

平成 21 年 6 月 10 日現在

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2007～2008

課題番号：19560097

研究課題名（和文）中間層の挿入による異種高分子材料の新しい接合技術の開発

研究課題名（英文）Proposal of Novel Welding Technology based on Interposed Sheet Inserting between Heterogeneous Polymers

研究代表者

きゅう 建輝 (QIU JIANHUI)

秋田県立大学・システム科学技術学部・教授

研究者番号：40244511

研究成果の概要：

本研究では異種高分子材料を直接接合するために、従来の接合方法と全く異なる中間層を挿入する新しい超音波接合方法を提案し、その新しいアイデアに基づいて、超音波接合装置を開発した。その装置を用いて様々な接合条件下で接合を行い、その有効性を確認した。また、異種高分子材料の接合を行い、接合体の界面構造、溶着強度に及ぼす接合条件の影響を検討し、高い接合強度が得られる最適な接合条件を明らかにした。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	2,300,000	690,000	2,990,000
2008 年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,100,000	930,000	4,030,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・機械材料・材料力学

キーワード：高分子材料、中間層、超音波接合、界面構造、接合強度

1. 研究開始当初の背景

プラスチックの接合技術は幅広い分野に応用されており、重要な役割を果たしている。その実用技術は、主に接着接合、熱溶着接合および機械的接合に分けられる。熱溶着接合の分野においては、主に超音波溶着、レーザー溶着、摩擦接合、熱板溶着などを挙げられる。最近、半導体レーザーやCO₂レーザーに代表される赤外線を利用した透過型溶着技術も注目されている。近年、樹脂製品の高性能、多機能化、製造工程の簡略化、低コスト化を目的として2色成形、サンドイッチ成形などの成形加工方法も検討されている。

一方、異種材料の接合技術は高性能の材料の機能をより有効に発揮、或いは一つの部品を異なる環境(温度・負荷など)に使用する場合において不可欠な製品加工方法となっている。例えば、セラミックスと金属の接合技術は、自動車、宇宙関連分野に広く応用されている。一方、民用工業分野では高分子材料の使用量が急速に増加しており、使用環境により異種高分子材料の接合技術の重要性がますます注目されている。一般的に、異種材料の接合は両材料の物性(熱膨張係数・力学特性等)および内部構造の違い、さらに相溶性の問題により、その接合界面部の接合強度

が不十分で、それに残留応力も生じやすいため、接合部の破壊の原因となっている。また、これまでの接合技術は基本的に同類材料間の接合に限定されており、異種材料間の接合技術は、接着剤による接合方法以外はほとんどないようである。しかし、接着剤を用いた接合加工は、接合体の耐久性、耐熱性および毒性、環境ホルモンなどの問題が存在しているため、その代わりに新しい異種材料間の接合技術の開発が大変重要になっている。

2. 研究の目的

本研究では以上のような問題点を解決するために、両被接合体の間に中間層を挿入し、この中間層を共振体ホーンに固定して超音波振動を行うという従来の接合方法と全く異なるアイデアを提案した。この接合方法は同じ材質の被接合体はもちろん、異種材料間の接合にも特に有利である。つまり、中間層を傾斜組成材料にすれば、異種材料を接合するとともに中間層による接合部の熱残留応力を緩和させる役割も果たすことができるので、接合強度および接合体の耐久性の向上が期待できる。また、この接合方法はプラスチック同士、金属同士の接合にも応用することが可能である。

具体的には提案した新しいアイデアに基づいて、超音波接合装置を開発し、その装置の有効性を様々な接合条件下で確認する。また、異種材料の接合を行い、接合体の界面構造、溶着強度に及ぼす接合条件の影響を検討し、高い接合強度が得られる最適な接合条件を明らかにする。

3. 研究の方法

(1). 材料と試験片

被接合材料は主にポリカーボネート（PC、パンライト（R）、帝人化成製、L1225L）とアクリル樹脂（PMMA、三菱レイヨン、MD）を用いた。PCは延性的な材料であり、PMMAは脆性的な材料である。接合試験片は射出成形機（FANUC（株）製、ROBOSHOT S2000i100A）によりJIS1号ダンベル型引張試験片用金型に黄銅製の入れ子を挿入し、図1に示したJIS1号の半形（PCとPC接合用）およびJIS1号（1/2）の半形引張試験片（PCとPMMA接合用）を成形した。射出成形条件は、PCの場合、射出温度（ノズル温度）：300、射出速度：20mm/s、金型温度：80、冷却時間30secであり、PMMAの場合、射出温度（ノズル温度）：230、射出速度：20mm/s、金型温度：40、冷却時間30secである。

(2). 中間層シートの作製

中間層シートは乾燥されたPCペレットを用いて、ホットプレス（（株）井元製作所製、小型加熱プレス）により、長さ100mm×幅100mm×厚さ1.0mmの正方形板材を作製し、

さらに長さ20mm×幅15mmの長方形板材に切出した。また、切出した板材はシートホルダに取り付けるために、端部の中央位置に直径φ3mmの孔を開けて、ネジで固定した。

傾斜組成の中間層シートについては同様な方法で、まず、厚さ0.5mmのPC、PC/PMMA(50/50)およびPMMAのシートを成形し、その後、この三種類のシートをPC、PC/PMMA、PMMAの順に重ね、再度小型加熱プレスを用いて、同じ成形条件で厚さ1.0mmの三層構造の中間層シートを作製した。

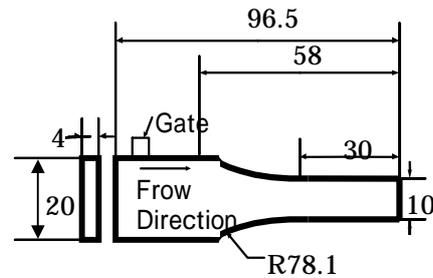


Fig.1 Half of the workpiece geometry

(3). 超音波接合

図2のように射出成形した両被接合試験片はそれぞれスライドガイドに取り付けたホルダに固定した後、中間層シートをシートホルダにネジで取り付け、両被接合試験片の間に挿入し、ひもの先端に取り付けたおもりで圧力を加える。最後に設定した接合条件により超音波振動を発生させ、接合を行う。接合条件としては周波数：28kHz、振幅：30μmで固定し、発振時間：1.00～4.00s、圧力：0.1～0.4MPaに設定した。また、接合表面の粗さの調整は垂直方向に設置したスライドガイドに取り付けた研磨装置でエメリーペーパーを用いて、その接合予定端面を研磨した。

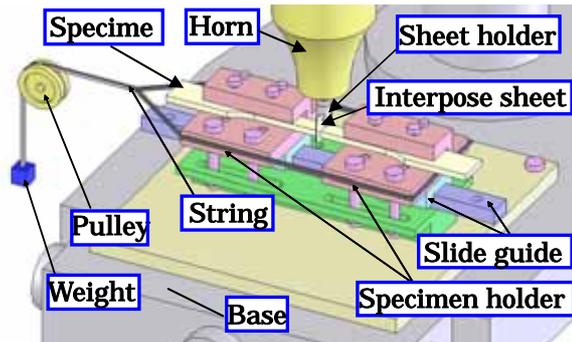


Fig.2 Structural schematic drawing of joint apparatus

(4). 接合強度の測定と破断面の観察

接合体の引張強度は、引張速度（クロスヘッド速度）5mm/min、室温 23±2（℃）の条件下で万能材料試験機（INSTRON製、Series3360）を用いて評価した。得られた荷重（N）、変位（mm）により、公称応力（MPa）- ひずみ（%）関係を計算し、さらに最大荷重から破壊強度を求めた。

引張試験で破断した破断面の様子を観察

するため、破断面の表面に Au スパッタコーティングしてから、走査型電子顕微鏡 S-4300 型（日立製作所（株）製）を用いて行った。また、接合面積も破断面の写真を用いて、画像処理により算出した。

4. 研究成果

(1). 接合装置の開発

接合原理と特徴

図 3 には提案した新しい超音波接合方法の接合原理図を示す。この接合方法とは両被溶着部材の間に薄い中間層シートを挿入し、この中間層シートを超音波共振体ホーンに固定して振動させることによって被接合試験片間の界面部に摩擦熱が生じ、数秒間で昇温溶融により両被溶着部材を溶着させることである。この接合方法の特徴は、(1). 接合される試験のサイズおよび形状に応じて超音波工具を変える必要がない。これは、多品種少量生産に適した超音波接合装置が開発されることを意味する。(2). 中間層を傾斜組成材料にすれば、従来の接合技術で困難な異種材料間の接合もできる。それに、熱膨張係数の異なる異種材料に対しても、傾斜組成の中間層が接合部の熱残留応力を緩和させる役割も果たすことができるので、接合強度および接合体の耐久性の向上が期待できる。(3). 同じ材質の被接合体はもちろん、異なる材質の金属同士間の接合も可能である。

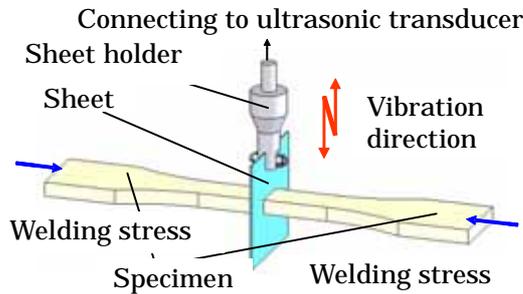


Fig.3 Welding principle schematic drawing

接合装置

提案した新しい接合方法で高分子材料を接合するために、接合装置を設計・製作した。図 2 には実験装置の全体構成の模式図を示す。この装置は、主に市販のプラスチック溶着用超音波振動子と発振器からなる超音波プラスチックウエルダ（超音波工業製、UPW0428G3X）と被接合試験片の固定、加圧機構からなっている。超音波プラスチックウエルダ装置は、出力が 400W、周波数が 28kHz、振動振幅が 32 ~ 48 μ m の範囲において 5 段階で切替可能であり、発振時間が 1.00 ~ 8.00s の範囲で調整できる。また、本研究の接合方法を実施できるように、図 1 に示す特殊なシートホルダを作製し、超音波プラスチックウエルダの超音波ホーンの先端にネジ留めを取り付けている。

被接合試験片を固定、加圧する機構は図 2 に示したように試験片固定ホルダ、スライドガイド、ひも、滑車、おもりにより構成されている。試験片ホルダはスライドガイド上に設置しており、左右に移動可能となっており試験片を設置した後に位置の調節が出来るようになっている。また、滑車に通したひもにおもりを乗せることで、接合部に任意の荷重をかけ、接合に必要な力を得ようになっている。

(2). 突き出し長さの影響

前述したように被接合試験片はホルダに固定して接合を行っているため、この試験片は片持ちはりのように、固定端から接合面までの長さ（突き出し長さ）が接合強度などに影響を与えると予想される。図 4 には PC/PC における接合面積と強度に及ぼす突き出し長さの影響を示す。ただし、接合圧力は 0.2MPa である。基本的には突き出し長さが長くなるほど、接合面積と接合強度がやや減少する傾向が認められる。これは接合界面に生じる摩擦力による試験片先端にたわみを生じさせるため、中間層シートと被接合試験片の間における摩擦移動距離（発熱効果）が小さくなると考えられる。一方、次の片持ちはりにおけるたわみ式(1)により、自由端(接合部)のたわみ(w)は突き出し長さ(L)に強く影響されることがわかる。

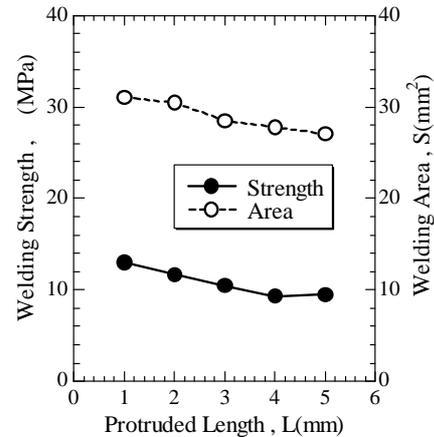


Fig.4 Effect of protruded length on welding area and strength

$$w_{\max} = \frac{FL^3}{3EI} \quad (1)$$

ここで、F は摩擦力、L は突き出し長さ、E は縦弾性係数、I は断面二次モーメントである。突き出し長さが 10mm から 50mm に変化すると、式(1)により、たわみが理論的に 125 倍大きくなる。しかし、実験結果により接合面積と接合強度では約 16% しか減少しなかった。つまり、超音波接合する場合は振動周波数が非常に高いため、試験片のたわみによる振動が中間層シートの振動に追従できず、中間層シートと被接合試験片の間における摩

擦移動距離はそれ程減少されなかったと考えられる。また、超音波振動により接合界面部が瞬間的に融け、摩擦力も急激に低下するため、たわみも小さくなると思われる。以上により、突き出し長さは比較的短い方が摩擦による発熱に有利であるが、それ程大きな影響がないと思われる。以下の接合試験は突き出し長さを 10mm に固定して行っている。

(3). 表面粗さの影響

接合面の表面粗さの影響を調べるために、被接合試験片の予定接合表面を粒度の異なるエメリーパー(#80~#1500)で研磨してから接合を行った。図5にはPC/PCにおける接合面の表面粗さと接合面積、接合強さの関係を示す。表面粗さ $Ra=0.2\mu\text{m}$ 以内は少しバラツキがあるが、これ以上になると、表面粗さの増加により、接合面積と接合強度がやや低下する傾向を示している。ただし、それ程大きな変化が認められなかった。一般的に、表面粗さが高いほど摩擦係数も大きいいため、界面部の発熱がより激しくなると考えられる。しかし、超音波接合する場合は、高分子材料の融点が低いため、接合表面が急速に発熱・昇温・軟化・溶融され、接合表面の初期状態が瞬間的に消えるので、接合に与える影響が少なくなると考えられる。ただし、表面粗さがあまり大きい場合は気泡などの欠陥が界面部に残留される可能性があるため、注意する必要がある。以下の接合試験は表面粗さ $Ra=0.2\mu\text{m}$ に設定した。

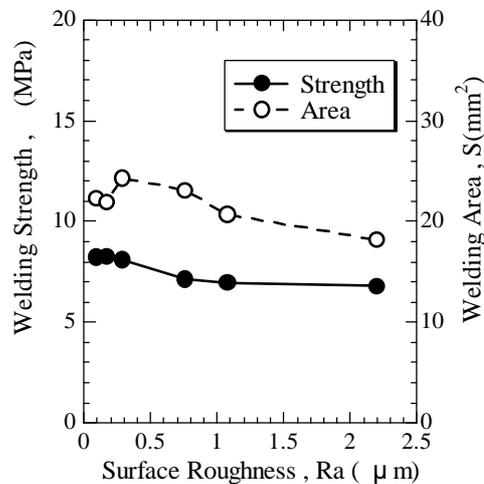


Fig.5 Effect of surface roughness on welding area and strength

(4). 振動時間の影響

図6にはPC/PCにおける接合時間と接合強度の関係(荷重約 0.12MPa)を示す。基本的に接合圧力が小さい場合は、接合時間の増加に伴って、界面部の摩擦による発熱がより激しくなるため、接合面積が増加し、接合強度が増えると考えられる。しかし、接合時間があまり長くなると、中間層シートに亀裂が生じやすくなることがあるので、本研究の接合方

法では低い接合圧力下で長時間の超音波振動という接合条件ではあまりよくないと思われる。

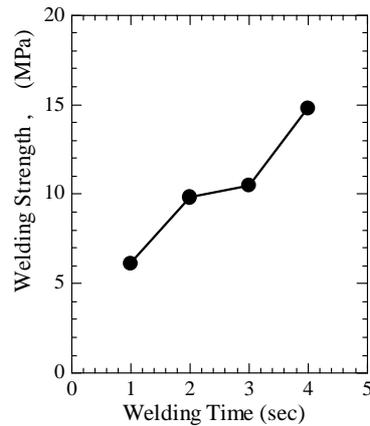


Fig.6 Relationship of welding time and strength between PC and PC

一方、図7にはPC/PMMAにおける超音波振動時間と接合体の接合強度の関係を示す。図より、接合圧力が低い場合は接合強度が全体的に低いが、いずれの接合圧力下においても、接合強度に及ぼす接合時間影響がほとんど同じ傾向を示している。つまり、接合時間の増加に伴って、接合強度が向上し、3secの時に最大値となるが、それ以上に接合時間が長くなると、接合強度が逆に低下する。ただし、接合強度は接合時間が1~4secの範囲において、その変動幅が約8MPa前後(P=0.3MPaの場合: 24~32MPaで、P=0.4MPaの場合: 35~43MPaである)の比較的狭い範囲であるので、接合圧力が比較的高い場合(P=0.3MPa以上)は接合時間の影響がそれ程大きくないことが言えよう。

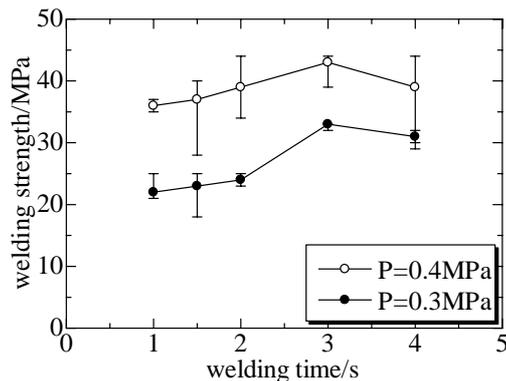


Fig.7 Relationship of welding time and strength between PC and PMMA

(5). 接合圧力の影響

図8にはPC/PCにおける接合強度と接合面積に及ぼす接合圧力の影響(接合時間 2secの場合)を示す。接合圧力の増加に伴って、接合強度と接合面積がほぼ同様な変化傾向を示している。接合圧力が比較的小さい場合は、圧力の増加に伴って接合強度と面積が向上

するが、接合圧力があまり大きくなると、接合強度と面積が逆に低下する傾向が現れている。接合圧力が約 0.25MPa にとき、最大接合強度が得られている。図 9 には接合体の破

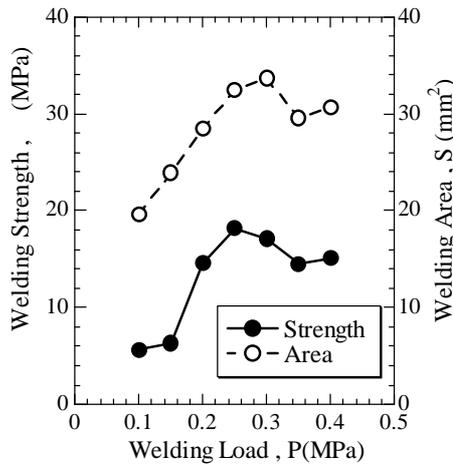


Fig.8 Effect of welding stress on welding strength and areas between PC and PC

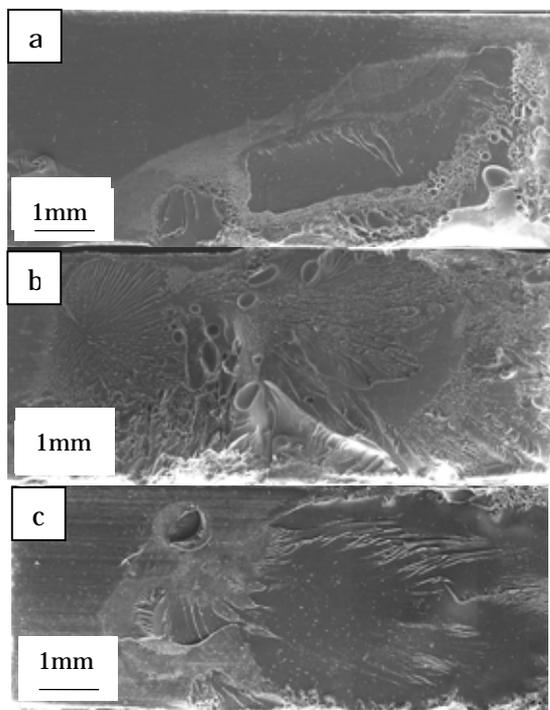


Fig.9 Section photos of interfaces of welded specimens

断面の写真を示す。図より、接合圧力が低い場合(図 9(a))は、摩擦力による発熱量が少ないため、未接合面がかなり残ってしまい、接合強度が低い。図 9(b)により、接合圧力の増加によって接合面の摩擦力も大きくなるので、界面部の発熱がより激しくなり、溶着面積が増え、強度も向上することがわかる。しかし、図 9(c)に示したように接合圧力があまり大きくなると、接合面に生じる摩擦力もかなり上昇するため、前述した式(1)により、接合試験片のたわみ量も増加し、中間層シート

と両試料の表面の摩擦距離が逆に小さくなる可能性がある。それで、界面部の発熱が逆に少なく、接合面積が減少することが考えられる。

一方、図 10 には PC/PMMA における接合圧力と接合強度の関係を示す。接合時間 $t=2.0\text{sec}$ 、接合圧力 $P=0.1\text{MPa}$ の場合を除けば、いずれの接合時間においても、接合圧力の増加に伴って、接合圧力がほぼ直線的に向上することがわかる。例えば、接合時間 $t=3.0\text{sec}$ の場合は、接合圧力 $P=0.1\text{MPa}$ の時、接合強度 $B=15\text{MPa}$ に対し、接合圧力 $P=0.4\text{MPa}$ になると、接合強度 $B=43\text{MPa}$ に達しており、約 2.9 倍、187% 向上した。前述した接合強度に及ぼす接合時間の影響については接合強度の変動範囲が狭い(約 8MPa)が、接合圧力の影響では接合強度の変動範囲が約 28MPa にも達しており、それに、接合圧力の増加につれてほぼ単調的に向上するという明確な増加傾向を示している。つまり、接合強度に及ぼす接合圧力の影響が接合時間の影響より遥かに大きいことが明らかである。

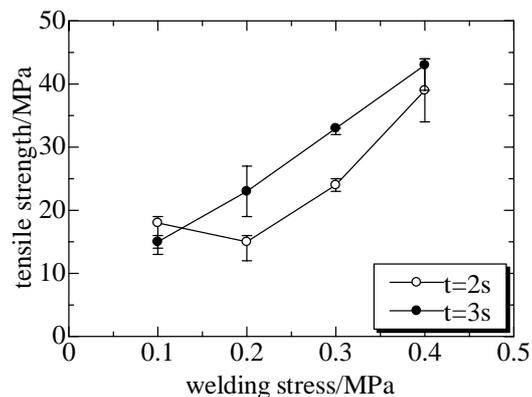


Fig.10 Effect of welding stress on welding strength and areas between PC and PMMA

しかし、本研究の接合条件下では、 $P=0.4\text{MPa}$ 以上の接合圧力を加えると、摩擦力が大きくなり、発振機に負荷をかけすぎで、超音波プラスチックウェルダにエラーがよく発生し、接合が出来なくなることがわかった。また、前述した PC 同士接合においては、最適な接合圧力($P=0.25\text{MPa}$)が存在しているが、今度の異種材料の接合ではこの現象が現れなかった。この理由としては、恐らく PMMA/PC の傾斜組成の中間層シートは単純の延性材料 PC より剛性が強いので、超音波振動による粘弾性変形が少なく、比較的の高い振動振幅を維持することができると考えられる。したがって、この接合方法は接合条件以外に中間層シートの力学特性も大変重要である。異種材料接合の場合はより高い接合強度が得られるために、必要に応じて傾斜組成の中間層シートに高強度の強化材を添加して、その力学特性を向上させることが今後の課題として検討する必要がある。

(6). 接合強度と界面構造の関係

本研究の接合条件下で、接合強度が低い場合は、図 9(a)に示したような未接合面の存在および図 11 (図 9(b)の拡大)に示したような接合界面部に生じた欠陥(気泡)が大きな要因であると考えられる。これらの界面欠陥の存在は引張負荷を受ける時、欠陥部に応力集中が生じやすいため、接合強度が大幅に低下してしまう。したがって、接合強度を向上させるには、全面的に接合させることと界面部の気泡の残留を抑えることが非常に重要であると思われる。それで、PC/PMMA 接合体の場合は表面処理により、両被接合面と中間層シートの表面の平行度および表面粗さなどを調整したところ、最大接合強度が 40MPa 以上の接合体が得られている。また、より高い溶着強度が得られるには健全な接合界面の形成および傾斜配分シートの強度向上が最も重要である。

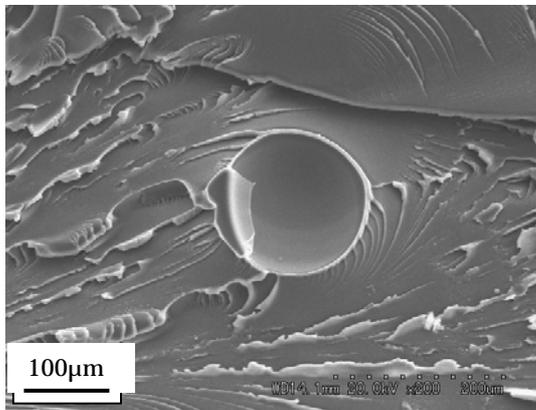


Fig.11 Air bubble at the welding interface which scale-up from Fig. 9(b)

以上の結果により、本研究で提案した新しい超音波接合方法および開発したその接合装置が高分子材料の接合に有効であることが認められる。

(7). 今後の予定

今後、本研究の結果を生かして、より安定した高い接合強度が得られる接合条件などを検討する。また、現在、溶着体の疲労強度に及ぼす環境温度の影響を検討しており、さらに、各種材料の接合体も作製できたので、これから引き続き、疲労特性を検討する予定である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 2 件)

Jianhui Qiu, Guohong ZHANG, Yongbo WU, Proposal of ultrasonic welding technique and weld performances applied to polymers, **Polymer Engineering and Science**, DOI 10.1002/pen 21414, 査読有

Y. Wu, T. Sato, J. Qiu and W. Lin, Proposal of a New Ultrasonic Welding Technique for Thermoplastic Polymer, 査読有

Advanced Materials Research, Accepted.

〔学会発表〕(計 6 件)

浅尾光洋、邱建輝、呉勇波、熊沢鉄雄、異種高分子材料の接合強度に及ぼす超音波接合条件の影響、日本機械学会、第 36 回東北学生員卒業研究発表講演会

(2009 年 3 月 6 日、羽後本荘市)、pp.89-90.

Y. Wu, T. Sato, J. Qiu and W. Lin, Proposal of a New Ultrasonic Welding Technique for Thermoplastic Polymer.

Abstract book of 11th Int. Conf. on Advances in Materials Processing Technology, pp.162

Bahrain, Nov. 2-5, (2008)

Jianhui Qiu, Guohong Zhang, Yongbo Wu, Yubai Pan, Tetsuo Kumazawa, Development of a New Ultrasonic Welding Technique for Polymer Materials, Proceedings of the 8th China-Japan Joint Conference on Composites (CJJCC-8). pp.413-416.

Sapporo, Japan, October 27-29, (2008)

邱建輝、呉勇波、工藤素、熊沢鉄雄、超音波を利用した中間層の挿入による接合技術の開発、秋田県立大学システム科学技術学部平成 20 年度第 9 回研究発表会

(2008 年 10 月 26 日、羽後本荘市)、pp.5.

松岡邦宜、呉勇波、邱建輝、野村光由、超音波による高分子材料の新しい接合方法に関する研究、第 15 回プラスチック成形加工学会秋季大会、成形加工シンポジウム'07、(2007 年 11 月 21 日～22 日、山口)、講演論文集、pp.125-126.

Qiu Jian-hui, The Polymer Material Joining Technology and the Relationship between Interfacial Structure and Welding Strength, The 4th Overseas and Domestic Youth Forum on Materials Science, pp.357.

Chongqing, China, October 12-16, (2007).

〔産業財産権〕

出願状況 (計 1 件)

名称：中間挿入層を有する超音波溶着方法

発明者：邱建輝

権利者：邱建輝

種類：特許

番号：特許出願2007-156866

出願年月日：2007年5月16日

国内外の別：国内

6. 研究組織

(1)研究代表者

きゅう 建輝 (QIU JIANHUI)

秋田県立大学・システム科学技術学部・教授
研究者番号：40244511