

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 19 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2015

課題番号：26820326

研究課題名(和文) 界面微細加工組織制御を応用したプラスチックと金属の異材摩擦重ね接合と接合機構解明

研究課題名(英文) Effect of mechanically- and chemically-structured interface on dissimilar materials joining properties of plastic to metal using friction lap joining

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) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：摩擦重ね接合を用いて、金属とプラスチックの異種材料接合を行い、最適な接合条件を検討した。金属材料に対する研磨処理、酸化皮膜処理、レーザー表面微細加工、ブラスト処理および化学的表面処理を施すことで、接合部の界面の構造を接合前にあらかじめ変化させて、界面構造が接合特性に及ぼす影響を明らかにした。さらに、これらの材料の接合メカニズムを検討した。金属材料としては、アルミニウム合金、鉄鋼材料等、プラスチックとしてはポリアミド(ナイロン)およびポリエチレンを用いた。さらに、得られた成果を元に、ポリアミドに炭素繊維を添加した炭素繊維強化樹脂(CFRP)の接合を行い、強固な金属とCFRPの接合を達成した。

研究成果の概要(英文)：Dissimilar materials joining of plastic to metal was performed. Effects of mechanically- and chemically-structured interface on the joining properties in addition to joining conditions were investigated. Several surface treatments such as grinding, oxide treatment, laser scanning, blasting and chemical treatment were applied on the metal surface to form the structured interface.

Aluminum alloys and steels plates as metals, and polyamide (Nylon) and polyethylene plates as plastics were used as experimental materials. Based on the results of joining between metals/plastics, dissimilar joint formation between metals/ carbon fiber reinforced plastic (CFRP), which consisted of polyamide and carbon fiber, were carried out. The strong joints, which were fractured at the plastic and CFRP base plates by tensile shear test, were obtained at the suitable joining condition and structured interface.

研究分野：接合

キーワード：異材接合 摩擦重ね接合 金属 プラスチック 炭素繊維強化プラスチック 界面微細加工組織制御  
表面改質 シランカップリング

### 1. 研究開始当初の背景

近年、輸送機器の軽量化を図る手段として、従来構造材である鉄鋼等の金属材料の一部を、軽量で比強度に優れたプラスチックや炭素繊維強化プラスチック (Carbon fiber reinforced plastic) に置き換える構造のマルチマテリアル化が注目されている。これらの材料を適材適所に使用し、構造のマルチマテリアル化を図るためには、金属とプラスチック・CFRP の異材接合が不可欠である。

これらの材料の異材接合法としては、接着剤による接合とリベット等の機械的締結が行われている。しかし、接着では、有機溶剤による環境への影響、接合に長時間が必要であること、機械的締結では、穴あけ加工が必要で、締結部材による重量増加や応力集中等の問題がある。こうした背景から、近年、新しい接合法として、熱可塑性プラスチックの一部を溶融させて、金属と直接接合を行う融着 (溶着) 法が検討されている。融着法としては、レーザ、超音波および誘導加熱等の熱源を利用した方法が検討されているが、接合強度、コスト、接合時間、複雑形状な継手への適用等を同時に満足する方法は確立されていない。これに対して、摩擦重ね接合法 (FLJ: Friction lap joining) では、回転ツールによる摩擦発熱と同時に接合界面に対して高い接合圧力を与えるため、短時間で密着性と強度に優れた点・線・面接合が可能である。しかし、FLJ による方法においても、一部の極性を有する熱可塑性プラスチックについてのみ接合が可能であり、プラスチックの種類によっては適用が困難で、CFRP の接合においては、十分に強固な接合は達成されていない。

プラスチック / 金属の異材接合はプラスチックおよび金属の表面同士の間相互作用によって達成され、表面状態や界面構造を変化させることで接合強度の向上が期待できる。そこで、接合界面の化学的な相互作用を強化する化学的界面構造制御、および凹凸を形成する機械的界面構造制御を行い、プラスチックと金属の接合性・濡れ性の向上とアンカー効果の導入を行う。これにより接合強度の向上が期待される。また、プラスチック / 金属の接合メカニズムとしては、ファンデルワールス力、水素結合力およびアンカー効果等が提案されているが未解明な部分が多い。そこで表面状態を任意に制御する加工技術によりこれらの異材接合を行うとともに、界面構造解析を行い、これらを総合的に考察することにより、プラスチックと金属の接合メカニズムを明らかにすることでプラスチックと金属の学術的に大きな課題の解決を目指す。

### 2. 研究の目的

地球環境への配慮から、輸送機器の軽量化による省エネルギー化および CO<sub>2</sub> 排出量抑制への要求が高まっている。そこで従来使用さ

れる鉄鋼材料から、より軽量で比強度に優れたアルミニウム合金、マグネシウム合金およびチタン合金等の適用が図られると共に、プラスチックおよび CFRP の適用が期待されている。しかし、プラスチック・CFRP と金属との異材接合としては、未だに強度、コスト、生産性等を満足する接合プロセスが確立されず、この実現は焦眉の急である。そこで金属表面への機械的および化学的表面処理と FLJ を応用することで、金属とプラスチック・CFRP の直接異材接合の実現に向けた接合技術の基盤を確立する。

### 3. 研究の方法

#### (1) 供試材料

供試材は上板の金属として、長さ 150 mm、幅 75 mm、厚さ 2.0 mm のアルミニウム合金 (A1050、A3004、A5052、A5083)、炭素鋼 (SPCC)、オーステナイト系ステンレス鋼 (SUS304)、純チタン (CP-Ti) およびマグネシウム合金を用いた。下板のプラスチックには、長さ 150 mm、幅 75 mm、厚さ 3.0 mm の、ポリアミド 6 (PA6)、ポリエチレン (PE)、および PA6 のマトリックスに対し、炭素繊維を 20wt% 添加し射出成形により作製した炭素繊維強化熱可塑性プラスチック (CFRTP: Carbon fiber reinforced thermoplastic) を用いた。これらの金属およびプラスチック・CFRTP について、FLJ による異材接合を行い、接合性を検討した。

界面構造制御のための表面処理としては、金属側に流水中エメリー紙を用いての湿式研磨処理、酸化皮膜処理、レーザ表面微細加工、ショットおよびサンドブラスト処理、ならびに、シランカップリング処理を施し、これが接合特性に及ぼす影響について検討を行った。

#### (2) 摩擦重ね接合

図 1 に摩擦重ね接合 (FLJ) の模式図を示す。FLJ は、上板を金属板、下板をプラスチック・CFRP 板として、所定の重ね代 (30mm) の重ね継手として固定し、高速回転するツールを金属板に押し付けて、摩擦発熱により加熱を行い、これを接合線に合わせて移動させることで、連続的な接合部を形成する。ツールとの摩擦によって加熱された金属板からの熱伝導によって、プラスチック・CFRP 板は加熱され、これが溶融・凝固することで、金属板との接

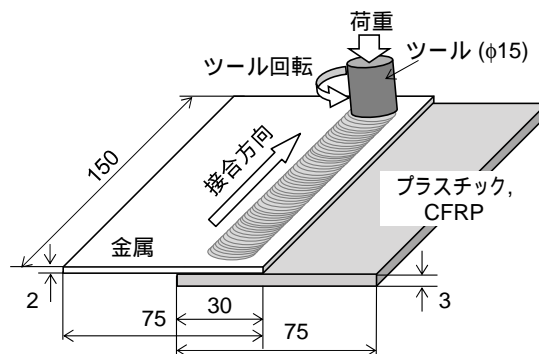


図1 摩擦重ね接合 (mm)

合が達成される。なお、ツールの先端は平坦となっており、上板と下板の攪拌は生じない。接合は位置制御型の摩擦攪拌接合装置を用いて実施し、バリの発生を防止する目的でツール前角0.5から3°とし、直径15mmのツールが全面金属表面と接するようにツールの挿入を行った。

得られた継手は、幅15mmの短冊状試験片として、引張せん断試験およびピール試験に供し、さらに、接合界面構造の観察を行った。

#### 4. 研究成果

##### (1) 金属の材質が接合特性に及ぼす影響

各種アルミニウム合金(A1050、A3004、A5052、A5083)とPA6とのFLJを実施し、合金中に含まれる添加元素であるマグネシウム量が接合性に及ぼす影響を検討した。図2にマグネシウム添加量が継手のピール破断荷重に及ぼす影響を示す。合金中のマグネシウム添加量の増加に伴ってアルミニウム合金/PA6継手の接合強度が増加した。引張せん断試験においても同様の傾向が認められた。図3に接合界面の微細構造を示す。これらの材料は、金属の酸化物を介して接合されており、マグネシウム添加量の増加に伴って酸化物中の酸化マグネシウムの割合が増加し、接合強度が増加したことが示唆された。

また、SPCC、SUS304、純チタンおよびマグ

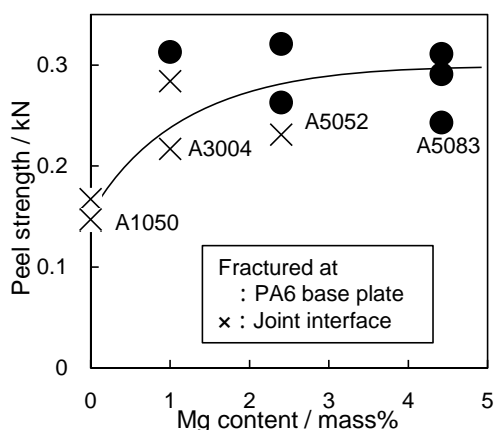


図2 Al合金中のMg添加量がピール強度に及ぼす影響

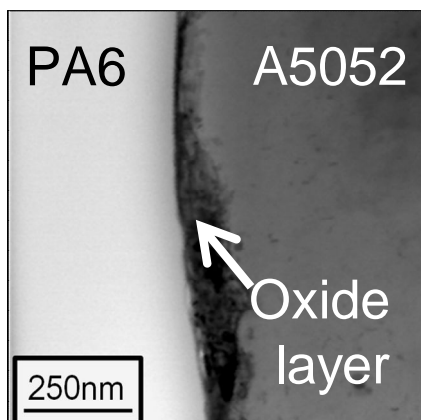


図3 A5052 / PA6の接合界面微細構造

ネシウム合金とPA6のFLJにおいても、同様に異材接合が可能であり、接合界面に形成される酸化物の種類に応じて接合強度が異なることが示唆された。

##### (2) 金属 / CFRTP の FLJ

金属と射出成形により作製したCFRTP(PA6+20wt%炭素繊維)のFLJを実施し、接合特性に及ぼす接合速度の影響を検討した。図4に湿式研磨を施したA5052 / CFRTP継手の引張せん断破断荷重を示す。接合強度は、接合速度の増加に伴って増加し、接合速度1600mm/minで最大の約2.8kNとなった。それ以上の接合速度では密着不足のために接合強度は低下した。低い接合速度においては、CFRTPのマトリックスであるPA6が熱分解を生じるために、接合強度が低下したと推察される。

他の金属材料を用いた場合においても、同様の傾向が認められた。図5に継手の断面組織を示す。金属とCFRTPは、CFRTPのマトリックス部(PA6)が金属の酸化物と接合されることで、継手を形成していた。

##### (3) 金属への表面処理の適用

接合界面の構造を制御する目的で、金属に対し表面処理を施した後、FLJに供した。検討を行った中では、湿式研磨、酸化皮膜処理、サンドブラストおよびシランカップリング処理を施した場合は、受入材を用いた場合に比べて著しく接合強度が増加し、特にシランカップリング処理を施した場合は、引張せん断試験において、最大で破断荷重が約5kN

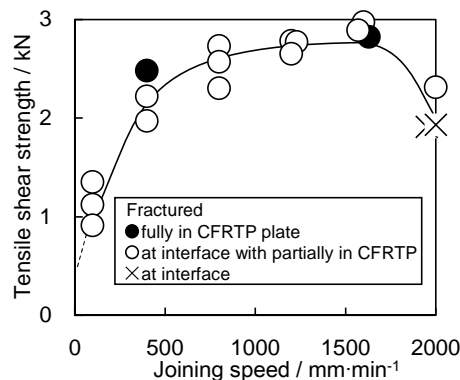


図4 接合速度がAl合金 / CFRTPの引張せん断破断荷重に及ぼす影響

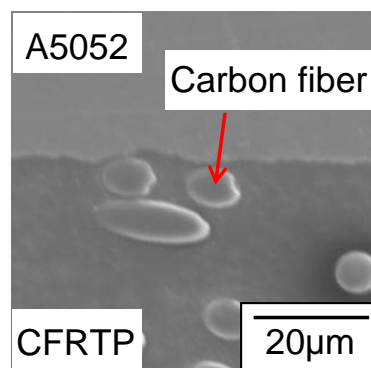


図5 A5052 / CFRTP継手の断面組織



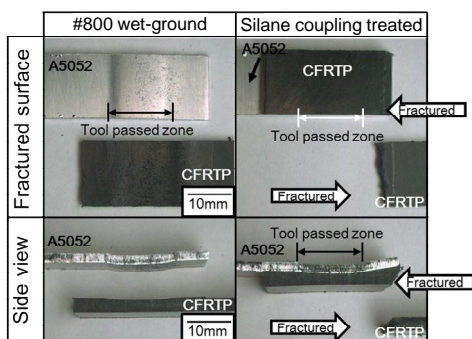


図6 引張せん断試験後の湿式研磨処理およびシランカップリング処理を施したA5052 / CFRTP継手

となり、広い接合条件において完全に CFRTP 板が母材破断を呈する強固な接合が可能となった。図6に継手の引張せん断試験後の外観を示す。これらは金属表面に形成される酸化皮膜の材質変化、水酸化物の形成、極性を有する有機物層が形成されること等の化学状態の変化に起因することが、TEM および XPS 分析により示唆された。

表面の化学状態を統一し、機械的結合力の影響を検討するため、A5052 に対して、番手の異なるエメリー紙を用いて湿式研磨処理を行い表面粗さが接合特性に及ぼす影響、酸化皮膜処理によって皮膜中に形成されるポアの径を制御し、ポア径が接合特性に及ぼす影響を検討した。湿式研磨においては、算術平均粗さ(Ra)が約 0.2 $\mu\text{m}$  まで、酸化皮膜処理においてはポア径が約 115nm となるまでは、表面粗さ、ポア径の増加に伴って、接合強度が増加し、それ以上では飽和する傾向が認められた。これらによって形成された凹凸に、CFRTP のマトリックスが入り込み、機械的な締結力が生じることで、接合強度は増加したと考えられる。

これらのことより、表面の化学状態を制御すると同時に、凹凸を形成し機械的な締結力を接合界面に導入することで、強固な金属 / プラスチック・CFRTP の異材接合が可能であることが示唆された。

#### (4)種々のプラスチックへの適用

無極性熱可塑性プラスチックの PE と金属の FLJ による異材接合を試みた。PE の受入材は金属と直接接合を行うことが困難であった。そこで PE に対し、コロナ放電による表面処理を施し、処理面を金属側に設置し、FLJ を実施した。コロナ放電により接合界面に形成されたカルボキシル等の極性官能基と、金属の酸化物が結合することで、PE が母材破断を呈するほどの強固な接合が可能となった。

これらの結果より、金属と CFRTP の接合メカニズムについて検討を行った結果、金属表面の酸化皮膜とプラスチック・CFRTP 中の極性官能基の相互作用による水素結合等が接合に大きく寄与していることが示唆された。さらに、シランカップリング処理を施した場

合では、化学的結合力が接合界面に導入され、表面に凹凸を形成した場合は、凹凸に溶融したプラスチックが入り込み機械的な締結力が生じ、強固に接合可能な接合が可能となることを明らかにした。

#### 5. 主な発表論文等

(雑誌論文)(計11件)

Kimiaki Nagatsuka, Daiki Kitagawa, Hiroto Yamaoka, and Kazuhiro Nakata, Friction lap joining of thermoplastic materials to carbon steel, ISIJ International, 査読有り, 56-7, 2016, DOI:10.2355/isijinternational.

ISIJINT-2016-042

NAGATSUKA Kimiaki, XIAO Bolyu, TSUCHIYA Atsuki, TSUKAMOTO Masahiro, NAKATA Kazuhiro, Dissimilar Materials Joining of Al Alloy/ CFRTP by Friction Lap Joining, Transactions of JWRI, 査読無し, 44-1, 2015, 9-14

Y. Gao, K. Nakata, K. Nagatsuka, T. Matsuyama, Y. Shibata, M. Amano, Microstructures and mechanical properties of friction stir welded brass/steel dissimilar lap joints at various welding speeds, Materials and Design, 査読有り, 90, 2016, 1018-1025, DOI: 10.1016/j.matdes.2015.11.056

永塚公彬, 田中宏宜, 肖伯律, 土谷敦岐, 中田一博, 摩擦重ね接合によるアルミニウム合金と炭素繊維強化樹脂の異材接合特性に及ぼすシランカップリング処理の影響, 溶接学会論文集, 査読有り, 33-4, 2015, 317-325, DOI: 10.2207/qjwjs.33.317

Y. Gao, K. Nakata, K. Nagatsuka, Y. Shibata and M. Amano, Optimizing tool diameter for friction stir welded brass/steel lap joint, Journal of Materials Processing Technology, 査読有り, 229, 2016, 313-321 DOI: 10.1016/j.jmatprotec.2015.09.029

Masaaki Kimura, Masahiro Kusaka, Koichi Kaizu, Kazuhiro Nakata, Kimiaki Nagatsuka, Friction welding technique and joint properties of thin-walled pipe friction-welded joint between type 6063 aluminum alloy and AISI 304 austenitic stainless steel, International Journal of Advanced Manufacturing Technology, 査読有り, 82, 2016, 489-499, DOI: 10.1007/s00170-015-7384-8

Y. Gao, K. Nakata, K. Nagatsuka, F.C. Liu, J. Liao, Interface microstructural control by probe length adjustment in friction stir welding of titanium and steel lap joint, Materials & Design, 査読有り, 65, 2015, 17-23, DOI:

10.1016/j.matdes. 2014.08.063  
Kimiaki Nagatsuka, Shoichiro Yoshida, Atsuki Tsuchiya, Kazuhiro Nakata, Direct joining of carbon-fiber reinforced plastic to an aluminum alloy using friction lap joining, Composites Part B-Engineering, 査読有り、73、2015、82-88、DOI: 10.1016/j.compositesb.2014.12.029  
K. Ishida, Y. Gao, K. Nagatsuka, M. Takahashi, K. Nakata, Microstructures and mechanical properties of friction stir welded lap joints of commercially pure titanium and 304 stainless steel, Journal of Alloys and Compounds, 査読有り、630、2015、172-177、DOI: 10.1016/j.jallcom.2015.01.004  
Kimiaki Nagatsuka, Shoichiro Yoshida, Atsuki Tsuchiya, Kazuhiro Nakata, Direct joining of carbon-fiber reinforced plastic to an aluminum alloy using friction lap joining, Composites Part B, 査読有り、73、2015、82-88、DOI: 10.1016/j.compositesb.2014.12.029  
永塚公彬, 斧田俊樹、岡田俊哉、中田一博、摩擦重ね接合による Mg 添加量の異なる種々のアルミニウム合金 / 樹脂の直接異材接合、溶接学会論文集、査読有り、32、2014、235-241、DOI: 10.2207/qj jws.32.235

[学会発表](計15件)

永塚 公彬, 土谷 敦岐、中田 一博、摩擦重ね接合法による Al 合金と炭素繊維強化熱可塑性樹脂の異材接合、日本金属学会 2016 年春季(第 158 回)大会、2016/3/23-25、東京  
永塚 公彬, 中田 一博、土谷 敦岐、Al 合金と樹脂・CFRP の摩擦重ね接合性に及ぼす材料因子の影響、溶接学会 第 111 回軽構造接合加工研究委員会、2015/11/24、愛知  
三輪 剛士、北川 大喜、永塚 公彬、山岡 弘人、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 平成 27 年度秋季全国大会、2015/9/2-4、札幌  
永塚 公彬、田中 宏宜、肖 伯律、土谷 敦岐、中田 一博、アルミニウム合金 / 炭素繊維強化熱可塑性樹脂の摩擦重ね接合継手強度に及ぼすシランカップリング処理の影響、溶接学会 平成 27 年度秋季全国大会、2015/9/2-4、札幌  
肖 伯律、三輪 剛士、北川 大喜、永塚 公彬、山岡 弘人、中田 一博、摩擦重ね接合によるステンレス鋼とポリアミド 6 との異材接合、溶接学会 平成 27 年度秋季全国大会、2015/9/2-4、札幌  
Kimiaki NAGATSUKA, BoLy XIAO, Atsuki

TSUCHIYA, Kazuhiro NAKATA, Dissimilar materials joining of aluminum alloy to polymers and carbon fiber reinforced thermoplastic by friction lap joining, 68th Annual Assembly of Int. Inst. Welding (IIW), 2015/6/28-7/3、Helsinki, Finland  
永塚公彬、田中宏宜、土谷敦岐、中田一博、摩擦重ね接合によるアルミニウム合金と樹脂・CFRP の直接異材接合、溶接学会 第 229 回溶接法研究委員会、2015/1/28、東京  
Kimiaki Nagatsuka, Hironobu Tanaka, Toshiki Onoda, Toshiya Okada, Kazuhiro Nakata, Effect of Mg Content in Al Alloys on Al Alloys / Polyamide 6 Dissimilar Materials Joint Characteristics by Friction Lap Joining, The International Symposium on Visualization in Joining & Welding Science through Advanced Measurements and Simulation (Visual-JW 2014)、2014/11/26-28、大阪  
Daiki Kitagawa, Tsuyoshi Miwa, Kimiaki Nagatsuka, Kazuhiro Nakata, Dissimilar Direct Joining of SUS304/CFRTP by Friction Lap Joining, The International Symposium on Visualization in Joining & Welding Science through Advanced Measurements and Simulation (Visual-JW 2014)、2014/11/26-28、大阪  
Hironobu Tanaka, Kimiaki Nagatsuka, Kazuhiro Nakata, Direct Joining of Glass Fiber-Reinforced Thermo Plastic and Al Alloy Using Friction Lap Joining, The International Symposium on Visualization in Joining & Welding Science through Advanced Measurements and Simulation (Visual-JW 2014)、2014/11/26-28、大阪  
Tsuyoshi Miwa, Daiki Kitagawa, Kimiaki Nagatsuka, Kazuhiro Nakata, Effect of Joining Speed on Formation of SUS304 / Polyamide 6 Joint by Friction Lap Joining, The International Symposium on Visualization in Joining & Welding Science through Advanced Measurements and Simulation (Visual-JW 2014)、2014/11/26-28、大阪  
Kimiaki Nagatsuka, Shoichiro Yoshida, Atsuki Tsuchiya, Kazuhiro Nakata, Effect of tool rotation speed on the dissimilar materials joint characteristics of carbon fiber reinforced thermoplastic and aluminum alloy by friction lap joining, Young Welding Professionals International Conference (YPIC2014)、2014/9/17-20、ハンガリー

永塚公彬、吉田昇一郎、土谷敦岐、中田一博、摩擦重ね接合による炭素繊維強化熱可塑性樹脂とアルミニウム合金の直接異材接合、溶接学会 平成 26 年度秋期全国大会、2014/9/10-12、富山  
田中宏宜、斧田俊樹、永塚公彬、岡田俊哉、中田一博、摩擦重ね接合による各種軽金属とプラスチックとの異材接合における合金添加元素の影響、溶接学会 平成 26 年度秋期全国大会、2014/9/10-12、富山  
北川大喜、永塚公彬、山岡弘人、中田一博、摩擦重ね接合による鉄鋼材料/樹脂の直接異材接合、溶接学会 平成 26 年度秋期全国大会、2014/9/10-12、富山

〔図書〕(計 1 件)

永塚 公彬、中田 一博、(株)技術情報協会、シランカップリング剤の使いこなし ノウハウ集、2016、218-225

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.jwri.osaka-u.ac.jp/index.jsp>

## 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：7 0 7 2 0 9 0 2