

令和元年6月13日現在

機関番号：17104

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04250

研究課題名(和文) マルチマテリアルに基づく積層造形法の立体成形制御に関する研究

研究課題名(英文) Research on Solid Building Control of Multi-Material Additive Manufacturing

研究代表者

榎原 弘之 (NARAHARA, HIROYUKI)

九州工業大学・大学院情報工学研究院・教授

研究者番号：80208082

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,900,000円

研究成果の概要(和文)：積層造形法で使用可能な樹脂材料の多様化に伴い、異種材料によるマルチマテリアル積層造形を可能とする成形方法について、積層界面の接合問題に焦点を絞って研究を実施した。機械的粗面処理の効果、大気圧プラズマによる化学的表面活性化処理の効果、および窒素雰囲気環境下の効果を調べた。窒素雰囲気では大気での結果よりも破断強度の向上が見られた。

機械的粗面化処理(アンカー効果)や化学的表面活性化処理(大気圧プラズマ処理)は、材料接合強度の向上方法として認識されているが、それらの処理は積層造形法特有のプロセスの影響を無視できないと考えられる。積層造形法による破断強度の向上方法については、さらなる調査が必要である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

積層造形法で使用可能な樹脂材料は年々増加してきている。また樹脂の種類も多様化してきているが、異種材料によるマルチマテリアル積層造形については、まだ十分に研究されていない。異種材料によるマルチマテリアル積層造形を可能とする成形方法を研究することは、積層造形法の適用可能分野を拡大することに貢献可能となる。そこで本研究では、積層界面の接合問題に焦点を絞り、材料接合強度向上の方法として認識されている機械的粗面化(アンカー効果)や化学的表面活性化(大気圧プラズマ処理)の処理の効果、および窒素雰囲気造形環境下における効果を研究した。

研究成果の概要(英文)：With emerging of the various resin material for Additive Fabrications, research on the multi-material Additive Fabrication manufacturing process for heterogeneous material was carried out. In particular, research was focused on the joining problem on the surface of lamination. Although mechanical surface roughening treatment and an atmospheric pressure plasma treatment are recognized as the improvement method of material joining strength, they are considered that those treatment cannot ignore influence of a process peculiar to Additive Manufacturing. In nitrogen atmosphere, improvement in rupture strength was found rather than the result in atmospheric air.

About the improvement method of the rupture strength by Additive Manufacturing, the further investigation is needed.

研究分野：生産工学・加工学

キーワード：付加製造法 アディティブ・マニュファクチャリング 3Dプリンター Additive Manufacturing 3D Printing

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

近年、樹脂吐出堆積方式の積層造形装置（3Dプリンター）が普及してきている。またそれに伴い、積層造形法に使用可能な樹脂材料の種類も増加してきており、導電性材料や金属粉末、無機材料を混入した樹脂や、射出成形用樹脂であったエラストマーやポリカーボネート樹脂などが、新たな樹脂材料として市場に出現して来ている。

一方で、近年の電子機器の小型化に伴い、省スペース化、組み立て工数の削減などの要求を満足できる技術として、携帯機器などの新製品への導入に、機械構造部品と電気配線回路部品などの機能を共に有するハイブリッドな機能性部品の重要性が増している。

このような社会の変化に対応して、これまで単一材料による3次元造形技術として発展してきた積層造形法の研究は、複数の異種材料による積層造形法の研究へと発展させる事の重要性が高まってきている。しかしながら、これまで該当分野で考慮する必要の無かった以下の研究が必要になってくる。

- ① 単一材料の問題から異種材料組み合わせ問題への拡張。
- ② 基台と配線部での異種材料接合問題。例えば金属とプラスチックの接合物理。
- ③ 配線材料・構造材料としての導電性・絶縁性機能の考慮。
- ④ 3次元的な細線化・微細化の研究。
- ⑤ 造形基本原理選択の問題。

これらの研究は、付加製造科学をさらに発展させる研究テーマとして興味深く、重要な研究テーマでもある。

2. 研究の目的

本研究では、積層造形法で使用可能な樹脂材料の多様化に対応して異種材料によるマルチマテリアル積層造形を可能とする成形方法についての研究を実施する。特に、積層界面の接合問題に焦点を絞り、以下に掲げる機械的粗面処理の効果、大気圧プラズマによる化学的表面活性化処理の効果、および窒素雰囲気造形環境下における効果を調べる。

- (1) 積層造形法における積層表面への機械的粗面化の効果
- (2) 積層造形法における積層表面への大気圧プラズマによる化学的表面活性化の効果
- (3) 積層造形法における積層表面への造形雰囲気の効果

3. 研究の方法

(1) 積層造形法における積層面への機械的粗面化の効果

本研究課題を実施するための基礎実験装置の構成を図1に示す。積層造形法は、基本原理として立体形状を薄い断面形状に固化・接合させて積み重ねる手法を採用している。今、材料Bを用いた造形から、材料Aによる造形に切り替える際に、材料Bの積層表面に対して、超音波振動子による機械的粗面化処理と、大気圧プラズマによる化学的活性化処理を施す機構を加えることで、異種材料の接着・接合への効果を調べることができる。材料の接合状況に対する直接的評価として、引張試験による破断強度を測定する。また積層前の材料Bの機械的粗面化後に、顕微鏡による表面観察を行い、アンカー効果としての表面状態の変化を調べる。積層前の材料Bへの大気圧プラズマ処理後に、表面自由エネルギー測定を行い、化学的活性化の効果としての表面状態の変化を調べる。

機械的粗面化処理の効果を調べるために製作した基礎実験装置の外観を図2に示す。造形ヘッドと、機械的粗面化のための超音波振動子を上部に配置し、造形用ステージがXYZ方向に移動する機構となっ

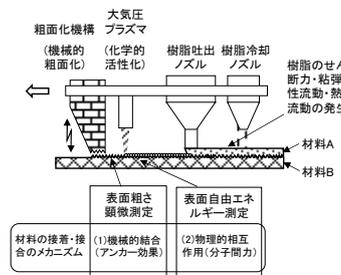


図1 異種材料積層造形の基礎実験装置構成

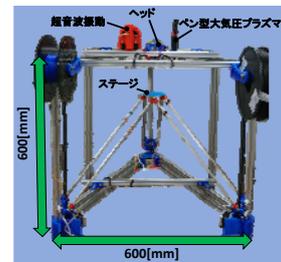


図2 積層造形実験装置1の外観

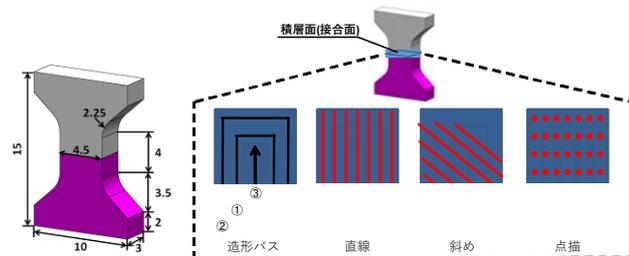


図3 試験片寸法

図4 粗面化パターン

表1 造形条件

造形(ステージ)速度[mm/s]	10
ヒータ加熱温度_PLA[°C]	205
ヒータ加熱温度_TPE[°C]	210/217/224
造形物の内部密度[%]	100
積層ピッチ[mm]	0.2
ノズル径[mm]	0.4

いる。評価用の試験片形状を図3に示す。実験では下半分をポリ乳酸 (PLA)、上半分を熱可塑性エラストマーとする材料で実施した。図4には、粗面化用ブレードの移動パスを示し、粗面化パターンによる効果の違いを評価した。表1に造形条件を示す。

図5に、粗面化処理後の積層面の顕微鏡写真を示す。それぞれのパターンによる、異なる粗面化状態が確認できる。図6に破断面の顕微鏡写真を示す。破断面へのTPEの付着が多くの条件で確認された。しかしながら、境界部での剥離も観察されており、粗面化パターンについてはさらなる検討が必要と考えられる。図7には、造形温度の違いによる、粗面化パターンごとの破断応力の実験結果を示す。この結果より、TPEの造形温度 210℃による場合が粗面化パターンに関わらず全般的に破断応力が高い結果が得られた。また、処理なしの場合と比較すると、最大で24%破断応力が向上した結果が得られた。

## (2) 積層造形法における積層面への化学的表面活性化の効果

図8にABSとPLAの異種材料による引張試験の実験結果を示す。通常造形の結果と、プラズマ処理を行わず、処理に要する時間だけ休止させた場合の結果、大気圧プラズマ処理を行った実験結果を示す。大気圧プラズマ処理を行なった試験片は、接合面が脆く、引張試験を行う前に破断し数値が得られなかった。この実験結果から現状装置構成を変えて、新たに大気圧プラズマガスを再加熱してから対象物へ当てられるように、加熱ブロックを配置する構成とした(図9)。また造形物の寸法精度を高める新たな移動機構を採用した基礎実験装置を製作し、試験片製作を行った(図10)。大気圧プラズマ処理実験の試験片寸法を図11に示す。

図12は、PLA樹脂、ABS樹脂による単一材料造形と2種類を組み合わせた試験片造形での破断強度評価試験の実験結果である。単一材料による造形と比較して、異種材料では大幅に引っ張り強度が低下している。図13に、加熱大気圧プラズマによる表面自由エネルギーの変化を示す。加熱温度が高くなると水滴は広がり、親水性が高まる事より、表面自由エネルギーが増加していることが確認された。プラズマガス種の違いによる効果についても調べた。

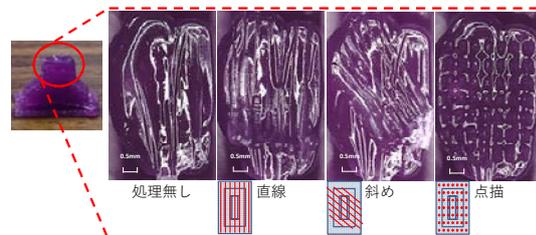


図5 粗面化処理後の積層面状態



図6 破断面観察結果

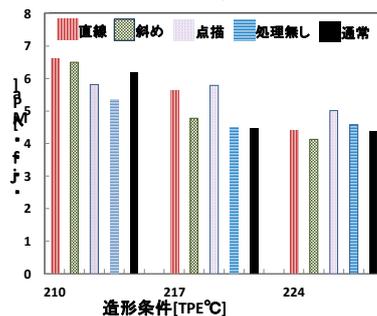


図7 粗面化パターンの違いによる破断応力への効果

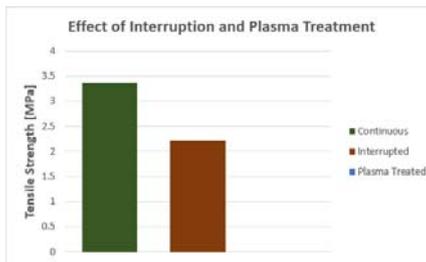


図8 異種材料接合における大気圧プラズマ処理の実験結果

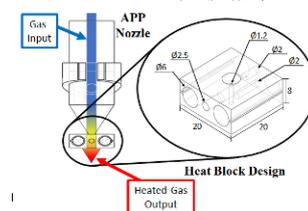


図9 大気圧プラズマとガス加熱ブロックの構成

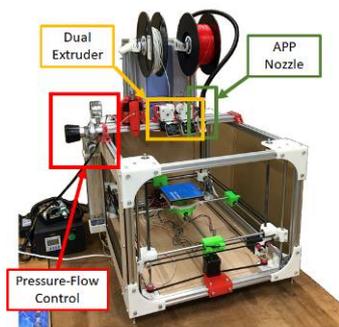


図10 積層造形実験装置2の外観

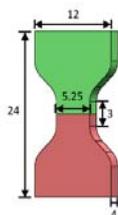


図11 大気圧プラズマ処理実験の試験片寸法

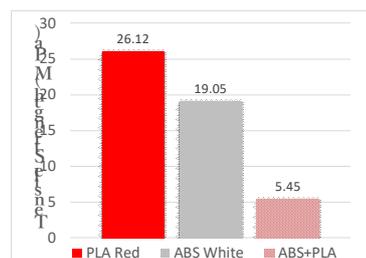


図12 単一および異種材料の破断強度の測定結果

図 14 は加熱大気圧プラズマによる破断強度への効果の実験結果である。窒素ガスを用いる場合がHeガスを用いる場合よりも、若干破断強度の向上が見られたが、何も処理しない場合よりも低く、また大気圧プラズマ処理に要する時間だけ休止させた場合よりも破断強度が低くなる結果となった。そして加熱温度の上昇に対して破断強度は逆に低下した。これらの結果より、現在の方式では表面活性化処理は確かに行われているものの、積層造形における接合プロセス自体を阻害していることが示唆された。

### (3) 積層造形法における積層面への造形雰囲気の効果

積層造形法における積層表面への造形雰囲気の効果調べるために、窒素雰囲気下での造形実験を行った。実験装置の装置構成を図 15 に示す。積層造形装置を密閉して外気から遮断すると共に、窒素ガスを導入し、酸素濃度を低下させた状態で実験を行う。実験装置の外観を図 16 に示す。図 17、18 は試験片を造形中の酸素濃度の違いによる、破断強度への影響を、PLA 樹脂と PS 樹脂材料に対する実験結果である。どちらの樹脂の場合でも窒素雰囲気下では大気雰囲気下の場合よりも破断強度の向上が見られた。

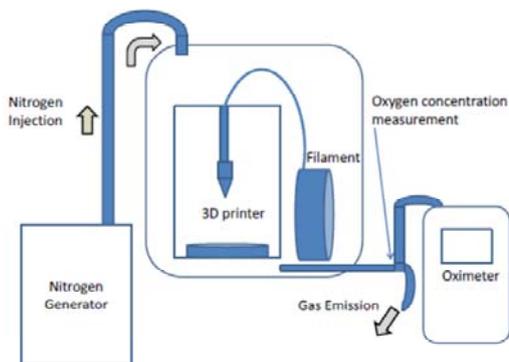


図 15 積層造形実験装置 3 の装置構成

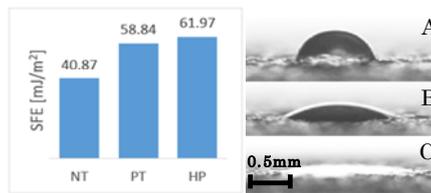


図 13 加熱大気圧プラズマによる表面自由エネルギーの変化

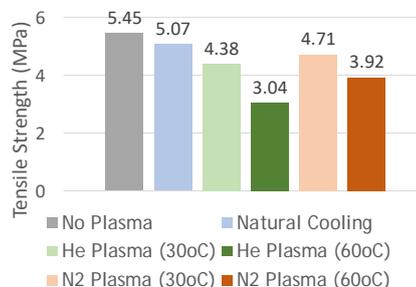


図 14 加熱大気圧プラズマによる破断強度への効果



図 16 積層造形実験装置 3 の外観

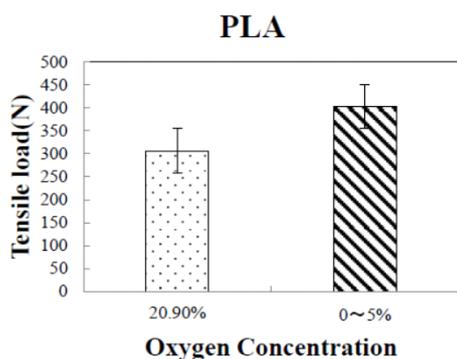


図 17 造形時の雰囲気破断力へ及ぼす影響(PLA)

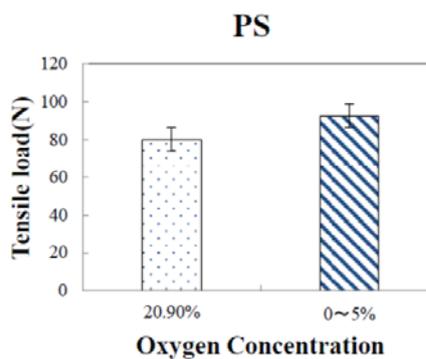


図 18 造形時の雰囲気破断力へ及ぼす影響(PS)

## 4. 研究成果

積層造形法で使用可能な樹脂材料の多様化に伴い、異種材料によるマルチマテリアル積層造形を可能とする成形方法についての研究を実施した。特に、積層界面の接合問題に焦点を絞り、機械的粗面処理の効果、大気圧プラズマによる化学的 surface 活性化処理の効果、および窒素雰囲気造形環境下における効果を調べた。その結果、以下の結果が得られた。

- (1) 積層造形法における積層表面への機械的粗面化の効果調べた。その結果、粗面化パターンにより破断応力の違いが見られた。処理なしの場合と比較すると、最大で 24% 破断応力が向上した結果が得られた。

- (2) 積層造形法における積層表面への大気圧プラズマによる化学的表面活性化の効果を調べた。大気圧プラズマ照射による積層界面での表面張力の上昇が観察されたが、造形後の破断強度については、未処理の場合よりも低い値が観察された。また、大気圧プラズマガスの加熱温度による効果についても調査したが、加熱温度の上昇に対して破断強度は逆に低下した。
- (3) 積層造形法における積層表面への造形雰囲気の効果調べるために、窒素雰囲気下での造形実験を行った。その結果、窒素雰囲気下では大気雰囲気下よりも破断強度の向上が見られた。

材料接合強度向上の方法として認識されている機械的粗面化（アンカー効果）や化学的表面活性化（大気圧プラズマ処理）などの処理を加える際には、樹脂材料を加熱溶融させて既積層面と固着させるという積層造形法特有の積層プロセスの影響を無視することができないと考えられる。積層造形法による破断強度向上の方法については、さらなる調査が必要である。

## 5. 主な発表論文等

〔学会発表〕（計13件）

- ① 熱溶解積層法による造形物の機械的強度向上を目的とした低真空環境下での造形， 田坂明大，榎原弘之，是澤宏之，2019年度精密工学会春季大会学術講演会，東京電機大学、東京，pp. 521, (2019)
- ② The Effect of Atmospheric Pressure Plasma on Inter-Laminar Adhesion Strength of FDM Parts Manufactured with Different Functional Polymers, コペッチ・ロドリゲズシーロ，榎原弘之，是澤宏之，中谷久之，2019年度精密工学会春季大会学術講演会，東京電機大学、東京，pp. 519-520, (2019)
- ③ FDM異種材料接合界面処理における大気圧プラズマ照射温度が引っ張り強度に与える影響，ロドリゲス・シーロ，榎原弘之，是澤宏之，中谷久之，精密工学会九州支部 北九州地方講演会，九州工業大学、北九州市，pp. 121-122, (2018)
- ④ Intermittent Monitoring of FDM Parts' Surface Conditions During the Manufacturing Process: A Newly Designed Automated Test Platform, コペッチ・ロドリゲズ シーロ，榎原弘之，是澤宏之，中谷久之，清水 章充，2018年度精密工学会春季大会学術講演会，中央大学、東京，pp. 399-400, (2018)
- ⑤ 樹脂3Dプリンタによる異種材料接合の接合強度向上に関する研究，清水 章充，榎原弘之，是澤宏之，コペッチ・ロドリゲズ シーロ，中谷久之，2018年度精密工学会春季大会学術講演会，中央大学、東京，pp. 397-398, (2018)
- ⑥ FDM法における特殊雰囲気下での3Dプリンティングの検討，田坂明大，榎原弘之，是澤宏之，2018年度精密工学会春季大会学術講演会，中央大学、東京，pp. 395-396, (2018)
- ⑦ 樹脂 3Dプリンタによる異種材料接合へ表面処理が与える影響，清水 章充，榎原弘之，是澤宏之，中谷久之，精密工学会九州支部熊本地方講演会，熊本大学、熊本市，pp. 27-28, (2017)
- ⑧ 特殊雰囲気下における FDM法による 3 Dプリンティングの検討，田坂明大，榎原弘之，是澤宏之，精密工学会九州支部熊本地方講演会，熊本大学、熊本市，pp. 25-26, (2017)
- ⑨ Improvement of Multi-Material FDM Parts Inter-laminar Adhesion Strength through Atmospheric Pressure Plasma Incidence, ロドリゲス・シーロ，榎原弘之，是澤宏之，清水 章充，中谷久之，精密工学会九州支部熊本地方講演会，熊本大学、熊本市，pp. 21-22, (2017)
- ⑩ Enhancement of Electrically Conductive FDM Parts Adhesion Strength to Different Polymers through Atmospheric Pressure Plasma Treatment, コペッチ ロドリゲス シー

ロ, 檜原 弘之, 是澤 宏之, 中谷 久之, 清水 章充, 2017年度精密工学会春季大会学術講演会, 慶応義塾大学、横浜市, pp. 1025-1026, (2017)

- ⑪ 樹脂3Dプリンター造形物の接合強度へ積層間の粗面化処理が与える影響, 清水 章充, 檜原 弘之, 是澤 宏之, 中谷 久之, コペッチ ロドリゲス シーロ, 2017年度精密工学会春季大会学術講演会, 慶応義塾大学、横浜市, pp. 1023-1024, (2017)
- ⑫ 3Dプリンタによる造形物への積層表面処理の違いによる接合力への影響, 清水 章充, 檜原 弘之, 是澤 宏之, 成形加工シンポジウム'16, 仙台, (2016)
- ⑬ デルタ型3Dプリンタの高速領域における成形条件のパラメータ設計, 清水 章充, 檜原 弘之, 是澤 宏之, 精密工学会学術講演会講演論文集, pp. 557-558, (2016)

## 6. 研究組織

### (1) 研究分担者

研究分担者氏名：中谷 久之

ローマ字氏名：NAKATANI, Hisayuki

所属研究機関名：長崎大学

部局名：工学研究科

職名：教授

研究者番号（8桁）：70242568

研究分担者氏名：是澤 宏之

ローマ字氏名：KORESAWA, Hiroshi

所属研究機関名：九州工業大学

部局名：大学院情報工学研究院

職名：准教授

研究者番号（8桁）：70295012

### (2) 研究協力者

研究協力者氏名：清水 章充

ローマ字氏名：SHIMIZU, Akimitsu

研究協力者氏名：シーロ ロドリゲス

ローマ字氏名：RODRIGUEZ, Ciro

研究協力者氏名：田坂 明大

ローマ字氏名：TASAKA, Akihiro

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。