

令和元年6月10日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04287

研究課題名(和文) 導電性DLCを組み込式プローブとするFRP接着界面剥離の電磁非破壊評価

研究課題名(英文) Electromagnetic nondestructive evaluation of FRP adhesive interface debonding by using conductive DLC as built-in type probe

研究代表者

高木 敏行 (Takagi, Toshiyuki)

東北大学・流体科学研究所・教授

研究者番号：20197065

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,200,000円

研究成果の概要(和文)：強磁性元素であるコバルトをナノクラスタ化して分散させたダイヤモンドライクカーボン(Co-DLC)を繊維強化プラスチック(FRP)の接着界面に導入してインジケータとし、Co-DLCの渦電流信号の変化を電磁非破壊評価試験の一つである渦電流探傷試験(ECT)により計測することで、FRP接着界面の非破壊評価を可能とした。ECTプローブがCo-DLCより10ミリメートル離れていてもCo-DLCに生じた損傷を十分に検出できることを明らかにした。Co-DLCを導入することで接着強度は18%低下したが、接着接合の非破壊評価を可能とする手法として本手法は実現可能性が期待できる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

軽量かつ高強度・高剛性で、化学的にも安定であるFRPを接合して構造部材に利用しようとする例が増えているが、応力の分散や軽量化という点で優れる接着接合は保全の難しさから敬遠され、力学的に非合理的な機械接合を採用することが多かった。本研究の成果により接着接合面の損傷評価が可能となることで接着接合を採用する判断ができるようになり、大型構造物のさらなる軽量化と設計の合理化を図ることができるようになる。一方、導電性DLCはセンサとしての機能が注目され研究が進められていたが、本研究成果のように非破壊評価に利用するアイデアはこれまでなかった。本研究成果によりDLCを用いた保全技術の新しい展開が期待される。

研究成果の概要(英文)：Diamond-like carbon in which cobalt, which is a ferromagnetic element, is dispersed in nano clusters is introduced into the adhesive bonding interface of fiber reinforced plastic (FRP). By measuring the change of eddy current signals of Co-DLC on bonding interface with eddy current testing (ECT), which is one of electromagnetic nondestructive evaluation methods, nondestructive evaluation of the failure generated in the FRP adhesive bonding interface is enabled. It was revealed that even if the ECT probe is 10 mm away from Co-DLC, the damage caused to Co-DLC can be sufficiently detected. Although the adhesive strength decreased by 18% by introducing Co-DLC, the feasibility of this method is expected as a method that enables nondestructive evaluation of adhesive bonding.

研究分野：電磁非破壊評価

キーワード：導電性ダイヤモンドライクカーボン 繊維強化プラスチック 渦電流探傷試験 接着接合 電磁非破壊評価 磁性ナノ粒子 多層構造 保全

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

ガラス繊維や炭素繊維を強化繊維とするプラスチック系複合材料(FRP)は、軽量で高強度・高剛性、かつ化学的安定性に優れることから、アルミ合金や鉄鋼に代わる構造材料として高い注目を集めている。FRP は単体で用いられることは少なく、異種材料や他の FRP と接合されたマルチマテリアルとして利用されることが多い。FRP の接合は、FRP の長所である軽量性を活かすためにファスナ等を用いる機械接合ではなく接着接合で行われる方が好ましいとされる。接着剤の物性や被着材の構造に問題がない場合、接着接合の破壊は接着剤/被着体の界面剥離、あるいは接着剤そのものの凝集破壊によって生じる。凝集破壊は設計値に従った破壊であるのに対し、界面剥離は設計値よりも低い応力で起こる破壊であるため、界面剥離の早期検出は接着接合を用いる構造体の品質保証にとって重要となる。接着部における界面剥離は、微小な剥離が発生した後に徐々に進展し、やがて破壊を引き起こすため、初期の微小な剥離を検出する手法が求められている。しかしながら、接合後の接着界面には探傷プローブが直接アクセスできないために効果的な検査方法は未だ確立されておらず、そのために接着接合を用いた FRP マルチマテリアル構造物の強度保証が困難とされ、接着接合の利用が敬遠されているのが現状である。

FRP の接着部の損傷をモニタリングする手法として、接着部に予め FBG センサと光ファイバを組み込んでおき、外部から光と弾性波を積極的に与え、光の反射信号を解析して剥離損傷を特定する方法が考案されている(Yamada S., et al., SAMPE, 2008)。しかし、接着層の厚さがおよそ 100 マイクロメートルであるのに対し、最新の細径 FBG センサであっても直径は 52 マイクロメートルであるため、これを組み込むことで生じる接着部や FRP そのものの強度低下が問題となる。またこの方法では損傷部の位置やサイズの特定制も困難である。

2. 研究の目的

上記の問題を克服するべく、研究代表者は金属含有導電性ダイヤモンドライクカーボン薄膜 (Me-DLC) を接着界面損傷のインジケータとする渦電流探傷法による非破壊評価を提案する。接着強度を損なわない厚さ(300 ナノメートル程度)の Me-DLC 薄膜のパターンを予め検査対象箇所形成して組込式プローブ(インジケータ)とし、これに FRP 外部から交流磁場を与えて誘導電流(渦電流)を発生させ、渦電流が作る反作用磁束の強度や位相を FRP 外部に設けた磁気センサで検出することでインジケータ近傍に発生する微小な剥離や損傷を検出するというものである(図 1)。

DLC は非晶質炭素膜であるため、FRP や接着剤との親和性は高く、界面接着力の低下の心配も少ない。Me-DLC パターンが形成された接着界面に剥離が発生するとき、Me-DLC 膜にき裂損傷が生じ、渦電流信号が変化する。Me-DLC は僅かな欠陥やひずみに対してその電気的特性が有意に変化するため(Ohno T., et al., IJAEM, 2010)、渦電流探傷法で接着界面に生じる微小剥離の信号を十分検出できる。

渦電流信号 v は下記の式の通り励磁周波数 $f(= \omega/2\pi)$ の他、導体の導電率 σ と透磁率 μ によって決定される。

$$v = -\frac{j\omega\mu}{4\pi} \oint_L \left\{ \int_{V'} \frac{J_e(r') \times (r - r')}{|r - r'|^3} dV' \right\} \cdot dl$$

$J(= \sigma E)$ は渦電流密度であり、 L は検出コイルの周長、 dI は検出コイルの微小素片、 V' は渦電流が発生している箇所の体積である。 r や r' は座標を示している。上式より、損傷により変化する Me-DLC の渦電流信号を精度良く評価するためには、Me-DLC の透磁率を高くする方法が有効であることがわかる。そこで本研究では強磁性元素であるコバルト(Co)をナノクラスタ化して a-C:H の炭素薄膜に分散させることで、高い透磁率を有し損傷を検出できる十分な渦電流信号を発生させる Co-DLC を提案する。得られた Co-DLC の電磁的特性を計測し、き裂を模擬した試験片と健全試験片の渦電流信号強度を比較することで、界面剥離を検出するためのインジケータとしての性能を評価する。また、Co-DLC 薄膜に a-C:H の絶縁層を挟む多層構造を導入することで電磁的特性を向上させる手法についても検討する。

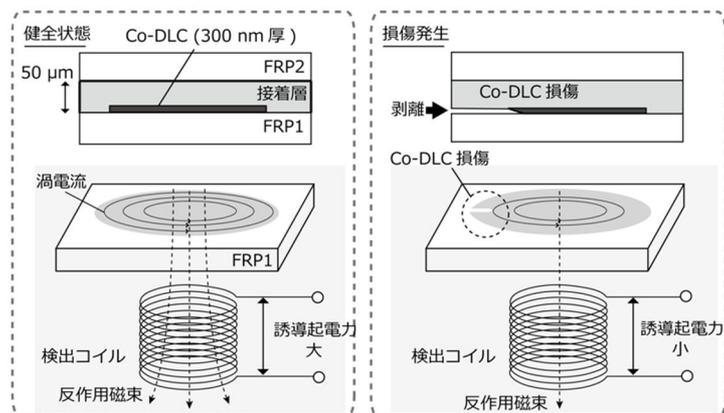


図 1 Co-DLC をインジケータとする渦電流を用いた電磁非破壊評価法の原理

3. 研究の方法

(1) Co-DLC の成膜と物性測定

PECVD-PVD ハイブリッド成膜装置を用いて Co-DLC を基板上に成膜した。a-C:H 炭素薄膜の原料はメタン(CH₄)ガスとし、流量を 4.5 sccm から 9.0 sccm まで変化させた。純度 6N のコバルト (Co) をターゲットとし、CVD による炭素薄膜の成長と同時に Co ターゲットを用いたスパッタリングにより炭素薄膜内に Co のナノクラスタを導入した。スパッタリングに用いたアルゴン流量は 10.0 sccm、反応容器内の圧力は 1.3 Pa で一定とし、20 分間成膜を行った。多層構造を構築する場合、CH₄ 流量を 4.5 sccm とし 3 分間スパッタリングを行った後、CH₄ 流量はそのまま 3 分間スパッタリングを停止して a-C:H 膜を導入する走査を繰り返し、合計で 18 分間成膜した。Co 含有量測定と電気抵抗測定、および磁化曲線測定のために石英上に Co-DLC を成膜し、接着界面の界面破断強度測定と損傷前後の渦電流信号測定のためにアクリル基接着シート (9077, 3M 社) 上に成膜を行った。

得られた Co-DLC の Co 含有量はエネルギー分散型 X 線分析により測定し、膜内部のナノクラスタの分散は透過型電子顕微鏡を用いて観察した。Co-DLC は、図 2 の透過型電子顕微鏡像に示すように Co がナノ粒子となって a-C:H 膜内に分散したグラニューラー構造をとることがわかった。CH₄ 流量を下げると厚さ方向に柱状に Co クラスタが成長し、体積含有量が多くなることわかった。また、多層構造とした場合、a-C:H 薄膜層がおよそ 2 nm の厚さで Co-DLC 層に導入されることが明らかとなった。本研究で得られた Co-DLC の膜厚はいずれも 300 nm 程度であった。Co-DLC の電気抵抗値は四探針法で、磁化曲線は振動試料型磁力計 (VSM) を用いて測定した。

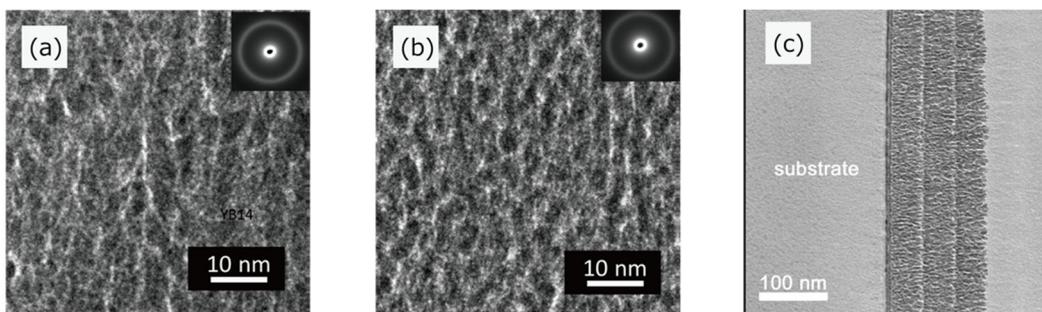


図 2 Co-DLC の透過型電子顕微鏡図 ; (a) CH₄ 流量=4.5 sccm、(b) 9.0 sccm、(c) 4.5 sccm (多層構造) の断面図

(2) Co-DLC を導入することによる接着強度への影響評価

Co-DLC を成膜した接着シートを用いて厚さ 3 mm の GFRP 平板どうしを接着し、シングルラップ接着構造を形成させた後、JIS K6805 に基づき引張せん断接着強度試験を行い、Co-DLC 導入による接着強度への影響を評価した。Co-DLC は CH₄ 流量を 4.5 sccm と 9.0 sccm としたものを成膜した。対照試験として Co-DLC を成膜していない接着接合試験片の試験も行った。

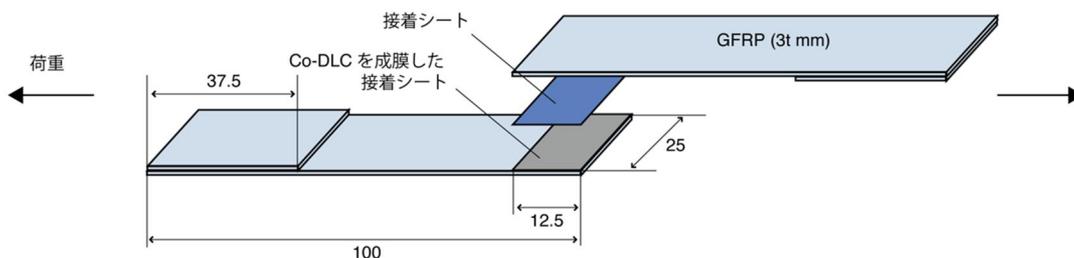


図 3 引張せん断接着試験のためのシングルラップ接着接合試験片

(3) 損傷を与えた Co-DLC の渦電流試験

接着シートを厚さ 1 mm の GFRP の表面に接着した後、幅 1 mm のマスクを接着シートに付着させた状態で Co-DLC (CH₄ 流量 4.5 sccm の単層) を成膜し、成膜後にマスクを外すことで擬似的なき裂を付加した Co-DLC 薄膜を得た (図 4(a))。渦電流試験プローブを Co-DLC 薄膜表面から最大 10 mm 離すように設置し (リフトオフ)、擬似き裂を横切るように走査した。渦電流プローブは長半径が 5 mm、短半径が 2.8 mm の楕円形の励磁コイル (147 巻) の内側に外径 5 mm の 2 ケの真円の検出ソレノイドコイル (350 巻) を設置し、2 ケの検出コイルの差動を信号とする差動方式を採用した (図 4(b))。渦電流探傷試験に用いた励磁電流の電圧は 4 V、周波数は 2 MHz とし、検出信号は差動アンプを用いて 20 倍に増幅した。渦電流探傷試験装置の概略図は図 4(c) の通りである。

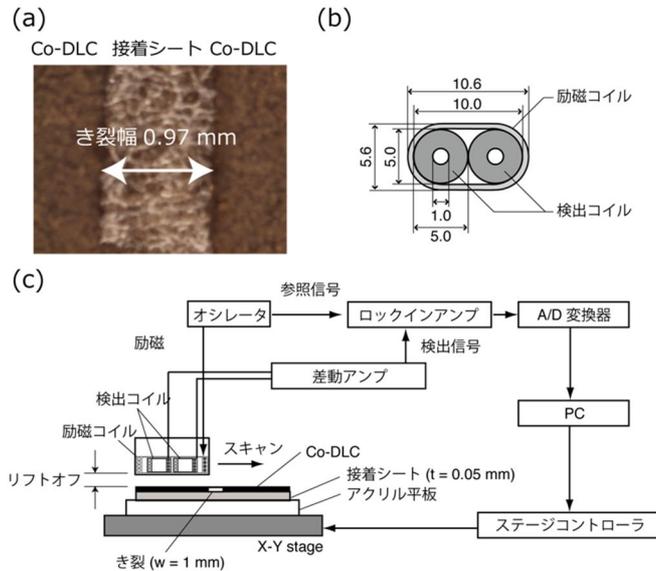


図4 (a) 擬似き裂を設けた接着シート上に成膜された Co-DLC 薄膜、(b) 差動型渦電流試験プローブ、(c) 渦電流探傷試験装置の概略図

4. 研究成果

(1) Co-DLC の電磁的特性

図5にCo-DLCの磁化曲線を示す。単層構造の場合、CH₄流量を小さくすることで強い軟磁性を示す磁性膜になることがわかる。これをa-C:H膜を挟んだ多層構造とすることで、さらに透磁率と飽和磁化を上昇させることが可能となることが明らかとなった。表1にCo-DLCの電磁的特性をまとめる。CH₄流量を小さくすることで、Co含有量と比透磁率が上昇し、電気抵抗が低下することがわかる。一方、多層構造を採用すると、比透磁率を上昇させつつ電気抵抗の低下を抑えることが可能であることがわかる。

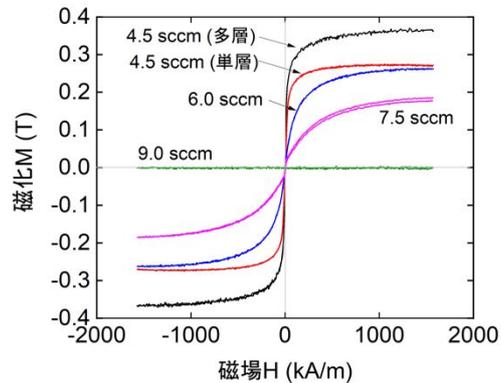


図5 CH₄流量に応じた Co-DLC の磁化曲線

表1 Co-DLC の電磁的特性

CH ₄ 流量 [sccm]	Co含有量 [at.%]	比透磁率	電気抵抗 [$\Omega \cdot \text{cm}$]
4.5	73.7	49.1	9.6E-4
6.0	65.7	37.2	1.8E-3
7.5	58.8	34.3	4.2E-3
4.5 (多層)	66.7	62.0	1.4E-3

(2) Co-DLC 導入による接着強度への影響

図6に引張せん断強度試験により得られた荷重変位曲線と破断後の接着部の写真を示す。いずれの場合においても接着シートとGFRPの界面における剥離は見られず、Co-DLCが成膜されている接着層の中間で破断が生じ、破断後はCo-DLCが破壊されていることが確認された(図6(a))。荷重変位曲線より、Co-DLCを接着シート上に成膜し接着界面に導入することで、18%程度の強度低下が生じることが明らかとなった。Co-DLCのCo含有量は強度の低下量には大きな影響を与えないが、Co含有量が多くなると(4.5 sccm)破断ひずみが小さくなる傾向があった。これはCo含有量によってCo-DLCの表面自由エネルギーの極性成分と分散成分の比が変化し、接着シートとの接着力が変化したことによるものと考えられる。以上より、Co-DLCを界面接着部に導入する上では、接着強度の低下を考慮に入れた設計が必要となる。

(3) 損傷による Co-DLC の渦電流信号変化

図7にリフトオフを0.2 mmから10 mmに変化させた場合の幅1 mmのき裂に対する差動方式による渦電流信号の変化を示す。き裂の中心は15 mmの位置である。き裂の前後で渦電流信号が変化する様子から、Co-DLCに生じた傷の位置が渦電流探傷試験により検出できることが明らかとなった。リフトオフが大きくなるに従い渦電流信号は小さくなるが、リフトオフが10 mmあっても渦電流信号の変化が検出できていることから、厚さ10 mmのFRPの接着接合

が対象であっても本手法を用いることで界面に存在する Co-DLC 薄膜の非破壊検査が可能であることが示された。

本実験では図 4(b)に示すように楕円形の励磁コイルの内側に 2 ケの検出コイルを設置した差動方式の渦電流試験プローブを用いたが、検出コイルを励磁コイルの外側に設置する励磁-受信 (TR) 方式であればより深部の探傷も可能となることから、本研究で提案する手法はリフトオフが 10 mm 以上となる厚板の接着接合にも適用できる可能性がある。以上の結果より、Co-DLC を接着界面部に導入し渦電流探傷試験のインジケータとすることで、接着強度はわずかに低下するものの、接着接合部の電磁非破壊評価が可能になることが示された。

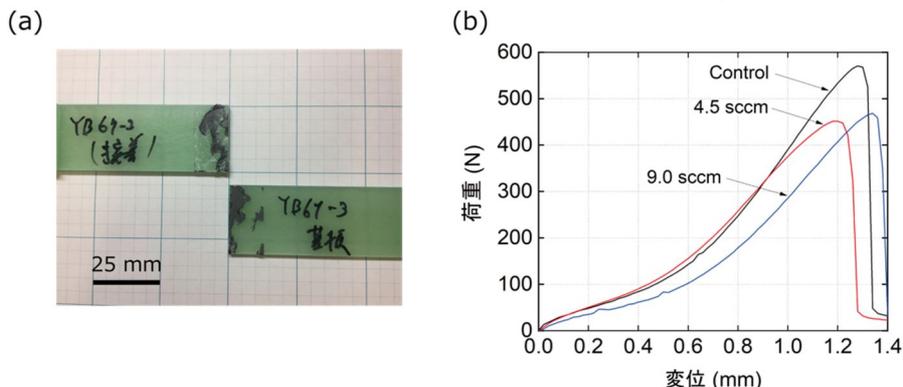


図 6 (a) 引張せん断強度試験後の Co-DLC(4.5 sccm)接着界面部、(b) 引張せん断強度試験により得られた荷重-変位曲線

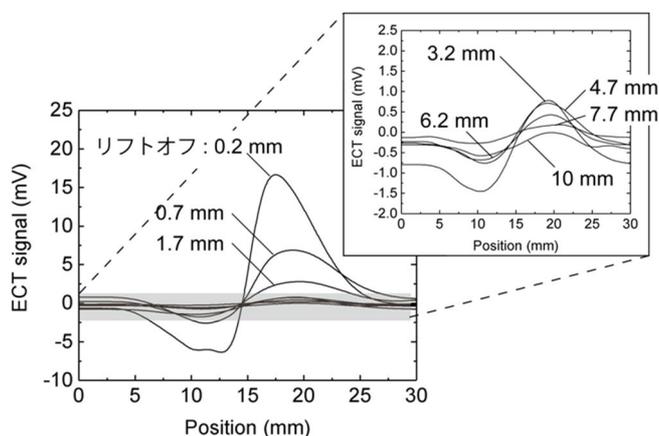


図 7 Co-DLC(4.5 sccm)のき裂近傍における渦電流信号の変化。き裂の位置は 15 mm。

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計 2 件)

小助川博之, 三木寛之, 高木敏行, 導電性 DLC のひずみセンサおよび疲労センサへの応用, NEW DIAMOND, 査読無, 2018, 130 巻, 32-35

URL: <https://www.jndf.org/katsudo/kaishi/backnumber/330-kaishi-130.html>

Hiroyuki Kosukegawa, Sophia Berkani, Hiroyuki Miki, Toshiyuki Takagi, Structure and electrical properties of molybdenum-containing diamond-like carbon coatings for use as fatigue sensors, Diamond & Related Materials, 査読有, 80 巻, 2017, 38-44

DOI: 10.1016/j.diamond.2017.09.018

[学会発表](計 8 件)

Zhuo Diao, Hiroyuki Kosukegawa, Hiroyuki Miki, Toshiyuki Takagi, Investigation of Structure and Electromagnetic Properties of Cobalt-containing DLC for Magnetic Device Application, Fifteenth International Conference on Flow Dynamics, 2018 年 11 月 8 日, Sendai (JAPAN)

Hiroyuki Kosukegawa, Satoshi Yamazaki, Hiroyuki Miki, Toshiyuki Takagi, Evaluation of Structural and Electric/magnetic Properties of Cobalt-containing DLC Film for Magnetic Device Application, International Conference on Diamond and Carbon Materials 2018, 2018 年 9 月 5 日, Dubrovnik (CROATIA)

山崎哲, 小助川博之, 三木寛之, 高木敏行, 強磁性金属含有 DLC 薄膜の電磁的・機械的特性評価, 日本機械学会東北支部第 53 期総会・講演会, 2018 年 3 月 15 日, 東北大学工学部青葉記念会館(宮城県仙台市)

Satoshi Yamazaki, Hiroyuki Kosukegawa, Hiroyuki Miki, Toshiyuki Takagi,

Investigation of Electromagnetic Properties and Morphology of Cobalt-containing Diamond-like Carbon Aiming for Magnetic Sensor, Fourteenth International Conference on Flow Dynamics, 2017年11月2日, 仙台国際センター(宮城県仙台市)

Satoshi Yamazaki, Hiroyuki Kosukegawa, Yiwen Zhang, Hiroyuki Miki, Toshiyuki Takagi, Evaluation of Electromagnetic Properties and Structure of Cobalt-containing DLC Fabricated by Hybrid Deposition Technique, 11th International Conference on New Diamond and Nano Carbons 2017, 2017年5月30日, Cairns (AUSTRALIA)

Hiroyuki Kosukegawa, Sophia Berkani, Hiroyuki Miki, Toshiyuki Takagi, Relationship between structure and electrical properties of molybdenum-containing DLC, 11th International Conference on New Diamond and Nano Carbons 2017, 2017, 2017年5月29日, Cairns (AUSTRALIA)

山崎哲, 小助川博之, 三木寛之, 高木敏行, 強磁性元素を導入した非晶質炭素薄膜の作製と電磁特性の評価, 安全・安心な社会を築く先進材料・非破壊計測技術シンポジウム【函館】, 2017年3月13日, サン・リフレ函館(北海道函館市)

Satoshi Yamazaki, Hiroyuki Kosukegawa, Hiroyuki Miki, Toshiyuki Takagi, Evaluation of Electromagnetic Properties of Cobalt-containing DLC Fabricated by Using Hybrid PECVD and DC Sputtering Technique, Thirteenth International Conference on Flow Dynamics, 2016年10月11日, Sendai (JAPAN)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

〔その他〕

該当なし

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名: 小助川 博之

ローマ字氏名: (KOSUKEGAWA, Hiroyuki)

所属研究機関名: 東北大学

部局名: 流体科学研究所

職名: 助教

研究者番号(8桁): 00709157

(2)研究分担者

研究分担者氏名: 三木 寛之

ローマ字氏名: (MIKI, Hiroyuki)

所属研究機関名: 東北大学

部局名: 学際科学フロンティア研究所

職名: 准教授

研究者番号(8桁): 80325943

(3)研究分担者

研究分担者氏名: 内一 哲哉

ローマ字氏名: (UCHIMOTO, Tetsuya)

所属研究機関名: 東北大学

部局名: 流体科学研究所

職名: 教授

研究者番号(8桁): 70313038

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。