



Title	Pore Effects and Local Viscoelasticity at Resin-Metal Interfaces Studied by MD Simulation
Author(s)	森, 穂高
Citation	大阪大学, 2019, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/76211
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

論文内容の要旨

氏名 (森 穂高)	
論文題名	Pore Effects and Local Viscoelasticity at Resin-Metal Interfaces Studied by MD Simulation (樹脂-金属界面における空孔効果と局所粘弾性のMDシミュレーションによる解析)
論文内容の要旨	
<p>現在の自動車にはセンサーやICといった電子部品が多数搭載されている。これらの部品は封止樹脂と電極のように内部に樹脂と金属が接着された構造が存在する。接着状態を良好に保つためには、まず接着剤である樹脂が被着体に十分接触にし、その後使用環境下でもその接触状態を保つ必要がある。これらの現象には分子レベルの相互作用やダイナミクスが重要な役割を果たすため、その解析には原子レベルの分解能を持つ手法が不可欠となる。分子動力学(MD)シミュレーションは、原子・分子レベルでの物質の挙動をシミュレートするものであり、接着メカニズム解明の有効な手段となる。本論文は、MDシミュレーションによる接着メカニズムの解明を目指し、特にナノ空孔へのエポキシ樹脂の充填性における樹脂サイズと空孔サイズの依存性と樹脂-金属界面における局所粘弾性について述べたものである。</p>	
<p>第1章 金属表面のナノ空孔へのエポキシ樹脂充填挙動の解析 樹脂と金属間の接着性を高める方法として金属表面の粗化処理があり、その中でも近年ナノレベルの凹凸を形成する方法が注目を浴びている。アルミニウム表面に形成された円筒状のナノ空孔を対象に、分子量の異なるエポキシ樹脂オリゴマーの充填挙動を全原子MDシミュレーションにより解析した結果を示した。充填は現実との対応を取るために実時間と対応した押し込み速度で解析した。その結果、分子が小さい場合は空孔の壁に沿って充填が進行し、分子が大きくなると空孔に対して均一に充填が進行することを示した。さらに、分子サイズが空孔サイズの半分を上回ると空孔の半分程度樹脂が充填された段階で、空孔自体が変形することを示した。</p>	
<p>第2章 様々な樹脂サイズ・空孔サイズのナノ空孔に対する樹脂の充填挙動の解析 前章の結果を拡張し、円筒状のナノ空孔とエポキシ樹脂オリゴマーについて、これらのサイズ比の依存性および、充填時の空孔周辺の応力分布の関係を全原子MDシミュレーションによって解析した結果を示した。現実的に印加可能な充填圧力においては、樹脂のサイズが空孔の1/10以下であっても空孔の数十%程度しか充填されないことを示した。また充填性が低い場合には空孔の周辺に大きな圧力が発生しており、樹脂が空孔の入り口で詰まっていることを示した。これらのシミュレーション結果から、良好な充填を実現するためには、樹脂サイズを空孔の1/10程度以下に小さくすることに加え、樹脂分子の構造緩和が起こるように充填速度を下げる、充填時の温度を上げるなどのアプローチも有効であることを示した。</p>	
<p>第3章 緩和弾性率の空間分割表式による樹脂-金属界面の局所粘弾性の解析 樹脂-金属界面近傍における粘弾性の不均一性と接着性の関係を解析するために、粘弾性の一つである緩和弾性率空間的に分割した表式を開発した。系内の各位置における局所的な緩和弾性率を導入することで、これまで時間依存性の観点のみから解析されてきた粘弾性に空間分解能を取り入れた。計算モデルとしてエポキシオリゴマーとアルミニウムもしくは白金で構成された樹脂-金属界面を、Kremer-Grest模型とLennard-Jones wallで粗視化したモデルを用いた。その結果、接着エネルギーが大きい場合は、界面近傍でのセグメントの動きが遅く、かつこのような領域はセグメントよりもはるかに大きいスケールに及ぶことを示した。さらに、接着エネルギーが大きい時に界面近傍に層状の構造が形成され、その層はバルクと比較し粘度が高いことを示した。粘性が高い領域は外力を加えた場合の抵抗力が大きくなることを示している。一般に接着力を高める場合には被着体との相互作用を強くする方法が取られるが、今回のシミュレーション結果は界面近傍の粘性を高めるのも、接着力を向上させるアプローチとして有効であることを示した。</p>	

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　(　森　穂高　)	
	(職)
論文審査担当者	主　　査　　教　授　　松林　伸幸
	副　　査　　教　授　　中野　雅由
	副　　査　　教　授　　境　　慎司

論文審査の結果の要旨

接着は産業用最も重要な技術の一つであるが、分子レベルの過程には未解明の点が多い。そのため、ナノレベルの凹凸など接着力を向上させる手法は多数開発されているものの、高い信頼性が求められる自動車部品への異素材接着の産業応用例は少ない。接着状態を良好に保つためには、まず接着剤である樹脂が被着体に十分に接触し、その後、使用環境下でも接触状態を保つ必要がある。これらの現象には分子レベルの相互作用やダイナミクスが重要な役割を果たすため、その解析には原子レベルの分解能を持つ手法が不可欠となる。

本学位論文では、分子動力学(MD)シミュレーションを用いてナノ空孔へのエポキシ樹脂の充填性における樹脂サイズと空孔サイズの依存性を解析した結果と樹脂-金属界面における局所粘弾性について述べている。第1章では、アルミニウム表面に形成された单一サイズの円筒状のナノ空孔を対象に、分子量(分子サイズ)の異なるエポキシ樹脂オリゴマーの充填挙動を全原子MDシミュレーションにより解析し、慣性半径 R_g の小さい分子が早く充填されることや R_g が小さい分子は空孔の壁面に沿って充填され、 R_g が大きくなるにつれ空孔に対し均一に充填されるという描像を提示し、樹脂-樹脂間、樹脂-金属間相互作用のバランスによって充填挙動が変化することを示している。第2章では、第1章の結果を拡張し、円筒状のナノ空孔とエポキシ樹脂オリゴマーについて、これらのサイズ比と充填率の関係、および、充填時の空孔周辺の応力分布を解析し、現実に印加可能な圧力では空孔の1/10のサイズの分子でバルクの70%の密度まで充填されることや充填不十分になる原因是樹脂の詰まりであることを示している。第3章では、従来は均一系にのみ適用してきた緩和弾性率の解析手法を不均一系に適用するためのフレームワークを定式化し、粗視化MDにより界面近傍の局所粘弾性と接着の関係を解析している。その結果、接着エネルギーが大きい場合は、界面近傍でのセグメントの動きが遅いことや、界面近傍に層状の構造が形成されその層はバルクと比較し粘度が高いといった知見が得られている。

これらの結果は、ナノ空孔による接着力改良において良好な充填を実現するための設計指針、および、界面粘弾性の改質と接着力向上のための新たなアプローチを与えるものである。よって、博士(工学)の学位論文として価値のあるものと認める。