

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 10 日現在

機関番号：12101

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560104

研究課題名(和文) 界面ナノ組織制御による軽金属溶接法の開発

研究課題名(英文) Development of the light metal welding by controlling the interface nanostructure

研究代表者

岩本 知広 (Iwamoto, Chihiro)

茨城大学・工学部・教授

研究者番号：60311635

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、接合界面のみに作用を及ぼし、母材の組織およびその機械的特性をできるだけ保持し、溶接時の影響を最小限に抑える接合法を開発するための基盤研究を行った。

通常Mg合金板間にMg-Zn-Y合金板をインサート材として挿入し、抵抗スポット溶接を様々な条件下で系統的に行った結果、低い溶接電流で高い強度を得ることが可能になった。組織観察の結果、接合部には強化相であるLPSO相が再析出しており接合体の強化に寄与していることが判明した。また、接合界面にナノ構造体を挟み込んだガラスとAlリボンの超音波接合では、Al結晶粒は微細化するものの母材の結晶方位分布を保持することが分かった。

研究成果の概要(英文)：Several welding techniques were studied to retain the microstructure and the mechanical properties of the base metal after welding.

Resistance spot welding with an insert material was developed to join Mg alloy plates. Using an Mg-Zn-Y alloy plate as an insert material, it was found that high strength joints were obtained at relatively low welding current. Microstructure observations revealed that the long period stacking ordered structure, which was thought to be one of the reinforcing phases of Mg-Zn-Y alloy, precipitated at the welded region and attributed to the high strength properties of the joint. Ultrasonic welding between an Al ribbon and a glass substrate was studied and the effect of the nano structure materials inserted at the bonded interface on the Al microstructure was evaluated. It was revealed that the Al grains became finer but retained the original orientation.

研究分野：接合工学

キーワード：マグネシウム ガラス 超音波接合 抵抗スポット溶接 透過型電子顕微鏡

### 1. 研究開始当初の背景

本研究で取り扱う  $Mg_{96}Zn_2Y_2$  合金は、ジュラルミンなどを凌駕する高比強度を持ち、それらに取って代わるものとして近年活発に研究が行われている。一般的に Mg 合金は抵抗が低く、熱伝導性が高いために抵抗スポット溶接をする際には大電流が必要である。申請者は本合金に対して、カバープレートを用いた抵抗スポット溶接を行うことで低い溶接電流で接合することに成功した。また、本合金の機械特性は Mg 母材中に存在するナノレベルでの変調構造である長周期積層構造相 (LPSO 相) が関係していると考えられているが、この構造は接合中に溶融部において溶融した後、凝固時に再び析出することがわかった。また、Mg が溶けていない母材熱影響部でも一度溶融した後、再析出することが確認されており Mg よりも融点が高いことが判明した。

これから通常の Mg 合金のスポット溶接において、 $Mg_{96}Zn_2Y_2$  合金をインサート材として挟んで接合すれば、本合金内の LPSO 相の融解、再析出により Mg 母合金を溶融しない低い溶接電流でも接合することが可能であると考えられる。これは実際に実験により確認され、新たな接合法として期待されている。

他方、ガラス/Al 超音波接合では、ガラスに Mo 膜を被覆すると低エネルギーで容易に接合が可能であることがわかった。この接合界面に対する高分解能電子顕微鏡解析の結果、Mo 膜は山型の頂点をもつナノ結晶となっており、この山の頂点で Al と反応相なく直接接合していた。また、結晶間の谷部分に接合前の Al 表面酸化膜が蓄積していることから、Mo の山型ナノ構造が、超音波溶接時に効果的に Al 酸化膜を除去することで、直接接合を促進したことが明らかになった。

これらの研究から、いずれの接合においても接合界面をナノレベルで制御することで、低いエネルギーで接合が可能であることが明らかになった。

一般に現在の接合技術では、母材に影響を与える程の大量のエネルギーを接合時に投入する必要がある。これによる母材の特性劣化が常に問題になるが、上記のこれまでの研究をさらに展開することで、被接合体の母材の組織に大きな影響を与えず、母材の特性をそのまま残した形で接合ができる、究極の接合法開発への足がかりがつかめるのではないかと考えている。

### 2. 研究の目的

本研究では、接合界面のみに作用を及ぼし、母材の組織およびその機械的特性をできるだけ保持し、溶接時の影響を最小限に抑える接合法を開発するための基盤となる研究を行うことが目的である。特に抵抗スポット溶接による Mg 合金板の接合、超音波接合によるガラス/Al 接合を採り上げ、ナノ構造体の接合過程への役割を詳細に研究していく。実

際に行う研究は下記になる。

(1) 通常の Mg 合金板間に  $Mg_{96}Zn_2Y_2$  合金板をインサート材として挿入し、抵抗スポット溶接を様々な条件下で系統的に行うことで、接合の有効性を検証するとともにその接合過程の解明を行う。また、LPSO 相をさらに多く含む  $Mg_{85}Zn_6Y_9$  合金板をインサート材として用いることで、LPSO 相の接合性への影響を確認する。

(2) LPSO 相についてはその機械的特性の発現機構、LPSO 相の生成機構など不明なことが多い。 $Mg_{96}Zn_2Y_2$  合金板同士のスポット溶接における溶接過程や機械特性のナノ解析を通じてその基礎的な接合特性を明らかにしていく。

(3) Mo ナノ構造体を被覆したガラス及びナノ Ag 薄膜を被覆したガラスと Al リボンの超音波接合体に対して、Al 全体の組織の分析や界面ナノ組織の観察を行うことで、超音波接合過程が母材に及ぼす影響について明らかにする。

### 3. 研究の方法

(1)  $Mg_{96}Zn_2Y_2$  合金及び  $Mg_{85}Zn_6Y_9$  合金をインサート材とした Mg 合金の抵抗スポット溶接法の開発

$Mg_{96}Zn_2Y_2$  合金に含まれる LPSO 相は溶接昇温時にいったん融解するものの、凝固時に再析出することが分かっている。

本研究では系統的に接合電流、接合圧力、接合時間などの接合条件を変化させ、抵抗スポット溶接を行うことで接合体を得る。接合部に対して断面を切り出し、接合部の組織を光学顕微鏡、走査型電子顕微鏡により観察することで、接合条件と溶接部の形態の関連を明らかにする。さらに透過型電子顕微鏡観察を行うことで、Mg 母材の結晶粒の形態、LPSO 相の原子構造、形態などを明らかにする。

また、 $Mg_{85}Zn_6Y_9$  合金板は非常に多くの LPSO 相を含んだ特殊な Mg 合金である。 $Mg_{96}Zn_2Y_2$  合金とは異なり、非常に固く脆いためそのままでは実用に適さないが、本研究の抵抗スポット溶接インサート材として用いることで LPSO 相の役割をより明確にとらえることができると考えられる。ここでは、 $Mg_{96}Zn_2Y_2$  合金の実験を  $Mg_{85}Zn_6Y_9$  合金板に置き換えて行い、機械特性、接合組織などについて研究を行う。

(2)  $Mg_{96}Zn_2Y_2$  合金同士の接合組織と接合体の機械特性の解明

一般に LPSO 相は、その組織の加工や熱履歴の違いにより、結晶粒界に析出する場合、結晶粒内に析出する場合、固まりとして析出する場合、原子層レベルの薄い板状に析出する場合など、その析出形態が大きく異なる。本実験では  $Mg_{96}Zn_2Y_2$  合金薄板に対し、通常の抵抗スポット溶接を行い接合体を得る。その接合体の接合部断面を走査型電子顕微鏡、

透過型電子顕微鏡を用いて観察することにより、LPSO 相の組織、形態など接合組織を明らかにする。また、接合体に対して引張試験を行うことで基本的な機械特性を得ると共に、破面の走査型電子顕微鏡観察、ピッカース硬度試験などを通じて、接合組織と機械的特性との関係についても明らかにしていく。

また、透過型電子顕微鏡内で試料に様々な応力を印可し、その変形過程を直接原子レベルで観察することにより、その試料の機械的特性の発現機構を直接明らかにすることができる。そこで本研究では、本合金溶接部に対して走査型電子顕微鏡により観察しながら応力を加えることにより、溶接部の組織、特に LPSO 相の変形過程を明らかにすると共に、機械的強度発現因子を直接調査していく。

### (3) Mo ナノ結晶及びナノ Ag 薄膜を挿入した場合の超音波接合微細組織

これまでの研究から Mo ナノ結晶の役割は明らかになったが、超音波接合の母材に対するマクロ的な影響などは不明であった。そこで、ガラス/Al 接合体、ガラス/Mo 被覆ガラス接合体に対して、Al 多結晶体の結晶粒の大きさの分布や結晶方位分布など解析することで、本超音波接合法の Al 母材への影響を明らかにする。

また、ガラス/Al 接合体に対し Ag のナノ薄膜を接合界面に挿入した場合においても、容易に超音波接合が可能であることが分かっている。そこで、本接合体の接合部の断面を走査型電子顕微鏡によるマクロ観察、透過型電子顕微鏡、分析電子顕微鏡などによるナノ観察、元素分析等を行うことで、Ag ナノ構造体の超音波接合に対する役割を明らかにする。

## 4. 研究成果

### (1) Mg<sub>96</sub>Zn<sub>2</sub>Y<sub>2</sub> 合金及び Mg<sub>85</sub>Zn<sub>6</sub>Y<sub>9</sub> 合金をインサート材とした Mg 合金の抵抗スポット溶接法の開発

始めに Mg<sub>96</sub>Zn<sub>2</sub>Y<sub>2</sub> 合金をインサート材として Mg 合金 AZ31B 同士のスポット溶接を行った。インサート材なしで接合した場合と比較すると、若干低い溶接電流で接合可能であることが分かった。溶接部では一様に溶融が起こっており、マクロな溶接欠陥は存在し

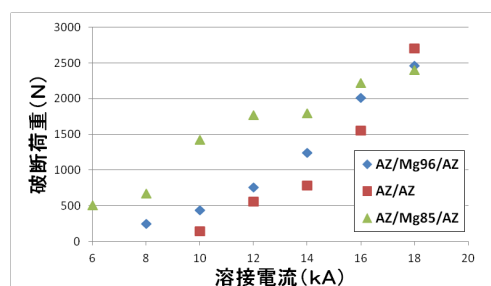


図 1 溶接電流と破断荷重の関係

	AZ/AZ	AZ/Mg <sub>96</sub> /AZ	AZ/Mg <sub>85</sub> /AZ
被接合材 (AZ31B)	60	60	60
インサート母材	-	90	102
熱影響部	56	58	88
溶融部	53	60	105

図 2 接合体各領域のピッカース硬度

なかった。Mg の結晶粒界に Zn や Y が広く偏析していることが分かった。

これに対し、より高密度の LPSO 相を含んだ Mg<sub>85</sub>Zn<sub>6</sub>Y<sub>9</sub> 合金をインサート材として市販の Mg 合金 AZ31B 薄板同士の抵抗スポット溶接を行った。インサート材なしの直接接合の場合や Mg<sub>96</sub>Zn<sub>2</sub>Y<sub>2</sub> 合金をインサート材にした場合と比べ、低い溶接電流の領域で接合体が顕著に高い強度を示すことが確認された (図 1)。

この原因を探るために、各接合体の場所によるピッカース硬度を測定した結果が図 2 である。市販の Mg 合金である AZ31B 同士の接合体に対し、Mg<sub>96</sub>Zn<sub>2</sub>Y<sub>2</sub> 合金を挿入して接合した場合、溶融部では若干ピッカース強度が上昇したもののほぼ同じ硬度を示した。これに対し、Mg<sub>85</sub>Zn<sub>6</sub>Y<sub>9</sub> 合金を挿入した接合体は、熱影響部、溶融部ともに大幅に硬度が上昇しており、この硬度上昇が高強度化に寄与していると考えられた。この時の組織の状態を示したものが図 3 である。この図では白い領域が Zn と Y の偏析が起きている場所である。Mg<sub>96</sub>Zn<sub>2</sub>Y<sub>2</sub> 合金に比べ、Mg<sub>85</sub>Zn<sub>6</sub>Y<sub>9</sub> 合金をインサート材とした場合、結晶粒が非常に微細になっていることが判明した。また特に Mg<sub>85</sub>Zn<sub>6</sub>Y<sub>9</sub> 合金をインサート材とし、低い溶接電流で接合した場合、粒界には 18 周期の LPSO 相が頻りに生成しているのが観察された。これよりピッカース硬度測定時における高硬度は、結晶粒の微細化による効果に加え、LPSO 相の再析出が関係していることが明らかになった。

### (2) Mg<sub>96</sub>Zn<sub>2</sub>Y<sub>2</sub> 合金同士の接合組織と接合体の機械特性の解明

Mg<sub>96</sub>Zn<sub>2</sub>Y<sub>2</sub> 合金同士を直接抵抗スポット溶接した場合は、AZ31B マグネシウム合金を溶接した場合に比べて 2/3 程度の溶接電流で接合可能であることが分かった。また接合部ではデンドライトの Mg のアーム間に Zn と Y

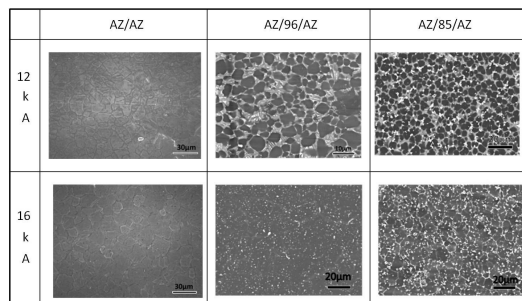


図 3 各溶接体溶接部の微細組織

	母材	熱影響部	熔融部
Mg <sub>96</sub> Zn <sub>2</sub> Y <sub>2</sub> /Mg <sub>96</sub> Zn <sub>2</sub> Y <sub>2</sub>	91	83	77
AZ31B/AZ31B	60	56	53

図4 溶接体各部のビッカース硬度

が偏析し、LPSO相が形成することが分かった。ビッカース硬度試験の結果では、溶接部の硬度は母材に対して若干低いものの、AZ31B マグネシウム合金などの硬度よりも高いことが分かった。また、熔融部における硬度は母材に比べて低下する事が明らかになった(図4)。接合体を引張りせん断試験したときの破断荷重を比べた結果、シヤ破断する条件下で Mg<sub>96</sub>Zn<sub>2</sub>Y<sub>2</sub> 合金接合体の方が高い結果が得られたが、これは溶接部の硬度差が関係すると考えられた。

続いて熔融部の機械特性を解明するために Mg<sub>96</sub>Zn<sub>2</sub>Y<sub>2</sub> 合金接合体の電子顕微鏡内引張試験を行った。Mg<sub>96</sub>Zn<sub>2</sub>Y<sub>2</sub> 合金押し出し材に対して応力を加えた場合、クラックはLPSO相内部には侵入する傾向が低いこと、また侵入した場合でもジグザグに進行することなどが明らかになった。

これに対して、スポット溶接の熔融部に対して応力を加え、その挙動を時系列で観察したものが図5である。白いコントラストの領域がLPSO相であり、左端にクラックが観察されている。この試料を上下に引っ張ったところまず母相からLPSO相を横切る形で多数のステップが生じた。さらに応力を印可した結果、LPSO相とMg母相界面及びLPSO相内部にクラックが生じた。これらはやがて連結することでクラックとして進行した。この挙動は、Mg母相とLPSO相における変形機構および結晶学的関係から解釈できた。まず、Mgは六方細密結晶であり、その変形機構は底面すべりが起こりやすいが、その他にも柱面すべり、錐面すべりなどがあり、また

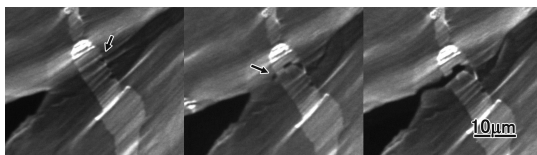


図5 Mg<sub>96</sub>Zn<sub>2</sub>Y<sub>2</sub>合金溶接部におけるクラック進展挙動

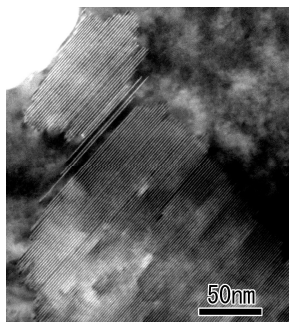


図6 接合体熔融部のLPSO相の微細組織

双晶などの変形も起こる。これに対しLPSO相はMgと同様に六方晶系でありながら主に底面すべりのみを変形機構として活動する。また透過型電子顕微鏡による微細組織観察から、熔融部ではLPSO相の底面

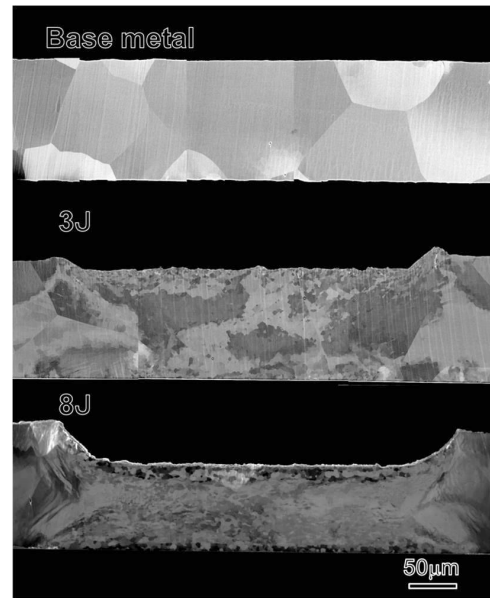


図7 超音波接合体の接合エネルギーとAl微細組織の関係

がMg母合金の底面に平行になるような結晶学的関係を持って析出していることが分かった(図6)。これらから試料を引っ張った際に観察されたステップはLPSO相とMgの底面すべりが連続的に活動した結果起こった現象であると解釈された。このため、LPSO相の強化機構が弱められ、ビッカース硬度試験を行った場合の熔融部における硬度の低下につながったと考えられた。さらに応力を印可した場合、すべり系の数の違いにより緩和しきれない応力が界面に集中し、その結果クラックが発生し進展したと考えられる。これらより、この合金ではMg母相とLPSO相の結晶学的関係が重要であることが明らかになった。

#### (4) Mo ナノ結晶及び Ag ナノ薄膜を挿入したガラス/Al 超音波接合体の微細組織

ガラス/Al 接合体、ガラス/Mo/Al 接合体の接合部の断面を走査型電子顕微鏡のチャンネルコントラストを用いて観察した結果、平均的に結晶粒径が約100分の1程度と劇的に細かくなっていることが分かった。これらはAgナノ薄膜を挿入した場合も同様の傾向を示し、エネルギーが大きくなるほど微細化が進むことが明らかになった(図7)。

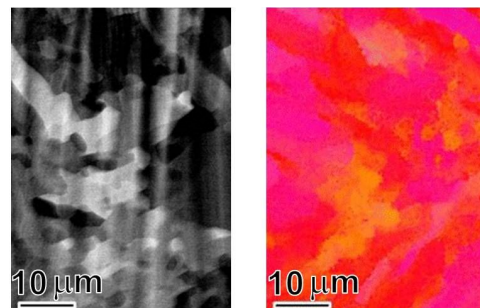


図8 接合部のAl方位分布

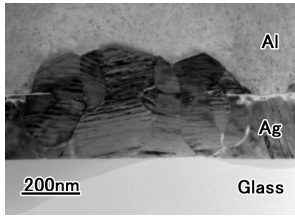


図9 Al/Ag 被覆ガラス  
超音波接合体接合部の  
反応相

熱により再配列することで微細化が達成されたことが分かった。これらの結晶粒界はすべり変形に対する抵抗が弱いと考えられるため、母材の機械的特性を大きく損なうことは少ないことが期待される。

一方、ガラス表面に Ag を被覆し Al と超音波接合した試料に対し引張り試験を行なった結果、クラックは、大部分の領域でガラス内部または Al リボン内部を進展し、Ag と Al の接合は良好であることが分かった。その破面を観察したところ、Al の延性破壊が起こっているのが観察された。一部微視的に、破面に Ag が観察される領域があり Ag と Al の界面で破壊していると考えられたが、そこでは非常に平坦な様相を呈していた。接合界面断面の透過型電子顕微鏡による微細組織観察から、反応相  $Ag_2Al$  が未反応 Ag 相の間に断続的に生成していた。(図 9)。これから本系では反応相生成領域のミクロな分布が接合体全体の強度に影響を及ぼしていることが明らかになった。

## 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 2 件)

東雄一、岩本知広、河村能人、超音波接合を用いて接合された押出  $Mg_{96}Zn_2Y_2$  合金継手の微細構造の特徴、日本金属学会誌、査読有、79 巻、2015、176-182、DOI: 10.2320/jinstmet.JBW201403

C. Iwamoto、Microstructure of Aluminum/Glass Joint Bonded by Ultrasonic Wire Welding、Metallurgical and Materials Transactions A、査読有、Vol. 45、2014、1371-1375、DOI: 10.1007/s11661-013-2085-0

[学会発表](計 6 件)

東雄一、岩本知広、河村能人、プラグ破断を示した  $Mg_{96}Zn_2Y_2$  合金の超音波接合継手、日本金属学会春期講演大会、2015 年 3 月 18 日、東京大学駒場 地区キャンパス(東京都目黒区)

また EBSD を用いた結晶方位の解析から、超音波接合後の試料の結晶粒界はほとんどが小角粒界であることが分かった(図 8)。これより接合中に発生した塑性流動による転位が接合時の摩擦

Yuichi Higashi, Chihiro Iwamoto, Yoshihito Kawamura、Microstructure and mechanical properties of  $Mg_{96}Zn_2Y_2$  alloy joint bonded by ultrasonic wire welding、The 2nd International Symposium on Long-Period Stacking Ordered Structure and Its Related Materials 2014、2014 年 10 月 05 日~2014 年 10 月 08 日、熊本大学(熊本県熊本市)

Chihiro IWAMOTO、Microstructure of the interface between Al and glass bonded by ultrasonic wire welding、IJST2013、2013 年 11 月 27 日、大阪大学(大阪府吹田市)

C. Iwamoto, S. Satonaka, Y. Ono, T. Matsuo, A. Yoshida, T. Nishinaka and K. Yamada、Microstructure of the Aluminum/Glass joint bonded by ultrasonic wire welding、ASMP 2012、2012 年 08 月 30 日、Chennai (INDIA)

C. Iwamoto, S. Satonaka, Y. Kawamura、In situ observation of deformation process of Magnesium alloy、ASMP 2012、2012 年 08 月 30 日、Chennai (INDIA)

岩本知広, 里中忍, 河村能人, 山内亮, 梶野満、高強度マグネシウム合金の抵抗スポット溶接、平成 24 年度日本金属学会春季全国大会、2012 年 04 月 10 日、アジア太平洋トレードセンター(大阪府大阪市)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

岩本 知広 (IWAMOTO CHIHIRO)

茨城大学・工学部・教授

研究者番号: 60311635

### (2) 研究分担者

無し

### (3) 連携研究者

無し