日本防水工法開発協議会 2021年研究開発者交流会

接着技術

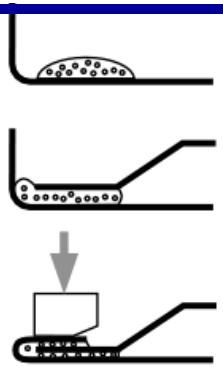
東京工業大学　科学技術創成研究院
産総研　接着・界面現象研究ラボ

佐藤千明

発表内容

1. 構造用接着技術の現状と課題
2. 最近の動向
3. 産総研　接着・界面現象ラボについて
4. 接着技術コンソーシアム

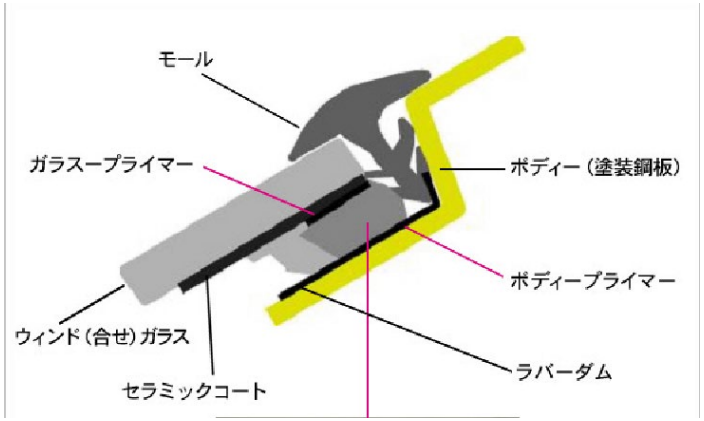
構造用接着技術の現状と課題



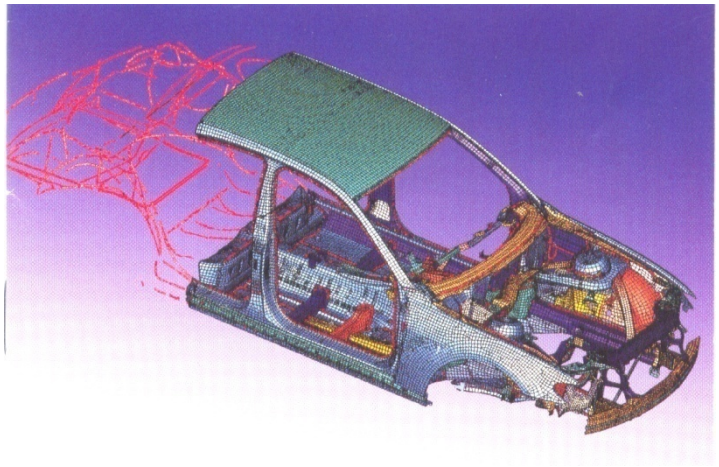
ヘミング接合プロセス
（接着剤中のガラスビーズにより仮止を行う）

ヘミングにより接合したドアパネル

・ドアパネルのヘミング



・ダイレクトグレージング



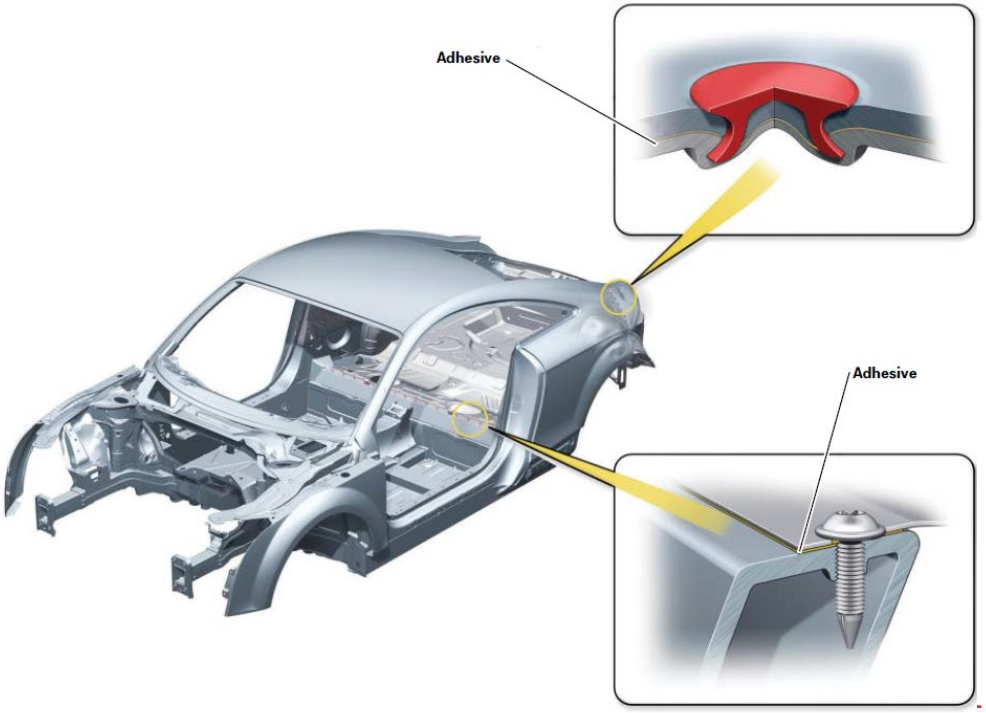
・ウエルドボンディング

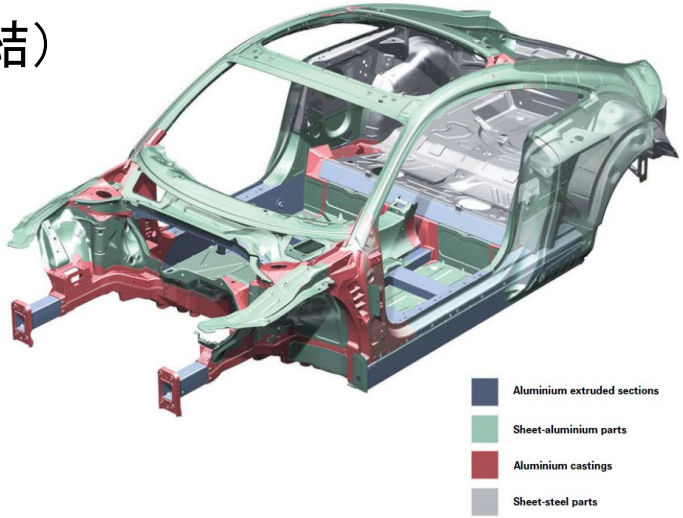
構造用接着技術の現状と課題

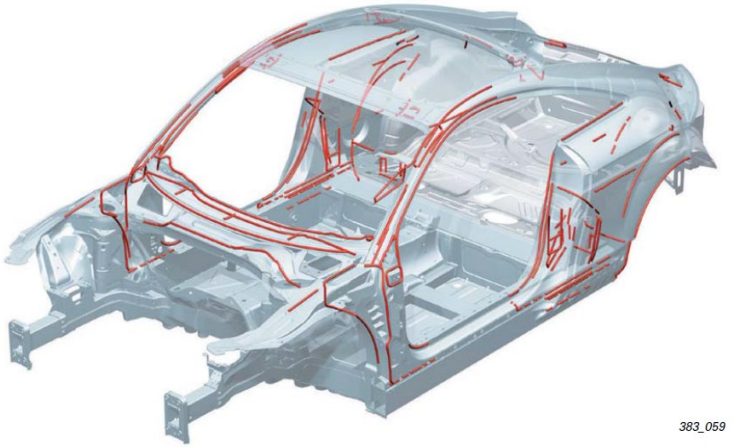
【アルミ車体】

・Audi TT （アルミ＋スチール，接着＋機械的締結）

異種材料の組み合わせで車体を構成.
日本メーカーは研究段階（研究済み?）.







（By courtesy of Audi corporation）

構造用接着技術の現状と課題

【CFRP車体】

・アルミシャシ＋CFRPボディ（接着構造）．アルミシャシ・CFRPボディ間もほぼ接着．

・タクトタイム２分で接合．接着剤の速硬化技術，塗工・ハンドリング技術に長けている．

・耐久性を保証する技術的バックグラウンドを有する．

・車体価格が4万ユーロ程度と，極めて廉価(i3ショック)．炭素繊維の内製化と高い生産性による．

日本はキャッチアップが必要！

・BMWホームページより

発表内容

1. 構造用接着技術の現状と課題
2. 最近の動向
3. 産総研　接着・界面現象ラボについて
4. 接着技術コンソーシアム

2. 最近の動向

【日本とドイツの違い】

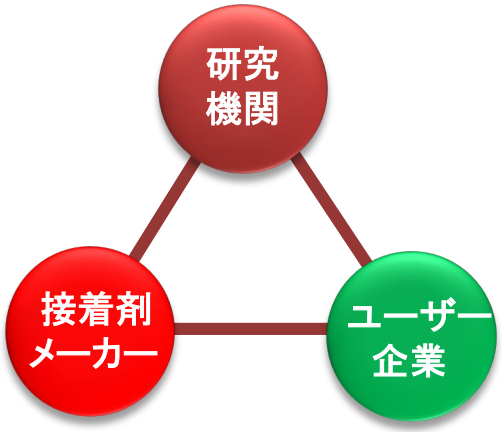
・ドイツでは，接着技術に関して，国を挙げて取り組んでいる.

・主なアクターはフラウンホーファー研，自動車会社，接着剤メーカー．この鉄の三角形が技術開発を加速している.

・例えば，フラウンホーファー研（IFAM）では接着関連のテーマに350人の職員が割り当てられている.

・日本では，自動車メーカーが個別に対応している．接着剤メーカーは単に追従している.

・大学の研究者も減っている．科研費も付かない．拠点も無い.



ドイツ鉄のトライアングル

我が国に必要なコラボレーション（案）

我が国にも，接着研究の拠点が必要！

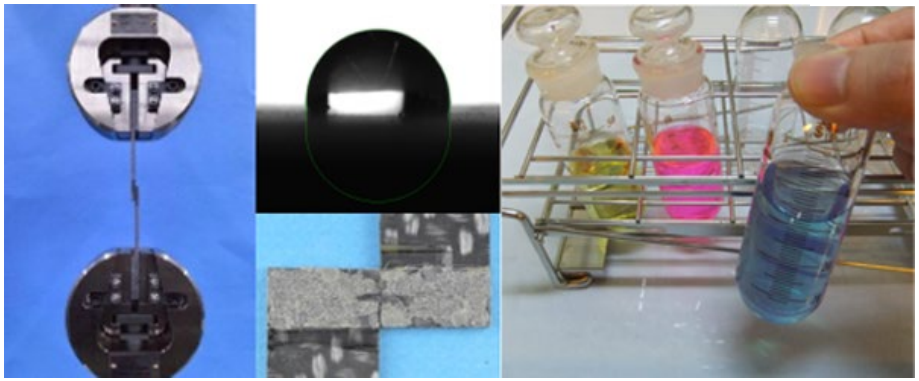
発表内容

1. 構造用接着技術の現状と課題
2. 最近の動向
3. 産総研　接着・界面現象ラボについて
4. 接着技術コンソーシアム

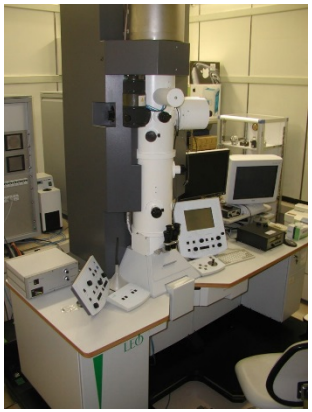
産総研　接着・界面現象研究ラボ（AIRL）

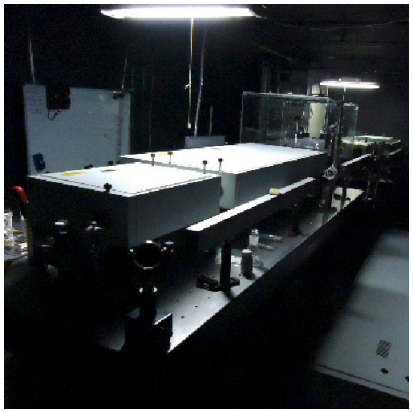
Study on Adhesive Bonding for Dissimilar Materials

The National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
Adhesion and Interfacial Phenomena Research Laboratory (AIRL)



産総研　接着・界面現象研究ラボ





設備 (FETEM and SFG)

実施体制

研究目的

ユーザーの抱える問題

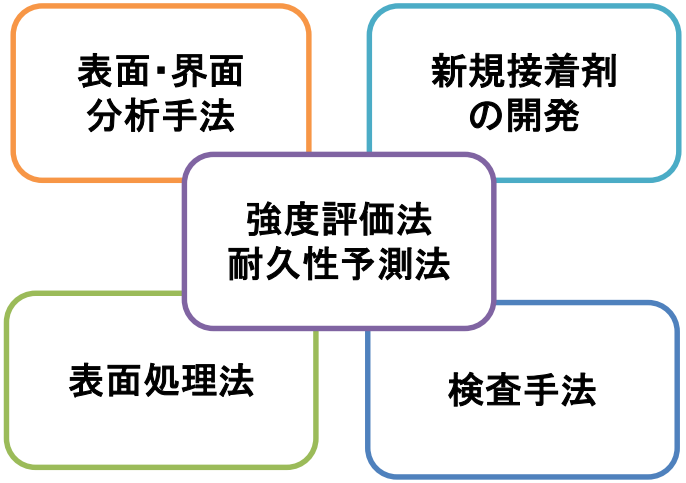
・接着の基本的メカニズムが不明瞭.

・接合部の評価・設計手法が未整備.

・検査手法が未整備.

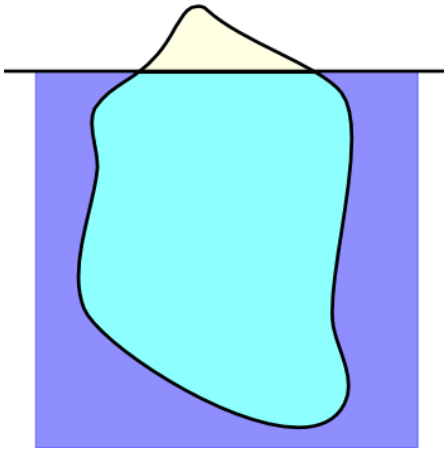
・耐久性・信頼性が保障できない.

・熱応力・電食の問題が厳しい.



必要とされる基盤技術

接着剤開発は氷山の一部！



接着剤開発は全体のほんの一部

研究開発の目的

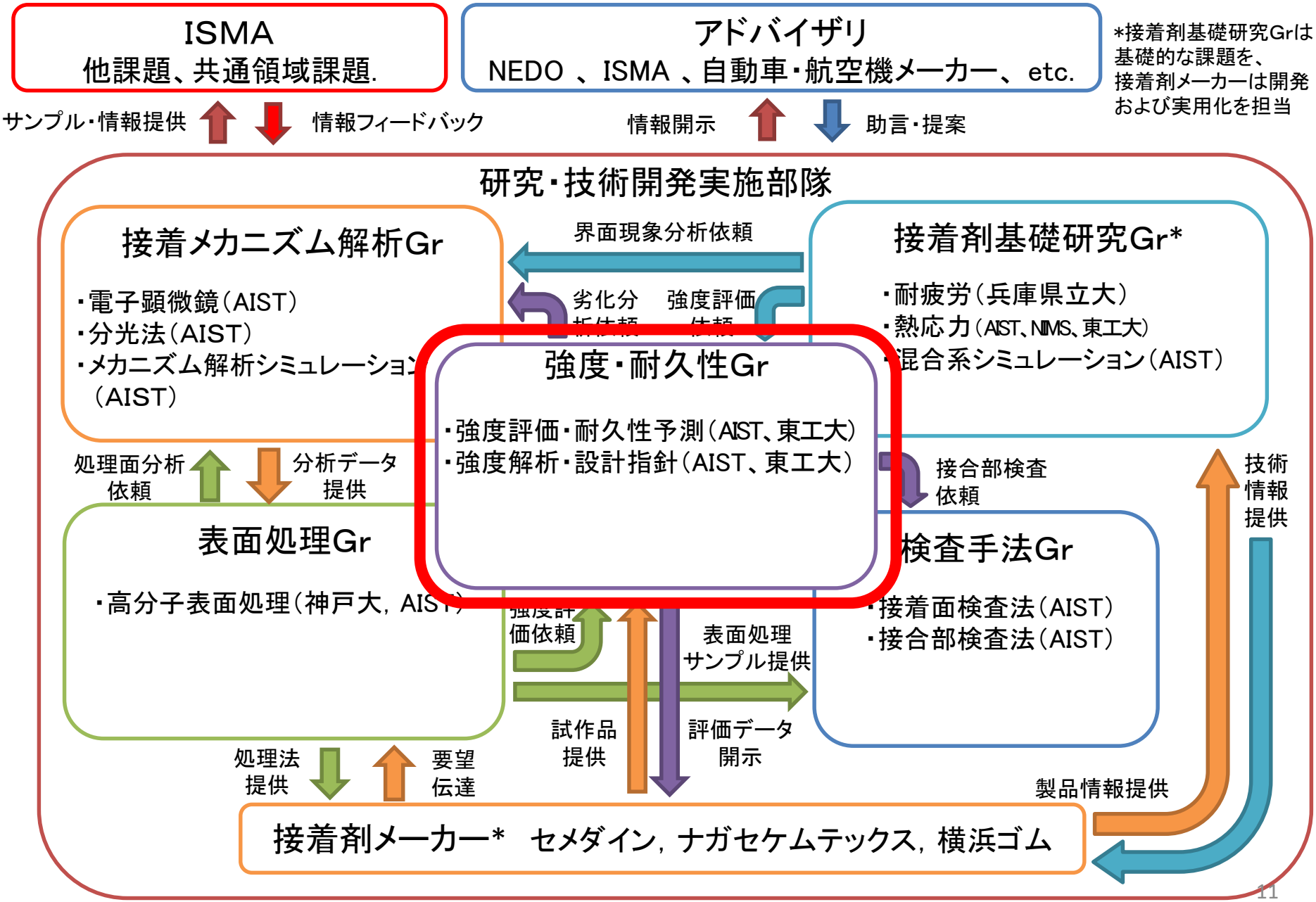
・マルチマテリアル車体用の異材接合が可能な**高信頼性接着技術**を確立する.

このため,

・必要とされる基盤技術に対して，多角的に研究開発を実施する.

・29年度から本研究を開始！

本研究の実施内容および体制

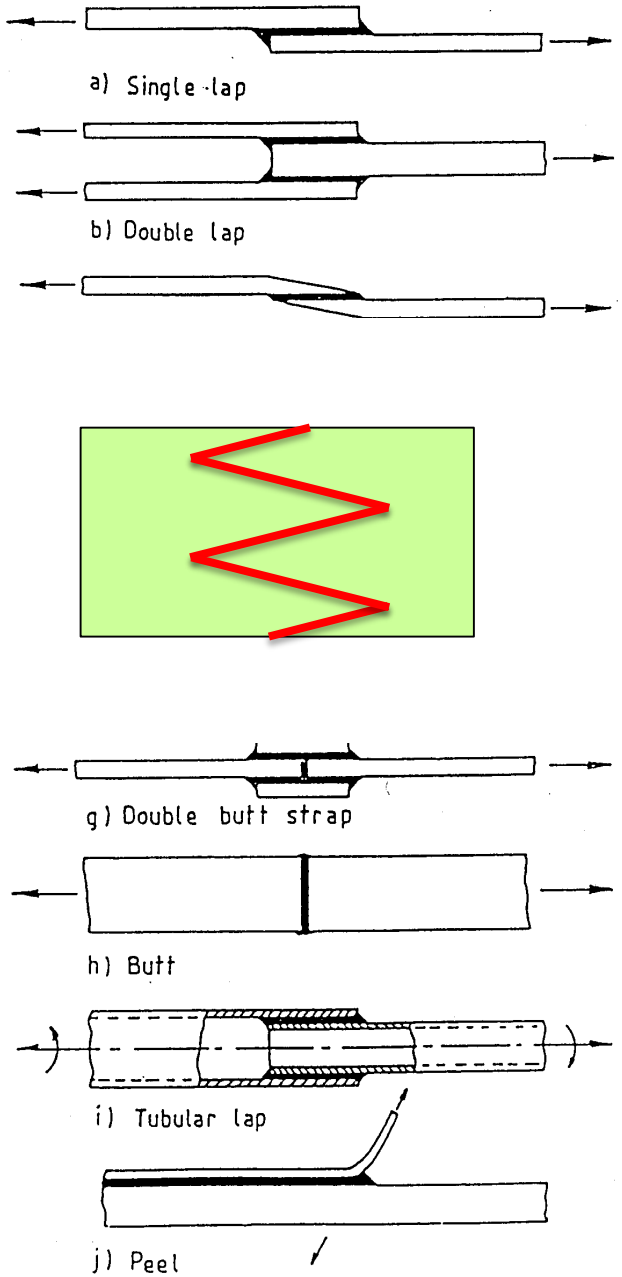


接合部の力学

- 接着接合部(継手)の強度は接着面積のみならず，継手の形状にも依存する.

- 簡単に思いつく
単純重ね合わせ継手(Single Lap Joint)は悪い接合例.

- 接着剤層の応力分布を平滑化し，応力集中を軽減する必要がある.



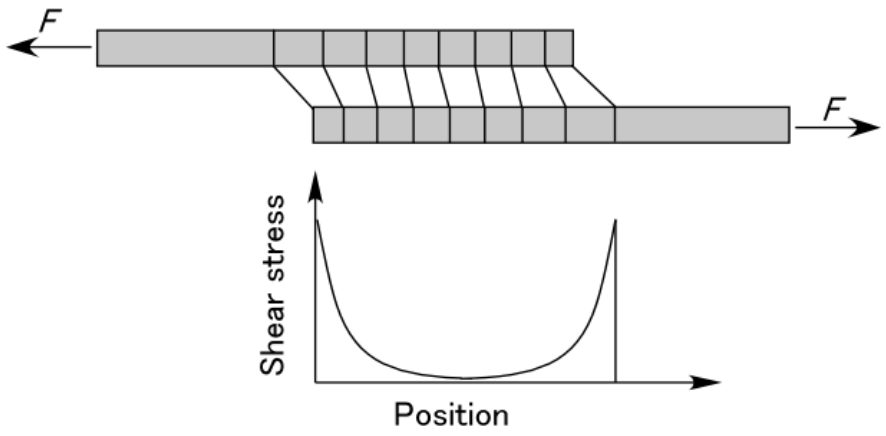
1
2
2.5
4
3.8
0.7
3
3
—
—

各種の試験片形状

接合部の力学

引張せん断
（シアラグモデル，Volkersenモデル）

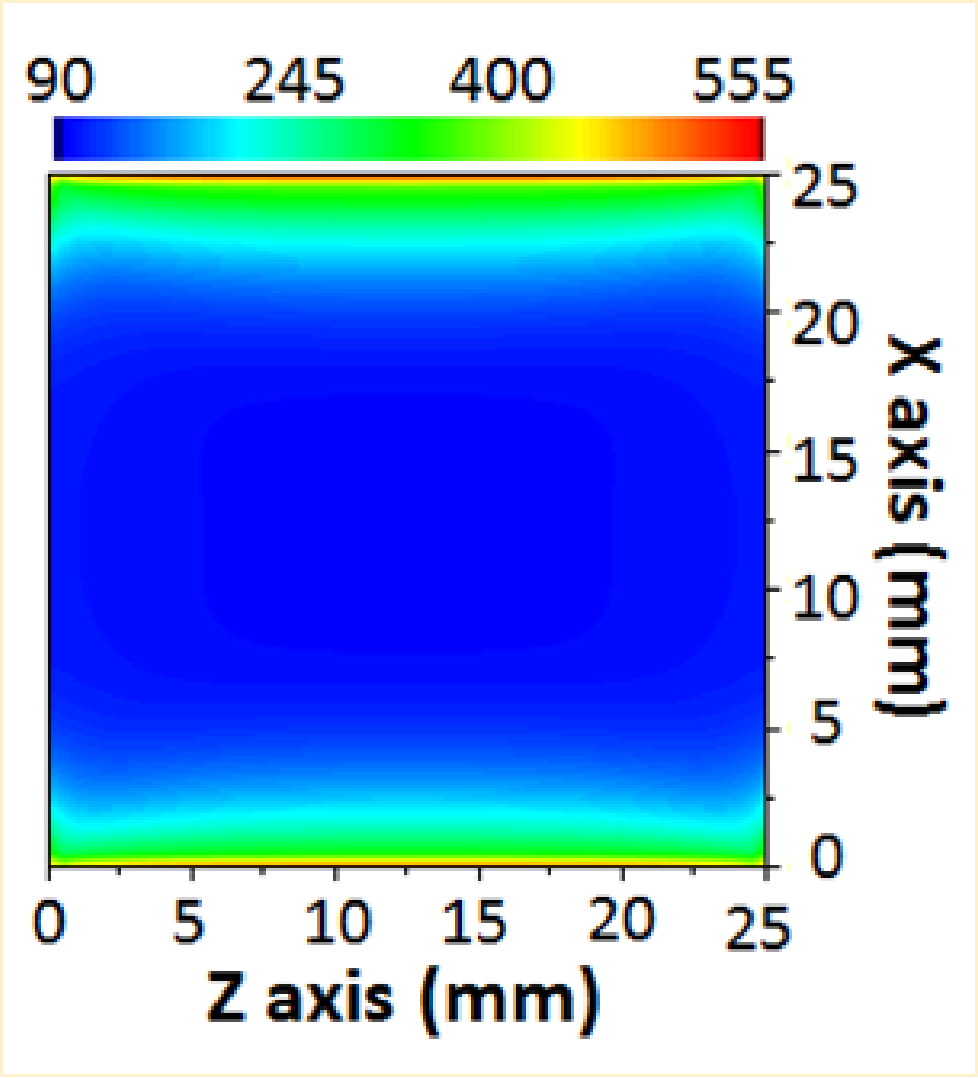
- 接着剤のみならず，被着体も弾性体と見なすと，その変形を無視できなくなる．
- 被着体の伸び変形を考慮すると，接着剤層中に均一なせん断応力の生じない，いわゆる“せん断遅れ（シアラグ）”が生じる．
- シアラグが生じると，接着剤層端部にせん断応力集中が生じる．



単純重ね合わせ継手の変形

CAE? Strain in Adhesive

Visualization of Static and Dynamic Stress distribution through mechanoluminescenc



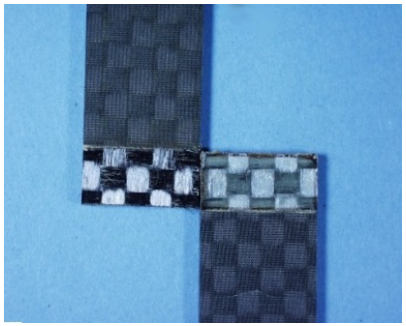
Collaboration with Prof. C. Sato (Tokyo Institute of T

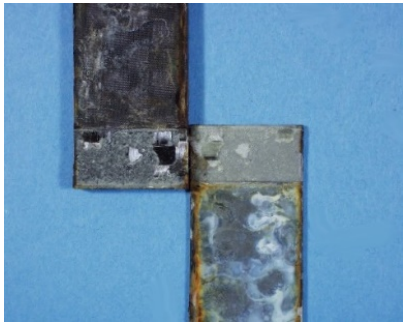
Huge opportunity for ML sensing and sophistication of CAE!

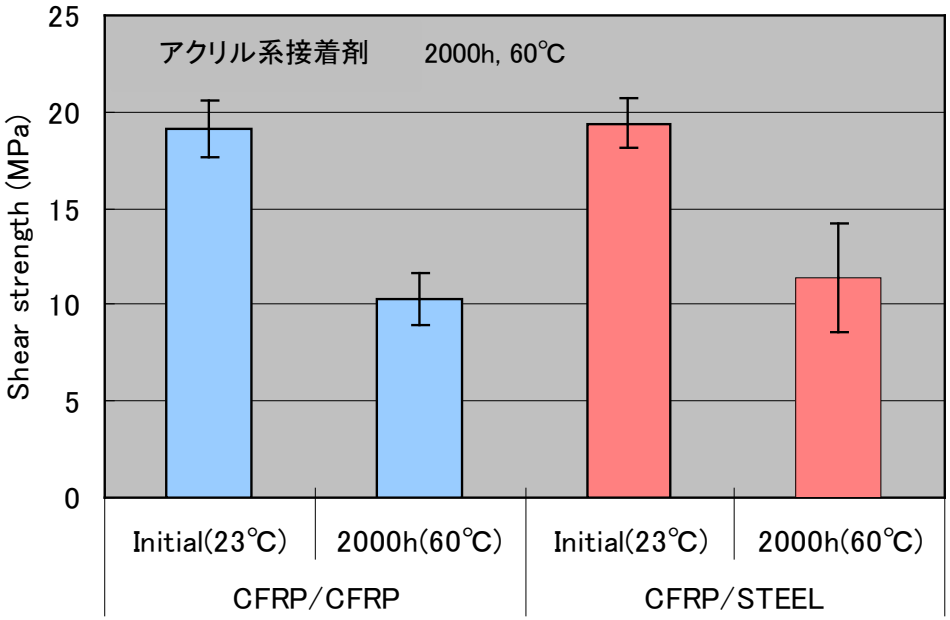
湿熱の問題

接着接合部は水分と温度に弱い

温水に漬けるだけで強度半減！



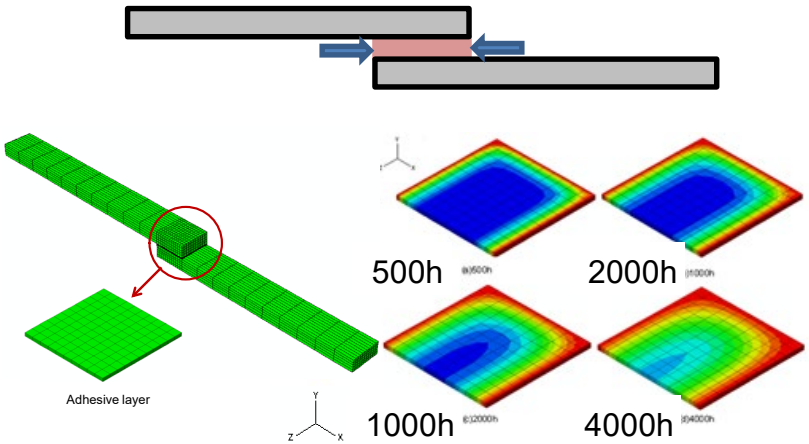




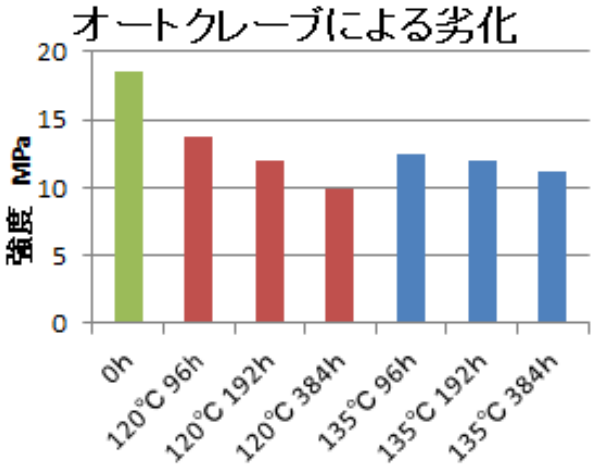
温水曝露による強度低下例

湿熱の問題

そもそも強度低下を正しく測れているのか？加速は可能か？



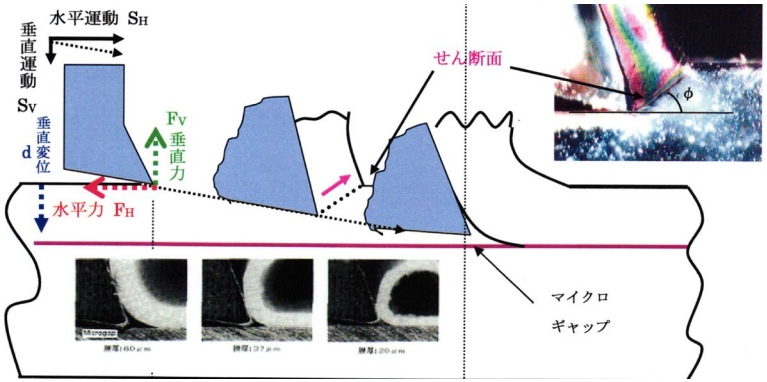
試験片への水分の浸透



～135℃
水蒸気雰囲気

滅菌用オートクレーブ

加速試験の一例



Units: kN/m=N/mm

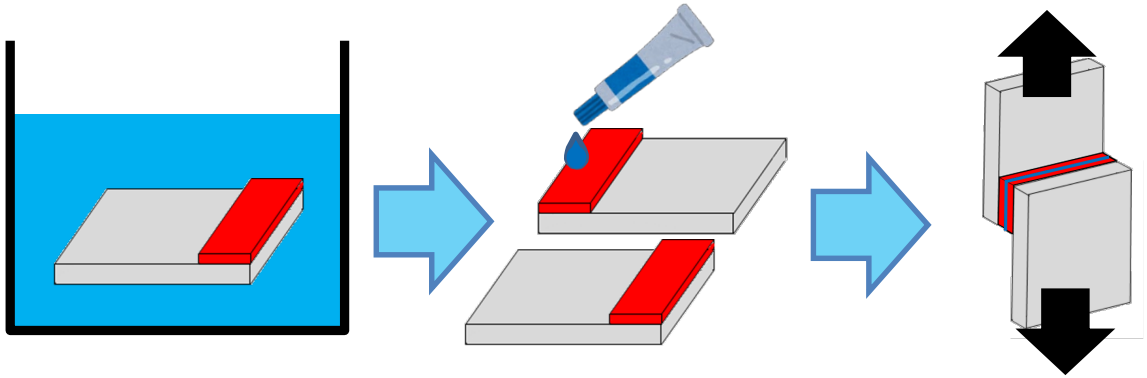
試験片	非曝露	40℃ 1日	80℃ 1日	備考
1	0.7	0.2	0.2	厚さ 200μm
2	0.6	0.2	0.2	厚さ20～50μm

SICASによる評価（鋼・メルカプタン硬化エポキシ）

湿熱の問題

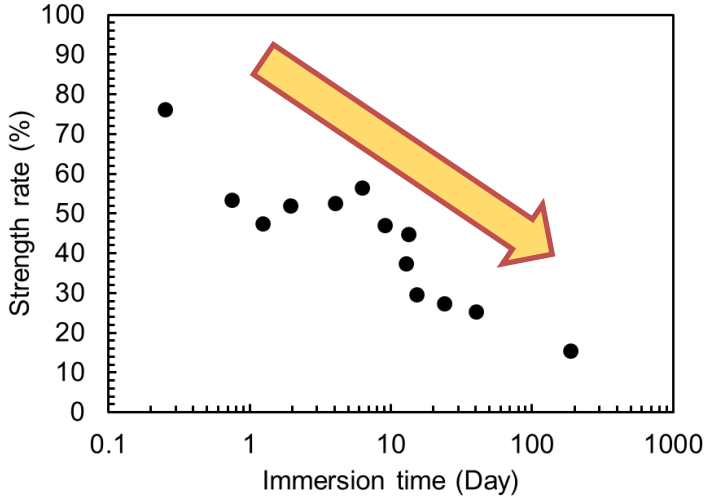
最近はこんなやり方をしています.（再貼り合わせ試験）

1. Immerse in water　2. Apply secondary adhesive　3. Tensile test

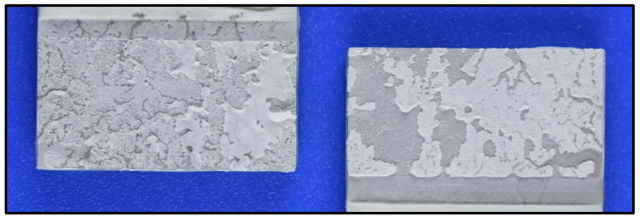


・Test type: Single lap shear (secondary bonding) ・Specimen type: Open-faced
・Primary adhesive: Epoxy (w/ CTBN) ・Curing condition：170˚C for 20 min. ・Thickness: 0.1 mm
・Secondary adhesive: Cyanoacrylates ・Thickness: 0 mm
・Adherend: Aluminum alloy (A6061) ・Surface treatment: Sandblasting
・Water temperature: 87˚C
・Tensile speed: 1 mm/min.

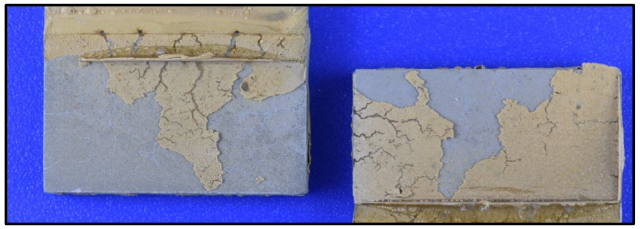
Test condition



Lap shear test results (after immersed in 87˚C water)



Fracture Surface (after immersed for **one day**)

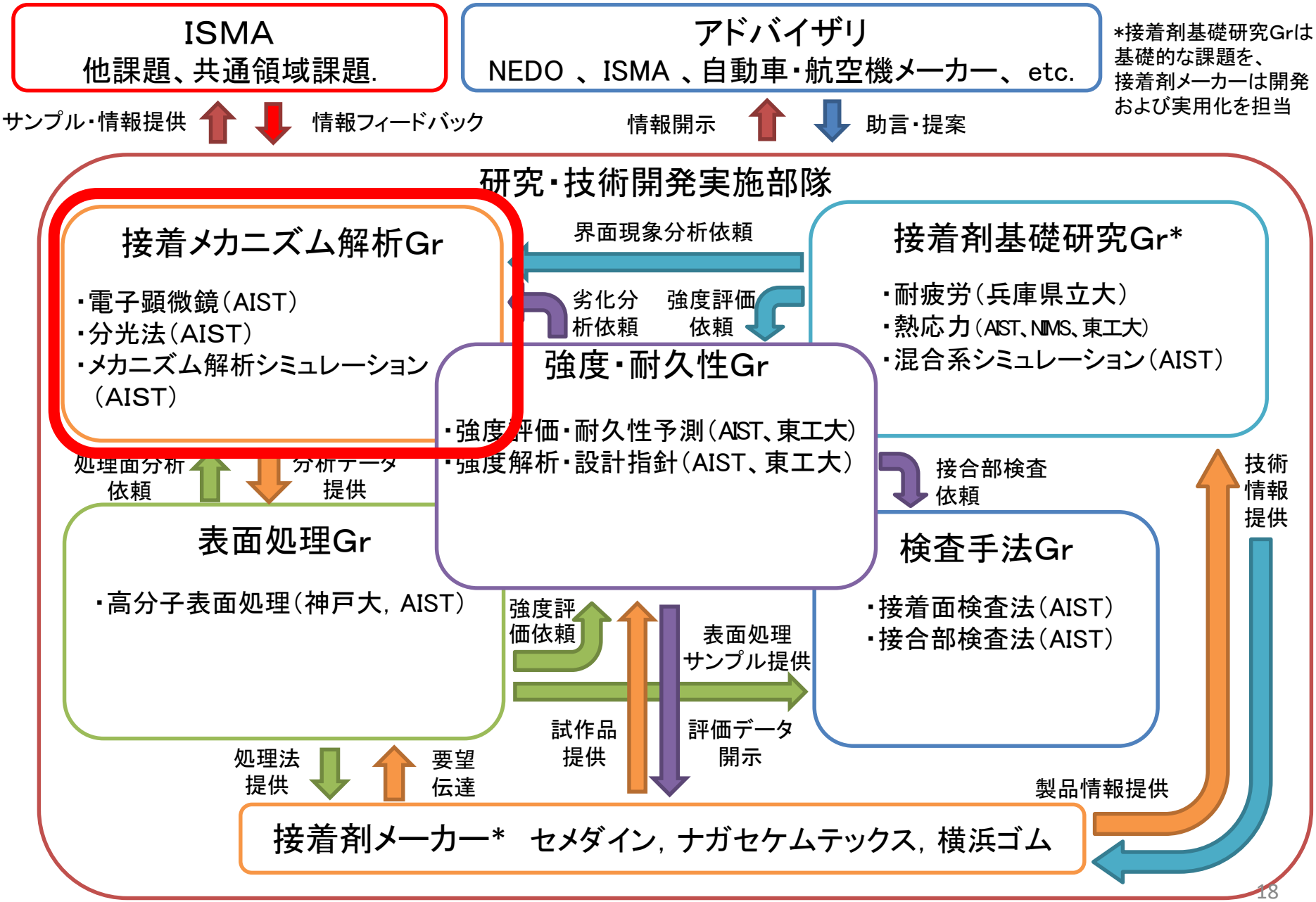


Fracture Surface (after immersed **over 100 days**)

1st International Conference on Advanced Jointing Process (AJP2019), Azores (Portugal),（2019.10）にて発表

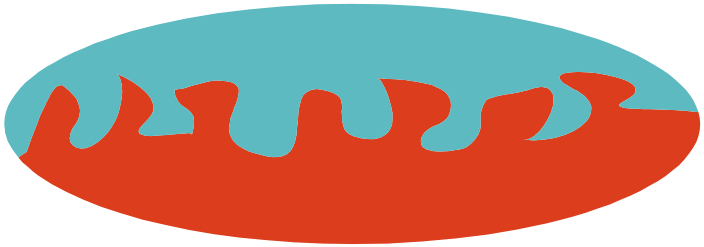
"Degradation of Epoxy Adhesive containing Dicyandiamide and Carboxyl-Terminated Butadiene Acrylonitrile Rubber due to Water with Open-faced Specimens", K. Shimamoto et al., The Journal of Adhesionにて続報を報告

本研究の実施内容および体制

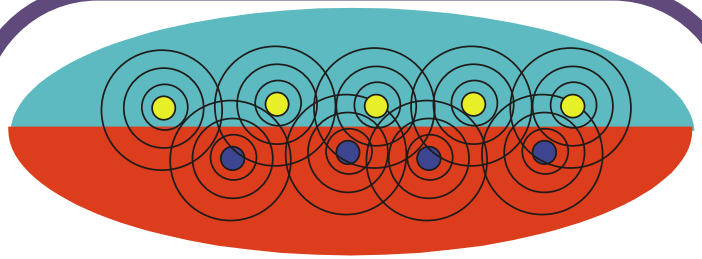


接着メカニズムの解明（1）

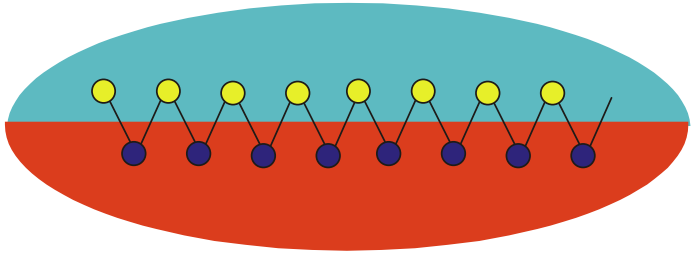
【接着のメカニズム（仮説）】



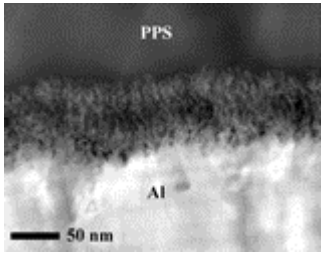
アンカー効果

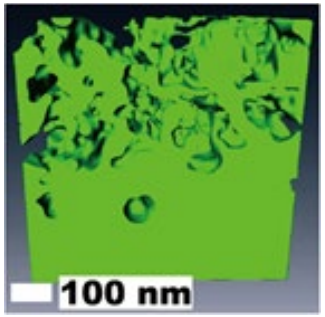


分子間力



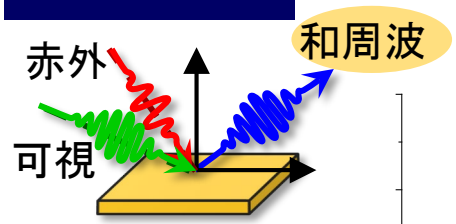
化学結合

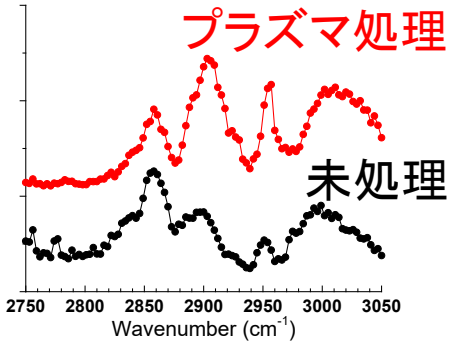




透過型電子顕微鏡トモグラフィー

SFG分光

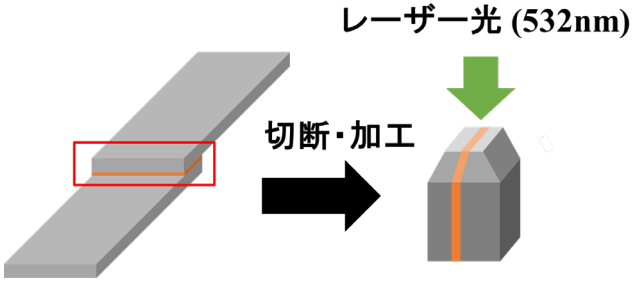




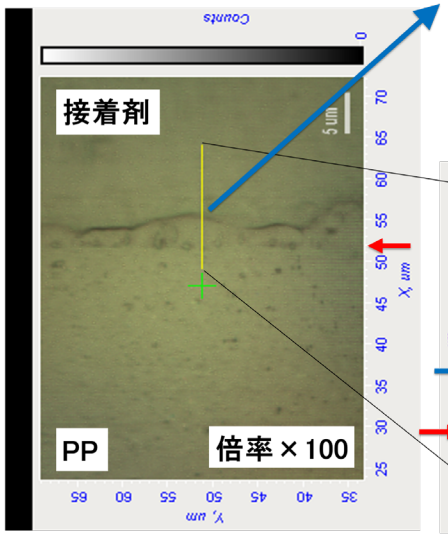
SFG（和周波分光）

ポリプロピレン接着サンプルの接着界面プロファイル

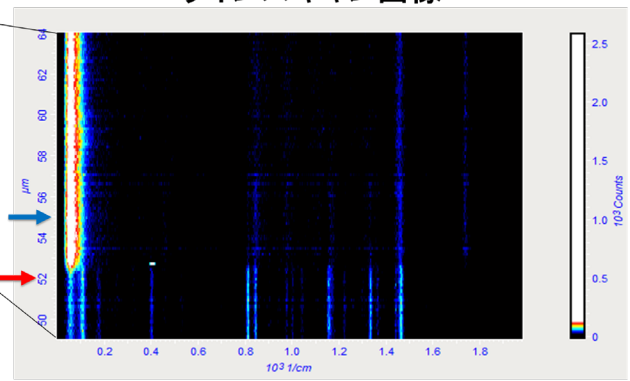
異種材料の接着・接合界面をサブミクロンで追跡



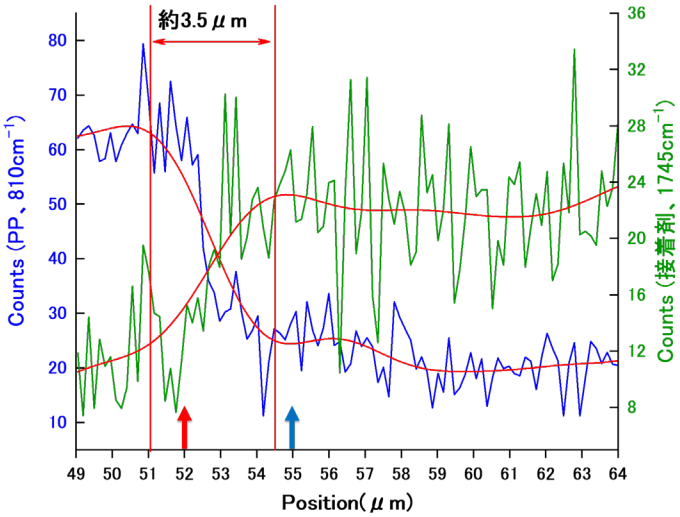
表面画像(黄線が測定ライン)



ラインスキャン画像

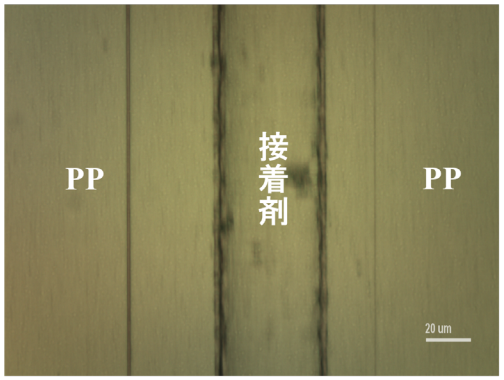


接着界面　PPの拡散終了点

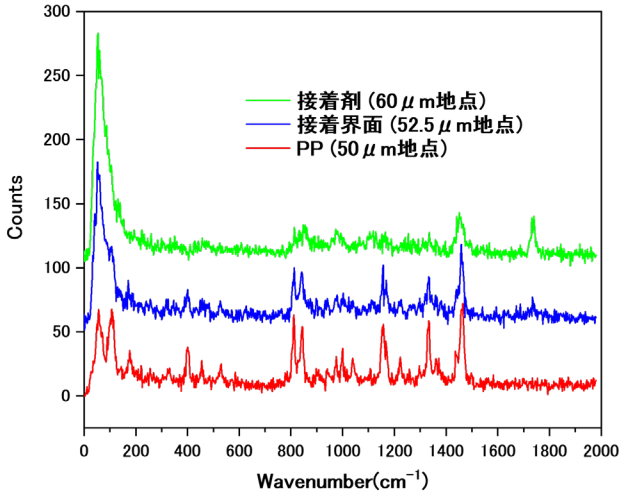


ピーク強度変化(倍率x100)

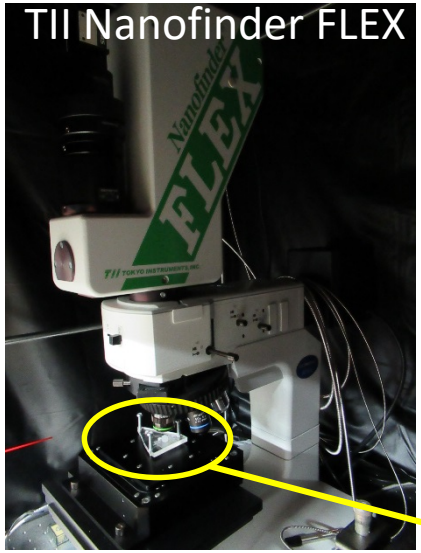
※赤のカーブはFFTフィルタでスムージングしたカーブ

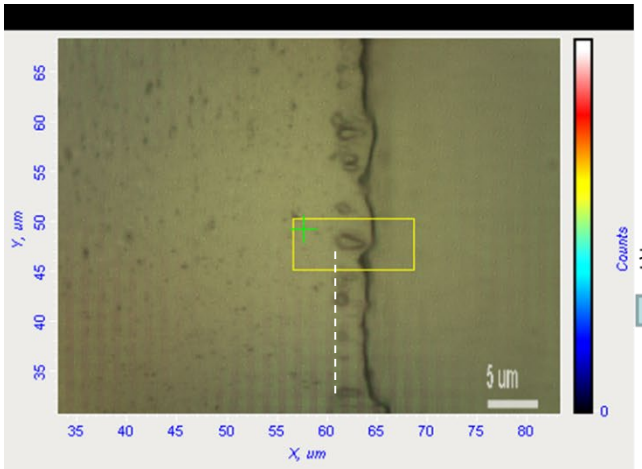


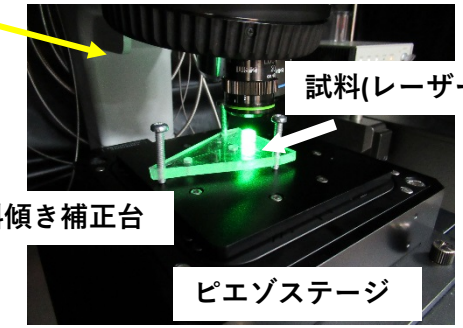
接着サンプル断面の表面画像(×20)

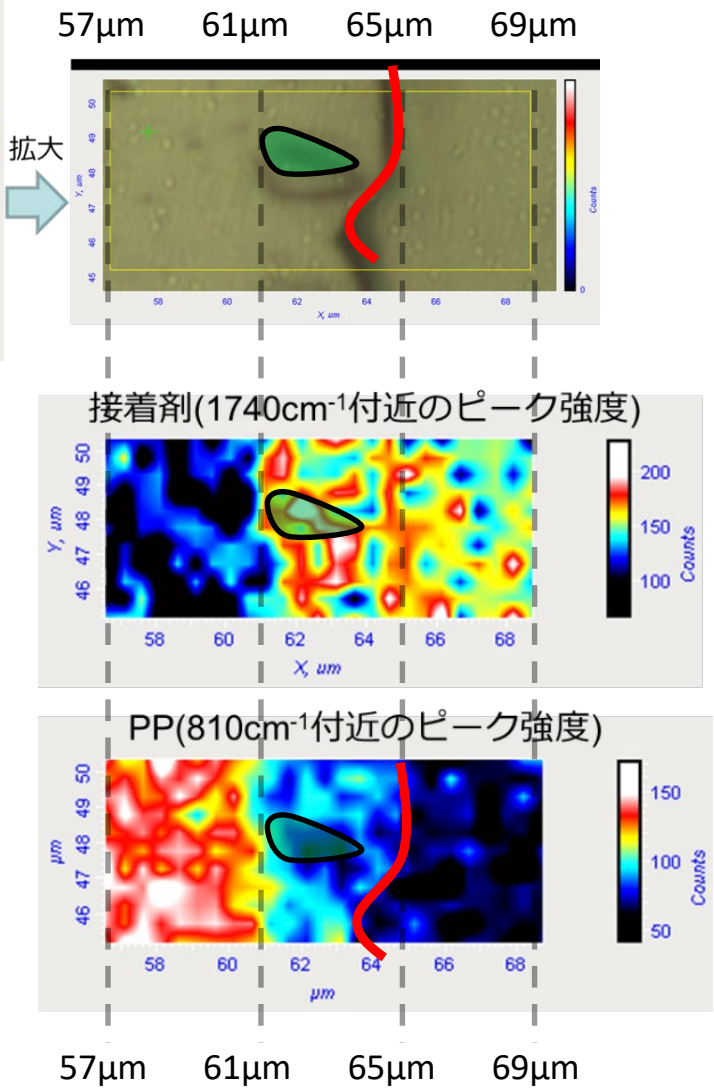


ポリプロピレン接着サンプルの接着界面（2次元マッピング）









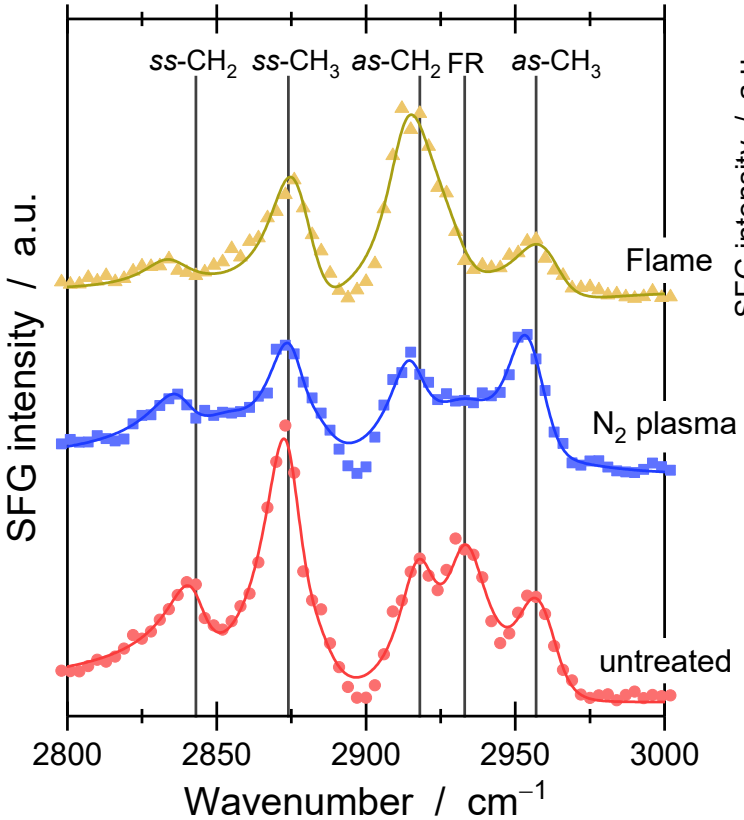
※マッピングはXY共に0.5µm間隔

界面での接着剤／樹脂複合領域での偏析、反応、構造変化を光の回折限界（＞300 nm）で分析

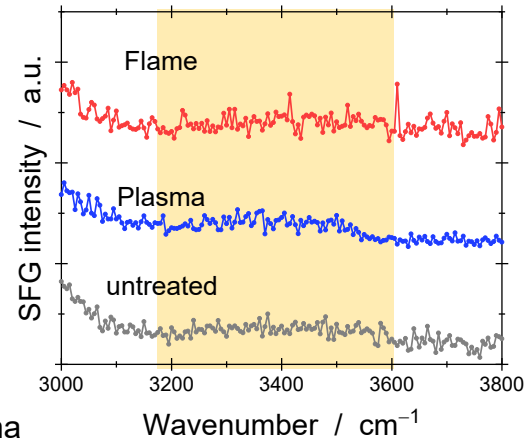
ポリプロピレン表面処理効果の検証

The results of SFG measurements

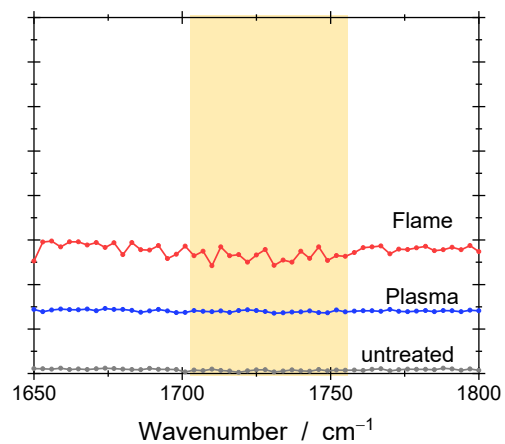
—C-H stretching region —

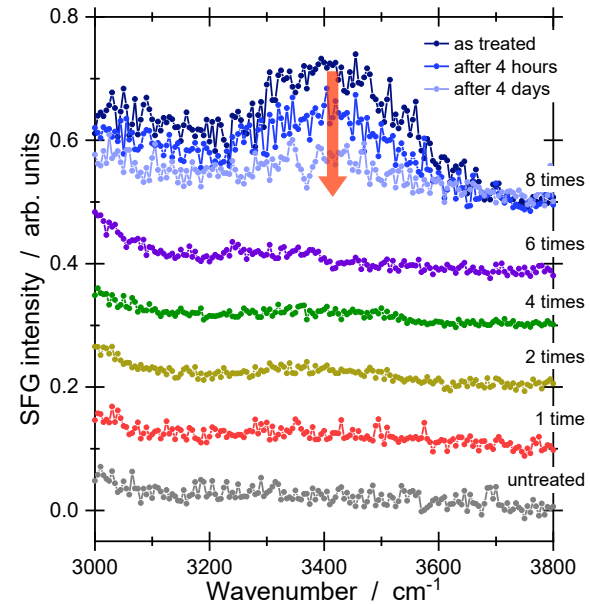


O-H stretching region



C=O stretching region



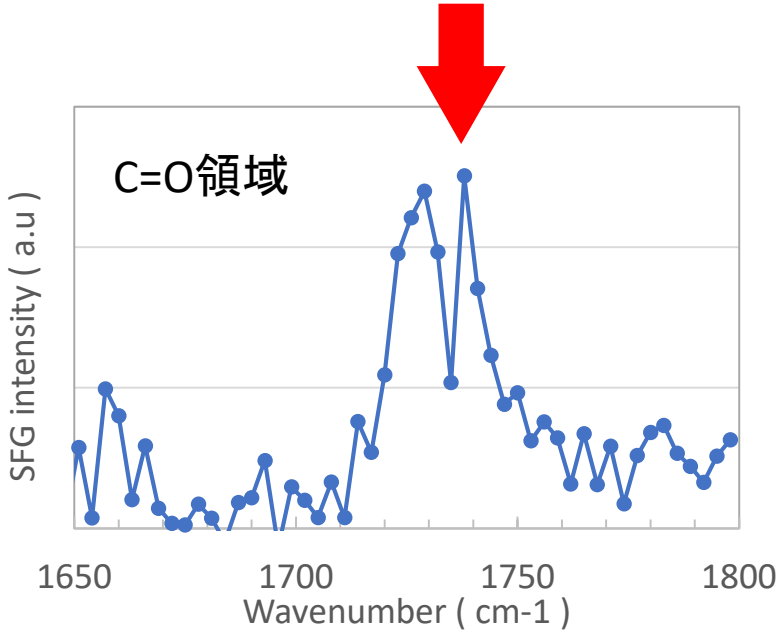


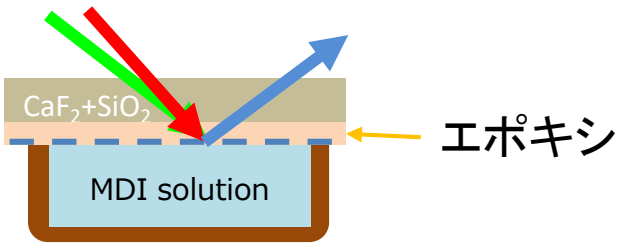
プラズマ処理（8往復処理）直後からのOHの時間変化追跡

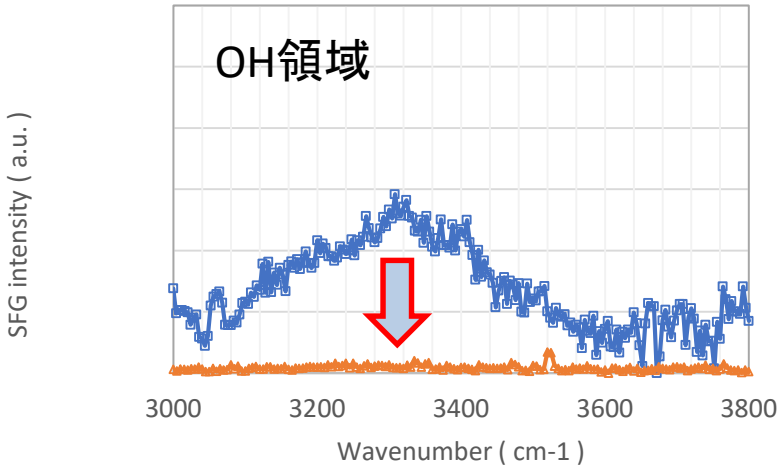
表面処理により、PP分子配向、構成要素は変化するが、C=OやOHはバルク内部に存在しており、最表面には現れていない

エポキシ樹脂／プライマー界面でのウレタン結合形成過程

エポキシ界面でのウレタン結合形成

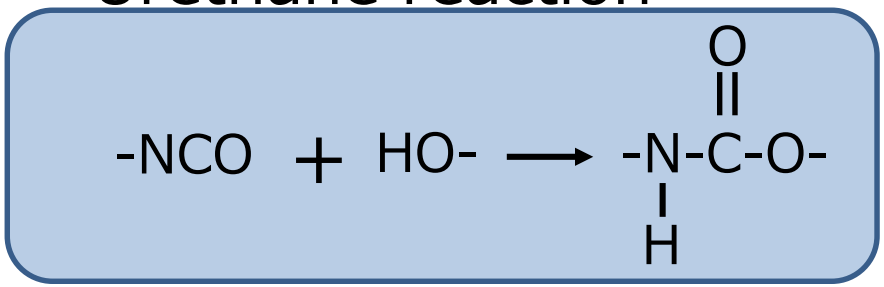






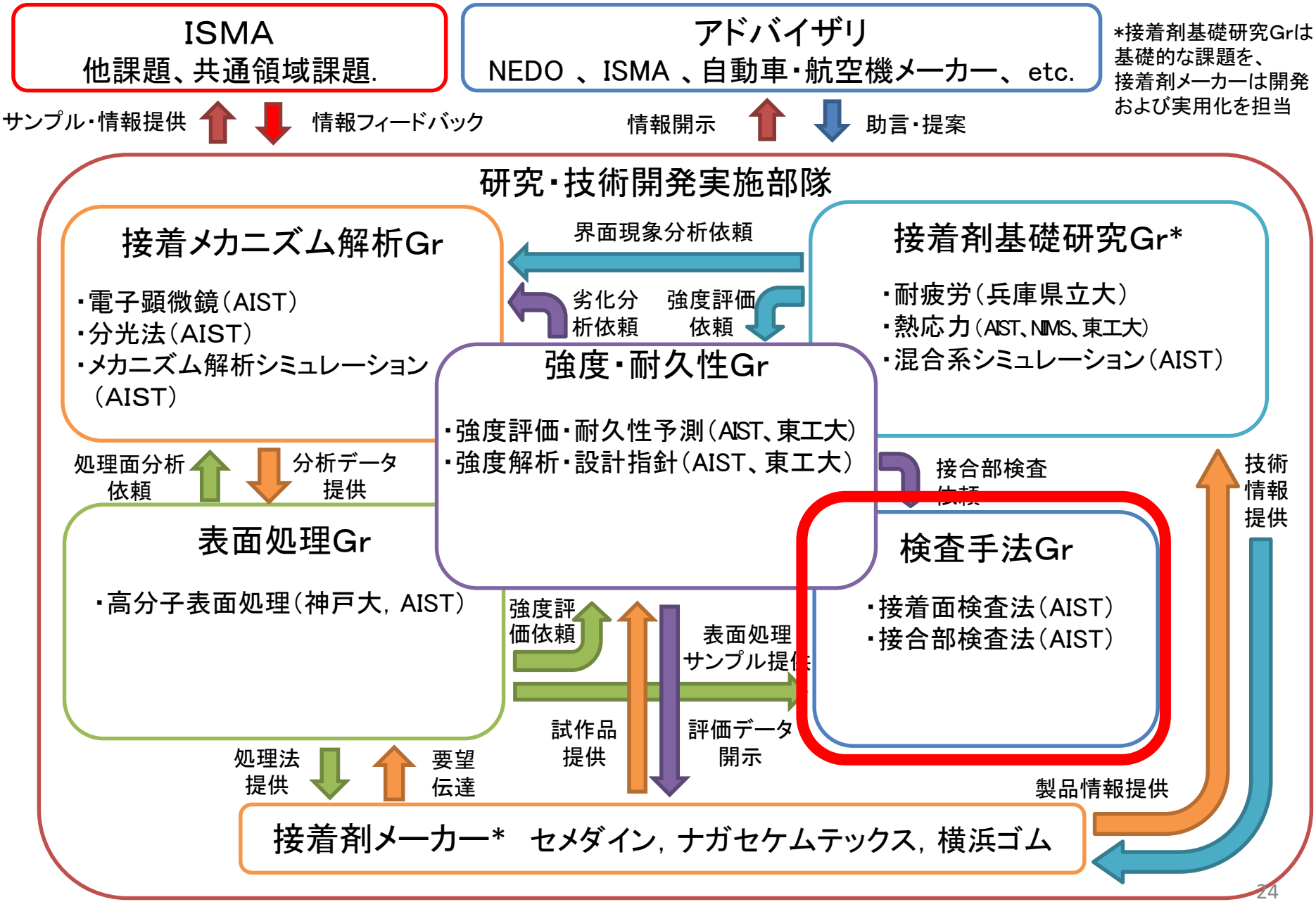
エポキシ表面の水酸基が反応により消失

Urethane reaction



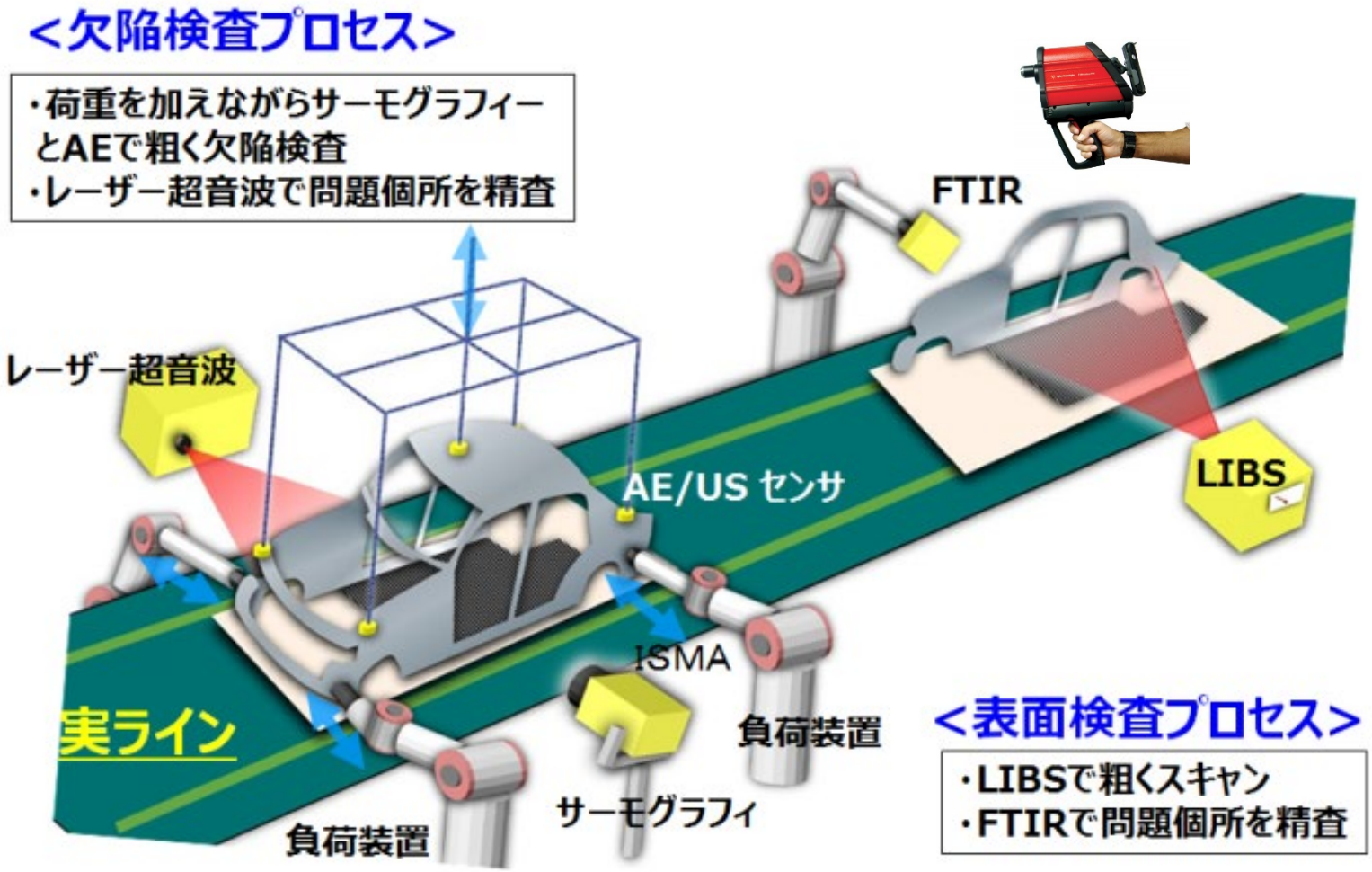
埋もれた界面や固液界面での分子挙動、反応、構造変化をその場、非破壊追跡

本研究の実施内容および体制



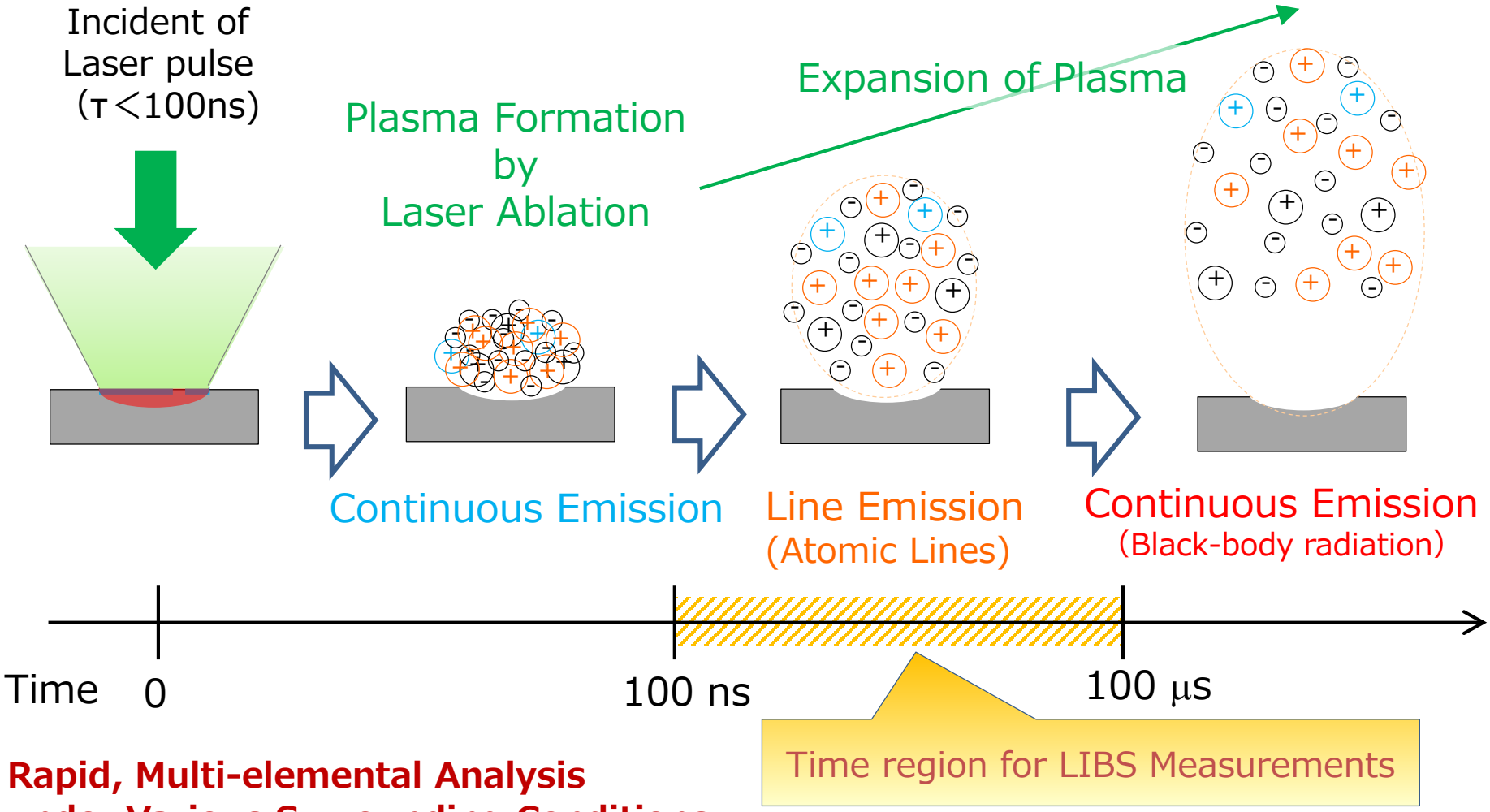
検査技術（1）

【出口イメージ】



接着前・後検査技術

LIBS : Laser Induced Breakdown Spectroscopy



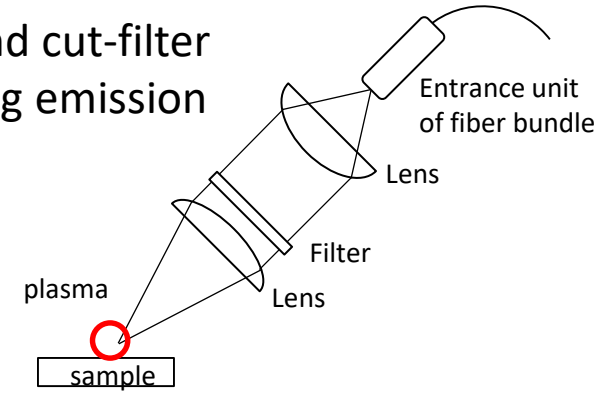
Rapid, Multi-elemental Analysis under Various Surrounding Conditions (including in Air), without Special Sample Preparation

Suitable Method for On-Line Inspection at Production Line

Experimental Setup for LIBS (Updated)

Laser pulse
(λ=266 nm, τ= 8 ns, 9 mJ/pulse)

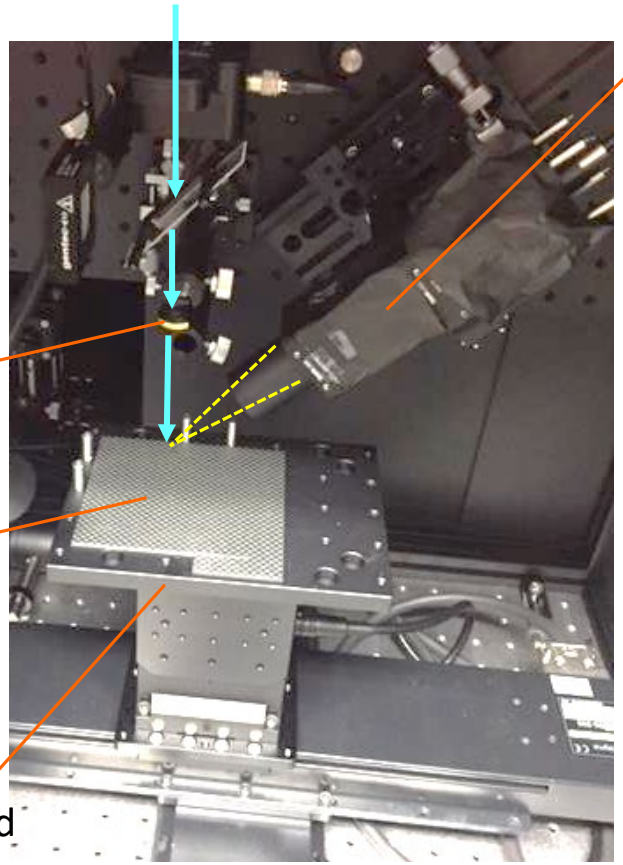
Lens pair and cut-filter
for collecting emission



Objective Lens
(f=100 mm)

Sample

X-Y-Z motorized
stage



Characteristics:

- **Sample is set onto X-Y-Z motorized stage.**
- **ns UV Laser pulse is used for plasma ignition**
- **Plasma emission is collected in off-axis layout**
- **Collected emission is analyzed by using two-channel parallel spectrograph.**

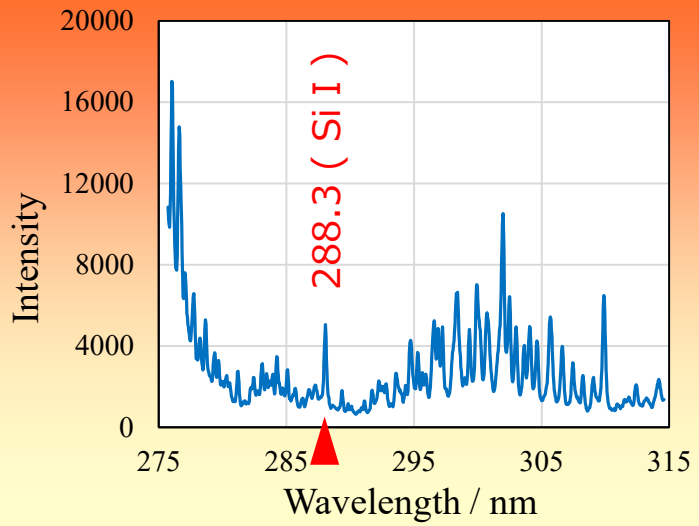
  (Two spectra in different wavelength regions can be obtained simultaneously)

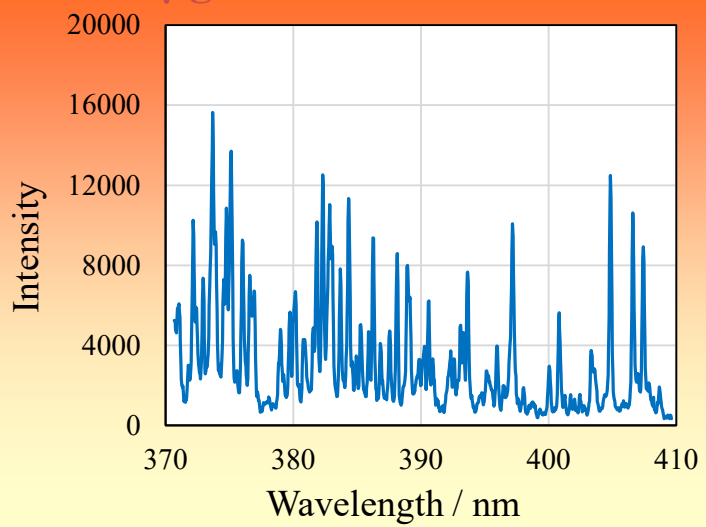
27

Detection of Si contamination on steel

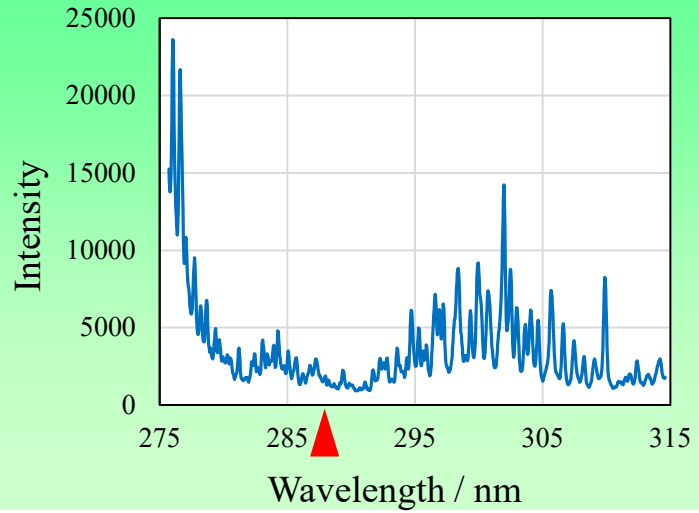
LIBS Spectra of Steel (SPCC) with/without Silicone Oil

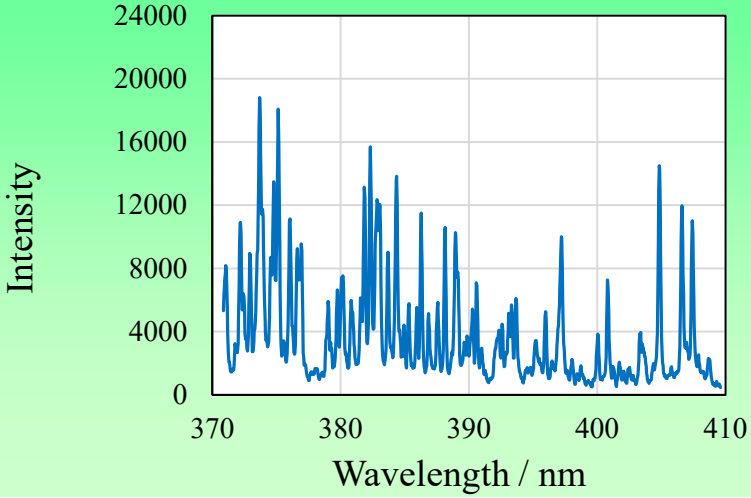
Silicone oil adhesion : 1.9 μg/cm^2





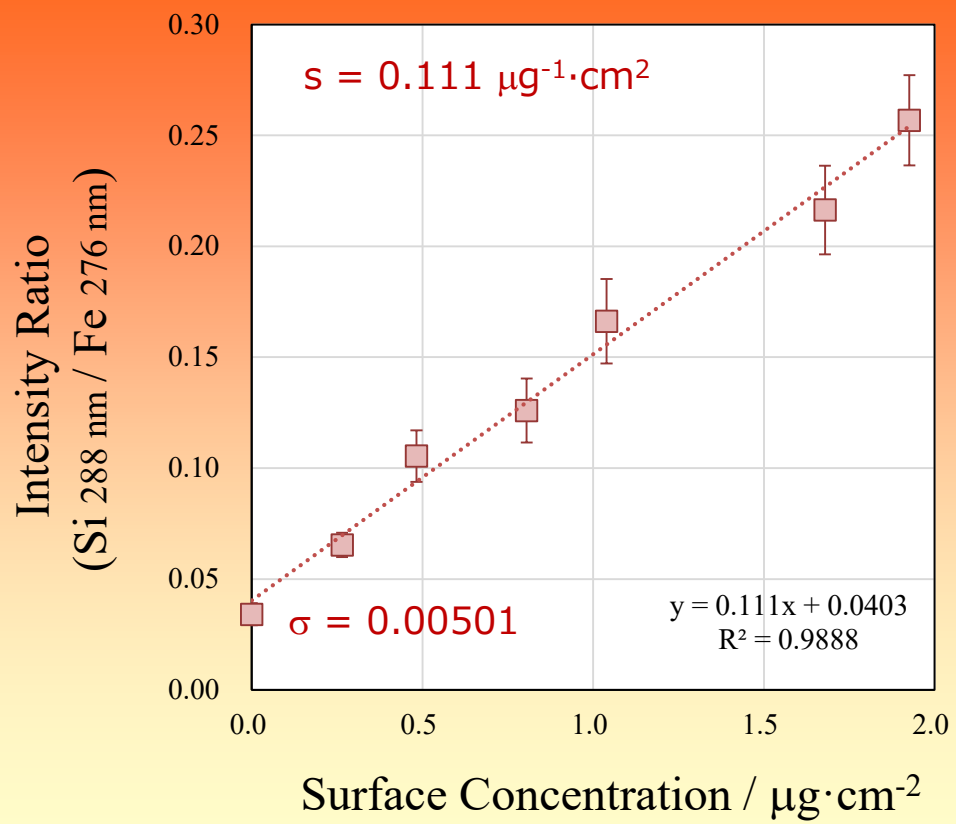
No silicone oil adhesion





Detection of Si contamination on steel

Calibration Curve for evaluating LOD



$$\text{LOD} = \frac{3\sigma}{s} = 0.135\ \mu g \cdot cm^{-2}$$

σ : deviation of the background signal
(Standard deviation for the Si signal from Si contained in Al alloy substrate)
S : the slope of the fitted line

LOD: Silicone oil on Al alloy (A6061)

$$\text{LOD} = \frac{3\sigma}{s} = 0.529\ \mu g \cdot cm^{-2}$$

$s = 0.0363\ \mu g^{-1} \cdot cm^{2}$
$\sigma = 0.0641$

発表内容

1. 構造用接着技術の現状と課題
2. 最近の動向
3. 産総研　接着・界面現象ラボについて
4. 接着技術コンソーシアム

接着・接合技術コンソーシアム(T-CAB)の目的と実施内容

海外では，接着技術に関する研究機関(フラウンホーファIFAMなど)が技術開発に大きな貢献を果たしている．一方，我が国ではこのような取り組みで大きな遅れを取っている．このため，国際競争力強化と、接着剤が関わる多岐にわたる技術開発の統合を見据えた接着拠点の整備を行う目的で、2015年に「接着・界面現象研究ラボ」を産総研に設置した．さらに、産学官の分野の垣根を超えた連携構築の場として、2016年10月1日に本コンソーシアムを設立した．

本コンソーシアムの主な事業

接着・接合技術に関する①情報の収集及び会員間での共有、②講演会、見学、ワークショップの開催等による情報提供・技術交流、③共同研究立案、④広報・啓蒙活動(展示会出展、ニュースレターの配信)、⑤国際標準化、⑥接着拠点の整備

お問い合わせ

国立研究開発法人 産業技術総合研究所
材料・化学領域 接着・界面現象研究ラボ
〒305-8568
茨城県つくば市東1－1－1 つくば中央第5
電話:029-861-4437
Eメール:airl-ml@aist.go.jp
Web:https://unit.aist.go.jp/nmri/airl/

終わりに

・ヨーロッパ，特にドイツでは，接着技術に関して国ぐるみで取り組んでいる.

・近年では熱応力緩和に関する研究が実施されている.

・協調領域のマルチラテラルな研究体制が整っている.

・日本でも，同様の取り組みが始まった.