

令和 6 年 6 月 2 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01662

研究課題名(和文)特性劣化のないAl/Fe接合体の設計・制御のための界面層強度発現機構の解明

研究課題名(英文) Strengthening mechanism of reaction layer at Fe/Al interface to design and control the Al/Fe weld without property deterioration

研究代表者

佐藤 裕 (Sato, Yutaka)

東北大学・工学研究科・教授

研究者番号：00292243

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、Al/Fe異種金属接合におけるZn添加、Zn+Ni複合添加、およびNi添加による界面強度発現機構の解明を目的とした。界面マイクロ組織観察やナノインデンテーション試験から、Zn添加およびZn+Ni複合添加はFe-Zn系化合物の形成に起因する界面層の硬さ低下、またNi添加は微細な Fe_2Al_5 相の形成に起因する内部にFeを多く含まない密な界面層の形成が、それぞれAl/Fe異種金属接合における界面強度発現に寄与することが示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の過程で、Al/Fe異種金属接合体の破壊は界面層におけるき裂の発生によって支配され、その接合強度は界面層におけるき裂発生応力と相関があることが示唆された。したがって、き裂の発生起点を抑制した界面層の設計を達成することができれば、Al/Fe接合に限らず、界面層を介して接合が達成されるAl/Cu、Al/Mg、Fe/Tiなどの異材接合についてもさらなる界面強度向上が期待される。そのため、異材接合の高強度化のための指針を提示した本研究は、学術的および社会的にも有用といえる。

研究成果の概要(英文)：This study aimed to elucidate the strengthening mechanism of dissimilar weld interface of Al to Fe by additions of alloying elements, such as Zn, Ni and Zn+Ni. Microstructure observations and nanoindentation tests of the layer revealed that the addition of Zn and Zn+Ni reduced the hardness of the interfacial layer through formation of Fe-Zn compounds. Single addition of Ni resulted in formation of dense interfacial layer consisting of fine Fe_2Al_5 grains with low fraction of Fe islands. These microstructural changes achieved by the additional elements might contribute to the strength improvement in the Al/Fe dissimilar weld.

研究分野：溶接・接合

キーワード：異材接合 Al/Fe接合 反応層 元素添加 機械的性質 ミクロ組織

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

異材接合は豊かな社会構築に不可欠な技術であるが、接合時に脆弱な界面層が形成されるため、求められる接合強度を達成することは難しく、汎用化に至っていない。研究代表者らは、種々の異材接合において、界面への元素添加により接合強度を大幅に向上させることに成功した。しかし、既存の材料強度学に基づいて界面層の強度発現機構を定量的に説明するに至っておらず、強度発現因子の形成機構に及ぼす合金元素の影響も解明されていない。

2. 研究の目的

本研究では 5052Al 合金 / Fe 接合に Zn 添加、および Zn と Ni を複合添加した際の界面強度発現機構、さらに単一添加のみならず他の元素 (Si, Zn) との複合添加でも接合強度を向上させる Ni 添加に着目し、接合強度を支配する界面層特性の決定をつうじて、Ni 添加による界面強度発現機構を明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

ティグ溶接を用いて Al / Fe 重ね異材接合を行った。供試材として、Fe 側には添加元素の少ない interstitial-free (IF) 鋼を用いた。Al 側供試材には種々の Al 合金を併用した。まず、接合強度に及ぼす Zn 添加および Zn+Ni 複合添加の影響を市販 5052Al 合金を調べた。また、接合界面に Zn を添加するために Zn 添加量の異なる Al-Zn 系溶接棒を自作し接合に用いた。さらに、Ni を複合添加する際には厚さ 20 μm の Ni を Fe 表面にめっきしたうえで接合した。Ni 添加の影響は、添加元素の少ない市販 1050Al 合金、および鋳造・圧延により自作した Al-Ni 合金を用いて調べた。また同様の方法で種々の Al-X 合金 (X: Ni 以外の元素) を作製し、接合に供することで異なる組織の界面層を作りこみ、界面強度発現機構解明の一助とした。接合後、引張せん断試験により接合強度を評価した。その際、試験片にスリットを導入することで、異なる Al/Fe 接合体間で界面強度が比較できるように試験面積を 20 mm^2 に統一した。接合界面のミクロ組織を SEM、TEM を用いて観察した。ナノインデンテーション法を用いて、界面層の機械的特性を評価した。なお、ナノインデンテーション法の条件および圧子 (パーコピッチあるいは球状) は目的に応じて適宜使いわけた。

4. 研究成果

(1) 5052Al 合金 / Fe 接合強度に及ぼす Zn 添加および Zn+Ni 複合添加の影響

図 1 に 5052Al 合金 / Fe 接合強度に及ぼす Zn 添加および Zn+Ni 複合添加の影響を示す。接合強度は添加元素なしの場合には約 40 MPa だったが、Zn 添加で最大約 60 MPa、Zn+Ni 添加で最大約 120 MPa まで向上した。また、Zn 添加および Zn+Ni 複合添加で得られた接合体において、それぞれ最大強度が得られた接合体の荷重 - 変位曲線の例を示す。この曲線で示すように、試験片はすべて脆性破壊した。また破面から取得した XRD スペクトル解析から、破断は接合界面に形成される $\eta\text{-Fe}_2\text{Al}_5$ 層内で生じることがわかった。

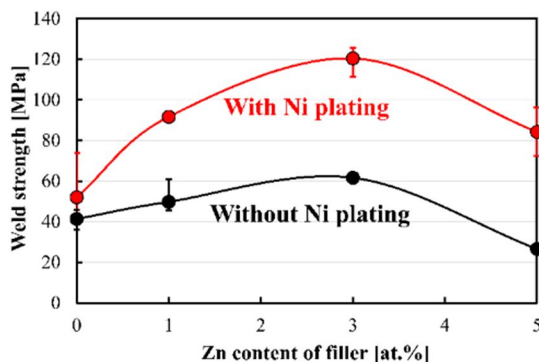


図 1 5052Al 合金 / Fe 接合強度に及ぼす Zn 添加および Ni+Zn 複合添加の影響

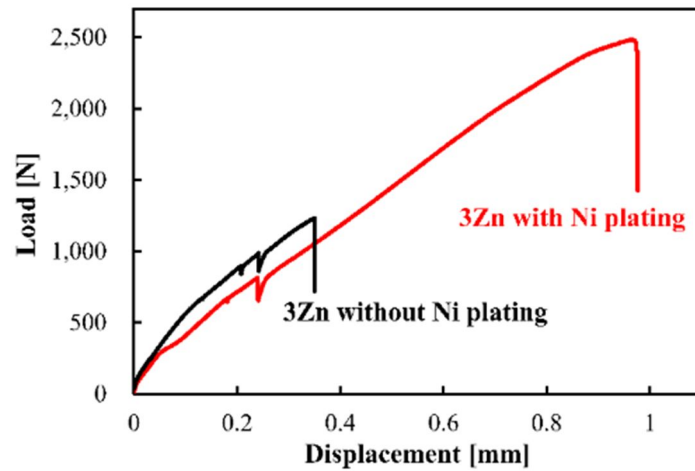


図2 Zn 添加および Zn+Ni 複合添加で得られた接合体の荷重 - 変位曲線

(2) Zn 添加および Zn+Ni 複合添加による界面強度発現機構

Al / Fe 接合では界面層が薄くなるほど接合強度が向上することが知られている。図 3 にティグ溶接で得られた Al / Fe 接合強度に及ぼす界面層の厚さの影響を示す。1050Al 合金 / Fe 接合体 (添加元素なし) については、界面層が薄くなるほど接合強度が向上しているが、Zn 添加および Zn+Ni 複合添加の場合には界面層の厚さと接合強度の間には相関がみられない。このことは Zn 添加および Zn+Ni 複合添加による界面強度発現機構には、界面層の薄層化以外の要因があることを示唆している。そこで破断き裂が進展する界面層の硬さを、パーコピッチ圧子を用いたナノインデンテーション法により測定した。図 4 に界面層の硬さと接合強度を示す。添加元素なしの場合の界面層の硬さは約 7 GPa であるのに対して、Zn 添加で約 6 GPa、Zn+Ni 複合添加で約 4 GPa まで低下した。また、界面層の硬さの低下にともなって接合強度が向上することが示唆された。

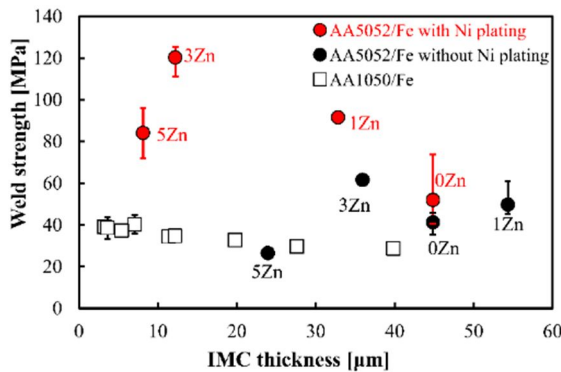


図3 ティグ溶接で得られた Al / Fe 接合体の強度に及ぼす界面層厚さの影響

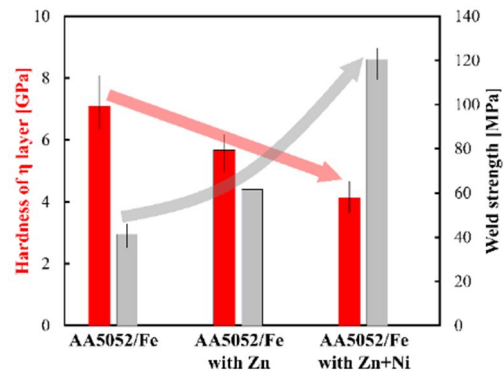


図4 各種接合体の界面層硬さと接合強度

(3) 界面層の硬さ低下機構

図 5 に界面層の断面 TEM 写真を示す。Zn 添加、Zn+Ni 複合添加どちらの場合でも、界面層内に Fe-Zn 系化合物 (ζ -FeZn₁₃ および δ_{1p} -FeZn₁₀) が微細に分散する様子が観察された。またこれらの核生成サイトは、 $\eta/\eta/\eta$ 粒界や $\eta/\eta/\text{Fe}$ 粒界などの 2 つ以上の η 結晶が関わる粒界であった。Fe-Zn 系化合物は、界面層の主な構成相である η 相と比較して、硬さが非常に低いことが知られている。したがって、Zn 添加による界面層の硬さ低下は、硬さが低い Fe-Zn 系化合物の層内分散

に起因することが示唆された。また Zn+Ni 複合添加により、Zn 添加の場合よりもさらに硬さが低下するのは、Ni 添加による η の結晶粒微細化効果が同時に発現するためと考えられる。つまり、Ni 添加により η が微細に形成されることで、界面層内の Fe-Zn 系化合物の核生成サイト（2 つ以上の η が関わる粒界）が増加し、結果として界面層の硬さがより低下したと考えられる。

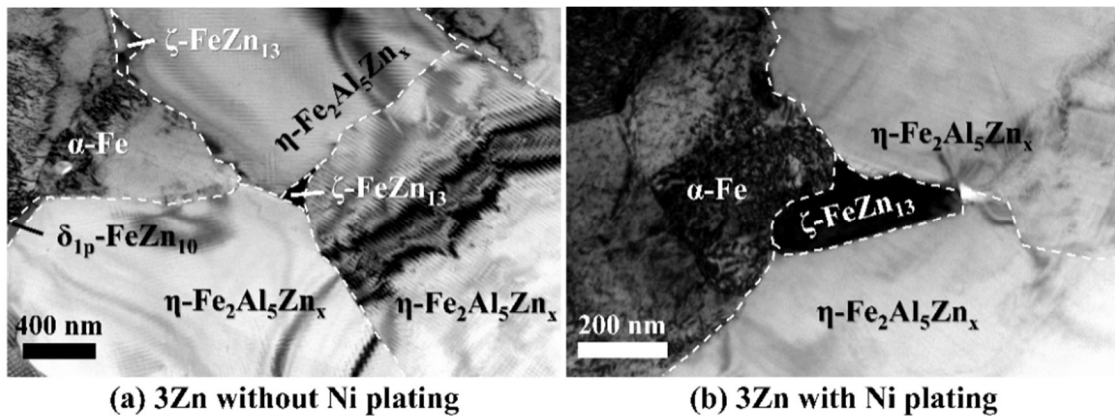


図5 Zn 添加、Zn+Ni 複合添加で得られた Al / Fe 接合体の TEM 観察結果

(4) 接合強度を支配する界面層特性の特定

前述したように、元素添加による界面強度発現機構は、従来から知られている界面層の薄層化だけでは説明できないことがわかった。これは元素添加により厚さ以外の界面層の組織因子（構成相、化学組成、結晶粒径や形状など）も変化するためと考えられる。界面層の強度発現機構解明には、接合強度を支配する界面層特性を明らかにする必要があるため、まず Al / Fe 接合体の破壊挙動に着目した。本研究において Al / Fe 接合体は引張せん断試験時にすべて脆性破壊し、界面層内で発生したき裂は瞬間的に界面全体を進展した。このことから接合強度を支配するのは、界面層におけるき裂発生応力であると予想された。そこで球状圧子を用いたナノインデンテーション法を用いることで界面層におけるき裂発生応力を求めた。図 6 にナノインデンテーション試験で得られる荷重 - 深さ曲線を示す。図中に赤矢印で示すように深さが急激に増加する pop-in がみられる。界面層のような脆性材料において、pop-in はき裂発生に対応するとされる。この pop-in が開始する荷重および深さと、圧子の形状からき裂発生応力を求めた。Al 側に 1050Al 合金、Al-Ni 合金、および Al-X 合金 (X: Ni 以外の合金元素)を用いて作製した Al / Fe 接合体について、接合強度と界面層厚さの関係（図 7）および接合強度と界面層のき裂発生応力の関係（図 8）を示す。接合強度と界面層厚さの間には相関がみられないのに対して、接合強度とき裂発生応力の間には相関性が見られた。このことから、界面層におけるき裂発生応力が Al / Fe 接合体の接合強度を支配することが示唆された。

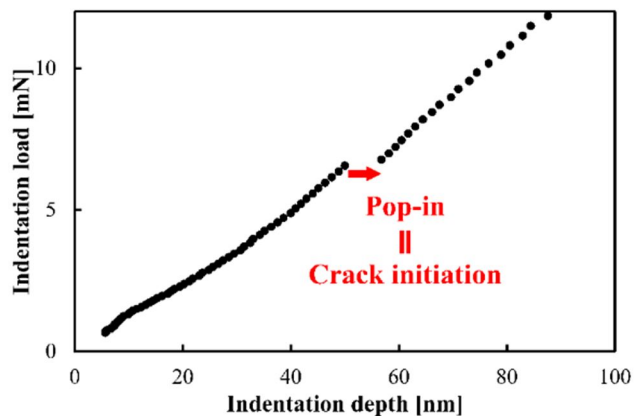


図6 界面層に対するナノインデンテーション試験で得られた荷重 - 深さ曲線

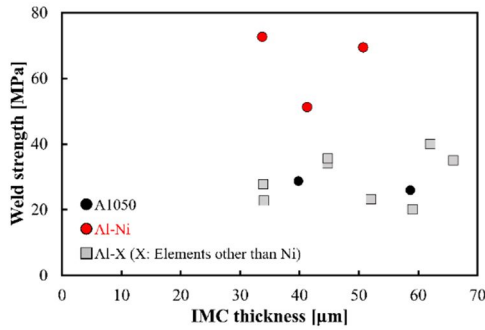


図7 Al / Fe 接合体の接合強度と界面層厚さの関係

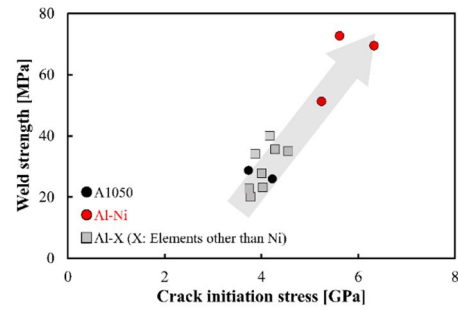


図8 Al / Fe 接合体の接合強度と界面層でのき裂発生応力の関係

(5) Ni 添加による界面強度発現機構

き裂発生応力が接合強度を支配することが示唆されたため、引張せん断試験を中断し、断面組織を SEM 観察することでき裂の発生起点を調査した。図9に1050Al合金 / Fe 接合体について調査した結果を示す。赤枠で示す界面端部にき裂がみられ、とくに界面層内に含まれる Fe によって形成される特異な舌状組織がき裂の発生起点となっていることが確認された。このことから界面層内に含まれる Fe の量がき裂の発生、つまりは接合強度に影響を及ぼすことが示唆された。

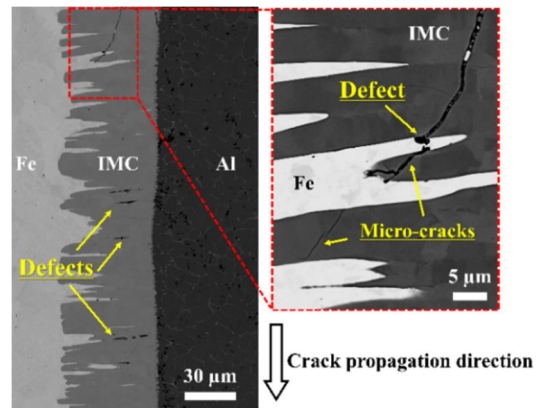


図9 引張せん断試験を中断することで得られた界面断面のSEM写真

界面層内に含まれる Fe を観察するために、SEM/FIB シリアルセクションによる界面層の

三次元観察を行った。なお観察対象は1050Al合金 / Fe 接合体、および単一添加で最大の接合強度が得られた Al-Ni 合金 / Fe 接合体とした。図10(a)および(b)にそれぞれの接合体に対してシリアルセクションを適用することで得られた界面層の厚さ中央の断面写真を示す。また、図10(c)に界面層内の Fe と η の面積分率の厚さ方向の分布を示す。1050Al 合金 / Fe 接合体では界面層の根元側 (Al 側) にも Fe が含まれおり、界面層内に島状に分布している。さらに、界面層内に含まれる Fe の量も多い。一方、高い接合強度を示した Al-Ni 合金 / Fe 接合体では、界面層の先端側 (Fe 側) にのみ Fe が含まれ、かつ界面層内に含まれる Fe の量も少ない。つまり、Ni

添加により η が微細に形成されることで、内部に Fe を多く含まない密な界面層が形成されたことがわかった。この密な界面層の形成によりき裂の発生起点が少なくなったことが、Ni 添加による界面強度発現の原因であると考えられた。

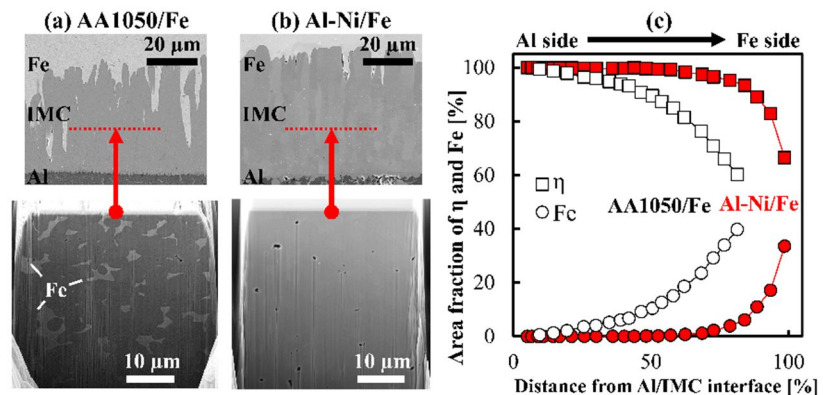


図10 界面層の三次元観察の結果

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 K.T. Suzuki, S. Omura, S. Tokita, Y.S. Sato, Y. Tatsumi	4. 巻 225
2. 論文標題 Drastic improvement in dissimilar aluminum-to-steel joint strength by combining positive roles of silicon and nickel additions	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Materials & Design	6. 最初と最後の頁 111444
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.matdes.2022.111444	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 鈴木聖頭
2. 発表標題 Al/Fe異種金属接合での界面組織形成に及ぼすSiおよびNi複合添加の影響
3. 学会等名 溶接学会春季全国大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 鈴木聖頭
2. 発表標題 Al/Fe異種金属接合の接合強度に及ぼすNiおよびZn複合添加の影響
3. 学会等名 溶接学会秋季全国大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 佐藤 裕
2. 発表標題 Al/Fe異種金属接合における界面反応層形成に及ぼす元素複合添加の効果
3. 学会等名 化学系学協会東北大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kiyoaki T. Suzuki
2. 発表標題 Strength improvement in dissimilar Al/steel weld by simultaneous addition of Si and Ni
3. 学会等名 The 6th International Symposium on Visualization in Joining and Welding Science through Advanced Measurements and Simulation (国際学会)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔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	鴫田 駿 (Tokita Shun) (60807668)	東北大学・工学研究科・助教 (11301)	

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
---------	---------