

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 22 日現在

機関番号：35403

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K04217

研究課題名(和文)樹脂とアルミニウム合金の高結合プロセスとその周辺技術の開発

研究課題名(英文)Development of high bonding for plastic/aluminum alloys

研究代表者

桑野 亮一 (Kuwano, Ryoichi)

広島工業大学・工学部・准教授

研究者番号：30709134

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：樹脂とアルミニウム合金の間に熱可塑性エラストマインサートシートを用いる異種材料接合プロセスを提案し、またアルミニウム合金の接合密着性を向上させ、異種材料継手の高結合を実現するための周辺技術の確立について目的とした。アルミニウム合金の接合面にナノからマイクロメートル寸法の微細で複雑な凹凸形状の創生、表面汚染物の除去と酸化物層の露出、化学的活性の付与などの表面改質を行うことで、異種材料継手の引張せん断試験の結果、その接合力をアルミニウム合金の母材が塑性変形するほどの応力伝達能を有する強度を実現できた。アルミニウム合金のナノスケールな最表面の性状は、高結合の上で非常に左右することを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

マルチマテリアルの結合では、機械的や熱的などの特性が顕著に異なるため、界面相互作用の解明、高結合化、継手特性の耐久保証などの課題が多く、高結合は困難とされてきた。本研究では、そのような課題を緩和させる異種材料間に熱可塑性エラストマインサート材を用いる異種材料接合技術とアルミニウム合金の表面改質に関する周辺技術を構築できた。特にナノスケールでの表面性状が接合力に及ぼす作用に関する理解を深める点に学術的な意義が高い。

本研究成果は、環境とエネルギーに配慮した高強度で軽量な次世代の輸送機器に応用し、さらに結合部を有する工業製品をはじめ、幅広い分野や用途への適用と拡大が期待できる。

研究成果の概要(英文)：This paper proposes a process for bonding between plastic and aluminum alloy using a thermoplastic elastomer insert. Also reported are related techniques to improve alloy adhesion and achieve high bonding of other dissimilar materials. In this approach, the aluminum surface is treated for production of nano-to-micrometer size irregularities, removal of contaminants and oxides, and chemical activation. Tensile shear testing showed that such joints were strong enough to transfer stress to the aluminum alloy base metal and avoid plastic-related deformation. The nanoscale properties of the aluminum surface were found to significantly influence joint strength.

研究分野：異種材料接合，表面改質

キーワード：マルチマテリアル 異種材料接合 陽極酸化 UVパルスレーザ加工 大気圧プラズマジェット 熱可塑性エラストマインサートシート A5052 ポリアミド樹脂

1. 研究開始当初の背景

地球規模での喫緊の課題の一つに二酸化炭素排出の削減や環境負荷の低減がある。自動車や航空機に代表される輸送機器産業では、車体重量と燃費の間に強い相関があることから、構造体の軽量化が主要な対策とされている。この流れに伴って構造材料のマルチマテリアル化が加速しつつあり、異種材料の接合は、次世代の構造体を作製する上で不可欠な基盤技術に位置付けられている。しかし、異種材料間を高結合で接合するためには、現状、結合力が低いことや結合機構は諸説の議論中であり、不明確な要素が多い。また従来からの接着剤を用いる接着接合では、金属に限らずプラスチックやセラミックスなどに対する応用の広さから、異種材料間の接合にも用いられている。ところが、接着工程によって排出される揮発性有機化合物(Volatile Organic Compounds: VOC)は、光化学スモッグの原因物質や浮遊粒子状物質の原因物質とされるなどの課題を有している。したがって、環境に配慮する製造基盤技術を構築する上で、接着に伴う揮発性有機化合物を極力低減する新たな接合手法の開発が求められている。また顕著に物性差が異なる異種材料を接合することは一般に困難な現状である。そのため物性差に起因する各種課題を緩和する接合手法の開発と同時に材料表面を接合に適する性状に操作できる表面処理の役割が高結合を実現する上で極めて重要となっている。

2. 研究の目的

本研究では、今後需要が見込まれる樹脂とアルミニウム合金の異種材料接合を取り上げ、それらの接合方法および高結合を実現するための各種表面処理を含めた周辺技術に関する開発を目的とした。提案する接合手法では、異種材料間に熱可塑性エラストマインサート材を用いており、その応力緩和機能をはじめ、接合加工やその条件許容範囲の拡大、熱応力や残留応力などに起因する力学的な課題の緩和、接合部の品質に対する長期的な信頼性の確保などの効果を意図している。また本接合手法を構築するためには、力学的、光学的、伝熱的、化学的などの諸現象の理解が必要となることから、マルチスケールでマルチフィジックスにわたる新規な学術的な探究領域への展開が予想される。本研究での異種材料接合技術の取り組みでは、樹脂とアルミニウム合金の継手強度を高結合化するために、アルミニウム合金の接合密着性を向上させる表面処理に関する周辺技術も検討した。主にアルミニウム合金に対する接合密着性の向上付与を目的としたⅠ：陽極酸化処理(湿式法)とⅡ：紫外短パルスレーザを用いた表面テクスチャリング加工(乾式法)を検討した。さらにⅢ：化学的な反応性の誘起を施すための低電力大気圧プラズマジェット(Atmospheric Pressure Plasma Jet、以後 APPJ と記す)を用いる物理的表面処理技術も検討した。具体的には、ⅠからⅢにおいて、プロセス条件と加工特性の関係を調べ、高結合化に不可欠な基本特性やその関係性を実験的に評価した。

3. 研究の方法

接合材料には PA66 ポリアミド系樹脂 (20×100 mm<sup>2</sup> ; t3), A5052 アルミニウム合金 (20×100 mm<sup>2</sup> ; t2), ホットメルトインサートシートには、PA66 を主成分としカーボンブラック (以後、CB と記す) を含有させた熱可塑性エラストマインサート材 (□20 mm ; t0.1) を試作した。まず A5052 に先に示したⅠからⅢの表面処理を施した後に、それらを用いて重ね継手形状の接合部材を製作した。表 1 から表 3 にそれぞれの表面処理条件と条件記号を示す。次に表面処理後の

表 1 研究Ⅰにおける表面処理条件

電解液	リン酸
電圧	15 V
時間	20 分

表 2 研究Ⅱにおける表面処理条件

条件記号	パルス周波数 kHz	ビーム走査速度 mm/s	Δx μm (S μm <sup>2</sup> )
I	50	4000	80 (4000)
II		2000	40 (2000)
III		1000	20 (1000)
IV	20 (400)		
V	100	500	10 (100)
VI			5 (25)

表 3 研究Ⅲにおける表面処理条件と材料記号

材料記号		材料の製作条件
走査速度	10.0 mm/s	陽極酸化後 0 日 A30
ガラス管-材料間距離	20.0 mm	陽極酸化後 30 日 N=2
照射間隔	1, 2, 4 mm	A30+APPJ 照射間隔 1 mm
		A30+APPJ 照射間隔 2 mm
		A30+APPJ 照射間隔 4 mm

材料表面性状の評価には、表面の形状を光学顕微鏡，レーザ顕微鏡，走査電子顕微鏡 (SEM)；化学組成を X 線光電子分光法；接触角を接触角計でそれぞれ観察測定した。接合部材の継手の接合力を引張せん断試験の破断荷重 N を測定して評価した。

4. 研究成果

本研究では、PA66 (樹脂) と A5052 (アルミニウム合金) の異種材料の高結合を実現することを目的に、接手法と各種表面処理を含めた周辺技術に関する開発を試みた。3 つの主な成果について以下に示す。

I：樹脂とアルミニウム合金の間に熱可塑性エラストマインサート材料を用いるレーザ加熱による高結合プロセス技術の確立

本研究では、接合品質を左右する熱可塑性エラストマインサートシートを試作し、それを用いた接手法の構築と異種材料接合の高結合化に不可欠なアルミニウム合金の (陽極酸化) 表面処理の検討を行った。PA66/インサートシート/A5052 (陽極酸化処理材) の三層の接合部に対するレーザ照射条件を予備実験から、レーザ出力 1.8 kW；ビーム移動速度 15 mm/s を求めて使用した。レーザ入射側の A5052 表面上でのレーザ照射面積を吸収紙のバーンパターンから測定し、エネルギー密度は 1.3 kJ/cm<sup>2</sup> であった。図 1 にインサートシートに含有させたカーボンブラック (CB) 濃度の違いによる接合部材の破断荷重の変化を示す。インサート材料中の CB 濃度によって、三層の材料内部での加熱状態が左右される。そこで CB 濃度①から④の 4 種類について調べた。伸びと破断荷重とも CB 濃度 0.07%以下のときに増加し、CB 濃度 0.50%では著しく低かった。これは高い光吸収のためインサートシートと PA66 (被接合材) が熱分解を起こしたことが原因であった。CB 濃度の調整で材料内部の接合温度を調整できるとその濃度は 0.1%以下が適正であることがわかった。図 2 に引張せん断試験の破壊部の代表的な状態をそれぞれ示す。①から③では、接合前のインサート位置に接合でインサートが A5052 表面に密着し、引張せん断試験で引きはがされた後に残存した状況を示している。図 2 (a) と図 2 (b) に示すように CB 濃度①と②は伸びおよび破断荷重のばらつきが大きかったことと関連して、インサート材の残存割合にばらつきのある状況が観察された。一方、③の場合は、接合前のインサートシートのあった領域にほぼ均一的に残存している状況が多く認められた。これらは、まず陽極酸化による表面活性の効果と次に接合界面の適正な接合加熱ができたことによるものと考えている。図 2 (d) では、過剰な加熱の結果、インサート材の残存がなく、炭化した残留物のみが付着した状態を示している。以上の検討から、陽極酸化処理を適用したポリアミド樹脂とアルミニウム合金の間に熱可塑性エラストマインサートシートを用いる異種接合方法について、半導体レーザ加熱での異種接合が可能となった。異種材料継手の強度は最低でも 4 MPa を得た。このようにレーザによる異種材料の接合が可能となった。

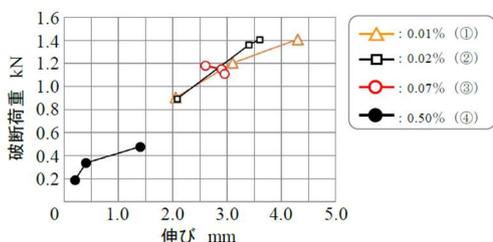


図 1 カーボンブラック (CB) 濃度と接合力の関係

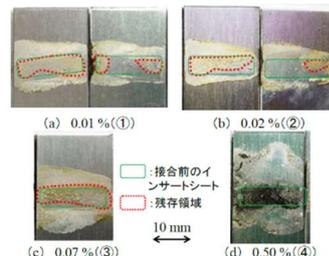


図 2 カーボンブラック含有量ごとの A5052 接合面でのインサートシートの残存量

II：紫外短パルスレーザによる乾式で迅速な表面処理技術の確立

フォトンエネルギーの高い波長 355 nm パルスレーザを用いて、レーザ照射間隔の異なる微細除去加工を行い、その表面処理効果を検討した。図 3 に示すようにレーザ照射スポットが重畳するほど、加工面は高低差 5 μm 程度の範囲で不規則で複雑な断面凹凸形状を呈した。またレーザ照射密度が上がるほど、表面層における C 由来の化合物や汚染物質が消失されるとともに酸化が促

進されることが認められた。さらに、レーザ照射すると材料表面の濡れ性が向上し、接触角が $5^{\circ}$ ほどの超親水性に変質した。これらの結果を踏まえたレーザ照射条件で試験片を製作後、A5052同士の重ね継手の接合部材を引張せん断試験で比較した結果、図4に示すようにその継手強度は10 MPaが得られた。以上より、波長355 nmパルスレーザ照射によってA5052の微細複雑形状、表面の清浄と酸化の促進、化学的な活性などが付与されることによって、接合力を向上できることを明らかにした。

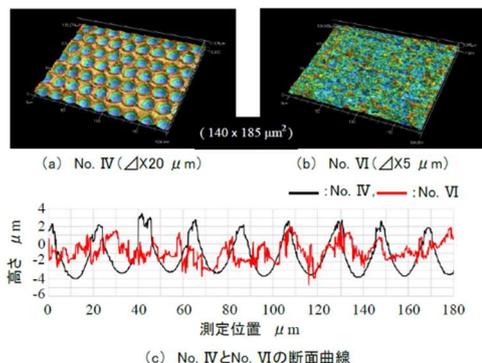


図3 UVパルスレーザ加工による加工面形状

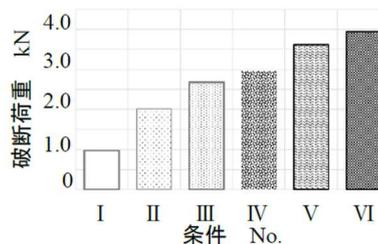


図4 接合力向上に対するレーザ照射密度の効果

### III：低電力駆動の大気圧プラズマジェット照射による表面活性回復技術の確立

陽極酸化したA5052の表面活性さの回復を目的として、10 W程度の低電力で動作する大気圧プラズマジェット (APPJ) 照射装置を試作し、陽極酸化処理から日数が経過したA5052表面にAPPJ照射し、PA66とA5052の異種材料接合力の効果を評価した。大気圧プラズマジェットの照射密度を変化させ、A5052表面の親水性の変化と異種接合継手に対する引張せん断試験の結果を図5に示す。陽極酸化後0日の材料A0の接触角は $8.6^{\circ}$ であり、陽極酸化が未処理の材料の10分の1ほどに低下した。一方、陽極酸化後30日経過のA30試料表面の接触角は $16.6^{\circ}$ に増加した。陽極酸化後30日経過の試料にAPPJを照射間隔4, 2, 1 mm (走査速度10 mm/s一定)と照射密度を高くすることに伴って、接触角は低下し照射間隔が最も密な1 mmのとき $6.0^{\circ}$ であった。短時間のAPPJ照射で親水性が向上したことを確認した。また異種接合継手の接合力は、陽極酸化後0日では破断荷重が1.63 kNと最も高かった。一方、30日経過後の試料A30による接合部材では1.08 kNと最も低い値を示した。図に示すように30日経過後の試験片にAPPJ照射密度を高くするほど親水性の向上とともに破断荷重が高くなりAPPJ照射間隔1 mmのとき1.43 kNが得られ、これは陽極酸化後0日の88%にあたる。図6に材料表面のSEM観察像を示す。図6(a)と図6(b)は、陽極酸化後から30日と180日それぞれ経過した後の材料表面である。日数の経過に伴って材料表面上に形成物が認められた。しかし、それら両試料にAPPJを照射しても、それによる形状変化はナノスケールの観察からも認められなかった。以上から、APPJ照射処理によって、A5052最表層の化学的な活性さや親水性が向上するため、PA66とA5052の異種材料接合部材の接合力を向上させることができたと考えられる。

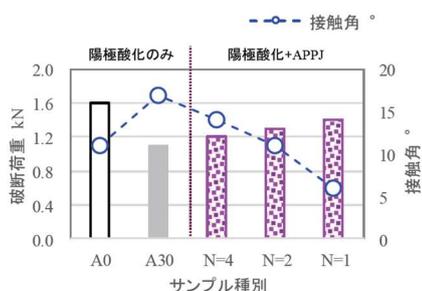


図5 APPJ照射の効果

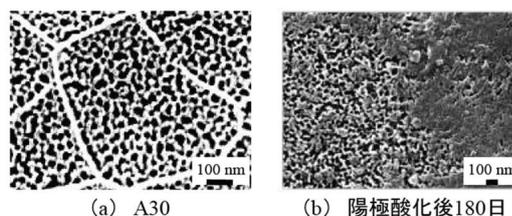


図6 表面形状

以上のとおり本研究では、材料物性差が顕著に異なることに関連して、接合が困難な異種材料間（ポリアミド樹脂とアルミニウム合金）の接合を実現するため、異種材料間に熱可塑性エラストマインサート材を用いる接合手法を提案し、同時に高結合化のための周辺技術（Ⅰ：陽極酸化処理，Ⅱ：UV パルスレーザー表面加工，Ⅲ：低電力 APPJ 照射処理）を検討した。それらの結果、困難であったポリアミド樹脂とアルミニウム合金の異種材料接合を可能とし、その継手強度は 4 MPa が得られた。また、アルミニウム合金の表面密着性を向上させる各表面処理の周辺技術の効果によって、引張せん断試験で破断した異種材料接合部材において、アルミニウム合金（母材）が塑性変形するほどの密着性を付与することができた。さらに、異種材料接合の高結合化には、ナノスケール領域での最表層の形状、化学組成、さらに化学的な活性などが相互に関連したことも明らかにした。得られた成果は、マルチマテリアル化が求められている輸送機器分野をはじめとする次世代の構造体作製に不可欠な基盤技術としての展開が期待できる。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 日野 実, 橋本 尊幸, 藤野 勇希, 桑野 亮一, 金谷 輝人	4. 巻 71
2. 論文標題 AZ91Dマグネシウム合金の接着性に及ぼすリン酸塩陽極酸化処理およびレーザー照射の影響	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 軽金属	6. 最初と最後の頁 241-245
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2464/jilm.71.241	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 日野 実, 桑野 亮一, 永田 教人, 山下 満, 福室 直樹, 松本 歩, 八重 真治, 永田 員也, 園田 司, 金谷 輝人	4. 巻 72
2. 論文標題 接着性および耐食性に優れたA5052アルミニウム合金への陽極酸化処理	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 表面技術	6. 最初と最後の頁 713-715
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4139/sfj.72.713	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 日野 実, 城戸 竜太, 橋本 尊幸, 窪田 竜成, 桑野 亮一, 永田 教人, 金谷 輝人	4. 巻 72
2. 論文標題 短パルスレーザーによるA5052アルミニウム合金の表面加工と接着性	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 表面技術	6. 最初と最後の頁 695-700
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4139/sfj.72.695	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 城戸竜太, 桑野亮一, 日野 実, 村山敬祐, 黒坂成吾, 小田幸典, 堀川敬太郎, 金谷輝人	4. 巻 84
2. 論文標題 A5052-H14およびA2017-T4アルミニウム合金の疲労特性に及ぼす表面処理の影響	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 日本金属学会誌	6. 最初と最後の頁 74-79
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2320/jinstmet.JB201904	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 日野 実, 今井田 至世, 桑野 亮一, 西條 充司, 金谷 輝人	4. 巻 71
2. 論文標題 AZ91Dマグネシウム合金の接着性に及ぼすリン酸塩陽極酸化処理および後処理の影響	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 表面技術	6. 最初と最後の頁 298-302
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4139/sfj.71.298	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 桑野亮一, 日野 実, 永田教人, 永田員也, 徳永 剛
2. 発表標題 A5052アルミニウム合金とポリアミド樹脂の異種材料接合における 大気圧プラズマジェット照射の表面処理効果
3. 学会等名 精密工学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 桑野亮一, 日野 実, 永田教人, 永田員也, 徳永 剛, 古賀俊彦
2. 発表標題 UVレーザによるA5052アルミニウム合金の表面加工とその接合性
3. 学会等名 精密工学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 桑野亮一, 日野 実, 永田教人, 永田員也, 徳永 剛
2. 発表標題 アルミニウム合金とポリアミド系樹脂の異種材料のレーザ接合
3. 学会等名 精密工学2020年度秋季大会学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 桑野亮一, 徳永 剛, 森田 翔
2. 発表標題 レーザビームシェイピングの方法とレーザ加工への展開
3. 学会等名 精密工学2020年度秋季大会学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 桑野亮一, 日野 実, 永田教人, 永田員也, 徳永 剛
2. 発表標題 ポリアミド樹脂とA5052アルミニウム合金の異種材料接合における低電力駆動の大気圧プラズマジェットによる表面処理の効果
3. 学会等名 スマートプロセス学会第27回「エレクトロニクスにおけるマイクロ接合・実装技術」シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 日野 実, 進野諒平, 桑野亮一
2. 発表標題 アルミニウム合金 - 樹脂異材接合に及ぼすレーザ照射の影響
3. 学会等名 スマートプロセス学会第27回「エレクトロニクスにおけるマイクロ接合・実装技術」シンポジウム
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 桑野亮一, 日野 実, 徳永 剛, 森田 翔	4. 発行年 2021年
2. 出版社 日本工業出版	5. 総ページ数 4
3. 書名 光アライアンス	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	日野 実  (Hino Makoto)  (70510486)	広島工業大学・工学部・教授    (35403)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関