低融点プリカーサの発泡を用いた ポーラスアルミニウムの接合

鈴木良祐 櫻井 裕* 松原雅昭

群馬大学大学院理工学府

J. Japan Inst. Met. Mater. Vol. 80, No. 2 (2016), pp. 134–139
© 2015 The Japan Institute of Metals and Materials

Bonding Process between Aluminum Foams Using Foaming of Low Melting Point Precursor

Ryosuke Suzuki, Yu Sakurai* and Masaaki Matsubara

Graduate School of Science and Technology, Gunma University, Kiryu 376–8515

Two pure aluminum foams were bonded using foaming of a low melting point precursor and the bonding strength was evaluated. Two rectangular pure aluminum foams with about 77% porosity was obtained by a precursor method. The commercial flux was applied to the bonding areas of pure aluminum foams. The low melting point precursor sheet manufactured from ADC12 aluminum alloy was put between the pure aluminum foams and was fixed in the stainless steel square tube. The specimen was heated in a muffle furnace. The four point bending test was carried out for the bonded specimen. Some bonded specimens were broken in the matrix. The flexure strength of the bonded specimen varies widely. This is because that a part of the cell walls of the bonded area was melted and broken. [doi:10.2320/jinstmet.JAW201510]

(Received April 15, 2015; Accepted October 20, 2015; Published December 4, 2015)

Keywords: aluminum foams, aluminum alloy, bonding, four point bending

1. 緒 言

ポーラスアルミニウム¹⁾は内部に多数の気孔を有するアルミニウム基複合材料の一つである。気孔率の高いポーラスアルミニウムは軽量、断熱、吸音、制振、衝撃吸収といった多数の工業的利点を有しており、軽量構造材料や機能性材料として注目されている。ポーラスアルミニウムはセル構造に起因して、一般的に金属の締結や接合に用いられる方法を適用することが困難である。例えば、ポーラスアルミニウムには雌ねじを切ることができず、ボルト・ナットの締結力による局所的圧縮でセル壁が破壊する。接着面積が小さくなるため、接着剤を用いた接合も困難である。また、母材のアルミニウムの融点が高いため溶接も困難であり、アルミニウムの接合に有効な摩擦攪拌接合²⁾もセル構造を破壊する。

緻密な板材^{3,4)}や管材⁵⁾と複合化したポーラスアルミニウムは、緻密材同士を上記した溶接などの接合方法で接合することができるが、ポーラスアルミニウム同士での接合は困難である。しかしながら、ポーラスアルミニウム同士の接合に関する検討は少ない。これまでになされたポーラスアルミニウム同士の接合に関する報告は、超塑性板材を利用する拡散接合⁶⁾および低融点アルミニウムプリカーサをレーザーやアークで加熱して接合部で発泡させる溶接である^{7–9)}。超塑性拡散接合では、ポーラスアルミニウムの間に超塑性アルミニウ

ム合金板材を挟み加圧することで接合する。超塑性拡散接合による接合強度は、高温において接着剤による接合に比べて高い。しかしながら、加圧が必要なため、セル構造の破壊を防ぐことは困難であり、接合強度も母材の約 50%と低い。加えて、超塑性アルミニウム合金板材部分は緻密材であり、接合部でポーラスアルミニウムの特性が保たれない。

低融点プリカーサの発泡を利用する溶接では、接合体の機械試験において母材での破壊が確認されている。加えて、接合部も発泡体であるため、ポーラスアルミニウムの特性は接合部でも保たれる。しかしながら、接合部近傍に大きな熱入力があるため、母材の溶融によりセル構造が破壊する。

本研究では被接合部材の母材の融点以下で低融点アルミニウムプリカーサを発泡させることにより、ポーラスアルミニウム同士を発泡接合することを試みた。発泡接合を施した接合体の 4 点曲げ試験を行うことにより接合強度を評価した。

2. 実 験 方 法

粒子径 180 μm 以下の純アルミニウム粉末に発泡剤として粒子径 45 μm 以下の水素化チタン(TiH_2)粉末を 1 mass%, 増粘剤として粒子径約 1 μm のアルミナ(Al_2O_3)粉末 1 mass%を加え混合した。混合粉末を円筒形金型に挿入し、753 K で 140 MPa 負荷し 180 min 保持する一軸ホットプレスを行うことで $\phi 25 \times 50 \text{ mm}^3$ の円柱状純アルミニウムプリカーサを得た。純アルミニウムプリカーサを 15 mm $\times$ 15 mm $\times$ 15 mm の立方体に切出した。正方形断面(内部寸法

* 群馬大学大学院生(Graduate Student, Gunma University)

16 mm×16 mm)の SUS304 ステンレス鋼製角管に純アルミニウムプリカーサを挿入した。SUS304 ステンレス鋼製角材を挿入することで角管の端部を塞ぎ、角管内部を 16 mm×16 mm×50 mm の密閉空間にした。純アルミニウムプリカーサを挿入した角管を炉温 983 K に加熱したマッフル炉に入れ、8 min 保持することでポーラス純アルミニウムを得た。溶融したアルミニウムが流出することなく、ポーラス純アルミニウムが角管内に完全に充填された場合に得られる最大気孔率 p_c は次式により計算される。

$$p_c = 1 - \frac{V_p}{V_f} \quad (1)$$

ここで、 V_p および V_f はそれぞれプリカーサおよび得られる発泡体(角管内部の密閉空間)の体積である。プリカーサを角管内で発泡させることで得られる最大気孔率は約 74% と計算される。ポーラス純アルミニウムを長軸方向に垂直に半分に切断し 16 mm×16 mm×25 mm の試験片を得た。ポーラス純アルミニウムの断面を写真撮影し、画像解析ソフト Image J を用いて気孔形態を解析した。純アルミニウムプリカーサは加熱発泡中、短軸方向に比較して長軸方向に大きく膨張する。気孔形態の異方性を考慮して、長軸方向に平行に切断したポーラス純アルミニウムの断面の気孔形態も解析した。

粒子径 300 μm 以下の ADC12 アルミニウム合金粉末に 1 mass% の TiH_2 粉末および 1 mass% の Al_2O_3 粉末を加えて混合した。ADC12 アルミニウム合金^{10,11)}の Si 含有量は 9.6 ~ 12.0 mass% であり、アルミニウムのろう付けに有効な 4045 合金¹²⁾の Si 含有量 9.0 ~ 11.0 mass% に近く、液相線温度が約 850 K である。混合粉末を上述と同様の条件で一軸ホットプレスすることで $\phi 25 \times 50 \text{ mm}^3$ の円柱状 ADC12 プリカーサを得た。ADC12 プリカーサから 7.5 mm×7.5 mm×10 mm の試験片を切出し、炉温 853 K, 883 K および 903 K の自由発泡試験を行った。

発泡接合に用いるため 16 mm×16 mm×2 mm の ADC12 プリカーサを切出した。アルミニウム表面の強固な酸化被膜を除去するために、半分に切断したポーラス純アルミニウムの切断面に市販のアルミニウム合金ろう付け用フラックス新富士バーナー製 RZ201 を塗布した。このポーラス純アルミニウムの切断面の間に ADC12 プリカーサを挟み、ステンレス鋼角管に再び挿入した(Fig. 1)。ADC12 アルミニウム合金の液相線温度約 850 K は純アルミニウムの融点 933 K より十分低いので、ポーラス純アルミニウムの溶融によるセル構造の破壊なく発泡接合を行うことができると考えられる。試験片を角管ごと炉温 873 K に加熱したマッフル炉の中に挿入し 20 min 保持する発泡接合を行った。比較のためにフラックスを塗布しないポーラス純アルミニウムの発泡接合も同様の加熱条件で行った。

発泡接合体を長軸方向に平行に切断し、接合部を光学顕微鏡(Nikon 製 ECLIPSE MA100)および走査電子顕微鏡(日本電子製 JSM-5510)を用いて観察した。走査電子顕微鏡のオプションであるエネルギー分散型 X 線分析(EDS)による Si 分布の解析を行った。

接合強度を評価するために鷺宮製作所製万能試験機を用い

Fig. 1 Schematic illustration of the foaming bonding.

Fig. 2 Schematic illustration of the four point bending test.

て接合体の 4 点曲げ試験をクロスヘッド速度 0.5 mm/min で行った(Fig. 2)。内支点間距離および外支点間距離は、それぞれ $L_1 = 50 \text{ mm}$ および $L_0 = 110 \text{ mm}$ であった。4 点曲げ試験はフラックス有試験片のみ 4 回実施し、他の試験片については 3 回実施した。支点部でセル壁が局所破壊しないよう、発泡体の端部をステンレス鋼角管に挿入して 2 液混合エポキシ系接着剤で接着した。ステンレス鋼角管から出ている試験片中央部の発泡体の長さはおよそ 25 mm であった。比較のために接合部のないポーラス純アルミニウムおよび接着剤で接合したポーラス純アルミニウムに対して同様の 4 点曲げ試験を行った。接着剤で接合した試験片に使用した接着剤は、2 液混合タイプのポリエステル系接着剤であった。4 点曲げ試験は比較用の各試験片について 3 回行った。試験片の曲げ強さ σ_f を次式を用いて算出した。

$$\sigma_f = \frac{3F(L_0 - L_1)}{2BH^2} \quad (2)$$

ここで、 F は曲げ試験中の最大荷重、 B は試験片の幅および H は試験片の高さであり、 $B = H = 16 \text{ mm}$ である。

発泡接合の加熱条件において母材の強度低下がないことおよび気孔形態が変形しないことを確かめるために、前述した 16 mm×16 mm×50 mm のポーラス純アルミニウムおよび長軸方向に切断したポーラス純アルミニウムを発泡接合と同様の条件で加熱した。加熱したポーラス純アルミニウムの 4 点曲げ試験を接合体と同様の実験条件で 3 回行った。加熱前後の断面を撮影し、気孔形態を Image J を用いて画像解析した。

3. 実験結果および考察

純アルミニウムプリカーサは充填率 99% 以上であり、一軸ホットプレスにより緻密なプリカーサが得られた。このプリカーサをステンレス鋼角管内で加熱して得られたポーラス純アルミニウム (16 mm × 16 mm × 50 mm) の断面写真を Fig. 3(a) に示す。発泡接合に用いたポーラス純アルミニウムの平均気孔率は約 77% であり、プリカーサの体積および金型内部の体積から計算した最大気孔率 74% よりわずかに高かった。これは、ステンレス鋼角管と角材の隙間から溶融したアルミニウムが流出したためである。発泡接合に用いたポーラス純アルミニウムの気孔率のばらつきは 3% 以内であり、気孔率によるポーラス純アルミニウムの強度のばらつきは小さいと考えられる。ポーラス純アルミニウムの長軸方向に平行および垂直の断面の気孔形態を画像解析した結果を Table 1 に示す。気孔径は以下の式を用いて算出した。

$$d_i = \sqrt{\frac{4A_i}{\pi}} \quad (3)$$

ここで、 A は断面に存在する気孔の面積、 d は断面に存在する気孔を円とみなした場合の気孔径である。画像の解像度を考慮し、直径 1 mm 以下の気孔を画像解析の対象から除外した。長軸に垂直な断面の平均気孔径 d_x は平行な断面の平均気孔径 d_y と比較して約 16% 小さかった。これはステンレス鋼角管および角材の拘束によるプリカーサの膨張方向異方性に起因する。

Fig. 3(a) の試験片を発泡接合と同条件で加熱した後の断面写真を Fig. 3(b) に示す。加熱後の試験片の気孔形態の解析結果を Table 1 に示す。平均気孔径および気孔数は加熱前

Fig. 3 Photographs of the cross sections of pure aluminum foams (a) before and (b) after heating at 873 K for 20 min.

Table 1 Mean pore diameters and pore numbers of the pure aluminum foam before and after heating at 873 K.

	Pore number		Mean pore diameter/mm	
	n_x	n_y	d_x	d_y
Before	62	122	2.18	2.57
After	52	125	2.39	2.71

subscript x: cross section area perpendicular to the long axis

subscript y: cross section area parallel to the long axis

後でほとんど変化しなかった。炉温 873 K で 20 min 加熱してもポーラス純アルミニウムは溶融しないことが確認された。熱処理前後の試験片の 4 点曲げ試験結果を Fig. 4 に示す。曲げ強さの平均値は実験結果の算術平均であり、エラーバーは実験結果の最大値および最小値を示している。ポーラス純アルミニウムの強度は発泡接合と同様の条件で加熱しても変化しないことが確認された。

発泡接合に必要なとなるポーラス ADC12 アルミニウムの気孔率を見積もる。ポーラス純アルミニウムの断面に $d_1 = d_2 = d_x$, $d_3 = d_y$ の回転楕円体状気孔が n_x 個存在していると考えられる。良好な発泡接合を行うためには、ポーラス純アルミニウムとポーラス ADC12 アルミニウムの接触面積を大きくする必要がある。つまり、ポーラス純アルミニウムの接合面に存在する気孔にポーラス ADC12 アルミニウムを充填する必要がある。接合面の気孔にポーラス ADC12 アルミニウムを充填するために必要となるポーラス ADC12 アルミニウムの気孔率 p_b は以下の式で表される。

$$p_b = \frac{n_x \pi d_x^2 d_y}{6w_p h_p t_p + n_x \pi d_x^2 d_y} \quad (4)$$

ここで、 w_p , h_p および t_p はそれぞれ ADC12 プリカーサの幅、高さおよび厚さである。本研究の実験条件および Table 1 の気孔形態から式 (4) を用いて計算される気孔率 p_b は約 44% である。

ADC12 プリカーサの自由発泡試験の結果として、加熱時間に対する気孔率の変化を Fig. 5 に示す。すべての温度条件で最大気孔率は 70% を超えた。853~903 K で加熱することで得られるポーラス ADC12 アルミニウムの気孔率は発泡接合に必要な気孔率 $p_b = 44\%$ を超えていた。853~903 K の温度範囲で発泡接合を行うことは可能である。853 K で加熱した場合、気孔率は加熱時間 24 min まで単調増加しており、最大気孔率は約 80% になった。883 K および 903 K で加熱した場合、8 min を超えて加熱し続けると気孔率は低下し、24 min 加熱すると気孔率はそれぞれ約 70% および約 60% になった。発泡接合ではポーラス純アルミニウムとポーラス ADC12 アルミニウムの冶金学的な接合を目指して

Fig. 4 Flexure strength of the specimens.

いる．このため，ポーラス ADC12 アルミニウムがポーラス純アルミニウム接合面の気孔に充填され，2つの発泡体が密着した状態で一定時間保持される必要がある．発泡接合時間を 20 min と仮定すれば，発泡接合温度は気孔率の低下がみられない 853 K が妥当である．発泡接合では，ADC12 プリカーサが熱伝導率の低いステンレス鋼角管およびポーラス純アルミニウムに挟まれた状態で加熱される．発泡接合中は自由発泡と比較して ADC12 プリカーサに熱が伝わりがたい．自由発泡試験の結果を参考に発泡接合の予備試験を行い，発泡接合条件を 873 K, 20 min と決定した．

発泡接合した試験片の 4 点曲げ試験結果として各試験片の曲げ強さを Fig. 4 に示す．4 点曲げ試験後のフラックス有発泡接合試験片の外観を Fig. 6(a) および (b) に示す．フラックス有発泡接合試験片は母材で破壊する場合と接合部で破壊する場合が 2 回ずつあり接合強度のばらつきが大きかった．フラックス有試験片については，母材で破壊する場合と接合部で破壊する場合に分けて，曲げ強さを Fig. 4 に示す．母材で破壊したフラックス有発泡接合試験片の曲げ強さはポーラス純アルミニウムと同程度であった．これは，接着

Fig. 5 Porosity of the ADC12 aluminum foam plotted against the holding time.

Fig. 6 Photographs of the specimens after the four point bending test.

剤による接合の 4 倍以上であり，Kitazono ら⁶⁾の超塑性拡散接合より高い．接合強度が母材と同程度になる Cambronero ら⁷⁾の溶接と同程度の接合強度が得られたと考えられる．圧縮試験結果ではあるが，気孔率 80% 程度のポーラス ADC12 アルミニウムの強さは同程度のポーラス純アルミニウムの強さの約 1.8 倍である¹³⁾．ポーラス ADC12 アルミニウムとポーラス純アルミニウムが冶金学的に接合すれば，破壊は低強度であるポーラス純アルミニウム中で生じると推定される．フラックス有発泡接合試験片では，ポーラス純アルミニウムとポーラス ADC12 アルミニウムの接触部で拡散が生じ冶金学的な接合がなされたと考えられる．接合部で破壊するフラックス有接合試験片の曲げ強さは接着剤による接合と同程度であった．

フラックス無発泡接合試験片の平均曲げ強さは母材であるポーラス純アルミニウムの約 60% である (Fig. 4)．曲げ強さのばらつきはフラックス有発泡接合試験片と比較して小さかった．フラックス無発泡接合試験片の 4 点曲げ試験後の外観写真を Fig. 6(c) に示す．試験片下部にポーラス純アルミニウムの気孔に充填されていたポーラス ADC12 アルミニウムが抜け出たと推定される突起が確認される．フラックス無発泡接合試験片においては，ポーラス純アルミニウムとポーラス ADC12 アルミニウムは冶金学的な接合がなされず，ポーラス純アルミニウム接合面の気孔にポーラス ADC12 アルミニウムが充填されたことにより機械的接合がなされていたと考えられる．

発泡接合した試験片の断面写真を Fig. 7 に示す．フラックス無発泡接合試験片では，ポーラス ADC12 アルミニウムがポーラス純アルミニウムの接合面の気孔に充填されていた．フラックス有発泡接合試験片では，接合部からポーラス純アルミニウムの気孔が貫通し粗大な気孔が形成されていた．フラックス有発泡接合試験片の接合面近傍の光学顕微鏡

Fig. 7 Photographs of the cross section areas of the foam bonded specimens (a) with and (b) without the flux.

Fig. 8 Optical micrographs of the cross section areas of the foam bonded specimens (a) with and (b) without the flux.

写真を Fig. 8(a) に示す。接合界面の一部消失が確認できる。ポーラス ADC12 アルミニウム内にほとんど気孔が観察されなかった。観察箇所が発泡接合試験時に下部にあったため、ドレナージにより気孔がほとんど存在しなかったと考えられる。Fig. 8(a) と同一の場所の SEM 観察および EDS による Si 分布の解析を行った結果をそれぞれ Fig. 9(a) および (b) に示す。Fig. 9(b) の Si 分布において、白色に近づくほど Si 濃度が高いことを示している。ポーラス純アルミニウムのセル壁にポーラス ADC12 アルミニウムから Si が拡散していることが確認できる。この EDS 解析の結果より Fig. 8(a) に見られた境界が ADC12 と純アルミニウムとの境界だと判断できる。フラックス有発泡接合試験片に見られる粗大な気孔は、ADC12 プリカーサの発泡過程において ADC12 アルミニウム合金の Si が、フラックスにより酸化被膜が除去されたポーラス純アルミニウムのセル壁内部に拡散し、セル壁の一部を溶融および貫通しながら ADC12 プリカーサが発泡したために生じたと考えられる。接合部で破壊したフラックス有発泡接合試験片 (Fig. 6(a)) でも、Al-Si 合金と見られる色の濃い灰色の領域が発泡接合前の ADC12 プリカーサ厚さよりも広範囲に広がっていた。フラックス有発泡試験片で曲げ強さが小さくなった原因は、ADC12 プリカーサの発泡過程でポーラス純アルミニウムのセル壁が溶融し、プリカーサの膨張による圧力でセルが破壊され、粗大なセルになるためと考えられる。

フラックス無発泡接合試験片の光学顕微鏡観察結果を Fig. 8(b) に示す。ポーラス純アルミニウムとポーラス ADC12 アルミニウムの接合面全体に未接合部があり、冶金学的な接合は確認できなかった。フラックスなしの発泡接合はポーラス ADC12 アルミニウムがくさびの様に作用する機械的な接合と考えられる。

Fig. 9 (a) SEM micrograph and (b) Si distribution by EDS around the bonding area of the foam bonded specimen with the flux. (b) shows relative intensity of Si in the micrograph, and the bright areas show the high relative intensity.

フラックスを用いることで ADC12 プリカーサをろう材として発泡接合することにより、ポーラス純アルミニウム同士を冶金学的に接合することが可能と考えられる。しかしながら、発泡接合過程において ADC12 アルミニウム合金から Si がポーラス純アルミニウムのセル壁に拡散することによりセル壁が溶融および破壊され接合強度が著しく低下する可能性がある。Si の拡散を低減することができれば、接合界面が見られず、曲げ試験を行ったときに母材であるポーラス純アルミニウムで破壊するような接合を達成できると考えられる。その方法としては、Si 含有量が少ないろう材を利用すること、発泡接合の際の加熱温度を低くすることまたは加熱時間を短くすることが挙げられる。

4. 結 論

融点の低い ADC12 アルミニウム合金製プリカーサの発泡を利用して、ポーラス純アルミニウム同士を発泡接合し、その接合強度を 4 点曲げ試験により調べた。その結果以下の結論を得た。

(1) フラックス有発泡接合試験片は母材で破壊する場合と接合部で破壊する場合があった。母材で破壊する場合のフラックス有発泡接合試験片の平均曲げ強さはポーラス純アルミニウムと同程度である。接合部で破壊する場合は接着剤の接合同程度の曲げ強さであった。

(2) フラックスを用いればポーラス純アルミニウムとポー

ラス ADC12 アルミニウムは冶金学的に接合が可能であった。このとき、発泡接合中に ADC12 アルミニウム合金からポーラス純アルミニウムに Si が拡散することでセル壁の一部が溶融し、ADC12 プリカーサの膨張による圧力でセル壁が破壊され、接合強度が低下する場合があった。

(3) フラックス無発泡接合試験片の平均曲げ強さはポーラス純アルミニウムの約 60% であった。フラックスを用いない場合、ポーラス純アルミニウムとポーラス ADC12 アルミニウムは冶金学的な接合ではなく、機械的に接合されているものと思われる。

文 献

- 1) J. Banhart: Prog. Mater. Sci. **46**(2001) 559-563.
- 2) C. Sharma, D. K. Dwivedi and P. Kumar: Mater. Des. **36**(2012) 379-390.
- 3) D. Schwingel, H.-W. Seeliger, C. Vecchionacci, D. Alwes and J. Dittrich: Acta Astronaut. **61**(2007) 326-330.
- 4) Y. Hangai, H. Kamada, T. Utsunomiya, S. Kitahara, O. Kuwazuru and N. Yoshikawa: J. Mater. Proc. Technol. **214**(2014) 1928-1934.
- 5) Y. Hangai, M. Saito, T. Utsunomiya, S. Kitahara, O. Kuwazuru and N. Yoshikawa: Materials **7**(2014) 6796-6810.
- 6) K. Kitazono, A. Kitajima, E. Sato, J. Matsushita and K. Kuribayashi: Mater. Sci. Eng. A **327**(2002) 128-132.
- 7) L. E. G. Cambronero, I. Cañadas, J. M. Ruiz-Román, M. Cisneros and F. A. Corpas Iglesias: J. Mater. Proc. Tech. **214**(2014) 2637-2643.
- 8) J. S. Shih, Y. F. Tzeng and J. B. Yang: Mater. Des. **32**(2011) 1253-1261.
- 9) G. Campana, A. Ascari and A. Fortunato: Opt. Laser Technol. **48**(2013) 331-336.
- 10) JIS H 5302: 2006.
- 11) Characteristics Database for Aluminum, Japan Aluminum Association, <http://metal.matdb.jp/JAA-DB/AL01S1103.cfm>, (cited 2015-08-10).
- 12) JIS Z 3263: 2002.
- 13) T. Utsunomiya, K. Takahashi, Y. Hangai, S. Kawano, O. Kuwazuru and N. Yoshikawa: J. JILM **60**(2010) 590-595.