

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 6 月 25 日現在

機関番号：82670

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560902

研究課題名(和文)組成調整による接合界面反応の制御を利用した異種金属接合

研究課題名(英文) Dissimilar metal joining using controlling of reaction at joint interface by composition adjustment.

研究代表者

青沼 昌幸 (Aonuma, Masayuki)

地方独立行政法人東京都立産業技術研究センター・開発本部開発第1部機械技術グループ・主任研究員

研究者番号：10463051

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、マグネシウム合金母材に溶融法を用いて合金元素を事前添加し、これらの母材をチタン母材に対して摩擦攪拌接合(FSW)により異種金属接合し、事前の合金元素添加が接合界面の反応層に及ぼす影響について検討した。摩擦攪拌接合でのマグネシウム合金側攪拌部では、事前添加した金属片が母材の合金元素と反応しているのが認められた。これらの金属片は合金元素と反応して攪拌部中に分散され、接合界面における金属間化合物層の厚さは、事前添加をしていない接合部と比較して減少した。このことから、合金元素の母材への事前添加してのFSWが、マグネシウム合金とチタンなどの異種金属接合に有効であることが明らかとなった。

研究成果の概要(英文)：In the present work, alloying elements were pre-added to magnesium alloy plates using fusion welding method, and magnesium alloy plates were joined to titanium plates by friction stir welding to evaluate the effect of a pre-added alloying elements on the reaction layer at the dissimilar metal joint. The interfacial microstructure improvement at the dissimilar metal joint was tried by several welding and joining methods. In stir zone at magnesium alloy side, pre-added element chips which reacted with alloying elements in base metal was observed. Pre-added element chips were formed and scattered in the stir zone due to the strong affinity between pre-added elements and alloying elements. In pre-added joints, the thickness of the intermetallic compound layer at the joint interface was decreased than no-added joints. This indicates that alloying elements pre-addition to the base metal alloy suited for the dissimilar metal joining of the magnesium alloy and the commercial pure titanium.

研究分野：溶接・接合

キーワード：溶接・接合 異種金属接合 摩擦攪拌接合 金属組織 接合界面 微細構造

### 1. 研究開始当初の背景

構造物の軽量化には、鉄鋼製の部品を、マグネシウム、アルミニウム、チタンなどの軽金属製部品へと置換えることが効果的である。しかし、部分的に部品材料を置換すると、異なる金属材料間での接合部位が生じることとなり、現状では、このような接合部位について、溶接ではなく、ボルトやリベットなどによる締結により対応している。よって、軽量化を目的とする材料置換であるにもかかわらず部品点数が増え、軽量化のメリットが低下することとなり、目的が達成されにくい問題がある。

このことを背景に、高強度で高信頼性の異種金属接合が締結部を減らすための有効な手段として望まれているが、高信頼性の異種金属接合体を得ることは未だ困難な場合が多い。一般的に異種金属の溶接では、熔融混合状態で二相分離して、元素の固溶や拡散が生じない場合や、脆弱な金属間化合物が接合界面に生成することなどにより、十分な接合強度が得られにくいことが、溶接困難な理由として挙げられる。

これまでも、小入熱量での接合が可能な摩擦攪拌接合法(FSW)や、高エネルギー密度のYAGレーザー溶接法などにより、軽金属材料の異種金属接合は試みられてきた。しかし、既存の接合プロセスのみを用いても、高強度な異種金属接合体を得ることは困難な場合が多く、効果的な異種金属接合へ向けた接合プロセス改良と金属学的見地からの双方からのアプローチが求められている。

### 2. 研究の目的

本研究では、高比強度異種金属の接合の検討として、マグネシウムとチタンを対象とした。これらは融点や性質が大きく異なる上、純マグネシウムと純チタンは固溶度をほとんど持たず、反応層を生じない組み合わせである。合金元素としてアルミニウムを含むAZ系マグネシウム合金とチタンとの摩擦攪拌接合では、接合界面でアルミニウムがチタンとTiAl<sub>3</sub>などの脆弱な金属間化合物層を生成する。マグネシウム合金とチタン合金との摩擦攪拌接合において、マグネシウム合金に含まれる合金元素がチタンと反応性が高い元素の場合、接合面で優先的に反応層を生成し、接合強度を制御できる可能性を示している。すなわち、摩擦攪拌接合により接合する以前に、接合面となる位置の合金組成と金属組織とを、相手材の異種金属と高強度な反応層を生成するように改良することで、接合界面の強度が向上する可能性があるということである。

これらの固溶し難い異種金属間の接合法として、本研究では、チタンと強固な固溶体を生成する元素を、YAGレーザーおよびTIG溶接法を用いてマグネシウム側の接合対象位置へ適量添加した後に、摩擦攪拌接合法を用い、小入熱量条件にてチタンと接合し、異

種金属接合面の反応層の生成状態を制御する方法を開発する。具体的には高温での溶融が可能な溶接法と、小入熱量の摩擦攪拌接合法を併用することにより、既存の単一接合プロセスでは困難な異種金属接合界面反応の制御を行い、異種金属接合に適する接合プロセスを開発することを目的とした。

### 3. 研究の方法

本研究では異種金属の摩擦攪拌接合における接合界面組織の基礎検討を含め、以下の3項目について研究を行った。

#### (1)異種金属接合部組織改善条件の基礎的検討

図1に摩擦攪拌接合の概要図を示す。摩擦攪拌接合法は、回転する接合ツールを利用した固相接合法であり、従来の溶接法と比較して接合温度が低く、異種金属の接合強度に影響を及ぼす接合界面での金属間化合物生成の抑制に有効とされる接合法である。本研究では、異種高比強度合金間(市販マグネシウム合金、アルミニウム合金、工業用純チタンおよびチタン合金)の摩擦攪拌接合性を比較し、強度特性と破断形態を含めた接合特性の評価を行った。板厚2mmから3mmのMg-Al合金、Mg-Al-Zn合金、Mg-Zn-Zr合金およびAl-Si合金を用い、工業用純チタンと摩擦攪拌接合し、異種金属接合特性と強度低下要因となる金属間化合物の生成機構について、金属組織と母材組成の影響を中心に検討した。

#### (2)溶接法/摩擦攪拌接合併用による接合プロセスの開発

(1)で検討した結果を基に、異種金属間の接合性の向上を目的とした母材の組織改善法の検討を行った。図2に本研究における元素添加と接合の概要を示す。摩擦攪拌接合におけるマグネシウム合金側攪拌部となる位置に、YAGレーザーあるいはTIGアークを用いてZrなどの元素を事前に線、箔により添加し、熔融部に生じる組織変化について検討した。また、これらの元素添加済みの母材を工業用純チタンと摩擦攪拌接合し、接合界面における金属間化合物の生成状態について検討を行った。

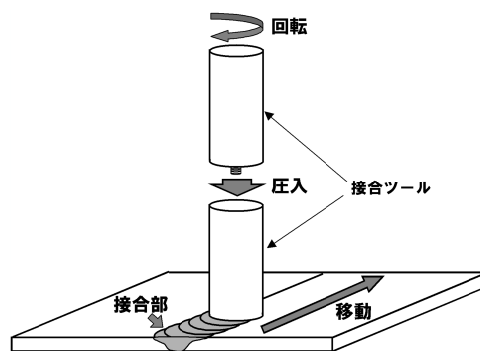


図1 摩擦攪拌接合(FSW)の概要図

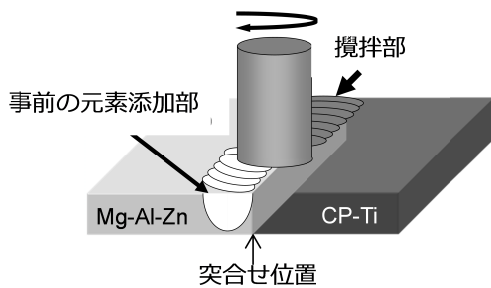


図2 本研究における元素添加と接合の概要 (Mg-Al-Zn/CP-Ti 突合せ継手の場合)

(3) 元素添加による接合部組織および接合界面微細構造の制御

接合界面および撈拌部における組織と微細構造について、走査型電子顕微鏡 (SEM)、透過型電子顕微鏡 (TEM) およびエネルギー分散型 X 線分光分析器 (EDS) を用いて検討し、事前元素添加が撈拌部および接合界面の組織と微細構造に及ぼす影響とその制御効果について評価した。

4. 研究成果

本研究により得られた代表的な成果を以下に示す。

(1) Mg-Al-Zn 系マグネシウム合金と工業用純チタンとの接合界面には、母材に含まれる Al により、Ti-Al 系金属間化合物を含む層が生成する。Mg-Al-Zn 合金母材に含まれる Al 量の増加に伴い金属間化合物層の厚さは増加するが、Mg-Al-Ca 系合金の Mg-6Al-2Ca 合金と CP-Ti との摩擦撈拌接合部においては、マグネシウム合金母材に 6mass% の Al が含まれるにもかかわらず、接合界面の金属間化合物層厚さは Mg-3Al-0.6Zn 合金を用いた接合部とほぼ同等の厚さとなった。これは図 3 の接合界面の TEM による明視野像に示すように、Mg-6Al-2Ca 合金に含まれる Ca が安定な  $Al_2Ca$  金属間化合物を形成しており、摩擦撈拌接合時の温度である 773K 程度では分

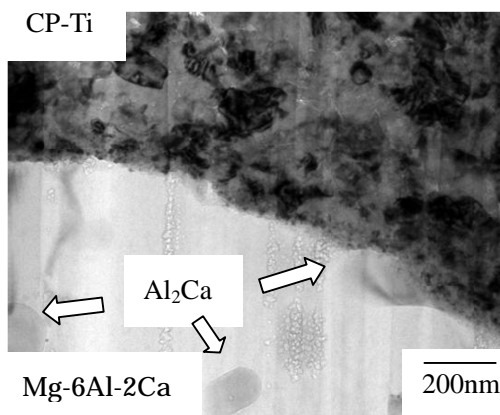


図3 Mg-6Al-2Ca と CP-Ti の摩擦撈拌接合界面

解されず摩擦撈拌により破碎されるのみで、Al が Mg マトリックスへ固溶しないことと、Ti との反応性が低下していることが影響していると考えられる。 $\beta$  相 ( $Mg_{17}Al_{12}$ ) を含むマグネシウム合金と CP-Ti を摩擦撈拌接合したマグネシウム合金側撈拌部では  $\beta$  相が分解され、Mg マトリックスへの Al の固溶が生じ、接合界面では金属間化合物層厚さの増加が認められた。また、過共晶 Al-Si 合金と CP-Ti との摩擦撈拌接合においては、Si と Al による共晶融解は生じず、Si のアルミニウムマトリックスへの再固溶を抑制しつつ、破碎された Si 粒を撈拌部中へ分散することが可能であった。しかし、高入熱条件での FSW では、接合界面に生成する厚さ  $5\mu m$  程度の混合領域において Si 粒の破碎と混合が見られた。このことは、母材と反応性の高い純金属を添加した場合に接合界面での反応が生じ、状況により 3 元系などの金属間化合物として生成することを示している。これらのことから、異種金属接合界面における合金元素間の反応については、金属間化合物を生成する元素を事前に安定な状態で固定することで、接合界面における母材との金属間化合物の生成を抑制できる可能性が示された。

(2) Mg-Al-Zn および Mg-Al-Zn マグネシウム合金に対し、摩擦撈拌接合前に Zr を事前添加し、これらの組織に及ぼす影響について検討した。パルス YAG レーザおよび TIG アークによる添加組織を比較検討した結果、エネルギー密度が高く溶融凝固時間が短い YAG レーザと比較して、高温に保持される時間が長い TIG アークによる添加により、母材に含まれる合金元素を金属間化合物として固定できる効果が高いことが判明した。図 4 に TIG アークによる元素添加を併用した Mg-6Al-0.6Zn 合金と CP-Ti との摩擦撈拌接合の概要図、図 5 に元素添加と FSW を併用したマグネシウム合金側撈拌部の SEM-EDS による特性 X 線像を示す。これらの接合における撈拌部では、Al と反応した Zr 片の分散が認められ、Zr の添加により Mg-6Al-0.6Zn 合金に含まれる Al の固定効果が得られることが明らかとなった。

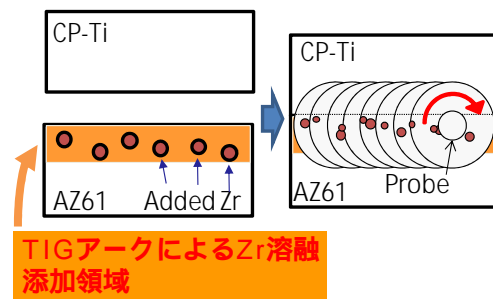


図4 元素添加を併用した Mg-6Al-0.6Zn 合金 (AZ61) と CP-Ti との摩擦撈拌接合の概要図



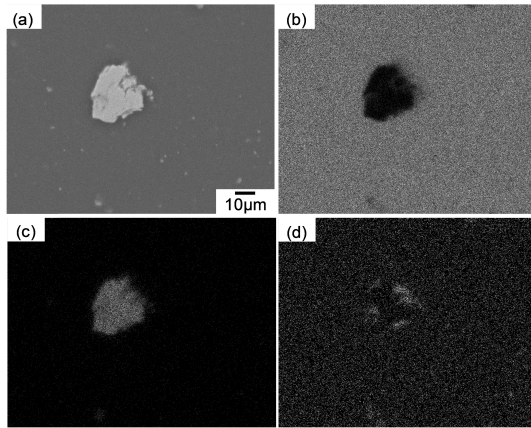


図5 Zr添加とFSWを併用したマグネシウム合金側攪拌部のSEM-EDSによる特性X線像；(a)SEI，(b)Mg，(c)Zr，(d)Al

(3)元素添加と合金元素との反応が得られた母材について、CP-TiおよびTi合金とを高入熱条件により摩擦攪拌接合し、接合界面での合金元素による金属間化合物の生成について検討した。Zrを添加せずにMg-6Al-0.6Zn合金をCP-Tiと接合した接合界面では、SEM-EDSにより10~2μmの厚さの金属間化合物層が接合界面に不均一に分布しているのが確認された。図6にZrを添加したMg-6Al-0.6Zn合金とCP-Tiとの接合界面の、TEMによる明視野像を示す。接合界面には反応層が不均一に分布していたが、その厚さは200~100nm以下と薄いことが確認された。これらについて、STEM-HAADF像による観察とEDSによる線分析を行った結果、接合界面でのAlの濃化が認められた。この接合界面の層においてナノビーム法による電子線回折を行ったが、明瞭な回折図形は得られなかったが、濃化はAlのみであることからTiAl<sub>3</sub>などの金属間化合物であると推測される。また、プローブにより削り取られて攪拌部に分散したTi片には、添加したZr片に凝着しているものも認められ、Zrに凝着したTiでは部分的にAlの濃化も認められた。これらのことから、Zrの添加により合金元素のAlの固定効果とともに、接合界面でのZr片の接触による金属間化合物層の除去効果が得られ、接合界面の金属間化合物厚さの抑制効果が得られると推測された。

以上のことから、従来からの溶接法と摩擦攪拌接合法を併用し、且つ、元素添加により合金元素との反応を制御することにより、接合界面の金属間化合物層厚さを制御できる可能性が示された。

## 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3件)

Masayuki Aonuma, Kazuhiro Nakata,  
Dissimilar metal joining of ZK60 magnesium

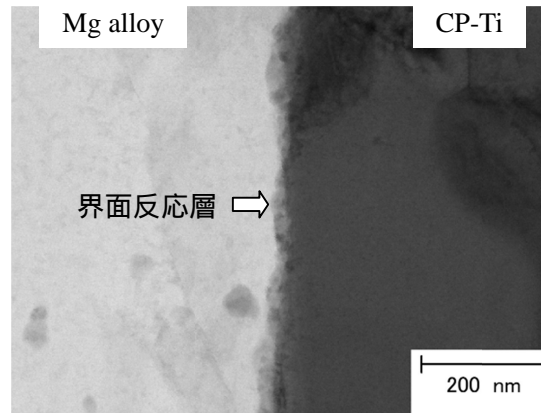


図6 Zrを事前添加したMg-6Al-0.6Zn/CP-Ti接合界面のTEMによる明視野像

alloy and titanium by friction stir welding, *Materials Science & Engineering B*, 177 (2012), 543-548, 査読有, 10.1016/j.mseb.2011.12.031

摩擦攪拌接合による異種金属接合, 青沼昌幸, 中田一博, 塑性と加工, Vol. 53 (2012) No. 621, pp.869-873, 査読有, 10.9773/sosei.53.869

Masayuki Aonuma, Kazuo Morikawa, Yoshikazu Teranishi, Kazuhiro Nakata, Interfacial Microstructure of CP-Ti and AZ31 Joint by Friction Stir Welding, *Quarterly journal of the JWS*, Vol.31 (2013) No.4, 96s-99s, 査読有, 10.2207/qjjws.31.96s

〔学会発表〕(計4件)

青沼昌幸, 森河和雄, 寺西義一, 中田一博, 過共晶 Al-Si 合金とチタンとの摩擦攪拌接合部における接合界面組織, 溶接学会平成 24 年度秋季全国大会, 2012/9/26 ~ 2012/9/28, 奈良

Masayuki Aonuma, Kazuo Morikawa, Yoshikazu Teranishi, Kazuhiro Nakata, Interfacial microstructure of commercial titanium and AZ31 magnesium alloy joint by friction stir welding, *Visual-JW2012*, 2012/11/28 ~ 2012/11/30, 大阪

青沼昌幸, 中田一博, 過共晶 Al-Si 合金と 2024 アルミニウム合金の異材摩擦攪拌接合性, 軽金属学会第 125 回秋季大会, 2013/11/9, 横浜

Masayuki Aonuma, Kazuhiro Nakata, Effect of zirconium addition on interfacial microstructure between commercial pure titanium and magnesium alloy joint by friction stir welding, *Visual-JW2014*, 2014/11/26 ~ 2012/11/28, 大阪

## 6. 研究組織

(1)研究代表者

青沼 昌幸 (AONUMA MASAYUKI)

地方独立行政法人東京都立産業技術研究センター・開発本部開発第1部機械技術グループ・主任研究員

研究者番号：10463051