

インサート材を用いた異種材料のレーザー接合

水戸岡 豊*, 日野 実*, 永田 員也*

Laser Joining of Different Materials Using Insert Materials

MITOOKA Yutaka, HINO Makoto and NAGATA Kazuya

*岡山県工業技術センター (〒701-1296 岡山県岡山市芳賀 5301)
yutaka_mitooka@pref.okayama.lg.jp

(原稿受付 2007年 7月 19日)

Laser joining of different materials using an insert material was studied. The insert material consists of an elastomer with a specified elastic modulus. In this research, it is important to adjust the insert material in proportion to the joining materials. The insert material was held between the joining materials, and diode laser irradiation was carried out. As a result, the joining of various different materials became possible, and high joining strength was achieved. As an example, it was possible to obtain the tensile shear strength of about 12 MPa in the PP-SUS304 joining. The insert material was effective for relaxation of the thermal stress with the expansion difference, maintenance of the adhesion between materials, and increase of joining area.

Key words: laser joining, different materials, insert materials, elastomer, shear strength

1. 緒言

軽量化を目的としたプラスチックの適用が進み, これらプラスチックを基材とした部品に対して, 金属, セラミックスあるいは種類の異なったプラスチックなどの異種材料を接合後, 使用するケースが増加している. 従来, これらの異種材料接合については, 接着剤もしくは機械的締結が多く用いられている. しかし, 接着剤を用いた場合, 揮発性有害物質(Volatile Organic Compound (VOC))の発生が問題となり, また, 機械的締結を用いた場合, 作業面とコスト面での負担が大きい.

一方, プラスチックの新たな接合法として, レーザ溶着法^{1,2)}が注目されており, 一部実用化が行われている³⁾. しかし, これらの適用は, 他の溶着法と同様, 性質の近いプラスチック同士の接合に限定されている⁴⁾. 溶着法により, 異種材料接合を実現するには, 被接合材間の物性差を緩和する対策が必要である.

本研究では, 異種材料のレーザー接合について, エラストマーからなるインサート材を用いて検討した結果, 種々の異種材料接合が可能となり, 高い接合力を実現できた^{5,6)}. 本報告では, まず, 同種プラスチック同士の接合を例に取り上げ, 開発法の特長を述べる. 次に, プラスチック-金属の接合にて, インサート材の極性が, 接合性に与える影響について述べる.

2. 実験方法

被接合材として, ポリプロピレン(新神戸電機(株)製 コウベポリシート, 以下 PP), ステンレス板(JIS SUS304, 以下 SUS304)を用いた. 被接合材の組合せとして, PP(レー

ザ透過材, 以下 PP(n))/インサート材/PP(n)および PP(n)/インサート材/SUS304 を選択した. インサート材として, オレフィン系の熱可塑性エラストマー(ゴム状の弾性体)をシート状に溶融し, 100 μm の厚さに調節したものをを用いた. レーザ吸収率を向上させるために, インサート材にレーザ吸収色素を 1 mass% 添加した. なお, 特許出願中につき, インサート材についての詳細な説明は割愛する. Table 1 に, 分光光度計により測定した被接合材とインサート材の光学特性を示す.

Fig. 1 に示すように, 被接合材の間にインサート材を挟み込み, Table 2 に示す条件でレーザー接合を行った. 熱源としては, 半導体レーザーを用いた. 試料と熱源を固定し, レーザ出力ならびに照射時間を変化させ, 得られた接合部について, 外観観察, 断面観察ならびにせん断試験による接合強度の評価を行った. また, 比較のために, 従来法¹⁾である PP(n)/PP(レーザー非透過材, 以下 PP(b))の組合せについても同様に評価した.

断面観察用の試料調整としては, 切断機を用いて試験片を y-z 面で切り出し, エポキシ樹脂に包埋し, SiC 耐水研磨紙による粗研磨(# 80-4000)に続いてダイヤモンド砥粒(3 および 1 μm)による精密研磨した. 光学顕微鏡観察の後, 一部の試料は, 接合状態を詳細に観察するために, 接合部を中心に切り出し, 300 μm まで研磨(# 600-2000)により薄片化した後, クロスセクションポリリッシャ(以下 CP)による精密加工(加速電圧 4 kV)を施し, 冷陰極電界放出型 X 線マイクロアナライザ(以下 FE-EPMA)による観察を行った.

せん断試験は, Fig. 2 に示した試料片を用い, クロスヘッドスピードは 0.5 mm/min とした.

Table 1 Optical characteristic of the joining materials and insert materials.

	Plastic		Metal	Insert material (i.m.)		
	PP(n) t=2 mm	PP(b) t=2 mm	SUS304 t=1.5 mm	A t=100 μm	B t=100 μm	C t=100 μm
Reflection (1)	8.2	4.6	55.4	9.9	7.1	3.9
Transmission (2)	77.3	—	—	38.3	36.0	5.2
Absorption 100-(1)-(2)	14.5	95.4	44.6	51.8	56.9	90.9

Table 2 Experimental conditions of laser joining.

Wavelength		800 nm
Focusing distance		100 mm
Spot diameter		600 μm
Defocusing distance		12 mm
Laser power	PP(n)-PP(b)	25-75 W
	PP(n)-i.m.-pp(n)	100-300 W
	PP(n)-i.m.-SUS304	100-300 W
Exposure time	PP(n)-PP(b)	250-750 ms
	PP(n)-i.m.-pp(n)	500-10000 ms
	PP(n)-i.m.-SUS304	500-10000 ms

i.m. : insert materials

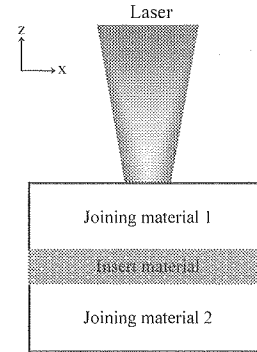


Fig. 1 Schematic drawing of laser joining.

3. 実験結果および考察

3.1 PP-PP 接合

従来、レーザー溶着法では、接合界面でレーザー光を吸収させるために、同種プラスチック同士の接合であっても、レーザー透過材とレーザー非透過材を組合せが必要である¹⁾。しかし、非透過材を用いた場合、被接合材の分解による接合性の低下を防止するために、厳密なレーザー照射条件の制御が要求された。また、レーザーを熱源とするために、接合領域の拡大が困難であり、実使用に対しては、設計精度の厳密化、走査回数(距離)の増加が必要とされた。開発法では、インサート材を用いることで、上記問題の解決を図り、レーザー透過材同士の接合を試みた。

Fig. 3 に、従来法および開発法により接合した試験片の外観写真を示す。従来法では、入熱量(レーザー出力×照射時間)10 J 程度までは良好な外観が得られたが、入熱量が増加する(12.5 J)と中央部に白い部分が生じ、さらに増加する(25 J)とPPが分解した。このとき、同じ入熱量であっても、レーザー出力が高いほど熱分解しやすかった。一方、開発法では、入熱量を50-750 Jの範囲で変化させたが、PPとインサート材が分解することなく、良好な外観が得られ、さらに接合領域も大幅に拡大する。これは、用いた吸収剤の粒径および分散性によるものと推測できる。吸収材として、従来法では、カーボンブラックを用いられているのに対して、開発法では、レーザー吸収色素を用いている。カーボンブラックは、凝集しやすく、二次凝集体の粒径がミクロンオーダーとなるため、局所的な発熱を避けることが困難である。そのため、被接合材の熱分解、熱劣化が生じやすい。一方、レーザー吸収色素は粒径がナノオーダーであることから、分子レベルでの分散が可能になり、局所的な発熱を防止できると考えられる。また、外観からも明らかのように、色素は入熱により分解(色を消失)するが、分解することで、それ以上の温度上昇を抑制できるため、被接合材の熱分解、

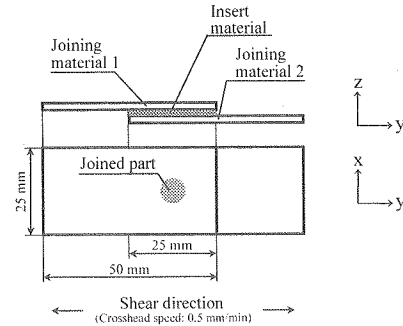


Fig. 2 Schematic drawing of shear test specimen.

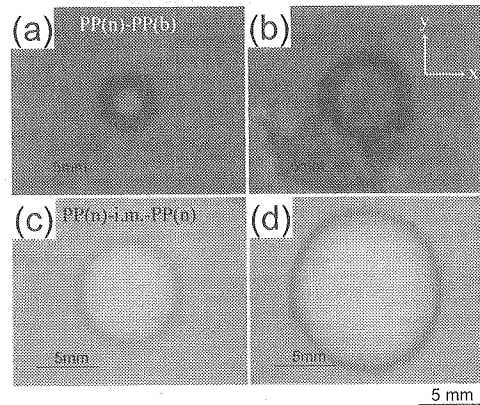


Fig. 3 Surface appearances of joint parts produced under respective joining conditions.

(a) Conventional method:12.5 J, (b) Conventional method:25 J, (c) Development method:50 J, (d) Development method:500 J

熱劣化が生じにくいと考えられる。本実験で明らかのように、従来法では、非常に限られた入熱量の範囲でしか良好な外観が得られないのに対し、開発法では、良好な外観が得られる入熱量の範囲が大幅に拡大する。また、Fig. 4 に、

従来法および開発法により接合した試験片の接合領域を示すが, 同一照射距離(焦点外し距離: 12 mm)で比較した場合, 開発法の接合領域は, 従来法のそれを6倍程度上回る(従来法: 32 mm² (25 J), 開発法: 190 mm² (750J)). これは, 入熱量の増加とインサート材の低弾性率によるものと推測できる. エラストマーは, 分子内に架橋を持たないため, 加圧された状態で溶融することで, 効率良く流動し, それによって接合領域の拡大を図ることができると考えられる. 接合領域の拡大により, 設計精度の緩和, 走査回数(距離)の減少, 走査速度の高速化等の数多くのメリットが期待できる.

Fig. 5 に, 従来法および開発法により接合した試験片の接合部断面写真を示す. 従来法(12.5 J)では, 接合部中央に1 mm 程度の未接合部が存在することが確認され, Fig. 3 の外観において, 黒い部分が接合部, 中央の白い部分が未接合にそれぞれ対応していることがわかった. PP の熱分解が生じた場合(25 J), 未接合部はさらに拡大していることが確認される. このような未接合部の発生は, 先に述べた被接合材の熱分解に加え, 被接合材間の密着の低下が影響するものと推測される. プラスチックは, 成形時の残留応力と高い吸水性により, 経時的に変形しやすい. そのため, 被接合材間の密着の維持が困難である. 特に, その高い線膨張係数により, 溶融・凝固時においては, 熱変形量が大きく, 接合材間に隙間を発生しやすい. 一方, 開発法では,

広い入熱量の範囲で, 良好な接合界面が得られ, 未接合部は認められない. 開発法では, 被接合材間に低弾性率層(インサート材)を挟みこむことで変形が大きい材料であっても, 被接合材間の密着の維持が容易になる. また, 溶融・凝固時においても, 流動性に優れたインサート材が溶融することで, 被接合材間に隙間は発生しない.

ここで, PP-インサート材間の接合状態を明らかにするため, 界面付近を詳細に観察した. PP とインサート材では, 弾性率の差が大きく, 機械研磨による精密な断面加工は困難であるため, CP による加工を施した. Fig. 6 に, 開発法により接合した試験片(入熱量 300 J)の y-z 断面について, FE-EPMA によって得た反射電子像を示す. PP-インサート材間には良好な接合界面が形成されており, 未接合部は認められない. また, 一部では相互拡散が確認されるが, これは, PP とオレフィン系エラストマーからなるインサート材の高い相溶性によって生じる.

Fig. 7 は, 従来法および開発法により接合した試験片について, せん断試験によって得られた最大荷重である. 同じ照射距離でありながら, 開発法の最大荷重は, 従来法のそれを3倍程度上回る(従来法: 462 N (25 J), 開発法: 1350 N (750J)). これらは, 先に述べた接合面積と接合状態の差に基づいている. また, 入熱量に対する最大荷重の変化は, 従来法では, PP の熱分解が認められない間は, 入熱量の増加に従い, 最大荷重も増加するが, PP の熱分解が認められると, 入熱量が増加しても最大荷重は増加せず, ほぼ一定値を示す. 一方, 開発法では, 入熱量の増加に従い, 最大荷重も増加する. この最大荷重の違いは, 接合界面での接合状態によるものと推測される. Fig. 8 には, 開発法によ

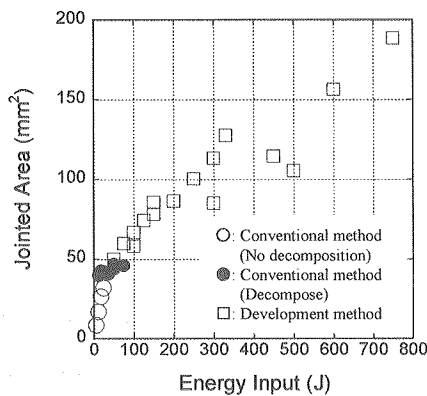


Fig. 4 Jointed area of joint parts produced by respective joining conditions.

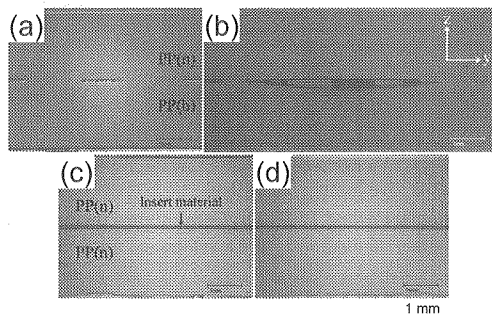


Fig. 5 Cross sections of joint parts produced under respective joining conditions.

(a) Conventional method:12.5 J, (b) Conventional method:25 J, (c) Development method:50 J, (d) Development method:500 J

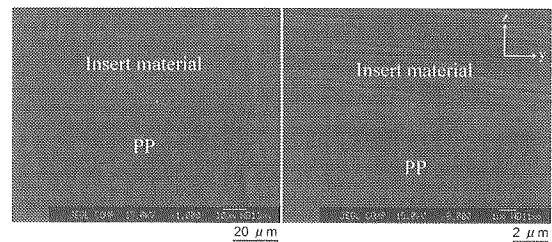


Fig. 6 Cross-sectional backscatter electron images of specimen produced by development method (at 300 J).

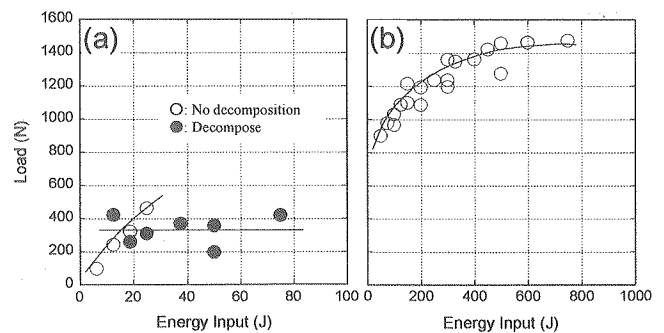


Fig. 7 Maximum load of joint parts produced by respective joining methods. (a) Conventional method, (b) Development method

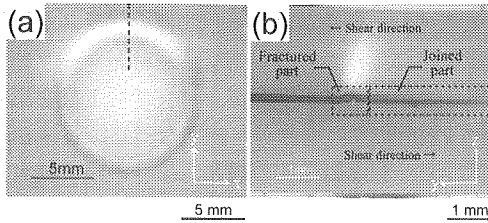


Fig. 8 Surface appearance (a) and cross section (b) of joint part produced by development method (at 300 J) after shearing test. ((b) is correspondent to the part shown in the line of (a).)

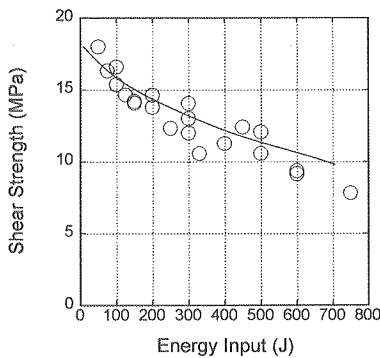


Fig. 9 Shear strength of joint parts produced by development method.

り接合した試験片のせん断試験後の外観と接合断面写真を示すが、応力は、局所的に集中しており、その部分が破壊の起点であることが確認できる。Fig. 9 は、開発法により接合した試験片のせん断強度であるが、最大で 18 MPa 程度を示し、入熱量の増加に伴い、せん断強度は低下する。このせん断強度の低下は、インサート材を用いたことによるものと考えられるが、詳細は不明であり、今後検討を要する。

以上、新たに開発したインサート材を用いることで、これまで困難であった PP(n)同士の接合を可能にした。さらに、従来法と比較して、レーザー照射条件の緩和、接合面積の拡大、気密性の向上等の数多くの優れた点が確認され、生産性の向上が期待できる。ここでは示していないが、同様のインサート材を用いて、ポリアセタール(POM)、ポリアミド(PA)、ポリカーボネート(PC)、ポリエチレンテレフタレート(PET)についても評価したが、最大せん断強度は 3-5 MPa 程度であり、PP の場合よりも劣った。これにより、インサート材の選択に対しては、被接合材との相溶性を考慮することが重要であることがわかっている。

3.2 断面マクロ観察

従来、異種材料同士の接合は、被接合材間の物性差により接合困難とされている⁷⁾。特に、プラスチックと金属の組合せでは、それらの差が大きく、中でも熱膨張差による応力発生や密着の低下が問題となる。一部のプラスチックと金属の組合せについて、接合例が最近報告されている⁸⁾が、無極性プラスチックと金属の組合せについては、接合困難とされている⁸⁾。これは、被接合材間の極性差によるものと推測される。一般に、水と油に代表されるように、極性差の大きい材料同士の組合せについては、混ざり合うことができないため、接合が困難である。開発法では、イ

ンサート材を用いることで、上記問題の解決を図る。接合界面に低弾性率層を介在させることで、接合時に発生する応力を緩和し、熔融することで、密着を維持する。また、異種材料の複合化の考えに基づき、プラスチックに対しては相溶性、金属に対しては極性を利用したインサート材を調節することで、極性差を緩和する。本実験では、PP と相溶性の優れたオレフィン系エラストマーに着目し、このエラストマーに対してカルボキシル基を変性することで、極性を付与した。変性する官能基の量を変えることで、3 種類のインサート材を調節した(極性: A(無極性) < B < C)。

Fig. 10 は、開発法により接合した試験片(インサート材 C, エネルギー入力 300 J) の外観および接合断面写真である。外観および断面から PP の分解は確認されず、良好な接合界面が形成されていることが確認できた。

Fig. 11 には、極性の異なるインサート材を用いて開発法により接合した試験片について、せん断試験によって得られたせん断強度を示す。未変性の極性のない A では、入熱量の大小にかかわらず、十分なせん断強度は得られない。一方、変性させ極性を付与した B では最大 6.5 MPa 程度、最も極性の強い C では最大 11 MPa 程度のせん断強度が得られた。インサート材の極性が増加するほどせん断強度が増加することから、金属との接合には極性が強く影響していることが明らかである。ここでは示していないが、変性する官能基の種類によっても、せん断強度に差を生じることが確認されている。B, C を用いた試験片について、赤外分光分析(IR)により、SUS304 のはく離面にてインサート材の成分が一部確認されたが、大部分はインサート材と SUS304 間での界面破壊であった。また、はく離面について、X 線光電子分光分析(XPS), IR を用いて化学結合状態を調査したが、官能基-金属間での化学結合は確認されておらず、インサート材と金属の接合メカニズムについては今後詳細な検討を要する。

入熱量に対するせん断強度の変化は、B, C とも同様で、入熱量 300 J 程度まで増加し、その後入熱量を増加してもほぼ一定の値を示した。被接合材として、金属を用いる場合は、プラスチックを用いる場合よりも、高い入熱量を要する。これは、熱伝導性の差によるものと考えられ、金属を用いる場合には、高い熱伝導性を考慮したレーザー照射条件の制御が必要となる。また、異種材料接合では、被接合材間での熱膨張係数が大きく異なり、それによって接合後に接合信頼性が問題となる場合があるが、温度サイクル試験(RT-1 hr → -30 °C-1 hr → RT-1 hr → 80 °C-1 hr → / 3 サイクル)を実施したが、接合部が剥がれることはなかった。これにより、接合後もインサート材は応力緩和層として機能していることと考えられる。

以上、開発法では、インサート材を用いることで、PP と SUS304 の接合が可能となり、金属との接合に対しては、インサート材の極性が強く影響していることが確認された。ここでは、無極性プラスチックと金属の接合について報告したが、同様に、プラスチックに対しては相溶性、金属に対しては極性を十分に考慮しながら、被接合材に応じたシ

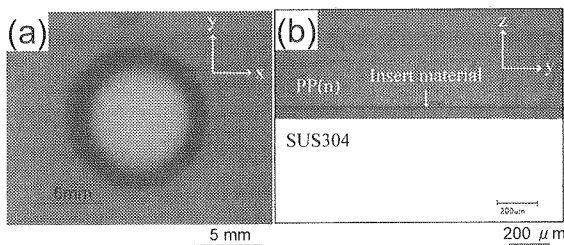


Fig. 10 Surface appearance (a) and cross section (b) of joint part produced by development method (at 300 J).

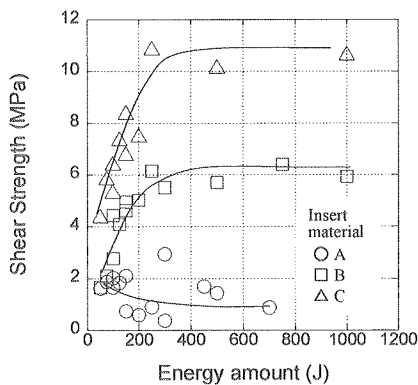


Fig. 11 Shear strength of joint parts produced by development method using various insert materials.

ートを調節することで、種々の組合せの異種材料接合(プラスチック - 異種プラスチック, プラスチック - 金属)が可能となった^{5),6)}。また、本実験では、インサート材を官能基により変性することで極性を付与したが、エラストマーの混合およびエラストマーへの極性物質の添加でも同様の効果が得られている。今後は、実用化を目的として、シート化・複合化による機能性付加について検討を行う。

4. 結 言

本研究では、同種プラスチック同士およびプラスチック-金属について、インサート材を用いてレーザー接合を行い、接合性に及ぼすインサート材の効果を検討した結果、以下の結論を得た。

- (1) 従来のレーザー溶着法では、同種のプラスチック同士の組合せであっても、レーザー透過材とレーザー非透過材の組合せが必要であったが、インサート材を用いることでPP(n)同士の接合が可能となった。従来法と比較して、レーザー照射条件の緩和、接合面積の拡大、気密性の向上等の数多くの優れた点が確認され、生産性の向上が期待できる。また、プラスチックとの接合性に対しては、インサート材の相溶性が強く影響することが確認できた。
- (2) 従来の溶着法では、無極性プラスチックと金属の組合せについて接合困難であったが、インサート材を用いることで、PP(n)-SUS304の接合が可能となった。また、金属の接合性に対しては、インサート材の極性が大きく影響することが確認できた。
- (3) 被接合材に応じたインサート材を調節することで、種々の異種材料接合が可能となる。そのため、開発法の適用材料範囲は広い。

5. 参考文献

- 1) Akihiko Tsuboi: Journal of the Japan Society of Polymer Processing, Applications of Laser Plastics Welding in Automotive Parts, 18-6, (2006), 380-384.
- 2) 三瓶和久: レーザによる樹脂の溶着技術, Welding Technology, 52, (2004-11), 100-105.
- 3) Hideo Nakamura, Masaki Terada, Masami Hirata, Tomohiro Sakai: Application to the plastic parts welding of Diode laser, Proceedings of the 59th Laser Materials Processing Conference, (2003), 1-7.
- 4) Akira Furuhashi: プラスチックレーザー溶接の範囲を拡大した BASF 社の新色材, ENGINEERING MATERIALS, 55-4, (2007), 91-95.
- 5) Yutaka Mitooka, Kazuya Nagata, Makoto Hino: 特願 2006-177613
- 6) Yutaka Mitooka, Kazuya Nagata, Makoto Hino, Kazuya Fujita, Kazuto Urakami: 特願 2006-273540
- 7) 中田一博: 異材溶接の基礎, Welding Technology, 52, (2004-9), 141-146.
- 8) Yousuke Kawahito, Seiji Katayama, Akio Tange, Shyuji Kubota: Laser Direct Joining of Metal and Optically-Transparent Plastic, Proceedings of the 67th Laser Materials Processing Conference, (2006), 35-39.