

平成 30 年 6 月 13 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2017

課題番号：16K18247

研究課題名(和文) 界面構造制御による金属と炭素繊維強化樹脂の抵抗加熱接合特性改善と接合機構の解明

研究課題名(英文) Dissimilar materials joining of metal to carbon fiber reinforced plastics by resistance spot welding

研究代表者

永塚 公彬 (Nagatsuka, Kimiaki)

大阪大学・接合科学研究所・特任助教

研究者番号：70720902

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：シリーズ抵抗スポット溶接(RSW)を用いて、金属と炭素繊維強化樹脂(CFRP)の異材接合を行った。電極直下は、通電により急激に加熱されてCFRPのマトリックス樹脂の融点を上回り、通電が終了すると数秒で融点を下回って継手が形成された。これらの接合強度はマトリックス樹脂中の極性官能基や金属への表面処理によって大きな影響を受けることを明らかにした。更に、同軸電極を用いるコアキシャルシリーズRSWを考案し、アルミニウム合金とCFRPの異材接合を達成し最大でせん断強度20MPa以上でCFRPが母材破断を呈する強固な継手の形成を達成した。

研究成果の概要(英文)：Dissimilar materials joining of metal to carbon fiber reinforced plastic (CFRP), which consisted of PA6, modified-PP) or PPS as matrix polymer with short carbon fiber, was performed using series-RSW. The metal around the electrode was heated by electrical resistance heating, and the thermoplastic near the interface was slightly melted by the heat conduction. The direct joint formations of metal to CFRP (PA6) and CFRP (PP) were accomplished, and to CFRP (PPS) was not. With increasing the welding current and welding time, the tensile shear fracture load of the series-RSW joint increased. The silane coupling treatment for metal surface was highly effective to increase the joining strength. The maximum tensile shear strength of about 20 MPa was obtained for metal/CFRP (PA6) joint. Further, we developed a novel RSW method as the coaxial series-RSW by using the coaxial electrodes for accomplishing the direct joint formation between aluminum alloy and CFRPs.

研究分野：異種材料接合

キーワード：抵抗スポット溶接 表面改質 樹脂 炭素繊維強化樹脂 金属 異材接合 異種材料接合

1. 研究開始当初の背景

近年、輸送機器の軽量化による省エネルギー化および CO₂ 排出量抑制への要求が高まり、従来使用される金属材料と軽量で比強度に優れた CFRP(Carbon fiber reinforced plastic)を、異材接合し適材適所に使う構造のマルチマテリアル化が重要となっている。金属と CFRP の異材接合法としては、接着接合や機械的締結が一般的である。しかし、有機溶剤による環境への影響、接合に長時間を要すること、穴あけ加工などの問題がある。新しい直接接合法として、レーザや超音波溶着法等の CFRP の一部を熱源により加熱・溶融させて接合する方法が挙げられるが、高い装置コスト、密着性の不良、CFRP の材質の劣化、継手形状の制限等の問題がある。装置が安価で、密着性にも期待が出来る接合法としては、電極による加熱と接合界面への加圧が同時に可能な抵抗スポット溶接(RSW: Resistance spot welding)法が挙げられる。RSW は輸送用機器の金属薄板の接合法として最も多用される接合法である。金属同士の RSW の場合は、上板、下板が共に導電性材料であるため、上板と下板に対しそれぞれ電極を配置し、一方の電極から溶接箇所を通じて他方の電極に溶接電流を流す方式が一般的である。しかし、樹脂・CFRP は基本的に非導電材料であるため、金属と樹脂・CFRP の両側に電極を配置して接合を行うのは困難である。

2. 研究の目的

こうした背景から、金属と樹脂・CFRP の重ね接合法として、導電性を有する金属側だけに電極を配置するシリーズ抵抗スポット溶接(シリーズ RSW)法に着目した。図 1 にシリーズ RSW の模式図を示す。この方法では、金属側だけに電流を流し、抵抗発熱により電極近傍の金属を局部的に加熱し、熱伝導により樹脂・CFRP を溶融・凝固させて接合を行うことが可能であると考えられる。シリーズ RSW を応用した金属/樹脂・CFRP 接合法のメリットとしては、電極による加熱と同時に加圧するため強固な密着性が期待されることに加え、短時間接合が可能であるため樹脂・CFRP の劣化が少なく、生産性にも優れ、装置およびランニングコストが低く、ロボット化および自動化が容易で、既存の溶接電源およびロボットの流用が可能であること等が挙げられる。このような金属/樹脂・CFRP の融着による異材接合は、材料表面同士の相互作用によって達成され、溶接条件に加えて、マトリックス樹脂の種類や金属に対する表面処理の接合特性に及ぼす影響は極めて大きいと考えられる。

本研究では、シリーズ RSW による金属/樹脂・CFRP 継手の形成を試み、これらの継手の接合特性に溶接電流および溶接時間等の接合条件、接合前の金属表面に対するシランカップリング処理、ならびに CFRP のマトリッ

クス樹脂の組成の及ぼす影響を検討し、その接合機構についても併せて検討を行った。さらに、シリーズ RSW では、二つの電極を金属板上の別々の箇所押し付ける必要があるため、自動化・ロボット化がより簡便な方法が自動車製造等では求められる。さらに、この方法では接合部の外部にも電流が流れるため、Al 合金等の導電率の高い金属への適用には大電源・大電流が必要である。そこで、二つの電極を同軸に配置し電極の簡便化を行ったコアキシャルシリーズ RSW を考案し、Al 合金と CFRP の異材接合を試みた。図 2 に提案したコアキシャルシリーズ RSW の模式図を示す。この方法は、棒状電極の周りに環状電極が配置された小型の電極を用い、二つの電極によって一つのスポット溶接部を形成することが可能である。さらに、通電が環状電極の内側で完結するため、シリーズ RSW に比べてエネルギーロス、熱損失が少ないため、Al 合金用の特別な電源を必要とせず、比較的低電流での Al 合金 / CFRP の接合が可能となると考えられる。

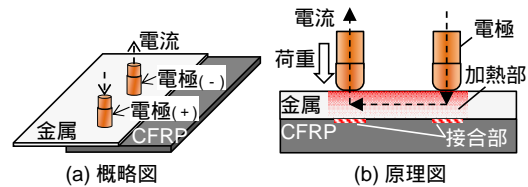


図1 シリーズRSWによる金属 / CFRP異材接合の(a)概略図および(b)原理図

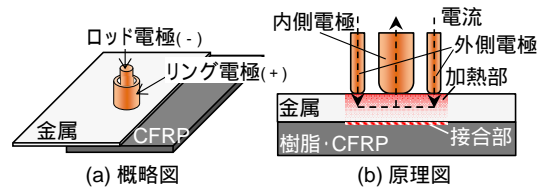


図2 コアキシャルシリーズRSWによる金属 / CFRP異材接合の(a)概略図および(b)原理図

3. 研究の方法

シリーズ RSW の供試材料には、金属としてオーステナイト系ステンレス鋼 SUS304 (Fe-18mass%Cr-8mass%Ni) を用いた。CFRP 板として、熱可塑性樹脂であるポリアミド 6(PA6: polyamide 6)、酸変性ポリプロピレン (PP: polypropylene) もしくはポリフェニレンサルファイド (PPS: polyphenylene sulfide) からなるマトリックスに、それぞれ短繊維の CF を添加したペレットを用いて射出成形にて試作した CFRP 板、ならびに比較のために強化繊維を含まない PA6 板を用いた。PA6 には極性官能基であるアミド基 (CONH) が存在し、PP および PPS には極性官能基が存在しない。使用した PP については、酸変性が施されており、構造中に極性官能基が付与されている。接合に先立ち、SUS304 については

受入材に加えて、エメリー紙#800にて流水中で湿式研磨を行った後にアセトンを用いて脱脂し、シランカップリング処理を施したシランカップリング処理材も CFRP (PA6)との接合に用いた。供試材料は、重ねしる 40mm として表面処理面が接合界面側となるように金属板を上板、PA6 および CFRP 板を下板として設置した。そして直流インバータ式シリーズ抵抗スポット溶接機を用いて、先端径 8mm の DR 型 (R40) クロム銅電極を金属側に押し付けて通電加熱を行った。電極加圧力は電極一つ当たり 1.5kN、電極間距離 55mm とした。CFRP (PA6) については、溶接電流を 4 から 8kA、および溶接時間 250 から 600ms として入熱量の影響を検討した。通電加熱後は、エアブローにより 30 秒間の冷却を行った。また、熱電対を SUS304 と CFRP の接合界面に挿入し、正極、負極の電極直下および電極同士の間際の 3 点の温度履歴を測定した。

コアキシャルシリーズ RSW には、供試材料として Al 合金 A5052 および PA6 をマトリクスとする CFRP の幅 15mm、長さ 75mm の短冊状試験片を用いた。

4. 研究成果

図 3 に電極直下および電極の間において、熱電対で実測した温度履歴を示す。電極直下は、通電により急激に加熱され、瞬間的には約 400 以上の高温となり CFRP のマトリクスである PA6 の融点 (225) を上回り、通電が終了すると数秒で融点を下回った。なお、電流の向きによる大きな差異は認められなかった。これに対し、電極間の中心は最高到達温度が低く、入熱量の低い接合条件では PA6 の融点を上回らなかった。溶接電流および溶接時間を増加させて入熱量を大きくした場合は、最高到達温度および PA6 の融点を上回っている時間が増加した。

図 4(a) および (b) に、溶接電流および溶接時間が SUS304 / CFRP (PA6) 継手の引張せん断破断荷重に及ぼす影響をそれぞれ示す。なお、図 4(a) には、SUS304 / CF 無添加の PA6 継手の結果について併せて示す。継手の引張せん断破断荷重は、溶接電流および溶接時間の増加に伴って増加した。継手の破断は、いずれの条件でも巨視的には接合界面において生じた。引張せん断試験後の CFRP 側破面に認められた溶融部は、溶接電流および溶接時間が増加するに伴って大きくなった。すなわち、溶接電流および溶接時間を増加させることによって接合面積が大きくなり、これらの継手の引張せん断破断荷重が増加したと考えられる。継手の引張せん断破断荷重は、溶接電流を増加させた場合は二次関数的に、溶接時間を増加させた場合は一次関数的に増加する傾向が認められた。これは抵抗加熱において溶接電流の二乗、溶接時間の一乗に比例して、ジュール発熱が増加することに起因すると考えられる。さらに入熱を増加させた場合は、溶融部が濡れ広がり接合部が

拡大を続ける限りは継手破断荷重は増加すると考えられる。しかし、単位面積辺りの接合強度は、マトリクス樹脂の熱分解や、端部での応力集中に起因して、入熱の増加に伴って減少すると考えられる。また、CF を添加していない PA6 を用いた場合は、CFRP の場合に比べて引張せん断破断荷重は小さかった。これらの継手はそれぞれ巨視的には界面破断であるが、PA6 および CFRP の一部でも母材破断を生じているため、それぞれの母材強度に起因した差であると考えられる。

接合前処理として、シランカップリング処理を施してからシリーズ RSW を実施した場合は、いずれの溶接条件においても引張せん断破断荷重は著しく増加し、せん断強度 20MPa 以上で CFRP 部で母材破断を呈する継手も認められた。その他の表面処理としては、化学的な結合力を付与する方法としてプラタイト処理、NMT、NAT 処理や、アンカー効果を付与する研磨布紙による粗面研磨、ショットブラスト、サンドブラスト等も接合強度の増加に有効であった。

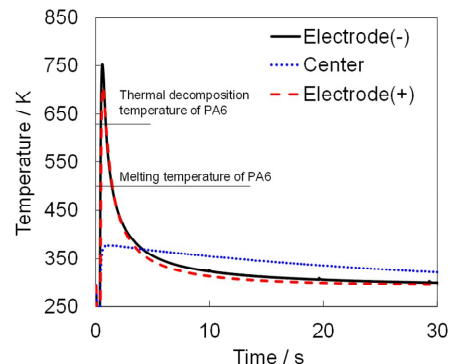


図3 シリーズRSW中の温度履歴

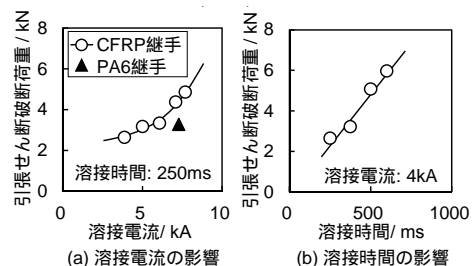


図4 SUS304 / CFRP (PA6) シリーズ RSW 継手の引張せん断破断荷重

次に、図 5 にシリーズ RSW により接合した SUS304 / CFRP 継手の引張せん断破断荷重に及ぼすマトリクス樹脂の影響を示す。CFRP のマトリクス樹脂として、PA6、酸変性 PP もしくは PPS を用いた。継手の引張せん断破断荷重は、PA6 マトリクスでは約 3.2kN、酸変性 PP マトリクスでは約 2.7kN であり、PPS マトリクスでは接合出来なかった。PPS については、入熱不足であることを懸念して、溶接時間を増加させたが、同様に接合を行うことが出来なかった。これらの継手の破断は、いずれも巨視的には SUS304 / CFRP 界面で生じ、CFRP 板の母材部での破断に起因する付着

物が SUS304 側破面から認められた。CFRP 側破面で認められる溶融部の大きさは、PPS < PA6 < 酸変性 PP の順に大きくなった。これらのマトリックス樹脂の融点は、PP が 436K、PA6 が 498K、PPS が 551K であるため、融点の高い材料をマトリックスとした場合、同じ加熱では CFRP の溶融部が小さくなったと考えられる。いずれの CFRP もシリーズ RSW によってマトリックス樹脂の溶融は確認されたものの、PPS をマトリックス樹脂とした場合のみ SUS304 との接合ができなかった。これは樹脂中の極性官能基の有無に起因すると考えられる。図 6 に SUS304 / CFRP(PA6) 界面の微細構造解析を行った結果を示す。SUS304 と CFRP(PA6) の接合は、マトリックス樹脂である PA6 が SUS304 と接合することで達成されており、CF が SUS304 と接合されている領域は認められなかった。マトリックス樹脂である PA6 と SUS304 の間には、厚さ 10nm 程度の Cr の酸化物や水酸化物と考えられる非晶質の SUS304 の酸化皮膜が認められた。これらの材料は、SUS304 の酸化皮膜と PA6 のアミド基で生じる水素結合等に起因して接合されたと考えられる。すなわち、金属 / CFRP の接合は、金属の表面に形成された酸化皮膜とマトリックス樹脂中の極性官能基の間で生じる水素結合等の相互作用に起因すると考えられる。そしてシランカップリング処理等の表面処理によって、界面に化学的な結合力を導入され、接合強度の増加が可能であったと考えられる。

表 1 にこれまでのシリーズ RSW の研究結果を基に作製した融着による金属と種々の CFRP の異材接合性を示す。CFRP のマトリックス樹脂の種類および CF の添加量(短繊維 / 連続長繊維)ごとに、金属との異材接合継手とした時の接合強度は異なる。FLJ やシリーズ RSW 等の融着では、金属からの熱伝導で樹脂を溶融・凝固させて接合を行うため、加熱による溶融を生じない熱硬化性樹脂をマトリックスとした場合は、接合が困難である。熱硬化性樹脂の融着を実施する場合は、接合界面にフィルム等のインサート材を事前に中間層として挿入してから接合することで、継手の形成が可能となる。熱可塑性樹脂をマトリックスとした場合では、極性を有する樹脂は強固な接合が可能であるが、無極性樹脂はそのままでは接合が困難であり、変性や表面処理(例えばコロナ放電処理)によって接合界面に極性官能基を存在させて接合することで強固な接合が可能となる。CF としては、ペレットを用いた射出成形等で使用する短繊維で添加量が 20 から 30wt% 程度以下と低い場合には、強固な継手の形成が可能である。連続的な長繊維等を用いて強化を行った CF 添加量の高い CFRP を接合する場合には、融着の際に接合界面に溶融した樹脂が不足することがあるため、インサート材の適用や予め樹脂層をラミネートする等の工夫を行うことで強固な継手の形成が可能となる。

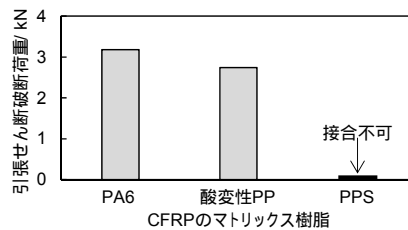


図5 SUS304 / 種々のCFRPのシリーズ RSW継手の引張せん断破断荷重

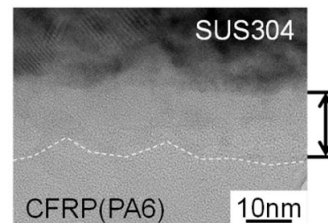


図6 SUS304 / CFRP(PA6) のシリーズRSW継手の接合界面

表1 融着による金属と種々のCFRPの異材接合性

マトリックス樹脂	炭素繊維添加量	接合強度
熱可塑性 極性樹脂 (PA6,ABS,PVC等)	低(短繊維)	~ *
	高(連続繊維)	~ *
熱可塑性 無極性樹脂 (PE, PP, PPS等)	低(短繊維)	x ~ **
	高(連続繊維)	x ~ *
熱硬化性 (エポキシ等)	高(連続繊維)	x ~ *

: CFRP母材破断する程、強固に接合可能。
 : 界面破断であるが強固に接合可能
 : 接合可能であるが容易に剥離
 x: 直接接合不可
 *: インサート材の適用で接合可能、**: 酸変性や表面処理で接合可能

次に、コアキシャルシリーズ RSW により接合した Al 合金(A5052) / CFRP(PA6) 継手の外觀を図 12 に示す。コアキシャルシリーズ RSW では、溶接電流 2-4kA 程度の比較的低電流での Al 合金 / CFRP の接合が可能であった。これは電極を同軸にした事によって電流密度の増加とエネルギー損失を低減することが達成されたことに起因すると考えられる。コアキシャルシリーズ RSW においても、金属板に表面処理を適用することで、接合強度は向上し、引張せん断破断強度が 20MPa 程度の強固な継手形成が可能であることが明らかになった。また、この方法では Al 合金に加えて、ステンレス鋼、炭素鋼、亜鉛メッキ鋼板、マグネシウム合金、チタン合金等への適用も可能であり、いずれも接合界面に形成された酸化皮膜と CFRP のマトリックス樹脂の相互作用によって接合が達成されていると考えられる。

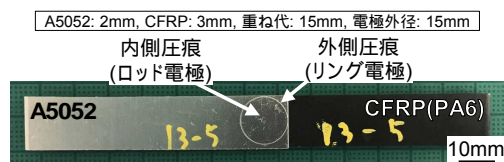


図12 コアキシャルシリーズRSWにより接合したAl合金(A5052) / CFRP(PA6+20wt%CF)の外観

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5件)

Sechi Yoshihisa, Nagatsuka Kimiaki, Fujimoto Takahiro, Tsukamoto Masahiro, Nakata Kazuhiro, Laser Brazing of a Hexagonal Boron Nitride Block to a Cemented Carbide Plate with Silver-Copper-Titanium Alloy Filler in Argon Atmosphere Including Different Oxygen Contents、溶接学会論文集、査読有り、35、2(2018)、89-93、DOI: 10.2207/qjjws.35.89s

永塚 公彬、FSW、抵抗スポット溶接を応用した金属/CFRP接合、溶接学会誌、査読無し、87、11(2018)、33-38、DOI: 10.2207/jjws.87.33

Kimiaki Nagatsuka, Bolyu Xiao, Lihui Wu, Kazuhiro Nakata, Shuhei Saeki, Yamato Kitamoto, Yoshiaki Iwamoto、Resistance spot welding of metal/carbon-fibre-reinforced plastics and applying silane coupling treatment、Science and Technology of Welding and Joining、査読有り、23、(2017)、181-186、DOI:10.1080/13621718.2017.1362159

三輪 剛士、北川 大喜、永塚 公彬、山岡 弘人、伊藤 和博、中田 一博、摩擦重ね接合によるステンレス鋼と炭素繊維強化熱可塑性樹脂との異材接合、溶接学会論文集、査読有り、35、1(2017)、29-35、DOI:10.2207/qjjws.35.29

永塚 公彬、肖 伯律、呉 利輝、中田 一博、佐伯 修平、北本 和、岩本 善昭、抵抗スポット溶接を応用した金属と炭素繊維強化樹脂の直接異材接合、溶接学会論文集、査読有り、34、4(2016)、267-273、DOI:10.2207/qjjws.34.267

[学会発表](計18件)

永塚 公彬、摩擦重ね接合による金属/樹脂・CFRPの異材接合、公益財団法人溶接接合工学会第28回セミナー、東京、(2017.10.25)

L. H. Wu, K. Nagatsuka, K. Nakata、Effect of laser-processing pretreatment on joining strength of friction lap joints of carbon-fiber reinforced plastic to metal、溶接学会平成29年度秋期全国大会、福岡、(2017.09.11-2017.09.13)

瀬知 啓久、永塚 公彬、佐藤 雄二、塚本 雅裕、中田 一博、In添加活性Agろう材を用いたレーザ局所加熱法による単結晶ダイヤモンドとろう材の界面反応層評価、溶接学会平成29年度秋期全国大会、福岡、(2017.09.11-2017.09.13)

永塚 公彬、呉 利輝、中田 一博、佐伯 修

平、北本 和、岩本 善昭、コアキシャルシリーズ抵抗スポット溶接によるアルミニウム合金と炭素繊維強化プラスチックの直接異材接合、溶接学会平成29年度秋期全国大会、福岡、(2017.09.11-2017.09.13)

松本 幸樹、永塚 公彬、伊藤 和博、塚本 雅裕、中田 一博、西本 明生、石川 武、レーザ溶接によるAl合金とMg合金の異材接合、溶接学会平成29年度秋期全国大会、福岡、(2017.09.11-2017.09.13)

松本 幸樹、西本 明生、永塚 公彬、石川 武、伊藤 和博、塚本 雅裕、中田 一博、レーザ溶接によるAl合金とMg合金の異材接合、日本金属学会2017年秋期(第161会)講演大会、北海道、(2017.09.06-2017.09.08)

永塚 公彬、呉 利輝、中田 一博、佐伯 修平、北本 和、岩本 善昭、抵抗スポット溶接法を応用した金属とCFRPの異材接合、日本金属学会2017年秋期(第161会)講演大会、北海道、(2017.09.06-2017.09.08)

永塚 公彬、摩擦重ね接合法等を用いたCFRPと金属の異種材料接合、軽金属学会異種材料接合・界面研究部会、東京、(2017.04.27)

永塚 公彬、摩擦攪拌接合法を中心とした異種材料の接合の最新の動向、とやま高機能素材研究会第6回マルチマテリアルWG、富山、(2016.12.22)

永塚 公彬、金属・樹脂・CFRP、セラミックスの異種材料接合、(一社)溶接学会溶接学会若手会員の会 溶接・接合若手研究会、神戸、(2016.11.10)

Tsuyoshi MIWA, Daiki KITAGAWA, Kimiaki NAGATSUKA, Kazuhiro ITO, Kazuhiro NAKATA, Hiroto YAMAOKA、Dissimilar Joint Formation of SUS304 / CFRTTP by Friction Lap Joining、The International Symposium on Visualization in Joining & Welding Science through Advanced Measurements and Simulation (Visual-JW2016)、Osaka, Japan、(2016.10.17-2016.10.18)

Lihui WU, Kimiaki NAGATSUKA, Kazuhiro NAKATA、Effect of Joining Speed on Mechanical Properties of Friction Lap Joints of Pure Copper to Polyamide-6 and Carbon-Fiber-Reinforced Thermoplastic、The International Symposium on Visualization in Joining & Welding Science through Advanced Measurements and Simulation (Visual-JW2016)、Osaka, Japan、(2016.10.17-2016.10.18)

Yoshihisa SECHI, Kimiaki NAGATSUKA, Takahiro FUJIMOTO, Masahiro TSUKAMOTO, Kazuhiro NAKATA、Effect of Residual Oxygen Content in Ar Atmosphere on

Dissimilar Laser Brazing of Hexagonal Boron Nitride and Cemented Carbide using Silver-Copper-Titanium Braze Alloys, The International Symposium on Visualization in Joining & Welding Science through Advanced Measurements and Simulation (Visual-JW2016)、Osaka, Japan、(2016.10.17-2016.10.18)

Kimiaki NAGATSUKA, Lihui WU, Kazuhiro NAKATA, Shuhei SAEKI, Yamato KITAMOTO, Yoshiaki IWAMOTO、Resistance Spot Welding of Metal / Thermoplastic and Carbon Fiber Reinforced Plastic, The International Symposium on Visualization in Joining & Welding Science through Advanced Measurements and Simulation (Visual-JW2016)、Osaka, Japan、(2016.10.17-2016.10.18)

永塚 公彬、呉 利輝、中田 一博、土谷 敦岐、山岡 弘人、ロボット摩擦重ね接合法による金属 / CFRP の直接異材接合、(一社)溶接学会 平成 28 年度秋季全国大会、群馬、(2016.09.14-2016.09.16)

瀬知 啓久、永塚 公彬、藤本 貴大、塚本 雅裕、中田 一博、六方晶窒化ホウ素と超硬合金の異材レーザーブレイジングにおける残留酸素濃度の影響、(一社)溶接学会 平成 28 年度秋季全国大会、群馬、(2016.09.14-2016.09.16)

永塚 公彬、呉 利輝、肖 伯律、中田 一博、佐伯 修平、北本 和、岩本 善昭、抵抗スポット溶接および摩擦重ね接合による金属と炭素繊維強化樹脂の異材接合、(一社)溶接学会 第 113 回軽構造接合加工研究委員会、東京、(2016.06.09-2016.06.11)

永塚 公彬、肖 伯律、中田 一博、佐伯 修平、北本 和、岩本 善昭、吉野 収、抵抗スポット溶接を応用した金属と炭素繊維強化樹脂の直接異材接合、(一社)溶接学会 平成 28 年度春季全国大会、大阪、(2016.04.12-2016.04.14)

〔図書〕(計 2 件)

永塚 公彬、中田 一博、自動車のマルチマテリアル戦略、株式会社エヌ・ティ・エス、(2017)、分担執筆、139-147

永塚 公彬、中田 一博、異種材料接合技術-マルチマテリアルの実現を目指して、株式会社シーエムシー出版、(2016)、分担執筆、160-170、171-177、183-191

〔その他〕

ホームページ等

<http://crownab.com/achievement/>

http://www.jwri.osaka-u.ac.jp/cooperation/project_nedo.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

永塚 公彬(NAGATSUKA Kimiaki)
大阪大学・接合科学研究所・特任助教
研究者番号：70720902