接触する微小2平面間に作用する凝着力*

—寸法、雰囲気および表面濡れ性の影響—

諸 貫 信 行** 内 山 賢 治***

Adhesion force between two small surfaces in contact
- Effect of size, environment, and surface wettability -

Nobuyuki MORONUKI and Kenji UCHIYAMA

Adhesion force, exactly standing for pull-off force, between tiny flat surfaces was measured. Adhesion force that acts between two mating surfaces becomes dominant factor in microscopic mechanisms. Sometimes it becomes larger than the weight of the moving part and restricts its motion. This paper describes the measurement method of adhesion force first. A silicon slider (chip) is placed on an inclined guide that is vibrated by a voice coil motor, and the adhesion force is calculated from the slider's mass and the critical acceleration that the slider begins to slide down. It was found that the adhesion force is ideally proportional to the nominal contact area in vacuum though it is not proportional in air. Also, the effect of the wettability of the surface on the adhesion force was made clear. These results suggest that the elimination of water capillary from interface of the mating surfaces is important to obtain steady motion of the mechanism.

Key words: adhesion force, pull-off force, scale-effect, vacuum, water capillary, meniscus, micro-mechanism

1. 緒 言

シリコンの異方性エッチングを利用した微小構造や機構の製作が多く行われてきており、筆者らも同手法で加工したV溝を案内面とする微小直線運動機構の試作等を行った⁽¹⁾。微小機構の問題点のひとつとして、2表面間に作用する強い凝着力によって可動部分が動きにくくなることが良く知られている。微小部品の操作において一度把持した物体が離れない等の問題も同様の原因によるものである。

ナノメートル領域の接触機構については、走査プローブ顕微鏡を用いた方法で力学的説明⁽²⁾や雰囲気の影響が明らかにされている⁽³⁾。マイクロメートル領域の接触機構についても、接触2平面の引き離し力測定と雰囲気湿度や面積の影響等が明らかにされてきているものの^(4,5)、理論を含めて⁽⁶⁾、接触力発生のメカニズムが十分に明らかにされているわけではない。

応用的立場からこの凝着力を低減するための方法として、表面に規則形状を設けて真実接触面積を減らす方法^(7,8)や表面に単分子膜を設ける方法⁽⁹⁾等がこれまで試みられている。これらの効果を体系的に評価するためには簡便な測定法が必須であると考えられるが、これまでに十分な検討は行われていない。

そこで本研究では、振動を用いた簡便な凝着力測定法を提案し、シリコン微小機構の2平面間に作用する凝着力に対する寸法や雰囲気の影響を調べるとともに、シリコンに固有の表面改質の効果を実験的に明らかにすることを目的とする。なお、本研究で扱う凝着力とは、固体どうしの接合や液架橋(メニスカス)力、静電力等の様々な力を含めた合力を指し、sticking forceとも類似したものを指す。さらに別の用語として引き離し力(pull-off force)があり、ここで用いる凝着力とは正確にはこの力に相当するものである。

2. 実験装置と方法

2.1 凝着力の測定方法

図1は凝着力の測定のための実験方法を示す。傾斜させた台に設置したボイスコイルモータ上にガイド(しゅう動面)を貼り付け、この上にスライダを置く。ボイスコイルモータに正弦波を加えながら、その振幅と周波数を調整し、スライダがしゅう動面を滑り落ちるときの振動加速度とスライダ質量から、スライダとしゅう動面の間に作用する凝着力を計算により求めることができる。このような装置を通常の雰囲気あるいは真空チャンバ内に設置することで、雰囲気の影響を調べられるようにした。

Fig.1 Measurement of adhesion force

しゅう動体に作用する力成分と釣合いは、図中の座標系に従うと次式のようになる。

$$F_{ad} = -m \left\{ g \cos \phi - z_0 (2\pi f_0)^2 \right\} \quad (1)$$

ここで m : 質量, g : 重力加速度, ϕ : ガイドの傾斜角, $z(t)$: しゅう動面変位, F_{ad} : 凝着力, f_0 : 入力周波数, z_0 : スライダが滑り始める時の振幅を示す。スライダが滑り始める時点の判定はビューイングポート外側に設置したCCD顕微鏡の像を目

* 原稿受付 平成14年7月29日

** 正会員 東京都立大学大学院 (八王子市南大沢1-1)

*** 正会員 日本大学 (船橋市習志野台7-24-1)

視により観察することで行った。ガイドの傾斜角 ϕ によって滑り始める条件が異なってくるが、これを過度に大きくすると接触面圧が不均一になる可能性がある。測定が行いやすく、かつなるべく小さい角度を経験的に選び、これを4度とした。

2.2 予備実験と実験条件

図2は予備実験結果の一例を示す。後の実験条件とは若干寸法が異なるものの、同様にシリコンチップをスライダとし、周波数と振幅を種々変えてこれが滑り出す時の条件を調べた。図中の2本の曲線のうち、下方のものは、凝着力を0とした場合にスライダが滑り始める条件（下向きの加速度が1g）を示している。上方の曲線は、凝着力を14 μ Nと仮定した場合であり、実験結果をよく近似できていることが分かる。以降では、実験結果をもっともよく近似できる F_{ad} の大きさを求め、これを凝着力とする。

これまでの研究例では構造のひずみを調べることで微小力を測定する方法⁹⁾が多く用いられているが、ここでは慣性力を利用した測定を行っている。そこで、この測定に含まれる各種誤差要因を考えてみる。振動周波数の精度は関数発生器(HP3314A)の性能に依存し、1%以下の確度を有している。加振電圧と振幅の関係を予めレーザ変位計を用いて校正しておき、実験の際は関数発生器の電圧を設定することで振幅を設定した。これの確度は $\pm 1\%$ 程度となっている。ガイド面内(10 $\times$ 10mm)での振動振幅のばらつきを調べたところ、場所によって最大振幅時(6 μ m)に10%程度の違いがあることがわかった。極力同じ場所での測定を行うよう心掛けたが、数%の誤差は避けられないと考えられる。滑り出す条件を見出す際に実験者の判断が含まれるため、不確かさや測定誤差が含まれるが、その誤差見積りはできていない。なお、質量は体積とシリコンの密度から計算により求めた。以上の要因を考慮し、最終的に求めた凝着力の有効桁数は2桁程度と見積もられる。

以降の実験で用いるスライダおよび試料台には、ダイサにより矩形に切断した単結晶シリコンを用いた。基板の面方位は(100)、厚さは0.45mm、酸化膜の厚さ1 μ m、表面粗さ R_a 0.2nmというものである。後に接触面積の影響を調べるため、表1に示すような各種寸法を用意した。いずれの実験も温度20 $^{\circ}$ C、相対湿度50%に保たれたクリーンルーム(クラス10000)で行い、実験前にスライダと試料台ともにエタノールによる超音波洗浄後、ドライ窒素で乾燥を行った。測定回数はそれぞれの条件で30回とした。固体接触機構には時間とともに変化する現象もあるため、スライダの静止時間(測定間隔)は1分以内とした。

3 実験結果と考察

3.1 静電力の影響

帯電による静電力は実験の再現性に大きく影響するため、まず、この影響を調べた。実験には表1(8)のスライダを用いた。加振周波数は400Hzで一定とし、凝着力 F_{ad} を30回繰り返し測定したときの頻度分布を図3に示す。除電を行わない場合の凝着力は平均値616 μ Nと大きく、その標準偏差も250 μ Nと大きかった。

一方、コロナ放電式除電器を用いて静電気を除去してから実験を行った場合、平均値、標準偏差がそれぞれ308 μ N、97 μ Nと大幅に減少した。この結果より、平均値の差分に相当する308 μ N程度の大きさが静電気により作用していたと考えられ、

Fig.2 Example of the measurement of pull-off force

Table 1 Specifications of the testpiece

No.	Width (mm)	Length (mm)	Nominal contact area (mm ²)	Calculated mass (mg)
(1)	0.19	0.19	0.036	0.038
(2)	0.30	0.32	0.10	0.10
(3)	0.45	0.45	0.20	0.21
(4)	1.0	1.0	1.00	1.0
(5)	1.25	1.20	1.50	1.6
(6)	1.30	1.30	1.69	1.8
(7)	1.5	1.5	2.25	2.4
(8)	1.25	2.0	2.5	2.7
(9)	2.0	2.0	4.0	4.2
(10)	2.0	3.0	6.0	6.3

Fig.3 Effect of electrostatic force

Fig.4 Adhesion force after repeated friction

単位面積当りでは308 μ N/2.5 mm²=123 μ N/mm²程度に上がることがわかった。

次に、しゅう動を繰り返した場合の凝着力の変化を調べた。除電後、外部からの電荷が移動しないように木片を介して接線力のみを負荷するようにしてほぼ10mm/sの様な速度でスライダを所定回数しゅう動させた後、図1の方法で凝着力を測定した。実験に用いたスライダは図3の実験で用いたのと

同じものであり、しゅう動距離は1回あたり往復約2～3mmとした。図4は実験結果を示し、横軸はしゅう動回数、縦軸はスライダが滑り始める時の振動振幅値 z_0 (入力周波数400Hz)、つまり凝着力を示す。

しゅう動回数(距離)が長くなるにつれて z_0 、つまり凝着力が大きくなるのがわかる。帯電による凝着力がしゅう動に伴って増大したと考えられる。その後、除電を行いながら同様の実験を4回繰り返した場合、しゅう動距離に対する凝着力の増大率が下がる傾向があることがわかった。これは、しゅう動を繰り返すうちに表面の酸化膜の破壊や摩耗による真実接触面積の増大によって電荷の移動が容易になり、帯電しにくくなったためと考えられる。以降の実験では条件が許す限り、このような繰返ししゅう動と除電の後に測定を行うようにした。

3.2 接触面積の影響

見かけの接触面積を変えたときの凝着力を、雰囲気を変えながら調べた。図1のような実験を真空チャンバ内で繰り返し行うため、斜面に沿って滑り落ちたスライダをチャンバ外部からその上部に戻せるような機構を設けた。しかし、チャンバ内部に置かれたスライダの姿勢調整までを行うのは難しかったことから、スライダ形状を正方形に近いものに限った。

測定結果を図5に示す。雰囲気は前述のように温湿度管理した大気中と真空中(10⁻⁴Pa)であり、それぞれの場合の近似直線を F_{at} 、 F_{va} で示してある。これらの結果より、真空中では凝着力が見かけの接触面積の1.1乗と、ほぼ比例するのに対し、大気中では凝着力が面積の1.3乗に比例するということがわかる。この違いは液架橋力による凝着力の影響と考えられ、真空中では液架橋力が無視できる程度まで小さくなり、接触面積と凝着力との間の比例関係が得られたと考えられる。接触面積に比例した凝着力の原因はファンデルワールス力などの作用の合力によるものと考えられる。

なお、図5に示すようなべき乗近似式の指数値は必ずしも一般的なものとはいえない。接触面積の異なる場合には真実接触部の面積や接触点の数が大きく異なると考えられ、また、表面粗さが異なる場合にも真実接触状態が異なり、指数値も変わると考えられるからである。

図6は、スライダの自重に対する凝着力の比が見かけの接触面積とともにどのように変化するかを示している。まず、自重の50から200倍もの大きな凝着力が作用していることに注意が必要である。また、真空中では接触面積によらず凝着力がほぼ一定であるのに対し、大気中では見かけの接触面積の増大とともに凝着力は増大する傾向があることが分かる。ここで用いた試料は厚さ一定で自重は面積に比例するため、見かけ面圧は一定に保たれている。しかし、厚さ一定で横寸法が長くなるため曲げ変形が生じやすくなり、大気中での接触では液架橋力によって生じた構造変形が新たな液架橋を生じさせ、結果的に強い凝着力を発生させていることなどがその理由として考えられる。

3.3 雰囲気の影響

雰囲気の違いによる凝着力の変化を調べるため、チャンバ内を大気、真空、不活性ガス(Ar)環境と変化させた実験を行った。ただし、不活性ガスは真空チャンバ内を10⁻⁴Paに減圧した後に充填した。前の例と同様に30回の測定を行ったときの頻度分布を図7に示す。凝着力の平均値は大気中の145 μ Nに比べ真空中では約48%減少し、69.9 μ Nとなった。真空環境下では凝着力の標準偏差も小さくなり、非常に安定した凝着力が測

Fig.5 Effect of nominal contact area

Fig.6 Ratio of adhesion force to own weight

Fig.7 Effect of environment

Fig.8 Meniscus between two mating planes

定された。不活性ガス雰囲気は真空の場合とほぼ同様の結果が得られた。ここで用いた不活性ガスを乾燥雰囲気ととらえれば、大気中とそれ以外の雰囲気による凝着力の違いは雰囲気に含まれる水分によるものと考えられ、その大きさは75 μ N/1.69mm²=44 μ N/mm²程度と大きいことがわかった。また、真空雰囲気と不活性ガス雰囲気の凝着力がほぼ同様の結果であることから、圧力の変化が凝着力に及ぼす影響に比べて相対湿度の影響が大きいことがわかる。

大気中では図8に示すように接触する2平面間の接触部で液

架橋が形成され、これによる凝着力 F_m は次式により求めることができる⁽¹⁰⁾。

$$F_m = 2\pi\gamma_L(\cos\theta_a + \cos\theta_b) \quad (2)$$

ただし、 r は液架橋の曲率半径、 γ_L は液架橋を形成する液体の表面張力、 θ_a 、 θ_b はそれぞれ材質A、B表面での接触角である。架橋の数や接触角等の数値を明確化できず、定量的な議論を展開することができないため、以下では定性的あるいは対比的な検討を行う。

なお、液架橋はファンデルワールス力に対してシールド効果を有し、真空中ではファンデルワールス力が大きくなると考えられるが⁽⁹⁾、液架橋の方が相対的に大きいため、真空環境下では凝着力が減少したと考えられる。今回用いたスライダの寸法範囲では、支配的な力はファンデルワールス力ではなく液架橋力であると考えられる。

3.4 表面の濡れ性の影響

前述の式(2)から、液架橋力は表面の濡れ性によって異なり、結果的に凝着力の大きさが異なることがわかる。シリコンは種々の改質を行うことができ、例えば、表面を窒化あるいは炭化することができ、耐摩耗性を向上させることができるだけでなく表面の濡れ性も変えることができる。

そこで、スライダとガイドを酸化膜付きシリコン(以下 SiO_2 と示す)の組合せによるものに加え、濡れ性の低い窒化珪素(以下 Si_3N_4 と示す)、およびフッ酸処理により酸化膜を除去したシリコン(以下Siと示す)の3者を比較する実験を行った。本実験で使用した SiO_2 と Si_3N_4 の接触角を実測したところ、図9に示すように、それぞれ51度、65度であった。式(2)にこれらの接触角を代入して凝着力の比を求めると0.61となり、 Si_3N_4 の方がSiよりも約40%凝着力が減少することが期待できる。Si(酸化膜を除去したシリコン)は接触角76度であり、凝着力はさらに小さくなると考えられる。ただし、フッ酸処理をしたシリコン面を大気中に置いた場合、30分程度の時間で再び酸化膜で覆われてしまうため、測定結果は基礎データを示すものの、応用的な意味を持つものではない。

SiO_2 と Si_3N_4 それぞれの表面粗さを触針式粗さ計で測定した結果を図10に示す。これらの粗さは大きく異なるものではないため、真実接触面積も大きく異なることはないと考えられる。フッ酸処理で酸化膜を除去した表面の粗さも確認のため測定したところ、酸化膜除去前と大きな違いはなかった。なお、スライダ寸法は $1\text{mm} \times 1\text{mm}$ である。

図11に通常の大気環境下で SiO_2 、 Si_3N_4 およびSiの凝着力を30回測定した結果の頻度分布を示す。頻度分布を見やすくするためにヒストグラムを線で結んである。図3の結果と同様に、 SiO_2 は平均値が大きだけでなく標準偏差も大きい。これに対し、接触角が大きい、すなわち水との親和性が悪い Si_3N_4 表面では平均値が30%程度まで小さくなり、併せて標準偏差も小さくなった。Si表面は接触角を測定した範囲では水との親和性が3者の中で最も悪く、凝着力が最も小さくなると予測されたが、平均値では SiO_2 と大差がない結果となった。しかし前述のようにフッ酸処理したSi面は長時間にわたって安定なものではないため、部分的な酸化が進行した可能性がある。Siの測定結果で頻度が最も高いのは30mN程度であり、 SiO_2 のような2つ山の分布ではなくなっていることを考えると、凝着力が小さくなったともいえる。

Fig.9 Contact angle on water droplet

Fig.10 Roughness of the surface
(upper: silicon with oxide layer, lower: Si_3N_4)

Fig.11 Effect of surface material on adhesion force in air

Fig.12 Effect of surface material on adhesion force in vacuum

図12には図11と同様の実験を真空環境下で行った結果を示す。湿度の低下に伴って液架橋力が小さくなり、全体の平均値が小さくなっている。 Si_3N_4 の場合の凝着力は SiO_2 のそれのやはり30%ほどになっており、上記の推定が正しかったことを示している。図には示していないが、 SiO_2 の測定値の標準偏差が大気中の27から真空環境下での3.7と著しく減少したのに対し、 Si_3N_4 は大気中2.4、真空中2.7とその値がほぼ変わっていない。このことから、凝着力の減少は接触角以外の因子にも影響を受けていると考えられる。しかし、真空中では凝着力が安定するという傾向は間違いないことが確認できた。

4. 結 言

代表寸法がmmオーダーで、鏡面仕上げされたシリコン2平面間に作用する凝着力を定量化するための実験を行い、以下の結果を得た。

- (1) 振動と慣性力を利用することで微小な凝着力を測定する方法を提案した。
- (2) 乾燥雰囲気ではみかけの接触面積と凝着力の関係はほぼ比例するものの、湿度の高い雰囲気では凝着力は面積の1.3乗に比例した。
- (3) 表面の濡れ性を変化させると凝着力も変化し、シリコンの表面を窒化した場合、凝着力が30%程度小さくなった。

その他、真空環境は微小機構の安定な動作を得るために好ましい環境であることがわかった。これらの成果はシリコンをベースとした微小機構の設計に資するものであると考えられる。

シリコン表面の改質層は素地部分と格子定数が異なるため、

原理的に残留応力を発生させる場合があり、特に薄い構造等にした場合、改質層の厚さが構造の厚さに対して大きくなって構造全体のひずみを引き起こすことがあるため、注意を要する。今後、このような問題も検討する必要がある。

謝 辞

本研究の一部は科学研究費補助金（基盤研究(C)(2), 11650135）を受けて行われたことを付記するとともに、実験を担当した修士修了生の西 大輔君、および学部卒業生の小沢 知之君に謝意を表す。

参 考 文 献

- 1) N. Moronuki: Linear Motion Microsystem Fabricated on a Silicon Wafer, Int. J. Japan Soc. Prec. Eng., 33, 2, (1999) 83.
- 2) B. Bhushan: Handbook of micro/nano tribology, CRC press, (1999) 261.
- 3) B. Bhushan: Friction, wear, lubrication, and materials characterization using scanning probe microscopy, Fundamentals of tribology and bridging the gap between the macro- and micro/nanoscales, Kluwer Academic publisher, 2001, 13.
- 4) Y. Ando: The effect of relative humidity on friction and pull-off forces measured on submicron-size asperity arrays, Wear, 238, (2000) 12.
- 5) 安藤泰久, 石川雄一, 北原時雄: 微小接触面の摩擦と凝着力, トライボロジスト, 39, 9(1994) 814.
- 6) 土谷茂樹 ほか: マイクロ構造における表面間力に関する理論的検討, 計測自動制御学会論文集, 32, 5(1996), 637-643.
- 7) N. Moronuki, D. Nishi, K. Uchiyama: Textured Surface Produced by Anisotropic Etching of Silicon and Its Frictional Properties, Proc. 10th ICPE, JSPE, (2001) 132.
- 8) 安藤泰久: 微小荷重下の摩擦に及ぼす凝着力の影響に関する研究, 機械技術研究所報告第 178 号 (1998).
- 9) W. R. Ashurst, C. Yau, C. Carraro, C. Lee, G. J. Kluth, R. T. Howe, R. Maboudian: Alkene Based Monolayer Films As Anti Stiction Coatings For Polysilicon MEMS, Sensors and Actuators A91, 3, (2001) 239-248.
- 10) 井上陽一: 吸着現象に起因した静摩擦解析の現状, トライボロジスト, 39, 3(1994), 201-207.