

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 12 日現在

機関番号：13904

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25249095

研究課題名(和文) 固相での動的拡散に基づくヘテロ構造創成のための新接合原理の確立

研究課題名(英文) Establishment of new welding principle for heterogeneous structure based on solid state dynamic diffusion

研究代表者

福本 昌宏 (Fukumoto, Masahiro)

豊橋技術科学大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：80173368

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,200,000円

研究成果の概要(和文)：摩擦攪拌援用バルク体接合および凝集微粒子投射援用膜創成の両課題において、以下の諸点を達成した。摩擦攪拌接合では、界面接合形成において物理主因子となる材料流動に半径方向での分布が存在し、これを平準化することが接合体継手強度向上に必須であること、本法固有の接合原理が工業用3大材料の組み合わせに対し適用可能であることを実証した。一方、微粒子援用膜創製では、固相粒子の付着成膜が1次粒子の結晶性、凝集性、粒子径に依存し、特に1次粒子の可動性が粒子付着機構を支配することを検証した。両成果を通じ、ヘテロ構造創成のための固相での動的拡散に基づく新接合原理を確立し、併せて社会実装の可能性を実証した。

研究成果の概要(英文)：Followings are achieved both in A) friction stir aided welding and B) agglomerated ultrafine particle spray aided coating. In research A, it was found that plastic flowing in stir zone has a distribution in radial position and homogenization of flowing gives essential for the higher welding strength between Al and ceramic material. It was revealed that original welding principle can be applied to all combinations within three major industrial materials, namely, metallic, ceramic and polymer. In research B, it was elucidated that deposition of ultrafine ceramic particle onto metallic substrate depends strongly on the crystallinity, agglomeration ability and size of agglomerated particle and especially the mobility of the primary particle dominates the deposition of agglomerated particle on the substrate. New welding principle based on solid state dynamic diffusion was established for the unique heterogeneous structure and practical application possibility of the principle was indicated.

研究分野：界面・表面創成工学

キーワード：異材接合 ヘテロ界面 ヘテロ構造創成 動的拡散 摩擦攪拌接合 凝集微粒子投射成膜 新接合原理

1. 研究開始当初の背景

通常、金属材料間の接合には材料の熔融を伴う溶融接合(溶接)が用いられるが、Fe/Al等反応性の高い異種金属材料間の場合には、溶融により界面に脆弱な反応相が厚く形成され継手の機械強度が保証されないことから、既存の溶接法は適用できない。その代替として、溶融範囲を界面局所に限定するレーザー溶接や固相で接合する拡散接合が挙げられるが、前者では接合体品質保証の不全さが、後者では生産効率の低さが、それぞれ実生産における隘路となっている。これに対し1991年に英国で開発されたFSW摩擦攪拌接合は、攪拌ツールとの摩擦発熱により材料内に塑性流動状態を作り出す画期的手法であり、瞬く間に世界中に普及した。

2000年に同法に出会った申請者は、同法が非溶融を最大の特長とすることから、即座に反応性異種金属接合への適用にこそ、その醍醐味があると看破した。折しも、環境負荷低減に向けた二酸化炭素排出量削減を社会的課題とした時代の要請にも符合し、輸送機器軽量化のための異種金属接合技術の開発に着手した。その結果、これまで既存溶接では不可能とされたFe/Al等各種異種金属の組合せにおいて、母材破断、即ち、効率100%の継手創成を国内外に先駆けて達成し国内特許を取得した。図1に示す概念図の様に、本法は塑性流動の要件さえ整えば、いかなる材料の組合せにも適用できることから、引き続き本法を金属/セラミックス接合に適用し、迅速かつ高品位な接合法としての可能性を見出した。本法は「塑性流動させた軟質材料を固定硬質材料表面に強加圧することで達成される革新的接合」と規定されるが、未知の現象である固相での材料流動の実像、ならびに、その異種材料間界面接合への関与の詳細は、学術、技術的な関心の高さと裏腹に未だ不明であり、解明が急務とされた。

一方、一般にセラミックス厚膜の作製には、溶融粉末を積層するプラズマ溶射法が用いられるが、この場合も粉末材料の溶融は固有の機能性や人為設計したナノ組織構造喪失の誘因となる必要悪であり、溶融前提の通常の溶射では高品位機能性セラミックス皮膜の創成は困難であった。そんな折り、各種組織構造粉末における膜創成の可能性を系統調査した申請

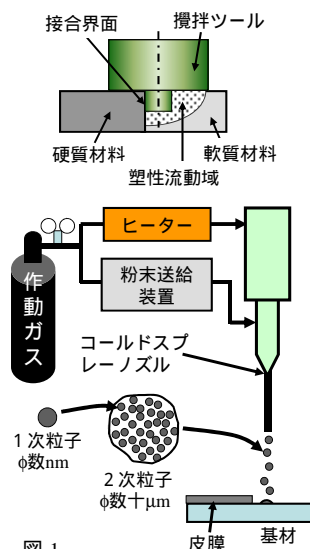


図1 摩擦攪拌援用バルク体接合凝集微粒子投射援用膜創成

者は、ある種のセラミックス粉末を超音速ガス流を駆動力とするCold Spray法により投射することで、溶融を経ず固相での高品位厚膜の創成が可能な事実を、国内外に先駆けて見出した。塑性変形を付着の前提とするCS法では、セラミックス粉末の成膜は原理上不可能なことから、本法の成膜は当該粉末の有す構造的特殊性に由来すると推測し構造解析した結果、「凝集2次粒子の解砕を通じたナノサイズ1次粒子の固相での流動、再結合による」と推測された。本成膜法の概念を図1に示す。本法にも成膜概念の斬新さに基づく高い潜在性が期待されるが、実際には上記本法成膜機構に対する解釈は未だ推測の域を出ず、実成膜機構に対する詳細の解明が急がれるところであった。

2. 研究の目的

以上の背景に基づき本研究では、申請者が独自に創出した固相での材料流動に基づく金属/セラミックス間接合法を、高品位かつ高生産性界面ヘテロ構造創成技術とするために、本法固有の材料流動およびその接合への関与機構を徹底解明し、社会実装実現に向けた新指導原理として確立することを目的とする。

3. 研究の方法

独自に創出した上記二つの新接合法について、(1)材料流動に基づく金属/セラミックス間接合形成に関わる支配因子の特定およびその影響解明、高品位接合体創成のためのプロセス条件最適化に対し実験的に取り組み、(2)最適条件の基に創成した接合体と既存プロセスによる接合体との諸特性の比較により、新接合法の有為性を検証する。なお、新接合法が生産効率および機能性等において既存法を凌駕することは自明であることから、作成接合体における基本特性として、本法による機械的特性が既存法でのそれと同等以上であることを達成目標とする。さらに(3)実験では定量把握の困難な両接合における材料流動現象を数値解析し、解析により得た接合界面での材料流動状況等定量把握結果を、実験的に求めた界面接合特性評価結果に照合することで、新接合原理の確立に資する界面創成への材料流動の関与性および接合機構を明らかにする。

より具体的には、摩擦攪拌援用バルク体接合では、突き合わせ継手の創成において界面形成に関わる機械的(温度・圧力・物質流動)、物理、化学的(表面性状)諸因子を系統変化させた継手の各種特性評価から、継手創成における支配因子を特定し、また静的拡散接合体特性との比較による動的拡散の効用を評価する。また数値解析による材料流動の定量解析を通じ材料流動の界面形成への関与を検証する。一方、微粒子援用膜創成では、凝集粒子圧潰強度および基材表面性状と成膜性および皮膜特性との関係を系統調査し、皮膜

創成における支配因子の特定，影響性を解明する．併せて数値解析による投射時粒子解砕，再結合挙動を定量解析する．以上の実験および数値解析結果を総括し，固相での動的拡散に基づく金属/セラミックス新接合原理を確立する．

両法で明らかにすべき点を以下に纏める．初めに本法でのバルク体接合イメージを図2

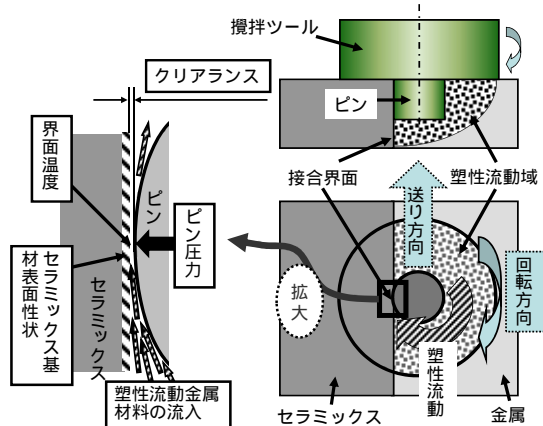


図2 摩擦攪拌援用バルク体接合の具体イメージ

に示す．攪拌ツールの回転により塑性流動域が金属内に形成され，図中，上方へと移動するピン端面とセラミックス端面間に圧入された流動金属材料が，両材料界面において連続的に接合を形成する．従って接合に関わる因子は，界面温度，ピン圧力，材料流動，クリアランスおよびセラミックス材の表面性状(粗さ，化学組成等)である．これら因子の組み合わせにより金属/セラミックス間接合強度や界面ヘテロ構造が決定されることから，これら特性評価結果を基にプロセス条件を最適化する．

次に微粒子投射援用膜創成イメージを図3に示す．図には実際の1次，2次粒子外観および基材上付着単一粒子縦断面のTEMおよびSEM観察像を示す．図より数nmサイズの1次粒子が凝集し10 μ m程の大きさを持つ球形状2次粒子が，巨視的塑性変形後に半球形状で基材上に付着した様相が認められる．従ってこの場合の粒子付着は基材への衝突により2次粒子が解砕し，1次粒子が流動の後に基材への付着を併せ再結合することによるものと推測される．付着に関わる主因子は，粒子間凝集強度，衝突速度，界面温度，

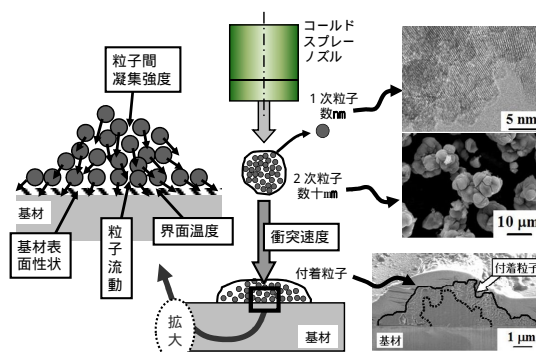


図3 凝集微粒子投射援用膜創成の具体イメージ

びSEM観察像を示す．図より数nmサイズの1次粒子が凝集し10 μ m程の大きさを持つ球形状2次粒子が，巨視的塑性変形後に半球形状で基材上に付着した様相が認められる．従ってこの場合の粒子付着は基材への衝突により2次粒子が解砕し，1次粒子が流動の後に基材への付着を併せ再結合することによるものと推測される．付着に関わる主因子は，粒子間凝集強度，衝突速度，界面温度，

粒子材料流動および基材表面性状(粗さ等)である．この場合も関連諸因子の組み合わせにより皮膜/基材間密着強度や界面ヘテロ構造が決定されることから，これら特性評価結果を基にプロセス条件を最適化する．

4. 研究成果

計画した摩擦攪拌援用バルク体接合，凝集微粒子投射援用膜創成，の2テーマにおいて，各年度に概略以下の成果を得た．

摩擦攪拌援用バルク体接合：

(平成25年度)当初予定した純Cuに代えて，より一般的な実用材料であるAl合金に金属材料を変更し，A5052/アルミナ基材間の摩擦攪拌接合を実施し，接合性に対するツール回転速度，押し込み荷重，保持時間のプロセス因子を系統変化させた一連の接合体を作製した．接合体に対し強度評価試験を実施し，得られた接合強度評価結果を基に各プロセス因子の影響度合いを評価，支配因子を特定した．またA5052/アルミナ界面接合強度の改善には熱応力緩和機能および冶金の因子が重要であることから，純Alインサート層およびTiNコーティング層付与としてその効用を評価した．その結果，ツール回転速度，押し込み荷重，保持時間はいずれも単独では支配的な影響性は無く，これら因子の適正条件の組み合わせにより良好な接合体創製が可能なこと，界面接合形成に関与する物理的主因子となる材料流動には，ある位置において流動が最大となる半径方向での分布があり，これを平準化することが接合体継手強度向上に重要である等の新規の見解を得た．

(平成26年度)引き続きA5052/アルミナ間の接合における接合特性の評価，接合特性の向上および接合メカニズムの解明に取り組んだ．接合特性評価では，A5052とアルミナの直接接合においてツール回転数と接合時間を変化させた接合を行い，引張りせん断試験，アルミナ内き裂発生確認のための探傷試験等を実施した．接合特性の向上では，接合界面にインサート材を挿入し接合強度への影響を調査した．接合メカニズムの解明では，機械的要因，化学的要因の両面からの検討を行った．その結果，図4に示すように，A5052と

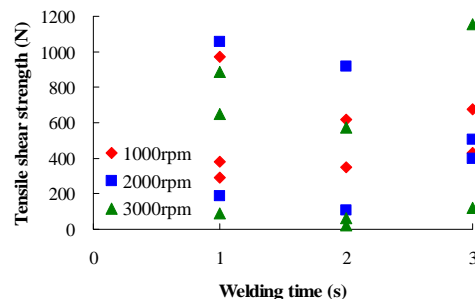


図4 ツール保持時間と接合強度

アルミナの接合において加圧力5600N，ツ

ル回転数 3000 rpm, 保持時間 3.0s の条件下で最大引張りせん断強度 1157N の接合体創成を達成した。またアルミナ側接合面の表面粗さを 2.0 μ m とした場合に高い接合強度が得られた。

(平成 27 年度) これまでに進めてきた A5052 / アルミナ系において, 表面に Ti 薄膜を成膜したアルミナでの接合において接合強度の改善効果を確認した。本接合法を既存拡散接合法と比較した場合, 静的強度はやや劣るものの, 圧倒的な生産性の改善が可能であることを実証した。また, 本法の金属 / セラミックス以外の材料組み合わせへの適用を志向し, 金属 / 高分子材料の組み合わせとして工業的に重要視される Al 合金 / CFRP 系に適用した。その結果, Al 合金側の攪拌により適度な接合強度, 機密性兼備の接合体創成が可能であることを実証した。今後, 本法の金属 / セラミックスおよび金属 / 高分子系ヘテロ構造創成の社会実装としての展開が期待される。

以上 3 年間に得られた結果を総括し, 界面接合形成における物理的主因子である材料流動が半径方向での分布を有し, これを平準化することが接合体継手強度向上に重要であること, 摩擦攪拌により塑性流動させた軟質材料を固定硬質材料界面に強加圧することで得られる本接合原理が工業用 3 大材料組み合わせに対し適用可能であること等の新規知見を獲得するとともに, 社会実装への展開の可能性を明らかにした。

凝集微粒子投射援用膜創成:

(平成 25 年度) 成膜の素過程となる単一凝集粒子について, 仮焼温度の変化に伴う凝集強度を実測し, 成膜特性との関係性推定の基礎データを蓄積した。このため, 今回の予算で新規に導入した粒子圧潰試験機を用い, 単一粒子圧潰強度評価法を確立した。その結果, 仮焼温度の上昇に伴い粒子凝集強度は徐々に低下し, 500 付近で最低を示した後に向上に転じる興味深い特性が明らかになった。一方, 未処理凝集粒子の成膜に及ぼす基材側因子の影響を系統調査した結果, 中間層および基材表面粗さおよび硬さが密着強度に深く関与するとの知見を明らかにした。

(平成 26 年度) 酸化チタン粉末への熱処理により粒子圧潰強度の変化が可能であるが, 圧潰強度の粒子付着効率への影響は小さい。同粉末の付着には粒子の有する固有の微視構造が関与し, 1 次粒子間に存在するナノサイズの空孔の有無が基材衝突時の粒子の崩壊に影響し, 粒子の付着ひいては皮膜形成に影響を及ぼすことを明らかにした。一方, 同粉末の成膜において, 基材材質はさほど影響を持たないこと, 基材表面の巨視的な表面粗さは皮膜密着強度の増大をもたらすこと, 粉末粒径に近い微視的な表面粗さは粒子付着効

率の増大に寄与すること, などの諸点を明らかにした。

(平成 27 年度) 独自製法のチタニア凝集粉末の作製を試み, 溶媒との組成比, 焼成温度等プロセス因子の最適化を行った結果, 適正凝集構造を有する粉末を得た。市販チタニア粉末以外の本成膜法への適応性として, 独自製凝集粉末の成膜を試みた結果, 安定的に成膜が可能であることを検証した。また粉末の付着が, 粉末の有する結晶性, 凝集性, 粒子径, および基材硬さに依存すること, 特に基材硬さの高いほど良好な付着特性が認められた事実から, この場合の粒子付着機構を支配する因子が 1 次粒子の稼動性にあることなどが示唆された。この場合の粒子付着機構を模式的に図 5 に示す。一方, 研究分担者はセラミック粒子内の破壊, 流動, 再結合の流体解析を志向し, 種々の取り組みを実施したが, 最終的に再結合の解析的扱いが極めて難解であることが判明し今後の課題とした。これに代えて, 超高分子量ポリエチレンとナノセラミックス粒子との混合粉末において数 mm 厚の成膜を達成した。

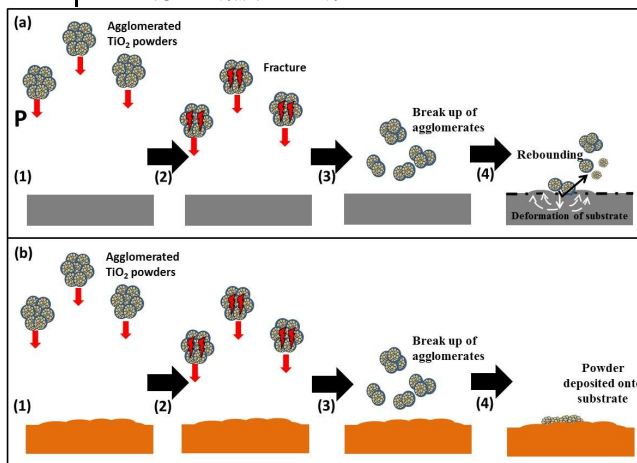


図 5 粒子付着に対する基材硬さの影響

以上 3 年間に得られた結果を総括し, 固相粒子の付着成膜が粒子の有する結晶性, 凝集性, 粒子径に依存し, 特に 1 次粒子の稼動性が粒子付着機構を支配するとの知見を得た。摩擦攪拌接合での成果と併せ, 固相での動的拡散に基づくヘテロ構造創成のための新接合原理を確立するとともに社会実装への展開の可能性を明らかにした。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(下記を含む計 28 件)

S. Kikuchi, S. Yoshino, M. Yamada, M. Fukumoto, and K. Okamoto, Microstructures and Thermal Properties of Cold-Sprayed Cu-Cr Composite Coatings, J. Thermal Spray Technology, 査読有, 22-6(2013)926-931

Doi: 10.1007/s11666-013-9926-7

A. Ganesan, M. Yamada and M. Fukumoto, The Effect of CFRP Surface Treatment on the Splat Morphology and Coating Adhesion Strength, J. Thermal Spray Technology, 査読有, 23(1-2) (2014)236-244

Doi: 10.1007/s11666-013-0003-z

M. Fukumoto, H. Mizushima and T. Yasui, Friction Stir Welding between Dissimilar Metals with Circular Weld Line, Key Engineering Materials, 査読有, 622-623 (2014) 501-507,

Doi: 10.4028/www.scientific.net/KEM.622-623.501

T. Yasui, N. Ando, S. Morinaka, H. Mizushima and M. Fukumoto, Effect of weld line shape on material flow during friction stir welding of aluminum and steel, Materials Science and Engineering, 査読有, 61(2014) 012009

Doi:10.1088/1757-899X/61/1/012009

Manap, O. Nooririnah, H. Misran, T. Okabe, K. Ogawa, Experimental and SPH study of cold spray impact between similar and dissimilar metals, Surface Engineering, 査読有, 30(2014) 335-341,

Doi:10.1179/1743294413Y.0000000237

Y. Watanabe, C. Yoshida, K. Atsumi, M. Yamada and M. Fukumoto, Influence of Substrate Temperature on Adhesion Strength of Cold-Sprayed Coatings, J. Thermal Spray Technology, 査読有, 24(1-2) (2015)86-91,

Doi: 10.1007/s11666-013-0003-z

A. Ganesan, M. Yamada, M. Fukumoto, Microstructure and Mechanical Properties of Warm-Sprayed Titanium Coating on Carbon Fiber-Reinforced Plastic, J. Thermal Spray Technology, 査読有, 29(2016)788-796,

Doi: 10.1007/s11666-016-0392-x

K. Ravi, Y. Ichikawa, T. Deplancke, K. Ogawa, O. Lamé and J.-Y. Cavaille, Development of Ultra-High Molecular Weight Polyethylene (UHMWPE) Coating by Cold Spray Technique, Journal of Thermal Spray Technology, 査読有, 24-6(2015)1015-1025,

Doi: 10.1007/s11666-015-0276-5

〔学会発表〕(国際会議 48, 国内会議 65, 招待講演: 国内 23, 国際 3, 下記を含む計 139 件)

Effect of Material flow by friction stir welding between aluminum and steel on weld interface, T. Yasui, T. Shimizu and M. Fukumoto, Proc. of IIS-JW 2013, (2013)CD

High performance thick coating formation on C-FRP substrate by thermal spraying, M. Fukumoto, H. Tokuyama, A. Ganesan and M. Yamada, Proc. of IJST 2013, (2013) 153-154

Influence of substrate temperature on adhesion strength of cold sprayed coatings, Y. Watanabe, C. Yoshida, K. Atsumi, M. Yamada and M. Fukumoto, Proc. of ITSC-2014, (2014) CD

Friction Stir Welding between Dissimilar Metals with Circular Weld Line, M. Fukumoto, H. Mizushima and T. Yasui, Proc. of Metal Forming-2014, (2014) CD

Effects of heat treatment on morphology, crystallinity and coating in TiO₂ nanostructures for Cold Spray Application, T. B. A. Rahim, M. Sato, M. Yamada and M. Fukumoto, Proc. ICCCI-2015 (2015) CD

Synthesis and Deposition Behavior of Cold-sprayed Agglomerated TiO₂ Powders, A.R. Toibah, M. Sato, M. Yamada and M. Fukumoto, Proc. of ATSC (2015) 28-29

Evaluation on mechanical property of dissimilar metal joints made by friction stirring, M. Fukumoto, M. Yamaguchi and T. Yasui, Proc.

ICSMA-17 (2015) CD

Development of ultra high molecular weight polyethylene coatings by cold spray technique, K. Ravi, Y. Ichikawa, K. Ogawa, T. Deplancke, J.-Y. Cavaille, Proc. of 11th ICFD-2014, (2014) CD

Influence of Substrate Materials on Deposition Behavior of Cold Spray Emulated Pure Single Al Particle, K. Ito, Y. Ichikawa, K. Ogawa, Asian-Pacific Conference on Fracture and Strength 2014 and the International Conference on Structural Integrity and Failure, (2014) 519-523

〔図書〕(下記を含む計 8 件)

未来を拓く粒子積層新コーティング技術-コーールド/ウォームスプレー, エアロゾルデポジションのすべて-, 監修 福本昌宏, シーエムシー出版(2013)

自動車の軽量化テクノロジー~材料・成形・接合・強度, 燃費・電費性能の向上を目指して~, 第2章第2節第1項 摩擦攪拌に基づく異種材料接合技術, 共著, エヌ・ティー・エス (2014) 129-138

Chapter 14, Thermal Spraying, M. Fukumoto, Encyclopedia of Aluminum and Its Alloys, Taylor & Francis, (2016)

〔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 研究代表者:

<http://isf.me.tut.ac.jp/>

研究分担者:

<http://www.ogawa.rift.mech.tohoku.ac.jp/index.html>

6. 研究組織

(1)研究代表者

福本 昌宏 (FUKUMOTO, Masahiro)
豊橋技術科学大学・大学院工学研究科・教授, 研究者番号: 80173368

(2)研究分担者

小川 和洋 (OGAWA Kazuhiro)
東北大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号: 50312616

(3)連携研究者

安井 利明 (YASUI, Toshiaki)
豊橋技術科学大学・大学院工学研究科・准教授, 研究者番号: 10263229

山田 基宏 (YAMADA, Motihiro)
豊橋技術科学大学・大学院工学研究科・助教, 研究者番号: 00432295