

# Al-Mg 合金の超音波接合性におよぼすマグネシウムの影響\*

—Al-Mg 合金の超音波接合 (第1報)—

平石 誠\*\*, 渡辺 健彦\*\*\*

## Effect of Magnesium on Ultrasonic Weldability of Al-Mg Alloy\*

—Ultrasonic Welding of Al-Mg Alloy (1st Report)—

by HIRAISHI Makoto\*\*, WATANABE Takehiko\*\*\*

The behavior of magnesium (Mg) in the ultrasonic welding process of aluminum (Al) alloy containing Mg was investigated to understand the reason for the poor weldability.

Commercially pure Al (A1050), Al-2.6 mass% Mg alloy (A5052), and Al-4.1 mass% Mg alloy (A5086), 1.2 mm thick each, were lap-welded and the fracture surfaces were examined by SEM observation and AES analysis.

For all of these materials, the tensile load of the weld increased with an increase in the clamping load or in the welding time. In the case of Al-Mg alloys, higher Mg concentration required higher clamping load or longer welding time to obtain the tensile load equivalent to A1050. SEM observation of the fracture surface of the weld indicated that dimple pattern occupied the almost whole fracture surface of A1050. On the other hand, upon Al-Mg alloys, scraped fracture pattern, dimple pattern and brittle fracture pattern were observed and the scraped pattern occupied the largest area in the fracture surface. AES analysis of each fracture surface showed that Mg was segregated at the surface presenting the scraped and the brittle pattern. Especially at the scraped pattern surface, welding for short time of 0.5 s induced the segregation of Mg about twice as high as the concentration before welding. When the specimen having the surface segregation of Mg formed by the pre-heat treatment was welded, the scraped pattern was observed on the almost whole fracture surface and the tensile load of the weld decreased.

Conclusively, it was found out that the surface segregation of Mg induced during the process of the welding caused the ultrasonic weldability of Al-Mg alloy to deteriorate.

**Key Words:** Ultrasonic Welding, Aluminum alloy, Magnesium, Surface segregation, Oxide film

### 1. 緒 言

超音波接合法は、静圧力と振動により接合面の酸化皮膜、付着物を排除しつつ、接触部を塑性変形させることにより接合する方法である。本接合法の特徴として、接合部には溶融部や結晶粗粒化域がほとんど認められないこと、凝固に伴う応力や割れが発生しないことなどが挙げられる。このため、特にアルミニウム合金のように熱膨張係数が大きな材料や凝固温度範囲が広い材料には適した接合方法であると考えられる。

マグネシウムを数%含有するアルミニウム合金（以後、Al-Mg 合金という）は適度な強さを持ち、成形加工性や耐食性に優れることから、広く使用されている。しかし、著者らが行った予備実験では、Al-Mg 合金の超音波接合継手は純アルミニウムのそれに比べ強さが低いことが見いださ

れている<sup>1)</sup>。また、同じく固相接合である圧接接合においても、マグネシウムを添加するとアルミニウム合金の接合強さが低下することが報告されている<sup>2)</sup>。

本研究では、Al-Mg 合金の超音波接合を行い、その接合性を低下させる要因を明らかにすることを目的とした。

### 2. 供試材および実験方法

#### 2.1 供試材

供試材には、工業用純アルミニウム合金 A1050-H24 と Mg 含有濃度の異なる Al-Mg 合金 A5052-H24 および A5086-H24 を用いた（以後、調質記号は省く）。いずれも板厚1.2 mm の冷間圧延板である。それぞれの化学組成を Table 1 に示す。接合試験片は長さ100 mm、幅10 mm の短冊型で、その長手方向が圧延方向と平行になるように切出した。試験片をアセトン中で超音波洗浄した後、Fig. 1 に示すように、接合面に 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、乾燥後、接合に供した。電解研磨部の硬さおよび表面粗さを Table 1 に併せて示す。

\*原稿受付 平成14年1月22日

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

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

Table 1 Chemical compositions (mass.%), hardness and surface roughness of materials used.

	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Al	Hardness (HV)	Surface roughness Ra ( $\mu\text{m}$ )
A1050	0.10	0.33	0.01	----	0.01	----	----	0.03	Bal.	37.2	0.15
A5052	0.10	0.31	0.03	0.06	2.56	0.23	0.01	0.01	Bal.	77.8	0.17
A5086	0.03	0.04	0.02	----	4.09	0.05	0.50	----	Bal.	98.4	0.15

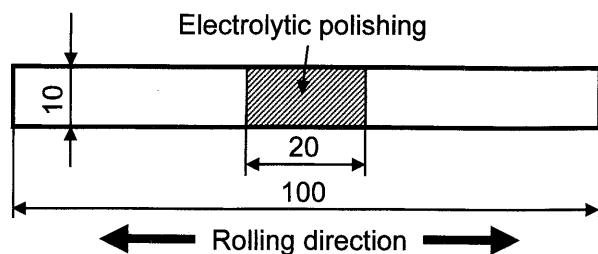


Fig. 1 Shape of specimen.

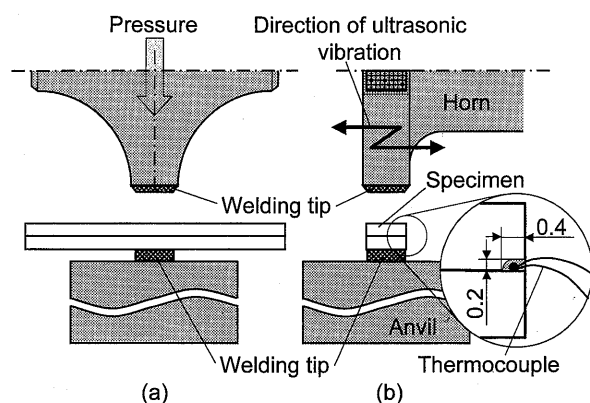


Fig. 2 Schematic illustration of the apparatus for ultrasonic welding. (b) is the right side view of (a). (Unit: mm)

## 2.2 超音波接合法

本研究に用いた超音波接合機の定格出力は2400 Wであり、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  $\mu\text{m}$  (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ビルの上面には10 mm  $\times$  10 mmの溶接チップを取付けた。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る。

Fig. 2に示すように、アンビル側溶接チップの上に2枚の接合試験片を平行に重ねて置いた後、ホーンに588 Nから1180 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2.0 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. 2(b)において、ホーンおよび試験片は左右に振動する。

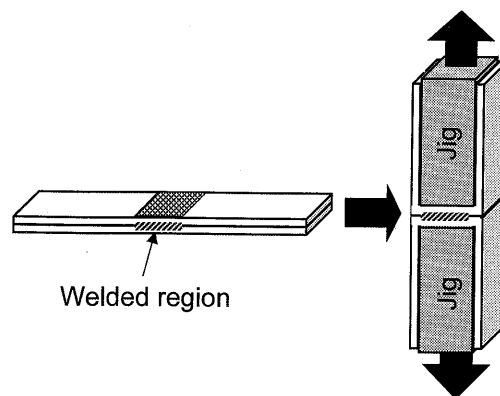


Fig. 3 Schematic illustration of tensile test.

## 2.3 接合部の温度測定

アンビル側試験片の接合箇所のほぼ中央の端部 (Fig. 2 (b)) に直径0.1 mmのK熱電対を溶接し、接合時の試験片の温度変化を200データ/sのサンプルレートで記録した。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 接合部の評価および接合面の分析

接合部の面積は約10 mm  $\times$  10 mmである。接合部の両端をFig. 3のように曲げてU字型試験片を作製し、引張試験により接合強さを評価した。引張速度は $1.67 \times 10^{-2}$  mm/sとし、引張破断荷重を接合部の接合強さとした。

電解研磨後の接合面および引張り試験後の破断面をXPS (X線励起光電子分光法) とAES (オージェ電子分光法) を用いて分析した。XPSのX線励起源はAlK $\alpha$ 線である。また、SEMを用いて破断面の観察を行った。

## 3. 実験結果および考察

### 3.1 接合強さ

Fig. 4にA1050, A5052そしてA5086のそれぞれについて、加圧力を変化させたときの接合時間と接合強さの関係を示す。破断は全ての条件において接合界面で生じた。接合強さは接合時間の増加とともに高くなり、また、同じ接

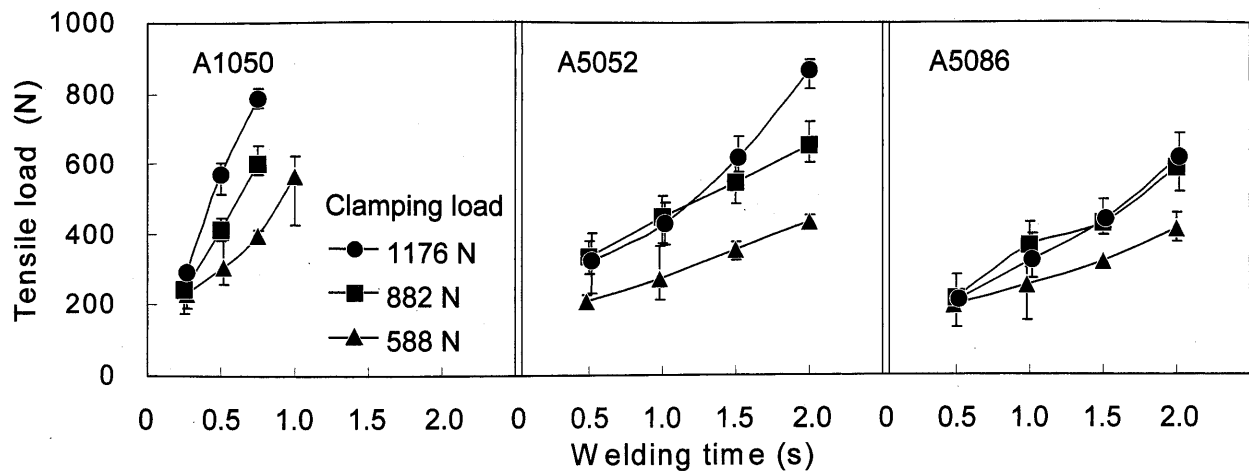


Fig. 4 Relationship between tensile load of joints and welding time.

合時間では加圧力が大きいほど高い接合強さを示した。なお、いずれの材料を用いた場合も、図にプロットされた接合条件より長い接合時間では、試験片がチップに強く付着したり、接合中に超音波振動によって試験片が疲労破断したりしたことから、実験条件としては不相当であると判断した。A5052やA5086を用いた場合、接合時間を長くすることによりA1050と同等あるいはそれ以上の接合強さが得られたが、同じ接合条件での接合強さは高い方からA1050、A5052、A5086の順となり、A5052やA5086の超音波接合性はA1050のそれより劣ることが明らかになった。

### 3.2 破面のSEM観察

#### 3.2.1 A1050 接合部の破面観察

A1050を加圧力882 N、接合時間0.5 sの条件で接合したときの破面のSEM写真をFig. 5(a)~(d)に示す。破面観察はアンビル側の試験片について行い、また、超音波振動方向はいずれも写真の上下方向である（以後の写真も全て同様である）。Fig. 5(a)はマクロ写真で、矢印①で示すような白く見える部分が接合部であり、その内部に点在する矢印②で示す黒く見える部分は未接合部ある。未接合部が写真の左右方向に並んで見えるのは、接合面上には、板の圧延時に生じたと思われるうねり（凸部から凸部の周期は約100  $\mu\text{m}$ ）が存在するために、その凸部から接合が始まり、接合時間とともに接合面積が広がった結果である。白く見える部分を拡大して観察するとFig. 5(b)のようなディンプルが認められ、良好な接合がなされたことがわかる。矢印②で示した黒く見える部分とディンプル部との境界付近を観察したのがFig. 5(c)である。暗く平滑な部分（矢印③）は未接合部であり電解研磨したままの面である。また、Fig. 5(b)ほど明瞭ではないが、網目状に延性破面も認められる。Fig. 5(c)の中央部を拡大したものがFig. 5(d)である。矢印

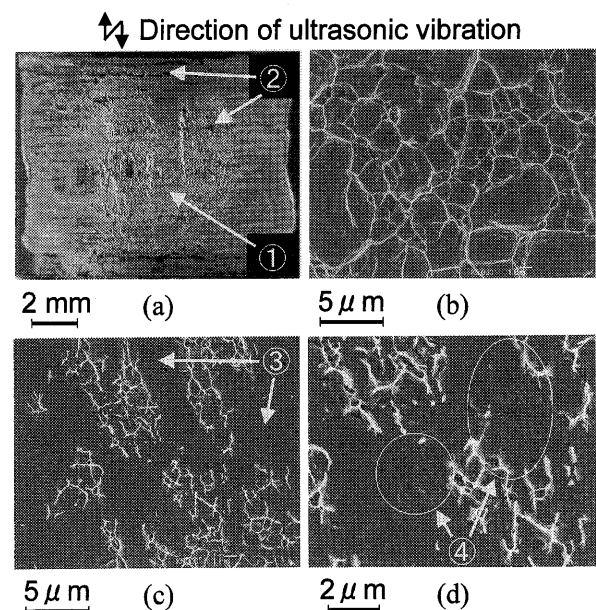


Fig. 5 Fracture surface of A1050 (a), (b) and (c) are SEM micrographs of white part (①) and border between a white and a black part (②), respectively. (d) is magnified image of (c). (Welding condition: 882 N, 0.5 s)

④で示した延性破面の先端では電解研磨面に亀裂が発生しており、ホーン側試験片との接触により表面皮膜を破壊しながら接合部が拡大していく様子がうかがわれる。

#### 3.2.2 A5086 接合部の破面観察

Fig. 6(I)はA5086を加圧力882 N、接合時間1.0 sの条件で接合したときのアンビル側試験片の破面をマクロ観察したものである。黒く見える部分は未接合部であり、A1050と同様に電解研磨したままの面である。白く見える部分では超音波振動方向に伸びた楕円形状の島が連なっており、Fig. 6(II)はその拡大模式図である。図中に記号(a~e)で示した箇所のSEM写真をFig. 7(a)~(e)に示す（観察倍

率は全て同じとした)。Fig. 7(a), (b)は、未接合の電解研磨面(以後、「E (Electrolytic polishing) 部」とする)との境界部を観察したものであり、ホーン側試験片との接触による擦過痕(以後、「S (Scrape) 部」とする)が観察された。また、その先端付近には、S部から脱離したと思われる矢印①で示すような小片が認められた。小片をEDSを用いて定量分析した結果、O: 58.8, Al: 35.1, Mg: 6.1(at.%)となり、接合表面の酸化皮膜が堆積、凝集したものと思われる。また、Fig. 7(b)に矢印②で示したような粒

子も見られ、それによって削痕を生じた部分も観察された。S部ではホーン側試験片との接触が生じたことは明らかであるが、A1050の場合に未接合部との境界部に認められたような延性破面(Fig. 5(c))が生じない点が大きく異なっている。Fig. 6(II)の模式図に示したD (Dimple) 部はS部に取り囲まれるように存在し、Fig. 7(d)のようにディンプルが観察された。また、D部にはFig. 7(e)のような脆性的な破面が混在していた(以後、「B (Brittle) 部」とする)。S部やFig. 7(b)に見られる削痕はA5052の破断面にも認められたことから、Al-Mg合金の特徴といえる。

接合時間を変化させたときの破面においてE, S, D, B部の占める面積率をFig. 8に示す。比較のためA1050の接合時間0.5sの破面におけるディンプルの面積率を併記した。面積率は、破断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0.5mmピッチで撮影した20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1000倍とした。

図にはS, D, B部の面積率を示したが、これ以外の領域がE部である。A5086の接触面積(S+D+B)は、接合時間1.0sにおいて急激に増加した。接触面積の増加のほと

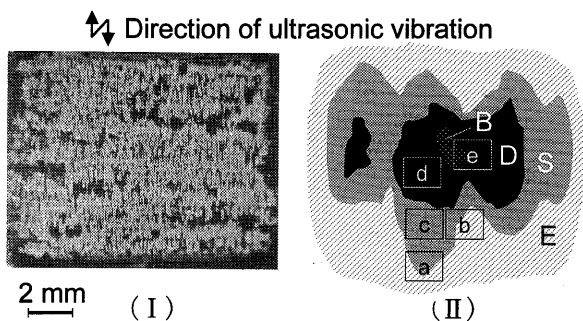


Fig. 6 Fracture surface of A5086 (I). (II) is magnified schematic illustration of (I). (Welding condition: 882 N, 1.0 s)

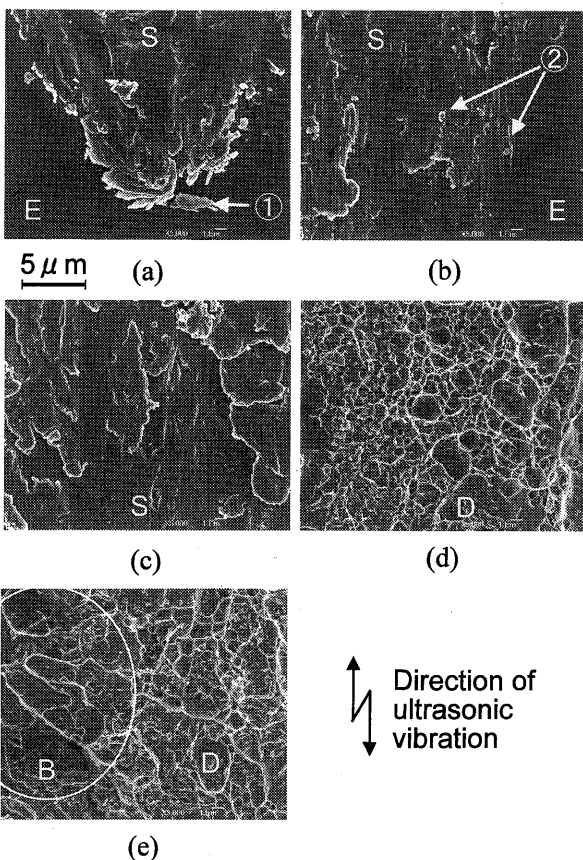


Fig. 7 SEM micrographs of fracture surface of A5086. (a) to (e) correspond to (a) to (e) marked in Fig. 6 (II), respectively. (Welding condition: 882 N, 1.0 s)

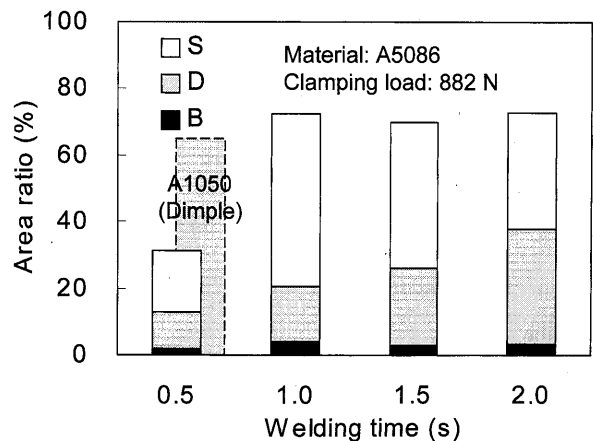


Fig. 8 Area ratio of S, D and B region in fracture surface of A5086 joint vs. welding time. (Welding condition: 882 N)

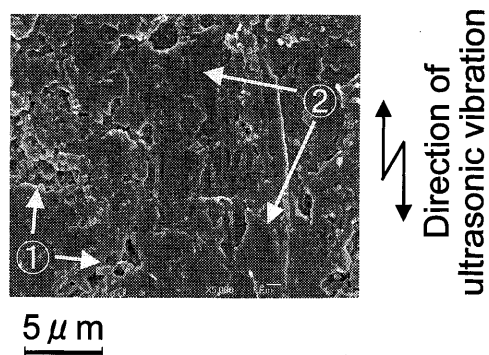


Fig. 9 SEM micrograph of fracture surface of AZ31B. (Welding condition: 882 N, 2.0 s)

んどはS部によるものであり、接合強さに寄与すると思われるD部の増加はわずかである。接合時間が長くなっても接触面積は70%付近では一定になるが、D部の割合が増し、逆に、S部は減少した。このことは、接合時間とともにS部がD部に変化することを示している。しかし、A1050のディンプルの面積が0.5 sまでに急速に拡大するのと比較して、A5086のD部の増加は極めて緩慢である。すなわち、A5086の場合、D部に先立って形成されたS部がD部の拡大を遅らせたことを示唆している。

著者らはマグネシウム(以後、Mgとする)合金板 AZ31Bの超音波接合について研究し報告している<sup>3)</sup>。その接合部の破面をSEM観察した一例をFig. 9に示す。これは、接合面の前処理方法の一つとして、クロム酸と硫酸との混合液を用いて酸洗した後(この処理により表面はMgO層となる)、加圧力882 N、接合時間2.0 sで接合した場合の破面である。破面には、酸洗による孔食(矢印①)が残存しているものの、矢印②のような擦過痕が認められる。Fig. 7(a)からFig. 7(c)に示したS部はこれによく似た破面であることがわかる。

### 3.3 破面のAES分析

A5052やA5086の破面にMg合金の破面との類似性が認められたことから、これらの材料の接合部にMgが偏析していることが予測される。そこで、加圧力を882 NとしたときのA5086の超音波接合部の破面をAES分析した。その結果、破面上にはO, Mg, Alおよび微量のCl, Cが検出された。Clは電解研磨の際に使用した過塩素酸の吸着によるものと思われる。

Fig. 7に示したE, S, D, B部の各破面におけるMgの表面偏析と接合時間との関係をFig. 10に示す。縦軸は(Al量+Mg量)に対するMg量の原子濃度比である。また、図中の破線は接合前の電解研磨面の分析結果である。いずれの破面においても接合時間とともにMg濃度は高くなったが、D部での増加はわずかであった。顕著な表面偏析は、特に2.0 s経過時のE部とB部で認められた。Al-Mg合金を加熱するとMgは材料表面に偏析することが知られており、これに関する報告は多くある<sup>4-7)</sup>。また、金属に超音波振動を付加することによって原子の拡散速度が大きくなることが知られている<sup>8)</sup>。Fig. 10に示した各表面におけるMg濃度の増加は、これらの作用によるものと思われる。E部とB部に顕著なMgの表面偏析が生じていた事実は、これらの部分が接合されなかったことを意味している。B部は上述のE部が残留した箇所と推測され、引張り強さを低下させる一因になっているものと思われる。Mg濃度の増加はS部で最も短時間で生じ、0.5 sまで急激に上昇した後、微増する傾向を示した。

Fig. 11にA5086を加圧力：882 Nで超音波接合したときの接合時間と接合部の温度変化の関係を示す。接合部の温度は、超音波負荷時間が0.5 s付近まで急激に上昇し、そ

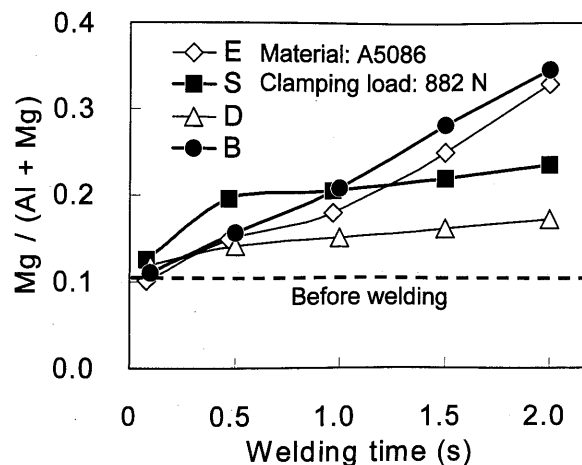


Fig. 10 Relationship between Mg concentration ratio at fracture surface of A5086 and welding time. (Welding condition: 882 N)

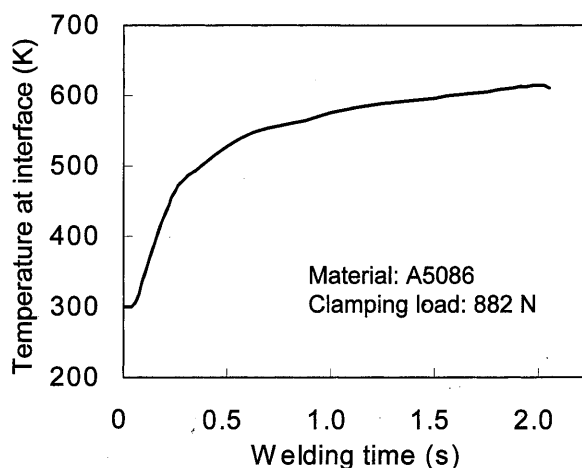


Fig. 11 Relationship between welding temperature of A5086 and welding time. (Welding condition: 882 N)

の後も単調に増加した。温度上昇は、繰り返し応力の負荷による試験片自体の発熱、および接合界面における摩擦熱によるものと考えられる。上下の試験片の接触が生じたS, D, B部のうち、SおよびB部は接合中も表面であり、また、特にS部では摩擦によりFig. 11に示した温度よりもさらに高い温度になっていることが予想される。Fig. 10に示したように、S部でMgの表面偏析が短時間で生じたのはこのためであると考えられる。

### 3.4 超音波接合性への加熱処理の影響

以上の検討結果から、Al-Mg合金の超音波接合性が工業用純アルミニウムに比して劣る理由として接合過程で生ずるMgの表面偏析が関与していることが予想される。このことを確認するために、電解研磨後のA5086試験片を接合前に大気中で加熱することによってあらかじめMgを表

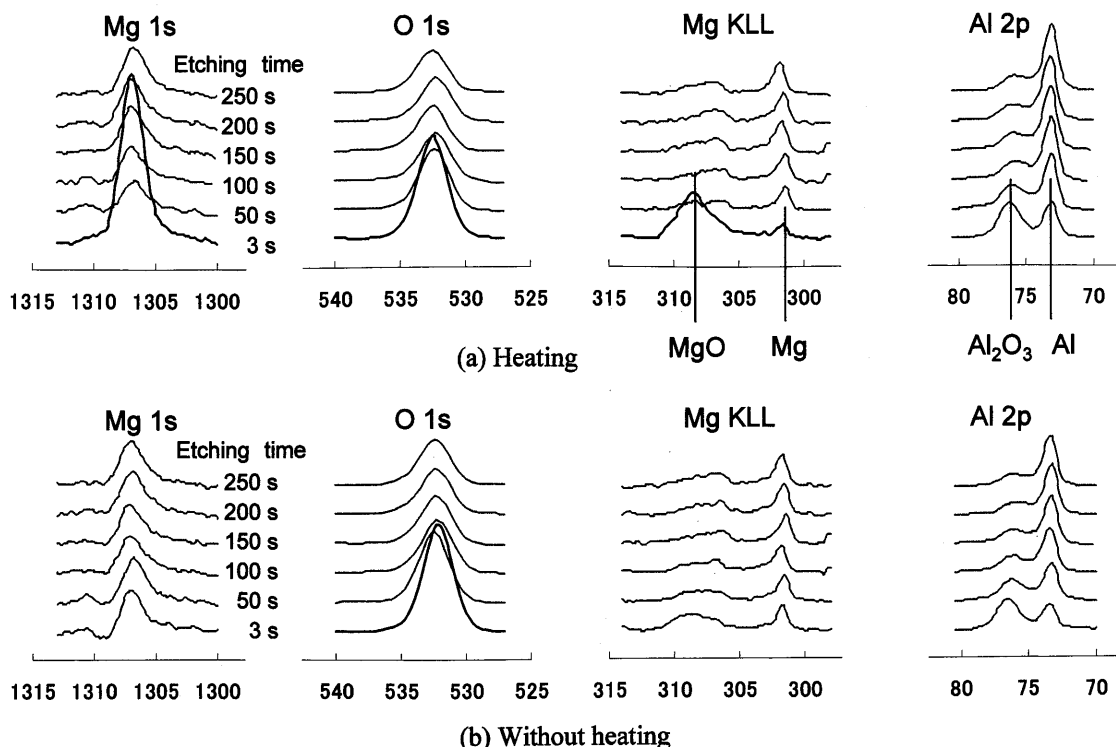


Fig. 12 XPS analyses of heat treated A5086 (a) and A5086 without heating (b). (Condition of heat treatment: 375 K for 3.6 ks)

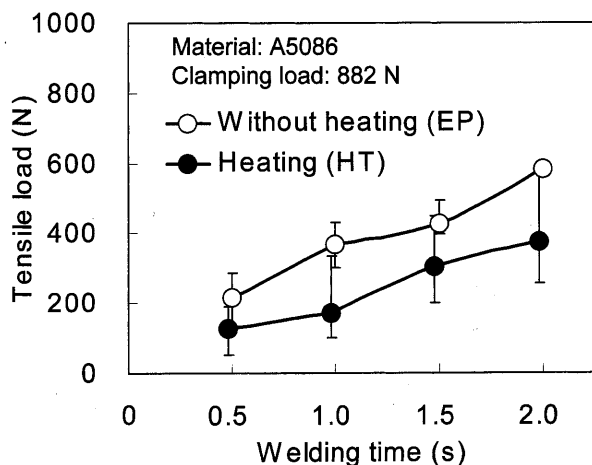


Fig. 13 Effect of heating on tensile load. (Condition of heat treatment: 375 K for 3.6 ks)

面に偏析させた後、接合に供した。熱処理は、373 K で 3.6 ks 保持後、空冷した。

熱処理前と後の接合面を XPS で分析した結果を Fig. 12 に示す。双方を比較すると、熱処理した接合面の表面には Mg 1s, Mg KL<sub>23</sub>L<sub>23</sub> (オージェ遷移ピーク) および MgO KL<sub>23</sub>L<sub>23</sub> の高いピークが認められることから、Mg が表面偏析したことがわかる。特に、309 eV のオージェ遷移ピークは、偏析層が MgO であることを示している。なお、加熱による硬さの低下は生じなかった。

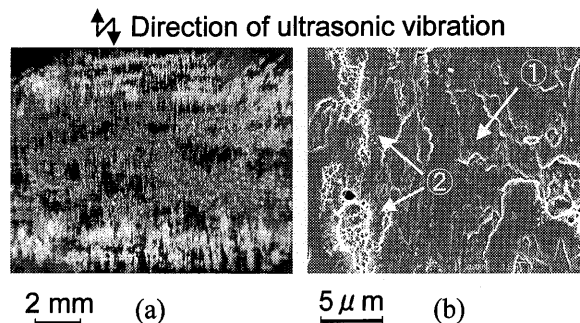


Fig. 14 Fracture surface of heat treated A5086. (Welding condition: 882 N, 1.0 s)

熱処理材 (以後、HT 材とする) と電解研磨のままの試験片 (以後、EP 材とする) を加圧力 882 N で接合し、引張り試験を行った結果を Fig. 13 に示す。HT 材の接合強さは、接合時間とともに大きくなったが、EP 材と比べて全体的に低下した。これは、接合面に生じた MgO 偏析層を排除するために長い接合時間を要したためと考えられる。

HT 材を接合時間 1.0 s で接合した場合の接合部の破面の SEM 写真を Fig. 14 に示す。Fig. 14 (a) はマクロ写真である。破面にはほとんどの箇所に Fig. 14 (b) の矢印①に示すような S 部と同様の擦過痕 (Fig. 7 (a)~(c) 参照) が認められた。また、矢印②で示すように、振動方向に細長く伸びた延性破断部も観察されたが、EP 材の D 部 (Fig. 7 (d)) のような大きなディンプルは認められなかった。

また、矢印①の個所を AES 分析した結果、Mg 原子濃度比 ( $\text{Mg}/(\text{Al}+\text{Mg})$ ) は 0.204 となり、Fig. 10 に示した、同条件で接合した EP 材の S 部の値 (0.206) とよく一致する。

以上の結果から、Al-Mg 合金の超音波接合過程において生ずる Mg の表面偏析は、接合面間の新生面の接触を阻害し、超音波接合強さを低下させることが明らかになった。

接合面に形成された MgO 偏析層の存在と接合強さの関係は以下のように考察される。

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の酸化皮膜 ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) は、ピリング・ベッドワース比 (PB 比)<sup>9)</sup> が PB ( $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al}$ ) = 1.70 と高く、圧縮応力状態にあり、なおかつ硬い (HV2370)<sup>10)</sup> ため、Fig. 5 (d) に示した破面上の亀裂のように、超音波振動および加圧力が加えられることにより比較的容易に破壊し、新生面同士の接触が得られたものと考えられる。一方、Al-Mg 合金の場合、接合過程において表面に MgO が形成される。MgO は、例えば硬度 (HV660)<sup>10)</sup>、剛性率 ( $\text{Al}_2\text{O}_3$  : 150<sup>11)</sup>, MgO : 76<sup>11)</sup> (GPa)) などが低いために、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  に比べて変形しやすく、加圧力の付加にともなう下地の変形に追従しやすい。この結果、皮膜が破壊しにくくなり、新生面の発現と接触が阻害され、接合強さが低下したと考えられる。

#### 4. 結 言

本研究では、Al-Mg 合金の超音波接合性を低下させる因子についての知見を得るべく、接合部破面の詳細な観察および表面の化学組成について検討した。得られた結果は以下のようである。

- 1) Al-Mg 合金の超音波接合では、工業用純アルミニウムの場合と同等の接合強さを得るためには長い接合時間を要し、その超音波接合性は劣る。
- 2) 工業用純アルミニウムでは、接合面同士の接触によって短時間で表面皮膜の破壊を生じ、強い接合部が形成される。
- 3) Al-Mg 合金の場合、接合部の形成に先立って、擦過痕 (S 部) が形成される。破面上では、接合時間とともに S 部の面積は急速に広がるが、ディンプルの増加には長い接合時間を要する。
- 4) S 部では、接合時間 : 0.5 s までの間に急激な Mg の表

面偏析が生じる。

- 5) 熱処理によってあらかじめ接合面に MgO の偏析層を形成させた試験片を用いた場合、接合強さは低下した。また、破断面の形態および表面の組成は S 部と同様になった。このことから、Al-Mg 合金の超音波接合過程において生ずる Mg の接合面への偏析が超音波接合強さを低下させる要因であることを明らかにした。

#### 参 考 文 献

- 1) M. Watanabe: Effect of Surface treatment on Ultrasonic Weldability, Bachelor's thesis (1996) March, Niigata University, 33-35. (in Japanese)
- 2) Japan Institute of Light Metal: The Handbook of Advanced Aluminum Technology, Kallos Publishing (1996), 879-903. (in Japanese)
- 3) 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)
- 4) C. Lea, J. Ball: The Oxidation of Rolled Heat Treated Al-Mg alloys, Applications of Surface Science, 17 (1984), 344-362.
- 5) D.J. Field, G.M. Scamans, E.P. Butler: High Temperature Oxidation of Al-4.2 wt pct Mg Alloy, Metallurgical Transactions A 18A (1987), 463-471.
- 6) O. Ohashi, K. Sasabe: Effect of Alloying Element on Behavior of Oxide Film at Diffusion-Welded Interface of Aluminum Alloys, Quar. J. JWS, 7-4 (1989), 449-455. (in Japanese)
- 7) K. Kotani, K. Ikeuchi, F. Matsuda: Interfacial Phases in Diffusion-Bonded Joints of Al-Mg Alloys —Diffusion-Bonding Mechanism of Al Alloys by Transmission Electron Microscopy (Report 4)—, Quar. J. JWS, 14-3 (1996), 551-562. (in Japanese)
- 8) Electric Industries Association of Japan: Ultrasonic Engineering, Corona Publishing (1995), 1-7. (in Japanese)
- 9) Y. Saito, T. Atake, T. Maruyama: 金属の高温酸化, Uchida Rokakuho Publishing (1997), 34-36. (in Japanese)
- 10) David. W. Richerson (Translated by S. Kato): Modern Ceramic Engineering, Uchida Rokakuho Publishing (1985), 81. (in Japanese)
- 11) David, W. Richerson (Translated by S. Kato): Modern Ceramic Engineering, Uchida Rokakuho Publishing (1985), 68-71. (in Japanese)