

# エラストマーシートを用いた異種プラスチックのレーザ接合

水戸岡 豊<sup>\*</sup>, 日野 実<sup>\*</sup>, 浦上 和人<sup>\*\*</sup>, 高田 潤<sup>\*\*\*</sup>

Laser Joining of Plastic and Different Plastic with Elastomer Sheet

MITOOKA Yutaka, HINO Makoto, URAKAMI Kazuto and TAKADA Jun

<sup>\*</sup>岡山県工業技術センター (〒701-1296 岡山県岡山市芳賀 5301)

<sup>\*\*</sup>早川ゴム株式会社 (〒721-8540 広島県福山市箕島町南丘 5351)

<sup>\*\*\*</sup>岡山大学大学院自然科学研究科 (〒700-8530 岡山県岡山市津島中 3-1-1)

yutaka\_mitooka@pref.okayama.lg.jp

(原稿受付 2009年2月6日)

To establish the joining technology of engineering plastic with different materials, laser joining has been researched by using an elastomer sheet with a specified elastic modulus. Diode laser joining was performed to join PP and different plastic (PP, PA66, POM, PET and PMMA) with the elastomer sheet. PP-PP joints produced by non-denatured elastomer sheet showed high shear strength in the shear test. On the other hand, in the case of using the COOH-denatured elastomer sheet, not only PP-PP but also PP-PA showed high shear strength. Regardless of the type of elastomer sheet, the shear strengths of PP-POM, PET, PMMA were measured about 300-800 N. High joining strength was considered to be obtained by adjusting the elastomer sheet considering solubility or reactivity between the elastomer sheet and the joining material.

**Key words:** laser joining, different materials, elastomer sheet, shear strength

## 1. 緒 言

自動車などを中心とした輸送機器産業では、CO<sub>2</sub>削減のために部材の軽量化が強く望まれており、エンジニアリングプラスチックの適用範囲が拡大している。これに伴いプラスチックの接合技術の重要性が増している。特に、最近ではプラスチック-異種材料接合の要望も強い<sup>1)</sup>。

プラスチック同士の接合法としては、熱板、振動、超音波およびレーザ等の各種溶着法が確立されている<sup>2)</sup>。中でも、レーザ溶着法は高い生産性を有することから注目されており、実用化が進んでいる<sup>3,4)</sup>。他方、プラスチックと異種材料の接合では、接合材間の物性差等が問題となり、上記の溶着法では接合できないのが現状である<sup>1)</sup>。そのため、現在の異種材料接合の多くは、接着あるいは機械的締結により行われている。しかしながら、これらのプロセスは作業面とコスト面での負担が大きい問題点を有することから、代替の接合技術を確立しなければならない。

これまでに、筆者ら<sup>5-9)</sup>は、エラストマーシートを接合材間に用いることにより、プラスチック-異種材料のレーザ接合が可能であることを示した。本研究では、エラストマーシートを用いたポリプロピレン-異種プラスチックのレーザ接合の可能性を検討した。得られた接合継手の接合強度、はく離モードおよび接合界面の状態を調べ、エラストマーシート-プラスチック間の接合メカニズムを調査した。

## 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 厚さ 2 mm, 以下 PP), 66 ナイロン(旭化成ケミカルズ(株)製 厚さ 3 mm, 以下 PA66), ポリアセタール(旭化成(株)製 厚さ 2 mm, 以下 POM), アクリル(三菱レイヨン(株)製 厚さ 2 mm, 以下 PMMA)およびポリエチレンテレフタレート(筒中プラスチック工業(株)製 厚さ 2 mm, 以下 PET)を用いた。分光光度計((株)島津製作所製 UV-3600)を用いて測定したプラスチックの光学特性を **Table 1** に示す。100% = 透過率 + 反射率 + 吸収率とし、測定値(透過率および反射率)から吸収率を求めた。エラストマーシートとしては、スチレン系熱可塑性エラストマーをシート状に成形したもの用いた。未変性からなるものをシート A, COOH 基変性からなるものをシート B とした。シート A およびシート B は、レーザ吸収を向上させるためにレーザ吸収色素を 1 mass% 添加しており、808 nm でのレーザ吸収率はそれぞれ 65 % および 95 % である。

接合材の間にエラストマーシートを挟み込み(PP/エラストマーシート/プラスチック), **Table 2** に示す条件で PP 側からレーザ照射を行った。熱源としては、半導体レーザ(Laser Line 社製 LDF600-1000; 最大出力: 1 kW)を用いた。レーザの出力を 50 W 一定とし、熱源の走査速度を 5, 10, 20 および 40 mm/s の 4 水準で変化させた。

**Fig. 1** に示す試験片を用い、せん断試験により接合強度

を評価した。また、せん断試験は、万能試験機(インストロン製 3382, クロスヘッドスピード: 5 mm/s)にて行った。せん断試験後、試験片の外観および離面を目視および実体顕微鏡により観察した。

界面の接合状態については光学顕微鏡、電界放射型電子プローブマイクロアナライザ(日本電子(株)製 JXA-8500FS, 以下 FE-EPMA)および透過電子顕微鏡((株)日立製作所製 H-800, 以下 TEM)により観察した。その際、断面および薄片試料作製には、クロスセクションポリッシャ(日本電子(株)製 SM-09010, 以下 CP)および凍結ミクロトームを用いた。CP および凍結ミクロトームを用いた理由は、接合材とエラストマーシート間の弾性差による影響を軽減するためである。

### 3. 実験結果および考察

#### 3-1. PP-異種プラスチック接合部の接合強度

従来の溶着法では、PP に対して PA, POM, PMMA および PET は溶着不可であった<sup>10,11)</sup>。相溶性があるか(溶解のしやすさ)を示す指標として溶解度パラメーター(Solubility Parameter, 以下 SP 値)の差の大きさが提案されている<sup>12)</sup>。Fedors 提示<sup>13)</sup>より算出した SP 値は、PP の 8.01 cal/cm<sup>3</sup>に対し、PA66, POM, PMMA および PET はそれぞれ 10.5, 9.6, 10.0 および 12.3 cal/cm<sup>3</sup>である。SP 値はよほど接近していないと相溶しないことが知られている<sup>12)</sup>。このことより、低相溶性が PP と上記のプラスチックが溶着できない原因と考えられる。

エラストマーシートを用いて Table 2 に示す条件で接合した結果、上記の SP 値の差の大きいいずれの PP-異種プラスチック接合も接合可能となった。本接合システムでは、エラストマーシートがレーザ光を吸収するために、従来のレーザ溶着法では困難な透過材同士の接合が可能となった<sup>6)</sup>。

熱源の走査速度に対する接合品の接合幅の変化を Fig. 2 に示す。Fig. 2 の(a)と(b)は、それぞれシート A とシート B を用いた場合の結果を示す。本実験の熱源配置から換算したレーザ照射径は 6 mm 程度である。一方、得られた接合幅は、走査速度 5 mm/s で 7.2 mm 程度、10 mm/s では 6.5 mm 程度であり、レーザ照射径を上回った。この接合幅の拡大はエラストマーチ特性によるものであり、本接合システムの特長のひとつである<sup>7)</sup>。シート A およびシート B のいずれの場合にも、走査速度の増加に伴い、接合幅は減少する。また、シート A とシート B 間で 30%程度のレーザ吸収率の差があり、接合幅はシート B が若干広い程度であった。これは、シート厚さが薄いためシート間の発熱量の差は小さいことによるものと推測される。また、同じシートを用いた場合、走査速度が同じであれば各接合品の接合幅は大差なく、下部材の影響は小さいことが確認された。

次に、シート B を用い走査速度 10 mm/s で接合した接合継手断面の反射電子像を Fig. 3 に示す。エラストマーシート-PP, PA, PMMA および PET 間については、未接合部のない良好な接合が得られた。一方、Fig. 3(b)のエラストマ

ーシート-POM 間の接合界面近傍に気泡の発生や POM の割れが確認された。これは、接合時には発生しないが、POM が熱分解したため生じたと推測される。

Table 1 Optical characteristics of plastics used

	Transmission (%)	Absorption (%)
PP	78.0	14.4
PA	40.1	32.6
POM	34.9	18.4
PMMA	92.7	1.4
PET	90.7	1.2

Transmission + Absorption + Reflection=100 (%)

Table 2 Laser joining conditions

Wavelength	808 nm
Focusing distance	100 mm
Defocusing distance	12 mm
Spot diameter	around 6 mm
Exposure mode	CW
Exposure angle	0°
Laser power	50 W
Scanning speed	5, 10, 20 or 40 m/s

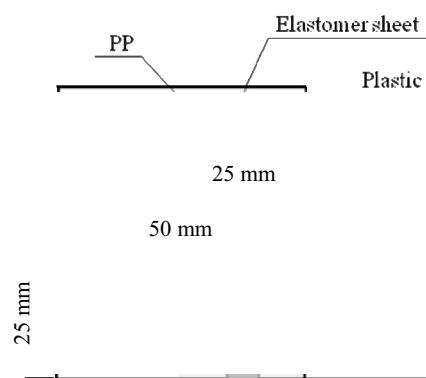


Fig. 1 Schematic drawing of shear test specimen

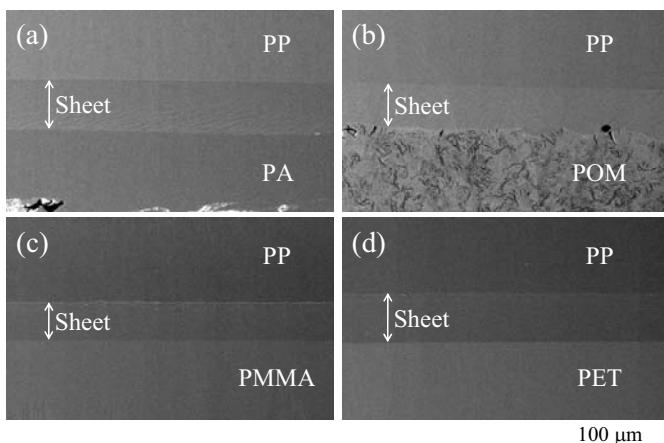
Fig. 2 Scan speed dependence of joint width of PP-different plastic joining using elastomer sheet: (a)Sheet A and (b)Sheet B

走査速度に対するせん断強度の変化を **Fig. 4** に示す。また、せん断試験後の外観およびはく離面の写真をシート A およびシート B について **Fig. 5** および **Fig. 6** に示す。せん断試験では **Fig. 1** に示す試験片を用いたが、接合材の弾性が低い場合、せん断のモーメント以外に回転のモーメントが加わる<sup>7)</sup>。せん断と回転のモーメントを区別することは困難であるため、それらを合わせてせん断強度とした。

**Fig. 4** より、PP-PP 接合は、シートの種類によらず高いせん断強度が得られ、すべての接合品で PP が破断した。せん断強度は最高値に達した後、徐々に低下するが、PP とシートは強固に接合されたままであった。せん断試験後の写真(**Fig. 5(a)**, **Fig. 6(a)**)から、接合部-未接合部界面に著しい白化(矢印部)が確認された。この部分の劣化によってせん断強度が低下したと判断できる。また、走査速度により接合幅に差があるにも関わらず(**Fig. 2**)、せん断強度はあまり変化しない。これは、強固に接合した場合、接合強度が接合部-未接合部界面で決定されるためである<sup>7)</sup>。

PP-PA66 接合では、シート A を用いた場合、せん断強度は最高で 500 N 程度(**Fig. 4(a)**)であり、はく離面からシート-PA66 間の界面破壊であることが確認された(**Fig. 5(b)**)。他方、シート B を用いた場合、せん断強度は著しく向上した。せん断強度は、5, 10 および 20 mm/s の走査速度で PP の強度に達し、接合部-未接合部界面に白化(矢印部)が確認された。また、**Fig. 6(b)** に示すように、5 mm/s では PA66 も破断した。はく離面から、シート B は PP と PA66 の両方に付着しており、シートの凝集破壊であることを確認した(**Fig. 6(c)**)。この凝集破壊は、シート A を用いた場合とのせん断強度の差を反映している。

PP に対する POM, PMMA および PET の接合では、シートの種類によってせん断強度に有意な差はなく、強度は最高で 300~800 N 程度であった。破断後、いずれの試料でもシートは PP 側へ付着しており、シート-下部材プラスチック間の界面破壊であることが確認された。POM, PMMA および PET 側ではエラストマー成分の染込みが確認できる程度であった(**Fig. 5(c)**, **Fig. 6(d)**)。

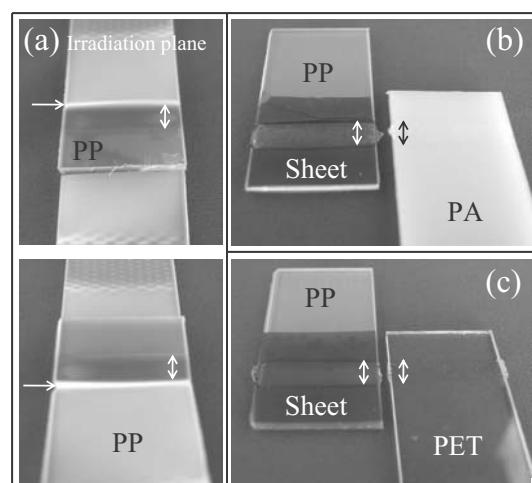


**Fig. 3** Cross-sectional backscattered electron images of PP-different plastic joining with elastomer sheet B: (a) PP-PA, (b) PP-POM, (c) PP-PMMA, (d) PP-PET

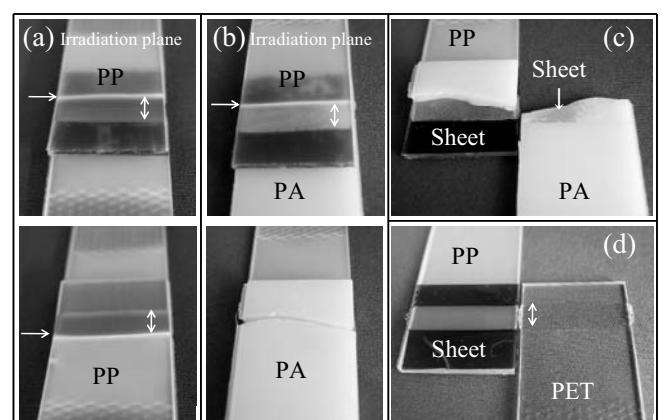
本実験ではエラストマーシートを用いることで、PP に対して上記の異種プラスチックはいずれも接合可能となった。せん断試験の結果から、エラストマープラスチック間の接合パターンは次の 3 種類に分かれた。

(a) (b)

**Fig. 4** Scan speed dependence of shear strength of PP-different plastic joining using elastomer sheet: (a) Sheet A and (b) Sheet B



**Fig. 5** Appearance of after shear test of PP-different plastic joining using sheet A. (Both arrows: joined part)



**Fig. 6** Appearance of after shear test of PP-different plastic joining using sheet B. (Both arrows: joined part)

- パターン 1. シートによらず母材破断
- パターン 2. シートによる接合強度差(シート A では接合強度 700-900 N, シート B では母材破断)
- パターン 3. シートによらず接合強度 300-800 N

### 3-2. 接合界面の観察と接合メカニズム

本節では、接合界面の詳細な観察を行い、エラストマーシート-プラスチック間の接合メカニズムについて考察する。

エラストマーシートを用いることで PP-異種プラスチック接合が可能となった。これは、エラストマーが PP だけでなく各種プラスチックに対して接合するためである。エラストマーは幅広い SP 値のプラスチックに接合可能なことから、その特性が SP 値の差を解消あるいは緩和していると推測される。エラストマーの特性としては、柔軟性(弾性率: プラスチック=1,500~3,500 MPa, エラストマーシート=50~200 MPa), 高溶融粘度, 高表面電荷(ゼータ電位: エラストマーシートはプラスチックの 5 倍程度)等が挙げられる。特に、異種材料が接合する際には、接合界面に発生する応力が問題となる<sup>11</sup>が、エラストマーシートの柔軟性がこの界面での応力を解消していると推測される。

前節でエラストマーシート-プラスチック間の接合パターンに 3 種類に分かれることを示したが、これらの接合メカニズムは異なると推測され、接合界面の観察から接合メカニズムを以下に考察した。

PP-PP 接合は、エラストマーシートの種類によらず材料強度に達する程の高い接合強度を示す。つまり、PP は未変性および変性によらずエラストマーと強固に接合する。熱可塑性エラストマーは、ゴム弾性を有する柔軟性成分(軟質相)と塑性変形を防止するための分子拘束成分(硬質相)から構成されている<sup>14</sup>。本研究で用いたエラストマーの軟質相は PP に対して非常に高い相溶性を示すため、エラストマーシートと PP は相溶していると推測される。シート A と PP の接合界面の断面 TEM 写真を Fig. 7 に示す。図中の矢印部に示すようにエラストマーと PP が部分相溶していることが確認できた。これが高い接合力をもたらしていると考えられる。

PP-PA66 接合は、シート A を用いたときよりもシート B を用いた方が高い接合強度を示した。つまり、PA66 は未変性と比較して、COOH 基変性と強固に接合する。エラストマーシートの種類によって接合強度の差が生じたのは PA66 のみであった。用いたプラスチックの中で PA66 のみが有する官能基は N-H 基であり、これがエラストマーの COOH 基と作用していると推測される。走査速度 5 mm/s で接合した場合の PA66 とエラストマーシートの接合界面の反射電子像を Fig. 8 に示す。Fig. 8(a)より、シート A-PA 間はそれぞれの材料が良好に密着した状態であることが確認できた。一方、シート B-PA 間では部分的であるが、Fig. 8(b)に示すような材料が混ざり合っている様子が確認できた。この混合により、シート B-PA は高い接合力を示すと考えられる。用いたエラストマーと PA は非相溶系あるが、

プラスチックに対して相性の良い官能基をエラストマーに付与することで高い接合強度を得ることができた。

既に述べたように、PP に対する POM, PMMA および PET の接合では、エラストマーシートの種類によらず接合強度は 300~800 N 程度であった(Fig. 4)。つまり、エラストマーシート-プラスチック接合について、エラストマーの未変性および変性はほとんど寄与していない。接合界面の詳細な観察において、相溶あるいは相互作用は確認されなかつたため、物理的相互作用により接合していると推測される。物理的相互作用が発揮されるためには、分子間距離が十分に小さくなることが重要である。このとき、エラストマーの特性が有効に寄与していると推測されるが、接合メカニズムについては今後更なる詳細な検討が必要である。

以上、エラストマーシートを用いることによって、従来不可能であった PP と異種プラスチックの接合が可能となった。その際、エラストマーシート-プラスチック間の相溶あるいは相互作用があれば接合特性は向上する。相溶系の組み合わせは限定されるため、官能基変性による相互作用を利用することは接合対象の拡大に有効である。

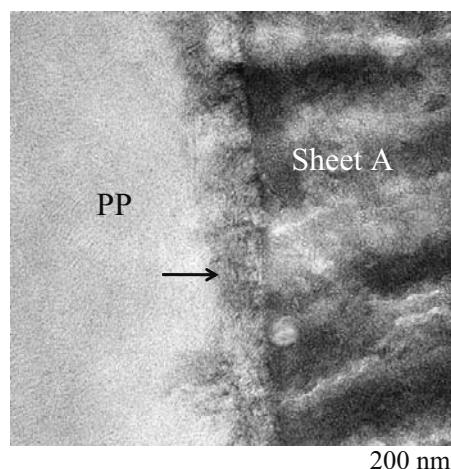


Fig. 7 Cross-sectional transmission electron micrograph of elastomer sheetA-PP joining.

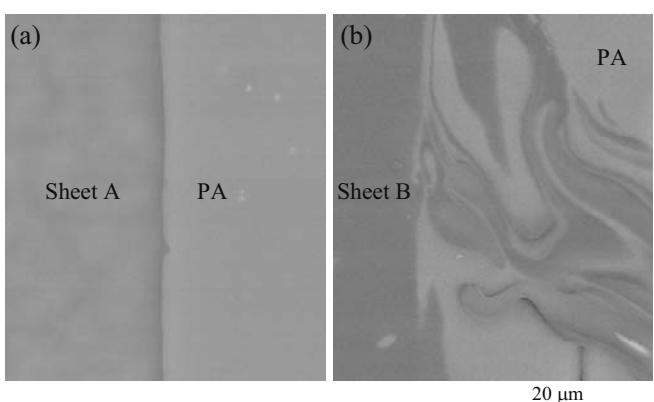


Fig. 8 Cross-sectional backscattered electron images of elastomer sheet-PA joining:(a) Sheet A-PA and (b) Sheet B-PA

今後は、変性官能基の効果を確認するために、COOH 基以外の官能基で変性したエラストマーを用いて接合性の評価を行う。また、相溶や相互作用が乏しい場合でも、エラストマーは種々のプラスチックに対して接合可能である。

現在、これらの接合メカニズムの詳細は明らかでないが、今後、表面電荷の定量化およびXPSによる化学状態の測定などを行って、接合メカニズムを明らかにする予定である。

#### 4. 結 言

本研究では、エラストマーシートを用いた PP-異種プラスチックのレーザ接合の可能性について検討した。接合強度測定および接合状態観察を行い、その接合メカニズムを検討した結果、以下の結論を得た。

- (1) エラストマーシートを用いることで、従来の溶着法では困難な PP-各種プラスチックでの異種プラスチック接合が可能となった。これは、エラストマーシートが幅広い SP 値のプラスチックに接合可能なためである。
- (2) エラストマーパラスチック間に相溶が起これば材料強度に達するほどの接合強度が得られた。
- (3) 相溶しない場合でも、エラストマーパラスチック間で相互作用が起これば材料強度に達するほどの接合強度が得られた。相溶系の組合せは限定されるため、変性により官能基を用いた相互作用を利用することは接合対象の拡大に有効である。
- (4) 相溶や相互作用が乏しく、直接接合が困難なプラスチックに対して一定の接合強度が得られた。このよう

な接合は物理的相互作用によるものと推測される。

#### 参 考 文 献

- 1) 中田一博: 異材溶接の基礎, Weld. Tech., **52**, (2004-9), 141-146.
- 2) 金子誠司: プラスチック接合技術, 工業調査会, (2005), 7.
- 3) Tsuboi, A.: Applications of Laser Plastics Welding in Automotive Parts, J. Jpn Soc. Polymer Processing, **18-6**, (2006), 380-384. (in Japanese)
- 4) Mikame, K.: Laser Welding of Plastic Parts, J. Jpn Laser Processing Soc., **14-4**, (2007), 1-5. (in Japanese)
- 5) Mitooka, Y., Nagata, K., Hino, M.: 特願 2006-177613.
- 6) Mitooka, Y., Nagata, K., Hino, M., Fujita, K., Urakami, K.: 特願 2006-273540.
- 7) Mitooka, Y., Nagata, K., Hino, M.: Laser Joining of Different Materials Using Insert Materials, J. Jpn Laser Processing Soc., **14-4**, (2007), 40-44. (in Japanese)
- 8) Mitooka, Y., Hino, M., Urakami, K.: Effect of Metal Surface on Laser Joining of Different Materials Using Insert Materials, J. Jpn Laser Processing Soc., **15-3**, (2008), 186-190. (in Japanese)
- 9) Hino, M., Mitooka, Y., Murakami, K., Urakami, Takada, J., Kanadani, T.: Joining of different materials between A1050P aluminum alloy and polypropylene resin by diode laser using insert materials, to be published in J. Jpn Inst. Light Metal. (in Japanese)
- 10) Adachi, K.: Ultrasonic Plastic Joinin, J. Jpn Soc. Polymer Processing, **12-10**, (2000), 598-602. (in Japanese)
- 11) 舊橋章: プラスチックレーザ溶接の範囲を拡大した BASF 社の新素材(1), 工業材料, **55-4**, (2007), 91-95.
- 12) プラスチック読本, プラスチックエージ, (1992), 25.
- 13) Fedors, R. F.: A Method for Estimating Both the Solubility and Parameters and Molar Volumes of Liquids, Polymer Engineering and Science, **14-2**, (1974), 147-154.
- 14) 山下晋三: エラストマー, 共立出版, (1989), 61.