

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 5月31日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2010～2012

課題番号：22246014

研究課題名（和文） 表面・界面の機能と強度を支配するケモメカニクス場の解明と制御

研究課題名（英文） Study on Chemo-Mechanical Field Dominating Function and Strength of Surface and Interface of Materials

研究代表者

岸本 喜久雄 (KISHIMOTO KIKUO)

東京工業大学・大学院理工学研究科・教授

研究者番号：30111652

研究成果の概要（和文）：

本研究は高分子系多層構造体の表面・界面の機能・強度特性を明らかにすることを目的とした。薄膜の機械的特性をナノ押し込み試験により求めるための逆問題解析法を提案した。さらに、粘性を考慮した界面強度特性の評価手法を提案し、二軸駆動型ピール試験を実施し、界面強度特性について検討した。また、計装化引っ掻き試験により傷の発生条件を明らかにするとともに、球形の圧子試験により界面接着・はく離挙動について検討した。

研究成果の概要（英文）：

In this study, surface and interface properties of the multilayer structures are investigated. Methods to evaluate the mechanical properties of films are developed through inverse approach. A method for evaluating interface strength is developed and interface strength is evaluated by using two-axes-driven peel method Surface scratch test and probe tack test developed are also conducted.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	22,400,000	6,720,000	29,120,000
2011年度	10,700,000	3,210,000	13,910,000
2012年度	4,200,000	1,260,000	5,460,000
年度			0
年度			0
総計	37,300,000	11,190,000	48,490,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・機械材料・材料力学

キーワード：マイクロ材料力学

1. 研究開始当初の背景

多くの工業製品において、高分子材料の果たす役割は益々増大しており、高分子材料に要求される性能も高度、かつ、多岐にわたってきている。とくに、電子機器をはじめとして多くの機器において高分子系多層構造体を利用されている。これまでの高分子材料の機械的特性を対象とした研究は、高分子化学的観点に立脚したマイクロレベルの研究と、連続体力学に立脚したマクロレベルの研究に大別することができ、それぞれの観点から、多くの研究が行われてきている。近年とくにマルチマテリアル構造体の機能や強度に関して化学的な取り扱いが不可欠となっている多くの問題が存在し、界面近傍の高分子化学と力学場（ケモメカニクス場）の関連を明らかにすることが望まれている。

2. 研究の目的

本研究では高分子系多層薄膜構造体の機能として、表面・界面の力学特性をその代表として取り上げ、力学特性を支配する力学場パラメータを明らかにすることを目的とする。具体的には、表面・界面の力学特性を評価するための解析手法ならびに実験手法を開発するとともに、表面・界面に力学特性を支配するケモメカニクス場を明らかにすることを旨として研究を進めた。

3. 研究の方法

(1) ナノ押し込み試験による表面特性評価

薄膜コーティング技術の利用の高まりから、薄膜の機械的特性の評価が重要になっているなかで、ナノ押し込み試験が広く用いられている。しかしながら、オリバー・ファーマの方法に代表されるような荷重-押し込み線図からの直接的な評価法は、均質材料の弾性係数の測定には適しているもののコーティング材料に対しては基材の影響を受けることや粘弾性的ように時間依存性を示す場合の特性評価には課題がある。そこで、本研究では、ナノインデンテーション試験に数値逆解析を適用することで同定する方法を考案した。

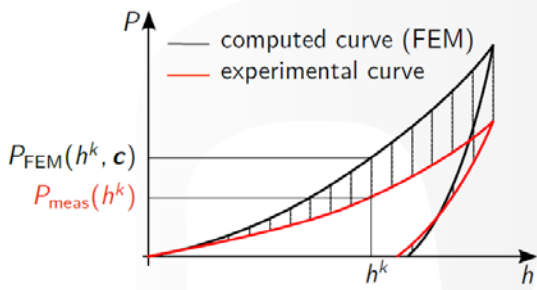


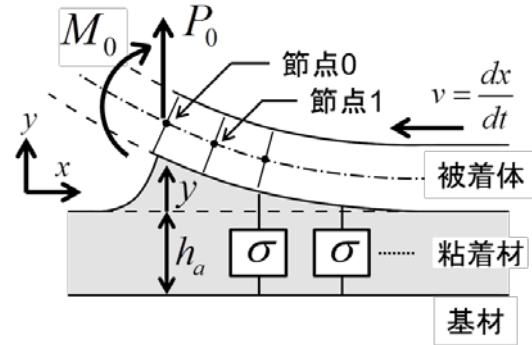
図1. 荷重-押し込み曲線

具体的には、次式のような試験データと有限要素法による数値データの残差の自乗和をコスト関数として定義し、それを最小化することで機械的特性を同定する逆解析手法を用いた（図1参照）。

$$J = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^n (F_{meas}(U_i) - F_{comp}(U_i))^2$$

(2) ひずみ速度依存性を考慮した強度評価

汎用の有限要素解析ソフトでは粘着要素が提供されており、界面特性を定義することで、はく離進展解析を行うことで、ピール試験の定常状態を実現し、塑性散逸エネルギーなどを評価することができる。しかしこの手法では解析前に界面特性が既知でなければならず、界面強度を評価するためには界面特性値を変えた繰り返し解析が必要であり、材料評価に用いるには困難が伴う。本研究では、粘着材の粘性特性を組み込むことが可能な界面強度評価法を提案した。すなわち、図2に示すように粘着材の材料特性を応力がひずみとひずみ速度の関数として表現される材料特性に置き換え、非線形となる被着体の曲げの微分方程式をはり要素を用いた有限要素解析を用いて計算することで界面強度を評価するものである。



$$\text{引張} : \sigma(\varepsilon, \dot{\varepsilon}) = E_a \varepsilon + C_a \varepsilon^{n_1} \cdot \left(\frac{\dot{\varepsilon}}{\dot{\varepsilon}_0} \right)^{n_2}$$

$$\text{圧縮} : \sigma(\varepsilon) = E_{rigid} \varepsilon$$

図2 粘着材のモデル化

(3) 二軸駆動型ピール試験

近年、液晶ディスプレイの多機能化により積層されるフィルムの枚数が増え、製品の薄型化が進んでいる。そこで、製品の信頼性を保つために、フィルムを張り合わせるための粘着シートの適切な評価が重要になっている。種々の厚さ PET、粘着材、OPP からの試験片を、図3に示す二軸駆動型はく離試験装置を用いて、はく離速度を変化させてピール試験を行

った。その際、はく離進展の様子を高速度カメラにより観察した。また、表面に対してコロナ処理を行うことで、界面特性を変化させた試験片も用意した。界面強度は次式により評価した。

$$\Gamma(\theta) = W_{out} - W_e - W_p - W_d - W_{res}$$

ここで、 W_{out} 、 W_e 、 W_p 、 W_d 、 W_{res} はそれぞれ、はく離力のする仕事、弾性ひずみエネルギー、塑性ひずみエネルギー、散逸エネルギー、残留応力による弾性ひずみエネルギーである

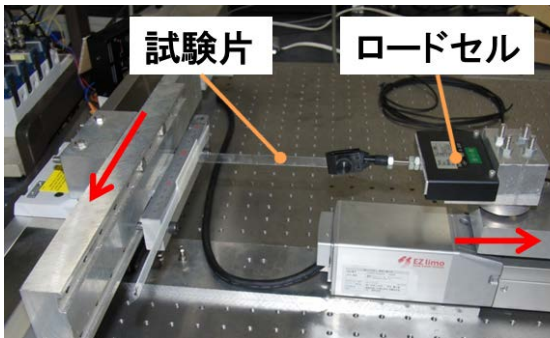


図3 二軸駆動型はく離試験装置

(4) 引っ掻き試験

表面を保護する目的で各種ディスプレイやタッチパネルに貼られる保護フィルム耐スクラッチ特性を評価する方法として引っかき硬度試験(鉛筆法)がある。本研究では、図4に示すように既存の鉛筆引っ掻き試験装置を、荷重測定を可能とするとともに背面観察装置を有する試験機に改良し、試験を行った。

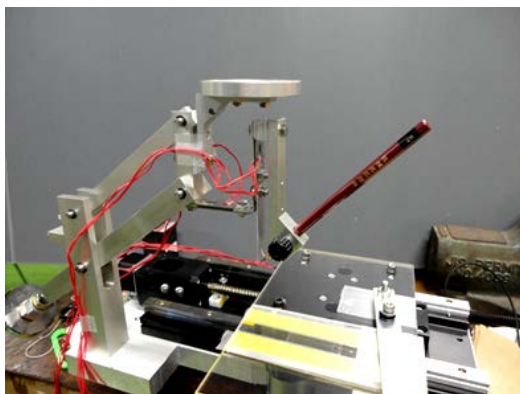


図4. 計装化引っ掻き試験装置

(5) 粘着剤のタック強度評価

粘着剤は様々な製品に使用されているが、商品の表示ラベルなどを接着する粘着剤は瞬間的な接着性を示すタックが重要とされている。本研究では粘着剤のはく離過程にお

ける変形挙動を観察し、粘着剤の厚さがタックに及ぼす影響について調べた。すなわち、図5に示すようなプローブタック試験装置を製作した。試験片に引張荷重を負荷して、球状のプローブをアクチュエータにより上下に動かすことで粘着剤に圧着・はく離させ、その際の荷重を、ロードセルで測定した。同時に顕微鏡を用いて粘着剤のはく離過程における変形の様子を観察した。

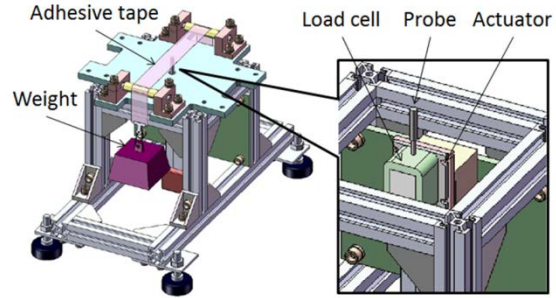


図5 プローブタック試験装置

4. 研究成果

(1) ナノ押し込み試験による表面特性評価

マクスウェルモデルに基づく線形粘弾性体の場合とノルトン・ホフ構成則に基づく粘塑性体の場合について機械的特性の同定法について検討した。接触領域を変位が規定された問題に置き換えることで接触面積が変化する影響を省略する近似を行うことで、感度解析問題を線形化し、コスト関数の勾配を与える式を導出した。本手法の妥当性を弾性接触問題の解析解との比較や粘弾性体と粘塑性体の場合における有限差分から得られた感度との比較により検証した。また、弾塑性体においてもインデンテーション試験における除荷過程は基本的に弾性変形であることに着目し、圧子押し込みに伴う変形を考慮した弾性有限要素解析結果を用いることで、試験に伴って塑性変形が生じる場合についても、除荷曲線から薄膜材の弾性係数を効率的に同定する方法を見出した。基材と薄膜の弾性係数の比を1/10から10まで変化させた解析を行い、本手法によりオリバー・ファーによる方法よりも高い精度で同定が行えること、および膜厚の20%までの圧子押し込み深さまでの範囲において、10%以内の精度で薄膜の弾性係数を同定できることを示した。

(2) ひずみ速度依存性を考慮した評価法

図2において被着体の変形は粘着材に生じる応力を考慮する、はりの方程式を用いて、次式のように表せる。

$$EI \frac{d^4 y}{dx^4} = -E_a \varepsilon - \sigma_{nonlinear}(\varepsilon, \dot{\varepsilon})$$

ここで、定常はく離の場合、次式が成立する。

$$\varepsilon = \frac{y}{h_a} \quad \dot{\varepsilon} = \frac{1}{h_a} \frac{dy}{dt} = \frac{v}{h_a} \frac{dy}{dx}$$

はりの微分方程式をはり要素を用いた有限要素法で離散化すると、次式を得る

$$[\mathbf{K}]\{\mathbf{d}\} = \{\mathbf{f}\} - [\mathbf{H}]\{\boldsymbol{\sigma}(\mathbf{d})\}$$

ここで、 \mathbf{K} は剛性マトリクス、 \mathbf{d} は被着体の変位ベクトルで各節点の y 方向変位と傾きから構成され、 \mathbf{f} は境界条件ではく離先端におけるせん断力と曲げモーメントが最初の成分に入り、 \mathbf{H} は粘着材の応力を変換する行列、 $\boldsymbol{\sigma}$ は被着体の変形に応じて生じる粘着材の応力ベクトルである。この式を繰り返し計算することで被着体の変形 \mathbf{d} を得て、被着体の変形形状を求める。この結果より塑性散逸エネルギーを求めることができ、最終的に界面強度を求めることができる。

図6は被着体の変形について、本手法による結果と理論解を示している。両者は良く一致しており、界面強度について同様な結果が得られた。

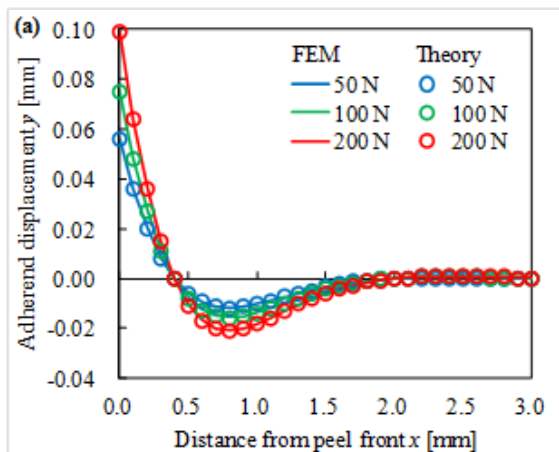


図6 被着体の変形形状の比較

(3) 二軸駆動型ピール試験

はく離エネルギーを、塑性変形の影響が無視できるとして、弾性ひずみエネルギーのみ

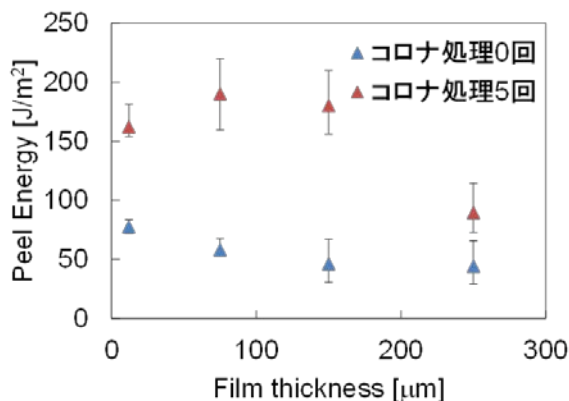


図7 はく離エネルギーの評価結果

を考慮に入れて算定した結果を図7に示す。コロナ処理によりはく離エネルギーが増加し、界面の強度が増加していることが分かる。また、厚い試験片ほど、はく離エネルギーが減少したのは、基材の剛性の影響を受けて、はく離挙動が変わるためだと推察された。

(4) 引っ掻き試験

鉛筆により引っ掻き試験について、接線力を押し付け力で除した値（スクラッチ摩擦係数 μ_s ）と引っ掻き傷との関係を調べた。結果を図8に示す。目視において傷の確認を行い、引っ掻き傷が無い場合を赤、傷がある場合を緑でプロットした。傷が発生しない場合は $\mu_s = 0.10 \sim 0.15$ であるのに対し、傷が発生する場合は $\mu_s \geq 0.15$ となることがわかる。また、薄膜と接する鉛筆芯接触面の凹凸の1つを模擬した鉛筆芯モデルと薄膜から成る3次元の有限要素モデルにより解析を行った結果、接線力増加分の約9割が塑性ひずみエネルギーに供給されていることが推察された。

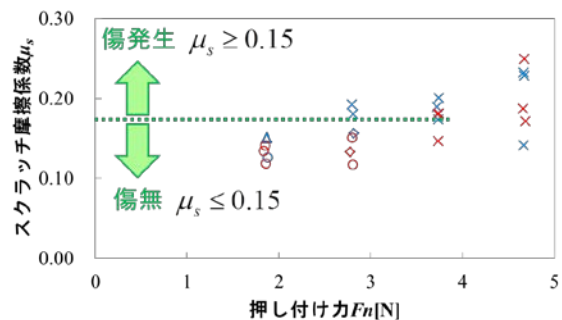


図8 引っ掻き試験の結果

(5) 粘着剤のタック強度評価

図9は、粘着剤厚さ $5\mu\text{m}$ で張力無しのおきとおもり 720g のときのはく離過程における圧着面の様子であり、図中の矢印の方向に張力が負荷している。無負荷の場合には、圧着面が球状プローブの形状に従って円形となるが、張力の負荷によって楕円形になっていることがわかる。図10は粘着剤の厚さと単位面積あたりのはく離エネルギーの関係である。粘着剤厚さが等しいときは、張力に関わらず単位面積あたりのはく離エネルギーはほ

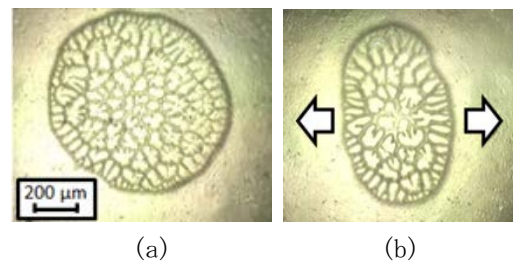


図9 はく離界面の様子 (a)無負荷, (b)負荷

ぼ等しい結果となったことから、張力負荷によって圧着面の面積は変化するものの単位面積あたりのはく離エネルギーには影響しないことが示された。また、粘着剤が薄いほどはく離エネルギーが小さくなったのは、粘着剤が薄い場合には、ぜい性的なはく離挙動を示すことに起因することが明らかとなった。

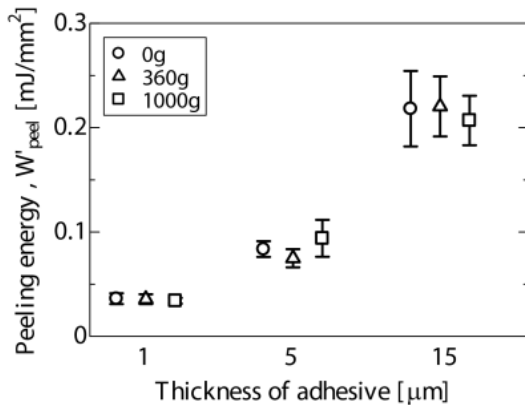


図 10 単位面積積あたりのはく離エネルギー

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 8 件)

1. Tack performance of pressure-sensitive adhesive tapes under tensile loading, Kosuke Takahashi, Masashi Shimizu, Kazuaki Inaba, Kikuo Kishimoto, Yoichi Inao, Toshio Sugizaki, International Journal of Adhesion and Adhesives, Vol.45, pp.90-97, May. 2013. 査読有
2. Inverse Analysis of Multiple Indentation Curves for Thin Film Young's Modulus Evaluation, Joris Prou, Kikuo Kishimoto, Kazuaki Inaba, Andrei Constantinescu, Theoretical and Applied Mechanics Japan, National Committee for IUTAM, Vol. 60, pp. 249-261, 2012. 査読有
3. Investigation of the Correlation between IC Chip Pick-Up Performance and Peeling Behavior of Adhesive Tapes Naoya Saiki, Kazuaki Inaba, Kikuo Kishimoto, Hideo Seno, Kazuhiro Takahashi., Key Engineering Materials, Vol. 462-463, pp. 807-811, Jan. 2011. 査読有
4. Investigation of the Correlation between IC Chip Pick-Up Performance and Peeling Behavior of Adhesive Tapes, Naoya Saiki, Kazuaki Inaba, Kikuo Kishimoto, Hideo Seno, Kazuhiro Takahashi, Key Engineering Materials, Vol. 462-463, pp. 807-811, 2011. 査読有

5. ナノインデンテーション試験による界面強度評価のための推定除荷曲線法, 上月謙太郎, 因幡和晃, 岸本喜久雄, 日本機械学会論文集 A 編, Vol. 77, pp. 629-637, 2011. 査読有
6. Identification of Young's Modulus from Indentation Testing and Inverse Analysis, Joris Prou, Kikuo Kishimoto, Andrei Constantinescu, Journal of Solid Mechanics and Materials Engineering, Vol. 4, No. 6, pp. 781-795, 2010. 査読有
7. 多軸駆動形はく離試験によるラミネート工程のはく離挙動予測, 増田良太, 井上裕嗣, 岸本喜久雄, 早川基行, 稲男洋一. 日本機械学会論文集(A編), Vol. 76, No. 763, pp. 325-331, 2010. 査読有
8. 粘接着テープを用いた半導体製造工程におけるピックアップ性能評価, 佐伯尚哉, 市川功, 因幡和晃, 岸本喜久雄, 日本機械学会論文集 (A編), 76, 766, 730-736, 2010. 査読有

[学会発表] (計 5 件)

1. スティックスリップはく離の発生に及ぼす被着体の剛性の影響, 熊谷理, 高橋航圭, 因幡和晃, 岸本喜久雄, 山田幹典, 谷中雅顕, 日本機械学会 M&M2012 材料力学カンファレンス, M&M2012, 21-24, Sept, 2012, 愛媛大学.
2. プローブタック試験による粘着剤のタック強度とはく離特性の評価, 高橋航圭, 清水雅司, 因幡和晃, 岸本喜久雄, 他, M&M 若手シンポジウム 2012 Hakodate(日本機械学会 材料力学部門) 11-12 Aug. 2012. 函館
3. Evaluation of Thin Film Elastic Modulus from Inverse Analysis of Multiple Indentation Unloading Curves, Joris Prou, Kikuo Kishimoto, Kazuaki Inaba, Andrei Constantinescu, The 60th National Congress of Theoretical & Applied Mechanics, Proceedings of The 60th National Congress of Theoretical & Applied Mechanics, 8-10, Mar. 2011 東京
4. Evaluation of protective film by scratch test, Satoshi Kumagai, Kazuaki Inaba, Kikuo Kishimoto, International Conference on Electronics Materials and Packaging, 12-15, Dec. Kyoto, 2011, 京都
5. Identification of Thin Films Young's Modulus from Continuous Indentation Test and Inverse Analysis, Joris Prou, Kikuo Kishimoto, Andrei Constantinescu, The IV European Conference on Computational Mechanics, Proceedings of the IV European Conference on Computational Mechanics, 16-21, May, 2010. Paris, France

ホームページ

<http://www.mech.titech.ac.jp/~koubutsu/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岸本 喜久雄 (KISHIMOTO KIKUO)

東京工業大学・大学院理工学研究科・教授
研究者番号：30111652

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし