

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 12 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24656427

研究課題名(和文) Al / Fe 界面での Al 液相中反応制御を用いた高品位 Al / Fe 接合の可能性

研究課題名(英文) Fundamental study for precise Al to Fe welding with control of interfacial reaction in molten Al near interface between Al and Fe

研究代表者

佐藤 裕 (Sato, Yutaka)

東北大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：00292243

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000 円、(間接経費) 930,000 円

研究成果の概要(和文)：アルミニウムと鉄の接合における界面反応制御を目指し、接合界面での金属間化合物の形成に及ぼす合金元素の影響とそのメカニズムに関する基礎知見を得ることを目的とした。金属間化合物形成に及ぼす Cu, Ni, Ti の影響を調べた結果、生成する金属間化合物の種類や構成相に及ぼす合金元素の影響は小さいものの、Ti は反応層厚さを低下させることが示された。Ti による反応層厚さ減少機構について検討し、アルミニウムと鉄の接合界面での高度な界面反応制御の一助となる知見を得た。

研究成果の概要(英文)：The objective of this study is to obtain fundamental knowledge on effect of alloying elements on formation of intermetallic compound layer at the interface between aluminum and steel and the formation mechanism, which is available to precisely control the interfacial reaction during welding of aluminum to steel. In this study, effect of Cu, Ni and Ti on formation of intermetallic compound layer at the interface was examined. These alloying elements hardly affected types of intermetallic compound formed at the interface, but Ti reduced thickness of formed intermetallic layers. Mechanism on the thickness reduction attempted to be clarified, which should be an useful knowledge for highly precise control of interfacial reaction during welding of aluminum to steel.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・材料加工・処理

キーワード：材料加工・処理 異材接合 アルミニウム合金 亜鉛めっき鋼板 金属間化合物

1. 研究開始当初の背景

アルミニウムと鉄の接合(以後、Al/Fe 接合)は機器・構造物の多機能化・高性能化に不可欠であるが、界面に Al-Fe 系金属間化合物(IMC)層が形成してしまうため、優れた継手強度を得るのは難しい。近年、IMC 厚さを数 μm 以下に制御することにより比較的良好な継手強度が得られることが数多く報告されているが、破断の起点は IMC 層であり、また継手性能は大きくばらつく。Al-Fe 系 IMC が脆弱なことを踏まえると、今後 Al/Fe 接合の更なる信頼性向上は期待できない。一方、Al/Fe 界面において、Al-Fe 系 IMC よりも熱力学的に安定な化合物を作り得る合金元素を添加しておけば、界面反応により Al-Fe₂ 元系 IMC 以外の反応層を形成し得る可能性がある。合金元素が添加された Al/Fe 界面での反応を制御して、これまでにない Al/Fe 界面を得ることができれば、高い信頼性と継手強度を両立する Al/Fe 接合の可能性が拡がるとともに、高度な界面反応制御に対する新たな学術的指針を提供し得るが、これらに関する知見はほとんど得られていない。

2. 研究の目的

本研究では、Al 合金と亜鉛(Zn)めっき鋼板の異材接合を想定した。Al と亜鉛めっき鋼板の異材接合では、Al/Fe 界面での「Zn による Al 溶解」と「Al-Zn 液相と鋼板の反応」が生じるため、これらを制御して、Al/Fe 界面に Al-Fe₂ 元系 IMC 以外の安定反応層を得るための基礎学理を究明することを目指した。すなわち、Al/Fe 界面での反応層形成に及ぼす合金元素の影響を明らかにするとともに、反応層形成メカニズムに関する基礎知見を得ることを目的とした。

3. 研究の方法

(1) Al/Fe 異材接合界面での反応層形成に及ぼす合金元素の影響: Al 合金と亜鉛めっき鋼板の異材接合を想定し、Al-Fe 系 IMC よりも熱力学的に安定な化合物を作る可能性がある合金元素を選定し、これらを添加した亜鉛めっき鋼板を試作した。実験レベルでは、Cu もしくは Ni を含む Zn をめっきした鋼板しか作製することはできなかった。Cu 含有亜鉛めっきは厚さが約 $3\mu\text{m}$ で組成は Zn-14wt.%Cu であり、Ni 含有亜鉛めっきは厚さが約 $2.0\sim 2.5\mu\text{m}$ で組成は Zn-2.7wt.%Ni と Zn-4.6wt.%Ni であった。その後、板厚が 1mm の合金元素添加亜鉛めっき鋼板と Al 合金の異材摩擦攪拌点接合を実施した。異材摩擦攪拌接合はシヨルダ径 10mm、プローブ径 4.0mm、プローブ長 0.85mm の接合ツールを用い、回転速度 3000rpm、ツール挿入深さ 0.8mm 一定とし、ツール挿入後の保持時間を 2~20s の間で変化させた。接合後、継手強度(引張せん断強度)ならびに界面反応層の解析を行い、Al/Fe 界面での反応層形成に及ぼす Cu および Ni の影響について調べた。

(2) Al/Fe 異材接合界面を模擬した界面反応に及ぼす合金元素の影響: Al 合金と亜鉛めっき鋼板の異材接合では、(1)Al/Fe 界面での亜鉛めっきの溶解、(2)溶解亜鉛による Al/Fe 界面近傍の Al の局部溶解、(3)溶解 Al-Zn と固相 Fe の界面反応が生じる。本研究を計画どおりに遂行するためには合金元素を添加した亜鉛を鋼板上にめっきする必要があるが、実験的に困難であった。本研究の主たる目的は、溶解 Al/Fe 界面での反応層形成に及ぼす亜鉛めっき中合金元素の影響を系統的・学術的に究明することであるため、Al 合金と亜鉛めっき鋼板の接合界面における現象を疑似的に再現する実験を行った。すなわち、亜鉛と合金元素を含む溶解 Al 中に Fe を浸漬し、Fe 表面に生成する IMC 層の厚さ、組成に及ぼす合金元素の影響に関する基礎知見を得ることを試みた。溶解 Al 中の Zn 量は 10at.% 一定とし、合金元素としては Ti を選定した。Ti 量は 0.5at.%, 1at.%, 3at.% とした。Fe を浸漬する溶解 Al の温度は 650, 680, 710 で、浸漬時間は 1, 2, 3 分、雰囲気は大気とした。

4. 研究成果

(1) Al/Fe 異材接合界面での反応層形成に及ぼす合金元素の影響: Cu と Ni をそれぞれ含有する亜鉛めっき鋼板と Al 合金の異材摩擦攪拌点接合を実施した。摩擦攪拌接合ではプローブを Al 合金のみに挿入し、Al 合金/亜鉛めっき鋼板界面をプローブで攪拌することなく接合した。その結果、いずれも接合可能であった。引張せん断強度試験を実施した結果を図 1 に示す。Ni を含む亜鉛めっきを用いた場合、通常の亜鉛めっき鋼板と Al 合金の引張せん断強度と同程度の値が得られ、Ni 量の影響は見られなかったが、Cu を含む亜鉛めっきの場合には、著しい強度低下が生じた。

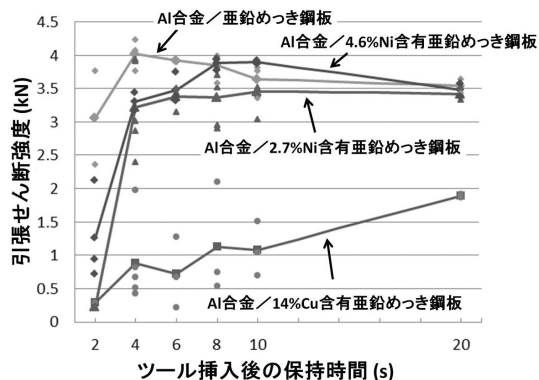


図1 合金元素添加亜鉛めっき鋼板と Al 合金の摩擦攪拌点接合継手の引張せん断強度に及ぼす保持時間の影響

接合界面を走査電子顕微鏡(SEM)にて観察した結果、いずれの接合界面にも図 2 に示すような反応層が形成され、Al 側には Zn が検出された。反応層の組成分析の結果、い

れも Al-Fe 系の IMC 層であることが示唆され、また Zn は接合界面付近の Al 中に主に検出された。これらの結果から、Al 合金と合金元素添加亜鉛めっき鋼板の摩擦攪拌接合時には合金元素を含む亜鉛めっきが溶融して界面近傍の Al 合金を溶融し、Zn と合金元素を含む溶融 Al と Fe の反応により反応層が形成されたことが示唆された。

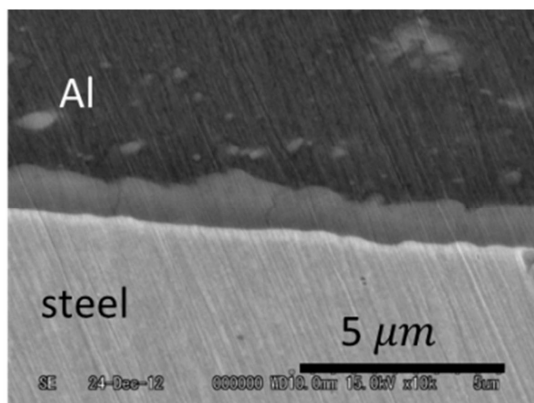


図 2 Al 合金と Ni を含む亜鉛めっき鋼板の摩擦攪拌点接合界面の SEM 写真。界面に反応層が形成されている。

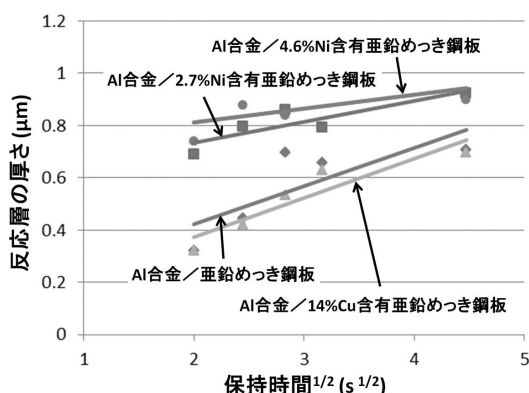


図 3 Al/Fe 界面に形成された反応層の厚さに及ぼす保持時間の平方根の関係

反応層厚さと保持時間の関係を図 3 に示す。反応層厚さは保持時間とともに増加するが、保持時間の平方根と比例関係を示しており、反応層の形成は体拡散律速であることが示唆された。反応層厚さに及ぼす合金元素の影響に着目すると、Cu は反応層厚さにほとんど影響しない一方、Ni 添加は反応層厚さを増大させることが示された。Al/Fe 接合における強度と反応層厚さに関する種々の報告によれば、反応層厚さが 1μm 以下では比較的良好な継手強度を示すことから、Ni 添加による反応層厚さの増大は継手強度にあまり影響していないものと推察される。

透過電子顕微鏡 (TEM) により形成された反応層の同定を行った結果、いずれの接合界面においても Al-Fe 系 IMC 層が検出され、それらは主に FeAl_{2.8} であったが、Ni や Cu を含む場合には加えて Fe₄Al₁₃ の形成も確認され

た。以上の結果より、亜鉛めっきへの Ni および Cu 添加は界面に形成される Al-Fe 系 IMC 層を若干変えることが示されたが、Al-Fe 系以外の IMC 層を得ることはできず、また引張せん断強度への影響は小さいことから、Al/Fe 接合の信頼性向上を目指した亜鉛めっきへの添加合金元素としてあまり効果的ではないことが示唆された。

(2) Al/Fe 異材接合界面を模擬した界面反応に及ぼす合金元素の影響：Zn と Ti を含む溶融 Al 中に Fe を浸漬し、Fe 表面に生成する IMC 層の厚さ、組成に及ぼす Ti の影響に関する基礎知見を得た。Ti を選定したのは、Al/Fe 界面における反応層厚さの減少効果が報告されているとともに、Al との親和力が高いためである。Zn と Ti を含有する溶融 Al へ Fe を浸漬した結果、Fe 表面に反応層の形成が認められた。図 4 に示すように反応層は舌状に Fe 側に成長し、その厚さは Ti の添加により減少することが示された。

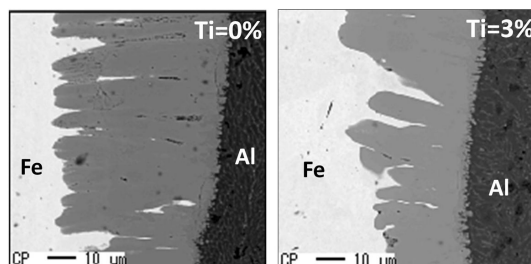


図 4 Zn を含む溶融 Al/Fe 界面における反応層形成 (溶融 Al の温度：680 °C、保持時間：1 分)

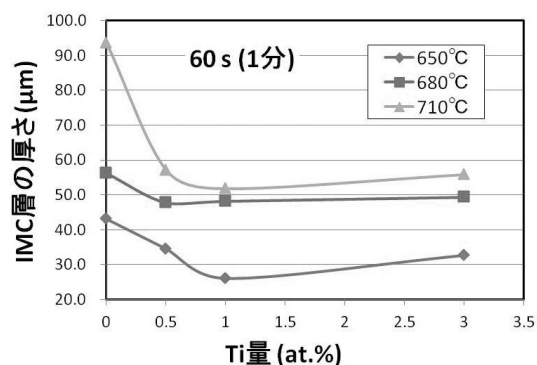


図 5 IMC 層厚さに及ぼす Ti 量の影響 (保持時間：1 分)

電子線マイクロアナライザ (EPMA) による反応層の組成分析を行った結果、反応層はいずれの界面においても Al-Fe 系 IMC の 2 層構造であり、Al 側が FeAl₃、Fe 側が Fe₂Al₅ であって、Ti の添加による違いは認められず、また反応相中における Zn および Ti の濃化はほとんど見られなかった。各溶融 Al 温度、保持時間における IMC 層の厚さを調べた結果の一例を図 5 に示す。ここには保持時間 1 分の結果のみを示しているが、2 分および 3 分でも同様の結果が得られている。IMC 層の

厚さは溶融 Al 中への Ti の添加により減少するが、その程度は Ti 量が 1at.% において最も顕著であることが示唆された。また、いずれの Ti 量においても IMC 層の厚さは保持時間の平方根に比例することが示され、体拡散律速であることが示唆された。IMC 層の成長に対する活性化エネルギーを見積った結果、その値は 120~180 kJ/mol となり、活性化エネルギーに及ばず Ti 量の明瞭な効果は見られなかった。

Al/Fe 界面に形成された IMC 層近傍の Al 側 (IMC 層/Al 界面から Al 側に 10 μ m の領域) における組成分析の結果、溶融 Al 中への Ti の添加により、IMC 層近傍の Fe 量の増加が認められた (図 6)。もともと溶融 Al 中には Fe は含有しておらず、また溶融 Al への Ti 添加によって IMC 層の厚さが薄くなっていることから、Al/Fe 界面で IMC 層が形成した後に IMC 層が溶解することにより IMC 層の厚さが減少することが示唆された。同様の現象は Al 中への Be 添加においても報告されている。Ti が 1at.% においては溶融 Al 中の Fe 量は平衡溶解度を超過しているものの Fe 溶解量 (Al 中の Fe 量) が最も高くなっていることから、一度生成した Al-Fe 系 IMC 層の溶解が最も顕著に生じており、その結果として IMC 層厚さが最も薄くなったものと推察される。

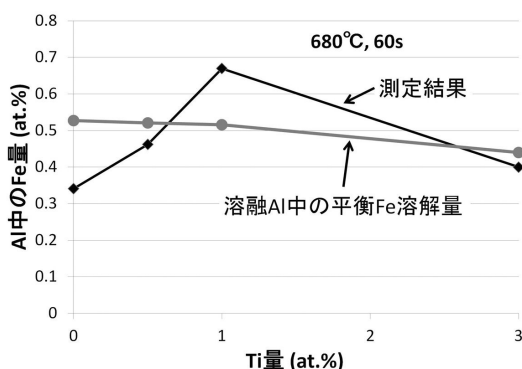


図 6 Al 中の Fe 量に及ぼす Ti 量の影響 (溶融 Al の温度: 680、保持時間: 1 分)

一般に Al への Si や Ge の添加も Al/Fe 界面に生成する IMC 層の厚さを減少させることが知られている。Si や Ge の場合には、IMC 層/Al 界面に Al-Fe-Si(Ge)系 IMC 層が形成され、IMC 層への Al の拡散が抑制されることにより、IMC 層全体の厚さが減少するメカニズムが提案されている。Ti 添加では Si や Ge とは異なるメカニズム、すなわち IMC 層の溶解により IMC 層の厚さが減少し、本研究で目指した Al/Fe 界面での Al-Fe 系以外の IMC 層を達成することはできなかったが、IMC 層の厚さを減少させることにより比較的良好な Al/Fe 継手強度が得られることを踏まえると、異なったメカニズムによって IMC 層の厚さを減少させる合金元素の複合添加により IMC 層の厚さをさらに減少させる可能性が示唆された。

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〕
出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕
ホームページ等

<http://www.material.tohoku.ac.jp/labs/mate01.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

佐藤 裕 (SATO, Yutaka)
東北大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号: 00292243

(2) 研究分担者

粉川 博之 (KOKAWA, Hiroyuki)
東北大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号: 1013305

藤井 啓道 (FUJII, Hiromichi)
東北大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号: 70560225

(3) 連携研究者

なし