

CFRP と各種金属との接着・接合技術

中田 一博 大阪大学

1. 異種材料接合技術の必要性

地球温暖化防止や大気環境保全の観点から，自動車の排ガス規制が一段と強化され，燃費向上のためにも自動車車体の軽量化が急務となっている。

車体の軽量化の方法として，強度の高い高張力鋼，鉄よりも軽い軽量金属材料である Al 合金や Mg 合金，さらに，より軽量化が期待できる樹脂材料や炭素繊維強化複合材料 (CFRP) を利用する方法があり，材料コストと製造コストを考慮して，これらの異なる特性を有する構造用材料を，適材適所で組合せて，軽量化と生産コストの両方の課題を同時に克服しようとするマルチマテリアル化が注目されている^{1,3)}。

このなかで，金属材料同士のみならず，まったく材料構造が異なる金属と樹脂，あるいは CFRP との接合までもが要求されてきている。

2. 金属と樹脂・CFRP の接合法の特徴

あらかじめ板やシート状に加工された樹脂・CFRP 材料と金属材料との異種材料接合法として，これまでに，接着剤を用いる接着法，リベットなどの機械的締結法，金属材料を加熱して樹脂を溶融して接合する熱圧着（融着）法などが用いられている。これらの接合法の特徴をまとめると表 1 のようになる。

接着法では接着剤が用いられるために，十分な接合強度が得られるまでに一定の時間（接着剤の硬化時間）が必要なことと，有機溶媒の周辺環境への影響，さらに接着剤の経年劣化等の対策が必要である。また機械的締結においても工程の効率化やリベット材等のコストが指摘されている。

一方，熱圧着（熱融着）法には，高周波加熱などにより金属材料を加熱して樹脂を局部的に溶融して接合する

表 1 実用化されている金属／樹脂異種材料接合法の特徴

接合法	接手法	特長	欠点
接着法	接着剤	<ul style="list-style-type: none"> 継手形状・寸法の自由度大 熱可塑性及び熱硬化性樹脂に適用可 	<ul style="list-style-type: none"> 消耗品（接着剤）必要 溶媒溶液の安全性 接着剤固化時間の確保
機械的締結法	<ul style="list-style-type: none"> リベット ボルト かしめ 	<ul style="list-style-type: none"> 継手形状・寸法の自由度大 熱可塑性及び熱硬化性樹脂に適用可 	<ul style="list-style-type: none"> リベット，ボルトでは消耗品必要 但し，かしめでは不要
熱圧着法	<ul style="list-style-type: none"> 高周波加熱 抵抗加熱 レーザ加熱 超音波圧着 	<ul style="list-style-type: none"> 継手形状・寸法の自由度大 熱可塑性樹脂に適用 消耗品不要 	<ul style="list-style-type: none"> 熱硬化性樹脂への適用不可
インサート成形（射出成形法）	金型を用いた溶融樹脂の射出成形	<ul style="list-style-type: none"> 小物部品の大量生産可能 熱可塑性及び熱硬化性樹脂に適用可 	<ul style="list-style-type: none"> 部品形状，寸法に大きな制約有り

方法や、樹脂が透明な場合には樹脂を透過してレーザービームを照射し、金属との接合界面で金属を加熱してその熱で樹脂を局部的に溶融して接合する方法などがある。これらの熱圧着法ではいずれの方法でも接合可能な樹脂は熱可塑性樹脂に限定される。

また適用製品は異なるが、最近特に注目されている方法に、溶融した樹脂を金型内に高圧で注入して成型する射出成形法を応用したインサート成形法がある。あらかじめ金型内に設置した金属と、注入された樹脂を直接接合して部材を作成するもので、小型部材の作製法として一部で実用化されている⁴⁾。しかし、その一方、金型を用いるために形状やサイズに大きな制約があり、大型部材や複雑な形状の部材などへの適用や、あるいは現場での組立工程などへの対応は難しいのが現状である。

最近では接着剤やリベット等を用いずに、金属と樹脂等を直接接合する方法が求められており、熱圧着（融着）法において、新しい加熱源として、レーザーを用いる方法や摩擦発熱を用いる方法が注目されている。本稿では、後者について著者の研究内容を中心に紹介する。

3. 直接接合法

3.1 摩擦重ね接合法（FLJ法）とその接合機構

加熱熱源として摩擦エネルギーを利用する摩擦重ね接合法（Friction Lap Joining, FLJ）接合法の原理図を図1に示す。金属と樹脂を重ねて、金属の表面に高速回転する棒状のツールを押し付けることにより、摩擦発熱により金属表面を加熱し、その熱伝導により接合界面の樹脂を溶融する方法⁵⁾であり、ツールを移動させることにより金属/樹脂の連続した重ね継手が得られ、密着性に優れ、かつ、引張せん断試験では樹脂母材破断を示す良好な継手強度が得られている。これまでに金属材料としてはAl合金、Mg合金、炭素鋼、ステンレス鋼、銅およびチタンにおいて樹脂材料との接合が確認されている。

FLJ法は、その接合原理から熱可塑性樹脂に適用され、熱硬化性樹脂への適用は困難である。さらに構造式中に極性官能基を有しているポリアミド（PA）などの樹脂は良好な接合性を示すが、極性官能基の無いポリエチレン（PE）やポリプロピレン（PP）などの樹脂の接合は困難であり、樹脂変性などの特別な対策が必要である。

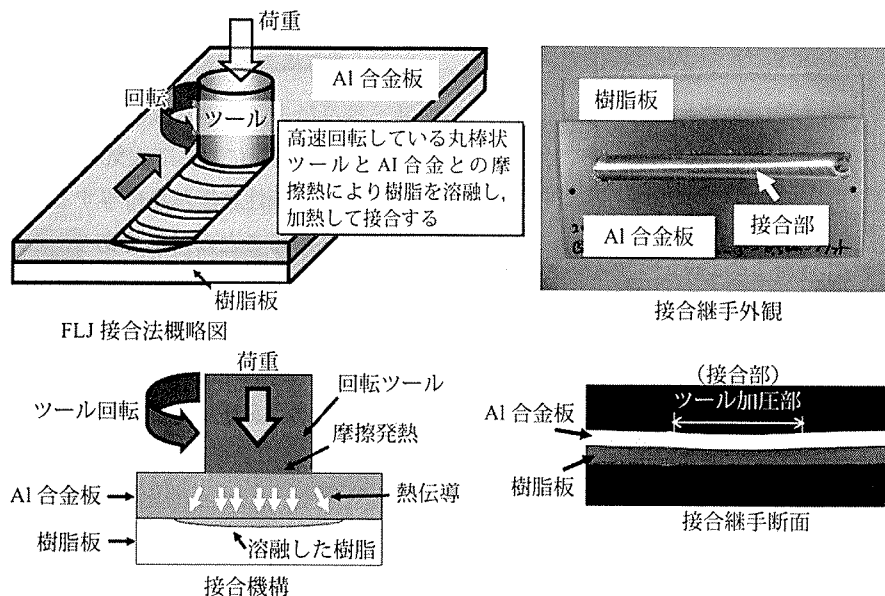


図1 摩擦エネルギーを利用した金属と樹脂との直接接合法：摩擦重ね接合法（FLJ法）

図2は、極性官能基であるCOOH基を有するエチレンアクリル酸コポリマー（EAA）と極性官能基を持たないポリエチレン（PE）の2種類の熱可塑性樹脂を用いて、Al合金A2017との接合を行った結果であり、得られた継手の引張せん断破断荷重を示す⁶⁾。Al合金の表面状態の影響についても、受入のままの状態と、表面に人工的に酸化アルミニウム皮膜を形成するアルマイト皮膜処理を施したものを比較検討したものである。極性官能基を有するEAA樹脂では、Al合金の表面状態にかかわらず継手が形成され、受入材のままでは破断は主として接合界面であったのに対して、アルマイト皮膜処理材ではすべて樹脂母材破断となり、このことは接合界面の強度は樹脂母材の強度よりも強いことを意味しており、良好な接合継手が得られた。その一方、極性官能基が無いPE樹脂では、Al合金の表面状態が受入材のままでは溶解したPEとAl合金は接合されなかった。しかし、アルマイト皮膜処理材では接合が可能であり、かつ樹脂母材破断を示し、良好な接合継手が形成された。

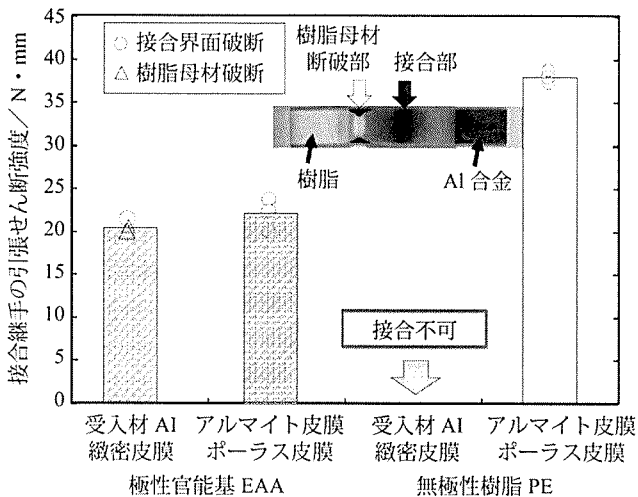


図2 FLJ法における接合性に及ぼす樹脂特性とAl合金の表面状態の影響

図3は接合界面の高倍率透過型電子顕微鏡観察結果を示す。極性官能基であるCOOH基を有するEAA樹脂では(a)に示すようにAl合金受入材表面に存在する数ナノの厚さの酸化アルミニウム層を介して接合されており、反応層は認められなかった。接合機構として図中に

示すように、分極した極性官能基と、同様に分極していると考えられる酸化アルミニウム層との間で、強い静電引力による分子間力（水素結合）により接合されたと考えられる。一方、PEの場合では(b)に示すようにアルマイト皮膜表面には多数の細孔が存在しており、(c)に示すようにさらに接合界面を拡大すると、ナノサイズレベルの細孔の中に溶解したPE樹脂が流入して固まった形跡（接合界面の破線で囲った部分）が認められ、いわゆるアンカー作用が発生し、機械的締結により接合されたことを示唆している⁶⁾。

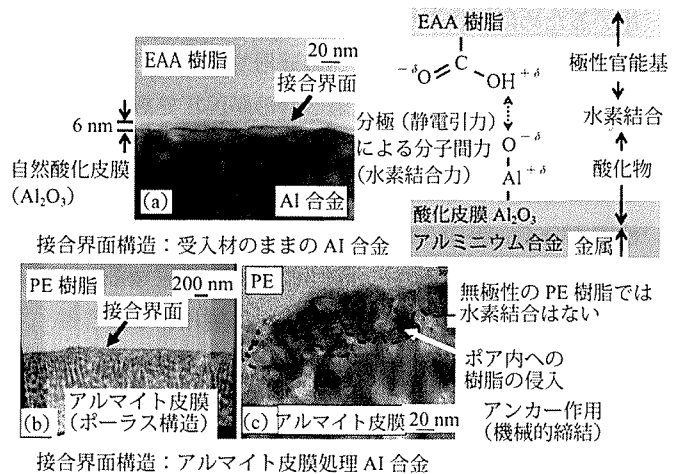


図3 FLJ法によるEAA樹脂/受入材Al合金継手およびPE樹脂/アルマイト処理Al合金継手の直接接合界面の微細構造と想定される金属/樹脂の接合機構

また、PE樹脂に対して大気中コロナ放電処理を行うと、樹脂表面に極性官能基を付与することができ、接合性を大幅に高めることが可能であり、FJL法でも継手引張試験で樹脂母材破断を示す良好な継手が得られている⁷⁾。

鉄鋼材料として軟鋼（SPCC）やステンレス鋼と樹脂ポリアミド（PA）との継手においても、引張せん断試験では樹脂母材破断を呈する良好な接合継手が得られている^{7,8)}。この場合にも、接合界面には鉄鋼材料由来の鉄酸化物層やクロム酸化物層の存在が確認されている。図4は、SPCCとPA6樹脂とのFLJ法による重ね継手とその接合界面構造を示す。数十nm厚さの酸化物層を介しての水素結合効果による接合機構が示唆されている。

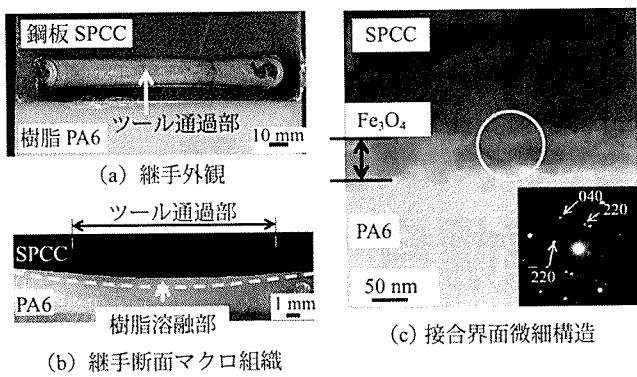


図4 SPCC (低炭素冷間圧延鋼板) とポリアミド樹脂 PA6 の FLJ 法による重ね継手と TEM による接合界面構造

さらに FLJ 法は，極性官能基を有する熱可塑性樹脂をマトリックス材料とする CFRP と金属との接合にも適用可能である。図5は，熱可塑性樹脂であるポリアミド PA6 をマトリックス樹脂として，射出成形により作られた短繊維 CFRP 板（繊維径数 μm ，繊維長 200 ~ 300 μm ，添加量 20 質量%）と Al 合金 A5052 との重ね継手の接合界面組織であり，接合条件の最適化により CFRP 母材破断や CFRP の一部母材破断を呈する良好な継手が得られている^{9,10}。接合界面の解析により，接合は，マトリックス樹脂と Al 合金表面の酸化皮膜（この場合は，合金元素の Mg が酸化した MgO）との間の水素結合によると考えられ，炭素繊維が直接，接合に寄与した形跡は認められていない。CFRP の特長を生かして接合するためには，炭素繊維と Al 合金との直接反応や，あるいはアンカー作用への直接寄与などのさらなる工夫が必要と考えられる。

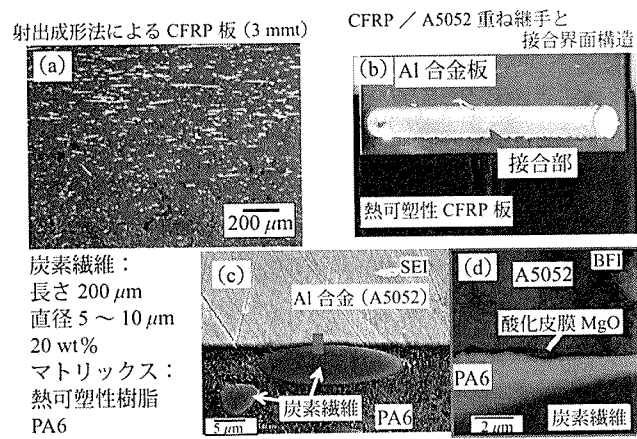


図5 FLJ 法による Al 合金 A5052 / 熱可塑性 CFRP (PA6 マトリックス) の直接接合継手と接合界面構造

以上のように，金属 / 樹脂の接合には，樹脂の極性官能基と金属表面の酸化皮膜との間で作用する水素結合力，ならびに金属表面の微小凹凸に由来するアンカー作用による機械的締結力が接合性に影響することが明らかになってきている⁶⁻¹¹。

3.2 シランカップリング反応の効果

更なる接合強度の向上のためには，分子間力である水素結合力よりも強力な接合力が必要であり，その方法として，例えばシランカップリング反応を利用した化学結合力による接合が挙げられる。金属表面に塗布された反応剤が加熱処理により金属表面の酸化皮膜及び樹脂の両方と化学結合を起こすものである。図6は一例として Al 合金 / CFRP 継手強度に及ぼすシランカップリング処理の効果を示している。シランカップリング処理を施した Al 合金との継手は引張せん断試験により CFRP 母材破断を示し，その接合強度は接合界面破断を呈した水素結合力による継手強度の約 2 倍まで増加した¹²。また鉄鋼材料に対しても同様の有効性が確認されている。

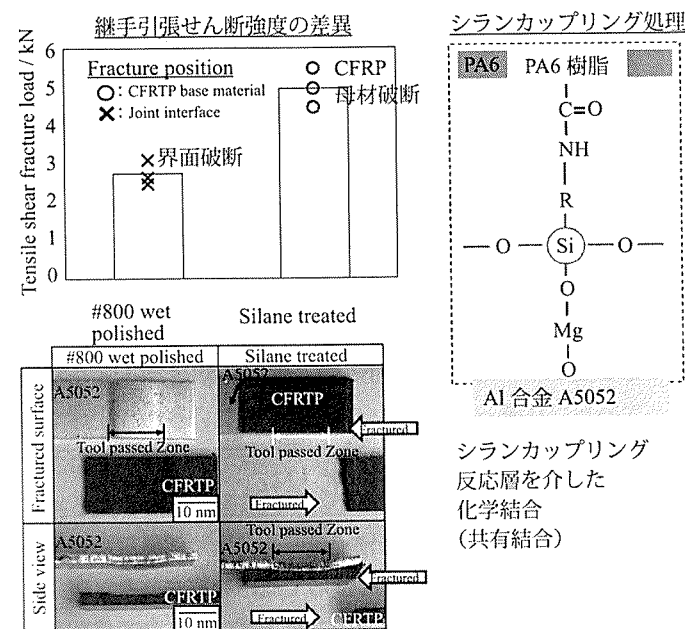


図6 FLJ 法における Al 合金 A5052 / 熱可塑性 CFRP (PA6 マトリックス) の接合性に及ぼすシランカップリング処理の効果と接合機構

3.3 アンカー作用の効果

射出成形の一種であるインサート接合法においては、特殊な表面処理法によって金属表面に予め数十～数百 nm サイズ径の多数の微細な孔を形成して接合することにより、孔内へ熔融樹脂が侵入し固化することによるアンカー作用で高い接合強度が得られており、既に実用化も始まっている^{4,13)}。既に図3で述べたポーラスアルマイト皮膜は数十 nm サイズのアンカー作用の例である。

また、細く絞ったレーザービームを高速で金属表面に照射して局所熔融させると、例えば Al 合金 A5052 に対する図7(a)に示すような、数十～数百 μm サイズの複雑な凹凸形状の表面熔融部が得られる。これがアンカー作用を有効に発揮する特殊表面処理法として注目されている¹⁴⁾。図7(b)は、(a)に対して FLJ 法で CFRP (PA6 マトリックス) を直接接合した接合界面組織である。Al 合金表面の深さ約 100 μm の細長い細孔の先端部にまで熔融した樹脂が浸入しており、接合継手の引張せん断試験では CFRP 母材破断を呈し、優れたアンカー効果を示した。

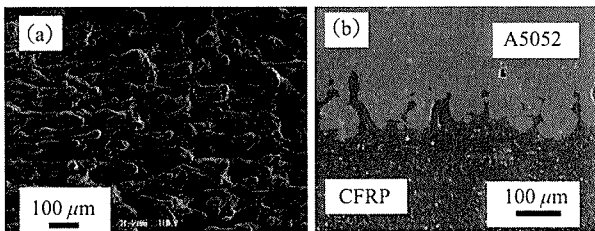


図7 レーザ表面熔融処理 (DLAMP 法) 後の Al 合金 A5052 の表面状態と FLJ 法による熱可塑性 CFRP (PA6 マトリックス) との接合継手界面における熔融樹脂の孔内への侵入状態

4. おわりに

以上、金属/樹脂 (高分子材料) の異種材料接合の現状について、最近の話題も含めて概略を紹介した。実用化のためには単に継手強度のみならず、部材や最終製品の用途により、要求性能は多岐に亘ることが想定される。このためには静的強度以外にも、疲労強度や衝撃特性、耐食性、耐候性、耐熱性などの諸特性も合わせて検討す

る必要がある。なお、本稿の一部は、NEDO 受託研究事業「革新的新構造材料等技術開発」による成果である。

文献

- 1) 例えば、「BMW7 シリーズ、骨格心材への CFRP 適用で 130kg 軽量化」日経テクノロジー online, (2015 年 10 月 12 日)
- 2) 「異種材料一体化のための最新技術～溶接・接着剤・一体成形・加飾～」, サイエンス&テクノロジー, (2012 年 1 月)
- 3) 「異種材料接合, 何でもくっつける技術が設計を変える」, 日経 BP 社, (2014 年 12 月)
- 4) 日経ものづくり: 設計をここまで変える金属・樹脂接合, 2011 年 11 月号 66-69
- 5) 中田一博 他, 特許第 817140 号 (2015 年 10 月 9 日), 特願 2011-035001, 金属部材と樹脂部材との接合法
- 6) 岡田俊哉, 内田壮平, 中田一博, 摩擦重ね接合によるアルミニウム合金と樹脂材料の直接接合特性に及ぼすアルマイト皮膜処理の影響, 軽金属溶接, 53(2015), 298-306
- 7) K. Nagatsuka, D. Kitagawa, H. Yamaoka, K. Nakata, Friction Lap Joining of Thermoplastic Materials to Carbon Steel, ISIJ International, 56(2016) 1226-1231
- 8) B.L.XIAO 他: 溶接学会全国大会講演概要集, 97 (2015.9) 16-17
- 9) K. Nagatsuka, S. Yoshida, A. Tsuchiya, K. Nakata, Direct joining of carbon-fiber-reinforced plastic to an aluminum alloy using lap joining, Composites: Part B, 73(2015)82-88
- 10) 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, 溶接学会論文集, 35(2017), 29-35
- 11) 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, 32(2014), 235-241
- 12) 永塚公彬, 田中宏宣, 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, 33-4(2015) 317-325
- 13) <http://taiseiplas.lekumo.biz/blog/index.html>
- 14) <http://www.daicelpolymer.com/ja/topics/archive/1404DLAMP/>



車載テクノロジー

Automotive Technology 2017.06

特集1 全固体電池の最新開発動向と自動車への応用可能性

バルク型全固体酸化物電池の構築に向けた Li_3BO_3 ベース酸化物固体電解質の開発

大阪府立大学 長尾賢治 作田敦 林晃敏 辰巳砂 昌弘 ————— 1

单相型リン酸塩系全固体 Na イオン電池

九州大学 猪石篤 岡田重人 ————— 7

液相加振法による硫化物系固体電解質の調製と全固体リチウムイオン電池への応用

豊橋技術科学大学 松田厚範 ————— 10

Argyrodite 型化合物の概要と特性

三井金属鉱業(株) 宮下徳彦 ————— 14

ポリマー・リチウムイオン電池の応用展開

泉化研(株) 菅原秀一 ————— 18

特集2 自動車軽量化へのマルチマテリアル化と異種材料の接着、接合技術

異種材料接合技術について

マツダ(株) 高見明秀 ————— 31

自動車軽量化へのアルミニウム合金の接合技術

(株)UACJ 田中晃二 ————— 36

CFRP と各種金属との接着・接合技術

大阪大学 中田一博 ————— 42

軽量化に向けたレーザー樹脂溶着の自動車部材への応用

(株)タマリ工業 三瓶和久 ————— 47

赤外線カシメによる異種材料の接合技術と自動車部品への応用

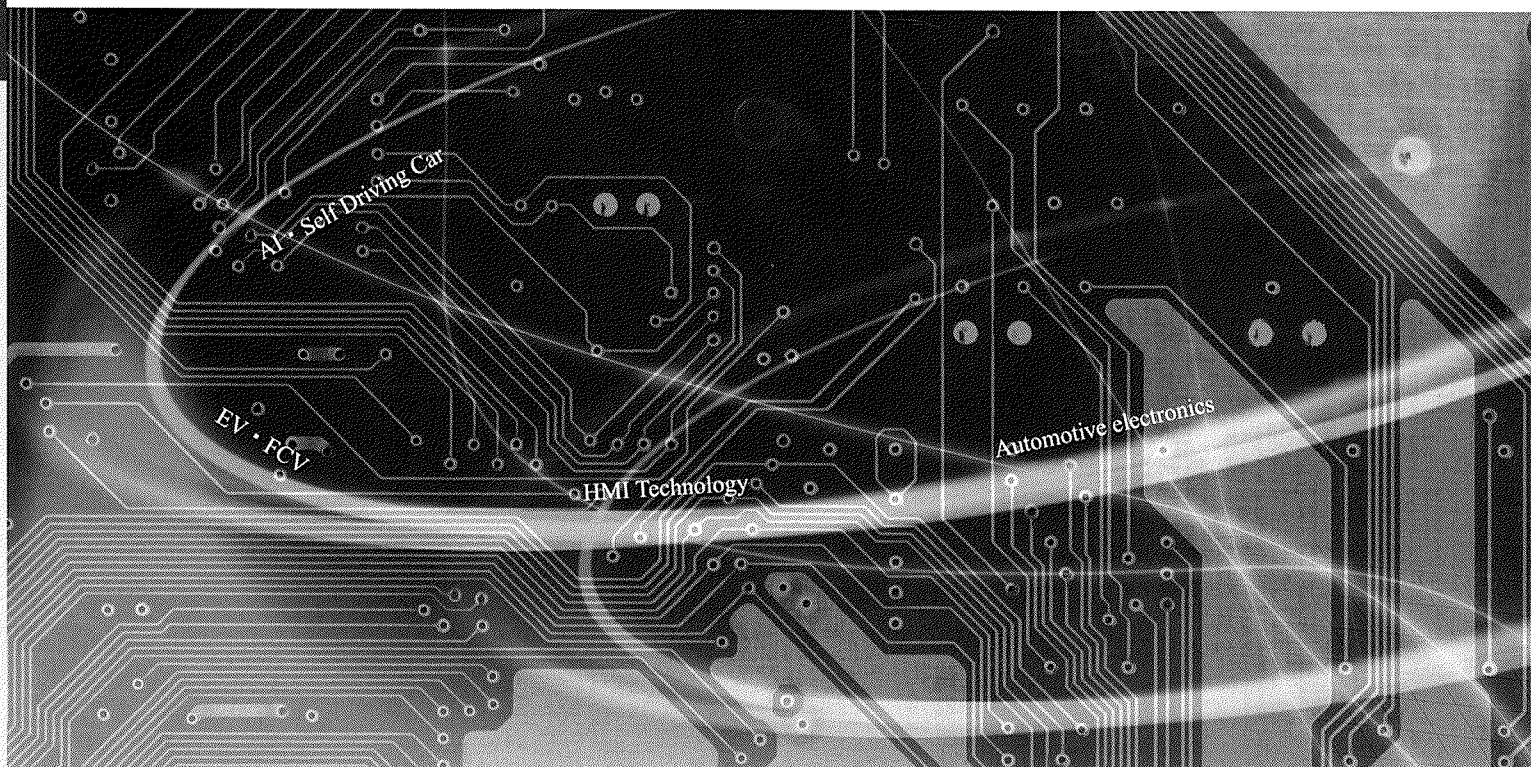
日本アレックス(株) 遠山達也 ————— 54

車載テクノロジー最前線

- ICT 機器の遠隔操作を可能とするフィンガージェスチャー技術と車載機器への応用
NEC ソリューションイノベータ(株) 渡部 博之 ————— 61
- 超多眼立体表示を用いた自動車用ヘッドアップディスプレイ
東京農工大学 高木 康博 ————— 67
- ディープラーニングを用いた歩行者検出技術
中部大学 山下 隆義 ————— 71
- リチウムイオン電池用セパレータの機能性コーティング技術と車載用途への展開
帝人(株) 西川 聡 ————— 76
- 自動車室内の振動, 騒音の発生メカニズムと対策事例
群馬大学 松村 修二 ————— 81
- アモルファス軟磁性合金とナノ結晶軟磁性合金の xEV への応用
日立金属(株) 片山 靖久 ————— 86

車載テクノロジー

Automotive Technology



特集 1 全固体電池の最新開発動向と自動車への応用可能性

特集 2 自動車軽量化へのマルチマテリアル化と
異種材料の接着、接合技術

<車載テクノロジー最前線>

フィンガージェスチャー技術と車載機器への応用

超多眼立体表示を用いた自動車用ヘッドアップディスプレイ

ディープラーニングを用いた歩行者検出技術

隔月刊



2017 Jun