

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 5 月 30 日現在

機関番号：14101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K06464

研究課題名(和文) 環境負荷低減接合のための表面膜破壊挙動の解明

研究課題名(英文) Analysis of fracture of oxide film for bonding with reduction of environmental consumption

研究代表者

川上 博士(KAWAKAMI, Hiroshi)

三重大学・工学研究科・准教授

研究者番号：00252338

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、アルミニウム大気中自発的溶融凝固接合において接合面周期運動を与えることにより、その環境負荷低減効果を調べた。界面周期運動を与えることにより接合温度の低温化による省エネルギー化およびインサートメタル厚さ低減による省資源化が可能であることがわかった。酸化膜破壊効率化に関する界面変形機構について初期形状が関与する機構と関与しない機構が観察された。周期運動では後者が生じることが分かった。

研究成果の概要(英文)：Effect of the reduction of the environmental consumption by vacuum free self fusion solidification bonding of aluminum with the periodic motion of the bonding interface was investigated in this study. The reductions of the bonding temperature and the insert metal thickness were introduced by the periodic motion. These reductions realized the energy conservation and the resource saving, respectively. Two types of the deformation mechanism of the bonding interface were classified by the relation with the original surface. The periodic motion during self fusion solidification bonding deformed the bonding interface with the independence from the original shape.

研究分野：接合工学

キーワード：大気中接合 環境負荷低減 アルミニウム 酸化膜 周期運動 界面変形

1. 研究開始当初の背景

金属材料の接合においては、船舶、ガスタンクなどに見られるように、安全上の要求として接合界面に空隙のない接合部が求められる。一般的に金属表面には酸化膜を含む表面汚染層が形成されている。そのため、空隙のない継手製作においては、表面汚染層の除去が前提となる。溶融溶接法は金属材料の接合において最も広く用いられる技術である。溶融溶接法では、高温加熱により接合過程で障害となる表面汚染層を除去している。非常に簡便な技術であるが最高到達温度は、必ず金属材料の融点（液相線温度）以上としなければならない制約があり、大量のエネルギー消費を必要とする。

金属材料の接合に関するエネルギー消費（環境負荷）低減のために、最高到達温度を低温化した接合プロセスが求められている。低温・低変形接合プロセスとして拡散接合などの固相接合法がすでに開発されているが、高真空、高接合圧力条件を利用したとしても接合時間が1時間を超えた長時間となる問題がある。環境負荷低減には金属材料の融点を超えない最高温度で実施が可能で溶融溶接と同等の接合部を与える短時間接合法が必要である。

2. 研究の目的

アルミニウムは軽量化材料として、自動車、鉄道車両、船舶などに広く使用されることが期待されている金属である。アルミニウムは融点が他の金属に比べ低温であることから接合が容易な材料と予想されるが、表面に生成されるアルミニウム酸化膜が他の金属酸化膜と比べて強固なことが知られている。そのため、アルミニウム酸化膜はアーク溶接では溶接性の低下を与え、拡散接合では拡散に対する障壁となる。

本研究では、環境負荷低減接合法として考案した大気中自発的溶融凝固接合をアルミニウムに適用するための酸化膜破壊付与手法と酸化膜破壊のために必要なマイクロ界面変形に関して変形機構を検討した。

3. 研究の方法

アルミニウムを大気中にて接合する方法として、自発的溶融接合法を用いるとともにその高効率化を図るため、界面変形を与える周期運動とその結果として現れるアルミニウム酸化膜破壊挙動を検討した。

(1)自発的溶融凝固接合法

一般的に行われるアーク溶接法では温度変化（加熱および冷却）を与えることによって、接合部を得ている。自発的溶融接合法では金属材料の融点以下で、接合部を溶融させるために、図1に示すように接合部の組成変化を利用する。相互拡散による組成変化（図中矢印方向）は接合部を溶融させ、溶接法と同じく空隙のない接合部を創出する。さらな

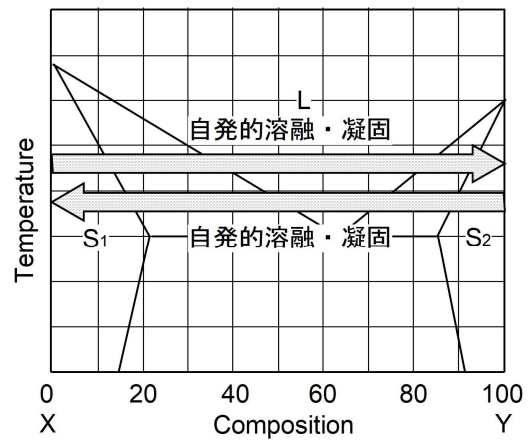


図1 自発的溶融凝固接合法と平衡状態図との関係

る組成変化（濃度均質化）により溶融していた接合部は凝固する。この接合プロセスにより金属材料の融点以下の接合温度で実施されるが、溶融溶接と同じ相変態を接合部に与えることができた。本研究では、図中XおよびYの金属元素はアルミニウムと銅である。銅はアルミニウムの強化元素である。

(2)接合界面周期運動

環境負荷を考慮し、エネルギー消費を低減させるために、最高温度が低温である自発的溶融凝固接合法を用いるが、更なるエネルギー消費低減策としてシールドガス、真空雰囲気を用いない大気中接合を行う。アルミニウム酸化膜は強固な接合阻害効果を有するため、酸化膜破壊のために、接合同士を衝突させる周期運動を接合プロセス中に与えることにした。周期運動は接合界面に与える最高圧力をしきい値として制御した。図2に

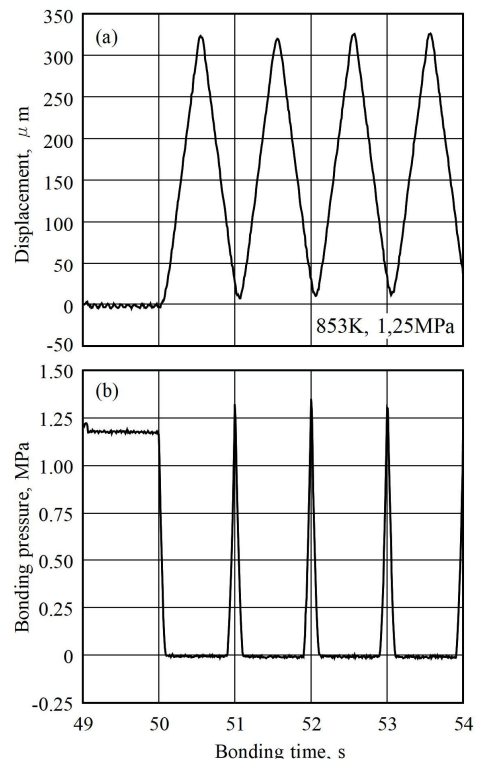


図2 接合界面周期運動中の変位および接合圧力履歴

周期運動の変位および圧力履歴を示す．変位を減少させることにより接合面同士を接触させ，さらに圧縮することで接合圧力をしきい値まで増加させた．

(3) 接合実験

図 3(a)に示す新たに購入した温度調節器を追加した既設実験装置にて接合試験片および界面変形観察用試験片を得た．リニアアクチュエータが上部試験片の圧縮方法変位を与え，ロードセルにてモニタリングされている圧力値（荷重値）がしきい値を超えると上方に引き上げられる．接合プロセス中の，温度，変位および圧力履歴の概要図を図 3(b)～(d)に示す．図 3(c)および(d)の実験結果の一例は図 2 に示した．

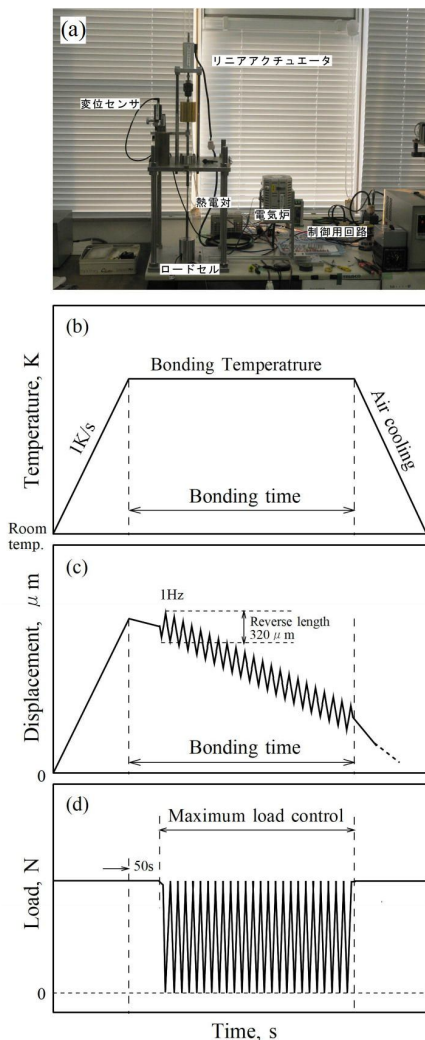


図 3 接合実験装置外観と接合パラメータの履歴

(4) 界面形状測定

アルミニウム酸化膜を破壊するために酸化膜に変形を与える必要がある．金属も同時に変形されるので，酸化膜に与えた変形を知るために金属表面の変形（形状変化）機構を調べた．そのために，図 4 に示すマイクロ스코プおよびワイドレンジズームレンズを購入し，組合わせて実験に使用した．また，マイクロ스코プは Z 方向だけがマイクロメ



図 4 表面形状測定装置

ーターによる計測機能が可能であったため，X および Y 方向マイクロメーターおよび試料回転機能を独自設計治具の追加することにより測定位置再現性を向上させた．本装置は Z 方向の画像を合成し，観察表面の 3 次元形状を測定するものである．本研究では Z 方向 $1\mu\text{m}$ 間隔で撮影した画像を用いた．

4. 研究成果

接合試験片として，6 の工業用純アルミニウム(1070)丸棒(長さ 30mm)とインサートメタルとして厚さ $50\mu\text{m}$ の純銅箔を用いた．

(1) 定荷重試験による既知の結果

おもりによる接合圧力 1.4MPa および接合温度 893K による大気中接合実験結果を図 5 に示す．酸化膜が破壊されて接合部となった接合面の接合面積率は 20%程度の低い値を示した．本実験結果は，本研究において比較用データとして位置付けられる．

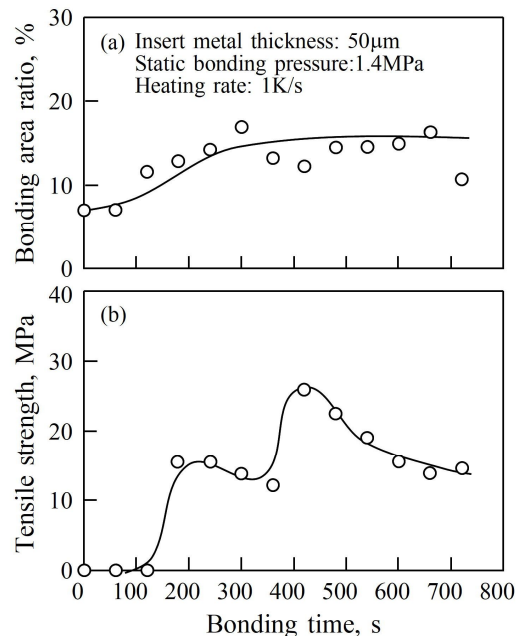


図 5 定荷重接合実験結果

(2) 界面周期運動に関する検討

静的荷重を用いる接合条件は，装置構成が簡便となり一般的な手法であるが，図 5 に示したように，良好な結果が得られなかった．アルミニウムの接合において，表面に存在する酸化膜に対して交流によるクリーニング

作用, 高真空による酸化膜成長抑制, フラックスによる酸化膜除去が接合補助プロセスとして追加されている. 本研究では, 新たなアイデアとして図2および図3に示したように変形を周期的に酸化膜に与えることで, 酸化膜破壊を行う試みを行った. 実験結果を図6に示す. 図6(a)に示すように周期運動を与えることにより, 静的荷重条件を用いた場合に比べて接合面積率が90%程度まで増加した. 継手強度は接合部での生成相の種類に依存するが, 図6(b)に示すように本実験条件では高温加熱後のアルミニウム母材強度(58MPa)に対して90%以上の引張強さを示した. 接合面積率および継手強度は界面周期運動のしきい値として用いる圧力値が大きいほど, 両者の値は増加した. また, 界面周期運動を与えることにより接合温度を873Kまで低温化することが可能になった. 本実験結果より, 低接合圧力による周期運動を付与することで, 接合温度の低温化(省エネルギー化), インサートメタル厚さの低減(省資源化)が可能になることがわかった.

図6に示した実験結果において明らかになった接合面積率におよぼす接合圧力依存性について検討を行った. 酸化膜破壊が行われることにより接合面積が得られるので, 上記結果は周期運動の接合圧力を増加させると酸化膜破壊面積も増加することを表している. 前章(4)において述べたように酸化膜破

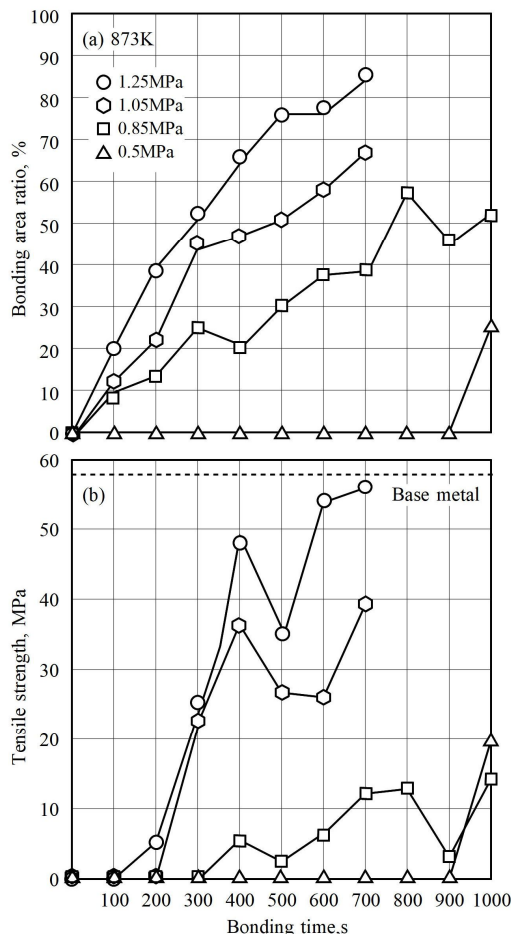


図6 周波数1Hzによる界面周期運動接合実験結果

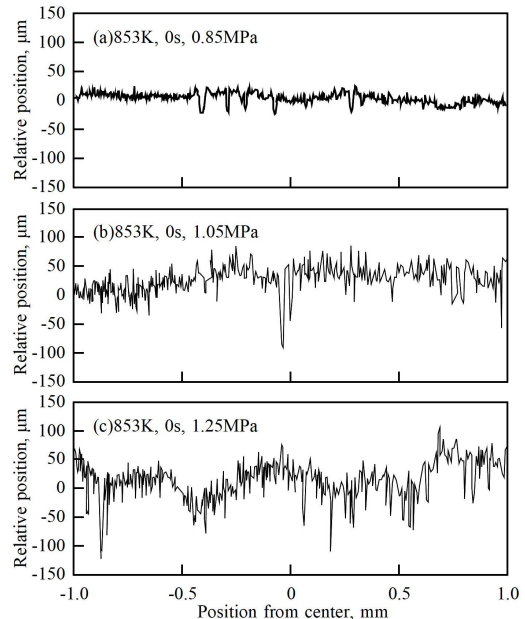


図7 接合温度853K到達時の接合面断面形状

壊と接合界面変形は密接な関係があるため, 接合圧力を変化させた接合面の切断面形状を比較した. 図7に示すように, 接合圧力が大きくなると接合面の凹凸度が大きくなった. すなわち, 接合圧力が増加すると界面変形量が増加することが明らかとなった.

さらなる環境負荷低減を目指し, 酸化膜破壊に効果的と考えられる接合界面の衝突回数を増加させるために接合界面周期運動の

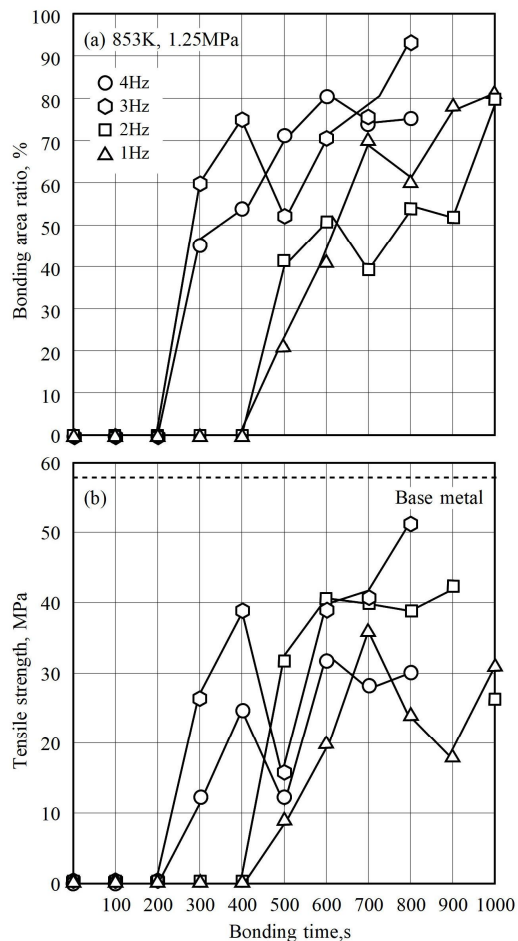


図8 各周波数による界面周期運動接合実験結果

周波数を増加させて接合実験を行った。説都合温度 853K による実験結果を図 8 に示す。現在得られている実験結果では 3Hz の周期運動を与えることにより、90%以上の接合面積率を得ることができた。これは、接合温度 873K、周波数 1Hz の接合条件で得られた値とほぼ同じである。本実験は現在も追加実験を行っており、最適周波数については確定していないが、周期運動周波数を増加させることで酸化膜破壊の効率化が達成でき、その結果として、接合温度の低温化(省エネルギー化)が可能になることがわかった。

(3)接合界面変形機構に関する検討

上述の実験結果より、接合界面およびアルミニウム酸化膜にマイクロメートルオーダーの変形を与えることにより大気中自発的溶融凝固接合に好影響を与えることが明らかになった。そこで、加熱・加圧による接合界面形状の変化を観察することより、接合プロセス中における界面変形機構を検討した。観察用試験片として、6 の工業用純アルミニウム(1070)と純銅の丸棒(長さ 30mm)を用いた。得られた形状曲線に対して、表面粗さに関する JIS で定められる処理を行った。

定性的な変形形態は図 9 に示すように 3 種類に分類することができた。いずれも与えられた接合圧力下で加熱温度に到達した時点での表面形状を示している。図 9(a)は、初期形状を継承しておきた平坦化変形の一例である。この変形形態は、初期表面あらさが大きい接合界面におきやすい。図 9(b)は初期表面形状を継承しておきた凹凸化変形の一例である。この変形形態は図 7 で示した界面マイクロ変形と深い関連性があるものと考えられる。図中左側の平坦な面において顕著に凹凸化が観察された。この場合は、接触している強度の大きい銅である相手側表面形状が大きく関与した変形が与えられているも

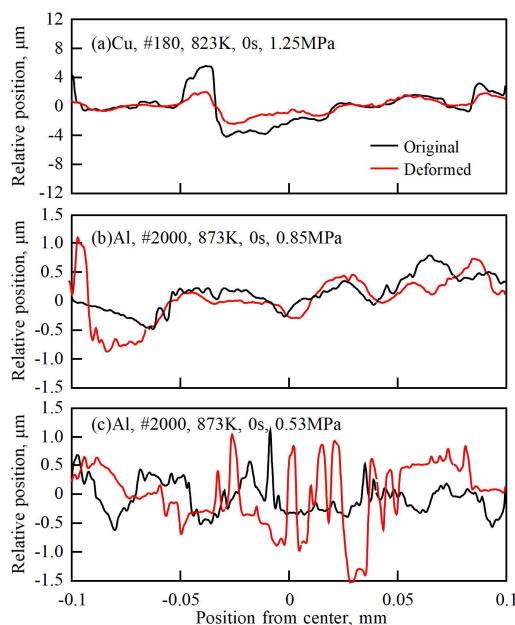


図 9 接合界面変形の形態

のと考えられる。同時にアルミニウム酸化膜にも同様の変形が与えられ、破壊させられることで接合面積を増加させるものと思われる。図 9(c)は初期表面形状を継承しないで、接合界面変形が生じる変形形態の一例である。この変形機構については、研究計画最終年度において初めて確認されたもので、現在はその詳細が不明であり、さらなる研究が必要である。図 9(a) ~ 図 9(c)に示した変形形態をそれぞれ、Type I、Type II および Type III としてその発生分布を図 10 に示す。低温範囲において、初期表面形状を継承する変形形態が現れるだけで、ほとんどの場合が初期表面形状を継承しない、すなわち周期運動により与えられた変形が生じることが明らかとなった。

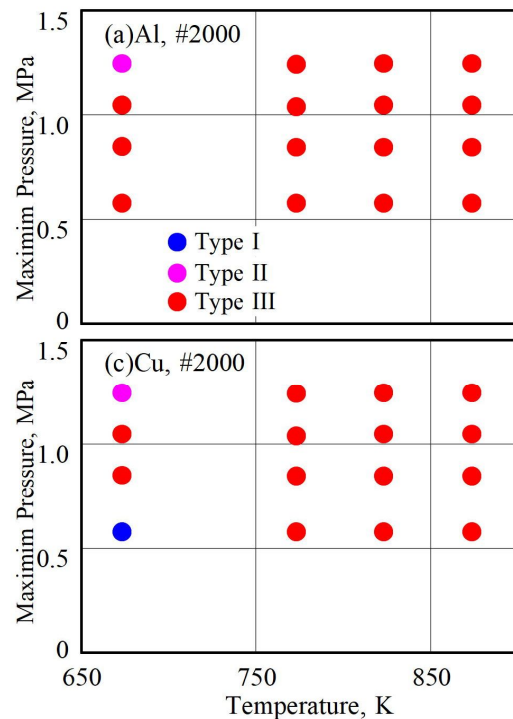


図 10 周期運動50回付与後の界面変形形態分布

(4)まとめ

アルミニウム酸化膜が問題となる大気中での接合に対し、接合界面周期運動による自発的溶融凝固接合法を適用し、環境負荷低減性を検討した結果、以下のようなことがわかった。

低最高圧力による接合界面に周期運動を与えた結果、静的圧力条件にくらべて接合温度の低温化(省エネルギー化)、インサートメタル厚さの低減(省資源化)を行うことができるとともに、アルミニウム酸化膜破壊も高効率化できた。

アルミニウム酸化膜破壊をもたらす接合界面変形は、初期表面形状を継承する変形形態と継承しない変形形態が認められた。前者は静的圧力下での加熱により生じやすく、後者は周期運動(動的圧力)により生じやすいことが分かった。

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 1 件)

川上博士, 児玉聖也, 圧力制御型周期運動を用いたアルミニウム自発的溶融凝固接合におよぼす圧力および温度の影響, 溶接学会誌論文集, 査読有, 第 36 巻, 第 2 号, 2018, 129-134.

<https://doi.org/10.2207/qjws.36.129>

〔学会発表〕(計 3 件)

川上博士, 接合プロセス設計における状態図の利用法, 日本材料学会東海支部セミナー, 2017. (名古屋)

H. Kawakami, K. Matsuda, S. Kodama, T. Nagao, J. Suzuki, Vacuum free self fusion solidification bonding of aluminum by periodic motion, Proc. of 10th Trends in Welding Research, 2016, 791-792. (東京)

児玉聖也, 川上博士, 尾崎仁志, 鈴木実平 AI 大気中自発的溶融凝固接合における接合時間短縮に関する検討, 溶接学会全国大会講演概要, 第 90 集, 2016, 294-295. (渋川)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

出願年月日:

国内外の別:

取得状況 (計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

取得年月日:

国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.met.mach.mie-u.ac.jp/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

川上 博士 (KAWAKAMI, Hiroshi)

三重大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号: 00252338

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

()

研究者番号:

(4) 研究協力者

児玉 聖也 (KODAMA, Seiya)

小田 佳典 (ODA, Yoshinori)

大林 耀 (OHBAYASHI, Yo)