

令和 6 年 6 月 27 日現在

機関番号：82723

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01221

研究課題名(和文) ミクロとマクロの力学特性を繋ぐマルチレイヤーインデンテーション法の開発

研究課題名(英文) Development of multi-layer indentation method connecting micro and macro mechanical properties

研究代表者

山田 浩之 (Yamada, Hiroyuki)

防衛大学校 (総合教育学群、人文社会科学群、応用科学群、電気情報学群及びシステム工学群)・システム工学群・准教授

研究者番号：80582907

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、高分子材料の変形過程が各測定スケールの階層(レイヤーと定義)に依存することを利用し、高時間分解能を有するMEMS半導体ひずみゲージの新開発、変形場が広がるインデンテーション技術とともに、変形レイヤーのワンパス横断によりミクロからマクロの力学特性を評価できるマルチレイヤーインデンテーション法の開発を目指した。高密度ポリエチレンの圧縮特性に及ぼすひずみ速度の影響を明らかにし、開発した高速インデンテーション試験装置を利用することで、圧子押込み時の高密度ポリエチレンの微視構造のその場観察により、マルチレイヤーインデンテーション試験への展開が可能である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

社会で幅広く使用されている高分子材料の1つである高密度ポリエチレンの圧縮特性のひずみ速度依存性を明らかにした。また、これまでにないひずみ測定が可能で、MEMS半導体ひずみゲージの設計が完了した。さらに、その場観察が可能な高速インデンテーション試験装置を開発した。これらを統合することで、材料のミクロな変形とマクロな変形を結びつけるマルチスケール材料力学への展開が可能となった。

研究成果の概要(英文)：This study aims to develop a new MEMS semiconductor strain gauge with high time resolution, together with an indentation technique that expands the deformation field, using the fact that the deformation process of polymeric materials depends on the hierarchy of each measurement scale (defined as layer), and to develop a multi-layer indentation method that can evaluate mechanical properties from micro to macro by a one-pass traversal of the deformation layer. The effect of strain rate on the compressive properties of high-density polyethylene was clarified, and the developed high-speed indentation test apparatus can be used to develop a multi-layer indentation test by in situ observation of the microstructure of high-density polyethylene during indentation.

研究分野：材料力学

キーワード：インデンテーション試験 高分子材料 ひずみ速度 ひずみゲージ 有限要素解析 MEMS

1. 研究開始当初の背景

力学特性を原子/分子レベルの構造とその挙動を考慮したミクロな視点から明らかにするマルチスケール材料力学が盛んに研究されている。現状では、マルチスケール材料力学のミクロな結果が実験で得られるマクロな結果に直結できない課題がある。一般的な実用材料内部には不純物、材料欠陥などがランダムに存在することで複雑難解な構造となり、変形ではこれらの相互作用が生じるためである。

2. 研究の目的

本研究では、高分子材料の変形過程が各測定スケールの階層（レイヤーと定義）に依存することを利用する。高時間分解能を有する MEMS 半導体ひずみゲージの新開発、変形場が広がるインデンテーション技術とともに、変形レイヤーのワンパス横断によりミクロからマクロの力学特性を評価できるマルチレイヤーインデンテーション法の開発を目指す。達成目標として、高分子材料の塑性変形挙動に及ぼすひずみ速度の影響を明かにする、MEMS 半導体ひずみゲージを新規に開発する、高速インデンテーション試験装置の開発となる。

3. 研究の方法

(1) 高分子材料の塑性変形挙動に及ぼすひずみ速度の影響

本研究では、試料として重量平均分子量 M_w の異なる 3 種類の HDPE を用いた。表 1 に各試料の諸特性を示す。これらのペレットを円柱状の型に入れて、真空オーブン中で熔融し、さらに室温にて圧縮プレスすることで円柱試験片（直径 10 mm, 高さ約 6 mm）を作製した。

表 1 重量平均分子量 M_w の異なる 3 種類の HDPE

Specimen	M_w	M_w/M_n	$T_a(^{\circ}\text{C})$	$\chi_v(\text{vol.}\%)$
HDPE5.2	5.2×10^4	5.2	80	74
HDPE10	10.0×10^4	5.9	100	74
HDPE30	30.0×10^4	5.0	110	68

材料強度のひずみ速度依存性を評価するため、ひずみ速度別（準静的、動的、衝撃）に 3 種類の試験方法を用いた。準静的圧縮試験は、万能試験機（5982 型, INSTRON）を用いた。2 種類のひずみ速度（ 1.0×10^{-1} , $1.0 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ ）の試験を行った。動的圧縮試験は、カムプラスチックを用いて約 $8.3 \times 10^0 \text{ s}^{-1}$ のひずみ速度の試験を行った。衝撃圧縮試験は、スプリット・ホプキンソン棒（SHB）型圧縮試験装置を用いた。試験より得られた平均ひずみ速度は約 $1.0 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$ である。

また、ひずみ量を制御した（真ひずみ 0.1 および 0.3）試験片を作製し、内部微視構造を明らかにするために、X 線構造解析（リガク社製 X 線構造評価装置 Nano viewer）を実施した。本試験装置の X 線の波長は 0.154 nm である。小角 X 線散乱（SAXS）測定のカメラ長は 460 mm, 広角 X 線回折（WAXD）測定のカメラ長は 130 mm である。また、X 線のスポット径は約 1 mm である。本研究では、X 線の照射時間は 300 s とした。試験片を透過した X 線をリガク社製ハイブリッド型多次元半導体検出器 HyPix3000 にて記録し、解析することで 1D-SAXS および 1D-WAXD プロファイルを求めた。

(2) MEMS 半導体ひずみゲージの開発

MEMS 半導体ひずみゲージの開発のために、数値解析により各部の形状や構成材料の検討を実施した。図 1 に、解析で用いた基本となる三次元数値解析モデルを示す。本モデルは試験片（Specimen: 材質 Al）、MEMS ひずみゲージの基材部（Base: PI or Si）、およびゲージ部（Gauge: Si）で構成される。ゲージの材質はゲージ率を高めるため Si とし、基材部の材質は一般的な PI と応力波伝播速度を考慮して Si も検討した。それぞれの形状・寸法は図 1 の通りで、ゲージ部は両端の端子接続部も含めて短冊形状である。端子接続部の長さは接続部 $100 \mu\text{m}$ 固定とし、ゲージ本体の長さは 1000, 300, 100, 50 μm の 4 種類とした。また基材部の厚さは 14, 2 μm とし、8 節点ソリッド要素を用いて有限要素モデルにメッシュ分割した。なお厚さ方向のメッシュ分割数はゲージ部 5 層、基材部 2 層、試験片 20 層とし、数値解析には陽解法ソルバ RADIOSS (Altair Engineering) を用いた。

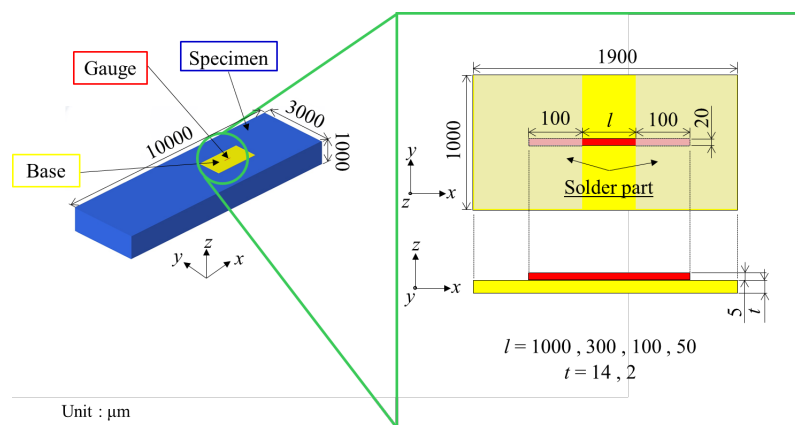


図 1 MEMS 半導体ひずみゲージの三次元数値解析モデル

(3) 高分子材料の高速インデンテーション試験

開発した高速マイクロインデンテーション試験装置の概略図を図2に示す。試験機は圧子、荷重測定部、駆動部、制御部、フレームによって構成されている。

ロードセルは、低荷重に対応させるために、最大荷重 5 N (LVS-500GA, 共和電業) とした。使用したロードセルの固有振動数は約 1220 Hz であり、高速荷重測定に対応できる。ロードセル先端には、ホルダーを介して圧子が固定されている。鋭い圧子は、ダイヤモンド製で、対稜角 115° の Berkovich 圧子 (三角錐圧子) を使用した。駆動部には精密位置決めステージ (XA05A-R102, 神津精機) を利用した。ステージは、モータの駆動により上下方向に ±7.5 mm 移動することができる。コントローラ (CRUX-D, 神津精機) の制御により、0.001~2.5 mm/s でステージの上下動作が可能である。ステージを下部に移動し、圧子を試験片に押し込むことによって、ロードセルの出力をシグナルコンディショナ (CDV-230C, 共和電業) で増幅し、出力された電圧をオシロスコープ (DL850E, 横河計測) にて記録する。

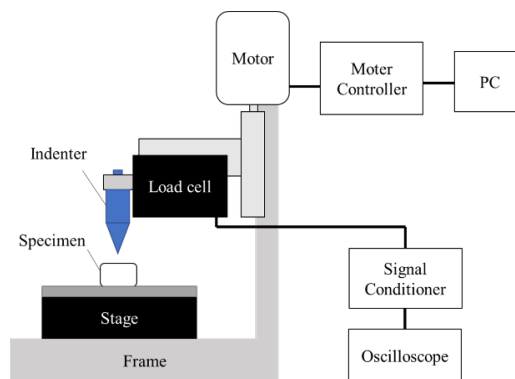


図2 開発した高速マイクロインデンテーション試験装置の概略図

本研究では、室温にて測定を行い、試験装置をビニールで囲むことにより風や温度変化の影響を軽減した。

4. 研究成果

(1) 高分子材料の塑性変形挙動に及ぼすひずみ速度の影響

図3に準静的、動的および衝撃試験から得られた代表的な真応力—真ひずみ曲線を示す。ひずみ速度の増加に伴い、3種類全て流動応力が増加しており、HDPEの材料強度のひずみ速度依存性が確認できた。ただし、重量平均分子量によって、変形強度のひずみ速度依存性が異なっていることがわかる。

HDPE5.2の $1.0 \times 10^{-1} \text{ s}^{-1}$ 以上を見ると、弾性挙動後に加工硬化挙動を示しているが、真ひずみ0.3~0.4付近から真応力の低下が生じた。また、既報⁽³⁾である衝撃試験では、試験後に回収した試験片は破壊した。また、HDPE10は、全てのひずみ速度で試験片の破壊は生じなかったが、HDPE5.2と同様に $1.0 \times 10^{-1} \text{ s}^{-1}$ 以上のひずみ速度で真応力の低下が生じた。一方、HDPE30は、弾性挙動後に大きな真応力の低下は生じていない。

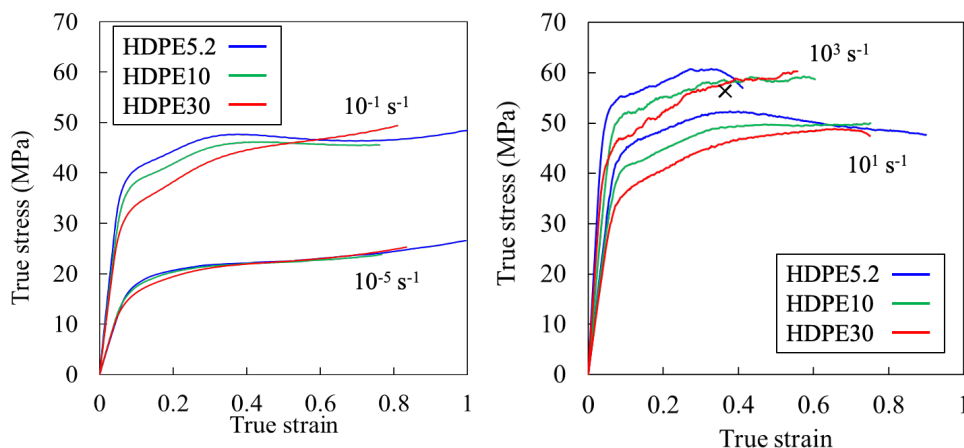


図3 準静的、動的および衝撃試験から得られたHDPEの代表的な真応力—真ひずみ曲線

図4にX線構造解析の一例として、HDPE5.2の真ひずみ0.1および0.3における1D-SAXSプロファイルを示す。このプロファイルから算出した長周期 L_p とひずみ速度の関係を合わせて示す。ひずみ速度 10^{-5} s^{-1} の真ひずみ0.1では、 L_p の変化が非常に小さい。真ひずみを0.3に増加すると L_p は増加した。よって、変形の進行に伴い L_p が増加することがわかる。この傾向は、ひずみ速度に関わらず生じた。また、真ひずみ0.1および0.3ともに、ひずみ速度の増加に伴い L_p が増加する傾向がみられた。HDPEの降伏現象は、内部の微視構造であるラメラ繰り返し構造の破壊が大きく関係していることが明らかにされている。よって、このように、ひずみ速度の変化による応力ひずみ関係の変化は、ラメラ繰り返し構造の破壊状態がひずみ速度によって変化することが示唆された。

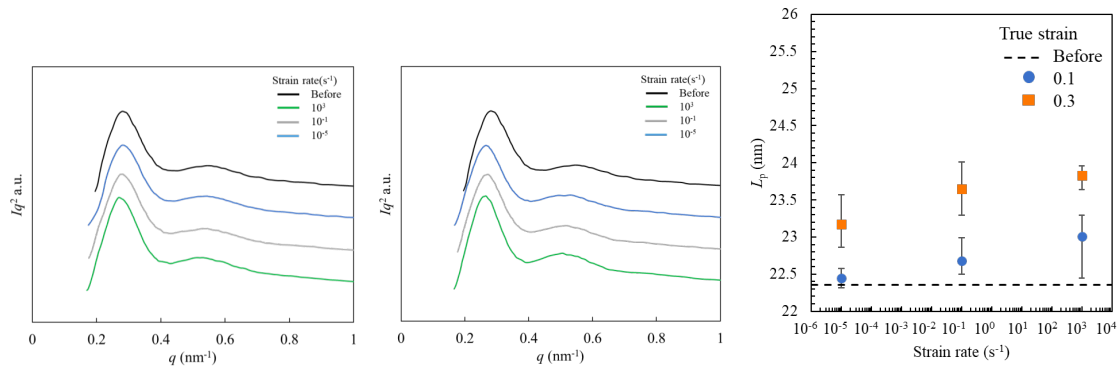


図4 HDPE5.2の真ひずみ0.1および0.3における1D-SAXSプロファイルおよび長周期 L_p とひずみ速度の関係

図5にX線構造解析より作成したHDPE5.2の真ひずみ0.1および0.3における1D-WAXDプロファイルを示す。 M_w に関わらず、すべてのひずみ速度で 22° から 23° 付近に直方晶とみられるピークが存在している。真ひずみ0.1の結果を見ると、ひずみ速度に関わらず、直方晶のピークが確認され、大きな変化は認められなかった。一方、真ひずみ0.3になると、 20° から 21° 付近にピークが見られた。このピークは、ひずみ速度 10^1 s^{-1} から現れ、ひずみ速度 10^3 s^{-1} では真ひずみ0.1と比べて顕著となった。このピークは、直方晶の一部が単斜晶に結晶転移した結果に由来すると考えられる。

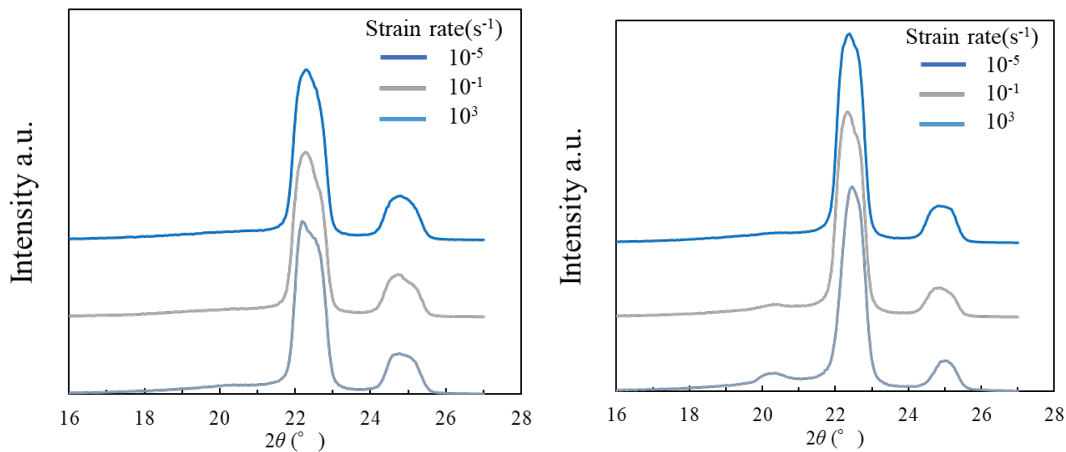


図5 HDPE5.2の真ひずみ0.1および0.3における1D-WAXDプロファイル

これらの結果より、ひずみ量が少ない領域では、ラメラ晶の破壊は生じるが、 M_w およびひずみ速度に関わらず、結晶構造は維持されることがわかった。しかし、ひずみ量が増加すると、ラメラ晶の破壊は進行しながら、同時にラメラ晶には結晶構造が直方晶から単斜晶に変化する程の大きな負荷が作用していることが明らかとなった。この結晶構造の変化は、材料強度のひずみ速度依存性と相関が認められた。

(2) MEMS 半導体ひずみゲージの開発

ひずみゲージの時間分解能はゲージ長および測定物の応力波伝播速度に依存することから、ゲージ長の選択を誤ると点ひずみと平均ひずみの差が拡大してしまう。そのためゲージ長の適応範囲を検討した。図6に、ゲージ長を変更した時間-ひずみ関係を目録値 (Specimen) とともに示す。なお基材部材料と厚さはSiおよび $2 \mu\text{m}$ とし、各ゲージ長さの点ひずみはほぼ同値であるためゲージ長 $100 \mu\text{m}$ のみを示す。

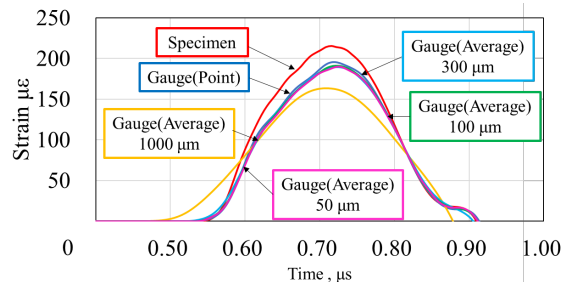


図6 ゲージ長を変更した時間-ひずみ関係

目標値の試験片ひずみと一般製品の最小長さであるゲージ長 $1000 \mu\text{m}$ の平均ひずみに注目すると、ひずみ立ち上がり・立ち下り・最大ひずみにおいて時間応答が追従できていない様子が確認できる。また最大ひずみの差も24.3%あり、ゲージ長 $1000 \mu\text{m}$ では時間分解能および測定精度が不足していることがわかる。

ゲージ長を短縮した $300 \mu\text{m}$ 、 $100 \mu\text{m}$ 、 $50 \mu\text{m}$ の三つはほぼ同値になっており、時間応答の追

従性が確認できる。また目標出力との最大ひずみ差もそれぞれ 12.1%, 11.6%, 11.8% と一致しており、若干の出力低下は見られるが、2 MHz においてゲージ長は 300 μm 程度あれば計測可能と考えられる。ゲージ長さを 100 μm まで短くするとわずかな精度の向上が見られるが 50 μm まで短くしてしまうと逆に精度が悪くなることから、100 μm 程度が最適な長さと考えられる。

解析結果をまとめると、以下の結論が得られた。

- (a) 基材部厚さおよび基材部材料はともに試験片ひずみ出力に影響し、基材部厚さについては薄肉化によりその影響を低減することができる。
- (b) 基材部材料 Si は PI と比較し目標値である試験片を拘束することにより出力値も低下するが、最終的なひずみ出力は PI よりも精度が高く、2 MHz においては基材部材料として Si を用いることが最適であると考えられる。
- (c) 2 MHz において、ゲージ長は 300 μm 程度あれば計測可能と考えられる。ゲージ長さを 100 μm まで短くするとわずかな精度の向上が見られるが 50 μm まで短くしてしまうと逆に精度が悪くなることから、100 μm 程度が最適な長さとなる。

よって、解析により、最適な MEMS 半導体ひずみゲージの検討ができた。今後、現在試作している実製品の検討が必要である。

(3) 高分子材料の高速インデンテーション試験

市販の A5052 アルミニウム合金を用いて、開発した試験装置の性能評価を行った。比較した試験装置は、市販のマイクロインデンテーション試験装置（ダイナミック超微小硬度計 DUH-201SR, 島津製作所）である。圧子は、同材料および同形状の Berkovich 圧子である。この試験装置は荷重制御のため、開発した試験装置の変位制御と異なる。そこで、下記の変位速度と荷重速度の関係式を用いて、速度条件を検討した。

$$\frac{\dot{h}}{h} \approx \frac{\dot{P}}{2P} \quad (1)$$

\dot{h} は変位速度、 h は変位、 \dot{P} は荷重速度、 P は荷重である。 $\dot{h}=1\mu\text{m/s}$ における $P=200\text{mN}$ の押込量から、 $\dot{P}=100\text{mN/s}$ と決定した。

荷重—変位関係から負荷曲率 ($C=P/h^2$) を算出した。図 7 に負荷曲率—変位関係を示す。変形初期は、変位制御よりも荷重制御の方が負荷曲率は高い。これは、有効ひずみ速度を算出すると、変形初期では荷重制御の方が変位制御よりも高いためである。変形量が増えて、有効ひずみ速度が遅くなり、材料強度のひずみ速度依存性が小さくなる準静的ひずみ速度に達すると、両制御でほぼ一致した値となった。よって、試作した高速マイクロインデンテーション試験装置は、十分な性能を有していると判断できる。

使用した試験片は、HDPE10 である。円柱状の HDPE10 を金属板に接着剤で固定して、高速マイクロインデンテーション試験装置に設置した。開発した高速マイクロインデンテーション試験装置から得られた代表的な荷重—変位関係を図 8 に示す。三角錐圧子を押し込んだ際に見られる変位量の増加による非線形的な荷重増加を確認した。また、10 $\mu\text{m/s}$ よりも 100 $\mu\text{m/s}$ の方が押し込中の荷重が増加しており、HDPE10 の材料強度のひずみ速度依存性を確認した。

(4) まとめ

本研究を通じて、高密度ポリエチレンの圧縮変形挙動に及ぼすひずみ速度の影響を微視構造の観点から明らかにした。マルチレイヤーインデンテーション試験の研究対象として、基礎データの構築を完了した。また、インデンテーション試験の高感度化のための MEMS 半導体ひずみゲージの設計が完了した。現在、試作したゲージの検討を行っており、今後のインデンテーション試験への実装が課題である。また、高速マイクロインデンテーション試験装置の開発が完了した。圧子押し込み時の高密度ポリエチレンの微視構造のその場観察により、マルチレイヤーインデンテーション試験への展開が可能である。

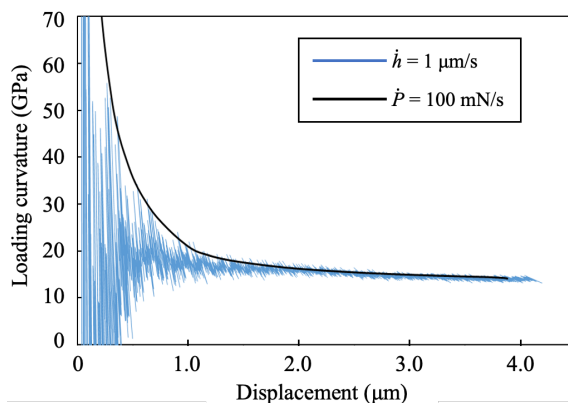


図 7 市販試験装置と試作試験装置から得られた A5052 の負荷曲率—変位関係

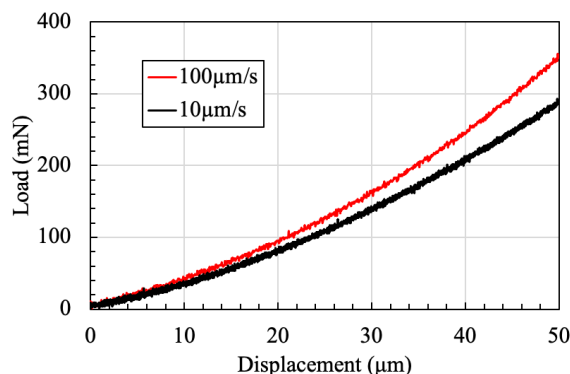


図 8 高速インデンテーション試験から得られた HDPE10 の代表的な荷重—変位関係。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 元師弘, 眞野彩子, 蔭山健介, 坂井建宣	4. 巻 48
2. 論文標題 ポリエチレンにおける時間-温度換算則の現象の解明	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 日本複合材料学会誌	6. 最初と最後の頁 149-155
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hiejima Yusuke, Misumi Nobuhiro, Ippitsu Ryohei, Kida Takumitsu, Higuchi Masahiro, Yamada Hiroyuki, Nitta Koh-hei	4. 巻 291
2. 論文標題 Compressive double yielding in high-density polyethylene over a wide range of strain rates	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Polymer	6. 最初と最後の頁 126590 - 126590
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.polymer.2023.126590	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 山田浩之, 三角宣博, 小笠原永久, 一筆稜平, 樋口理宏, 比江嶋祐介, 新田 晃平
2. 発表標題 高密度ポリエチレンの圧縮変形特性と微視構造の関係
3. 学会等名 日本機械学会M&M2022材料力学カンファレンス
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 三角宣博, 山田浩之, 小笠原永久, 一筆稜平, 樋口理宏, 比江嶋祐介, 新田晃平
2. 発表標題 高速マイクロインデンテーション試験による高密度ポリエチレンの材料強度特性評価
3. 学会等名 日本機械学会M&M2022材料力学カンファレンス
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 三角宣博, 山田浩之, 小笠原永久, 一筆稜平, 樋口理宏, 比江嶋祐介, 新田晃平
2. 発表標題 広範囲ひずみ速度における高密度ポリエチレンの圧縮変形特性
3. 学会等名 日本材料学会第71期学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 三角宣博, 山田浩之, 小笠原永久, 一筆稜平, 樋口理宏, 比江嶋祐介, 新田晃平
2. 発表標題 高密度ポリエチレンの圧縮強度のひずみ速度依存性に及ぼす微細構造変化の影響
3. 学会等名 日本材料学会関東支部2022学生研究交流会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 三角宣博, 山田浩之, 小笠原永久, 一筆稜平, 樋口理宏, 比江嶋祐介, 新田晃平
2. 発表標題 マイクロインデンテーション試験による分子量の異なる高密度ポリエチレンの材料強度特性評価
3. 学会等名 日本機械学会機械材料・材料加工部門第29回機械材料・材料加工技術講演会 (M&P2021)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三角宣博, 山田浩之, 小笠原永久, 一筆稜平, 樋口理宏, 比江嶋祐介, 新田晃平
2. 発表標題 広範囲ひずみ速度における高密度ポリエチレンの圧縮変形特性
3. 学会等名 日本材料学会第71期学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Nobuhiro Misumi, Hiroyuki Yamada, Nagahisa Ogasawara, Ryohei Ippitsu, Masahiro Higuchi, Yusuke Hiejima, Koh-hei Nitta
2. 発表標題 Effect of Microscopic Structural Changes on Strain Rate Dependence of Compressive Strength of High-Density Polyethylene
3. 学会等名 International Conference on Materials & Processing 2022 (ICM&P 2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山田浩之, 小笠原永久, 三角宣博, 一筆稜平, 樋口理宏, 比江嶋祐介, 新田晃平
2. 発表標題 鋭い圧子を用いた高速インデンテーション試験による高密度ポリエチレンの力学特性評価
3. 学会等名 日本実験力学会2023年度年次講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 杉山友仁, 立山耕平, 藤木裕行, 山田浩之, 洞出光洋
2. 発表標題 有限要素法によるMEMSひずみゲージの性能評価
3. 学会等名 日本機械学会M&M2023材料力学カンファレンス
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 伊東大毅, 山田浩之, 小笠原永久, 一筆稜平, 比江嶋祐介
2. 発表標題 高密度ポリエチレンの引張特性に及ぼす試験温度の影響
3. 学会等名 第54回応力・ひずみ測定と強度評価シンポジウム
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	小笠原 永久 (Ogasawara Nagahisa) (60262408)	防衛大学校(総合教育学群、人文社会科学群、応用科学群、電気情報学群及びシステム工学群)・システム工学群・教授 (82723)	
研究分担者	洞出 光洋 (Horade Mitsuhiro) (30583116)	防衛大学校(総合教育学群、人文社会科学群、応用科学群、電気情報学群及びシステム工学群)・システム工学群・准教授 (82723)	
研究分担者	樋口 理宏 (Higuchi Masahiro) (50455185)	金沢大学・フロンティア工学系・准教授 (13301)	
研究分担者	坂井 建宣 (Sakai Takenobu) (10516222)	埼玉大学・理工学研究科・教授 (12401)	

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	比江嶋 祐介 (Hiejima Yusuke) (10415789)	金沢大学・フロンティア工学系・教授 (13301)	
研究協力者	立山 耕平 (Tateyama Kohei) (70837096)	室蘭工業大学・大学院工学研究科・准教授 (10103)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------