

2023 年度年次報告書

革新的力学機能材料の創出に向けたナノスケール動的挙動と力学特性機構の解明

2019 年度採択研究代表者

陣内 浩司

東北大学 多元物質科学研究所

教授

原子分解能観察によるソフト/ハード界面の接着・破壊機構の解明

主たる共同研究者:

末永 和知 (大阪大学 産業科学研究所 教授)

溝口 照康 (東京大学 生産技術研究所 教授)

吉田 要 ((一財)ファインセラミックスセンター ナノ構造研究所 主任研究員)

研究成果の概要

本研究では、最先端電子顕微鏡法と理論計算を組み合わせ、高分子/無機接着界面(以下、異種界面)における接着・剥離の基本原理を解明することを目的としている。2023年度は主にエポキシ樹脂とシリコン基板の異種界面を対象とし下記成果を得た。

1. 陣内 G は、異種界面の接着・剥離現象における物理的接着成分(アンカー効果)の影響を明らかにするため、表面化学状態を制御した矩形凹凸シリコン基板とエポキシ樹脂の接着界面について、垂直引張破断後およびせん断破断後の断面をそれぞれ電子顕微鏡観察することに成功した。その結果、凹凸の幅によらず凸部表面を繋ぐように界面剥離および樹脂の凝集破壊が起こることや、せん断破断においては凹部内の樹脂の側面が基板から剥離する特異な挙動を示すことを明らかにした。
2. 溝口 G は、周期凹凸パターンを有する基板と架橋高分子の接着界面について、粗視化分子動力学法(MD)による垂直引張変形、およびせん断変形シミュレーションを行った。基板の凹凸形状にはパラメトリック曲線(河川の蛇行曲線)を利用し、基板形状(物理的接着成分)、壁との吸着の強さ(化学的接着成分)、高分子の温度、を系統的に変化させることで、応力-ひずみ関係や高分子中/接着界面でのボイド形成挙動の解析を行い、接着・剥離現象における化学的・物理的接着の影響を各々切り分けて理解することに成功した。
3. 吉田 G は、エポキシ樹脂バルク内部における化学結合状態の不均一分布を走査透過型電子顕微鏡を用いた電子エネルギー損失分光(STEM-EELS)により極めて低ダメージで解析できることを実証した。
4. 末永 G は、STEM-EELS でナノスケール分子振動マッピングを行い、他手法では観測困難なブロック共重合体を作る微細構造を捉えることに成功した。さらに、溝口 G の粗視化 MD 計算と組み合わせ、観測された微細構造の分子論的起源を明らかにした。

【代表的な原著論文情報】

- 1) T. Miyata, Y. K. Sato, Y. Kawagoe, K. Shirasu, H-F. Wang, A. Kumagai, S. Kinoshita, M. Mizukami, K. Yoshida, H-H. Huang, T. Okabe, K. Hagita, T. Mizoguchi, H. Jinnai, "Effect of inorganic material surface chemistry on structures and fracture behaviors of epoxy resin", *Nature Communications* **15**, 1898 (2024).
- 2) K. Hagita, T. Murashima, T. Miyata, H. Jinnai, "Model Based on the River Meander Curve for Simulating the Adhesion of Cross-Linked Polymers to Rough Surfaces", *Macromolecules*, *in press*. (Sup. Cover) (2024).
- 3) H-H. Huang, T. Miyata, Y. K. Sato, T. Mizoguchi, H. Jinnai, K. Yoshida, "Microscopic chemical characterization of epoxy resin with scanning transmission electron microscopy – electron energy-loss spectroscopy", *Micron* **180**, 103623 (2024).
- 4) K. Hagita, T. Miyata, H. Jinnai, "Molecular Dynamics Simulations on Epoxy/Silica Interfaces Using Stable Atomic Models of Silica Surfaces", *Langmuir* **39**, 125733 (2023).
- 5) K. Yoshida, H.-H. Huang, T. Miyata, Y. Sato, T. Mizoguchi, H. Jinnai "Electron irradiation damage of amorphous epoxy resin at low electron doses", *Microscopy* **72**, 361 (2023).