Cu/Al 爆発圧接材の接合界面の冷却過程および 中間層の生成過程のシミュレーション*

西脇 淳人**, 熊井 真次***

Simulation of Cooling and Intermediate Layer Formation Processes at Explosive Welded Cu/Al Interface*.

by NISHIWAKI Junto** and KUMAI Shinji***

Explosive welding is a kind of solid state welding method, and a strong metallurgical bonding can be obtained with a wide range of metal combinations. Depending on metal combinations, an intermediate layer (IML) is formed at part of the joint interface by solidification of the local melting zone. When the excessive intermediate layer is formed along the joint interface, the bonding strength decreases drastically. Therefore, it is desirable that the intermediate layer is reduced at the joint interface. In order to control the formation of the intermediate layer at the joint interface, it is necessary to reveal the cooling process at the joint interface and formation process of the intermediate layer on the explosive welding. However, it is difficult to observe the phenomenon occurring at the joint interface of the explosive welded joint which is completed in a very short time, experimentally. In this study, the cooling process at the joint interface and formation process of IML were investigated by the simulation and experiment. The cooling rate at the local melting zone reached over 10^6 K/s. This rapid cooling was caused by large temperature gradient between joint interface and base metals. The solidification of IML proceeds from the outside of the local melting region toward the center and the final solidification area of the IML becomes the central part of the local melting region. Therefore, it is considered that the void observed at the center of the IML at the actual bonding interface is due to the solidification shrinkage generated at the final solidification area. The wavy interface (wave height, wavelength) obtained by explosive welding and the composition of the IML and the position of the void were quantitatively in good agreement with the interface form obtained by numerical analysis.

Key Words: Explosive welding, Cu/Al joint, SPH method, OpenFOAM, Cooling process, Joint interface, Microstructure.

1. 緒 言

爆発圧接法は、爆薬の爆轟を利用し、金属板同士を数百 m/s で傾斜衝突させて接合する方法である。爆発圧接法を用いれば、溶融溶接では接合が困難な金属の組み合わせでも接合が可能であり、接合面積が数 m^2 の大きな接合材を作製できる。異種金属爆発圧接材の接合界面形態は金属の組み合わせ、衝突速度 V や衝突角度 β によって大きく異なることが知られている。また Cu/Al や Al/Fe 接合材等の接合界面には、中間層が生成されることが知られている。接合界面に沿って硬くて脆い中間層が生成されると、接合強度は著しく低下する。よって、中間層生成による接合強度の低下を防ぐためには、接合界面での中間層の生成過程を明らかにし、中間層の生成を制御あるいは抑制する必要がある。我々は前報¹⁾で Cu/Al 爆発圧接材の波状界面形成過程とそれに伴う接合界面の温度変化を数値解析により検討し、接合界面近傍での温度上昇や、接合界面における局所的な融解挙動について報告した。中間層の生成過程を明らかにするためには、接合界面の高温からの冷却過程を明らかにする必要

がある。しかしながら、爆発圧接法は、数 μs ～ 数百 μs の極短時間で接合が完了する。よって接合界面の冷却過程や中間層生成過程を実験的に観測することは困難であり、このため従来、接合後の組織観察結果からその冷却過程を推測することしかできていない。

たとえば、Paul らは、中間層内に様々な準安定相が含まれていることから、接合界面の冷却速度は非常に大きいと推測している。しかし、具体的な冷却速度は明らかにされていない²⁾。Crossland らは、爆発圧接材の接合界面の組織観察結果を基に、接合界面の冷却速度は $10^5 \sim 10^6$ K/s であると述べているが、接合に供した金属の種類や組織については具体的に示していない³⁾。なお、爆発圧接に類似した電磁圧接においては、Sapanathan らが ALE 法を用いて Al/Al 電磁圧接時の接合界面近傍での冷却速度を測定し、それが 10^9 K/s オーダーであると報告している⁴⁾。

このように爆発圧接接合界面の冷却速度について検討した研究は非常に少なく、さらに爆発圧接材の冷却速度や中間層の生成過程について数値解析的手法を用いて検討した例はほとんどない。

本研究は Cu/Al 爆発圧接界面における局所融解領域生成について取り扱った前報¹⁾に引き続き、接合界面の時間経過に伴う温度変化（冷却過程）とそれに伴う中間層の生成過程を数値解析により検討したものである。数値解析により得られた中間層を含む接合界面の形態を実際の組織観察結果

*受付日 平成29年3月24日 受理日 平成29年5月24日

**学生員 東京工業大学、大学院生 Student member, Graduate student, Tokyo Institute of Technology

***正 員 東京工業大学、物質理工学院、材料系 Member, Department of Materials Science and Engineering, Tokyo Institute of Technology

と比較し、これまで不明な点が多かった中間層の生成過程について明らかにする。

2. 実験方法

本研究の実験条件（爆薬量、板材の寸法、板材の間隔）は前報¹⁾と同様である。爆発圧接における起爆点、爆薬、板材（Flyer plate(Cu)およびParent plate(Al)）および固定具の位置関係をFig.1 (a)に示す。銅製の固定具の上にParent plateを置き、スペーサーを用いてFlyer plateとParent plateの間に4mmの間隔を設けた。爆薬をFlyer plateの上面に設置し雷管から爆薬を起爆した。硝酸アンモニウムを主成分とした爆薬を用い、爆薬質量/飛翔板質量比（E/M比）を1.87とした。実験は室温、大気圧下で実施した。

得られたCu/Al接合材には起爆点から100mm以上離れた位置に、波状界面の振幅と波長が一定となる定常部が見られた。そこで、Cu/Al圧接材をFig.1 (b)に示すように爆轟の進行方向に沿って切断し、起爆点から180mmの位置から縦10mm×横20mmの寸法の組織観察用の試験片を採取した。試験片の断面をSiC研磨紙（＃120～＃2000）とダイヤモンドペースト（粒度6 μ m～1 μ m）で機械研磨し、OPSを用いて鏡面に仕上げ、OMならびにSEMを用いて組織を観察した。またEPMAの点分析により、接合界面に観察された中間層の成分分析を行った。

3. 解析方法

3.1 接合界面の波状界面の形成過程と温度上昇過程の解析手法

前報¹⁾では、爆薬の爆轟とそれに伴う板材の衝突過程を再現し、衝突速度 V と衝突角度 β をEuler-Lagrange coupling法をソルバーとする解析モデル（E-Lモデル）によって求め、得られた V と β をSmoothed Particle Hydrodynamics（SPH）法をソルバーとする解析モデル（SPHモデル）の初期条件として解析を行い波状界面の生成過程を再現した。

そこでは、接合界面の温度上昇過程とその要因ならびに接合界面で局所的に生じる融解領域（局所融解領域）について検討したが、前報¹⁾でも述べたように接合界面の中間層の生成について検討するためにはその後の接合界面の冷却過程を明らかにしなくてはならない。

そこで本研究では、SPHモデルにより得られた接合界面における物質分布と温度分布を元に、このあと3.2で述べるOpenFOAMのlapracianFOAMをソルバーとする解析モデル（LFモデル）を用いて波状界面形成後の接合界面における温度変化（冷却過程）とそれに伴う中間層の生成過程を再現した。なお、衝突速度 V と衝突角度 β は、前報¹⁾と同様それぞれ535m/s、11.9°である。

SPH法では、メッシュのかわりに粒子を平滑化長さ h の間隔で計算空間に分布させている。SPH法はメッシュフリーのLagrangeでありSPH粒子はメッシュにとらわれない補完点で、連続体仮定を満たすような連続的な密度分布を持つ。SPH法は変形時のメッシュ形状による制限がないため、大変形を伴う衝撃解析に非常に適している。

解析コードにANSYS AUTODYNを用いた。SPH法を用いて接合界面の波状界面形成過程と温度上昇を再現するSPHモデルをFig.2に示す。SPHモデルの対称系は、奥行き方向に無限遠に続くと仮定した2次元平板体系とし、単位系はmm、mg、 μ sとした。解析モデル内のFlyer plateとParent plateの寸法をそれぞれ横20mm×縦2mmとし、Anvilは、横20mm×縦20mmとした。Flyer plate、Parent plateならびにAnvilの状態方程式と構成則は、前報でも用いたMie-Grüneisen型衝撃Hugoniot状態方程式¹⁾とSteinberg-Guinan model⁵⁾である。またAnvilの最下部を固定するため、Anvilの最下部から1mmの範囲に位置するSPH粒子にFixed layerを設けた。

SPHモデルはFig.2に示すような場所によって異なる平滑化長さ h を用いて作製した。波状界面が形成されるFlyer plateとParent plateの衝突面から厚さ1mm以内の領域においては、平滑化長さを10 μ mとした。それ以上の厚さ方向の領域においては、波状界面形成の影響が小さいと考えられる

Fig. 1 (a) Schematic illustration of the explosive welding setup, (b) Position of the specimen

ため、平滑化長さを $20\mu\text{m}$ とした。Anvil に関しても波状界面のような大きな変形は生じないため、特に平滑化長さを小さくする必要はない。そこで、Anvil を 1～3 の領域にわけ、それぞれにおいて 40, 80, $160\mu\text{m}$ の異なる平滑化長さを設定し、SPH モデルの解析要素を削減した。なお Anvil 1 ならびに 2 の厚さは 1mm で、Anvil 3 の厚さは、 18mm とした。

3.2 接合界面の温度変化と中間層の生成過程の数値解析手法

SPH モデルに用いる解析コードである AUTODYN の SPH ソルバーでは熱伝導が考慮されていない。よって、SPH モデルでは衝突による波状界面形成後の温度変化、すなわち接合界面を含む接合材の冷却過程は解析できない。そこで、SPH モデルで得られた物質分布と温度分布を初期条件として、熱伝導を考慮した新たな解析モデルを作製し、これを用いて接合界面での冷却過程や局所融解領域の凝固によって生成する中間層の生成過程について解析を行った。解析コードには C++ のクラスライブラリの OpenFOAM を用いた。OpenFOAM は偏微分方程式を解くソルバー群とそれに関するツール群である。本研究では、OpenFOAM に収録されて

いるソルバーの中で、固体の熱拡散方程式に代表される Laplace 方程式を有限体積法 (FVM: Finite volume method) で離散化して解くソルバーである laplacianFoam を改良して用いた。この接合界面の温度変化と中間層の生成過程を再現する解析モデルを、以下、LF モデルと呼称する。

LF モデルでは、Fig.3 (a) の SPH モデルの Flyer plate, Parent plate ならびにそれらの接合界面を含むような横 5mm $\times$ 縦 4mm の領域 (図内の破線内) を解析対象とした。なお本モデルには Anvil を含めていない。LF モデルのメッシュサイズ Δx , Δy は $10\mu\text{m}$ とし、モデル全体の要素数は 20 万個とした。時間ステップ Δt は CFL (Courant–Friedrichs–Lewy) 条件を考慮し、 $0.25\mu\text{s}$ とした。

LF モデルでは SPH モデルで再現した波状界面の物質分布、温度分布ならびに局所融解領域の物質分布を初期条件として解析を行うが、冷却過程ならびに中間層の生成過程を解析するには、これに加え Cu, Al, 局所融解領域ならびに中間層各々の熱拡散率 α が必要となる。熱拡散率の定義方法については、この後の LF モデルによる冷却過程と中間層生成過程の解析の項で述べる。

Fig.3 (b) は SPH モデルによる解析の一例である。解析開始 ($0\mu\text{s}$) から時間とともに、Flyer plate が Parent plate に $V=535\text{m/s}$ と $\beta=11.9^\circ$ で衝突し、 $10\mu\text{s}$ 後には、黒の点線内の領域 (原点から $13\text{mm} \sim 18\text{mm}$) に波高と波長が一定の波状界面を呈する領域 (定常部) が見られた。本研究では、この領域の波状界面に注目する。

Fig.4 (a) に LF モデルを用いた解析のフローチャートを示す。Fig.4 (a) のフローチャートの 2 段目のコラムは LF モデルの初期状態 ($10\mu\text{s}$ における SPH モデルの物質分布と温度分布) を表している。ここでの物質識別番号 C, 熱拡散率 α ならびに温度 T は、SPH モデルで得られた物質分布ならびに温度分布 (ρ ならびに T) を、Fig.4 (b) に示す方法で変換して求める。

Fig.4 (b) の左側の図は SPH モデルの SPH 粒子を表している。今、I～L の SPH 粒子に注目する。各 SPH 粒子は、接合に供した材料 1 あるいは 2 のどちらかであり、それぞれ、温

Fig.2 Schematic illustration of the SPH model (h : smoothing length, β : impact angle, V (V_x , V_y): impact velocity)

Fig.3 Collision process of flyer plate and parent plate on SPH model for $10\mu\text{s}$

Fig.4 (a) Flowchart of the calculation cycle of the thermal conductivity analysis, (b) Conversion method from SPH model to LF model, (c) Update method of the material number and thermal diffusivity in the calculation cycle for thermal conductivity analysis.

度 $T_{1\sim L}$ 、密度 $\rho_{1\sim 2}$ を持つ。ここで物質識別番号の $C=1$ は材料1、 $C=2$ は材料2、 $C=3$ は溶融した材料（局所融解領域）を意味する。

SPHの粒子分布にSPH粒子の平滑化長さに等しい $10 \times 10 \mu\text{m}$ の格子をあてはめ、 $I \sim L$ の各粒子内のメッシュの交点に位置する密度と温度をAUTODYNのライントレース機能を用いて読み取る。読み取った各粒子の温度と密度をLFモデルのメッシュに読み込む。この操作の一例として次の場合を考える。SPH粒子 $I \sim L$ の温度をそれぞれ、1000, 500, 2000, 1500K、材料1の融点 T_{m1} は900K、材料2の融点 T_{m2} は1200Kとする。SPH粒子 I に着目すると、密度は材料1と等しいが、温度 T_I は T_{m1} を超えていない。よってSPH粒子 I は固相の材料1であるとみなす。従って、この領域のメッシュには $T=T_I$ 、 $\alpha=\alpha_1$ 、 $C=1$ が初期条件として定義される。同様にSPH粒子 J に対応するメッシュには、 $T=T_J$ 、 $\alpha=\alpha_2$ 、 $C=2$ が初期条件として定義される。次にSPH粒子 K 、 L に着目すると、密度の情報により、メッシュ K は、材料1、メッシュ L は材料2と判定される。さらに温度 T_K および T_L が、各々 T_{m1} と T_{m2} を超えているため、 K 、 L のSPH粒子は融解しているものとみなせる。従って、メッシュ K および L には、それぞれの温度 T_K および T_L と局所融解領域（LMZ）の熱拡散率 α_3 と $C=3$ が定義される。

このような変換作業をSPHモデルのすべてのSPH粒子に対して行うことにより、SPHモデルで求めた温度分布と密度分布（物質分布）からLFモデルの初期条件である物質識別番号、温度分布、熱拡散率を得ることができる。

Fig.4 (a) の青の点線内に示すように、LFモデルでは非定常の熱拡散方程式を解くことにより、接合界面における温度の時刻歴変化を再現することができる。その際、温度低

下に伴い Fig.4 (c) に示すような物質識別番号と熱拡散率の更新を行う必要が生じる。Fig.4 (c) のメッシュ K に注目し、その一例を示す。各メッシュの温度 $T_{I \sim L}$ が冷却によって温度 $T'_{I \sim L}$ まで低下した場合を考える。メッシュ K の温度 T'_K を750Kとし、局所融解領域の凝固温度 T_{m3} を800Kとする。なお、局所融解領域の凝固温度は、SPHモデルで求めた局所融解領域の組成と接合に用いた金属の平衡状態図をもとにある温度に定めた。局所融解領域と定義されているメッシュ K は、局所融解領域の凝固温度を下回っていることから、この局所融解領域は凝固したものと判定され、メッシュ K の物質識別番号と熱拡散率が中間層の物質識別番号（ $C=4$ ）と熱拡散率（ α_4 ）に更新される。このようにして中間層の生成過程を模擬することができる。

4. 実験結果ならびに数値解析結果

4.1 Cu/Al 爆発圧接界面組織

4.1.1 接合界面の光学顕微鏡組織

Fig.5 に、Cu/Al 爆発圧接材の光学顕微鏡写真を示す。研磨のままの組織であり、エッチング等は施していない。Cu はピンク色、Al は水色で観察された。Fig.5 (a) に示すように、接合界面にはほぼ一定の波高と波長をもつ波模様が観察され、これらの波の平均の波高と波長は、それぞれ $110 \mu\text{m}$ と $371 \mu\text{m}$ であった。また幾分濃い水色を呈する中間層が接合界面に沿って観察された。中間層は、厚い部分と薄い部分があり、厚さは最大で $150 \sim 200 \mu\text{m}$ 、最小で数 μm であった。中間層には、Fig.5 (b) に示すようなボイドや、接合界面に対して垂直に生じたき裂が数多く観察された。中間層内には、部分的に色の異なる領域も観察された。

Fig. 5 Optical micrograph of Cu/Al interface; (a) Interface morphology (b) High magnification image of the wavy interface.

4.1.2 中間層のSEM像とEPMAによる組成分析結果

Fig. 6 に接合界面に観察された中間層のSEM-BEI像を示す。Fig. 6 (a) に観察されるボイドの内部表面を観察した高倍率写真を Fig. 6 (b) および (c) に示す。凝固により生じた引け巣と思われるボイドの表面は全体的に滑らかであったが、Fig. 6 (b) の矢印で示す位置には、Fig. 6 (c) のようにファセット状に成長した結晶の先端も観察された。

次に、Fig. 6 (a) の赤色のポイントで示す無作為に選んだ中間層内の 10 点について EPMA による点分析を実施した。中間層の平均組成は 40 wt. %Al – 60 wt. %Cu であった。

4.2 接合界面の温度分布と局所融解領域

先に述べたように SPH モデルの解析モデルの初期条件の V と β は、本研究と同じ実験条件下で実施した前報¹の爆轟解析の結果を参照し、それぞれ、535 m/s、 11.9° と設定した。Fig. 7 (a) に Flyer plate と Parent plate の衝突開始から 10 μ s における波状界面形態（物質分布）を示す。10 μ s 以降は波状界面形態はほとんど変化しなかったため、ここでは 10 μ s 時の物質分布を $V=535$ m/s、 $\beta=11.9^\circ$ の条件での代表的な界面形態とみなし、10 μ s 時の接合界面の物質分布と温度分布に注目する。

接合界面には前報¹でも示したように、トリガー状の波状界面が形成された。図内の矢印で示す波の頭頂部には、Cu と Al の SPH 粒子が混ざり合う渦部が観察された。

Fig. 7 (a) に対応する接合界面での温度分布を Fig. 7 (b) に示す。前報¹でも述べたように接合界面近傍でのみ顕著な温度上昇が見られた。これに対し 200 μ m 以上離れると Cu の母材の温度は界面からほぼ室温の 300 K のままであり、ほとんど上昇していなかった。一方、Al 側では、界面から 500 μ m 以内の領域は、400 ~ 700 K 程度までの温度上昇が見られたが、それ以上離れると母材の温度はほぼ 300 K で Cu の場合と同様、ほとんど上昇しなかった。

Fig. 6 (a) Location of EPMA analysis, (b) High magnification of the SEM-BEI of the void surface, (c) Faceted crystal structure observed at the void surface.

Fig. 7 (a) Material distribution at the joint interface at 10 μ s, (b) Temperature distribution near the interface at 10 μ s, (c) Position of local melting zone at 10 μ s.

前報¹で Cu と Al の各融点を越えた SPH 粒子を融解しているとみなし、これらの粒子が存在する箇所を「局所融解領域」と定義した。局所融解領域を赤で示したのが Fig. 7 (c) である。Fig. 7 (a) の物質分布と照らし合わせることで局所融解領域は主に渦部と界面極近傍で観察されることがわかる。

次に局所融解領域の組成について検討を行った。局所融解領域の組成は、後述するように接合界面における冷却過程ならびに中間層生成について議論する上で必要な情報で

ある。本解析結果で得られた局所融解領域内の Cu と Al の SPH 粒子の分布に着目し、その領域の単位面積あたりに含まれる Cu と Al の粒子数比を求めれば、局所融解領域の組成を予測することができる。Fig. 7 (a) と Fig. 7 (c) を対比させ、Fig. 7 (c) に赤色で示した局所融解領域内に位置する Cu と Al の粒子数 N を Fig. 7 (a) より求めたところ、それぞれ 146 個と 342 個であった。そこで式 (1) を用いて得られた各粒子数 N から、Cu と Al の数密度 n を求めた。

$$n_{Cu \text{ or } Al} = \frac{N_{Cu \text{ or } Al}}{N_{Cu} + N_{Al}} \quad (1)$$

n_{Cu} と n_{Al} は、それぞれ 0.3 と 0.7 であった。得られた Cu と Al の数密度 n_{Cu} , n_{Al} , Cu と Al の密度 ρ_{Cu} , ρ_{Al} ならびに SPH 粒子 1 つあたりの体積 V (平滑化長さの等しい SPH 粒子 1 つあたりの体積は、材料によらず等しい) を用いれば、式 (2) を用い、局所融解領域内の組成 C' を算出することができる。

$$C'_{Cu \text{ or } Al} = \frac{n_{Cu \text{ or } Al} \times \rho_{Cu \text{ or } Al} \times V}{n_{Cu} \times \rho_{Cu} \times V + n_{Al} \times \rho_{Al} \times V} \times 100 \quad (2)$$

これにより局所融解領域の平均組成として、41 wt.%Al-59 wt.%Cu が得られた。

4.3 LF モデルによる冷却過程と中間層生成過程の解析

4.3.1 AUTODYN から OpenFOAM への解析モデルの変換結果

先に述べたように SPH モデルによって衝突開始 ($0\mu\text{s}$) から Flyer plate と Parent plate の衝突が完了する $10\mu\text{s}$ までの解析を行い、Fig. 8 (a) に示すような波状界面、すなわち $10\mu\text{s}$ 時の接合後の界面における物質分布を再現した。次に Fig. 8 (a) の $10\mu\text{s}$ の破線の領域内の SPH 粒子を Fig. 8 (b) に示すように、LF モデルのメッシュへ変換した。Fig. 8 (b) の実線の枠で囲んだ 1 つの波の中の SPH モデルの平滑化長さ $10\mu\text{m}$ の SPH 粒子を Fig. 8 (c) に示すように LF モデルの $10 \times 10\mu\text{m}$ のメッシュへと変換した。SPH モデルから LF モデルへの変換の際、Cu と Al の融点を超える粒子は、局所融解領域のメッシュ (図内の赤色) として定義した。よって LF モデルの初期状態は、Cu を表す緑色のメッシュに、Al を表す青色のメッシュ、局所融解領域を表す赤色のメッシュで構成されることになる。

温度分布についても、物質分布の変換過程と同様、Fig. 8 (a) に示す $10\mu\text{s}$ 時の接合後の界面の実線の枠内の SPH 粒子の温

Fig. 8 Definition of the conversion area and initial time of the thermal conductivity analysis.

度分布を Fig.8 (d) のようにメッシュへ変換した。Fig.8 (d) の実線の枠で囲んだ1つの波の中の SPH モデルの平滑化長さ $10\mu\text{m}$ の SPH 粒子を Fig.8 (e) に示すように LF モデルの $10\times 10\mu\text{m}$ のメッシュへと変換した。

このように SPH モデルの $10\mu\text{s}$ 時の物質分布と温度分布を LF モデルの初期状態 (LF モデルの $0\mu\text{s}$) として定義し、物質分布、温度分布ならびに熱拡散率をベースに LF モデルを用いた解析を行った。予備解析の結果、今回の接合条件であれば、 $150\mu\text{s}$ 以降の温度変化は極めて小さいことがわかったので、本解析においては $0\sim 150\mu\text{s}$ における接合界面の冷却過程と中間層の生成過程に焦点を絞って解析を行った。

4.3.2 熱拡散率の推定

4.3.2.1 Cu, Al の熱拡散率

熱拡散方程式を解くための初期条件として、接合界面の温度分布、熱拡散率ならびに中間層の凝固温度が必要である。ここでは以下のようにして固相の Cu, Al, 局所融解領域、中間層の各々の熱拡散率と中間層の凝固温度を定めた。

まず、様々な材料の熱拡散率が収録されている Thermophysical Properties of Matter-The TPRC Data Series の Volume 10 を参照して Cu および Al の固相と液相の熱拡散率とその温度依存性を求めた⁶⁾。Fig.9 に Cu と Al の固相と液相の熱拡散率の温度依存性を示す。

Fig.9 の Cu と Al の固相および液相の熱拡散率と温度の関係は、式 (3)～(6) に示す線形関係で近似できる。

$$\alpha_{\text{Cu, Solid}} = -3.45 \times 10^{-8}T + 1.25 \times 10^{-4} \quad (3)$$

$$\alpha_{\text{Al, Solid}} = -4.81 \times 10^{-8}T + 1.13 \times 10^{-5} \quad (4)$$

$$\alpha_{\text{Cu, Liquid}} = 7.69 \times 10^{-9}T + 3.3 \times 10^{-5} \quad (5)$$

$$\alpha_{\text{Al, Liquid}} = 8.14 \times 10^{-9}T + 2.83 \times 10^{-5} \quad (6)$$

4.3.2.2 局所融解領域の熱拡散率

固相の Cu と Al の熱拡散率は、式 (3) と (4) によって表現することが可能である。しかし、Fig.7 (c) に示した局所融解領域では、Cu と Al が混ざりあっており、この領域に対して Cu と Al 個々の液相における熱拡散率をそのままあてはめることはできない。しかし、Cu と Al の合金融液の熱拡散率はデータブックに収録されていない⁶⁾。そこで本研究では、式 (7) に示すように、式 (5) および (6) に示した液相における Cu と Al の熱拡散率と局所融解領域の Cu と Al の数密度 (n_{Cu} , n_{Al}) の積を求め、これらを線形的に足し合わせた式 (8) により局所融解領域の熱拡散率を推定した。

$$\alpha_{\text{LMZ}} = \alpha_{\text{Al, Liquid}} \times n_{\text{Al}} + \alpha_{\text{Cu, Liquid}} \times n_{\text{Cu}} \quad (7)$$

$$\alpha_{\text{LMZ}} = 8.01 \times 10^{-9}T + 3.36 \times 10^{-5} \quad (8)$$

4.3.2.3 中間層の熱拡散率

次に中間層の熱拡散率について検討する。Cu/Al 接合界面では各波の渦部の局所融解領域が凝固して中間層が生成されると考えられるため、局所融解領域の平均組成と中間層の平均組成は同じはずである。しかし、SPH モデルで得られた局所融解領域の組成に合致する中間層の熱拡散率はこれまでに報告されていない。

そこで、中間層の熱拡散率 α_{IML} が式 (9) のように、中間層の熱伝導率 k_{IML} 、密度 ρ_{IML} および比熱 $C_{p,\text{IML}}$ から求められると考え、以下のような処理を行った。

$$\alpha_{\text{IML}} = \frac{k_{\text{IML}}}{\rho_{\text{IML}} C_{p,\text{IML}}} \quad (9)$$

Thermophysical Properties of Matter-The TPRC Data Series の Volume 1 および Volume 4 には、種々の組成の Cu/Al 合金の熱伝導率 k と比熱 C_p が温度別にリストアップされている^{7,8)}。

Fig.9 Thermal diffusivity of the Cu (solid and liquid) and Al (solid and liquid)⁶⁾

これらのデータブックには、SPHの粒子数比より推定した中間層の組成（41 wt.%Al–59 wt.%Cu）に近いAl–Cu系の中間相（ Al_2Cu （ θ 相））の300 Kの熱伝導率 k と比熱 C_p として、それぞれ $k=75 \text{ W/mK}$ 、 $C_p=470 \text{ J/kgK}$ が掲載されている^{7,8)}。よって、ここではこれらを中間層の熱伝導率 k_{IML} と比熱 $C_{p,\text{IML}}$ として採用した。

中間層の密度 ρ_{IML} は、CuとAlの密度 ρ および数密度 n を用い、式(10)により求め、 $\rho_{\text{IML}}=4590 \text{ kg/m}^3$ を得た。

$$\rho_{\text{IML}} = n_{\text{Cu}} \times \rho_{\text{Cu}} + n_{\text{Al}} \times \rho_{\text{Al}} \quad (10)$$

これら中間層の熱伝導率 k_{IML} 、比熱 $C_{p,\text{IML}}$ 、密度 ρ_{IML} から、式(9)を用いCu/Alの中間層の熱拡散率を $\alpha_{\text{IML}}=3.48 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ と推定した。

なお、先に示したデータブックには300 Kにおける Al_2Cu の熱伝導率と比熱が報告されているのみで、その温度依存性は示されていない。よって、本解析においては中間層の熱拡散率は定数として取り扱うことを断っておく。

4.3.2.4 凝固温度の推定

LFモデルを用いて波状界面形成後の接合界面の冷却過程を再現する際、局所融解領域が凝固して中間層となる凝固温度を定義すれば、局所融解領域の凝固過程についても再現することができる。そこで、局所融解領域の凝固温度について検討した。Fig. 10は、Al–Cu 2元系平衡状態図である⁹⁾。これより渦部の組成（41 wt.%Al–59 wt.%Cu）の合金融液がすべて固相になる温度は873 Kであるとみなせる。中間層の組成は場所によって異なっており、一定ではないことは承知の上で、ここでは便宜上873 Kを中間層の凝固温度とし

て設定した。

4.4 接合界面の冷却過程と冷却速度

Fig. 11は、LFモデルを用いて再現した接合界面の冷却過程を示している。ここでは顕著な温度変化が生じた0～100 μs の間の冷却過程（20 μs 間隔）と温度がほとんど変化しなくなった150 μs における接合界面の温度分布を示している。

0 μs では、渦部と界面近傍にのみ高温領域が観察され、界面から離れたCuとAlの母材部分ではほとんど温度は上昇していない。20 μs では、渦部の中心付近に1500 K以上の高温領域が見られた。また、接合界面近傍からCuとAlの母材への熱拡散が急速に起こり、界面近傍の母材には帯状に温度変化が観察された。さらに接合界面から両側に200～300 μm の幅で温度が400 K以上となる領域が見られた。

40 μs では、渦部の中心付近の温度が約1100～1300 Kまで低下した。20 μs 時に比べ接合界面の温度が400 K以上になる領域が、接合界面からCu側に幅、約200 μm 、Al側に幅、約400 μm へと拡大した。

60～100 μs では、渦部の中心付近の温度が約800～900 Kまで低下した。接合界面の温度が400 K以上になる領域は40 μs 時に比べさらに広がり、接合界面からCu側に幅、約300 μm 、Al側に幅、約500 μm となった。

150 μs では、渦部および界面近傍の温度は600～700 Kまで低下した。接合界面の温度が400 K以上になる領域がCu側では、接合界面からおおよそ300～400 μm の範囲、Al側で400～500 μm の範囲で見られた。Fig. 12はA～D点の温度変

Fig. 10 Al–Cu binary equilibrium phase diagram⁹⁾.

Fig. 11 Cooling process at the joint interface during 150 μ s.

化と A, B における冷却速度の時刻歴変化を示したものである。Fig. 12 (a) は温度の時刻歴変化を求めた位置を示している。A, B は渦部に、C, D は接合界面から約 500 μ m 程度離れた Cu と Al の母材内に対応する。

Fig. 12 (b) は A～D 点における温度の時刻歴変化である。A では、0～150 μ s の間におよそ 2400 K から 700 K まで温度が低下し、特に 0～10 μ s で急激な温度低下が見られた。また、B でも 0～150 μ s の間におよそ 2000 K から 700 K まで温度が低下し、A と同様 0～10 μ s で急激に温度が低下した。C および D では、ほとんど温度変化がなく 300～350 K であった。

Fig. 12 (c) は (b) より求めた A および B における 0～150 μ s の間の冷却速度の時刻歴変化である。0～10 μ s の間の冷却速度はおよそ 10^8 K/s オーダー、30 μ s 以降は $10^6 \sim 10^7$ K/s オーダーであることが明らかになった。

このように SPH モデルと LF モデルの 2 種類の数値解析を用いることによって、爆発圧接界面では数 μ s の間に波状界面が形成され、特に渦部や界面で温度が急激に増加すること、この急激な温度上昇は接合界面近傍のごく限られた領

Fig. 12 Temperature change and cooling rate at each point from A to D during 150 μ s.

域で生じ、界面から数百 μ m 離れた Cu, Al 両母材の温度はほとんど上昇しないこと、そして接合界面とその周囲の母材の幅数百 μ m の間には 1000～1500 K の温度差が生じ、この非常に大きな温度勾配下、接合界面から母材への急激な放熱が起こるため、Fig. 12 (c) に示したように接合界面近傍は $10^6 \sim 10^7$ K/s オーダーの冷却速度で急冷されることが明らかとなった。

Crossland らは、爆発圧接材の接合界面の組織観察結果から冷却速度を推測し、予想された冷却速度は、およそ $10^5 \sim 10^7$ K/s であると述べている³⁾。本研究で得られた冷却速度は Crossland らの報告とよく一致している。

4.5 接合界面における中間層生成過程の数値解析結果

Fig. 13 に 0～100 μ s の間の局所融解領域の凝固過程 (20 μ s 間隔) と、150 μ s 時の接合界面の界面形態を示す。図内、緑で固相の Cu を、青で固相の Al を表している。また Cu と Al が融点以上の温度となった領域を局所融解領域とみなして赤色で示した。局所融解領域の温度が凝固温度以下になっ

Fig. 13 Formation process of the intermediate layer in the local melting zone.

た場合には、その領域が凝固し、中間層になったとみなして灰色で示した。

0～20 μ sの間に、接合界面の局所融解領域の範囲がわずかに広がっている。これは接合界面からの熱拡散によって界面近傍のCuとAl母材の温度が上昇し、高温域が広がったためである。また、20 μ sでは、黒矢印で示す接合界面の局所融解領域の幅が狭い部分から凝固し始めることがわかった。40 μ sでは、局所融解領域の凝固がさらに進行し、渦部に位置する局所融解領域の外側が凝固し始めた。60～100 μ sでは、渦部の局所融解領域の外側から中心に向かって凝固が進行した。この段階では渦部の中央に局所融解領域が残存しており、これより、渦部の最終凝固位置は渦部の中央となることがわかった。150 μ sでは、局所融解領域の凝固はすべて完了し、接合界面全面に中間層が生成した。中間層の厚さは一定ではなく、厚い部分と薄い部分が見られ、厚さは最大で約200 μ m、最小で10 μ mであった。数値解析で得られた中間層の大きさと形状は、Fig.5に示した実際の爆発圧接材の接合界面に観察される中間層とよく一致した。

5. 考察

5.1 数値解析結果と実験結果との整合性

SPHモデルならびにLFモデルを組み合わせた数値解析により、Cu/Al接合材の波状界面の形成過程のみならず、局所融解領域の生成位置と形状、組成およびその後の中間層の生成過程を再現することができた。そこで、ここでは数値解析結果と実際に作製した爆発圧接材の接合界面との整合性について検討する。

まず、波状界面形態について比較する。SPHモデルで再現された波状界面の波高と振幅は、それぞれ181 μ m、491 μ mであった。数値解析条件と同じ衝突速度、衝突角度で実施した爆発圧接実験で得られたCu/Al接合材において観察された波状界面の波高と波長は110 μ m、371 μ mであった。実験結果に比べ数値解析結果は若干大きいものの、波状界面はトリガー状を呈し、中間層が接合界面や渦部にのみ生成している形態は両者でよく一致している。またLFモデルにより再現した中間層の生成過程から予測される最終凝固部の位置は、実際の接合界面の中間層内に観察されるボイドの位置とよく一致している。

局所融解領域の組成に関しても、SPHモデルで得られた界面におけるCuとAlの粒子数比から見積もった組成(41 wt.%Al–59 wt.%Cu)は、EPMAにより組成分析して得られた平均組成(40 wt.%Al–60 wt.%Cu)と定量的によく一致している。このように本研究の数値解析結果と実験結果との整合性は非常に高い。

5.2 中間層の生成過程

従来、爆発圧接材の接合界面における中間層の生成過程については、接合界面における両金属の混ざり合いや急激な温度変化の直接観察・直接測定が困難なため、実験により得られた最終組織の観察や化学組成の分析結果から推定するしかなかった。本研究では、爆発圧接による接合界面での波状界面の形成と温度上昇を取り扱うSPHモデルならびに爆発圧接直後からの温度変化を取り扱うLFモデルを連成した数値解析を行うことにより、接合界面における中間層の生成過程を再現することに成功した。

波状界面の形成に伴い界面のごく近傍ならびに渦部では、CuとAlの融点以上まで急激に温度が上昇し、局所的な融解が生じると考えてよい。このような局所融解が起こる渦部や界面では、SPHモデルの解析で得られたCuとAl粒子分布が示すように、Cu成分とAl成分がほぼ均等に混ざり合っていた。よって、ここでCuとAlの合金融液が生成し凝固すれば、中間層となるはずである。

さらに接合界面の温度上昇は接合界面極近傍に限られており、界面から数百 μ m離れると、母材の温度はほとんど上昇しないことがわかった。よって、接合界面から数百 μ m離れた母材との間に1000～1500Kの温度差が生じ、非常に大

きな温度勾配が発生すると考えられる。よって、接合界面から母材への急激な抜熱が生じ、Fig.12 (c)に示したように接合界面近傍では $10^6 \sim 10^7$ K/s オーダーの冷却速度で温度低下が起こると考えられる。

局所融解領域の組成がほぼ一定であれば、凝固温度は等しいため、先に温度が低下する幅の狭い部分から凝固が始まり、また幅の広い部分では融解部の外側から中心へと凝固が進行するはずである。よって局所融解領域の幅の広い部分の中心付近が中間層の最終凝固部となる。実際には最終凝固部で凝固収縮が生じ、この部分にボイド(引け巣)が形成する。Fig.5ならびにFig.6に示した接合界面の中間層の形状とボイドの位置は、数値解析によって再現した最終凝固部の位置とよい一致を示しており、これは、本研究で行った解析手法の妥当性を証明するものである。

Fig.5ならびにFig.6に示すように爆発圧接材の接合界面に生成した中間層内には、接合界面に対して垂直に多くのき裂が観察されている。これは、冷却中の熱収縮によるものと考えられる。中間層は周囲のCuやAlに比べて熱膨張係数が小さくかつ脆いため、主にボイドを起点として中間層の幅が広い部分に、き裂が生じたものと考えられる。なお、これらのき裂は接合界面に沿って生成していないため、界面の接合状態に依存するCu/Al接合材の強度に及ぼす影響は小さいと考えられる。

6. 結 言

Flyer plateにCu, Parent plateにAlを使用して、Cu/Al爆発圧接材を作製した。接合界面にはトリガー状の波状界面とともに中間層の生成が観察された。EPMA分析により測定した中間層の平均組成は40wt.%Al-60wt.%Cuであった。また中間層内にはき裂やボイドが観察され、ボイドの表面にはファセット成長した結晶の先端も観察された。

まず、SPH法を用いた解析により衝突中の波状界面形成過程と温度変化について検討した。接合界面には、トリガー状の波状界面が形成され、渦部ならびに界面近傍では局所的な融解が生じることがわかった。数値解析により得られたSPH粒子の分布から局所融解領域の組成を推定したところ、爆発圧接材の接合界面の中間層の組成とよく一致した。

SPHモデルで再現された波状界面の物質分布、温度分布ならびに局所融解領域の組成から、LFモデルの初期条件(熱拡散率、温度分布)を求め、局所融解領域の凝固温度を設定することにより、LFモデルによって波状界面形成後の接合界面における冷却過程と局所融解領域の凝固過程を再現した。

波状界面形成直後、接合界面近傍と界面から離れた母材の間には大きな温度差が生じていた。これにより接合界面

と母材の間に大きな温度勾配が生じ、急激な抜熱が起こることがわかった。局所融解領域ならびに界面から600 μ mほど離れた母材における温度の時刻歴変化を求めると、界面近傍では、 $10^6 \sim 10^7$ K/s オーダーの冷却速度となる一方で、母材部分はほとんど室温のままで変化しないことがわかった。

接合界面における中間層の生成過程について検討した。局所融解領域の凝固は凝固開始からおよそ100 μ sでほぼ完了した。凝固は局所融解領域の外側から中心に向かって進行し、中間層の最終凝固部は局所融解領域の中央部となることわかった。よって実際の接合界面の中間層の中央に観察されたボイドは、最終凝固部で生じた凝固収縮によるものと考えられる。このように爆発圧接により得られたCu/Al接合材の波状界面形態(波高、波長)ならびに中間層の組成やボイドの位置は、数値解析により求めた界面形態と定量的によく一致した。

以上のように、実験と数値解析の両手法を用いることにより、Cu/Al爆発圧接材の接合界面の冷却過程および中間層の生成過程を明らかにすることができた。

謝 辞

本研究の一部は公益財団法人軽金属奨学会「統合的先端研究」ならびにJSPS科研費JP16K06742の助成により行われたものであり、ここに記して御礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 西脇淳人, 熊井真次: Cu/Al爆発圧接界面における局所融解領域生成に関するシミュレーション, 溶接学会論文集, 34 - 4 (2016) 274-284.
- 2) H. Paul, L. Lityńska-Dobrzyńska, M. Prazmowski. Microstructure and Phase Constitution Near the Interface of Explosively Welded Aluminum/Copper Plates. Metallurgical and Materials Transactions A, 44 - 8 (2013) 3836-3851.
- 3) B. Crossland: Explosive Welding of Metal and Its Application, Oxford Series, (1982)
- 4) T. Sapanathan, R.N. Raoelison, N. Buiron, M. Rachik. In Situ Metallic Porous Structure Formation Due to Ultra High Heating and Cooling Rates During an Electromagnetic Pulse Welding, Scripta Materialia, 128 (2017) 10-13.
- 5) D. Steinberg, S. Cochran, M. Guinan: A Constitutive Model for Metals Applicable at High-Strain Rate, Journal of Applied Physics, 51 - 3 (1980) 1498-1504.
- 6) Y. Touloukian. Thermophysical Properties of Matter-The TPRC Data Series Volume 10 Thermal Diffusivity, TPRC (1974).
- 7) Y. Touloukian. Thermophysical Properties of Matter - The TPRC Data Series. Volume 4. Specific Heat, TPRC (1970).
- 8) Y. Touloukian. Thermophysical Properties of Matter - The TPRC Data Series. Volume 1. Thermal Conductivity, TPRC (1970).
- 9) ASM International Alloy Phase Diagram and Handbook Committees. ASM Handbook: Volume 3: Alloy Phase Diagrams. (1992).