

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 20 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25249004

研究課題名(和文) レーザー超音波を用いた多層構造燃料電池セルの密着強度・靱性評価法の開発

研究課題名(英文) Development of evaluation method of adhesion strength and toughness of multilayered fuel cell using laser ultrasound

研究代表者

荒井 政大 (Arai, Masahiro)

名古屋大学・工学研究科・教授

研究者番号：30260532

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 21,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では多層構造を有する燃料電池に用いられるコーティング膜の評価を目的として、コーティングを有する材料に対してパルスレーザーを照射し、材料内に超音波波動を励起させ、それを材料内に伝播・反射・干渉させることによってコーティング膜と基材の間において剥離を生じさせた。また、その際の弾性応力波を数値解析により評価することによってコーティング膜と基材の間の密着強度ならびに、界面に生じた剥離進展時の破壊靱性値を評価した。3次元境界要素法による動弾性解析プログラムを新たに作成し、階数低下法による適切化を施すことにより、界面強度と界面破壊靱性値が高い精度で求められることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：In the present study, the interfacial adhesion strength between coating film and interface fracture toughness between coating film and substrate were evaluated by laser ultrasonic waves and boundary element method. The adhesion strength can be estimated by inverse analyses using transfer function from the history of displacement of the specimen and boundary element analysis for unsteady 3-dimensional vibration. In the present study, an alternative boundary element program has been made for the axisymmetric solid body. Using data processing by Weibull distribution, the interfacial strength between Ti coating film and Al-alloy substrate could be confirmed to be 59.2MPa from the present investigation.

研究分野：機械工学

キーワード：機械材料・材料力学 コーティング膜 境界要素法 非破壊検査 逆解析

1. 研究開始当初の背景

燃料電池は自動車用の新たな動力源として、さらには災害発生時の非常用動力としても大いに期待されている。固体電解質型の燃料電池セルには多層構造薄膜が用いられており、運用時における熱的負荷によって内部に剥離が生じ、機能が損なわれることが問題となっている。そのため多層コーティング膜構造の接合界面における密着強度ならびに界面における剥離の層間破壊靱性値を正確に測定・評価することが重要となる。

2. 研究の目的

本研究では多層構造を有するコーティング膜の密着強度を高い精度で測定することを目的とし、パルスレーザーを用いたレーザースポレーション法に着目して研究を実施した。パルスレーザーにより励起された超音波によって材料に破壊を生じさせ、その際の応力を数値解析により見積もることで、材料の密着強度と界面における層間破壊靱性値を求めること、また、それらの物理量算出に際して用いる逆解析用の数値計算プログラムを新たに作成・構築することが本研究の目的である。

3. 研究の方法

図1にレーザースポレーション法による実験装置の概要図を示す。パルスレーザー(YAG)を材料表面に照射することによってアブレーション効果による圧縮波を材料内部に励起させた。アブレーション層にはシリコングリースを用い、図2に示すように治具を用いて周辺を固定して垂直に支持した。アブレーション層の瞬間的な熱膨張により発生した超音波は、基材・コーティング膜内を板の面外方向に進行し、反射・干渉することによって材料内部の接合界面において剥離が生じる。また、層間破壊靱性試験においては、すでに剥離が生じた試験片にレーザーを照射して、剥離進展時における臨界値を測定する。剥離が発生しないしは剥離が進展する際の弾性波動場を逆解析によって計算することにより、コーティング膜と基材間の密着強度と、界面剥離の層間破壊靱性値を算出する。数値解析には Laplace 変換法に基づく境界要素法を用い、階数低価法による適切化処理を施した。

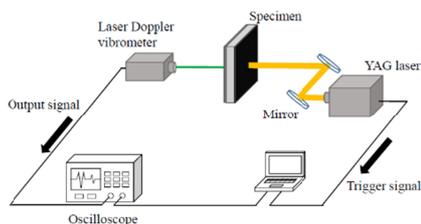


図1 レーザースポレーション法の概要図

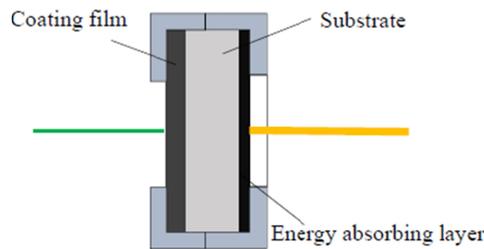


図2 試験片の固定方法

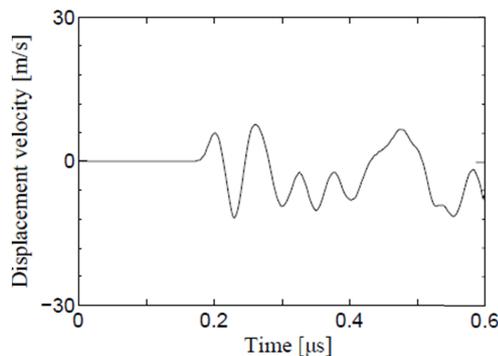


図3 レーザーエネルギー190mJにおける試験片裏面の変位履歴の測定結果

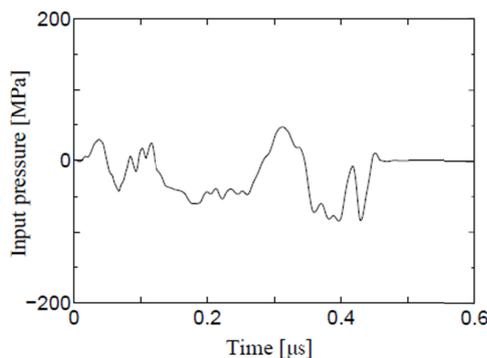


図4 レーザーエネルギー190mJにおける試験片上面の圧力履歴の逆解析結果

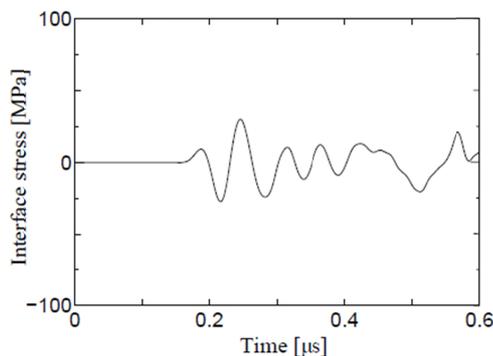


図5 界面応力の逆解析結果

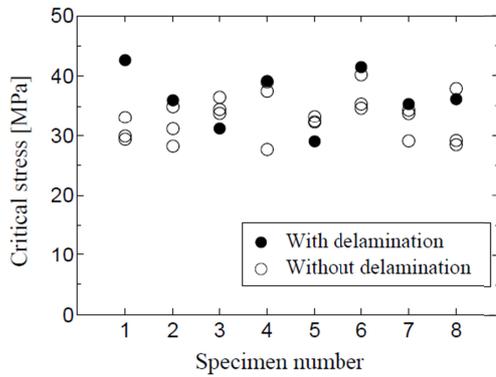


図6 界面強度の測定結果のまとめ

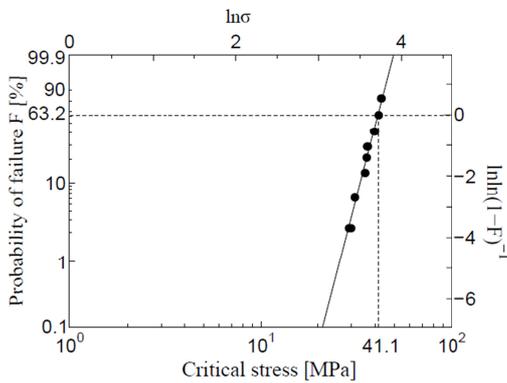


図7 界面強度のワイブルプロット

#### 4. 研究成果

上記の実験手法と計算手法によって、ナノカーボン Epoxy コーティング膜の密着強度を評価した。図3はレーザー干渉計によって測定された試験片裏面の変位データ、図4は境界要素法に基づく逆解析により得られた試験片上面の圧力履歴、図5は界面応力の逆解析結果である。

複数の試験片により得られた界面強度の測定データを図6にまとめた。グラフに示されているように、得られた界面強度の値にはばらつきが認められたため、本研究では得られた結果を統計的に処理するものし、図7に示されるようなワイブル分布によって評価した。

ワイブルプロットより累積破壊確率 63.2% の場合の臨界応力を本研究における臨界値として判断した。その結果、ナノカーボン Epoxy コーティング膜の密着強度は 41.1MPa であることが確かめられた。

得られたデータを検証するために、本研究ではレーザースポレーション試験と並行し

て、ピン引張による密着強度試験を実施した。試験装置は図8に示す Romulus Quad Group であり、アルミ合金製のスタッドピンを試験片の



図8 ピン引張法による密着強度評価

表1 ピン引張法における臨界荷重の値

Specimen number	Critical load [N]
No.1	157.5
No.2	111.8
No.3	258.1
No.4	137.4
No.5	242.9
No.6	231.7
No.7	211.8
No.8	183.9
No.9	203.1
No.10	193.1

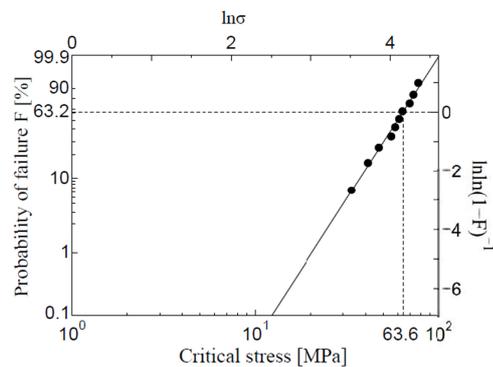


図9 ピン引張試験におけるワイブルプロット

コーティング膜側に接着した後、それを引きはがす際の臨界強度を測定することによって界面応力を得た。なお、一般に用いられる平均応力による評価法ではピン接合部における応力集中を考慮しておらず、ピン接合端

部で大きな応力の誤差が生じる．本研究ではそれらの誤差を避けるため，ピン引張試験に対しても境界要素法による軸対称解析を適用し，ピン端部の応力を数値解析によって直接評価した．

表 2 界面き裂進展時の臨界エネルギー

Specimen number	Critical energy [mJ]
No.1	75
No.2	90
No.3	90
No.4	75
No.5	90
No.6	105
No.7	105
No.8	90

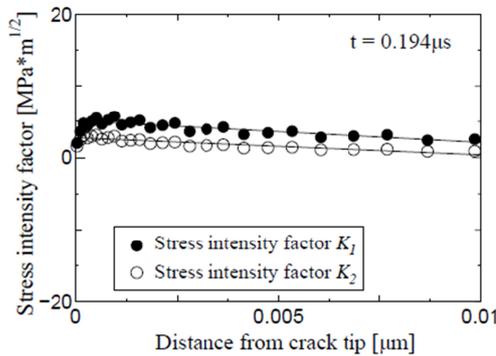


図 10 応力拡大係数  $K_1$ ,  $K_2$  の外挿例

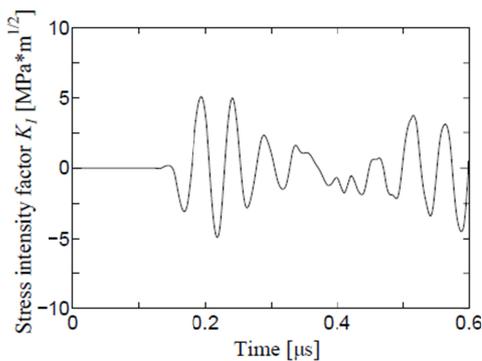


図 11 応力拡大係数  $K_1$  の時刻歴

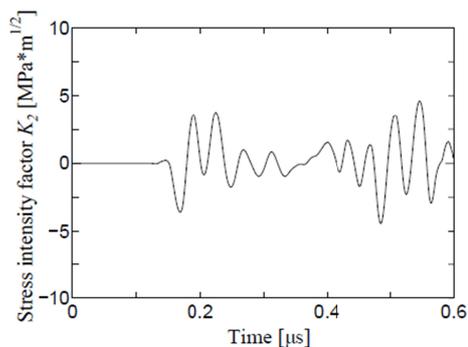


図 12 応力拡大係数  $K_2$  の時刻歴

表 1 はピン引張法により得られた剥離発生時の臨界応力の値である．この値より界面強度を計算し，先のレーザースポレーション法の場合と同様にワイブルプロットを計算した値が図 9 である．このグラフより，ピン引張試験により得られた値は 63.6MPa となり，レーザースポレーション法よりもやや高い値を示すことがわかった．

次に，ナノカーボン Epoxy 複合膜の界面破壊靱性値について調査した結果について示す．直径約 1mm の初期剥離を有する試験片について再度レーザースポレーション試験を実施し，その際に剥離が進展する際の試験片内部の応力波を境界要素法により解析し，き裂進展時の層間破壊靱性値を求めた．

図 10 は，き裂先端近傍の応力値より応力拡大係数  $K_1$ ,  $K_2$  を外挿した結果である．やや離散化誤差が認められるものの，概ねき裂近傍の応力場は外挿式に従い直線で近似できることが確かめられる．各時刻の応力場を直線外挿により近似すれば，応力拡大係数  $K_1$ ,  $K_2$  の時刻歴が得られる．

図 11 に応力拡大係数  $K_1$  の時刻歴を，図 12 に応力拡大係数  $K_2$  の時刻歴を示す．8 枚の試験片より得られた  $K_1$ ,  $K_2$  より，エネルギー解放率の臨界値として層間破壊靱性値の平均値を求めた結果 2.24kJ/m<sup>2</sup> となった．他方，ピン引張試験により同様の層間破壊靱性値を求めた結果は 3.23kJ/m<sup>2</sup> となり，密着強度試験の結果と同様に，ピン引張試験のほうがやや高い値を示すことが確かめられた．

界面密着強度試験ならびに界面層間破壊靱性試験に関しては，本研究で新たに開発された Laplace 変換法に基づく軸対称型境界要素法プログラムを用いた．プログラムはすべて Fortran コードで作成され，Linux 上において gfortran コンパイラにより実行された．本研究グループにより作成されたプログラムによって，高精度かつ高速にコーティング膜 - 基材間の密着強度と層間破壊靱性値を算出できることが確かめられた．

また，逆解析における数値解の安定化に対しては，階数低下法と許容条件数法を組み合わせた適切化によって，逆解析で求められた数値解が十分に安定化され，不要な誤差の発生を抑制した形で十分な精度の解が得られることを明らかにした．数値 Laplace 逆変換

に関しては、細野の方法を適用することによって、高い精度の数値 Laplace 逆変換が可能となり、結果として強度、靱性値の精度が向上することを確認した。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計3件)

[1] 平工淳樹, 杉浦大介, 柳澤隆, 西村正臣, 伊藤寛明, 長秀雄, 後藤圭太, 荒井政大, ナノカーボン複合コーティング膜の密着強度評価に関する境界要素逆解析, 計算数理工学論文集, Vol.16, 2016, pp.19-24.

[2] Masahiro Arai, Yoshitaka Sato, Daisuke Sugiura, Masaomi Nishimura, Hiroaki Ito and Hideo Cho, Inverse Analysis for Interface Fracture Toughness of Ti Coating Film by Laser Spallation Method, Advances in Engineering Software, DOI: 10.1016/j.advengsoft.2016.04.003.

[3] 荒井政大, 佐藤慶宜, 伊藤寛明, 長秀雄, 西村正臣, 榊和彦, 軸対称型境界要素法によるコーティング膜の密着強度評価, 計算数理工学論文集, Vol.13, 2013, pp.25-30.

[学会発表](計5件)

[1] 杉浦大介, 西村正臣, 後藤圭太, 荒井政大, 伊藤寛明, 長秀雄, レーザー超音波による複合平板の密着強度解析, M&M2016 材料力学カンファレンス(神戸市 2016.10.8~10)講演論文集, OS12-20, pp.636-637.

[2] 平工淳樹, 杉浦大介, 柳澤隆, 西村正臣, 伊藤寛明, 長秀雄, 後藤圭太, 荒井政大, ナノカーボン複合コーティング膜の密着強度評価に関する境界要素逆解析, 計算数理工学シンポジウム 2016, 富山市, 12月2日, 2016.

[3] M. Arai, A. Hiraku, K. Goto, D. Sugiura, M. Nishimura, H. Ito, H. Cho, T. Yanagisawa, Adhesive Strength of Nano-Carbon Coating Film Measured by Laser Spallation Method, 4th International Conference on Nanomechanics and Nanocomposites (ICNN4), Vicenza, Italy, Sep.14-17, 2016, pp.1-5 (PDF).

[4] 荒井政大, 西村正臣, 杉浦大介, 伊藤寛明, 長秀雄, レーザースポレーション法による Ti コーティング膜の密着強度と界面破壊靱性値の評価, 日本機械学会 M&M2015 材料力学カンファレンス, 慶応大学矢上キャ

ンパス, 2015.11.21-23.

[5] M. Arai, Y. Sato, N. Sugiura, M. Nishimura, H. Ito and H. Cho, Inverse Analysis for the Adhesion Strength of a Titanium Coating Film Using the Laser Spallation Method, Proceedings of the 12th International Conference on Computational Structures Technology (CST2014), Civil-Comp Press, Stirlingshire, Scotland, Paper 183, September 2014, 10pages (PDF).

[図書](計0件)

[産業財産権]

出願状況(計0件)

取得状況(計0件)

[その他]

なし

#### 6. 研究組織

(1)研究代表者

荒井 政大 (ARAI Masahiro)  
名古屋大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号: 30260532

(2)研究分担者

西村 正臣 (NISHIMURA Masaomi)  
信州大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号: 40554580

伊藤 寛明 (ITO Hiroaki)  
近畿大学・工学部機械工学科・講師  
研究者番号: 70534981

(3)連携研究者

( )

研究者番号:

(4)研究協力者

( )