論文

微小パターンのシート材打抜き用 マイクロテクスチュア金型の創製

相澤 龍彦* 吉原 正一郎**

Microtexturing into AISI420 Dies for Fine Piercing of Micropatterns into Metallic Sheets

Tatsuhiko AIZAWA* and Sho-ichirou YOSHIHARA**

(Received on May 30, 2018)

Fine piercing of micropatterns into metallic sheets has become an engineering issue in the stamping industries. Plasma nitriding-assisted printing was proposed as a solution for forming a microtextured surface on die materials. AISI420 die material was employed for this plasma printing. First, maskless patterning was used to print two dimensional micropatterns onto a mirror-polished AISI420 stainless steel surface. The unprinted surface area was selectively nitrided; the negative micropattern of the original prints changed to nitrogen supersaturated AISI420 areas. This die surface was dipped into 20% HCl solution for chemical etching. Since the nitrogen supersaturated areas had high corrosion resistance against this etching, only the printed parts were selectively etched, leaving a hardened AISI420 punch head after etching. These selective nitriding characteristics were demonstrated in experiments. A cylindrical punch array with a diameter of 50 μm was fabricated as a punch for piercing microtextures into thin AISI304 stainless steel sheets.

Key words: fine piercing, dies, AISI420, microtexturing, plasma printing, chemical etching.

1. 緒言

微小なパターンをマイクロ打抜きした、金属あるいはポリマーシート材および箔材の要求が高まっている。例えば、燃料電池のセパレータでは、 $\phi 50 \mu\text{m}$ 径以下の孔が規則的かつ緻密に配列されたステンレスシート材が必要とされている¹⁾。このシート材へのマイクロ打抜きに、Roll-To-Roll法²⁾を適用する場合、ロール表面上に規則的に直径 $\phi 50 \mu\text{m}$ のマイクロ円柱ピラーを配置したロールが必要となる。またマイクロ打抜きプレスを利用した場合にも、同形状のマイクロテクスチュアをプレス金型に形成しなければならない。精密切削で1つ1つのマイクロ円柱ピラーを型材中に彫り込む工程を考えよう。一回にロール成形あるいはプレス打抜きする製品として、ステンレスシート素材(サイズ: 200 mm x 50 mm x 0.01 t mm)を対象とする。やや緩慢な円柱ピラー配列として、ピラー径 $\phi 50 \mu\text{m}$ 、ピッチ間隔 200 μm を想定すると、その金型には約 170 万個のマイクロ円柱ピラーを高さ 20 μm で作製することになる。ミリング時間を刃物の移動時間も含め、1ピラーあたり1秒としても、170

万秒すなわち 480 時間近くを要することになる。加えて、精密切削を行うには、切削パスを構成する CAM データを作成する必要がある、さらに製造時間がかかる。さらに、刃先などの摩耗などにより、ミリングが停止した場合には、再開する段取りが困難となる。高速レーザー加工においては、工具摩耗の懸念はないが、1孔加工あたりの時間は、レーザー切削でも加工位置制御時間も含め、1秒は要するので機械式ミリングと生産時間に大差はない³⁾。以上を要するに、実行可能な生産時間で、微小パターンのマイクロ打抜き金型の製造は現行の除去加工ではきわめて困難と考えられる。研究者らは^{4)~7)}、プラスチック射出成形におけるマイクロディンプル金型の生産方法として、プラズマ窒化援用プリンティング法を提案した。この方法では、鏡面研削、研磨した型面に、インクジェットプリンタ、リソグラフィあるいはスクリーン印刷などで、CAD データにしたがって、所定のマイクロパターンを形成する。次に、非印刷部のみを低温プラズマ窒化することで、その部位のみを選択的に高濃度窒素固溶処理する。最後にサンドブラスト法あるいはケミカルエッチング法にて、未窒化表面部位を除去することで、マイクロテクスチュアを転写する射出成形用の金型、中子を作製できる。文献 8)~9)に示したように、インクジェットプリンタを用いたプラズマプリンティングにて、マイクロプレス金型の作製にも成功している。

* 表面機能デザイン研究所 〒144-0045 東京都大田区南六郷 3-15-10
Surface Engineering & Design Laboratory LLC, 3-15-10 Minami-Rokugo,
Ota-ku, Tokyo 144-0045, Japan.

** 芝浦工業大学大学院理工学研究科 〒108-8548 東京都港区芝浦 3-9-14
Graduate School, Shibaura Institute of Technology,
3-9-14 Shibaura, Minato-ku, Tokyo 108-8548, Japan.

本論文では、直径 $50\ \mu\text{m}$ 以下の円孔パターンを同時多数打抜きするポンチアレイを創製する方法を提案する。はじめに当該プラズマプリンティング法を紹介し、その特徴を説明する。次に本手法の指導原理である、1) マイクロパターンの非印刷部のみの選択的窒化ならびに 2) 非印刷部の母材深さ方向への異方的な選択窒化を、実験的に証明する。 $50\ \mu\text{m}$ 直径の円柱ピラーの創製実験を通じて、マイクロ打抜き用ポンチの作製を行い、本プラズマ窒化援用プリンティングの可能性を示す。

2. 実験方法

当該プラズマプリンティングプロセスの概要を Fig. 1 に示す。目標の 3 次元マイクロテクスチャの断面形状を、2 次元 CAD で作成する。次に塗布装置にて、鏡面研削・研磨した型材表面を、ナノカーボンレジンとアルミ薄膜で被覆する。アルミ被覆層厚さを変化させた予備実験より、膜厚 $400\ \text{nm}$ のアルミ被覆層でも低温プラズマ窒化中に剥離、損傷が生じないことを確認した。次に、マスクレスリソグラフィ (ELS-7500Ac) を用いて、ビーム位置合わせ後、マイクロパターンをレジン ($400\ \text{nm}$ 厚) + 被覆層 ($400\ \text{nm}$ 厚) に露光、印字する。これにより CAD 形状が、型表面被覆内の硬化、反応した 2 次元パターンに変換され、エッチングで未硬化、未反応部位を除去して、Fig. 1(a) の出発パターンが形成される。低温プラズマプロセス^{10)–12)} は、市場のイオン窒化、ラジカル窒化プロセスと異なり、 $400\ ^\circ\text{C}$ において化合物層を生成せずに、4 時間の窒化で型母材表面に厚さ $50\ \mu\text{m}$ 以上の固溶窒素拡散層を形成する。加えて、この拡散層では、母材の結晶格子中に窒素が侵入型元素として合金化し、結晶格子を膨張させる。例えば、プレス金型に使用される SUS420 材の場合、マルテンサイト相が膨張するとともに、一部オーステナイト相にも相変態する。また膨張、変態する結晶子の周辺の結晶格子は、塑性変形するため、母材の構成結晶が微細化する。これにより、型母材の窒化層は、結晶サイズが $0.1\ \mu\text{m}$ 以下の微細粒からなる 2 相組織となるため、高硬度・高強度・高耐食性を獲得する。

Fig. 1 Processing procedure of plasma nitriding assisted printing. (a) Micropatterning step, (b) plasma nitriding step, and (c) chemical etching step

このプロセスを Fig. 1(a) に適用すると、印刷部位の表面は被覆層で保護されているため、窒化されない。非印刷部

は、鏡面研磨された型母材表面が露出しているため、窒素が容易に拡散し、窒化層を形成する。ただし、母材中を窒素原子が深さ方向のみに異方拡散しなければ、文献 13) で報告された失敗例のように、マイクロテクスチャは形成されない。一方、型母材表面を選択窒化、かつ母材深さ方向にも選択窒化できれば、Fig. 1(a) を Fig. 1(b) のように変換することができる。最後に、選択窒化された部位が、高強度・高硬度・高耐食性を保持していることを利用することで、非印刷部位をケミカルエッチングする。Fig. 1(c) は、Fig. 1(a) に対応する 3 次元マイクロテクスチャである。窒素が型母材に高濃度固溶することで、非窒化部すなわち印刷部のみが選択的に除去され、窒化部位が凸形状の 3 次元固体として造形できることが第 1 の利点である。この手法をマイクロ打抜き用金型創製に利用する第 2 の利点は、Fig. 2 左欄において、基材 (灰色) 上に 2 次元マイクロパターン (黒色) の印刷時にポジネガを反転させるのみで、印刷部位を除去することで、右欄のように、コアダイとポンチを同一の手順で創製できる点にある。微小径多数ポンチの作製では、ポンチ頭部以外の領域を型表面被覆上に印刷し、一方ポンチ頭部形状のみを印刷することで、コアダイを作製できる。コアダイとポンチのはめあい、クリアランス設定も CAD 上で行うことができる。

	Micropattern	Printed Microtexture
Positive Printing		
Negative Printing		

Fig. 2 Fabrication of micropunch and micro-die core by the plasma printing procedure

加えて窒化したポンチ頭部およびコアダイ部位は、SKD 材においても $1000\ \text{HV}$ 以上に硬化しており、後処理なしでも微小打抜き用金型として利用できる。

3. 実験結果

ここでは、プラズマプリンティングの成立条件である、型母材表面における非印刷部の選択的窒化挙動ならびに非印刷部の母材深さ方向の選択的窒化挙動を実験的に記述し、本プロセスの妥当性を証明する。次に、直径 $50\ \mu\text{m}$ の微小円孔を同時多数打抜きするポンチアレイを創製する。

3.1 金型母材表面の選択的窒化挙動

プラズマプリンティングの最初の成立条件は、印刷部位と非印刷部位との差異が窒素濃度の差異として実現されることである。ここでは、SEM (Scanning Electron Microscopy) -EDX (Electron Dispersive X-ray spectroscopy) を用いて、窒素を含む元素分布を調査した。

最初に直径 $10\ \mu\text{m}$ の円パターンを用い、円外部をカーボンレジン+アルミ被覆でマイクロパターン印刷した試験片

を作成した。母材であるステンレス鋼 SUS420 材の主要元素は、{Fe, Cr}であり、印刷部位の表面はアルミ被覆層であることから、Fe, Cr, Al の元素マッピングを行った。これにより、微小円パターンの選択性すなわち非マスク部にのみ基材が露出していることを確認した。

Fig. 3 SEM – EDX analysis of printed surface of die materials. (a) SEM image, (b) Cr-mapping, (c) Al-mapping, and (d) Fe-mapping

Fig. 3 に示すように、SEM 像における円内部は、{Fe, Cr} 元素のみで Al は検出されず、逆に円外部には {Fe, Cr} 元素は検出されず、Al のみとなっている。すなわち、型母材表面は円の内側部分のみが非印刷部となり、それ以外はすべてアルミ被覆されていることがわかる。

次に、EDX の解像度、検出濃度を考慮して、100 μm 径の円形マイクロパターン以外を印刷し、保持温度 673 K、圧力 70 Pa、窒化時間 2 時間、窒素－水素混合気流中でプラズマ窒化処理した。処理した試験片を酸素エッチング、洗浄でレジン・被覆層を除去し、SEM-EDX 解析を行った。

Fig. 4 SEM-EDX image of microtextured SUS420 die material surface

Fig. 4 に示すように、プリントした円周外部位には、窒素原子が検出されず、円周内部に高濃度の窒素原子が存在する。印刷したマイクロパターン以外が選択的にプラズマ窒化されている。この差異を定量的に記述するため、円周内部の A 部位と円周外部の B 部位で元素分析を行った。**Table 1** で、両部位における SUS420 の Cr の合金濃度には、ほとんど差異は認められない。A 部位の窒素濃度は 7 mass%であるのに対して、B 部位では 0.01 mass%であり、ほとんど窒素原子は存在していない。これより、マイクロパターン印刷における非印刷部位の選択窒化が実証された。

Table 1 Analyzed element contents of (a) printed area and (b) unprinted area

Element	mass%	(a)	Element	mass%	(b)
C	5.26		C	3.37	
N	0.01		N	6.61	
O	1.16		O	1.29	
Si	0.31		Si	0.34	
P	0.14		P	0	
S	0.19		S	0.18	
Cr	17.77		Cr	16.95	
Mn	0.98		Mn	0.85	
Fe	balance		Fe	balance	

3.2 金型母材の深さ方向の選択的窒化挙動

本手法が成立するための第 2 条件は、印刷部位と非印刷部位との境界深部において、窒素原子が **Fig. 4** のように選択的に存在することにある。この母材深さ方向の窒素選択性を実証するために、25 mm 角・板厚 1 mm の SUS420 板材に 2 本の幅 5 mm の線状パターンを間隔 7.5 mm で印刷を行い、3.1 と同条件でプラズマ窒化を実施した。この試験片表面のみを 20%希釈濃塩に 15 分浸漬し、浸漬後の試験片を **Fig. 5** に示す。Fig. 5(a)において金属光沢を示す部位が非印刷部、光沢がない部位が印刷部である。両部位の境界線近傍における SEM 像を **Fig. 5(b)** に示す。印刷部位のみが切立って選択的エッチングされており、非印刷部位は全くエッチングされていない。

Fig. 5 Chemical dipping of the nitrided SUS420 specimens into HCl solution. (a) Surface conditions of specimen after dipping and (b) SEM image of surface across the boundary between printed and unprinted regions

Fig. 6 Selective nitrogen mapping only in the unprinted regions. (a) Microstructure near the border between un-nitrided and nitrided zones, (b) Cr-mapping across the border, and (c) N-mapping across the border

この差異を記述するために、エッチング面の境界線上の A 点を介して元素分布を調査した。SUS420 構成元素である Cr は、Fig. 6 において A 点を介しても一定濃度を示している。一方、窒素濃度はエッチングされた SUS420 面印刷部では、ほぼゼロ、A 点から非印刷部位では 6 mass% を超える濃度が検出された。エッチング境界が急峻な窒素濃度分布変化に対応し、その境界面が厚さ方向に切立つように形成され、側面エッチングもない。非印刷部位に窒素原子が厚さ方向に異方拡散し、印刷部位-非印刷部位の 2 次元境界がそのままエッチング部位-非エッチング部位の 3 次元境界となっている。これにより、SUS420 の深さ方向への異方性拡散による窒素選択性の実証された^{5), 14), 15)}。

3.3 微小ポンチの試作

3.1 および 3.2 で実証したプラズマプリンティングの原理により、マイクロパターンングを用いてテクスチャのユニット形状および配列を自在に設計できる。ここでは、微小孔打抜きプレス用のポンチ作製を目標に、直径 50 μm の円形ピラー形状の微小ポンチ作製を試みた。前述したマスクレスパターンングで直径 50 μm の円形パターン印刷、被覆除去後、3.1 ならびに 3.2 と同条件で低温プラズマ窒化を行った。Fig. 7 に窒化後の SUS420 型材表面を示す。円周内部のみが選択窒化され、円周外の結晶粒と比較して、結晶粒が微細化していることがわかる。

Fig. 7 Circular microtexture after plasma nitriding at 673 K for 7.2 ks

Fig. 8 Formation of cylindrical micropillar array with a height of 20 μm

次にケミカルエッチングで、印刷部位を選択的に除去する。20%希釈濃塩酸に 15 分浸漬後の SUS420 試験片を Fig. 8 に示す。除去予定部位以外は、脱着可能なプラスチック

材で被覆し、余分な部位のエッチングは防止した。同図が示すように、印刷部位のみが選択的に深さ 20 μm ほどエッチングされ、非印刷部から直径 50 μm の円柱ピラーが、高さ 20 μm の円柱ポンチとして形成された。また CAD データ通りに印刷した円形マイクロパターン配列と円柱ポンチ間のピッチがともに 200 μm となり、本プラズマプリンティングを用いて、微小径ポンチアレイを SUS420 型材上に創製できることを示した。ポンチ高さはエッチング時間で制御し、ポンチ高さを 2 倍の 40 μm にしても、Fig. 9 に示すように円形ポンチ形状・円形ポンチ配列は Fig. 7 と同等である。ただし、溶液成分制御および電解エッチング付与などの最適化を行わず、希釈濃塩酸浸漬のみを行ったため、選択窒化したポンチ頭部中央とエッジ部の一部で、窒素濃度むらによる低濃度部位で孔食が生じたと考えている。

Fig. 9 Formation of cylindrical micropillar array with a height of 40 μm

当該マスクレスリソグラフィーの形状分解能 1 μm の制限ならびに、ケミカルエッチングによる局所浸食 1~2 μm を考慮すると、現行の技術で実現できる円柱ポンチ直径は 10 μm 以上で、ポンチ外形誤差は 3~4 μm と推定した。

4. 考察

ここでは、作製した微小ポンチの硬さ分布、厚さ 0.01 mm の SUS304 シート材の打抜き特性などを議論する。

4.1 微小ポンチ頭部の硬度分布

プラズマプリンティングの特性より、窒素が過飽和に固溶し、ケミカルエッチングされなかったポンチ頭部を含む高さ 20 μm ポンチは、固溶強化で高硬度化していると考えられる。そこでマイクロビッカース試験装置(Mitsutoyo 製)を用い、エッチング前の Fig. 7 の硬度分布を測定した。窒化した円周内部を任意に 5 点、窒化していない円周外部を任意に 5 点選択し、各点 5 回の測定硬さデータを平均し、その測定点における硬さとした。測定荷重は 100 g (約 1 N) である。Table 2 に、窒化部位および未窒化部位の平均硬さデータを示す。窒化部位では、最低 1560 HV_{0.1}、最大 1850 HV_{0.1}、平均 1700 HV_{0.1}を示しており、超硬と同等の高硬度を示している。一方、未窒化部位では、平均 270 HV_{0.1}であり、SUS420 母材硬度 250 HV と同等であり、窒化による硬化が生じていない。これより、作製した微小ポンチは打抜きポンチとして十分な硬度を有していることが示された。

Table 2 Hardness data measured on the nitrided area and the un-nitrided area in Fig. 6

On nitrided area		On un-nitrided area	
Measuring Point	Hardness HV _{0.1}	Measuring Point	Hardness HV _{0.1}
1	1560	1	350
2	1750	2	290
3	1850	3	240
4	1730	4	230
5	1630	5	250

4.2 試作ポンチによる SUS304 シート材の打抜き試験

試作したポンチによる打抜き特性を検討するため、Fig. 8 の小径 50 μm の微小ポンチアレイ中子を簡易金型に設置し、SUS304 シート材 (板厚: 0.01 mm) を用いて実験を行った。実験には、卓上型小型 CNC プレス (微細加工研究所製) を用いた。

Fig. 10 Edges in the AISI304 stainless steel sheet with the thickness of 0.01 mm pierced by the multipunch array. (a) Circular trace of pierced edge and (b) transcription of edges pierced by micropunch array

実験では、打抜き時のポンチアレイとシート材との接触一打抜き開始状態を観察するため、荷重を寸止めし、打抜き痕をとどめるように設定した。なお、コアダイを用いず、荷重の寸止め制御も兼ねてテフロンシート上にシート材を固定して実験した。

Fig. 10 (a) に、ポンチエッジ先端部がシート材に貫通した円周痕を示す。前述したように、直径 50 μm ポンチのエッジ部位にエッチングむらが認められ、その凸部が最初にシート材を貫通し、円周痕を形成している。これより、エッチングプロセスの制御性を増し、後工程に軽度なエッジ

研磨を施すことで、打抜きプロセスに利用できる。Fig. 10 (b) に示すように、ポンチアレイ全体の打抜き挙動も同期しており、ポンチアレイとして多孔同時打抜きへの展開も想定できる。

5. 結 言

プラズマ窒化で援用した印刷技術で微細な頭部形状を有するポンチアレイを創製する方法を提案した。リソグラフィと選択的プラズマ窒化原理により、マスクレスパターン形状が、空間分解能 1 μm でポンチ基材への過飽和窒素分布に変換されることで、CAD データに対応するポンチ形状を実現する。径 50 μm ポンチのエッジ形状精度は、エッチング条件に大きく依存し、同ポンチアレイによる多孔同時打抜きを実現するには、エッチング材の選択に加え、エッチング手法についても検討を進める必要がある。

謝 辞

本研究では、和佐憲治氏、橋本早紀氏 (株式会社・テクダイヤ) および奥田和樹君、山本祐希君 (当時、芝浦工大デザイン工学科) の助力を得た。ここに深謝する。なお本研究の一部は、経済産業省・戦略的ものづくり事業化支援事業 (2017 年度) による。

参 考 文 献

- 1) Strategic Business Insights: Fuel Cells, (2015), 89-96, Nikkei BP.
- 2) William, S. W. & Salleo, A. (Eds.): Flexible Electronics: Materials and Applications, (2009), 19-31, Springer.
- 3) Benson, M., Patel, R. & Chei, H.: Industrial Laser Solution Japan, (2013), 14-18.
- 4) Santojojo, D., Aizawa, T., Muraishi, S. & Morita, H.: Proc. 9th ICOMM, **90** (2014), 1-7.
- 5) Katoh, T., Aizawa, T. & Yamaguchi, T.: Manufacturing Review, **2-2** (2015), 1-7.
- 6) Aizawa, T. & Yamaguchi, T.: Proc. 10th 4M/ICOMM, (2015), 454-459.
- 7) Aizawa, T., Suga, H., Kato, T., L-Silva, L. U. & Yamaguchi, T.: SIT Res. Rep., **59-1** (2015), 9-18.
- 8) Aizawa, T., Takashima, T. & Shiratori, T.: Proc. 8th AWMFT, (2015), J1/1-J1/6.
- 9) Aizawa, T.: J. JSTP, **56**-657 (2015), 866-870.
- 10) Farghali, A. & Aizawa, T.: ISIJ-International, **58-3** (2018), 401-407.
- 11) Aizawa, T.: Proc. 7th Annual Basic International Conference, (2018), 1-14.
- 12) Aizawa, T.: J. JSTP, **58**-683 (2017), 1064-1068.
- 13) Marcos, G., Guilet, S., Cleymand, F., Thiriet, T. & Czerwicz, T.: Surf. Coat. Technol., **205** (2011), S275-279.
- 14) Aizawa, T.: Stainless Steels. Ch. 3. InTechOpen, (2019), 31-50.
- 15) Lu, S., Zhao, X., Wang, S., Li, J., Wei, W. & Hu, J.: Vacuum, **145** (2017), 334-337.