

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 6 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26630011

研究課題名(和文)ソフトインデンテーションの構築

研究課題名(英文)Development of Soft and wet Indentation Concept

研究代表者

澁谷 陽二 (Shibutani, Yoji)

大阪大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：70206150

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、吸着現象を考慮した接触力学について検討した。従来より吸着を伴う接触力学には、Johnson, Kendall and RobertsのJKR理論(1971)と、Dejaguin, Muller and ToporovのDMT理論(1975)がある。まずは、両者の理論を精査することにより類似性を明確にし、実現象への適用にあたっての問題点を明らかにした。つぎに、その吸着が顕著と思われる生体材料の歯牙を対象にして、押込み試験を実施した。水分を含む湿質なサンプルを固化させる技術を開発することでデータのばらつきを大幅に低減し、ソフトインデンテーションとしての一試験方法を提案した。

研究成果の概要(英文)：This research is concerning to the adsorption behavior observed in the physical contact with the soft and wet matters. There are two major theories on this mechanics proposed by Johnson, Kendall and Roberts in 1971 and by Dejaguin, Muller and Toporov in 1975. The present results give the findings about the similarity of both theories and also about the problems for the practical applications. These conclusions contribute to develop the revised model to the contact with adsorption. We have also done the indentation to the human wet teeth with the heterogeneous harder and softer regions. The new technique for solidification of such a wet sample was proposed and the local mechanical properties of the teeth can be successfully obtained by indentation with the much smaller unevenness.

研究分野：固体力学

キーワード：ナノインデンテーション 表面吸着 接触力学 ソフトマター

1. 研究開始当初の背景

研究代表者(澁谷)は、これまでナノスケールでのコンタクトメカニクス(接触力学)として、金属に生じる塑性変形の開始に着目した研究を実施してきた(文献①)。力学場を極端に矮小化することにより、その領域に含まれる初期欠陥を著しく減少させることができる。その結果、塑性の開始である転位群の集団的生成がほぼ理想状態に近い状態で起こり、Hertzの線形接触理論に基づくコンタクトメカニクスから材料の臨界せん断応力(CRSS)の推定に成果を上げた(文献②)。一方、被押し込み材が高分子材料や生体材料あるいはゲル材料のようなソフトマターでは、非晶性の分子鎖構造が主たる内部構造であることから金属に比べて変形抵抗が小さく、また表面吸着現象を伴った接触特性を示す場合がある。このようなソフトマターに対する押し込みの非線形接触力学挙動の解明と応用は、保水性を持つ先端的な医療材料等の特性評価や機能評価につながると考えた。

2. 研究の目的

数種類の高分子材料をガラス転移温度以上の高温環境下で保持し、ナノインデンテーションを実施する。その結果、表面性状からの投錨効果や弱い相互作用による物理吸着を活性化させた試料での押し込み試験から、有意な吸着力を発生させる。そして、その一連の表面物理・接触力学の連成系を表現できるマルチフィジクス非線形接触理論の構築を行い、吸着が解離する不安定点の予測から吸着表面の表面エネルギーといった特性評価も可能とするソフトインデンテーションの方法論を確立する。

3. 研究の方法

平成26年度において：

(1) 高分子材料のナノインデンテーションの実施：5種類の高分子材料、PET(ポリエチレンテレフタレート)、PTFE(テフロン)、PI(ポリイミド)、PEEK(ポリエーテルエーテルケトン)、PC(ポリカーボネイド)の試料を作成し、現有設備のNanoIndenter G200(アジレント・テクノロジー社製)を用いて、環境温度の上昇試験により、

- 1) ヤング率の温度依存性
 - 2) ガラス転移温度の同定
- と、常温において、
- 3) 押し込み荷重一定試験(クリープ試験)
 - 4) 押し込み変位一定試験(応力緩和試験)

を行う。

つぎに、ナノインデンテーション試験機のダイヤモンド圧子を、a)従来のBerkovich型三角錐圧子に加えて、b)フラット圧子(先端部直径 $D=5\mu\text{m}$ の平坦部)、c)フラット圧子(先端部直径 $D=20\mu\text{m}$ の平坦部)のように接触領域を大きくするフラット圧子での試験を行い、効果的な吸着力が得られる試験条件を探

索するとともに、圧子形状や接触面積による表面張力の発生状況を調査する。

(2) 構成則モデルの同定

平成27年度以降の表面物理モデルとの整合性を考え、時間依存性を表す特性関数、クリープ関数 $J(t)$ と緩和関数 $G(t)$ を一般化Voigtモデルと一般化Maxwellモデルから求めておく。

(3) 試料温度の較正曲線

既存のナノインデンテーション試験機(NanoIndenter G200)に、すでに購入している加熱ステージ(U9820A-060、アジレント・テクノロジー社製)を設置する。このステージは 350°C まで加熱可能となっているので、熱電対を設置した試料に対して加熱予備試験を行い、所定の温度に対する誤差の確認と較正曲線を求める。

平成27年度において：

(1) 表面物理と接触力学との連成

吸着を伴う接触における内部エネルギーについて考える。通常のHertzの接触理論に基づく弾性のひずみエネルギー U_1 は簡便に計算できる。それに対して吸着によるエネルギー U_2 を現象論的に見積もり、それらを合わせることで系の持つ内部エネルギー U_E が算出できる。吸着に伴う押し込み荷重増分 ΔP と押し込み変位の増分 Δh が、従来からのJKR理論(1971)では接触半径 a を介して線形に関係づけられている。

検討すべき点は、i)表面物理の観点から、上式の線形関係式の妥当性そして弾性率 M の物理的意味を明確にすること、ii)圧子と表面相あるいは液相との界面の接触角 θ を決定する表面張力の関係式(Youngの式)との整合性、そしてiii)表面物理における熱力学的考察、の3点について考察を行い、2つの物理が連成するマルチフィジクス問題としての定式化を試みる。

(2) 生体試料への適用

保水性の著しい試料の押し込みでは、液相の生成とともに表面張力の発生により接触近傍の挙動に大きな影響を与えることが予想される。現在、大阪大学歯学部との共同研究を実施しており、老化に伴い糖化が進む結果歯牙の色調や物性が変化することが言われている。その変化をナノインデンテーションで評価することで生化学的経年効果を確認しようとしている。試料の歯牙は断面をスライスした後、保存水で保持し、保水された状態での押し込みを実施する必要がある。歯牙のヤング率や硬度は、糖化することにより脆化することが予想され、部位によるヤング率や硬度の違いを検出する。

4. 研究成果

(1) 高分子材料のナノインデンテーション：

5種類の高分子材料、PET(ポリエチレンテレフタレート)、PTFE(テフロン)、PI(ポリイミド)、PEEK(ポリエーテルエーテルケトン)、PC(ポリカーボネイド)の試料を作成し、現有設備のNanoIndenter G200(アジレント・テクノロジー社製)を用いて、環境温度の上昇試験により、1)ヤング率の温度依存性、2)ガラス転移温度 T_g の同定と、常温において、3)押し込み荷重一定試験(クリープ試験)、4)押し込み変位一定試験(応力緩和試験)を行った。本手法により T_g が明確に確認できた材料に対して、 T_g 以上の温度でのナノインデンテーションを実施し、流動性が高まった状態での接触挙動について調べた(図1参照)。

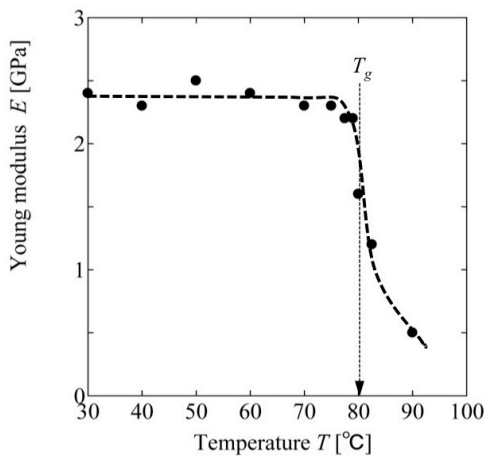


図1 PETのヤング率の温度依存性とガラス転移温度

つぎに、ナノインデンターのダイヤモンド圧子を、a)従来のBerkovich型三角錐圧子に加えて、b)フラット圧子(先端部直径 $D=5\mu\text{m}$ の平坦部)、c)フラット圧子(先端部直径 $D=20\mu\text{m}$ の平坦部)のように接触領域を大きくするフラット圧子での試験を行い、効果的な吸着力が得られる試験条件を探索するとともに、圧子形状や接触面積による表面張力の発生状況を調査した。その結果、実験的に検討できる大きな吸着力の生成には至らなかった。

(2) 構成則モデルの同定

平成27年度以降の表面物理モデルとの整合性を考え、データから時間依存性を表す特性関数、クリープ関数と緩和関数を一般化Voigtモデルと一般化Maxwellモデルから求めた。そして、吸着を取りこんだ力学モデルとして、JKR(Johnson, Kendall, Roberts, 1971)モデルを用いた解析を行った。さらに、JKRの比較対象として、DMT(Derjaguin, Muller, Toporov, 1975)モデルの存在を得た。

(1) 表面物理と接触力学との連成については、吸着を伴う接触における内部エネルギーを考え、これを接触半径の摂動に対する変分原理から支配される押し込み荷重と押し込み変位の関係式を得た。そして、表面物理における熱力

学的考察を行い、2つの物理が連成するマルチフィジクス問題としての定式化を行った。その解析結果の一例を図2と3に示す。図2は、押し込み荷重と変位の関係であり、図3は硬度と変位の関係を表している。

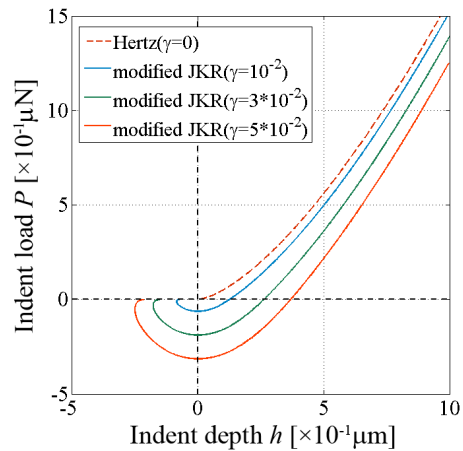


図2 押し込み荷重 P と変位 h の関係

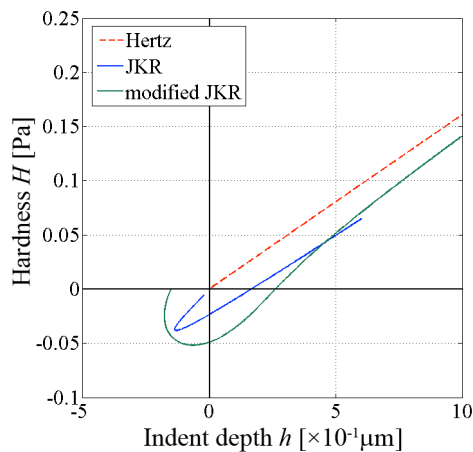


図3 硬度 H と変位 h の関係

(2) 生体試料への適用については、表面性状がより平坦なサンプル作成が可能になり、その結果ヤング率のばらつきが大幅に減少し、糖化することによる歯牙の異なる部位におけるヤング率や硬度の違いが測定できた。そのサンプルの一例を図4に示す。

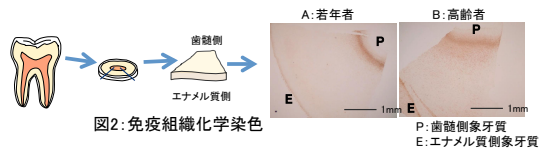


図4 歯牙のサンプル例

測定精度が著しく向上したことで、図5のように若年者と高齢者のコラーゲン繊維のヤング率が有意に異なることがわかり、図6のようにその違いは歯髄側、エナメル質側に

関わらず高齢者の組織が硬化していることが判明した。

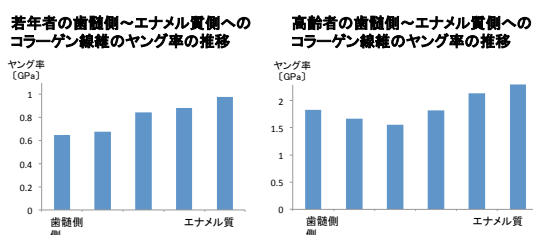


図5 若年者と高齢者の歯牙のヤング率

歯髄側とエナメル質側における若年者と高齢者のコラーゲン繊維のヤング率の比較

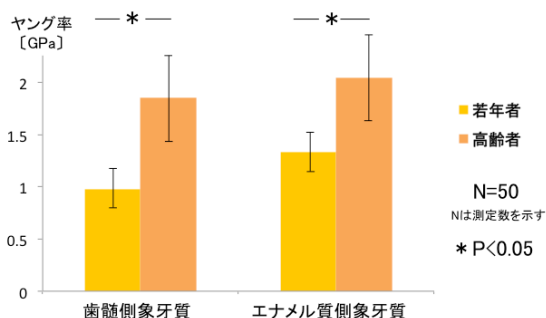


図6 部位によるヤング率における違い

<引用文献>

- ① 渋谷陽二, ナノインデンテーションによる局所的な材料強度評価, 機械の研究, 64 巻, 2012, pp. 21.
- ② Y. Shibutani, T. Tsuru and A. Koyama, Nanoplastic deformation of nanoindentation: Crystallographic dependence of displacement bursts, Acta mater., Vol. 55, 2007, pp. 1813.

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)

[学会発表] (計4件)

- ・ 渋谷陽二, ナノインデンテーションを用いた時間に依存した力学特性と力学的サイズ効果, 日本真空学会・機能薄膜部会(招待講演), 2014年10月29日～2014年10月29日, オミクロンテクノロジー・ジャパン(株)
- ・ 久保美寿穂, 三浦治郎, 松中大介, 田中展, 竹重文雄, 渋谷陽二, ナノインデンテーションにおける象牙質コラーゲン繊維の物性評価, 日本真空学会機能薄膜部会ナノ・キャラクターゼーション専門部会, 2015年09月24日～2015年09月24日, 東陽テクニカ本社(東京都, 中央区)
- ・ 松中大介, 渋谷陽二, 田中展, インデンテーションにおける凝着接触の効果に関する理論的考察, 日本機械学会第28回計算力学講演会, 2015年10月10日～2015年10月10日, 横浜国立大学(神奈川県, 横浜市)

・ 渋谷陽二, ナノインデンテーションによる局所的な材料強度・特性評価, 日本機械学会関西支部第339回講習会, 2015年10月30日～2015年10月30日, 日本機械学会関西支部(大阪府, 大阪市)

[その他]

ホームページ等

・ 渋谷・垂水研究室

<http://www-comec.mech.eng.osaka-u.ac.jp/>

・ アトミックデザイン研究センター

<http://www.camt.eng.osaka-u.ac.jp/index.html>

.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

渋谷 陽二 (SHIBUTANI Yoji)

大阪大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号: 70206150

(2) 研究分担者

松中 大介 (MATSUNAKA Daisuke)

信州大学・工学部・准教授

研究者番号: 60403151