

# 界面ナノ塑性流動による低エネルギー接合法の開発

茨城大学工学部 マテリアル工学科

教授 岩本 知広

(平成 26 年度一般研究開発助成 AF-2014016)

キーワード：超音波接合、透過型電子顕微鏡、マグネシウム合金

## 1. 緒言

現在、軽量化が強く求められている航空機・車両等輸送機器分野では Mg 合金の活用が期待されている。特に本研究で取り扱う Mg-Zn-Y 合金は、ジュラルミンなどを凌駕する高比強度を持ち、それらに取って代わるものとして精力的に研究されている。ところでこれらを実際の産業に応用する場合、組立加工において接合技術の確立が必要不可欠である。

Mg-Zn-Y 合金は Mg 母相と Zn と Y が偏析した長周期積層構造相（以下 LPSO 相）の 2 相からなる Mg 合金である。LPSO 相は、Zn と Y の偏析した局所的に fcc 構造を持った構造ユニットが、六方晶の底面に対して垂直に特定の周期性を持って並んだ構造をしている。この LPSO 相による強化機構などにより、Mg-Zn-Y 合金は軽量で優れた機械的特性を有している。我々はこの合金に対して、輸送機器の製造工程で最も広く利用されている抵抗スポット溶接法を初めて応用した。この結果、通常の Mg 合金より低い溶接電流で接合が可能になった<sup>1)</sup>。しかしながら接合時の高いエネルギーにより広範囲で Mg 合金が溶融し、鑄造組織が生成してしまった結果、最終的に得られた接合体全体の機械特性が低下する傾向があった。

これに対して超音波接合法は基本的に固相接合であり、これを Mg-Zn-Y 合金に応用することで、母材の組織を大きく損なわず、高強度の接合体が得られると考えられる。そこで本研究では実際に Mg-Zn-Y 合金に超音波接合し、その接合界面の詳細な微細組織を明らかにした<sup>2, 3)</sup>。また、超音波接合では、塑性流動により接合阻害因子である表面凹凸や汚染物質などが除去され接合が達成されるが、固相接合のためその塑性流動性は、もともとの板の微細組織に大きく影響を受けると考えられる。そこで、Mg-Zn-Y 合金板がもともと有している集合組織の方位を変化させ接合を行うことで、超音波接合に対する影響を評価した。また、

接合界面に集合組織の影響を緩和するためのインサート材を挟みこみ、その接合性の変化についても検討した。

## 2. 実験方法

供試材としては、 $Mg_{96}Zn_2Y_2$  合金の円柱押出材を用い、その押出材から押出方向に平行及び垂直に試験片を切り出した。試験片のサイズは長さ 50mm、幅 20mm、板厚 0.8mm である。インサート材は厚さ  $70\mu m$ 、純度 99.9% の Mg 箔を用いた。

超音波接合の実験では、超音波接合装置（東芝三菱電機産業システム（株））および発信器（ソノマックジャパン（株））を用いた。図 1 は、装置の模式図である。チップとアンビルの間に接合に供する 2 枚の板を挟みこんだ。定格出力、発信周波数および加圧力は、それぞれ 1200W、20kHz および 1100N とし、接合エネルギーを 1300~3500J の範囲で変化させ接合を行った。

$Mg_{96}Zn_2Y_2$  合金は、後に示すように押出方向に LPSO 相が伸長している。微細組織観察を行うための試料については、界面の位置を同定しやすいように、接合時に押出方向が互いに交差するように配置して接合させた。試料は、接合し

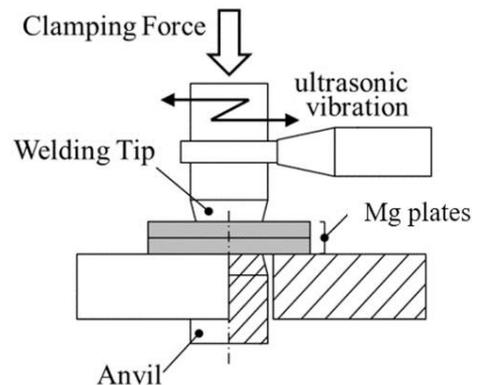


図 1 超音波接合の模式図

た板の接合界面に対して垂直にロースピードソーで切り出した。表面を機械研磨をした後、電界放出型走査型電子顕微鏡 (JEOL JSM-7600F) を用いて観察した。またこの断面から薄片を切り出し、機械研磨、 $\text{Ar}^+$  イオンによるイオン研磨により薄膜化した後、透過型電子顕微鏡 (JEOL JEM-2800、FEI TECNAI G2 F20) を用いてより詳細に観察した。

### 3. 実験結果および考察

#### 3.1 $\text{Mg}_{96}\text{Zn}_2\text{Y}_2$ 合金板の超音波接合体接合界面の微細組織観察

図2は超音波接合された接合体のうち、接合強度が高い試料を微細組織観察した結果である。白いコントラストがLPSO相を示しており、下板は図の横方向にLPSO相が伸びているのに対して、上板は図の手前方向にLPSO相が伸びている。接合後もLPSO相の分布や形態に大きな変化がなく、また接合界面も未接合部や欠陥がなく良好な接合状態であった。この接合界面をさらに透過型電子顕微鏡で詳細に観察した像が図3である。接合界面に平行に約 $1\mu\text{m}$ 程度の結晶粒を有する幅 $5\mu\text{m}$ のバンド状の領域が形成していることが分かった。またこの領域の外側では、 $3\sim 6\mu\text{m}$ 程の大きさに結晶粒が成長していた。一般に超音波接合では、接合界面に塑性加工が入ると同時に2枚の板の摩擦熱により温度が上昇するため、動的再結晶により微細粒が生成すると考えられている。本 $\text{Mg}_{96}\text{Zn}_2\text{Y}_2$ 合金の接合の場合も、接合時の動的再結晶によりMg微細粒が生成するが、本合金内に存在するLPSO相により転位の伝達が妨げられるため、接合界面近傍に特に転位密度が高い領域が生成し、バンド状の微細粒領域ができたと考えられた。またバンド外側では結晶粒成長が起こっているが、その粒径はLPSO

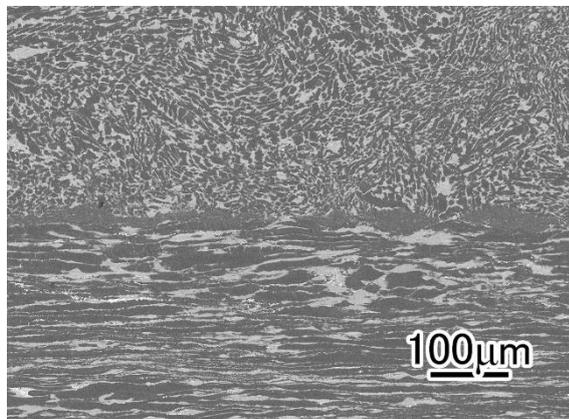


図2 接合体断面の微細組織

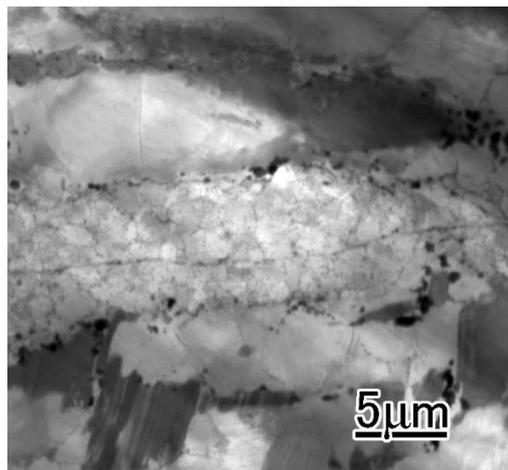


図3 接合界面の微細結晶粒領域

相間の幅で飽和しており、同様にLPSO相による粒界移動のせき止めが起こっていると考えられた。これらよりLPSO型マグネシウム合金の超音波接合では、LPSO相が接合組織形成に大きな影響を及ぼすことが明らかになった。

図4は、このバンド状領域のSTEMによる像である。この像では、Mgに対してZnとYが存在している場所が白いコントラストで観察される。これより、バンド状領域の微細結晶粒の粒界にZnとYが偏析していることが分かった。また図5は、この結晶粒界周辺の拡大像である。結晶粒内では特定の方向に伸び様々な長さを持った細い平行な線状コントラストが多数観察されている。結晶粒界に並んでいる丸い物質はEDSによる分析の結果、Mg-Zn-Yの化合物であるw相であることが分かった。また、結晶粒内をさらに拡大したものが図6である。これらの線上のコントラ

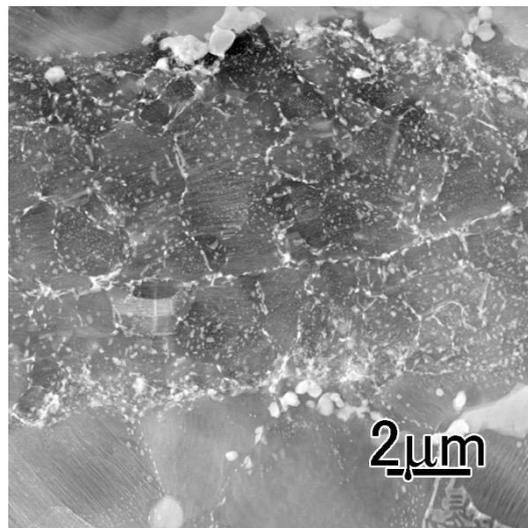


図4 微細結晶粒領域のSTEM像

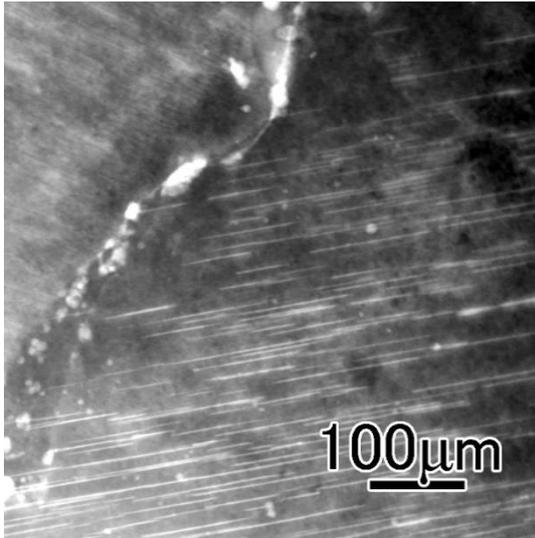


図5 接合界面結晶粒の粒界と粒内の STEM 像

ストは原子 2 相分の幅を持っているが、それぞれは、異なった間隔で並んでいることが分かった。図7は、この中で 3 本平行に並んでいる線状のコントラストの領域を高分解能で観察した STEM 像である。像の横方向はマグネシウムの底面に相当し、底面に対して平行に 2 原子層の白い Zn と Y の偏析コントラストが観察されている。この白いコントラストの領域は fcc の構造ユニットになっていることから、これらは LPSO 相の構造ユニットであると考えられた。これらの観察から、バンド状の微細結晶粒領域では母材で観察されたようなブロック状の LPSO 相は観察されず、結晶粒内に Zn と Y が偏析した LPSO 相の構造ユニットが多数存在していることが分かった。

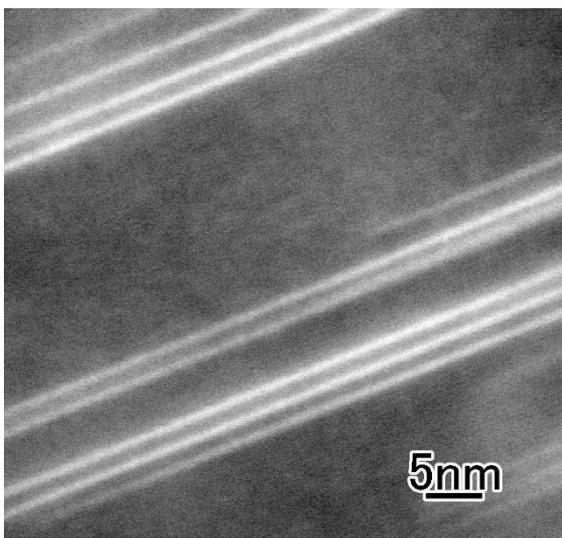


図6 微細結晶粒内の偏析コントラスト

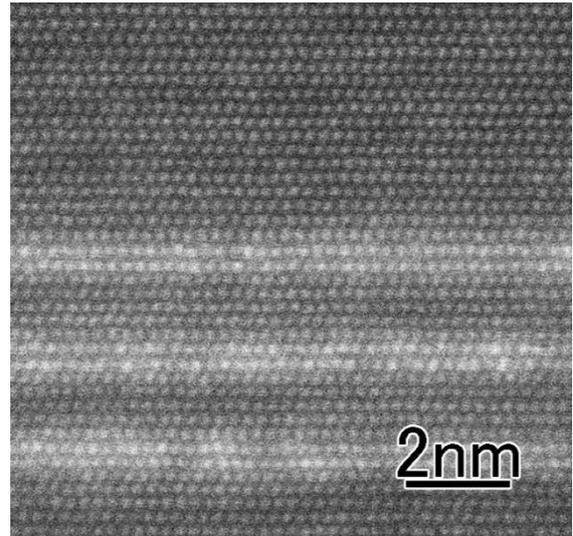


図7 偏析コントラストの STEM 像

ところで、18R の LPSO 相は熱処理などを行うことにより、14H の LPSO 相と w 相になると言われている<sup>4)</sup>。また、安定な 14H の LPSO 相が生成する際に多数の fcc の構造ユニットが徐々に集積するような挙動をとると考えられている<sup>5)</sup>。本研究において微細粒内部で観察された LPSO 相の構造ユニットは、超音波接合中に接合界面で高い塑性変形が起こると同時に温度が上昇したことで LPSO 相が分解し、さらに安定な集積した LPSO 相を形成する前に接合が終了したことで形成されたと考えられた。

### 3.2 インサート材を挟んだ $Mg_{96}Zn_2Y_2$ 合金板の接合

図8は、LPSO相が接合界面に対して平行に入っている板同士と垂直に入っている板同士を超音波接合した試料に対し、せん断引張試験を行った結果である。接合界面に対して LPSO 相が水平になっている場合安定に接合できるのに対し、垂直に入っている場合は同じ条件で接合したにも関わらず接合強度は大きくばらつき、ほとんど接合しない場合もみられた。これに対し接合界面にインサート材を挿入して超音波接合した試料について、その接合強度を評価した結果が図9である。接合強度の向上はみられないものの、強度のばらつきは収まり、安定に接合できることが分かった。これらの結果により、超音波接合ではもともとの材料の組織影響を大きく受けるが、インサート材を用いることによりその塑性流動促進の役割をある程度もたせることが可能となり、接合性を向上させることができたことが分かった。

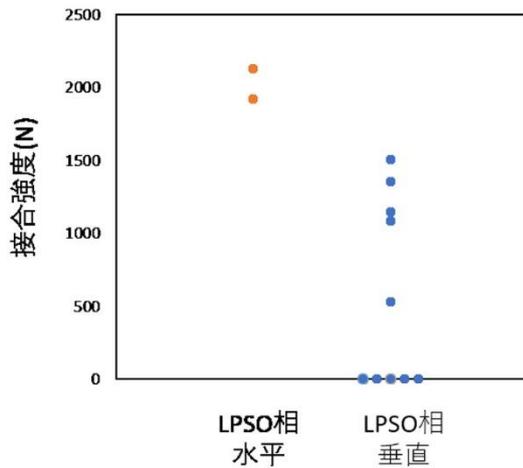


図 8 LPSO 相の方向と接合強度の関係

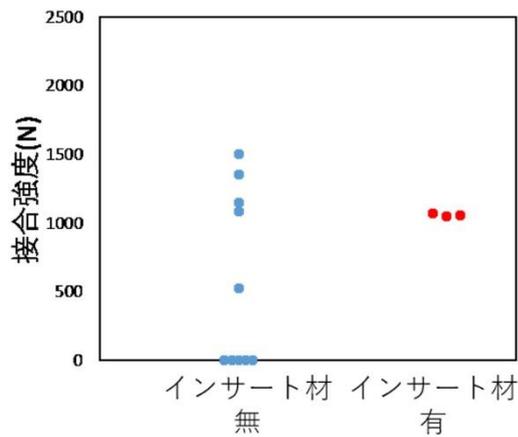


図 9 インサート材と接合強度の関係

#### 4. 結言

本研究では LPSO 相を有する Mg-Zn-Y 合金に超音波接合を応用しその接合微細組織を明らかにするとともに、界面塑性流動に関わる合金板の集合組織、インサート材と接合性の関係を検討した結果以下のことが分かった。

- 1) 接合界面では微細結晶粒からなるバンド状の領域が観察され、LPSO 相が接合組織形成に大きな影響を及ぼすことが明らかった。
- 2) 接合界面では超音波接合特有の接合過程に起因した結晶粒界の Mg 化合物相、結晶粒内の LPSO 相の構造ユニットに相当する偏析層が多数観察された。
- 3) 接合前の Mg-Zn-Y 合金板の LPSO 相方向が、その接合性に大きな影響を与えることが明らかになった。またインサート材により、接合性を改善できることも分かった。

#### 謝辞

本研究の一部は、公益財団法人天田財団の一般研究開発助成によるものであり、ここに付記して深く謝意を表します。

#### 参考文献

- 1) C. Iwamoto, S. Satonaka, Y. Kawamura, Mater. Sci. Forum. 706-709 (2012) 1187-1192.
- 2) Y. Higashi, C. Iwamoto, Y. Kawamura, Journal of the Japan Institute of Metals 79 (2015) 176-182.
- 3) Y. Higashi, C. Iwamoto, Y. Kawamura, Materials Science and Engineering: A 651 (2016) 925-934.
- 4) H. Liu, J. Bai, K. Yan, J. Yan, A. Ma, J. Jiang, Materials & Design 93 (2016) 9-18.
- 5) J.-K. Kim, W.-S. Ko, S. Sandlöbes, M. Heidelmann, B. Grabowski, D. Raabe, Acta Materialia 112 (2016) 171-183.