

塑性加工と液相拡散接合を併用した異種金属の複合化

室蘭工業大学 材料物性工学科

教授 桃野 正

(平成7年度研究開発助成AF-95030)

キーワード：拡散接合、複合化、複合材料

1. 研究の目的と背景

本研究の主目的は、アルミニウムと鉄鋼、鉄鋼とチタン、あるいはアルミニウムと銅のように、性質が大きく異なる金属を複合化することである。

従来、複合化プロセスの多くは、鋳造や溶接、塑性加工技術を基礎としてきたが、本研究では接合界面にわずかな液相を生じさせ、同時に界面にせん断力が働くような塑性変形を付与することによって、強固な接合強度を有する積層型複合材料を製造することをねらいとしている。すなわち、複合加工による異種金属の接合・複合化を図ろうとするものであり、以下の特徴がある。

(1) ろう材やフラックスを使わないことから、異種金属界面に低融点層が生じない。

(2) 接合時間（界面反応時間）が極めて短いため、界面における脆弱な相の成長が抑制される。

(3) 界面にせん断力が働くことから、反応相の成長が抑制される。

このような新しい複合化プロセスは、従来のプロセスとは異なり、低コストで高い付加価値を発現させる有効な手段と考え、取り組むこととした。

2. 液相拡散接合 (Transient Liquid Phase: TLP) 接合の原理

図1はTLP接合過程の概略を示したもので、融点降下元素の濃度分布の変化が示されている。加熱により(1)で接合界面に液相が生じた後、(2)で等温凝固が進行し、(3)では等温凝固が終了している。その後さらに組成の均一化を行い、(4)の状態では接合が完了する。すなわち接合過程は、接合界面における液相の生成過程（過程Ⅰ）、等温凝固による液相の消失過程（過程Ⅱ）、接合部の均質化過程（過程Ⅲ）に大別できる。

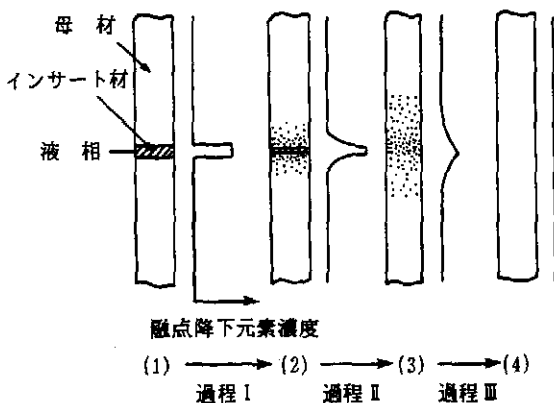


図1 TLP接合過程の概念図

以上のように、TLP接合部には低融点相がないことが特徴であり、このことが本研究への応用に着目した最大の理由である。

3. TLP接合における溶解・凝固過程

図2は厚さ3 μm のCu箔をインサート材とし、市販アルミニウム棒(A1050B)を母材として、接合温度(T_j)833K(a)、および863K(b)で拡散接合した試料の接合界面組織である。(a)では箔の溶解が認められないのに対し、(b)では箔が溶解・消失し、TLP接合がなされている。Al-CuAl₂共晶温度が821Kであることから、箔の溶解には12K以上の過熱が必要であることがわかる。

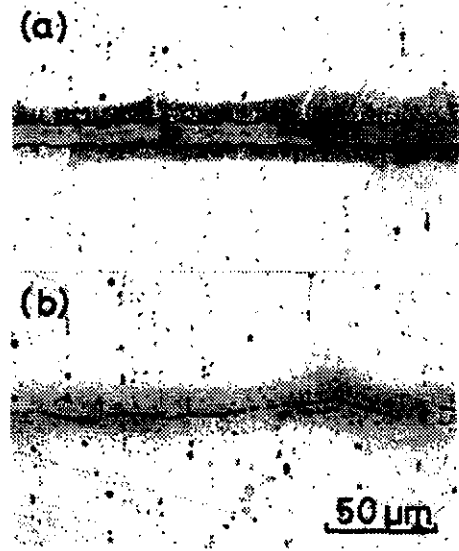


図2 銅箔をインサート材としたアルミニウムのTLP接合

このように、Cuは母材よりも融点が高いにもかかわらず、CuのAl母材中への拡散によって低融点の共晶相が生成され、これが等温凝固した結果、共晶相が消失し、良好な継手が得られたものと考え、以下の実験を行った。

4. 実験方法

TLP接合装置は図3に示すように、加熱系と加圧系、および真空系から構成される。加熱には赤外線反射炉を用い、接合温度はJISK熱電対を試料の接合界面付近にスポット溶接し、温度コントローラにより制御した。なお、加熱速度は1.0K/sで一定とした。

試料への加圧は手動式油圧ポンプにより行い、圧力測定

には小型ロードセルを用い、動ひずみアンプとデジタル式電圧計により測定した。真空系にはロータリポンプと油拡散ポンプとを併用し、 10^{-4} Torrクラスの真空雰囲気とした。

接合面の仕上げ条件と接合性とは密接に関連することから、母材の接合面は#1000までエメリ紙研磨した後、粒径 $15\mu\text{m}$ のダイヤモンド研磨を行い、最終研磨としてOP-S化学研磨剤により鏡面仕上げした。なお、これらの前処理はすべて接合直前に行い、最終処理としてアセトン中で超音波洗浄して接合装置にセットした。

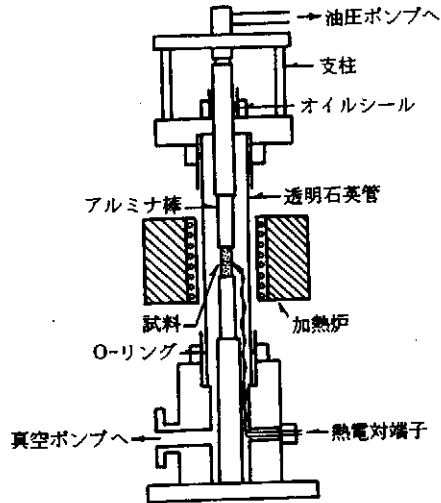


図3 TLP接合装置の概略図

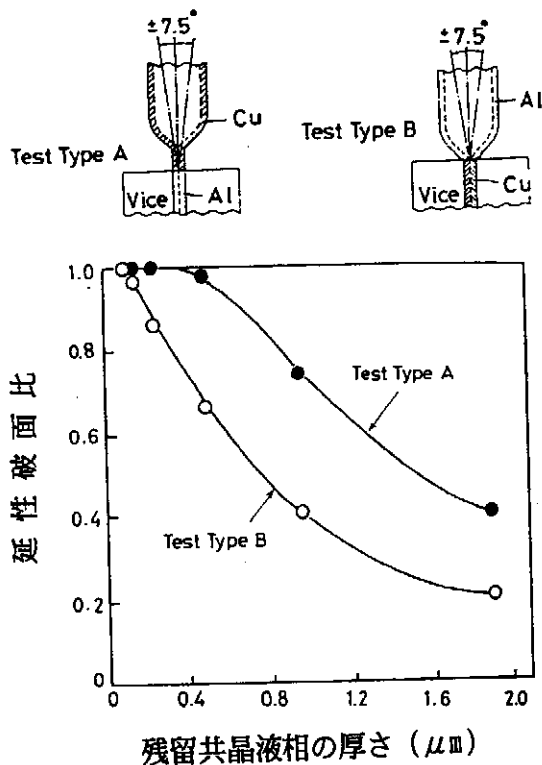


図4 アルミニウムと銅パイプ接合における残留共晶液相の厚さと延性破面比の関係

5. 実験結果と考察

5.1 アルミニウムと銅の液相拡散接合

アルミニウムと銅の固相拡散接合では、界面に数種の金属間化合物層が形成されるが、 Al-CuAl_2 共晶液相を利用した接合では、形成される化合物は θ 相のみとなる。図4は宮崎ら¹⁾が共晶反応を利用してアルミニウムパイプと銅パイプの圧接を行った結果である。パイプ端面を加圧接触させ、共晶温度以上に加熱後さらに加圧力を高めることによって余剰の共晶融液を接合部外へ排除し、残留共晶量を制御している。図より明らかなように、共晶相の厚さを $0.1\mu\text{m}$ 以下とすることによって、脆性的な破壊を阻止し、高い気密性が得られることを示している。

後にTLP接合の例で示すように、 $0.1\mu\text{m}$ 以下の厚さの共晶相は、接合温度に等温保持することによって容易に消失することから、上記の接合プロセスはTLP接合に極めて近いといえる。

5.2 アルミニウムとニッケルの接合

図5にアルミニウムとニッケル接合継手の引張強さに及ぼす接合温度の影響を表す²⁾。接合温度 $853\sim 883\text{K}$ では、継手強さは加工中破断する程度であったが $803\sim 923\text{K}$ では $47\sim 50\text{MPa}$ の引張強さを示した。しかし 873K で30min焼鈍処理したアルミニウム母材の引張強さと比較するとかなり低い値であり、接合強度の向上にはアルミニウム母材の融点近傍温度までの加熱が必要である。

なお接合部のマイクロ組織は図6に示すとおりであり、AlとNi間に2種の金属間化合物相が観察され、温度の上昇とともにこれらの相は厚く成長するのが認められた。X線回折の結果、これらはNi側の相が Al_3Ni_2 (γ 相)、Al側は Al_3Ni (β 相)と同定された。

アルミニウムとニッケルの複合化について、実用例は見あたらないが、ニッケルは箔として得やすいこと、鉄鋼材料と接合性が良好であることから、インサート金属としての役割が期待できる。

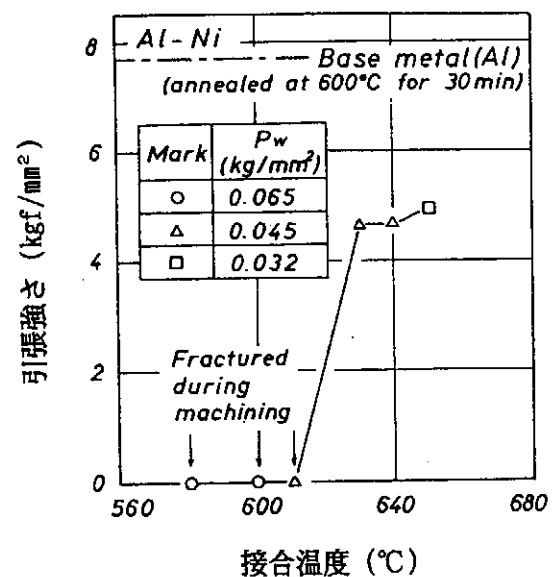


図5 アルミニウムとニッケルの接合継手強さに及ぼす接合温度の影響

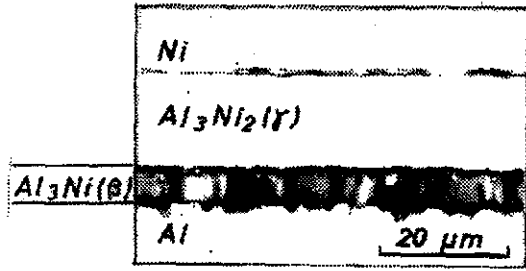


図 6 アルミニウムとニッケルの接合界面付近の光学顕微鏡組織 (接合温度 923K、接合圧力 0.3MPa、接合時間 1.8ks)

5.3 アルミニウムと鉄鋼の接合

アルミニウムと鉄鋼の接合体あるいは複合材料は、既に低温用プラント、原子力産業の分野で利用されている。さらに自動車用アルミホイール、ビル用大型サッシ、電磁調理器具などを対象として、高強度と装飾性の両立を図ることができ、今後の発展が期待できる。また最近では軽量磁気シール材、磁気浮上式車両のレールにも応用が拡大されつつある。しかしアルミニウムと鉄鋼の接合は極めて難しく、今なお多くの問題が残されている。

5.4 アルミニウムと鉄鋼の直接接合

著者ら¹⁾は図 7 に示すように、市販純アルミニウム (A1050) と球状黒鉛鑄鉄の拡散接合を行ない、接合部に FeAl₃ と舌状の Fe₂Al₅ が形成され、破断は Al/FeAl₃ 界面で容易に生じること示した。

このような Al-Fe 系金属間化合物層の成長に対する合金元素の影響について、Trutnev ら²⁾はアルミニウムとステンレス鋼との接合に関して、Mg は化合物層の成長を促進し、Si はこれを抑制する働きを有することを報告している。この理由として、(1) Mg 添加によりアルミニウムの材質硬度が高められ、異種金属との十分な物理的接触が得難くなる、(2) Mg は金属間化合物の形成と成長を速めるので、接合面の十分な接触が達成される以前にミクロ的接触部に脆化層を形成する等の点を挙げている。

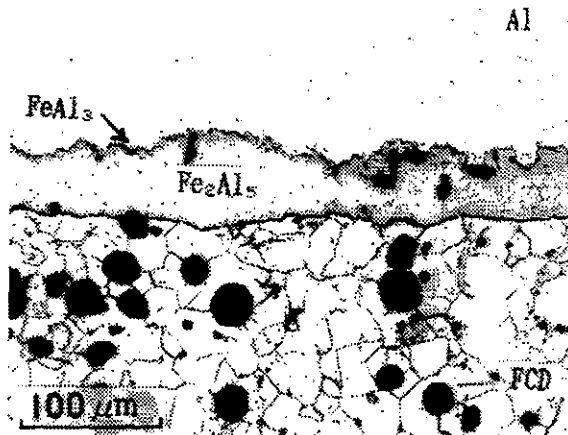
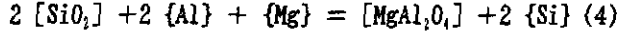
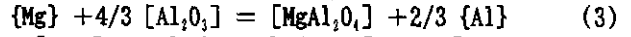
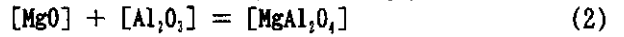
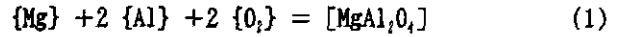


図 7 アルミニウムと球状黒鉛鑄鉄の接合界面近傍の光学顕微鏡組織 (接合温度 873K、接合圧力 0.13MPa、接合時間 1.8ks)

ここでアルミナ皮膜に対する破壊作用に着目すると、Mg は Cu より効果的である。圓城³⁾は A6063 合金の接合においては、合金中の Mg と酸化皮膜との間に反応が生じ、MgAl₂O₄ および MgO 等の酸化物が生ずることを指摘している。また Lee ら⁴⁾は、Al₂O₃ 粒子と Al 界面において、MgAl₂O₄ が形成される可能性について、以下の反応式を提案している。



以上の反応式の中で、Lee らは(3)式による可能性が最も高いことを示唆しており、(4)式が最も低いとしている。

なお Mg は接合前に接合面上に多量に存在しても効果は認められない。すなわち、接合中に接合面に拡散し、Al₂O₃ を還元することが重要であり、大橋ら⁵⁾によれば、母材中に含まれる Mg の最適量は 0.1~2% 程度である。

5.5 インサート金属によるアルミニウムと鉄鋼の拡散接合

著者ら¹⁾は Ni を予め S20C 鋼と接合し、S20C 鋼/Ni/A2024/Al の配置で積層し接合した結果、A2024 合金箔の一部に液相が生じる温度 (786K) 以上では、最高 66MPa の接合強さを示すことを示した。しかし接合温度が高くなるにしたがって強度は低下することが判明し、Ni はインサート材として問題が残った。

さらに著者ら¹⁾は Ti 箔のインサート金属としての有用性を検討し、A6063 合金と S20C 鋼との接合例を報告した。図 8 はその結果であり、接合手順は Ti 箔を予め 933K 以上で鋼に接合し、次に Ti 被覆 S20C 鋼と A6063 を固相線温度以下で接合した。この場合界面には Al₃Ti が層状に成長するが、継手は母材の A6063 合金と同程度の引張強さが得られた。

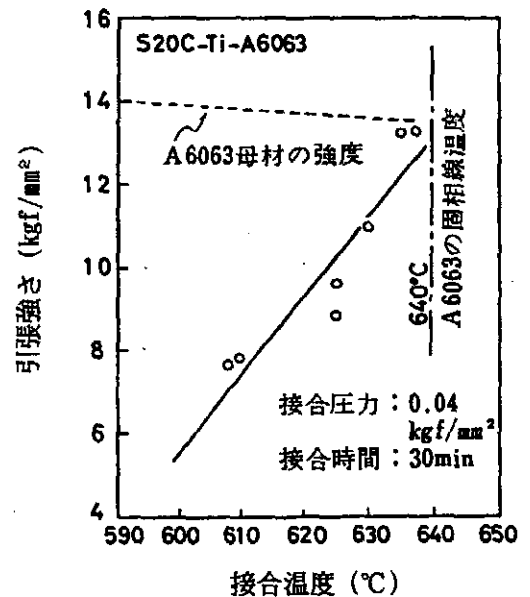


図 8 チタン箔をインサート金属とした A6063 合金と S20C 鋼接合材の引張強さと接合温度の関係。チタン箔 (厚さ 50 μm) は、接合温度 1133K、接合圧力 1.7MPa、接合時間 1.8ks の条件で、あらかじめ S20C 鋼と接合した。

同様に、SiC 粒子を強化相とし、AC3A 合金をマトリックスとした複合材料 (MMC) と鋳鉄との固相拡散接合を、Ti 箔をインサート材として試みた。その結果、図 9 に示すように、Ti と MMC は接合温度 843K、接合圧力 3MPa、接合時間 1.8ks 以上の条件で、およそ 100MPa の接合強度を示した。なお、接合強度が 100MPa と比較的低いのは、強化相粒子である SiC が、接合を阻害するためと思われる。

なお、Ti と鋳鉄は TiC によって接合し、その接合強度は接合温度 1123K では、200MPa を超えることを著者らは明らかにしている¹⁰⁾。

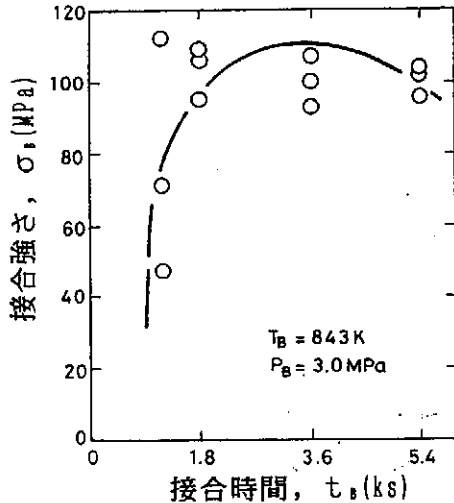


図 9 SiC 粒子強化 AC3A 合金基複合材料とチタンの接合継手強さに及ぼす接合時間の影響

5.6 アルミニウムと鉄鋼の液相拡散接合

前述のように、アルミニウムと鉄鋼の接合では、Ni や Ti がインサート金属として有効であり、これら金属箔とアルミニウムとの間に、さらに液相を介して接合することは、密着性の向上、および Al 母材表面のアルミナ皮膜への浸食などの効果が期待される。そこで本研究では電磁調理用鍋を対象として、フェライト系ステンレス鋼 (SUS430) と A1050 との液相拡散接合を試みた。

基本的には、Ni インサートと Al との間で低融点の液相が生じ、等温凝固の後に液相が消失する金属が望ましいと考えた。このような観点から Cu 箔を介して接合し、Al-CuAl₂ 共晶融液を利用して接合することとした。

SUS430 と Ni は、接合温度 900°C、圧力 10MPa、時間 0.6ks の条件で予め接合した。このような条件で接合した SUS430 と Ni の接合継手は、約 200MPa 以上の接合強度が保証される。

なお、Cu 箔の厚さは 3μm とし、Ni 箔と A1050 との間に挿入し、Al-CuAl₂ 共晶温度直上の 833K と 843K で接合した。図 10 は A1050 と Ni 母材間に Cu 箔をインサートし、接合温度と時間を変化させた場合の、接合界面に生成した Al₃Ni₂ 層の厚さと引張接合強度との関係を表している。接合継手強さは接合時間の増加にともない急激に低下し、反応層の厚さが 6μm 以上ではほぼ一定となることがわかる。なおこの場合、接合時間が 5min よりも短時間では、未接合部の増大により接合強度の低下が認められた。

以上の結果より、接合継手強さは Al 母材の強度に匹敵し、低融点液相 (共晶相) は消失し、健全な積層型複合材

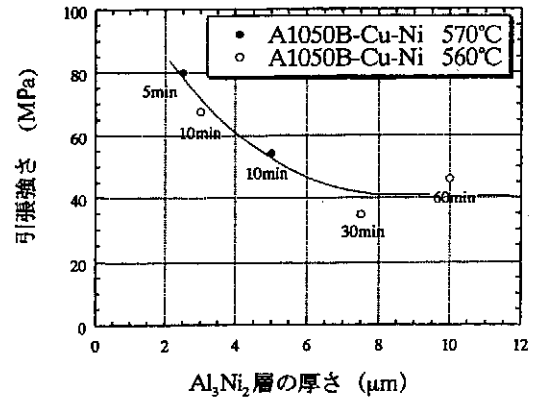


図 10 Cu 箔をインサート材として TLP 接合した A1050/Ni 継手の引張接合強さに及ぼす Al₃Ni₂ 相厚さの影響

料が得られることが実証された。なお、反応相は Al₃Ni₂ のみから成っており、固相接合で認められた Al₃Ni 相は同定されなかった。また Cu を含む化合物相も認められなかった。

5.7 複合材料の拡散接合

複合材料が次世代の重要な素材として位置づけされているにもかかわらず、実用化が遅れている最大の要因は、そのコスト高にある。このような現状をふまえると、複合材料の局部的使用が一層増大することが見込まれる。すなわち既存の素材に接合・結合されて使用されるものと思われる。このような観点から複合材料どうしの TLP 接合、および複合材料とマトリックス合金との TLP 接合を試みた。

5.8 複合材料どうしの TLP 接合

図 11 は Al₂O₃ 粒子を 10vol% 含み、A6061 合金をマトリックスとした複合材料を母材とし、厚さ 50μm の Cu 箔をインサート材として TLP 接合した場合の、接合部近傍のミクロ組織である。(a) は融液が試料周辺部に漏れないように、予めシールした場合であり、(b) は接合圧力によって融液が排出された場合である。(a) では矢印で示したように、およそ 400 μm 幅にわたって共晶相が観察され、共晶相内の強化粒子の分布形態は、母材のそれと大きな差異は認められない。これに対して融液が排出された (b) では、共晶相は観察されないが、強化粒子の凝集が特徴的である。こ

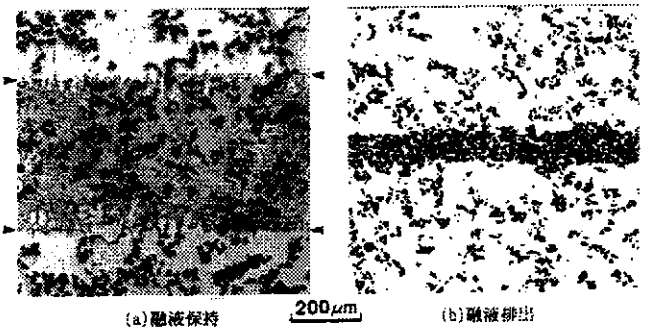


図 11 10vol%Al₂O₃/A6061 複合材料を母材とし、50μmCu 箔をインサート材として接合した継手部のミクロ組織。接合温度 843K、接合圧力 2.0MPa、接合時間 1.8ks

のような融液の排出は、結果として薄いインサート材を用いた場合と同様の効果があり、等温凝固の完了を著しく速めることがわかる。なお、接合部の強化粒子密度が高くなったのは、マトリックスのAl相がCuと反応して溶解し、試料周辺部に排出されたことによると推察される。

これに対してCuインサート材の厚さを $3\mu\text{m}$ とし、 $10\text{vol}\%\text{SiC}/\text{A6061}$ 複合材料をTLP接合すると、接合部のミクロ組織は図12に示すように、強化粒子の偏析を著しく抑制できる。

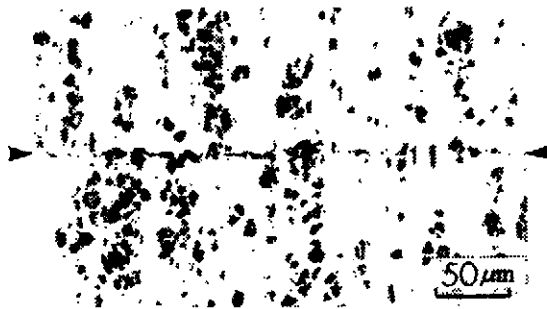


図12 $10\text{vol}\%\text{SiC}/\text{A6061}$ 複合材料を母材とし、 $3\mu\text{m}$ Cu箔をインサート材として接合した継手部のミクロ組織。接合温度 823K 、接合圧力 2.0MPa 、接合時間 0.6ks

なお、図11に示したように、著しい粒子の凝集が生じた継手部の強度は、接合後熱処理しても改善されなかった。すなわち接合後T4またはT6処理しても、その継手強さは低い値となった。この結果より、複合材料の接合ではマトリックス相の溶解をできる限り抑制する、すなわちインサート材の厚さを小さくし、余剰の融液を接合部外に排出することが重要であることが判った。

TLP接合では、固相接合にくらべて、接合部の表面仕上げ条件が厳しくないことも特徴の1つとして挙げられる。たとえば箔の厚さを $3\mu\text{m}$ とし、 $10\text{vol}\%\text{SiC}/\text{A6061}$ 複合材料をTLP接合した場合の、接合表面仕上げ条件と接合強さの関係を調べた結果、実験の範囲内では、仕上げ条件が#120エメリ紙であっても、ダイヤモンド研磨剤であって

も、表面粗さの差異による接合強さの影響は認められなかった。

6. 結 言

拡散接合法によるアルミニウムと他の金属との複合化の例をいくつか示した。アルミニウムは表層に強固な Al_2O_3 皮膜を有することから、一般に拡散接合が困難な材料といえる。また、本研究の対象としてとりあげたTLP接合が、すべて他の複合化プロセスと比較して優っているのではなく、下記のような短所もまた指摘しなければならない。

(1) インサート材の選定にあたって、母材との相平衡状態態図に制限が大きい。

(2) 液相量を制御するには、厳密な温度制御が必要である。

(3) 等温凝固に長時間の加熱を必要とする。

本研究によって、TLP接合や超塑性を利用した接合、接合表層の改質など、視点を新たにした複合化プロセスが明らかにされたものと確信する。

謝 辞

本研究を遂行するにあたり、財団法人天田金属加工機械技術振興財団から多大なる援助をいただきました。ここに記して謝意を表します。また研究に多大に協力いただいた田湯善章助手に感謝申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 宮崎、玉村、落合：溶接学会誌、6(1976)、486
- 2) 桃野、圓城：軽金属、35(1985)、396
- 3) 桃野、小林、及川、井川：鋳物、60(1988)、448
- 4) V.V.Trutnev and M.K.Shorshorov：Weld Prod., 14(1967)、10
- 5) 圓城：日本金属学会会報、26(1987)、706
- 6) J.C.Lee, K.N.Subramanian and Y.Kim：J. of Materials Sci., 29(1994)、1983.
- 7) 大橋、雀部：溶接学会講演概要、(1988)、第42集、100
- 8) 桃野、圓城：軽金属、35(1985)、396
- 9) 桃野、宮坂、圓城：軽金属、37(1987)、413
- 10) T.Momono, T.Enjo and K.Ikeuchi：ISIJ International, 30(1990)、978