積層 Al/Ti 箔の常温圧接による複合化過程と 曲げ特性に及ぼす Ti 箔厚の影響

奥村 善雄*・佐治 重興**・穴田 博**

Journal of Japan Institute of Light Metals, Vol. 49, No. 11 (1999), pp. 529-534

Effects of Ti foils thickness on fabrication and bending properties of multilayered Al/Ti composites by cold pressure welding

Yoshio OKUMURA*, Shigeoki SAJI** and Hiroshi ANADA**

In order to produce metal-matrix-composites by a simple method, it has been attempted to fabricate an Al/Ti composite by pressing alternately multilayered pure Al and Ti foils at room temperature. The thickness of Ti foil used, was 10, 25 or 102 μm for the constant thickness, 92 μm , of Al foil to fabricate Al/Ti composites with various volume fraction. Effect of Ti foil thickness on fabrication and bending properties of multilayered Al/Ti composites has been examined. Three inflection points are detected on nominal compressive stress-displacement curves for alternately multilayered Al/Ti foils. Joining of the multilayered Al/Ti foils is attained after the 3rd inflection point. Stress at the 3rd inflection point rises with increasing thickness of the multilayered Ti foils and is proportional to the volume fraction of Ti phase. Multilayered Al/Ti composite with Ti flakes of 52.1 volume percent could be fabricated at nominal compressive stresses higher than 3 GPa at room temperature. The bending strength of multilayered Al/Ti composites obtained increases with the volume fraction of Ti phase.

(Received March 23, 1999)

Keywords: multilayer, Al and Ti foils, cold pressure welding, Al/Ti composite

1. 緒 言

最近、著者らは単純な方法で複合材料を作製する目的で、アルミニウム箔とチタン箔を交互に多重積層した後に常温で圧接し、チタンの体積率が9.7%のアルミニウム基複合材料の作製に成功した。また、複合化の過程を組織観察で調べ、作製した複合材料の硬さと引張性質を測定し、得られた引張強さはフレック強化複合則をほぼ満足することを報告した¹⁾。

この方法は単純であり、強化相の偏在が生じることもない。また、積層する箔厚を変化させることによって、より高い体積率の2次元強化複合材料を作製できると考える。

本研究では、アルミニウム箔厚を一定とし、チタン箔厚を変化させることにより、より高い体積率の複合材料の作製を試みた。また、常温での複合化におけるチタン箔厚の影響を調べ、作製した Al/Ti 複合材の曲げ試験を行い、チタン箔厚と層間せん断強さ、曲げ強さなどとの関係を調べた。

2. 実験方法

供試材としては、純度99.98%の高純度アルミニウム箔(焼なまし材)と市販の純度99.92%の高純度チタン箔(焼なまし材)を用いた。アルミニウム箔の厚さは約92 μm 一定とし、チタン箔の厚さは10 μm ($V_f=9.7\%$), 25 μm ($V_f=21.2\%$) および102 μm ($V_f=52.1\%$) の3種類に変化させた。体積率

V_f は複合化前の積層したアルミニウム箔とチタン箔の厚さの合計の割合から求めた。なお、一部の実験では、厚さ24 μm の高純度アルミニウム箔(純度99.98%, 焼なまし材)と上記厚さのチタン箔を用い、 V_f が29.3, 50.9および80.8%となる複合材についても調べた。各供試材を20×50と20×25 mmの2種類の大きさに切出し、アセトンによる脱脂を行った後、等しい大きさの箔を両端がアルミニウム箔となるように99~199枚交互に積み重ねた。積層した Al/Ti 箔を荷重容量2000 kNの油圧式アムスラー万能試験機を用い、最大4 GPaの公称圧縮応力(以下、圧縮応力は公称応力を示す)で、上下一軸方向より常温圧接した。圧接はクロスヘッドを固定し、ラム移動速度を0.5 mm/min一定とした。Al/Ti 接合体がダイ表面に接合することを防ぐために、ダイ表面にワセリンを薄く塗布した¹⁾。

箔厚を変えた組合せにおける圧接時の荷重-変位線図と複合化過程との関係および、両者に及ぼすチタン箔厚の影響を調べた。

種々の条件で常温圧接した Al/Ti 複合体の接合強さを評価するために90°曲げ試験を行い、破壊形態が層間剥離であるか曲げ破壊であるかを調べた。試験は各試料3個に対して行った。また、それぞれの荷重-変位線図と90°曲げ試験での破壊の特徴との関係を検討した。90°曲げ試験において、曲げ破壊を生じるような比較的強い接合がなされている試料に対

* 富山大学大学院 (〒930-0887 富山県富山市五福3190)。Graduate school, Toyama University (3190. Gofuku, Toyama-shi, Toyama 930-0887)。

** 富山大学工学部 (富山市)。Faculty of Engineering, Toyama University (Toyama-shi, Toyama)。

Fig. 1 Stress-displacement curves of multilayered Al foils (92 μm thick) and various thickness of Ti foils during cold pressure welding. The thickness of Ti foils are 10 μm (A), 25 μm (B) and 102 μm (C). Inflection points a, b, c and E are observed on the curves.

して、ショートスパン3点曲げ試験を行った。この曲げ試験では、圧縮のままの厚さ約2~5 mm、幅10 mm、長さ20 mmの短冊型試験片を用い、支点間距離10 mmにて行った。クロスヘッド移動速度は0.5 mm/minである。

組織観察は光学顕微鏡と走査電子顕微鏡を用いて行った。

3. 実験結果および考察

3.1 積層 Al/Ti 箔の常温圧接

Fig. 1(A)は厚さ92 μm のアルミニウム箔と厚さ10 μm のチタン箔を199枚交互に積層し、室温で圧接した場合の圧縮応力-変位線図を示す。低応力側すなわち圧接初期に生じる変曲点を明瞭に示すため、低応力側の線図は縦軸を拡大した。線図には4つの変曲点 E, a, b および c が存在し、積層した Al/Ti 箔の接合が組織観察で確認されたのは変曲点 c 以上の応力である。変曲点 c 以上の応力で圧接された積層 Al/Ti 接合体の断面組織観察では、チタン箔は分断しており、変曲点 c はチタン箔が局部的に分断し始める応力に相当する。アルミニウム箔のみ、もしくはチタン箔のみを多重に積層し圧接した場合、それぞれの箔は分断しないが、アルミニウム箔とチタン箔を交互に積層し圧接した場合にはチタン箔が分断する。fcc 金属であるアルミニウムに比べて、高純度チタンは hcp ですべり系が少なく変形しにくいいため、それぞれの箔を積層した状態で変形させると、チタン箔はアルミニウム箔の塑性変形に追従できずに分断すると考えられる。一方、圧縮応力が変曲点 c のそれより低い場合には、アルミニウム箔とチタン箔はほとんど接合されていない。マイクロメータで未接合箔の厚さを測定すると、変曲点 a 以上の応力ではアルミニウム箔は塑性変形しており、変曲点 a はアルミ

Fig. 2 Effect of Ti foil thickness on the third inflection point stress.

ニウム箔の降伏に対応する。変曲点 b 以降ではアルミニウム箔の塑性変形はさらに進行している。一方、チタン箔の塑性変形は確認できない程度であるが、変曲点 c でチタン箔の局所的な分断が始まっていることから、変曲点 b はチタン箔中で降伏が起こることに対応すると考える。最も低い圧縮応力でみられる小さな変曲点 E では、箔と箔、および箔と圧縮用治具間のすき間が埋められ、積層した箔に応力が伝わり始めたため、応力が急激に増加して生じたものと考えられる。したがって、変曲点 E は圧接過程に直接関係しない外因的なものである。以後、変曲点 E は検討から除外する。

Fig. 1(B)は厚さ92 μm のアルミニウム箔と厚さ25 μm のチタン箔を199枚交互に積層し、圧接した場合の圧縮応力-変位線図を示す。チタン箔厚が10 μm の場合 (Fig. 1(A)) と同様に、圧接過程は3つの変曲点 (a, b, c) で区別され、接合は変曲点 c 以上の応力で認められた。チタン箔厚が10 μm の場合と大きく異なるのは、変曲点 c の応力が約2倍程度高くなっていることである。これはチタン箔厚が厚くなった分、チタン箔を分断するための荷重が大きくなったためである。

Fig. 1(C)は厚さ92 μm のアルミニウム箔と厚さ102 μm のチタン箔を99枚交互に積層し、圧接した場合の圧縮応力-変位線図を示す。変曲点 c、すなわち積層した Al/Ti 箔の複合化に必要な最低の圧縮荷重は、チタン箔厚が10 μm の場合に比べて約4.7倍高くなっている。また、チタン箔厚が102 μm の場合、変曲点 b 前後の荷重を負荷し、未接合となったチタン箔厚を調べた結果、変曲点 b 以上の応力でチタン箔が塑性変形していることを確認できた。したがって、変曲点 b はチタン箔の降伏に対応する。

以上より、積層した Al/Ti 箔の常温圧接による複合化過程はチタン箔厚の違いによらず同じ過程によって進行するものの、チタン箔厚の増加とともに接合に必要な圧縮荷重が高くなることがわかった。

Fig. 2 は、24と92 μm 厚のアルミニウム箔に対して10, 25 および102 μm 厚のチタン箔を積層し圧接した場合の変曲点 c を生じる応力とチタン箔厚との関係をプロットした結果である。アルミニウム箔厚の違いによらず、チタン箔厚の増加とともに変曲点 c を生じる応力が増加している。また、アル

Fig. 3 Effect of the volume fraction of Ti phase on the third inflection point stress.

Fig. 4 Optical micrographs of the transverse section of multilayered Al/9.7 vol%Ti composites fabricated at pressures of 0.3 GPa (a), 0.5 GPa (b) and 2.0 GPa (c).

ミニウム箔が薄い方が変曲点cを生じる応力が大きくなっている。これは、チタン箔厚が同じでもアルミニウム箔厚が薄くなると、全体に占めるチタンの割合が大きくなり、チタン中で変形可能なひずみ量すなわち、ひずみ硬化量が大きくなってチタン箔が分断し始める応力が大きくなるためと考えられる。すなわち、変曲点cの応力はチタン箔の厚さだけでは決まらず、アルミニウム箔の厚さにも関係する。

Fig. 3は、変曲点cを生じる応力をチタンの体積率に対してプロットした結果を示す。変曲点cの応力とチタンの体積率との間にはよい直線関係が認められる。また、チタン箔のみを積層した場合、すなわちチタンが100%の場合にはチタン箔の分断が生じていないことより、変曲点cの応力は高体積率側では図中の点線で示すように急激に増加すると考える。

3.2 組織観察

Fig. 4は厚さ92 μmのアルミニウム箔と厚さ10 μmのチタン箔を積層し0.3(a), 0.5(b)および2.0 GPa(c)の圧縮応力で圧接したAl/Ti複合材の横断面の顕微鏡組織を示す。黒く見える相がチタン相、白い相がアルミニウム相に対応する。アルミニウム中のチタンはおよそ矢印の方向に沿って分断し、圧縮応力が増加するに従って分断は増加している。分断したチタン箔の間にはアルミニウムが侵入し、この領域では酸化皮

Fig. 5 Optical micrographs of the transverse section of multilayered Al/21.2 vol%Ti composites fabricated at pressures of 0.4 GPa (a) and 2.0 GPa (b).

Fig. 6 Optical micrographs of the transverse section of multilayered Al/Ti composites fabricated at a pressure of 4 GPa: (a) Al/21.2 vol%Ti and (b) Al/52.1 vol%Ti.

膜が破られた新生なアルミニウム同士が接触するため、接合が強いと考える。また、圧縮応力の増加とともにチタン相の分断が増加していることから、Al/Ti複合材としての接合強さは増加すると考える。矢印の方向に沿って集中的に多くのチタン箔が分断するのは、圧縮時に試料とダイ表面間の摩擦力のために試料内に生じたせん断応力によってチタン箔が分断されるためと考えられる¹⁾。

Fig. 5は厚さ92 μmのアルミニウム箔と厚さ25 μmのチタン箔を積層し0.4(a)および2.0 GPa(b)の圧縮応力で圧接したAl/Ti複合材の横断面の顕微鏡組織を示す。チタン箔厚が10 μmの場合と同様にアルミニウム中のチタン箔は分断しており、圧縮応力の増加とともに分断は増加している。チタン箔厚が10 μmと25 μmの場合について、2.0 GPaで圧接した複合材の組織; Fig. 4(c)とFig. 5(b)を比べると、25 μmの場合のチタン相には長いものが多い、そのサイズのばらつきは大きい。いずれの場合も、Al/Ti相の界面には空隙はみられない。

Fig. 6は厚さ92 μmのアルミニウム箔と厚さ25 μm(a)および厚さ102 μm(b)のチタン箔を室温で4 GPaの圧縮応力で圧接したAl/Ti複合材の横断面の顕微鏡組織を示す。厚さが102 μmのチタン箔を用いて作製したAl/Ti複合材の界面にも空隙はほとんど観察できない。同じ圧縮応力を加えてもAl/Ti複合材中のチタン箔の分断は、チタン箔の厚さが薄いほど分断数が多くなり、チタンフレークのサイズにばらつきはあるがその平均値は小さい。また、黒く見えるチタン箔が激しく塑性変形したネッキング現象が数多く観察される。

3.3 90°曲げ特性

積層したAl/Ti箔が接合、すなわち複合化するのは圧縮応

Fig. 7 Effects of the fabricating pressure on the fracture behavior of the multilayered Al/Ti composites for various thickness of Ti foil. Evaluation of the fracture behavior were carried out by 90 degree bend test. ×: Interlaminar exfoliation, ●: bending fracture, ○: The third inflection point stress (reference).

力が変曲点cを超えてからであり、変曲点cを超えて応力を負荷した場合でも、比較的低い複合化圧力では界面接合強さが弱く、曲げ角度を増すと層間剥離を生じる。一方、高い複合化圧力で作製された Al/Ti 複合材では90°曲げまで層間剥離を生じず、曲げ破壊を生じる¹⁾。90°曲げ試験において、層間剥離が生じるか、曲げ破壊が生じるかは界面強さの強弱の一つの指標となる。

Fig. 7 は、チタン箔厚と90°曲げ試験での破壊形態との関係に及ぼす複合化圧力の影響を示す。図中のプロット点、×印と●印は、それぞれの複合化圧力で作製された Al/Ti 複合材が層間剥離(×)もしくは曲げ破壊(●)を生じたことを示す。また、参考のために、変曲点cの応力値を白丸(○)で示してある。

チタン箔厚が10 μm の場合、層間剥離が生じずに曲げ破壊するような強い接合がなされるための複合化圧力は0.5 GPa であり、チタン箔厚が25 μm の場合は約1.0 GPa、102 μm の場合は約3.0 GPa であり、チタン箔厚の増加とともにその複合化圧力は高くなる。また、このような強い接合が起こるためには、チタン箔厚の違いを問わず、変曲点cの約3~4 倍の高い圧縮応力が必要であることがわかった。

3.4 ショートスパンを利用した3点曲げ試験

90°曲げ試験では作製した Al/Ti 複合材の界面強さを定性的にしか評価できないので、ショートスパンを利用した3点曲げ試験により界面強さの定量評価を試みた。この方法は主に FRP のような積層材の層間せん断強さを求める方法として汎用化されている方法²⁾である。3点曲げ試験において試験片に生じるせん断応力 τ は(1)式で表される。

$$\tau = 3P/4bh \quad (1)$$

一方、試験片に生じる曲げ応力 σ_b は(2)式で表され、試験片の曲げ中心の下端部で最大となる。

$$\sigma_b = 3PL/2bh^2 \quad (2)$$

ここで、 P : 負荷荷重、 L : スパン(支点間距離)、 b : 試験片の幅、 h : 試験片の厚さである。

(1)、(2)式より、 $\sigma_b/\tau = 2L/h$ であり、二つの応力成分の

Fig. 8 Typical load-displacement curves, (a), (b) in three point bend test for multilayered Al/Ti composites, and appearances of the composite after the test, (c), (d). (a) and (c) corresponds to shearing fracture mode. (b) and (d) corresponds to bending fracture mode.

比は L/h に依存する。せん断応力の割合を大きくして層間破壊を起こさせるには、試験片の L/h が小さい方がよい。CFRP のように層間せん断強さに対して曲げ強さが極端に大きな材料では、層間せん断破壊は $L/h = 4 \sim 6$ で生じ、曲げ破壊は $L/h > 20$ で生じることが知られている^{3)~5)}。一般に、曲げ強さと層間せん断強さの関係は、マトリックスと強化相の種類や強化相の形態によっても異なる。層間せん断破壊を起こさせるためには試験条件を十分に検討する必要がある。本研究では、予備調査として Al/9.7 vol%Ti 複合材の3点曲げ試験を $L/h = 8 \sim 15$ で行い、曲げ破壊を主とした破壊が確認された。そこで、層間せん断破壊を起こさせるために、 L/h の値を2~5として試験を行った。スパンは10 mm とし、厚さは圧縮まま約2~5 mm とした。

Fig. 8 に3点曲げ試験における代表的な荷重-変位線図(a)および(b)と試験後の破壊の状態を示す実体顕微鏡による外観写真(c)および(d)を示す。破壊がせん断破壊モードの場合は、Fig. 8(a)に示すように曲げ破壊が生じる前に荷重のdrop-offが生じ、その変曲荷重点(P_i)より(1)式を用いて層間せん断強さを求めた。一方、層間せん断破壊が生じずに曲げ破壊が生じる場合、(b)では、層間せん断強さを求めることができず、最大荷重(P_b)より(2)式を用いて曲げ強さを求めた。

3.4.1 層間せん断強さ

Fig. 9 はショートスパンによる3点曲げ試験により求めた層間せん断強さに及ぼす複合化圧力の影響を示す。体積率が9.7%および21.2%のいずれの場合でも、複合化圧力の増加とともに層間せん断強さは増加する傾向を示す。Al/9.7 vol%Ti 複合材を1 GPaの複合化圧力で作製した場合には層間せん断強さの平均値は12 MPa、Al/21.2 vol%Ti 複合材を2 GPaの複合化圧力で作製した場合にはその平均値は7 MPaとなる。これらの値は層間せん断強さが弱いとされているC/C複合材料⁶⁾と同程度であり、CFRP積層板²⁾に比べると1/5程度と低い。しかし、本研究のより高い圧力で作製された多くの Al/Ti 複合材では、層間破壊を生じずに曲げ破

Fig. 9 Effect of fabricating pressure on interlaminar shear strength of the multilayered Al/Ti composite.

Fig. 10 Relationship between volume fraction of Ti phase and bending strength of multilayered Al/Ti composites.

壊を生じた。また曲げ破壊後の組織観察では、主クラックの伝播によるものを除くと、チタンフレークの Al/Ti 界面で発生したクラックは観察されなかった。したがって、複合化圧力がより高い複合材では層間せん断強さはより高くなっているといえる。

3.4.2 曲げ強さ

Fig. 10はチタン相の体積率と曲げ強さの関係を示す。曲げ強さは体積率の増加とともに大きくなり、Al/9.7 vol%Ti 複合材では最大191 MPa、Al/21.2 vol%Ti 複合材では最大238 MPa、Al/52.1 vol%Ti 複合材では最大369 MPaの値が得られている。山田ら⁷⁾は、複合材料の引張強さと曲げ強さの間に「引張強さ $\approx 0.760 \times$ 曲げ強さ」で表される相関関係のあることを示している。著者らが先に報告した Al/9.7 vol%Ti 複合材の引張強さの値¹⁾、本報告とは別に調べた Al/21.2 vol%Ti 複合材の引張強さ180 MPaより、上記 Al/Ti 複合材の係数はそれぞれの最大値と比較すると0.76となり、山田らの報告とよい一致を示す。

また、チタン相の体積率が増すほど曲げ強さのばらつきが大きい。Fig. 11は Al/52.1 vol%Ti 複合材を4 GPaの圧縮応力で作製した試料について、曲げ強さが187 MPa(a)と357 MPa(b)であった試験片の、引張応力が負荷される側のスパン中央付近の縦断面 SEM 組織を示す。図中の主クラック(矢印)やその近くの層間の剥離は曲げ試験中に生じたものである。曲げ強さの低い試料(a)では配向に強い乱れがあり、

Fig. 11 SEM micrographs of the longitudinal section of multilayered Al/52.1 vol%Ti composites near the tension-side surface after three point bend test. The fabricating pressure of the composites was 4 GPa. Bending strength was 198 MPa(a) and 296 MPa(b).

写真上でより黒くみえるアルミニウム相と白くみえるチタンフレークが斜めに配向している。さらに、チタン箔の分断が多い。一方、曲げ強さの高い試料(b)では両相が水平方向にそろって配向し、チタン箔の分断も少ない。高い体積率の Al/Ti 複合材を作製する場合、チタン箔が厚いために高い荷重までチタン箔は分断されず、剪断応力方向により大きく流動した後に分断するため、配向のより大きい乱れが局部的に発生し、曲げ強さの低い部分となる。また、大きい剪断変形が生じた領域では、チタン箔の分断が多くなり、曲げ強さの低い部分となる。このような圧縮中のより顕著な不均一変形が曲げ強さの大きいばらつきの原因であると考えられる。複合化前の試験片形状を変えること、マトリックスを強度の高い合金にすること、圧接時の試料と治具間の摩擦係数を低減することなどにより、配向の乱れを少なくし、チタン相の分断を場所的に均一にすることによって、曲げ強さのばらつきを小さくできる。詳しい実験結果については次報で報告する予定である。

4. 結 言

高純度のアルミニウム箔とチタン箔を交互に多重積層し、常温圧接による複合化過程を圧縮荷重-変位線図と組織観察により調べた。また、積層する箔厚を変化させることにより、高い体積率の Al/Ti 複合材の作製を試みるとともに複合化に及ぼすチタン箔厚の影響を調べた。さらに、作製した複合材の曲げ試験を行った。得られた結論は以下の通りである。

(1) 交互に多重積層したアルミニウム箔とチタン箔の公称圧縮応力-変位線図上には三つの変曲点が存在し、第3変曲点より高い圧縮応力で接合が進む。

(2) 第3変曲点を生じる応力はチタン箔の厚さだけでは決まらず、チタン相の体積率の増加に比例して高くなる。また、体積率の増加とともに複合化に必要な圧縮応力は高くなる。

(3) 90°曲げ試験において、層間剥離が生じずに曲げ破壊が生じるような強い接合が起こるためには、圧縮応力-変位線図上の第3変曲点応力の約3~4倍以上の高い圧縮応力が必要である。

(4) アルミニウム箔とチタン箔を交互に多重積層し、室温で常温圧接する方法によって、体積率の高いAl/52.1 vol% Ti 複合材の作製が可能である。

(5) 作製したAl/Ti 複合材の曲げ強さは体積率の増加とともに高くなり、Al/52.1 vol%Ti 複合材では最大369 MPaの値を示す。

最後に、本研究を遂行するに当たり、高純度アルミニウム

箔を提供いただいた東洋アルミニウム(株) (現在、日本軽金属(株)) に感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) 奥村善雄, 佐治重興, 穴田 博: 軽金属, **49** (1999), 238.
- 2) 宮入裕夫: 複合材料入門, 裳華房, (1997), 91.
- 3) L. J. Broutman: "Interfaces In Composites", ASTM STP 452, (1969), 27.
- 4) H. M. Hawthorne and E. Teghtsoorian: J. Adhesion, **6** (1974), 85.
- 5) ASTM D 2344 (1984), Standard Test Method for Apparent Interlaminar Shear and Strength of Parallel Fiber Composites by Short-Beam Method.
- 6) 向後保雄, 八田博志, 豊田雅二, 後藤 健, 杉林俊雄: 日本複合材料学会誌, **24** (1998), 222.
- 7) 山田勝利, 関口昭一, 橋本敬三: 日本金属学会誌, **58** (1994), 1250.