

樹脂溶着技術に関する研究 (2)

山田岳大* 信本康男*

Study for Resin Welding Method (2)

YAMADA Takehiro*, NOBUMOTO Yasuo*

抄録

高圧二酸化炭素を用いた樹脂溶着技術について注目し、常温で接合が可能な高圧二酸化炭素溶着法と接着剤、熱による接合界面を、ラマン分光光度計により評価し比較検討した。

これにより本接合技術の接合面の状態を評価した。その結果、次の知見を得た。高圧二酸化炭素溶着法では、接合界面付近で $12\mu\text{m}$ の範囲にわたり樹脂に特徴のある波形が緩やかに移り変わっていた。本溶着法は、接着剤による接合技術と比較し、同等もしくはそれ以上の融合領域を有し、安定的な接合が可能であることを示唆した。

キーワード：超臨界流体，二酸化炭素，溶着，PMMA

1 はじめに

自動車部品や、半導体部品、光学部品などが小型化、複雑化していく中で、単一の成形では高機能な複合成品品が得られなくなり、接合技術の重要性が増している。近年の技術として、表面活性化プロセスによる低温接合技術を用いて、接着剤を使用しない接合技術がバイオチップの複合化に展開されている¹⁾。またMEMSの複合化において異種材の微細接合が求められており、線膨張の違いによる残留応力が発生しない、常温接合が用いられている²⁾。このように、MEMSやバイオチップは今後樹脂化が進み高温劣化の防止や、熱溶着の耐久性が向上などから低温接合技術が求められている。そこで著者らは高圧二酸化炭素を用いた樹脂溶着技術に注目した。二酸化炭素を樹脂に含浸させると見かけの粘度が低下することが知られている³⁾⁶⁾。この可塑化効果

を用いて低温で樹脂の溶着や可塑化促進による溶着性の向上が考えられる。近年では、高圧の二酸化炭素を用いて、PDMSとPnBMAの接合状態促進させることを行っており、計算によりガス含浸時の表面張力を算出し、接合状態について検討している⁷⁾。

高圧二酸化炭素を用いてバイオチップ等の低温溶着技術が検討されている⁸⁾。さらにMEMSの作製エッチング加工で使用されるレジスト皮膜と母材との密着性を向上させるために高圧二酸化炭素溶着方法が使用されている⁹⁾。しかし、本技術における接合界面状態の詳細な議論がなされていない。そこで、前報¹⁰⁾では含浸圧力（二酸化炭素の雰囲気圧）を変化させ接合状態に及ぼす影響について検討を行った。本研究では、高圧二酸化炭素溶着法と接着剤、熱による接合界面をラマン分光光度計により評価し、比較検討し、本接合技術の接合面の状態を評価した。

* 試験研究室 生産技術担当

2 実験方法

高圧二酸化炭素溶着法に使用した機器は、超臨界ガス抽出スクリーニング装置 (X-01-05 型 (株) 熊谷エンジニアリング) である。試料は PMMA フィルム (N47) (アクリプレン HBX N47 三菱レイヨン(株)) と PMMA フィルム (560F) (デルペット 560F 旭化成(株)) の構造の異なる異種材を接合した。ガスの分布などの影響を低減させるため厚さ 0.125mm とした。これら試料を図 1 のようにフィルムを重ね合わせ、溶着部および試料全体に圧着がかかるようバネで挟み込み設置し、表 1 の条件により高圧処理した。二酸化炭素溶解度が飽和状態に達するとされる 2h 高圧処理した後、減圧し、0℃に 1.5h 放置し、試料を作製した。

他溶着比較試料として、熱溶着における試験片を図 1 に示すジグを使用して、120℃2h で処理し、接合品を得た。接着剤による接合は、アクリポンド (硬化液) (三菱レイヨン(株)) とメタクリル樹脂溶液 (BC-415B) (三菱レイヨン(株)) を塗布して試料を接合させた。接合面の観察には SEM (日本電子(株) JSM-5300LV) を使用した。断面における接合状態を確認するためレーザーラマン分光光度計 (NSR3100 型日本分光(株)) を用いて接合界面を測定した。

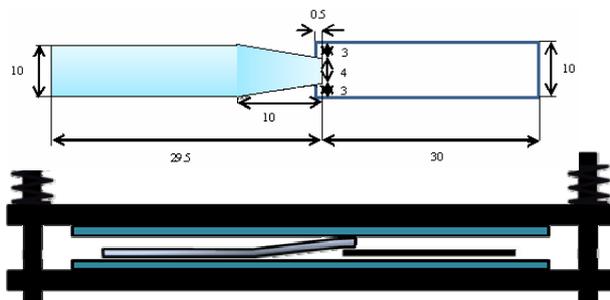


図1 成形品形状 固定方法

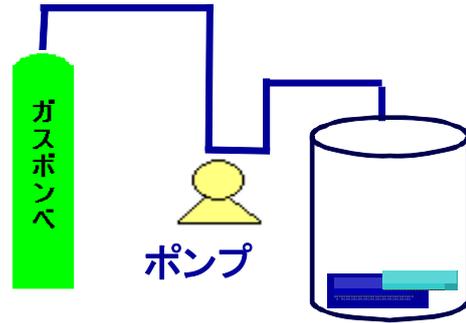


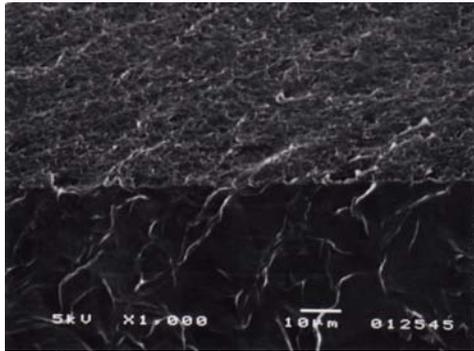
図2 高圧処理状況

表1 接合条件

	二酸化炭素接合法	熱溶着	接着剤
含浸圧力 (MPa)	10	0	0
含浸温度 (°C)	40	120	25
含浸時間 (h)	2		
圧着力 (KPa)	18		
減圧速度 (MPa/min)	0.5		
樹脂	N47vs560F		

3 結果、考察

図 3 に高圧二酸化炭素溶着法で接合した破断面を示す。SEM 像より各材料から得られたコントラストが異なり界面で接合それぞれの樹脂が接合している様子が観察された。次に、接合面付近を 0 とし、厚さ方向 (x) 20 μm の範囲において 2 μm ピッチのラマン波形データを図 4 に示した。樹脂が異なるため界面から離れた上方および下方では波形が異なっており、955cm⁻¹において強度差が観察された。591cm⁻¹においては両者とも強度の変化が少ないため、これを基準とした接合断面各位置における 955cm⁻¹の強度比の移り変わりをグラフ化した。熱溶着と、接着剤、高圧二酸化炭素溶着法による接合の強度比の移り変わりを図 5 に示す。



CO₂ pressure: 10MPa

図3 断面SEM写真 上:N47vs下:560F
高圧二酸化炭素溶着法

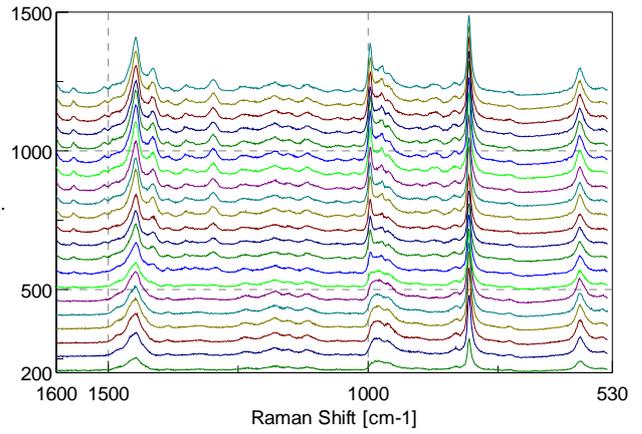
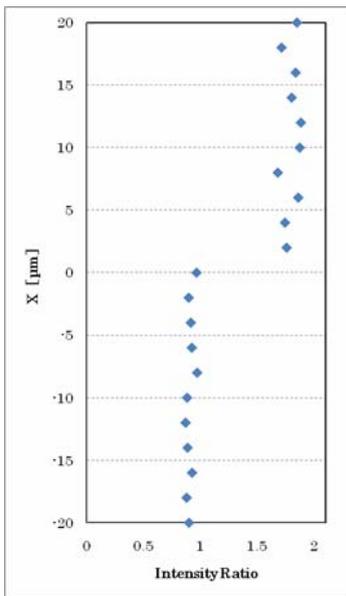
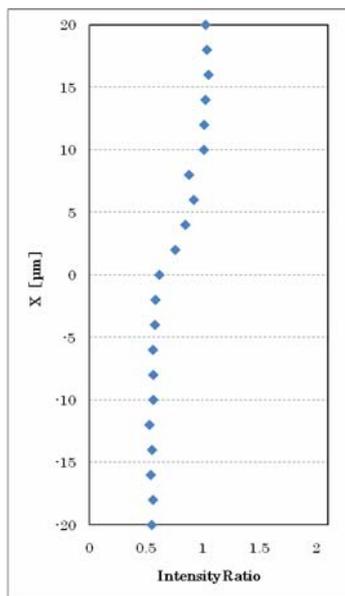


図4 厚さ方向各位置におけるラマン波形の移り変わり 検出範囲: Φ1 μm 2 μm ピッチで測定 N47vs560F 高圧二酸化炭素溶着法



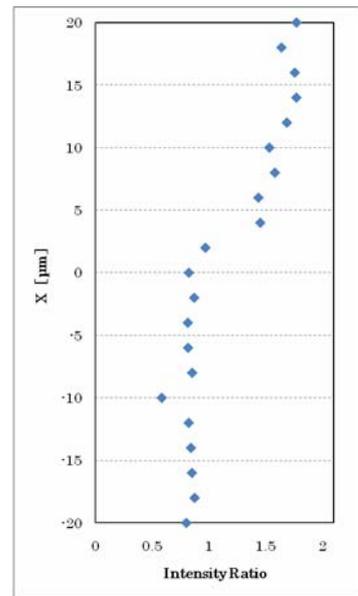
熱溶着

上:N47vs下:560F



接着剤接合

上:接着剤vs下:560F



高圧二酸化炭素溶着法

上:N47vs下:560F

図5 ラマン強度比と厚さ方向各位置における関係 (955cm⁻¹/591cm⁻¹)

熱溶着による接合では、急激に界面付近で強度比が変化している。一方、接着剤は N47 と 560F の中間領域に接着剤が存在し、接着剤とアクリル (560F) の接合界面を示した物である。接合界面における強度比は、 $10\mu\text{m}$ 幅を持って緩やかに変化している。超臨界二酸化炭素溶着法では、 $14\mu\text{m}$ の幅をもって緩やかに強度比が変化している。この緩やかに移り変わる領域で樹脂が融合されている可能性が示唆出来、この領域を融合領域と定義し、接合方法による融合状態の変化を図 6 のグラフに示した。その結果、超臨界溶着方法は、融合領域が接着剤と同等もしくはそれ以上の融合状態が確認され、安定した接合強度が得られる接合方法であることが示唆出来る。

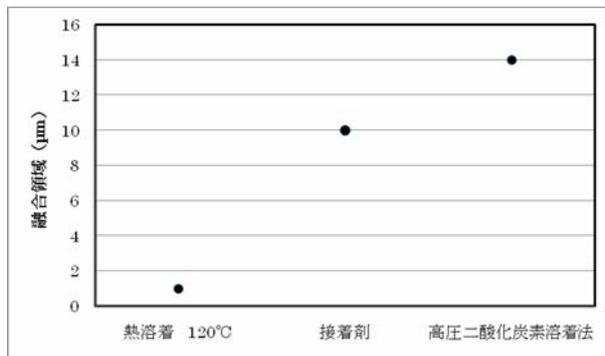


図6 溶着方法の違いにおける融合領域の違い

4. まとめ

本研究では、高圧二酸化炭素溶着法と接着剤、熱による接合界面をラマン分光光度計により評価し、比較検討した。これにより本接合技術の接合面の状態を評価した。その結果、高圧二酸化炭素溶着法では、接合界面付近で $12\mu\text{m}$ の範囲にわたり樹脂の特徴のある波形が緩やかに移り変わっていることが確認された。本溶着法は、接着剤による接合技術と比較し、同等もしくはそれ以上の融合領域を有し、安定的な接合が可能であることを示唆した。

謝 辞

本研究するにあたりラマン測定でご協力請け賜りました日本分光(株)と試料の提供をいただきました三菱レイヨン(株)に謝意を表します。

参考文献

- 1) 水野潤：表面活性化プロセスによる低温接合技術の確立とマイクロデバイスへの応用, 第 116 回講演会 プラスチック微細接合技術最新動向と今後の展望, 成形加工(2010)1
- 2) 佐名川佳治：MEMSの低応力パッケージング: 第116回講演会 プラスチック微細接合技術最新動向と今後の展望, 成形加工(2010)43
- 3) 志熊治雄, 木原伸一, 大嶋正裕：高圧レオメータで測定したポリプロピレン/CO₂系の粘弾性挙動, 成形加工'05(2005)29
- 4) 林田昌大, 坂田賢志, 佐藤善之, 滝島繁樹, 舩岡弘勝：ポリマー+ガス混合系の粘度測定装置の開発 成形加工'02,(2002)95
- 5) 伊崎健晴：ガス溶解ポリマーの流動挙動, 成形加工, 12, 11, (2000)680
- 6) Lee, M., Park, C.B. and Tzoganakis, C., : Measurements and Modeling of PS/Supercritical CO₂ Solution Viscosities, Polymer Engineering and Science, 39, 1,, (1999) 99
- 7) WANG Xiaochu, SANCHEZ Isaac C. : Welding Immiscible Polymers with a Supercritical Fluid, Langmuir, 23, 24 (2007) 12192
- 8) 住友ベークライト 太田 賢 特許公開 2006-116803：プラスチックの接合方法、プラスチック接合装置、及びその接合方法を使用して接合されたプラスチック製品
- 9) 東京工業大学 石山千恵美, 曾根正人, 肥後矢吉 特許公開 2009-61650：無機・高分子構造体、微小および超微小電気機械システム、製造方法、および製造装置
- 10) 山田岳大, 信本康男：溶着技術に関する研究, 埼玉県産業技術総合センター研究報告書, 7(2009)83