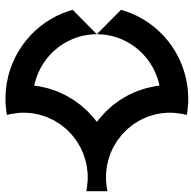


大阪大学

接合科学共同利用・共同研究拠点

共同研究報告書

2021 年度



大阪大学 接合科学研究所

Joining and Welding Research Institute
Osaka University



大阪大学接合科学研究所は、2009年度に文部科学省から「接合科学共同利用・共同研究拠点」として認定され、溶接工学・接合科学に関する我が国で唯一の総合研究所として、国内外から広く共同研究員を受け入れている。

本研究所の共同研究員に係る公募課題には、「一般公募研究課題」と「先導的重点課題」の2種類の区分を設けている。一般公募研究課題は、従前までの各研究分野単位での共同研究課題に関するものであり、2010年度より開始した先導的重点課題では、当研究所として重点的に取り組むべき研究課題を選定し、複数の共同研究員と研究所教員がチームとして参加して当該課題に取り組むものである。特に、後者の先導的重点課題においては、国内外での多様な学術領域との連携研究を通じて、接合科学共同利用・共同研究拠点の発展に資することを目的とする。さらに、2015年度より国際共同研究員制度を新たに設け、溶接・接合分野の世界拠点として貢献することを目指している。

2021年度においては、以下に示す先導的重点課題を選定し、遂行してきた。

- ・ 溶接・接合技術におけるデジタルツインに関する研究(継続／役割分担型)
(代表申請者:麻 寧緒 教授)
- ・ レーザ溶接プロセスのモデリングと適応性技術の開発(継続／役割分担型)
(代表申請者:佐藤 雄二 准教授)
- ・ 構造用材料溶接部の水素割れ評価手法の高度化に関する研究(新規／FS 型)
(代表申請者:三上 欣希 教授)

2021年度実施の一般公募研究課題と先導的重点課題への参加人数は下表の通りである。

一般公募研究課題		先導的重点課題	
国内共同研究員	国際共同研究員	国内共同研究員	国際共同研究員
181人	17人	17人*	0人

*一般公募研究課題との重複申請課題を含む。

なお、2022年度に実施する先導的重点課題として、次の3テーマを選定している。

- ・ レーザ溶接プロセスのモデリングと適応性技術の開発(継続／役割分担型)
(代表申請者:佐藤 雄二 准教授)
- ・ 構造用材料溶接部の水素割れ評価手法の高度化に関する研究(継続／役割分担型)
(代表申請者:三上 欣希 教授)
- ・ 特異な構造を内包したマイクロ接合部の高機能・高信頼化に関する研究(新規／FS型)
(代表申請者:巽 裕章 講師)

共同研究 題目一覧

***** 先導的重点課題 *****

溶接・接合技術におけるデジタルツインに関する研究

- | | | | | |
|---|--------|--------------------|---------------------|-------|
| 1. 溶接・接合技術におけるデジタルツインに関する研究 | 大阪公立大学 | 准教授
准教授 | 生島 一樹
柴原 正和 | ・・・ 1 |
| 2. 微小引張試験による高張力鋼板スポット溶接部の局所力学的特性評価とCAEによる破断予測 | 慶応義塾大学 | 教授 | 大宮 正毅 | ・・・ 3 |
| 3. Digital twin for the transient temperature prediction during coaxial one-side resistance spot welding of Al5052/CFRP | 和歌山大学 | 教授
大学院生
大学院生 | 呉 海元
王 開
張 継偉 | ・・・ 5 |

レーザー溶接プロセスのモデリングと適応性技術の開発

- | | | | | |
|--|----------------|-------------|-----------------|--------|
| 1. レーザ溶接プロセスのモデリングと適応性技術の開発 | 東京工科大学 | 准教授
大学院生 | 大久保 友雅
越地 駿人 | ・・・ 7 |
| 2. 密度汎関数法を用いた溶融銅の光学特性解析 | 産業技術総合研究所 | 主任研究員 | 加藤 進 | ・・・ 9 |
| 3. レーザ溶接プロセスのモデリングと適応性技術の開発 | 福岡県工業技術センター | 研究員 | 島田 雅博 | ・・・ 11 |
| 4. ブルー半導体レーザーによる純銅の突合せ溶接 | 石川工業高等専門学校 | 准教授 | 山下 順広 | ・・・ 13 |
| 5. レーザ溶接プロセスのモデリングと適応性技術の開発
ーレーザー溶接プロセスの可視化手法の検討ー | 若狭湾エネルギー研究センター | 主査研究員 | 山田 知典 | ・・・ 15 |

構造用材料溶接部の水素割れ評価手法の高度化に関する研究

- | | | | | |
|------------------------------------|-------------|------------|----------------|--------|
| 1. 水素の可視化手法による二相ステンレス鋼溶接金属部の水素挙動解析 | 新居浜工業高等専門学校 | 教授
講師 | 日野 孝紀
真中 俊明 | ・・・ 17 |
| 2. 構造物に適用可能な水素拡散解析手法の検討 | 帝京大学 | 特任教授
講師 | 横堀 壽光
尾関 郷 | ・・・ 19 |

***** 一般公募研究課題 *****

*については、先導的重点課題に掲載

接合プロセス研究部門

【エネルギー制御学分野】

- | | | | | |
|--|-----------|-----|--------|------|
| 1. マグ溶接中の溶融池表面におけるスラグ流動の粒子法シミュレーション | 熊本大学 | 助教 | 古免 久弥 | … 23 |
| 2. 異材抵抗スポット溶接の粒子法シミュレーション | 東北大学 | 教授 | 茂田 正哉 | … 25 |
| 3. 溶接アーク現象, 溶融池現象および溶接輸送現象解析
疑似火星大気中における交流GTAの計測 | 香川高等専門学校 | 准教授 | 正箱 信一郎 | … 27 |
| 4. ティグ溶接中における金属蒸気による電極汚染と電極表面状態の関係 | 大阪産業技術研究所 | 研究員 | 田中 慶吾 | … 29 |
| 5. サブマージアーク溶接中の溶滴移行現象の二次元粒子法シミュレーション | 熊本大学 | 教授 | 寺崎 秀紀 | … 31 |
| 6. 溶接アーク現象, 溶融池現象および溶接輸送現象解析
電磁力を用いた高品質・高効率GMA溶接の研究 | 琉球大学 | 准教授 | 松田 昇一 | … 33 |
| 7. キーホールプラズマアーク溶接におけるアンダーカット形成メカニズム | 宮崎大学 | 教授 | 湯地 敏史 | … 35 |

【エネルギー変換機構学分野】

- | | | | | |
|--|-------------|----------------------------|---|------|
| 1. プラズマ触媒作用を用いたCO ₂ メタネーションにおける振動回転温度の影響 | 九州大学 | 教授
教授
教授
助教
助教 | 板垣 奈穂
古閑 一憲
白谷 正治
奥村 賢直
鎌滝 晋礼 | … 37 |
| 2. 金属/樹脂接合に向けた新規大気圧プラズマの開発 | 名城大学 | 教授 | 内田 儀一郎 | … 39 |
| 3. 混合粉体ターゲットを用いた透明導電膜の試作 | 佐世保工業高等専門学校 | 教授 | 川崎 仁晴 | … 41 |
| 4. プラズマ-材料相互作用の解明と先進的な表界面制御プロセスの研究
酸化物半導体の欠陥の発生と修復のメカニズムの解明 | 産業技術総合研究所 | 上級主任
研究員 | 布村 正太 | … 43 |

<学内>

- | | | | |
|------------------------------------|----------|-----------------------------------|--|
| 1. 一軸型塗布プロセスによる有機無機ペロブスカイト単結晶薄膜の創製 | 大学院工学研究科 | 教授
准教授
大学院生
大学院生
大学院生 | 尾崎 雅則
藤井 彰彦
鵜野 弦也
桑原 直
齋藤 智樹 |
|------------------------------------|----------|-----------------------------------|--|

【加工プロセス学分野】

- | | | | | |
|--|--------|-----|-------|------|
| 1. I族合金ナノ粒子接合剤の開発とその接合界面の機械的強度および熱伝導度の評価 | 室蘭工業大学 | 准教授 | 葛谷 俊博 | … 45 |
|--|--------|-----|-------|------|

【レーザープロセス学分野】

- | | | | | |
|--|-------------|-----------------------|------------------------|------|
| 1. レーザー熱加工のための高温領域における金属の光学特性評価に関する実験的研究 | 近畿大学 | 大学院生 | 有村恒良 | … 47 |
| 2. パラメータ制御CO ₂ レーザーによるガラス・樹脂加工特性の研究 | 山梨大学 | 准教授 | 宇野和行 | … 49 |
| 3. レーザ照射条件を提案するAIの開発 | 東京工科大学 | 准教授
大学院生 | 大久保 友雅
中尾根 美樹 | … 51 |
| 4. レーザ加工におけるビームと材料の相互作用ならびにレーザー加工現象の解明 | 福岡県工業技術センター | 専門研究員
主任技師
主任技師 | 小川 俊文
菊竹 孝文
島崎 良 | … 53 |
| 5. エネルギービームと物質との相互作用現象の解明
超短パルスレーザーによる加工プロセスに関する研究 | 宮崎大学 | 准教授 | 甲藤 正人 | … 55 |
| 6. 短パルスレーザーによる色中心生成に関するモデル構築 | 産業技術総合研究所 | 主任研究員 | 加藤 進 | … 57 |
| 7. 指向性エネルギー堆積法による中炭素鋼へのWC/Co超硬合金層の形成と機械加工性能 | 金沢大学 | 准教授 | 國峯 崇裕 | … 59 |
| 8. レーザ加工におけるビームと材料の相互作用ならびにレーザー加工現象の解明:フェーズフィールドモデルを用いた, レーザクラディングにおける割れ発生の機構の解明 | 武蔵野大学 | 教授 | 高石 武史 | … 61 |
| 9. 16kWディスクレーザを用いたキーホール型溶接におけるスパッタの抑制機構の解明に関する研究 | 近畿大学 | 教授
大学院生 | 中野 人志
有田 智貴 | … 63 |

10.	レーザー加工におけるビームと材料の相互作用ならびにレーザー加工現象の解明 複合レーザービーム照射による新しい表面機能の創成	東海大学	特任教授	橋田 昌樹	・・・ 65
11.	レーザークラッティングおよび積層造形技術の開発 -青色半導体レーザーマルチビーム式LMD法を用いた純銅ラティス構造作製および銅合金皮膜形成-	大阪産業大学	教授	部谷 学	・・・ 67
12.	レーザーを用いた新機能創成技術の開発 生体材料薄膜表面のレーザー局所加熱による結晶化技術の探究	近畿大学	助教	三上 勝大	・・・ 69
13.	フェムト秒レーザーによりSiO ₂ 表面に形成した均一なナノ構造による表面透過率の向上	東京農工大学	准教授	宮地 悟代	・・・ 71
14.	フローサイトメリーを適用した迅速抗菌評価手法の開発	秋田大学	准教授	宮野 泰征	・・・ 73
15.	ブルー半導体レーザーによる純アルミ基材への純銅層形成	石川工業高等専門学校	准教授	山下 順広	・・・ 75
16.	青色半導体レーザーとIRレーザーを用いたハイブリッドシステムによる純銅の溶接技術の開発に関する研究	近畿大学	教授	吉田 実	・・・ 77
< 学内 >					
1.	レーザー核融合燃料保持のためのダイヤモンドカプセルの性能評価	レーザー科学研究所	教授 大学院生 大学院生	重森 啓介 川崎 昂輝 田中 大裕	
2.	生体組織(ヒト関節軟骨・半月板・三次元培養組織)の表面形状評価	大学院医学系研究科	講師	金本 隆司	

接合機構研究部門

【溶接機構学分野】

1.	In718三次元積層造形材のクリープ劣化挙動の解明 -プロセス改善により鍛造材と同等のクリープ寿命を達成-	西日本工業大学	教授	高橋 雅士	・・・ 79
2.	異材界面の微細構造の観察、評価及び制御 金属電極/酸化物絶縁膜/金属電極の異種接合界面における反応及び微細構造の解析	物質・材料研究機構	グループ リーダー 主任エンジニア 主任エンジニア	生田目 俊秀 池田 直樹 大井 暁彦	・・・ 81

<学内>

- | | | | |
|--|----------|-----------------------------------|----------------------------------|
| 1. 急速加熱液相エピタキシャル成長により作製した半導体微細構造の結晶性評価 | 大学院工学研究科 | 准教授
招へい研
究員
大学院生
大学院生 | 志村 考功
國吉 望月
田淵 直人
山口 凌雅 |
| 2. 樹脂板表面に固定化された金属ナノ粒子の解析 | 大学院工学研究科 | 准教授 | 清野 智史 |

【接合界面機構学分野】

- | | | | | |
|--|-------------|---------------------------|----------------------------------|-------|
| 1. 光加熱を用いたポーラスアルミニウムと金属板との接合とその強度 | 群馬大学 | 教授
教授
大学院生 | 天谷 賢児
半谷 禎彦
大塚 駿 | … 83 |
| 2. 鉄鋼材料用接合ツール形状による攪拌領域温度の検証 | 近畿大学 | 教授 | 生田 明彦 | … 85 |
| 3. 機械学習を用いたポーラスアルミニウムの応力推定 | 群馬大学 | 教授
教授
大学院生 | 天谷 賢児
半谷 禎彦
小澤 創 | … 87 |
| 4. 大荷重摩擦攪拌プロセスによるマグネシウム合金の組織制御 | 大阪産業技術研究所 | 主任研究員 | 木元 慶久 | … 89 |
| 5. 鉄鋼材料の摩擦攪拌接合(FSW)と継手の機能評価(球面ツールを用いた点接合技術の開発) | 広島県立総合技術研究所 | 担当部長
副部長
研究員
研究員 | 坂村 勝朗
松葉 耕平
大田 亮太
山形 亮太 | … 91 |
| 6. 発泡補修における補修部材の気孔率制御 | 群馬大学 | 助教 | 鈴木 良祐 | … 93 |
| 7. A5052とA6061組み合わせの異材線形摩擦接合 | 広島大学 | 助教
大学院生 | 崔 正原
蘇 金銘 | … 95 |
| 8. アルミニウムとCFRPの摩擦攪拌重ね接合におけるシランカップリング剤の効果 | 大阪産業技術研究所 | 主任研究員 | 長岡 亨 | … 97 |
| 9. 高Mn鋼の摩擦攪拌接合技術の確立と接合機構の解明 | 物質・材料研究機構 | 主幹研究員 | 柳樂 知也 | … 99 |
| 10. アルミニウム合金A6061/A2024の摩擦攪拌接合 | 阿南工業高等専門学校 | 教授
教授 | 西野 精一
西本 浩司 | … 101 |
| 11. プリカーサ法によって作製したポーラス鉄の加熱時間, 加熱温度が発泡へ及ぼす影響 | 群馬大学 | 教授
大学院生 | 半谷 禎彦
青木 智史 | … 103 |
| 12. 加熱発泡直後のポーラスアルミニウムのベルトコンベアによる自動ローラー成形 | 群馬大学 | 教授
大学院生 | 半谷 禎彦
鈴木 滉大 | … 105 |

13. 異種合金ポーラスAlのプレス加工と横方向の往復運動による接合	群馬大学	教授 大学院生	半谷 禎彦 永井 孝直	・・・ 107
14. ポーラスアルミニウムとポリカーボネートのプレス加工を用いた接合	群馬大学	教授 大学院生	半谷 禎彦 藤岡 巧	・・・ 109
15. 炭酸カルシウムを用いた鉄とアルミニウム接合部のポーラス化による分離	群馬大学	教授 大学院生	半谷 禎彦 増田 敦哉	・・・ 111
16. 摩擦圧接時の回転数と接合時間がポーラスAl/熱可塑性樹脂の接合強度に及ぼす影響	群馬大学	教授 大学院生	半谷 禎彦 松島 慶幸	・・・ 113
17. 摩擦攪拌接合を利用したアルミニウム合金粉末によるプリカーサ作製とその発泡	群馬大学	教授 大学院生	半谷 禎彦 諸橋 寛海	・・・ 115
18. 1.4GPa級焼戻しマルテンサイト鋼FSW継手の機械的特性に関する研究	秋田大学	准教授 大学院生	宮野 泰征 花井 惇弥	・・・ 117
19. 窒化珪素製ツールを用いた15mm厚鋼板の摩擦攪拌接合における裏面加熱効果	龍谷大学	講師	森 正和	・・・ 119

< 学内 >

1. フッ素樹脂と異種材料の摩擦攪拌接合 (FSW)	大学院工学研究科	助教	大久保 雄司	
----------------------------	----------	----	--------	--

【複合化機構学分野】

1. 直接通電焼結法によるMg ₂ Si系熱電材料の合成	福井工業大学	教授	井藤 幹夫	・・・ 121
2. チタン積層造形材における3次元構造欠陥が引張強度に及ぼす影響	九州大学	教授 大学院生 大学院生	尾崎 由紀子 楠 涼太郎 重田 雄二	・・・ 123
3. バイオシリカ/ローズベンガル複合体による新規光抗菌剤の開発	関西大学 北海道大学	教授 大学院生 講師 医員 大学院生	川崎 英也 齋田 慧 宮治 裕史 西田 絵利香 森 七星	・・・ 125
4. ナノスケール解析による合金表面の電気化学反応	東北大学	准教授	熊谷 明哉	・・・ 127
5. セルロースナノファイバーを前駆体にした高強度チタンの創製と力学特性評価	東北大学	助教 大学院生	栗田 大樹 小山 毅士	・・・ 133
6. 高濃度炭素含有チタン積層造形材の結晶組織形成機構の解明	東京大学	特任教授	古月 文志	・・・ 135

<学内>

- | | | | |
|---|----------|------------|----------------|
| 1. ナノ多結晶体の弾性率計測を通じた機能性焼結材の機械特性の解明 | 大学院工学研究科 | 助教
大学院生 | 長久保 白
木元 万聡 |
| 2. 超高精細表面性状分析による古代青銅鏡の摩滅痕生成過程の解明 | 大学院文学研究科 | 教授 | 福永 伸哉 |
| 3. 第一原理計算による固溶元素の力学特性への振舞いと界面構造・界面特性の解明 | 大学院工学研究科 | 教授 | 吉矢 真人 |

接合評価研究部門

【接合構造化解析学分野】

- | | | | | |
|---|------------------|--------------------------|---------------------------------|-------|
| 1. 陽解法と陰解法のハイブリットFEM解法—ショットピーニングの数値解析手法の検討— | 東海大学 | 准教授 | 太田 高裕 | … 137 |
| 2. 低変態温度溶接材料を用いた伸長ビード溶接による角回し溶接部の疲労寿命延伸効果 | 長崎総合科学大学 | 准教授
大学院生 | 岡田 公一
木村 俊介 | … 141 |
| 3. 繰返し大荷重を受ける溶接接手の三次元弾塑性極低サイクル疲労き裂進展解析の基盤構築 | 東京理科大学
電気通信大学 | 教授
助教 | 岡田 裕
遊佐 泰紀 | … 143 |
| 4. 先進パワー半導体ヒートシンクシステム用のSiC—タンゲステン異材接合技術に関する研究 | 室蘭工業大学 | 教授
助教
大学院生
大学院生 | 岸本 弘立
中里 直史
垣内 陸
高橋 裕三 | … 145 |
| 5. 低変態温度溶接材料のWAAMプロセス適用効果の検証 | 物質・材料研究機構 | 主任研究員 | 北野 萌一 | … 147 |
| 6. 光ファイバを用いた回転系攪拌槽内の溶液温度、翼ひずみ分布計測の可能性検証 | 福井工業大学 | 教授 | 中尾 一成 | … 149 |
| 7. 有限要素法によるマグネシウム合金板の塑性変形挙動解析 | 京都大学 | 准教授 | 浜 孝之 | … 151 |

<学内>

- | | | | | |
|--------------------------------------|----------|----------------------|---------------|-------|
| 1. オーステナイト系ステンレス鋼の多層溶接熱ひずみおよび残留応力の検討 | 大学院工学研究科 | 特任講師
(常勤)
大学院生 | 于 麗娜
浅井 郁海 | … 153 |
|--------------------------------------|----------|----------------------|---------------|-------|

【接合設計学分野】

- | | | | | |
|-------------------------------------|-------------------|-------------|---------------|-------|
| 1. 破壊靱性試験等で要求されている試験片の冷却時間に関する解析的検討 | 東京大学
海上技術安全研究所 | 教授
主任研究員 | 川畑 友弥
小沢 匠 | … 155 |
| 2. 機械学習を用いた溶接熱源形状決定システムの構築 | 物質・材料研究機構 | 主任研究員 | 北野 萌一 | … 157 |

3. ボルト締結体のゆるみ特性に関する数値解析的検討	神戸大学	准教授 大学院生	野村 昌孝 植木 亮太	… 159
4. 低炭素鋼材の動的力学特性に及ぼす応力多軸性の影響	防衛大学校	教授 准教授 大学院生	別府 万寿博 市野 宏嘉 濱田 匠李	… 161

<学内>

1. X線を用いたグラウンドアンカー緊張力の非破壊評価手法に関する	大学院工学研究科	助教	寺澤 広基	
-----------------------------------	----------	----	-------	--

【信頼性評価・予測システム学分野】

1. 自在設計のためのテーラード溶接プロセスシミュレーションシステムの構築	日本原子力研究開発機構	研究員	青木 聡	… 163
2. 自動車用鋼板を母材とする引張はく離型摩擦攪拌点接合継手の疲労特性におよぼす接合部径の影響	広島大学	准教授	曙 紘之	… 165
3. 自動車用鋼板を母材とするせん断型レーザー接合継手の応力拡大係数による寿命の統一的評価	広島大学	特任助教	荒川 仁太	… 167
4. アルミニウム合金を母材としたレーザー溶接継手の散逸エネルギーに基づく疲労限度評価	神戸大学	助教	小川 裕樹	… 169
5. Al合金における異種金属接触腐食の抑制を実現するAl/Fe接合部の同時化成処理の検討	東北大学	大学院生	小鯖 匠	… 171
6. 自動車用鋼板を母材とした摩擦攪拌点接合継手の疲労寿命および破壊機構の評価	広島大学	大学院生	セルバラージ トーマスプラ ブ	… 173
7. 高Mn鋼の溶接凝固割れ感受性評価と凝固割れ発生機構の解明	物質・材料研究機構	主幹研究員	柳樂 知也	… 175
8. 溶接高温割れ感受性評価法の高度化とその支配因子の解明 溶融加工プロセスでの凝固割れ発生現象の解明とその防止技術の構築	群馬大学	助教	西田 進一	… 177
9. 溶湯発泡法によるポーラスアルミニウム製造時の中空セラミックスによる増粘	群馬大学	教授 大学院生	半谷 禎彦 山本 貴也	… 179
10. 加熱発泡後のポーラスアルミニウムの切断加工	群馬大学	教授 大学院生	半谷 禎彦 山本 貴也	… 181
11. SPCC鋼板を母材とするレーザー溶接継手の散逸エネルギーに基づく疲労限度評価	神戸大学	大学院生	堀田 大樹	… 183

12. ハイエントロピー合金の凝固組織と変形双晶の評価	関西大学	教授	丸山 徹	・・・ 185
13. ステンレス鋼/Cu合金異材肉盛溶接部の組織形態と抗菌性評価	秋田大学	准教授	宮野 泰征	・・・ 187
14. Al/Fe接合部での異種金属接触腐食における鋼の自己腐食挙動の解析	東北大学	准教授	武藤 泉	・・・ 189

<学内>

1. 熱影響部モデル組織の組織設計と評価手法の研究	大学院工学研究科	特任教授 特任教授	杉山 昌章 丸山 直紀	
---------------------------	----------	--------------	----------------	--

スマートプロセス研究センター

【スマートコーティングプロセス学分野】

1. 複合材料の熱物性評価	産業技術総合研究所	研究グループ長	阿子島 めぐみ	・・・ 191
2. 多孔質材料の熱物性評価	産業技術総合研究所	主任研究員	阿部 陽香	・・・ 193
3. セラミックス粉体の構造制御に関する研究	山口東京理科大学	教授	石川 敏弘	・・・ 195
4. Liイオン電池電極用ナノ材料の基礎的研究	名城大学	教授	内田 儀一郎	・・・ 197
5. 超低熱伝導率材料の熱物性評価	和歌山工業高等専門学校 建材試験センター	教授 統括リーダー代理	大村 高弘 田坂 太一	・・・ 199
6. 液相合成チタン酸リチウム系ナノ粒子の特性評価	東北大学	教授	蟹江 澄志	・・・ 201
7. 湿式ボールミルの粉砕挙動解析	東北大学	教授 助教 助教	加納 純也 石原 真吾 久志本 築	・・・ 203
8. 粉砕操作によるポリマー処理粒子の構造制御に関する研究	山形大学	教授	木俣 光正	・・・ 205
9. 全固体リチウムイオン二次電池の電極の成形と焼結	長岡技術科学大学	准教授	田中 諭	・・・ 207
10. メカノケミカル反応を用いた遊星ボールミル粉砕による臭素系難燃剤を含有するプラスチックからの臭素除去	早稲田大学 産業技術総合研究所	教授 研究員	所 千晴 綱澤 有輝	・・・ 209

11. 親水性ナノ粒子を用いた金属表面の加工とその利用技術の開発	大阪公立大学	教授	野村 俊之	… 211
12. シェルの微構造を考慮したZnO担持ナノシリカ中空粒子の合成	名古屋工業大学 岐阜大学	教授 助教	藤 正督 高井 千加	… 213
13. 石炭灰の有効利用拡大に向けた灰性状評価と表面改質技術	電力中央研究所	研究アドバイザー 上席研究員	牧野 尚夫 野田 直希	… 215
14. ジオポリマー硬化体の硬化反応性におよぼすフライアッシュ粒子への微粉碎処理の効果	関西大学	教授 助教	村山 憲弘 松岡 光昭	… 217
15. 天然無機物の微粒子分散プロセスが色彩特性、造形素材に及ぼす影響	女子美術大学	教授 准教授 准教授 客員研究員	宮島 弘道 荒 姿寿 稲田 亜紀子 橋本 信	… 219
16. 粉碎中の金属粒子の凝着機構の解明と超極薄偏平軟磁性金属粒子の創出に関する研究	九州工業大学	准教授	本塚 智	… 221

【ナノ・マイクロ構造制御プロセス学分野】

【スマートグリーンプロセス学分野】

<学内>

1. 環境中から集積・分離した好塩性／耐塩性セレン酸還元菌によるセレン還元機構の解明	大学院工学研究科	准教授 大学院生 大学院生	井上 大介 上田 優弥 内田 寛大
--	----------	---------------------	-------------------------

* * * * * 国際共同研究課題 * * * * *

<一般公募研究課題>

【エネルギー制御学分野】

- | | | | | |
|--|-----------|-----------|--------------|---------|
| 1. Research On Hybrid Laser-Arc Based Additive Manufacturing | KU Leuven | Professor | Abhay Sharma | ・・・ 223 |
|--|-----------|-----------|--------------|---------|

【複合化機構学分野】

- | | | | | |
|--|---------------------------------------|-----------|-----------|---------|
| 2. High-performance Ti alloys processed by selective laser melting | Northwestern Polytechnical University | Professor | Chen Biao | ・・・ 227 |
|--|---------------------------------------|-----------|-----------|---------|

【接合構造化解析学分野】

- | | | | | |
|--|------------------------------------|--|-------------|---------|
| 3. Analysis of the bending deformation in girth-welded slender pipes with numerical modelling and experimental measurement | Harbin Institute of Technology | assistant researcher | Yong Liu | ・・・ 231 |
| 4. Finite element simulation of nonlinear ultrasonic response of plastically deformed 35CrMoA Steel | Anhui university of Technology | Lecturer | Lei Hu | ・・・ 233 |
| 5. Preparation and characterization of nano TiO ₂ coated CBN particles | Guangdong University of Technology | Postgraduate student studying Doctor's Program | Da-Wang Tan | ・・・ 235 |

先導的重点課題・研究報告書

(溶接・接合技術におけるデジタルツインに関する研究)

【研究目的】

次世代工業革命 (Industry Society 5.0 等) の実現に貢献するため、モノづくりプロセスにおける物理現象を仮想空間で再現するデジタルツインの構築が求められている。それを支援するキーテクノロジーの一つは、数値シミュレーション技術である。本研究では、接合研が開発した数値シミュレーション手法・ソフト JWRIAN と汎用ソフトを活用して、溶接・接合及び積層における熱プロセス・材料・力学の実挙動を高精度で再現した上、溶接・接合・積層プロセスにおける熱流動、接合部形状、材料組織、応力ひずみおよび使用時の力学挙動を予測し、それらの実現象を包括したデジタルツインに関する研究を行う。計画では、下記のテーマを対象として、(1)溶接熱源・熱流動と熔融形状のデジタルツイン、(2)溶接・接合・積層の熔融形状・塑性形態と熱応力ひずみのデジタルツイン、(3)溶接・接合・積層の熱サイクルと材料組織のデジタルツイン、(4)接合部形状・負荷状態とその力学挙動のデジタルツインという基礎を構築する。

【成果成果】

2019 年度からフィージビリティの調査を行い、溶接・接合の有限要素法ソフトウェア JWRIAN を改良開発し、デジタルツインに必要とされる基盤技術を準備した。2020 と 2021 年度では、①金属と樹脂系複合材 CFRP の抵抗スポット溶接による過渡温度場、接合領域寸法ならび引張せん断強度のデータベースを構築し、デジタルツインを開発した。その成果を「Composite Structures 252 (2020) 112766」と「J. Manuf. Sci. Eng. 1-20 (2021)」にて発表した。②国際共同研究員 Hongbo XIA は、アルミと鋼板の2束レーザー接合技術を研究し、国際ジャーナル「JOLT 122-2 (2020) 105845」にては発表し、分野重付引用率 FWCI が 25.94 にマークした。③国内共同研究員 柴原正和、生島一樹(大阪公立大学)と、デジタルツインに関する「溶接高温割れ問題に対する AI 強化学習」の研究を共同で推進し、「溶接学会論文集 39-4 (2021)」にて2編学術論文を発表した。

2022 年度で、溶接・接合技術におけるデジタルツインの成果発表会を開催する。

1. 諸言

デジタルツインとは実空間におけるデータをもとに、実現象をコンピュータ内の仮想空間上で再現する技術であり、物理現象の詳細な把握や技術の習得等の様々な点から注目されている。デジタルツインを活用することで、物体内部の情報が推定可能となるため、計測のみでは知ることのできない物理状態を把握することが可能となる。本研究ではデータ同化手法を用いて実現象を仮想空間上で表現し、現実に近い物理現象の把握を可能とするデジタルツインシステムを構築する。また、本システムを溶接時に重要な物理パラメータとなる、熱伝導現象パラメータの推定に対して適用し、計測コストの高い材料定数の温度依存性などのデータを推定できる可能性を示す。

2. データ同化に基づくデジタルツインシステム

データ同化とは FEM 等で得られた予測値と計測値に対し数的手法を用いた重み付けを行い、実現象での真値を推定する手法である。一般に予測値と計測値はそれぞれ真値に対して誤差を持つが、その誤差が最も小さくなるような値を算出する。本研究で構築した熱伝導現象を支配する代表的なパラメータである熱伝導率と比熱の温度依存性の推定手法の流れを Fig.1 に示す。推定終了時に推定値と順解析の物性値を比較することで推定の評価を行い、推定結果が収束するまで繰り返しデータ同化を行う。本研究ではデータ同化手法としてアンサンブルカルマンフィルタを用い予測手法として理想化陽解法 FEM を用いた。

3. 熱伝導現象パラメータの推定手法

ステンレス(SUS304)を対象として開発システムによる熱伝導パラメータの推定を数値解析上で実施した。使用した解析モデルを Fig. 2 に示す。まず初めに板材を約 1300℃まで昇温させた順解析データを作成し、室温 (20℃) と 100℃の比熱、熱伝導率の推定を行い、次に推定した 20℃, 100℃における物性値を用いて 200℃での物性値を推定する。20℃, 100℃の物性値には 20%の誤差を与えておき、200℃における物性値の初期値は 100℃の物性値を与えておく。これを 1300℃まで 100℃間隔で段階的に行うことにより、20℃~1300℃までの物性値を推定する。熱源は簡単のため瞬間線熱源とし、データ同化に用いる計測値は熱源付近の六つの点における熱電対による計測を想定した温度履歴を用いる。

4. 比熱・熱伝導率の温度依存データの推定結果

20℃, 100℃の比熱、熱伝導率の推定に用いた計測点における温度履歴を Fig.3 に、推定結果を Fig.4 に示す。グラフから、データ同化前はそれぞれの値が真値に対して 20%の誤差を持っているのに対し、1 度目の推定により 20℃, 100℃の熱伝導率と比熱が真値に良好に近づいているのが確認できる。さらに Fig.4 に示すように、推

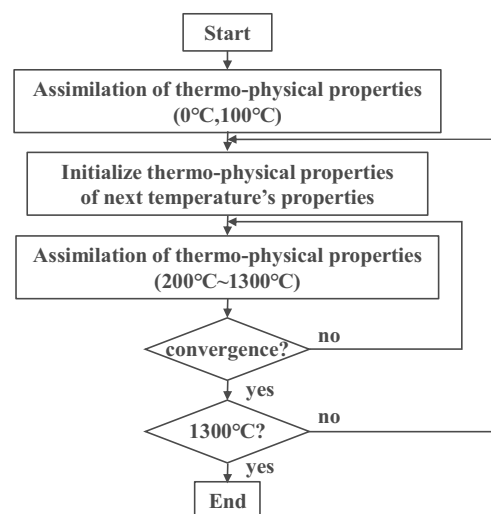


Fig. 1 System of assimilation.

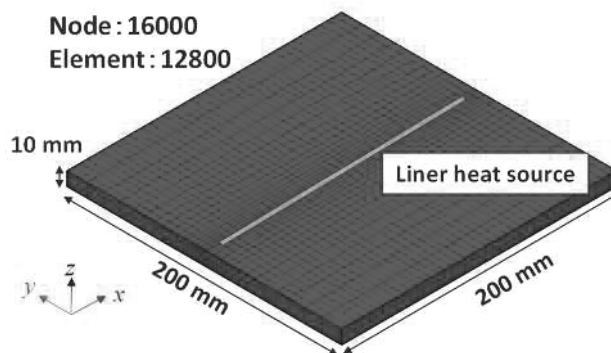


Fig. 2 Analysis model.

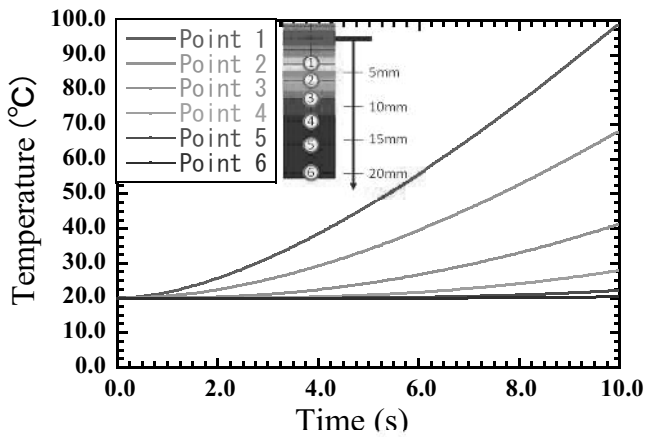
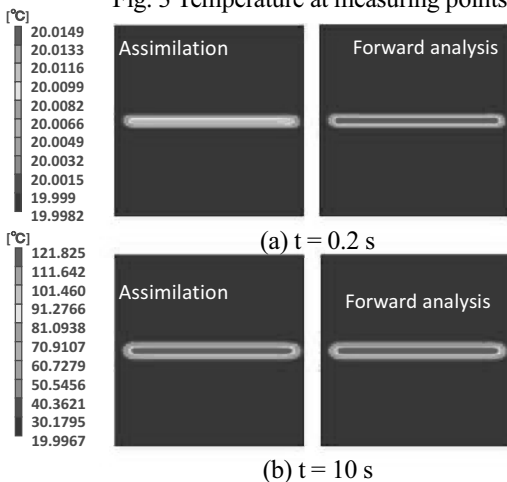


Fig. 3 Temperature at measuring points.



(b) t = 10 s

Fig. 5 Comparison between results of assimilation and forward analysis.

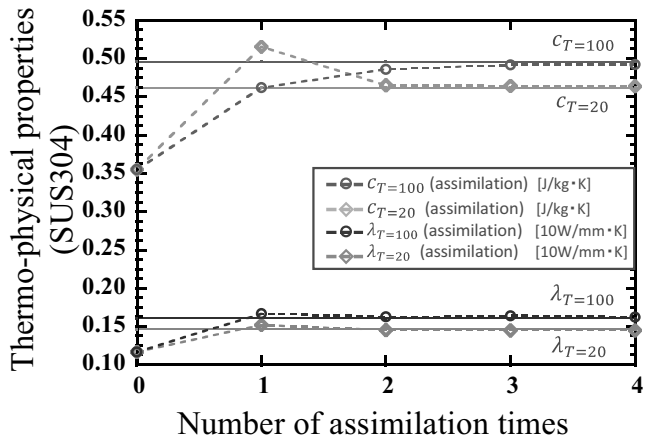


Fig. 4 Assimilation history of thermo-physical properties.

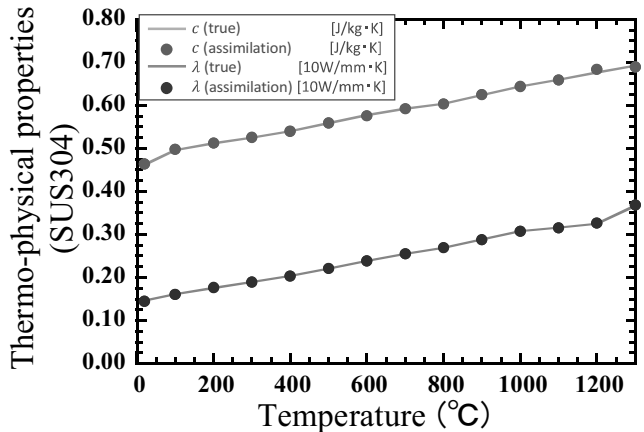


Fig. 6 Assimilation results of thermo-physical properties.

定により改善された値を初期値に更新し、同じ計測値によって再度推定する工程を4回行った結果、推定値が真値に近づく傾向がみられた。Fig.5 に 20°C~100°Cの推定と順解析での温度分布を示す。Fig.5 から、時刻 $t = 0.2$ s においては初期の誤差の影響が大きく、順解析結果と推定結果が大きく異なるのに対し、時刻 $t = 10$ s では計測値による情報を十分にデータ同化に用いるので推定が良好に行われたことが確認できる。次に 200°C~1300°Cの物性値の推定について、Fig.6 に 20°C~1300°Cでの推定結果を示す。Fig.6 から、全温度域において良好に推定が行われることを確認した。このことから、段階的にデータ同化を行うことで 20°C~1300°Cまで 100°Cごとの比熱および熱伝導率を推定できることが確認できる。

5. 結言

本研究では、溶接力学問題においてデジタルツインシステムを構築するために、理想化陽解法 FEM とアンサンブルカルマンフィルタに基づくデータ同化手法を用いたシステムを開発した。熱伝導現象において FEM 解析で得られた予測値と熱電対による計測を想定した数点の温度計測値に対し、開発したデジタルツインシステムを適用することで仮想空間上に実現象を再現し、直接計測にコストを要する熱伝導現象の温度依存のパラメータの推定を行った。以下に得られた知見を示す。

- 1) 一度の温度計測実験結果に対しデータ同化を複数回行うことで、熱伝導パラメータがより真値（順解析で与えた物性データ）に近づくことが確認された。
- 2) 本手法を用いることで、一度の温度計測実験により室温から 1300°Cまで、100°Cごとの比熱および熱伝導率を同定できることを示唆する結果が得られた。

(接合構造化解析学分野)

微小引張試験による高張力鋼板スポット溶接部の局所力学的特性評価と CAE による破断予測

慶應義塾大学理工学部機械工学科 大宮正毅

慶應義塾大学大学院理工学研究科 玄振鐸

大阪大学接合科学研究所 麻寧緒

1. 目的

現在、高張力鋼板（ハイテン材）の破断予測に関して、延性破断モデルを用いることで、引張強さ 590 MPa 級のハイテン材の破断開始のタイミング、き裂進展方向の予測が可能となっている。そして、さらに強度レベルの高い超ハイテン材やホットスタンプ材への適用、異種材接合部からの破壊開始やき裂進展予測技術の確立が求められている。引張強さ 980 MPa 級以上の超ハイテン材の場合、スポット溶接部周辺の熱影響部（HAZ）が焼きなましにより軟化し、HAZ 部を起点としたき裂の発生、母材への進展、急速な破断をもたらすことが指摘されており、自動車衝突 CAE において変形モードやエネルギー吸収特性を正確に予測することが困難な状況にある。そのため、自動車衝突 CAE におけるデジタルツインを実現するためには、母材である超ハイテン材のき裂発生・進展モデルだけでは不十分で、スポット溶接部や HAZ 部からのき裂発生・進展モデルが必要である。

そこで本研究では、微小引張試験機を用いて、超ハイテン材スポット溶接部の局所力学的特性を把握し、スポット溶接部の破断・き裂進展予測モデルを構築することを目的とする。そして、構築した力学モデルを汎用有限要素法ソフトウェアに組み込み、スポット溶接試験片の引張解析を行い、その妥当性について検証した。

2. 研究方法

本研究では、スポット溶接部のナゲット部と HAZ 部に注目し、それらの部位から微小試験片を採取して引張試験を行った。スポット溶接試験片は、厚さ 1 mm のダンベル型試験片に、厚さ 1 mm の当て板をスポット溶接で接合した。そして、微小試験片は、図 1 に示す A, B, C の 3 箇所から、全長 3.2 mm、標点間距離 1.0 mm、厚さ 0.25 mm となるようにワイヤー放電加工により切り出した。引張試験に用いた装置の概要を図 2 に示す。供試材にはスプレーによりランダムパターンが塗布されており、試験中の様子を上部に配置した CCD カメラで撮影し、画像相関法によりひずみ計測を行った。引張試験速度は 0.5 $\mu\text{m/s}$ 、サンプリング周期が 100 ms とした。

CAE 計算で用いるナゲット部と HAZ 部の応力-ひずみ曲線は、式(1)(2)に示すように、母材に対するビッカース硬さの比およびシフトファクター H を導入し、母材の応力-ひずみ曲線から決定した。また、シフトファクター H は、微小引張試験とビッカース硬さ試験の結果から、式(3)のように定義した。

$$\sigma_{\text{HAZ}} = \sigma_{\text{BM}} \times \frac{\overline{HV}_{\text{HAZ}}}{\overline{HV}_{\text{BM}}} \times H^{-1} \quad (1)$$

$$\varepsilon_{\text{HAZ}} = \varepsilon_{\text{BM}} \times \left(\frac{\overline{HV}_{\text{HAZ}}}{\overline{HV}_{\text{BM}}} \right)^{-1} \times H \quad (2)$$

$$\frac{\overline{HV}_{\text{HAZ}}}{\overline{HV}_{\text{Nug}}} = \frac{\sigma_{\text{HAZ}}}{\sigma_{\text{Nug}}} \times H^{-1} \quad (3)$$

ここで、 σ_{BM} , σ_{HAZ} は母材および HAZ 部の真応力、 ε_{HAZ} , ε_{BM} は母材および HAZ 部の真ひずみ、 $\overline{HV}_{\text{BM}}$, $\overline{HV}_{\text{HAZ}}$ は母材および HAZ 部のビッカース硬さの平均値である。解析モデルは、スポット溶接試験片をソリッド要素でモデル化し、治具部および標点を越えた部分を 2 mm ピッチで、スポット溶接部とその周囲は 1 mm ピッチで、厚さ方向には 3 層としてメッシュ分割を行った。

3. 結果

図3に引張強さ 980 MPa 級ハイテン材の微小引張試験結果を示す。切り出し箇所により、降伏応力、引張強さ、破断ひずみが異なっていることがわかる。特に、ナゲット部においては、他の箇所より引張強さが大きく、反対に、破断ひずみが低下していることがわかる。また、HAZ 部では、引張強さが低下し、破断ひずみが大きくなっている。さらに、ナゲット上部においては、引張強さおよび破断ひずみがともに小さくなっている。このように、微小引張試験を行うことで、スポット溶接部周辺の局所的な力学的特性を正確に把握することが可能となった。

図4、5にスポット溶接試験片の応力-ひずみ曲線、き裂進展の様子を比較した結果を示す。CAE では最大応力は実験値と比べて2.6%、破断開始ひずみは0.2%の差であり、実験を良く再現できている。また、図5に示したき裂進展の様子も、HAZ 部を起点としたき裂発生、進展の様子が再現できた。

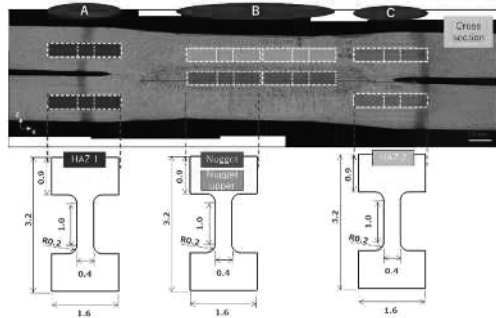


図1 接合試験片断面上における微小引張試験片の採取位置

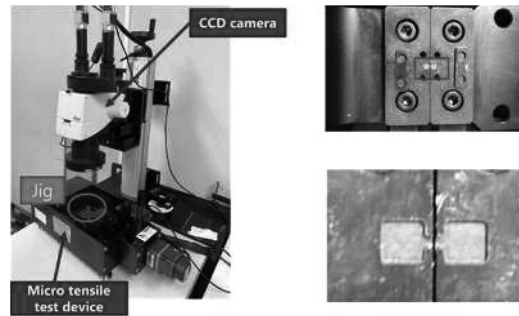


図2 微小引張試験装置

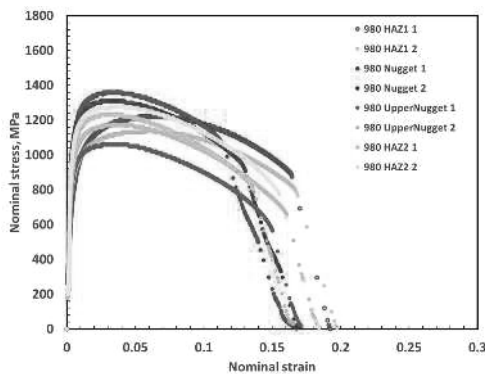


図3 微小引張試験で得られた応力-ひずみ線図

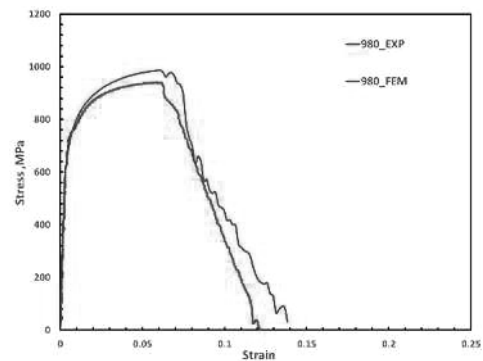
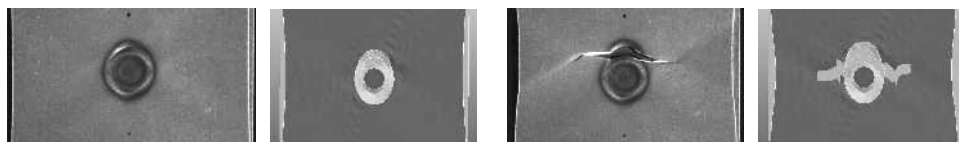


図4 スポット溶接試験片の応力-ひずみ線図



(a) 23.6 kN

(b) 42.2 kN

図5 き裂進展の様子 (左: 実験 右: CAE)

4. 結論

微小引張試験の実施を通して、スポット溶接部周辺の局所的な力学的特性を把握し、CAE の材料データに反映した。その結果、引張強さ 980 MPa 級ハイテン材のスポット溶接引張試験に関して、最大引張応力は2.6%、破断開始ひずみは0.2%の差で実験を再現できた。さらに、HAZ 部からのき裂発生と進展、母材へのき裂進展の様子も再現できた。

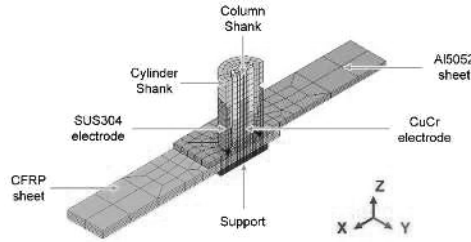
(共同研究分野：接合構造化解析学分野)

1. Introduction

Although FEM can save experimental cost, but its long-time consumption makes it inefficient to find the optimal parameters for desired results. In this research, a digital twin of coaxial one-side resistance spot welding (COS-RSW) was proposed to predict the transient temperature field. A 3-D model was established based on the in-house FE code JWRIAN-SPOT. The FE model was verified by measured thermal cycles directly and then employed to generate the database of temperature fields. Multiple dimension interpolation was realized on Fortran platform to process the database and generate visualization results. Finally, the real-time prediction of transient temperature field on COS-RSW joint was achieved with high accuracy.

2. Establish of digital twin

A full-scale 3D model of COS-RSW was established based on the in-house code JWRIAN-SPOT for the analysis of COS-RSW:



Welding time (t), welding current (I) and electrode force (F) were three essential parameters for COS-RSW. Four actual welding experiment were designed and performed to present the influence of each parameter, and the FEM calculation was processed for each welding parameter set. The smooth temperature field can be described as a function of welding parameters $T(I, F, t)$. The temperature fields at the grids of welding

parameters space (T_g) can be written as:

$$T_g(x, y, z) = T(I_x, F_y, t_z), \quad \begin{cases} I_x = I_{\min} + \frac{I_{\max} - I_{\min}}{n_I} x & x = 0, \dots, n_I \\ F_y = F_{\min} + \frac{F_{\max} - F_{\min}}{n_F} y & y = 0, \dots, n_F \\ t_z = t_{\min} + \frac{t_{\max} - t_{\min}}{n_t} z & z = 0, \dots, n_t \end{cases}$$

The multiple dimension interpolation was processed to get the temperature field of arbitrary parameters (I, F, t), according to the neighbors of grids that are determined via:

$$\begin{cases} I_x \leq I \leq I_{x+1} \\ F_y \leq F \leq F_{y+1} \\ t_z \leq t \leq t_{z+1} \end{cases}$$

The relative distance u , v and w from point (I, F, t) to the nearest grid in each dimension can be calculated by the grid length:

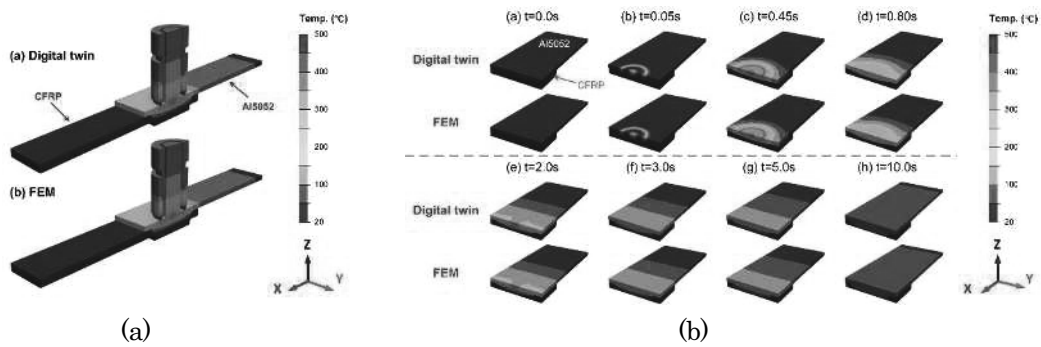
$$\begin{cases} u = \frac{I-I_x}{I_{x+1}-I_x} \\ v = \frac{F-F_y}{F_{y+1}-F_y} \\ w = \frac{t-t_z}{t_{z+1}-t_z} \end{cases}$$

Then the temperature field $T(I, F, t)$ can be calculated by performing interpolation in each dimension and integrating the results:

$$T(I, F, t) = (1-u)(1-v)(1-w)T_g(x, y, z) + u(1-v)(1-w)T_g(x+1, y, z) + (1-u)(1-v)wT_g(x, y, z+1) + u(1-v)wT_g(x+1, y, z+1) + (1-u)vwT_g(x, y+1, z+1) + uvwT_g(x+1, y+1, z+1)$$

3. Comparison between digital twin, FEM and real experiments

Generally, digital twin can describe the characteristics of transient temperature field on COS-RSW joint. It had potential to replace the traditional FEM for welding result prediction.



Comparison between digital twin and FEM: (a) Case B-4 (b) Case B-4

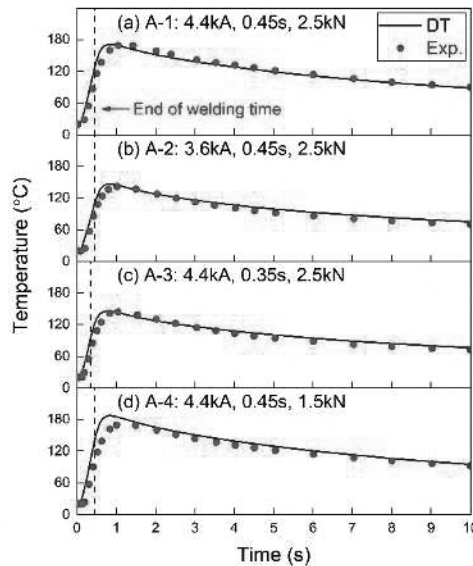


Fig 1 Comparison of digital twin prediction and experimental measurement of thermal cycles on COS-RSW joint in Case A

(接合構造化解析学分野)

先導的重点課題・研究報告書

(レーザー溶接プロセスのモデリングと適応性技術の開発)

【研究目的】

レーザー溶接は、集光したレーザー光を熱源とするため熱的な影響範囲が狭く局所加工性に優れ、しかもファイバー伝送が可能なことから、遠隔操作性にも優れている。その一方、レーザー溶接は、露光部が局所的に高温になるため高温割れの発生や、金属蒸気やスパッタの発生、溶接部内部のポロシティの形成などが生じ、これらが溶接欠陥となっている。特にスパッタは、レーザー光路上に飛散するとレーザーと干渉してしまい、溶接の不安定性を招く要因となっている。近年、レーザーのモード制御や真空中でレーザー溶接を行うとスパッタが低減すると報告されているが、スパッタの発生メカニズムおよびこれを抑制するメカニズムに関する検討は十分にされていない。そこで本研究課題では、これら溶接欠陥形成因子となるスパッタの発生メカニズムの学理を理解し、スパッタに起因する溶接欠陥を抑制する適応性技術を開発する。

【成果概要】

本年度は、レーザー溶接で形成される溶融池の挙動および温度を詳細に評価するために、ガラス透過法と二色温度解析を組み合わせたリアルタイム溶融池断面温度直接計測法を開発し、これを用いて溶融池断面内の温度分布ならびに溶融池の揺動性の評価を行った。キーホールはX線による透過像から同定し、レーザー照射時のキーホールと溶融池の時間変動からスパッタの抑制メカニズムの解明を試みた。キーホール形状は雰囲気圧力が減少することに伴い、幅、長さが増加し、くさび型から底膨らみ形状に移行することが明らかになった。キーホールは、金属蒸気の蒸気圧の低下することによって蒸発量が増加したことに起因し、さらに、ガラス透過観察を用いた溶融池挙動および温度観察することによって、溶融池内部の温度分布、溶融池と固体の固液境界における挙動を詳細に観察することが出来た。これによって、大気圧下で発生する溶融池が拡大・縮小を繰り返す周期的な振動によって、溶融池後方の固液境界から融液が押し出され、これがスパッタとなって飛散していることがわかった。一方、真空下ではキーホールが大きく、併せて溶融池も大きくなることによって、溶融池の揺動を自身の溶融池がダンパーとなって緩和することになり、その結果、融液の飛散を防いでいることがわかった。

レーザー溶接プロセスのモデリングと適応性技術の開発

東京工科大学 工学部 大久保友雅

工学研究科 越地駿人

1. はじめに

レーザー溶接の品質を左右する大きな要因として、スパッタの発生が挙げられる。スパッタが発生する原因は、レーザー照射点での局所的な入熱により、局所的な相変化により生成された気体による圧力と考えられているが、その物理的原因や抑制方法は未だ不明な点が多々ある。

先行研究では、雰囲気圧力を変更することでスパッタの飛散量とレーザーの溶け込み深さが変化することが実験で確認されている。しかし、その根拠として明確な学術的議論はなされていない。

そこで、本研究では数値計算を用いて、先行研究をもとに表面張力と雰囲気圧力を変更し、雰囲気圧力とスパッタの飛散量について検討を行った。

2. 計算モデル

本研究では、Flow Science Japan の Flow-3D と、レーザー溶接モジュールである Flow 3D WELD を用いて計算を行った。計算領域の概念図を図 1 に示す。レーザー照射位置に対して前後は対称であると仮定して、奥側のみ計算を行った。また、周囲の境界条件は、上面を雰囲気圧力で固定とし、他は壁境界とした。メッシュサイズは、レーザー照射位置付近の領域 1 は 0.015 mm とし、外側の領域 2 は 0.075 mm とした。レーザーは出力 400 W で焦点距離 140 mm のレンズで集光した。さらに、焦点に厚さ 1 mm の SUS304 のターゲットを配置した。

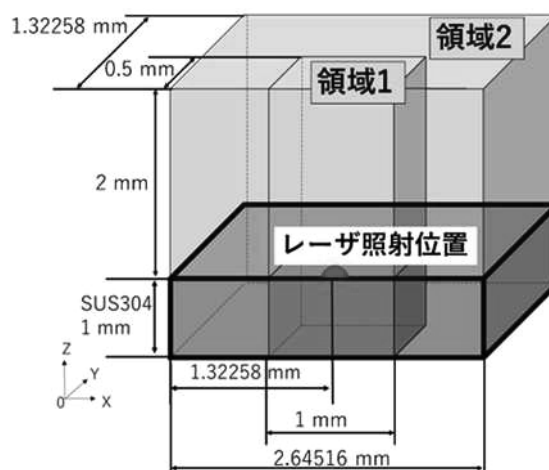


図 1 計算領域の概念図

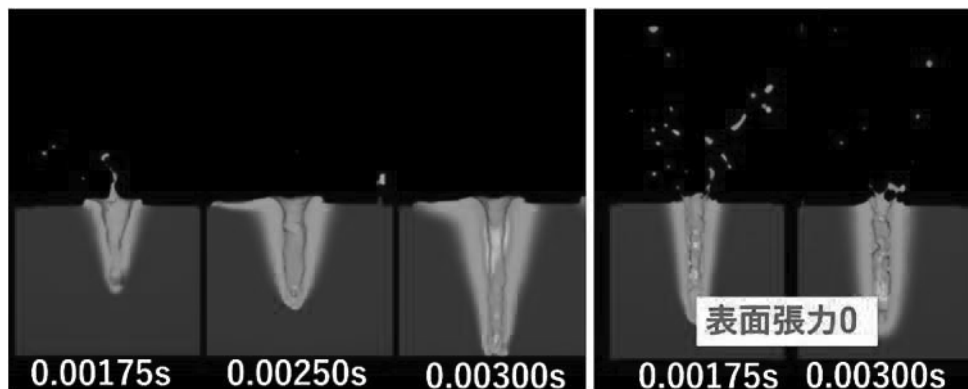
3. 計算結果と今後の予定

雰囲気圧力を大気圧、 $10^4 \text{ g/cm} \cdot \text{s}^2$ 、 $2 \times 10^6 \text{ g/cm} \cdot \text{s}^2$ と変化させた際の計算結果を図 2 に示す。また、図 2 の左側は表面張力がある場合の計算を示し、右側には表面張力を 0 とした場合の計算結果を示した。

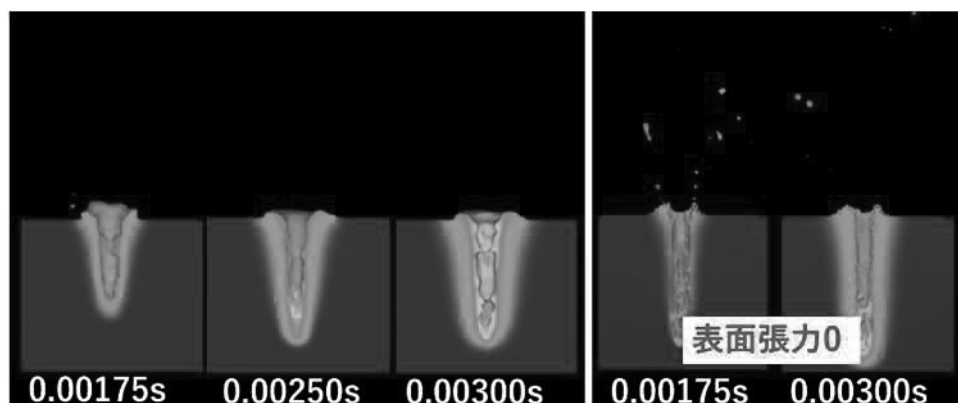
まず、図 2 の左右の結果を比較すると、どの雰囲気圧力においても表面張力を 0 にした場合のスパッタの飛散量は大きくなり、スパッタの抑制には表面張力が大きく関わっていると示唆される。

また、図 2 の左側のそれぞれの結果を比較すると、図 2-A に示す大気圧での計算ではスパッタが飛散するが、図 2-B, C に示すように圧力を下げた場合はスパッタが抑制されるという結果が得られた。キーホールの深さに着目すると、図 2-A に示す大気圧下では深いキーホールが形成されているのに対し、図 2-B, C に示すように圧力を変化させた場合はどちらも形成されたキーホールの深さが浅くなっている。すなわち、キーホールが深くなるとスパッタが飛散しやすくなるということが示唆される。

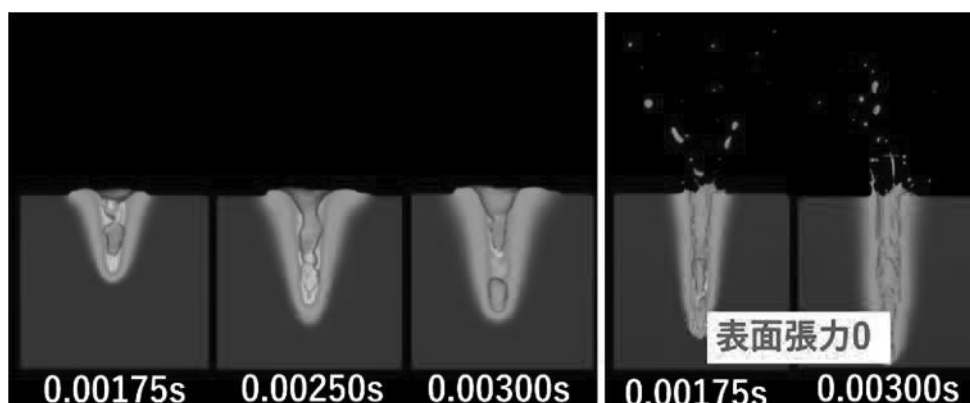
今後はこれらの因果関係について検討を行う予定である。



A: 大気圧下での計算結果



B: 雰囲気圧力を $10^4 \text{g/cm} \cdot \text{s}^2$ とした場合の計算結果



C: 雰囲気圧力を $2 \times 10^6 \text{g/cm} \cdot \text{s}^2$ とした場合の計算結果

図 2 雰囲気圧力を変化させた場合の計算結果の比較

(共同研究分野：レーザープロセス学分野)

密度汎関数法を用いた溶融銅の光学特性解析

産業技術総合研究所 電子光基礎技術研究部門 先進プラズマプロセスグループ
加藤 進

1. 目的

レーザー溶接では、材料の温度は室温から融点を超え、局所的には沸点以上の高温にまで達する可能性がある。このため、材料の状態が固体から溶融金属、金属蒸気プラズマまで変化する中での温度や状態を精度良く制御する必要があり、レーザーの照射パワーや集光条件等の決定には、常温の固体とは異なる状態における吸収エネルギー量の高精度の見積が不可欠である。

電気自動車の二次電池や配線などの用途で利用されている電気伝導特性が良い銅は、近赤外光の吸収率が低いいため、吸収率が高い青色、緑色の可視光レーザーの利用が進んでいる[1]。銅の光学特性は、1950年代から研究されている[2-6]。光学特性はレーザー溶接における最も重要な基礎データのの一つであるが、可視光域にd電子が関与するバンド間遷移があるため、赤外光域[7]と比較して、高温・溶融状態での可視光域の特性[8-9]は未解明な部分が多い。

本研究の目的は、第一原理的手法を用いて、銅の溶融状態を含む広い温度域での光学特性を解明し、その特性を反映した高精度なレーザー溶接シミュレーションで利用可能な現象論的な複素誘電率モデルを構築することである。

2. 溶融銅の電子状態

本研究では、密度汎関数法による第一原理電子状態計算ソフトウェアの一つである Quantum Espresso (QE) [10] を用いて溶融金属状態における電子状態密度を決定した。擬ポテンシャルには QE データベースにある Cu_pbe-dnr-rrkjus_psl.1.0.0.UPF を使用し、32 個の原子を含んだスーパーセルの計算を行った。融点での密度 7.99 g/cc からセルサイズは $(7.5 \text{ \AA})^3$ とした。図 1 に結晶の面心立方格子構造(a)と溶融状態(b)の電子状態密度を示した。溶融状態のイオン配置は、動径分布関数が実験値[11]と一致するように決めた。図 1 より、溶融により規則的な結晶構造が乱れたことにより、1.5eV 近傍の電子状態密度の立ち上がりがなめらかになる傾向が見られる。

3. まとめ

今年度は、第一原理電子状態計算を用いて、固相・液相の相変化による溶融銅の電子状態の変化について調べた。今後、固相・液相の相変化により、複素誘電率が、特に可視光域で、どのように変化するかを調べる予定である。ただし、密度汎関数法で銅や金等の固体貴金属のバンド間遷移のエネルギー差を正確に記述することは困難であることが知られているため、その絶対値ではなく、構造変化が与える影響について調べる。

4. 参考文献

- [1] 特集「加工用青色・緑色レーザーとその応用への期待」OPTRONICS, No.457 (2020).
- [2] L.G. Schulz, J. Opt. Soc. Am. 44, 57 (1954). L.G. Schulz and F.R. Tangherlini, J. Opt. Soc. Am. 44, 362 (1954).
- [3] S. Roberts, Phys. Rev. 118, 1509 (1960).
- [4] G.P. Pells and M. Shiga, J. Phys. C 2, 1835 (1969).
- [5] P.B. Johnson and R.W. Christy, Phys. Rev. B 6, 4370 (1972). P.B. Johnson and R.W. Christy, Phys Rev B 11, 1315 (1975).
- [6] D.J. Nash and J.R. Sambles, J. Mod. Opt. 42, 1639 (1995).
- [7] K. Ujihara, J. Appl. Phys. 43, 2376 (1972).
- [8] J.C. Miller, Phil. Mag. 20, 1115 (1969).
- [9] N. R. Comins, Phil. Mag. 25, 817 (1972).
- [10] P. Giannozzi et al., J. Phys. Condens. Matter 21, 395502 (2009). P. Giannozzi et al., J. Phys.: Condens. Matter 29, 465901 (2017).
- [11] R. Iida, R. I. L. Guthrie, The Physical Properties of Liquid Metal (Oxford, 1988).

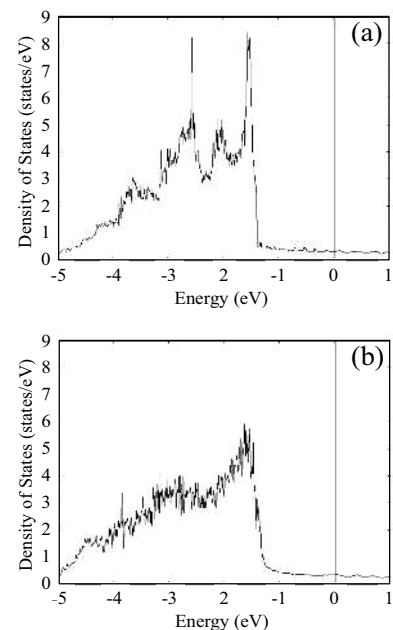


Fig. 1. Electron density of states (DOS) in (a) face-centered cubic and (b) liquid copper.

(共同研究分野：レーザープロセス学分野)

レーザー溶接プロセスのモデリングと適応性技術の開発

福岡県工業技術センター機械電子研究所材料技術課
島田雅博

1. 目的

一般に金属にレーザーを照射すると材料表面の露光部が融点以上に加熱され、溶融・蒸発が起こる。この時融液の表面では、局所的な蒸発による反発力によってキーホールが形成され、溶込みが比較的深い溶接ができるが、キーホールの形成に伴い、溶融金属や金属蒸気、粒子が噴出するスパッタと呼ばれる飛散現象が生じる。そこで近年、スパッタ抑制のためレーザーのモード制御による溶接が取り組まれている。本研究では、ステンレス鋼 SUS304 のレーザー溶接におけるレーザーのモードが溶接品質に与える影響を調べるためにシングルモードのビームモードで溶接を行い、溶接部の断面観察等により溶接時における加工条件の影響について検討した。

2. 研究方法

ファイバレーザー発振器、ミラー、レンズ（焦点距離：200mm）、自動ステージを組み合わせによるレーザー溶接機を作成して研究を行った。SUS304（50×50×t3mm）を用いてビードオンプレート溶接を実施した。溶接条件は、レーザー出力（W）、溶接速度（mm/s）を変数とした。溶接後、溶接方向に対し直行方向に試験片を切断して断面組織観察を行った。組織観察は、粒径1μmのアルミナ粉末で鏡面研磨仕上げした後、王水とグリセリンを容積比1:1で混合させた溶液でエッチングを行い、観察を行った。

3. 結果

レンズ位置を調整して集光径100μmにした後、レーザー出力：200～475W、加工速度10～300mm/sで溶接を行った。溶接後の断面組織を図1に示す。溶融部が小さい画像は溶融部の周りを点線で囲った。得られた溶

表1 溶接部の断面組織

	10mm/s	100mm/s	200mm/s	300mm/s
200W				
300W				
400W				
475W				

け込み深さを図2に示す。レーザ出力が上昇するにつれて溶込み深さは大きくなっており、また溶接速度が大きくなると溶込み深さは小さくなる傾向を示した。レーザ出力400W、475Wでの溶接はきれいな傾向を示さず、ばらつきが確認されたがこれは条件により溶接部の形状が熱伝導型とキーホール型に分かれたためだと考えられる。

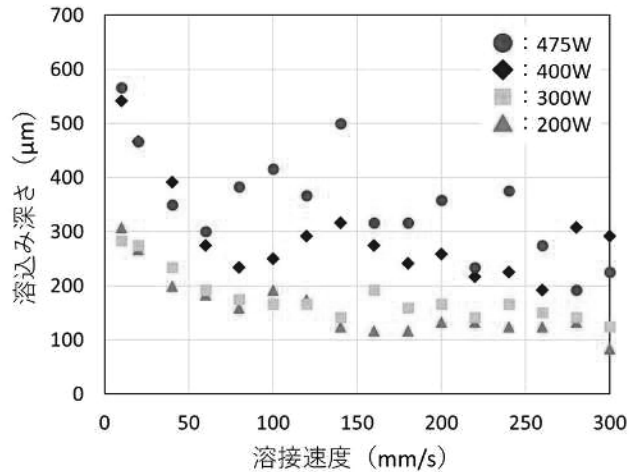
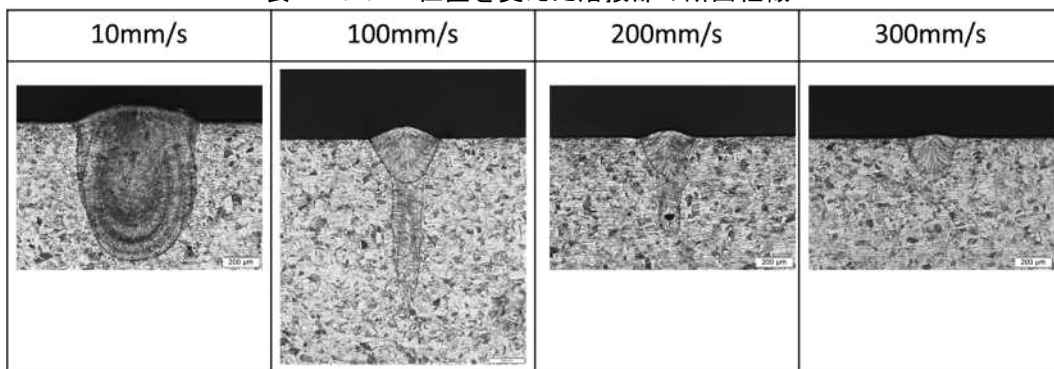


図2 各条件の溶込み深さ

表2 レンズ位置を変えた溶接部の断面組織



レンズ位置を10mm変更して475Wで溶接した断面組織を表2に示す。表1の475Wで溶接した溶込み深さと比較して深い溶込みが得られた。図2の475Wの溶込み深さ（変更前）とレンズ位置を変えた溶込み深さ（変更後）を図3に示す。表2で述べたようにどの溶接速度でもレンズ位置を変える前と比較して深い溶込みが得られた。レンズ位置を変えることにより、集光径が小さくなり、エネルギー密度が上昇したため、キーホール型の溶融部が確認される頻度が上がり、溶け込みが深くなったと考えられる。

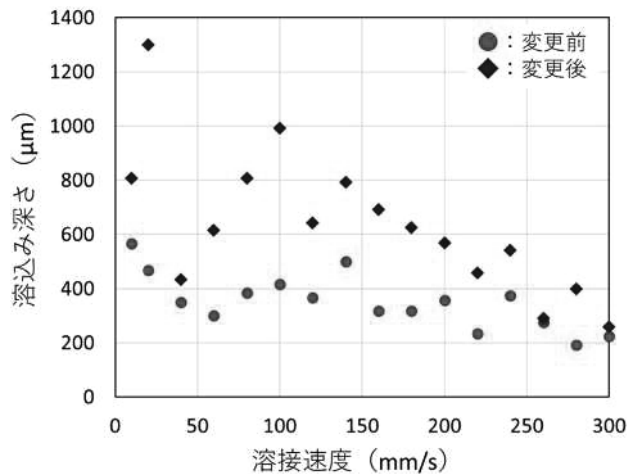


図3 レンズ位置を変えた溶接の溶込み深さ

4. 結論

レーザ出力、溶接速度、焦点位置（レンズ位置）を変えてレーザ溶接を行った。レーザ出力が大きくなるほど、溶接速度が小さくなるほど、溶込み深さは大きくなった。また焦点位置の違いによる溶込み深さの変化が確認された。

（共同研究分野：レーザプロセス学分野）

1. 目的

銅は、高い電気伝導性や熱伝導性など優れた特性を有するため、電線や家電、自動車など様々な用途に使用されている。近年、微細な製品製造がおこなわれる中でレーザー加工による銅の溶接要求も多くなってきている。しかし、純銅のレーザー加工は、現在主流の近赤外波長帯のレーザーでは吸収率が低く加工が難しい。青色波長帯では、近赤外波長帯に比べ吸収率が数倍高くなることが知られており加工に有利とされており、同波長の銅加工への利活用が期待されている¹⁾。そこで本研究では、ブルー半導体レーザーを用いて薄板の銅の突合せ溶接を行い、溶接可能なレーザー照射条件について調べた。

2. 実験方法

ブルー半導体レーザーを用いて、厚さ0.05mmの純銅（C1020）の突合せ溶接を行った。装置には、図1に示すマルチビーム式ブルー半導体レーザー加工機（ALPION type-Blue、(株)村谷機械製作所製）を用いた。波長は、445nmで最大出力300W（ブルー半導体レーザー発振器最大出力100Wを3台）である。3本のビームは加工ヘッド中心軸にて一点に集光し照射される。銅板の突合せ状態を図2に示す。図に示すように2枚の銅板は隙間なく密着させた状態で溶接実験を行った。実験は、レーザー出力100Wに固定し送り速度を5～50mm/sとした場合と、送り速度を20mm/sに固定しレーザー出力を60～120Wとした場合のレーザー照射条件で行った。実験後、デジタルマイクロ스코ープにて溶接部の外観を観察した。

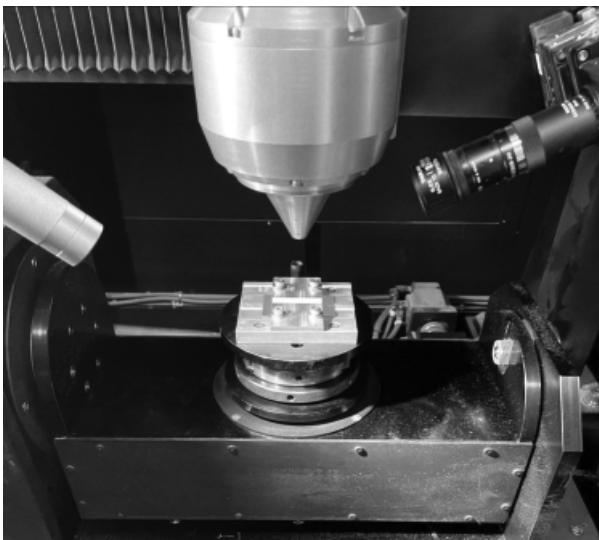


図1 マルチビーム式ブルー半導体レーザー加工機

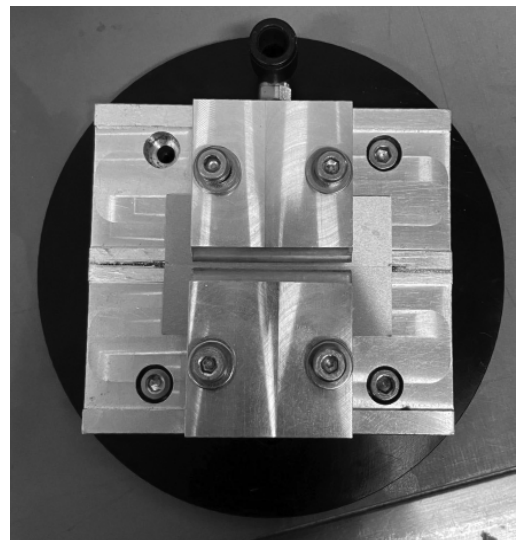


図2 銅板の突合せ状態

3. 実験結果

図3にレーザー光出力100Wにおける突合せ溶接後の試験片中央付近の外観観察画像を示す。送り速度を速めることにより、単位面積当たりレーザー投入エネルギー量が減り、それに伴い溶接ビードの幅が小さくなっていることがわかる。いずれの送り速度においても裏面まで溶接が行えた。

図4に送り速度20mm/sに固定した条件における突合せ溶接後の試験片中央付近の外観観察画像を示す。60Wにおいてはレーザー照射面においても接合する結果が得られなかった。80W以上では裏面まで熔融し接合が行えることがわかった。

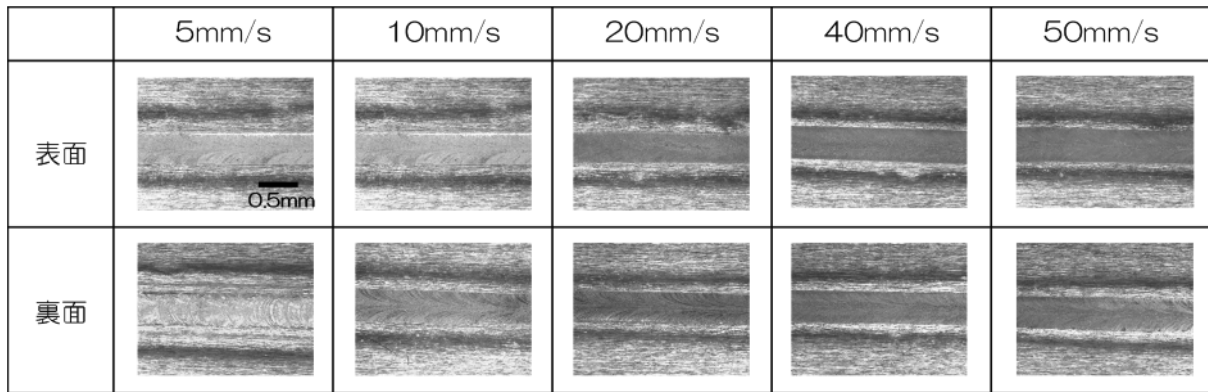


図3 レーザー光出力 100W における突合せ溶接後の溶接中央部観察画像

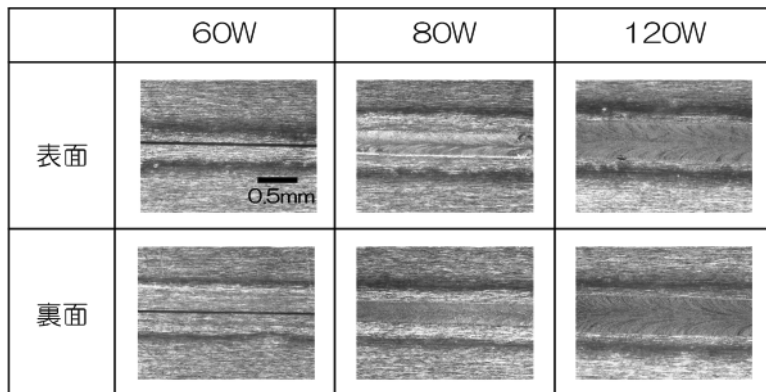


図4 送り速度 20mm/s における突合せ溶接後の溶接中央部観察画像

4. まとめ

本研究では、マルチビーム式ブルー半導体レーザー加工機を用いて厚さ0.05mmの純銅(C1020)の突合せ溶接を行った。実験結果、80W以上のレーザー光出力で裏面まで熔融した接合が行えることを確認した。また、レーザー光出力100Wでは、送り速度50mm/sにおいても裏面までしっかり熔融した溶接ビードが得られることがわかった。

5. 参考文献

[1] レーザー学会編：レーザーハンドブック第2版，オーム社，(2005)。

(共同研究分野：レーザープロセス学分野)

レーザー溶接プロセスのモデリングと適応性技術の開発
—レーザー溶接プロセスの可視化手法の検討—

若狭湾エネルギー研究センター 研究開発部 レーザー技術開発室
山田 知典

1.目的

レーザー技術は、遠隔操作機器とのマッチング性、コンパクト性等の優れた特徴を有することから、分析、診断、加工をはじめ様々な技術として利用されている。原子力発電所においても、レーザー技術の特徴を活用し、作業者の被ばくや二次廃棄物の低減、作業効率の向上、汚染拡大防止等の観点から、現場への適用を目指した研究開発が行われているが、対象物が放射性物質であるため、いずれのレーザー技術においても、レーザー照射を行った際に発生する放射性物質を含有する飛散粒子の把握及びその制御が課題とされている。

昨年度は、レーザー加工技術の中で保守保全技術として利用されるレーザー溶接技術に着目し、レーザー照射により発生する微粒子として溶接品質に影響を与えるスパッタの評価手法と制御技術について検討を行っており、今年度は、レーザー溶接プロセスを、より定量的に評価するための可視化手法として、シャドウグラフ撮影と2色温度測定を組み合わせる手法を検討した。

2.研究方法

図1にシャドウグラフ撮影の実験配置を示す。X軸ステージに試験体であるステンレス鋼 SUS304 を固定して移動させ、上部からレーザーを照射することで、ビードオンプレート溶接を行った。この時、レーザー照射部を挟み込むように、高速度カメラ及びレーザー照明を設置し、その様子をシャドウグラフ撮影した。レーザー溶接にはファイバーレーザーを用いており、波長は1070 nmである。レーザー溶接条件は、レーザー出力400 W、溶接速度10 mm/sであり、高速度カメラの撮影条件は、フレームレート6000 fps、シャッター速度1/950000 sである。また、レーザー照明の波長は、 640 ± 10 nmであり、高速度カメラの先端に取り付けたバンドパスフィルターの波長は、レーザー照明の波長に合わせて 640 ± 10 nmを選定した。

図2に2色式画像温度測定の実験配置を示す。温度測定には、カラーの高速度カメラを使用しており、赤と緑の2波長の画像から表面温度を算出した。この撮影では、照明は使用せず、高速度カメラのレンズの先端に1064 nmに対応したノッチフィルター、1000 nmに対応したショートパスフィルター、UV-IR カットフィルターを取付けて、レーザー照射部を直接観察した。レーザー溶接条件は、シャドウグラフ撮影と同様であり、高速度カメラの撮影条件は、フレームレート6000 fps、シャッター速度1/40000 sである。

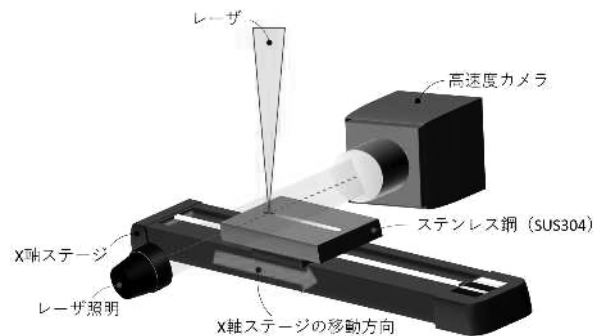


図1 シャドウグラフ撮影の実験配置

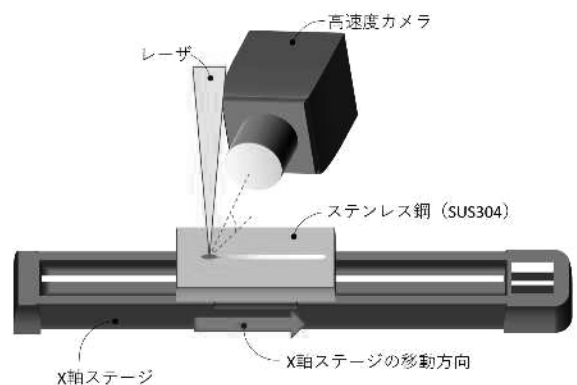


図2 2色式画像温度測定の実験配置

3.結果

図 3 にシャドウグラフ撮影の結果を示す。レーザ照明の波長が昨年度と異なるが、昨年度と同様にレーザ溶接中の挙動を撮影することに成功した。ここでは、レーザヘッドの真下に、直径約 1 mm の溶融池が形成し、溶接方向に向けてレーザ溶接が進行する様子が観察できた。さらに、溶融池から切り離された溶融金属がスパッタとなって溶接方向後方に飛散する様子の観察に成功した。図 4 に 2 色式画像温度測定の結果を示す。温度測定範囲は、1601℃～2028℃であり、レーザ照射により急激に加熱された溶融池内の温度や、溶融池から飛散するスパッタの温度の測定に成功した。高速度カメラが溶融池内部を撮影していることから、レーザ溶接プロセス中の現象の定量的な評価に役立てることが出来ると思われる。

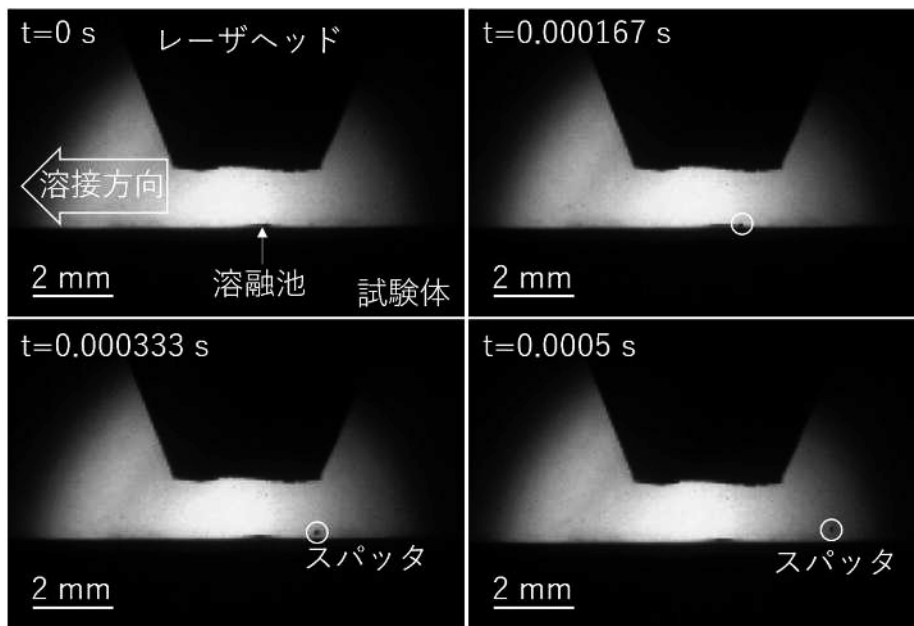


図 3 シャドウグラフ撮影によるレーザ溶接中の様子

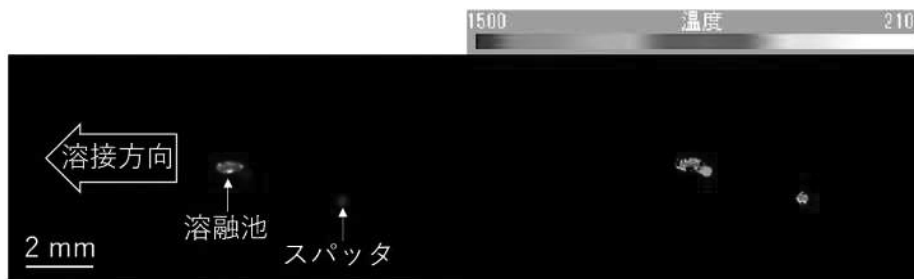


図 4 2 色式画像温度測定によるレーザ溶接中の様子

4.結論

レーザ溶接中の様子をシャドウグラフ撮影及び 2 色式画像温度測定することで、レーザ溶接プロセスを、より定量的に評価できる可能性が示唆された。

(共同研究分野：レーザプロセス学分野)

先導的重点課題・研究報告書

(構造用材料溶接部の水素割れ評価手法の高度化に関する研究)

【研究目的】

構造用材料の溶接部の水素割れ評価は、主に使用材料の規定や溶接条件の選定のための知見を得ることを目的として、巨視的な負荷応力と平均的な水素量といった工学的な指標に基づいて行われることが多い。一方、溶接部には形状の不連続や微視組織の不均質があり、局所的な応力集中や水素集積が生じる。水素割れは、応力集中や水素集積によって生じるため、応力や水素濃度の不均一な分布を考慮した評価を実現することは、水素割れ評価の高度化のための重要な課題である。

そこで本課題では、マクロ(溶接継手や試験片)、ミクロ(材料組織)の双方のレベルでの不均一な応力および水素濃度分布を考慮した、水素割れ評価手法の構築を目的とする。従来の平均値による指標に替えて、局所の応力や水素濃度を指標とした評価手法を提案・適用するために、従来の手法の課題や、局所条件を用いることによって生じる新たな課題などを整理し、それらをふまえた新たな手法の提案と適用可能性を検討する。

【成果概要】

本課題の初年度は FS 型として実施した。代表申請者は、巨視的・微視的な観点での応力ひずみや水素濃度分布に関する数値シミュレーション技術を保有していることから、主に水素の可視化、測定技術に関する連携の実現を模索した。その結果、水素マイクロプリント法による水素濃度分布の可視化に関する研究者、および、構造材料の負荷時の水素放出挙動の検出に関する研究者の参画を得ることができた。これらの研究者と具体的な研究推進方法について議論し、役割分担型に移行する次年度は、二相ステンレス鋼母材および溶接金属を共通の材料として、各種の実験および数値シミュレーションを試みることにした。また、数値シミュレーション手法の高度化や定量性向上のために、水素の放出挙動のモデル化についての知見を有する研究者の参画も実現した。この他、(一社)軽金属学会 アルミニウム中の水素と材料物性研究部会において代表申請者が講演し、次年度の新たな研究者の参画につながった。

1. 背景および目的

二相ステンレス鋼は、フェライト相とオーステナイト相が同量形成されるように合金組成が設計されており、機械的性質や耐食性に優れることから、種々の過酷な腐食環境にさらされる機械等に用いられている。金属材料を構造部材に用いる際には溶接工程が欠かせないが、二相ステンレス鋼溶接金属では相比が崩れた場合には機械的特性や耐食性が低下することが知られている。さらに、フェライト相が著しく増加した場合には、低温割れが生じることが報告されている。低温割れは溶接時に侵入した水素によって割れが生じる現象であり、これを防ぐためには材料中での水素挙動の理解が必要である。本研究では、金属表面から放出された水素原子を金属銀として可視化する水素マイクロプリント (HMPT) 法¹⁾を二相ステンレス溶接金属に適用し、水素の放出位置を金属組織と対応させることで、二相ステンレス鋼溶接金属中での水素の移動経路を検討することを目的とした。

2. 研究方法

本研究では、市販の二相ステンレス鋼溶接棒（日鉄溶接工業社製 S-DP3W）を使用して、炭素鋼上に5層の肉盛溶接を行った。各実験では、母材希釈の影響を避けるために、いずれも最終層から試験片を採取した。水素量測定および HMPT 用試験片として、厚さ 0.4mm の試験片を切り出した。水素量測定試験片は、表面を #800 までの機械研磨仕上げを行い、それから陰極電解法による水素チャージを施した。陽極に白金を用いて、3%NaCl+3g/L NH₄SCN 水溶液中で、電流密度 100A/m²として、室温で 24h の水素チャージを行った。チャージ終了後は表面層を機械研磨で除去した後に、半導体ガスセンサを検出器とするガスクロマトグラフを用いて、昇温脱離分析法により水素量を測定した。昇温速度は 100°C/h として、5N-Ar 気流下で室温から 300°C まで昇温した。水素チャージから測定までの室温放置時間を変化させて試験を行った。

HMPT 用の試験片は、片面を鏡面仕上げとして、エッチングを施して組織を現出した後に、上記の条件で水素チャージを行った。それから、暗室内で試料表面に臭化銀粒子からなる写真用乳剤を被覆し、所定の時間室温で保持してから、定着処理を行い、未反応の臭化銀粒子を除去し、水洗、乾燥を経て、乳剤被覆面を走査型電子顕微鏡 (SEM) で観察した。試料表面に観察される粒子はエネルギー分散型 X 線 (EDS) 分析装置を用いて、銀粒子であるかを調べた。

3. 結果

光学顕微鏡で観察した溶接金属組織に対して、画像解析してフェライト相とオーステナイト相の相比を算出すると、ほぼ同量であった。図 1 には、水素チャージした試料の拡散性水素量と測定までの室温放置時間の関係を示す。水素チャージ直後は 200massppm を超える多量の水素がチャージされており、24h 保持後には約 100ppm が放出されていることがわかる。図は省略するが、水素チャージ直後の水素放出曲線では、100°C 以下で水素放出速度が大きくなっており、室温放置時間が長くなると低温側での水素放出速度は小さくなっていった。これは、水素の拡散が速いフェ

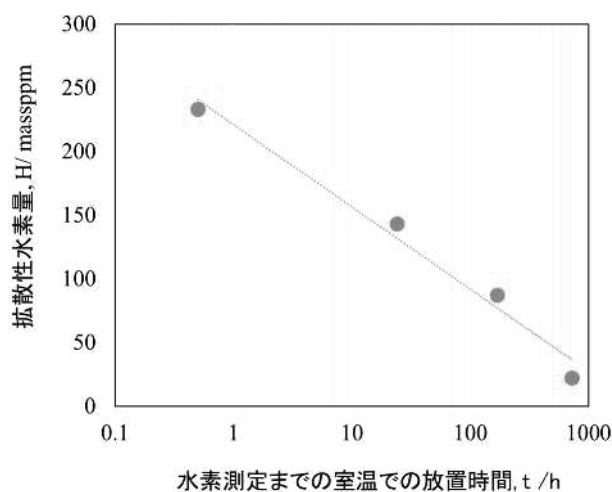


図 1 水素チャージした二相ステンレス鋼溶接金属の拡散性水素量と室温放置時間の関係。

ライト相中を通じて、水素が放出されたものと考えられる。一方で長時間室温においても、水素が材料中に一部残っているのは、水素の固溶量が多く、拡散が極めて遅いオーステナイト相中に存在していた水素によるものと推察される。図2には、乳剤被覆後に室温で24h保持してから定着した場合のHMPT/SEM像を示す。白色粒子が多数観察され、それらはEDS分析により銀粒子であることを確認した。HMPT法の原理¹⁾から銀粒子の位置と水素の放出位置が対応するため、今回の実験では水素は室温で24hの保持中に、フェライト相、オーステナイト相、相界面から放出されたものと考えられる。複数視野について、観察された銀粒子の面積に対して、放出位置を分類すると、フェライト相の割合が最も多かった。また、乳剤を被覆してから定着処理を行うまでの室温保持時間を変化させた実験を行い、水素放出位置（銀粒子の位置）の変化を調べると、室温保持時間が長いほうが、フェライト相からの放出割合が増加した。試験片内部のフェライト相中を拡散して表面まで到達したものや、オーステナイト相からフェライト相に移動して表面まで拡散してきた水素を可視化したために、フェライト相からの放出が多くなったものと推察される。今回の実験でオーステナイト相から放出された水素は、オーステナイト相中の水素の拡散が極めて遅いため、ごく表面に存在していた水素が試料表面まで到達することで銀粒子を形成していた可能性がある。水素の優先的な拡散経路や集積場所を調べるためには、本研究で実施したチャージ面に乳剤を被覆する方法ではなく、チャージ面と反対面側に乳剤を被覆して、調査する必要がある。今後は、水素透過面側にHMPT法を適用し、二相ステンレス鋼溶接金属中の水素の優先的な拡散経路を明らかにするとともに、溶接時の予熱を想定した高温（～100℃）での水素の放出経路を可視化するために本手法が適用できないかを検討していきたい。

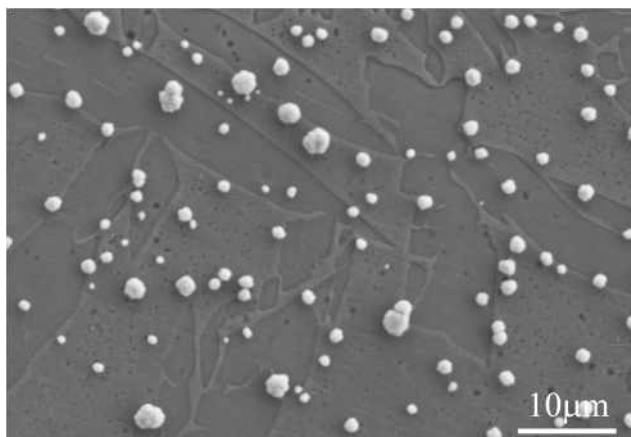


図2 二相ステンレス鋼溶接金属のHMPT/SEM像.

4. 結論

本研究では、二相ステンレス鋼溶接金属中の水素挙動を水素マイクロプリント法により調査した。陰極電解法によりチャージした水素は室温で24h保持している間に、その一部が放出されるが、その放出位置はフェライト相が最も多いことがわかった。

参考文献

- 1) 倉本繁, 菅野幹宏 : Zairyo-to-Kankyo, **49** (2000), 265-270.

(先導的重点課題, 共同研究分野: 接合設計学分野)

1. 背景および目的

水素は鋼内をすぐに逸散するため、水素拡散挙動を実験的に明らかにすることは困難であり、その挙動を正確に予測できる計算ツールの開発は、今後の水素エネルギー利用技術に関わるインフラの安全性維持に必要不可欠である。

このような背景から、本研究では、今まで開発してきた局所応力誘起水素拡散解析理論[1,2]に基づいて、溶接部を含めた構造物の応力集中部近傍での水素拡散挙動や疲労き裂成長挙動を計算機シミュレーションにより予測する手法を構築し、遅れ破壊を含めた水素脆化敏感度に及ぼす負荷応力変動効果の解明とそれを可能にするプログラムソフトの開発を行うことを目的とする。

2021年度は、熱伝導-熱応力-局所応力水素拡散連成解析プログラムを用いて[3-5]、様々な予熱温度における y 型溶接構造の冷却過程における水素拡散凝集挙動について、高精度解析を可能とするための数値解の安定条件について研究を行った。

2. 研究方法

2.1. 解析モデルと解析方法

本研究で用いた解析モデルは JIS 規格[6]に基づいて、溶金 (WM)、母材(BM)、熱影響部 (HAZ: Heat Affected Zone) から成る y 型溶接構造を作成した。解析モデルを Fig. 1 に示す。本解析は 2 次元解析で行い、溶接冷却時の温度変化を熱伝導解析で行い、温度変化に対応して生じる熱応力の解析を有限要素法(FEM)で行う。その後、節点に与えられる応力を差分格子点に補間して、差分法で水素拡散解析を行った。応力解析に用いた物性値を Table1 に示す。ヤング率および降伏応力は冷却時の温度変化に対応して変化させた[7]。また、降伏応力は式(1)の条件にて解析を行った[8]。

$$\sigma_{ys(WM, BM)} = 0.8\sigma_{ys(HAZ)} \quad (1)$$

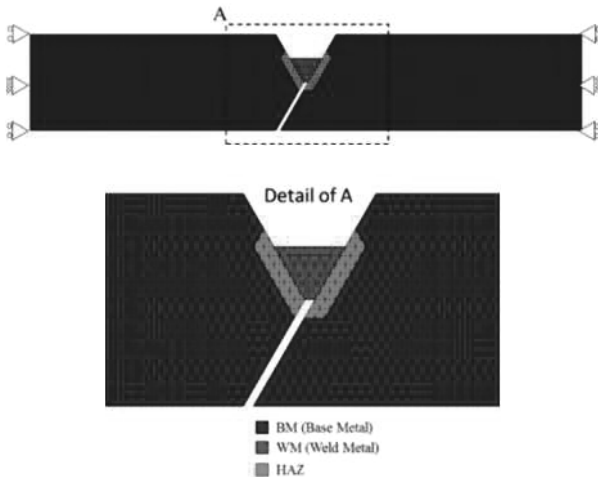


Fig. 1 Analytical model.

Table 1 Material properties for FEM analysis.

	E [GPa]	ν	σ_{ys} [MPa]	H_p [GPa]	$T\alpha$ [1/K]
WM					
HAZ	ref. [7]	0.3	ref. [7]	$0.01 \times E$	$1.2E-5$
BM					

$T\alpha$: Thermal expansion coefficient, E : Young's modulus, ν : Poisson's ratio, σ_{ys} : Yield stress, H_p : Work hardening coefficient

2.2. 局所応力水素拡散誘起水素拡散方程式

本解析で用いた水素拡散方程式は、 α マルティプリケーション法に基づく式(2)を用いた。その詳細と物理

的意味は先行研究で示している[1,2,9]。

$$\frac{\partial C}{\partial t_c} = \alpha_1 D \nabla^2 C - \alpha_2 \frac{D \Delta V}{RT} \nabla C \nabla \sigma_p - \alpha_3 \frac{D \Delta V}{RT} C \nabla^2 \sigma_p \quad (2)$$

本解析では、各項の影響が同程度となるように $\alpha_1:\alpha_2:\alpha_3=1:1000:5$ とした。式(2)について、無次元化した後、Crank-Nicolson法で離散化し、SUR (Successive-Under-Relaxation)法を用いて数値解析を行った[1,2]。

3. 結果

本解析で得られた溶接溝底部鈍角側におけるそれぞれの予熱温度での水素濃度の時系列変化を Fig. 2 に示す。本結果から、予熱温度の上昇に伴い、冷却後(1200sec以降)の水素濃度は100°Cまでは低下していき、予熱温度100°Cにおいて最も低くなるが、125°C以上では逆に増加することがわかった。また、予熱125°C以上では、水素濃度の時系列変化は若干不安定な挙動を示した。この原因について、横堀らは拡散方程式の数値解の安定性(振動解の制御)について報告している[1,2,10]。Crank-Nicolson法は、位置と時間の刻み幅に関する制限はないとされているが、微分方程式に1次微分項が存在する場合は、振動解が発生する可能性があることが指摘されており[11]、本解析の場合も Fig. 3 に示すように振動を示す場合がある[10]。そこで、解が振動せず安定する条件として、振動度限界パラメータ λ_c を用いて、式(3)を満たすことが必要であると指摘されている[1,2,10]。ここで t^+ は無次元化時間、 r^+ は無次元化距離である。

$$\lambda = \frac{\Delta t^+}{(\Delta r^+)^2} \leq \lambda_c \quad (3)$$

本解析では、振動度限界パラメータを水素拡散解析と熱伝導解析において、 λ_{Dif} 、 λ_{Heat} としてそれぞれ定義している。これらの組み合わせの影響について解析したものを Fig. 4 に示す。Fig. 4 は予熱温度150°Cにおける水素濃度の時系列変化におよぼす λ_{Dif} 、 λ_{Heat} の影響を示したものである。これより、 λ_{Dif} が λ_{Heat} よりも小さい場合($\lambda_{Dif}=0.1$ 、 $\lambda_{Heat}=0.3$)に最も振動安定性が高くなることがわかった。次に、これまでの解析では λ_{Dif} 、 $\lambda_{Heat}=0.3\sim 0.4$ として計算していたが[3~5]、 $\lambda_{Dif}=0.1$ 、 $\lambda_{Heat}=0.3$ に変更して再解析を行った[12]。この時の水素濃度分布の時系列変化を解析したものを Fig. 5 に示す。Fig. 5 より、予熱125°C以上の条件にて、 $t=400\sim 800$ sec付近で見られた不安定な挙動が改善されたことがわかる。本解析結果から、式(3)に示す λ_c の条件を適切に考慮することで振動解を抑制し、より安定な解析結果を得ることができた。また、1400sec以上では100°C以上の予熱温度で、予熱温度の上昇につれて水素凝集濃度が軽減化されることも示された。

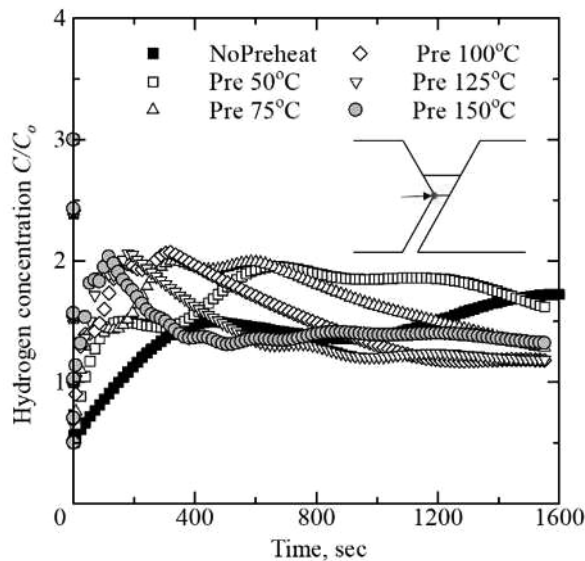


Fig. 2 Time sequential change of hydrogen concentration at the bottom of weld metal ($\lambda_c=0.3$) [12].

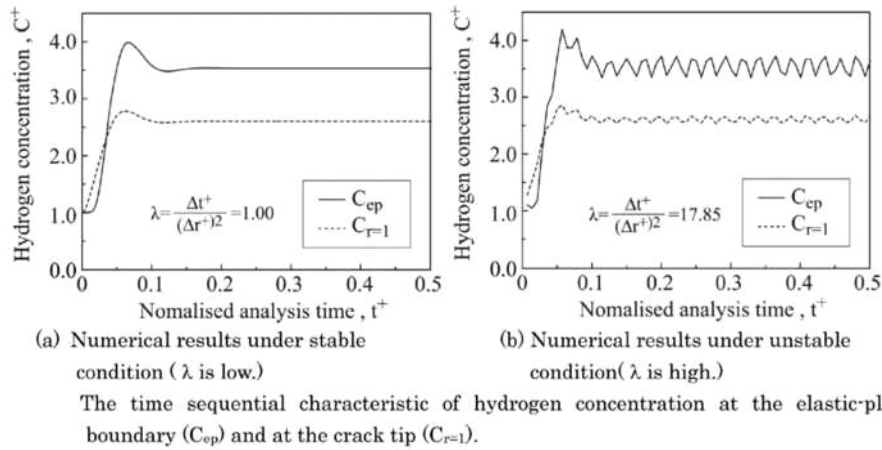


Fig. 3 Example of oscillatory solution for stress induced hydrogen diffusion analysis[1,2,10].

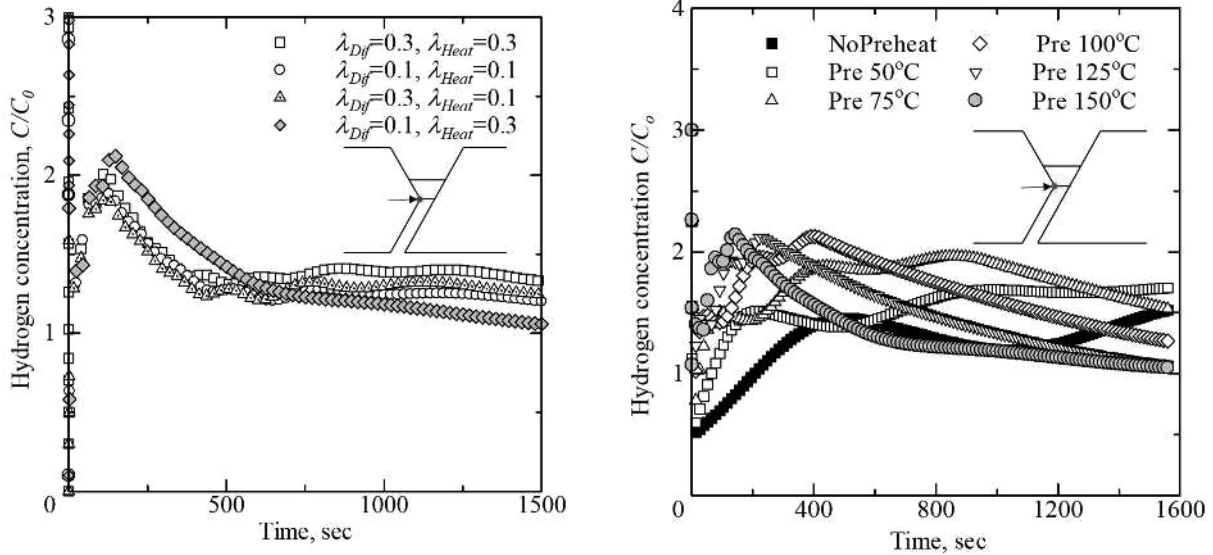


Fig. 4 Effect of the convergence parameters λ_{Dif} and λ_{Heat} on time sequential change of hydrogen concentration under the conditions of pre-heat temperature 150°C[12].

Fig. 5 Time sequential change of hydrogen concentration at the bottom of weld metal ($\lambda_{Dif}=0.1, \lambda_{Heat}=0.3$)[12].

4. 結論

本研究では、溶接部冷却過程における水素拡散解析を用いて、y 形溶接構造の水素凝集挙動を解析し、以下の結論を得た。

- 1) 熱伝導解析、熱応力解析および局所応力誘起水素拡散解析を連成させるプログラムを開発し、溶接部の冷却時における水素凝集および静水圧応力の時系列特性に及ぼす予熱の効果を明らかにした。
- 2) 水素拡散方程式にはVCなる1次微分項が含まれているため、振動度限界パラメータ λ_c を用いた $\lambda < \lambda_c$ なる条件を考慮することで、水素凝集の時系列変化におよぼす振動解が抑制された。しかし、熱伝導解析と

水素拡散解析を in-phase で行うという観点から、水素拡散解析と熱伝導解析では λ_{Dif} と λ_{Heat} によって、それぞれ異なる時間幅を有するため、 λ_{Dif} と λ_{Heat} の最適比についての検討が必要と考えられる。

謝辞

本研究の一部は、総合科学技術・イノベーション会議の SIP（戦略的イノベーション創造プログラム）「革新的構造材料」（管理人：JST）によって実施されました。また、湘南工科大学 大見敏仁 准教授にもご協力いただいた。ここに記し謝意を表します。

- [1] A. T. Yokobori, Jr., T. Nemoto, K. Satoh and T. Yamada, *Engineering Fracture Mechanics*, Vol. 55, No. 1, pp. 47-60 (1996).
- [2] A. T. Yokobori, Jr., T. Ohmi, T. Murakawa, T. Nemoto, T. Uesugi and R. Sugiura, *Strength, Fracture and Complexity*, Vol. 7, No. 2, pp. 215-233 (2011).
- [3] G. Ozeki, A. T. Yokobori, Jr., T. Ohmi, T. Kasuya, N. Ishikawa, S. Minamoto and M. Enoki, *Proceedings of the ASME 2018 Pressure Vessels and Piping Conference*, PVP2018-84178.
- [4] G. Ozeki, A. T. Yokobori, Jr., T. Ohmi, T. Kasuya, N. Ishikawa, S. Minamoto and M. Enoki, *Advanced Materials Letters*, Vol. 9, No. 10, pp.677-683 (2018).
- [5] A. T. Yokobori, Jr., G. Ozeki, T. Ohmi, T. Kasuya, N. Ishikawa, S. Minamoto and M. Enoki, *Materials Transactions*, 60,2(2019),pp.222-229.
- [6] JIS Z 3158, Method of y-groove weld cracking test (2016).
- [7] Y. Mikami, N. Kawabe, N. Ishikawa and M. Mochizuki, *Quarterly Journal of the Japan Welding Society*, Vol. 34, No. 2, pp.67-80 (2016), (in Japanese).
- [8] K. Satoh, T. Terasaki and Y. Yamashita, *J. of the Japan Welding Society*, Vol. 48, No. 7(1979), pp.504-509 (1979), (in Japanese).
- [9] A. T. Yokobori Jr. and T. Ohmi, *Strength, Fracture and Complexity*, Vol. 8, No. 2, pp.117-124 (2014).
- [10] 横堀壽光, 大見敏仁, 根本剛直, 上杉智治, 東北大学 大規模科学計算システム広報 SENAC, Vol.42, No. 4 (2009), pp.27-35.
- [11] S.V. Patankar, *Numerical heat transfer and fluid flow*, Translated by:Y. Mizutani and M. Katsuki, p. 70, Morikita Pub. (1985), in Japanese.
- [12] 尾関郷, 横堀壽光, 大見敏仁, 小川道夫, 糟谷正, 東北大学 大規模科学計算システム広報 SENAC, Vol. 54, No. 2 (2021).

(先導的重点課題, 共同研究分野: 接合設計学分野)

一般公募研究課題・研究報告書

1. 研究背景

マグ溶接においてスラグは溶接部の酸化防止に寄与する反面、ビード上に定着することで塗装不良による腐食の原因となる。そのため溶接後にスラグを除去する必要があるが、ビード止端部に定着したスラグの除去には時間を要するため、生産効率低下の一因となっている。この除去工程を短縮するため、スラグの定着位置の制御を目的としたマグ溶接中のスラグ輸送過程の解明が期待されている。スラグの輸送にはスラグ上を流れる気流の他、4つの溶融池駆動力(Marangoni 効果による力、表面せん断力、Lorentz 力、浮力)が影響すると考えられる。そのためスラグ輸送過程の解明には、個々の駆動力がスラグの輸送に及ぼす影響を調査する必要があるものの、実験観察によって明らかにすることは困難である。

そこで本研究では粒子法を用いてスラグの輸送に特に影響を与えると考えられる上記4つの溶融池駆動力および気流がスラグに与える力をモデル化し、これらを個別に作用させた数値実験を行い、溶融池表面でのスラグの挙動からマグ溶接中のスラグ輸送過程の解明を試みた。

2. 計算モデル

本研究において溶融金属の運動は、外力として上記の4つの溶融池駆動力と法線方向の表面張力を考慮した Navier-Stokes 方程式によって決定される。

$$\frac{D\vec{u}_a}{Dt} = -\sum_b m_b \left(\frac{p_a}{\rho_a^2} + \frac{p_b}{\rho_b^2} \right) \nabla_a W_{ab} + \frac{2\delta}{\lambda_a n_a \rho_a} \sum_{b \neq a} \frac{\mu_b + \mu_a}{2} (\vec{u}_b - \vec{u}_a) W_{ab} + \frac{\vec{F}_a}{\rho_a} \quad (1)$$

$$\vec{F}_a = \frac{\partial \gamma S_a (\vec{\eta}_a \times \nabla T_a \times \vec{\eta}_a)}{\partial T} + \frac{\tau_a S_a}{V_a} + \vec{j}_a \times \vec{B}_a + (T_a - T_0) \beta \rho_a \vec{g} + \frac{1.2\gamma h}{V_a} \sum_b f_{ab}^{\text{attract}} \quad (2)$$

u は速度、 t は時間、 p は圧力、 δ は空間次元数($\delta = 3$)である。 λ 、 n は粒子法の1種である MPS (Moving Particle Semi-implicit)法¹⁾におけるパラメータおよび粒子数密度であり、 μ は粘性係数、 F は外力である。式(1)において右辺第1項は圧力勾配項、第2項は粘性項、第3項は外力項を表している。 F を示す式(2)においては、右辺の各項は Marangoni 効果による力、表面せん断力、Lorentz 力、浮力と法線方向の表面張力を表している。

本研究においてスラグは、Koshizuka ら²⁾の計算モデルを適用し剛体として表現している。このスラグの運動は外力としてスラグが溶融池の流動によって受ける力に加え、スラグが気流から受ける力 \vec{f}_{drag} を式(3)のように考慮した Newton の運動方程式によって決定される。

$$\vec{f}_{\text{drag}} = \sum_{i=1}^N \mu_{\text{MAG}} S \frac{(\vec{u}_{\text{MAG}i} - \vec{u}_i)}{dz} + 2 \sqrt{\frac{N}{\pi}} \left(\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{1}{2} C_{D_i} \rho_{\text{MAG}} A (\vec{u}_{\text{MAG}i} - \vec{u}_i)^2 \frac{\vec{u}_{\text{MAG}i} - \vec{u}_i}{|\vec{u}_{\text{MAG}i} - \vec{u}_i|} \right) \quad (3)$$

式(3)の右辺第1項は摩擦抗力、第2項は圧力抗力を表している。また、 N はスラグを構成する粒子数、 μ_{MAG} はシールドガスの粘性係数、 S は粒子の断面積、 $u_{\text{MAG}i}$ は剛体粒子 i 直上のシールドガス流の速度、 u_i は剛体粒子 i の速度、 dz は母材表面からの距離(0.1 mm)、 C_D は抵抗係数、 ρ_{MAG} はシールドガスの密度、 A は粒子の代表面積である。

本計算において、母材は長さ 30.0 mm × 幅 17.5 mm × 厚さ 5.0 mm の軟鋼と設定している。スラグの形成過程は簡略化し、熱源の中心から同心円状の領域($1.5 \text{ mm} \leq R \leq 3.0 \text{ mm}$)で 60°毎に 30°の幅を持つ

4つの扇状の領域内の表面粒子を0.5 s毎に剛体粒子に変えることでスラグの発生を取り扱っている。

3. 計算結果および考察

Fig. 1に各駆動力を個別に作用させた計算結果における、計算開始から3.2 s後の溶融池表面の力の分布を示す。矢印の向きは力の方向を、粒子の色は力の大きさを示しており、黒の点は熱源中心位置を示している。計算結果から、Fig. 1(a)のMarangoni効果による力とFig. 1(b)のLorentz力は溶融池端部から熱源中心部に向かう方向に、Fig. 1(c)の表面せん断力とFig. 1(d)の気流による抗力は熱源中心部から溶融池端部の方向にはたらいっている。力の大きさはMarangoni効果による力は溶融池端部で大きい。また、Lorentz力、表面せん断力、気流による抗力は熱源中心近傍で大きく、3つの力の最大値を比較すると、Lorentz力が他の2つの力に比べて小さい。そのため熱源近傍に発生したスラグには、主に表面せん断力と気流による抗力がはたらき、スラグは溶融池端部へと輸送される。その後、溶融池後方に輸送されたスラグには、気流の影響が小さくなることでMarangoni効果による力が主な駆動力となる。その結果、溶融池後方のスラグは溶融池中央部へ輸送される。以上のような過程で、溶融池表面においてスラグの輸送が生じることが本計算によって示唆された。

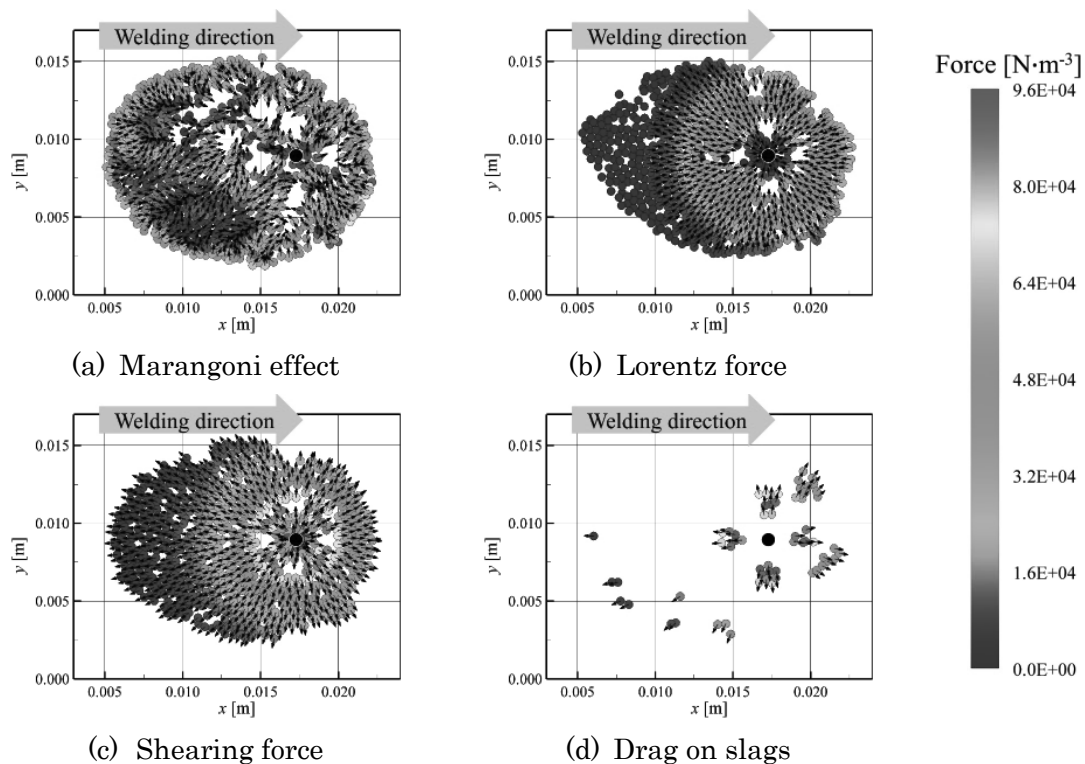


Fig. 1 Instantaneous distributions of individual driving forces on weld pool surface.

参考文献

- 1) S. Koshizuka and Y. Oka, Nucl. Sci. Eng., 121(3) (1996), 421-434.
- 2) S. Koshizuka, A. Nobe and Y. Oka, Int. J. Numer. Methods Fluids, 26 (1998), 751-769.

(共同研究分野：エネルギー制御学分野)

1. 研究背景

自動車の燃費向上を目的とした車体軽量化の観点から、鋼とアルミニウム合金の異材抵抗スポット溶接技術の確立が急務とされている。しかしながら、鋼とアルミニウム合金の接合界面には脆弱な金属間化合物 (IMC: Intermetallic compound) 層が形成され、継手強度が低下する[1]。このような IMC の形成にはナゲット形成過程の熔融金属の流動が大きく影響していると考えられるが[2]、その詳細は明らかになっていない。そこで本研究では、異材抵抗スポット溶接中の電磁気力と Marangoni 効果による力を考慮した熔融・凝固過程の3次元粒子法シミュレーションによって、ナゲット中の熔融金属の流動現象を明らかにすることを目的とした。また、異材接合において接合部の強度低下の一因となる上述の IMC 層の成長過程の予測も試みた。

2. 計算手法

本研究では通電によって被溶接材料の一部が熔融し、その流動過程をシミュレートする。ある熔融金属粒子 a の速度は、電磁気力と Marangoni 効果による力を考慮した次式の Navier-Stokes 方程式から求められる。

$$\frac{D\vec{u}_a}{Dt} = - \sum_b m_b \left(\frac{p_a}{\rho_a^2} + \frac{p_b}{\rho_b^2} \right) \nabla_a W_{ab} + \frac{2D}{\rho_a \sum_b |\vec{r}_{ab}|^2} W_{ab} \sum_{b \neq a} \frac{\mu_a + \mu_b}{2} (\vec{u}_b - \vec{u}_a) W_{ab} + \frac{1}{\rho_a} (\vec{j}_a \times \vec{B}_a + \vec{M}_a) \quad (1)$$

u は速度、 t は時間、 b は粒子 a の近傍粒子、 m は質量、 p は圧力、 ρ は密度、 W は粒子 a と b の相対距離 $|\vec{r}_{ab}|$ によって決まるカーネル関数、 D は次元数、 μ は粘性係数、 j は電流密度、 B は磁束密度、 M は Marangoni 効果による力である。粒子の温度変化は Joule 発熱と接触抵抗による発熱を考慮したエネルギー輸送方程式である次式から計算する。

$$\frac{DT_a}{Dt} = \frac{2D}{\rho_a C_a \sum_b |\vec{r}_{ab}|^2} W_{ab} \sum_b \frac{2\kappa_a \kappa_b}{\kappa_a + \kappa_b} (T_b - T_a) W_{ab} + \frac{|\vec{j}_a|^2}{\rho_a C_a \sigma_a} + \frac{R_c |\vec{j}_a|^2 S_a}{\rho_a C_a V_a} \quad (2)$$

T は温度、 C は比熱、 κ は熱伝導率、 σ は電気伝導度、 R_c は接触電気抵抗であり、 S 、 V は粒子の断面積および体積を表している。また本計算では電磁気力や、Joule 発熱および接触抵抗による発熱を計算するため、被溶接材料内の電流密度分布が必要である。そこで本計算モデルでは電流保存則に Ohm の法則を代入して電位を変数として書き換えた式を、粒子法の一つである MPS (Moving Particle Semi-implicit) 法の離散化アルゴリズムに従って離散化している。そして、この式を用いて電位の繰返し計算を行うことで、被溶接材料中の電流密度場を計算している。磁束密度については、計算領域中のベクトルポテンシャルを用いて計算している。

3. 計算領域および計算条件

Fig. 1 に計算領域を示す。計算領域は3次元とし、粒子によって構成される電極と被溶接材料を設置している。図中の黒色は電極、濃灰色は軟鋼、淡灰色はアルミニウム合金を示している。なお、電極中心軸を通る軟鋼とアルミニウム合金の接触界面に原点を置いている。被溶接材料および電極は直径 0.1 mm の計算粒子 105096 個によって構成されている。計算に用いる時間刻みは 5 μ s と設定して 100 ms 間計算を行い、通電は計算開始とともに進行。計算時間の内訳は通電時間が 60 ms、実施工における加圧保持時間と冷却時間を想定した無通電時間が 40 ms である。また本研究では計算領域の大きさを考慮して溶接電流を 8 kA として計算を行う。したがって溶接電流が 8 kA になるように、各電極の持つ電位は z 軸方向に見て被溶接材料の上にある上部電極の電位を 1.3 V、下にある下部電極の電位を 0 V と設定している。

本計算モデルは簡単のため、以下の仮定を設けている。①電極による被溶接材料の加圧は考慮せず、固体の領域は変形しない。②電極は水冷されているものとし、電極の温度上昇は無視する。③電極間の通電によって発生する Joule 発熱は被溶接材料全体で生じる。④接触電気抵抗は固体の被溶接材料同士の接触面での

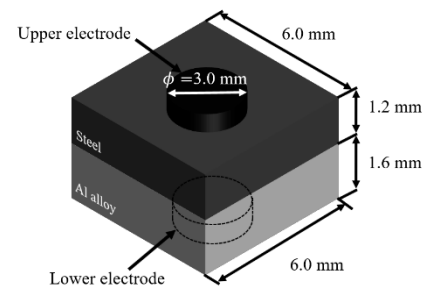


Fig. 1 Computational domain.

み生じる。⑤被溶接材料と電極の接触面における発熱は生じない。⑥物性値の温度依存性はなく一定とする。

4. 計算結果

Fig. 2 に通電期間終了時の $t = 40.0$ ms における、電極中心軸を通る xz 断面での粒子の状態分布を示す。各粒子の色は、黒色が電極、濃灰色が固体状態の軟鋼、淡灰色が固体状態のアルミニウム合金、赤色が溶融した軟鋼、青色が溶融したアルミニウム合金を表している。図より、アルミニウム合金の溶融域は接触界面から半楕円球状に、軟鋼の溶融域は板の中央部から楕円球状に形成されていることがわかる。

Fig. 3 に同時刻における速度分布を示す。図は電極中心軸を通る xz 断面の速度分布であり、色は速度成分の大きさを、矢印の向きは速度ベクトルの向きを示している。また、この図は粒子が存在する計算領域上に粒子直径に等しい間隔を持つ格子を作成し、任意の格子点においてカーネル平均処理を行った後、時間刻み 5 ステップ分 で時間平均を取ることによって空間的、時間的に溶融金属の速度場を平均化した結果である。図の視認性の観点から、矢印の描画は格子点 2 つ毎に表示しており、図中の黒線はナゲット領域の境界である固液界面を示している。

図より、軟鋼の溶融域では周囲から中央に向かって溶融金属が流れ、溶融域端部において中央部よりも速度が大きい領域が生じていることがわかる。同様にアルミニウム合金の溶融域ではナゲット底部近傍で溶融金属が中央部に向かって流れ、上方に対流方向を変えて接合界面に到達した後、中央から周囲に向かう流れが生じていることがわかる。これはアルミニウム合金の溶融域の上下で電流密度と磁束密度が異なり、それらが $j \times B$ で表される電磁気力の差として表れるためである。

Fig. 4 に、接合界面の座標 A から E の各点 ($x = -1.5, -0.75, 0.0, 0.75, 1.5$ mm, $y = 0.0$ mm, $z = 0.0$ mm) での時間経過に伴う IMC 層の成長過程を示す。本計算では各測定点の温度が $t = 20.0$ ms から 60.0 ms の区間で順次アルミニウム合金の融点を超えるが、金属間化合物もこの時刻において急激に厚くなっていることがわかる。また金属間化合物はアルミニウム合金の界面中央部 (点 C) 付近で厚く、界面端部 (点 A, E) になるほど薄くなる傾向になる。本計算は実施工と比較して被溶接材料の板幅が狭く、同じ溶接条件で行った実験結果との比較ができていないものの、IMC が界面中央部付近で厚く、界面端部で薄くなる傾向は定性的に一致した。したがって本研究で構築した、粒子法による異材抵抗スポット溶接中の対流熱輸送を考慮した溶融・凝固過程の計算モデルは、溶融金属の対流を考慮しつつナゲットの形成過程や IMC の成長過程をシミュレートできることが示された。

参考文献

- [1] M. Yasuyama, K. Ogawa, and T. Taka, "Spot welding of Aluminum and Steel Sheet with insert of Aluminum Clad steel sheet", Quarterly Journal of Japan Welding Society, Vol. 14, No.2, 314-320 (1996).
- [2] 立花瑞樹, 永瀬裕也, 伊與田宗慶, "Fe-Al 異材抵抗スポット溶接時の Al 溶融部内における対流現象の可視化", 日本機械学会 関西学生 2020 年度学生員卒業研究発表講演会(2020).

(共同研究分野：エネルギー制御学分野)

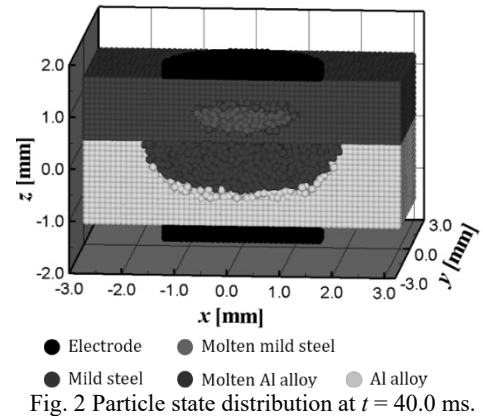


Fig. 2 Particle state distribution at $t = 40.0$ ms.

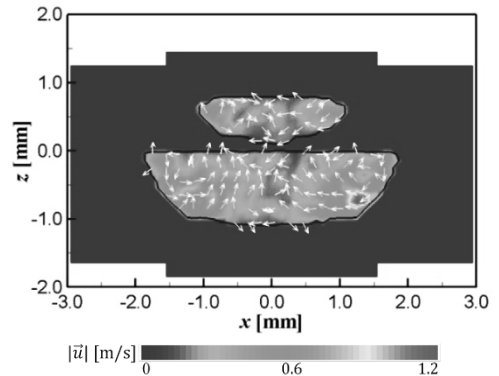


Fig. 3 Velocity distribution of xz cross-section at $t = 40.0$ ms.

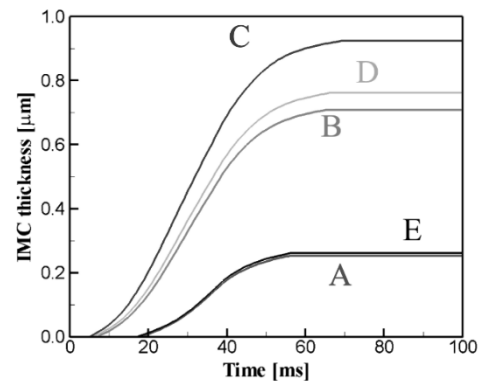


Fig. 4 Al-steel interfacial IMC layer thickness

溶接アーク現象，溶融池現象および溶接輸送現象解析 疑似火星大気中における交流 GTA の計測

香川高等専門学校機械電子工学科

正箱 信一郎

香川高等専門学校専攻科創造工学専攻

青山 海斐

1. 目的

米国のバラク・オバマ元大統領は 2030 年代半ばを目標に火星の有人探査計画を発表し，火星有人探査のための基礎研究が進められている．火星の平均大気圧は 750 Pa であるため，構造物内の気密を保つために構造物材料間を密閉する溶接技術が必要と考える．また，輸送コストを考慮すると，構造物の金属材料には軽量なアルミニウム合金が適していると考えられる¹⁾．地球大気下では，アルミニウム合金の溶接に母材表面の酸化膜を除去しながら母材を溶融させる，交流 GTA (Gas Tungsten Arc) 溶接が用いられる．吹田ら，正箱らにより交流 GTA 溶接が真空チャンバ内に擬似的に作製した火星大気中で適用可能であると報告されているが¹⁾，作成した溶接接手に溶接欠陥が発生することや³⁾，大気圧や溶接パラメーターの設定によってはアークが不安定になる等，疑似火星大気中での交流 GTA をコントロールできているとは言えない．そこで本研究では，疑似火星大気中の交流 GTA における電子密度分布を計測し，まずはその特徴を調査することを目的とした．計測は真空チャンバ外から行うことが必要であるため，計測システムを整えることに重点を置き研究を進めた．

2. 研究方法

火星は大気圧 600~1000 Pa かつ大気成分の 95 %以上が CO₂ であるため，真空チャンバ内を減圧して工業用 CO₂ ガスを導入し，真空ポンプによる排気とのバランスで 1000 Pa の火星大気を擬似した．

疑似火星大気中で発生させた交流 GTA(200 Hz)を中心波長 0.96 μm のバンドパスフィルタを装着した高速度カメラ(5000 fps)で真空チャンバ外から石英窓を通して撮影し，アークの赤外線像を取得した．Fig.1 に実験装置と撮影の状況を示す．撮影したアークの赤外線像を，赤外線放射プラズマ診断法 (IR 法)⁴⁾を用いて画像処理し，電子密度分布へ変換した．なお，光速度カメラで撮影される輝度は，電気炉と放射温度計を利用して放射強度へ校正した．

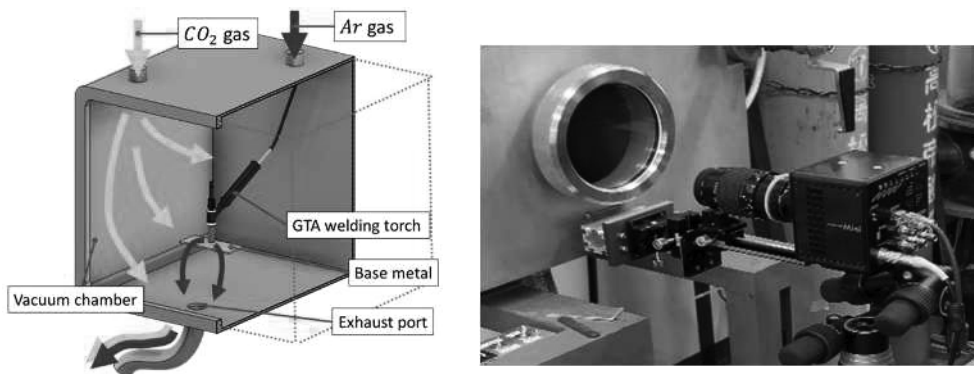


Fig.1 Experimental setup

3. 結果

高速度カメラによって撮影した地球および疑似火星大気中の交流 GTA の EN(Electrode negative)および EP(Electrode positive)時の赤外線輝度分布を Table 1 に示す．トーチからは Ar ガスを 2 L/min 流し，アーク電流は 100 A，アーク長は 3 mm とした．地球大気中に比べて疑似火星大気中におけるアーク光は発光強度が弱いため，多くの光を取り込むようカメラの撮影条件を設定した．

カメラに多くの光を取り込む疑似火星大気中では、電極周りの輝度が飽和し、肥大化して見えていることが Table 1 から確認できる。Table 1 より疑似火星大気中では、EN 時に拡散したアークが観測され、EP 時はアーク光に対して電極からの光が強すぎるため撮影が困難であった。

Table 2 に、Table 1 の赤外線像から電子密度分布を算出した結果を示す。これまでにシミュレーションされている直流 GTA の電子密度は $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 程度である⁵⁾。今回は交流 GTA であるが、Table 2 に示した地球大気中の EN 時の最大電子密度も同程度であった。疑似火星大気中ではアークが広範囲に拡散し、電子密度が地球大気に比べワンオーダー程度低いことが確認できた。疑似火星大気中の場合、母材表面のクリーニングされた範囲が直径 100 mm 以上に及ぶことから²⁾、EP の場合はかなり広範囲にアークが及ぶと予測される。しかし Table 1 に示したように今回のカメラの設定では電極から離れた範囲のアークを捉えることができなかった。電極周辺と電極から離れた部分それぞれにフォーカスした映像を別に撮影して合成する等、何らかの工夫が必要である。また、今回算出した電子密度値が正しいものか、ラングミュアプローブ法等、別の方法で測定して確認する必要がある。

4. 結論

今回得られた知見を以下に示す。

(1) 高速度カメラと赤外線透過フィルターを利用することで、疑似火星大気中での交流 GTA の電子密度分布を計測することができたが、赤外線の強度が弱いために EP 時の計測が困難であった。

(2) 地球大気中に比べ、疑似火星大気中でのアークは拡散しており、電子密度の最大値はワンオーダー程度低いことがわかった。

5. 参考文献

- 1) 吹田義一, 正箱信一郎, 白井瑞生, 佐藤亮太, 寺嶋昇, 山下雅弘: 疑似火星大気での GTA 溶接および GHGA 溶接実験, 溶接学会論文集, 32-2(2014), 107-113.
- 2) 正箱信一郎, 浜野修, 山下智彦, 相馬岳, 寺嶋昇: 疑似火星大気における交流 GTA の安定性とクリーニング作用の観察, 溶接学会論文集 39-3 (2021), 151-157.
- 3) 藤原康平, 原田佑樹, 島航洋, 正箱信一郎, 寺嶋昇: 疑似火星大気における溶接継手内のブローホール発生機構, 第 24 回溶接学会四国支部講演大会講演概要集, (2019), 15-16.
- 4) 正箱信一郎, 黄地尚義: Hollow Cathode Arc の熱源特性—赤外線放射プラズマ診断法による電子密度計測—, 鉄と鋼, 91-7(2005), 575-580.
- 5) 田中学: アーク及びティグ溶接, 溶接学会誌, 77-2(2008), 50-60.

(共同研究分野: エネルギー制御学分野)

Table 1 Infrared Image of AC-GTA

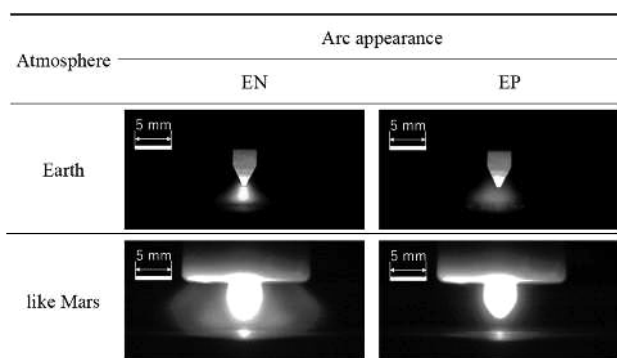
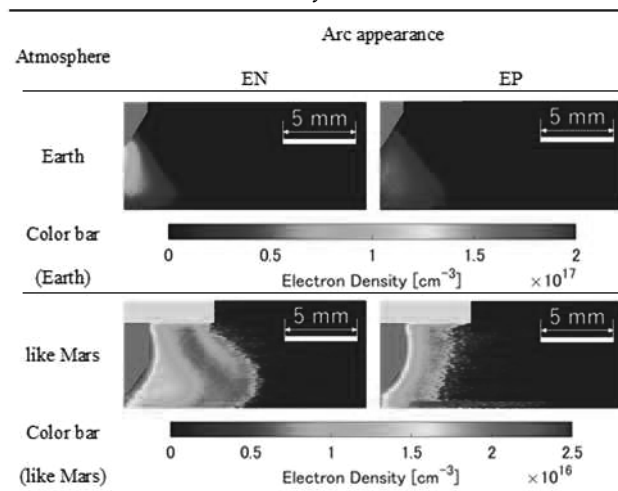


Table 2 Electron density distribution of AC-GTA



1. 緒言

近年、ティグ溶接中に熔融池表面から生じる金属蒸気は、アークプラズマ空間においてイオン化しており、電気泳動によってタングステン電極表面へと輸送される領域が存在することが明らかとされた[1-4]。また、輸送された金属イオンは電極表面へ堆積し、熔融・拡散することで電極表層のタングステン濃度を低下させており、それに伴い電極の融点が降下することで電極が熔融・変形することも明らかとされた[5]。このとき、電極表面の一部領域へ集中するように金属イオンは堆積していたが、その堆積の可否を決定づける条件については不明瞭なままである。そこで本研究では、ティグ溶接中の電極表面状態に着目し、2種類の電極を使用することで金属蒸気の堆積による電極汚染領域と電極表面状態の関係を調査した。

2. 実験方法

Table 1 に本研究における実験条件を示す。陰極には直径 3.2 mm、先端角 60 度の 2 wt.%酸化ランタン入りタングステン電極および 2 wt.%酸化セリウム入りタングステン電極、陽極には純クロム板 (50 mm×50 mm×9 mm thick) を用いて静止ティグ溶接を行った。溶接中は中心波長 980 nm(半値幅: 10 nm) のバンドパスフィルタを備えた高速度カメラにて電極表面状態を撮影した。撮影速度は 100 fps、露光時間は 996 μs と設定した。溶接後には電極先端部を切断・採取し、熱硬化性樹脂に埋め込み、電極の軸方向に対する中心断面が現れるよう研磨した。そして鏡面仕上げされた電極中心断面に対して、エネルギー分散型 X 線分析 (EDS: Energy Dispersive X-ray Spectroscopy) を用いて元素マッピングを行った。

Table 1 Experimental conditions.

Welding current	150 A
Shielding gas	Pure helium
Gas flow rate	25 L·min ⁻¹
Electrode extension	3.0 mm
Arc length	3.0 mm
Welding time	60 s

3. 実験結果

Fig. 1 にアーク点弧から 60 秒後における溶接中の電極先端部の写真をそれぞれ示す。(a) 2 wt.%酸化ランタン入りタングステン電極表面では電極先端から上部約 1.3 mm、(b) 2 wt.%酸化セリウム入りタングステン電極表面では電極先端から上部約 2.1 mm 以上の領域(A 領域)において凸型の変形が見られた。一方、電極先端に向かう領域(B 領域)では電極の変形は見られなかった。Fig. 2 に 60 秒間溶接後の電極先端部の写真を示す。Fig. 1 で観察された形状と類似しており、形状に関しては溶接後と溶接中の状態にほとんど差異が無いことが確認された。Fig. 3 に溶接後の電極中心断面に対する元素分析結果を示す。いずれの電極も A 領域、特に凸型の変形箇所以上の領域において陽極成分である Cr が検出されており、熔融池由来の金属蒸気による汚染が認められた。一方、B 領域においては Cr がほとんど検出されていなかった。

本実験で用いた 2 種類の電極使用時に形成されるアルゴンアークプラズマの温度場やアーク電圧に大きな差は生じない[6]。ヘリウムティグ溶接でも同様であるならば、熔融池表面から生じる金属蒸気量や電気泳動によって電極近傍まで輸送される金属イオン量も同等であると考えられる。しかしながら、電極の汚染領域は異なっていた。これは電極表面状態に起因した差異だと考えられる。2 wt.%酸化ランタン入りタングステン電極使用時に比べ、2 wt.%酸化セリウム入りタングステン電極使用時は電極表面温度が高く、かつ電極先端表面を覆う熔融添加物領域は広い[6]。そのため、電極の汚染領域がさらに上部の領域になっていたと考えられる。

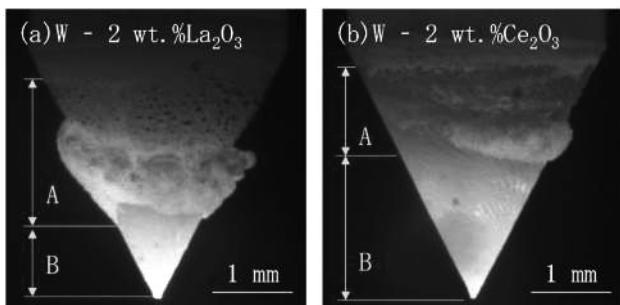


Fig.1 Photographs of tungsten electrode tip at 60 seconds after arc ignition.

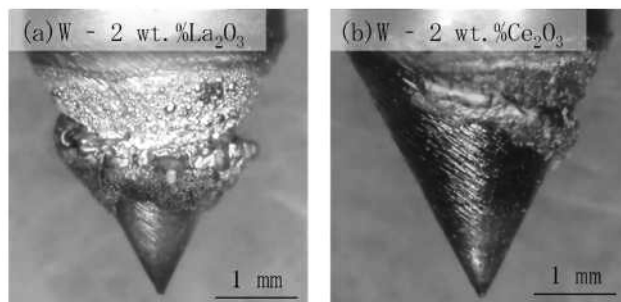


Fig.2 Photographs of tungsten electrode tip after welding for 60 seconds.

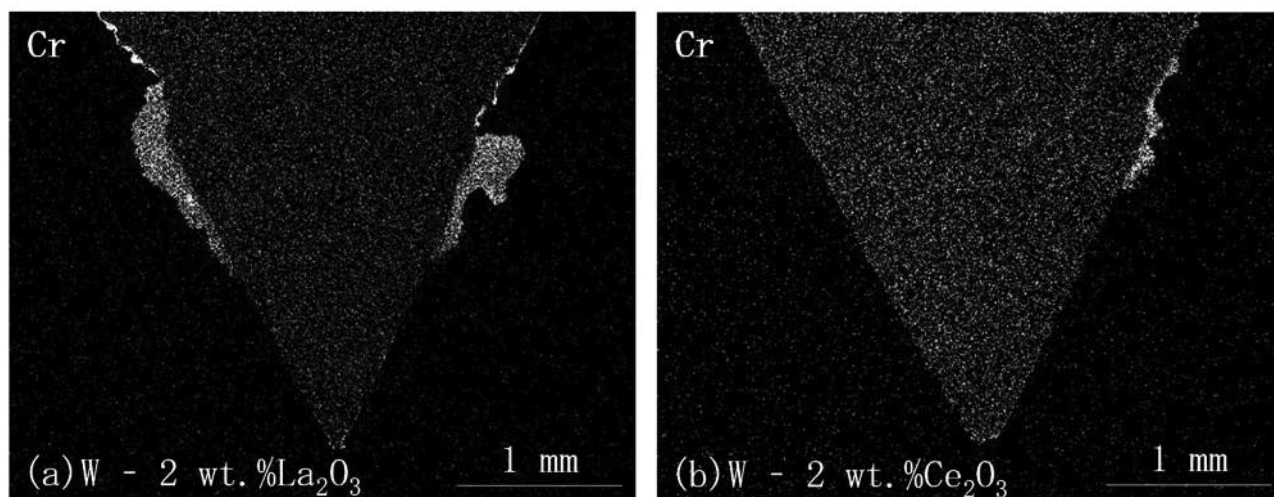


Fig.3 Cross-sectional elemental mappings for the tungsten electrode after welding for 60 seconds.

4. 結言

ティグ溶接中において溶融池表面から生じる金属蒸気によって汚染される電極領域は、溶接時に使用する電極種によって異なることが明らかとなった。この差異は電極表面温度または電極表面状態の違いによるものだと考えられた。つまり、電極表面温度が高い、あるいは電極表面が液相状態であれば、金属蒸気による汚染が抑制されると考えられる。今後、溶接中の電極表面温度計測などを実施することで詳細なメカニズムの解明が期待される。

5. 参考文献

- [1] H. Park et al., *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50** (2017), 43LT03.
- [2] H. Park et al., *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51** (2018), 395202.
- [3] K. Tanaka et al., *J. Phys. D: Appl. Phys.* **52** (2019), 354003.
- [4] K. Tanaka et al., *J. Phys. D: Appl. Phys.* **53** (2020), 42520.
- [5] K. Tanaka et al., *Sci. Tech. Weld. Join.*, **26** (2021), 258-263.
- [6] M. Tanaka et al., *Mater. Sci. Forum*, **580-582** (2008), 319-322.

(共同研究分野：エネルギー制御学分野)

1. 研究背景

サブマージアーク溶接 (SAW: Submerged Arc Welding) は粒状フラックスの中で溶接を行う施工法であり、太径のワイヤを使用して高電流で溶接できること等から他の方法と比べて高能率な溶接法である。この溶接後の接合部の品質を大きく左右する要因として SAW 特有の溶滴移行形態である壁面移行形態が挙げられる。この溶滴移行形態が生じた際には、接合部に欠陥が生じる場合があることが報告されている。したがって壁面移行形態となるメカニズムが解明できれば、この移行形態が生じないような溶接条件の選定や、プロセス制御の設計に寄与すると考えられる。

しかしながら SAW はフラックスで接合部が覆われているため、実験による観察が困難である。そこで本研究では SPH (: Smoothed Particle Hydrodynamics) 法を用いた数値計算モデルを開発し、SAW 中の壁面移行形態の溶融金属挙動を解明することを目的としてシミュレーションを試みる。

2. 計算手法

SPH 法において粒子 a の運動は、その周辺に存在する粒子 b との相互作用を考慮した次式で求められる。

$$\frac{D\vec{u}_a}{Dt} = - \sum_b m_b \left(\frac{p_a}{\rho_a^2} + \frac{p_b}{\rho_b^2} \right) \nabla_a W_{ab} + \frac{2\delta}{\lambda_a n_a \rho_a} \sum_{b \neq a} \frac{\mu_b + \mu_a}{2} (\vec{u}_b - \vec{u}_a) W_{ab} + \frac{\vec{F}_a}{\rho_a} \quad (1)$$

ここで u , t , m , p , ρ , W , δ , μ , F はそれぞれ速度, 時間, 質量, 圧力, 密度, カーネル関数, 空間次元数, 粘性係数, 外力を示し, λ はパラメータ, n は粒子数密度である。外力 F には電磁気力, キャビティ内の圧力, 気流とのせん断力, 重力を考慮している。

Fig. 1 に計算領域を示す。全粒子の直径は $50 \mu\text{m}$ とし, 軟鋼の物性値¹⁾を与える。電磁気力やキャビティ内の気流の速度や圧力は溶接電流を 250 A とした先行研究²⁾の計算結果を用い, 時間刻み $10 \mu\text{s}$ で計算を行う。なお本計算では温度計算は行わず, ワイヤを構成する粒子はワイヤ先端の初期位置から下に移動した瞬間に液体粒子になると仮定している。

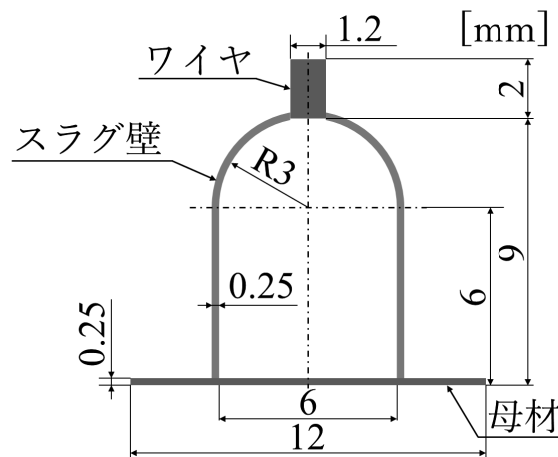


Fig. 1 計算領域

3. 結果・考察

Fig. 2 に計算結果を示す。時間経過と共にワイヤ先端で形成された液柱がスラグ壁に衝突し, その先端から溶滴が離脱しており, SAW 中の壁面移行形態の挙動の再現に成功している。溶滴径の平均値を実験結果²⁾と比較すると差は約 19%となった。実際の壁面移行形態では溶滴径のばらつきが大きいことを考慮すると, 妥当な計算結果が得られたといえる。

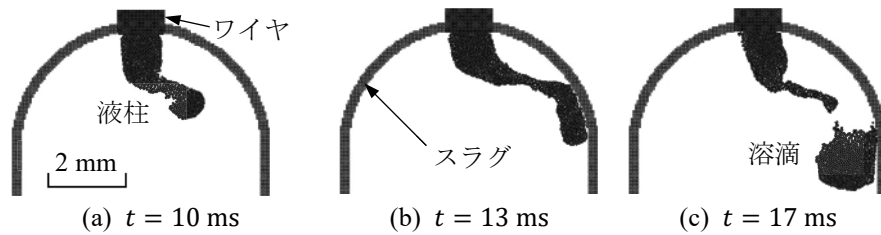


Fig. 2 時間経過に伴う壁面移行の様子

Fig. 3 に、Fig. 2(b)における電磁気力分布とキャビティ内の圧力分布を示す．図中の矢印は各力が作用する方向を示している．図より、電磁気力は液柱を絞るように、圧力は液柱を押し上げるように作用していることがわかる．これらが複合的に作用することで、ワイヤ先端に形成された液柱が押し上げられて壁面に衝突し、その先端から溶滴が離脱すると考えられ、SAW 中の壁面移行形態のメカニズムが示唆された．

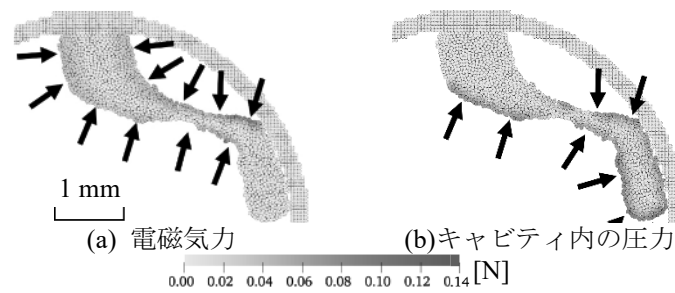


Fig. 3 熔融金属に作用する駆動力

Fig. 4 に各駆動力を考慮しなかった場合の数値実験結果を示す．電磁気力を考慮しなかった場合では溶滴がワイヤ先端から離脱せず、大きな溶滴を形成していることがわかる (Fig. 4(a))．したがって、溶滴の離脱には電磁気力が大きく寄与しているといえる．キャビティ内の圧力を考慮しなかった場合では、液柱が鉛直下方向に成長し、その先端から溶滴が離脱している (Fig. 4(b))．このことから、キャビティ内の圧力は液柱を押し上げ、スラグ壁に向かって運動させる駆動力であるといえる．気流とのせん断力を考慮しなかった場合では Fig. 2 と同様の壁面移行形態の挙動を示している (Fig. 4(c))．したがって、壁面移行形態における気流とのせん断力の影響は小さく、電磁気力とキャビティ内の圧力が共に作用すれば壁面移行形態が生じることが明らかとなった．

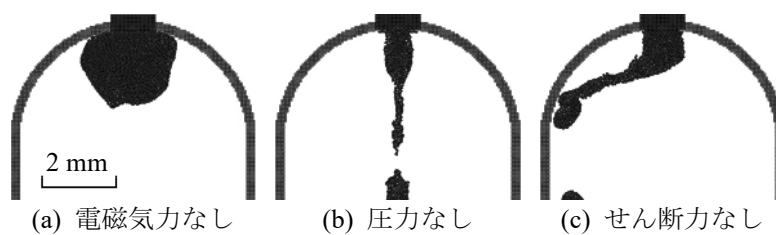


Fig. 4 各駆動力を考慮しなかった場合の計算結果

4. 結論

本研究では SPH 法を用いた数値計算モデルを開発し、SAW 中の壁面移行形態の熔融金属挙動を解明することを目的としたシミュレーションを試みた．その結果、壁面移行形態を再現することに成功し、妥当な計算結果が得られた．また熔融金属に作用する各駆動力が、壁面移行形態に及ぼす影響が数値実験により明らかとなった．

参考文献

- 1) Y. B. Li et al.: J. Appl. Phys., 101(5) (2007), 053506.
- 2) 古免ら: 溶接学会論文集, 35(2) (2017), pp. 93-101.

(共同研究分野：エネルギー制御学分野)

溶接アーク現象，溶融池現象および溶接輸送現象解析
電磁力を用いた高品質・高効率 GMA 溶接の研究

所属：琉球大学 工学部

氏名：松田昇一

1. 目的

マグ溶接や炭酸ガス溶接などのガスメタルアーク (GMA) 溶接は，一般に高電流密度の溶接法であるため，溶着速度が大きく，溶込みが深い高効率な溶接法である。しかしながら GMA 溶接は溶接ワイヤが電極を兼ねており，電極が溶融することから，熱源が時間的・空間的に変動する。そのためアークが不安定になり，スパッタが発生しやすく，溶接欠陥が生じやすい。特に溶接電流が大きく溶接速度が速い場合は，アンダーカットやハンピングビード等の溶接欠陥が発生しやすい。また磁気吹き現象が生じやすくアークが乱れる場合がある。これらの欠点は，溶接電源のパルス化や適正な溶接条件の設定，ワイヤやシールドガス等の選定およびアース位置の検討により軽減されるが，コスト面を考慮すると，特に実際の施工現場では対処が難しい場合がある。そこで我々は，GMA 溶接中のアークおよび溶融池に外部磁場を付加することにより，アーク中および溶融池内に生じる電磁力を用いて，アークの安定化およびスパッタやハンピングビード等の溶接欠陥の低減を試みた。

本研究は昨年度からの継続研究で有り，本年度は特に付加する外部磁場の分布形状を工夫し，その外部磁場がアークの形状 (偏向) に及ぼす影響およびアークの挙動がビード外観および形状に及ぼす影響を詳細に調べた。

2. 実験装置および方法

外部磁場を付与する GMA 溶接の実験装置構成図を図 1 に示す。実験装置は主にトーチ，2つの磁化コイルおよび母材で構成されている。トーチはプラス極，母材はマイナス極に接続した。外部磁場を発生させる2つの磁化コイルは，母材の下側にビードを跨ぐように設置した。付加する交流磁場 (磁化電流) の波形 (矩形波) 例を図 2 に示す。図 2 においてプラスの電流が流れている時はアーク中には前向き電磁力が生じるため，アークは溶接方向前方に傾く。マイナスの場合，アークは後方に傾く。これまでの予備実験の結果よりアークが前方に大きく傾いた場合，溶融池前方に多数の陰極点が観測され，瞬間的に溶込みは増加するがアークが不安定に

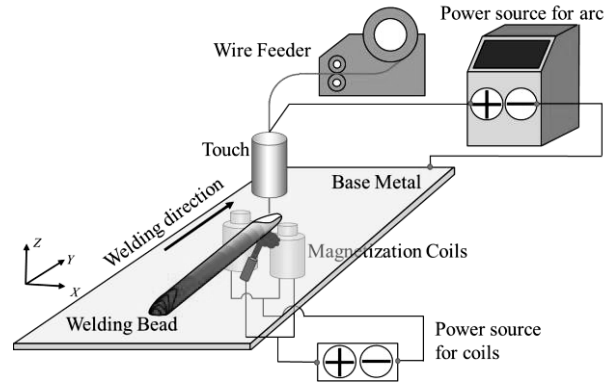


Fig.1 Experimental setup of GMA welding added with magnetization coils.

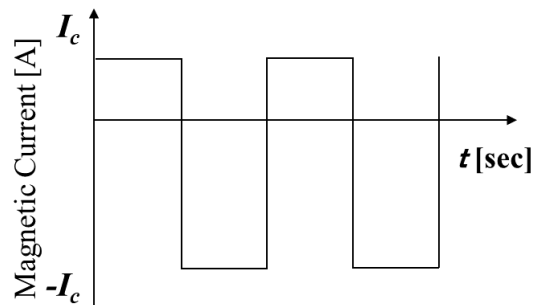


Fig.2 Distribution of Magnetic current

なる傾向を示した，アークが後方に傾いた場合は，すでに形成されたビード上にアークが発生するため，溶け込みは浅くなるが，アークは比較的安定した，本研究では溶接の安定化が主な目的であるため，付加する磁化電流値はマイナス側にオフセットさせた (図 2 参照)。磁束密度は $B_x = -3.0 \sim 3.0 \text{ mT}$ ，磁化周波数は $f = 5, 10, 20 \text{ Hz}$ とした。その他の主な溶接条件はアーク電流 $I_A = 120 \sim 220 \text{ A}$ ，アーク電圧 $E = 12 \sim 25 \text{ V}$ および溶接速度 $V = 5 \sim 10 \text{ mm/s}$ であり，トーチは 10° の前進角とした。またシールドおよびバックシールドガスはアルゴン，ワイヤは直径 1.2 mm の JISYS308，母材は板厚 3 mm ($400 \times 70 \times 3 \text{ mm}$) の SUS304 を使用した。

3. 実験結果

図 3(a), (b) に磁束密度 $B_x = -1 \sim 0 \text{ mT}$ ，磁化周波数 $f = 10 \text{ Hz}$ の交流磁場を付加した GMA 溶接のアーク

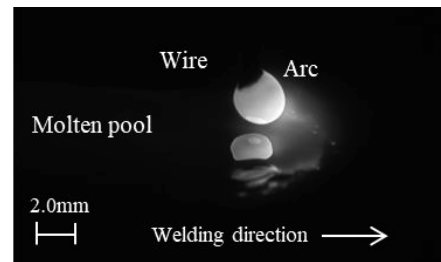
および溶融池の様子を示す。図中の中央部の明るい箇所がアークで有り、その直下の光沢の面が溶融池である。またカメラの撮影速度は 1,000 fps である。図(a)ではアークが前方(溶接方向)に偏向しており、溶融池前方に多くの陰極点が見られるが、磁場を付加していない場合と比較して、アークの傾きは小さくなり、陰極点の数も減少している。図(b)は図(a)の約 100/1000 秒後のアークの様子で有り、アークおよび溶滴はほぼ母材に対して垂直に発生している。図(b)はアークおよび溶滴中に後方への電磁力 ($B_x = -1$ mT, $f = 10$ Hz) が発生するタイミングで有り、その電磁力によりアークおよび溶滴の過度な前方への偏向が抑制出来たと考えられる。なお、磁場を付加した場合もアークは前後方向に振動するが、磁場を付加することによりその振幅が小さくなり、溶接が比較的安定しスパッタ等の発生量が減少する。図4(a)に通常の GMA 溶接(磁場無し)、図(b)に直流磁場を付加、図(c)、図(d)に 5 Hz と 10 Hz の交流磁場を付加した場合のビード断面形状を示す。なお図の上側がアーク側、下側が裏波側を示している。図(a)の溶込みは浅く、裏波側まで到達していない。直流磁場を付加した図(b)の溶込みは裏波側まで到達しており、その溶け込み量は交流磁場を付加した図(c)と図(d)と比較しても大きい。しかしながら、その形状は若干左側に偏った形状を示している。図(c)と図(d)の溶け込みは両者共に裏波側に到達し、その形状はほぼ左右対称である。図5に裏波側のビード高さの変化の様子を示す。図より、ビード高さは直流磁場を付加した場合が最も大きい。場合によっては、交流磁場を付加した場合より小さくなる。交流磁場を付加した場合のビード高さは小さいものの、ほぼ一定で安定している。

結論

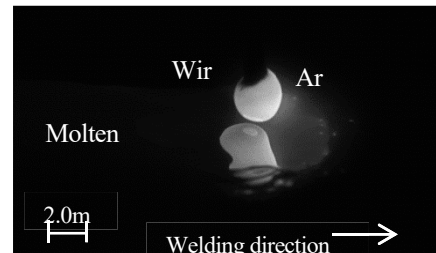
- (1)アーク、溶融池およびビードの観測結果より、直流磁場の付加では、溶け込みは大きいものの急激に溶融池の流動が変化する場合があり、アーク側および裏波側のビードが大きく乱れた。
- (2)アーク、溶融池の観測結果から交流磁場の付加により、アークの変動や溶滴の極度の成長を抑制することでスパッタの発生を減少させることができた。
- (3)裏波側のビード高さ測定結果より、直流磁場と比べて交流磁場を付加した場合はビード高さが安定した。

参考文献

- (1) 田中, 田代: アーク溶接における可視化技術のス

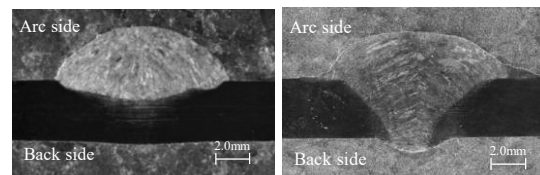


(a) Arc inclining forward.



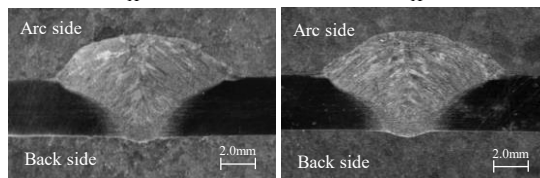
(b) Arc inclining backward.

Fig.3 Appearance of change in arc shape and molten pool flow ($I_A = 135$ A, $E = 20$ V, $V = 5$ mm/s, $B_x = -1$ mT \sim 0 mT, $f = 10$ Hz).



(a) DC $B_x = 0$ mT

(b) DC $B_x = 2$ mT



(c) $B_x = 0 \sim -1$ mT, $f = 5$ Hz

(d) $B_x = 0 \sim -1$ mT, $f = 10$ Hz

Fig.4 Effect of magnetic field on bead shape ($I_A = 135$ A, $E = 20$ V, $V = 5$ mm/s).

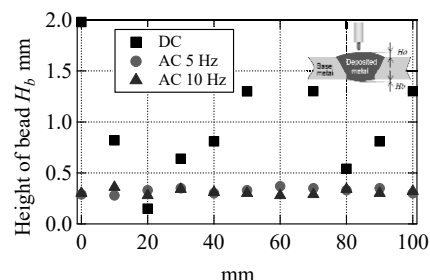


Fig.5 Change of a height of bead.

テート・オブ・ジ・アート, 溶接学会誌, 82(2), (2013), 15-20.

- (2) 田中: 溶接アーク物理, 溶接学会誌, 87(8), (2018), 9-28.

(共同研究分野: エネルギー制御学分野)

1. はじめに

プラズマアーク溶接は拘束ノズルによりアークを緊縮させ母材表面への高い入熱密度とアーク圧力を得ることができるため、入熱量を低減しつつ溶接速度や溶込み深さを向上させることができる。これらの長所から、プラズマアークはレーザ溶接と同様にキーホール溶接に用いられているものの、溶接の安定性確保が難しく技術的課題となっている。アンダーカットはキーホールプラズマアーク溶接(KPAW)における一般的な溶接欠陥である。本研究ではX線透過システム、高速度カメラ、熱カメラから成る統合計測システムを用いて溶融池熱輸送現象を観察し、アンダーカット形成のメカニズムを解明することを目的としている[1]。

2. 実験方法

図1にX線透過システム使用時の実験装置構成を示す。本システムは2組のX線撮像系を用いて異なる2方向からのステレオ同期撮像を行うことができる。これら二組の画像データからトレーサの座標を算出することにより、その軌跡から溶融池の3次元流動場を計測することが可能となる。ここでは本システムによりキーホール溶接を上下30度の角度から撮像した。溶接電源及び溶接トーチには、日鐵溶接工業株式会社製のNW-300ASR及び100WHを用いた。溶接電流は直流120Aである。ここではプラズマガス流量がアンダーカット形成に及ぼす影響について検討する。プラズマガスは純アルゴンとし流量0.7, 1.7または3.0 L/minで導入した。シールドガスも純アルゴンとし流量7.5L/minで導入した。トーチノズル-母材間距離は5mmとした。母材は板厚4mmのステンレス鋼SUS304を用いている。溶接速度は3 mm/sとした。トレーサとしては直径約0.5mmのタングステン球を用い、あらかじめ溶接線上に配置した。このほか、直径0.03mmのジルコニア球をトレーサとして用いて、これを高速度ビデオカメラで観察することにより、溶融池の表面及び裏面の2次元流動場を計測した。さらに、熱カメラを用いて2色测温法により溶融池の表面及び裏面の2次元温度場についても計測した。

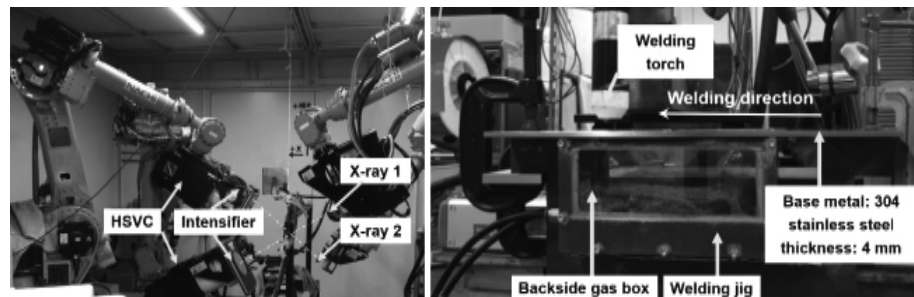


Fig. 1 Experimental setup

3. 実験結果及び考察

図2に各プラズマガス流量における溶接ビード外観および断面マクロを示す。0.7L/minではアーク圧力が不十分なためキーホールが貫通しないが、1.7L/min以上ではオープンキーホールとなることがわかる。3.0L/minでは表面の止端部に深刻なアンダーカットが見られた。1.7L/minでは健全なビードが得られた。裏面側キーホール径はプラズマガス流量の増加に伴い拡大し、キーホール内壁も垂直に近くなった。図3にX線透過システムにより計測された溶融池の3次元流動場を示す。溶融池流動の主たる駆動力はプラズマせん断力と考えられる[2]。キーホールが貫通しない0.7L/minではキーホール表面に沿って後方へと強いせん断力が働くため、後方では時計回りの渦が生じる。1.7L/minではプラズマ流が表面後方側へと向かうものとキーホールを通じて裏面側へ吹き抜けるものと分離するため、上部では時計回り、下部では反時計回りの二つの渦が形成された。3.0L/minでは殆どのプラズマ流が裏面へと向かうため反時計回りの渦が見られた。図4は表面側の溶融池2次元温度場である。プラズマガス流量が増加するほど特に側面付近の溶融池温度が低下し凝固開始位置が前方へとシフトすることがわかる。プラズマガス流量が増加するほどキーホール背後の溶融池で下向きの熱輸送が活発となり、結果として表面側の側面で凝固が促進しアンダーカット形成につながったものと思われる。

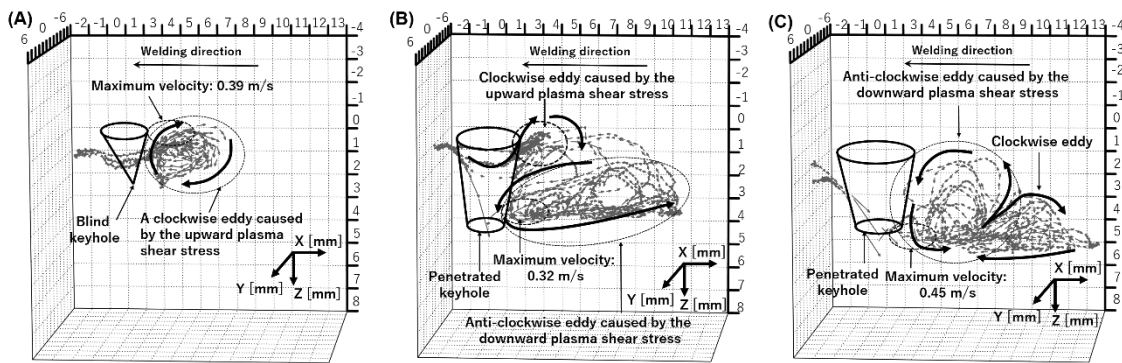


Fig. 3 The three-dimensional convective patterns inside the weld pool

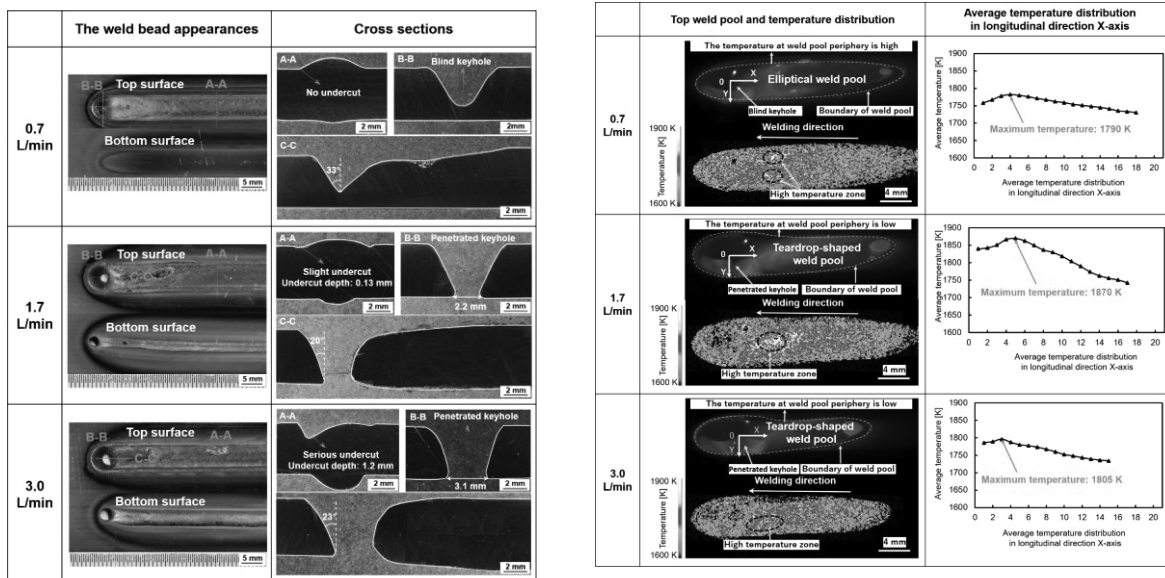


Fig. 4 The top weld pool and temperature distribution

Fig. 2 The weld bead appearances and the cross sections of the weld beads

参考文献

- [1] A.V.Nguyen, D.Wu, S.Tashiro, M Tanaka, Welding journal, 98, 204s-212s, 2019.
- [2] A.V.Nguyen, S.Tashiro, B.V.Hanh, M Tanaka, J.Phys.D:Appl.Phys. Vol.51, 015204, 2017.

(共同研究分野：エネルギー制御学分野)

1. 目的

持続安定な社会の実現に向けて、CO₂のメタネーション技術が世界中で注目されている。メタネーションには 250°C 以上のプロセス条件で熱触媒作用を用いた反応が一般的であるが、本反応が発熱反応であるため、触媒の安定性や平衡状態の観点からより低温でのプロセス促進が望ましい。プラズマ触媒作用はプロセスの低温化を実現しうる、有望な手法である。様々なプラズマと触媒の相互作用により、従来の熱触媒作用のプロセス条件と比べて 100°C 以上低温でメタネーションを促進できる。主な低温化の要因と考えられているのは、原料ガスと電子との衝突による振動励起分子の生成である。予想されているプラズマ触媒作用によるメタネーションモデルを図1に示す。反応の初段階として、電子との衝突により原料ガスが分解、励起される。生成された振動励起種が触媒表面と反応し、吸着する。その後表面反応によりメタン化反応が進行し、メタンが生成される。最後に、触媒表面からメタンが脱離する。しかし、現状では振動励起分子の生成とメタン生成との関係について定量的な評価がされておらず、メタン生成に用いられる振動励起分子や反応の素過程といった反応メカニズムについてはわかっていない。本研究では、振動励起分子の生成の指標となる振動温度を発光分光法より求め、振動温度とメタネーションの関係について調べた。

2. 研究方法

図2に実験装置の図を示す。放電管として外径 5.0cm、内径 4.2 cm のアルミナチューブを用い、3 巻きのコイルアンテナによって放電管内部にプラズマを生成した。放電管上部から H₂を 6 sccm、CO₂を 1 sccm 導入した。触媒として、放電管下流領域に銅の 100 メッシュを設置した。本研究では、振動温度を変化させるため、圧力を 0.5 mTorr ~ 20 mTorr、放電電力を 100 W ~ 400 W の範囲で変化させた。ガス組成の測定には四重極質量分析計を使用し、プラズマ診断のため発光分光法を用いた。

3. 研究結果

CO₂プラズマの発光スペクトルにおいて、450 ~ 550 nm の範囲に現れる CO Angstrom band は、CO(B1Σ⁺)状態の電子励起 CO が CO(A1Π)状態へ遷移する際に発する光であり、その発光強度や波長は CO(B1Σ⁺)の振動回転励起状態に依存する。したがって、プラズマの発光スペクトルから振動回転温度を推定することが可能である。本研究では、483 nm と 468 nm に現れる発光強度比を振動温度推定の指標とした。振動温度の導出には発光強度のシミュレーションソフトである pgopher を用いた。結果として、圧力が低いほど、また放電電力が高いほど振動温度の増加が確認できた。振動温度は最も低い時(圧力 20 mTorr、放電電力 100W)で約 1000 K であり、最も高い時(圧力 0.5 mTorr、放電電力 400 W)で約 4000 K であった。メタンの生成速度は振動温度とともに指数的に増加する

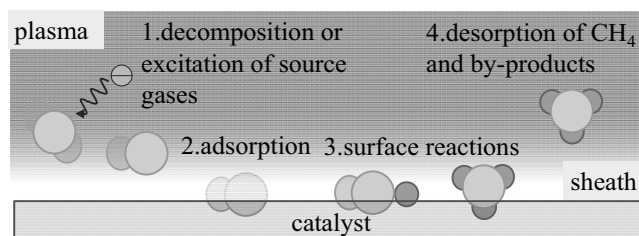


図 1. プラズマ触媒作用によるメタネーションプロセスのモデル図

傾向が確認され、振動温度が 4000K の時のメタン生成速度は振動温度が 1000K の時の約 8 倍まで増加した。本研究結果は、振動温度の増加によりメタン生成に寄与する振動励起種の生成速度が増加し、メタン生成速度が向上したことを示している。一方で、振動温度は圧力、放電電力が制御パラメータの場合、約 4000K で飽和する傾向も得られており、今後はなぜ振動温度が飽和するのか、またどのようにしてさらなる振動温度の向上につなげるか、といった検討が望まれる。

4. 結論

本研究では、プラズマ中で生成される振動励起種とメタン生成の関係を明らかにするため、振動温度を発光シミュレーションソフト **pgopher** により導出し、圧力、放電電力の振動温度への影響と、

振動温度とメタン生成速度との関係について調査した。結果として、低圧、高放電電力にて振動温度は増加し、振動温度の増加とともにメタン生成速度は指数的に増加することが分かった。しかし、振動温度は圧力、放電電力による制御において約 4000K で飽和したため、その原因の究明と打開が今後の課題となる。

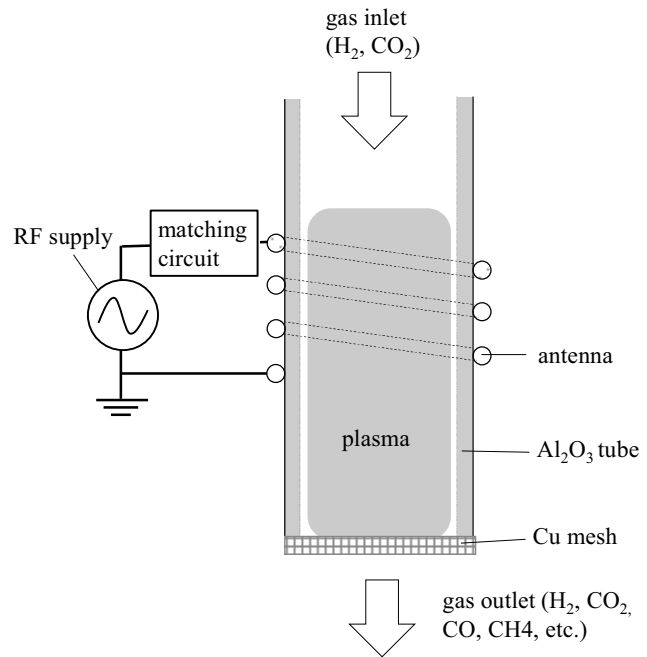


図2. プラズマ触媒作用によるメタネーション装置の概要図

(共同研究分野: エネルギー変換機構学分野)

金属/樹脂接合に向けた新規大気圧プラズマの開発

内田儀一郎（名城大学）、竹中弘祐、節原裕一（大阪大学）

【研究目的】

近年の輸送産業界では車体・部品の軽量化が求められており、軽金属や CFRP 等、炭素と樹脂の複合材料の利用が推進されている。その複合材料の広範囲の応用展開には、金属/樹脂接合技術の開発が必要不可欠である。従来の金属/樹脂間の接合にはホットプレス接合や接着剤、留め具が用いられているが、接合強度不足が指摘されている。本研究では高周波プラズマジェットを用いた接合を軽金属であるアルミニウムと樹脂に適用し、高強度の接合を実現する。

【実験方法】

直径 6 mm の石英管に銅板電極を同心円状に 2 枚巻き付け上側は高周波電圧電源に、下側はアースに接続した。石英管上端からガス流量 3 slm の条件で Ar ガスを流した。高周波電圧電源からは周波数 60 MHz、入射電力 110 W(反射電力 12 W)の条件で電圧を印加した。樹脂表面に 1 分間、金属表面に 3 分間プラズマを照射した。その後樹脂の融点を超える温度まで金属表面を抵抗加熱ヒーターで加熱し、金属と樹脂を 2 MPa 程度でプレスした。従来型熱接合は樹脂の融点を超える温度まで金属を抵抗加熱ヒーターで加熱し、2 MPa 程度でプレスした。接着剤接合はエポキシ系接着剤(アラルダイト)を使用した。シランカップリング溶液はプラズマを 10 秒間照射した金属表面に 50 ml 滴下し、15 分間乾燥させ塗布した。塗布した金属を各種接合法の金属として用いた。接合強度(MPa)は引張試験機を用いて 1 mm/min の速度でサンプルを引張り、破断強度から評価した。接合金属サンプルとしてステンレス(SUS-304)を用いた。

【実験結果】

ステンレス(SUS304)とポリカーボネート(PC)の接合強度を図 1 に示す。接着接合 1.5 MPa、熱接合 0.6 MPa に対し、本研究で開発したプラズマ接合では 10.2 MPa の高い接合強度となった。また、シランカップリング溶液を SUS304 に塗布した場合、熱接合の 0 MPa に対しプラズマ接合は 13.4 MPa とさらに高い強度が得られた。また、シランカップリング溶液を金属に塗布したプラズマ接合では、ポリイミド(PI)で 15.2 MPa、ポリアミド(PA)で 11.2 MPa、ポリスチレン(PS)で 10.9 MPa、ポリエチレン(PE)で 7.3 MPa、ポリプロピレン(PP)で 2.4 MPa といずれも従来の熱接合を大きく越える接合強度が得られ、シランカップリング溶液とプラズマ照射の相乗効果を確認できた。

今回、シランカップリング溶液を塗布した金属と各種樹脂に、高周波プラズマジェットを照射する新規接合法を開発した。その結果、PC、PA、PS、PI では 10 MPa 以上の超高強度接合を達成した。また、PE、PP では 10 MPa 未満だが、従来の熱接合法の 2 倍以上の接合強度を達成した。

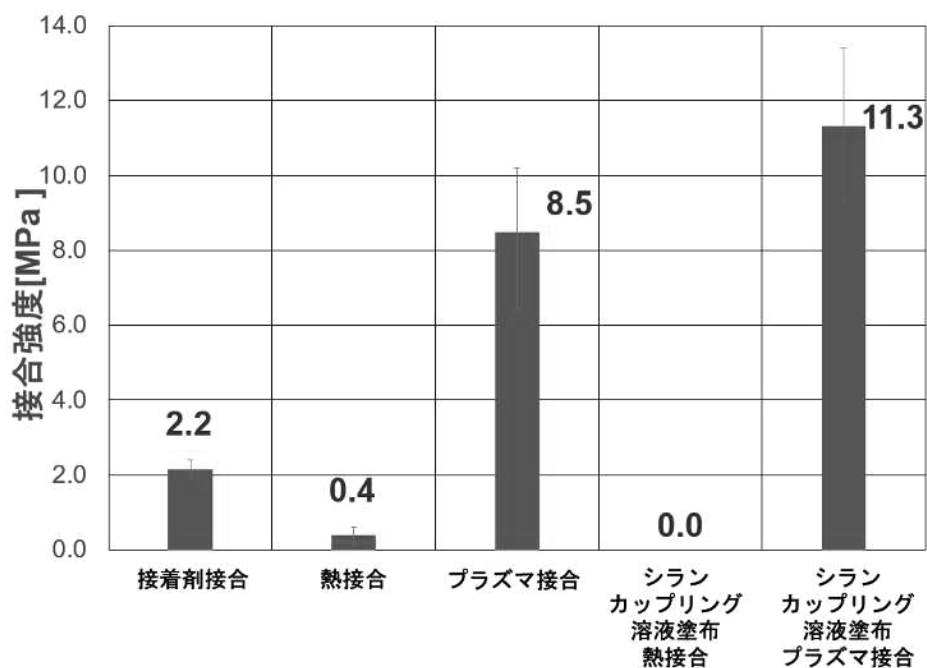


図 1. ポリカーボネート樹脂とステンレス金属(SUS304)の接合強度

(共同研究分野：エネルギー変換機構学分野)

混合粉体ターゲットを用いた透明導電膜の試作

所 属 佐世保工業高等専門学校

氏 名 川崎 仁晴

1. 目的

スパッタリング法は安価で安全な成膜法として知られており、特に中小企業で DLC (ダイヤモンドライクカーボン) 等のハードコーティングを行う場合などに利用されている。この方法で薄膜作製を行う場合、一般的に密度が比較的高いバルク(固体)ターゲットが用いられるが、多くの成分を混合させて機能を発現させる場合には、多ターゲットの成膜法を用いるか、ターゲットを別の方法で作成する必要がありコスト高になる。もし、粉体をそのままターゲットに用いることができれば、高機能薄膜の作製が容易に作製できる可能性がある。本研究では、昨年に引き続き粉体ターゲットを用いたプラズマプロセス過程と高品質薄膜を作製するための最適条件を調べた。特に、接合研節原や竹中先生が進められている Zn 系の多元素薄膜の作製を目標とした。今回は、透明導電性にも利用されている酸化インジウム (In_2O_3)、酸化ガリウム (Ga_2O_3)、酸化亜鉛 (ZnO) を混合したターゲットを用いて In-Ga-Zn の酸化物薄膜を試作し、膜中の組成比および成膜速度とターゲット混合比の関連その性質を調べたので報告を行う。

2. 研究方法

実験装置を図 1 に示す。粉体を混合させたターゲットをホルダに設置し、通常のスパッタリング法で薄膜を作製した。基底真空はターボ分子ポンプとロータリーポンプを併用し 5×10^{-3} Pa とした。その状態でアルゴンガスを 10sccm 導入し、10 Pa で成膜した。13.56 MHz の RF 電力を 100~200 W 投入し、プラズマを発生させた。基板はアセトンと純粋で洗浄した Si およびガラス基板を用いた。基板温度は室温、成膜時間は 90 分とした。

本年度は作製した薄膜の性質を調べた。膜厚は触針段差膜厚計 (Kosaka Laboratory Surfcoorder ET4000A)、表面形状は原子間力顕微鏡 (AFM: JEOL JSPM4210) および走査型電子顕微鏡 (SEM: Elionix ERA-9000)、結晶性は X 線回折装置 (XRD: Rigaku RINT2100V)、組成は X 線光電子分光装置 (XPS: JEOL; JPS9010) により解析した。透過率は FTIR (日本分光: FT/IR-4000)、導電率は金電極を用いた抵抗測定によって行った。このときの計測は以下の式によって求めた。但し A は導通領域、L は長さである。

$$\rho = (R \cdot A) / L,$$

3. 研究結果

作製した薄膜の XPS のナローズペクトルのターゲット組成非依存性を図 2 に示す。図にはターゲットの組成比 ($\text{In}_2\text{O}_3:\text{Ga}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$) を 1:1:1、2:1:1、3:1:1 と変化させたときの $\text{In}3d_{5/2}$ のピーク強度を示している。このことは薄膜の組成比がターゲットの組成比を変えることによって制御可能であることを示唆している。図 3 にはターゲットの組成比 ($\text{In}_2\text{O}_3:\text{Ga}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$) を 1:1:1、2:1:1、1:2:1、1:1:2 と変化させた時の XRD による薄膜の結晶性を示している。組成比が 1:1:1、1:2:1、1:1:2 と作製した薄膜は

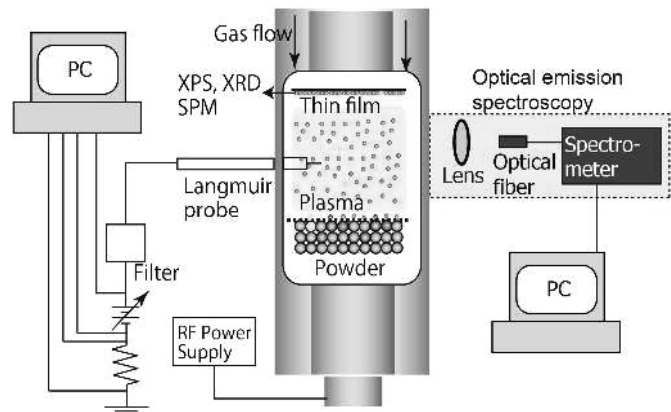


Fig. 1 Schematic of the experimental setup.

ZnOのみ結晶性を持っており、InやGaに関する結晶性はほとんど表れていない。一方、組成比が2:1:1の場合はInに関する結晶性が小さいが検出された。このことは薄膜中のInやGaはほぼアモルファスであること、薄膜の結晶性がターゲットの組成比を変えることによって多少変えられることを示唆している。図4にはSiO₂基板上に作製した薄膜のFTIRによる透過率の計測結果を示している。作製したときの組成比は1:1:1、2:1:1、3:1:1とした。透過率はどれも60%以上であり、平均して80%程度であることが分かる。図5には薄膜の抵抗率のターゲット組成比依存性を示す。抵抗率は10⁵~10⁶Ωm程度以上であり、導電性はかなり低いことが分かった。いずれにしてもこのままでは透明導電膜としては利用できないので今後は成膜条件を精査し、実用的な薄膜の作製を行う予定である。

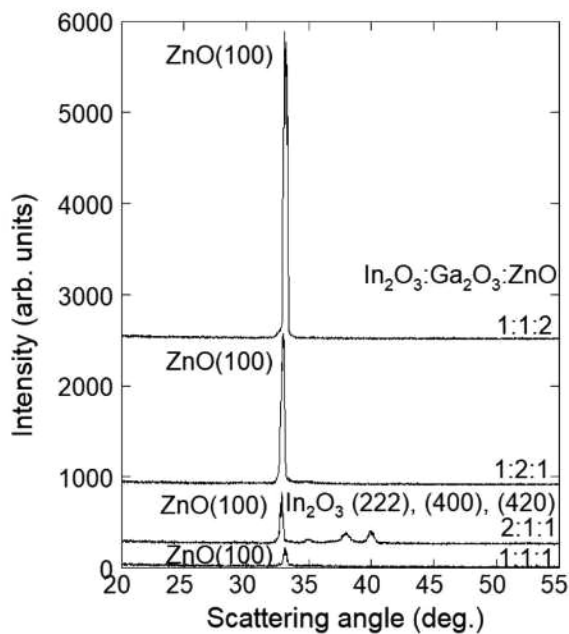


Fig. 3 Dependence of concentration XRD spectra on the In₂O₃/Ga₂O₃/ZnO powder targets.

4. 結論

粉体を用いた薄膜作製を酸化インジウム(In₂O₃)、酸化ガリウム(Ga₂O₃)、酸化亜鉛(ZnO)を混合したターゲットを用いてIn-Ga-Znの酸化物薄膜を試作し、その性質を比較した。その結果、組成比の制御ができることがわかった。

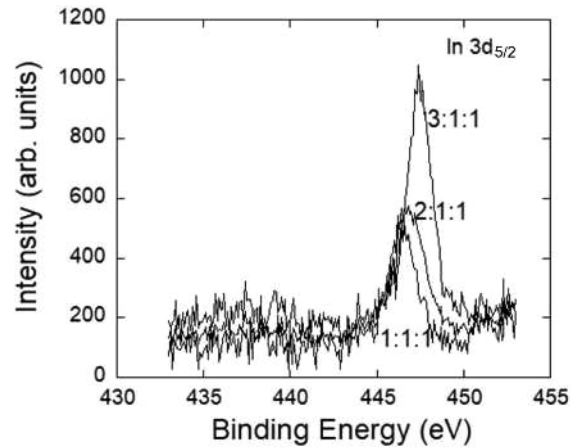


Fig. 2 Dependence of concentration In ratio on the In₂O₃/Ga₂O₃/ZnO powder targets.

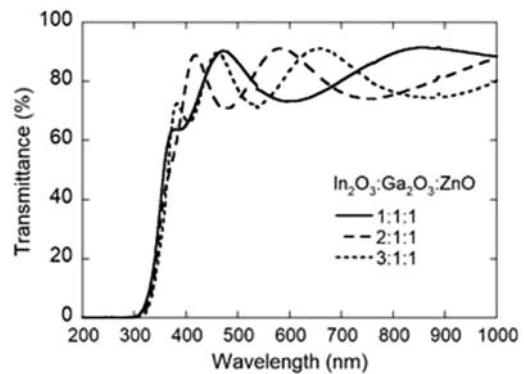


Fig. 4 Dependence of the FTIR spectra of the prepared films on the powder targets mixture.

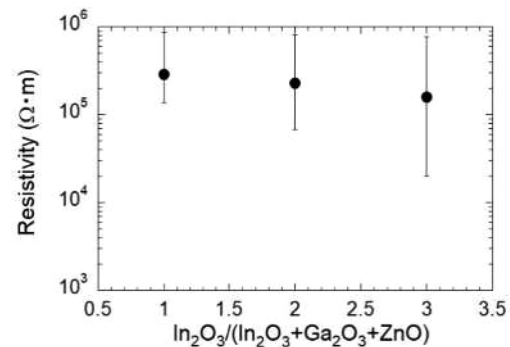


Fig. 5 Dependence of the Resistivity of the prepared films on the powder targets mixture.

(共同研究分野:エネルギー変換機構学分野)

プラズマ材料相互作用の解明と先進的な表界面制御プロセスの研究
 酸化物半導体の欠陥の発生と修復のメカニズムの解明

産業技術総合研究所 電子光基礎技術研究部門
 布村正太

1. 目的

本研究では、酸化物半導体の欠陥の発生と修復のメカニズムを解明し、高性能酸化物半導体デバイスの作製に貢献することを目的に研究を進める。具体的には、阪大接合研にて高度化したプラズマ成膜技術を用いて高品質酸化物半導体を作製し、産総研にて高感度欠陥評価法を用いて欠陥量の定量評価を行う。

本年度は、半導体材料の一例として、IGZO を取り上げ、分光エリプソ法、サブギャップ光電流計測 (CPM) 法、ポンププローブ法などを用いて、膜構造や欠陥、トラップキャリア等を評価した。

2. 研究方法

サンプルの IGZO はスパッタ法により熱酸化膜付きのシリコン基板上に成膜した[1]。表1に評価に用いたサンプルの作製条件を示す。サンプル22は酸素添加 0.04%条件で積んだ膜、サンプル32は酸素添加を行わずに積んだ膜、サンプル42はプラズマアニールを施した膜、サンプル52は熱アニールを施した膜を示す。評価には、分光エリプソ法、サブギャップ光電流計測 (CPM) 法、ポンププローブ法などを用いた。分光エリプソより、膜厚、バンドギャップと構造乱れを求めた[2]。CPM法より、サブギャップの欠陥準位分布を決定した。ポンププローブ法より、トラップキャリアを検出した[3]。ポンプ光には 375nm(1uW)の紫外レーザー用い、プローブ光には 1550nm(500mW)の近赤外レーザーを用いた。

3. 研究結果

表1に、分光エリプソにより求めた膜厚(d)、バンドギャップ(Eg)と構造乱れ(Br)を示す。酸素添加無しのサンプル32を除き、バンドギャップが 2.8-2.9eV で制御されていることが確認できる。また、膜厚は、サンプル22を除き 30nm 程度で準備されたことも確認できる。構造乱れに関しては、酸素添加無しのサンプル32を除き、類似の値を示していることが確認できる。

図1にサンプル22におけるポンププローブ法の結果を示す。図より、ポンプ光照射により光電流が流れ(10-

サンプル名	d(nm)	Eg(eV)	Br(eV)
22 as depo. O2 0.04%	19.0	2.90	16.4
32 as depo. O2 0.00%	32.2	2.04	7.84
42 プラズマアニール	33.5	2.82	16.6
52 熱アニール	33.2	2.88	16.5

表1 サンプルと分光エリプソにより求めた光学パラメータ。

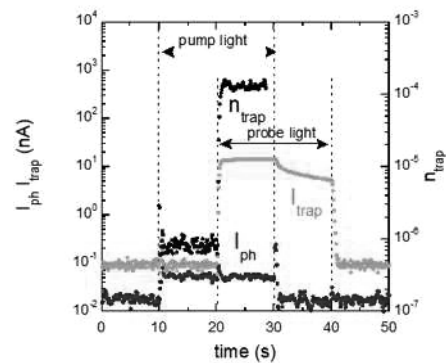


図1 ポンププローブ法による光電流とトラップ電流の測定結果例。

30s)、プローブ光照射によりトラップ電流が流れる(20-40s)ことが分かる。また、このトラップ電流は、ポンプ光とプローブ光が同時に照射されているときに(20-30s)、その値は大きい(~20nA)ことが確認できる。さらに、ポンプ光照射 OFF 後のプローブ光照射のみの時間帯(30-40s)では、このトラップ電流が徐々に減少することも確認できる。このトラップ電流の振る舞いから、ポンプ光により生成されたフリーキャリア(電子)が欠陥準位(トラップ)に捕獲され、プローブ光によってトラップキャリアが励起されトラップ電流として検出されていることが分かる。また、トラップキャリアの取り出しには、比較的長い時間を要し電荷蓄積の効果が示唆される[3]。

4. 結論

上述の研究を通し、本年度は以下の点を明らかにした。良好な半導体特性を有する酸化物 IGZO デバイスの作製には、バンドギャップ、構想乱れを制御したうえで、欠陥準位(キャリアトラップ)を減少する必要があることを見いだした。今後は、デバイス特性との関連を調査し、デバイスの高性能化、信頼性向上に関する指針と材料・プロセス開発の提案を行う。

本研究の一部は、本共同研究に加え、科研費の助成を受け実施されました。この場を借りて感謝申し上げます。

参考文献

- [1] K. Takenaka, *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **54** 06GC02/1-5 (2015).
- [2] S. Nunomura *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **61** 056003 (2022).
- [3] S. Nunomura *et al.*, *submitted to J. Appl. Phys.*

(共同研究分野:エネルギー変換機構学分野)

I 族合金ナノ粒子接合剤の開発とその接合界面の機械的強度および熱伝導度の評価

室蘭工業大学 生産システム工学系専攻

葛谷 俊博

1. 目的

銅は優れた電気伝導性や熱伝導性を有し、金や銀より安価であることから、低温焼結性を有した銅ナノ粒子(Cu NPs)は電子部品の実装や金属の接合材への応用が期待されている。我々はトリ-n-オクチルアミン(TnOCA)を還元剤、オレイン酸(OA)を表面保護剤とする銅ナノ粒子の合成について検討を行い、数十～数百 nm 域の銅ナノ粒子の合成を可能とした。本研究では、有機金属化合物の分解を利用して、階層構造を有する Cu-Sn 合金メソ粒子 (MP) の合成を試みた。TEM および STEM-EDX 分析により、MP のナノ構造に関して詳細な観察を行った。また、ナノスケールの物質の融点が曲率に依存していることから、微細な NP で構成される階層構造型 MP は、高い化学的安定性を維持しながら低温焼結性を備えている可能性があると考え、Cu-Cu 接合材としての特性を引張試験および熱伝導度測定により評価した。

2. 方法

Cu-Sn 合金 MPs はオレイン酸銅(II) (Cu-OA : $C_{36}H_{66}O_2Cu$)、オレイルアミン (OLA : $C_{18}H_{37}N$: 80 ~ 90 %)、OA ($C_{18}H_{34}O_2$)、TnOCA ($C_{24}H_{51}N$: 97 %)、エチルヘキサン酸スズ (II) (Sn-EH : $C_{16}H_{30}O_4Sn$: 85 %)を精製せずに用いた。Cu-OA、OLA、OA、TnOCA を4つ口フラスコに入れ攪拌しつつ真空脱気を2.5 h 行った後、Sn-EH を0.09 ml (Sa. #1)または0.28 ml (Sa. #2)添加した。この反応溶液を攪拌しながら Ar ガスで30 分間フラッシングを行った。次に、120 °C で30 分間保持した後、さらに200 °C まで昇温し保持した。昇温速度は10 °C/min で統一した。精製した MPs をヘキサンに再分散させ濃縮することで Cu-Sn 合金 MPs インク(0.2 g/ml)を作製し、引張試験及び熱伝導率の測定に使用した。引張試験試料は、Cu-Sn 合金 MPs インクを銅板(10×30×t0.5 mm)の10×10 mm² 四方に塗布し、予熱したホットプレスで試料を圧着接合した。接合した試料は引張試験によりその最大剪断応力を評価した。熱伝導率測定試料は Cu-Sn 合金 MPs インクを銅板(10×20×t0.5 mm)の全面に塗布し、ホットプレス(573~613 K, 40~120 MPa, 10 min)で銅板を圧着接合した。接合した試料の熱伝導率は一方向熱流定常法により行った。

3. 結果及び考察

Cu-OA に OLA、OA、TnOCA を加えて加熱すると200 °C 付近以上で溶液の色が濃い青色から赤褐色に変化した。これは Cu-OA が熱分解したことによって Cu が析出したためと考えられる。一方、Sn-EH を添加すると常温で溶液の色が変化した。Sn⁴⁺/Sn²⁺の酸化還元ポテンシャルは0.15 V、Cu²⁺/Cu(0)は0.34V であることから、Sn-EH が還元剤として働き、合金 NPs が析出したためと考えられる。析出物を SEM/TEM により観察した結果、Sn-EH の添加によりその形状は大きく変化し、微細な一次 NP が凝集したメソサイズ域の階層構造型粒子 (MPs) に変化した (Fig. 1)。MP の平均サ

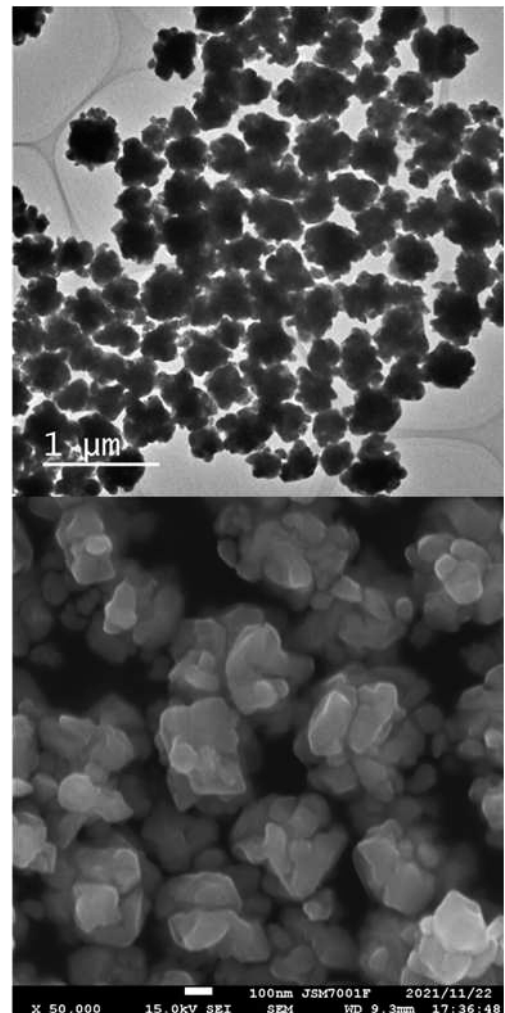


Figure 1 TEM and SEM image of Cu-Sn alloy MPs

イズは Sn-EH の添加量とともに増加する傾向がみられるが (Sa. #1 ; 440 nm、Sa. #2 ; 680 nm)、逆に MP を構成する一次 NP のサイズは減少した (Sa. #1 ; 21 ~ 34 nm、Sa. #2 ; 15 ~ 26 nm)。FT-IR スペクトルより MPs の表面にオレイン酸に起因する吸収ピークを確認できた。このため、析出物表面は疎水性であるが、溶媒である TnOCA は弱いながらも極性を持つため、Sn-EH の添加により生じた NPs は表面自由エネルギーを低減するために凝集する。反応温度が高くなるとその低い融点のため微細な一次 NP が結合、残った Cu、Sn 前駆体の分解によりモノマーが供給され、凝集体が均一に成長することで階層構造を持つ Cu-Sn 合金 MPs に転化される。Sn は Cu と比較し酸化しやすいため表面に SnO₂ などの酸化被膜が存在すると考えられるが、HRTEM や STEM-EDX の結果からは、Sn 酸化物被膜は観察されなかった。EDX 分析によりナノ粒子中の金属組成の測定を行ったが、仕込み比と比較しナノ粒子中の Sn 濃度はかなり小さくなった (Sa. #1 ; 0.42 at%Sn、Sa. #2 ; 1.5 at%Sn)。

次に、Cu-Sn 合金 MPs の機械的、熱的特性の評価を行った (Table 1)。Sa. #1 と Sa. #2 の MPs インクを Cu 試験片に塗布後、ホットプレス(613 K, 40 ~120 MPa, 10 min)することで圧着し、その試験片の引張試験を行った。結果、Sa. #1 では 573 K ; 80 MPa、613 K ; 50 MPa、613 K ; 80 MPa の条件下では母材である銅板が破断した。銅 (C1100) の引張強度からその最大剪断応力は 11 MPa 以上であると考えられる。一方、Sn の添加量が多い Sa. #2 では接合面での剥離が観察された。Sa. #1 と Sa. #2 の熱伝導率は Cu を基準としてその 40~70 %と推定された。熱伝導率の低下は、ボイドや粒子表面の酸化被膜に起因すると考えられる。

Table 1 Summary

Experimental Conditions		Results		
	Temp. (K)	Pressure (MPa)	Maximum Shear Stress (MPa)	Relative Conductivity (%)
Cond. 1 (Sa. #1)	573	50	9	39
Cond. 2 (Sa. #1)		80	11	67
Cond. 3 (Sa. #1)	613	50	11	65
Cond. 4 (Sa. #1)				69
Cond. 5 (Sa. #1)		80	11	44
Cond. 6 (Sa. #1)				67

4. 結言

本研究では還元剤として TnOCA、表面保護剤として OA を用いて Cu 及び Cu-Sn 合金 MPs の合成を試みた。Cu-OA を出発原料とし Sn-EH を添加することで接合に適した Cu-Sn 合金 MPs を合成することができた。今回作製した Cu-Sn 合金 MPs インクを使用し銅板の圧着接合を行い、銅板の接合が可能であることを確認した。本研究は 2022 年発行の Materials Transactions に掲載予定である²⁾。今後はスクラッチ試験により正確な最大剪断応力を求めることに挑戦したい。また、電気伝導性についても検討を行う予定である。

5. 参考文献

- 1) Y. Kim, B. Park, S. Hyun, H. Nishikawa: Materials Today Communications 29(2021) 102772.
- 2) T. Kuzuya et al.: Materials Transactions (To be published) (2022).

(共同研究分野：加工プロセス学分野)

レーザー熱加工のための高温領域における 金属の光学特性評価に関する実験的研究

近畿大学大学院 総合理工学研究科 エレクトロニクス系工学専攻

有村 恒良

1. 緒言

近年、高輝度、高出力レーザーが開発され、これに併せてレーザー加工技術の開発が進んでいる。中でも、高出力CWレーザーによる溶接では、従来の溶接法に比べてクラックや熱変形が少ないことで知られている。近年、電気自動車などの普及拡大により、電気伝導性の高い銅の需要が高まっており、これらの接合加工するための技術として、純銅のレーザー溶接が求められている。高エネルギー密度のレーザー光を照射し、加熱溶融させるレーザー溶接プロセスにおいて、材料の光学特性は重要な基礎データとなる。金属の反射率については多くの研究が報告されているが、その性質を十分理解するに至っていない。特に、高温領域での反射率に関しては不明な点が多い。純銅においては、Spisz らは 21°C~200°Cの範囲での反射率計測を行い、200°Cにおいて波長 1100 nm で 30%、450 nm で 10%の反射率減少をしているのに対し、Roberts らは同範囲での銅の光学特性の計測を行い、1%未満の変化率を示しており、相反する報告がなされている。これらの報告は、銅の化学変性、表面形状変化など、外乱が反射率に及ぼす影響がほとんど考慮されておらず、測定上の課題が多く存在していることを示唆している。さらに、500°C以上の高温領域における反射率の測定例はほとんどない。そこで、本研究では 1400 °Cまでの加熱機構を有し、雰囲気制御可能な反射率測定システムを開発した。さらに、1000°C以上に達すると、液相の表面がゆらぐので、測定光源をパルス化し、測定光源をモニタリングしながら反射率を測定するシステムを構築した。本システムを用いて、銅の 1100°Cまでの反射率を測定し、化学的変性、表面形状評価と併せて行った。

2. 加熱、雰囲気制御反射率計測装置の開発

Fig. 1 に開発した加熱、雰囲気制御反射率計測装置の概略図を示す。本装置は、1400°Cまで加熱が可能でかつ真空ポンプを用いて真空排気が可能な正反射率測定装置である。測定用光源には、出力 1.5 mW の各種 LD 光源を使用し、これらの光軸を同軸上に合わせることで、波長ごとの切り替えを容易にした。正反射率の測定には、銅板の反射前、後のフォトダイオード (PD) の出力を計測した。また、銅板の反射側の PD 先のウェッジ基板により、10%の正反射光を CCD カメラに入射させることで、反射側の PD に光軸に変化がないかをモニタリングした。また、各ミラーにおける光量の損失は、紫外可視分光光度計で測定した銅板の鏡面反射率 (基準反射率) を用いて導出し、反射率補正を行った。温度測定には、K 型熱電対を用いた。

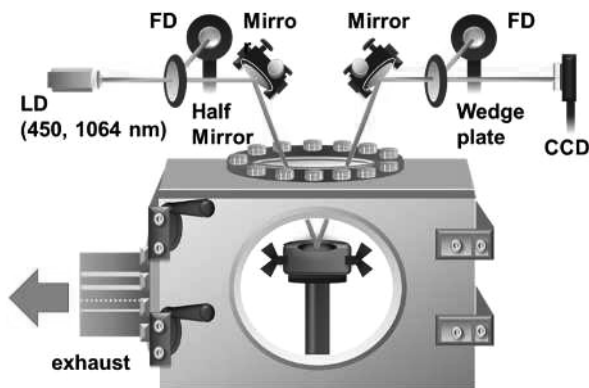


Fig. 1 Reflectance of copper plate under 800°C

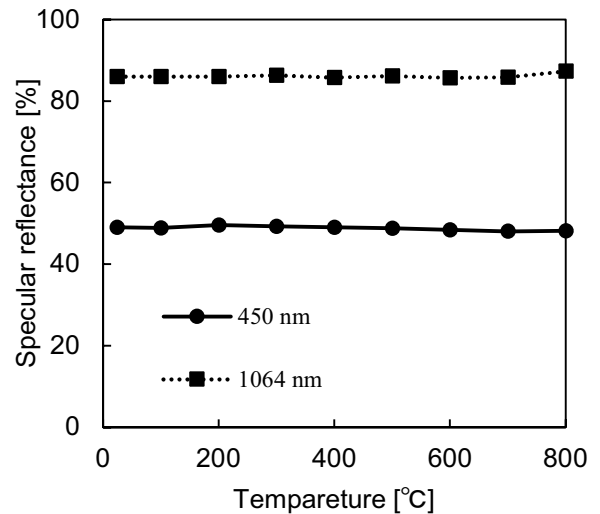


Fig. 2 Image of laser beam profile at the fabricating surface.

3. 実験方法

反射率測定試料として、 $\Phi 9.5\text{mm}$ 、表面粗さ $Ra < 5\text{ nm}$ の純度 99.5 % の銅板を用いた。チャンバー内のヒーター上に試料を設置し、この状態で昇温速度 $26\text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ で銅板を加熱し、任意の温度での反射率測定を行った。真空ポンプを用いて 10 Pa まで減圧した後、 $1.0 \times 10^5\text{ Pa}$ に Ar ガス(99.9999%)を充填、これを 3 回繰り返し、大気圧下で Ar ガスをフローした。加熱前、後の銅板試料表面は、原子間力顕微鏡 (AFM) を使用した。AFM を用いて、 $100\text{ }\mu\text{m} \times 100\text{ }\mu\text{m}$ の領域の表面粗さ測定を行った。また、表面元素分析には X 線光電子分析装置 (XPS) を用いて、表面酸素の定量分析を行った。

4. 実験結果及び考察

4.1 純銅の $25^\circ\text{C} \sim 800^\circ\text{C}$ の反射率測定

Fig. 2 に 450 nm と 1064 nm のレーザーにおける純銅の $25 \sim 800^\circ\text{C}$ までの各温度の反射率を示す。Fig. 2 より 450 nm 、 1064 nm 共に、 800°C までの加熱プロセスでは温度に依存した反射率の変動は 1% 未満であった。また、AFM による表面形状分析結果を Fig. 3 に示す。加熱後の試料は、 Ra は 2.7 nm から 5.4 nm に変化した。測定光の波長よりも十分に小さいオーダーでの起伏の変化であるため、反射率に影響を及ぼさなかった可能性がある。次に、XPS の定量分析結果より、加熱前、後で酸素量の減少が確認され、試料表面は化学変化していないことが分かった。このことから、表面形状変化、熱変性を共に抑えた固相状態における鏡面反射率変動は 1% 未満であり、温度依存した反射率変動はほとんどみられなかった。

4.2 純銅の $800^\circ\text{C} \sim 1100^\circ\text{C}$ の反射率測定

Fig. 4 に 450 nm と 1064 nm のレーザーにおける純銅の $800 \sim 1100^\circ\text{C}$ までの鏡面反射率測定結果を示す。 450 nm のレーザーでは、 800°C から 1100°C で 40% から 8% に反射率は減少し、 1064 nm で 80% から 31% に反射率が減少した。この結果より、固相から液相に転移すると反射率が減少することが示唆された。

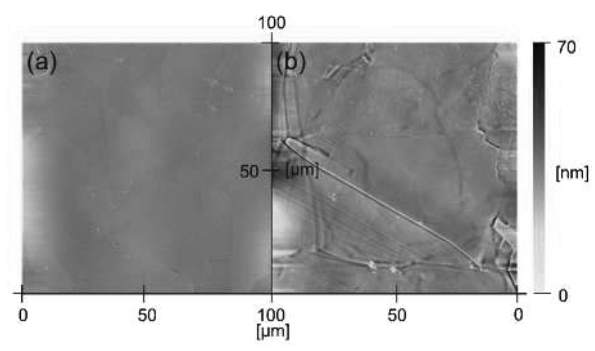


Fig. 3 Change in surface roughness of copper plate (a) before and (b) after heating.

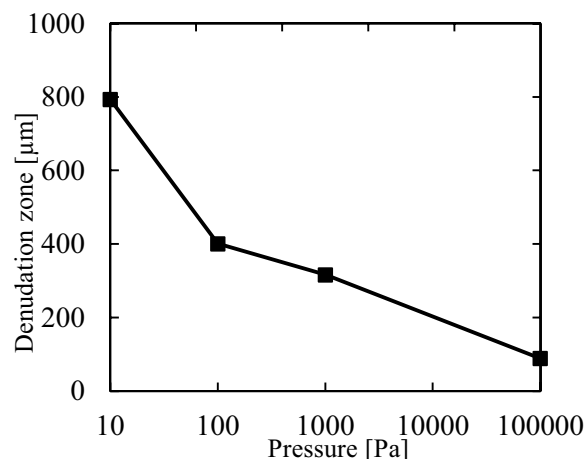


Fig. 4 Reflectance of copper plate over 800°C

5. 結論

本研究では、高温域での銅の反射率変動を明らかにした。固相では反射率の変動が、 450 nm 、 1064 nm のレーザー共に 1% 未満であったのに対し、融点近傍では、 1000°C から 1100°C にかけて 40% ~ 8% まで反射率は減少し、 1064 nm においては 80% ~ 31% まで反射率が減少した。よって、温度に依存した反射率変動は固相から液相に変化する際の急激な反射率変動によるものである可能性が示唆された。

(共同研究分野：レーザープロセス学分野)

1. 目的

本研究の目的は、著者が開発したレーザーパルス波形が制御可能な軸方向放電励起 CO₂ レーザーによるガラスの切削加工・溝加工とポリマー樹脂の溝加工におけるレーザーパルス波形がサンプルに及ぼす影響の調査である。本報告では、2種類のレーザーパルスによる7種類のガラスの切削加工が示される。

2. 研究方法

2種類のテール付き短パルスの CO₂ レーザーによるクラウンガラス (熱膨張係数 $100 \times 10^{-7} / \text{K}$, 軟化点 724°C) とソーダライムガラス ($87 \times 10^{-7} / \text{K}$, 740°C), ホウケイ酸ガラス ($72 \times 10^{-7} / \text{K}$, 736°C), 低膨張ホウケイ酸ガラス ($33 \times 10^{-7} / \text{K}$, 820°C), アルカリフリーガラス ($32 \times 10^{-7} / \text{K}$, 971°C), 合成石英ガラス ($5.5 \times 10^{-7} / \text{K}$, 1600°C) の切削加工特性が調査された。Fig. 1 は、実験で使用したレーザーパルス波形である。Fig. 1 の赤線は尖頭パルス幅 450 ns, テール長 71 μs , エネルギー比 (尖頭パルスのエネルギーに対するテールのエネルギー) 1:31 のテール付き短パルスを示し、青線は尖頭パルス幅 570 ns, テール長 35 μs , エネルギー比 1:8 のテール付き短パルスを示す。レンズへのビームの入射径 12 mm, レンズの焦点距離 38.1 mm, NA0.16 により, 焦点における集光径は 230 μm , 焦点における 1 パルスあたりフルエンスは $22 \text{ J}/\text{cm}^2$ であった。サンプルの表面は, レンズの焦点面に固定された。繰り返し周波数 200 Hz で, レーザーパルスがサンプルの表面に照射された。

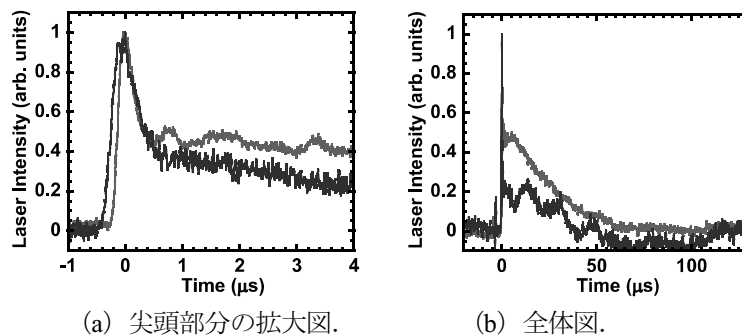


Fig. 1. レーザーパルス波形.

赤がエネルギー比 1:31 のテール付き短パルス, 青がエネルギー比 1:8 のテール付き短パルスを示す。

3. 結果

テールの大きな短パルス CO₂ レーザーではテール部分により大きな熱が発生することや熱膨張係数の大きなガラスでは温度勾配による応力が大きくなりクラックが生じやすいことが考えられたが, 本実験では, 全ての条件でクラックの生じない切削加工が実現した。

Fig.2 と 3 は, テールの大きな短パルス (エネルギー比 1:31) とテールの小さな短パルス (エネルギー比 1:8) による 7 種類のガラスの切削加工特性を示す。サンプル表面の加工穴の直径と熱影響層の直径は, レーザーの照射径に対する比として示す。総照射フルエンスは, 1 パルスあたりのフルエンスに照射パルス数を乗じたフルエンスを示す。照射径に対する表面穴径の比は, レーザーパルス波形とガラスの種類に依存せずに, 約 60% で一定であった。照射径に対する熱影響層径の比は, ガラスの熱膨張係数の増加 (軟化点の減少) とともに増加した。CO₂ レーザーの発振波長 10.6 μm に対するガラスの吸収率は, 材質にほぼ依存せずにほぼ 100% である。同じビームを同じ照射径でガラスに照射しているため, ガラス表面で生成される熱による温度は同じであると考えられる。ガラス表

面の熱影響層の大きさは、径方向への熱伝導と軟化点に依存すると考えられる。総照射フルエンス 2000 J/cm^2 以上、熱膨張係数 $87 \times 10^{-7}/\text{K}$ 以上（軟化点 740°C 以下）のガラスにおいて、テールの大きな短パルスは、テールの小さな短パルスよりも大きな熱影響層を与えた。10 パルス照射以下では、照射径に対する熱影響層径の比は、レーザーパルス波形とガラスの種類に依存せず、約 100% で一定であった。切削深さは、ガラスの種類に依存せず一定であった。総照射フルエンス 500 J/cm^2 以上では、テールの小さな短パルスは、テールの大きな短パルスよりも大きな切削深さを与えた。2つのレーザーパルスにおいて1パルスあたりのフルエンスが同じであるため、尖頭パルス部分のフルエンスはテールの小さな短パルスの方が大きいため、その影響が切削深さに現れたと考えられる。

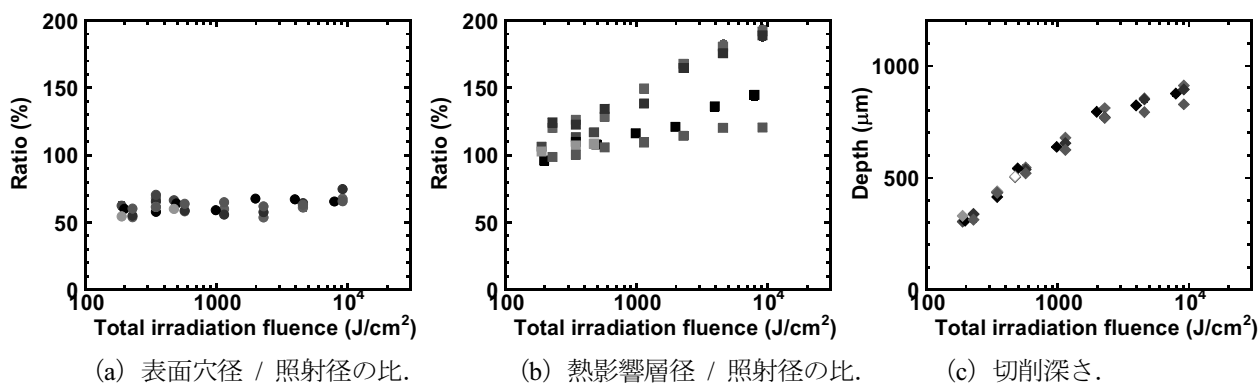


Fig. 2. テールの大きな短パルス（エネルギー比 1:31）による切削加工特性.

赤はクラウンガラス、青はソーダライムガラス、紫はホウケイ酸ガラス、黒は低膨張ホウケイ酸ガラス、橙はアルカリフリーガラス、緑は合成石英ガラスを示す。

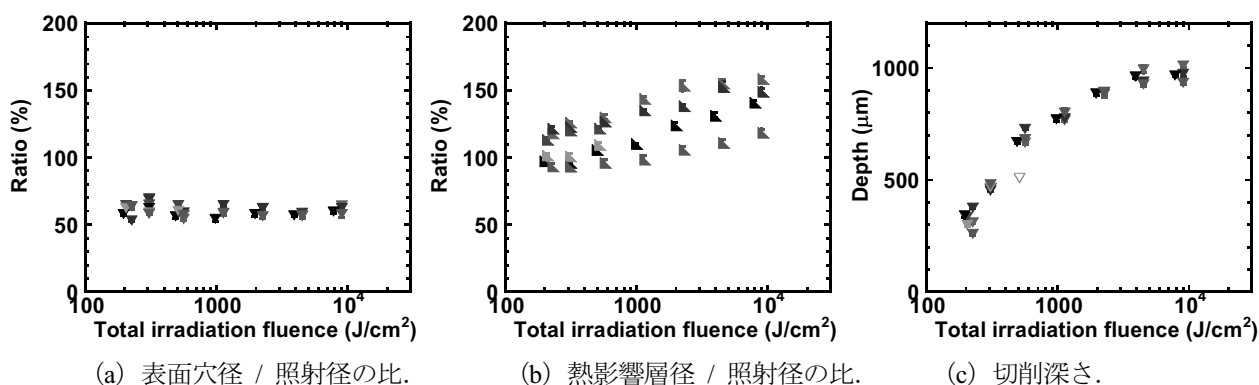


Fig. 3. テールの小さな短パルス（エネルギー比 1:8）による切削加工特性.

赤はクラウンガラス、青はソーダライムガラス、紫はホウケイ酸ガラス、黒は低膨張ホウケイ酸ガラス、橙はアルカリフリーガラス、緑は合成石英ガラスを示す。

4. 結論

テールの大きな短パルス CO_2 レーザーではテール部分により大きな熱が発生し、ガラス加工においてクラックを生じさせる原因となると考えられたが、テールの大きな短パルス（エネルギー比 1:31）であっても、熱膨張係数 $100 \times 10^{-7}/\text{K}$ から $5.5 \times 10^{-7}/\text{K}$ のガラスにおいて、クラックのない切削加工が可能であった。テールの大きさは、マルチパルス照射における熱影響層の大きさと切削深さに影響を与えた。ガラスの種類は、表面穴径と切削深さには影響を与えず、熱影響層の大きさに影響を与えた。

（共同研究分野：レーザープロセス学分野）

レーザー照射条件を提案する AI の開発

東京工科大学 工学部 大久保友雅

工学研究科 中尾根美樹

1. はじめに

ものづくり立国を目指す我が国は、残念ながら最新の加工技術であるレーザー加工に関して、特にコンピュータを援用した技術の最適化や現象理解について、欧米に大きく後れを取っている。そこで本研究では、計算負荷の軽い簡易計算モデルと機械学習を組み合わせることにより、定性的にレーザー加工で生じる複雑な現象を学習するサイバーフィジカルシステム (CPS) の構築を目指す。本研究では、レーザー加工で生じる複雑な現象を定性的に模擬出来る簡易的な計算モデルにより、レーザー加工に関する豊富なデータを生成し、それらを機械学習により、現象の定性的な理解及び最適化が可能となるシステムの開発を目指す。

2018 年度は PBF 法の計算モデルの構築を、2019 年度は LMD 法の計算モデルの構築を、2020 年度は複数のビームを用いた LMD 法において、ビームの本数の違いによる照射点におけるパワー密度の変化を計算により求めた。そこで、2021 年度は、熱伝導溶接を模擬した簡単な熱計算によって得られた温度分布と、その計算に用いたパラメータの内のレーザーパワーとの関係を学習する AI の開発に取り組んだ。

2. 温度分布の計算方法と、構築した AI

ターゲットにレーザーを照射し、その結果得られる温度分布を数値計算により求めた。用いた支配方程式を式 (1) に示す。

$$\rho CV \frac{\partial T}{\partial t} = \alpha LA + \nabla(\lambda \nabla T)V - hA(T - T_0) - \epsilon \sigma A(T^4 - T_0^4) \quad (1)$$

$\rho, C, V, T, t, \alpha, L, A, \lambda, h, \epsilon, \sigma$ はそれぞれ密度、比熱、体積、温度、時間、吸収率、レーザーパワー、表面積、熱伝導率、空気への熱伝達率、シュテファン・ボルツマン定数、放射率である。この支配方程式を有限差分法で解くコードを C++ により実装した。

計算では、 $40 \times 8 \times 2$ (厚さ) mm のターゲットにビーム径が 8 mm のレーザーを 1 点に照射し、レーザーパワーと照射座標が異なる 102 通りの照射条件で温度分布データを生成した。なお、いずれの温度分布データもレーザーを照射してから 10 秒後のデータである。

照射条件と温度分布のセットであるデータセットの内、8 割を学習用データ、2 割をテストデータとなるようにランダムに分類した。これらは学習や調整を一通り終えたあとに用いる。学習用データはさらに 8 割を訓練データ、2 割を検証データとなるようにランダムに分類した。これらは学習や調整に用いる。

機械学習の主要部分には、全結合ニューラルネットワークを用いた。入力層は、二次元の温度分布データを x 方向に一次元化したものを入力とし、その後は隠れ層として、全結合ニューラルネットワークの層の数が 2 層と 3 層、4 層の 3 通りのネットワークを作成した。活性化関数は全結合層では ReLU 関数を、最後の出力層には恒等関数を使用し、オプティマイザは RMSprop、損失関数は MSE を用いた。これらは Python により TensorFlow の Keras を用いて実装した。

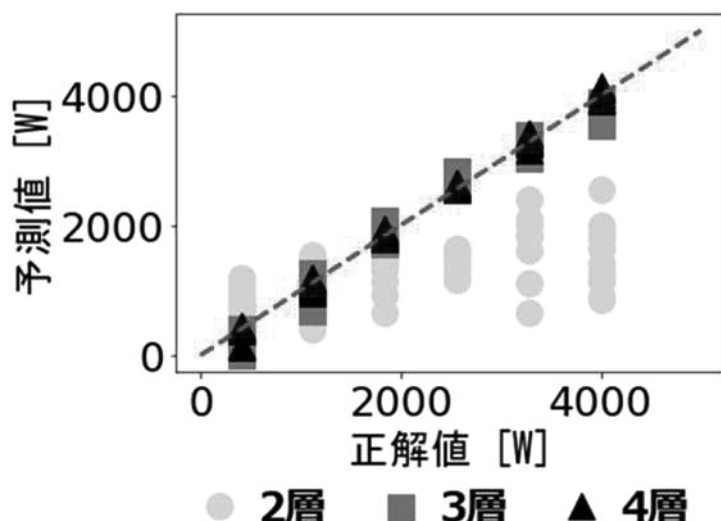


図 1 隠れ層の数を変えた際の正解値と予測値との関係の比較

3. 結果と考察

レーザパワーと温度分布との関係を、2節で述べたニューラルネットワークを用いて学習した。その結果を用いて、未学習の温度分布から、その温度分布を実現するために計算条件としたレーザパワーの推定を行った。隠れ層の層数を変化させた際の、正解値と予測値との関係を図 1 に示す。なお、図 1 中の破線は、正解値と予測値とが完全に一致した場合を示す。

層の数が 2 層の場合には、特に正解値のパワーが高くなる程予測値が外れる傾向にあった。しかし、層の数が 3 層、4 層と隠れ層の数が増えるほど、正解値と予測値との差が小さくなった。特に、4 層の場合においては、図 1 に示す通り予測値はほぼ正解値と等しくなった。

これらを定量的に評価するために、評価指標として平均絶対誤差 (MAE) と決定係数 (R^2) を用いた。3 層と 4 層のネットワークでレーザパワーを推定したときの MAE はそれぞれ 164 W, 60.4 W であり、正解値が 400 W から 4000 W であるのに対して十分小さく、 R^2 はそれぞれ 0.970, 0.995 と 1 に非常に近い値が得られた。従って、未学習の温度分布を実現するために、レーザパワーを提案させる AI には、全結合ニューラルネットワークの層が 4 層もあれば十分であることが分かった。

今後の課題としては、レーザパワー以外の様々なパラメータについて学習することや、畳み込みニューラルネットワーク等の空間分布をより学習しやすいであろうと予想されるニューラルネットワークを用いること等が挙げられる。

(共同研究分野：レーザプロセス学分野)

1. 目的

レーザー技術を活用した金属材料表面処理技術の開発が様々な分野で期待されている。本研究では、ブルーレーザーによるステンレス板への銅肉盛技術確立を目的に、銅肉盛に及ぼす加工条件の影響について検討した。

2. 研究方法

試験片作製には、基材 SUS304(50 * 50 * t3mm)、Cu 粉末(粒径 20~38 μm)を用いた。ブルーレーザー加工装置で肉盛試験片を作製した。加工条件は、レーザー出力(W)を変数とした。試験片作成後、顕微鏡で肉盛部外観を観察後、肉盛加工方向に対し直行方向に試験片を切断し、肉盛部断面組織観察を行った。断面組織観察は、コロイダルシリカで鏡面研磨仕上げし、王水とグリセリンを容積比1:1で混合させた溶液でエッチングを行った。

3. 結果

はじめに、レーザー出力と基材表面における熱影響部の関係について検討した。加工速度(6mm/s)を一定とし、レーザー出力は10W刻みで20~120Wに変化させた。断面組織観察の結果を図1に示す。20,30,40Wの場合、明瞭な熱影響部は、観察されなかった。レーザー出力50W以上では、レーザー出力増加に伴って熱影響部は拡大した。図2に、熱影響部の幅、深さとレーザー出力の相関を示す。レーザー出力の増加に伴い、幅と深さは緩やかに増加した。熱影響部の最大は、レーザー出力120Wで幅464 μm、深さ111 μmであった。

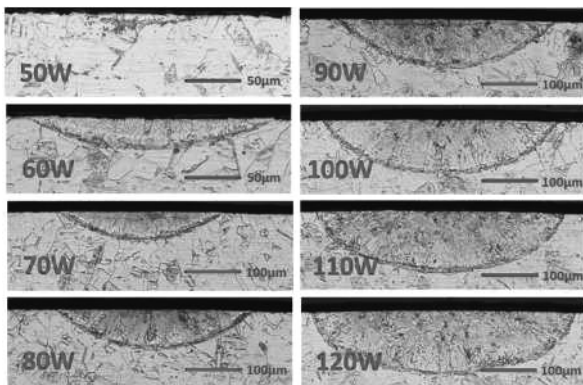


図1 熱影響部の断面組織

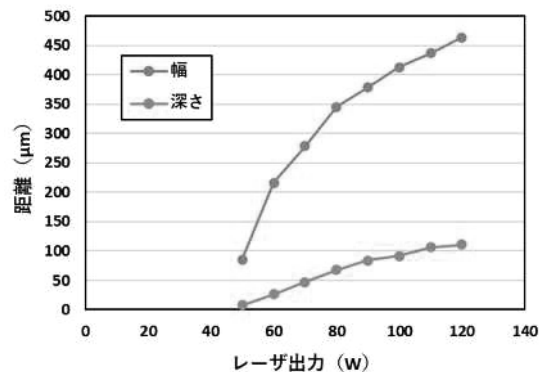


図2 レーザ出力と熱影響部幅、深さとの関係

肉盛に及ぼすレーザー出力の影響に関して検討を行った。加工速度6mm/s、粉末送給12mg/s一定とし、レーザー出力を10W刻みで20~120Wに変化させ、肉盛ビードを1本走らせた。肉盛ビードの外観観察結果を図3に示す。

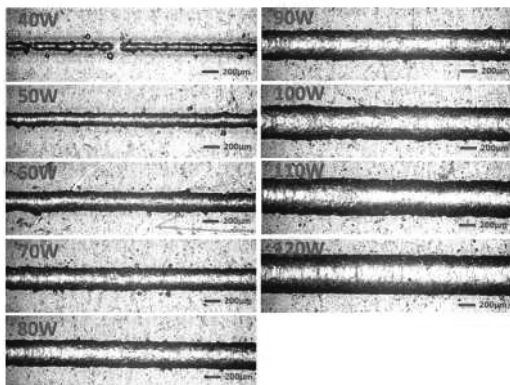


図3 肉盛ビードの外観観察結果

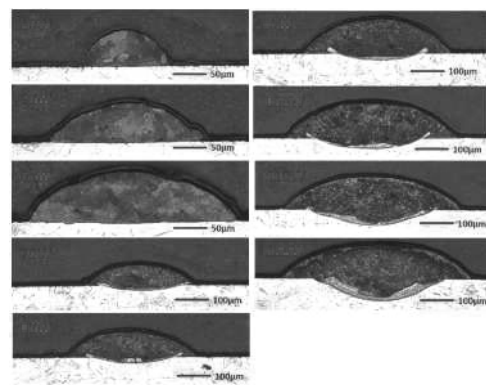


図4 肉盛ビードの断面組織の比較

20,30Wでは、全く肉盛が出来なかった。40Wで不連続ながら肉盛ビードが形成された。50W以上で1本の連続肉盛ビードが形成された。図3より肉盛ビード表面は滑らかで、割れやブローホール等の欠陥は観察されなかった。図4に肉盛ビードの断面組織の比較を示す。60Wまでは、基材表層部が溶けた様子は観察されなかった。70W以上になると基材表層部が溶けて銅が基材側に溶け込んでいるのが観察された。図4の肉盛ビード断面組織を用いて、肉盛ビードの幅、高さ、溶け込み深さを計測し、レーザ出力との相関をまとめた結果を図5に示す。肉盛ビード幅は、レーザ出力の増加に伴い単調に増加した。肉盛ビード高さは、レーザ出力90Wまでは、約100 μm まで緩やかに増加し、90W以上では、ほぼ約100 μm で一定となった。溶け込み深さは、90W以上で増加度合いが大きくなっており、肉盛材の希釈が大きくなっていった。肉盛材の希釈状況を見るために、基材表層部が溶けていなかったレーザ出力60Wと肉盛材の溶け込みが見られるレーザ出力120Wの場合の肉盛ビード断面においてEPMA面分析を行った。その結果を図6に示す。レーザ出力60W肉盛では、基材と肉盛の境界部分において肉盛側への基材成分Fe, Cr, Niの溶け込みは見られなかった。一方、レーザ出力120W肉盛の溶け込み部分において、基材成分Fe, Cr, Niの溶け込みが明瞭に観察された。

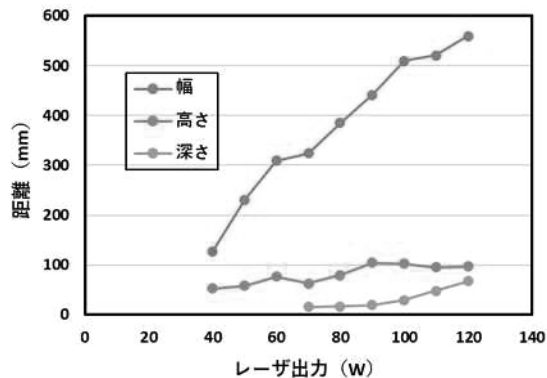
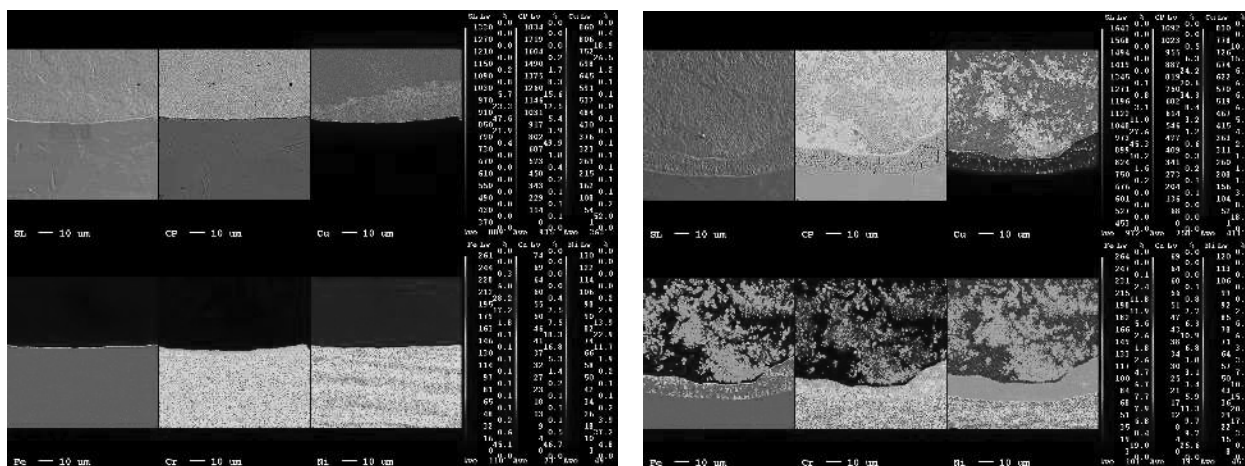


図5 肉盛ビード形状に及ぼすレーザ出力の影響



(a)レーザ出力60W肉盛の分析結果

(b)レーザ出力120W肉盛の分析結果

図6 肉盛ビード断面におけるCu,Fe,Cr,NiのEPMA面分析結果

レーザ出力60W、加工速度6mm/s、粉末供給12mg/sの加工条件で、肉盛材の希釈が殆どなく、欠陥の無い肉盛ビードが得られたので、同じ加工条件で4 \times 3mmの1,2,3層肉盛を試みた。図7に肉盛層断面組織を示す。多層肉盛にしても肉盛の厚みはほぼ同じで、今回の加工条件では多層肉盛が上手く出来ていなかった。

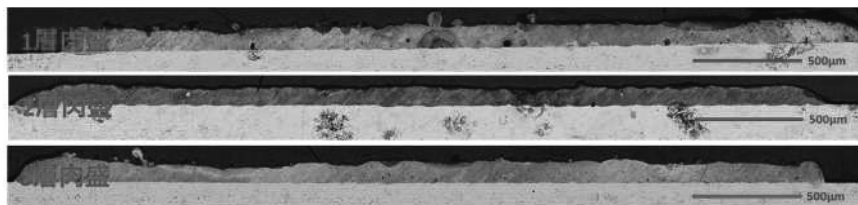


図7 1層肉盛、2層肉盛、3層肉盛の断面組織の比較

4. 結論

銅は熱伝導が良いため、多層肉盛する場合は、1層目銅肉盛の存在により抜熱し易い状態にあることを考慮し、1層目肉盛条件よりも投入エネルギーが大きくなる肉盛条件にする必要があると考えられる。

(共同研究分野:レーザプロセス学分野)

エネルギービームと物質との相互作用現象の解明 超短パルスレーザーによる加工プロセスに関する研究

宮崎大学 産学・地域連携センター 甲藤 正人

1. はじめに

レーザーはその特長を活かし、接合や溶接、被膜形成などのものづくり分野の産業応用が盛んであり、近年のレーザー光源開発のトレンドとしては、短波長化と短パルス化がある。一般に紫外より短波長の領域においては、多くの材料が高い吸収率を持つこと、ならびに光化学的な作用の増大と回折限界角が小さいことも併せて、極精密加工への応用が期待される。また短パルス化においては、照射部近傍のみに加工に必要なエネルギーを集中させることができ、熱的な影響の少ない加工が可能である。

宮崎大学では、これらの特長を併せ持つ短波長・短パルスレーザー光源として、真空紫外 (Vacuum Ultraviolet: VUV) 域である波長 126 nm で発振し、パルス幅がサブ ps の出力が得られるレーザーシステムの開発を行っている。この VUV レーザーシステムを基幹装置として、自己位相変調による短波長広帯域・超短パルス光の発生も期待され、高付加価値な加工プロセスや表面処理、表面計測・分析への応用展開が期待される。

本共同研究においては、短波長ならびに短パルスレーザーの応用技術開発による物質とレーザー光の相互作用過程の解明を目的としている。本年度は、所有するレーザーシステムを利用し、超短パルスレーザー加工プロセスにおけるエネルギーの蓄積と拡散など、プロセスにおける物理的素過程を検討するべく研究を実施した。

2. 超短パルスレーザーシステム

宮崎大学においては、2 台の近赤外チタンサファイアレーザーをジッター 2 ps 以下で同期発振が可能なレーザーシステムを構築し、非線形光学効果や光電離エキシマ生成技術などにより、真空紫外領域でのレーザー光源を開発してきた。

この共同研究においては、超短パルスレーザーによる加工プロセスにおける基礎過程を検討することを目的として、昨年度に引き続き、波長 800 nm のレーザーを用い、1 パルスあたりフルーエンスならびに照射回数を変え、表面での加工の進展がどの様に変化するかを観測することで、レーザープロセスの初期過程を検討することを目的とした。

3. 超短パルスレーザー加工における結晶シリコンの面方位による違い

波長 800 nm、繰り返し 1 kHz、パルス幅が 125 fs (FWHM) の Ti:Sapphire レーザーを光源として、1/2 波長板とポラライザーを用いてパルスエネルギーを変えた。レーザー光は $f=30\text{ cm}$ のレンズを用いて試料表面に集光し照射した。試料には真性半導体 (ノンドーブ) Si (111) 基板を用いた。焦点位置における集光径は、CCD カメラによるビームプロファイル計測により、 $143\ \mu\text{m}\times 155\ \mu\text{m}$ の楕円形状であった。照射パルス数は、レーザーパルスと同期させた高速メカニカルシャッターを用いてレーザーパルスを切り出すことにより制御し、1 から 30 まで変えた。照射後に加工痕をデジタルマイクロスコープで観察した。

図 1 に 1 パルスの照射フルーエンスならびにパルス数を変化させた際の加工痕を示す。照射パルス数を多くすると、表面に変色した部分が観測され始めるしきい値フルーエンスが低くなっていることが分かる。変色部分の表面は結晶からアモルファス相へと変化していることが知られている。

複数ショットの照射時において、フルーエンスが大きくなると、強度の高い中心部から円形にアモルファス化し、その後に黒色のアブレーション部が観測された。(100) 基板では、パルス数を重ねることで、中心部に再結晶相が観測され、明確な円環状となっていたが、(111) 基板では周囲の変成が濃く見られる程度であった。照射フルーエンスが $0.13\ \text{J}/\text{cm}^2$ 以下においては、中心部より先に周辺部のアモルファス部からアブレーションが観測されている。一方、 $0.13\ \text{J}/\text{cm}^2$ 以上の高いフルーエンスの照射では、強度の高い中心部からアブレーションが観測されていることが分かる。これらのことより、アモルファス部の方がアブレーションしきい値が低いことが推測される。複数回数の照射による加工においては、1 パルスのフルーエンスにより

加工の進展が異なることがわかる。

図1の最左列、シングルパルスの照射において、Si(111)面では(100)基板と比較して、アモルファス変成のしきいエネルギー値が1/2に低下したことが、また、アモルファス相が顕著に観測されたことが異なる。

これらの違いは、シリコンの加工においては異方性があることが知られており、例えば面方位による熱伝導性の違いなどが原因と考えている。

今後、照射痕の各部位表面の分析を実施し、超短パルスレーザー加工の初期過程について、より詳細に検討する予定である。また、これまでは真性半導体をサンプルとしていたが、N型(Pドープ)Si基板を用い、キャリア密度が加工に与える影響を調査する予定である。

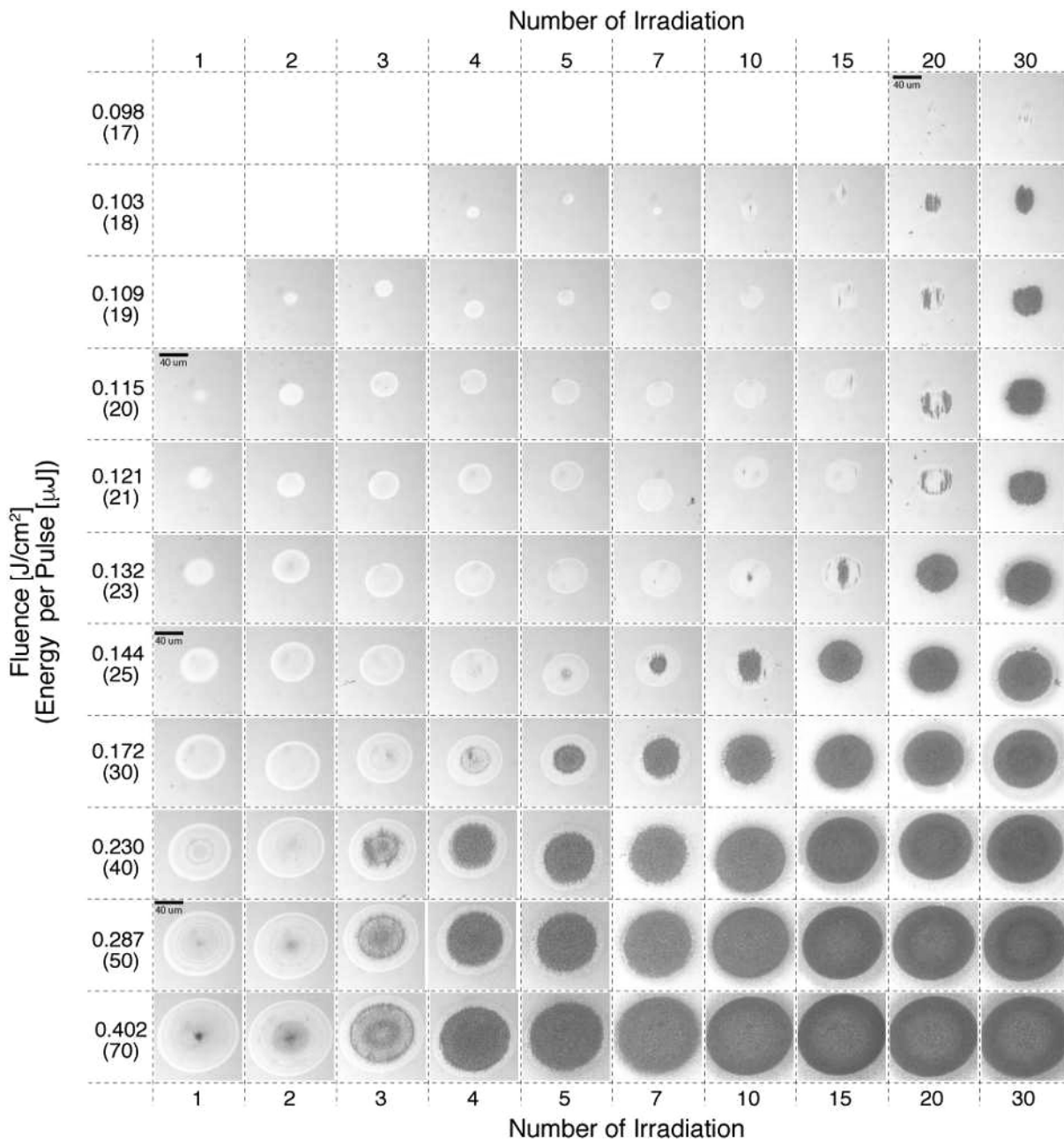


図1 超短パルスレーザーのフルーエンスと照射パルス数を変えた際の Si(111) 表面の加工痕

(共同研究分野：レーザプロセス学分野)

短パルスレーザーによる色中心生成に関するモデル構築

産業技術総合研究所 電子光基礎技術研究部門 先進プラズマプロセスグループ
加藤 進

1. 目的

酸化チタン (TiO₂) 薄膜表面に波長 775nm, パルス幅 150 fs のレーザーを照射することにより, 着色と電気抵抗の減少や可視光で光触媒機能の発現が観測されている. その原因は酸素欠損と考えられているが, 不明な点が多い. 本研究では, 短パルスレーザーによる酸化チタンなどの誘電体表面および内部への色中心生成に関するモデルを構築することにより, エネルギービームと物質との相互作用現象を解明し, 光触媒機能発現の原因の特定を目指している.

これまで, 点欠陥生成に関する現象論的なカイネティックモデルを提案し, 点欠陥密度の評価を行ってきた[2]. このとき, 吸収係数に加え, 重要なマクロパラメータとして欠陥生成の活性化エネルギーを用いていた. しかし, その活性化エネルギーの絶対値に第一原理的な裏付けはなかった. また, 欠陥発生による吸収係数の変化も考慮していない.

今年度は, 欠陥が吸収係数に与える影響を理論的に検討するため, 第一原理電子状態計算を用いて, 銅酸化物の複素誘電率について調べた.

2. 銅酸化物のバンド構造と電子状態密度

銅酸化物には, 立方晶系の酸化第一銅 (Cu₂O) と単斜晶系の酸化第二銅 (CuO) がある. 今回の計算では, 密度汎関数法による第一原理電子状態計算ソフトウェアの一つである Quantum Espresso (QE) [3]を用いて, 酸化第一銅 (Cu₂O) の立方晶系結晶(A)と銅原子に欠損のある結晶(B)に対するバンド構造, 電子状態密度および複素誘電率を図 1 に示す. 酸化第一銅 (Cu₂O) に対しては, 実際の結晶の格子間隔 (4.288[Å]), 密度 (6.03 [g/cm³]) を用いたが, 欠陥のある結晶は, ユニットセルにある 4 個の銅原子から 1 個を取り除いた仮想結晶 (Cu₃2O) である.

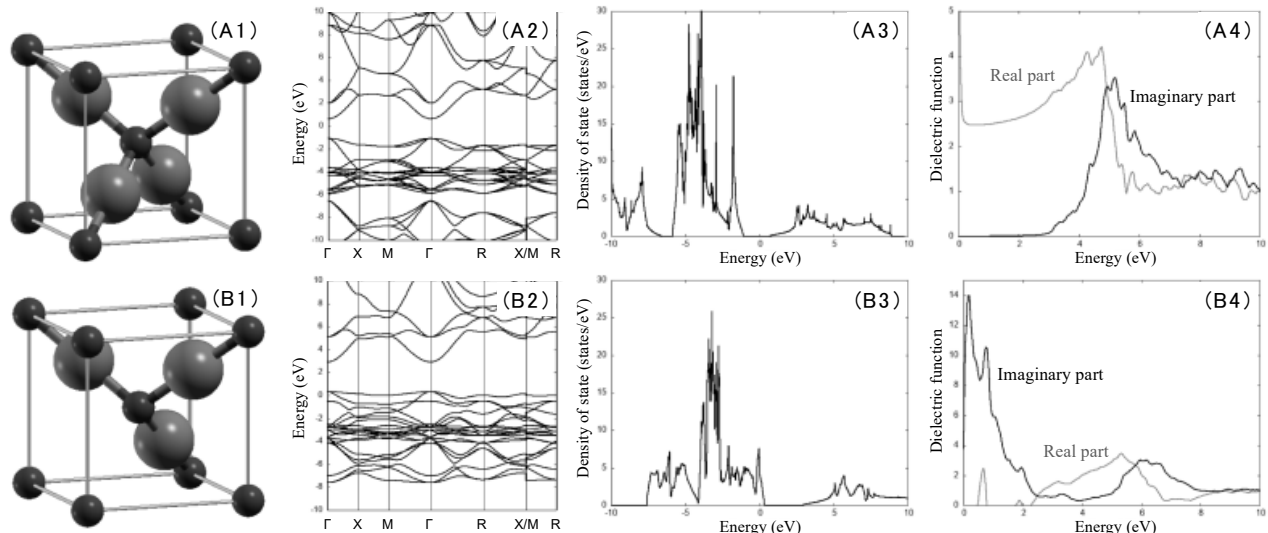


図 1. 酸化第一銅結晶(A)と銅原子に欠損のある結晶(B)の(1)結晶構造, (2)バンド構造, (3)電子状態密度および(4)複素誘電率結晶構造,

3. まとめ

第一原理電子状態計算ソフトウェアを用いて Cu₂O と Cu 欠損のある結晶に対する複素誘電率を求めた. バンド構造, 電子状態密度は, Meyer らの論文[4]と大きな相違はないが, 一致しない点もある. 欠損のある結晶についても, 欠損の量が現実とは大きく異なっている. 今後, 相違の原因の特定や現実的な酸素欠陥量がある結晶の複素誘電率や吸収係数を求める予定である.

4. 参考文献

- [1] M. Tsukamoto et al., Appl. Phys. A 93, pp. 193-196 (2008). M. Tsukamoto et al., Appl. Phys. A 110 pp. 679-682 (2013). M. Tsukamoto et al., Appl. Surf. Sci. 313, pp. 730-735 (2014).
- [2] S. Kato, A. Sunahara, and M. Tsukamoto, J. Vac. Sci. Technol. A 37, 031512 (2019).
- [3] P. Giannozzi et al., J. Phys. Condens. Matter 21, 395502 (2009). P. Giannozzi et al., J. Phys.: Condens. Matter 29, 465901 (2017).
- [4] B. K. Meyer et al., Phys. Status Solidi B 249, No. 8, 1487-1509 (2012).

(共同研究分野: レーザプロセス学分野)

1. 目的

WC/Co 超硬合金は工具等にコーティングされ、工具の機械加工性能や摩擦摩耗特性の向上が図られている。近年では、レーザ加工を用いた指向性エネルギー堆積法 (Directed Energy Deposition: DED) によって、WC/Co 超硬合金を工具の必要な部分にのみコーティングする試みも行われている¹。本研究ではマルチビームレーザ式 DED 装置²によって、Co-Cr-W 合金と WC/Co 超硬合金の層形成を中炭素鋼の基材上に種々のレーザ加工条件で実施した。得られた種々の試料の表面に対してボールオンディスク型の摩擦摩耗試験を行い、ボール材の摩耗量等を測定することで、コーティング材としての機械加工性能の評価を実施した。これによってレーザ加工条件がコーティング材の微細組織と機械加工性能に及ぼす影響を調べた。

2. 研究方法

粉末を積層造形するための基材として中炭素鋼 (S45C) の板材を用いた。また積層造形用の粉末材料として、平均粒子径 10 μm の Co-Cr-W 合金粉末と、粒子径約 1 μm の WC 微粒子を Co ボンド材で造粒焼結することで作製した平均粒子径 30 μm の WC-12wt.%Co 造粒粉末を用いた。マルチビームレーザ式 DED 装置を使用して、これらの粉末を最大で 3 層まで積層造形することで、傾斜組成超硬合金を基材上に形成した。1 層目は Co-Cr-W 合金 (5 mg/s) のみ、2 層目は Co-Cr-W 合金 (5 mg/s) と WC-12wt.%Co 造粒粉末 (15 mg/s)、3 層目は WC-12wt.%Co 造粒粉末 (15 mg/s) のみとした。レーザ加工時の出力は、1 層目 100 W、2 層目 120 W、3 層目 120 W とした。レーザ走査速度は 10 mm/s とした。また 1 層目を加工する際のレーザ集光位置は基材上の 0 mm とした。2 層目と 3 層目を加工する際には、レーザ集光位置を基材上の 0 mm と 0.5 mm とし、2 つの異なる条件で加工した試料をそれぞれ作製した。積層造形材の断面に関して SEM による微細組織観察を行った。また、SEM 画像から各層ごとの WC 粒子径を算出した。

マルチビームレーザ式 DED 装置によって造形した各試料の表面に対して、ボールオンディスク型の摩耗試験を行った。すなわち、各試料は基材 (S45C ままのコーティング無し)、1 層目までの造形材 (Co-Cr-W 合金)、2 層目までの造形材 (集光位置 0 mm と 0.5 mm の 2 試料)、3 層目までの造形材 (集光位置 0 mm と 0.5 mm の 2 試料) の合計 6 試料である。摩耗試験後に相手材であるボール材 (SUJ2) の表面を共焦点顕微鏡により観察を行い、ボール材の摩耗幅、摩耗深さ、摩耗量の測定を行うことで造形層の機械加工性能を評価した。

3. 研究結果

組織観察の結果、2 層目と 3 層目ともにレーザ集光位置を基材上の 0 mm から 0.5 mm とすることで、WC 粒子の粒成長が観察された。摩擦摩耗試験後のボール材表面の共焦点顕微鏡像の観察結果に関して、球状面に形成された摩耗痕を平面に変換し、その摩耗幅、摩耗深さ、摩耗量を図 1 のようにして計測した。表 1 に各ボール材表面における摩耗幅、摩耗深さ、摩耗量を示した。摩耗幅、摩耗深さ、摩耗量に関して、2 層目よりも 3 層目の方が大きくなり、また集光位置 0 mm よりも 0.5 mm の方が大きくなる傾向が観察された。WC 含有量が多いほど、また WC 粒子径が大きいほど相手材のボール材を顕著に摩耗させる傾向が観察された。これらの結果は、WC 含有量と平均 WC 粒子径の大きさの違いによるものであると考えられ、摩擦摩耗試験の結果と WC 粒子の含有量や粒サイズとの間に相関が見られた。基材や 1 層目の Co-Cr-W 合金と比べ、WC/Co 超硬合金を含む層では機械加工性能の向上が確認され、またマルチビームレーザ式 DED 装置のレーザ加工条件の変化によっても WC 粒子径が変わるため機械加工性能の向上が得られることが確認された。

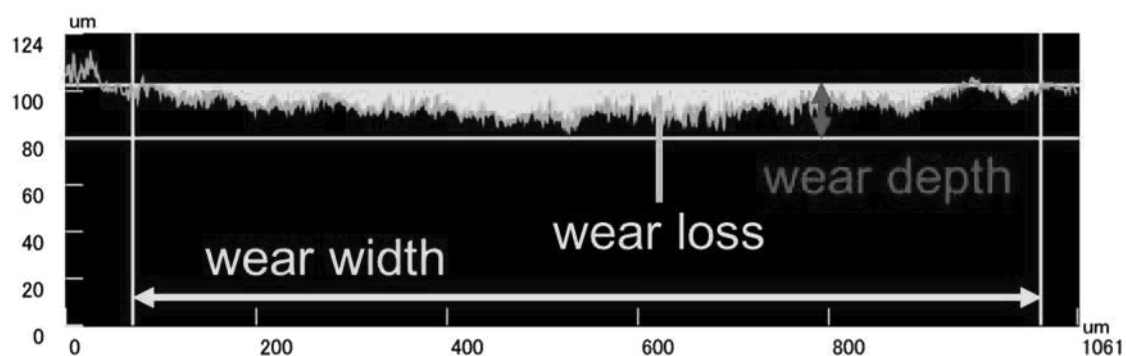


図 1. 共焦点顕微鏡による摩耗領域の測定結果.

表 1. 各試料表面に対する摩擦摩耗試験の結果.

	S45C	1st layer	2nd layer 0 mm	2nd layer 0.5 mm	3rd layer 0 mm	3rd layer 0.5 mm
Wear Width [μm]	570	630	750	930	1050	950
Wear Depth [μm]	14	10	15	16	18	23
Wear Loss [μm^2]	3950	2080	3970	4990	6670	7880

4. 結論

マルチビームレーザ式 DED 装置のレーザ集光位置を基材上方に制御することで、WC/Co 超合金中の WC 粒子の粒成長を促進することができ、これによって WC/Co 超合金層の機械加工性能の向上を図ることができた。

5. 参考文献

- [1] D. Bartkowski, A. Bartkowska. “Wear resistance in the soil of Stellite-6/WC coatings produced using laser cladding method” *Int. J. Refract. Met. Hard Mater.*, **64**, pp. 20–26 (2017).
- [2] K. Asano, M. Tsukamoto, Y. Sechi, Y. Sato, S. Masuno, R. Higashino, T. Hara, M. Sengoku, M. Yoshida. “Laser metal deposition of pure copper on stainless steel with blue and IR diode lasers” *Opt. Laser Technol.*, **107**, pp. 291–296 (2018).

(共同研究分野：レーザプロセス学分野)

レーザ加工におけるビームと材料の相互作用ならびにレーザ加工現象の解明：

フェーズフィールドモデルを用いた、レーザクラディングにおける割れ発生の機構の解明

武蔵野大学 工学部 数理工学科
高石 武史

1. 目的

レーザクラディングは、レーザにより金属を瞬時に加熱し溶融する肉盛り加工であり、熱影響を受けやすい母材の表面加工など多くの分野で応用され始めている。しかし、肉盛りされた金属の冷却時に割れが発生することにより強度を著しく低下させる場合があり、その原因の究明と改善のために割れ発生機構の解明が必要である。本研究ではレーザクラディングによる接合の際に発生する割れに関して、フェーズフィールドを用いたき裂進展モデルを適用することで、その機構をどのように解明できるか検討する。今年度は盛り形状での温度収縮によるき裂進展について調べる。

2. 研究方法

レーザクラディングにおける積層割れについて、実験データと照合した結果、低温割れであり、またはほぼ脆性的に割れていることが考えられ、塑性等を含まないモデルでのき裂進展について検討することとした。フェーズフィールドを用いたき裂進展モデルがどの部分に適用できるか、必要な条件などを検討し、数値シミュレーションのプロトタイプを作った。き裂の有無をフェーズフィールドと呼ばれる場の変数として導入するフェーズフィールドモデルでは、弾性エネルギーとき裂面形成エネルギーの総和をもとにき裂面の形状と変形を求めるもので、連続モデルとして理論的に解析することも可能であり、数値計算手法にも依存しない。フェーズフィールドモデルの構築としてはMaxwell型粘弾性モデルにおいて粘性を示すダッシュポット(ダンパー)を熱膨張素子に置き換えたき裂進展モデルを考えた。これは、既に木村-Alfatによって導出されたものと同様である。2020年度の共同研究において、熱は瞬時に伝わるものとして、接合部分においてき裂進展が生じることを確かめた。今年度は基板上に盛られた形状での割れについて、全体の温度が一様に低下していく場合と、境界からの熱伝導により温度が変化する場合について調べた。

3. 数値計算結果

数値シミュレーションには規格化した方程式を用い、FreeFEMを用いて有限要素法で計算を行った。材料基板上にクラディングによる金属が盛られている形状において、規格化したヤング率 E 、及び、規格化したエネルギー開放率 γ に対してき裂進展がどのように変化するかを調べた。数値シミュレーションに用いた計算領域と有限要素メッシュをFig.1に示す。計算領域の底面は材料基板に固定されているものとし、その他は自由境界とした。また、時刻 $t=0$ において、初期のき裂および変位はないものとした。数値シミュレーションにおいては、応力が集中する点での計算を精密に行うためにアダプティブメッシュ有限要素法を用いているため、各時間ステップにおいてメッシュ分割は変化している。

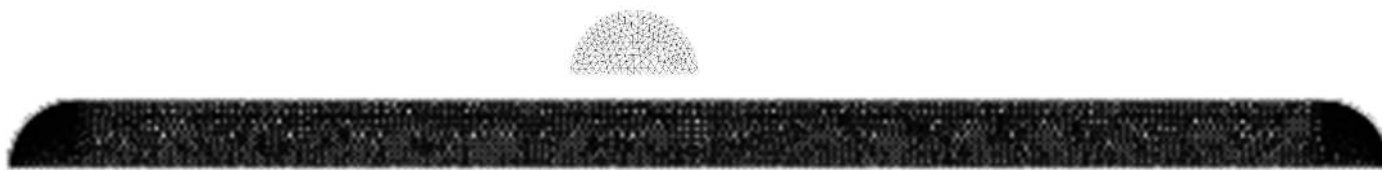


Fig.1 数値シミュレーションにおける計算領域とメッシュ分割。半円形状(上)、および横長の形状(下)による計算領域。

(1) 一様な冷却による割れの進展

最初に半円形状の材料におけるき裂進展について調べた。時間に比例して材料の温度を一様に低下させることで材料は収縮していき、各点の変位により生じた応力から、底面の固定境界の両端からき裂面が形成されていくことがわかった。Fig.2はき裂による変形した材料にフェーズフィールドの値を色で表示したもので、ヤング率 E が大きいほどき裂が大きく成長していることがわかる



Fig2 $E = 10, \gamma = 0.01$ (左)、 $E = 100, \gamma = 0.01$ (右)における、 $t = 1$ でのき裂の様子。色はフェーズフィールドの分布を表現している。

次に、ヤング率を $E = 10$ に固定し、横長の薄い形状におけるき裂進展について調べた。半円形上の場合と異なり、横長の形状では臨界エネルギー開放率 γ が小さい場合に、接地面の両端ばかりでなく、上部表面にもき裂が発生していることがわかる(Fig3)。

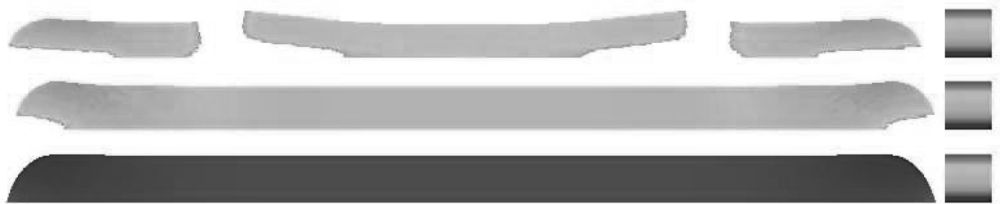


Fig3 $E = 10, \gamma = 0.005$ (上), 0.01 (中), 0.1 (下)における、 $t = 1$ でのき裂の様子。色はフェーズフィールドの分布を表現している。

(2) 熱伝導を考慮したモデルでの割れの進展

境界温度の分布を仮定し、熱伝導の時間発展を同時に解くことで、計算領域内の温度分布の変化と、そのき裂進展への影響について調べた。 $E = 10, \gamma = 0.005$ として、上面に行くほど表面境界の温度が下がると仮定して、シミュレーションを行った。時間経過により材料の温度分布が変化することで局所的に収縮していき、各点の変位により生じた応力により、上部表面からき裂が成長していることがわかる(Fig4)。また、この場合には接地面でのき裂は生じていない。

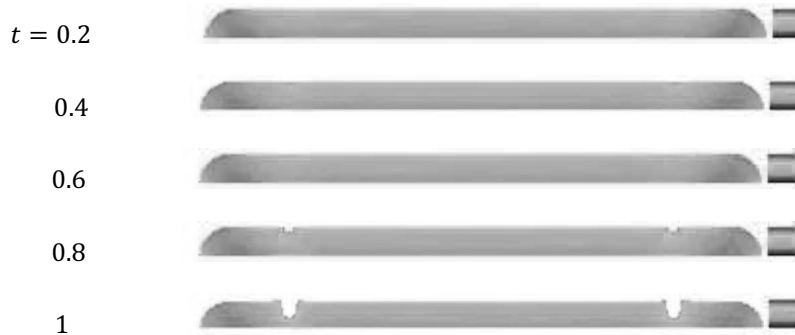


Fig4 熱伝導を考慮したモデルでの各時刻におけるき裂進展の様子。色はフェーズフィールドの分布を表現している。

4. 結論

本研究では、レーザークラディングにおける割れ発生機構の解明のために、盛り上がり形状の物質の冷却過程でのき裂進展を調べた。一様な温度低下が起きる場合においては、半円状では材料との接地面でのき裂が生じやすいことがわかった。また、横長の形状では上部表面にもき裂が生じ、臨界エネルギー開放率 γ が小さいことで表面き裂が生じやすいことが確認できた。さらに、境界の温度分布を上部冷却で設定し、材料の温度分布が熱伝導の時間発展に従うき裂進展シミュレーションを行った場合には、上部表面でき裂が開くような進展がみられ、接地面でのき裂が生じない場合があることも分かった。今後、境界温度分布、材料定数の分布の実験と対比することで、積層割れのメカニズムを再現できることが期待される。

(共同研究分野：レーザープロセス学分野)

16 kW ディスクレーザを用いたキーホール型溶接における スパッタの抑制機構の解明に関する研究

近畿大学大学院 総合理工学研究科
中野人志・有田智貴

1. 目的

レーザ溶接は、高パワー密度を有し、高速な溶接が出来る手法として多くの産業分野で活用されている。しかも、レーザ光は、制御性が高く、光ファイバで導光することが可能なためロボットアームに搭載して使用できるなど、用途が広い。一般に、レーザ光が金属に照射されると、レーザ光が表面で吸収され、露光部の温度が融点・沸点温度以上に加熱され、キーホールが形成される。キーホール内では、レーザ光が多重反射を繰り返して吸収され、深い溶け込みを得ることができる。しかし、キーホールの形成とともに熔融池が飛散するスパッタが発生し、減肉や空孔の発生などの溶接欠陥が生じてしまう。そのためスパッタの発生を抑制する技術の開発が望まれている。

これまでに減圧雰囲気でレーザ溶接を行うとスパッタが低減することが報告されている¹⁾が、スパッタが減少する機構はまだ明らかにされていない。そこで本研究では、熔融池の揺らぎに着目した。減圧雰囲気下でレーザ溶接を行い、形成される熔融池の形成過程を高速ビデオカメラを用いたガラス透過法による観察を行い、熔融池断面積が雰囲気圧力およびスパッタ発生量に依存していることを明らかにした。

2. 実験方法

実験装置の概略図を Fig. 1(a)に示す。レーザは波長 1030 nm, 最大出力 16 kW の Yb ドープ CW ディスクレーザを用いた。レーザはコア径 200 μm の光ファイバによって加工ヘッドに伝送した。光ファイバから出射されたレーザ光はレンズによって平行光にし、集光レンズによって試料表面へと集光された。スポットの大きさは $1/e^2$ で 350 μm であった(Fig. 1(b))。サンプルには 50 mm \times 3 mm \times 50 mm¹ のオーステナイト系ステンレス鋼(SUS304)を用いた。サンプルは、真空チャンバー内のジグによって所定の位置に固定し、真空チャンバー下部に設置し電動ステージを用いて真空チャンバーを移動させることによってレーザスポットを掃引した。実験条件は、レーザ出力は 10 kW, 掃引速度は 8 m/min とした。また、真空チャンバー内の圧力はロータリーポンプを用いて減圧し、その後アルゴンガスを充填して任意の圧力でビードオンプレート溶接試験を行った。レーザ照射時に形成される熔融池は SUS304 板とホウケイ酸ガラス (50 mm \times 50 mm \times 2 mm¹) をクリップで圧力をかけ密着させた。SUS304 板とガラスの界面にレーザを照射し、形成された熔融池の深さ分布は、バンドパスフィルタを取り付けた高速ビデオカメラを用い、熔融池の自発光の波長 800 \pm 20nm を観察した。

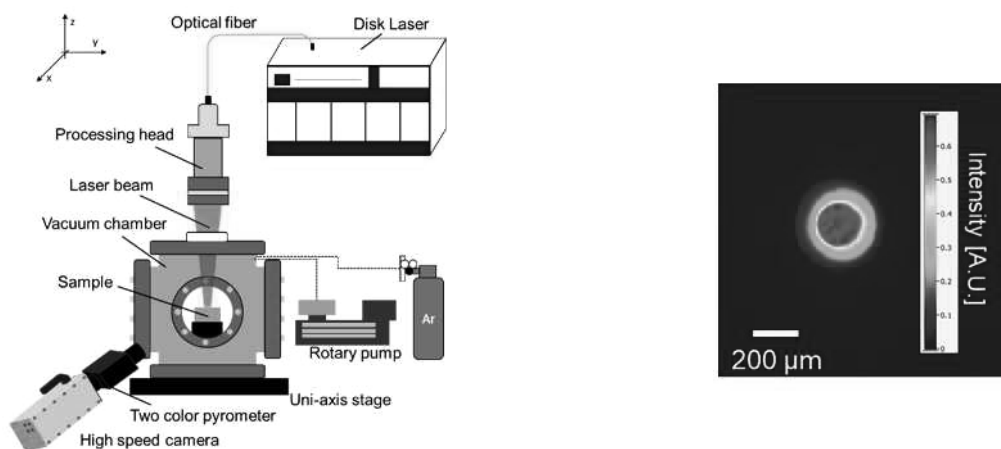


Fig. 1(a) Experimental setup for bead on plate test with 16 kW disk laser under vacuum. (b) Laser beam profile at the focal point.

3. 実験結果

Fig. 2 に雰囲気圧力を大気圧と 10 Pa の条件で SUS304 板にビードオンプレート溶接試験を行い、溶接が定常状態となった時点での高速度ビデオカメラを用いたガラス透過法による溶融池の断面画像を示す。この画像から溶融池断面積を測定した結果、雰囲気圧力が 10 Pa では溶融池断面積が 39.5 mm²、大気圧では 9.9 mm² と溶融池の大きさが大気圧と比較して 10 Pa では約 4 倍大きくなっていることがわかった。Fig. 3 に雰囲気圧力に対するスパッタ発生量と溶融池断面積の相関を示す。雰囲気圧力が高くなるに従ってスパッタ発生量は多くなるが、これに反して溶融池断面積は小さくなった。即ち、溶融池断面積が大きくなるとスパッタは少なくなることがわかった。

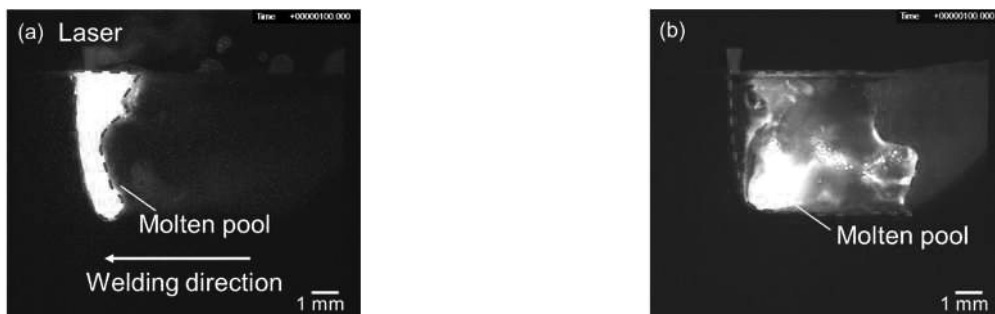


Fig. 2 The molten pool shape.

(a) Atmospheric pressure, (b) Ambient pressure of 10 Pa

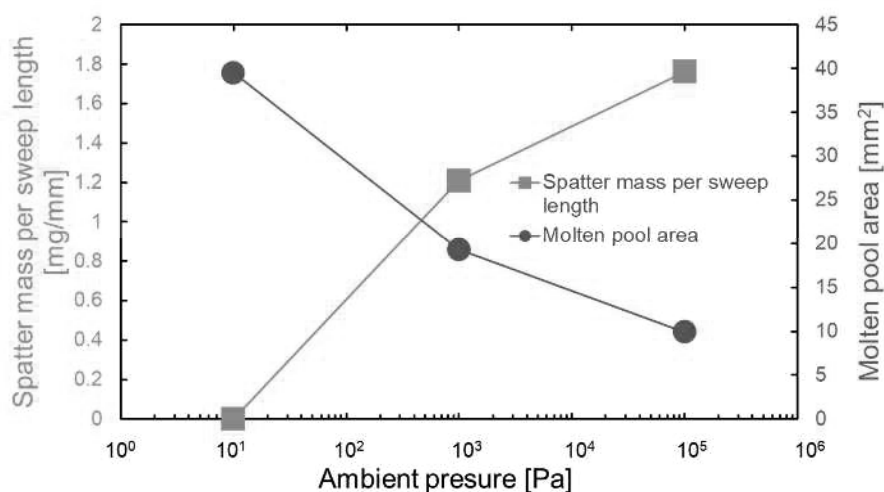


Fig. 3 Correlation of spatter mass and molten pool area with respect to ambient pressure.

4. 結論

本研究ではレーザ溶接におけるスパッタの抑制機構を明らかにするために、高速度ビデオカメラを用いたガラス透過法による溶融池挙動のリアルタイム観察を行った。その結果、スパッタは溶融池断面積が大きくなるに従って少なくなり、また溶融池断面積がスパッタの発生因子となっていることを明らかにした。

5. 参考文献

1) Y. Sato and T. Arita et al., Journal of Laser Applications, 33 (2021) 042043.

(共同研究分野：レーザプロセス学分野)

レーザー加工におけるビームと材料の相互作用ならびにレーザー加工現象の解明 複合レーザービーム照射による新しい表面機能の創成

東海大学
総合科学技術研究所
橋田昌樹

はじめに

固体材料の破壊閾値を超えるパルスレーザーを照射すると表面が飛散剥離（アブレーション）し痕跡が残り、その表面にはレーザー波長程度の格子間隔を持つ周期的な微細構造（LIPSS）が形成される。LIPSS が最初に報告されたのは 1965 年で、LIPSS の格子間隔 Λ はレーザー波長 λ と同程度であった。1997 年には格子間隔がレーザー波長より短くなる LIPSS がフェムト秒レーザーで形成された。その後、LIPSS の格子間隔は 2014 年には格子間隔がレーザー波長の $\lambda/13$ のものがダブルパルスを用いることで形成に成功している。そして自由電子 THz 波においても $\lambda/25$ 程度の格子間隔の LIPSS が形成されている。

LIPSS の形成機構としてフェムト秒レーザー照射表面に瞬時にできる表面プラズマと固体（ここでは金属）との界面にできる表面プラズマ波が寄与しており、その波数 k_{ps} が表面構造の周期を決めていると言われている。表面構造の周期（格子間隔）は固体密度と表面プラズマ密度を制御することでコントロールできることをシミュレーションにより示されている。実験ではレーザービームの照射条件（照射方式、波長、パルス幅、偏光、フルエンス等）、固体の材料種や表面形状に依存することが経験的にわかってきている。

レーザー照射時の表面プラズマや表面プラズマ波を計測する装置はなく、シミュレーションと実験を比較するためにも高い時空間分解計測の開発が急務となっている。そこで、LIPSS 形成のメカニズム解明を目指して独自に開発した高速アブレーション法による、金属表面の反射率と光の進入長の時間的な変化をその場計測したので成果報告する。

実験結果と考察

複合レーザー照射によるその場計測では、独自に開発した高速アブレーション法をチタンに適用した。アブレーション抑制が最大になる遅延時間の詳細を調べるため波長の異なるダブルパルス（800nm と 400nm）を用いた実験を実施した。レーザーのパルス幅は 150fs (FWHM)、照射直径は 25 μ m (FeW¹M) である。時間的に最初に照射されるパルスを第一パルスと呼び遅延されて照射されるパルスを第二パルスと呼ぶ。第一パルスはアブレーション閾値 F_{th} の 1.5 倍に設定し、第二パルスをアブレーション閾値 F_{th} の 1.0, 0.75, 0.50 倍に調整し遅延時間を変化させアブレーション率を測定した。図に実験結果を示す。第一パルスが 400nm の場合 (図(a)) ではアブレーション抑制は遅延時間 200ps のとき最も大きく、一方、第一パルスが 800nm の場合 (図(b)) ではアブレーション抑制は遅延時間 60ps で最大を示した。波長により抑制時間が異なることが明らかになった。次に、第一パルスで生成されたプラズマが膨張し、第二パルスが照射されるときに臨界密度に達した時に抑制が最も大き

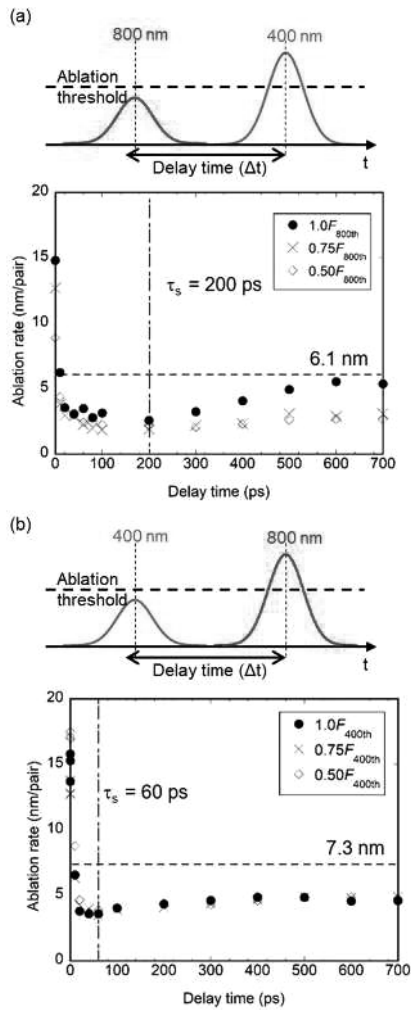


図 $F_1 = 1.5F_{th}$, P 照射のアブレーション率の遅延時間依存性 ($F_2 = 0.5F_{th}$, $0.75F_{th}$, $1.0F_{th}$)

くなると仮定すると、臨界密度は $1/\lambda^2$ に比例するため第二パルスの波長により照射遅延時間が異なることが分かる。プラズマ膨張時間を 1000m/s とすると図(a)の照射では計算値 154ps を示し実験値 200ps に比較的近い値を示した。一方、図(b)の照射では計算値 51ps を示し実験値 60ps と良い一致を示した。実験結果は表面のプラズマにより説明できることが明らかになった。白金、シリコンも同様にアブレーション抑制が測定されており表面プラズマにより抑制されていると考察した。

おわりに

本研究では1つのフェムト秒レーザパルスをTi基板に照射した後に、時間差をつけてもう1つのレーザパルスを照射する、「複合レーザビーム照射」という照射方法を用いた。特に、組み合わせるパルスの波長を変えた「二波長複合レーザビーム照射」を行い、アブレーション抑制が最大化する時間が変化することを明らかにした。抑制する時間がレーザ生成プラズマの臨界密度によることを明らかにした。

謝辞

本研究の一部は、大阪大学接合科学研究所共同研究、科学研究費補助金(基盤研究(C) 課題番号 JP16K06745)、

及び(国)新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の「エネルギー・環境新技術先導プログラム/新機能材料創成のための高品位レーザ加工技術の開発」、H30-R3年度文部科学省光・量子飛躍フラッグシッププログラム(Q-LEAP) JPMXS0118070187、天田財団重点研究開発助成(課題番号 AF-2018203-A3)の支援を受けて行われた。

成果報告

[1] K. Takenaka, *et al*, Appl. Phys. Lett. **119**, 231603 (2021).

(共同研究分野：レーザプロセス学分野)

レーザークラッティングおよび積層造形技術の開発 -青色半導体レーザーマルチビーム式 LMD 法を用いた純銅ラティス構造作製および銅合金皮膜形成-

大阪産業大学工学部電子情報通信工学科

森本雄喜、菟谷充成、部谷 学

1. はじめに

本研究では、入熱を抑えた密着性の高い良質な付加造形に適し、金属への応用が可能な指向性エネルギー堆積の一種であるレーザー金属堆積法 (LSM: Laser Metal Deposition) に着目する。LSM 法は熱源にレーザーを用いているため、入熱の精密な制御を行うことができる。このため、基材への投入熱量を最小限とすることで、熱影響が小さく良質な積層造形を行うことができる。本研究では、純銅および銅合金の積層造形技術の用途開発を目指し、LSM 法の中の 1 方式であるマルチビームレーザー金属堆積法を用いて、2 つの基礎実験を行う。1 つ目は純銅のラティス構造の作製、2 つ目は銅合金の皮膜形成である。以下に、それぞれについて述べる。

2. 純銅のラティス構造の作製

純銅は加工性が低いため、複雑形状の構造を形成するのが難しい。そこで選択的レーザー溶融法 (Selective Laser Melting: SLM) を用いて純銅の積層造形が実現できれば、銅の性質を最大限に活用できる。先行実験では、純銅に対する吸収率が高い青色半導体レーザーを用いた SLM 装置を開発し、これによって純銅の積層造形を可能とした。しかし、開発した SLM 装置は加工ヘッドを XY ステージによって移動させ、レーザーを掃引照射するため、位置決め精度が低く、加減速に時間を要するため精密な造形が困難であった。そこで、本研究では、3 軸のガルバノスキャナーを搭載した SLM 装置を新たに開発した。ガルバノスキャナーは 2 枚のミラーを用いてレーザーを造形面に掃引照射するもので、従来の装置に比べて高精度な位置決め精度を有しており、高速な加減速が可能である。今回は、本装置を用いて純銅の積層造形を試み、ラティス構造を有する複雑形状の 3D 造形物を作製した。

本実験で使用した、青色半導体レーザーを搭載した SLM 装置においては、ステージ上に SUS304 基板 (10 mm 厚) を設置し、リコーターを用いて純銅粉末を 100 μm 厚に敷き均した。熱源であるレーザーには波長 450 nm、最大出力 200 W の青色半導体レーザー (島津製作所社製) を用いた。出射したレーザー光をガルバノスキャナー (YD-300-450-3.0、安川電機) に導光し、3 軸のガルバノミラーを介して粉末に掃引照射した。レーザーの掃引速度は 200 mm/s、スポット径は半値全幅で 250 μm 、ハッチング距離は 200 μm とした。レーザー照射時に純銅の酸化を防ぐため、シールドガスとして Ar ガスを流量 10 L/min でフローさせた。CAD ソフトには Inventor (Autodesk) を、CAM ソフトには Mastercam (CNC Software) および LUNA (ジェービーエムエンジニアリング) を使用した。3D データからスライスデータに変換し、5×5×0.8mm³ の直方体および梁の太さが 0.8 mm の 27×27×27 mm³ のラティス構造を有する立体を造形した。

本装置で作製した直方体およびラティス構造の造形物の外観を Fig. 1 に示す。開発したガルバノユニット搭載 SLM 機によって 3D データからラティス構造等、所望の形状の造形物を純銅で作製することができた。

3. 銅合金の皮膜形成

銅は、抗菌・ウイルス不活化作用を有する材料であるため、手すりなどへのコーティングが注目されている。しかし、純銅は、空気に触れると酸化皮膜が形成され表面が黒色化し、この変色は、純銅の優れた性質を損ない、銅製品の普及を妨げている。そこで、我々は銅合金に着目した。銅合金は、純銅と比べて変色しにくく、さらに抗菌・ウイルス不活化作用を有している。しかし、従来の近赤外領域でのレーザーは、銅に対する吸収率が 10 % と低いため、レーザーコーティング加工が難しかった。そこで、銅に対する光吸収率が 60 % と高い、青色領域に着目し、青色半導体レーザーを搭載した LMD システムを開発した。先行研究では、青色半導体レーザーを搭載した LMD 装置を用いて、ステンレス鋼基板上に、純銅皮膜を形成し、皮膜厚さがレーザーエネルギーに依存していることを明らかにした。さらに、レーザーエネルギーが大きくなると基板成分が皮膜に混入する希釈層が発生することがわかった。そこで本研究では、青色半導体レーザーを用いたマルチビーム式 LMD 装置により銅合金の皮膜形成を試みた。形成した皮膜を純銅皮膜と比較した結果、同条件で皮膜を形成した場合、銅合金皮膜の方が皮膜形成効率が高いことを明らかにした。

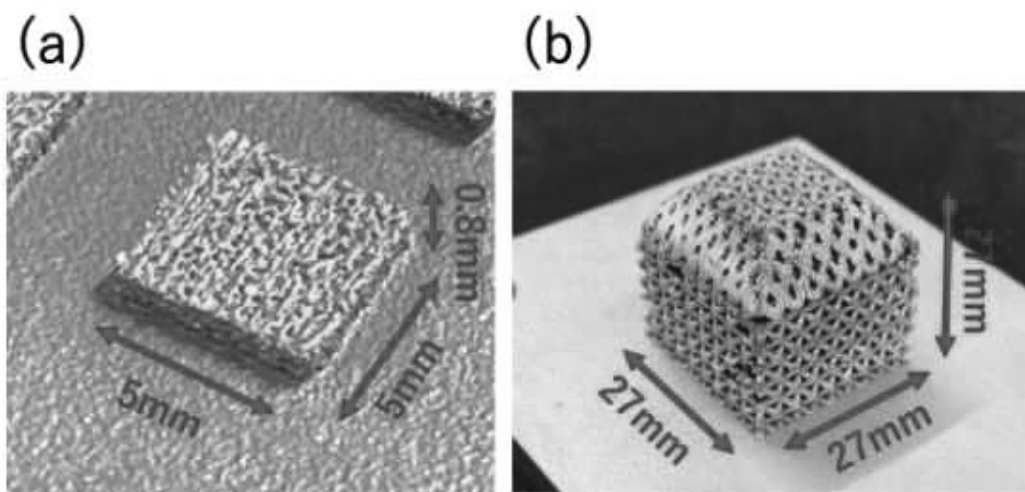


Fig. 1 (a) Rectangular parallelepiped cross section. (b) Lattice structure model.

青色半導体レーザーを用いたマルチビーム式LMD装置においては、1モジュールあたり最大出力200Wの青色半導体レーザー2台から出射されたビームを、光ファイバーを用いて加工ヘッドに伝送し、加工点で重畳させた。重畳した加工点でのスポット径を $260\ \mu\text{m}$ に設定した。加工ヘッドに取り付けた粉末供給ノズルから平均粒径 $40\ \mu\text{m}$ の純銅と銅合金の粉末を基板に対して垂直に供給し、同時にレーザーを照射することで1ビードの皮膜を形成した。形成した皮膜は、掃引方向に対して垂直に切断し、樹脂埋め、研磨を行い、光学顕微鏡で観察し、断面を評価した。

Fig. 2にレーザー出力35W、掃引速度6mm/s、粉末供給量12mg/sの条件で形成した純銅と銅合金の皮膜の断面観察像をそれぞれに示す。純銅では約 $4500\ \mu\text{m}^2$ 、銅合金では約 $30000\ \mu\text{m}^2$ の皮膜が得られた。この結果より銅合金の方が皮膜形成効率が6.6倍程度高いことがわかった。

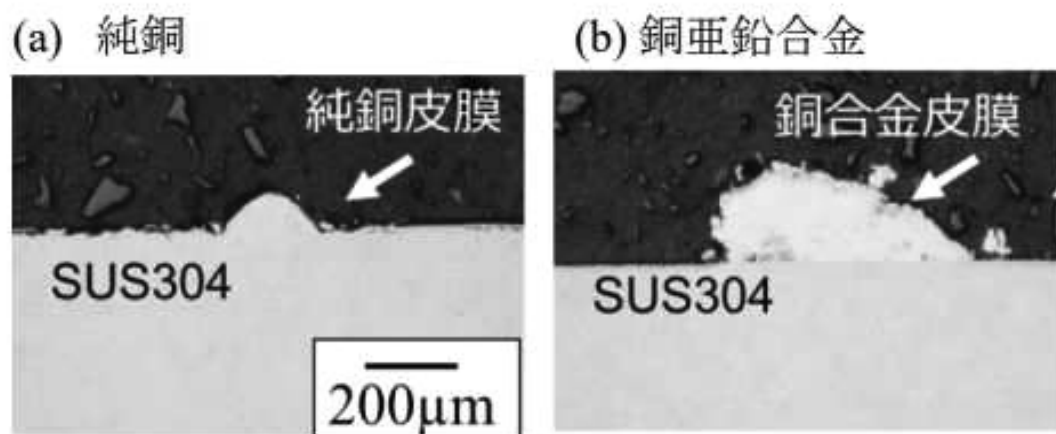


Fig. 2 Cross section image of copper layer formed by multi-beam LMD method with blue diode laser.

(共同研究分野：レーザープロセス学分野)

レーザーを用いた新機能創成技術の開発
生体材料薄膜表面のレーザー局所加熱による結晶化技術の探究

近畿大学生物理工学部
三上勝大

1. はじめに

ガラス材料はバイオマテリアル [1] として、また、化学安定性や市場への安定した製品供給により研究開発に欠かせない理科機器の原料として活用されている。生体親和性膜材料は、骨の主成分であるハイドロキシアパタイト (Hydroxyapatite : 以下、HA) が代表的であり [2]、整形外科や歯科領域など骨に設置するインプラント材料の表面に施される。この HA は生体内での溶解を抑制するため、結晶性が高いことが求められる。HA 成膜は一般にプラズマ溶射法で行われ、数 μm の表面粗さから透光性は有していない。一方で、パルスレーザー堆積 (Pulse Laser Deposition: 以下、PLD) 法を用いると表面粗さが数 nm の透光性を有する HA 膜を成膜することができる。PLD 法では成膜原理や結晶化促進のため材料を高温度に加熱する必要があり、ガラス表面に成膜することを考慮すると失透の影響を避けることが困難であり透光性が損なわれてしまう。また、基板全体を加熱せざるを得ないため、任意の空間領域を結晶化させることができず、例えばパウダーベット法による 3D プリント手法などを用いた所望の立体構造を作製することが困難である。透光性を有した広く用いられる理科機器であるガラスに、上記の課題を克服することができれば、立体構造を有する HA 材料に細胞培養が可能となり、同時に背面照射を伴う光学イメージングや材料-細胞界面の観察も可能となる。さらに、人体骨に近い機械強度を有していることからインプラント材料として期待される PEEK (Poly Ether Ether Ketone) 樹脂表面への成膜も可能になる。本研究では、PLD 法にレーザーアニール技術を導入することで、従来、不可能であった材料上に HA 膜を、ピンポイントに加熱処理・結晶化成膜を行う技術について検討を行う。

2. PLD 法による非晶質 HA 膜作成

レーザーアニール技術の実証に用いる HA 膜の作成を PLD 法により実施した。PLD 法では、KrF エキシマレーザーを僅かな水蒸気+酸素混合ガスを導入した真空チャンバー内に設置したリン酸三カルシウム水和物のタブレット状ターゲットに照射し、そのブルームを基板に体積させることで実施した。従来、PLD 法による HA 膜成膜は 600~800°C の基板加熱を行う必要があるが、本実験では基板加熱は実施せず、室温での成膜とした。

2020 年度には、石英ガラス基板上に室温成膜を行い、わずかに結晶性を有する HA 膜を生成することを確認した。2021 年度では、結晶性サファイア基板 (サイズ $\square 10\text{ mm}$, 厚さ 0.5 mm) への HA 膜の作製を、次の 2 つの評価を行うため実施した。これは、① 600°C 昇温による PLD 成膜によりレーザーアニールで目指すべき結晶化度の評価、② 室温 PLD 成膜後に電気炉を用いた成膜後の追加加熱による結晶化度の評価を行うためである。図 1 に、PLD により、サファイア上に HA を室温成膜したサンプルの X 線回折装置により分析した結果を示す。2 θ 表記において、41.7 deg および 90.6 deg の 2 つのサファイア由来のピークとともに、42.7 deg の結晶性 HA ピークもほんの僅かながら確認できる程度の結果となった。したがって、サファイア基板上に PLD 成膜された HA の大部分は非晶質であると考えられる。今後、600°C の昇温成膜による結晶性 HA ピークの確認、および室温成膜サンプルの電気炉による追加加熱処理後の結晶性 HA ピークの確認を進め、比較検討を進める。

3. PLD 法による成膜再現性

本研究を遂行するにあたり、非晶質 HA 膜を安定して成膜することは実験条件を統一するため重要である。2021 年度上半期に成膜チャンバーシステムにトラブルがあり、下半期に更新作業を行った。そのため、昇温成膜前に再度、室温成膜を行った。図 1 の解析結果で示すサンプルを 1 回目と定義し、チャンバー更新後に成膜した HA

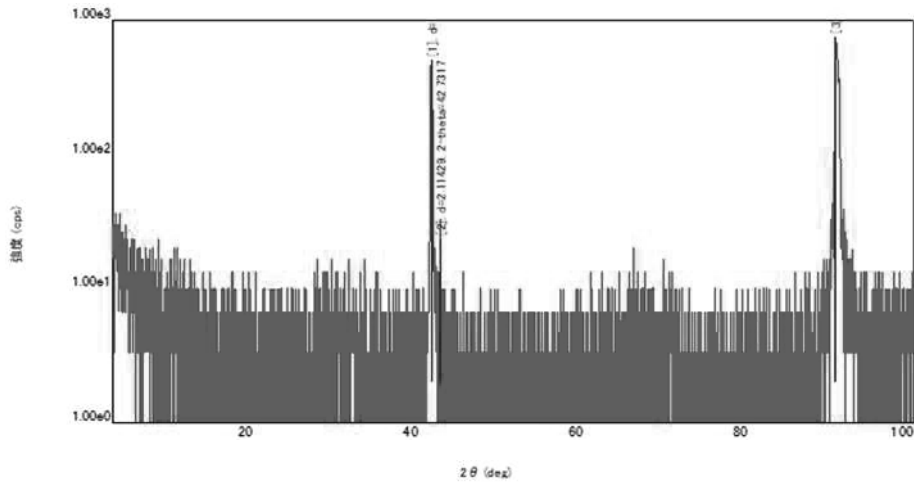


図1. 昇温なし PLD 成膜したサファイア基板上 HA 膜の X 線回折分析結果

膜を 2 回目、3 回目と定義し、同条件で成膜を行った。1 回目から 3 回目のサンプルについて、分光光度計で分光特性を評価した結果を図 2 に示す。分光特性の結果を用いて、光学膜厚（屈折率と実膜厚の積）を推定した結果、HA 膜の屈折率が同じと仮定した場合、同条件で成膜したにも関わらず 1 回目と比較して 2 回目は約 59%、3 回目は 83.5% の実膜厚しか成膜できていないことが分かった。またレイリー散乱に伴う、散乱損失もチャンバー更新前後で異なっており、PLD 成膜の状況が異なっており安定していないことが分かる。しかし、散乱損失はチャンバー更新後の 2 回目および 3 回目のほうが 1 回目と比較して改善されており、高品質な HA 膜が期待できる。目下、成膜条件出しを行い、安定した成膜ができるよう評価を進めている。

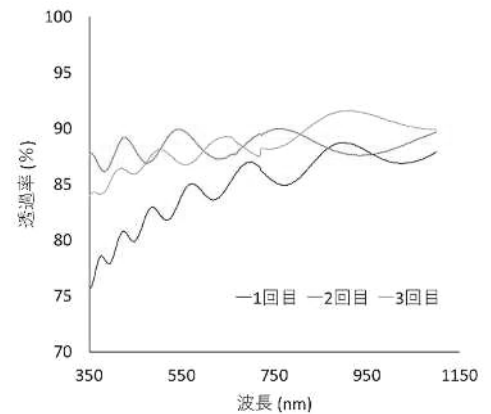


図2. サファイア基板上 HA 膜の分光特性

4. 結論

本研究では、非晶質 HA 膜の結晶化技術としてレーザーアニールの導入を検討した。2020 年度に続き、PLD 法によりサファイア基板上に HA 膜の成膜を実施し、X 線回折および分光特性の評価を通じて、実証試験試料の作製を進めている。

謝辞

本共同研究の実施するにあたり、受け入れ、ご支援賜った塚本研究室の塚本教授、佐藤准教授に篤くお礼申し上げます。また、PLD 成膜においては、近畿大学生物理工学部医用工学科の西川教授にご支援いただきました。ここに深謝申し上げます。

参考文献

- [1] L. L. Hench, *et al.*, *J. Biomed. Mater. Res.*, **5**(6) (1971) 117.
- [2] 久森, 大塚, *J. Soc. Mater. Sci.*, **63**(7) (2014) 563.
- [3] H. Nishikawa, S. Umatani, *Mater. Lett.*, **209** (2017) 330.

(共同研究分野：レーザープロセス学分野)

フェムト秒レーザーにより SiO₂ 表面に形成した均一なナノ構造による表面透過率の向上

東京農工大学 大学院工学研究院

宮地 悟代

1. 目的

ナノメートルオーダーの微細加工技術の開発が、次世代の先端科学と持続的な産業界発展のための基盤として注目され、精力的に研究開発が行われている。レーザーによる光プロセスの研究開発は、レーザー光が有する高い指向性と侵襲性、汎用性のため、その要素技術の候補として活発に行われているが、光の回折限界によって空間分解能は光の波長程度に制限されるのが課題である。

光の波長よりも小さな周期を持つ構造は屈折率を制御できるため、反射防止表面や構造複屈折素子などに応用されている。SiO₂のようなガラスは可視光領域で透明であり、化学的に安定、安価であることから、ナノ構造を有する SiO₂ をレーザーで簡便に作製できれば光学デバイスへの応用が期待される。これまで、SiO₂ よりも非線形光吸収係数が高く、大気中でのアニールにより SiO₂ に変化する特徴を持つ SiO_x ($x \sim 1$) にフェムト秒 (fs) レーザーを集光照射することにより、表面にナノ構造を生成できることを示した[1]。本研究では、均一で直線性の良い SiO₂ ナノ構造体を形成し、その表面透過率が向上することを実証した[2,3]。

2. 研究方法

加工ターゲットとして、熔融石英基板上に厚み $\sim 1.2 \mu\text{m}$ で成膜した SiO_x ($x \sim 1$) を用いた。均一なナノ構造を 2 ステップ法[4]により形成した。具体的には、Ti:sapphire 増幅システムから出力される直線偏光のレーザーパルス (パルス幅 100 fs、中心波長 800 nm) を 2 つに分け、1 つをターゲットに垂直に、もう 1 つを入射角 60 度で照射した。まず、時間的・空間的に 2 つのパルスをターゲット上で重ねて干渉パターンを作製した後、その上から fs レーザーを垂直に複数パルス照射することにより、均一なナノ構造を形成した。さらにナノ加工後のターゲットを大気中にて 1000°C で 144 時間アニールした。アニール後のターゲットの透過スペクトルを白色光源とファイバ分光器で測定した。ナノ構造の形状を走査型電子顕微鏡 (SEM) と走査型プローブ顕微鏡 (SPM) で観測し、表面反射率および表面透過率を光学顕微鏡で測定した。

3. 研究結果

図 1 に結果を示す。第 2 ステップでフルーエンス $F \sim 500 \text{ mJ/cm}^2$ の fs パルスを $N = 0$ パルスおよび $N = 20$ パルス照射した後の SiO_x 表面の電子顕微鏡画像と、それぞれのフーリエ周波数スペクトルである。図より、第 1 ステップでは周期 960 nm の干渉パターンが形成され、第 2 ステップではパルス数 $N = 20$ のときに干渉パターンに沿って周期 $d \sim 240 \text{ nm}$ でほぼ単一空間周波数のナノ構造が形成されていることがわかる。第 2 ステップのフルーエンス F を増加させると、 $d \sim 320 \text{ nm}$ および $d \sim 480 \text{ nm}$ の均一なナノ周期構造が形成されることがわかった。レーザー照射後のターゲットを、大気中にて 1000°C で 144 時間アニールした。図 2 にアニール前後のレーザー未照射部分のターゲットの透過スペクトルを示す。図より、ターゲットは透明になっていることから、アニールによって SiO_x は SiO₂ に変化したことを示す。また、アニール後の表面形状を観察したところ、ナノ構造の形状は変化していなかった。

次に、このターゲット表面を同軸落射照明および透過照明にて光学顕微鏡で観察したところ、 $d \sim 240, 320, 480 \text{ nm}$ のナノ構造を有する表面の反射率はいずれも $\sim 4\%$ 減少した。さらに、 $d \sim 240, 320 \text{ nm}$ のナノ構造を有する表面の透過率は、未照射の透過率よりも高いことが分かった。

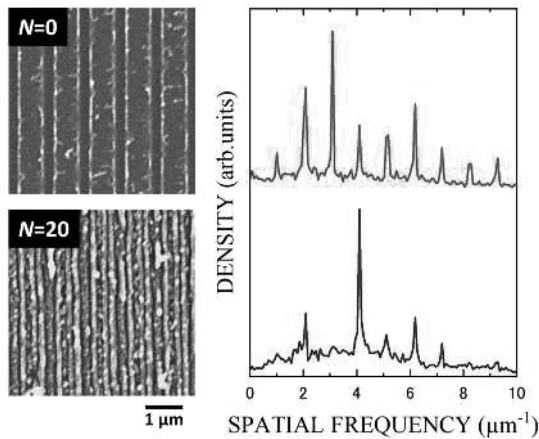


図 1. 第 2 ステップで $F \sim 500 \text{ mJ/cm}^2$ の fs パルスを 0 パルスおよび 20 パルス照射した後の SiO_x 表面の電子顕微鏡画像（左）とそれぞれのフーリエ周波数スペクトル（右）。

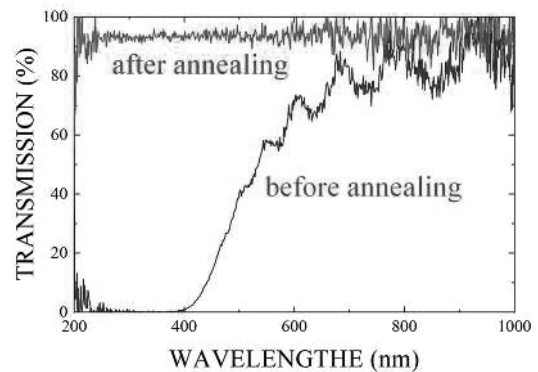


図 2. SiO_x のアニール前（青線）、および、大気中にて 1000°C で 144 時間アニール後の透過スペクトル（赤線）。

4. 結論

以上より、2 ステップ法により形成した均一なナノ構造を有する SiO_2 表面は、散乱の少ない無反射表面であることが分かった。

参考文献

- [1] T. Takaya, G. Miyaji, L. J. Richter, and J. Ihlemann, “Fabrication of Periodic Nanostructures on Silicon Suboxide Films with Plasmonic Near-Field Ablation Induced by Low-Fluence Femtosecond Laser Pulses”, *Nanomaterials* **10**, 1495 (2019).
- [2] 枝窪南, Lukas Janos Richter, 原口裕哉, 香取浩子, Jürgen Ihlemann, 宮地悟代, “フェムト秒レーザーにより SiO_2 表面に形成した均一なナノ構造とその反射・透過特性”, 第 82 回応用物理学会秋季学術講演会, 11a-N321-6 (2021).
- [3] M. Edakubo, Y. Haraguchi, H. Aruga Katori, G. Miyaji, L. J. Richter, and J. Ihlemann, “Homogeneous Nanostructures on SiO_2 formed with Femtosecond Laser Pulses and Improvement of Optical Transmittance”, 16th Conference on Laser Ablation (COLA 2021/2022), Th-O-75 (2022).
- [4] K. Miyazaki and G. Miyaji, “Nanograting formation through surface plasmon fields induced by femtosecond laser pulses”, *J. Appl. Phys.* **114**, 153108 (2013).

共同研究分野：レーザプロセス学分野

フローサイトメトリーを適用した迅速抗菌評価手法の開発

秋田大学大学院理工学研究科 宮野 泰征

1. 諸言

新型コロナウイルス感染症克服に向け、材料の衛生機能を利用した感染対策が脚光を集めている。抗菌評価に関する公定法は、感染源の培養・復元などの操作を基本とするため実時間での評価・効果の速度論的な解析が困難な側面がある。本研究では、多様な感染源/実環境にも適用可能な迅速評価手法として、フローサイトメトリー法を適用した感染源の不活化/定量化評価について検討した。

2. 実験方法

供試微生物には大腸菌：*Escherichia coli* NBRC 3972（以下、*E. coli*）を使用し、Nutrient broth（以下 NB 培地）で2代の継体培養を経た菌体液（濃度 10^8 cfu/ml 相当）を作成した。供試液には、菌体液 1ml を所定の前処理（遠心分離と上清排除）により得た生細胞ペレットサンプル、同ペレットサンプルに対し 70%Isopropyl alcohol を 60 分暴露した死細胞サンプルを用意した。前者には、未染色のもの他に、生細胞のみを染色する SYTO™ 9 Green Fluorescent Nucleic Acid Stain（Thermo Fisher Scientific）、後者には死細胞のみを染色する Propidium Iodide（Thermo Fisher Scientific）による染色処理を実施し、抗菌試験後の生死判別の可否検証を想定した検討を行った。簡易的な抗菌試験を疑似し、低濃度の $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$ 液に短時間暴露した試料も用意した。フローサイトメータには FC500MPL（Beckman Coulter, Inc）を使用し、Ar レーザーを 488nm の青色波長域に分光した光をサンプルに照射し励起光を得た。525nm 付近の蛍光（SYTO™ 9 由来）を検出器 FL 1 で、610nm 付近の蛍光（Propidium Iodide）を検出器 FL2 で取得した。測定サンプルの詳細を表 1 にまとめる。

表 1 各測定サンプルの詳細

コード	用途	検体	染色前処理	染色試薬
Sample A	生細胞判定	菌体液由来ペレット	ペレット受入まま	SYTO™ 9
Sample B	生細胞判定			
Sample C	死細胞判定		上記ペレットを不活化薬剤処理	Propidium Iodide
Sample D	細胞生死判定		低濃度 $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$ 液に短時間暴露	SYTO™ 9

3. 実験結果と考察

フローサイトメトリーの結果を図 1 に示す。左側は測方散乱光に対する前方散乱光のドットプロット、右側は前方散乱に対するヒストグラムを、コードごとに整理した。Sample A と Sample B に着目すると、生細胞が蛍光染色されることで前方散乱光のドットプロット、ヒストグラムプロットにシフトが起きている様子が確認できる。このことは生細胞が SYTO™ 9 により正確に検出できている様子を示している。一方、Sample D においては Sample A と Sample B の両者の特徴を反映し、プロットが二領域に分散した傾向が示されている。したがって、ここでの Sample A に対応した領域 ((g) の下側のドットプロット、(h) の左側のヒストグラムピーク) は不活化により蛍光励起がおきなかった細胞に由来する前方散乱光と考えられる。Sample C の FL2 のヒストグラムピークはシングルであることから、サンプル中の細胞は全て不活化していたものと推定される。なお(e)の右側の区画に示されるドットプロットはサンプル細胞を定量するためのマイクロビーズの分布を示すものである。将来的には、ビーズ数と細胞プロット数の相関を検量することで、生死細胞の定量化を実施していく予定である。

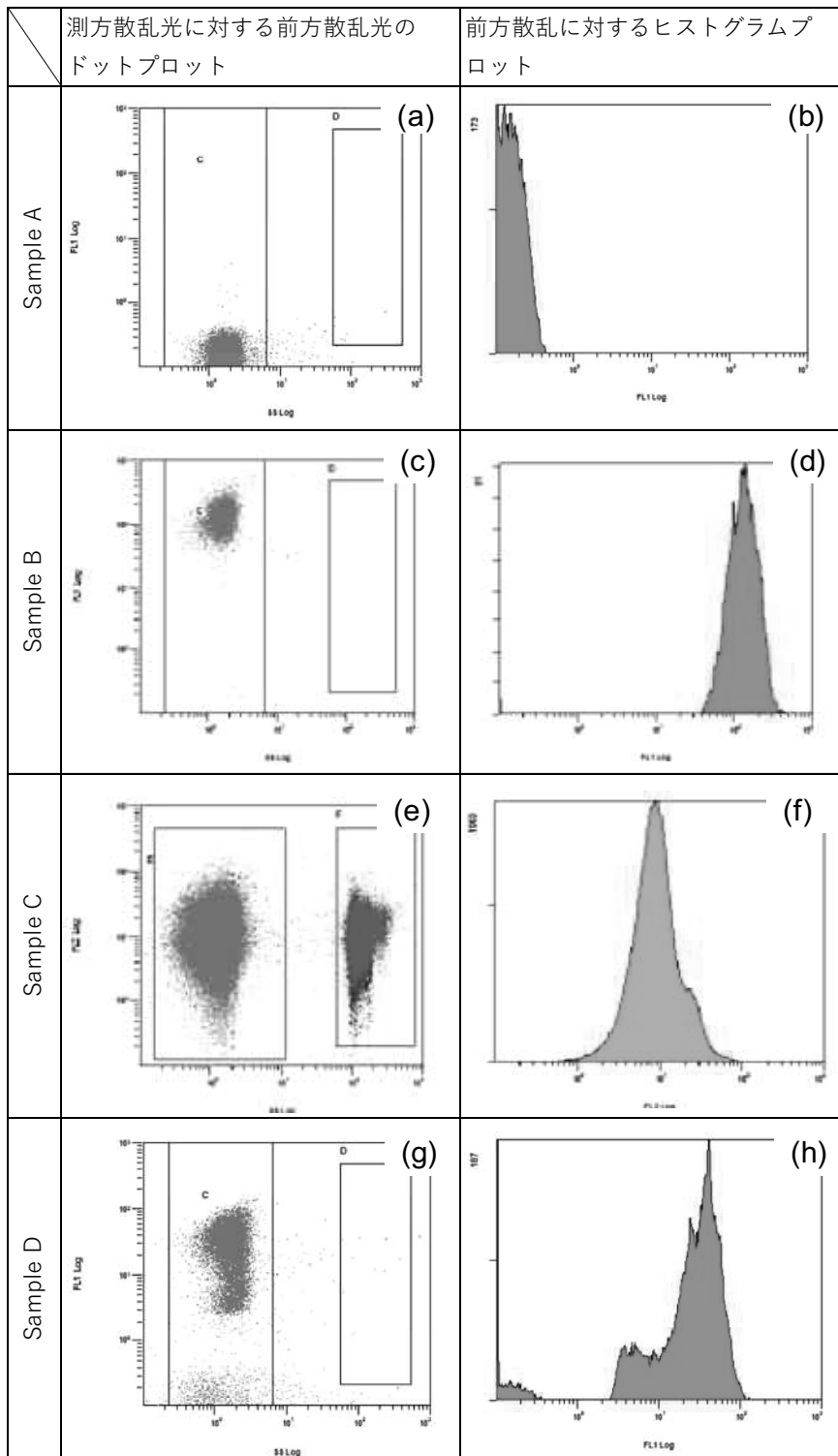


図 1. 各サンプルを対象としたフローサイトメトリーの結果

4.結言

フローサイトメトリーを適用した細胞生死判別評価法を疑似抗菌試験サンプルに適用し、生存数、死滅数の分布を定性的に計測できる可能性を確認した。

(共同研究分野：レーザープロセス学分野)

1. 目的

軽量で比強度の高いアルミ合金へ銅を付加する要求が高まっている。しかし、鉄系材料より熱伝導の高い銅およびアルミは、レーザー加工が難しい材種である。そこで本研究では、純アルミ基材へ純銅の肉盛が形成可能か調査を行った。

2. 実験方法

マルチビーム式ブルー半導体レーザー肉盛装置 (ALPION type-Blue、榎村谷機械製作所製) を用いて、純アルミ (A1052) 基材への純銅の層形成を行った。装置は、レーザー波長445nmで最大出力300W (ブルー半導体レーザー発振器最大出力100Wを3台) であり、3本のビームは加工ヘッド中心軸にて一点に集光し照射される。集光位置におけるレーザー集光径は0.26mmとした。肉盛りする金属粉末には、平均粒径0.03mmの純銅粉末を用いた。実験は、レーザー光出力270W、送り速度10mm/s、粉末供給量12mg/secとし、10mmのビードを幅方向に0.15mmずつ移動させ、6ビード分を重ね肉盛層を形成した。形成後、デジタルマイクロスコープにて層形成部の外観および断面を観察した。

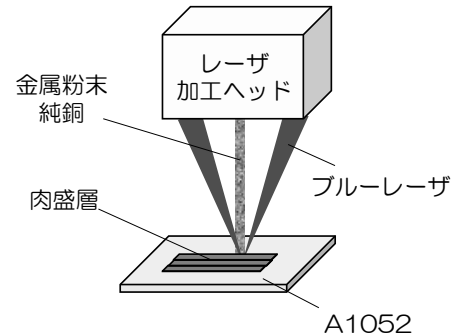
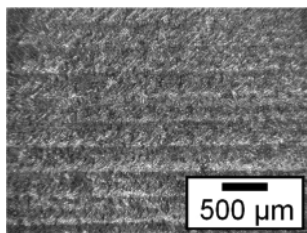


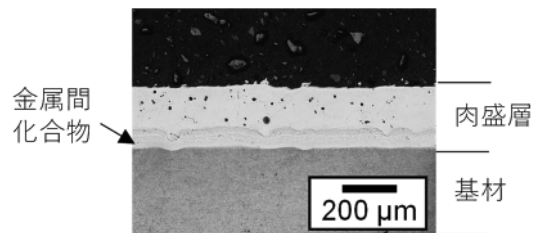
図1 マルチビーム式ブルー半導体レーザー肉盛の概要図

3. 実験結果

層形成後の外観および断面画像を図2に示す。外観観察において、断続した箇所は見受けられず面形成できていることがわかる。断面では、純アルミ基材と純銅の肉盛層の境界部において、厚み約60 μ mの金属間化合物層が認められた。



(a) 外観画像



(b) 断面画像

図2 純アルミ基材への純銅の層形成後の観察画像

4. まとめ

本研究では、マルチビーム式ブルー半導体レーザー肉盛装置を用いて純アルミ基材上への純銅の層形成を行い、基材と肉盛層の境界部において金属間化合物が認められるが、純銅の層形成ができることを明らかにした。

5. 参考文献

[1] Y.Sato, M.Tsukamoto, T.Shobu, Y.Funad, Y. Yamashit, T.Hara, M.Sengoku, Y.Sakon, T.Ohkubo, M. Yoshida and N.Abe : Applied Surface Science 480 (2019) 861.

(共同研究分野：レーザープロセス学分野)

青色半導体レーザーと IR レーザーを用いた ハイブリッドシステムによる純銅の溶接技術の開発に関する研究

近畿大学 理工学部電気電子工学科

吉田 実 貴田 優希

1. 序論

純銅は熱伝導性、電気伝導性に優れており、自動車部品等に広く産業応用されている。特に大容量の Li イオン電池ではセル同士を接続するバスバーが用いられ、ここに大容量の電流が導電される。従って電池の容量に依存してバスバーのサイズも大きくなる。バスバーの接合には抵抗溶接やアーク溶接が採用されているが、加工速度が遅く、熱影響が大きい等、課題が多い。そこでレーザー溶接に着目した。レーザー溶接には近赤外線レーザー (IR レーザー) が一般的に用いられているが、純銅は近赤外線領域の吸収率が低い。そのため高出力のレーザーが必要となる。純銅は高温領域で光吸収率が急激に高くなるため、熔融することはできても安定した溶接はできなかった。そこでレーザーによる先行加熱を行い、吸収率の変動を抑えることを試みた。本研究では、先行加熱用熱源として、銅への高い吸収率を有する波長 450 nm の青色半導体レーザー (Blue レーザー) を用い、Blue レーザーと IR レーザーを加工点で重畳するハイブリッドレーザーシステムを構築し、本システムを用いて厚さ 2 mm の純銅板の溶接を試みた。その結果、Blue レーザーによる先行加熱を行うと、IR レーザー単体照射に比べて高効率な純銅の溶接が可能となった。さらに IR レーザーのパワー密度に依存して溶込み深さが大きくなることがわかった。

2. 実験方法

Fig. 1 に Blue レーザーと IR レーザーを用いたハイブリッドレーザーシステムによる純銅の溶接実験の概略図を示す。先行加熱用熱源であるファイバカップル Blue レーザーは、純銅に対して 45° 入射し、光学倍率 1.3 倍で伝送して加工点でレーザーパワー密度を $5.4 \times 10^5 \text{ W/cm}^2$ にした。次に溶接用熱源である IR レーザーは、加工点に垂直に照射し、光学倍率 4 倍とした。加工点の像はウェッジ板と 2 枚のアルミミラーで CCD カメラ上に像転送し IR レーザーのスポット径を $60 \mu\text{m}$ に設定した。サンプルには純銅板 $10 \times 30 \times 2 \text{ mm}$ を用い、これを電動ステージ上に配置して、IR レーザーのパワー密度をパラメータとしハイブリッドレーザーを掃引照射した。レーザー照射後のサンプルはレーザー掃引方向と垂直に切断して、樹脂埋め研磨後、断面観察を行い、溶込み深さを測定した。

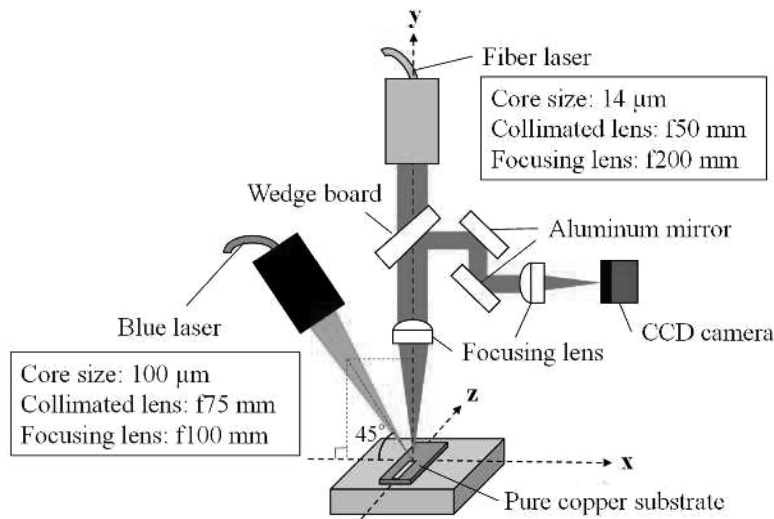


Fig. 1 Schematic diagram of experimental setup for pure copper welding with a hybrid laser system using a fiber laser and a blue diode laser

3. 実験結果

Fig. 2 に IR レーザーのパワー密度に対する溶込み深さ依存性を示す。IR レーザー単体照射では、出力 1000W による加工点でのパワー密度 $3.5 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ 以上になるとパワー密度の増加に伴って、溶込み深さが増加した。これにレーザー出力 200 W、パワー密度 $5.4 \times 10^5 \text{ W/cm}^2$ の Blue レーザーを重畳すると、出力 800 W によるパワー密度 $2.1 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ から溶込みが始まり、出力 1000W での $2.8 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ では、キーホールモードの溶接が開始されることがわかった。Fig. 3 に IR レーザー単体照射とハイブリッドレーザーを照射した時の 2 mm 厚の純銅板の断面図を示す。IR レーザーを出力 1400 W によるパワー密度 $4.2 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ で照射したときの溶込み深さは $42.8 \mu\text{m}$ であったが、レーザー出力 200 W、パワー密度 $5.4 \times 10^5 \text{ W/cm}^2$ の Blue レーザーを重畳すると、溶込み深さは 1.8 mm となり 42 倍の効果が得られた。

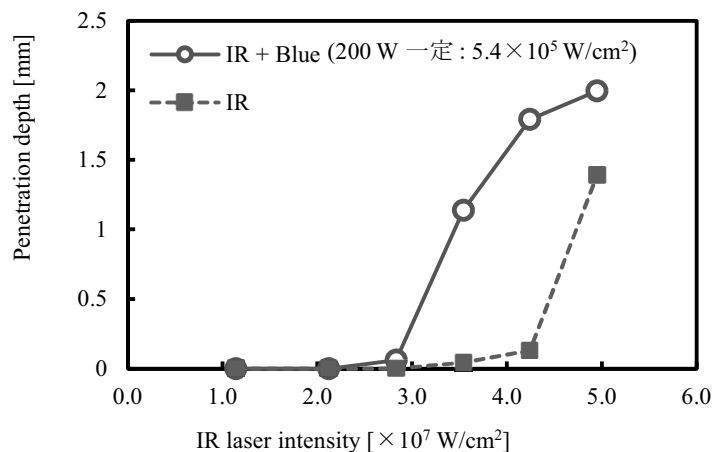


Fig. 2 Dependence of laser intensity for IR laser on penetration depth of pure copper

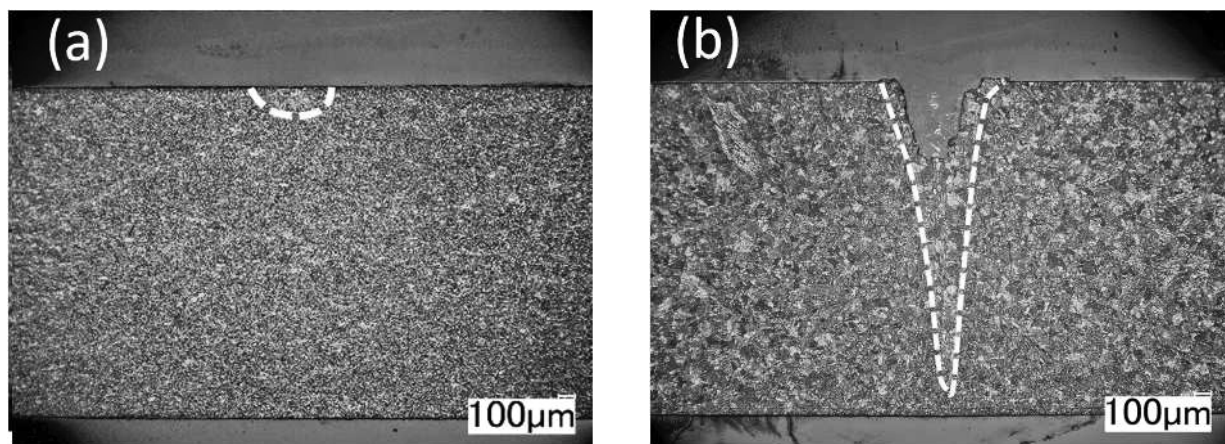


Fig. 3 Optical images of cross-sectional observation area with (a) IR laser, (b) hybrid laser

4. 結論

本研究では、Blue レーザーと IR レーザーを重畳照射可能なハイブリッドレーザーシステムを構築し、純銅のレーザー溶接を試みた。その結果、Blue レーザーの先行加熱によって溶接効率が向上し、2 mm 厚の純銅板の貫通溶接ができるようになった。

(共同研究分野：レーザープロセス学分野)

In718 三次元積層造形材のクリープ劣化挙動の解明 —プロセス改善により鍛造材と同等のクリープ寿命を達成—

西日本工業大学 高橋雅士、大濱陸、中岡天
金属技研株式会社 増尾大慈
大阪大学接合科学研究所 伊藤和博、山本啓

1. はじめに

本研究は、航空機用 In718 合金の三次元積層造形技術に関するものである。In718 三次元積層造形材は鍛造材に比べてクリープ破断寿命が著しく低いという課題があった[1]。三次元積層造形は粉末を溶融、急冷して造形するために、製造時の空孔（原子欠陥）が形成する。この空孔を HIP（Hot Isostatic Pressing）処理で除去することでクリープ破断寿命は改善したが、未だ鍛造材の 60%強に留まっていた[2]。

2. 目的

In718 三次元積層造形材について、室温引張強度が ASTM5662 基準値である 1275MPa を満たしつつ、鍛造材並みのクリープ寿命を有する製造プロセス条件を確立することを目的とする。

3. 造形方法

3.1 造形条件

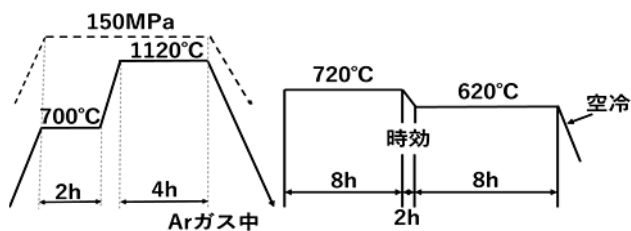
本試験では、表 1 に示す化学成分のアトマイズ法により作製した In718 粉末を使用した。その平均粒径は約 30 μm だった。また造形は、レーザ加熱式三次元積層造形装置（EOS 社製；EOSINT M280）を用いて行った。造形条件は、エネルギー密度が 50J/mm³、積層ピッチが 40 μm 、大気中とし、 $\Phi 14 \times 80\text{mm}$ の丸棒を造形した。

表 1 使用した In718 粉末の化学成分 単位 wt%

元素	Ni	Cr	Nb	Mo	Ti	Al	Co	Cu
割合	50	17.0	4.75	2.8	0.65	0.20	≤ 1.0	≤ 0.3
	~55	~21.	~5.5	~3.3	~1.1	~0.8		
C	Si	Mn	P	S	B	Fe		
≤ 0.08	≤ 0.35	≤ 0.35	≤ 0.015	≤ 0.015	≤ 0.006	Bal.		

3.2 HIP 処理および熱処理条件

造形後に HIP 処理および時効熱処理を実施した。その条件を、図 1 に示す。HIP 処理は Ar ガスを用い、最高温度が 1120 $^{\circ}\text{C}$ で 4h 保持、圧力が 150MPa の条件とした。時効熱処理条件は、ASTM5662 で規定された溶解材料での標準的な時効熱処理条件（720 $^{\circ}\text{C}$ -8h+620 $^{\circ}\text{C}$ -8h+空冷）を用いた。



(a) HIP 処理条件 (b) 時効熱処理条件

図 1 HIP 処理および時効熱処理条件

-8h+空冷)を用いた。本研究では、比較のために最高温度が 1120 $^{\circ}\text{C}$ で 150MPa、100MPa の 2 条件で HIP 処理した後に溶体化時効熱処理したもの と HIP 処理していないものも作製した。

- (1) 今回：HIP 処理（1120 $^{\circ}\text{C}$ ，150MPa）+時効熱処理
- (2) 高圧 HIP：HIP 処理（1120 $^{\circ}\text{C}$ ，150MPa）+溶体化時効熱処理
- (3) HIP：HIP 処理（1120 $^{\circ}\text{C}$ ，100MPa）+溶体化時効熱処理
- (4) HIP なし：溶体化時効熱処理

3.3 組織観察方法

本試験では、造形方向と垂直な方向で切断し、その後、研磨、エッチングし、後方散乱電子線回折（EBSD）分析を実施した。これにより、組織、結晶方位、粒径を調べた。次に、電子顕微鏡（SEM）により断面組織観察を実施し、微視的な組織や析出物を観察した。なお、今回の造形材は、高圧 HIP、HIP、HIP なしの 3 種類の材料と比較評価した。

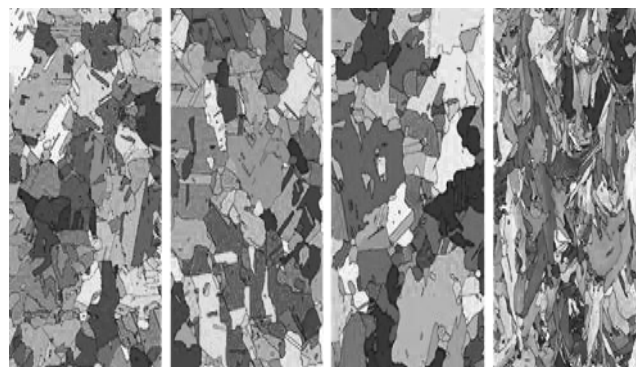
3.4 クリープ試験方法

おもりに荷重式クリープ試験装置を用いてクリープ試験を実施した。クリープ試験条件は、荷重 630MPa、温度 650 $^{\circ}\text{C}$ 、大気中とした。また、試験片のツバ部を用いて伸びを測定し、荷重がゼロになるまでの時間をクリープ寿命として評価した。

4. 試験結果

4.1 EBSD 分析結果

図 2 は、今回の造形材の EBSD 分析結果を高圧 HIP、HIP、HIP なしのもの と比較している。図にはそれぞれの材料の平均結晶粒径も示している。今回の造形材では、造形時に冷却方向に成長した細長い結晶粒は残っているものの、HIP なしと比べると丸みを帯びているのがわかった。今回の造形材での平均結晶粒径は 73.7 μm であり、他の試験材よりも大きくなっていった。これは、HIP 処理により再結晶が進んだことを示唆するものである。



平均結晶粒径
(a) 今回 73.7 μm (b) 高圧 HIP 71.3 μm (c) HIP 61.5 μm (d) HIP なし 41.6 μm

図 2 EBSD 断面組織の評価結果

4.2 SEMによる組織観察結果

図3は、今回の造形材についてSEMによる断面マイクロ組織観察結果を高圧HIP、HIP、HIPなしのものと比較したものである。HIPなしでは粒内に微細な析出物と粒界に沿った線状析出物が認められるのに対し、今回の造形材では粒内に微細な析出物がほとんど認められず、粒界の線状析出物も少なく大きな球形の析出物も認められた。また、今回の造形材と高圧HIPでは組織に顕著な差異は認められなかった。

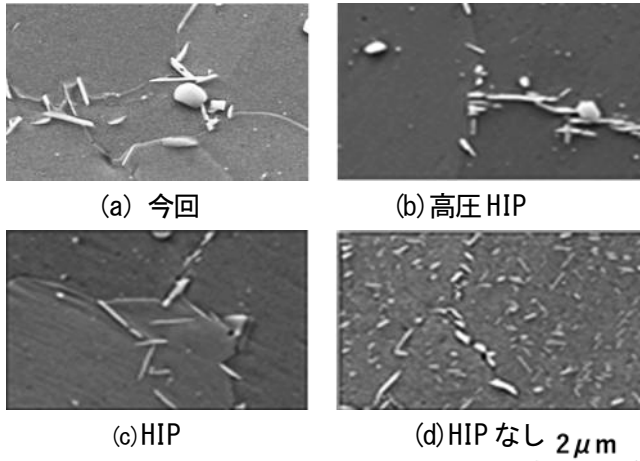


図3 SEMによる組織観察結果

4.3 クリープ試験結果

図4は、今回の造形材で得られたクリープ曲線(時間-伸び曲線)を示したものである。今回の造形材では2回のクリープ試験を行ったが、いずれもほぼ同等の結果が得られ、平均値で破断時間が555h、破断伸びが4.5%だった。また、今回の鍛造材の破断時間は平均500hあり、鍛造材材での512hと同等の値が得られた。すなわち、HIP処理後に溶体化処理を行わず時効処理のみですることによって大幅な破断時間の改善効果が確認できた。

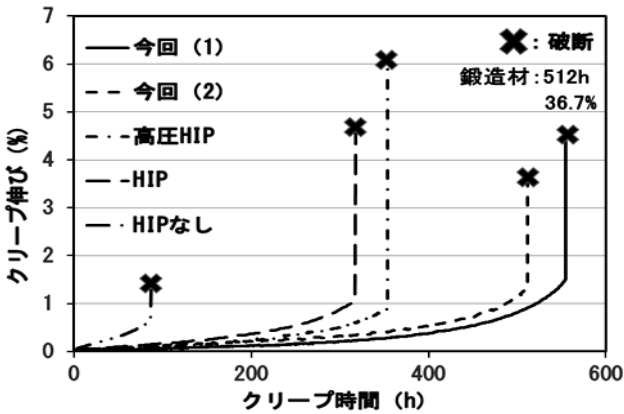


図4 クリープ曲線

5. 考察

5.1 クリープ試験後の破断形態

図5は、今回の造形材についてクリープ試験後の破面観察結果を高圧HIP、HIP、HIPなしのものと比較したものである。HIPなしの破断面は全面脆性の粒界破面であるのに対し、今回の造形材は高圧HIPと同様に延性破面特有のディンプルが見られ、さらに、そのディンプルの領域割合が増大していた。このことは、今回の造形材でクリープ時の粒界脆化を抑制することでクリープ寿命を大幅に向上できたことを裏付けるものである。

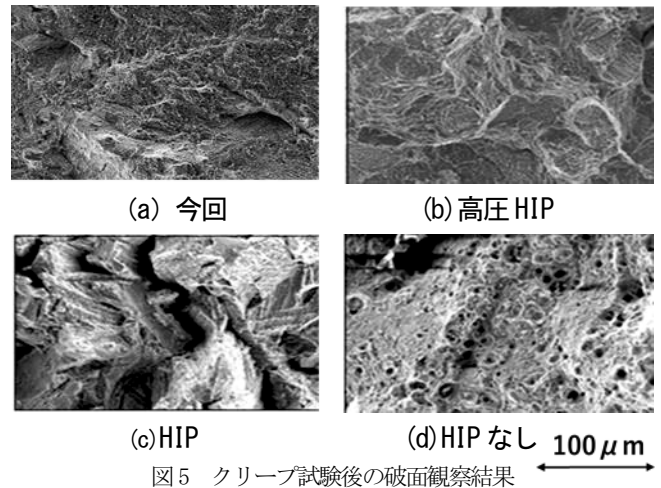


図5 クリープ試験後の破面観察結果

5.2 鍛造材並みのクリープ寿命の達成

図6は、18年度から21年度までのクリープ寿命の改善状況を示したものである。目標である鍛造材のクリープ寿命512hに対し、今回の造形材では534hと達成することができた。これは、造形時に発生した空孔をHIP処理を施すことで低減し、溶体化処理をなくすことで、残存する空孔の拡散によるキャビティ(粒界脆化)を抑制できたためと考えられる。また、今回の造形材では室温引張強度が1368MPaでありASTM5662基準値である1275MPaを満足していた。

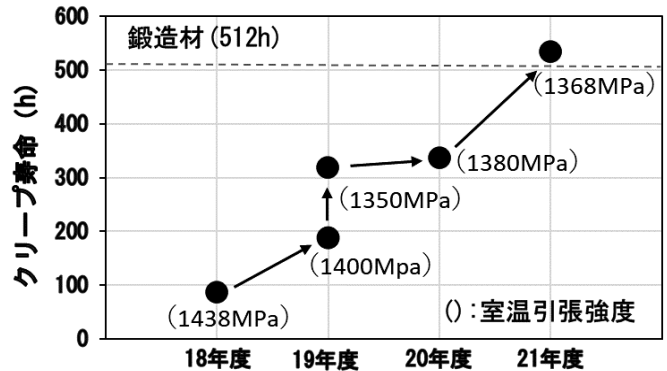


図6 クリープ寿命の向上履歴

6. 緒言

本研究では、In718 三次元積層造形材のクリープ寿命を鍛造材並みへの向上を検討し、以下の知見を得た。

- (1) HIP処理後、溶体化熱処理をなくし時効熱処理のみですることによって、クリープ寿命を鍛造材の512hを超える534hまで向上できた。
- (2) この要因として、空孔低減によりクリープ時の粒界脆性が抑制されたと考えられる。このことは、破面から多数のディンプル形成から裏付けられた。
- (3) 今回の造形材では、鍛造材と同等のクリープ寿命が得られたが、破断伸びは平均4.1%であり、鍛造材での36.7%より著しく小さかった。この要因は今後検討する必要がある。

参考文献

[1] 江本恒平, 渋谷悟: In718 三次元積層造形のクリープ強度特性, 西日本工業大学卒業論文(2020).
 [2] 木下篤志・野中勇輝・横山省吾: 熱間等方性加工(HIP)の高圧化によるクリープ強度の改善検討, 西日本工業大学卒業論文(2021).

(共同研究分野: 溶接機構学分野)

異材界面の微細構造の観察、評価及び制御
金属電極/酸化物絶縁膜/金属電極の異種接合界面における反応及び微細構造の解析

国立研究開発法人 物質・材料研究機構 ナノファブリケーショングループ
生田目 俊秀、大井 暁彦、池田 直樹

1. 目的

2050年までに温室効果ガスの排出を全体としてゼロにするカーボンニュートラルの実現に向けて、パワーデバイスはキーデバイスの一つであり、直流-交流の電力変換（直交変換）及び交流電流の電圧・周波数を調整するインバータを構成する素子として期待されている。パワーデバイスの基板であるワイドバンドギャップ半導体材料の中で、 Ga_2O_3 は、バンドギャップが4.5~4.9 eVであり、SiC (3.3 eV)及びGaN (3.4 eV)に比べて約1 eVと大きく魅力的な材料である。 Ga_2O_3 は数多くの結晶相を有するが、その中で、 β 相 ($\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$)が最安定相であることが知られている。 $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 単結晶は、GaNと異なり、Siと同様に、Czochralski法及びfloating zone法で作製できるために、量産製造による低コスト化が図れる利点を有している。

これまでに、我々は、ALD法による Ga_2O_3 膜の成膜メカニズムを研究しており、pentamethylcyclopentadienyl gallium (GaMeCp)を原料としたALDでは、酸化剤ガスとして H_2O ガス及びplasma-Oガスをパルス供給する手法により、ALDモードで Ga_2O_3 膜が成膜できることを見出した[1]。一般に、 Ga_2O_3 は、熱処理温度が高くなるに従って、アモルファス構造からメタステーブルな ϵ 相、 δ 相及び γ 相を経てから安定な β 相へ構造変化する事が知られている。しかし、ALD法で作製したアモルファス構造の Ga_2O_3 膜(ALD- Ga_2O_3)が熱処理温度に対してどの様に結晶構造が変化するのは系統的に調べられていない。また、下地基板の材料がALD- Ga_2O_3 の結晶性へどのような影響を及ぼすかは、結晶成長のメカニズムを理解する上で非常に興味深い。

そこで、本研究では、面方位の異なるSi(100)及びSi(111)基板上へALD法で作製したアモルファス構造の Ga_2O_3 膜の800°C熱処理による構造変化について、詳細に調べた結果を報告する。

2. 研究方法

基板として、Si(100)及びSi(111)を用いた。この基板上へ、成長温度200°CのALDで、GaMeCp原料ガス、Arパージガス、 H_2O 酸化ガス、Arパージガス、Plasma-O酸化ガス及びArパージガスをパルス供給したフローを1サイクルとした。成長速度は約0.06 nm/cycleであり、ALDサイクルを変えて目的の膜厚20 nmを成膜した。続いて、Si(100)/ Ga_2O_3 及びSi(111)/ Ga_2O_3 サンプルは、 N_2 雰囲気中、800°Cで熱処理した。これらのサンプルはFIB加工して、TEM観察用サンプルとして、大阪大学接合研所有の透過型電子顕微鏡（日本電子製JEM-2010）を用いて、 Ga_2O_3 膜の構造変化を観察した。

3. 結果とまとめ

成長温度200°Cで、Si(100)基板へ作製した膜厚32 nmのALD- Ga_2O_3 膜の断面TEM像及び電子線回折像を図1に示す。Si(100)/ Ga_2O_3 膜の界面に、ALD成膜におけるplasma-Oガスによる SiO_2 界面層が形成した。 Ga_2O_3 膜は電子線回折像より如何なるスポットも認められない事より、アモルファス構造であった。これは、断面TEM像より、格子パターンが観察されない事からも確認できた。

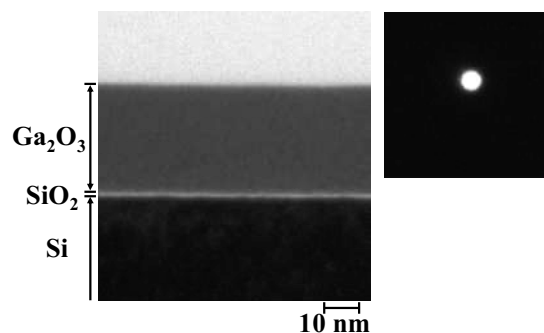


図1 ALD- Ga_2O_3 (32 nm)膜の断面TEM像及び電子線回折像

続いて、800°Cで熱処理した膜厚 20 nm の Si(111)/SiO₂/Ga₂O₃膜の断面 TEM 像と Ga、O 及び Si 元素のエネルギー分散型 X 線分光法 (EDS) の面分析結果を図 2 に示す。Ga₂O₃層への Si 元素の拡散は認められない事より、熱処理における Ga₂O₃膜と SiO₂界面層の反応はなく、Ga₂O₃膜は Si 元素の影響を受けていない事が分かった。

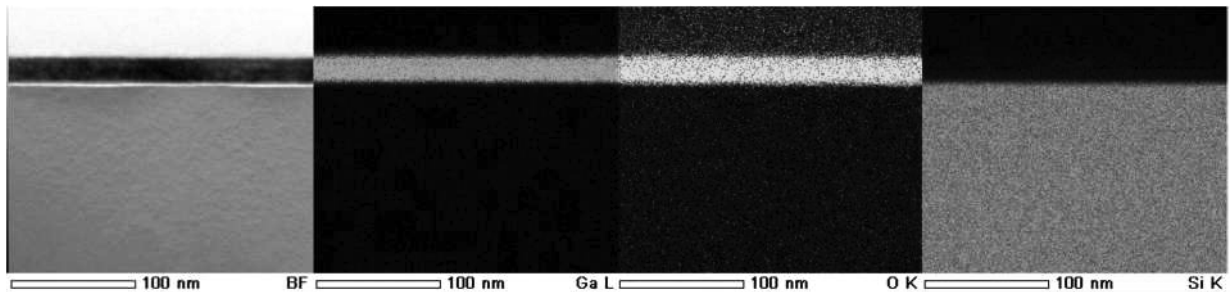


図 2 Si(111)/SiO₂/Ga₂O₃(20 nm)膜の断面 TEM 像と Ga、O 及び Si 元素の EDS の面分析

このサンプルの断面 TEM 像及び電子線回折像を図 3 に示す。電子線回折像より、スポットが認められる事より、Ga₂O₃膜が熱処理前のアモルファスから結晶化した事が分かった。これは、断面 TEM 像より膜全体が結晶化している事が観察された事と一致する。また、Ga₂O₃膜に一定の方向に格子パターンが配列した大きな粒子も認められ、この結晶の粒径は約 100~300 nm と巨大成長している事も分かった。

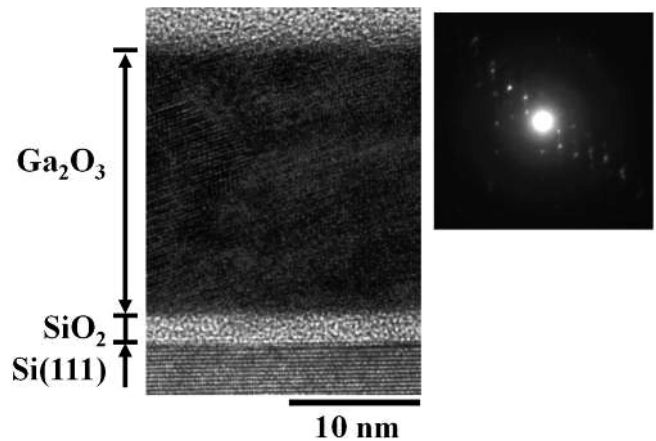


図 3 Si(111)/SiO₂/Ga₂O₃膜の断面 TEM 像と電子線回折像

一方、800°Cで熱処理した Si(100)/SiO₂/Ga₂O₃膜の断面 TEM 像及び電子線回折像を図 4 に示す。電子線回折像は、Si(111)の場合と異なりハローリングが認められると共に、スポットも現れた。断面 TEM 像より、10 nm サイズの微結晶の集合体が観察され、Si(111)と異なる結晶成長であった。

以上より、Ga₂O₃膜の結晶成長に、Si 基板の面方位が影響を及ぼし、(111)面上では Ga₂O₃の結晶成長が(100)面に比べて、進む事が分かった。

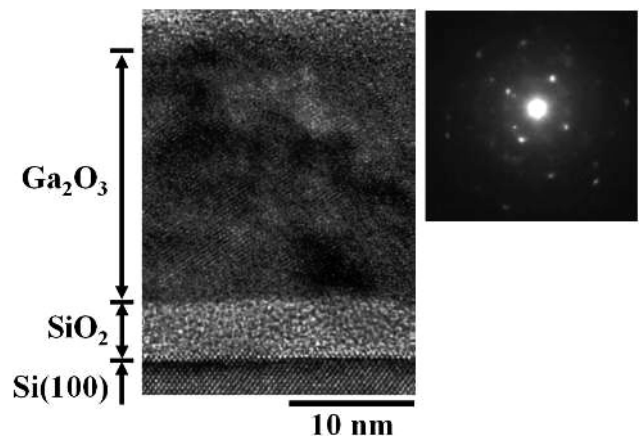


図 4 Si(100)/SiO₂/Ga₂O₃膜の断面 TEM 像と電子線回折像

4. 参考文献

[1] F. Mizutani, S. Higashi, M. Inoue, and T. Nabatame, J. Vac. Sci. Technol. A 38, 022412 (2020).

(共同研究分野：溶接機構学分野)

光加熱を用いたポーラスアルミニウムと金属板との接合とその接合強度

群馬大学 大学院理工学府 知能機械創製部門

大塚駿, 半谷禎彦, 天谷賢児

1. 目的

ポーラスアルミニウムは、内部に多数の気孔を含有しており、軽量で衝撃吸収性に優れている。この特徴を利用して、自動車用部材や飛行機の構造部材などへの利用が期待されている。ポーラスアルミニウムは一般的に発泡剤と気孔形態安定剤を添加したプリカーサと呼ばれるポーラス材料の前駆体を加熱発泡することで作製される。過去の研究では、プリカーサをアルミニウム緻密板材の上で発泡させ、その発泡直後に金網でプレス加工することで、ポーラスアルミニウムとアルミニウム緻密板材の接合を試みた。この研究では接合できた試験片もあったが、再現性が取れなかった。

そこで本研究では、まず光加熱装置を用いてアルミニウム緻密板材を加熱し、その後 ADC12 プリカーサをアルミニウム緻密板材上に置いた。そして、プレスしながら発泡させることでポーラスアルミニウムとアルミニウム緻密板材の接合を試みた。この方法はポーラスアルミニウムの形状付与のためのプレス加工と同時にポーラスアルミニウムとアルミニウム緻密板材との接合が実現できるため生産性の向上が期待できる。また本研究によりプレス加工による表面材とポーラスアルミニウムの接合が可能になれば、湾曲した板材に発泡したポーラスアルミニウムが接合できるなど複雑形状にも適用できる。

2. 研究方法

プリカーサは摩擦攪拌接合法 (Friction Stir Welding, FSW)を用いて作製した。原材料として ADC12 (Al-Si-Cu 系合金) ダイキャスト板材を 2 枚、発泡剤として TiH_2 粉末、気孔形態安定剤として Al_2O_3 粉末を用いた。はじめに ADC12 板材上に TiH_2 と Al_2O_3 の混合粉末を散布し、ADC12 板材を重ね、混合粉末の散布領域に FSW を行った。FSW を行った ADC12 板材を $15\text{ mm} \times 15\text{ mm} \times 6\text{ mm}$ に加工し、これをプリカーサとした。

Fig. 1 にプリカーサを発泡させたポーラス ADC12 とアルミニウム緻密板材とのプレス加工による接合手順について示す。アルミニウム緻密板材として A1050 (工業用純アルミニウム) 圧延板材を用いた。Fig. 1 (a) に示すように光加熱装置を用いて厚さ 3 mm の A1050 板材を先に温め、温度が $T^\circ\text{C}$ になったところで、Fig. 1 (b) のように ADC12 プリカーサを A1050 板材上に置いた。この時、光加熱装置に流す電流は 9 A、電圧は 180 V とし、板の温度を熱電対を用いて計測した。プリカーサが加熱によって少し発泡し始め、柔らかくなったところで、Fig. 1 (b) のようにロボットアームを挿入し、金網をプリカーサの真上に移動させた。そして発泡したプリカーサと A1050 板材を合わせた厚さが 9 mm になるようにプレス加工を行った。その後、Fig. 1(c)のように、プリカーサの発泡中に金網を左右に動かし、またセラミックスが置いてある台を円弧上に動かした。Fig. 1 (d) のようにプリカーサが十分に発泡したときに光加熱装置のハロゲンランプを消灯した。この時の試験片の様子を Fig. 2 に示す。そしてプレス加工によって接合したポーラス ADC12 と A1050 板材の接合強度を調べるために引張試験を行った。Fig. 3 に引張試験前のジグを取

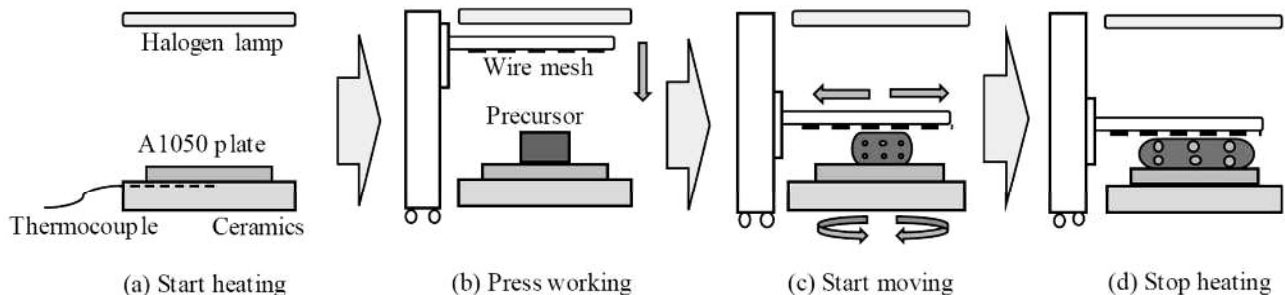


Fig. 1 Fabrication and bonding processes of porous ADC12 and A1050 plate

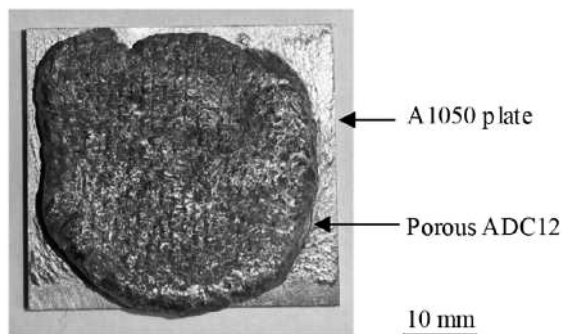


Fig. 2 Photograph of test piece

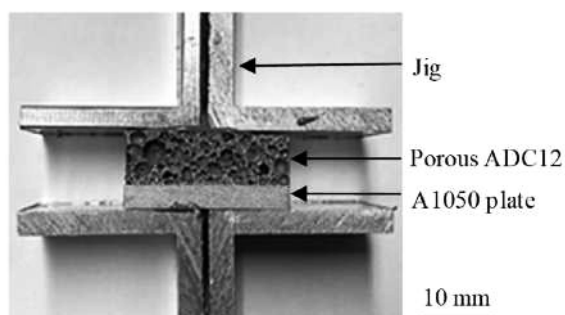


Fig. 3 Photograph of test piece before tensile test

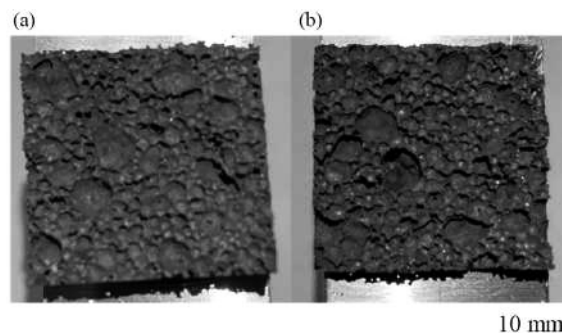


Fig.4 Fracture surface after tensile test of (a) porous ADC12 side, (b)A1050 plate side

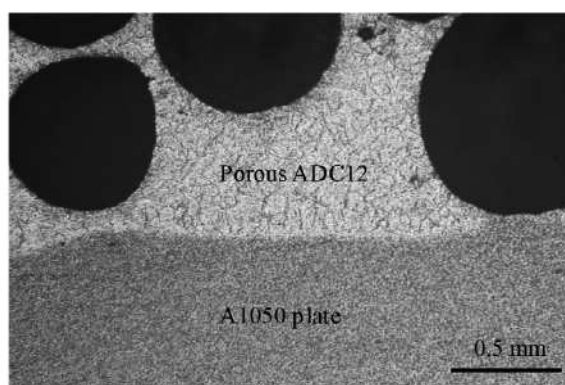


Fig. 5 OM image of interface after tensile test

り付けた試験片の様子を示す。Fig. 3のように、試験片を 20 mm × 20 mm × 9 mm に放電加工した後、ジグに取り付け、ジグを引張試験機でつかみ、引張速度を 1 mm/min として行った。なお引張用ジグは構造用接着剤を用いて試験片に接着した。引張試験後のポーラス ADC12 と A1050 板材の接合界面を光学顕微鏡を用いて観察した。

3. 実験結果

Fig. 4 に (a) 試験片の引張試験後のポーラス ADC12 側の破面と (b) A1050 緻密板材側の破面の様子を示す。Fig. 4 の試験片の破断の様子から、ポーラス ADC12 と A1050 板材の接合部分ではなく、ポーラス ADC12 の部分で破断していることがわかる。はじめに板を加熱したことによって塑性流動の発生を容易にし、酸化被膜を破壊して接合することができたと考えている。Fig. 5 に接合部の境界面を示す。境界面の様子からもポーラス ADC12 と A1050 板材が剥離しておらず、十分に接合できていることがわかる。今回の試験片の引張強度を求めると、4.9 MPa であった。ここで、ポーラス ADC12 自体の引張強度は、気孔率 70%～78% の範囲では 4 MPa～10 MPa となっていて、今回の試験片の引張強度は範囲内にある。このことから、ポーラス ADC12 と A1050 板材の接合強度は 4.9 MPa より大きく、十分な接合強度であると考えられる。

4. 結言

ポーラス ADC12 と A1050 板材の接合は、発泡直後のプレス加工によって可能であることが分かった。

謝辞

本研究の一部は、国立大学法人大阪大学接合科学研究所共同研究利用のもと、藤井英俊教授のご指導により行われました。ここに記して感謝の意を表します。

(共同研究分野：接合界面機構学分野 藤井英俊教授)

1. 目的

鉄鋼用摩擦攪拌接合ツールにおいて、様々なツール材質で長寿命化に効果のある形状が提案されている¹⁻⁴⁾。一方で、このツール形状を用いると長寿命化する原因について、従来形状ツールを用いた場合と比較して、摩擦攪拌点接合を用いたモデル実験により、攪拌領域内の温度分布が異なっている可能性が示唆された⁵⁾。しかしながら、その詳細については不明なままであり、明確にはなっていない。

そこで、本研究では、提案形状ツールを用いた場合の鋼の摩擦攪拌接合において、攪拌領域内の温度分布について詳細な検討を行うため、光ファイバ温度計を用いた実際の摩擦攪拌接合中の攪拌領域内部温度を測定し、従来形状ツールを用いた場合と比較した。これにより、ツール形状の違いが接合温度におよぼす影響を検討し、長寿命化を達成した提案形状ツールの特徴を明らかにした。

2. 研究方法

接合材料には、高炭素鋼として板厚 6mm の機械構造用炭素鋼 S55C を使用した。ツールは超合金製で、提案形状ツール (P2-S0 ツール) および比較用の従来形状ツール (P5.4-S10 ツール) を使用した。これらのツール形状は、提案形状ツールの場合、シオルダ直径 12mm、プローブ径 4mm およびプローブ長さ 1.9mm であり、プローブ先端のエッジ部がない半球状である。従来形状ツールの場合は、シオルダ直径 12mm、プローブ径 4mm およびプローブ長さ 1.9mm であるが、プローブ先端が半球状とはなっておらず、シオルダ角を有するものである。これらのツールを用いた摩擦攪拌接合は、ツール回転数 400rpm、圧入量 1.9mm、接合速度 100mm/min、接合距離 50mm および前進角 3° で位置制御にて行った。攪拌領域の温度測定は、光ファイバ温度計を用いて⁶⁾、突合せ接合のように配置した S55C 板の一方の側面に機械加工により溝を作製し、この溝に光ファイバを通した上で、測定部がツールの回転中心、回転中心から AS 方向に 1 および 2mm および回転中心から RS 方向に 1 および 2mm の各部に相当する位置で接合して行った。

3. 結果

温度測定実験では、提案形状および従来形状ツールを用いた場合ともに各部についてそれぞれ 5 回測定を行ったが、その典型例として、図 1 にツールの回転中心 (攪拌領域中央) における結果を示す。図 1(a)の結果より、従来形状ツールを用いた場合、最高到達温度は 1100K 程度で、ここでは省略したが他の部分においても最高到達温度は概ね同様であった。一方、図 1(b)の結果より、提案形状ツールを用いた場合、最高到達温度は 900K 程度で従来形状ツールを用いた場合とは異なっていた。また、こちらもここでは省略したが他の部分において、最高到達温度は 1100K 程度となっていた。なお、いずれのツール、いずれの位置においても温度の変動が激しくなっていた。これはバリの排出時における温度変動、および光ファイバ破断時の外乱によるものと考えられる。しかしながら、接合中にほぼ定常化したと考えられる状態においては、いずれのツール、いずれの位置においても最高到達温度はほぼ同等と考えられる。これらのことから、既報告⁵⁾にあるように温度計測結果において、ここでも攪拌領域の温度測定には最高到達温度を用いて評価することが妥当であると判断された。そのため、図 2 に示すように、ツールごとの各部における最高到達温度の平均値をまとめた。その結果、従来形状ツールを用いた場合、ツールの回転中心、回転中心から AS 方向に 1 および 2mm および回転中心から RS 方向に 1 および 2mm の各部に相当する位置のいずれにおいても、最高到達温度の平均値は 1105~1125K 程度でほぼ一定していた。一方、提案形状ツールを用いた場合、回転中心から RS 方向に 1 および 2mm の各部に相当する位置では、従来形状ツールを用いた場合とほぼ同様の 1100K 程度であったが、回転中心から AS 方向に 1 および 2mm および回転中心に相当する位置では異なっていた。すなわち、提案形状ツールを用いた場合の最高到達温度の平均値は、AS 方向に 1 および 2mm に相当する位置では 1050K

程度，回転中心に相当する位置では 928K で，従来形状ツールを用いた場合より若干もしくは比較的大きく低下した．このような攪拌領域温度分布の違いについて，現状ではツール形状の違いによる原因は明確になっていない．しかしながら，長寿命化に効果が認められる提案形状ツールにおいて，AS 方向および回転中心に相当する位置の攪拌領域温度が低くなっており，明確な有意差が認められる．このことから，通常，AS 方向の温度が高くなるとされる FSW では⁷⁾，当該部分の低温化がツール寿命向上に寄与する可能性が強く示唆される．

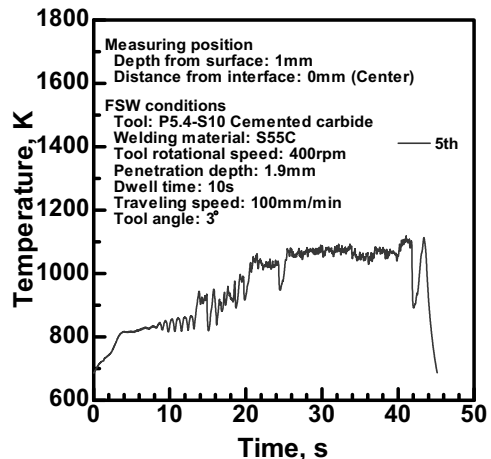
4. 結論

これまでに示した提案形状ツールを用いた結果から，鉄鋼材料用摩擦攪拌接合ツールにおいて，攪拌領域中央および AS 方向の攪拌領域温度を低下させることがツール寿命向上に寄与している可能性がある．

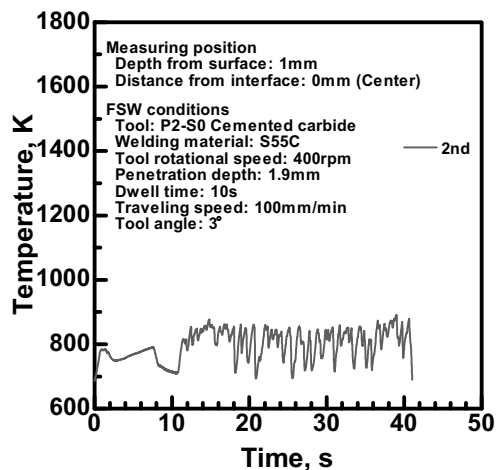
5. 参考文献

- 1) 生田明彦：鉄鋼材料への適用を考慮した接合ツール各部の評価，大阪大学接合科学共同利用・共同研究拠点共同研究報告書，(2017), 91-92
- 2) 生田明彦：鉄鋼材料への適用を考慮した接合ツール材料の検討，大阪大学接合科学共同利用・共同研究拠点共同研究報告書，(2018), 81-82
- 3) 生田明彦：鉄鋼材料用接合ツール形状の各種ツール材料に対する適用性の検討，大阪大学接合科学共同利用・共同研究拠点共同研究報告書，(2019), 99-100
- 4) 生田明彦：鉄鋼材料用接合ツール形状の各種ツール材料に対する適用性の実証，大阪大学接合科学共同利用・共同研究拠点共同研究報告書，(2020), 98-99
- 5) 生田明彦：鉄鋼材料用接合ツール形状が接合温度におよぼす影響，大阪大学接合科学共同利用・共同研究拠点共同研究報告書，(2021), 87-88
- 6) 上野泰弘，石井伸治，山中善吉：放射率の補正が不要な浸漬型光ファイバー温度計による溶接金属の温度特性，溶接学会誌，Vol. 81, No. 7(2012)，17-21
- 7) 李志浩，生島一樹，宮坂史和，柴原正和：溶接学会全国大会講演概要，第 107 集(2020)，96-97

(共同研究分野：接合界面機構学分野)



(a) 従来形状ツール



(b) 提案形状ツール

図 1 従来形状および提案形状ツールを用いた場合の攪拌領域中央の温度測定結果例

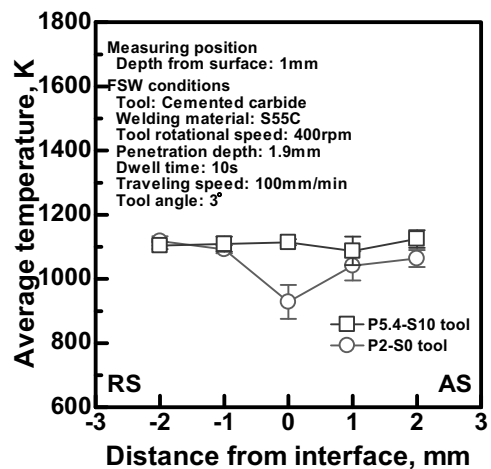


図 2 各測定位置における攪拌領域の最高到達温度分布

機械学習を用いたポーラスアルミニウムの応力推定

群馬大学 大学院理工学府 知能機械創製部門

小澤 創, 天谷賢児, 半谷禎彦

1. 目的

ポーラスアルミニウムの機械的特性は、気孔率や内部の気孔形態に影響されると考えられる。しかし、気孔率や内部の気孔形態がポーラスアルミニウムの機械的特性にどのような影響を及ぼすか評価するのは困難である。また、ポーラスアルミニウムの気孔形態を精密に制御することは、ポーラスアルミニウムの作製時に発泡過程を経るため困難であり、機械的性質にバラつきが生じてしまう。そのため、これらポーラスアルミニウムを製品にした際に、ポーラスアルミニウムを非破壊で品質評価できることが望ましい。ここで機械学習を用いれば製品の画像データのみから機械的特性を評価できる可能性がある。本研究では X 線 CT 画像データを入力データとする機械学習により機械的特性を評価することを試み、非破壊でポーラスアルミニウムの機械的特性評価できるかについて検討を行った。

2. 研究方法

本研究ではポーラスアルミニウムを溶湯発泡法により作製した。母材として Al-Si-Cu 系の ADC12 アルミニウム合金を用いた。作製したポーラスアルミニウムから、放電加工機を使用して一辺が 25 mm の立方体形状の試験片を 14 個作製した。得られた試験片は X 線 CT 撮像を行い、内部の気孔形態の画像の三次元データを取得した。図 1 は作製した試験片および試験片の断面を X

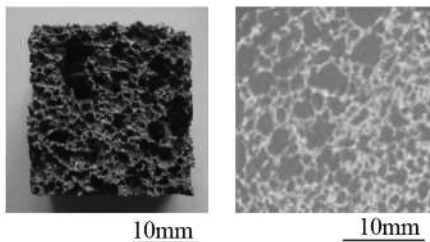


Fig.1 X-ray CT of porous aluminum

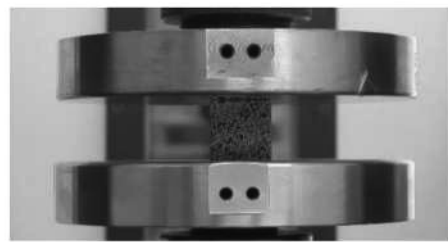


Fig.2 Compression test

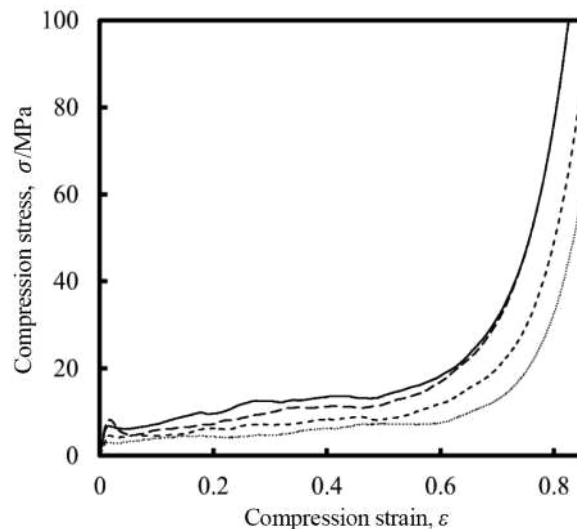


Fig.3 Stress-strain curves of porous aluminum during compression test

線 CT で撮像したものである。X 線 CT 画像では、白色の部分がアルミニウム、灰色の部分が気孔である。図 2 に圧縮試験の様子を示す。圧縮試験は、インストロン 5582 万能試験機を用い、日本工業規格に準じて、ひずみ速度 3.3×10^{-3} (圧縮速度 5.0 mm/min) で行った。図 3 に代表的な 4 個の試験片の応力-ひずみ線図を示す。縦軸は圧縮試験によって算出された圧縮応力 σ 、横軸は圧縮ひずみ ε である。図 3 において、応力値が比較的平坦な圧縮ひずみ $\varepsilon = 20\% - 30\%$ での圧縮応力の平均値がプラトー応力と定義されている。機械学習には、Mathematica (Ver. 12.3)を用いて畳み込みニューラルネットワーク(CNN)を用いた。訓練集合の X 線 CT 画像データを学習させ、検定集合の画像データからプラトー応力を推定した。本研究では試験片 1 個につき、訓練集合の画像データを 290 枚、検定集合の画像データを 10 枚、ランダムに選択した。これを試験片 14 個で行った。

3. 実験結果

訓練集合の画像データ 290 枚を学習させ、検定集合の画像データ 10 枚からプラトー応力を推定した結果を図 4 に示す。縦軸は圧縮試験から算出したプラトー応力 σ_{pl}^r 、横軸は機械学習により推定されたプラトー応力 σ_{pl}^e である。どの試験片においても、推定されたプラトー応力 σ_{pl}^e の値は、圧縮試験によって算出されたプラトー応力 σ_{pl}^r とほぼ同様の値を示していることがわかる。このことから、画像データを学習させれば、プラトー応力を推定できると考えられる。しかし、推定された応力を見てみると少しバラつきがある。これは機械学習がプラトー応力を推定した画像と類似した画像からプラトー応力を推定してしまうためであると考えられる。今回は試験片 14 個を機械学習させたが、類似した画像が少なかったと考えられる。これを改善するためには、試験片の数を増やし、学習するデータを増やすことが考えられる。また、今回の機械学習は X 線 CT 画像の二次元

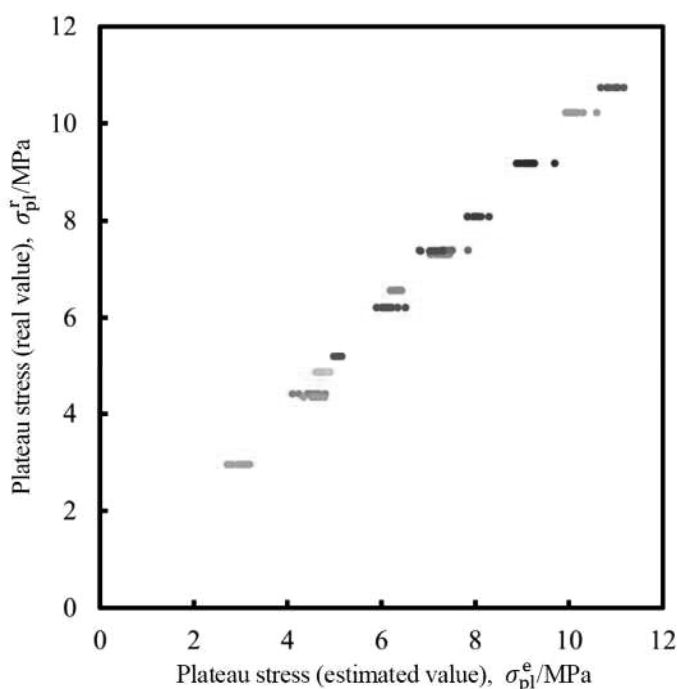


Fig.4 Plateau stress estimation by machine learning

断面のみを用いたが、試験片は立体であり、断面画像のみでは試験片内部の気孔を立体的に捉えることができなかったと考えられる。このため、立体画像(三次元画像)を入力データにすることによって正確なプラトー応力を推定できると考える。

4. 結言

機械学習によって、ポーラスアルミニウムの X 線 CT 画像から、ポーラスアルミニウムの圧縮試験により得られるプラトー応力の推定を試みた。機械学習により推定されたプラトー応力と、圧縮試験により算出されたプラトー応力はほぼ同様の値を示し、画像データを学習させればプラトー応力を推定できることが示唆された。

謝辞

本研究の一部は、国立大学法人大阪大学接合科学研究所共同研究利用のもと、藤井英俊教授のご指導により行われました。ここに記して感謝の意を表します。

(共同研究分野：接合界面機構学分野 藤井英俊教授)

大荷重摩擦攪拌プロセスによるマグネシウム合金の組織制御

地方独立行政法人大阪産業技術研究所

木元慶久

1. 目的

摩擦攪拌プロセス (FSP) ¹⁾ は、摩擦攪拌接合における攪拌部の組織微細化効果を表面改質に応用したものである。FSP を用いて金属組織を超微細化する手法としては、液体窒素急冷下の FSP ²⁾、カーボンナノチューブ等のナノ材料の摩擦攪拌複合化 ³⁾、異種金属を添加し化合物を微細析出させる摩擦攪拌合金化 ⁴⁾ が検討されてきた。近年藤井らは、Mg 合金 AZ31 ⁵⁾ および難燃性 Mg 合金 Mg-6Al-0.4Mn-2Ca ⁶⁾ に大荷重摩擦攪拌プロセス (Large-load FSP; LL-FSP) を施すことにより、攪拌部にナノ双晶および高密度転位を含み、結晶方位のランダム化が進行した組織を生成し、接合部の強度と延性を同時に向上させた。

本研究では、Mg 合金 ZK60 (Mg-5wt.%Zn-0.8wt.%Zr) に対し、大気中および液体窒素浴中において LL-FSP を施し、攪拌部の組織観察および二次元硬さ分布測定等を行った。

2. 研究方法

大気中の大荷重 FSP (LL-FSP) および液体窒素浴下の急冷大荷重 FSP (Liquid-nitrogen large-load FSP; LN-LL-FSP) の諸条件を表 1 に示す。大荷重 FSP (LL-FSP および LN-LL-FSP) では通常の FSP と比較して回転数および送り速度を 1 桁小さく、荷重を約 4 倍程度に設定した。急冷大荷重 FSP では 2 種類のツール送り速度 (低速[L]・中速[M]) により試料を作製した。FSP における相当ひずみは Reynolds による FSW におけるひずみの定義式 ⁷⁾ を用い、攪拌部の平均値から計算した。

$$\varepsilon_{\text{FSP}} = \frac{1}{\sqrt{3}r} \int_0^r \varepsilon dx, \quad \varepsilon = \ln\left(\frac{l}{APR}\right) + \left| \ln\left(\frac{APR}{l}\right) \right|, \quad l = 2r \cos^{-1}\left(\frac{r-x}{r}\right), \quad APR = \frac{\text{送り速度 } V [\text{mm/min}]}{\text{回転数 } N [\text{rev./min}]}$$

攪拌部断面を鏡面研磨後、腐食液 (酢酸 20 ml, 硝酸 1 ml, エチレングリコール 60 ml, 水 90 ml) ⁸⁾ にて微細組織を現出し、光学顕微鏡によりマクロ組織、レーザー顕微鏡によりミクロ組織を観察した。断面の二次元硬さ分布はマイクロビッカース硬度試験システム (ヒューチュアテック, FM-300/ASV-90) を用いて測定した。

3. 結果および考察

表 2 に攪拌部断面のマクロ組織、ビッカース硬さ分布およびミクロ組織を示す。

送り速度 10 mm/min (低速) にて作製された試料では、大気中において大荷重 FSP を施した試料 LL-FSP が最表面付近のみで硬化していたのに対し、液体窒素浴中で大荷重 FSP を施した試料 LN-LL-FSP では硬化領域が板厚全体に拡大した。しかし、液体窒素浴中にて送り速度 50 mm/min (中速) にて作製した試料 LN-LL-FSP [M] では、硬化領域が表面から板厚の半分程度に留まった。これは攪拌部に与えられる相当ひずみが小さいことが一因と考えられる。

改質部のミクロ組織は、いずれの試料においても通常の FSP に典型的な動的再結晶組織が見られず、転位及び双晶からなる加工組織であった。広範囲に硬化した試料 LN-LL-FSP [L] では、転位が高密度に分布する領域が支配的であった。

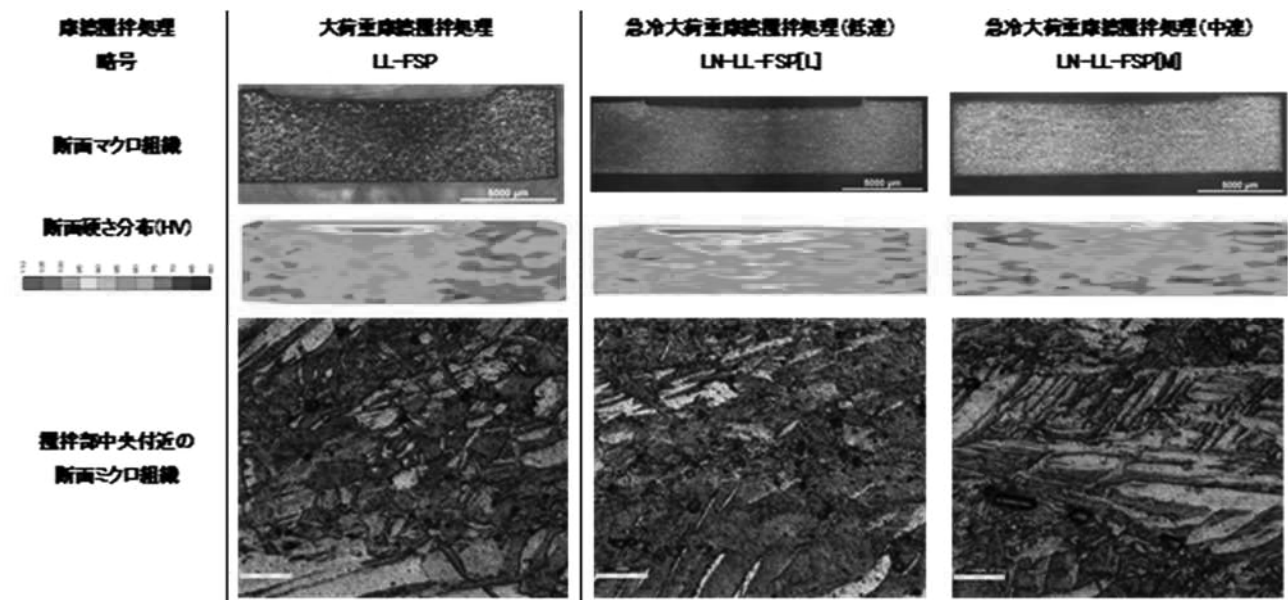
4. 参考文献

- 1) R.S. Mishra and Z.Y. Ma, Mater. Sci. Eng. R 50 (2005) 1-78.
- 2) C. I. Chang et al., Scripta Mater. 57 (2007) 209-212.
- 3) Y. Morisada, et al., Mater. Sci. Eng. A 419 (2006) 344-348.
- 4) K. Inada et al., Sci. Technol. Weld. Join. 15 (2010) 131-136.
- 5) N. Xu, et al., et al., Mater. Lett. 219 (2018) 93-96.
- 6) N. Xu, et al., Mater. Sci. Technol. 34 (2018) 1118-1130.
- 7) A. P. Reynolds, Scripta Materialia 58 (2008) 338-342.
- 8) Y. Tamura et al., Mater. Trans. 44 (2003) 552-557

表 1 摩擦攪拌プロセス条件

摩擦攪拌処理略号	大荷重摩擦攪拌処理 LL-FSP	急冷大荷重摩擦攪拌処理 低速 [L]	急冷大荷重摩擦攪拌処理 中速 [M]
	LN-LL-FSP		
回転数	100 rpm		
送り速度	10 mm/min		50 mm/min
相当ひずみ	6.2		4.4
荷重	4500 kgf (44 kN)		
ツール形状	平ツール (φ 12 mm)		
雰囲気	大気中	液体窒素浴中	

表 2 攪拌部断面のマクロ・ミクロ組織および硬さ分布



(共同研究分野：接合界面機構学分野)

鉄鋼材料の摩擦攪拌接合 (FSW) と継手の機能評価 (球面ツールを用いた点接合技術の開発)

広島県立総合技術研究所

坂村 勝, 松葉 朗, 大田 耕平, 山形 亮太

1. 緒言

筆者らは、先端が球面のツールを用いる点接合法である摩擦アンカー接合¹⁾を考案し、種々の金属材料に適用してきた^{2,3)}。しかし、実用化を勘案した際に、球面ツールの先端に用いているセラミックス球の耐久性向上は非常に重要なファクターと言える。筆者らはこれまでの研究で種々のセラミックス材料を対象に耐久性試験を実施し、コストも勘案すると、窒化珪素が最も実用的であるとの結論を得た。しかし、市販の窒化珪素では十分な耐久性を有しないことも分かってきた。そこで本研究では、先端に用いる窒化珪素を新たに開発し、その耐久性を市販材と比較するとともに、得られた接合材の接合強度の評価を行った。

2. 実験方法

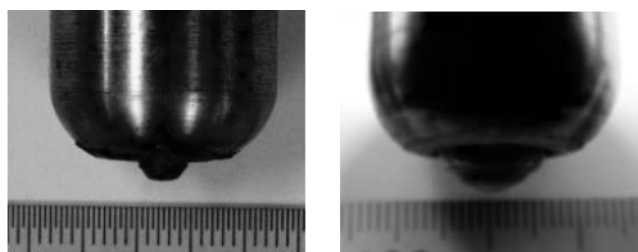
本研究では、評価対象を、市販の窒化珪素球 3 種 (A~C) と東芝マテリアル(株)で開発した窒化珪素球 (T) の合計 4 種とし、球径は 9.5mm とした。それぞれの球を直径 20mm の炭素鋼 S45C 製円柱の先端に設けられた窪みに固定して接合ツールとした。これらの接合ツールの寿命評価を行うための供試材として、300mm×200mm×3.2mm の SPCC を用いた。この供試材に、Fig.1 に示すように Stir in Plate を行った後、レーザ変位センサー (榊キエンス製 LK-030) を用いて窪み部の断面形状測定を行った。これは供試材側の窪み形状を測定することによりツールの摩耗状況を推察することを目的としている。また、適当な打数の Stir in Plate 後に、30mm×85mm×1.0mm の SPCC の重ね点接合を行って引張せん断試験片を作製し、JIS Z2241 (金属材料引張試験方法) に従って引張せん断試験を実施した。なお、接合条件は、回転数 1500rpm, 押込荷重 12kN, ツール押込量: 1.6mm, 接合時間: 2.5 秒とした。



Fig.1 Appearance of the experimental setup.

3. 実験結果及び考察

Fig.2 に、市販材で最も耐久性の高かった窒化珪素 A と開発材 T の 1000 打点後の外観写真を示す。Fig.3 にレーザ変位センサーで測定して得られた SPCC の窪み測定結果の一例を示す。本研究では、図中の斜線部分の面積を求めることで摩耗の状態を定量化した。その結果を Fig.4 に示す。なお、Fig.4 の窪み部断面積は、各測定時の断面積を第 1 打点目の断面積で除し、規格化した値を示している。Fig.2, Fig.4 より、開発材 T の耐久性が他の材料に



(a) Ceramics A (b) Ceramics T
Fig.2 Appearances of the tip of the tools after 1000 shots for ceramics A and T.

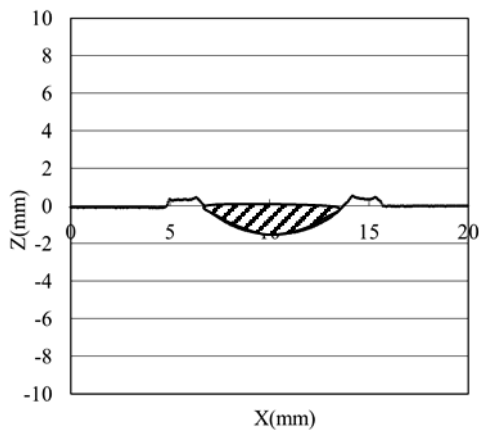


Fig.3 Schematic diagram showing how to measure the cross-sectional area of indentation.

比し高いことが分かる。次に、市販材で最も耐久性の高かった窒化珪素 A と開発材 T を用いて得られた接合材の引張せん断試験結果を Fig.5 に示す。Fig.5 より、材種 A ではツールの摩耗に伴い引張せん断強度が顕著に低下しているのに対して、開発材 T では 1000 打点後もほとんど低下せず、JIS Z3140 (スポット溶接部の検査方法) に記載の引張せん断荷重 A 級をクリアすることが分かった。

4. 結言

被接合材として軟鋼SPCCを対象とした接合ツール用材料の耐久性試験を行い、1000打点後もJIS Z3140の引張せん断荷重A級をクリアできる窒化珪素を開発することができた。一方、現在の自動車製造では大量の高張力鋼が使用されている。したがって、高張力鋼や超高張力鋼等にも適用できるツール用材料の開発は不可欠であり、現在も引き続き研究開発を行っている。

参考文献

- 1) 大石郁, 坂村勝, 竹保義博: 日本国特許第 5854451 号 (2015).
- 2) K. Ohishi, M. Sakamura, K. Ota and H. Fujii: Novel Dissimilar Spot Welding of Aluminum Alloy and Steel Sheets by Friction Stirring, Q. J. Jpn Weld. Soc., 32-1 (2014), 1-7. (in Japanese)
- 3) M. Sakamura, K. Ohishi, K. Ota, Y. Takeyasu, S. Mizunari and H. Fujii: Dissimilar spot welding of three lapped sheets of aluminum alloy and steels by metal flow, Journal of Light Metal Welding, 52-12 (2014), 453-461. (in Japanese)

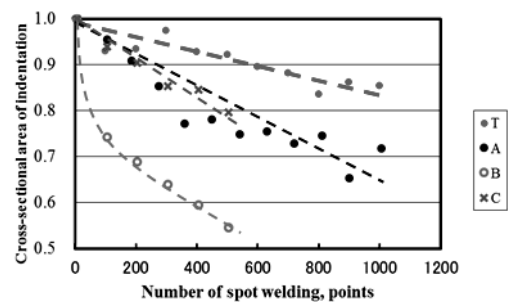


Fig.4 Relationship between the number of spot welding and the cross-sectional area of indentation.

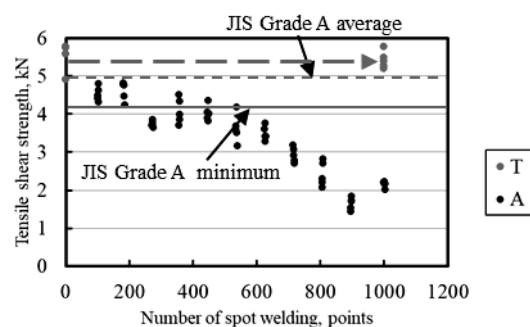


Fig.5 Relationship between the number of spot welding and the tensile shear strength for ceramics A and T.

(共同研究分野：接合界面機構学分野)

1. 緒言

環境負荷低減の観点から輸送機器の軽量化が望まれている。輸送機器の軽量構造材料として有望な材料の一つにポーラスアルミニウムがある。ポーラスアルミニウムは多数の気孔を内包したアルミニウム合金である。

緻密な構造材料に欠陥が生じた場合、欠陥の形態や寸法によっては、補修を施しつつ継続利用することが可能である。例えば、板金加工による補修や溶接を利用した補修方法がある^{1, 2)}。ポーラスアルミニウムに関しては補修方法が確立されていない。供用中のポーラスアルミニウムに欠陥が生じた場合、補修ができないため、部材ごと交換する必要がある。わずかな欠陥で大型部材を交換することは維持費や環境負荷の増加につながる。サステナブルな社会の実現の観点から、ポーラスアルミニウムの補修技術を確立することが必要である。

本研究ではポーラスアルミニウムの欠陥補修技術として、発泡補修を提案する。発泡補修では欠陥部分にフラックスを塗布した後、低融点合金製発泡前駆体プリカーサを補修材として挿入する。これを高温に加熱することで、欠陥を低融点ポーラスアルミニウムで充填する。供用中のポーラスアルミニウムに低融点ポーラスアルミニウム合金が接合することにより補修が達成される。欠陥に挿入される補修用プリカーサの体積によって、欠陥部分の気孔率が変化するため、補修用プリカーサの体積は補修後の強度にとって重要である。本研究では補修用プリカーサの体積を変化させて、発泡補修を行った試験片に対して4点曲げ試験を行うことにより、補修用プリカーサの体積の変化が補修後の強度に与える影響について実験的に調べることを目的とする。

2. 実験方法

2.1 被補修用ポーラスアルミニウムの製作

純アルミニウム粉末96 mass%，増粘剤(Al_2O_3)粉末3 mass%および発泡剤(TiH_2)粉末1 mass%を混合した。混合粉末をステンレス製の金型に入れ、773 Kに加熱しつつ180 min間、150 MPaを負荷する一軸ホットプレスを行い、純アルミニウムプリカーサを得た。このプリカーサの組成についてTable 1にまとめる。

純アルミニウムプリカーサを一辺15 mmの立方体

に切り出し、ステンレス角管(内部寸法 $16 \times 16 \times 50 \text{ mm}^3$)に挿入した。角管を983 Kに加熱した電気炉内に挿入し、7 min保持後、電気炉より取り出し冷却することで $16 \times 16 \times 50 \text{ mm}^3$ の発泡体を得た。発泡体の長手方向に平行な面の中央部にドリル加工を用いて $\phi 8$ の孔を設け、これを被補修用ポーラスアルミニウムとして用いた。

2.2 補修用プリカーサの製作

補修用プリカーサの材料として、共晶に近い組成を有し、融点の低い市販のAl-Si合金であるADC12アルミニウム合金粉末を用意した。ADC12粉末97 mass%，増粘剤として純アルミニウム粉末および Al_2O_3 粉末をそれぞれ3 mass%および TiH_2 粉末1 mass%を混合した(Table 1)。

混合粉末を純アルミニウムプリカーサと同様の条件で一軸ホットプレスすることで補修用プリカーサを得た。補修用プリカーサを $\phi 8$ ，長さ16 mmの円柱に切り出した。ドリルを用いて補修用プリカーサの底面中央に貫通孔を設け、貫通孔のないプリカーサ($\phi 8-0$)， $\phi 1$ の貫通孔を有するプリカーサ($\phi 8-1$)および $\phi 4$ の貫通孔を有するプリカーサ($\phi 8-4$)の3種類の補修用プリカーサを得た。

2.3 発泡補修

被補修用ポーラスアルミニウムの $\phi 8$ の貫通孔にフラックスを塗布し乾燥させた後、補修用プリカーサを挿入して試験片とした。試験片を被補修用ポーラスアルミニウム作製の際に使用したステンレス角管に挿入し、873 Kに加熱した電気炉に入れ20 min保持した後、電気炉より取り出し冷却した(Fig. 1)。補修用プリカーサの異なる3種類の試験片を得た。

Table 1 Compositions of the precursors.

	Composition (mass%)			
	ADC12	Pure Al	Al_2O_3	TiH_2
Pure aluminum precursor	0	96	3	1
Repair precursor	97	3	3	1

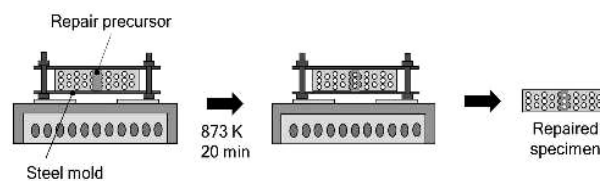


Fig. 1 Foaming repairing process.

2.4 4点曲げ試験

補修した試験片の強度を評価するために、穿孔前後のポーラス純アルミニウムおよび異なる補修用プリカーサを用いて補修した3種類の試験片に対して4点曲げ試験を行った。

3. 実験結果および考察

各試験片の最大曲げ荷重の平均値をFig. 2に示す。穿孔を施したポーラス純アルミニウム(Drilled)の最大曲げ荷重は、穿孔を施していないポーラス純アルミニウム(Base metal)の約65%であった。補修を施した試験片φ8-0、φ8-1およびφ8-4の最大曲げ荷重は穿孔を施していないポーラス純アルミニウムと同程度であった。欠陥の生じたポーラスアルミニウムに発泡補修を施すことにより、欠陥のないポーラスアルミニウムと同程度の強度にすることが可能である。

φ8-0の試験片のばらつきは他の補修した試験片よりも大きかった。Al-Si合金プリカーサを用いた発泡接合において、Al-Si合金から被接合用ポーラス純アルミニウムのセル壁に拡散したSiがセル壁を構成する純アルミニウムの融点を低下させ、Al-Si合金プリカーサの膨張力によってポーラス純アルミニウムのセル壁が破壊されることが確認されている³⁾。本研究においては、φ8-0の体積が大きく膨張力が強すぎることにより、発泡補修中に被補修用ポーラスアルミニウムのセル壁を破壊することが、φ8-0試験片のばらつきが大きくなる原因と考えられる。

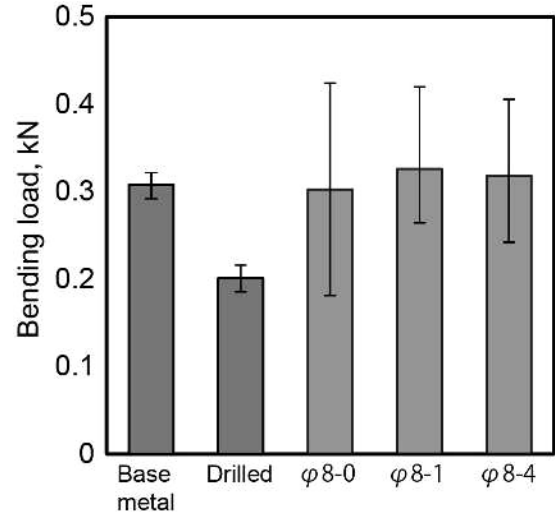


Fig. 2 Results of four points bending tests.

4. 結言

本研究では穿孔を施すことで体積を変えた3種類のAl-Si合金製補修用プリカーサを用いて発泡補修を行い、補修後の曲げ強度を評価し、次の結論を得た。

- (1) 穿孔を施したポーラス純アルミニウムは、穿孔を施していないポーラス純アルミニウムの約65%の最大曲げ荷重であった。穿孔を施したポーラス純アルミニウムに対して発泡補修を施すと、本研究の範囲では補修用プリカーサの体積に関係なく、穿孔を施していないポーラス純アルミニウムと同程度の最大曲げ荷重になった。
- (2) 穿孔により体積を減じた補修用プリカーサを利用した方が、最大曲げ荷重のばらつきが小さかった。これは、補修用プリカーサの体積の減少により、プリカーサの膨張により被補修用ポーラスアルミニウムのセル壁が受ける圧力が減少し、補修過程における被補修用ポーラスアルミニウムのセル壁の破壊を防げるためと考えられる。

謝辞

本研究の一部は、国立大学法人大阪大学接合科学研究所共同研究利用のもと、藤井英俊教授のご指導により行われました。ここに記して感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 池元茂, 高井由佳, 濱田泰以, 桑原教彰: 日本機械学会論文集, 84 (2018), 17-00552.
- 2) 榎本正敏: 溶接学会誌, 82 (2013), 64-67.
- 3) 鈴木良祐, 櫻井裕, 松原雅昭: 日本金属学会誌, 80 (2016), 134-139.

(共同研究分野: 接合界面機構学分野 藤井英俊教授)

A5052とA6061組み合わせの異材線形摩擦接合

蘇金銘¹、崔正原¹、山本元道¹、青木祥宏²、藤井英俊²

¹広島大学 先進理工系科学研究科

²大阪大学 接合科学研究所

キーワード：線形摩擦接合；異材接合、A5052；A6061；微細組織；機械的性質

1. 研究背景

Al合金は、高い比強度、比較的低い密度の特性のため車体に主に使用されている鉄鋼材料を代替する材料として注目されている。Al合金継手実用化の拡大をすると共に材料のマルチマテリアルかを実現するためには、異材接合の研究が必要である。しかしながら、従来の溶融溶接方法では溶融溶接中溶接領域における気孔の形成、および変形は、継手の機械的性質が低下する原因になる。このような問題を解決するためには接合温度が低い固相接合による作製が必須である。

高強度、および高延性を有する健全なAl合金継手を作製するために、TWIは摩擦攪拌接合を開発した。摩擦攪拌接合は固相接合であるため、溶融、および凝固中に発生する気孔の形成を抑制し、比較的低温で接合が行われるため変形も大きく抑制される。しかしながら、5000系などのAl合金は、接合領域で結晶粒微細化による強化効果よりもアニーリングによる軟化効果が大きいいため、接合部で軟化が発生し母材に比べて継手強度効率が低くなる。また、6000系などのAl合金は、母材の支配的な強化メカニズムである析出物が接合中に高温で溶解されるため、継手の機械的性質が大幅に低下する。上記の問題を解決するために極低温で接合を行うと、接合中の材料流動が不十分となるため接合領域で欠陥が発生する。

本研究では、より低温で接合が可能となる線形摩擦接合（LFW）を用いてA5052合金とA6061合金の異材接合を実施した。印加圧力が増加するにつれて接合温度が低くなるという事実を利用し、印加圧力を制御することにより極低温で接合を実施した。また、線形摩擦接合中のAl異材継手における微細組織と硬さ分布などの機械的特性を調査した。

2. 実験方法

5mm^T×25mm^W×65mm^Lの寸法のA5052とA6061合金を使用した。LFWは、25Hzの周波数、3mmの振幅、様々な印加圧力で行われた。その後、断面組織を電子後方散乱回折（EBSD）で観察した。硬さ測定は、接合中心線に垂直な方向に沿って実施した。また、接合界面に垂直な方向に引張試験を行った。

3. 実験結果及び考察

図1で30と100MPaで得られた継手の断面組織組織を示す。接合界面近傍の組織は(101)方向に主に発達していることが見られる。LFW中に大きなひずみ、および高温で塑性変形が発生するため、この領域で動的再結晶が発生する。この領域の幅は、30MPaの印加圧力よりも100MPaの印加圧力で得られた継手において狭くなることが確認できる。この結果は、印加圧力が増加することによって接合温度が低下することを示している。

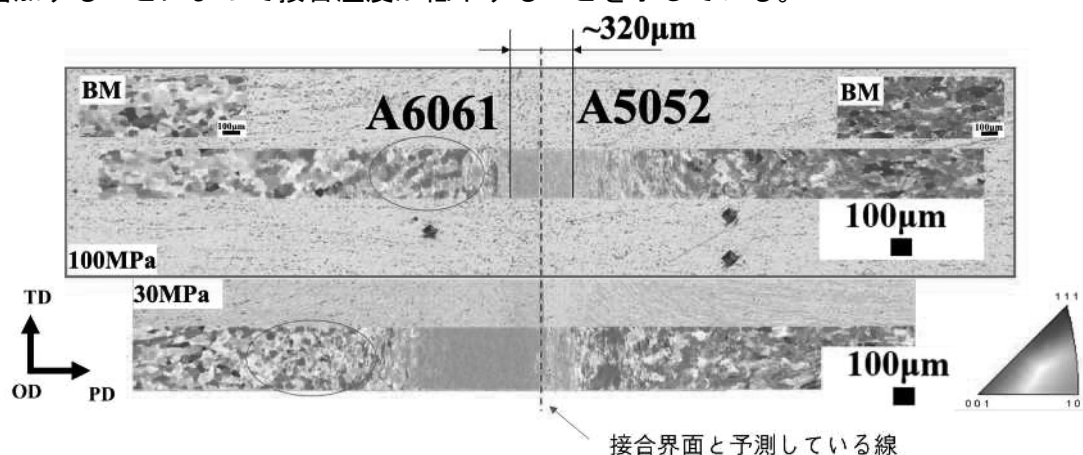


図1. 30と100MPaで得られた継手の断面組織

また、A5052側とA6061側の再結晶された微細組織が対称ではないことが見られる。この結果は、A5052とA6061合金の異なる機械的性質のため接合中にひずみ、またはひずみ速度が異なったためであると考えられる。この結果について詳細に調査する予定である。

図2で30と100MPaで得られた継手の硬さ分布を示す。接合領域において、30MPaで得られた継手の硬さ値は100MPaで得られた継手の硬さ値よりも低い。30MPaで得られた異材継手では、A5052側とA6061側の接合界面近傍で軟化が発生することを確認できる。100MPaで得られた異材継手では、A5052側の接合界面近傍の硬さの値が母材の値とほぼ同等であるが、A6061側の接合界面近傍の硬さの値は母材に比べ低い。また、A6061側において印加圧力が30から100MPaになると、軟化した領域の幅が狭くなることわかる。これらの全ての結果は印加圧力の増加に伴って接合温度が低下し、接合近傍の結晶粒がより微細化されたことを示している。現在までには、30と100MPaのみを中心として調査しているが、200MPaの結果もさらに調査する予定である。

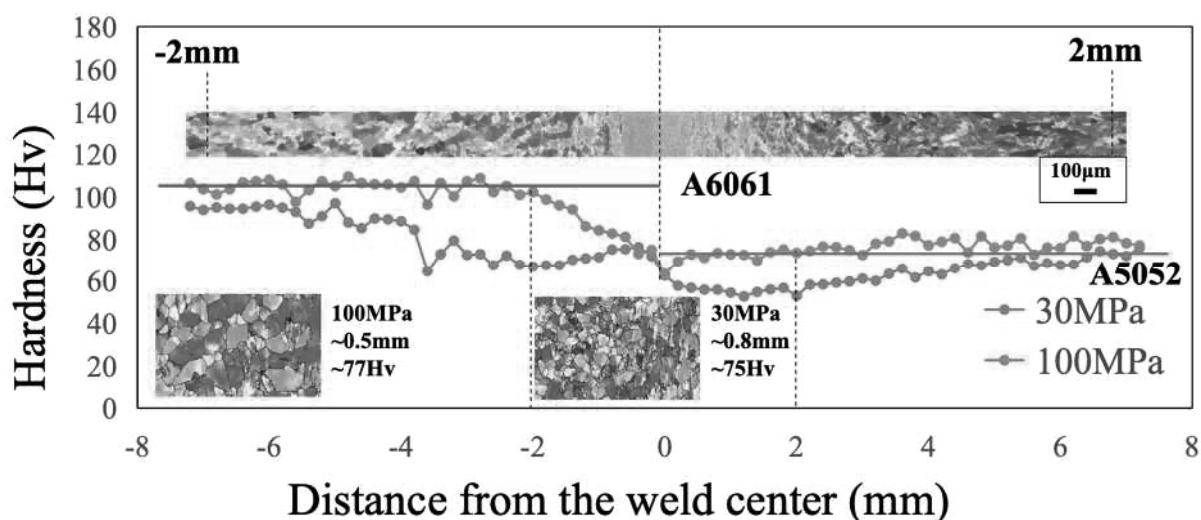


図2. 30と100MPaで得られた継手の硬さ分布

図3で30と100MPaで得られた継手の応力ひずみ曲線を示す。30MPaで得られた異材継手の引張強度と降伏強度は、接合温度がより高かったため、100MPaで得られた異材継手の引張強度と降伏強度より低いことがわかる。30と100MPaの継手の引張強度は、それぞれ189MPaと211MPaであった。30と100MPaの印加圧力で得られた継手両方の引張特性は母材の引張特性に比べて低下した。この結果は、接合領域において主にA5052側の軟化が原因であったため、継手強度の効率を高めるためにはさらに低温（高印加圧力）での接合が必要であると考えられる。引き続きより高印加圧力である200MPaで得られた継手も検討しようとしている。

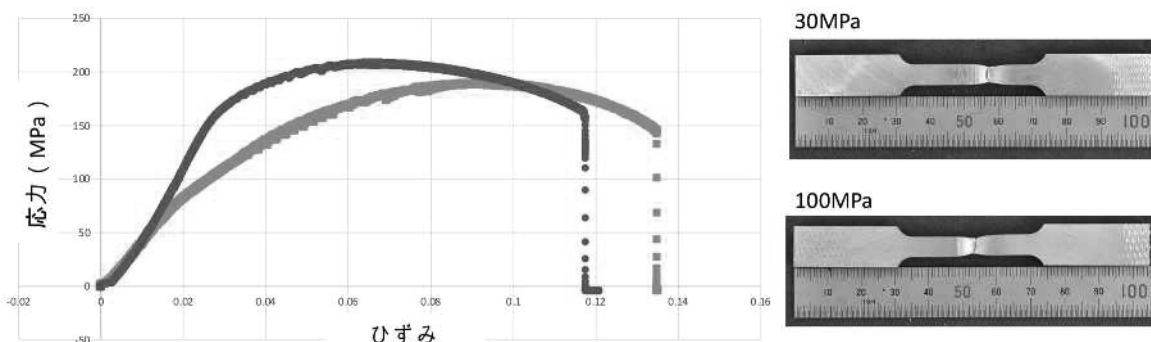


図3. 30と100MPaで得られた継手の応力ひずみ曲線

接合界面機構学分野

アルミニウムと CFRP の摩擦攪拌重ね接合における

シランカップリング剤の効果

地方独立行政法人大阪産業技術研究所

物質・材料研究部

長岡 亨

1. 目的

炭素繊維強化プラスチック (CFRP) は、耐熱性、機械的性質、難燃性、耐薬品性等に優れるため、自動車や精密機器等に幅広く利用され、その需要は拡大しつつあることから、従来の金属部品との接合技術が求められている。本研究では、ポリアミド (PA6) を母材とする CFRP と純アルミニウムの異種材料接合に摩擦攪拌重ね接合を適用し、接合部の機械的性質に及ぼすシランカップリング剤の影響について検討した。

2. 研究方法

CFRP 板材には不連続炭素繊維を 20 wt%含む PA6 からなる CFRP を用いた。CFRP 板材のサイズは 140 mm × 75 mm × 3 mm であった。アルミニウム板材には 140 mm × 75 mm × 2 mm の A1050 板材を用いた。受け入れままの A1050 板材表面の算術平均粗さ Ra は 0.2 μm であった。接合前処理として研磨を行い、表面の Ra を 1.7 μm とした A1050 板材も用意した。受け入れ材、ならびに研磨処理材にシランカップリング処理を行った。シランカップリング剤には、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシランを 1%含有する水溶液を用いた。A1050 板材を水溶液に浸漬した後、110°Cにて 1 時間保持した。X 線光電子分光分析装置を用いて、A1050 板材の表面分析を行った。CFRP 板材の上に重ね代を 25 mm として A1050 板材を重ねて摩擦攪拌重ね接合を行った (図 1)。底面が平面である直径 15 mm の円柱型ツールを用いた。ツール回転数は 500 rpm とし、送り速度は 100 mm/min, 前進角は 3° とした。引張せん断試験片は幅を 10 mm として接合方向に垂直に切り出した。得られた接合材について、引張せん断試験、硬さ分布測定および走査型電子顕微鏡による断面観察ならびに結晶方位解析を行った。

3. 結果

シランカップリング処理を行った A1050 板材表面の XPS 分析で得られた Si 2p, Al 2p のスペクトルを図 2 に示す。金属 Al と Al-O 結合, Si の存在が認められた。シランカップリング剤は水溶液中で加水分解によってシラノール (Si-O-H) を生成し、シラノールと A1050 表面の水酸基の間で Si-O-Al 結合が生じたと考えられる。

A1050/CFRP 接合材の引張せん断試験結果を図 3 に、引張せん断試験後の試験片を図 4 に示す。シランカップリング処理を行わなかった場合には研磨の有無に関わらず接合材を得ることができなかったが、シランカップリング処理を行うことで接合材が得られた。研磨処理なしの場合、引張せん断荷重は 732 N を示し、破断は接合界面であった。研磨後シランカップリング処理を行うことで、引張せん断荷重は上昇し 1942 N となった。破断は CFRP 母材で生じた。A1050 板材表面の算術平均粗さ Ra を 0.2 μm から 1.7 μm に変化させることで、A1050 と CFRP の接合強度は大幅に向上することが分かった。

摩擦攪拌重ね接合後の A1050 板材の接合中心における表面部近傍の結晶方位解析結果を図 5 に示す。図の左側が回転ツールと接触していた A1050 板材表面部で、右側が CFRP 板材との接合界面への向きを示している。表面側から微細な等軸粒からなる攪拌部(SZ), 伸長した結晶粒からなる熱加工影響部(TMAZ), 比較的粗大な結晶粒が見られる熱影響部(HAZ)が観察された。図 5 の観察領域の幅は約 1 mm であり, SZ と TMAZ を合わせた領域の幅は約 0.5 mm であった。A1050 板材の厚さは 2 mm であったことから, 回転ツールによる A1050 の材料流動は深さ約 0.5 mm までで生じ, CFRP との接合界面近傍ではアルミニウムの材料流動は生じていなかったことが示唆された。このことから, シランカップリング剤を用いた A1050 板材と CFRP 板材の摩擦攪拌重ね接合では, 主に回転ツールからの摩擦熱と荷重によって接合できたものと考えられた。

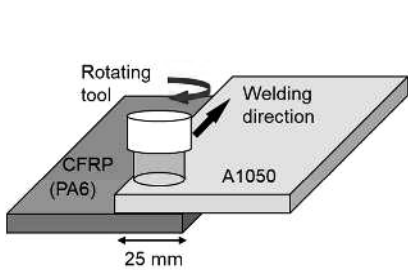


図1 CFRP(PA6)とA1050の摩擦攪拌重ね接合

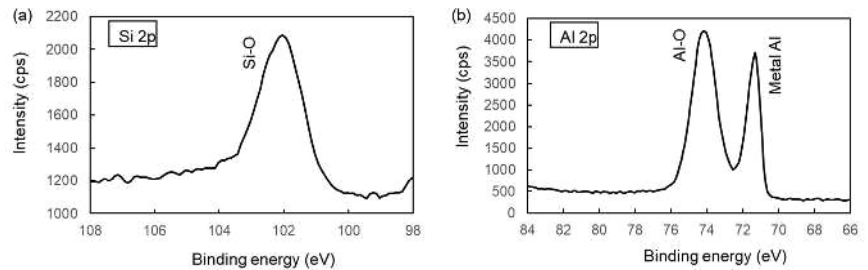


図2 シランカップリング処理後のA1050表面のXPS分析結果：(a) Si 2p, (b) Al 2p.

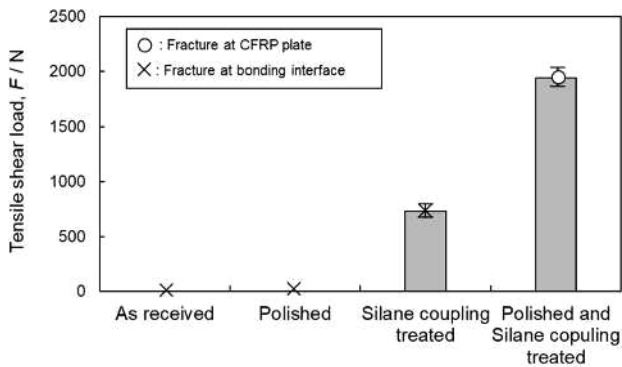


図3 A1050/CFRP継手の引張せん断試験結果

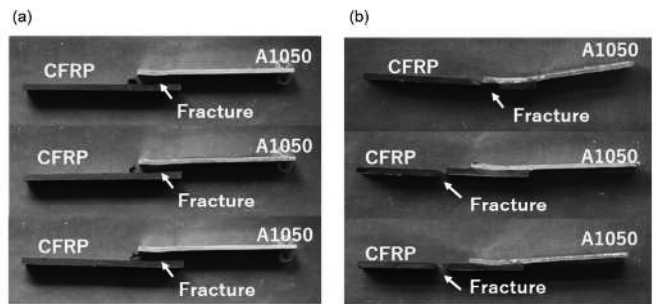


図4 引張せん断試験後のA1050/CFRP試験片：(a) シランカップリング処理, (b) 研磨後シランカップリング処理

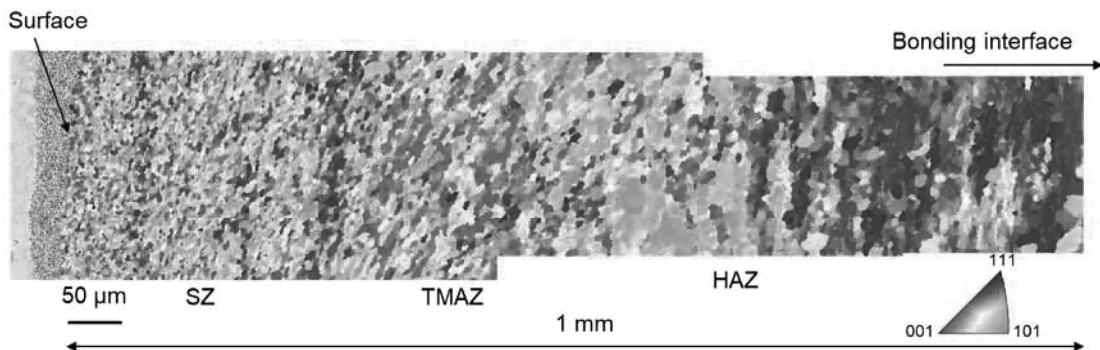


図5 摩擦攪拌重ね接合後のA1050断面における結晶方位解析結果

(共同研究分野：接合界面機構学分野)

高 Mn 鋼の摩擦攪拌接合技術の確立と接合機構の解明

物質・材料研究機構 柳樂 知也

1. 目的

近年、Fe-Mn-Si をベースとして開発された Fe-15Mn-10Cr-8Ni-4Si 合金(以下、FMS 合金と呼ぶ)は、優れた低サイクル疲労寿命を有しており、新たな制振ダンパー材料としての応用が期待されている。しかしながら、溶融溶接法では凝固割れが生じやすく、構造体化のためには溶接性の問題を克服することが課題となっている。一方、固相接合である摩擦攪拌接合(FSW)では、Fe 系合金においても合金元素に制約されることなく、健全な継手の作製が可能であることが報告されている。そこで本研究では、FSW による継手の作製を行い、接合性について評価を行った[1]。また、FCC 金属において FSW 中の組織形成は、積層欠陥エネルギーに強く依存することが知られている。積層欠陥エネルギーが大きなアルミニウムの場合、連続動的再結晶が支配的に起こるが、積層欠陥エネルギーが低下(純銅、黄銅、Ag など)すると、転位のすべり、上昇運動が抑制されるため、連続動的再結晶が抑制され、不連続動的再結晶が顕在化する。そこで Ag と同程度の低い積層欠陥エネルギーを有する FMS 合金における FSW 中での微細組織の形成機構についても調査を行った[1]。

2. 実験方法

Fe-15Mn-10Cr-8Ni-4Si 組成の厚さ 2 mm の供試材に対して、Stir in plate で FSW を行い、接合性について調査した。超硬合金製の接合ツールを用いて、ツールの移動速度を 300 mm/min に固定し、ツールの回転速度 300、500、700、900 rpm の 4 種類の接合条件で実験を行った。また、厚さ 11 mm の供試材においても Stir in plate で FSW を行い、接合性について調査した。PCBN 製のツール材料を用いて、ツールの移動速度 10 mm/min、ツールの回転速度 500 rpm の条件で実験を行った。一方、微細組織形成の調査については、FSW 中に液体 CO₂ を噴射して組織を凍結させる急速冷却 FSW 法、回転しているツールを瞬間的に引き抜く stop action 法、試験片の突き合わせ面に厚さ 0.2 mm のマーカー材料(純 Ni シート)を挿入して材料流動の経路を調べるマーカー挿入法を組み合わせて接合を行った。ツールの移動速度は 100 mm/min に固定し、ツールの回転速度を 400、600、900 rpm の 3 種類の条件で実験を行った。組織の観察位置は、試料の上表面から 0.5 mm の位置である。マーカー材料の分布(図 1(a)の-8 から 5)に沿って、FE-SEM/EBSD による組織観察、結晶方位分布などの評価を行った。接合温度は、板の裏面に K 熱電対を設置して測定した。

3. 実験結果及び考察

板厚 2mm の場合、ツールの移動速度 300 mm/min、ツールの回転数 300 rpm の条件では、入熱不足によるトンネル状の欠陥が形成されたが、ツールの回転数 500 rpm 以上の条件では欠陥のない健全な継手を作製することが出来た。次に、組織形成の調査のために作製した試料(ツールの移動速度 100 mm/min、回転速度 400 rpm の条件)の水平面のマクロ写真を図 1(a)に示す。この条件では、接合中の最高温度は、融点(1350 度)の 50% である。マーカー材料は、キーホール回りに連続的に分布しており、攪拌部に入るキーホール前方においてマーカー材料は大きく変形した。これは、他の FCC 金属(Al、銅、銀)と同様の傾向であった。また、マーカー材料が大きく変形した位置での IPF および粒界マップを図 1(b-g)に示す。マーカー材料の変形初期では、オーステナイト相の結晶粒は塑性変形を受けており、粒界近傍で低角粒界の割合が高いことが分かる($x=3.5$)。さらに変形が進むと、元の粒界に沿って微細な結晶粒が多数分布($x=3.0$)していた。これは粒界バルジング(粒界の張り出し)や高転位密度領域からの直接的な核生成により形成された再結晶粒であり、微細化が進行した($x=2.0$)。つまり、銀や黄銅など積層欠陥エネルギーの低い材料の FSW で一般的に観察される不連続動的再

結晶によって、結晶粒の微細化が起きていることが明らかとなった。x=-2 以降は、焼鈍双晶の形成と粒成長が動的にバランスし、ほぼ結晶粒径は変化しなかった。また、微細組織に及ぼす接合温度の影響については、接合温度が上昇(接合中の最高温度が融点の 55%)すると、不連続動的再結晶の頻度が低下した。また焼鈍双晶の割合が高くなるが、粒成長の寄与が大きいいため、結晶粒径は増加した。また、集合組織は、不連続動的再結晶の頻度が低下した結果、45° 回転立方集合組織の成分が低下し、 B/\bar{B} $\{112\}\langle 110\rangle$ のせん断集合組織の寄与が大きくなった。

板厚 11 mm の場合、トンネル状や溝状欠陥などのマクロな欠陥は観察されなかった。ただし、攪拌部において 1-2 μm の大きさの欠陥が観察され、その内部に微小な粒子が観察された。EDS 分析を行った結果、B と N が分布しており、BN 粒子であることが分かった。つまり、FSW 中に PCBN 製ツールが摩耗し、その摩耗粉である BN 粒子が分散することにより、微小な欠陥が形成されたと考えられる。今後は、ツール摩耗をできるだけ生じない接合条件の探索を行う必要がある。

4. 結論

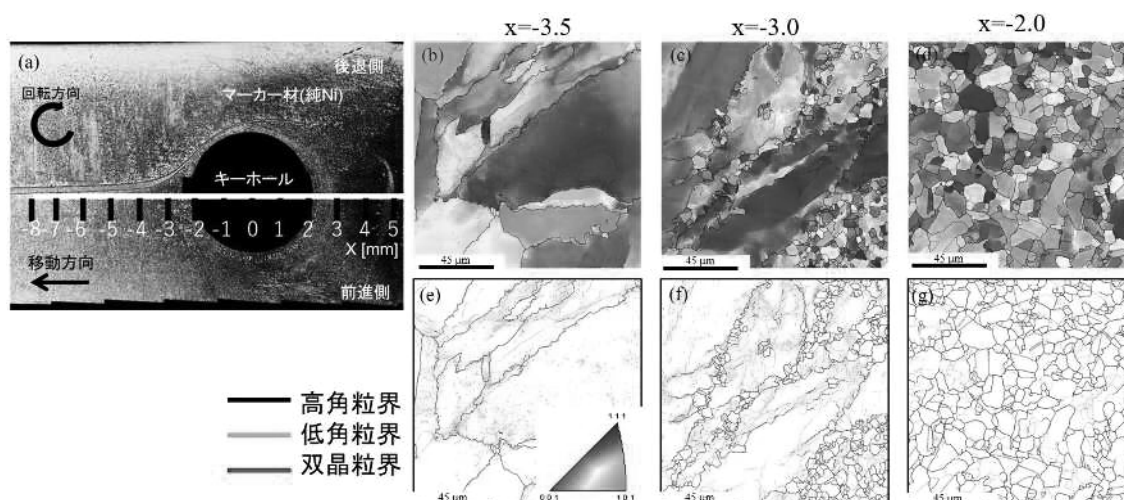


図 1 (a)水平面のマクロ写真、x=-3.5、-3.0、-2.0 での(b-d)IPF マップ(e-g)粒界マップ

高 Mn 系制振ダンパー合金において FSW による接手の作製を行った。また、stop action 法とマーカー挿入法を組み合わせた急速冷却 FSW を用いて微細組織形成機構の解明を行い、以下の結論を得た。

- (1) 板厚 11 mm までは、マクロな欠陥のない健全な接手の作製が出来た。ただし、板厚 11 mm の継手の攪拌部において、1-2 μm の大きさの PCBN ツールの摩耗粉が分散していた。
- (2) マーカー材料が大きく変形するツールの近傍の領域において、結晶粒の微細化が起こった。これは、転位密度差を駆動力とする粒界バルジングと高転位密度領域からの直接的な核生成による不連続動的再結晶に起因する。積層欠陥エネルギーが同程度の黄銅や Ag と類似した組織形成を示した。
- (3) 接合温度が上昇すると、焼鈍双晶の割合が増加するが、粒成長の寄与が大きいため粗大化した。また、不連続動的再結晶の頻度が低下し、 B/\bar{B} $\{112\}\langle 110\rangle$ のせん断集合組織の寄与が大きくなった。

参考文献

- [1] 柳樂知也、Ilya Nikulin、中村 照美、澤口 孝宏、森貞 好昭、森 正和、藤井 英俊、“制振ダンパー用 Fe-Mn-Si 系合金の摩擦攪拌接合”、日本鉄鋼協会春季(第 183 回)講演大会シンポジウム、2022 年 3 月 15 日-17 日。

(共同研究分野：接合界面機構学分野)

アルミニウム合金 A6061/A2024 の摩擦攪拌接合

阿南工業高等専門学校 創造技術工学科

西本 浩司, 西野 精一

接合機構研究部門 接合界面機構学分野

藤井 英俊

1. 研究目的

摩擦攪拌接合は、ツールと呼ばれる工具を高速で回転させながら接合材と接触させ、ツールと接合材の間で発生する摩擦熱を利用して接合する方法である¹⁾。最高到達温度が融点に達せず、固相接合であり溶融や凝固を伴わないため、継手の変形や欠陥が少なく、接合部の強度低下が従来の溶接法に比べ小さいのが特徴である²⁾。

異種アルミニウム合金の接合条件はこれまでの著者らの研究により、A2024 と A6061 の接合において A2024 より軟らかい A6061 をツールの回転方向と接合方向が逆となる後退側に配置することで、より良好な接合材が得られることが明らかになっている³⁾が、A6061 を全身側に配置した接合における接合部の攪拌状態については検討していない。

そこで本研究では、A2024 と A6061 アルミニウム合金の異種接合材に対し摩擦かくはん接合を実施し、接合部の硬さ、組成分布および結晶粒径について検討することを目的とする。

2. 実験方法

供試材料として、板厚2 mm、幅50 mm、長さ300 mmのA2024-T3及びA6061-T6を使用した。T3は溶体化処理後、冷間加工を行い、さらに自然時効させた材料であることを示しており、T6は溶体化処理後積極的に冷間加工を行わず、人工時効効果処理(433 K, 24 時間)したものであることを示す。引張強度はA2024が460 MPaで、A6061が287 MPaである。主となる化学成分はA2024がAl-Mg-Cu系合金であり、A6061がAl-Mg-Si系合金である。

接合はFSW加工機を用いて行った。接合は、供試材料の長辺を突き合わせて配置した後、冶具で固定した。ツール材料は工具用合金鋼SKD61であり、ツール寸法は、シオルダ径を12 mm、プローブ部をM4 右ネジとし、プローブ部長さは1.9 mmである。ツールのシオルダ部は10°の傾斜を持たせ、わずかに凹面となるよう加工した。実験では、接合部の表面に対しツールの前進角を3°とし、反時計方向に回転しながら実施した。なお、ツールの回転方向と接合方向が同一となる側を前進側(Advancing side: AS)、逆になる側を後退側(Retreating side: RS)と呼ぶ。接合の組合せとして、AS側に6061をRS側に2024を配置した異種接合材(以下、6061/2024)とした。接合条件は、ツール回転数 $n=1000\sim 2200$ rpmとし、ツール送り速度 $v=200\sim 1600$ mm/minと変化させて実験を行った。

接合された継手のビッカース硬さ分布の測定を行うとともに、接合部の元素分布や結晶粒径との関係を検討するため、エネルギー分散型X線分析(EDX)により接合部の元素分布について調査し、元素分布から攪拌状態について検討を行った。また、後方散乱電子回折(EBSD)により、接合部における結晶粒の大きさや形状の観察を行った。

3. 実験結果および考察

図1に各種接合条件における軟化幅と送り速度および回転数の関係をまとめて示す。いずれの回転数においても、送り速度の増加に従い軟化幅が狭くなっている。送り速度が速くなるほど、単位時間当たりの入熱が低下するため軟化幅は低下したものと推察される。一方、送り速度の増加に伴い入熱量は高くなるため、ツール接合域の外側まで軟化が生じていた。同じ送り速度でそれぞれの回転数を比較する

と、1000 rpmの場合に一番軟化幅が狭くなっていることがわかった。

図2に1000 rpm, 240 mm/minでの接合部断面SEM観察写真, EDX分析およびEBSD結果をまとめて示す。また, 図3に各接合部位置における接合条件と粒径の関係を示す。EDX分析結果から, RS側がAS側に流入していることがわかる。また, いずれの試験片においても断面下部における流入は顕著ではなかった。EBSD結果から, 粒径はツールのプローブが接触した中心部分である③~⑤で最も細粒化されていることがわかった。

4. 結言

接合条件によって軟化幅が変化し, 回転ピッチが高くなるほど軟化幅が狭くなることが明らかとなった。EDXによる観察の結果, 送り速度が高いほど, RS側のA2024に対するAS側のA6061の流入量が減少することが明らかとなった。EBSDによる観察の結果, ツールのプローブが接触した接合中心部では, 母材と比較して結晶粒が細かく, 母材部分には顕著な変化は見られなかった。また, 接合時のツールの送り速度が高いほど接合中心部分での結晶粒は細かくなっていることが明らかとなった。

参考文献

- 1) 藤井英俊：溶接接合教室 -基礎を学ぶ-, 溶接学会誌, 78-4 (2009), pp.274-282.
- 2) 納康弘, アルミニウムの接合, 軽金属, 59-1 (2009), pp.49-59.
- 3) 畑中信夫, 西本浩司, 西野精一, 森貞好昭, 藤井英俊異種アルミニウム合金の摩擦かくはん接合特性, 軽金属溶接 55-10 (2017), pp.4-6.

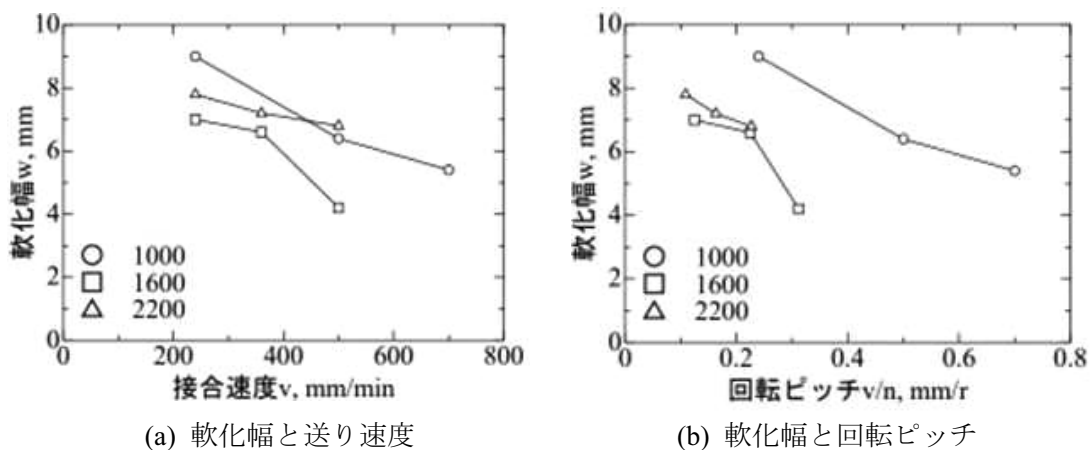


図1 各種接合条件と軟化幅の関係

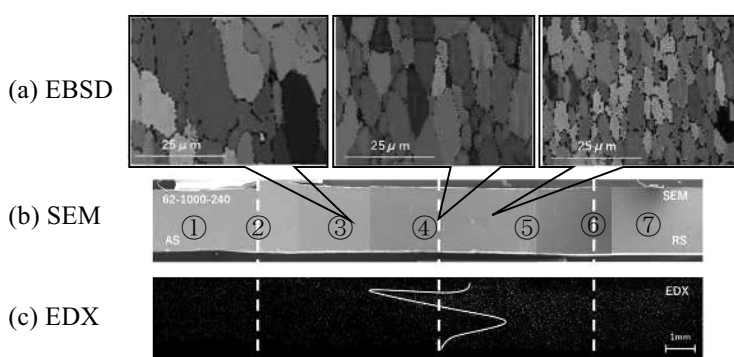


図2 SEM観察, EDX分析およびEBSD結果

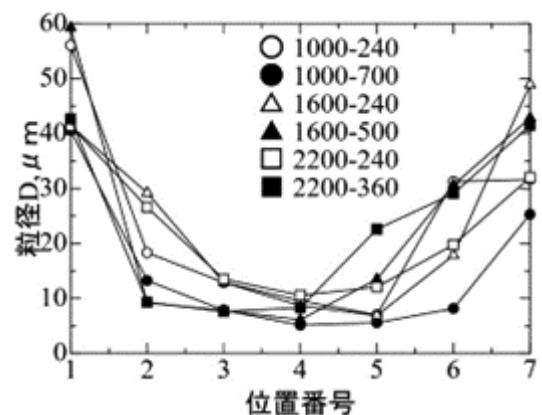


図3 接合部位置と粒径の関係

(共同研究分野：接合機構研究部門 接合界面機構学分野)

プリカーサ法によって作製したポーラス鉄の加熱時間、加熱温度が発泡へ及ぼす影響

群馬大学 大学院理工学府 知能機械創製部門
青木智史, 半谷禎彦

1. 目的

ポーラス金属は多数の気孔を有する金属で、衝撃吸収特性を有してそれらを必要とするところ、例えば自動車の車体などへの応用が期待されている。中でも今回は Fe に焦点を置いて発泡試験を行った。ポーラス Fe はポーラス Al と比較して、Fe 自体の融点が高いので耐熱性に優れ、さらに Fe はヤング率が高いので変形しにくく耐衝撃性に優れている。さらに Al と比較して原材料自体のコストが安い。しかし Al に対して Fe のポーラス化は研究が進んでいない。この背景には Fe の融点が高いことがある。これにより発泡までのプロセスに多くの時間とコストを費やす。これが研究・実用化への大きな壁となっているが、これを払拭することができればポーラス Al が使用できない環境への応用が可能になる。

本研究ではプリカーサ法を用いて Fe プリカーサを作製した後、炉を用いてプリカーサ全体を加熱させた。プリカーサ法は金属粉末と発泡剤および条件に応じて気孔形態安定剤を混ぜたのち粉末を焼結したプリカーサと呼ばれるものを作製する方法である。本研究では純 Fe 粉末と発泡剤として CrN 粉末および Cr₂N 粉末、添加剤として C 粉末を用いて各粉末を混ぜ、放電プラズマ焼結法で焼結しプリカーサを作製した。このとき炉での加熱温度および加熱時間を変化させ気孔率により発泡特性の評価を行った。

2. 研究方法

実験の一連の流れの概略図を図 1 に示す。本研究では発泡剤として、C 量 2.14-6.69 mass% における Fe の固相線温度 (1147°C) にガス発生開始温度が比較的近い CrN もしくは Cr₂N (Cr₂N のガス発生温度 1027-1293°C) を用いることとした。各粉末量は純 Fe 粉末 (粒径 10 μm) に発泡剤として CrN を 0.4 mass%, または Cr₂N を 0.8 mass%, そこに C (粒径 10 μm) を 3.5 mass% 添加し、プリカーサの寸法が φ20 mm, 厚さ 5 mm 程度になるようにした。そして図 1(a)のようにそれらの粉末を混合し図 1(b)のように型に混合粉末を入れた後、図 1(c)のように放電プラズマ焼結を行った。このときの焼結条件は混合粉末に関して 10 分もしくは 15 分で 750°C まで、その後 2 分で 800°C まで温度を上昇させたのち 800°C を 5 分間保持し、焼結中は常に 80 MPa の荷重を負荷した。焼結後図 1(d)のように炉を用いてプリカーサの加熱を行った。このとき加熱時間を 10 分で固定し炉内温度を 1100-1400°C まで変化させ最も発泡する炉内温度を決定した後、最も発泡したときの炉内温度で次は加熱時間を 5-20 分まで変化させてそれぞれ加熱発泡を行った。加熱発泡後、アルキメデス法を用いて気孔率の算出を行った。

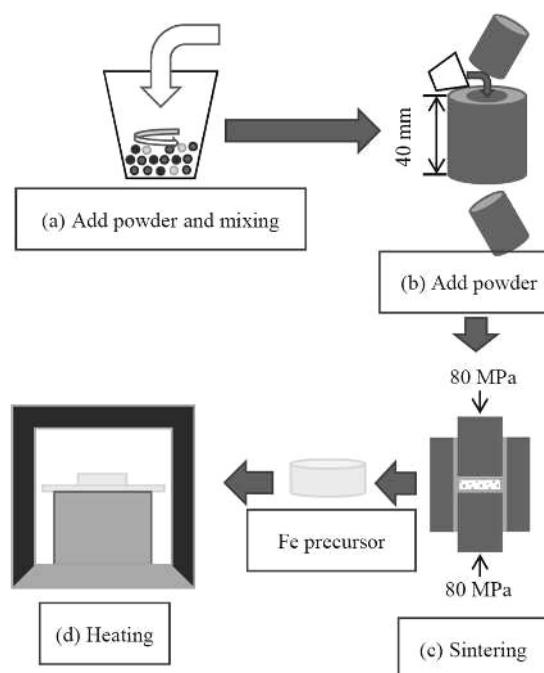


Fig.1 Schematic diagram of fabrication of porous Fe

3. 実験結果

図 2 に炉での加熱温度と気孔率の関係を示す。加熱時間はすべて 10 分で行った。結果から発泡剤なしのものは 1300°C で最も発泡し Cr₂N 添加のものは 1250°C, CrN 添加のものは 1200°C で最も発泡する結果となった。発泡剤なしのものから 1150°C

付近から発泡を開始しているのが Fe-C 系状態図より固液共存領域 (C 量 3.5 mass% の場合 1147~約 1250°C) で発泡を開始していることがわかる. そして最も発泡する条件での温度は液相線温度を超えていた. しかし発泡剤の入っているものは Fe-C 系状態図の液相線温度よりも低い温度で最も発泡しているのが発泡剤なしのものよりも液相線温度が低いことが考えられる.

図 3 に炉での加熱時間に対する気孔率の関係を示す. これはプリカーサの作製条件によって大きく変化し発泡剤なしのものは右肩上がり, Cr₂N 添加のものは右肩下がり, CrN 添加のものは全体的に気孔率が高い結果となった. これについて加熱時間超過により起こるのはガス抜けであり Cr₂N 添加のものはこれが起きたと考えられる. CrN 添加のものもガス抜けは起きたと考えられるが発泡剤として自身もガスを発生させていることから気孔率への影響は小さかった.

図 4 に本実験において最も発泡した条件の発泡後の画像を示す. 画像から全体的に発泡していることがわかる. 気孔についても形態を維持していることから加熱温度超過による融解, 加熱時間超過によるガス抜けは起きていないと考えられる.

4. 結言

本実験によって以下の結言を得た.

- Fe を加熱発泡させる際の加熱温度は 1200-1300°C が最も発泡し, 加熱時間は添加物によって気孔率の変化に差が見られた.

- Fe が発泡し始めるときの温度は発泡剤の有無にかかわらず約 1150°C であることが示唆される.

- 発泡剤を入れると最も発泡する温度は低いほうに移動し, 加熱時間は気孔率に大きく影響しない結果となった.

謝辞

本研究の一部は, 国立大学法人大阪大学接合科学研究所共同研究利用のもと, 藤井英俊教授のご指導により行われました. ここに記して感謝の意を表します.

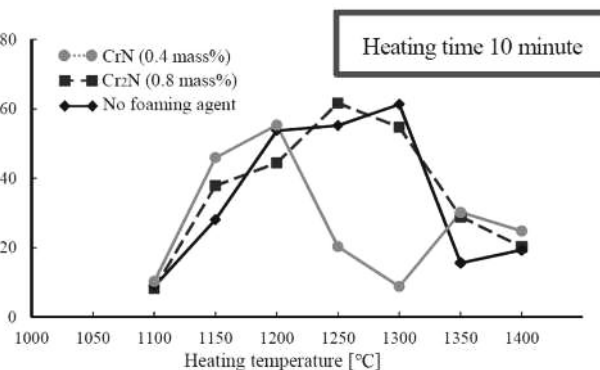


Fig.2 Porosity as a function of heating temperature in a furnace

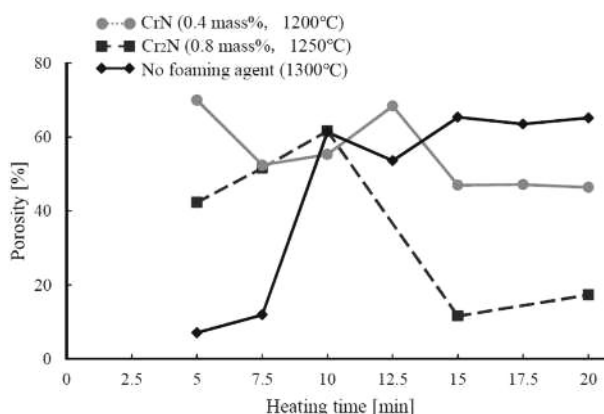


Fig.3 Relationship of porosity to heating time in furnace

Each condition	CrN (0.4 mass%)	Cr ₂ N (0.8 mass%)	No foaming agent
Heating temperature	1200[°C]	1250[°C]	1300[°C]
Heating time	5 [min]	10 [min]	15 [min]
After foaming			
Porosity	70.00 [%]	61.61 [%]	65.35 [%]

10 mm

Fig.4 Image after foaming for the most foamed condition

(共同研究分野：接合界面機構学分野 藤井英俊教授)

加熱発泡直後のポーラスアルミニウムのベルトコンベアによる自動ローラー成形

群馬大学 大学院理工学府 知能機械創製部門

鈴木滉大, 半谷禎彦

1. 目的

ポーラスアルミニウムは内部に多数の気孔を持つ多孔質の性質を持つアルミニウムである。そのため低密度で軽量でありながら、衝撃吸収性や防音性、断熱性も高く、優れた性能をもつ材料である。このような性質を持つことから自動車部品に利用することで燃費の向上や衝撃安全性能の向上が期待されている。ポーラスアルミニウムを工業的に利用するためには、生産性の高い連続的な加工が求められる。そこで本研究では、ローラーを用いてロール成形することで、比較的容易に短時間でポーラスアルミニウムに形状付与することを目的とした。発泡直後にローラーを用いてロール成形することで気孔形態を維持したまま、形状付与できることが期待される。ローラー成形する方法として過去の実験では手でローラーを走査していたが、本研究では固定されたローラーにむけてポーラスアルミニウムをベルトコンベアで移動させて圧延成形した。また、より工業的な生産方法に近づけるため、4本のローラーを使って段階的に加工した。このようにして成形したポーラスアルミニウムの表面の形状の観察、成形時のポーラスアルミニウムの温度変化を観察した。さらに本研究では作製したポーラスアルミニウムの内部の気孔形態をX線CTによる非破壊観察によって確かめた。

2. 研究方法

まずポーラスアルミニウムの作製にはプリカーサ法を用いた。この製法はプリカーサを加熱することによって発泡させてポーラスアルミニウムを得る。本実験ではプリカーサを摩擦攪拌接合によって作製した。母材の金属板には安価で高生産性、高リサイクル性である Al-Si-Cu 系の ADC12 合金を用いた。発泡剤には水素化チタン (TiH_2)、気孔形態安定剤にはアルミナ (Al_2O_3) を用い、それらの散布量は攪拌領域質量に対してそれぞれ 1 mass%, 5 mass% とした。プリカーサの寸法はローラーで加工しやすいように 30 mm × 15 mm の長方形で厚さは 5 mm とした。加熱装置についてはハロゲンランプを使用した。ハロゲンランプによる光加熱は省スペースかつ非密閉空間でも利用でき、比較的短時間でポーラスアルミニウムを発泡させられることから、ローラーによって連続して成形するのに適している。加熱時は光源真下にプリカーサを置き、プリカーサ表面とハロゲンランプとの距離を 40 mm とし加熱を行なった。ハロゲンランプは3本使い、電源は1本あたりに対して電圧と電流を 180 V, 9 A (1620 W) とした。また、加熱時にはプリカーサ下面に直径 1 mm の穴を底から 3 mm の深さで明け、熱電対を挿入しプリカーサの温度変化をポーラスアルミニウムの発泡からローラー成形が終わるまで測定した。

加熱実験装置の概略図を Fig. 1 に示す。プリカーサを昇降機の上に乗せたセラミックハニカムの中心に設置したあと、ハロゲンランプの真下にプリカーサを移動させ、ハロゲンランプを点灯させて加熱を始めた。プリカーサの温度が上昇すると固液共存状態になり、徐々にプリカーサが膨らみはじめ、液相線温度を超えると大きく発泡した。プリカーサが 630 °C になるまで加熱したら昇降機ごとベルトコンベアで動かし、ポーラスアルミニウムが 13 mm の厚さになるようローラーで成形した。

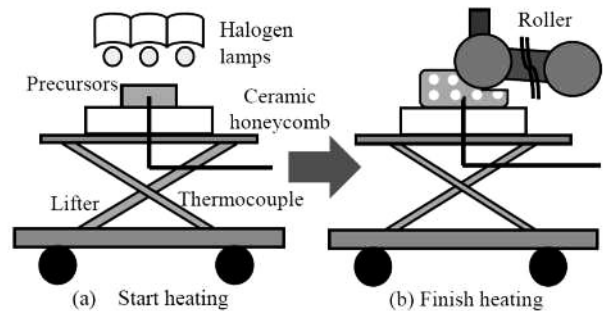


Fig. 1 Schematic diagram of experiment

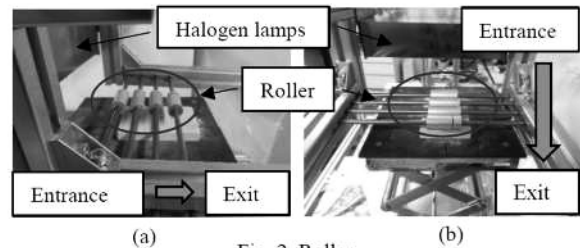


Fig. 2 Roller

この実験で使用したローラーを Fig. 2 に示す。(a)は実験装置に取り付けたローラーを横から見た図で、(b)は正面から見た図である。段階的な成形を行うため入り口から出口にかけて薄くなるように4本のアルミニウム製ローラーを斜めに設置した。ローラーの寸法は直径 17 mm で長さは 40 mm、一本目のローラーはポーラスアルミニウムが 17 mm、二本目は 15.75 mm、三本目は 14.25 mm、四本目は 13 mm の厚さになるよう設置した。また、ローラーの位置が変わらないようにローラーが連結しているフレームの端を押さえつけながらローラー成形した。ベルトコンベアはハロゲンランプの真下からローラーを完全に通り抜けるまで 60 mm/s で動かした。

3. 実験結果

ローラーを用いて形状付与している様子を Fig.3 に示す。(a)がローラー成形直前のポーラスアルミニウムで、(b)がローラー成形後のポーラスアルミニウムである。ポーラスアルミニウムがローラーに固着することなくスムーズにローラーを通過し、発泡した上部がローラーで押しつぶされて平らになっている。Fig.4 に本実験のローラーで形状付与されたポーラスアルミニウムの外観を斜め上からと真横から見た図と真横からの X線 CT 画像を示す。どの図も上面をローラーが通過している。表面の形状から平面が表れていることがわかる。X線 CT 画像を見ると内部に気孔形態が残っていると確認できる。よってベルトコンベアにより自動でポーラスアルミニウムの気孔形態を保ちつつ、ローラーで段階的に形状付与できることが分かった。

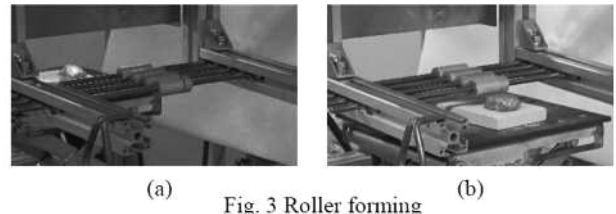


Fig. 3 Roller forming

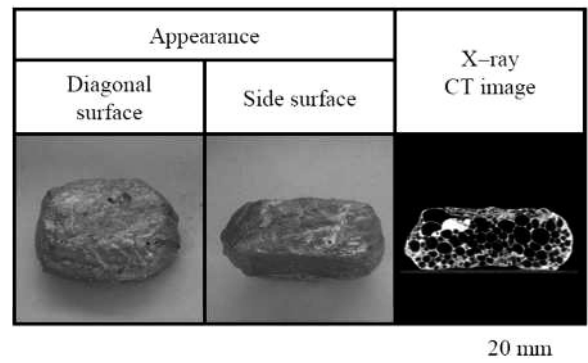


Fig. 4 Appearance and X-ray CT image

次に加熱開始からローラー成形終了までの温度変化を Fig. 5 に示す。630 °C に達した(a)の矢印で加熱を止めベルトコンベアを動かし、灰色の区間でローラーを通過し、(b)の矢印の時点でローラー成形を終了した。ローラーに接している間にポーラスアルミニウムが冷却されて液相線温度付近まで温度が低下したことが分かる。よって、ローラーでポーラスアルミニウムを冷却し、形状を安定させられたといえる。予備実験ではローラー5本で実験をしていたがローラーにポーラスアルミニウムが接する時間が長すぎてローラーを通過中に液相線温度を下回り、表面が凝固し、うまく加工できなかった。しかし、4本の場合は本実験のように平面に加工することができた。

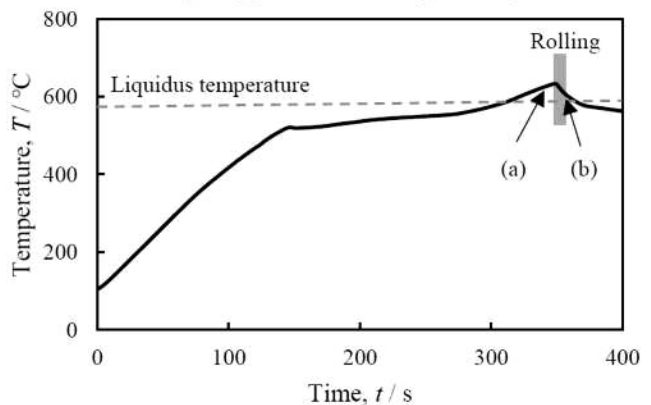


Fig. 5 Temperature history of precursor

謝辞

本研究の一部は、国立大学法人大阪大学接合科学研究所共同研究利用のもと、藤井英俊教授のご指導により行われました。ここに記して感謝の意を表します。

(共同研究分野：接合界面機構学分野 藤井英俊教授)

異種合金ポーラス Al のプレス加工と横方向の往復運動による接合

群馬大学 大学院理工学府 知能機械創製部門

永井孝直, 半谷禎彦

1. 目的

ポーラスアルミニウム(以下, ポーラス Al)は, 内部に多数の気孔を有する多孔質材料である. 内部に多数の気孔を有しているため, 軽量性・衝撃吸収性・吸音性・断熱性に優れている. それらの特徴から, 自動車などの構造部材への応用が期待されている. また, ポーラス Al の強度などの機械的特性は, 合金種や内部の気孔形態に依存している. したがって, ポーラス Al 母材内部で合金種や気孔形態を連続的に変化させることによって傾斜機能性を付与する事が可能である. このようなポーラス Al を傾斜機能ポーラス Al と呼ぶ. 過去の研究では, 傾斜機能ポーラス Al に圧縮試験を行ったところ, 比較的強度の低い合金側で破壊が始まり, 徐々に高強度部分に破壊が遷移していった. このように, ポーラス Al に傾斜機能性を付与させることによって, ポーラス Al の工業的利用の更なる拡大に期待できると考えられる. 本研究では, ADC12(Al-Si-Cu 系アルミニウム合金)と A1050(工業用純アルミニウム)を用いて傾斜機能ポーラス Al の作製を行った.

2. 研究方法

本研究では, ポーラス Al の前駆体であるプリカーサを加熱発泡し, 発泡直後にプレス加工と微振動(数 mm 程度)を加えることで ADC12 と A1050 のポーラス Al を接合することで, 傾斜機能ポーラス Al の作製を行った. 図 1 に示すように, ADC12, A1050 のそれぞれの板材から 15 mm×20 mm のサイズでプリカーサを作製した. ADC12 から作製したプリカーサの外観を図 1 に示す. このように作製したそれぞれのプリカーサを図 2 のように配置し, 図 3(a)のような光加熱装置で加熱し, 発泡させた. 発泡直後, 図 3(b)および図 3(c)のようにプレス加工を行い, 微振動を加える事によって接合を試みた.

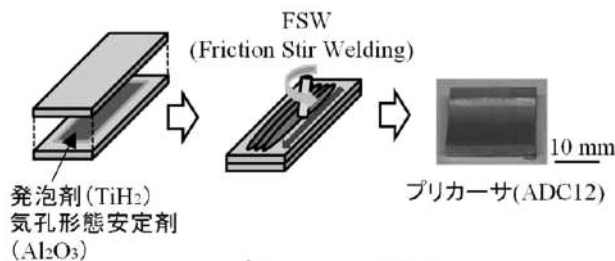


図 1 プリカーサの作製手順

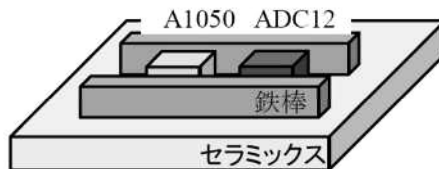


図 2 光加熱実験の概略図

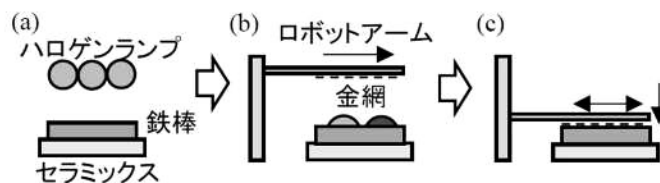


図 3 実験手順の概略図

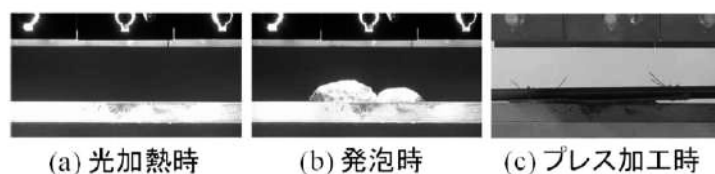


図 4 実験時の様子

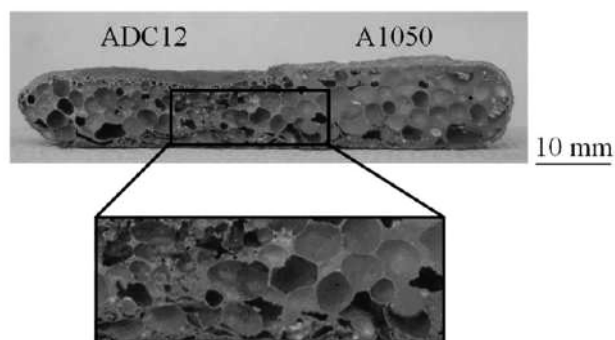


図 5 傾斜機能ポーラスAlの断面図

3. 実験結果

図 4 に、実験時の様子を示す。図 4(a)は光加熱開始時の様子で、図 4(b)はプリカーサが発泡している様子である。図 4(c)は光加熱終了後のプレス加工の様子である。

作製した傾斜機能ポーラス Al の断面図を図 5 に示す。この断面図からは、内部の気孔が潰れることなく形状を維持していることが確認でき、微振動による内部の気孔形態への影響は見られなかった。また、境界部付近の拡大図からは ADC12 と A1050 の境界は観察されず、境界部付近では ADC12 と A1050 が混在していると考えられる。今後、図 5 に示した断面において、EPMA(電子線マイクロアナライザ)を用いて Si 分布を定量分析することによって、Si 含有率の違いから、ADC12 と A1050 の分布を観察する。その結果から、境界部で異種合金がどのように混合しているのか観察し、微振動が、ADC12 と A1050 の接合に与える影響について調査したいと考えている。

また本実験では、人の手によって微振動を与えた。今後は、ロボットアームにプログラミングを用いて定量的に横方向の微振動を与えることによって、接合時にポーラス Al に与える微振動の定量化を行っていきたいと考えている。

4. 結言

発泡直後にプレス加工を行い、微振動を加えることで、傾斜機能ポーラス Al が作製できることがわかった。

謝辞

本研究の一部は、国立大学法人大阪大学接合科学研究所共同研究利用のもと、藤井英俊教授のご指導により行われました。ここに記して感謝の意を表します。

(共同研究分野：接合界面機構学分野 藤井英俊教授)

ポーラスアルミニウムとポリカーボネートのプレス加工を用いた接合

群馬大学 大学院理工学府 知能機械創製部門
藤岡巧, 半谷禎彦

1. 目的

ポーラスアルミニウム (AI) とは、アルミニウムを発泡させることによって、材料内部に多数の気孔を持たせた多孔質材料である。そのため、軽量性、衝撃吸収性、断熱性、吸音性に優れている。このような特徴より、自動車の部材や構造物などに適応することで、燃費や安全性の向上が期待されている。近年、合成樹脂は高い強度や絶縁性、耐腐食性を有しながら、加工性、生産性ともに優れているため、幅広い製品に適用されている。本研究で用いるポリカーボネートは熱可塑性樹脂であるため、上記のような特徴と併せて、加熱すると軟化し、その後冷却すると再度硬化するといった性質を持っている。

そこで、本研究ではポーラス AI とポリカーボネートを接合することを試みる。この2つの材料を接合することにより、衝撃吸収性を持たせつつ、強度の向上と軽量化の両立が図られる。ポーラス AI を加熱し、そこにポリカーボネートを押し付けることで、ポリカーボネートが軟化し、ポーラス AI の気孔部に侵入する。その後冷却を行うことでポーラス AI とポリカーボネートの接合が期待できる。また、接合の状態を評価するために、接合体に X 線 CT 撮像と引張試験を実施した。

2. 研究方法

最初に、ポーラス AI の前駆体となるプリカーサを作製した。このプリカーサを加熱することによって、ポーラス AI となる。プリカーサの母材には、Al-Si-Cu 系合金 ADC12、発泡剤として TiH_2 粉末 (粒径 $45 \mu m$ 以下)、気孔安定剤として Al_2O_3 (粒径約 $1 \mu m$) を用いた。ADC12 に対して TiH_2 を 1 mass%、 Al_2O_3 を 5 mass% 添加し、摩擦攪拌接合法 (Friction Stir Welding, FSW) により混合し、切り出してプリカーサとした (図 1)。

図 2 にポーラス AI の発泡の概略図を示す。最初に切り出したプリカーサをハロゲンランプで光加熱を行い発泡させた (図 2 (a), (b))。そしてハロゲンランプ消灯後、上下に設定した距離だけ可動するロボットアームの先端に離型剤を塗布したアルミニウム板を設置し (図 2 (c))、厚さ約 10 mm になるようにプレス加工を行った (図 2 (d))。プレス加工を行う理由として、表面を平面にすることで、次工程でのフライス加工を容易にし、接合面を大きくするためである。また、プレス加工で内部の気孔が変形しないことは、過去の研究より明らかになっている。

図 3 にポーラス AI とポリカーボネートの接合過程の概略図を示す。作製したポーラス AI の表面を約 2 mm フライス加工で切削し、気孔を露出させた (図 3 (a))。続いて、再びハロゲンランプを用いてポーラス AI を加熱した (図 3 (b))。このとき、ポーラス AI を昇降機の上に設置し、下側に熱電対を挿入して温度の計測を行った。今回の研究では接合温度を $200 \text{ }^\circ\text{C}$ 、 $300 \text{ }^\circ\text{C}$ 及び $400 \text{ }^\circ\text{C}$ の条件で行ったので、条件の温度より温度が高くなった時点でハロゲンランプを消灯し、加熱を終了した。そして、昇降機を移動させて実験装置に固定したポリカーボネートの下にポーラス AI を設置した (図 3 (c))。条件の温度まで温度が低下した後、昇降機を上昇させて、実験装置に設置したポリカーボネートにポーラス AI を接触させ、2 mm 押し込み、空冷することで接合を行った (図 3 (d))。

また、X 線 CT 撮像と引張試験により、接合の強度やメカニズムの調査を行った。

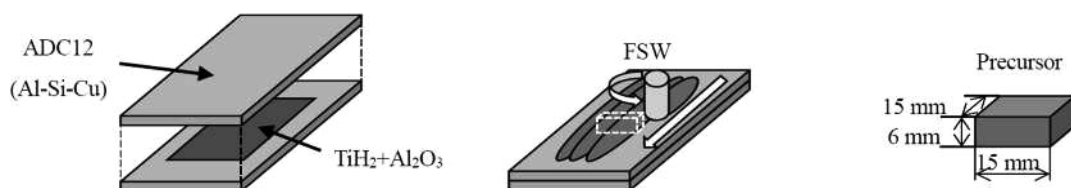


Fig. 1 Schematic illustration of fabricating precursor

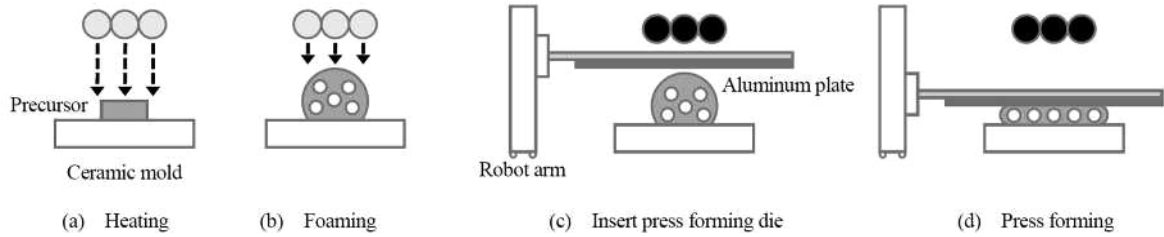


Fig. 2 Schematic illustration of foaming and press forming

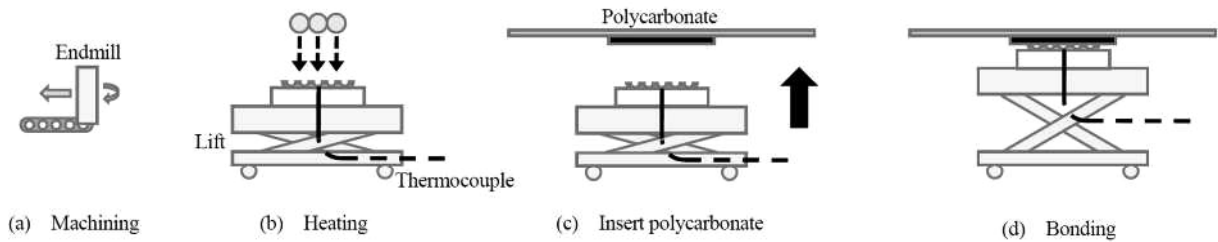


Fig. 3 Schematic illustration of bonding

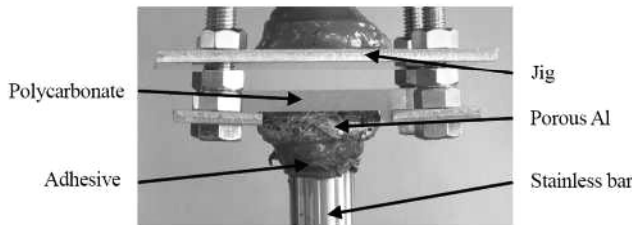


Fig. 4 Tensile test

	400 °C	300 °C	200 °C
Appearance			
X-ray CT image			
Load (kN)	(1.57)	0.56	0.02

Fig. 5 Joining result

3. 実験結果

接合を行うと、ポリカーボネートがポーラス Al に接触した後に、熱によって樹脂の接触面が軟化し、ポーラス Al の気孔部に侵入していることが観察できた。その後空冷すると、ポリカーボネートが硬化し、ポーラス Al とポリカーボネートが接合されることが確認できた。

接合強度を調査するために引張試験を行った。引張試験は、電気炉で 120 °C で 1 時間保温後、24 時間の空冷により接着が可能な構造用接着剤でステンレス棒を接合体のポーラス Al 側に接着し、図 4 のように行った。引張試験の結果を図 5 にまとめた引張試験の荷重については、接合体の固定に用いた接着剤の強度を超えた接合強度が得られ、荷重の測定ができなかったものがあったため、参考値として括弧で示す。この図から 200 °C 及び 300 °C では外観からも X 線 CT 画像からも、ポリカーボネートの気孔部への侵入が少なく、強度も小さいことから、接合時の温度としては不適であるといえる。400 °C においては外観からポリカーボネートが塑性流動した様子が確認できる。X 線 CT 画像ではポーラス Al の気孔部にポリカーボネートが侵入している様子よりアンカー効果が見込め、それにより高い強度が得られたため接合条件としては適しているといえる。

謝辞

本研究の一部は、国立大学法人大阪大学接合科学研究所共同研究利用のもと、藤井英俊教授のご指導により行われました。ここに記して感謝の意を表します。

(共同研究分野：接合界面機構学分野 藤井英俊教授)

炭酸カルシウムを用いた鉄とアルミニウム接合部のポーラス化による分離

群馬大学 大学院理工学府 知能機械創製部門

増田敦哉, 半谷禎彦

1. 目的

ポーラスアルミニウムは、アルミニウムに発泡剤や増粘剤を添加したプリカーサと呼ばれるポーラス材料の前駆体を加熱・発泡することで作製され、内部に多数の気孔を有する軽量で衝撃吸収性に優れた材料である。一方で、ポーラス材料は母材に比べて強度が低いという問題がある。そこで、著者らは異種金属の接合の際に接合部に発泡剤を添加し、その後の廃棄時に接合部を加熱・ポーラス化することで接合部を低強度化し、容易に分離できるか試みている。過去の研究では工業用純アルミニウム A1050 と一般構造用圧延鋼材 SS400 の摩擦攪拌接合 (Friction Stir Welding, FSW) による突き合わせ接合と同時に摩擦攪拌接合の強力な攪拌力を用いて、発泡剤である水素化チタンと増粘剤であるアルミナ粉末を接合部に混合しプリカーサを作製した。この試料を光加熱によりプリカーサ部の発泡を行った。この試料に対して 4 点曲げ試験を実施したところ、最大曲げ荷重や試料を破断させるのに必要なエネルギー量は、発泡剤を添加せず光加熱をした試料や光加熱を行わない試料の 30%~50%程度であり、接合部のポーラス化による分離の有効性が示唆された。しかし、発泡剤に用いた水素化チタンは可燃性固体のため運輸機器などへの使用は好ましくない。そこで、本研究では発泡剤として入手しやすく安価で不燃性である炭酸カルシウムを用いて同様に実験を行い、接合部のポーラス化による分離の有効性を検討した。

2. 研究方法

本研究では摩擦攪拌法により接合および接合部におけるプリカーサの作製を行った。Fig.1 (a), (b)に FSW の概略図および試料の採取位置を示す。母材には A1050 板材(幅 80 mm × 長さ 210 mm × 厚さ 3 mm) と SS400 板材(幅 80 mm × 長さ 210 mm × 厚さ 5 mm), 発泡剤には炭酸カルシウム粉末 (CaCO_3 , 2 mass%), 増粘剤にはアルミナ粉末 (Al_2O_3 , 5 mass%) を用いた。2 枚の A1050 の間に接合面に沿って縦 170 mm × 横 10 mm の領域に粉末を散布し SS400 と突き合わせ、大気中で FSW を行った。FSW 条件はツール回転数 2200 rpm, ツール送り速度 100 mm/min, 前進角 3° とした。ツール走査は、ツールのプローブ側面が接合界面から SS400 に 1 mm 入るように走査を行い、次に A1050 側にプローブ径 5 mm ずらして同様に走査を行った。その後、1 列目に戻り同様に 2 列走査を行った。すなわち、各列に対して 2 回走査を行った。その後、バリを除去した後にワイヤー放電加工機を用いて接合部が長手方向の中心になるように幅 20 mm × 長さ 160 mm × 厚さ 5 mm の短冊形の試料を採取した。また、比較のため発泡剤や増粘剤を添加しない試料も同様に作製した。次に、採取した短冊状の試料の接合部の加熱・ポーラス化を、ハロゲンランプを用いた光加熱により行った。この際、試料表面とハロゲンランプの距離は 35 mm, ハロゲンランプは 3 本用いてランプ出力は 1 本あたり 1620 W (電流 9 A, 電圧 180 V) とした。加熱は A1050 の表面が溶融した時点で終了した。以後、発泡剤を添加して加熱した試料を Sample1, 発泡剤を添加せず加熱した試料を Sample2 と称する。Sample1, 2 は再現性を確認するため、それぞれ 3 つずつ作製した。さらに、本研究では粉末を添加し加熱を行わない試料も作製した。以後、この試料を Sample3 と称する。

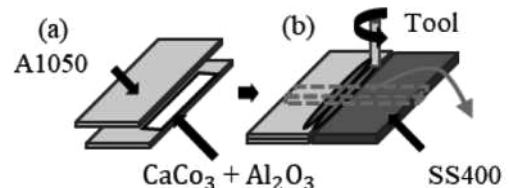


Fig.1 Schematic illustration of friction stir welding.

3. 実験結果

Fig.2 (a)に Sample1 の 4 点曲げ試験の様子を示す。き裂が接合面付近で発生していることが確認できる。Sample2 も同様の破断形態であり、Sample3 は破断せず、くの字にたわむのみだった。Fig.2 (b)に破断面の BSE 画像を示す。Sample2 は接合部に金属間化合物層が生成されていることが確認できる。そのため、接合部の強度が低下し、Sample1 と同様に破断したと考えられる。Fig.2

(c)に4点曲げ試験によって得られた荷重-変位曲線、Fig.2 (d)に試料を破断させるのに必要なエネルギー量のグラフを示す。Fig.2 (c)の Sample1, 2 は最大曲げ荷重が中間の値のものを代表して記載し、Fig.2 (d)の Sample1, 2 は3つの試料の平均値を記載した。加熱をした Sample1,2 ともに加熱をしていない Sample3 と比較すると最大曲げ荷重および破断させるのに必要なエネルギー量は減少したが、Sample1 と Sample2 では最大曲げ荷重および試料を破断させるのに必要なエネルギーに差は生じなかった。Fig.3 (a)に断面X線CT画像を示す。X線CT画像から、プリカーサ部で気孔が生成されていることが確認できる。Fig.3 (b)に Sample1 のポラス部周辺の気孔率のグラフを示す。発泡領域外でも気孔率が0~10%となっているが、これは2枚のA1050を重ねてFSWを行った際に生じた空洞によるものである。発泡領域では気孔率が上昇していることが確認できるが、水素化チタンを用いた場合の気孔率が最大70%程度であったのに対して炭酸カルシウムを用いた本研究では最大25%程度であった。A1050の融点が約650°C、水素化チタンの熱分解温度が約450°Cであるのに対して、炭酸カルシウムの熱分解温度が約900°Cであることから、A1050の融点付近でのガス発生量が少なく、気孔率が低い値となったことが考えられる。そのため、ポーラス化に伴う接合部周辺の強度の低下や体積の増大による接合部への応力集中が過去の研究よりも小さく、破断に大きな影響を与えなかったと考えられる。

4. 結言

発泡剤に炭酸カルシウムを用いて接合部をポーラス化した試料は、加熱しない試料よりも最大曲げ荷重や試料を破断させるのに必要なエネルギー量は減少した。しかし、発泡剤を添加せず加熱した試料との間に差は生じなかった。

謝辞

本研究の一部は、国立大学法人大阪大学接合科学研究所共同研究利用のもと、藤井英俊教授のご指導により行われました。ここに記して感謝の意を表します。

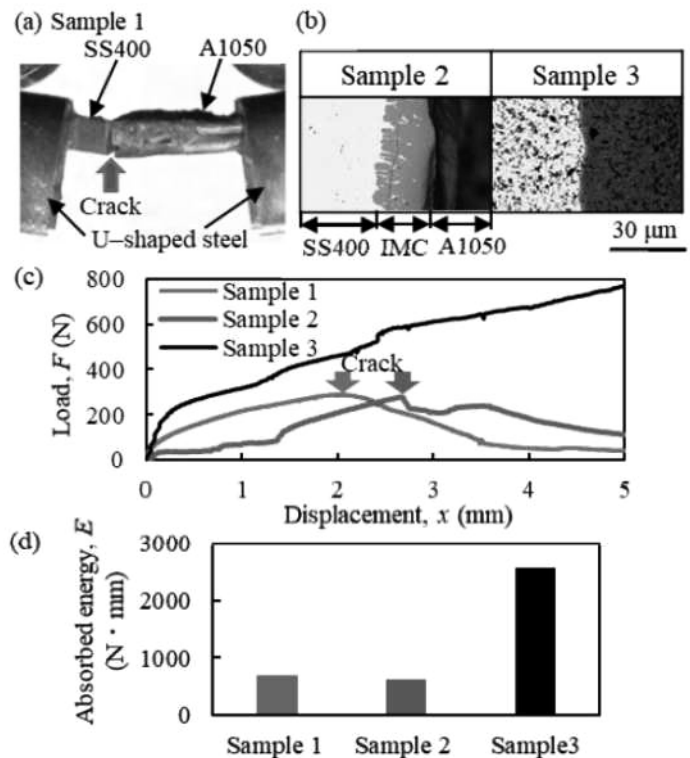


Fig.2 (a) 4 point bending test, (b) BSE images of fractured surface, (c) load-displacement curves, (d) absorbed energy.

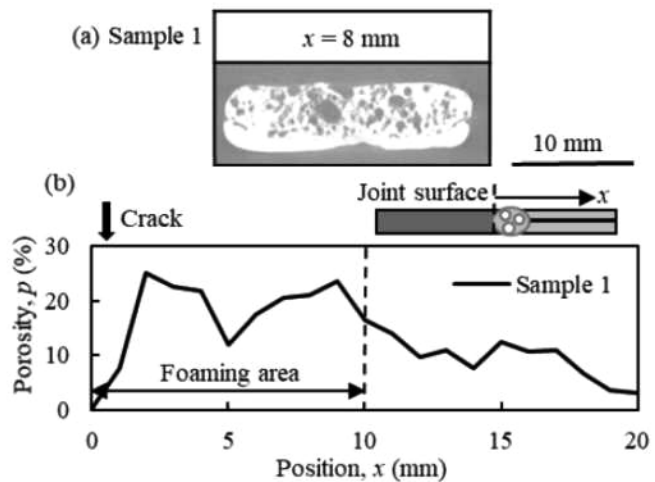


Fig.3 (a) X-ray image, (b) porosity distribution.

(共同研究分野：接合界面機構学分野 藤井英俊教授)

摩擦圧接時の回転数と接合時間がポーラス Al/熱可塑性樹脂の接合強度に及ぼす影響

群馬大学 大学院理工学府 知能機械創製部門
松島慶幸, 半谷禎彦

1. 目的

低比重で高衝撃吸収性, 高断熱性および高遮音性などの多くの優れた機械的特性を有するポーラスアルミニウム(以下ポーラス Al)は多気孔な金属であり, 自動車を含む輸送機器, 工場や高速道路の遮音壁など, 様々な用途に用いられることが期待されている. しかし単体での使用が難しく, 複合素材の作製方法の研究が求められている. 異種素材と接合し工業製品に対する応用性を向上させることで, ポーラス Al の普及に加え, 工業製品の軽量化や運転コスト削減, および環境負荷低減を図ることが可能である. 接合材料が熱可塑性樹脂であれば, 樹脂表面を加熱・軟化させることでポーラス Al の開気孔部に樹脂が侵入しアンカー効果による強固な接合が可能である. 本研究では, スペーサー法により作製したポーラス Al とアクリル樹脂板を摩擦圧接法により接合した. 摩擦圧接時の回転数および接合時間をパラメータとし, 各々を段階的に変化させ接合した試験片の引張試験を行うことで, 回転数および接合時間がポーラス Al/熱可塑性樹脂の接合強度に及ぼす影響について調査した.

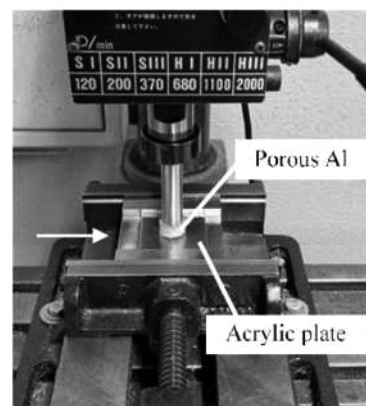
2. 研究方法

Fig. 1 にスペーサー法により作製したポーラス Al の外観写真を示す. 母材となる粒径 $20\ \mu\text{m}$ の Al 粉末とスペーサーとなる粒径 $355\text{--}425\ \mu\text{m}$ の塩化ナトリウム粉末を 3:7 の割合で混合, 攪拌し, SPS(Spark Plasma Sintering)を用いて焼結した後, 除塩することで気孔率 $p = 70\%$, 直径 $20\ \text{mm}$, 高さ $10\ \text{mm}$ のポーラス Al を作製した.

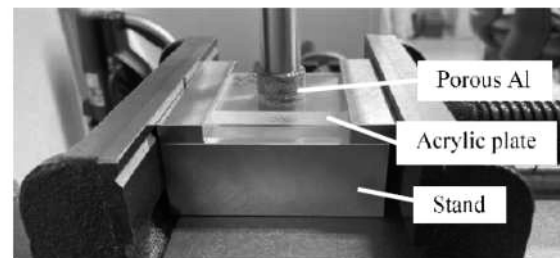
Fig. 2(a)に摩擦圧接の全体写真および側面写真を示す. 作製したポーラス Al を外径 $16\ \text{mm}$, 長さ $100\ \text{mm}$ のステンレス丸棒の先端に接着することで摩擦圧接の試験片とした. 作製した試験片をフライス盤ワーク固定部に装着し, $50\ \text{mm} \times 50\ \text{mm} \times 5\ \text{mm}$ のアクリル樹脂板を治具を用いて万力に固定した. 試験片を任意の回転数で回転させ, ポーラス Al とアクリル樹脂板が接触すると同時に時間計測を開始した. 計測開始と同時に任意の接合時間をかけてポー



Fig. 1 Porous Al.



(a) Overview



(b) Left side view

Fig. 2 Setup of friction welding.

Table 1 Test conditions for friction welding.

Rotation speed [rpm]	680, 1100, 2000
Welding time [s]	10, 15, 20, 25, 30, 35, 40, 50, 60

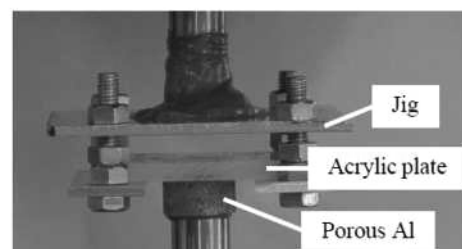


Fig. 3 Tensile test.

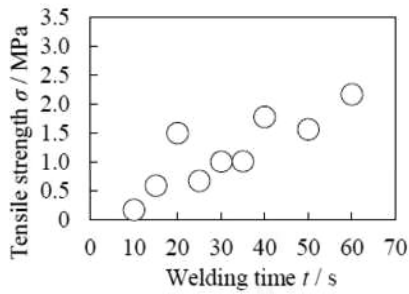


Fig. 4 Tensile strength at 680 rpm.

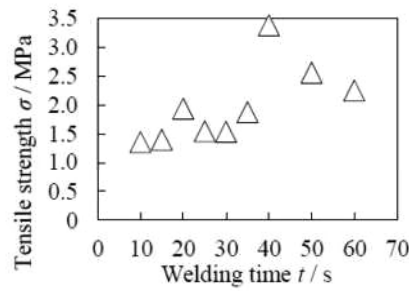


Fig. 5 Tensile strength at 1100 rpm.

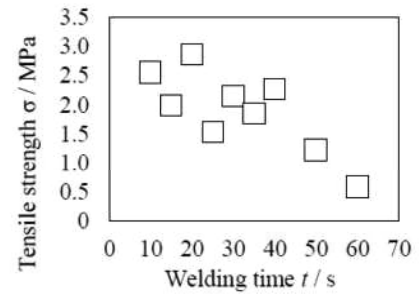


Fig. 6 Tensile strength at 2000

ラス Al を 0.5 mm 押し込んだ後、回転を停止し接合完了とした。Table 1 に摩擦圧接の接合条件を示す。

Fig. 3 に引張試験時の構成を示す。引張試験時のクロスヘッドスピードは 1 mm/min とした。

3. 実験結果

Fig. 4, Fig. 5, Fig. 6 にそれぞれ 680, 1100, 2000 rpm における接合時間と引張強度の関係を示す。それぞれの図において、縦軸は引張強さ[MPa]、横軸は接合時間[s]を示している。本研究で注目しているアンカー効果による高い接合強度を得るためには、接合素材の一部がポーラス Al 表面の開気孔により多く侵入することが求められる。

Fig. 4 より、680 rpm で接合した試験片では摩擦熱の発生が少なく、アクリル樹脂の軟化が遅くなったことにより長い接合時間を必要とすることがわかった。また、60 s で最大 2.17 MPa の引張強度を示し、更に接合時間を延長することでより高い引張強度を得られる可能性がある。

Fig. 5 より、1100 rpm では接合時間 40 s において 680 rpm の試験片よりも高い最大 3.37 MPa の引張強度を得た。回転数が高いほど摩擦熱の発生量が多くなり、アクリル樹脂板表面の軟化が早くなるため、680 rpm よりも短時間で高い接合強度を得ることができたと考えられる。

Fig. 6 より、2000 rpm では 1100 rpm の接合時間の 1/2 の 20 s で最大引張強さ 2.87 MPa を示した。これは 1100 rpm に比べて回転数が高いため、より大きな摩擦熱が発生したことで樹脂の軟化が早まり、引張強度が最大となる接合時間が短縮されたと考えられる。しかし、20 s を境界として長時間側では引張強度低下の傾向があることがわかった。

4. 結言

ポーラス Al とアクリル樹脂板の摩擦圧接および引張試験を行った。その引張試験の結果から以下の結言を得た。

- ・ 摩擦圧接により気孔率 $p = 70\%$ のポーラス Al とアクリル樹脂板の接合は可能であり、その接合強度は接合時間と回転数に影響される。
- ・ 回転数 680 rpm の条件では、今回設定した接合時間の範囲では接合時間が長いほど接合強度が高くなった。より強固に接合するためには、更に長時間の接合が必要と考えられる。
- ・ 1100, 2000 rpm と回転数を高くすることで接合にかかる時間を短縮できる。しかし 1100 rpm では 40 s, 2000 rpm では 20 s を超えると接合面に気体やアクリル樹脂の板厚の減少が生じ、引張強度が低下した。

謝辞

本研究の一部は、国立大学法人大阪大学接合科学研究所共同研究利用のもと、藤井英俊教授のご指導により行われました。ここに記して感謝の意を表します。

(共同研究分野：接合界面機構学分野 藤井英俊教授)

摩擦攪拌接合を利用したアルミニウム合金粉末によるプリカーサ作製とその発泡

群馬大学 大学院理工学府 知能機械創製部門

諸橋寛海, 半谷禎彦

1. 目的

ポーラスアルミニウム（ポーラス Al）は、多数の気孔を含んでおり、水にも浮くような軽量性を有し衝撃吸収性にも優れていることから、自動車の構造材料などへの利用が期待されている。また近年、自動車用部材などの接合に摩擦攪拌接合(Friction Stir Welding: FSW)が用いられるようになってきている。ポーラス Al 作製法の 1 つである摩擦攪拌法は、FSW により発泡剤を均一に攪拌してプリカーサを作製する方法である。作製したプリカーサを、電気炉などにより加熱し発泡させることでポーラス Al を作製する。しかし、この方法ではプリカーサを作製した後に、発泡させるという 2 つの工程が必要となる。そのため効率よくポーラス Al を作製することが出来れば、工業的利用拡大が期待される。そこで過去の研究では、まず Fig.1(a)のように 2 枚の Al 板材の間に発泡剤粉末をはさんだ積層板を鉄板の溝にはめ込み、次に Fig. 1(b)のように、上ツールによって FSW を行ってプリカーサを作製するとともに、同工程で下ツールを走査し発生した摩擦熱で発泡させる連続プロセスを可能とした。このプロセスにおいて Al 切削屑などの工業製品製造時の廃材をリサイクル Al チップとして Al 板材のかわりに利用することができれば、ポーラス Al の低コスト化が期待できる。そこで本研究では、フィージビリティスタディとして、Fig.1 の 2 枚の Al 板のうち下板の方を Al 粉末に変え、上ツールによりプリカーサが作製できるか試みた。そして、作製したプリカーサにおいて光加熱により発泡させポーラス Al を作製した。ポーラス Al の出発材として ADC12 (Al-Si-Cu 系) 合金粉末と ADC12 合金ダイカスト板材を使用し、作製したプリカーサは Al 粉末の固化や欠陥の有無を調べるため切断し断面を観察した。また、作製したポーラス Al を切断することで、気孔の有無や気孔形態の検討を行った。

2. 研究方法

SS400 鋼材に、フライス盤を用いて溝を加工した。その鉄板の溝に ADC12 粉末を入れ、その上に発泡剤としての TiH_2 と気孔形態安定剤としての Al_2O_3 の混合粉末を散布した。さらにその上から ADC12 板材を鉄板の溝にはめ込み FSW 装置に設置した。そして混合粉末の散布領域に対して FSW を行い、ADC12 粉末の固化と同時に、発泡剤や増粘剤を ADC12 内に混合し、プリカーサを作製した。FSW のツール走査条件は回転数 1000 rpm、前進角 3 度の一定とした。走査速度 v は 10, 20, 30, 40, 50 mm/min の 5 条件とし、走査回数 (pass 数) は 1 pass とした。

Fig.2(a)のように右から左にツール走査をした向きで、Fig.2(b)のように鉄板ごと作製したプリカーサをセラミックの上に置き、ハロゲンランプで加熱した。加熱の際の電力は、1 本当たり 1620 W (9 A × 180 V) とし 3 本用いた。この時、ハロゲンランプとプリカーサ上面との距離は

40 mm とし、また、K タイプのシーチップ熱電対を鉄板の溝側面（中央）から 2 mm の位置に穴をあけ挿入し発泡時の温度を計測した。さらに、熱の吸収を促すためプリカーサにブラックトナーを塗布した。Fig.2(c)のように、プリカーサが発泡し温度が 670°C になったところで、ハロゲンランプを消灯した。これは ADC12 の液相線温度が 580°C であるプリカーサが発泡し、温度が 670°C

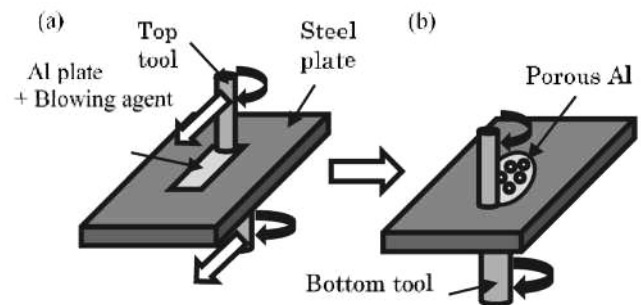


Fig.1 Schematic diagram of FSW

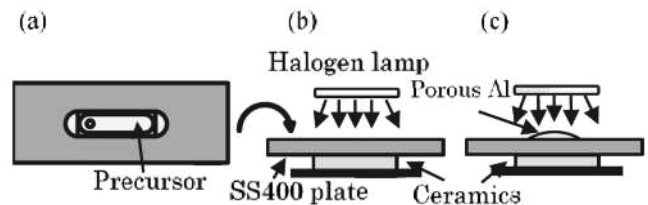


Fig.2 Foaming procedure using light heating

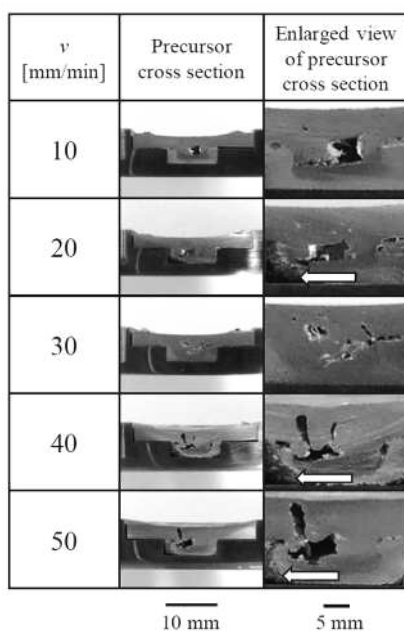


Fig.3 Cross sections of ADC12 precursors and obtained its porous Al for various v values.

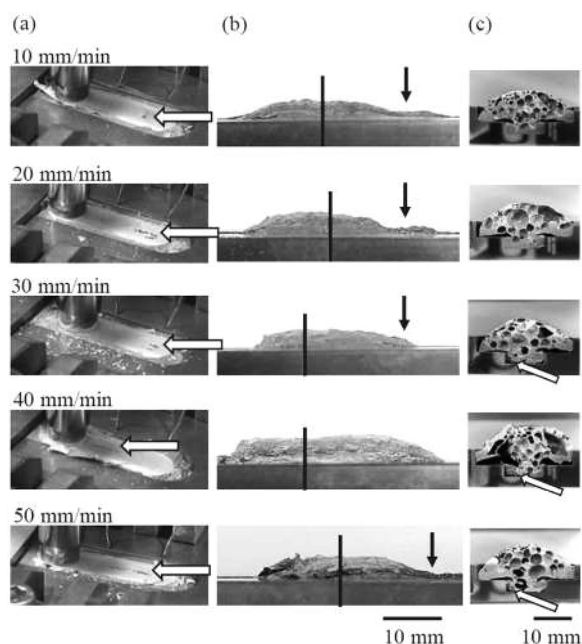


Fig.4 (a) Fabrication of precursor. (b) Porous Al obtained for various v . (c) Cross sections of Porous Al obtained.

になったところで、ハロゲランプを消灯した。これは ADC12 の液相線温度が 580°C であることから発泡するのに十分な温度であることを確認している。

3. 実験結果

Fig.3 にプリカーサ断面を示す。溝下段に散布した ADC12 粉末が攪拌により固化し、緻密なプリカーサが得られたことがわかる。一部に矢印で示すように固化していない部分も観察されるが、これはツールが通っていない箇所、攪拌された箇所は固化している。また v によって個体差はあるがトンネル状欠陥が見られる。これは一方向のツール走査であるため、ツールのプローブ部によって走査方向への下段粉末の偏りと、鉄板に付けた溝形状により塑性流動が妨げられたことによる攪拌不足により欠陥が生じたと考えられる。対策として、鉄板に粉末を入れる際に圧粉し緻密な状態で攪拌することによってツール走査による粉末の偏りを防ぐことや、溝形状の最適化などが挙げられる。さらに、 $v=40, 50 \text{ mm/min}$ では、ツール走査速度が他速度に比べ速いことから、粉末の偏りが生じやすく欠陥が大きくなったと考えられる。

Fig.4 にプリカーサ作製の様子と、ポーラス Al の外観図、およびその断面図を示す。まず(a)をみると、全ての v において矢印に示す部分で割れが見られる。次に(b)の黒矢印部分を見ると、(a)の矢印により示した割れの部分からプリカーサ内において発生したガスが外部に抜け、一部発泡不良が生じていることが分かる。しかし(c)をみると、一部に矢印で示すように ADC12 粉末の固化が不十分な様子も見られるが、溝下段まで気孔が入り込み全ての v で全体的に発泡していることが観察された。プリカーサの時点ではトンネル状欠陥が生じていたが、発泡することにより内部の欠陥は気孔で区別できなくなる場合があることも分かる。つまり ADC12 粉末を圧粉し密度を高め、溝形状を最適化することで粉末の偏りが軽減され攪拌量が増し欠陥の発生が抑制できれば、(b)のような発泡の弱い部分が生じることなくポーラス Al を作製できると考えられる。

謝辞

本研究の一部は、国立大学法人大阪大学接合科学研究所共同研究利用のもと、藤井英俊教授のご指導により行われました。ここに記して感謝の意を表します。

(共同研究分野：接合界面機構学分野 藤井英俊教授)

1.4GPa 級焼戻しマルテンサイト鋼 FSW 継手の機械的特性に関する研究

秋田大学大学院理工学研究科 宮野 泰征、花井 惇弥
秋田県産業技術センター 木村 光彦

1. 諸言

近年、構造材料の軽量化を目的に鉄鋼材料の高強度・軽量化を目指した材料開発が注目されている。著者らは、中高炭素鋼に非溶融接合（摩擦攪拌接合）を適用した場合における、接合継手の機械的特性と組織の関係解明を目的とした基礎研究を行っている。本報では、JIS-S55C を 1.4GPa 相当に調質した鋼板に対し摩擦攪拌接合を適用した結果について報告する。

2. 実験方法

供試鋼には JIS-S55C を調質し引張強度を 1.4 GPa 相当とした薄鋼板を使用した。150^L×28^W×1.6^t mm の板材を対象に、突合せ条件で摩擦攪拌接合試験を実施した。WC 製ツール（シヨルダ：φ12 mm，プローブ：φ4 mm）を使用した。位置制御機能を有する摩擦攪拌接合装置を使用し、回転速度と接合速度をそれぞれ 100～400 rpm、100～400 mm/min の範囲で変化させ、入熱量の異なる継手を作製するための接合試験を実施した。接合中の入熱量を赤外線放射熱画像解析装置により評価した。

継手作製後、光学顕微鏡による接合部断面観察、および FE-SEM / EBSD による接合部の微細組織観察、結晶粒界解析を行った。接合線に垂直な接合断面を対象にビッカース硬さ測定を行った。攪拌部を標点区間に設定した試験片を対象に引張試験を行った。試験時の温度は常温、クロスヘッドスピードは 1.0 mm/min とし、試験中の変形挙動を高速度カメラで撮影し、デジタル画像相関法（DIC）を適用し、応力-ひずみの相関、局所変形の分布を評価した。

3. 実験結果と考察

3.1 摩擦攪拌接合温度測定

接合材表面に接したツールシヨルダ表面を対象に、摩擦攪拌接合中の最高到達温度を赤外線放射熱画像解析装置により測定した。Fe-Fe₃C 状態図上に接合最高温度を整理したものを Fig. 1 に示す。400 rpm-100 mm/min の条件で 1175 °C と最も高く、300 rpm - 100 mm/min で 1108 °C、400 rpm - 400 mm/min で 1051 °C、200 rpm - 100 mm/min で 991 °C、100 rpm - 100 mm/min で 769 °C となり、総じて回転速度の増加に接合温度の大きさが良く反映される傾向が確認された。

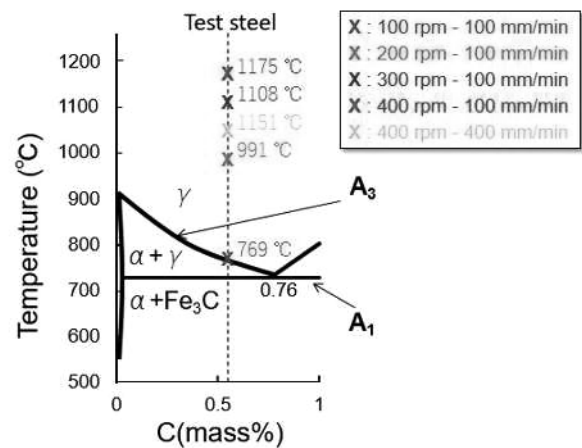


Fig. 1 各接合条件における接合最高温度

3.2 接合部断面マクロ観察

接合断面の光学顕微鏡（デジタルマイクロスコープ）によるマクロ組織観察結果を Fig. 2 に示す。攪拌部は全ての条件で裏面に到達している様子が確認された。いずれの断面もキッシングボンド、あるいはボイドなどの欠陥がない健全な組織が形成されている。回転速度が小さい 100 rpm - 100 mm/min、接合速度が大きい 400 rpm - 400 mm/min の各条件では、裏面側の攪拌領域が狭くなる傾向が顕著であり、それぞれ入熱が抑制気味であったこと、接合プロセス中の表面側と裏面側の温度勾配が大きくなったことを示唆している。
(共同研究分野：接合界面機構学分野)

本検討で設定した接合条件においては、攪拌部内には組織の変遷を示唆する色調の遷移の現出や、ツール摩耗を示唆するバンド組織の形成は見られなかった。

3.3 ビッカース硬さ測定

接合継手断面 Fig. 3 に各接合条件で得られた FSW 継手断面のビッカース硬さの分布を示す。硬さ分布は 260HV~460HV の領域を 10 階調の色調で区分したカラー二次元マップとしている。接合界面を中央に配置し右側が前進側 (A.S.)、左側が後退側 (R.S.) に対応している。攪拌部から十分に遠い位置に存在する領域を母材領域と捉えると、母材の硬さは約 400HV 程度であることが確認できる。

400 rpm・400 mm/min の条件では、攪拌部中心では母材に対して 250 HV 程度の硬化が確認されたが、他の条件では、むしろ攪拌部の方に母材よりも約 50~100HV 程度軟化する傾向が確認された。また、全ての接合条件で攪拌部外縁付近に HAZ 軟化を示唆する領域が形成されていた。ただし、300 rpm・100 mm/min の条件では、このような軟化域の分布が、他の条件に比べてやや狭くなる傾向を示した。

3.4 引張試験

Fig. 4 の応力ひずみ線図に継手の応力ひずみ線図を示す。延性破壊的な挙動を示す 300 rpm 以下の接合条件と、脆性破壊的な挙動を示す 400 rpm 以上の接合条件との違いが明確に示される。継手効率が母材引張強度比 70%を超えた 300 rpm・100 mm/min と 400 rpm・100 mm/min の条件は、いずれも接合温度が高い値を示した条件であった。低温を志向した接合パラメータ：100 rpm・100 mm/min の条件や、大きめの冷却速度を志向した 400 rpm・400 mm/min の条件は、継手効率の確保には優位にならなかった。

4. 結言

300 rpm・100 mm/min の条件で得られた継手は、引張、伸びの双方で母材の性能を良く維持していることを確認した。

謝辞

本研究の成果は、独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) の委託業務の結果得られたものである。

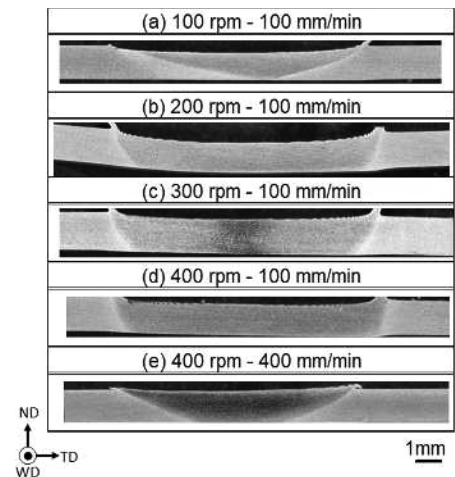


Fig. 2 各接合条件で得られた FSW 継手の断面マクロ像

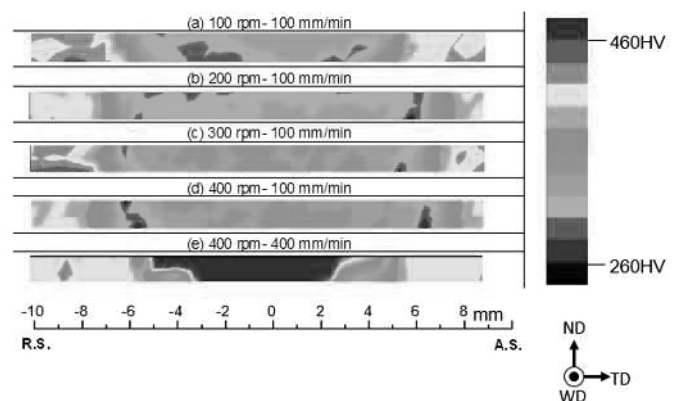


Fig. 3 各接合条件で得られた FSW 継手断面のビッカース硬さ分布

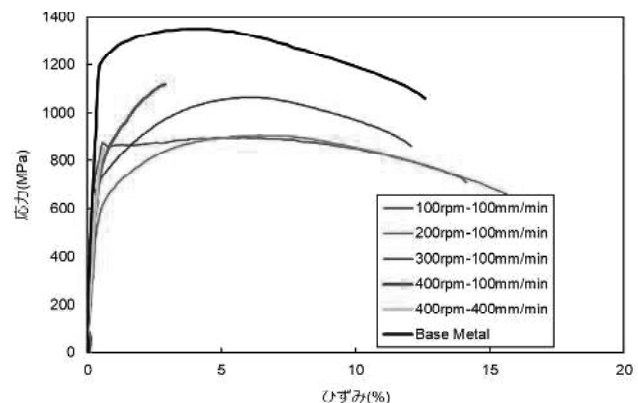


Fig. 4 各接合条件で得られた摩擦攪拌接合継手を対象とした引張試験の結果

(共同研究分野：接合界面機構学分野)

窒化珪素製ツールを用いた 15mm 厚鋼板の摩擦攪拌接合における裏面加熱効果

龍谷大学 先端理工学部 機械工学・ロボティクス課程

森 正和

1. 緒言

摩擦攪拌接合(Friction Stir Welding : FSW)は、回転ツールと被接合材の間で生じる摩擦熱および加工発熱を用いて材料を軟化させ、ツール回転力により生じる塑性流動を利用して接合を達成する固相接合法である。産業応用の観点から、厚鋼板の接合への展開が期待されているが、厚鋼板の FSW に用いることが可能な PCBN 製ツールは非常に高価であり、適用可能な対象分野は大幅に限定される。よって、安価かつ長寿命な厚鋼板用の FSW ツールの開発が期待されている。

本研究では、比較的安価に製造可能な窒化珪素製ツールによる厚鋼板の FSW に関する知見を得ることを目的としている。我々は、窒化珪素製ツールを用いた FSW により、15 mm 厚鋼板の無欠陥継手が得られることを明らかにした^[1]。一方、厚板に対応するためのツール形状の大型化は、ツール回転トルクや Z 軸荷重の増加につながる。そこで、厚鋼板の FSW における窒化珪素製ツールに対する負荷低減を目的として、ツール挿入時のツール回転数の増速および裏面加熱の効果を調査した。

2. 実験方法

供試材は、厚さ 15 mm の低炭素鋼である。FSW に用いたツール材質は、日本特殊陶業製の窒化珪素素材 (SX9) である。接合条件は、ツール回転数 200 rpm、接合速度 50 mm/min、ツール前進角 1°とした。ツール挿入時のツール回転数の増速や裏面加熱による、FSW 中のツール回転トルクおよび Z 軸荷重の変化を評価した。FSW 後、接合部を切断して鏡面研磨を行ない、ビッカース硬度試験 (試験力 98.07 N, 保持時間 10 s) を実施した。また、鏡面研磨後にナイターによるエッチングを行い、金属顕微鏡による微細組織観察を行った。

3. 実験結果および考察

同一接合条件下において、ツール回転トルクに及ぼすツール挿入時のツール回転数の増速および裏面加熱の影響を図 1 に示す。

ツール挿入時のツール回転数の増速および裏面加熱を行わなかった FSW における、ツール回転トルクの最高値は 152 N・m であり、接合開始後のツール回転トルクは、約 140 N・m であった。ツール挿入時にツール回転数を増速する (350 rpm) ことで、ツール挿入時のツール回転トルクは、約 100 N・m に抑制できた。しかし、ツール回転数を規定値 (200 rpm) した後接合開始したところ、ツール回転トルクが徐々に増加する傾向を示した。ツール挿入時の増速に加えて裏面加熱を併用すると、ツール挿入時のツール回転トルクを抑制できだけでなく、接合開始後のツール回転トルクが約 100 N・m と、最も低い値を示し、接合中の上昇

も抑制も可能であった。なお、Z 軸荷重も、ツール挿入時の増速に加えて裏板加熱を併用することで、最も低い値を示すことも確認している。

次に、接合継手の外観および断面観察結果を図 2 (a), (b)に示す。接合距離は 200 mm である。断面試料は、接合継手の中央部から採取したものである。図 2 に示すように、攪拌部表面および断面に欠陥のない、無欠陥継手が得られていることがわかる。

以上から、大型の窒化珪素製ツールを用いた厚鋼板の FSW において、ツール挿入時の増速と裏板加熱を併用することで、ツール回転トルクおよび Z 軸荷重の増加を抑制でき、ツール負荷を低減しながら、無欠陥継手が得られることを明らかにした。

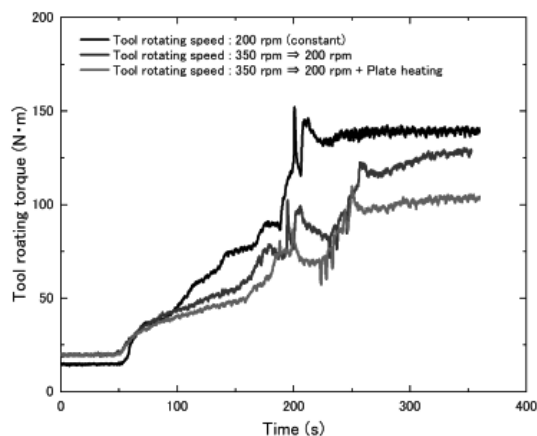


図 1 回転トルクに及ぼすツール挿入時のツール回転数増速および裏板加熱がツールの影響



(a) 接合継手の外観写真



(b) 断面観察

図 2 接合継手の外観および観察結果

参考文献

[1] 森 正和ら, 窒化珪素製ツールを用いた 15mm 厚鋼板の摩擦攪拌接合, 溶接学会全国大会講演概要, 108 (2021-4), 58- 59.

(共同研究分野：接合界面機構学分野)

直接通電焼結法による Mg_2Si 系熱電材料の合成

福井工業大学 工学部 機械工学科
井藤 幹夫

1. 目的

直接通電焼結法は通常のパルス通電焼結(PECS)法とは異なり、絶縁性のダイを用いた焼結法であり、全ての電流を直接圧粉体試料に印加できるという特徴を持つ¹⁾。この焼結法を用いると低温域から焼結が進行すると報告されていることから、粉末粒子間の物質輸送が促進されていると考えられ、反応性も向上することが期待できる。そこで、本研究では反応焼結による単相の作製が難しい Mg_2Si 系熱電変換材料を直接通電焼結法により合成し、焼結時の緻密化挙動・ダイセットの電気抵抗値、作製した焼結体の密度・構成相を従来法で作製した場合と比較することで本プロセスの有効性について調査した。

2. 研究方法

本研究では試料粉末として n 型で代表的な Al-1at% ドープ Mg_2Si の組成のものを選択した。まず、 $Mg:Si:Al=2:1:0.01$ の組成となるように Mg, Si, Al の各粉末を秤量し、遊星型ボールミルを用いて回転数 300rpm で 10 時間メカニカルミリング (MM) 処理を施すことで焼結用混合粉末を作製した。得られた混合粉末を絶縁性ダイとして石英製のダイを用い、パルス通電焼結装置により昇温速度 100K/min, 加圧力 50MPa で真空雰囲気にて焼結を行った (直接通電焼結法)。比較のために通常黒鉛製のダイを用いた焼結も行った (従来法)。なお、パンチ棒についてはどちらの焼結法においても黒鉛製のものを用いた。本研究では材質の異なる 2 種類のダイを使用しているため、穴の開いたダイに熱電対を横から挿入する一般的な測温方法ではなく、より正確な試料温度を評価するため、直接通電焼結法および従来法のどちらにおいても、穴を開けたパンチ棒に K 熱電対を挿入して圧粉体試料表面近傍の温度を直接測定した^{2,3)}。焼結時の試料圧粉体の収縮量およびパルス通電焼結装置電極間の印加電流・電圧値を記録するとともに、作製した焼結体に対して密度測定や XRD 測定を行い、従来の黒鉛ダイを使用して作製した試料と結果を比較した。

3. 結果

メカニカルミリング(MM)を施した Mg, Si, Al 混合粉末のパルス通電焼結時の緻密化挙動と温度および電極間電気抵抗値と温度の関係を図 1 に示す。石英ダイおよび黒鉛ダイを用いて焼結を行った結果、600K 付近から収縮量の差が生じ始め、石英ダイを用いた直接通電焼結法の方が同じ温度における収縮量が大きくなった。さらに、得られた焼結体の相対密度を図 2 に示す。焼結温度 973K, 保持時間 10 分で作製した焼結体の相対密度を比較すると、従来法では 93.0%だったのに対して、直接通電焼結法により 99.3%という高い密度を有する焼結体が得られた。従来法でこれと同程度に緻密化した焼結体を作

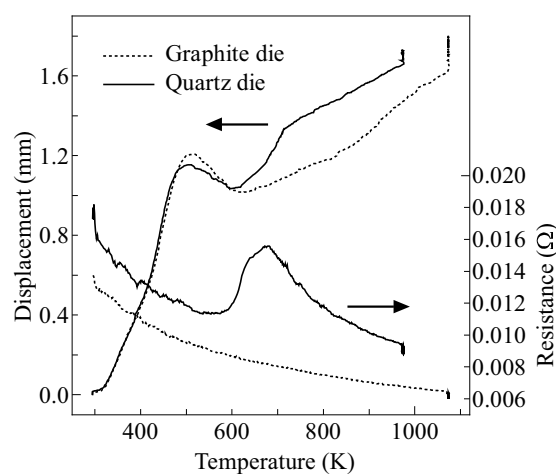


図 1 パルス通電焼結時の試料成型体の収縮挙動および装置電極間の電気抵抗値の温度依存性。

製するためには 1073K という高い焼結温度で 30 分~60 分保持する必要があった。このように、直接通電焼結法は従来法と比較してより低温・短時間での緻密化が可能であることがわかった。これは、直接圧粉体試料に通電することで、高抵抗な粉末粒子接触部で局所的な高温場が発生してネックの形成・成長が効果的に進行したためだと考えられる。さらに、直接通電焼結時の電極間の電気抵抗値に注目すると、収縮量の差が開き始めたのと同時に急激にその値が増加していることがわかった (図 1)。このことは、圧粉体試料の電気抵抗値が上昇していることを示していると考えられる。Al-1at%ドープ Mg_2Si は金属 Mg と比較して 3 桁ほど電気抵抗率が高い⁴⁾。つまり、直接通電焼結時の急激な電気抵抗値の上昇は Mg_2Si の生成によるものと示唆される。実際に従来法と本手法によりこの抵抗値上昇前後の温度で昇温を中断した焼結体に対して行った XRD 測定結果 (図 3) から、抵抗値上昇前の 593K では両焼結法において Mg, Si の残留量に差が見られなかったが、上昇後の 653K では、従来法と比較して直接通電焼結法の方が残留 Mg および Si 量が少なく、直接通電焼結法により、ほぼ単相の Mg_2Si が得られることがわかった。

4. 結論

本研究では、絶縁性ダイを利用した直接通電焼結法という新規な焼結プロセスを用いて、 Mg_2Si 系熱電材料を反応焼結により合成し、従来法よりも低温かつ短時間の焼結で緻密な焼結体を得ることができるとともに Mg_2Si 相形成促進効果も同時に得られることを明らかにした。このことは、パルス通電焼結法による熱電材料合成において、従来法に比して焼結温度および時間を著しく低減できることを示している。今後、これらの各種条件を最適化することにより、従来法に比較してさらなる微細組織構造を有する熱電材料焼結体を得られることが期待される。

5. 参考文献

- 1) M. Ito, K. Kawahara, K. Araki, Metall. Mat. Trans. A, **45**, (2014) 1680.
- 2) 南口 誠, 丸山俊夫, 富野寿和: 日本金属学会誌, **63**, (1999) 917.
- 3) S. Grasso, C. Hu, G. Maizza, B. Kim, Y. Sakka, J. Am. Ceram. Soc., **94**, (2011) 1405.
- 4) T.Itoh, A.Tominaga, T. Jinushi, Z. Ishijima, J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, **61**, (2014) 324.

(共同研究分野: 複合化機構学分野)

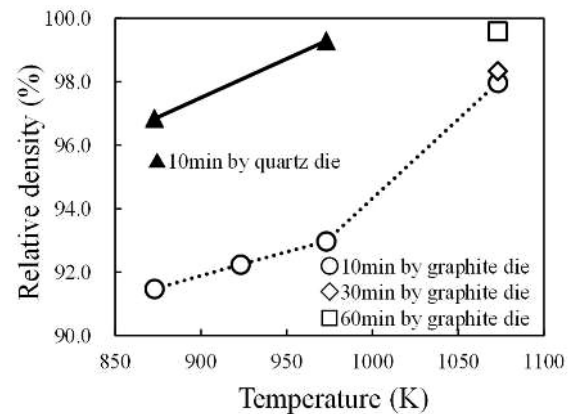


図 2 焼結体の相対密度と焼結条件との関係。

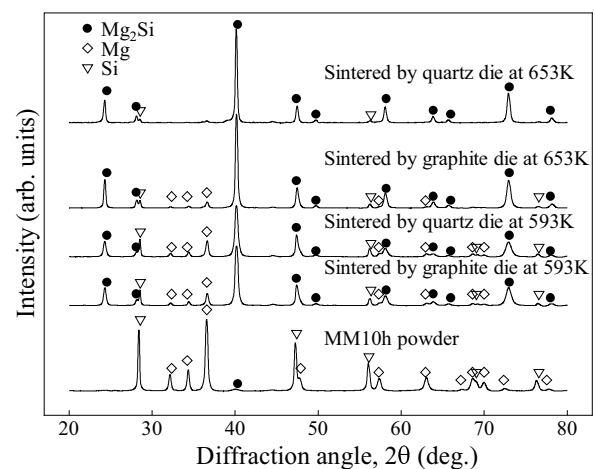


図 3 パルス通電焼結により 593K および 653K まで昇温した各成型体の XRD パターン。

チタン積層造形材における 3次元構造欠陥が引張強度に及ぼす影響

九州大学大学院

工学府材料工学専攻 重田雄二, 楠 涼太郎

工学研究院材料工学部門 尾崎由紀子

1. 目的

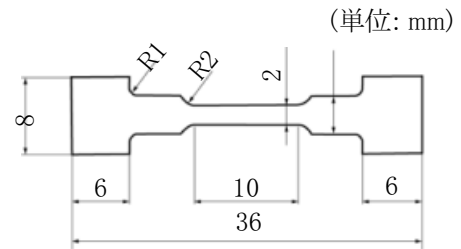
金属三次元(3D)積層造形法(AM)で作製された材料は,溶融部近傍に生じるマイクロボイドや未溶融部の気孔等の構造欠陥が強度低下の要因となることが報告されている[1, 2]. 本研究では, 構造欠陥の形態および 3D 配置が AM 材の積層方向への引張強度に及ぼす影響を解析するため, 異なる積層条件で作製した純 Ti レーザーAM 材について, 高輝度 X 線コンピュータ断層撮影(CT)により内部構造欠陥の 3D 配置を観察し, 画像解析等を用いて数値化することによって, 3D 構造欠陥形態・配置と引張強度との相関を解析した.

2. 研究方法

市販の純 Ti プラズマアトマイズ粉末を用いた. 造形条件は, 粉末積層厚を 25 mm, ビームのハッチング間隔 90 mm, レーザーパワー80 および 95 W, スキャンスピード 400 -1200 mm s⁻¹として試作した底面 6 mm × 12 mm, 高さ 50 mm の純 Ti-AM 材角柱試料を供試験材とした(Table1). 550°Cで 1 時間, 真空中で焼鈍した後, 放電加工により平行部長さ 10 mm, 幅 2 mm, 厚さ 1 mm, 全長 36 mm の平板引張試験片に加工した(Fig.1). 試験片の平行部について 40 keV の高輝度 X 線 CT によって欠陥分布の 3D 像を撮像し, 画像解析等によって欠陥の空間配置およびサイズを数値化した. 引張試験は, 小型引張試験機(Deben 社製, CT5000)を用い, ひずみ速度 10⁻³ s⁻¹で実

Table1 レーザー積層条件

	レーザー パワー (w)	スキャン スピード (mm/s)	ハッチング 距離 (μ m)	層厚 (μ m)	エネル ギー 密度 (J/mm ³)
A	80	600	90	25	59.3
B		1000			35.6
C	95	400			105.6
D		800			52.8
E		1200			35.2



厚さ: 1±0.05

Fig. 1 引張試験片形状

3. 研究結果

【エネルギー密度と相対密度および欠陥形態の関係】

試作した積層造形材 A~E のエネルギー密度 52.8 J mm⁻³ の試料 D で密度が極大となった. また, 欠陥の形状は, エネルギー密度が低い B および E では, 欠陥サイズにばらつきが見られ, 粗大な欠陥はレーザービームの軌跡に沿った細長い不定形であった. 欠陥は試料 D ではほぼ球形となり, さらにエネルギー密度が高くなると, 球形気孔が粗大化することが確認された.

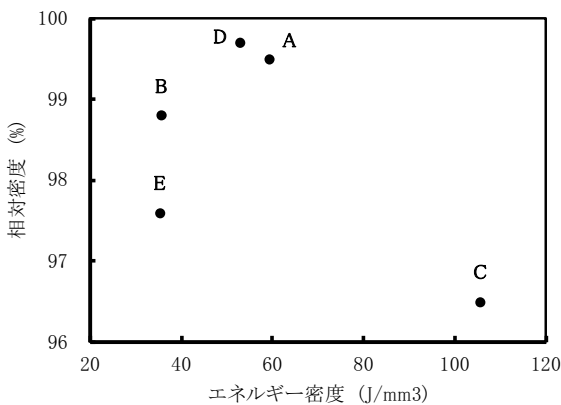


Fig.2 エネルギー密度と相対密度の関係.

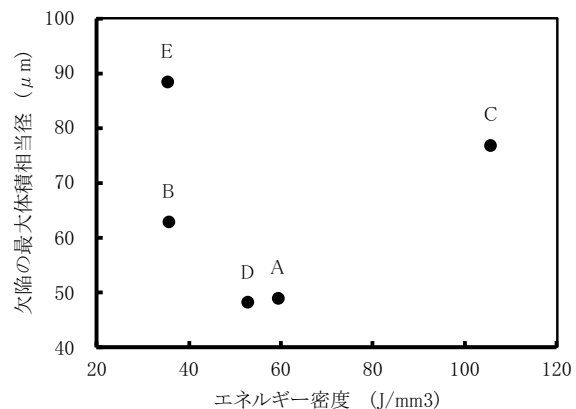


Fig.3 エネルギー密度と欠陥の最大体積相当径の関係.

【エネルギー密度と欠陥サイズの関係】

試料中の欠陥について、画像解析により欠陥の球相当径(d_e)分布を求め、平均球相当径(d_{e-av})および最大体積相当球径(d_{e-max})を指標とした。 d_{e-av} は、ほぼエネルギー密度に比例して増大したが、 d_{e-max} は相対密度が極大となった試料Dで極小となり、相対密度が高い試料ほど d_{e-max} が小さいことが示唆された(Fig.3)。

【欠陥サイズと引張強さの関係】

Figs.4 および 5 に d_{e-av} および d_{e-max} と引張強さの関係をそれぞれ示す。 d_{e-av} と引張強さの相関は見られなかったが、 d_{e-max} の増大とともに引張強さは低下傾向を示した。図中、各プロットに試料名および造形時のエネルギー密度をラベルした。引張強さの減少の傾向は図中 D→A→C、および D→B→E の2つの経路で減少していることが窺える。試料 D は相対密度が最大であったことから(Fig.2)、密度が低いほど引張強さが低下したものと考えられる。Fig.5 において d_{e-max} に対する強度低下の傾向が大きい D→B→E は、欠陥形態の不定形かつ粗大化が進んだ経路でもあることから、引張強さは欠陥の最大寸法だけでなく、形態に依存するものと推定される。

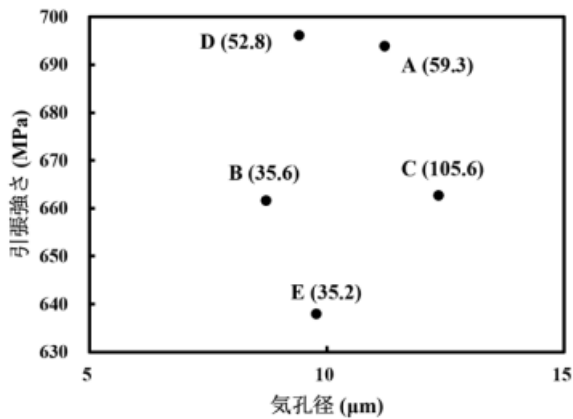


Fig.4 欠陥の平均体積相当径と引張強さの関係

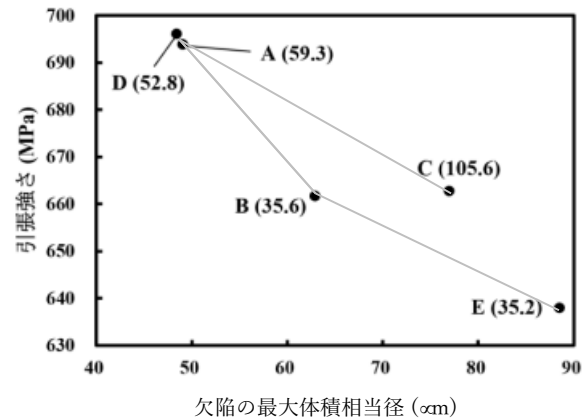


Fig.5 欠陥の最大体積相当径と引張強さの関係

4. 結論

Ti-AM 材中の 3D 構造欠陥を X 線 CT によって可視化し、画像解析によって数値化した欠陥のサイズ(体積相当球径)の分布を求め、積層時のビームエネルギー密度との関係を調査した。さらに、欠陥サイズと積層方向に応力を付与した引張強さとの相関を解析した。その結果、以下の結論を得た。

(1) 欠陥の平均体積相当球径はエネルギー密度の増加とともに増大し、最大体積相当球径は、相対密度が低いほど大きい傾向となった。

(2) 引張強さは、体積相当球径の増大とともに減少した。その減少傾向は、不定形の欠陥において顕著であった。

以上より、引張強さは欠陥の最大寸法だけでなく、形態に依存するものと結論された。

参考文献

- [1] E. Liverani et al. : J. Material Processing Technology, 249(2017)255.
- [2] H. Galarraga et al. : Additive Manufacturing, 10(2016), 47.

(共同研究分野：複合化機構学分野)

バイオシリカ/ローズベンガル複合体による新規光抗菌剤の開発

北海道大学病院歯周・歯内療法科¹⁾, 関西大学化学生命工学部²⁾

西田 絵利香¹⁾, 森 七星²⁾, 齋田 慧²⁾, 川崎 英也²⁾, 宮治 裕史¹⁾

1. 目的

歯周病は、わが国では成人の8割以上がかかっている国民的な慢性疾患の一つであり、歯を失う最大の原因でもある。さらに近年では、歯周病が心臓疾患、糖尿病などの全身疾患を誘発、悪化させることも明らかにされている。現在歯周病菌に対する除菌治療として抗菌薬が使用されているが、バイオフィルムに対する無効性や耐性菌の出現、アレルギーの問題があり、抗菌薬による歯周病除菌治療には限界が生じている。

近年、歯周病の新たな治療法として、「光線力学療法 (PDT)」が注目されている。PDTとは、光を照射した時だけ酸素を選択的に活性化できる有機光感応剤 (メチレンブルーなど) により発生する活性酸素 (1O_2 , 一重項酸素) の強力な酸化力で、歯周病に関連した種々の病原菌を光殺菌する方法である (図1)。

しかし有機光感応剤は、光安定性が低い、毒性が高い、容易に会合体 (ダイマー) を形成し 1O_2 生成能が失活するという重大な欠点があった。稲作の副産物として発生するもみ殻から生成したバイオシリカは多孔質で生体安全性が高く、強力な物質吸着能があると報告されている。我々は、昨年(2020年度)、バイオシリカの多孔質内に安全性の高い食用色素としても知られる有機光増感剤 (ローズベンガル) を導入したバイオシリカ/ローズベンガル複合体 (RB/PEI@BS) を新たに創製した。ここで、RB:ローズベンガル、BS:バイオシリカ、PEI:ポリエチレンイミン(BSへのRBへの吸着を促進するカチオン分子)、である。このRB/PEI@BSは、白色LEDによる可視光照射下でRB単独に比べて、高い 1O_2 生成能を示すことを見出した。本年度は、RB/PEI@BSの 1O_2 生成能が最大となる条件を検討した。口内細菌に対する生物学的なPDT活性を評価し、RB/PEI@BSの医療応用への有効性を検証した。

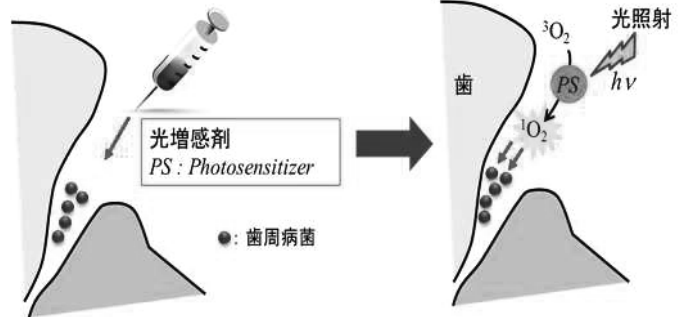


図1 歯周病における PDT の概念図

2. バイオシリカ/ローズベンガル複合体の 1O_2 生成能と可視光照射強度との関係

PDTとは、光を照射した時だけ酸素を選択的に活性化できる有機光感応剤により発生する活性酸素 (1O_2 , 一重項酸素) の強力な酸化力で、歯周病に関連した種々の病原菌を光殺菌する方法である。ここでは、光源に用いた白色LEDの強度とバイオシリカ/ローズベンガル複合体から生成する 1O_2 生成量との関係を調べた。図2は、RB/PEI@BS (0.1:1=RB:PEI)の 1O_2 生成速度と白色LED光量との関係を示す。白色LEDの光強度を上げててもRB/PEI@BS中のRBは分解せず安定であり、光照射強度と 1O_2 生成量との間に強い相関が見られた。白色LEDの光強度により、RB/PEI@BSからの 1O_2 生成速度 (つまり、 1O_2 生成量) をコントロールできることがわかった。

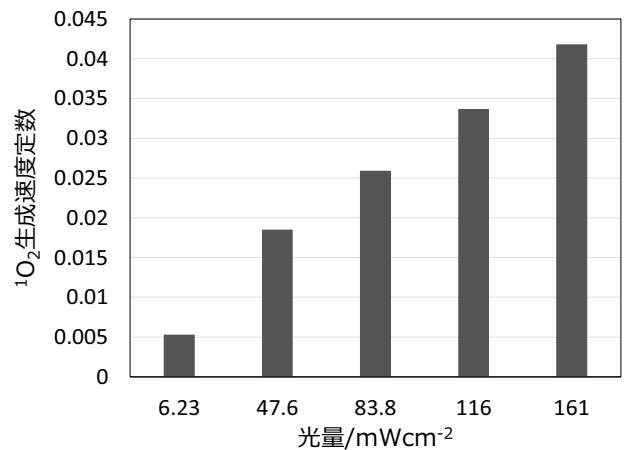


図2 RB/PEI@BS (0.1:1=RB:PEI)の 1O_2 生成速度と白色LED光量との関係

3. バイオシリカ/ローズベンガル複合体におけるローズベンガル最大担持量の評価

RB/PEI@BS からの 1O_2 生成量は、先の白色 LED 強度に加えて、RB/PEI@BS における RB 担持量が多いほど、可視光照射時の 1O_2 生成量は増大すると考えられる。ここでは、RB/PEI@B における RB 最大担持量の検討を行った。その結果、RB/PEI@BS における RB 担持量は、PEI によって規定されていることがわかった。つまり、**RB:PEI=0.1:1 (PEI に対して RB が 0.1 当量)** の RB/PEI@BS の場合 BS1mg 当たりの RB 吸着質量は 6.8×10^{-3} mg/mg であるのに対し、**RB:PEI=1:1 (PEI に対して RB が 1 当量)** の RB/PEI@BS の場合、BS1mg 当たりの RB 吸着質量は 6.7×10^{-2} mg/mg となり、前者の約 10 倍となった。これは、アニオン性 RB がカチオン性 PEI を介して BS へ吸着していることを示す。次に、RB:PEI=0.1:1 (0.1eq) と RB:PEI=1:1 (1.0eq) の RB/PEI@BS に対し、白色 LED 照射下 (6.2 mWcm^{-2}) での 1O_2 生成量を評価した (図 3)。

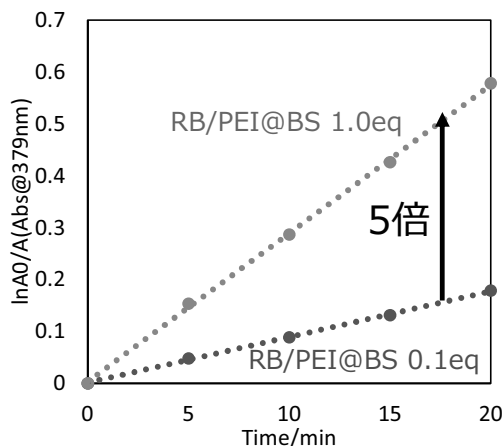


図 3 RB/PEI@BS の 1O_2 生成速度 : RB 担持量の効果

RB/PEI@BS における BS への RB 担持量が 10 倍になると 1O_2 生成量が約 5 倍になった。10 倍 RB 担持量とそれに比例した 10 倍 1O_2 生成量とならなかった理由は、BS への RB 担持量が増えると、BS 上での RB 同士の会合が起こり、担持された RB の一部の 1O_2 生成能が失活しているためであると考えられる。

3. 口内細菌に対する RB/PEI@BS の PDT 活性評価

口内細菌 (*S. mutans*) に対する RB/PEI@BS の PDT 活性評価 (白色 LED 光照射による光殺菌効果) を濁度法により評価した (図 4)。濁度法では、菌液の生菌数濃度を濁度から推定する微生物学的手法であり、濁度の数値が大きいほど、生菌数が多いことを示す。*S. mutans* 2.8×10^7 CFU/mL の細菌懸濁液 200 μ L ずつ 96well に分取した。この細菌懸濁液に RB/PEI@BS 1mg/mL、或いは RB 単独 0.068mg/mL を含む系を比較した。これらの 2 つの液中の RB 濃度は同じとなるように調整してある。光照射なし (Light(-)) と光照射有り (Light(+)) とを比較すると、光照射時において、RB/PEI@BS が最も低い濁度の数値

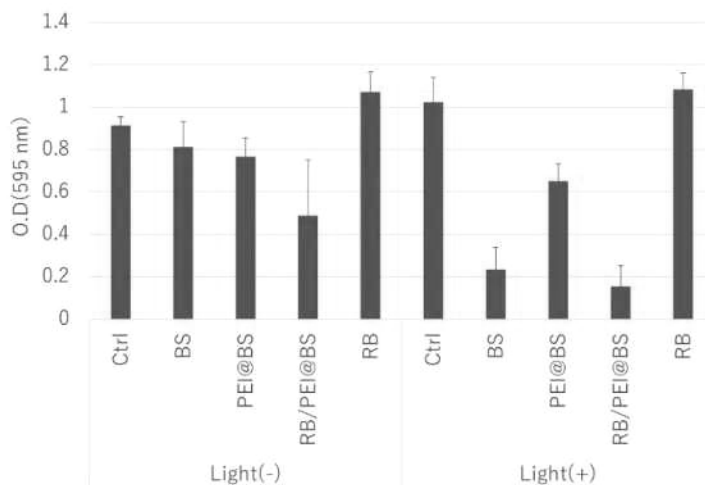


図 4 PDT 活性評価 (濁度法)

(高い可視光殺菌能) を示した。RB 単独よりも高い

RB/PEI@BS の光殺菌効果は、RB/PEI@BS の高い 1O_2 生成量と関与していると考えられる。但し、BS のみでも光殺菌効果が見られるという興味深い結果が得られた。この要因については、今後、調査していく予定である。

結論

、白色 LED 照射下で高い 1O_2 生成能を示す RB/PEI@BS の条件を明らかにした。この 1O_2 生成能は RB 単独に比べて増強されていること、 1O_2 生成量を白色 LED 光量でコントロールできることが示した。RB/PEI@BS による口内細菌 (*S. mutans*) に対する PDT 評価において高い可視光殺菌能が明らかとなり、RB/PEI@B の医療応用への有効性を示すことができた。

(共同研究分野：複合化機構学分野)

ナノスケール解析による合金表面の電気化学反応

所 属 東北大学材料科学高等研究所

氏 名 熊谷明哉

(以下 本文)

1.

本研究では、耐腐食合金における異種金属接合面やナノ炭素効果などをナノスケール解析した。ナノスケール解析の分析手法には、サブマイクロメートルスケールで電気化学反応を取得・可視化する電気化学プローブ顕微鏡の一種であるナノ電気化学セル顕微鏡 (SECCM) を用いた。SECCM を適応することで、合金表面、特に各種合金内もしくは接合面での電気化学反応の検証が可能となり、本研究では酸化還元種を用いた反応性、腐食反応と水素発生反応を取得した。酸化還元種による反応性の検証では、合金表面の異種金属およびその接合面における反応性の不均一性の可視化に成功し、本計測手法が合金表面に応用可能であることを示し、腐食反応と水素発生能の結果比較からは耐腐食合金の反応性の差異を捉えることができた。

2. 研究方法

金属合金に関する研究は、持続可能な社会の構築に欠かせないインフラ整備など社会実装に密接に繋がる重要な研究分野である[1]。長年の研究成果や経験から、現在では異種金属接合面を精緻に制御した合金作製が可能となり、耐腐食性など合金の機能性の向上も目覚ましい。その耐腐食性に関する腐食防止のメカニズム解明には、マクロな腐食変化を追う電気化学的な解析法とミクロな構造変化を追う電子顕微鏡を連携させた解析手法が一般的である。しかし、これらの実験的手法においては、異種金属合金の接合面もしくは金属の破断面での局所的な腐食反応性はそのミクロな構造が腐食に寄与しているにもかかわらず、その電気化学的な検証が困難となっている。総合的なマクロ計測結果は、合金の機能性を包括的に解釈する上で重要であるが、その腐食要因がミクロ反応を起点賭している可能性があることを理解することも重要である。

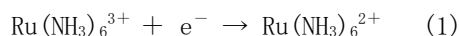
顕微な電気化学的な分析手法の発展は近年目覚ましく、走査型電気化学顕微鏡 (SECM) [2] を主軸として、電解液中における腐食反応をディスク半径が数 nm のナノ電極を用いて観察する高解像度電気化学顕微鏡[4]やその複合融合装置 (例：原子顕微鏡[5]やラマン顕微鏡[6]と連携) が開発されている。その他にも微小液滴を試料表面で形成し、その微小液滴に電極を挿入することで計測する電気化学メニスカス計測[7]も報告されている。しかし、一般的な SECM は測定試料を電解液に浸漬させるため、試料表面全域で起こる腐食反応の変化を解析するには適しているものの、接合面に限定した腐食情報は周囲の電気化学反応に影響を受けるため局所的な計測に課題を残す。一方、電気化学メニスカス計測は液滴と試料の接着面に関する腐食反応に計測応用が可能なもの、その電解液の濡れ性の影響と計測領域が液滴位置に限られている。ナノ電気化学セル顕微鏡[7]もしくは走査型電気化学セル顕微鏡[8] (SECCM) は SECM の利点と電気化学メニスカス計測の利点を融合させた計測手法であり、これらの課題に対して有効な分析手法となる。

SECM の探針であるディスク電極とは異なり、開口径をサブマイクロメートルに制御したガラスナノピペットに測定用電解液と参照電極を充填し探針とする。探針先端が試料表面に接近した際にピペット先端径と同様のメニスカスを形成する。このメニスカスを電気化学メニスカスとして局所的な電気反応の取得し、探針を走査することでその反応性マッピングが可能となる [9, 10]。本研究では、SECCM を利用しチタン (Ti) 系合金の電気化学的な反応性を酸化還元種であるルテニウム錯体イオンの還元反応及び、マグネシウム (Mg) 系合金とその炭素被膜効果を塩化ナトリウム水溶液による腐食反応と硫酸電解液による水素発生能を計測・可視化した。

3. 結果

ナノ電気化学セル顕微鏡 (SECCM) は、全て大気下で計測しその探針にガラスキャピラリーには開口径が約 80 nm のボロシリケートガラスピペットを用いた。ピペットに挿入する電解液と参照対極は計測系によって異なるものを利用した-Fig. 1(a)。ルテニウム錯体の酸化還元反応計測には、電解液に酸化還元種である $\text{Ru}(\text{NH}_3)_6\text{Cl}_3$ の濃度が 0.1 mL となるように調整した塩化カリウム (KCl) 溶液に水酸化ナトリウム (NaOH) を混合し、pH=9 となるように調整した電解液を用い、参照対極に銀/塩化銀 (Ag/AgCl) 線を用いた。腐食反応には電解液に 0.3 wt% の塩化ナトリウム (NaCl) 溶液を用い、水素発生反応には 0.03 M に調整した硫酸 (H_2SO_4) 溶液を用い、参照対極には共にパラジウム (Pd) 線を用いた。

はじめに、異種金属接合面の電気化学的ナノスケール解析を検証するため、Ti 系合金を測定試料とし SECCM を用いて検証した。測定に利用した電気化学反応は、電解液に溶解している酸化還元種の $\text{Ru}(\text{NH}_3)_6^{3+/2+}$ の還元反応 (1) に伴う電流応答であり、Ti 系合金の電極反応性を SECCM のピペットの形成する電気化学メニスカスにより可視化した。



SECCM の探針に電圧-0.6 V (vs Ag/AgCl) を印加し、ルテニウム錯体イオンの還元反応を促し可視化された Ti 系合金の電極反応性のマッピング結果を Fig. 1 (b) に示す。得られた電流応答に不均一性が見られており、異種金属合金における電気化学的なナノスケール解析が SECCM にて可能となったことがわかる。この電流応答は、合金表面の電極反応に起因しており、印加電圧がルテニウム錯体イオンの酸化還元反応を促したことにより得られたものである。従って、還元反応を促す電位を印加した際に得られた電流値がより負であれば、還元反応に伴う測定試料である電極の還元活性反応が高いことを示している。マッピング画像を解析すると、異種金属合金に存在する各金属の結晶粒により反応電流値が異なっていた。特に反応性の高い結晶粒は-22.1 pA と平均値よりも 5 倍以上の電流応答があった。この異なる反応性は、異種金属によるものと金属の結晶方位に依存したものであると推測できる。また、幾つかの結晶粒間では電流値が-0.1 pA 程度と低い応答となっており、この応答性の低さは異種金属の接合面である粒界で電極反応の酸化還元反応の活性が低いことを意味している。今後の課題として同一領域における電子線

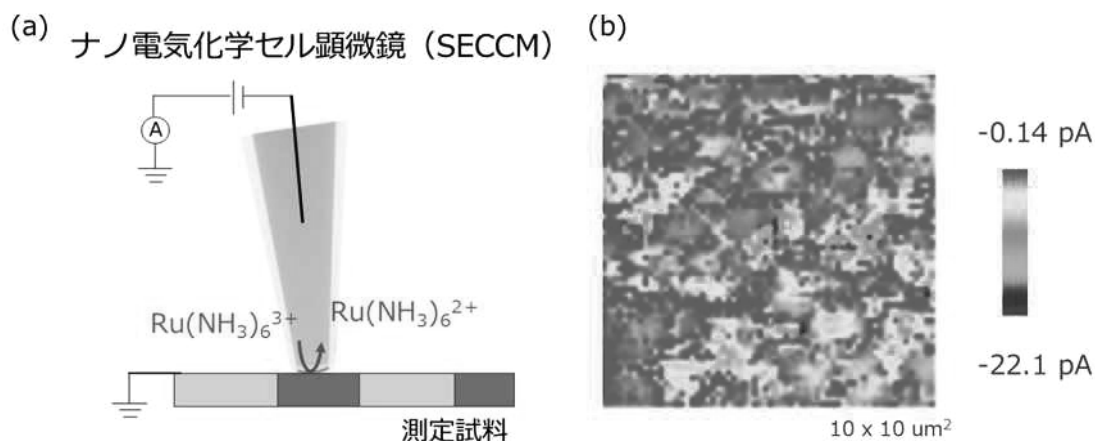
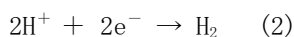


Fig. 1. (a) ナノ電気化学セル顕微鏡：SECCMの概略図、(b)SECCMにて取得されたTi系合金の電気化学イメージング結果：印加電圧=-0.9 V vs Ag/AgCl

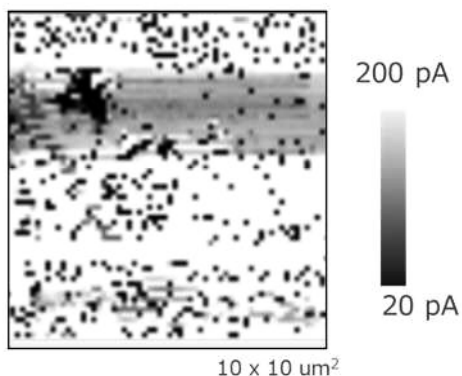
後方散乱回折 (EBSD) 法や透過型電子顕微鏡による方位と金属原子の特定が必要となる。本結果から、SECCMにより合金表面の電気化学反応をナノスケールで解析することが可能となった。

次に、耐腐食性合金として Mg 合金に注目した。また、Mg 合金にナノ炭素剤を複合させた Mg 系-C 合金は耐腐食性が向上することがバルク体の腐食反応から知られており、Mg 系-C 合金を比較試料として先ほどと同様に SECCM のマッピングによるナノスケール解析を行った。解析に用いた電気化学反応には、耐腐食性とその電極反応を比較するため、各試料において腐食反応には探針に充填した NaCl 溶液 (参照対極：Pd) によって発生する酸化電流値の検証、電極触媒が関与する水素発生反応 (2) を利用した。水素発生反応は探針に充填した H₂SO₄ 溶液 (参照対極：Pd) によっておこる。



NaCl 溶液に SECCM の印加電圧を 0 V (vs Pd) となるように設定し、Mg 合金および Mg 系-C 合金をそれぞれマッピングした。得られた結果を Fig. 2 に示す。Pd 基準にて測定試料-Pd 間に生じる電位を 0 V となるように SECCM 側で制御したため、正の酸化電流が観測された。この酸化電流は電解液内の OH⁻ が酸化腐食した際に流れるものであると推測している。共に酸化電流が pA オーダーの比較的小さく耐腐食性が計測された。更に、その中でも Mg 系-C 合金における電気化学イメージング結果では、更に酸化電流を相対的に 1/10 程度抑制された領域が観測された。Mg 系-C 合金の表面を電子顕微鏡像で確認したところ、抑制領域はナノ炭素が被膜されている領域であることが分かっている。言い換えれば、Mg 系合金をナノ炭素で被膜することで電解液が直接的に合金表面に接触することなく腐食耐性の高いカーボンの酸化電流が観測された。

(a) Mg系合金



(b) Mg系-C合金

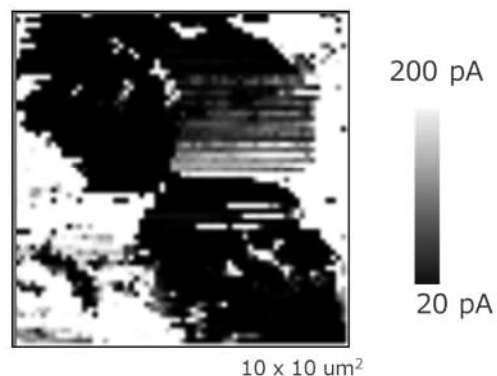
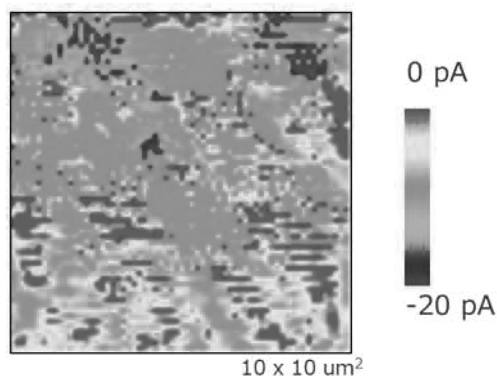


Fig. 2. SECCMにて取得された各合金の電気化学イメージング結果（耐腐食性検証）：
印加電圧=-0.9 V vs pd

めだと思われる。続いて、同等の試料を用いて、SECCMの探針内の電解液を硫酸に代替し、電気化学的なナノスケール解析を行った。その結果をFig. 3に示す。Mg系合金においては、酸性溶液下ではFig. 1のマッピング結果と同様に結晶粒により反応性の違いが現れている可能性があった。しかし、水素発生反応に寄与する電流応答がほとんど得られなかった。次に、ナノ炭素を被膜したMg系合金では、被膜下において水素発生能が顕著に応用電流値として観測できた。これらのマッピング結果は、Mg系合金では耐腐食性があるものの電極における電気化学反応性も失われているが、その一方で、炭素被膜を施すことにより、耐腐食性を維持しつつも、電極の電気化学反応性、特に電極触媒能である水素発生能を顕著に引き出すことが分かった。今後は、第

(a) Mg系合金



(b) Mg系-C合金

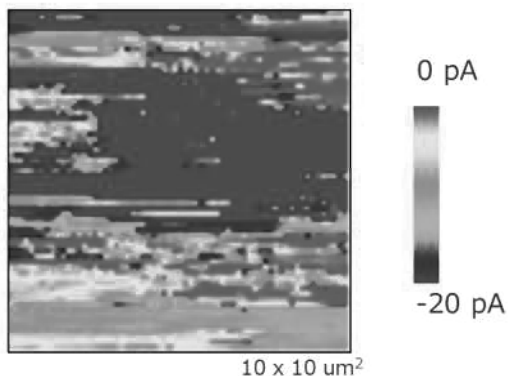


Fig. 3. SECCMにて取得された各合金の電気化学イメージング結果（水素発生反応）：
印加電圧=-1.8 V vs pd

一原理計算などの理論的な検証を進めていく予定であり、それらの計算結果と比較することで、通常の合金では困難であった耐腐食性を維持しつつ、電極触媒能も兼ね備えた電極材料への展開が期待できる。特に、本研究で検討した水素発生反応が関与する電極触媒能は今後のカーボンニュートラル社会への実現にも大きく貢献できるものとなりえる。

5. 結論

本研究では、ナノ電気化学セル顕微鏡を用いて異種金属合金表面における電気化学反応のナノスケール解析を行った。はじめにチタン系合金表面における電気化学的な反応性を顕微鏡探針内の電解液に溶解した酸化還元種の還元反応を利用して、その反応性を可視化した。得られた電気化学イメージング結果から、異種金属の結晶粒の活性に不均一性が見られ、特定の結晶粒では顕著な電極活性が見られた。また、異種金属接合面である結晶粒界では平均値よりも低い電極活性が見られた。更に、マグネシウム系合金とその合金に炭素被膜した試料をそれぞれナノ電気化学セル顕微鏡で検討した。検討には、腐食反応と水素発生反応を利用し各々電気化学反応に起因するマッピング結果を取得した。腐食反応のマッピング結果から酸化電流値は pA オーダーであり耐腐食性が見られた。更に、ナノ炭素を被膜した合金ではより顕著に酸化抑制がみられた。同様の計測を水素発生反応にて検証したところ、以上から、ナノスケール解析による合金表面の電気化学反応を可視化しその特性評価が可能となった。

6. 参考文献

- [1] G. Koch, in Trends in Oil and Gas Corrosion Research and Technologies, ed. A. M. El-Sherik, Woodhead Publishing, Boston, pp. 3-30, 2017.
- [2] A. J. Bard et al., Analytical Chemistry 61, 132 (1989).
- [3] B. B. Katemann et al., Electroanalysis 16, 60 (2004).
- [4] C. Kranz et al., Ultramicroscopy 100, 127 (2004).
- [5] M. Etienne et al., Analytical Chemistry 86, 11203 (2014).
- [6] Y. Takahashi et al., Nature Communications, 5:5450, (2014).
- [7] O. J. Wahab et al., Current Opinion in Electrochemistry, 22, 120 (2020).
- [8] A. Kumatani et al., Surface and Interface Analysis 51, 27-30 (2019).
- [9] A. Kumatani et al., Advanced Science 6, 1900119 (2019).

(共同研究分野：複合化機構学分野)

セルロースナノファイバーを前駆体にした高強度チタンの創製と力学特性評価

東北大学 大学院環境科学研究科
栗田大樹, 成田史生, 小山毅士

1. 目的

Ti の機械的特性は主に固溶強化によって向上される。固溶原子は、チタン構造にひずみを与え、転位の運動抵抗を増大させてその移動を阻止する。例えば、純チタンにナノレベルの均一な窒素 (N) および酸素 (O) 原子を分散させると、破断伸びを低下させることなく純チタンの引張強度が劇的に向上することなどが報告されている。一方で、Ti マトリクス複合材料 (TMC) も長い間研究されてきた。Ti を強化材料 (繊維や粒子) で強化し、Ti マトリクスの代わりに荷重を負担することで、TMC は優れた機械的特性を示す。これまでに我々はホウ化チタン (TiB) ウィスカで強化された Ti マトリクス複合材料の引張特性、疲労特性、破壊挙動を評価し、その強化機構が短繊維強化複合材料の理論を用いて議論できることを明らかにした。

セルロースナノファイバー (CNF) は、植物繊維から抽出されたナノセルロースで、植物の細胞壁を構成している。CNF は親水性、生分解性、広範な化学修飾能力など多くの優れた特性を有しており、さらに低密度で高強度であることから、新世代の強化繊維として注目されている。そのため、CNF は航空宇宙、自動車、建築、食品など幅広い分野での応用が期待されている。一方で、CNF が熱に弱いことはよく知られており、ポリマーマトリクス複合材料の強化材として CNF を用いることが多い。

我々の知る限り、これまでに CNF は金属粉末と複合化されたことはない。しかし我々は、CNF が Ti 粉末との圧密中に炭化し、Ti との反応により TiC ナノファイバーに変異する可能性があると考えた。本研究では、圧密時の CNF の Ti 中での形態変化と、CNF 添加による Ti の引張特性の変化を評価した。

2. 研究方法

出発原料として、粒径 45nm 以下の球状ガスアトマイズ Ti および Ti-6Al-4V (64Ti) 粉末 (TILOP-45, TILOP64-45, 大阪チタンテクノロジー株式会社) と CNF 2 wt% スラリー (BiNFi-s IMA-10002, スギノマシン株式会社) を準備した。この粉末とスラリーを電動ミキサー (TM8100, テスコムデンキ株式会社製) を用いて 10 分間混合した後、混合粉末を 110 °C で 24 時間乾燥させた。次に、放電プラズマ焼結 (SPS) 装置 (Dr. Sinter SPS-1050, 富士電波工機株式会社) を用いて、10 MPa の一軸圧力下で、1100 °C, 60 分間、焼結した。CNF の量は、乾燥した Ti と CNF の混合粉末に対して 1.08, 2.16, 3.25, 6.5 wt.% に制御した。得られた成形体の大きさは、 $\phi 50 \times 5 \text{ mm}^2$ であった。また、Ti-CNF および 64Ti-CNF 焼結体の引張特性および微細構造を比較するために、同じ SPS 条件で Ti および 64Ti (すなわち、Ti-CNF 0 wt.% および 64Ti-CNF 0 wt.% 焼結体) を作製した。また、焼結体の組織を走査型電子顕微鏡 (SEM) とエネルギー分散型蛍光 X 線分析 (EDX) によって分析した。

Ti-CNF および 64Ti-CNF 成焼結体から、ワイヤ放電加工 (MV1200R, 三菱電機株式会社) および #600 防水研磨紙による表面層の除去によって引張試験片を作製した。引張特性は、万能試験機 (Ag-50kN Xplus, 島津製作所) を用いて、ISO 6892-1 ("Metallic materials-Tensile testing-Part 1: Method of test at room temperature") にしたがって実施した。Ti-CNF および 64Ti-CNF 試料は公称ひずみとして、Ti-CNF 試料はひずみゲージ (KFL-2-120-C1-11, 協和電業株式会社) で求めた初期ひずみからヤング率および 0.2 % 耐力をそれぞれ推定した。

3. 実験結果

図 1 に、Ti-CNF および 64Ti-CNF 焼結体の典型的な応力-ひずみ曲線を示す。焼結前の Ti 粉末に CNF を添加することにより、Ti 圧粉体の最大引張強さは増加し、破断伸びは減少する傾向にあった。Ti-CNF 3.25 wt.% の焼結体は、700 MPa 以上の最大引張強さ (純 Ti の 2 倍) を示し、14 % 以上の破断伸びを維持した。Ti の破断伸びが硼化チタンウィスカの添加により大幅に低下することを考えると、Ti-CNF 成形体が高い最大引張強さと破断伸びを同時に発現することは注目に値する。内部には TiC の析出が確認 (図 2) され、Ti の最大引

張強さ向上は、Ti 中の O 原子の分散と SiC 粒子の析出の両方によるものと考えられる。しかし、Ti-CNF 6.5 wt.%焼結体は脆性的な挙動を示した。この Ti の脆化は TiC 粒子の過剰な析出や凝集が原因であり、O 原子の Ti への過剰な分散が原因ではないと考えている。実際、TiC 粒子のない領域では延性材料の典型的な破面であるディンプルが、TiC 粒子の周囲では脆性破壊がともに観察された。一方、焼結前の 64Ti 粉末に CNF を添加した焼結体の最大引張強さは向上せず脆化した。

焼結前の Ti 粉末に CNF を添加することで、ヤング率は直線的に増加した (図 2)。また、Ti-CNF 焼結体の 0.2%耐力も CNF 添加により増加し、最大引張強さと同様の傾向を示した。Ti は他の金属と同様に、結晶粒の微細化、転位強化 (=加工硬化)、固溶体強化、粒子分散 (析出) 強化によって強化されることから、本研究において、同じプロセスで製造された Ti-CNF 焼結体の引張特性の違いは、固溶体と粒子分散に起因すると思われる。しかし、本研究では、TiC 粒子の分散状態は偏っており、強化機構を論じるまでに至らなかった。

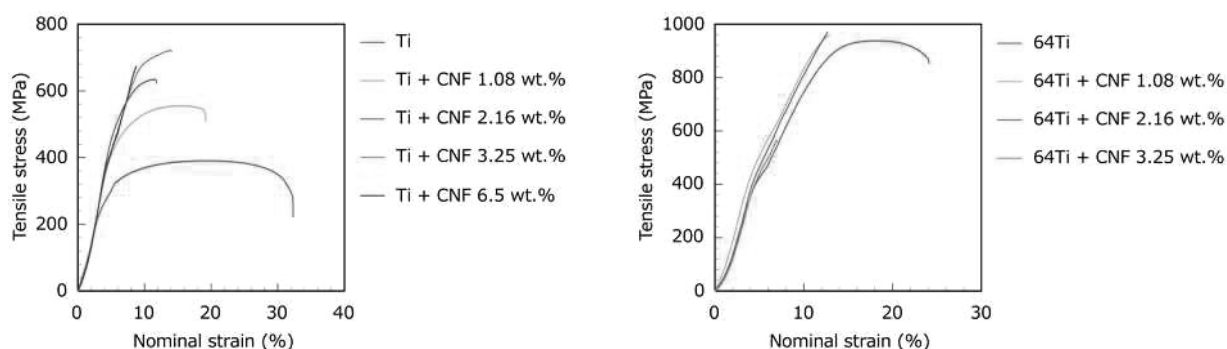


図 1 Ti-CNF および 64Ti-CNF 焼結体の典型的な応力-ひずみ曲線

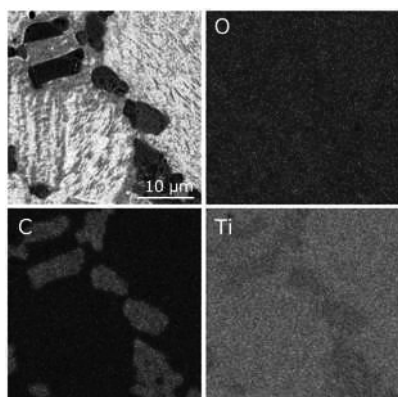


図 2 SEM 観察および EDX 結果

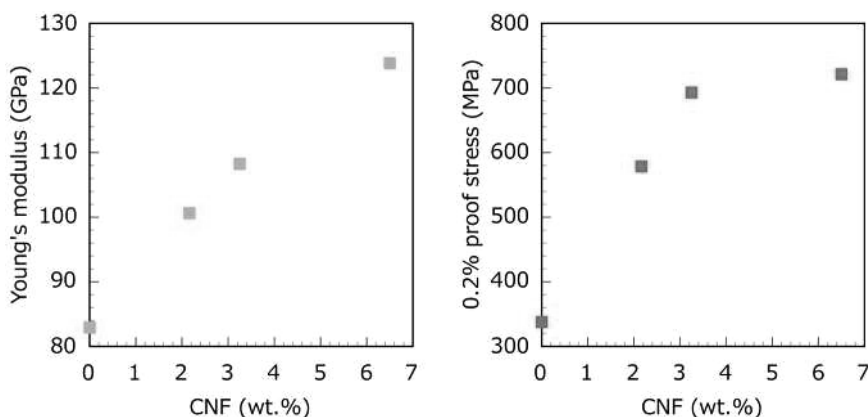


図 3 CNF の添加量とヤング率および 0.2%耐力の関係

4. 結論

SEM 観察と EDX 分析により、炭化した CNF と Ti が反応して、マイクロメートルサイズの球状 TiC 結晶が析出した。Ti-CNF 3.25 wt.%成形体は 700 MPa 以上の最大引張強さと 14 %以上の破断伸びを示した。しかし、Ti-CNF 6.5 wt.%の成形体は脆性的な挙動を示した。また、64Ti-CNF は CNF の添加量によらず脆性的な挙動を示した。CNF 添加による Ti の力学特性の向上は、TiC 粒子の分散と O 原子の固溶体強化の両方によるものであると考えられるが、さらなる検討が必要である。

(共同研究分野: 複合化機構学分野)

高濃度炭素含有チタン積層造形材の結晶組織形成機構の解明

東京大学 政策ビジョン研究センター 古月文志

1. 緒言

選択的レーザー溶融(Selective Laser Melting; SLM)法は、金属粉末にレーザーを照射し、超急凝固現象を利用して材料を作製する方法であり、切削加工では作製が困難な 3 次元複雑形状を一つのプロセスで作製可能である。本研究で使用するチタン(Ti)は、他の金属材料と比較して比強度、耐腐食性および生体適合性に優れるという特徴を活かして、航空機用部材や体内埋入型医療デバイスに至るまで幅広く利用されている。しかしながら、この優れた特徴により Ti 合金は難加工性を有しており、3 次元複雑構造の創製を考えると、最終製品形状に近いニアネットシェイプを直接製造できる SLM 法が適していると言える。Ti 合金を工業的に利用するには、高強度化を目指し合金化元素を添加することが一般的である。代表的な Ti 合金として Ti-6 wt.% Al-4 wt.% V 合金(以下、Ti6Al4V 合金と記述する)が知られている。Ti6Al4V 合金は合金化元素として、高価で人体に毒性のあるバナジウム V を使用する。そこで、これらに代わる合金化元素として廉価で人体に毒性のない酸素 O や窒素 N などの侵入型固溶元素の活用が注目されてきた。これらの元素の添加により Ti 合金は高強度化するが、著しく脆化することが知られている。これまでに複合化機構学分野では、Ti-N 合金において SLM 法の超急凝固現象を利用することにより窒素成分の均一固溶を実現し、窒素固溶 Ti SLM 材が高強度かつ高延性を有することを明らかにした[1]。具体的には、Ti-0.3 wt.% N SLM 材の破断伸び(22 %)は同濃度窒素含有焼結押出材(8 %)の 3 倍を達成すると同時に、924 MPa の 0.2 %YS を有した。これら侵入型固溶元素の一つとして知られる炭素 C も同様に、SLM 法の利用による優れた強度・延性バランスが期待されるが、これまでに SLM 法を用いて炭素固溶 Ti 材の結晶組織を詳細に議論した研究は確認できなかった。そこで本研究では、Ti 積層造形材を対象に炭素成分の高濃度添加による結晶組織を詳細に調査し、炭素含有 Ti 積層造形材の組織形成機構の解明を目指す。

2. 実験方法

試料の作製には、原料粉末として Ti 粉末(純度 99.7 %, 平均粒径 26 μm , (株)大阪チタニウム製, TILOP-45), TiC 粒子(純度 99 %, 粒径 3 μm , (株)高純度化学研究所製)を用いた。まず、Ti 粉末と TiC 粒子を Ti-x wt.% TiC(x = 0, 0.25, 0.5, 1.0, 2.0)の 5 組成で秤量し、プラスチックボトルに封入後、ロッキングミル装置を用いた混合処理(振動数:60 Hz, 混合時間:3.6 ks)を行った。その際、局所的に凝集した TiC 添加粒子の粉碎・分散を目的に、 $\phi 5$ mm のジルコニア(ZrO_2)製メディアボールを投入粉末に対して重量比 0.1(粉末:メディア = 10:1)の割合で加えて混合処理を施した。この混合粉末を用いて適正な SLM 条件(出力:160 W, 走査速度:535 mm/s, サポート高さ:1.5 mm, 造形チャンバー内酸素濃度:100 ppm 以下)にて試料を作製した。その後、残留応力除去のために真空雰囲気下で 500 $^{\circ}\text{C}$ にて 3.6 ks 加熱保持した。得られた SLM 材に対して XRD 解析による相同定を行った。X 線回折パターンを Bragg の条件式により解析することで、母相 α -Ti 結晶の格子定数を算出した。TEM-EDS により元素分析を、SEM-EBSD 解析により結晶組織構造を観察した。

3. 実験結果及び考察

3.1 SLM 材における TiC 粒子の分布状況

まず、SLM 材の中に残存する TiC 粒子を構造解析すべく、TEM-EDS 分析を行った。その結果を Fig. 1 に示す。TEM-BF 像中心の粒子は炭素が濃化していることから TiC 粒子であると考えられる。制限視野回折により同 TiC 粒子は $\langle 33-2 \rangle$ 方位と $\langle 1-1-1 \rangle$ 方位を有することから、多結晶であることを確認した。また、その粒子形状は丸みを帯びている。一方、原料 TiC 粒子は角張った形状を有し、SLM 材中の TiC 粒子と同様に多結晶である。これらの結果より、SLM 材中の TiC 粒子は SLM 過程にて完全に分解し、再析出した粒子ではなく、未分解のまま SLM 材の中に残存した粒子であるといえる。また、その粒子形状は丸みを帯びていることから TiC 粒子表面は母相 Ti と反応したと考えられ、その際に TiC 由来の炭素成分は母相 Ti 中に固溶したと考えられる。

3.2 結晶組織の炭素量依存性と組織形成機構

EBSD 解析により、純 Ti (Ti-0wt.% TiC) 材は積層方向に伸びる粗大な柱状組織(平均結晶粒径:33.4 μm)を有していたが、炭素固溶現象によりその結晶粒径は 7.7 μm 以下まで著しく減少した。この結晶粒微細化挙動を Fig. 2 に示す模式図を用いて説明する。純 Ti 材では高温時に発生した粗大旧 β -Ti 柱状結晶粒が積層方向に成長し続け、その後の冷却過程で β 相から α 相へと変態することで粗大な α -Ti 柱状結晶粒を形成したと考えられる。次に、炭素固溶量の増加による Ti-0.5 wt.% TiC 材の著しい結晶粒微細化挙動および柱状結晶粒から針状結晶粒への形状変化は、 β 相からの降温過程で $\alpha+\beta$ 二相領域を経由する際に生じると考えられる。炭素原子が固溶した Ti では、 β 単相域からの降温過程で $\alpha+\beta$ 領域を経て Burgers の方位関係に従い初晶 α 粒が生成する。さらに降温が進むと残存した β 相が相変態して 2 次 α 粒が析出するが、これらが先に生成した初晶 α 粒と接して、その粒成長が妨げられるため、炭素固溶 Ti 材では結晶粒径が大幅に減少する。最後に、Ti-2.0TiC 材は $\alpha+\beta$ 二相領域の温度幅が極めて小さくなっている。そのため、部分的に炭素濃度が高い領域では、純 Ti 材と同様に $\alpha+\beta$ 二相領域を経由せずに β 相から α 相に変態するため、一部で粗大な結晶粒が形成されると考えられる。

3.3 炭素原子の存在状態解析

SLM 材における炭素固溶状態を、実験的に導出した格子定数と第一原理計算を用いた理論的導出との比較により定量的に考察する。侵入型固溶原子は α -Ti において八面体孔サイトが最安定であることが知られており[2,3]、同サイトに固溶した場合 c 軸長が増大する。そこで、八面体孔サイトに炭素固溶した焼結押出材と、SLM 材、第一原理計算を用いて c 軸格子定数の増加量を算出した。その結果、焼結押出材は第一原理計算結果と良い一致を示し、八面体孔サイトに炭素原子が固溶していると考えられる。一方、SLM 材では焼結押出材で見られたような増加傾向は確認できず、 c 軸格子定数はほぼ一定であった。既往研究[4]において、八面体孔サイトへの炭素固溶により酸素固溶強化の発現が示唆されるが、SLM 材では同サイトに炭素固溶していないことから炭素固溶強化が発現しない可能性が考えられる。

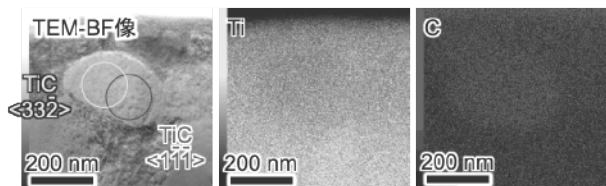


Fig. 1 Ti-2.0 wt.% TiC 積層造形材の TEM-EDS 分析結果(粒径 200-300 nm の TiC 粒子分散)

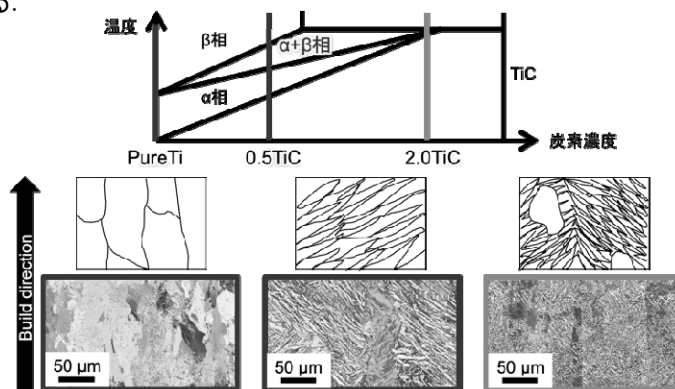


Fig. 2 異なる炭素量を含む Ti-C 系積層造形材の結晶集合組織変化(微細粒化・針状化)と相変態の関係

4. 結言

炭素含有 Ti 積層造形材では、積層造形過程において TiC 粒子は分解し、解離した炭素原子は母相 Ti 中に固溶する。純 Ti 造形材では、エピタキシャル成長過程で形成される旧 β 粒の相変態によって生成する粗大な柱状結晶粒を有するが、炭素固溶現象により微細な針状組織へと変化した。この結晶粒微細化挙動は $\alpha+\beta$ 二相領域を経由する際、 β 相が相変態して析出する 2 次 α 粒が先に生成した初晶 α 粒の粒成長を抑制することが主たる原因と考えられる。

参考文献

- [1] A. Issariyapat et.al., Additive manufacturing, 36, 2020. DOI:10.1016/j.addma.2020.101537.
- [2] S. K. Nayak et.al., Npj Computational Materials, 4, 2018. DOI:10.1038/s41524-018-0068-9.
- [3] K. Shitara et.al., Scripta Materialia, 203, 2021. DOI:10.1016/j.scriptamat.2021.114065.
- [4] K. Kondoh et. al., Materials Science and Engineering A, 795, 2020, DOI: 10.1016/j.msea.2020.139983.

1. 緒言

ショットピーニングは金属部材の疲労強度向上するため、航空機産業や自動車産業で広く用いられている。空気式ショットピーニングの施工は、ショット径、ショット材質、空気圧、およびカバレッジなどで管理される。ショットピーニングの重要な物理的因子としてショット速度があるが、ショット速度を直接計測した例は少ない^{1)~3)}。

本研究では、高速カメラと Particle Image Velocimetry (PIV) を用いて、ショット速度を直接計測した。また、ショット速度と残留応力分布の関係を FEM で明らかにした。

2. 実験方法

2.1 ショット速度の計測

実験には直圧式ショットピーニング装置を用いた。ショットは ASR170 (平均粒径: 0.5 mm, 材質: 低合金鋼) である。エア圧を 0.14~0.35 MPa でショットを投射した。ショット速度の計測では試験片を設置しなかった。高速度カメラはナックイメージテクノロジー社の MEMRECAM ACS-1 を用いた。シャッター速度は 1/250,000 秒、フレーム速度は 50,000 fps である。解像度は 1028 × 720 ピクセルでノズルから約 150 mm の範囲を撮影した。PIV はフローテックリサーチ社の FtrPIV を用いた。ショットの移動量の推定には粒子追跡法を用いた。検査窓は 16×16 ピクセルである。234 ペアの画像解析を行い、ショット速度を求めた。

2.2 残留応力の計測

試験片として Al-Mg 合金 A5052 の板を用いた。寸法は長さ 76 mm×幅 19 mm×板厚 5mm である。空気圧を 0.14, 0.20, 0.30 MPa で試験を行った。ノズルから試験片までの距離 (スタンドオフ距離) は 140mm で、ピーニング時間は 160 秒とした。このピーニング時間はアルメンストリップのサチレーション曲線からカバレッジが 200%となる時間を設定した。ショットピーニング後にパルステック社の μ -X360 を用いて、X 線回折法で残留応力を求めた。用いた特性 X 線は Cr の $K\alpha$ 線で、アルミニウムの (211) 面のピークで計測した。板厚内の残留応力を計測する場合は表面より順次、電解研磨で直径 8mm の範囲の領域を除去して計測した。

3. ショット速度の計測結果

ショットの撮影画像を Fig. 1 に示す。代表例としてエア圧が 0.30 MPa の場合である。画像は左右を鏡面反転し、ノズル近傍のみを示している。ノズルから投射後、ショットは広がりながら飛行している。PIV で求めたノズル中心線でのショット速度の変化を Fig. 2 に示す。234 ペアの画像解析結果をすべてプロットしているが、計測結果にばらつきがある。また、検査窓の範囲にショットがない場合、速度が 0 となっている。このため、スタンドオフ距離が遠くなると、0 の値が多くなる傾向にある。そこで、スタンドオフ距離とショット速度の関係を、最小二乗法で累乗関数に近似した。Fig. 2 に近似線を実線で、 $\pm 10\%$ を破線で示す。ショット速度は近似線と $\pm 10\%$ の範囲に含まれている。ショット速度はノズルから投射された後に圧縮空気により加速される。今回計測した約 150 mm の範囲ではショットはわずかに加速されている状態である。

同様に 0.14~0.35 MPa までのショット速度の計測結果の近似線を Fig. 3 に示す。いずれのエア圧でもショット速度の変化は 0.30 MPa の場合と同じ傾向を示し、エア圧が高いほど、ショット速度は速い。A5052 板にショットピーニングを行ったスタンドオフ距離 140 mm でのショット速度は、0.14 MPa で 30.7 m/s, 0.20 MPa で 38.9 m/s, 0.30 MPa

で 46.1 m/s である。

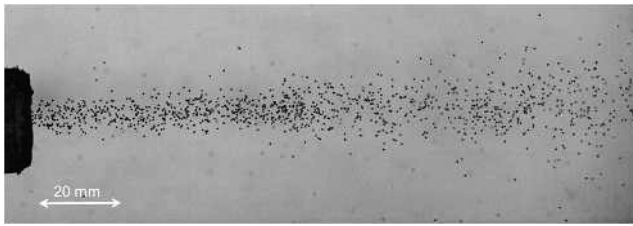


Fig. 1 Images captured by the high-speed camera at 0.30 MPa

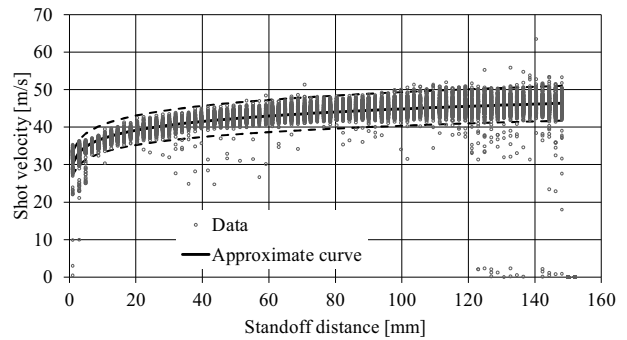


Fig. 2 Shot velocity distribution analyzed with PIV at 0.3 MPa

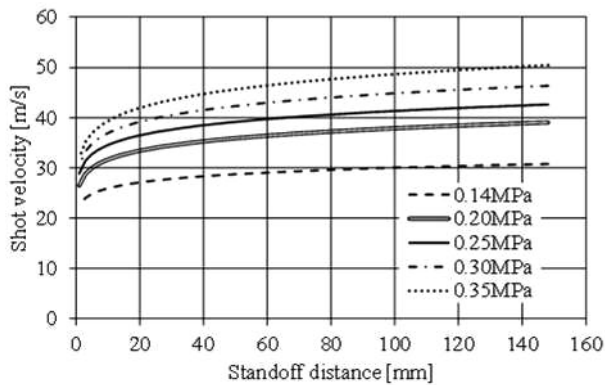


Fig. 3 Shot velocity distribution measured with PIV

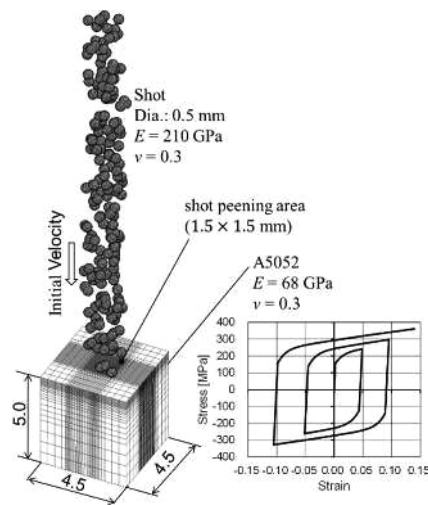


Fig. 4 FE model

4. 有限要素法モデル

動的陽解法 FEM コード LS-DYNA を用いて、ショットピーニングプロセスの有限要素法で計算した。FE モデルを Fig. 4 に示す。ステップ 1 では、測定したショット速度で 400 個のショットを投射し、ショットと試験片の接触を定義することで、過渡的な応力とひずみを解析した。ステップ 2 では、ショットピーニングが完了後に、静的陰解法 FEM を用いて、残留応力を解析した。Fig. 4 に A5052 合金の応力-ひずみ曲線を示す。1.5×1.5 mm のショットピーニング領域に、0.1 mm の間隔を空けてショットをランダムに配置した。200 個のショットを衝突させると、表面のすべての要素が圧痕に含まれるようになり、カバレッジは 100% 以上となった。400 個のショットでは、カバレッジは 200% 以上となった。ショットは直径 0.5 mm の球体で、弾性体とした。ショットと試験片の間の摩擦係数は 0.2 とした。

5. FEM 結果と実験結果

Fig. 5 と Fig. 6 に板厚内の残留応力分布の実験結果と FEM 結果の比較を示す。Fig. 5 は 0.14 MPa, Fig. 6 は 0.30 MPa の結果である。解析結果は表面から同じ深さの 1024 要素の応力の平均値で示している。実験結果と FEM 結果はほぼ一致しており、FEM モデルは妥当であることを確認した。

Fig. 7 には 0.14~0.30 MPa における残留応力分布の FEM 結果を示す。残留応力は表面からわずかに深い位置で最大の圧縮応力を示し、板厚内部では圧縮応力は減少する。この傾向は 0.14~0.30 MPa で同じであるが、エア

圧が増加すると圧縮残留応力の領域が深くなる。

Fig. 8 には、表面の応力、圧縮応力の最大値、および圧縮残留応力の深さとショット速度の関係をまとめた。ショット速度が増加すると、表面の圧縮応力と圧縮応力の最大値はわずかに増加する。ショット速度が増加すると、圧縮残留応力の深さは深くなる。これらの傾向はショット速度にほぼ比例する。

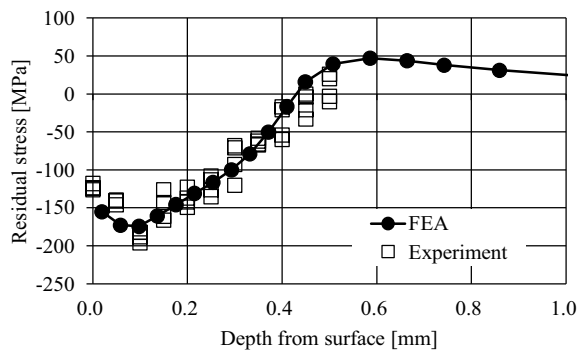


Fig. 5 Residual stress distribution at 0.14 MPa

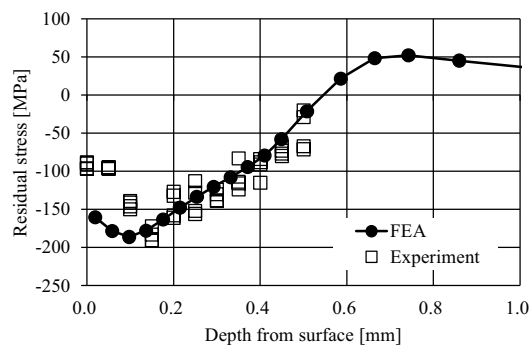


Fig. 6 Residual stress distribution at 0.30 MPa

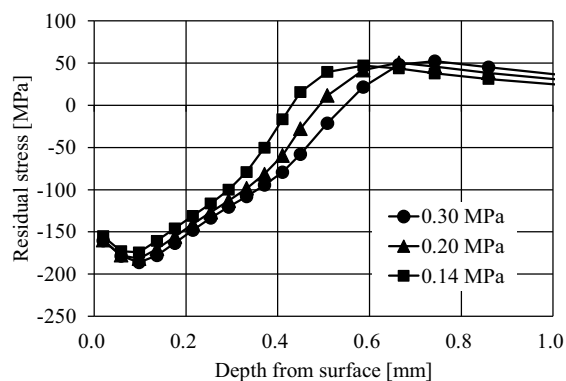


Fig. 7 Effect of shot velocity on residual stress distribution

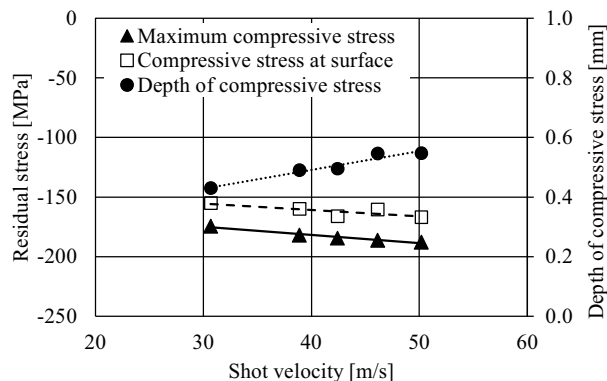


Fig. 8 Shot velocity vs. residual stress distribution

5. 結論

- 1) ショット速度を高速度カメラとPIVで計測可能であり、ショット速度はノズルから150mmまでは加速され、エア圧が高いほどショット速度は速い。
- 2) 2) 残留応力分布のFEM結果は実験結果と一致し、最大圧縮応力と圧縮応力の深さはショット速度に比例して増加する。

本研究は科研費基盤研究C(20K05158)の補助を受けて実施した。

参考文献

- 1) T. Ohta, N. Ma: Mechanical Engineering Journal, 7-4 (2020), 20-00152
- 2) T. Ohta, S. Tsutsumi, N. Ma, Surfaces and Interfaces, 22 (2021), 100827
- 3) T. Ohta, N. Ma: Journal of Manufacturing Processes, 58(2020), 1138–1149

(接合構造化解析学分野)

1. 諸言

高張力鋼板溶接継手部の疲労強度向上対策として、種々の方策が考えられて来た。その中で、低変態温度(Low Transformation Temperature: L.T.T.)溶接材料使用による引張残留応力低減は、疲労強度向上の抜本的対策として有効であることは 20 数年前から認識され、種々検討が試みられてきた。筆者らのこれまでの研究成果として、船体用高張力鋼板製の主板に、スチフナ材を隅肉溶接し、そのスチフナ材先端角回し溶接部に、L.T.T.溶接材料(10Cr10Ni系ソリッドワイヤ)で、長さ 約 40mm の伸長ビードを 80%Ar20%CO₂ ガスで MAG 溶接した場合、角回し溶接継手部の疲労寿命が延伸することが明らかにした。さらに、船舶の修繕の現場等で実用できるよう、各種溶接姿勢にて 16Cr8Ni 系フラックス入りワイヤ(記号:LTTB)を 100%CO₂ ガスで炭酸ガスアーク溶接した伸長ビード角回し溶接継手部の疲労寿命延伸効果について検討している。本研究では、LTTB を用いた伸長ビード施工法の船舶修繕現場での実用化を目指し、5 種類の溶接姿勢で施工した疲労試験体を 3 通りの応力範囲でそれぞれ複数体の疲労試験を実施して S_N 線図を取得し、本手法の有効性を検証した。

2. 疲労試験

2.1 疲労試験体

板厚 20mm および 16mm の船体用高張力鋼板(AH36)を使用した主板とスチフナ材を、Conv. Wire の MAG 溶接(下向姿勢)で、極普通に、直線部の隅肉溶接と、角回し溶接した試験片(タイプ A)を基本とし、各溶接姿勢にて LTTB を用いて 100%CO₂ ガスで炭酸ガスアーク溶接し、伸長ビード角回し溶接継手試験片として供試した。供試した伸長ビード角回し溶接継手試験片の形状・寸法を Fig.1 に示す。また、各種姿勢溶接で施工された角回し溶接継手部の伸長ビード溶接の例を Fig.2 に示す。

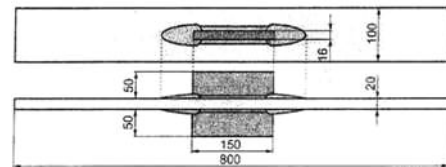


Fig.1 Shape and size of boxing fillet welded joint specimen

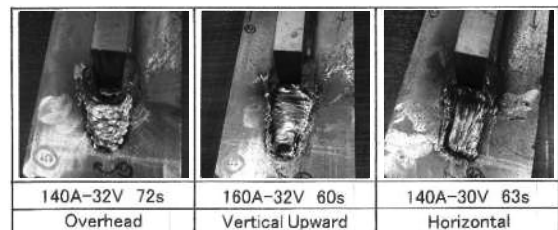


Fig.2 Example of boxing weld・elongated bead weld for every welding position

2.2 疲労試験結果

下向・横向・上向・立向上進・立向下進の 5 種類の姿勢で溶接・製作された伸長ビード角回し溶接継手疲労試験片を供試し、長崎総合科学大学および大阪大学の疲労試験機にて 3 通りの応力範囲にて疲労試験を実施した。なお、疲労試験条件は、室温、大気中、軸力、引張り、荷重一定条件[応力比 $R=0$]、荷重波形は正弦波、応力範囲(σ_R)は 120 MPa, 150MPa, 200MPa の 3 通りで、試験片が破断するまで疲労試験を実施したが、破断せずに事前に設定した目標回数に到達した場合には試験を打ち切った。

疲労試験結果を各溶接姿勢毎に S-N 線図にして Fig.3~Fig.7 に示す。下向姿勢では 3 応力範囲の試験体 6 体すべての疲労寿命が通常角回し溶接継手(TypeA と称す)の 4~6 倍以上に延伸された。横向姿勢においては、応力範囲 200MPa の試験体 1 体のみが明らかな溶接欠陥により疲労寿命がやや短くなっている(ただし、TypeA よりは延伸している)が、その他の試験体は疲労寿命が 6 倍以上に延伸された。上向姿勢では、一部の試験体で疲労寿命が 6 倍以上延伸されたものの、再角回し溶接部やスチフナ止端部に溶接欠陥等が存在する試験片では、疲労寿命が TypeA よりは延伸しているがやや短くなっている。立向上進姿勢では、応力範囲 150MPa, 120MPa では 4~6 倍以上の疲労寿命延伸が達成できている。応力範囲 200MPa では疲労寿命は 3 倍程度の延伸にとどまったが、その原因

については調査中である。立向下進姿勢では、応力範囲 150MPa では4~6 倍以上の疲労寿命延伸が達成されたが、他の応力範囲では疲労寿命もバラツキが大きく、破断起点の位置も様々であった。これも原因を調査中である。

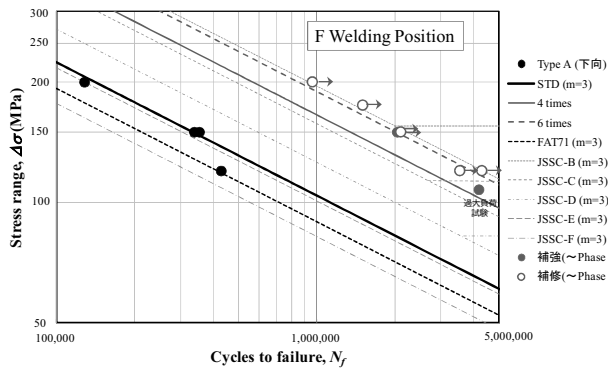


Fig.3 S-N diagram (F Welding Position)

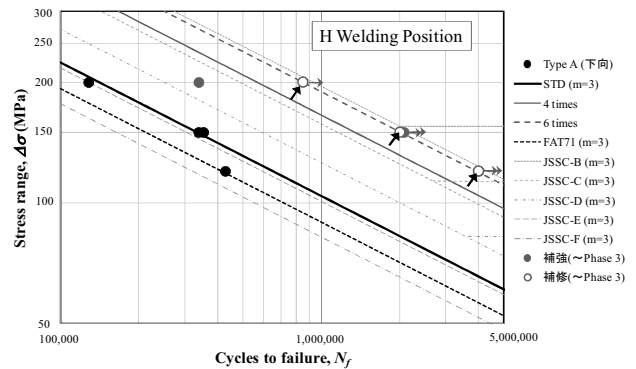


Fig.4 S-N diagram (H Welding Position)

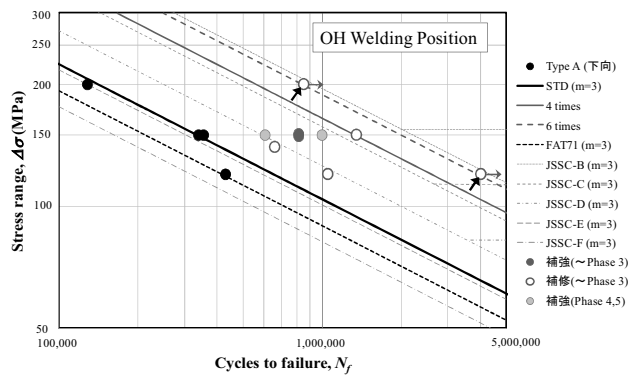


Fig.5 S-N diagram (OH Welding Position)

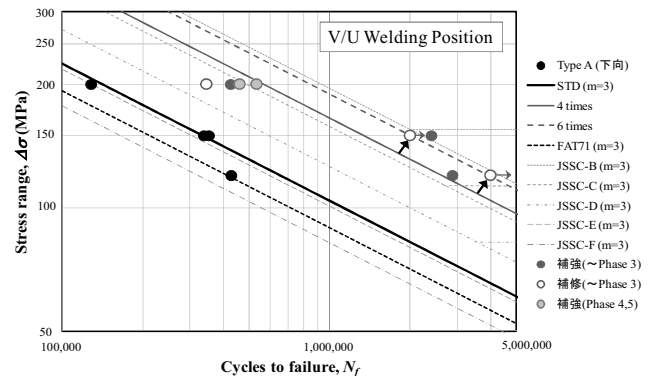


Fig.6 S-N diagram (V/U Welding Position)

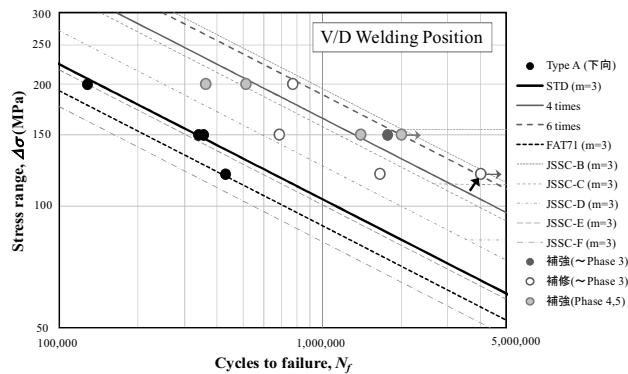


Fig.7 S-N diagram (V/D Welding Position)

3. 結言

本研究では、全姿勢溶接が可能な、LTTB (16Cr8Ni系フラックス入りワイヤ, 100%CO2 ガス使用) で炭酸ガスアーク溶接した、伸長ビード角回し溶接継手部の疲労寿命延伸効果を検証した。その結果、(許容できないほどの)欠陥なく溶接施工できれば、本手法によって大幅に疲労寿命を延伸できることが明らかになった。また、たとえ欠陥があったとしても、通常の角回し溶接継手でのき裂発生点である溶接止端部からのき裂はほぼ発生しておらず、欠陥部からのき裂発生が大半であり、疲労寿命も延伸することも確認できた。上向き等の溶接が困難な姿勢で欠陥が入らないよう施工法をさらに改善できれば、実用化へ大きく近づくと考えられる。

(接合構造化解析学分野)

繰返し大荷重を受ける溶接接手の三次元弾塑性極低サイクル疲労き裂進展解析の基盤構築

東京理科大学理工学部 岡田 裕
電気通信大学大学院情報理工学研究科 遊佐泰紀

1. 緒言

本研究では、繰返し大荷重を受ける溶接接手の三次元弾塑性極低サイクル疲労き裂進展解析の基盤構築の一環として、有限変形弾塑性問題に対する非線形破壊力学パラメータ J 積分計算手法の高度化研究に取り組んできた。本報告では、接合材で起こるような材料の機械的性質の不連続面がある場合についての J 積分定式化と数値解析による検討結果について表す。なお、先行研究である、荒井ら[1]では任意の負荷履歴を有する有限変形弾塑性問題でもいわゆる経路独立性を喪失しない J 積分の定式化と例題解析、Okada et al. [2] では、残留応力や構造内で連続的に変化する材料の機械的性質が変化する場合について取り上げた。さらに、荒井ら[3]では、繰返し荷重下の亀裂進展評価を可能にするための J 積分範囲 ΔJ について検討を行っている。

2. 機械的性質の連続変化と不連続変化を許容する有限変形弾塑性問題に対する J 積分定式化

二次元模式図 (図 1) に示すような、亀裂近傍で幾つかの材料が組み合わされた材料からなる構造を考える。これらの材料境界では、これらの機械的性質が不連続に変化する。材料領域を $\Omega_I^0 (I=1,2,3,\dots)$ 、そしてそれらのうち積分領域に含まれる部分を $V_J^0 (J=1,2,3,\dots)$ とする。 V_J^0 を囲む閉曲面を S_J^0 とする。なお、 V_J^0 の総和により積分領域 V^0 が得られる ($V^0 = \sum_J V_J^0$)。このような仮定の下、 J 積分を次式で表すことができる。第二積分は材料の機械的性質の不連続、第三積分は有限変形弾塑性問題や材料の機械的性質が連続変化する場合に現れる項である。 V_ϵ^0 は亀裂前縁を囲む、半径 ϵ の円筒形微小体積である。本研究で使用した J 積分は、単位亀裂面積の亀裂進展の際に、 V_ϵ^0 内へその単位幅あたりに散逸するエネルギーを表すものである。

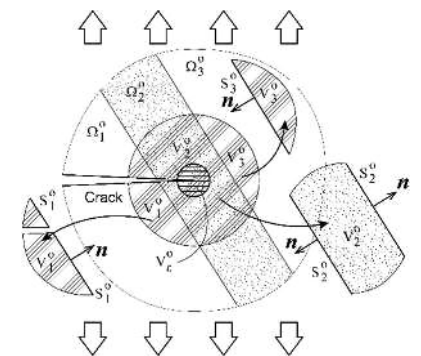


図 1 J 積分積分領域等の模式図

$$\begin{aligned}
 J = & - \frac{1}{DA} \int_{V^0} d_{ik} - P_{ij} \frac{\partial u_j}{\partial X_k} \frac{\partial q_k(\mathbf{X})}{\partial X_i} dV^0 + \frac{1}{DA} \int_{S_J^0} W^0 d_{ki} n_i - n_i P_{ij} \frac{\partial u_j}{\partial X_k} q_k(\mathbf{X}) dS_J^0 \\
 & - \frac{1}{DA} \int_{V_\epsilon^0} q_k(\mathbf{X}) \frac{\partial W^0}{\partial X_k} - P_{ij} \frac{\partial^2 u_j}{\partial X_i \partial X_k} dV^0 \quad \dots (1)
 \end{aligned}$$

式 (1) 第三積分に現れたひずみエネルギー密度や変位こう配の微係数は Nose ら[4]で詳しく述べた局所最小二乗法により、ひずみエネルギー密度や変位こう配を有限要素法解析モデルの節点に与え、有限要素の形状関数を利用した微分操作により求める。局所最小二乗法による手法は、Nose ら[4]にあるように Zienkiewicz and Zhu [5]の Superconvergent patch recovery (SPR) 法に基づく考え方である。なお、残留応力や構造内で連続的に変化する材料の機械的性質が変化する場合に対応した Okada ら[2]の研究では、式(3)第一項と第三項だけとなる。さらに、一様弾性体だけの場合、右辺は第一積分だけとなる。

3. 数値解析による検討

式(1)に基づき試行解析を実施した結果を示す。簡単のために、二種類の材料からなる接合材 (図 2) に対して検討を行った。有限要素法解析モデル中に示すように、材料境界の左側のヤング率を 206GPa、右側を 20600GP とした。ポアソン比は両者とも 0.3 である。図 3 に J 積分のための三種類の積分領域 (大 (large), 中 (Medium),

小 (Small)) の例を示す.

図 4 にき裂前縁の J 積分計算結果の分布を示す. 三種類の積分領域で J 積分計算を行った結果が良く一致しており, 良好な経路独立性を有する. 次に, 図 5 に示すように材料境界を有限要素法解析モデルで陽に表現せず, 有限要素の重心位置座標により材料の種類を割り振る解析モデルを生成した. 材料境界は平面でなく凸凹形状を有する. 図 6 に Okada ら [2] の定式化と式(1)を用いて J 積分計算をした結果を示す. Okada ら [2] の定式化を用いた場合は経路独立性を保持し, 滑らかな J 積分分布が得られた. 一方, 式(1)に示す手法で経路独立性の喪失と J 積分値の亀裂前縁分布に振動が発生した.

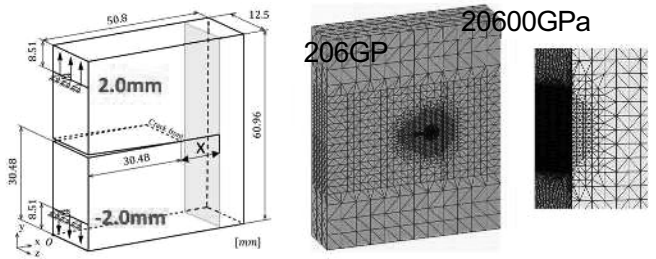


図 2 簡易 CT 試験片と有限要素法解析モデル

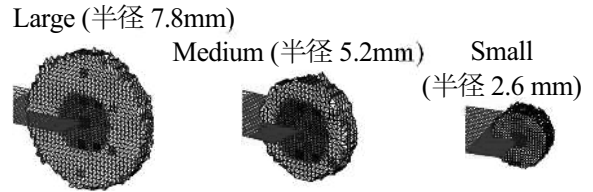


図 3 積分領域の例

4. 結言

接合材を仮定し, 材料の機械的性質が不連続分布する場合の J 積分解析に関する検討を行った. その結果, 予想に反し, 材料の機械的連続変化を仮定した Okada ら [2] の定式化でも高精度な J 積分計算が可能なのことがわかった.

参考文献

- [1] 荒井 皓一郎, 岡田裕, 遊佐泰紀, 任意の荷重経路と有限変形を許容する新しい三次元 J 積分法の提案, 日本機械学会論文集, 84 巻 863 号 p. 18-00115.
- [2] H. Okada, T. Ishizaka, A. Takahashi, K. Arai, Y. Yusa, 3D J-integral evaluation for solids undergoing large elastic-plastic deformations with residual stresses and spatially varying mechanical properties of a material, Eng. Frac. Mech., Vol. 236, 107212, 2020.
- [3] 荒井 皓一郎, 岡田裕, 遊佐泰紀, 有限変形弾塑性問題に適用可能な J 積分範囲 ΔJ の三次元領域積分表示の提案, 日本機械学会論文集, 84 巻 867 号, p. 18-00309.
- [4] M. Nose, H. Amano, H. Okada, Y. Yusa, A. Maekawa, M.Kamaya, H.Kawai, Computational crack propagation analysis with consideration of weld residual stresses, Eng. Frac. Mech., Vol. 182, pp. 708-731, 2017.
- [5] O. C. Zienkiewicz, J. Z. Zhu, The superconvergent patch recovery and a posteriori error estimates. Part 1: The recovery technique, Int. J. Nume. Meth. Eng., Vol. 33, pp. 1331-1364.

【謝辞】プログラム開発および数値計算は東京理科大学大学院理工学研究科機械工学専攻・富部悠太氏にご尽力頂いた. また, 同・永野拓海のご協力に謝意を表す.

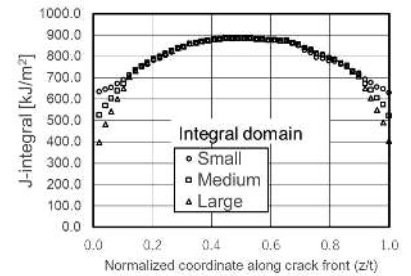


図 4 式(1)を用いた図 2 の解析モデルによる J 積分計算結果 (き裂前縁の分布)

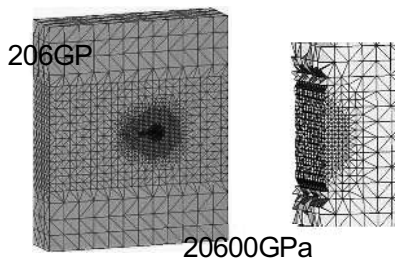
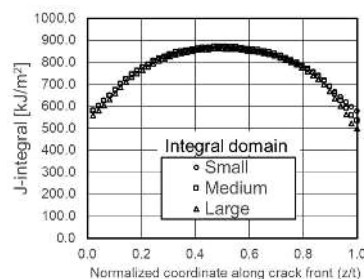
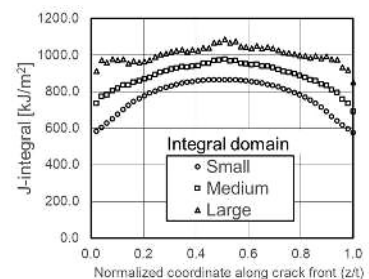


図 5 界面が凸凹形状を有する有限要素法解析モデル



(a) Okada ら [2] の手法



(b) 式(1)による計算結果図

図 6 図 5 の解析モデルによる J 積分計算結果 (き裂前縁の分布)

(共同研究分野: 接合構造化解析学分野)

1. 目的

次世代の輸送機器の電力化および省電力化のためには、搭載される電力変換機器の小型・軽量化が重要な課題となっており、次世代のパワー半導体として SiC 半導体の活用が期待されている。SiC 半導体には $-40\sim 300^{\circ}\text{C}$ の温度範囲での動作が期待されているが、従来の半導体とヒートシンクの層間を接合していた「はんだ」では耐熱性が十分でない。そのため、極低温から高温までの温度変化に耐えられる SiC 基材用の接合法が求められている。本研究では層間の接合材料として、高熱伝導率を有する銅に着目し、先進レーザー技術を応用したレーザー粉体肉盛法による、SiC 基材上への銅肉盛層の生成を試みる。レーザー粉体肉盛法は立体造形も可能な手法であるため、将来的にはヒートシンクシステムの熱設計の尤度を向上できるような構造を有する銅肉盛層の生成も期待できる。しかし、難溶接性の SiC 材料への直接の銅肉盛層の生成は困難である。そこで本研究では W/SiC 基材上へ銅肉盛層を生成する技術概念を考案した。タングステンは高融点且つ、SiC と熱膨張率が近く、SiC との拡散接合が可能である。現状では銅肉盛層の生成に最適な W/SiC 基材の作製や、W/SiC 基材上への銅肉盛形成による接合界面への影響等に関する知見は乏しく、基礎からの研究が必要である。本研究では先進パワー半導体ヒートシンクシステムへの応用を目指した SiC とタングステンの異材接合技術の構築を目的とし、SiC 板材と厚さの異なるタングステン板/薄膜の固相拡散接合を用いた異材接合試験を実施した。併せて、作製した W/SiC 接合材上へのレーザー粉体肉盛法による銅肉盛形成試験を検討した。

2. 実験方法

供試材には $20\times 20\times 2\text{ mm}$ の α -SiC 材と、 $20\times 20\times 1\text{ mm}$ の純タングステン (W) 板あるいは、 $20\times 20\times 0.025\text{ mm}$ の純 W 薄膜を用いた。SiC 材の接合面をダイヤモンドスラリーで鏡面研磨後、W 板あるいは薄膜を重ね合わせ、一軸加圧のホットプレスを用いて温度 1600°C 、圧力 20 MPa 、保持時間 1 h 、Ar 雰囲気中で接合し、W/SiC 基材を作製した。W/SiC 接合材上へのレーザー粉体肉盛試験は大阪大学のマルチレーザー加工システムを用いて、出力 $60\text{--}220\text{ W}$ 、レーザー移動速度 $5\text{--}7\text{ mm/s}$ で実施した。レーザー粉体肉盛試験後の表面観察にはレーザー顕微鏡を用いた。また接合材を切断、断面を研磨し、SEM/EDS を用いて接合界面近傍部の微細組織観察を行った。

3. 研究結果

W 厚さ 0.025 mm 、 1 mm 共に、W/SiC 接合材の作製は可能であり、本研究により、これまでに接合実績がなかった W 薄膜においても、固相拡散接合を用いた W/SiC 接合材が作製可能であることを示した。また、微細組織観察用の試験片加工時 (切断・研磨) にも接合材の剥離は生じなかったことから、両タングステン厚さの接合材ともに、機械加工に耐えうる程度の接合力は有していると考えられる。図 1 に各厚さの W 板/薄膜を用いて作製した W/SiC 接合材の接合界面部の SEM による反射電子像 (BEI) を示す。BEI 像では原子番号の大きい元素は明るいコントラストを示し、元素番号の小

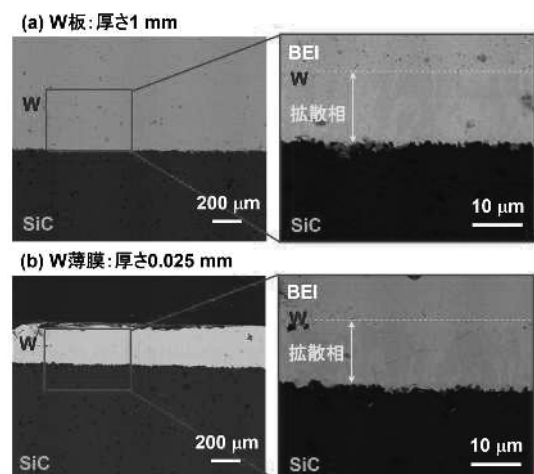


図 1 作製した W/SiC 接合材の接合界面部近傍の反射電子像：

(a) W 板 1^{t} mm、(b) W 薄膜 0.025^{t} mm

さい元素は暗いコントラストを示す。タングステン厚さによらず、接合界面近傍部の W 側にはコントラストの異なる腕状組織を有する拡散相が観察される。この拡散相の厚さはタングステン厚さ 1 mm の W/SiC 接合材で 12 μm 、厚さ 0.025 mm の接合材で 14 μm であった。この拡散相をより詳細に観察するため、SEM/EDS 分析を行った結果、W 側の腕状の拡散相には Si が拡散しており、この拡散相は W 板接合材、W 薄膜接合材で共に観察され、今回検討した範囲でのタングステン厚さによる接合界面相への影響は少ないと考えられる。

W/SiC 接合材（タングステン薄膜材）を 4 枚繋げ、マルチレーザーシステムを用いた銅肉盛試験を実施し、試験後の W/SiC 接合材の表面外観を図 2 に示す。銅肉盛生成条件として、レーザー出力とレーザー移動速度を検討したが、本報告書ではレーザー出力の影響について記述する。銅肉盛層表面のレーザー顕微鏡も含めた観察から、レーザー出力の影響として、レーザー出力 60 W では肉盛層の生成はほとんど観察できなかった。100 W 及び 140 W では不連続ではあるが銅肉盛層の生成が認められた。一方で、180 W では連続した銅肉盛層の生成が観察された。220 W は肉盛層生成途中でレーザー出力が不安定になったが、不安定になる前までは 180 W 同様、連続した銅肉盛層が生成できていた。図 3 にレーザー出力 180 W、肉盛速度 5 mm/s で肉盛試験した W/SiC 接合材断面の SEM/EDS 分析結果を示す。Cu 肉盛層/W 間、W/SiC 間共に剥離は見られず、接合されている。また、Cu 肉盛層中に Si の拡散も観察された。一方で、本試験で最大の入熱であるレーザー出力 220 W の試験後接合材については、W と SiC 管の接合は維持されていたものの、Cu 肉盛層/W 間での剥離が認められた。

4. 結論

本研究では先進パワー半導体ヒートシンクシステムへの応用を目指した SiC とタングステンの異材接合技術の構築を目的とし、SiC 板材と厚さの異なるタングステン板/薄膜を用いた固相拡散接合による異材接合試験を実施した。W 板材 (1 mm)、W 薄膜 (0.025 mm) 共に、レーザー粉体肉盛試験用の W/SiC 接合材の作製が可能であった。作製した W/SiC 接合材上への銅肉盛形成試験を行い、一部の条件にて、W/SiC 接合材上への銅肉盛層の連続的な形成が可能であった。特にレーザー出力 180 W 試料 (肉盛速度 5 mm/s) では Cu 肉盛層-W 間に剥離は見られず、接合が認められたことから、基準となるレーザー肉盛条件を見出すことができた。次年度以降では、W/SiC 接合材の大型化の検討や、レーザー肉盛条件のより詳細な検討を行う予定である。

(共同研究分野：接合構造化解析学分野)

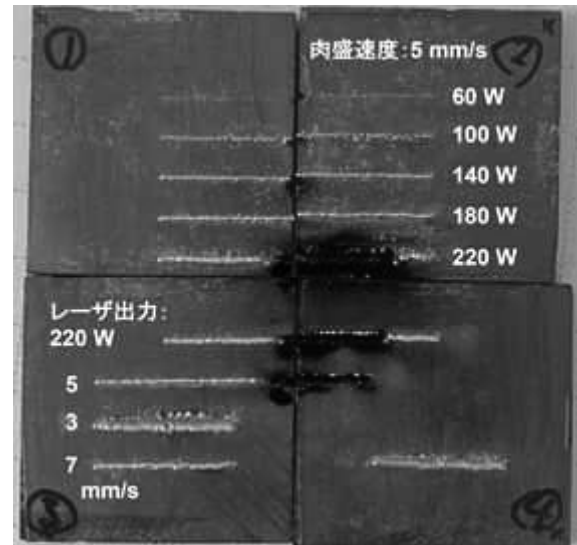


図 2 銅肉盛試験後の W/SiC 接合材表面の外観

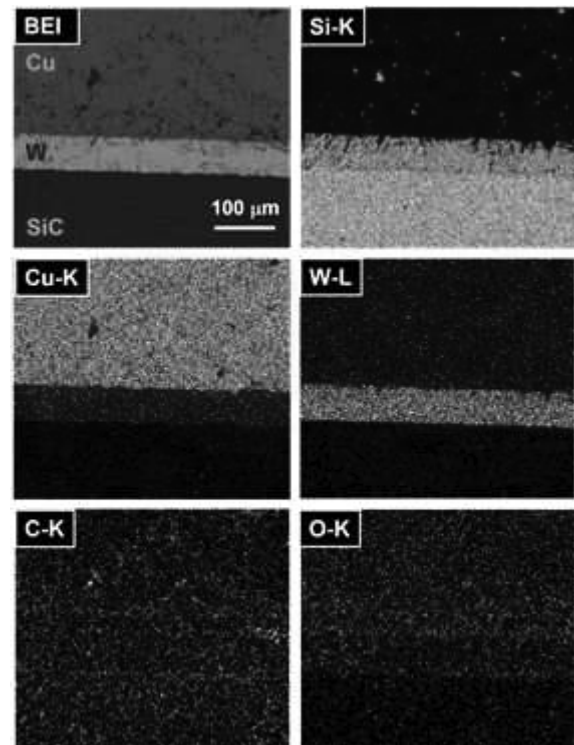


図 3 銅肉盛試験後の W/SiC 接合材断面の SEM/EDS 分析結果
(レーザー出力 180 W、肉盛速度 5 mm/s)

低変態温度溶接材料の WAAM プロセス適用効果の検証

国立研究開発法人 物質・材料研究機構 北野 萌一
大阪大学 接合科学研究所 麻 寧緒

1. 背景および目的

アーク放電により金属ワイヤを熔融して積層する熔融金属積層造形法(Wire and Arc Additive manufacturing: WAAM 法)は、時間当たりの造形量が多く、大きな金属構造部材の新しい製法として期待されているが、プロセス中の熱・材料・力学的な挙動は必ずしも明らかではなく、造形条件の適正化に多大なコストがかかっているのが現状である。本研究では溶接部材の残留応力・変形低減に実績のある低変態温度溶接材料を WAAM プロセスへと適用することを最終目標として、まずは WAAM プロセス中の温度履歴や弾塑性挙動を再現可能な数値シミュレーション手法についての検討を進めている。

2021 年度はオーステナイト系ステンレス鋼を素材として用いた壁状、円筒状造形物の残留応力の実測および数値シミュレーションによる再現方法に関する検討を行った。

2. 実験方法

2.1 造形方法

オーステナイト系ステンレス鋼である JIS 規格 YS308LSi 相当の溶接ワイヤ(ワイヤ径:1.2 mm、以下 SUS308LSi ワイヤ)を素材ワイヤとして使用した。造形物の形状は壁状および円筒とした。両造形物の概観およびおおよその寸法を図 1 に示す。ベースプレート(SUS304)は 4 隅を水冷銅板上に固定した。以上の条件で、層間温度 100℃以下にて造形物を製作した。

2.2 残留応力実測方法

造形物の残留応力はコンター法に実測した。コンター法はワイヤ放電加工により評価対象を切断し、断面の変形状態を 3 次元測定機で評価し、弾性解析により切断前に存在した切断面垂直方向の残留応力を算出する手法である。コンター法により、壁状造形物については、造形物長手方向の残留応力を、円筒造形物については、円周方向残留応力を評価した。

3. 数値シミュレーション方法

数値シミュレーションには熱弾塑性有限要素法を採用した。材料特性は、一般に公開されている文献等を参考にして決定した。熱源は、ガウス分布熱源として、各パラメータは造形物形状を参考にして決定した。

3. 残留応力実測結果および数値シミュレーション結果

図 2 に壁状および円筒造形物断面の、コンター法による残留応力評価結果を示す。これらの図より、いずれの形状においても、ベースプレート近傍では圧縮で造形物上部では引張の残留応力分布となっていることがわかる。これは、造形物上部はプロセス後期に造形される領域であり、その領域の冷却中の収縮に起因していると考えられる。

図 3 に、図 2 中 O-O'ラインおよび L-L'ライン上の残留応力実測結果と数値シミュレーション結果を併せて示す。数値シミュレーション結果については、ベースプレートの固定開放前後の分布について示している。この図より、残留応力実測結果と数値シミュレーション結果(固定解放後)は、その分布および絶対値について概ね一致していることがわかる。本結果より、WAAM プロセスにおける熱弾塑性挙動を適切に再現可能な数値シミュレーション手法が開発されたと考えられる。

4. まとめ

オーステナイト系ステンレス鋼を用いて壁状および円筒造形物の製作を行い、コンター法により残留応力を評価した。さらに、熱弾塑性数値解析により、その残留応力分布を再現する方法について検討した。今後、開発した数値シミュレーション手法により、低変態温度溶接材料を使用した場合の熱弾塑性挙動解析を進める。

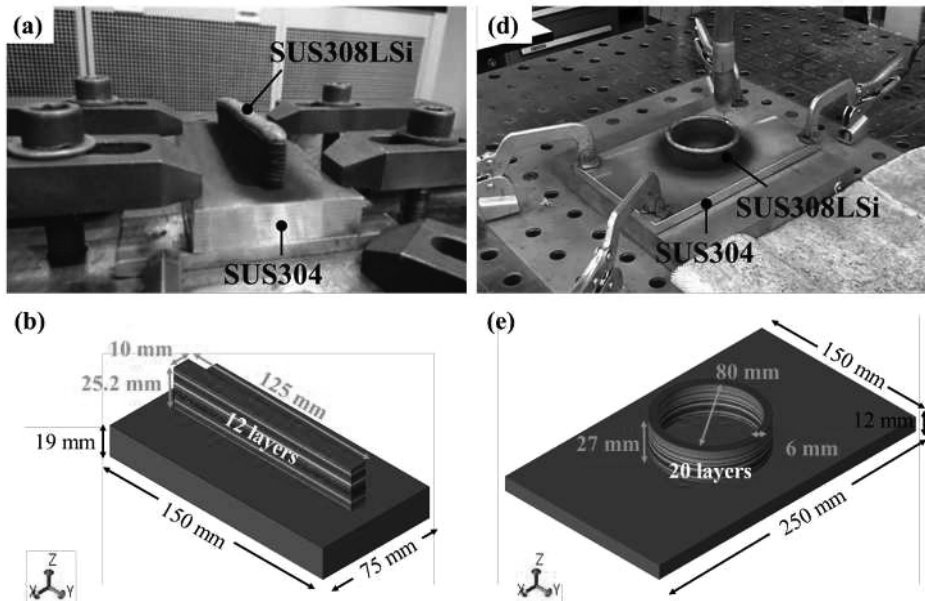


図1 壁状および円筒造形物の概要((a),(b)壁状造形物、(c),(d)円筒造形物)

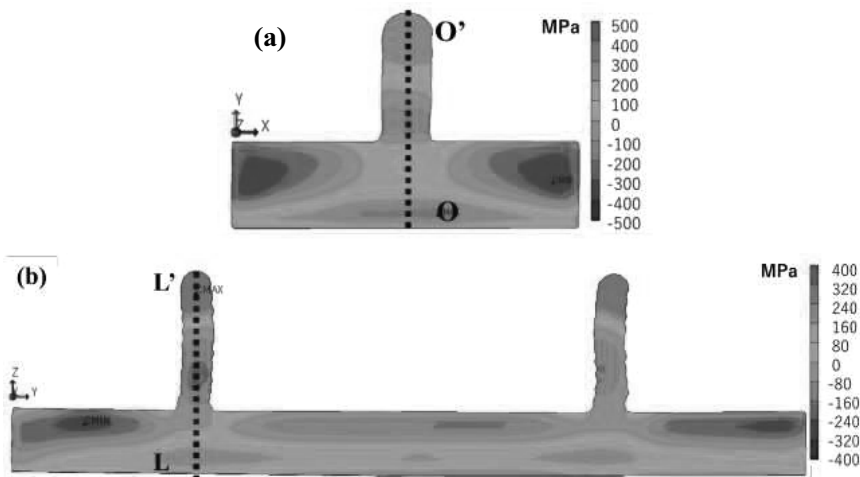


図2 コンター法による残留応力評価結果((a)壁状造形物、(b)円筒造形物)

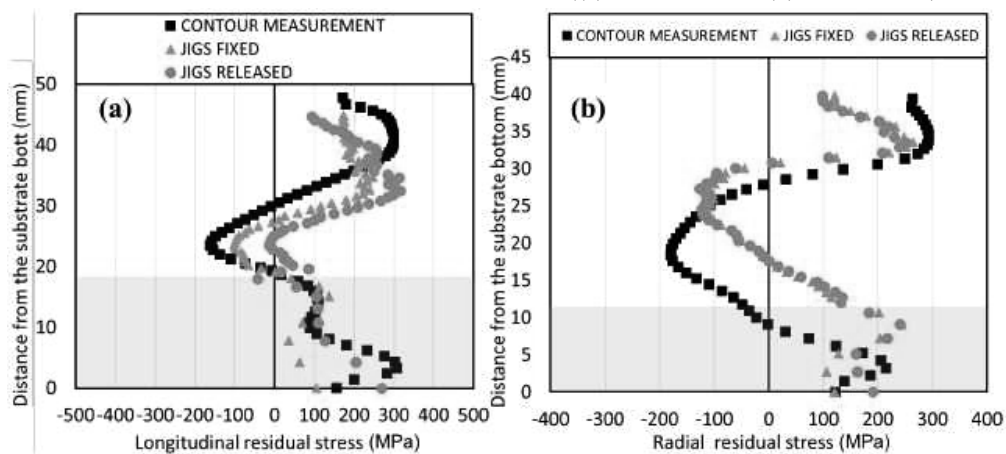


図3 残留応力実測結果と数値シミュレーション結果の比較((a)壁状造形物、(b)円筒造形物)

(共同研究分野: 接合構造化解析分野)

1. 諸言

化学産業・食品などの攪拌操作における温度や粘度測定は、熱電対による温度の点計測や試験終了後のサンプリングによる粘度測定が一般的である。高収率、高品質な製品を生産するためには攪拌システムの高熱応答かつ高精度な制御が求められ、制御のためのデータ取得が不可欠である。温度などの攪拌パラメータを空間的な分布情報として測定できる手段としてレーザーの後方散乱光を利用した光ファイバ計測法が有力である。これまでの攪拌槽を対象とした光ファイバ計測例は静止系における溶液の温度測定、攪拌槽内部の付着物の検知のみであった。

本研究では、光ファイバによる多変数・分布計測の可能性を検証するために、攪拌システムの回転軸に光ロータリージョイントを組み込み、攪拌翼の回転系における攪拌槽内部の溶液の温度測定と粘度測定を試みた。ここでは、その可能性検証結果について報告する。

2. 実験装置及び実験方法

Fig.1 は本研究で使用した光ロータリージョイントで静止部と回転部から構成される。Fig.2 は Fig.1 の光ロータリージョイントを上部に組み込んだニューブレクス社製の攪拌システムを示す。

Fig.3 はゲート翼(□250mm×厚み2mm)における温度と翼ひずみ測定用の光ファイバ線の装着位置(温度：赤線、ひずみ：青線)、熱電対温度測定位置(●1~6)、ひずみ評価位置(●1~4)の距離情報を示す。

光ファイバは、温度測定用としてはφ0.2 mmの素線がφ1mmのステンレス管内のシリコン油に浸漬されたFIMT(Fiber in metal tube)(赤線)、翼ひずみ測定用としては素線(青線)を使用した。また、温度校正用熱電対が翼板に装着され、無線データロガーから温度データがPCに送信されている。

2.1 FIMTによる温度測定

溶液としては水と粘度 5000、10000 mPas の CMC 水溶液(Carboxymethyl cellulose solution)を使用し、回転数を 30 rpm と一定のもとで、ステンレス製の攪拌槽の底部を IH ヒータにより加熱しながら常温→30°C→40°C→50°Cとステップ状に加熱して、レイリー散乱光の周波数シフト量 $\Delta\nu$ を計測する。各溶液温度帯における換算係数 $C(=\Delta T/\Delta\nu)$ は約10°Cの温度差 ΔT を $\Delta\nu$ で除して求めた。

2.2 光ファイバ素線による翼ひずみ測定

CMC 水溶液の温度は25°C一定、溶液粘度は5800、7000、10000 mPas、回転数は40、60、80 rpmで実験を行なった。その際に $\Delta\nu$ のリファレンスデータは無回転時の値とし、粘度と回転数が翼ひずみに及ぼす影響を $\Delta\nu$ との関係性から評価した($\Delta\nu$ のひずみへの変換は麻研究室で別途実施)。

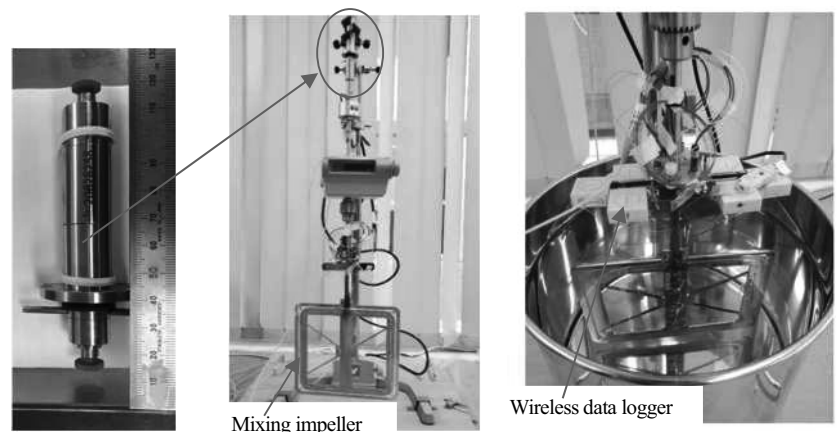


Fig. 1 Optical rotary joint

Fig. 2 Experimental apparatus

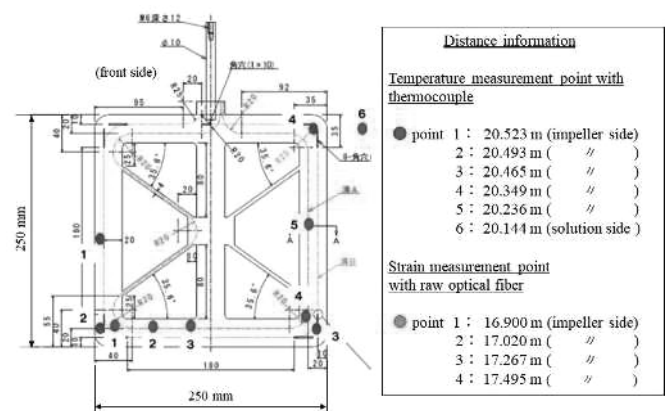


Fig. 3 Measurement points and distance information

3. 実験結果

3.1 FIMT による温度測定精度の検証

Fig.4 は、一例として粘度が約 50000 mPa・s の CMC 溶液を用いた翼位置 CH1 における光ファイバによる測定温度と熱電対による測定温度の時間推移を示す。図を見ると光ファイバと熱電対の示す温度がほぼ同じ値となっており、高粘度液体の温度変化速度約 0.4 °C/分に対して十分な精度で温度測定ができた事を示している。水、CMC 水溶液(粘度約 10000 mPa・s)を対象とした場合においても同様に十分な温度の一致が認められた。

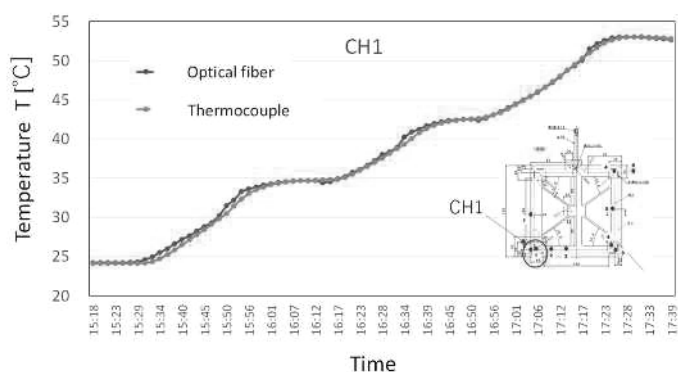


Fig. 4 Transit temperature profile at CH 1 on mixing impeller

3.2 光ファイバ素線による周波数シフト $\Delta\nu$ と濃度、回転数との関係性評価

回転数及び粘度の変化が翼ひずみ($\Delta\nu$)に及ぼす影響について検証した。Fig. 5 に一例として粘度 5800 mPa・s の CMC 水溶液における翼回転数の変化 (N=40,60,80 rpm) に伴う周波数シフト量 $\Delta\nu$ [GHz] の変化を示す。図中の○で囲まれた $x=16.8$ m 近傍及び $x=17.8$ m 近傍で示された点に注目すると、翼回転数増加に伴い、翼ひずみに相当した周波数シフト $\Delta\nu$ が増加している事が分かる。 $x=16.8$ m 近傍では負、 $x=17.8$ m 近傍では正の値を示すが、前者に圧縮応力、後者に引張応力がかかっているが回転方向が反時計回りであることから妥当であると言える。また、これら $\Delta\nu$ が大きい領域は回転軸の下端から翼上部の水平部にかけての両端部分であり、回転数の増加に伴い、 $\Delta\nu$ が増加している。これは溶液の抗力が増加するためと考えられる。Fig.6 は回転数が 40 rpm と一定のもとで溶液粘度を変化させた時の $\Delta\nu$ の変化を示す。○で囲まれた領域では、その関係性が弱い粘度の増加につれて $\Delta\nu$ は増加傾向にある。

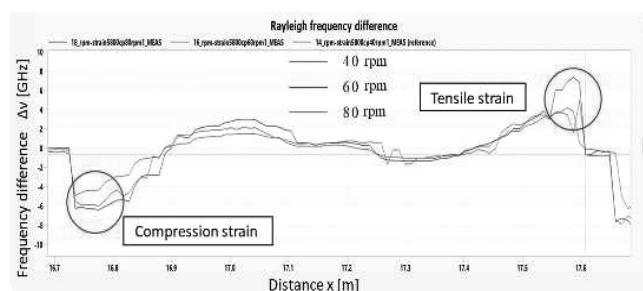


Fig. 5 Relationship between distance x and frequency difference $\Delta\nu$

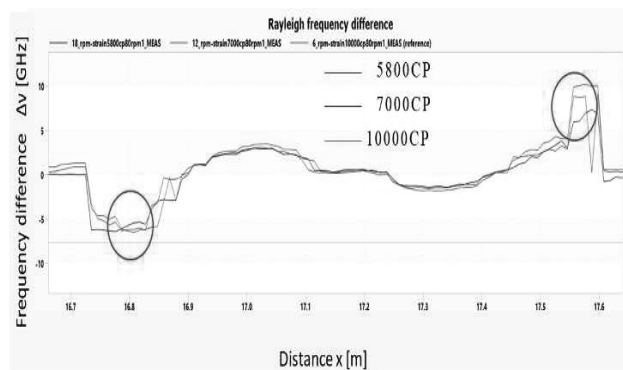


Fig. 6 Relationship between distance x and frequency difference $\Delta\nu$

4. 結言

光ファイバによる多変数・分布計測の可能性を検証するために、攪拌システムの回転軸に光ロータリージョイントを組み込み、攪拌翼の回転系における攪拌槽内部の溶液の温度計測と粘度計測を試み、以下の結論を得た。

- (1) 高粘度溶液に対して、ステンレス管で被覆保護された FIMT にて温度変化速度 0.4 °C/分に対して十分な精度での温度測定が可能である。
- (2) 回転数の増加、また、関係性が弱い粘度の増加に伴い $\Delta\nu$ が増加する傾向が認められる。

今後、以下のような課題に取り組み、光ファイバによる実用的な多変数・分布計測技術を確立させる。

- ① 溶液粘度と $\Delta\nu$ の関係性を明確にするためにニュートン流体である水飴水溶液にて粘度域を拡張して同様な検証を行う。
- ② 翼を誘導加熱した時の $\Delta\nu$ と翼温度、溶液粘度との関係性について検証する。
- ③ 翼周りの熱流体解析と翼構造解析の連成にて $\Delta\nu$ (翼ひずみ)から溶液粘度(重合度)を同定できる手法の開発を進める。

(接合構造化解析学分野)

1. 諸言

マグネシウム合金は構造部材に用いられる金属としては最も密度が低く、また機械加工性や耐食性などにも優れることから、輸送機器や医療部品など幅広い分野で利用が進められている。一方、六方晶金属であるマグネシウム合金は従来から用いられてきた構造用金属とは巨視的な変形特性が大きく異なるため、その加工が難しい。そのため、今後の利用拡大には数値シミュレーションによる成形性の事前予測が不可欠であり、マグネシウム合金の挙動を記述可能な材料モデルに関する研究が近年活発に展開されている。本研究では、Kim らの研究 [Kim, et al., Int. J. Plast., 50 (2013), 66-93] に基づく新しい材料モデルを提案し、有限要素法ソフトウェア LS-DYNA に組み込み、クラッシュボックスの変形挙動予測を試みた。また板厚や摩擦係数といった諸因子が解析精度に及ぼす影響を調査した。

2. 材料モデル

マグネシウム合金では、双晶の活動が加工硬化挙動に大きな影響を及ぼすことが知られている。特に底面集合組織が発達している場合、顕著な引張-圧縮非対称性を示す。Kim らは、双晶形成、双晶回復、またすべりが加工硬化挙動に及ぼす影響を個別に定式化した材料モデルを提案した。本研究では、実用的な観点から Kim らの手法を簡略化した新たなモデルを提案した。具体的には、すべりが主体である引張変形の記述には Hill1948 降伏関数を用い、双晶が支配的となる圧縮変形の記述には引張-圧縮非対称性を考慮可能な Cazacu2006 降伏関数を用いた。また、シェル要素への実装を想定して、板厚方向の応力成分を無視した平面応力状態を仮定した。Fig.1 に、本モデルによって得られた繰り返し反転負荷時の応力-ひずみ曲線を示す。ここでは、3%までの引張→-3%までの圧縮→3%までの引張変形を与えた際の結果を示す。従来の von Mises 降伏関数を用いると予測精度が極めて低いのに対して、本モデルにより予測された結果は実験結果を良好に再現しており、モデルの妥当性が示された。

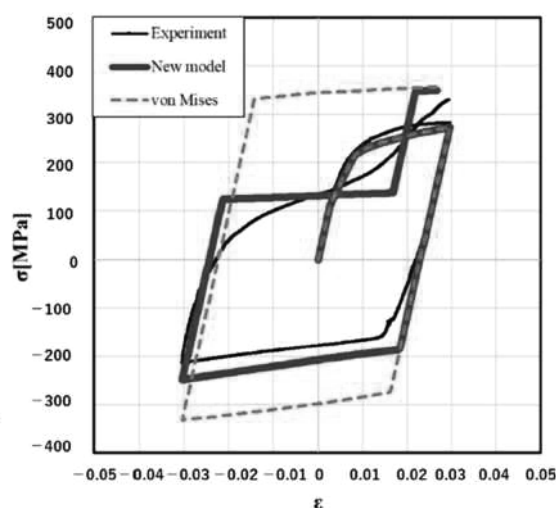


Fig.1 Stress-strain curves under cyclic loading.

3. クラッシュボックスの衝突解析

提案した材料モデルを用いて、自動車用クラッシュボックスの衝突変形シミュレーションを行った。本クラッシュボックスは、自動車の低速衝突において衝撃エネルギーを吸収することを目的として組み込まれている部品である。素材は板厚が 1.96mm の AZ91 マグネシウム合金板である。解析では、本部品を 7906 個のシェル要素によりモデル化した。その様子を模式的に Fig.2 に示す。モデル上、接合部の溶接強度は無視した。解析では、実験を模して剛体平板を 100mm/s の速度でクラッシュボックスに衝突させ、その時の変形挙動を試みた。クラ

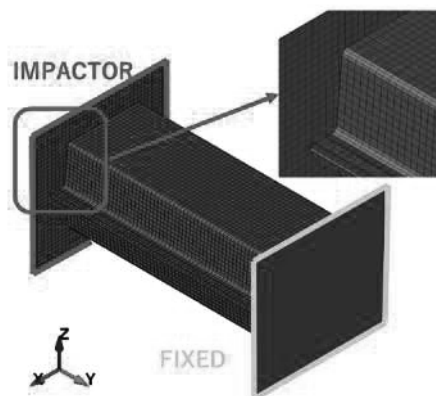


Fig.2 Finite-element model.

ッッシュボックスと剛体平板の間の摩擦係数は、0.1 と設定した。

4. 結果と考察

解析で得られた変形後の形状を Fig.3 に示す。なお、解析結果に及ぼす板厚および摩擦係数の影響を調査するため、板厚 2.0mm、摩擦係数 0.2 とした場合の解析結果も合わせて示す。以下、第 3 節で示したモデルを通常モデル、条件を変更したモデルを条件指定モデルと呼ぶ。また、実験で得られた結果を Fig.4 に示す。荷重—ストローク曲線では、弾性域まではいずれのモデルも良好に実験結果を再現している。一方、塑性域では、通常モデルは実験結果を良好に再現しているのに対して、条件指定モデルは荷重を過剰に見積もっている。変形形状を比較すると、モデルによって明瞭な違いがみられる。具体的には、通常モデルでは端部に変形が集中しているのに対して、条件指定モデルでは部材全体にわたって座屈が生じている。いずれも実験結果とは完全な一致はみられないものの、相対的には通常モデルの結果がより実験結果に近いと考えられる。以上より、提案した材料モデルおよび適切な解析条件を用いることで、定性的に一致する解析結果が得られることが明らかとなった。

前述のように、素材の板厚や摩擦係数は解析結果に大きな影響を及ぼすことが示された。そこで、条件を種々に変更した数値実験を行い、その影響を詳細に検討した。その結果、板厚増加は荷重増加に寄与する一方で変形モードには影響しないこと、また摩擦係数は局所的な変形に大きく影響することが明らかになった。このことから、解析ではこれらのパラメータを適切に設定することが重要であることが示された。

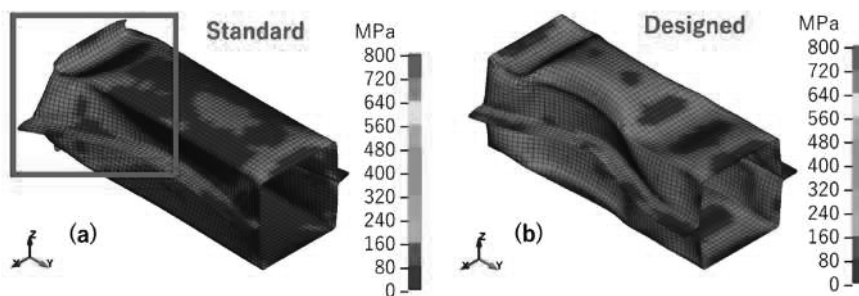


Fig.3 Deformed geometries obtained from simulations.

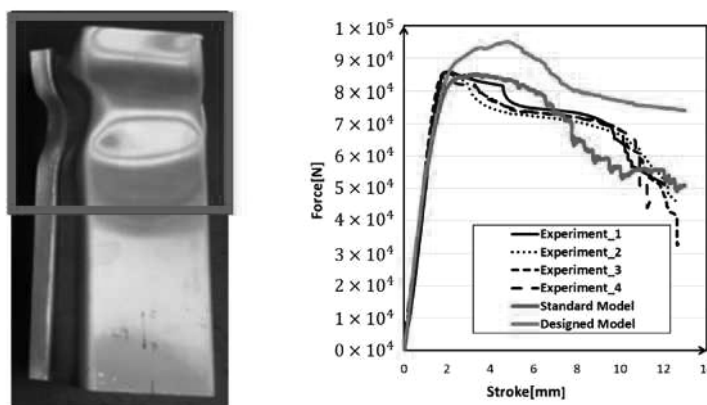


Fig.4 Experimental results. (a) Deformed geometry and (b) force-stroke curves.

5. 結言

本研究では、マグネシウム合金のための新しい材料モデルを提案し、それを用いてクラッシュボックスの衝突シミュレーションを実施した。その結果、提案したモデルと適切な解析条件を用いることで、実験結果を良好に再現できることを明らかにした。また、各種解析因子が解析結果に及ぼす影響を明らかにした。

(接合構造化解析学分野)

オーステナイト系ステンレス鋼の多層溶接熱ひずみおよび残留応力の検討

大阪大学大学院工学研究科 マテリアル生産科学専攻 于麗娜、浅井郁海
接合科学研究所 接合構造解析学分野 麻寧緒

1. 研究目的

ステンレス鋼は優れた耐食性や耐熱性を有しており、中でもオーステナイト系ステンレス鋼は高温強度や靱性にも優れているため、産業用機械や一般家庭用品の他、原子力発電プラントや海洋開発機器等様々な用途で用いられており、ステンレス鋼の中で最も広く用いられている¹⁾。発電プラント等の大型構造物の建造の際には溶接技術は欠かすことのできない技術であり、特に板厚の大きい部分の溶接には多層溶接が適用される。溶接部は局部的に加熱、冷却され、熱収縮により塑性ひずみが導入される。ひずみの導入に伴い溶接熱影響部の硬さが局部的に上昇し、低強度部の塑性変形が隣接する高強度部によって拘束され、応力分布が不均一になり低強度部の応力が高くなる傾向にある²⁾。これらの不均一な応力・ひずみ状態により、脆性破壊や応力腐食割れ等様々な問題を引き起こす要因となる^{3,4)}。そのため、本研究では、解析手法を用いて、溶接入熱、周囲の拘束条件などによるオーステナイト系ステンレス鋼多層盛溶接部のひずみおよび残留応力への影響を検討し、これに伴う割れ発生の可能性を予測することを目的とする。

2. 研究方法

JWRIAN を用いて、実溶接部を想定した直管-直管のモデルに対して、周囲の拘束条件、溶接入熱、配管の長さなどの影響検討を行った。作成した解析モデルを Fig. 1 に示す。

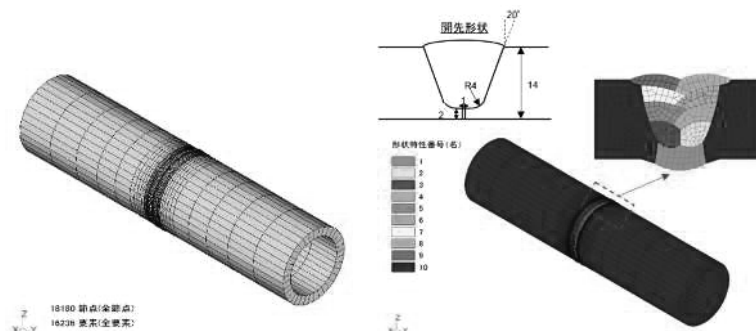


Fig. 1 Model of multi-pass welding of tube

3. 研究結果

実溶接部を想定した直管-直管のモデルに対して、周囲の拘束条件、溶接入熱、配管の長さなどの影響検討を行った。代表として、第2層以上の溶接入熱が 12 kJ/cm から 23 kJ/cm に変化させた場合、溶接熱影響部のひずみと残留応力の解析結果を Figs. 2-3 に示す。多層盛溶接後中間断面の最高到達温度分布と相当塑性ひずみの分布は Fig. 2 に、配管内表面の相当塑性ひずみと残留応力の分布結果を Fig. 3 に示す。これらの結果から、2層以上の溶接入熱の増加に伴い、溶融線付近の相当塑性ひずみも増加し、軸方向の引張残留応力も増加することが分かった。

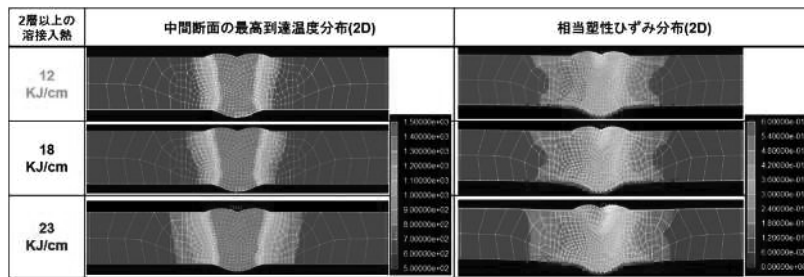


Fig. 2 Simulated peak temperature distribution and equivalent plastic strain distribution in cross section of pipe

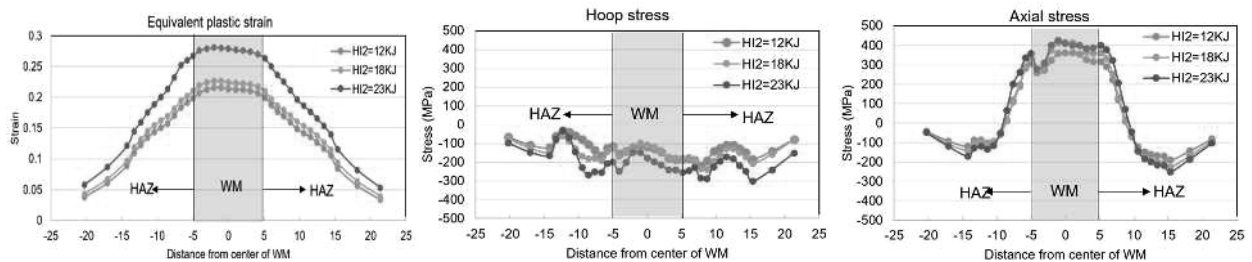


Fig. 3 Equivalent plastic strain distribution and residual stress distribution at the inter surface of pipe

4. 結論

溶接入熱，拘束条件など影響因子が変化した際溶接熱影響部の残留応力と相当塑性ひずみの解析結果により，以下の結論を得られた。

- 1) 両端拘束の場合，溶融線近傍の相当塑性ひずみが大きな変化が見られないが，軸方向の引張残留応力が大きく増加することが分かった。
- 2) 2層以上の溶接入熱の増加に伴い，溶融線付近の相当塑性ひずみも増加し，軸方向の引張残留応力も増加することが分かった。
- 3) 配管長さは一定な長さになると，溶融線付近の相当塑性ひずみがほぼ同じである。また，自由端の場合残留応力はほぼ変わらないが，両端拘束場合配管が長いほど溶融線近傍の引張残留応力が大きくなること分かった。

5. 参考文献

- 1) 才田一幸，“ステンレス鋼の溶接性”，溶接学会誌，第79巻，第6号（2010），pp. 582-592.
- 2) 南二三吉，“破壊靱性と継手破壊強度”，溶接学会誌，第78巻，第4号（2009），pp. 283-297.
- 3) 升岡正，黛正己，新井拓，谷純一，“SUS316L ステンレス鋼の SCC き裂進展に及ぼす加工硬化の影響”，Zairyo-to-Kankyo, 56巻，3号（2007），pp. 93-98.
- 4) M. Tsubota, Y. Kanazawa, H. Inoue, “Effect of cold work on the SCC susceptibility of austenitic stainless steels”, Proceedings of 7th International Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems Water Reactors, Vol.1 (1995), pp.519-527.

（共同研究分野：国際連携溶接計算科学研究拠点）

破壊靱性試験等で要求されている試験片の冷却時間に関する解析的検討

海上技術安全研究所 小沢 匠, 東京大学 川畑友弥

1. 概要

脆性破壊や延性破壊といった不安定破壊は破壊靱性値を材料強度の指標としている。この破壊靱性値は温度によって著しく変化するため、破壊靱性試験規格では試験温度の管理に関する要件が存在する。現行規格では「液体冷媒の場合、試験温度 $\pm 2^{\circ}\text{C}$ の状態を板厚/2分間」保持することを要求しており、これにより計測位置である表面と破壊の起点である板厚中心の温度が同程度であることを保証している。しかし、本来であれば表面温度と中心温度の差は板厚などの寸法だけでなく材料の熱力学的な特性や試験温度に依存するはずであるが、この要件ではそれが考慮されていない。加えて、近年需要が高まっている板厚100mm超えの極厚鋼板に対して50分以上の温度管理が求められることになるが、熱伝達率の高い鋼材に対してそのような長時間の温度管理は本当に必要か議論の余地があると考えられる。そこで中心温度が表面温度と同程度になる時間を解析的に導出し、その合理性を温度計測試験から検証した。

2. 解析的検討

試験片を無限平板と仮定し、熱伝導解析を用いて中心温度が表面温度と同程度になる時間を導出した。現行規格の温度管理要件を踏まえ、表面温度は常に試験温度 T_T と等しいという境界条件を仮定した。また、表面以外の温度は初期条件において室温 T_R に等しいこととした。実際の破壊靱性試験では、ノッチを含めた自由境界を有する上、表面温度が T_T に到達する頃には表面以外の温度も T_R から低下している等、解析的検討で仮定した条件から乖離がある。しかし、これらの乖離はいずれも中心温度が低下する方向で作用するものであり、この仮定で求めた冷却時間 t によって中心温度が表面温度と同程度になることは解析上保証されると考える。この仮定を用いて求めた冷却過程の提案時間 t を式(1)に示す。

$$\therefore t = \frac{B^2 c_V}{\pi^2 \lambda} \log \frac{4|T_R - T_T|}{\pi T_A} \quad (1)$$

式(1)において B は試験片の板厚、 c_V は定積比熱、 λ は熱伝導率であり、 T_A は表面温度と中心温度間の許容ギャップである。現行規格の要件を踏まえ、本研究では T_A を 2°C とした。一般的な炭素鋼の物性値 ($c_V = 3.60 \text{ J/cm}^3\text{K}$, $\lambda = 50.0 \text{ W/mK}$) を代入し、室温 T_R を 20°C 、試験温度 T_T を -200°C とした場合、 t の値は $B=10\text{mm}$ で3.6秒、 $B=50\text{mm}$ で90秒、 $B=100\text{mm}$ で5分となる。現行規格ではそれぞれ5分、25分、50分の冷却時間が要求されており、この解析結果は現行要件の冷却時間を大幅に短縮できる可能性を示している。

3. 冷却過程温度計測試験

試験片の表面温度と中心温度を同時に計測し、その温度履歴から表面温度が試験温度に到達する時間と中心温度が試験温度に到達する時間の差を求めた。図1に試験片の写真を示す。試験片は破壊靱性試験規格にて求められている寸法と同様、 $9B \times 2B \times B$ としており、ノッチ加工は行っていない。この $9B \times B$ の面中央に $\phi 4$ の円孔を中心まで空け、そこに熱電対を接続する。加えて、試験片表面の数点にも熱電対を接続し、これらにより中心温度と表面温度を同時に計測する。

試験条件を表1に示す。板厚 B が10, 20, 50mmとなる3種類の試験片を用意し、エタノールとドライアイスを用いた試験温度 -50°C のものと液体窒素を用いた試験温度 -196°C の2種類の冷却方法で実施した。これらの条件にて破壊靱性試験規格で定められた温度制御を行い、この冷却過程における中心温度と表面温度を記録した。なお、試験回数は試験条件ごとに3回とした。

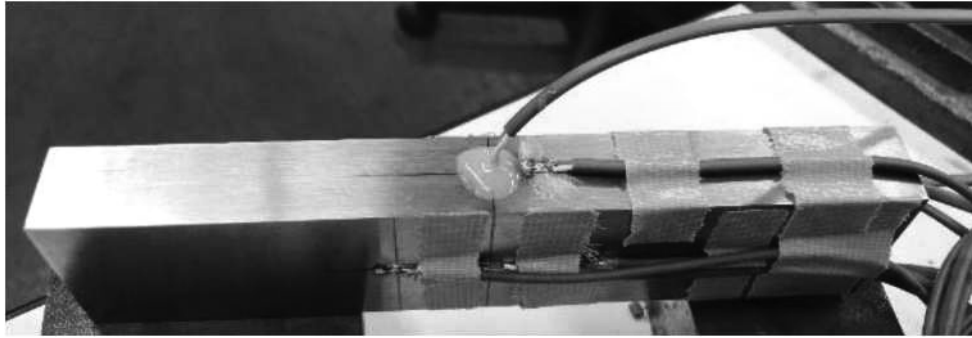


図1 試験片

試験結果を図2に示す。図2の縦軸は実際に中心温度が表面温度（試験温度）と同程度になるまでに要した時間と式(1)にて求めた提案時間との比率であり、縦軸の値が1以下であれば提案時間の温度管理で中心温度が試験温度に到達することを示している。なお、各試験条件にて3回ずつ試験を行い、また9Bx2Bの表裏面中央2点で表面温度を評価したため、各試験条件にて6つのデータが存在する。板厚Bが20または50mmとなる#3から#6の試験については提案時間が精度よく推定、あるいは保守的に評価できていた一方、板厚Bが10mmとなる#1と#2の試験条件については提案時間内で中心温度が試験温度に到達しないものもいくつか存在した。これは板厚が薄い試験片は相対的に円孔による断熱効果の影響が大きくなることや、冷媒の温度分布等が原因と考えられる。ただし、板厚10mmの提案時間は数秒であるため、提案時間から十数秒経過すればいずれの試験片においても中心温度が試験温度に到達した。このため、実際の運用を踏まえるとこの時間差はあまり大きな問題にならないと考える。

表1 試験条件

No.	B	冷却方法	試験温度	冷却時間
#1	10 mm	エタノール +ドライアイス	-50 °C	5 min
#2	10 mm	液体窒素	-196 °C	5 min
#3	20 mm	エタノール +ドライアイス	-50 °C	10 min
#4	20 mm	液体窒素	-196 °C	10 min
#5	50 mm	エタノール +ドライアイス	-50 °C	25 min
#6	50 mm	液体窒素	-196 °C	25 min

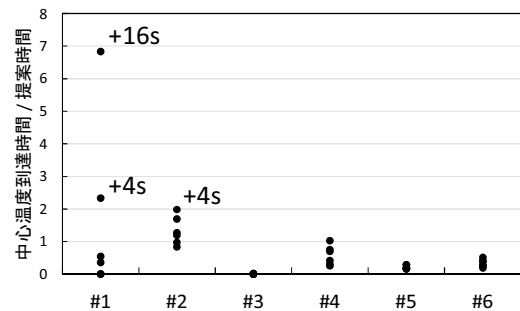


図2 試験結果

4. 結言

解析的手法を用いて表面温度が試験温度に到達してから中心温度が到達するまでの時間を求め、温度計測試験を用いてこの妥当性を検証した。解析的手法より求めた時間は現行規格で要求している時間を大幅に短縮可能であることを示しており、また試験結果もこの時間が妥当であることを示していた。

(共同研究分野：接合設計学分野)

機械学習を用いた溶接熱源形状決定システムの構築

国立研究開発法人 物質・材料研究機構
北野 萌一

1. 背景および目的

溶接部材の変形・残留応力予測のために、有限要素シミュレーションは広く用いられている。変形・残留応力を高精度に予測するためには、溶接部の熱履歴を精度良く再現可能な熱源パラメータ(入熱形状、入熱量)を定義する必要があるが、それらの決定法は確立されておらず、予備試験結果等を参考に個々に決定されているのが現状である。

本研究では、溶接部近傍の温度履歴や母材形状、溶融部断面形状から、適切な熱源パラメータを提案するためのシステム構築を目的とする。本年度は、システムの中核を成す、適正熱源パラメータ推定のための機械学習モデル構築を提案し、その有効性の検証を行った。

2. 研究方法

2.1 熱源パラメータ決定システムの概要

本研究で、最終的に構築することを目指す熱源パラメータ決定システムの概要を図1に示す。構築システムでは、実溶接での温度履歴や溶融部形状が熱源パラメータ予測モデルに入力され、熱源パラメータが決定される。熱源パラメータ予測モデルは、様々な熱源パラメータで実施した熱伝導有限要素解析結果を用いて作成される熱源パラメータと温度履歴の関係データベースを用いて構築される。

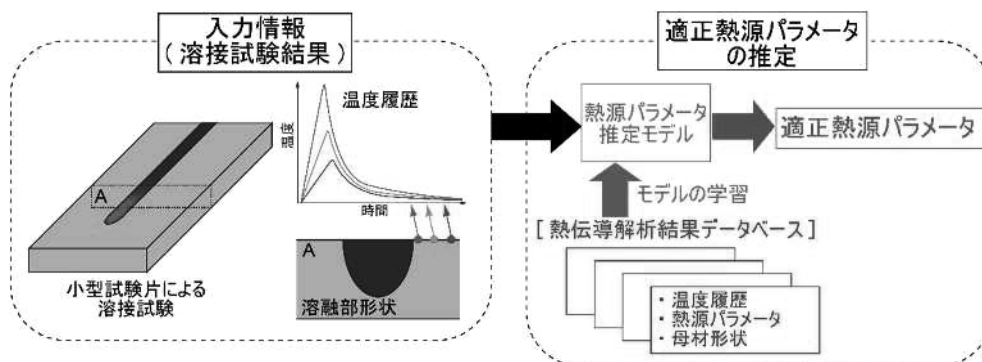


図1 機械学習モデルを活用した熱源パラメータ決定システムの概要

2.2 熱源パラメータ予測モデルの概要

熱源パラメータ予測モデル構造を図2に示す。熱源モデルとして、一方向ガウス分布熱源モデル(溶接線垂直方向断面内の規定領域内で一定の入熱分布かつ、溶接線方向にガウス分布状に入熱が変化する熱源モデル)を用いることを前提とした。その前提のもとで、温度履歴計測位置を基準とした相対的な溶接線垂直方向断面熱源形状、相対母材形状、温度履歴を入力として、熱源モデルパラメータである溶接線方向ガウス分布パラメータ、入熱量を推定するモデルを構築した。上述の3つの入力は、 224×224 pixelsのグレースケール画像として準備され、各画像の画素値をRGB成分として、一枚のRGB画像へと変換されるRGB画像は事前学習が行われた深層畳み込みニューラルネットワークであるGoogLeNetへと入力され、特徴量ベクトルに変換される。得られた1000成分の特徴量ベクトルは全結合ニューラルネットワーク(FC1, FC2)により、ガウス分布パラメータ r_G (mm)と入熱量 Q (J/s)へと変換される。

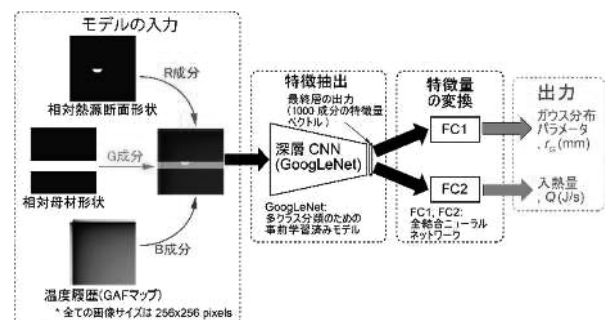


図2 熱源パラメータ予測モデルの概要

相対入熱領域断面形状と相対母材形状は、図に示す様に、温度履歴計測位置を原点とした溶接線

垂直断面内における $y-z$ 座標系において、0.05 mm 刻みでメッシュ分割し、メッシュ交点が入熱領域断面あるいは母材に含まれる場合を 1 に、それ以外の領域を 0 とし、画像情報 (1120 × 1120 pixels) とした。その後、GoogLeNet の入力画像サイズである 224 × 224 pixels へとダウンスケールした。

温度履歴情報の画像化は、時系列データを画像にエンコーディングする手法である Gramian Angular Field を用いて行った。具体的には図 4 に示す様に、評価時間範囲内の温度履歴を、等間隔で抽出し、その結果から 224 × 224 の行列 G を以下の式にて計算し、行列 G をグレースケール情報とした。

$$GAF = \begin{bmatrix} \cos(\phi_1 + \phi_1) & \cdots & \cos(\phi_1 + \phi_{224}) \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \cos(\phi_{224} + \phi_1) & \cdots & \cos(\phi_{224} + \phi_{224}) \end{bmatrix}$$

$$\tilde{T} = \frac{(T_i - T_{\max}) + (T_i - T_{\min})}{T_{\max} - T_{\min}}, \phi = \arccos(\tilde{T})$$

2.3 熱源パラメータ予測モデルの有効性検証

母材板厚、ガウス分布パラメータ、入熱量を変更して全 150 条件にて 3 次元熱伝導解析を実施して、熱源パラメータ予測モデル構築用のデータベースを構築し、図 2 に示したモデルの学習を行った。その後、上述の 150 条件と異なる条件で実施した熱伝導解析結果を人工データとして、相対入熱領域断面形状と相対母材形状、温度履歴情報を学習済みモデルに入力し、ガウス分布パラメータ、入熱量の推定した結果と真値(熱伝導解析における設定値)を比較し、モデルの有効性を検証した。

3. 結果

ガウス分布パラメータ、入熱量の推定結果と真値(熱伝導解析における設定値)を比較した結果を図 5 に示す。この図に示す通り、構築モデルを用いることで、モデルの学習に用いなかった条件においても、適切に熱源パラメータを予測できていることがわかる。

これは、本研究で構築したモデルは、未知の熱源パラメータ推定に活用できることを示唆する結果である。

4. おわりに

本研究では、溶接部の温度履歴を精度良く再現可能な、熱伝導有限要素シミュレーションのための適正熱源パラメータを推定するモデルの提案を行い、その有効性を検証した。今後は実溶接部の溶接部近傍の温度履歴や母材形状、溶融部断面形状から実際に熱源パラメータ推定を行い、提案手法の実用性を検証する。

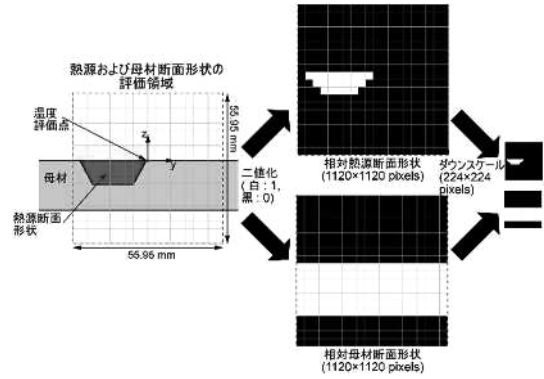


図 3 熱源および母材断面形状の画像情報化

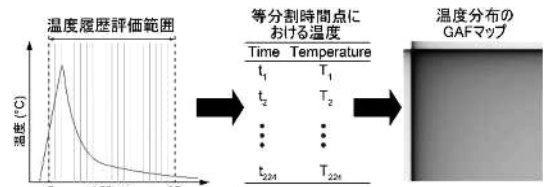
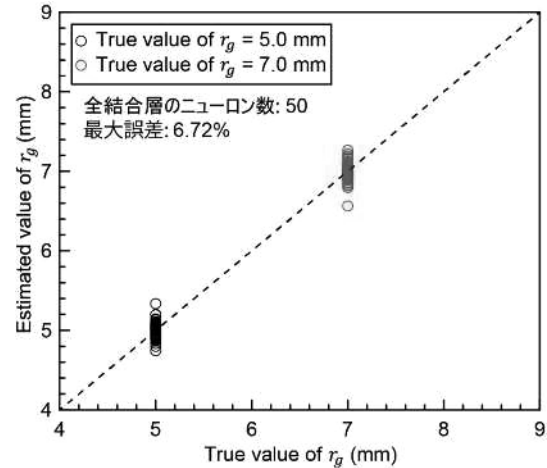
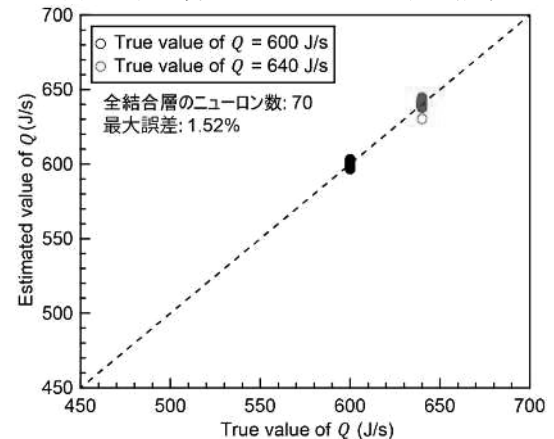


図 4 温度履歴の画像情報化



(a) ガウス分布パラメータの推定結果



(b) 入熱量の推定結果

図 5 学習済みモデルによる熱源パラメータの推定結果

(共同研究分野: 接合設計学分野)

神戸大学 野村昌孝, 植木亮太
 大阪大学接合科学研究所 堤 成一郎

1 緒言

ボルト締結体は荷重や振動のような動的な外力が作用することによってゆるみが生じその締結力が低下することがある。その中でもボルト軸直角方向の繰り返し外力が作用することによって発生するゆるみに関する研究は、これまで実験ならびに有限要素解析により実施されてきた。近年、ねじ山のらせん形状をモデル化した有限要素解析によるゆるみの研究が実施されるようになってきたが、それらの研究についてはモデルに強制変位を与え締め付けやゆるみ現象を再現したものが主であり、実際にナットを回転させ、定量的にゆるみ挙動を評価した数値解析はほとんど行われてこなかった。

そこで本研究では、ボルト締結体のねじ山らせん形状を再現した解析モデル（三次元ねじ山らせんモデル）を作成し、実際にナットを回転させることで締め付けを再現し、ボルト締結体が軸直角方向荷重を受ける際の回転ゆるみ挙動に及ぼす影響を評価することで、実際の使用環境下におけるゆるみやすさを定性的かつ定量的に明らかにすることを目的としている。

2 解析手法

2.1 解析モデル

図1に本研究で使用した解析モデルを示す。同じ寸法の2枚の板を“重ね継手”状に配置し、1本のボルト・ナット（M16）で締結したものを使用した。ねじピッチは2mm、ボルト穴径は直径17.5mm（等級2）、グリップ長さは48mm、ねじ部はらせん形状を再現した「ねじ山らせんモデル」となっている。

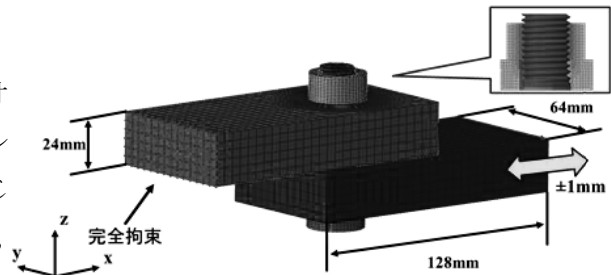


図1 解析モデル

2.2 解析条件

解析には汎用有限要素法解析ソフト ABAQUS 6.14-3 を用いた。ボルト・ナット、被締結体は同一材料の弾性体とし、材料定数はヤング率 206GPa、ポアソン比 0.3、接触面の摩擦係数は 0.15 とした。目標初期軸力を 20.1kN（軸応力：100MPa）とし、ナット上部外縁に回転変位を与えることで締め付けを行った。その後、図1に示すように、上側被締結体の片側端面を x, y, z 方向に変位拘束し、下側被締結体反対側端面に ±1mm の軸直角方向（x 方向）変位を与えた。軸直角方向変位を正負方向に与えた後、変位 0 の状態に戻すまでを 1 サイクルとした。また、ボルト頭部に強制変位を与え締め付けを行った場合のものと比較を行った。

3 解析結果

強制変位、トルク締め付け、それぞれにおける変位荷重関係、ゆるみ回転角度、軸力変化のグラフを図2～図4に示す。変位荷重関係は、下側被締結体に変位を与えた際に、上側被締結体の固定端に発生する反力を求め、その関係をグラフ化した。また、サイクル番号を n_c として図中に表記した。ゆるみ回転角度に関しては、ボルトとナットの相対角度を、締め付け完了時を 0、ゆるむ向きを正として表したものである。軸力変化のグラフに関しては、締め付け完了時の軸力 F_b を初期軸力 F_i で除して無次元化した“軸力残留率（ $=F_b/F_i$ ）”として表している。

図2の変位荷重関係のグラフより、締め付け方法に関わらず、せん断荷重約 ±6000N のヒステリシ

スループを描くことが分かる。ただし、変位 0~1mm ($n_c=0\sim 0.25$) の区間において、強制変位で締め付けを行った場合では、変位約 0.2mm でせん断荷重が最大値をとりその後一定となっているが、トルク締め付けを行った場合はせん断荷重が徐々に上昇し、変位約 1mm ($n_c=0.25$) 付近で初めて最大値をとる。この間の接触面の状態を確認すると、強制変位締め付け時は、まず座面に固着、ねじ面にゆるむ向きのすべりが発生し、荷重が一定となるタイミングで座面に軸直角方向のすべり、ねじ面に固着が発生した。一方トルク締め付け時は、座面の一部（接している被締結体の変位拘束している側）に固着が発生し、ねじ面に締まる向きのすべりが発生していた。これは、トルク締め付けを行った場合に、強制変位締め付けではほとんど発生しなかったボルト軸部ねじれが発生していることが原因であると考えられる。トルク締め付けで締め付けを行った場合、ボルト軸部にねじれにより元に戻ろうとする力が働いている。しかし、与えた軸直角方向荷重により各座面に集中荷重が発生し、摩擦力が局所的に高まったため、座面と被締結体が固着する。一方ねじ面は集中荷重が発生しづらく、各座面よりも先に、ボルト軸部のねじれが解放する向きにねじ面が滑り始めたため、締まり回転が発生したと考えられる。

図 3, 4 のゆるみ回転角度のグラフより、強制変位締め付け時には初期段階からゆるみ回転が発生しているのに対して、トルク締め付け時には初期段階で一度締まり回転が発生し、その後ゆるみ回転をしていることが分かる。この締まり回転は、前述のとおりボルト軸部ねじれの解消によるものだと考えられる。

図 3, 4 のゆるみ回転角度のグラフ及び図 5 の軸力変化のグラフより、3 サイクルまでの段階において、強制変位締め付けに比べてトルク締め付けの方がゆるみ現象が小さくなることが分かった。これは、トルク締め付けを行った場合、ねじ面の弾性変形やボルト軸部・被締結体ねじれなどにより、強制変位締め付けでは発生しなかった力のつり合いがねじ面に発生しているためであると考えられる。

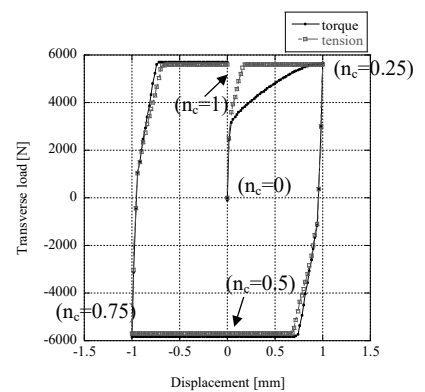


図2 変位荷重関係(1サイクル)

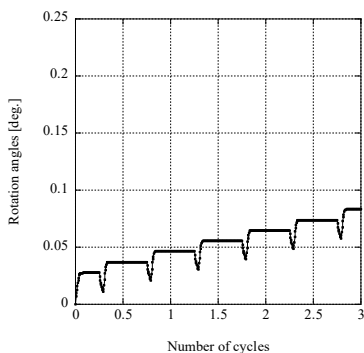


図3 ゆるみ回転角度(強制変位)

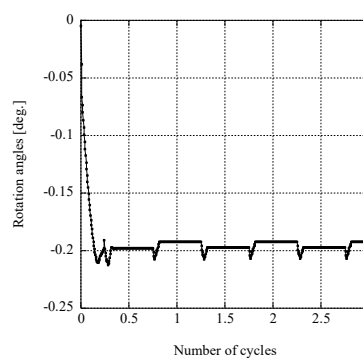


図4 ゆるみ回転角度(トルク)

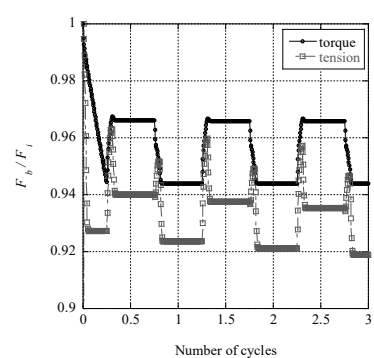


図5 軸力変化

4 結言

トルク締め付けを行ったボルト締結体は、強制変位で締め付けを行った場合にはほとんど発生しないボルト軸部ねじれが発生し、軸直角方向荷重サイクル初期段階において、ボルト軸部ねじれ解放に伴う締まり回転が発生する。また、3 サイクルまでの段階において、強制変位締め付けに比べてトルク締め付けの方がゆるみ現象が小さくなる。

(共同研究分野：接合設計学分野)

1. 緒言

鋼材の静的力学特性の特徴として、多軸応力状態において破断ひずみが小さくなることが実験的に知られている。一方で、鋼材の動的力学特性については、降伏応力および引張強度のひずみ速度効果を調べた研究例はあるが、応力三軸度の影響を調べた例は非常に少ないのが現状である。本研究¹⁾は、切欠きを有する低炭素鋼 SS400 平板試験体の動的引張試験を行い、鋼材の動的力学特性に及ぼす応力三軸度の影響を調べたものである。

2. 引張試験の概要および考察

試験体の種類は、切欠き無しの平板試験体 A および切欠き半径の異なる 3 種類の平板試験体である。载荷速度は、静的、0.01m/s および 4m/s とし、合計 36 ケースの実験を行った。図-1 に、試験体 A (平板), B (R35), C (R8.75) および D (R2.5) における降伏応力および引張強度の動的強度倍率 (Dynamic Increase Factor) ~ひずみ速度関係を示す。図中には、高橋の実験式も比較して示す。

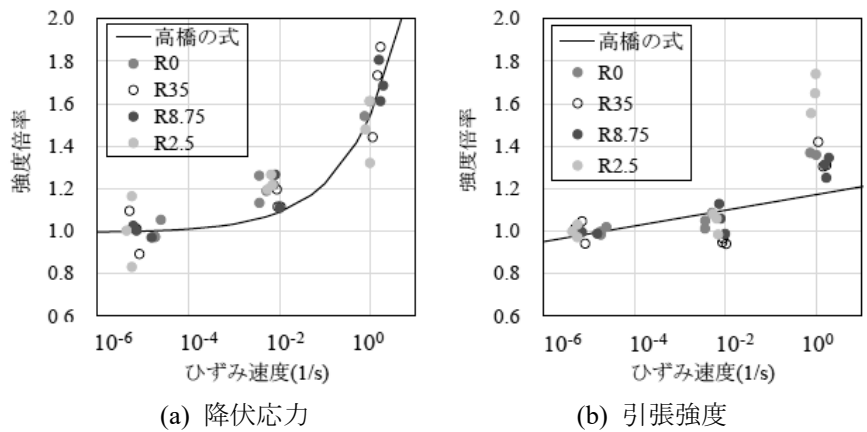


図-1 動的強度倍率~ひずみ速度関係

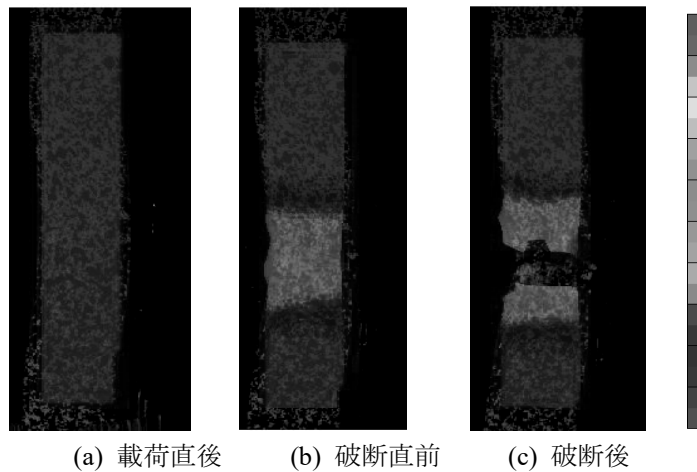


図-2 DICにより計測したひずみ分布の例 (試験体 B)

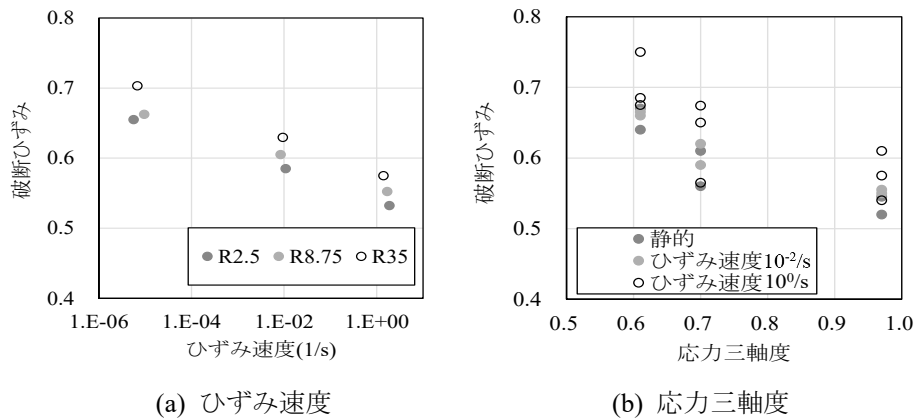


図-3 破断ひずみに及ぼすひずみ速度および応力三軸の影響

図から、降伏応力については、全ての試験体においてひずみ速度の増加にともなって降伏応力の増大が認められた。ただし、試験体の種類によってばらつきが生じ、ひずみ速度 100/s 付近で最もばらつきが大きくなった。高橋の実験式と比較すると、ひずみ速度 10-2/s 付近で最も差が大きく、約 18%の差が認められた。引張強度については、ひずみ速度 10-2/s 付近の強度倍率は平均で約 1.1 倍となった。また、ひずみ速度 100/s 付近で最もばらつきが大きくなり、試験体 D (R2.5) の強度倍率が最大の約 1.7 倍となり、試験体 C (R8.75) は強度倍率が最小の約 1.2 倍となった。高橋の実験式と比較すると、ひずみ速度 10-2/s 付近では約 10%の差が認められ、ひずみ速度 100/s 付近で最も差が大きく最大で約 50%の差が認められた。図-2 に、試験体 B (R35) に対して速度 4m/s で載荷した実験ケースで得られた、DIC により計測したひずみ分布の例を示す。載荷後から時間の経過とともにひずみは切欠き部の中心に局所化し、破断が生じている。以下では、破断直前において切欠き中心部に発生した最大ひずみを破断ひずみと定義する。なお、試験体 A (平板) については、変形初期に塗装が剥がれ落ちたため DIC による破断ひずみの算定ができなかった。図-3 に、試験片 B (R35)、C (R8.75) および D (R2.5) の破断ひずみ～ひずみ速度関係および破断ひずみ～応力三軸度関係を示す。破断ひずみ～ひずみ速度関係から、全てのケースにおいてひずみ速度の増加に伴う破断ひずみの低下が認められた。また、全てのひずみ速度において、応力三軸度が最も大きい試験片 D (R2.5) で破断ひずみは最小となり、応力三軸度が最も小さい試験片 B (R35) で最大となった。破断ひずみ～応力三軸度関係から、全ての載荷速度において、応力三軸度の増加に伴う破断ひずみの低下が認められた。

3. 結言

本研究は、切欠きを有する平板試験体の動的引張試験を行い、鋼材の動的力学特性に及ぼす応力三軸度の影響を調べたものである。実験の結果、切欠きの有無によらず全てのケースでひずみ速度の増加とともに降伏応力および引張強度の増加や破断ひずみの低下が認められた。また、応力三軸度の増加に伴う破断ひずみの低下が認められた。

(共同研究分野：接合設計学分野)

自在設計のためのテーラード溶接プロセスシミュレーションシステムの構築

日本原子力研究開発機構 青木 聡

1. 緒言

多種類の金属材料が組み合わさることで発電プラントや化学プラントなどの様々な社会基盤構造物が製造されている。すなわち、構造物の製造では異種材料の溶接接合が必要不可欠である。したがって、構造物の健全性は溶接部の特性に依るところが大きく、その特性を向上させることは構造物の信頼性を高める上で極めて重要である。

本研究は、安全性を確保した自由度の高い適切な設計に基づく効率的な新型原子炉設備の製造、既存設備の保全・補修を実現するため、溶接プロセスから、マイクロ組織形態、耐溶接割れ性、耐応力腐食割れ（SCC：Stress Corrosion Cracking）性など溶接部性能の確保に至るまでを統一的に予測可能な溶接プロセスシミュレーションシステムの構築を目的とする。

今年度は軽水炉の炉内環境を想定した試験水質環境の安定的な維持に維持し、その環境中で材料間のSCC発生感受性を相対的に比較するスクリーニング評価を効率的に行うための定ひずみ法によるSCC試験(以下単にSCC試験と記す)の試験方法・条件を適正化することを目的とした。併せて、SCC感受性指標のデータベース化手法を検討した。

2. 実験方法

SCC試験では試験片をU字型に曲げることにより一定ひずみを付与した試験片を用いた。今回の試験では、このJISG0576「ステンレス鋼の応力腐食割れ試験方法」の規定などを参考に試験片の製作・加工を行った。

試験片を採取するステンレス鋼種はそれぞれ商用オーステナイトステンレス鋼であるSUS304、SUS316L、およびSUS310Sとした。これらの3鋼種についてU字曲げ試験片作製のため75×15×2 mmの平板を切り出した。今回の試験では母材ままの状態ですべての試験片の他に、溶接を施した試験片(以下溶接試験片と記す)、および溶接熱影響部を再現した熱処理を施した試験片(以下熱処理試験片と記す)をそれぞれ作製し試験に供した。溶接試験片は試験片の片方の面の幅方向中央の領域に溶接によるビード部が存在している。同様に熱処理試験片では長手方向の両端部を除き溶接熱影響部再現熱処理領域とした。溶接はTIGアーク熱源によるメルトラン溶接とし、溶接条件は溶接電流120 A、溶接速度0.1 m/min、アーク長2 mmとした。再現熱処理条件は、高周波加熱で最高到達温度600 °Cおよび1000 °Cとし、冷却速度は35 °C/sとした。図1にSUS304母材試験片のU字曲げ試験片の外観写真を一例として示す。

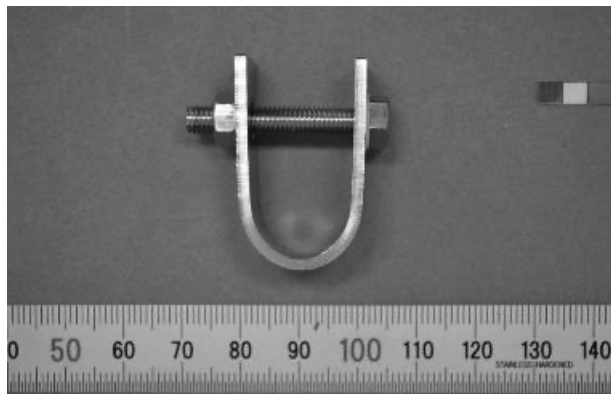


図1 U字曲げ試験片外観写真

SCC試験を行う試験環境はBWRを想定した水質環境とした。すなわち、8.5 MPaの高圧下で、試験温度は288±1 °Cに制御した。環境の酸化性を高めて腐食を加速させるために溶存酸素濃度は8.0～8.1 ppmに併せて制御した。このような水質環境下に各種U字曲げ試験片を静置して浸漬させ腐食させた。試験時間は1000時間とした。試験中の入口側導電率は0.057 μS/cmあり、出口側導電率0.075～0.076 μS/cm程度で推移した。SCC試験後、試験面表面に発生したき裂を、SEMを用いて観察した。観察範囲はU字曲げ試験片の頂部を中央に幅1 cmとした。

3. 結果・考察

SUS304の母材試験片は全体的に腐食しており表面は酸化物で覆われていたが、SCCき裂はほとんど観察されなかった。また観察したき裂はいずれも微小で深く進展しているようには見受けられなかった。これらのことからSUS304の母材試験片の当該環境におけるSCC発生感受性は高くないと考えられる。一方で、SUS304の溶接試験片あるいは熱処理試験片は観察されたき裂発生数のおおよそのオーダーおよびSEM観察像を取得したき裂の平均的な長さが増大しており、母材試験片に比べSCC発生感受性が明確に高まっていたと考えられる。特に溶接試験片や熱処理試験片(1000 °C)はその傾向が顕著であった。熱処理試験片(1000 °C)は熱処理によって鋭敏化温度域に曝されているため、粒界およびその周辺の耐食性が母材に比べ劣化している可能性が考えられる。同様に溶接試験片においても溶接による溶融および凝固の過程で母材の金属組織が変化しており、また同時に残留応力も生じていたと考えられ、周辺の溶接熱影響部も含めて耐食性が低下した箇所が母材に比べ増大したことがSCC発生感受性を高めた要因であると考えられる。SUS316Lの各条件の試験片においてもSCCき裂が観察されたため当該環境においては一定のSCC発生感受性を有するものと判断できる。SUS304ほどではないが、SUS316Lにおいても溶接試験片あるいは熱処理試験片ではSEM観察像を取得したき裂の平均的な長さが増大していることから、母材試験片に比べSCC発生感受性が高まっているものと考えられる。SUS316Lは鋭敏化対策として含有炭素量を低減させたステンレス鋼種であり、Moを添加することで耐食性を高めた代表的な軽水炉ステンレス鋼部材である。しかし、溶接や溶接熱影響部を再現した熱処理を施すことによってSUS316LにおいてもSCC発生感受性が高まる可能性があることが本試験結果から考えられる。SUS310Sは、母材試験片において多数のき裂が観察された。溶接や熱処理を施さない試験片であっても高いSCC発生感受性を示す結果となった。さらに、溶接や溶接熱影響部を再現した熱処理を施すことによってSEM観察像を取得したき裂の平均的な長さが増大したことから、他の鋼種と同様に母材試験片に比べSCC発生感受性が高まったものと考えられる。

図2にSCCき裂観察例としてSUS310S溶接試験片で観察された最大のSCCき裂SEM観察像を示す。

今回実施したSCC試験はBWRを想定した水質環境として、試験温度は 288 ± 1 °Cに制御し、試験中の入口側導電率は 0.057 $\mu\text{S}/\text{cm}$ 、出口側導電率は $0.075\sim 0.076$ $\mu\text{S}/\text{cm}$ 程度で推移した試験環境を、試験時間1000時間を通して安定的な維持に維持することができた。併せて環境の酸化性を高めて腐食を加速させるために溶存酸素濃度は $8.0\sim 8.1$ ppmに制御した。このような試験水質環境下において、それぞれの鋼種の各条件試験片でSCCき裂を発生させることができ、観察されたき裂発生数のおおよそのオーダーおよびSEM観察像を取得したき裂の平均的な長さを指標として材料間のSCC発生感受性を相対的に比較・評価することができたものと考えられる。この他、一般的にU字曲げ試験片を用いたSCC試験の場合には、一定時間ごとに試験を停止し、試験片を取り出して試験片観察を行い、SCCき裂の発生が認められない場合には試験を継続する方法が採用されている。したがって、各鋼種ともに試験片の条件によっては多数のSCCき裂が観察されているため、試験時間をより短時間に設定することで、SCCき裂が発生しない試験片が生じSCCき裂発生時間やSCCき裂発生確率が評価指標となり得る可能性がある。

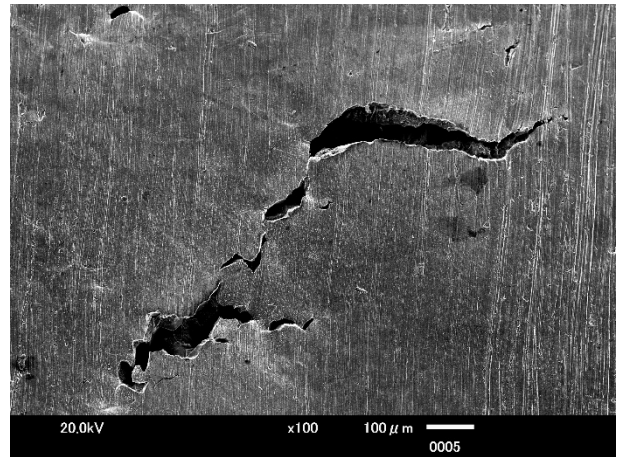


図2 SUS310S 溶接試験片の SCC き裂の SEM

(共同研究分野：信頼性評価・予測システム学分野)

1. 研究背景・目的

摩擦攪拌接合を鋼板材料への適用に際し、最高到達温度 A_1 点以下で接合が可能であると報告され、継手の作成が可能となった。しかしながら、鉄鋼材料を用いた FSSW 継手の疲労特性に関する報告例は少ないため、著者らはこれまで様々な鋼板材料を用いた摩擦攪拌点接合継手の疲労特性評価を行っている。昨年、石田、Thomas らにより同様の接合条件であっても接合部径にばらつきが生じることが確認されたため、今年度は、引張はく離型継手を対象とし、接合部径が疲労特性におよぼす影響の調査を行った。

2. 供試材・および実験方法

本研究で使用した材料は、板厚 0.8mm の 590MPa 級自動車用冷間圧延鋼板 SPFC590Y である。同材 2 枚を図 1 に示すように重ね固定し、その中央部に負荷速度 3kN/sec、ツール回転数 550rpm、押込時間 6.5sec で FSSW を施工した。なお使用した接合ツールはショルダ径 12mm、プローブ径 4mm、プローブ長 1.0mm である。FSSW 施工後、上板、下板それぞれにヒンジを取り付けて、取り付けしたヒンジを疲労試験機に固定し疲労試験を行った。なお、疲労試験は電気油圧式サーボパルサを用い、周波数 $f=0.5\sim 12\text{Hz}$ 、荷重比 $R_p(=P_{\min}/P_{\max})=0.1$ で行った。

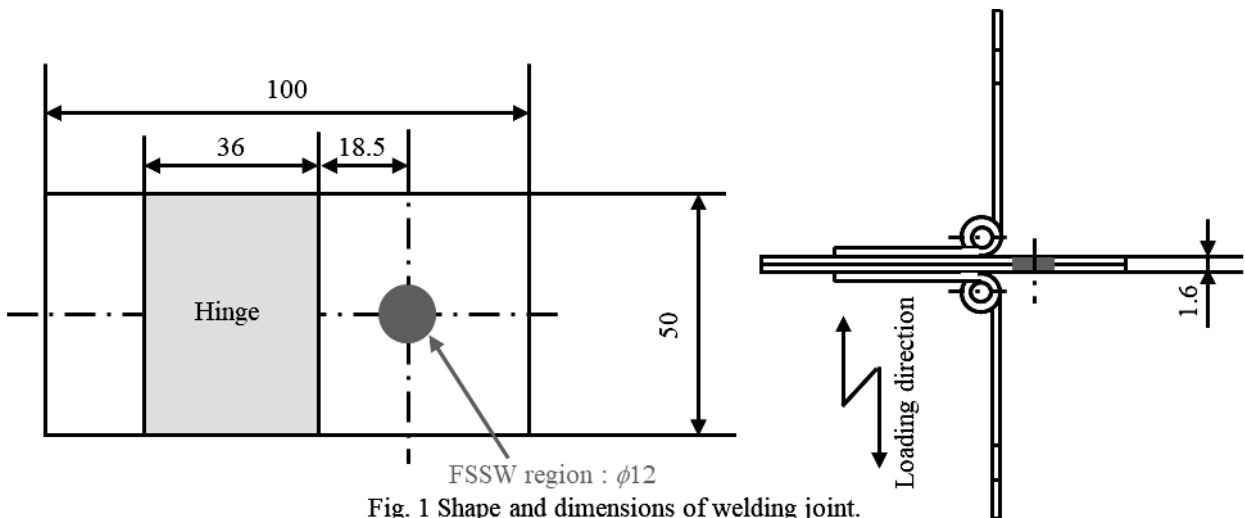


Fig. 1 Shape and dimensions of welding joint.

3. 試験結果および考察

得られた疲労試験結果を図 2 に示す。なお、同図縦軸は作用した負荷試験力振幅 P_a 、横軸は 2 枚の鋼板が完全分離した時点の繰返し数を表している。また疲労試験結果は、後述する破壊形態別で表している。同図より疲労限度は $P_a=30\text{N}$ であることが確認された。次に、疲労試験後に観察された巨視的な破壊形態を図 3 に示す。本研究では 2 つの異なる破壊形態が認められた。1 つは同図(a)に示す通り、き裂が母材部である鋼板中を進展する破壊形態であることから、この破壊を「母材破壊」と称する。もう一つの破壊形態は、同図(b)に示す通り、上板と下板が突然完全に分離する破壊形態であることから、本研究ではこの破壊を「接合部破壊」と称する。図 2 に示す通り、比較的負荷試験力振幅が大きい場合、接合部径の小さな試験体で接合部破壊を、接合部径の大きな試験体で母材破壊を呈することが確認された。しかし負荷試験力振幅の低下に従い、その破壊形態が母

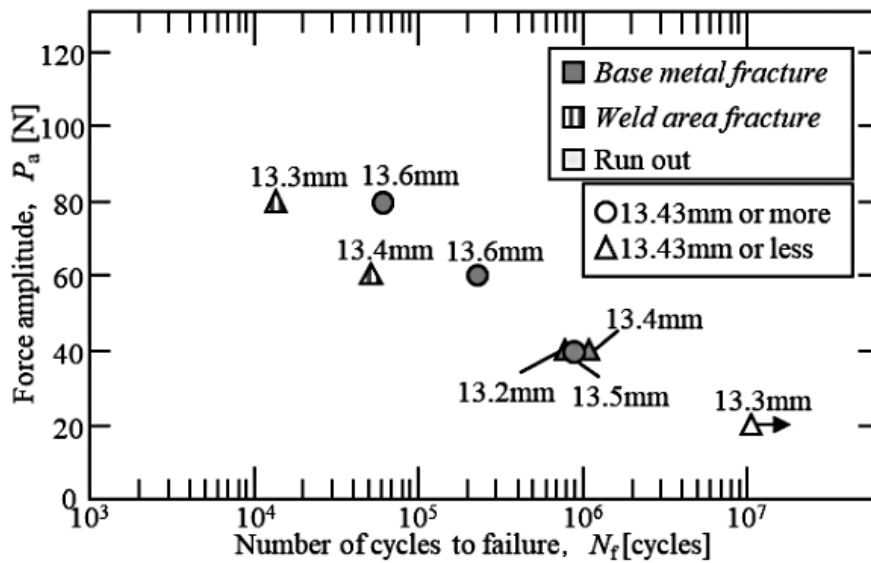


Fig. 2 P-N curve.

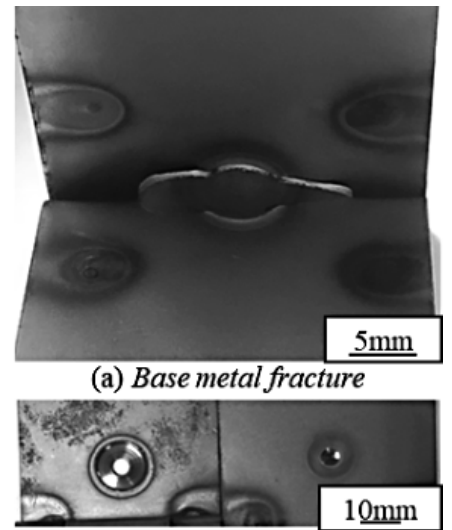


Fig. 3 Fracture morphologies.

材破壊のみ呈することが認められ、破壊形態の試験力レベル依存性および接合部径レベル依存性が認められた。

次に比較的負荷試験力が大きき場合に確認された、接合部径の大小による疲労寿命および破壊形態の遷移について詳細にデータを取得するため、応力振幅 $P_a=80\text{N}$ にて疲労試験を行った結果を図4に示す。なお、同図縦軸は試験体の接合部径、横軸は2枚の鋼板が完全分離した時点の繰返し数を表している。同図より、先ほど同様、接合部径の小さな試験体で接合部破壊を、接合部径の大きな試験体で母材破壊を呈することが確認された。また接合部破壊を呈した際、接合部径の減少に伴い疲労寿命が低下することが分かる。一方で、母材破壊を呈した際の疲労寿命は接合部径にかかわらずおおよそ一定であった。このため、母材破壊を呈すると推測される接合部径の試験体に限って用いることで、安定した製品の製造が可能であると思われる。

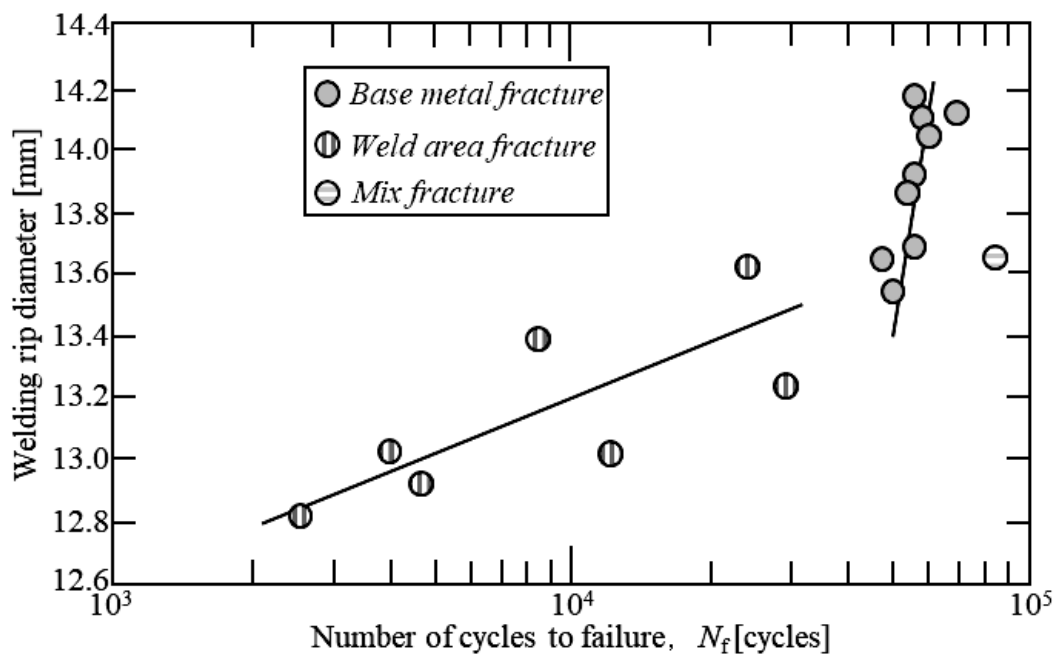


Fig. 4 Results of fatigue test.

(共同研究分野：信頼性評価・予測システム学分野)

自動車用鋼板を母材とするせん断型レーザー接合継手の応力拡大係数による寿命の統一的评价

広島大学大学院 先進理工系科学研究科 機械工学プログラム

荒川 仁太

1. 研究背景・目的

自動車用薄鋼板にレーザー溶接を施したせん断型接合継手を対象とし、治具拘束によりスリット先端に純せん断型の負荷が作用する接合継手との疲労特性評価を行い、引張せん断型の疲労特性と比較検討を行うとともに、疲労寿命の統一的评价として等価応力拡大係数 ΔK_{eq} および後述する破壊力学的パラメータ K_{I0max} による評価を行うことで、評価パラメータの確立を行った。

2. 供試材・および実験方法

本研究では板厚 $t=1.2$ mm の 270 MPa 級自動車用鋼板(JSC270D)および冷間圧延鋼板(SPCC)を供試材料とした。同材を板状に機械加工後 Fig. 1(a),(b)に示すように同じ材料の鋼板同士を重ね合わせ、レーザー溶接によって線接合を行いそれぞれ試験に供した。なお、本研究にて同等の強度レベルを持つ 2 種類の鋼板を使用した。これは材種の違いによる溶接継手の疲労特性を比較検討するためであり、また両材とも同等の疲労特性を示すことから、本研究では両材で作成した溶接継手を同一のものとみなして検討した。

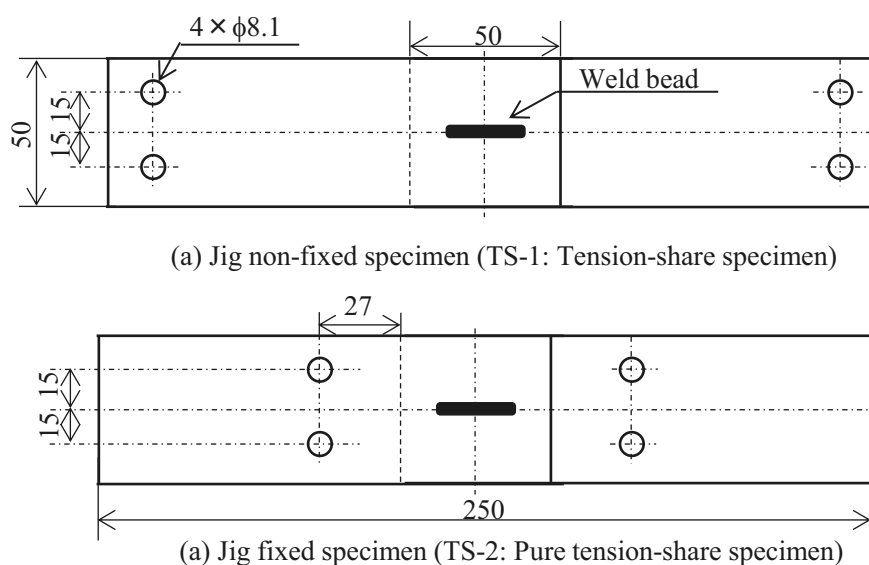


Fig. 1 Shape of specimen.

3. 試験結果および考察

本研究では数値解析により得られた応力分布を用いて、応力外挿法に基づき応力拡大係数の算出を行った。両試験片について算出した K_I , K_{II} および K_I/K_{II} の値を Table 1 に示す。同表より両試験片のスリット先端はモード I およびモード II 型の応力成分が混在していることが分かった。等価応力拡大係数 ΔK_{eq} を用いて混合モード下における初期応力拡大係数の評価を行った。そして、両試験片の疲労試験結果を ΔK_{eq} によって整理した結果を Fig. 2 に示す。同図に示すように ΔK_{eq} により整理した結果に着目すると両試験片の傾きは僅か

に異なり、疲労寿命の差異を詳細に評価できたとは言い難い結果となった。これに関しては今後の課題である。

そこで、き裂開口および進展に関して支配的であると考えられる開口型の応力拡大係数 K_I に着目した破壊力学的パラメータ K_{I0max} による評価に着目した。しかしながら、試験力振幅に応じて破壊機構ならびにき裂進展方向に差異があり、同解析手法においても実験結果と一致するとはいいがたい。そのため今後は、き裂進展方向も含めた解析手法の確立と疲労寿命の統一的评价は課題とされる。

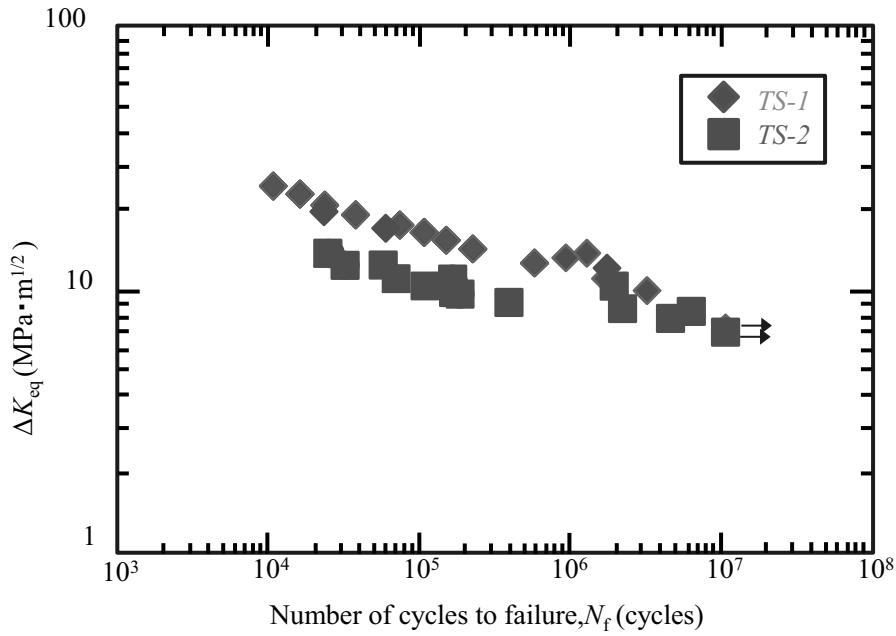


Fig. 2 Fatigue test results evaluated by ΔK_{eq} .

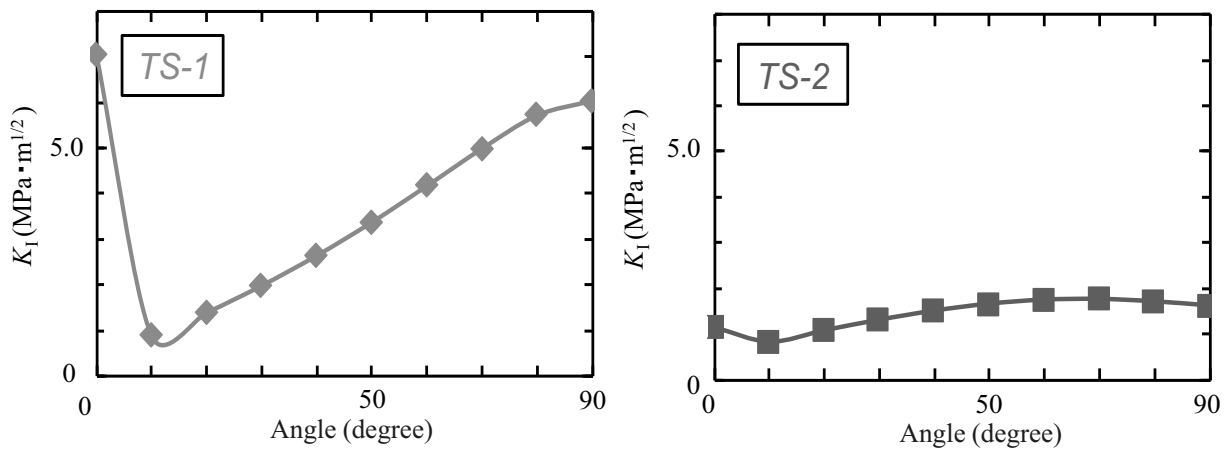


Fig. 3 Results of FEM analysis evaluated by K_I .

(共同研究分野：信頼性評価・予測システム学分野)

アルミニウム合金を母材としたレーザ溶接継手の散逸エネルギーに基づく疲労限度評価

神戸大学大学院 工学研究科 機械工学専攻
小川 裕樹

1. 研究背景

近年環境負荷低減の観点から、モビリティの軽量化に向けた取組が活発となり、比強度に優れ成形性が高い特長から、しかしアルミニウム合金のレーザ溶接は、ポロシティや高温割れなどの欠陥が発生しやすく、用途に応じた溶接条件の最適化が望まれる。また、溶接構造物は高水準での安全性および信頼性が要求されるため、破壊の主要因である疲労に対する評価を迅速かつ正確に行わなければならない。そこで本研究では、散逸エネルギーに基づく疲労限度推定法に着目した。本報では、アルミニウム合金を母材とするレーザ溶接継手を対象として、赤外線カメラを用いた散逸エネルギー計測を実施し、これに基づいた疲労限度評価の適用性を検討した。

2. 試験方法

本研究は、2枚のアルミニウム合金 A5052 平板をギャップ 0 mm で突合せ、Table 1 の条件にてレーザ溶接を施工する。その後、作製した継手は Fig. 1 に示すように、溶接方向に対して垂直方向に幅 20mm のダンベル状に放電加工にて切出し供試材とした。

継手の応力振幅一定試験（疲労試験）は、鷲宮製作所製油圧式サーボバルサを用いた。負荷条件は、応力比 $R=1$ 、周波数 $f=13$ Hz とし、試験片が 2 つに完全分離した時点を疲労破壊と定義した。未破壊時の試験打切り回数は $N=1 \times 10^7$ cycles とした。また、本研究で着目する散逸エネルギーは、短い繰返し数ごとに応力振幅を階段状に増加させる階段状応力振幅増加試験から、赤外線サーモグラフィを用いて測定した。負荷条件は応力比 $R=1$ 、負荷周波数 $f=13$ Hz、各応力振幅の繰返し数は 3600 cycles とした。負荷 1 サイクルの荷重変動に対して、最大引張・圧縮応力付近で塑性すべり変形により不可逆的な発熱が生じる。温度変動信号から得られる負荷周波数の 2 倍にあたる周波数成分を散逸エネルギーと定義した。また、散逸エネルギー測定の高精度化を図るため、試験片の剛体移動の影響を除去、および試験機の高調波振動の影響を取り除くための位相ロックイン処理を施した。

Table 1 Welding condition

Electric power (kW)	Welding speed (m/min)	Defocus length (mm)	Drag angle (deg.)
6.0	5.4	0	30.0

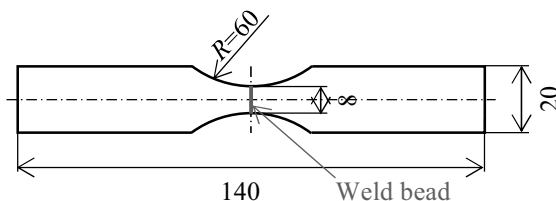


Fig. 1 Shape and dimensions of specimen (unit: mm).

3. 試験結果

まず、溶接方向と垂直な断面に対する溶接部中央の断面観察結果を Fig. 2 に示す。同図から、継手断面には 3 種類の組織が観察された。その詳細として、溶接部中央には、柱状晶からなる溶接金属 (Fig. 2(a)) が観察された。その周囲には熱影響部がみられ、熱影響部の周りにはレーザ溶接による熱影響等を受けていない母材の圧延組織 (Fig. 2(b)) が確認された。

レーザ溶接継手の疲労試験結果 (S-N 曲線) を Fig. 3 に示す。なお図中の黒丸は、溶接継手と同形状の母材試験片に対する疲労試験結果である。同図から、母材試験片の疲労限度は $\sigma_a=120\sim130$ MPa、レーザ溶接継手の疲労限度は $\sigma_a=40\sim50$ MPa であり、レーザ溶接継手の疲労強度は、母材のそれと比べ大きく低下することが分かる。また、Fig. 4(a)に疲労試験後のレーザ溶接継手の疲労破壊形態を示す。同図より Al 合金を母材とするレーザ溶接継手は、最小断面部の溶接部から疲労破壊したことがわかる。そこで、レーザ溶接継手の疲労破壊機構を詳細に観察するた

め、疲労試験を任意の繰返し数にて停止した際の、荷重方向に対する溶接部中央断面を観察した。観察結果を Fig. 4(b)に示す。同図から、レーザー溶接継手の疲労き裂は、レーザーの熱の影響を受けている溶接金属と熱影響部の境界を起点に発生し、かつ、その境界に沿って進展する様相が確認された。

階段状応力振幅増加試験における、散逸エネルギー計測結果を Fig. 5 に示す。なお散逸エネルギーの評価領域は、母材試験片が最小断面部の $10 \times 10 \text{pixel}$ 、レーザー溶接継手は最小断面部の溶接部にて疲労破壊に至ったため、レーザー溶接継手は、き裂発生箇所の $3 \times 3 \text{pixel}$ とした。Fig. 5 より、母材試験片は応力振幅 σ_a が 120MPa 程度で散逸エネルギーが増加し、レーザー溶接継手の散逸エネルギーは $\sigma_a = 50 \sim 60 \text{MPa}$ の間で増加することが分かる。散逸エネルギーが急増する箇所を疲労限度と推定すると、疲労試験にて実際に取得した疲労限度とおおよそ一致している。したがって、本研究で対象とした A5052 を母材とするレーザー溶接継手およびその母材は、散逸エネルギーに基づき疲労限度を推定できる可能性が示された。

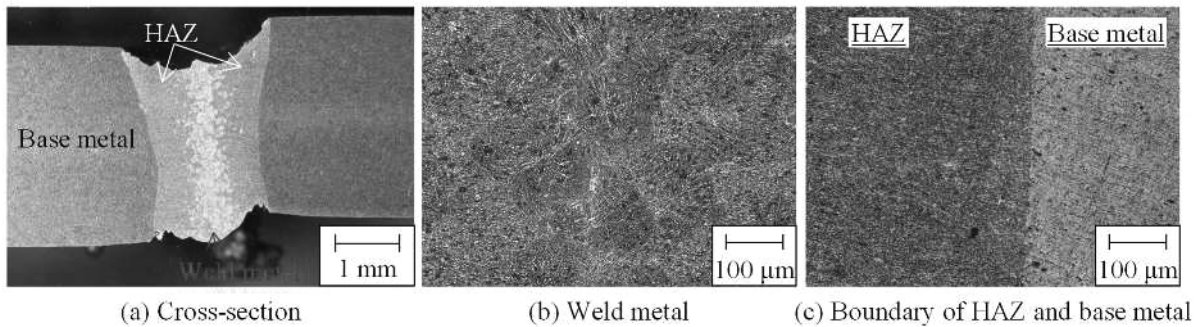


Fig. 2 Cross section observation results of aluminum laser welds.

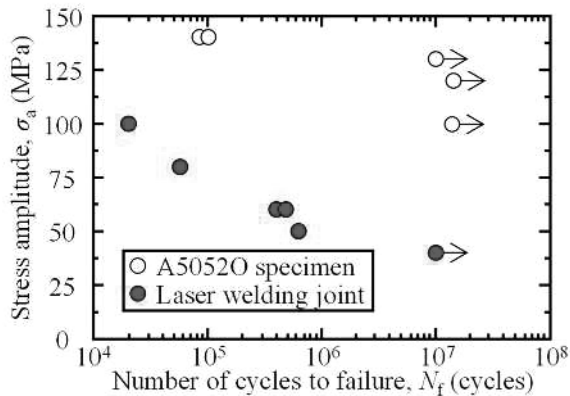


Fig. 3 Fatigue test results (S-N curves).

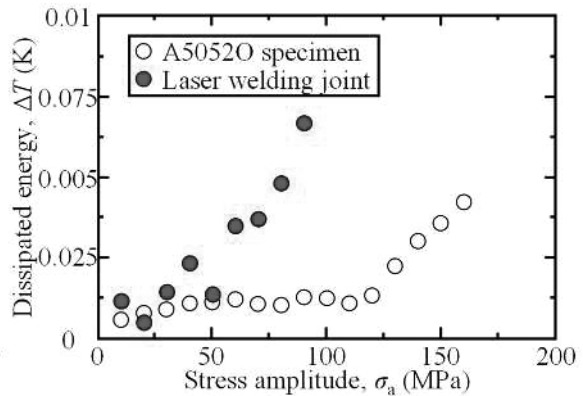


Fig. 5 Measure results of dissipated energy.

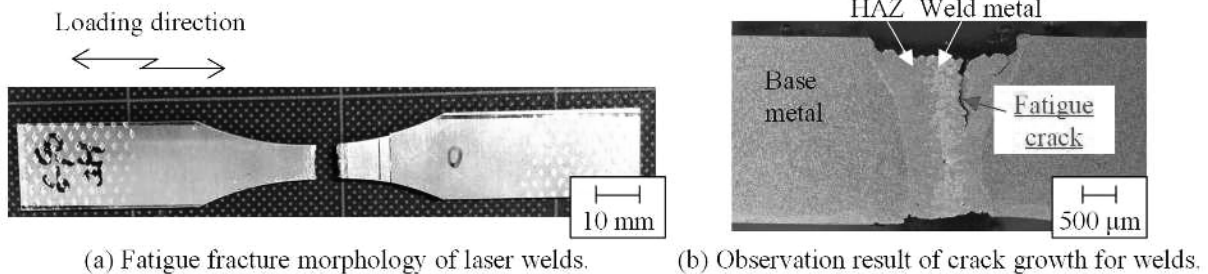


Fig. 4 Fatigue fracture mechanism of laser welds.

(共同研究分野：信頼性評価・予測システム学分野)

Al 合金における異種金属接触腐食の抑制を実現する Al/Fe 接合部の同時化成処理の検討

東北大学工学研究科知能デバイス材料学専攻材料電子化学講座

小鯖 匠 (博士後期課程 2 年)

1. 目的

自動車に代表される輸送機器の軽量化の手段として、車体材料のマルチマテリアル化が精力的に研究されている。従来の構造材料である鋼から軽量化を図るためにアルミニウム合金のような軽量材料へ適材適所に置換していく方法である。マルチマテリアル化の発展を支える上で、脆弱な異材接合部強度やアルミニウム合金上での異種金属接触腐食の発生が技術的な懸念事項として挙げられる。異材接合部の強度上昇には、溶接とリベットのようない機械的接合の併用が図られる。このとき、異種金属接触腐食の発生を防止するために、接合前に鋼やアルミニウム合金の表面へ個別に異なる化成処理を施す方法が挙げられる。しかしながら機械的接合を用いた場合、金属表面の保護皮膜が剥離し、接合後に再度の化成処理を施す必要がある。また鋼とアルミニウム合金を同時に化成処理することが可能な処理方法に関しても実施例はまだ少ない。そこで本研究では、MIG アークブレイジングの技術を応用し、Fe 表面に Al を肉盛することで模擬的な Al/Fe 接合試験片を作製する。この接合試験片に本研究グループで検討している化成処理を同時に施す。その試験片を用いて、Al 合金上での異種金属接触腐食に伴う局部腐食の発生に及ぼす同時化成処理の影響を検討する。

2. 研究方法

鋼側母材には、板厚 12 mm の溶接構造用圧延鋼板 SM490A を用いた。Al ワイヤには、MIG 溶接用ワイヤ A5356WY を用いた。溶接時の条件は次のようにした。溶接電流: 100 A、溶接電圧: 20 V、EN 比率: -10、溶接速度: 0.2 m/min、0.3 m/min、0.4 m/min、0.5 m/min として、交流電圧を印加した。本研究で使用した MIG アークブレイジングの概略図

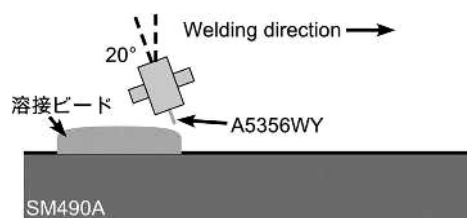


図 1. MIG アークブレイジングによる Al 溶接ビードの作製概略図

を図 1 に示す。作製した Al 溶接ビードと SM490A の接合部断面を Al/Fe 接合試験片とした。浸漬試験について説明する。Al 溶接ビードと SM490A の露出面積が界面を境として同面積となるように電極面を作製した。電解液には、希釈人工海水(pH 8.2、200mg/L Cl⁻)を用いた。この溶液中に Al/Fe 接合試験片を浸漬し、Al 溶接ビード上での局部腐食の発生に関して解析した。浸漬時間は 30 分(短期浸漬)と 20 時間(長期浸漬)の 2 通りを実施した。同時化成処理には Mn 化合物を含有した化成処理液を用いた。電極面は腐食試験と同様のものを使用した。この化成処理液に Al/Fe 接合試験片を 10 分間浸漬した。表面処理を行った Al/Fe 接合試験片に関しても浸漬試験を行い、局部腐食の発生に与える本化成処理の影響を

評価した。

3. 結果

溶接速度を変化させ、MIG アークブレイジングによる SM490A への Al 溶接ビードの肉盛りを試みた。溶接速度が 0.2 m/min、0.3 m/min、0.4 m/min の場合には、溶接直後や腐食試験用に断面加工時に Al 溶接ビードが SM490A 鋼表面から剥離した。一方で溶接速度が 0.5 m/min の場合には、上記のような界面からの破壊は確認されなかった。そのため、この溶接速度で作製した接合体の断面を Al/Fe 接合試験片として、化成処理を試みた。Al 溶接ビードと SM490A の露出面積が同一になるようにそれ以外の部分を被覆し、Mn 化合物を含有した化成処理液に 10 分間浸漬した。化成処理後の SM490A 表面には、赤色の腐食生成物が堆積していることが観察された。

4. 結論

Mn 化合物を含有する化成処理液に Al/Fe 接合試験片を 10 分間浸漬することで、SM490A 上に腐食生成物が堆積することが確認された。今後はこの化成処理後の Al/Fe 接合試験片を用いて浸漬試験を行い、Al 溶接ビードと SM490A での腐食挙動に与える影響を解析する予定である。

(共同研究分野: 信頼性評価・予測システム学分野)

自動車用鋼板を母材とした摩擦攪拌点接合継手の疲労寿命および破壊機構の評価

広島大学大学院先進理工系科学研究科 機械工学プログラム

SELVARAJ THOMASPRABHU

1. 研究背景・目的

板金接合は、コンパクトカーの製造、特に自動車の車体の軽量化において重要な役割を果たす。自動車ボディにはスポット溶接をはじめ種々の接合技術が用いられているが、高張力鋼板への適用に際し多数の問題が浮き彫りになっており、そうした背景から既存の接合技術の改善および新たな接合技術の開発・実用化が要求されている。自動車ボディにはスポット溶接をはじめ種々の接合技術が用いられているが、高張力鋼板への適用に際し多数の問題が浮き彫りになっており、そうした背景から既存の接合技術の改善および新たな接合技術の開発・実用化が要求されている。そこで、本研究では新たな接合技術である摩擦攪拌点接合(Friction Stir Spot Welding: FSSW)の高張力鋼板への適用を念頭に、一般的な自動車車体に広く適用されている 590MPa 級冷間圧延高張力鋼板を母材とするせん断型摩擦攪拌点接合継手を対象とし、変動振幅荷重条件下における疲労特性を解明することを目的とした。

2. 供試材・および実験方法

本研究で使用した材料は、板厚 0.8mm の 590MPa 級自動車用冷間圧延鋼板 SPFC590T である。同材 2 枚を図 1 に示すように重ね固定し、その中央部にツール押込荷重 21kN、ツール回転数 550rpm、押込時間 6s で FSSW を施工した。なお使用した接合ツールはショルダ径 12mm、プローブ径 4mm、プローブ長 1.2mm である。なお、疲労試験は電気油圧式サーボパルサを用い、周波数 $f=5\sim 15\text{Hz}$ 、荷重比 $R_p (=P_{\min}/P_{\max})=0.01$ で行った。

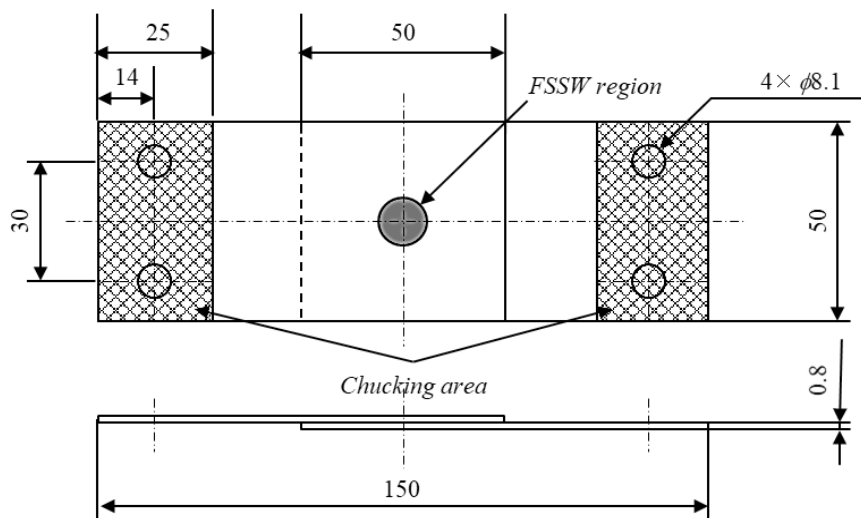


Fig. 1 Shape and dimensions of FSSW specimen (Tension shear type), (unit : mm).

3. 試験結果および考察

図 2 に疲労試験結果を示す。なお、同図は後述する破壊形態別で表しており、縦軸は作用した負荷試験力振幅 P_a 、横軸は破断に至るまでの繰り返し数を用いて整理している。同図より、本試験体の疲労限度は $P_a=0.8\text{kN}$ であり、ビッカース硬さ(200~350HV)、静的引張強度($P_B=10.6\text{kN}$)を考慮すると高張力鋼板を母材とする引張せん断型 FSSW 継手の耐疲労性が著しく低い値であることが分かる。塑性変形は $\Delta P_L=1.4\sim 2.0\text{kN}$ の範囲と確認した。次に、破断した全ての試験体の巨視的破壊形態を観察した結果を図 3 に示す。同図より、2 種類の破壊形態が確認された。まず、図 3 (a)に示す破壊形態についてはスリット先端より発生したと考えられる疲労き裂

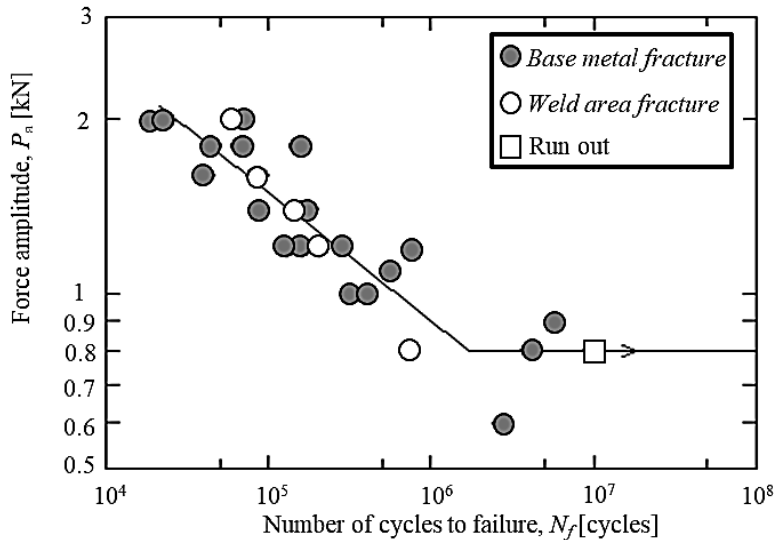


Fig. 2 Fatigue test results.

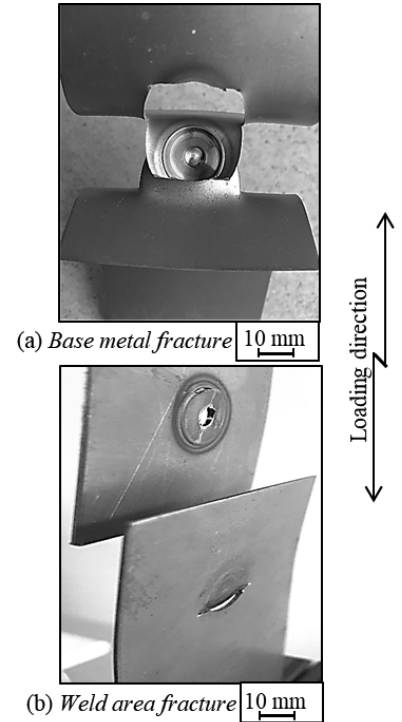


Fig. 3 Fracture morphologies.

が攪拌部領域内を板厚方向・板幅方向に進展した後、母材領域に到達し最終破断に至っている。本研究ではこのような破壊形態を母材破壊 (*Base metal fracture*) と定義する。一方で、図 3(b) に示す破壊形態については図 3(a) と同様にスリット先端から発生した疲労き裂が攪拌部内の圧接界面を継手中央に向けて進展し、上板と下板が剥がれるように最終破断に至っている。これは前節で示した静的破壊形態と同様の破壊様相であると言える。本研究ではこのような破壊形態を接合部破壊 (*Weld area fracture*) と定義する。図 4 と 5 に示す修正マイナーのルールを使用して n_H と n_L の値は、 $D=1$ を考慮して定義し図 6 に示す通り $P_H=1\text{kN}$ と決め $P_L=0.3\sim 0.7\text{kN}$ の範囲で行った。結果は同じ荷重条件で、溶接リップ径の大きいジョイントと小さいジョイントの D_M 値は同等である。 D_{MM} の場合、ほとんど ($D_{MM}\geq 1$) の範囲にあり、設計上より安全である。修正マイナーの規則の損傷計算により、溶接継手の疲労限度がなくなることが確認した。破壊モードは、リップ径の大きいジョイントは母材破壊とリップ径の小さいジョイント接合部破壊のある事を確認できたが、塑性変形範囲に近い為、溶接リップ直径特性で分離した $\Delta P_L=1.4\text{kN}$ ジョイントでのみ異なります。

$$1 = \left(\frac{n_H}{N_H} + \frac{n_L}{N_L} \right) \times \text{block number}$$

Fig.4 Modified miner's rule

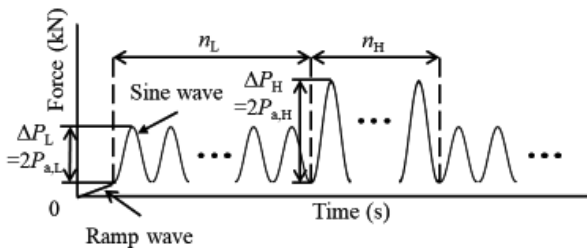


Fig.5 Schematic illustration of repeated two step loading wave

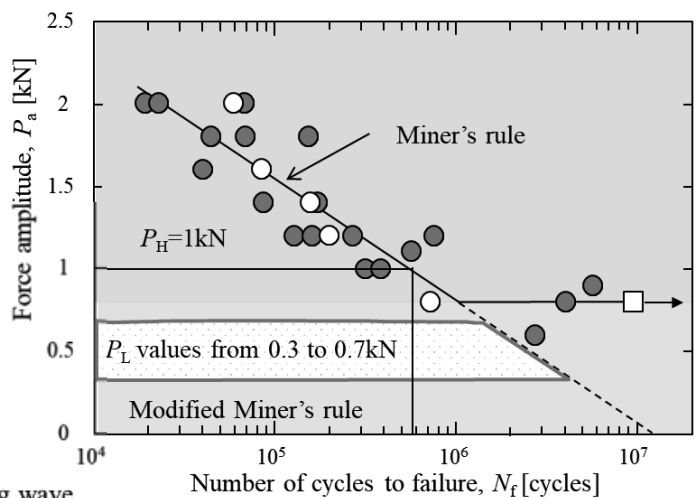


Fig.6 S-N curve

((共同研究分野：信頼性評価・予測システム学分野))

高 Mn 鋼の溶接凝固割れ感受性評価と凝固割れ発生機構の解明

物質・材料研究機構 柳樂 知也

1. 目的

近年、Fe-Mn-Si をベースとして開発された Fe-15Mn-10Cr-8Ni-4Si 合金(FMS 合金と呼ばれる)は、優れた低サイクル疲労寿命を有しており、新たな制振ダンパー材料としての応用が期待されている[1]。しかしながらアーク溶接などの熔融溶接法では、オーステナイト単相で凝固するため、凝固割れが生じやすく、構造体化のためには溶接性の問題を克服することが課題となっている。最近の研究では、構成元素比の制御や合金元素の添加により、凝固割れ感受性が低下することが分かっている[2]。凝固モードや凝固形態が変化していると考えられるが、凝固モードに関する凝固過程における結晶成長や相変態挙動は不明である。また、これまでは組織観察による割れの有無の判定といった定性的な評価のみであり、割れの長さや本数、凝固割れの脆性温度領域などの定量的なデータがないのが現状である。そこで本研究では、凝固割れ感受性を定量的に評価することが可能なバレストレイン試験機の導入とステンレス鋼を用いた予備試験を行った。また、凝固過程の組織を凍結させる液体 Sn 急冷法を利用して FMS 合金の凝固モードについても調査した。

2. 実験方法



図1 導入したバレストレイン試験機

本研究において導入したバレストレイン試験機((株)山本金属製作所製)の外観を図1に示す。両曲げ式のトランス型のバレストレイン試験機である。予備実験として、供試材はオーステナイト系ステンレス鋼 SUS310S を用いた。試験片の寸法は、厚さ(t)5 mm、幅 100 mm、長さ 50 mm とした。溶接速度 0.1 m/min、アーク電流 120A、アーク長 2 mm の条件で TIG メルトラン溶接を行った。幅 35 mm、曲率半径(R)70 mm のベンディングブロックを使用してひずみを負荷した。負荷されるひずみ量は、 $3.4\% (=t/(2R+t))$ である。曲げひずみは、熔融池後端が試験片中心に到達した際に負荷し、曲げ負荷と同時にアークを消弧した。

FMS 合金の凝固モードを調査するために液体 Sn 急冷法を行った。供試材は、凝固割れが発生する組成と凝固割れが抑制される組成の二種類の FMS 合金を用いた。溶接速度 0.1 m/min、アーク電流 250 A、アーク長 4 mm の条件で TIG メルトラン溶接を行い、溶接長が 20 mm となった時点でアークの消弧と同時に液体 Sn を投入し、冷却過程における凝固組織を凍結させた。

3. 実験結果及び考察

図2にバレストレイン試験後の試験片の外観を示す。熔融池の固液境界線から凝固割れが放射線状に多数発生しているのが観察された。SUS310S は、オーステナイト単相で凝固することから、柱状デンドライトの境界に沿って顕著な凝固割れが発生していた。割れの計測により、割れ数 14 個、最大割れ長さ 1.36 mm、総割れ長さ 9.54 mm であった。今回導入したバレストレイン試験を用いて凝固割れ感受性を定量的に評価でき

ることが明らかとなった。

図3に液体 Sn 急冷法により凍結させた凝固割れが発生する組成と凝固割れが抑制される組成の FMS 合金の組織を示す。凝固割れが発生する組成の場合、柱状 dendライトが一方向に成長しており、計算状態図の結果[2]も考慮すると、オーステナイト単相で凝固する A モード凝固であると推定される。一方、凝固割れが抑制される組成の場合、柱状 dendライトの成長過程において、コントラストの異なる相の晶出が観察された。計算状態図の結果[2]を合わせて考慮すると、フェライトが柱状 dendライトとして成長する過程において、オーステナイトが dendライト樹間において晶出した可能性がある。すなわち FA モード凝固であると推定される。

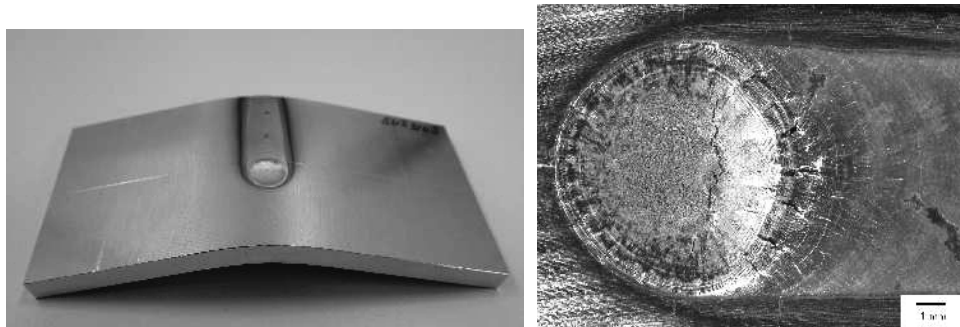


図2 バレストレイン試験後の試験片(SUS310S)

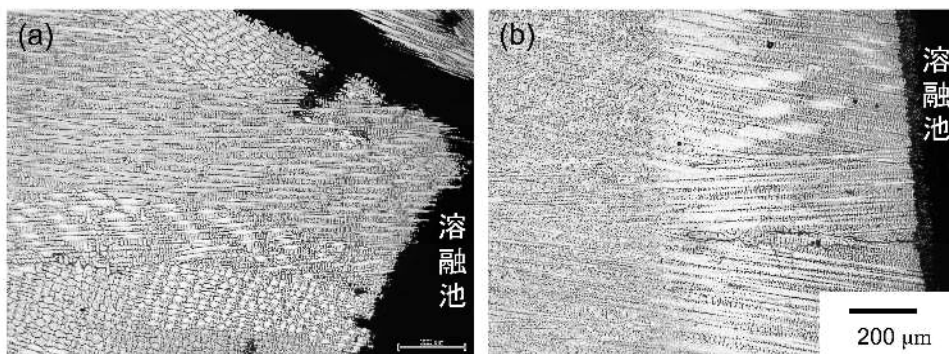


図3 液体 Sn 急冷後の凝固組織(a)凝固割れが発生する組成(b)凝固割れが抑制される組成の FMS 合金

4. 結論

本課題においてバレストレイン試験機を利用して凝固割れ感受性を定量的に評価できる手法を確立することが出来た。今後は FMS 合金に適用し、凝固モードと凝固割れ感受性の関係について調査を行う。また、熱電対により冷却曲線を取得し、凝固脆性温度領域(Brittle Temperature Range)を評価する予定である。

液体 Sn 急冷法においては、凝固割れが発生する組成は A モード凝固、凝固割れが抑制される組成は FA モードであると推定される。今後は、液体 Sn 急冷後の組織を対象に EBSD による phase map の作成や冷却曲線の取得による晶出相の温度を調査することにより、推定される凝固モードの変化について検証する予定である。さらに大型放射光施設(SPring-8)における高輝度 X 線を利用した溶接凝固現象のその場観察においても凝固モードを検証する。

参考文献

- [1] I. Nikulin, T. Sawaguchi, A. Kushibe, Y. Inoue, H. Otsuka, K. Tsuzaki, Int. J. Fatigue 88 (2016) 132–141.
- [2] F. Yoshinaka, T. Sawaguchi, S. Takamori, T. Nakamura, G. Arakane, Y. Inoue, S. Motomura, A. Kushibe, Scr. Mater., 197 (2021) 113815.

(共同研究分野：信頼性評価・予測システム学分野)

溶接高温割れ感受性評価法の高度化とその支配因子の解明
 溶融加工プロセスでの凝固割れ発生現象の解明とその防止技術の構築

群馬大学大学院理工学府知能機械創製部門 助教 西田進一

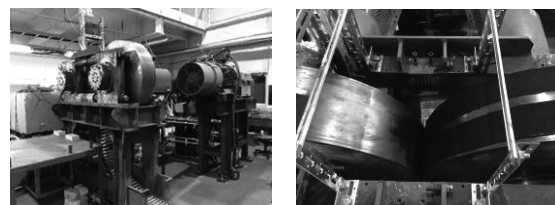
予備実験により注湯温度は 640 °C とした。ロール周速は 2 m/min, 3 m/min, 5 m/min, 10 m/min とした。

1. 緒 言

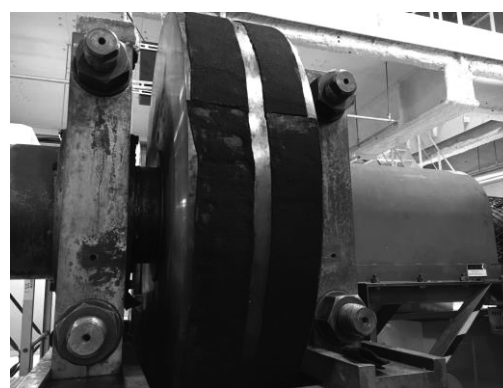
本報告は、縦型双ロールキャスターを用いたアルミニウム合金 A7075 の薄板連続鋳造に関して報告する。双ロールキャストでは溶湯から直接薄板作製が可能であるため、現在数多くの研究が実施されている⁽¹⁾⁽²⁾。実験室規模の研究は多数報告されているが、実機サイズの装置を用いた研究例の報告は少ない。本研究は、ストリップキャストの実用化を目的として、大型装置を用いたアルミニウム合金 A7075 の双ロールキャストの研究を実施した。ロール周速がおよぼす薄板の連続性、表面性状、板厚、圧延荷重への影響について評価を実施した。

2. 実験装置と実験条件

図 1(a), (b), (c) に実験装置を示す。図 1(a) は装置の全体図、図 1(b) は装置の上面図、図 1(c) は装置の側面図である。本装置は株式会社 IHI 製であり、群馬大学太田キャンパスへ移設した。ロール材質は SKD61、ロール直径は 1000 mm、ロール幅は 240 mm であり、中実材である。設計上の最大圧延荷重は 75 t であり、単位幅あたりに換算すると、最大 312.5 kgf/mm の負荷を与えることが可能である。今回、アルミニウム合金の実験を行うにあたり、一部改造を施した。溶湯がロールに接触する箇所がロール幅 30 mm となるように、片側のロール表面にのみ布状カーボンシートを貼付した。ロール幅 240 mm で行われた先行研究において、より高圧の荷重で圧延することで薄板の機械的性質の向上を見込めると推察されたためである。ロールギャップは固定式である。ロール周速はインバータを用いて変更し、2 m/min から 100 m/min まで可変である。図 2 にサイドダムを示す。サイドダムは金属ブロックとボルトを用いて、ボルトの軸力により板を固定した。サイドダムは、軟鋼板と 2 層の耐熱クロスから形成される。耐熱クロスは軟鋼板へ、スプレーのりを用いて貼り付けた。約 400 g のアルミニウム合金 A7075 を坩堝炉にて溶解した。図 3 にノズルを示す。ノズルは軟鋼板、耐熱クロスおよび布状カーボンシートから形成される。ノズルは凝固距離を制御するために使用した。ロールへの離型剤は、グラファイトスプレーを使用した。実験条件を表 1 に示す。初期ロールギャップは 0.8 mm とした。凝固距離は 100 mm とした。



(a) Overall view (b) Top view



(c) Overall view

Fig. 1 Twin roll casting machine

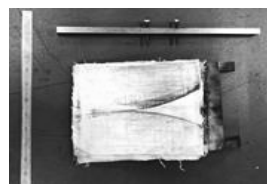


Fig. 2 Side dam plate

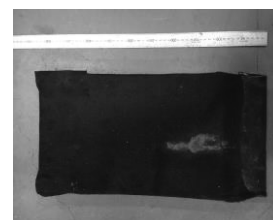


Fig. 3 Nozzle

Table 1 Experimental conditions

Material	A7075
Roll speed [m/min]	2, 3, 5, 10
Pouring temperature [°C]	640
Initial roll gap	0.8
Solidification length [mm]	100

3. 実験結果および考察

図 4(a), (b), (c), (d) に作製した薄板を示す。図の点線内は、ロール表面（布状カーボンシートが貼付されていない箇所）で圧延された。点線外は、布状カーボ

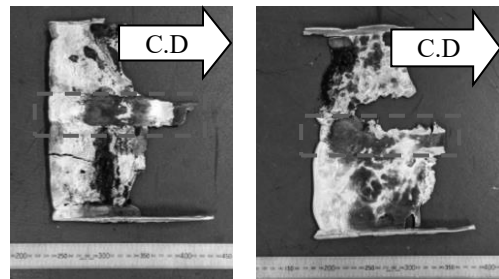
ンシートを貼付した箇所溶湯が流れ、板状となった。ロール周速 2 m/min, 3 m/min では、ロールが停止したため薄板を作製することができなかった。これは、ロール周速が遅すぎたことで、ロールギャップ部入り口で溶湯が凝固し、圧延荷重が大きくなりすぎたためだと考えられる。ロール周速 5 m/min, 10 m/min では薄板を連続的に作製可能であった。ロール周速 5 m/min, 10 m/min で作製された薄板の表面性状は、金属光沢部と白濁部によって構成され、白濁部には凝固割れが生じた。図 6 に、ロール周速 5 m/min のときの凝固割れを示す。白濁部では、溶湯とロールの接触が不十分であったため、冷却が不足し、凝固が完了せずにロールの回転による引張応力を受けたことで、割れが発生したと考えられる。表 2 に薄板の長さ、板厚および最大圧延荷重の測定結果を示す。図 4 の点線外においても溶湯が流れたため、ロール幅 30 mm より広い範囲で荷重が加わっていたと考えられるが、計算の都合上、幅 30 mm で単位幅当たりの荷重を計算した。設計上の単位幅当たりの荷重 312.5 kgf/mm と比較し、本実験での単位幅当たりの荷重は増加した。しかし、ロール幅 30 mm より広い範囲で荷重が加わっていたと考えられるため、計算した値より小さい可能性がある。初期ロールギャップと板厚の相違の原因は、装置に対する習熟度の問題であり、装置の弾性変形等を考慮して、目的とする板厚に対する初期ロールギャップを設定することにより、この問題は解決可能であると考えられる。

図 6(a), (b) に、ロール周速 5 m/min, 10 m/min の微細組織写真を示す。晶出物及び析出物が周速 10 m/min の薄板より周速 5 m/min の薄板のほうが少なかった。これは、急冷凝固により過飽和の初晶 α -Al 固溶体が形成されたためである。溶湯が安定したことでロールに十分に接触し冷却されたことが要因であると考えられる。

Table 2 Measurement results

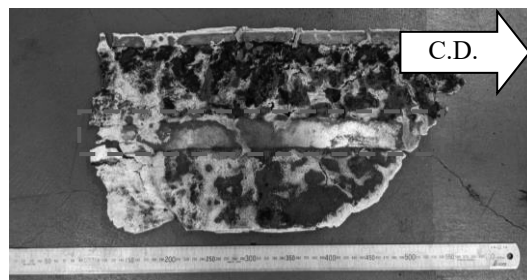
Roll speed [m/min]	2	3	5	10
Strip thickness [mm]	2.52	2.34	1.52	1.41
Strip length [mm]	185	164	425	540
Rolling load [t]	65	59	40	33
Rolling load per unit width [kgf/mm]	2167	1967	1333	1100

(共同研究分野：信頼性評価・予測システム学分野)

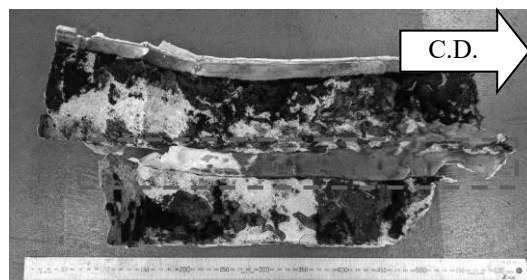


(a) 2 m/min

(b) 3 m/min



(c) 5 m/min



(d) 10 m/min

Fig. 4 Produced strips

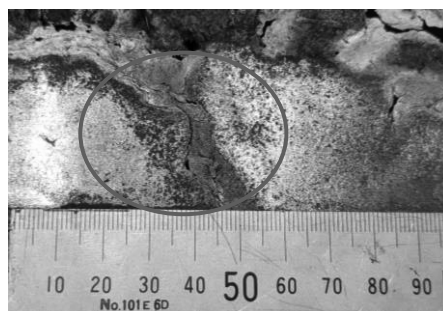
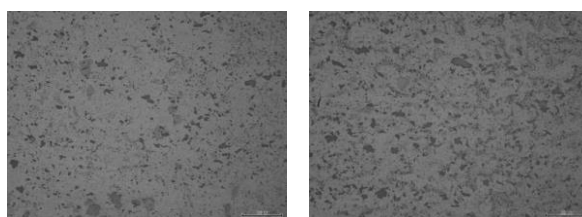


Fig. 5 Solidification cracks



(a) 5 m/min

(b) 10 m/min

Fig. 6 Microstructure

溶湯発泡法によるポーラスアルミニウム製造時の中空セラミックスによる増粘

群馬大学 大学院理工学府 知能機械創製部門

山本貴也, 半谷禎彦

1. 目的

溶湯発泡法によるポーラスアルミニウム（ポーラス Al）の作製は、溶湯の増粘、発泡、冷却の工程からなる。本研究では、増粘剤としてマイクロバルーン（微細中空球）と呼ばれる中空セラミックスを用いることを検討した。中空セラミックスは薄肉の中空形状で、母材に中空粒子を添加することはシンタクチックフォームと呼ばれ軽量化や断熱性などの向上が見込める。中空セラミックスを増粘剤に用いてポーラス Al を作製し、その増粘効果を確認する。増粘剤に中空セラミックスを用いることで、シンタクチックフォームとポーラス Al を組み合わせることができ、中空セラミックスと発泡剤により生成された2つの気孔を持つバイモーダルなポーラス Al の作製が期待される。

2. 研究方法

図1に実験の手順を示す。母材として ADC12（Al-Si-Cu 系アルミニウム合金）を用いた。はじめに図1（a）に示すように、電気炉内 800℃にて ADC12 を溶融させる。その後炉から取り出し、増粘工程で図1（b）のように平均粒径 175 μm の中空セラミックスを添加してハンドミキサーにより攪拌を行った。ハンドミキサーの回転数は 1300 rpm である。熱電対により溶湯の温度を計測し 620℃になったところで、図1（c）のように発泡剤として TiH₂ 粉末を 1.5 mass% 添加して 30 秒間攪拌を行い、発生した H₂ ガスを溶湯内に分散させて発泡を行いポーラス Al を作製した。中空セラミックスの添加量は、中空セラミックスを添加せずに発泡剤だけのものと、中空セラミックスを 5, 7, 10 mass% 添加したものを作製した。得られたポーラス Al は断面、X 線 CT 画像による観察を行った。

3. 実験結果

図2に作製したポーラス Al の外観と断面写真および X 線 CT 画像と各条件での気孔率を示す。まず全体の外観写真を見ると、中空セラミックスを添加しない場合とした場合とでは、発泡状態に大きな違いが確認でき、中空セラミックスを含む方が大きく発泡していることが確認できる。このことから、中空セラミックスを添加した場合には溶湯の増粘が行われていたと考えられ、中空セラミックスを添加することでポーラス Al の気孔形態を維持するこ

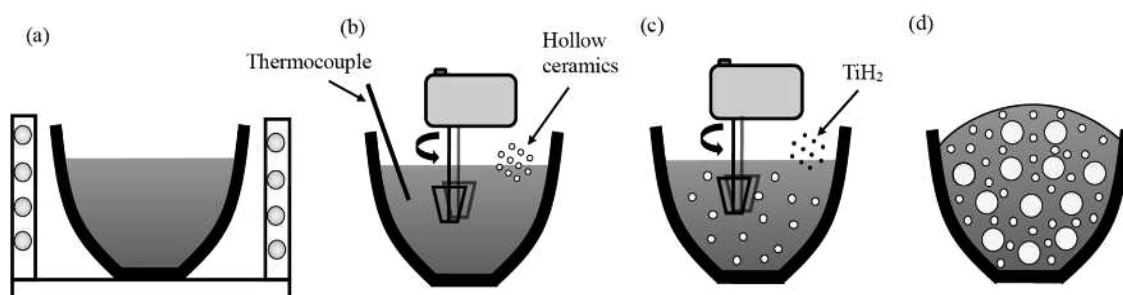


Fig. 1 Experimental procedure




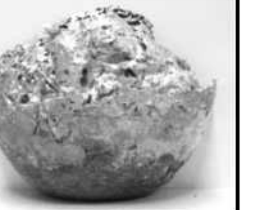
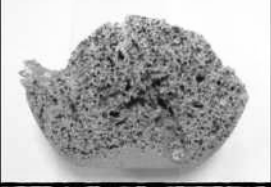
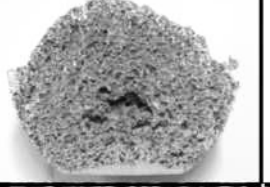
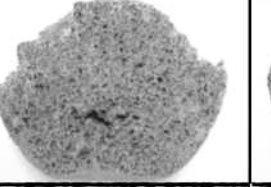
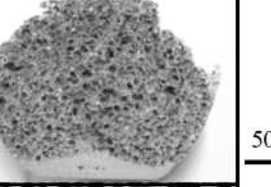
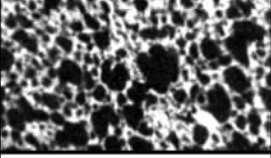
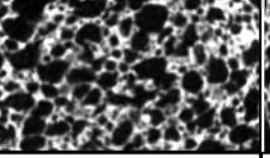
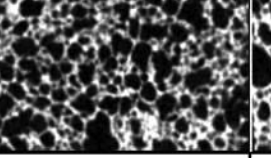
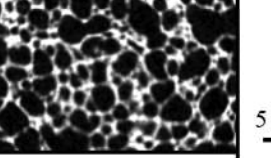
Hollow ceramics	—	5 mass%	7 mass%	10 mass%
Appearance				
Cross sections				
X-rayCT images				
P (%)	54.4	73.9	75.6	76.9

Fig. 2 Images of experimental results

とができた。断面写真を見ると、中空セラミックスの添加量が 10 mass%以外の条件において、ポーラス Al の中心部に空隙が生じていることが確認できる。10 mass%の時に空隙が生じていないことから、これは溶湯の増粘が不十分である場合に気孔同士が結合してしまうことによるものと考えられる。

X 線 CT 画像を見ても中空セラミックスを添加した場合の方が、気孔が均一に分散されており、10 mass%のときに最も気孔が均一に分散されている様子が確認できる。これは中空セラミックスの添加量を増やすほど溶湯の増粘効果が高くなり、気孔を維持することができたためと考えられる。また気孔率は中空セラミックスの添加量が増えるほど高くなり最大で 76.9%だった。これは中空セラミックスの増粘効果によって気孔が安定して生成できるためと、添加量を増やすことでシタクチックフォームの効果が大きくなるという二つの要因が考えられる。

4. 結言

中空セラミックスには溶湯の増粘効果があると考えられ、中空セラミックスを増粘剤として用いることで、ポーラス Al の気孔形態を維持することができることが確認できた。また、中空セラミックスの添加量をさらに増やすことで、増粘効果に加えてシタクチックフォームの効果も大きくなるため軽量性の向上も期待できる。

(共同研究分野：信頼性評価・予測システム学分野)

加熱発泡後のポーラスアルミニウムの切断加工

群馬大学 大学院理工学府 知能機械創製部門

山本貴也, 半谷禎彦

1. 目的

加熱発泡直後のポーラス Al が軟化した状態での切断加工を試みた。提案する切断加工法では気孔形状を維持したまま切断加工が可能であることや、常温での切断加工と比較して低荷重で切断できること、切断時に切粉が生じないことなどが期待できる。ポーラス Al の作製はプリカーサ法を利用し、作製したプリカーサを光加熱装置で加熱発泡させてポーラス Al を作製する。その後ポーラス Al が軟化した状態のまま、ポーラス Al を移動させて切断を行う。非接触式放射温度計による切断直前のポーラス Al の表面温度の計測と、切断後のポーラス Al の断面と X 線 CT 撮像による気孔形状の観察を行い、切断可能な温度と気孔形状を維持したまま加工が可能であるか検討を行う。

2. 研究方法

プリカーサの作製には摩擦攪拌接合法を用いた。母材には ADC12 (Al-Si-Cu 系) 板材を 2 枚用い、気孔形態安定剤としてアルミナ、発泡剤とした水素化チタンを散布して、摩擦攪拌接合により積層板を作製した。作製した積層板から 15 mm × 15 mm × 6 mm に切り出し、プリカーサとして使用した。

Fig. 1 (a), (b)に使用したカッターの全体写真と刃の拡大写真をそれぞれ示す。刃は 2 枚刃構造となっており、2 枚の刃がそれぞれ高速で交互に動くことで対象を切断するものである。Fig. 2 には使用した光加熱装置を示す。昇降機の上にセラミックハニカム板を置き、その上にプリカーサを設置した。ハロゲンランプとプリカーサ上面の距離は 40 mm となるように昇降機を調整した。この昇降機はロボットアームと連結されていて、プリカーサ発泡直後に、カッターまで設定した速度で移動させることができる。Fig. 3 に実験手順の概略図を示す。まず Fig. 3 (a)のように、ハロゲンランプを点灯し加熱を開始した。その後プリカーサが十分に発泡したところでハロゲンランプを消灯し加熱を終了した。加熱終了後、Fig. 3(b)のように直ちにロボットアームにより、ポーラス Al を 54 mm/s でカッターの刃の間近まで移動させた。このときの位置は、発泡前にあらかじめプリカーサの右端と刃の距離が 15 mm のところに設定しており、発泡後も刃に当たらない距離であることを確認している。刃の間近までの移動完了時からの待機時間 t を 0-30 s の間で変化させ、 t s 待機後、Fig. 3 (c)のようにロボットアームの速度を 9 mm/s としてポーラス Al の移動を開始し、カッターの刃を通過させることでポーラス Al の切断を行った。このときのカッターの刃の高さはセラミックハニカム表面から 6 mm とした。得られたすべての試験片は、断面と X 線 CT 撮像による気孔形状の観察を行った。

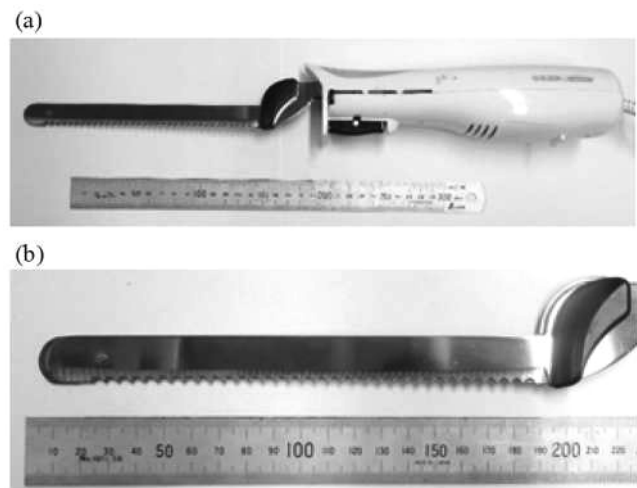


Fig. 1 Images of cutter used for cutting porous Al.

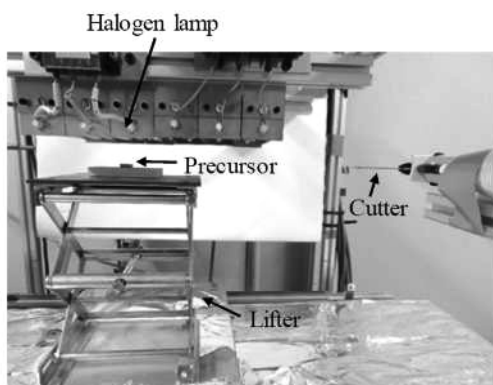


Fig. 2 Experimental setup

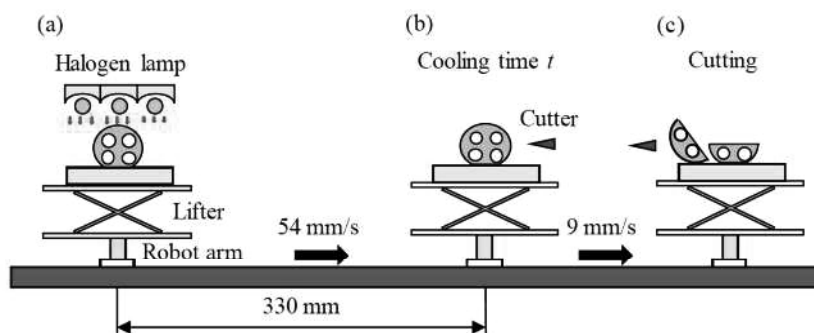


Fig. 3 Experimental procedure

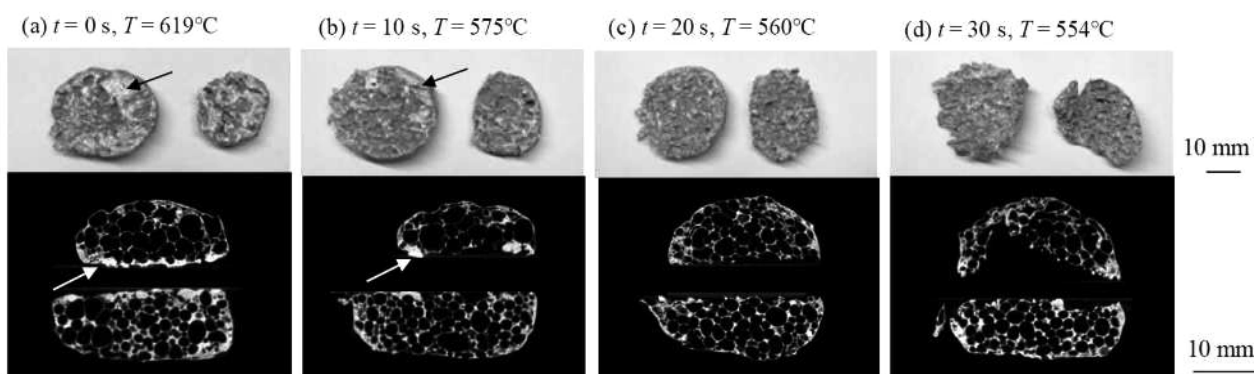


Fig. 4 Cross sections and X-ray CT images of porous Al after cutting.

3. 実験結果

Fig. 4 に各条件での切断後のポーラス Al の断面とその X 線 CT 画像を示す。それぞれの図で、右端から刃が入って左に通過している。Fig. 4 (a), (b) では黒矢印や白矢印で示した部分が切断中に引き延ばされ、断面の気孔が倒れて緻密化していることが確認できる。Fig. 4 (a) で 2 色式放射温度計で計測したポーラス Al の表面温度 T は 619°C であり熔融状態であったと考えられる。Fig. 4 (b) では $T = 575^{\circ}\text{C}$ だったが、ポーラス Al の中心部は液相線温度よりも高く、刃が通過する際に気孔が倒れてしまったと考えられる。Fig. 4 (c) では気孔が潰れたり緻密化している様子はほとんど確認できず、良好な切断ができたものと考えられる。このときのポーラス Al の表面温度 T は 560°C だった。これらのことから ADC12 の液相線温度 580°C よりも低い温度で、ある程度凝固してから切断することで気孔を維持できると考えられる。また Fig. 4 (a)-(c) では断面部以外の気孔が潰れたり変形している様子は見られなかったため、切断によるポーラス Al の気孔形状への影響は、刃が触れる断面のみ考慮する必要があると考えられる。一方で待機時間が最も長い $t = 30\text{ s}$ の Fig. 4 (d) では硬化が進みすぎてしまい、切断部以外で破断してしまったと考えられる。この時の表面温度は $T = 554^{\circ}\text{C}$ だった。以上のことから、ポーラス Al の切断を行うためには母材の液相線温度以下であると同時に、冷却が進みすぎないことも重要であると分かる。

(共同研究分野：信頼性評価・予測システム学分野)

SPCC 鋼板を母材とするレーザー溶接継手の散逸エネルギーに基づく疲労限度評価

神戸大学大学院 工学研究科 機械工学専攻
堀田 大樹

1. 研究背景

高エネルギー密度のレーザー光を用いるレーザー溶接は、短時間かつ高品質な溶接を実現でき、溶接装置の自動化や精密制御が容易であることから、自動車や鉄道車両をはじめとして、精密機器や航空宇宙分野など各種産業分野での利用が拡大している。しかし、高い水準での安全性および信頼性が要求される溶接構造物に対しては、破壊の主要因である疲労に対する評価を行う必要があり、かつ、近年の技術革新のスピードに応じて、迅速に疲労強度を評価できる手法の確立が求められている。そこで本研究では、散逸エネルギーに基づく疲労限度評価法に着目した。散逸エネルギーとは、局所的な塑性変形に起因したエネルギーの散逸による微小な発熱である。散逸エネルギー変化を追従することで、鉄鋼材料や軽金属材料など幅広い材料に対して破壊箇所を可視化できるとともに、迅速な疲労強度評価を実現できる。そのため、本報では、鋼板を母材としたレーザー溶接継手を対象に、散逸エネルギーに基づく疲労強度推定に対する適用性について実験的検討を行った。

2. 試験方法

本研究で用いた材料は、板厚 3 mm の冷間圧延鋼板 SPCC である。同材を 70×100 mm の短冊状に機械加工後、2 枚の鋼板をギャップ 0 mm で突合せ、Table 1 の条件にてレーザー溶接を施工する。その後、作製した継手は Fig. 1 に示すように、溶接方向に対して垂直方向に幅 20 mm のダンベル状に放電加工にて切出し供試材とした。

継手の応力振幅一定試験（疲労試験）は、応力比 $R=-1$ 、周波数 $f=7\sim 10$ Hz、未破断時の試験打ち切り回数は $N=1\times 10^7$ cycles とした。また、本研究で着目する微小な塑性変形による発熱を示す散逸エネルギーは、短い繰返し数ごとに応力振幅を階段状に増加させる階段状応力振幅増加試験から、赤外線サーモグラフィを用いて測定した。負荷条件は応力比 $R=-1$ 、負荷周波数 $f=7$ Hz、各応力振幅の繰返し数は 3300 cycles とした。負荷 1 サイクルの荷重変動に対して、最大引張・圧縮応力付近で塑性すべり変形により不可逆的な発熱が生じるため、温度変動信号から得られる負荷周波数の 2 倍にあたる周波数成分を散逸エネルギーと定義した。また、散逸エネルギー測定の高精度化を図るため、試験片の剛体移動の影響を除去する位相補正処理、および試験機の高調波振動の影響を取り除くための位相ロックイン処理を施した。

Table 1 Welding condition

Electric power (kW)	Welding speed (m/min)	Defocus length (mm)	Push angle (deg.)
4.0	1.5	5.0	5.0

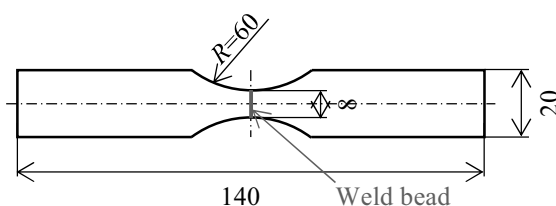


Fig. 1 Shape and dimensions of specimen (unit: mm).

3. 試験結果

荷重軸方向に対する溶接断面およびそのビッカース硬さ試験結果を、Fig. 2 に示す。同図から、溶接金属のビッカース硬さは、母材のそれと比べ 1.5 倍程度となることがわかる。また、母材試験片およびレーザー溶接継手の疲労試験結果を Fig. 3 に示す。同図縦軸は、負荷試験力振幅を破断箇所の面積で除した応力振幅、横軸は破断までの繰返し数をそれぞれ示している。同図から、黒丸で示す母材試験片および赤丸で示すレーザー溶接継手の疲労限度は、ともに 120-130MPa 程度であった。レーザー溶接継手に対する疲労破壊様相を詳細に観察するため、疲労試験を任意の繰返し数にて停止した際の、溶接部中央断面を観察した結果を Fig. 4 に示す。同図から、溶接継手の疲労き裂発生起点は、レーザー溶接の影響を受けていない母材領域であり、かつ、母材内を疲労き裂進展する様相が確認された。これは、溶接部の硬さが母材のそれと比べ高いことが要因とされる。

レーザー溶接継手で取得した散逸エネルギー分布を Fig. 5 に示す。同図から、レーザー溶接継手にて最も散逸エネルギーが発現する箇所は、疲労き裂が発生する母材領域である。したがって、散逸エネルギーからレーザー溶接継手の破壊起点を可視化することができることが明らかになった。母材試験片およびレーザー溶接継手の階段状応力振幅増加試験における、散逸エネルギーの計測結果を Fig. 6 に示す。本研究における、散逸エネルギーの評価領域は母材試験片およびレーザー溶接継手ともに 10×10 pixel に設けており、母材試験片は最小断面部中央、レーザー溶接継手はき裂発生箇所の母相領域としている。Fig. 5 において、黒丸で示す母材試験片と赤丸で示すレーザー溶接継手の散逸エネルギーを比較すると、散逸エネルギーが急増する応力振幅は、 150 MPa 程度であることが分かる。したがって、散逸エネルギーの急増点を疲労限度と仮定すると、疲労試験より求まる疲労限度とおおよそ一致しており、本研究で対象とした SPCC 鋼板を母材とするレーザー溶接継手およびその母材は、散逸エネルギーに基づく疲労限度推定が可能であることが分かった。

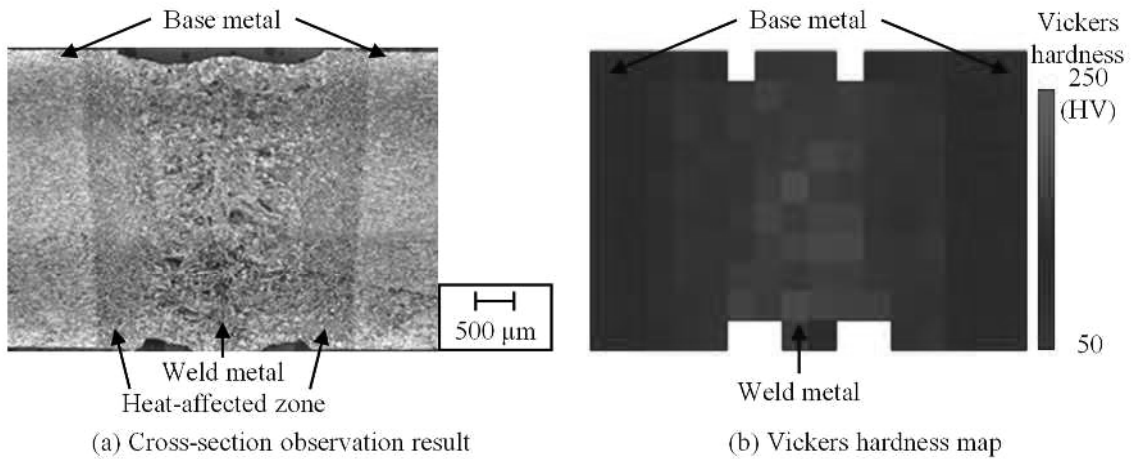


Fig. 2 Welding properties of laser welds for SPCC.

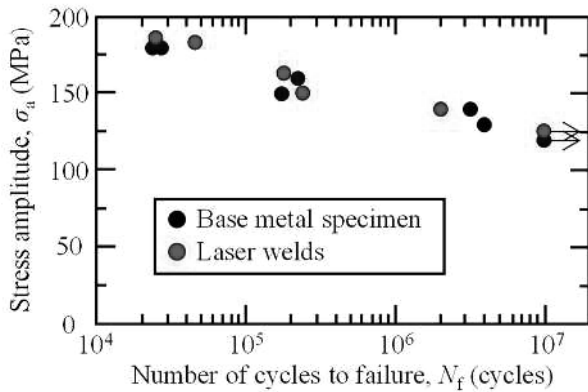


Fig. 3 Fatigue test results ($S-N$ curves).

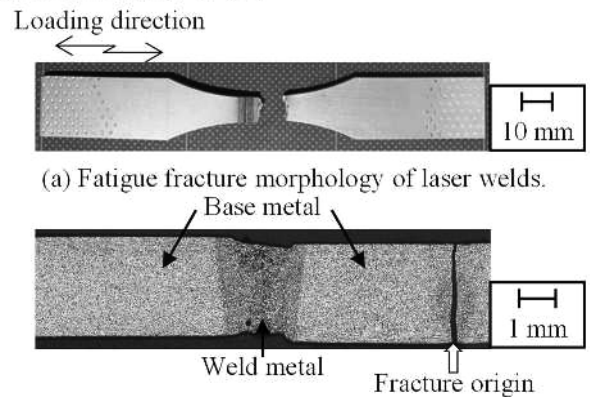


Fig. 4 Fatigue fracture mechanism of laser welds.

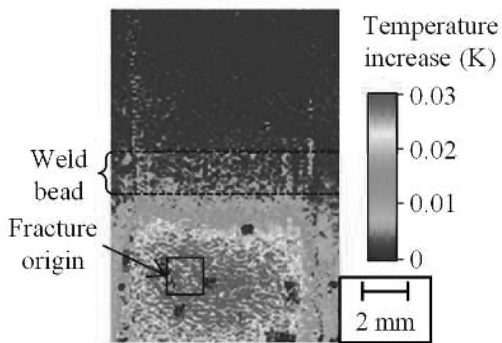


Fig. 5 Dissipated energy distribution for laser welds.

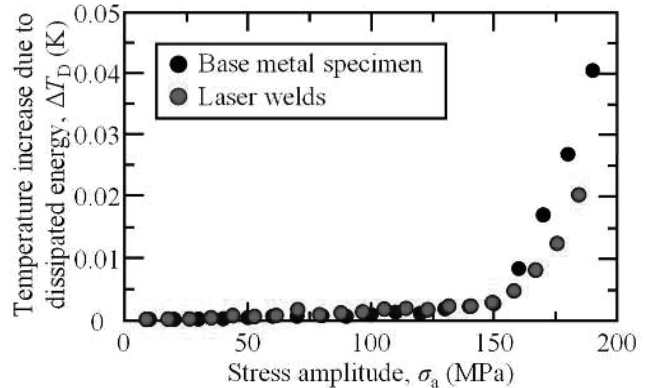


Fig. 6 Measure results of dissipated energy for specimen.

(共同研究分野：信頼性評価・予測システム学分野)

ハイエントロピー合金の凝固組織と変形双晶の評価

関西大学 化学生命工学部
化学・物質工学科
丸山 徹

1. 研究背景と目的

ハイエントロピー合金において fcc 固溶体を形成する合金では、低温で高強度・高延性を示すことが報告されている。この要因は合金内の広範囲にわたって双晶誘起塑性が生じることと考えられている。一方で室温における降伏強度は低いことが課題とされている。この解決法として固溶強化による降伏強さの向上が考えられる。配置のエントロピーを大きく変えることなく固溶強化を導入するために炭素等の侵入型固溶元素の合金化が考えられる。fcc 系ハイエントロピー合金である MnFeCoNiCu 系合金に炭素を添加した合金では、室温及び液体窒素温度の両方で降伏強さが向上するが、延性は低下する¹⁾。この他に Li は炭素の合金化によって fcc 相の積層欠陥エネルギーが増加することを報告しており²⁾、このことから双晶変形が生じる臨界せん断応力が大きくなり、延性が低下すると考えられる。以上のことから炭素の合金化と延性との間にはトレードオフの関係であると想像される。しかし、鑄造材では凝固偏析の影響を受けるため、配置のエントロピーや炭素の分布はデンドライト組織と対応すること予想され、単純なトレードオフの関係となるとは限らないと考えられる。

そこで本研究では、炭素添加による fcc 系ハイエントロピー合金の機械的性質の知見を深めることを目的として炭素量を変化させた MnFeCoNiCu 合金鑄造材を作製し、マイクロ組織および引張特性を調査した結果を報告する。

2. 実験方法

純金属と人工黒鉛を目標組成になるように合計 4kg に秤量し、高周波誘導炉にて大気溶解後、鑄込み温度約 1500°C で φ25 の丸棒が得られる金型に鑄造した。炭素量を 0at%、2.2at% (0.5mass%) および 5.5at% (1.2mass%) と変化させた。Cu 量は 11at% 一定とし、Mn, Fe, Co および Ni を等原子組成とした。得られた試料の成分分析、光学顕微鏡(OM)観察、EPMA による元素マッピング、X 線回折、硬さ試験および引張試験(室温と液体窒素温度)を行った。

3. 結果及び考察

鑄造試料の OM 観察より、炭素量に関わらず黒鉛の生成は認められなかったことから、この合金の炭素固溶限は 5.5at% 以上であると考えられる。EPMA による元素マッピングの結果(図 1)、デンドライトのアーム部には Fe と Co が、デンドライト間隙には Ni, Mn および Cu が濃化していた。この傾向は炭素添加の有無にかかわらず同じであった。炭素を添加した場合、C はデンドライト間隙に濃化した。図 2 に XRD パターンを示す。fcc の回折ピークは明瞭に認められた。一方で、図中に○印で示した fcc の回折ピークとは異なる小さなピークが複数認められた。Sonkusare らは炭素を含まない

MnFeCoNiCu 合金の XRD パターンを測定しており、室温では fcc のみのピークを示すが、650°C を超えた温度では室温で検出される fcc 相とは別の格子定数を有する fcc 相と bcc 相の回折ピークが検出されることを報告している³⁾。図 2 で認められた fcc 以外の小さなピークに由来する結晶の同定には更なる実験結果とより詳細な解析が必要と考えられるが、これらのピークの一部は Sonkusare らが 650°C を超えた高温

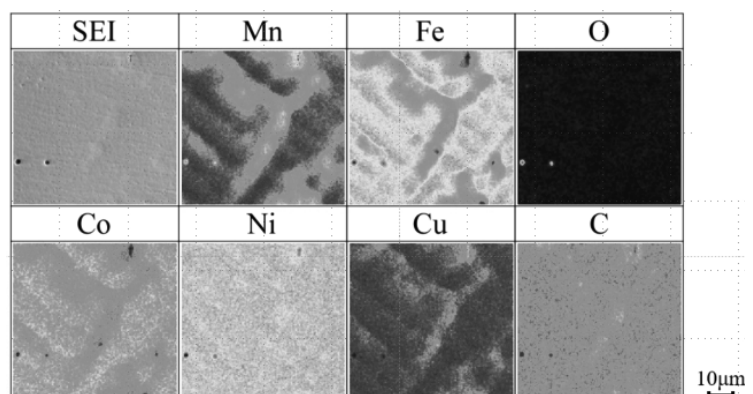


図 1 炭素を 5.5 at% 含む (MnFeCoNi)₈₉Cu₁₁ 合金の凝固組織と EPMA による元素マッピング結果

で測定したピークと類似していた。これらのことから格子定数の異なる fcc 相や bcc 相、あるいは B2 や L12 のような規則構造の相が含まれることが予想される。また、炭素量が多いほど fcc 以外のピークは検出されなくなることから、炭素は fcc 相を安定にすると考えられる。炭素量の増加により fcc の回折ピークは低角度側に変化しており、ピークシフトから求めた格子定数は炭素量の増加とともに大きくなることが明らかとなった。また硬さは炭素量の増加とともに大きくなった。これらの結果は炭素の固溶強化によるものと考えられる。

図3に炭素無添加試料の応力-ひずみ曲線を示す。伸びは室温の方が液体窒素温度よりもやや大きかったが、液体窒素温度でも大きな伸びを示した。塑性変形がすべり変形のみの場合、液体窒素における伸びは小さくなることから、液体窒素温度における塑性変形は双晶変形も関与していると考えられる。室温の降伏強さは約 250MPa であった。同様な試験で炭素を 5.5at% 添加した試料の結果を図4に示す。延性は低下したが、室温の降伏強さは約 550MPa 程度となり、炭素 1at%あたり約 55MPa (1mass%あたり約 600MPa) の降伏強さの向上が認められた。液体窒素温度の降伏強さは約 850MPa であり、室温のそれと比べて大きい。このことから炭素を含む合金では双晶変形の寄与はほとんどないと推察される。MnFeCoNiCo 合金に炭素を合金化すると積層欠陥エネルギーが大きくなることが報告されている³⁾。炭素を添加した(MnFeCoNi)₈₉Cu₁₁合金の積層欠陥エネルギーは炭素無添加の合金よりも大きいと考えられ、このことが双晶変形の臨界せん断応力を大きくしていると考えられる。以上の結果より、炭素含有量を調整することで固溶強化により降伏強さを大きくしつつ、塑性変形の際にはすべり変形と双晶変形の両方が生じる合金設計が可能と考えられる。

参考文献

- 1) 丸山ら：日本鑄造工学会第173回全国大会 講演概要集(2019), 62.
- 2) Z. Li: Acta Materialia, 164(2019), 400.
- 3) R. Sonkusare et al.: Mater Chem Phys 210 (2018), 269.

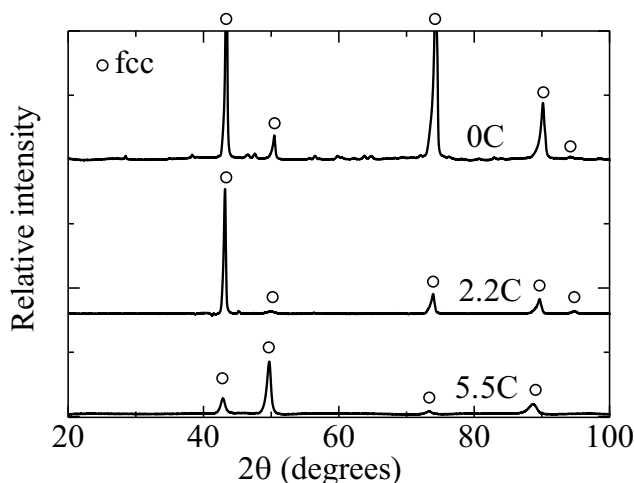


図2 C_x(MnFeCoNi)_{89-x}Cu₁₁合金鑄造材のXRDパターン

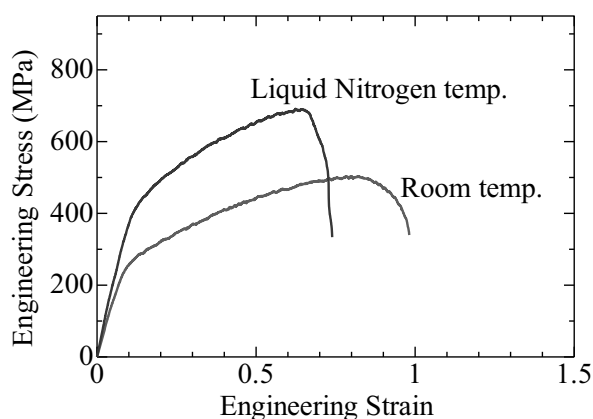


図3 炭素無添加(MnFeCoNi)₈₉Cu₁₁合金の引張試験における応力-ひずみ曲線

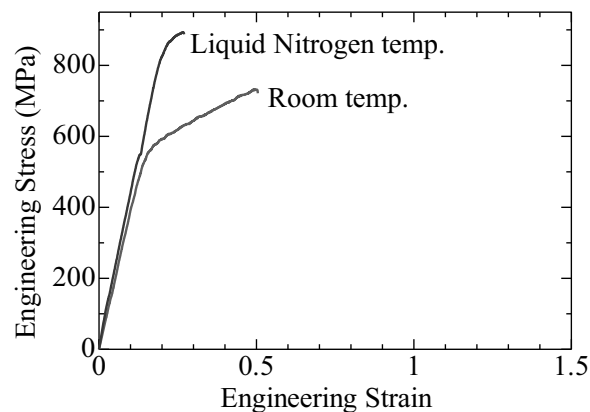


図4 炭素を5.5at%添加した(MnFeCoNi)₈₉Cu₁₁合金の引張試験における応力-ひずみ曲線

(共同研究分野：信頼性評価・予測システム学分野)

ステンレス鋼/ Cu 合金異材肉盛溶接部の組織形態と抗菌性評価

秋田大学大学院理工学研究科
宮野 泰征

1. 諸言

国内の腐食コストは年間数兆円規模と報告され、多くの費用と労力が対策に投じられている。耐食材料の積極活用も検討されているが、ステンレス鋼などを選定しても、微生物腐食への免疫性は必ずしも十分ではなく、その溶接部などはむしろリスク要因となる場合もある。微生物腐食の発生は ①金属表面への微生物の着床 ②バイオフィーム形成 ③バイオフィーム近傍/直下での腐食発生という過程に従うとされる。腐食を誘導する微生物の種類/活動は極めて多様であるが、微生物の付着、あるいは忌避に合金中の元素濃度の影響を指摘する報告は多い。しかし、両者の相互作用を系統的に調査した知見は必ずしも充実していないように思われる。本報告では、微生物腐食が見つかることの多いステンレス鋼溶接部に注目し、微生物の忌避性が知られる Cu 合金の溶加材を用いた異材肉盛溶接部に対して、溶接条件によるマイクロ組織や抗菌性を評価した結果について報告する。

2. 実験方法

2.1 供試材

Cu を含有する溶接ワイヤを用い、SUS304L 上に低入熱施工が可能な交流パルス MIG 溶接により肉盛溶接を行った。溶加材には JIS Z 3341 準拠の YCuNi-1 ワイヤを使用した。溶接電圧等の溶接条件によって母材希釈，すなわち溶接金属中の Cu 濃度の制御を行った。溶接部断面観察から母材希釈率をするとともに，溶接金属の組織形態を光学顕微鏡ならびに SEM-EDS により評価した。溶加材の化学組成を Table 1 に示す。

Table 1. Chemical composition of welding wire (mass%).

Cu	Si	Mn	P	S	Ni	Fe	Ti
Bal.	0.02	0.85	0.008	0.001	8.93	0.69	0.17

2.2 抗菌性評価

肉盛溶接部を平面研削し 13×13mm の評価面を有する試料として取得した。評価面は耐水研磨紙#1500 仕上げとした。JIS Z 2801 (フィルム密着法) に準拠し抗菌活性を評価した。供試微生物には大腸菌：*Escherichia coli* NBRC 3972 (以下、*E. coli*) を使用し、Nutrient broth (以下 NB 培地) で 2 代の継体培養を経て、濃度 0.5% NB 培地中に *E. coli* の生菌数を $2.5 \sim 10 \times 10^6$ cfu/ml に調整した細菌懸濁液として用意した。試験に供する細菌懸濁液量は 0.075ml とし、試料表面に滴下後、13×13mm のフィルムを使用し密着させた。温度 308K、相対湿度 90% 以上に制御した培養器にて 24 h の試験を行った。試験終了後、フィルムと試験片を 5 ml の SCDLP 培地を注入した遠沈管に入れ、15 秒間の攪拌操作により生菌数測定用の菌液を得た。この菌液を原液とする希釈系列を作製し、各系列からそれぞれ 1ml を検体として取得した。各検体と Standard Ager 培地を混釈し、評価用寒天培地を作製した。作製した平板培地を、温度 308K、相対湿度 90% 以上に制御した培養器にて 48 h 保管し、発現したコロニーを目視で数え CFU(colony forming unit)として生菌数として評価を行った。

評価サンプルの各希釈系列あたり n 数は 3 とした。

3. 結果と考察

Fig.1(a) に MIG 溶接により SUS304L 上に得られたビード外観の一例を示す。健全な外観を呈しており、幅も評価面サイズの 13mm を十分に確保できている。Fig.1(b) に溶接線に垂直な断面のマクロ観察結果を示す。溶接金属は母材表層を侵食するような形態を示し、融け込みによる母材希釈がおきている様子が示唆される。EDS 分析で最大 45.1%の範囲まで母材希釈が実現できることを確認した。Cu を数 mass%含有する抗菌 SUS などは市販されているが、10 mass%以上の濃度で Cu を含有するステンレス鋼材は市販材としての入手は困難と思われる。このような高濃度で Cu を含有するステンレス鋼表面を対象に抗菌性試験を実施した。

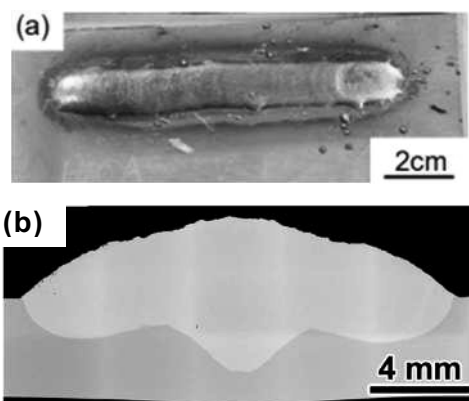


Fig. 1 (a) Example of Weld bead appearance (b) SEM image of Cross section of weld bead.

抗菌試験は、最大の母材希釈が実現された①希釈率 45.1%材と②溶加材まま材の 2 種類の試料（加工材）を対象に実施した。対照材（無加工材）には③SUS304L 材を設定した。評価は、厳密には JIS Z 2801 が定める以下の評価式から導出される抗菌活性値 R に従う。

$$R = [\log_{10}(B/A) - \log_{10}(C/A)] = [\log_{10}(B/C)] \cdots (1)$$

ここで、式中の文字は以下を示す。

A : 無加工材に暴露直後 (0 h) の生菌数

B : 無加工材に 24 h 暴露後の生菌数

C : 加工材に 24 h 暴露後の生菌数

評価は R が 2.0 以上、すなわち無加工材での生菌数に対し、加工材での生菌数が二桁以上減少している場合に抗菌性が有ると定めるものである。Fig.2 は、各条件の生菌数の計測結果を示している。SUS304L では 24 時間経過後の生菌数には僅かな増加傾向が示された。一方、希釈 45.1%材および溶加材まま材の試料は、24 h 後の生菌数が全く確認されない結果となった。米国環境保護庁 (EPA) が 2008 年 3 月に制定した銅合金の公衆衛生効果の表示認可は、銅合金の銅濃度を 60mass%以上と定めるものである。希釈率 45.1%材の銅含有率を、溶加材の化学組成から考慮すると、凡そ 40mass%と見積もられる。これより、40mass%程度の Cu 濃度でも表示認可レベルの銅合金と同等の抗菌性能を発現している。また、本溶施工法によれば、汎用 SUS 表面に抗菌性を付与できることを確認した。

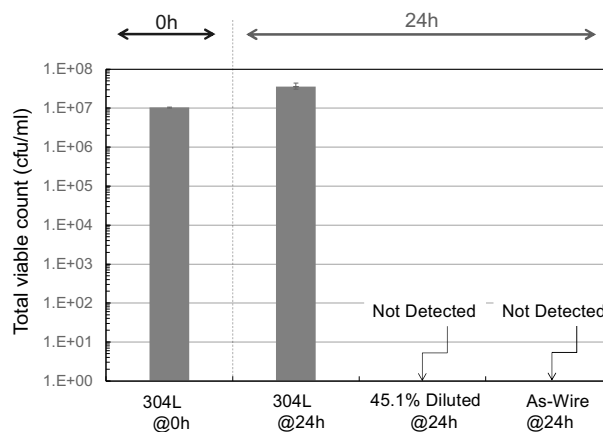


Fig. 2 Result of total viable counts by the plate culture method

5. まとめ

- ・汎用ステンレス鋼 SUS304L に対し、市販 Cu 含有溶接ワイヤを使用した交流パルス MIG 溶接を実施し、Cu 濃度の異なるステンレス鋼/Cu 合金異材肉盛溶接部を得ることができた。
- ・作製した肉盛溶接部表面を対象に、JIS Z 2801 抗菌試験を実施し、母材希釈率 45.1%の試料でも、表示認可レベルの銅合金と同等の強い抗菌活性を示すことを確認した。

1. 目的

自動車に代表される輸送機器の軽量化の手段として、車体材料のマルチマテリアル化が精力的に研究されている。従来の構造材料である鋼から軽量化を図るためにアルミニウム合金のような軽量材料へ適材適所に置換していく方法である。マルチマテリアル化の発展を支える上で、脆弱な異材接合部強度やアルミニウム合金上での異種金属接触腐食の発生が技術的な懸念事項として挙げられる。大気腐食環境下でのアルミニウム合金と鋼の異材接触時には、アルミニウム合金がアノード、鋼がカソード側金属となり、アルミニウム合金と鋼とで局部電池を形成する。この反応は異材接触時のアルミニウム合金と鋼では、異材接触により内部電位差が生じるために起こる。この場合のアノード反応として、アルミニウム合金上での局部腐食の発生が予測される。一方で鋼表面ではカソード反応が促進されるとされている。

ところで、大気腐食環境下で単独で鋼を使用する場合、局部腐食の発生に伴って生成されるさびによって鋼表面が覆われる。これは鋼表面でアノード反応サイトとカソード反応サイトが存在することで、局部電池を形成するからである。アルミニウム合金との異材接触時の鋼がカソード反応サイトとなる場合においても、鋼表面のみでも局部電池が形成されることは予想できる。いいかえれば、たとえ鋼がアルミニウム合金と接触しているとしても、鋼本来の耐食性が低いならば、容易にさびが生成すると思われる。アルミニウム合金と鋼の異種金属接触腐食の研究はアノード反応サイトとなるアルミニウム合金の腐食挙動に着目した先行事例が多い。しかしながら、アルミニウム合金との接触時の鋼表面でのアノード反応に着目した事例は少ない。異材接合部の信頼性を向上させるためにも、アルミニウム合金表面だけではなく、鋼表面での異材接触時の腐食挙動も解析する必要がある。

そこで本研究では、MIG アークブレイジングの技術を応用し、Fe 表面に Al を肉盛することで模擬的な Al/Fe 接合試験片を作製した。この接合試験片を用いた浸漬試験により、異材接触時のアルミニウム合金と鋼の腐食挙動を解析する。

2. 研究方法

鋼側母材には、板厚 12 mm の溶接構造用圧延鋼板 SM490A を用いた。Al ワイヤには、MIG 溶接用ワイヤ A5356WY を用いた。溶接時の条件は次のようにした。溶接電流: 100 A、溶接電圧: 20 V、EN 比率: -10、溶接速度: 0.2 m/min、0.3 m/min、0.4 m/min、0.5 m/min として、交流電圧を印加した。本研究で使用した MIG アークブレイジングの概略図を図 1 に示す。作製した Al 溶接ビードと SM490A の接合部断面を Al/Fe 接合試験片とした。浸漬

試験について説明する。Al 溶接ビードと SM490A の露出面積が界面を境として同一になるように電極面を作製した。電解液には、希釈人工海水(pH 8.2、200mg/L Cl⁻)を用いた。浸漬時間は 30 分と 20 時間の 2 通りを実施し、短期浸漬と長期浸漬による鋼の腐食挙動の差異を解析した。

3. 結果

図 1 は送り速度を 0.5 m/min とした場合の Al/Fe 接合試験片の表面写真を示している。A5356WY の溶接ビードと SM490A の接合界面には金属間化合物(IMC)層の形成が確認された。しかしながら、IMC 層には所々微小なひびや割れが生じていることも確認された。これらの欠陥は A5356WY が凝固した際に収縮応力が異材界面にかかったために生じたと推測される。

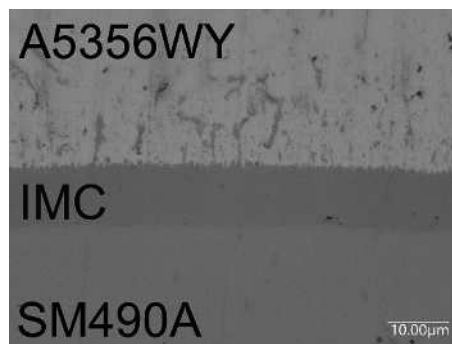


図 2. 送り速度を 0.5 m/min とした場合の Al/Fe 接合試験片の表面写真

この接合試験片を用いて浸漬試験を行い、浸漬時間の違いが及ぼす鋼表面のさび生成への影響を解析

した。30 分間浸漬した場合には、鋼表面でのさびの生成は確認されなかった。一方でアルミニウム合金表面には局部腐食の発生が見られた。この結果は短期浸漬においては異材接触によるアルミニウム合金の犠牲防食作用によって鋼表面でのさびの生成が防止されたことを示唆している。しかしながら 20 時間浸漬した場合には、鋼表面にさびの生成が確認された。

4. 結論

MIG アークブレイジングで作製した Al/Fe 接合試験片を用いた浸漬試験を実施し、アルミニウム合金接触時の SM490A 鋼の腐食挙動を解析した。その結果、30 分間という短期間の浸漬条件では、アルミニウム合金の犠牲防食作用は成り立つことが分かった。しかしながら、20 時間という長期間の浸漬条件では、SM490A 鋼表面にさびの生成が確認され、アルミニウム合金と接触していながらも自己腐食作用を示すことが分かった。

(共同研究分野: 信頼性評価・予測システム学分野)

複合材料の熱物性評価

国立研究開発法人 産業技術総合研究所 物質計測標準研究部門
阿子島 めぐみ

1. 研究の背景

省エネルギーを背景に断熱材の開発が進められているが、低熱伝導を実現するために、低密度化や熱媒体の含有の低減、界面の増加による熱抵抗増大などの工夫が凝らされている。断熱材の熱伝導率評価では、定常熱流法が用いられることが多い。定常熱流法は比較的低熱伝導率で密度が低い材料の熱伝導率測定において実績があり[1]、JIS や ISO も制定されている。定常熱流法では、大型の試料に大きな温度勾配を生じさせて測定することが有利であり、平均的な熱伝導特性を評価する。大型試料が必要であることや測定時間が長いことが短所であり、材料開発へのフィードバックが非効率な側面がある。一方、密度が比較的高く緻密で高熱伝導率の固体材料は、フラッシュ法[2]による熱拡散率、DSC 法による比熱容量、質量と寸法から求めたかさ密度をそれぞれ求め、これらの積として熱伝導率を算出する場合が多い。フラッシュ法は小型試料を用いて測定からデータ解析して結果が出るまでの評価を数分で実施可能であることから、この手法が利用できれば断熱材の開発の効率向上に役立つと期待し、我々はその適用性に関する研究を進めている。我々はこれまでフラッシュ法を用いたシリカナノ粒子とガラス繊維の複合断熱材の熱伝導特性の評価[3]やカーボンナノ粒子と扁平状カーボン粒子の複合断熱材の熱伝導特性の評価[4, 5]を行い、評価が可能であることおよび温度上昇曲線の解析における課題や繊維の配向に伴う熱伝導性の異方性について検討を進めてきた。今年度は、これまでの測定結果を踏まえ、組成が同じで加圧成形時の圧力を変えることによって意図的に配向性の度合いを変えた断熱材試料を作製いただき、熱拡散率の測定をフラッシュ法により行った。

2. 研究方法

試料は接合科学研究所で合成し、熱拡散率の測定は産総研において行った。

試料はフェームドアルミナ、炭化ケイ素、セラミック繊維の原料粉を重量比 65:15:20 の配合で、Mechanical Processing で混合後に加圧成形したものである。加圧成形時に、セラミック繊維の多くが加圧面に平行に配向することを期待して作製されたが、配向性の度合いを変化させることを期待して加圧は 3 MPa、4 MPa、5 MPa と 3 段階とした。形状は、熱伝導性の異方性を評価する目的で、5 mm×5 mm× 5 mm の立方体とした(図 1)。

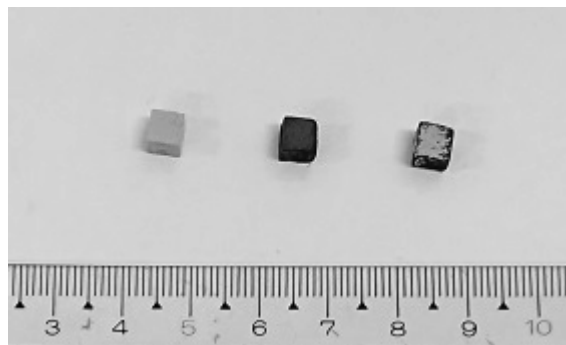


図 1. 測定用試料の写真

左から作製時、熱拡散率測定用に黒化処理後、熱拡散率測定後

試料は炭化ケイ素を含むため灰色をしており、そのままの状態ではフラッシュ法の測定で試料加熱に用いている近赤外波長の光を一部吸収し、温度応答観測を行う赤外放射計の赤外波長に対しても半透明である。この 5 mm 立方の表面で近赤外光を吸収して加熱され、その加熱による反対面の温度変化を確実に捉えるために、試料表面にカーボンスプレーを塗布して熱拡散率の測定を行った。熱拡散率測定に用いたフラッシュ法の測定装置の概要及び測定条件等は下記の通りである。

- ・パルス加熱光源：Nd:YAG レーザ（波長 1064 nm、パルス幅 半値時間で約 300 μ s）
- ・試料裏面の温度変化観測：赤外放射計（中心波長 4.8 μ m）
- ・測定条件：室温・空气中
- ・温度上昇曲線の解析方法：Cape & Lehman の式[6,7]及び等面積法[8]によるカーブフィッティング
- ・パルス加熱強度依存性：1 条件各 3 回繰返し測定

3. 研究結果

フラッシュ法で得られた温度上昇曲線を図2に示す。図2より、1個の立方体試料を3方向から測定して得られた温度上昇曲線は方向に応じて相違があり、そのうち2方向は類似、1方向が異なる傾向が確認できた。よって、セラミック繊維は加圧方向に繊維の長手方向が垂直に配向して、加圧方向に垂直な面ではランダムな向きになっているであろうと推測される。成形時の加圧が3 MPaと5 MPaを比較すると、3 MPa試料は3方向の温度上昇曲線の相違は小さいが、5 MPa試料は相違が大きく、より異方的であると推測された。これらの温度上昇曲線から得られた熱拡散率は、3 MPa試料で $2.4 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ 、 $3.0 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ 、 $2.9 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ 、5 MPa試料で $2.7 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ 、 $2.7 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ 、 $3.4 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ と得られた。各試料各方向の熱拡散率の平均値に別途求めた比熱容量と密度を掛けて熱伝導率を算出すると、3 MPa試料は $0.10 \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ 、5 MPa試料で $0.13 \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ となった。

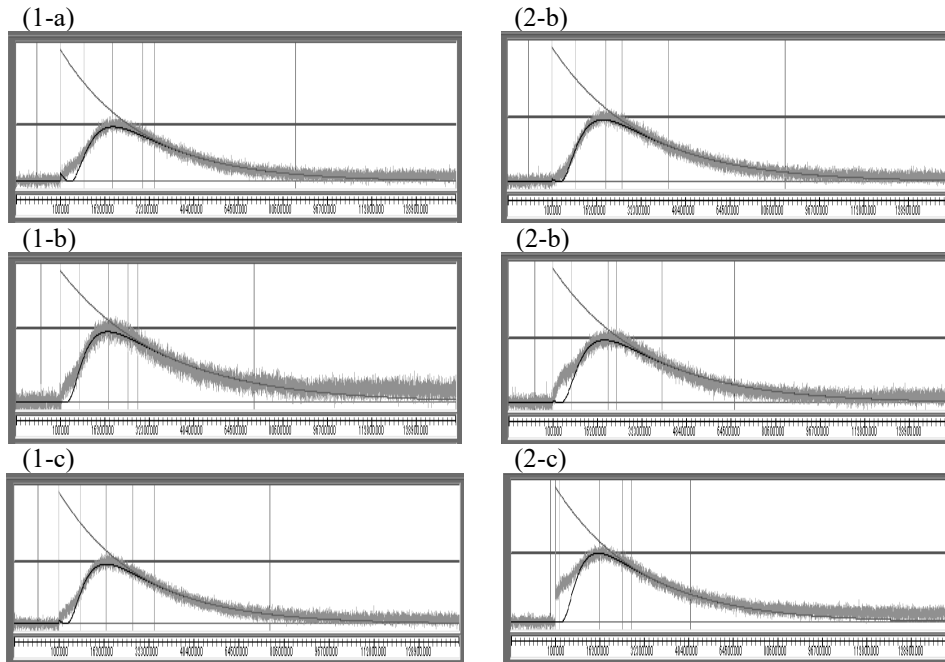


図2 1個の立方体試料を向きを変えて3方向で測定した温度上昇曲線。
(1-a)(1-b)(1-c)は3 MPa加圧成形試料、(2-a)(2-b)(2-c)は5 MPa加圧成形試料。

4. 結論

フェームドアルミナ、炭化ケイ素、セラミック繊維からなる成形時に加圧を変えて作製した複合断熱材の熱拡散率をフラッシュ法で測定し、熱伝導性に異方性があることを確認した。加圧成形の圧力に違いによりセラミック繊維の配向性が異なるためであると考えている。今後もナノ粒子と繊維等で構成される断熱材の熱拡散率を様々評価して傾向の検討を進めたい。

5. 参考文献

- [1] JIS 1412-1:1999 “熱絶縁材の熱抵抗及び熱伝導率の測定方法—第1部：保護熱板法（GHP法）” (1999).
- [2] W. J. Parker, R. J. Jenkins, C. P. Butler, and G. L. Abbott, *J. Appl. Phys.*, 32 (1961) 1679.
- [3] T. W. Lian, A. Kondo, T. Kozawa, M. Akoshima, H. Abe, T. Ohmura, W. H. Tuan, M. Naito, *Journal of Asian Ceramic Societies*, 5 (2017) 118.
- [4] 阿子島めぐみ, 大阪大学 接合科学共同利用・共同研究拠点 共同研究報告書 (2019年度) p.186.
- [5] 阿子島めぐみ, 大阪大学 接合科学共同利用・共同研究拠点 共同研究報告書 (2020年度) p.163.
- [6] J. A. Cape and G. W. Lehman, *J. Appl. Phys.*, 34-7 (1963) 1913.
- [7] D. Josell, J. Warren, A. Cezairliyan, *J. Appl. Phys.*, 78-11 (1995) 6867.
- [8] JIS R 1611:2010 “ファイブセラミックスのフラッシュ法による熱拡散率・比熱容量・熱伝導率の測定方法” (2010).

(共同研究分野: スマートコーティングプロセス学分野)

多孔質材料の熱物性評価

(国研) 産業技術総合研究所 物質計測標準研究部門
阿部 陽香

1. 緒言

多孔質材料とはその内部に多数の微細な孔をもつ固体の総称であり、孔のない緻密な固体とは種々異なる性質をもつ。その特異な性質を利用して、耐火物や断熱材、緩衝材、吸音材、あるいは吸着材として多方面にわたって使用されているが、特に近年では、低熱伝導率を有する材料が数多く開発されている。固体の熱伝導率の評価法としては、主に保護熱板法、熱流計法などが用いられるが、熱拡散率×比熱×かさ密度から算出できることも知られており、低熱伝導率材料にも後者の方法が適用できるかどうか、課題のひとつとなっている。そこで大阪大学接合科学研究所で開発された低熱伝導率材料を用いて、熱拡散率をレーザーフラッシュ法、比熱を示差走査熱量計 (Differential Scanning Calorimeter :以下 DSC) により測定し、材料のかさ密度を求めることにより算出される熱伝導率の評価を行なっている。本研究ではこれまでフェームドシリカ、SiC、ガラス繊維により構成された複合多孔体及び、グラフェンとカーボンナノ粒子 (ケッチェンブラック) の複合体を開発し、比熱の評価を進めてきた[1]。今回はフェームドアルミナ、SiC、セラミック繊維からなる試料を作製した。その測定結果について報告する。

2. 測定法および測定試料

DSC は、参照側と試料側と呼ばれる二つのサンプルホルダーを持ち、調整されたプログラムに従って装置全体の温度を変化させながら、サンプルホルダー間の入力エネルギー差を測定する比較測定法である。参照側は空の試料容器のみの状態で、試料側に ① 空容器、② 容器+基準物質、③ 容器+測定試料、をセットした3測定を同条件で行う。基準物質としては、熱容量標準物質 NIST SRM720 (合成サファイア) にトレーサブルなサファイアを使用した。測定のための温度プログラムは、JIS R1672 [2] に従い、等温過程 (10分) → 等速昇温過程 (20 K/min) → 等温過程 (10分) を繰り返すステップ型とした。Fig.1 に実際の DSC 曲線例を示す。測定①②③の等温時の DSC 曲線を補正後、等速昇温時のある温度 T における測定②から測定①の熱流値を差し引くことにより基準物質の熱流値を求め、測定③から測定①の熱流値を差し引くことにより、測定試料の熱流値を求める。この二つの熱流値の比較から算出される熱容量を測定試料の質量で除することにより比熱値を得ることができる。

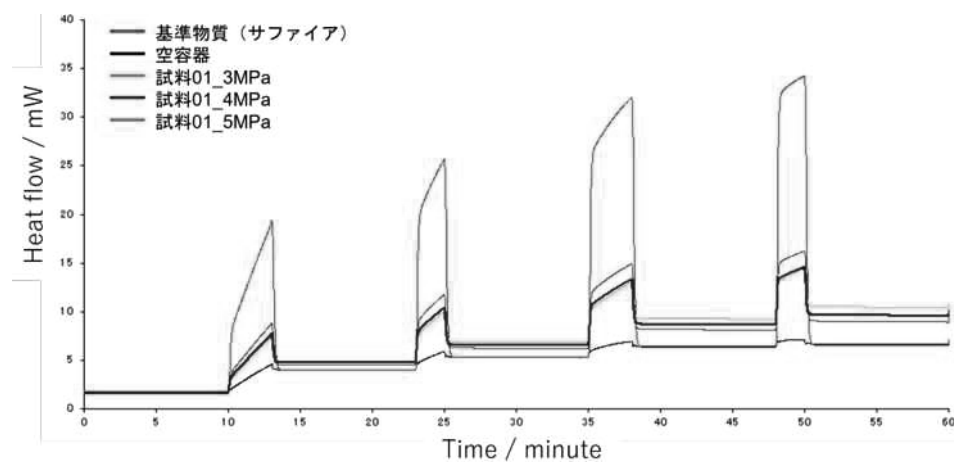


Fig. 1 DSC 曲線例

今回測定した試料は、質量配合比がフェームドアルミナ：SiC：セラミック繊維 = 65：15：20 である複合体である。試料作製時の設定圧力を 3 MPa、4 MPa、5 MPa とした、異なる 3 種類の試料（試料 01_3 MPa、試料 01_4 MPa、試料 01_5 MPa）について測定を実施した。3 試料の大きさは、直径 5 mm、厚さ 1 mm であり、試料 01_3 MPa、試料 01_4 MPa、試料 01_5 MPa の質量はそれぞれ、11.01 mg、13.39 mg、20.29 mg であった。

3. 測定結果

Fig.2 に 300 K、400 K、600 K における温度依存性の測定結果を示す。図中の各点は 3 回繰り返し測定の平均値であり、エラーバーは標準偏差を示す。結果より、測定はばらつきも小さく、概ね良好であったことがわかる。また Fig.3 に、設定圧力別の測定結果を示す。これより、試料 01_3MPa の測定値は若干小さい傾向がみられる。しかしながら、測定の不確かさを考慮した結果、作製時の設定圧力の変化による比熱値の変化は、有意な差とは言えないという結論となった。

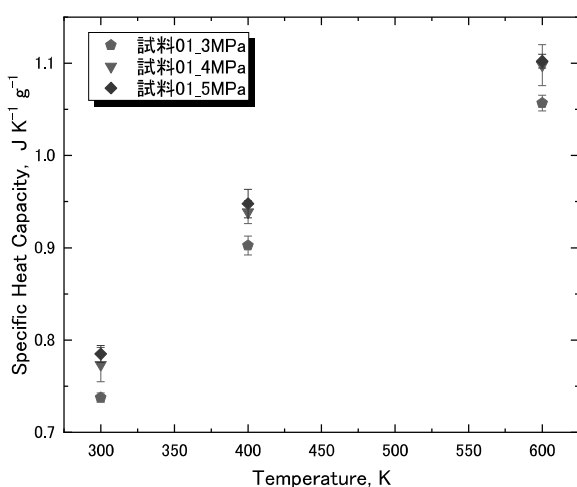


Fig. 2 温度依存性

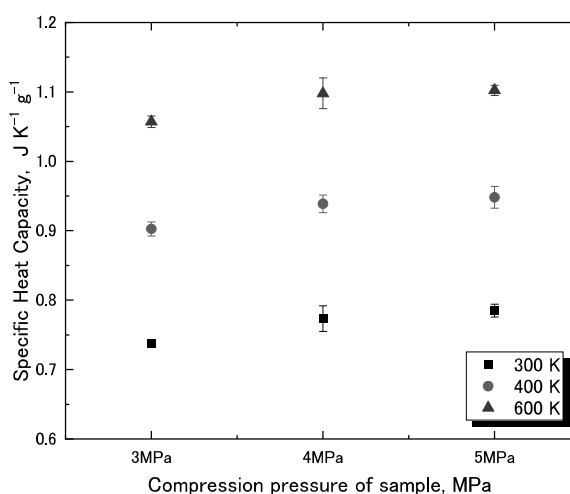


Fig. 3 設定圧力依存性

4. 結言

新しい低熱伝導率材料として、フェームドアルミナ、SiC、セラミック繊維からなる試料を開発し、300 K、400 K、600 K の温度における比熱測定を DSC により行った。測定は良好であり、低い熱伝導率材料であっても、DSC により測定が可能であるというエビデンスが得られた。試料作製時の設定圧力依存性についても今回初めて調査したが、少なくとも、3 MPa～5 MPa の圧力範囲内では比熱値は影響を受けないという結果を得た。

参考文献

- [1] 阿部陽香、大阪大学 接合科学共同利用・共同研究拠点 共同研究報告書 (2017) 196-197, (2020) 165-166.
- [2] JIS R 1672: 2006、長繊維強化セラミックス複合材料の示差走査熱量法による比熱容量測定方法

(共同研究分野: スマートコーティングプロセス学分野)

1. はじめに

樹脂をマトリックス材として用いた熱伝導部材には、アルミナを中心とした放熱フィラーを混練した材料が使用されているが、より安価で高い熱伝導性を有する放熱フィラーへの要求が高まっており、安価で優れた熱伝導性を有する MgO への期待度も高まっている。米国のエネルギー省管轄の Oak Ridge National Laboratory の Dr. Andrew Wereszczak 等のグループでは、宇部マテリアルズの MgO を用いた自動車用放熱部材の開発に関する研究を行い良好な熱伝導特性を報告している(IEEE Transactions on Components, Packing and Manufacturing Technology, Vol.3, No.12 (2013) 1994-2005)。ところで、MgO の生産方法として「鉱物資源であるドロマイトを原料とする方法(鉱物法)」と「海水中に豊富に含まれる $MgCl_2$ (約 2000ppm) を $Ca(OH)_2$ と反応させて $Mg(OH)_2$ として抽出・焼成する方法(海水法)」があるが、上記宇部マテリアルズでは、比較的高純度な MgO が得られる後者の海水法を採用している。しかし、高純度ではあるが少量の B, Si, Ca が不純物として含まれており、それが粉末のモルフォロジー、熱伝導ならびに耐水性に微妙に影響を及ぼしていることが判っていた。そこで、我々は、不純物の存在割合と MgO 結晶粒径・熱伝導度の違いについて詳細な検討を行ったので報告する。

2. 実験方法

酸化マグネシウム粉末は、組成調整が容易で均一な試料が得られ易い錯体重合法により調製した。それぞれの不純物添加量は酸化物換算で計算し合成した。その後、酸化マグネシウム粉末を円形一軸成形した後 1300 °C から 1800 °C まで焼成することにより酸化マグネシウム焼結体を作製した。得られた酸化マグネシウム粉末の形態は走査型電子顕微鏡(FE-SEM, JSM-700F, JEOL, Tokyo, Japan)により観察し、結晶構造は X 線回折(Rigaku X-ray Diffractometer with $CuK\alpha$ and nickel filter)により測定した。また、焼結体の熱伝導率はホットディスク法を用いて測定し、密度は試料の重量と形状より算出し、計算により真密度に換算した時の熱伝導率を得た。

3. 結果と考察

得られた酸化マグネシウム単体の焼結体、各不純物を添加した焼結体の熱伝導率測定結果を図 1 に示す。B および Si 添加系において熱伝導率は MgO 単体の熱伝導率 40.7 W/m・K と同等であり、含有量による変化は認められなかった。これは、結晶相である、 $Mg_3B_2O_6$ 、 Mg_2SiO_4 が MgO へ固溶せず、熱伝導を阻害しないためと考えられた。一方、Ca を添加した系では、1 wt% 添加で 26 W/m・K、3 wt%

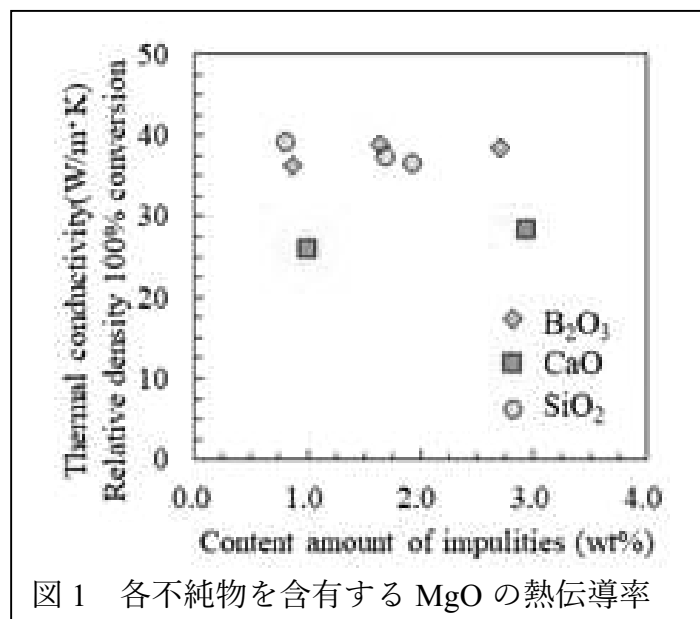


図 1 各不純物を含有する MgO の熱伝導率

添加では 28 W/m·K と酸化マグネシウム単体と比較すると大幅な熱伝導率の低下が認められた(Fig. 2■)。これは MgO 結晶中に Ca が固溶し、格子振動に基づいた熱伝導の際のフォノン散乱を増大させるためと考えられた。

図 2 には、Ca-Si 共存 MgO 焼結体の熱伝導率の変化を示す。Ca と Si を同時に添加した系において、CaO/SiO₂ 比が 1 以下の場合、Ca を単独で添加した時に見られた熱伝導率の低下は認められなかった。そこで、MgO 焼結体の熱伝導率が維持された系(図 2◆)について構造解析を行ったところ、電子顕微鏡観察より CaMgSi₂O₄(モンチセライト)が MgO の結晶粒界に生成していることが確認された(図 3)。Ca-Si 共存系では、熱伝導率に悪影響を及ぼさない結晶相の粒界析出により、MgO への Ca 固溶を抑制していると推察された。以上のことから、熱伝導率に及ぼす因子として、MgO 中に含まれる Ca の存在状態が大きく影響を与えていることが明らかとなった。また、Ca 添加系では Si を共存させることで、CaMgSi₂O₄ などの低融点化合物を MgO 粒界相として局在させことにより構造制御が可能となり、実質的な熱伝導率の低下を抑制できることが明らかとなった。

4. 本研究に関連する学会発表

- (1) Toshihiro Ishikawa, Keiko Tsujikura, “Inexpensive, high thermal conductive MgO material”, The 8th International Congress on Ceramics (ICC8), 2021, Busan, Korea. (Online 発表)

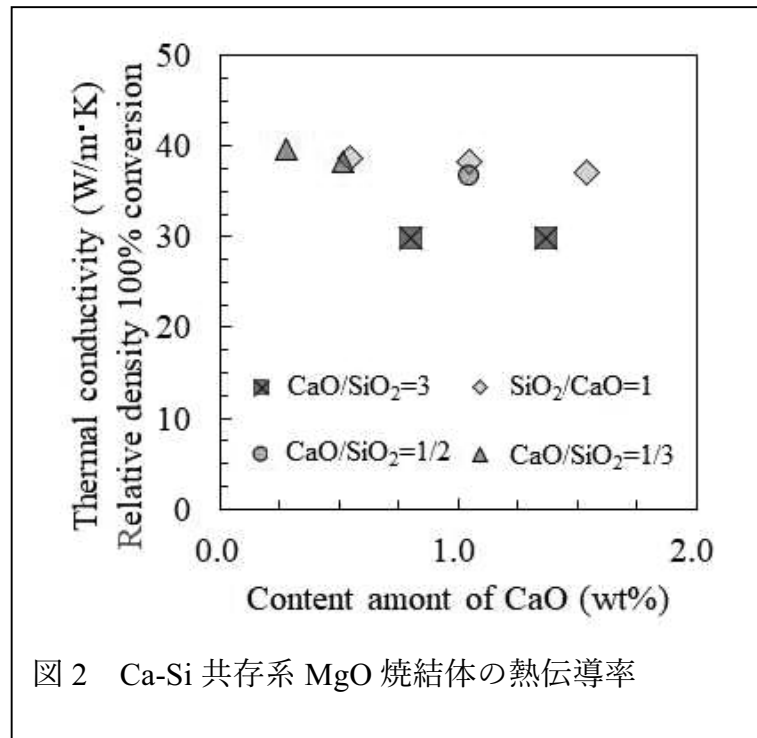


図 2 Ca-Si 共存系 MgO 焼結体の熱伝導率

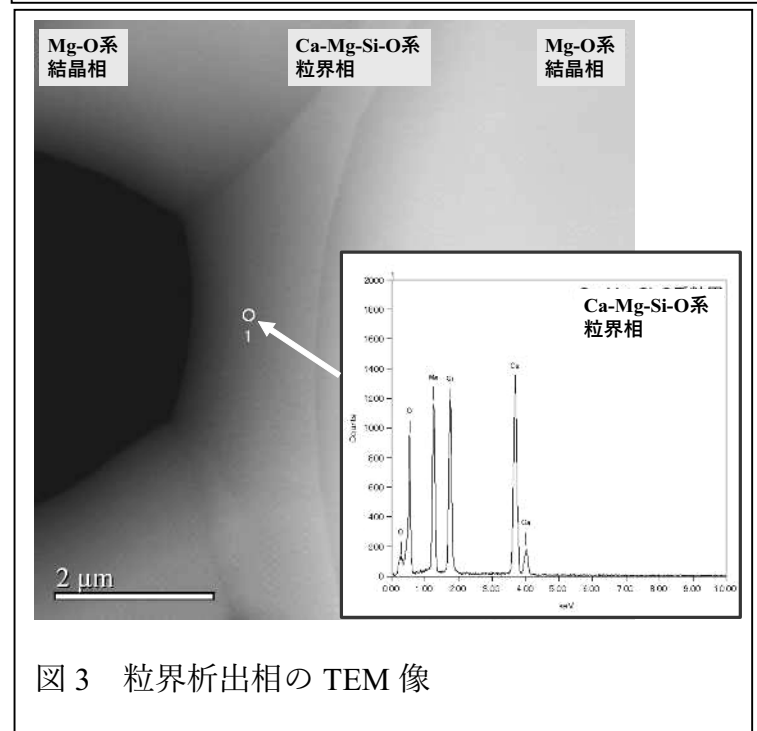


図 3 粒界析出相の TEM 像

(共同研究分野: スマートコーティングプロセス学分野)

Li イオン電池電極用ナノ材料の基礎的研究

内田儀一郎（名城大学）、小澤隆弘、内藤牧男（大阪大学）

【研究背景】

3 V 以上の高い起電力を有するリチウムイオン電池は、モバイル機器への利用にとどまらず電気自動車への搭載が勢力的に展開されている。しかしながら現行の電気自動車の 2 倍以上の長距離走行を可能とするためには、電池の高容量化が必要不可欠である。このような研究背景のもと、本研究ではリチウムを大量に吸蔵できる新規負極材料を開発することにより、リチウムイオン電池の高容量化を実現することを目標とする。今回は、現在広くリチウムイオン電池に利用されているカーボン系材料（理論容量: 372 mAh/g）に比べ 10 倍以上の高い理論容量を有する Si 材料（理論容量: 4,200 mAh/g）に着目し、両者を混合したナノ複合膜の開発を行った。Si 材料は、高い電気容量が期待できる一方、Li 吸蔵時(充電時)の体積膨張率が 400%とカーボンに比べ極めて大きく、材料膨張時の亀裂など機械的劣化が指摘されている。今回は Si ナノ粒子膜、Si/カーボンナノ粒子混合膜を作製し、それを負極としたリチウムイオン電池を評価した。

【実験結果】

最初に異なる粒径の Si ナノ粒子を、アセチレンブラックとポリイミド系バインダーと混合してスラリー状にし、銅箔上に塗布、焼成することで Si ナノ粒子負極を作製した（図 1 の電極膜の写真と SEM 像を参照）。この Si ナノ粒子負極を用いて Li イオン電池を作製し、電池容量の充放電サイクル特性を評価した。図 2 に示すように、Si ナノ粒子の粒径が 500 nm と比較的大きい場合、初期容

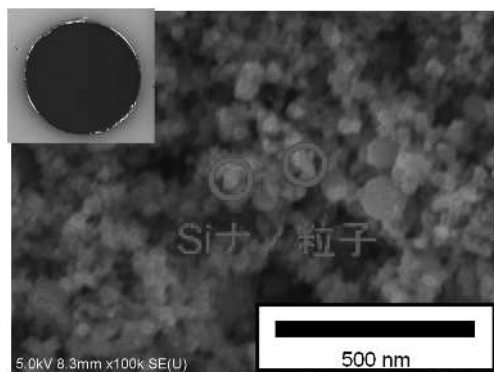


図 1 : Si ナノ粒子負極の SEM 像。

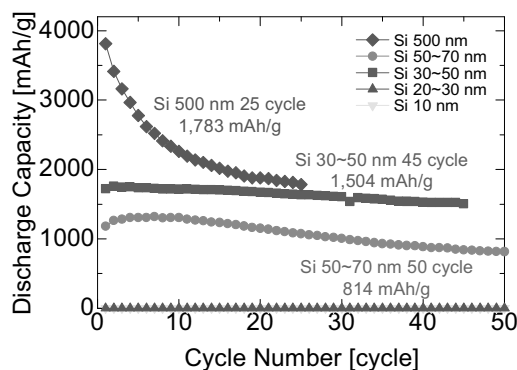


図 2: Si ナノ粒子負極を用いた Li イオン電池容量の充放電サイクル特性。Si ナノ粒子の粒径を変化させて。

量は約 4,000 mAh/g と非常に高い値を示したが、充放電を 10 回程度繰り返すと容量は急激に低下した。一方、Si ナノ粒子の粒径が 30–50 nm の場合、初期容量は約 1,600 mAh/g であるが、40 サイクル後もその値をほぼ一定に保った。このように同じ Si 材料でも粒径を変えることで、電池容量の低下を防止し、電池を長寿命駆動できることが明らかになった。

次に初期容量の高かった粒径 500 nm の Si ナノ粒子と球晶グラファイトカーボン(粒径 15 μm)を混合して同様の方法で負極を作製した。図 3 にその Si/C ナノ粒子複合負極の断面 SEM 像を示す。球晶グラファイトカーボンの表面にナノサイズの Si 粒子が付着している様子が観測できた。図 4 で Si ナノ粒子と球晶グラファイトカーボン粒子の割合を変化させた負極で Li イオン電池の容量を比較した。Si ナノ粒子に球晶グラファイトカーボン粒子を添加すると容量は半分に低下したものの、サイクル特性の容量の低下は改善され、初期から 20 サイクルまでほぼ同じ容量での電池駆動が可能であった。本研究では、Si ナノ粒子負極と Si/C ナノ粒子複合負極を作製し、実際の Li イオン電池で容量のサイクル特性を評価した。その結果、適切な粒径、あるいは Si/C 混合比を選択することにより、従来のカーボン負極を大きく超える約 1,000 mAh/g の高容量を長寿命維持できることが明らかになった。

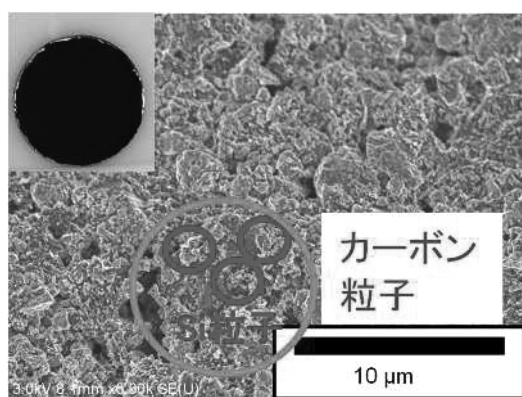


図 3 : Si/C ナノ粒子複合負極の SEM 像。

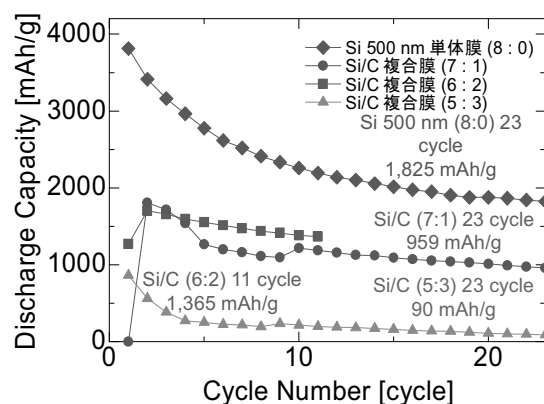


図 4: Si/C ナノ粒子複合負極の Li イオン電池容量の充放電サイクル特性。Si 粒子と C 粒子の混合比を変化させた。

(共同研究分野：スマートコーティングプロセス学分野)

超低熱伝導率材料の熱物性評価

一般財団法人 建材試験センター 中央試験所 環境グループ 田坂 太一
和歌山工業高等専門学校 知能機械工学科 大村 高弘

1. 緒言

近年、真空断熱材やナノ多孔質断熱材をはじめ、従来よりもけた違いに低い熱伝導率を有する新しい断熱材が開発され、実用化されるようになってきている。このうちナノ多孔質断熱材は、高い温度環境下での使用が期待されている材料である。既に筆者らは、アルミナナノ粒子断熱材を対象に 800°C を超える温度での特性変化を評価しているが^[1]、シリカナノ粒子断熱材についてこれを超える温度での特性変化を詳細に検討した事例は見当たらない。そこで本研究では、シリカナノ粒子断熱材を対象に、800°C を超える温度域での熱伝導率を評価するとともにその結果を解析し、高温環境がナノ多孔質断熱材の熱伝導率に及ぼす影響を検討した。

2. 実験方法

(1) シリカナノ粒子断熱材の製作

フュームドシリカナノ粒子とセラミック繊維を機械的に処理すると、セラミック繊維表面にフュームドシリカナノ粒子が多孔質状に接合され、高い空げき率を有する複合繊維粒子集合体を作製できる。今回は、既報^[1]と同様の手法により、フュームドシリカナノ粒子(AEROSIL 130, Nippon Aerosil)とセラミック繊維(B80, DENKAALCEN, Al₂O₃: 80%, SiO₂: 20%)の複合繊維粒子集合体に、SiC粉体(GMF-6S, Pacific Rundum)を添加混合し、2MPaで一軸加圧した成形体を試験体とした。ここで、セラミック繊維は成形体を補強する役目を担い、SiC粉体は高温下でのふく射伝熱を抑制する効果を持つ。成形体は約100mm×150mm、厚さ10mm、密度は約410kg/m³である。

(2) 熱伝導率の評価

本研究では、周期加熱法^[2]により熱拡散率 a (m²/s) を測定し、これに DSC 法^[3]により測定した比熱 c [J/(g・K)] と別途測定したかさ密度 ρ (kg/m³) を乗じて熱伝導率 λ [W/(m・K)] を求めた。熱拡散率の測定条件の詳細を以下に示す。なお、900°C 以上では測定時間を約 24 時間とし、この加熱が熱伝導率にどのような影響を及ぼすかを確認した。

- ・ 加熱前(1回目)の測定: 200°C~900°Cの熱拡散率を低温側から順に連続的に測定した。測定温度は、200°C~800°Cでは100°C間隔、800°C~900°Cでは50°C間隔とした。
- ・ 900°C処理後(2回目)の測定: 200°C~1000°Cの熱拡散率を低温側から順に同様に測定した。測定温度は、200°C~900°Cでは100°C間隔、900°C~1000°Cでは50°C間隔とした。
- ・ 1000°C処理後(3回目)の測定: 200°C~1100°Cの熱拡散率を低温側から順に同様に測定した。測定温度は、200°C~1000°Cでは100°C間隔、1000°C~1100°Cでは50°C間隔とした。
- ・ 1100°C処理後(4回目)の測定: 200°C~1100°Cの熱拡散率を低温側から順に同様に測定した。測定温度は、100°C間隔とした。

熱伝導率の測定結果を図1に示す。加熱前(1回目)の測定では、200°C~900°Cの範囲では 0.032W/(m・K)~0.051W/(m・K)程度の低い値を示し、温度の影響は小さい結果となった。900°C処理後(2回目)の測定の200°C~900°Cの熱伝導率は加熱前のそれとほぼ一致し、本成形体は900°Cの高温場で1日程度加熱しても、熱伝導率はほとんど変化しないことがわかった。1000°C処理後(3回目)の測定の200°C~900°Cの熱伝導率は加熱前のその約1.1倍に増大し、一旦1000°Cで加熱すると熱伝導率がわずかに高くなることがわかった。また、加熱温度が1050°Cを超えるとそれ以下の温度よりも熱伝導率の増加割合が急激に大きくなり、1000°C処理後(3回目)の測定での1100°Cの熱伝導率は1000°Cのその約1.5倍に増大した。さらに、1100°C処理後(4回目)の測定の200°C~900°Cの熱伝導率は加熱前の各温度のその約1.3倍~1.5倍に増大した。

3. 熱伝導率の解析

(1) 解析方法

ここでは、ナノ多孔質断熱材の熱伝導率を式(1)で示すように固体、気体及びふく射に寄与する熱伝導率の和で表せると仮定する^[4]。ここで、気体の熱伝導率 λ_g を無視できるような真空下での熱伝導率は、式(2)で表すことができる。したがって、同一試験体について、複数の絶対温度 T で大気圧下の熱伝導率 λ と真空下の熱伝導率 λ_v を測定すれば、式(1)と式(2)より、固体及びふく射のそれぞれに寄与する伝熱成分 A と B を知ることができ、どのような伝熱成分が変化したのかを推測できる。ただし、本試験体は、真空下の熱伝導率 λ_v を測定できていないため、式(2)に示すように、大気圧下での熱伝導率 λ から気体が寄与する熱伝導率 λ_g (静止空気熱伝導率) を差し引くことで、見かけの真空下の熱伝導率 λ_v を求めることとした。なお、本研究に用いたナノ多孔質断熱材は、既報^[4]で作製したものと同類であることから、熱伝導率 λ_g として既報^[4]の解析結果から得られた 0.00926W/(m・K) を用いた。

$$\lambda = A\rho + \frac{B}{\rho}T^3 + \lambda_g \quad (1)$$

$$\lambda_v = \lambda - \lambda_g = A\rho + \frac{B}{\rho}T^3 \quad (2)$$

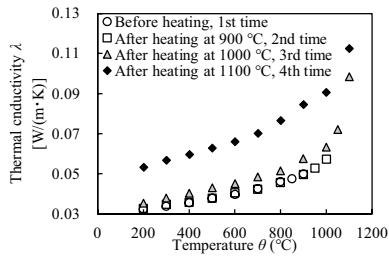


Fig. 1 Thermal conductivities of test specimen.

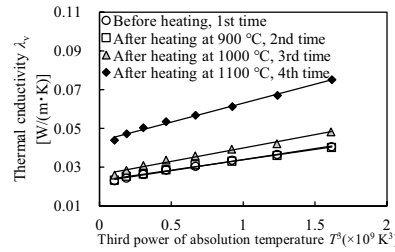


Fig. 2 Relationship between third power of absolute temperature and thermal conductivity.

Table 1 Calculation results of coefficients.

Coefficient	A	B
	[W·m²/(kg·K)]	[W·kg/(m⁴·K⁴)]
1st time	5.6×10^{-5}	4.6×10^{-9}
2nd time	5.6×10^{-5}	4.4×10^{-9}
3rd time	6.2×10^{-5}	5.8×10^{-9}
4th time	9.2×10^{-5}	9.3×10^{-9}

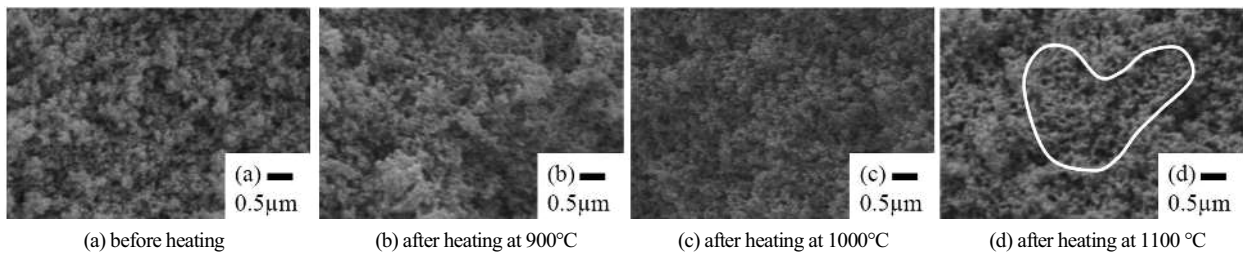


Fig. 3 SEM images of the fracture surface of the compacts.

(2) 解析結果

熱伝導率 λ の測定結果から気体が寄与する熱伝導率 λ_g を差し引いて求めた λ_v と絶対温度の3乗との関係を図2に示す。また、図2中に示す近似直線の傾き及び切片を使って求めた式(1)の係数 A と B を表1に示す。各回の係数を見ると、固体伝熱に寄与する係数 A は1000°C処理後の測定から増大し、1100°Cまで加熱した後の4回目の測定で著しく増大することがわかった。1回目の測定に対する増加割合は、3回目で1.1倍、4回目で約1.6倍であり、加熱温度が高くなるほど大きくなる傾向が認められた。

加熱による熱伝導率変化の要因を検討するため、加熱前と加熱後(900°Cで24時間加熱後、1000°Cで24時間加熱後、1100°C処理後(4回の熱拡散率測定後))の成形体について、走査型電子顕微鏡(SEM)(株式会社日立ハイテクノロジー製 SEM Su-6600)により形態観察した。その結果をFig.3に示す。900°Cと1000°Cでそれぞれ約24時間加熱した後の成形体の画像(Fig.3(b)と(c))を見ると、いずれも加熱前の成形体(Fig.3(a))と微構造の明確な差異は見られていない。一方、1100°Cで4回目の熱拡散率測定後の成形体(Fig.3(d))では実線で囲った領域に示すように、粒子が連結したような構造が観察された。以上より、本成形体は、1000°Cで加熱しても成形体の微構造に明確な変化はなく固体伝熱に著しい変化は生じないが、1100°Cで加熱すると微構造が変化することで固体伝熱が増え係数 A が増大したと考察される。なお、加熱による係数 B の変化には、既にSiC粉体の表面に酸化被膜が形成されることが寄与することを考察している^[1]。本成形体も900°C以上の加熱により酸化によると思われる質量増加が認められたことから、900°C以上で加熱するとSiC粉体の表面に酸化被膜が形成されて屈折率が変化し、これによりふく射伝熱の抑制効果が低下し、3回目の測定と4回目の測定で係数 B が増大したものと考察される。

4. 結論

本成形体の200°Cから900°Cまでの熱伝導率は、0.034W/(m·K)から0.051W/(m·K)と低い値に保持された。また、本成形体を900°Cで加熱した場合、熱伝導率は加熱前から変化しなかったが、1000°Cを超える温度での繰り返し測定に伴い熱伝導率が徐々に増大した。ただし、1100°C処理後の測定時の1100°Cにおける熱伝導率は0.11W/(m·K)程度であり、アルミナナノ粒子断熱材の1200°C処理後(4回目)のそれ^[1]よりも低い値に保持された。

5. 参考文献

- [1] T. Tasaka, T. Ohmura, A. Kondo, T. Kozawa and M. Naito, Effect of heat processing on the thermal and mechanical properties of fibrous fumed alumina compacts, J. Soc. Powder Technol., Japan 58, 596-602 (2021)
- [2] T. Ohmura and T. Tomimura, "Study on Thermal Conductivity Measurement of Low Bulk Density Fibrous Insulation by Cyclic Heat Method", Engineering Sciences Reports, Kyushu University (KYUSYU DAIGAKU SOGORIKOGAKU HOKOKU) Vol.24, No.3, 313-317 (2002)
- [3] JIS R 1672, Determination of specific heat of fiber-reinforced ceramics composite by differential scanning calorimetry methods (2006)
- [4] T. Ohmura, I. Abe, Y. Ito, K. Sato, H. Abe and M. Naito, Development and evaluation of characteristics of Nanoporous materials, J. Soc. Powder Technol., Japan 46, 461-466 (2009)

(共同研究分野：スマートコーティングプロセス学分野)

液相合成チタン酸リチウム系ナノ粒子の特性評価

東北大学 多元物質科学研究所 蟹江 澄志

大阪大学 接合科学研究所 小澤 隆弘, 内藤 牧男

1. 研究の目的

リチウムイオン電池は、作動電圧やエネルギー密度が高いことから、近年、小型電子機器だけでなく、電気自動車などの大型機器の動力源としても用いられている。そのため、長寿命及び高安全性を兼ね備えた電池がより一層求められている。Li₄Ti₅O₁₂ (LTO) は、電極電位が高いことから、リチウム析出と電解質の還元分解の抑制が可能な負極材料として注目されている。LTO は現在、主に固相法により調製されており、比較的粗大な粒子として得られる。このため、Li⁺ イオンの固体内拡散距離が長くレート特性が悪いという問題点を有する。そこで本研究では、LTO の小粒径化及び高比表面積化を目的として、水熱合成により LTO 前駆体である薄片状 Li_{1.81}H_{0.19}Ti₂O₅·2H₂O ナノ粒子を調製し、次いで熱処理を行うことで薄片状 LTO ナノ粒子とし、その電池特性を評価した。さらに、LTO 調製時に、あらかじめ Li_{1.81}H_{0.19}Ti₂O₅·2H₂O ナノ粒子とグラフェンを混合することで緻密化し、電極特性を評価することを目的とした。

2. 実験

モル比 1:2 のチタンテトライソプロポキシド/トリエタノールアミン錯体水溶液に Ti:Li = 1:1 となるように水酸化リチウム水溶液を加え、250 °C で 3 時間水熱合成を行い、LTO 前駆体ナノ粒子を得た。次に、得られたナノ粒子を空气中、窒素下及び水素下において 400~500 °C で 3 時間焼成し、LTO ナノ粒子を得た。グラフェンとの複合粒子は、温度 200~600 °C で 3 時間、大気および水蒸気焼成処理した。得られた粒子は、XRD, TEM 観察、及び窒素吸着によって評価した。また、得られた粒子をカーボンブラックおよびバインダーと混合して Cu に成膜することで LTO-Cu 電極を作製し、その電池性能を評価した。

3. 結果と考察

昨年度までの研究の結果、LTO 前駆体ナノ粒子に対し、大気焼成および水蒸気焼成を行う事で LTO とした。この際、水蒸気焼成では、大気焼成に比べ、より低温の焼成温度で LTO が生成することが見出されている。さらに、500 °C での焼成サンプルとの比較の結果、水蒸気焼成では、より粒子成長を促進する効果があることが明らかとなった。そこで、LTO の粒成長に及ぼす水蒸気の導入効果について検討した (Figure 1)。ここでの焼成条件は、500 °C, 3 時間とした。Scherrer 式を用いた LTO の結晶子サイズの比較から、水蒸気焼成では、結晶子サイズが 24 nm であり、大気焼成の際の 20 nm よりも大きいことがわかり、その優位性が示された。続いて、LTO とグラフェンとの複合粒子について、水蒸気焼成後に得られたサンプルの XRD 測定および SEM 観察を行った。水蒸気焼成においては、600 °C での焼成処理後もグラファイトに対応する回折が観察され、LTO/グラファイト複合体を調製する上で水蒸気焼成の優位性を見出すことができた。Figure 2 に示す SEM 観察の結果からも、熱処理後にグラファイトが明確に観察された。

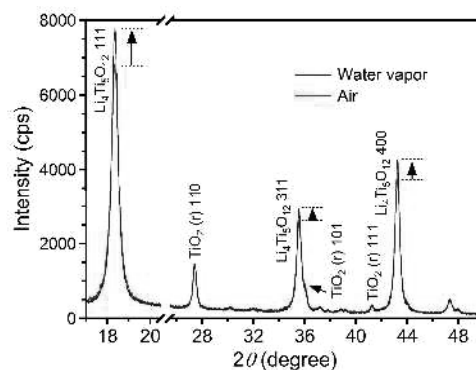


Figure 1. Effect of steam on LTO NPs preparation.

続いて、得られた LTO/グラフェン複合体を負極とし、Li 金属を正極としたコインセルを作成し、その特性評価を行った。この際、負極の組成としては、重量比で LTO/グラフェン複合体 : カーボンブラック : ポリフッ化ビニリデン = 8 : 1 : 1 とした。Figure 3 に、水蒸気焼成および大気焼成により得られた LTO/グラフェン複合体の充放電特性測定を行った際のサイクル特性を示す。水蒸気焼成により得られた複合体の比容量は大気焼成により得られたサンプルに比べて高く、優れた特性を示すことが明らかとなった。また、充放電に対する耐久性も水蒸気焼成により得られたサンプルの萌芽高いことが示された。すなわち、水蒸気加熱は、安定な充放電特性を示す LTO/グラフェン複合体を調製する手法として優れていることがわかった。

4. まとめ

本研究では、リチウムイオン電池の特性向上として、液相法により LTO 前駆体を調製し、LTO/グラフェン複合材料の小粒径化及び高比表面積化に着目した。まず、水熱合成により LTO 前駆体である薄片状 $\text{Li}_{1.81}\text{H}_{0.19}\text{Ti}_2\text{O}_5 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ナノ粒子を調製し、次いで大気下および水蒸気焼成により熱処理を行うことで薄片状 LTO ナノ粒子が

得られる条件探索を行った。さらに、得られた LTO の電極特性を評価したところ、初期容量は、LTO の理論容量である 175 mAh/g に近い値を示した。さらなる特性向上を目指し、焼結段階においてグラフェンと混合し、大気下および水蒸気加熱により LTO/グラフェン複合体を調製した。得られた複合体を負極としたコインセルを作成し、その電池特性を評価したところ、大気焼成したサンプルは急速に充放電特性が低下したのに対し、水蒸気焼成したサンプルは優れた耐久性を示すことが明らかとなり、その比容量は 300 mAh/g と、優れた特性であることを見出すことができた。その要因の一つとしては、水蒸気焼成では、より低温での LTO 相の生成を促進するのみならず、600 °C の焼結温度においてもグラフェンがその層状形態を保持できるためであると考えられる。今後、水蒸気焼成がもたらすこれらの要因を精査することにより、水蒸気焼成法の優位性を顕彰すると共に、優れた電池特性を活かした材料の創製に繋げていく予定である。

(共同研究分野：スマートコーティングプロセス学分野)

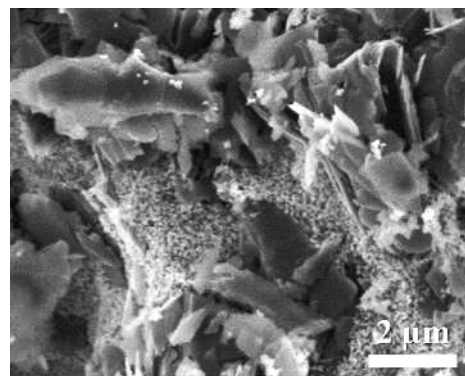


Figure 2. An SEM image of the LTO/graphene composite prepared by steam heating.

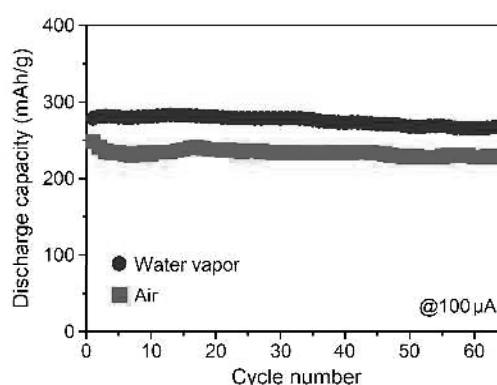


Figure 3. Cycle properties of the LTO/graphene composite prepared by steam heating at 600 °C for 3 h.

湿式ボールミルの粉砕挙動解析

東北大学多元物質科学研究所
久志本築、石原真吾、加納純也

1. 研究目的

セラミックス製品の製造プロセスの中で最も上流に位置する粉砕工程は、その後の製造工程や製品の品質を左右する重要な単位操作の一つである。特に近年では、ナノ粒子が求められることも多くなってきていることから、粉砕工程の精緻かつ精密な制御がこれまで以上に重要とされている。しかしながら、ナノ粒子を作製可能な粉砕方法は確立されておらず、このことがセラミックス製品の成長を鈍化させる要因の一つとなっている。

セラミックスの原料粒子の粉砕には、微細化性能が高く量産化も可能といった特徴から湿式ボールミルが用いられることが多い。しかしながら、湿式ボールミルを用いてもナノ粒子の製造は難しく、その主な原因の一つに、同じ粉砕操作中にも関わらずサブミクロン付近から逆に粒子径が増大し始める“再凝集”の発現が挙げられる。加えて、この再凝集が起こる様子を実験から解析することは微視的かつ動的な現象のため困難であり、その制御方法はおろか発現メカニズムも明らかにされていない。そこで本研究では、湿式ボールミル中の砕料粒子挙動を数値シミュレーションにより解析可能とすることで、再凝集の発現メカニズムの解明を試みた。

2. シミュレーション方法

湿式ボールミル中の砕料粒子の再凝集挙動を解析するために、本シミュレーションでは、媒体ボールの運動、砕料粒子の運動、分散媒の運動、媒体ボール－分散媒間相互作用、砕料粒子－分散媒間相互作用を考慮する。まず、砕料粒子の運動は離散要素法(DEM)¹⁾により、以下の並進および回転の運動方程式を砕料粒子個々について逐次解くことで追跡する。

$$m_p \frac{d\mathbf{u}_{p,i}}{dt} = \sum_j \mathbf{F}_{pi-pj} + \mathbf{F}_{wall} + \mathbf{F}_f + \mathbf{F}_v + \mathbf{F}_e + \mathbf{F}_l \quad (1)$$

$$I_p \frac{d\boldsymbol{\omega}_{p,i}}{dt} = \sum_j \mathbf{M}_{pi-pj} + \mathbf{M}_{wall} \quad (2)$$

ここで、 t は時間、 m_p と I_p はそれぞれ粒子の質量と慣性モーメントであり、 $\mathbf{u}_{p,i}$ と $\boldsymbol{\omega}_{p,i}$ はそれぞれ粒子の並進速度と回転速度を表す。 \mathbf{F}_{pi-pj} 、 \mathbf{M}_{pi-pj} はそれぞれ衝突力と衝突力に起因するトルクである。 \mathbf{F}_f は流体力であり DEM-CFD カップリングモデル²⁾により推算する。また、 \mathbf{F}_l は潤滑力であり、粒子の分散・凝集挙動を表現するために、DLVO 理論に基づく分散・凝集力として van der Waals 力 \mathbf{F}_v と静電気力 \mathbf{F}_e をそれぞれ考慮する。なお、媒体ボールの運動については、ある決められた相対速度および周期で接近、接触、離反を繰り返すものとして、予め与えるものとする。一方で、分散媒の運動については、分散媒を非圧縮性ニュートン流体とみなし、計算格子毎の分散媒割合 ε_f で局所平均化された流体の質量保存式と運動量保存式に、粒子と媒体ボールと流体の相互作用を外力としてそれぞれ考慮した以下の 2 式を、有限差分法(FDM)に基づき解くことで表現する。

$$\frac{\partial \varepsilon_f}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_f \mathbf{u}_f) = 0 \quad (3)$$

$$\frac{\partial \varepsilon_f \mathbf{u}_f}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_f \mathbf{u}_f \mathbf{u}_f) = \varepsilon_f \left(-\frac{1}{\rho_f} \nabla P + \frac{\mu_f}{\rho_f} \nabla^2 \mathbf{u}_f + \mathbf{f}_{f-p} \right) + \mathbf{f}_{Ball} \quad (4)$$

ここで、 \mathbf{u}_f は分散媒の速度、 ρ_f と μ_f はそれぞれ分散媒の密度と粘度、 \mathbf{f}_{f-p} は粒子－分散媒間相互作用力、 \mathbf{f}_{Ball} は媒体ボール－分散媒間相互作用をそれぞれ表す。

3. シミュレーションによる砕料粒子再凝集挙動の解析

2節のシミュレーション手法を用い、接近・接触・離反を規則的に繰り返す2つの媒体ボール間での砕料粒子挙動を解析する。媒体ボールは湿式媒体攪拌型ミルを参考に、媒体ボール径 0.1 mm、媒体ボールの接近・離反時の相対速度 0.1 m/s とした。砕料粒子の粒子径は再凝集が起こり始めるとされている 0.3 μm とし、砕料粒子の初期配置は完全分散状態となるよう設定した。また、分散媒は純水を仮定した。

Fig. 1 に媒体ボールが接近・接触・離反するときの砕料粒子挙動の概念図を示す。媒体ボール同士が接触するときに核となる凝集粒子が形成され、その後、媒体ボールが離反・接近するたびにその凝集粒子が成長していく再凝集挙動がシミュレーション上でも確認された。

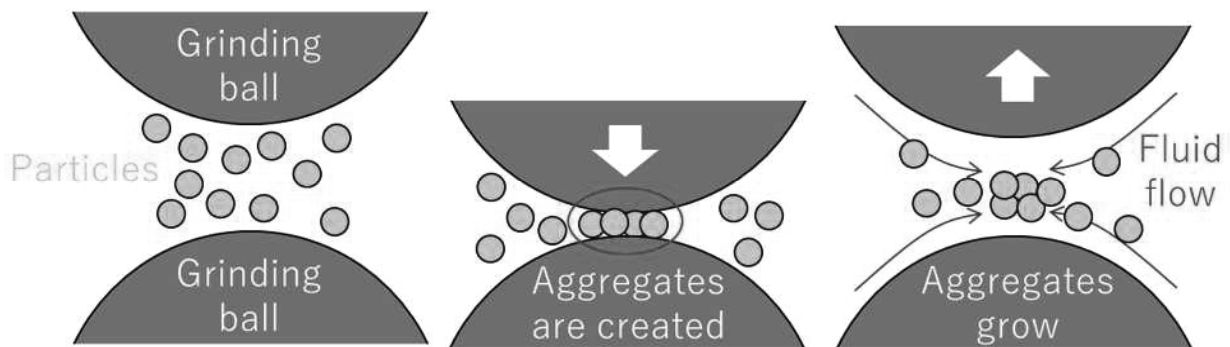


Fig. 1 Schematic diagram of the simulated reaggregation behavior of particles when the grinding balls are approaching, contacted, and separating.

粒子径がサブミクロン以下のきわめて微細な砕料粒子の場合、自重が van der Waals 力よりも小さくなることから、媒体ボールの接触により凝集粒子の核が形成される。この凝集粒子は分散した状態よりも粒子径が大きいため Stokes 数も大きくなり、周囲の砕料粒子がその凝集粒子を回避することが難しくなる。この状況で、媒体ボールが離反・接近し凝集粒子周りに流体流れが生じると、その流れに流された砕料粒子は凝集粒子に衝突・合一するため、さらに凝集粒子は大きく成長する。したがって再凝集は、媒体ボールの運動が粉碎ではなく、凝集粒子の生成と成長に寄与するようになるために起こる可能性が示唆された。

4. 結言

湿式ボールミルを用いたセラミックス粒子の微細化において課題とされている再凝集の発現メカニズムを明らかにするために、数値シミュレーションを用いた砕料粒子の再凝集挙動の解析を行った。その結果、媒体ボール接触時に凝集粒子の核が形成され、分散した砕料粒子がその凝集粒子に次々と衝突・合一することで、その凝集粒子が成長する挙動が確認された。このことは、砕料粒子の粉碎を目的として投入した媒体ボールが、サブミクロンまで微細化された砕料粒子に対しては逆に凝集を促す方向に作用することで再凝集が発現している可能性を示唆していた。

参考文献

- 1) P. A. Cundall, O. D. L. Strack, *Geotechnique*, **29**, 47-65 (1979)
- 2) Y. Tsuji, T. Kawaguchi, T. Tanaka, *Powder Technology*, **77**, 79-87 (1993)

(共同研究分野：スマートコーティングプロセス学分野)

粉碎操作によるポリマー処理粒子の構造制御に関する研究

山形大学 学術研究院 システム創成工学分野

木俣 光正

1. 緒言

粉碎は固体粒子を細分化、微細化させる単位操作であり、原料の粒子径に応じて様々な粉碎装置が存在している。また、粉碎という機械的エネルギーが加えられると、固体表面から低エネルギーの電子放射（エキソエレクトロン放射）、ラジカル（メカノラジカル）やイオンが生成する。これをメカノケミカル現象と呼び、当研究室では、メカノケミカル現象で生成するラジカルやイオンを利用したポリマーの重合反応に関する研究を行っており、これをメカノケミカル重合反応とよんでいる。本反応は粉体の切断面に生成するメカノラジカルやイオンを重合開始点とするため、新たな切断面が生成しない系では、本法を適用することができなかつた。しかし、2017年度から、共同研究している内藤牧男教授の研究室の強い剪断を加えられる特殊な装置により、粉碎を伴わない剪断のみの力で粉体表面が活性化され、メカノケミカル重合反応の進行を確認するに至った。具体的には比較的大きな粒子径約 $50\mu\text{m}$ の石英粒子を用いて剪断実験を行い、粒子径分布で変化がないことを確認後、TEMにより粒子表面にポリマーの存在を確認することができた。

そこで昨年度は、この原理を市販されているシリカフィラーへ応用するため、アドマテックス社製の粒子径約 $1\mu\text{m}$ のシリカフィラーを用い、剪断実験を行った。石英粒子と比べて50分の1に粒子径が小さくなったため、石英の実験における体積を基準に実験条件を決定した。また、重合モノマーはこれまでと同様にメタクリル酸メチル（MMA）を使用した。しかし、回転数に対して動力値が上がらず、空回りする傾向が見られたため、今年度は $100\mu\text{m}$ のアルミナビーズを添加して実験を試みた。

2. 実験

実験装置はホソカワミクロン製の水冷ジャケット付きの摩砕ミル（容器内径 130mm 、粉接部材質 SUS304）を用いた。これは、粉碎媒体を用いず装置内部のローターが回転する構造となっており、粒子に強い剪断力を与えられる装置である。粉碎試料は企業から提供して頂いたメデアン径 $0.83\mu\text{m}$ のシリカフィラーを用いた。Fig.1に粒子径分布を、Fig.2にSEM画像をそれぞれ示した。モノマーは市販のMMAを窒素雰囲気下で減圧蒸留して重合禁止剤を除去したものを使用した。

実験はシリカフィラーにMMAをそれぞれ所定量添加し粉砕機に投入して30～180min摩砕ミルによる処理を行った。また、アルミナビーズをフィラーに添加した実験も行った。なお、処理回転数は2000～3000rpm（動力 0.15～0.6kW）、容器温度は一部を除き 16°C 以下に保ちながら処理を行った。処理後に得られた粒子は、SEMおよびTEMにより観察を行った。

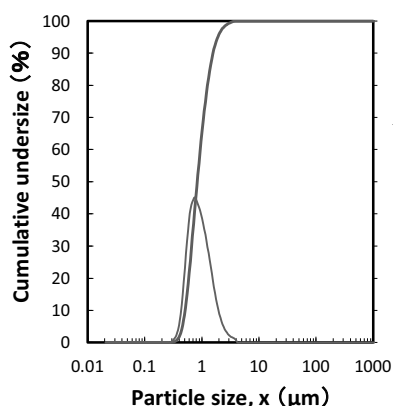


Fig.1 Particle size distribution of silica filler

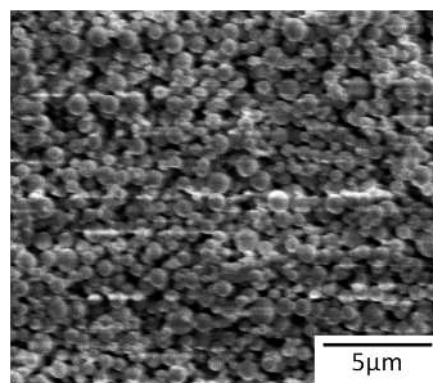


Fig.2 SEM image of silica filler

3. 結果および考察

生成した粒子の外観について Fig.3 に示す。アルミナビーズを加えたものはすべて灰色に変色していることがわかる。また、処理時間が短い(b)は白色の部分も残っていることが確認できた。しかし、いずれも粒子が摩砕により板状に固まっており、強固な凝集構造を形成していると考えられる。

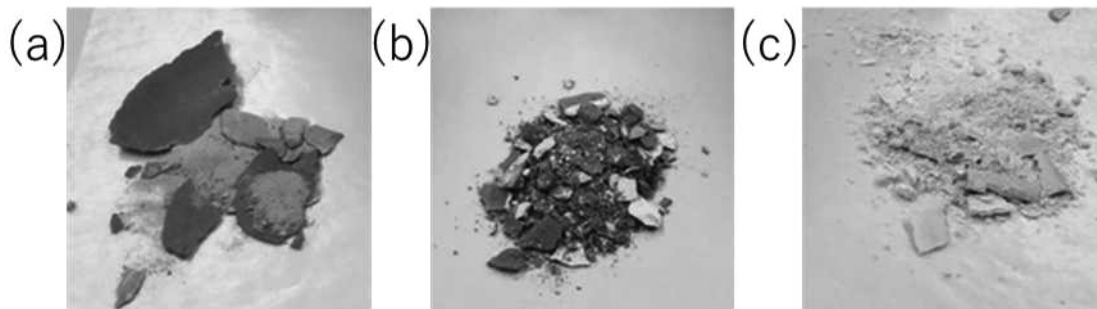


Fig.3 Photo of the ground products

(a) Silica 10g, Beads 40g, Time 120min (b) Silica 30g, Beads 20g, Time 30min (c) Silica 60g, Time 180min

そこで、昨年度実験して得た摩砕物を SEM および TEM 観察することで、ポリマーの存在について調査することにした。**Fig.4** に摩砕して得られた粒子の SEM および STEM 画像を 4 種類示す。これはシリカファイラー30 g を 30 min 間隔で 120 min 処理したものである。なお、画像の(a)は SEM 画像であり、(b)は同視野における STEM 画像であり、すべて同じサンプルから得られた画像である。すべての粒子を観察したわけではないが、STEM 画像から球状のシリカファイラーの周りに不規則ながら、半透明のポリマーの生成を確認することができた。また、ポリマーと思われる半透明の部分に濃淡が存在していることから、構造が変化したか分子量の異なるポリマーが生成しているものと考えられる。昨年度の報告書において既に示したが、得られた粒子を TG-DTA 分析したところ、質量変化が見られておらず、これらポリマーの生成量はかなり少ないと思われる。したがって、ポリマーの特定や分子量の測定など、これ以上の分析は困難と思われる。

Fig.3 で示した着色の影響を考えると、摩砕機のジャケットは冷却して 16°C以下に保たれているものの、アルミナビーズとシリカファイラーとの間で摩擦による熱が発生している可能性が考えられる。そのため、MMA が熱重合または重合前に炭化するなどして着色したと考えられる。しかし、**Fig.4** に示した粒子の処理にはアルミナビーズは含まれておらず、30 min 間隔で冷却を確認しており MMA の熱重合の可能性はないと考えられる。したがって、**Fig.4** に示された半透明の物質は明らかに PMMA であると思われる。これまで使用した摩砕装置では、本実験で使用した 1 μm サイズの粒子へ剪断力を十分加えることができなかつたため、今後、微細粒子に対しても剪断力を付与できるよう装置の改良が望まれる。

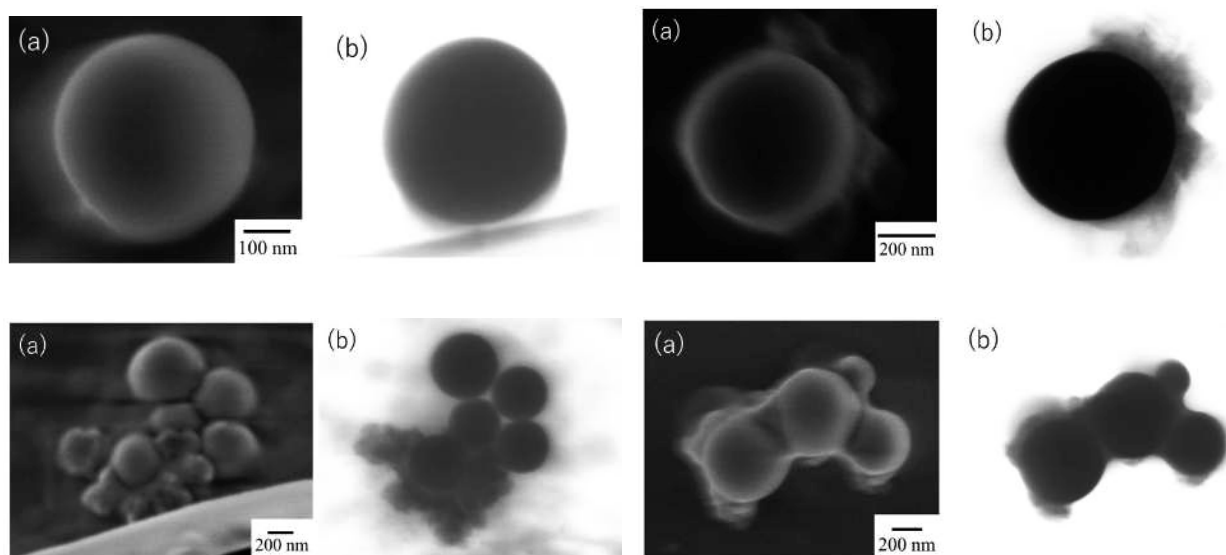


Fig.4 SEM and STEM images of the product
Silica 30 g, MMA 20 mass% (5%×4), 120 min

(共同研究分野：スマートコーティングプロセス学分野)

全固体リチウムイオン二次電池の電極の成形と焼結

長岡技術科学大学 工学研究科 物質材料工学専攻

田中諭

1. 緒言

酸化物全固体リチウム二次電池は安全性の点から今後の開発が期待されている。電極活物質や固体電解質の物質選定だけでなく、その電極層と固体電解層との低抵抗界面の形成プロセスが重要である。セラミックスの製造を利用したこの界面形成を複合電極と固体電解質との同時焼成で作製することが想定される。本研究では、複合電極の正極活物質と電解質に低温で焼結可能な物質を用いて、成形と焼結を検討することを目的とした。低温焼結可能な酸化物固体電解質として、LISICON系の $\text{Li}_{3.5}\text{Ge}_{0.5}\text{V}_{0.5}\text{O}_4$ (LGVO)を用いた。LGVOは730℃以下で焼結可能であり、複合正極内にもLGVOを混合することで、同時焼結させられるかを検討した。複合正極層は、混合スラリーを調製してからシート成形した。固体電解質については圧粉成形体として、正極シートと圧粉体とをプレス成形で圧着してから同時焼成させた。

2. 実験方法

電極活物質には、 LiCoO_2 (LCO) 粉 (日本化学工業製, 粒子径 5 μm) , 固体電解質には高純度の Li_2CO_3 粉, GeO_2 粉, V_2O_5 粉を用いて700℃で固相反応して合成したLGVO粉体を用いた。複合電極層では、LCO粉とLGVO粉の比を1:1から1:3まで変化させた。焼結助剤に Li_3BO_3 を1wt%添加した。これらの粉体を分散媒 (1-butanol と butyl acetate との混合液体) , または、3-メトキシ-3-メチル-1-ブタノール(MMB)に分散させた。結合剤として polyvinyl butyral (PVB) , 可塑剤には Ethylene glycol を添加してボールミル混合し、固体濃度 20 vol%のスラリーとした。アプリケーションを用いて展開し乾燥させて、複合電極シートを作製した。金型にLGVO粉を充填して軽く圧粉した後、直径1cmに切り出した複合電極シートを載せて、100℃中100MPaの条件で加圧した。焼結は700-800℃の温度で行った。評価としては、スラリーの評価をレオロジー測定により行い、複合正極と電解質の界面を走査型電子顕微鏡によって観察と元素分析をした。界面の電気特性を交流インピーダンス測定により行った。

3. 実験結果

Fig. 1aにスラリーの粘度曲線を示す。混合溶媒において、ヒステリシス性の少ない低粘度のスラリーが得られた。一方、MMBではヒステリシス性が大きく、良好なスラリーは得られなかった。Fig.1bに成形シートの外観を示す。厚さ約80-100 μm のシートが作製できた。

Fig. 2にLCOとLGVOの比が2:1のときの電極層と電解質層を重ねて密着させた後に700℃で焼結させた焼結体の断面のSEM像を示す。Fig.2に示すとおり、両者は剥離することなく同時焼結がみられた。また、Fig.2(b)から、Coの固体電解質層への拡散はみられなかった。一方、Vは両方の層に見られた。これより、相互の拡散は殆どないと考えられる。なお、LCOとLGVOの比が1:1及び2:1のときは、両者はき裂も見られずに同時焼結が確認されたが、3:1の系では剥離がみられたことから、焼結にはLGVOがある程度必要であることがわかった。

Fig.3に LCO と LGVO の比が 2:1 のときの電極層と電解質層を重ねて密着させた後に 750°C で焼結させた焼結体の断面の SEM 像を示す。電極層中の LCO 粒子が接近したことで、V が LCO 粒子間だけでなく LCO 粒子内全体に拡散した様子が観察された。LGVO の固体電解質層内での粒成長もみられた。730°C で焼結ではまだ拡散は観察されなかった。LGVO はこの温度で融解することはないため、可能性としては低融点の化合物 Li_2CO_3 及び Li_3BO_3 の影響が考えられた。インピーダンス測定を室温 25°C で行った結果、焼結温度 700°C で LCO と LGVO 比が 2:1 のとき、導電率は $7.1 \times 10^{-5} \text{ S} \cdot \text{cm}^{-1}$ となった。焼結温度 750°C 以上では急激に抵抗が高くなり、観察結果と対応した。

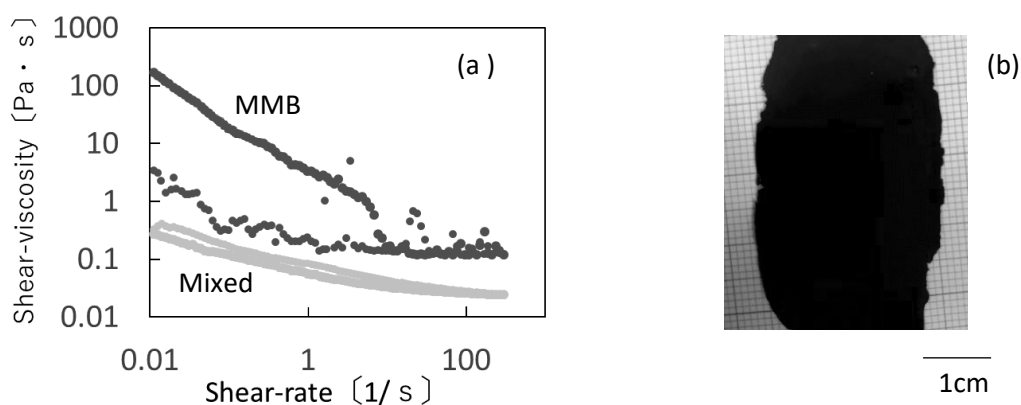


Fig.1 分散媒の異なる複合正極スラリーの粘度曲線(a)とグリーンシートの外観

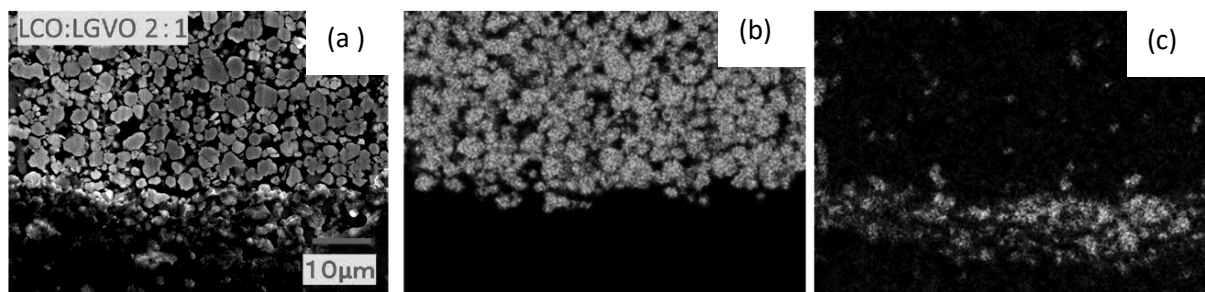


Fig.2 複合正極層と固体電解質層の焼結温度 700°C の界面付近の観察画像. (a)SEM 観察像, (b) Co の分布, (c) V の分布

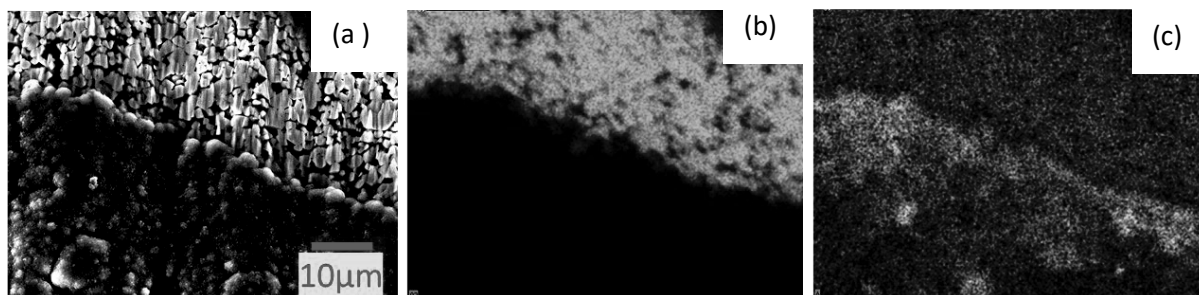


Fig.3 複合正極層と固体電解質層の焼結温度 750°C の界面付近の観察画像. (a)SEM 観察像, (b) Co の分布, (c) V の分布

(共同研究分野：スマートコーティングプロセス学分野)

1. 目的

臭素系難燃剤であるテトラブロモビスフェノール (TBBPA) は、自動車の樹脂部品をはじめとする様々なプラスチックに添加や含有されている。2004 年のストックホルム条約により、これらの臭素系難燃剤を含有するプラスチックなどの製造や使用が禁止されているものの、これらの適切な処理技術は十分に確立されていない。既往研究より、メカノケミカル反応を利用した遊星ボールミル粉砕によって、プラスチックからの臭素の分解機構やその除去が報告されており、臭素系難燃剤を含有するプラスチックの処理技術として期待されている。しかしながら、遊星ボールミル粉砕における種々の装置パラメータや試料条件などがメカノケミカル反応やその結果として生じる脱臭素過程に与える影響が十分には解明されていない。そこで本研究では、メカノケミカル反応を用いた遊星ボールミル粉砕による臭素分解の最適化を目的とし、臭素分解過程に速度式を適用し、各種装置条件や試料条件と速度定数との関連を考察する。

2. 実験方法

粉砕実験には、遊星ボールミル(KURIMOTO, Ltd., BX254E)を用いた。TBBPA (Analytical standard, Sigma-Aldrich, Inc.) を 0.5 g、石英砂を 0.5 g、鉄粉を 5.5 g、それぞれ量り取り、混合させたものを粉砕試料とした。また、粉砕媒体として、直径 4 mm のジルコニアボールを所定の充填率 (10%、15%、30%) になるように投入した。粉砕時間は 1、2、3、4 時間の 4 条件とし、ミルの回転数は 314、450、609 rpm の 3 条件とした。得られた粉砕産物中の TBBPA の濃度は、ガスクロマトグラフ(GC-MS; Gas Chromatography, Agilent Technologies, 7890B)を用いて測定した。

3. 結果および考察

3.1. 速度論による臭素分解過程の評価

各粉砕条件における TBBPA の分解割合を Fig. 1 に示す。いずれのミル回転数の条件においても、粉砕媒体の充填量が大きくなるほど、TBBPA の分解割合が大きいことが確認された。したがって、ミル回転数がメカノケミカル反応による臭素分解の促進に大きな影響を与えると考えられ、既往研究[1]で報告されている傾向とも一致していた。

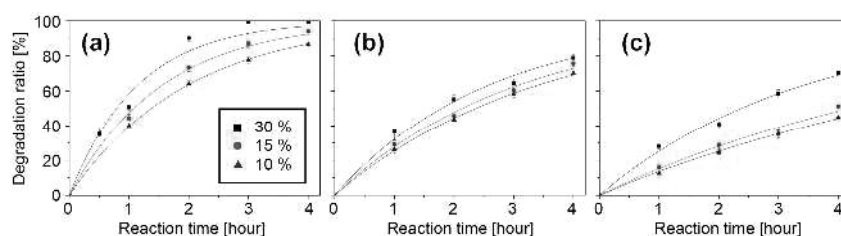


Fig. 1 TBBPA degradation ratio at the different filling ration of grinding media at the rotation speed of (a) 609 rpm, (b) 450 rpm, and (C) 314 rpm.[2]

臭素分解過程を、以下に示す一次の速度式[3]でフィッティングした。

$$\chi = 1 - \exp(-Kt) \quad (1)$$

ここで、 χ は TBBPA の分解割合、 K は TBBPA の分解速度定数、 t は粉砕時間を示している。フィッティングから得られた結果を Fig. 1 の実験結果に重ねて示す。いずれの粉砕条件においても、相関係数は 0.98 よりも高い値が得られたことから、臭素分解過程が式(1)に示す一次の速度式で良好に評価できることが示唆された。

3.2. 媒体の衝突エネルギーと臭素分解速度定数の相関性の評価

離散要素法[4]による遊星ボールミル内の媒体粒子挙動解析から、媒体の衝突エネルギーを算出した。算出した衝突エネルギーおよび衝突エネルギーを法線方向成分と接線方向成分に分けてそれぞれ積算したエネルギーと分解速度定数の関係を Fig. 2 に示す。遊星ボールミル内の媒体の衝突エネルギーの大部分が接線方向成分であるが、総衝突エネルギーや衝突エネルギーの接線方向成分の積算値よりも法線方向成分の積算値が分解速度定数と良好な相関が確認された。衝突エネルギーの接線方向成分は主にミル内壁への転がりによる摩擦に起因するものであるのに対し、衝突エネルギーの法線方向成分はミル内壁と媒体間あるいは媒体同士の圧縮に起因するものである。そのため、摩擦に起因する衝突エネルギーよりも圧縮に起因する衝突エネルギーによって、メカノケミカル反応による臭素分解が促進されることが示唆された。

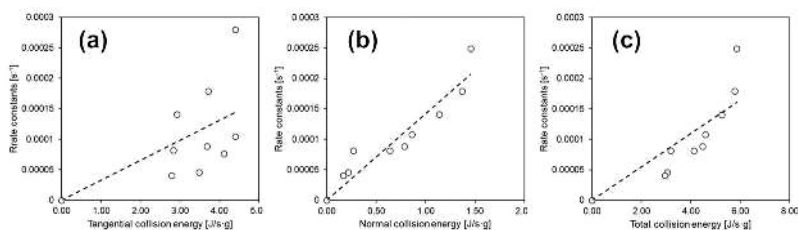


Fig. 2 The relationship between the rate constant and (a) E_t : tangential collision energy, (b) E_n : normal collision energy, and (c) E_T : total collision energy. [2]

4. まとめ

本研究では、メカノケミカル反応を用いた遊星ボールミル粉砕による TBBPA の臭素分解の最適化を目的とし、臭素分解過程に速度式を適用し、各種装置条件や試料条件と速度定数との関連を考察した。媒体の充填量やミル回転数が大きな条件であるほど、TBBPA の臭素分解が促進されることが確認された。また、遊星ボールミル粉砕による TBBPA の臭素分解過程を速度式で良好に評価できることを示すとともに、離散要素法を用いた媒体挙動解析から得られる衝突エネルギーの法線方向成分の積算値と TBBPA の臭素分解速度定数に相関が得られることを示した。

参考文献

- [1] H. Mio, S. Saeki, J. Kano, F. Saito, Estimation of Mechanochemical Dechlorination Rate of Poly(vinyl chloride), *Environ. Sci. Technol.* 36 (2002) 1344–1348.
- [2] Y. Takaya, Y. Xiao, Y. Tsunazawa, M. Córdova, C. Tokoro, Mechanochemical degradation treatment of TBBPA: A kinetic approach for predicting the degradation rate constant, *Adv. Powder Technol.* 33 (2022) 103469.
- [3] G. Cagnetta, J. Huang, B. Wang, S. Deng, G. Yu, A comprehensive kinetic model for mechanochemical destruction of persistent organic pollutants, *Chem. Eng. J.* 291 (2016) 30–38.
- [4] P.A. Cundall, O.D.L. Strack, A discrete numerical model for granular assemblies, *Géotechnique*. 29 (1979) 47–65.

(共同研究分野：スマートコーディングプロセス学分野)

1. 目的

バイオフィームは、食品・医療器具汚染、金属腐食、虫歯など、トラブルの原因となる場合も多い。しかし、バイオフィームは機能的・構造的に非常に複雑であるため、それらの問題に適切に対応できる技術は皆無である。バイオフィームが関係するトラブルには重大なものが多い。例えば、一見、関連性がないような金属配管の腐食でさえも微生物が関わっており、1年間で30～50億ドルの被害が出ていると言われている（微生物劣化）。また、微生物の混入に細心の注意を払う食品分野でも、バイオフィーム除去のために生産ラインを止めることは避けられない（微生物汚染）。さらに、厄介なのは、微生物がバイオフィームを形成すると、様々な耐性を発現するため、大量の薬剤添加をもってしても、バイオフィームの除去が困難になることである。したがって、バイオフィーム形成の抑制技術が確立できれば、その経済的な効果は計り知れない。

2016年度までの共同研究では、ガラス基板表面を親水性シリカ粒子で表面加工すると、カビ胞子を水洗により容易に脱離できることを明らかにした[1]。2017-2018年度は、ステンレス表面を親水性チタニア粒子で表面加工した基板を作製し、生きた微生物細胞と基板間に働く付着力の測定技術を構築した。2019年度は、上記の基板を用いて、乳酸菌をモデル微生物としてバイオフィーム形成の初期段階である微生物の付着抑制効果について検討を行い、SUS基板表面を親水性ナノ粒子で処理すると、微生物の付着が抑制できることを明らかにした[2]。2020年度は、大腸菌をモデル微生物として基板に付着した微生物のマイクロバブル（MB）を用いたノンケミカル洗浄について検討を行い、基板の材質によらず90%以上の付着菌体を除去できることを明らかにした。しかし、付着菌体を完全に除去することは困難であることが示唆された。そこで2021年度は、この要因について検討するために、微生物種を増やしてその生死が除去効率に及ぼす影響について検討を行った。

2. 実験方法

モデル微生物として、乳酸菌 *Lactiplantibacillus plantarum* JCM 1149 株、乳酸菌 *Lactococcus lactis* JCM5805 株、大腸菌(鞭毛欠損株) *Escherichia coli* JD23004 株、脱窒菌 *Paracoccus denitrificans* NBRC13302 株の4種類を使用した。固体基板にはカバーガラスを用いた。マイクロバブルは、加圧発泡法により発生させた(MB径:10~100 μm)。それぞれ推奨培地で培養した微生物は、遠心分離により回収して培地成分を除去した後、生理食塩水で3回洗浄することでできるだけ細胞外ポリマーを除去した。集菌洗浄した微生物懸濁液20 mLをカバーガラスの入ったシャーレに分注して5分間浸漬させた後、菌体が付着した基板面を下にしてMB分散液中で30秒間MBに接触させてから20秒振とう洗浄した。SYTO 9とPIで生死染色した後、共焦点レーザー顕微鏡(CLSM)で観察した。基板上に残存した菌体数は、画像処理ソフトImage Jにより計数した。

3. 実験結果および考察

4種類の微生物をMB洗浄したときの付着菌体数をFig. 1に示す。*L. plantarum*では、洗浄後も多くの菌体が付着していることが分かった。また、残留した*L. plantarum*の生死判別を行うと、そのほとんどが死菌体であることが分かった。次に、培養時間の異なる*L. plantarum*を用いて洗浄実験を行った。培養時間と付着菌体数の関係をFig. 2に示す。培養時間の増加に伴い、洗浄前後の付着死菌体数は増加した。これにより、洗浄前の付着死菌体が多いほど、MB洗浄効果が低くなることが分かった。

死菌体の付着現象を理解するために、原子間力顕微鏡(AFM)を用いた菌体-ガラス間の付着力測定と、菌体-MB間の付着力の理論的推算を試みた。*L. plantarum*-ガラス間の付着力をFig. 3(A)に示す。ガラスに対する付着力は、死菌体の方が生菌体よりも大きくなることが分かった。これは、細胞膜が損傷した死菌体において、細胞内からバイオポリマーが流出したためと推定される。次に*L. plantarum*-MB間の付着力を次式より推算した[3]。

$$F = 2\pi R_B \gamma_{lv} \sin[\phi(t)] \sin[-\phi(t)] \quad (1)$$

ここで、 R_B は粒子半径、 γ_{lv} は気液界面の表面張力、 θ は粒子-液体間の接触角、 ϕ は時刻 t における粒子の気液界面に対する位置を示す角度である。菌体付着力の計算結果を **Fig. 3(B)**に示す。これより、MB に対する微生物の疎水性相互作用力は、死菌体の方が生菌体よりも小さくなることが分かった。以上より、MB 洗浄により生菌体の増殖によるバイオフィルム化を抑制できることが分かった。

Fig. 2 において最も洗浄効果が低かった培養 168 時間の菌体を、酸性 (pH4) に調整した水道水中に分散させた MB で洗浄した。そのときの MB 洗浄後の付着死菌体数を **Fig. 4** に示す。酸性条件下での洗浄の方が洗浄後の付着死菌体数は減少することが分かった。MB の分散する溶液が中性から酸性に変化すると、MB は負帯電から正帯電に変化するため、酸性条件下では負帯電の微生物と付着しやすくなったと推定される。

References

1. T. Nomura, M. Minamiura, K. Fukamachi, S. Yumiyama, A. Kondo, M. Naito, Adv. Power Technol. 29 (2018) 909.
2. T. Tanaka, E. Fujisawa, A. Yoshihara, Y. Konishi, T. Nomura, A. Kondo, M. Naito, J. Soc. Powder Technol., Japan 57 (2020) 588.
3. A.T. Kriegel, W. A. Ducker, Langmuir, 35 (2019) 12817.
(共同研究分野：スマートコーティングプロセス学分野)

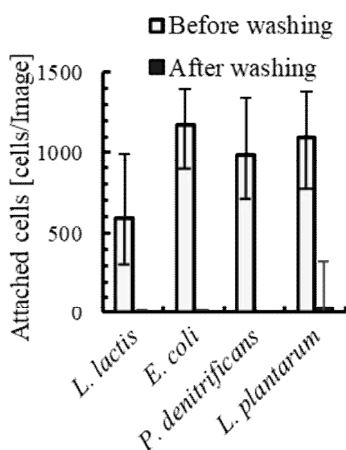


Fig. 1 Attached various cells before and after MB washing.

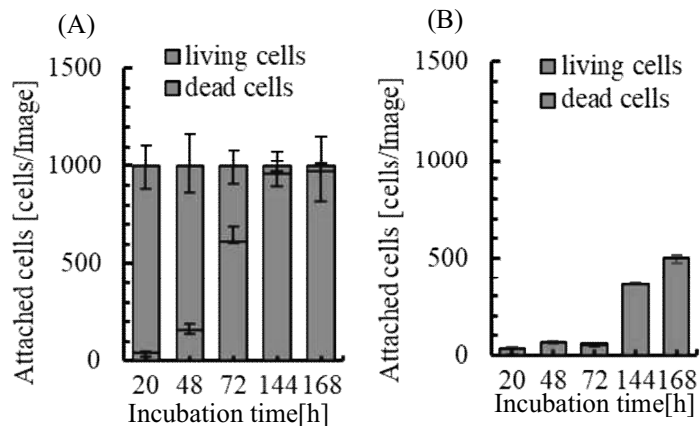


Fig. 2 Relationship between incubation time and attached cells. (A) Before MB washing (B) After MB

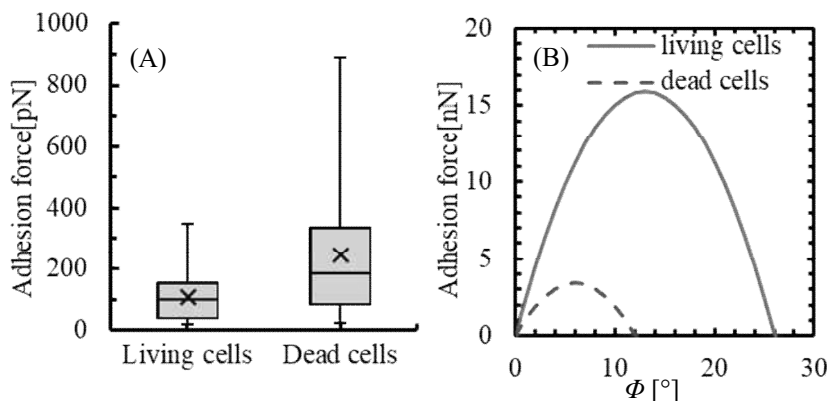


Fig. 3 (A) Adhesion force between *L. plantarum* and silica particle

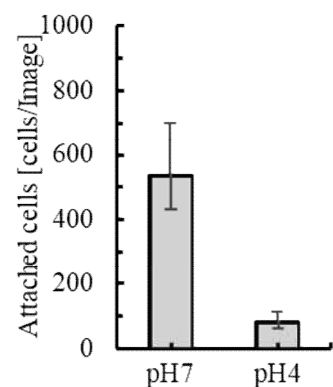


Fig. 4 Attached cells on pH4 and pH7 after MB washing.

1. 緒言

ナノシリカ中空粒子は、内部に空洞を持つ直径 100 nm 以下の粒子である。自身のユニークな構造から、断熱性、光散乱性、滑り止め特性など様々な機能を有する。これらの機能は、粒子の微構造制御によって、より向上することも分かっている。例えば断熱性は、ナノサイズの空洞の存在だけでなく、空洞を構成するシリカシェルの密度が低いほど良い。中空粒子は、無機粒子テンプレート法を用いて合成する場合、以下のような手順を踏む。テンプレートとして炭酸カルシウムを用い、ゾルゲル法によりシリカをコーティング後、酸性条件でテンプレートを除去し中空構造を得る。この方法の特徴は、テンプレート除去に有機溶媒を用いないこと、除去後に排出される溶液中には炭酸カルシウムの原料が溶出しているため再合成ができることである。冒頭のシリカシェルの密度など微構造を制御するには、シリカシェルを構成するゾルゲル反応条件の選択が必要である。例えば、溶媒極性、触媒添加量、シリカ源の添加量、反応温度や時間、などである。これらを調整することによって、シリカシェルにマクロ孔、メソ孔、マイクロ孔をもたせたり、密度を制御したりできる。

ナノシリカ中空粒子は、前述のように光散乱特性を有する。ポリマーフィルムに練りこみ光導光板システムに搭載すると、光源からの光を効率よく取り出すことができる。従来用いられているマイクロサイズの中実粒子を散乱粒子として用いたフィルムと比較すると、光取り出し効率は約2倍である。光の散乱は、中実粒子表面で起こる。散乱光は、ポリマーフィルム内部を通り導光板表面に取り出されるが、中実粒子内で減衰も起こる。一方、ナノシリカ中空粒子は、散乱するとともに、透過率も高いので減衰が抑えられる。したがって、光取り出し効率が高くなる。

ナノシリカ中空粒子の光散乱性を用い白色光を示す発光ダイオード(LED)への応用を考える。例えば青色LEDと黄色蛍光体の組み合わせのように、白色を出すために蛍光体が必要となる。従来、マイクロサイズの蛍光体が練りこまれており、取り出された光が蛍光体内部で減衰することが課題としてあった。そこで、ナノシリカ中空粒子にナノサイズで蛍光体を担持させる手法を確立できれば、高輝度白色LEDに展開可能であると考えた。

本研究では、蛍光体として酸化亜鉛(ZnO)粒子を選択し、ナノシリカ中空粒子のシェルに均一に担持させる手法を提案する。ZnOの合成法は種々あり、亜鉛源として酢酸亜鉛を用い、水酸化ナトリウム(NaOH)で亜鉛水酸化物を経てZnOとする手法を選択した。シェル上でZnOに転化させるために、中空粒子内部に亜鉛源水溶液を保持させ、それをNaOH水溶液に浸すことで、シェル上でこれらの反応が起こるように工夫した。

2. 実験方法

ナノシリカ中空粒子は、無機粒子テンプレート法を用いて合成した。炭酸カルシウムをテンプレートとし、シリカ源としてテトラエトキシシラン(TEOS)を用い、水酸化アンモニウム水溶液を触媒としてシリカシェルを作り、所定時間後、塩酸水溶液を用いてテンプレートを溶解除去した。粒子の合成は、電子顕微鏡観察を用いて行い、テンプレート除去は、X線回折により炭酸カルシウムの回折ピーク消失により確認した。シリカシェルの細孔の有無は、窒素ガス吸着等温実験により行った。その結果、シェルにはマイクロ孔が存在していることが分かった。この合成した中空粒子に、酢酸亜鉛水溶液を浸透させた。その後、NaOH水溶液に浸し、中空内部に亜鉛源、外部に塩基雰囲気を作った。所定時間後、固液分離、洗浄、乾燥工程を経てZnO担持ナノシリカ中空粒子を合成した。ZnOの生成は、X線回折により確認した。

3. 結果と考察

図1に合成した中空粒子(a)とZnO担持後の中空粒子(b)のSTEM観察結果を示す。中空粒子のシェル表面はなめらかであるが、ZnO担持後は、微小な粒子が確認できる。X線回折から、ウルツ鉱であることが分かった。市販ZnOのX線回折ピークと比較してZnO担持中空粒子のZnO由来の回折ピークはブロードであったため、微小なまま担持できているといえる。顕微鏡観察範囲では、ZnOと思しき微小粒子が、シリカシェル以外に存在していなかった。つまり、中空粒子内部に亜鉛源を、中空粒子外部に塩基水溶液を存在させて反応させたことで、

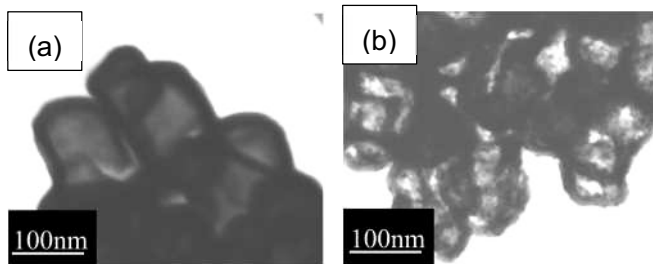


図1 中空粒子(a)とZnO担持後の中空粒子

シェル上でZnO生成が起こったといえる。図2に、ZnO担持中空粒子の蛍光強度を測定した。比較のために、中空粒子のみのデータも載せる。ZnO担持中空粒子(ZnO/h-SiO₂)は目視で確認できるほど、蛍光発光が確認できた。中空粒子のシェルにZnOが微小粒子のまま担持できたことについて、考察する。亜鉛源と塩基水溶液がシェル付近で反応するだけでなく、生成したZnOがシェル表面と相互作用し付着しなければならない。それを調べるために、シリカ中実粒子にも同様にZnOの担持を試みた。その結果、中実粒子表面にはZnOは均一に担持されず、凝集体が不均一に存在しているのみであった。中実粒子の窒素ガス吸着測定を行うと、粒子表面にマイクロ孔は存在していないことが分かった。つまり粒子表面は中実粒子と異なり、平滑であるということである。X線回折から、生成したZnOは同様なウルツ鉱であったが、回折ピークはシャープであり、大きな結晶ができていたことが示唆される。これは、電子顕微鏡観察像からも明らかである。中実粒子の実験では、亜鉛源は粒子間隙に補足され、そこでZnO粒子に成長したであろうと推測される。ZnO担持中実粒子のバンドギャップエネルギーは3.228 eVであり、結晶子サイズは8.63 nmであった。ZnO担持中空粒子のバンドギャップは3.236 eVであり、結晶子サイズは7.66 nmであった。

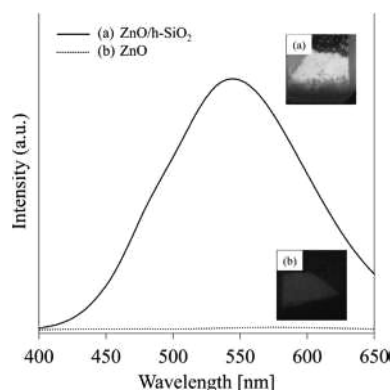


図2 蛍光測定結果

微小なZnO粒子を担持させるには、中空粒子のシリカシェルに存在しているマイクロ孔の存在が最も重要なカギであることが分かった。ZnOの前駆体溶液が中空粒子内部に補足され、Znイオンがシリカシェルの表面に吸着する。シリカシェルを構成する多くのシロキサン結合の欠陥がZnイオンの吸着をサポートしているのではないかと推測される。加えて、この欠陥が、ZnOからの蛍光発光を効率よく外部に放出することにも寄与していると考えられる。マイクロ孔は、ZnOが過剰に成長することを抑制する効果もあるかもしれない。

ZnOを中空粒子に担持させることのメリットとして、中空構造の高い可視光透過率により散乱光の減衰が抑えられることがあげられる。ZnO担持中空粒子がポリマーフィルムに分散した複合フィルムを作製した場合、フィルムの透過率向上も期待できる。

4. 結言

強い黄色発光を示すZnO担持中空粒子を、酢酸亜鉛前駆体とNaOH触媒を用いて作る事ができた。蛍光特性は、ZnO粒子がシリカシェル上にシングルナノ粒子として担持していたことによる。担持体の表面にマイクロ孔の存在が不可欠であることが分かった。得られたZnO担持中空粒子は十分な黄色蛍光発光を持ち、LEDへの搭載により高輝度白色LEDへの応用が期待できる。

(共同研究分野:スマートコーティングプロセス学分野)

(一財)電力中央研究所
牧野尚夫、野田直希

1. 目的

石炭は可採埋蔵量が豊富で、産出国に極端な偏りもないため、供給安定性に優れた燃料であり、我が国においては発電量の約30%が石炭により供給されている。石炭利用に伴う大きな課題は環境保全性の向上であり、温室効果ガスの排出抑制と並んで、発生石炭灰の環境影響に配慮した有効利用の拡大が極めて重要となっている。

石炭灰の有効利用先としては、セメント、コンクリートなどの構造物への混和材などが主である。その利用に当たっては、石炭灰の形状が比表面積の小さな球形粒子になっている事が強度の点で重要であり、環境影響抑制の上では、石炭灰に含まれるホウ素、セレンなどの石炭灰表面からの溶出抑制が効果的である。本研究では、石炭灰の有効利用拡大に向け、球形に近い石炭灰を発生させると共に、ホウ素、セレンなどの溶出を抑制するための灰性状制御技術の検討を行う。

2. 研究方法

石炭の最も一般的な利用法である微粉炭燃焼において生成される石炭灰性状に及ぼす様々な影響因子についての検討を行うため、図.1に示す、試験用の微粉炭燃焼試験炉において、性状の異なる石炭を異なる燃焼条件の下で燃焼させ、生成した石炭灰について、その性状に及ぼす生成条件の影響を明らかにし、表面構造の最適化の視点から、有効利用しやすく環境性に優れた石炭灰を発生させるための条件を明らかにする。

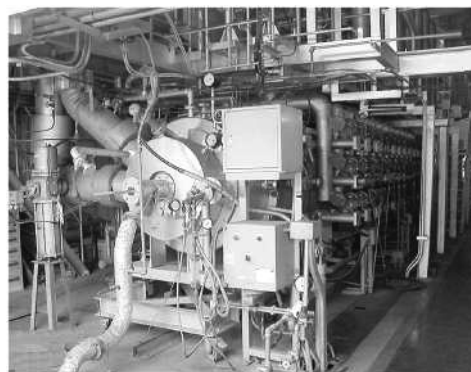


図.1 微粉炭燃焼試験炉

3. 結果

3.1 石炭灰の生成過程と形状

微粉炭燃焼で得られた石炭灰の代表的な形状を示す写真を図.2に示す。石炭灰の多くは、きれいな球状となっている。これは、微粉炭が燃焼する際に雰囲気温度は1,800K程度になるため、石炭灰の熔融温度を上回る事が多く、石炭灰が一旦液状化し表面張力により球形となった後、排ガスの冷却時に固体状の灰粒子へと変化するためである。すなわち、灰の融点が高い石炭灰や燃焼温度が低い中で得られた石炭灰は球状になり難いと考えられる。石炭灰の形状を表す因子として、Wadellの実用球形度¹⁾(粒子の投影断面積と等しい円の直径÷粒子に外接する円の直径)を採用し、実用球形度に及ぼす石炭灰生成条件の影響を明らかにした。

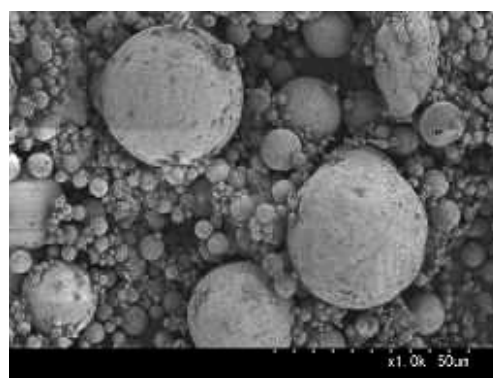


図.2 石炭灰の形状(例)

3.2 石炭灰形状に及ぼす粒子径の影響

同じ石炭種を同じ条件で燃焼させた場合は、石炭灰の粒子径が小さいほど実用球形度が1に近くなった。これは、石炭灰の粒子径が小さいほど、燃焼ガスの温度が灰に伝わりやすくなるため、灰粒子全体の温度が融点以上になり表面張力により球形化しやすいからだと考えられる。元々の微粉炭粒子を細かくすることで灰の球体化を促進できる事に加え、石炭灰生成後に、分級操作により微細な石炭灰の含有率を多くすることにより、球状に近い石炭灰粒子の含有率も多くすることが可能となる。

3.3 石炭灰形状に及ぼす燃焼条件の影響

微粉炭燃焼では、燃焼時に発生する窒素酸化物(NO_x)の抑制を図るため、燃焼用空気の一部を分割して火炎の後流から注入することで、バーナ近傍の一次燃焼域の酸化雰囲気をも弱める二段燃焼技術が採用される²⁾。この方式を用いた場合、一次燃焼域でのガス温度が高くなり灰が溶融しやすくなる。すなわち、二段燃焼技術の採用、制御により灰の球体化の促進が可能となる。

3.4 石炭灰形状に及ぼす石炭種の影響

約10種類の石炭種を用いて、同じ燃焼条件で燃焼させて生成した石炭灰を比較し、図.3に示すように、灰の融点が高い石炭種ほど実用球形度が1に近づく事を明らかにした。また、燃料比(石炭中の固定炭素と揮発分の比率)が低い石炭ほど球体化しやすい傾向を持つことも明らかにした。燃料比が低い石炭は着火しやすく速やかに昇温するため、灰が球状化しやすいと考えられる。

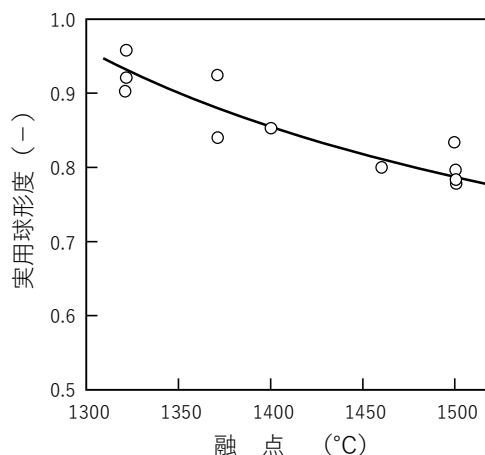


図.3 灰融点と実用球形度との関係

3.5 石炭灰からのホウ素とセレンの溶出特性に及ぼす石炭灰組成の影響

微粉炭燃焼試験炉から排出される石炭灰を対象にセレンとホウ素の溶出試験を行った結果、石炭灰中のカルシウム濃度が高いほど溶出する割合が低くなる傾向となった。これは、カルシウムの含有量が多いほど溶出液のpHが高くなり、溶液中でホウ素やセレンがカルシウムと不溶性化合物を生成した事によると考えられる。

4. 結論

微粉炭燃焼場で生成された石炭灰の形状および溶出特性に及ぼす諸因子の影響を検討し、微粉炭の粒子径が微細で着火性が良く、かつ灰の融点が高い石炭ほど、球状粒子含有率が多くなり石炭灰を有効利用しやすくなる事に加え、カルシウムが多いほどホウ素、セレンの溶出が抑制できる事が明らかになった。石炭に融点降下剤やカルシウムを添加する、あるいは燃焼火炎温度を高くする事により石炭灰の球形度を高く環境性に優れた石炭灰が得られる事が明らかになった。

5. 参考文献

- 1) H. Wade11 : J. Geol., 40, 443 (1932) ; 41, 310 (1933)
- 2) 牧野他 : 化学工学論文集, 20, 6, 747-757 (1994)

(共同研究分野: スマートコーティングプロセス学分野)

1. 緒言

火力発電所から排出される副産物である石炭燃焼飛灰(フライアッシュ)は、日本国内で年間 1000 万トン以上に達している。フライアッシュの有効利用として、ジオポリマーが注目されている。ジオポリマーとは、アルミノシリケート粉体とアルカリ溶液との縮重合反応によって得られる非晶質のポリマーである^[1]。ジオポリマーの原料粉体のアルミノシリケートとしてフライアッシュや高炉スラグを用いることにより、廃棄物の有効用途として期待されている。大量の二酸化炭素を排出するクリンカーの焼成工程を必要としないジオポリマーをセメントコンクリートの代替材料として用いれば、コンクリートの製造による二酸化炭素排出量を大幅に削減できる。一方、フライアッシュ粒子の表面は安定なガラス層に覆われているため、ジオポリマーの硬化反応の進行には長時間の養生や養生の際の加熱が必要といった実用上の課題がある。これまでフライアッシュ粒子に対して機械的処理を施して粒子表面を活性化することにより、ジオポリマー硬化体の機械的特性を向上することを報告している^[2]。室温養生のような緩和な養生条件によりジオポリマーの硬化反応を促進するには、フライアッシュ粒子からの金属イオンの溶出性を向上する必要がある。

本研究では、硬化反応性の促進を目的として遊星ボールミルを用いてフライアッシュ粒子を微粉碎した。室温養生にて硬化体を作製し、初期硬化の圧縮強度におよぼすフライアッシュ粒子への微粉碎処理の影響を検討した。

2. 実験方法

本研究では、原料粉体として JIS 試験用フライアッシュを用いて、遊星ボールミルによる微粉碎処理を行った。遊星ボールミルの条件は回転数を 600 rpm、処理時間を 30, 60, 180 min とし、得られた微粉碎フライアッシュ粒子に対して各種粉体特性を評価した。微粉碎フライアッシュをそれぞれ 0.1 g ずつ遠沈管に投入し、30 wt% NaOH 水溶液と混合して 24 時間浸とう後、ろ過した。ろ液に対して ICP による濃度測定を行い、Al³⁺、Si⁴⁺ イオンの溶出特性を評価した。

未処理および微粉碎フライアッシュを円柱容器に取り、30 wt% NaOH 溶液と水ガラスの混合スラリー (重量比 3:2) を加えて練り混ぜ、ペーストを作製した。得られたペーストを円柱容器に充填後に密閉し、室温で 24 時間静置して試料を脱型した。脱型後、室温で 7 日養生して直径 10 mm、高さ 15 mm の硬化体を作製した。得られたジオポリマー硬化体に対して、SEM による形態観察、XRD による相同定、オートグラフによる圧縮強度試験を行い評価した。

3. 実験結果および考察

遊星ボールミルを用いて微粉碎処理を施したフライアッシュの SEM 写真を図 1 に示す。処理時間の増加に伴い粒子形状が球状から変化しており、微粉碎されている様子が見られた。比表面積は未処理フライアッシュの 2.2 m²/g から 180 min 処理では 5.9 m²/g まで増加した。

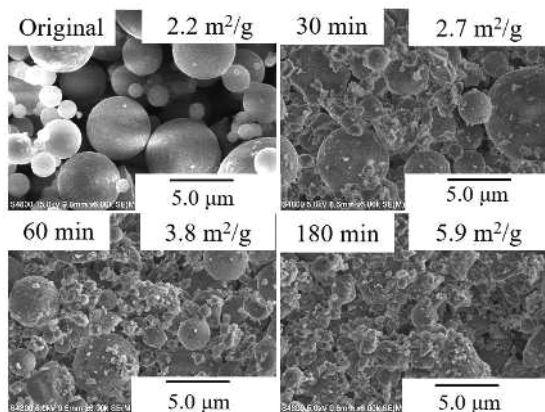


図1 各粉碎処理時間のフライアッシュ粒子の形態

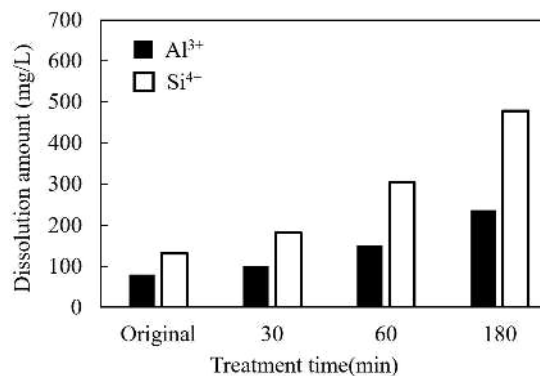


図2 微粉碎フライアッシュからの Al³⁺および Si⁴⁺イオン溶出特性

フライアッシュからの Al³⁺イオンおよび Si⁴⁺イオンの溶出特性を図2に示す。粉碎処理時間の増加とともにいずれのイオンも溶出量が増加した。処理時間 180 min の微粉碎フライアッシュからは、Al³⁺イオンが約 250 mg/L、Si⁴⁺イオンが約 500 mg/L 程度溶出した。未処理フライアッシュに対して、それぞれ順に 3.0 倍、3.6 倍の溶出量を示した。フライアッシュ粒子を微粉碎することにより、比表面積が増加するとともに活性な表面が生成し、Al³⁺イオンおよび Si⁴⁺イオンの溶出性が促進されると考えられる。

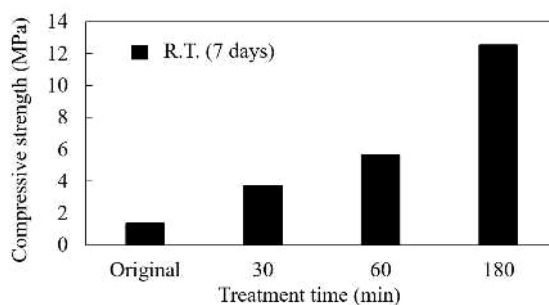


図3 室温養生によるジオポリマー硬化体の圧縮強度

室温 7 日養生により得られたジオポリマー硬化体の圧縮強度を図3に示す。微粉碎処理時間の増加にともない、非加熱かつ短期間の養生であっても圧縮強度が増加した。フライアッシュに微粉碎処理を施すことにより硬化反応性が向上し、加熱養生の圧縮強度には劣るものの、硬化の初期段階から強度を発現すると考えられる。水砕高炉スラグ等のフィラーの添加により強度が向上できれば、微粉碎フライアッシュの硬化反応性促進と強度向上の両立が期待できる。

4. 結言

遊星ボールミルを用いてフライアッシュ粒子を微粉碎し、室温養生でジオポリマー硬化体を作製した。比表面積の増加にともない、Al³⁺イオンおよび Si⁴⁺イオンの溶出性が向上した。フライアッシュ粒子の微粉碎は硬化反応の促進には有効であるが室温養生での強度は加熱養生には劣るため、さらなる強度発現が課題である。

参考文献

- 1) J. Davidovits, "Geopolymers: inorganic polymeric new materials", J. Thermal. Anal., 37, 1633–1656, 1991.
- 2) M. Matsuoka, K. Yokoyama, K. Okura, N. Murayama, M. Ueda, M. Naito, "Synthesis of geopolymers from mechanically activated coal fly ash and improvement of their mechanical properties", Minerals, 9, (12), 791–800, 2019.

(共同研究分野:スマートコーティングプロセス学分野)

天然無機物の微粒子分散プロセスが色彩特性、造形素材に及ぼす影響

女子美術大学芸術学部
日本画研究室
宮島 弘道、稲田 亜紀子
工芸研究室
荒 姿寿
染色文化資源研究所
橋本 信

1. 緒言

これまで「天然無機物の微粒子分散プロセスが色彩特性、造形素材に及ぼす影響」という課題で、接合科学研究所スマートコーティングプロセス学分野との共同研究を進めてきた。今回は研究対象としてきた天然顔料微粒子の具体的な応用分野について検討することとなった。共同研究者は、女子美術大学／宮島弘道・橋本信・稲田亜紀子・荒姿寿と大阪大学接合科学研究所内藤牧男先生で行われ、接合科学研究所において粉碎を行った岩絵具と胡粉を中心に討議と実験がおこなわれた。

2. 実験結果及び考察

宮島は、女子美術大学で開発中の黒朱色に変わる開発中の顔料の粒子径分布の計測結果より、黒朱とほぼ同程度の粒子径であることを確認した。さらに遊星ボールミルによる粉碎が粒子径に及ぼす影響が小さいことが確認され、実用化の方向を示す知見が得られた。

荒は、大豆粉・藍・美藍棒・カオリンなどの日頃使用する染色材料の粒子径分布測定により、染色作品における粒子径と触覚の関連性を新たに追究し、基礎材料を科学的に理解するために、非常に重要な知見を得ることができた。

また今回、橋本と稲田が中心となり調査した主な材料は、日本画作品における重要な色材である胡粉（ごふん）であり、その混練方法による粒子径分布の違いに興味深い結果が見られた。胡粉は、イタボガキの殻を風化させたものを粉碎してつくられるのが一般的であるが、原料としてはハマグリも利用されている。今回測定を実施した4つのメーカーで作製した4種類の胡粉の粒子径分布にも違いが見られた（表1）。

また、上羽絵惣の胡粉寿という一般的で入手しやすい胡粉を使い、混練し絵具にした場合の、制作者による絵具の粒子径分布の違いについても検討した（図1,2）。図1では、細かい径から粗い径まで分布の広がりがあり、全体としてメジアン径が小さくなっているのに対して、図2では粒子径分布の幅が狭く、急な山状の分布であり、メジアン径も図1に比較して大きくなった。図1の場合には、乳鉢で胡粉を粉碎後、そのまま膠を徐々に投入しながら、耳たぶの硬さ程度の胡粉団子を、乳棒を使って制作し、それを絵皿に移し、百叩き（絵皿に団子を叩きつけ、膠分を胡粉に馴染ませる工程）を行い、熱湯でアクを抜き指でとき下ろした。一方図2の場合には、乳鉢で胡粉を粉碎後、絵皿に移し、適量の膠を加え指で混練後、百叩き・アク抜きをし、指でとき下ろした。両者の工程の大きな違いは、指を用いて膠を混ぜたか、乳棒を使って強い力で膠を混ぜたかの違いである。この混練方法の差は、両者に大きな違いを生んだと考えられる。図3には、膠の有無による粒子径分布の違いを示す。図1に示した胡粉の粒子径分布と図2に示した粒子径分布の違いには、膠による分散の違いから生じる凝集程度の差が、関係しているものと推察される。以上の結果から、膠が接着材のみならず分散剤としても有効であり、適量を科学的知見から見つけることが可能ではないかと考える。また胡粉を塗布した和紙上の表面にも、制作者による粒子径分布の違いが顕著に現れており、個性の現れる扱いの難しい絵具であることが窺える（図4）。今後、粉体特性と色彩特性との関係について、さらに検討を進める予定である。

（共同研究分野：スマートコーティングプロセス学分野）

表1 各粉体の粒子径分布

サンプル	50%径(d_{50}) (μm)
放光堂	11.9
飛切（上羽絵惣）	13.7
彩雲堂	7.2
金鳳（中川胡粉絵具）	4.6

※測定サンプルの作製方法…サンプル粉体 0.15g/ヘキサメタリン酸ナトリウム溶液 50mL

※※前処理…超音波 40W 5min → ホモジナイザー 150W, 1min

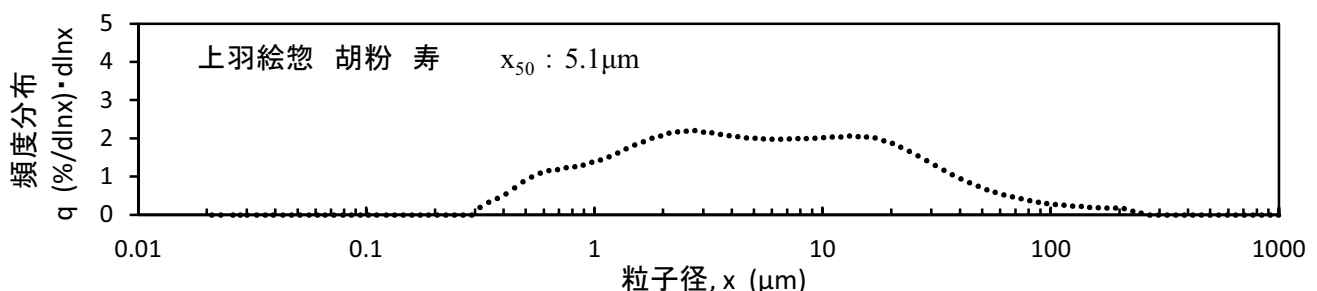


図1 宮島制作胡粉絵具の粒子径分布

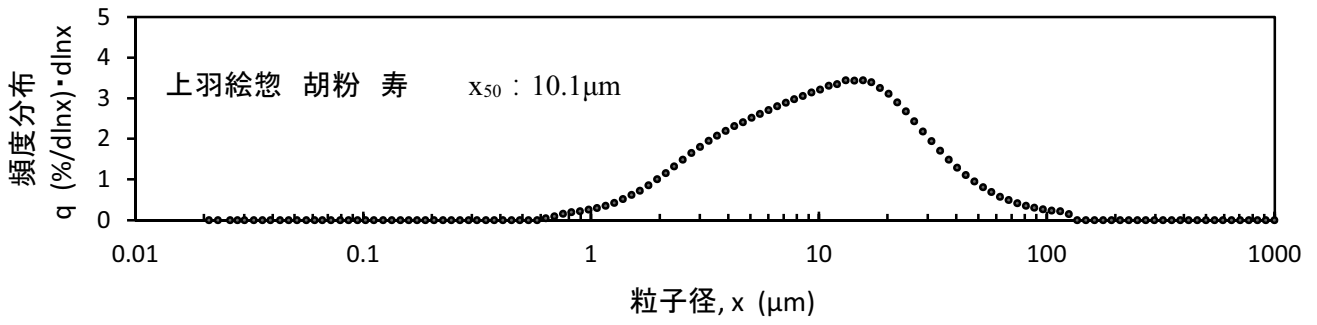


図2 橋本制作胡粉絵具の粒子径分布

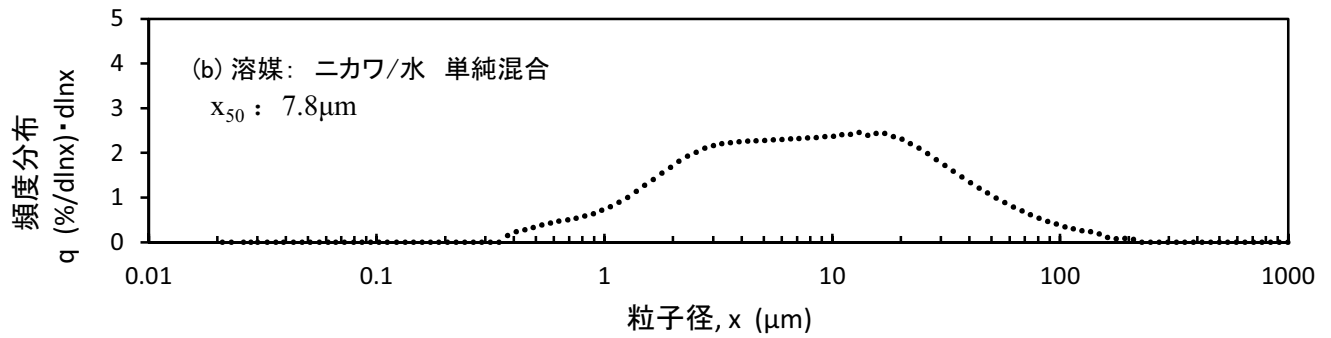
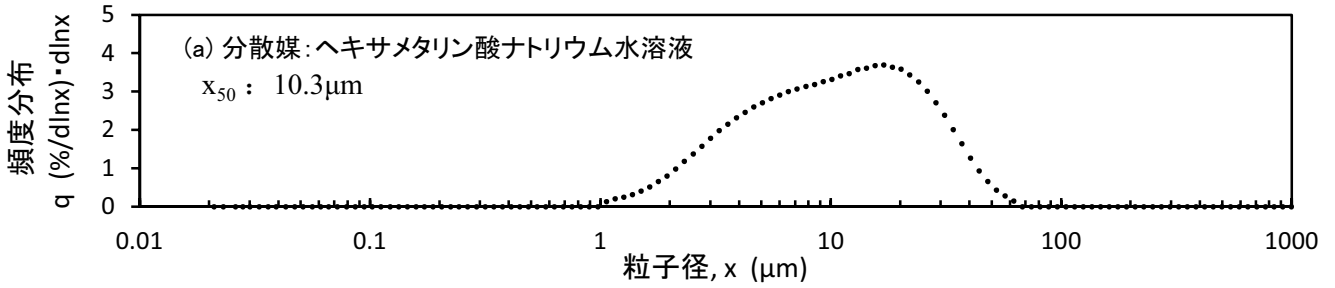


図3 膠の分散剤効果 (a) 分散媒: ヘキサメタリン酸ナトリウム水溶液, (b) 分散媒: 膠/水

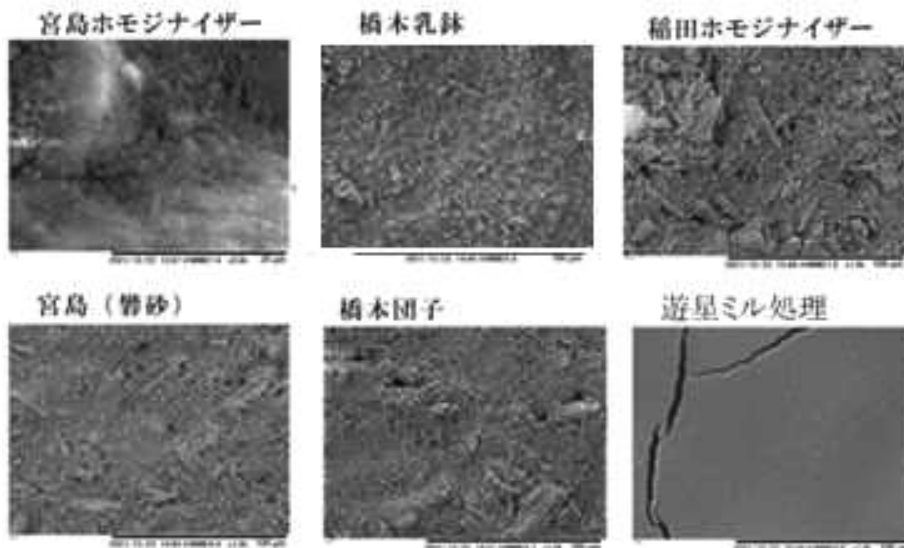


図4 練り方の異なる胡粉層の表面

粉砕中の金属粒子の凝着機構の解明と超極薄扁平軟磁性金属粒子の創出に関する研究

九州工業大学大学院・工学研究院

本塚 智

1.目的

半導体技術の発達により、パワーエレクトロニクス機器の作動周波数が高まり、それに伴うインダクタで生ずる渦電流損失の増加が問題になっている。渦電流の抑制には、インダクタを構成する軟磁性金属粒子の厚み低減が有効である。1 MHz 程度の励磁周波数ではサブ μ オーダーとすることで渦電流損を抑制できる[1]。扁平粉は顆粒状の金属粒子を粉砕することで得られ、極薄化における課題は、粉砕中の金属粒子同士の凝着である[2]。凝着防止のアプローチとして、扁平粒子間の接触面積減少と、表面間の相互作用抑制がある。本研究では、接触面積と相互作用の抑制の観点から超極薄金属粒子を開発するとともに、凝着機構の解明に取り組む。

2.研究方法

出発材料として、Fe-6.5Si 粒子(鉄粒子と記載、エプソンアトミックス社製、PIS65)を用い、粉砕助剤としてヘプタンを用い、粉砕媒体は 10 mm の鋼球(SUJ2)とした。アトリションミル(日本コークス社製、パウダーラボ)容器に鉄粒子 6.3 g、鋼球 375 g、ヘプタン 44 cc を導入し、回転数 1000 rpm で所定時間処理した。凝着防止剤として[2]のオレイン酸を 0.7 g 添加した。出発粒子の粒度が小さければ、厚みが同じ扁平粉の表面積はより小さくなる。そこで、粉砕前に鉄粒子を 32 μ m ふるい下(微粒と表記)と、150 μ m ふるい下かつ 100 μ m ふるい上(粗粒と表記)の 2 種類に分級・比較した。一部の鉄粒子は絶縁被膜後にリングコアに圧縮成形して磁気特性を評価した。

3.研究結果

3.1 アトリションミル処理に伴う鉄粒子の形状変化

図 1(a)にアトリションミル処理前後の鉄粒子の代表的な外観、断面 SEM 像を示す。処理前の不規則形状の鉄粒子が、処理によって扁平化し、その厚みは数 μ m である。図 1(b)にはミル処理時間に対する微粒と粗粒を出発材料として、また、オレイン酸を添加もしくは添加せずに粉砕した鉄粒子の厚みとアスペクト比の推移を示す。アスペクト比は、扁平粒子に外接する円の直径を厚みで割った値である。アスペクト比は反磁場係数と呼ばれる別の磁気特性に影響するので、高アスペクト比で厚みの薄い粒子のほうが磁気特性に優れる。本実験ではオレイン酸を使わずに粉砕された粗粒が最も高アスペクト比で薄くなった。

3.2 アトリションミル処理された鉄粒子による鉄心の磁気特性と厚みの効果

図 2 に厚み 2.18 および 0.96 μ m とした扁平粒子製のリングコア断面の SEM 像と、未粉砕鉄粒子で作製したコアも含めた渦損の周波数特性を示す。断面観察から、いずれの条件でも粒子間に絶縁樹脂が浸透しているが、一部の界面では外観から樹脂浸透の有無、言い換えると凝着の有無の判断が難しい。渦損に関してはミリング前後で比較すると、扁平鉄粒子のリングコアの損失は大幅に低減しているが、扁平粒子同士で比較すると、平均厚み 2.18 μ m の鉄粒子より 0.96 μ m の鉄粒子製のリングコアの渦損が高い。渦損 W_e は次式で表される。

$$W_e = \frac{(\pi d f B_m)^2}{6\rho} \quad (1)$$

d は材料厚さ、 f は周波数、 B_m は材料の飽和磁束密度、 ρ は抵抗率である。厚みに反比例して渦損が減少すると式は予測するが、実際は増加した。一方、未粉砕の鉄粒子と比較して、厚み 2 μ m の扁平粒子の渦損は顕著

に低下した。このことから、ある程度の厚みまでは渦損は外観から観察される厚みの減少に伴って抑制されるが、サブ μ オーダーではその関係が破綻する。原因として、凝着を判断しにくい箇所、絶縁樹脂の浸透不足による絶縁不良が生じている可能性が挙げられる。従って、凝着機構の解明およびインダクタへの応用を目指した極薄扁平軟磁性金属粒子の開発には、凝着の発生を断面観察に依存せずに見出す手法の開発が課題である。

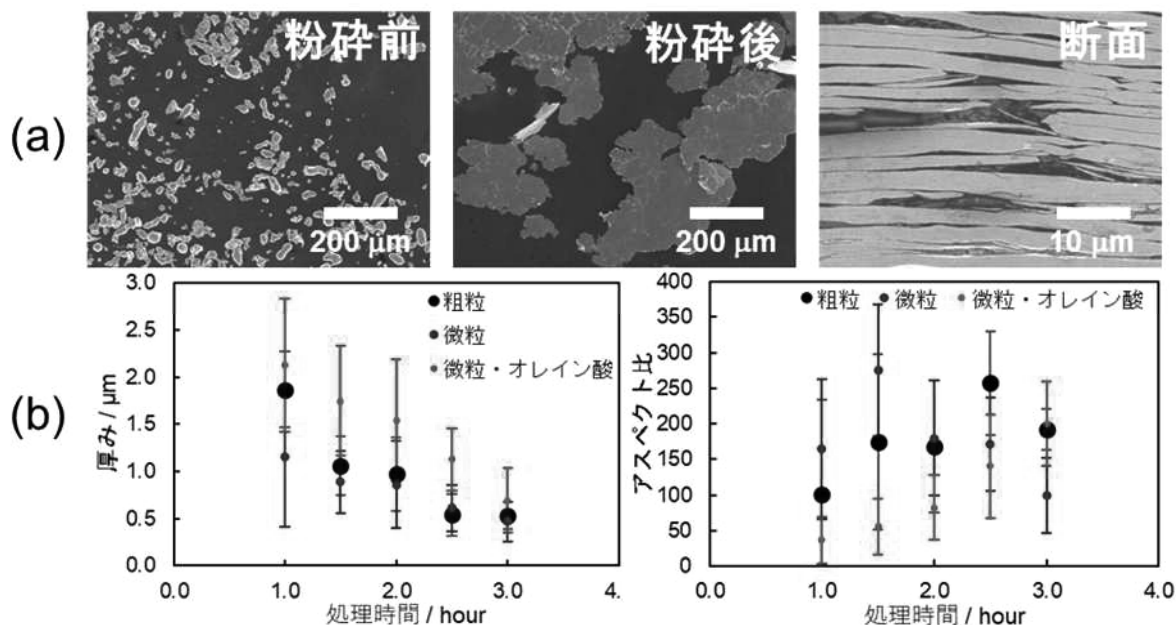


図 1 (a)アトリションミル処理前後の鉄粒子外観および断面図と(b)定量評価結果

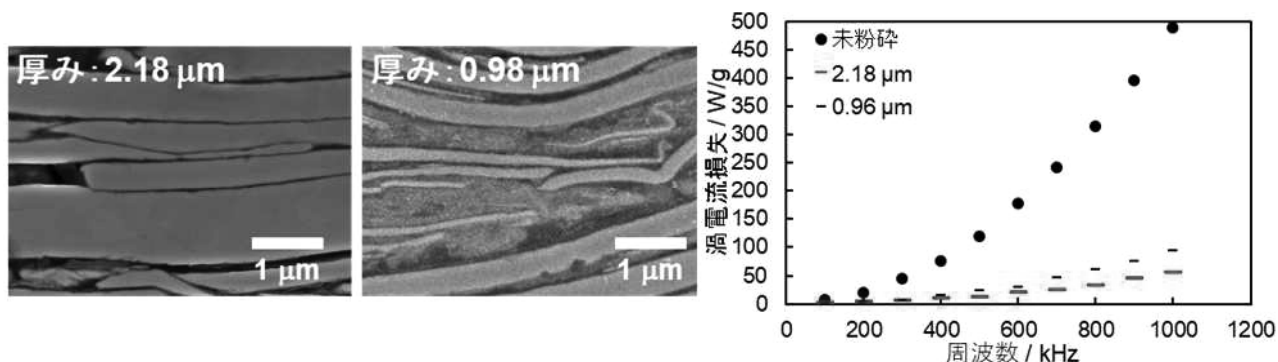


図 2 各種厚みの扁平粉で作製したリングコアの断面 SEM 像とリングコアの渦電流損の周波数特性

4.結論

高周波用のインダクタ素子への応用を志向した超極薄扁平軟磁性金属粒子の創出のための研究を行った。扁平鉄粉はアトリションミルで作製された。ミルによってサブ μ オーダー領域まで扁平粉の厚みを低減できた。一方、サブ μ オーダーでは渦電流と軟磁性材の厚みの関係式が成立せず、その原因として外観観察では判断できない箇所での凝着とそれに伴う実効的な軟磁性材の厚みの増加が考えられた。この凝着を外観観察に依存しない方法で判断する手法の開発が、超極薄扁平軟磁性金属粒子の開発に先立って必要である。

5.参考文献

- [1] N. G. M. Thao et. al., IEEE Transactions on Magnetics, **57**(2), 1, (2021).
 [2] 田頭ら, 精密工学会誌, **66**(12), 1917, (2000).

(共同研究分野:スマートコーティングプロセス学分野)

国際共同研究課題・研究報告書

Research On Hybrid Laser-Arc Based Additive Manufacturing

Abhay Sharma

Department of Materials Engineering, KU Leuven, Belgium

This research work carried out within the JIJReC Program in cooperation between JWRI, Osaka University and KU Leuven in a period between 1 April 2021 and 31 March 2022. The result of the research work was submitted to “Journal of Manufacturing Processes” in December 2021.

1) Introduction

The coupling of different heat sources (arc and laser) for deposition leads to differences in the functional and working conditions compared to the individual processes, i.e., arc or laser. In the additive manufacturing (AM) framework, the mutual interaction of the two different heat sources and the effect of variation in laser and arc parameters on the bead shape are still to be clearly understood. It is also unclear, at this stage, how the bead models developed for the conventional arc deposition-based AM process will behave in the case of hybrid laser arc direct energy deposition (HLADED). While several bead models exist in the literature for conventional welding processes like gas metal arc welding (GMAW) (e.g., parabolic model [1], Gaussian model [2], cosine model [3], arc model [3], sine model [2]), submerged arc welding (composite model [4]), cold metal transfer welding [5], to the authors best knowledge, development of such models for HLA has not been reported. Although models for the prediction of critical offset distance exist for conventional arc-based DED processes, it is necessary to check the applicability of these models for hybrid laser-arc based DED (multi-pass deposition), the knowledge of which currently does not exist in the literature.

2) Objectives

The core objective of this study is to evaluate the unexplored aspects of HLADED, including a parametric study on bead formation and defects, modelling of the bead and suitability of the process to make a flat layer for multi-layer deposition. A new composite bead model is developed for the HLA process and the same is utilized to compute critical offset distances based on two existing bead overlapping models. The influence of the offset distance between the adjacent beads on the developed surface characteristics is analyzed. The paper also develops a fundamental understanding of the effect of coupling laser and arc heat sources on the deposited bead.

3) Experimental procedure

The material employed in this study was HT780-class MAG wire of Ni-Cr-Mo-Ti type (MG-S80 (Kobelco)), with a diameter of 1.2 mm. The substrate was 780 MPa class heat-treated HSS plates with dimensions of 250 mm × 100 mm × 9 mm. The as-received steel plates were cleaned with acetone before the deposition to remove any surface contamination. Fig. 1(a) shows the HLA set-up developed by OTC (Daihen Corporation) used in this study.

The laser beam was generated using a fiber laser oscillator (IPG make) with a fiber diameter of 0.3 mm, maximum output of 4 kW, and a focal length of 250

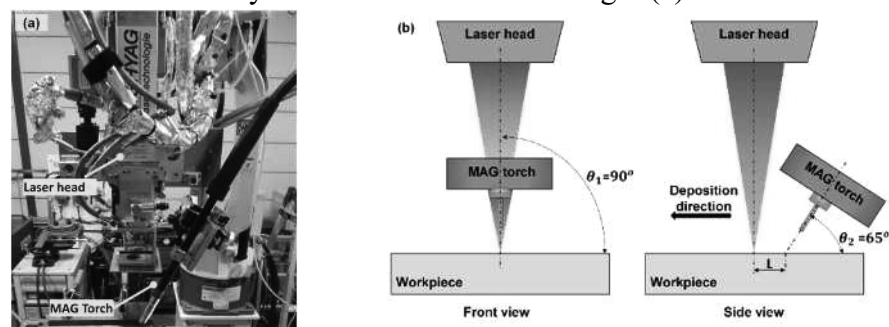


Fig. 1 (a) Hybrid laser-arc machine, and (b) schematic representation of the arrangement of the laser head and MAG torch (front and side views).

mm. A digital inverter control type (DP500, Daihen Corporation) MAG power source was employed to generate the arc. Ar-20% CO₂ at a flow rate of 25 L/min was used as the shielding gas for the MAG torch. The workpiece surface on which the laser beam impinged was considered as a reference to adjust the focus position of the laser beam. A right-angled leading laser with a 65° inclined (with respect to the workpiece) trailing MAG torch arrangement was used, as shown schematically in Fig. 1(b). The contact tube to workpiece distance for the MAG torch was fixed at 15 mm. The voltage and current signals were both recorded during the deposition.

4) HLA bead and overlap model

The HLA bead profile can be expressed as a composite of a parabola and a unimodal distribution ($\varphi(x)$)

$$y = h \left(1 - \frac{4x^2}{w^2} \right) - \varphi(x) \quad (1)$$

where $\varphi(x)$ is the unimodal distribution for $0 \leq x \leq \frac{w}{2}$ and

called depression function, representing the bead depression caused by the laser beam. A varying skewness is possible to be represented by the power function of width fraction ($x/(w/2)$) and its reflection using the shape parameters $\alpha, \beta > 0$, and the scaling coefficient C_0 , as follows:

$$\varphi(x) = C_0 \left(\frac{2x}{w} \right)^{\alpha-1} \left(1 - \frac{2x}{w} \right)^{\beta-1} \quad (2)$$

The values of α, β and C_0 are obtained by inverse modelling, i.e., the sum-squared error (SSE) between the actual and predicted bead profile data is minimized. The SSE is minimized with the use of the Generalized reduced gradient method with a convergence of 10^{-4} . The overlap (s), Fig. 2, for beads can be found by solving the Eqs. (3) and (4) as follows:

$$\Rightarrow \frac{f_1(s-\frac{w}{2}) + f_1(s-x_2)}{2} \left(x_2 - s + \frac{w}{2} \right) - \int_{s-x_2}^{\frac{w}{2}} f_1(x) dx - \int_{s-w/2}^{\frac{w}{2}} f_1(x) dx = 0 \quad (3)$$

$$\int f_1(x) dx = h \left(x - \frac{4x^3}{3w^2} \right) - \frac{2^{\alpha-1} x \left(\frac{x}{w} \right)^{\alpha-1} {}_2F_1 \left(\alpha, -\beta+1; \alpha+1, \frac{2x}{w} \right)}{\alpha} + constant \quad (4)$$

where ${}_2F_1(a, b; c; x)$ is the hypergeometric function.

5) Results and discussion

The present investigation provides initial results on the study of the hybrid laser-arc based directed energy deposition for possible AM applications. Preliminary results showed the process applicability for the considered material (high-strength steel, HT780) and range of process parameters. Existing bead models for conventional arc-based additive manufacturing do not employ for hybrid laser-arc process used in this work. The new composite model (composite of a parabola and a unimodal distribution) developed for the hybrid laser-arc process is significantly more accurate and provides substantially improved prediction capabilities. The offset distance (s) for multi-pass deposition is a dynamic parameter that depends not only on the bead shape (profile) but also on the size of the bead. Unlike previous studies for conventional arc-based additive manufacturing that prescribe a single value of critical offset distance, the critical offset distance in the hybrid laser-arc process varies with process conditions.

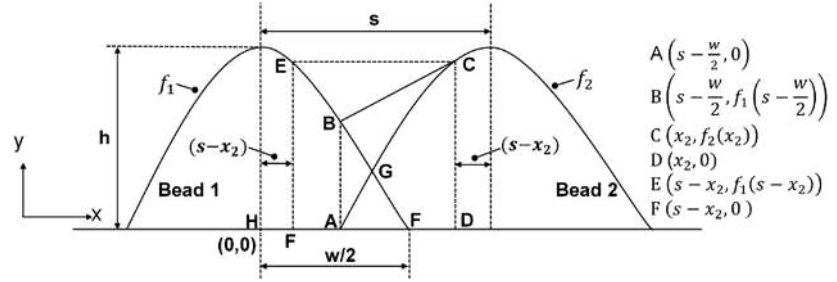


Fig.2 Bead overlap model

The scaling coefficient C_0 , that accounts for the bead depression is inversely related to the offset distance. With an increase in the bead depression, because of the dominance of laser parameters, the offset distance (as a fraction of the bead width) decreases with a corresponding increase in the scaling coefficient. Variation in the process parameters has the least effect on the bead height and the maximum impact on the bead width. Among the parameters, traverse speed has the major control on the production of defect-free beads. An increase of laser power leads to bead widening with negligible change in bead height that in turn causes bead depression. Unlike results in the literature, an increase in the laser-arc distance leads to an increase in deposition area and bead width. The results of this investigation provide an array of opportunities to expand this process for multi-layer-multi-pass deposition or, in other words, additive manufacturing for other classes of materials that have poor weldability through conventional processes.

6) Conclusions

- The existing bead models for conventional arc-based AM do not employ for the HLA process. The developed model (composite of a parabola and a unimodal distribution) provides significantly improved prediction capabilities.
- Contrary to existing studies for conventional arc-based AM, that prescribe a single value of critical offset distance, it is established that the critical offset distance in HLA process is a dynamic parameter, that depends not only on the bead shape (profile) but is also influenced by the size of the bead.
- The observed deviation in the bead shape deposited using HLA process is a consequence of the interaction of the laser with the arc source. Increase of laser power leads to bead widening with negligible change in bead height, that in turn causes bead depression.

References

- [1] Ding D, Pan Z, Cuiuri D, Li H, Van Duin S, Larkin N. Bead modelling and implementation of adaptive MAT path in wire and arc additive manufacturing. *Robot. Comput. Integr. Manuf.* 2016;39:32-42. <https://doi.org/10.1016/j.rcim.2015.12.004>.
- [2] Cao Y, Zhu S, Liang X, Wang W. Overlapping model of beads and curve fitting of bead section for rapid manufacturing by robotic MAG welding process. *Robot. Comput. Integr. Manuf.* 2011;27(3):641-45. <https://doi.org/10.1016/j.rcim.2010.11.002>
- [3] Xiong J, Zhang G, Gao H, Wu L. Modeling of bead section profile and overlapping beads with experimental validation for robotic GMAW-based rapid manufacturing. *Robot. Comput. Integr. Manuf.* 2013;29(2):417-423. <https://doi.org/10.1016/j.rcim.2012.09.011>.
- [4] Mohanty, U. K., Abe, Y., Fujimoto, T., Nakatani, M., Kitagawa, A., Tanaka, M., Suga, T. & Sharma, A. (2020). Performance Evaluation of Alternating Current Square Waveform Submerged Arc Welding as a Candidate for Fabrication of Thick Welds in 2.25 Cr-1Mo Heat-Resistant Steel. *Journal of Pressure Vessel Technology*, 142(4), 041506 (1-11).
- [5] Wang C, Suder W, Ding J, Williams S. Wire based plasma arc and laser hybrid additive manufacture of Ti-6Al-4V. *J. Mater. Process. Technol.* 2021; 293:117080. <https://doi.org/10.1016/j.jmatprotec.2021.117080>.

(Joint Research Laboratory: Energy Control Processing)

High-performance Ti alloys processed by selective laser melting

Prof. Biao Chen

Northwestern Polytechnical University, CHINA

1. Introduction

As a novel method of 3D print in powder metallurgy, selective laser melting (SLM) had drawn great attention for its outstanding advantages in term of net shaped processes, high geometrical freedoms, low material waste and high material efficiency. Notwithstanding many researches have revealed the characteristics of SLMed Ti alloys, the application of Ti alloys parts are still at infancy because of the incomplete of acknowledge in SLMed Ti alloys. To better understand the structure-mechanical properties relation of SLM Ti alloys, a comparison study was performed on Ti-6Al-4V (Ti64) alloys fabricated by powder-based selective laser melting (SLM) and sintering methods. It is found that the SLM Ti64 alloy has prior β grains filled with (lath α +needle α') structure. While Ti64 alloys sintered over and below $\beta \rightarrow \alpha$ transformation temperature have widmanstatten $\alpha+\beta$ and lamellar $\alpha+\beta$ structure, respectively. The SLM Ti64 alloy has higher strength and hardness than sintered alloys, but possesses similar Young's modulus to the spark plasma sintered alloy. The mechanisms leading to the different mechanical properties are discussed based on phase compositions and contents. The results suggest that SLM Ti64 alloys potentially have better mechanical performance compared with those fabricated by conventional sintering methods.

2. Experimental procedure

The previous reports usually ignored the variance of Ti64 alloys consolidated by different methods. It usually leads to the negligence in the discrepancies of the microstructure and properties caused the SLM and sintering methods, e.g., spar plasma sintering (SPS) or hot pressing (HP). Herein, as shown in Fig. 1, the commercially available gas atomized Ti64 powders (53-103 μm) were used as the raw material for HP, SPS and SLM. In the HP process, 45 g powders were poured into a graphite die (external diameter of 100 mm and internal diameter of 30 mm) sintering at temperature of 1195 K for 1 h at a pressure of 30 MPa and a vacuum of 4.3×10^{-2} Pa. In the SPS process, the raw powder, 127 g Ti64 powders was loaded into a graphite die (external diameter of 76 mm and internal diameter of 30 mm) sintering at 1273K and keeping time was 30 min with a constant compressive pressure of 30 MPa. In the SLM process, the raw Ti64 powders of 5 kg were loaded into a container. And then, the chamber temperature was heated up to 373 K with a vacuum of ~ 1 Pa in the building room. Finally, the sample was produced with a laser power of 200 W, a scanning speed v of $1000 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$, a thickness of 30 μm layer, a hatch spacing (h) of 105 μm . Each layer scanning trace that followed a zigzag pattern was rotate 67° one by one with an alternate continuous laser mode.

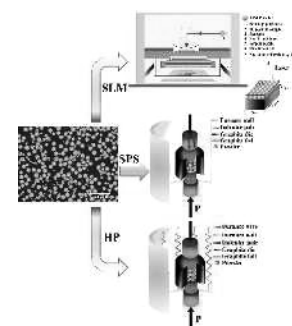


Fig. 1 SEM image of raw Ti64 powder and schematic diagram of fabrication process

3. Results and discussion

The SPS-manufactured Ti64 alloy (Fig. 2a-b) has widmanstatten structure that consists of long α laths inside prior β . The prior β size, or the grain size is as large as $\sim 150 \mu\text{m}$ because of the comparatively high SPS temperature of ~ 1273 K over the $\beta \rightarrow \alpha$ transformation temperature (~ 1263

K). While, the HP alloy (Fig. 2c-d) is a typical $\alpha+\beta$ lamellar double-phase structure. The width and length of the α laths are $\sim 3\ \mu\text{m}$ and $\sim 30\ \mu\text{m}$, respectively. β laths (bright contrast) with width in submicron scale exist at the boundaries of α laths (darker contrast). Such morphology is a result of sintering temperature in $\alpha+\beta$ zone and comparatively slow cooling down rate.

The EBSD results of SLM-built Ti64 samples are displayed in Fig. 3. Due to the high cooling rate of the SLM process, a sufficient driving force is yielded to form full α/α' laths structure. It can be observed from Fig. 3a that there is a similar orientation of α' inside the prior β boundary, while the orientation changes in adjacent layers, due to the aforementioned 67° rotation of scan path in each layer. The size of α' laths was around submicron. Moreover, no preferred orientation of α' laths is observed in the inverse polar figure (IPF) images of as-built Ti64 via SLM (Fig. 3b-d). In addition, the prior β grains along the non-laser deposition direction appear to be in a columnar crystal state (Fig. 3b-d), which is due to the epitaxial grain growth along the central of the melt pool during SLM consolidation.

The TEM microstructure of the SLM-fabricated Ti64 alloy are shown in Fig. 4. The bright field transmission electron micrographs (Fig. 4 a and b) illustrate that there are many laths with different lengths in different direction. The selected area electron diffraction (SAED) of the marked circle area in Fig. 4b reveals the HCP crystal structure with an interplanar spacing of $0.2648\ \text{nm}$ along $\{10\bar{1}0\}$ (Fig. 4c). This value is slightly larger than that of α -Ti, namely $0.2555\ \text{nm}$, possibly due to the lattice distortion caused by the stress and defects during consolidation. However, it is difficult to distinguish the α' from α via SAED result because of the similar HCP crystal lattice constant, while there is a subtle change in c/a values of α' (1.58) and α (1.59-1.6) respectively. An EDS mapping analysis was performed at the area corresponded to the image (Fig. 4a) and the elements (Ti, Al and V) distributions are shown in Fig. 4d-f. It can be clearly observed that the elements of Al and V distribute

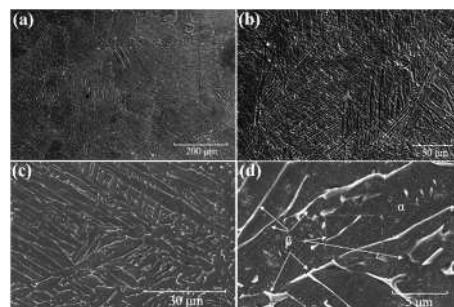


Fig. 2 SEM of SPS-fabricated Ti64 alloy (a-b) and HPed Ti64 alloy (c-d) at two magnifications.

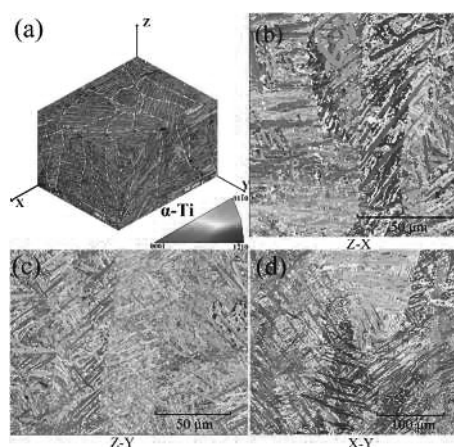


Fig. 3 (a) 3D model of as-built Ti64 via SLM with bond contrast. (b-d) IPF of as-made Ti64 by SLM at different orientation.

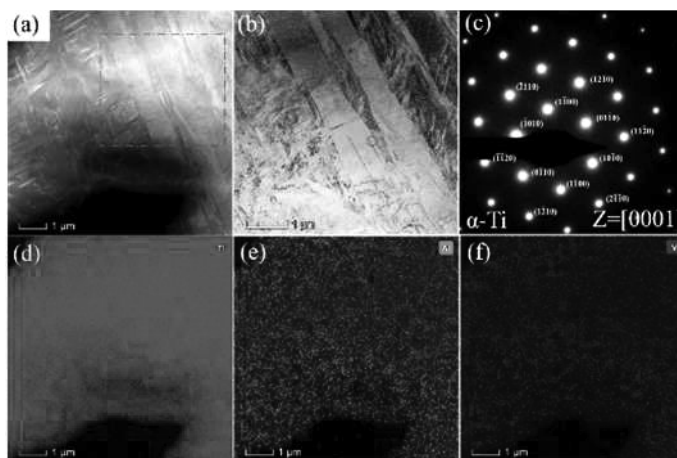


Fig. 4 TEM of SLM-fabricated Ti64 alloy: (a) Dark field image and elements distribution. (b) Bright field and (c) SAED of α in (a). (d-f) Elements distribution in (a). (d) Ti element. (e) Al element. (f) V element.

uniformly without any obvious element segregation. There is no noticeable difference in elements distribution among different phases, which can confirm that α/α' phase may not cause serious elements segregation.

Fig. 5 shows the nominal tensile stress-strain curves of Ti64 alloys fabricated by different methods and the obtained properties are summarized in Table 1. Comparing with Ti64 alloys fabricated by SPS and forging, Ti64 fabricated by SLM possesses a high yield strength (946 MPa, 12% improvement), a high ultimate tensile strength (UTS, 1151 MPa, 24% improvement) and high hardness (408 Hv, ~20% improvement). Notwithstanding, the plasticity of SLM-built Ti64 alloy is limited at 4.4%, which is similar to that of the SPS alloy (4.6%) but much smaller than that of the forged alloy (15%). Compared with literatures on SLM Ti64 alloys, it is found that the tensile properties of the SLM Ti64 alloy in the present study fall into the range reported by previous studies.

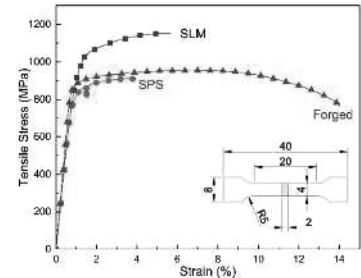


Fig. 5 Tensile performance of Ti64 alloys fabricated by different methods.

Table 1 Mechanical properties of as-built Ti64 via different methods.

Process	Tensile properties			Hardness	Reference
	$\delta_{0.2}$ (MPa)	UTS (MPa)	El. (%)	HV	
SPS	847±12	931±12	4.6±0.8	336±20	This work
Forged	846±17	932±14	15.0±0.6	—	This work
HP	—	—	—	342±15	This work
SLM	946±10	1151±9	4.4±0.7	408±40	This work
	962±47	1166±25	1.7±0.3	—	
	1137±20	1206±8	7.6±1.7	—	
	1066±91	1148±80	5.4±3.8	—	
	978±5	1143±6	11.8±0.5	—	

Fig.6 depicts the fracture morphology of as-built Ti64 via SLM after tensile testing. It is observed that there are some unfused powder particles (marked in yellow arrow at Fig. 6a-d) and cracks (marked in blue arrow at Fig. 6c). Fig. 6c illustrates a large vertical crack (~20 μm in width and ~100 μm in length) on the fracture surface, which is probably enlarged during tensile test by the unfused particle. In despite of many defects, there are still a large number of dimples on the fracture surface (Fig. 6f, the magnified box in Fig. 6c), which suggests that the SLM-fabricated Ti64 failed in ductile mode during tensile testing. However, there are some areas

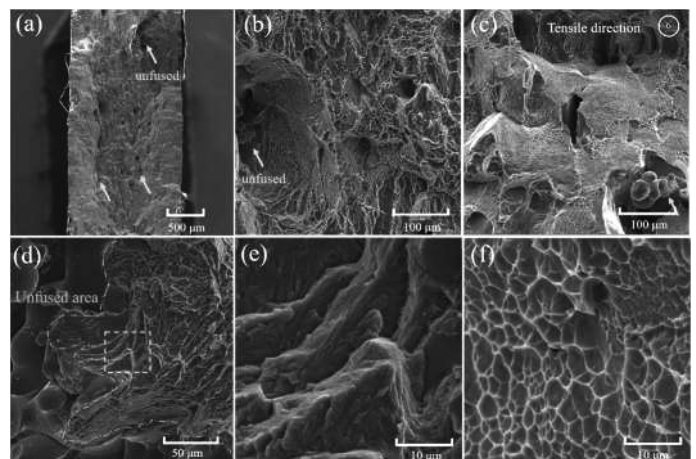


Fig. 6 (a) the whole fracture image and (b) the magnification box area in (a). (c) cracks in as-built Ti64. (d) a brittle fracture area. (e) a selected magnification area in (d). (f) the specific magnification area in (c)

with brittle fracture characteristics closed to the unfused area (Fig. 6d). From the local view (Fig. 6e), it illustrates that the unfused area trend to form stress concentration, where the induced cracks is growing instability lead to transgranular fracture. Therefore, the unfused areas lead to poor ductility of SLM Ti64 alloys. With the SPS-fabricated Ti64 alloys, transgranular fracture is clearly observed (Fig. 6a and b), owing to the limited deformability of the coarse grains. However, there are still large number of dimples in the fracture, agreeing with the moderate ductility (4.6% in elongation) of the SPS Ti64 alloy.

Fig. 7a shows the nano-indentation test results of as-fabricated Ti64 alloys. It is observed that the nano-indentation curves of the SLM-built Ti64 at different planes are fitting very well, which suggests the isotropy of Young's modulus. In addition, the measured Young's modulus of SLM-built Ti64 is 95.4 ± 2.1 GPa which is similar to that of SPS-fabricated Ti64 alloy, 97.1 ± 2.2 GPa. However, they are higher than that of HP-fabricated Ti64 alloy, 90.3 ± 2.6 GPa, because of larger fraction of β phase with smaller modulus in the HP Ti64 alloy. The Vickers hardness and the micro-hardness obtained by nano-indentation of as-built Ti64 via different processes and testing places are shown in Fig. 7b. It is seen that there is very small difference (406-410 Hv/4.80-5.29 GPa), among the three directions in hardness of the as-built Ti64 by SLM, which further confirmed the little anisotropy of mechanical properties of the SLM-fabricated Ti64 alloy. The Vickers hardness values of the as-built Ti64 via SPS and HP are similar, viz. 336 HV and 342 HV respectively. Generally, the hardness (Vickers hardness and nano-indentation) of SPS and HP alloys is $\sim 20\%$ lower than that of the SLM alloy, which should be due to the high hardness of α' phase

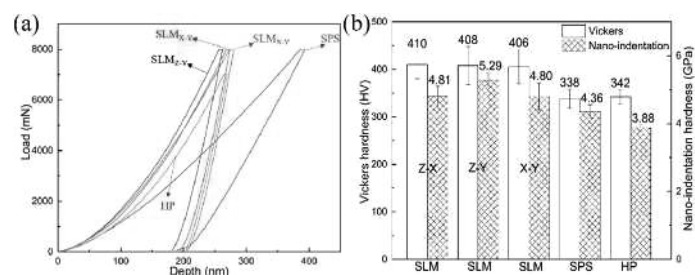


Fig. 7 Nanoindentation load-depth curves (a) and hardness bar chart (b) of Ti64 alloys fabricated by different methods.

4. Conclusions

In summary, the Ti64 alloy fabricated by SLM exhibits prior β grains filled with a (lath α +needle α') structure. The lath structure in each deposition layer possessed a similar orientation without obvious anisotropy. The SPS Ti64 alloy sintered over $\beta \rightarrow \alpha$ transformation temperature had a widmanstatten structure that consisted of long α laths inside prior β . While, the HP Ti64 alloy sintered below $\beta \rightarrow \alpha$ transformation temperature had a lamellar $\alpha + \beta$ structure. The SLM Ti64 alloy had high tensile yield strength (946 MPa), high tensile strength (1152 MPa) and moderate ductility (4.4% in elongation). It had similar Young's modulus to the SPS alloy, but higher strength and hardness than SPS, HP and HF alloys, because of the existence of needle α' phases. In addition, there was little anisotropy in Young's modules and hardness of the SLM-built Ti64. The limited ductility of SLM Ti64 alloys was likely to be the existence of unfused areas.

Analysis of the bending deformation in girth-welded slender pipes with numerical modelling and experimental measurement

Yong Liu ^{1,2}, Ninshu Ma¹

1. Joining and Welding Research Institute, Osaka University; 2. Harbin Institute of Technology, China

Keywords: Bending deformation; Welding deformation; Girth welded pipe; Numerical simulation

1. Introduction

Girth welding is a major process for the fabrication and assembly of pipe structures. The welding characteristics in girth welded pipes have been extensively studied with respect to the welding temperature field, residual stresses and welding deformation. But for girth welded slender pipes, the bending deformation is a prominent problem, which is distinctly different from that of thin-walled pipes with large diameters. In this study, several slender pipes of 304-type stainless steel were girth welded with four different schemes to study the fundamental characteristics of the bending deformation. The welding induced deformation was measured by a 3D shape measuring system. To further analyze the deformation modes, the four welding schemes were simulated by 3D thermal-mechanical coupling model, by which both the transient and residual bending deformation were estimated comparatively, and the optimal welding scheme was proposed.

2. Experimental study

To capture the basic welding deformation mode, several slender pipes of 304-type stainless steel were girth welded with gas tungsten arc welding (GTAW) process as shown in Fig.1. The geometric dimensions of these pipes are identical with a length of 250 mm, a diameter of 60 mm and a thickness of 3 mm. Four different welding schemes were designed as shown in Fig.1. The process of welding deformation measurement was shown in Fig.2.

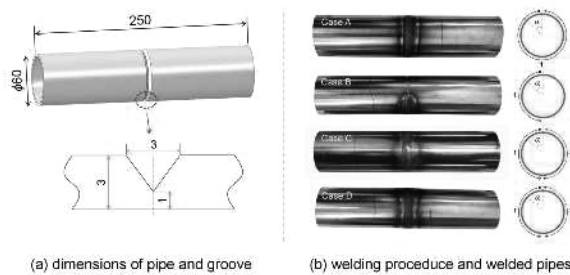


Fig.1 Welding processes and girth welded pipes

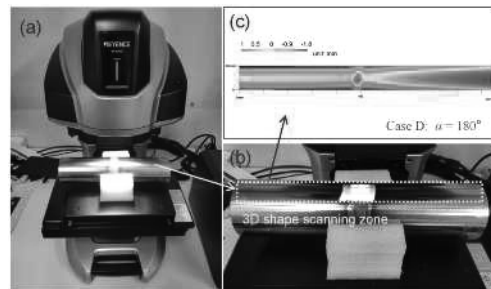


Fig.2 Setup of welding deformation measurement

3. Welding numerical simulation

3D thermomechanical FE model based on Marc was employed to calculate the welding heat transfer process and welding deformation. Six freedoms of three points of one end section were fixed to ensure that the model could be deformed freely without rigid motion during the whole welding simulation.

4. Welding deformation characteristics

To verify the welding models, the measured bending deformation in all the cases was plotted in Fig.3 to compare with the simulated results. It shows that the welding deformation modes could be reproduced by the developed numerical models in this study, and reasonable simulation results were obtained.

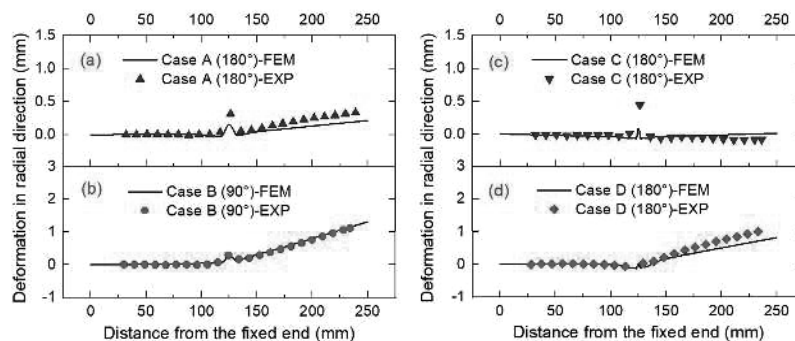


Fig.3 Comparison of welding deformation between simulation and measurement: (a) Case A; (b) Case B; (c) Case C; (d) Case D

To further analyze the bending deformation behavior, the transient displacement of Point O at the center of the free end during the whole welding processes was recorded in Fig.4. Fig.4b shows the transient deformation in the continuous girth welding of Case A. The pipe presents a small bending due to thermal expansion during welding the first quarter turn. While welding the second quarter turn, the pipe tends to bend toward the first quarter because the weld in this region starts to shrink due to cooling. When welding the last two quarter turns, relatively larger bending deformation from 90deg to 135deg appears, which is derived from both the weld shrinkage in first two quarter turns and the thermal expansion of the opposite side. After that, the welding process is finished and enters the cooling stage, the bending deformation is significantly reduced and finally a residual bending toward 180deg is generated. The residual bending was caused by the uneven distribution of axial shrinkage on the circumference, which would be analyzed based on inherent strain theory in the following section. Fig.4c shows the transient deformation in girth welding of Case B to Case D. It indicates that the continuous half-turn welding always produces a larger bending component toward 90deg and a smaller bending component toward 180deg if the bending is decomposed. And thus the two segments in Case C could balance out the bending components in both directions, while in Case D only one-directional bending (90deg) could be mutually eliminated, and the bending in the other direction (180deg) would be summed up.

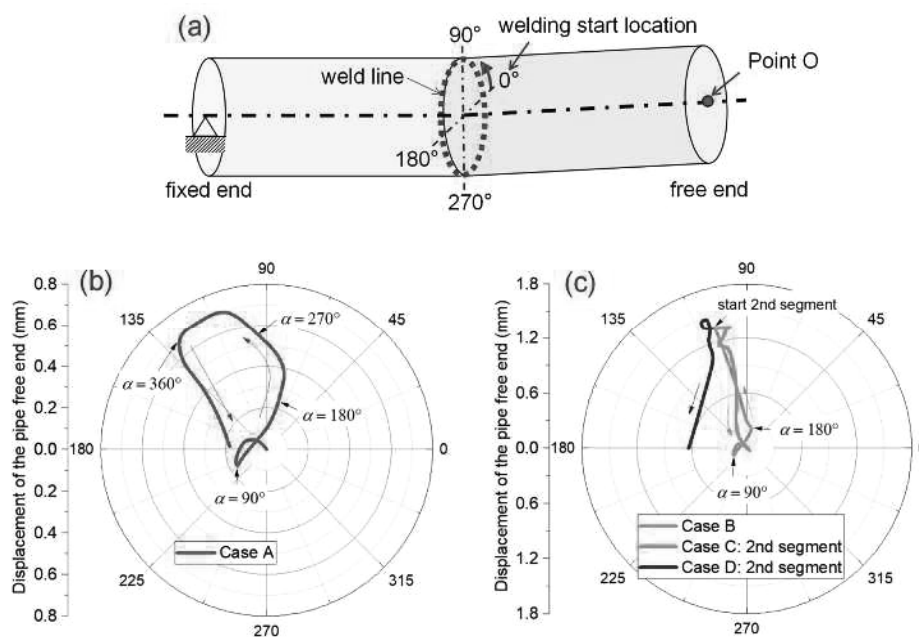


Fig.4 Transient deformation in girth welding: (a) illustration of Point O; (b) transient deformation of Point O in Case A; (c) transient deformation of Point O in Case B to Case D

5. Conclusions

Welding deformation characteristics in girth welded slender pipes were investigated by both experimental measurements and numerical modelling. Four different welding schemes were compared, and further mitigation methodology was developed. The main conclusions are as follows.

- (1) Global bending is observed to be the main welding deformation mode in girth welded slender pipes based on measured and modeled results, which is distinctly different from that of thin-walled pipes with large diameters.
- (2) Continuous welding of full turn in Case A tends to result in the bending to the opposite side of the welding start position, which is due to the uneven distribution of axial residual plastic strain on the circumference.
- (3) Welding of half turn in Case B tends to generate a bending from the weld starting position to the finish position besides the bending toward the weld side, which causes the mutual elimination of the bending deformation with same direction half-turns in Case C and the superposition with reverse direction half-turns in Case D.
- (4) The preferred welding scheme in Case C using two separate segments in same direction could significantly mitigate the bending deformation.

(Department of Joining Mechanics and Analysis)

Finite element simulation of nonlinear ultrasonic response of plastically deformed 35CrMoA steel

Lei Hu ^{1,2}, Ninshu Ma¹

¹Joining and Welding Research Institute, Osaka University; ²Anhui university of Technology, China

Keywords 35CrMoA steel, Nonlinear ultrasonics, plastic damage, finite element simulation

1. Introduction

The quantitative evaluation of plastic damage is of great significance for predicting the service life of steel structures. Nonlinear ultrasound is one of the most effective methods to detect early material damage such as plastic damage, fatigue damage and creep damage. The macroscopic mechanical properties of materials are directly related to the microstructure evolution. Ultrasonic nonlinearity is caused by the nonlinear stress-strain relationship of materials, while the nonlinear stress-strain relationship of metal materials is caused by the microstructure evolution of materials such as lattice and dislocation. Damage degree of metal materials can be characterized by cumulative plasticity caused by microstructure changes such as dislocation and slip. In order to quantitatively describe the relationship between ultrasonic nonlinearity and material microstructure, a series of theoretical models have been established, such as dislocation string model, dislocation couple model and cumulative strain model. In the current investigation, finite element simulation model is modeled based on the Kocks-Mecking model and mixed dislocation theory of ultrasonic nonlinear model, and the ultrasonic nonlinear response of different plastic damaged 35CrMoA steel are simulated. Experimental verification is carried out to provide a theoretical basis for nonlinear ultrasonic evaluation of material plastic damage.

2. Experimental procedure

The chemical composition (mass distribution, %) of 35CrMoA steel is C 0.357, Cr 1.025, Mo 0.188, Si 0.212, Mn 0.688, P 0.015, S 0.0048, Fe allowance. The specimens were firstly subjected to tensile test at room temperature. The loading rate was 2.0 mm/min. A total of 6 groups of tests were conducted, with two samples in each group. A0 was the original sample, and A5 were stretch till snapped to obtain the maximum elongation of the sample.

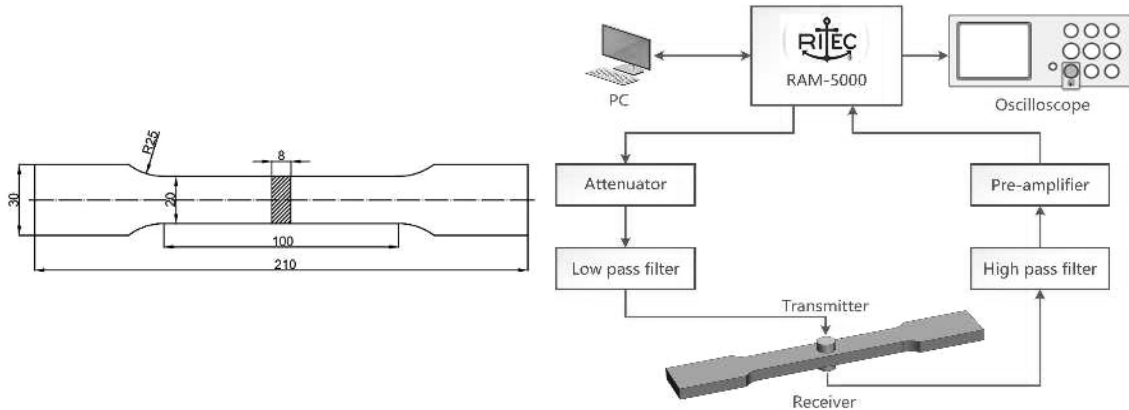


Fig.1 Dimension of tensile test specimen (Unit: mm)

Fig.2 Experimental setup

A1 to A4 were stretched to 20%, 40%, ..., 80% to obtain samples with different tensile damage, and the corresponding plastic deformation were 0.4%, 3.5%, 6.8% and 11.2%, respectively. Then the nonlinear ultrasonic testing experiments were carried out on the prepared tensile specimens and the original specimens with different plastic deformation using RITEC SNAP RAM-5000 nonlinear ultrasonic testing system, as shown in Figure 2.

The longitudinal wave method is used for detection. The central frequency of the transmitting probe and the receiving probe are 5 MHz and 10 MHz respectively, and the diameter of the probe is $\phi 6$ mm. The transmitted signal is pulse crosswise of 5 periods with a space length of about 6.0 mm and a transmitting signal center frequency of 5 MHz. Hanning window modulation is used.

3. Finite Element Model

The fourth-order Lagrange element was used in the FE model. In order to ensure the convergence of calculation, each

wavelength needs about 1.5 grid elements. The material parameters used in the calculation were $A_2^H = -3A_3^H = 195 \text{ GPa}$, $\mu=82 \text{ GPa}$, $\nu=0.3$, $b = 2.5 \text{ nm}$, $L=23 \text{ nm}$, and the conversion factors Ω and R were set at 0.33. It was assumed that the edge dislocation and screw dislocation accounted for half of the total errors. Fig. 3 shows the propagation process of ultrasonic wave in the sample when strain $\epsilon=0.112$. The time-domain waveform and spectral distribution of the received signal in Fig. 3 are shown in Fig.4.

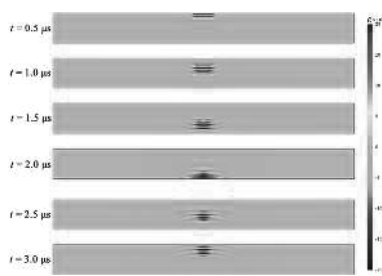


Fig. 3 Propagation of elastic waves in the specimen at different times

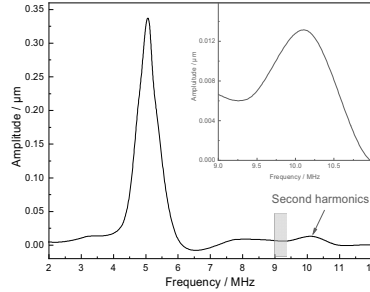


Fig. 4 Received signal in frequency domain

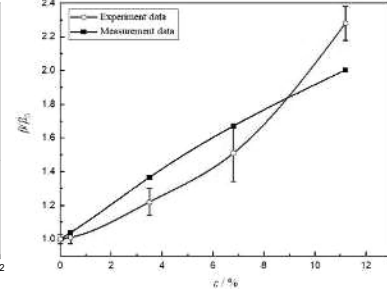


Fig. 5 Effect of plastic strain on normalized nonlinearity parameter

4 Results and discussion

The relationship between the normalized relative ultrasonic nonlinear coefficients and plastic deformation is shown in Fig. 5. The ultrasonic nonlinear coefficient increases with the increase of plastic deformation. In the early stage of plastic deformation, the increase of ultrasonic nonlinear coefficient is mainly due to the increase of dislocation density, while in the late stage of plastic deformation, the increase of ultrasonic nonlinear coefficient is mainly related to the formation of dislocation wall and dislocation cell. At the early stage of plastic deformation, the simulation result is lower than the experimental result, which may be due to the dislocation entanglement in the area with high dislocation density at the early stage of plastic deformation, which hinders dislocation movement and thus reduces the nonlinear ultrasonic response of dislocation. In this paper, only the effect of planar dislocation evolution on ultrasonic nonlinearity is considered. In the later stage of plastic deformation, with the increase of dislocation density, the dislocations pile up with each other, forming dislocation cells and dislocation walls, and the ultrasonic nonlinear response caused by dislocation cells and dislocation walls is higher than that caused by planar dislocations. Therefore, the calculated results are lower than the experimental results at the later stage of plastic deformation.

5 Conclusion

- (1) The ultrasonic nonlinear coefficient has a significant correlation with plastic deformation. The finite element model established in this paper can better simulate the ultrasonic nonlinear response of 35CrMoA steel under different plastic damage.
- (2) In the early stage of plastic deformation, the simulation results of ultrasonic nonlinear coefficient are lower than the experimental results, which may be due to the dislocation entanglement in the area with high dislocation density at the early stage of plastic deformation, which hinders the dislocation movement and thus reduces the nonlinear ultrasonic response of the dislocation.
- (3) At the later stage of plastic deformation, very high dislocation density is generated. The dislocation piles up with each other, forming dislocation cell and dislocation wall, and the ultrasonic nonlinear response induced by dislocation cell and dislocation wall is higher than that of plane dislocation. Therefore, the calculated results of ultrasonic nonlinear coefficients in the late plastic deformation period are lower than the experimental results

(Department of Joining Mechanics and Analysis)

Preparation and characterization of nano TiO₂ coated CBN particles

Da-Wang Tan^{1,2}, Hua-Tay Lin², Makio Naito¹

¹Joining and Welding Research Institute, Osaka University, Osaka 567-0047, Japan

²Department of Electromechanical Engineering, Guangdong University of Technology, Guangzhou, 510006, PR China

1. Purpose

Cubic boron nitride (CBN) particles possess ultrahigh high hardness, excellent thermal conductivity, and chemical stability at high temperature. CBN fine particles can be used as reinforcement in the ceramic or metallic matrix composites, which could enhance their high temperature mechanical properties and tribological resistance. However, adding naked CBN particles may lead to interfacial reaction at the high temperatures. One of the effective solutions is to design a thin and chemical inertness layer between the reinforcing particle and the matrix. TiO₂ is one of the commonly used agents to compromise the physical and chemical difference between them. Coating of the nano-TiO₂ particles on the CBN micro-particle is of great interest to make this layer for its high efficiency and low cost. So, the present study gives an attempt to prepare such a nano-TiO₂ particle coating on the micro-CBN particle. The prepared coated CBN particles were added in the SiAlON ceramic matrix to evaluate the reinforcing effect.

2. Experimental

Powders of CBN and TiO₂ with an average particle size of ~2.82 μm and ~35 nm, respectively, were chosen as the raw materials. The raw particle microstructure and size distribution of CBN were showed in Fig. 1. The coating process was conducted using a special attrition-type mill at 3000 rpm for 10 min in ambient conditions. The milling processor included a main chamber (inner diameter 80mm) and an internal elliptical rotor; the gap between rotor and chamber was 0.6 mm. The TiO₂ to CBN powder mass ratio was fixed at 2%. The coated CBN particles were then mixed with a SiAlON formular composition powder. The mixed powder was sintered in a SPS furnace at 1500°C for 7 min, under a N₂ atmosphere and pressing force of 40Mpa. The TiO₂/CBN composite powder and ceramic composite were evaluated by SEM, XRD and Vickers hardness testing.

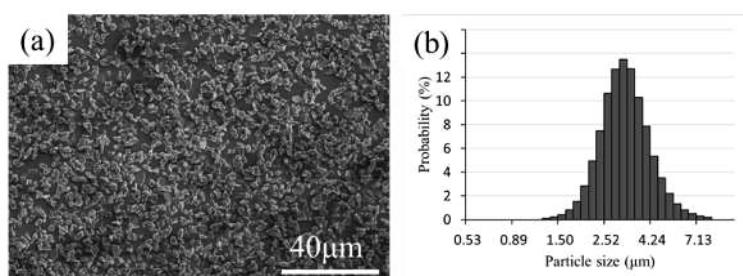


Fig.1 (a) Microstructure, and (b) particle size distribution of raw CBN powder.

3. Results

Figure 2 illustrated the microstructure and element distribution of nano TiO₂ coated CBN particles. The element Ti distribute in the particle area and match the location of B and N, seen in Fig 2(b, c, d), which suggest that nano TiO₂ were dispersed uniformly to form the TiO₂ layer on the surface of the CBN particles.

The microstructure of the coated CBN particles was illustrated in Fig 3(a), which exhibited a rough surface. The sectioning surface of the particle showed that the nano-TiO₂ particle attached to the CBN particle closely, Fig.3(b). Presumably, the two kinds of particles organized well into core-

shell structure with the host CBN particle as a core.

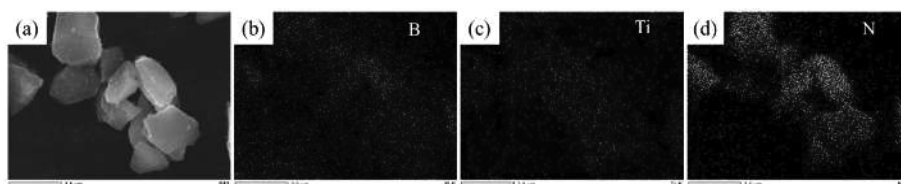


Fig.2 Microstructure and element distribution of coated CBN particles, (a) for SEM graph, and (b), (c) and (d) for distribution of element B, Ti and N on the area in (a), respectively.

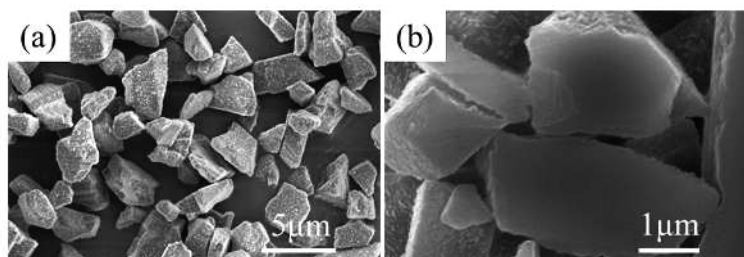


Fig.3 microstructure of coated CBN particles, (a) surface morphology, (b) sectioning morphology.

After sintering of the SiAlON ceramic containing CBN particles, the relative density of the composite with TiO₂ coated CBN was 94.4%, slightly lower than that with naked CBN particles (96.7%). However, the hardness of the one reinforced with TiO₂ coated CBN was 19.72 ± 0.12 GPa, higher than that with naked CBN (18.88 ± 0.25 GPa). The reason might be the protective effect of the TiO₂ layer to prevent the CBN particle from phase transformation from cubic to hexagonal type. As illustrated in Fig.4, the HBN diffraction peak was hardly found in the SiAlON matrix ceramic with TiO₂ coated CBN (Fig.4(a)), while increased HBN diffraction peak was apparent in the one reinforced with naked CBN (Fig.4(b)).

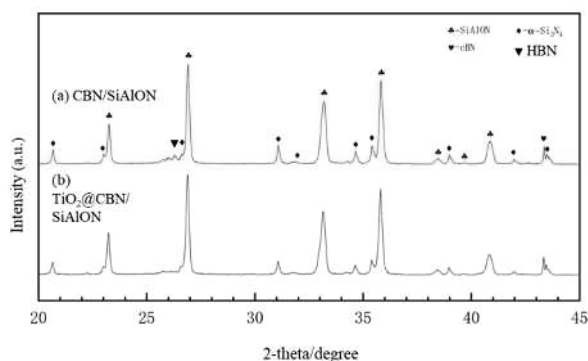


Fig.4 XRD patterns of SiAlON matrix ceramics, (a) with naked CBN, (b) with TiO₂ coated CBN.

4. Conclusions

Nano TiO₂ coated CBN particles with a core-shell structure were prepared by powder processing. The TiO₂ coated CBN particles was found less phase transformation in the SiAlON matrix ceramic during high temperature sintering, which result in a higher hardness of the ceramic.

Acknowledgement

This work was conducted under *JWRI International Joint Research Collaborator (JJReC) 2021* program. The authors were sincerely grateful to Dr. Takahiro Kozawa, Dr. Akira Kondo, and Ms. Fukuyama Kayo for the hospitality and help on conducting the experiment.

(Dep. of Smart Coating Processing)

