

令和 6 年 6 月 2 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2022～2023

課題番号：22K18893

研究課題名（和文）ハイエントロピー効果と低拡散効果を積極活用した革新的異種材接合への挑戦

研究課題名（英文）Challenge of innovative dissimilar metal joining using high-entropy effect and sluggish diffusion

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） 4,800,000円

研究成果の概要（和文）：ハイエントロピー合金を異材接合に用いることで、低拡散効果と反応層のハイエントロピー効果の発現を目指し、2種類のハイエントロピー合金とAl合金の接合界面における反応層の生成・成長挙動とマイクロ組織・機械的特性を調べた。カンター合金を用いた場合、Al合金との接合界面において反応層の成長抑制が見られ、反応層の硬さ低下が生じた。カンター合金をインサート材として利用したAl/Fe接合を実施した結果、得られた接合継手はAl合金母材で破断し、高い破断強度を達成できる可能性が示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

異材接合における反応層は、力学負荷により界面破断をもたらすため、継手強度を低下させるため、反応層の生成・成長挙動とマイクロ組織は異材接合での重要な学術データと言える。本研究では、2種類のハイエントロピー合金とAl合金の接合界面における反応層の成長挙動とマイクロ組織に関する知見を提供している。また、ハイエントロピー合金の中には、Al合金との接合界面で反応層の成長抑制と硬さ低下をもたらすものがあり、インサート材として利用することで、異材継手の力学特性を向上させる可能性が示唆された。この結果は、異材接合のメリットを有効に活用できていない現状を打破できる可能性を示しており、社会的意義も高い。

研究成果の概要（英文）：Use of high entropy alloy to dissimilar welding expectedly causes both sluggish diffusion and high-entropy effect of reaction layer at the dissimilar weld interface, resulting in high strength of dissimilar weld. In this study, formation and growth behavior, and microstructure and mechanical properties of the reaction layer at dissimilar weld interface between Al alloy and two kinds of high entropy alloys was examined. Dissimilar weld interface between Al alloy and Cantor alloy showed the slow growth of the reaction layer during heat treatment, and the reaction layer had the lower hardness than that formed at the dissimilar Al/Fe weld interface. The dissimilar Al/Fe weld interface failed at the Al base metal and exhibited the high strength, when Cantor alloy was used as an insert metal between Al and Fe.

研究分野：溶接・接合

キーワード：異種材接合 ハイエントロピー合金 ハイエントロピー効果 低拡散効果 界面反応

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

異種材接合は、材料を適材適所に用いる“マルチマテリアル化”に不可欠な技術である。多くの異種材接合では、異方性が高く脆性的な反応層が界面に形成されるため、優れた接合強度と信頼性を確保できない。一方、5種類以上の元素をほぼ当量混合したハイエントロピー合金には特異な効果があり、「ハイエントロピー効果」は、界面反応において、異方性が低く延性的な反応層をもたらす可能性があり、「低拡散効果」は、反応層の形成反応を抑制しうる事が期待される。これらの効果は、異種材接合の課題である界面反応層に関わる問題点を一気に解決できる可能性があるが、接合界面でのハイエントロピー効果や低拡散効果を調べた学術研究は少なく、異種材接合に対する有効性を系統的に調べた研究はほとんどない。

### 2. 研究の目的

本研究では、異種材界面でのハイエントロピー効果と低拡散効果を実験的に解明するとともに、これら効果を異種材接合に積極的に活用した画期的な異種材接合技術の確立に挑戦する。

### 3. 研究の方法

異種材界面でのハイエントロピー効果と低拡散効果を検証するため、FCC 構造を有する AlCoCrCuFeNi 系のハイエントロピー合金と Al 合金の異材接合界面を作製し、温度・時間を系統的に変えて熱処理を行い、接合界面での反応層の生成・成長挙動を調べ、反応層の構成相と機械的性質を調べた。

AlCoCrCuFeNi 系のハイエントロピー合金と Al 合金の異材接合界面においては、反応層のハイエントロピー効果による延性向上と低拡散効果による反応層の形成抑制効果は限定的であったため、カンター合金と呼ばれる CoCrFeMnNi ハイエントロピー合金と Al 合金の異材接合界面における反応層の生成・成長挙動およびマイクロ組織・機械的特性を調べ、Al 合金と Fe の接合 (Al/Fe 接合) 界面と比較した。さらに、カンター合金をインサート材として利用した Fe/Al 接合を実施し、得られた接合継手の機械的特性と接合界面のマイクロ組織を調べた。

### 4. 研究成果

#### (1) AlCoCrCuFeNi 系のハイエントロピー合金と Al 合金の異材接合界面挙動

AlCoCrCuFeNi 系のハイエントロピー合金と A1100 の異材接合界面を重ね摩擦攪拌接合により得た。接合継手の外観写真と接合界面のマイクロ組織を図 1 に示す。両者は良好に接合されており、接合界面には反応層はほとんど存在しないことを確認した。

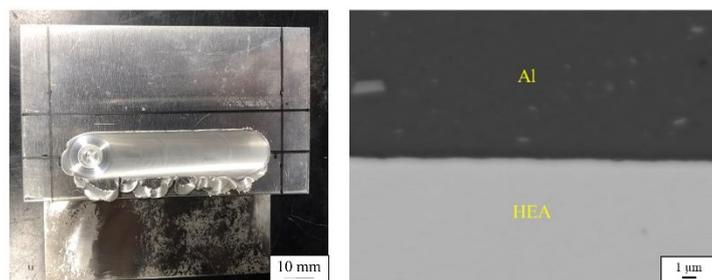


図 1 AlCoCrCuFeNi 系ハイエントロピー合金 / A1100 異材継手の外観写真と界面の SEM 写真

この接合界面に対して、500～600°Cの温度で恒温保持し、反応層の形成およびその成長挙動を調べた。600°Cで 0 min, 10 min, 30 min の恒温保持した後の接合界面の SEM 写真を図 2 に示す。

恒温熱処理に伴い、接合界面に形成された反応層が時間の増加とともに Al 合金側に向かって成長し、反応層厚さは増加した。

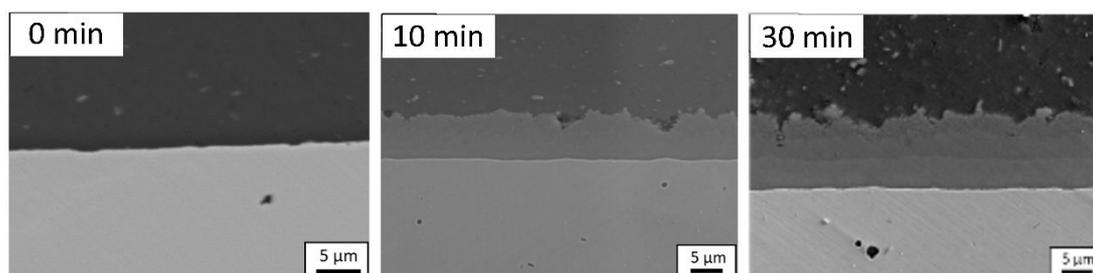


図 2 600 で恒温保持した接合界面の SEM 写真

600 で反応層の構成相を TEM/EDX ならびに EPMA を用いて調べた結果、反応層は複数の層により構成されており、Al 合金に近い側には Al-Ni 系と Al-Cr 系の金属間化合物が複雑に分散し、ハイエントロピー合金側には  $Fe_2Al_5$  系と AlCo 系の金属間化合物が層状が観察された (図 3)。各熱処理温度における反応層全体の厚さと熱処理時間の関係を調べた結果を図 4 に示す。反応層厚さは熱処理時間の平方根に比例することが明らかとなった。さらに反応層成長の活性化エネルギーを見積もったところ 235 kJ/mol となり、Al/Fe 接合界面における反応層成長の活性化エネルギーと同等であったことから、低拡散効果による反応層の形成抑制は生じていない可能性が示唆された。

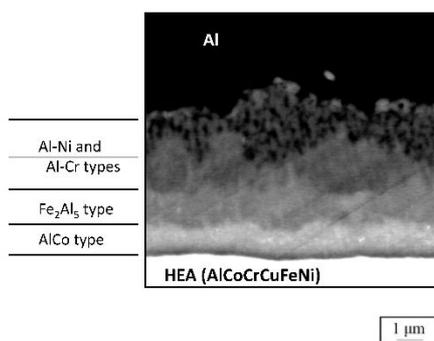


図 3 600、10 min の恒温熱処理で得られた界面反応層における各相の分布状態

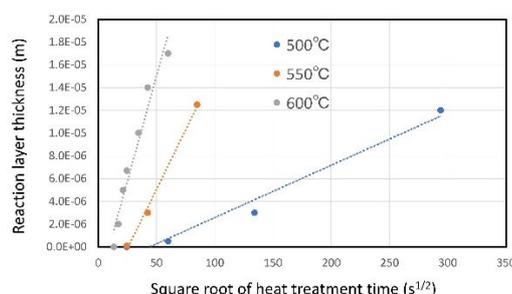


図 4 各温度で恒温熱処理したときの界面反応層厚さに及ぼす熱処理時間の影響

接合界面自体の強度を調べるため、重ね継手にスリットを付与し、引張せん断試験を実施した。反応層がない接合まま界面は、スリット導入にもかかわらず Al 合金側で破断し、高い強度が得られたが、熱処理時間が増加し、反応層が形成された接合界面では、Al 合金 / 反応層もしくは反応層 / ハイエントロピー合金の界面をき裂が進展し、破断強度は反応層形成に伴い低下することが明らかとなった。重ね継手はほとんど伸びることなく破断していたことから、反応層のハイエントロピー効果による延性向上なども生じていない可能性が示唆された。

## (2) CoCrFeMnNi ハイエントロピー合金と Al 合金の異材接合界面挙動

CoCrFeMnNi ハイエントロピー合金 (以下カウンター合金と略す) と Al 合金の異材接合界面を拡散接合により得た。各接合温度、接合時間で得られた接合界面の SEM 写真を図 5 に示す。いずれも欠陥のない良好な接合界面を有しており、接合時間の増加とともに反応層の厚さは増加

した。

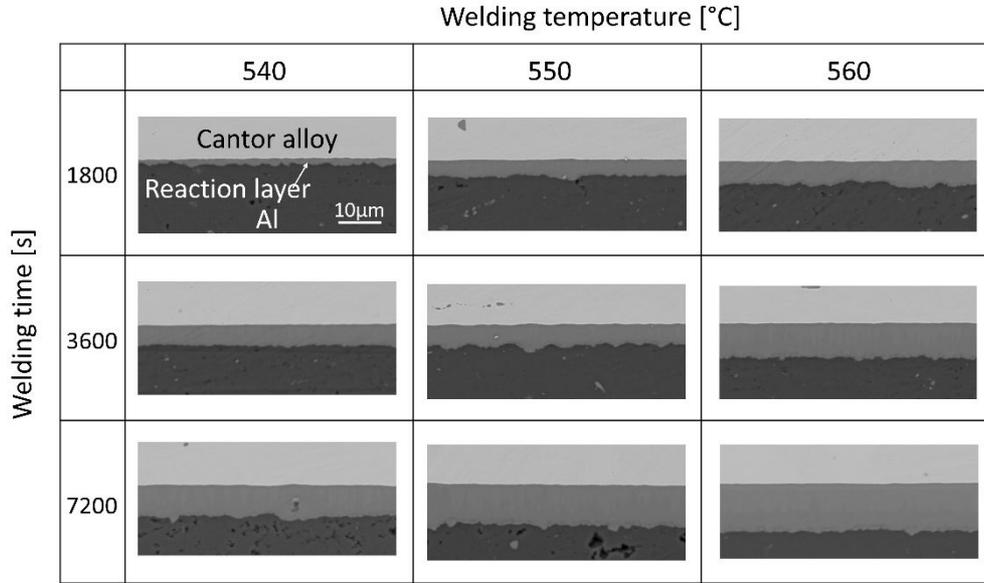


図5 種々の接合温度、接合時間で得られたカンター合金 / Al 合金拡散接合界面の SEM 写真

図6に同一条件(560°C、2h)で拡散接合されたカンター合金 / Al 合金界面と Fe / Al 接合界面の SEM 写真を同じ倍率で示すが、Fe / Al 接合界面では、Fe-Al 系金属間化合物が厚く形成される一方、カンター合金 / Al 合金の接合界面においては、Fe / Al 接合界面に比べて反応層の厚さは著しく薄いことが分かった。

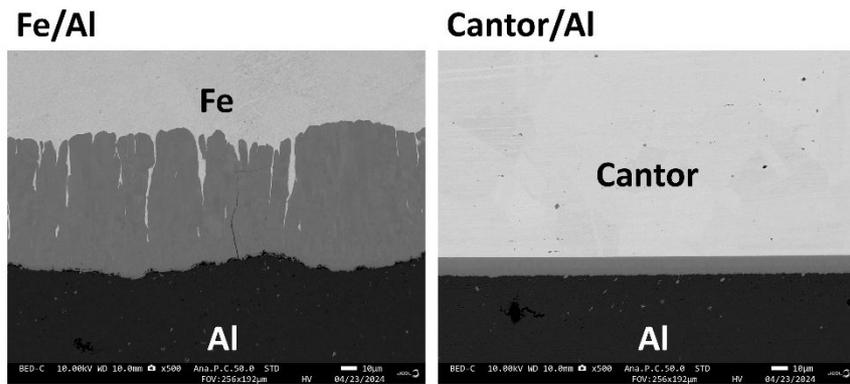


図6 560 °C、2h で得られたカンター合金 / Al 合金界面と Fe / Al 接合界面の SEM 写真

Fe / Al 接合界面、カンター合金 / Al 合金接合界面ともに、反応層は保持時間の増加とともに成長したが、カンター合金 / Al 合金接合界面においては、Fe / Al 接合界面に比べて反応層の成長が著しく遅いことが示された。反応層の成長挙動を調べた結果を図7に示す。いずれの温度においても、反応層厚さは熱処理時間の平方根に比例することから拡散律速であることが分かった。反応層成長の活性化エネルギーは、カンター合金 / Al 合金界面において Fe / Al 界面よりも高いことが示されたことから、カンター合金 / Al 合金界面での低拡散効果が示唆された。

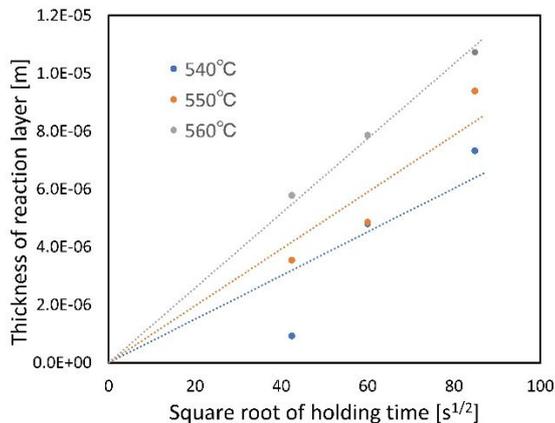


図 7 各温度で拡散接合されたカンター合金 / Al 合金接合界面での反応層厚さに及ぼす接合時間の影響

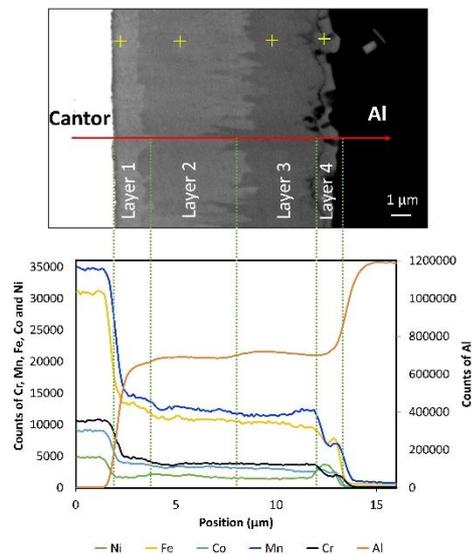


図 8 560 °C、2h で得られたカンター合金 / Al 合金接合界面の SEM 写真と線分析結果

図 8 にカンター合金 / Al 合金界面の SEM 写真と界面に対して垂直方向の元素線分析結果を示す。接合界面には、4 種類の化合物が層状に形成されており、それらに含まれる Co, Cr, Fe, Mn, Ni 量は異なるものの、いずれも Al リッチな化合物であることが示された。一方、Al / Fe 界面においては、Al 合金側に薄い  $\text{FeAl}_3$  が観察されるが、反応層の大部分は舌状の  $\text{Fe}_2\text{Al}_5$  であった。反応層に対してマイクロピッカース試験を実施した結果、カンター合金 / Al 合金界面では約 720HV、Fe / Al 界面では約 990HV であった。いずれも反応層は硬く、金属間化合物であることが示唆されたが、カンター合金 / Al 合金界面のほうが低い値となり、ハイエントロピー化に伴う硬さ低下が示唆された。

### (3) カンター合金をインサート材として用いた Fe / Al 異材接合

厚さ 0.8 mm のカンター合金をインサート材として用いて、Fe / Al 接合を拡散接合で実施した。得られた接合継手の Fe / カンター合金界面とカンター合金 / Al 合金界面を調べた結果、両界面は良好に接合されており、Fe / カンター合金界面には約  $10\mu\text{m}$  の拡散層が、カンター合金 / Al 合金界面には Al リッチな化合物から形成される反応層が観察された。接合継手から接合界面に垂直に引張試験片を切り出し、単軸引張試験を実施した結果、インサート材なしの Al/Fe 接合継手はいずれも界面破断し、破断強度は約 33MPa であった。一方、カンター合金をインサート材として用いた場合には、Al 合金側で破断し、破断強度は 60MPa を超えるものもあった。Al/Fe 継手は界面破断し、破断強度も限定的であることが知られているが、カンター合金をインサート材として利用することで、カンター合金 / Al 合金界面における低拡散効果と反応層のハイエントロピー効果により継手強度の向上が可能であることが示唆された。接合条件の最適化により更なる継手強度の向上が期待できると考えられる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計0件

〔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