

# アルミニウム合金とポリアミド樹脂の中間にインサート材料を用いる異種材料のレーザー接合技術とその要素技術の開発

広島工業大学 機械システム工学科

准教授 桑野 亮一

(2018年度 一般研究開発助成 AF-2018210-B2)

キーワード：異種材料接合，半導体レーザー，熱可塑性エラストマーシート，陽極酸化，アルミニウム合金

## 1. 研究の目的と背景

環境負荷の低減やCO<sub>2</sub>排出の削減などの社会的な取り組みが行われている。輸送機器分野での取り組みでは、重量と燃費の間に強い相関があることから、車体の軽量化が進められている<sup>1)</sup>。車体材料や構造設計の改良や材料の代替などを実現するためには、異なる材料を適切に使用するマルチマテリアル化が不可欠となっている。それに伴い異種材料の接合は、ますます重要な基盤技術となっている。

異種材料の接合では熱膨張係数，ヤング率，融点，熱伝導率などの物性差が著しく異なる場合，熱応力や残留応力の発生や長期的な継手の健全な維持などの問題が挙げられる。これまでに，樹脂と樹脂，樹脂とアルミニウム合金，チタン合金，ステンレス鋼などとの異種材料接合の報告が多数ある<sup>2-4)</sup>。これらの多くは，被接合材同士を直接接合する接合方式であるため，接合加工中の加工安定性や材料物性差による上記のような問題が懸念される。一方，本研究では，それらの問題を緩和するために被接合材料の間にインサート材料を用いるレーザー接合技術を開発している<sup>5-7)</sup>。本接合方法で使用するインサートシートは，接合品質を左右する重要な周辺要素技術となる。

そこで本研究では，ポリアミド樹脂であるPA66とアルミニウム合金A5052の異種材料接合において，それらの中間に熱可塑性エラストマーシートを用いるレーザー接合技術の開発を行った。インサートシートの主要な目的は，接合界面での光吸収の調整ができることと接合時や接合後に発生する応力を緩和することである。ここでは，レーザー加熱によるPA66同士，PA66とA5052の異種接合の結果，また試作したインサートシートの接合性能をヒータ加熱によるA5052同士の接合から評価した結果について報告する。

## 2. 実験材料と実験方法

### 2.1 実験材料

実験材料には接合材として，ポリアミド系樹脂PA66 (100 mm x 20 mm, t1, t3)とA5052 (100 mm x 20 mm, t2)を使用した。接合材料に供するA5052には，表面未処理の市販材料と陽極酸化処理の材料を用いた。陽極酸化処理を希硫酸溶液12%，1800 sから3600 sの時間範囲で行った。

本研究では樹脂とアルミニウム合金の接合にインサート材料を用いる接合方法を開発している。そこで，それら

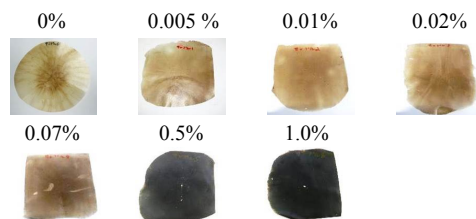


図1 試作したインサートシートの外観

の接合用のインサートシートを試作した。主に接合界面での光吸収の調整ができることと接合時や接合後に発生する応力を緩和する機能を備えていることを目標とした。よってインサートシートについて，主成分としてPA66に熱可塑性エラストマーシートを15%，PA6を10%混合して製作した。またカーボンブラックを0から1%の範囲で7種類変化させて試作し，その外観を図1に示す。インサートシートは，カーボンブラックの濃度が増えるほど，黒い外観となった。また7種類ともそれらの厚みは0.1 mmである。以後，インサートシートをCBシートと称す。

### 2.2 接合方法

図2に半導体レーザーを用いる接合方法について示す。材料をA: PA66, B: CBシート, C: A5052の順に重ねて，それらの中心線に沿ってレーザーを材料A側から走査し照射した。レーザーで接合加工中は，接合試験片をガラス板で固定し，土台に設けた空気圧シリンダを用いて加圧した。表1にレーザー照射条件を示す。

CBシートの接合性能を評価する場合，接合熱量不足の影響を除くためにヒータによる加熱でA5052同士の接合を行った。まず設定温度を一定にしたヒータ上に材料を上からA, B, Cの順で重ねた。次に19.6 Nの重りで加圧し，その状態で300 s加圧し接合した。その後，重りを取り除き30 s空冷し室温に放置した。接合時の温度をCBシート部に熱電対を挿入し，285~300 °Cの温度条件のときに接合した。

### 2.3 異種接合後の評価

接合部材の評価は，引張せん断試験を行い，そのときの破断荷重Nを測定した。破断後のA5052の接合部表面を光学顕微鏡で観察した。また陽極酸化後のA5052の表面形状の確認は，ショットキー電界放出形走査電子顕微鏡(日本電子社 JSM-7200F)で観察した。

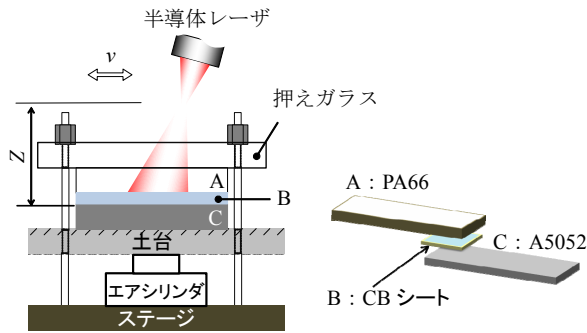


図2 レーザ接合方法

表1 レーザ照射条件

レーザー出力	800, 1200, 2000	W
ビーム移動速度	60, 80	mm/s
レーザー照射面積	0.81-1.40	cm <sup>2</sup>

### 3. 実験結果および考察

#### 3.1 インサートシートの熱特性と分光特性

CBシート（インサートシート）の熱的特性は接合工程にとって重要である。図3に試作したCBシートの熱重量測定（TG）と示差熱分析（DTA）の測定結果を示す。測定はセイコーインスツルメンツ（株）TG/DTA6300を用いて、昇温速度10℃/min；雰囲気ガス空気；雰囲気ガス流量100 mL/minの条件で行った。加熱による温度上昇に伴い262℃に吸熱のピークが示されており、CBシートの熔融開始状態が考えられる。さらに昇温が進み400℃以上では熱分解が加速され、その重量は著しく減少した。したがって、最大400℃以下での接合が適切であることがわかった。

本研究の異種接合方法は、レーザーで加熱するため、試作したCBシートの分光特性は接合品質に大きな影響を与える。試作したCBシートの透過率の測定結果を図4に示す。カーボンブラックの濃度が増すとともに透過率は減少した。レーザー接合に用いる半導体レーザーの波長は808nmであり、その波長における透過率は炭素濃度0%のCBシートでは64.6%であり、0.07%のときに51.9%であった。さらにカーボンブラックの濃度が0.5%以上から透過率が著しく低下し、1.0%のときの透過率は2.0%ほどまでに低下した。

#### 3.2 カーボンブラック濃度およびエネルギー密度の接合性への影響

PA66とPA66の接合にCBシートを用いたレーザー接合について調べた。基本的な接合条件はエネルギー密度 $E_d$ を基準としてレーザー出力とビーム移動速度を変化させて接合可能な領域を調べた。その適正な条件は、接合できている状態と引張せん断試験後に界面破壊のないことから判断し、エネルギー密度が240 J/cm<sup>2</sup>以上の範囲であることがわかった。図5にPA66の板厚が1mmと3mmでの接

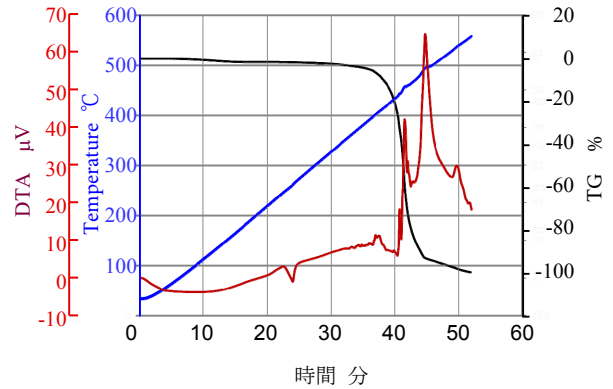


図3 試作したCBシートの熱的特性

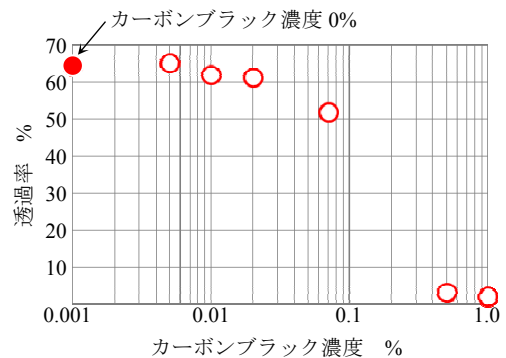


図4 試作したCBシートの光学的特性

合結果を示す。照射条件はレーザー出力800W、ビーム移動速度80mm/s ( $E_d: 240 \text{ J/cm}^2$ )で行った。縦軸に引張せん断試験の破断荷重 $N$ を示した。その値は、CBシートのカーボンブラック濃度が増すと増加し、最大値を示した後、減少する変化を示した。また板厚は厚い方が破断荷重は高く、厚み1mmと3mmでのその最大値は、それぞれ895N、1,484Nであった。それらの接合強度を用いたCBシートの面積150mm<sup>2</sup>から求めると、それぞれ6.0MPa（厚み1mm）、9.9MPa（厚み3mm）であった。厚み1mmではカーボンブラックの含有率が0.01%と0.02%、厚み3mmでは0.01%から0.07%の場合、全ての接合試験片は引張りせん断試験においてPA66自身が破断した。カーボンブラックの濃度が高い0.5%と1.0%のCBシートを用いたレーザー接合では、透過率と反射率の差で求めた吸収率が92.3%と93.5%と高い値であった。それらを用いた接合試験片では、融合し接合されたような状態であったが、継手の破断荷重は700N（4.7MPa）と低かった。これはレーザーの吸収率が高かったため、接合界面の樹脂またはCBシートに熱損傷や熱分解が生じた結果、継手の強度を低下させたことが考えられる。特に板厚が1mmではその影響が大きかった。以上のように、PA66の板厚とCBシートのカーボンブラック濃度の組合せによって、界面での加熱状態を調節できることがわかった。特にカーボンブラックの添加量は、0.1%以下の範囲で有

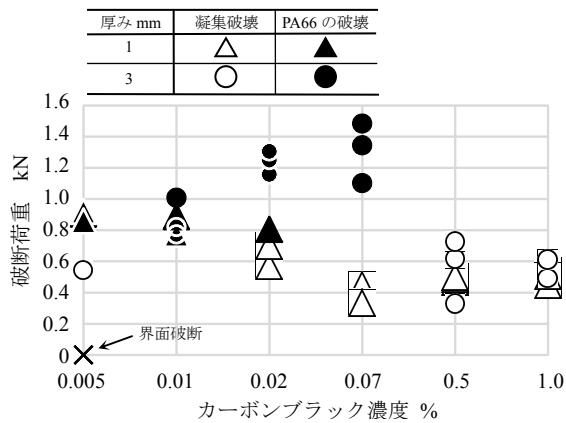
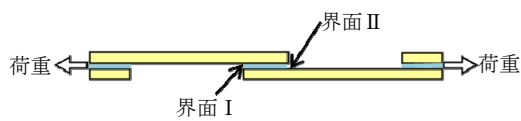
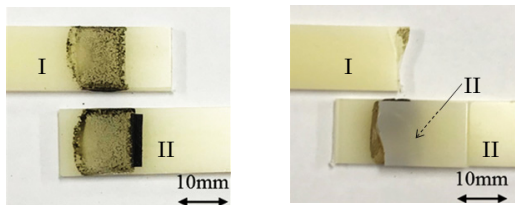


図5 CBシートによるレーザー吸収の効果



(a) 引張せん断試験片と接合界面の位置



(b) 凝集破壊

(c) 母材破壊

図6 接合試験片の破断の状態

効に機能した。破断荷重が高かった PA66 板厚 3 mm について、レーザー出力を 800W, 1200W, 2000W の条件で照射しており、出力が高いほど継手の破壊状態は PA66 母材で破断することが多かった。レーザー出力 2000 W, ビーム移動速度 80 mm/s ( $E_d: 700 \text{ J/cm}^2$ ), カーボンブラック含有量 0.07% のとき、破断荷重は 1, 648N の最大値を示した。この傾向は他のレーザー出力でも同様であった。レーザー出力 800W ( $E_d: 240 \text{ J/cm}^2$ ) でカーボンブラック濃度 0.005% の CB シートでは接合部の熱量不足のため接合力が低い界面破壊であった。カーボンブラック濃度が 0.5% 以上の領域では、凝集破壊が多く、破断荷重は 1, 000 N 程度であった。カーボンブラック濃度が高いと、CB シートの蒸発や接合界面の熱損傷などで材料の劣化と実質的な接合面積が低下したことが原因と考えられる。このようにエネルギー密度が  $240 \text{ J/cm}^2 \sim 933 \text{ J/cm}^2$  の範囲での引張りせん断試験の結果から、エネルギー密度が  $700 \text{ J/cm}^2$  (レーザー出力 2000 W, ビーム移動速度 80 mm/s) のときに最大値を示す傾向が得られた。さらにエネルギー密度が高い  $933 \text{ J/cm}^2$  (レーザー出力 2000 W, ビーム移動速度 60 mm/s) のとき、接合界面が過剰な入熱状態となり、破断荷重が低下した。以上から、適正な接合範囲はエネルギー密度 700

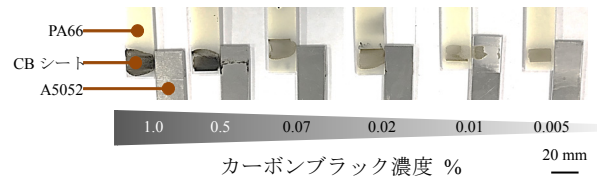


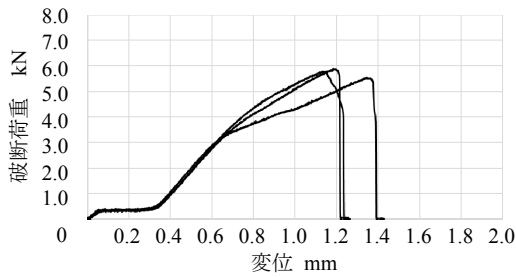
図7 表面未処理A5052のレーザー異種接合状況

$\text{J/cm}^2$  付近であることがわかった。

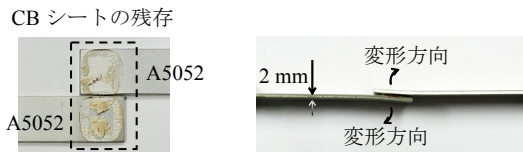
図6に引張りせん断試験の破壊の状態と位置を示す。図6(a)に破断前の接合界面の位置を示す。図6(b)と(c)に凝集破壊と被接合材の破壊の様子をそれぞれ示す。図6(b)のような凝集破壊はカーボンブラック濃度 0.07% 以上で多く確認された。両方の被接合体の接合部に CB シートが残存した状態であるが、接合力が低かったのは CB シートや PA66 の熱損傷による材料的な劣化が原因と考えられる。一方、図6(c)のような PA66 母材の破壊はカーボンブラック濃度 0.07% 以下で認められた。この接合状態は、界面が適正な接合温度範囲であったことが推察される。継手の破壊は、CB シートの周辺部から進行したことが観察された。

CBシートを用いたPA66とA5052のレーザー接合性を調べた。図7に示すように6種類のシート全てで接合は困難であった。原因として、A5052の放熱性が高いこととCBシートとA5052との材料的な結合の難しさが考えられる。しかし、PA66とPA66あるいはA5052をヒータで加熱する接合の場合、PA66に熱変形や熱損傷が発生したため、接合は困難であった。このことから、レーザー加熱では内部発熱の効果とCBシートの効果を利用できるため、異種材料接合における熱源の優位性が期待できる。

CBシート自体の接合性能を評価する上で接合熱量不足や熱源形状の影響を除く目的で、ヒータで加熱するA5052同士の接合を行った。まずA5052の表面未処理の材料同士では、CBシートとの接合が困難であった。次にA5052を希硫酸で陽極酸化処理した材料では、異種接合が可能であった。その接合部材を製作後、引張せん断試験を行った結果を図8(a)に示す。変位が増すとともに接合部材の担う荷重も増加した。変位 0.7 mm 以上では、A5052の伸びと接合部付近の回転方向の変形による傾きの違いが認められた。破断後の接合試験片は、試験荷重によって曲げ変形が残っており、塑性変形に至るほどの応力を担う結合部を得られたことがわかった。製作した接合試験片間の変位と荷重の変形履歴も再現性がよく、接合工程に起因するバラツキは抑えられていた。破断荷重の平均値 5.7 kN を CB シートの面積  $400 \text{ mm}^2$  ( $20 \text{ mm}$ ) から求めると、 $14.3 \text{ MPa}$  であった。この結果から試作した CB シートの接合力は、アルミニウム合金の 0.2% 耐力以上の接合力を有することが確認できた。図9にA5052に陽極酸化処理に加え封孔処理(沸騰水処理, 封孔剤使用,  $80 \text{ }^\circ\text{C}$ -900 s)を行ったA5052同士のヒータ接合試験片の引張せん断試験



(a) 引張せん断試験における変位と破断荷重



(b) 引張せん断試験後の破断面と継手の曲げ変形

図8 CBシートの接合性能

験結果を示す。試験荷重の増加とともに変位と接合部材の担う荷重が増加した。これらの変位と荷重の変化は陽極酸化のみの図8(a)と同様であった。陽極酸化のみと封孔処理も行った場合を比較すると、変位および破断荷重は、それぞれ32.8%と12.3%向上した。図10(a)に陽極酸化のみと図10(b)に陽極酸化と封孔処理を行った材料の走査電子顕微鏡像を示す。図10(a)に示すように陽極酸化処理のみの表面は、比較的滑らかな表層部が形成されており、直径が数百nmから1μm規模にわたる大小の凹凸構造が認められた。さらにそれらの表面は、数十nm程度の微細孔が多数形成された微細構造を有していた。一方、図10(b)は、図10(a)の表面形状を基盤とし、数十nm程度の微細突起状の凹凸形状が密に形成されていた。以上の観察から、陽極酸化や封孔処理の表面処理によって、表面に微細な起伏が形成されたことによる接合面積の増加とアンカ効果によって、接合力が向上したと考えられる。

#### 4. 結言

ポリアミド系樹脂PA66とアルミニウム合金A5052との接合用として、カーボンブラック含有の熱可塑性エラストマーを添加したインサートシートを試作し、それによる異種材料接合の可能性と性能について検討した。試作したインサートシートは、その上下の界面を含む内部領域における光吸収の調節と安定した接合加工が可能であった。0.1%以下のカーボンブラック含有量のとき、接合部材の接合力の向上効果が確認できた。接合後の引張せん断試験から、継手の破壊はインサートシートの周辺部を起点に生じたことがわかった。試作したインサートシートの接合能力は、A5052の0.2%耐力相当以上あることが確認できた。インサートシートを用いて接合するためには、A5052の陽極酸化処理が必要であることがわかった。

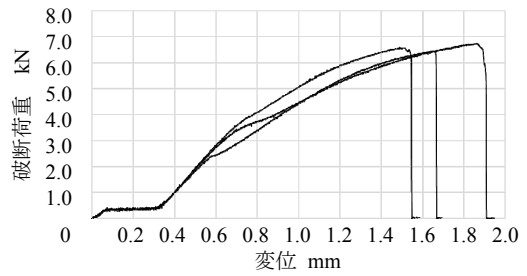
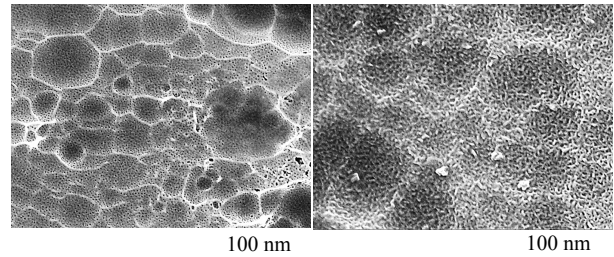


図9 陽極酸化+封孔処理材の引張せん断試験



(a) 陽極酸化処理の表面形状 (b) 陽極酸化+封孔処理の表面形状

図10 A5052の表面処理による表面形状

#### 謝辞

本研究は、公益財団法人天田財団の2018年度一般研究開発助成(AF-2018210-B2)を受けて実施されたものであり、厚く謝意を表します。また、本研究を遂行するにあたり、表面処理、表面分析、インサートシートの試作等で多大なご支援を頂いた広島工業大学の日野実教授、(株)サーテック永田の永田教人常務、富山県立大学の永田員也教授に厚く御礼申し上げます。

#### 参考文献

- 1) 佐藤千秋：表面技術，**67**，12 (2016)，644.
- 2) 中村秀生・寺田真樹：溶接学会誌，**72**，3 (2003)，189.
- 3) 長谷川達也・前田知宏・中原修一・高井雄一郎・中村隆：日本機械学会論文集(C編)，**67**，661 (2001-9)，2997.
- 4) 片山聖二・川人洋介・丹羽悠介・丹下章男・久保田修司：溶接学会論文集，**25**，2 (2007)，316.
- 5) J. Holtkamp, A. Roesner, A. Gillner, Int J Adv Manuf Technol, **47** (2010) 923-930.
- 6) 水戸岡豊・永田員也・日野実：特願 2006-177613.
- 7) 水戸岡豊・日野実・永田員也：レーザー加工学会誌，**14** (2007)，250-254.
- 8) 日野実・水戸岡豊・村上浩二・浦上和人・高田潤・金谷輝人：軽金属，**59**，5 (2009)，236.
- 9) M. Hino, R. Kuwano, N. Nagata, K. Nagata, T. Kanadani: Materials Science Forum, ISSN: 1662-9752, 941, 1815-1820.