

アルコール付着による Al-Mg 合金の超音波接合強さの改善*

— Al-Mg 合金の超音波接合 (第2報) —

平石 誠**, 渡辺 健彦***

Improvement of Ultrasonic Weld Strength for Al-Mg Alloy by Adhesion of Alcohol — Ultrasonic Welding of Al-Mg Alloy (2nd Report) — *

by HIRAISHI Makoto** and WATANABE Takehiko***

In order to improve the ultrasonic weld strength of Aluminum (Al)-Magnesium (Mg) alloy, the effects of pre-heating the specimen and the putting a drop of alcohol on the welding surface on the weldability were examined. Al-4.1 mass% Mg alloy (A5086) with 1.2 mm thickness was lap-welded. The following results were obtained in this study.

Pre-heating the specimen increases the strength of the weld. The adhesion of the alcohol on the welding surface causes the specimen temperature during welding to increase by 130 K higher than that without the alcohol adhesion, because the large relative motion between the specimens was induced at the incipient stage of the welding process due to the alcohol adhesion. The amplified relative motion and softening of the specimen because of the temperature rise broken down the Mg-segregated region preventing the faying surface from welding and resulted in increasing the weld strength about twice as high as that without alcohol. Furthermore, the adhesion of the alcohol causes the welding time necessary to achieve the sound welding to shorten below 1 second.

Key Words: Ultrasonic welding, Aluminum alloy, Magnesium, Weld strength, Alcohol, Welding temperature

1. 緒 言

マグネシウム含有アルミニウム合金（以後、Al-Mg 合金という）は成形加工性や耐食性に優れており、かつ適度な強さを持つことから、広く使用されている軽量金属材料の一つである。著者は、Al-Mg 合金の超音波接合の研究を行っており、前報¹⁾では、Al-Mg 合金の接合性を低下させる因子について検討した。その結果、工業用純アルミニウムの超音波接合継手と同等の接合強さを得るためには長い接合時間を要すること、また、Al-Mg 合金の場合、接合の初期において接合面に顕著な Mg の表面偏析が生じ、これが接合部の形成・拡大を阻害する要因であることを明らかにしてきた。

そこで、本研究では、Al-Mg 合金の超音波接合性を改善することを目的として、予加熱の効果およびアルコールを接合面に付着させることによる超音波接合性への影響について検討した。予加熱あるいはアルコール付着の超音波接合性に及ぼす影響を検討した背景には、次のような研究結果がある。

まず、著者らが行った Mg 合金の超音波接合の研究において、試料を予熱することにより接合強さが大きくなることを見出していること²⁾。また、これまでの Al-Mg の超音

波接合実験から、溶接工具（ホーン）による試料への加圧力が過大となると接合強さが低下する現象を見出しており、これには、試料間の相対運動あるいは摩擦熱が関与していることを明らかにしてきたこと、さらに、Al 合金の摩擦面にアルコールを吸着させると、Al 合金の摩擦係数が低減することが報告されている^{3,4)}、等である。

2. 供試材および実験方法

2.1 供試材

前報において工業用純 Al (A1050-H24) に比較して顕著な超音波接合性の低下が認められた Al-Mg 合金 A5086-H24 (Al-4.1 mass% Mg) を使用した（以後、調質記号は省く）。板厚 1.2 mm の冷間圧延板であり、詳細な化学組成は前報に示したとおりである。接合試験片は長さ 100 mm、幅 10 mm の短冊形とした。被接合面には 4 vol.% 過塩素酸－エタノール溶液を用いて電解研磨を施し、水洗および乾燥の後、接合実験に供した。

2.2 超音波接合法

本研究に用いた超音波接合機は前報と同じもので、定格出力は 2400 W、発振周波数は 15 kHz である。ホーン先端での振幅は無荷重時で約 53 μm (Peak to peak) である。ホーン先端および試験片の受け台となるアンピルの上面には 10 mm \times 10 mm の溶接チップが取り付けられている。溶接チップには 0.8 mm ピッチでローレット加工が施されており、試験片と溶接チップ間でのすべりを生じにくくしてい

* 原稿受付 平成 14 年 7 月 24 日

** 正 員 新潟大学大学院 Member, Graduate school, Niigata University

*** 正 員 新潟大学 Member, Niigata University

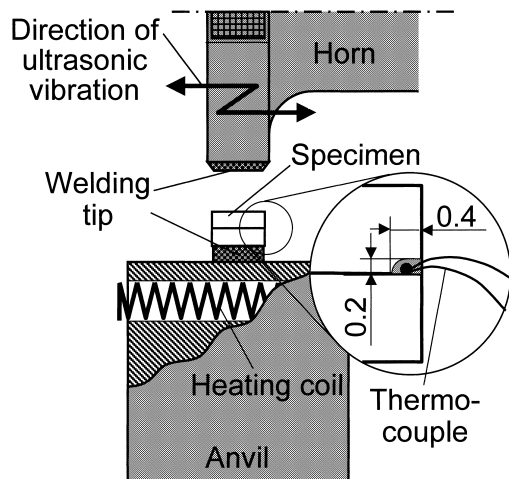


Fig. 1 Schematic illustration of ultrasonic welding apparatus. (Unit: mm)

る。接合部の面積は約 $10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ となる。Fig. 1 に示すように、アンビル側溶接チップの上に2枚の接合試片を平行に重ねて置いた後、ホーンに 588 N から 1470 N の荷重を加えて（以後、加圧力という）超音波振動を付加して接合を行った。超音波付加時間（以後、接合時間という）は 0.1 s から 1.0 s の間で変化させた。ホーンの振動方向は試験片の長手方向に対し直角方向とした。すなわち、Fig. 1において、ホーンおよび試験片は紙面上左右に振動する。アンビル内には加熱コイルが挿入されており、試料の予加熱が可能となっている。試料温度が室温から 453 K に達するまでの時間は 180 s であった。ただし、予加熱を行う場合は、接合中の試料の圧壊を避けるため加圧力を 882 N とした。

また、接合部の温度測定も前報と同様の方法である。熱電対には直径 0.1 mm の K 熱電対を使用した。熱電対接点部とホーン側試験片との接触を避けるために、ホーン側試験片の対応する部分を図に示すように削除した。

2.4 接合面への試液およびカーボンの付着

エタノールおよび水（イオン交換水）を接合面に滴下し、接合強さへの影響を検討した。溶接チップ上においた一方の接合試片にのみ $2.0 \times 10^{-7} \text{ m}^3$ の試液を滴下した後、他方の試片を重ねた。このとき、試片間の隙間は毛細管現象により試液でほぼ満たされた。その後、 10 s 後に接合を開始した。

また、真空蒸着により接合面にカーボンを蒸着させた。ESCA 分析の結果、蒸着膜の厚さは 7 \AA であった。

2.5 試料の予備冷却

予め冷却した試料を用いた予備接合実験を行った。冷媒としてドライアイスを入れたエタノール（以後、冷却エタノールという）を用いた。 213 K に保持された冷却エタノール中に接合試片を浸漬して同温度とした後、試片を溶接チップ上に置き、約 10 s 後、その温度が 223 K になると

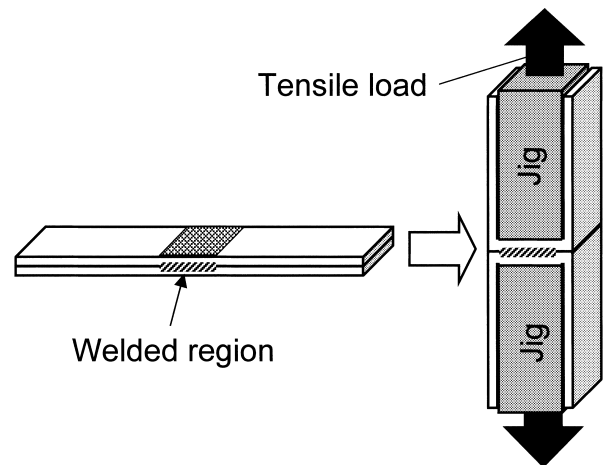


Fig. 2 Schematic illustration of tensile test.

同時に接合を開始した。接合開始時は試片はエタノールで濡れており、目視では結露は生じていなかった。

2.6 接合部の接合強さおよび接合面の分析

前報と同様、Fig. 2のようなU字型試験片を用いて引張試験を行い、引張破断荷重を接合部の接合強さとした。引張試験後の破面について SEM 観察を行い、また、AES（オージェ電子分光法）により元素分析した。

3. 実験結果および考察

3.1 予加熱が接合強さに及ぼす影響

アンビルを加熱することによりあらかじめ試料温度を上げた後、接合を行った。Fig. 3に接合開始時の試料温度（以後、初期温度という）と接合強さの関係を示す。初期温度の上昇に伴ない接合強さは高くなることがわかる。初期温度を 453 K にした場合、接合完了時（接合時間 1.0 s 時）の

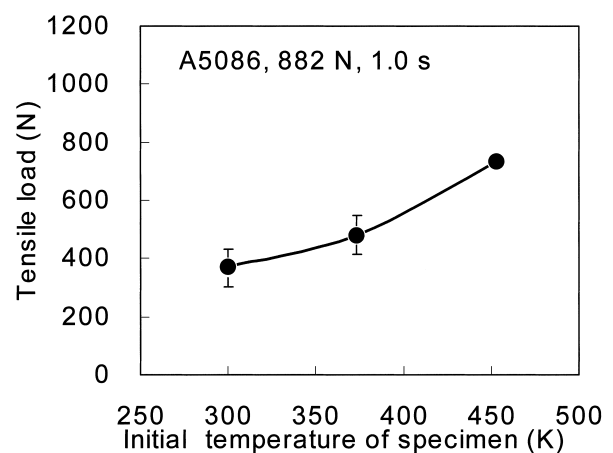


Fig. 3 Effect of preheat of specimen on tensile load of joints.

試料温度は 724 K に達した。

室温での試料の硬さは HV98.4 である。試料を加熱してビッカース硬さ試験を行った結果、約 370 K 以上に加熱すると顕著に軟化し、670 K では HV9.9 となった。したがって、予加熱による接合強さの増加は、加熱による原子の拡散の促進、並びにそれに伴う試料の軟化による接触面積の増加によるものと思われる。

3.2 エタノール付着が接合強さに及ぼす影響

3.2.1 接合温度と接合強さの関係

電解研磨したまま (以後、As EP (Electrolytic polishing) という) の場合、接合面に室温下でエタノールを付着させた場合 (以後、Ethanol という)、および試料を冷却エタノール中に浸漬した場合の接合強さと加圧力の関係を Fig. 4 に示す。接合時間は 1.0 s とした。As EP の場合、接合強さは加圧力 882 N で極大を示し、それ以上の加圧力では低下した。このような傾向は他の報告にも見られ^{5),6)}、過大な加圧力を加えた場合、接合界面での摩擦力が大きくなり相対運動が起こりにくくなる結果、接合強さが低下したものと思われる。

Ethanol の場合の接合強さは、882 N 以下の加圧力では As EP の場合とほぼ同等であったが、加圧力の増加とともに大きくなり、1176 N 以上の条件で著しく上昇した。一方、冷却エタノールで冷却した場合 (Ethanol 223 K)、Ethanol に比べると接合強さは相対的に低下した。このことは、上述の予加熱を行った実験結果とともに、接合強さには接合温度が大きく影響することを示している。また、冷却した場合でも 1470 N 以上の高加圧力条件では As EP の場合より大きな接合強さを示すことから、エタノールが被接合面に付着したことに何らかの効果があることが予想される。

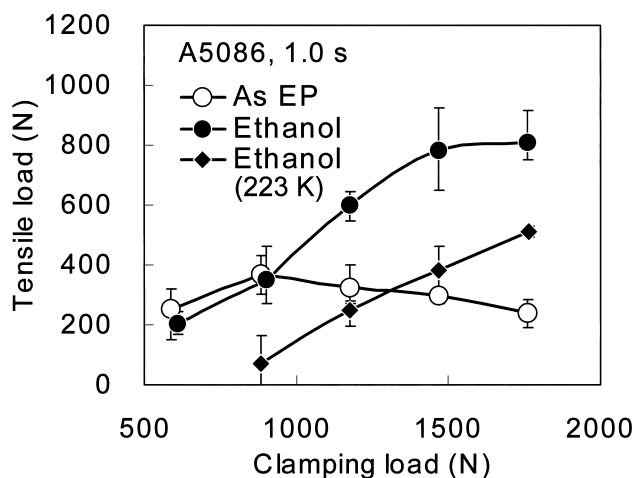


Fig. 4 Relationship between tensile load of joints and clamping load in each case of as-electrolytic polishing (As EP) and application of ethanol at R.T. (Ethanol) and at 223 K.

As EP と Ethanol (以後、特に記述しない場合は、室温でエタノールを用いた) の場合について、加圧力を 1470 N としたときの接合時間と接合強さの関係を Fig. 5 に示す。いずれの場合も接合強さは接合時間の経過とともに増加するが、その増加率は Ethanol の場合の方が大きい。

Fig. 6 は Fig. 5 と同条件における試料温度の時間変化である。Ethanol の場合の試料温度は、接合時間 0.7 s 付近まで急激に上昇し、その後はほぼ一定となった。接合完了時 (1.0 s) での試料温度は、As EP の場合が約 540 K であったのに対し、Ethanol の場合は約 710 K に達した。

Fig. 4 に示した各加圧力における接合強さと接合完了時 (1.0 s) の試料温度との関係を Fig. 7 に示す。図には As EP の場合と Ethanol の場合を併記している。いずれの場合も、接合強さは試料温度の上昇とともに増加することがわかる。As EP の場合、加圧力が 882 N より大きくなると試料温度は低下した。このことは、上述の高加圧力では相対運動が起こりにくいという考察を支持するものであり、逆に、エタノールの付着によって相対運動が活発化することを示唆し

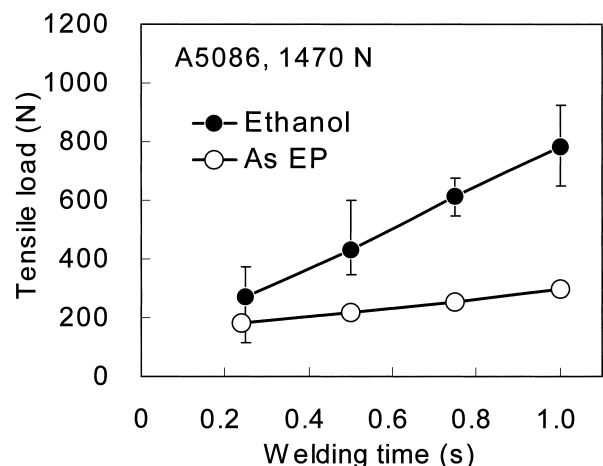


Fig. 5 Relationship between tensile load of joints and welding time in each case of Ethanol and As EP.

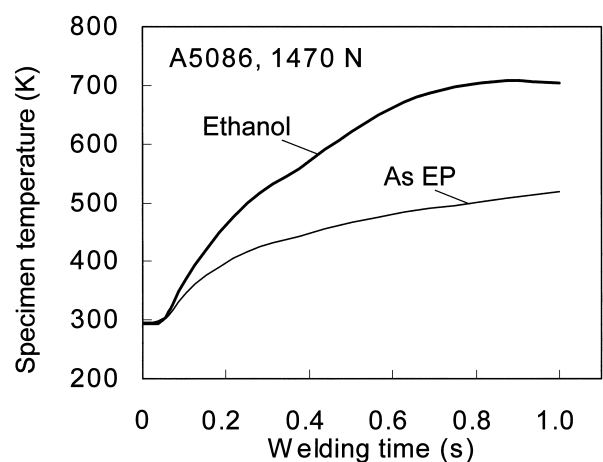


Fig. 6 Comparison of specimen temperatures during welding between Ethanol and As EP.

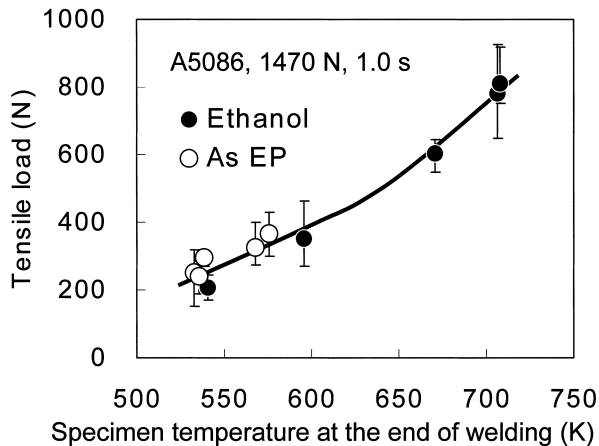


Fig. 7 Relationship between tensile load of joints and specimen temperature at the end of welding. (Welding time: 1.0 s)

ている。ただし、Ethanolの場合、試料温度は加圧力の増加とともに大きくなっていることから、試料温度の上昇、ひいては接合強さの増大には接合中の摩擦熱の発生を大きくする適度な摩擦力が不可欠であると思われる。

試料の相対運動の様子を調べるため、ホーン側試料に形成されたチップのローレットの圧痕径を測定した。試料がホーンの超音波振動に追従する場合は圧痕は小さく、一方、接合が進行するなどして試料界面の摩擦が大きくなった場合には、チップと試料の間で滑りが生じて、圧痕は大きくなる。

Fig. 8に測定結果を示す。図には圧痕の写真およびその模式図を添付した。圧痕は楕円形をしており、その幅入を圧痕径とした。接合時間 0.5 s 以下では、Ethanol の場合の方が圧痕径が小さい。このことは、試料間の相対運動が活発に行われたことを示しており、ホーンの超音波振動が有効に接合界面に伝えられていることが推察される。圧痕径の増加率が Ethanol の場合の方が大きくなるのは、温度上昇に伴うエタノールの消失および接合面積の拡大によって、試料間の相対運動が生じにくくなり、チップ-試料間での滑りへと徐々に遷移したためであると考えられる。また、温度上昇による試料の軟化も一因として挙げられる。

このように、接合初期においては、エタノールは潤滑材として作用する。振動環境における摩擦形態の一つにフレッティング (Fretting, 微動摩耗) があるが、接触界面への潤滑剤の侵入などによる不完全な潤滑は、摩擦振幅を増大させ無潤滑時よりも凝着摩耗を大きくすることが報告されている⁷⁾。エタノールを用いたことによる接合時の試料温度の上昇および接合強さの増大は同様の凝着機構によるものと思われる。

3.2.2 接合面への水あるいはカーボンの付着の影響

エタノールに換えて水を付着させた場合、およびカーボンを真空蒸着した場合の接合強さへの影響を調べた結果を

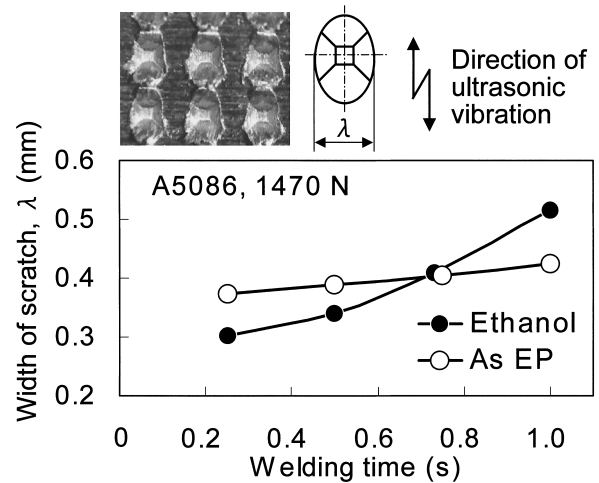


Fig. 8 Comparison of width of scratches between Ethanol and As EP. The scratches, which have elliptic shape as shown in the attached photograph, are formed by the welding tip with pyramidal projections.

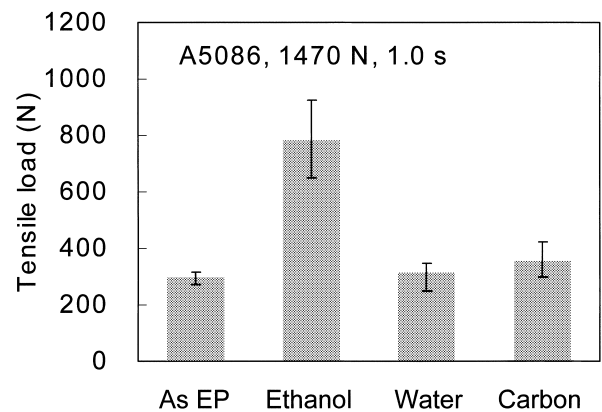
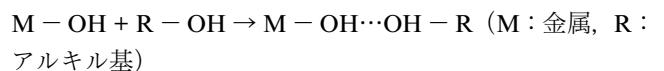


Fig. 9 Effects of adherent materials on tensile load of joints.

Fig. 9に示す。水やカーボンを付着させても接合強さへの影響はほとんど認められない。なお、試料温度は電解研磨のままの場合と同等であった。このことは以下のように考察される。

金属の表面酸化物には大気中の水分が吸着している。例えば、Al表面は $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ などのようであり、また、Al(OH)₃のように水酸化物も形成する^{8),9)}。アルコールは、極性基である水酸基 (—OH) を介して、



のような水素結合 (…で示した部分) によって金属酸化物表面に吸着することが知られている。また、この場合、水 (H_2O) の吸着も生じうる^{10),11)}。

Fig. 9の結果から、接合面にエタノールを付着させた際の効果は、エタノールが①金属酸化物表面への吸着力を持つこと、②アルキル基を有するために、試料表面同士の直接接触が妨げられたことによって発現されていると言える。

3.2.3 接合時間と接合界面の挙動との関係

引張試験後の接合部の破面 (アンビル側) を SEM 観察した。Fig. 10 は加圧力 1470 N, 接合時間 1.0 s の Ethanol の場合の破面である。Fig. 10(a) はマクロ写真である。矢印①で示した平坦に見える部分の拡大写真を Fig. 10(b) に示す。前報

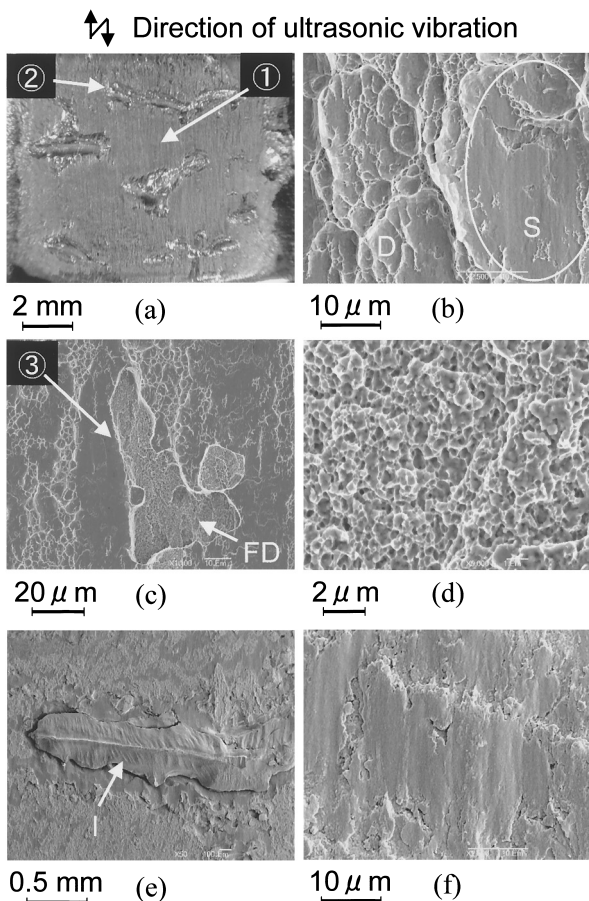


Fig. 10 Fracture surface in the case of Ethanol. (b) is a flat part pointed by arrow ① in (a). (c) and (d) are FD-section observed on the flat part and its magnified image, respectively. (e) is a magnified image of the island shape (I-section) pointed by arrow ② and its surface is shown in (f). (Welding condition: 1470 N, 1.0 s)

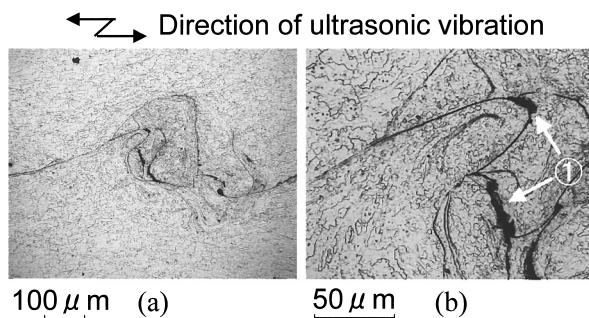


Fig. 11 Cross-sectional image of I-section. (b) is magnified image of (a).

でも報告した擦過痕 (以後、「S (Scrape) 部」とする) とディンプル (以後、「D (Dimple) 部」とする) が混在しており、破面の大部分を覆っていた。また、S-D混在部には、Fig. 10 (c) に矢印③で示すように、細かい凹凸のある表面を持った破面 (以後、「FD (Fine dimple) 部」とする) が斑点状に観察された。その破面を拡大すると、Fig. 10(d)のように、細かいディンプルが観察されるが、D部と比較してディンプルは極めて小さく、介在物を多く含んでいることが示唆される。Ethanolの場合の特徴として、Fig. 10(a)に矢印②で示した島状の凹凸 (以後、「I (Island) 部」とする) が見られる。I部の拡大図を Fig. 10(e) に示す。この凹凸は、アンビル側破面が凸型になる場合、ホーン側破面にはそれに対応した形の凹部が存在した。I部の表面は Fig. 10(f) に示したようであり、S部と同じ破面を呈していることがわかる。超音波振動方向と平行な断面においてI部を観察した結果を Fig. 11(a) に示す。I部では界面が激しく攪拌されていることがわかる。後述のように、I部は接合時間 0.25 s までに形成される。すなわち、500 K 以下 (Fig. 6 参照) の比較的低温で大きな塑性ひずみを与えられた後、高温にさらされるため、攪拌部では結晶が細粒化している。I部は試料を予熱した場合や水を滴下した場合には認められないことから、エタノールを用いたことにより試料間の相対運動が促された結果生じたものと考えられる。Fig. 11(b) は Fig. 11(a) の中央部を拡大したものである。矢印①で示した箇所やそれらを結ぶ黒い線には空隙が認められることから、接合はなされていないと思われる。しかし、接合の初期においては、D部はI部の周辺にのみ形成された。これは、I部における大きな塑性流動によってI部に向かうせん断力が界面傍傍の材料に作用し、この結果、表面酸化皮膜が破れやすくなり、また、表面が引き寄せられ摩擦が生じやすくなったことが考えられる。すなわち、I部はそれ自体では接合はなされていないが、D部の形成には重要な役割を果たしていると言える。

Ethanolの場合に接合時間を変化させたときの破面においてS, FD, D, I部およびE部の占める面積率を調べた。ここに、E (Electrolytic polishing) 部は電解研磨のままの面である。比較のため、As EPの場合の面積率も併記した。この場合、前報に述べたように、脆性的な破面 (B (Brittle) 部) が認められた。面積率は、破面の試験片長手方向の中央に一本の線を仮想し、これに沿って 0.4 mm ピッチで撮影した 24 箇所の写真上で点算法によって算出した。なお、撮影倍率は 500 倍とした。

Fig. 12 は S, FD, D, I および B 部の各面積率を示しており、これ以外の領域が E 部である。Ethanol の場合の接触面積 ($S + FD + D + I$) は接合時間とともに増加し、0.75 s 以降では E 部は認められなくなり、破面の全面で接触が生じた。接合時間 1.0 s で As EP の場合と比較すると、接触面積、および接合強さに寄与すると思われる D 部の面積が著しく大きくなるのがわかる。また、各破面の構成比を見ると、接触面積が全面に広がる接合時間 0.75 s まで、S 部は 36 ~

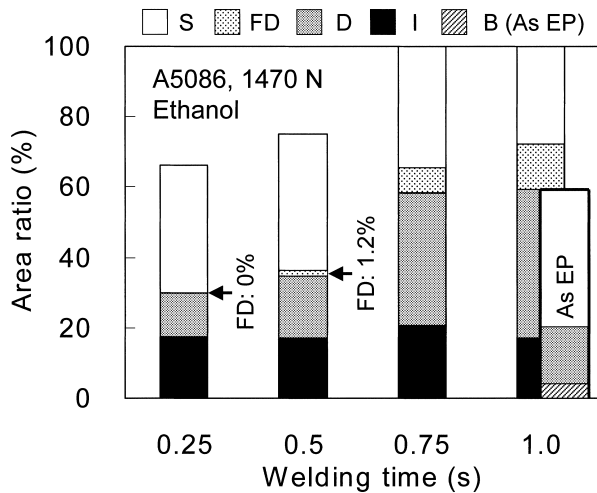


Fig. 12 Variation of area ratio of S, FD, D and I-section in fracture surface with welding time for Ethanol.

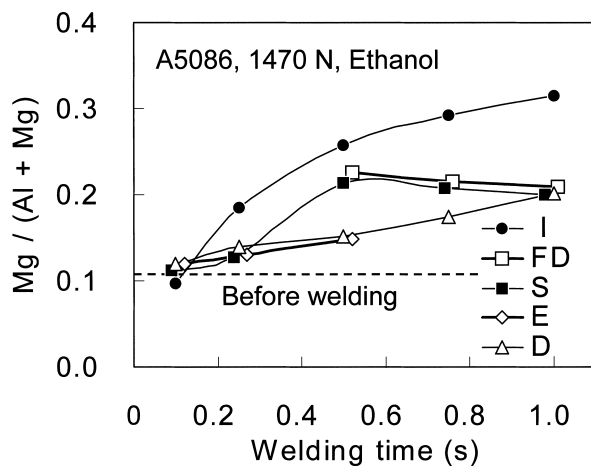


Fig. 13 Relationship between Mg concentration ratio at fracture surface and welding time for Ethanol.

39%, I部は17~20%でほぼ一定しており, 接触面積 (S + FD + D + I) の増加は主にFD部およびD部の増加によることがわかる。

前報では, As EPの場合, S部では急激なMgの表面偏析が生じ, これがD部の形成・拡大を阻害する要因であること, そして, 接合中の接触面積の増加は主にS部の増加によることを報告した. Fig. 12に示した顕著なD部の増加は, これと対照的な結果である. なお, FD部の形成については後に述べる。

3.2.4 破面のAES分析

S, FD, D, I部およびE部におけるMgの表面偏析をAES分析により調べた. (Al量 + Mg量) に対するMg量の原子濃度比と接合時間との関係をFig. 13に示す. なお, E部は接合時間0.5 s以下, FD部は0.5 s以上でのみ認められるため, それ以外の条件での結果は示されていない。

いずれの破面においても接合前に比べて表面のMg濃度

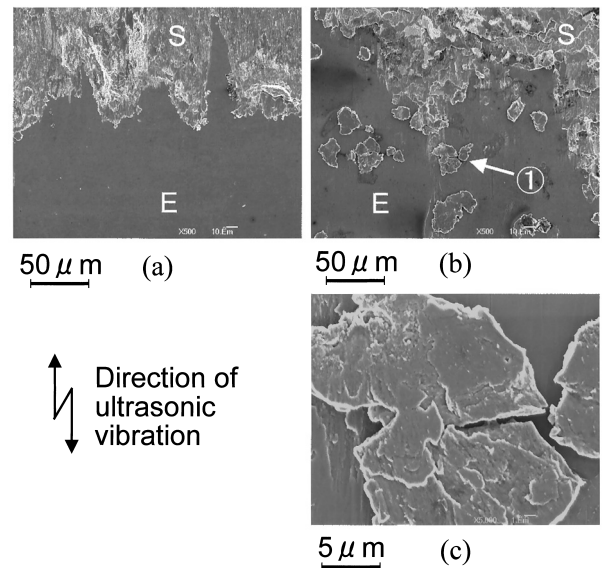


Fig. 14 SEM micrograph of fracture surface in each case of As EP (a) and Ethanol (b). (c) is magnified image of the part pointed by arrow ①.

は増加し, 特にI部およびS部においては短時間でMgの偏析が生じることがわかる. I部は, 接合時間0.25 sまでに形成されるが, その後もMg濃度が増加している. これは, 上述のようにI部では接合がなされていないためであり, また, 特にI部が高温にさらされたことを示唆している. S部におけるMgの濃度は接合時間0.5 sまで上昇し, それ以降はMg/(Al+Mg)比は0.21付近で一定した。

As EPの場合, 接合時間0.5~1.0 sの範囲では, S部のMg/(Al+Mg)比は0.20付近で一定することを前報で述べた. この結果は加圧力882 Nにおけるもので接合時間1.0 sでの試料温度が最も高く(約580 K)なる. Fig. 13に示した値と比較すると, 両者では接合時間1.0 s時の試料温度に約130 Kの差があるにもかかわらずS部におけるMg濃度はほぼ等しくなった. これは, S部を形成する際に酸化皮膜の攪拌が生ずるために, 表面のMg偏析濃度への温度の影響が現れにくいためと思われる。

Fig. 14(a), (b)に, それぞれAs EPおよびEthanolの場合について, 加圧力1470 N, 接合時間0.5 sで接合したときの破面を示す. 平滑で暗い部分がE部, 擦過痕を呈している部分がS部である. Ethanolの場合, E部上に多数の断片が散在しているのが観察される. 矢印①で示した断片を拡大したものがFig. 14(c)である. 断片の表面はS部と同様の擦過痕を呈していることがわかる。

S部近傍に存在した断片について表面のMg濃度をAES分析した結果, Mg/(Al+Mg)比は, 接合時間0.25 sでは0.13, 0.5 sでは0.22となった. これらの値はFig. 13に示したS部の値とよく一致しており, 断片がS部から脱落したものであることを示している. また, 接合時間0.5 s以後の破面上にはFD部が斑点状に存在することを先に述べた (Fig. 10 (c)). Fig. 13によれば, FD部のMg濃度はS部のそれと同

等であり、このことから、S 部の断片は残留して、細かいディンプルを有する FD 部を形成するものと思われる。

以上のことから、エタノールを用いることによって、試料界面での相対運動が大きくなるとともに、接合中の試料温度の上昇に伴う試料の軟化により界面が密着したことが S 部の破壊を生じさせたと考えられる。そして、このことが Al-Mg 合金の接合を阻害する S 部の拡大を抑制し、超音波接合性を向上させることが明らかになった。

4. 結 言

本研究では、Al-Mg 合金の超音波接合性を改善することを目的として、加熱あるいはエタノールの接合面への付着が超音波接合性に及ぼす影響について検討した。得られた結果は以下のようである。

- 1) 試料を予熱することにより接合強さは増加する。
- 2) 加圧力の増加に伴う接合強さの変化は、電解研磨のままの場合、ある加圧力で極大値を示す。一方、エタノールを接合界面に付着させると、電解研磨のままの場合に低下傾向を示す高加圧力範囲で大きな接合強さが得られる。
- 3) エタノールを用いた場合の接合中の試料温度は電解研磨のままの場合よりも高くなる。接合時間 1.0 s のときの接合強さは、試料温度の上昇とともに増加する。
- 4) エタノールを用いた場合、接合初期に試料間で大きな相対運動が生じる。
- 5) 接合面に水を付着させた場合あるいはカーボンを真空蒸着した場合、接合強さは電解研磨のままの場合と同等であり、エタノールのような効果は得られない。
- 6) エタノールを用いた場合、接合時間 0.75 s までに接触面積が急激に増加する。Mg の表面偏析が生じた擦過痕 (S 部) は、試料間での相対運動の活性化および温度上昇に伴う試料の軟化により破壊される。これにより、ディン

プル部 (D 部) の面積は増加し、Al-Mg 合金の超音波接合性が向上することがわかった。

謝 辞

前報および本報にわたり、本研究の遂行に際し試料材料をご提供下さった昭和電工(株) 市川健二氏に心より御礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) Jap. Welding. Soc. in press.
- 2) T. Watanabe, S. Yamashita, M. Hiraishi: Effect of Surface Treatment on the Ultrasonic Weldability of AZ31B Magnesium Alloy Plate, Journal of Japan Institute of Light Metal, 51-10 (2001), 521-527. (in Japanese)
- 3) L. Hu, J. Chen, W. Liu, Q. Xue, C. Kajdas: Investigation of Tribochemical Behavior of Al-Si Alloy Against Itself Lubricated by Amines, Wear, 243 (2000), 60-67.
- 4) S. Igari, S. Mori, Y. Takikawa: Effects of Molecular Structure of Aliphatic Diols and Polyalkylene Glycol as Lubricants on the Wear of Aluminum, Wear, 244 (2000), 180-184.
- 5) Electric Industries Association of Japan: Ultrasonic Engineering, Corona Publishing Co. (1995), 162-168. (in Japanese)
- 6) N. E. Weare, J. N. Antonevich, R. E. Monroe: Fundamental Studies of Ultrasonic Welding, Welding Research Supplement, August (1960), 331s-341s.
- 7) 日本潤滑学会編: 潤滑ハンドブック, 養賢堂 (1987), 68-69.
- 8) C. Lea, J. Ball: The Oxidation of Rolled Heat Treated Al-Mg alloys, Applications of Surface Science, 17 (1984), 344-362.
- 9) K. Naito, et al.: 表面処理技術ハンドブック, NTS (2000), 170-171. (in Japanese)
- 10) T. Murakawa: 金属機能表面, Kindai Henshu (1959), 55-56. (in Japanese)
- 11) F. P. Bowden, D. Tabor: The Friction and Lubrication of Solids (Translated by N. Soda), Maruzen (1965), 199-215. (in Japanese)