

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 5 月 21 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K17946

研究課題名(和文)表面微細構造を利用した金属・樹脂直接接合の接合力発現メカニズムの解明

研究課題名(英文)Elucidation of mechanism of metal/plastic direct joint using a surface fine structure

研究代表者

木村 文信(Kimura, Fuminobu)

東京大学・生産技術研究所・助教

研究者番号：10739311

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：表面微細構造と射出成形を利用した金属・樹脂直接接合において、どのような要素が接合特性に影響を与えるかを調査した。微細構造の形成には陽極酸化、プラスト処理などの様々な手法を横断的に検討し、接合に適した構造の形成条件を明らかにした。射出成形条件も高精度に制御することで、様々な接合サンプルを作製可能にした。接合特性の評価手法としては、独自の引張試験機の開発を行い、従来手法よりも高精度に接合強度を計測できるようにした。また、界面を電子顕微鏡などで分析し、微細構造へのアンカー効果以外の要素も接合に大きく影響している様子を確認した。

研究成果の概要(英文)：This study investigated how various factors affect joining characteristics of metal/polymer direct joining that is produced by surface fine-structuring and injection insert molding. In terms of the fine-structuring, this study cross-sectionally investigated various structuring methods, e.g. anodization, micro-blasting, etc, and showed that the methods can produce fine-structures enabling the direct joining. Conditions of injection molding, which is another process for the direct joining, was also investigated for each structuring method in order to make a wide variety of joining samples. To evaluate joining characteristics of a single-lap joint, this study newly developed a tensile tester and tested the samples processed under various conditions. Additionally, using electron microscopic analyses of the interface, this study showed the direct joining is affected by not only anchoring but also other factors, such as chemical bonds.

研究分野：成形加工，メカトロニクス

キーワード：金属・樹脂直接接合 射出成形 表面微細構造

1. 研究開始当初の背景

近年環境への配慮から、自動車や航空機の製造業において、構造の軽量化が求められている。軽量化を達成するために、金属と樹脂を併用することが取り組まれており、このような異種材料の接合・組立にはねじやリベット、接着剤などが用いられている。最近では新しい接合技術として、こういった接合のための部品を利用しない金属・樹脂直接接合技術が検討されるようになってきている。金属・樹脂直接接合技術を用いることで、より軽量の構造や、組立工程の簡易化、コスト削減を実現することができると考えられており、非常に注目されている。

提案されている様々な金属・樹脂直接接合手法のうち、金属の表面粗化処理と射出成形を利用する接合手法（成形接合、図1）は、生産性の高さから多くの期待が寄せられているが、十分な信頼性が得られていないため、広く実用化されていない。信頼性が低い理由としては、厳密な接合メカニズムが不明である点や処理条件と接合特性（接合強度など）の関係が十分に調査されていない点を挙げることができる。これらの課題の解決によって信頼性を向上し、成形接合の広範囲での実用化が期待されている。

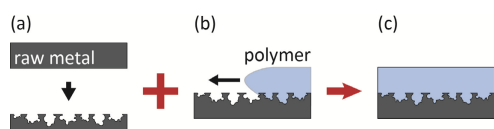


図1 成形接合の概略。(a)表面処理によって微細構造を形成。(b)射出成形によって樹脂を流し込む。(c)接合の完成。

2. 研究の目的

本研究では、成形接合における接合メカニズムの解明を検討する。メカニズム解明へのアプローチとしては、様々な条件下で作製された接合サンプルの評価を繰り返し、どういった要素が接合に寄与しているかを調査するという方法が考えられる。本研究では、任意の条件でのサンプル作製手法および接合特性（強度）の評価手法の基盤確立を行い、接合メカニズム解明を進めることを目的とする。

3. 研究の方法

研究の目的で述べた通り、接合サンプルの「作製」と「評価」の2つを「繰り返す」ことでメカニズム解明に取り組む。具体的には以下のような方法を実施した。

(1) 任意条件下のサンプル作製手法の確立

成形接合は「表面処理」による金属片上への微細構造の形成と、「射出成形」による熔融樹脂の微細構造への流し込み（樹脂部の形成も兼ねている）という2つの加工技術の組み合わせによって成り立っている。そのため、これらの加工技術それぞれで、条件を検討していく必要がある。

① 表面処理

金属表面に形成される微細構造の「形状」および「化学的な性質」が接合強度に影響する要素である。そのため、表面処理によって、任意の形状・性質に制御できることが好ましい。単一種類の処理方法で、処理条件を変更するだけでは、完全に制御することは難しいと考えられるため、本研究では様々な処理方法を横断して検討した。

具体的に検討した処理方法を列挙する：薬品処理、陽極酸化処理、マイクロブラスト、レーザ加工、電解液ジェット加工。薬品処理に関してのみ、外部企業への外注処理であったため、処理条件を変化させることはできなかったが、他の処理に関しては条件をハンドリングできる構成を検討した。

② 射出成形

射出成形の条件によって、熔融樹脂の微細構造への流れ込み方や接合部の化学的な状態が変化し、接合強度に影響を与えると考えられる。成形条件は基本的に射出成形機上で調整する。しかし、成形中の型内の状態を表す物理量（条件）の一部には、成形機で直接調整できないものもある。これらについては、金型内の状態計測をフィードバックさせることで調整した。

(2) 接合特性の評価手法の確立

成形接合プロセスによって作製された接合サンプルの接合特性を評価するため、機械特性（接合強度）の評価および接合界面の観察・分析を検討した。

① 機械特性（強度）の評価

本研究では、初めに重ね継手構造の接合サンプルによる引張せん断強度の試験を対象とした。この試験方法は他の接着・接合技術で広く用いられている一般的な方法である。しかし、従来の試験方法では、試験中にサンプルにたわみが生じることで接合面が傾斜し、純粋なせん断強度が計測できないという問題が示唆されていた。成形接合サンプルでもこのような問題が生じることを確認し、この問題対策のために新たな試験構成の検討および専用試験機の開発を行った。

② 界面の観察・分析

接合界面を観察・分析する手法の1つが、界面を通る面で接合サンプルを切断し、その断面を観察するというものである。この切断では、加工特性が大きく異なる金属と樹脂の2種類の材料を同時に切断する必要があるため、観察・分析に適したきれいな断面を得ることが難しい。そこで本研究では、ウルトラマイクロトム法、収束イオンビーム（FIB）法、イオンミリング法、クライオイオンミリング法といった複数の手法を用いて断面出しを検討した。断面サンプルは電界放出形走査電子顕微鏡（FE-SEM）や透過型電子顕微鏡

鏡 (TEM) を用いて観察した. 分析にはエネルギー分散型 X 線分光 (EDS) と電子エネルギー損失分光 (EELS) を用いた.

(3) 処理条件と接合強度の関係調査

上記の(1)で確立したサンプル作製手法によって, 様々な条件下で接合サンプルを作製し, それらのサンプルを(2)で確立した手法で評価した. 特に, 新たに開発した試験機を用いて, 引張せん断強度の評価を繰り返し, 表面処理条件や成形条件の影響を調査した.

4. 研究成果

(1) サンプル作製手法の確立

① 表面処理

本研究では表面処理手法として, 薬品処理, 陽極酸化処理, マイクロプラスト, レーザ加工, 電解液ジェット加工の検討を行った. 加工対象は, 基本的に A5052 アルミニウム合金であったが, 電解液ジェット加工のみ SUS304 ステンレスも対象とした.

薬品処理については, 成形接合の実績がある企業に外注をした. 任意の処理条件を依頼することはできなかったため, 異なる 2 種類の処理方法 (NMT 処理, 大成プラス社. AMALPHA 処理, メック社) を用いて比較を行った. この 2 種類の最も大きな違いは, 形成される微細構造のサイズで, NMT 処理は 10 nm オーダの構造が形成されるのに対し, AMALPHA 処理では 10 μm オーダの構造が形成される (図 2). 加えて, 両処理の中間のサイズ (100 nm から 1 μm オーダ) で微細構造を形成して比較するため, 同様な化学的な湿式処理として陽極酸化処理を導入した. 陽極酸化処理はサイズのコントロール性が高いため, 図 3 のように, 形状は同様であるがサイズは異なる微細構造を金属試料上に形成できた.

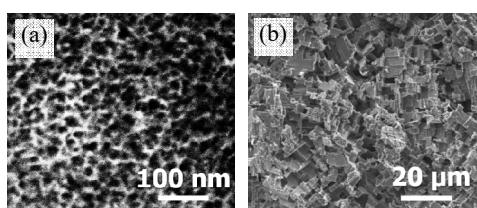


図 2 薬品処理によって形成された微細構造. (a) NMT 処理 (10 nm オーダ). (b) AMALPHA 処理 (10 μm オーダ).

乾式の表面処理として, マイクロプラストとレーザ加工を用い, 10 μm オーダの構造を形成した. マイクロプラストは, 自動ステージで送られるノズルより砥粒などを対象物に噴射することで, 微細構造を形成する. 砥粒の種類や噴射圧, ノズルの送り方など, 調整できるパラメータが多いため, 多様な微細構造の形成が可能であった. 処理された表面の形状は触針式の表面粗さ計 (形状測定器) で計測し, 計測された表面プロファイルから粗さ指標や独自指標を抽出した.

レーザ加工については, ピコ秒レーザ, ナ

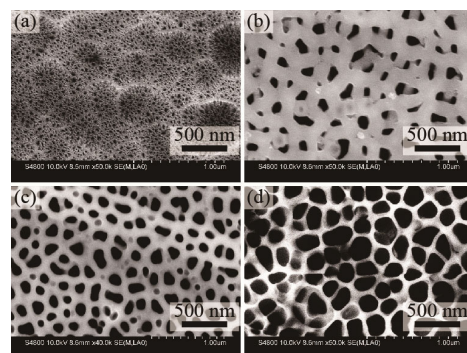


図 3 陽極酸化処理によって形成された微細構造. 処理条件によって異なるサイズの構造が形成される.

ノ秒レーザ, 連続波レーザなどを用いて表面処理を行った. 金属表面にディンプルアレイを形成し, 使うレーザの種類によって形成されるディンプルの側面の状態が変化する様子などを確認した.

以上の表面処理手法は, 先行研究で他の研究グループでも成形接合に応用されてきたものである. しかし, 電解液ジェット加工に関しては, 利用された例が皆無であった. 電解液ジェット加工は電解作用を利用した除去加工の一種で, 本来は除去面が鏡面になるように条件を選ぶが, 本研究では逆に表面が荒れる (微細構造が形成される) 条件を検討し, その結果から成形接合に利用できることを確認した. また, 電解液ジェット加工も, マイクロプラストと同様にノズルを走査することで加工を行う手法であるため, 制御できるパラメータが多い. これらのパラメータを変化させることで, 微細構造の形状が変わる様子を確認した (図 4).

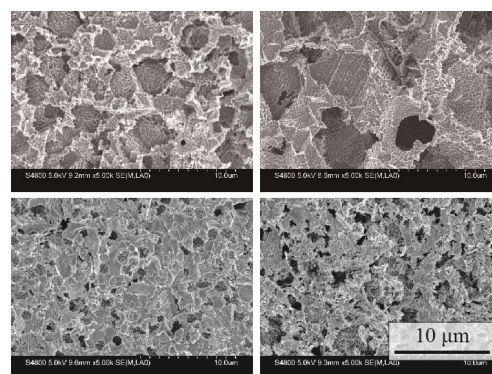


図 4 電解液ジェット加工によって形成された微細構造. 処理条件によって異なるサイズの構造が形成される. (拡大率はすべて同じ)

② 射出成形

表面処理ごとに分類して, 射出成形条件の検討を行った. どの表面処理においても, 通常の射出成形では行わないオーバーパックが重要であり, オーバーパックを行うことで, 安定して接合できることを明らかにした. これにより, 先行研究で必要性が示唆されていた金属試料の事前加熱が無くても接合できることを示した. この, オーバーパック時の型内状態の詳細の制御は, 型内に配置したセ

ンサの計測値をフィードバックさせることで実現した。

(2) 接合特性の評価

① 接合強度試験

接着・接合の評価で多く用いられている、重ね継手構造の引張せん断強度の試験を主な評価手法とした。重ね継手構造に引張荷重を与えた際、サンプルにたわみが発生することが知られている。本研究ではまず、このたわみが接合強度評価にどのような影響を与えるかを調べ、たわみを除外するための試験構成の開発を行った。

重ね継手構造への荷重が大きくなるにつれてたわみ量が大きくなり、引張方向に対する接合面の傾きが大きくなる。接合面が傾くことで、せん断方向だけではなく法線方向の力もかかるようになり、傾きが大きくなるにつれて法線方向の割合も大きくなる。そのため、試験機によって与えられている荷重とせん断力の関係が線形にならない。また、接合させる材料の剛性によっても傾き量が変わるため、異なる材料で統一した評価ができない。有限要素法によって重ね継手サンプルの引張せん断試験のシミュレーションを行い、こういった問題点を定量的に確認した。また、その解決策として、図5のように金属片側のつかみ具にサポート部を設ける構成を提案し、試験機を開発した。提案構成のシミュレーションの結果から、一般的な試験構成に比べて大幅にたわみなどの問題を解決できることを確認し、接合強度評価の基盤とした。

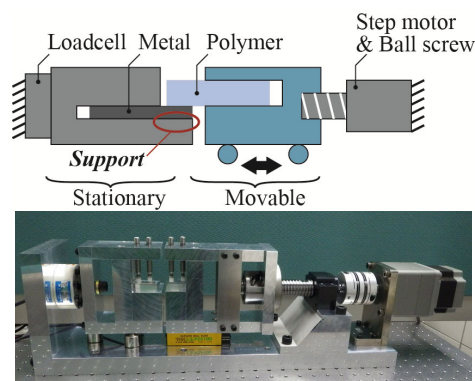


図5 重ね継手構造用の引張試験機。金属片のつかみ具にサポート部を設けることでたわみの抑制が可能になった。

② 薬品処理を用いた際の成形条件の接合強度への影響

2種類の薬品処理（NMT 処理および AMALPHA 処理）を用いた成形接合において、成形条件が接合強度にどのように影響するかを調査した。いくつかある成形条件の中で特にユニークな影響が表れたのが射出速度であった。図6に射出速度に対する接合強度の試験結果を示す。ナノスケールの構造を有する NMT 処理を使ったものでは、射出速度に対して負の相関が見られるが、マイクロスケールの AMALPHA 処理では正の相関が見

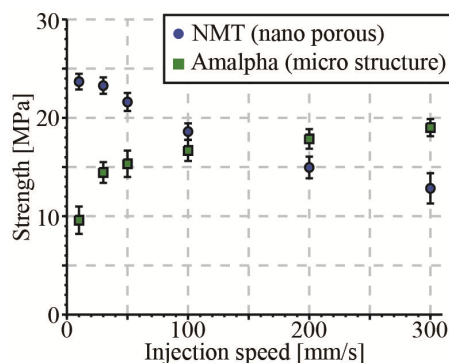


図6 射出速度に対する接合強度の関係。

られ、両者で正反対の傾向が確認された。

一般的な射出成形において、金型の構造（微細構造を含む）への成形樹脂の転写性を高めるためには、射出速度が高くなるような条件を設定する。これは、樹脂を高温に保つことで、充填過程での流動性を高くするためである。転写率が高くなるほど、樹脂の微細構造への引っ掛かり（アンカー効果）が高くなり、接合強度が高くなると考えられる。そのため、図6における AMALPHA 処理の結果（射出速度と接合強度の間に正の相関）は妥当なものだと考えられる。NMT 処理の結果が正反対の傾向を示しているのは、微細構造のスケールが異なることに理由があると考えられるが、現状では明確にできていない。両処理の中間のスケールの構造が形成可能な陽極酸化処理を用いることで、スケールの影響調査を進めており、今後厳密な理由を明らかにしていく。

③ マイクロブラスト・レーザ加工を用いた際の接合強度への影響

マイクロブラストとレーザ加工は調整できる条件が多いため、形状制御性が高い。そのため、単一の処理手法であっても、異なる形状の微細構造を形成できる。この特徴をいかし、様々な微細構造を用意し、その構造と接合強度の関係を調査した。

用意した様々な微細構造、特に乱雑性が高いマイクロブラスト処理面と接合強度の関係を定量的に評価するためには、微細構造（処理面）自体を定量的に表現する手法（指標）が必要となる。はじめは JIS 規格で制定されている粗さ指標（ Ra や RSm など）を用いて接合強度との関係を調査した。その結果、マイクロブラスト条件を特定のものに限定した（砥粒は一定で噴射圧を変えるなど）場合は Ra と相関が見られることがあったが、あらゆる処理面で相関を有するわけではなかった。調査した範囲で最も高い相関を有していた粗さ指標は Δa （算術平均傾斜、現在の JIS から廃止）であった。ただし、これもあらゆる処理面に対しては十分ではなかったため、接合強度と高い相関を有する指標を新しく導くことを検討した。

触針式の形状測定器によって2次元の形状（断面プロファイル）を計測し、そのプロフ

ファイルから新しい指標を導くことを検討した。ここでは、プロファイルの極値を用いて、プロファイルをディンプル（凹部）の連なりで表すよう定義し、各ディンプルのアスペクト比を求めた（図7）。アスペクト比の出現頻度解析の結果から、接合に寄与しているのは0.1以上のアスペクト比を有するディンプルであることを明らかにした。また、限定的ではあるが、アスペクト比の平均値などから接合強度と相関があることを確認できた。

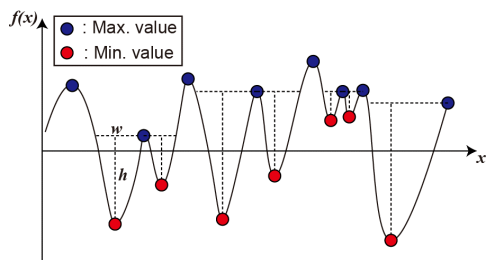


図7 処理面の断面プロファイルの模式図。極値から個別のディンプルを定義し、そのアスペクト比を計算した。

先述した通り、本研究で用いたレーザ加工では、ディンプルアレイを形成したが、使用したレーザの種類によってディンプル内の側面などの様子に変化した。ディンプル内にさらに微細な構造が形成される場合があり、その場合に接合強度が高くなることが分かった。このディンプル構造をモデル化し、有限要素法で応力の分散などを計算したところ、接合強度が高くなるのは妥当であることを確認することができた。

④ 電解液ジェット加工を用いた際の接合強度への影響

電解液ジェット加工の条件を変化させることで、接合強度にどのような影響が現れるかを調査した。調整できる加工条件の中で、ノズルの走査速度と走査回数について示す。他の条件を固定した状態で、走査速度を0.1, 0.3, 0.5 mm/sに変化させ、走査回数を1, 4, 8, 12回に変化させた。走査速度と走査回数はどちらも合計の処理時間を変化させる。そこで処理時間と接合強度の関係を調べたところ図8のような結果になった。この結果から、走査速度や走査回数自体は接合強度に影響を与えず、合計の処理時間が影響を与えていることが分かる。これは、形成された微細構造の観察結果と同様の傾向であった。

⑤ 接合界面の観察・分析

接合界面を観察・分析するため、まずは界面を通る面で接合サンプルを切断する方法（断面出し）について検討した。ここでは対象として、NMT処理を利用した中程度の強度の接合サンプルを検討した。NMT処理で形成される微細構造は非常に小さいため、本研究ではTEM（透過型電子顕微鏡）を用いて観察・分析を行った。

断面出しには粗加工と仕上げ加工の2工程

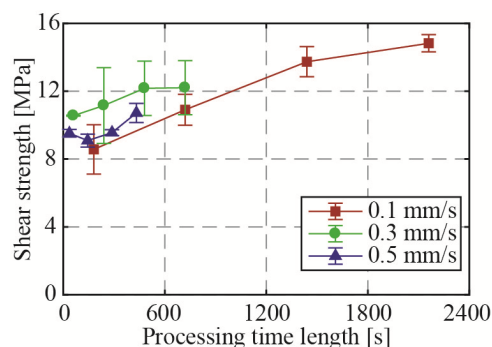


図8 電解液ジェット加工の処理時間と接合強度の関係。

を必要とし、粗加工については、条件を変えず、ダイヤモンドソーと卓上研磨機によって行った。仕上げ加工に関しては、ウルトラミクロトーム法、収束イオンビーム法（FIB）、イオンミリング法、クライオ（低温）イオンミリング法の4種類を試した。ウルトラミクロトーム法は先行研究において実績のある手法であったが、本研究の実験環境では、切断に成功することはできなかった（切断時に接合部がはく離した）。他の3手法に関しては、ダメージなどは生じず問題無く切断できた。この中では、FIB法が最もコストが低く、我々の実験環境で使いやすい加工法であった。そのため、基本的にFIBによって断面出しを行った。

図9にTEM観察の結果を示す。接合界面は金属部（左上側）と樹脂部（右下側）のみから構成されているわけではなく、界面付近に帯状の変成層が存在することが確認できた。このことから、接合にはアンカー効果だけではなく、化学反応などを通して作られた結合力なども寄与していることが予想できた。また、変成層中に空隙の存在を確認できなかったことから、転写率は100%であったということも確認できた。

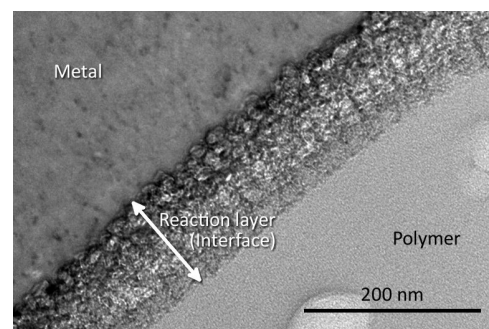


図9 TEMによる接合界面の観察結果。

TEMで観察した範囲を電子エネルギー損失分光（EELS）によって分析した。計測点は金属部（Point 1）樹脂部（Point 2）変成層（Point 3）の3点である。図10に分析結果を示す。すべての曲線が1560 eV付近で立ち上がることから、すべての計測点でアルミニウム（Al）が検出していることが分かる。樹脂部でも検出されていることから、接合が形成された際にAlが拡散した可能性が示唆された。また変成層では、複数の励起が見られることから、

Al-有機の結合などが形成されている可能性も示唆された。

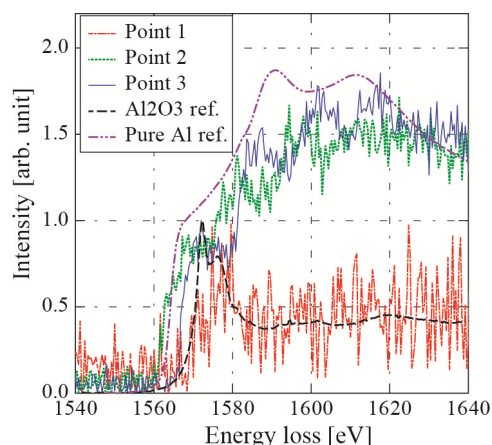


図 10 EELS による界面付近の分析結果。

(3) まとめ

本研究では、成形接合の接合メカニズムの解明を進めるため、様々な条件下で作製された接合サンプルに対して、接合強度の試験および界面の観察・分析による評価を行った。多様な作製条件を揃えるため、複数の表面処理手法を横断的に検討し、成形機のみでは調整できない成形条件の調整手法を用いた。評価手法に関しては、従来の強度試験手法では不十分であった点を明らかにし、それを解決する新しい試験構成を開発した。界面の観察・分析に関しては、成形接合に適した試料作成方法（断面出し手法）を確立した。

本研究では、メカニズム解明を進めるための基盤確立を主に行った。今後はこれらの手法を用いることで、厳密なメカニズムの解明が達成できると考えられる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

- ① F. Kimura, et al., “Effects of molding conditions on injection molded direct joining using a metal with nano-structured surface” *Precision Engineering*, Vol. 45, pp. 203-208, 2016. 査読有
doi.org/10.1016/j.precisioneng.2016.02.013
(他 2 件)

[学会発表] (計 38 件)

- ① S. Kadoya, F. Kimura, and Y. Kajihara, “Development of a tensile test machine for metal-polymer direct joining”, 12th International Symposium on Measurement Technology and Intelligent Instruments, 2015.
- ② F. Kimura, et al., “Interface analysis of injection molded direct joining using surface nano - structures”, euspen’s 16th

International Conference & Exhibition, 2016.

- ③ F. Kimura, et al., “Surface structure analysis for injection molded direct joining using abrasive blasting”, The 33rd international conference of Polymer Processing Society, 2017.
- ④ S. Kadoya, F. Kimura, and Y. Kajihara, “Metal-polymer direct joining using nano structures on metal surface: effect of surface structure size on polymer replication”, The 33rd international conference of Polymer Processing Society, 2017.
- ⑤ K. Enami, F. Kimura, et al., “Effect of Laser-structured Metal Surface on Strength of Metal-Polymer Direct Joining”, The 33rd international conference of Polymer Processing Society, 2017.
- ⑥ 木村文信 ほか, “電解液ジェット加工援用型成形接合における加工レートの調整法とその影響” 2018 年度精密工学会春季大会学術講演会, 2018.

(他 32 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称: 接合体の製造方法
発明者: 江波翔, 梶原優介, 木村文信
権利者: 東京大学, 生産技術研究奨励会
種類: 特許権
番号: 特願 2017-169506
出願年月日: 2017 年 9 月 4 日
国内外の別: 国内

○取得状況 (計 1 件)

名称: Production method for composite member, and composite member
発明者: Y. Kajihara, F. Kimura, Y. Tamura, N. Nakura, E. Yamaguchi, N. Shibuya
権利者: 東京大学, 生産技術研究奨励会
種類: 特許権
番号: WO/2017/141381
取得年月日: 2017 年 8 月 24 日
国内外の別: 国外

[その他]

- ① *Advances in Engineering* への掲載
<https://advanceseng.com/nanotechnology-engineering/effects-molding-conditions-injection-molded-direct-joining-using-metal-nano-structured-surface/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

木村 文信 (KIMURA, Fuminobu)
東京大学・生産技術研究所・助教
研究者番号: 1 0 7 3 9 3 1 1