

# インサート材を用いたレーザー接合技術の開発

岡山理科大学工学部 機械システム工学科

教授 金谷輝人

(平成 21 年度一般研究開発助成 AF-2009203)

**キーワード：**レーザー接合、インサート材、異種材料

## 1. 研究の目的と背景

自動車を中心とした輸送機器産業では、CO<sub>2</sub>削減のため、部材の軽量化が切望されており、軽量、加工性などに優れたアルミニウム合金の適用が拡大している<sup>1)</sup>。プラスチック材料も軽量で成形性に優れていることから、その適用範囲は拡大しており、それに伴い、プラスチックへの接合技術の重要性が増している。

近年、プラスチック同士の新たな接合法として波長が 1  $\mu$  m 付近のレーザー光がプラスチックを透過する性質を利用したレーザー溶着法が開発され<sup>2)</sup>、既存の熱板、振動、超音波などの溶着法よりも生産性および接合品質が優れていることから、実用化が進んでいる<sup>3)</sup>。

一方、プラスチック-金属異種材料接合では、被接合材間の物性差が大きいことから、前述のレーザー溶着法による接合が困難であり、一般に接着剤や機械的締結が用いられている。これらのプロセスでは、揮発性有機化合物 (VOC) の発生、あるいは作業面とコスト面の負担が大きいなどの問題があり、それらを改善する代替工法が強く要望されている。最近、レーザーによるプラスチック-金属異種材料間での接合が試みられ、極性の強い PET など一部のプラスチック-金属間での接合例が報告されている<sup>4)</sup>。著者らもプラスチック-金属異種材料接合に対して被接合材間の物性差を緩和させるインサート材を用いることでレーザー接合が可能なることを報告した<sup>5)</sup>、<sup>6)</sup>。また、分子の一部を-COOH 基で変性することによって極性を付与したインサート材を適用することで、これまで困難であった無極性のプラスチックが塑性変形するほどの強固な接合が得られることを報告した<sup>7)</sup>。その際、アルミニウム基材の表面状態が接合強度に著しく影響を及ぼすことを示したが、その詳細には不明な点も多い。さらにアンカ効果で知られる表面

形状は接着性に多大な影響を及ぼす。

この研究では、インサート材を用いた半導体レーザーによるアルミニウム板材-ポリプロピレン樹脂異材接合における接合メカニズムの解明を目的として、接合強度に及ぼすアルミニウム板材の表面形状の影響および酸・アルカリ処理による表面の化学状態の影響について詳しく検討した。

## 2. 実験方法

被接合材として、主に 1050 アルミニウム板材 (30×20×1(厚さ)mm<sup>3</sup>) (以下、1050 と記す) およびポリプロピレン樹脂 (新神戸電機 (株) 製コウベポリシート (50×25×2(厚さ)mm<sup>3</sup>) (以下、PP と記す。)) を用いた。接合強度に及ぼす 1050 の表面形状の影響を調べるため、1050 の接合表面に対して Table 1 に示す研磨を行い、表面形状の異なる 4 種類の試料を作製した。なお、研磨後、アセトンによる超音波洗浄を 60 秒間実施した。研磨試料の表面について、SEM 観察および非接触式三次元構造解析顕微鏡 (Zygo New Vie 5000) による表面形状測定を行い、算術平均粗さ (Ra) および表面積 (I Surf Area) を求めた。また、接合強度に及ぼす 1050 表面の化学状態の影響を調べるため、バフ研磨による鏡面状態の試料に対して、Table 2 に示す化学処理を行った。化学処理後の表面について、X 線光電子分光装置 (以下、XPS と記す) による状態分析を行った。

被接合材の間にインサート材を挟み込み、Table 3 に示す条件でレーザー接合を行った。熱源には半導体レーザー (Laser Line 社製 LDF600-1000: 最大出力 1kW) を用いた。インサート材にはスチレン系熱可塑性エラストマをシート状に加工したもの (厚さ 50  $\mu$  m) を用いた。なお、熱可塑性エラストマの特徴として、分子中に柔軟性成分 (軟質

Table 1 Various polishing conditions for 1050 aluminum substrate.

#220	#1200	#4000	Mirror buffing
Substrate ↓ #220	Substrate ↓ #220 ↓ #800 ↓ #1200	Substrate ↓ #220 ↓ #800 ↓ #1200 ↓ #4000	Substrate ↓ #220 ↓ #800 ↓ #1200 ↓ #4000 ↓ Mirror buffing

Table 2 Chemical treatments for 1050 aluminum substrate after mirror buffing.

Alkaline dipping	Acid dipping	Second alkaline dipping
(Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> (20 kg/m <sup>3</sup> ) + Na <sub>2</sub> SiO <sub>3</sub> (10 kg/m <sup>3</sup> )) (325 K-30 s) ↓ Washing	Alkaline dipping ↓ Washing ↓ Nitric acid (60%) (Room temperature-5 s) ↓ Washing	Acid dipping ↓ Washing ↓ Alkaline dipping ↓ Washing

Table 3 Experimental conditions of laser joining.

Wavelength (nm)	808
Focusing distance (mm)	100
Spot diameter (μm)	600
Defocusing distance (mm)	12
Exposure mode	CW
Exposure angle	80° for the joining material
Laser power (W)	200
Joining Speed (mm/s)	5

相)と塑性変形を防止するための分子拘束成分(硬質相)を有するため、加硫なしでも加硫ゴムと同様の弾性を示す。また、加熱により可塑化するが、冷却されることで再固化し、補強なしでも高強度ならびに高引張応力を示す。本研究では、アルミニウムとの接合性を高めるため、分子の一部を-COOH基で変性し、レーザ吸収材を1mass%添加したインサート材(レーザ波長808nmに対する吸収率:95%)を用いた<sup>6)</sup>。

レーザ照射後、表面および断面方向から接合状況を観察した。また、せん断試験によって接合強度を求めた。せん

断試験後、剥離面の外観観察および電界放射型X線マイクロアナライザ(以下、FE-EPMAと記す)による元素分析を行い、剥離モードを調べた。

### 3. 結果および考察

#### 3.1 接合強度に及ぼす表面形状の影響

Fig. 1には、1050に対してTable 1に示した研磨を施した表面の二次電子像および非接触式三次元構造解析顕微鏡による表面形状を示す。エメリー紙#220番による研磨では、表面に多数の研磨傷が観察されるが、#1200、#4000へと研磨することで大部分の研磨傷は消滅し、最終のパフ研磨によって完全に除去され、外観的にも鏡面状態を示した。Table 4には、各研磨表面について、非接触式三次元構造解析顕微鏡によって求めた表面粗さRa(算術平均粗さ)を示す。表面粗さRa値は、#220から#4000へと研磨することで低下し、パフ研磨では0.063μmまで低下しており、研磨を順次行うことで平滑化されることが定量的に確認できる。

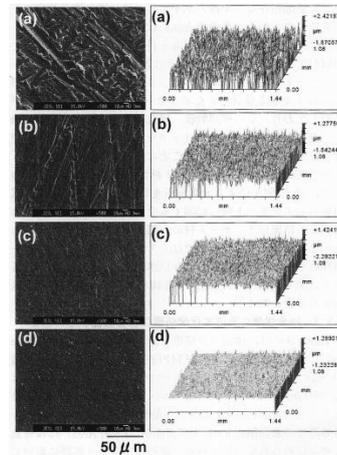


Fig. 1 Secondary electron images and surface morphology of specimens showing various polished surface on 1050 aluminum substrate. (a) #220, (b) #1200, (c) #4000, (d) Mirror buffing.

Table 4 Surface roughness (Ra) of various polishing for 1050 aluminum substrate.

	#220	#1200	#4000	Mirror buffing
Ra (μm)	0.420	0.192	0.145	0.063

このように表面粗さ Ra が異なる 4 種類の試料に対して、インサート材を挟み込みレーザ接合を行い、せん断試験によって接合強度を求めた。Fig. 2 には、Table 1 に示した表面粗さ Ra とレーザ接合によって得られたせん断強度の関係を示す。せん断強度は、表面粗さ Ra の値によって変化するが、表面粗さ Ra とせん断強度の間には相関が認められない。特に、Ra 値が  $0.420\ \mu\text{m}$  と最も粗い #220 番の試料でのせん断強度が、約 1/3 の Ra 値を示す平滑な #4000 番の試料のそれよりも低い結果は、本プロセスでの接合強度には表面粗さ以外の因子の存在が示唆される。

Fig. 3 には、非接触式三次元構造解析顕微鏡から求めた表面積 (I Surf Area) とせん断強度の関係を示す。なお、最も表面の粗い #220 番の試料の表面積がすべての試料の中で最小値を示しているが、これは #220 番の表面凹凸が激しいために表面積を算出する際のデータ欠損率が 58% と、他の試料の 1% 未満に比べ、非常に大きいことによる。

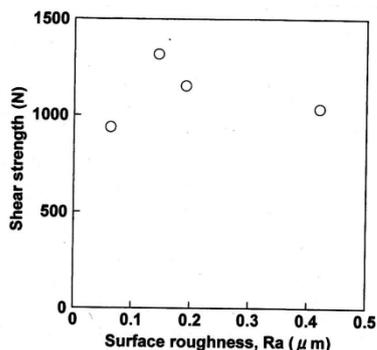


Fig. 2 Relationships between surface roughness and shear strength.

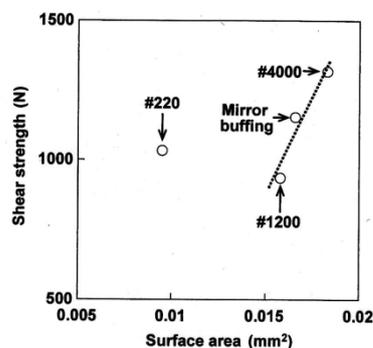


Fig. 3 Relationships between surface area and shear strength.

#220 番の試料を除き、表面積の増加とともにせん断強

度が増加し、両者には比例関係が成立する。このことから、本プロセスでの接合強度に対して、表面粗さではなく、表面積が重要な因子であることがわかった。なお、#220 番の試料のせん断強度が表面積と相関しない要因については後述する。

### 3. 2 接合界面の状態

Fig. 4 には、#220 番の試料を除いた接合部の断面観察結果を示す。PP-インサート材の界面には気泡や未接合部は認められず、すべての試料で良好な接合界面が形成されている。また、1050-インサート材の界面についても、同様に気泡や未接合部は認められない。

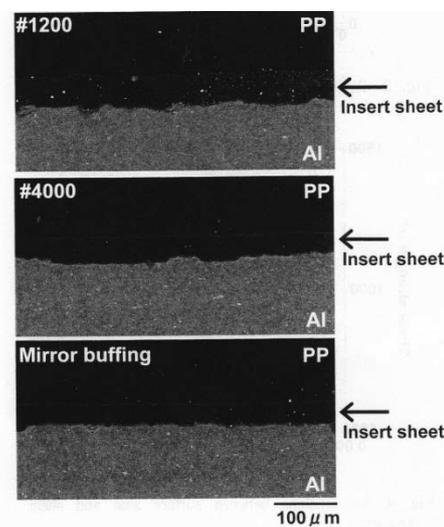


Fig. 4 Cross sectional backscattered electron images of laser joining specimens with various polishing conditions.

一方、Fig. 3 において #220 番の試料のみ表面積とせん断強度に相関が得られなかったが、その要因を明らかにするため、1050-インサート材の界面について、断面観察試料をクロスセクションポリッシャにより作製し、詳細に観察した。Fig. 5 には #220 番および鏡面研磨についての結果を示す。表面粗さの最も粗い #220 番では、凹部においてインサート材が完全に充填されない未接合部 (Fig. 5 (a) 破線部) や気泡が観察された。その他の試料の接合界面には、#220 番で観察された未接合部や気泡は観察されなかった。このように #220 番の試料では、凹部における未接合部が、接合強度を低下させ、それが表面積との相関を示さない要因と推測される。

以上、本プロセスは、アルミニウム接合面での表面積を

増加させることは接合強度に対して有効に作用する。しかし、#220 番のような粗い表面研磨の場合では、本実験に用いた熱可塑性インサート材はレーザー照射での加熱によって流動性が増すものの、凹部まで完全に充填されず、十分なアンカー効果を得ることができない。このように接合

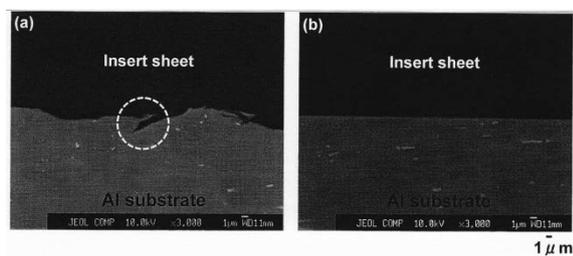


Fig. 5 Cross sectional backscattered electron images of laser joining specimens. (a) #220 polishing, (b) Mirror buffing.

強度の向上を目的とした表面粗化は、未接合部を生じさせ、逆に接合強度の低下を招くことから、最適な表面形状の選択が重要である。

次に、せん断試験後の剥離面を目視観察した結果、すべての試料で PP-インサート材間での剥離は認められず、1050-インサート材間で剥離が生じた。これは、スチレン系熱可塑性エラストマを主成分としたインサート材が PP との相溶性<sup>8)</sup>を有しており、レーザー照射後、接合界面において両者が熔融し、混ざり合う<sup>9)</sup>一方で、インサート材-アルミニウム間ではインサート材のみ熔融することに起因する。

せん断試験によってインサート材が剥離した 1050 表面について、FE-EPMA による元素分析を行った結果、いずれの試料からもインサート材に起因する炭素が剥離面から検出された。この結果はインサート材の一部が凝集破壊していることを示しており、本プロセスでは、アルミニウム-インサート材間にその詳細は明らかではないが、何らかの結合が生じることにより、PP が塑性変形するほどの強固な接合が得られるのではないかとと思われる<sup>7)</sup>。

### 3. 3 接合強度に及ぼす化学処理による表面状態の影響

Table 5 には、鏡面バフ研磨を施した 1050 に対して Table 3 に示す化学処理を行った試料の表面粗さ Ra および表面積 (I Surf Area) を示す。鏡面バフ研磨後の表面

粗さは Ra 0.063 μm と極めて平滑であるが、それに対して化学処理を施すことで表面粗さ Ra は増し、表面が粗化される。しかし、各処理での表面粗さ Ra および表面積 (I Surf Area) には有意な差が認められないことから、最初のアルカリ処理においてアルミニウム表面はエッチングされるものの、その後の酸処理およびアルカリ処理でのエッチングはわずかであると言える。このようにバフ研磨後の表面に対するアルカリ処理と酸処理後のそれに対するアルカリ処理を比較すると、同じアルカリ処理であるにもかかわらず、エッチング効果が大きく異なる結果は、バフ研磨と酸処理後に生成する酸化皮膜の状態が異なることを示唆している。

Table 5 Surface roughness (Ra) and surface area (I Surf area) of various chemical treatments for mirror buffing substrate.

	No treatment	Alkaline dipping	Acid dipping	Second alkaline dipping
Surface roughness, Ra (μm)	0.063	0.219	0.214	0.207
Surface area (mm <sup>2</sup> )	0.016	1.548	1.540	1.540

Table 6 には、各処理を施した試料のせん断強度を示す。せん断強度は、最初のアルカリ処理によって鏡面バフ研磨試料よりも向上し、続く酸処理により、さらに向上した。しかし、再びアルカリ処理を施した試料のせん断強度は、鏡面バフ研磨試料のそれよりも低下した。Table 5 に示した表面粗さおよび表面積から、各処理による表面形状に大きな差異はないが、一方、せん断強度が各処理によって異なる結果は、本プロセスの接合強度に影響を及ぼす要因として、表面形状のほかにも表面の化学状態が考えられる。なお、表面凹凸が激しいために未接合部が存在する #220 番の試料を除き、化学処理によるせん断強度は、前述の鏡面研磨試料と同様の傾向を示した。

Table 6 Shear strength of various chemical treatments for 1050 aluminum substrate.

	No treatment	Alkaline dipping	Acid dipping	Second alkaline dipping
Shear strength (N)	936.7	1023.0	1122.3	847.7

Fig. 6には、鏡面バフ研磨および各処理を施した試料表面のXPSによるAl3p1/2ナローズペクトルを示す。いずれの試料からも金属および酸化状態の存在を示すピークが認められるが、これら金属および酸化状態のピークの割合は、各処理によって変化していることがわかる。この結果は、最表面の化学状態がそれぞれ異なっていることを示唆している。

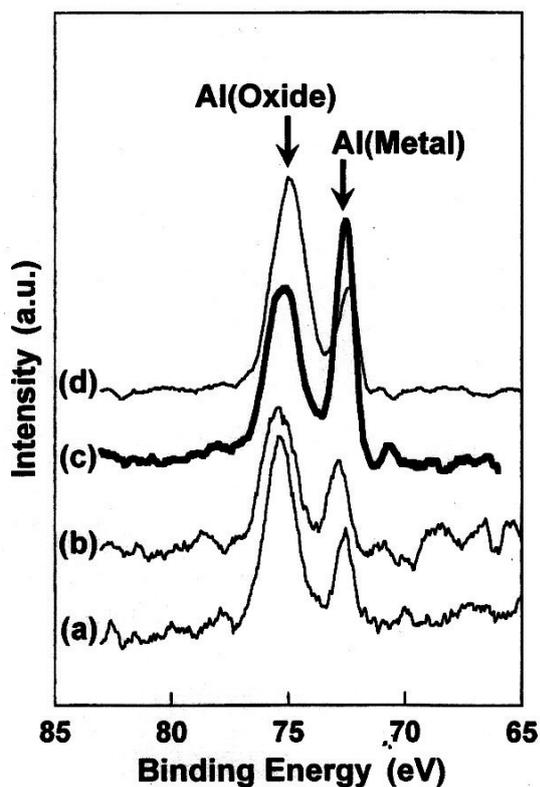


Fig.6 XPS Al3p1/2 narrow spectra of 1050 aluminum substrates after various chemical treatments. (a) No treatment, (b) alkaline dipping, (c) acid dipping, (d) second alkaline dipping.

Fig. 6 から求めた各処理におけるアルミニウムの金属および酸化状態の組成比を Table 7 に示す。ここで金属状態の比率に着目すると、せん断強度が最も高い値を示した酸処理試料での金属状態の比率は、すべての試料の中で最も高く、逆にせん断強度の最も低い2回目のアルカリ処理のそれは最も低い値を示し、せん断強度と金属状態の比率は相関を示すことがわかった。

本実験に用いたインサート材は、-COOH 基変性によって極性を付与することで金属-インサート材間での反応性の向上を図っている。アルミニウム表面へのアルカリおよび

酸処理による表面の化学状態の差異が接合強度を変化させる、すなわちインサート材との反応性に影響を及ぼす結果から、その両者間には酸-塩基相互作用<sup>10)</sup>が関与していることが予想される。酸-塩基相互作用を明確にするた

Table 7 Composition ratio of Al (Metal) and Al (Oxide) from Al3p1/2 spectra.

	(at%)			
	No treatment	Alkaline dipping	Acid dipping	Second alkaline dipping
Al (Metal)	25.8	27.3	45.7	18.6
Al (Oxide)	74.2	72.7	54.3	81.4

め、-COOH 基と相反する塩基性官能基である-NH<sub>2</sub> 基によって変性インサート材を作製し、同様のレーザ接合を行い、せん断強度を測定した。なお、1050 の接合表面はロール面を用い、研磨加工は行っていない。結果を Fig. 7 に示したが、-COOH 基変性および-NH<sub>2</sub> 基変性インサート材のせん断強度を比較すると、絶対値は異なるものの、酸処理によるせん断強度が最も高く、両者の各処理によるせん断強度は同様の傾向を示した。この結果は、酸-塩基相互作用よりも別の接合機構が作用していることを示唆している。

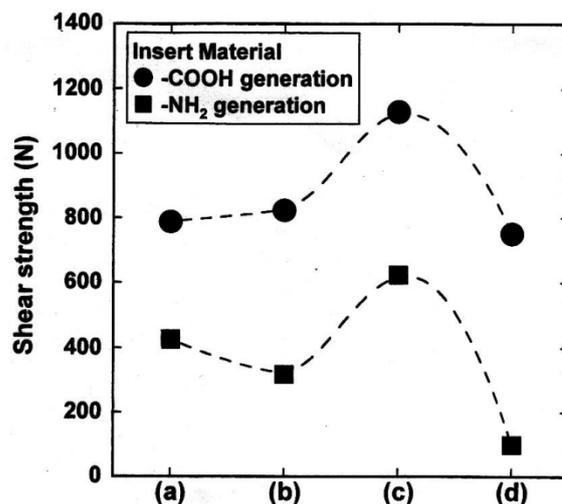


Fig.7 Shear strength of various chemical treatments for 1050 aluminum substrate. (a) (a) No treatment, (b) alkaline dipping, (c) acid dipping, (d) second alkaline dipping.

一般に金属材料に対する接着剤は、その分子中に OH 基、-COOH 基および-NH<sub>2</sub> 基などの有機官能基を有しており、金属表面に存在する水素基と有機官能基間での水素結合に基づく相互作用力によって接着剤が金属表面に強固に固定化される<sup>10)</sup>。Fig. 7 での-COOH 基および-NH<sub>2</sub> 基が各処理で同じ傾向を示す結果は、アルミニウム表面に存在する水素基とインサート材に付与した-COOH 基あるいは-NH<sub>2</sub> 基間で水素結合が生じていることを示唆している。ちなみに、-COOH 基あるいは-NH<sub>2</sub> 基未変性のインサート材を用いた場合、表面形状や化学的処理を変化させてもアルミニウム-インサート材間で反応は生じず、結合できない。この結果は、前述の水素結合を支持している。なお、Fig. 6 の XPS 分析結果で明らかになった各処理での酸化状態の差異が、最表面に生成する水酸化物に影響を及ぼし、せん断強度を変化させると推測される。

以上、本プロセスでの接合性に対して表面の化学状態が重要な因子であることが判明した。他方、接合性には表面形状も影響するが、接合性の向上を図るためにはアルミニウム表面の形状制御とともに科学的な処理による表面の化学状態の制御も重要と言える。特にレーザー接合では、ファイバ伝送+ロボットにより、複雑形状部位に適用できるという大きな特徴を有している。これら複雑形状部品の接合表面に対して、科学的な処理の方が研磨等による機械的な処理よりも容易で効率的な前処理と思われる。

#### 4. まとめ

インサート材を用いた半導体レーザーによるアルミニウム合金板材-ポリプロピレン樹脂異材接合における接合強度に及ぼすアルミニウム表面の形状の影響および表面の化学状態の影響について検討し、以下の諸点が明らかになった。

(1) 接合面でのアルミニウムの表面積の増大は、接合強度に対して有効に作用した。しかし、表面研磨が粗く、凹凸の大きな表面では、インサート材が凹部まで完全に充填されず、接合強度は低下することがわかった。そのため、

本プロセスでは、最適な表面形状の選択が重要である。

(2) アルミニウムの表面に対するアルカリ処理あるいは酸処理によって接合強度が変化し、この傾向は-COOH 基あるいは-NH<sub>2</sub> 基変性したインサート材でも同様であった。したがってアルミニウム-インサート材間の接合は、酸-塩基相互作用よりも水素結合が支配的で、その際、表面の酸化状態、特に水酸基の状態が水素結合に影響を及ぼし、接合強度を変化させると推測した。

#### 謝 辞

本研究は、財団法人天田金属加工機械技術振興財団の一般研究開発助成 (AF-2009203) のもとで行われたことを記し、ここに深く感謝申し上げます。また、共同研究いただいた岡山県工業技術センター 水戸岡豊、日野実、村上浩二の諸氏に深謝致します。

#### 参考文献

- 1) 堀川宏：軽金属， 58 (2008)， 259-273.
- 2) 三瓶和久：レーザー加工学会誌， 14 (2007)， 211-215.
- 3) 長谷川達也監修：レーザー樹脂溶着技術ノウハウ集，技術情報協会， (2009)， 292.
- 4) Y. Kawahito and S. Katayama：Smart Processing Technology， 2 (2008)， 19-22.
- 5) 水戸岡豊， 永田員也， 日野実：特願 2006-177613.
- 6) 水戸岡豊， 日野実， 浦上和人：レーザー加工学会誌， 15 (2008)， 186-190.
- 7) 日野実， 水戸岡豊， 浦上和人， 高田潤， 金谷輝人：軽金属， 59 (2009)， 236-240.
- 8) 接着ハンドブック第4版 (日本接着学会編集)， 日刊工業新聞社， (2009)， 136-138.
- 9) 日野実， 水戸岡豊， 浦上和人， 高田潤：レーザー加工学会誌， 16 (2009)， 136-140.
- 10) 接着ハンドブック第4版 (日本接着学会編集)， 日刊工業新聞社， (2009)， 836-840.