

ファイバーウォブリング法による分子層液体潤滑膜の  
粘弾性計測に関する研究

伊藤 伸太郎

2006 年

名古屋大学図書



11564173

報告番号	甲第 7044 号
------	-----------

# 目次

図目次 .....	iii
表目次 .....	viii
第 1 章 序論 .....	1
1.1 研究の背景 .....	1
1.1.1 磁気ディスク装置 .....	1
1.1.2 ヘッド・ディスク・インタフェースにおける潤滑システム .....	5
1.2 液体潤滑膜 .....	10
1.2.1 液体潤滑膜の機能 .....	10
1.2.2 液体潤滑膜のトライボロジー・レオロジー特性の測定 .....	15
1.3 研究の目的 .....	25
1.4 本論文の構成 .....	27
第 2 章 ファイバーウォブリング法の原理 .....	28
2.1 ファイバーウォブリング法のコンセプト .....	28
2.2 超高感度せん断力測定法の原理と理論的力最小検出限界 .....	29
2.3 隙間制御の分解能 .....	40
第 3 章 せん断力測定法の最適設計 .....	42
3.1 せん断力測定のための光学系最適化の指針 .....	42
3.2 光線追跡法による理論解析 .....	44
3.3 実験による検証 .....	52
3.4 せん断力検出限界 .....	58
第 4 章 測定装置 .....	63
4.1 測定装置の構成 .....	63
4.2 光ファイバプローブの機械的特性 .....	67
4.3 キャリブレーション .....	72
4.3.1 プローブ加振用ピエゾアクチュエータのキャリブレーション .....	72
4.3.2 変位測定のカリブレーション .....	73

4.3.3	隙間制御用ピエゾアクチュエータのキャリブレーション.....	76
4.4	試料ディスクの傾き調整 .....	78
4.4.1	傾き調整の必要性 .....	78
4.4.2	光ファイバー干渉計による傾き調整法 .....	79
4.4.3	光ファイバー干渉計の構成 .....	85
4.4.4	傾き調整例.....	88
第5章	高分子液体潤滑膜のナノレオロジー特性測定.....	91
5.1	目的 .....	91
5.2	レオロジー特性の測定法 .....	91
5.3	供試試料と測定手順 .....	96
5.4	実効隙間の定義と接触開始点の同定法.....	98
5.5	レオロジー特性の測定結果 .....	102
5.6	考察 .....	111
第6章	結論 .....	122
	参考文献.....	126
	謝辞.....	140
	発表論文目録.....	141

## 図目次

Fig. 1.1	Hard disk drive.....	1
Fig. 1.2	(a) Longitudinal magnetic recording. (b) Perpendicular recording, using a probe head and a soft underlayer in the medium. (c) Perpendicular recording, using a ring head and no soft underlayer. ....	2
Fig. 1.3	Areal density progression since 1990.....	3
Fig. 1.4	Head-to-media spacing vs. the product areal density.....	4
Fig. 1.5	Head disk interface of the hard disk drive.....	6
Fig. 1.6	HDI budget.....	8
Fig. 1.7	Dimension of PFPE Zdol with a molecular weight of 2000 amu. ...	13
Fig. 1.8	Molecular conformation of Zdol2000. ....	13
Fig. 1.9	PFPE lubricant molecules on the DLC overcoat. ....	14
Fig. 1.10	Schematic of tribological condition in the near contact and the contact interface.....	16
Fig. 1.11	Schematic of surface force apparatus.....	17
Fig. 1.12	Schematic of modified SFA for the measurement of lateral force.	21
Fig. 1.13	SEM image of the AFM cantilever.....	23
Fig. 1.14	Optical lever method for the detection of deflection of the AFM cantilever.....	23
Fig. 2.1	Concept of the fiber wobbling method. ....	28
Fig. 2.2	Schematic of the deflection measurement of the optical fiber probe using the end ball as a micro lens.....	31
Fig. 2.3	Magnified image of the end ball of the optical fiber probe.....	31
Fig. 2.4	Magnified image of the laser spot on the position sensitive detector. ....	31
Fig. 2.5	Optical system of the probe deflection measurement using the end ball as a micro lens. ....	32

Fig. 2.6 Schematic of the displacement of laser spot on the position sensitive detector.....	32
Fig. 2.7 Schematic of the deflection measurement using the probe fiber as a micro cylindrical lens. ....	37
Fig. 2.8 Magnified image around the probe tip. ....	38
Fig. 2.9 Magnified image of the laser spot on the position sensitive detector focused by the probe fiber. ....	38
Fig. 2.10 Schematic of the laser spot displacement on the position sensitive detector focused by the probe fiber. ....	39
Fig. 2.11 Sphere moving parallel to the flat surface. ....	40
Fig. 3.1 Model of the optical system for the ray tracing calculation. ....	45
Fig. 3.2 Intensity distribution of the laser spot focused by the end ball.....	48
Fig. 3.3 Intensity distribution of the laser spot focused by the probe fiber. ....	48
Fig. 3.4 Distance $A$ vs. intensity at the center of laser spot focused by the end ball.....	49
Fig. 3.5 Distance $A$ vs. intensity at the center of laser spot focused by the probe fiber. ....	49
Fig. 3.6 Relation between the numerical aperture of the objective lens and the maximum intensity at the center of laser spot. ....	51
Fig. 3.7 Schematic diagram of the experimental setup for the deflection measurement.....	53
Fig. 3.8 Micrographs of (a) side view of the optical fiber probe, (b) magnified side view of the end ball, and (c) bottom view of the end ball. ....	53
Fig. 3.9 Experimental setup. ....	54
Fig. 3.10 Closeup picture around the optical fiber probe of the experimental setup.....	54
Fig. 3.11 Comparison of the displacement signal with the center intensity of laser spot focused by the end ball calculated by the ray tracing method.	

.....	56
Fig. 3.12 Comparison of the displacement signal with the center intensity of laser spot focused by the probe fiber calculated by the ray tracing method.	57
.....	57
Fig. 3.13 Signal to noise ratio with the probe amplitude ranging from 5 nm to 40 nm measured with the end ball.....	59
Fig. 3.14 Signal to noise ratio with the probe amplitude ranging from 5 nm to 40 nm measured with the fiber probe. ....	59
Fig. 3.15 Differential signal (displacement of the end ball) and applied voltage for the piezo acutuator at a probe displacement of (a) 43 nm, and (b) 0.5 nm. ....	60
Fig. 3.16 Detection limit vs. numerical aperture in the case of end ball. ...	61
Fig. 3.17 Detection limit vs. numerical aperture in the case of the probe fiber. ....	61
.....	61
Fig. 4.1 Schematic of the experimental setup of the fiber wobbling method.....	64
Fig. 4.2 Schematic of the optical fiber probe glued on to the glass epoxy plate. ....	65
.....	65
Fig. 4.3 Attachment of the optical fiber probe.....	65
Fig. 4.4 Dimensions of the position sensitive detector. ....	65
Fig. 4.5 Experimental setup. ....	66
Fig. 4.6 Magnification of the optical fiber probe. ....	66
Fig. 4.7 Schematic of the spring constant measurement.....	69
Fig. 4.8 Relationship between the load and the deflection of optical fiber probe.....	69
.....	69
Fig. 4.9 Resonance curve of the optical fiber probe. ....	70
Fig. 4.10 Topographical image of the end ball measured with AFM. ....	71
Fig. 4.11 Surface topography of the end ball of the optical fiber probe used in the experiment. ....	71

Fig. 4.12	Input voltage vs. amplitude at different oscillation frequencies..	72
Fig. 4.13	Oscillation frequency vs. conversion coefficient between the piezo displacement and the applied voltage.....	73
Fig. 4.14	Probe amplitude vs. the deflection signal. ....	75
Fig. 4.15	Schematic of the calibration of displacement measurement with LDV.....	76
Fig. 4.16	Piezo Z and the sample stage. ....	77
Fig. 4.17	Input voltage vs. the displacement of Piezo Z. ....	78
Fig. 4.18	Tilting of the optical fiber probe.....	79
Fig. 4.19	Schematic of the optical fiber interferometry.....	80
Fig. 4.20	Interference caused by the displacement $\Delta z$ .....	83
Fig. 4.21	Typical result obtained with the optical fiber interferometry. ....	84
Fig. 4.22	Experimental setup of the optical fiber interferometry.....	86
Fig. 4.23	Optical fiber interferometry.....	87
Fig. 4.24	Tilting angles of the sample stage.....	88
Fig. 4.25	Piezo Z displacement vs. light intensity change caused by interference.....	89
Fig. 4.26	Tilting angle $\theta_R$ vs. average of light intensity. ....	90
Fig. 4.27	Tilting angle $\theta_L$ vs. average of light intensity. ....	90
Fig. 5.1	Mechanical model for the fiber wobbling measurement.....	92
Fig. 5.2	Topographical image of the magnetic disk measured with AFM...	97
Fig. 5.3	Surface topography of the magnetic disk. ....	97
Fig. 5.4	Probe amplitude change and the phase shift measured with no lubrication.....	100
Fig. 5.5	Inclination of the probe amplitude change.....	101
Fig. 5.6	Probe amplitude change and the phase shift measured with Z03. ....	103
Fig. 5.7	Probe amplitude change and the phase shift measured with	



Zdol2000.....	103
Fig. 5.8 Probe amplitude change and the phase shift measured with Zdol4000.....	104
Fig. 5.9 Probe amplitude change and the phase shift measured with Z03 at $h_0 < 15$ nm.....	104
Fig. 5.10 Probe amplitude change and the phase shift measured with Zdol2000 at $h_0 < 15$ nm.....	105
Fig. 5.11 Probe amplitude change and the phase shift measured with Zdol4000 at $h_0 < 15$ nm.....	105
Fig. 5.12 Effect of the probe-to-sample sample gap $h_{ave}$ on $\eta'$ and $\eta''$ with Z03.....	108
Fig. 5.13 Effect of the probe-to-sample gap $h_{ave}$ on $\eta'$ and $\eta''$ with Zdol2000. .....	108
Fig. 5.14 Effect of the probe-to-sample gap $h_{ave}$ on $\eta'$ and $\eta''$ with Zdol4000. .....	109
Fig. 5.15 Effect of the probe-to-sample gap $h_{ave}$ on $\eta'$ and $\eta''$ with Z03 at $h_{ave} < 20$ nm.....	109
Fig. 5.16 Effect of the probe-to-sample gap $h_{ave}$ on $\eta'$ and $\eta''$ with Zdol2000 at $h_{ave} < 20$ nm.....	110
Fig. 5.17 Effect of the probe-to-sample gap $h_{ave}$ on $\eta'$ and $\eta''$ with Zdol4000 at $h_{ave} < 20$ nm.....	110
Fig. 5.18 Schematic of nonpolar molecules (Z03) confined in nano-meter-scale gaps.....	113
Fig. 5.19 Schematic of polar molecules (Zdol) confined in nano-meter-scale gaps.....	114
Fig. 5.20 End adsorbed polymer.....	115
Fig. 5.21 Pinned polymer molecule.....	115

# 表目次

Table 1.1	PFPE lubricants.....	12
Table 1.2	Properties of PFPE lubricants (Z03, Zdol2000, Zdol4000).....	12
Table 1.3	Properties of PFPE lubricants (Z Tetraol, AM2001, AM3001).....	12
Table 3.1	Parameters used for the ray tracing.....	46
Table 3.2	Optimal distance $A$ obtained by the ray tracing.....	47
Table 3.3	Experimental detection limit.....	60
Table 4.1	Mechanical properties of the optical fiber probe.....	68

# 第1章 序論

## 1.1 研究の背景

### 1.1.1 磁気ディスク装置

磁気ディスク装置は、現在の高度情報化社会において、外部記憶装置の中核を担っている。磁気ディスク装置の記憶容量の増大および信頼性の向上は、情報化社会の継続的な発展を支えるために必要不可欠である。特に最近ではビデオ信号記録装置、カーナビゲーションシステム、携帯型音楽プレーヤーなどコンピュータ以外の民生用機器への応用が目覚しく、今後も新たな需要が始まると期待されている<sup>(1)</sup>。磁気ディスク装置の概略図を図 1.1 に示す。磁気ヘッド (Magnetic head) が磁気ディスク (Magnetic disk) 上を高速に走査しデジタルデータの記録・再生を行う。磁気ヘッドはスライダ (Slider) に搭載されており、高速走査中スライダの発生する動圧によ

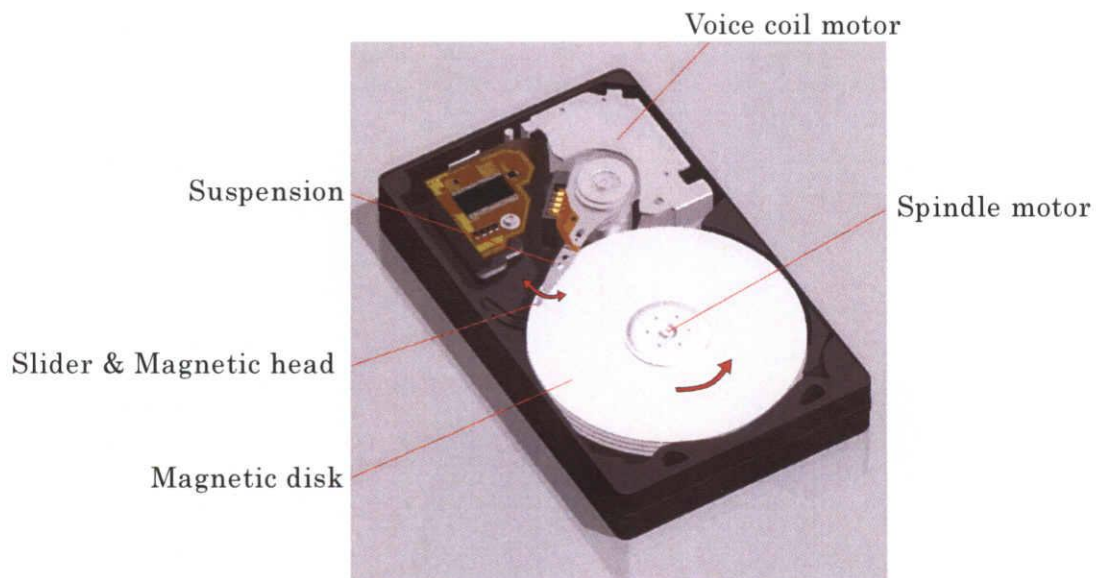


Fig. 1.1 Hard disk drive.

って磁気ディスク上を浮上している。浮上する隙間を一定に保つために、スライダはサスペンション (Suspension) によって荷重される。ボイスコイルモータはサスペンションを磁気ディスクの面内方向に駆動し、磁気ヘッドの位置決めを行う。磁気ディスクはスピンドルモータ (Spindle motor) により回転駆動される<sup>(2)</sup>。

図 1.2 に磁気ディスク装置の記録方式を模式的に示す<sup>(3)</sup>。デジタルデータは磁気ディスク上に形成された厚さ数十 nm の磁性層 (Recording medium) に記録される。磁性層は図 1.2 に示すように連続的に配列したビットセルにより構成されている。一つ一つのビットセルはそれぞれ微小な磁性体であり、それらの磁化方向によって 1 と 0 を表現する。磁化の方法によって記録方式は大きく二つに分けられる。一つは図 1.2 (a) に示すように、ビットセルの N 極と S 極をディスク面に対して水平方向に配置す

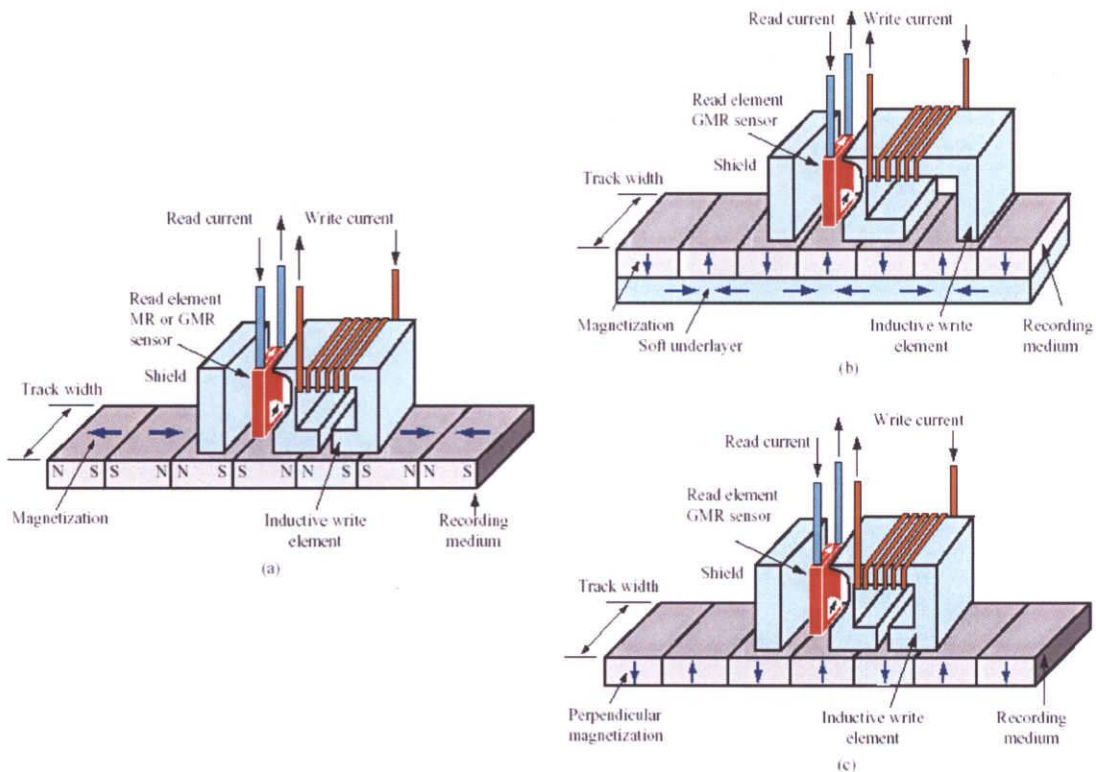


Fig. 1.2 (a) Longitudinal magnetic recording. (b) Perpendicular recording, using a probe head and a soft underlayer in the medium. (c) Perpendicular recording, using a ring head and no soft underlayer.

る長手磁気記録方式であり、もう一つは図 1.2 (b) (c) に示すように、垂直に配置する垂直磁気記録方式<sup>(4)</sup>である。実用化されているのは長手磁気記録方式であった。そして、原理的には記憶容量向上の面で有利でありながらも、実用化が困難であった垂直磁気記録方式も、2005 年に商品化され、今後更なる記憶容量の増加が期待されている。いずれの記録方式においても磁気ヘッドの主な構成は同じであり、記録ヘッド (Inductive write element) および再生ヘッド (Read element) から成る。記録ヘッドには誘導型のコイルが使用されており、ヨークに形成されたギャップから漏洩する磁束によりビットセルの磁化方向を決める。再生ヘッドには MR (Magneto Resistive) ヘッドもしくは GMR (Giant Magneto Resistive) ヘッドが用いられている。MR, GMR はともに磁気抵抗効果を利用し、ビットセルから漏れる磁化方向の変化を電気抵抗の変化として検出する<sup>(5)</sup>。

磁気ディスク装置の性能は、しばしば面記録密度により評価される。面記録密度と

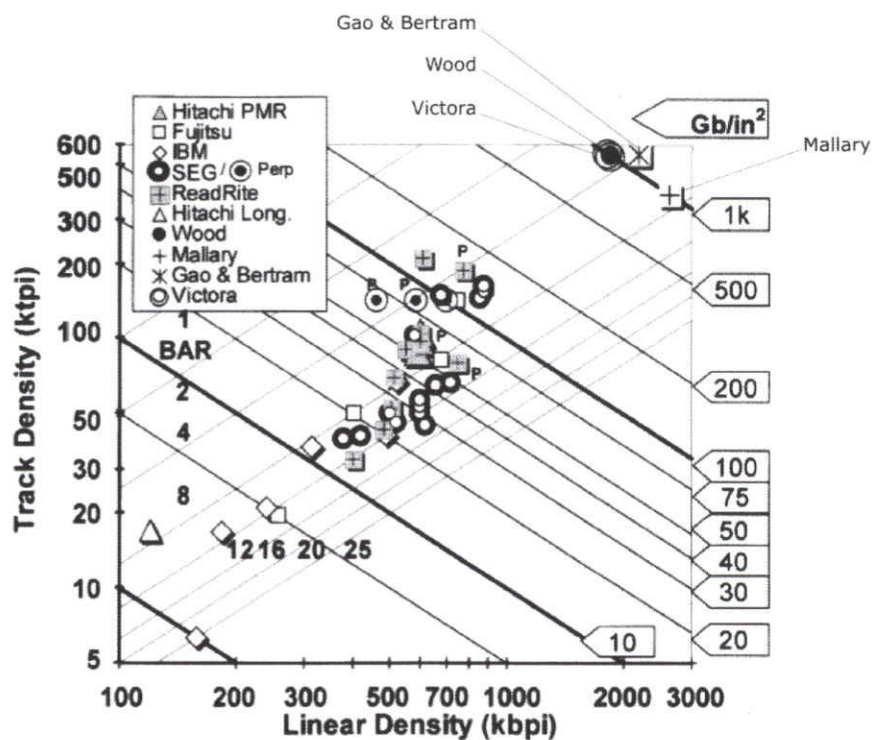


Fig. 1.3 Areal density progression since 1990.

は、ディスク半径方向のビットセルの密度であるトラック密度 (Track Density: TD) と、円周方向の密度である線記録密度 (Linear Density: LD) の積である。図 1.3 に 1990 年以降、研究段階における TD, LD と面記録密度の変遷を示す<sup>(6)</sup>。右下がりの直線は面記録密度の等高線を表し、右上がりの直線はビットアスペクト比 (Bit Aspect Ratio: BAR) を表す。BAR とはビットセルの半径方向と円周方向の寸法の比 (半径方向 : 円周方向) を意味する。垂直磁気記録方式を採用すると、技術的に克服しなければならない問題点が多数存在するものの、理論的には面記録密度 1Tb/in<sup>2</sup> が実現可能であることが示唆されている<sup>(7)-(11)</sup>。図 1.3 中に理論解析により得られた面記録密度 1Tb/in<sup>2</sup> を実現するための LD, TD の組み合わせを示した (●印: Wood, +印: Mallery, \*印 Gao & Bertram, ◎印 Victora)。面記録密度の向上には、高い LD, TD を達成する必要があり、それには円周方向および半径方向のビットセルの寸法を小さくすることが必須である。ビットセルを微小化すると、磁気ヘッドも微小化する必要があるだけでなく、記録ヘッドおよびビットセルからの漏洩磁束は広がりを持つために、一つのビットに正確な情報の記録・再生を行うためには、磁気ヘッドを可能な限り磁気

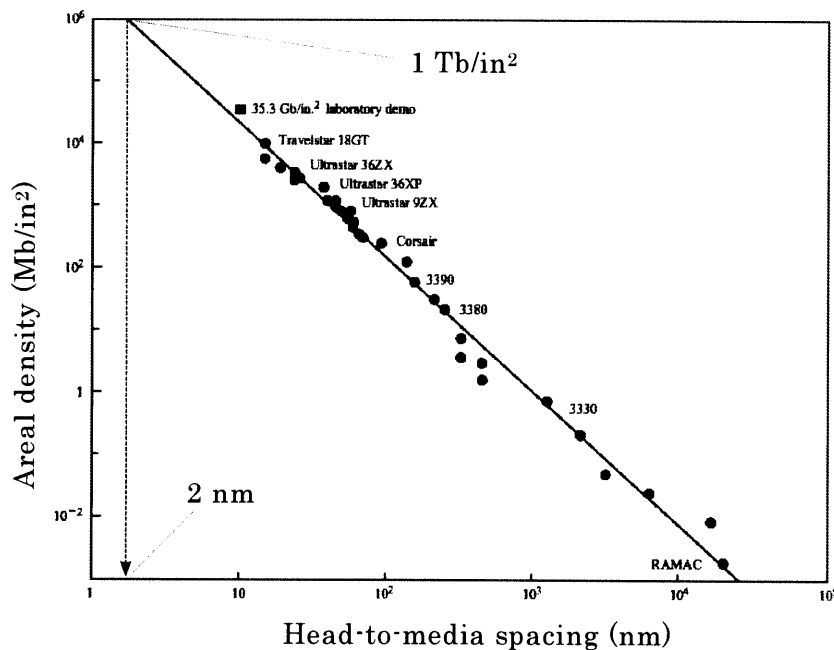


Fig. 1.4 Head-to-media spacing vs. the product areal density.

ディスクに接近させる必要がある。図 1.4 に磁気ヘッドと磁気ディスクの隙間（磁気隙間）と面記録密度の関係を示す<sup>(3)</sup>。磁気隙間が小さくなるほど高い面記録密度を達成することができる。世界初の磁気ディスク装置である RAMAC（Random Access Method of Accounting and Control）の磁気隙間は 25  $\mu\text{m}$  程度であったが<sup>(12)</sup>、現在は製品レベルにおいても 10~20 nm 程度にまで狭小化している。今後更なる記録密度の向上には 10 nm 以下の磁気隙間を達成することが求められている。図 1.3 中 Wood, Mallary, Gao & Bertram, Victra による理論解析の結果から、面記録密度 1Tb/in<sup>2</sup> を達成するためには、ビットサイズは 10 nm $\times$ 50 nm 程度を、磁気隙間は 5~6 nm を実現しなければならない。図 1.4 に示したように、これまで実現されてきた磁気隙間と面記録密度の関係を示すことによっても面記録密度 1Tb/in<sup>2</sup> に必要な磁気隙間を予測することができ、おおよそ 2 nm となる。この値は経験則から得られた値であるので、理論的に得られた 5~6 nm と単純に比較することはできない。ただし、過去のデータからの予測であることを考慮すると、長手記録方式を基準にしており、理論的に得られた値は垂直記録方式を前提としているので、2 nm と 5~6 nm の違いは記録方式の違いを反映していると推測される。

### 1.1.2 ヘッド・ディスク・インタフェースにおける潤滑システム

微小な磁気隙間を実現するために最も重要となるのが、磁気ヘッドと磁気ディスク間の潤滑技術である<sup>(13)・(15)</sup>。磁気ヘッドは 10 nm 以下の磁気隙間を維持しつつ、高速なデータ転送を可能にするためにディスク上を秒速 20~30 m の高速で走査しなければならない。このような状況においても磁気ディスク装置の信頼性を十分に確保するためには、磁気ヘッド・磁気ディスク間の摩擦は限りなく小さく、摩耗は限りなく少なくするという極限的な潤滑技術が求められている。磁気ヘッドおよび磁気ディスクの相対運動に関わる領域をヘッド・ディスク・インタフェース（Head Disk Interface: HDI）とよぶ。HDI の構成を図 1.5 に示す<sup>(2)・(5)</sup>。磁気ディスクの回転によりスライダ

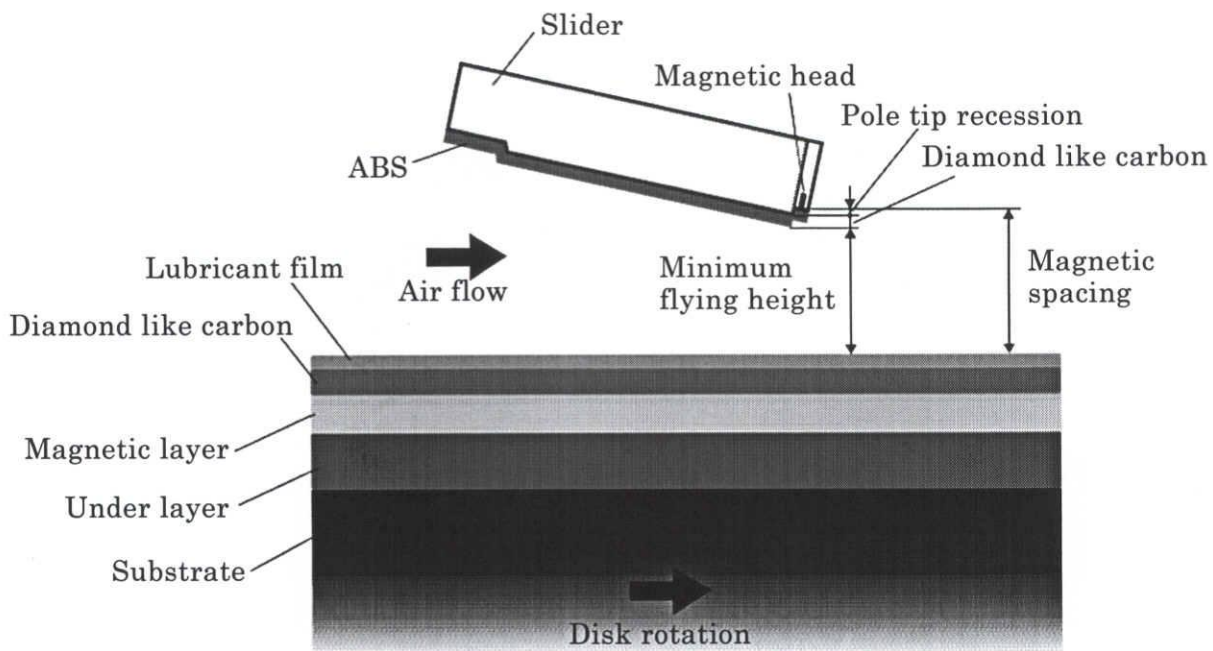


Fig. 1.5 Head disk interface of the hard disk drive.

と磁気ディスク間に引き込まれた空気の発生する動圧によって、スライダはディスク面から浮上する。スライダのディスクに接する面を ABS (Air Bearing Surface) とよぶ。磁気ヘッドは、スライダとディスク間の距離が最小となる空気の流出端に配置される。空気の流出端における隙間が最小となる部分の隙間を最小浮上隙間 (Minimum flying height) とよぶ。スライダの浮上面には腐食防止や耐摩耗性の向上を目的として、ダイヤモンド・ライク・カーボン (Diamond Like Carbon: DLC) 保護膜が形成されている。磁気ディスクはアルミニウムやガラスなどを基板として、その上に下地膜、磁性膜、DLC 保護膜が順に形成され、最表面には液体潤滑膜が塗布されている。磁気ヘッドと磁気ディスクは、本項冒頭に述べたように、わずか 10 nm 程度の磁気隙間を維持しながら、秒速数十 m/sec の高速で相対運動している。安定した相対運動を確保するためには、ヘッドとディスク間の低摩擦化および表面保護という潤滑技術が重要となる。HDI の潤滑における困難性は、これら低摩擦化および表面保護の機能を、1 nm オーダの隙間において実現しなければならないことである。こ



の極限的な潤滑に重要な役割を果たすのが、それぞれ厚さ数ナノメートルの三種類の薄膜である。第一の薄膜が空気膜であり主にヘッドとディスク間の低摩擦化に機能する。第二の薄膜が DLC 保護膜であり、磁性層および磁気ヘッドの表面保護に機能する。第三の薄膜が液体潤滑膜であり、ヘッドとディスクの接触時に緩衝材として機能する。次にこれらの薄膜についてそれぞれ詳細に述べる。

第一の薄膜である空気膜は、ディスクの回転によってスライダとディスク間に押し込まれた空気によって形成される。磁気ディスクと磁気ヘッドは空気を介して相對運動するため、摩擦抵抗は空気の粘性で決まり極めて小さな値となる。つまり気体軸受と同様の原理によって低摩擦化を実現している。ただし HDI の場合には磁気隙間をナノメートルオーダーにまで微小化させなければならないため、空気膜は厚さ数ナノメートルでありながら、磁気ディスクと磁気ヘッドの接触を防ぐために安定的に存在しなければならない。この空気膜の厚さは、ABS (Air Bearing Surface, スライダのディスクに接する面) に発生する動圧により得られる浮上力と、サスペンションによってスライダに加えられる荷重を釣り合わせることで一定に保つ。さらに、ナノメートルオーダーの精密な空気膜厚の制御を可能とするために、ABS には数百 nm オーダーの浅い凹凸が形成されている。空気流入端付近および流出端付近の凸部ではスライダをディスクから引き離そうとする正圧がはたらき、ABS 中央部分での凹部ではスライダをディスクにひきつけようとする負圧がはたらく。これら正圧と負圧のバランスを ABS の凹凸形状により精密に制御し、厚さ数ナノメートルの空気膜を安定的に存在させることを可能としている。

第二の薄膜である DLC 保護膜は、磁性層および磁気ヘッドの表面保護膜として機能する。ここで、DLC 膜とはアモルファスな硬質の炭素系皮膜を総称していう。ダイヤモンド構造に対応する  $sp^3$  混成軌道により結合した炭素と、グラファイト構造に対応する  $sp^2$  混成軌道により結合した炭素とが不規則に混ざり合った構造をもち、化学的に不活性であり、高い機械的強度 (ビッカース硬さ  $H_v1500\sim 5000$  程度、ヤング率  $500\sim 800\text{GPa}$  程度<sup>(16)・(19)</sup>) を有する。スライダ浮上面および磁性層の上に形成された DLC 保護膜は、耐摩耗性および耐腐食性の向上を目的としており、厚さは  $3\sim 5\text{ nm}$  程度である。磁気隙間を微小化するには DLC 保護膜の厚さもさらに薄くする必要が

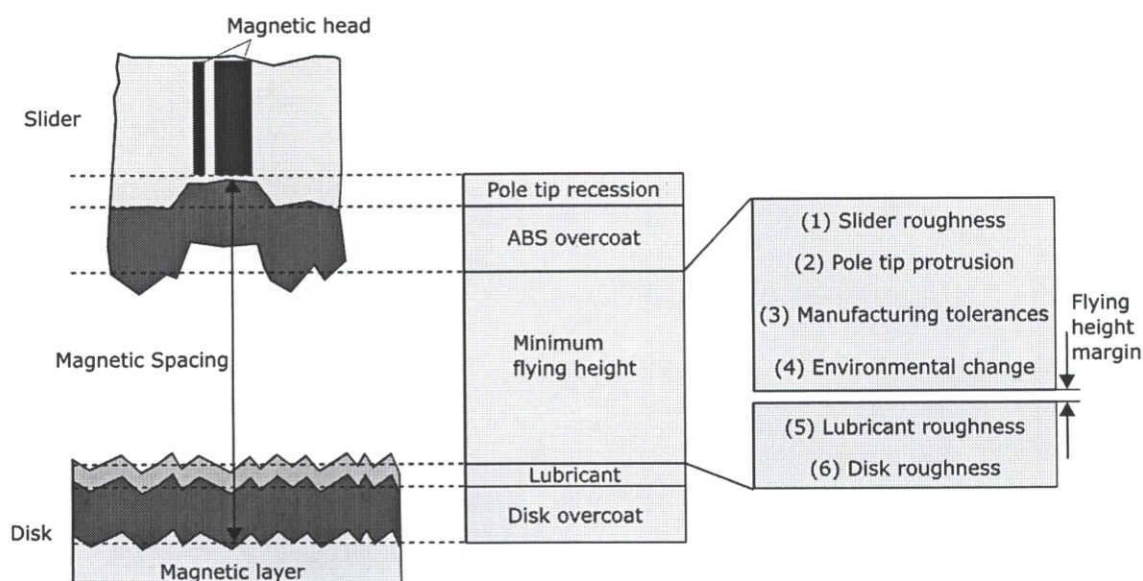


Fig. 1.6 HDI budget.

あり，現在も薄くても十分な緻密性および高い機械的強度をもつ膜の開発が進められている(20)-(22)。

第三の薄膜である液体潤滑膜は何らかの原因により空気膜が破断し，磁気ヘッドと磁気ディスクが接触した際に，それぞれの DLC 保護膜同士が直接接触するのを防止する緩衝材として機能し，摩擦力の低減および DLC 保護膜の摩耗防止を目的としている．潤滑剤の特性としては，摩擦力の低減のために空気膜と同様に低い粘性（高い流動性）が必要とされる．一方，DLC 保護膜の摩耗防止には磁気ヘッドにより接触摺動された際にも剥がれない強い固着性（低い流動性）が要求される．したがって，液体潤滑膜には相反する特性が求められている．さらに，その膜厚は 1–2 nm となっており，これは単分子膜厚に相当する．液体潤滑膜の潤滑メカニズムは次の第 1.2.1 項において詳しく述べる．

これまでの説明からわかるように，HDI の潤滑システムにおいては，ナノメートルスケールの気体・液体・固体薄膜が多層構造を形成し，それぞれが物性を活かした機能を果たすことによって，低摩擦化・表面保護をナノメートルオーダの隙間において実現している．ただし，更なる記憶容量の向上のためには，磁気隙間を約 10 nm 以下

に狭小化する必要があり，その場合これまでの潤滑システムが機能しなくなる可能性が高い．図 1.6 に磁気隙間の配分を概念的に示す<sup>(23)</sup>．加工段差（Pole tip recession: PTR）は ABS を研削加工する際に，ABS と磁気ヘッド先端部分に生じる段差のことをいう．磁気隙間は PTR，ABS 上の DLC 保護膜厚（ABS overcoat），最小浮上隙間（Minimum flying height），液体潤滑膜厚（Lubricant），ディスク上の DLC 保護膜厚（Disk overcoat）に配分される．磁気隙間を微小化するには，PTR の低減，DLC 保護膜の薄膜化，最小浮上隙間の狭小化が必須である．最小浮上隙間はさらに以下の 6 つの変動要因に配分される．

- (1) ABS の表面粗さ（Slider roughness）
- (2) 記録電流による発熱に起因した磁気ヘッドの熱変形（Pole Tip Protrusion: PTP）<sup>(24)(25)</sup>．
- (3) スライダの製造誤差（Manufacturing tolerances）
- (4) 周囲圧力の変化と装置の温度変化（Environmental change）
- (5) 液体潤滑膜の厚さの不均一性（Lubricant roughness）
- (6) ディスク表面の表面粗さ（Disk roughness）

最小浮上隙間から上記の 6 つの変動要因を差し引いた値が浮上マージン（Flying height margin）であり，接触に対する安全性を評価する値となる．浮上マージンがプラスの値をとるように設計された場合，定常動作時において磁気ヘッドと磁気ディスクの接触はないことが保証される．最小浮上隙間は磁気隙間の中で最も大きな割合を占めており，記憶容量の増大のためには現状の 10 nm 程度から更なる微小化が要求されている．10 nm 以下に狭小化された浮上隙間は，上記（1）～（6）の要因による隙間変動量と同程度となり，変動要因の確率的な重畳によって浮上マージンがマイナスとなり，定常動作時においても磁気ヘッドと磁気ディスクの間欠的な接触が起こる．このような HDI は，ニアコンタクト・インタフェースとよばれる．さらに第 1.1.1 項において述べた 1Tb/in<sup>2</sup> を実現するには，磁気隙間 5–6 nm を達成する必要がある，その場合磁気ヘッドと磁気ディスクは常に接触した状態となる．このような HDI は，コンタクト・インタフェース<sup>(26)(27)</sup>とよばれる．ニアコンタクト・インタフェースおよびコンタクト・インタフェースでは，磁気ヘッド付近において空気膜が破断し，ヘッ

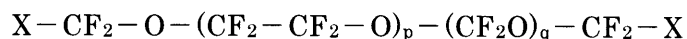
ドが間欠的にもしくは連続的に液体潤滑膜に接触する状態となるため、本項の冒頭に説明した従来の潤滑システムが機能しない。磁気ヘッドと液体潤滑膜との接触面積はABS全体に比べると微小であるが、潤滑剤の粘性は空気の粘性に比べ一万倍以上大きいため<sup>(28)</sup>、潤滑剤による粘性抵抗がスライダのうける摩擦力において支配的となる。したがって、ニアコンタクト、コンタクト・インタフェースにおける液体潤滑膜には緩衝材としての機能だけでなく、これまで空気膜が担っていた低摩擦化の機能も要請される。しかも従来のHDIの潤滑システムにおいては、空気膜と液体潤滑膜の全く物性の異なる膜を隙間方向に層状に構成することにより二つの機能を達成してきたのに対して、ニアコンタクト、コンタクト・インタフェースにおいては液体分子のみを用い、単分子膜厚において二つの機能を両立させなければならない。低摩擦化のためにはより粘性の低い（流動性の高い）潤滑剤が望まれるが、磁気ヘッドにより常に接触摺動をうけることを考慮すると、表面保護のための緩衝材としてはより固着性の高い（流動性の低い）潤滑剤が求められる。従来の潤滑システムにおいても、液体潤滑膜は低摩擦化と表面保護という矛盾する特性を両立させてきたが、ニアコンタクト、コンタクト・インタフェースにおいてはこれらの特性に対する要求がより厳しいものになり、より精密な潤滑膜の設計およびその評価が必須となる。低摩擦化と表面保護の効果を併せ持つ液体潤滑膜の評価には、粘性を定量的に測定すると同時に、接触時の衝撃を吸収する粘弾性特性を測定しなければならない。したがって、分子層厚さの液体潤滑膜のレオロジー特性（粘弾性特性）の定量化は磁気ディスク装置の記録密度の向上、および信頼性の確保には必須の課題となっている。

## 1.2 液体潤滑膜

### 1.2.1 液体潤滑膜の機能

ヘッド・ディスク・インタフェースの液体潤滑には現在 Perfluoropolyether (PFPE) 系潤滑剤が主に用いられている。PFPE 系潤滑剤の主鎖の化学構造は、次のように表

される。



Xは末端基を表しており、HDIに用いられる代表例を表 1.1 に、それぞれの潤滑剤の詳細な性質を表 1.2, 1.3 に示す。これら PFPE 系潤滑剤の主な特徴は以下のようにまとめられる<sup>(29)</sup>。

- 熱的・化学的に安定しているため分解しにくい。
- 表面エネルギーが低いため固体表面を被覆しやすい。
- 蒸気圧が低いため気化による損失が少ない。
- 温度による粘性係数の変化が小さい。
- 末端基の効果により基板への親和性を変化させることができる。

表 1.1～1.3 に挙げたような HDI に用いられる PFPE 系潤滑剤は、すべて図 1.7 に示すように直鎖状の分子構造をもつ。直鎖の断面積は 0.7–0.8 nm 程度であり、長さは分子量に比例して増加し、分子量 2000 の Zdol2000 の場合約 7 nm である<sup>(30)</sup>。通常基板上に塗布された潤滑剤分子は、直鎖部分の柔軟性が高いために図 1.8 に示すようにランダムコイル形状をとる。潤滑剤分子は熱揺らぎによって常に揺動しているため、ランダムコイル状の分子の半径は一意に決まらず統計的な値をとる。回転半径  $R_g$  は高分子の大きさを決める一つの指標であり、分子の重心から高分子を構成する各セグメントまでの距離の二乗平均の平方根として定義される<sup>(31)</sup>。表 1.2, 1.3 に示した回転半径  $R_g$  の値は文献データおよび  $R_g$  と分子量  $M_n$  の関係式  $R_g \propto M_n^{1/2}$  を用いて概算したものである<sup>(32)</sup>。

表 1.1 に示した PFPE 系潤滑剤のうち、現在実際の磁気ディスク装置に多く用いられているのは、Z03 以外の末端に極性基をもつ潤滑剤である。極性基の効果により、潤滑剤分子は基板上に化学的に強く吸着した単分子層を形成する。この層のことを固定層 (Bonded layer) とよぶ。固定層の厚さは分子の回転半径に依存し、 $2R_g$  程度になることが知られている。図 1.9 に示すように、基板上的潤滑剤分子がすべて固定層を形成するわけではなく、基板上に吸着できない分子は固定層の隙間や、固定層の上に流動性の高い状態で存在する。この状態にある分子集団を流動層 (Mobile layer)

**Table 1.1 PFPE lubricants.**

Lubricant	X group
Z03	– CF <sub>3</sub>
Zdol2000, Zdol4000	– CH <sub>2</sub> OH
Z Tetraol	– CH <sub>2</sub> OCH <sub>2</sub> CH(OH)CH <sub>2</sub> OH
AM2001, AM3001	– CH <sub>2</sub> OCH <sub>2</sub> – piperonyl

**Table 1.2 Properties of PFPE lubricants (Z03, Zdol2000, Zdol4000).**

Properties	Units	Z03	Zdol2000	Zdol4000
Molecular weight, $M_n$	amu	4000	2000	4000
Vapor pressure at 20 °C	Torr	–	$2 \times 10^{-5}$	$1 \times 10^{-8}$
Vapor pressure at 100 °C	Torr	–	$2 \times 10^{-5}$	$1 \times 10^{-4}$
Surface tension at 20 °C	dyne/cm	23	24	22
Radius of gyration $R_g$	nm	1.4	1.1	1.5
C2/C1 ratio	–	0.5-2	1	1
Viscosity at 20 °C	Pas	0.05	0.15	0.18
Polydispersity	Mw/Mn	–	1.5	1.15

**Table 1.3 Properties of PFPE lubricants (Z Tetraol, AM2001, AM3001).**

Properties	Units	Z Tetraol	AM2001	AM3001
Molecular weight, $M_n$	amu	500	2400	3200
Vapor pressure at 20 °C	Torr	$5 \times 10^{-7}$	$1 \times 10^{-7}$	$1 \times 10^{-8}$
Vapor pressure at 100 °C	Torr	$2 \times 10^{-4}$	$2 \times 10^{-5}$	$1 \times 10^{-4}$
Surface tension at 20 °C	dyne/cm	–	25	25
Radius of gyration $R_g$	nm	–	1.3	1.5
C2/C1 ratio	–	–	1	1
Viscosity at 20 °C	Pas	3.5	0.13	0.16
Polydispersity	Mw/Mn	–	–	–

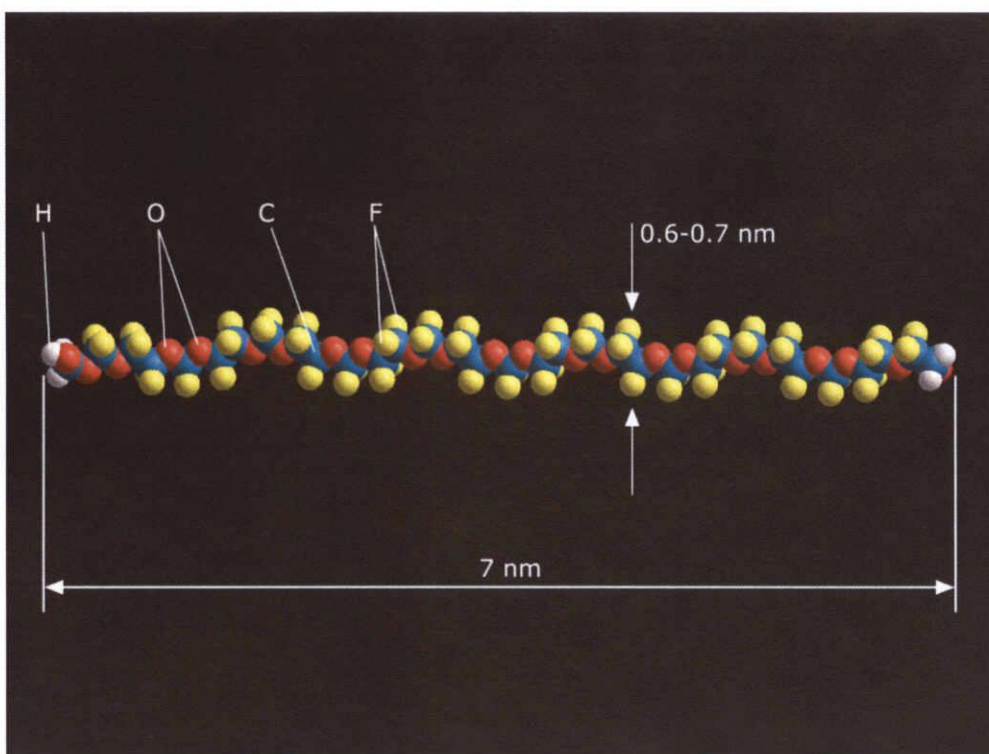


Fig. 1.7 Dimension of PFPE Zdol with a molecular weight of 2000 amu.

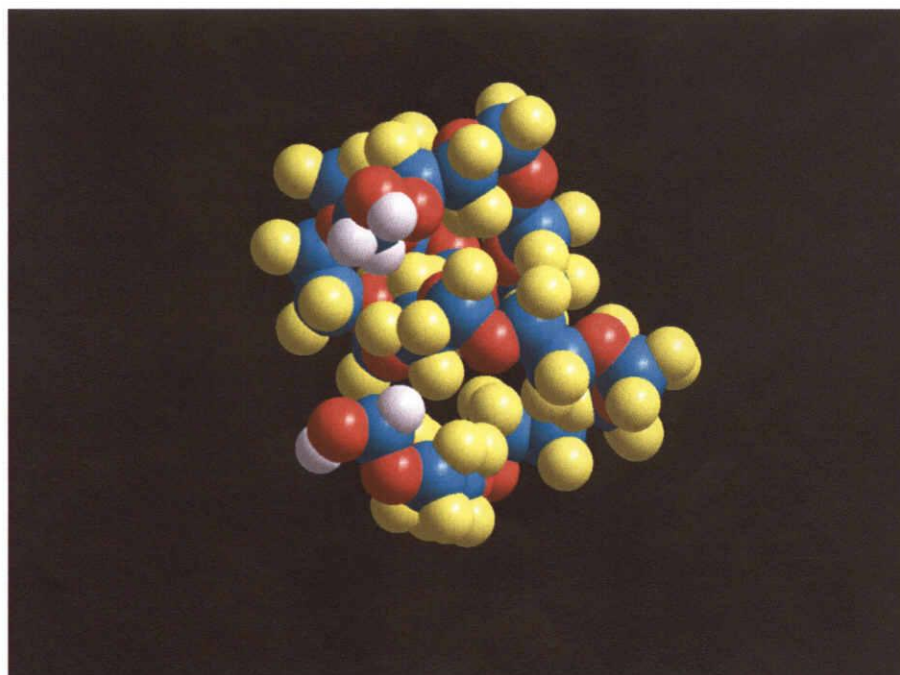


Fig. 1.8 Molecular conformation of Zdol2000.

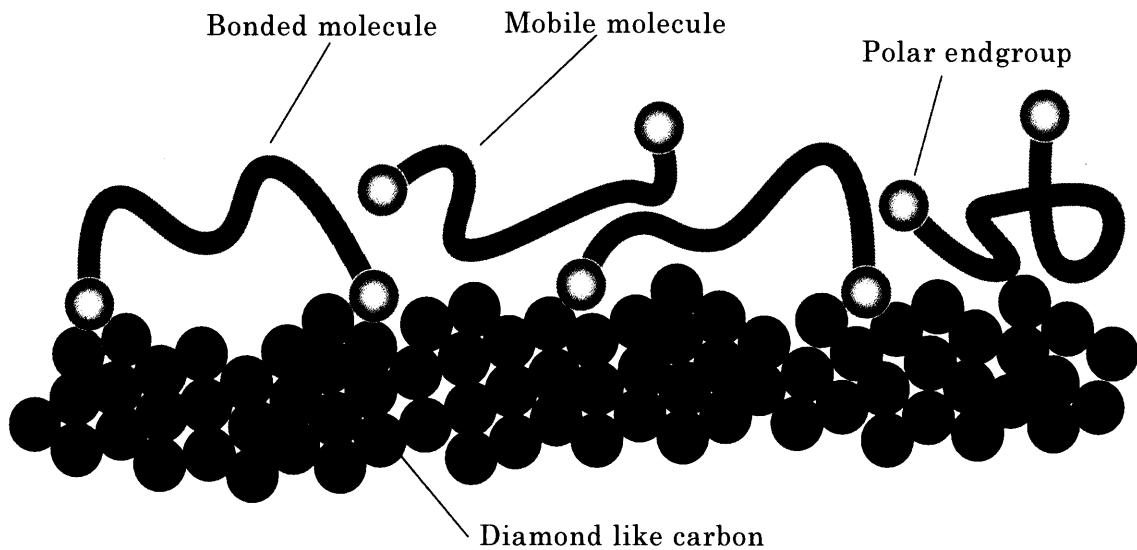


Fig. 1.9 PFPE lubricant molecules on the DLC overcoat.

とよぶ。Z03 は末端に極性基をもたないために固定層を形成せず，流動層のみを形成する。固定層は磁気ヘッドと磁気ディスクの直接接触を防止する緩衝材として機能し，DLC 保護膜の耐摩耗性を向上させる。流動層は磁気ヘッドの接触摺動時に摩擦力を低減させるようにはたらく。また摺動によって潤滑膜が部分的に剥離した場合，流動層の分子が剥離部分に流れ込み潤滑膜を修復する。このように同一の分子の中で，基板に吸着する分子と吸着しない分子を共存させることにより，低摩擦化と緩衝材としての表面保護の機能を両立させている<sup>(33)・(36)</sup>。しかし，これはあくまで一時的なヘッドとディスクの接触において機能するものであり，従来の液体潤滑膜が定常動作時も常に接触摺動されるような状況におかれた場合，十分な低摩擦化や表面保護を達成することは困難である。したがってニアコンタクト，コンタクト・インタフェースにおける液体潤滑膜の設計には，低摩擦化と表面保護の二つの機能をより高機能化させるために，固定分子，流動分子の存在割合，配列，存在形態を制御し，そのトライボロジー・レオロジー特性を精密に評価することが必須となる。



## 1.2.2 液体潤滑膜のトライボロジー・レオロジー特性の測定

第 1.2.1 項に前述したように、ニアコンタクト、コンタクト・インタフェースによる磁気記録を実現する液体潤滑膜の設計には、固定分子、流動分子の存在割合、配列、存在形態を制御し、そのレオロジー特性を精密に評価することが必要となる。固定分子と流動分子の存在割合は、潤滑膜を塗布した基板に対する加熱処理<sup>(37)</sup>や紫外線照射<sup>(38)</sup>により制御することができる。配列制御に関しては、三矢らが基板上に二次元的に形成した化学的テクスチャや物理的テクスチャによって、固定分子、流動分子の二次元的な配列を制御する手法を提案し、実験的に制御可能であることを示した<sup>(39)(40)</sup>。潤滑剤の存在形態は、固定層の形成法、基板の化学的特性、潤滑剤の分子構造など様々な要因に依存し、その制御は現状では非常に困難であるが、枝分かれ構造を持つ潤滑剤分子に複数個の極性末端基を付加し、固体表面に吸着した際の主鎖の形態を制御しようとする研究例が報告されている<sup>(41)</sup>。ここで問題となるのはこうした様々な手法により制御・作成された液体潤滑膜を、実際の HDI に近い条件で摺動し、そのレオロジー特性を評価する手法が未だ確立されていないことである。図 1.10 に示すように、ニアコンタクト、コンタクト・インタフェースでは、液体潤滑膜はナノメートルオーダーの精度で制御された最小浮上隙間に挟まれ、磁気ヘッドにより高速に摺動される。したがって評価法としては、液体潤滑剤をナノメートルオーダーの精度で任意に設定した隙間に閉じ込め、それを高速に摺動し、そのレオロジー特性を精密に測定することが必要となる。本論文では、とくに液体潤滑剤がナノスケールの隙間に閉じ込められる状態をナノ閉じ込め状態とよぶ。

ナノ閉じ込め状態における液体潤滑剤のレオロジー特性の評価は、これまで表面力測定装置 (Surface Force Apparatus: SFA)<sup>(42)</sup>や原子間力顕微鏡 (Atomic Force Microscope: AFM)<sup>(43)</sup>を中心に研究が進められてきた。SFA は Tabor と Israelachvili らによって、二つの対向する表面間にはたらく垂直力を測定するために開発された。SFA の測定原理を図 1.11 に示す。SFA の最大の特徴の一つは、試料となる液体を閉じ込める固体表面として、雲母表面を利用する点である。雲母の薄片をへき開すると、

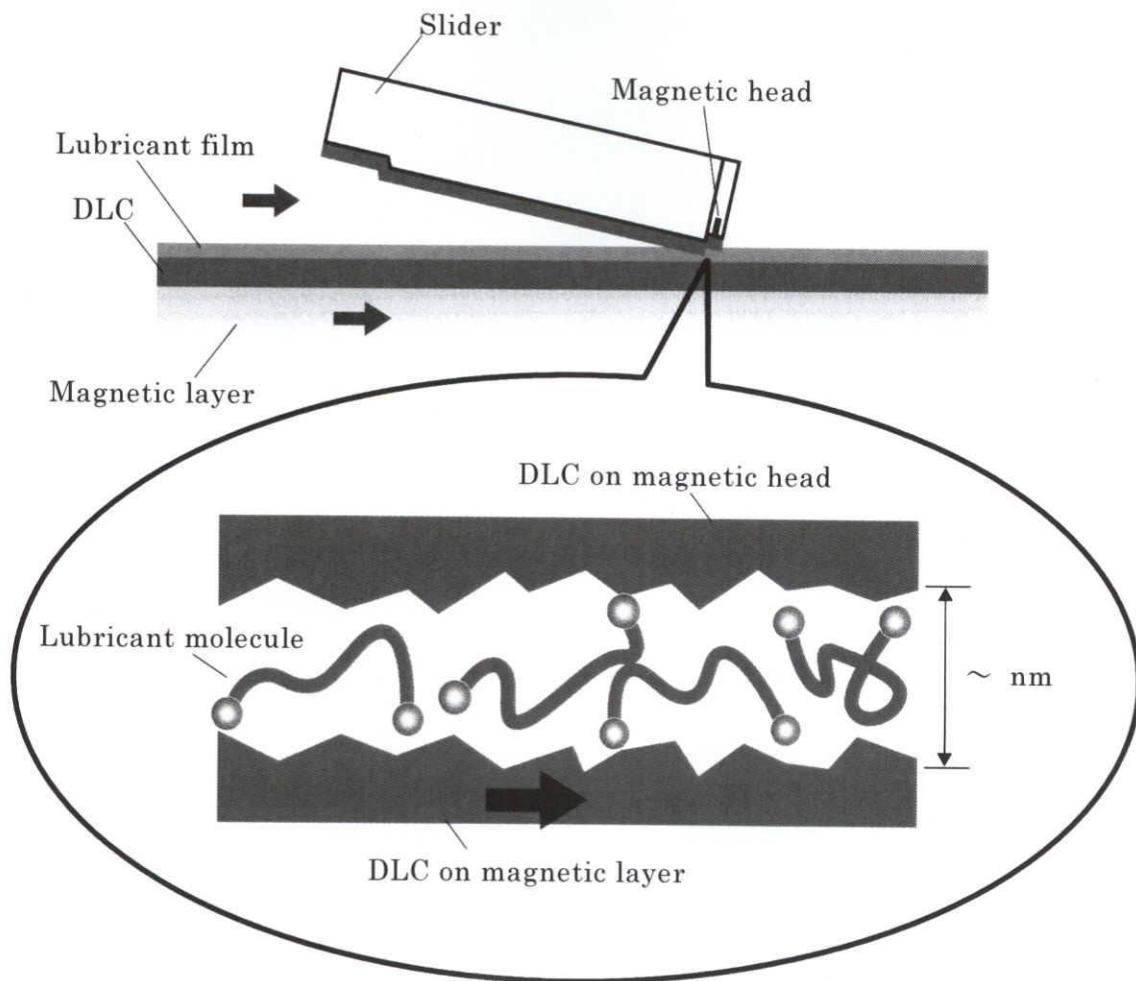


Fig. 1.10 Schematic of tribological condition in the near contact and the contact interface.

およそ 1 cm 四方，原子数でいえば 1000 万個以上を並べた長さにわたって，原子レベルで平坦な表面を得ることができる．SFA では雲母の薄片を張り付けた二つの半円筒レンズを交差させて配置する．一方の表面は平行板ばねによって支持し，それを上下に移動することによって表面間距離を変え，二つの雲母表面を液体潤滑剤を介して接触させる．潤滑剤分子は原子レベルで平滑な二表面間に閉じ込められる．これにより表面粗さに影響されない，ナノ閉じ込め状態における液体のレオロジー評価が可能と

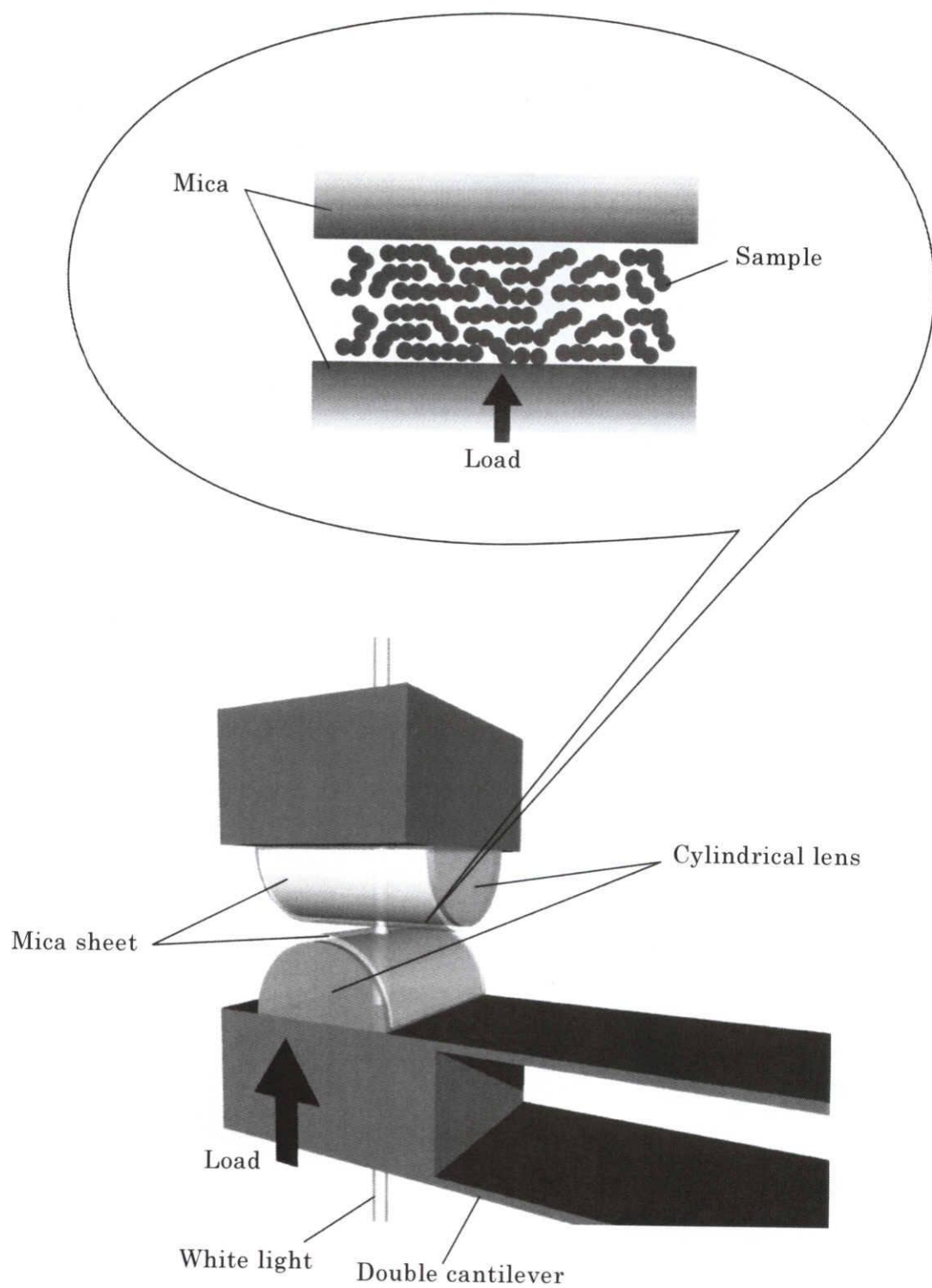


Fig. 1.11 Schematic of surface force apparatus.

なる。ただし、固体表面が雲母に限定されることは、より一般的な固体表面での液体の特性を評価することができないという欠点も有する。二表面間にはたらく垂直力は平行板ばねの変位を測定し、ばね定数との積から求めることができる。また、二表面間の隙間は等色次数干渉法 (Fringes of equal chromatic order: FECO)<sup>(44)</sup>を用いて 0.1 nm の分解能で測定できる。FECO 法では雲母板の裏側に銀薄膜を蒸着し、接触面に対して垂直方向から白色光を入射する。白色光は銀薄膜の間で多重干渉を起こし、面間の距離に応じてある特定の波長の光だけが反射面を透過する。この透過光を分光器に導入し、等色次数干渉縞のスペクトルを得る。干渉縞の解析から表面間の隙間を求めることができる。また縞の形状が表面の幾何学的形状を反映していることから、表面の曲率や接触面積も知ることができる。SFA を用い Israelachvili らは、直径 1.0 nm 程度の球形分子である octamethylcyclotetrasiloxane (OMCTS) を試料として、二表面間の隙間変化に対する垂直方向の表面力の変化を測定した<sup>(45)</sup>。垂直力は壁間の距離が離れるに従って、引力と斥力を周期的に繰り返しながら減衰する。垂直力の極大値間の隙間変化量は、一分子直径に相当し、およそ 6 から 10 分子に相当する隙間まで隙間に対して振動的な垂直力の変化が測定された。これは固体と接した液体分子が、幾何学的な制限効果により固体表面に層状に配列する効果に起因している。固体と接した第一層目の分子層は配列の効果によりバルクと比較して密度が高くなり、二層目、三層目と固体表面から離れるにしたがって、配列が徐々に乱れてくるため、密度は分子径に対応した周期で振動しながら減少しバルクの密度に近づいていく。液体分子が二つの固体表面間に挟まれた場合、それぞれの表面上に層構造が形成されており、二表面間の隙間が十分に大きいときには、膜の物性は液膜中央部の性質に支配されバルクの特性をもち、隙間が小さくなると、表面近傍のそれぞれの層構造が重なり、膜全体にわたって規則的な構造が形成されることになる。すなわち、垂直力の減衰振動的な変化は、固体壁面の影響により配列した液体分子による構造力に起因している。液体分子の固体表面における配列については、球形の分子モデルを用いたモンテカルロ法による計算によっても確認されている<sup>(46)</sup>。液体分子の配列のしやすさ (何分子層まで配列するか) は、分子の形状にも依存しており、OMCTS のような球形の分子ではなく、高分子溶融体などでは配列の効果は小さくなり、2-3 セグメント

の膜厚までしか配列がみられない<sup>(47)(48)</sup>.

このようなナノ閉じ込め状態における液体は、バルク状態とは異なる物性をもつ。ChanらはSFAを用い、ナノ閉じ込め状態における液体の粘性係数がバルクと比べて増大し、固体表面の第一層目の液体分子は流動に関与しないことを明らかにした<sup>(49)</sup>。この流動に関与しない液体分子層はとくに固定層 (hard wall, immobilized layer, immobile layer) とよばれる。SFAにおける固定層は、第1.2.1項において述べたHDIの液体潤滑膜の固定層とは定義が異なる。HDIにおける固定層は、固体基板に化学的に吸着した分子層のことをいうのに対して、SFAにおける固定層は、化学的吸着か物理的吸着かという吸着の形態に関係なく、荷重を印加して二表面間から液体潤滑剤を排出させた際、流れに関与せず固体基板上の留まり、最終的には荷重を支えることのできる液体分子層のことをいう。本研究では、HDIの固定層を固定層の定義として採用する。SFAを用いてナノ閉じ込め状態における液体の粘性係数を測定するには、片方の表面を微小な振幅で動的に垂直振動させ、他方の表面の力学的応答を観測する手法<sup>(50)(52)</sup>や、平行板ばねによって支持された表面に一定の荷重を印加し、二表面間からの液体潤滑膜の排出過程における隙間の時間変化を観測する手法が用いられる<sup>(49)(53)</sup>。Chanらは液体潤滑剤として、無極性のOMCTS, *n*-tetradecane, *n*-hexadecaneを用い、それらが隙間50 nmまではバルクと同様のニュートン流体の挙動を示し、50 nm以下では粘性係数が増大することを明らかにした<sup>(50)</sup>。さらに、隙間が数分子程度まで狭小化すると、隙間変化は固体表面上に構造化した分子層の厚さに対応した不連続な変化を示すようになり、これらの挙動はもはや流体的ではなく固体的であり、レイノルズ方程式による説明が不可能となることを見出した。隙間が二分子程度（上下表面にそれぞれ一分子層吸着）まで狭小化すると、固定層が荷重を支えるためにそれ以上隙間は減少しない。この固定層の存在は polydimethylsiloxane, polybutadiene など他の様々な分子についても確認されている<sup>(52)(54)</sup>。Georgesらは、固体表面の材質、表面粗さをある程度任意に選択することのできる独自のSFAを構成し、固定層は表面粗さの存在する固体表面にも形成され、その厚さは表面粗さと無関係であることを示した<sup>(55)</sup>。IsraelachviliらやGranickらは図1.11に示したSFAに、表面をせん断方向に駆動する要素を加え、ナノ閉じ込め状態における液体潤滑剤のトライボロジー

特性の解析を可能にした<sup>(56)-(67)</sup>。測定装置の模式図を図 1.12 に示す。雲母板間に液体試料をはさみ、荷重  $L$  を印加することによって薄膜化する。雲母板の下地は柔らかく弾性変形しやすいので、荷重によって表面は平坦化し、液体試料は平行平板間に閉じ込められた形となる。荷重と液体薄膜による斥力が準平衡状態で釣り合うまで待ち、その後下側の表面を水平方向に駆動して、上側の表面にかかるせん断力を平行板ばねの変位を測定することにより求める。下側表面を一定速度で駆動した場合のせん断力  $F$  を測定すると、アモントンの法則  $F = \mu L$  から摩擦係数  $\mu$  を求めることができる。また、下側表面を正弦的に駆動したときの上側表面の応答を測定することにより、レオロジー特性の測定が可能となり、ナノ閉じ込め状態における液体試料の粘性および弾性を評価することができる。ただし、SFA で用いられる摺動子は半径 1cm 程度の半円筒レンズと平行板ばねにより構成されており比較的サイズが大きい。したがって高速摺動が困難であり、レオロジー測定において最大の加振周波数は 100 Hz 程度である<sup>(60)</sup>。摺動子のサイズが大きいかつ弾性変形しやすいので、接触面積は大きく直径は最大数 mm にもなる。したがって膜厚方向にはナノメートルスケールであるが、面内方向にはミリメートルスケールの領域において平均化された性質を評価していることになる。Granick らはせん断による粘弾性特性の測定により、ナノ閉じ込め状態における液体薄膜の粘性係数はバルクに比べ数倍から数十倍以上に増加し、非ニュートン挙動を示すことを明らかにした<sup>(61)(65)(66)</sup>。また、粘性係数のせん断速度に対する依存性を測定し、高速せん断時には粘性係数が減少するというシアシニング (shear thinning) を観測した<sup>(61)</sup>。バルクの液体においてもシアシニング (shear thinning) は観測されるが、ナノ閉じ込め状態ではバルク液体の場合よりもかなり低いせん断速度でシアシニング (shear thinning) が現れることを見出した。本稿の冒頭に述べたように本研究の目的としているレオロジー特性の測定は、隙間をナノメートルオーダの精度で設定し、その間に閉じ込められた液体の高速摺動時におけるレオロジー特性を測定するものである。SFA では、隙間は表面に荷重を印加して狭小化させるため、FECO 法により測定可能であるものの、直接制御することができない。また、二表面間に挟まれた液体に流動性がある隙間領域では、断続的に液体が排出されるため、隙間を一定に保つことはできない。隙間が十分に小さくなり、固体表面上において極度

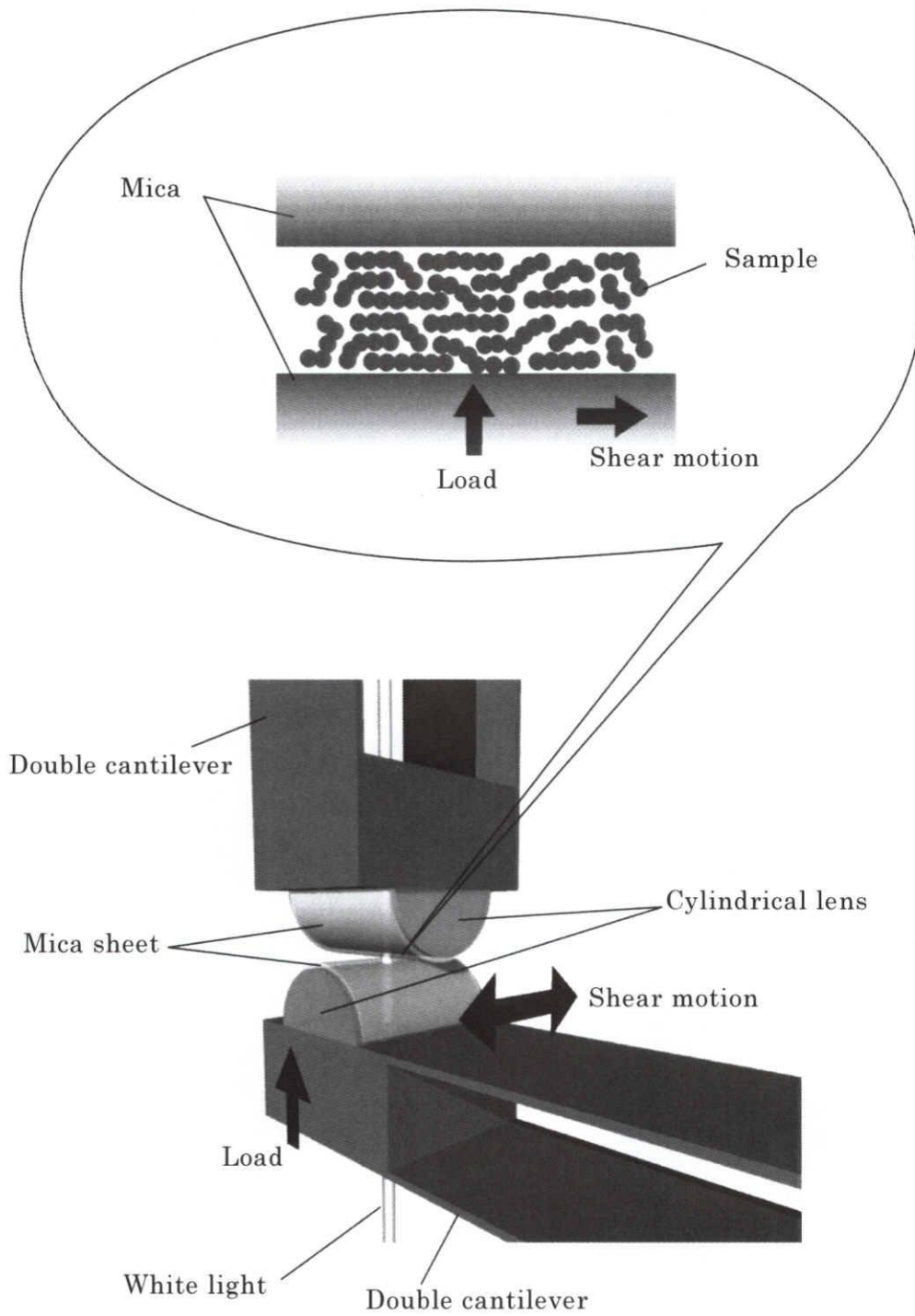


Fig. 1.12 Schematic of modified SFA for the measurement of lateral force.

に流動性の低下した液体薄膜が形成されている場合には、液体薄膜の発生する斥力が荷重を支えるため、隙間を一定に保つことができるが、その隙間は液体の物性によって決まるため、任意の隙間を設定できない。以上のように、SFA を本研究で目的としているレオロジー特性の測定に適用することは困難である。

AFM（前述）は、試料表面の表面形状像をナノメートルスケールで測定可能とし、ナノテクノロジー発展の牽引役となっている。AFM では、図 1.13 に示すような微小な片もち梁（カンチレバー）の自由端に、先端径が数ナノメートルの探針を作製したものをを用いる。試料表面に探針を接触させると、カンチレバーは試料面に対して垂直方向にたわむため、このたわみを一定に保つように試料表面を走査すれば、ナノメートルスケールの表面形状像を得ることができる<sup>(68)</sup>。高感度な力検出のために、カンチレバーを共振周波数付近で振動させ、探針にはたらく分子間力を振動周波数変化として測定する手法が開発され、より柔らかい表面や、より高い分解能での表面観察が可能となっている<sup>(68)(69)</sup>。AFM によりナノスケールの表面観察が可能となるポイントは、探針の先鋭度と高感度な力検出である。表面形状像の分解能は探針先端の直径で決まる。より鋭い先端であればより分解能の高い表面観察が可能となる。最近では探針として直径が数 nm であり、高いアスペクト比をもつカーボンナノチューブを取り付ける手法も確立されている<sup>(71)</sup>。ただし先鋭化された先端は過度の接触力により変形してしまうので、先端が変形しないような微小な力を高感度に検出し、その力を一定に保つように探針先端と試料表面との距離を制御する必要がある。高感度な力測定にはカンチレバーのたわみを高感度に測定する必要があり、AFM 開発当初は、探針と反対側のカンチレバー表面に金薄膜を蒸着し走査型トンネル顕微鏡（Scanning Tunneling Microscope: STM）によりたわみを測定していた<sup>(43)</sup>。しかし、STM による測定は STM 探針の先端とカンチレバー間の隙間を 1 nm 程度に設定しなければならないため、カンチレバーが大きく変位したときに STM 探針と金薄膜が接触してしまい、たわみの測定ができなくなる問題が発生した。そこで現在では、光てこ方式とよばれる非接触な測定方法が採用されている<sup>(72)</sup>。光てこ方式の概要を図 1.14 に示す。光てこ方式ではレーザー光をカンチレバー背面に斜めから入射し、反射光を四分割型フォトダイオードで受光する。カンチレバーがたわむと、反射角が変化するので四分割型フォトダ



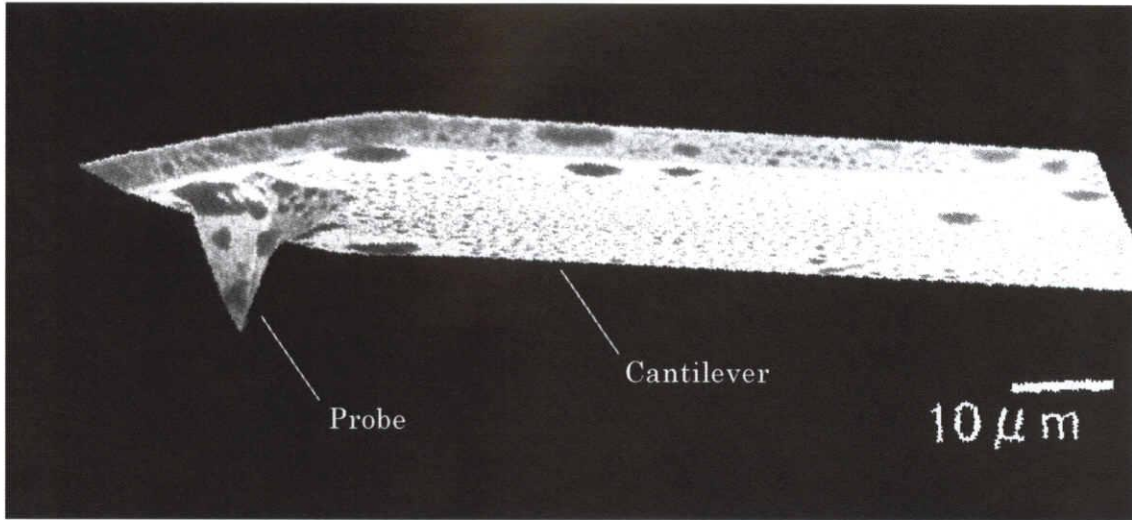


Fig. 1.13 SEM image of the AFM cantilever.

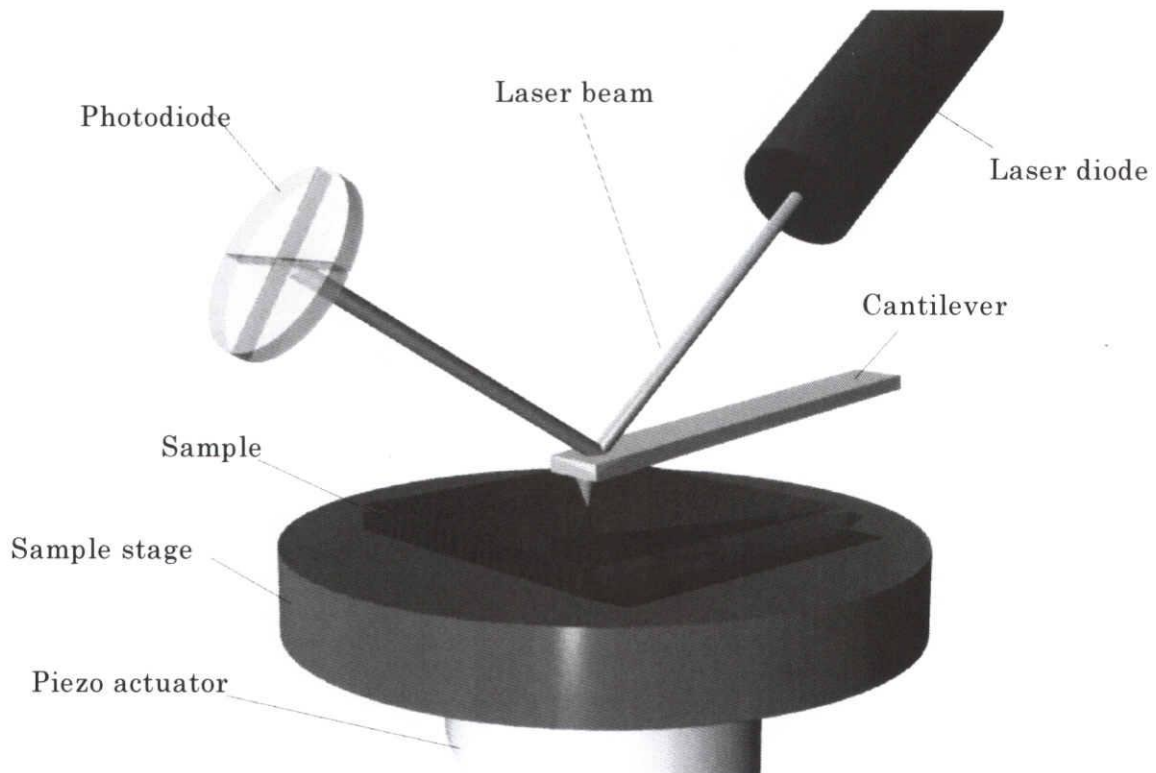


Fig. 1.14 Optical lever method for the detection of deflection of the AFM cantilever.

イオード上でのレーザースポットが移動する。この移動量を測定することによりカンチレバーのたわみを知ることができる。AFM を応用した装置として、探針にせん断方向にはたらく力をカンチレバーのねじりから測定する摩擦力顕微鏡 (Friction Force Microscope: FFM) や、磁性探針を利用して表面上の磁区を検出する磁気力顕微鏡 (Magnetic Force Microscope: MFM), 試料表面と探針にはたらく電気力を検出し、試料表面の表面電位をはじめとする表面電気物性を高分解能で測定する電気力顕微鏡 (Electric Force Microscope: EFM) などが開発されている<sup>(68)</sup>。

AFM を利用すると、表面形状像の観察だけではなく、探針と基板間に挟まれた液体薄膜の力学特性を局所領域において測定することが可能となる<sup>(70)</sup>。カンチレバーのばね定数が小さく、かつ変位の測定分解能が高いため、力感度が高くピコニュートンオーダの力を測定することができる。O'Shea らは AFM を用い SFA と同様な液体の配列による構造力を局所領域において観測している<sup>(73)</sup>。またカンチレバーを動的に加振することによって探針と基板間の液体の動的粘弾性特性も測定されており、AFM 測定 of 液体薄膜評価における有効性が示されている<sup>(74)-(76)</sup>。また、Bhushan らは FFM 測定により、基板上に塗布された PFPE 系潤滑剤の摩擦係数を測定し、探針の曲率、湿度、温度、せん断速度のトライボロジー特性に及ぼす影響について研究している<sup>(77)(78)</sup>。しかしながら、本研究で目的とする液体潤滑膜のレオロジー特性の測定には、AFM のカンチレバーは隙間方向に非常にたわみやすく、隙間の制御が困難であるという点が問題となる。また、せん断力測定においては、カンチレバーのねじれを利用するため、たわみに比べ力感度が低い。さらに、ねじれとたわみは連成するため、厳密に垂直力とせん断力を切り分けて測定することが困難であり、またせん断力の変化によって隙間が変動する可能性がある。したがって、AFM を利用し、隙間を精密に制御した液体潤滑膜のレオロジー特性の評価は難しい。

本研究において目的とする、ナノ閉じ込め状態の液体薄膜のレオロジー特性の評価を達成するために、従来用いられてきた SFA, AFM に共通する問題点をまとめる。まず、SFA, AFM とともに、直接的な隙間制御が難しい。両者はともに荷重を印加することによって表面間を接近させる。したがって隙間は液体のレオロジー特性と荷重との関係によって間接的に決まり、任意の隙間を設定した摺動実験を行うことはできな

い。また SFA によるレオロジー測定では最高周波数が 100 Hz 程度であり、高速摺動におけるレオロジー特性の評価は困難である。AFM において特に問題となるのは、せん断力測定においてねじれとたわみが連成することである。これによりせん断力を正確に測定することが困難となるだけでなく、摺動時に隙間を一定に保つことができない。先に述べたようにニアコンタクト、コンタクト・インタフェースにおける液体潤滑膜の評価には、ナノメートルオーダの厳密な隙間制御と高速摺動が必須である。以上のように、従来法である SFA や AFM の本研究への適用は困難である。

### 1.3 研究の目的

ニアコンタクト、コンタクト・インタフェースにおいて想定される液体潤滑膜の摺動条件を以下にまとめる。

- (1) 液体潤滑膜の膜厚は数 nm であるので、磁気ヘッドが接触摺動する際に、潤滑剤はナノメートルオーダの隙間に閉じ込められた状態（ナノ閉じ込め状態）になる。
- (2) 磁気ヘッドは磁気ディスク上を高速に走査するため、液体潤滑膜はナノ閉じ込め状態において磁気ヘッドによる高速摺動をうける。
- (3) スライダは最小浮上隙間付近において、液体潤滑膜と部分的に接触するが、浮上隙間をきめるのはサスペンションによる荷重と ABS において空気膜の発生する負荷容量との釣り合いである。したがって、潤滑剤分子が閉じ込められる隙間は、空気膜の発生する負荷容量により支持されており、通常の流体軸受けのように液体潤滑膜自体が荷重を支えているわけではない。

上記の摺動条件は、HDI に限らず将来実用化が期待されているマイクロマシン、ナノマシンの潤滑には共通して想定される特徴であると考えられる。重力が支配的であるマクロな世界において、物体のもつ質量は物体を動かす際に大きな制約条件となりうる。したがって、従来のマクロなトライボロジーにおいては、アモントン・クーロンの摩擦の法則にみられるように、摺動面に印加される荷重が摺動条件のうち最も重

要なものの一つである。荷重によって摺動面の隙間・接触状態が変化し、摩擦状態がきまる。ゆえにこれまでの摩擦評価装置は、荷重一定の条件下において摩擦特性を測定している。一方、HDIやマイクロマシンなど微小化する機械要素においては、摩擦力や凝着力などの表面力が支配的となり、重力は無視できるようになる。そして、ミクロな機械要素を動かす際には、機械要素間の隙間の制御は安定動作のための重要な条件となる。隙間が狭まり機械要素間において凝着や摩擦が発生すると、ミクロな物体のもつ運動エネルギーはわずかであるため動作が不安定となる。液体潤滑膜に求められる機能について考えると、マクロな機械の場合はいかに重い荷重を支えながら低摩擦化が可能であるかを求められるのに対して、ミクロな機械の場合は、HDIにおいて特徴的であるように、いかに狭い隙間において低摩擦化が可能であるかが要求される。したがって、微小機械のトライボロジーの評価には、荷重一定ではなく隙間一定の条件下において摩擦特性を評価する測定装置が必須である。また、一般にミクロな機械は高速動作が要請されるので、機械要素は高速摺動される。上記の摺動条件を想定した液体潤滑膜のナノトライボロジー・ナノレオロジー特性の計測法には、以下の三つの条件の実現が必要になると考えられる。

- (1) 液体潤滑剤をナノメートルオーダーの隙間に閉じ込め、高速に摺動する。
- (2) 液体潤滑剤を閉じ込める隙間をサブナノメートルオーダーで制御する。
- (3) 摺動に伴う摩擦力、粘性抵抗力を高感度に測定する。

これらすべてを達成する計測法は、第1.2.2項に述べたように未だ確立されていない。そこで本研究では、上記の要求条件を満たす計測法を確立し、ナノ閉じ込め状態でかつ高速摺動下における液体潤滑剤のレオロジー特性・トライボロジー特性の解明を目的とする。具体的には、

- (1) ナノメートルオーダーの精度で任意に設定した隙間に液体潤滑剤を閉じ込め、100 Hz～数 kHz の周波数で高速に摺動し、そのときにはたらくせん断力を高感度に測定可能とする新規なせん断力測定法を確立する。
- (2) 新規に開発したせん断力測定法を用い、ナノ閉じ込め状態における液体潤滑剤のレオロジー特性を測定する。特に隙間の狭小化がレオロジー特性に及ぼす影響について明らかにする。

## 1.4 本論文の構成

本論文は全 6 章から成る。以下にその構成を示す。

第 1 章では本研究の背景として、磁気ディスク装置のヘッド・ディスク・インタフェースにおける潤滑システムについて概説し、高記録密度化を実現するために必須となる液体潤滑膜のトライボロジー・レオロジー特性の解明について、その重要性和従来法を用いた解析における問題点を挙げるとともに、本研究の目的について述べた。

第 2 章では、本研究のために新規に考案したせん断力測定法の計測原理について述べ、目的とする液体潤滑膜のレオロジー特性の解析に必要な性能を明らかにし、それらが理論的に実現可能であるかを検討する。

第 3 章では、新規に考案した計測法を実験的に実現するために、せん断力検出に必要な光学系を、光線追跡法を用いて最適化する。光線追跡の結果に基づいて実験装置を構成し、必要とされる性能が実験的に実現可能であるかを検討する。

第 4 章では、第 3 章の成果を基に製作したせん断力測定装置の構成、キャリブレーション、調整法について述べる。

第 5 章では、第 4 章において述べた新規な測定装置を用い、ナノメートルスケールの隙間に挟み込まれた高分子液体潤滑剤のレオロジー特性を測定する。実験結果を基に、隙間の狭小化が潤滑剤の粘弾性挙動に及ぼす影響について考察する。

第 6 章では以上の成果を総括する。

## 第2章 ファイバーウォブリング法の原理

### 2.1 ファイバーウォブリング法のコンセプト

本研究で提案するせん断力測定法の原理を図 2.1 に示す。平面に対して相対運動する摺動プローブとして、先端を直径 200  $\mu\text{m}$  の球状に加工した光ファイバーを使用する。プローブ先端の球と基板の間に試料となる潤滑剤を挟み込み、プローブを試料面に対して面内方向に相対運動させ、その時のプローブのたわみを測定することによりせん断力を検出する。以下では、この方法をファイバーウォブリング法とよぶ。このプローブの大きさは表面力測定装置のプローブに比べると一桁小さく、共振周波数を数 kHz から数十 kHz と高くすることができるため高速摺動での測定に適している。さらにファイバーを試料面と垂直に配置することにより、垂直方向の剛性を高く面内方向の剛性を低く設定できるため、プローブ先端と基板間の隙間を精密に制御すること、またせん断力を高感度で測定することが可能となる。したがって、ファイバーウォブリング法により、第 1.3 節に述べたナノトライボロジー・ナ

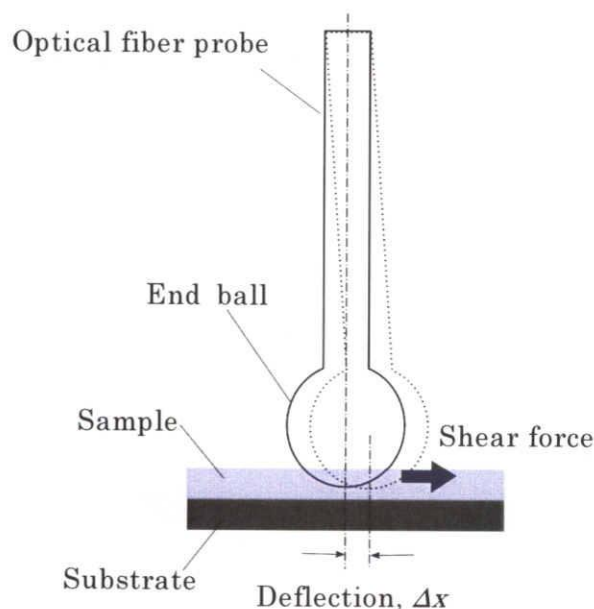


Fig. 2.1 Concept of the fiber wobbling method.

ノレオロジー特性の評価法に必要とされる三つの条件、すなわち、液体潤滑膜のナノ閉じ込め状態における高速摺動、隙間のサブナノメートルオーダーの制御、高感度な摩擦力・粘性抵抗力の測定を同時に実現できる。

## 2.2 超高感度せん断力測定法の原理と理論的力最小検出限界

ファイバーウォブリング法では高速な摺動を実現するために、サイズの小さな光ファイバースローブを摺動子として利用する。したがって、プローブ先端の摺動部分（直径 200  $\mu\text{m}$  の球）と試料との接触面積も小さいため、せん断力によるプローブのたわみも小さい。そこで、光ファイバースローブのたわみ検出について、高い力検出感度を得るための要求条件を検討する。粘性係数  $\eta$  の液体を相対速度  $U$  で摺動したときにプローブ先端にはたらくせん断力  $F$  は次式により表される<sup>(60)</sup>。

$$F = \eta\Omega U \quad (2.1)$$

ここで  $\Omega$  は摺動面の幾何形状から決まるパラメータである。ファイバーウォブリング法のように摺動面が球と平板により構成されている場合には、 $\Omega$  は解析的に求められており、次式で表される<sup>(79)</sup>。

$$\Omega = 3\pi d \left[ \frac{8}{15} \log\left(\frac{d}{h}\right) + \dots \right] \approx \frac{8}{5} \pi d \log\left(\frac{d}{h}\right) \quad (2.2)$$

ここで  $d$  は球の直径、 $h$  は球と平板表面間の隙間を表す。右辺の近似式は、 $h \ll d$  の時に成立する。典型的な値として、潤滑剤の粘性係数を 0.1 Pas、隙間を 1 nm とすると、式(2.1)および(2.2)から、直径 200  $\mu\text{m}$  の球にはたらくせん断力  $F$  は 1 nN のオーダーとなる。プローブのばね定数は 10 N/m のオーダーであるので、1 nN のせん断力を検出するためには 0.1 nm のプロ

ープの変位を測定する必要がある。従来、微小な変位測定法として一般的に用いられてきた光てこ方式（図1.14）は、光の平面における反射を利用するため、曲面で構成される光ファイバプローブの変位測定への適用は困難である。そこで、プローブ先端の球部分（先端球）をマイクロ球レンズとして利用する新規な変位測定法を考案した。この手法により非常に簡潔な光学系でありながら、超高感度な変位測定が可能となった。具体的には図2.2に示すように、プローブの振動面に対して垂直方向からレーザー光を入射し先端球によって集光させ（図2.3）、二分割型光位置センサ（Position Sensitive Detector: PSD）上にレーザースポットを形成する（図2.4）。先端球が移動すると、レーザースポットも移動するので、プローブのたわみはPSD上のレーザースポットの位置より検出することができる。

以下に新規に考案した変位測定法の理論的検出限界を算出し、1 nNのせん断力検出が実現可能であるかを検討する。図2.5にプローブの軸方向からみたときの変位測定法の光学系を示す。図中  $x$ 、 $y$  および  $z$  軸は、それぞれプローブのたわみ方向、光学系の光軸方向、プローブの軸方向を示す。 $x$  軸、 $z$  軸の原点はPSDの中心とする。対物レンズにより集光したレーザースポットと先端球中心間の距離を  $A$ 、先端球中心とPSD間の距離を  $B$  とする。先端球の集光点にPSDを配置した場合、レーザーのパワー密度が高すぎPSDからの光電流は飽和してしまう。そこで、PSDはレーザーの集光点から離し、レーザースポットをPSD全面に広がるように配置するものとする。対物レンズおよび先端球により集光されたレーザースポットの半径をそれぞれ  $r$ 、 $r'$  とし、PSD上のレーザースポットの半径を  $r''$  とする。光ファイバプローブ先端が  $\Delta x$  変位したとき、先端球により集光されたレーザースポットは  $\Delta x'$  変位し、PSD上のレーザースポットは  $\Delta x''$  変位する。図2.5に示した光学系において、光軸方向からみたPSD上でのレーザースポットの動きを模式的に図2.6に示す。図2.6 (a)はレーザースポットが変位する前の状態つまり、PSDの中心にレーザースポットが位置している状態を示し、図2.6 (b)は  $\Delta x''$  変位した後の状態を示す。図2.6 (b)に示すようにレーザースポットが変位すると、右半分の写真ダイオードにおけるレーザーの照射面積は  $\Delta S$  だけ増加し、同じ面積分だけ左半分の写真ダイオードでは減少する。したがって、それぞれの写真ダイオードからの光電流の差  $\Delta I$  はレーザースポットの変位に対応して変化する。以上のように、PSD上でのレーザースポットの変位は、PSDを構成する右半分の写真ダイオードと左半分の写真ダイオードそれぞれからの信号出力の差分として得られる。PSDの差出力電流  $\Delta I$  は次式



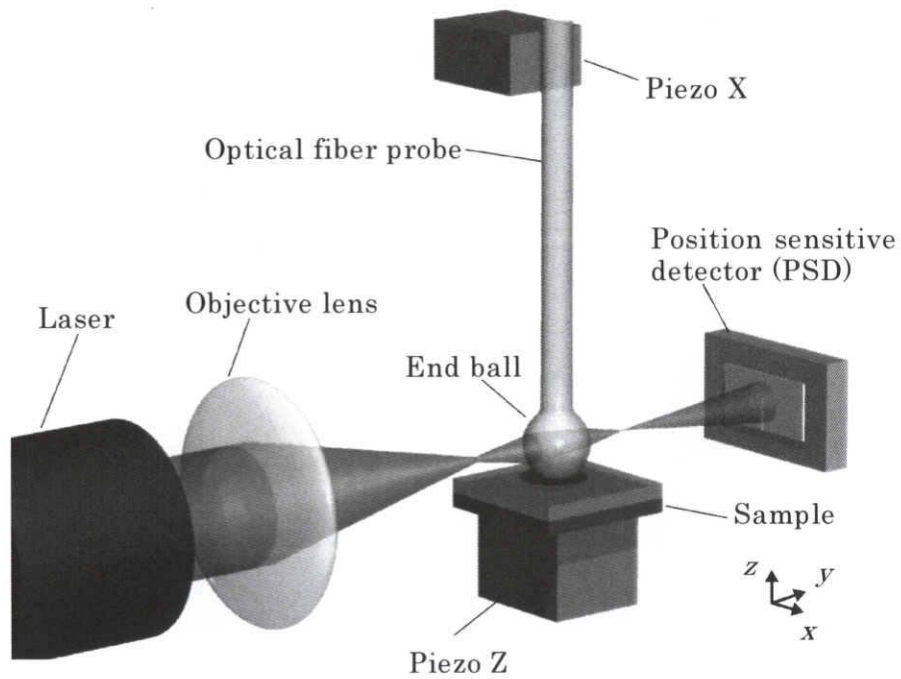


Fig. 2.2 Schematic of the deflection measurement of the optical fiber probe using the end ball as a micro lens.

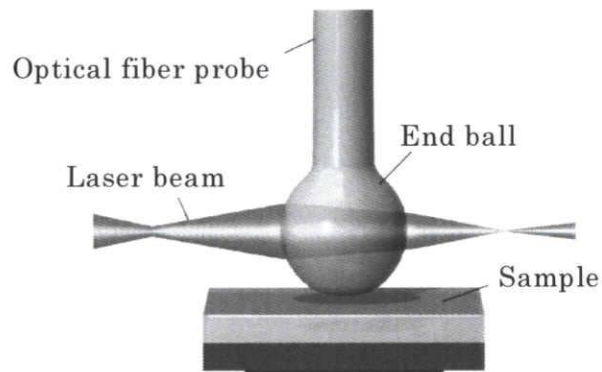


Fig. 2.3 Magnified image of the end ball of the optical fiber probe.

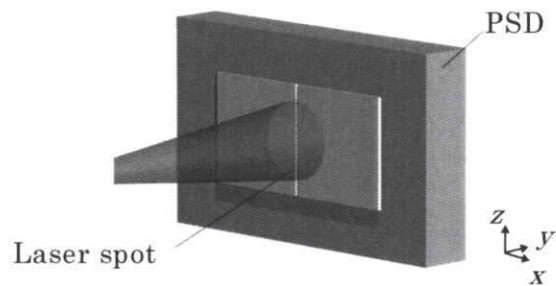


Fig. 2.4 Magnified image of the laser spot on the position sensitive detector.

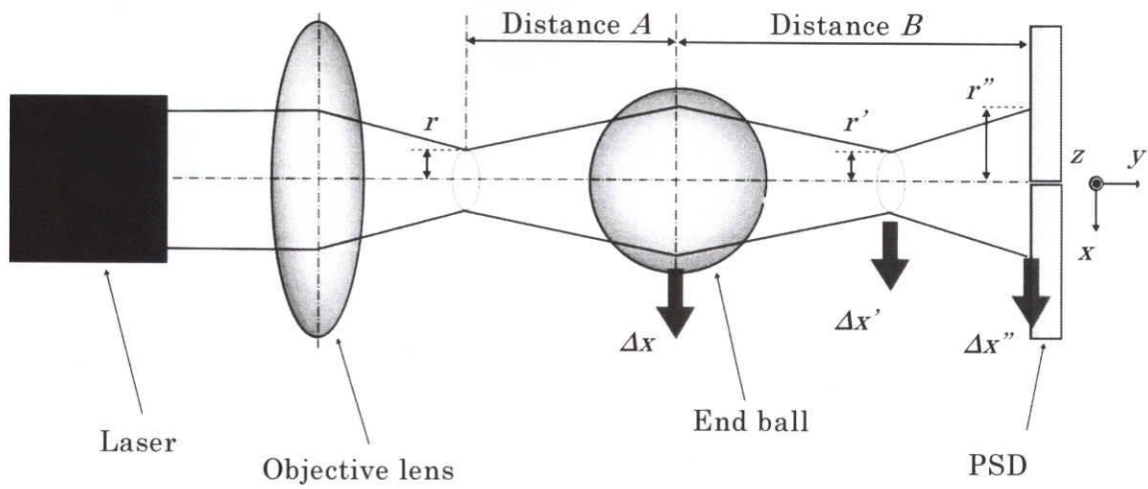


Fig. 2.5 Optical system of the probe deflection measurement using the end ball as a micro lens.

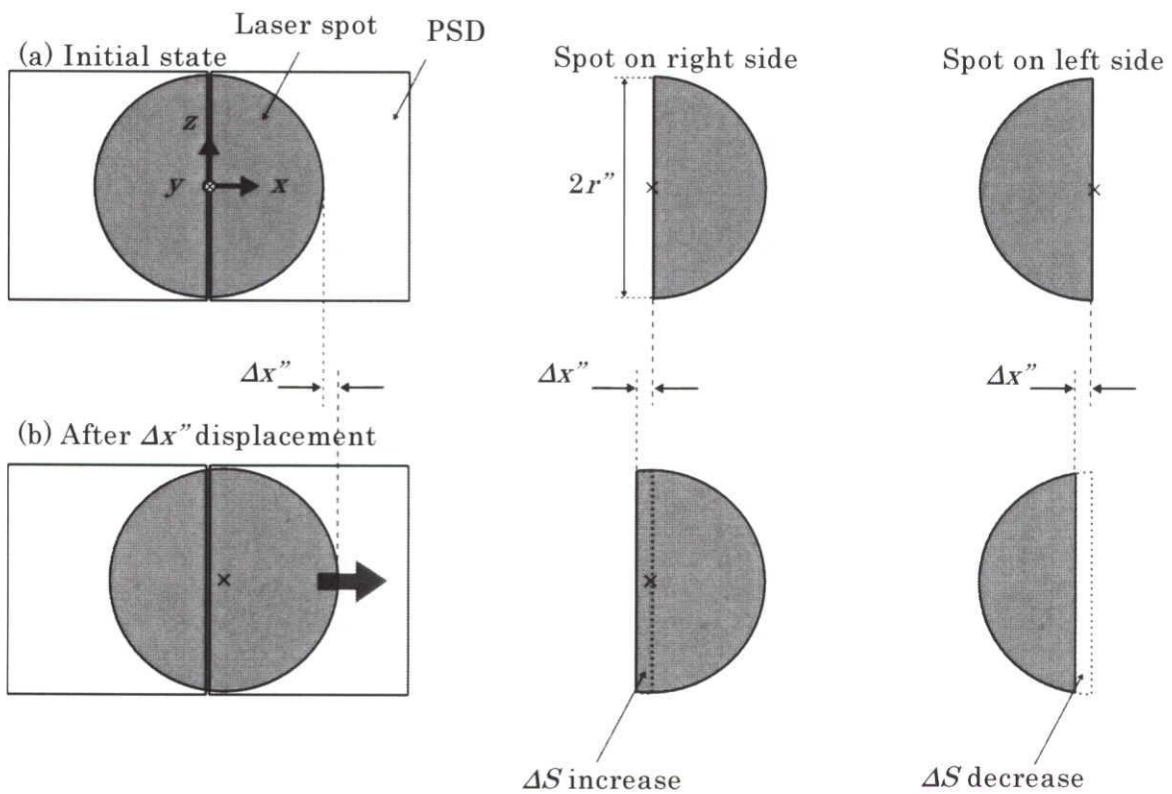


Fig. 2.6 Schematic of the displacement of laser spot on the position sensitive detector.

により表される.

$$\Delta I = 2s\Delta P \quad (2.3)$$

ここで $\Delta P$ は照射面積が $\Delta S$ だけ変化したときのレーザーパワーの変化,  $s$ は PSD の感度を示す. PSD 上のレーザー強度の分布を $D(x, z)$ とすると,  $\Delta P$ は次式で表される.

$$\Delta P = \iint_{\Delta S} D(x, z) dS = \int_0^{\Delta x'} \int_{-r''}^{r''} D(x, z) dx dz \quad (2.4)$$

本研究のレーザースポットの変位 $\Delta x''$ は数~数百 nm 程度, レーザースポットの半径 $r''$ はおおよそ 1 mm であり,  $\Delta x''$ は $r''$ に対して十分に小さいので, 図 2.6 (b)に示すようなレーザースポット中心付近の細い短冊状の領域のみが $\Delta P$ に寄与する. その領域上のレーザー強度分布は,  $\Delta x''$ が十分に小さいので $x$ 軸方向に対して均一であると考えてよい. したがって式 (2.4) は次式のように簡単化することができる.

$$\Delta P = \Delta x'' \cdot \int_{-r''}^{r''} D(0, z) dz \quad (2.5)$$

球レンズにより集光されたレーザースポットの半径 $r'$ およびその変位 $\Delta x'$ と PSD 上のレーザースポットの半径 $r''$ およびその変位 $\Delta x''$ との関係は, 幾何光学により次式で表される<sup>(80)</sup>.

$$\frac{r'}{\Delta x'} = \frac{r''}{\Delta x''} \quad (2.6)$$

レンズの厚さを無視できる理想的な光学系を仮定すると, 距離 $A$ ,  $B$ , レーザースポット半径 $r$ ,  $r'$ およびレーザースポットの変位 $\Delta x$ ,  $\Delta x'$ の関係は次式により表される.

$$\frac{A}{B} = \frac{r}{r'} = \frac{\Delta x}{\Delta x'} \quad (2.7)$$

式 (2.6) および (2.7) を用いると, 式 (2.5) は次のように表される.

$$\Delta P = \frac{\Delta x}{r} r'' \sigma_{center} \quad (2.8)$$

ここで,

$$\sigma_{center} = \int_{-r''}^{r''} D(0, z) dz \quad (2.9)$$

とした.  $\sigma_{center}$  は  $x=0$  上のレーザー強度の積分値を表す. 一般に, 半径  $r''$  のレーザースポットの強度分布は次式により表現される<sup>(81)</sup>.

$$D(x, z) = \frac{2P}{\pi r''^2} \exp\left[\frac{-2(x^2 + z^2)}{r''^2}\right] \quad (2.10)$$

ここで,  $P$  はレーザースポット全体の光強度の合計値を示す. 式 (2.10) を式 (2.9) に代入すると  $\sigma_{center}$  は次式により表される.

$$\sigma_{center} = \alpha \frac{P}{r''} \quad (2.11)$$

ここで,

$$\alpha = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \operatorname{erf}(\sqrt{2}) \quad (2.12)$$

$\operatorname{erf}$  は誤差関数を意味し、

$$\operatorname{erf}(\sqrt{2}) = 0.9545 \quad (2.13)$$

式 (2.11) を式 (2.8) に代入することにより次式を得る.

$$\Delta P = P_{center} \Delta x \quad (2.14)$$

ここで、

$$P_{center} = \frac{\alpha P}{r} \quad (2.15)$$

とした.  $P_{center}$  はレーザースポット中心部分における  $x$  軸方向の単位長さあたりの光強度を表している. 対物レンズにより, 回折限界までレーザースポットが集光できるとすると,  $r$  は以下の式で与えられる<sup>(82)</sup>.

$$r = \frac{0.61\lambda}{N} \quad (2.16)$$

となる. ここで  $\lambda$  はレーザーの波長,  $N$  は対物レンズの開口数を表す. 式 (2.3), (2.14) ~ (2.16) から次式を得る.

$$\Delta I = 2sP_{center}\Delta x = 2s \cdot \frac{\alpha NP}{0.61\lambda} \cdot \Delta x \quad (2.17)$$

式 (2.17) より,  $P_{center}$  が高い値をとると, プローブ変位による出力電流  $\Delta I$  が増大するため, 変位測定における最小検出限界は向上すると考えられる.  $P_{center}$  を向上させるには対物レンズの開口数  $N$  を大きくする, 光源の強度  $P$  を大きくする, 光源の波長  $\lambda$  を小さくすることが挙げられる. 本変位測定法においては PSD で検出するレーザー光の強度が比較的大きいので, ショットノイズが熱雑音や暗電流に比べ支配的になる. 一般に, ショットノイズは次式により表される<sup>(83)</sup>.

$$I_n = \sqrt{2Pbqs} \quad (2.18)$$

ここで,  $b, q$  はそれぞれ PSD からの出力電流を検出する電子回路の帯域, 電子電荷を表す. 式 (2.17) および (2.18) から本変位測定法における信号対雑音比 (Signal to Noise Ratio: SNR) は以下のように表される.

$$SNR = \frac{\Delta I}{I_n} = \frac{2sP_{center}\Delta x}{\sqrt{2Pbqs}} = \frac{2\alpha N}{0.61\lambda} \sqrt{\frac{Ps}{2bq}} \Delta x \quad (2.19)$$

$SNR=1$  となる  $\Delta x$  の値を  $\Delta x_{min}$  とすると,  $\Delta x_{min}$  が理論的な最小検出限界を与える. 例えば, 代表的な値として  $N=0.25$ ,  $P=3 \times 10^{-3}$  W,  $s=0.65$  A/W,  $b=10$  kHz,  $\lambda=633$  nm を式 (2.19) に代入すると,  $\Delta x_{min}=0.002$  nm となる. したがってばね定数が  $k=10$  N/m のとき, せん断力の理論的な最小検出限界は  $0.02$  nN と見積もられる. この見積もりは, ファイバーウォブリング法によって, 最小検出限界  $1$  nN 以下の高感度なせん断力測定の実現性を示している.

また, 光ファイバープローブの円筒部分を円筒レンズとして用いても PSD 上にレーザーを集光することができるため, プローブの変位測定が可能である. この場合プローブ先端の

形状は球に限定されないため、図 2.7, 2.8 に示すように、より鋭利な先端をもつプローブを用いた局所領域の測定など応用が可能となる。光ファイバーの先鋭化に関しては、先端直径 10 nm まで微小化した研究例が走査型プローブ顕微鏡の分野で報告されている<sup>(84)</sup>。円筒レンズの場合、レーザー光は  $x$  軸方向のみに集光され、 $z$  方向には集光されず、図 2.9, 2.10 に示すように、プローブは縦方向に楕円形状となる。しかし、上述したように変位測定には  $x$  軸方向のみの集光が関係するため、球レンズの場合と同じ理論式が適用可能となる。したがって、理論的な測定分解能は球レンズの場合でも円筒レンズの場合でも同じ  $\Delta x_{\min} = 0.002$  nm となる。

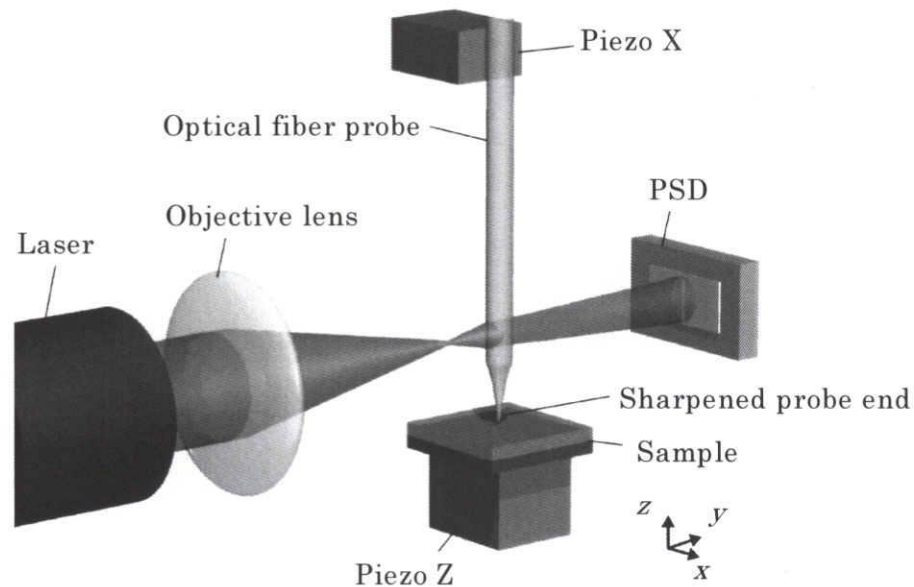


Fig. 2.7 Schematic of the deflection measurement using the probe fiber as a micro cylindrical lens.

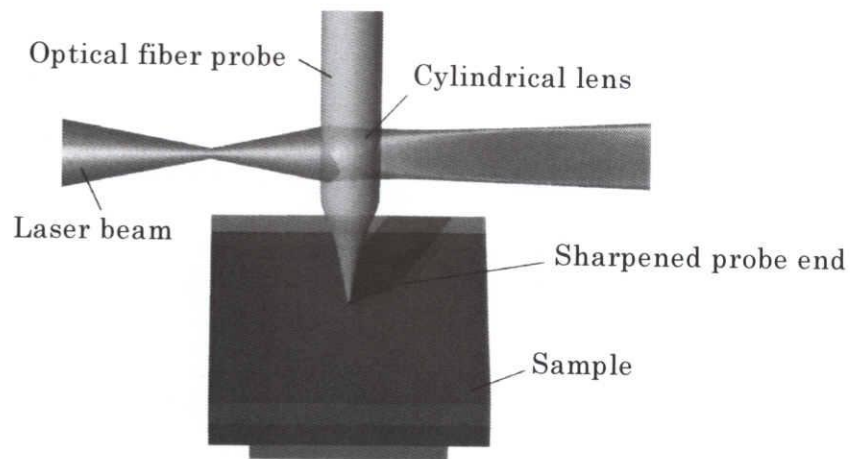


Fig. 2.8 Magnified image around the probe tip.

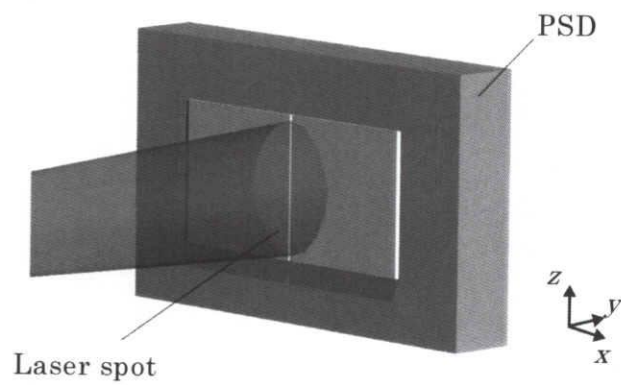


Fig. 2.9 Magnified image of the laser spot on the position sensitive detector focused by the probe fiber.



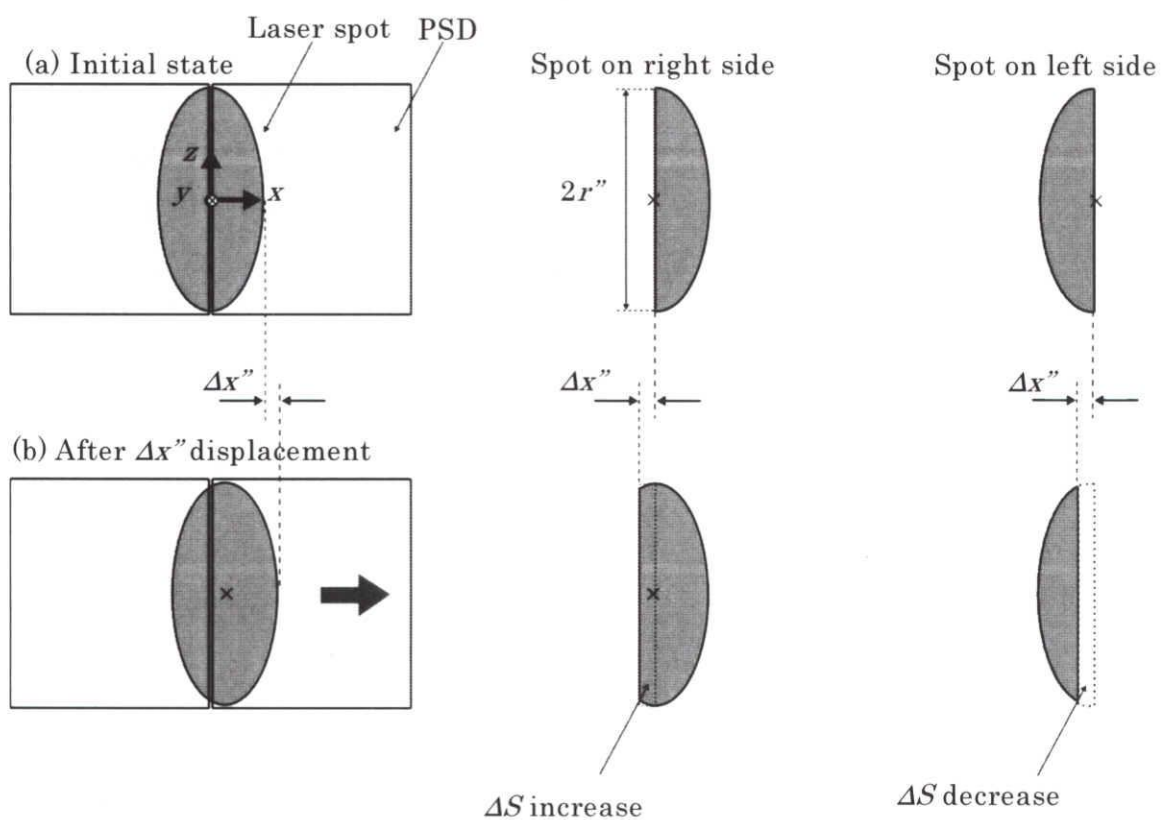


Fig. 2.10 Schematic of the laser spot displacement on the position sensitive detector focused by the probe fiber.

## 2.3 隙間制御の分解能

ファイバーウォープリング法では、光ファイバプローブを試料面に対して垂直に配置し、プローブが垂直力に対してはたわみにくく、せん断力に対してはたわみやすい状態にすることで、隙間を精密に制御した高感度なせん断力測定が可能となる。ただし本測定法では、0.1 nmオーダーの隙間制御を目的としているので、垂直力によるプローブの微小な変形の影響が無視できない可能性がある。変形量が十分に小さければ、目的とする0.1 nmの精度で隙間制御が可能となる。そこで本節では、プローブの垂直方向への変形量を見積もり、隙間制御の分解能について検討する。また、垂直力が大きいと座屈する可能性もある。そこで、光ファイバプローブの座屈荷重を見積もり、垂直力と比較して座屈が発生する可能性についても検討する。

プローブ先端の球を用いて基板上的潤滑剤を摺動した際にはたらく垂直力  $F_z$  は、図 2.11 に示すように球が平板上を平行方向に運動したときの負荷容量として、次式により計算することができる<sup>(85)</sup>。

$$F_z = \frac{3\pi U \eta}{5} \sqrt{\frac{d^3}{h}} \quad (2.20)$$

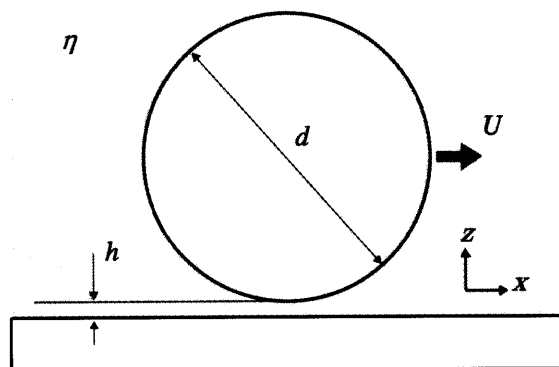


Fig. 2.11 Sphere moving parallel to the flat surface.

ここで $U$ は球の速度， $\eta$ は潤滑剤の粘性係数， $d$ は球の直径， $h$ は球と平板との隙間を表す．典型値として $U = 1 \times 10^{-3}$  m/s， $\eta = 0.1$  Pas， $d = 200 \times 10^{-6}$  m， $h = 1 \times 10^{-9}$  mとすると， $F_z = 1.7 \times 10^{-5}$  Nとなる．プローブの長さを $l$ ，垂直力によるプローブの垂直方向の変形量を $\Delta l$ ，ガラスのヤング率を $E$ ，プローブの円筒部分の直径を $d_p$ とすると，フックの法則から垂直力 $F_z$ と変形量 $\Delta l$ の関係は次式により表される<sup>(86)</sup>．

$$\Delta l = \frac{F_z l}{(\pi d_p^2 / 4) E} \quad (2.21)$$

典型値として $l = 2 \times 10^{-3}$  m， $d_p = 100 \times 10^{-6}$  m， $E = 8 \times 10^{10}$  N/m<sup>2</sup>とすると， $F_z = 1.7 \times 10^{-5}$  Nの垂直力がはたらいたときの変形量 $\Delta l$ は0.05 nmとなる．したがって，プローブの垂直方向の剛性は十分に高く，0.1 nmの隙間制御が可能であるといえる．

次に光ファイバプローブの座屈について考える．座屈荷重 $F_c$ は次式により求められる<sup>(87)</sup>．

$$F_c = C \frac{\pi^2 EI}{l^2} \quad (2.22)$$

ここで $C$ は末端条件係数， $I$ は断面二次モーメントを表す．末端条件係数 $C$ は光ファイバプローブのように上端固定端，下端自由端の場合 $C = 0.25$ となる．典型値として $l = 2 \times 10^{-3}$  m， $d_p = 100 \times 10^{-6}$  m， $E = 8 \times 10^{10}$  N/m<sup>2</sup>とすると，式(2.22)から座屈荷重は $F_c = 2.4 \times 10^{-1}$  Nとなる．負荷容量による垂直力は $F_z = 1.7 \times 10^{-5}$  N程度であり，座屈が発生する荷重に比べ四桁も小さい．したがって，負荷容量による垂直力では座屈は起こらない．

以上から光ファイバプローブの垂直力によるたわみ量は十分に小さいと考えられるので，プローブを固定し試料表面を0.1 nmオーダの精度でプローブに接近させることにより，隙間を0.1 nmオーダで制御することが可能である．

## 第3章 せん断力測定法の最適設計

### 3.1 せん断力測定のための光学系最適化の指針

ファイバーウォブリング法において中核となる高感度なせん断力測定を達成するためには、プローブの精密な変位測定が必須である。第 2.2 節における理論的な見積もりでは、本研究で目標とする最小検出限界 0.1 nm の高感度変位測定の可能性を示した。本節では、変位測定をより詳細に検討し、実験的な最適設計について述べる。

本変位測定法の光学系は図 2.5 に示したように、レーザー、対物レンズ、マイクロ球レンズまたは円筒レンズとして利用するプローブ先端球もしくはプローブファイバー部、二分割型光位置センサ (PSD) から構成される。本光学系の設計パラメータは、対物レンズの開口数、対物レンズと先端球 (ファイバー部) 間の距離、および先端球 (ファイバー部) と PSD 間の距離である。第 2.2 節と同様に対物レンズと先端球 (ファイバー部) 間の距離を表すパラメータとして、対物レンズによって集光されたレーザースポットと先端球 (ファイバー部) 中心との距離  $A$ 、先端球 (ファイバー部) 中心と PSD 間の距離を表すパラメータとして距離  $B$  を用いる。対物レンズの開口数を  $N$  とする。式 (2.19) から、理論的には本変位測定系の SNR (信号対雑音比) は対物レンズの開口数  $N$  に比例し、距離  $A$  および距離  $B$  には依存しない。しかし実験的に得られる SNR は、距離  $A$  に大きく依存した。これは、理論的な解析では理想結像を仮定しているのに対して、実際には先端球 (ファイバー部) が大きな球面収差をもつことに起因する。球面収差はレンズ面に対する光線の入射角が大きくなるほど顕著になるため、曲率半径が 100~200  $\mu\text{m}$  と小さい先端球 (ファイバー部) を使用する場合には必然的に球面収差が大きくなる。球面収差の大きいレンズを用いてレーザーを集光する際に問題となるのは、光線の進路がレンズ面への入射角度のわずかな変化により非線形に変化することである。これにより PSD 上のレーザースポットの強度分布は、対物レンズにより集光されたレーザースポットの強度分布と相似形にならず、光線ごとの入射角に依存して変化する。PSD 上のレーザースポットの強度分布は本測定

法の測定分解能を大きく左右する。式 (2.17) から変位信号  $\Delta I$  は  $P_{center}$  に比例する。式 (2.15) で述べたように、 $P_{center}$  はレーザースポット中心部分における半径方向の単位長さあたりの光強度である。したがって高い  $P_{center}$  が得られるような強度分布では、高い  $\Delta I$  を達成することができる。また本変位測定におけるノイズは、式 (2.18) に示すように、レーザースポット全体の光強度に依存し強度分布には依存しない。したがって先端球（ファイバー部）への入射角を最適化し、 $P_{center}$  が最大となるようにすれば、最高の SNR を達成でき、最小の検出限界が得られる。本変位測定法の光学系において、先端球（ファイバー部）面への入射角を決めるのは距離  $A$  および対物レンズの開口数  $N$  である。そこで、 $P_{center}$  を最大にする最適な距離  $A$  および開口数  $N$  を検討するために、光線追跡を行った。光線追跡における光学系のモデルと解析結果については第 3.2 節に述べる。光線追跡によって得られた結果に基づき実験装置を構成し、光線追跡結果の検証および実験における最小検出限界を求めた。実験による検証については第 3.3 節に、測定結果については第 3.4 節において述べる。

一方、距離  $B$  はレーザースポットの強度が高く PSD の出力が飽和してしまう場合以外は測定分解能に影響しない。第 2.2 節で述べたように、距離  $B$  を PSD が先端球（ファイバー部）により集光されたレーザースポット上に位置するように設定すると、レーザースポットのエネルギー密度が高すぎるために PSD からの光電流は飽和してしまう。レーザースポットのエネルギー密度を下げるためには、距離  $B$  を長くとり、PSD の受光面全体にレーザースポットが広がるようにする必要がある。出力の飽和が起こらない場合には、距離  $B$  の変化により SNR が変化することはない。例えば距離  $B$  を長くとり PSD 上のレーザースポットを広げた場合、レーザースポットが変位することによるレーザーの照射領域の面積変化  $\Delta S$  も拡大される。しかし、同時にレーザースポットのエネルギー密度が下がるために、 $\Delta P$  は変化しない。したがって、距離  $B$  を長くすることにより、PSD から出力電流が変化することはない。距離  $B$  を短くした場合も同様のことがいえる。以上のことから距離  $B$  は SNR に影響しないため、最適化する必要はない。

## 3.2 光線追跡法による理論解析

光線追跡のモデルについて以下に述べる。最高の SNR を達成するために、 $P_{center}$  を最大にする最適な距離  $A$ 、および開口数  $N$  を光線追跡により検討した。プローブは  $x$  軸方向のみに変位するので、PSD 上のレーザースポットの変位は  $x$  軸方向に限定される。したがって、 $z$  軸方向のレーザースポットの強度分布は変位の測定分解能に関与しない。よって光線追跡は図 2.5 に示した光学系について  $xy$  の二次元平面内で行い、 $x$  方向への光の強度分布を解析することにより  $P_{center}$  の最大値を達成する最適条件について検証した。光線追跡の手法としては収差を扱うことのできるフェーダーの手法を用いた<sup>(88)</sup>。フェーダーの手法について詳細は参考文献(88)を参照されたい。図 3.1 に光線追跡に用いた光学系のモデルを示す。プローブ先端球およびプローブファイバー部は  $xy$  平面内において円として表した。円の直径は、実際の測定に用いる先端球もしくはファイバー部の直径と同じとした(図 3.8)。光ファイバープローブの材質は石英ガラスであり屈折率は 1.53 である。光線追跡を開始する光源は、対物レンズによって集光されたレーザースポット(図 2.5)とした。光源の強度分布  $U(x)$  は、円形開口によるフラウンホーファー回折に従うとし、次式のように表した<sup>(81)</sup>。

$$U(x) = \frac{\sin^2(\pi x/r)}{(\pi x/r)^2} \quad (3.1)$$

各光線のレンズ面での屈折においては、フレネル係数を考慮に入れ光強度を計算した。式(2.16)と同様に、対物レンズで回折限界まで集光できたとすると、光源となるレーザースポットの半径  $r$  は次式で与えられるものとした。

$$r = \frac{0.61\lambda}{N} \quad (3.2)$$

ここで  $\lambda$  は光の波長を表す。光源から出射する光線の光軸に対する広がり角度  $\theta$  は対

物レンズの開口数  $N$  で決まり, 空気の屈折率を 1 とすると次式により表されるものとした<sup>(82)</sup>.

$$\theta = \sin^{-1} N \quad (3.3)$$

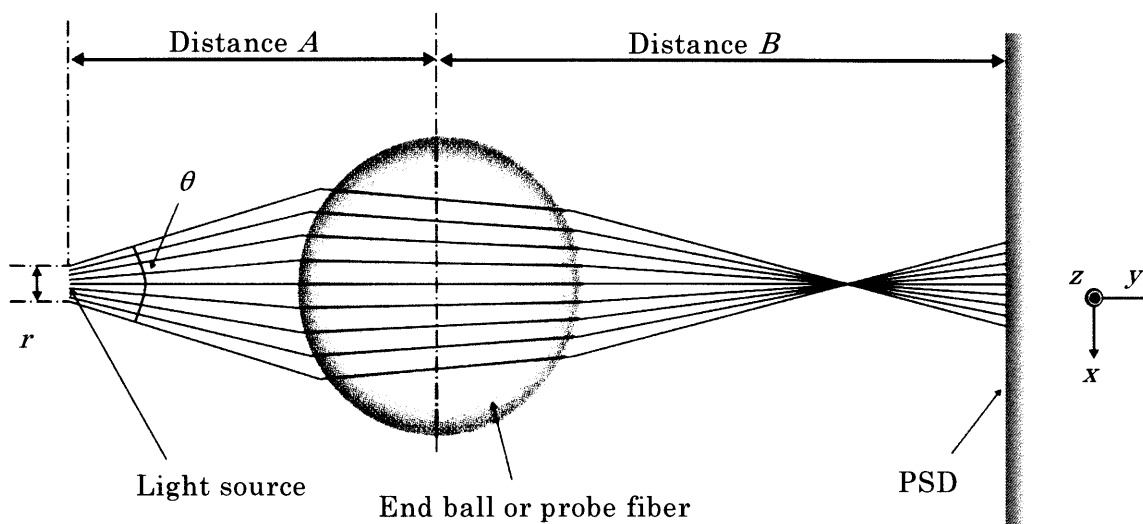


Fig. 3.1 Model of the optical system for the ray tracing calculation.

上に述べた光学系のモデルを用いて、図 3.1 の距離  $A$  を変化させたときの PSD 上のレーザースポットの強度分布を光線追跡により算出し、 $P_{center}$  と距離  $A$  との関係を求めた。実験において使用する対物レンズの開口数は  $N=0.1, 0.25, 0.3$  とした。それぞれの開口数に対応する光源の半径  $r$  および広がり角  $\theta$  を表 3.1 に示す。表 3.1 には解析に用いた距離  $A$  の範囲も示した。距離  $A$  の最小値は光源が先端球あるいはファイバー部表面付近に位置する場合を意味する。距離  $A$  の原点は先端球・ファイバー部中心としているので、先端球を用いた場合、最小値は  $110 \mu\text{m}$ 、ファイバー部を用いた場合は  $55 \mu\text{m}$  とした。光源からの光線は広がり角度  $\theta$  をもつため、距離  $A$  が大きくなるほど、先端球・ファイバー部に入射する面積が大きくなる。したがって距離  $A$  の最大値は、光源からのすべての光線が先端球・ファイバー部に入射する場合とした。第 3.1 節において述べたように距離  $B$  は変位測定分解能に関与しない。したがって、任意に設定することができ、先端球を用いた解析では  $B=20 \text{ mm}$ 、ファイバー部を用いた解析では  $B=10 \text{ mm}$  とした。

光線追跡によって得られた PSD 上のレーザースポットの  $x$  方向への強度分布の計算結果を、距離  $A$  をパラメータとして図 3.2 および図 3.3 に示す。強度分布は PSD 上のレーザースポットを  $x$  軸方向に  $100 \text{ nm}$  幅の微小領域に分割し、各領域に入射した光線の強度を加算し全光線の強度で正規化したものを示す。図 3.2 は対物レンズの開口数が  $0.25$  のとき、先端球を用いて集光した時の計算結果を示す。図 3.3 は同様に対物レンズの開口数が  $0.25$  のとき、ファイバー部を用いて集光した時の計算結果を示す。図 3.2 および図 3.3 からわかるように先端球を用いた場合、ファイバー部を用い

Table 3.1 Parameters used for the ray tracing

		$r$ ( $\mu\text{m}$ )	$\theta$ (deg.)	球レンズの場合の距離 $A$ の変化範囲 ( $\mu\text{m}$ )	円筒レンズの場合の距離 $A$ の変化範囲 ( $\mu\text{m}$ )
開口数 $N$	0.1	3.86	5.74	110–220	55–150
	0.25	1.54	14.5	110–180	55–150
	0.3	1.29	17.5	110–180	55–150



た場合ともにレーザースポットの強度分布は距離  $A$  の微小な変化 ( $1 \mu\text{m}$  オーダ) によって大きく異なった. 他の開口数の対物レンズを用いた場合も同様の傾向を示した. 式 (2.15) において  $P_{center}$  は, レーザースポット中心部分における半径方向の単位長さあたりの光強度と定義した. 光線追跡における解析では,  $x = \pm 50 \text{ nm}$  の領域に含まれる光強度を合計し, 全光線の強度で除して正規化した値を  $P_{center}$  とした. 計算で求めた  $P_{center}$  を距離  $A$  に対してプロットしたものを図 3.4, 図 3.5 に示す. 図 3.4 は先端球を用いた場合, 図 3.5 はファイバー部を用いた場合についての結果である. 距離  $A$  は表 3.1 に示した範囲内において  $1 \mu\text{m}$  刻みで計算した. 図中, 実線で示した結果は対物レンズの開口数  $N=0.3$  の場合, 点線で示したものが  $N=0.25$  の場合, 一点鎖線で示したものが  $N=0.1$  の場合の結果を示す. これらの結果から明らかなように, どの開口数を用いても距離  $A$  には  $P_{center}$  が最大値をとる最適値が存在した.  $P_{center}$  の最大値およびそれを達成する距離  $A$  の最適値を表 3.2 にまとめた. 表 3.2 からわかるように, 距離  $A$  の最適値は使用する対物レンズの開口数の違いにより多少前後するものの, 先端球を用いた場合  $144 \mu\text{m}$  付近であり, ファイバー部を用いた場合は  $75 \mu\text{m}$  付近となった. 厚肉レンズの焦点距離  $f$  は, 一般に次式により求められる<sup>(80)</sup>.

$$\frac{1}{f} = (n-1)\left(\frac{1}{R_1} - \frac{1}{R_2}\right) + \frac{(n-1)^2}{n} \frac{\Theta}{R_1 R_2} \quad (3.4)$$

**Table 3.2 Optimal distance  $A$  obtained by the ray tracing calculation.**

		先端球を用いた場合		ファイバー部を用いた場合	
		$P_{center}$ 最大値 (a.u.)	最適距離 $A$ ( $\mu\text{m}$ )	$P_{center}$ 最大値 (a.u.)	最適距離 $A$ ( $\mu\text{m}$ )
開口数 $N$	0.1	0.021165	146	0.009619	75
	0.25	0.040939	142	0.018050	73
	0.3	0.041539	141	0.018892	72

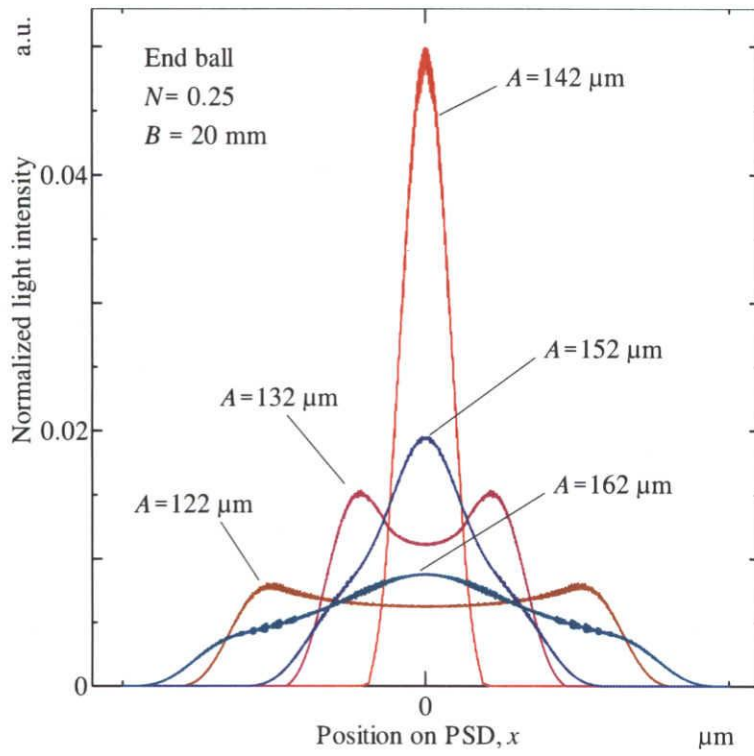


Fig. 3.2 Intensity distribution of the laser spot focused by the end ball.

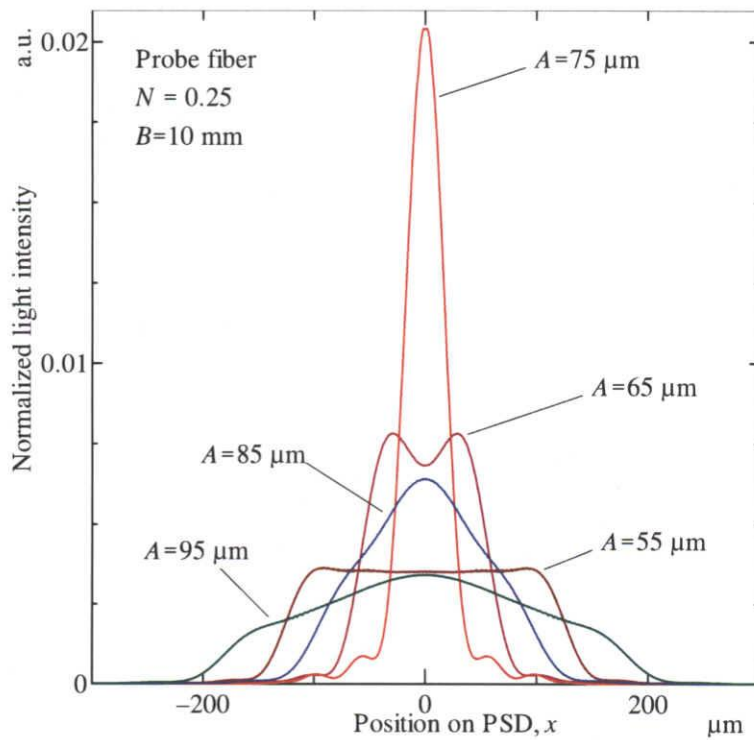


Fig. 3.3 Intensity distribution of the laser spot focused by the probe fiber.

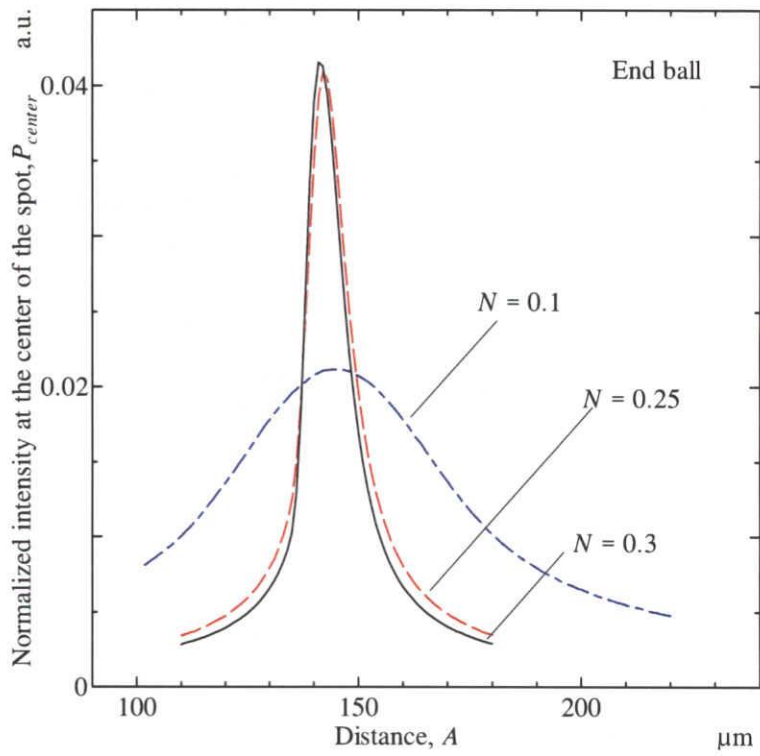


Fig. 3.4 Distance  $A$  vs. intensity at the center of laser spot focused by the end ball.

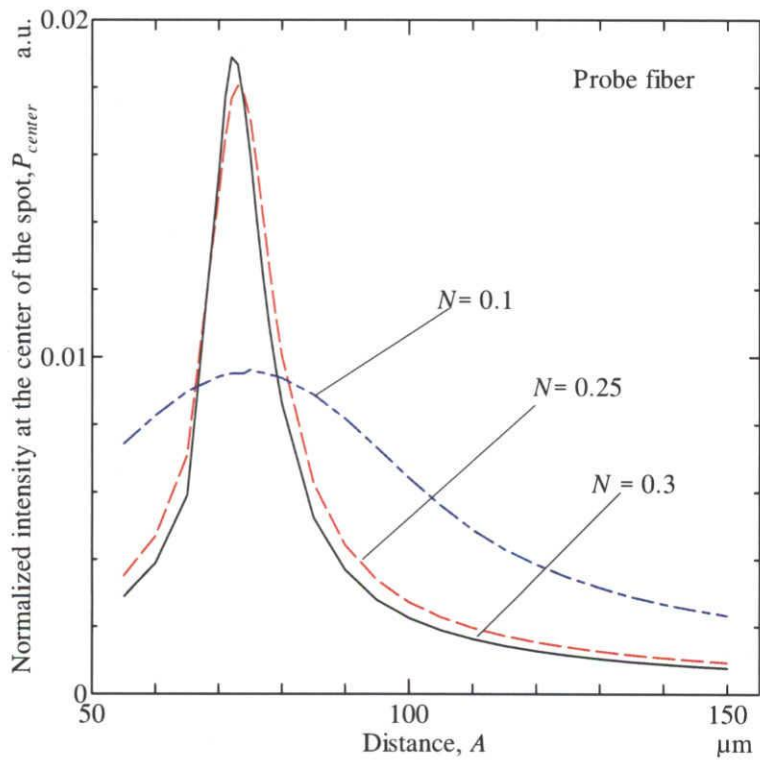


Fig. 3.5 Distance  $A$  vs. intensity at the center of laser spot focused by the probe fiber.

$R_1$ ,  $R_2$  はそれぞれレンズの物点側と像点側の曲率（符号は光線の入射方向に向かってレンズ面が凸のときを正とする）、 $\Theta$  はレンズの厚さ、 $n$  はレンズの屈折率を表す。式 (3.4) を用いて、先端球およびファイバー部の焦点距離を計算すると、それぞれ  $144 \mu\text{m}$ ,  $75 \mu\text{m}$  となる。すなわち、距離  $A$  の最適値は先端球・ファイバー部の焦点距離にほぼ一致する。このことから、曲率半径の異なる先端球・ファイバー部を用いる場合にも、それぞれの焦点距離を算出し、焦点距離と距離  $A$  を一致させる、つまり先端球・ファイバー部の焦点位置付近に対物レンズの集光点をおくことにより最大の  $P_{center}$  が得られ、最小の検出限界が得られる。

次に、対物レンズの開口数  $N$  とレーザースポット中心部分の光強度  $P_{center}$  の関係について検討した。図 3.6 には、表 3.2 の最適条件における対物レンズの開口数と、光強度  $P_{center}$  の最大値の関係を示す。第 2.2 節の式 (2.15), (2.16) からわかるように、理論では対物レンズの開口数  $N$  と  $P_{center}$  が比例する。しかし光線追跡の結果、対物レンズの開口数  $N$  の増加に伴い、 $P_{center}$  の最大値は飽和傾向を示した。開口数  $N$  を大きくすると、光源（対物レンズによって集光したレーザースポット）中心部分での光強度が大きくなるため  $P_{center}$  は増大する。一方で、式 (3.3) から開口数  $N$  を大きくすると、先端球（ファイバー部）への入射角が大きくなる。入射角が大きくなると、球面収差が大きくなり、光線の到達点はレーザースポット中心部分からずれ、 $P_{center}$  は減少する。つまり開口数を大きくした場合、 $P_{center}$  を増大させる作用と、 $P_{center}$  を減少させる作用とが競合する。開口数  $N$  の増加に対して  $P_{center}$  が飽和傾向を示したのは、 $N$  が大きくなるにつれて  $P_{center}$  を減少させる作用の影響が大きくなったためと考えられる。以上の結果から、開口数  $N$  を大きくしすぎても SNR の向上には限界があり、先端球を用いた場合、ファイバー部を用いた場合ともに、 $N=0.25$  と  $N=0.3$  とで  $P_{center}$  が同程度であるため、これより大きな開口数の対物レンズを用いても最小検出限界の更なる微小化は期待できない。

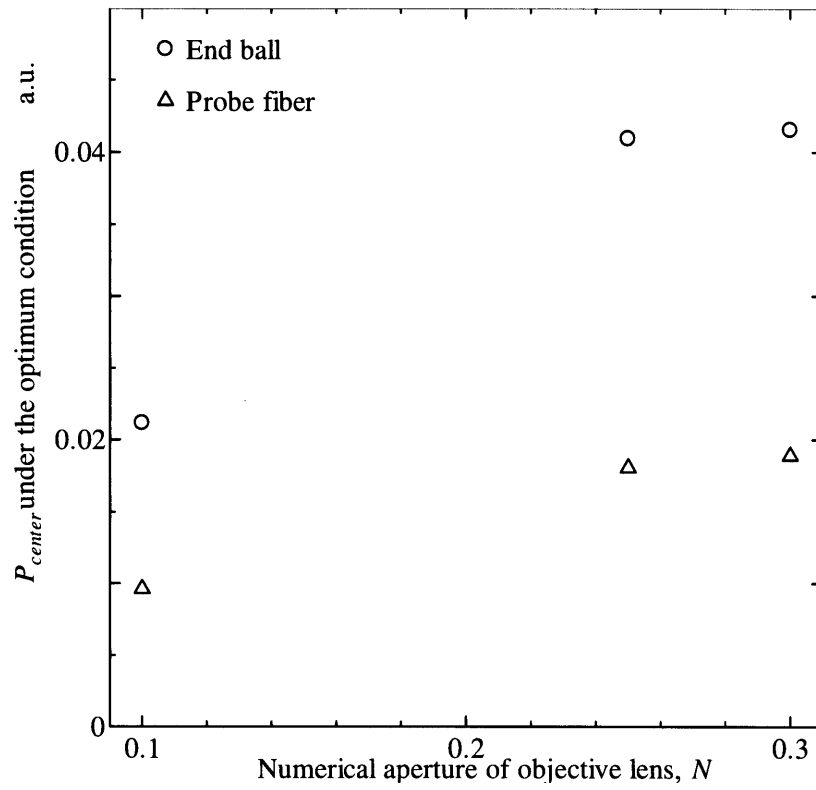


Fig. 3.6 Relation between the numerical aperture of the objective lens and the maximum intensity at the center of laser spot.

光線追跡により PSD 上に形成されるレーザースポット中心部分の光強度  $P_{center}$  を計算した結果、プローブと対物レンズ間の距離  $A$  と対物レンズの開口数  $N$  が変位測定における最小検出限界に及ぼす影響は以下のようにまとめられる。

- 光源とプローブ中心との距離  $A$  を先端球（ファイバー部）の焦点距離に一致させたときに、PSD 上に形成されるレーザースポットの中心部分における光強度  $P_{center}$  が最大値をとる。したがって、このとき最小の検出限界が得られることが予想される。
- PSD 上に形成されるレーザースポットの中心部分の光強度  $P_{center}$  は  $1 \mu\text{m}$  オーダの距離  $A$  の変化により変動するため、距離  $A$  は  $1 \mu\text{m}$  オーダの精度で調整することが必要である。
- 開口数  $N$  を大きくすると、検出限界を小さくすることができる。ただし開口数が 0.25 以上では、球面収差の影響が大きくなり  $P_{center}$  は飽和傾向を示すため、検出限界の微小化は望めない。

### 3.3 実験による検証

本節以降では、上記の解析結果を確認するために測定装置を構成し、実験的な最小検出限界を求めた結果を述べる。図 3.7 に実験のために作製した装置の構成を示す。光源には  $3 \text{ mW}$  の He-Ne レーザーを用いた。レーザーの強度を調節するために ND フィルタ (OD=0.1) を用いた。対物レンズは開口数が 0.1, 0.25, 0.3 の三種類を用いた。光ファイバープローブのサイズは長さ  $3.3 \text{ mm}$ 、直径  $115 \mu\text{m}$  であり、先端球の直径は  $202.5 \mu\text{m}$  であった。プローブの顕微鏡写真を図 3.8 に示す。プローブを正弦的に加振し、その先端に正弦的な変位を与えた。プローブの加振には、ピエゾアクチュエータ (Piezo X) を用いた。光線追跡の結果に基づき、対物レンズは  $1 \mu\text{m}$  の移動精度をもつ xyz の三軸マイクロメータステージに搭載し、その集光点が先端球（ファイバー部）の焦点付近に位置するように設置した。二分割型光位置センサ (PSD) も同様の三軸マイクロメータステージに搭載した。信号処理回路 (Signal Processor)

は PSD を構成する二つのフォトダイオードからの出力 (Output 1, Output 2) を電流-電圧変換し, それらの差分を出力した. この差分信号 (Differential signal) がプローブの振幅信号となる. プローブの振幅信号とそのノイズを, PiezoX の加振信号を参照信号として, ロックインアンプにより測定した. ロックインアンプの帯域は 1 Hz とした. ロックインアンプにより測定された振幅とノイズはデジタル電圧計により記録した. Piezo X のキャリブレーション, プローブ変位測定のキャリブレーションには測定分解能がおよそ 1 nm のレーザードップラー振動計を用いた. キャリブレーション方法の詳細については, 第 4.3 節に述べるためここでは省略する.

図 3.9 には実験装置全体の概観を, 図 3.10 にはプローブ付近の拡大像を示す. 図 3.10 中には, プローブ先端球にレーザーが入射している様子を PSD 側から撮影した写真を示す.

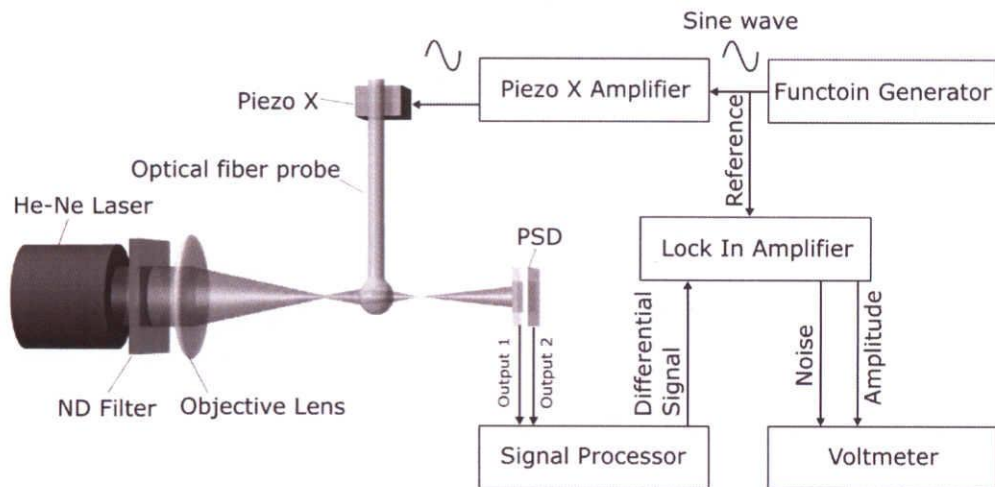


Fig. 3.7 Schematic diagram of the experimental setup for the deflection measurement.

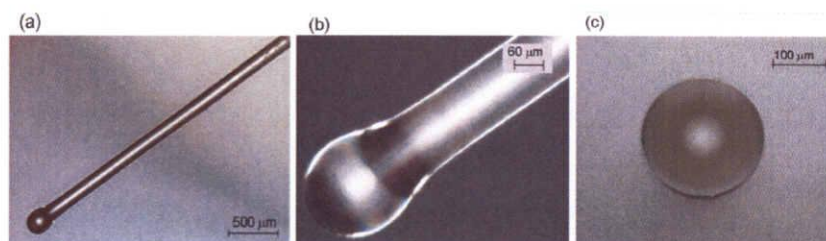


Fig. 3.8 Micrographs of (a) side view of the optical fiber probe, (b) magnified side view of the end ball, and (c) bottom view of the end ball.

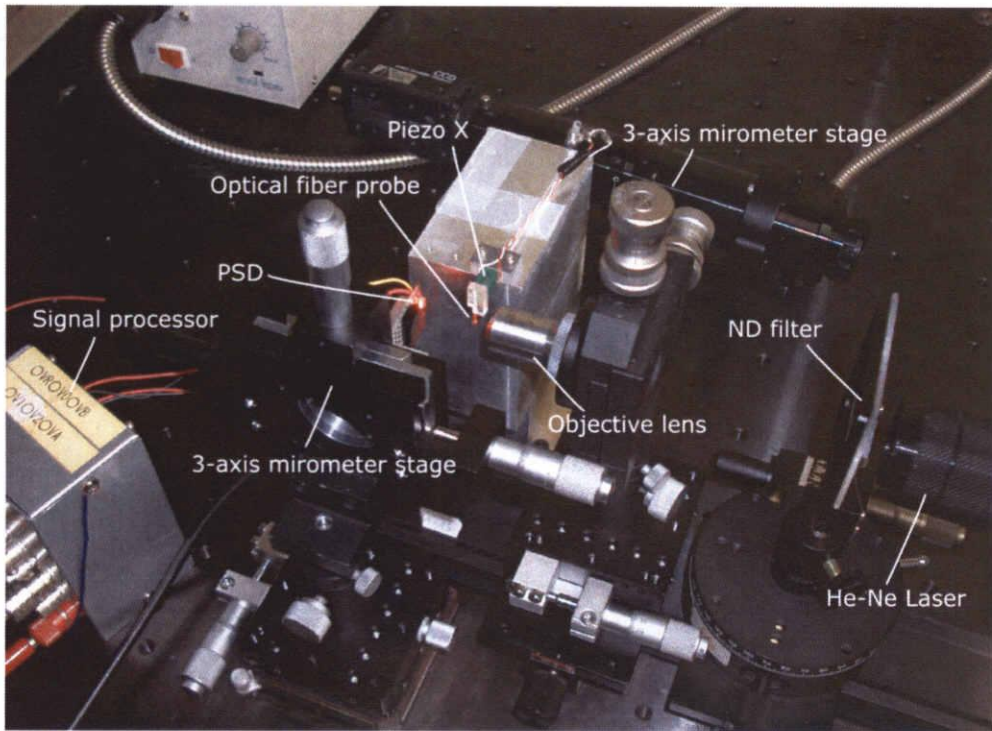


Fig. 3.9 Experimental setup.

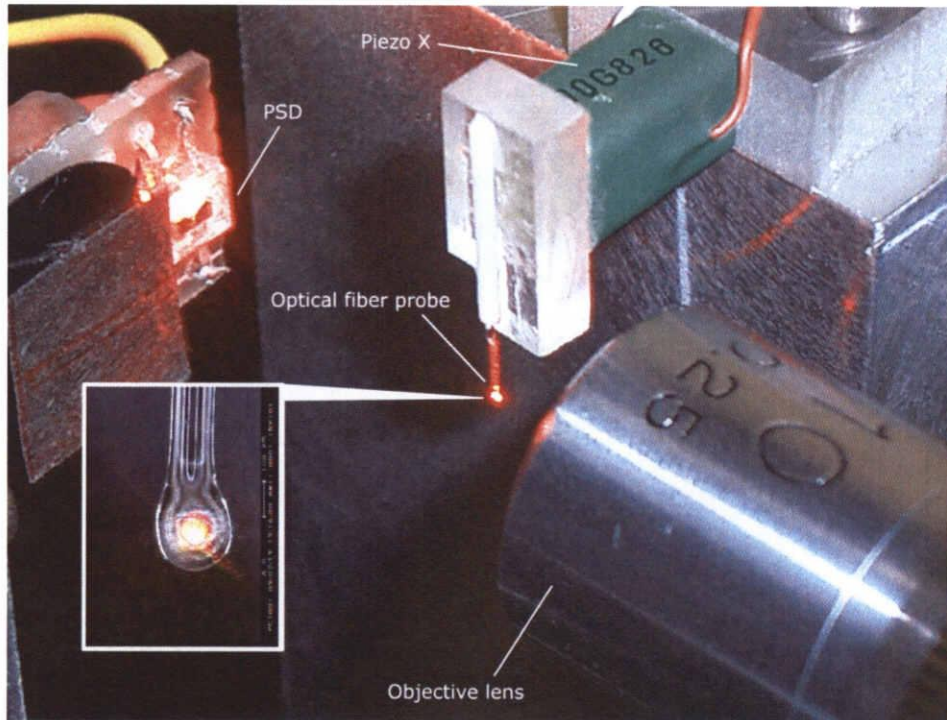


Fig. 3.10 Closeup picture around the optical fiber probe of the experimental setup.



第 3.2 節に述べた光線追跡の結果より、プローブ中心点と対物レンズの集光点間の距離  $A$  を、先端球（ファイバー部）の焦点距離に一致させたとき、PSD 上でのレーザースポットの中心部分における光強度  $P_{center}$  が最大となり、プローブの変位信号が最大値をとると予想される。実験において距離  $A$  を変化させたときのプローブの変位信号の変化を測定し、光線追跡の結果予想された変位信号の最大値が存在するかを検証した。

プローブを一定振幅（43 nm）、一定周波数（1 kHz）で加振しながら、マイクロメータを用い距離  $A$  を変化させたときのプローブ変位信号の測定結果を図 3.11, 図 3.12 に示す。図 3.11 は先端球を用いた場合、図 3.12 はファイバー部を用いた場合を示す。○印, △印, □印はそれぞれ対物レンズの開口数を 0.3, 0.25, 0.1 としたときの実験による測定点を示し、実線は光線追跡により得られた距離  $A$  に対するレーザースポット中心部分の光強度  $P_{center}$  の計算結果を示す（図 3.4, 図 3.5 に示した結果と同じ）。比較のために実験結果および光線追跡による結果はともに、それぞれの平均値を用いて正規化した。実験においては対物レンズの集光点の位置を決めることは困難であったので、距離  $A$  の絶対値を測定することは難しく、マイクロメータの送りから相対値しか得られなかった。ここでは、実験における距離  $A$  の絶対値を、実験結果と光線追跡の解析結果の差が最小となるように決定した。図 3.11 および図 3.12 から、先端球を用いた場合もファイバー部を用いた場合も、 $P_{center}$  の距離  $A$  に対する依存性と、プローブ変位信号の距離  $A$  に対する依存性が良く一致している。このことから、光線追跡の結果から予想されたように、プローブの変位信号は  $P_{center}$  に依存し、 $P_{center}$  が最大値をとる距離  $A$  において最大となる。すなわち距離  $A$  を、先端球を用いる場合は 144  $\mu\text{m}$  付近、ファイバー部を用いる場合は 75  $\mu\text{m}$  付近に設定することにより、変位信号の SNR を最大にでき、最小の変位検出限界が得られる。次の第 3.4 節では、距離  $A$  を変位信号が最大値をとる最適な位置に設定し、実験的な最小検出限界を求めた。

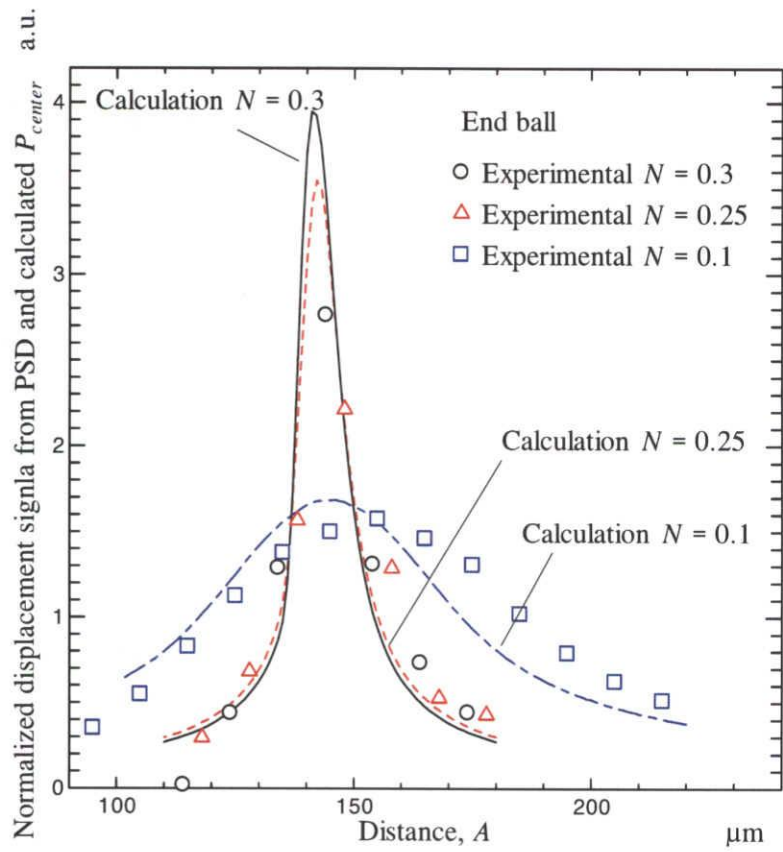


Fig. 3.11 Comparison of the displacement signal with the center intensity of laser spot focused by the end ball calculated by the ray tracing method.

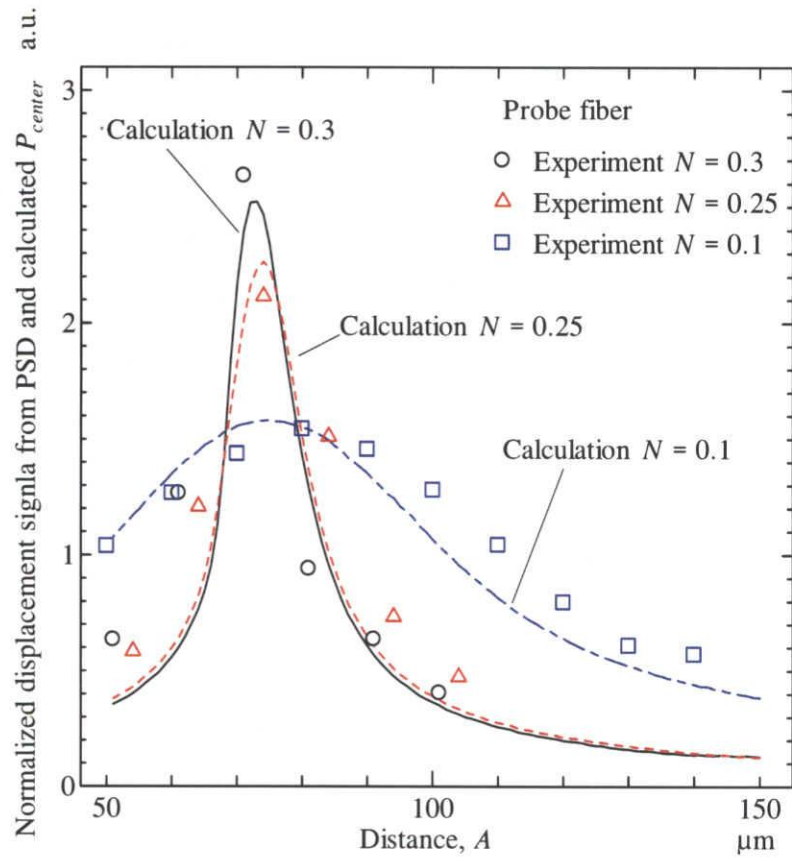


Fig. 3.12 Comparison of the displacement signal with the center intensity of laser spot focused by the probe fiber calculated by the ray tracing method.

### 3.4 せん断力検出限界

実験的な検出限界を求めるために、距離  $A$  を先端球（ファイバー部）の焦点位置に一致させた状態において、プローブの振幅を約 5 nm から 40 nm まで変化させ、SNR（信号対雑音比）を測定した。SNR はロックインアンプにおいて測定した変位信号の電圧値をノイズ信号の電圧値で除したものとした。ロックインアンプの帯域は 1 Hz とした。振動周波数は 1 kHz とした。図 3.13, 図 3.14 にそれぞれ先端球を用いた場合、ファイバー部を用いた場合のプローブ振幅と SNR の関係を示す。図中○印, △印, □印はそれぞれ対物の開口数が 0.3, 0.25, 0.1 の場合を示す。式 (2.19) より SNR はプローブの振幅に比例すると予想されるため、測定結果を最小二乗法により直線近似し実線で示した。図 3.13 および 3.14 の結果から、SNR が 1 となるときのプローブの振幅を変位測定の検出限界とし表 3.3 にまとめた。先端球を用いた場合もファイバー部を用いた場合も、それぞれ対物レンズの開口数が 0.3 のときに最高の測定分解能 0.0063 nm および 0.0064 nm となった。フックの法則を考えると、プローブのばね定数が 10 N/m の場合、力の検出限界は 0.01 nN のオーダーと見積もられる。距離  $A$  を最適値に設定したときの PSD からの出力信号を図 3.15 に示す。図 3.15 (a) は振幅が 43 nm のとき、(b) は振幅が 0.5 nm のときの信号を示す。0.5 nm という微小振幅であっても、帯域が 60 MHz のオシロスコープの生波形において確認できることから本測定法の感度の高さがわかる。図 3.16, 図 3.17 にはそれぞれ先端球の場合、ファイバー部の場合の対物レンズの開口数  $N$  と最小検出限界の関係を示す。○印は実験結果を、△印は計算で求めた  $P_{center}$  の逆数をプロットしたものである。比較のためにそれぞれ平均値を用いて正規化している。 $P_{center}$  の逆数をプロットするのは式 (2.19) より、SNR=1 のときの  $\Delta x$  として与えられる検出限界と、 $P_{center}$  とが反比例の関係にあるためである。実験の結果から検出限界は、開口数  $N$  を大きくすると小さくできるが、先端球を用いた場合もファイバー部を用いた場合も  $N=0.3$  と  $N=0.25$  とではほぼ変わらず、飽和傾向を示すことが明らかとなった。この検出限界の開口数  $N$  に対する依存性と、 $1/P_{center}$  の開口数  $N$  に対する依存性がよく一致することから、実験において  $N=0.3$  としたときに検出限界が小さくならないのは、光線追跡の結果から予想されたよう

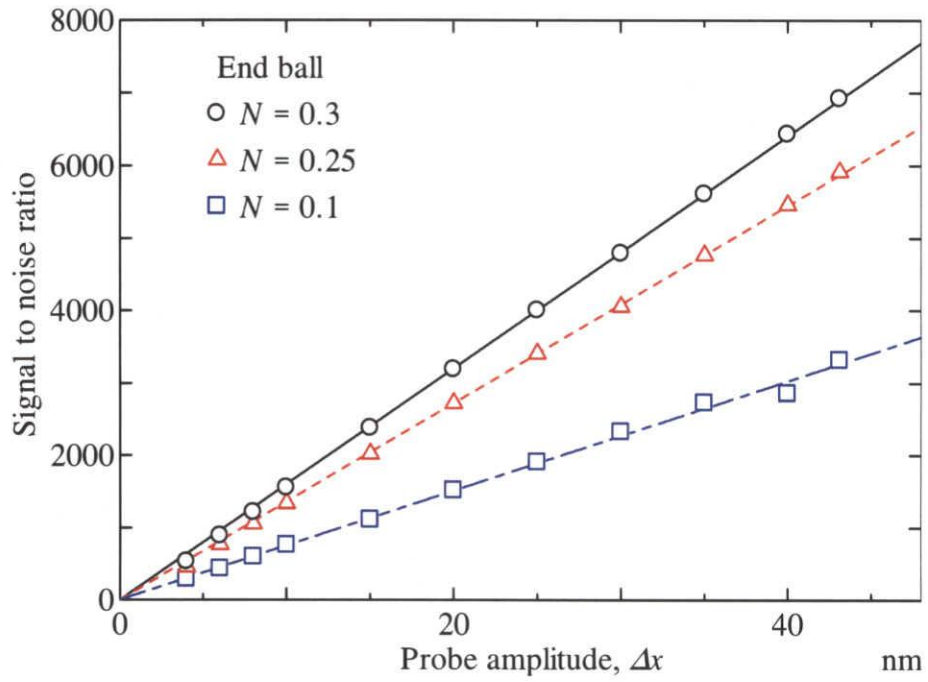


Fig. 3.13 Signal to noise ratio with the probe amplitude ranging from 5 nm to 40 nm measured with the end ball.

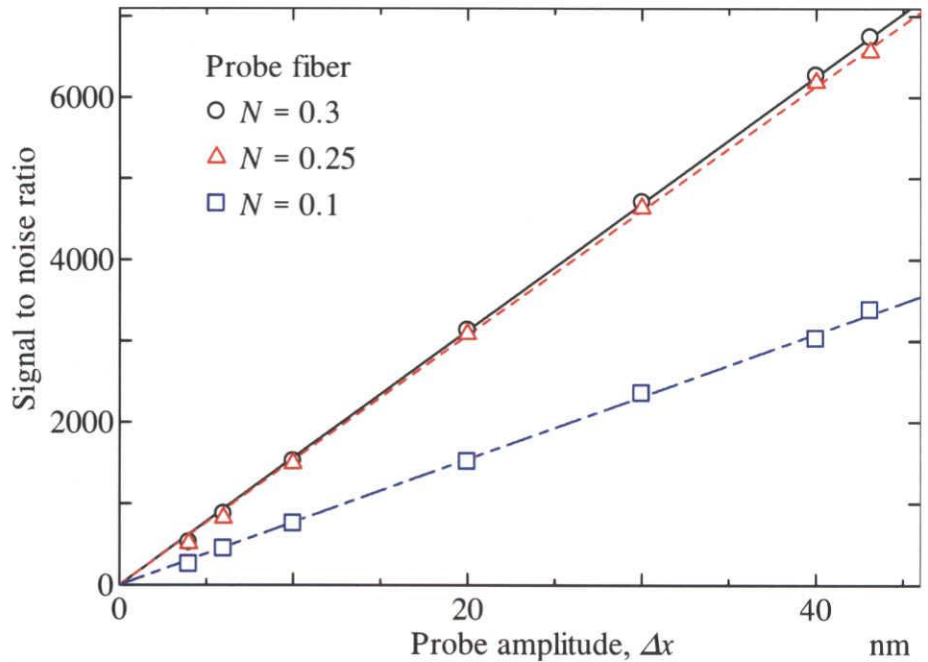


Fig. 3.14 Signal to noise ratio with the probe amplitude ranging from 5 nm to 40 nm measured with the fiber probe.

Table 3.3 Experimental detection limit.

対物レンズの開口数 $N$	先端球を用いた場合の最小 検出限界 (nm)	ファイバー部を用いた場合 の最小検出限界 (nm)
0.1	0.0130	0.0130
0.25	0.0073	0.0065
0.3	0.0063	0.0064

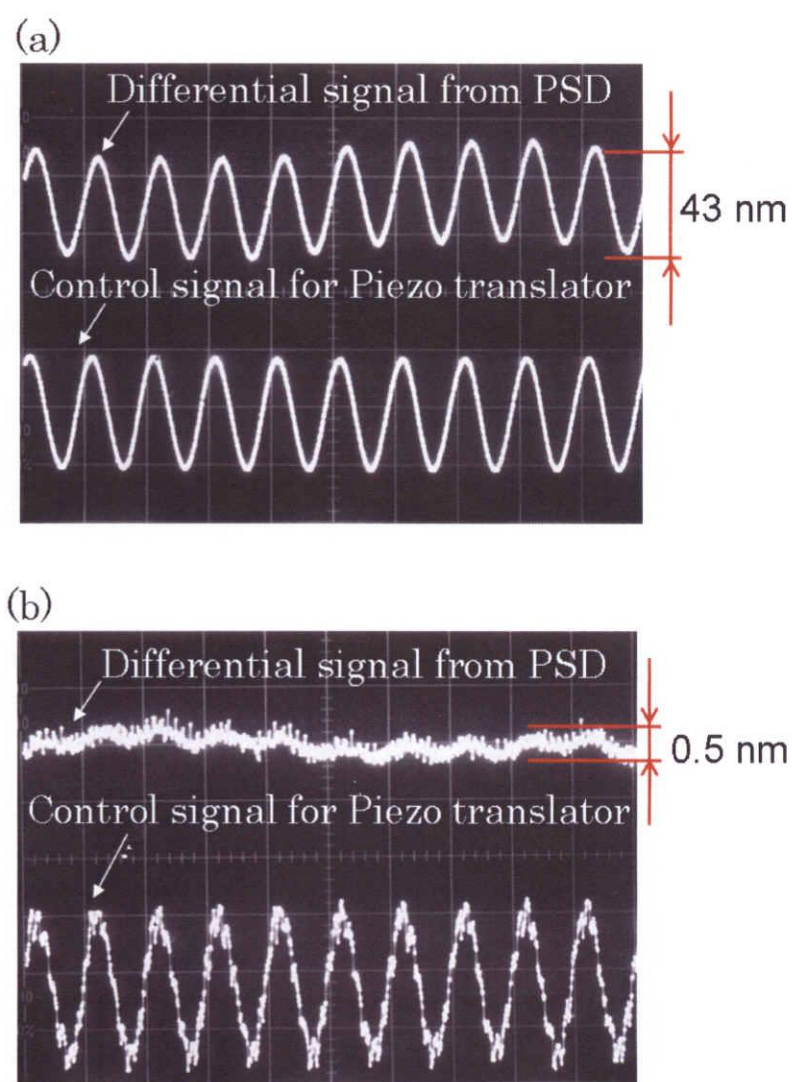


Fig. 3.15 Differential signal (displacement of the end ball) and applied voltage for the piezo acuator at a probe displacement of (a) 43 nm, and (b) 0.5 nm.

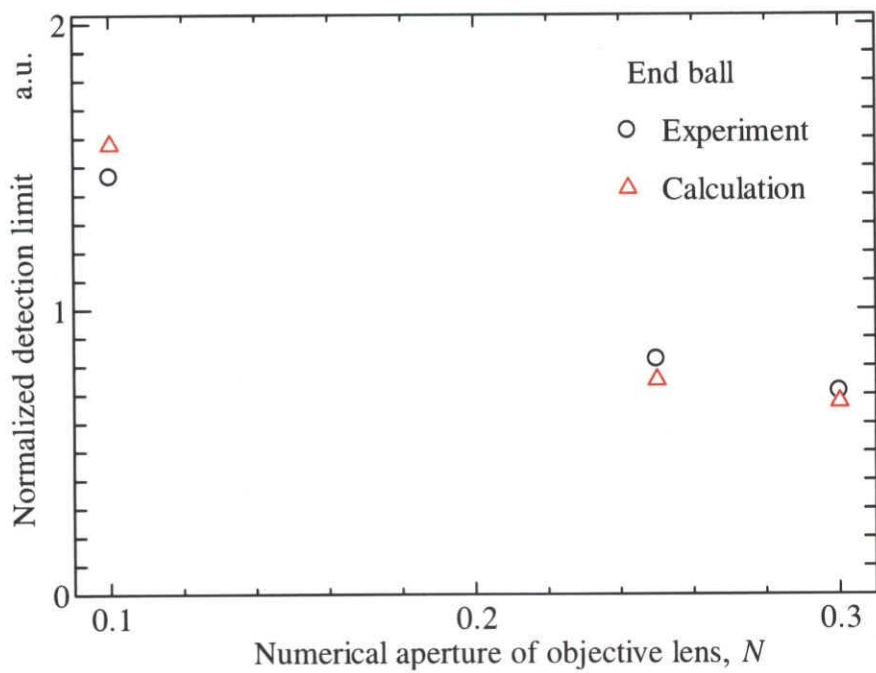


Fig. 3.16 Detection limit vs. numerical aperture in the case of end ball.

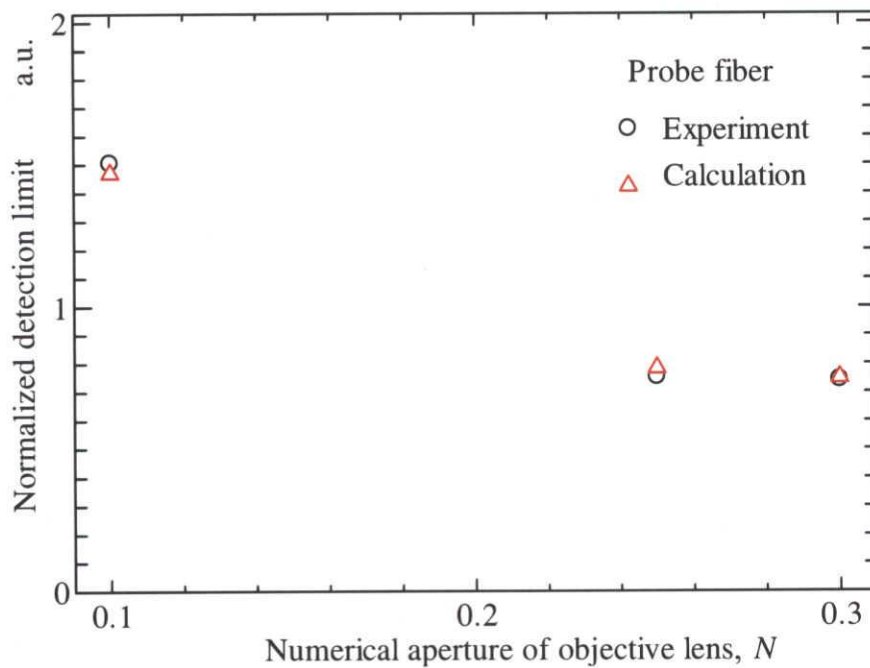


Fig. 3.17 Detection limit vs. numerical aperture in the case of the probe fiber.

に、 $P_{center}$  が開口数を大きくすることによって増加しないことが原因である。したがって開口数を大きくすることだけでなく、球面収差を補正するなどして光学系を工夫することにより、より高い光強度  $P_{center}$  を実現できれば、更なる検出限界の微小化の余地があると考えられる。

本章で得られた結果についてまとめる。ファイバーウォブリング法において 1 nN のせん断力測定を可能にするために、プローブの変位測定における検出限界は 0.1 nm を達成しなければならない。そこで変位測定のための光学系について光線追跡を行い、最小の検出限界を達成する変位測定の最適条件について検討した。その結果を実験的に検証し、実験的な最小検出限界を求めた。主な結果について以下にまとめる。

- 変位測定における最小検出限界として、先端球を用いる場合 0.0063 nm、ファイバー部を用いる場合 0.0064 nm を実験的に達成し、目標をとした 1 nN 以下のせん断力測定分解能が可能であることを示した。
- 変位測定における検出限界は対物レンズによる集光点を先端球・ファイバー部の焦点位置に設定した場合に最小となる。
- 対物レンズの開口数を大きくすると検出限界を小さくすることができるが、球面収差の影響も大きくなり、開口数  $N=0.25$  以上では分解能の大幅な向上はみられない。



## 第4章 測定装置

### 4.1 測定装置の構成

ファイバーウォブリング法によるせん断力測定を実現するために、試作した実験装置の構成を図 4.1 に示す。図 4.2 に示すように、光ファイバープローブはエレクトリックボンドを用いてプローブ固定用基板（ガラスエポキシ基板）に接着固定した。このときプローブ先端から固定点までの長さを任意に調節することにより、プローブのばね定数を調節した。プローブ固定用基板は、プローブ加振用ピエゾアクチュエータ（Piezo X）の先端に接着したアルミ板にねじ止めした（図 4.3）。Piezo X を正弦的に駆動することにより、プローブを試料面に対して面内方向に相対運動させた。Piezo X を駆動するには、ファンクションジェネレータからの正弦波信号を、電圧増幅器により増幅して Piezo X に印加した。Piezo X のキャリブレーションはレーザードップラー振動計を用いた。キャリブレーションの詳細は第 4.3.1 項に述べる。実際に製作した測定装置全体の写真を図 4.5 に、プローブ付近の拡大写真を図 4.6 に示す。

第 3.3 節において説明した変位測定分解能を検証するための実験装置では、光源として光強度の安定した比較的大型の He-Ne レーザーを用いた。これに対して、摺動実験を行う本測定装置では、装置全体の高剛性化を図り、より小型で軽量なレーザーダイオードモジュールを用いた。出力は 5 mW、波長は 670 nm である。レーザーダイオードモジュールは対物レンズが組み込まれており、焦点位置の調整が可能である。二分割型光位置センサ（Position Sensitive Detector: PSD）は、左右二つのシリコンフォトダイオードから構成されている。受光面の寸法を図 4.4 に示す。レーザーダイオードモジュールおよび PSD を xyz 三軸マイクロステージに搭載し光学系の微調整を行った。PSD からの出力電流は、信号処理回路に入力した。信号処理回路はプリアンプ回路、加算回路、減算回路、アナログ割り算回路から構成した。プリアンプ回路において、PSD の右側のフォトダイオードおよび左側のフォトダイオードからの出力電流（図 4.1 中、Output1, Output 2）をそれぞれ電流-電圧変換し、それらを減算回路において減算して差信号（Differential Signal）を得た。この差信号をプロ

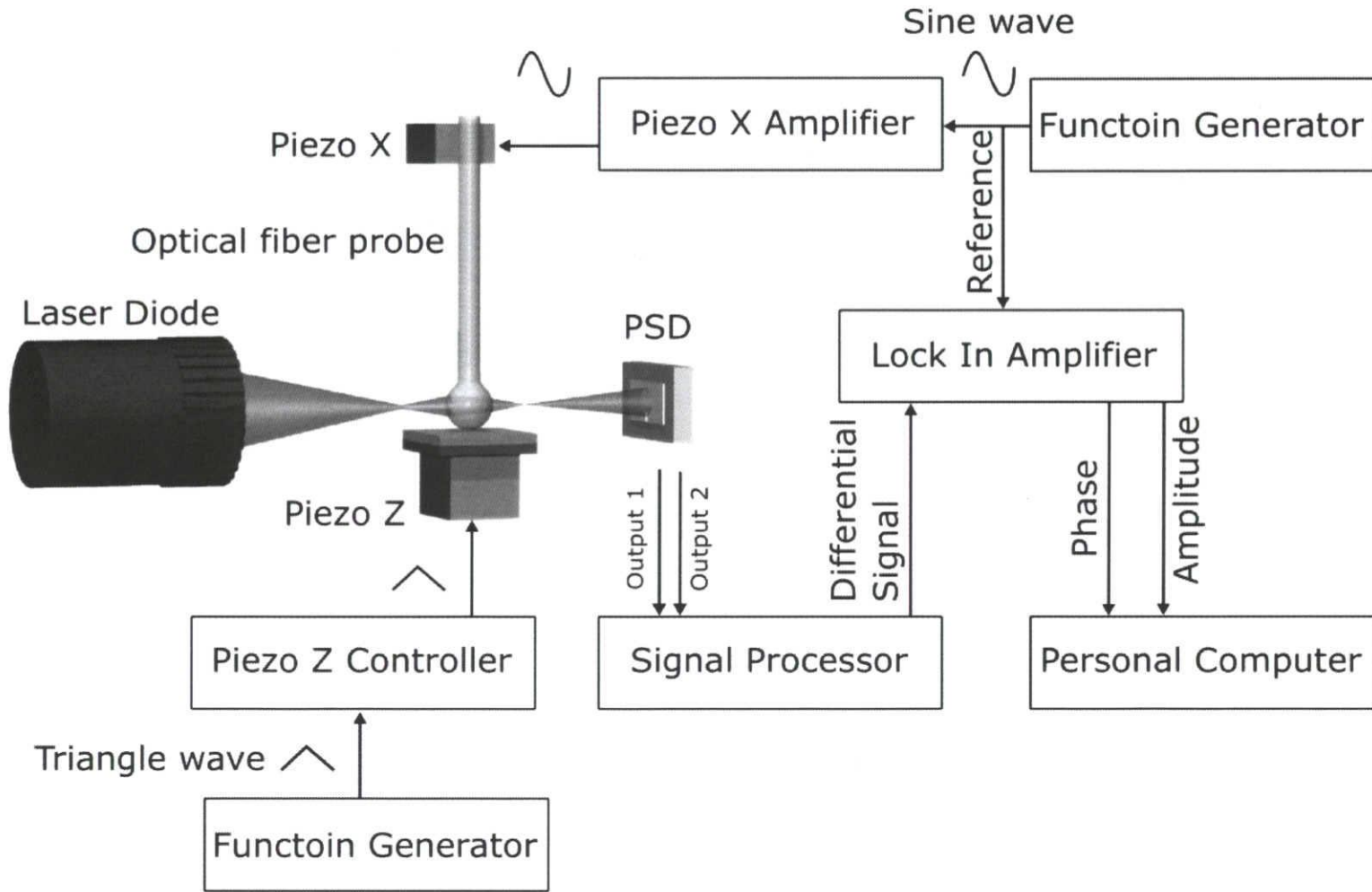


Fig. 4.1 Schematic of the experimental setup of the fiber wobbling method.

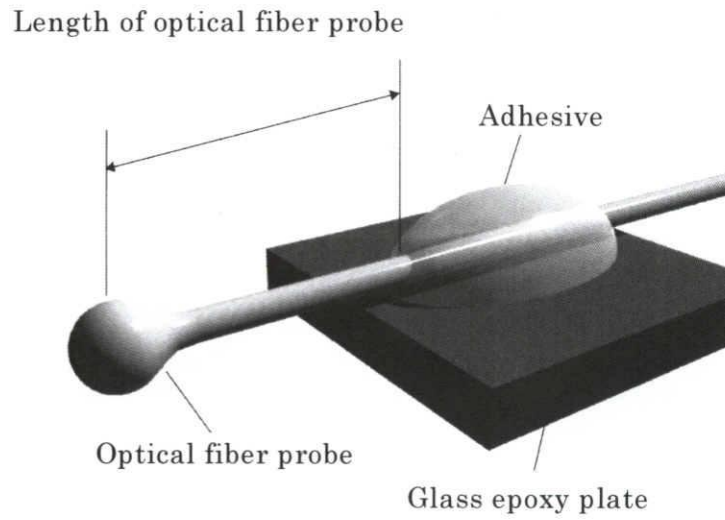


Fig. 4.2 Schematic of the optical fiber probe glued on to the glass epoxy plate.

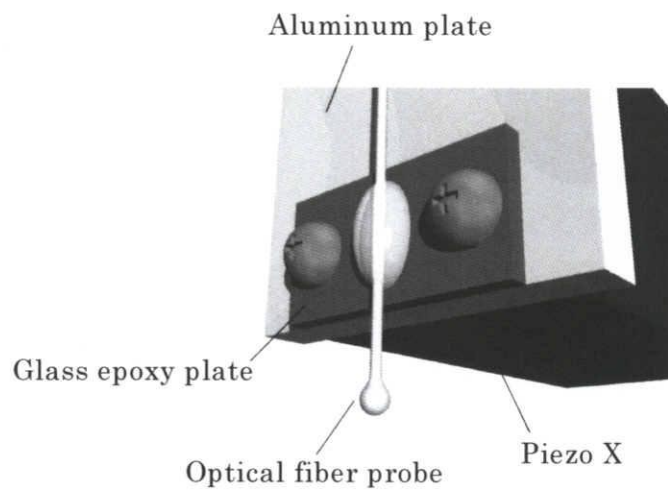


Fig. 4.3 Attachment of the optical fiber probe.

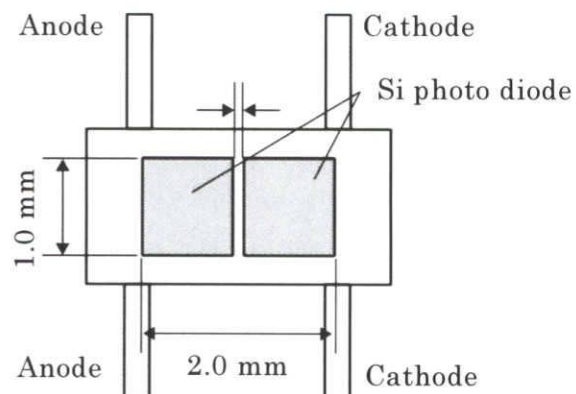


Fig. 4.4 Dimensions of the position sensitive detector.

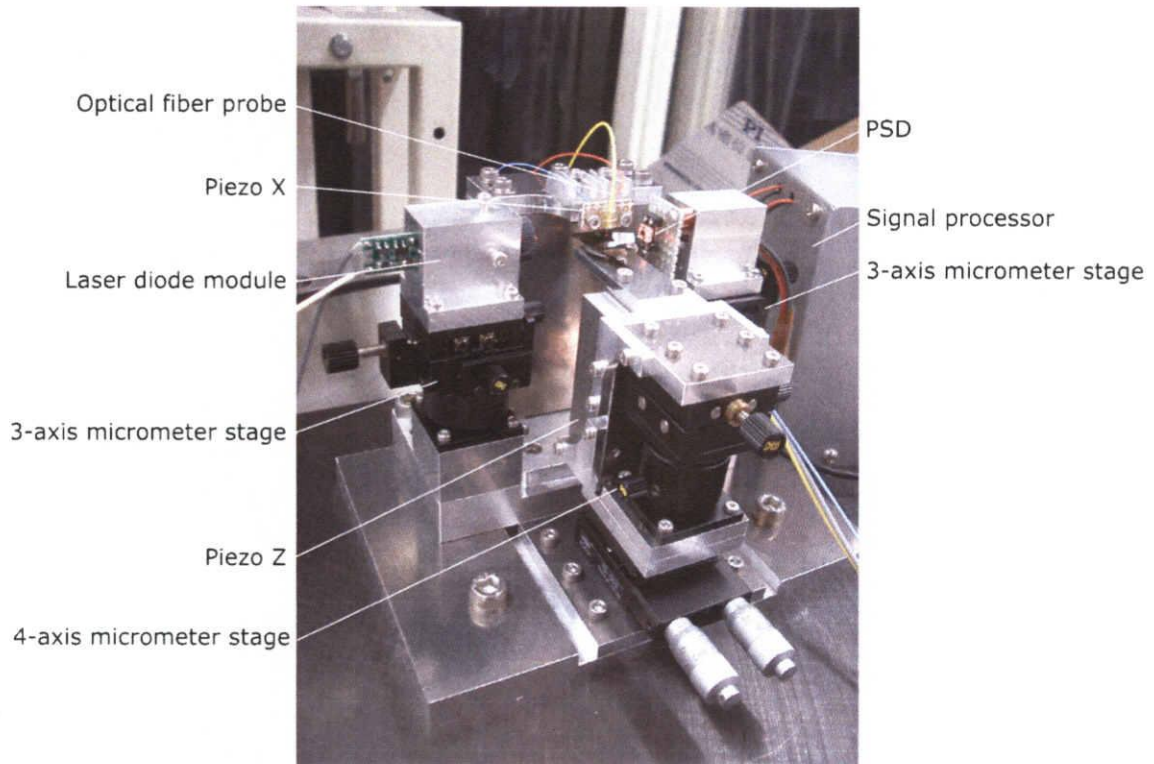


Fig. 4.5 Experimental setup.

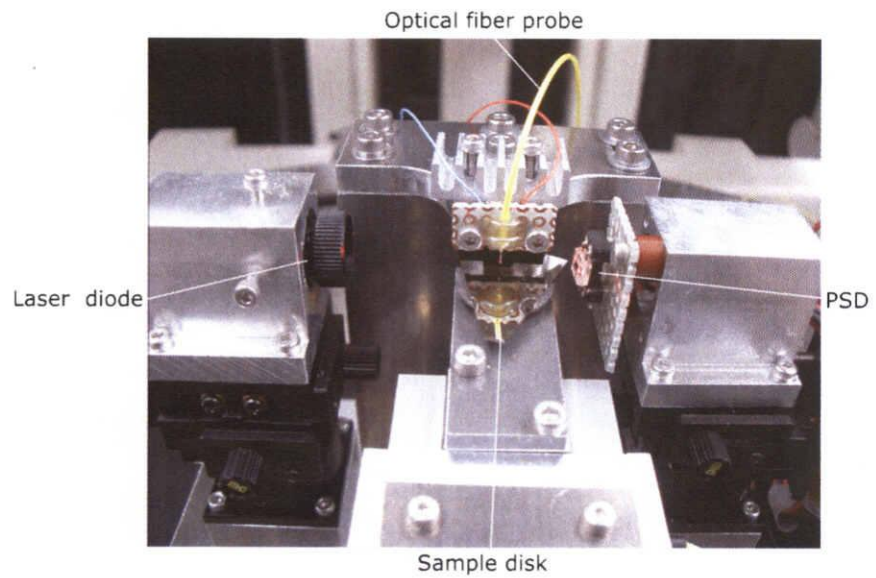


Fig. 4.6 Magnification of the optical fiber probe.

ープの振幅信号とした。ロックインアンプによりこの信号について、Piezo Xの駆動信号を参照信号とした同期検出を行った。ロックインアンプにより同期検出された差信号の振幅 (Amplitude) と位相 (Phase) は、AD ボードを介してパーソナルコンピュータに取り込んだ。プローブ先端球と基板表面との隙間は、ステージ駆動用ピエゾアクチュエータ (Piezo Z) によって 0.1 nm の分解能で調整した。Piezo Z には静電容量センサが内蔵されており、伸長量のフィードバックにより発生変位を制御した。これによりヒステリシスがなく、線形性の良好な駆動が可能となった。Piezo Z の制御には、+0 V~+10 V のアナログ制御信号を Piezo Z 制御装置 (Piezo Z Controller) に入力した。+0V では発生変位は 0 nm, +10 V では 11990.5 nm であった。Piezo Z のキャリブレーションに関する詳細は第 4.3.3 項に述べる。Piezo Z を xyz 三軸マイクロメータステージおよび傾き調整ステージに搭載し、隙間の粗動調整、摺動位置の調整、試料ディスクの傾き調整を行った。試料ディスクの傾き調整については第 4.4 節において詳しく述べる。

## 4.2 光ファイバプローブの機械的特性

実験に使用した光ファイバプローブの機械的特性を表 4.1 にまとめた。以下、プローブの寸法測定、ばね定数の測定、共振周波数の測定、表面粗さの測定についてそれぞれ詳細に述べる。光ファイバプローブの寸法測定には光学顕微鏡を用いた。拡大観察像例は図 3.8 に示した。拡大観察像から今回実験に用いた光ファイバプローブの寸法は、プローブの長さ  $l = 2.26$  mm, ファイバー部の直径  $d_p = 115$   $\mu\text{m}$ , 先端球の直径  $d = 191$   $\mu\text{m}$  であった。測定した先端球の直径およびガラスの密度から、先端球を完全な球としてその質量を見積もると、 $8.06 \times 10^{-9}$  kg となった。

光ファイバプローブのばね定数の測定には、MAGNEBIT 社製グラムロードテスター (GRAMMER) を使用した。GRAMMER は磁気ディスク装置におけるヘッド・ジンバル・アセンブリ (HGA) のばね定数測定用に開発されたものである。GRAMMER による光ファイバプローブのばね定数測定の概要を図 4.7 に示す。第 4.1 節で述べたようにプローブはガラスエポキシ基板に接着固定した。この基板をクランプ固定し、プローブ先端の球部分に

Table 4.1 Mechanical properties of the optical fiber probe.

材質	石英ガラス
密度	2210 kg/m <sup>3</sup>
プローブの長さ, $l$	2.26 mm
ファイバー部の直径, $d_p$	115 $\mu$ m
先端球の直径, $d$	191 $\mu$ m
先端球の質量, $m$	$8.06 \times 10^{-9}$ kg
共振周波数, $f_r$	10.186 kHz
プローブの減衰係数, $c_p$	$10^{-5}$ Ns/m
ばね定数, $k$	66.088 N/m
表面粗さ (算術平均粗さ), $R_{ba}$	0.15 nm
表面粗さ (二乗平均粗さ), $R_{brms}$	0.21 nm
表面粗さ (最大高さ), $R_{bmax}$	1.44 nm

ロードセルを押し付けた。ロードセルの荷重測定分解能は 1mg である。ロードセルはマイクロメータを用い 1 $\mu$ m の精度で送った。マイクロメータによる送り量がプローブの相対的なたわみに相当する。マイクロメータによる送り量と、ロードセルにより測定した力の関係を最小二乗法で直線近似し、その傾きからプローブのばね定数を求めた。測定例を図 4.8 に示す。図中○印が測定値であり、実線は測定結果を直線近似した結果を示す。測定の結果ばね定数は 66.088 N/m であった。

光ファイバースプローブの共振特性は、プローブ加振用ピエゾアクチュエータ (Piezo X) の加振周波数を 1 kHz から 20 kHz まで変化させ、そのときのプローブ振幅と加振信号に対する位相遅れを測定して求めた。その際の加振電圧振幅は 2.5V とした。測定結果を図 4.9 に示す。共振周波数は 10.186 kHz であった。先端球の質量、プローブのばね定数、および図 4.9 の共振曲線の Q 値から得られるプローブの減衰係数は、約  $10^{-5}$  Ns/m となった<sup>(89)</sup>。

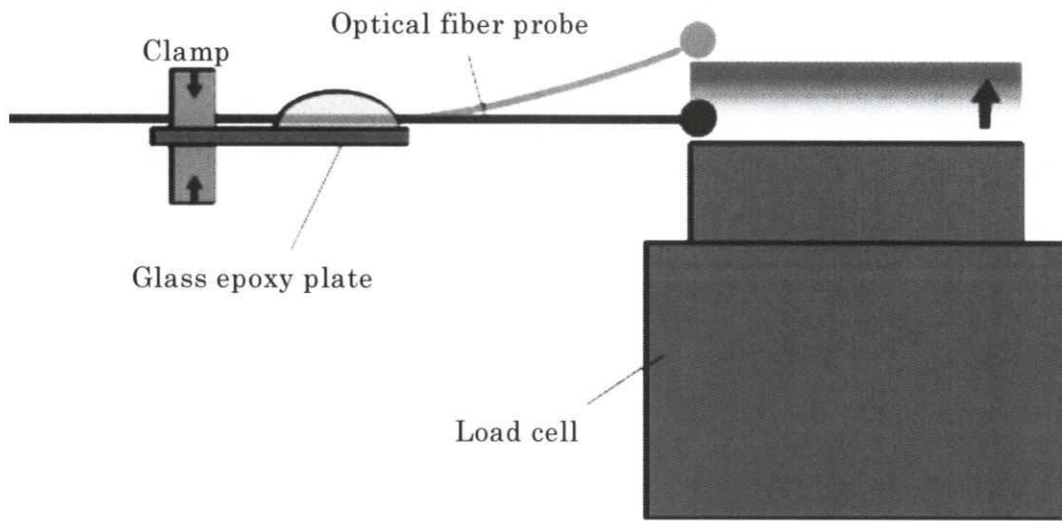


Fig. 4.7 Schematic of the spring constant measurement.

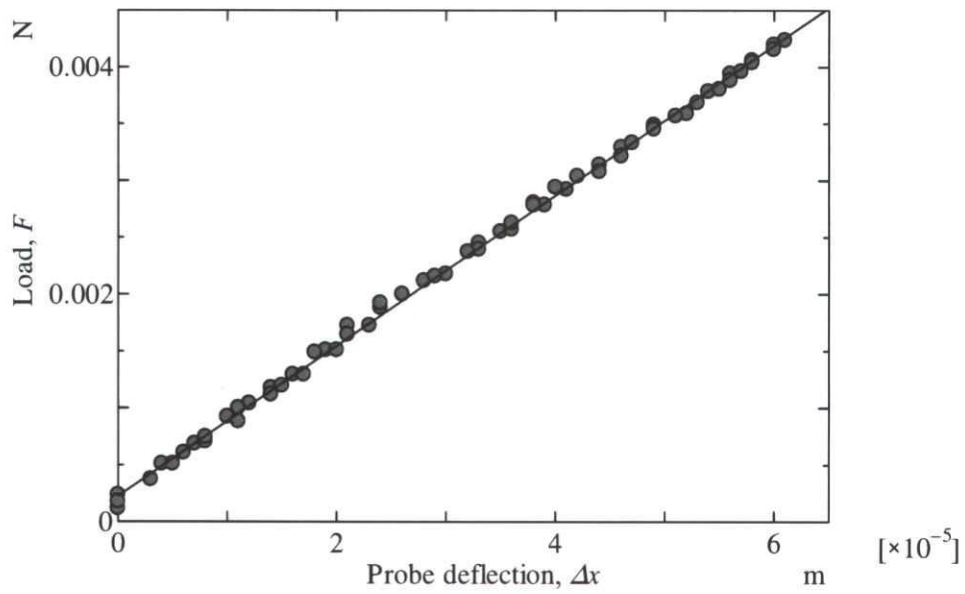


Fig. 4.8 Relationship between the load and the deflection of optical fiber probe.

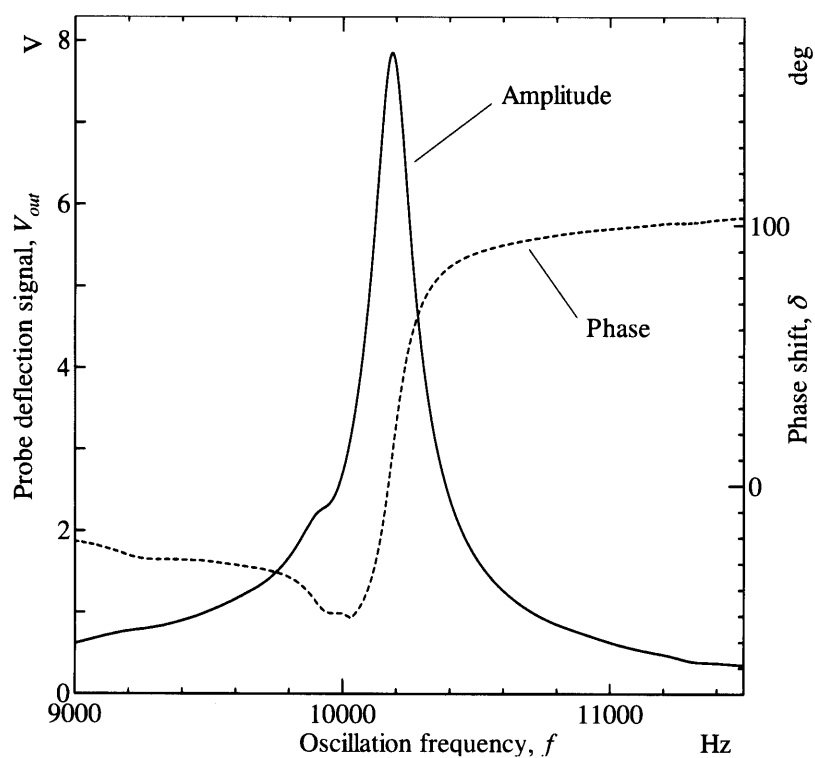


Fig. 4.9 Resonance curve of the optical fiber probe.

ファイバーウォブリング法において摺動面となるプローブ先端の球部分の表面粗さをAFM（原子間力顕微鏡）を用いて測定した。先端球は熔融法で形成されたものであり、研磨仕上げされた通常の光学素子（精度 $\lambda/20$ ）の表面よりも平滑性が高い。AFMによる観察像を図4.10に示す。図4.10中A-Bの断面形状を図4.11に示す。算術平均粗さ（ $R_{ba}$ ）は0.15 nm、二乗平均粗さ（ $R_{brms}$ ）は0.21 nm、最大高さ（ $R_{bmax}$ ）は1.44 nmであり、極めて高い面精度であることが分かる。本研究で用いる分子のサイズ（ $R_g \sim 1.5$  nm）に比しても十分小さく、分子レベルで平滑な面であるといえる。



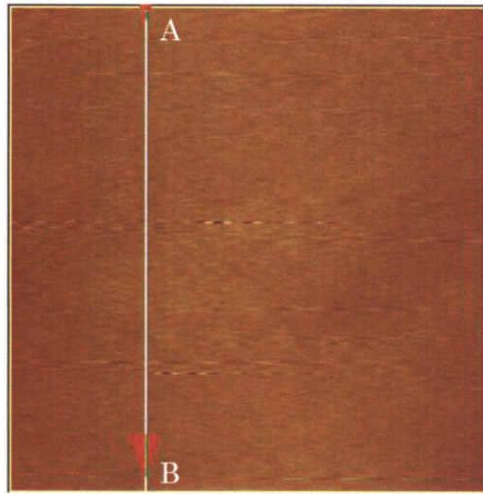


Fig. 4.10 Topographical image of the end ball measured with AFM.

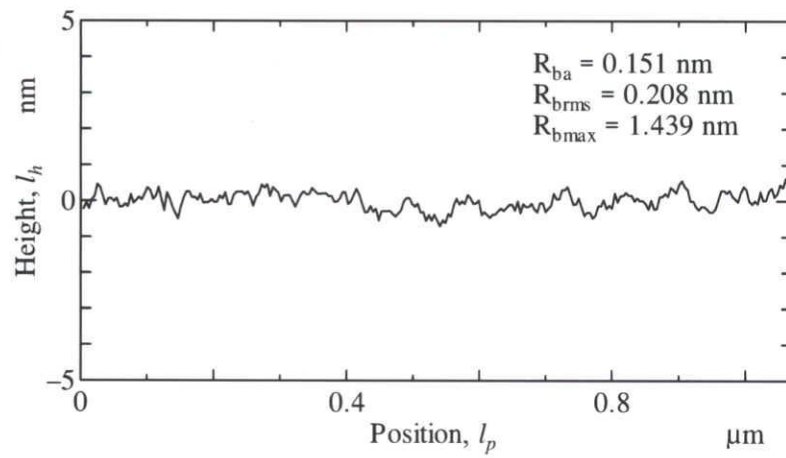


Fig. 4.11 Surface topography of the end ball of the optical fiber probe used in the experiment.

### 4.3 キャリブレーション

本研究では 1 nm オーダの領域の現象を対象としているため、測定の精度を得るためには各装置のキャリブレーションが非常に重要である。本節では各装置のキャリブレーションの手順について詳しく述べる。

#### 4.3.1 プローブ加振用ピエゾアクチュエータのキャリブレーション

プローブ加振用ピエゾアクチュエータ (Piezo X) の発生変位と印加電圧との関係はレーザードップラー振動計を用いてキャリブレーションした。キャリブレーションの結果を図 4.12 および図 4.13 に示す。Piezo X の印加電圧に対する応答性は加振周波数によって変化した。したがって 300 Hz から 3000 Hz までの各周波数においてキャリブレーションを行った。印加電圧の振幅 (peak to peak 値) を 0.5 V から 4 V までスイープさせ、そのときの Piezo X の振幅 (peak to peak 値) をレーザードップラー振動計により測定した。図 4.12 には例と

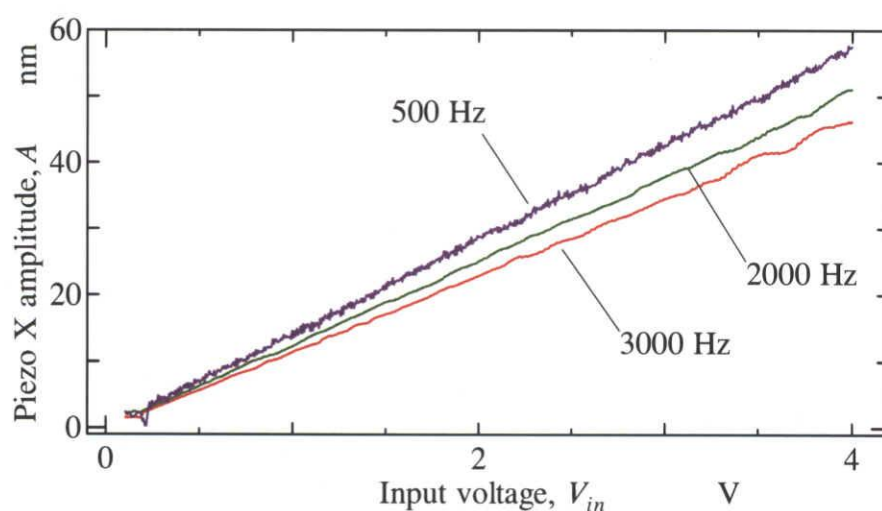


Fig. 4.12 Input voltage vs. amplitude at different oscillation frequencies.

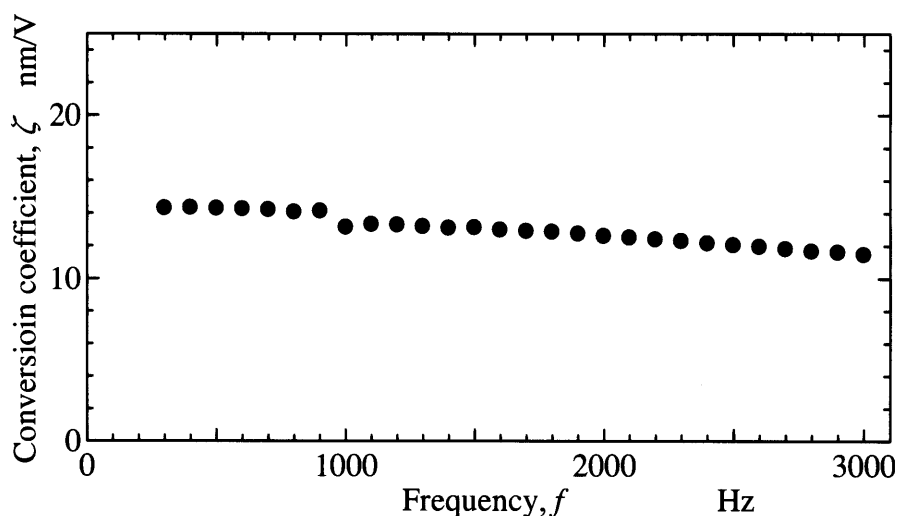


Fig. 4.13 Oscillation frequency vs. conversion coefficient between the piezo displacement and the applied voltage.

して加振周波数 500 Hz, 2000 Hz, 3000 Hz の測定結果をそれぞれ示す. 測定結果を最小二乗法により直線近似し, 近似式の傾きを印加電圧と発生変位の変換係数  $\zeta$  nm/V とした. 加振周波数 300 Hz から 3000 Hz まで, 印加電圧と発生変位の関係は高い線形性を有することを確認した. 図 4.13 には, 各周波数について求めた変換係数 $\zeta$ を示す. 加振周波数を 300 Hz から 3000 Hz まで変化させると, 変換係数 $\zeta$ は徐々に小さくなるが大幅に減少することはないため, 高周波数の摺動においても, 十分な加振振幅が得られることを確認した. 図 4.13 に示した変換係数 $\zeta$ を用いることにより, 印加電圧から各周波数における Piezo Z の振動振幅を求めた.

### 4.3.2 変位測定のカリブレーション

せん断力測定のための変位測定は第 3 章に述べたように, 対物レンズの集光点をマイクロ球レンズとして用いるプローブ先端球, もしくはマイクロ円筒レンズとして用いるプローブファイバー部の焦点に一致させることにより, 最小の検出限界を達成することができる. 摺動実験を行う本測定装置では対物レンズの代わりに, レーザーダイオードモジュールの焦点

調節機能を用いて集光し、そのレーザースポットを xyz 三軸マイクロメータステージを用いて先端球・ファイバー部の焦点位置に一致させ、高感度な変位測定を行った。変位測定のキャリブレーションは、この最適に調整した状態において行った。Piezo X のキャリブレーションと同様にレーザードップラー振動計 (LDV) を用いた。ただし、LDV ではプローブ先端の変位を直接測定することは困難である。これは、プローブ先端表面が曲率をもっていることと、材質がガラスであり光の反射率が低いことから、十分な反射光強度を得ることができないためである。そこで、キャリブレーションではプローブ先端の振幅と Piezo X の振幅の違いが無視できるように、加振周波数をプローブの共振周波数に比べて十分に小さい周波数に設定した。加振周波数が高すぎると慣性によりプローブ先端の変位が Piezo X の変位よりも大きくなってしまふ。減衰が作用しないとすると、プローブ先端の変位  $\Delta x$  と Piezo X の変位  $\Delta x_{st}$  の差は次式により表される<sup>(89)</sup>。

$$\Delta x - \Delta x_{st} = \frac{\omega^2}{\omega_n^2 - \omega^2} \Delta x_{st} \quad (4.1)$$

ここで  $\omega$ 、 $\omega_n$  はそれぞれ強制振動の周波数およびプローブの共振周波数を表す。キャリブレーションの際には、 $\Delta x - \Delta x_{st}$  が変位測定の分解能よりも小さくなるように Piezo X の振幅と周波数を選択した。後述するように、本測定装置における変位測定の分解能は 0.01 nm 程度であった。代表的な値として  $\omega_n = 10 \text{ kHz}$  とすると、 $\Delta x - \Delta x_{st} < 0.01 \text{ nm}$  とするには、 $x_{st} < 10 \text{ nm}$ 、 $\omega < 316 \text{ Hz}$  の範囲で選択すればよい。 $\Delta x - \Delta x_{st}$  が十分に小さいと、Piezo X の振幅とプローブ先端の振幅は等しいとして、図 4.14 に示すように Piezo X の振幅を LDV により測定し、プローブ先端の変位とした。この測定と同時に第 3 章に述べた変位測定法によりプローブ先端の振幅を測定し、変位測定法のキャリブレーションを行った。 $\Delta x - \Delta x_{st}$  が十分小さくなるように設定したときの Piezo X の振幅を  $\Delta x'_{st}$ 、周波数を  $\omega'$  とし、そのとき測定した PSD からの変位信号を  $V'_{out}$  とする。式 (2.17) からプローブ先端の変位と PSD からの出力は線形関係にあるため、任意の  $\omega$  および  $\Delta x_{st}$  におけるプローブの変位  $\Delta x$  は、そのときの PSD の変位信号  $V_{out}$  を用い次式により求められる。

$$\Delta x = \frac{\Delta x'_{st}}{V'_{out}} V_{out} \quad (4.2)$$

図 4.15 に先端球を用い、加振周波数を 300 Hz としたときのプローブの両振幅と PSD からの変位信号 (peak to peak 値) の測定結果を示す。点線は最小二乗法による近似直線を表す。近似直線の傾き、つまりプローブ振幅と変位信号の変換率は  $V'_{out} / \Delta x'_{st} = 0.781 \text{ mV/nm}$  であった。この変換率と式 (4.2) より、任意の周波数において、PSD からの変位信号からプローブの振幅を求めることができる。

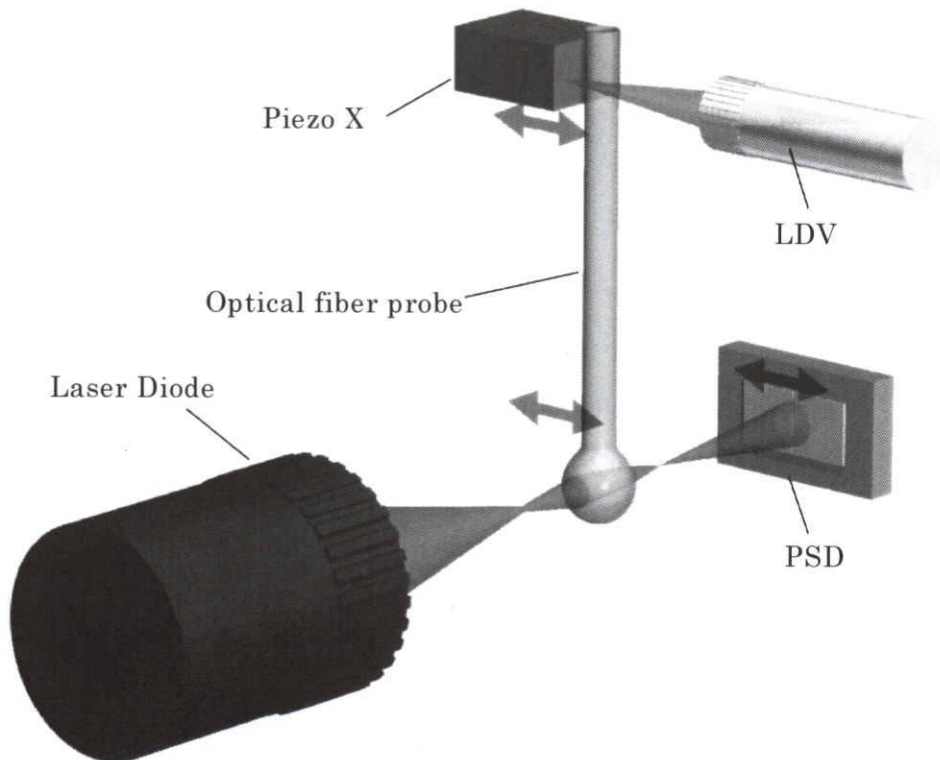


Fig. 4.14 Probe amplitude vs. the deflection signal.

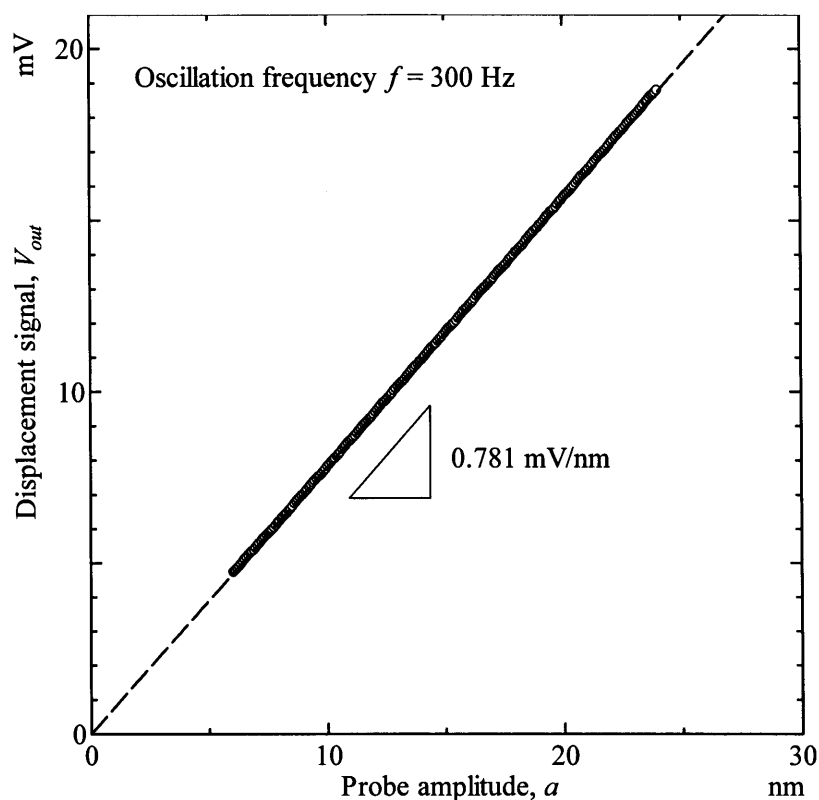


Fig. 4.15 Schematic of the calibration of displacement measurement with LDV.

次に、本測定装置におけるプローブ変位の検出限界を求めた。測定の手順は第 3.4 節に述べた方法と同様である。プローブの振幅約 5 nm から 40 nm まで変化させ PSD の出力信号の SNR を測定した。振動周波数は 1 kHz とした。得られた最小検出限界は、先端球を用いた場合 0.0084 nm、ファイバー部を用いた場合 0.0056 nm であり、第 3 章で述べた変位測定評価用の装置と同等の最小検出限界をもつことを確認した。今回測定に用いたプローブのばね定数は 66.088 N/m であるので、フックの法則から見積もられるせん断力検出限界は 0.37~0.55 nN となり、目標とした分解能 1 nN オーダ以下のせん断力測定が可能である。

### 4.3.3 隙間制御用ピエゾアクチュエータのキャリブレーション

隙間制御用のピエゾアクチュエータ (Piezo Z) は光ファイバー干渉計を用いて Piezo Z の

変位を測定し、キャリブレーションを行った。光ファイバー干渉計による変位測定の原理は第 4.4.2 項において述べる。第 4.1 節に述べたように、Piezo Z は Piezo Z 制御装置 (Piezo Z Controller) に入力された +0 V ~ +10 V のアナログ制御信号に対応した変位を発生する。+0 V で発生変位は最小、+10 V で最大となる。最小の発生変位は 0 nm であるが、最大の発生変位は負荷により変化する。本測定装置では Piezo Z により試料台および試料ディスクを駆動するので、それらを Piezo Z に搭載した状態で Piezo Z 制御装置に +0 V → +10 V → 0 V と三角波状の制御信号を入力し、発生変位を光ファイバー干渉計により測定した。図 4.16 に Piezo Z および試料台、試料の写真を示す。図 4.17 に印加電圧と Piezo Z の変位の測定結果を示す。+10 V に対応する最大の変位は 11990.5 nm であった。Piezo Z には静電容量センサによる伸長量のフィードバック制御が施されているので、Piezo Z の発生変位は良好な線形性をもち、フィードバック制御を行わない一般的なピエゾアクチュエータに特有である伸長時と収縮時のヒステリシスはみられなかった。したがって任意の隙間を設定するには、制御電圧の最大値である 10V を、目標とする発生変位と最大変位 (11990.5 nm) の比によって比例配分し、その値を制御装置に印加した。

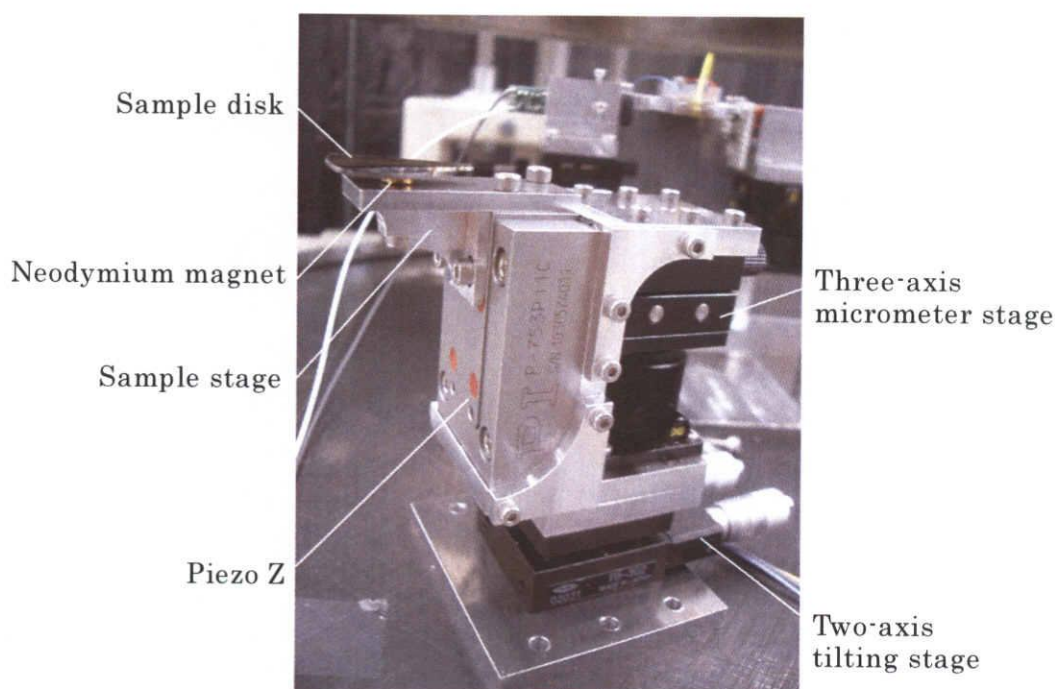


Fig. 4.16 Piezo Z and the sample stage.

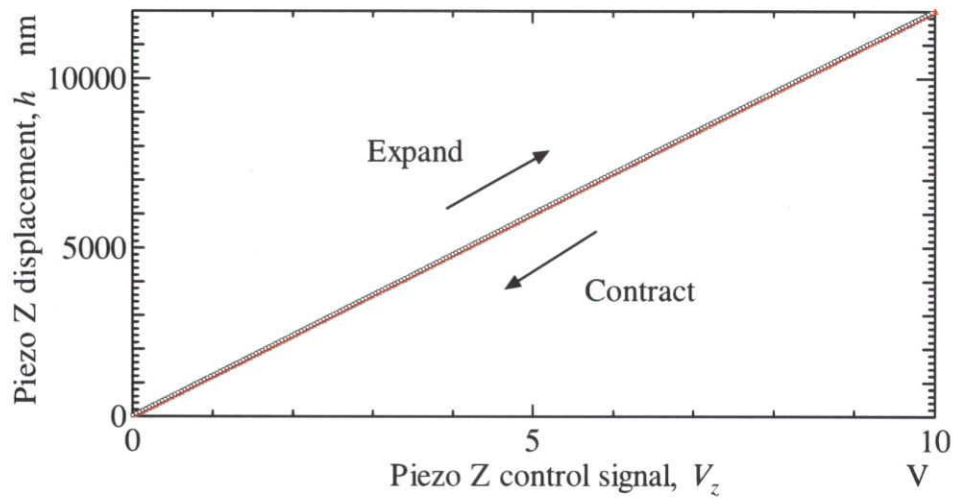


Fig. 4.17 Input voltage vs. the displacement of Piezo Z.

## 4.4 試料ディスクの傾き調整

### 4.4.1 傾き調整の必要性

光ファイバプローブの軸線が、試料面に対して傾いている場合、正確なせん断力測定ができない。図 4.18 に示すように、試料を摺動した際にプローブ先端にはたらく力は、摩擦力  $F_x$  と動圧やスキーズ圧に起因する垂直力  $F_z$  である。プローブが傾いている場合、摩擦力  $F_x$  は軸線に垂直な  $F_{x\perp}$  と軸線に平行な  $F_{x\parallel}$  に分解される。プローブを水平方向にたわませるのに寄与するのは  $F_{x\perp}$  のみであるので、測定される摩擦力は実際に働いている摩擦力  $F_x$  よりも小さくなってしまふ。また同様に垂直力  $F_z$  も軸線に垂直な  $F_{z\perp}$  と軸線に平行な  $F_{z\parallel}$  に分解される。 $F_{z\perp}$  がプローブをたわませる方向にはたらくため、垂直力の一部が摩擦力として検出されてしまうことになる。このように、プローブの軸線が試料面に対して垂直でない場合、摩擦力と垂直力の切り分けが困難となり正確なせん断力測定が困難となる。また隙間方向に対してプローブがたわみやすくなるために、潤滑剤をナノ閉じ込めした際に発生する圧力によって隙間が変動してしまう可能性がある。したがって、ファイバウォブリング法によるせん断力測定では、試料面をプローブの軸線に対して垂直になるように配置すること



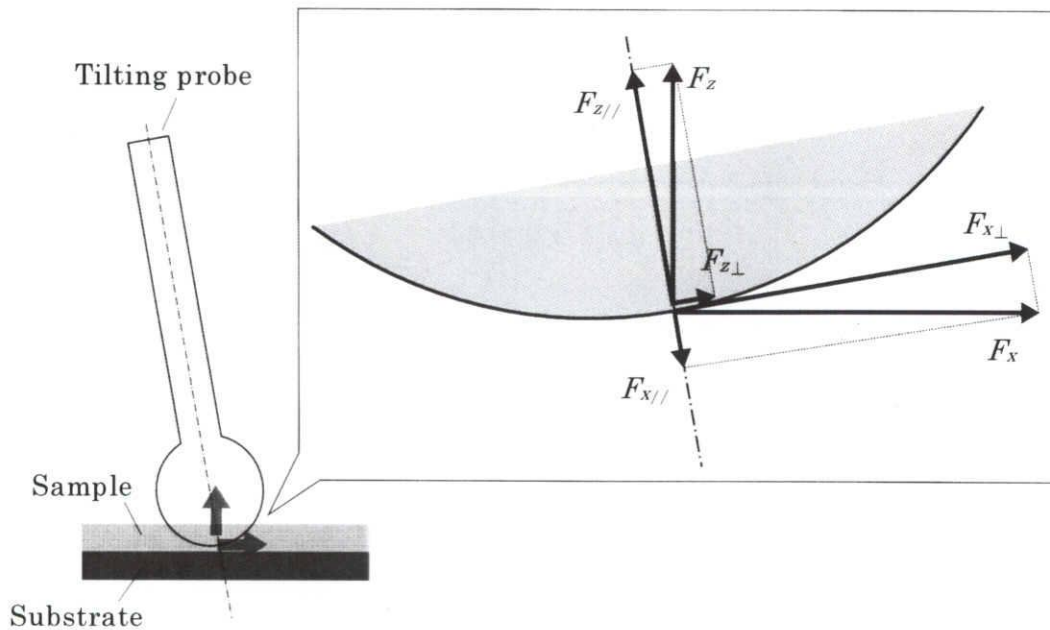


Fig. 4.18 Tilting of the optical fiber probe.

が必須である。本研究では実際、試料面の傾き調整に不備があると安定した測定結果が得られなかった。試料面の傾きを検出するために光ファイバー干渉計を利用した方法を考案した。詳細を次の第 4.4.2 項以降に述べる。

#### 4.4.2 光ファイバー干渉計による傾き調整法

光ファイバー干渉計は AFM のカンチレバーたわみ測定など nm オーダの高感度な変位測定に広く用いられている<sup>(90)-(93)</sup>。本測定装置ではこれを試料面の傾き調整に応用した。本項ではまず、光ファイバー干渉計を用いた変位測定の原理について述べ、その後、傾き調整への応用について述べる。

光ファイバー干渉計の原理を図 4.19 に示す。光ファイバーの一方の端にレーザー光を導入し(以下、この端を入射端 (Incident end) とよぶ)、他方の端(以下、この端を出射端 (Outgoing end) とよぶ)から出るレーザー光を測定対象物に照射する。出射端のガラス-空気界面では、約 96%の光が界面を透過し対象物に照射されるが、約 4%の光は界面で反射

され、入射光とは逆方向にファイバーを伝播し入射端まで戻る。これが干渉をおこすための参照光となる。測定対象物の反射率が十分に高い場合、対象物に照射された光の反射光も、再び出射端からファイバー内に入り、入射端までファイバーを伝播する。この対象物での反射光が物体光となり、出射端で反射された参照光と干渉する。干渉強度はプローブの出射端と測定対象物との隙間に起因する光路差によって変化するため、干渉強度から対象物の変位を高感度に検出することができる。干渉の光強度  $P$  は、出射端で反射される参照光の光強度を  $P_g$ 、試料で反射される物体光の光強度を  $P_s$ 、参照光と物体光の光路差に起因する位相差を  $\delta$  とすると、

$$P = P_g + P_s + P_{gs} \cos \delta \quad (4.3)$$

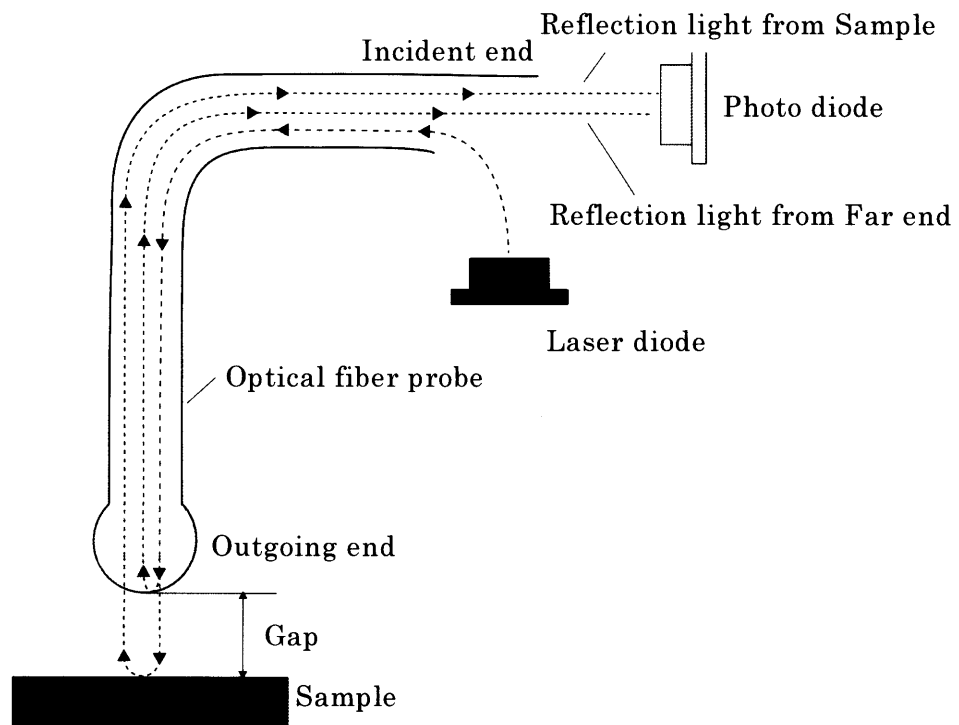


Fig. 4.19 Schematic of the optical fiber interferometry.

となる。ここで、 $P_g$ 、 $P_s$ 、 $P_{gs}$ は次のように表される。

$$P_g = \alpha |a_1|^2 \quad (4.4)$$

$$P_s = \alpha |a_2|^2 \quad (4.5)$$

$$P_{gs} = 2\alpha a_1 \cdot a_2 \quad (4.6)$$

ここで $a_1$ 、 $a_2$ は偏光を考えたときの電場の振幅ベクトルであり、 $\alpha$ は比例定数である。式(4.4)、式(4.5)、式(4.6)より

$$P_{gs} = 2 \frac{\sqrt{P_g \cdot P_s}}{|a_1| \cdot |a_2|} \cdot (a_1 \cdot a_2) = 2\sqrt{P_g P_s} \cos \theta \quad (4.7)$$

となる。ここで $\theta$ は二つの光の偏光方向ベクトルのなす角度を表す。この式(4.7)を用いると式(4.3)は次のように書き換えられる。

$$P = P_g + P_s + 2\sqrt{P_g P_s} \cos \theta \cos \delta \quad (4.8)$$

最も感度が高いと考えられる位相差 $\pi/2$ の位置から隙間が $\Delta z$ 変位したとすると、位相差 $\delta$ は、

$$\delta = \frac{2\pi}{\lambda} \cdot 2\Delta z - \frac{\pi}{2} = \frac{4\pi\Delta z}{\lambda} - \frac{\pi}{2} \quad (4.9)$$

となる。ここで $\lambda$ はレーザーの波長を表す。これを式(4.8)に代入すると、

$$P = P_g + P_s + 2\sqrt{P_g P_s} \cos \theta \cos \left( \frac{4\pi\Delta z}{\lambda} - \frac{\pi}{2} \right) \quad (4.10)$$

となる。ファイバーの入射端に入射した光の強度を  $P_{in}$  とし、 $P_g$  および  $P_s$  をそれぞれ次式のように表す。

$$P_g = R_g P_{in} \quad (4.11)$$

$$P_s = R_s P_{in} \quad (4.12)$$

ここで、 $R_g$  および  $R_s$  はそれぞれ入射端に戻ってきた参照光と物体光の  $P_{in}$  に対する光強度の割合を示す。先に述べたように出射端で 4% の光が反射され、試料での反射光がすべてファイバーに戻る理想的な状態では  $R_g = 0.04$ 、 $R_s = 0.96$  となる。式(4.11)、式(4.12)を式(4.10)に代入し、偏光方向が平行 ( $\theta = 0$ ) であるとすると、

$$P = P_{avr} + P_{amp} \sin \left( \frac{4\pi\Delta z}{\lambda} \right) \quad (4.13)$$

となる。ここで

$$P_{avr} = P_{in} (R_g + R_s) \quad (4.14)$$

$$P_{amp} = 2P_{in} \sqrt{R_g R_s} \quad (4.15)$$

とした。式(4.13)から、測定対象物の変位  $\Delta z$  の変化に対して  $P$  は図 4.20 のような干渉波形を示す。 $P_{avr}$  は干渉波形の中心値であり、 $P_{amp}$  は  $\Delta z$  の変化による干渉強度の変化幅に対応し

ている。通常の変位測定においては、式(4.13)の第二項  $P_{amp} \sin(4\pi\Delta z/\lambda)$  が変位  $\Delta z$  によって変化することを利用する。これに対して、本研究における傾き調整法においては、通常の変位測定では利用されない式(4.13)の第一項  $P_{avr}$  の変化を利用した。試料面で反射された光（物体光）が入射端まで到達して干渉を起こすには、反射後再び出射端から直径約  $10 \mu\text{m}$  のファイバーコア内に戻らなければならない。コア内に戻る光量の割合は式(4.12)に示した  $R_s$  により表される。 $R_s$  を左右する要因としては二つ考えられる。第一の要因は出射端と試料面間の隙間である。隙間が大きくなるとコア内に戻ることのできる光は減少するので  $R_s$  は減少し、逆に小さくなると増加する。第二の要因は試料面の傾きである。プローブの軸線に対して試料面が垂直になると  $R_s$  は最大値をとり、垂直からのずれが大きくなるほどコア内に戻ることのできる光は減少するので  $R_s$  は減少する。傾き調整においては後者の性質を利用する。式(4.14)および式(4.15)から  $R_s$  の変化に対して、 $P_{amp}$  は  $R_s$  の 1/2 乗に比例するのに対して  $P_{avr}$  は 1 乗に比例するので、 $P_{avr}$  のほうが  $R_s$  の変化に対して感度が高いといえる。したがって本傾き調整においては、傾きを変化させたときの  $P_{avr}$  を測定し、 $P_{avr}$  が最大値をとるような配置に試料面を調整した。図 4.20 に示したように  $P_{avr}$  は  $P$  の中心値であるので、実験的に  $P_{avr}$  を測定するには、 $P$  を測定しその平均値を算出すればよい。そこで、試料面の傾き  $\theta$  を一定として、Piezo Z を三角波で駆動することにより、隙間を  $H$  から  $H - \Delta H$  まで狭小化したときの  $P$  を

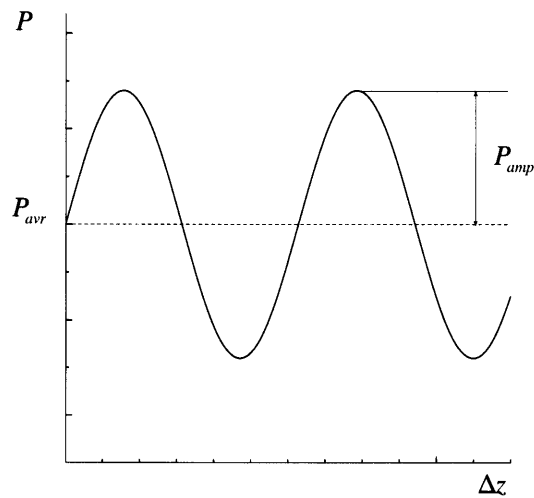


Fig. 4.20 Interference caused by the displacement  $\Delta z$ .

測定した。図 4.21 に  $\Delta H$  の隙間変化に対応する  $P$  の変化を例示する。実験的において、 $P_{avr}$  は隙間の狭小化によって線形に増加した。したがって  $P$  の平均値を算出すると、 $P_{avr}$  の平均値が得られる。これを  $\bar{P}_{avr}$  として図 4.21 に示した。 $\bar{P}_{avr}$  はおよそ  $H - \Delta H/2$  における  $P_{avr}$  に相当する。 $H$  および  $\Delta H$  を一定として、試料面の傾き  $\theta$  を  $\Delta\theta$  ずつ変化させる毎に  $P$  を測定し、その平均値である  $\bar{P}_{avr}$  を算出した。各  $\theta$  における  $\bar{P}_{avr}$  を比較することにより、試料面のプローブの軸線に対する垂直度を評価することができる。つまり、 $\bar{P}_{avr}$  が最大となるときが最も垂直度が高いことになる。光ファイバプローブを付け替える毎に傾き調整を行う必要がある。調整結果の一例を第 4.4.4 項に述べる。次項では製作した光ファイバ干渉計の構成について述べる。

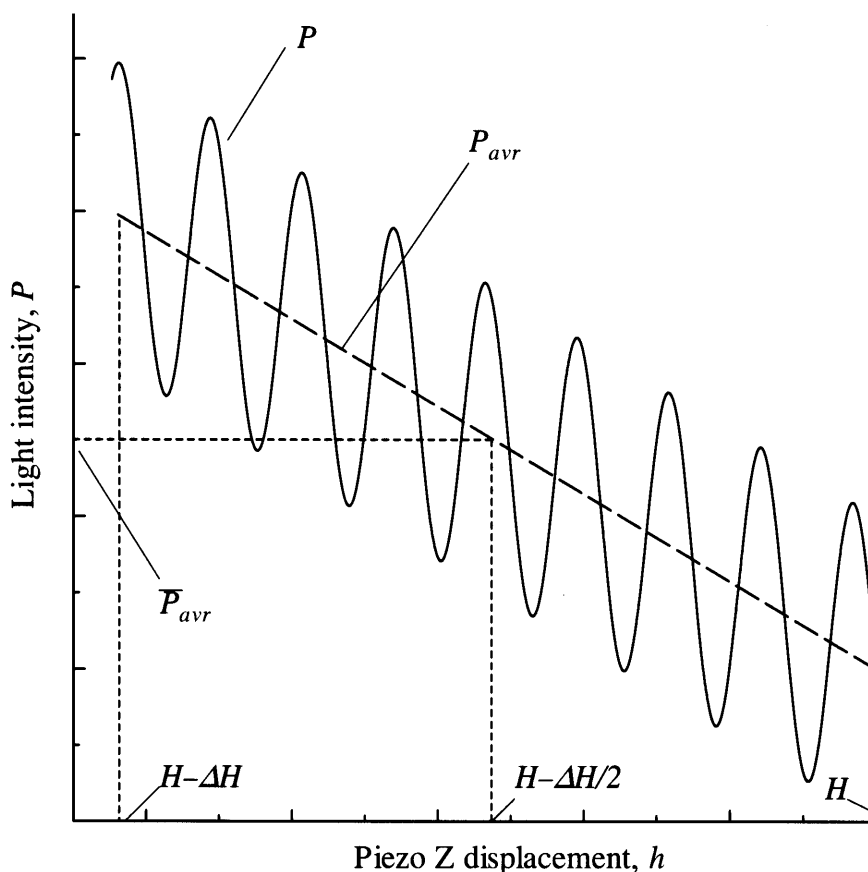


Fig. 4.21 Typical result obtained with the optical fiber interferometry.

### 4.4.3 光ファイバー干渉計の構成

光ファイバー干渉計の構成を図 4.22 に示す。図 4.19 からわかるように、ファイバーの入射端ではレーザーからの入射光の光路と、出射端および試料面からの反射光の光路を分岐する必要がある。一般的な干渉計ではハーフミラーを用いて光学系を構成するが、本測定装置ではファイバーカップラーを使用した<sup>(93)</sup>。ファイバーカップラーにより光学系を構成する利点は、光が測定部分以外すべてファイバーの中を通るため、外部環境から機械的な振動や熱などのノイズに強いという点である。またレーザーダイオードや、フォトダイオード、光ファイバプローブといった素子間がすべて光通信等で広く用いられる FC コネクタにより接続可能であるため、ハーフミラーやレンズなど一般的な光学部品を必要とせず、装置の小型化・軽量化が可能となる。さらには、光学部品を使用しないために光学系の調整が不要である。ファイバーカップラーとは二本の光ファイバーが一部で接合されており、図 4.22 に示すように四つ股に分岐した光路を形成する。四つ股のそれぞれの末端を A 末端 (A-end)、B 末端 (B-end)、C 末端 (C-end)、D 末端 (D-end) とすると、例えば A 末端から入射した光は接合部分において二つに分岐し、C 末端と D 末端から出射する。逆に C 末端から入射した光は A 末端と B 末端に分かれて出射する。本測定装置では D 末端は使用せず、A 末端、B 末端、C 末端を使用した。A 末端には光源としてレーザーダイオードを、B 末端にはフォトダイオードを、C 末端には光ファイバプローブをそれぞれ FC コネクタにより接続した。使用するレーザーダイオードの波長は 1310 nm、パワーは最大 20 mW であった。レーザーからの光は C 末端から光ファイバプローブに入り、ファイバー出射端および試料面において反射される。反射光は再び C 末端をとおり B 末端からフォトダイオードに入射する。図 4.22 では、D 末端へ分岐したレーザー光および A 末端へ分岐した反射光は測定に関係しないため省略している。フォトダイオードからの光電流を電圧に変換した後、ローパスフィルターを介しパソコンにより記録した。ローパスフィルターのカットオフ周波数は 100 Hz とした。実際に製作した光ファイバー干渉計の概観を図 4.23 に示す。

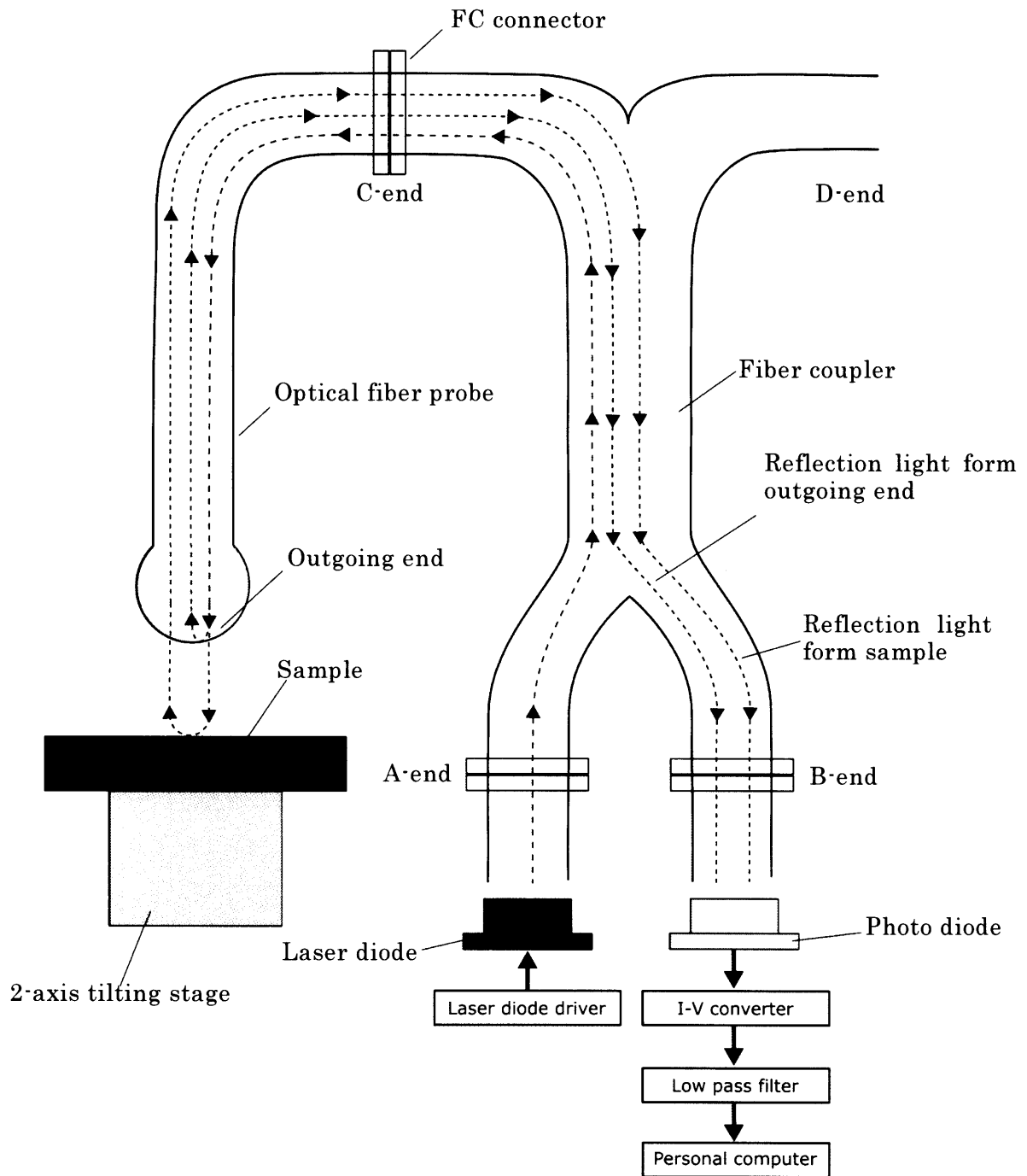


Fig. 4.22 Experimental setup of the optical fiber interferometry.





#### 4.4.4 傾き調整例

試料面の傾き調整の例を述べる。試料面の傾き調整は二軸の傾斜ステージを用いた。第一軸による角度変化を $\theta_R$ 、第二軸による傾き変化を $\theta_L$ とした。 $\theta_R$ 、 $\theta_L$ はそれぞれ図 4.24 に示すように、試料面を上からみたときに、長方形の試料ステージ (Sample stage) 面の対角線をそれぞれ軸とした回転角を表す。それぞれ初期位置において $\theta_R = 0$ 、 $\theta_L = 0$ とした。プローブ先端と試料との隙間 $H$ はモニタ上で調整し、おおよそ0.5 mmとした。Piezo Zを駆動する三角波の振幅は5 Vとし、これは $\Delta H = 6 \mu\text{m}$ に相当する。干渉波形の測定例として、 $\theta_R$ が0.96, 1.28, 1.60 deg.のときの測定結果を図 4.25 に示す。横軸に Piezo Z の発生変位 $h$ 、縦軸にフォトダイオードからの出力電圧 $V_{out}$ を示す。フォトダイオードからの電流は反転増幅して電圧に変換したので、マイナス側に大きな値をとるほど光強度 $P$ が高いことを意味する。出力電圧 $V_{out}$ の平均値を $\bar{V}_{ave}$ とする。 $\bar{V}_{ave}$ は第 4.2.2 項で述べた $\bar{P}_{avr}$ に対応する測定値である。隙間が減少するに従い光強度がほぼ線形に増加し、 $\theta_R$ の変化によって $\bar{V}_{ave}$ が増減することがわかる。 $\theta_R$ および $\theta_L$ の変化に対して出力電圧の平均値 $\bar{V}_{ave}$ をプロットしたものをそれぞれ図 4.26, 図 4.27 に示す。それぞれ $\theta_R = 1.60 \text{ deg}$ 、 $\theta_L = 1.92 \text{ deg}$ のときに、 $\bar{V}_{ave}$ が最小値すなわち $\bar{P}_{avr}$ が最大値をとることから、このときプローブの軸線と試料表面が垂直に配置されているとした。

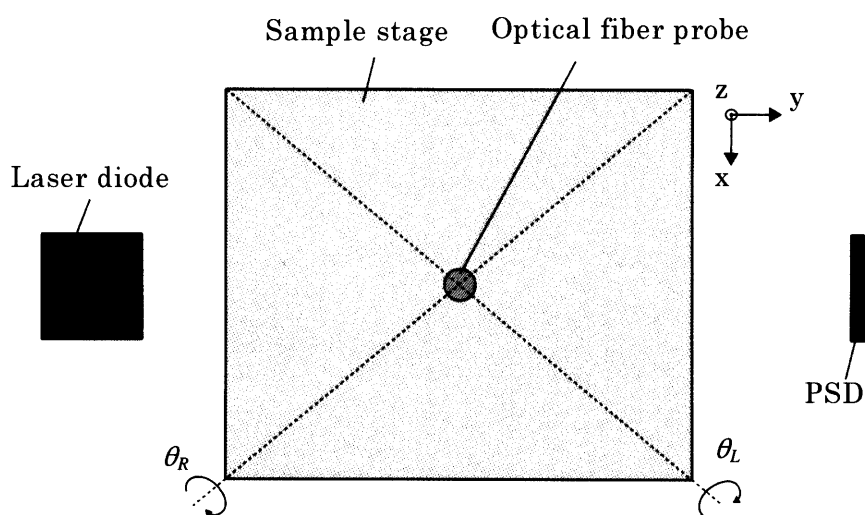


Fig. 4.24 Tilting angles of the sample stage.

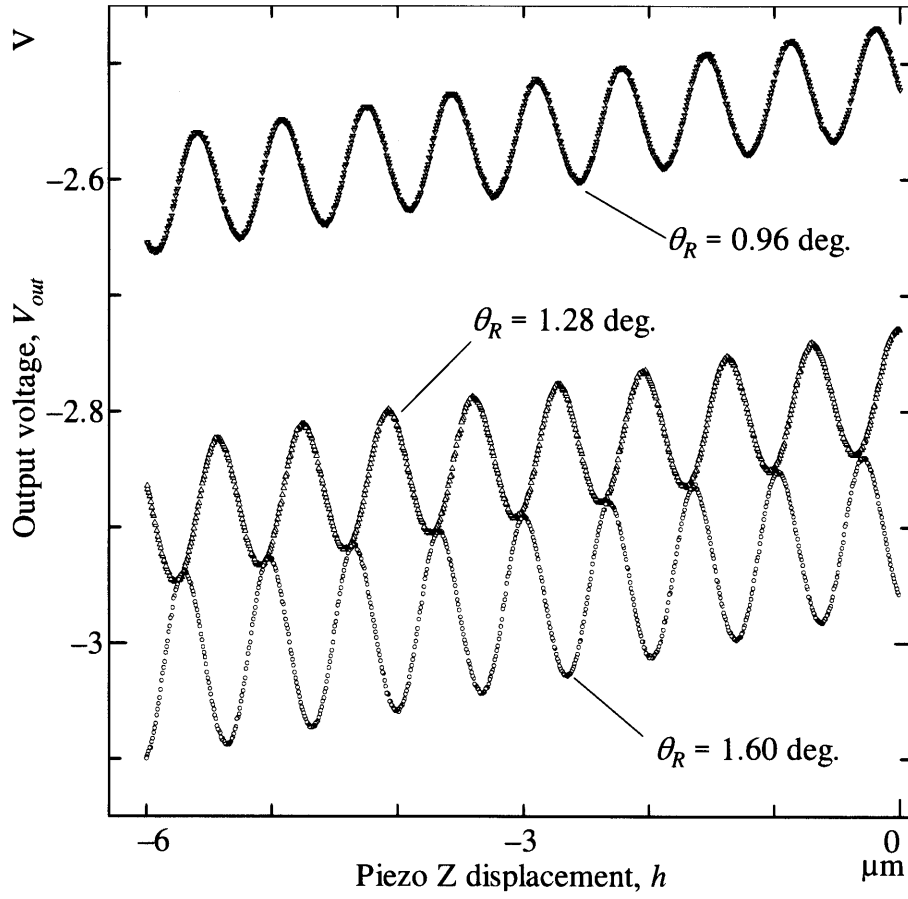


Fig. 4.25 Piezo Z displacement vs. light intensity change caused by interference.

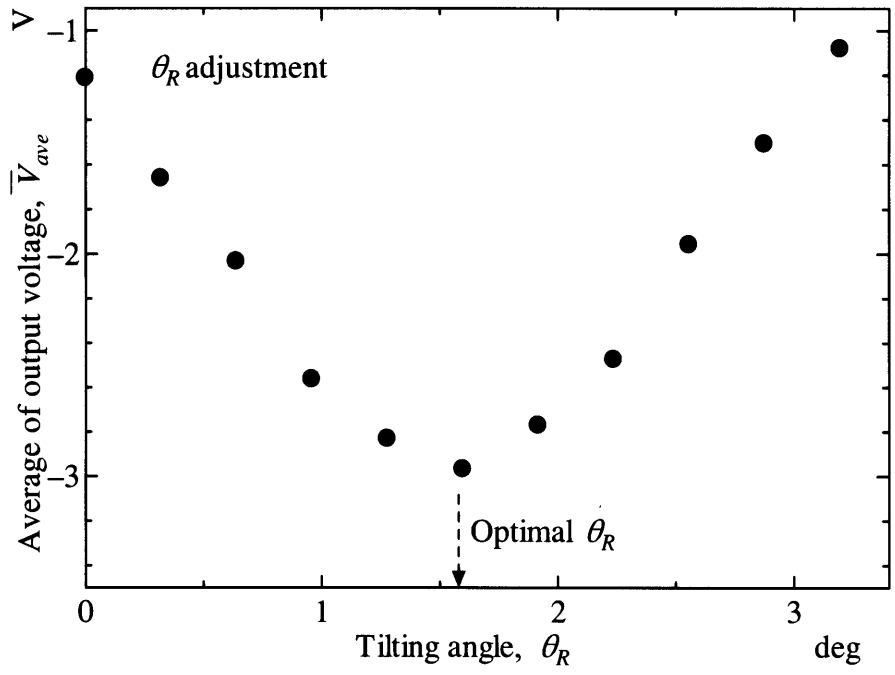


Fig. 4.26 Tilting angle  $\theta_R$  vs. average of light intensity.

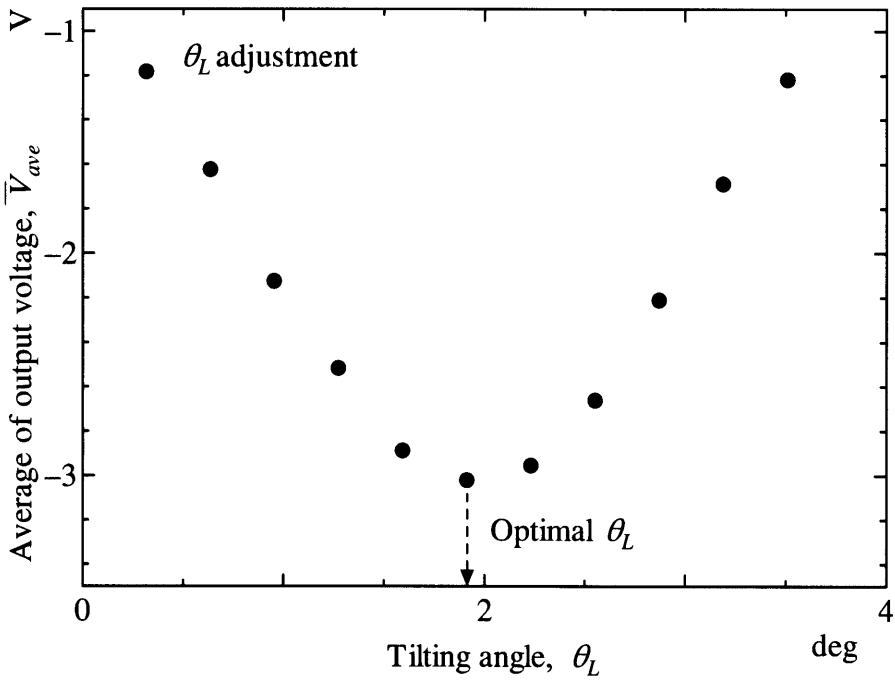


Fig. 4.27 Tilting angle  $\theta_L$  vs. average of light intensity.

# 第5章 高分子液体潤滑膜のナノレオロジー 特性測定

## 5.1 目的

本章ではファイバーウォブリング法を用いて、ナノ閉じ込めが液体潤滑剤のレオロジー特性に及ぼす影響について明らかにする。第 1.2.2 項で述べたように、従来ナノ閉じ込め状態における液体のレオロジー特性の解明は、SFA や AFM を中心に進められてきたが、これらの測定方法は任意の隙間を設定したレオロジー特性の測定が困難であるという欠点をもつ。SFA を用いたレオロジー測定では、隙間を一定に保つのに固定層による斥力と荷重を釣り合わせる必要があるため、表面間の隙間は液体試料の物性に依存し、所望の隙間を設定することはできない。特に広い隙間において液体が高い流動性をもつような場合には、表面間からの液体の排出が容易に起こるため、隙間を一定に保ったせん断によるレオロジー測定は困難となる。本実験では、隙間を  $1\mu\text{m}$  程度の広い領域から徐々に狭小化し、バルク状態からナノ閉じ込め状態に至るまでの粘性、弾性を連続的に測定することによって、隙間の狭小化がレオロジー特性に及ぼす影響を解明することを目的とする。

## 5.2 レオロジー特性の測定法

プローブの固定端を正弦的に加振したときのプローブ先端球の振動を、プローブと試料が接触していない場合（無摺動条件）と、接触摺動している場合（摺動条件）について比較すれば、レオロジー特性は両者間の振幅比と位相差を用いて、以下のように求めることができる。図 5.1 に示すように、振幅を  $F_0$ 、角周波数を  $\omega$  とする加振力  $F_0 e^{i\omega t}$  が作用する振動系の運動方程式は、プローブ先端の位置を  $x$ 、先端の球部分の質量を  $m$ 、減衰係数を  $c$  とすれば、以下のように表される。

$$m \frac{d^2x}{dt^2} + c \frac{dx}{dt} + kx = F_0 e^{i\omega t} \quad (5.1)$$

この方程式の強制振動解は、次式で与えられる。

$$x = a \cos(\omega t - \delta) \quad (5.2)$$

ここで、 $a$  は振幅、 $\delta$  は位相であり、それぞれ次式で表される。

$$a = \frac{F_0}{\left[ (k - m\omega^2)^2 + \omega^2 c^2 \right]^{1/2}} \quad (5.3)$$

$$\delta = \tan^{-1} \left( \frac{\omega c}{k - m\omega^2} \right) \quad (5.4)$$

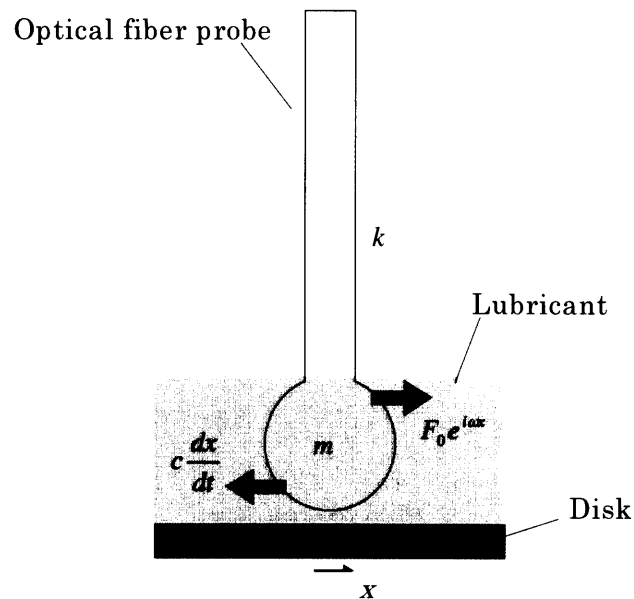


Fig. 5.1 Mechanical model for the fiber wobbling measurement.

変位振幅  $a$  と力振幅  $F_0$  の比を  $\alpha = a/F_0$  として、式 (5.3), (5.4) から減衰係数  $c$  を求めると、次式を得る。

$$c = \frac{\sin \delta}{\alpha \omega} \quad (5.5)$$

右辺の  $\omega$  は既知であり、 $\alpha$ ,  $\delta$  を測定すれば、この式より減衰係数  $c$  を求めることができる。次に減衰係数  $c$  を、摺動面の幾何学的な形状に依存しない粘性係数  $\eta$  に変換する方法を考える。減衰係数  $c$  と粘性係数  $\eta$  の関係は次式で表される。

$$\eta = \frac{c}{\Omega} \quad (5.6)$$

ここで  $\Omega$  は摺動面の幾何形状から決まる幾何パラメータである。物性値である粘性係数  $\eta$  が求まれば、任意の摺動面について、その面に固有の  $\Omega$  と粘性係数  $\eta$  の積より、減衰係数  $c$  を知ることができる。本実験系のように摺動面が球と平板により構成され、また直径  $d$  の球がニュートン流体中に完全に浸っており、かつ隙間  $h$  を介した平板に平行に運動する場合には、第 2.2 節で述べたように  $\Omega$  は解析的に求められており、次式で表される。

$$\Omega = 3\pi d \left[ \frac{8}{15} \log \left( \frac{d}{h} \right) + \dots \right] \approx \frac{8}{5} \pi d \log \left( \frac{d}{h} \right) \quad (5.7)$$

ここで右辺の近似式は、 $h \ll d$  の時に成立する。式 (5.6), (5.7) を用いれば、減衰係数  $c$  を粘性係数  $\eta$  に変換することができる。ただし式 (5.7) では、粘性係数は液体全体にわたって一定としている。つまり式 (5.7) は本来バルク状態の液体に適用する式であるが、そのままナノ閉じ込め状態の液体に適用して粘性係数を算出する。したがってナノ閉じ込めによる影響は、バルク状態の液体の粘性係数からの差として評価する。本研究では、ナノ閉じ込め状態の液体において式 (5.7) から算出される粘性係数を見

かけの粘性係数  $\eta_{\text{eff}}$  として、次式(5.8)により定義する。見かけの粘性係数  $\eta_{\text{eff}}$  は、実際は隙間方向に対して分布が存在すると考えられる粘性係数を、液体全体にわたって一定であると仮定して算出するため、隙間の狭小化した局所的な領域で発生するナノ閉じ込めの影響は、液体全体に平均化され小さく見積もられることになる。

$$\eta_{\text{eff}} = \frac{c}{\Omega} \quad (5.8)$$

流体が粘性と弾性を合わせもつような場合、その動的特性を評価するために見かけの粘性係数  $\eta_{\text{eff}}$  を次式のように複素粘性係数で表す<sup>(60)</sup>。

$$\eta_{\text{eff}} = \eta' - i\eta'' \quad (5.9)$$

ここで、 $\eta'$  は動的粘性係数とよばれる。 $\eta''$  には正式な邦名が定まっていないため、ここでは動的弾性係数とよぶことにする。潤滑剤に次式 (5.10) に示すような周期的なひずみが作用する場合、発生する応力は次式(5.11)のように表される<sup>(102)</sup>。

$$\gamma(t) = \gamma_0 \sin \omega t \quad (5.10)$$

$$\tau(t) = \gamma_0 (\omega \eta'' \cdot \sin \omega t + \omega \eta' \cdot \cos \omega t) \quad (5.11)$$

式(5.10)および(5.11)より、 $\eta''$  はひずみと同位相ではたらく応力成分に寄与し、 $\eta'$  はひずみに対して位相が  $\pi/2$  進んだ応力成分に寄与することがわかる。したがって、粘弾性をもつ液体を摺動した際にはたらく抵抗力において、 $\eta''$  は弾性的な力応答を示す成分の寄与を、 $\eta'$  は粘性的な力応答を示す成分の寄与を表す値となる。また、液体内で一周期の振動運動により散逸するエネルギー  $\Phi$  を計算すると、次式により表される。



$$\Phi = \int_0^{2\pi/\omega} \tau \cdot d\gamma = \omega \eta' \cdot \pi \cdot \gamma_0^2 \quad (5.12)$$

式(5.12)より、散逸するエネルギーは $\eta'$ に比例し、 $\eta''$ には依存しない。したがって、 $\eta'$ による力のなす仕事は散逸するが、 $\eta''$ による力のなす仕事は保存される。ゆえに、エネルギーの面から見ても $\eta'$ は粘性的であり、 $\eta''$ は弾性的である。本測定では潤滑剤の粘性を評価する値として $\eta'$ 、弾性を評価する値として $\eta''$ を算出する。ここで注意されたいのは、 $\eta'$ 、 $\eta''$ はあくまで動的なひずみに対する力応答において、粘性的であるか、弾性的であるかを評価する値であるため、潤滑剤の物性値としての粘性、弾性だけでなく、流体としての流れやイナーシャなど流体力学的な効果も反映している。そのため、 $\eta'$ 、 $\eta''$ は、必ずしも粘弾性体のモデル化に一般的に用いられるダッシュポットの粘性係数や、ばねの弾性係数に直接一致するわけではない。

式(5.8)、(5.9)を用いると、式(5.1)、(5.2)から次式を得る。

$$\eta' = \frac{\sin \delta}{\alpha \omega \Omega} \quad (5.13)$$

$$\eta'' = \frac{\cos \delta - \alpha(k - m\omega^2)}{\alpha \omega \Omega} \quad (5.14)$$

以上の関係式に基づき、実験的に試料の $\eta'$ 、 $\eta''$ を知るための手順は以下のようになる。まず無摺動条件におけるプローブの振幅 $a_0$ と、加振信号に対するプローブの位相 $\delta_0$ を測定する。 $a_0$ と $\omega$ 、および第4.2節の表4.1において示したプローブのばね定数 $k = 66.088 \text{ N/m}$ 、先端球の質量 $m = 8.06 \times 10^{-9} \text{ kg}$ を式(5.3)に代入し $F_0$ を求める。このとき、無摺動であるため潤滑剤による減衰はなく、またプローブの減衰係数は $c_p = 10^{-5} \text{ Ns/m}$ 程度であることから、プローブの加振周波数が数百 Hz～数 kHz までの範囲においては、 $\omega^2 c^2$ は $(k - m\omega^2)^2$ に比べ無視できる程度に小さいと考えられ、 $\omega^2 c^2 = 0$ とする。次に摺動条件におけるプローブの振幅 $a_1$ と位相 $\delta_1$ を測定する。これより位相差 $\delta = \delta_0 - \delta_1$ 、振幅比 $\alpha = a_1/F_0$ を算出し、式(5.13)、

式 (5.14) に代入して  $\eta'$ ,  $\eta''$  を求める.

### 5.3 供試試料と測定手順

高分子液体潤滑剤としては, ヘッド・ディスク・インタフェースの潤滑に用いられる Perfluoropolyether (PFPE) 系潤滑剤, Z03, Zdol2000, Zdol4000 の 3 種類を用いた. Z03 は分子量 4000, 無極性の潤滑剤であり, Zdol2000, 4000 はそれぞれ分子量 2000, 4000 の極性潤滑剤である. 第 1.2.1 項に詳しく述べたように極性潤滑剤の Zdol は, 固体基板 (DLC 保護膜) 上に化学的に強く吸着した単分子膜厚の固定層を形成する. 表面に吸着しなかった分子は, 固定層の間もしくは上に流動性の高い状態のまま存在する. これを流動層とよぶ. 無極性潤滑剤の Z03 は固体基板に化学的に吸着しないので, 固定層は形成せず流動層のみ形成する.

固体基板には磁気ディスクを用いた. 磁気ディスクは, ガラス基板上に磁性層, さらにその上に DLC (Diamond like carbon) 保護膜が被覆されており, 多層構造となっている. 今回実験に使用した DLC 保護膜には窒素が添加されており, この効果により極性潤滑剤の吸着性が向上している. 磁気ディスク最表面の DLC 保護膜を AFM により測定した. AFM 像を図 5.2 に, 断面形状を図 5.3 に示す. 測定の結果, 算術平均粗さ ( $R_{da}$ ) は 0.45 nm, 二乗平均粗さ ( $R_{drms}$ ) は 0.59 nm, 最大高さ ( $R_{dmax}$ ) は 2.99 nm であった.

次に実験手順について説明する. 試料を摺動する前に, 光ファイバプローブを規定の周波数と規定の振幅で加振し, その時の先端球の振幅  $a_0$  と Piezo X の加振信号に対する位相  $\delta_0$  を測定した. 次にディスク上にマイクロシリンジを用いて試料となる液体潤滑剤を滴下した. 液量は光ファイバプローブの先端球が完全に液滴に浸る程度とした. プローブ先端の球を潤滑剤の液滴に浸漬し, 無摺動時と同じ条件でプローブを加振しながら, Piezo Z を用いて試料を十分に遅い速度で垂直方向に送ることにより, プローブ先端球とディスク表面の隙間  $h$  を徐々に小さくしていき, そのときの先端球の振幅  $a_1$  と位相  $\delta_1$  を測定した. プローブの変位測定は, 先端球が潤滑剤に浸っているため, プローブファイバ部分をマイクロ円筒レンズとして用いた. Piezo Z の送りの速度は 10 nm/sec として, プローブ先端球とディスク

表面間の液体膜が破断し、固体接触が起こるまで隙間を狭小化した。固体接触した後は、Piezo Z を逆方向に同じ速度で駆動して、プローブ先端球とディスク表面を引き離す。引き離す過程においても先端球の振幅  $a_1$  と位相  $\delta_1$  を測定した。隙間を狭小化しながら摺動することをここでは接近摺動、隙間を広げながら摺動することを引き離し摺動とよぶことにする。接近摺動と引き離し摺動におけるレオロジー特性を比較することによって、レオロジー特性の隙間変化に対するヒステリシスについて検討する。

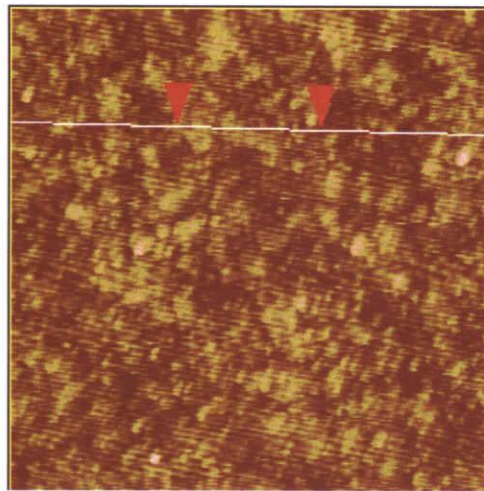


Fig. 5.2 Topographical image of the magnetic disk measured with AFM.

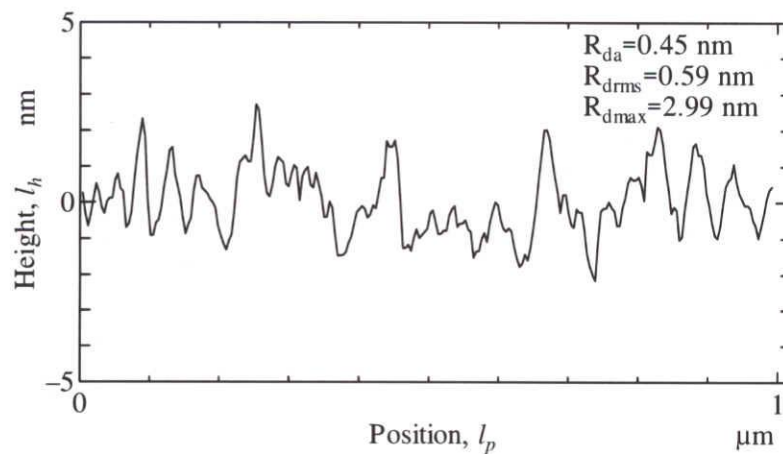


Fig. 5.3 Surface topography of the magnetic disk.

## 5.4 実効隙間の定義と接触開始点の同定法

プローブ先端球と磁気ディスクの表面は、ともに超高精度に仕上げられているが、ナノメートルレベルからみれば、図 4.11, 5.3 に示したように粗さが存在する。ナノメートルの隙間を議論する場合には、固体接触が生じている場合にも、粗さに相当する隙間が存在するため、隙間がゼロとなる原点や隙間の絶対値を単純に決めることはできない。また、接触摺動している場合にも、粗さの内部に存在する潤滑剤がせん断を受けるために、動力的な実効隙間が存在することになる。ここでは、実効隙間として、微小隙間を介したせん断流れにおいて、通常使用されている平均隙間（粗さの中心線間距離） $h_{ave}$ を使用することとする。接触開始点は摺動実験によって検出することになるが、粗さの中心間距離、つまり接触が開始したときの平均隙間を直接検出することはできない。このために、接触開始時における平均隙間を見積もる必要がある。一般に粗さの突起分布がガウス分布の場合には、確率的な接触開始点は平均隙間が約  $3R_{rms}$  のときとされている<sup>(94)</sup>。ここで  $R_{rms}$  は、相対する二面に二乗平均粗さ  $R_{brms}$ ,  $R_{drms}$  が存在するときの、等価的な二乗平均粗さを意味し、次式で表される<sup>(94)</sup>。

$$R_{rms} = \sqrt{R_{brms}^2 + R_{drms}^2} \quad (5.15)$$

これを、先端球の表面粗さ  $R_{brms}=0.21$  nm、ディスクの表面粗さ  $R_{drms}=0.59$  nm に適用すると、 $R_{rms} = 0.63$  nm を得る。後述するように、先端球および磁気ディスク表面の突起分布はガウス分布に近いので、ここでも接触開始点における平均隙間として  $3R_{rms}=1.89$  nm を用いることとする。これにより、先端球とディスク間の相対的な距離は、Piezo Z の送り量として与えられるので、接触開始点が同定されれば、先端球とディスク間の平均隙間を決定することができる。接触開始点を検出するためには、潤滑剤がない場合のほうが、検出感度を高くすることができる。そこで、まず隙間に潤滑剤を注入しない場合について、隙間を変えて摺動したときの先端球の振幅変化と位相遅れを測定し、つぎに同一の実験系において、隙間に潤滑剤を注入して同じ測定

を行った。

隙間に潤滑剤がない場合について、プローブの加振周波数 800 Hz, 無摺動時の振幅約 30 nm の条件における測定結果を図 5.4 に示す。●印は振幅, △印は位相差である。ここで、下横軸の原点（接触開始点）は実験中には未知であり, Piezo Z の送り量としての相対変位のみが既知である。接触開始点は、固体接触による振幅の急激な変化から同定することになる。振幅の折れ点をより明確に判別するために、接触領域の振幅をその変化率として表すことにする。振幅の変化率は、対象とする点とその前後 2 点を含めた合計 5 点の測定値を最小二乗法により直線近似したときの傾きから求めた。結果を図 5.5 に示す。図 5.5 において、接触開始以降にも振幅の変化率は増大し、最大値をとった後に減少し、先端球の動きが静止した点でゼロになる。変化率カーブがおおむねガウス分布状であることは、隙間の減少に伴う接触点の数の増加がガウス分布状になるという接触現象の基本的な特性とよく対応していることを示している。ここでは、振幅の変化率が急増し始める点を接触開始点と定義した。図 5.4, 5.5 の下横軸の座標は、接触開始点を原点とし、隙間が大きくなる方を正とした Piezo Z の送り量を示す。図 5.4, 図 5.5 の下横軸の Piezo Z の送り量と、接触開始時における平均隙間  $3R_{\text{rms}}=1.89 \text{ nm}$  を加算することにより平均隙間が得られ、上横軸に併記した。図 5.4 において、固体接触開始後から振幅は単調に減少するが、位相遅れは、接触開始以降の初期の間は、ほぼ一定値を維持していることがわかる。これは、接触初期においては、表面の突起同士が間欠的に接触する状態であり、位相に影響する減衰効果が小さいことを示している。さらに Piezo Z を伸張させ静止すると、振幅および位相遅れはともにほぼ一定となる。このときには、相対滑り運動は消滅しているが、先端球の接触部は接触点を節として揺動しており、振動モードの境界条件が、自由端から単純支持端へ移行したと考えられる。

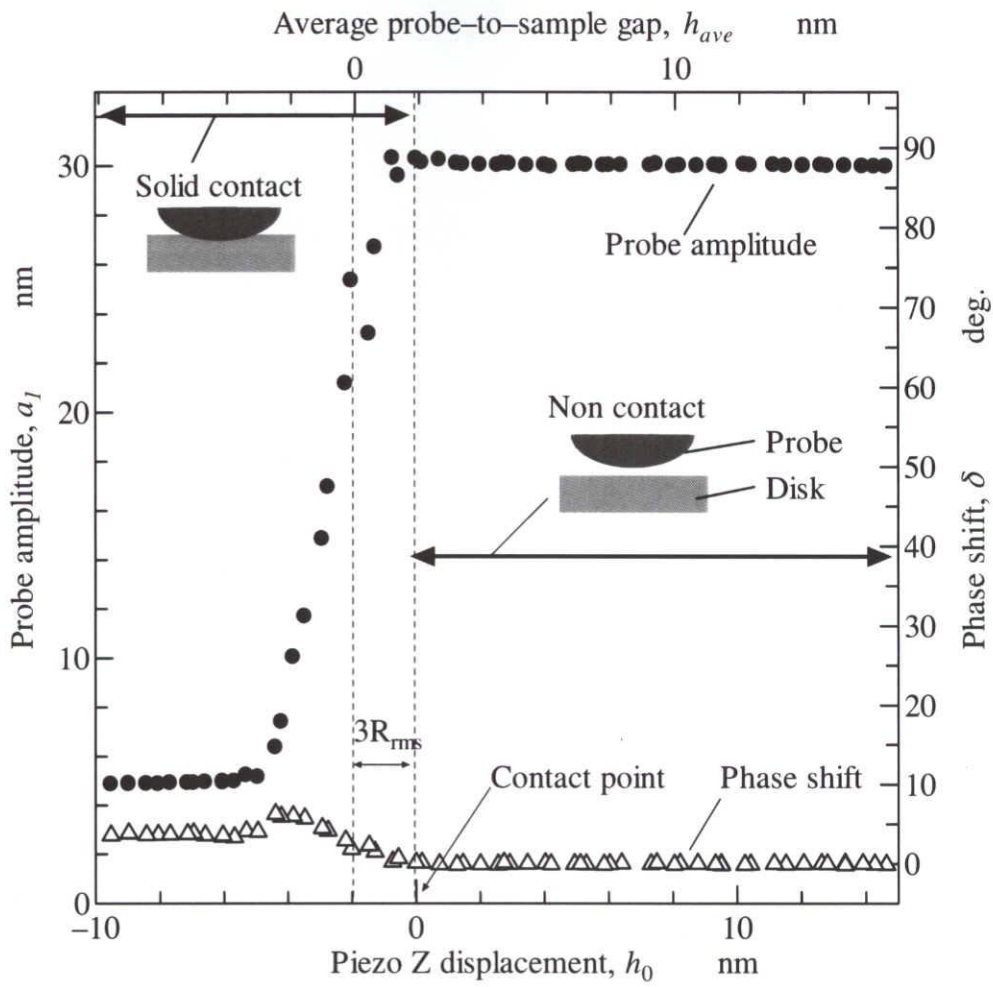


Fig. 5.4 Probe amplitude change and the phase shift measured with no lubrication.

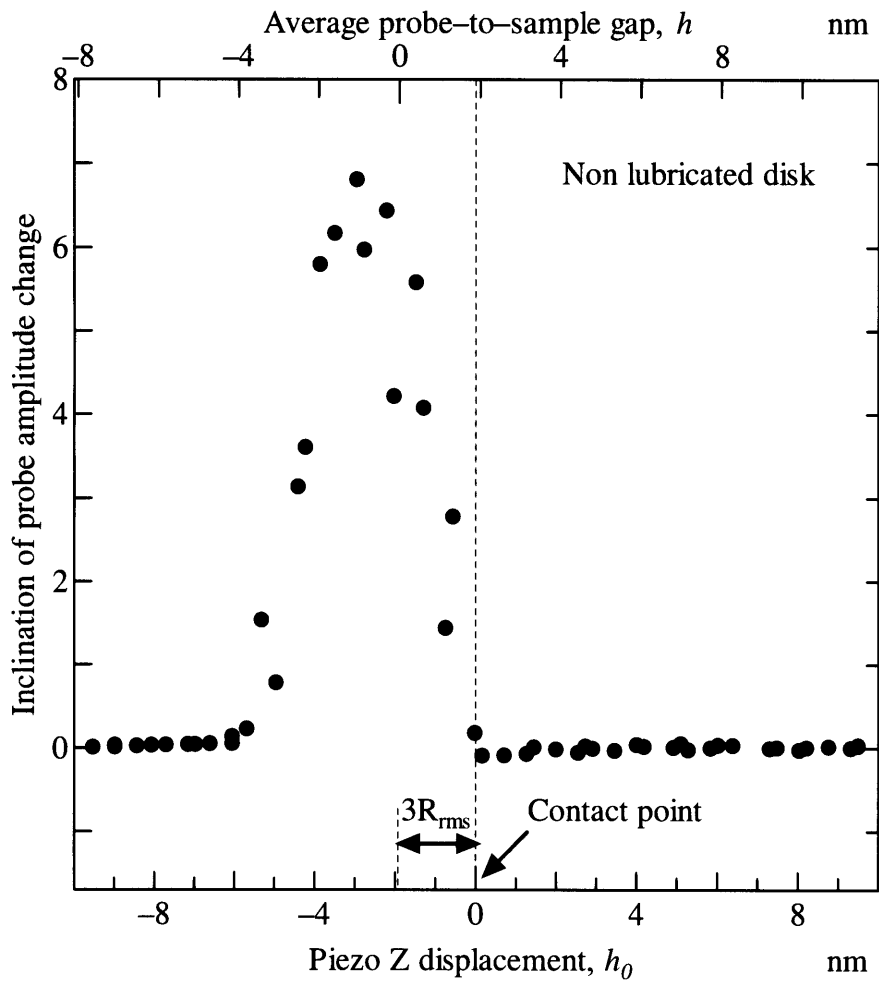


Fig. 5.5 Inclination of the probe amplitude change.

## 5.5 レオロジー特性の測定結果

潤滑剤を注入した場合について、潤滑剤がない場合と同じ条件（プローブ振動振幅 30 nm, 振動周波数 800 Hz）で、先端球の振動振幅  $a_1$  と、位相遅れ  $\delta = \delta_0 - \delta_1$  を測定した。図 5.6~5.8 は、Z03, Zdol2000, Zdol4000 それぞれについて、平均隙間 100 nm までの隙間領域で振幅と位相差をプロットしたものを示す。後述するように、接近摺動と引き離し摺動では、隙間変化に対する振幅と位相差の変化はほぼ一致するため、図 5.6~5.8 においては接近摺動時のデータのみを示す。先の第 5.4 節で述べたように、これらの図においても横軸の原点は測定中には未知であり、図 5.4, 5.5 と同様に振幅の変化率から原点を同定した。算出した変化率を、それぞれ挿入図として示す。潤滑剤がある場合も隙間を狭小化し続けると、やがて液膜が破断して固体接触が起こり、潤滑剤を介して摺動している場合に比べて、急激な振幅の減少が起こる。したがって、図 5.5 の場合と同様に変化率の急激な上昇が始まる点を固体接触開始点とし、図 5.6~5.8 の下横軸の原点とした。また図 5.4 と同様に平均隙間を上横軸に併記した。図 5.6~5.8 からわかるように、どの潤滑剤においても平均隙間の狭小化により振幅は徐々に小さくなり、位相遅れは増大し、バルクの摺動とは違った特性が現れることが分かる。これらは後述するように  $\eta'$ ,  $\eta''$  の増大を表している。

狭い隙間での変化をより詳しくみるために、図 5.6~5.8 を固体接触開始点から平均隙間 15 nm までの領域について拡大表示したものをそれぞれ図 5.9~5.11 に示す。図中、丸印は接近摺動時、三角印は引き離し摺動時の振幅・位相差をそれぞれ表す。振幅および位相差の隙間に対する変化は、接近摺動時と引き離し摺動時ではほぼ一致することがわかる。また、固体接触が開始する直前において位相遅れの増加が飽和する傾向が見られ、極性基をもつ Zdol2000, 4000 のほうが Z03 に比べより広い隙間から飽和傾向が顕著になることがわかる。固体接触がすすむと、振幅および位相差はともに一定値に漸近する。これは、潤滑剤がない場合と同様に、単純支持端の振動モードへ移行した結果と思われる。



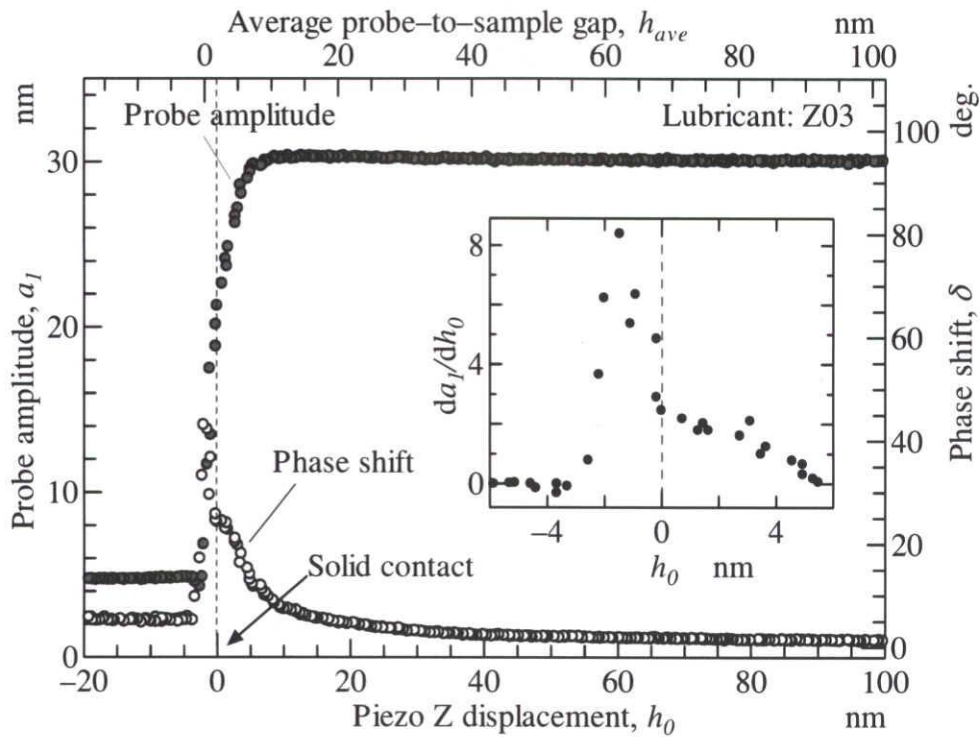


Fig. 5.6 Probe amplitude change and the phase shift measured with Z03.

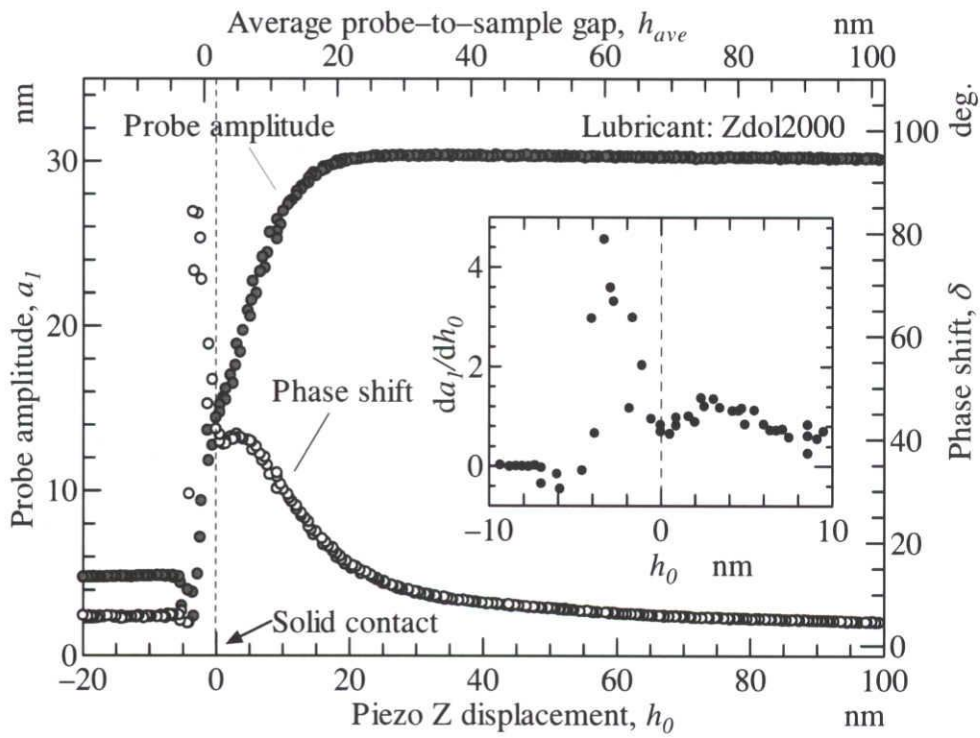


Fig. 5.7 Probe amplitude change and the phase shift measured with Zdol2000.

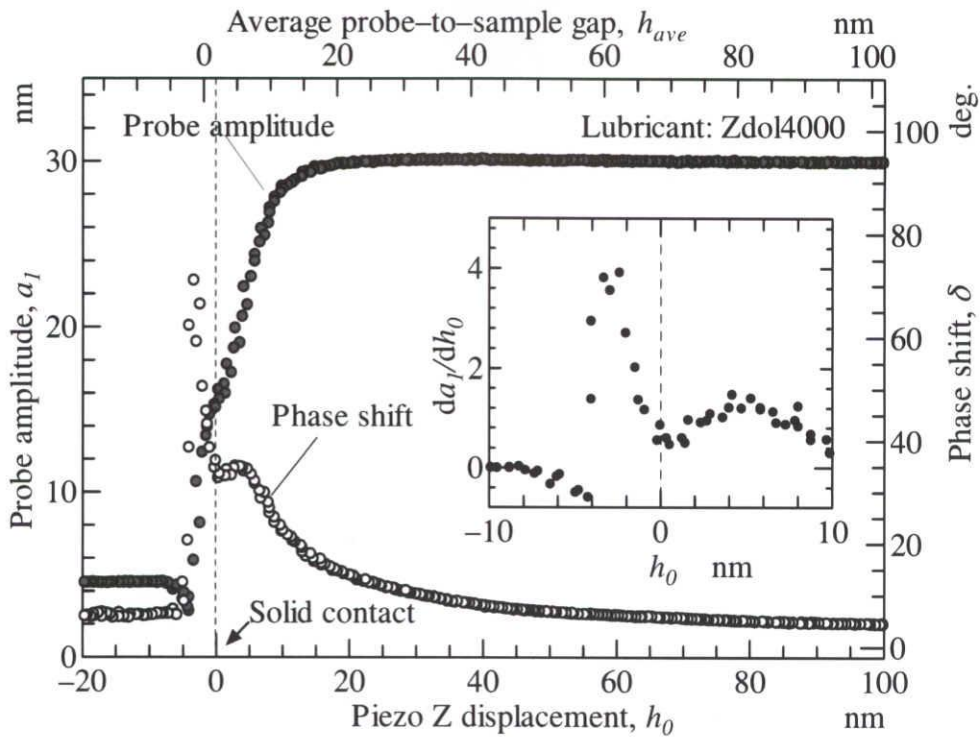


Fig. 5.8 Probe amplitude change and the phase shift measured with Zdol4000.

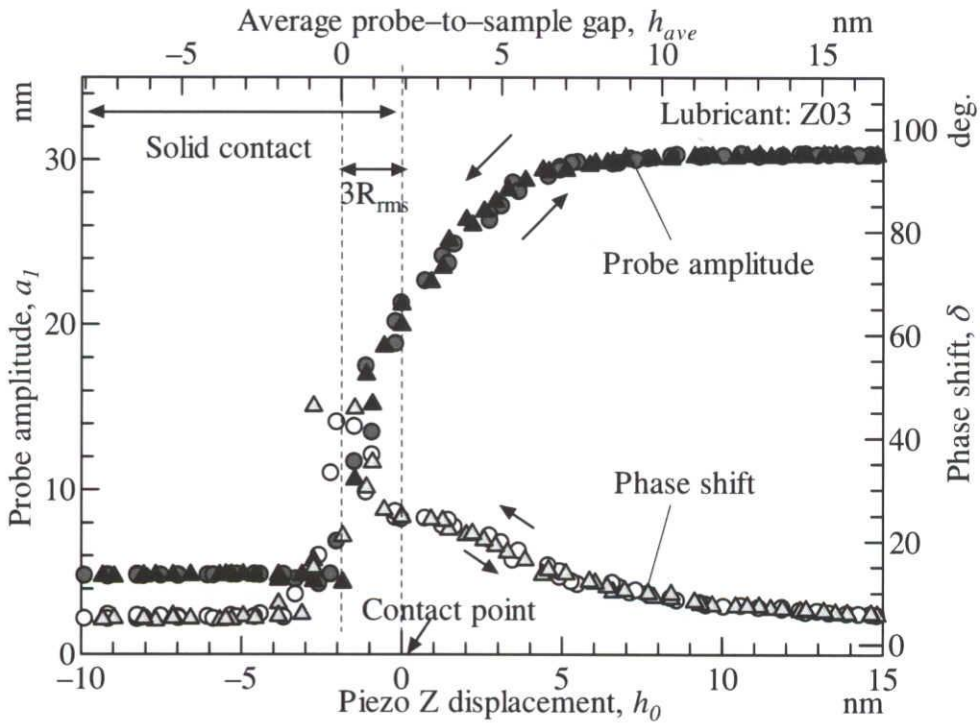


Fig. 5.9 Probe amplitude change and the phase shift measured with Z03 at  $h_0 < 15$  nm.

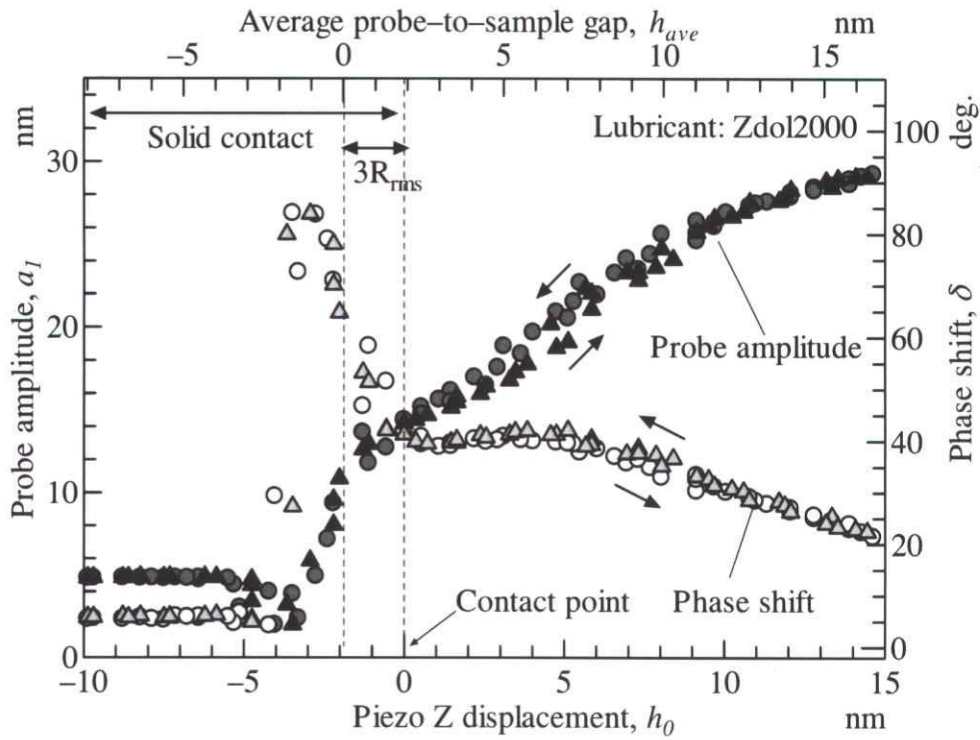


Fig. 5.10 Probe amplitude change and the phase shift measured with Zdol2000 at  $h_0 < 15$  nm.

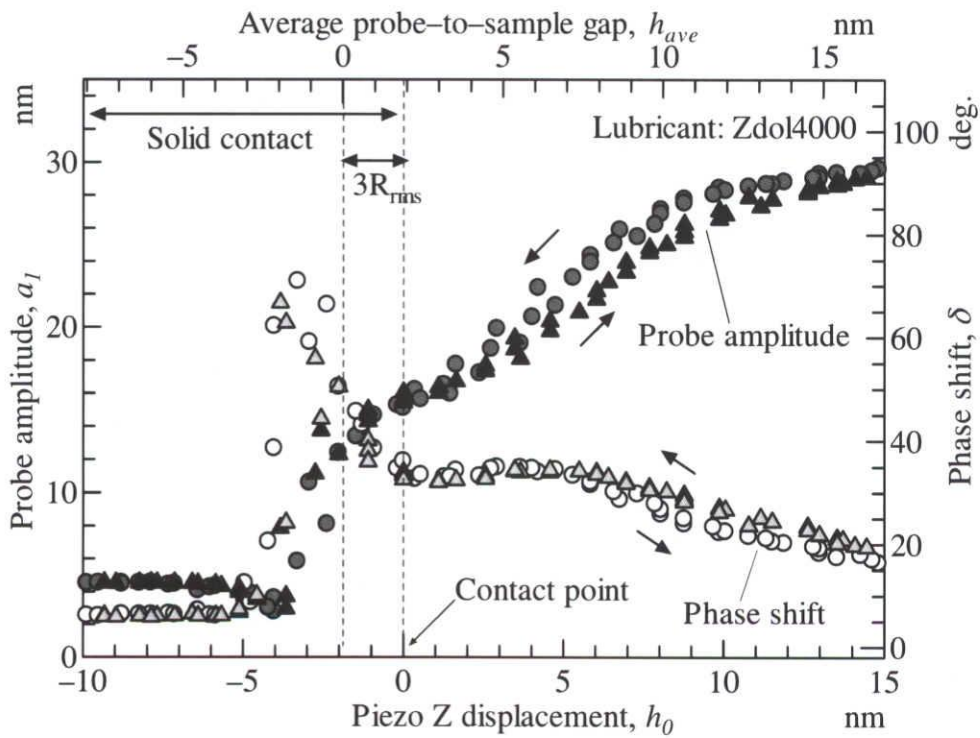


Fig. 5.11 Probe amplitude change and the phase shift measured with Zdol4000 at  $h_0 < 15$  nm.

ナノ閉じ込め効果が液体潤滑剤のレオロジー特性に及ぼす影響について評価するために、固体接触が始まる前 ( $h_{ave} > 3R_{rms} = 1.89 \text{ nm}$ ) の領域における Z03, Zdol2000, Zdol4000 それぞれについての振幅と位相差の測定結果を式 (5.13), (5.14) に代入して、 $\eta'$ ,  $\eta''$  を算出した。結果を図 5.12~5.17 に示す。図 5.6~図 5.11 の場合と同様に、図 5.12~図 5.14 には、平均隙間 0~100 nm までの領域における接近摺動時の結果を、図 5.15~5.17 には、平均隙間 0~20 nm の領域における接近摺動時および引き離し摺動時の結果を拡大表示したものを示す。さらに図 5.12~5.14 の挿入図には平均隙間 900 nm 付近までの  $\eta'$  を示す。図 5.12~5.14 から、Z03 の場合、平均隙間約 500 nm 以上、Zdol200 の場合約 700 nm 以上、Zdol4000 の場合約 800 nm 以上の領域において  $\eta'$  はほぼ一定値をとった。これは液体潤滑膜がバルクと同様の粘性係数をもつと解釈できる。本測定装置により得られたバルク状態での粘性係数は、それぞれ約 0.05 Pas, 約 0.18 Pas, 約 0.19 Pas となった。これらは概ね表 1.2 に示したバルク状態での粘性係数の文献値とほぼ一致している。この結果は本測定法の妥当性を示している。すべての潤滑剤において、平均隙間数百 nm 程度の比較的広い隙間領域から  $\eta'$  の増加がみられた。潤滑剤分子の直径は  $2R_g$  程度であることから、Z03, Zdol2000, Zdol4000 の分子直径は、Table 1.2 よりそれぞれ 2.8 nm, 2.2 nm, 3.0 nm と見積もられる。したがって、 $\eta'$  の上昇が開始する平均隙間数百 nm は、数百分子膜厚に相当する。隙間の狭小化とともに  $\eta'$  は単調に増加し続け、最大でバルク状態の 20~30 倍を示した。また図 5.15~5.17 に示した狭い隙間領域での  $\eta'$  について特徴的であるのは、Zdol2000 および Zdol4000 において、固体接触直前に  $\eta'$  の増加が停止し一定値を保つ領域が存在することである。この  $\eta'$  が一定値をとる隙間領域は、Zdol2000 の場合 4~5 nm 以下、Zdol4000 の場合 5~6 nm 以下となり、それぞれの分子直径  $2R_g$  (Zdol2000 : 2.2 nm, Zdol4000 : 3.0 nm) を考慮すると、二分子膜厚 ( $4R_g$ ) に相当する。さらに、図 5.15~5.17 の  $\eta''$  についてみると、平均隙間が大きい場合は検出感度に比して無視できるほど小さいが、数十 nm の隙間においてわずかに負に変化する。これは図 5.6~5.8 からわかるように、振幅がわずかに増加するためである。ただしこの振幅の増加は 0.1~0.2 nm 以下であり、変位測定の検出限界の 10 倍程度であるため、 $\eta''$  の有意な変化を示しているのか、測定における系統的な誤差や、外部環境からの機械

的振動，音などの誤差の影響によるものであるのか議論することは現時点では困難である．固体接触直前の数 nm 以下の隙間になると，すべての潤滑剤において  $\eta''$  は急激に上昇した．Z03 は平均隙間 5~6 nm 付近から，Zdol2000 は平均隙間 8~9 nm 付近から，Zdol4000 は平均隙間 11~12 nm 付近から上昇し，これらの平均隙間は，Z03 では二分子膜厚 ( $4R_g$ )，Zdol2000，Zdol4000 ではともに四分子膜厚 ( $8R_g$ ) に相当する．また，図 5.15~5.17 について接近摺動時と引き離し摺動時の  $\eta'$ ， $\eta''$  を比較するとほぼ一致することがわかる．このことから  $\eta'$  の上昇および  $\eta''$  の上昇は隙間変化に対して可逆的に起こる現象であることを示している．

三種類の液体潤滑剤 Z03，Zdol2000，Zdol4000 について，本測定法で見出されたナノ閉じ込めのレオロジー特性に及ぼす影響についてまとめると以下のようなになる．

- (1)  $\eta'$  は，摺動隙間の減少にともない平均隙間が数百分子膜厚に相当する領域から，緩やかに上昇を開始し，固体接触にいたるまで単調に増加を続け，最大値はバルク状態の 20 倍から 30 倍に達する．ただし，極性潤滑剤 Zdol2000，4000 では，二分子膜厚 ( $4R_g$ ) に相当する隙間領域において  $\eta'$  の増加が停止し，固体接触まで一定値を保つ．
- (2)  $\eta''$  は平均隙間が広い領域では無視できる程度に小さいが，無極性潤滑剤 Z03 の場合では二分子膜厚 ( $4R_g$ ) 以下，極性潤滑剤 Zdol2000，4000 の場合では四分子膜厚 ( $8R_g$ ) 以下において急激に増加する．
- (3) ナノ閉じ込めによる  $\eta'$ ， $\eta''$  の増加現象は隙間変化に対して可逆的である．

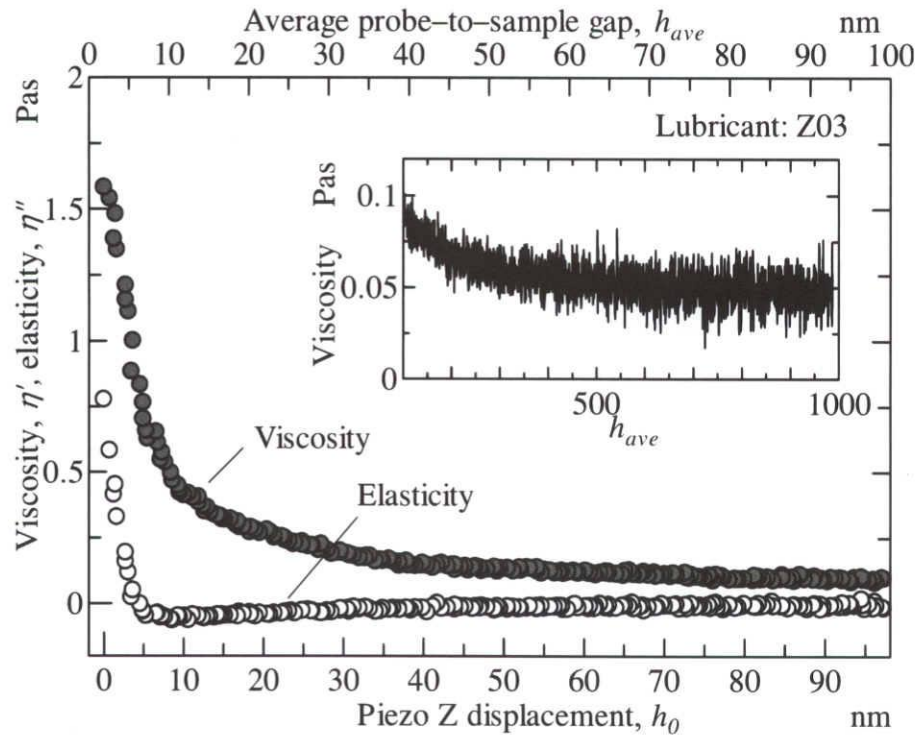


Fig. 5.12 Effect of the probe-to-sample sample gap  $h_{ave}$  on  $\eta'$  and  $\eta''$  with Z03.

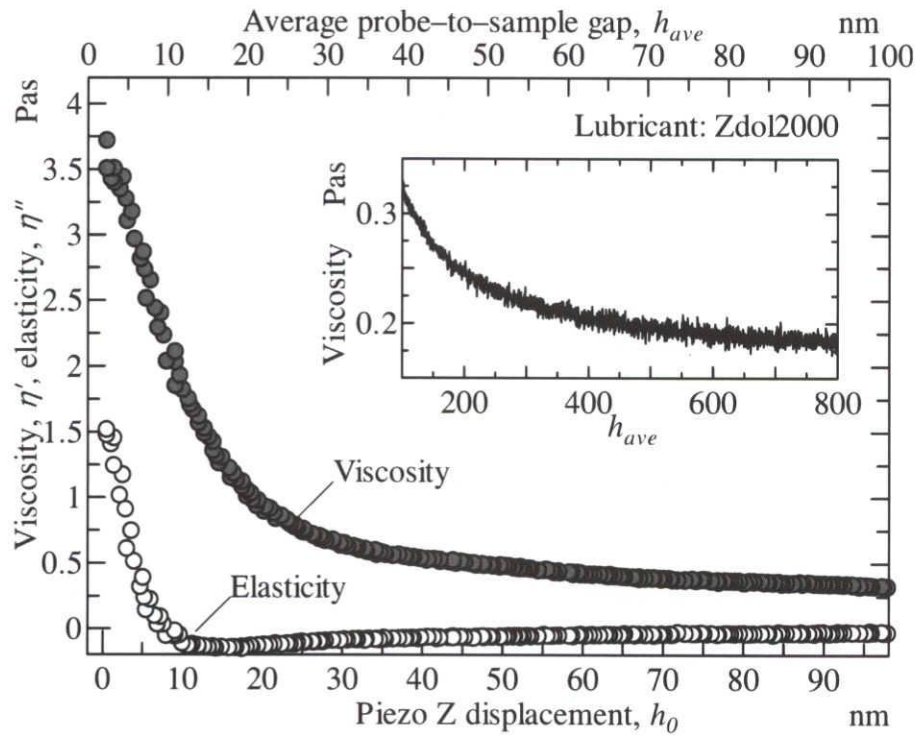


Fig. 5.13 Effect of the probe-to-sample gap  $h_{ave}$  on  $\eta'$  and  $\eta''$  with Zdol2000.

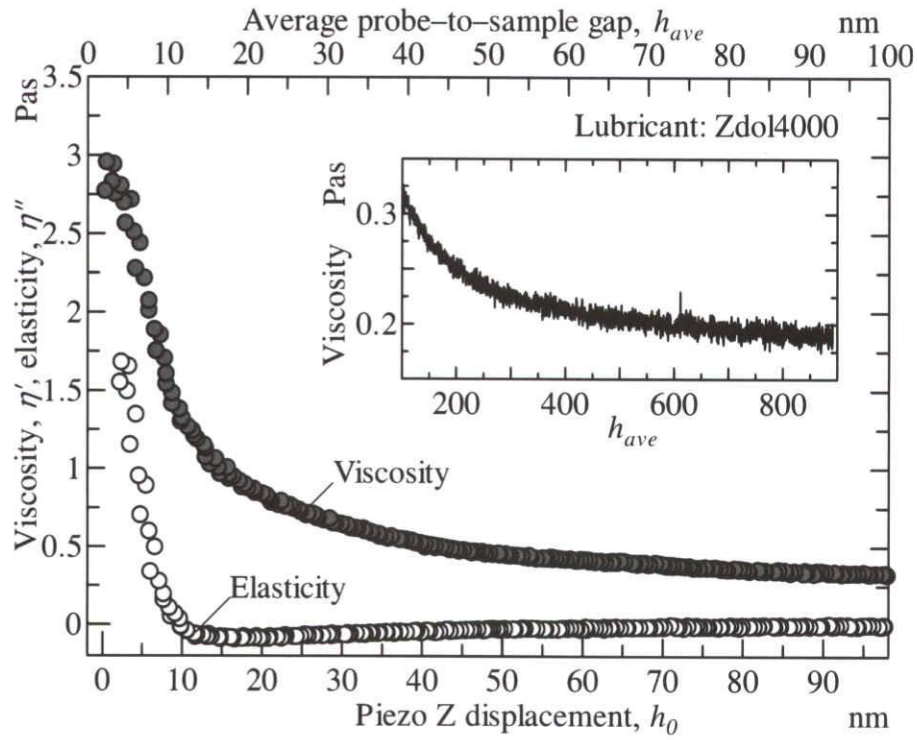


Fig. 5.14 Effect of the probe-to-sample gap  $h_{ave}$  on  $\eta'$  and  $\eta''$  with Zdol4000.

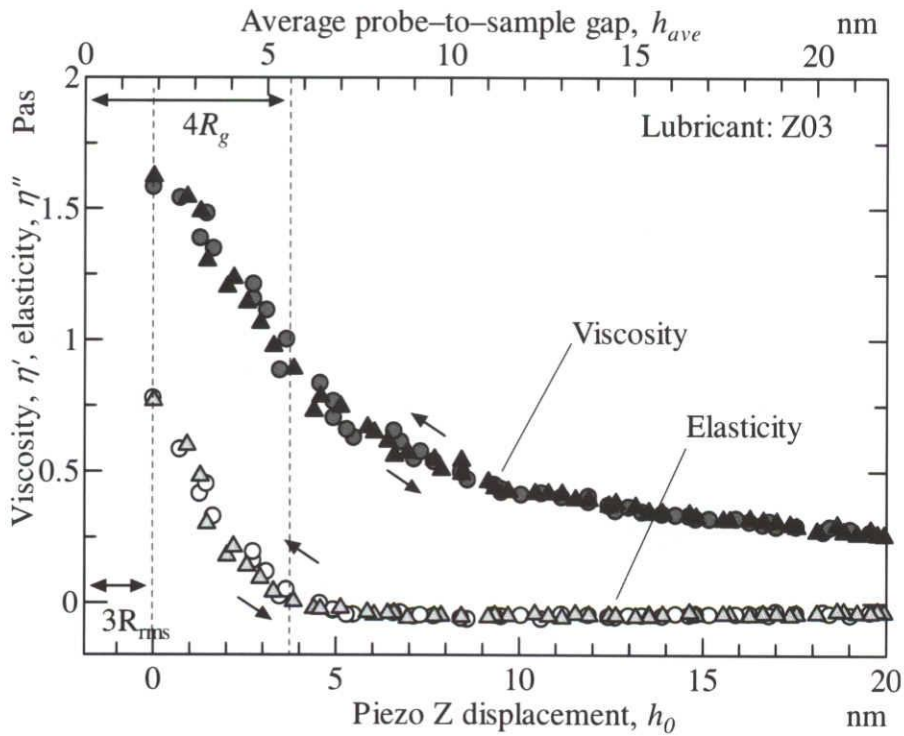


Fig. 5.15 Effect of the probe-to-sample gap  $h_{ave}$  on  $\eta'$  and  $\eta''$  with Z03 at  $h_{ave} < 20$  nm.

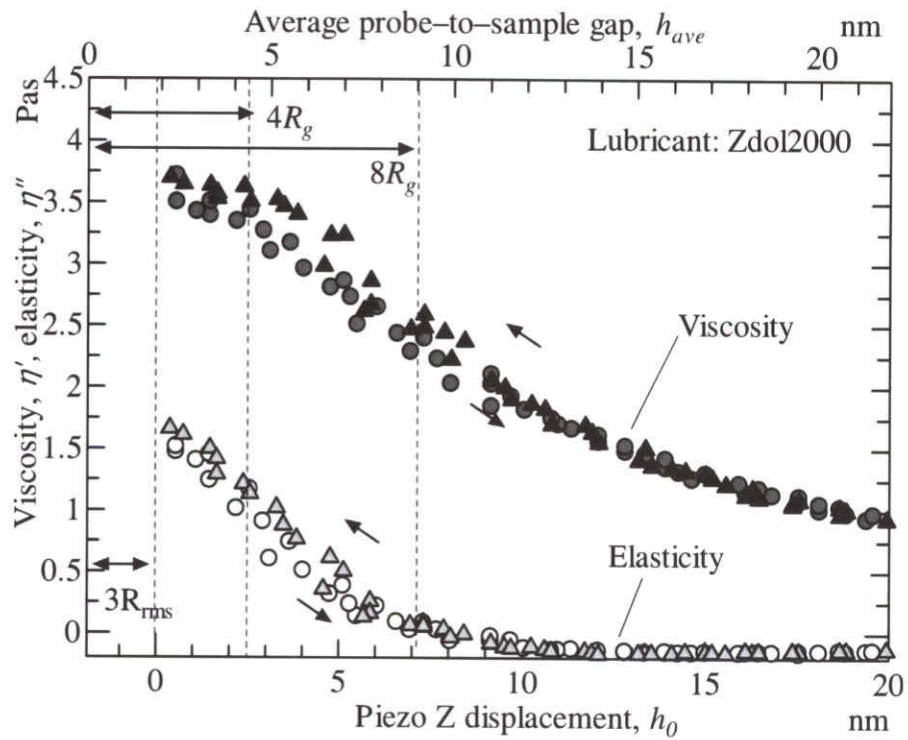


Fig. 5.16 Effect of the probe-to-sample gap  $h_{ave}$  on  $\eta'$  and  $\eta''$  with Zdol2000 at  $h_{ave} < 20$  nm.

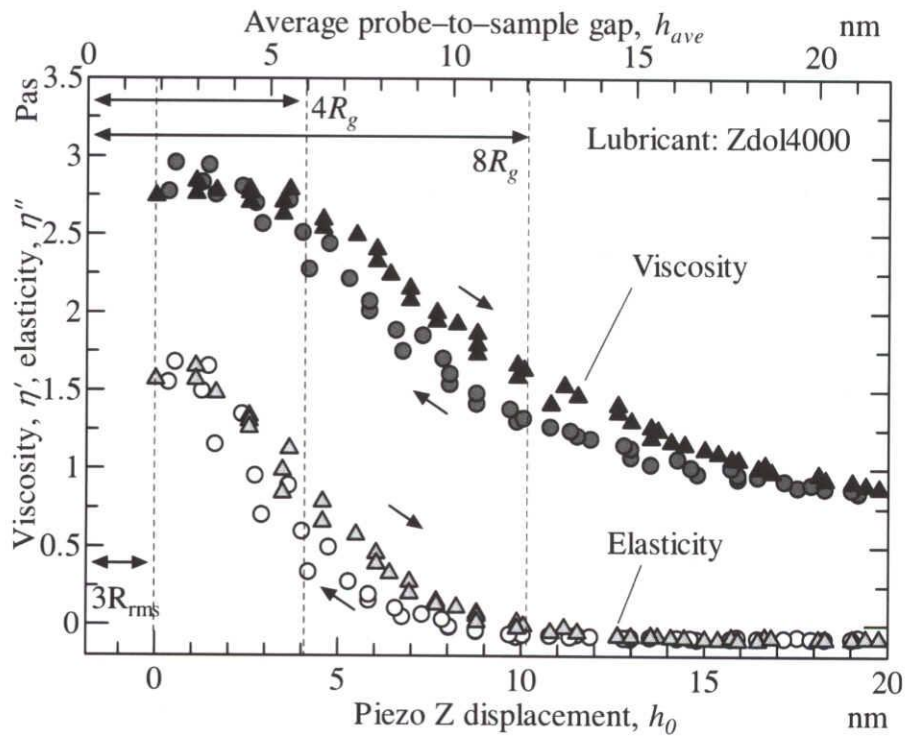


Fig. 5.17 Effect of the probe-to-sample gap  $h_{ave}$  on  $\eta'$  and  $\eta''$  with Zdol4000 at  $h_{ave} < 20$  nm.



## 5.6 考察

前節までにファイバーウォブリング法によって広い摺動隙間から、ナノ閉じ込め、そして固体接触に至るまでの、各隙間における液体潤滑剤のレオロジー特性を、体系的に測定可能となることを示した。従来用いられてきた SFA (Surface force apparatus) では荷重をかけることによって隙間を制御するため、広い隙間から狭い隙間までの各隙間におけるレオロジー特性を、任意に選択し測定することは困難である。これに対して本ファイバーウォブリング法では、任意の隙間におけるレオロジー特性を体系的に測定することにより、ナノ閉じ込めが液体に及ぼす影響をより詳細に検討することができる。ただし、本研究において測定した  $\eta'$  および  $\eta''$  は第 5.2 項で述べたように動的なひずみに対する力応答を表す値であり、潤滑剤の物性値としての粘弾性だけでなく流体力学的な効果を反映している可能性がある。流体力学的な効果の寄与についての詳細は今後の課題であるが、本節の考察においては、プローブの加振振幅が分子寸法の数倍程度と微小であるため無視できると仮定する。また、式(5.7)を適用することにより算出された、 $\eta'$ 、 $\eta''$  は式 (5.9) において示したように見かけの値であり、厳密な値に比べるとナノ閉じ込めの影響が低く見積もられていると考えられる。厳密な値を算出するためには、隙間による粘性係数の変化を考慮した式(5.7)に替わる理論式が必要となるが、現段階ではナノ閉じ込めの粘弾性特性に及ぼす影響について未解明な部分が多いため、そのような理論式の確立は困難である。しかしながら、実際の測定結果において、見かけの粘性係数がナノメートルオーダーの微小な隙間の変化によって大きく変わることから、先端球全体を取巻く液体のうち基板とのナノメートルスケールの隙間に閉じ込められた液体の影響が、プローブ先端にはたらく減衰作用において支配的であり、見かけの粘性係数はナノ閉じ込め状態の液体の粘性係数を十分に反映していると考えられる。本節ではファイバーウォブリング法によって得られたナノ閉じ込めによる  $\eta'$ 、 $\eta''$  の特異的な変化を、SFA によってこれまで明らかにされてきた結果と比較しながら、今回の研究によって新たに得られた事実と、そのメカニズムについて順に考察する。

第 5.5 節に述べたレオロジー特性の測定結果から、隙間の狭小化に対するレオロジ

一特性の変化は固定層を形成しない Z03 の場合と、固定層を形成する Zdol2000, 4000 の場合の二つのパターンに分けることができる。以後 Zdol2000 および Zdol4000 をあわせて Zdol とよぶことにする。ナノ閉じ込め状態における Z03 および Zdol について、それぞれ特徴的な隙間とレオロジー特性の変化の関係を、図 5.18 および 5.19 に模式的にまとめた。隙間を狭小化していくと、Z03, Zdol とともに数百分子膜厚から  $\eta'$  が上昇し始める (図 5.18 (b), 図 5.19 (b))。この広い隙間での  $\eta'$  の上昇は、固定層を形成しない Z03 と形成する Zdol の両方にみられることから、固定層が何らかの影響を及ぼしている可能性は考え難く、また隙間の大部分は流動的な分子で満たされていることから、流動的な分子の運動性が低下していると考えられる。数百分子膜厚の広い隙間における流動的な分子の  $\eta'$  の上昇のメカニズムは、これまで SFA による研究から明らかにされた、固体表面における幾何学的な制限効果によって、配列・構造化した液体分子による  $\eta'$  上昇とは異なる。固体表面における液体分子の構造化は、配列しやすい球形の OMCTS においても隙間方向に対して十分子程度までしか起こらない<sup>(45)</sup>。本研究において測定した Z03, Zdol は高分子溶融体であるため、OMCTS にくらべ配列しにくく、数百分子膜厚まで配列・構造化しているとは考え難い。これまで SFA を用いた実験においても、構造化が起こらない数十 nm の広い隙間領域での  $\eta'$  の上昇が報告されているが<sup>(49)</sup>、明確なメカニズムの解明はなされていない。典型的な説明としては、固体壁面上に流動に関与しない固定層が存在しているために、液体の実際に流動することのできる隙間が固体壁面間の隙間よりも狭くなっているために、 $\eta'$  が増加したように測定されるとするものである<sup>(55)</sup>。ただしこれは数十 nm 程度の隙間における  $\eta'$  の上昇は説明可能であるが、本研究において測定している数百 nm の隙間における  $\eta'$  の上昇は説明できない。また直鎖状の高分子においては、図 5.20 に示すように片方の末端のみが固体表面に吸着した場合、自由に揺動する他方の末端が相互作用するために固定層膜厚よりも広い隙間から  $\eta'$  が上昇するとする説や、図 5.21 に示すように流動的な分子が固定的な分子に“ピン止め”されることにより広い隙間まで影響を及ぼすとする説がある<sup>(57)(60)</sup>。ただしこれらによって説明可能となるのは、固定層膜厚の数倍程度の隙間における  $\eta'$  の上昇である。ファイバーウォブリング法によって測定した、数百分子膜厚における  $\eta'$  の上昇は、これまでの SFA を中心としたナノ閉じ込め

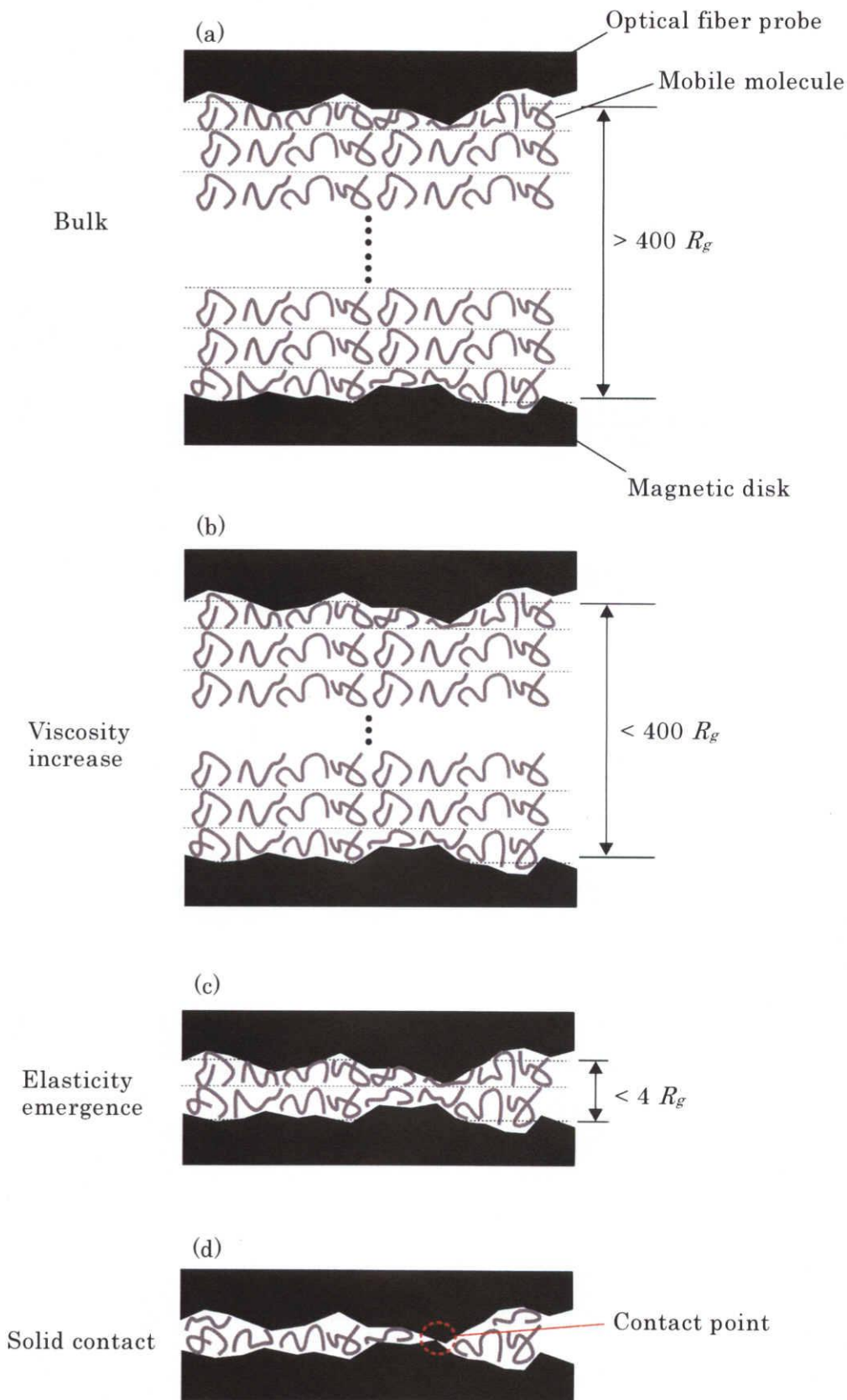


Fig. 5.18 Schematic of nonpolar molecules (Z03) confined in nano-meter-scale gaps.

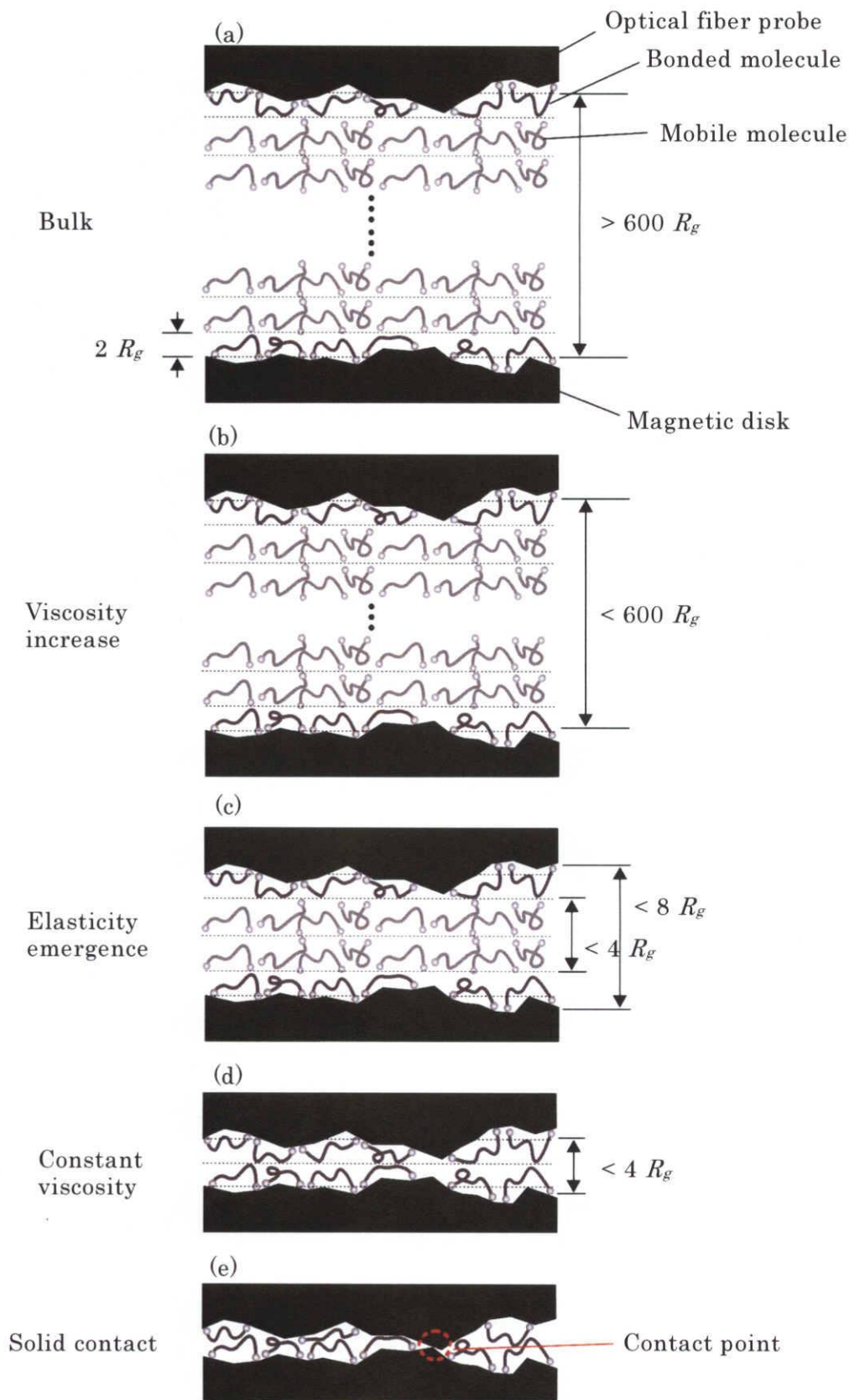


Fig. 5.19 Schematic of polar molecules (Zdol) confined in nano-meter-scale gaps.

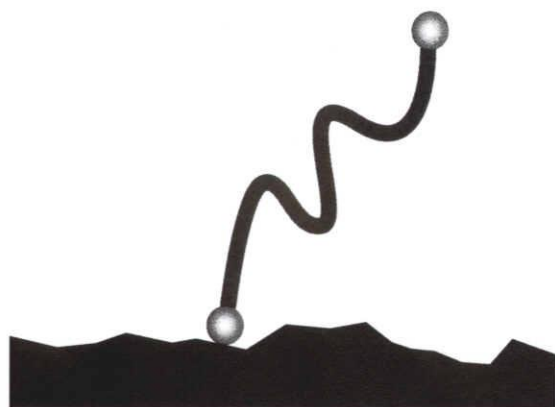


Fig. 5.20 End adsorbed polymer.

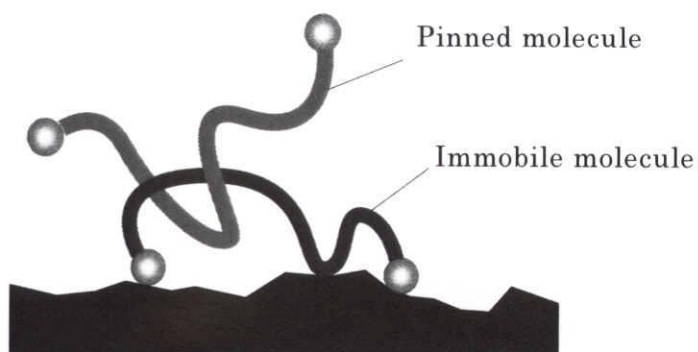


Fig. 5.21 Pinned polymer molecule.

状態の液体のレオロジー研究の結果からは説明が困難であり、詳細なメカニズムについては今後検討が必要であるが、せん断による液体分子の配列の効果が考えられる。山田らは SFA を用いた実験によって、ランダムコイル状に丸まった直鎖状の高分子が、ナノ閉じ込め状態におけるせん断によって伸張し配列することを明らかにした<sup>(95)(96)</sup>。この結果は、これまで固体表面の幾何学的な制限効果によって配列するとされていた液体分子の構造化のメカニズムとは別に、せん断によっても分子は構造化し $\eta'$ の上昇を引き起こす可能性があることを示唆するものである。せん断により分子が配列する

のであれば、固体表面からの影響のない広い隙間における液体分子も構造化する可能性があり、本研究において測定した隙間数百分子膜厚での $\eta'$ の上昇のメカニズムが説明可能となるかもしれない。ただし注意すべきは、彼らの実験ではSFAを用いているために、隙間は数 nm に設定されており、非常に流動性の低下した分子をせん断した結果であるので、本研究において測定した数百分子膜厚という広い隙間における、流動性の高い分子の $\eta'$ の上昇のメカニズムの解明に適用できるかどうかは今後の課題である。

$\eta''$ についてみると、隙間が広い領域では無視できる程度に小さいが、無極性の Z03 は二分子膜厚 ( $4R_g$ )、極性のある Zdol は四分子膜厚 ( $8R_g$ ) の隙間領域から $\eta''$ の増加がみられた (図 5.18 (c), 図 5.19 (c)). Z03 は固定層を形成しないため、流動的な分子であっても二分子膜厚まで狭小化されると $\eta''$ が増加すると考えられる。Zdol の場合、固体表面にそれぞれ単分子膜厚 ( $2R_g$ ) の固定層が存在するため、 $\eta''$ の増加はそれらに挟まれた二分子膜厚 ( $4R_g$ ) の流動的な分子のナノ閉じ込めから発生していると考えられる。したがって、潤滑剤の極性に関係なく、Z03 および Zdol とともに二分子膜厚 ( $4R_g$ ) の流動的な分子において $\eta''$ が増加する。二分子膜厚 ( $4R_g$ ) 以下の隙間領域における Zdol の $\eta''$ の増加は、固定層同士の接触が寄与していると考えられる。 $\eta''$ が増加し始めた隙間から、二分子膜厚分の隙間を狭小化したとき、つまり Z03 の場合は固体接触直前、Zdol の場合は固定層同士が接触する直前における $\eta''$ をそれぞれ比較すると、すべて 1 Pas 程度となった。したがって、 $\eta''$ の増加は定量的にみても極性基の有無や、分子量の違いを反映しない。SFA などを用いて測定される $\eta''$ の増加は、ナノ閉じ込めによって固化した分子において発生するものであり、いわゆるエネルギー弾性に相当すると考えられる。液体分子が固化した場合、隣接分子同士の位置の交換 (分子の移動) は極度に低下し、その動的特性はセグメントレベルの局所運動に依存し分子構造の違いを敏感に反映しない<sup>(97)</sup>。したがって、ナノ閉じ込めにより固化した状態では、Z03 と Zdol の $\eta''$ が同程度となることが SFA を用いた測定結果により示されている<sup>(63)(64)</sup>。一般に粘性係数は隣接する分子間に働く二次結合力 (Van der Waals 力、水素結合力、絡み合い力など) に基づいて発現する物性である<sup>(98)</sup>。ファイバーウォブリング法によって測定した、流動的な分子による $\eta''$ の増加がおこる隙間領域では、Z03

の  $\eta'$  は Zdol に比べると三分の一程度と低く、これは隣接分子間の二次結合力の違いを反映していると考えられる。このことから流動的な分子は、二分子膜厚においても固化していないと考えられ、それらの示す  $\eta''$  は SFA により観測されたエネルギー弾性と発現のメカニズムが異なると考えられる。弾性的な動特性の発生メカニズムとしてはエネルギー弾性のほかに、エントロピー弾性がある<sup>(99)</sup>。分子鎖が外力により引き伸ばされた場合、ランダムコイル状の方が高いエントロピーもつ分子であれば、丸まろうとする弾性力、いわゆるエントロピー弾性がはたらく。このエントロピー弾性力は主鎖の活発なミクロブラウン運動に起因するため、主鎖の構造が同じである Z03 と Zdol において、発現する  $\eta''$  が定量的に等しくなるという測定結果と矛盾しない。ただし一般にエントロピー弾性の発現する条件としては、ゴムのよう分子同士が架橋されて網目鎖を構成している必要がある。外力により架橋点間が離され、分子鎖が引き伸ばされたとき、網目構造が不安定となればエントロピー弾性によって分子鎖は元に戻ろうとする。本研究において測定した Z03 および Zdol は、網目構造を持たないために分子を引き伸ばす架橋点は存在しないが、せん断により分子が引き伸ばされるようなことが起これば、エントロピー弾性がはたらく可能性がある。詳細なメカニズムの解明については今後の課題であるが、エントロピー弾性かエネルギー弾性かを区別するには、液体試料の温度をパラメータとしてレオロジー測定を行う方法が考えられる。エントロピー弾性は分子鎖のミクロブラウン運動に起因しているため温度の影響を受けやすいが、一方エネルギー弾性は温度の影響を受けにくい。したがって温度による弾性の変化を測定することができれば、流動的な分子による  $\eta''$  の増加の発現メカニズム解明に有益な知見が得られると考えられる。

隙間の更なる狭小化によって、固定層を形成しない Z03 は固体接触に至る (図 5.18 (d))。Zdol は二分子膜厚 ( $4R_g$ ) 相当の隙間になると、 $\eta''$  は上昇し続けるが  $\eta'$  の上昇は停止し固体接触にたるまでほぼ一定値を保つ。Zdol は固体表面に単分子膜厚 ( $2R_g$ ) の固定層を形成することから、二分子膜厚相当の隙間においては、固定層同士の接触が起こっていると考えられる (図 5.19 (d))。第 5.4 節において定義した平均隙間は、プローブと先端球とディスク表面との最小隙間であり、今回の実験において測定しているレオロジー特性は最小隙間付近における平均値である。したがって最

小隙間周辺では固定層同士の接触する隙間にいたっておらず、隙間の狭小化によって  $\eta'$  は上昇し続けていると考えられる。ゆえに測定した  $\eta'$  が一定となるのは、最小隙間周辺部では  $\eta'$  が上昇するのに対して、最小隙間では  $\eta'$  が減少している可能性がある。Granick らは SFA を用いた実験において、固定層同士が接触する隙間領域において隙間を狭小化すると、 $\eta''$  が増加すると同時に  $\eta'$  が減少する現象を観測しており<sup>(100)(101)</sup>、これはナノ閉じ込めされた液体試料が隙間の減少とともに流体的な応答から、固体的な応答を示すように変化していることを意味している。つまり、液体試料の固化の過程を観測していることになる。このことから  $\eta'$  の上昇が停止し、一定値を保つ領域では Zdol の固化が起こっている可能性がある。これが正しいとすると、固定層を形成しない Z03 において、Zdol にみられた  $\eta'$  の上昇の停止が測定されないのは、Z03 では固化が起こらないためであると理解できる。Xu らは SFA による実験によって、Z03 では固化は起こらず、Zdol では二分子膜厚において固化が起こると報告しており<sup>(53)</sup>、ファイバーウォブリング法による測定結果から予想される結論と一致している。

接近摺動時と引き離し摺動時のレオロジー特性の変化が一致し、特に固定層同士の接触に起因すると考えられる Zdol の  $\eta'$  の平坦化は、引き離し摺動時においても観測されることから、プローブ表面とディスク表面の固体接触においても、固定的な分子の大部分は表面間から排出されず留まっており、固体接触は固定層を貫通した固体表面の突起同士が接触していると考えられる (図 5.19 (e))。

ファイバーウォブリング法を用いて測定したナノ閉じ込め状態における液体潤滑剤のレオロジー特性についての考察を以下にまとめる。

- (1) 流動的な分子は、数百分子膜厚に相当する広い隙間においてもせん断により  $\eta'$  が上昇する。この  $\eta'$  の上昇は従来報告されている、固体壁面による液体分子の配列・構造化など、壁からの影響によるものではなく、せん断による分子の配向による構造化の可能性が考えられる。
- (2) 流動的な分子は二分子膜厚まで狭小化された状態において、固化せず流動的な性質を維持したまま  $\eta''$  が増加する。これは従来のナノ閉じ込めによって固化された液体のもつ  $\eta''$  の増加と発現のメカニズムが異なり、エントロピー弾性の可能性が考えられる。



ただし本節の考察においては、本節冒頭に述べたように、流体力学的な効果は無視していることに注意されたい。ファイバーウォブリング法により見出されたこれらの現象は、いずれも流動的な分子の粘弾性挙動に関するものであり、隙間一定制御下におけるレオロジー特性の測定によって初めて明らかとなった。従来用いられてきたSFAでは、流動的な分子は荷重の印加によって比較的容易に隙間から排出されてしまうために測定が困難であったと考えられる。

液体の粘弾性特性は熱によって変化する。したがって、摩擦による発熱が粘弾性特性の測定に影響を及ぼす可能性がある。そこで、本測定系における摺動面のおおよその温度上昇を見積もる。本測定系では、摺動面は先端球表面とディスク表面により構成される。先端球表面は曲率をもっているが、その半径は100  $\mu\text{m}$ 程度であり測定対象としているナノメートルオーダの隙間に比べ十分に大きいと考えられる。したがって、ここでは先端球表面およびディスク表面を平面と仮定する。摺動面の相対速度を $U$ 、摺動面間の隙間を $h$ 、その間の潤滑剤の粘性を $\eta$ とすると、潤滑剤の粘性抵抗による発熱から生じる熱流 $Q$ は、次式により表される<sup>(103)</sup>。

$$Q = v_c \eta \left( \frac{U}{h} \right)^2 \quad (5.16)$$

ここで $v_c$ は粘性抵抗に寄与する潤滑剤の体積を表す。先端球を取り巻く潤滑剤のうち、基板との隙間が最も狭小化する領域の潤滑剤が、先端球にはたらく粘性抵抗において支配的であると考えられる。摺動面を平面と仮定したので、粘性抵抗が支配的に発生する領域を、隙間が最小となる点を中心として面内方向に半径 $r_c$ 、隙間方向に高さ $h$ の円筒形と仮定する。この場合、

$$v_c = \pi r_c^2 h \quad (5.17)$$

となる。この円筒形の領域が熱源となり、そこで発生した熱量が摺動面に伝達し温度

上昇を引き起こす。本測定系では $r_c$ は $10\ \mu\text{m}$ 程度であり、プローブの加振振幅は数十 $\text{nm}$ とこれに比べて十分小さく、ディスク面上のほぼ同一箇所を摺動していると考えられるので、熱源は静止していると仮定する。また温度上昇を高めに見積もるために、発生した熱量はすべて先端球表面の面内方向に、熱伝導のみによって伝えられると仮定する。すなわち、ディスク側への熱伝導や、先端球内部への熱伝導、および表面からの熱放散を無視する。円筒形の熱源と、平面と仮定した先端球表面の接触部は半径 $r_c$ の円形となる。この円形に式(5.16)により計算される熱流 $Q$ が一様に分布しているとする、接触部である円中心の最高温度上昇 $\Delta T$ は次式により表される<sup>(103)</sup>。

$$\Delta T = \frac{Q}{\pi\lambda r_c} \quad (5.18)$$

ここで $\lambda$ は摺動面の熱伝導率を表す。式(5.16)、(5.17)を用いて式(5.18)を書き換えると以下のように表される。

$$\Delta T = \frac{\eta r_c U^2}{\lambda h} \quad (5.19)$$

代表的な値として、 $\eta=3\ \text{Pas}$ 、 $r_c=10\ \mu\text{m}$ 、 $U=100\ \mu\text{m/s}$ 、 $\lambda=1\ \text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 、 $h=1\ \text{nm}$ を式(5.19)に代入すると、 $\Delta T=3\times 10^{-4}\ \text{K}$ となる。一般に潤滑剤の粘性係数と温度の間には以下の関係式が成立する<sup>(94)</sup>。

$$\log \eta = \xi + \frac{\psi}{T} \quad (5.20)$$

ここで、 $\xi$ 、 $\psi$ は潤滑剤によってきまる定数であり、 $T$ は絶対温度である。例えば、Z03の場合、カタログ値から得られる $\xi$ 、 $\psi$ はそれぞれ $-4.78$ 、 $1018$ となる。温度が $T=292\ \text{K}$ から $\Delta T=3\times 10^{-4}\ \text{K}$ 上昇したとすると、式(5.20)から粘性係数は $4\times 10^{-7}\ \text{Pas}$

減少する。他の潤滑剤についても同程度の変化となる。したがって発熱の影響は測定  
の検出感度に比べ無視できる程度に小さい。

今回の結果から、ニアコンタクト、コンタクト・インタフェースにおいてスライダ  
のうける粘性摩擦力は、バルクの粘性係数で計算した値よりも最大 30 倍程度大きく  
なることが明らかとなった。平板間に挟まれた液体をせん断したときの粘性抵抗力  
 $F_{visco}$  は以下の式により表される<sup>(60)</sup>。

$$F_{visco} = \frac{S\eta U}{h} \quad (5.21)$$

$S$  は平板の表面積（接触面積）、 $\eta$  は液体の粘性係数、 $U$  は速度、 $h$  は平板間の隙間を  
表す。簡単な見積もりとして、 $S=1 \mu\text{m}^2$ 、 $U=10 \text{ m/sec}$ 、 $h=1 \text{ nm}$ 、 $\eta'$  は今回の測定  
において Zdol の場合、最大 3 Pas 程度まで増加したので、 $\eta=3 \text{ Pas}$  とすると、式(5.21)  
から粘性摩擦力は  $F_{visco}=30 \text{ mN}$  となる。これは従来の空気膜による粘性抵抗と比較す  
ると、10 万倍上の大きな摩擦抵抗となることから、ニアコンタクト、コンタクト・イ  
ンタフェースにおいてスライダの安定走行を保証するには、粘性摩擦力を正確に定量  
化し、設計に活用することが必須であると考えられる。第 1.2.1 項で述べたように、  
液体潤滑膜の設計には、流動層と固定層を最適な割合で形成することが一つのポイン  
トとなる。今回の測定において、流動層が支配的な隙間においても、ナノ閉じ込めに  
よって  $\eta'$ 、 $\eta''$  の増加がおこることが明らかとなった。また SFA によっても測定され  
ているように、固定層同士が接触する隙間においては、バルク状態に比べ高い  $\eta'$  をも  
ち、隙間の狭小化に対して  $\eta''$  が急増することが明らかとなった。したがって液体潤滑  
膜の設計においては、流動層の粘性・弾性、固定層の粘性・弾性の四種類の力学的特  
性と、それらの隙間に対する非線形な依存性を考慮する必要がある。これら四種類の  
力学的特性の組み合わせとトライボロジー特性の関連性を明確にし、それらの制御法  
を確立することによって、より精密な液体潤滑膜の設計が可能になると考えられる。

## 第6章 結論

本論文は、磁気ディスク装置のヘッド・ディスク・インタフェース (HDI) における液体潤滑膜のレオロジー (粘弾性) 特性を計測するために、新規に考案したせん断力測定法の開発、および本法を適用することによって明らかとなった、ナノメートルオーダーの隙間に閉じ込められた (ナノ閉じ込め状態) 液体潤滑剤の特異的なレオロジー特性の測定結果についてまとめたものである。従来、ナノ閉じ込め状態における液体のレオロジー特性の測定は、表面力測定装置 (SFA) や原子間力顕微鏡 (AFM) を中心に行われてきた。しかし、これらの従来法は 100 Hz 以下の低速摺動による測定に限られ、また摺動面間の隙間は荷重によって制御するために任意に設定することが困難であり、HDI のトライボロジー・レオロジー特性の測定に適用することは難しいと考えられる。本研究において開発したせん断力測定法は、ニアコンタクト、コンタクト・インタフェースにおける液体潤滑膜の摺動条件を想定し、0.1 nN オーダーの高感度なせん断力測定、100 Hz～数 kHz に及ぶ高速摺動、0.1 nm オーダーの分解能による隙間制御を特長としている。本法を適用することにより、広い隙間から狭い隙間までの各隙間におけるレオロジー特性を体系的に測定することができ、ナノ閉じ込めが液体のレオロジー特性に及ぼす影響について詳細に検討することが可能となった。これにより、従来法では測定困難であったと考えられる、液体潤滑剤の新たな粘弾性挙動を明らかにした。各章において得られた結果をまとめると以下のようになる。

第 2 章では、ナノ閉じ込め状態における液体潤滑剤のレオロジー特性を、100 Hz～数 kHz の高速摺動下、および 0.1 nm オーダーの高精度な隙間制御下において高感度に測定する新規なせん断力測定法として、ファイバーウォブリング法を提案した。本法は摺動プローブとして、先端を直径 200  $\mu\text{m}$  の球状に加工した光ファイバーを使用する。プローブ先端の球と基板の間に試料となる潤滑剤を挟み込み、プローブを試料面に対して面内方向に相対運動させ、その時のプローブのたわみを測定することによりせん断力を検出する。たわみを高感度に検出する手法として、プローブ先端の球部分 (先端球) もしくはプローブのファイバー部を、マイクロ球レンズまたはマイクロ円筒レンズとして利用する新規な

変位測定法を考案し、理論的には 0.002 nm の最小検出限界が達成可能であることを示した。光ファイバークローブのばね定数が  $k=10$  N/m のとき、せん断力の理論的な最小検出限界は 0.02 nN と見積もられる。また、本法ではファイバーを試料面と垂直に配置することにより、垂直方向の剛性を高く設定し、プローブ先端と基板間の隙間を精密に制御することが可能となる。液体潤滑剤の摺動時に発生する動圧によるプローブ先端球の変形を見積もることにより、プローブの垂直方向への剛性を評価し、0.1 nm オーダの隙間制御が可能であることを示した。

新規に考案した光ファイバークローブの変位測定法では、先端球もしくはファイバー部を用い、レーザー光を二分割型光位置センサ (PSD) 上に集光してレーザースポットを形成し、レーザースポットの変位を検出することにより、プローブのたわみを測定する。第 3 章では光線追跡法を用いてこの変位測定法の光学系の最適設計について検討した。さらにその結果に基づいて実験装置を構成し、実験的な最小検出限界を測定した。光線追跡計算の結果、先端球もしくはファイバー部に光を入射する際に、対物レンズによって集光したレーザースポットを、先端球・ファイバー部の焦点距離に一致させることによって最小の検出限界が得られることが明らかとなり、これは実験的にも成り立つことを確認した。先端球を用いて集光した場合、およびファイバー部を用いて集光した場合の実験的な検出限界はそれぞれ、0.0063 nm, 0.0064 nm を達成した。これらは、プローブのばね定数を 10 N/m とすると、フックの法則からせん断力としては 0.01 nN オーダと見積もられるため、ファイバーウォブリング法によって実験的に 0.1 nN 以下のせん断力検出限界を達成したことを示している。

第 4 章では、ファイバーウォブリング法により液体潤滑膜の摺動実験を実現するための測定装置の構成について述べた。さらに、光ファイバークローブの機械的特性の測定、および装置のキャリブレーションについて詳説した。また、摺動実験において光ファイバークローブは試料面に対して垂直に配置されていなければならない、微小な傾きによって測定結果が安定しない。そこで光ファイバー干渉計を用いた傾き調整法を考案し、傾きの調整が可能であることを示した。

第 5 章では、ナノ閉じ込めが液体潤滑剤のレオロジー特性に及ぼす影響について明らかにするために、無極性潤滑剤である Z03 と、極性潤滑剤である Zdol2000, Zdol4000 を試料として、隙間を 1  $\mu$ m 程度から 0 nm (固体接触) に至るまで徐々に狭小化した際の、潤滑剤の

動的粘性係数  $\eta'$  と動的弾性係数  $\eta''$  を測定した。測定の結果以下の事実が明らかとなった。

- (1)  $\eta'$  は、摺動隙間の減少にともない平均隙間が数百分子膜厚に相当する領域から、緩やかに上昇を開始し、固体接触にいたるまで単調に増加を続け、最大値はバルク状態の 20 倍から 30 倍に達する。ただし、極性潤滑剤 Zdol2000, 4000 では、二分子膜厚 ( $4R_g$ ) に相当する隙間領域において  $\eta'$  の増加が停止し、固体接触まで一定値を保つ。
- (2)  $\eta''$  は平均隙間が広い領域では無視できる程度に小さいが、無極性潤滑剤 Z03 の場合では二分子膜厚 ( $4R_g$ ) 以下、極性潤滑剤 Zdol2000, 4000 の場合では四分子膜厚 ( $8R_g$ ) 以下において急激に増加する。
- (3) ナノ閉じ込めによる  $\eta'$ ,  $\eta''$  の増加現象は隙間変化に対して可逆的である。

以上のように、隙間を精密に制御した状態で、高感度にせん断力を検出することのできるファイバーウォブリング法を用い、広い隙間から狭い隙間までの各隙間におけるレオロジー特性を体系的に測定することにより、ナノ閉じ込めが液体のレオロジー特性に及ぼす影響について詳細に検討することが可能となった。従来法である SFA による研究結果と比較すると、本測定法によって以下に示す新たな事実が明らかとなった。

- (1)  $\eta'$  は、平均隙間が数百分子膜厚に相当する隙間領域から増加し始める。この数百分子膜厚という広い隙間領域において観測される  $\eta'$  の上昇は、SFA の研究により従来報告されている、固体壁面による液体分子の配列・構造化という壁からの影響によるものとは考え難く、せん断による分子の配向に起因した構造化の可能性が考えられる。
- (2) 流動的な分子は二分子膜厚まで狭小化された状態において、固化せず流動的な性質を維持したまま  $\eta''$  が増加する。これは従来のナノ閉じ込めによって固化された液体のもつ弾性と発現のメカニズムが異なり、エントロピー弾性の可能性が考えられる。

レオロジー特性の測定結果より、液体潤滑剤の粘性は隙間とともに増加することから、ニアコンタクト、コンタクト・インタフェースにおいてスライダのうける粘性摩擦力は、バルクの粘度で計算した値よりも最大 30 倍程度大きくなることが明らかとなった。これは従来の空気膜による粘性抵抗と比較すると、10 万倍上の大きな摩擦抵抗と

なる。また隙間が数 nm 程度になると、バルクでは観測されない弾性的な性質が発現し、極性潤滑剤においては粘性の増加が停止するという特徴的な変化を示す。したがって、ニアコンタクト、コンタクト・インタフェースにおいてスライダの安定走行を保証するには、増大する粘性摩擦力を精密に定量化し、かつ隙間に対する液体潤滑剤のレオロジー特性の非線形な変化を正確に把握した潤滑膜設計が必須である。

本研究において確立したファイバーウォブリング法、ならびに本法を適用することによって得られたナノ閉じ込め状態における液体潤滑剤の、分子構造に依存したレオロジー特性は、更なる高記録密度化が要請される磁気ディスク装置の HDI 設計だけでなく、将来様々な分野での応用が期待されているマイクロマシン、ナノマシンなどの微小機械の安定的な動作、信頼性を確保するための潤滑技術に有益な知見を与えるものであると考えられる。

## 参考文献

- (1) 三矢保永, 高度情報化社会を担うトライボロジー技術, *トライボロジスト*, Jan-46, (2001), pp. 76-81.
- (2) 岡村博司, ハード・ディスク装置の構造と応用, CQ 出版社, (2002).
- (3) D. A. Thompson, J. S. Best, The future of magnetic data storage technology, *IBM Journal of Research Development*, 44-3, (2000), pp. 311-322.
- (4) S. Iwasaki, Perpendicular magnetic recording, *IEEE Transactions on Magnetism*, 16, (1980), pp. 71-76.
- (5) 金子峻, Zip の挑戦, オーム社雑誌局, (1999).
- (6) G. J. Tamopolsky, Hard disk drive capacity at high magnetic areal density, *IEEE Transactions on Magnetism*, Jan-40, (2004), pp. 301-306.
- (7) R. Wood, The feasibility of magnetic recording at 1 Terabit per square inch, *IEEE Transactions on Magnetism*, Jan-36, (2000), pp. 36-42.
- (8) R. Wood, J. Miles, and T. Olson, Recording technologies for terabit per square inch systems, *IEEE Transactions on Magnetism*, Apr-38, (2002), pp. 1711-1718.
- (9) M. Mallary, A. Torabi, and M. Benakli, One terabit per square inch perpendicular recording conceptual design, *IEEE Transactions on*



*Magnetics*, Apr-38, (2002), pp. 1719-1724.

- (10) R. H. Victora, J. Xue, and M. Patwari, Areal density limits for perpendicular magnetic recording, *IEEE Transactions on Magnetics*, May-38, (2002), pp. 1886-1891.
- (11) K. Z. Gao, and H. N. Bertram, Transition jitter estimates in tilted and conventional perpendicular recording media at 1 Tb/in<sup>2</sup>, *IEEE Transactions on Magnetics*, Feb-39, (2003), pp. 704-709.
- (12) B. Hayes, Terabyte territory, *American Scientist*, 90, (2002), pp. 212-216.
- (13) M. Yanagisawa, A. Sato, and K. Ajiki, Lubricant design for contact recording systems, *IEICE Transactions on Electronics*, E81-C-3, (1998), pp. 343-348.
- (14) A. K. Menon, Interface tribology for 100 Gb/in<sup>2</sup>, *Tribology International*, 33, (2000), pp. 299-308.
- (15) C. M. Mate, Q. Dai, R. N. Payne, B. E. Knigge, and P. Baumgart, Will the numbers add up for sub-7-nm magnetic spacings? Future metrology issues for disk drive lubricants, overcoats, and topographies, *IEEE Transactions on Magnetics*, 41-2, (2005), pp. 626-631.
- (16) D. Schneider, T. Schwarz, H. J. Scheibe, and M. Panzer, Non-destructive evaluation of diamond and diamond-like carbon films by laser induced surface acoustic waves, *Thin Solid Films*, 295, (1997), pp. 107-116.

- (17) N. Savvides, and T. J. Bell, Hardness and elastic modulus of diamond and diamond-like carbon films, *Thin Solid Films*, 228, (1993), pp. 289-292.
- (18) B. Shultrich, H. J. Scheibe, G. Grandremy, D. Drescher, and D. Schneider, Elastic modulus as a measure of diamond likeness and hardness of amorphous carbon films, *Diamond and Related Materials*, 5, (1996), pp. 914-918.
- (19) Y. Tsukamoto, H. Yamaguchi, and M. Yanagisawa, Mechanical properties of thin films: Measurement of ultramicroindentation hardness, Young's modulus and internal stress, *Thin Solid Films*, 154, (1987), pp. 171-181.
- (20) A. Anders, W. Fong, A. V. Kulkarni, F. W. Ryan, and C. S. Bhatia, Ultra thin diamond-like carbon films deposited by filtered carbon vacuum arcs, *IEEE Transaction on Plasma Science*, 5-29, (2001), pp. 768-775.
- (21) B. Tomcik, T. Osipowicz, and J. Y. Lee, Diamond-like film as a corrosion protective layer on the hard disk, *Thin Solid Films*, 360-1-2, (2000), pp. 173-180.
- (22) C. Y. Chan, K. H. Lai, M. K. Fung, W. K. Wong, I. Bello, R. F. Huang, C. S. Lee, S. T. Lee, and S. P. Wong, Deposition and properties of tetrahedral amorphous carbon films prepared on magnetic hard disks, *Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surface, and Films*, 4-19, (2001), pp. 1606-1610.
- (23) 小平英一, ニアコンタクト・インタフェース用磁気ヘッドスライダの浮上特性と摺動特性に関する研究, 博士学位論文, 名古屋大学, (2004).

- (24) Y. Li, Write-induced pole-tip-protrusion and its effect on head-disk interface clearance, *IEEE Transactions on Magnetics*, Apr-40, (2004), pp. 3145-3147.
- (25) J. Xu, M. Kurita, and M. Tokuyama, Thermal analysis of a magnetic head, *IEEE Transactions on Magnetics*, Apr-40, (2004), pp. 3142-3144.
- (26) F. E. Talke, A review of contact recording technologies, *Wear*, 207, (1997), pp. 118-121
- (27) T. E. Karis, Tribochemistry in contact recording, *Tribology Letters*, 10-3, (2001), pp. 149-162.
- (28) 日本機械学会編, 流体工学, (2000)
- (29) E. E. Klaus, and B. Bhushan, Lubricants in Magnetic Media: A Review, *Tribology and Mechanics of Magnetic Storage Systems*, STLE SP-19, 2, (1985), pp. 7-15.
- (30) G. W. Tyndall, and P. B. Leezenberg, Interfacial interactions of perfluoropolyether lubricants with magnetic recording media, *Tribology Letters*, 4, (1998), pp. 103-108.
- (31) 松下裕秀, 高分子化学Ⅱ, 丸善株式会社, (2000).
- (32) X. Ma, Spreading of Perfluoropolyalkylether Films on Amorphous Carbon Surfaces, Ph. D. Thesis, Carnegie Mellon University, (1998).

- (33) T. Kato, M. Kawaguchi, S. Mayeed, J. Choi, Friction and durability characteristics of ultrathin perfluoropolyether lubricant film composed of bonded and mobile molecular layers on diamond-like carbon surfaces, *Wear*, 207, (2004), pp. 909-915.
- (34) Z. Zhao, E. R. Karazic, Q. Zhao, M. J. Emvree, P. H. Trinh, and T. Lam, Lubricant bonding, chemical structure, and additive effects on tribological performances at head-disk interfaces, *Microsystem Technologies*, 2009-1-2, (2002), pp. 48-54.
- (35) H. Tani, and H. Matsumoto, Spreading mechanism of PFPE lubricant on the magnetic disks, *Journal of Tribology*, 123, (2001), pp. 533-540.
- (36) 加藤孝久, ナノ潤滑膜の異方性と課題, *トライボロジスト*, Jun-49, (2004), pp. 453-459.
- (37) R. J. Waltman, D. J. Pocker, and G. W. Tyndall, Studies on the interactions between Zdol perfluoropolyether lubricant and the carbon overcoat of rigid magnetic media, *Tribology Letters*, 4, (1998), pp. 267-275.
- (38) G. H. Vurens, C. S. Gudeman, L. J. Lin, and J. S. Foster, Mechanism of ultraviolet and electron bonding of perfluoropolyethers, *Langmuir*, 8, (1992), pp. 1165-1169.
- (39) 村松拓郎, 福澤健二, 出口貴則, 川村淳, 張賀東, 三矢保永, 液体潤滑膜のナノスケールパターンニング, *トライボロジー会議予稿集*, 東京, (2005).

- (40) 張賀東, 三矢保永, 福岡夏子, 福澤健二, 化学的テクスチャ付き表面における単分子層潤滑膜の表面流動特性, *トライボロジスト*, Jan-49, (2004), pp. 92-101.
- (41) H. Chiba, Y. Oshikubo, and K. Watanabe, Synthesis of tri-functional PFPE lubricant and its spreading characteristics on a hard disk surface, *Proceedings of the 2004 International Symposium on Micro-Nanomechatronics and Human Science*, (2004), pp. 261-264.
- (42) J. N. イスラエルアチヴィリ, 分子間力と表面力, 朝倉書店, (1996).
- (43) G. Binnig, and C. F. Quate, Atomic force microscope, *Physical Review Letters*, 56-9, (1986), 930-933.
- (44) J. N. Israelachvili, Thin film studies using multi-beam interferometry, *Journal of Colloid and Interface Science*, 44-2, (1973), pp. 259-272.
- (45) R. G. Horn, and J. N. Israelachvili, Direct measurement of structural forces between two surfaces in a nonpolar liquid, *Journal of Chemical Physics*, 75-3, (1981), pp. 1400-1411.
- (46) I. K. Snock, and D. Henderson, Monte Carlo study of a hard-sphere fluid near a hard wall, *Journal of Chemical Physics*, May-68, (1978), pp. 2134-2139.
- (47) K. F. Mansfield, and D. N. Theodorou, Interfacial structure and dynamics of macromolecular liquids: A monte carlo simulation approach, *Macromolecules*, 22, (1989), pp. 3143-3152.

- (48) I. Bitsanis, and G. Hadziioannou, Molecular dynamics simulations of the structure and dynamics of confined polymer melts, *Journal of Chemical Physics*, Jun-92, (1990), pp. 3827-3847.
- (49) D. Y. C. Chan, and R. G. Horn, The drainage of thin liquid films between solid surfaces, *Journal of Chemical Physics*, 83-10, (1985), pp. 5311-5324.
- (50) R. G. Horn, and J. N. Israelachvili, Molecular organization and viscosity of a thin film of molten polymer between two surfaces as probed by force measurements, *Macromolecules*, 21-9, (1988), pp. 2836-2841.
- (51) J. N. Israelachvili, Measurement of viscosity of liquids in very thin films, *Journal of Colloid and Interface Science*, 110, (1986), pp. 263-271.
- (52) J. N. Israelachvili, S. J. Kott, and L. J. Fetters, Measurement of dynamic interactions in thin films of polymer melts: The transition from simple to complex behavior, *Journal of Polymer Science: Part B: Polymer Physics*, 27, (1989), pp. 489-502.
- (53) L. Xu, D. F. Ogletree, M. Salmeron, H. Tang, X. Ma, and J. Gui, Thickness and drainage of perfluoropolyethers under compression, *Journal of Chemical Physics*, 114-23, (2001), pp. 10504-10509.
- (54) H. K. Christenson, D. W. R. Gruen, R. G. Horn, and J. N. Israelachvili, Structuring in liquid alkanes between solid surfaces: Force measurements and mean-field theory, *Journal of Chemical Physics*, Mar-87, (1987), pp. 1834-1841.

- (55) J. M. Georges, S. Millot, J. L. Loubet, and A. Tonck, Drainage of thin liquid films between relatively smooth surfaces, *Journal of Chemical Physics*, 98-9, (1993), pp. 7345-7360.
- (56) J. N. Israelachvili, and S. J. Kott, Liquid structuring at solid interfaces as probed by direct force measurements: The transition from simple to complex liquids and polymer fluids, *Journal of Chemical Physics*, 88-11, (1988), pp. 7162-7166.
- (57) R. G. Horn, S. J. Hirz, G. Hadziioannou, C. W. Frank, J. and M. Catala, A reevaluation of forces measured across thin polymer films: Nonequilibrium and pinning effects, *Journal of Chemical Physics*, 90-11, (1989), pp. 6767-6774.
- (58) J. N. Israelachvili, and S. J. Kott, Shear properties and structure of simple liquids in molecularly thin films: The transition from bulk (continuum) to molecular behavior with decreasing film thickness, *Journal of Colloid and Interface Science*, 129-2, (1989), pp. 461-467.
- (59) M. L. Gee, P. M. McGuiggan, J. N. Israelachvili, and A. M. Homola, Liquid to solidlike transitions of molecularly thin films under shear, *Journal of Chemical Physics*, Mar-93, (1990), pp. 1895-1906.
- (60) G. Luengo, F. J. Schmitt, R. Hill, and J. N. Israelachvili, Thin Film Rheology and Tribology of Confined Polymer Melts: Contrasts with Bulk Properties, *Macromolecules*, 30, (1997), pp. 2482-2494.

- (61) S. Granick, Motions and Relaxations of Confined Liquids, *Science*, 253, (1991), pp. 1374-1379.
- (62) C. D. Dushkin, and K. Kurihara, Nanotribology of thin liquid-crystal films studied by the shear force resonance method, *Colloids and Surfaces A*, 129-130, (1997), 131-139.
- (63) M. Ruths, and S. Granick, Tribology of Confined Fomblin-Z Perfluoropolyalkyl Ethers: Role of Chain-End Chemical Functionality, *Journal of Physical Chemistry B*, 103, (1999), pp. 8711-8721.
- (64) M. Ruths, and S. Granick, Tribology of confined fomblin-Z perfluoropolyalkylethers: molecular weight dependence and comparison between unfunctionalized and telechelic chains, *Tribology Letters*, 7, (1999), pp. 161-172.
- (65) J. V. Alsten, and S. Granick, Molecular tribometry of ultrathin liquid films, *Physical Review Letters*, 61-22, (1988), pp. 2570-2573.
- (66) J. V. Alsten, and S. Granick, Shear rheology in a confined geometry: polysiloxane melts, *Macromolecules*, 23, (1990), pp. 4856-4862.
- (67) J. Peachey, J. V. Alsten, and S. Granick, Design of an apparatus to measure the shear response of ultrathin liquid films, *Review of Scientific Instruments*, Feb-62, (1991), pp. 463-473.
- (68) 森田清三, 走査プローブ顕微鏡 (基礎と未来予測), 丸善株式会社, (2000).



- (69) W. W. Scott, and B. Bhushan, Use of phase imaging in atomic force microscopy for measurement of viscoelastic contrast in polymer nanocomposites and molecularly thick lubricant films, *Ultramicroscopy*, 97, (2003), pp. 151-169.
- (70) 森田清三, 原子・分子のナノ力学, 丸善株式会社, (2003).
- (71) H. Nishijima, S. Kamo, S. Akita, Y. Nakayama, K. I. Hohmura, S. H. Yoshimura, and K. Takeyasu, Carbon-nanotube tips for scanning probe microscopy: Preparation by a controlled process and observation of deoxyribonucleic acid, *Applied Physics Letters*, 74-26, (1999), pp. 4061-4063.
- (72) S. Alexander, L. Hellemans, O. Marti, J. Schneir, V. Elings, P. K. Hansma, M. Longmire, and J. Gurley, An atomic-resolution atomic force microscope implemented using an optical lever, *Journal of Applied Physics*, 65-1, (1989), pp. 164-167.
- (73) S. J. O'Shea, M. E. Welland, and J. B. Pethica, Atomic force microscopy of local compliance at solid-liquid interfaces, *Chemical Physics Letters*, 223, (1994), pp. 336-340.
- (74) M. C. Friedenber, and C. M. Mate, Dynamic viscoelastic properties of liquid polymer films studied by atomic force microscopy, *Langmuir*, 12, (1996), pp. 6138-6142.
- (75) R. M. Overney, D. P. Leta, C. F. Pictroski, M .H. Rafailovich, Y. Liu, J. Quinn, J. Sokolov, A. Eisenberg, and G. Overney, Compliance

- measurement of confined polystyrene solutions by atomic force microscopy, *Physical Review Letters*, 76-8, (1996), pp. 1272-1275.
- (76) M. He, A. S. Blum, G. Overney, and R. M. Overney, Effect of interfacial liquid structuring on the coherence length in nanolubrication, *Physical Review Letters*, 88-15, (2002), pp. 154302-1-4.
- (77) B. Bhushan, and C. Dandavate, Thin-film friction and adhesion studies using atomic force microscopy, *Journal of applied physics*, 87-3, (2000), pp. 1201-1210.
- (78) H. Liu, and B. Bhushan, Nanotribological characterization of molecularly thick lubricant films for applications to MEMS/NEMS by AFM, *Ultramicroscopy*, 97, (2003), pp. 321-340.
- (79) A. J. Goldman, R. G. Cox, and H. Brenner, Slow viscous motion of a sphere parallel to a plane wall I Motion through a quiescent fluid, *Chemical Engineering Science*, 22, (1967), pp. 637-651.
- (80) 大頭仁, 高木康博, 基礎光学(光の古典論から量子論まで), コロナ社, (2000).
- (81) E. Hecht, *Optics*, Addison-Wesley, (2002).
- (82) 谷田貝豊彦, 応用光学, 丸善, (1988).
- (83) A. Yariv, 光エレクトロニクスの基礎, 丸善, (1988).
- (84) T. Pangaribuan, K. Yamada, S. Jiang, H. Ohsawa, and M. Ohtsu,

Reproducible fabrication technique of nanometric tip diameter fiber probe for photon scanning tunneling microscope, *Japan Journal of Applied Physics*, 31, (1992), pp. L1302-L1304.

- (85) A. Cameron, *The principles of lubrication*, Longmans, (1966).
- (86) 日本機械学会編, 機械工学便覧 材料力学, 丸善, (1984).
- (87) 吉識雅夫, 金沢武, 材料力学明解, 養賢堂, (1959).
- (88) 高橋友刀, レンズ設計 (収差係数から自動設計まで), 東海大学出版会, (1994).
- (89) 日本機械学会編, 機械工学便覧 力学・機械力学, 丸善, (1986).
- (90) A. D. Drake, and D. C. Leiner, Fiber-optic interferometer for remote subangstrom vibration measurement, *Review of Scientific Instruments*, 55-2, (1984), pp. 162-165.
- (91) D. Rugar, H. J. Mamin, R. Erlandsson, J. E. Stern, and B. D. Terris, Force microscope using a fiber-optic displacement sensor, *Review of Scientific Instruments*, 59-11, (1988), pp. 2337-2340.
- (92) D. Rugar, H. J. Mamin, and P. Guethner, Improved fiber-optic interferometer for atomic force microscopy, *Applied Physics Letters*, 55-25, (1989), pp. 2588-2590.
- (93) F. Ruan, Y. Zhou, Y. L. Lam, S. Mei, C. Liaw, and J. Liu, A precision fiber

- optic displacement sensor based on reciprocal interferometry, *Optics Communications*, 176, (2000), pp. 105-112.
- (94) H. Czichos, *Tribology*, Elsevier, (1978).
- (95) S. Yamada, Layering transitions and tribology of molecularly thin films of poly(dimethylsiloxane), *Langmuir*, 19, (2003), pp. 7399-7405.
- (96) S. Granick, Z. Lin, and S. C. Bae, Molecules squeezed and stroked, *Nature*, 425, (2003), pp. 467-468.
- (97) 山田真爾, 液体の薄膜化に伴うガラス転移挙動とナノトライボロジー, 表面, Jan-41, (2003), pp. 1-14.
- (98) 村上謙吉, レオロジー基礎論, 産業図書, (1991).
- (99) 久保亮五, ゴム弾性, 裳華房, (1998).
- (100) S. Granick, and H. W. Hu, Nanorheology of confined polymer melts. 1. Linear shear response at strongly absorbing surfaces, *Langmuir*, 10, (1994), pp. 3857-3866.
- (101) H. W. Hu, S. Granick, and K. S. Schweizer, Static and dynamical structure of confined polymer films, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 172-174, (1994), pp. 721-728.
- (102) 小川明, レオロジー概論, 山海堂, (1991).

(103) 山本雄二, 兼田楨宏, トライボロジー, 理工学社, (1998).

## 謝辞

本論文は、名古屋大学大学院工学研究科電子機械工学専攻知能計測工学講座において、同マイクロ・ナノシステム工学専攻（機械理工学専攻 併担） 三矢保永教授の御指導の下に行った研究をまとめたものです。長期にわたり御指導と御鞭撻を賜りました三矢保永教授に対し、謹んで感謝の意を表します。また、研究を進めるにあたり終始懇切丁寧なる御指導を賜りました同マイクロ・ナノシステム工学専攻（機械理工学専攻 併担） 福澤健二助教授には心より感謝の意を表します。

本論文をまとめるにあたり、有益な御教示、御検討を賜りました名古屋大学大学院工学研究科機械理工学専攻 石田幸男教授、名古屋工業大学大学院工学研究科産業戦略工学専攻 中村隆教授に深謝の意を表します。

研究室配属当初から、本研究における有益な討論、様々な御助言を賜りました名古屋大学大学院情報科学研究科複雑系科学専攻 張賀東助手に心より感謝いたします。

また、名古屋大学大学院情報科学研究科複雑系科学専攻 大岡昌博助教授、愛知江南短期大学現代キャリアコース 大島康司助教授には普段より有益な御指導、御配慮を賜りましたことを心より感謝いたします。

本研究を実施するにあたり、マイクロ・ナノシステム工学専攻マイクロ・ナノ計測工学グループ、機械理工学専攻電子機械工学分野知能計測グループの諸氏、および情報科学研究科複雑系科学複雑系計算論講座の諸氏には、実験への様々な助力を頂き厚く御礼申し上げます。

# 発表論文目録

## 本論文に関係のある論文提出者の発表論文

### 学術雑誌論文

- (1) K. Fukuzawa, S. Itoh and Y. Mitsuya, Fiber Wobbling Shear Force Measurement for Nanotribology of Confined Lubricant Molecules, IEEE Transactions on Magnetics, Vol. 39, No. 5, (2003), pp. 2453-2455.
- (2) 伊藤伸太郎, 福澤健二, 張賀東, 三矢保永, ファイバーウォブリング法によるナノ閉じ込めされた分子潤滑膜の粘弾性特性の測定, 日本機械学会論文集 (C編), Vol. 70, No. 691, (2004), pp. 841-848.
- (3) S. Itoh, K. Fukuzawa, K. Takahashi, T. Ando, H. Zhang and Y. Mitsuya, Optimization of Dynamic Shear Force Measurement for Fiber Wobbling Method, Microsystem Technologies, Vol. 11, No. 8-10, (2005), pp. 894-900.
- (4) S. Itoh, K. Fukuzawa, T. Ando, H. Zhang and Y. Mitsuya, Viscosity Increase due to Confinement of Mobile Molecules of Perfluoropolyethers Measured by Fiber Wobbling Method, IEEE Transactions on Magnetics, Vol. 41, No. 10, (2005), pp 3046-3048.

### 国際学会発表

- (1) S. Itoh, K. Fukuzawa and Y. Mitsuya, Fiber Wobbling Shear Force Measurement for Nanotribology of Molecularly Thin Lubricant Film, Digests of the IEEE International Magnetics Conference, Boston, U.S.A (2003).
- (2) S. Itoh, K. Fukuzawa, K. Takahashi, H. Zhang and Y. Mitsuya, Sub-Nano-Newton Dynamic Shear Force Measurement for Fiber Wobbling Method, Proceedings of the 2003 JSME-IIP/ASME-ISPS Joint Conference on Micromechatronics for Information and Precision Equipment, Yokohama, Japan, (2003), pp. 249-250.
- (3) S. Itoh, K. Fukuzawa, H. Zhang and Y. Mitsuya, Nanorheological

Properties of Confined PFPE Lubricant Measured by Fiber Wobbling Method, Proceedings of Fourth International Conference on Tribology of Information Storage Devices, Monterey, U.S.A. (2003).

- (4) S. Itoh, K. Fukuzawa, T. Ando, H. Zhang and Y. Mitsuya, Nanotribology of Confined PFPE Lubricant Measured by Fiber Wobbling Method, The 21st Century COE Program "Micro-and Nano-Mechatronics for Information-based Society" Nagoya, Japan, (2004), pp. 25-26.
- (5) S. Itoh, K. Fukuzawa, T. Ando, H. Zhang and Y. Mitsuya, Viscosity Increase due to Confinement of Mobile Molecules of Perfluoropolyethers Measured by Fiber Wobbling Method, Digests of the IEEE International Magnetics Conference, Nagoya, Japan, (2005), p. 955.
- (6) S. Itoh, K. Fukuzawa, T. Ando, H. Zhang and Y. Mitsuya, Shear Rheology of Confined PFPE lubricant Measured by Fiber Wobbling Method, Synopses of the International Tribology Conference Kobe, Kobe, Japan, (2005), p. 270.

## 国内学会発表

- (1) 伊藤伸太郎, 福澤健二, 三矢保永, ファイバーウォブリング法によるナノ分子膜のマイクロトライボロジー特性の計測, IIP'02 情報・知能・精密機器部門講演論文集 (東京工業大学), No. 02-13, (2002), pp. 42-45.
- (2) 伊藤伸太郎, 福澤健二, 三矢保永, ファイバーウォブリング法によるナノ分子膜の液膜力の計測, 日本機械学会 2002 年度年次大会講演論文集 (東京大学) No. 02-1, (2002), pp. 211-212.
- (3) 伊藤伸太郎, 福澤健二, 高橋一浩, 安藤貴真, 張賀東, 三矢保永, ファイバーウォブリング法におけるせん断力測定の高感度化, 日本機械学会 2003 年度年次大会講演論文集 (徳島大学), No. 03-1, (2003), pp. 243-244.
- (4) 伊藤伸太郎, 福澤健二, 安藤貴真, 張賀東, 三矢保永, ファイバーウォブリング法による極薄潤滑膜のナノレオロジー特性の測定, トライボロジー会議予稿集 (機械振興会館), 2004-5, (2004), pp. 9-10.
- (5) 伊藤伸太郎, 福澤健二, 張賀東, 三矢保永, ファイバーウォブリング法による超薄膜潤滑膜の粘弾性特性の測定 (固定層の影響), 日本機械学会 2004 年



度年次大会講演論文集（北海道大学），No. 04-1, (2004), pp. 363-364.

## 本論文に直接関係のない論文提出者の発表論文

### 学術雑誌論文

- (1) K. Fukuzawa, S. Itoh, T. Ando, K. Takahashi, H. Zhang and Y. Mitsuya, Lateral Force Measurement using a Probe Fiber as a Microlens, *Journal of Applied Physics*, Vol. 95, No. 9, (2004), pp. 5189-5191.
- (2) K. Fukuzawa, S. Itoh, K. Suzuki, Y. Kawai, H. Zhang and Y. Mitsuya, Conformation and Motion of Monolayer Lubricant Molecule on Magnetic Disks, *IEEE Transactions on Magnetics*, Vol. 41, No. 10, (2005), pp 3034-3036.
- (3) 福澤健二, 伊藤伸太郎, 鈴木健太, 河合佑介, 張賀東, 三矢保永, 単分子 PFPE 潤滑膜の分子形態と流動過程, *日本機械学会論文集 (C 編)*, Vol. 71, No. 711, (2005), pp. 3254-3261.
- (4) K. Fukuzawa, S. Itoh, K. Suzuki, Y. Kawai, H. Zhang and Y. Mitsuya, Diffusive motion of molecules in submonolayer liquid film on solid surface, *Physical Review E* (掲載予定) .

### 国際学会発表

- (1) Y. Mitsuya, K. Fukuzawa, Y. Ohshima and S. Itoh, Novel Methods for Measuring Dynamic Surface Forces Exerted on Ultra-Thin Perfluoropolyether Lubricant Film, *Proceedings of Fourth International Conference on Tribology of Information Storage Devices*, Monterey, U.S.A. (2003).
- (2) K. Fukuzawa, S. Itoh, T. Ando, H. Zhang and Y. Mitsuya, Fiber Wobbling Method: Novel Method for Measuring Rheological Properties of Molecularly Thin Liquid Films, *Proceedings of the 2004 International Symposium on Micro-NanoMechatronics and Human Science*, Nagoya, Japan, (2004), pp. 255-258.
- (3) K. Fukuzawa, S. Itoh, K. Suzuki, K. Kawai, H. Zhang and Y. Mitsuya,

Conformation and Motion of Monolayer Lubricant Molecule on Magnetic Disks, Digests of the IEEE International Magnetism conference, Nagoya, Japan, (2003), p. 954.

## 国内学会発表

- (1) 安藤貴真, 福澤健二, 伊藤伸太郎, 張賀東, 三矢保永, ファイバーウォブリグ法における剪断力の高感度測定, トライボロジー会議予稿集 (機械振興会館), 2004-5, (2004), pp. 11-12.
- (2) 鈴木健太, 福澤健二, 伊藤伸太郎, 河合佑介, 張賀東, 三矢保永, PFPE 単分子潤滑膜中における分子の形態と拡散過程, IIP'05 情報・知能・精密機器部門講演論文集 (東京工業大学), No. 05-6, (2005), pp. 222-223.
- (3) 福澤健二, 伊藤伸太郎, 鈴木健太, 河合佑介, 張賀東, 三矢保永, 磁気ディスク上の PFPE 単分子膜の流動過程, トライボロジー学会, ファイル記憶のトライボロジー研究会 (2005).

## その他

- (1) 福澤健二, 伊藤伸太郎, 三矢保永, 光ファイバプローブを用いたナノ潤滑膜の力学特性計測, トライボロジスト, Vol. 50, No. 2, (2005), pp. 129-133.