

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 5 日現在

機関番号：17104

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560137

研究課題名(和文) 積層造形法に基づく機能性部品の異種材料密着性制御に関する研究

研究課題名(英文) Study on control of the adhesive properties of the heterogeneous material for the functional part made by Additive Fabrication method

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) 4,300,000円

研究成果の概要(和文)：溶解式MID-RP成形プロセスでの積層接合面への影響を検証するために基礎実験装置の構築を行った。また大気圧プラズマ処理による接合面へ与える影響を測定した。さらに、実際の積層物としての多層へ拡張した際の、接合面に対する評価を行った。造形物の表面自由エネルギー、機械的特性(密着強度)等々を評価した。大気圧プラズマを照射することで未処理の状態から表面自由エネルギーが増加し、接着強度も向上する結果が得られた。導電性材料と非導電性樹脂との密着性の評価を行った。銅粉末混入PLA樹脂、ブロンズ粉末混入PLA樹脂、カーボン粒子混入樹脂を用い、表面自由エネルギーを評価し、処理条件で差異が出る結果が得られた。

研究成果の概要(英文)：In order to verify the influence on lamination within a MID-RP process, fundamental experiment equipment was constructed. The influence on the lamination plane by atmospheric-pressure plasma treatment was measured. Furthermore, evaluation to the bonded surface at the time of extending to the multilayer as a actual laminated product was performed. The surface free energy of building parts and a mechanical property (adhesion strength) were evaluated. By irradiating with atmospheric-pressure plasma, surface free energy increased from unused condition. Moreover, the experimental result that strength of adhesive bonding also improved was obtained. The adhesion of a conductive material and non-conductive resin was evaluated. Surface free energy was evaluated using PLA resin of copper powder mixing, PLA resin of bronze powder mixing, and resin of carbon-particles mixing. The difference result in the processing condition was obtained with material.

研究分野：生産システム

キーワード：付加製造科学 Additive Manufacturing ラピッドプロトタイピング MID

1. 研究開始当初の背景

積層造形法はラピッドプロトタイピングとも呼ばれる。3次元形状部品を薄い層の積み重ねとして定義し、プラスチックや金属材料を少しずつ付加接合しながら立体部品を実現する技術である。切削等の除去加工技術とは異なり、複雑な形状であっても加工プロセスがほとんど影響を受けずに製造可能という特長を持つ。

一方、Molded Interconnect Device (成形回路部品：MID) とは、射出成形部品の表面に電気回路を立体的に形成する技術である。

MID 部品は、機械構造部品と電気配線回路部品との機能を共に有しており、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ことから、電子機器の小型化に伴い重要性が増している。

MID 部品は構造部品としての部品形状と、電気配線の一体化されたものであるため、将来的にはセンサー型部品、流体検査チップ、小型アクチュエータやスマート部品のための要素技術となり得る。MID により、これまでに無い機能部品を実現できることから、機械的機能の役割としての部品構造体の形成技術についても基礎的な検討を加えてゆくことが必要である。

MID は今後、産業的に価値が高まると予想されるが、これを積層造形法に基づいて実現しようとする場合、これまで該当分野の研究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。

これらの研究課題は、単一材料の研究が中心の、これまでのラピッドプロトタイピング研究をさらに発展させるものとして非常に興味深く、重要なテーマである。これらの基礎的研究を推進していく事によって産業応用への実現性が近くなると期待される。

2. 研究の目的

本研究課題は、これまでの単一材料ラピッドプロトタイピング技術に対し、複数材料の親和性や接合科学を中心とする複数材料のラピッドプロトタイピング技術の基礎理論を進展させていく事を目的としている。Molded Interconnect Device - Rapid prototyping (MID-RP) 実現のための根幹技術となる、熔融式積層造形法と粉末焼結式積層造形法をベースとした MID-RP 研究を手掛けていく。

熔融式 MID-RP 成形における接合問題に取り組み、解析システムの整備および、表面自由エネルギー測定実験装置の構築を進める。また熔融式 MID-RP 成形での、改質処理によ

る接合特性の制御の問題に取り組む。

3. 研究の方法

(1) 熱溶解積層造形法の積層面への大気圧プラズマ処理による効果

① 熱溶解積層造形法

積層造形法については、最近付加製造法 (AM: Additive Manufacturing) と呼ばれるようになってきているが、この技術の一つに、熱溶解積層造形法 (FDM: Fused Deposition Modeling) がある。図1に示すように、ノズルヘッドから溶解した熱可塑性樹脂を吐出して、堆積と固化を繰り返すことで三次元形状を造形する手法である。任意形状をオンデマンド製造できる特長を有しているが、その原理が積層に基づいているために、層間接着強度が低い事がその欠点の一つとして挙げられる。本研究では、大気圧プラズマを用いて FDM 部品の積層面に改質処理を行うことで、積層間の接着強度の向上への効果を確認する。

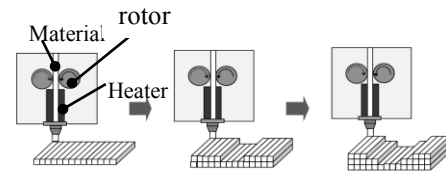


図1: FDM の造形プロセス

② 大気圧プラズマ

大気圧プラズマは、グロー放電状態を大気圧下で発生させているのを特徴とする。これは通常は真空条件下でしか発生できない。プラズマにより生じた活性種 (ラジカル、イオン、電子等) は、有機物の汚れ除去などの洗浄効果や、凹凸形状形成などの粗面効果や、表面処理などの活性化効果に利用することができる。本研究では、He ガスが流されたガラス管に低周波・高圧電源 (10kV, 10kHz) が接続されて放電を発生させることで大気圧プラズマを発生させる (図2、図3)。

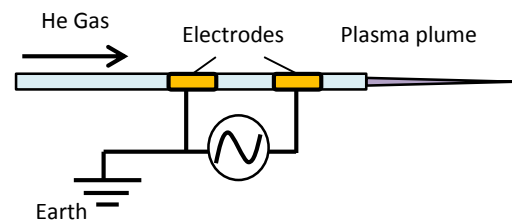


図2: 大気圧プラズマ



図3: 大気圧プラズマ炎

③ 表面自由エネルギーによる接着強度の評価

接着仕事は、図5に示すように界面で接している二つの表面を引き離すのに必要なエネルギーで定義され、デュプレ式と呼ばれる式(1)で表される。

$$W_a = \gamma_A + \gamma_B - \gamma_{AB} \quad (1)$$

ここでは、 γ_A は表面Aの表面自由エネルギー [J/m²]、 γ_B は表面Bの表面自由エネルギー [J/m²]、 γ_{AB} はA-B界面の界面自由エネルギー [J/m²]をそれぞれ表している。この接着仕事を計算することで、積層の接着強度が評価できる。

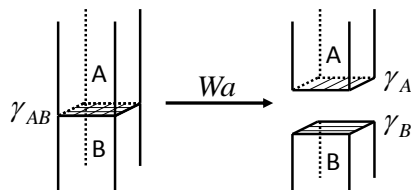


図4: 接着仕事

拡張フォークス式とは、固体の表面自由エネルギーを計算する方法の一つである。片方の表面がもう一つの表面に与える作用力は、それぞれの表面自由エネルギーの幾何平均値であるとして、式(2)で表すことができる。

$$W_a = \gamma_L(1 + \cos \theta) = 2(\gamma_S^d \cdot \gamma_L^d)^{1/2} + 2(\gamma_S^p \cdot \gamma_L^p)^{1/2} + 2(\gamma_S^H \cdot \gamma_L^H)^{1/2} \quad (2)$$

ここで、 γ_L は液体の表面張力、 γ_S は固体の表面張力、 γ_d はファンデルワールス力の分散力成分、 γ_p は極性に基づく分子間力による界面-相互作用力(極性力成分)、 γ_H は水素結合相互作用力(水素結合成分)を表している。

図5に示すように、 θ は接触角で、固体表面上の小さな液滴で、端からの接線と固体表面の線とで成す角度である。

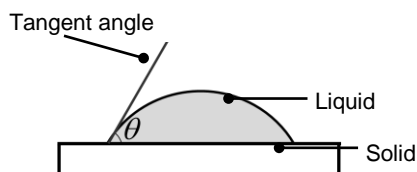


図5: 接触角

分散力成分、極性力成分、水素結合成分の3つの成分値のあらかじめ判明している3種類以上の液体試薬を用いる。それらの試薬を試験片に滴下して接触角を測定して、式(2)で最小二乗法を用いることで、固体の表面自由エネルギーの各成分を計算することができる。

④ 破断試験

大気圧プラズマ処理による効果を調べるため、破断試験用試験片を作成する。試験片の作成には、FDM装置として、RepRap Mendel Plusaを使用した。またFDM装置にプラズマ照射ヘッドを取り付けて、試験片の各層の積層造形とプラズマ処理を交互に行う。図6のように、造形用ヘッドとプラズマヘッドをある間隔に並べて移動機構へ固定して、試験片を2個同時に作成する。

積層面が造形される度に最上面にプラズマ炎が照射される。その2個のサンプル中の1サンプルだけに、積層面にプラズマ処理が行われる。本実験では、流量計付きのレギュレータを用いることでプラズマ発生時のHeガス流量を変化させる。

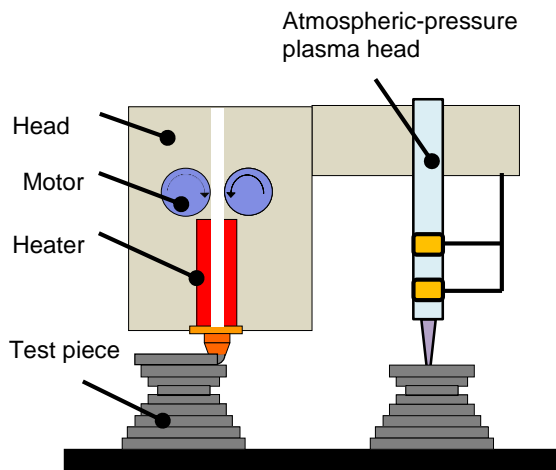


図6: プラズマ処理実験装置構成

造形する破断試験片の形状を、図7に示す。電動スタンドに取り付けたフォースゲージを用いて、作製した各試験片の破断試験を行う。破断応力 σ [MPa]は式(3)より求めることができる。

$$\sigma = F/A \quad (3)$$

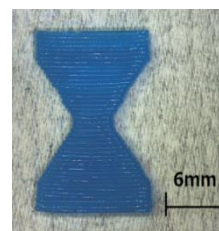


図7: 破断試験片形状

ここでFは測定荷重 [N], Aは断面積 [mm²] である。破断試験では破断時の最大荷重と破断面の面積を使用する。断面積の測定には画像解析ソフトを使用する。

(2) 接合問題における熱成形プロセス影響の表面自由エネルギーに基づいた解析:

直交実験を行い、大気圧プラズマ処理に大きな影響を与える因子の特定と、照射条件の最適化を図った。造形条件とプラズマ発生条件を変化させて表面自由エネルギーを測定した。

表 1 実験条件

Level	Stage temperature[A]	Specimen size[B]	Irradiation area [C]	Interval time[D]
1	40°C	20x10mm	a	0h
2	50°C	30x10mm	ab	24h
3	60°C	40x10mm	abc	48h

(3) 熔融式M I D-R P成形における接合問題の基礎特性実験:

導電性材料との接合時の接着性の評価を、表面自由エネルギーに基づいて評価した。導電性材料としては、銅粉末混入P L A樹脂、ブロンズ粉末混入P L A樹脂、カーボン粒子混入樹脂について、それぞれ異なる表面処理を施した場合の表面自由エネルギーの変化を評価した。この表面自由エネルギーの測定結果から接着仕事を算出した

表 2 実験処理条件

Label	name
A	Normal-copperFill
B	After plasma treatment copperFill
C	After shaving copperFill
D	Normal-CONDUCTIVE BLACK
E	After plasma treatment CONDUCTIVE BLACK
F	After shaving CONDUCTIVE BLACK
G	Normal-bronzeFill
H	After plasma treatment bronzeFill
I	After shaving bronzeFill

4. 研究成果

(1) 熱溶解積層造形法の積層面への大気圧プラズマ処理による効果

① 表面自由エネルギーによる接着強度の評価結果

図 8 に、P L A樹脂の積層にプラズマを 0 ~30 秒間照射した時の表面自由エネルギーの変化を示す。

図 8 より、プラズマを照射することによってF D M造形物での表面の表面自由エネルギーが増加することを確認した。表面自由エネルギーが 5[s] という短い処理時間で約 8%, 20 秒で約 20%増加した結果が得られた。また、図 8 に示すように、プラズマ処理によって表面自由エネルギーにおける水素結合項

の割合が最も大きく増加した。

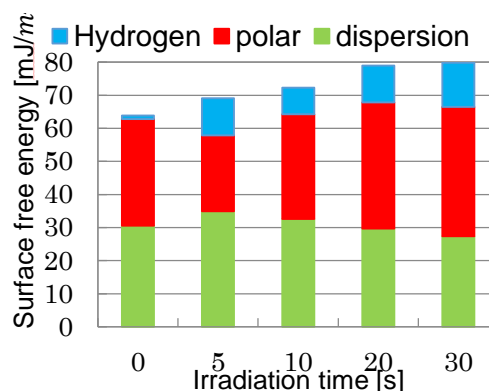


図 8: 大気圧プラズマ処理による表面自由エネルギーへの影響

② 破断試験結果

図 9 に破断試験による各試験片の破断時の応力を示す。図 9 に示した応力グラフより、造形のを速めた場合に破壊強度は向上した。また大気圧プラズマ処理を行う事で、破壊強度はさらに向上した。プラズマを照射した際の破断応力が非照射造形よりも 1000mm/min, 1400mm/min でも共に増加している。このことより、プラズマ処理により破断強度向上が確認された。

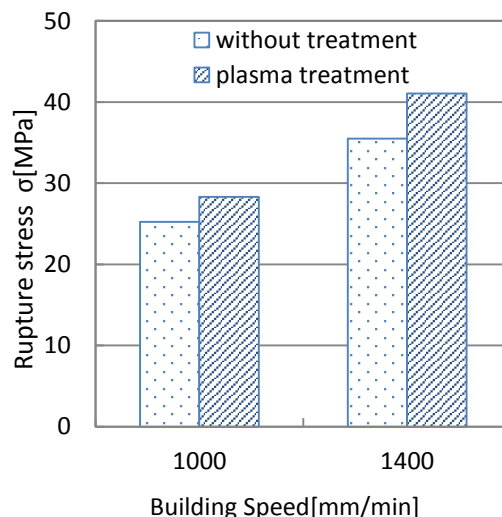


図 9: 大気圧プラズマ処理による破断強度への影響

(2) 接合問題における熱成形プロセス影響の表面自由エネルギーに基づいた解析:

直交実験の結果より (図 10)、照射範囲の条件が顕著な影響を与える事が明らかになった。また最適な条件で大気圧プラズマを照射することで未処理の状態から表面自由エネルギーが約 75%増加する結果が得られた。

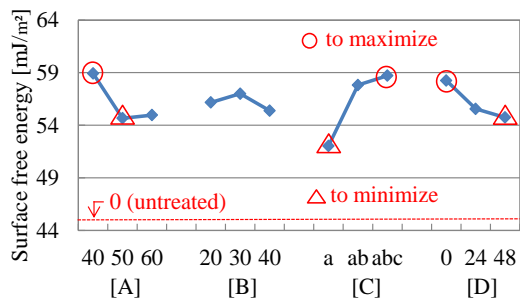


図 10: 直交実験結果

(3) 熔融式M I D-R P成形における接合問題の基礎特性実験：

導電性材料との接合時の接着性の評価を、表面自由エネルギーに基づいて評価した。導電性材料としては、銅粉末混入P L A樹脂、ブロンズ粉末混入P L A樹脂、カーボン粒子混入樹脂について、それぞれ異なる表面処理を施した場合の表面自由エネルギーの変化を評価した。この表面自由エネルギーの測定結果から接着仕事を算出した結果、カーボン粒子混入樹脂が最も高い接着仕事の値となるという結果が得られた。また、表面を粗くすることで接着仕事の増加が確認された。

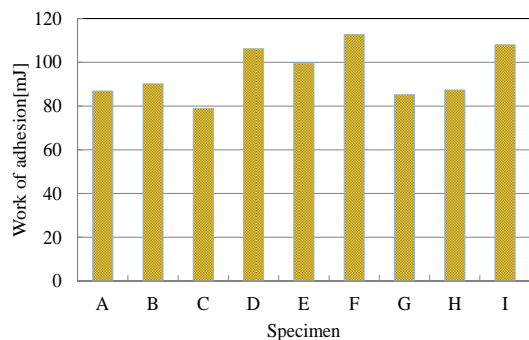


図 11: 実験結果

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)

[学会発表] (計 11 件)

- (1) 白濱洋太, 是澤宏之, 榎原弘之, "FDMの接着性向上を目的とした大気圧プラズマ処理", 2015年度精密工学会春季大会学術講演会, 精密工学会, 2015年3月17-19日, 東洋大学、東京, 219-220
- (2) Hiroyuki Narahara, Yota Shirahama, Hiroaki Sanematsu, Hiroshi Koresawa and Hiroshi Suzuki, "Improvement in The Interlaminar Bonding Strength of The FDM Parts by the In-Process Surface Treatment using Atmospheric-Pressure Plasma", ISIC/ASME 2014 International Symposium on Flexible Automation, Institute of Systems, Control and Information Engineers, 14-16

July, Awaji-Island, Hyogo, JAPAN, 2014-39S, 1-4

- (3) 白濱洋太, 榎原弘之, 是澤宏之, "大気圧プラズマ照射条件による FDM 造形物表面の表面自由エネルギーの変化", 2014年度精密工学会九州支部鹿児島地方講演会, 2014年12月6日, 鹿児島大学
- (4) 白濱洋太, 是澤宏之, 榎原弘之, "FDMにおける熱可塑性樹脂と導電性材料との接着性制御の検討", 2014年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集, 精密工学会, 2014年9月16日-18日, 鳥取, 307-308
- (5) 白濱洋太, 榎原弘之, 鈴木裕, 是澤宏之, "大気圧プラズマ処理を用いた FDM 造形物の強度向上～造形速度と引張応力～", 2013年度精密工学会九州支部宮崎地方講演会, 2013年12月15日, 宮崎大学
- (6) 白濱洋太, 是澤宏之, 榎原弘之, 鈴木裕, "大気圧プラズマ処理を用いた FDM 造形物の強度向上～表面自由エネルギーの測定と確認実験の検討～", 2013年度精密工学会春季大会学術講演会, 2013年03月13-15日, 東京工業大学 大岡山キャンパス, 1053-1054
- (7) 松永健嗣, 是澤宏之, 榎原弘之, 鈴木裕, "熱溶解積層法に用いるスクリーン機構の開発", 2013年度精密工学会九州支部宮崎地方講演会, 2013年12月15日, 宮崎大学
- (8) 小林祐也, 是澤宏之, 榎原弘之, 鈴木裕, "FDMシステム用の導電性樹脂の作製及び評価", 2013年度精密工学会九州支部宮崎地方講演会, 2013年12月15日, 宮崎大学
- (9) 松永健嗣, 榎原弘之, 鈴木裕, 是澤宏之, "FDMに用いる導電性樹脂用吐出ヘッドの開発", 2012年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集, 2012年9月14-16日, 北九州, 973-974
- (10) 小林祐也, 鈴木裕, 榎原弘之, 是澤宏之, "FDMシステムに適用可能な導電性樹脂の開発", 2012年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集, 2012年9月14-16日, 北九州, 787-788
- (11) 安永志郎, 是澤宏之, 榎原弘之, 鈴木裕, "金属光造形におけるレーザ焼結時の熱伝導解析", 2012年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集, 2012年9月14-16日, 北九州, 561-562

6. 研究組織

- (1) 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

- (2) 研究分担者

(3) 連携研究者

是澤宏之 (KORESAWA, Hiroshi)

九州工業大学・大学院情報工学研究院・助教

研究者番号：70295012

(4) 研究協力者

白濱洋太 (SHIRAHAMA, YOTA)

九州工業大学・大学院学際情報工学専攻 (当時)

松永健嗣 (MATSUNAGA, KENJI)

九州工業大学・大学院情報創成専攻 (当時)

小林拓也 (KOBAYASHI, TAKUYA)

九州工業大学・大学院情報創成専攻 (当時)

安永志郎 (YASUNAGA, SHIRO)

九州工業大学・大学院情報創成専攻 (当時)