特集

金属ガラス接合技術の最前線

金属ガラスのマイクロ抵抗スポット溶接*

福本 信次**

Small-scale Resistance Spot Welding of Bulk Glassy Alloys*

by FUKUMOTO Shinji**

キーワード マイクロ接合, 抵抗スポット溶接, 冷却速度, 金属ガラス, 大気中溶接, 過冷却液体

1. はじめに

金属ガラスはその優れた機能性と機械的特性ゆえに新しい構造用材料として期待されているが、構造用材料として使用する際には溶接・接合といった加工技術の発展が不可欠である。しかしながら金属ガラスは加熱することで構造緩和あるいは結晶化を起こして脆化することが知られており、溶接することは非常に困難とされてきた。これに対して近年、ガラス形成能が著しく改善された合金が次々と開発され、溶接も不可能ではなくなっており、摩擦圧接¹⁻⁴⁾、レーザー溶接^{5, 6)}、電子ビーム溶接⁷⁻⁹⁾などのプロセスでの成功例が報告されている。これらの中で溶融溶接に共通する条件としては、大冷却速度および組成変動がないことである。ガラス形成のための臨界冷却速度が1 K/sと非常に小さい金属ガラスは別として、やはり一般的な金属ガラスの接合に溶融プロセスを用いるのであれば高密度熱源で大きな冷却速度が得られるプロセスが適していると考えられている。またたとえ大冷却速度で結晶化は避けられたとしても、Zr 基金属ガラスのように非常に酸化しやすい材料の場合は、わずかな酸素の混入で脆化が生じるため、溶融溶接を行う場合は雰囲気制御が必須となる。また溶接部の組成変化も結晶化を起こす原因となりうるため、フィラーを用いるようなプロセスは原則適していないと考えられる。

抵抗スポット溶接は金属ガラスの溶接に必要な条件を満たしたプロセスと考えられる。本稿ではZr 基金属ガラス薄板のマイクロ抵抗スポット溶接性^{10, 11)}について記載する。

2. 抵抗スポット溶接 (RSW) とその利点

RSW は古くからある溶接方法で、主に自動車産業ととも発展してきたプロセスである。2枚のシートを重ねて電極で挟み、加圧・通電する。材料の電気抵抗および接合面での接触抵抗によりジュール熱が発生、それにより接合界面が溶融・凝固することで溶接が完了する(図1)。RSWの長所は数多くあるが、なかでも金属ガラスに対するアドバンテージとして最も重要なものはやはり大きな冷却速度であろう。図2に示すように鋼の抵抗スポット溶接においては、その溶融部の冷却速度は $10^4 \sim 10^5$ K/sに達し、レーザー溶接や電子ビーム溶接に匹敵する。マイクロ抵抗スポット溶接のように板厚が小さい場合は、さらに大きな冷却速度も期待できる¹²⁾。また原則フィラーを用いないプロセスであるため、溶接中の組成変動はほぼ無視でき、さらに溶融金属は雰囲気中に曝されることがないため、基本的に雰囲気制御する必要がない。以上のような観点から、抵抗スポット溶接は金属ガラスを大気中で溶接できる極めて優れたプロセスであると言える。

図1 抵抗スポット溶接

*原稿受付 平成20年12月18日

**正 員 兵庫県立大学大学院 Member, Graduate school of engineering, University of Hyogo

図2 鋼の各種溶接法における冷却速度と板厚の関係¹²⁾

図3 $\text{Zr}_{50}\text{Cu}_{30}\text{Al}_{10}\text{Ni}_{10}$ 金属ガラスのマイクロ抵抗溶接部断面 (溶接電流: 600 A)¹¹⁾

3. Zr 基金属ガラスのマイクロ抵抗スポット溶接

3.1 溶接部の組織と継手強度

板厚 $260\mu\text{m}$ の $\text{Zr}_{50}\text{Cu}_{30}\text{Ni}_{10}\text{Al}_{10}$ 金属ガラスを大気中でマイクロ抵抗スポット溶接した断面写真を図3に示す。接合界面およびその近傍に割れ、ポロシティなどの大きな欠陥は認められない。また過剰な溶接電流でなければ電極溶着も生じず、容易に溶接可能である。図3はエッチングしていない断面であるが、エッチングを行っても鋼板のRSW断面に観察されるようなナゲットはみられず、マクロ的には結晶化が生じていないことが示唆されている。また図4の接合界面中心の高分解能透過電子顕微鏡 (HREM) 像に示したように、ミクロ的に見ても溶接部ではナノ結晶すら認められず、アモルファス構造が維持されていることがわかる。

一方、溶接部近傍の熱影響部 (HAZ) はどうであろう。Zr 基金属ガラスを溶接可能な電子ビーム溶接の場合でさえも、しばしば HAZ における結晶化の問題が生じる

図4 溶接部中心における高分解能 TEM 像 (溶接電流: 700 A)¹¹⁾

図5 接合界面中央およびその近傍の微小領域 XRD 図形 (a: 接合界面, b~f は a から $20\mu\text{m}$ 間隔で板厚方向に測定, コリメータ径: $20\mu\text{m}$)¹¹⁾

ため、適切なプロセスウィンドウはかなり限定されている⁷⁾。図3のようにマイクロ抵抗スポット溶接部では、溶融部および HAZ の特定が困難である。そこで溶接部の中心から板厚方向へ $20\mu\text{m}$ 間隔で微小領域X線回折測定を行った結果を図5に示す。使用したコリメータ径は $\phi 20\mu\text{m}$ である。回折図形はすべてハローパターンを示しており、すべての箇所では非晶質構造が保たれていることがわかる。同様の測定を長手方向にも行ったが、同じ結果が得られた。溶接電流値にかかわらず同様の結果が得られている。また組織観察では明確な溶融部、HAZ は観察されなかったが、溶融部およびその近傍が結晶化してないことは明らかである。また溶接部およびその近傍のビッカース硬さにも大きな変化は認められず、構造緩和による脆化は生じていないと考えられている。

マイクロ抵抗スポット溶接した継手の引張せん断試験結果およびナゲットサイズを図6に示す。ナゲットサイズは破断面において測定した値である。溶接電流が増加するとともにナゲットサイズは大きくなり、それにとともにせん断強度 (破断荷重) は増加する。板厚が薄いため、600 A 以上の溶接電流では試験中に試料が曲がってし

まいプルアウト破断となったものの、界面破断した継手でせん断強度（破断荷重/ナゲット面積）を算出したところ、溶接電流に関係なく約 730 MPa と十分な強度が得られている。破面は金属ガラス特有のベインパターンがほぼ全面を占めており、またせん断荷重方向に無模様のずり領域が形成されていた（図 7）。これらのことから溶接部は脆化しておらず、十分な延性を有していたことがわかる。

図 6 引張せん断強度 (a) およびナゲット成長挙動 (b)。ナゲットサイズは界面破断したサンプルの破面において測定¹¹⁾。

3.2 温度履歴の推定

このようなマイクロ抵抗スポット溶接では、通電時間が数 ms と極めて短く、また溶接部が小さいことから直接温度測定することは困難である。一般的に抵抗スポット溶接は液相状態の接合であるが、金属ガラスの接合では通常の固相、液相に加え、過冷却液体状態での接合も考慮する必要がある¹⁾。抵抗スポット溶接の界面においてナゲットが形成されていたことから考えて、接合界面は少なくともガラス遷移温度 (T_g) 以上まで加熱されていたと推測される。ただし、それが過冷却液体状態かそれともいわゆる融点 (T_m) 以上の液相状態であったかは不明である。これについては破面において観察されたナゲット周りにはみ出した金属の形態が興味深い手がかりを与えてくれている（図 7 参照）。このナゲット周りに押し出された部分は、一般的な金属の抵抗スポット溶接に見られるいわゆる「散り」と若干異なる形態を示しており、少し粘性の高い過冷却液体状態で押し出されたようにみえる。おそらくナゲットの大部分は熔融状態であるが、その周りは過冷却液体状態であったのではないかと推測される。しかしながら、この押し出された金属のさらに外側には、液滴が飛び散ったような細かい「散り」が観察される場合もあり¹¹⁾、ナゲット全体の正確な温度分布はまだよくわかっていない。

図 2 に示したように鋼の RSW においては 10^4 K/s 以上の冷却速度が得られ、板厚減少に伴いさらに大きな冷却速度が得られることが示されている¹²⁾。マイクロ抵抗スポット溶接では、光学顕微鏡像、HREM 像、破面、X 線回折図形のすべて結果が溶接部およびその周辺で結晶化していないことを示している。つまりマイクロ抵抗スポット溶接の冷却速度は少なくとも本合金のガラス形成臨界冷却速度（約 10^2 K/s^{7, 13)}）には達していたと考えられる。そしておそらく実際の冷却速度はさらに大きく、 10^4 – 10^5 K/s に達していたのではないかと推察される。以上の

図 7 界面破断したナゲット破面。(b) 破面全域にベインパターンが観察される。(c) 破面端にずり領域がみられ、またナゲット全周にわたり BMG が押し出されている¹¹⁾。

図8 Zr 基金属ガラスの CCT 図¹⁴⁾におけるマイクロ抵抗スポット溶接 (SSRSW) の冷却曲線¹⁾.

ことから推測されるマイクロ抵抗スポット溶接部の冷却曲線を CCT 図¹⁴⁾にあわせて図 8 に示す。ただし、この冷却曲線はあくまでも半定量的なものであり、最高到達温度、温度分布とともにさらなる研究が必要である。

4. おわりに

抵抗スポット溶接は非常に古典的なプロセスであるが、金属ガラスを大気中で容易に溶接できる非常に優れたプロセスであることが示された。この抵抗スポット溶接のダウンサイジング化は金属ガラスの特性を活かした小型デバイスの作製に大いに役立つことが期待される。しかし一方、結晶化が生じないが故に溶融部および HAZ の特定が困難で、接合メカニズムに不明瞭な点が多数残っている。溶接部およびその近傍のより詳細な構造を知るためには今後さらに詳細な組織観察や数値解析が必要になるであろう。

参考文献

- 1) Y. Kawamura: Mater. Sci. Eng. A, 375-377 (2004), 112-119.
- 2) C. H. Wong and C. H. Shek: Scr. Mater., 49 (2003), 393-397.
- 3) H-S. Shin, Y-J. Jeong, H-Y. Choi, H. Kato and A. Inoue: Mater. Trans., 46 (12) (2005), 2768-2772.
- 4) Y. Kawamura and Y. Ohno: Mater. Trans., 42 (4) (2001), 717-719.
- 5) B. Li, Z. Y. Li, J. G. Xiong, L. Xing, D. Wang and Y. Li: J. Alloys and Compounds, 413 (2006), 118-121.
- 6) Jong Hyun Kim, C. Lee, D. M. Lee, J. H. Sun, S. Y. Shin and J. C. Bae: Mater. Sci. Eng. A, 449-451 (2007), 872-875.
- 7) Y. Yokoyama, N. Abe, K. Fukaura, T. Shinohara and A. Inoue: Mater. Trans. 43 (19) (2002), 2509-2515.
- 8) Y. Kawamura and Y. Ohno: Mater. Trans., 42 (11) (2001), 2476-2478.
- 9) 横山嘉彦: 機能材料, 22 (7) (2002), 19-23.
- 10) S. Fukumoto, K. Fujiwara, Y. Yokoyama, Y. Murakami and A. Yamamoto, Mater. Sci. Forum, Vols. 561-565, (2007) 1307-1310.
- 11) K. Fujiwara, S. Fukumoto, Y. Yokoyama, M. Nishijima and A. Yamamoto: Mater. Sci. Eng. A, 498, (2008) 302-307.
- 12) J. E. Gould, S. P. Khurana and T. Li: Weld. J., 85 May (2006), 111s-116s.
- 13) A. Inoue, Y. Shinohara, Y. Yokoyama, T. Masumoto: Mater. Trans. JIM, 36 (1995), 1276-1281.
- 14) Y. Yokoyama, A. Kobayashi, K. Fukaura and A. Inoue: Mater. Trans., 43 (2002), 571-574.