

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 3 日現在

機関番号： 14401
 研究種目： 基盤研究（A）
 研究期間： 2009～2012
 課題番号： 21246111
 研究課題名（和文） 摩擦攪拌効果を利用するプラスチックと金属との異種材料間の高信頼性接合界面創出
 研究課題名（英文） Development of high reliability joining interface of dissimilar joint of plastic and metal by using friction stir processing effect
 研究代表者
 中田 一博（NAKATA KAZUHIRO）
 大阪大学・接合科学研究所・教授
 研究者番号： 80112069

研究成果の概要（和文）：摩擦エネルギーを活用したプラスチックと金属の直接異材接合法として摩擦重ね接合法（FLW）を開発し、軽量金属材料であるアルミニウム合金及びマグネシウム合金と代表的なプラスチック材料であるナイロン及びポリエチレンとの異材接合においてプラスチック母材破断を示す良好な継手が得られる接合条件を明らかにし、さらに接合には金属及びプラスチックに対してそれぞれに必須の材料・表面特性があることを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：A novel joining process, friction lap welding (FLW), to enable the direct joining of metal and plastic, was developed by using friction energy, and direct joining of light weight metals as aluminum alloy and magnesium alloy and plastics as nylon and polyethylene has been successfully made with good joint strength showing the fracture at the base material of plastics by selecting the optimum FLW conditions. In addition, special characteristics of composition and surface of metal and plastics, which were necessary for direct joining of these materials, have been made clear.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	18,300,000	5,490,000	23,790,000
2010年度	7,900,000	2,370,000	10,270,000
2011年度	6,100,000	1,830,000	7,930,000
2012年度	3,400,000	1,020,000	4,420,000
年度			
総計	35,700,000	10,710,000	46,410,000

研究分野： 工学

科研費の分科・細目： 材料工学・材料加工・処理

キーワード： 接合・溶接、摩擦、異材接合、金属、プラスチック、界面構造、CFRP

1. 研究開始当初の背景

地球環境に係る低炭素社会構築に向けてCO₂排出量抑制のためには輸送機器である自動車、鉄道車両、および航空機等の軽量化が必須であり、また最も直接的でかつ効果的な方法である。このため軽量金属構造材料であるアルミニウム合金やマグネシウム合金、チタン合金の適用が図られると共に、金属より

もはるかに軽量である高分子材料プラスチックの適用が強く望まれている。しかしプラスチックと金属との異材接合は主に接着剤に依るが、接合部強度の信頼性において十分ではなく、構造強度部材への適用例はほとんどなく、工業的に満足のゆく異材接合プロセスは未だ確立されていない。低炭素社会実現に資するためにも、高分子材料と金属と

の高信頼性を有する異材接合の実現は焦眉の急である。

さらに学術的観点からは、プラスチックと金属との有機／無機材料間の接合は、金属同士の異材接合とは根本的に異質なものであり、その接合機構は金属学および高分子化学のいずれの視点からも学術的に極めて興味深いものである。当該研究ではこれまで困難であった両者の直接的な異材接合を、摩擦エネルギーを利用した新しい固相接合法を開発して実現しようとするものである。

2. 研究の目的

当該研究では、これまで困難であったプラスチックと金属の直接的な異材接合を、摩擦エネルギーを利用した新しい低温固相接合法を開発し、さらに界面の微細構造制御により世界で初めて実現しようとするものである。主要研究目的は以下の3項目からなる。

(1)異材接合プロセス開発

高速回転するツールと金属材料との摩擦発熱を利用して、加熱、加圧、もしくは攪拌作用により金属／プラスチック接合界面構造をサブミクロンサイズで微細に構造制御し、強固な接合強度を獲得する新しいアイデアによる異材接合プロセスシステムを構築する。

(2)異材接合界面構造解析と構造制御

プラスチック／金属異材接合部界面のナノ微細構造を解明し、異材接合継手強度との関係を明らかにする。

(3)異材接合継手特性評価

プロセスパラメータ等の最適化を図り、異材接合プロセスによるプラスチック／軽量金属材料 (Al 合金、Mg 合金、Ti 合金)、及びプラスチック／鉄鋼、さらに比較として軽量金属材料 (Al 合金、Mg 合金、Ti 合金)／鉄鋼の高信頼性異材接合継手の実用化に向けての学術基盤データベース構築を行う。

3. 研究の方法

(1)使用材料

プラスチックには熱可塑性プラスチックであるポリエチレン PE、ポリプロピレン PP、エチレン・アクリル酸コポリマーEAA、ナイロン 6Nylon 等を用いた。また熱可塑性プラスチックをマトリックスとする CFRP も検討した。金属材料には、軽量構造材料として Al 合金、Mg 合金及びチタン、また一般的な構造材料として炭素鋼 SPCC と亜鉛めっき鋼板、及び銅を用いた。板厚は 2mm から 3mm である。

また材料の接合前の表面処理として、受入材のままの状態以外に、プラスチックにはコロナ放電処理、また金属材料には表面研磨による粗面化、表面皮膜処理等を行い、その効果を検討した。

(2)異材接合プロセスシステム

図 1 に示すように、摩擦攪拌接合 FSW と同様に先端にプローブと呼ばれる突起を有するツールを高速回転させて金属側から接合界面にまで挿入し、回転するプローブの攪拌作用で両材料をサブミクロンサイズで微細に混合した複合層を直接的にその場に形成して接合する方法 (直接攪拌混合方式) と、図 2 に示す先端が平坦なプローブの無いツールを高速回転させて金属板に押し付けて、摩擦発熱により加熱された金属板を通じて接合継手界面のプラスチックを軟化・溶解し、加圧して両者を接合する (間接熱圧着方式) 方法からなる新しい異材接合プロセスシステムの構築を目指した。後者を摩擦重ね接合法 (Friction Lap Welding、FLW) と呼ぶ。

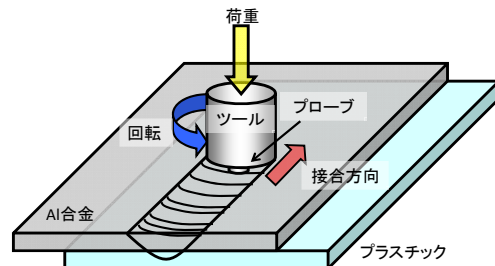


図 1 直接攪拌混合方式 (FSW)

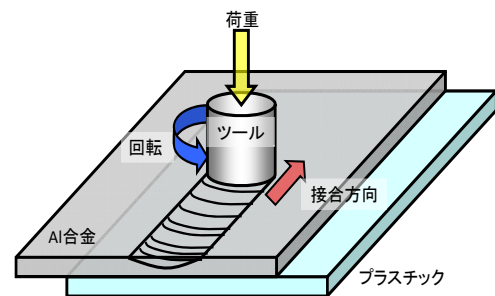


図 2 間接熱圧着方式 (FLW)

既設の連続接合方式の摩擦攪拌接合装置に加えて、自動車・車両製造に多用される抵抗スポット溶接及び航空機製造に多用されるリベット接合との比較検討も合わせて行うために、点接合タイプの摩擦攪拌点接合装置を新設した。

またプロセスパラメータとして、ツール回転速度、接合速度、ツール押付け量、プローブ／界面位置、試片配置及びプローブ材質・形状を取り上げ、接合継手形成に及ぼす影響を検討した。

さらに接合中の温度履歴は熱電対を直接、接合界面近傍に挿入することにより計測した。

(3)継手特性評価法

接合継手から図 3 に示すように接合方向

に対して垂直方向に引張試験片を切り出し、インストロン型引張試験機により引張せん断試験を行い、継手強度を評価した。試験後に破断面を走査型電子顕微鏡 SEM・EDX 元素分析等を行った。

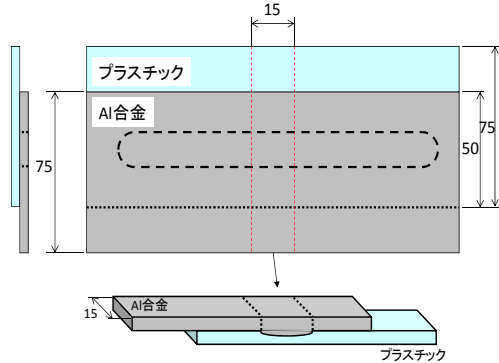


図3 FLW 継手と引張せん断試験片

(4) 接合界面構造解析法

接合部断面のナノ微細構造の透過型電子顕微鏡 TEM・EDX 評価を行うと共に、材料表面処理の影響を検討する為に表面処理面の XPS 化学状態分析による表面構造解析を行った。

4. 研究成果

(1) 直接攪拌混合方式 (FSW 方式)

図1に示したプローブの攪拌効果により金属とプラスチックを直接混合する方式では、ツールと金属との摩擦発熱により塑性流動するまでに高温加熱された金属によりプラスチックの劣化が著しく、また一方、加熱温度を低下させた場合には金属の塑性流動が不十分となり金属側に溝状欠陥が発生し、良好な接合継手を得ることは困難であった。このために本研究では以後は図2に示した間接熱圧着方式による検討を進めた。

(2) 間接熱圧着方式 (FLW 方式)

① Al 合金/プラスチックの接合

代表的なプラスチックとして 6Nylon と PE を取り上げ、Al 合金との異材重ね継手形成を行い、その継手強度を評価した結果を図4に示す。6Nylon はその構造に極性官能基であるアミド結合 (-CONH-) を有しており、一方 PE は (-CH₂-) 結合からなり、極性官能基を有しない。図より、6Nylon では Al 合金の受入材及び表面皮膜処理材共に異材継手が形成された。また受入材では接合界面破断であり、接合強度はやや低い、表面皮膜処理材では 6Nylon 母材での破断となり、異材継手として十分な継手強度を示した。

一方、極性官能基を有しない PE では受入材及び表面皮膜処理材のいずれにおいても両者は接合されなかった。しかし、PE 材に接合試験直前にコロナ放電処理を行い、接合実験を実施すると、表面皮膜処理 Al 合金材で

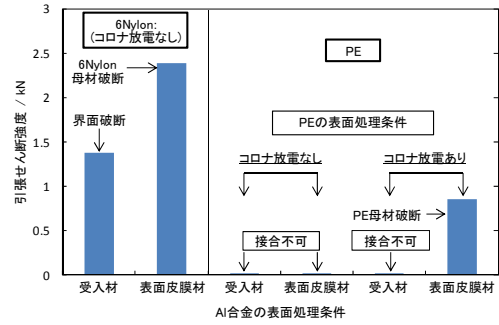


図4 継手引張せん断強度

は PE 母材破断 (降伏現象) を示し、異材継手として良好な継手強度が得られた。しかし受入材のままではコロナ放電処理を PE に実施しても接合はできなかった。コロナ放電処理により PE 表面にはヒドロキシル基、ケトン基、カルボキシル基などの極性官能基が形成されていることを XPS により確認した。また相手材である表面皮膜処理 Al 合金材表面でも XPS 分析により酸化物や水酸化物の存在を確認しており、これらの結果から、接合機構として金属表面の水酸基とプラスチックが有する極性官能基の間の水素結合による相互作用力が有力と考えられた。極性官能基を有する EAA 及び極性官能基の無い PP に対してもそれぞれ 6Nylon 及び PE と同様の結果が得られた。すなわち金属とプラスチックの両者の異材接合を可能とするためにはお互いの特性として活性反応基をそれぞれが保持することが必須であることが明らかになった。

また Al 合金材の表面粗さも関係しており、図5に示すように微小な凹凸部に熔融・軟化したプラスチックが入り込み、いわゆるアンカー効果が働いていることが推察された。

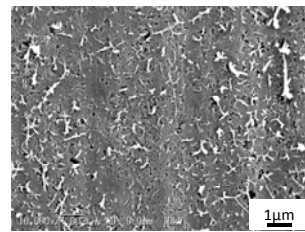


図5 Al 合金側界面破断面のマイクロ組織

また Mg 合金は Al 合金と同様の結果が得られた。銅も同様に異材接合が可能であったが、接合強度の向上のためには表面処理の更なる検討が求められた。チタンに対してはツールと Ti 合金との凝着の防止が必要であることが明らかになった。

② 鉄鋼材料/プラスチックの接合

市販汎用鉄鋼材料として軟鋼板 SPCC を取り上げ、6Nylon との異材接合を行った。SPCC の受入材や表面研磨材では接合は不可であ

ったが表面皮膜処理材の一種である亜鉛めっき鋼板では接合が可能であった。しかし引張せん断試験では破断はめっき層と鋼材界面での破断を示したことから、今後、めっき層／鋼材間の接合強度の強化が必要と考えられる。

③CFRP／Al 合金の異材接合

プラスチック／Al 合金のFLW接合結果で得られたデータベースを元に、マトリックスを6 Nylon とした炭素繊維強化プラスチックと Al 合金との異材接合特性を検討した結果、引張せん断試験における破断が一部でCFRP 部材部を含む良好な接合継手を得られることを明らかにした。図6に接合継手外観を示す。今後、接合性に優れた炭素繊維強化プラスチック材の開発が望まれる。

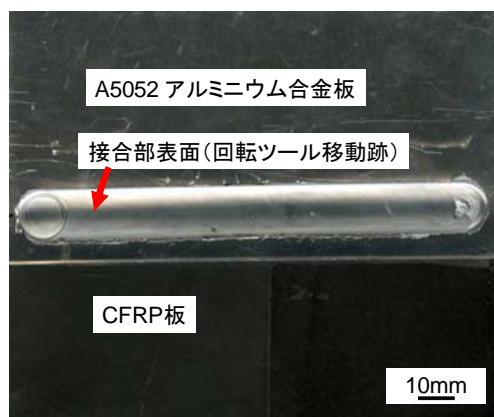


図6 CFRP／Al 合金接合継手外観

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 28 件)

①L. Zou, K. Nakata, J. Liao, T. Tsumura, Microstructural characteristics and mechanical properties of non-combustive Mg-9Al-Zn-Ca magnesium alloy friction stir welded joints, *Material & Design*, 査読有、42巻、(2012)、505-512、

②Kuk Hyun Song, Kazuhiro Nakata, Investigation of Microstructure and Mechanical Properties of Friction Stir Lap Jointed Ni Base Superalloy, *Material Science Forum*, 査読有、724、(2012)、481-485

③Masayuki Aonuma, Kazuhiro Nakata, Dissimilar metal joining of ZK60 magnesium alloy and titanium by friction stir welding, *Material Science and Engineering B*, 査読有、177巻、(2012)、543-548

④Y. Morisada, H. Fujii, Y. Kawahito, K. Nakata, M. Tanaka, Three-dimensional Visualization of Material Flow during Friction Stir Welding by Two Pairs of X-ray Transmission

Systems, *Scripta Materialia*, 査読有、65巻、(2011)、1085-1088

⑤Y. C. Chen, H. Fujii, T. Tsumura, Y. Kitagawa, K. Nakata, K. Ikeuchi, K. Matsubayashi, Y. Fujiya, J. Katoh, Banded Structure and Its Distribution in Friction Stir Processing of 316L Austenitic Stainless Steel, *Journal of Nuclear Materials*, 査読有、420巻、(2011)、497-500

⑥Duo Liu, Hiroyuki Nishio, Kazuhiro Nakata, Anisotropic Property of Material Arrangement in Friction Stir Welding of Dissimilar Mg Alloys, *Materials & Design*, 査読有、32巻、(2011)、4818-4824

⑦Masayuki Aonuma, Kazuhiro Nakata, Dissimilar Metal Joining of 2024 and 7075 Aluminium Alloys to Titanium Alloys by Friction Stir Welding, *Materials Transactions*, 査読有、52巻、(2011)、948-952

⑧山本尚嗣、廖金孫、中田一博、微細結晶粒を持つMg-Al-Zn系Mg合金の摩擦攪拌接合継手強度に及ぼすツール形状の影響、*日本金属学会誌*、査読有、75巻、(2011)、91-96

⑨Hong Liu, Kazuhiro Nakata, Grain Orientation and Texture Evolution in Pure Titanium Lap Joint Produced by Friction Stir Welding, *Materials Transactions*, 査読有、51巻、(2010)、2063-2068

⑩Masayuki Aonuma, Kazuhiro Nakata, Effect of calcium an intermetallic compound layer at interface of calcium added magnesium-aluminium alloy and titanium joint by friction stir welding, *Materials Science and Engineering B*, 査読有、173巻、(2010)、135-138

⑪Jinsun Liao, Naotsugu Yamamoto, Kazuhiro Nakata, Microstructure at friction stir lap joint interface of pure titanium and steel, *Materials Letters*, 査読有、64巻、(2010)、2317-2320

⑫Hidetoshi Fujii, Yufeng Sun, Hideaki Kato, Kazuhiro Nakata, Investigation of welding parameter dependent microstructure and mechanical properties in friction stir welded pure Ti joints, *Materials Science and Engineering A*, 査読有、527巻、(2010)、3386-3391

⑬Y. F. Sun, Y. S. Ji, H. Fujii, K. Nakata, K. Nogi, Microstructure and Mechanical Properties of Friction Stir Welded Joint of Zr55Cu30Al10Ni5 Bulk Metallic Glass with Pure Copper, *Materials Science and Engineering A*, 査読有、527巻、(2010)、3427-3432

⑭K. H. Song, K. Nakata, Microstructural and mechanical properties of friction-stir-welded and

post-heat-treated Inconel 718 alloy, Journal of Alloys and Compounds, 査読有、505巻、(2010)、144-150

⑮H. Liu, K. Nakata, N. Yamamoto, J. Liao, Friction stir welding of pure titanium lap joint, Science and Technology of Welding and Joining, 査読有、15巻、(2010)、428-432

⑯山本尚嗣、廖金孫、中田一博、難燃性Mg合金の摩擦攪拌点接合および抵抗スポット溶接、日本金属学会誌、査読有、74巻、(2010)、307-313

⑰Y. C. Chen, K. Nakata, Effect of surface states of steel on microstructure and mechanical properties of lap joints of magnesium alloy and steel by friction stir welding, Science and Technology of Welding and Joining, 査読有、15巻、(2009)、293-298

⑱Naotsugu Yamamoto, Jinsun Liao, Shuhei Watanabe, Kazuhiro Nakata, Effect of Intermetallic Compound Layer on Tensile Strength of Dissimilar Friction-Stir Weld of a High Strength Mg Alloy and Al Alloy, Materials Transactions, 査読有、50巻、(2009)、2833-2838

⑲Y. C. Chen, K. Nakata, Friction Stir Lap Welding of Magnesium Alloy and Zinc-Coated Steel, Materials Transactions, 査読有、50巻、(2009)、2598-2603

⑳Kuk Hyun Song, Kazuhiro Nakata, Mechanical Properties of Friction-Stir-Welded Inconel 625 Alloy, Materials Transactions, 査読有、50巻、(2009)、2498-2501

㉑Lina Yu, Kazuhiro Nakata, Jinsun Liao, Microstructures and Mechanical Properties in Friction Stir Zone of Thixo-Molded AS41 Mg Alloy, Materials Transactions, 査読有、50巻、(2009)、2378-2383

㉒Y. C. Chen, K. Nakata, Effect of tool geometry on microstructure and mechanical properties of friction stir lap welded magnesium alloy and steel, Materials & Design, 査読有、30巻、(2009)、3913-3919

㉓Jinsun Liao, Naotsugu Yamamoto, Kazuhiro Nakata, Effect of Dispersed Intermetallic Particles on Microstructural Evolution in the Friction Stir Weld of a Fine-Grained Magnesium Alloy, Metallurgical and Materials Transactions A, 査読有、40A巻、(2009)、2212-2219

㉔K. H. Song, H. Fujii, K. Nakata, Effect of welding speed on microstructural and mechanical properties of friction stir welded Inconel 600, Materials & Design, 査読有、30巻、(2009)、3972-3978

㉕Young Su Ji, Hidetoshi Fujii, Yufeng Sun

、Masakatsu Maeda, Kazuhiro Nakata, Hisamichi Kimura, Akihisa Inoue, Kiyoshi Nogi, Friction Stir Welding of Zr55Cu30Ni5Al10 Bulk Metallic Glass, Materials Transactions, 査読有、50巻、(2009)、1300-1303

㉖Lina Yu, Kazuhiro Nakata, Jinsun Liao, Microstructural modification and mechanical property improvement in friction stir zone of thixo-molded AE42 Mg alloy, Journal of Alloys and Compounds, 査読有、480巻、(2009)、340-346

㉗Masayuki Aonuma, Kazuhiro Nakata, Effect of alloying elements on interface microstructure of Mg-Al-Zn magnesium alloys and titanium joint by friction stir welding, Materials Science and Engineering B, 査読有、161巻、(2009)、46-49

㉘Kuk Hyun Song, Hidetoshi Fujii, Kazuhiro Nakata, Evaluation of Grain Refinement and Mechanical Property on Friction Stir Welded Inconel 600, Materials Transactions, 査読有、50巻、(2009)、832-836

[学会発表] (計29件)

①Toshiki ONODA, Keisuke IKEHATA, Takuya TSUMURA, Kazuhiro NAKATA, Friction Spot Joining of Ti-6Al-4V Alloy and SPCC, Jisual-JW2012, 2012.11.28-30、大阪

② Toshikazu MATSUYAMA, Takuya TSUMURA, Kazuhiro NAKATA, Novel Solid State Cladding of Brass to Steel Plate by Friction Stir Welding, Visual-JW2012, 2012.11.28-30、大阪

③池畑佳祐、中田一博、摩擦エネルギーを利用したアルミニウムとプラスチックの異材接合、日本金属学会 2012 年秋期大会、2012.09.17-19、松山

④斧田俊樹、津村卓也、中田一博、摩擦攪拌点接合法によるチタン合金と軟鋼の重ね異材接合、日本金属学会 2012 年秋期大会、2012.09.17-19、松山

⑤青沼昌幸、森河和雄、寺西義一、中田一博、過共晶 Al-Si 合金とチタンとの摩擦攪拌接合部における接合界面組織、溶接学会平成 24 年度春季全国大会、2012.04.10-12、大阪

⑥松山敏和、津村卓也、中田一博、摩擦攪拌接合を用いた黄銅と鋼の重ね異材接合性、溶接学会平成 24 年度春季全国大会、2012.04.10-12、大阪

⑦ Y. Morisada, H. Fujii, Y. Kawahito, K. Nakata, M. Tanaka, Three-dimensional Visualization of Material Flow in FSW by X-Ray Radiography, ECO-MATES 2011, 2011.11.28-30, Osaka

⑧大石郁、大田耕平、坂村勝、藤井英俊、中

田一博、アルミニウム合金/鋼/鋼の異材点接合における突起部の効果、日本金属学会 2011 年秋期大会、2011. 11. 07-09、沖縄

⑨池畑佳祐、高橋誠、津村卓也、中田一博、摩擦攪拌点接合法による純チタンと軟鋼の重ね異材接合、日本金属学会 2011 年秋期大会、2011. 11. 07-09、沖縄

⑩M. Aonuma、K. Nakata、Dissimilar Metal Joining of ZK60 Magnesium Alloy and Titanium by Friction Stir Welding、STAC5、2011. 06. 22-24、Kanagawa

⑪T. Tsumura、K. Nakata、H. Fujii、Friction Stir Spot Welding of Cold-rolled Steel Sheets with Inserted Ni-Based Bulk Metallic Glass Foil、STAC5、2011. 06. 22-24、Kanagawa

⑫石郁、坂村勝、竹保義博、藤井英俊、中田一博、アルミニウム合金/鋼の摩擦攪拌点接合における接合界面の観察、日本金属学会 2010 年秋期大会、2010. 09. 25-27、北海道

⑬D. Liu、H. Nishio、K. Nakata、T. Namise、H. Yonezaki、Evaluation of Microstructure and Mechanical Properties of Friction Stir Welding Joints of Dissimilar Mg Alloys、溶接学会平成 22 年度秋季全国大会、2010. 09. 07-09、福島

⑭坂村勝、大石郁、竹保義博、藤井英俊、中田一博、球面ツールを用いたアルミ/鋼の摩擦攪拌点接合継手の機械的性質、溶接学会平成 22 年度秋季全国大会、2010. 09. 07-09、福島

⑮Hong Liu、Takuya Tsumura、Kazuhiro Nakata、Friction Stir Lap Joining of Pure Titanium、溶接学会春季全国大会、2010. 04. 20-22、東京

⑯青沼昌幸、中田一博、Ti-6Al-4V 合金とマグネシウム合金との摩擦攪拌接合、溶接学会春季全国大会、2010. 04. 20-22、東京

⑰池英沫、藤井英俊、孫王峰、稲田孝治、中田一博、野城清、横山嘉彦、木村久道、井上明久、摩擦攪拌接合によるZr基金属ガラス/純Alの異材接合、溶接学会春季全国大会、2010. 04. 20-22、東京

⑱北川良彦、鈴木啓一、興石房樹、井上岳、陳迎春、中田一博、高張力鋼摩擦攪拌接合部の組織と機械的性質、溶接学会平成 21 年度秋季全国大会、2009. 09. 09-11、徳島

⑲青沼昌幸、津村卓也、中田一博、AMC602 マグネシウム合金とチタンとの摩擦攪拌接合、溶接学会平成 21 年度春季全国大会、2009. 04. 22-24、東京

⑳中田一博、摩擦攪拌接合 (FSW) の進化と可能性、摩擦攪拌接合フォーラム、2010. 04. 23、東京

〔図書〕 (計 1 件)

①中田一博、サイエンス&テクノロジー、異種材料一体化のための最新技術、(2012)、3-17

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 2 件)

①名称：金属部材と樹脂部材との接合方法
発明者：中田一博
権利者：国立大学法人大阪大学
種類：国際出願
番号：PCT/JP2012/053839
出願年月日：平成 24 年 2 月 17 日
国内外の別：国外

②名称：金属部材と樹脂部材との接合方法
発明者：中田一博
権利者：国立大学法人大阪大学
種類：特許
番号：特願 2011-035001
出願年月日：平成 23 年 2 月 21 日
国内外の別：国内

〔その他〕

①報道

日刊工業新聞 平成 25 年 3 月 12 日掲載
「金属と炭素繊維強化プラ
摩擦で低コスト接合」

②解説

青沼昌幸、中田一博、塑性と加工、53 巻、摩擦攪拌接合法による異種金属接合、2012 年

③ホームページ等

http://www.jwri.osaka-u.ac.jp/research/research01_3.html

http://www.jwri.osaka-u.ac.jp/research/research01_3.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中田 一博 (NAKATA KAZUHIRO)
大阪大学・接合科学研究所・教授
研究者番号：8 0 1 1 2 0 6 9

(2) 研究分担者

津村 卓也 (TSUMURA TAKUYA)
沖縄工業高等専門学校・その他部局等・
准教授

研究者番号：0 0 2 8 3 8 1 2

高橋 誠 (TAKAHASHI MAKOTO)
大阪大学・接合科学研究所・講師

研究者番号：1 0 2 9 4 1 3 3

田代 真一 (TASHIRO SHINICHI)
大阪大学・接合科学研究所・助教
研究者番号：7 0 4 3 2 4 2 4