

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 10 月 18 日現在

機関番号：33302

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25420071

研究課題名(和文) アンカー効果および金属表面コーティングの相乗効果による金属樹脂接合技術の開発

研究課題名(英文) Development of joined with metal and resin by anchor effect and DLC coating

研究代表者

瀬戸 雅宏 (SETO, MASAHIRO)

金沢工業大学・ものづくり研究所・講師

研究者番号：90367459

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、接合部表面に凹凸を有するアルミニウムプレートを用いた金属-樹脂接合射出成形品について、接合強さに与える代表的な成形条件や強化繊維の影響を検討した。また、射出成形中の樹脂流動挙動を可視化観察し、接合強さを向上させるための成形条件を提案した。その結果、強化繊維によって成形収縮が小さくなり、接合面の剥離が抑制されて接合強さが向上したと推察された。また、金属と樹脂のアンカー効果による接合強さの向上には、樹脂の固化層成長を遅くし、高速充填して固化層が成長する前に凹凸部に樹脂を流入させる条件設定が必要であることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：In this study, the influence of typical injection molding conditions and reinforcement fiber on joining strength was investigated in joining resin and aluminum plate with uneven surface by injection molding. Moreover, visualization of resin flow into the fine uneven part on the metal surface was carried out, and the injection molding conditions for enhancement of joining strength were proposed. As a result, it was inferred that the cause of enhancement of joining strength is reduced in molding shrinkage by reinforcement fiber. Also for the improvement in joining strength of injection molded parts joined with metal and resin, it was concluded that high filling speed is essential to make growth of the solidification layer delayed.

研究分野：プラスチック成形加工

キーワード：射出成形 異種材料接合 アンカー効果 成形条件 強化繊維 接合強さ

1. 研究開始当初の背景

研究代表者は、これまで自動車部品メーカーと共同で軽量化を目的とした射出発泡成形技術の開発に取り組んできた。しかし、自動車の車体構造部品やエンジン部品などは、強度や耐熱性の観点から樹脂材料単体では難しい問題が顕在化した。そのため、金属材料と樹脂材料を接合し、複合化によって軽量化を実現する必要が生じた。金属材料と樹脂材料の接合に関しては、金属材料表面の化学的な処理によって樹脂との親和性を改善し接合する方法が研究されている。しかし、これらの方法では十分な接合強さが得られず、また有害な廃液を処理する必要がある、環境に対する負荷が大きい問題があった。そのため、金属材料と樹脂材料を物理的に接合する方法が求められていた。その方法として、近年では、金属表面に微細な凹凸形状を加工し、溶融樹脂を流し込んで冷却固化させて、アンカー効果によって接合する方法が注目されている。本接合方法は、一部で実用化されているものの、接合強さの発現メカニズムや接合強さの向上を実現できるプロセス条件がいまだ明確ではなく、接合強さの向上メカニズムならびに接合プロセス条件の確立が求められていた。

2. 研究の目的

本研究課題では、二次加工を必要とせず、表面に凹凸加工を施した金属材料を金型内にインサートし、射出成形によって樹脂と金属の接合を同時に行う方法を検討した。しかし、アンカー効果を用いた射出成形による金属材料と樹脂材料の接合では、接合強さの発現メカニズムが不明確であることから、接合強さを向上させる成形条件が明らかになっていない。そのため、樹脂と金属の接合強さの向上を実現できる成形条件の最適化が求められている。

射出成形法およびアンカー効果による金属と樹脂の接合方法の技術的課題は、金属表面の凹凸部に樹脂を完全に充填させることである。そのため、本研究課題では、射出成形中の凹凸部に流入する樹脂の流動挙動を直接観察して、各成形条件と凹凸部の樹脂流入挙動の関係を明らかにし、接合強さの向上を実現できる成形条件の指針を構築することを目的とする。また、本接合方法において接合強さに与えるガラス繊維の影響についても明らかにする。さらに、金属の接合部表面に樹脂材料との親和性を向上させる薄膜コーティングにより、金属材料と樹脂材料との濡れ性の改善と接合強さ向上の効果について検討することを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 接合強さに与える成形条件の影響

試験片の形状および成形条件

本研究では、金属材料として図1に示すように幅15mm、長さ60mm、厚さ1mmのアルミ

ニウムプレート(A5052)を使用した。接合部表面にはレーザー加工で深さ140 μ m、ピッチ100 μ mの凹凸形状を加工し、図2に示すように、接合面に樹脂が流れるように金型内にインサートして樹脂を充填した。成形には、スクリー径40mmの電動サーボ射出成形機(東洋機械金属製, Si180-)を使用した。

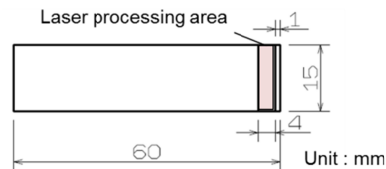


図1 アルミニウムプレートの形状

成形品形状は、図3に示すようなゲート厚さ1.0mmのファンゲートを有する樹脂部板厚2.5mmの平板状とした。成形に使用した樹脂材料はポリプロピレン(PP, サンアロマー製, PM975X)である。射出成形条件は、接合強さに与える成形条件の影響を明らかにするため、表1に示すように、射出速度、樹脂温度、金型温度および保圧を変化させて成形を行った。なお、保圧時間は5s、冷却時間は20sとし、すべての条件において統一した。

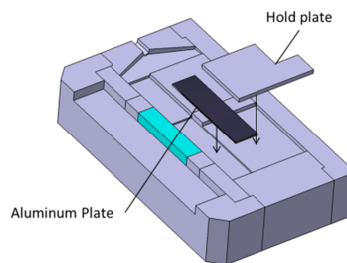


図2 アルミニウムプレートのインサート方法

表1 成形条件 (成形条件の影響)

Injection rate	V	mm/s	5	10	20	30	100
Mold temp.	M	$^{\circ}$ C	30	50	70		
Resin temp.	T	$^{\circ}$ C	180	200	220		
Holding press.	R	MPa	0	10	20		
Holding time	t_R	s	5				
Cooling time	t_C	s	20				
standard condition							

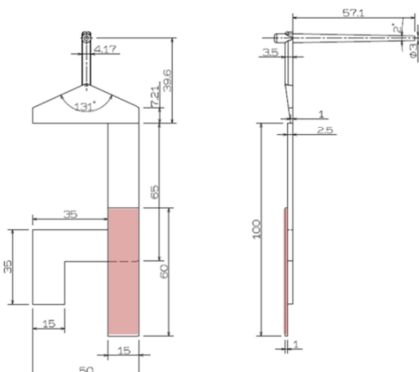


図3 成形品形状

また、接合強さに与える強化繊維の有無および繊維長の影響を検討するため、非強化の

PP (J3021GR, プライムポリマー) と、この樹脂材料に繊維長が $80 \pm 20 \mu\text{m}$ (以下, 短繊維とする) および 5mm (以下, 長繊維とする) のガラス繊維をそれぞれ 30wt% 含有した 2 種類の強化樹脂材料の計 3 種類の材料を供試材料として使用した。成形条件は表 2 に示す。

表 2 成形条件 (強化繊維の影響)

GF length	-	$80 \mu\text{m}$	5mm
GF content	0wt%	30wt%	
Resin temp.	220		
Mold temp.	70		
Injection rate	$125.7\text{cm}^3/\text{s}$		
Holding pressure	50MPa		
Holding time	10s		

接合強さの評価

アルミニウムプレートと樹脂の接合強さの評価に使用した試験片は、図 3 に示す成形品から不要部分を切除して図 4 に示す引張試験片を作製した。接合強さの評価には、卓上引張試験機 (島津製作所製, EZ-TEST500) を使用して試験速度 $5\text{mm}/\text{min}$ で上記試験片の引張試験を行い、接合面剥離時の最大荷重を計測し、(1)式によりせん断接合強さを算出して評価した。

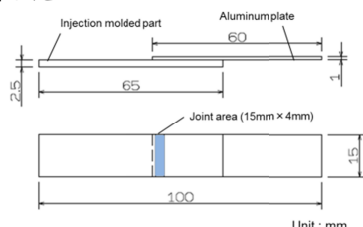


図 4 接合強さと評価試験片

$$P[\text{MPa}] = \frac{F[\text{N}]}{A[\text{mm}^2]} \dots (1)$$

ここで、 P はせん断接合強さ、 A は接合部の面積、 F は最大引張荷重である。

樹脂流動挙動の可視化観察方法

接合強さと樹脂流動挙動の関係を考察するため、アルミニウムプレート接合面の凹凸部に流れる樹脂流動挙動を観察した。樹脂流動挙動の観察には、金型の一部に観察用のガラスブロックを組み込んだ可視化金型を使用した。図 5 に可視化金型キャビティブロックの模式図を示す。キャビティ内にインサートしたアルミニウムプレートの接合部側面に観察用のガラスブロックを設け、観察部に光を照射して金型側面に設置した高速度カメラにより成形品板厚方向の樹脂流動挙動を観察した。観察には使用した高速度カメラは動き解析マイクロスコープ (キーエンス製, VW-5000) であり、フレームレートは 500FPS、シャッタースピードは 0.001s の条件で撮影した。また、接合部の微細な樹脂流動挙動を観察するため、高倍率の長距離焦点レンズ (キーエンス製, VH-Z50L) を用いて 200 倍の倍率で観察した。

アルミニウムプレートと樹脂を接合させるためには、接合面の凹凸部に溶融樹脂を流

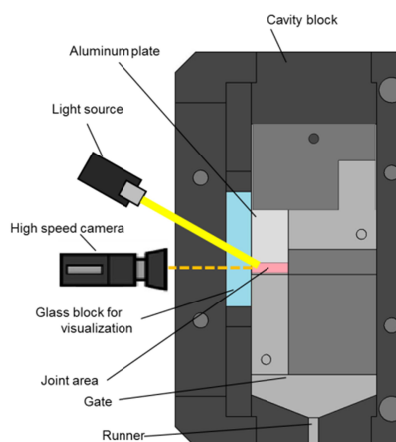


図 5 可視化実験の模式図

し込む必要がある。この凹凸部に流れ込む樹脂は樹脂流動中の樹脂圧力に影響されることが考えられる。そのため、接合部の固定側キャビティ面に樹脂圧力センサー (キスラー製, 6157BA) 設置し、高速度カメラと樹脂圧力センサーを同期させて計測することで、成形中の樹脂圧力が凹凸部への流入挙動およびせん断接合強さに与える影響を検討した。

4. 研究成果

接合強さに与える成形条件の影響

図 6 に各条件の接合強さを比較した結果を示す。射出速度を変化させた条件で接合強さを比較すると、射出速度を高く設定することで接合強さが高くなっている。射出成形では樹脂温度に比べて金型温度は低く、キャビティ内を流れる樹脂は固化層が成長しながら充填される。射出速度が遅い条件では、樹脂の充填に時間がかかるためキャビティ表面近傍の樹脂の冷却が進み、粘度が上昇してアルミニウムプレート接合部表面の凹凸部に樹脂が入り込みにくくなったと考えられる。一方、射出速度が速い条件では、樹脂がキャビティ内に充填されるまでの時間が短く金型による樹脂の冷却効果が小さいためにキャビティ表面の樹脂粘度が低い状態となり、凹凸部に十分樹脂が流れ込み接合強さが高くなったと考えられる。

金型温度を変化させた条件では、金型温度を高くすることで接合強さが高くなってい

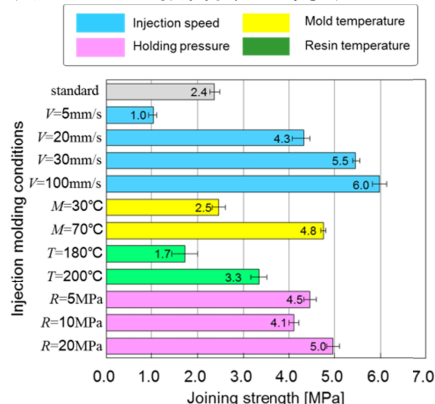


図 6 成形条件と接合強さの関係

る。また、樹脂温度を変化させた条件でも、樹脂温度を高くすると接合強さが向上することが確認された。金型温度や樹脂温度が高い条件では、キャビティ内を流れる樹脂の固化層の成長が遅くなり、キャビティ表面近傍の樹脂粘度が低く保たれる。そのため、成形中の樹脂圧力によって接合面の凹凸部に樹脂が流れ込みやすくなり、金型温度や樹脂温度が高い条件で接合強さが向上したと考えられる。

保圧を変化させた条件では、保圧を高くした条件の方が接合強さは高くなる傾向が見られた。これは保圧によって比較的長い時間樹脂に圧力がかかり、凹凸部に樹脂が流入したために接合強さが向上したものと推測される。

接合部の樹脂流動挙動

図7に凹凸部の樹脂流動挙動の可視化観察の結果を示す。図7(a)は、樹脂のフローフロントが接合面凹凸部を通過した直後の画像である。フローフロントが通過した直後では、金属表面の凹凸部上部を樹脂が通過し凹凸部への樹脂の流入は確認できなかった。その後図7(b)および(c)に示すように、時間の経過とともに凹凸部に徐々に樹脂が流れ込む様子が観察された。この時、凹凸部に流れ込む樹脂は、フローフロント側よりも成形品のゲート側の方が深く流れ込んでいることがわかった。しかし、樹脂流動中は凹凸部の最深部までの充填は確認できなかった。キャビティ内に樹脂が完全に充填されると、図7(d)に示すように、凹凸部の最深部に樹脂が流れ込むことが確認された。

これは、接合面にフローフロントが到達した直後では、接合部における樹脂圧力が低いために凹凸部に樹脂が流入しないが、樹脂の充填が進むにしたがって、流動抵抗が大きくなって樹脂圧力が高くなるため、凹凸部に樹脂が流れ込んだものと推測される。

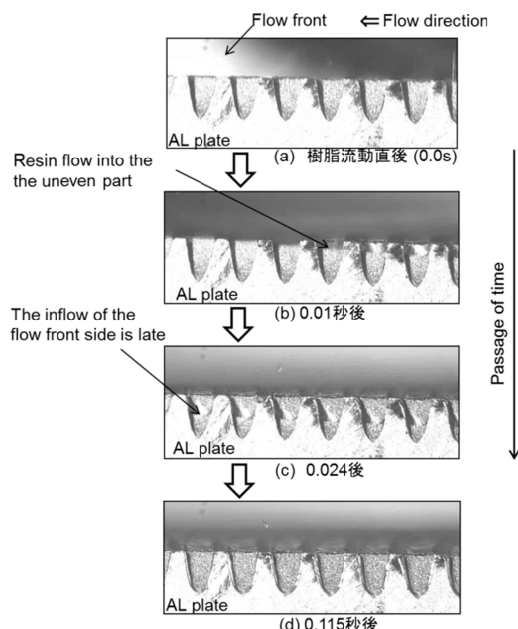


図7 凹凸部の樹脂流動挙動の観察結果

接合強さに与える樹脂圧力の影響

図8に樹脂圧力の計測結果を示す。図8(a)に示すように、射出速度が遅い条件(10mm/s)では圧力が上昇し始めてからピークに達するまで0.394sであるが、射出速度が20mm/sでは0.302s, 100mm/sでは0.234sと射出速度が速くなるにしたがって時間が短くなっている。射出速度が遅い条件では、速い条件に比べて、接合部での圧力の立ち上がりからピークまで比較的長い時間を要していることから、固化層が成長して凹凸部に樹脂が流れ込みにくく、十分な接合強さが得られなかったと推測される。一方、射出速度が速い条件では樹脂圧力のピークまでの時間が短いため、固化層が成長する前に樹脂圧力が高くなり凹凸部に十分に樹脂が流れ込み、接合強さが向上したと考えられる。また図8(b), (c)に示す金型温度および樹脂温度を変化させた条件では、接合部の樹脂圧力の立ち上がりからピークまでの時間が約0.39sであった。金型温度や樹脂温度を高くすることで、固化層の成長が遅くなり凹凸部に樹脂が流れ込んで、接合強さは高くなったと推察される。

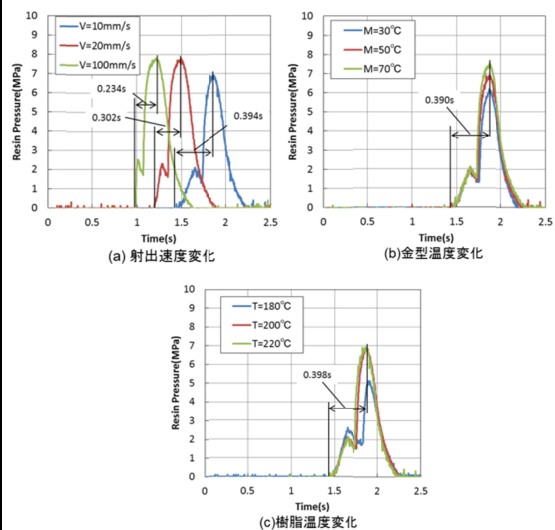


図8 接合部における成形中の樹脂圧力変化

以上の結果は、接合強さを向上させるための一手法として、樹脂充填中の固化層の成長を遅らせるとともに、高速で樹脂を充填し固化層が成長する前に樹脂圧力を高くして凹凸部に樹脂を流入させる条件設定が有効であることを示唆している。

ガラス繊維長と接合強さの関係

図9に樹脂に含有したガラス繊維の繊維長と接合強さの関係を示す。短繊維を含有した材料では、残存平均繊維長は79μm、長繊維を含有した材料の残存平均繊維長は、可塑化時および流動中の折損により371μmであった。ガラス繊維を含有しないPP樹脂では接合強さは4.6MPaであるのに対し、短繊維では7.7MPa、長繊維では10.2MPaであり、ガラス繊維を含有した方が接合強さは高く、またガラス繊維長の長い方が接合強さは高くなる傾向が見られた。

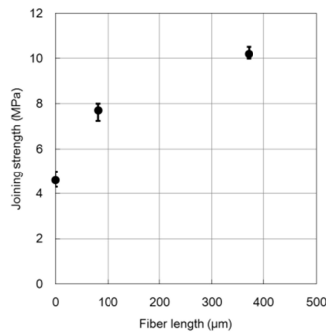
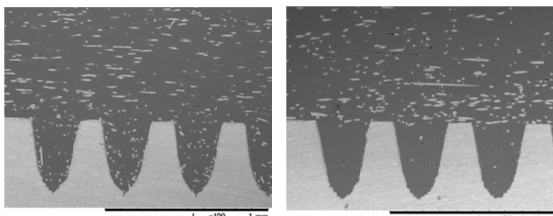


図9 ガラス繊維長と接合強さの関係

非強化のPPよりもガラス繊維含有PPの方が接合強さは高くなった原因としては、ガラス繊維による樹脂の弾性率向上によって同じ荷重下でも変形が小さくなり、接合部の剥離が抑制されたためと考えられる。また短繊維よりも長繊維の方が接合強さは向上しているが、上述したように長繊維含有PPでは凹凸部に繊維はみられない。このことから、長繊維含有PPの接合強さ向上の要因としてガラス繊維による変形の抑制以外にも要因があると考えられる。



(a)短繊維 (b)長繊維
図10 接合部のガラス繊維観察写真

凹凸部へのガラス繊維の流入挙動

図10(b)に示したように、長繊維含有PPでは、凹凸部にガラス繊維が確認されなかった。この原因を検討するため、可視化金型を用いて接合面凹凸部におけるガラス繊維の流動挙動を観察した。図11(a)に示す短繊維では、フローフロント通過時では、樹脂およびガラス繊維は凹凸部に流入していないが、フローフロント通過後から樹脂が徐々に凹凸部に流入し始めている。フローフロント通過後0.02s後では、樹脂の凹凸部への流入に若干遅れてガラス繊維も流入していることが確認でき、さらに0.04s後では、凹凸部に樹脂が完全に充填されガラス繊維も凹凸部の深部にまで流入していることがわかる。一方、図11(b)に示す長繊維では、短繊維と同様に樹脂の流動が進行すると徐々に凹凸部に樹脂が流入している。しかしながら、凹凸部に流入するガラス繊維は短繊維に比べて少ない。また、0.02s後の画像を見ると、一部のガラス繊維がアルミニウムプレート凹凸部の流入口付近で流入が拘束されていることが確認できる。短繊維では、凹凸部の開口寸法よりも繊維長が短いため、流動抵抗による樹脂の圧力上昇によって上部から押されるように樹脂とともに繊維が凹凸部に流入す

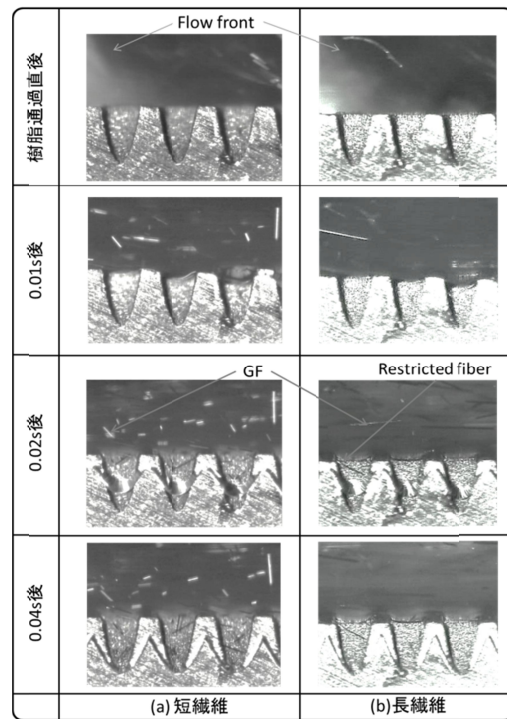


図11 ガラス繊維流入挙動の観察結果

る。一方、長繊維では、樹脂圧力によって押されるように樹脂と繊維が凹凸部に流入しようとするが、アルミニウムプレート表面凹凸部の開口寸法よりも繊維長が長いために凹凸部に拘束され、繊維が流入しにくくなったと推察される。

接合強さに与える接触面積の影響

接合強さに与える接合面の剥離の影響を考察するため、非強化PPを用いて保圧条件を変化させて射出成形を行い、接合部の観察と接合強さの測定を行った。接合部を樹脂側から観察すると、金属と樹脂との接触状態によって観察画像の濃淡に差が見られた。このことを利用し、実際の接合面積（接触面積）の評価は、デジタルマイクロスコブ（VHX-500、キーエンス）で接合面を樹脂側から撮影し、画像処理により二値化処理を行って接触面積を計測した。なお、接触面積の計測と接合強さの評価は、成形品を室温で1週間以上保管した後行った。その結果、図12に示すように、接触面積が大きくなると接合強さが向上し、接触面積と接合強さに相関があることが示された。この結果は、アルミニウムプレートと樹脂の接合強さは接触面積が支配因子であることを示唆している。この結果から、凹凸部に繊維の流入が確認された短繊維を含有した材料では、前述したようにガラス繊維が含有したことによる弾性率の向上に加えて、樹脂の成形収縮が小さくなり接合部の剥離が抑制されたため、非強化樹脂と比較して接合強さが向上したものと推察される。一方、長繊維を含有した樹脂では、凹凸部にガラス繊維の流入がないため、凹凸部の樹脂の剛性は小さくなるが、ガラス繊維長が長いので、短繊維含有PPよりも成形後

の収縮が小さくなり接合面の剥離が短繊維樹脂よりも抑制される。そのため、短繊維含有 PP よりも接合強さが向上したと考えられる。この確認のため、短繊維及び長繊維を含有した PP 成形品の面内平均収縮率（流れ方向と直交方向の平均）を比較した。その結果、短繊維含有 PP では 0.44%であったのに対し、

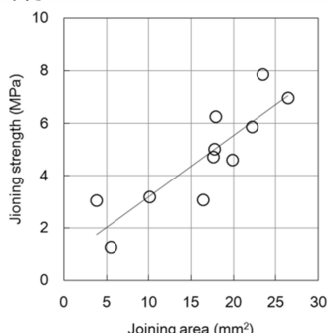


図 12 接触面積と接合強さの関係

長繊維含有 PP では 0.37%と短繊維よりも収縮率小さいことが確認された。このことにより、長繊維含有 PP の接合強さ向上は、成形収縮低減による接合面剥離の抑制が一因と推察された。

接合強さに与えるコーティングの影響

フッ素添加量を 0at%、1.75at%、14.23at% の 3 条件変化させた DLC コーティングをアルミニウムの接合面に行い、接合強さを評価した。その結果、図 13 に示すように、コーティングを行わない条件では、接合強さは 6.2MPa であるのに対し、フッ素を 1.75at% 添加した DLC コーティングを行った条件では接合強さは 6.9MPa となり、10%程度の向上が確認された。しかしながら、フッ素を 14.23at% 添加した条件では接合強さは低下した。また各条件でアルミニウム表面の濡れ性を接触角計で評価した結果、DLC コーティングを行わない条件では、接触角は 90.8°であったが、フッ素を 1.75at% 添加した条件では、65.1°、14.23at% 添加した条件では 72°となり、接合強さと相関がみられた。この結果は、フッ素添加 DLC コーティングによって樹脂との親和性が向上し、接合強さの向上に有効であることを示唆しているが、図 13 にも示すようにフッ素添加量を多くすると接合強さが低下することから、最適なフッ素添加量が存在することも示している。

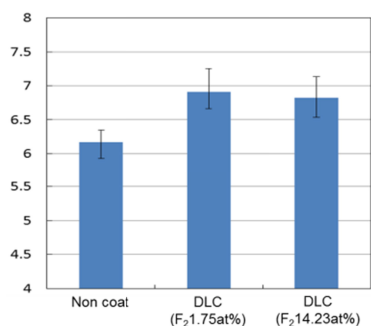


図 13 各種 DLC 条件と接合強さの比較

研究成果のまとめ

本研究課題では、アンカー効果による樹脂と金属の接合の接合強さに与える射出成形条件の影響を検討した。その結果、射出速度、金型温度、樹脂温度を高くした条件で接合強さが向上した。可視化観察および樹脂圧力の測定結果から、接合強さの向上には成形中の樹脂の固化層成長を遅らせるため、金型温度や樹脂温度高く設定するとともに、高速充填して固化層が成長する前に凹凸部に樹脂を流入させる条件設定が有効であることを明らかにした。また強化繊維等の含有によって樹脂の剛性向上とともに、成形収縮を抑制する条件設定も接合強さの向上に必要であることも明らかにした。さらに、金属表面にフッ素を添加した DLC コーティングを行うことで接合強さが向上する可能性を示した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 2 件)

1. 瀬戸雅宏, 片山昌広, 田中宏明, 板倉雅彦, 山部昌: 樹脂-金属接合射出成形品の接合強さに与える強化繊維の影響, 成形加工, 28(10), 455-4617(2016), 査読あり(掲載予定)

2. 瀬戸雅宏, 朝見芳弘, 板倉雅彦, 田中宏明, 山部昌: 樹脂-金属接合射出成形品の接合強さに与える成形条件の影響, 成形加工, 27(2), 68-74(2014), 査読あり

〔学会発表〕(計 3 件)

1. 瀬戸雅宏, 田中宏明, 山部昌: 樹脂-金属接合射出成形品の接合強さに与える強化フィラーの影響, 日本塑性加工学会北陸支部第 24 回講演会, 2015 年 3 月 9 日, 福井大学(福井県・福井市)

2. 瀬戸雅宏, 田中宏明, 片山昌広, 板倉雅彦, 山部昌: 樹脂-金属接合射出成形品の接合強さに与える成形収縮の影響, 成形加工シンポジウム'14, 2014 年 11 月 14 日, 朱鷺メッセ: 新潟コンベンションセンター(新潟県・新潟市)

3. 瀬戸雅宏, 田中宏明, 山部昌: アンカー効果を用いた樹脂-金属接合射出成形品の接合強度, 日本塑性加工学会北陸支部第 23 回講演会, 2014 年 3 月 13 日, 金沢工業大学(石川県・野々市市)

〔その他〕

研究代表者(瀬戸雅宏)所属研究室のホームページ

<http://www2.kanazawa-it.ac.jp/yamabe/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

瀬戸 雅宏 (Seto Masahiro)

金沢工業大学・ものづくり研究所・講師

研究者番号: 90367459

(2) 研究分担者

池永 訓昭 (Ikenaga Noriaki)

金沢工業大学・工学部・講師

研究者番号: 30512371