2024B1371 BL20XU

金属-接着剤界面の引張試験中のマルチスケール CT 観察
Multi-Scale CT Observation of Metal-Adhesive Interface during Tensile Test

伊藤孝憲、齋藤憲男、稲葉雅之、宋哲昊、向井絵美、熊本隆
Takanori Itoh, Norio Saito, Masayuki Inaba, Chulho Song, Emi Mukai, Takashi Kumamoto

（株）日産アーク
NISSAN ARC, LTD.

近年、自動車の軽量化のために Al、CFRP などと鋼板との異種材接着接合は不可欠であり、特に軽量化可能な接着技術が注目されている。しかし、機械的接合に比べ、接着強度、耐久性、破壊メカニズムの評価、向上には多くの課題が残っている。そこで本研究では Al-接着剤の試験片を引張ながら放射光 X 線 CT によって異なるサイズスケールである μ-CT、nano-CT を用いることで破壊メカニズムを定性的に議論した。

キーワード： 接着、歪み、破壊モード、X 線イメージング、CT、μ-CT、nano-CT

背景と研究目的：

近年、自動車の軽量化のために Al（アルミニウム）、CFRP（Carbon Fiber Reinforced Plastics）などと鋼板との異種材接着接合は不可欠であり、特に軽量化可能な接着技術が注目されている。接着は従来のリベットや溶接の機械的接合に比べ、軽量化、応力分散への期待が高まっている。しかし、機械的接合に比べ、接着強度、耐久性、破壊メカニズムの評価、向上には多くの課題が残っている。特に破壊メカニズムを理解することは接着開発に最も重要な項目の一つであり、多くの検討がなされている。基本的な機械強度試験[1]、金属表面の評価として X 線光電子分光法(XPS: X-ray Photoelectron Spectroscopy) [2, 3]、二次イオン質量分析法(SIMS: Secondary Ion Mass Spectrometry) [2, 3]、全反射 FT-IR (ATR-FT-IR: Attenuated Total Reflection FT-IR) [4]、形態観察としては光学顕微鏡、レーザー顕微鏡、走査電子顕微鏡(SEM: Scanning Electron Microscopy)、透過電子顕微鏡(TEM: Transmission Electron Microscopy)[5]などが報告されている。最新の放射光 X 線による走査型透過 X 線顕微鏡(STXM: Scanning Transmission X-ray Microscopy)を用いた状態分析では劣化前後での元素の状態変化を議論している[6, 7]。しかし、これらは破壊中の評価、観測ではないために破壊メカニズムを議論するには限界がある。そこで破壊メカニズムを議論するために引張試験中での評価、観察が積極的に行われている。

例えばアコースティックエミッション（AE: Acoustic Emission）法を用いた解析と破断面の SEM による破壊メカニズムの議論[8]、また、光学顕微鏡、デジタルマイクロ顕微鏡を用いたデジタル画像相関（DIC: Digital Image Correlation）法により、引張試験時の歪み分布を議論し破壊メカニズムとの関連を見出している例もある[9]。サブミクロンの分解能を有するコンピューター断層撮影(CT: Computed Tomography)によって引張試験時の破壊メカニズム、特に破壊の起点に関して議論している[10]。更に近年、空間分解能が最も良い TEM を用いて *in-situ* で引張、接着破壊を考察している[11]。このように様々な手法によって破壊中の評価、観察することで破壊メカニズムを議論している。しかし、更に破壊メカニズムを理解するためには、高空間分解能、広視野での破壊中の評価、観察を行い、定性定量的な考察が必須となる。

そこで本研究では Al-接着剤の試験片を引張ながら放射光 X 線 CT によって異なるサイズスケールである μ-CT、nano-CT を用いることで破壊メカニズムを定性的に議論した。

実験：

図 1 に引張試験で利用した Al-Al 接着の試験片を示す。試験片の大きさは引張試験機に合わせた。Al は 6000 系、厚さ 0.8 mm、接着剤はエポキシ系構造材料用、複数のフィラーを含むものを用いた。フィラーとして炭酸カルシウム、水酸化アルミニウム、ウラストナイト、酸化カルシウ

ム、酸化チタン等が含まれていることがエネルギー分散型 X 線分析法(EDX: Energy Dispersive X-ray Spectroscopy)から確認された。接着層の厚さは約 50 μm であった。今後の *x*, *y*, *z* は図 1 の試験片に示す方向とする（*x*：X 線が当たる方向、*y*：X 線が当たる方向、引張る方向と垂直な方向、*z*：引張る方向）。

引張試験は 500NCT（DERBEN 製）を用いた。引張条件：0.2 mm/min、引張力：2 N、25 N、50 N、75 N、78 N（破壊直前）にて CT 観察を行った。CT 観測時は変位固定となるよう引張力を制御した。

放射光 X 線マルチスケール CT 観察は SPring-8, BL20XU（課題番号：2024B1371）にて実施した。本研究では X 線のエネルギーは 30 keV とした。(a)μ-CT は投影法で通常の CT 観察と同様な測定法である。voxel サイズ:0.49 μm、視野:φ1 mm×高さ 1 mm、観察枚数：1800 枚、観察時間：約 5 分である。(b) nano-CT は結像法であり、コンデンサーを使って X 線を集光し、フレネルゾーンプレートを用いて、像を拡大している。拡大した像はフレネルゾーンプレートの 160 m 後方の X 線カメラによって観察している。voxel サイズ：32 nm、視野：φ60 μm ×高さ 48 μm、観察枚数：1800 枚、測定時間：約 20 分となる。測定は μ-CT で接着層を確認し、その後 nano-CT により μ-CT で確認した接着層の座標を指定し観察した。図 2 にそのセッティングを示す。透過像は Convolution back projection 法により 3 次元のスライス画像セットに再構成した[13]。

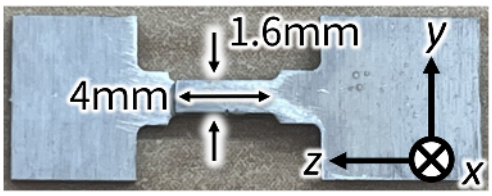

Fig. 1 Test piece for CT observation during tensile test.

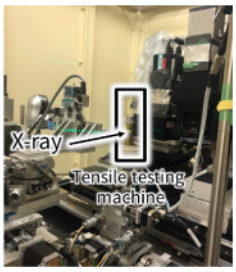

Fig. 2 Geometry of CT during tensile test.

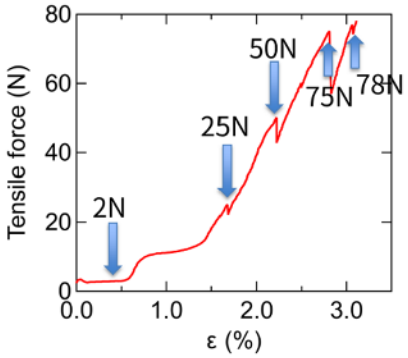

Fig. 3 Tensile test results during CT observation. Tensile force at CT observation: 2 N, 25 N, 50 N, 75 N, 78 N (Just before break).

結果および考察：

図 3 に CT 観測中における引張試験結果を示す。2 N、25 N、50 N、75 N、78 N（破断直前）で μ-CT、nano-CT の観察を行った。各引張力での CT 観察には 1 時間程度を要し、応力緩和が確認された。応力緩和の影響を抑えるために各引張力に到達して 10 分緩和させてから CT 観察を実施した。図 4 に 2 N 時の(a) μ-CT と(b) nano-CT の試験片に対して x-y 面の CT 像を示す。試験片を固定するために 2 N かけて観察を実施した。μ-CT 像、nano-CT 像から接着層は均一に約 50 μm の厚さで、様々な形のフィラーを含み、数 10 μm のボイドが存在することが観測された。nano-CT 像からは 100 nm 程度の空間分解能で観察できていることが分かる。詳細に観察するとボイドは球状であり、ボイドの周りには微小フィラーが存在していないことが分かる。また、微小フィラーが板状に見えており、試験片が若干動いてアーティファクトが観測された可能性がある。しかし、1 μm 以上のフィラーではエポキシの界面が明瞭に観察され、フィラーの移動など

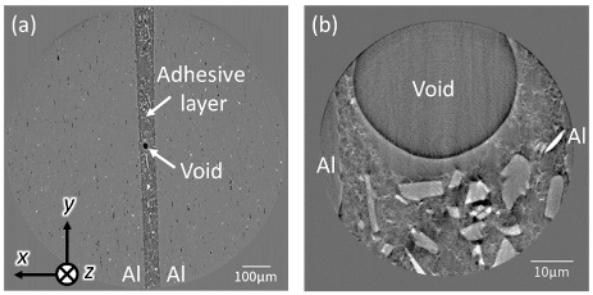

Fig. 4 μ-CT image and (b) nano-CT image at a tensile force: 2 N.

が正確に評価できることが分かる。

図 5 に 75 N 時の nano-CT 像を示す。(a)、(b)は 1 つの試験片のそれぞれ別の部分を観察している。75 N ではじめて明瞭なクラックが確認された。今回、クラックは基本的にはフィラー-エポキシ界面が起点となることが分かった。

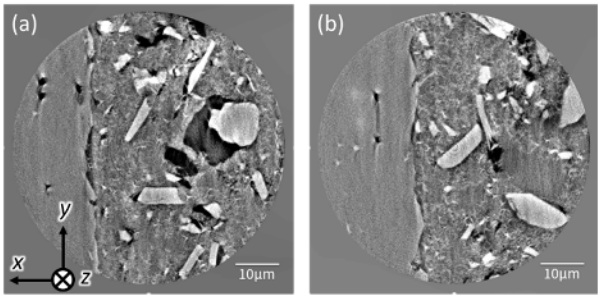

Fig. 5 nano-CT images at 75 N (a) and (b) are of different parts of the test piece.

今後の課題：

今後は nano-CT によるフィラー形状と EDX の組成の結果からどのようなフィラー付近でクラックが発生しやすいかを考察する。

謝辞：

本測定に関しての議論、引張試験機の借用に関しては九州大学大学院工学研究院、戸田裕之教授、藤原比呂助教、測定に関しては SPring-8/JASRI の竹内晃久博士、上椙真之博士、佐田侑樹博士に大変お世話になりました。ここに感謝の意を表します。

参考文献：

[1] 田中延宜：溶接学会誌、**70**, 34 (2001).
[2] 山辺秀敏：表面技術、**45**, 250 (1994).
[3] M. Gettings *et al.,　J. Mater. Sci.,* **12**, 2511 (1977).
[4] 岩森ら：真空、**39**, 7 (1995).
[5] Y. Shiraki *et al., Macromolecules* **56**, 2429 (2023).
[6] 苑ら：第 62 回接着学会年次大会 (2024).
[7] Y. Hiroyuki *et al., Commun Mater.* **2**, 63 (2021).
[8] 駒井ら：日本機械学会論文集（A 編）、**528**, 1792 (1990).
[9] 門川ら：あいち産業科学技術総合センター研究報告、20 (2020).
[10] M. Kimura *et al., Sci. Rep.,* **9**, 19300 (2019).
[11] H. Shin *et al., Discover Mechanical Engineering* **3**, 11 (2024).
[12] A. Takeuchi *et al., Microscopy and Microanalysis*, **24**, (2018) 106.
[13] Kak, A. C. and Slaney, M., Principles of Computerized Tomographic Imaging, Society of Industrial and Applied Mathematics, (2001).