

報告番号	甲 第 13132 号
------	-------------

主 論 文 の 要 旨

論文題目 ポラスアルミニウムの接合技術に関する
研究
(Research of bonding technology for
porous aluminum)

氏 名 黒崎 友仁

論 文 内 容 の 要 旨

本論文では、ポラスアルミニウムの熱交換用途への適用に必要なポラスアルミニウムとアルミニウム部材の接合技術に関する研究成果をまとめた。ポラスアルミニウムの金属結合形成と気孔構造維持を両立する接合技術として、接合時に発生する液相量を微量に制御可能なるろう付用材料の考案と実証を試みた。その後、開発したろう付用材料をポラスアルミニウムの接合に適用し、気孔構造変化という新たな課題を抽出した。ろう付時のポラスアルミニウム内の液相移動現象と気孔構造変化の時間変化を詳しく調査し、気孔構造変化の支配要因を明らかにした。それにより、気孔構造変化の少ない好適な条件を示すだけでなく、接合品質をさらに向上するための指針を提案した。

本論文は全5章で構成され、それぞれの章の概要を以下に示す。

第1章では、ポラスアルミニウムの特徴と熱交換用途への適用可能性を述べ、金属結合形成と気孔構造維持の両立が可能な接合技術を確立することの重要性を明らかにした。はじめに、材料工学を取り巻く状況と主要な材料の分類を整理し、ポラス金属の特徴を述べた。様々なポラス金属の製造方法が提案されており、気孔構造の制御によりバルク金属にはない特性を得ることが研究されていた。また、輸送機器用途や工作機械用途において実用化に成功した例などについて述べた。次に、本研究にて注目したポラスアルミニウムの特徴を示した。ポラス金属の中でも比較的製造が容易であり、軽量性及び熱伝導性に優れることから、輸送機器分野における熱マネジメント部材としての適用が期待されていた。特に潜熱型蓄熱材料 (PCM) との複合材に関しては、実験による研究と理論計算による研究が多

数報告されていた。しかし、ポーラスアルミニウムを熱交換対象部材と接合する技術に関する研究例はほとんど見られず、本研究の重要性を指摘した。ポーラスアルミニウムの熱交換用途における接合では、金属結合形成と気孔構造維持を両立する必要があることを述べ、従来の一般的な接合方法では実現が困難であることを明確にした。そこで本論文の目的をポーラスアルミニウムの金属結合形成と気孔構造維持を両立する接合技術の確立とし、以下の3点を検討項目とした。

- ◆液相量を微量に制御可能な新たなろう付用材料の考案と実証
- ◆新たなろう付用材料を用いたポーラスアルミニウムの接合における、
金属結合形成と気孔構造維持の検証
- ◆上記接合における接合品質に影響を及ぼす因子の明確化

第2章では、共晶合金を利用して液相量を微量に制御可能な新たなろう付用材料を考案し、実証した。まず、従来のろう付技術の概要を説明した。ろう付け技術をポーラスアルミニウムの接合に適用する際の課題として、従来のろう付用材料では、接合時に発生する液相量をごく微量に制御するのは困難であるという点を指摘した。解決方法として、ろう材を使用せずに均質な材料を部分熔融させて液相を供給する手法を考案した。また、従来のろう付用材料に関する研究例から、ろう付用 Al-Si 系合金材においてケイ素量を低下させた場合に、ろう材を使用せずに金属結合を形成し、部材形状も維持できる可能性を見出した。それにより、接合時に供給される液相量を微量に制御可能と考えた。そこで、この研究では、ろう付用 Al-Si 系合金材におけるケイ素量による接合性及び耐変形性への影響を明らかにし、本接合技術を実証することを目的とした。ろう付実験の結果から、ケイ素量の増加に伴い接合性が増加し耐変形性が低下するトレードオフの関係を明らかにした。また、少なくとも本実験条件下では、ろう付用 Al-Si 系合金材を用いて接合性と耐変形性の両立が可能であることを示した。さらに、接合時の金属組織変化をその場観察し、ろう付用 Al-Si 系合金材の熔融挙動と接合メカニズムを提案した。このろう付用 Al-Si 系合金材では、加熱時に固相線温度以上になると、ケイ素粒子を起点に球状の液相が発生し、結晶粒界を起点に膜状の液相が発生することを明らかにした。また、ろう付後の断面金属組織観察と元素分析を元に、ろう付後の材料中に形成されている共晶組織の分布が、加熱時の液相の分布に対応することに着目した。そして、平衡状態図から推定される通り、ケイ素量の増加に対応してろう付後の材料内部に形成されている共晶組織の発展が認められ、加熱時に材料中に発生する液相が増加したことを指摘した。これらの結果から、ケイ素量の調整やミクロ的な金属組織制御によって、接合部に供給される液相量をより微量に制御できる可能性を示した。

第3章では、第2章で実証したろう付用 Al-Si 系合金材を用い、ポーラスアルミニウムの気孔を液相が充填せずに、ろう付用 Al-Si 系合金材とポーラスアルミニウムの上に金属結合を形成できるか検証した。これは本研究独自のアプローチである。まず、標準的な組成

のろう付用 Al-Si 系合金材とポーラスアルミニウムを用意した。ポーラスアルミニウムの作製に用いるアルミニウム粉末には、熱交換用途を想定しているため純アルミニウム粉末を用いた。また、潜熱型蓄熱材料 (PCM) との複合化を想定しているため、開気孔型のポーラスアルミニウムを焼結スペーサー法により作製した。さらに、ろう付時の液相の移動現象を調査するための単純モデルとして、気孔を有さないアルミニウム粉末焼結材をポーラスアルミニウムと同様の方法で作製した。ろう付実験の結果から、気孔を充填することなく金属結合の形成が可能であることを明らかにした。しかし、特に接合界面近傍で気孔構造変化が発生しており、局所的に気孔率が低下したことを示した。気孔構造変化は、ろう付用 Al-Si 系合金材の代わりに液相が発生しないアルミニウム材を用いて、ろう付実験と同じ条件で加熱した際には発生しなかった。また、気孔構造変化は接合界面近傍程顕著であり、ろう付温度の増加に伴い増加する傾向があった。従って、ろう付用 Al-Si 系合金材から供給された液相の作用によって気孔構造変化が起こったと結論づけた。さらに、ポーラスアルミニウム内の液相の挙動を調査するために、液相に含まれるケイ素の元素マッピング像を解析した。ケイ素はポーラスアルミニウム内のセル壁中に広範囲に分布しており、加熱時に液相が速やかにポーラスアルミニウム内に移動したことを明らかにした。ケイ素濃度が接合界面近傍では中程度であり、接合界面から離れた領域で高濃度を呈し、さらに離れた領域では非常に低濃度であったことから、ポーラスアルミニウム中の液相移動現象を詳しく調査する必要性を指摘した。そこで、単純モデルとして気孔を内包しないアルミニウム粉末焼結材を用い、液相移動現象調査を行った。調査結果から、液相の移動経路には「表面移動」と「バルク内移動」の 2 種類があり、「表面移動」のほうが早いことを示した。「表面移動」は材料表面における液相の濡れ現象として理解できたが、「バルク内移動」の距離は、拡散現象で説明できる値よりはるかに大きかった。そこで、バルク内移動経路を明らかにするためにろう付前後のアルミニウム粉末焼結材の TEM 観察を行った。TEM 観察及び EDS 分析結果から、ろう付前には原料粉末の表面に形成されていた自然酸化皮膜が残存する旧粉末界面があり、ろう付後にはその界面にケイ素と酸素が共存することを明らかにした。これは加熱時に液相が旧粉末界面を経路に材料内へ移動したことを示す。これらの結果から、ポーラスアルミニウム内の液相移動は、「(セル壁表面を経路とした) 表面移動」「(旧粉末界面を経路にした) バルク内移動」「(液膜状態を維持したまま移動する) 結晶粒成長」の 3 段階の現象によって進むという仮説を提示した。

第 4 章では、第 3 章で確認された液相移動現象と気孔構造変化を詳しく調査し、気孔構造変化の支配因子を明らかにした。第 3 章と同様の実験を、ろう付時間を変化させて実施することで、液相移動現象、気孔構造変化及びセル壁内結晶粒径の時間変化を定量的に示した。ポーラスアルミニウムと、気孔を有さないアルミニウム粉末焼結材の比較から、液相移動距離についてはセル壁表面が支配的に影響していることを明らかにした。一方両者の接合界面近傍の結晶粒径の時間変化に大きな違いはないことから、セル壁表面が影響しないバル

ク内部の現象は同様であることを確認した。また、バルク内部の結晶粒粗大化は、旧粉末界面（初期結晶粒界）に液相が移動し、酸化物と混ざり合った液膜の状態での液膜移動によって起こったことを示す分析結果を得た。さらに、定量的な測定データの解析から、この結晶粒粗大化が課題である気孔構造変化に直接的に影響していることを明らかにした。それにより、気孔構造変化の抑制に有効と考えられる手法が示唆された。

第5章では、本論文を総括した上で、将来の展望を述べた。ポーラスアルミニウムの熱交換用途への適用は近年盛んに研究されており、部材軽量化及び熱エネルギーの有効活用に環境貢献が期待されている一方で、実用化に向けた検討課題も多いことを示した。従来の金属材料に比べて研究期間が短いこともあり、今後コスト低減や大型化に向けた課題解決が必要である。また、ポーラスアルミニウムの特性に強く影響する気孔構造の制御についても、研究の余地が残っており、用途に応じた気孔構造を設計する技術や、望ましい気孔構造を実現する製造技術の双方が必要であることを述べた。本研究で取り扱った接合技術の観点においては、本研究の成果を活用し、ろう付用 Al-Si 系合金材を用いてポーラスアルミニウムを接合することで、気孔構造を充填することなく金属結合を形成できることを示した。また本研究結果から、良好な金属結合を得られる範囲において、ろう付時間の短縮やろう付温度の低温化により、気孔構造変化を最小限に抑制可能であることを示唆した。さらに、ポーラスアルミニウムの気孔率および気孔サイズを選択に自由度がある場合は、気孔構造を損なわない範囲で原料のアルミニウム粉末サイズを大きくすることで、ろう付時の気孔構造変化をさらに抑制できる可能性があることを提案した。