

樹脂モールド構造における内部界面  
強度評価の研究

山崎 美稀

# 目次

<b>第 1 章 序論</b>	<b>9</b>
1.1 研究背景	9
1.1.1 樹脂モールド構造とその特徴	9
1.1.2 樹脂モールド構造を用いた製品	10
1.1.3 樹脂モールド構造の現状と課題	12
1.1.4 樹脂モールド構造の内部界面強度評価技術の現状と課題	14
1.2 本論文の目的と構成	16
1.2.1 本論文の構成	18
<b>第 2 章 樹脂モールド構造のプロセス</b>	<b>19</b>
2.1 緒言	19
2.2 樹脂モールド試験体の界面生成プロセス	20
2.3 モールド樹脂層に発生する応力	21
2.4 熱変形量の測定	28
2.5 結言	33
<b>第 3 章 樹脂モールド構造の内部接着界面のはく離実験</b>	<b>35</b>
3.1 緒言	35
3.2 樹脂材料の選定と基礎特性	36
3.2.1 樹脂材料の選定	36
3.2.2 樹脂材料の基礎特性	38
3.3 試験体の概要と実験方法	40
3.3.1 試験体の概要	40
3.3.2 試験方法	41
3.4 樹脂モールド構造の接着界面はく離実験	44
3.5 せん断力と面圧との関係	45

---

3.6	結言	47
<b>第4章</b>	<b>接着・摩擦有限要素解析手法の提案</b>	<b>49</b>
4.1	緒言	49
4.2	界面に作用する力のモデル化	50
4.3	有限要素法に基づく接触解析手法	51
4.3.1	残留応力による面圧作用	53
4.3.2	接触界面の摩擦力の作用	53
4.3.3	接着界面の接着力の作用	54
4.3.4	有限要素法に基づく接触解析手法	54
4.4	接着係数および接着強度指標の妥当性検証	56
4.4.1	接着係数および接着強度指標の定義	56
4.4.2	せん断力の実験値と解析値の比較	56
4.5	気中絶縁ロッドの開発への適用	62
4.5.1	有限要素モデル	62
4.5.2	絶縁ロッドの強度解析	63
4.5.3	絶縁ロッドの強度試験	64
4.6	結言	64
<b>第5章</b>	<b>原子レベルモデリングによる界面接着強度の検証</b>	<b>66</b>
5.1	緒言	66
5.2	古典分子動力学手法	67
5.2.1	材料の力学特性の古典力学シミュレーション [76]	68
5.3	ニュートン力学的分子動力学法による接着強度の評価	69
5.3.1	分子動力学手法によるはく離モード I の接着強度評価	69
5.3.2	分子動力学手法によるはく離モード II の接着強度評価	75
5.3.3	はく離の進展モードについて	78
5.3.4	モード I の界面破壊エネルギーと接着強度指標との比較	81
5.4	実験と計算の比較に関する考察	82
5.4.1	定量的な比較の検討	82
5.4.2	計算と実験のスケール差の定量的な検討	83
5.5	結言	88

---

第 6 章 結論	89
6.1 本研究の結論	89
6.2 製品開発における本研究成果の位置付けと今後の展開	93
6.3 提案手法の将来の展望	93
付録 A	95
A.1 Wiener-Khinchin Theorem	95
A.2 有効接触面積	98
参考文献	99
研究業績	110
謝辞	112

## 目次

1.1	24- kV vacuum-switchgear (SF <sub>6</sub> -free environmental correspondence). . . . .	12
1.2	Flowchart of the thesis. . . . .	18
2.1	Heat curing processes of resins . . . . .	22
2.2	Relationship between temperature and time . . . . .	23
2.3	Volume change of epoxy in curing . . . . .	23
2.4	Mechanical model for stress relaxation . . . . .	26
2.5	Stress relaxation of epoxy resin . [91] . . . . .	26
2.6	Stress in the cooling process . [91] . . . . .	27
2.7	The mounting arrangement of distortion sensor . . . . .	31
2.8	Circumferential strain variation in mold process . . . . .	31
2.9	The test piece of liquefied resin . . . . .	31
2.10	The test piece of solid resin . . . . .	32
2.11	Deformation on the surface of resin . . . . .	32
2.12	The interface between resin and metal . . . . .	33
3.1	Comparison of resin material characteristic using Radar chart . . . . .	37
3.2	Physical-properties measurement examination of epoxy resin . . . . .	38
3.3	Relation between tensile stress and strain :Static tension test(0.001 m/sec) . .	38
3.4	Relation between tensile stress and strain :Static tension test(0.01 m/sec) . .	39
3.5	Relation between tensile stress and strain :Impact-test(1.0 m/sec) . . . . .	39
3.6	Specification of element model . . . . .	40
3.7	Experimental system . . . . .	41
3.8	Enlarged view of experimental system . . . . .	42
3.9	Test piece . . . . .	42
3.10	Relationship between temperature and time . . . . .	43

---

3.11	Axially symmetrical cross section . . . . .	43
3.12	Test piece for halfway test . . . . .	44
3.13	Relationship between shear forces and displacement . . . . .	45
3.14	Relationship between shear forces and displacement . . . . .	46
3.15	Relationship between maximum shear forces and pressure forces . . . . .	47
4.1	Concept of test piece (Axially symmetrical cross section) . . . . .	51
4.2	Modeling of contact interface . . . . .	52
4.3	Analysis model (Non-linear spring) . . . . .	55
4.4	Flowchart of contact analysis . . . . .	55
4.5	Axially symmetrical cross section FEM-model . . . . .	58
4.6	Radial stress distribution by FEM . . . . .	59
4.7	Process of contact analysis (Case of C1011) . . . . .	59
4.8	Comparison between measured and numerical-analysis results (Case of C1011) .	60
4.9	Comparison between measured and numerical-analysis results (Case of A1050) .	61
4.10	Comparison between measured and numerical-analysis results (Case of SS400) .	61
4.11	Comparison between measured and numerical-analysis results (Case of C1011) .	61
4.12	Axial symmetry model of air-insulated Rod. . . . .	62
4.13	Relationship between shear strain and displacement . . . . .	63
4.14	Breaking force 68kN . . . . .	64
5.1	Prediction of the adhesive strength of resin [76] . . . . .	69
5.2	Concept of interface fracture . . . . .	70
5.3	Method for calculating adhesive fracture energy . . . . .	71
5.4	Molecular structure of crystalline-like resin . . . . .	71
5.5	Potential interatomic interaction . . . . .	72
5.6	Potential intermolecular interaction . . . . .	73
5.7	Resin/copper interface structure obtained from molecular dynamics . . . . .	73
5.8	Resin/iron interface structure obtained from molecular dynamics . . . . .	73
5.9	Resin/aluminum interface structure obtained from molecular dynamics . . . . .	74
5.10	The concept of a lattice mismatch . . . . .	75
5.11	Simulation model of Mode-II . . . . .	76

---

5.12	Example of atomic configuration with displacement of 0.25 nm . . . . .	76
5.13	Variation in energy at interface model due to applied displacement . . . . .	77
5.14	Surface profile ( $\mu\text{m}$ ) . . . . .	79
5.15	Resin/aluminum interface profile and its FEM analysis results . . . . .	80
5.16	Comparison of adhesive strength of experiment and simulation . . . . .	81
5.17	Surface roughness power spectra of aluminum cylinder . . . . .	85
5.18	Relation between effective contact area and wave vector . . . . .	87

## 表目次

1.1	History of epoxy casting insulated apparatuses [5]. . . . .	10
1.2	Specification of Cubicle-type Vacuum Insulated Switch-gear . . . . .	11
2.1	Setting-out item and setting-out conditions of mold process . . . . .	29
3.1	Resin material characteristic list . . . . .	37
4.1	Coefficients of friction and adhesion . . . . .	57
4.2	Physical properties . . . . .	57
5.1	Maximum shear force and interfacial pressure . . . . .	78
5.2	Adhesive strength index and interfacial fracture energy . . . . .	78

# 第1章 序論

## 1.1 研究背景

### 1.1.1 樹脂モールド構造とその特徴

樹脂材料は軽量で高強度の特性を持つことから、金属やセラミックを樹脂でモールドした絶縁ロッドや絶縁容器などの絶縁体として電力機器に幅広く利用されている [1], [2]. エポキシ樹脂モールド絶縁体は電力機器の小型化に貢献した技術の一つとして挙げられる。エポキシ樹脂は熱硬化性樹脂の一種であり、その硬化反応プロセスは付加重合反応であるため、ガスなどの反応副生成物がなく、ポイドなどの初期欠陥の発生が少ない高電圧絶縁に適した材料である [4].

国内におけるエポキシ樹脂モールド絶縁の利用は1960年代から始まり、表 1.1 に示すように、初期は低圧の計器用変成器、遮断器、支持物、ブッシング等の絶縁被覆への適用が中心であった。1964年には東海道新幹線車両用変圧器の高圧ブッシング、1969年にはSF<sub>6</sub> ガス絶縁スイッチギヤ (Gasinsulated switcgear : GIS) に適用されている [3].

スイッチギヤは、電力の安定供給のために必要不可欠な系統の開閉、保護、監視、計測などの機能を備えた装置であり、ビル、工場、プラント、交通システムなどの受配電設備として幅広い分野に利用されている。絶縁スペーサなどのモールド絶縁体は、液状あるいは固体を溶解したエポキシ樹脂を型に流し込んで固化することで所定形状としている。モールド絶縁体は所定の肉厚を有するため、硬化反応時の発熱、硬化収縮、およびそれらに伴い発生する収縮応力、成形ひずみに留意する必要がある。これらの挙動は、樹脂、硬化剤、無機充填剤などの選択・配合により支配されるとともに、注型方法、注型樹脂量、注型絶縁物の肉厚、温度条件などにも依存している [4].

また、近年の地球環境への配慮から SF<sub>6</sub> ガスの使用量削減が求められており、エポキシ樹脂モールド絶縁をはじめとする固体絶縁や真空絶縁の重要度が増している。今後、エポキシ樹脂による絶縁体が担う役割は大きくなっていくと推測される。

以上、樹脂モールド構造とその特徴について、樹脂モールド構造は軽量で高強度のと特徴から、電力機器の絶縁体としてのその役割が大きいことを述べた。

しかし、樹脂モールド構造を製作するときに樹脂層と材料の組み合わせによってモールド樹脂がひずみを受け、樹脂層のクラックや界面はく離を発生させる原因となったり、過酷な冷熱試験などでは大きな熱応力が発生して、樹脂層を破壊したりするので、目的とする形状、性能を備えたモールド構造を得ることが困難な場合が多いなど課題も多いのが現状である。

そのため製品の強度、安定性を保持する上で樹脂モールド構造の中に発生する応力関係を知ることが必要である。特に電力機器に用いる樹脂絶縁体は、絶縁性能を確保するために樹脂と金属間に強固な接着が要求される。その樹脂モールド構造の内部界面強度を正しく評価することによって、電力機器の信頼性を向上させることができると考える。

Table 1.1: History of epoxy casting insulated apparatuses [5].

Year	Epoxy casting resin insulated electrical equipment
1955 ~ 1960	Instrument transformer
1960 ~ 1965	Insulator, Bushing, Magnetic blowout circuit breaker
1965 ~ 1970	Submersible motor, Compact type substation
1970 ~	SF <sub>6</sub> gas insulated compact type substation, Solid insulated transformer

### 1.1.2 樹脂モールド構造を用いた製品

樹脂モールド構造を用いた製品にはケーブル、絶縁ロッド、絶縁容器を含む絶縁開閉装置などの電力機器以外にも自動車、通信、家電などに使用される電子部品など幅広く、電力機器への適用は年々拡大している。特にスイッチギアの樹脂モールド構造の適用率は5割を越え樹脂モールド構造に関する技術の開発は欠かせない。

現在、電圧 24/36 kV クラスのスイッチギアの主流は、六フッ化硫黄 (SF<sub>6</sub>) ガスを利用したキュービクル形ガス絶縁スイッチギア (Cubicle-type Gas Insulated Switch-gear : C-GIS) である。SF<sub>6</sub> ガスは極めて電気特性に優れ不燃性で安全なガスとして、電気絶縁用に幅広く使用されており、機器の小型化に大きく寄与している。その反面、地球温暖化係数 (GWP) が二酸化炭素ガス (CO<sub>2</sub>) の約 23900 倍であり、1997 年に開催された地球温暖化防止京都会議 (COP3) において、排出抑制対象ガスに指定された。以来、SF<sub>6</sub> ガスを削減した機器の研究開発が活発

に行われている [6] .

このような背景から,  $SF_6$  ガスを全く使用せず, 従来機種である C-GIS より小型・軽量化を図った固体絶縁スイッチギヤ ( Cubicle-type Solid Insulated Switch-gear : SIS ) [7] や真空絶縁スイッチギヤ ( Cubicle-type Vacuum Insulated Switch-gear : VIS ) [8] の開発が行われ, 商品化している . これらの環境型スイッチギヤの開発コンセプトは,  $SF_6$  ガスフリーによる環境調和はもちろんのこと, 変電所のリニューアルなどを考慮した小型・軽量化, 省メンテナンス化, さらに, 安全性, 信頼性の向上である . VIS の仕様を表 1.2, 24 kV クラスの VIS の代表的な構造を図 1.1 に示す . このクラスの遮断器は真空絶縁を適用した真空遮断器 ( Vacuum Circuit-Breaker : VCB ) が主流であるが, 近年, 断路器にも真空絶縁を適用した真空断路器 ( Vacuum Disconnecting Switch : VDS ) が採用されている . VCB や VDS を含む高電圧主回路部は, エポキシ注型樹脂でモールドによる真空絶縁の採用により,  $SF_6$  ガスフリーを実現している .

さらに, 主回路構造を簡素化し, モールドしたエポキシ表面に外層シールドを施して相分離することにより, 小型・軽量化を図り, 短絡故障の抑制と感電防止などの安全性を向上させた . また, VCB, VDS などの操作機構は, 従来から用いられてきた複雑な構成の電動ばね操作機構に対して, 永久磁石とソレノイドコイルを組み合わせ構成したバランス型電磁操作機構 ( BMA ) を開発し, 機構部の部品点数を大幅に削減することで, 信頼性の向上と省メンテナンス化が図られている . 環境調和, 小型・軽量, 省資源の観点で C-GIS と VIS を比較すると, SIS は,  $SF_6$

Table 1.2: Specification of Cubicle-type Vacuum Insulated Switch-gear .

Specification	VIS
Rated voltage	7.2/12/24 kV
Rated current	630/800/1,250 A
A short-time permissible current	25 kV 3 sec
Insulated medium	Vacuum + epoxy
Insulated structure	Phase separation
Operation machine composition	CB, DS, ES solenoid control(Greaseless)
Mass	650 ~ 750 kg
Size (height × depth × width) (mm)	2,000 × 1,300 × 600
Notes-Abbreviation explanation    CB ( Circuit-breaker ) , DS ( Disconnecting Switch ) , ES ( Earthing Switch )	

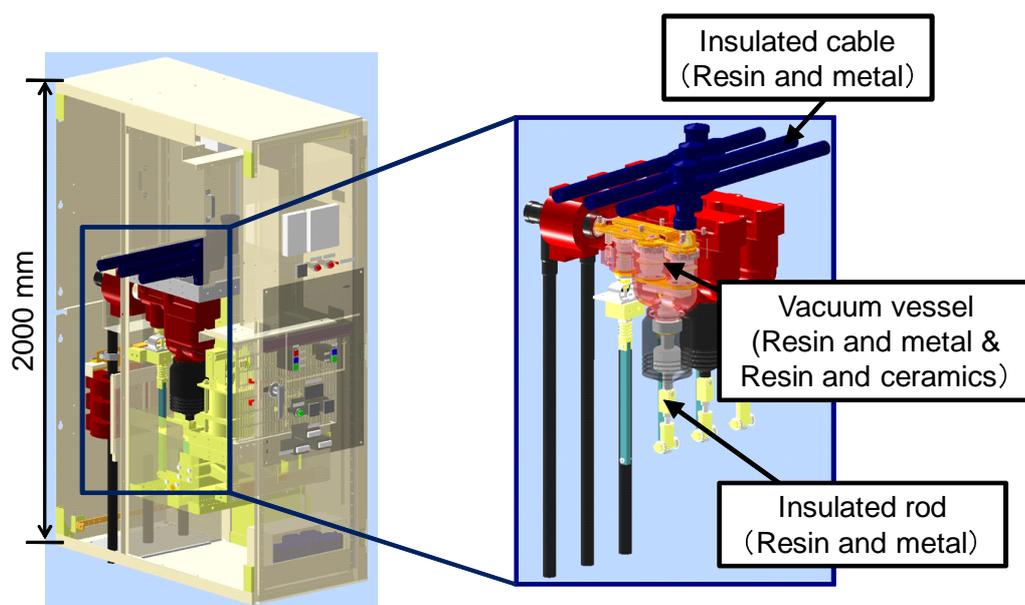


Fig. 1.1: 24- kV vacuum-switchgear ( $\text{SF}_6$ -free environmental correspondence).

ガスフリーはもちろんのこと，質量半減，容積 40 % 減，部品点数半減を実現している [9] 。

以上，樹脂モールド構造を用いる製品，特に樹脂モールド構造のスイッチギヤへの適用について述べた。

環境型スイッチギヤを支えるエポキシモールド樹脂スイッチギヤは，絶縁体としてばかりでなく主回路部を支える構造体としても主要な役割を担う。また，機器の小型・軽量化のために，エポキシモールド樹脂と線膨張係数が大きく異なるセラミックス（VCB，VDS に使用される真空容器）や金属導体を直接モールドする必要があり，内部界面には複雑な挙動が起これと考えられる。そこで，従来の材料に比べて機械特性，耐熱性，靱性を向上させた新しい樹脂材料の開発の検討はもちろんのこと樹脂モールド構造の内部界面の強度評価技術の開発は不可欠である。

### 1.1.3 樹脂モールド構造の現状と課題

樹脂モールド構造の内部界面の評価技術の開発が最も必要とされる製品分野のひとつが半導体パッケージと言える。半導体パッケージの基本的な課題として，複数の異なる材料を接着接合した多層構造体であるため，半導体素子の動作発熱等による温度変動によって材料間の熱膨張差に伴い熱応力が発生するという問題がある。特に半導体素子であるシリコン及びリードフ

レームと、半導体素子を外部環境から保護するためのモールド樹脂と線膨張係数が大きく（一桁）違うため、熱応力発生に伴い接着界面にはく離が発生し、樹脂クラックや接合部の断線など致命的な損傷を引き起こす。

また、半導体パッケージの内部界面のはく離は直接半導体素子の電気的な動作に影響を与えないが、はく離端部は応力の特異点となるため、半導体素子の動作に伴う温度サイクル時の熱応力によって、樹脂のクラック発生やクラック進展が進み致命的な損傷の引き金となり得る [10–12]。特に樹脂との接着界面の強度設計を定量的に実施することは異種材料構造、特にこのようなパッケージの構造設計上極めて根本かつ重要な課題となる。

電力機器に用いる樹脂モールド構造についても上記と同様な課題を抱えている。特に絶縁を目的で使用する場合が多いことから、上記の課題に加え絶縁上の課題を解決しなければならない。

スイッチギヤの場合、絶縁容器の内部構造の電界特性を優先して構造が形成される特徴がある。つまり、高電圧部と接地電位の距離が近いと電界が集中しやすいため、電界集中部付近はシールドなどの金属金具を用いるなど複雑に入り組んで形成される。また、材料間の線膨張係数の差によるモールド後の熱収縮による変形によって応力集中が起き、き裂やはく離が発生しやすい。この結果、空隙が形成され絶縁性能が低下する。これは、空隙に硬化反応時の残渣やエポキシ樹脂に浸透していた空気や水分が出てきて、絶縁性能の低い気体充たされた状態となるためである。

このような樹脂内部の界面はく離は、樹脂内部のポイドや構造の凹凸による影響で界面に接着されていない部分などが起点となりはく離が進展すると考えられる。 $\text{Al}_2\text{O}_3$  絶縁筒円面は樹脂との線膨張係数の差が大きいため、界面に加わる面圧が大きく接着強度の増加が期待できるが、C-VIS の樹脂モールド内部構造は高い電圧が流れる銅導体、電気的な絶縁性能を確保するために用いるアルミニウムシールド、鉄締結部など多くの金属と樹脂間の界面が存在し、これらの界面におけるはく離抑制が大きな課題となっている。

特に、スイッチギヤの容器に樹脂モールド構造を用いる場合は、スイッチギヤの機能である開閉動作の際に樹脂と金属間界面に加わる衝撃や振動により、はく離進展につながる恐れがある。今まではく離が生じても絶縁性能が確保出来るように金属の表面に導電性塗料を用いて界面処理を行っている。しかし、導電性塗料による界面処理は導体や容器の形状が複雑であることから作業性が悪く、コスト増加につながる。したがって、樹脂モールド内部の界面接着強度の評価技術を確認させて導電性塗料レスの界面構造の検討が必要である。

さらに、樹脂モールド構造の製品への適用動向は、自動車の場合、エンジン直接搭載等による使用環境の苛酷化、小型・軽量化による高電圧化・機能向上・複雑化によるモールド領域の

微小化・薄肉化等，より一層厳しくなっているのが現状である．

以上，樹脂モールド構造の現状と課題について，異種構造体である樹脂モールド構造の内部界面には応力集中によるはく離やクラック発生の可能性が高いこと，電気的な絶縁性能を確保するためには樹脂モールド構造の内部界面に強い接着が要求されること，樹脂との接着界面の強度設計を定量的に実施することが異種材料構造の設計上極めて根本かつ重要な課題となることについて述べた．

#### 1.1.4 樹脂モールド構造の内部界面強度評価技術の現状と課題

樹脂モールド構造を用いる半導体パッケージ分野の構造設計では樹脂接着界面のはく離発生を許容した強度設計が行われてきた．すなわち，接着界面のはく離が発生した場合でも，そのはく離端からのパッケージクラックを防止する設計であるため，界面評価手法よりも界面破壊の原因究明の研究が活発に行われてきた．西村ら [13,14] はパッケージクラックがチップ，リードフレーム，封止樹脂相互界面はく離によるものと推定して，温度サイクル環境下でのパッケージクラック発生メカニズムを示している．この中でも，パッケージクラック発生は，パッケージ構成材料間の界面はく離が重要な原因の一つであると言及している．他にもクラック研究による結果 [15–17,17–25] が種々の構造損傷の原因になっている事を示している．これらの原因究明から示したクラックの発生メカニズムに基づいて，モールド樹脂の破壊靱性値及び疲労き裂進展速度測定し，温度サイクル環境下でのき裂進展挙動の予測値が実験値とほぼ一致することを示している [10,11,26–32]．

半導体パッケージのような異種接着界面への線形破壊力学の適用については，通常の均質材中のき裂と異なり，そのき裂先端では正負に大きく振動し振動時の特異応力が生じ，き裂面側では振動 Overlapping が生じることが知られており，古くから多くの報告 [10,33–36] がなされている．ただし，この振動特異応力はき裂先端のごく近傍に限られた現象であるので，実際の適用においては無視できるのものと考えられている．その一方，この振動現象は，き裂面の接触により実際は生じないとする新たなモデルが提案されており [37–42]，現在の考え方として，上記の二つのグループに大別されている状況にある．このような理論的な混乱に対して，結城ら [43–46] は，Hetenyi の基本解を用いた効率的な境界要素解析プログラムを開発し，厳密解のわかっている無限板中の界面き裂について，振動応力の発生するき裂先端を避けてき裂先端から少し離れた所の安定な解を用いて外挿により応力拡大係数を求める方法を提案し，厳密解と一致する高精度な解が得られることを明らかにしている．また，佐藤ら [47,48] は，境界要素解析を実施し，半導体パッケージ内部の樹脂とダイパット間の接着界面における応力拡大係数と

き裂長さとの関係について検討している。さらに、池田らは [49, 50] 仮想き裂進展法 の概念を導入することで、はく離進展も考慮した樹脂とダイパット間の接着界面の応力拡大係数とき裂長さとの関係について明らかにしている。

以上、異種接着界面の強度評価技術において、薄い接着材層の場合のように残留応力の影響が無視できる場合では、破壊クライテリオンを上記で述べたような破壊力学パラメータで表すことによって普遍的な接着強度が得られていることを述べた [51–64]。このように、従来の機械や構造物の設計は、引張り強さや降伏点に適当な安全率を加味した許容応力を基礎として行われていた。しかし、き裂が関与する破壊の問題に対してはこの方法は適用できず、強度ならびに破壊を支配するパラメータの抽出が必要であった。後に、均質材のき裂端における応力場は特異性を示し、その時には応力拡大係数やき裂解放エネルギーが強度を評価する上での重要な因子であることが理論的に明らかにされ、これらは破壊力学として高度に体系化されてきた。その後、この力学は実験的にも明らかにされ、破壊靱性値等の材料の破壊を決定するクライテリオンの基礎となっている。

一方、従来の力学は均質材に対して行われてきたものであるが、近年の各種産業分野（宇宙機器、原子力機器、電子機器、航空機、自動車など）で用いられる構造部材は、ほとんどが界面の存在している異材ないしは複合材であり、破壊の発生や強度低下の原因はほとんどが界面端ないしは界面に到達しているき裂端を起点としている。よって、界面が存在している部材の力学特性を明らかにする必要があるが、界面強度、き裂が進展する経路、そして残留応力等の問題が複雑に絡み合い、強度を評価する上での破壊力学的なクライテリオンが確立していない。

そして、界面の力学特性を明らかでないまま、多くの構造部材に使用されているのが現状である。しかし、破壊の指標となるクライテリオンを明確にしなければ、実際に複合化された構造物のき裂の成長挙動と破壊に至る過程を定量的に扱うことができない。そのため、実際の構造物中に非破壊検査法等によってき裂を発見しても、このき裂がその後の外力や熱変動あるいは環境の影響等により不安定破壊を引き起こすか否か、安定破壊であればどのくらいの使用期間に耐えうるかを予測することはできず、構造物の信頼性評価ができない。

特に 1.1.3 で示した課題を持つ樹脂モールド構造の金属と樹脂間の界面には、摩擦力と接着力および残留応力による面圧が作用し、これらの力が樹脂モールド構造全体の挙動に大きな影響を与える。そのため、樹脂モールドのように界面をもつ構造の設計には、これらの力をすべて考慮した強度評価手法が必要である。しかしながら、3 軸応力状態における樹脂モールド構造の界面の力学特性についてはまだ不明な点が多く、通常は、異種材料間を共有節点にする界面を考慮しない固着モデルを用いるか、または、摩擦力のみを考慮し解析を行うことが多い。

摩擦力を考慮した界面の接触問題を解析する方法としては、ペナルティ法 [65] や拡張ラグランジェ法が広く用いられている [66–69]。しかし、樹脂モールド構造のような界面に摩擦力と接着力および残留応力による面圧が複合して存在する問題には適用できない。

このような問題に対して、損傷力学に基づき、界面の損傷とはく離を統合させた Cohesive zone model に関する研究が数多く行われている [70–74]。しかしながら、Cohesive zone model はモデルの複雑さにより汎用的なモデルには至っていないのが現状である。

今後の構造物の多くは界面が存在したものとなり、さらに多数の界面が存在している複合材料や電子デバイス等の使用が大いに期待できることから、産業の発展は上記に示した界面力学からの破壊のクライテリオンの解明に掛かってくる。均質材のき裂端における応力場が理論的に明らかにされ、実験的に確認され、破壊力学と言う新たな力学が生まれ、多くの産業分野に寄与しているように、3 軸応力状態における樹脂モールド構造の界面の力学特性についても理論的に明らかにし、ナノスケールの化学結合とマクロスケールのはく離強度の関わり合いを考慮した界面力学なる新たな力学を体系化し、樹脂モールド構造の内部界面強度が正しく評価できる手法の提案が重要である。

## 1.2 本論文の目的と構成

電力機器に用いる樹脂絶縁体は、絶縁性能を確保するために樹脂と金属間に強固な接着が要求される。その樹脂モールド構造の内部界面強度を正しく評価することによって、電力機器の信頼性を向上させることができる。

そこで本研究は、樹脂モールド構造の内部界面強度を正しく評価するために、樹脂モールド構造の金属と樹脂間の界面強度に関する実験的な検討により界面の接着特性を求め、界面挙動をモデル化し、解析モデルに反映することで樹脂モールド製品における界面強度の評価手法を構築する。また、計算による界面接着強度評価手法を検討するために、界面接着強度を表すひとつの指標として、界面結合の解離を扱う原子レベルモデリングにより求められる「界面破壊エネルギー (Interfacial fracture energy)」を定義する。さらに、内部接着界面のメカニズムと接着界面強度の支配因子を把握するために、検討手法を Cu, Fe, Al の三種類の材料とエポキシ樹脂間の界面に適用し、ミクロレベルのはく離実験により得られた界面の接着強度指標とナノレベルの分子動力学法の計算により得られた界面破壊エネルギーとの定性的な比較を行い、ナノスケールの化学結合とミクロスケールの界面接着強度の関わり合いについて、主に表面粗さの影響 [28, 75, 77–82, 82–89] に着目しながら考察する。

本論文の構成は、本章を含め、全 6 章から構成される。以下に各章の概要を示す。

本章では本研究の背景と目的について製品的需要と工学的技術の背景に基づき紹介している。

第 2 章では、樹脂モールド構造の界面生成のプロセスを把握するために、はく離実験に用いる試験体のモールドプロセスを通してモールド時に界面に働く力や樹脂層に発生する応力を明らかにする。また、インサート金属の表面状態や、樹脂と金属が一体化された界面状態の観察によりプロセス時の界面における樹脂の挙動を明らかにする。

第 3 章では、樹脂モールド構造の内部界面に作用する力を把握するために、第 2 章のモールドプロセスによって製作した試験体を用いて、試験体の内部接着界面のはく離実験を行い、金属と樹脂間の接着界面に生じるせん断力を測定する。また、樹脂モールド構造の金属と樹脂間の界面に作用する摩擦力と接着力および面圧力と測定せん断力との関係を確認し、これらの力が樹脂モールド構造全体の挙動に及ぼす影響を検討する。

第 4 章では、第 3 章の実験により求めた金属製の円柱と樹脂間のせん断力を用いて、新たに定義する接着強度指標により三つの力（摩擦力、接着力、残留応力による面圧）に分解し、界面に作用する力のモデル化を行い、分解した力を法線方向と接線方向に非線形ばねを使った単純モデルでモデル化する。また、そのモデルを用いて接着・摩擦有限要素解析手法を提案し、提案手法の妥当性の検討さらに、界面の特性を再現できることを示す。また、樹脂モールド構造の内部界面の接線方向はせん断ばね（接着強度指標を用いるせん断力によるばね定数）とし、法線方向は垂直ばね（樹脂のヤング率から求まるペナルティ剛性によるばね定数）とするモデル化を行うことで、実機部品である絶縁ロッドの破断強度試験をシミュレーションできることを示す。

第 5 章では、第 4 章の接着・摩擦有限要素解析手法の提案に対する考察として、マクロレベルのはく離実験の界面特性により得られた接着強度指標に相当する界面の接着強度を計算で求めることを検討する。さらに、界面接着強度を表すひとつの指標として、界面結合の解離を扱う原子レベルモデリングにより求める界面破壊エネルギー（Interfacial fracture energy）を定義する。また、内部接着界面のメカニズムと接着界面強度の支配因子を把握するために、ナノレベルの界面破壊エネルギーとマクロレベルの接着強度指標との定性的な比較を行い、ナノスケールの化学結合とミクロスケールの界面接着強度の関わり合いについて、主に表面粗さの影響 [28, 75, 77–82, 82–89] に着目しながら考察する。

第 6 章は、結論であり、本研究の成果を概括的に述べ、製品開発における本研究成果の位置付けや今後への展開について概説する。

## 1.2.1 本論文の構成

本論文の構成を図 1.2 に示す。

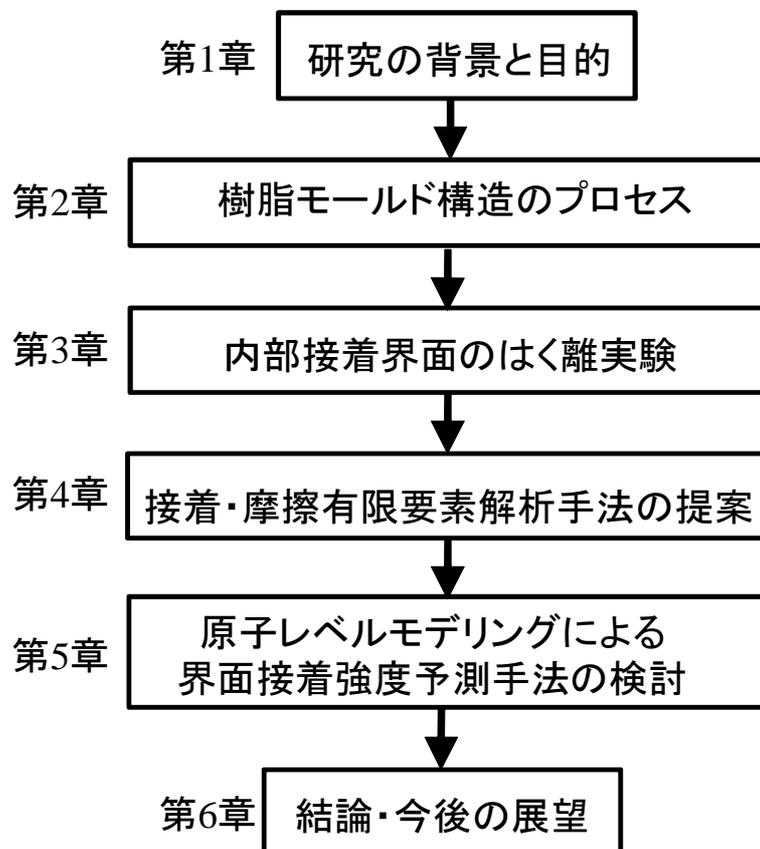


Fig. 1.2: Flowchart of the thesis.

## 第2章 樹脂モールド構造のプロセス

### 2.1 緒言

電力機器には鉄心や導体などが樹脂に埋め込まれるものが多く、このインサート材と樹脂層との組み合わせによってはモールド時の収縮により樹脂層がひずみを受け、クラックやはく離の発生原因となる。また、過酷な冷熱試験などでも大きな熱応力が発生して、応力集中による樹脂層のクラックや界面のはく離が発生する。この結果、空隙が形成され絶縁性能が低下する。絶縁性能の低下の理由は空隙に硬化反応時の残渣やエポキシ樹脂に浸透していた空気や水分が出てきて、絶縁性能の低い気体で充たされた状態となるためである。樹脂層のクラックや界面ではく離によって、目的とする形状、性能を備えたモールドを得ることが困難な場合が多い。そのため樹脂モールド製品の強度、安定性を保持する上にモールド品の中に発生する応力関係を知ることが必要である。

そこで本章では、樹脂モールド構造の界面生成のプロセスを把握するために、はく離実験に用いる試験体のモールドプロセスを通してモールド時に界面に働く力や樹脂層に発生する応力を明らかにする。また、インサート金属の表面状態や、樹脂と金属が一体化された界面状態の観察によりプロセス時の界面における樹脂の挙動を明らかにする。

本章の構成を以下に示す。

- 緒言
- 樹脂モールド試験体の界面生成プロセス
- モールド樹脂層に発生する応力
- 熱変形量の測定
- 結言

## 2.2 樹脂モールド試験体の界面生成プロセス

樹脂モールド構造の試験体の界面生成プロセスを確認するため、試験体の製作を行う。試験体には金属円柱（直径 37 mm，高さ 27 mm）をインサート材として挿入でき、樹脂の厚さが 10 mm になるように製造した金型を用いる。

製作方法は、次の項目の順で行う。

- (1) 表面の汚れを取るために、金属円柱を石鹼で洗浄，乾燥した後，アセトンで洗浄する。
- (2) 金型に離型剤を塗布し，室温で約 30 分間乾燥させた後，図 2.1(a) に示すように，金属円柱を金型にセットし 70 °C で 4 時間予熱を行う。
- (3) 樹脂の低粘度化を図るために，図 2.1(b) に示すように液状の主剤および硬化剤を 70 °C で予熱し，樹脂を調合する。
- (4) 図 2.1(c) に示すように，あらかじめ金属円柱を挿入した金型中に，液状のエポキシ樹脂を室内大気圧にて注入する。
- (5) 図 2.1(d) に示すように，真空タンクにて 0.5 Torr 以下に保持しながら図 2.1(e) に示すように真空脱泡を行う。
- (6) 図 2.1(f) に示す高温槽に入れ，モールドを行う際の炉の設定条件を，一次硬化温度 85 °C で 7 時間保持し，二次硬化温度 130 °C で 24 時間保持後，7 °C/hour で常温（20 °C）まで冷却させ，完全離型させる。図 2.2 にモールドプロセス中で測定した樹脂中の温度を示す。

上記の樹脂モールドプロセスの中でのエポキシ樹脂モールドの温度変化による体積変化は図 2.3 のような挙動を示すと考えられる [90,91]。図 2.3 に示す第 1 の硬化過渡の実際の挙動は複雑であり，製品性能の硬化条件依存性が極めて高いと考えられるが，一般的なエポキシ硬化過渡の体積変化は，加熱による温度上昇で，液状状態で熱膨張し，硬化反応により樹脂の 2 次元の架橋が始まり，体積収縮を伴いながらゲル点に到達すると考えられている。エポキシ樹脂は固体としての挙動に移行し，ここから 3 次元の架橋に移り，この終点である硬化点に到達する。さらに，高温から冷却過程を経て，室温に戻る。

ゲル化点から硬化点に至る過程の体積変化が硬化内部ひずみとなり，特徴として，この硬化内部ひずみは硬化工程条件により大きく異なるため，硬化工程設定には多大な工数がかかり，また，許容公差・余裕度把握も極めて困難である。このように熱硬化型エポキシ樹脂は温度上昇による硬化反応で金属円柱と樹脂が一体となり金型から離型され，図 2.1(f) の試験体が製作され

る．図 3.10 はモールド時に測定した樹脂中の温度を示す．硬化時の最大温度差は 110 で，最高温度は 130 である．また，用いたエポキシ樹脂のガラス転移温度は 140 であるので，ガラス転移温度付近で生じる樹脂の粘性特性による影響は少ないと考えられる．

以上のように樹脂モールドのプロセスの中で受ける熱負荷によって起こる体積収縮は残留応力として界面に加わることになる．また，液状状態と固体状態でのそれぞれの界面における樹脂の挙動は異なると考えられる．

### 2.3 モールド樹脂層に発生する応力

モールド樹脂と金属との組み合わせについて考えるとき，両者の物理的性質の差によって種々の大きさの内部応力が誘起される．応力の発生に関係すると思われる項目は以下に挙げられる [90,91] ．

- 樹脂が硬化するとき起こる体積変化，すなわち硬化収縮率
- 樹脂と金属の熱膨張係数の差異によるひずみに起因する熱応力
- 金属およびモールド体の形状

特に，モールド品のクラック発生に関して一番問題となることは，過酷な冷熱の繰り返しによる熱応力の影響である．これを避けるためには，冷熱の変化を与えた時のモールド内部の温度分布，熱の移動速さをあらかじめ確かめ，応力の発生状態について充分検討する必要がある．一方，高分子材料であるモールド樹脂には，上記の要因で発生した応力を緩和する性質がある．この応力緩和は樹脂中の温度分布や熱の移動速さによっても大きく影響されることが考えられ，発生する残留応力として考える．樹脂モールド構造で扱う残留応力を用いたモールド品内の樹脂強度 ( $\sigma_{total}$ ) の単純な考え方として式 (2.1) の関係がある [91] ．

$$\sigma_{total} = \sigma_f - (\sigma_\theta + \sigma_s - \sigma_a) \quad (2.1)$$

ここで， $\sigma_f$  は静的樹脂の強度， $\sigma_\theta$  は発生した熱応力， $\sigma_s$  は樹脂の硬化収縮による応力， $\sigma_a$  は樹脂層に発生した応力緩和量をそれぞれ示す．

したがって，モールド時樹脂層に残存する残留応力  $\sigma_{pm}$  は次の式 (2.2) となる．

$$\sigma_{pm} = \sigma_\theta + \sigma_s - \sigma_a \quad (2.2)$$

また，樹脂層に発生する熱応力  $\sigma_\theta$  は次の式 (2.3) となる．

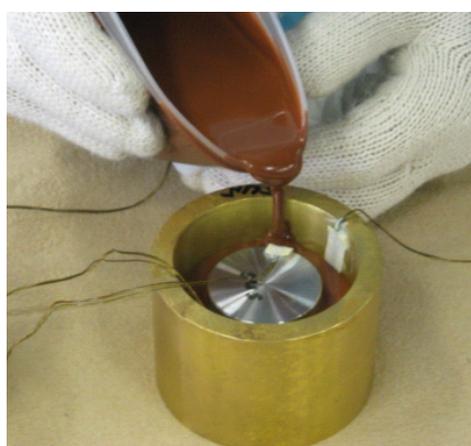
$$\sigma_\theta = \Delta\alpha \cdot \Delta t \cdot E_{resin} \quad (2.3)$$



(a) Preheating at 70 for 4 hours



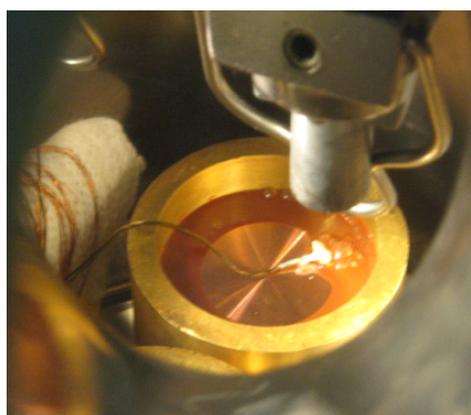
(b) Mixture of liquid resin



(c) Resin pouring 70



(d) Holding to 0.5 Torr with vacuum vessel



(e) Bubble removing



(f) First curing at 85 for 7hours, Second curing at 130 for 24hours

Fig. 2.1: Heat curing processes of resins .

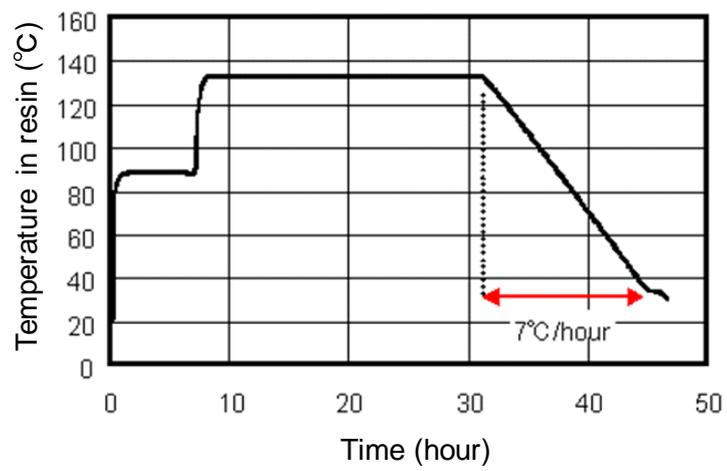


Fig. 2.2: Relationship between temperature and time .

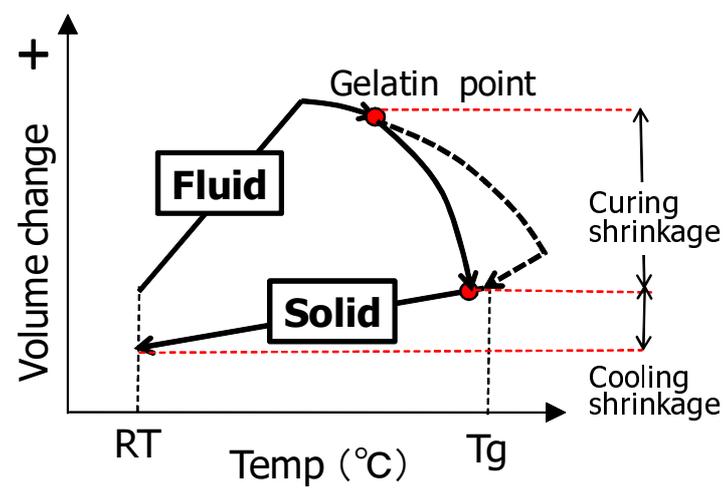


Fig. 2.3: Volume change of epoxy in curing .

ただし,  $\Delta\alpha$  は異種材料間の熱膨張係数の差,  $\Delta t$  は樹脂層の温度変化,  $E_{\text{resin}}$  は樹脂の温度によって変化する樹脂層の弾性率をそれぞれ表す. また,  $\Delta t$  は冷熱の変化を受けている時の材料熱容量に関するもので, 次式で表される.

$$\Delta t = \sigma(t_c) \cdot (C)^{-1} \cdot \lambda \quad (2.4)$$

ここに,  $t_c$  は樹脂層の厚み,  $C$  は樹脂の比熱,  $\lambda$  は樹脂の熱伝導率をそれぞれ表す.

また, 樹脂の硬化収縮によるひずみを  $\epsilon_x$  とすると, 応力は次の式 (2.5) で求められる.

$$\sigma_s = \epsilon_x \cdot E_{\text{resin}} \quad (2.5)$$

一方, モールド樹脂のような高分子材料は急激な変形に対しては弾性体として挙動するが, 徐々に力を加えれば粘性流動する性質がある. つまり, 固体状態では弾性率 ( $E_{\text{resin}}$ ) とし液状状態では粘性 ( $\eta$ ) で取り扱われるので, 樹脂に外力が加えられたとき, 違う性質が重畳した挙動をする [90, 91]. 熱硬化性樹脂は弾性項 ( $E_1, E_2$ ) と粘性項 ( $\eta$ ) からできているとして, 高分子材料の粘弾性の取扱いをすれば, その応力緩和  $\sigma_a$  は次式のようなになる.

$$\sigma_a = \frac{E_1}{E} (\sigma_\theta + \sigma_s) e^{-\frac{E_1}{\eta} \cdot t} + (\sigma_\theta + \sigma_s) \frac{E_2}{E} \quad (2.6)$$

したがって, 式 (2.1) ~ 式 (2.6) を総合すると次の式のようなになる.

$$\begin{aligned} \sigma_{\text{total}} &= \sigma_f - \Delta\alpha \cdot \sigma(t_c) \cdot (C)^{-1} \cdot (\lambda) \cdot E_{\text{resin}} \\ &- \epsilon_x \cdot E_{\text{resin}} + \frac{E_1}{E} (\sigma_\theta + \sigma_s) e^{-\frac{E_1}{\eta} \cdot t} + (\sigma_\theta + \sigma_s) \frac{E_2}{E} \end{aligned} \quad (2.7)$$

式 (2.7) で示すモールド樹脂に発生する応力は, 樹脂の弾性率の温度依存性, 熱膨張係数, 比熱, 熱伝導率, 熱変形温度, 応力 - ひずみ曲線, 樹脂の収縮率, 樹脂中の温度分布, 組み合わせ形状効果などの設計因子が関わって決定される. つまり, モールドというプロセスにより製作される製品には必ず残留応力が存在するということになる. また, 冷熱などでクラックやはく離が生じない製品は式 (2.7) の  $\sigma_{\text{total}}$  が負値ではないことから, 外部応力が  $\sigma_{\text{total}}$  以上になる環境では使用できないことを意味する.

このような残留応力の一要因となっている樹脂の収縮率に関して, 一般に充てん剤なしのポリエステル樹脂は 8 ~ 10 % でエポキシ樹脂は 4 ~ 6 % とされている [91].

モールド製品では樹脂の収縮率が大きいほど (すなわち変位量が大きい場合) 発生する応力は (変位量  $\times$  樹脂弾性率) 大きくなるため, この発生応力を小さくする必要があり, 樹脂の収縮率あるいは樹脂の弾性率を小さなものにしなければならない. 樹脂の収縮率を小さくするの

に，一般にモールド樹脂に充てん剤を添加してその効果を期待する場合が多い．つまり，エポキシ樹脂の中に充てん剤の添加量の多ほど体積収縮率が小さくなることが示されている．しかし，樹脂に充てん剤を添加すると逆に弾性率が增大する傾向である．したがって応力（変位量×樹脂弾性率）が充てん剤の添加量増加によって必ずしも軽減されるとは限らない．ただし，収縮後は一定の高温状態で 24 時間以上置くことになるので，収縮時の応力はほとんど緩和されると考えられる．

次に，熱硬化型エポキシ樹脂モールド品は比較的高温 100 以上で樹脂を硬化させ製品を作成する．したがって硬化後のモールド品は高温から室温に戻される．このときの熱負荷によってモールド樹脂中に熱応力が大きく発生することになる．その他に過酷な冷熱試験や使用状態中に受ける温度負荷に対しても同様にモールド樹脂層が熱応力の繰り返しを受ける．この熱応力がモールド品の樹脂層にクラックやはく離を発生するに至るような大きな応力値となる．熱応力そのものは中心のインサート材が壁となり温度負荷に対して，インサート材の直径に変位が生じないとしたとき，異種材料間が密着もしくは接着して自由変形を拘束する．樹脂と金属の組み合わせの応力への影響を考慮すると式 (2.8) で示した熱応力が生じる．

$$\sigma_{\theta} = \Delta\alpha \cdot \Delta t \cdot E_{\text{resin}} \quad (2.8)$$

通常，樹脂の硬化収縮，熱応力によって，生じる応力を単純な平面応力として扱う場合が多い．しかし，実際のモールド品の樹脂部は単純な平面応力状態であることは少なく，構造的には常に 3 軸応力状態におかれた場合が多いので，平面応力値よりも数倍大きな応力の発生することが予想される．モールド樹脂の場合，引張応力は約 70～100 MPa ほど生じるため，過酷な冷熱試験などを行ったときのクラックを防ぐことはとても難しい．しかしながら，これらのモールド樹脂は負荷状態が一定で続くと発生応力を緩和してくれる性質がある．高分子物性では応力緩和と称していくつかモデルの単純化を行っている．

熱負荷により樹脂層に発生する応力緩和の度合については図 2.4 に示す関係がよく用いられている．図 2.4 のように応力の緩和は時間によって初めは急速に低下し，時間の経過とともに緩やかに応力が低下して行く． $e_0 E_1$  は一定ひずみ  $e_0$  に対する  $E_2 \eta$  の重畳した作用による応力の緩和を示すものであるが，一般にエポキシ樹脂のように熱硬化性樹脂では，図に示す  $e_0 E_1$  に相当する応力が樹脂中に残存する．

図 2.5 はエポキシ樹脂について，試験片に一定のひずみを与えて発生した応力の経時的な挙動について，温度との関係について示したものである．温度が高い程応力の緩和速さが早いことが示されている．

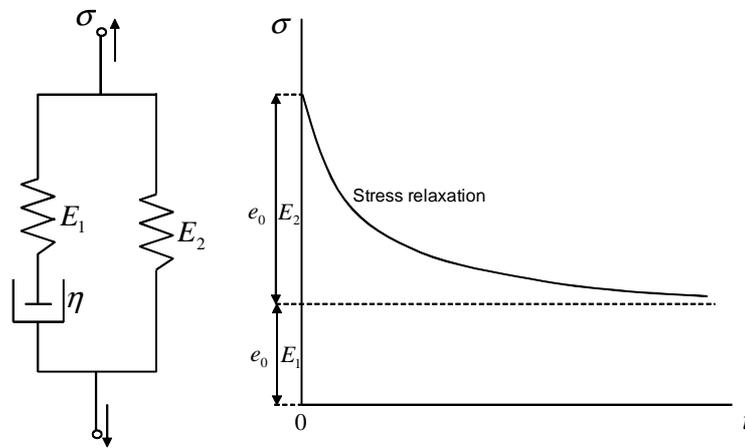


Fig. 2.4: Mechanical model for stress relaxation .

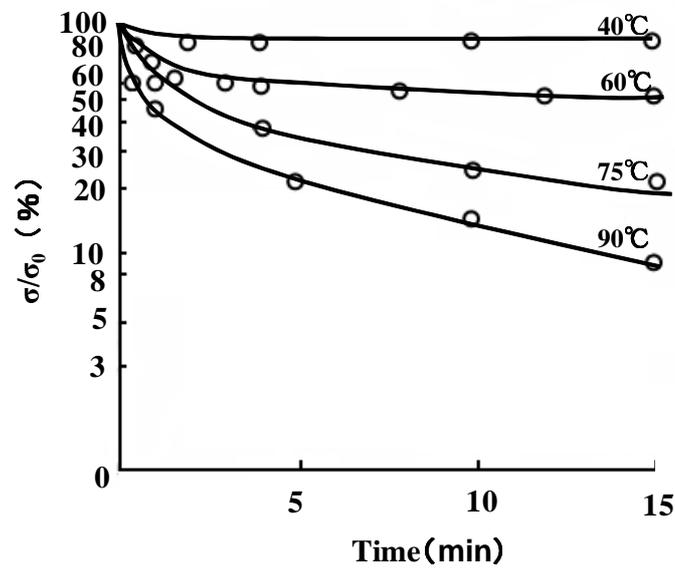


Fig. 2.5: Stress relaxation of epoxy resin . [91]

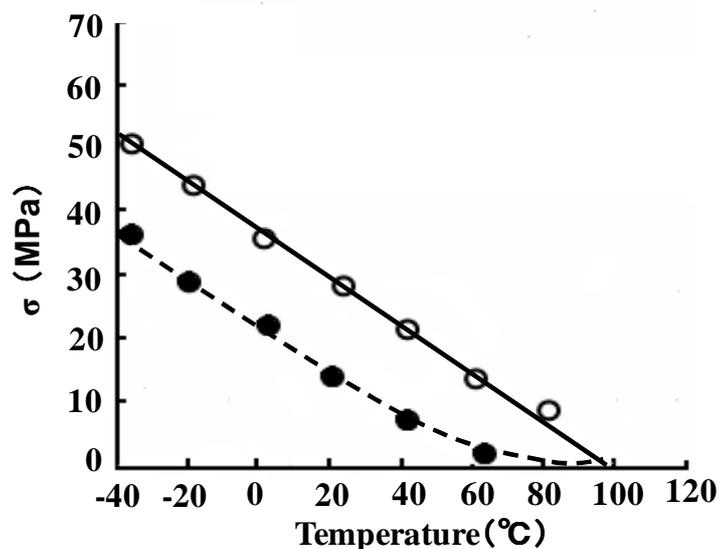


Fig. 2.6: Stress in the cooling process . [91]

これは図 2.4 の  $e_0 E_1$  に相応する部分にあたり，この応力緩和して行く挙動についてのみ取扱えば次の式 (2.9) で表される．

$$\sigma = \sigma_0 e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (2.9)$$

ここで， $\sigma_0$  は初期応力を示し， $\tau = \frac{\eta}{E_1}$  は緩和時間を示し，初期に発生した応力  $\sigma_0$  が一定温度では，時間の経過とともに小さくなることを示す．また  $\tau$  は，次の式 (2.10) で表される．

$$\tau = A' e^{\frac{U}{RT}} \quad (2.10)$$

式 (2.9)，式 (2.10) を近似化して扱えば

$$\ln \frac{\sigma}{\sigma_0} = -A'' \left(1 - \frac{B}{T}\right) \cdot t \quad (2.11)$$

ここで， $A''$ ， $B$  は材料によって定まる定数で温度が高いほど，応力緩和が早くなる．また  $T_g$  以下の温度域では応力が緩和するのに時間がかかるので徐冷する必要がある．図 2.6 は一定の徐冷速度で樹脂を冷却した場合，急冷した場合に比べて樹脂の中に発生する応力値にどれくらい差異があるかを示したものである．この値は，冷却速度 1 /15 分で徐冷した場合の値を用いて求めたもので，急冷した場合に比べ発生した応力値が小さくなることを示し，樹脂層に残存する残留応力と考えられる．

さらに、樹脂はインサート材との組み合わせによる形状によってその強度は異なって来る。特に電機機器は鉄心や、導体（銅など）をインサート材として使用する例が多く、このような金属には角が存在し、角に当たる部分に応力の集中を受け、クラックやはく離の発生起点になる可能性が大きい。したがって、角の樹脂層が薄くならないように注意しなければならない。つまり、引張方向の応力に対する樹脂層の変位を考慮すると、外周樹脂部の伸び変位と同じだけ先端部が伸び変位を受け、樹脂層が薄いものほど大きいな応力値となり、破壊が先端部より始まることになる。この樹脂層の集中応力に対し、応力を分散させるだけの樹脂層が存在しないとクラックが生じ易いことになるので角に当たる部分には丸みをつけて、丸みを相当する部分の樹脂層に応力の分散を図る。

以上、樹脂層に発生する熱応力の種々の物理要因を考慮した残留応力について述べた。樹脂層の残留応力は、クラックやはく離のない実用価値のあるモールド品を製作するための重要な要素を含んでいる。一般にモールド品を作成するときモールド樹脂の引張強度、曲げ強度、曲げ弾性率など静的強度を主に考えているが、モールド品の多くは異種材料の組み合わせのため、構造的な要因を加味した上で樹脂の硬化過程、冷却過程における樹脂層の応力挙動と樹脂強度の関係を検討する必要がある。樹脂モールド構造は樹脂層が発生応力に耐えられるようにあらかじめ検討した結果に基づいて製作する必要がある。

## 2.4 熱変形量の測定

前節で述べた熱応力発生メカニズムに基づき、モールドプロセスの中での熱変形量の測定を行う。図 2.7 に示すようにインサート材の表面円周方向にひずみゲージを固定し、ゲージの測定部（表面）を樹脂側となるようにひずみゲージ裏とインサート材はシリコンゴムにより仮留めする。その後、樹脂を流し込んで硬化過程に進む。表 2.4 に熱ひずみ測定のためのモールドプロセス進行過程をまとめて示す。モールドプロセスの中で硬化反応により体積変化や樹脂に加わる熱負荷によるひずみを測定し図 2.8 に示す。図 2.8 は測定した円周方向ひずみと時間との関係と、樹脂内部温度と時間との関係を共に示す。図 2.8 に示すように 1 次硬化反応が生じる 85℃ で圧縮方向にひずみが発生する。その後 130℃ への温度増加にしたがって熱膨張によりひずみが引張に転じ 130℃ で 2 次硬化反応が生じると再びひずみは圧縮方向に発生し、130℃ 一定で 24 時間放置すると応力緩和によるクリープひずみが発生する。その後 7℃/h の徐冷で常温に戻す際、圧縮方向に熱ひずみが発生する。

まとめると 1 次硬化および 2 次硬化での硬化反応によるひずみは、クリープひずみの発生によりリセットされ、残留応力として残るひずみは、主に徐冷で常温に戻す際に発生する熱ひず

Table 2.1: Setting-out item and setting-out conditions of mold process .

Process	Setting-out item	Preset value
1.Resin preheating	Temperature	$70 \pm 5$
	Time	4 h over
2.Metallic mold preheating	Temperature	$85 \pm 5$
	Time	2 h over
3.Resin mixture	Churning Time	10 min
4.Mold	Pouring time	3 ~ 15 min
5.Defoaming	Time	5min
6.Primary curing	Temperature	$85 \pm 5$
	Time	6.5 h
7.Secondary curing	Temperature	$130 \pm 5$
	Time	24 h
8.Slow cooling	Temperature	130 $\rightarrow$ 20
	Time	24 h

みであることがわかる。これら内部界面挙動に加えて、熱変形による影響を確認するために液状状態での樹脂と固体状態での樹脂の変形を確認する。図 2.9 は樹脂を流し込んだ直後の試験体を示し、樹脂上部表面は樹脂がほぼインサート材の角部下まで注入されていることがわかる。それに対して、硬化後に離型され固体状態で徐冷によって熱変形を受けた後の試験体を図 2.10 に示す。図 2.9 と図 2.10 の写真を比較してみると、図 2.10 の方は樹脂上部のへこみが大きく見受けられる。

図 2.10 のへこみ量を Laser autofocus (Mitaka 製 Non-contact 3D, 2D measuring system) を用いて測定した。その結果を図 2.11 に示す。図 2.11 は 3 種類の金属 (Al, Cu, Fe) に対するへこみ量を傾きなどの修正のために平坦面が続き金属中心の上部から樹脂端部まで測定したへこみ深さを示す。深さは零を基準としてへこみ量の増加に伴い負の方向に増加する。金属の端部の丸みの R と図 2.9 の初期構造を考慮して、熱変形によるへこみ深さは Al, Cu, Fe, それぞれ 0.12 mm, 0.14 mm, 0.16 mm である。理論計算による熱変形量 (線膨張係数の差  $\times$  温度差  $\times$  金属円柱軸方向距離) は Al, Cu, Fe, それぞれ 0.10 mm, 0.12 mm, 0.13 mm でほぼ同じである。つまり、図 2.8 のプロセス中のひずみ変化が示すように、2 次硬化時に十分な時間をかけて硬化収縮時の変形を緩和させることで、徐冷時の熱応力のみを考慮して設計することが可能であることを示している。ただし、今回のモールドプロセスの挙動は、用いた樹脂の  $T_g$  以下での温度負荷を考慮しているが、 $T_g$  以上の温度負荷の場合は今回と違うモールドプロセスの挙動が生じると考えられる。

また、製作した試験体の樹脂と金属間の界面をマイクロ스코ープにより 100 倍拡大で測定した写真を図 2.12 に示す。図 2.12 からは金属表面に切削痕のような周期的ラフネスが存在すること、樹脂がそのラフネスに沿って流れ込んで固まっていることがわかる。しかし、円周方向に沿った樹脂と金属間の界面隙間は観察が難しく確認は困難である。液状樹脂は樹脂成分の分子レベルのラフネスまで流れ込むが、その後の固体状態では 0.1 mm レベル熱変形を受けるために部分的にはく離が存在する可能性は否定できないと考えられる。

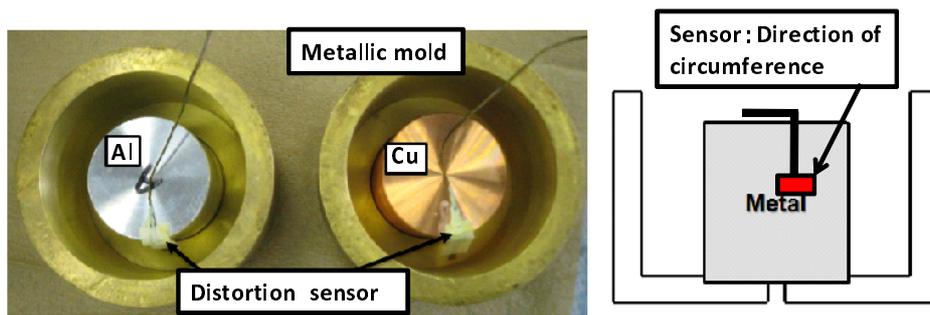


Fig. 2.7: The mounting arrangement of distortion sensor .

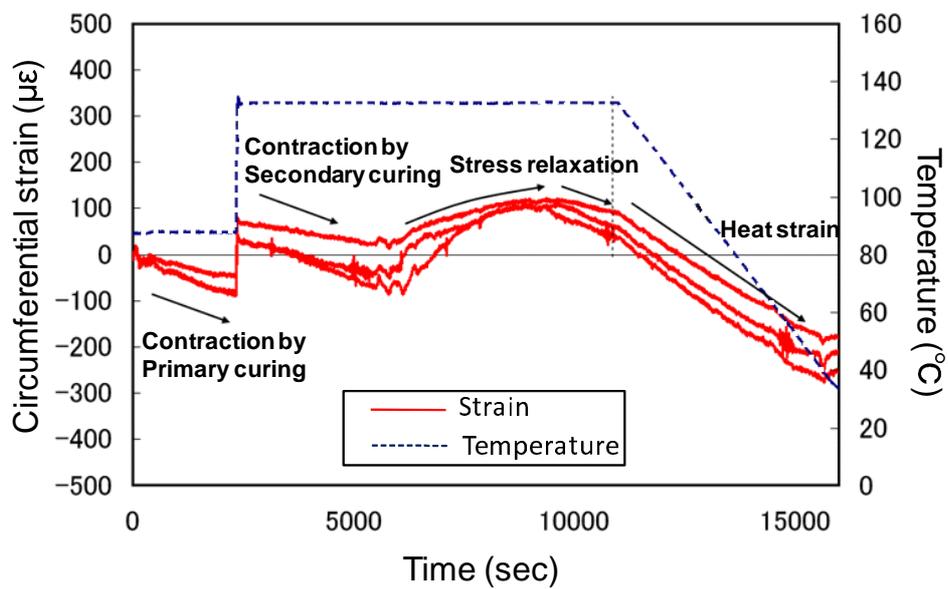


Fig. 2.8: Circumferential strain variation in mold process .

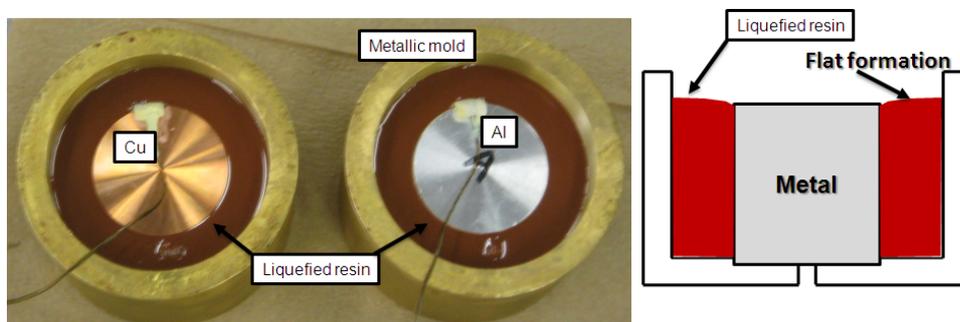


Fig. 2.9: The test piece of liquefied resin .

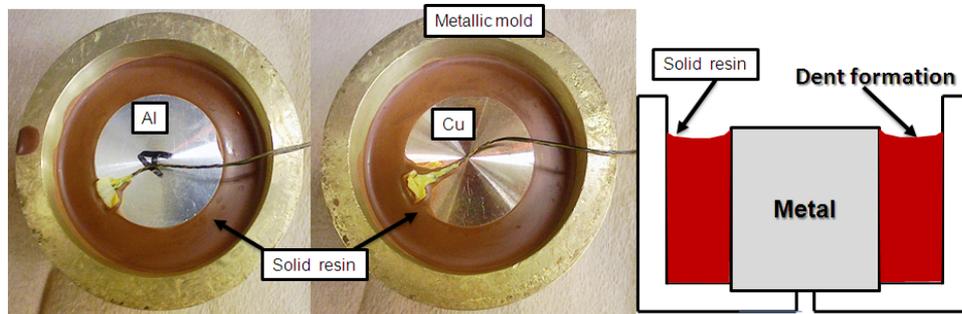


Fig. 2.10: The test piece of solid resin .

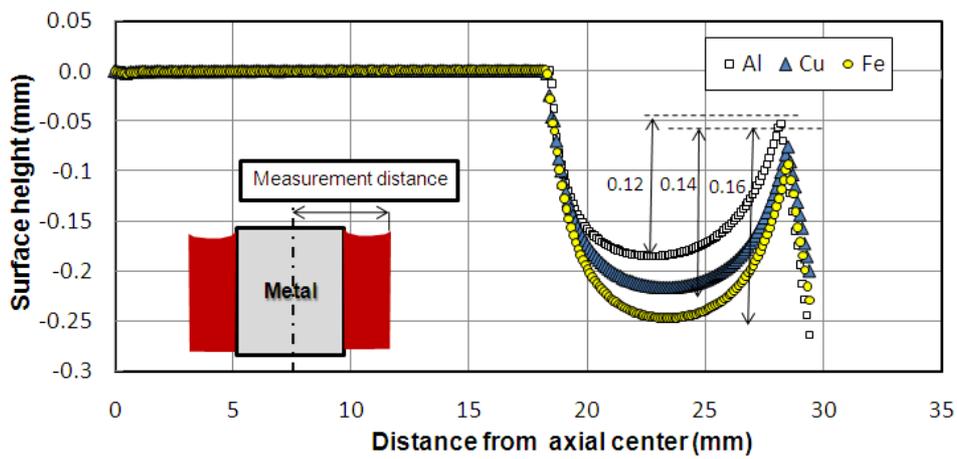


Fig. 2.11: Deformation on the surface of resin .

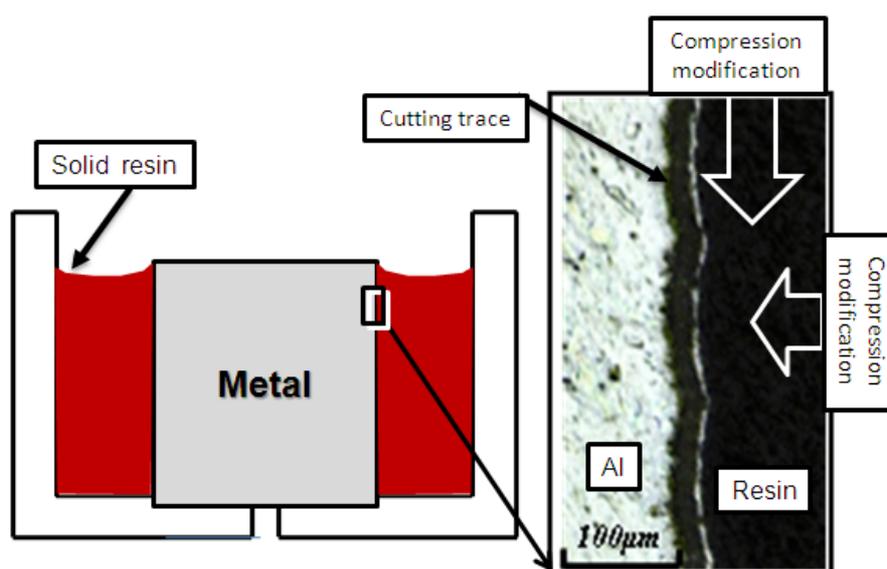


Fig. 2.12: The interface between resin and metal .

## 2.5 結言

樹脂モールド構造の界面生成のプロセスを把握するために、はく離実験に用いる試験体のモールドプロセスを通してモールド時に界面に働く力や樹脂層に発生する応力を明らかにした。また、インサート金属の表面状態や、樹脂と金属が一体化された界面状態の観察によりプロセス時の界面における樹脂の挙動を示し、得られた結果は以下に整理される。

- (1) 樹脂の体積変化と温度変化の関係から考えられる熱硬化型エポキシ樹脂の硬化過渡は、加熱による温度上昇で、液状状態で熱膨張し、次に、硬化反応により樹脂の2次元的架橋が始まり、体積収縮を伴いながらゲル点に到達する。エポキシは固体としての挙動に移行し、ここから3次元的架橋に移り、この終点である硬化点に到達する。さらに、冷却過程を経て、室温に戻る。
- (2) 樹脂層に発生する応力は樹脂が硬化するときにかかる体積変化によるもの(硬化収縮率による応力)と樹脂と金属の熱膨張係数の差異によるひずみに起因する熱応力および、金属とモールド体の形状による応力集中などが存在する。
- (3) モールド製作プロセスの中で液状樹脂から固体樹脂までの硬化過程をひずみセンサーにより測定した結果、1次硬化および2次硬化における硬化反応によるひずみはクリープひ

ずみの発生によりリセットされ、残留応力に起因するのは主に徐冷で常温に戻す際に発生する熱ひずみであることを明らかにした。

- (4) 熱変形による影響を確認するために液状状態での樹脂と固体状態での樹脂の変形を測定した結果、熱変形によるへこみ深さは Al, Cu, Fe, それぞれ 0.12 mm, 0.14 mm, 0.16 mm であり、理論計算による熱変形量（線膨張係数の差 × 温度差 × 金属円柱軸方向距離）は Al, Cu, Fe, それぞれ 0.10 mm, 0.12 mm, 0.13 mm でほぼ同じであることが確認できた。
- (5) 樹脂と金属の接着界面観察により金属表面に切削痕のような周期的ラフネスが存在することと、樹脂がそのラフネスに沿って流れ込んで固まっていることがわかった。しかし、円周方向に沿った樹脂と金属間の界面隙間は観察測定が難しく確認は困難である。液状樹脂は樹脂成分の分子レベル大きさと同じレベルのラフネスまでは流れ込むと考えられるが、その後の固体状態で徐冷により常温に戻す際に発生する 0.1 mm レベル熱変形によって、部分的なはく離の可能性を示した。

## 第3章 樹脂モールド構造の内部接着界面のはく離実験

### 3.1 緒言

樹脂モールド構造における内部界面強度評価技術の確立のために、第2章で述べた内部接着界面生成プロセスと樹脂モールド時に加わる熱変形による残留応力の把握に加えて、樹脂モールド構造の内部接着界面強度の把握が必要である。本章のモールドプロセスにしたがって製作した試験体を用いて、試験体の概要と内部接着界面のはく離実験方法を説明する。その後、内部接着界面のはく離実験を行い、金属と樹脂間の接着界面に生じるせん断力を測定する。

樹脂モールド構造の金属と樹脂間の界面に作用する摩擦力と接着力および面圧力と測定せん断力との関係を確認し、これらの力が樹脂モールド構造全体の挙動に及ぼす影響を検討する。さらに界面に加わる面圧とせん断力との関係を明らかにする。

本章の構成を以下に示す。

- 緒言
- 樹脂材料の選定と基礎特性
- 要素モデルと実験方法
- 樹脂モールド構造の接着界面はく離実験
- せん断力と面圧との関係
- 結言

## 3.2 樹脂材料の選定と基礎特性

電力機器のモールドに使用する樹脂材は、通常、充填剤として溶融球状シリカが含まれている。このような樹脂材は、モールド時の界面のき裂発生を防止するために、応力緩和材を用いる必要がある。また、充填剤として溶融球状シリカを添加する樹脂材もあるが、両材料とも靱性付与剤は含まない。それに対して、充填剤として溶融球状シリカに加え、靱性付与剤であるアクリル微粒子を添加する樹脂材は、アクリル微粒子入りの材料の中でも比較的にき裂の進展に対する抵抗指標の 1 つである破壊靱性値が高くない。また、コスト面で優位性がある樹脂材の特徴は線膨張係数がエポキシ樹脂材の中でも比較的に大きく、残留応力の増加が考えられる。

このような樹脂材の中から本研究の題材とする樹脂材として、今後の樹脂モールド製品の動向を考慮しコスト面で優位性がある材料を優先的に選定する。基礎特性測定実験のために樹脂板を製作し、樹脂の基礎データとして樹脂のヤング率と引張強度および衝撃強度を測定する。樹脂材の温度依存性に関する基礎データはメーカーのカatalog値を用いる。

### 3.2.1 樹脂材料の選定

本研究に適切な樹脂材料の選定のために表 3.2.1 に示す樹脂材料の特性の比較を行う。Compound D は充填剤として溶融球状シリカが含まれている。この樹脂材は、モールド時の界面のき裂発生を防止するために応力緩和材を用いる必要がある。Compound C も同じく充填剤として溶融球状シリカを添加するが、両材料とも靱性付与剤は含まない。それに対して、Compound B と Compound A は充填剤として溶融球状シリカに加え、靱性付与剤であるアクリル微粒子を添加する。アクリル微含有を含有する Compound B が、比較の中で最も破壊靱性値が高い。Compound E は、コスト面で優位ではあるが線膨張係数が比較の中で最も大きく、残留応力の増加が考えられる。Compound G, Compound H は、高熱伝導が特徴であるが高粘度であるためモールド性の確認が必要である。Compound H では靱性付与剤としてシリコン微粒子が添加されており、比較的靱性値が高い。応力緩和層無しで樹脂モールド構造に使用可能だが、低コスト化と低粘度化が課題となる。

これらの比較をレーダチャートにしたのが図 3.1 である。図 3.1 ではモールドにおける重要評価因子をコスト、ガラス転移温度、許容欠陥寸法、歪安全率、応力安全率を同時に同図で比較している。この比較から、総合的に評価が高いのが Compound B であるが、本研究ではコスト面が優位であるが線膨張係数が高く応力として厳しい条件である Compound E を用いて試験片を作成する。

Table 3.1: Resin material characteristic list .

Evaluation criteria	Compound							
	A	B	C	D	E	F	G	H
Cost(Yen/l)	1280	1370	1200	1070	900	2700	1000	1000
Glass transition temperature( )	138	134	137	140	142	136	130	131
Expansion coefficient(ppm/ , at $\leq T_g$ )	22	23	21	22	29	18	24	23
Fracture toughness $K_{IC}$ (MPa $\cdot\sqrt{m}$ )	3.1	3.6	2.2	1.9	1.9	2.5	3.6	2.9
Stress factor of safety(at 25 )	7	7	7	7	4	10	6	8
Strain factor of safety(at 25 )	7	7	7	7	4	10	6	8
Allowable defect size(at 25 )	0.2	0.2	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
Heat conductivity (W/m-K)	0.6	0.6	0.6	0.6	0.6	0.6	1.49	0.6

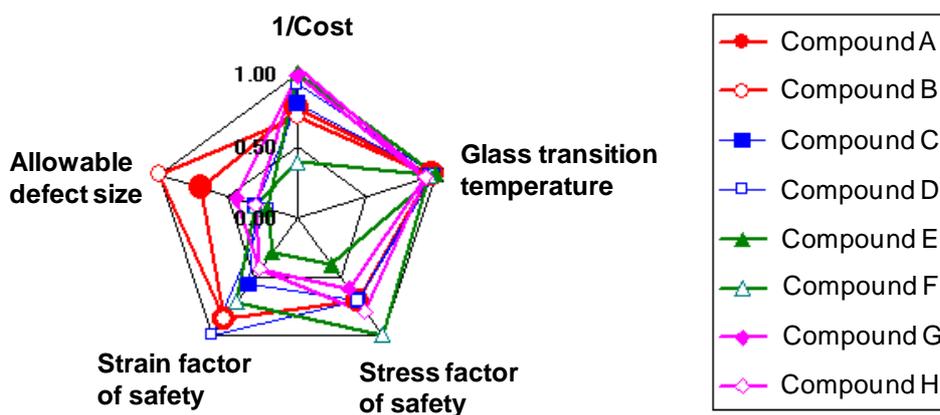


Fig. 3.1: Comparison of resin material characteristic using Radar chart .

## 3.2.2 樹脂材料の基礎特性

選定した材料を用いて，樹脂モールド板を製作し，その樹脂板から図 3.2(a) に示す試験片を作成し樹脂材料の基礎特性測定試験を行った．0.001 m/sec の速度での引張試験に使用した静引張試験機を図 3.2(b) に示す．また，0.1 m/sec と 1.0 m/sec の速度での引張試験に使用した

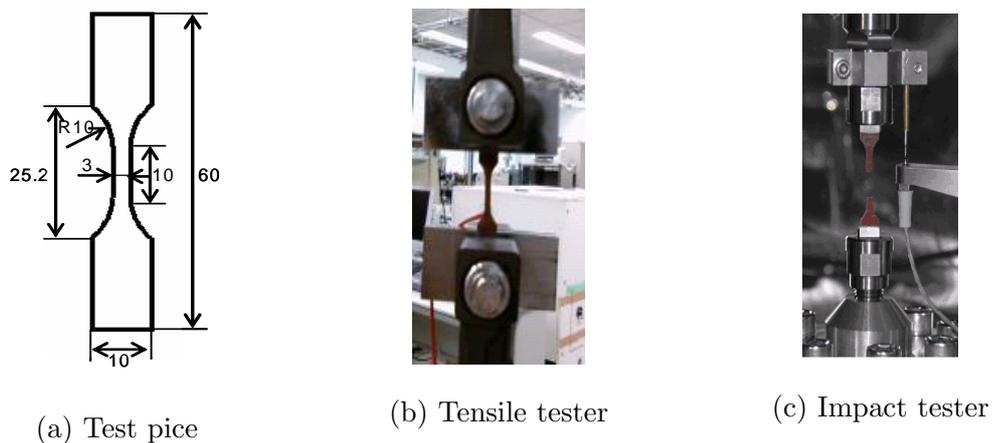


Fig. 3.2: Physical-properties measurement examination of epoxy resin .

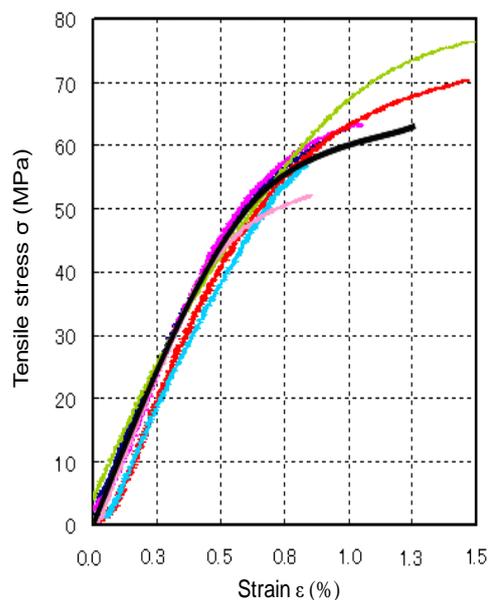


Fig. 3.3: Relation between tensile stress and strain :Static tension test(0.001 m/sec) .

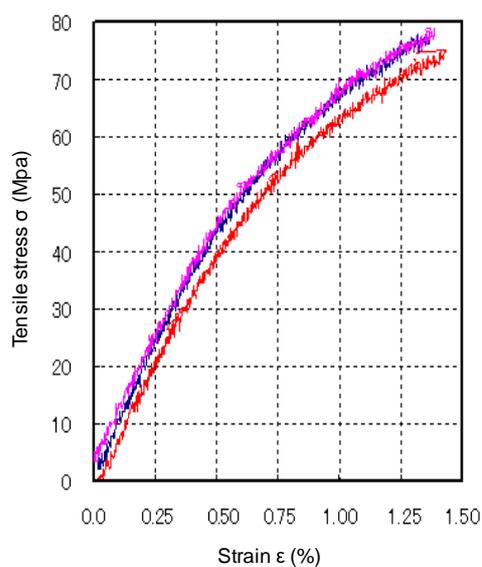


Fig. 3.4: Relation between tensile stress and strain :Static tension test(0.01 m/sec) .

衝撃試験機を図 3.2(c) に示す．また，図 3.3 は 0.001 m/sec の速度で応力とひずみとの関係を示す．選定材料の引張破断強度のカタログ値が 70 MPa であるのに対して，本試験の破断強度の結果は図 3.3 に示すように 52 MPa ~ 77 MPa の範囲であり，その平均は約 64 MPa である．

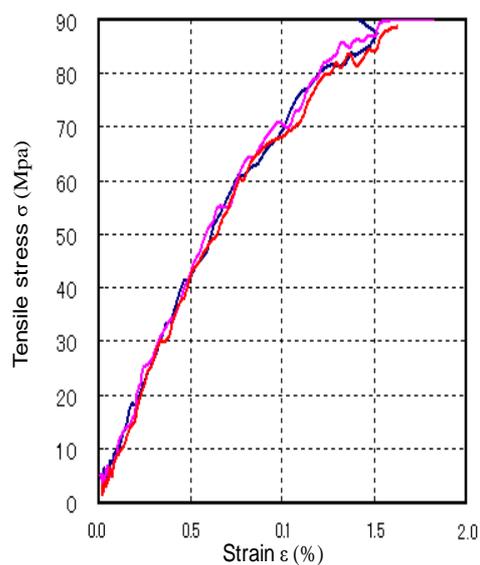


Fig. 3.5: Relation between tensile stress and strain :Impact-test(1.0 m/sec) .

また，図 3.3 においてひずみ 0.5 % の時の応力が 48 MPa であることからヤング率は約 9.4 GPa であることがわかる．図 3.4 に引張速度 0.1 m/sec，図 3.5 に引張速度 1 m/sec の時の応力とひずみの関係を示す．破断強度の引張速度依存に関して，0.001 m/sec から 1 m/sec に速度が増加するのに伴い，破断強度は約 40 % 増加することがわかる．また，ヤング率はほとんど変わらないことがわかった．

### 3.3 試験体の概要と実験方法

#### 3.3.1 試験体の概要

接触界面の挙動を確認するための試験体の概要のイメージを図 3.6 に示す．インサート材を図 3.6 に示す 2 トン試験機のラムによって軸方向に上方から押し出す試験に供する．図 3.6 の治具の中央にインサート材の直径より大きい穴を設けて，インサート材が内部に落とされるようになっている．インサート材を押し出す際のせん断力  $f_s$  を測定する．力の釣り合い関係式  $f_s = \mu P$  (ここで， $\mu$  は摩擦係数， $P$  は面圧力で面圧  $\sigma_{pm}$   $\times$  接触面積  $A_0$  を示す．) によって，樹脂とインサート材間界面に加わるモールド時の面圧  $\sigma_{pm}$  を求めることができる．

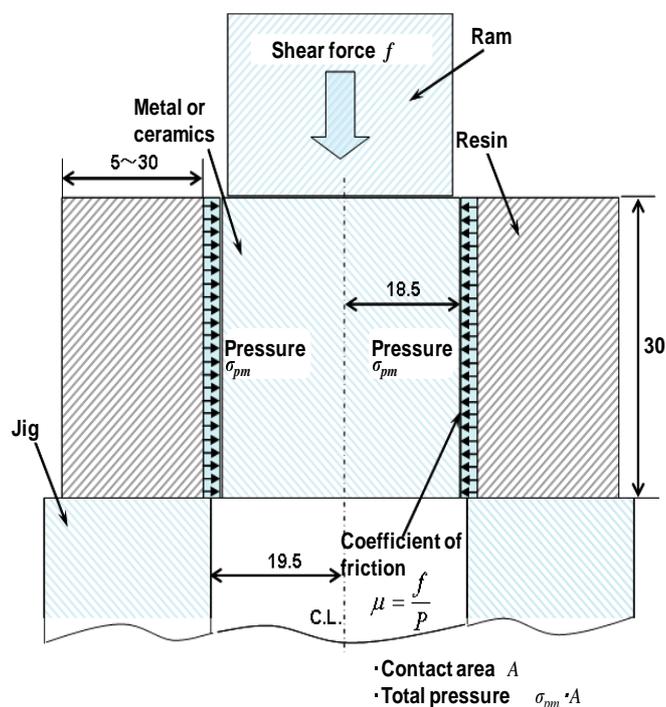


Fig. 3.6: Specification of element model .

### 3.3.2 試験方法

界面強度を求めるための界面はく離実験概略を図 3.7 に、試験片付近の拡大図を図 3.8 に示す。試験装置は、図 3.7 に示すように治具上に試験片が設置されている。また、図 3.7 の治具の中央には円柱が押し出されるように金属円柱の直径より大きい貫通穴を設けている。試験機のラムでモールドされている金属円柱を変位制御により 0.01 mm/sec の速度で押し出す。押し出す際のラム負荷すなわちせん断力  $f_s$  と変位  $x$  を計測する。

試験には島津製作所製オートグラフ AG-100 kNG の試験機を使用した。また、変位測定には東京測器研究所製高感度変位計 CDP-25 の 25 mm 変位センサー A と CDP-10 の 10 mm 変位センサー B を使用した。ここで変位  $x$  は、変位センサー A により計測される押しラムの先端の変位と変位センサー B により計測される受け治具の変位との差を取って補正した値を用いる。

試験体は、第 2 章の樹脂モールド内部界面生成プロセスの方で示したようにあらかじめ金属円柱を挿入した金型中に液状のエポキシ樹脂を注入し真空脱泡を行い、温度上昇による硬化反応で金属円柱と樹脂が一体となり金型から離型され図 3.9 のように製作される。

モールドを行う際の炉の設計条件は、一次硬化温度 85 °C で 7 時間保持し、二次硬化温度 130 °C で 24 時間保持後、7 °C/hour で常温 (20 °C) まで冷却した。図 3.10 はモールド時に測定した樹脂の中の温度を示す。硬化時の最大温度差は 110 °C で、最高温度は 130 °C である。また、用いたエポキシ樹脂のガラス転移温度は 140 °C であるため、ガラス転移温度付近で生じる樹脂の

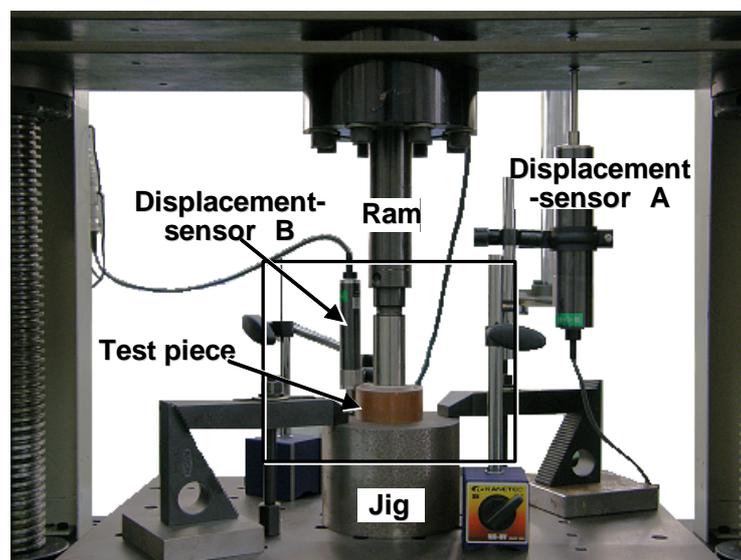


Fig. 3.7: Experimental system .

粘性特性による影響は少ないと考えられる。

熱硬化型樹脂モールド構造は、樹脂が硬化するときにかかる体積変化、および樹脂と金属の熱膨張係数の差異によるひずみに起因する残留応力( $\sigma_{pm}$ )が面圧として図 3.11(a) のように内部界面に働く。その内部界面の金属と樹脂間の状態をレーザー顕微鏡で観察した写真を図 3.11(b) に示す。このように金属と樹脂間の界面は金属表面の切削痕による周期的凸凹に樹脂が流れ込み硬化した状態となっていることがわかる。つまり、押し出し実験は周期的凸凹の界面状態の中でせん断方向の負荷によってはく離を起こすことになる。

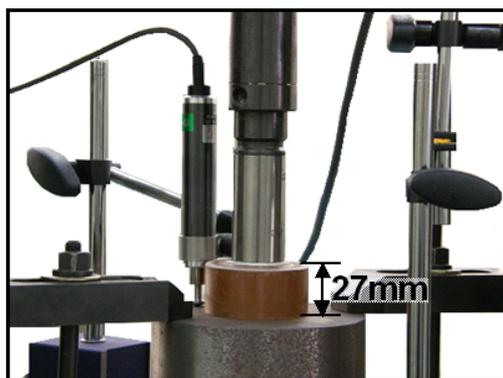


Fig. 3.8: Enlarged view of experimental system .

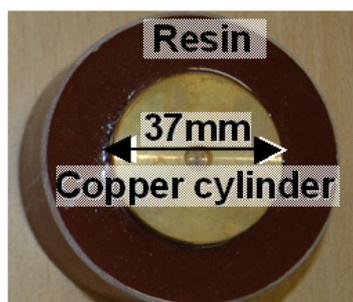


Fig. 3.9: Test piece .

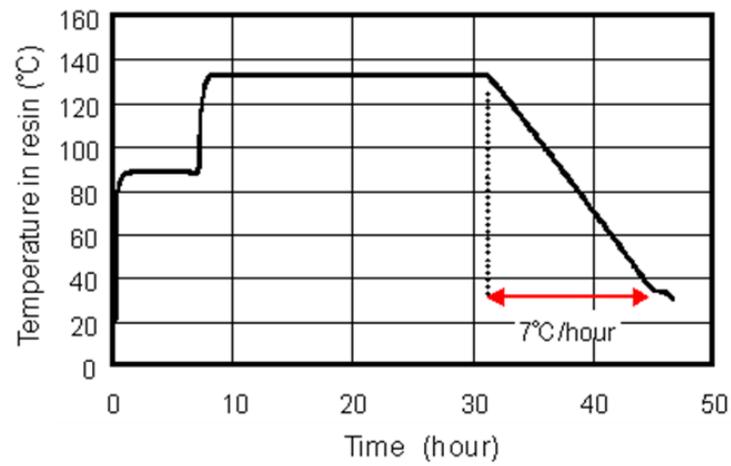
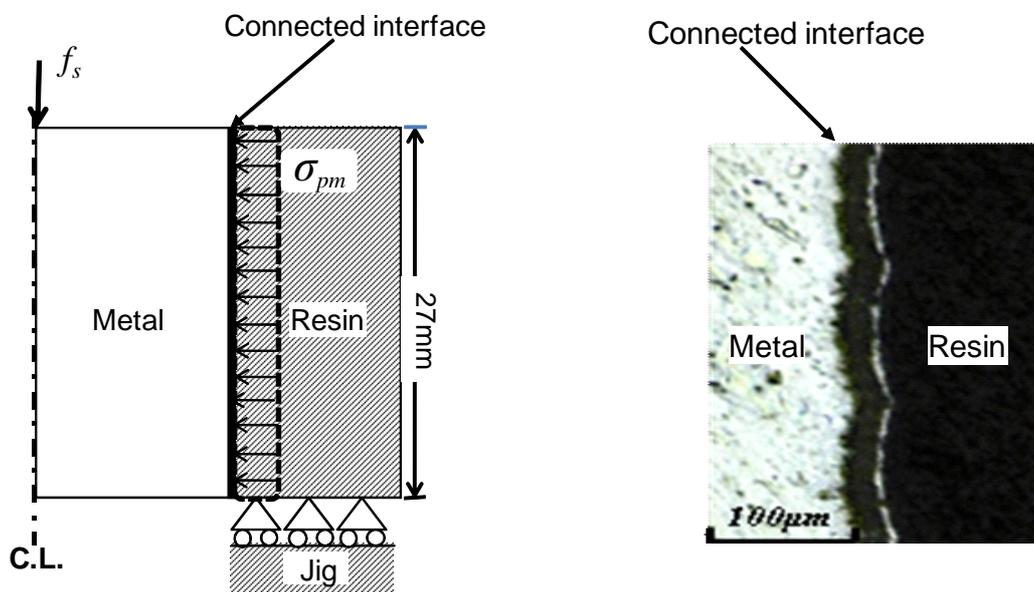


Fig. 3.10: Relationship between temperature and time .



(a) Stress field of test piece

(b) Observation interface by microscope

Fig. 3.11: Axially symmetrical cross section .

### 3.4 樹脂モールド構造の接着界面のはく離実験

試験機のラムでモールドされている金属円柱を変位制御により 0.01 mm/sec の速度で押し出す際のラム負荷すなわちせん断力  $f_s$  と変位  $x$  を計測する。

図 3.12(a) は試験中の金属円柱（アルミニウム）の押し出し状態を、図 3.12(b) は試験片のアルミニウムが試験途中で押し出されている状態を示す。図 3.12(a) と図 3.12(b) に示すように、押し出した後の樹脂内周にアルミニウムの残骸は残っていない。または押し出された後のアルミニウムの外周に樹脂の残骸は付着していない。つまり、樹脂と金属間の接着界面で、はく離が起こっていることを示す。

図 3.13 には三種の試験片でのせん断力  $f_s$  と変位  $x$  の関係を示す。変位はラムの先端部の位置を示し樹脂の高さ 27 mm まで変位制御により変化させている。図 3.13 の変位軸は 0.0 mm から 0.2 mm までの急激なせん断力の変化とそれ以降の滑らかなせん断力の変化を同時に表すために対数で表している。

図 3.13 よりせん断力は材料によらず、急激に増大し、急激に減少するピーク（変化の山）が過渡の中で 2 箇所存在する。これは、本構造が平面構造ではなく、軸対称構造であるためと考えられる。つまり、はく離が生じると接着力（結合力）が開放され、均等に加わっていた面圧の再配分が生じる可能性がある。これによって部分的な力の集中が起き、安定する間にピークが現れると考えられる。このことから一つ目のピークがはく離の有無を表すと考えられる。

図 3.13 に示す界面のはく離強度に相当するせん断力は銅（33 kN）、鉄鋼（33 kN）、アルミニウム（8 kN）の順に大きい。図 3.13 に示す試験結果を材料間で比較すると、いずれの材料も、せん断力は急激に増大し、最大せん断力の後、金属円柱と樹脂間に接触界面が現われせん断力

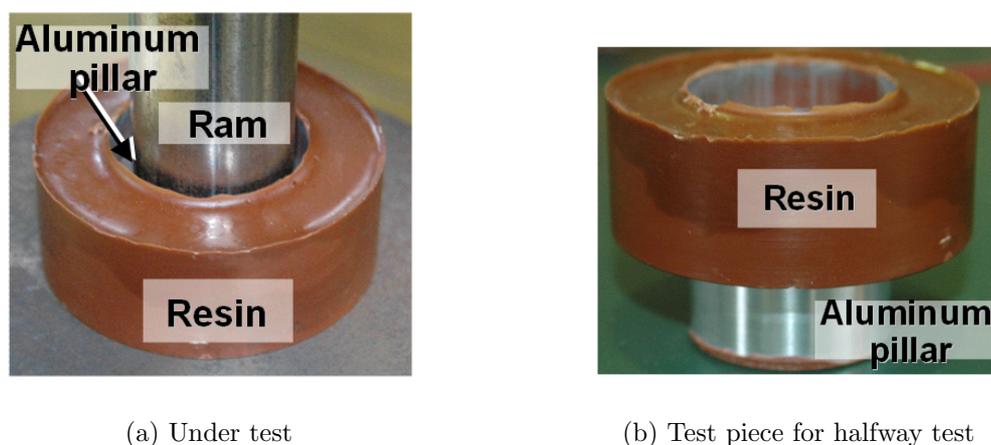


Fig. 3.12: Test piece for halfway test .

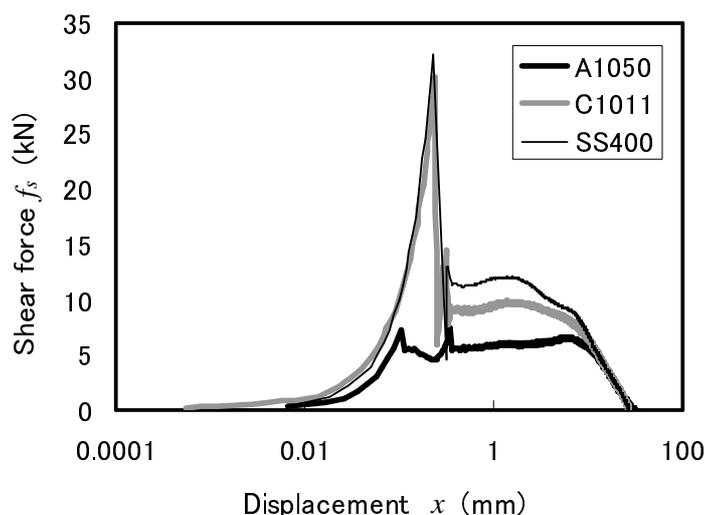


Fig. 3.13: Relationship between shear forces and displacement .

は急激に減少していることがわかる．図 3.13 の試験結果は以下のように整理される．

- 樹脂モールド構造の界面のせん断強度の限界までは摩擦力と接着力の両方が作用すると考えられる．
- 金属円柱が樹脂界面をすべりだすと接着力はなくなり，摩擦力だけが作用すると考えられる．
- 対象材質の比較からせん断強度の限界までの最大せん断力は銅と鉄鋼が大きく，その値は図 3.13 より 33 kN であり，アルミニウムは 8 kN である．
- 対象材質の比較からはく離直後のせん断力（摩擦力）は鉄鋼が最も大きく，その値は図 3.13 より 13 kN であり，銅は 11 kN，アルミニウムは 6 kN である．
- はく離直前の最大せん断力に含まれる接着力は，摩擦力を取り除いた値となり銅が最も大きく，その値は 22 kN であり，鉄鋼は 20 kN，アルミニウムは 2kN である．

### 3.5 せん断力と面圧との関係

測定したせん断力には界面状態や面圧の影響が含まれている．これより，界面の接着強度を評価するためには，界面状態の影響が少なく，面圧の影響が大きいと思われるモールド試験体

を製作して、せん断力と面圧との関係を把握する必要がある。

セラミックスを絶縁体として使用する場合、汚れなどをつきにくくするためにセラミックスの表面に釉薬処理を施す場合が多い。図 3.14(a) は釉薬処理のみを施した構造を押し出した後のセラミックスの表面状態の写真と変位とせん断力との関係を示す。また、図 3.14(b) は釉薬処理施した後、釉薬側と樹脂側両方に接着性があるカップリング材で界面処理を行った構造を押し出した後のセラミックスの表面状態と変位とせん断力との関係を示す。これにより接着の程度にかかわる界面状態の以外の材料、寸法、樹脂厚 (14 mm) などの条件を同様に設定することで、残留応力による面圧力 ( (a)14 kN, (b)14 kN) が一定の場合の接着強度の変動 ( (a) 接着力なし, (b) 接着力あり) をせん断力の変動 ( (a)17 kN, (b) 30kN) によって確認できる。

次に、接着作用があるカップリング材処理を行った試験体を用いて、樹脂厚を 20 mm と 30

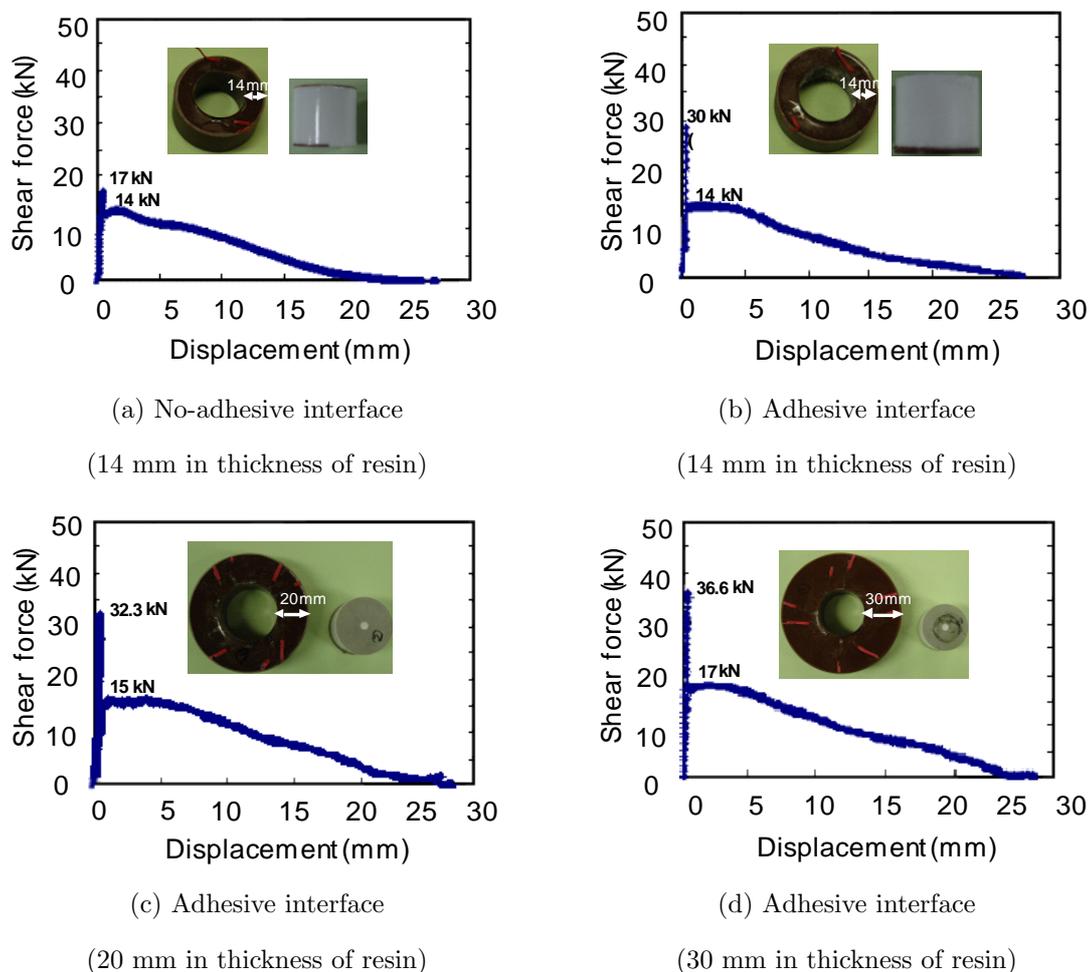


Fig. 3.14: Relationship between shear forces and displacement .

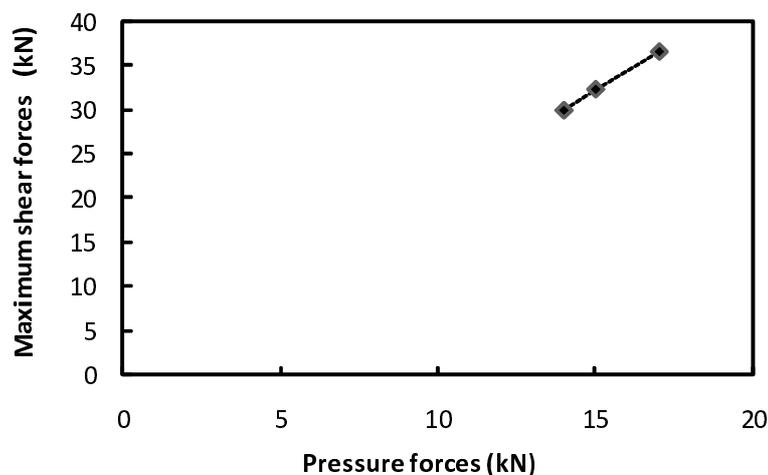


Fig. 3.15: Relationship between maximum shear forces and pressure forces .

mm に変えることで残留応力による面圧を変動させて比較する．図 3.14(c) は樹脂厚を 20 mm にした構造を押し出し後，セラミックスの写真と変位とせん断力 ( (c)32kN ) との関係を示す．図 3.14(d) は樹脂厚を 30 mm にした構造を押し出し後のラミックスの写真と変位とせん断力 ( (d)36.6 kN ) との関係を示す．

ここで，図 3.15 に図 3.14(b) , (c) , (d) のせん断力と面圧力 ( (b)30 kN , (c)32 kN , (d)36.6 kN ) と残留応力による面圧と摩擦係数による摩擦力 ( (b)14 kN , (c)15 kN , (d)17 kN ) は比例の関係であることが読み取れる．

### 3.6 結言

2 章のモールドプロセスにしたがって，銅，鉄鋼，アルミニウムの 3 種類の金属インサート材をモールド製作した試験体を用いて，試験体要素モデルと内部接着界面のはく離実験方法を示した．

内部接着界面のはく離実験を行い金属と樹脂間の接着界面に生じるせん断力を測定した．また，測定したせん断力から樹脂モールド構造の金属と樹脂間の界面には，摩擦力と接着力および面圧が作用していることを確認した．さらにモールド時の残留応力によって接着界面に面圧が働くことになるが，この面圧とせん断力との関係が比例の関係であることを明らかにした．

内部接着界面のはく離実験結果により，界面のはく離強度に相当するせん断力は銅 ( 33 kN ) ，

鉄鋼 (33 kN) , アルミニウム (8 kN) の順に大きいことと , いずれの材料も , せん断力は急激に増大し , 最大せん断力の発生後 , 金属円柱と樹脂間に接触界面が現われ , せん断力は急激に減少していることがわかった . また , 樹脂モールド構造の界面のせん断強度の限界までは , 摩擦力と接着力の両方が作用すると考えられ , 金属円柱が樹脂界面をすべりだすと接着力はなくなり , 摩擦力だけが作用すると考えられる . さらに , 対象材質の比較からせん断強度の限界までの最大せん断力は銅と鉄鋼が大きく , 33 kN であり , アルミニウムは 8 kN である . はく離直後のせん断力 (摩擦力) は鉄鋼が最も大きく 13 kN であり , 銅は 11 kN , アルミニウムは 6 kN である . はく離直前の最大せん断力に含まれる接着力は , 摩擦力を取り除いた値となり銅が最も大きく , 22 kN であり , 鉄鋼は 20 kN , アルミニウムは 2 kN である .

## 第4章 接着・摩擦有限要素解析手法の提案

### 4.1 緒言

第3章では、樹脂モールド構造の金属と樹脂間の接着界面強度と界面に働く力をはく離実験により求め、樹脂モールド構造の内部界面の挙動を検討した。その結果、内部界面には、摩擦力と接着力および面圧が作用し、これらの力が樹脂モールド構造全体の挙動に与える影響が大きいと考えられる。樹脂モールド構造の設計には内部界面の接着強度を正しく評価するために、摩擦力と接着力および面圧をすべて考慮した解析手法が必要である。

しかしながら、樹脂モールド構造における界面の力学特性についてはまだ不明な点が多く、多くの場合は、異種材料間を共有節点にする界面を考慮しない固着モデルを用いるか、または、摩擦力のみを考慮し解析を行う。

摩擦力を考慮した界面の接触問題を解析する方法としては、ペナルティ法 [65] や拡張ラグランジェ方法 [66, 67] が広く用いられている。しかし、樹脂モールド構造のような界面に摩擦力と接着力および面圧が複合して存在する問題には適用できない。このような問題に対して、損傷力学に基づき、界面の損傷とはく離を統合させた Cohesive zone model に関する研究が数多く行われている [71–74, 92, 93]。Cohesive zone model によるき裂進展解析はき裂が接触する二つの界面が分離する現象を理想化させ、二つの界面に作用する結合力と変位間の構成方程式を記述することにより、き裂の発生および進展を解析する方法である。しかしながら、Cohesive zone model はモデルの複雑さにより製品向けの汎用的なモデルには至っていない。

そこで本章では、実験により求めた金属製の円柱と樹脂間のせん断力を用いて、接着強度指標による三つの力（摩擦力、接着力、残留応力による面圧）の分解と界面に作用する力のモデル化を行う。また、分解した3つの力を非線形ばねを使った単純モデルでモデル化し、そのモデルを用いて接着・摩擦有限要素解析手法を提案し、提案手法の妥当性を検討する。さらに、界面の特性を再現できることを示す。また、樹脂モールド構造の内部界面の接線方向はせん断ばね（接着強度指標を用いるせん断力によるばね定数）とし、法線方向は垂直ばね（樹脂のヤング率から求まるペナルティ剛性によるばね定数）とするモデル化を行うことで、実機部品である絶縁ロッドの破断強度試験がよくシミュレートできることを示す。[94]。

本章の構成を以下に示す．

- 緒言
- 界面に作用する力のモデル化
- 有限要素法に基づく接触解析手法
- 接着係数および接着強度指標の妥当性検証
- 気中絶縁ロッドの開発への適用
- 結言

## 4.2 界面に作用する力のモデル化

実験結果に基づき，樹脂モールド構造に適した解析手法を提案するために，界面に作用する力のモデル化を行う．

図 3.9 に示す試験片を軸対称モデルとして図 4.1 に示す．図 4.1(a) は試験開始前で界面が結合され金属円柱と樹脂が一体となっている状態を示し，図 4.1(b) は試験が開始され強制的に変位が与えられるが，まだ界面は結合された状態で金属円柱と樹脂は一体的な弾性変形  $x_e$  が生じた場合の状態を示す．その後，最大せん断力に達し，結合からはく離状態になる．最大せん断力は  $f_{s\max}$  と表記する．

界面に生じるせん断ひずみとせん断負荷が加わる界面の面積，およびせん断力と変位との関係を図 4.2 に概念的に示す．図 4.2(a) に示すように界面のはく離強度時の変位  $x_e$  までは樹脂と金属は一体となっていて，ラムの負荷による上部平面のずり変形によってせん断ひずみ  $\gamma_S (= x_e / (R_2 - R_1))$  が生じる．また，せん断負荷が加わる界面の面積は図 4.2(b) で示すように， $x_e$  までは初期断面積  $A_0$  を維持していて，それ以降のせん断面積  $A(x)$  は変位  $x$  の変動とともに減少していく．

せん断力  $f_s$  のモデル化を図 4.2(c) に示す．ラムの負荷による変形量が界面のせん断強度の限度内である場合，せん断力  $f_s$  はせん断応力  $\tau_s$  とせん断面積  $A_0$  の積で求まる．ここで，せん断応力  $\tau_s$  は横弾性率  $G$  とせん断ひずみ  $\gamma_S(x)$  の積で得られる．従って，弾性変形量  $x_e$  までのせん断力  $f_s$  は，変位  $x$  に比例して増加する．

変位は  $x = x_e$  の時点で，界面のせん断力  $f_s$  は最大となり，その後せん断力  $f_s$  は急激に減少し，せん断面積の減少と同様にせん断力  $f_s$  が減少していく．ここで，せん断力  $f_s$  が急激に減少

する理由として、金属と樹脂が一体となって弾性変形し、そのせん断応力がせん断強度に達した時、接触界面が現われ界面をすべり出すことによるもの考える。

滑っている時は、金属が樹脂界面を等速直線運動していると仮定すると、せん断力は一定の摩擦力とつりあうことになり、せん断面積の減少とともに減少していくことになる。つまり、せん断強度の限界に達した後のせん断力はクーロン摩擦力によるものと考えられる。

そこで、金属と樹脂が一体となって弾性変形し、そのせん断応力が界面のせん断強度の限界となる力を最大せん断力  $f_{smax}$  とし、図 4.2(c) で示すように摩擦力  $f_f$  に接着力  $f_b$  が加わり、最大せん断力  $f_{smax}$  と釣り合っていると想定する。また、摩擦力  $f_f$  と接着力  $f_b$  とともに、モールド時の残留応力による面圧に依存するものとする。

### 4.3 有限要素法に基づく接触解析手法

接触界面に作用する力のモデル化を基に、これらの力の定式化を行う。はじめに、焼き詰め理論に基づく面圧を示し、次に摩擦力と接着力のそれぞれの定式化を行う。また、界面の接着特性を再現できる接触解析手法に適用する。

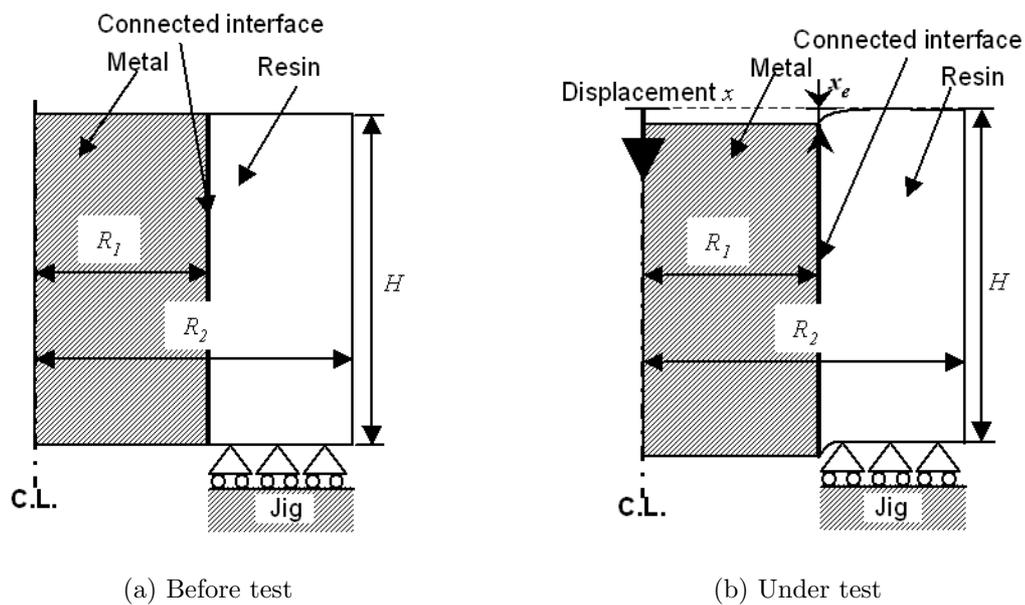
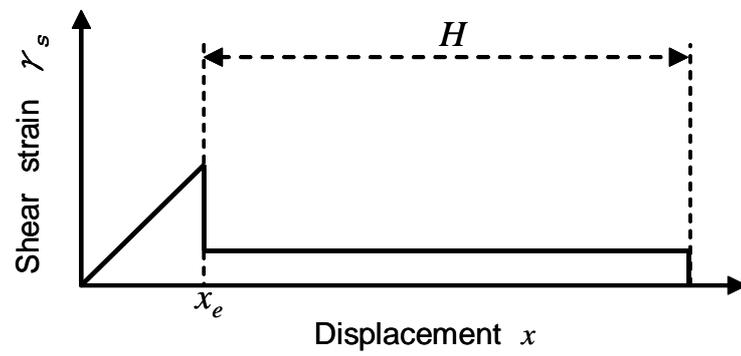
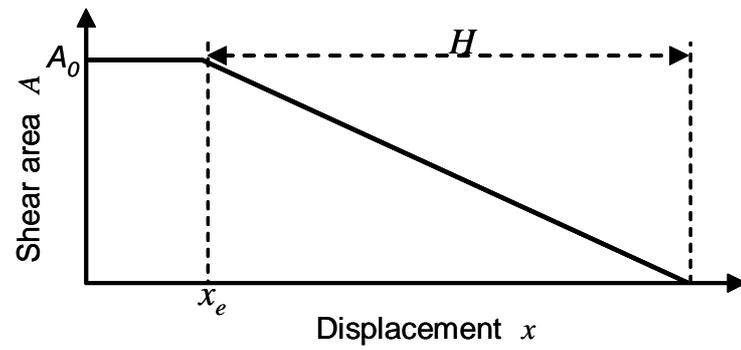


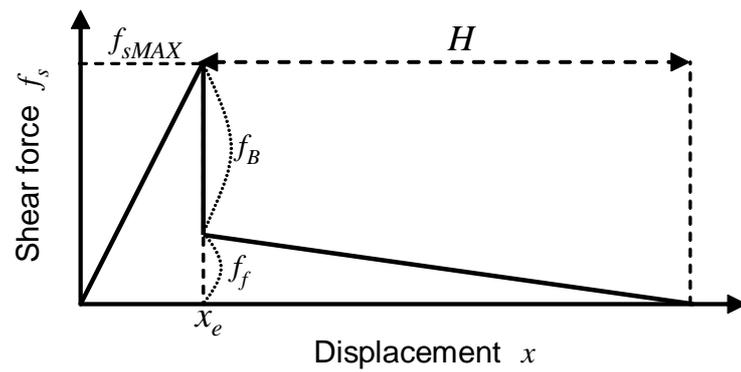
Fig. 4.1: Concept of test piece (Axially symmetrical cross section).



(a) Relationship between shear strain and displacement



(b) Relationship between shear area and displacement



(c) Relationship between shear force and displacement

Fig. 4.2: Modeling of contact interface .

### 4.3.1 残留応力による面圧作用

第 2 章の試験体モールド製作時の熱変形量の測定によって、モールド時の熱変形は 1 次硬化反応が生じる 85 °C で圧縮方向にひずみが発生し、その後 130 °C への温度増加にしたがって熱膨張によりひずみが引張に転じ 130 °C で 2 次硬化反応が生じると再びひずみは圧縮方向に発生し、130 °C 一定で 24 時間放置すると応力緩和によるクリープひずみが発生する。さらにその後 7 °C/h の徐冷で常温に戻す際、圧縮方向に熱ひずみが発生することがわかった。これは、1 次硬化および 2 次硬化での硬化反応によるひずみは、クリープひずみの発生によりリセットされ、残留応力として残るひずみは、主に徐冷で常温に戻す際に発生する熱ひずみであることを表す。

そこで、測定した円周および軸方向ひずみと FEM の熱応力計算によりひずみがほぼ一致していることと、FEM による半径方向の平均面圧と焼き嵌め理論による面圧がほぼ一致していることを確認し、本研究における残留応力による面圧  $\sigma_{pm}$  作用はモデル化の簡略化のために、組み合わせ円柱の焼き嵌め理論による、式 (4.1) により算出することとした。ここで、 $R_1$ 、 $R_2$  は図 4.1(a) に示す金属円柱の半径と樹脂モールド試験片の外径である。 $E_1$  と  $E_2$  は金属と樹脂のヤング率、 $\nu_1$  と  $\nu_2$  は金属と樹脂のポアソン比である。また、 $\delta$  は焼きはめ代で、金属と樹脂の線膨張係数の差と温度差  $T$  および金属円柱の半径の積として求められる。

$$\sigma_{pm} = \frac{\delta}{2R_1 \frac{(1+\nu_2)(\frac{R_2}{R_1})^2 + (1-\nu_2)}{E_2(\frac{R_2}{R_1})^2 - E_2} + \frac{(1-\nu_1)}{E_1}} \quad (4.1)$$

### 4.3.2 接触界面の摩擦力の作用

摩擦力は、Coulomb 摩擦モデルを用いて、次式で表される。

$$f_f = \mu \langle -f_n \rangle = \begin{cases} \mu f_n & (f_n < 0) \\ 0 & (f_n > 0) \end{cases} \quad (4.2)$$

ここで、 $f_f$  は摩擦力の接線方向成分、 $f_n$  は樹脂と金属円筒の面圧の法線方向成分を示す。また、すべりに伴い変動する金属と樹脂間の界面にせん断力が加わるせん断面積  $A(x)$  は、以下で表される。

$$A(x) = \begin{cases} 2\pi R_1 H & (0 \leq x \leq x_e) \\ 2\pi R_1 (H - (x - x_e)) & (x > x_e) \end{cases} \quad (4.3)$$

ここで， $H$  は図 4.1 で示す樹脂の高さである．式 (4.2) を用いて面圧の法線方向成分  $f_n$  は式 (4.4) より求められ，摩擦力  $f_f$  は式 (4.5) で表される．

$$f_n(x) = \sigma_{pm}A(x) \quad (x \geq x_e) \quad (4.4)$$

$$f_f(x) = \mu\sigma_{pm}A(x) \quad (x \geq x_e) \quad (4.5)$$

### 4.3.3 接着界面の接着力の作用

樹脂モールド構造の界面にはモールド時に生じる残留応力による面圧が垂直に作用し，垂直抗力が生じる．従って，接触界面に生じる接着力は，残留応力による面圧に比例して，次式のように表される．

$$f_b = B \langle -f_b \rangle = \begin{cases} Bf_b & (f_b < 0) \\ 0 & (f_b > 0) \end{cases} \quad (4.6)$$

ここで， $f_b$  は接着力の接線方向成分， $f_b$  は接着時の面圧（垂直抗力）で， $B$  は“接着係数”， $\mu + B$  は“接着強度指標”として新しく定義するものであり，面圧と接着面積の大きさに依存しない接触する材料間の接着強度に対応するものである．接着力  $f_b$  が式 (4.6) のように面圧に比例することは，別途面圧を変化させた試験により確認している．これは，垂直方向の残留応力の接着プロセスへの影響と残留応力の垂直方向とせん断方向の混合モード効果による見かけの界面のせん断強度の向上が原因と考えられる．また，接着力  $f_b$  は樹脂と金属の間に接触界面の発生により変位が生じると，失われる．従って，図 4.2(c) で示すように最大せん断力が生じ弾性変形量  $x_e$  に達した時に接着力  $f_b$  は零となり式 (4.7) のようなステップ関数で定義する．

$$f_b = \begin{cases} B\sigma_{pm}A(x) & (x \leq x_e) \\ 0 & (x > x_e) \end{cases} \quad (4.7)$$

### 4.3.4 有限要素法に基づく接触解析手法

前節まで定義した界面のモデルおよび定式を用いて，界面の接着特性を精度良く再現できる接触解析手法を以下で検討する．有限要素法によるモデルは，図 4.3 に示すように接触する金属と樹脂の節点間に接触ペアになる 2 節点を設け，それらを結ぶ非線形ばねを設定する．

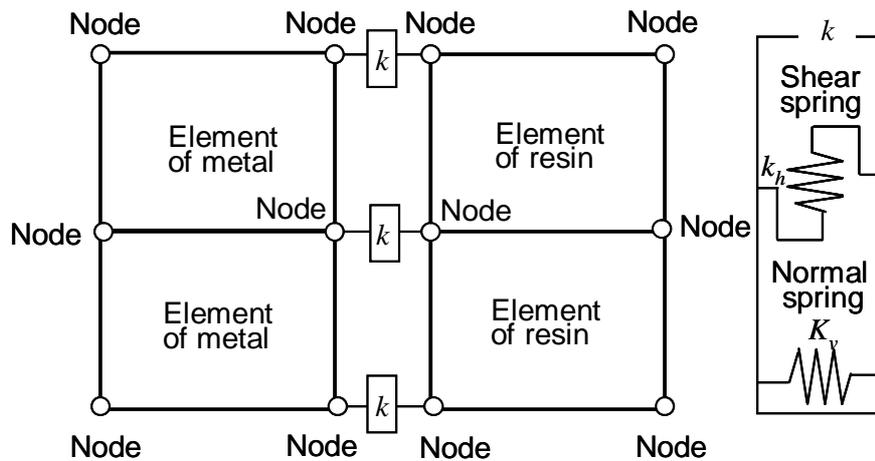


Fig. 4.3: Analysis model (Non-linear spring) .

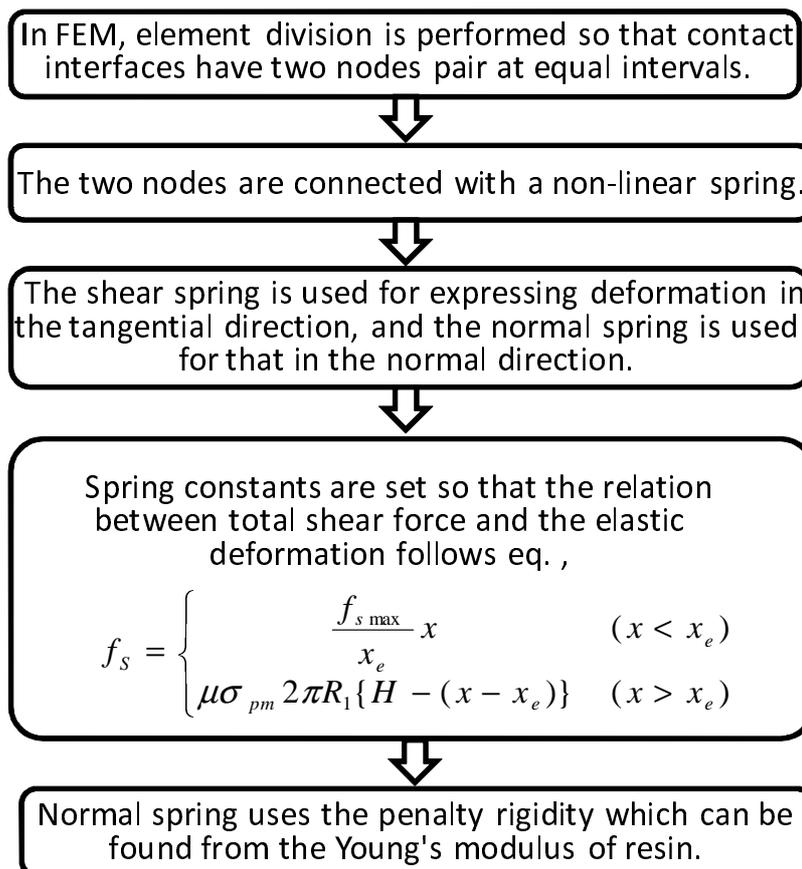


Fig. 4.4: Flowchart of contact analysis .

ばねの接線方向（接触面の接線方向）と法線方向（接触面の垂直方向）はそれぞれ独立と考え、図 4.3 に示すように接線方向はせん断ばねとし、法線方向は垂直ばねとすることで界面の接着特性の再現を試みた。式 (4.5) と式 (4.7) によるせん断力  $f_s$  は下記のように表される。

$$f_s = \begin{cases} (\mu + B)\sigma_{pm}2\pi R_1 H x = \frac{f_{smax}}{x_e} x & (x \leq x_e) \\ \mu\sigma_{pm}2\pi R_1 (H - (x - x_e)) & (x > x_e) \end{cases} \quad (4.8)$$

有限要素解析では等間隔にメッシュを配置し、系全体で式 (4.8) が成立するように各節点のばね定数を設定する（総計が式 (4.8) になるように平均的に振り分ける）。また、垂直ばねは樹脂のヤング率から求まるペナルティ剛性を用いる。解析の流れを図 4.4 に示す。

#### 4.4 接着係数および接着強度指標の妥当性検証

本章では、接着力と接着係数およびそれを取り入れた有限要素法に基づく接触解析の有効性を検討するために、第 2 章の実験結果と解析結果の比較を行う。

##### 4.4.1 接着係数および接着強度指標の定義

変位  $x = x_e$  ときの最大せん断力は、式 (4.8) より、次の式のように表すことができる。

$$f_{smax} = (\mu + B)\sigma_{pm}A(x_e) \quad (4.9)$$

式 (4.1) と式 (4.3) より  $\sigma_{pm}$  と  $A(x_e)$  を求め、最大せん断力  $f_{smax}$  を測定結果の図 3.13 より読み取り、式 (4.9) に代入すれば、摩擦係数と接着係数の和で定義する接着強度指標 ( $\mu + B$ ) を得ることができる。また、摩擦係数は測定（平均値）により求められる、接着係数  $B$  を算出することができる。表 4.1 に算出した接着係数と摩擦係数を共に示す。接着係数は、銅、鉄鋼、アルミニウムの順に大きい。

##### 4.4.2 せん断力の実験値と解析値の比較

有限要素法に基づく接触解析により、せん断力  $f_s$  を求め、図 3.13 の測定結果と比較を行う。解析に用いた材料定数を表 4.2 に示す。

解析モデルは、図 4.1(a) に示す  $R_1$  は 18.5 mm,  $R_2$  は 38.5 mm,  $H$  は 27 mm にした図 4.5 の軸対称モデルを用いる。図 4.5 に示すように、樹脂側と金属側で同じ位置節点ペアを持てるようにメッシュを作成する。

実験で用いた試験体の硬化時の最大温度差は 110 で、最高温度は 130 であることから熱負荷  $T = 110K$  となる。また、用いたエポキシ樹脂のガラス転移温度は 140 であるので、ガラス転移温度付近で生じる樹脂の粘性特性による影響は少ないと考えられる。そこで樹脂の温度依存性を考慮するために、表 4.1 に示すように 25 と 130 での樹脂の物性値を用いて、試験体全体に熱負荷 (130 25 ) を加える FEM による熱応力解析 (銅と樹脂の界面は摩擦係数 0.38 による接触条件) を行い、求めた残留応力による面圧と表 4.1 に示すように 130 での樹脂の物性値を用いて、4.3.1 節の焼き嵌め理論式 (4.1) による計算を行い、求めた面圧を比較する。図 4.6 に樹脂の温度依存性を考慮した FEM の計算結果を示す。図 4.6 に示すように界面に働く面圧の平均は 19.2 MPa である。それに対して 4.3.1 節の焼き嵌め理論式 (4.1) による計算結果も 18.8 MPa と FEM による結果とほぼ一致していることが確認できる。そこで、単純モデル化による接着・接触解析手法では 4.3.1 節の焼き嵌め理論に基づく面圧を用いる。また、金属円筒の上部の節点を Tying で設定し、図 4.5 の中の点 A に強制変位を与えることで図 3.7

Table 4.1: Coefficients of friction and adhesion .

Coefficients		Cu(C1011)	Fe(SS400)	Al(1050)
Friction coefficient	$\mu$	0.17	0.16	0.13
Adhesion coefficient	$B$	0.38	0.28	0.05

Table 4.2: Physical properties .

Properties	Unit	Resin	Al(A1050)	Cu(C1011)	Fe(SS400)
Young's modulus $E$	GPa	11/15*	70	117	206
Poisson's ratio $\nu$	-	0.29/0.34*	0.35	0.34	0.3
Thermal expansion coefficient $\alpha$	ppm/K	29/52*	23	17	14

\* at 25 /130

の押し出し試験を再現する．図 4.7 の解析プロセスで示すように，実験で得られた最大せん断力  $f_{smax}=33$  kN とはく離直前の変形量  $x_e=0.2$  mm を用いて，せん断ばね定数を決める．図 4.5 で作成した界面の非線形ばねペアは  $n=29$  ペアあるので， $f_{smax}/28=1178.5$  N を界面内部の 27 ペアのせん断ばね定数として設定し， $f_{smax}/2(n-1)=589.3$  N を界面端部の 2 ペアのせん断ばね定数として設定する．すべり時の挙動は式 (4.1) による面圧を用いて算出し，金属と樹脂の間の摩擦係数  $\mu=0.17$  と面圧および接触面積変化を考慮して，ばね定数を設定した．4.4.1 に示す．Cu 場合についてせん断力と変位との関係を図 3.13 の実測値と一緒に図 4.8 に示す．これより同時にすべり変位ごとの内部せん断力の分布を表している．材質ごとに，せん断力の変動と変位との関係を図 4.9 から図 4.11 に示す．解析値は実験から得られた係数を用いるため，いずれの材質においても，解析値と実験値の傾向が同様であることがわかる．

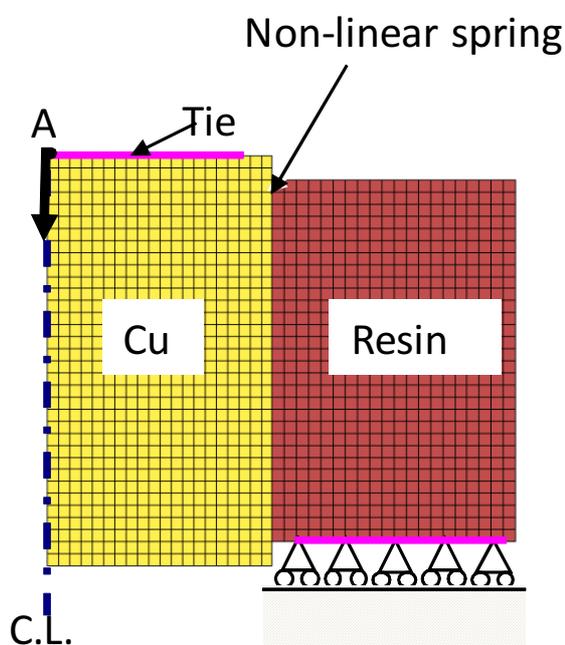


Fig. 4.5: Axially symmetrical cross section FEM-model .

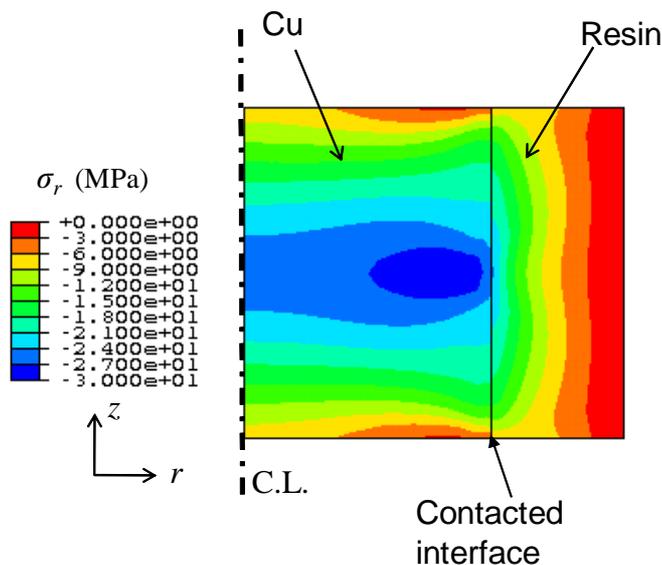


Fig. 4.6: Radial stress distribution by FEM .  
 (Using temperature-dependent properties of resin).

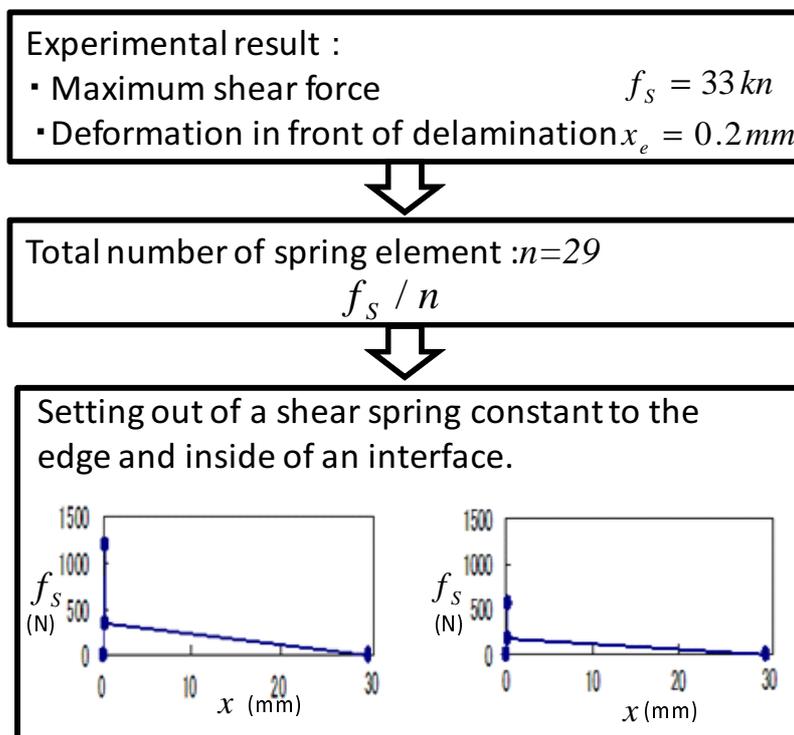


Fig. 4.7: Process of contact analysis (Case of C1011) .

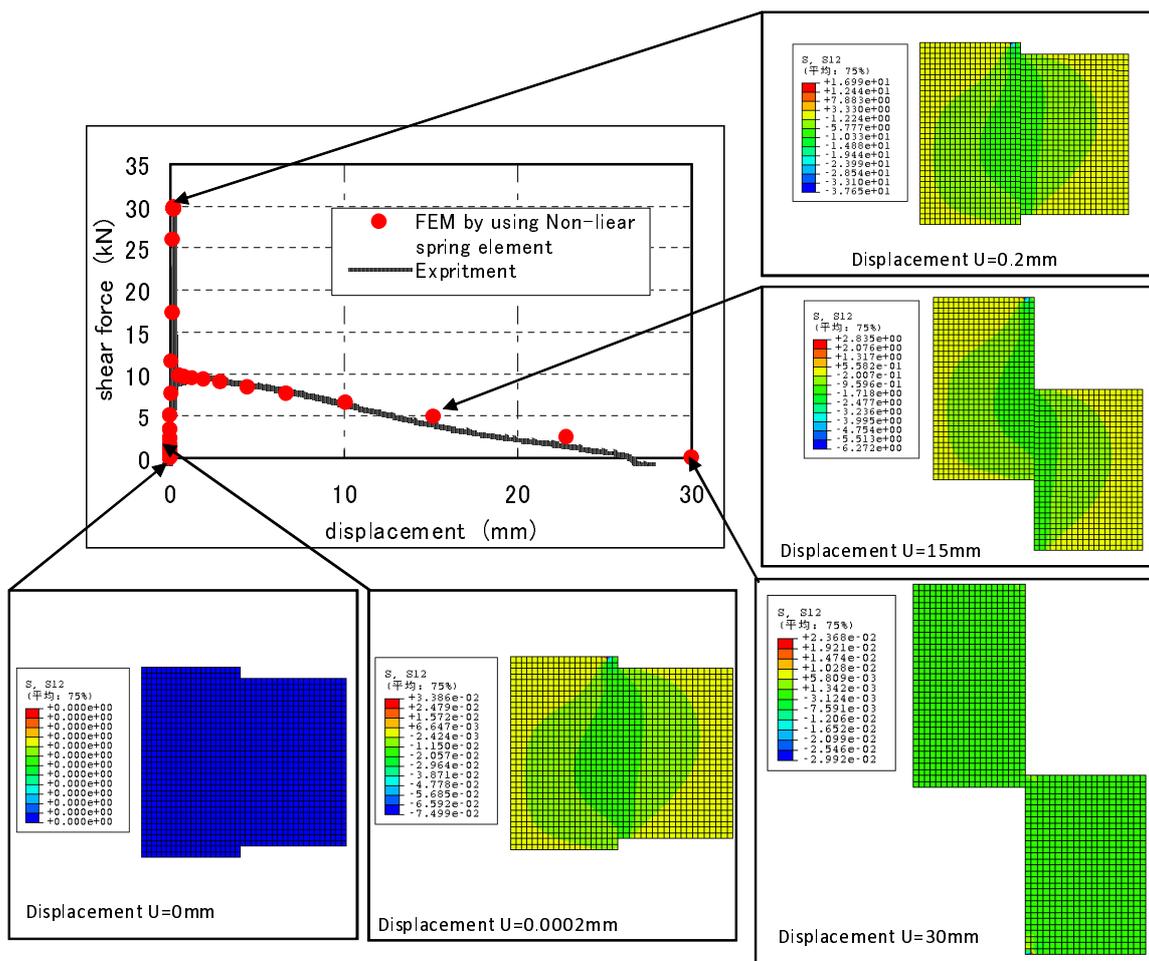


Fig. 4.8: Comparison between measured and numerical-analysis results (Case of C1011) .

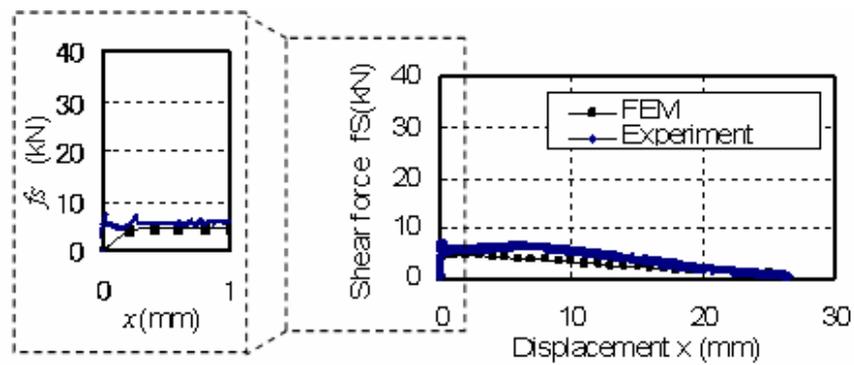


Fig. 4.9: Comparison between measured and numerical-analysis results (Case of A1050) .

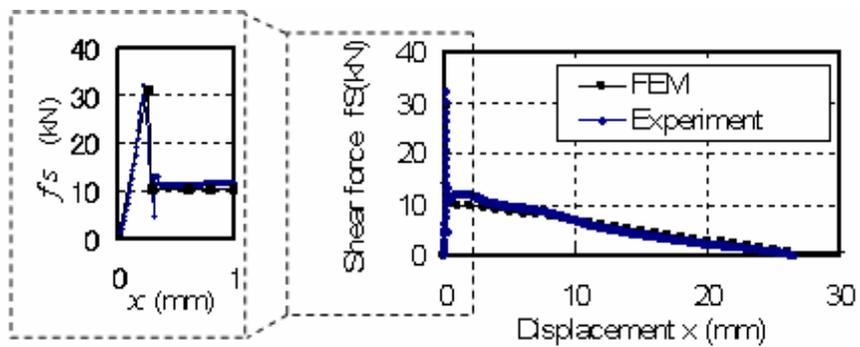


Fig. 4.10: Comparison between measured and numerical-analysis results (Case of SS400) .

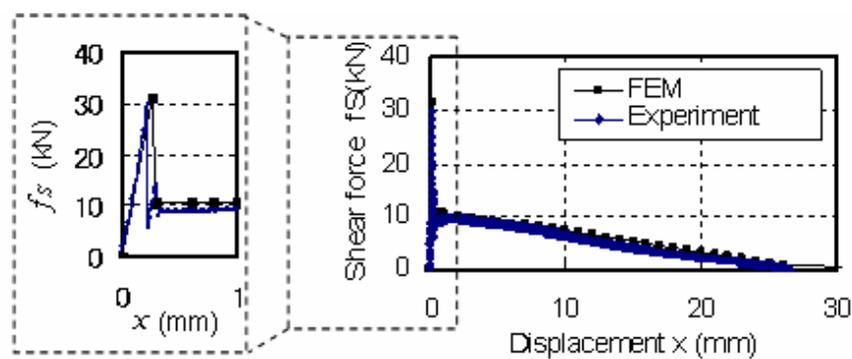


Fig. 4.11: Comparison between measured and numerical-analysis results (Case of C1011) .

## 4.5 気中絶縁ロッドの開発への適用

樹脂モールド構造の内部界面の接線方向はせん断ばね（接着強度指標を用いるせん断力によるばね定数）とし，法線方向は垂直ばね（樹脂のヤング率から求まるペナルティ剛性によるばね定数）とするモデル化を行うことで，実機部品である絶縁ロッドの破断強度試験をシミュレーションできることを示す．なお，絶縁ロッドは2本の鉄鋼棒の間に隙間があげられており，樹脂でモールドされ，接地作用ができる構造になっている．

### 4.5.1 有限要素モデル

図 4.12 に，絶縁ロッドの解析に用いる軸対称有限要素モデルを示す．接触する界面のモールドと鉄鋼棒上の要素分割数が同じ数になるようにモデルを作成し，接触節点ペアを作成する．表 4.1 の鉄鋼（SS400）の接着係数 0.27，摩擦係数は 0.16 を用いる．

図 4.3 に示すように，接線方向はせん断ばねとし，法線方向は垂直ばねとすることで界面の接着特性を再現する．表 4.2 の鉄鋼（SS400）の材料定数を解析に用い，接着・接触有限要素解析を実施した．

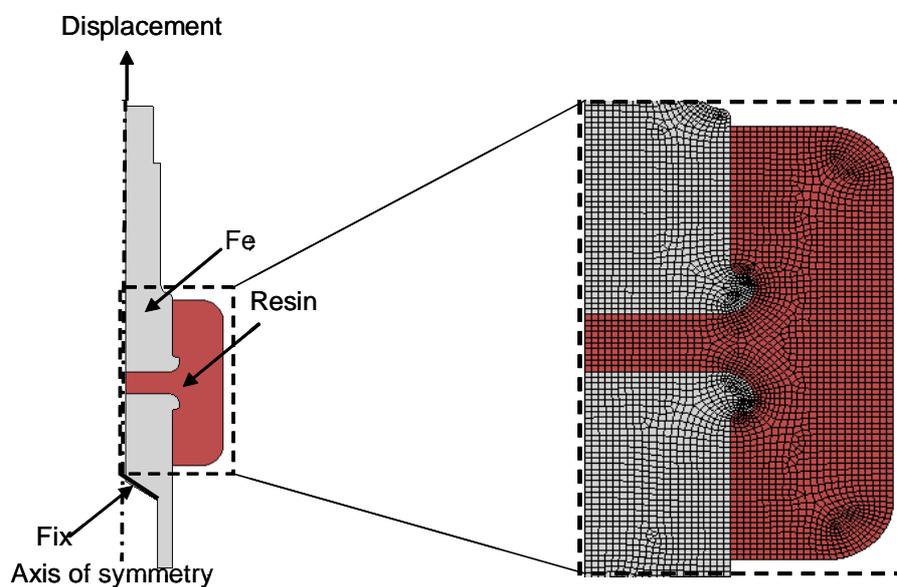


Fig. 4.12: Axial symmetry model of air-insulated Rod.

## 4.5.2 絶縁ロッドの強度解析

樹脂モールド構造の内部界面の接線方向はせん断ばね（接着強度指標を用いるせん断力によるばね定数）とし，法線方向は垂直ばね（樹脂のヤング率から求まるペナルティ剛性によるばね定数）とするモデル化を行うことで，実機部品である絶縁ロッドの破断強度試験がよくシミュレートできることを示すために，界面の接着特性，金属と樹脂の界面に作用する力として接着力を考慮する場合と考慮しない場合について，絶縁ロッドを用いて強度評価を行った．本実機モデルは，絶縁の理由によって鉄鋼棒間に樹脂が挟まれている構造で，樹脂界面にはせん断方向および引張方向の両方に力が発生する例題であり，また，構造の特徴上樹脂界面の法線方向の断面積が鉄鋼棒の円周を囲む接線方向断面積より小さく，界面のせん断強度より界面の引張強度が低いケースである．図 4.13 に引張力と最大引張応力との関係を示す．接着・接触力を考慮している本手法の結果では，鉄鋼材側面と接触している樹脂界面での剥離が生じる前に樹脂の最大引張応力が鉄鋼材底面と接触している樹脂界面で樹脂の引張強さ（43 MPa）に達し，樹脂破壊が生じる．結果，63 kN が臨界の引張力となる．したがって，本手法によって界面の接着特性をせん断方向および引張方向共に示すことが可能であると考えられます．

一方，摩擦力のみを考慮する接触解析結果は鉄鋼棒の凸部と樹脂界面に生じる引張応力が 15 kN の時，樹脂の引張強さに到達する．

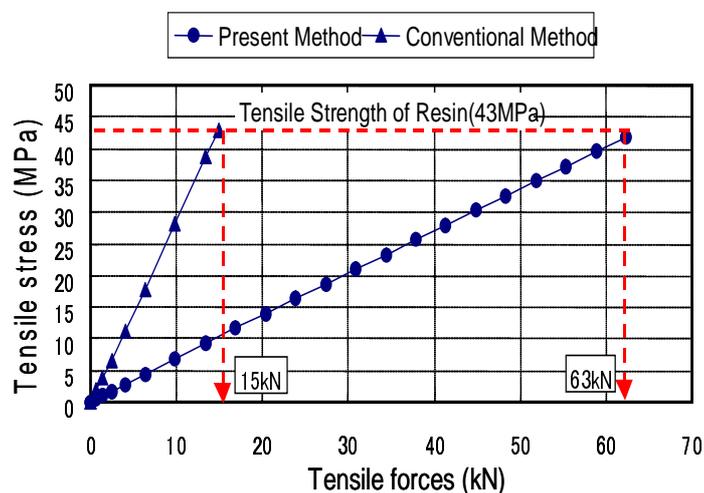


Fig. 4.13: Relationship between shear strain and displacement .

この絶縁ロッドの使用負荷は 16 kN であるため、摩擦力のみを考慮するこれまでの手法では、限界値を超える評価となってしまう。そのため、強度信頼性を確保するためには、大型化や高コストの原因となる可能性がある。それに対して、接着力も考慮する本手法では、最大応力が安全率 3 で決まる設計許容値を下回り、小型化および低コスト化の余地がある、という結果となる。

### 4.5.3 絶縁ロッドの強度試験

絶縁ロッドの引張試験を実施して、6.2 節で示した解析結果と比較を行った。

引張試験は絶縁ロッドを 3 個用意し、変位制御により 0.01 mm/sec の速度で鉄鋼棒を引っ張ることで行った結果、3 個の破断荷重は、64 kN、68 kN、70 kN、であった。図 4.13 に樹脂の最大引張応力が鉄鋼材底面と接触している樹脂界面で樹脂の引張強さ（43 MPa）に達し、界面付近で樹脂破壊が生じた後、さらに変位を増加させ鉄鋼材底面と樹脂間を完全分離させた後の写真を示す。実験では 64 kN、68 kN、70 kN が臨界の引張力となる。

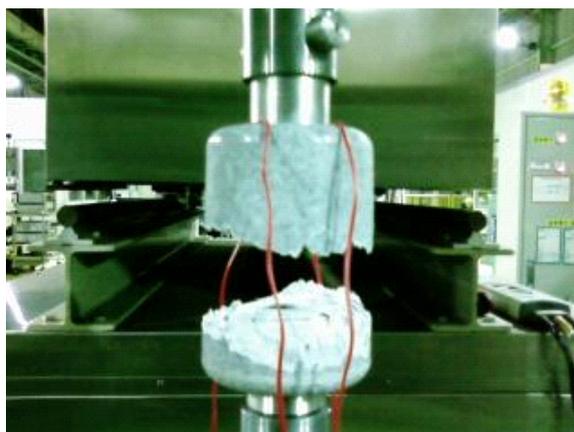


Fig. 4.14: Breaking force 68kN .

## 4.6 結言

樹脂モールド構造の金属と樹脂間の接着界面強度と界面に働く力をはく離実験により求めて、界面の挙動を検討した。その結果、界面には、摩擦力と接着力および面圧が作用し、これらの力が樹脂モールド構造全体の挙動に与える影響が大きいと考えられ、そのために、樹脂モールド構造の接触界面における摩擦力と接着力および面圧が構造全体の挙動に及ぼす影響を考慮し、

接触界面のモデル化および定式化を行った。また、これらを用いて有限要素法に基づく接着・接触解析手法を提案し、以下の結論を得た。

- (1) 界面にはく離が生じる直前までに作用する摩擦力以外の力を“接着力”と定義し、それを規定する“接着係数”、“接着強度指標”を新しく導入することで、残留応力による面圧に依存する摩擦力と接着力で構成される接触界面をモデル化および定式化を行った。また、この接着強度指標が、接触する材料間の接着強度に対応することを示した。
- (2) 接着・接触力を考慮している本手法を絶縁ロッド製品の強度評価に適用した。絶縁ロッド製品モデルの特徴により、鉄鋼材側面と接触している樹脂界面での剥離が生じる前に樹脂の最大引張応力が鉄鋼材底面と接触している樹脂界面で樹脂の引張強さ（43 MPa）に達し、樹脂破壊が生じ、結果、63 kN が臨界の引張力となることがわかった。実験では 64 kN, 68 kN, 70 kN が臨界の引張力となる。したがって、樹脂モールド構造の内部界面の接線方向はせん断ばね（接着強度指標を用いるせん断力によるばね定数）とし、法線方向は垂直ばね（樹脂のヤング率から求まるペナルティ剛性によるばね定数）とするモデル化を行うことで、実機部品である絶縁ロッドの破断強度試験がよくシミュレートできることを示した。

## 第5章 原子レベルモデリングによる界面接着強度の検証

### 5.1 緒言

前章まで、金属円柱と樹脂の界面の挙動を検討するため、樹脂モールドの試験体を作成し、界面のせん断力の測定を行った。また、測定した結果を基に界面の接着性に着目した接着係数  $B$  と摩擦係数  $\mu$  による接着強度指標 ( $\mu + B$ ) を新たに提案し、樹脂モールド構造の接触界面における摩擦力と接着力および面圧が構造全体の挙動に及ぼす影響を考慮した接触界面のモデル化および定式化を行った。さらに、これらを用いて有限要素法に基づく接触解析手法を提案し、はく離の発生からはく離の進展までの界面の特性が再現できることを確認した [94]。

はく離の発生からはく離の進展までの界面特性を再現するためにははく離実験が必要となる。つまり、樹脂と金属間の材料が変更するたびに実験を実施しなければならない。また、樹脂モールド構造の内部接着界面のメカニズムに基づいて、実験結果から求めた内部界面における材料毎の接着強度指標の妥当性の検証が必要である。

そこで、本章では界面接着強度を表すひとつの指標として、界面結合の解離を扱う原子レベルモデリングにより求められる「界面破壊エネルギー (Interfacial fracture energy)」を定義し、それを用いて計算による界面接着強度の手法および界面強度の発現機構を検討する。また、第3章で行ったミクロレベルのはく離実験により得られた界面の接着強度指標とナノレベルの分子動力学法の計算により得られた界面破壊エネルギーとの定性的な比較を行う。さらに、内部接着界面のメカニズムを把握することで界面の接着強度の支配因子を検証するために、ナノスケールの化学結合とミクロスケールのはく離強度の関わり合いについて、主に表面粗さの影響 [82–89] に着目しながら考察する。

本章の構成を以下に示す。

- 緒言
- 古典分子動力学手法

- ニュートン力学的分子動力学法による接着強度の評価
- 実験と計算の比較に関する考察
- 結言

## 5.2 古典分子動力学手法

古典分子動力学手法について一般的概論の関連図書が多数出版されているので、それらを参考されたい [95–99]。計算科学シミュレーションによる現象予測は有用となるが、原子スケールの分解能で現象をシミュレートするためには、原子 1 個 1 個の運動を扱う必要があり、原子の運動方程式を直接解く必要がある。

原子は、原子核とそれを取り巻く電子からできているため、シミュレーションでは、原子核と電子の状態を解くことになる。原子核は、古典力学の基礎方程式であるニュートンの運動方程式（質量 × 加速度 = 力）に従うが、電子の質量は原子核の数千分の 1 以下と軽いために、ニュートンの運動方程式に従わず、量子力学という根本原理に従うことが 20 世紀初頭に見いだされた。実は、原子核や目に見える世の中の物体のように、古典力学に従う物質も、電子と同じように量子力学の基礎方程式、すなわちシュレーディンガー方程式に従っている。ただし、電子の数千倍以上も質量が重い場合に成り立つ近似を持ち込むと、シュレーディンガー方程式がニュートンの運動方程式で近似できるため、古典力学で運動状態を十分に表現できてしまうのである。シュレーディンガー方程式は、電子のような粒子を波として記述するため、波の状態を表す  $\Psi(r, t)$  の方程式として次のように表される。

$$\frac{-\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2 \Psi}{\partial r^2} + U\Psi = i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} \quad (5.1)$$

ここで、 $m$  は質量、 $r$  は空間座標、 $t$  は時間、 $U$  はポテンシャルエネルギー、 $i$  は虚数単位である。また、 $\hbar$  はプランク定数と呼ばれ、 $\hbar = 1.05457 \times 10^{-34} \text{J} \cdot \text{s}$  である。質量  $m$  が電子の数千倍となる粒子の波は、波の存在領域が狭い領域に限られた波束という形で表され、波束の運動がニュートンの運動方程式で近似的に表されることが証明できる。このため、原子核や目に見える世の中の物体は、ニュートンの運動方程式で記述できるのである。量子力学が根本原理であることがわかった現在でも、古典力学のニュートンの運動方程式は物体の運動を記述する重要な方程式ということになる。ここでは、量子力学から古典力学までのシミュレーションを用いて、電子物性と力学的物性に大別される材料物性を高精度予測するシミュレーション技術について述べる。

### 5.2.1 材料の力学特性の古典力学シミュレーション [76]

材料の力学的物性の中でも、産業上で最もニーズが多く、感覚的にも理解しやすい密着強度（はく離強度）を例として取り上げて、古典力学に基づく原子シミュレーション手法を解説する [100]。材料としては、最近の地球環境保全の潮流から、省エネルギー化のための軽量化を意図して多用されつつある樹脂材料を取り上げることにする。樹脂材料は、うまく材料を選ばないと金属材料との密着強度が低い場合が多く、電子部品の製造工程などにおいてははく離してしまうため、密着強度を予測し、強度の高い材料を選定することが重要となる。

古典力学シミュレーションにより、樹脂材料と金属材料の界面における密着強度を予測する場合、それぞれの材料中に存在するすべての原子についてのニュートン運動方程式を連立方程式として解くことになる。これは到底人間の力では解くことができないため、計算機に解かせることになる。方程式は、質量 × 加速度 = 力であるが、これを記述すると以下の式となる。

$$m_j \frac{\partial^2 r_j}{\partial t^2} = -\frac{\partial U}{\partial r_j} + F_j^{ext} \quad (5.2)$$

ここで、 $j$  は原子に付けた通し番号、 $m_j$  は原子  $j$  の質量、 $r_j$  は原子  $j$  の空間座標、 $t$  は時間、 $U$  はポテンシャルエネルギー、 $F_j^{ext}$  は原子  $j$  に働く外力である。式 (5.2) は原子の数だけ存在するため連立方程式となる。

式 (5.2) において、 $-\partial U / \partial r_j$  は材料中の原子の間に働く内力であり、原子の間に存在するばね力のようなもので記述できる。この原子間力をデータベースとして用意しておいてから式 (5.2) を解き、シミュレーションを実行することになる。したがって、簡単には、質量を持った点（質点）がばねで結ばれている系に外力が働く場合の各質点の運動を求めるのが、このシミュレーションの本質と言える。

原子間力を示すばね力は、原子間がある程度の距離（約 0.5 nm 程度）だけ離れてしまうと、力をほとんど及ぼさなくなり、いわばばねが切れた状態となる。金属下地の上に接合されている樹脂の各原子に外力を与えて引きはがすピール試験をシミュレートした結果を図 5.1 に示す。はがれてしまっている部分があるが、それらの部分の原子間力は、ほとんどゼロとなっており、ばねが切れたような状態となっている。外部からどれくらいのエネルギーを与えたらはがれるかといった情報から、密着強度を予測することができる。

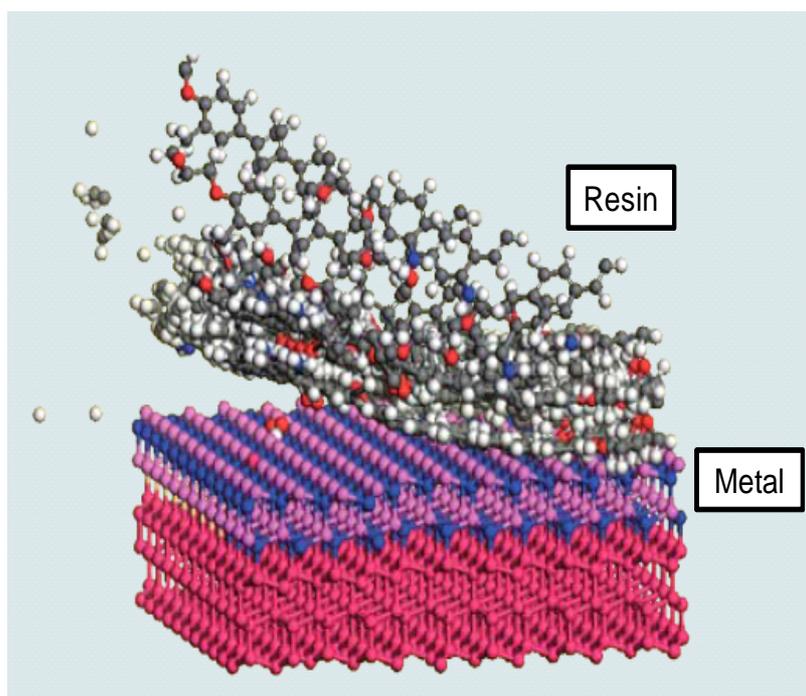


Fig. 5.1: Prediction of the adhesive strength of resin [76].

### 5.3 ニュートン力学的分子動力学法による接着強度の評価

試験における界面のはく離とすべりの変形は図 5.2(a) に示すモード I および図 5.2(b) に示すモード II と二つの独立な変形様式に分離することができる。つまり、接着力によって一体化されていた界面が、せん断方向に荷重を受けはく離が生じ界面が現れ接着力がゼロとなる図 5.2(a) に示すようにモード I の状態となり、界面が現れた後は図 5.2(b) に示すようにモード II の状態でのすべりが発生するが、分子間のすべり難度ははく離が生じにくい尺度を表し接着強度に関係すると考えられる。

そこで、分子動力学法により樹脂モールド構造における内部界面の接着強度を予測する手法を検討する [100, 101]。

#### 5.3.1 分子動力学手法によるはく離モード I の接着強度評価

計算における接着強度評価を検討するために、界面接着強度を表すひとつの指標として、界面破壊エネルギー (Interfacial fracture energy) を定義する。破壊モード I の場合の界面破壊エネルギー (Interfacial fracture energy for mode-I) とは、金属下地上に樹脂が接着した状態での



さらに、金属には表面に自然酸化膜が存在していることが多いが、本研究におけるエポキシ樹脂と金属の界面の場合、熱処理した際に、酸素が金属側に拡散してしまい、界面近傍には酸素がほとんど存在しなくなることから、本モデルでは酸化膜の無い表面だけを用いる。このような現象は、分子動力学シミュレーションによって緩和計算をした場合にも同様に見られる。

計算に用いる金属と樹脂界面の分子構造は、厚さ 0.84 nm × 縦 2.3 nm × 横 2.3 nm の金属の上に図 5.4 の樹脂分子が 16 個（4 層 × 4 個/層）積層された構造を用いた。

また、分子動力学計算には、Accelrys 社 Materials Studio の Discover を使い、ポテンシャルとして Consistent Valence Force Field (CVFF) を用いた [102]。

CVFF ポテンシャルは古典分子動力学用ポテンシャル原子間相互作用と分子間相互作用によっ

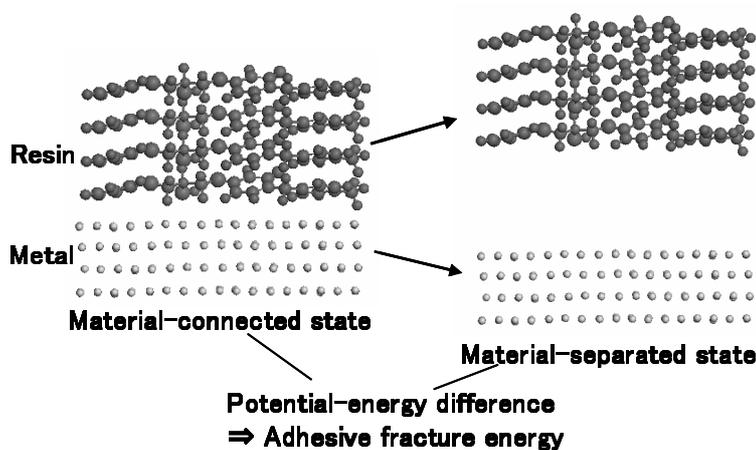


Fig. 5.3: Method for calculating adhesive fracture energy .

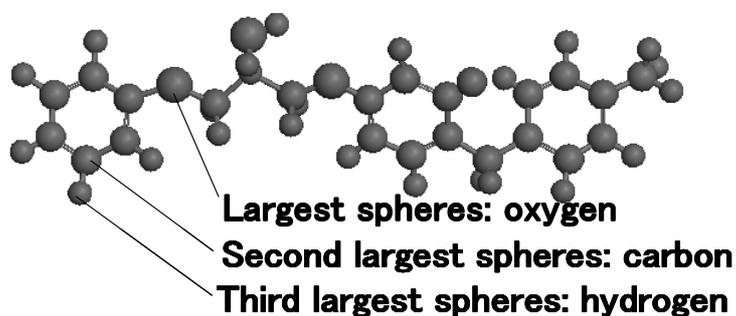


Fig. 5.4: Molecular structure of crystalline-like resin .

て計算される．ポテンシャル原子間相互作用は共有結合の伸縮による図 5.5(a) の Morse (結合) 項 [103] と共有結合角の開閉による図 5.5(b) の Angle (結合角) 項および共有結合のねじりによる図 5.5(c) の Torsion (二面角) 項によって式 (5.3) のようになる．また，共有結合していない原子間の相互作用つまりポテンシャル分子間相互作用は図 5.6(a) の Lennard-Jones (Van der Waals エネルギー) 項 [104] と図 5.6(b) Coulomb (静電エネルギー) 項によって式 (5.4) のようになる．

$$E = \sum_b D_b [1 - e^{-\alpha(b-b_0)}]^2 + \sum_\theta H_\theta (\theta - \theta_0)^2 + \sum_\phi H_\phi [1 + \cos(n\phi - \phi_0)] \quad (5.3)$$

$$E = \sum_i \sum_{j>1} \left[ \frac{A_{ij}}{r_{ij}^{12}} - \frac{B_{ij}}{r_{ij}^6} + \frac{Z_i Z_j e^2}{r_{ij}} \right] \quad (5.4)$$

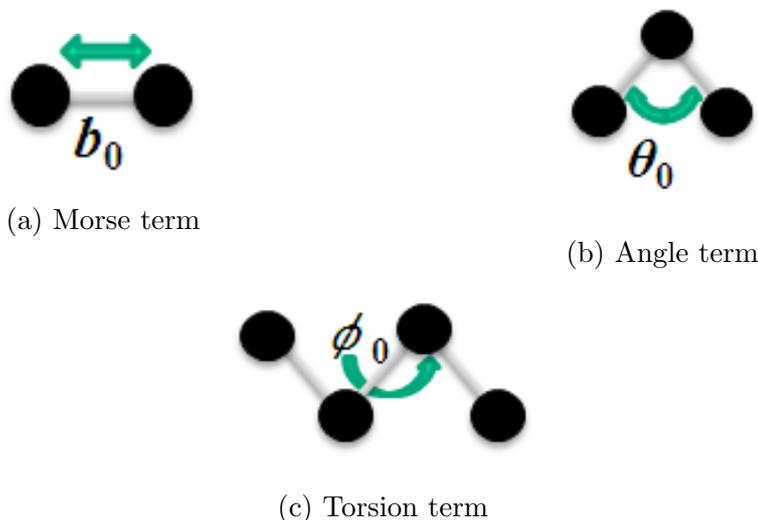


Fig. 5.5: Potential interatomic interaction .

20 において緩和計算を実施して得られた界面の構造を Cu, Fe, Al に対してそれぞれ図 5.7, 5.8, 5.9 に示す．これらの図は界面に垂直な方向から見た図であるが，すべての樹脂分子と金属分子を示すとわかりにくいので，界面に最も近い樹脂分子 1 個と金属 1 原子層のみを示した．ここで，定義した界面破壊エネルギーを計算するために，図 5.7, 5.8, 5.9 の接着状態から，樹脂と金属の間の原子間ポテンシャルを消し去って分離状態を形成した．この結果，界面破壊エネルギーは，銅，鉄，アルミニウムに対してそれぞれ  $0.57 \text{ J/m}^2$ ,  $0.46 \text{ J/m}^2$ ,  $0.08 \text{ J/m}^2$  と得られ，分子計算による界面破壊エネルギーの順番と実験による接着強度指標の順番が一致する結果が得られた．



Fig. 5.6: Potential intermolecular interaction .

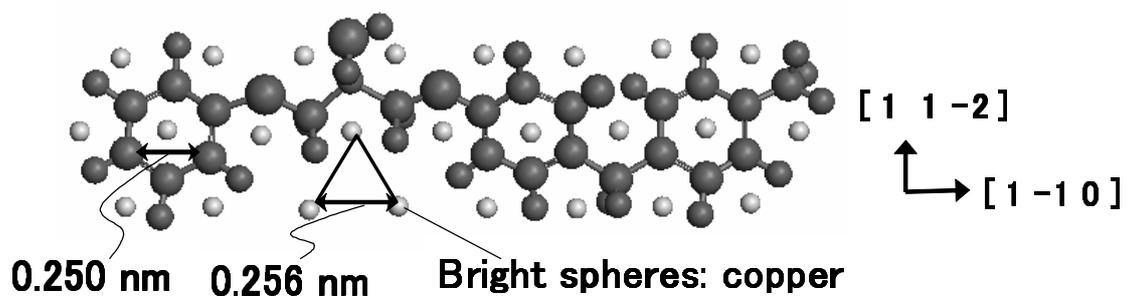


Fig. 5.7: Resin/copper interface structure obtained from molecular dynamics .

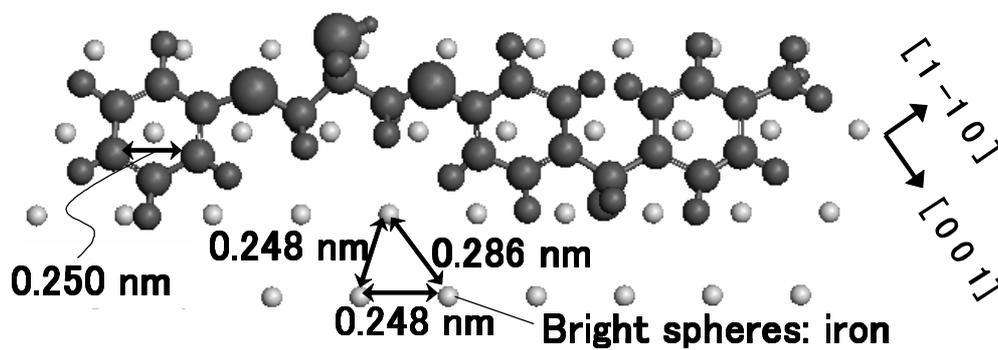


Fig. 5.8: Resin/iron interface structure obtained from molecular dynamics .

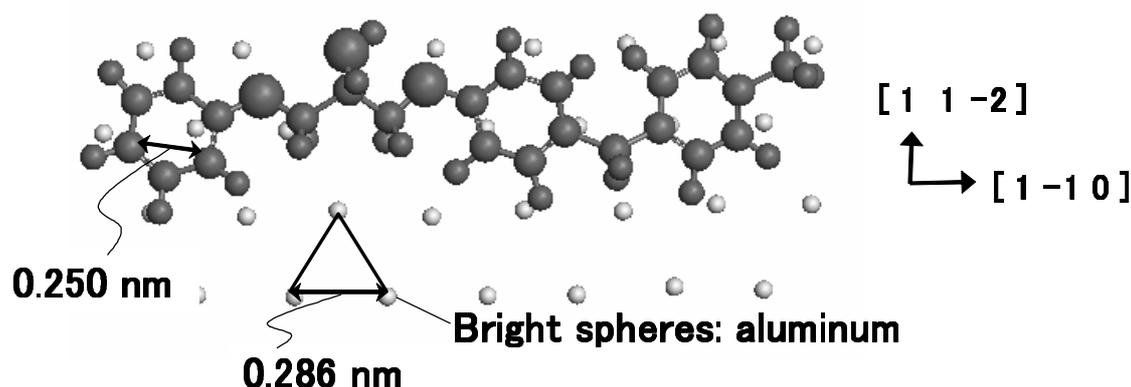


Fig. 5.9: Resin/aluminum interface structure obtained from molecular dynamics .

接着強度の順番を支配する因子として、分子動力学計算から、金属同士の場合には結晶格子のミスマッチが重要となることが示されている [100] ので、格子ミスマッチに着目して考察を行う。図 5.10(a),(b) はそれぞれ金属下地を上から見た模式図と横から見た模式図を示す。図 5.10(a),(b) で示すように原子を三角形格子に並べてできる原子間のくぼみに原子を置く（付着する）のが最も安定すると考えられる。つまり、図 5.10(c),(d) で示すようように樹脂の分子と金属下地の原子間の間隔が同じである場合には全ての原子を原子間のくぼみに置くことができる。従って、格子マッチングが良い状態を示す。図 5.10(e),(f) で示すように樹脂の分子と金属下地の原子間の間隔が異なる場合には原子間のくぼみに置くことができない原子が出てくる。従って、格子ミスマッチが大きい状態を示す。

格子ミスマッチに着目して考察するために、図 5.7, 5.8, 5.9 において、六員環の第二近接原子間距離（0.250 nm）と、金属中の最近接原子間距離とを比較して、あらためて図 5.7 を見ると、樹脂（原子間距離 0.250 nm）と銅（原子間距離 0.256 nm）のミスマッチは 2 % 程度しかないため、樹脂分子と銅結晶の原子が同じ周期で整然と並んでいることがわかる。

一方、図 5.9 では、格子ミスマッチが 0.250nm と 0.286 nm の相対差になるので、14 % 程度あり、原子の並ぶ周期がずれて、配列が乱れていることがわかる。図 5.8 の場合には、鉄の格子が長さ 0.248 nm と 0.286 nm の辺を持つ三角形で特徴付けられる構造となっているため、0.248 nm の辺については 0.250 nm との格子ミスマッチが 0.008 % しかないのに対して、0.286 nm の辺については 14 % の格子ミスマッチがあるため、相性の良さが図 5.7 と図 5.9 の中間になっている。

以上より、接着強度は、樹脂と金属（または金属酸化物）の格子ミスマッチが小さいほど高

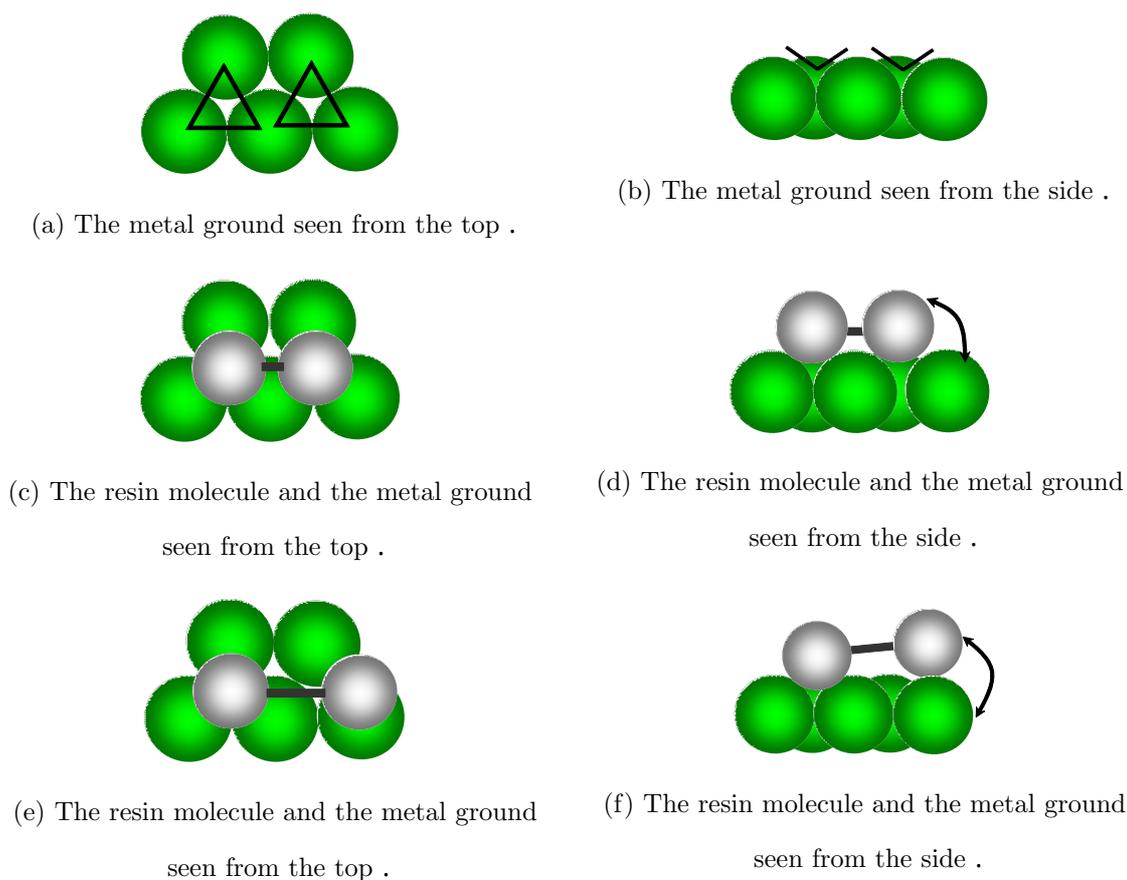


Fig. 5.10: The concept of a lattice mismatch .

く，銅，鉄鋼，アルミニウムの順番に大きくなることがわかった。また，この順番と実験により求める接着係数の順番と一致することが確認できた。

### 5.3.2 分子動力学手法によるはく離モード II の接着強度評価

図 5.2(b) に示すモード II のような金属下地上に接合されている樹脂に変位を与えるシミュレーションモデルを図 5.11 に示す。樹脂の分子すべてに変位を 0.25 nm 与えた時の原子構成の一例を図 5.12 に示す。

界面でのすべりが見かけ上の界面破壊となり，これに相当するモード II の場合の界面破壊エネルギー (Interfacial fracture energy for mode-II) が定義できる。樹脂 1 分子についてモード I と同様に図 5.4 のような分子構造をもつ結晶性の高い樹脂を用いた。計算においては，厚さ 0.63 nm × 縦 2.3 nm × 横 2.3 nm の金属の上に図 5.4 の樹脂分子が 1 個置かれた構造を用いた。これは，層が多くなると，樹脂内部のせん断変形が界面破壊エネルギーに及ぼす影響が大きく

なり，現象が複雑になるためである．

金属表面には，エネルギー的に安定で表面に現われやすい最密結晶面，すなわち面心立方構造では (110) 面が現われていることを仮定した．金属結晶上を樹脂が移動する方向によって界面破壊エネルギーは変化するが，このような変化を考慮するためには統計処理するために膨大な計算が必要となる．

本研究の計算では，簡易的に評価をおこなうため，界面破壊エネルギーが最も小さくなる [110] 方向を樹脂の移動方向として選択した．また，分子動力学計算には，モード I と同様に原子間ポテンシャルとして Consistent Valence Force Field (CVFF) [102] を用いた．せん断シミュレーションを行い，下地金属が銅，鉄，アルミニウムである場合に対する界面モデルでのエネルギーを，樹脂の変位に対してプロットした結果を図 5.13 に示す．変位が大きくなるとともに，界面でのエネルギーが変化するが，この変化の中で最大値が界面破壊エネルギーに相当すると考えると，この値は銅，鉄，アルミニウムに対してそれぞれ  $0.65 \text{ J/m}^2$ ， $0.53 \text{ J/m}^2$ ， $0.09 \text{ J/m}^2$  と得られた．

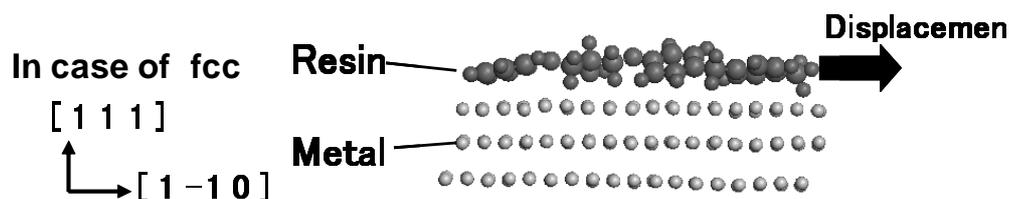


Fig. 5.11: Simulation model of Mode-II .

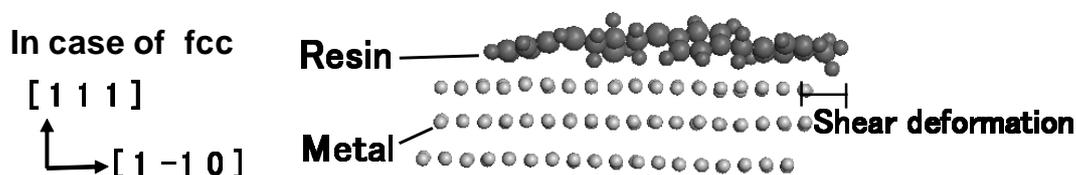


Fig. 5.12: Example of atomic configuration with displacement of 0.25 nm .

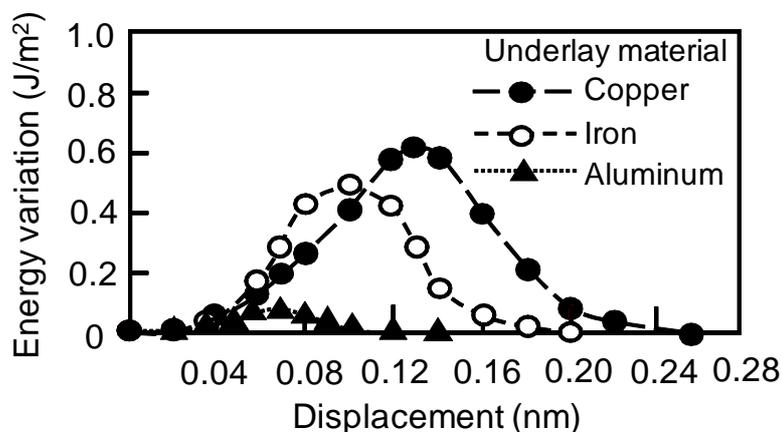


Fig. 5.13: Variation in energy at interface model due to applied displacement .

ここで、表 5.1 に示す第 3 章で測定した金属円柱の材料毎の最大せん断力  $f_{smax}$  および残留応力により面圧力  $\sigma_{pm}A_0$  を用いて求められる接着強度指標とモード I による界面破壊エネルギーおよび、モード II による界面破壊エネルギーの比較を行う。

第 3 章で述べたように、最大せん断力は接着界面にはく離が生じるために必要な力を意味し、面圧力  $\sigma_{pm}A_0$  は材料間の線膨張係数の差異と温度差から求める。  $A_0$  は見かけ上の接着面積を示す。

表 5.1 に示す面圧力  $\sigma_{pm}A_0$  を材料毎に比較すると、Fe の方が Cu より 25 % 大きいことがわかる。これは樹脂と金属間の熱膨張の差が Fe の方が Cu より大きいからである。しかし、接着時の最大せん断力  $f_{smax}$  は表 5.1 に示すように Cu と Fe は同じである。つまり、面圧力が Fe より小さい Cu の方が Fe より接着性が良いことを示すことになると考えられる。このような界面の接着性に着目して新たに提案した接着係数  $B$  と摩擦係数  $\mu$  による接着強度指標  $(\mu + B)$  [94] を用いると、最大せん断力は式 (5.5) のように表される。

$$f_{smax} \propto (\mu + B)\sigma_{pm}A_0 \quad (5.5)$$

ここで、式 (5.5) は界面に十分な面圧が加わる条件の上で成り立つことを実験で確認している。式 (5.5) の最大せん断力  $f_{smax}$  をそれぞれの材料毎の面圧  $\sigma_{pm}A_0$  で割ることで接着強度の指標  $(\mu + B)$  が得られる。つまり、接着強度指標は材料毎の面圧の影響を取り除いた界面の接着特性のみを表し、Cu, Fe, Al 順に大きい。従って、接着強度の指標  $(\mu + B)$  は接着界面にはく離が生じるために必要な力を求めるための指標と考えられる。接着強度指標とモード I に

Table 5.1: Maximum shear force and interfacial pressure .

Forces , Index	Cu	Fe	Al
$f_{smax}$ (kN)	33	33	7
$\sigma_{pm}A_0$ (kN)	59	75	44
$f_{smax}/\sigma_{pm}A_0$	0.56	0.44	0.18

よる界面破壊エネルギーおよび，モード II による界面破壊エネルギーを表 5.2 に示す．表 5.2 に示すように接着強度の順番と傾向はモード I とモード II の界面破壊エネルギー共に実験より求めた接着強度指標とほぼ一致することがわかる．

しかしながら，上記のモード I 型の分子動力学計算は，モード I 型より，圧縮面圧を受けつつ，界面にせん断応力が加わっている実験の条件に近いが，計算結果からは，界面でのすべりが見かけ上の界面破壊となっているので実験と同じ条件では界面すべりが起こるだけで，はく離は生じないと考えられる．

Table 5.2: Adhesive strength index and interfacial fracture energy .

Mat.	Adhesive strength index	Interfacial fracture energy	Interfacial fracture energy
	$(\mu + B)$	for mode-I ( $J/m^2$ )	for mode-II ( $J/m^2$ )
Cu	0.56	0.57	0.65
Fe	0.44	0.46	0.53
Al	0.18	0.08	0.09

### 5.3.3 はく離の進展モードについて

分子動力学計算では，いわゆるモード I 型の界面分離のエネルギーを計算しているが，実験は，圧縮面圧を受けつつ，界面にせん断応力が加わっている（モード I）．しかしながら，分子動力学で，実験と同じ条件の計算を行っても，界面すべりが起こるだけで，はく離は生じない．これは，実際の界面にある表面粗さを計算では無視してしまっているために生じると考えられる．

そこで、表面粗さが界面に及ぼす挙動を確認するために、観察した表面プロファイルを使って、有限要素法解析を行った。

図 5.14 は 150 倍拡大観察表面を  $300 \mu\text{m} \times 300 \mu\text{m}$  の領域を高さデータ  $h(x)$  の表面粗さをプロットしたものを示す。高さ  $5 \mu\text{m}$  の切削痕が見られる。

これらの表面形状の影響を取り入れ界面のはく離挙動を検討するために、図 5.15(a) の表面粗さを取り入れた図 5.15(b) に示す軸対称有限要素法 (FEM) モデルを作成し FEM 解析を行った。半径方向に面圧を発生させ、軸方向にせん断負荷を加わる条件を設定した。

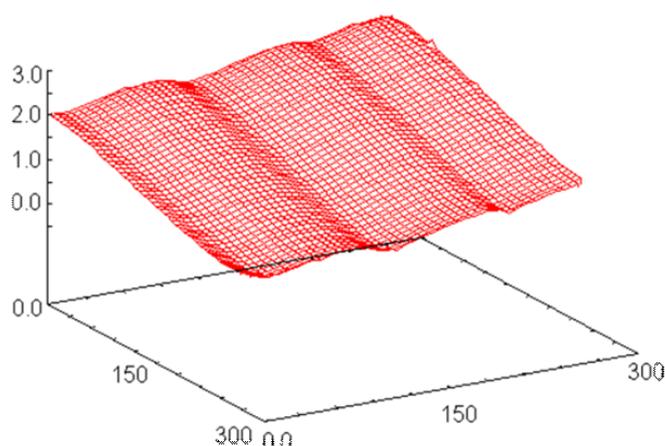
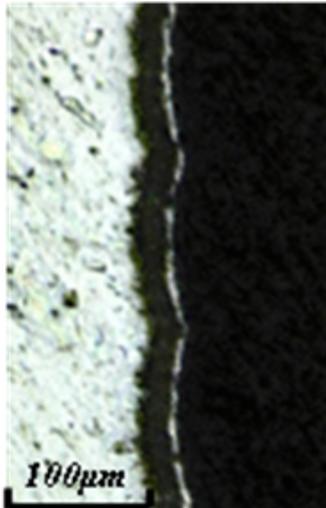


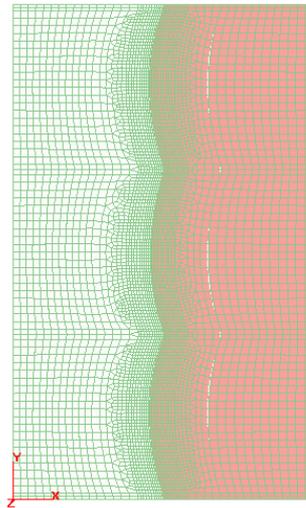
Fig. 5.14: Surface profile ( $\mu\text{m}$ ).

図 5.15(c) と図 5.15(d), それぞれに内部界面の半径方向応力分布と軸方向の応力分布を示す。図 5.15(c) と図 5.15(d) とともに内部界面の山の傾斜付近 (図 5.15(c) に点線表示) に樹脂側およびアルミニウム側両方に引張応力が発生している。つまり、はく離は切削痕端部での引張応力により生じ進展すると考えられる。また、さらに細かい表面粗さのレベルまで見ても同様な現象がおこるものと考えられる。これらのはく離進展特性は Persson からも同様に指摘している [82–89]。

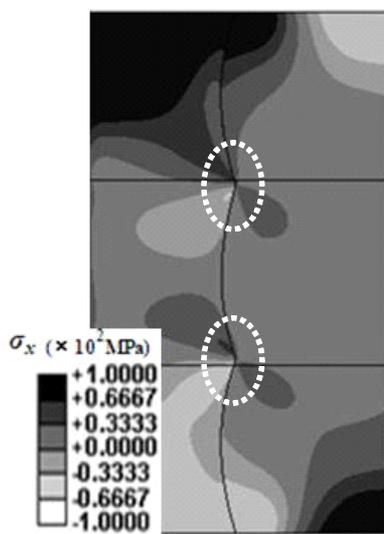
このように実際の界面の表面粗さによってミクロに結合の解離 (モード I 型) が起こり、それによりはく離が進展しているものと考えられ、結合の解離を扱う分子動力学のモード I 型の破壊エネルギーが本論文の実験のケースとの比較にも有効であると考えられる。



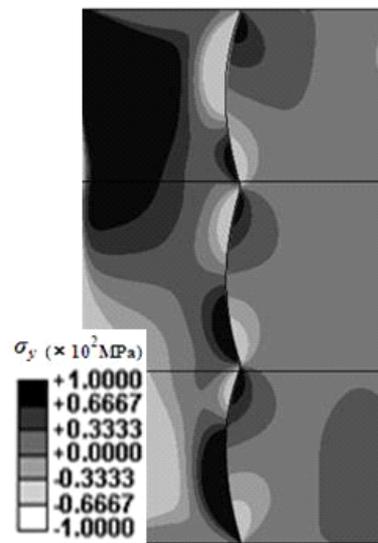
(a) Optically observed resin/aluminum interface



(b) Axially symmetrical FEM model



(c) Stress distribution of radial direction



(d) Stress distribution of axial direction

Fig. 5.15: Resin/aluminum interface profile and its FEM analysis results .

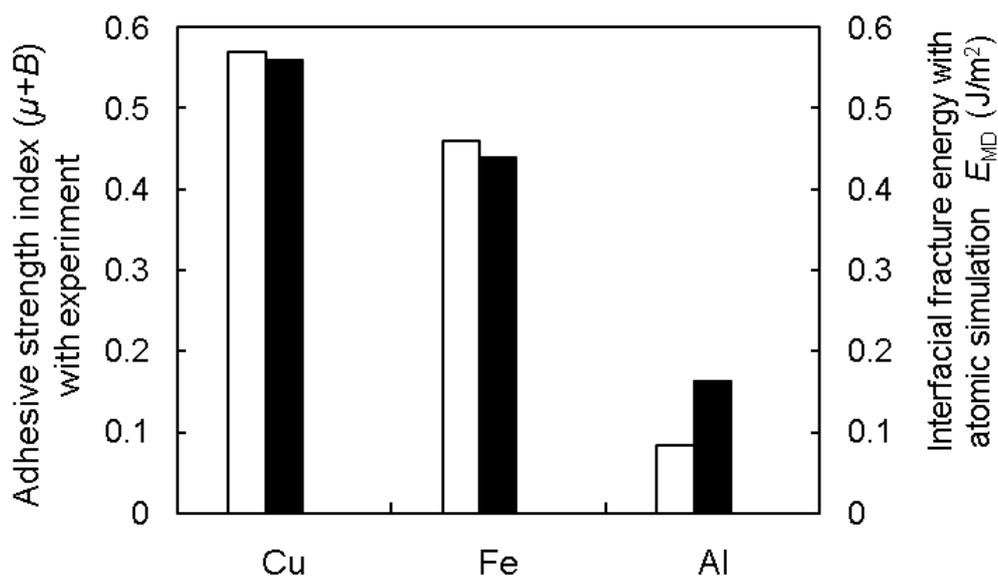


Fig. 5.16: Comparison of adhesive strength of experiment and simulation .

#### 5.3.4 モード I の界面破壊エネルギーと接着強度指標との比較

表 5.2 で示したマイクロレベルの実験による接着強度指標と原子レベルの計算によるモード I 型の界面破壊エネルギーを、図 5.16 ように棒グラフで比較する．図 5.16 では、左の縦軸に計算結果、右側の縦軸に実験結果の目盛りをとって示している．図 5.16 から、接着強度指標と界面破壊エネルギーが同様の傾向を示し、銅に対する接着強度が最も強く、アルミニウムに対する接着強度が弱いことがわかる．

図 5.16 に示すように接着強度指標が結合の解離を扱う原子レベルの計算と一致することから、その妥当性が検証され、界面の接着強度を表すひとつの指標としてあり得ると考えられる．また、原子レベルの計算は、5.3.1 節で示した格子ミスマッチ等の接着強度を決定する支配因子を把握できるという利点があるだけでなく、接着強度を効率的に予測できる利点があると考えられる．

以上の通り、インサート材や樹脂材が変更される度に樹脂モールド構造を製作し、インサート材と樹脂間のせん断力を測定する要素試験を行わなくても、原子レベルのシミュレーションで界面の接着強度を求め、FEM 解析モデルに反映することで樹脂モールド製品における界面強度を正しく評価する事ができる．

## 5.4 実験と計算の比較に関する考察

5.3 節では、無次元である接着強度の指標と次元がある界面破壊エネルギーの定性的な比較を行った。本章では同じ次元における実験と計算の比較のために、接着強度が一番大きい Cu の場合について、実験と計算の定量的な比較を試みた。

### 5.4.1 定量的な比較の検討

Cu の接着強度の指標をエネルギーに換算するために、面圧を考慮したせん断力を用いる。したがって、実験結果により求める界面破壊エネルギーは最大せん断力  $f_{\text{smax}}$  を用いて式 (5.6) によって求められる。

$$E_{\text{exp}} = \frac{f_{\text{smax}} x_{\text{exp}}}{2A_0} \quad (5.6)$$

ここで、 $x_{\text{exp}}$  ははく離直前の弾性ひずみ量を表す。式 (5.6) による  $E_{\text{exp}}$  は  $946 \text{ J/m}^2$  である。計算結果の  $0.573 \text{ J/m}^2$  と定量的に比較すると  $E_{\text{exp}} \gg E_{\text{MD}}$  で 3 桁以上の差がある。これは、 $E_{\text{exp}}$  が試験系全体の弾塑性ひずみエネルギーである一方、 $E_{\text{MD}}$  は、界面の界面破壊エネルギーのみであるためである。変形を抑えて界面破壊エネルギーを求めた実験 [105] でも内部の変形は完全に抑えることはできないため、大きな値が得られてしまう。実験より、界面エネルギーだけを抽出するのは困難であるため、エネルギーによる定量的な比較は難しいと考えられる。

そこで、公称破壊応力による比較を試みる。界面に全く欠陥がなく、理想的に結合していると仮定すると、界面を引き剥がすための応力は、以下の式 (5.7) のように、界面破壊エネルギー  $E_{\text{MD}} (0.573 \text{ J/m}^2)$  を、原子間距離  $\lambda_{\text{atom}} (0.31 \text{ nm})$  で割ったものになる。

$$\sigma_{\text{MD}} \approx \frac{2E_{\text{MD}}}{\lambda_{\text{atom}}} \quad (5.7)$$

式 (5.7) を用いた分子動力学による破壊応力 ( $\sigma_{\text{MD}}$ ) は  $3.67 \text{ GPa}$  であり、実験で得られた最大せん断力  $33 \text{ kN}$  を接着面積  $3138 \text{ mm}^2$  で割った破壊応力 ( $\sigma_{\text{exp}}$ ) は  $0.01 \text{ GPa}$  となる。したがって、公称破壊応力による定量的な比較では、分子動力学の結果が、実験結果より、2 桁以上大きいことがわかる。

このような実験と計算における破壊応力の違いの主な理由は、分子動力学の計算には、界面状態に対する影響が全く反映されていないことが挙げられる。つまり、実験での界面の接着状態は表面粗さの影響を受けて、部分的であり、真実接着面積は見かけよりも小さいと考えられる。

Persson とも、表面粗さのスケール依存性を考慮したモデルによる検討 [77–81, 84] が有効である提案している。そこで、本論文では界面状態の観察から分子動力学と実験のスケール差の定量的な検討による考察を試みた。

#### 5.4.2 計算と実験のスケール差の定量的な検討

4.1 節での分子動力学による破壊応力と実験で得られた破壊応力との関係 ( $\sigma_{MD} \gg \sigma_{exp}$ ) で生じる差分の大きな原因は界面状態による有効接着面積の減少や界面に存在する欠陥が考えられる。

従来の界面問題は、基本的には次の二つの仮定の上で進められてきた。

物体間の接触領域ではクーロンの摩擦則が成立する。

接触面は体質的にはなめらかである。

Nayak [106] はこれらの二つの仮定から脱却した新しい接触論が考えられた。すなわち摩擦は、物体表面間の接触結合の変形によって起こるものと考え、実験的観察とさらに粗い面接触における静的な解析解が接触論の基礎となっている。この理論より垂直力と接線力の関数としてのすべりに対する数値結果は、表面粗さの影響を示すパラメータに左右されること、さらにそのパラメータが大きいとき、すなわち表面が極めて粗いか垂直力が極めて小さい場合は、すべりと力の関係はかなり古典的摩擦論から相違するものであることなどが報告されている。

接着と摩擦の特性に対する粗さの影響は、Nayak によって定義された表面の粗さパワー・スペクトル  $C(q)$  (あるいはパワースペクトル密度) によって主として決定される。

そこで、本研究ではインサート材である金属円柱の表面粗さの詳細観察 (ラフネスのスケール依存性) を行った。5.3.3 節で示した  $300 \mu\text{m} \times 300 \mu\text{m}$  の領域の高さデータ  $h(x)$  のラフネスをプロットした図 5.14 を用いる。切削痕高さ  $5 \mu\text{m}$  の図 5.14 の高さデータ  $h(x)$  のラフネスとパワースペクトルの関係を式 (5.8) のように表す [106]。高さデータ  $h(x)$  の自己相関関数のフーリエ変換によって高さプロファイルのパワースペクトルになる Wiener-Khinchin の定理に基づく (詳細は、Appendix A.1 参照)。

$$C(q) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int d^2x \langle h(x)h(0) \rangle e^{-iqx} \quad (5.8)$$

ここで、 $\langle \rangle$  はあらゆる位置を考慮したアンサンブル平均である。 $q$  は波数ベクトルを示し、 $\langle h(x)h(0) \rangle$  は高さデータ  $h(x)$  の自己相関関数を示す。また、高さデータ  $h(x)$  は式 (5.9) のように表すことができる。なお、本研究で用いた 3 種類の表面は表面仕上げを同一にしているため、表面粗さのデータは材料間でほとんど違いがない。

$$h(x) = \int d^2q h(q) e^{iqx} \quad (5.9)$$

さらに、表面粗さ（高さの平均自乗平均の平方根）とパワースペクトルの関係は式 (5.10) のようにパワースペクトルの一次モーメントとして表す [77] .

$$\langle h^2 \rangle = \int d^2q C(q) = 2\pi \int_0^\infty dq q C(q) \quad (5.10)$$

ここで、パワースペクトルには、上限と下限があり、最も大きな波数ベクトルを  $q$  とすると  $q = 2\pi/a$  が上限となり ( $a$  は格子定数)、表面のサイズを  $L$  として最も小さなベクトルを  $q_L$  とすると  $q_L = 2\pi/L$  が下限となる。また、ある波長以下で  $C(q)$  が一定になる波長 (roll-off) を  $q_0$  とする。一般にこれらの定義を用いて、ラフネスは式 (5.11) のように表し積分レンジに依存することがわかる。

$$\langle h^2 \rangle (q_0, q_1) = 2\pi \int_{q_0}^{q_1} dq q C(q) \quad (5.11)$$

従って、面積  $A$  での  $C(q)$  は式 (5.12) のように表される [77] .

$$C(q) = \frac{(2\pi)}{A} \langle |h_A(q)|^2 \rangle \quad (5.12)$$

ここで、測定された高さデータ  $h(x)$  から  $C(q)$  を数値的に計算するためには、測定ポイントが格子定数  $a$ 、および  $x$  と  $y$  の座標に沿った  $N$  データポイントを備えた式 (5.13) に示すスクエア・メッシュを作成する必要がある。

$$x = (n_x, n_y)a = na = x_n \quad (5.13)$$

ここで、 $n_x = 1, 2, \dots, N$  と  $n_y = 1, 2, \dots, N$  は整数である。さらに、フーリエ変換  $h_A$  の積分を個別の合計に近似することができ、格子面間隔  $q_L = 2\pi/L = 2\pi/N_a$  を備えたグリッド使用により表面の有限サイズが波数ベクトル  $q$  領域を制限するので、フーリエ変換もサンプリングもすることができる。従って、 $q$  領域は  $q = (q_x, q_y) = (2\pi m_x/L = 2\pi m_y/N_a)$  となり、 $h_A(q)$  は式 (5.14) のように表すことができる。ここで、 $m_x, m_y$  は 0 から  $N - 1$  の間の整数の数を示す。本計算では、 $m_x, m_y$  は 64 としている。

$$\begin{aligned} h_A(q) &\approx \frac{a^2}{(2\pi)^2} \sum_n h_n e^{-i2\pi N(m_x n_x + m_y n_y)} \\ &= \frac{a^2}{(2\pi)^2} H_m \end{aligned} \quad (5.14)$$

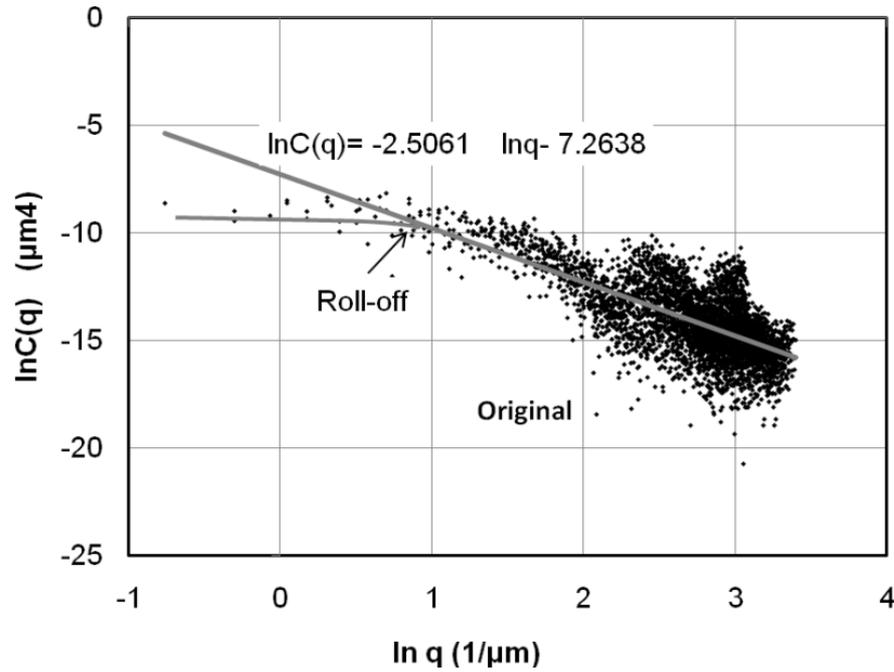


Fig. 5.17: Surface roughness power spectra of aluminum cylinder .

ここで  $H_m$  は  $h_n$  の二次元の個別のフーリエ変換である . パワースペクトル  $C(q)$  の計算は式 (5.14) によって求めた  $h_A(q)$  を式 (5.12) に代入して求める . 式 (5.12) による求めたパワースペクトル  $C(q)$  を用いて ,  $\ln q$  と  $\ln |C(q)|$  の関係を図 5.17 に示す .

また , 高さプロファイルは多くの場合自己アフィン性を示す . 自己アフィンフラクタルの表面である場合 , 高さ方向座標を  $z = h(x, y)$  とし ,  $x \rightarrow x/\zeta$  ,  $y \rightarrow y/\zeta$  と置き換えると  $z/\zeta^H = h(x/\zeta, y/\zeta)$  にあるので ,  $h(x, y)$  は次式のように表される .

$$h(x, y) = \zeta^H h(x/\zeta, y/\zeta) \tag{5.15}$$

また , パワースペクトル式 (5.11) を  $x \rightarrow x'/\zeta$  ,  $y \rightarrow y'/\zeta$  で置き換えると ,

$$C(q) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int d^2x' \frac{1}{\zeta^2} \left\langle \left( \frac{x' + x'_0}{\zeta} \right) h\left(\frac{x'_0}{\zeta}\right) \right\rangle e^{-iq \frac{x'}{\zeta}} \tag{5.16}$$

となり , 式 (5.16) のアンサンブル平均は式 (5.15) により次式ようになる .

$$\begin{aligned} \left\langle h\left(\frac{x' + x'_0}{\zeta}\right) h\left(\frac{x'_0}{\zeta}\right) \right\rangle &= \left\langle \frac{1}{\zeta^H} h(x' + x'_0) \frac{1}{\zeta^H} h(x'_0) \right\rangle \\ &= \frac{1}{\zeta^H} \left\langle h(x' + x'_0) h(x'_0) \right\rangle \end{aligned} \tag{5.17}$$

さらに，式 (5.17) を式 (5.16) に代入すると式 (5.18) になる．

$$C(q) = \frac{1}{(2\pi)^2} \zeta^{-2(H+1)} \int d^2x' \langle h(x' + x'_0)h(x'_0) \rangle e^{-iq \frac{x'}{\zeta}} \quad (5.18)$$

ここで， $\zeta = |q|$ ， $q/|q| = \hat{q}$  とおくと，式 (5.19) になる．

$$\begin{aligned} C(q) &= |q|^{-2(H+1)} \frac{1}{(2\pi)^2} \int d^2x' \langle h(x' + x'_0)h(x'_0) \rangle e^{-i\hat{q}x'} \\ &= |q|^{-2(H+1)} C(\hat{q}) \end{aligned} \quad (5.19)$$

従って，自己アフィンフラクタルの表面では， $x \rightarrow \zeta x$ ， $y \rightarrow \zeta y$ ， $z \rightarrow \zeta^H z$  の投写により，パワースペクトルは次の式 (5.20) のように表される．

$$C(q) \approx q^{-2(H+1)} \quad (5.20)$$

ここで  $\zeta$ ， $H$  はスケール毎の拡大係数と Hurst 数を示す．ラフネスはおよそ自己アフィン性を有し，Hurst 数はおよそ，0.25 であった．ただし，図 5.17 に示すようにある波長以下では  $C(q)$  が一定となるロールオフ (Roll-off) 波長が存在するため，Hurst 数の算出においては無視している．

次に自己アフィン性の指標である Hurst 数 (フラクタル次元に相当) を使った有効接触面積の減少を見積る．本研究で取り上げた界面は，モールド構造であり，硬化時に非接着部分が作られると考えられ，現象は複雑であるが，ここでは考察のため，最も接着が弱いケースとして，平滑な高分子と表面粗さを有する金属の接触面積の計算式により見積もる．真実接触面積は，式 (5.21) のように Persson らによって定義されている (詳細は，Appendix A.2 参照) [84]．真実接触面積はパワースペクトル  $C(q)$  に依存し，押し付け荷重  $F_N = \sigma_{pm} A_0$  に比例した定義になる．ここで  $A_0$  はみかけの接触面積で， $\sigma_{pm}$  は面圧である．

$$A = (2\pi)^{\frac{1}{2}} \frac{F_N}{E^*} \left( \int d^2q q^2 C(q) \right)^{-\frac{1}{2}} \quad (5.21)$$

ここで， $E^* = E/(1-\nu)$ ， $E$  は二物体間の有効弾性係数  $(1-\nu)/E = (1-\nu_1)/E_1 + (1-\nu_2)/E_2$  である． $C(q)$  は高さプロファイル  $h(x)$  のパワースペクトルは式 (5.8) で表される．金属表面に対して，実際に測定したパワースペクトル  $C(q)$  による， $\ln q$  と  $\ln |C(q)|$  の関係を示す図 5.17 のように，自己アフィン性を示す．自己アフィン性の指標である Hurst 数 (フラクタル次元に相当) を使った有効接触面積比  $P(\zeta) = A(\zeta)/A_0$  は式 (5.22) のようになる．ここで， $\zeta$  は拡大係数 (スケール) を示す．

$$P(\zeta) = \frac{4\sigma(1-\nu^2)}{q_0 h_0 E} \left( \frac{1-H}{\pi H} \right)^{\frac{1}{2}} \zeta^{H-1} \quad (5.22)$$

ここで,  $\zeta \gg 1$  において  $\langle h^2 \rangle = h_0^2/2$ ,  $q_0$  は Roll-off 波数ベクトルを示す.  $q$  と  $\zeta$  の間には,  $q = q_L$  ( $q_L = 2\pi/L$ ,  $L$  はサンプルの大きさ) の関係がある.

図 5.18 は式 (5.22) による有効接触面積比  $P(\zeta)$  と拡大係数 (スケール)  $\zeta$  との関係を示す. 図 5.18 に示すように有効接着面積が  $1/2$  の減少で収束している. しかしながら, 実験で得られた最大せん断力 33 kN を接着面積 ( $A_0=3138 \text{ mm}^2$ ) で割った破壊応力 ( $\sigma_{\text{exp}}$ ) 0.01 GPa から, 有効接着面積の減少率 0.5 を考慮しても, 破壊応力 ( $\sigma_{\text{exp}}$ ) は 0.02 GPa と差分への影響は大きくないことがわかる.

そこで, 界面に存在する初期欠陥を考慮した破壊応力は, 原子間を引き離す際なされた仕事と破面を生成するのに費やされたエネルギーが等しいとして得られる (Orowan のへき開強度) 式 (5.23) を用いて求める [99]. を評価することから求められる.

$$\sigma'_{\text{MD}} \approx \sqrt{\frac{E_{\text{MD}}E^*}{\lambda_{\text{crack}}}} \quad (5.23)$$

ここで,  $E_{\text{MD}}$  は界面破壊エネルギー ( $0.573 \text{ J/m}^2$ ) を示し,  $E^* = E(1-\nu^2)=14.6 \text{ GPa}$ ,  $E$  は二物体間の有効弾性係数  $[87](1-\nu^2)/E = (1-\nu_{\text{Cu}}^2)/E_{\text{Cu}} + (1-\nu_{\text{Resin}}^2)/E_{\text{Resin}}$  で示し,  $\nu_{\text{Cu}}$  は Cu のポアソン比 0.34,  $E_{\text{Cu}}$  は Cu のヤング率 117 GPa,  $\nu_{\text{Resin}}$  は樹脂のポアソン比 0.29,  $E_{\text{Resin}}$  は樹脂のヤング率 15 GPa である.

$\lambda_{\text{crack}}$  は初期欠陥サイズを示し, 式 (5.23) により定量的な比較を行うためには, 欠陥サイズ

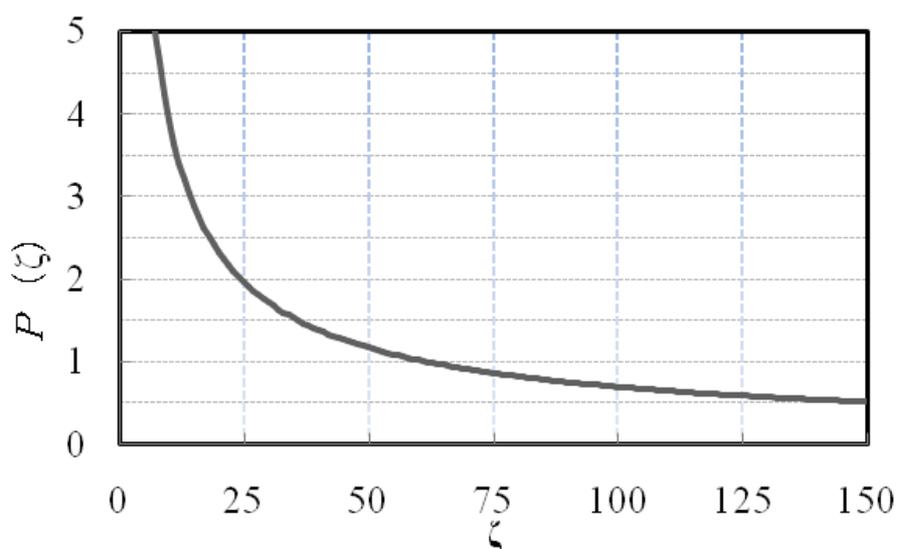


Fig. 5.18: Relation between effective contact area and wave vector .

を考慮しなければならない。破壊応力の桁違いの差分 ( $\sigma_{MD} = 3.7$  GPa と  $\sigma_{exp} = 0.02$  GPa の差) をなくすために必要とされる初期欠陥のサイズは約 0.02 mm となることからわかる。なお、本研究の実験に用いた樹脂材料の許容初期欠陥サイズ (カタログ値) が 0.1 mm であることから、0.02 mm の欠陥サイズは定量的な評価のための初期欠陥のサイズとしてあり得ないサイズではないと考えられる。

以上、界面状態の観察から分子動力学と実験のスケール差の定量的な検討を行った。計算と実験の破壊応力の差分の大きな原因として考慮した界面状態による有効接着面積の減少より界面に存在する欠陥サイズの影響の方が大きいと考えられる。つまり、はく離は界面状態による界面結合の不完全性が支配的であると考えられる。

## 5.5 結言

本章ではマクロレベルのはく離実験の界面特性により得られた接着強度指標に相当する界面の接着強度を計算で求めることを検討した。本研究においては、界面接着強度を表すひとつの指標として、界面の結合の解離を扱う分子動力学法により求められる界面破壊エネルギー (Interfacial fracture energy) を定義し、それを用いて、Cu, Fe, Al の三種類の材料とエポキシ樹脂間の界面の接着強度 (界面破壊エネルギー) を求めた。計算による界面破壊エネルギーと実験による接着強度指標との定性的な比較を行い、ほぼ一致していることを確認し、計算による接着強度の予測が可能であることを示した。

界面はく離進展モードのメカニズムについて、本研究における樹脂モールド構造のはく離実験では圧縮面圧を受けつつ、界面にせん断応力が加わっている (モード II 型) が、実際の界面は表面粗さによってミクロに結合の解離 (モード I 型) が起こり、それによりはく離が進展しているものと考えられる。したがって、結合の解離を扱う分子動力学のモード I 型の破壊エネルギーが本研究の実験のケースとの比較にも有効であると考えられる。

さらに、内部接着界面のメカニズムを把握することで界面の接着強度の支配因子を検証した。ナノスケールの化学結合とミクロスケールのはく離強度の関わり合いについて、主に表面粗さの影響に着目しながら考察した。計算と実験の破壊応力の差分 (2 桁) の大きな原因として有効接着面積の減少と初期欠陥の存在が考えられ、界面状態を考慮し見積った。結果、計算と実験の差分の原因は界面状態による有効接着面積の減少 (1/2 減少) の影響より、界面に存在する欠陥サイズ (0.02 mm) の影響の方が大きいと考えられ、界面接着強度の支配因子は界面状態による界面結合の不完全性が支配的であると考えられる。

## 第6章 結論

### 6.1 本研究の結論

樹脂材料は軽量で高強度の特性を持つことから、金属やセラミックを樹脂でモールドした絶縁ロッドや絶縁容器などの絶縁体として電力機器に幅広く利用されている [1], [2]. 樹脂モールド構造による電力機器などの製品は内部界面強度を正しく評価することによって、信頼性を向上させることができる.

樹脂モールド構造の金属と樹脂間の界面には、摩擦力と接着力および面圧が作用し、これらの力が樹脂モールド構造全体の挙動に大きな影響を与える. そのため、樹脂モールドのような界面の強度を正しく評価するためには、これらの力をすべて考慮し、界面強度を評価する手法が必要がある.

本研究では、樹脂モールド構造の界面生成のプロセスを把握するために、はく離実験に用いる試験体のモールドプロセスを通してモールド時に界面に働く力や樹脂層に発生する応力を明らかにし、インサート金属の表面状態や、樹脂と金属が一体化された界面状態の観察によりプロセス時の界面における樹脂の挙動を示した. また、樹脂モールド構造の金属と樹脂間の界面強度に関する実験的な検討により界面の接着特性を求め、界面挙動をモデル化し、解析モデルに反映することで樹脂モールド製品における界面強度の評価手法を構築した. また、実験実施前の計算による界面接着強度評価手法と界面強度の発現機構を検討するために、界面接着強度を表すひとつの指標として、界面結合の解離を扱う原子レベルモデリングにより求められる界面破壊エネルギーを定義した.

接着界面強度の支配因子を把握するために検討した手法を Cu, Fe, Al の三種類の材料とエポキシ樹脂間の界面に適用し、マイクロレベルのはく離実験により得られた界面の接着強度指標とナノレベルの分子動力学法の計算により得られた界面破壊エネルギーとの定性的な比較を行った. また、ナノスケールの化学結合とマイクロスケールの界面接着強度の関わり合いについて、主に表面粗さの影響 [28, 75, 77–82, 82–89] に着目しながら考察した.

以上の検討による研究成果を予約すると以下ようになる.

- (1) 樹脂の体積変化と温度変化の関係から考えられる熱硬化型エポキシ樹脂の硬化過渡は、加熱による温度上昇で、液状状態で熱膨張し、次に、硬化反応により樹脂の 2 次元的架橋が始まり、体積収縮を伴いながらゲル点に到達する。エポキシは固体としての挙動に移行し、ここから 3 次元的架橋に移り、これの終点である硬化点に到達する。さらに、冷却過程を経て、室温に戻る。
- (2) 樹脂層に発生する応力は樹脂が硬化するとき起こる体積変化によるもの（硬化収縮率による応力）と樹脂と金属の熱膨張係数の差異による歪に起因する熱応力および、金属およびモールド体の形状による応力集中などが存在する。
- (3) モールド製作プロセスの中で液体樹脂から固体樹脂までの硬化過程をひずみセンサーによって測定した結果、1 次硬化および 2 次硬化における硬化反応によるひずみはクリープひずみの発生によりリセットされ、残留応力に起因するのは主に徐冷で常温に戻す際に発生する熱ひずみであることを明らかにした。
- (4) 熱変形による影響を確認するために液状状態での樹脂と固体状態での樹脂の変形を測定した結果、熱変形によるへこみ高さは Al, Cu, Fe, それぞれ 0.12 mm, 0.14 mm, 0.16 mm であり、理論計算による熱変形量（線膨張係数の差 × 温度差 × 金属円柱軸方向距離）は Al, Cu, Fe, それぞれ 0.10 mm, 0.12 mm, 0.13 mm でほぼ同じであること確認できた。
- (5) 樹脂と金属の接着界面観察により金属表面に切削痕のような周期的ラフネスが存在することと、樹脂がそのラフネスに沿って流れ込んで固まっていることがわかった。しかし、円周方向に沿った樹脂と金属間の界面隙間は観察測定が難しく確認は困難である。液状樹脂は樹脂成分の分子レベル大きさと同じレベルのラフネスまでは流れ込むと考えられるが、その後の固体状態で徐冷で常温に戻す際に発生する 0.1 mm レベル熱変形によって、部分的な剥離の可能性を示した。

次に第 3 章では、モールドプロセスによって製作した試験体を用いて、試験体の内部接着界面のはく離実験行い金属と樹脂間の接着界面に生じるせん断力を測定した。また、樹脂モールド構造の金属と樹脂間の界面に作用する摩擦力と接着力および面圧力と測定せん断力との関係を確認し、これらの力が樹脂モールド構造全体の挙動に及ぼす影響を検討した。

以上の検討による研究成果を予約すると以下のようなになる。

- (1) 測定したせん断力から樹脂モールド構造の金属と樹脂間の界面には、摩擦力と接着力および面圧が作用していることを確認し、モールド時の残留応力によって接着界面に働く面圧とせん断力との関係が比例の関係であることを明らかにした。
- (2) 内部接着界面の剥離実験結果により、樹脂モールド構造の界面せん断強度の限界までは摩擦力  $f_f$  と接着力  $f_B$  の両方が作用し、金属円柱が樹脂界面をすべりだすと接着力  $f_B$  はなくなり、摩擦力  $f_f$  だけが作用することがわかった。また、インサート材質の比較から接着力  $f_B$  は銅が最も大きく、その値は 22 kN であり、摩擦力  $f_f$  は鉄鋼が最も大きく、その値は 13 kN である。

次に第 4 章では、第 3 章の実験により求めた金属製の円柱と樹脂間のせん断力を用いて、接着強度指標による三つの力（摩擦力、接着力、残留応力による面圧）の分解と、界面に作用する力のモデル化を行い、分解した 3 つの力を非線形ばねを使った単純モデルでモデル化し、そのモデルを用いて接着・摩擦有限要素解析手法を提案した。また、提案手法の妥当性を検討し、界面の特性を再現できることを示した。さらに、樹脂モールド構造の内部界面の接線方向はせん断ばね（接着強度指標を用いるせん断力によるばね定数）とし、法線方向は垂直ばね（樹脂のヤング率から求まるペナルティ剛性によるばね定数）とするモデル化を行うことで、実機部品である絶縁ロッドの破断強度試験がよくシミュレートできることを示した。

以上の検討による研究成果を予約すると以下ようになる。

- (1) 界面に剥離が生じる直前までに作用する摩擦力以外の力を“接着力”と定義し、それを規定する“接着係数”、“接着強度指標”を新しく導入することで、残留応力による面圧に依存する摩擦力と接着力で構成される接触界面をモデル化および定式化を行った。また、この接着係数が、接触する材料間の接着強度に対応することを示した。
- (2) 接着・接触力を考慮している本手法を絶縁ロッド製品の強度評価に適用した。絶縁ロッド製品モデルの特徴により、鉄鋼材側面と接触している樹脂界面での剥離が生じる前に樹脂の最大引張応力が鉄鋼材底面と接触している樹脂界面で樹脂の引張強さ（43 MPa）に達し、樹脂破壊が生じ、結果、63 kN が臨界の引張力となることがわかった。実験では 64 kN、68 kN、70 kN が臨界の引張力となる。したがって、樹脂モールド構造の内部界面の接線方向はせん断ばね（接着強度指標を用いるせん断力によるばね定数）とし、法線方向は垂直ばね（樹脂のヤング率から求まるペナルティ剛性によるばね定数）とするモデル化を行うことで、実機部品である絶縁ロッドの破断強度試験がよくシミュレートできることを示した。

最後に第 5 章では、界面接着強度を表すひとつの指標として、界面結合の解離を扱う原子レベルモデリングにより求められる界面破壊エネルギーを定義し、マクロレベルのはく離実験の界面特性により得られた接着強度指標に相当する界面の接着強度を計算で求め、界面強度の発現機構を検討した。界面の結合を分子動力学法によるモデリングを行い、界面破壊エネルギーを求め、マクロレベルの接着強度指標とナノレベルの界面破壊エネルギーの定性的な比較を行った。また、内部接着界面のメカニズムを把握することで界面の接着強度を検証した。さらに、樹脂モールド時の界面生成のプロセスの観点から、マルチスケールでの界面状態を考慮し定量的な比較を行うと共に、定量的な接着強度予測の可能性を示した。

以上の検討による研究成果を予約すると以下ようになる。

- (1) 本章ではマクロレベルのはく離実験の界面特性により得られた接着強度指標に相当する界面の接着強度を計算で求めることを検討した。本研究においては、界面接着強度を表すひとつの指標として界面破壊エネルギー (Interfacial fracture energy) を用いるとし、界面の結合の解離を扱う分子動力学法により、Cu, Fe, Al の三種類の材料とエポキシ樹脂間の界面の接着強度 (界面破壊エネルギー) を求める。計算による界面破壊エネルギーと実験による接着強度指標との定性的な比較を行い、ほぼ一致していることを確認し、計算による接着強度の予測が可能であることを示した。
- (2) 界面はく離進展モードのメカニズムについて、本研究における樹脂モールド構造のはく離実験では圧縮面圧を受けつつ、界面にせん断応力が加わっている (モード II 型) が、実際の界面は表面粗さによってミクロに結合の解離 (モード I 型) が起こり、それによりはく離が進展しているものと考えられる。したがって、結合の解離を扱う分子動力学のモード I 型の破壊エネルギーが本研究の実験のケースとの比較にも有効であると考えられる。
- (3) 内部接着界面のメカニズムを把握することで界面の接着強度の支配因子を検証した。ナノスケールの化学結合とミクロスケールのはく離強度の関わり合いについて、主に表面粗さの影響に着目しながら考察した。計算と実験の破壊応力の差分 (2 桁) の大きな原因として有効接着面積の減少と初期欠陥の存在が考えられ、界面状態を考慮し見積った。結果、計算と実験の差分の原因は界面状態による有効接着面積の減少 (1/2 減少) の影響より、界面に存在する欠陥サイズ (0.02 mm) の影響の方が大きいことが考えられ、はく離は界面状態による界面結合の不完全性が支配的であると考えられる。

## 6.2 製品開発における本研究成果の位置付けと今後の展開

樹脂材料は軽量で高強度の特性を持つことから、金属やセラミック製の円筒を樹脂でモールドした絶縁ロッドや絶縁容器などの絶縁体として電力機器に幅広く利用されている。

電力機器に用いる樹脂絶縁体は、絶縁性能を確保するために樹脂と金属間に強固な接着が要求され、その樹脂モールド構造の内部界面強度を正しく評価することによって、電力機器の信頼性を向上させることができる。

電力機器などの樹脂モールド構造は高機能化や低コスト化、小型化に対応する形で変遷を重ね、今日に至っている。これらの変遷のなかでも普遍的な技術課題がありながら、樹脂モールド構造の内部界面強度を正しく評価するための界面接着強度評価手法の提案において、本研究の研究意義は高いと考えている。昨今の電力機器の樹脂モールド構造への適用が大幅に拡大している中で、構造信頼性設計の観点からその設計マージンの確保が益々厳しい状況になっている。そのような背景において、これまでのような界面剥離を許容した樹脂モールド設計では困難を極めてきており、樹脂接着界面の剥離防止設計を前提とした限界設計への挑戦は必至であると考えられる。本研究成果はその挑戦を他社に先駆けて進めていく上での重要な技術的武器であり、今後、本論文の手法を製品開発への適用と他の材料へ展開、更なる高信頼化が要求される自動車等への適用拡大、樹脂モールド内部界面の結合状態の詳細観察、表面状態の操作などによる界面接着性向上技術の提案を含めて、本研究成果の応用展開を図っていきたい。

## 6.3 提案手法の将来の展望

樹脂接着界面の剥離防止設計を前提とした限界設計への挑戦のために、本研究が進めてきた接着界面強度予測手法に加え、接着界面の強度の操作ができる技術の確立が必要である。

そのために、今後は先進的力学系理論を用いてシミュレーションによるマルチスケール現象の再現および解明と共に、マルチスケール機械システムを実現するための先端計測および精密・微細加工技術を確立する。例えば、界面活性剤を利用するということによってガスと金属酸化物の気質の間の接触面積を最大化して、スプレー熱分解による新しいコーティング方法を適用するということによって、熱処理温度を低くして数ナノメートル大きさの粒子を持つ均一なナノ細工型決定性複合金属酸化物薄膜を得ることができるなど金属やセラミックスの表面の性質を操作することで樹脂との接着界面の強度や絶縁性能の向上が期待できると考えられる。

また、マルチスケールでの表面計測の技術の拡張としてナノ技術を利用した生体模倣機能性表面技術に関する研究を行う。最近、超疎水性および超接着性機能性表面の原理を理論的に分

---

析してこれを工学的に応用しようとする研究が全世界的に急激に増加している。その理由は自然界に存在する多くの機能性原理の中で超疎水性表面と超接着性表面を我々が正確に模写できるならば、日常生活の便宜性を高める新しい製品からマイクロ流体力学同じ専門研究領域に至るまでその応用範囲が無尽蔵なためである。特に米国が90年代後半に入って本格的な研究を始めることによってナノ技術を利用した生体毛紡技術に対する研究が世界的に急速に広がったと考えられる。最近ナノ技術の急速な発展と研究開発拡大とかみ合わさって商業化適用のための生体模倣材料開発の重要性はより一層浮び上がると予想される。

## 付録 A

### A.1 Wiener-Khinchin Theorem

関数  $f(x)$  のフーリエ変換を  $F(k)$  とすれば,

$$\text{Fourier 変換 : } F(k) = \int_{-\infty}^{\infty} f(x)e^{2\pi ikx} dx \quad (\text{A.1})$$

$$\text{逆 Fourier 変換 : } f(x) = \int_{-\infty}^{\infty} F(k)e^{-2\pi ikx} dk \quad (\text{A.2})$$

この定義は結晶学の分野で伝統的に使われている定義で, W. H. Press らの「Numerical Recipes in C」(技術評論社, 1995 年)でも推奨されている定義方法である.

超関数のフーリエ変換における, Dirac のデルタ関数  $\delta(x)$  について,

$$\int_{-\infty}^{\infty} f(x)\delta(x) = f(0) \quad (\text{A.3})$$

という性質から,

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{\infty} \delta(x)e^{2\pi ikx} dx &= \int_{-\infty}^{\infty} \delta(x)e^{-2\pi ikx} dx \\ &= 1 \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{\infty} e^{2\pi ikx} dx &= \int_{-\infty}^{\infty} e^{-2\pi ikx} dx \\ &= \delta(x) \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

という関係が成り立つ. つまり, デルタ関数の Fourier 変換は 1 になり, 1 の Fourier 変換がデルタ関数である. デルタ関数の微分  $\delta'(x)$  の Fourier 変換は

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{\infty} \delta'(x)e^{2\pi ikx} dx &= [\delta(x)e^{2\pi ikx}]_{-\infty}^{\infty} - 2\pi ik \int_{-\infty}^{\infty} \delta(x)e^{2\pi ikx} dx \\ &= 2\pi ik \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

であり，デルタ関数の  $n$  階微分  $\delta^{(n)}(x) = \frac{d^n \delta(x)}{dx^n}$  の Fourier 変換は，

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{\infty} \delta^{(n-1)}(x) e^{2\pi i k x} dx &= [\delta(x) e^{2\pi i k x}]_{-\infty}^{\infty} - 2\pi i k \int_{-\infty}^{\infty} \delta(x) e^{2\pi i k x} dx \\ &= -2\pi i k \int_{-\infty}^{\infty} \delta^{(n-1)}(x) e^{2\pi i k x} dx \end{aligned} \quad (\text{A.7})$$

であることから，一般的に

$$\int_{-\infty}^{\infty} \delta^{(n-1)}(x) e^{2\pi i k x} dx = (-2\pi i k)^n \quad (\text{A.8})$$

と書ける．Convolution と相関について，2つの関数  $f(x), g(x)$  の Convolution は

$$f(x) * g(x) = \int_{-\infty}^{\infty} f(x-y) g(y) dy \quad (\text{A.9})$$

で定義される．Convolution の代わりに接合積とか合成積と呼ばれることもある．デルタ関数の性質から，ある関数をデルタ関数と Convolution による結果は元の関数と必ず等しくなることは容易にわかる．関数  $f(x), g(x)$  それぞれの Fourier 変換が

$$\text{Fourier 変換} : F(k) = \int_{-\infty}^{\infty} f(x) e^{2\pi i k x} dx \quad (\text{A.10})$$

$$\text{Fourier 変換} : G(k) = \int_{-\infty}^{\infty} g(x) e^{2\pi i k x} dx \quad (\text{A.11})$$

であるとするとき，Convolution の Fourier 変換は

$$\int_{-\infty}^{\infty} [f(x) * g(x)] e^{2\pi i k x} dx = \int_{-\infty}^{\infty} \left[ \int_{-\infty}^{\infty} f(x-y) g(y) dy \right] e^{2\pi i k x} dx \quad (\text{A.12})$$

$$\begin{aligned} \text{ということになるが，積分の順序を交換すれば，} &= \int_{-\infty}^{\infty} g(y) \left[ \int_{-\infty}^{\infty} f(x-y) e^{2\pi i k x} dx \right] dy \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} g(y) \left[ \int_{-\infty}^{\infty} f(x-y) e^{2\pi i k (x-y)} dx \right] e^{2\pi i k y} dy \\ &= F(k) \int_{-\infty}^{\infty} g(y) e^{2\pi i k (x-y)} dy \\ &= F(k) G(k) \end{aligned} \quad (\text{A.13})$$

となる．つまり，Convolution の Fourier 変換は Fourier 変換の積に等しくなる．これを Convolution theorem と呼ぶ．これらの定義を基に2つの関数  $f(x), g(x)$  の相関 (Correlation) は

$$\text{Corr}[f(x)g(x)] = \int_{-\infty}^{\infty} f(x+y) g(y) dy \quad (\text{A.14})$$

で定義される．これは  $f(x)$  と  $g(-x)$  との Convolution と同じことである．相関の Fourier 変換は，

$$\begin{aligned}
 \int_{-\infty}^{\infty} \text{Corr}[f(x)g(x)]e^{2\pi ik(x-y)} dx &= \int_{-\infty}^{\infty} \left[ \int_{-\infty}^{\infty} f(x+y)g(y)dy \right] e^{2\pi ikx} dy \\
 \text{ということになるが，積分の順序を交換すれば，} &= \int_{-\infty}^{\infty} g(y) \left[ \int_{-\infty}^{\infty} f(x+y)e^{2\pi ikx} dx \right] dy \\
 &= \int_{-\infty}^{\infty} g(y) \left[ \int_{-\infty}^{\infty} f(x+y)e^{2\pi ik(x+y)} dx \right] e^{-2\pi iky} dy \\
 &= F(k) \int_{-\infty}^{\infty} g(y)e^{-2\pi ik(y-x)} dy \\
 &= F(k)G(-k)
 \end{aligned} \tag{A.15}$$

となる．さらに，関数  $g(x)$  が実関数（実数値を取る関数）の場合には， $G(-k) = G^*(k)$ （ただし  $G^*(k)$  は  $G(k)$  の複素共役）という関係があるので，

$$\int_{-\infty}^{\infty} \text{Corr}[f(x)g(x)]e^{2\pi ik(x-y)} dx = F(k)G^*(k) \tag{A.16}$$

という関係が成り立つ．つまり，相関の Fourier 変換は，Fourier 変換と Fourier 変換の複素共役との積に等しくなる．この関係は相関定理 (Correlation theorem) と呼ばれる．特に  $g(x)$  が  $f(x)$  に等しいとき，

$$\text{Corr}[f(x)g(x)] = \int_{-\infty}^{\infty} f(x+y)g(y)dy \tag{A.17}$$

のことを自己相関 (Autocorrelation) と呼ぶ．従って，

$$\int_{-\infty}^{\infty} \text{Corr}[f(x)f(x)]e^{2\pi ikx} dx = F(k)F^*(k) = |F(k)|^2 \tag{A.18}$$

という関係が導かれるが，この関係をウィーナーヒンチン (Wiener- Khinchin) の定理と呼ぶ．ここで，信号の全パワーは

$$\int_{-\infty}^{\infty} |F(k)|^2 dx = \int_{-\infty}^{\infty} f^*(x)f(x)dx \tag{A.19}$$

で表されるが，信号のフーリエ変換について同様の計算をしても，

$$\begin{aligned}
 \int_{-\infty}^{\infty} |F(k)|^2 dk &= \int_{-\infty}^{\infty} F(k)^* F(k) dk \\
 &= \int_{-\infty}^{\infty} \left[ \int_{-\infty}^{\infty} f^*(x)e^{-2\pi ikx} dx \right] \left[ \int_{-\infty}^{\infty} f(y)e^{2\piiky} dy \right] dk \\
 &= \int_{-\infty}^{\infty} f^*(x) \int_{-\infty}^{\infty} f(y) \int_{-\infty}^{\infty} e^{2\pi iky(y-x)} dk dy dx \\
 &= \int_{-\infty}^{\infty} f^*(x) \int_{-\infty}^{\infty} f(y)\delta(y-x) dy dx \\
 &= \int_{-\infty}^{\infty} f^*(x) \int_{-\infty}^{\infty} f(y) dx
 \end{aligned} \tag{A.20}$$

となって、同じ結果が得られる。このことをパーセバル (Parseval) の定理と呼ぶ。

## A.2 有効接触面積

有効接触面積は観察するスケールの倍率  $\zeta$  に依存する。また、接触領域の応力分布 (頻度)  $P(\sigma, \zeta)$  もスケール  $\zeta$  に依存し、式 (A.21) の拡散タイプの微分方程式で表すことができる [77, 84]。ここでスケール  $\lambda = L/\zeta$ ,  $A(\zeta = 1) = A_0$ ,  $q_L = 2\pi i/L$ ,  $q = q_L \zeta$ ,  $A_0 \sim L_2$  間の有効接触面積比は  $P(\zeta) = A(\zeta)/A_0$  と定義する。

$$\frac{\partial P(\sigma, \zeta)}{\partial \zeta} = f(\zeta) \frac{\partial P(\sigma, \zeta)}{\partial \sigma^2} \quad (\text{A.21})$$

ここで、 $f(\zeta) = G' \sigma_0^2$  ( $\sigma_0$  は界面に働く平均圧力) であり、以下の式となる [84]。

$$G(\zeta) = \frac{\pi}{4} \left( \frac{E^*}{\sigma_0} \right) \int_{q_L}^{\zeta q_L} dq q^3 C(q) \quad (\text{A.22})$$

ここで、 $E^* = E/(1-\nu)$ ,  $E$  は二物体間の有効弾性係数  $(1-\nu)/E = (1-\nu_1)/E_1 + (1-\nu_2)/E_2$  である。

弾性変形のみが生じるとすると、有効接触面積比  $P(\zeta)$  は次の式 (A.23) になる。

$$\begin{aligned} P(\zeta) &= \int_0^\infty d\sigma P(\sigma, \zeta) \\ &= \frac{2}{\pi} \int_0^\infty dx \frac{\sin x}{x} e^{x^2 G(\zeta)} = \text{erf} \left[ \frac{1}{2\sqrt{G}} \right] \end{aligned} \quad (\text{A.23})$$

式 (A.23) をテイラー級数展開して微分方程式に代入すると (A.24) が導出される [79, 80]。

$$P(\sigma, \zeta) = \sum_{n=1}^{\infty} A_n(\zeta) \sin \left( \frac{n\pi\sigma_0}{\sigma_Y} \right) \quad (\text{A.24})$$

ここで、荷重による応力  $\sigma_0$  が微小の場合  $G \gg 1$  となるので、 $P(\zeta) \approx P_1(\zeta) = (\pi i G(\zeta))^{-1/2}$  となる。つまり  $G \gg 1$  より、有効接触面積比  $P(\zeta)$  は荷重  $\sigma_0$  に比例することになり、次の式 (A.25) のように表される。

$$P(\zeta) = \text{erf} \left( \frac{\sqrt{\pi}}{2} P_1(\zeta) \right) \quad (\text{A.25})$$

この理論により、有効接触面積は荷重 (微小)  $F_N = \sigma A_0$  に比例して増加するので、 $P_1(\zeta) = (\pi i G(\zeta))^{-1/2}$  に式 (A.22) を代入すると式 (A.26) が導かれる。

$$A(\zeta) = (2\pi)^{\frac{1}{2}} \frac{F_N}{E^*} \left( \int d^2 q q^2 C(q) \right)^{-\frac{1}{2}} \quad (\text{A.26})$$

Hurst 数を使うと式 (A.26) は式 (A.27) になる .

$$P(\varsigma) = \frac{4\sigma_0(1-\nu^2)}{q_0h_0E} \left(\frac{1-H}{\pi H}\right)^{1/2} \varsigma^{H-1} \quad (\text{A.27})$$

ここで ,  $\varsigma \gg 1$  において  $\langle h^2 \rangle = h_0^2/2$  を示す .

## 参考文献

- [1] T. Okamoto, M. Shibuya, T. Takahashi, Y. Mizutani, and T. Takahashi. Proposal of all solid insulated substation for future substation. *IEEE 7th Intern. Conf. Properties and Application of Dielectric materials*, Vol. S22-4, pp. 1190–1193, 2003.
- [2] J. Sato, O. Sakaguchi, N. Kubota, S. Makishima, S. Kinoshita, T. Shioiri, T. Yoshida, M. Miyagawa, M. Homm, and E. Kaneko. New technology for medium voltage solid insulated switchgear. *IEEE/PES Transmission and Distribution Conference and Exhibition: Asia Pacific*, Vol. 3, pp. 1791–1796., 2002.
- [3] 新保正樹. エポキシ樹脂ハンドブック, . エポキシ樹脂. 日刊工業新聞社, 1987.
- [4] 昭晃堂, 編集垣内弘. 新エポキシ樹脂. 9. 注型・ポッティング・エンキャプシ 9.2. エポキシ樹脂の重電機器への応用, 1985.
- [5] 今井隆浩. ナノコンポジット技術による熱硬化性樹脂の高性能化に関する研究. 学位論文, 2006.
- [6] 次世代送変電機器のガス絶縁方式調査専門委員会. SF<sub>6</sub> の地球環境負荷と SF<sub>6</sub> 混合ガス・代替ガス絶縁. 電気学会技術報告, Vol. 841, pp. 1–62, 2001.
- [7] 佐藤純一, 坂口修. 地球環境に配慮した 24 kV 固体絶縁スイッチギヤ. 東芝レビュー, Vol. 58, No. 12, pp. 66–69, 2003.
- [8] 佐藤克朗, 渡辺竜一, 細川績, 小林将人, 菅原雄一. 海外市場向け 24 kV 真空絶縁スイッチギヤ (c-vis) の開発. 日立評論, Vol. 91, No. 3, pp. 298–299, 2009.
- [9] T. SHIMIZU, S. KINOSHITA, S. MAKISHIMA, J.SATO, and O. SAKAGUCHI. Material and simulation technology for solid insulated switchgear. *Proceedings of the 17th ICPADM*, Vol. 17, pp. 1194–1197, 2003.

- 
- [10] F. Erdogan. Stress distribution in bonded dissimilar materials with cracks. *J. Appl. Mech.*, Vol. 87, pp. 403–410, 1965.
- [11] J. C. W. VAN VROONHOVEN. Stress singularities in bi-material wedges with adhesion and delamination. *Fatigue Fract. Engng. Mater. Struct.*, Vol. 15, No. 2, pp. 159–171, 1992.
- [12] 戸谷異之, 小野孝, 宮脇正, 桐岡健. 三点、および四点曲げを受ける積層ばりのはく離解析. 日本機械学会論文集, Vol. 57, No. 540, pp. 39–47, 1991.
- [13] A. Nshimura, S. Kawai, and G. Murakami. Effect of lead frame material on plastic-encapsulated ic package cracking under temperature cycling. *IEEE Transactions on Components*, Vol. 12, No. 4, pp. 639–645, 1989.
- [14] 田中直敬. 半導体パッケージにおける接着・接合界面の強度特性および導電性に関する研究. 学位論文, 2004.
- [15] S. Kim. The role of plastic package adhesion in performance. *IEEE Trans. Comp. Hybrids, Manuf. Technol.*, Vol. 14, pp. 809–817, 1991.
- [16] K. V. Doorselar and K.D. zeeuw. Relation between delamination and temperature cycling induced failures in plastic packaged devices. *IEEE Trans, Comp. Manuf. Technol.*, Vol. 13, No. 4, pp. 879–882, 1990.
- [17] F. ERDOGN. Stress distribution in a nonhomogeneous elastic plane with cracks. *Transactions Of the ASME*, pp. 231–236, 1963.
- [18] S. Suzuki and K. Oota. Analysis of solder crack phenomena in LSI plastic packages. *Advances in Electronic Packaging, ASME*, pp. 343–347, 1992.
- [19] P. G. Charalambides, J. Lun A. G. Evans, and R. M. McMeekin. A test specimen for determining the fracture resistance of bimaterial interface. *Journal of Applied Mechanics*, Vol. 56, pp. 77–82, 1989.
- [20] M. Shmuel, Rubinstein, G. Cohen, and J. Fineberg. Cracklike processes within frictional motion: Is slow frictional sliding really a slow process. *MRS BULLETIN*, Vol. 33, pp. 1181–1189, 2008.

- 
- [21] S. G. SAWYER and R. B. ANDERSON. Collocated interfacial stress intensity factors for finite bi-material plates. *Engineering , Fracture Mechanics*, Vol. 4, pp. 605–616, 1972.
- [22] G. P. ANDERSON, K. L. DEVRIES, and M. L WILLIAMS. Mixed mode stress field effect in adhesive fracture. *International Journal of Fracture*, Vol. 10, pp. 565–583, 1974.
- [23] C. T. SUN and C. J. JIH. On strain energy release rates for interfacial cracks in bi-material media. *Engineering Fracture Mechanics*, Vol. 28, pp. 13–20, 1987.
- [24] 市川昌弘. 界面き裂モデルの検討および界面き裂の古典解と修正解の定量的比較. 日本機械学会論文集, Vol. 57, No. 538, pp. 68–72, 1991.
- [25] 荒居善雄, 土田栄一郎. 残留応力場における界面き裂の応力拡大係数の解析. 日本機械学会第 68 期通常総会講演会講演論文集, Vol. A, pp. 151–153, 1991.
- [26] 西村朝雄, 矢口昭弘, 河合末男. シリカ粒子高充填エポキシ樹脂の強度特性. 材料学会論文集, Vol. 38, No. 434, pp. 1322–1328, 1989.
- [27] A. Nshimura, A. Tatemichi, H. Miura, and T. Sakamoto. Life estimation for ic plastic packages under temperature cycling based on fracture mechanics. *IEEE Transactions on Components, Hybrids,,* Vol. CHMT-10, No. 4, pp. 637–642, 1987.
- [28] A. N. GENT. New and improved tests for adhesion. *J. Adhesion*, Vol. 23, pp. 115–122, 1987.
- [29] A. C. GARG. Delamination-a damage mode in composite structures. *Engineering Fracture Mechanics*, Vol. 29, No. 5, pp. 557–584, 1988.
- [30] S. L. DONALDSON and S. MALL. Delamination growth graphite/epoxy composites subjected to cyclic mode-III loading. *Journal of REINFORCED PLASTICS AND COMPOSITES*, Vol. 8, pp. 91–103, 1989.
- [31] Y. H. Pao and T. Y. Pan. Determination of stress intensity factors for interfacial cracks in bimaterial systems. *Journal of Electronic Packaging*, pp. 154–161, 1990.

- 
- [32] H. F. Brinson and et al. Test specimen geometries for evaluating adhesive durability. *19th International SAMPE Technica1 Conferenc*, pp. 152–164, 1987.
- [33] 池田徹, 他 3 名. LSI プラスチックパッケージのはんだりフロー割れ防止設計法の検討. 日本機械学会論文集, Vol. 4, No. 1, pp. 47–55, 2001.
- [34] M. L. Williams. The stress around a fault or crack in dissimilar media. *Bull. Seism. Soc. Am.*, Vol. 49, No. 2, pp. 199–204, 1959.
- [35] F. Erdogan. Stress distribution in a nonhomogeneous elastic plane with cracks. *J. Appl. Mech.*, Vol. 85, pp. 232–236, 1963.
- [36] G. C. Shi and J. R. Rice. The bending of plates of dissimilar materials with cracks. *J. Appl. Mech.*, Vol. 86, pp. 477–481, 1964.
- [37] M. Comninou. The interface crack. *J. Appl. Mech.*, Vol. 44, pp. 631–636, 1977.
- [38] M. Comninou. The interface crack in a shear field. *J. Appl. Mech.*, Vol. 45, pp. 287–290, 1978.
- [39] M. Comninou and D. Schmueser. The interface crack in a combined tension-compression and shear field. *J. Appl. Mech.*, Vol. 46, pp. 345–348, 1979.
- [40] M. Comninou. An overview of interface cracks. *Engineering Fracture Mechanics*, Vol. 37, No. 1, pp. 197–208, 1990.
- [41] C. Atkinson. The interface crack with a contact zone. *Int. J. of Fracture*, Vol. 18, No. 3, pp. 161–177, 1982.
- [42] A. F. Mak, L. M. Keer, S. H. Chen, and J. L. Lewis. A no-slip interface crack. *J. Appl. Mech.*, Vol. 47, pp. 347–350, 1980.
- [43] 結城良治, 他 3 名. Hetenyi の解を用いた効率的境界要素弾性解析. 日本機械学会論文集, Vol. 53, No. 492, pp. 1581–1588, 1987.
- [44] 結城良治, 他 1 名. 異材界面き裂の応力拡大係数の境界要素解析. 日本機械学会論文集, Vol. 55, No. 510, pp. 340–347, 1989.

- 
- [45] 結城良治, 他 1 名. パーソナルコンピュータによる異材接合継手・界面き裂の境界要素解析. 日本機械学会論文集, Vol. 42, No. 8, pp. 508–514, 1990.
- [46] 結城良治, 他 1 名. 界面き裂の力学. 生産研究, Vol. 42, No. 8, pp. 508–514, 1990.
- [47] 佐藤満, 他 2 名. き裂面接触を考慮した LSI パッケージの界面き裂の境界要素熱伝導・熱弾性解析. 日本機械学会論文集, Vol. 58, No. 550, pp. 859–865, 1992.
- [48] M. Sato, S. Yoshikawa, and R. Yuki. Boundary element thermal and thermoelastic contact analysis of interface cracks in LSI package. *Advances in Electronic Packaging*, ASME, pp. 469–476, 1992.
- [49] 池田徹, 他 1 名. 仮想き裂進展法による熱応力場での異種材界面き裂の応力拡大係数解析. 日本機械学会論文集, Vol. 63, No. 611, pp. 1377–1384, 1997.
- [50] T. Ikeda and C. T. Sun. Stress intensity factor analysis for an interface crack between dissimilar isotropic materials under thermals stress. *International Journal of Fracture*, Vol. 111, pp. 229–249, 2001.
- [51] A. Kinloch. The science of adhesion. *J. Mater. Sci.*, Vol. 17, pp. 617–651, 1982.
- [52] B. M. Mayshev and R. L. Salganik. The strength of adhesive joints using the theory of cracks. *Int. J. Fract. Mech.*, Vol. 1, pp. 114–128, 1965.
- [53] J. O. Stoffer and S. K. Gadodia. Development of tests for measuring adhesion of coatings. *American Paint-Coating Journal*, Vol. 1, pp. 36–40, 1989.
- [54] S. O. Show. Adhesive joint failure- a fracture mechanics approach. *Adhesion*, Vol. 7, pp. 173–196, 1983.
- [55] S. J. BENNETT, K . L. DEVRIES, and M . L. WILLIAMS. Adhesive fracture mechanics. *International Journal of Fracture*, Vol. 10, No. 1, pp. 33–43, 1974.
- [56] M. Bogner, W. Holzapeel, M. Maier, E. Ouella, and R. Schwarz. Adhesion between moulding compound and substrate. *IEEE/ISHM IEMT Symposium*, pp. 332–339, 1990.
- [57] J. C. W. van Vroonhove. Effects of adhesion and delamination on stress singularities in plastic-packaged integrated circuit. *Journal of Electronic Packaging*, Vol. 115, pp. 28–33, 1993.

- 
- [58] L T. Nguyen and M. M. Michael. Effects of die pad anchoring on package interfacial integrity. *Journal of Electronic Packaging*, Vol. 115, pp. 930–938, 1992.
- [59] 服部敏雄, 西村朝雄, 村上元. A stress singularity parameter approach for evaluating reliability of LSI plastic package. *Journal of the Society of Materials Science*, Vol. 443, No. 39, pp. 1101–1105, 1990.
- [60] 三好俊郎, 高野直樹, 小池秀生. 接合材・接合構造の強度評価に関する研究(接合界面の応力評価). 日本機械学会第68期通常総会講演会講演論文集, Vol. A, pp. 466–467, 1991.
- [61] 岸本喜久雄. 界面破壊力学-接着・接合界面の破壊力学. *Ja.Soc. Mat Sci.Japan*, Vol. 49, No. 2, pp. 238–244, 2000.
- [62] R. Yuuki and S.B. Cho. Efficient boundary element analysis of stress intensity factors for interface cracks in dissimilar materials. *Engineering Fracture Mechanics*, Vol. 34, pp. 179–188, 1989.
- [63] 山崎利春. 突合わせ継手の端部特異熱応力と破壊規準. 第6回破壊力学シンポジウム講演論文集, Vol. 44, pp. 242–247, 2003.
- [64] 松川宏. 摩擦の物理. 表面科学, Vol. 24, No. 6, pp. 328–333, 2003.
- [65] G. Yagawa, H.Hirayama, A.Miyoshi, and Y. Ando. Analysis of contact problem of shell structures using finite element method with pwnalty function. *Transcations of the Japan Society of Mechanical Engineers. A*, Vol. 48, No. 428, pp. 454–466, 1998.
- [66] SIMULIA Co. Abaqus/standard ver.6.4 user 's documentation. *Abaqus*, 2009.
- [67] Y.Y.Lu, T.Belytschko, and L.Gu. A new implementaion of the element free galerkin method. *Comp.Meth.Appl.Mech.Eng.*, Vol. 139, pp. 49–74, 1996.
- [68] M. Sato, S. Yoshioka, and Yuki. Boundary element thermal and thermoelastic contact analyses of interface cracks in LSI package. *Advances in Electronic Packagin, ASME*, pp. 469–476, 1992.
- [69] 前野隆司. 固着・滑りを考慮した超音波モータの接触解析. 音響学会誌, Vol. 54, No. 4, pp. 305–311, 1998.

- 
- [70] C. Shet and N. Chandra. Analysis of energy balance when using cohesive zone models to simulate fracture processes. *Journal of Engineering Materials and Technology*, Vol. 124, pp. 440–450, 2002.
- [71] G. Alfano and E. Sacco. Combining interface damage and friction in q cohesive-zone model. *Int. J. Numer. Meth. Engng*, Vol. 68, No. 5, pp. 542–582, 2006.
- [72] X.P. XU and A. Needleman. Numerical simulations of dynamic crack growth along an interface. *International Journal of Fracture*, Vol. 74, No. 4, pp. 289–324, 1995.
- [73] C. Dobert, R. Mahnken, and E. Stein. Numerical simulation of interface debonding with a combined damage/friction constitutive model. *Computational Mechanics*, Vol. 25, No. 5, pp. 456–467, 2000.
- [74] C. Marotzke and L. Qiao. Interfacial crack propagation arising in single-fiber pull-out tests. *Comp. Sci. Tech. 57*, Vol. 57, pp. 887–897, 1997.
- [75] J. W. Gillespie, L. A. Carlsson, and R.B. Pipes. Finite element analysis of the end notched flexurespecimen for measuring mode-II fracture toughness. *Composites Science and Technology*, Vol. 27, pp. 177–197, 1986.
- [76] 岩崎富生, 濱田智之, 小林金也, 佐野彰洋. ナノテクノロジーを支える材料物性シミュレーション. *日立評論*, Vol. 90, No. 2, pp. 890–891, 2008.
- [77] B. N. J. Persson, O. Albohr, U. Tartaglino, A. I. Volokitin, and E. Tosatti. On the nature of surface roughness with application to contact mechanics, sealing, rubber friction and adhesion. *J.Phys. Condens. Matter*, Vol. 17, pp. R1–R62, 2005.
- [78] A. G. Peressadko, N. Hosoda, and B. N. J. Persson. Influence of surface roughness on adhesion between elastic bodies. *J.Phys. Rev. Lett*, pp. 124301–124304, 2005.
- [79] B. N. J. Persson. Theory of rubber friction and contact mechanics. *Journal of Chemical Physics*, Vol. 115, No. 8, pp. 3840–3861, 2001.
- [80] B. N. J. Persson. The effect of surface roughness on the adhesion of elastic solids. *JOURNAL OF CHEMICAL PHYSICS*, Vol. 115, No. 12, pp. 5597–5610, 2001.

- 
- [81] B. N. J. Persson. Adhesion between elastic bodies with randomly rough surfaces. *Physical Review Letters*, Vol. 89, No. 24, p. 245502, 2002.
- [82] B. N. J. Persson, F. Bucher, and B. Chiaia. Elastic contact between randomly rough surfaces, comparison of theory with numerical results. *Physical Review B*, Vol. 65, No. 18, p. 184106, 2002.
- [83] B. N. J. Persson, O. Albohr, C. Creton, and V. Peveri. Contact area between a viscoelastic solid and a hard, randomly rough, substrate. *Journal of Chemical Physics*, Vol. 120, No. 18, pp. 8779–8793, 2004.
- [84] B. N. J. Persson. Contact mechanics for randomly rough surfaces. *Surface Science Reports*, Vol. 61, pp. 201–227, 2006.
- [85] C. Yang, U. Tartaglino, and B. N. J. Persson. A multiscale molecular dynamics approach to contact mechanics. *The European Physical Journal E, Soft Matter and Biological Physics*, Vol. 19, No. 1, pp. 47–58, 2006.
- [86] B. N. J. Persson. Relation between interfacial separation and load: A general theory of contact mechanics. *Physical Review Letters*, Vol. 99, No. 12, pp. 125502.1–125502.4, 2006.
- [87] C. Yang and B. N. J. Persson. Molecular dynamics study of contact mechanics: contact area and interfacial separation from small to full contact. *Phys Rev Lett*, Vol. D-52425, pp. 024303.1–024303.4, 2008.
- [88] C. Yang and B. N. J. Persson. Contact mechanics: contact area and interfacial separation from small contact to full contact. *J. Phys. Condens. Matter*, Vol. 20, pp. 215214.1–215214.13, 2008.
- [89] B. N. J. Persson. On the elastic energy and stress correlation in the contact between elastic solids with randomly rough surfaces. *J. Phys.: Condens. Matter*, Vol. 31, pp. 1–3, 2008.
- [90] 伊奈治, 石川智則, 杉浦昭夫, 成田量一. 熱硬化型樹脂注型品の硬化プロセス解析技術の開発. *デンソーテクニカルレビュー*, Vol. 7, No. 2, pp. 173–196, 2002.

- 
- [91] 元木巖, 時光富士雄, 綿貫勇次郎. 注型品の残留応力. 富士時報, pp. 827–831, 1968.
- [92] A. Needleman. A continuum model for void nucleation by inclusion debonding. *J. App. Mech.* 30, Vol. 30, pp. 259–276, 2009.
- [93] J.H. Rose, J. Ferrante, and J.R. Smith. Universal binding energy curves for metals and bimetallic interfaces. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 47, pp. 675 – 678, 1981.
- [94] 山崎美稀, 泉聡志, 酒井信介. 樹脂モールド構造のための接着・摩擦解析手法の開発と気中絶縁ロッドへの応用. 日本機械学会論文集 A 編, Vol. 75, No. 756, pp. 974–980, 2009.
- [95] 上田顯. 分子シミュレーション. 裳華房, 2003.
- [96] 川添良幸, 三上益弘, 大野かおる. コンピューター・シミュレーションによる物質科学分子動力学とモンテカルロ法. 共立出版, 1996.
- [97] 岡崎進. コンピュータシミュレーションの基礎. 化学同人, 2000.
- [98] 北川浩, 他 3 名. コンピュータシミュレーションの基礎. 養賢堂, 2000.
- [99] 日本機械学会編. 原子・分子を用いる数値シミュレーション. コロナ社, 1996.
- [100] T. Iwasaki, et al. Molecular dynamics analysis of adhesion strength of interfaces between thin films. *Journal of Materials Research*, Vol. 16, No. 6, pp. 1789–1794, 2001.
- [101] T. Iwasaki. Molecular dynamics study of adhesion strength and diffusion at interfaces between interconnect materials and underlay materials. *Computational Mechanics*, Vol. 25, No. 1, pp. 76–86, 2000.
- [102] P. Dauber-Osguthorpe, V. A. Roberts, D. J. Osguthorpe, J. Wolff, M. Genest, and A. T. Hagler. Structure and energetics of ligand binding to proteins. *E. coli dihydrofolate reductase-trimethoprim, a drug-receptor system*, *Proteins Structure, Function and Genetics*, Vol. 4, pp. 31–47, 1988.
- [103] P. M. Morse. Diatomic molecules according to the wave mechanics. ii vibrational levels. *Phys. Rev.*, Vol. 34, pp. 57–64, 1929.
- [104] J. E. Lennard-Jones. Lennard-jones. *Proc. Roy. Soc. A*, Vol. 106, pp. 463–477, 1924.

- [105] A. A. Volinsky, N. R. Moody, and W. W. Gerberich. Interfacial toughness measurements for thin films on substrates. *Acta Materialia*, Vol. 50, pp. 441–466, 2002.
- [106] P. R. Nayak. Random process model of rough surfaces. *Transactions of ASME and Journal of Lubrication Technology*, Vol. 93, pp. 398–407, 1971.

## 研究業績

### 雑誌論文

- (1) 山崎美稀, 泉聡志, 酒井信介, 樹脂モールド構造のための接着・摩擦解析手法の開発と気中絶縁ロッドへの応用, 日本機械学会論文集 A 編, Vol.75, No.756, pp.974-980, 2009.
- (2) 山崎美稀, 岩崎富生, 泉聡志, 酒井信介, 樹脂モールド構造内部における界面接着強度の予測への原子レベルモデルリングの適用, 日本機械学会論文集 A 編, 投稿中.
- (3) M. Yamazaki, S. Izumi, S. sakai, New Method of Analyzing Adhesion/Friction in Resin-molded Structures and its Application to Insulated Rods, Journal of Solid Mechanics and Materials Engineering, submitted.

### 国内会議

- (1) 山崎美稀, 小林将人, 酒井信介, 樹脂モールド構造における接着界面の強度評価手法の検討, 日本機械学会年次大会講演論文集, Vol.6, pp.431-432, 2008.
- (2) 山崎美稀, 岩崎富生, 原祥太郎, 泉聡志, 酒井信介, 原子シミュレーションによる樹脂モールド構造の接着界面強度評価, 日本機械学会年次大会講演論文集, Vol.6, pp.331-332, 2009.

### 特許

- (1) 特開 2009-170372, 真空バルブ用 (出願)
- (2) 特開 2009-158218, 真空スイッチギヤ (出願)
- (3) 特開 2009-032611, 真空絶縁スイッチ及び真空絶縁スイッチギヤ (登録)
- (4) 特開 2008-311036, 真空スイッチギヤ (出願)
- (5) 特開 2008-146934, 真空スイッチギヤ (審査請求)

- 
- (6) 特開 2008-071522 , 開閉操作装置 ( 審査請求 )
  - (7) 特開 2004-289028 , 半導体装置 ( 登録 )
  - (8) 特開 2004-014860 , 半導体装置 ( 登録 )
  - (9) 特開 2003-264252 , 半導体装置 ( 登録 )
  - (10) 特開 2002-343915 , 半導体装置 ( 登録 )

上記の樹脂モールド構造を用いる真空スイッチギヤ , 半導体装置に関する研究業績すべてに関して中心的な役割を果たしたものである。

## 謝辞

本論文は、著者が東京大学大学院工学系研究科社会人博士課程在学中、東京大学酒井信介教授のご指導のもと総括したものです。酒井信介教授には、基礎的な研究姿勢から研究活動支援に至るまで懇切丁寧なご指導をして頂きました。深く感謝致します。

また、東京大学泉聡志准教授には、研究方針・論文のまとめ方・研究者あり方等、本研究の全般を指導して頂きました。常に献身的にかつ熱心にご指導をしていただいたこと、この場を借りて深く感謝致します。

本論文の審査をお忙しい中お引き受け下さり、有益な御助言と暖かい励ましのお言葉を賜りました東京大学大学院の吉川暢宏教授、梅野宜崇准教授、崔 豪講師に深く感謝し、心よりお礼を申し上げます。

同研究室の先輩である独立行政法人労働安全衛生総合研究所の山際謙太様と原祥太郎助教にはたくさんのご助言とご協力をして頂きました。また、研究室の後輩である現博士後期課程の横山喬氏には、本論文の計算に関する議論ならびに普段の計算環境まで、多大な協力をしてもらいました。また、参加させていただいた研究会において、先生方および研究室の皆様より貴重なご指摘とご意見をいただきました。厚く謝意を申し述べます。

本論文は、著者が日立製作所機械研究所に在籍しながら樹脂モールド構造の製品開発における研究課題を用いて、工学的なメカニズムの解明から製品レベルへの適用まで発展させまとめたものであります。本研究の方向付けおよび研究成果の製品への適用に際しては、日立製作所国分生産本部の土屋賢治主管技師、森田歩主任技師、小林将人主任技師から大多なるご助言やご協力を頂きました。本研究の着手、推敲及び論文のまとめにあたっては、日立製作所機械研究所の川端敦所長、北野誠主管研究長、佐々木直哉主管研究長、日立電線株式会社の斉藤直人部長（元機械研究所三部部長）、日立化成工業株式会社田中直敬主任技師（元機械研究所三部）、鈴木隆之主任研究員および機械研究所第三部の皆様よりご支援と有益なご助言、そして暖かい励ましのお言葉を賜りました。

また、日立製作所機械研究所の岩崎富生主管研究員には、本研究の遂行並びに本論文をまとめるにあたり、本研究の全般を指導して頂きました。また、数々の御協力と有益な御助言、暖

かい励ましのお言葉を賜りました。この場を借りて深く感謝致し、心よりお礼申し上げます。  
最後に、著者の研究推進への理解と暖かく見守ってくれた家族に感謝の意を捧げます。