純アルミニウムと軟鋼の異種金属摩擦攪拌接合材の接合界面における 金属間化合物形成機構*

田中 努**, 森重 大樹***, 平田 智丈**

Formation mechanism of intermetallic compound at the weld interface of dissimilar friction stir welded joint
of pure aluminum and mild steel*

by TANAKA Tsutomu**, MORISHIGE Taiki*** and HIRATA Tomotake**

There is considerable interest in joining of aluminum to iron because of various advantages such as weight reduction of vehicles. However, the intermetallic compound (IMC) formed at the welded interfaces causes a brittle fracture of the dissimilar joint. Therefore, it is important to prevent the formation of IMC. It is well-known that friction stir welding (FSW) is suitable for the inhibition of IMC formation due to the low heat input. This study investigated the formation mechanism of IMC during FSW by comparing the results from previous studies, in which dissimilar welds were prepared by the diffusion bonding and roll bonding. The time compensated IMC thickness in FSW was larger than that in the other joining methods. This is because three factors of fresh surface, stored strain and plastic flow were strongly affected the formation mechanism of IMC. However, the amount of IMC was significantly small because the welding time was very short. It is therefore considered that a dissimilar joint of aluminum to iron can be achieved by FSW.

Key Words: Friction stir welding, Dissimilar metals, Intermetallic compound, Aluminum, Steel, activation energy, diffusion

1. 緒 言

近年の産業界では、環境保全や省資源といったキーワードが製品の付加価値を高めている。その典型例が自動車であり、EVやハイブリッド車を積極的に開発し、顧客の関心を得ている。これら次世代自動車にとって、燃費は最大の関心事であり、車体軽量化による燃費向上を目的として、薄鋼板やアルミニウム合金が多く部位に採用されているのは周知の事実である。しかしながら、アルミニウム合金は、強度や材料コストの面で従来の鉄鋼よりも不利であるため、構造物全体をアルミニウム合金に置換することは不適切である。つまり、鉄鋼とアルミニウム合金の適材適所化が求められるが、そのような複合構造物を製作するためには、鉄鋼とアルミニウム合金の接合技術の確立が必要不可欠となる。しかしながら、鉄鋼とアルミニウムを通常の溶融溶接で接合すると、接合界面に脆弱な金属間化合物相（以後 IMC [Intermetallic compound] と略す）が形成^{1, 2)}、接合部が顕著に弱くなるため接合が困難とされてきた。

このような背景の下、新たに検討されたのが、摩擦攪拌

接合（以後 FSW [Friction Stir Welding] と略す）技術である。FSWは母材よりも高強度の接合部が得られ、接合ひずみが小さいという機能的優位性だけでなく、消耗品も少なく省電力で接合が可能で、ヒュームやスパッタが発生しないなどのコストや作業環境の優位性も兼ね備えており、まさに時代の趣向に適した新しい接合技術といえる^{3, 4)}。FSWにより鉄鋼とアルミニウムの突合せ接合および重ね合せ接合が可能であり、組合せ合金種によっては、アルミニウム母材で破断するような接合材の作製が可能となっている⁵⁻⁷⁾。これは FSW 特有の低入熱接合によって、強度に影響を与える IMC の形成量が抑制されたためであると考えられるが、FSW でも接合条件によっては IMC が急速に成長し、接合強度が顕著に低下する⁷⁾。

鉄とアルミニウムの接合体の界面に形成する IMC に関しては、拡散接合^{8, 9)}および積層圧延後加熱処理^{9, 10)}（以後圧延接合と略す）によって詳細に検討されている。それらの報告によると、IMC 層の成長は拡散律速に従うとされている。一方で、FSW では他の接合方法に比べて加熱保持時間 (t) が非常に短い⁴⁾が、熱の付与だけでなく、加圧下で被接合材が塑性流動する特徴を持っている。これらが IMC 形成に大きな影響を与え、FSW 特有の IMC 形成挙動を示す可能性があるが、現在までに FSW の IMC 形成機構についての系統的な報告はなされていない。著者らは、IMC の形成がこれまでの報告にあるような成長過程と、鉄とアルミニウムが反応して IMC が瞬間的に形成する生成過程に分類でき

*受付日 平成22年12月8日 受理日 平成23年5月10日

**正 員 大阪府立産業技術総合研究所 Member, Technology Research Institute of Osaka Prefecture

***正 員 関西大学 Member, Kansai University

Fig. 1 Schematic illustration of friction stir welding of steel to aluminum.

るとの考えに立脚して、IMC 形成機構を明らかにすることを目的とした研究を行なった。

2. 実験方法

本研究で用いた供試材として、板厚 3 mm の SS400 軟鋼板（以下、Fe と称す）と、純アルミニウム A1100-O 材（以下、Al と称す）を用いた。純アルミニウムの使用は合金元素による IMC 形成への影響を極力排除するためである。接合ツールの材質は SKD61 で、ショルダ部直径 12 mm、プローブ部は直径 4 mm、長さ 2.9 mm の逆ねじを切ったものを使用した。

接合の模式図を Fig. 1 に示す。これまでの報告^{5, 10)}に従い、アルミニウム合金板をツール回転方向とツール移動方向が逆になる後退側に配置し、FSW ツールのプローブ側面が鋼板内に約 0.2 mm 接触する位置にて突合せ接合を行なった。接合速度は 100 mm/min で一定にし、接合中の温度を変化させる目的で回転速度を 1000, 1200, 1400, 1600 rpm の 4 条件を採用した。なお、接合は荷重制御である。本研究では、FSW における IMC の成長機構を、拡散の速度式を用いて比較検討した。この解析のためには、FSW 中一定時間接合温度を保持し、IMC 層厚さと接合温度の関係を調べる必要がある。そこで、FSW ツールの移動がない状態でも材料流動を含む FSW 特有の現象を維持させるため、接合開始から 60 mm プローブを移動させ接合を行なった時点で、ツールの移動を停止した。回転および加圧力は維持しながら種々の時間ツールを停滞させた後、ツールを引き抜いた。ツール停滞時間は、10, 20, 30, 40 秒と変化させ、ツール停滞時間と温度保持時間が同一であると仮定し、FSW における IMC 層の成長機構を検討した。

FSW 中の温度測定は K 型熱電対を使用し、Fig. 2 に示すように鋼板断面に $\phi 1.3$ mm の貫通穴を施し、その穴に熱電対を挿入し、Al 側突合せ面に接触させた状態で、接合中の温度変化を 0.1 秒ピッチで測定した。温度測定位置は、接合の中間地点である接合開始点から 30 mm 離れた位置（Fig. 1 中の Thermocouple ①）と、ツール停滞位置（Fig. 1 中の Thermocouple ②）の 2 箇所で測定している。

Fig. 2 Schematic illustration of the cross section perpendicular to weld line.

各接合条件で作製された継手に対して、接合部の断面組織を高分解能走査電子顕微鏡（FE-SEM）によって観察した。ショルダ部と接触する表面近傍では、ショルダからの加圧と材料攪拌が顕著であるため、本研究の目的としている FSW 特有の IMC 生成状態を保持していると考えられる。そこで本研究では、最表面から約 150 μ m までの深さの IMC 層の厚さを任意に測定し、その平均値を IMC 層の厚さとして定義し、考察を行った。

3. 実験結果および考察

3.1 接合中およびツール停滞中の接合温度

Fig. 3 には、回転数 1400 rpm において、ツール保持時間を 10, 20, 30, 40 秒間とした場合の温度測定結果を示す。図中①および②は、Fig. 1 中 Thermocouple ①および②の位置の温度履歴に対応している。ツールが通過する場合、瞬間的に温度が上昇し、ピーク温度を迎えた直後に温度が急激に下降しているのがわかる。一方、ツール保持中の温度は、ツール通過時と同様に、ピーク温度まで急激に温度が上昇するが、保持中は種々の温度域で保持され、ツールを引き抜いた直後に温度は下降しているのがわかる。ツール停滞中の温度履歴より、30℃ から 100℃ 程度の温度の振れが観察される。これは、熱電対が接合界面の Al 面に接触しているためツール通過直前はツール直近の温度が測定されるが、保持中は Al の激しい塑性流動により熱電対が押し出されたり、巻き込まれたりしたことにより、測定温度が変動したものと考えられる。しかしながら、ツール停滞中、

Fig. 3 Diagram of heat history measured under welding conditions of 1400 rpm, 100 mm/min for various holding times of (a) 10 sec, (b) 20 sec, (c) 30 sec, (d) 40 sec.

Fig. 4 Typical SEM images of interface region welded under 1400 rpm for various holding times of (a) 0 sec (passage), (b) 20 sec, (c) 30 sec, (d) 40 sec.

一様に温度が下降するもしくは上昇するなどの傾向はみられず、測定点①におけるツール通過時に測定されたピーク温度とほぼ同じ温度域であった。従って、ツールを停滞させることで、FSW 時の塑性流動状態を維持しながら温度も保持できていると考えた。この傾向は、他の接合条件においても同様であった。そこで、各測定データの最高温度の平均を、その接合条件の接合温度として解析を行なうこととした。

Fig. 5 Relationship between the thickness of intermetallic phases and square root of holding time.

3.2 IMC 層の成長に及ぼす接合温度と保持時間の影響

Fig. 4 に、回転数 1400 rpm の条件において、(a) 通過した場合および (b) 20, (c) 30, (d) 40 秒間ツールを停滞させた場合の界面組織を示す。回転数 1400 rpm では、通過した場合にもサブミクロンレベルの IMC 層が形成していることがわかる。そして、この IMC 層は保持時間とともに増加していることが明らかとなった。

Fig. 5 は、保持時間の平方根と IMC 厚さとの関係を示している。図より、IMC 厚さが、保持時間の平方根に対して

直線的に増加していることがわかる。つまり、これは FSW による IMC の成長機構も拡散律速であることを示唆している。ところで、IMC 成長が拡散律速による場合、以下の式が成立することが知られている^{9, 12)}。

$$d^2 = Kt \quad (1)$$

$$K = K_0 \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (2)$$

ここで、 d : IMC 層の厚さ、 t : 加熱保持時間、 K, K_0 : 比例定数 (m^2/s)、 Q : 活性化エネルギー (J/mol)、 R : ガス定数 ($\text{J/mol} \cdot \text{K}^{-1}$)、 T : 絶対温度 (K) である。式 (2) に従い、アレニウスプロットした結果を Fig. 6 に示す。 $\ln K$ と保持温度の逆数は直線関係となり、この直線の勾配から IMC の成長のための活性化エネルギーを求めた結果、 144 kJ/mol と算出された。さらに、比例定数 K_0 を算出することで、FSW における IMC の成長の関係式は以下のように表すことができた。

$$K = \frac{d^2}{t} = 9.6 \times 10^{-3} \exp\left(-\frac{144,000}{RT}\right) \quad (3)$$

3.3 種々の接合方法における IMC 生成・成長機構の検討

FSW では、摩擦による発熱と材料の塑性流動という特異な環境下において IMC が生成・成長していると考えられる。そのため、拡散接合等の固相接合法とは異なった IMC 形成挙動を示す可能性がある。そこで、本節では FSW 以外の接合法によって解析された結果を引用し、接合原理等から推察される IMC 形成機構の影響因子に着目しながら、IMC の生成および成長機構について検討する。Fig. 7 に、種々の接合方法における $\ln K$ と $1/T$ の関係を示す。本研究結果は丸のシンボルで、拡散接合^{8, 9)}は菱形のシンボルで、圧延接合^{9, 10)}は三角のシンボルで表示し、便宜上それぞれ番号付けをしている。すべてのデータが全く同じ材料ではないが、基本的には軟鋼と純アルミニウムの接合に関するデータであるので、多少の誤差を加味しても、FSW が他の接合法と比較して特別な挙動を示していることがわかる。

前節において、FSW における IMC 形成の成長段階では、拡散律速で支配されることを示した。そこで本節では、Fe と Al が接触した瞬間の IMC 生成段階も含めた IMC 形成機構について検討する。Fig. 8 には、これまでに報告されている金属および IMC における拡散係数と温度との関係を示している¹³⁻¹⁶⁾。Fe と Al が反応する場合には、Fe 中に Al が拡散する場合と、Al 中に Fe が拡散する場合が想定されるが、後者のほうが支配的であることがわかる。それゆえ、Fe と Al の IMC 形成過程は、Fe 側から Al 側に Fe 原子が供給されることで IMC が形成し、その形成された IMC 中を Fe 原子が通過 (拡散) し、Al 側に流入することで IMC が増大していくと考えられる。この過程では、Fe の自

Fig. 6 Arrhenius plot of growth rate of intermetallic phase against temperature.

Fig. 7 Arrhenius plots of growth rate of intermetallic phase with the previous reports.

Fig. 8 Arrhenius plots of diffusivities in metals and IMC.

己拡散、IMC 中の Fe の拡散、Al 中の Fe の拡散という 3 つの拡散が寄与していると考えられるが、Fig. 8 に示すよう

に, Fe の自己拡散が最も遅い。したがって, Fig. 9 で模式的に示しているように, IMC の形成機構は Fe の自己拡散がこの過程を律速していると考えられる。

次に, IMC の形成に影響を与える因子について検討する。FSW では, 母材に強ひずみを付与しながら塑性流動させることで, 界面を活性化 (新生面を露出) させ接合している。そこで, 以下に示す 3 つの因子に着目して IMC 形成機構を検討する。

○新生面: 反応開始時の障壁の有無に影響

○ひずみ: 原子の拡散速度に影響

○塑性流動: 材料同士の接触率に影響

接合によって形成する IMC が反応初期の生成段階と生成後の成長段階に分けられるとすると, Fig. 7 における K 値は実験的に測定された IMC 厚さから算出されているため, 生成機構と成長機構両者の影響を受けている。一方, 活性化エネルギー Q は IMC が生成した後の結果であるので, 成長機構のみを表している。そこでまず, Q と影響因子の関係について考察する。IMC の成長段階では新生面の有無は影響しない。さらに, 上述のように Fe の自己拡散が律速していると考えられるため, Al 側の塑性流動も IMC 成長には寄与しない。ひずみに関しても同様に Al 側は無視できるため, Fe 側のひずみに着目すると, FSW および圧延接合では, ツールおよびローラの加圧により Al だけでなく Fe も変形を受け, ひずみが導入される。一方, 拡散接合では強度の低い Al が優先的に変形するため Fe 側にはほとんどひずみが導入されないと考えられる。Fig. 7 より, FSW と圧延接合の Q 値は近似しており, 拡散接合ではその Q 値より

も高くなっていることがわかる。つまり, Fe 側のひずみの導入量と Q 値には相関性があり, ひずみの存在により低い Q 値を示すことが予想される。金属では空格子を媒介とする拡散が一般的であるので, ひずみ量が多い場合には拡散が容易になるのは妥当であると考えられる。さらに, 拡散接合の Q 値は Fig. 8 における Fe の自己拡散の活性化エネルギーに近い値を示し, FSW および圧延接合は IMC 中の Fe の活性化エネルギーに近いことがわかった。これは, Fe 側のひずみにより, Fe の自己拡散の拡散速度が増加したためであると考えられる。また Fig. 7 より, 圧延接合のうち Fe の圧下率が高い圧延接合 2 は圧延接合 1 よりも若干傾きが低くなっており, 同様に Fe 側の変形が観察された拡散接合 2 は, Fe の変形がほとんどないと思われる拡散接合 1 よりも傾きが低くなっていることがわかる。以上の結果は, Fe 側のひずみは IMC の成長の活性化エネルギーに強い影響を与え, ひずみ量が活性化エネルギーを低下させることを示唆している。

次に K 値に着目して議論する。FSW の K 値は他の接合法と比べてより高いため, Q 値の議論のようにひずみのみに影響しているわけではないと考えられる。そこで, ひずみと新生面, あるいはひずみと塑性流動が影響していると仮定し考察する。前者の場合, 低い塑性加工量のためひずみがほとんど導入されず新生面も露出しにくい拡散接合で最も低くなると予測されるが, Fig. 7 においてそのような傾向は観察されない。一方後者の場合には, 静的加熱により IMC を形成させているため塑性流動の影響が無視できる圧延接合において, 圧延接合 1 と圧延接合 2 の間に明らかな K 値の差が観察される (Fig. 7)。すなわち, これらの結果は, 3 つの因子すべてが重複して K 値に影響を与えていることを示唆している。以上の考察を Table 1 にまとめた。表より, 少なくとも新生面と塑性流動が IMC 生成機構に影響を及ぼし, K 値を変動させていることがわかる。これは, FSW に限らずその他の接合法でも, 新生面や塑性流動の状態に依存した瞬間的な IMC の生成が Fe と Al の接触時に生じていることを示唆している。種々の接合法の中で, FSW は新生面・ひずみ・塑性流動という影響因子が顕著に働いているため, Fig. 7 に示すように活性化エネルギーが低くなるとともに, 成長速度を超える速さで IMC が瞬間的に生成されることにより K 値が他の接合法と比べてより高くなったと考えられる。以上の結果より, FSW は IMC が形成しやすい接合法ではあるが, 接合中瞬時に加熱され

Fig. 9 Schematic illustration of diffusion process during formation of IMC.

Table 1 Relationship between the parameters in Fig. 7 and the factors affecting the formation mechanism of IMC..

Parameter in Fig.7	Fresh surface	Strain(defect)	Plastic flow
K value (Initiation mechanism + Growth mechanism)	○	○	○
Q value (Growth mechanism)	×	○	×

た直後、急速に冷却されるため IMC の形成が抑制された高品質な異種金属接合材が作製できる。

本研究により、IMC 形成機構と影響因子の関係を定性的に明らかにすることができた。この結果は、Fe と Al が反応する際の表面状態やひずみ状態といった影響因子を制御すれば、IMC 形成量や活性化エネルギーも制御できることを示唆しており、今後の Fe と Al の接合における材料組織制御の一助となりうる。

4. 結 論

摩擦撹拌接合 (FSW) により作製した鉄鋼と純アルミニウムの突合せ接合材に対して、接合中に形成された金属間化合物 (IMC) の生成および成長機構について検討した。FSW による IMC の成長機構は、拡散接合法によって報告されている機構と同様の拡散律速の速度式で表すことができた。また、IMC の形成には新生面、ひずみ、塑性流動の 3 因子が影響していると考えられ、成長の速度式における活性化エネルギーはひずみの影響が大きいことがわかった。一方、成長の速度式における K 値は、3 因子すべてが重複して影響を及ぼしていると結論付けた。それゆえ、すべての因子が顕著に働く FSW は、その他の接合方法よりも K 値が高くなっており、IMC が形成しやすい接合方法といえる。しかしながら、FSW は接合中に瞬時に温度が上昇し、その後急速に温度が下降するというプロセスであるがゆえに IMC 形成量が抑制され高品位な鉄鋼とアルミニウムの接合材が作製できる。本研究結果から、IMC 形成機構に影響を与える 3 因子を制御すれば、IMC 形成量や活性化エネルギーも制御できることが明らかとなった。

謝 辞

本研究は天田金属加工機械技術振興財団平成21年度一般研究開発助成 (AF-2009024) による成果の一部であり、ここに謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) 森井, 藤田: 異種金属の拡散溶接, 溶接技術, No.11 (1974), 20-26.

- 2) H. Oikawa, T. Saito, T. Yoshimura, T. Nagase, T. Kiriya: Spot welding of aluminum clad steel to steel or aluminum, Quarterly journal of the Japan Welding Society, 14-1 (1996), 69-80. (in Japanese)
- 3) Japan Welding Society, 摩擦撹拌接合-FSW のすべて-, 産報出版, 2006, 16.
- 4) H. Okamura, K. Aota, H. Takai, M. Ezumi: Development and application of friction stir welding, Journal of light metal welding & construction, 41-5 (2003), 191-202. (in Japanese)
- 5) M. Fukumoto, M. Tsubaki, Y. Shimoda, T. Yasui: Welding between ADC12 and SS400 by means of friction stirring, Quarterly journal of the Japan Welding Society, 22-2 (2004), 309-314. (in Japanese)
- 6) T. Yasui, Y. Shimoda, M. Tsubaki, T. Ishii, M. Fukumoto: Characteristics of high speed welding between 6063 and S45C by means of friction stirring, Quarterly journal of the Japan Welding Society, 23-3 (2005), 469-475. (in Japanese)
- 7) T. Tanaka, T. Morishige, T. Hirata: Comprehensive analysis of joint strength for dissimilar friction stir welds of mild steel to aluminum alloys, Scripta Materialia, 61-7 (2009), 756-759.
- 8) H. Imaeda, M. Kondo, F. Matsui, A. Hirose, K. F. Kobayashi: Interfacial microstructure and strength of dissimilar joint of Al alloys and steels for hybrid car body, Preprints of the National Meeting of JWS, 2005s (2005), 59-60. (in Japanese)
- 9) H. Oikawa, T. Saito, T. Nagase, T. Kiriya: Formation and growth of intermetallic compound at interface of steel/aluminum bonding sheet, TETSU-TO-HAGANE, 82-10 (1997), 641-646. (in Japanese)
- 10) S. Mukae, K. Nishio, M. Katoh, T. Inoue, k. Sumitomo: Effect of heat treatment on bond characteristics of aluminum clad steel, Quarterly journal of the Japan Welding Society, 12-4 (1994), 528-533. (in Japanese)
- 11) T. Watanabe, A. Yanagisawa, H. Takayama: Solid state welding aluminum alloy to steel using a rotation pin, Quarterly journal of the Japan Welding Society, 22-1 (2004), 141-148. (in Japanese)
- 12) K. Shibata, S. Morozumi, S. Koda: Formation of the alloy layer in the Fe-Al diffusion couple, Journal of the Japan Institute of Metals, 30-4 (1966) 382-388. (in Japanese)
- 13) G. Rummel, T. Zunkley, M. Eggersmann, K. Freitag, H. Mehrer: Diffusion of implanted 3d-transition elements in aluminium part 1, Zeitschrift fur Metallkunde, 86 (1995), 122-130.
- 14) O. Taguchi, M. Hagiwara, Y. Yamazaki, Y. Iijima: Impurity diffusion of Al and Cu in gamma-Fe, Diffusion and defect data. Part A, Defect and diffusion forum, 194-199 (2001), 91-95.
- 15) I. Kaur, W. Gust, L. Kasma: Handbook of grain and interphase boundary diffusion data, Ziegler Press, (1989).
- 16) H.J. Frost, M.J. Ashby: Deformation-mechanism maps, Franklin book company, (1995).