



Title	拡散溶接に関する基礎的研究
Author(s)	大橋, 修
Citation	大阪大学, 1985, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/23446">https://hdl.handle.net/11094/23446</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

# 拡散溶接に関する基礎的研究

昭和 59 年 9 月

大 橋 修

# 拡散溶接に関する基礎的研究

昭和 59 年 9 月

大 橋 修

# 目 次

第1章 総 論 .....	1
第2章 拡散溶接部における密着部の形成に及ぼす接合条件因子の影響 .....	5
2.1 概 説 .....	5
2.2 拡散溶接装置 .....	5
2.3 供試材及び実験方法 .....	6
2.4 密着部の観察と密着面積割合の測定法 .....	8
2.5 密着面積に及ぼす接合温度, 時間, 圧力の影響 .....	14
2.5.1 密着部を単純化した円錐形状試験片の高温変形 .....	15
2.5.2 円錐形状試験片の密着部の変形とクリープ変形 .....	20
2.5.3 円錐形状試験片での密着面積と拡散溶接部での密着面積 .....	21
2.6 拡散溶接部の密着面積に及ぼす接合面の粗さの影響 .....	26
2.7 拡散溶接部の密着過程についての考察 .....	32
2.8 要 約 .....	33
第3章 拡散溶接部における密着部の形成に及ぼす変態の影響 .....	35
3.1 概 説 .....	35
3.2 供試材及び実験方法 .....	35
3.3 接合圧力下での変態の影響 .....	35
3.4 変態に伴う変形について .....	38
3.5 無荷重下加熱時での変態の影響 .....	41
3.6 要 約 .....	43
第4章 拡散溶接部における密着部の強さ .....	44
4.1 概 説 .....	44
4.2 供試材及び実験方法 .....	44
4.3 密着面積割合と引張強さとの関係 .....	44
4.4 引張強さへの切欠効果の影響 .....	46
4.5 要 約 .....	48

第 5 章	拡散溶接における表面皮膜	49
5.1	概 説	49
5.2	接合する面の表面皮膜	49
5.2.1	供試材及び実験方法	49
5.2.2	オージェ分析による考察	50
5.3	拡散溶接部での表面皮膜	54
5.3.1	実験方法	55
5.3.2	走査型オージェ分析による考察	55
5.4	空隙部での酸化物の消失機構	59
5.4.1	実験方法	60
5.4.2	酸化皮膜の挙動	61
5.4.3	酸素の母材への拡散	64
5.5	密着部での介在物について	70
5.6	突起部の変形による表面皮膜の破壊	74
5.7	拡散溶接部における表面皮膜の挙動	77
5.8	要 約	78
第 6 章	グロー放電による接合面の清浄化	80
6.1	概 説	80
6.2	グロー放電表面処理接合装置	81
6.3	供試材及び接合方法	81
6.4	試験片の極性とグロー放電	82
6.5	グロー放電条件因子と継手強さとの関係	84
6.5.1	グロー放電時間の影響	84
6.5.2	グロー放電電圧, 電流の影響	86
6.6	グロー放電の清浄化作用とその効果	89
6.7	要 約	91
第 7 章	接合面のイオンめっき処理	93
7.1	概 説	93
7.2	イオンめっき表面処理装置	93
7.3	供試材及び実験方法	94

7.4	めっき特性へのめっき条件因子の影響 .....	95
7.5	銀をイオンめっきした材料の接合 .....	98
7.6	要 約 .....	105
第8章	総 括 .....	106
謝 辞	.....	109
参考文献	.....	110
本論文に関連した発表論文	.....	113

## 第 1 章 総 論

拡散溶接とは、被接合物を接触させ、被接合物を溶融することなく、大きな塑性変形を生じない程度に加熱・加圧して接合する方法で、固相溶接法の 1 種である。拡散溶接では、接合しようとする材料同士を直接接合する場合と、接合面間にインサート金属を挿入して接合する場合とがある。

最近、Transient Liquid Phase Bonding<sup>1)</sup>、あるいは Activated Diffusion Bonding<sup>2)</sup>とも呼ばれる接合面間のインサート金属を溶融して接合する方法が注目されている。本法は、特にニッケル基耐熱合金の接合に適用され普及しつつある。この方法を、拡散溶接とろう付のどちらに分類するかについては意見が別れているが、Welding Handbook (7 版)<sup>3)</sup> 及び Owczarski<sup>4)</sup>らは、ろう付に分類している。

拡散溶接の特徴として、溶融溶接では極めて溶接が困難とされていた金属及び異種金属間の接合ができる。また、形状の点から溶融溶接が困難な中空部品の精密組立て接合ができることなどがある。

近年、原子力、宇宙・航空機工業をはじめとする諸工業の分野で、高度な性能を有する材料の要求が高まり、材料の改良、開発が進められている。また、機器の性能向上と高信頼性の確保の上から、複雑な形状をした高度な機能をもつ部品の組立溶接が要望されている。これら新しい材料の部品の組立、溶接技術の一つとして、拡散溶接が期待されている。

拡散溶接の適用例として、フォト・エッチングにより迷路がきざまれた部材を重ね合せて拡散溶接して作られた流体素子<sup>5)</sup>、NASA の宇宙実験用のミニチュア・ヒータ及びガスクロマトグラフィのカラム<sup>6)</sup>などの機能部品の製作例がある。また、チタン合金の拡散溶接継手の性能が母材並みで安定していることから、チタン合金を多量に使用する航空機器に適用例が多い。ガスタービンの中空コンプレッサ・ブレード<sup>7)</sup>及び中空のファン・ハブ<sup>4)</sup>、航空機の翼及び胴体などの骨格部品<sup>8)</sup>、ヘリコプタのロータ・ハブ、ハニカム<sup>9)</sup>などの製作がある。

1950 年代から拡散溶接に関する研究が多数見られる。その多くはチタン合金、ニッケル基耐熱合金、銅、クロム・モリブデン鋼、モリブデン、タングステンなどの同種金属の接合報告<sup>10-15)</sup>や、アルミニウム-チタン、銅-ニッケルなど各種の異種金属の接合報告<sup>16, 17)</sup>で、接合条件選定の指針を与えている。とりわけチタン合金についての報告例が多い。

拡散溶接するには、接合面の表面皮膜を除去して清浄面を全面密着すればよいと考えられて

いる。しかし、実在の接合面には微細な凹凸がある。また、酸化物や吸着ガスなどの表面皮膜で覆われている。この接合面上の凹凸と表面皮膜が接合を妨げている。したがって、拡散溶接部での接合面の凹凸が変形して密着面積が増加する過程、及び密着部での表面皮膜の挙動など、拡散溶接の接合機構についての研究が重要であるにもかかわらず、その報告は少ない。

拡散溶接の接合過程については、Kingらは<sup>18,19)</sup>、図1-1に示すようなモデルの提案を行っている。図1-1のA図は、常温で接合面を突き合せた様子を示している。加熱、加圧した際、接合過程の第1段階(B図)では、接触した突起部がクリープ変形機構によって変形し、密着面積が増加する。これと併行して、密着面を通しての原子の拡散により接合が進行してゆく。第2段階(C図)では、変形よりも拡散が重要となり、拡散によって多くの空隙が消失し、一部の接合境界の移動が生じる。第3段階(D図)は、結晶粒内にとり残された空隙が拡散によって消失する過程である。これらの各段階が重なり合って進行する。

提案された過程は、チタンの拡散溶接部の観察に基づいた結果である。しかし、チタンについての粒界及び表面の拡散係数、表面エネルギー及び変形のデータの不足もあって、推論的で定

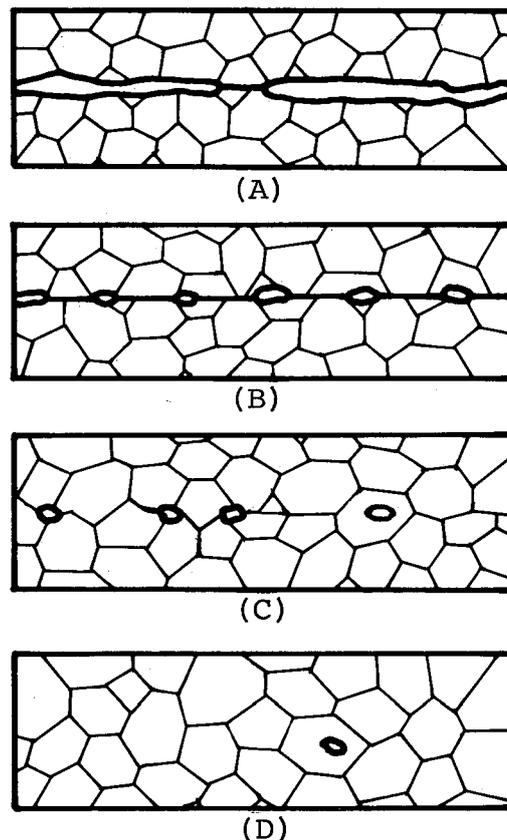


図1-1 拡散溶接部の接合過程

- (A) 加熱前
- (B) 接合面の凹凸が変形する過程
- (C) 粒界の移動及び空隙が消失する過程
- (D) 体拡散により全ての空隙が消失する過程

性的なものとなっている。また、密着面積を接合条件因子でもって定量化するには至っていない。

一方、拡散溶接部での表面皮膜に関しては、アルミニウム接合部の酸化物を透過型電子顕微鏡で観察した報告がある<sup>20)</sup>。チタンの接合では、接合面の表面皮膜は拡散溶接中に消失すると考えられている。しかし、拡散溶接による表面皮膜の消失の確認や表面皮膜の消失に影響する因子など、接合部での表面皮膜の挙動について明らかになっていないのが現状である。

以上のように、接合面の突起部が密着し、密着面積の増加と併行して密着面での原子の拡散により接合が進行する。しかし、拡散溶接部で突起部が変形して密着化する過程、及び密着部での接合を妨げる表面皮膜について十分に解明されていない。拡散溶接継手の性能に十分な信頼性を得るためには、これらの問題を明らかにしなければならない。

接合面には微小な凹凸がある。このような面を突き合せて拡散溶接すると、アルミニウムの場合には、接合面の突起部は密着はするが接合しにくい。一方、銅、鉄などの場合には、接合面の突起部が密着して接合し、200～400倍での拡散溶接部の断面観察や破面観察で、その領域は識別できる。しかし、この領域を3000倍以上で観察すると、介在物などの微小な欠陥が見られることがあり、微視的には接合箇所と密着はしているが接合していない箇所とが混在する場合もある。本論文では微小な欠陥を含む接合領域も、密着部と呼ぶ。

本研究では、拡散溶接の基本的な接合現象である接合面の密着過程及び表面皮膜の挙動について検討した。そして材料によっては表面皮膜が接合性に大きく影響するとの結果に基づき、表面処理法についても検討した。

本論文の構成と内容は次の通りである。

第1章で、本研究の着眼点について述べ、本論文の構成を示している。

第2章で、接合過程の初期における、拡散溶接部の密着面積の増加過程に及ぼす接合条件因子の影響を、密着箇所をモデル化した円錐形状試験片を用いて検討した。その結果、密着面積の増加は主にクリープ変形と空隙の収縮によること、密着面積は限られた条件範囲で定量化できること、少ない変形で全面密着するには、接合面の粗さを細くしなければならないことを示す。

第3章で、密着面積の増加過程に及ぼす変態の影響を鉄を用いて検討した。そしてクリープ変形で密着面積が形成される接合過程においては、変態超塑性現象によって密着化が促進されること、空隙の収縮による密着面積の増加過程に変態の効果はそれほど認められないことを示す。

第4章で、密着面積と継手の引張性能との関係を調べ、継手の引張強さは、密着部での接合面積割合と、空隙による切欠効果に影響されることを示す。

第5章で、拡散溶接部の酸化皮膜の挙動をオージェ分析などから検討した。そして拡散溶接部での酸化皮膜が消失する銅、鉄、チタン、SUS304 ステンレス鋼では密着部は接合するが、酸化皮膜が消失しないアルミニウムでは密着部は接合し難い。この酸化皮膜の消失は主に拡散現象による。さらに酸化皮膜の挙動は材料によって異なり、3つの型があることなどを示す。

第6章で、拡散溶接部で酸化皮膜が消失しないアルミニウムのような材料の接合性改善の目的で、接合面の清浄化と接合を連続的に行えるグロー放電表面処理について検討した。その結果、グロー放電表面処理によってアルミニウムの接合性が向上すること、グロー放電条件の選定に際しては、高電圧、高電力、低雰囲気圧力とすればよいことを示す。

第7章で、接合面の清浄化と密着促進のため、接合する面を酸化皮膜の影響を余り受けない銀であらかじめイオンめっきして接合する方法について検討した。そして、銀のイオンめっきによって、アルミニウムをはじめ各種材料が酸化皮膜の影響を受けずに接合できること、直接接合時より接合性が向上することを示す。

第8章で、本研究で得られた知見を総括している。

## 第 2 章 拡散溶接部における密着部の形成に及ぼす 接合条件因子の影響

### 2.1 概 説

接合面には微小な凹凸があり，またその表面は吸着分子や酸化物などの表面皮膜で覆われている。このような接合面を突き合せて，加熱・加圧して拡散溶接した時には，密着面積の増加と併行して，密着部では原子の拡散により接合が進行する。

アルミニウムの場合，接合面の突起部は密着するが接合しにくい。一方，銅や鉄などの場合，接合面の突起部は密着して接合する。しかし，この領域は微視的には接合箇所と欠陥とが混在する場合が多い。本論文では接合箇所と欠陥を含む領域も密着部と呼ぶ。

本章では，拡散溶接部における密着面積への接合温度，時間，圧力，表面粗さなどの接合条件因子の影響を明らかにした。

拡散溶接部での密着面積が増加する過程及び密着面積増加過程への接合条件因子の影響については，2, 3 の報告があるだけである。

King<sup>18, 19)</sup>らは，純チタンの拡散溶接部について検討し，図 1-1 に示したように，密着面積の増加は突起部の変形と拡散による空隙の収縮によることを示している。しかし，高温でのチタンの変形や拡散のデータが不足することから，密着面積は定量的に表現されていない。したがって，この増加過程への接合条件因子の影響についても定性的なものとなっている。

そこで，本章では拡散溶接過程の初期における接合面の突起部が密着した面積を，密着部をモデル化した円錐形状試験片から求めた材料の高温変形性能で定量化することを試みた。さらに，密着面積の増加過程への接合温度，圧力，時間及び表面粗さなどの接合条件因子の影響も明らかにした。

### 2.2 拡散溶接装置

図 2-1 の(A)に，拡散溶接装置の概略図及び(B)に溶接室内の写真を示す。本装置は，排気系（油拡散ポンプ，油回転ポンプ），てこを利用した加圧系及び高周波誘導による加熱系などからなる。溶接室は円筒形（内径 30 cm，奥行 30 cm）で，溶接室の到達雰囲気圧力は，約  $1 \times$

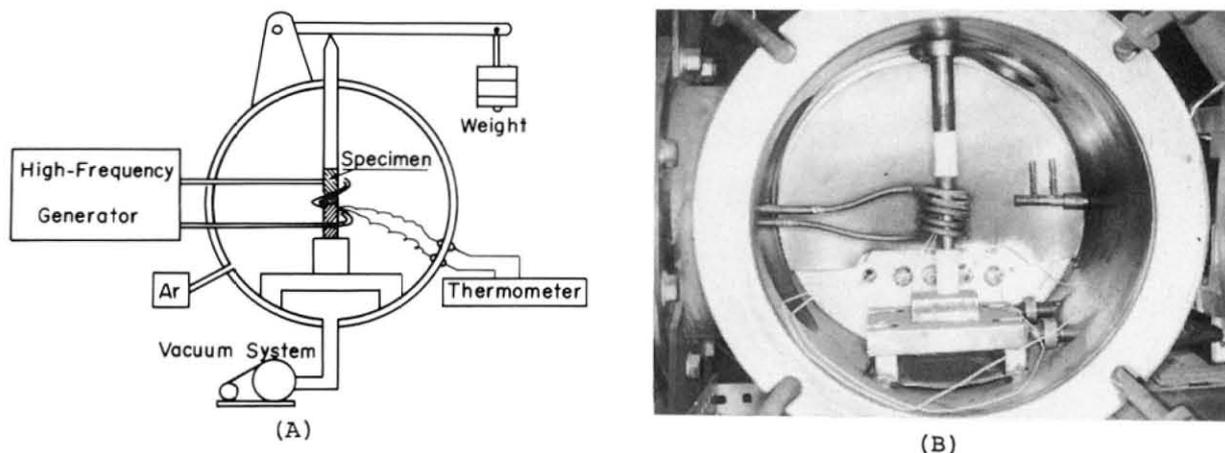


図 2-1 拡散溶接装置の概略図(A)及び溶接室内写真(B)

$10^{-4}$  Torr である。一方、加圧装置の最大荷重は 400kgf，高周波発振器は最大出力 40kW，周波数 200kHz である。

### 2.3 供試材及び実験方法

供試材は、チタン、鉄、無酸素銅、アルミニウム、及び SUS 304 ステンレス鋼で、これらの材料は直径 12mm の丸棒である。ステンレス鋼以外の材料は市販の純金属で、表 2-1 に化学組成(重量%)を示す。

図 2-2 の(A)は、接合試験片の形状である。試験片は丸棒の端面を旋盤加工した後、アセトン中で超音波洗浄した。引き続き、接合面の表面加工層を取り除くため、試験片を真空中で熱処理した。熱処理温度は、チタン、鉄及びステンレス鋼では 800℃，銅では 500℃，アルミニ

表 2-1 実験に使用した材料の化学組成(重量%)

Fe							Cu		
C	Si	Mn	P	S	O	Fe	O	S	Cu
0.005	0.20	0.24	0.016	0.012	0.0082	Bal.	0.003	0.001	99.994

Ti					
H	O	N	Fe	C	Ti
0.0025	0.126	0.005	0.032	0.006	Bal.

Al							
Cu	Si	Fe	Mn	Mg	Zn	Ti	Al
< 0.05	< 0.25	< 0.40	< 0.05	< 0.05	< 0.05	< 0.03	99.50

SUS 304									
C	Si	Mn	S	Nb	Al	O	Cr	Ni	Fe
0.049	0.42	1.56	0.009	0.020	0.001	0.016	18.58	8.82	Bal.

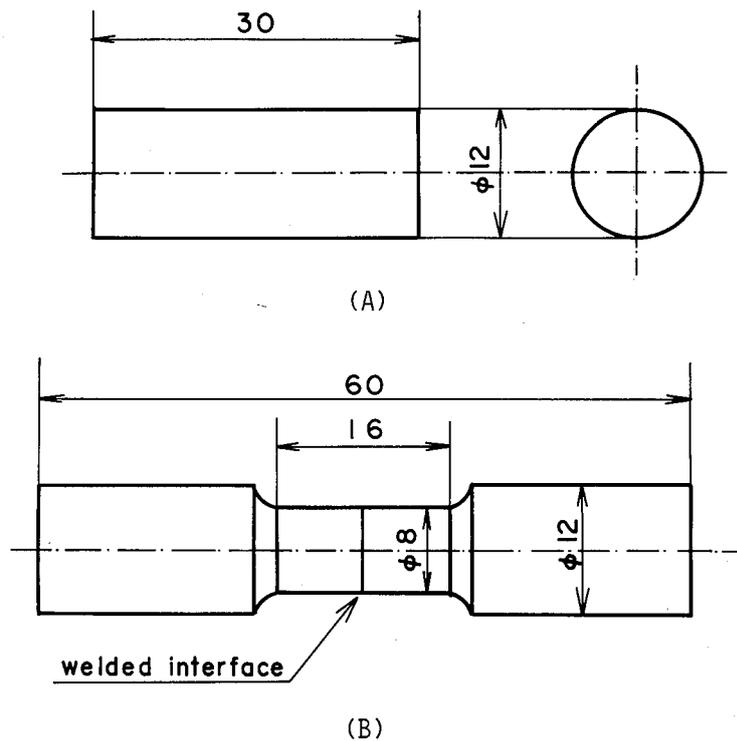


図 2-2 接合試験片形状(A)と引張試験片形状(B)

ウムでは  $400\text{ }^{\circ}\text{C}$  で、雰囲気圧力  $5 \times 10^{-5}$  Torr 以下で 1 時間加熱した。

各種材料の接合面を触針式表面粗さ計で測定し、その粗さ曲線を、図 2-3 に示す。接合面の粗さは、銅： $3\text{ }\mu\text{m}$ 、SUS304 ステンレス鋼： $6\text{ }\mu\text{m}$ 、鉄： $10\text{ }\mu\text{m}$ 、チタン： $5\text{ }\mu\text{m}$ 、アルミニウム： $3\text{ }\mu\text{m}$  である。この接合面の粗さは旋盤加工で比較的容易に得られる最小粗さで、鉄以外の表面粗さは三角記号 3 個 ( $0.8 \sim 6\text{ }\mu\text{m}$ ) に相当する。このような凹凸をもつ試験片を拡散溶接した。

接合に際しては、図 2-1 に示したように試験片を垂直に取り付け、雰囲気圧力  $3 \times 10^{-4}$  Torr 以下に排気した後、加熱加圧した。接合温度は、接合面から約  $2\text{ mm}$  離れた箇所に取り付けた熱電対 (アルメル・クロメル、あるいは白金ロジウム・白金) で測定した。

加熱法として高周波誘導加熱を用いた。本法では、試験片は表皮効果によって表面から加熱される。試験片の表面と中心部での温度差が検出されず、接合部が均一に加熱されるように加熱速度に留意した。本実験では加熱速度を  $2 \sim 4\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{sec}$  とした。試験片が所定の温度に到達した後、加圧して一定温度に保持した。この温度での保持時間を接合時間とした。

図 2-2 の (B) は引張試験片の形状で、接合試験片を平行部長さ  $16\text{ mm}$ 、平行部直径  $8\text{ mm}$  の形状に機械加工している。この試験片をインストロン型引張試験機を用いて引張試験を行った。

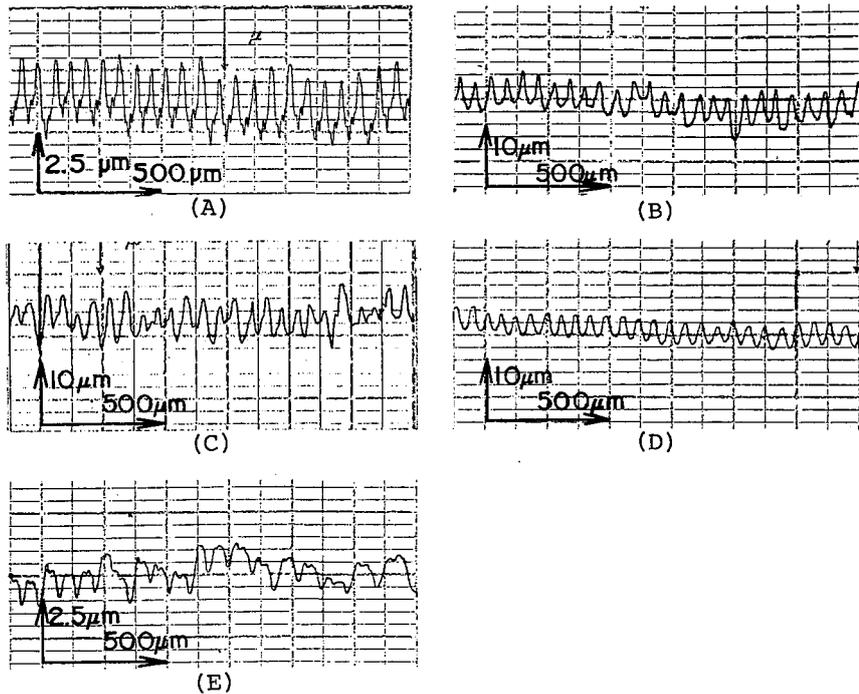


図 2-3 触針式表面粗さ計で測定した各種材料の接合面の粗さ曲線

- |            |                  |
|------------|------------------|
| (A) 銅      | (B) SUS304ステンレス鋼 |
| (C) 鉄      | (D) チタン          |
| (E) アルミニウム |                  |

## 2.4 密着部の観察と密着面積割合の測定法

各種材料の丸棒を突き合せて拡散溶接して、拡散溶接部の断面観察及び破面観察を行い、拡散溶接過程の初期における密着部の分布状態及び密着面積割合の測定法について検討した。

図 2-4 は、拡散溶接部に空隙のある接合初期での、チタン、鉄、SUS304 ステンレス鋼及び銅の拡散溶接部断面の光学顕微鏡写真である。いずれの材料の拡散溶接部においても、空隙と密着部が交互に連なって観察される。なお、アルミニウムは接合し難いので断面観察は困難であった。

次に、接合初期の拡散溶接継手の引張破面を走査型電子顕微鏡で観察した。図 2-5 は、銅の拡散溶接部での結果である。(A) は 160 倍の写真で、(B) の写真は (A) の中央部を 800 倍で撮影してある。写真 (B) には、引張試験の際にできたディンプルが多数ある破断部と、空隙部に相当すると考えられる結晶粒界が認められる平坦な箇所とがある。写真 (A) で白く見える帯状の領域が破断部である。この帯状の破断部の間隔が約  $70 \mu\text{m}$  で、接合面の粗さ曲線から求まる突起部の間隔に一致することから、密着した突起部が破断したものと考えられる。

図 2-6 は、チタン、鉄、SUS304 ステンレス鋼及びアルミニウムの拡散溶接部の引張破面

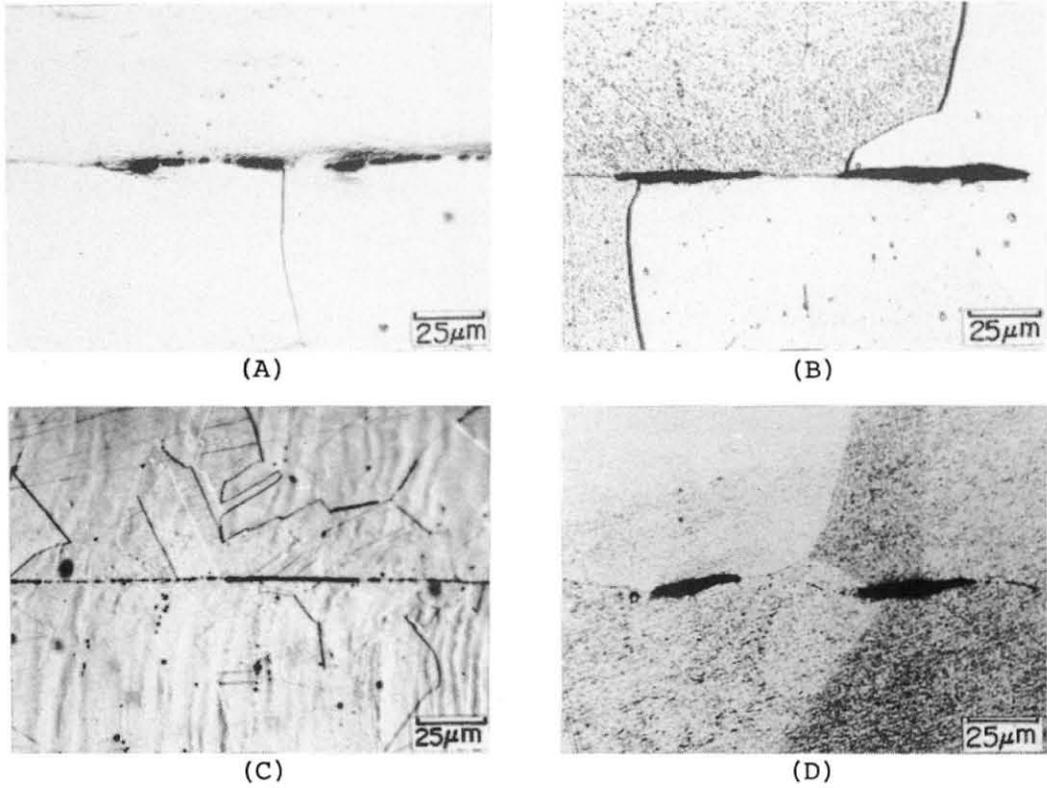


図 2-4 各種材料の拡散溶接部断面の光学顕微鏡写真

- (A) チタン (830°C, 4min, 1.2 kg f/mm<sup>2</sup>, 5μm)
- (B) 鉄 (830°C, 4min, 1.4 kg f/mm<sup>2</sup>, 10μm)
- (C) SUS 304 ステンレス鋼  
(1060°C, 4min, 2 kg f/mm<sup>2</sup>, 6μm)
- (D) 銅 (800°C, 4min, 1.6 kg f/mm<sup>2</sup>, 3μm)

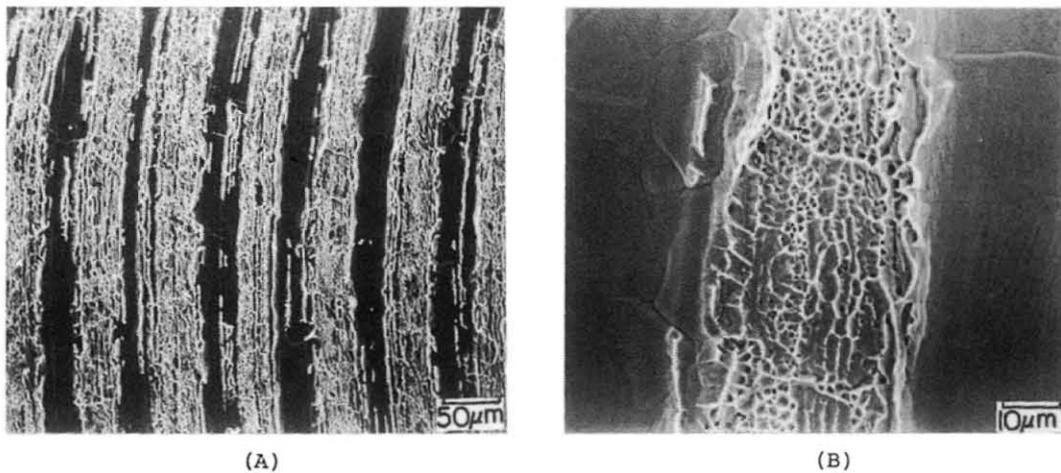


図 2-5 銅の拡散溶接部の引張破面の走査型電子顕微鏡写真  
(800°C, 4min, 1.6 kg f/mm<sup>2</sup>, 3μm)

- (A) 160倍
- (B) 800倍

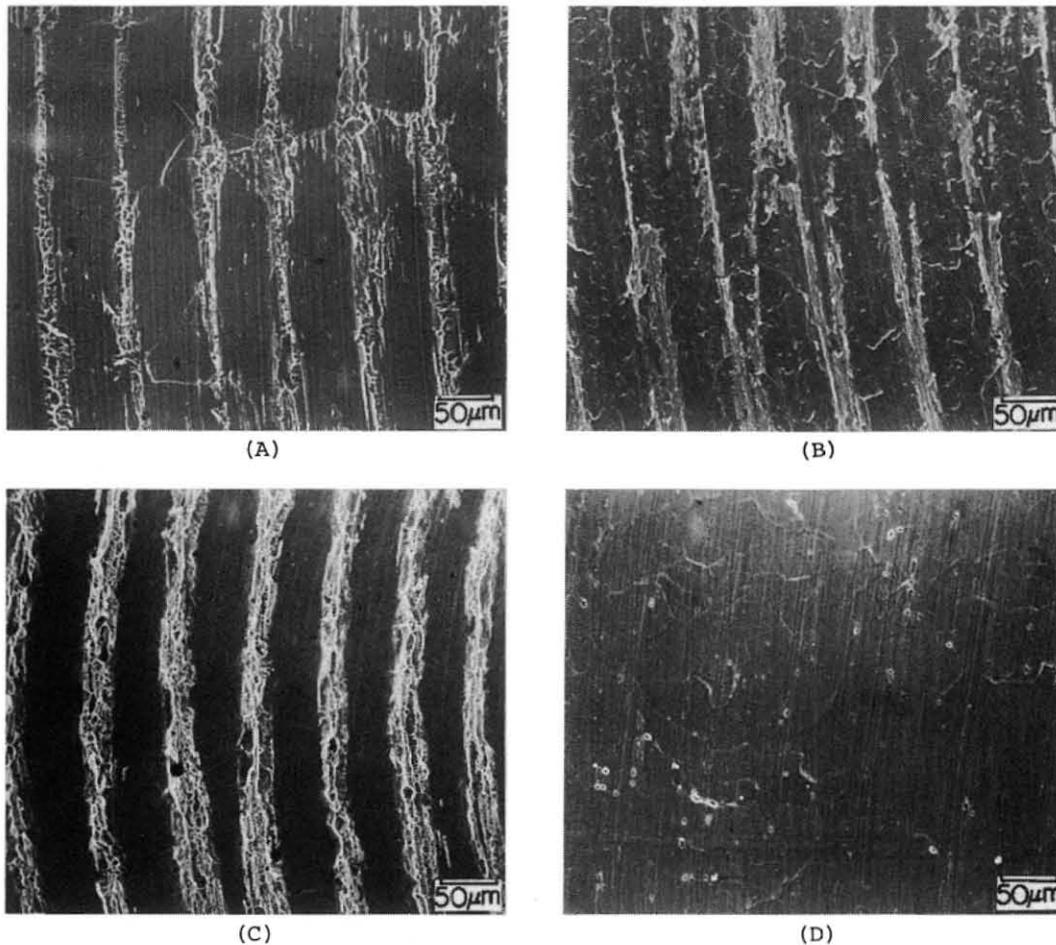


図 2-6 各種材料の拡散溶接部の引張破面の走査型電子顕微鏡写真

- (A) チタン (830°C, 4min, 1.2 kgf/mm<sup>2</sup>, 5 μm)
- (B) 鉄 (830°C, 4min, 1.4 kgf/mm<sup>2</sup>, 10 μm)
- (C) SUS304 ステンレス鋼  
(1060°C, 4min, 2 kgf/mm<sup>2</sup>, 6 μm)
- (D) アルミニウム (600°C, 4min, 0.5 kgf/mm<sup>2</sup>, 3 μm)

の走査型電子顕微鏡写真である。アルミニウム以外の破面には、いずれも帯状の破断部が見られる。

次に拡散溶接継手の引張破面に見られる破断箇所と断面観察で見られる密着箇所との関係を調べた。図 2-7 の(A)に示すような試験片について、接合部断面の光学顕微鏡写真を撮影し、引張試験後 (B) の試験片で同じ場所を走査型電子顕微鏡で撮影した。それぞれの写真を、図 2-8 に示す。断面写真での密着部と、引張破面でのディンプルの見られる破断部とが対応し、断面での空隙が、破面での結晶粒界が見られる平坦な領域と対応している。このように破面写真で白く観察される領域は密着部であることが明らかとなった。

密着部と破面での破断部とが対応することから、破面写真から密着部の分布を調べた。図 2-9 は、接合条件を変えて銅を拡散溶接した 3 個の試験片での引張破面の 14 倍の走査型電子顕微鏡写真である。密着箇所を示す破断部は一様に分布せず、密着部は試験片によって偏在し

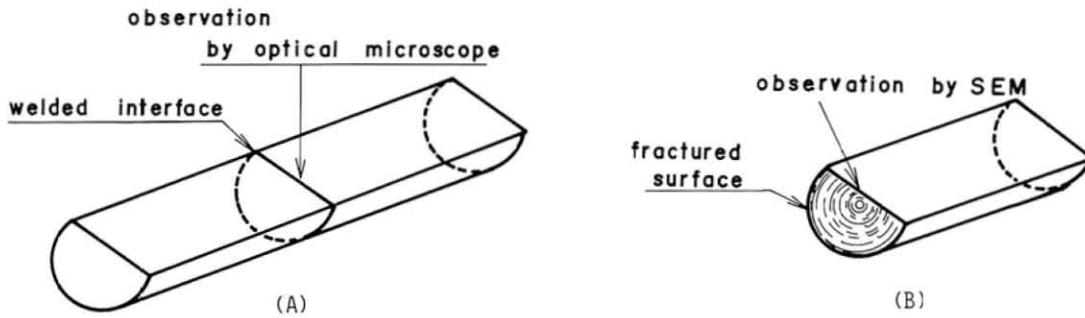


図 2-7 接合部断面(A)の光学顕微鏡組織と接合部破面(B)の走査型電子顕微鏡組織の比較のための試験片

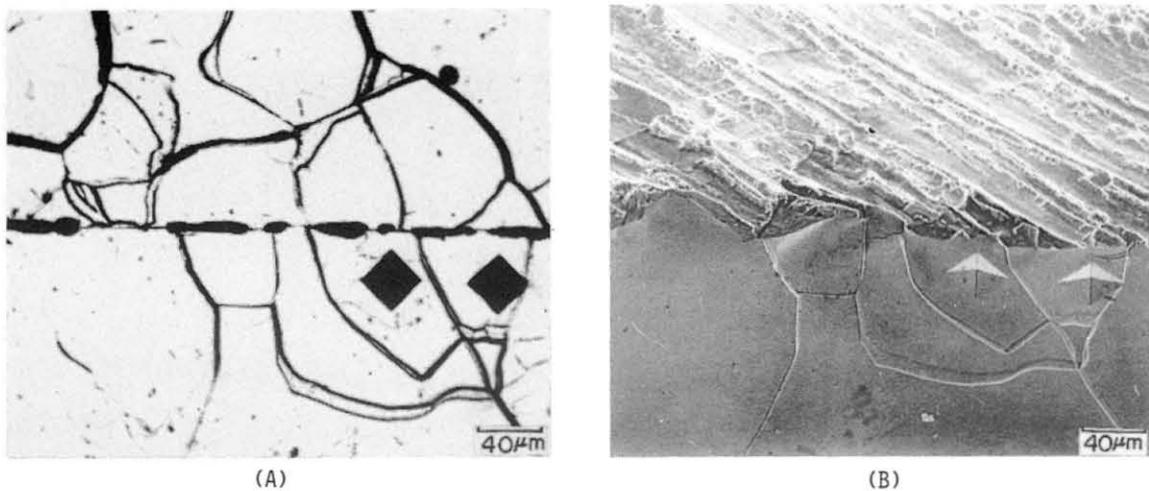


図 2-8 図 2-7(A)の試験片での光学顕微鏡写真(A)と引張試験後の図 2-7(B)での走査型電子顕微鏡写真(B)  
(鉄, 830℃, 32min, 0.5 kgf/mm<sup>2</sup>, 10 µm)

ているのがわかる。

次に、拡散溶接部での密着面積割合の測定法について検討した。破面写真での破断部は拡散溶接部の密着部に対応するので、破面写真から密着面積割合を求める方法及び断面写真から求める方法について調べ、それらを比較検討した。

まず、密着面積割合を引張破面の走査型電子顕微鏡写真から求める方法について検討した。密着面積割合は、破面の走査型電子顕微鏡写真と格子とを重ね合せた図 2-10 に示すような写真で、密着部のところにある格子点数を全格子点数で割って求めた。

図 2-5 の(A)の 200 倍の写真上で、格子間隔 5mm，総格子点数 361 個の測定条件で、破面写真と格子との相対位置を変えた 30 枚の写真について密着面積割合を測定した結果、平均値 63%，標準偏差 1.4%であった。標準偏差を平均値で割って求まる変動率は 2.2%で、本法では測定値の変動が少なく、密着面積割合が測定できる。

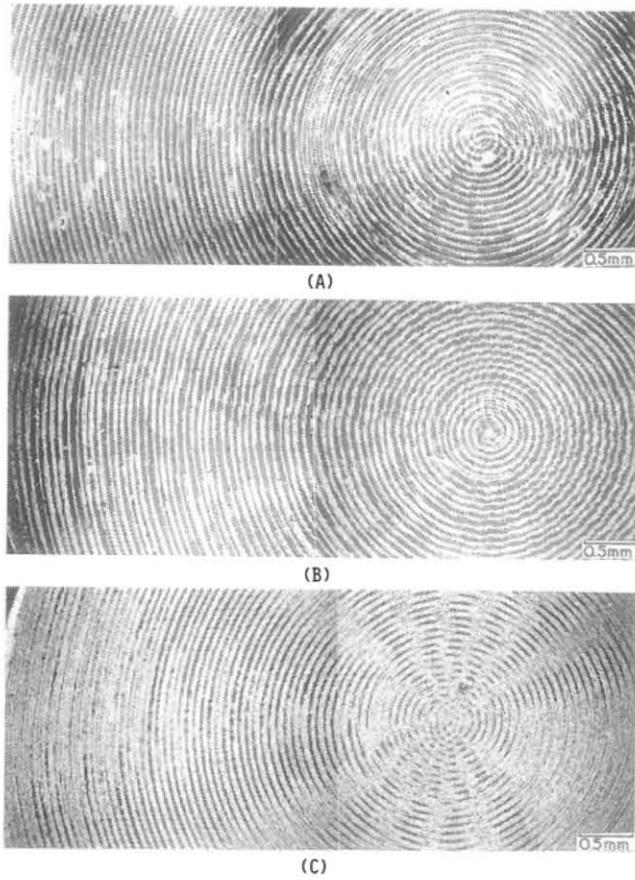


図 2-9 銅を各種の条件で接合した継手の引張破面上の密着部の分布

- (A) 700°C, 4min, 0.8 kgf/mm<sup>2</sup>, 3 μm
- (B) 800°C, 4min, 1 kgf/mm<sup>2</sup>, 3 μm
- (C) 800°C, 4min, 1.6 kgf/mm<sup>2</sup>, 3 μm

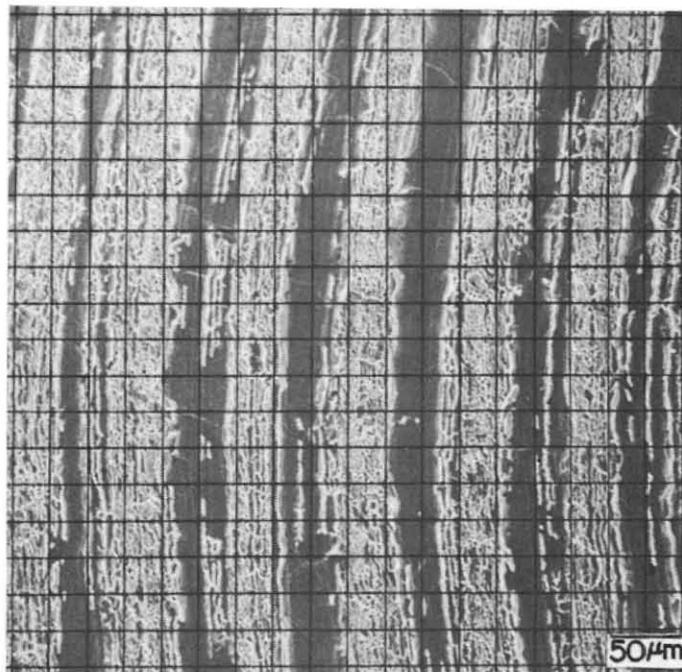


図 2-10 拡散溶接部の破面写真からの密着面積割合の測定法

上記の密着面積割合の測定条件下では、破面上で  $450\ \mu\text{m}$  四方での密着面積割合を求めることになる。そこで、密着部が均一に分布しない拡散溶接部の密着面積割合を求めるのに際し、何枚の写真から求めるのが妥当であるかについて調べた。

図 2-9 のそれぞれの破面について、破面全面を  $1\text{mm}$  間隔で撮影し、撮影した写真についてそれぞれ密着面積割合を求める。次に、例えば写真枚数 8 枚の平均値から拡散溶接部の密着面積割合を求めた際、この平均値の変動について考えてみる。全写真から無作為に 8 枚の写真を取り出し、その平均値を求める。同じことを 10 回繰り返して、その平均値の標準偏差を求める。このようにして各写真枚数での平均値の標準偏差を求めた。図 2-11 は、図 2-9 の (C) の破面について密着面積割合の平均値を求める際の写真枚数が平均値の標準偏差にどのように影響するかを示している。その結果、密着面積割合を求める写真枚数が増えると、平均値の標準偏差は急激に減少し、写真枚数の増加とともに平均値の変動が少なくなることがわかる。

8 枚の写真からの平均値の標準偏差は、図 2-9 の (C) の破面では図 2-11 に見られるように全体の平均値 63 % に対して 2.4 % であり、変動率は 3.8 % である。同じ方法で求めた図 2-9 の (A), (B) の破面では、密着面積割合の平均値は 43 % 及び 24 % で、変動率は 3.7 %, 9.6 % である。

密着面積割合が小さい場合、その測定値の変動が大きくなる傾向にあるが、8 枚の写真から比較的精度よく拡散溶接部の密着面積割合が求まることがわかる。密着面積割合を破面から測定する方法では、8 枚の破面写真から求めた。

次に、拡散溶接部断面の光学顕微鏡写真から求める方法について検討した。図 2-4 に示したように、拡散溶接部断面の光学顕微鏡写真には、接合境界上に密着部と空隙が見られる。接合境界部全長の観察から、接合境界全長に対する密着部の長さの総和の割合を求める。引き続

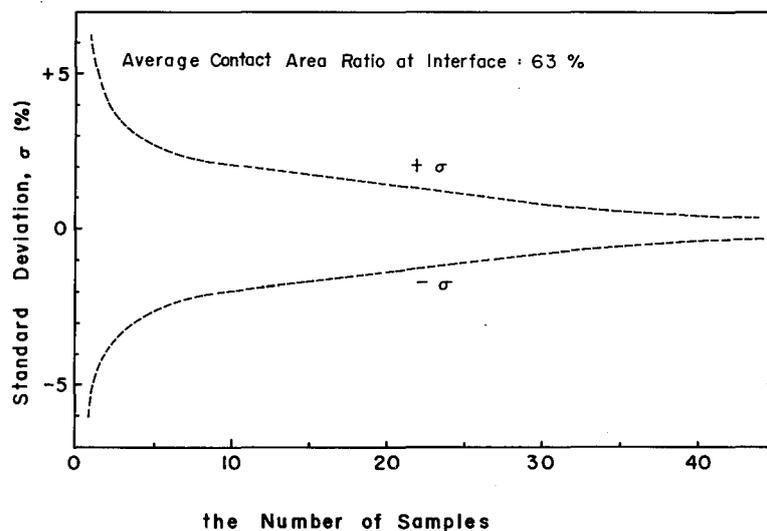


図 2-11 密着面積割合の平均値を求める際の破面写真枚数と算出した値の標準偏差との関係

いて観察面を約1mm削り取っては割合を測定し、8断面の平均から密着面積割合を算出した。

このようにして、破面写真及び断面写真から求めた密着面積割合の値を比較してみる。同じ条件で拡散溶接した継手2本について、一方は断面の光学顕微鏡観察から、一方は破面の走査型電子顕微鏡観察から、密着面積割合を求めた。

図2-12は銅及び鉄を各種の接合圧力で接合し、断面及び破面から求めた密着面積割合と接合圧力との関係を示している。いずれの材料においても、測定法による密着面積割合の差はあまり見られない。

以下、密着面積割合は、測定が比較的簡単な破面写真から求める方法で測定した。

### 2.5 密着面積に及ぼす接合温度、時間、圧力の影響

接合面には微小な突起があり、この面を突き合せて拡散溶接すると、図1-1に示したように、接合の初期では突起部が変形して密着面積が増加する。本節では、拡散溶接過程の初期段階における密着面積の増加過程への接合温度、時間、圧力の影響について調べた。

拡散溶接部の密着箇所は、前節で明らかなように、無数にあり、その大きさ及び形状も複雑である。そこで、接合面での密着部をモデル化し、図2-13に示すような密着部を1個とした円錐形状試験片と平坦面を突き合せた密着部の観察から、材料の高温での変形性能を求めた。この変形性能と拡散溶接部の密着面積割合との関係を明らかにし、接合初期過程での密着面積を接合温度、時間、圧力で定量化することを試みた。

なお、本節では、図2-3に示した粗さ3~10 $\mu\text{m}$ の接合面をもつ各種材料の試験片について検討した。これより粗さの小さい試験片については、次節で述べる。

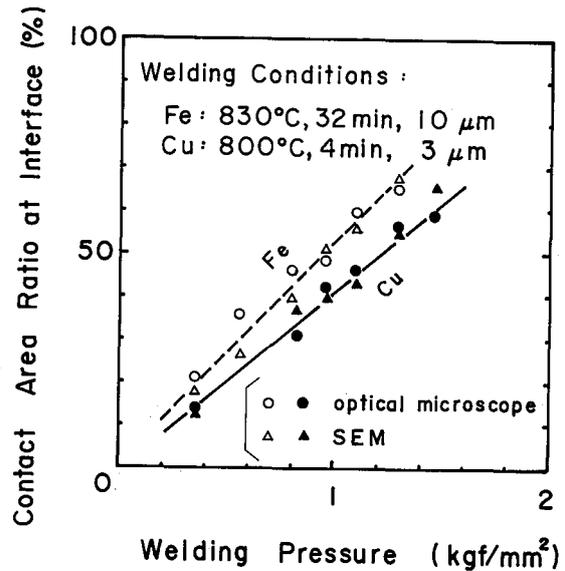


図2-12 断面の光学顕微鏡観察及び破面の走査型電子顕微鏡観察から求めた密着面積割合の比較

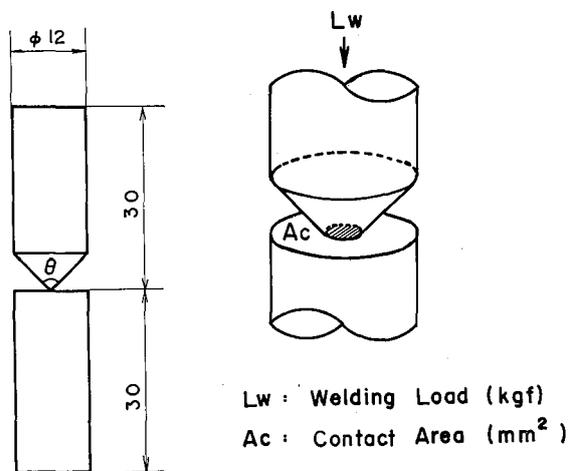


図2-13 円錐形状試験片の寸法及び密着部の外観図

### 2.5.1 密着部を単純化した円錐形状試験片の高温変形

拡散溶接過程の初期段階における接合面の突起が変形し密着した面積は、材料の高温での変形性能に密接に関連することが予想される。したがって、材料の変形性能が既知であれば、拡散溶接部の密着面積を推測できる。

そこで、拡散溶接部での密着箇所の一個を取り出して密着部をモデル化した図2-13のような円錐形状試験片と平坦な試験片の密着部を調べた。特に、密着部の面積( $A_c$ )に及ぼす円錐形状試験片の頂角( $\theta$ )、温度、時間、圧力の影響について検討し、材料の高温での変形性能を表す指標を求めた。

まず、円錐形状試験片と平坦な試験片との密着部の外観、断面及び破面について調べた。

銅の円錐形状試験片と平坦な試験片とを24 kgfの荷重下で800℃、4min加熱した。図2-14に円錐形状試験片の頂角が40度、60度及び140度での密着部の外観写真を示す。また、図2-15の(A)に頂角が60度の時の密着部断面の光学顕微鏡写真、(B)に引張破面の走査型電子顕微鏡写真を示す。(A)の組織写真からわかるように、光学顕微鏡的には、銅の密着部に空隙は全く認められない。また、円錐形状試験片の破面(B)には、全面ディンプルが見られる密着部のみで、丸棒の突き合せ接合部の破面に見られたような未密着部は見られない。このように、円錐形状試験片での銅の密着部は全面密着している。

次に銅以外のチタン、鉄、アルミニウム及びSUS304ステンレス鋼についても、同様に円錐形状試験片と平坦な試験片の密着部を調べた。図2-16には円錐形状試験片の破面の走査型電子顕微鏡写真を示している。チタン、鉄及びSUS304ステンレス鋼の破面にはディンプルが見られ、全面密着している。アルミニウムの破面には、第5章で述べるように、酸化皮膜が原因でディンプルは見られないが、他の金属と同様に全面密着していると考えられる。

以上のことから、円錐形状試験片の密着部は全面密着し、ほぼ円形であることがわかる。そこで、図2-13に示した外観から密着部の直径を測定して密着面積を求めることができる。

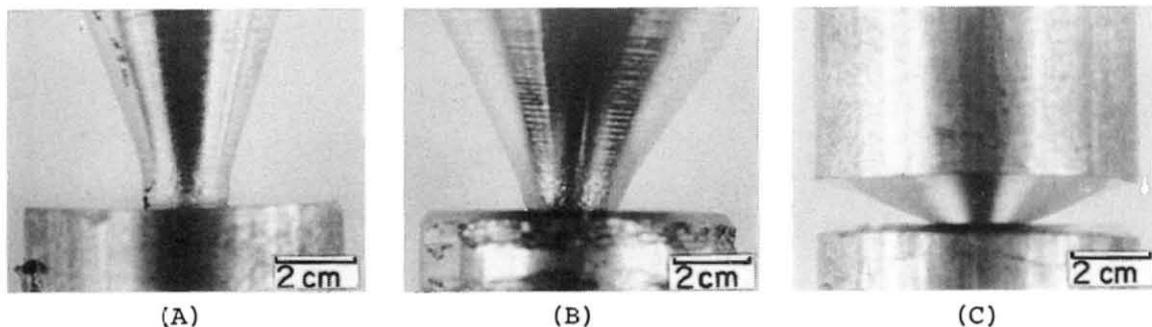
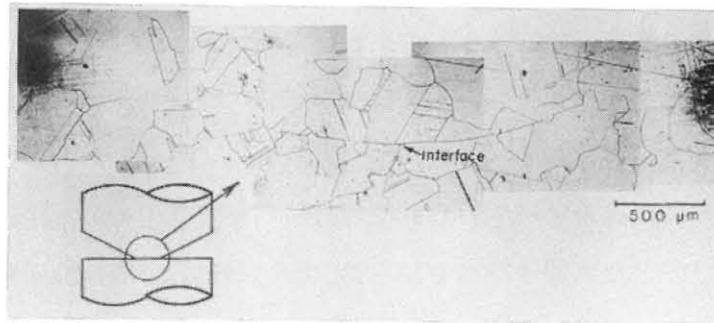


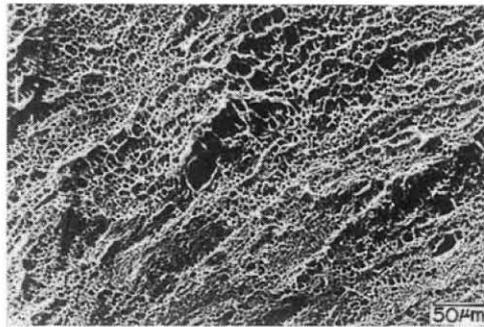
図2-14 各種頂角での円錐形状試験片の密着部のマクロ写真

(A) 40度 (B) 60度 (C) 140度

(接合条件：銅，800℃，4min，24kgf)

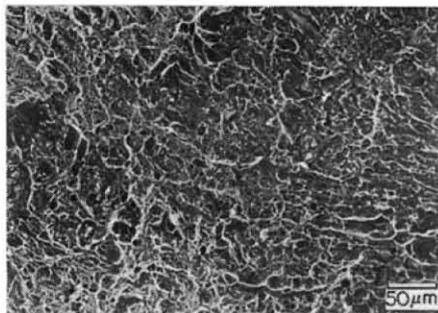


(A)

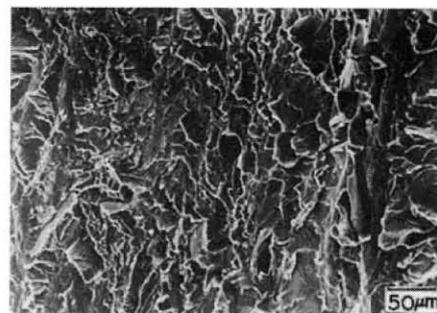


(B)

図 2-15 円錐形状試験片の密着部断面の光学顕微鏡写真(A)及び引張破面の走査型電子顕微鏡写真(B)  
(接合条件：銅, 800°C, 4min, 24kgf, 60度)



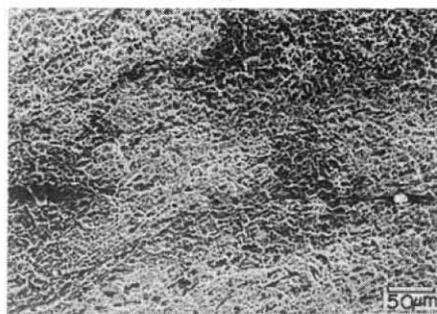
(A)



(B)



(C)



(D)

図 2-16 各種材料の円錐形状試験片の引張破面の走査型電子顕微鏡写真  
(A) 鉄 (830°C, 4min, 24kgf, 60度)  
(B) チタン (830°C, 4min, 24kgf, 60度)  
(C) アルミニウム (600°C, 4min, 8kgf, 60度)  
(D) SUS304 ステンレス鋼  
(1100°C, 4min, 24kgf, 60度)

次に、このように算出した円錐形状試験片の密着面積への円錐の頂角の影響を調べた。図2-17は各種金属について頂角を40度から140度まで変えた時の密着面積を示している。頂角が160度をこえると密着部の直径を外観から光学顕微鏡で測定するのが困難となった。また頂角30度以下では円錐が座屈した。図より実験した角度範囲の頂角では、密着面積は円錐の頂角に関係しないことがわかる。

次に、頂角60度一定として、密着面積への接合荷重の影響を検討した。図2-18は、銅を700℃及び800℃で4min加圧し接合した時の結果である。荷重に比例して直線的に密着面積が大きくなる。しかし密着面積が20mm<sup>2</sup>以上と大きくなると、その直線のこう配が低下する傾向にある。直線のこう配の低下の原因は、円錐が大きく変形し平面に円柱をたてたような外観形状となって、密着面積の小さい時の円錐台が平面に接している形状と異なるためと考えられる。

密着面積が20mm<sup>2</sup>以下と小さい領域で、円錐形状試験片の密着面積(Ac)は接合荷重(Lw)に比例するとした場合、次のように表される。

$$A_c = A_s \cdot L_w \quad (2-1)$$

A<sub>c</sub> : 円錐形状試験片の密着面積 (mm<sup>2</sup>)

L<sub>w</sub> : 接合荷重 (kgf)

A<sub>s</sub> : 比例定数

比例定数 A<sub>s</sub> は

$$A_s = A_c / L_w \quad (2-2)$$

で求まる。比例定数 A<sub>s</sub> は単位接合圧力下で密着した面積を表す値で、この比例定数 A<sub>s</sub> の値が

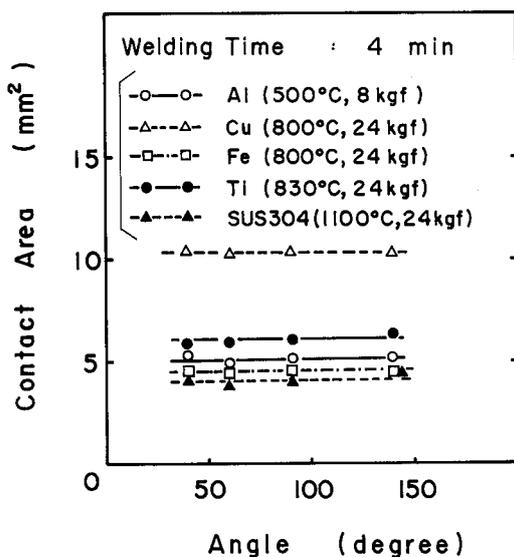


図2-17 各種材料の円錐形状試験片での密着面積と頂角との関係

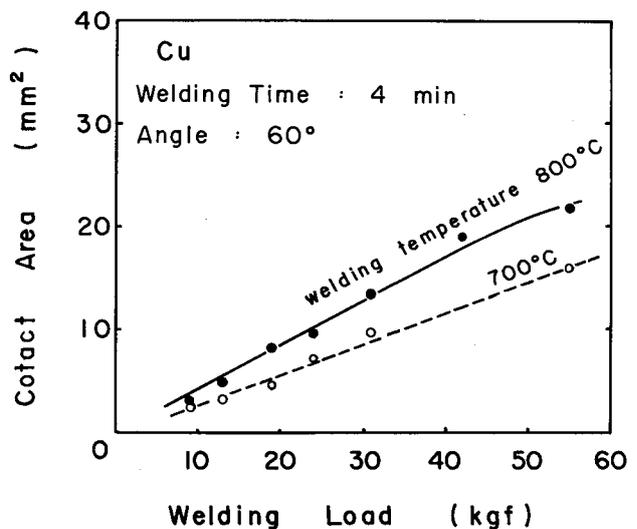


図2-18 円錐形状試験片での密着面積と接合荷重との関係

わかれば任意の接合荷重下での密着面積がわかることになる。この比例定数  $A_s$  を密着面積指数と呼ぶことにする。

次に、円錐形状試験片の密着面積への接合時間の影響を調べた。図 2-19 は接合荷重 8 及び 24 kgf での実験結果で、密着面積を荷重で割った値、つまり密着面積指数  $A_s$  と接合時間との関係図である。密着面積指数は荷重に関係なく、接合時間の経過とともに増加する。接合荷重が 24 kgf で接合時間が長い時、8 kgf の場合より密着面積指数が小さくなるのは、接合荷重 24 kgf では密着面積が約  $20 \text{ mm}^2$  と大きいためである。

図 2-20 には、銅、SUS304 ステンレス鋼、鉄、チタン及びアルミニウムについて、各種の接合温度での密着面積指数  $A_s$  への接合時間の影響を調べた結果を示している。図より単位接合圧力下で密着した面積を表す密着面積指数  $A_s$  は、接合時間とともに増加することがわかる。750 ~ 860 °C の  $\alpha$  鉄、1000 ~ 1150 °C の  $\gamma$  鉄の実験温度領域では、密着面積指数  $A_s$  は温度の上昇とともに大きくなっている。しかし  $A_3$  変態点で  $A_s$  は不連続で、 $\alpha$  鉄から  $\gamma$  鉄になると  $A_s$  は低下している。なお、高温硬さの測定結果によれば、 $\alpha$  鉄から  $\gamma$  鉄に変化すると、逆に硬さが増加する。<sup>21)</sup> このように変態点での密着面積指数  $A_s$  と高温硬さの変化は全く逆である。この原因は、硬さは測定荷重を圧子の密着面積で割って求められ、高温硬さの逆数が密着面積指数に相当するからである。

以上の結果、円錐形状試験片の密着部には空隙は見られず、ほぼ全面密着している。この密

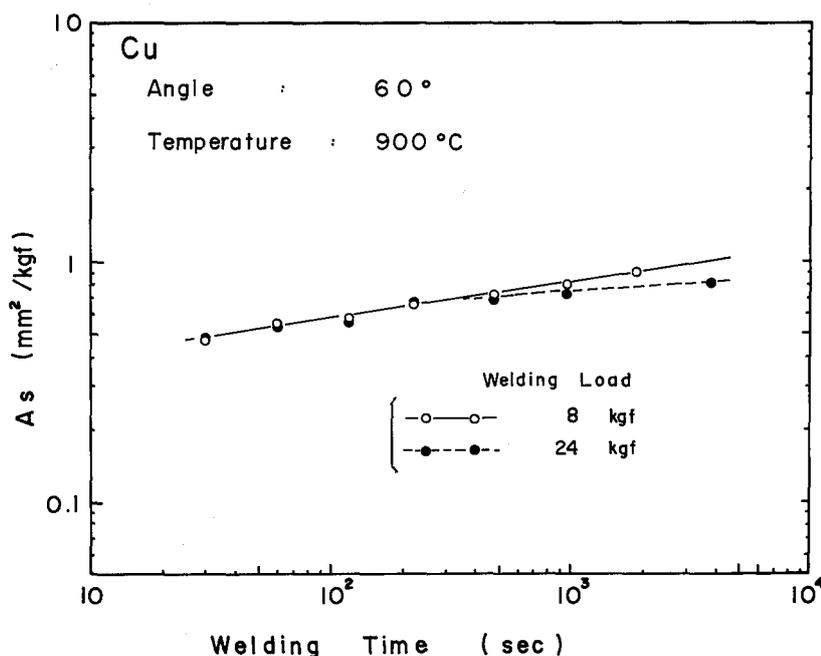


図 2-19 銅の密着面積指数  $A_s$  と接合時間との関係に及ぼす荷重の影響

着部の面積は円錐の頂角が 40 ~ 140 度の範囲では円錐の頂角に関係なく一定である。密着面積は接合温度，時間，荷重の増加とともに大きくなる。この密着面積を接合荷重で割って算出した密着面積指数  $A_s$  は，単位接合圧力で密着する面積を示す材料特有の値で，密着面積が 20  $\text{mm}^2$  以下の条件では，円錐の頂角，荷重には関係せず，接合温度，時間のみに依存することがわかる。

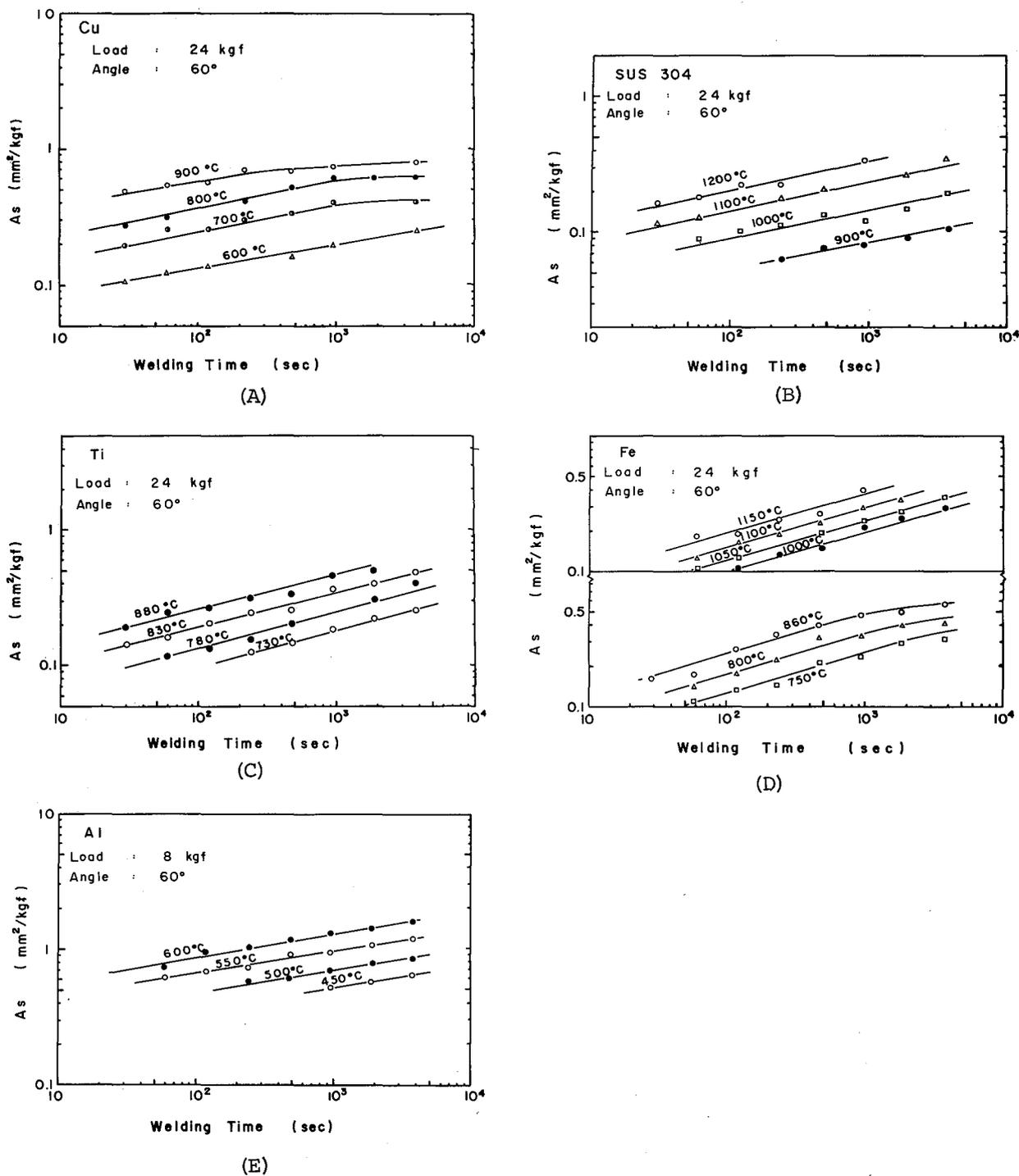


図 2-20 各種材料での密着面積指数  $A_s$  に及ぼす接合温度，時間の影響

- (A) 銅
- (B) SUS304 ステンレス鋼
- (C) チタン
- (D) 鉄
- (E) アルミニウム

### 2.5.2 円錐形状試験片の密着部の変形とクリープ変形

円錐形状試験片の密着面積は接合温度，時間，荷重の増加とともに大きくなる。したがって，密着面積の増加はクリープ変形と密接に関係することが予想される。そこで，円錐形状試験片の密着面積の実験式を求め，密着面積の増加過程について速度論的考察を行い，密着面積の増加機構について考える。

図 2-20 の(A)に示した銅についての密着面積指数  $A_s$  と接合時間との関係図から，直線部分の  $A_s$  の実験式を求めた。各温度での直線部分のこう配の平均値は  $1/5.5$  である。図中の直線部分のこう配を温度に関係なく  $1/5.5$  とみなすと，

$$A_s = C t_w^{1/5.5} \quad (2-3)$$

と書き表すことができる。ここで  $C$  は定数， $t_w$  は接合時間 (sec) である。定数 ( $C$ ) は温度によって変るので，いま図 2-20 の(A)から接合時間 100 sec での  $A_s$  値を読み取り，この値を (2-3) 式に代入して，各温度での定数 ( $C$ ) の値を求めた。定数 ( $C$ ) と接合温度 ( $T_w$  K) の逆数 ( $1/T_w$ ) との関係を表対数のグラフ上に書き表すと，図 2-21 が得られ，アレニウスの式を満足することがわかる。したがって，定数 ( $C$ ) は次式で表される。

$$C = 12.5 \exp(-9300/RT_w) \quad (2-4)$$

ここで  $R$  は気体定数 ( $1.98 \text{ cal/mol}\cdot\text{K}$ ) である。(2-4) 式を (2-3) 式に代入すると，次のようになる。

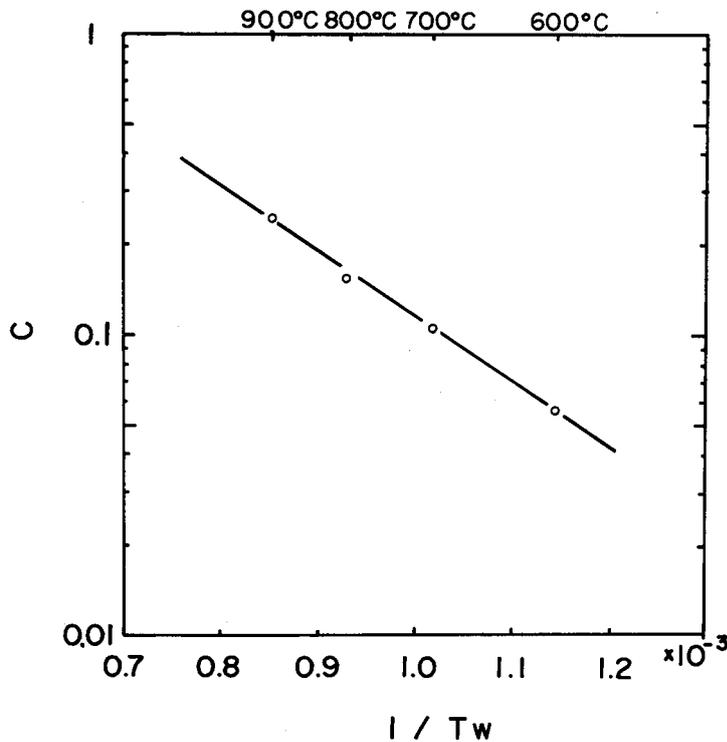


図 2-21 定数(C)と接合温度 ( $T_w$ ) の逆数との関係

$$A_s = 12.5 \{ t_w \exp(-51150/RT_w) \}^{1/5.5} \quad (2-5)$$

銅以外の各種金属についても、図 2-20 から  $A_s$  の実験式を求めた結果、次式で書き表すことができる。

$$A_s = C_1 \{ t_w \exp(-Q/RT_w) \}^{1/n} \quad (2-6)$$

ところで、 $C_1$  は定数、 $1/n$  は直線のこう配に相当する。表 2-2 に、各種金属について得られた  $C_1$ 、 $Q$ 、 $n$  の値、及び文献<sup>22~25)</sup>に見られるクリープのみかけの活性化エネルギーを示している。

各種金属で得られた密着面積増加のみかけの活性化エネルギーは、それぞれクリープ変形でのみかけの活性化エネルギーに比較的一致している。

円錐形状試験片の実験は高温硬さ測定と類似している。高温硬さの値は、圧子の加圧時間とともに小さくなる。この高温硬さの時間的変化のみかけの活性化エネルギーはクリープの活性化エネルギーに近似的に一致し、その変形過程はクリープ変形によると考えられている<sup>21)</sup>。

以上のことから、円錐形状試験片での接合荷重下の密着面積が形成される過程は、クリープ変形に大きく依存していることがわかる。

表 2-2 各種材料の密着面積指数  $A_s$  を表す実験式での変数の値

$$A_s = C_1 \{ t_w \exp(-Q/RT_w) \}^{1/n}$$

Metals	$T_w$ (K)	$C_1$	$Q$ (cal/mol)	$n$	$Q$ for Creep(cal/mol)
Al	723~873	17	38000	5.8	35000(603~853 K) <sup>22)</sup>
Cu	873~1173	12.5	51150	5.5	47000~55700 <sup>23)</sup>
$\alpha$ Ti	1003~1153	42	54000	3.7	57000(811~1144 K) <sup>24)</sup>
$\alpha$ Fe	1023~1133	130	66000	4.0	68000~78000 <sup>23)</sup>
$\gamma$ Fe	1273~1423	22	60000	3.4	70000~73000 <sup>23)</sup>
SUS 304	1173~1473	9.8	72500	5.1	78000(923~1023 K) <sup>25)</sup>

### 2.5.3 円錐形状試験片での密着面積と拡散溶接部での密着面積

微小な凹凸のある接合面同士を突き合せた拡散溶接部での密着面積と、円錐形状試験片から求まる密着面積指数  $A_s$  との関係について調べた。なお、アルミニウム以外の密着面積割合が測定できる銅、鉄、チタン及び SUS 304 ステンレス鋼を用いて検討した。

いま、図 2-22 に旋盤加工した接合面同士を突き合せた際の接合前の接合面の模式図 (A) と、接合した後の断面の模式図 (B) を示す。凹凸のある接合面を突き合せて、加熱下で接合荷重を加えた場合、加圧した直後各々の突起部は材料の降伏応力にみあった面積で密着し、保持時間の増加とともにそれらの面積は増大すると考えられる。

接合面の個々の突起部が変形して密着した拡散溶接部での面積と円錐形状試験片から求まる密着面積指数との関係を次の仮定のもとに求めている。

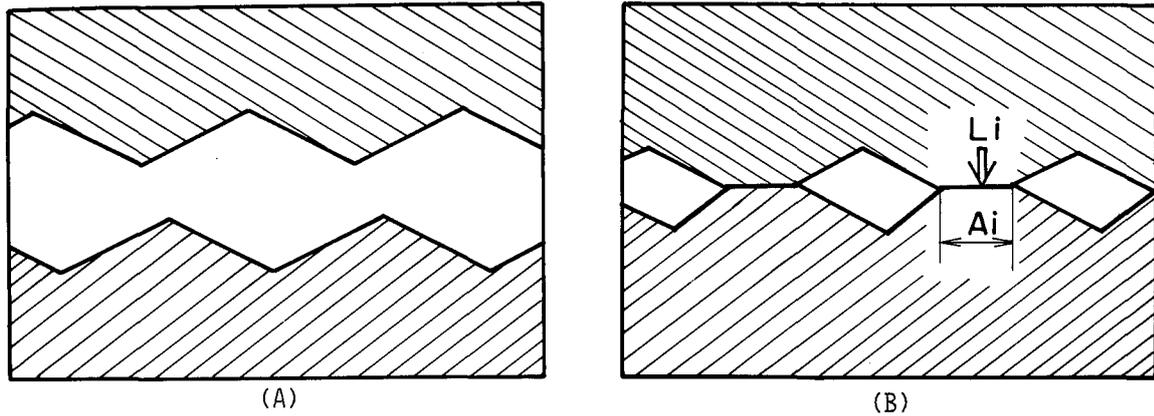


図 2-22 接合前の接合面の模式図(A)及び接合した後の断面の模式図(B)

$L_i$  : 個々の密着部に加わる接合荷重  
 $A_i$  : 個々の密着部の面積

- (1) 接合面の各々の突起部の小さな密着部の変形は、同じ温度、時間で接合した円錐形状試験片での密着面積が  $20 \text{ mm}^2$ 以下と小さい時の変形と同じ塑性変形状態になっている。
- (2) 接合面の各々の突起部の密着面積は、接合面の突起部の形状、また隣接する密着部にも影響されない。

上記の仮定から、各々の突起部の密着面積 ( $A_i$ ) と突起部に加わる荷重 ( $L_i$ ) の比は密着面積指数 ( $A_s$ ) に一致し、

$$A_i / L_i = A_s \quad (2-7)$$

と書きあらわせる。拡散溶接部での密着面積 ( $A_b$ ) は個々の突起部の密着面積 ( $A_i$ ) の総和であるから、(2-7)式は

$$A_b = \sum A_i = A_s \cdot \sum L_i \quad (2-8)$$

と書き換えられる。密着部に加わる荷重の総和 ( $\sum L_i$ ) は拡散溶接時の接合荷重 ( $L_w$ ) に相当する。(2-8)式は、

$$A_b = A_s \cdot L_w \quad (2-9)$$

となる。丸棒の断面積 ( $A$ ) に対する密着面積の割合 ( $A_b / A$ ) は、(2-9)式から、

$$A_b / A = A_s \cdot L_w / A \quad (2-10)$$

となる。つまり(2-10)式は、拡散溶接部での密着面積割合が、密着面積指数 ( $A_s$ ) と接合圧力 ( $L_w / A$ ) との積から求まることを示している。

次に、各種接合条件の拡散溶接部の密着面積割合を測定して、(2-10)式への接合温度、時間、圧力の影響について調べ、(2-10)式の妥当性を検討した。

まず、(2-10)式への接合温度の影響を調べた。図 2-23 は、銅の丸棒を突き合せて各種の温度で接合した際の、拡散溶接部での密着面積割合と接合圧力との関係図である。この図

の横軸の接合圧力 ( $L_w/A$ ) を、 $A_s \cdot L_w/A$  で書きあらためるため、銅の  $A_s$  の実験式 (2-5) 式から拡散溶接時の温度、時間での密着面積指数 ( $A_s$ ) の値を算出した。この密着面積指数 ( $A_s$ ) と接合圧力 ( $L_w/A$ ) との積 ( $A_s \cdot L_w/A$ ) を求めた。図 2-24 には、密着面積割合と  $A_s \cdot L_w/A$  との関係を示す。拡散溶接部の密着面積割合は、いずれの接合温度においても  $A_s \cdot L_w/A$  と比例関係にあり、(2-10) 式が成立することがわかる。

次に、(2-10) 式への接合時間の影響を調べた。図 2-25 は、接合面の粗さが  $3 \mu\text{m}$  の銅を  $800^\circ\text{C}$  及び  $900^\circ\text{C}$  で拡散溶接した時の密着面積割合と接合時間の関係を示す。実線は実測値、破線は (2-10) 式に  $A_s$  の実験式 (2-5) 式を代入して得られた値を示している。実験した接合時間範囲内では、破線の  $A_s \cdot L_w/A$  から得られた値と実線の実測値とは比較的一致

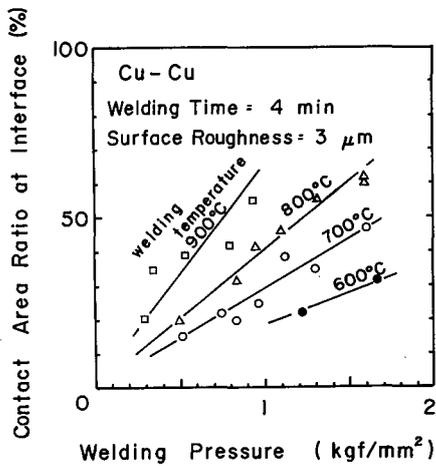


図 2-23 各種接合温度での拡散溶接部の密着面積割合と接合圧力との関係

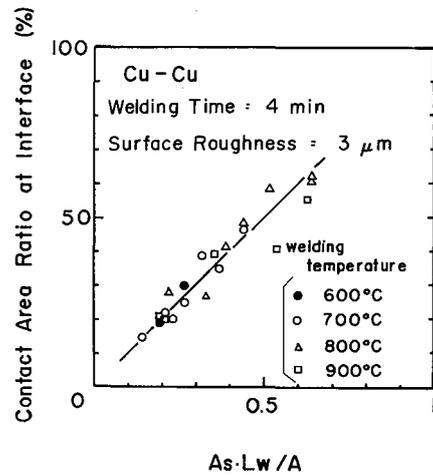


図 2-24 銅の拡散溶接部の密着面積割合と  $A_s \cdot L_w/A$  との関係

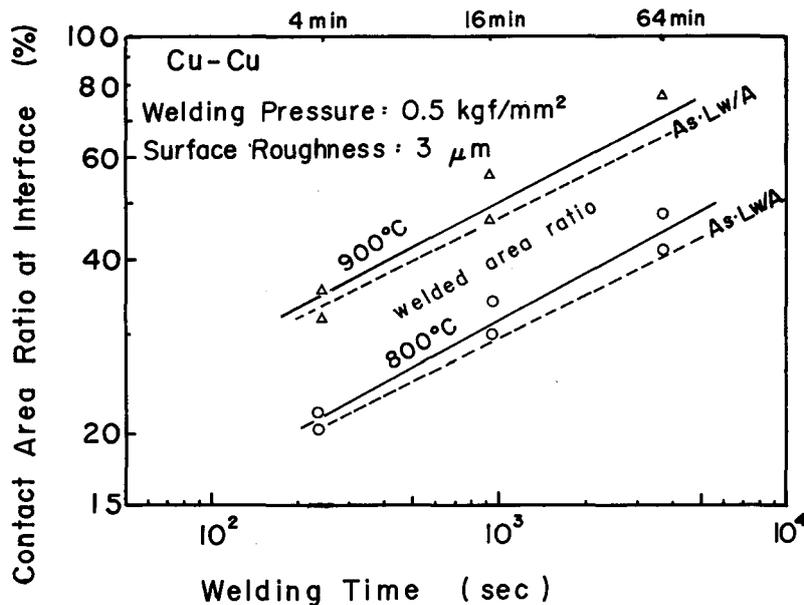


図 2-25 銅の拡散溶接部の密着面積割合に及ぼす接合時間の影響  
破線は  $800^\circ\text{C}$  及び  $900^\circ\text{C}$  での  $A_s \cdot L_w/A$  の値

しており、密着面積割合は  $As \cdot Lw / A$  から求まることがわかる。

次に、密着面積割合と  $As \cdot Lw / A$  との関係への接合圧力 ( $Lw / A$ ) の影響について調べた。図 2-24 では、接合荷重 ( $Lw$ ) の大きさを変えることによって  $As \cdot Lw / A$  の値を変えている。 $As \cdot Lw / A < 0.6$  の接合圧力条件下では、 $As \cdot Lw / A$  は拡散溶接部での密着面積割合を示している。接合荷重が増加して  $As \cdot Lw / A > 0.6$  の条件下では、丸棒が「く」の字の形に変形するようになり、 $As \cdot Lw / A$  と密着面積割合との関係を調べることができなかった。

そこで、試験片が「く」の字の形に変形しないように、図 2-26 の図中に示すような継手部の断面積を小さくした試験片を用いて接合した。接合面の粗さ  $3 \mu\text{m}$  及び  $10 \mu\text{m}$  の銅を接合し、継手の破面から求まる密着面積割合と  $As \cdot Lw / A$  との関係を図 2-26 は示している。この試験片を用いて接合した際、例えば  $As \cdot Lw / A \div 0.9$  では継手部の断面積の増加割合は 15% 程度となるが、試験片が「く」の字に変形することなく接合できた。図より  $As \cdot Lw / A > 0.6$  の条件下でも、密着面積割合は  $As \cdot Lw / A$  にほぼ比例することが明らかになった。図 2-27 に  $As \cdot Lw / A = 0.94$  の接合条件下の破面写真を示すが、 $As \cdot Lw / A$  が 1 近くなるとほぼ全面密着している。このように  $As \cdot Lw / A$  から密着面積割合を予測でき、全面密着するには  $As \cdot Lw / A$  が 1 となるような条件で拡散溶接すればよいことがわかる。

以上の結果、粗さ  $3 \mu\text{m}$  の銅の拡散溶接部における密着面積割合は次の接合条件範囲で  $As \cdot Lw / A$  から求まる。接合温度 ( $T_w$ )、時間 ( $t_w$ )、圧力 ( $Lw$ ) の範囲は、それぞれ  $0.6 < T_w / T_m < 0.9$ ,  $1 \text{ min} < t_w < 60 \text{ min}$ ,  $0 < As \cdot Lw / A < 0.9$  である。ただし、 $T_m$  は材料の融点 (K) である。

次に銅以外の材料についても、(2-10) 式が成立するかどうかを調べた。図 2-28 に、各種材料の拡散溶接部の密着面積割合と  $As \cdot Lw / A$  との関係を示す。いずれの材料においても

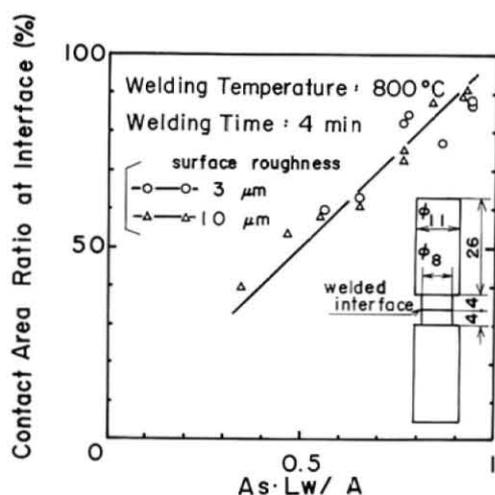


図 2-26 図中に示した試験片を用いて接合した時の、密着面積割合と  $As \cdot Lw / A$  との関係

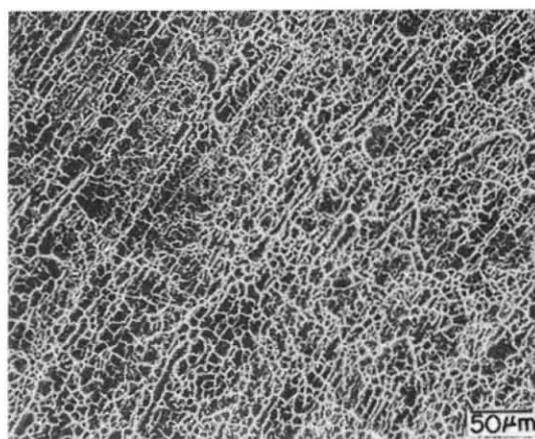


図 2-27  $As \cdot Lw / A = 0.94$  で接合した銅の引張破面の走査型電子顕微鏡写真 ( $800^\circ\text{C}$ ,  $2 \text{ kgf}/\text{mm}^2$ ,  $4 \text{ min}$ ,  $3 \mu\text{m}$ )

拡散溶接部の密着面積割合は  $A_s \cdot L_w / A$  と比例関係にあり，密着面積割合は円錐形状試験片の結果から推測できることがわかる。

以上のことから，拡散溶接部の密着面積割合は (2-10) 式に  $A_s$  の実験式 (2-6) 式を代入して次式で求まる。

$$A_b / A = C_1 \cdot L_w / A \{ t_w \exp(-Q/RT_w) \}^{1/n} \quad (2-12)$$

各種材料の  $C_1$ ， $Q$ ， $n$  の値は表 2-2 に示している。

このように，接合面の凹凸が変形して，その密着面積が増加する拡散溶接過程の初期においては，密着面積割合は密着面積指数と接合圧力でもって定量的に表すことができる。

なお，常温で微小な凹凸のある面を突き合せた場合の密着部の面積は表面の凹凸の形状，大きさに関係なく，材料の変形能と加圧力に依存することが報告されている<sup>26, 27)</sup>。拡散溶接でも密着面積は材料の変形能と加圧力に依存しており，常温での変形と類似している。

拡散溶接部の密着面積割合を大きくして，初期の拡散溶接過程をできるだけ速く終了させるには， $A_s \cdot L_w / A$  の値を大きくする必要がある。すなわち，接合荷重 ( $L_w$ ) を大きく，あるいは  $A_s$  の値を高めるために，接合温度を高く時間を長くしなければならない。しかし，拡散溶接部の断面積が増加し，断面積の増加割合から算出した変形度は大きくなる。

今までの各種の接合条件で接合した試験片から変形度を求めた。図 2-29 は変形度と  $A_s \cdot L_w / A$  との関係を示している。接合材の断面積の増加割合を示す変形度は， $A_s \cdot L_w / A$  と密接に関係し， $A_s \cdot L_w / A$  が約 0.2 以上つまり密着面積割合が 20% 以上になると断面積が

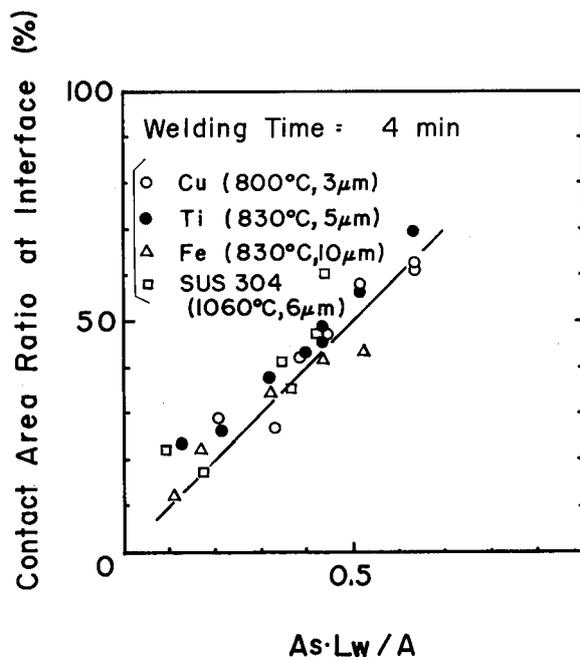


図 2-28 各種材料の拡散溶接部の密着面積割合と  $A_s \cdot L_w / A$  との関係

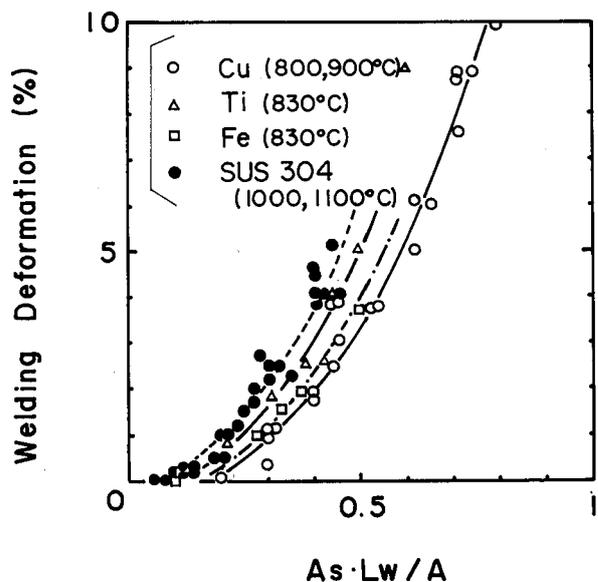


図 2-29 各種材料の拡散溶接部の断面積の増加割合と  $A_s \cdot L_w / A$  との関係  
(Cu: 3 $\mu$ m, Ti: 5 $\mu$ m, Fe: 10 $\mu$ m, SUS304: 6 $\mu$ m)

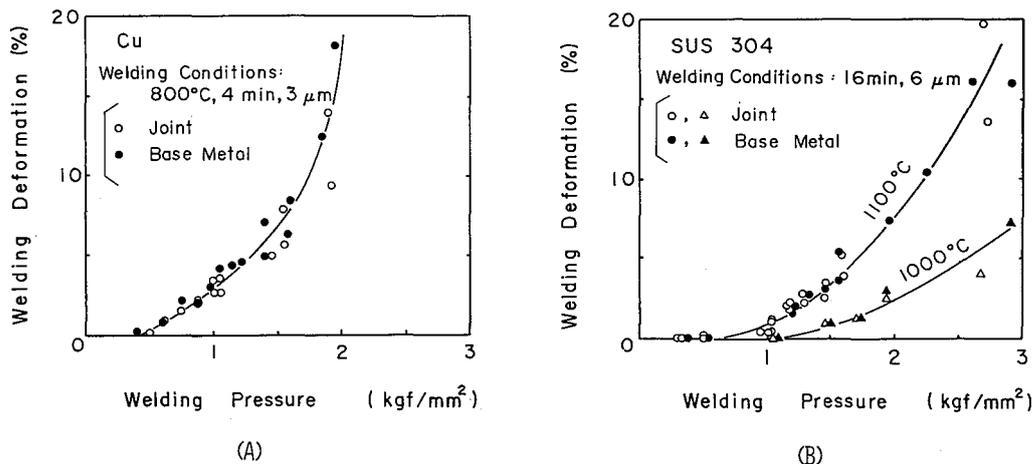


図 2-30 継手と母材における拡散溶接部の断面積の増加割合と接合圧力との関係  
(A) 銅 (B) SUS304 ステンレス鋼

増加し始める。このように全面密着していない状態で、接合材の断面積が増加する原因を調べるため、各種の条件で接合した時の継手と、同じ条件で加熱加圧した母材の変形度を比較した。図 2-30 は銅と SUS304 ステンレス鋼についての結果を示す。なお、変形度が 5% 以上の結果は、接合部の面積を小さくした図 2-26 の試験片形状の結果である。図より継手と母材とに変形度の差が認められない。したがって、全面密着していない条件下で、接合材の断面積が増加する原因の一つとして、断面での応力が密着箇所での応力よりも低いけれども、低い応力に対応したクリープ変形が進行するためと考えられる。

このように数  $\mu\text{m}$  以上の接合面を拡散溶接した時、丸棒が座屈現象を生じない変形度が 6% 以下では、拡散溶接部を全面密着するのは困難であることがわかる。

## 2.6 拡散溶接部の密着面積に及ぼす接合面の粗さの影響

拡散溶接部の密着面積割合と  $A_s \cdot L_w / A$  との関係への接合面の粗さの影響について調べた。供試材として、銅（無酸素銅）を使用した。旋盤加工、化学研磨（研磨液； $\text{HNO}_3$ ：50%， $\text{CH}_3\text{COOH}$ ：25%， $\text{HPO}_3$ ：25%）及びバフ研磨など表面処理法を変えることにより、各種の表面粗さの試験片を作製した。

図 2-31 に触針式表面粗さ計で測定した、各種表面処理法により加工した銅の接合面の粗さ曲線を示す。これらの表面粗さをもつ銅の丸棒を突き合せて  $0.96 \text{ kgf/mm}^2$  の圧力で 4 min、 $800^\circ\text{C}$  の温度で接合した。継手の破面写真から拡散溶接部の密着面積割合を求め、図 2-32 に密着面積割合と接合面の粗さとの関係を示す。この接合条件下での  $A_s \cdot L_w / A$  は 0.4 である。接合面の粗さが  $3 \mu\text{m}$  以上では、粗さに関係なく密着面積割合はほぼ一定で 35 ~ 40% である。

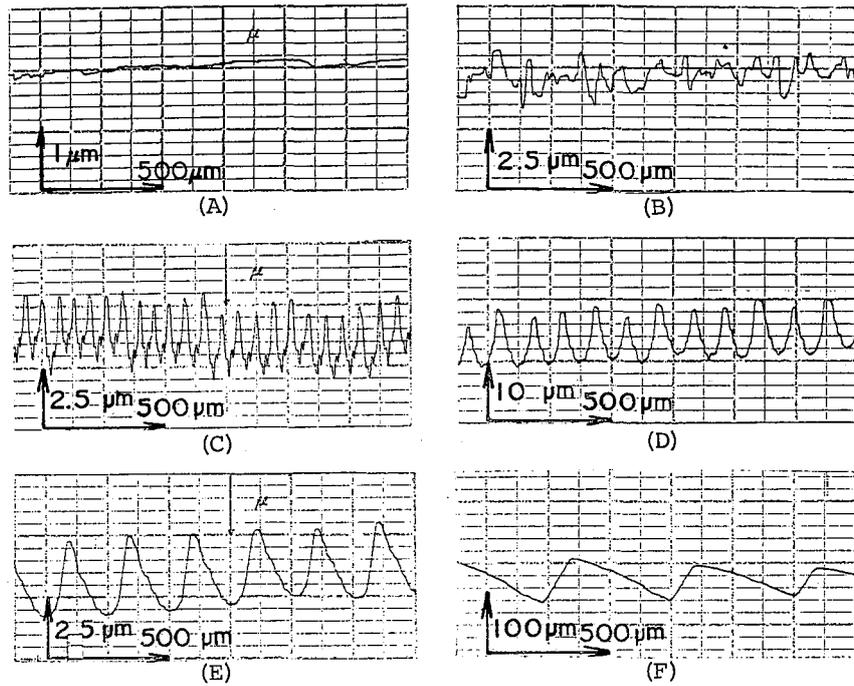


図 2-31 各種表面処理法により加工した銅の接合面の粗さ曲線  
 (A) バフ研磨面 (B) 化学研磨面  
 (C)(D)(E)及び(F) 旋盤加工面

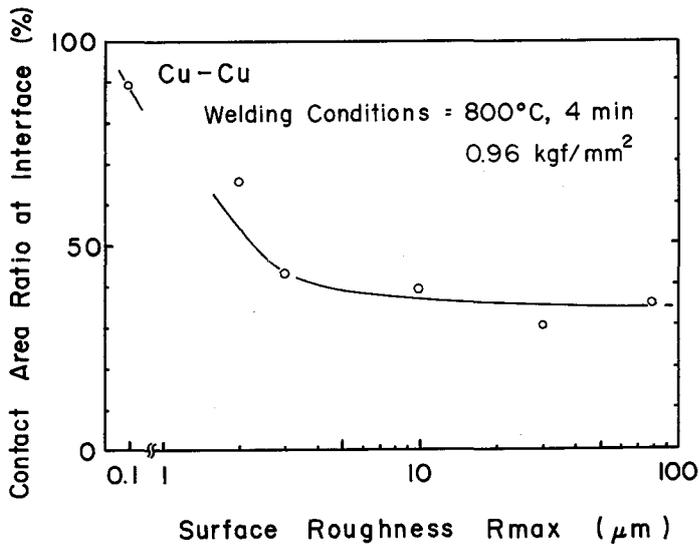


図 2-32 銅の拡散溶接部の密着面積割合と接合面の粗さとの関係

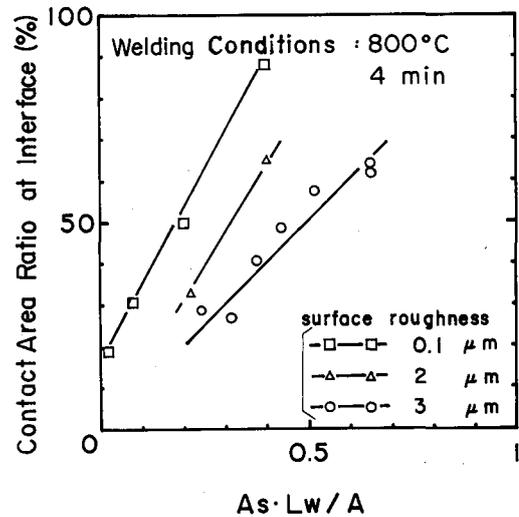


図 2-33 各種表面粗さの銅を接合した時の拡散溶接部の密着面積割合と  $As \cdot Lw / A$  との関係

この値は  $As \cdot Lw / A$  から計算される値と比較的一致している。しかし、粗さが  $2 \mu\text{m}$  以下では拡散溶接部の密着面積割合が増加している。いま接合面の粗さが  $0.1, 2$  及び  $3 \mu\text{m}$  の銅の試験片を各種の圧力下で接合し、破面から求めた密着面積割合と  $As \cdot Lw / A$  との関係図を図 2-33 に示す。粗さ  $2 \mu\text{m}$  以下では、密着面積割合は  $As \cdot Lw / A$  から予測される面積割合より増加する。

次に、接合面の粗さが小さい時、密着面積が増加する原因について検討した。

まず拡散溶接部での空隙の大きさを調べた。図 2-34 に各種の粗さの接合面をもつ丸棒を突き合せて接合した継手の引張破面を示す。バフ研磨材及び化学研磨材の破面写真 (A), (B) では空隙部の分布が不規則であるが、旋盤加工材の破面写真 (C), (D) では空隙部が規則的に分布している。このように表面処理法によって空隙の分布が異なっている。

図 2-35 は、各種粗さの接合面をもつ銅の継手部断面の光学顕微鏡写真である。破面と断面写真から接合面の粗さが小さくなるほど空隙の大きさが小さく、その数が増加するのがわかる。

粉末の焼結時に見られる空隙の収縮現象では、空隙の大きさが小さくなるほど、空隙の収縮が活発になる。<sup>28)</sup>そこで、拡散溶接継手を無荷重下で加熱して、密着面積の増加現象と粉末の焼結時に見られる収縮現象との関係を調べた。

各種粗さの銅の試験片を接合温度 600 °C、圧力 1.2 kgf/mm<sup>2</sup>、4 min で予備接合して、これらの継手を無荷重下で種々の温度で加熱した。図 2-36 に接合面の粗さ 2 μm の銅継手を加熱した際の引張強さの増加量と加熱時間との関係を示す。加熱時間とともに継手の引張強さが

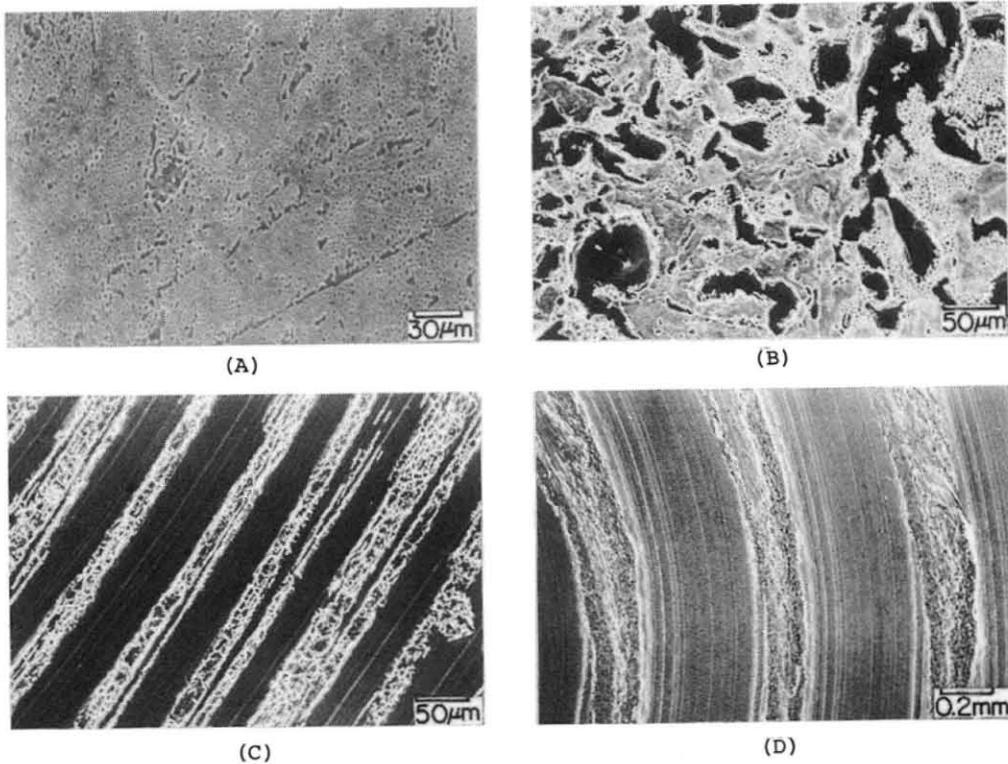


図 2-34 各種粗さの接合面を拡散溶接した継手の破面の走査型電子顕微鏡写真  
(接合条件：銅，800°C，4min，0.96kgf/mm<sup>2</sup>)

- (A) バフ研磨面 (Rmax : 0.1 μm)
- (B) 化学研磨面 (Rmax : 2 μm)
- (C) 旋盤加工面 (Rmax : 3 μm)
- (D) 旋盤加工面 (Rmax : 70 μm)

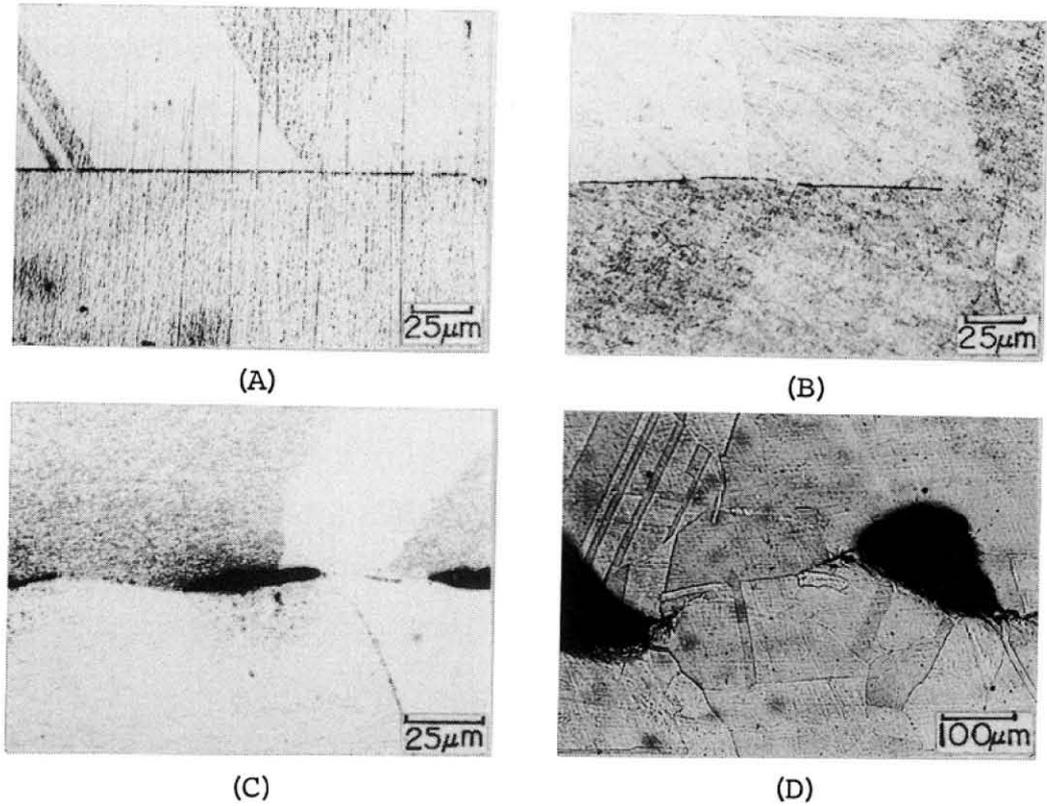


図 2-35 各種粗さの接合面をもつ銅の継手部断面の光学顕微鏡写真  
 (接合条件: 800°C, 4min, 0.96 kg f/mm<sup>2</sup>)

- (A) バフ研磨面 (Rmax : 0.1 μm)
- (B) 化学研磨面 (Rmax : 2 μm)
- (C) 旋盤加工面 (Rmax : 3 μm)
- (D) 旋盤加工面 (Rmax : 70 μm)

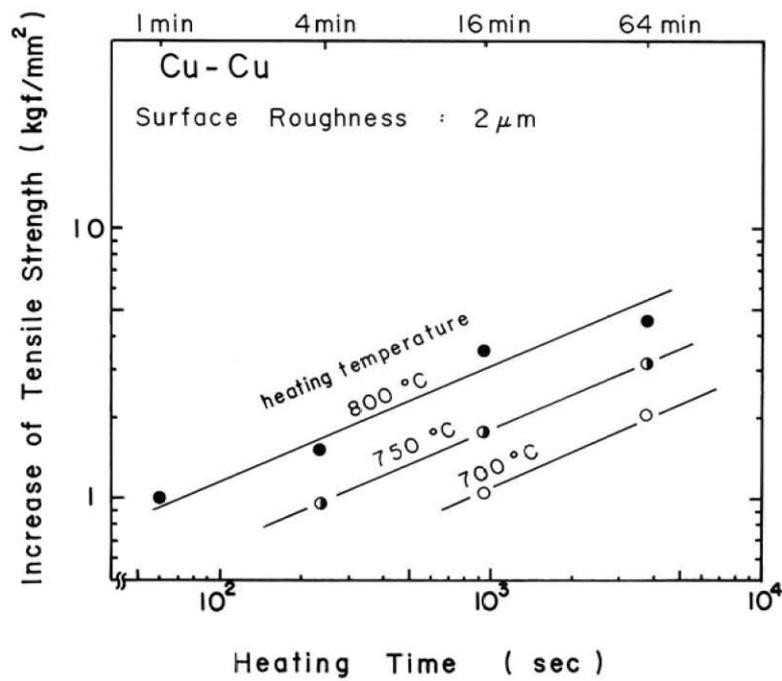


図 2-36 熱処理による拡散溶接継手の引張強さの増加量と熱処理時間との関係

増加し、また加熱温度が高いほど引張強さの増加量は大きい。一方旋盤加工した接合面の粗さ 70 及び 3  $\mu\text{m}$  の試験片の継手では、加熱による継手の強さの増加はそれほど認められなかった。粗さが小さく接合面の空隙が小さい時のみ継手の強さが向上することから、この強さの向上は、次に示す空隙の収縮現象により密着面積が増加するためと考えられる。

なお、旋盤加工した接合面の粗さ 3  $\mu\text{m}$  の試験片と化学研磨した粗さ 2  $\mu\text{m}$  の試験片とでは、粗さの差はわずかである。しかし、接合面の凹凸形状が異なり、図 2-35 に見られるように継手部の空隙の大きさに差が認められる。空隙の厚さが薄く空隙端部の半径の小さい化学研磨材の方が、次に示す空隙の収縮現象により密着面積が増加し、継手の強さが増加したものと考えられる。

いま、図 2-36 で 2  $\text{kgf}/\text{mm}^2$  の強さの増加量に達するまでの加熱温度 (TK) と加熱時間 ( $t \text{ sec}$ ) を  $1/T$  と  $\log 1/t$  の片対数のグラフ上にプロットすると直線関係が得られる。したがって次の関係式が導き出された。

$$1/t = C_2 \exp(-47000/RT) \quad (2-13)$$

強さの増加のみかけの活性化エネルギーは 47000  $\text{cal}/\text{mol}$  で、実験温度領域での銅の自己拡散の活性化エネルギー<sup>29)</sup>に近い値となっている。強さの増加は空隙の収縮による密着面積の増加と考えられるので、空隙の収縮過程が銅の自己拡散に律速されるものと考えられる。

銅の焼結では空隙の収縮全過程を通じて体拡散が支配的であり<sup>30)</sup>、また G.C.Kuczynski は体拡散による空隙の収縮過程を検討している<sup>31,32)</sup>。

そこで、G.C.Kuczynski の考えを拡散溶接部の空隙の収縮に適用すると次のようになる。拡散溶接部に図 2-37 のように球状空隙があると、空隙の近傍では表面張力により原子空孔濃度が平衡濃度より高くなる。これらの過剰空孔は接合境界や結晶粒界へ体拡散し、さらに粒界を通過して試料の表面などへ移動する。t 秒後の空隙半径  $r$  (cm) は、

球状空隙の場合、

$$r^3 = r_0^3 - \frac{6 r \delta^3 D}{kT} t \quad (2-14)$$

円筒状空隙の場合、

$$r^3 = r_0^3 - \frac{3 r \delta^3 D}{kT} t \quad (2-15)$$

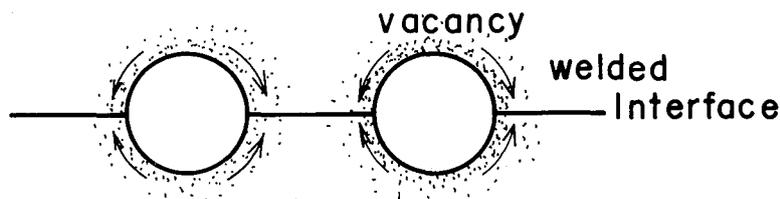


図 2-37 拡散溶接部での空隙の収縮モデル

で表わされる。ここで  $r_0$  は初期の空隙半径 (cm),  $T$  は加熱温度 (K),  $r$  は表面張力 (温度依存性が少ないので,  $1430 \text{ dyne/cm}$  一定とした<sup>33)</sup>),  $\delta$  は最近接原子間距離 (cm),  $D$  は拡散係数 {  $D = 0.2 \exp(-47120/RT)^{29)}$  },  $k$  はボルツマン定数である。

いま, (2-14), (2-15) 式より空隙の収縮による密着面積の増加割合 { 球状空隙:  $(r_0^2 - r^2)/r_0^2$  円筒状空隙:  $(r_0 - r)/r_0$  } と, 加熱温度 (TK) と融点 ( $T_m K$ ) との比 ( $T/T_m$ ) との関係を求め, 図 2-38 に示す。空隙の半径が  $4 \mu\text{m}$  以上ではほとんど収縮による面積の増加はないが,  $2 \mu\text{m}$  より小さくなると, 空隙の収縮により面積の増加が顕著となる。また, 空隙半径が一定の場合加熱温度の上昇とともに面積増加が大きい。

図 2-34 及び 35 の継手部の破面及び断面の観察から, 実際の拡散溶接部の空隙は複雑な形状である。また空隙も小さいので, 空隙の半径を正確に測定できない。したがって, 空隙の収縮についての定量的な検討は困難である。しかし, 接合面の粗さが小さく, 継手部の空隙も小さくなると, 拡散溶接部の密着面積の増加が見られ, 焼結の実験式から求めた図 2-38 の傾向に一致している。

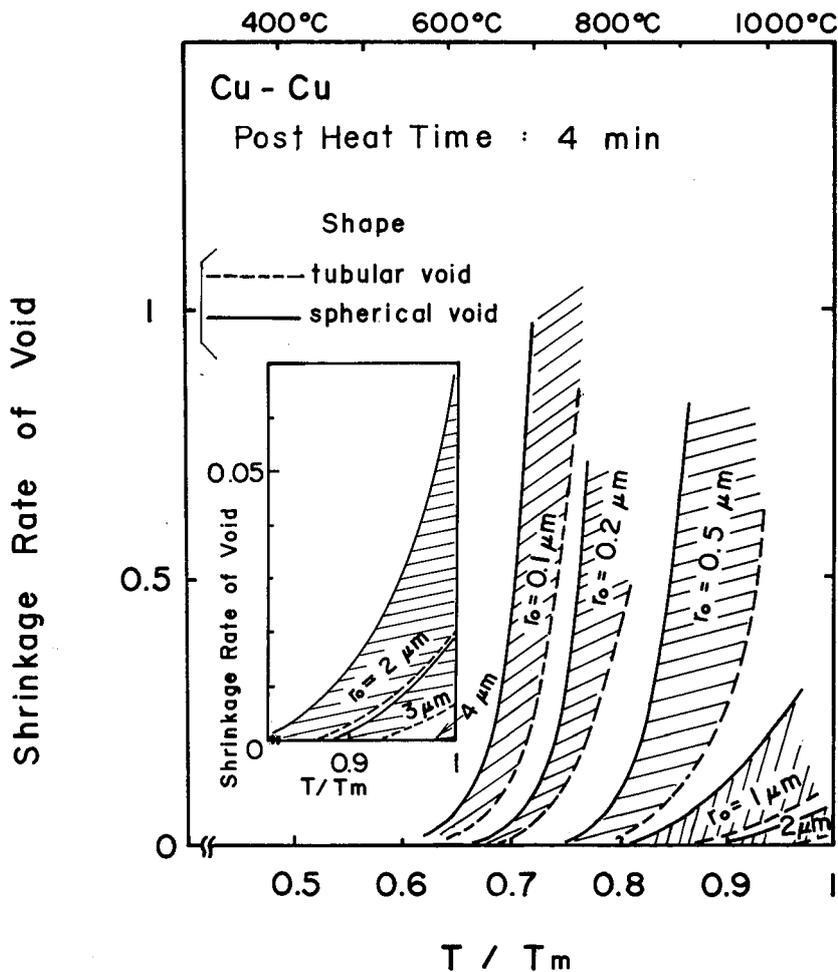


図 2-38 焼結での空隙の収縮の実験式から算出した接合部の空隙の収縮割合と  $T/T_m$  との関係

以上の結果、接合面の粗さが小さくなると、継手部の空隙が小さくなり、空隙の収縮現象による密着面積の増加量が大きくなる。このため、拡散溶接部の密着面積割合は $A_s \cdot L_w / A$ から予測される値より大きくなり、少ない変形で接合できるようになる。また、銅の拡散溶接部の空隙の収縮現象は体拡散によることが明らかになった。

## 2.7 拡散溶接部の密着過程についての考察

粗さが数 $\mu\text{m}$ 以上の接合面を突き合せて拡散溶接した際の密着部の面積は、(2-12)式から求まる。つまり、円錐形状試験片の結果から求めた密着面積指数と、接合圧力で定量的に表すことができる。円錐形状試験片の変形過程がクリープ変形に大きく依存していることから、数 $\mu\text{m}$ 以上の粗さの接合面を拡散溶接した時、密着面積の増加機構はクリープ変形に依存するものと考えられる。したがって、クリープ変形が支配的なこの拡散溶接部での密着過程には、接合圧力は重要な役割を果す。

接合圧力、温度、時間の増加とともに、 $A_s \cdot L_w / A$ の値が大きくなり、 $A_s \cdot L_w / A \div 1$ となる条件下では全面密着するようになる。しかし、図2-29に示したように $A_s \cdot L_w / A \div 1$ では継手の断面積が非常に大きくなる。したがって、数 $\mu\text{m}$ 以上の接合面を拡散溶接した時には、断面積の増加割合が6%以下で、拡散溶接部を全面密着するのは非常に困難である。

接合面の粗さが数 $\mu\text{m}$ より小さくなると、拡散溶接部の密着面積割合は $A_s \cdot L_w / A$ から求まる密着面積割合より大きくなる。またクリープ変形による効果のない無荷重下での加熱においても、拡散溶接部の密着面積が増加する。つまり拡散溶接部の空隙が小さくなると、表面張力に起因した拡散により空隙が収縮する。そして空隙が小さくなるほど密着面積の増加量が大きくなる。このように接合面の粗さが小さくなると、接合面の凹凸がクリープ変形によって密着面積が増加する他に、併行して空隙の収縮現象によっても密着面積が増加するようになる。

したがって、継手部の断面積の増加割合を6%以下の変形で拡散溶接部を全面密着するには、クリープ変形の他に空隙の収縮現象が生じるように、表面粗さを小さくしなければならない。

なお、拡散溶接する際の接合面の粗さ( $R_{\text{max}}$ )については、P.M. Bartle<sup>34)</sup>は $0.8 \sim 1.6 \mu\text{m}$ 、もしくはこれ以下が望ましいと報告している。この報告は本実験結果とほぼ一致し、空隙のない拡散溶接部を得るため、接合面の粗さをできるだけ小さくしなければならないことがわかる。

また、Kingの提案した図1-1の拡散溶接部の接合モデルに対応させるなら、次のようになる。円錐形状試験片の結果から密着面積が予測できる範囲はモデルの第1段階(B図)に相当し、空隙の収縮は第2、3段階(C, D図)に相当する。

拡散溶接の密着過程は、クリープ変形と空隙の収縮現象による。これらはいずれも拡散現象

と密接に関連するので、接合温度、時間が全過程を通じてその進行を左右する。また、接合初期のクリープ変形による密着過程においては接合圧力、空隙の収縮による密着過程においては表面粗さが大きく影響する。

## 2.8 要 約

微小な凹凸のある接合面を突き合せて拡散溶接した際、拡散溶接部での密着面積への接合温度、圧力、時間、及び接合面の粗さの影響を調べた。さらに拡散溶接部の密着面積を定量化することを試みるとともに、密着機構についても検討した。無酸素銅、鉄、チタン、アルミニウム及びSUS304ステンレス鋼を用いて検討した結果、次のように要約できる。

1. 接合面の粗さが数  $\mu\text{m}$  以上の場合には、拡散溶接部の密着部は、接合面の凹凸がクリープ変形することによって形成される。接合面の粗さが小さい場合には、初期の凹凸のクリープ変形と併行して生じる空隙の収縮現象により密着面積が増加する。
2. 接合面の粗さが数  $\mu\text{m}$  以上の拡散溶接部の密着面積は、拡散溶接部の密着部をモデル化した円錐形状試験片と平坦な試験片との密着部の観察結果から定量的に求まる。
3. 円錐形状試験片の密着面積を接合荷重で割って求めた密着面積指数  $A_s$  は、単位接合圧力下での密着面積を示す値で、密着面積  $20\text{mm}^2$  以下では円錐の頂角、荷重に関係なく、次のように表される。

$$A_s = C_1 \{ t_w \exp(-Q/RT_w) \}^{1/n} \quad (2-6)$$

$C_{1,n}$  : 定数                       $R$  : 気体定数                       $Q$  : 活性化エネルギー

$T_w$  : 接合温度 (K)       $t_w$  : 接合時間 (sec)

表 2-2 に各種金属について得られた  $C_1$ ,  $Q$ ,  $n$  の値を示す。

4. 接合面の粗さが数  $\mu\text{m}$  以上の拡散溶接部の密着面積割合は、次式で示される。

$$A_b / A = A_s \cdot L_w / A \quad (2-10)$$

$$= C_1 \cdot \frac{L_w}{A} \{ t_w \exp(-Q/RT_w) \}^{1/n} \quad (2-12)$$

$A_b$  : 丸棒の拡散溶接部の密着面積 ( $\text{mm}^2$ )

$A$  : 丸棒の断面積 ( $\text{mm}^2$ )                       $L_w$  : 接合荷重 (kgf)

上式は、 $0.6 < T_w/T_m < 0.9$ ,  $1 \text{ min} < t_w < 60 \text{ min}$ ,  $0 < A_s \cdot L_w / A < 0.9$  の条件下で成立する。なお、 $T_m$  は材料の融点 (K) である。

5.  $A_s \cdot L_w / A \div 1$  の接合条件では全面密着する。しかし、接合材の断面積の増加割合が 20 ~ 30 % となる。

6. 接合面の粗さが小さいほど，空隙の収縮現象による密着面積の増加量は大きくなる。したがって，拡散溶接部の密着面積割合は， $A_s \cdot L_w / A$  から予測される値より大きくなる。
7. 接合材の断面積の増加割合をなるべく小さくして，空隙のない拡散溶接部を得るためには，接合面の粗さをできるだけ小さくする必要がある。

## 第3章 拡散溶接部における密着部の形成に及ぼす変態の影響

### 3.1 概 説

拡散溶接部での密着面積の増加は、第2章でクリープ変形と空隙の収縮現象によることを述べた。変態する金属においては、変態に伴って発生する内部応力によって、クリープ変形及び収縮現象が促進されることが期待される。したがって、拡散溶接部の密着促進法の一つとして変態の利用が考えられる。

拡散溶接での変態の影響については、主にTi-6Al-4V合金について検討がなされ、超塑性現象によって接合性が向上することが報告されている。<sup>35)</sup> また、超塑性を利用した整形と拡散溶接を組み合わせる複雑な形状部品を製作する方法の報告<sup>36)</sup> などもある。このように、Ti-6Al-4V合金では変態超塑性現象によって密着化が促進されることが指摘されている。しかし、空隙の収縮による密着過程に変態がどのように影響するか明確でない。

本章では、鉄を用いて金属固有の因子である同素変態が、突起部のクリープ変形による密着過程及び空隙の収縮による密着過程にどのように影響するかを検討した。

### 3.2 供試材及び実験方法

供試材並びに接合試験片の形状、前処理、接合方法は前章と同じである。なお、接合雰囲気ガスはアルゴンである。

変態の効果を明らかにするため、変態点を境にして図3-1に示すような温度サイクルを接合試験片に与えた。1サイクル2minで実験を行い、この変態繰り返し加熱方式で接合した継手と、図に示した $T_1$ と $T_2$ の一定温度加熱方式で接合した継手を比較した。変態温度には、温度幅が見られ、図の $T_c$ 、 $T_r$ はそれぞれ加熱時と冷却時の変態領域の温度である。 $T_1$ は $830^{\circ}\text{C}$ 、 $T_r$ は $840\sim 870^{\circ}\text{C}$ 、 $T_c$ は $890\sim 920^{\circ}\text{C}$ 、 $T_2$ は $930^{\circ}\text{C}$ である。

### 3.3 接合圧力下での変態の影響

クリープ変形によって密着面積が増加する拡散溶接初期過程での変態の影響を調べた。

前章の結果から、接合面の粗さが数  $\mu\text{m}$  以上の拡散溶接部の密着面積の増加は、クリープ変形が支配的である。そこで、粗さ  $10\ \mu\text{m}$  の鉄の丸棒を、図 3-1 に示すような変態繰り返し加熱方式と一定温度加熱方式で接合した継手の引張強さを調べた。その結果を図 3-2 に継手効率と接合圧力との関係で示す。接合時間は 32 min で、周期的な温度サイクルを与えた継手では 32 回の変態を繰り返している。変態を繰り返して接合すると継手の強さが大きくなっている。

次に、変態を繰り返した継手が強い原因について考えてみる。この実験での試験片の破面観

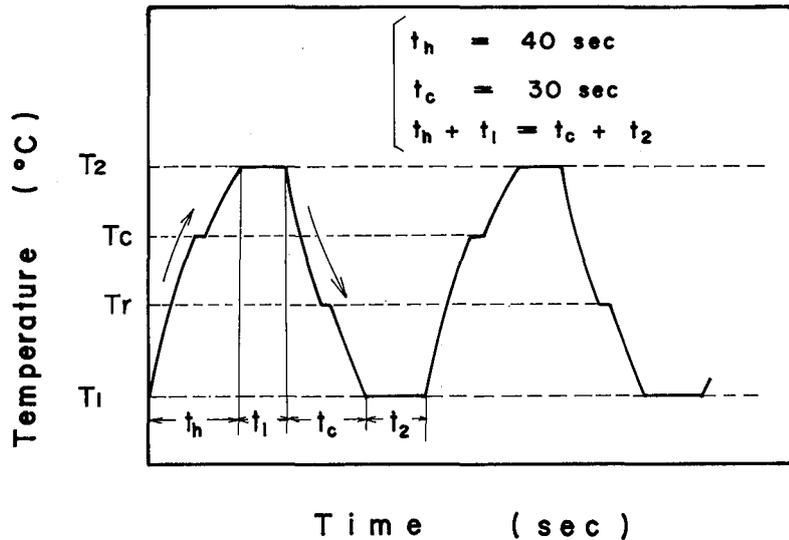


図 3-1 変態繰り返し加熱方式の温度サイクル

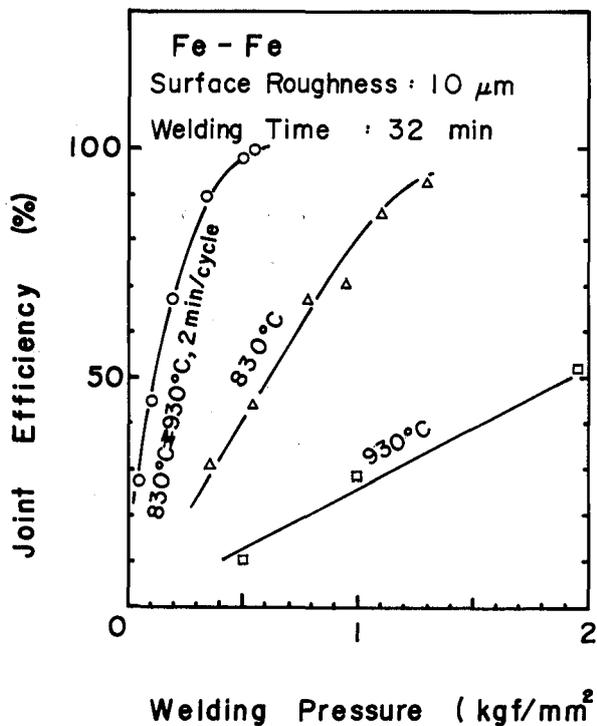


図 3-2 鉄の拡散溶接部の継手効率と接合圧力との関係に及ぼす加熱方式の影響

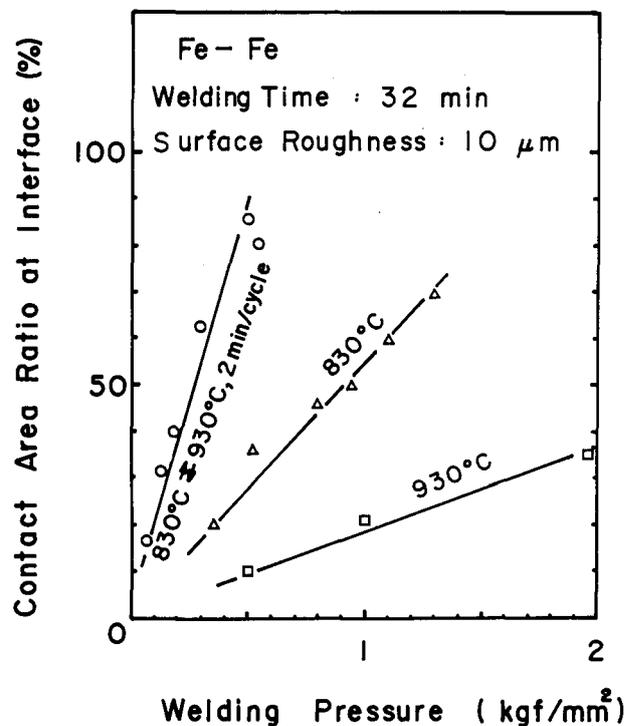


図 3-3 鉄の拡散溶接部での密着面積割合と接合圧力との関係に及ぼす加熱方式の影響

察から密着面積割合を測定し、図3-3に密着面積割合と接合圧力との関係を示す。830°Cでの密着面積が930°Cより大きいのは、第2章で示したように830°Cの方が密着面積指数が大きいためである。図3-2と図3-3から、継手効率と密着面積割合との関係を求め、図3-4にその結果を示す。継手効率と密着面積割合には一定の関係があり、各加熱方式の結果もほぼ同一曲線上にある。加熱方式に関係なく、継手効率は密着面積割合に依存するのがわかる。

図3-5は各種の加熱方式での拡散溶接部の引張破面と拡散溶接部の断面組織の結果である。断面の光学顕微鏡観察から、変態を繰り返せば接合境界の移動が見られ、完全に一体化したかのように見える。しかし破面観察の結果、変態を繰り返して接合した破面にも、一定温度で接合した破面にも、母材と比べいづれもかなり小さなディンプルが見られ、加熱方式による破面形態の差は認められなかった。

このように、継手強さと密着面積との関係並びに破面形態に対して、変態は余り影響を及ぼさない。したがって、変態を繰り返して接合した場合、継手が強くなるのは密着面積の増加によると考えられる。

以上の結果、変態を繰り返して接合すると、密着部の面積が大きくなることが明らかとなった。

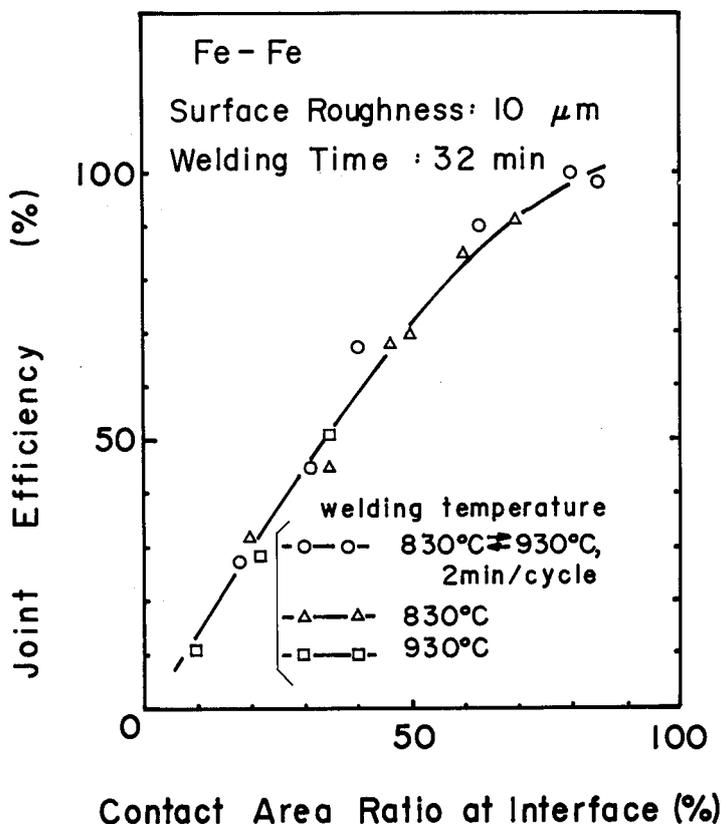


図3-4 継手効率と密着面積割合との関係に及ぼす加熱方式の影響

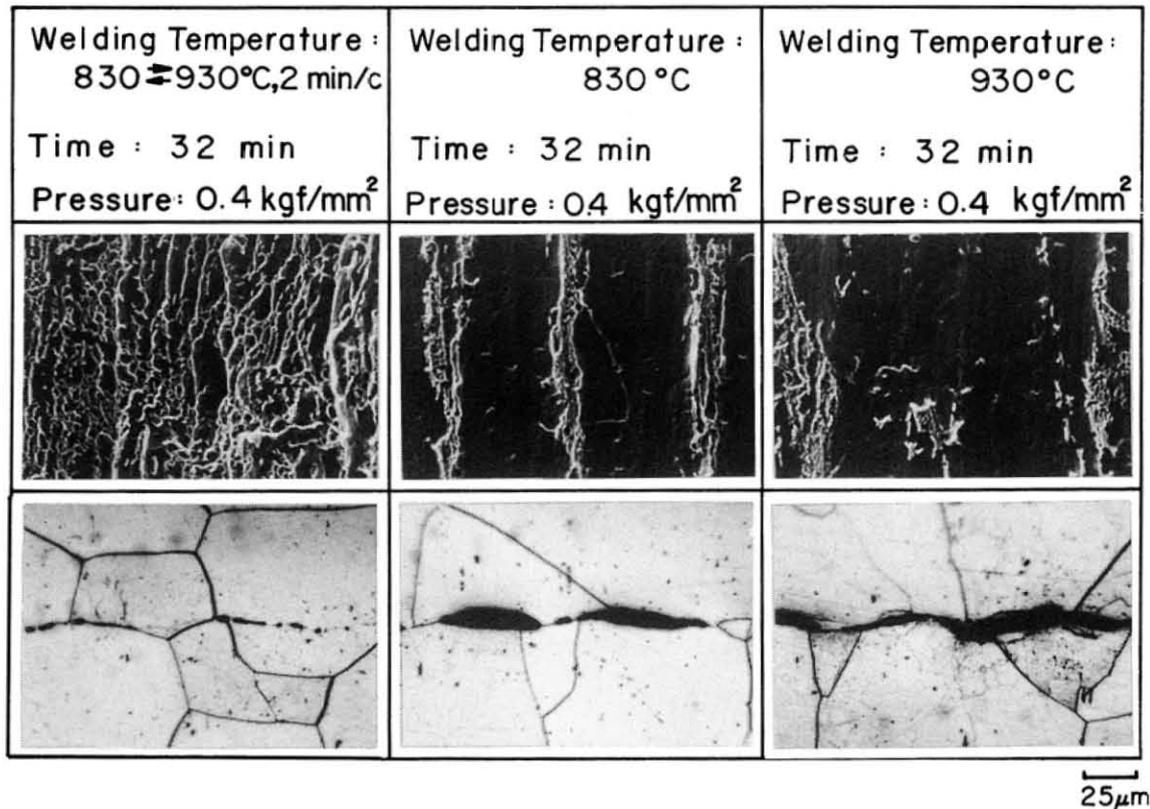


図3-5 変態繰り返し加熱方式と一定温度加熱方式での拡散溶接部断面の光学顕微鏡組織及び引張破面の走査型電子顕微鏡写真

### 3.4 変態に伴う変形について

一定温度加熱方式より変態繰り返し加熱方式の方が、拡散溶接部での密着面積割合が増加した。変態繰り返し方式での変形について調べるため、長さ60mmの丸棒の変位を差動トランスで検出し、温度、時間、変位の相互関係を記録した。

まず室温から1000°Cまで加熱し、また室温まで冷却した際の最小荷重（変位測定治具などの自重、0.5 kgf）下での温度と試験片の長さの変化量との関係を調べた。引き続き、荷重下での温度と長さの変化量との関係を求め、両者を差し引きして熱膨張の影響を取り除いた。このようにして求めた種々の圧力下でのひずみ量と温度の関係を図3-6に示す。その結果、加熱及び冷却時とも変態点において、顕著な軸方向の変形が認められた。この変形量と時間との関係のグラフを求め、このグラフから算出した変態中の最大ひずみ速度と圧力との関係を両対数のグラフ上にプロットした結果を図3-7に示す。図中には、O. D. Sherbyら<sup>37)</sup>によるα鉄とγ鉄の一定温度加熱時の結果も示している。変態を繰り返した場合、変態超塑性現象に特徴的な傾向<sup>38)</sup>、すなわち  $Pw = K \cdot \dot{\epsilon}^n$  ( $Pw$  : 圧力,  $K$  : 定数,  $\dot{\epsilon}$  : 最大ひずみ速度) で、 $n \div 1$  が得られた。一方、一定温度加熱時の場合には  $n \div 0.2$  である。したがって変態時の変形は超塑性

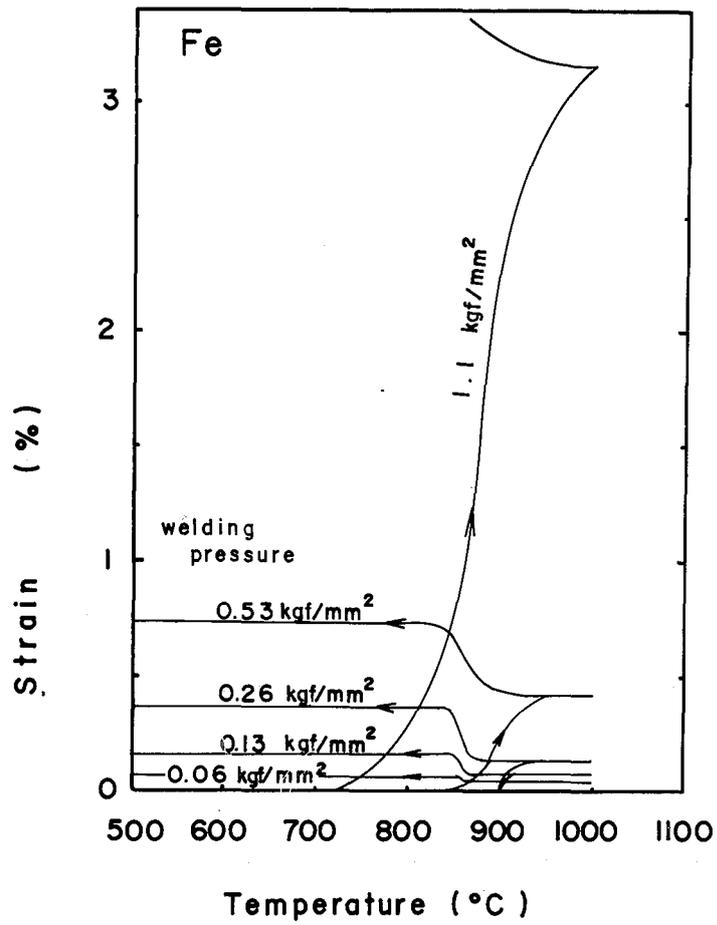


図3-6 各種の接合圧力下における試験片長さのひずみ量と温度との関係

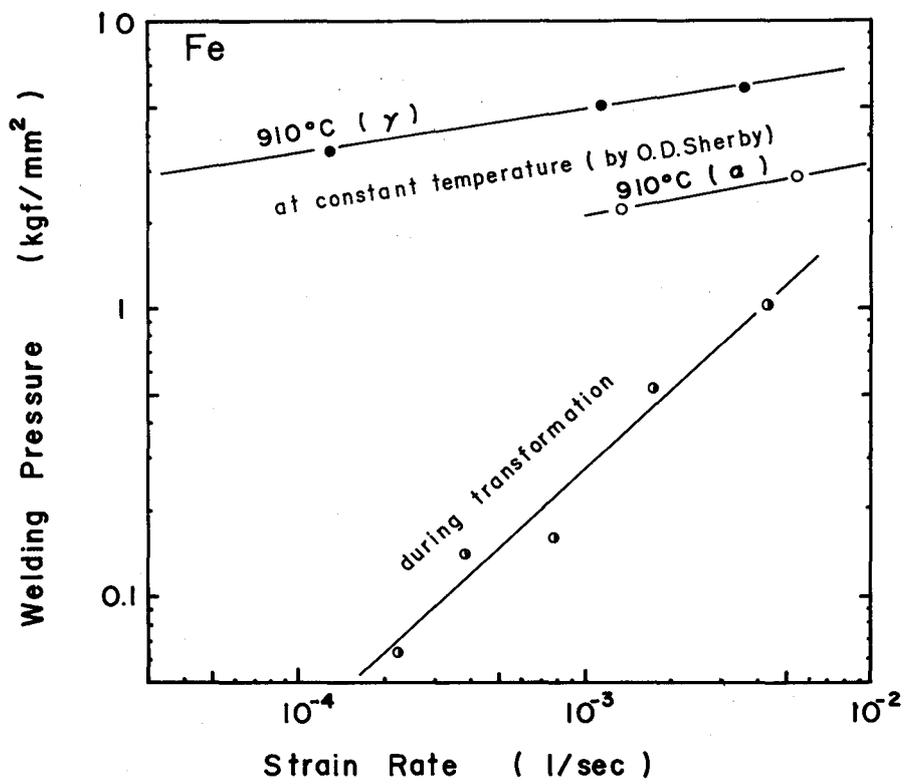


図3-7 接合圧力とひずみ速度との関係

現象として理解できる。

以上のことより、一定温度での接合より変態を繰り返して接合すると、変態超塑性現象で接合面の突起部が変形するので、拡散溶接部の密着面積割合が増加すると考えられる。

変態を繰り返して接合すると、拡散溶接部の密着面積割合が増加すると同時に継手部の断面積も増加する。図3-8は、継手部の断面積の増加割合から算出した変形度と密着面積割合との関係を示している。変形度と密着面積割合には一定の関係があり、各加熱方式ともほぼ同一曲線上にある。つまり、継手部の変形が同程度なら、加熱方式に関係なく、拡散溶接部の密着面積割合はほぼ等しくなっている。

以上の結果、鉄を拡散溶接した際、拡散溶接部に与えた変形が同程度なら、変態を繰り返しても一定温度で接合しても、密着面積割合には大差ない。しかし変態を繰り返すとクリープ変形に加えて変態時に発生する変態超塑性現象によって、低い接合圧力で密着できることが明らかとなった。

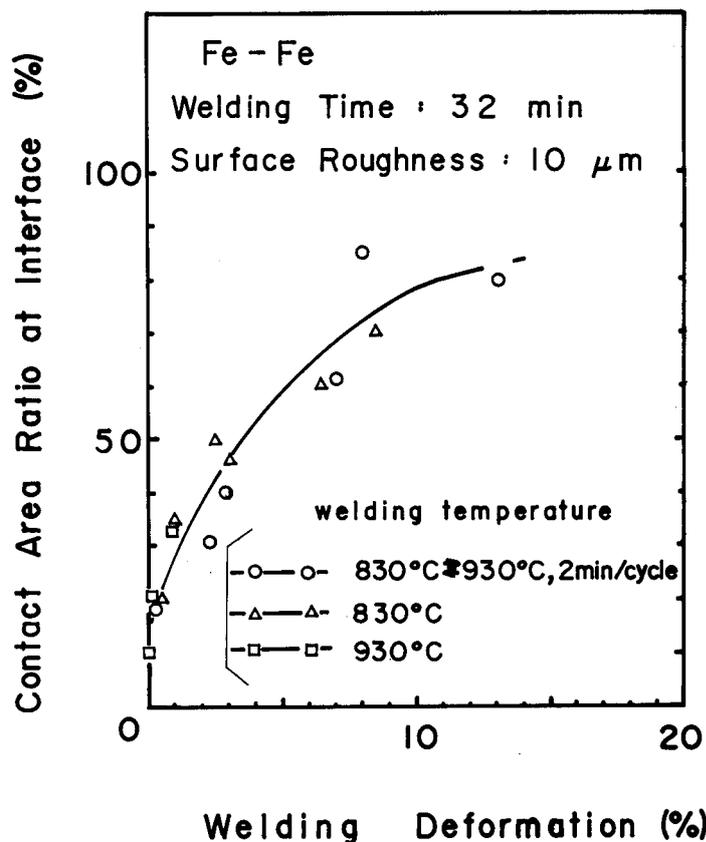


図3-8 鉄の拡散溶接部の密着面積割合と断面積の増加割合との関係に及ぼす加熱方式の影響

### 3.5 無荷重下加熱時での変態の影響

前節では、拡散溶接部の密着面積がクリープ変形で増加する拡散溶接の初期過程では、変態超塑性現象によって低い接合圧力で密着することを述べた。本節では、空隙の収縮によって密着面積が増加する溶接過程への変態の影響を調べた。

空隙の収縮現象が発生するような粗さが  $0.1 \mu\text{m}$  の鉄を  $760^\circ\text{C}$  で予備溶接した。クリープ変形の影響がなく、空隙の収縮の効果のみを調べるため、予備溶接継手を無荷重下で加熱した。これらの継手を引張試験したところ、引張強さはほぼ母材の強さに達したが、継手間に絞りの差が見られた。そこで、各種の温度で加熱した時の絞りと加熱時間との関係を図 3-9 に示す。

いま、図 3-9 の横軸を拡散距離に關係する  $\sqrt{Dt}$  で書きあらためた結果を図 3-10 に示す。なお、変態を繰り返した時の等価拡散係数  $D_A$  は図 3-1 で温度上昇及び下降時を直線とみなし、変態に伴う特別な拡散係数の変化がないと仮定して変態点以下及び以上でのそれぞれの拡散係数  $D_\alpha$ 、 $D_\gamma$  を用いて、次式より求めた。

$$D_A = \frac{1}{120} \left( \int_0^{30} D_\alpha dt + \int_{30}^{80} D_\gamma dt + \int_{80}^{120} D_\alpha dt \right) \quad (3-1)$$

$$\text{なお, } D_\alpha = 2.01 \exp(-57500 / RT)$$

$$D_\gamma = 0.22 \exp(-64000 / RT)$$

である。<sup>29)</sup> また、変態温度には温度幅があるが、今変態中に最も大きな変位の変化を示す温度を変態点とし、加熱時  $900^\circ\text{C}$ 、冷却時  $860^\circ\text{C}$  とした。 $D_A$  は図 3-1 の温度サイクルでの平均的

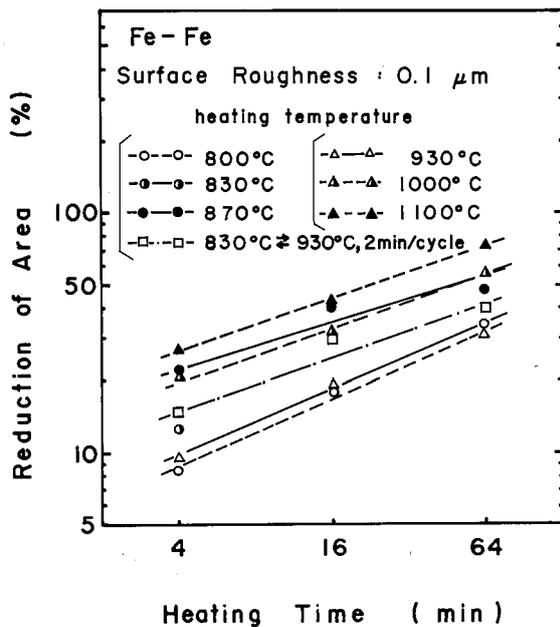


図 3-9 継手を各種の温度で加熱した時の加熱時間と継手の絞りの関係

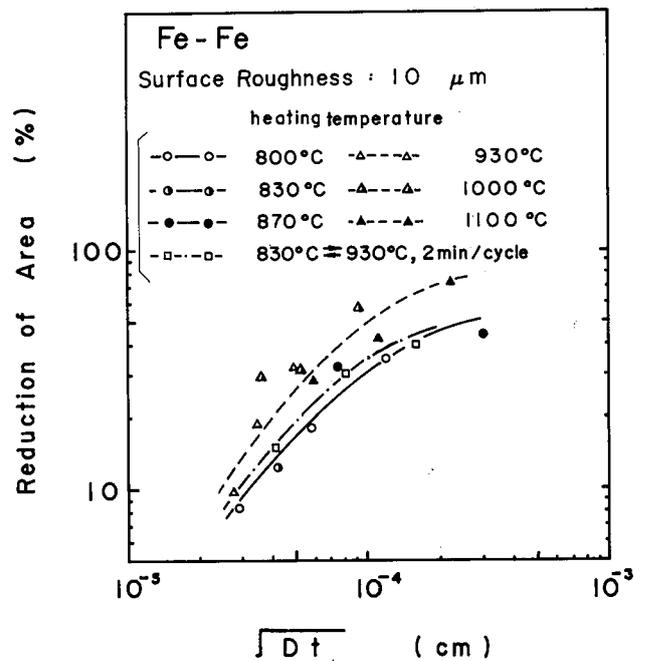


図 3-10 各種の温度で加熱した際の継手の絞りと拡散量に關係する  $\sqrt{Dt}$  との關係

な拡散係数であり、変態に伴う拡散係数の変化を考慮していない値である。図3-10に見られるように、継手部の絞りは $\sqrt{Dt}$ と一定な関係がある。

絞りは、密着部での接合面積に依存すると考えられる。また、密着部での接合面積は拡散に関係していることから、拡散量は継手の絞りに大きな影響を及ぼすことが予想される。したがって、変態に伴う特別な拡散係数の変化を考慮していない $D_A$ を用いた結果が、一定温度での加熱結果にほぼ一致したことから、逆に変態に伴う拡散係数に顕著な変化はないと考えられる。

次に、変態に伴う拡散係数の顕著な変化はないと考えられたが、この点についてさらに検討する。鉄に固溶して、かつ変態温度も合金濃度によって余り変わらないコバルトに着目し、10重量%コバルトを含む鉄合金と鉄との拡散対で、コバルトの拡散を調べた。図3-1の変態繰り返し温度サイクルでの鉄中のコバルトの等価拡散係数 $D_A$ を、 $\alpha$ 鉄中及び $\gamma$ 鉄中のコバルトの拡散係数<sup>29)</sup>を(3-1)式に代入して計算した。その結果、等価拡散係数 $D_A$ が830°Cでの拡散係数に一致した。それで、830°C及び変態繰り返し温度サイクルを与えた拡散対でのコバルトの濃度分布をX線マイクロアナライザで測定した。128 min加熱した拡散対での結果を図3-11に示す。拡散対は図中に示すような形状で、760°Cで予備溶接してある。図に見られるように、加熱方式による濃度分布の差は余り認められず、拡散係数への変態の影響は少ないようである。

鉄の自己拡散に及ぼす変態の影響については、これまでのところそれほど多くの研究は行われていない。Clinardら<sup>39)</sup>はFe基の合金について、変態の繰り返しによって拡散がわずかに促

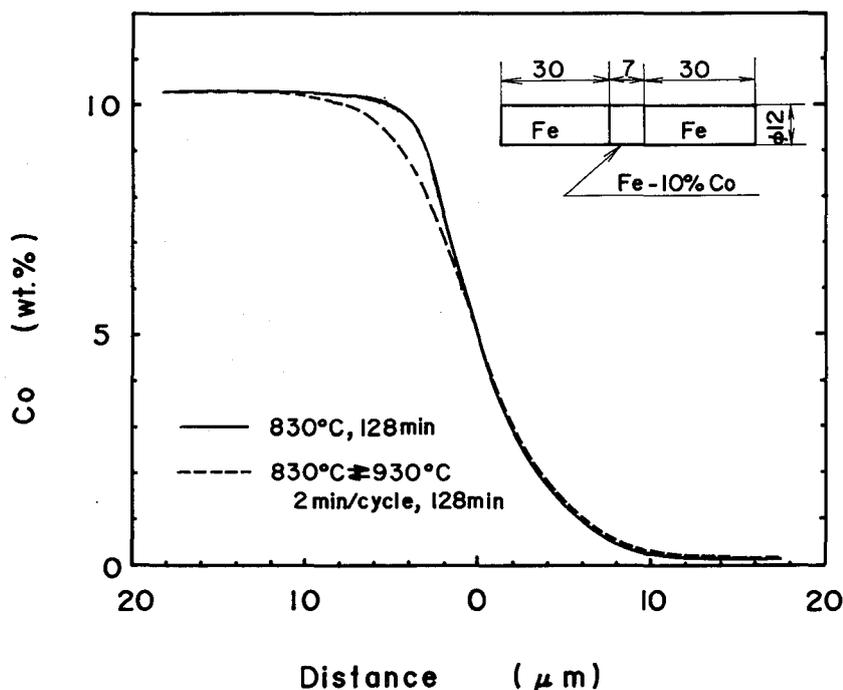


図3-11 鉄と10%Co合金の拡散対で、Coの濃度分布に及ぼす加熱方式の影響

進されることを報告している。一方、Angersらは<sup>40)</sup>、純鉄について変態の繰り返しによって拡散は促進されないという結果を報告している。

また、鉄粉の焼結の際の変態の繰り返しの影響についての研究がある。それによると、変態の繰り返しによる焼結の促進の機構は、拡散による収縮によるものではなく、主として変態超塑性によると報告<sup>41)</sup>されている。

以上の結果、変態に伴う拡散係数の促進は少なく、拡散溶接部の空隙の収縮過程への変態の効果はそれほど期待できないことが明らかとなった。

### 3.6 要 約

拡散溶接部の密着面積の増加過程に及ぼす変態の影響を、鉄を用いて検討した。得られた結果は次のように要約できる。

1. クリープ変形で密着面積が形成される拡散溶接の初期過程においては、変態を繰り返して接合すると、変態超塑性現象によって密着化が促進される。
2. 空隙の収縮による密着面積の増加過程に、変態の効果はそれほど認められない。
3. 変態を繰り返して接合した継手が強いのは、拡散溶接部での密着面積の増加による。
4. 拡散溶接継手部に与えた変形が同程度なら、変態を繰り返して接合してもあるいは一定温度で接合しても、密着面積及び継手性能にはそれほど差はない。
5. 変態を繰り返して接合すると、変態超塑性現象によって一定温度で接合する時よりも接合面の密着面積が大きくなるため、低い接合圧力で拡散溶接できる。

## 第4章 拡散溶接部における密着部の強さ

### 4.1 概 説

第2, 3章では, 拡散溶接部での密着面積を定量的に表すことを試みるとともに, 密着面積の増加過程に及ぼす接合条件因子と変態の影響について検討した。

本章では, 第2章で取り扱った各種材料の拡散溶接部の密着面積と継手の引張強さとの関係を調べて, 拡散溶接継手の引張性能に影響を及ぼす因子を明らかにする。

### 4.2 供試材及び実験方法

供試材, 接合面の表面処理法, 接合方法, 試験片形状などは第2章の実験と同じである。

### 4.3 密着面積割合と引張強さとの関係

銅, SUS304ステンレス鋼, 鉄, チタン及びアルミニウムを各種の接合圧力下で4min加圧して接合し, 継手の引張強さを求めた。この引張強さを継手と同じ熱履歴を与えた母材の引張強さで割って求めた継手効率と, 破面から求めた密着面積割合との関係を調べた。その結果を図4-1に示す。なお破面から密着面積割合を測定できなかったアルミニウムは記入していない。もし拡散溶接部の密着箇所が接合して母材並みの強さとなり, 密着箇所の分布が継手の強さに影響しないとすると, 図4-1の関係図で傾きが45度の直線関係が得られるはずである。SUS304ステンレス鋼及び銅は傾きが45度のほぼ直線上, 鉄及びチタンは傾きが45度の直線よりやや上にある。これら密着部は接合して母材並みの強さになっていることがわかる。

次に, アルミニウムの継手強さについて考える。前章で述べたが, 拡散溶接部の密着面積割合は接合面の粗さが数 $\mu\text{m}$ 以上では, 円錐形状試験片から求まる密着面積指数( $A_s$ )と接合圧力( $L_w/A$ )との積から求まる。そこで密着面積割合を表す $A_s \cdot L_w/A$ と継手効率との関係を求め, 図4-2に各種材料についての結果を示す。SUS304ステンレス鋼及び銅は傾きがほぼ45度の直線上, 鉄及びチタンは傾きが45度の直線よりやや上にある。図4-1と図4-2とでは, アルミニウム以外の材料で継手効率に大きな差はなく,  $A_s \cdot L_w/A$ からおおよそその継手効率がわ

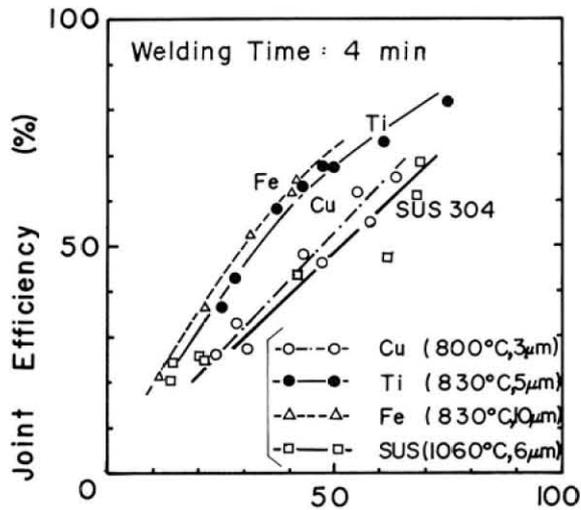


図 4-1 各種材料の継手効率と密着面積割合との関係 (継手効率=継手の引張強さ/母材の引張強さ)

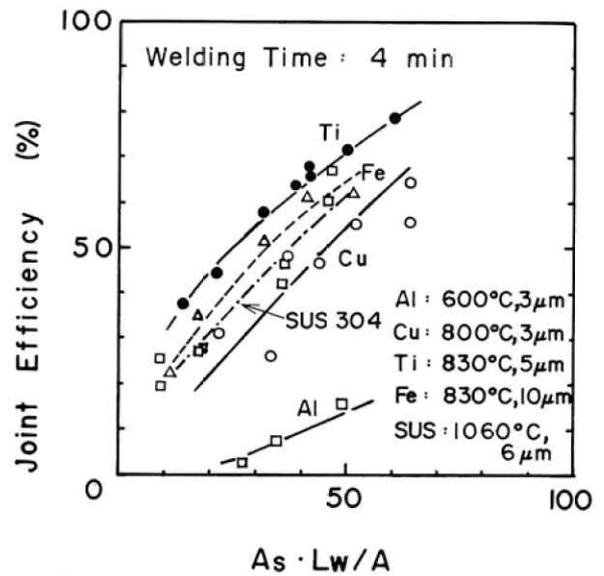
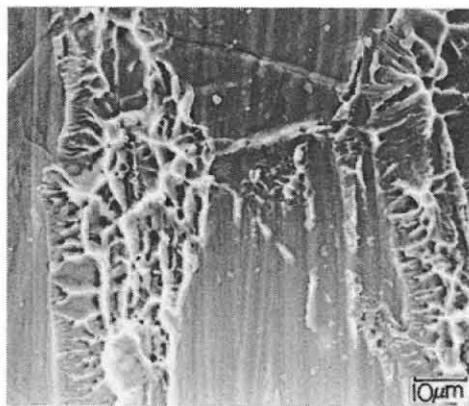
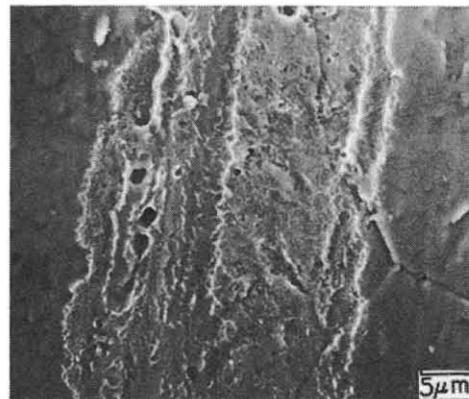


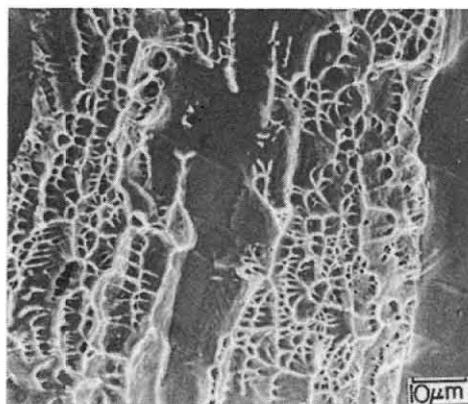
図 4-2 各種材料の継手効率と  $A_s \cdot L_w / A$  との関係



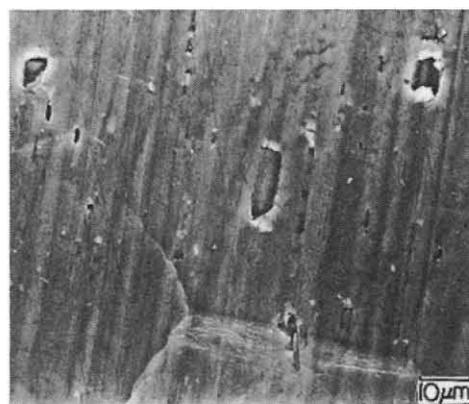
(A)



(B)



(C)



(D)

図 4-3 各種材料の拡散溶接部の引張破面の走査型電子顕微鏡写真

(A) チタン (830°C, 4min, 1.2 kgf/mm<sup>2</sup>, 5μm)

(B) 鉄 (830°C, 4min, 1.4 kgf/mm<sup>2</sup>, 10μm)

(C) SUS304 ステンレス鋼 (1060°C, 4min, 2 kgf/mm<sup>2</sup>, 6μm)

(D) アルミニウム (600°C, 4min, 0.5 kgf/mm<sup>2</sup>, 3μm)

かる。一方アルミニウムは45度の直線よりかなり下にあり、密着箇所の強さが著しく低い。

このアルミニウムの継手の強さが著しく低い原因について破面観察から考えてみる。図2-5には銅、図2-6には他の材料の破面写真を示したが、アルミニウム以外の材料ではいずれも帯状の密着部の破断が観察される。この帯状の破断領域を観察した写真を、図4-3に示している。アルミニウム以外の材料の破面には、ディンプルの見られる帯状の延性破壊領域がある。なお、鉄では3000倍の写真上でディンプルが確認できた。このようにアルミニウムにおいては密着したものの、密着部は接合していない。この原因は酸化皮膜によるもので、次章で考察する。

このように、銅、鉄、チタン及びSUS 304ステンレス鋼の拡散溶接部においては、密着部の引張強さは母材の強さに匹敵しており、密着部はほぼ接合している。一方、アルミニウムでは  $As \cdot Lw/A$  から算出した密着部の引張強さは著しく低く、密着箇所での接合箇所が少ない。

以上のことから、拡散溶接部の引張強さは、密着部での接合面積に関係することがわかる。

#### 4.4 引張強さへの切欠効果の影響

アルミニウム以外の材料で、同じ密着面積割合でも継手効率に差がある。この原因として、拡散溶接部の空隙が密着部に対して切欠となるため、切欠効果が各種材料の引張強さに影響したものと考えられる。

そこで、まず拡散溶接部の空隙の大きさ及び分布状態を調べ、次いで切欠の引張性能への影響について検討してみる。

拡散溶接部での空隙の大きさ及び分布状態を先に示した継手の断面(図2-4)及び破面(図2-5, 6, 9)の写真から調べた。拡散溶接部の空隙は扁平である。例えば、密着面積割合が43%の銅の継手(図2-9の(B))では空隙の幅は約40 $\mu$ mで、空隙の長さは1mm以上にも及んでいる。各種材料の接合面の粗さ曲線は図2-3に示しており、おおよそ類似な接合面形状である。したがってこれらの材料の密着部の大きさ、分布状態には大差ないと考えられる。

次に、空隙が密着部に対して切欠となるので、母材の引張強さへの切欠の影響を調べた。図4-4の図中に示すような直径10mmの丸棒に60度の円周切欠をもつ試験片の引張試験を行った。図4-4は各種材料について切欠試験片の引張強さへの切欠先端半径の影響を示している。縦軸( $L_n/L_p$ )は直径10mmの平滑試験片の引張破断荷重( $L_p$ )に対する図中の切欠試験片の引張破断荷重( $L_n$ )の割合である。なお切欠部の断面積は平滑部の49%である。引張試験に際しては、切欠試験片を接合試験片と同じように熱処理して、引張速度5mm/minで引張試験を

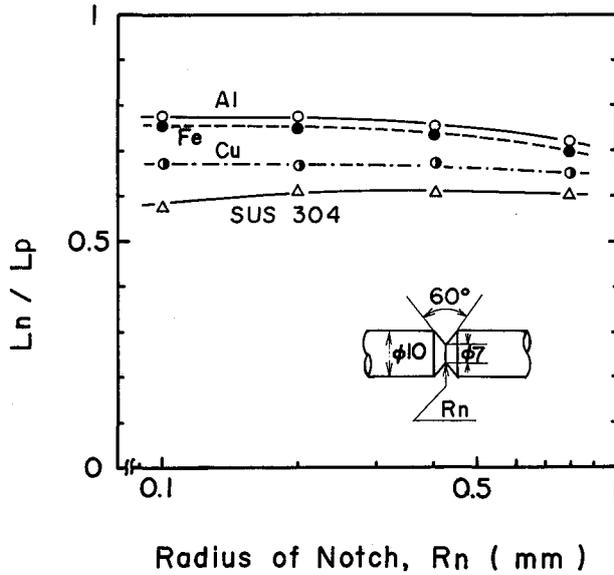


図 4-4 各種材料の平滑試験片に対する円周切欠試験片の引張破断荷重割合に及ぼす切欠半径の影響  
 $(L_p$  : 直径 10mm の平滑試験片の引張破断荷重)  
 $(L_n$  : 円周切欠試験片の引張破断荷重)

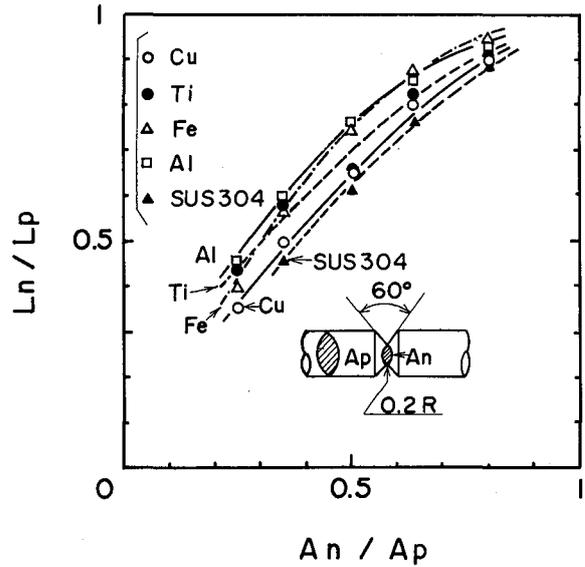


図 4-5 各種材料の平滑試験片に対する円周切欠試験片の引張破断荷重割合に及ぼす切欠部の断面積割合の影響  
 $(A_n$  : 切欠部の断面積)  
 $(A_p$  : 平滑部の断面積)

行っている。その結果、切欠部の先端半径は切欠試験片の強さに余り影響せず、 $L_n/L_p$  はほぼ一定である。また切欠部の断面積が平滑部の 49% にもかかわらず、切欠試験片の引張破断荷重は平滑試験片の 60~80% である。つまり断面積当りの引張強さは切欠試験片の方が平滑試験片より大きくなっている。

次に、切欠部の先端半径を 0.2 mm 一定として切欠深さの影響について検討した。図 4-5 は、平滑試験片に対する円周切欠試験片の引張破断荷重割合 ( $L_n/L_p$ ) と切欠部の断面積割合 ( $A_n/A_p$ ) ( $A_n$  : 切欠部の断面積,  $A_p$  : 平滑部の断面積) との関係である。切欠試験片の引張破断荷重が断面積にのみ関係すれば、図で傾きが 45 度の直線関係が得られるはずである。しかし 45 度の直線より各種材料の結果はいずれも上にあり、切欠試験片の引張強さは平滑試験片より大きくなっている。また、アルミニウム、チタン及び鉄の結果が他の材料より上に位置しており、平滑試験片に対する切欠強さの増加割合がやや大きくなっている。

このように延性材料で引張強さが、平滑試験片より切欠試験片の方が大きくなる理由は、切欠による拘束効果で説明されている。<sup>42)</sup>しかし延性の高い材料の動的強さや、特に脆性の高い金属の静的・動的強さが、切欠によって低下することは周知の通りである。

単純な環状切欠試験片モデルの結果から、空隙の散在する実際の拡散溶接継手の強さを類推することは、両者で切欠半径とその分布状態に大きな差があるため問題がある。しかし図 4-5 の実験での切欠深さによる  $L_n/L_p$  の金属による変化傾向は、継手部にも通用すると考えられ

る。

円周切欠試験片の実験で、アルミニウムが本実験で取扱った他の材料と比べて特に差が認められない。このことから、図4-2の拡散溶接部での密着面積割合を表す $As \cdot Lw/A$ と継手効率との関係図上で、アルミニウムの継手効率が著しく低いのは、密着箇所への空隙の切欠効果によるものではなく、密着箇所が接合し難いためと考えられる。

図4-1の拡散溶接部での密着面積割合と継手効率の関係図上で、アルミニウム以外の材料は45度の直線上もしくはそれより上にある。またチタン及び鉄が銅及びステンレス鋼より上に位置している。この傾向は図4-5の円周切欠試験片の結果と一致している。したがって、継手の強さは空隙による切欠効果に影響されると考えると、各種材料の継手強さの差が説明できる。

以上の結果、継手の引張強さは密着部での接合面積、空隙による切欠効果に関係することが明らかとなった。

#### 4.5 要 約

拡散溶接初期過程での密着面積と継手の引張性能との関係から、継手の引張性能に影響を及ぼす因子を検討した。得られた結果は次のように要約できる。

1. 銅、鉄、チタン及びSUS304ステンレス鋼の拡散接部においては、密着部の引張強さは母材の強さに匹敵しており、密着部はほぼ接合している。したがってこれらの材料の継手の強さは、主として接合した密着部の面積と空隙による切欠効果に影響される。
2. 拡散溶接部の空隙が密着部に対して切欠となる。平滑試験片に対する切欠強さの増加割合の大きい鉄及びチタンにおいては、この切欠効果により継手の引張強さが増加する。
3. アルミニウムでは、 $As \cdot Lw/A$ から算出した密着部の引張強さは著しく低く、密着部での接合箇所が少ない。
4. 空隙が残留する継手の引張強さは、密着部の接合面積と空隙による切欠効果に影響される。

## 第 5 章 拡散溶接における表面皮膜

### 5.1 概 説

第 4 章で述べたように、アルミニウムの拡散溶接継手の引張強さが低い。この原因として、表面皮膜の影響が考えられ、拡散溶接部での表面皮膜の影響を明らかにする必要がある。

接合面の清浄さが拡散溶接継手の性能に影響すると考えられるが、清浄さを定量的に表す方法や、簡便に測定する方法がないこともあって、拡散溶接部での表面皮膜についての研究は非常に少ない。

拡散溶接部での皮膜についての報告には、真空度  $3 \times 10^{-2}$  Torr でのステンレス鋼の接合において、 $\text{Cr}_2\text{O}_3$  の酸化皮膜が拡散溶接部に形成されるとの報告がある。<sup>43)</sup> またアルミニウムの拡散溶接部の電気抵抗測定及び透過型電子顕微鏡観察から、アルミニウムの酸化物が接合過程に影響するとの報告<sup>20)</sup> もある。しかし、拡散溶接によって、接合面上の表面皮膜がどのような挙動を示すか、明らかにされていない。

そこで、本章では拡散溶接前後での接合面のオージェ分析、走査型電子顕微鏡観察などから、拡散溶接部での酸化皮膜の挙動を調べるとともに、アルミニウムの継手強さが低い原因について検討した。

### 5.2 接合する面の表面皮膜

前章で密着部の引張強さを調べた試料について、拡散溶接直前の接合面をオージェ分析し、表面皮膜の組成及び厚さについて検討した。

また、前章での接合試験片は表面加工層を取り除く目的で、すべて真空中加熱処理を行ったが、その影響についても調べた。

#### 5.2.1 供試材及び実験方法

供試材及び表面処理法は、第 2, 3, 4 章の実験と同じである。つまり、表面処理は接合面を旋盤加工後、アセトン中で超音波洗浄し、引き続き表面加工層を取り除くため真空中で熱処理した。熱処理温度はチタン、鉄及び SUS 304 ステンレス鋼では  $800^\circ\text{C}$ 、銅では  $500^\circ\text{C}$ 、アルミニウムでは  $400^\circ\text{C}$  である。雰囲気圧力  $5 \times 10^{-5}$  Torr 以下の真空中で 1 時間加熱した。接合面

の粗さ曲線は図 2-3 に示している。

接合面の分析に用いたオージェ電子分光器は Physical Electronics Industries Inc. 製, 10-155 型である。本装置のビーム径は約 100  $\mu\text{m}$  である。なお, オージェ分析は 1 次電子の加速電圧は 3 kV で行っている。スパッタリング条件は 2 kV, 25 mA である。この条件下のスパッタリング速度は鉄で実測の結果, 70  $\text{\AA}/\text{min}$  であった。材料によってスパッタリング速度は異なるが, 鉄との相対スパッタリング速度比から算出した, 各種材料のスパッタリング速度を表 5-1 に示す。なお各元素の濃度の算出は, 相対感度を考慮して各元素の相対強度を求め, 全元素の相対強度の和を 100 % として各元素の相対強度割合から求めている。<sup>44)</sup>

表 5-1 各種材料のスパッタリング速度

Materials	Sputtering Rate
Fe	70 $\text{\AA}/\text{min}$
Cu	140
Al	30
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	10

Sputtering Conditions :

$5 \times 10^{-5}$  Torr, Ar, 2 kV, 25 mA

### 5.2.2 オージェ分析による考察

接合試験片は, 実験方法で述べたように, 旋盤加工後アセトン中で洗浄し, 真空中で加熱した。図 5-1 はこのように処理をした拡散溶接直前での各種材料のオージェ分析結果を示す。いずれの材料の接合面にも, 母材金属の他, 酸素, 炭素, 硫黄などが検出される。

次に, アルゴンイオン衝撃しながらオージェ分析を行い, 深さ方向の組成変化を調べた。図 5-2 に各種材料について各元素の濃度とアルゴンイオンによるスパッタリング時間との関係を示す。いずれの材料の接合面上にも, 酸素, 炭素が多く, チタンでは窒素も検出される。スパッタリング時間の増加とともに, これら元素の濃度が低下し, 母材の元素濃度が逆に増加しており, 接合面には母材金属と酸素, 炭素などからなる表面皮膜がある。

なお, アルミナと金属アルミニウムのオージェ分析とで, アルミニウムの分析波形及びエネルギー位置が異なることが知られている。<sup>44)</sup> 図 5-3 のアルミニウムの分析結果で, スパッタリング時間がゼロで, 酸素量の多い(A)の場合には, アルミナの分析波形がアルミナのエネルギー位置に見られる。一方, スパッタリング時間が長く酸素が検出されない(B)では, 金属アルミニウムの分析波形が高エネルギー側に移動して見られた。したがって, アルミニウムの接合面に

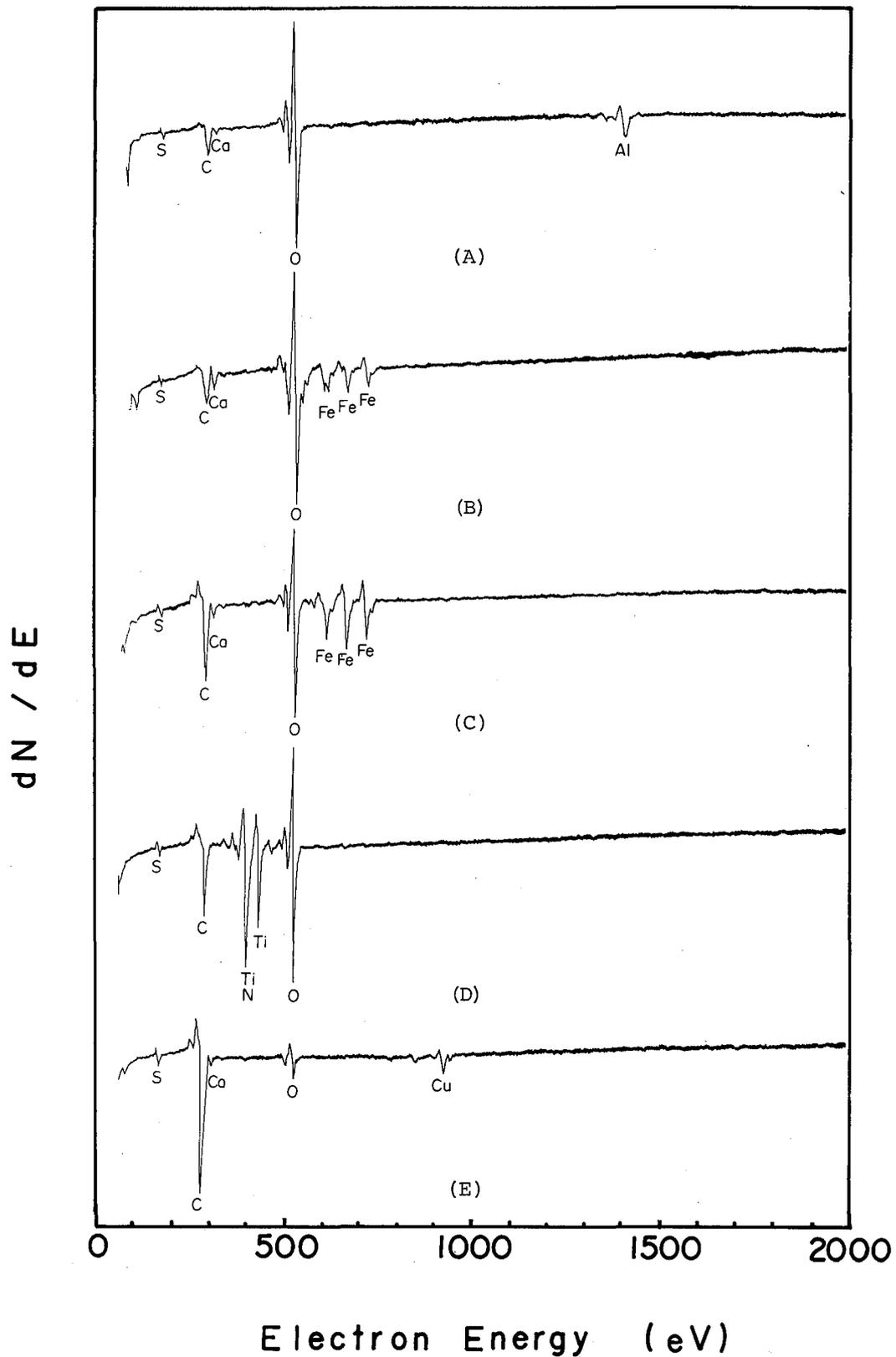
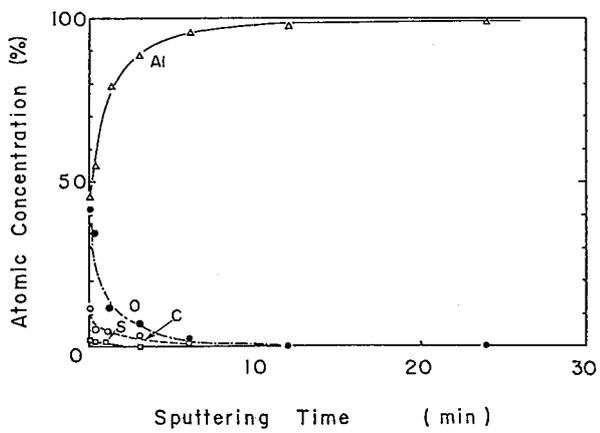
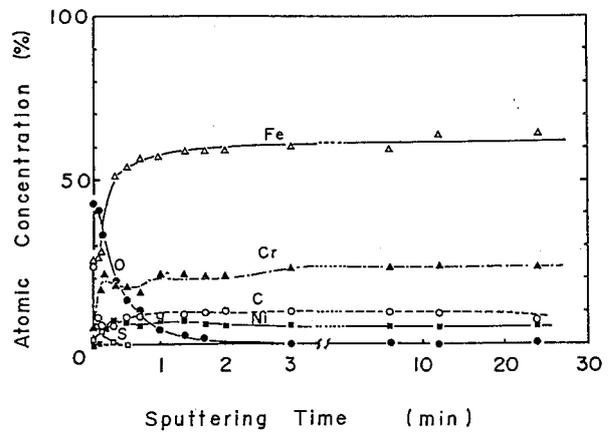


図5-1  $3 \times 10^{-5}$  Torr の真空中で1時間加熱した各種材料の接合面のオージェ分析結果  
 (加熱温度; SUS304, Fe, Ti: 800°C, Cu: 500°C, Al: 400°C)

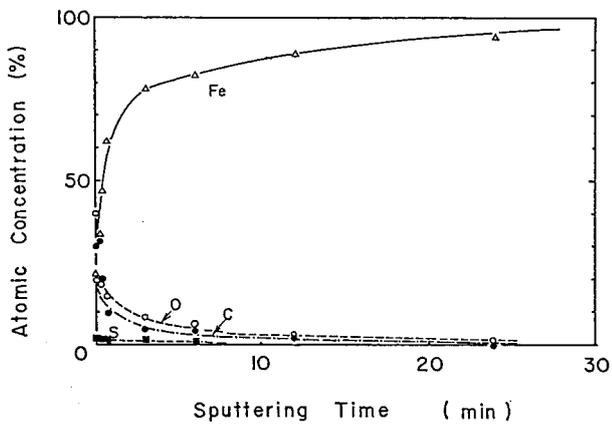
- (A) アルミニウム (B) SUS304ステンレス鋼  
 (C) 鉄 (D) チタン (E) 銅



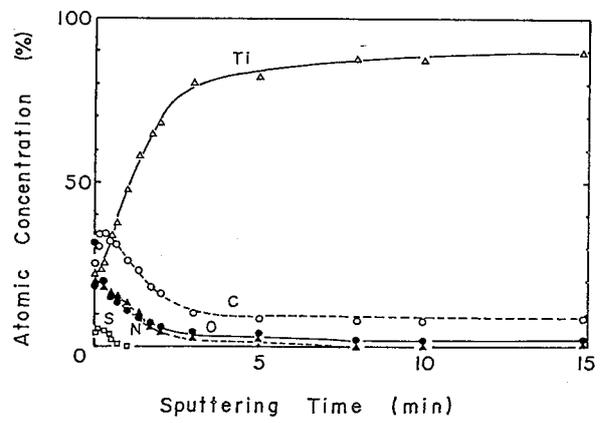
(A)



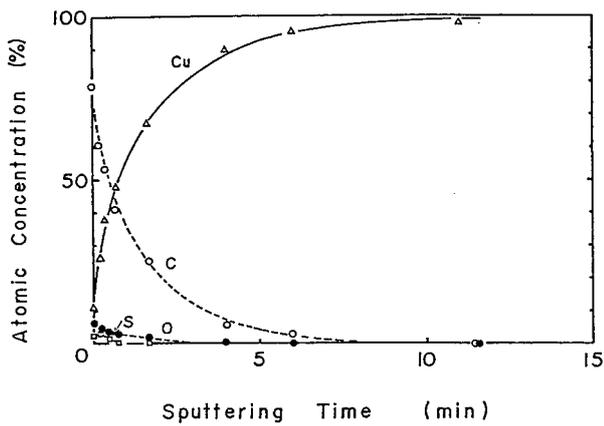
(B)



(C)



(D)



(E)

図 5-2 真空中で熱処理した各種材料の深さ方向のオージェ分析結果

- (A) アルミニウム (B) SUS304ステンレス鋼  
 (C) 鉄 (D) チタン  
 (E) 銅

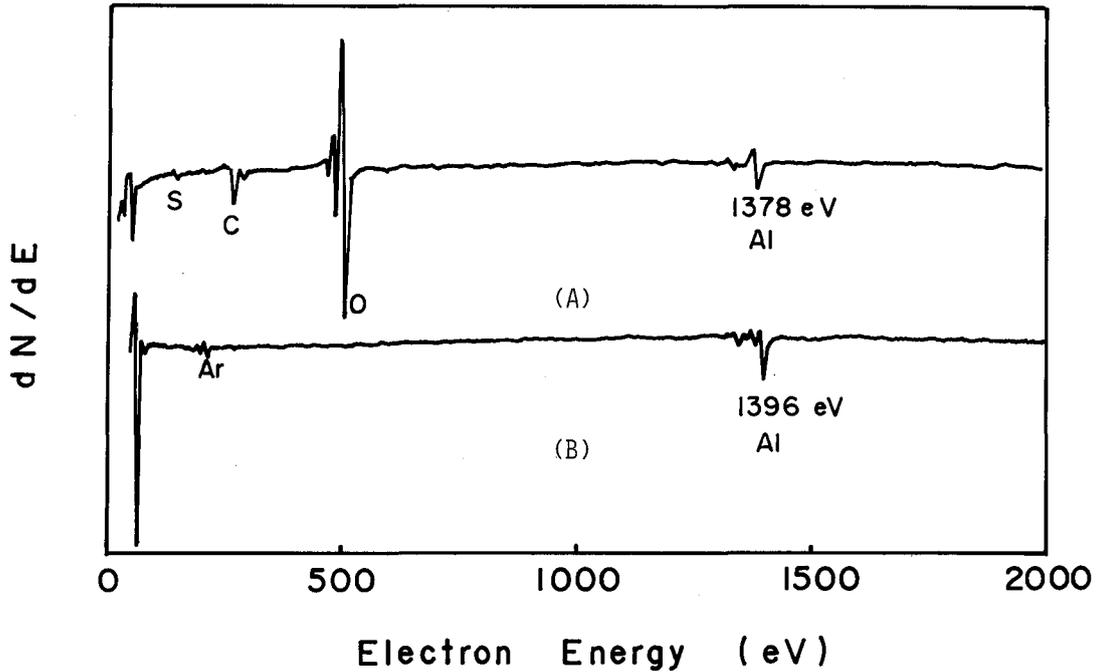


図 5-3  $3 \times 10^{-5}$  Torrの真空中で  $400^{\circ}\text{C}$ 、1時間加熱したアルミニウム表面のオージェ分析結果  
スパッタリング時間 (A) 0分 (B) 24分

はアルミナがあると考えられる。

次に、酸化皮膜層の厚さについて考えてみる。図 5-2 の深さ方向の濃度分布に見られるように、酸素濃度は深さ方向にいずれの材料においても減少している。明らかな酸化皮膜層を示す酸素濃度一定の領域が見られないのは、表面粗さやスパッタリングの不均一性などによるものと考えられる。いずれにせよ表 5-1 の各種材料のスパッタリング速度から、本実験での接合面の酸化皮膜層の厚さは非常に薄いものと考えられる。

先の分析は、表面加工層の影響を取り除くため真空中で加熱した拡散溶接直前の試験片である。この真空中加熱が表面皮膜の組成及び厚さに及ぼす影響を調べた。

アルミニウムについて旋盤加工後アセトンで脱脂した試験片及び大気中で行った引張試験の破面の分析を行った。図 5-4 にその結果を示す。(A)の旋盤加工後アセトンで脱脂した接合面では、図 5-1 の(A)の真空中で熱処理した接合面より炭素が多い。これはアセトンの吸着によると考えられる。図 5-4 の(B)の母材の引張破面上には、アセトンで脱脂した試験片及び真空中で加熱した試験片より炭素が少なく、逆に酸素量が多い。また、アルミニウムの分析波形及び分析波形のエネルギー位置から、大気にさらしたアルミニウムの破面上にアルミナが形成されているのがわかった。

さらに、図 5-4 のアルミニウムについて深さ方向の分析も行い、脱脂のみの接合面、真空中で加熱した接合面、大気中での引張破面を比較した。その結果、炭素、酸素の量に差はある

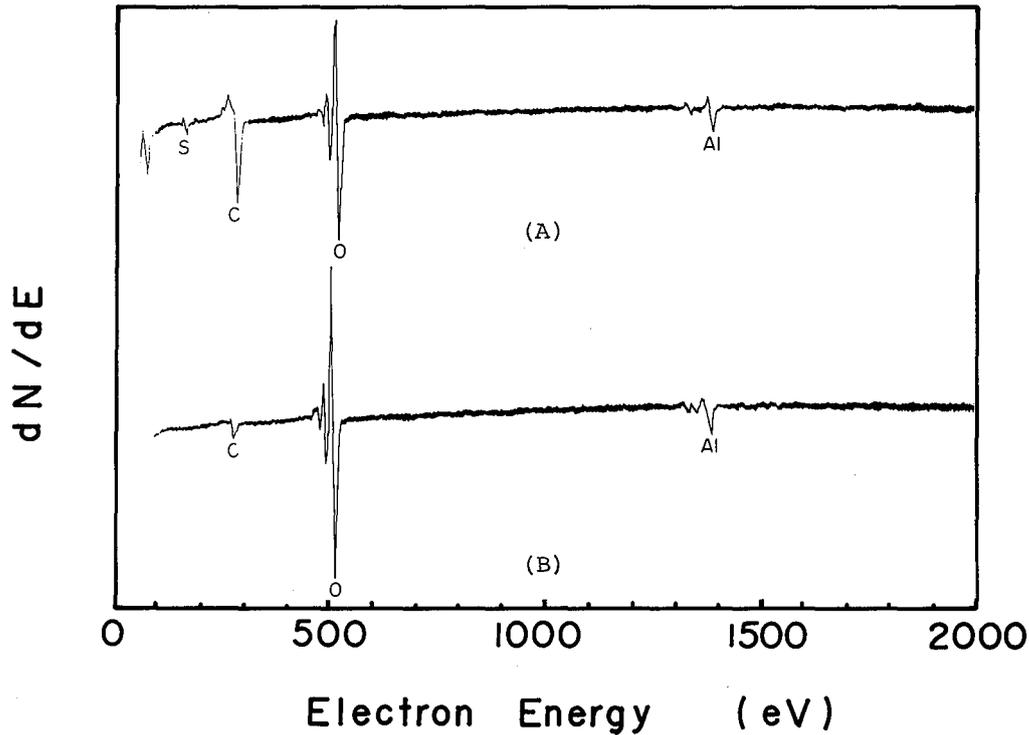


図5-4 アルミニウム表面のオージェ分析結果  
 (A) 旋盤加工後アセトンで脱脂した面  
 (B) 母材の引張破面

が、深さ方向の各元素の濃度変化には余り差がなかった。

アルミニウム以外の各種材料について、アセトンで脱脂した接合面の深さ方向の分析を行い、真空中加熱した接合面と比較した。ステンレス鋼では、酸素を含む層が真空中加熱によってやや厚くなったが、他の材料ではほとんど変らなかった。

以上の結果、前章までの実験に用いた真空中加熱した各種材料の接合面は、炭素、酸素の他、各種の元素でおおわれている。また、アルミニウムの接合面にはアルミナが存在することが明らかとなった。

### 5.3 拡散溶接部での表面皮膜

接合する面は酸素や炭素などを多量に含む表面皮膜で覆われている。本節では図5-1、図5-2に示したような表面皮膜をもつ接合面の拡散溶接継手を走査型オージェ電子分光器内で破壊して、破面のオージェ分析を行った。未密着部と密着部の破断箇所でのオージェ分析結果と接合前のオージェ分析結果との比較から、拡散溶接による各種材料の表面皮膜の挙動を検討した。また、アルミニウムの継手強さが低い原因についても考える。

### 5.3.1 実験方法

供試材，表面処理法及び接合方法は第2,3,4章と同じである。拡散溶接した継手を図5-5に示すような試験片形状に加工し，走査型オージェ電子分光器内に取り付けた。使用した装置はPhysical Electronics Industries Inc. 製，590A型である。 $5 \times 10^{-10}$  Torr以下の圧力に排気した後，試験片を衝撃的に接合部で破壊して，破面をオージェ分析した。

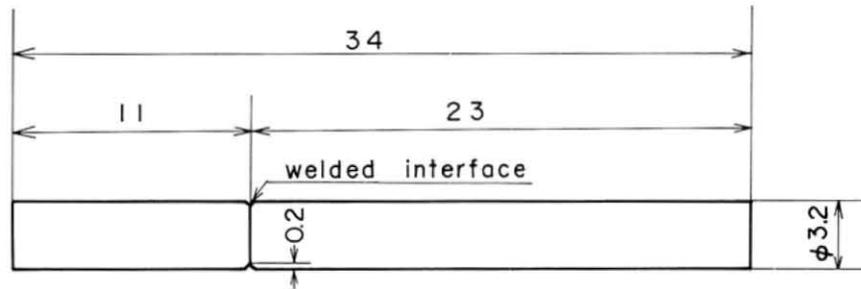


図5-5 走査型オージェ電子分光器用の破断試験片形状

### 5.3.2 走査型オージェ分析による考察

拡散溶接部での密着面積割合が30～50%の継手の破面について，未密着部と密着部の破断面所のオージェ分析を行った。

図5-6はアルミニウムを630℃，0.3kgf/mm<sup>2</sup>，64minで接合した継手の破面の2次電子像を示している。図5-7は2次電子像上の分析点(1)と分析点(2)の結果である。分析点(2)は接合面の凸部に相当し，前章までの破面についての知見から密着部と考えられる。分析点(1)は

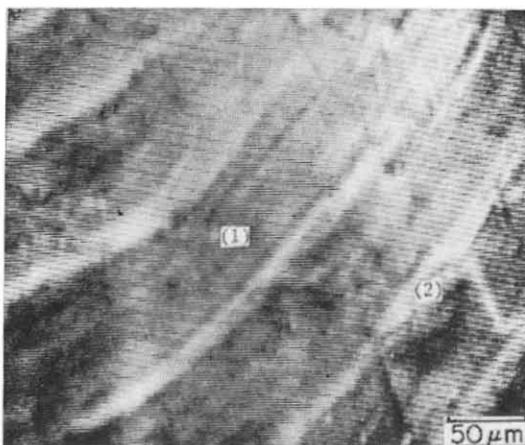


図5-6 アルミニウムの拡散溶接部を走査型オージェ電子分光器内で破壊して得られた破面の2次電子像  
(1)は未密着部 (2)は破断面  
(接合条件：630℃，0.3kgf/mm<sup>2</sup>，64min，3μm)

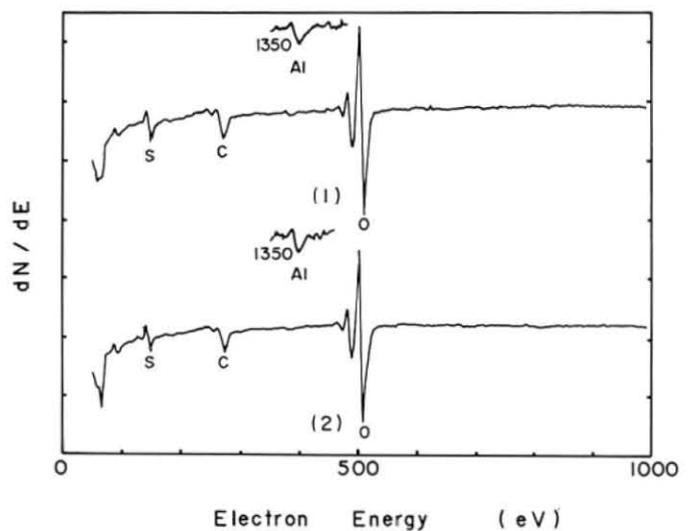


図5-7 図5-6上の分析点(1)及び(2)のオージェ分析結果

凹部で未密着部である。密着部の破断箇所ではやや酸素が少ないものの、両分析点でそれほど差が見られない。また、接合前の図5-1の結果と比べても接合による酸素、炭素量の変化は見られない。アルミニウムの表面皮膜は接合によってほとんど変化しないといってよい。

図5-8は銅を800℃、0.5 kgf/mm<sup>2</sup>、16min で接合した継手の破面の観察結果である。(A)

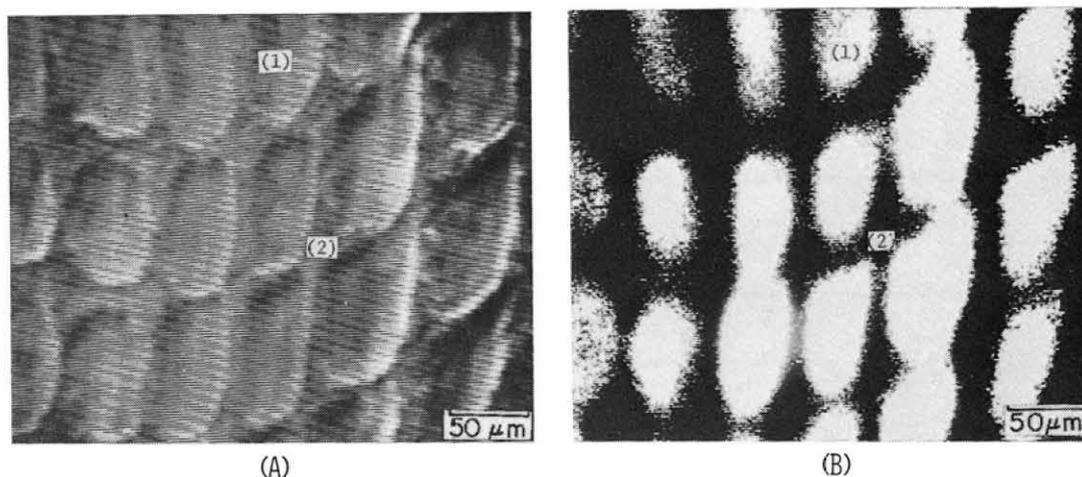


図5-8 銅の拡散溶接部の破面の2次電子像(A)と硫黄のオージェ電子像(B)  
 (1)は未密着部 (2)は破断部  
 (接合条件：800℃、0.5 kgf/mm<sup>2</sup>、16min、3μm)

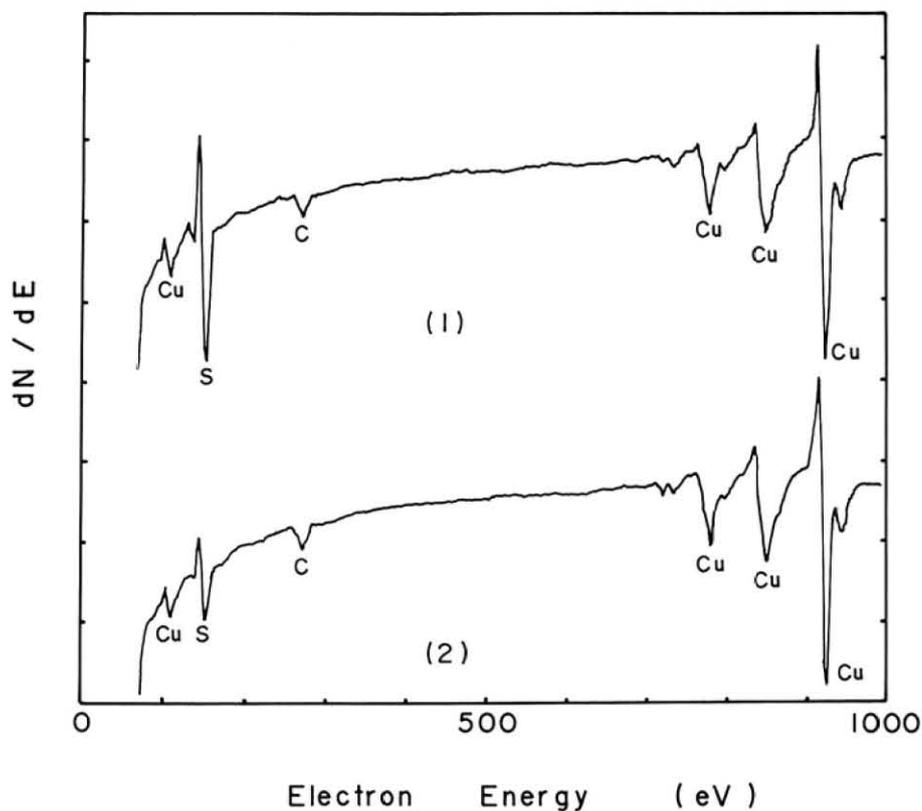


図5-9 図5-8上の分析点(1)及び(2)のオージェ分析結果

に破面の2次電子像，(B)に硫黄のオージェ電子像を示している。(A)の2次電子像で未密着部と密着部の破断箇所が識別できる。(B)の硫黄の分布と比較してみると，未密着部に硫黄が偏析しているのがわかる。いま，写真上で分析点(1)の未密着部と分析点(2)の破断箇所をそれぞれ分析した結果を図5-9に示す。未密着部に硫黄が偏析している。また，図5-1の接合前の接合面と比べて，接合によって酸素，炭素量が大きく減少しているのがわかる。

図5-10，図5-11はステンレス鋼を1100℃，0.5kgf/mm<sup>2</sup>，16minで接合した破面の観察結果である。

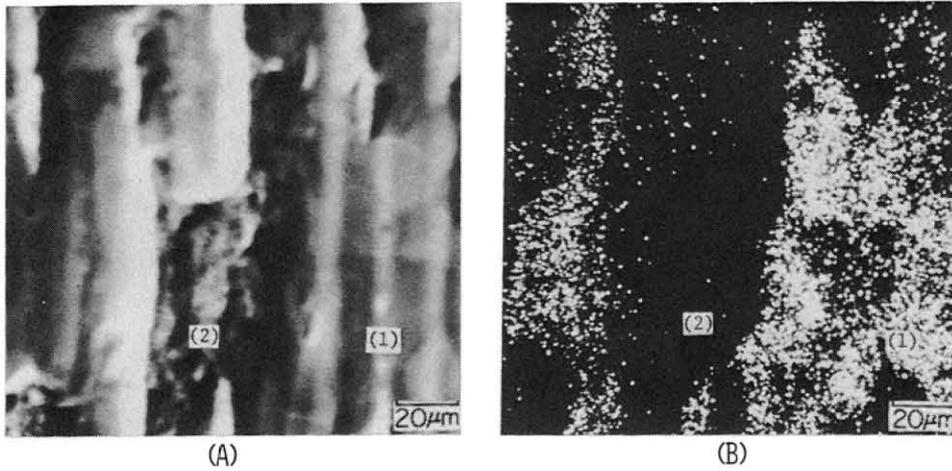


図5-10 SUS304 ステンレス鋼の拡散溶接部の破面の2次電子像(A)と硫黄のオージェ電子像(B)  
 (1)は未密着部 (2)は破断部  
 (接合条件：1100℃，0.5kgf/mm<sup>2</sup>，16min，2μm)

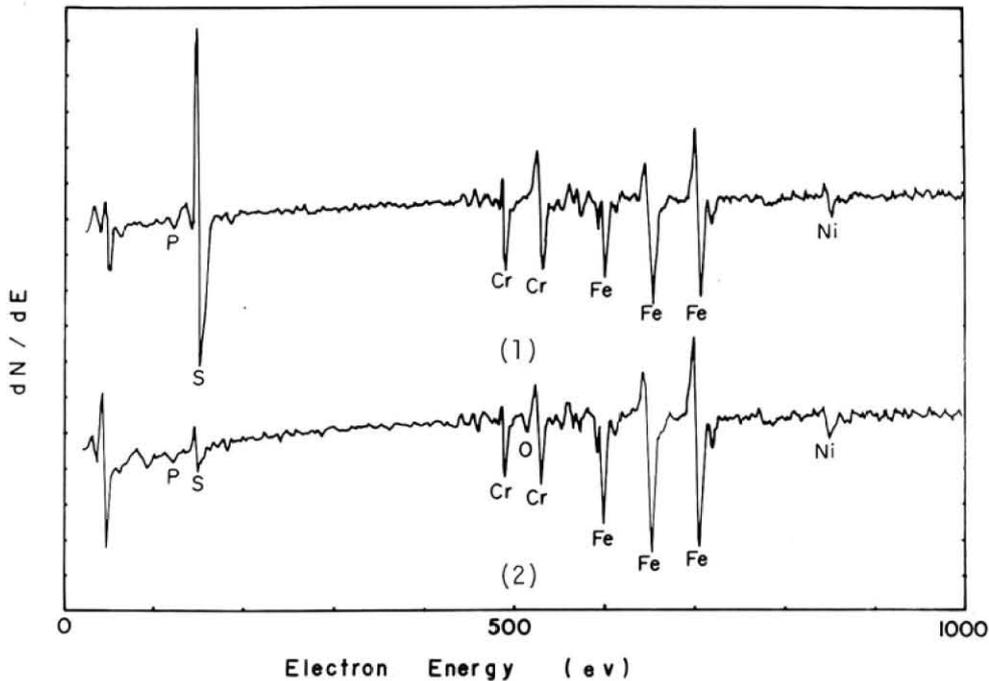


図5-11 図5-10上の分析点(1)及び(2)のオージェ分析結果

表 5-2 各種材料の接合面及び継手の破面上での未密着部と破断箇所の表面組成(原子%)

Al

	S	C	O	Al
before welding	1	12	41	45
no-contact surface	5	13	38	45
fracture surface at contact zone	4	13	36	47

Cu

	S	C	O	Cu
before welding	2	79	6	11
no-contact surface	15	7	0	78
fracture surface at contact zone	6	8	0	86

SUS 304

	S	C	O	Cr	Ni	Fe
before welding	1	24	50	3	0	16
no-contact surface	23	0	0	23	7	45
fracture surface at contact zone	3	0	2	20	8	66

以上の各種材料の分析結果から、未密着部と密着部の破断箇所の組成を求め、拡散溶接による表面の組成変化を調べた。その結果を表 5-2 に示す。

アルミニウムでは、未密着部と密着部の破断箇所組成に差は見られない。またこれらの組成は接合前の接合面の組成にほぼ等しい。つまり、アルミニウムでは接合によって表面皮膜はほとんど変化しない。一方、銅及び SUS 304 ステンレス鋼では、いずれも接合によって未密着部及び破断部とも、酸素、炭素が減少している。

アルミニウム以外の材料で拡散溶接部の密着面が破断面に原子的な観点で一致するかどうかは確認できない。それで、密着部の破断箇所の組成から拡散溶接部の密着部の組成を論ずるのは困難である。しかし、未密着部については次のことが明らかになった。すなわち、アルミニウムでは表面組成が変わらないが、銅及び SUS 304 ステンレス鋼では、炭素、酸素が減少した。したがって、アルミニウムでは拡散溶接によって表面皮膜は変化しないが、銅及びステンレス鋼では表面皮膜は消失すると考えられる。

未密着部には硫黄の偏析が見られた。そこで深さ方向にオージェ分析して硫黄の層の厚さを調べた。図 5-12 は SUS 304 ステンレス鋼についての結果である。5sec のスパッタした面には全く硫黄が検出されなかった。この 5 sec のスパッタ条件では鉄を 6 Å 除去するのに相当することから、空隙内面上の硫黄の厚さは極めて薄いことがわかる。

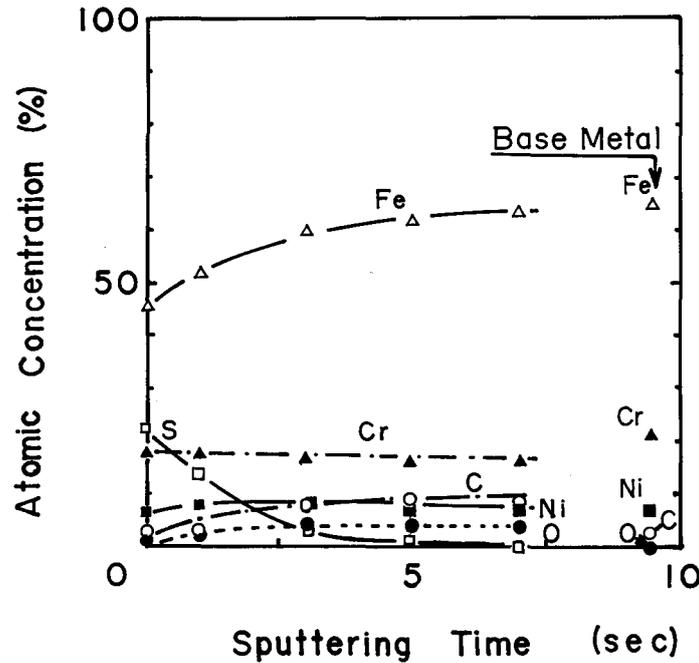


図5-12 ステンレス鋼拡散溶接部の未密着部における深さ方向のオージェ分析

なお、高温で加熱した時の SUS304 ステンレス鋼の表面には、硫黄の偏析が見られることが報告されている。<sup>45)</sup> このことから、拡散溶接部の空隙の内面でも、自由表面と同じように、硫黄の偏析があることがわかる。

次に、空隙内面に偏析した硫黄の継手強さへの影響について考えてみる。SUS304 ステンレス鋼を硫黄の偏析が見られた図5-10と同じ加熱条件で熱処理した試験片を拡散溶接した。硫黄の偏析した面の接合継手の引張強さは、硫黄の少ないアセトン脱脂面の接合継手の強さとあまり差が見られなかった。第5.5節で述べるように、破面に硫化物が見られることから、密着部での硫黄は凝集して硫化物を形成すると考えられる。しかし、この量はわずかなことから、空隙内面に偏析した極く薄い硫黄の層は、継手の強さにそれほど影響しないものと考えられる。

このように、銅及びステンレス鋼では拡散溶接による表面皮膜の変化が見られるが、アルミニウムでは変化が見られない。このアルミニウムの表面皮膜の安定さが、継手の引張強さの低い原因と考えられる。

#### 5.4 空隙部での酸化物の消失機構

前節の結果から、アルミニウム以外の材料では拡散溶接部の未密着部つまり空隙部では酸化皮膜は消失すると考えられる。

本節では、拡散溶接初期での空隙部における酸化皮膜の消失機構について検討し、アルミニ

ウムの空隙での酸化皮膜の消失しない原因について考察する。空隙部での酸化皮膜の消失機構についての知見は、拡散溶接の進行とともに空隙部が密着するので、密着部での酸化皮膜の挙動について示唆を与えてくれるものと考えられる。

#### 5.4.1 実験方法

実際の拡散溶接部では微細な密着部と空隙部とは混在している。それで空隙部の観察を容易にする目的で、図5-13に示すような接合面にくぼみのある試験片(A)と平坦な接合面の試験片(B)とを拡散溶接した。また酸化皮膜を観察しやすくするため、大気中で加熱して酸化皮膜を厚くした。表5-3に各種材料の酸化処理条件を示す。なお、拡散溶接法は第2章の場合と同じである。

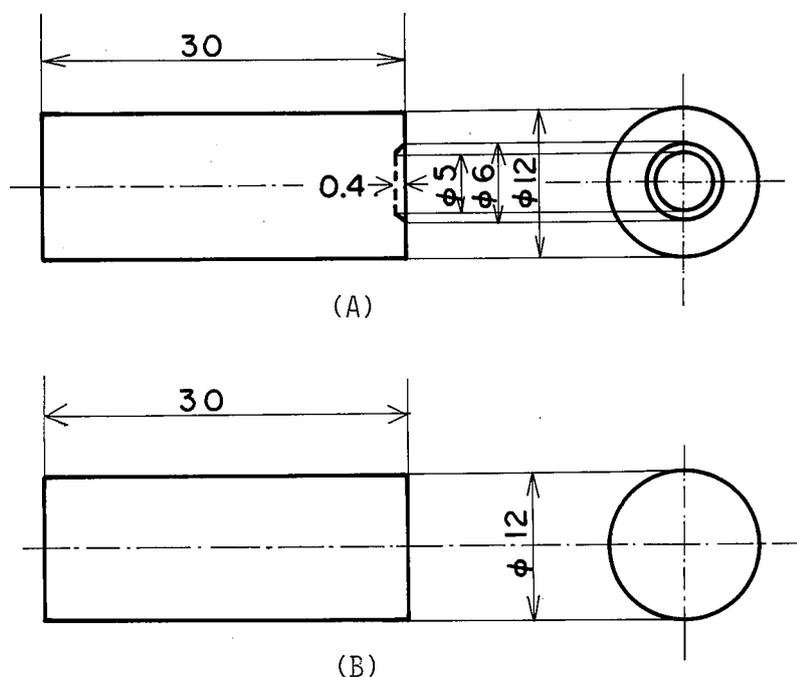


図5-13 空隙部観察用の試験片形状

表5-3 各種材料の酸化処理条件

Materials	Heating Conditions
Al	400°C, 1 h, in Air
Cu	400°C, 15 min, in Air
Fe	400°C, 15 min, in Air
Ti	400°C, 1 h, in Air
SUS 304	400°C, 1 h, in Air

#### 5.4.2 酸化皮膜の挙動

図5-13の形状に加工した各種材料の試験片を大気中加熱して、酸化した試験片を拡散溶接した。これらの継手を引張試験し、円板状の空隙内面を走査型電子顕微鏡で観察した。

図5-14は、接合前の酸化面、並びに接合時間が15sec, 64minの空隙内面の走査型電子顕微鏡写真を示す。アルミニウムでは、拡散溶接による空隙内面の変化はそれほど見られない。チタンでも変化が少ないが、結晶粒界が接合時間とともにはっきり見えるようになった。SUS 304 ステンレス鋼では、酸化物が凝集したと思われる介在物が見られ、接合時間とともにその量は減少している。また、介在物の形が小さいけれども、銅及び鉄にも介在物が見られ、接合時間とともに減少している。

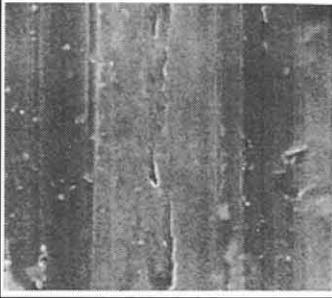
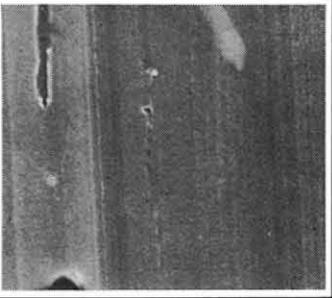
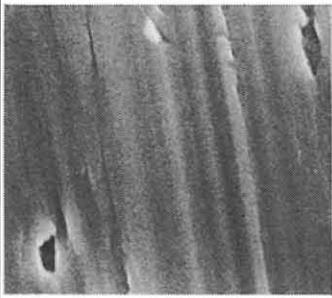
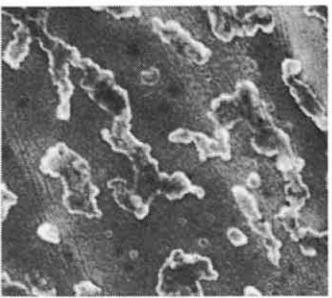
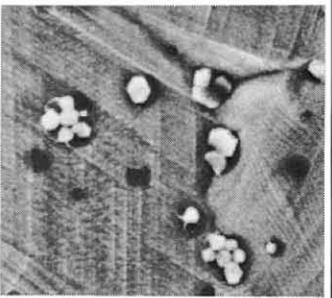
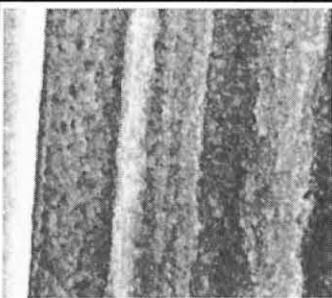
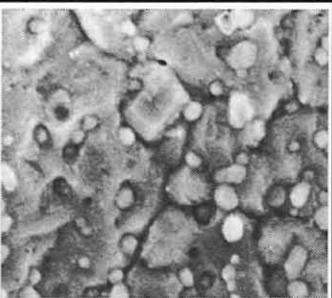
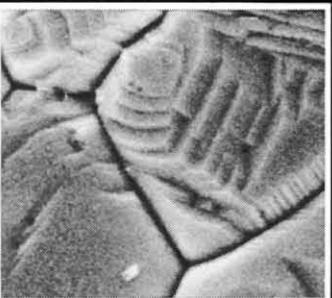
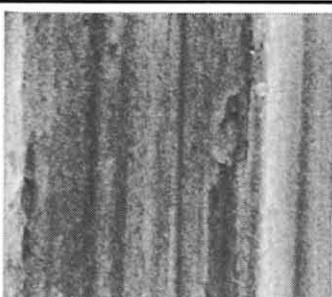
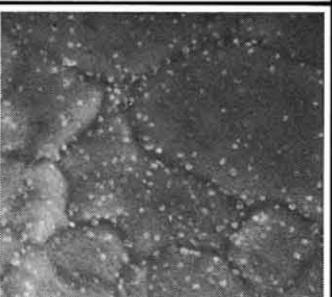
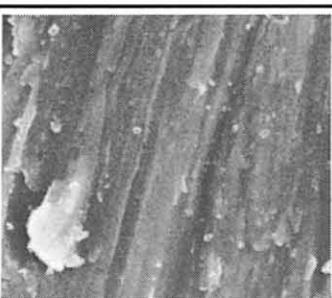
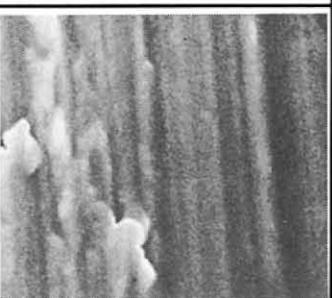
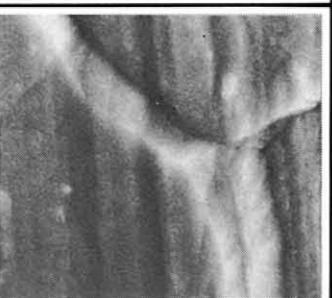
次に、拡散溶接部の空隙内面における現象を明らかにするため、加熱時に $3 \times 10^{-5}$  Torrの雰囲気ガスに常に接している自由表面と比較した。大気中で酸化処理した図5-13の(A)の試験片を拡散溶接装置内で加熱し、そのくぼみ面を走査型電子顕微鏡観察した。図5-15には自由表面の結果を示す。図5-14の空隙内面と比較して、アルミニウム及びチタンにおいては差はない。しかし、ステンレス鋼、銅及び鉄においては拡散溶接部の空隙に見られた介在物は見られない。

このように、拡散溶接部の空隙内面には、自由表面の加熱時と異なり、介在物が見られる。

そこで、この介在物をX線マイクロアナライザで分析した。図5-16はSUS 304 ステンレス鋼、銅及びチタンの接合時間15secでの空隙内面の2次電子像と酸素の特性X線像を示している。SUS 304 ステンレス鋼では介在物の分布と酸素の分布とが対応しており、介在物は酸化物であることがわかる。一方、銅においては介在物が $1 \mu\text{m}$ 以下と微細で、X線マイクロアナライザの分析限界を越えている。しかし、白く見える介在物が多く分布する左上方には、酸素が多く検出され、微細な介在物は酸化物であることがわかる。一方、チタンでは酸素の偏析は見られず、凝集した酸化物は見られない。なお、微細なため分析できなかった鉄の空隙内面の介在物も酸化物と考えられる。

次に、図5-14で観察した空隙部内面をオージェ分析した。図5-17は深さ方向の酸素分布に及ぼす接合時間の影響を示している。オージェ分析径は約 $100 \mu\text{m}$ で、酸化物径よりも大きいので、分析結果は空隙内面の平均組成を示している。大気中で破壊したので、空隙内面は汚染されているが、深さ方向の濃度分布の変化から酸化皮膜の挙動を考える。アルミニウムでは、拡散溶接しても酸素の濃度分布に変化が見られない。一方、他の材料においては拡散溶接前はかなり深くまで酸素が分布し、厚い酸化皮膜で覆われている。しかし接合時間の増加とともに酸素が少なくなった。これは、破面観察時での空隙内面の酸化物の減少と対応している。

以上の破面観察及び分析結果から、アルミニウムの酸化皮膜は安定で、拡散溶接による変化

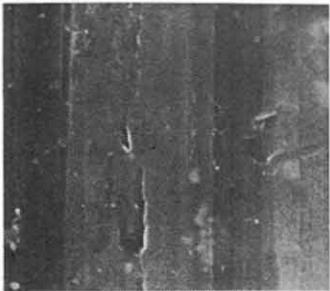
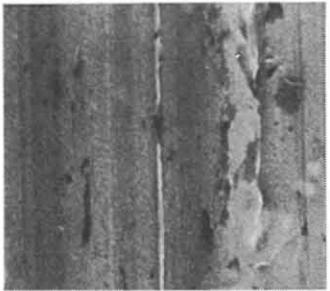
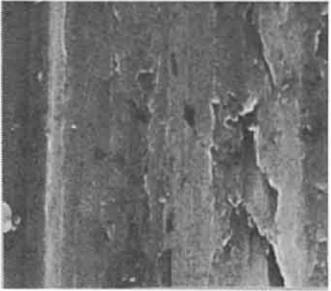
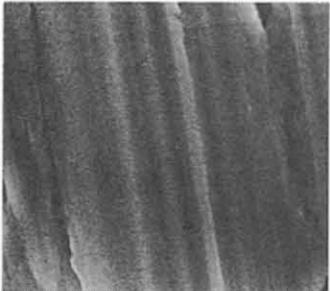
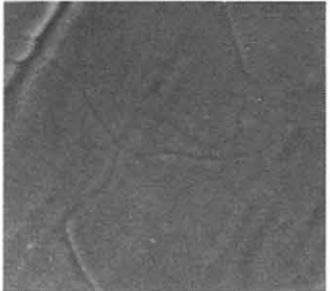
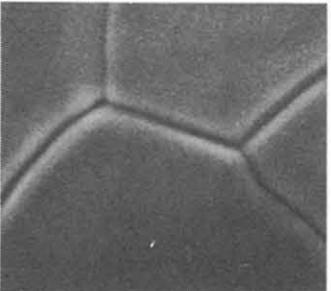
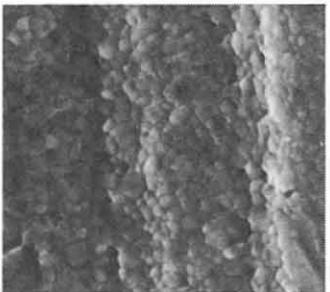
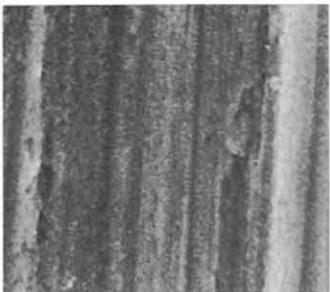
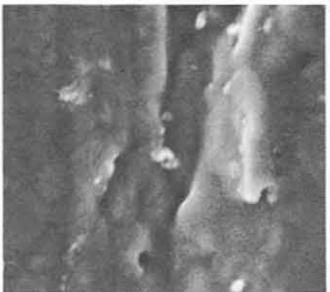
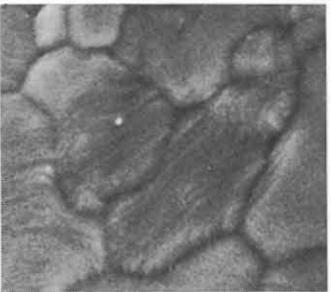
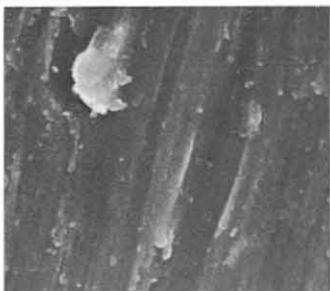
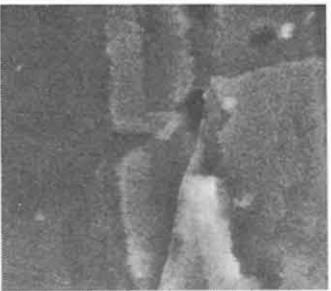
	Before Welding	Welding Time	
		15 sec	64 min
Al			
SUS 304			
Cu			
Fe			
Ti			

Welding Temperature

3μm

Al:600°C, SUS304:1100°C, Cu:800°C, Fe:830°C, Ti:830°C,

図 5-14 図 5-13 の形状に加工した試験片を酸化処理して接合した継手における円板状空隙部の走査型電子顕微鏡写真

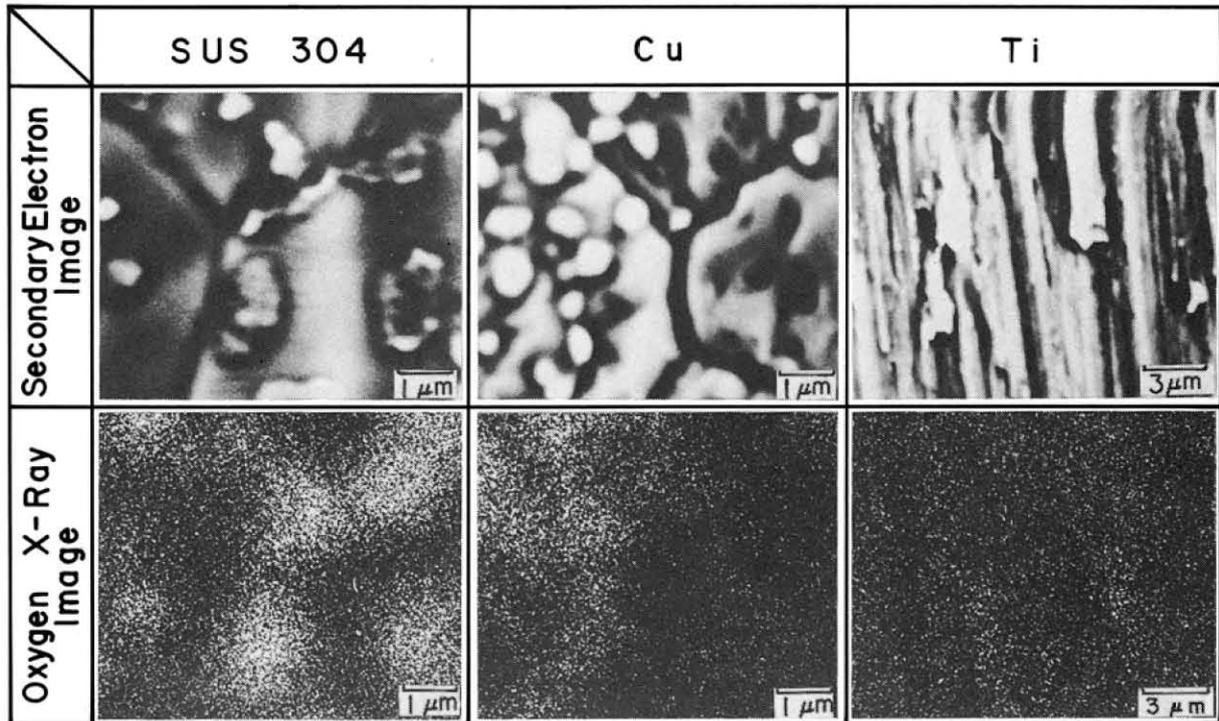
	Before Heating	Heating Time	
		15 sec	64 min
Al			
SUS 304			
Cu			
Fe			
Ti			

Heating Temperature

3μm

Al: 600°C, SUS304:1100°C, Cu:800°C, Fe:830°C, Ti:830°C,

図 5-15 酸化処理した試験片を  $3 \times 10^{-5}$  Torr 中で加熱した表面の走査型電子顕微鏡写真



Welding Conditions    SUS304 : 1100°C, 15sec, 1.2kgf/mm<sup>2</sup>  
                                   Cu : 800°C, 15sec, 0.6kgf/mm<sup>2</sup>  
                                   Ti : 830°C, 15sec, 0.3kgf/mm<sup>2</sup>

図 5-16 空隙部の 2 次電子像と酸素の特性 X 線像

はそれほど認められない。SUS 304 ステンレス鋼，鉄，銅では空隙内面の酸化皮膜が凝集し，酸化物を形成する。その量は接合時間とともに減少する。一方，チタンでは酸化物の形成は見られないが，拡散溶接によって空隙内面の酸化皮膜は消失している。

以上の結果は厚い酸化皮膜をもつ試料での結果であるが，酸化皮膜が薄い場合にも，同様な現象が生じていると考えられる。したがって，前節でアルミニウム以外の材料で空隙内面の酸素量が減少しているのは，納得できる。

#### 5.4.3 酸素の母材への拡散

拡散溶接によって空隙部の酸化皮膜は消失する。この消失する機構について考えてみる。

酸化皮膜で覆われた材料を真空中で加熱した際の，酸化皮膜の消失については 2，3 の報告がある。<sup>46,47)</sup> それによると，<sup>46)</sup> 酸化皮膜の消失は

- (1) 酸化物の分解
- (2) 酸化物を作っている元素の蒸発及び酸化物自身の蒸発
- (3) 母材中の炭素による酸化物の還元
- (4) 酸素の母材への拡散

などによると考えられている。

Nb 入オーステナイト系ステンレス鋼表面の酸化皮膜の真空中での消失機構は、主に炭素による還元反応によって発生したCOガスが排気され、還元反応が進行するためと報告<sup>46)</sup>されている。また炭素鋼の酸化皮膜の消失も炭素による還元反応によると報告<sup>47)</sup>されている。したがって、図5-15に示した自由表面での酸化物の消失も類似な機構によるものと考えられる。

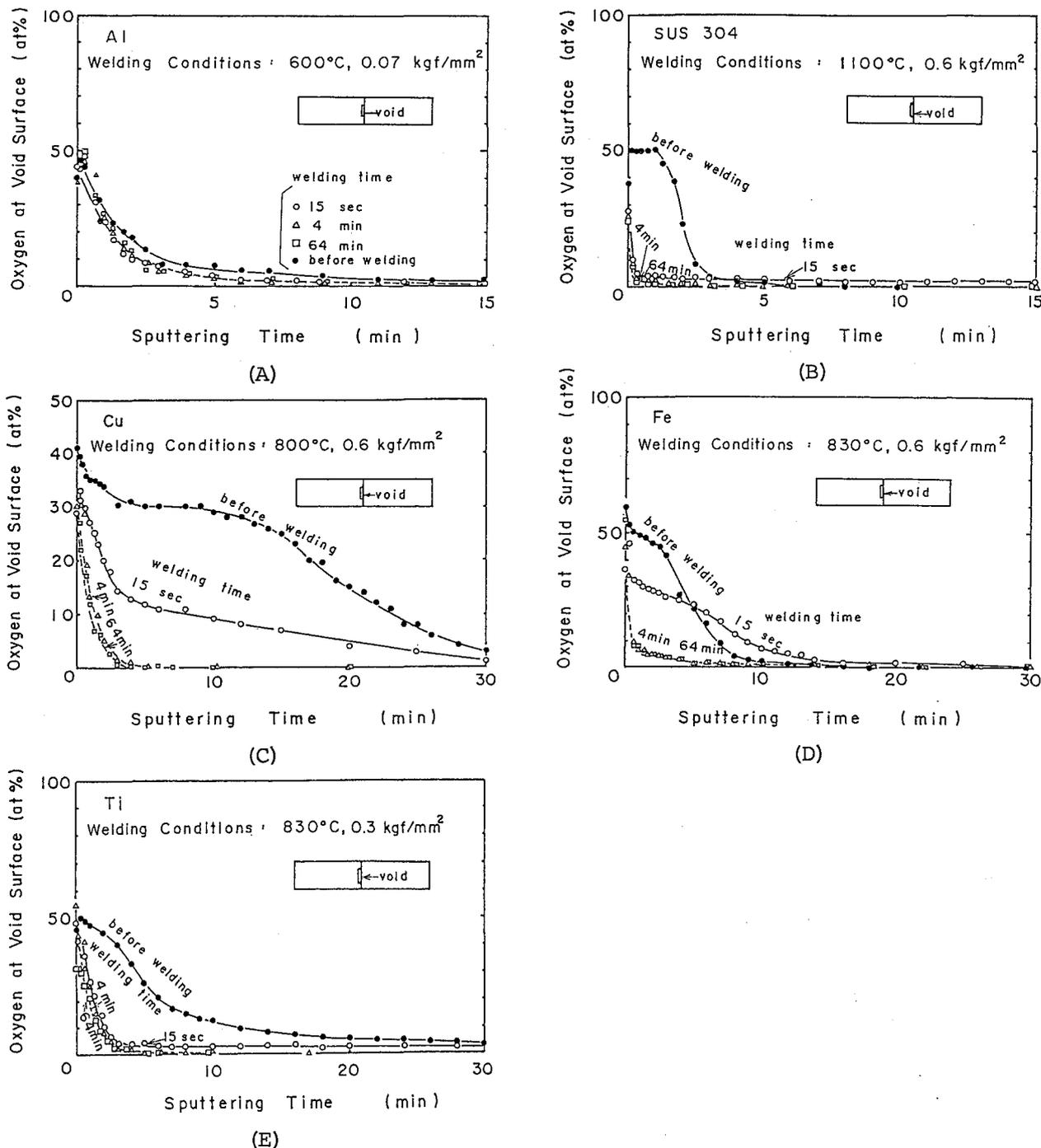


図5-17 円板状空隙部における深さ方向の酸素の分布

- (A) アルミニウム      (B) SUS304ステンレス鋼
- (C) 銅                      (D) 鉄
- (E) チタン

しかし、拡散溶接部の空隙は、接合の進行とともに密着部が形成されるので、外部としゃ断される。したがって、空隙部の酸化皮膜の挙動は雰囲気ガスと常に反応し、生成物が排気される自由表面での挙動と異なることが予想される。

まず、空隙内の酸化物が消失する機構として(1)の酸化物の分解について考えてみる。酸素との親和力の低い銅の酸化物でさえ、800℃では約 $10^{-9}$  Torr以下の酸素分圧になって始めて還元される。<sup>48)</sup> 拡散溶接の初期の空隙内には $3 \times 10^{-5}$  Torrの雰囲気ガスが満ちているので、酸化物の分解は考えにくい。また、外部としゃ断されている拡散溶接部の酸化物の消失機構として、(2)の酸化物の蒸発は不可能である。母材中の炭素による酸化物の還元も、生成ガスが排気されないので、(3)の還元反応による酸化物の消失は考えにくい。酸化物の消失の可能性として、(4)の酸化物の酸素の母材への拡散によることが考えられる。

そこで、酸化物の酸素が母材に拡散するかどうかを調べた。図5-13の空隙部に、接合材の酸化物の粉末を満して拡散溶接した。図5-18は、空隙部に $TiO_2$ をもつチタン継手の光学顕微鏡写真、X線マイクロアナライザによる分析結果及び硬さ分布を示している。チタン及び酸素の濃度分布からチタン中に酸素が拡散しているのがわかる。チタン中への酸素の固溶によってチタンが硬くなることが知られており、<sup>49)</sup> 硬さ分布と酸素分布がほぼ一致することからも、チタン中に酸素が拡散していることが確認できる。

図5-19は、鉄の継手の空隙部に $Fe_2O_3$ がある時の空隙端部の観察結果を示している。(A)は光学顕微鏡写真、(B)は(A)の写真での矢印上のX線マイクロアナライザ分析結果を示している。接合部近傍に黒い粒子が見られ、この粒子は酸化物である。

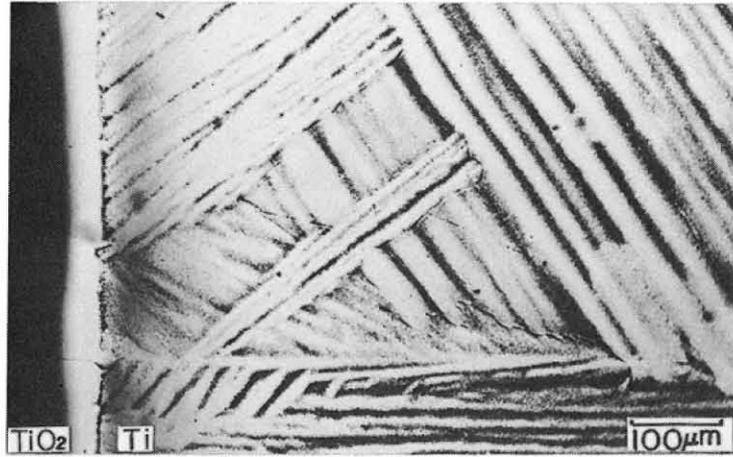
なお、類似な結果が酸化した純鉄の圧接部に見られることが報告<sup>50)</sup>されている。すなわち、圧接部近傍の母材に酸化物が分散して観察されること、酸化物の分散は酸素が母材へ拡散することによると報告されている。

図5-20は銅の継手の空隙部に $CuO$ がある時の光学顕微鏡写真を示している。接合部近傍の銅の結晶粒界には黒い粒子状の物質が見られる。接合境界から十分離れた結晶粒界には黒い粒子は見られず、黒い粒子は酸化物と考えられる。

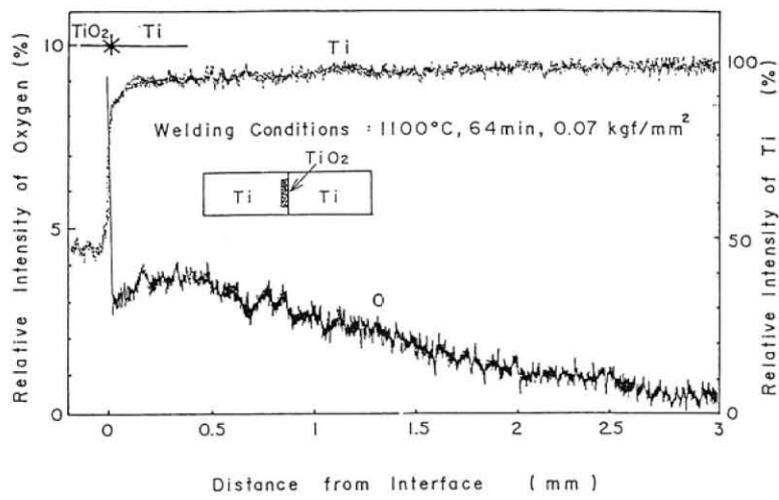
図5-21は、アルミニウムの継手の空隙部に $Al_2O_3$ がある時のX線マイクロアナライザ分析結果である。アルミニウム中には酸素の拡散は認められない。また光学顕微鏡的にも組織的变化は見られなかった。

以上の結果、接合部に酸化物をもつチタン、銅及び鉄の継手では、いずれも酸化物からの酸素の拡散が観察できた。一方、アルミニウムの場合には酸素の拡散は見られなかった。

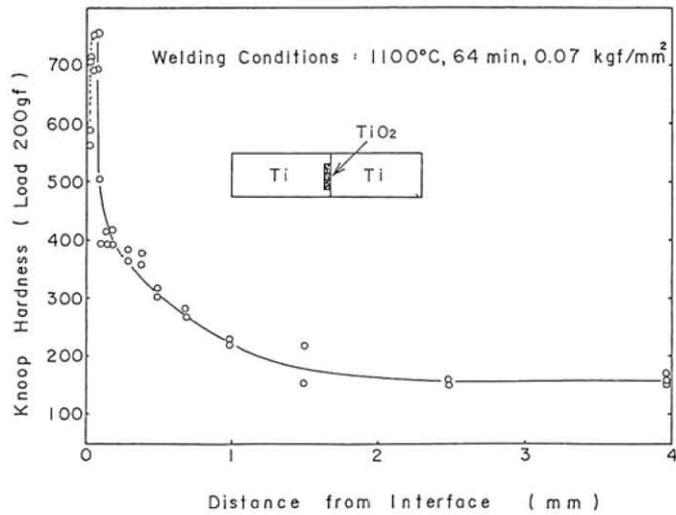
酸化物中の酸素の母材への拡散は、酸化物の熱力学的安定性の他に、酸素が母材に固溶できるかどうかに関係していると考えられる。アルミニウムの酸化物は他の母材の酸化物と比べて



(A)



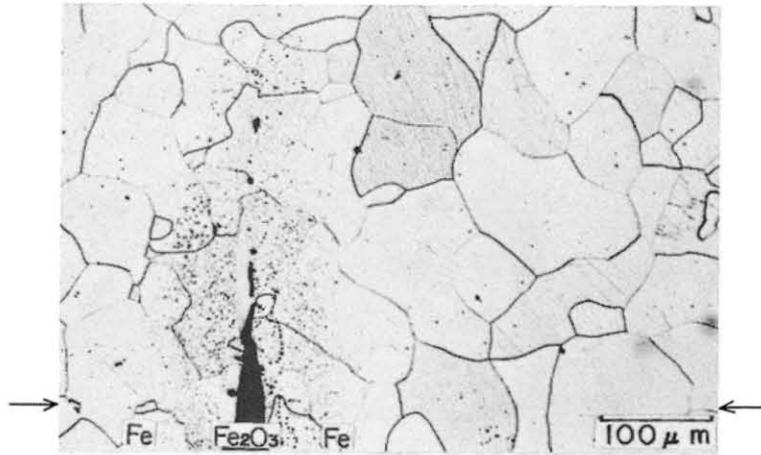
(B)



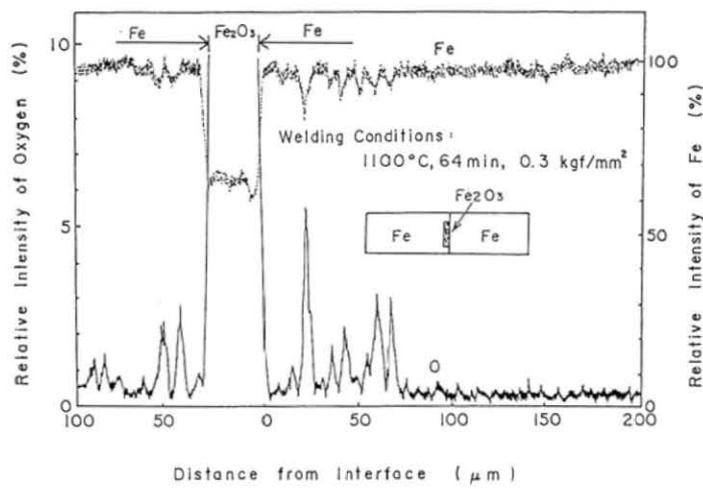
(C)

図 5-18 チタンとTiO<sub>2</sub>との接合境界部の観察

- (A) 光学顕微鏡写真
- (B) 酸素とチタンの濃度分布
- (C) 硬さ分布



(A)



(B)

図 5-19 鉄と  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  との接合境界部の観察

(A)光学顕微鏡写真 (B)酸素と鉄の濃度分布

(接合条件:  $1100^\circ\text{C}$ , 64min,  $0.3\text{ kgf/mm}^2$ )

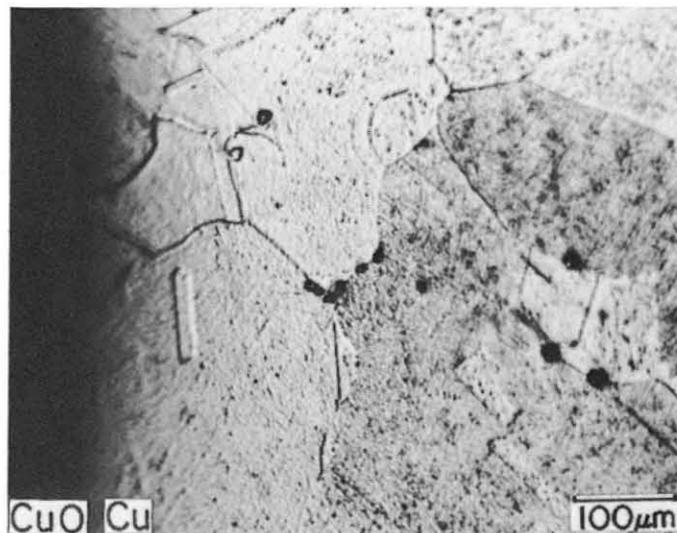


図 5-20 銅と  $\text{CuO}$  との接合境界部の光学顕微鏡写真

(接合条件:  $900^\circ\text{C}$ , 64min,  $0.4\text{ kgf/mm}^2$ )

熱力学的に最も安定である。一方、母材への酸素の固溶は、母材の酸素量と接合温度での酸素固溶量に関係する。表 2-1 に供試材の酸素量を示した。なお、アルミニウム中の酸素の定量法は確立していない。文献によれば、分析法によって酸素量の値に差があり、0.0008~0.0029%と報告されている。<sup>51)</sup> 表 5-4 の酸素の固溶度と比較して、<sup>52)</sup> アルミニウム以外の材料では、供試材の酸素量より酸素の固溶度の方が大きく、供試材へ酸素が固溶できる。しかし、アルミニウムでは酸素の固溶度が低いので、母材へ酸素が拡散できないと考えられる。

以上の結果、チタン、鉄、銅の空隙内面の酸化物の消失は、母材への酸素の拡散による。アルミニウムの酸化皮膜が消失し難いのは、酸化物の熱力学的安定さと、母材へ酸化物の酸素が拡散できないことによると考えられる。このように、アルミニウムの酸化皮膜が消失し難いこ

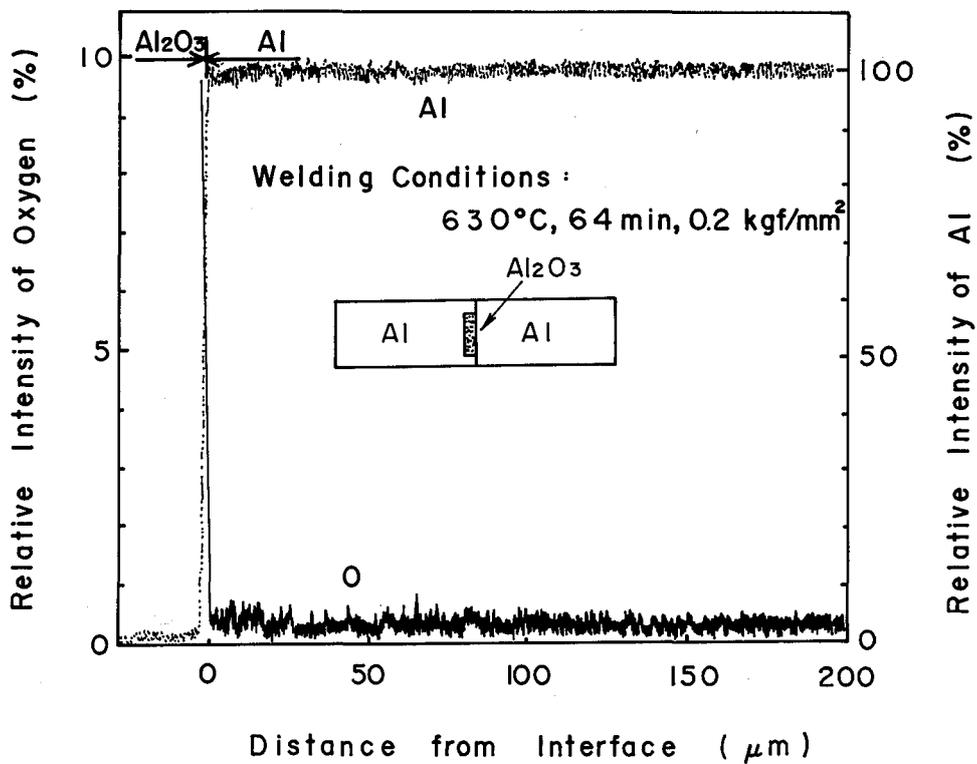


図 5-21 アルミニウムと Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> との接合境界部の X線マイクロアナライザによる分析  
(接合条件: 630°C, 64min, 0.2kgf/mm<sup>2</sup>)

表 5-4 各種材料の酸素の固溶度

Materials	Oxygen Solubility
Al	0.00015~0.0003 wt%
Cu (800°C)	0.009
Fe (800°C)	0.018
Ti	14.5

とが継手強さの低い原因となっている。

### 5.5 密着部での介在物について

拡散溶接部の引張破面の破断箇所を観察し、密着部での酸化皮膜が拡散溶接によってどのような挙動を示すかを検討した。

第4章で密着部の強さを調べた試験片を再び走査型電子顕微鏡で観察した。図5-22はSUS304ステンレス鋼、鉄、銅、チタンの破断部の写真である。チタンには介在物は見られない。しかし、ステンレス鋼、鉄及び銅の破面には介在物が見られる。

先の観察結果は、真空加熱した試験片の接合結果である。次に表5-3に示した酸化条件で加熱して酸化皮膜で覆われた試験片の拡散溶接を行い、その破断箇所を観察した。その結果を図5-23に示す。チタンには介在物は見られないが、鉄、銅及びSUS304ステンレス鋼には介在物が見られる。その介在物量は真空加熱材の場合より増加している。

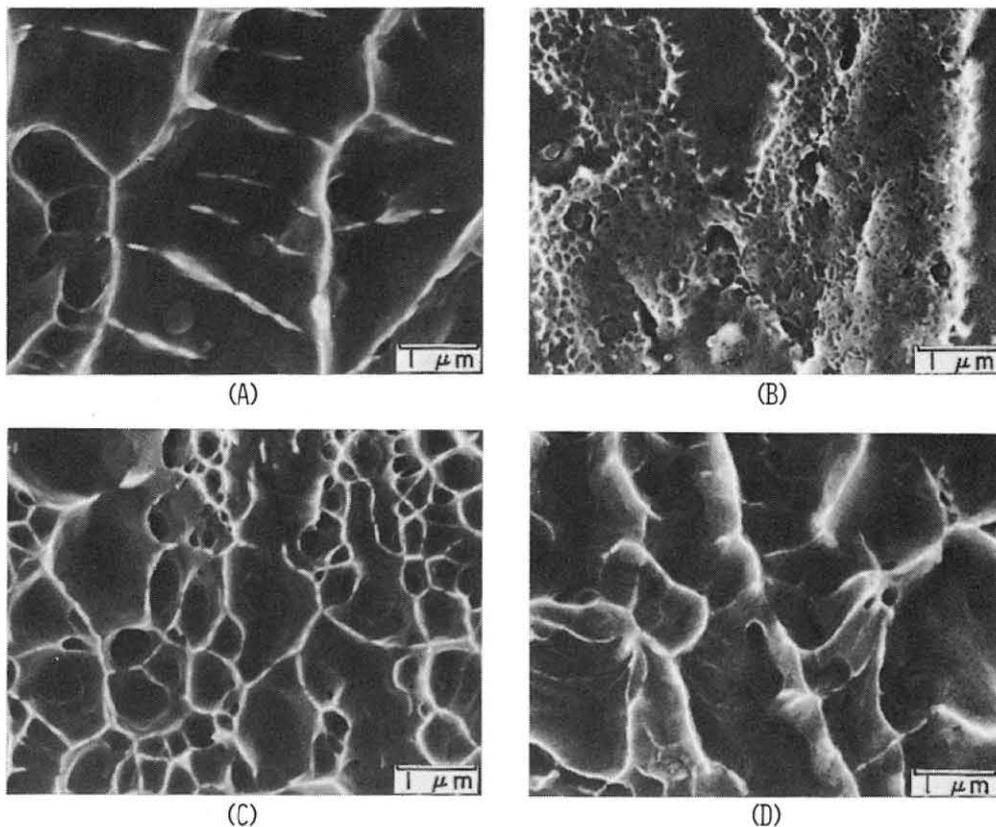


図5-22 真空加熱材を拡散溶接した継手の引張破面の走査型電子顕微鏡写真

- (A) SUS304ステンレス鋼  
(1060°C, 4min, 2 kgf/mm<sup>2</sup>, 6 μm)
- (B) 鉄  
(830°C, 4min, 1.4 kgf/mm<sup>2</sup>, 10 μm)
- (C) 銅  
(800°C, 4min, 1.6 kgf/mm<sup>2</sup>, 3 μm)
- (D) チタン (830°C, 4min, 1.2 kgf/mm<sup>2</sup>, 5 μm)

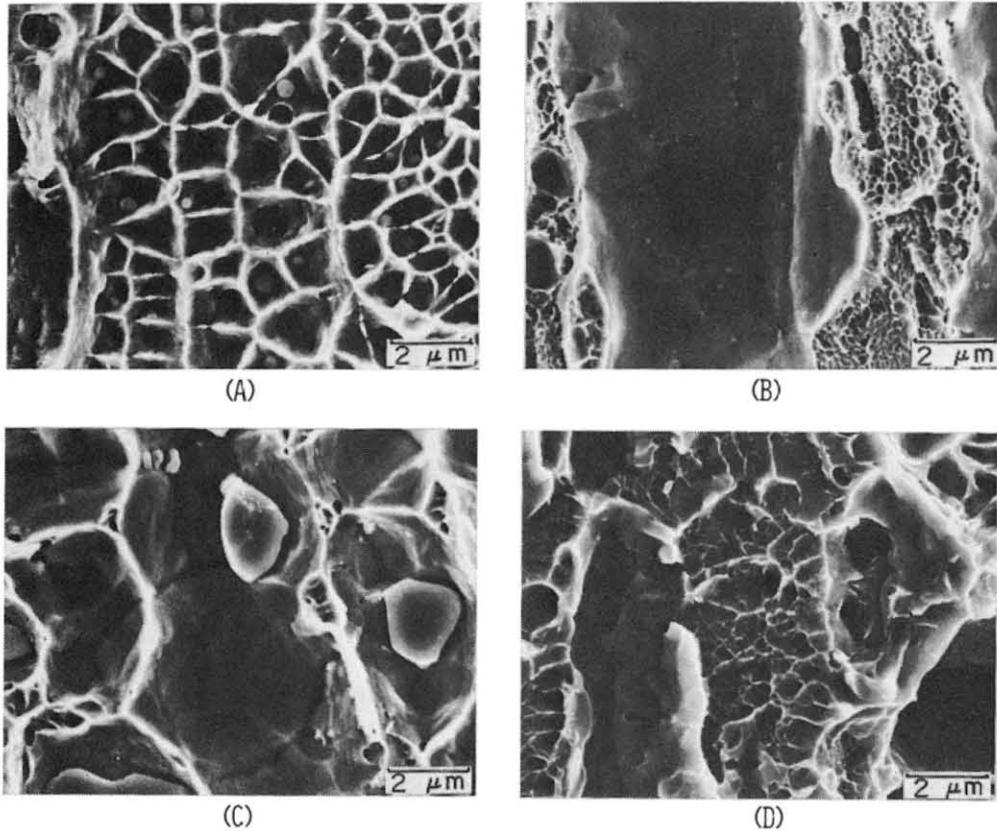


図5-23 酸化材を拡散溶接した継手の引張破面の走査型電子顕微鏡写真

- (A) SUS304 ステンレス鋼  
 (1100°C, 64min, 0.6 kgf/mm<sup>2</sup>, 6 μm)  
 (B) 鉄 (830°C, 64min, 0.6 kgf/mm<sup>2</sup>, 10 μm)  
 (C) 銅 (800°C, 64min, 0.6 kgf/mm<sup>2</sup>, 3 μm)  
 (D) チタン (830°C, 64min, 0.3 kgf/mm<sup>2</sup>, 5 μm)

酸化皮膜が厚くなると介在物量が増加することから、介在物は接合面上の酸化皮膜と関連することが予想される。

そこでまず、介在物量と接合面上の酸化皮膜の厚さとの関係を、ステンレス鋼について調べた。まず各種表面処理の接合面をオージェ分析し、深さ方向の酸素の濃度分布を測定した。酸素濃度が半分にまで減少する範囲を酸化皮膜層とし、鉄のスパッタリング速度で換算して膜厚を求めた。その結果、脱脂した試験片及び真空加熱の試験片での酸化皮膜の厚さは12, 25 Åであった。また、400, 500, 600, 700°Cの大気中で1時間加熱した試験片では、それぞれ125, 195, 265, 630 Åであった。

図5-24は各種の酸化皮膜の厚さの試験片を接合し、その継手の破面の介在物量と酸化皮膜の厚さとの関係を示している。破面上の介在物量は接合面の酸化皮膜層の厚さとともに多くなっている。

次に、介在物の組成について調べてみる。図5-25は真空加熱した鉄の接合破面上に見られる介在物をX線マイクロアナライザで分析した結果である。介在物には、酸素の他マンガン、

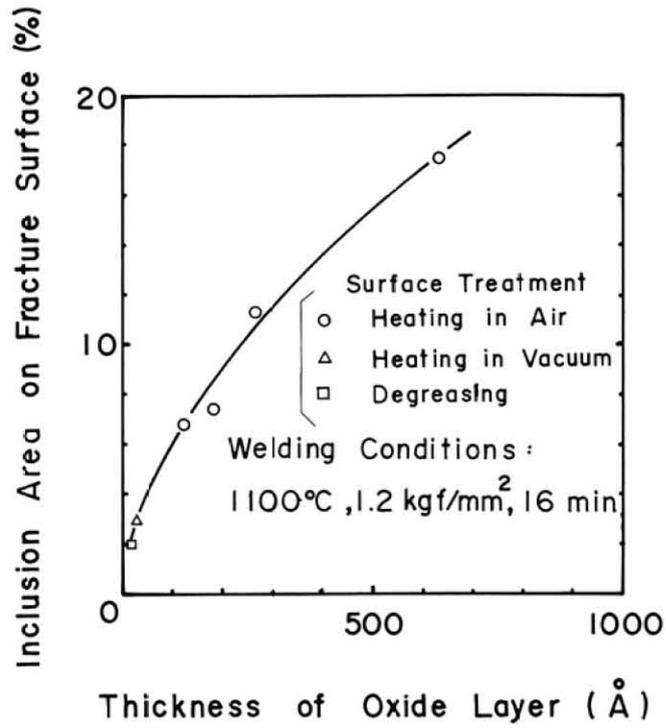
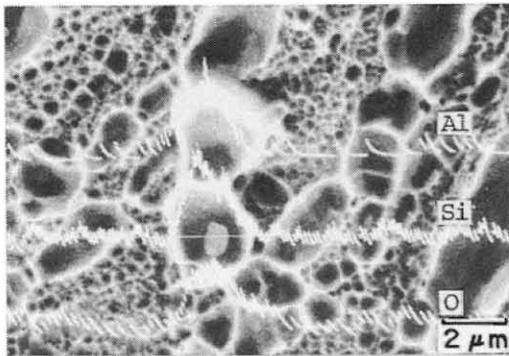
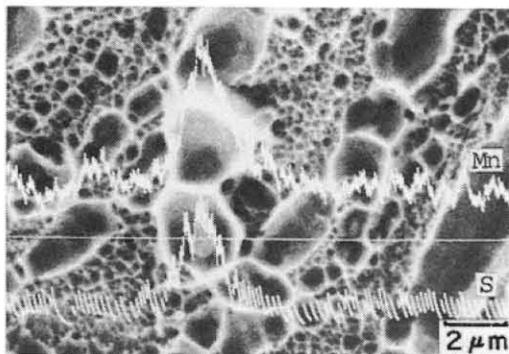


図5-24 SUS304 ステンレス鋼表面の接合前の酸化膜の厚さと継手の破面上での介在物の占める面積割合との関係

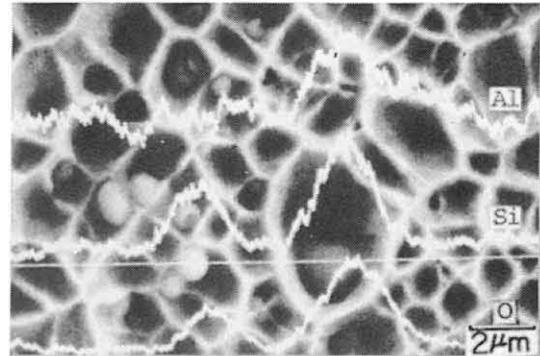


(A)

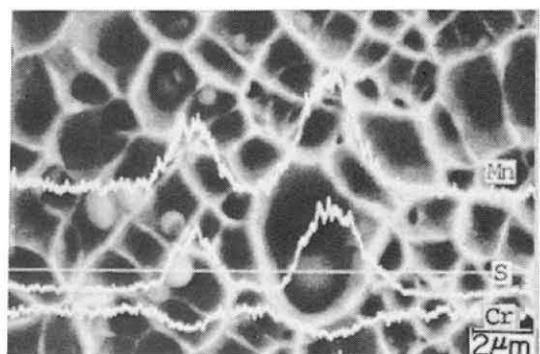


(B)

図5-25 真空加熱した鉄の拡散溶接部の破面に見られる介在物のX線マイクロアナライザによる分析(白線は分析箇所)  
(A) Al, Si, O (B) Mn, S  
(接合条件: 830°C, 64min, 0.6 kgf/mm<sup>2</sup>, 10 μm)



(A)



(B)

図5-26 真空加熱したステンレス鋼の破面に見られる介在物のX線マイクロアナライザによる分析(白線は分析箇所)  
(A) Al, Si, O (B) Mn, S, Cr  
(接合条件: 1100°C, 64min, 0.6 kgf/mm<sup>2</sup>, 6 μm)

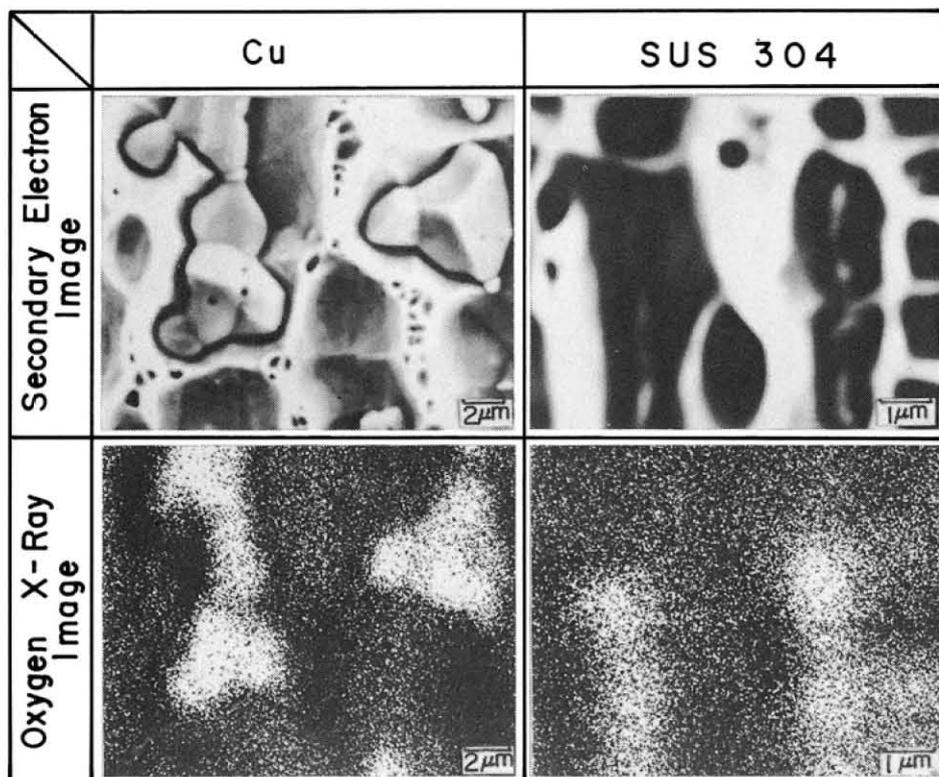
アルミニウム，シリコン，硫黄が検出され，酸化物と硫化物が複合したものと考えられる。図 5-26 にステンレス鋼についての結果を示す。鉄の場合と同様に，介在物は硫化物と各種酸化物が複合したものである。

また，大気中加熱した試験片の接合破面に見られる介在物についても調べた。図 5-27 は SUS304 ステンレス鋼と銅について，接合破面の 2 次電子像と酸素の特性 X 線像を示している。大気中加熱した試験片の接合部に見られる介在物も酸化物であることがわかる。

このように，介在物が酸素を含むこと，及び介在物量と酸化皮膜厚さが密接に関係することから，破面上の介在物は酸化皮膜が凝集して，形成したものと考えられる。

前節で述べたように，拡散溶接部の空隙内面での酸化物は接合時間とともに減少した。これは酸化物の酸素が母材へ拡散するためと考えられた。したがって，破面の酸化物も接合時間とともに減少することが予想される。

そこで，介在物量への接合時間の影響を調べた。図 5-28 は脱脂及び大気中加熱したステンレス鋼の接合破面上の介在物量と接合時間との関係を示す。破面上に見られる介在物量は接合時間とともに減少している。接合時間が長くなると介在物が大きくなる傾向にある。しかし接合時間による介在物量の減少は介在物の粗大化だけでは説明できなかった。したがって，こ



Welding Conditions SUS304 : 1100°C, 15sec, 1.2kgf/mm<sup>2</sup>  
Cu : 800°C, 64min, 0.6kgf/mm<sup>2</sup>

図 5-27 酸化処理した銅と SUS304 ステンレス鋼の拡散溶接部の破面の X 線マイクロアナライザによる分析

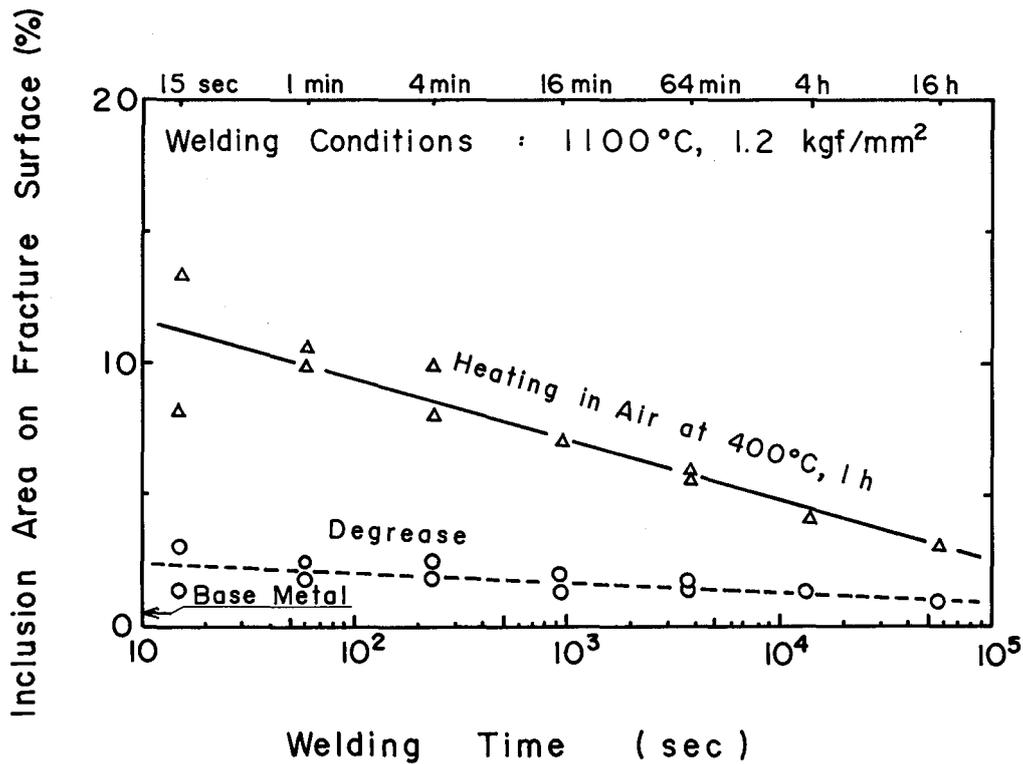


図5-28 SUS304 ステンレス鋼の継手の破面に見られる介在物量に及ぼす接合時間の影響

の介在物量の減少は酸化物の酸素が母材へ拡散することに負うところが大きいと考えられる。

このように拡散溶接部の破面に見られる介在物の挙動は、空隙内面に見られる酸化物と類似している。すなわち、材料的には、介在物はチタンには見られず、鉄、銅及びステンレス鋼に見られること。介在物は主に酸化物であること。接合時間とともに介在物は減少することが判明した。

したがって、拡散溶接部での密着部の酸化皮膜は空隙部の酸化皮膜と類似な挙動を示すものと考えられる。

### 5.6 突起部の変形による表面皮膜の破壊

拡散溶接部の密着部が接合するかどうかは、酸化皮膜が拡散溶接中に消失するか否かに大きく左右されること、アルミニウムの酸化皮膜は消失し難いことを第5.4節で述べた。しかし、アルミニウムの酸化皮膜はもろいので、<sup>53)</sup> 接合面の突起部の変形により酸化皮膜が破壊され、密着部で部分的に接合することが予想される。

本節では、突起部の変形が密着部での表面皮膜にどのように影響するかを調べた。

図5-29は、各種の表面粗さのアルミニウムを拡散溶接した際の、継手強さと接合温度と

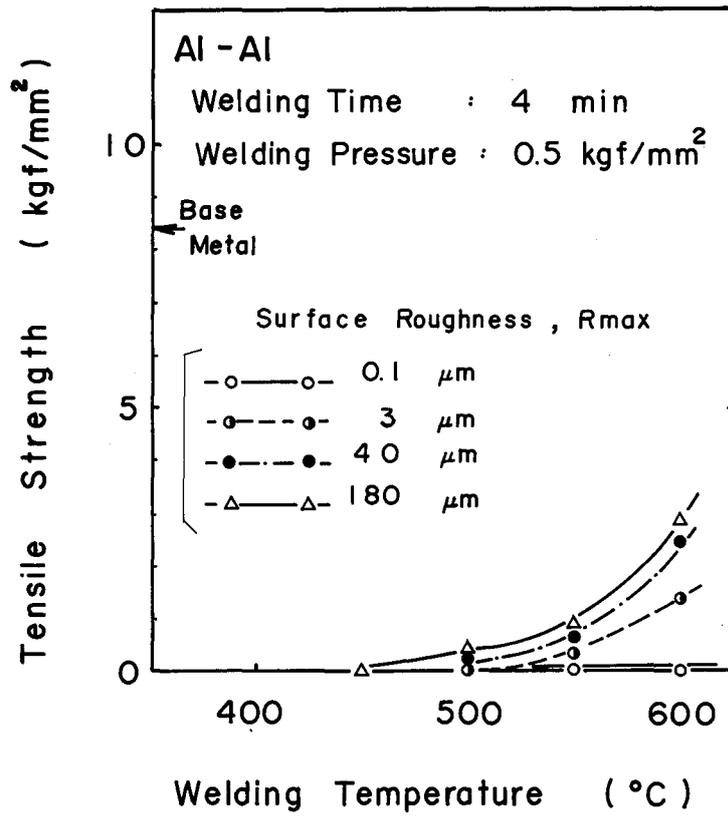


図5-29 アルミニウムの拡散溶接継手の引張強さと接合温度との関係に及ぼす接合面の粗さの影響

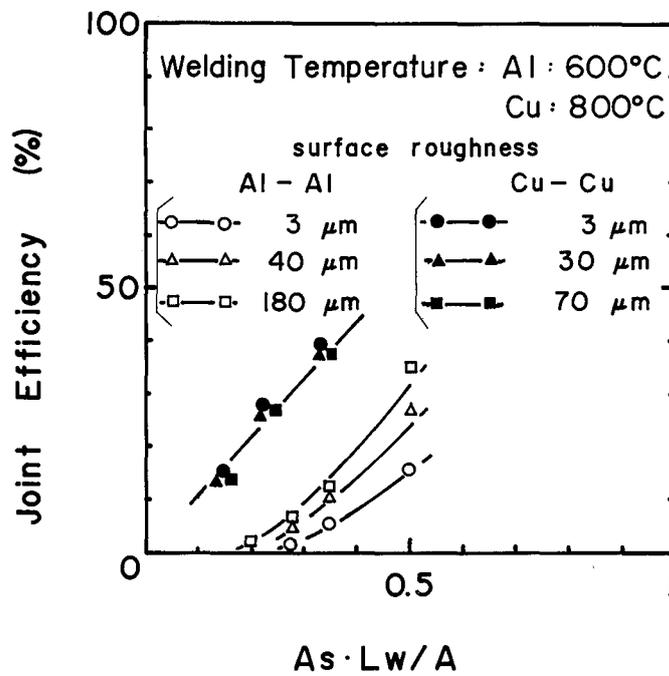


図5-30 アルミニウムと銅の拡散溶接部の継手効率とAs · Lw / Aとの関係に及ぼす接合面の粗さの影響

の関係を示している。接合面が粗くなるほど、継手強さが大きくなっている。

次に、酸化皮膜が拡散により消失する銅と消失しないアルミニウムについて、継手強さへの粗さの影響を比較してみる。図5-30は、密着面積割合を表す  $As \cdot Lw / A$  と継手効率との関係を示している。第4章の結果から、密着部が母材並みに接合して、空隙による切欠効果がなければ、傾きが45度の直線関係が得られるはずである。3~70 $\mu\text{m}$ の接合面の粗さの範囲の銅では、継手効率は密着面積割合を表す  $As \cdot Lw / A$  と比例関係にあり、いずれの接合面の粗さにおいても同一直線上にある。酸化皮膜が拡散により消失し、密着部が接合するので接合面の粗さには関係なく、継手の強さは密着面積を表す  $As \cdot Lw / A$  に依存している。

一方、アルミニウムでは45度の直線より下にあり、密着面積割合に比べて、継手効率が低い。そして接合面の粗さが小さくなるほど、継手効率が低くなっている。つまり密着部の引張強さは接合面の粗さに関係し、接合面の粗さが小さくなるほど密着部の強さは低くなっている。

このアルミニウムの接合現象は、次のように考えると理解できる。アルミニウムの酸化皮膜は熱的には安定で、拡散溶接中の消失は期待できない。しかし、接合面の突起部の変形により酸化皮膜が破壊され、密着部の一部で清浄面が露出し接合する。この皮膜の破壊状態に接合面の粗さが影響するためと考えられる。

拡散溶接部での酸化皮膜の破壊状態を観察するのは、アルミニウムの酸化皮膜が薄いので困難である。

そこで、陽極酸化処理により積極的に皮膜を形成させたアルミニウムを拡散溶接し、接合部での皮膜の挙動を観察した。陽極酸化処理は、アルミニウムを水酸化ナトリウム溶液中で洗浄した後、約25 $^{\circ}\text{C}$ の8%シュウ酸浴中で電流密度20mA/cm<sup>2</sup>で行っている。なお、陽極酸化皮

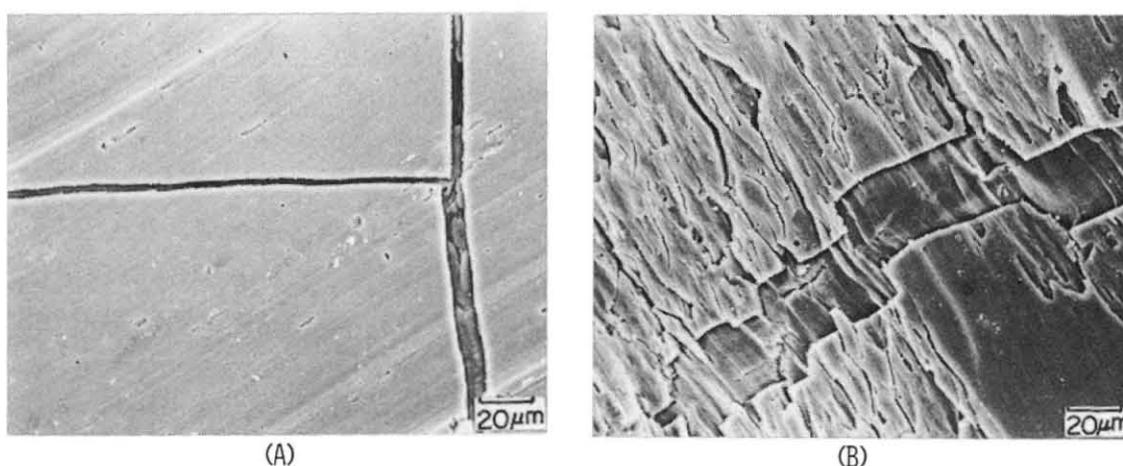


図5-31 陽極酸化処理したアルミニウムの拡散溶接部の破面の走査型電子顕微鏡写真、  
接合面の粗さ (A)2 $\mu\text{m}$  (B)150 $\mu\text{m}$   
(接合条件: 600 $^{\circ}\text{C}$ , 0.5 kgf/mm<sup>2</sup>, 4min, 陽極酸化膜の厚さ: 5 $\mu\text{m}$ )

膜が接合面全面に付着していることを走査型電子顕微鏡で確認している。図 5-31 は、継手の引張破面の走査型電子顕微鏡写真である。(A)に接合面の粗さ  $2\mu\text{m}$ 、(B)には  $150\mu\text{m}$  の結果を示している。いずれの写真でも陽極酸化皮膜が破壊し、亀裂を生じて、アルミニウムが見える。

しかし表面粗さが大きい方が、亀裂の溝の幅も大きくなっており、突起部の変形が大きいことがうかがえる。

このように、アルミニウムの継手の強さは接合面の酸化皮膜によって大きく影響され、酸化皮膜を破壊すれば、密着部での接合箇所が増加して、継手強さが向上することがわかる。

### 5.7 拡散溶接部における表面皮膜の挙動

接合面には微小な凹凸があり、表面皮膜で覆われている。表面皮膜の組成や厚さは、機械加工後のアセトン脱脂や真空中加熱など表面処理によってそれほど変わらない。接合面はおおよそ酸素、炭素からなる表面皮膜で覆われているとよい。

拡散溶接部での酸化皮膜について考えてみる。拡散溶接部での酸化皮膜の挙動は材料によって異なり、図 5-32 に示すように 3 つの型に分類できる。

A 型では、空隙内面及び密着面間の酸化皮膜が拡散溶接の初期に消失し、酸化皮膜が拡散溶接部にそれほど影響を及ぼさない。この型の皮膜の挙動を示す材料としてチタンがある。

B 型では、拡散溶接の初期段階に接合面の酸化皮膜が凝集して、空隙内面及び密着部に介在物を形成する。接合の進行につれて、さらに凝集が進むとともに、母材への酸素の拡散により、介在物量は減少する。したがって、接合面上の酸化皮膜の厚さが薄くなると介在物量は減少する。また、接合時間が長くなり、拡散が進むと介在物量は減少する。この型の材料には鉄、銅、

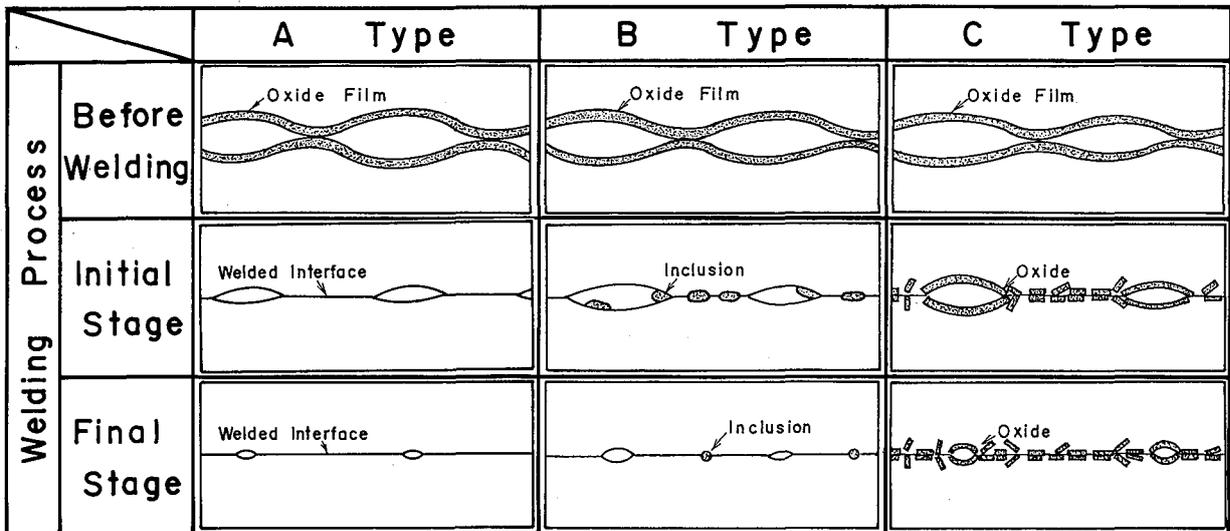


図 5-32 拡散溶接部での酸化皮膜の挙動

ステンレス鋼がある。

C型では、酸化皮膜が非常に安定で、拡散溶接中に消失しない。接合の進行とともに接合面の突起部の変形により清浄面が露出し、密着部でわずかな接合箇所が得られる。したがって、たとえ全面密着したとしても接合箇所はわずかで、継手の強さは非常に低いものとなる。

アルミニウムのようなC型の酸化皮膜の挙動を示す材料の拡散溶接では、拡散による酸化皮膜の消失が期待できないので、清浄な面を密着させねばならない。一方、介在物を形成するB型の材料の接合においても、介在物が機械的性能に影響することが予想されるので、介在物を減らすためにも清浄面を接合する必要がある。

現在、拡散溶接が実用化されているのは、チタン合金が多い。つまり酸化皮膜が母材に消失し、酸化皮膜や介在物が接合部に残らないA型の酸化皮膜の挙動を示す材料である。B型及びC型の皮膜挙動を示す材料の拡散溶接部の信頼性を高くするには、酸化皮膜を取り除く表面処理方法の開発が急務と考えられる。次章で表面処理法について検討する。

## 5.8 要 約

各種材料の拡散溶接部での酸化皮膜の挙動を拡散溶接前後での接合面のオージェ分析、走査電子顕微鏡観察などから検討した。得られた結果は次のように要約できる。

1. 各種材料の接合面は、酸素、炭素を含む表面皮膜で覆われている。また、アルミニウムの接合面にはアルミナが存在する。
2. 各種材料の表面皮膜の組成及び厚さは、機械加工後アセトン脱脂処理あるいは真空加熱処理などの表面処理によってそれほど変らない。
3. 接合面の表面皮膜の安定さが、密着部での接合を左右する。つまり、拡散溶接によって表面皮膜が消失するチタン、銅、鉄及びSUS304ステンレス鋼の密着部は比較的容易に接合するが、拡散溶接によって表面皮膜が消失しないアルミニウムでは、密着部でわずかな接合部しか得られない。
4. 拡散溶接部での酸化皮膜の挙動は材料によって異なり、図5-32に示すように3つの型がある。

A型…空隙内面及び密着面間の酸化皮膜が拡散溶接の初期に消失し、酸化皮膜が拡散溶接部にそれほど影響を及ぼさない。

B型…拡散溶接の初期段階に接合面の酸化皮膜が凝集して、空隙内面及び密着部に介在物を形成する。接合の進行とともにさらに凝集が進み、また母材への酸素の拡散により介在物量は減少する。

C型…酸化皮膜が非常に安定で、拡散溶接中に消失しない。接合の進行とともに接合面の突起部の変形により清浄面が露出し、わずかな接合箇所が得られる。

5. A型の皮膜の挙動を示す材料としてチタンがある。B型の材料には、鉄、銅、SUS304ステンレス鋼がある。C型の材料にはアルミニウムがある。
6. A型及びB型での酸化皮膜の消失機構は、母材への酸素の拡散による。
7. B型に見られる介在物量は酸化皮膜の厚さの減少とともに、また接合時間とともに減少する。
8. 鉄及びSUS304ステンレス鋼の拡散溶接部の介在物は硫化物と各種の酸化物が複合したものである。
9. C型の酸化皮膜の挙動を示す材料の拡散溶接では、接合界面での変形の増加とともに、密着部で酸化皮膜が破壊され、わずかに接合する。しかし密着部で酸化皮膜が残留するので、継手の強さは低い。
10. C型の酸化皮膜の挙動を示す材料の拡散溶接では、拡散による酸化皮膜の消失が期待できないので、清浄面を密着させる必要がある。
11. 銅、SUS304ステンレス鋼の拡散溶接部の空隙内面に硫黄の偏析が見られる。この硫黄は密着部で凝集して硫化物を形成するが、その量がわずかなことから、継手の引張強さへの影響は少ない。

## 第6章 グロー放電による接合面の清浄化

### 6.1 概 説

接合面は表面皮膜で覆われている。この接合面を突き合せて拡散溶接した際、表面皮膜の安定さが密着部での接合を左右することを第5章で述べた。つまり、チタン、銅、鉄、SUS304 ステンレス鋼のように、拡散溶接中に酸化皮膜の酸素が母材へ拡散する材料では、密着面間の酸化皮膜が消失して密着部は接合する。一方、アルミニウムのように酸化皮膜が消失し難い場合は、突起部の変形によって密着面間の酸化皮膜が微細化されるものの、密着部に酸化皮膜が残留する。

したがって、接合面上の酸化皮膜が安定で拡散溶接中に消失し難い材料を接合するには、安定な皮膜を取り除いて清浄面を密着させる必要がある。このように清浄な面を密着すれば、アルミニウムも接合することができる。

また、酸化皮膜が消失する材料においても、拡散溶接中に酸化皮膜の酸素の母材への拡散が不要となるため、その分だけ低い接合温度での接合が期待できる。

そこで、本章では接合面の清浄化について検討した。

金属の引張破面は破断時には表面皮膜のない清浄面と考えられる。しかし大気にさらしたアルミニウムの破面上には、図5-4に示したように酸素が検出され、酸化皮膜が形成されている。このように、大気中では清浄面を保持できないことがわかる。したがって、酸素による接合面の汚染を少なくする目的で、接合面の清浄化と接合を同時あるいは連続的な工程で行う必要がある。それでどんな方法で接合面を清浄化して、かつ清浄化した面の再汚染を防ぎつつ接合するかが重要な課題となる。

上記の観点から、低圧のアルゴン雰囲気中でグロー放電を発生させ、アルゴンイオン衝撃による接合面の清浄化と加熱を行い、グロー放電を持続しながら接合する方法について調べた。特に、グロー放電表面処理接合において、放電時間、電圧、電流、雰囲気圧力などのグロー放電条件因子が継手強さにどのように影響するかを調べ、最適グロー放電条件とその効果について検討した。

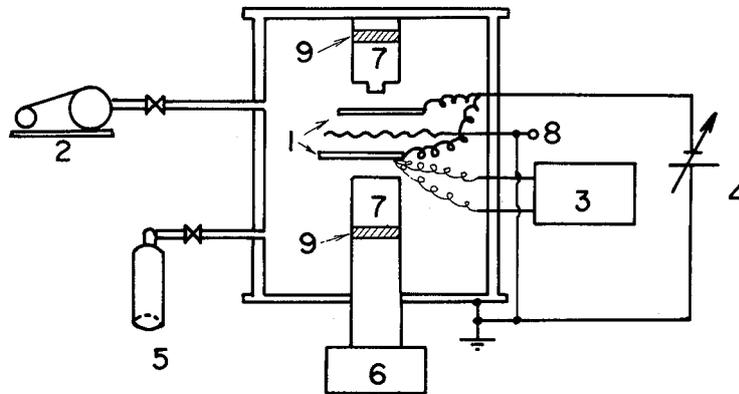
実験には供試材として、表面皮膜が消失せず、密着部が接合し難いアルミニウムと、比較のため表面皮膜が消失して密着部が接合する銅を用いた。

## 6.2 グロー放電表面処理接合装置

図6-1にグロー放電表面処理接合装置を示す。本装置は排気系（油回転ポンプ，拡散エゼクタポンプ，油拡散ポンプ），加圧系（油圧），直流電源（0～3 kV）などからなる。

グロー放電では，陰極がイオン衝撃されるので，接合する2個の試験片を陰極としている。またスパッタされた金属が他方の試験片面に付着することを防止する目的で試験片の間に移動する板を設け，これを陽極としている。電極間距離は約10 cmである。

なお，グロー放電表面処理によって，接合試験片の清浄化と同時に加熱もできるので，他の加熱装置はなく，グロー放電によってのみ試験片を加熱している。



- |                        |                     |
|------------------------|---------------------|
| 1 Specimen             | 5 Inlet Gas         |
| 2 Evacuating System    | 6 Pressure System   |
| 3 Thermometer          | 7 Welding Tool      |
| 4 Power Supply (0～3kV) | 8 Sliding Electrode |
|                        | 9 Insulator         |

図6-1 グロー放電表面処理接合装置

## 6.3 供試材及び接合方法

グロー放電では陰極である試験片の温度が上昇する。本章では，温度上昇が容易な板材を用いている。実験に使用した材料はタフピッチ銅（JIS，TCuR-H）及びアルミニウム（JIS，Al1070-H1）である。いずれも板厚1 mmの圧延板で，20 × 50 mmのたんざく形に切断してアセトンで脱脂した後，実験に供した。

接合室内の直径4 mmの突起のあるダイスと平坦なダイスとの間に，接合する2個の試験片

を設置し陰極とする。まず、雰囲気圧力  $1 \times 10^{-4}$  Torr 以下まで排気したのち、排気を続けながら、バリアブルリークバルブによりアルゴンガス（純度 99.999 %）を導入した。そして所定の雰囲気圧力を保持しグロー放電表面処理した。グロー放電を持続しながら、移動電極を動かして加圧装置で試験片を重ね合せ接合した。加圧後、放電を停止し、所定の圧力で 1 min 加圧して接合を終了した。なお、接合面を均一に表面処理するため、放電が陰極全面で発生し、正抵抗性を示す異常グロー放電領域で実験した。

このように直径 4 mm の突起のあるダイスと平坦なダイス間で板の重ね接合を行った。この重ね継手の引張せん断荷重をインストロン型引張試験機で測定した。

#### 6.4 試験片の極性とグロー放電

グロー放電によって接合面を清浄化する際、電極をどのように配置すればよいかを調べた。

たんざく形（ $20 \times 50 \times 1$  mm）の銅板 2 枚を平行に接合室内に配置して、一方を陽極、他方を陰極とした。接合室を雰囲気圧力  $1 \times 10^{-4}$  Torr 以下に排気後、アルゴンガスを導入して、圧力を 0.06 Torr に調整した。引き続き、両電極間に 1140 V の直流電圧を加え、30 min 放

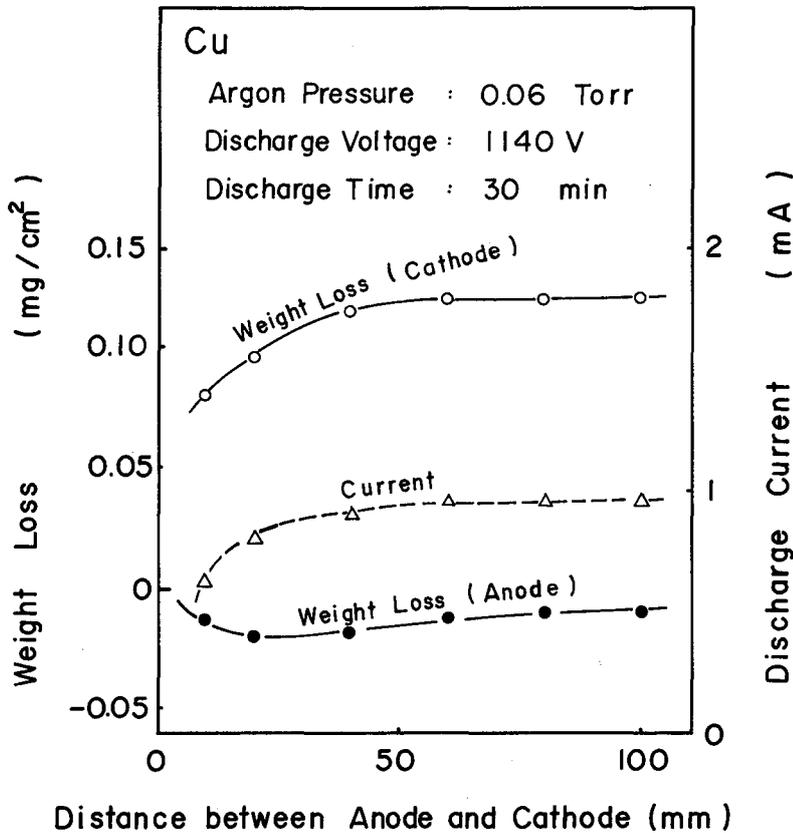


図 6-2 電極の損失重量と放電電流に及ぼす電極間距離の影響

電させた。

図6-2に、両電極の損失重量と放電電流に及ぼす電極間距離の影響を示している。なお放電電流は図6-4で述べるが、時間とともに大きく減少し一定値に達するので、一定となった値で示している。損失重量は放電前後の重量差と放電面積の比で、重量減少を「正」に取って示している。陰極の試験片においては重量減少が、一方陽極の試験片においては逆に重量増加が認められる。また電極間距離が2 cmと短くなると、放電電流が低下し始める。

電極間距離が短くなると放電電流が低下する原因は、相対する電極面間で放電が発生せず、有効な放電面積が減少するためである。またこの陰極の重量減少はグロー放電によるアルゴンイオン衝撃で、陰極表面がスパッタされたためと考えられる。一方このスパッタされた陰極金属の付着により、逆に陽極の重量は増加する。

以上のことから、電極面間で一様な放電を発生させるための電極間距離が必要であり、また陰極がアルゴンイオン衝撃によってスパッタされることがわかる。

これらの結果に基づき、グロー放電表面処理接合装置では接合する2個の試験片を陰極としている。またスパッタされた金属が他方の試験片面に付着することを防止する目的で、試験片の間に移動する板を設け、これを陽極としている。電極間距離は約10 cmである。

グロー放電表面処理の際、陰極である接合試験片のまわりに発光部が見られる。図6-3には、グロー放電時の陰極の写真を示すが、陰極である試験片全面で一様に放電が発生しているのがわかる。

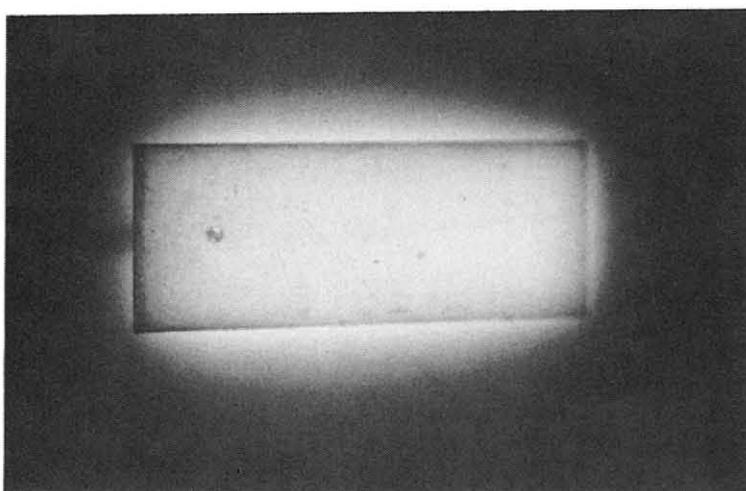


図6-3 アルミニウム板のグロー放電

(放電条件；電圧：1500V，電流：12mA)  
雰囲気圧力：0.06 Torr)

## 6.5 グロー放電条件因子と継手強さとの関係

接合面をアルゴン雰囲気中でグロー放電表面処理して放電を持続しながら接合する際の、グロー放電条件因子の継手強さへの影響を調べ、最適グロー放電条件を求めた。

### 6.5.1 グロー放電時間の影響

グロー放電条件因子の一つである放電時間の影響について調べた。アルミニウムについて 0.06 Torr のアルゴン雰囲気中で 1500 V を加え、グロー放電表面処理した後接合した。図 6-4 は損失重量、引張せん断荷重、放電電流及び試験片の温度への放電時間の影響を示している。本実験では、圧接治具を加熱していないので、試験片の温度は加圧と同時に低下する。図の試験片の温度とは加圧し接合する直前の温度である。図から試験片の温度は放電時間の増加とともに上昇し、5 min 後にはほぼ一定となっているのがわかる。一方、損失重量は放電時間とともに直線的に増加し、試験片の重量が減少している。放電によるアルゴンイオン衝撃によって接合面の皮膜が取り除かれ、試験片の温度上昇とあいまって、継手強さは増加する。

図 6-5 には、銅についての放電時間の影響を示している。アルミニウムの場合と同じように、放電時間の増加とともに損失重量が増え、温度が上昇し、それとともに継手は強くなっている。

放電電流は放電開始後に急激に減少し、放電時間の経過に伴い一定となった。次にこの電流の減少と表面皮膜との関連を調べた。400°C で 15 min 大気中で加熱し赤く変色した銅の試験

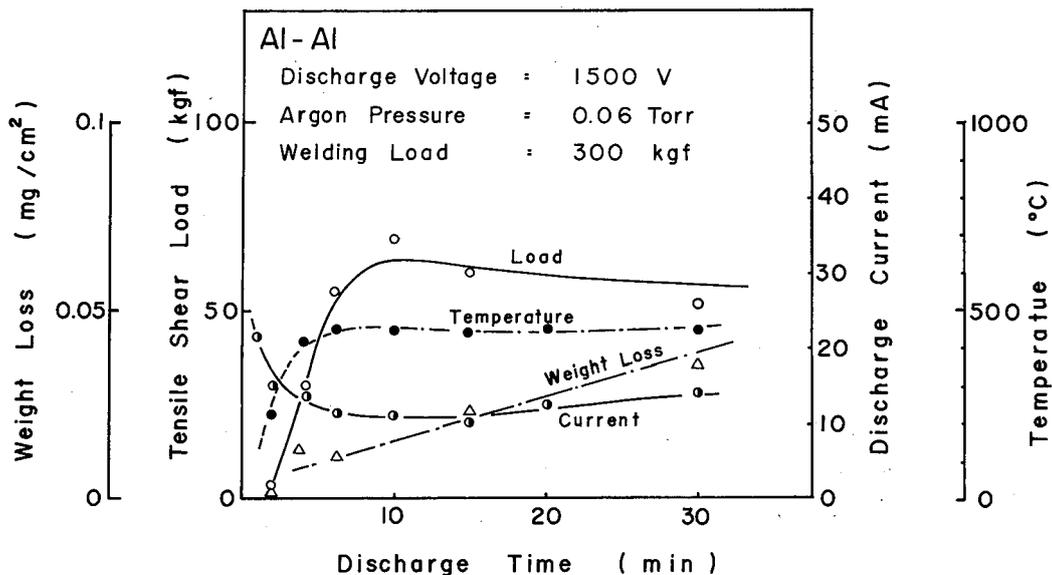


図 6-4 グロー放電表面処理して、アルミニウム板を重ね合せ接合した時の試験片の損失重量、継手の強さ、放電電流及び温度に及ぼす放電時間の影響

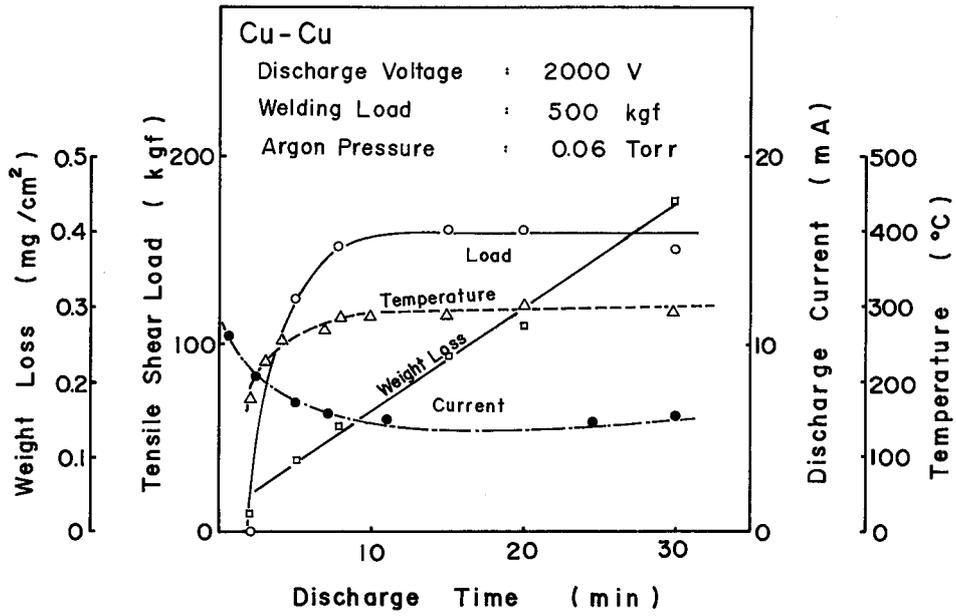


図6-5 グロー放電表面処理して銅板を重ね合せ接合した時の損失重量，  
 継手の強さ，放電電流及び温度に及ぼす放電時間の影響

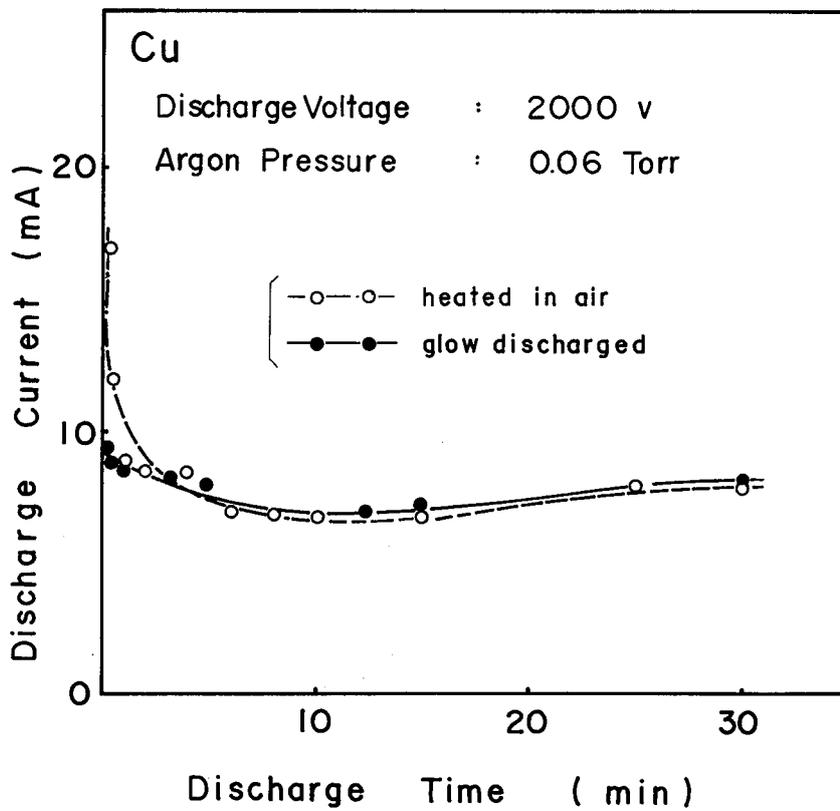


図6-6 放電電流と放電時間との関係に及ぼす表面処理の影響

片と、あらかじめグロー放電表面処理を行ったまま、接合室で冷却した銅の試験片とについて、グロー放電時の電流の時間的変化を比較した。その結果を図6-6に示す。グロー放電表面処理してあらかじめ表面皮膜を取り除いた試験片では、皮膜で覆われた試験片と比べて、放電初期の電流の変化は小さい。このことから、放電開始直後の急激な電流減少の原因の一つとして、陰極の表面皮膜が考えられる。

以上の結果、グロー放電時間とともに接合面の皮膜が取り除かれ、試験片の温度上昇とあいまって、継手の強さは大きくなることがわかる。

### 6.5.2 グロー放電電圧、電流の影響

放電電圧、電流の選定の指針を求めするため、放電電力が一定となるように、電圧、電流を調整してグロー放電表面処理接合を行った。本項では、グロー放電による重量変化の大きい銅を用いて検討した。

グロー放電特性として、放電条件因子である電圧、電流、雰囲気圧力をそれぞれ単独に制御できない。たとえば、放電電力を一定に保ちながら電圧を上げるには、雰囲気圧力を低くして電流を低下させねばならない。

まず、放電電力が10W一定となるように電圧、電流、雰囲気圧力を調整して、銅をグロー放電表面処理接合した。図6-7に雰囲気圧力、引張せん断荷重、損失重量、試験片温度と放電

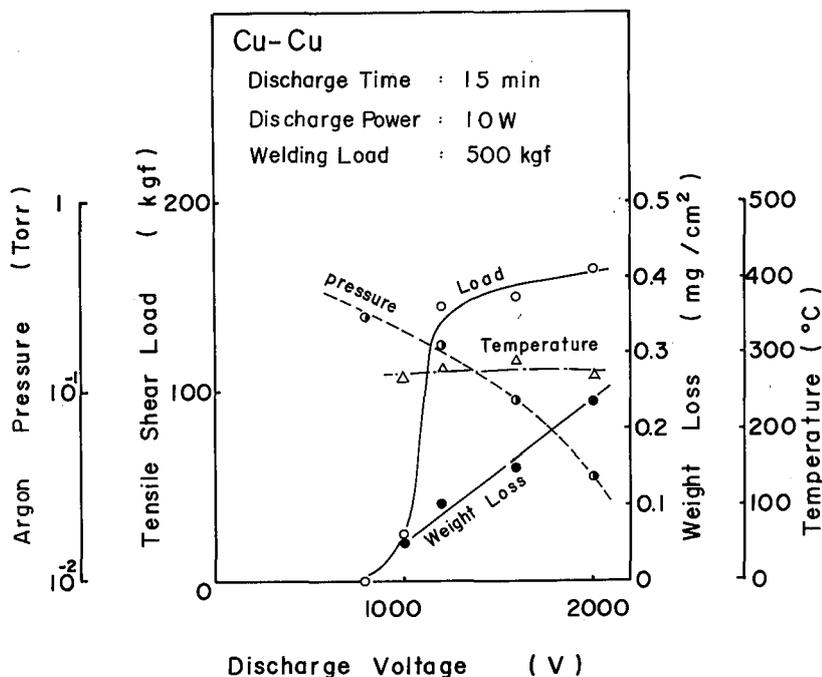


図6-7 一定放電電力下でグロー放電表面処理して銅板を重ね合せ接合した際の、アルゴン雰囲気圧力、継手の強さ、損失重量、温度と放電電圧との関係

電圧の関係を示す。放電電圧が高いほど、スパッタによる損失重量が増加して、表面の清浄化が進んでいる。

第4章で述べたように、丸棒の突き合せ拡散溶接部の引張強さは、密着部での接合面積の大小及び空隙による切欠効果に影響される。本実験での板材の重ね継手の引張せん断強さも、引張強さと同様な因子に影響されると考えられる。

次に、これらの因子に及ぼす放電電圧、電流の影響について考察する。図6-7で放電電力が一定であれば、電圧が変わっても試験片の温度は一定である。放電電圧が異なっても、拡散溶接部での密着面積を決定する温度、圧力、時間が同一条件である。それで図6-7で放電電圧が異なっても密着面積には差がないはずである。したがって、放電電圧の上昇による継手の強さの向上は、接合面の皮膜が除去されたことによる密着部での接合面積の上昇に依存していると考えられる。

5 W、10 W及び20 Wの一定放電電力下で接合した時の結果を比較してみた。図6-8は、各放電電力下の引張せん断荷重、損失重量への放電電圧の影響を示している。なお、板厚の変

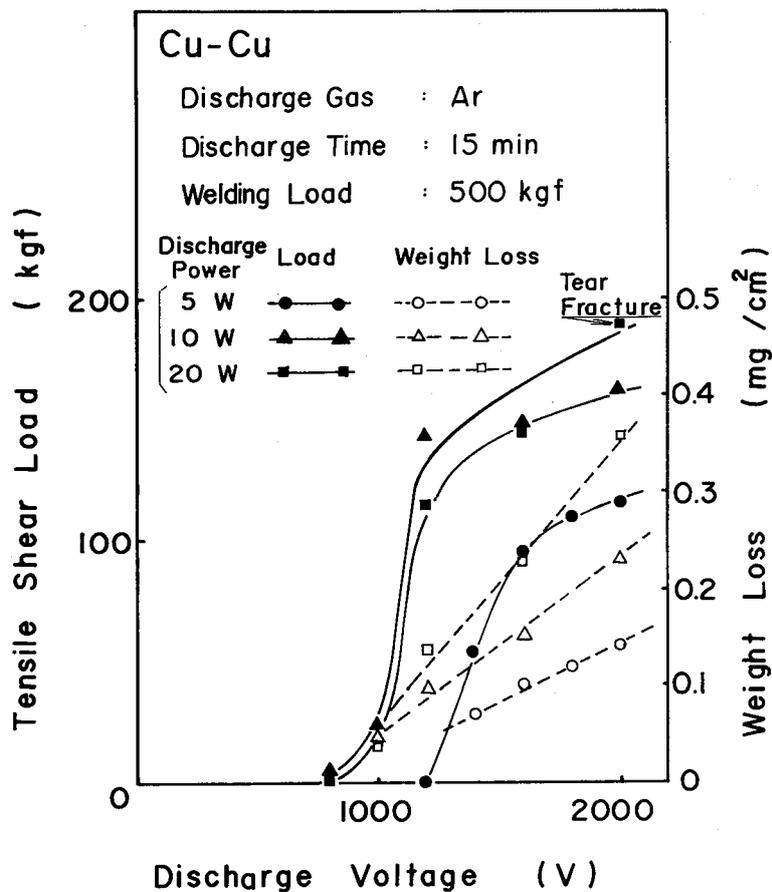


図6-8 一定放電電力下でグロー放電表面処理接合した際の、継手の強さと放電電圧との関係に及ぼす放電電力の影響

化量から求めた接合部の変形度は2～4%である。放電電力が一定ならば、放電電圧に関係なく試験片の温度は一定である。放電電力5, 10, 20 Wの場合、それぞれ160, 290, 400°Cであった。いずれの放電電力の場合においても、放電電圧を高めると損失重量が大きくなり、引張せん断荷重が大きくなっている。また、放電電力の上昇とともに継手は強くなっている。放電電力の上昇は密着面の清浄化とともに、試験片の温度を上昇させる。したがって、放電電圧の上昇による継手強さの増加は、密着面積の増加と清浄化による密着部での接合面積の増加とに起因していると考えられる。

次に、スパッタリング速度に及ぼすグロー放電電圧、電流について検討した。図6-8に示した各種の放電条件下での結果から、単位時間当りの損失重量と放電電流との関係を求めた。その結果を図6-9に示す。図には重量の損失速度から算出した表面層のスパッタリング速度も併せて示している。なお、放電面積は、2個の試験片の表面積44 cm<sup>2</sup>と試験片取付治具表面積50 cm<sup>2</sup>との和である。この図から、放電電流の増加より電圧の上昇の方が重量の損失速度に大きく影響するのがわかる。例えば、2000 V, 0.05～0.1 mA/cm<sup>2</sup>での条件下では、スパッタリング速度は2.3～3.6 Å/secである。銅の原子間距離は2.25 Åであることから、毎秒1原子層前後の表面層がけずり取られていることになる。

以上の結果、スパッタリング速度を向上させるには、電流の増加より、電圧の上昇が効果的で、放電電圧をできるだけ高くすればよいことがわかる。

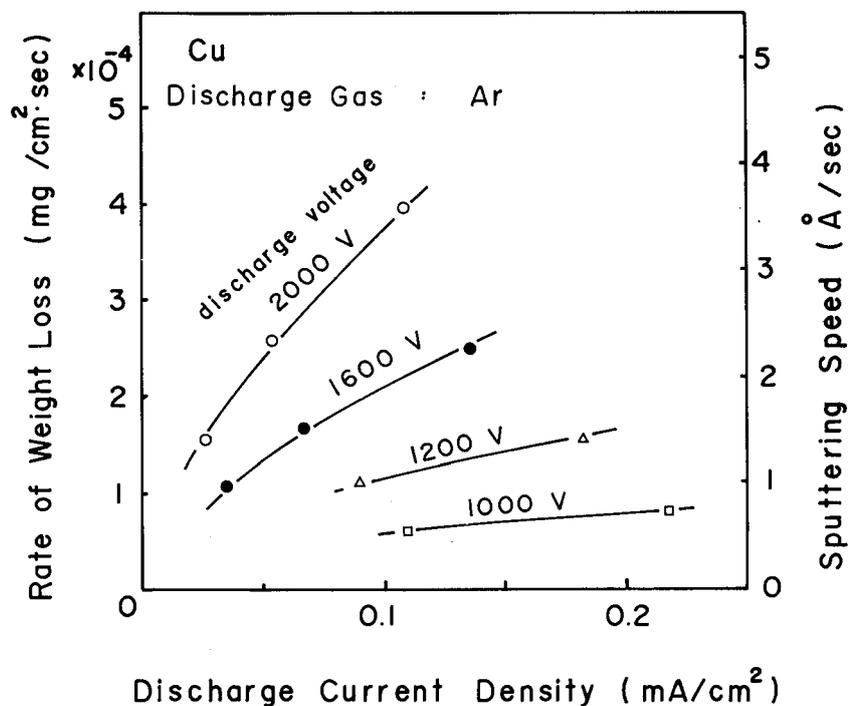


図6-9 銅の単位時間当りの損失重量と放電電流密度との関係に及ぼす放電電圧の影響

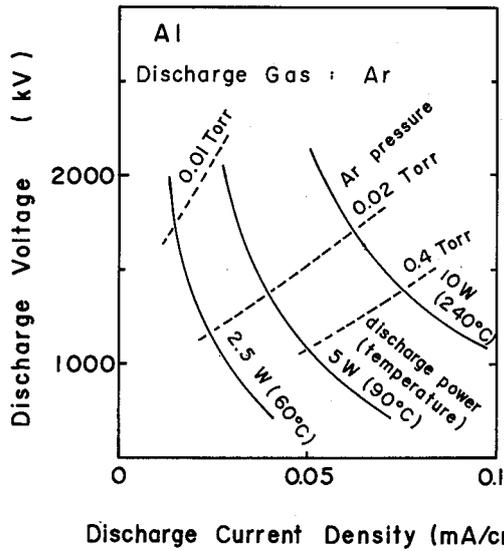


図 6-10 アルミニウムをグロー放電処理した時の放電電圧、電流密度及び雰囲気圧力の関係

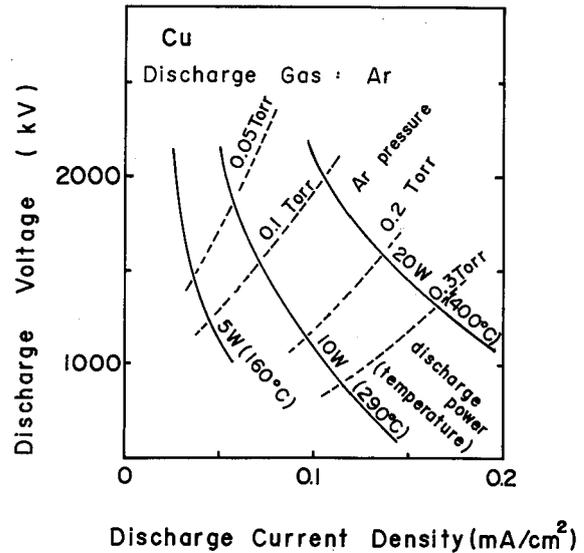


図 6-11 銅をグロー放電表面処理した時の、放電電圧、電流密度及び雰囲気圧力の関係

最後に、グロー放電表面処理する際の最適グロー放電条件について考えてみる。グロー放電の特性として、放電電圧、電流、雰囲気圧力をそれぞれ単独に制御できない。図 6-10、図 6-11 には、アルミニウム及び銅について、グロー放電電圧、電流密度及びアルゴン雰囲気圧力の相互関係を示す。先の図 6-8 の結果から、接合面の清浄化のため高いスパッタリング速度となるように、かつ密着面積増加のため高い接合温度となるように、放電条件を選定する必要がある。つまり、図 6-10、図 6-11 上の高電圧、低雰囲気圧力、高電力の条件でグロー放電処理して接合すればよい。

## 6.6 グロー放電の清浄化作用とその効果

グロー放電表面処理した接合面の表面状態の変化、それと他の表面処理法との比較から、グロー放電表面処理の効果について検討した。

グロー放電表面処理した試験片の表面は、試験片の重量が減少することから、表面層がスパッタされて清浄面が露出しているものと考えられる。しかし、グロー放電による清浄化の確認は困難である。図 5-2 のオージェ分析の結果で、スパッタリング時間とともに表面にある酸素や炭素の濃度が減少しており、表面が清浄化されているのがわかる。したがって、グロー放電によるアルゴンイオン衝撃においても、同様に表面が清浄化されると考えられる。

次に、グロー放電表面処理した表面を走査型電子顕微鏡で観察した。アルミニウムでは、グロー放電による変化はそれほど見られないが、銅では変化が見られた。図 6-12 は、グロー放電

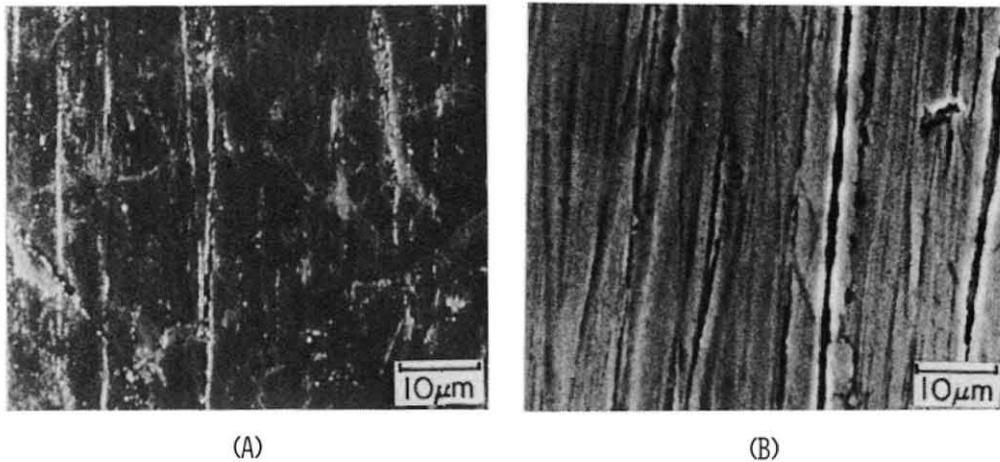


図6-12 グロー放電表面処理前(A)と後(B)での、銅の試験片表面の走査型電子顕微鏡写真

放電条件：電流：5 mA                      時間：30min  
 電圧：2000V                      雰囲気圧力：0.06 Torr

表面処理した銅試験片表面と未処理の銅試験片表面との写真である。(A)の未処理の試験片は比較的平坦であるが、(B)の放電処理した試験片では凹凸が明確に認められる。触針式表面粗さ計での粗さ測定の結果、未処理の試験片においては表面粗さが $0.4\ \mu\text{m}$ である。一方、放電表面処理試験片においては表面粗さが $0.8\ \mu\text{m}$ で、放電処理によって表面粗さがやや大きくなった。一方、アルミニウムの表面粗さはグロー放電処理によって余り変らなかつた。このようにグロー放電表面処理によって表面粗さの大きな変化は見られなかつた。

次に、グロー放電表面処理して接合した継手の強さと脱脂のみの試験片の継手強さとを比較し、グロー放電表面処理の効果について調べた。脱脂した試験片を減圧アルゴン雰囲気（雰囲気圧力：0.06 Torr）中で、高周波誘導加熱し接合した。この継手の強さとグロー放電表面処理した継手の強さとを比べた。図6-13はアルミニウムについて、図6-14は銅についての結果を示す。なお、脱脂のみの試験片の接合においては、接合温度に1 min 保持している。両図でいずれの場合にも脱脂材の継手より、グロー放電表面処理して接合した継手の方が強い。

第4章で述べたように、継手の強さは密着部での接合面積の大小に関係する。密着面積は接合温度に依存するので、同じ接合温度での密着面積は表面処理に関係なく、余り差がないはずである。したがって、グロー放電表面処理した継手の強さの大幅な向上は、接合面の清浄化による密着部での接合面積の増加に起因していると考えられる。

このように、グロー放電表面処理は表面清浄化法として優れ、安定な皮膜を形成するアルミニウムに対しても有効であることがわかる。

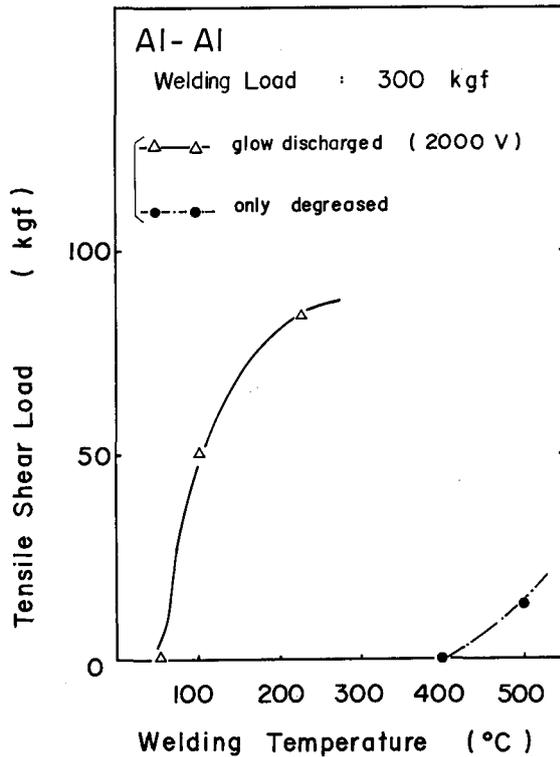


図6-13 アルミニウム板を重ね合せ接合した時の継手の強さと接合温度との関係に及ぼす表面処理の影響

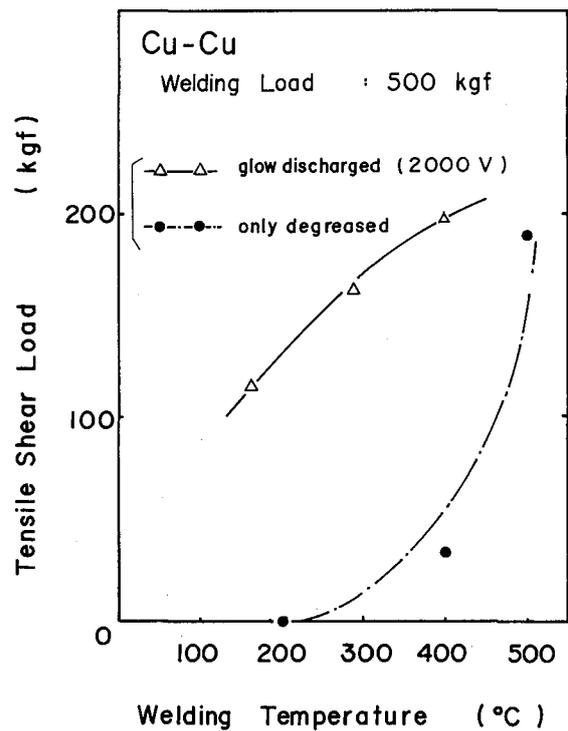


図6-14 銅板を重ね合せ接合した時の継手の強さと接合温度との関係に及ぼす表面処理の影響

## 6.7 要 約

アルミニウムのように安定な皮膜をもつ材料の接合では、皮膜を取り除いて清浄面を密着させる必要がある。そこで、接合面の清浄化と接合を連続的に行えるグロー放電表面処理において、最適グロー放電条件及びその効果について検討した。その結果は次のように要約できる。

1. グロー放電表面処理法は、接合面の皮膜を取り除いて密着部での接合面積を増加するのに効果があり、継手強さが向上する。
2. グロー放電表面処理は、表面皮膜が消失する銅はもちろん、表面皮膜が消失しないアルミニウムに対しても有効である。
3. グロー放電によるアルゴンイオン衝撃により、陰極である接合試験片は全面清浄化され、同時に加熱される。
4. グロー放電による清浄化作用を向上させるには、電流の増加より電圧の上昇の方が効果的である。
5. グロー放電表面処理による表面粗さの変化は、あまりない。

6. グロー放電条件の選定に際しては、接合面の清浄化のため高いスパッタリング速度となるように、かつ密着面積増加のため高い接合温度となるように放電条件を選定すればよい。
7. すなわち、図 6 - 10, 図 6 - 11 のグロー放電電圧, 電流, 雰囲気圧力の関係図上で、高電圧, 低雰囲気圧力, 高い放電電力下で、グロー放電表面処理して接合すればよい。

## 第7章 接合面のイオンめっき処理

### 7.1 概 説

拡散溶接部で表面皮膜が消失し難い材料では、接合は困難である。しかし、その材料の接合面に酸化皮膜の消失が容易な金属をめっきすれば、表面皮膜の影響を少なくして接合できることが予想される。また、めっき金属が母材より軟ければ、接合面の密着の促進も期待できる。

本章では、大気中でも約 230°C 以上で酸化物が分解する銀を接合面にめっきして、その接合性を調べた。めっき法として、清浄でめっき基板との密着性のよいめっき膜の得られるイオンめっき法に注目した。

まず、最適イオンめっき条件を求め、ついで銀をめっきした材料の継手の強さに及ぼすめっき膜厚、接合雰囲気の影響を調べ、銀のイオンめっき処理の効果について検討した。銀をイオンめっきする効果について明らかにするため、実験には密着部が接合し難いアルミニウムと密着部が接合する銅と鉄を用いた。

なお、接合部に銀を挿入した継手の報告もあるが、<sup>54)</sup>接合面の清浄化というより密着促進の観点から検討が加えられたものである。

### 7.2 イオンめっき表面処理装置

図7-1にイオンめっき表面処理装置を示す。本装置は図6-1に示したグロー放電表面処理接合装置の移動電極のかわりに、めっき金属の蒸発源が配置してある。蒸発源と接合室を陽極、めっき基板を陰極としている。蒸発源は直径 0.5 mm のタングステン線をかご状に巻いたもので、その中にめっき金属（銀 2 g）を満たし、抵抗加熱して金属を蒸発させる。

めっき金属の蒸発速度（単位時間当りの蒸発重量）は、蒸発源の入力に関係し、入力の増大とともに大きくなる。また、蒸発源への入力がある程度ならば、蒸発重量は時間に比例した。入力 350 W で実験を行ったが、その際のめっき金属銀の蒸発速度は約 130 mg/min である。

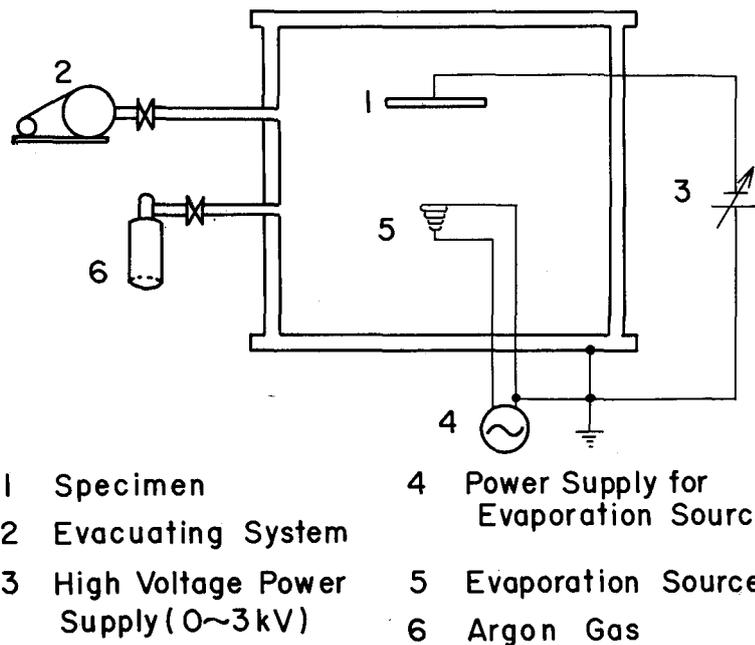


図7-1 イオンめっき表面処理装置

### 7.3 供試材及び実験方法

供試材は板厚 1 mm の工業用純鉄板と銀板，第 6 章の実験に使用した銅板とアルミニウム板である。20 × 50 mm のたんざく形状に切断し，アセトンで脱脂して実験に供した。めっき金属は純銀（純度 99.95 %）である。

イオンめっきは次の手順で行った。イオンめっき表面処理装置を真空度  $1 \times 10^{-4}$  Torr まで排気したのち，排気を続けながらバリアブルリークバルブにより，アルゴンガス（純度 99.999 %）を導入した。所定の雰囲気圧力を保持しながら，グロー放電を発生させた。めっき基板を 10 min グロー放電表面処理した後，グロー放電を継続しながらめっき金属の入った蒸発源を加熱して金属蒸気を発生させ，イオンめっきした。

イオンめっき時の付着率とは，めっき基板への付着重量と蒸発源からのめっき材の総蒸発重量の比である。一方，蒸発源に面しない側にも膜が形成され，いわゆる“つきまわり”（throwing power）が見られる。蒸発源に面しない側と面する側の付着重量との比をつきまわり率とした。

なお，付着率及びつきまわり率を測定するため，蒸発源の真上に板厚 1 mm で 20 × 50 mm の試験片を 2 枚重ね合せて水平に設置した。

イオンめっきした板の重ね継手の接合は，図 2-1 の拡散溶接装置内で，直径 4 mm の突起

のあるダイスと平坦なダイス間で加圧加熱して行った。

#### 7.4 めっき特性へのめっき条件因子の影響

接合面にめっきして拡散溶接する際には、ミクロ的な凹凸のある接合面にも、マクロ的な複雑な形状の接合面にも、一様な膜厚で所定の厚さの金属がめっきされることが要望される。

そこで、めっき金属の付着率、つきまわり率及びめっき金属表面状態に及ぼすイオンめっき条件因子の影響について検討した。めっき基板として銀と合金化の問題のない鉄を用いている。

まず始めに、陰極であるめっき基板と陽極である蒸発源との電極間距離の影響について検討した。

放電電圧 2000 V、雰囲気気圧 0.03 Torr 中でグロー放電表面処理したのち、4 min 銀を蒸発させてイオンめっきした。この時の付着率及びつきまわり率に及ぼす電極間距離の影響を図 7-2 に示す。付着率は電極間距離の増加に伴い、蒸発源側のめっき基板前面及び裏面とも急激に低下する。また、つきまわり率は電極間距離の増加に伴い急激に増加し、約 150 mm 以上

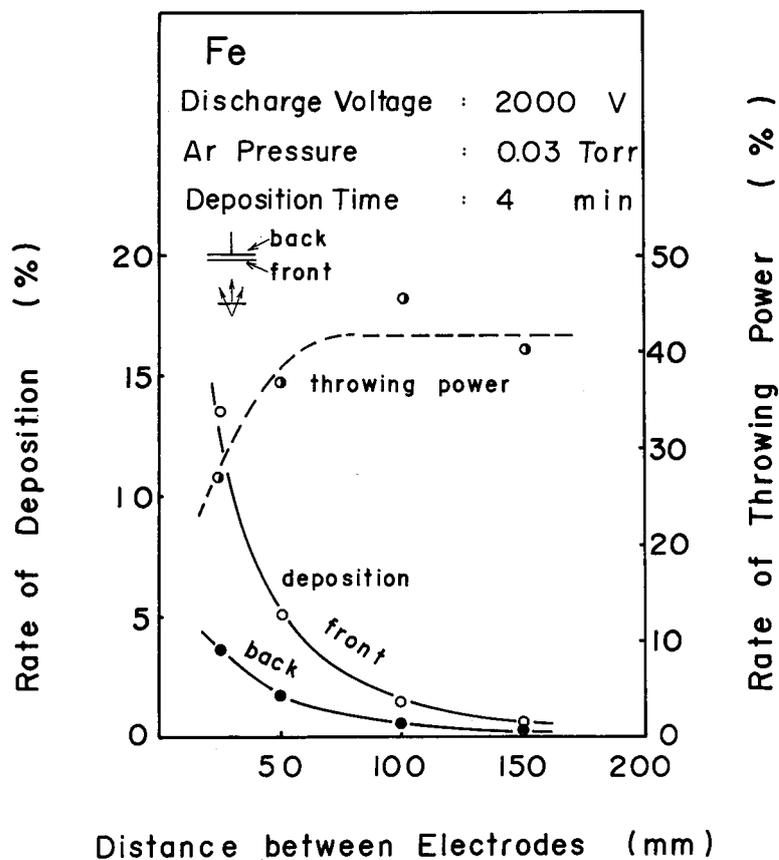


図 7-2 付着率及びつきまわり率に及ぼす電極間距離の影響

ではほぼ一定となる。そして、めっき基板の裏側にも前面の約40%めっきされることがわかる。付着率を高めるため、電極間距離を短くすると、つきまわり率は低下する。以下電極間距離50mm一定として、放電電圧、電流、雰囲気圧力の影響について検討した。

図7-3は、雰囲気圧力0.03 Torr中でイオンめっきした際の付着率及びつきまわり率に及ぼす放電電圧の影響を示している。付着率及びつきまわり率とも電圧には無関係ではほぼ一定である。放電電圧の上昇とともに放電電流は著しく増加するにもかかわらず、付着率及びつきまわり率には余り変化が認められない。したがって、付着率及びつきまわり率は電圧、電流及び電力にはほとんど影響されないといつてよい。

図7-4は、放電電圧1000Vでイオンめっきした際の付着率及びつきまわり率への雰囲気圧力の影響を示している。雰囲気圧力の増大とともに付着率及びつきまわり率とも増加し、雰囲気圧力0.03 Torr以上ではほぼ一定となった。

めっき基板がアルミニウム、銅の場合についても検討した結果、鉄の場合と同傾向で、つきまわり率及び付着率はめっき基板の材料には影響されなかった。

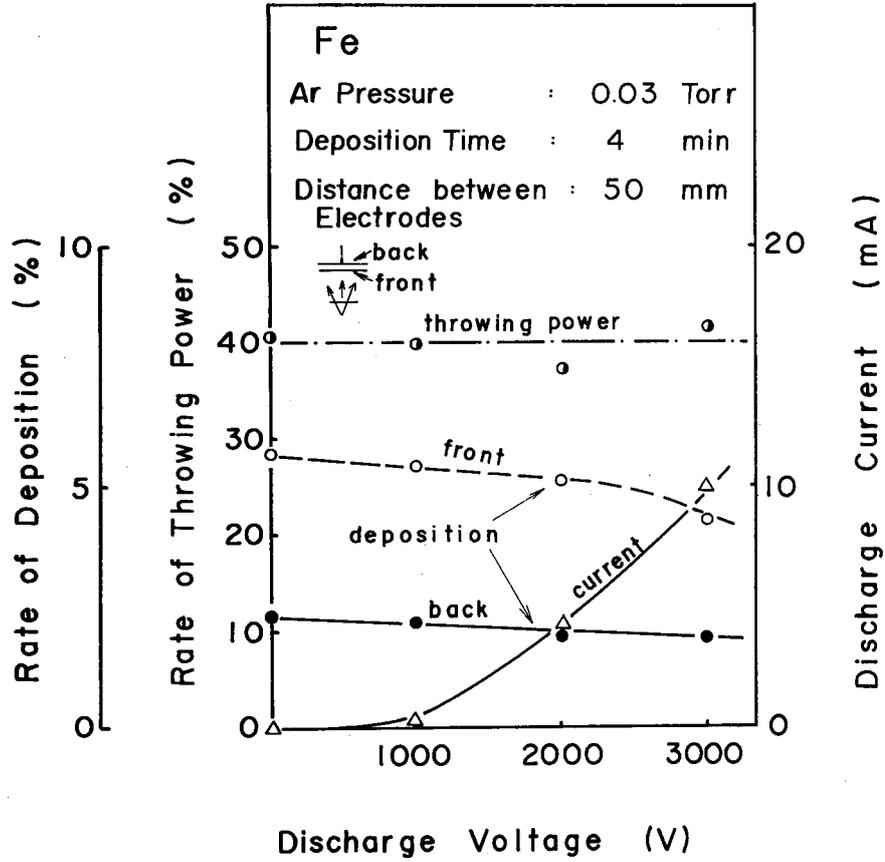


図7-3 付着率及びつきまわり率に及ぼす放電電圧の影響

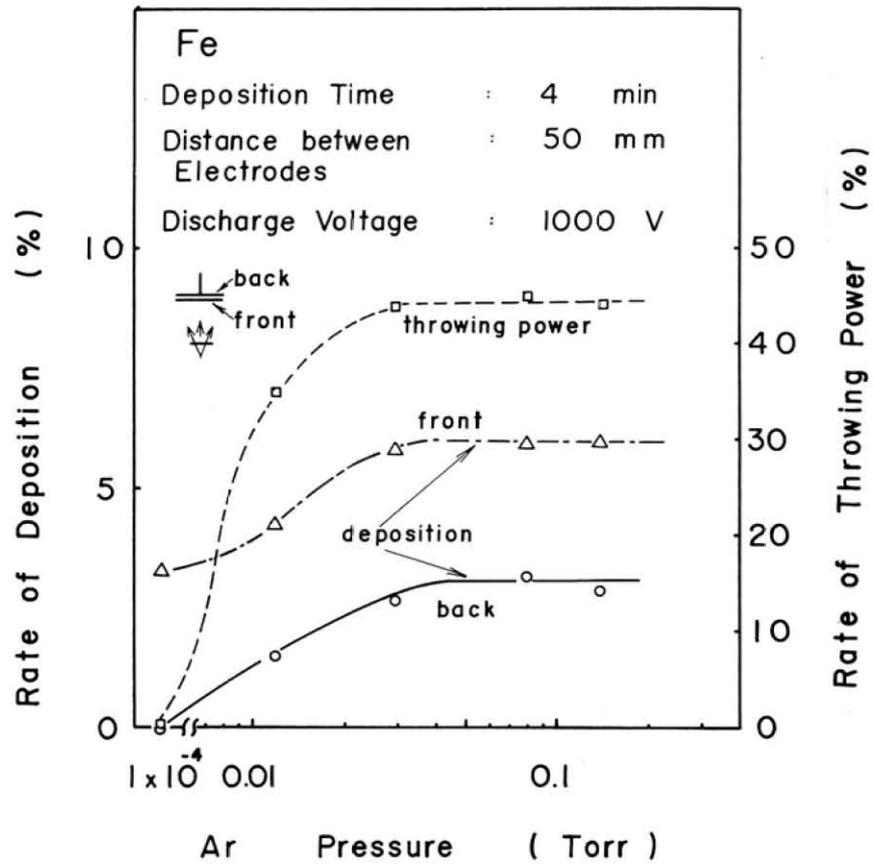
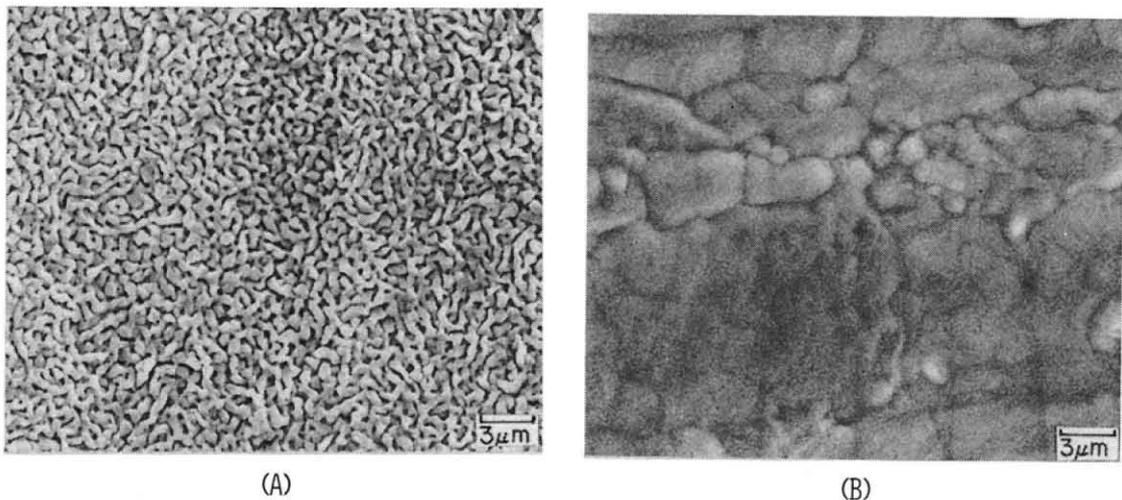


図7-4 付着率及びつきまわり率に及ぼす雰囲気圧力の影響



(A)

(B)

図7-5 イオンめっきした面の走査型電子顕微鏡写真  
 放電条件

(A) 800V, 24mA, 0.12Torr, 4min

(B) 2400V, 8mA, 0.03Torr, 4min

次に、イオンめっき表面を走査型電子顕微鏡で観察した。図7-5は、鉄上に銀をイオンめっきした表面の2次電子像で、(A)に雰囲気圧力0.12 Torr, (B)に0.03 Torrの結果を示す。真空蒸発のめっき層の構造は、基板温度と雰囲気圧力などによって変化することが報告<sup>55)</sup>されている。それで温度が一定(500°C)となるように放電電力を調節し、イオンめっきしている。雰囲気圧力の高い時には銀の粒子が付着した多孔質の表面状態である。雰囲気圧力を下げ、電圧を上げるに伴いめっき膜はち密化した。イオンめっき表面状態は雰囲気圧力に大きく影響される。

鉄板にイオンめっきした表面を触針式表面粗さ計で測定し、受け入れ材、グロー放電表面処理材と比較した。その結果、いずれも1.5~2 μmで表面処理法による表面粗さの大きな差は認められなかった。

めっき膜とめっき基板との接合強さは、放電電圧ゼロでは、めっき膜は簡単にはく離して弱い。放電電圧2000Vでは、第7.5節で述べるように銀めっきした鉄の継手の破断部は銀めっき層内であることから、めっき膜とめっき基板との接合強さは銀より強いことがわかる。この向上の原因はグロー放電によってめっき膜が清浄化されること、イオン化した銀の粒子が加速されてめっき面に衝突することなどによる。

以上の結果、付着率及びつきまわり率はめっき基板の材料、放電電圧、電流、放電電力には余り関係せず、雰囲気圧力、電極間距離に関係することがわかる。

以下、イオンめっきはめっき膜の均一性及び付着率の観点から、電極間距離50mm, 0.03 Torrのアルゴン雰囲気圧力としている。また、めっき基板との接合性の点から、放電電圧2000Vの条件下で行った。

## 7.5 銀をイオンめっきした材料の接合

銀は230°C以上に加熱されると、1気圧の酸素雰囲気中でも銀の酸化物は分解<sup>48)</sup>する。そこで、まず最初に銀は雰囲気に影響されず、大気中でも還元雰囲気中と同様に接合できるかを調べた。

図7-6は板厚1mmの銀板を1%水素アルゴン中及び大気中で重ね合せて接合し、大気中で酸化物を形成する銅と比較した結果を示している。接合に際しては、接合面が雰囲気ガスと十分反応するように、所定温度に2min保持した。引き続き、試料を重ね合せて直径4mmの突起のあるダイスで4min, 50kgfで加圧した。銀の継手の強さは雰囲気に影響されず、接合温度の上昇とともに継手の強さは大きくなる。一方、銅の継手は還元雰囲気中では接合温度の上昇とともに強くなった。しかし、大気中では400°C近傍から接合し始めるが、500°C以上になると逆に弱くなった。接合温度400°C及び500°Cで大気中接合した銅の継手の破断部には銅

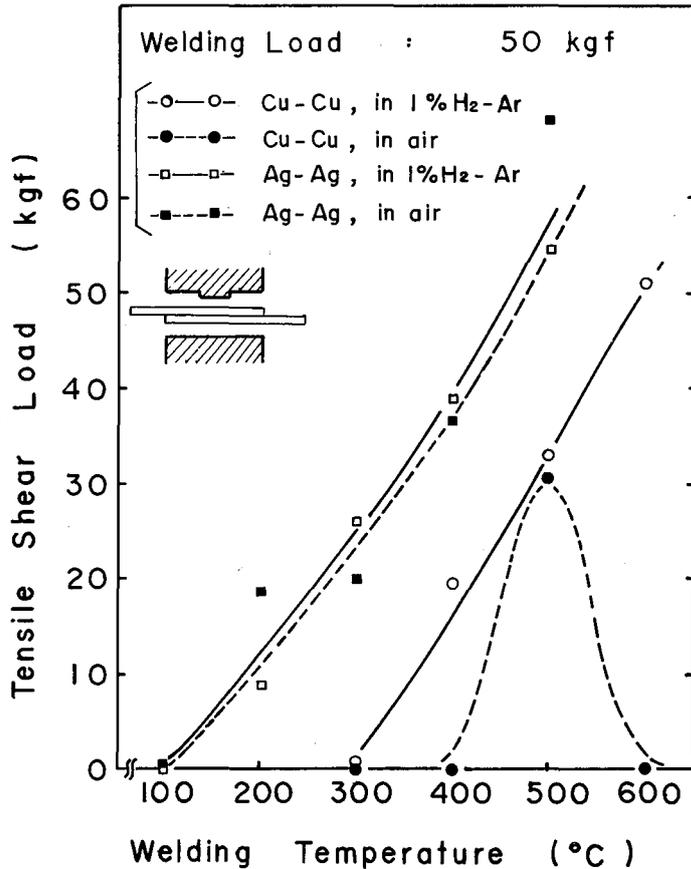


図7-6 銀及び銅の継手強さと接合温度との関係に及ぼす接合雰囲気の影響

の光沢が見られる。しかし、600°Cの大気中で接合した銅の破面は赤く変色しており、破面をX線マイクロアナライザ分析した結果、多量の酸素が検出された。一方銀の破面は雰囲気に関係なく延性破面を示し、また雰囲気による破面上の酸素量の差異は検出されなかった。このように、銀は雰囲気に関係なく接合できる。

接合面を銀めっきした材料の継手の強さは、接合部の銀の厚さに左右されることが予想される。それで、銀と合金化の問題のない鉄を用いて、銀めっき厚さの継手強さへの影響を調べた。

図7-7に接合部に挿入された銀の厚さ(めっき膜厚の2倍)と継手強さとの関係を示している。イオンめっきでは蒸発源に面しない側にもめっき膜が形成される。そこで蒸発源に面した接合面同士、及び蒸発源に面しない接合面同士を接合して、接合面の蒸発源に対する位置の影響も調べた。銀の引張せん断荷重は、引張せん断強さを引張強さ(14 kgf/mm<sup>2</sup>)の60%として算出し、図中に示した。その結果、蒸発源側の接合面同士と反対側の接合面同士の継手の強さには差が認められない。接合部に挿入された銀の厚さが薄くなるほど継手の強さは増加し、約10 μmで最大となった。銀の厚さの減少による継手の強さの増加傾向は、軟質層を含むろう

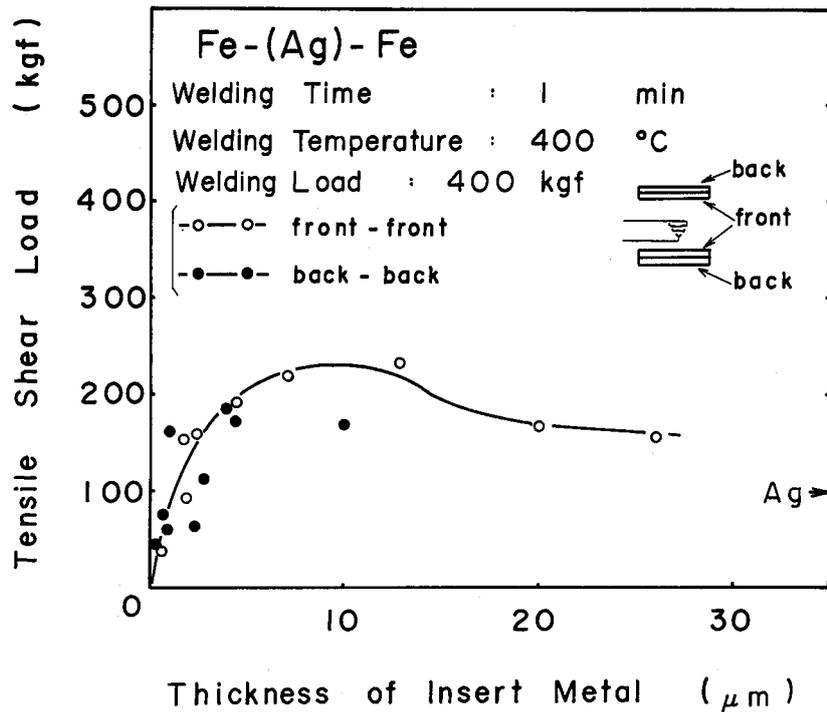


図7-7 銅板の重ね継手の強さとインサート金属厚さとの関係

接継手での、ろう厚さと継手強さとの関係に類似している。<sup>56)</sup>

ろう厚さの減少に伴うろう接継手のせん断引張強さの上昇の原因として、雀部らはろう材が<sup>57)</sup>薄いほどろう材と母材との境界で転位の移動が妨げられ、結晶粒微細化と同じ効果が生じるためと報告している。

一方、接合部に挿入された銀の厚さが数 $\mu\text{m}$ より薄くなると、逆に弱くなった。

図7-8は、厚さの異なる銀をめっきした鉄の接合部断面の顕微鏡写真を示す。挿入された銀の厚さが $5\mu\text{m}$ の場合には銀層の中央部に接合境界は認められず、銀同士は全面密着している。しかし、銀の厚さが $1.4\mu\text{m}$ の場合、接合境界部に多くの空隙が認められる。この原因は、この母材の表面粗さが約 $2\mu\text{m}$ であるので、接合部の空隙を銀が満たすことができないことによる。銀の厚さの減少による継手の強さの低下は密着面積の減少に起因する。

このように、母材の表面粗さが約 $2\mu\text{m}$ の場合、接合部での最適な銀の厚さは約 $10\mu\text{m}$ である。

次に、接合面のめっき法として、イオンめっき、電気めっき、真空蒸着を比較する。それとともに、銀の箔を挿入した接合及び直接接合も調べて、最適なめっき法とめっきの効果について検討した。

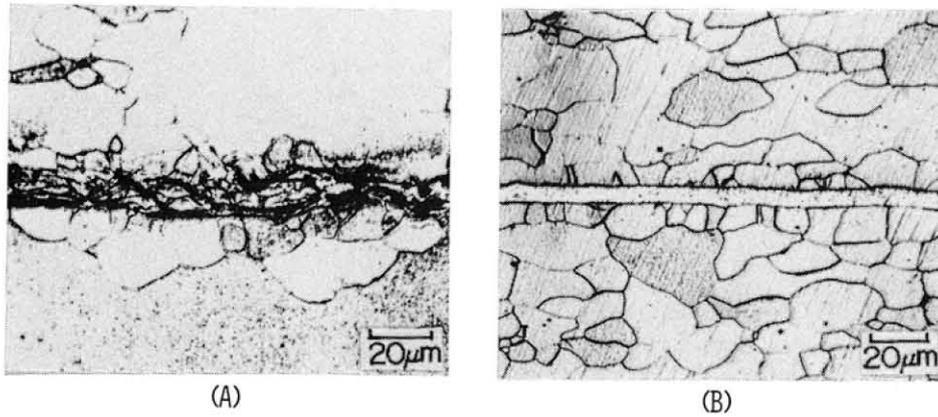


図7-8 銀をイオンめっきした鉄の接合部断面の光学顕微鏡写真  
 インサート金属の厚さ  
 (A) 1.4 μm (B) 5 μm

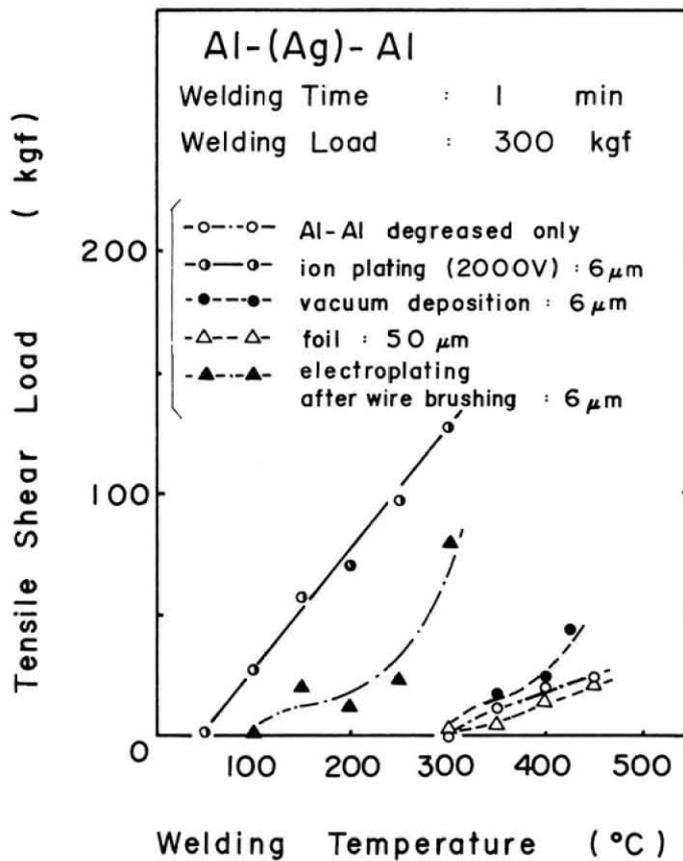


図7-9 各種の方法で銀をめっきして接合したアルミニウム板の重ね継手の強さと接合温度との関係

図7-9はアルミニウムについて、図7-10は鉄について、各種の条件で接合した継手の引張せん断荷重と接合温度との関係を示している。いずれも直接接合より、銀をめっきした方が強くなり、めっき法としてイオンめっき法が最も優れる。

なお、銀をイオンめっきした鉄の接合性は、グロー放電表面処理した鉄より優れた。これは銀が母材より軟らかいので、密着面積が増加するためと考えられる。一方、アルミニウムでは銀のイオンめっき処理よりもグロー放電表面処理した継手が強かった。これは銀が母材より硬いので密着面積が少なくなるためである。

次に、破断位置を明らかにするため、破断部をX線マイクロアナライザで調べた。図7-11にイオンめっきした鉄の接合部破面の結果を示す。(A)は反射電子像、(B)(C)は、写真(A)の中央部を拡大して撮影した鉄及び銀の特性X線像である。写真上の(a)の部分は最下段部で母材の鉄がかなり検出されるが、この部分を高倍率で観察すると細かい銀の粒子が付着している。中段部(b)及び反対側の母材の凹凸が見られる上段部(c)には、鉄は検出されずすべて銀である。一方、この試験片の相手側表面上でも同様な傾向が認められた。なお、(a)のような母材の鉄が多く認

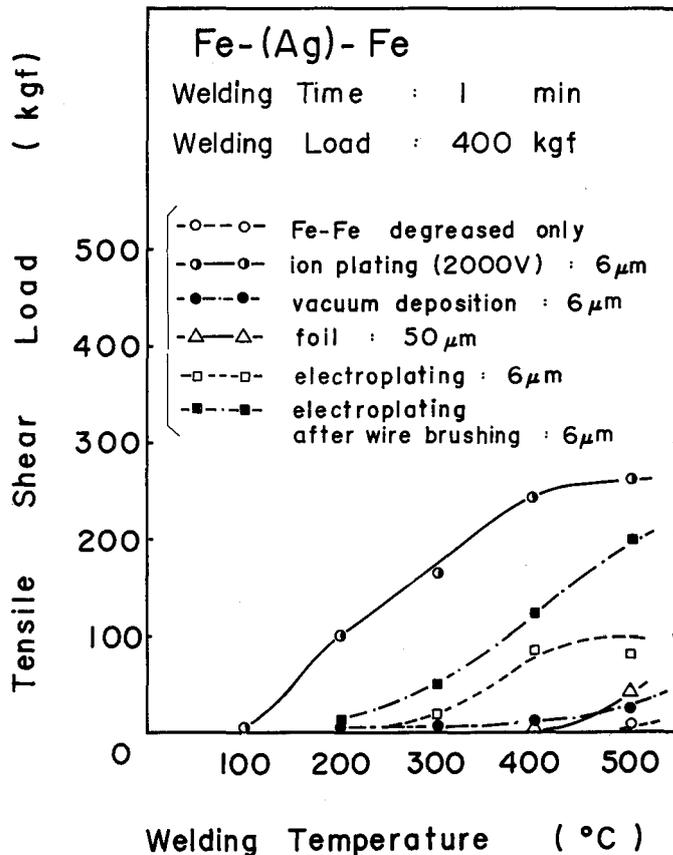
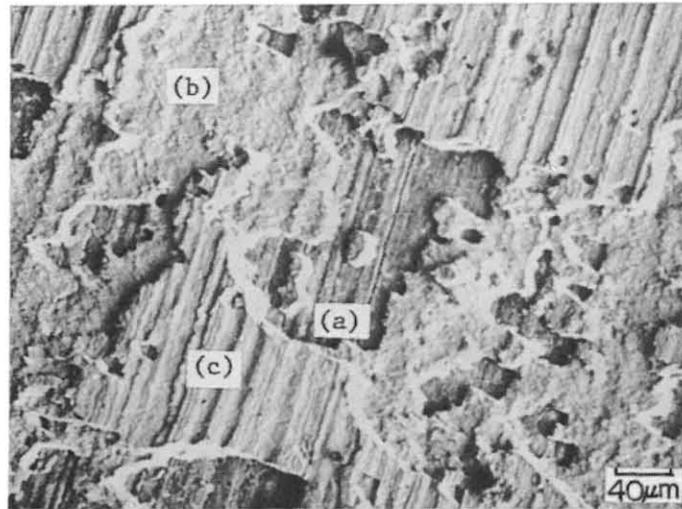
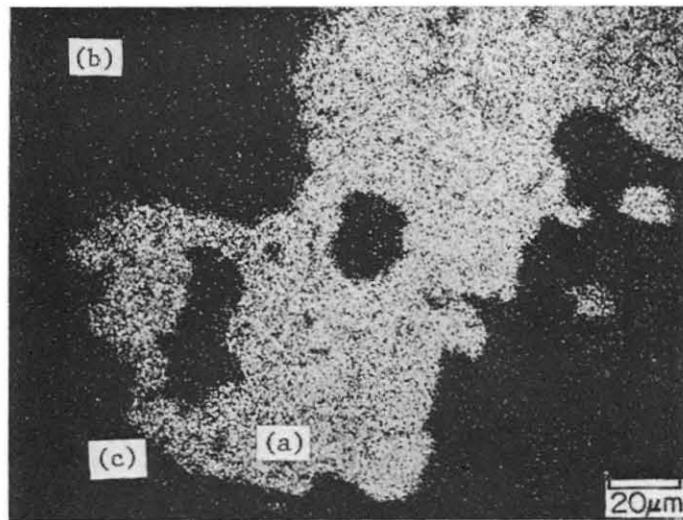


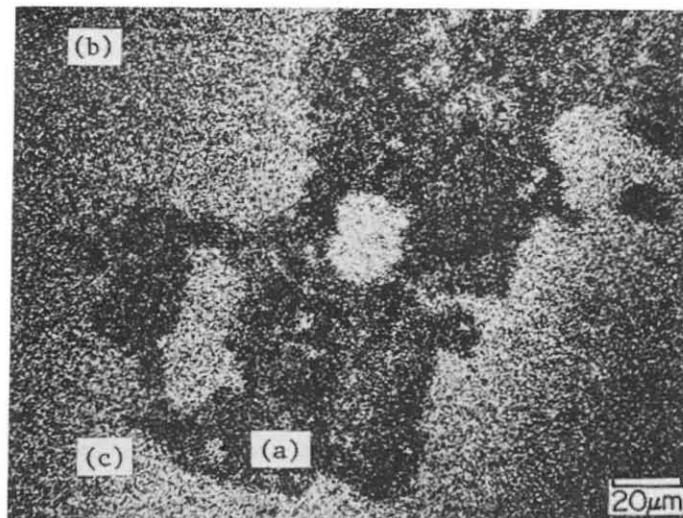
図7-10 各種の方法で銀をめっきして接合した鉄板の重ね継手の強さと接合温度との関係



(A)



(B)



(C)

図7-11 銀をイオンめっきした鉄の接合部の破面のX線マイクロアナライザによる分析

- (A) 反射電子像
- (B) FeK $\alpha$ 線像
- (C) AgL $\alpha$ 線像

められる部分は全体の密着面積に対して非常に少ない。破断箇所は複雑であるが、イオンめっきした継手はおおよそめっき金属内で破断したといてよい。他のめっき法による継手では、いずれも母材と銀との界面で破断していた。

イオンめっきでは、母材との接合性の良いめっき膜が得られることから、イオンめっきによる継手は他の方法によるよりもはるかに強いことがわかる。

図7-12は、銀をイオンめっきしたアルミニウムの継手の強さと接合温度との関係に及ぼす接合雰囲気の影響を示している。なお、接合部での銀の厚さは約8 $\mu$ mであり、真空中での直接接合の結果も示す。銀をイオンめっきしたアルミニウムの継手の強さは、大気中での接合時でも真空時とほぼ同じである。銀をイオンめっきした鉄の継手においても同様な結果が得られ、酸素による影響が少なく、安定した継手が得られる。

このように、接合面に銀をイオンめっきすることによって、安定な酸化皮膜のため接合が困難な材料の接合ができる。また雰囲気中の酸素の影響を少なく接合できることがわかる。

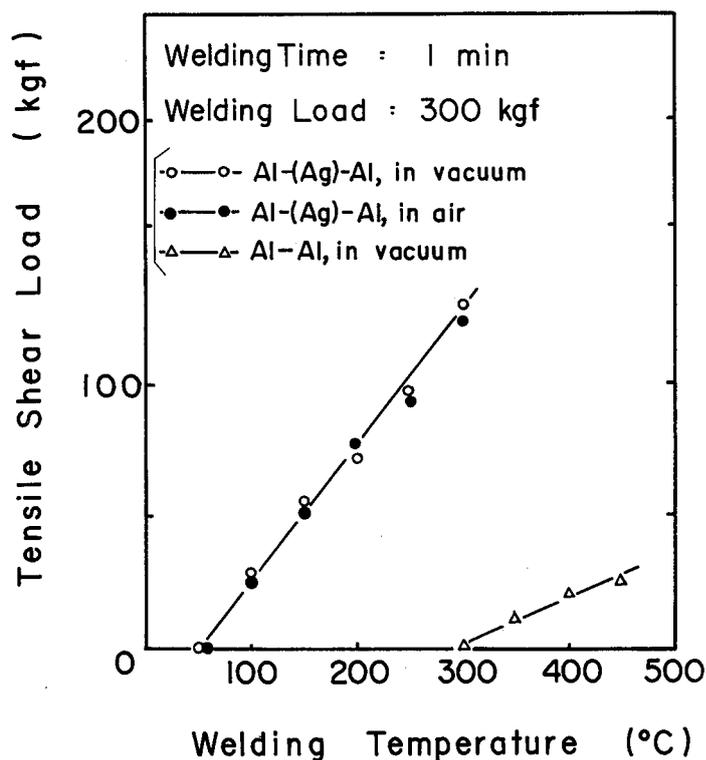


図7-12 銀をイオンめっきしたアルミニウム板の重ね継手の強さと接合温度との関係に及ぼす接合雰囲気の影響

## 7.6 要 約

酸化皮膜の消失が容易な銀を接合面にイオンめっきして接合する方法で、最適イオンめっき条件、継手の強さへのめっき膜厚及び接合雰囲気の影響、銀をイオンめっきする効果について検討した。得られた結果は次のように要約できる。

1. 銀は酸化雰囲気に影響されることなく接合できるので、銀を接合面上にめっきすれば、大気中での接合継手の強さは真空中での接合継手の強さに達する。
2. 接合面のめっき法として、イオンめっき法が真空蒸着法、電気めっき法より優れる。
3. 母材の表面粗さが約  $2\mu\text{m}$  では、最適な接合部の銀層の厚さは約  $10\mu\text{m}$  である。
4. イオンめっき条件の選定に際しては、めっき膜の均一性及び付着率の点から、電極間距離  $50\text{mm}$ 、 $0.03\text{Torr}$  のアルゴン雰囲気とし、母材とめっき膜との接合性の点から、放電電圧が高い方がよい。
5. 銀をイオンめっきした鉄の継手の強さは、グロー放電表面処理した継手より大きい。
6. アルミニウムの継手の強さは、酸化皮膜に影響されるが、アルミニウム上に銀をイオンめっきすることによって継手強さが大きく向上する。

## 第8章 総 括

接合面には微細な凹凸がある。また、酸化物や吸着ガスなどの表面皮膜で覆われている。この接合面上の凹凸と表面皮膜が接合を妨げている。したがって、凹凸が変形して密着面積が増加する過程、及び密着部での表面皮膜の挙動など、接合機構についての研究が重要である。

本研究では、拡散溶接部における密着過程と表面皮膜の挙動といった基本的な接合現象を明らかにするとともに、接合性改善のための表面処理についても検討した。

以下に各章で得られた結果を要約する。

第1章では、本論文の着眼点、構成について述べた。

第2章では、接合面の凹凸が変形して密着面積が増加する過程への接合温度、圧力、時間及び接合面の粗さの影響を調べた。実験には無酸素銅、鉄、チタン、アルミニウム及びSUS304ステンレス鋼を用いている。得られた結果は次のように要約できる。

1. 接合面の粗さが数 $\mu\text{m}$ 以上の場合には、拡散溶接部の密着部は、接合面の凹凸がクリープ変形することによって形成される。接合面の粗さが小さい場合には、初期の凹凸のクリープ変形と併行して生ずる空隙の収縮現象により密着面積が増加する。
2. 接合面の粗さが数 $\mu\text{m}$ 以上の拡散溶接部の密着面積は、拡散溶接部の密着部をモデル化した円錐形状試験片と平坦な試験片との密着部の観察結果から定量的に求まる。
3. 円錐形状試験片の密着面積を接合荷重で割って求めた密着面積指数 $A_s$ は、単位接合圧力下での密着面積を示す値で、次のように表される。

$$A_s = C_1 \left\{ t_w \exp(-Q/RT_w) \right\}^{\frac{1}{n}} \quad (2-6)$$

$C_1, n$  : 定数

$T_w$  : 接合温度 (K)

$R$  : 気体定数

$t_w$  : 接合時間 (sec)

$Q$  : 活性化エネルギー

表2-2に各種金属について得られた $C_1, Q, n$ の値を示す。

4. 接合面の粗さが数 $\mu\text{m}$ 以上の拡散溶接部の密着面積割合は、次式で示される。

$$A_b / A = A_s \cdot L_w / A \quad (2-10)$$

$$= C_1 \cdot \frac{L_w}{A} \left\{ t_w \exp(-Q/RT_w) \right\}^{\frac{1}{n}} \quad (2-12)$$

$A_b$  : 丸棒の拡散溶接部の密着面積 ( $\text{mm}^2$ )

$A$  : 丸棒の断面積 ( $\text{mm}^2$ )                       $L_w$  : 接合荷重 (kgf)

上式は、 $0.6 < T_w/T_m < 0.9$ ,  $1 \text{ min} < t_w < 60 \text{ min}$ ,  $0 < A_s \cdot L_w/A < 0.9$  の条件下で成立する。なお  $T_m$  は材料の融点 (K) である。

5. 接合面の粗さが小さいほど、空隙の収縮現象による密着面積の増加量は大きくなる。したがって、拡散溶接部の密着面積割合は、 $A_s \cdot L_w/A$  から予測される値より大きくなる。

6.  $A_s \cdot L_w/A \div 1$  の接合条件下では全面密着する。しかし、接合材の断面積の増加割合が 20～30% となる。接合材の断面積の増加割合をなるべく小さくして、空隙のない拡散溶接部を得るためには、接合面の粗さをできるだけ小さくする必要がある。

第 3 章では、クリープ変形及び空隙の収縮による密着過程に及ぼす変態の影響を、鉄を用いて検討した。得られた結果は次のように要約できる。

1. クリープ変形で密着面積が増加する接合過程においては、変態超塑性現象によって密着化が促進される。それで、変態を繰り返して接合すると、一定温度接合時よりも低い接合圧力で拡散溶接できる。
2. 空隙の収縮による密着面積の増加過程に、変態の効果はそれほど認められない。
3. 変態を繰り返して接合した継手が強いのは、密着面積の増加による。

第 4 章では、継手の引張強さに影響を及ぼす因子を検討した。得られた結果は次のように要約できる。

1. 銅、鉄、チタン及び SUS304 ステンレス鋼の拡散溶接部においては、密着部の引張強さは母材の強さに匹敵しており、密着部はほぼ接合している。これらの材料の継手強さは、主として接合した密着部の面積と空隙による切欠効果に影響される。
2. アルミニウムでは、 $A_s \cdot L_w/A$  から算出した密着部の引張強さは著しく低く、密着部での接合箇所が少ない。
3. 空隙が残存する継手の引張強さは、密着部での接合面積と空隙による切欠効果に影響されるので、継手の強さは低い。

第 5 章では、拡散溶接前後での接合面のオージェ分析などから、拡散溶接部での酸化皮膜の挙動を調べるとともに、アルミニウムの継手強さが低い原因について検討した。その結果、次のように要約できる。

1. 各種材料の接合面は、酸素、炭素を含む表面皮膜で覆われている。拡散溶接部での表面皮膜の安定さが密着部での接合を左右する。
2. 拡散溶接部での酸化皮膜の挙動は材料によって異なり、3つの型に分類できる。

A 型……空隙内面及び密着面間の酸化皮膜が拡散溶接の初期に消失し、酸化皮膜が拡散溶

接部にそれほど影響しない。

B型……拡散溶接の初期段階に接合面の酸化皮膜が凝集して、空隙内面及び密着部に介在物を形成する。接合の進行とともにさらに凝集が進み、母材への酸素の拡散により介在物量は減少する。

C型……酸化皮膜が安定で、拡散溶接中に消失しない。

3. A型の皮膜の挙動を示す材料としてチタンがある。B型の材料には、鉄、銅、SUS304ステンレス鋼がある。C型の材料にはアルミニウムがある。
4. 鉄及びSUS304ステンレス鋼拡散溶接部の介在物は硫化物と各種の酸化物が複合したものである。介在物量は、酸化皮膜の厚さの減少とともに、また接合時間とともに減少する。
5. C型の酸化皮膜の挙動を示すアルミニウムでは、接合界面での変形の増加とともに、密着部の酸化皮膜が破壊されわずかに接合する。しかし、拡散による酸化皮膜の消失が期待できないので、清浄な面を接合する必要がある。

このように、拡散溶接における密着過程及び表面皮膜の消失といった基本過程はともに拡散現象と深い関係をもっている。したがって、拡散の進行とともに密着化と表面皮膜の消失が進み、接合が進行する。しかし、表面皮膜が安定でアルミニウムのように拡散溶接中に皮膜が消失せず、継手強さが低い場合がある。

そこで第6章では、安定な酸化皮膜をもつアルミニウムのような材料の接合性改善の目的で接合面の清浄化と接合を連続的に行えるグロー放電表面処理について検討した。その結果を要約すると、

1. グロー放電表面処理は、接合面の皮膜を取り除いて密着部での接合面積を増加するのに効果がある。
2. グロー放電表面処理は、拡散溶接部で皮膜が消失する銅はもちろん、消失しないアルミニウムに対しても効果的である。
3. グロー放電条件の選定に際しては、接合面の清浄化のため高いスパッタリング速度となるように、かつ密着面積増加のため高い接合温度となるように放電条件を選定すればよい。

第7章では、接合面の清浄化と密着促進のため、接合する面を酸化皮膜の影響を受けない銀であらかじめイオンめっきして接合する方法について検討した。その結果を要約すると、

1. 銀は酸化雰囲気の影響されことなく接合できるので、銀を接合面上にめっきすれば、大気中での接合継手の強さは真空中での継手の強さに達する。
2. 接合面の銀めっき法として、イオンめっき法が真空蒸着法、電気めっき法より優れる。
3. アルミニウムの継手強さは酸化皮膜に影響されるが、アルミニウム上に銀めっきすることによって、継手の強さが大きく向上する。

## 謝 辞

本論文の一連の研究を遂行し、本論文をまとめるにあたり、大阪大学溶接工学研究所 圓城敏男教授から終始御指導と御鞭撻を賜り、深く感謝致します。

また、本論文の御検討ならびに御助言を賜った、大阪大学溶接工学研究所長 荒田吉明教授、大阪大学溶接工学研究所 岡本郁男教授、大阪大学工学部 丸尾 大教授、中尾嘉邦教授、ならびに大阪大学溶接工学研究所の各位に深く感謝の意を表します。

さらに、本論文の一連の研究は科学技術庁金属材料技術研究所溶接研究部において遂行したものであり、荒木 透前所長、中川龍一所長及び関係各位、ならびに溶接研究部で直接御指導をいただいた、稲垣道夫前部長、中村治方部長、橋本達哉前第3研究室長、故田沼欣司前第3研究室長及び溶接研究部の各位に心より御礼申し上げます。

## 参 考 文 献

1. D. S. Duvall, W. A. Owczarski and D. F. Paulonis : "TLP Bonding : A New Method for Joining Heat Resistant Alloys", W. J., **53** (1974), 203 S~214 S
2. G. S. Hoppin and T. F. Berry : "Activated Diffusion Bonding", W. J., **49** (1970), 505 S~509 S
3. American Welding Society : Welding Handbook, Volume III, 1980
4. W. A. Owczarski and D. F. Paulonis : "Application of Diffusion Welding in the USA", W. J., **60** (1981), No.2, 22~33
5. W. M. Spurgeon, S. K. Rhee and R. S. Kiwak : "Diffusion Bonding of Metals", Bendix Technical Journal, 1969, Spring, 24~41
6. W. M. Spurgeon : "Diffusion Bonding and its Application to Manufacturing", Proceedings of the Symposium on Welding, Bonding and Fastening, 1972
7. R. M. Cogan and C. E. Shamblem : "Development of a Manufacturing Process for Fabricated Diffusion Bonded Hollow Blades", Technical Report, AFML-TR-219, 1969
8. R. D. Reidelberger and W. A. Reinsch : "The B-1 Materials-Processing Systems", Metal Progress, **101** (1972), 52~57
9. P. R. McGowan, N. R. Williams and J. I. Allyn : "Diffusion Bonded Titanium Alloy Honeycomb Panels", Technical Report, AFML-TR-66-419
10. H. G. Kellerer and L. M. Milacek, "Determination of Optimum Diffusion Welding Temperatures for Ti-6Al-4V", W. J., **49** (1970), 219S~224S
11. D. S. Duvall, W. A. Owczarski, D. F. Paulonis and W. H. King : "Methods for Diffusion Welding the Superalloy Udimet 700", W. J., **51** (1972), 41S~49S
12. 鈴木, 恩沢, 田村 : "銅の拡散接合性に及ぼす表面処理の影響", 溶接学会誌, **50** (1981), 196~200
13. 河野, 才川, 佐々木, 小出 : "拡散接合に関する研究", 溶接法資料, SW-1140-79
14. 橋本, 田沼 : "モリブデンの拡散接合" 溶接学会誌, **37** (1968), 1345~1352
15. M. J. Albom : "Diffusion Bonding Tungsten", W. J., **31** (1962), 491S~502S
16. 圓城, 池内, 金井, 丸山 : "チタンとアルミニウムとの拡散溶接", 溶接学会誌, **83** (1977), 82~89
17. 松田, 山田 : "拡散溶接について", 資料 No.175, 摩擦圧接協会
18. W. H. King and W. A. Owczarski : "Diffusion Welding of Commercially Pure Titanium", W. J., **46** (1967), 289S~298S
19. W. H. King and W. A. Owczarski : "Additional Studies on the Diffusion Welding of Titanium", W. J., **47** (1968), 444S~449S
20. T. Enjo, K. Ikeuchi and N. Akikawa : "Study of Microscopic Process of Diffusion Welding by Electric-Resistance Measurement and Transmission Electron Microscope", Trans. of JWRI, **7** (1978), No.2, 97~100

21. O. D. Sherby and R. E. Armstrong : "Prediction of Activation Energies for Creep and Self-Diffusion from Heat Hardness Data", *Metallurgical Trans.*, **2** (1971), 3479~3483
22. O. D. Sherby, J. L. Lytton and J. E. Dorn : "Activation Energies for Creep of High-Purity Aluminum", *Acta Met.*, **5** (1957), 219
23. F. Garofalo : "金属クリープの基礎", 丸善, 1967
24. J. Lunsford and N. J. Grant : "Relative high temperature properties of the hexagonal close-packed and body-centered cubic structures in iodidetitanium", *Trans. of the ASM*, **49** (1957), 328~338
25. NIRM Creep data sheet, No.4A : "Data sheets on elevated-temperature properties of 18Cr-8Ni stainless sheet", NIRM, 1978
26. バッデン・ティバー : "固体の摩擦と潤滑", 1966, 丸善
27. T. Tsukizoe and T. Hisakado : "On the Mechanism of Contact Between Metal Surface : Part 2", *Trans. Am. Soc. Mech. Engrs.*, **90F** (1968), 81~88
28. 松山, 三谷, 鈴木 : "総説 粉末冶金学", 日刊工業新聞社, 1975
29. Y. Adda et J. Philibert : "La Diffusion dans les Solides", Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires, Presses Universitaires de France, 1966
30. B. H. Alexander and R. W. Balluffi : "The Mechanism of Sintering of Copper", *Acta. Met.*, **5** (1957), 666~667
31. G. C. Kuczynski : "The Mechanism of Densification during Sintering of Metallic Particles", *Acta. Met.*, **4** (1956), 58~61
32. G. C. Kuczynski : "Self-diffusion in Sintering of Metallic Particles", *Trans. AIME*, **185** (1949), 169~178
33. H. Udin, A. J. Shaler and J. Wulf : "The Surface Tension of Solid Copper", *Trans. AIME*, **185** (1949), 186~190
34. P. M. Bartle : "A Look at the Furture", *W. J.*, **54** (1975), 779~804
35. 圓城, 池内, 秋川, 伊藤 : "Ti-6Al-4V 合金の拡散溶接に対する母材の金属組織の影響", *日本金属学会誌*, **44** (1980), 659~665
36. E. D. Weiserd and G. W. Stacher : "Fabricating Titanium Parts with SPF/DB Process", *Metal Progress*, **111** (1977), No.3, 33~37
37. O. D. Sherby and J. L. Lytton : "Possible Role of Diffusion in the Creep of Alpha and Gamma Iron", *Trans. AIME*, **206** (1956), 928
38. 井口, 岡, 早乙女 : "純鉄の急速加熱変態超塑性", *日本金属学会誌*, **38** (1974), 725~730
39. F. W. Clinard and O. D. Sherby : "Diffusion in a Dilute Iron Alloy During Alpha-Gamma Phase Transformations". *Trans. AIME*, **233** (1965), 1975~1983
40. R. Angers and F. Claisse : "Self-Diffusion in Iron During the Alpha-Gamma Transformation", *Trans. of AIME*, **245** (1965), 1645~1650

41. 小原, 立沢 : “くり返し変態による鉄粉の焼結の促進”, 粉体および粉末冶金, **20** (1973), 184~189
42. テテルマン : “構造材料の強度と破壊”, 培風館
43. 大前, 深谷, 井上, 加藤, 沖田 : “拡散溶接技術の開発と実用化”, 三菱重工技報, **19** (1982), 366~373
44. L. E. Davis : Handbook of Auger Electron Spectroscopy”, Physical Electronics Industries, Second Edition, 1976
45. 吉原, 新居 : “SUS304, SUS347 ステンレス鋼表面上の非金属元素と金属元素の共偏析”, 日本金属学会誌, **46** (1982), 494~503
46. E. Lugscheider and Hong-shou Zhuang : “Mechanism by which wetting-inhibiting films of surface oxide are removed from X10 Cr Ni Nb 189 Steel during vacuum brazing”, Schweißen und Schneiden, **34** (1982), 490~495
47. 荒田, 大森, 蔡 : “真空ろう付に関する研究 (第3報)”, 溶接学会講演概要集, No.32, 108~109
48. R. A. Swalin : “固体の熱力学”, コロナ社, 1970
49. R. I. Jaffee, H. R. Ogden and D. J. Maykuth : “Alloys of Titanium with Carbon, Oxygen and Nitrogen”, Trans. AIME, **188** (1950), 1261~1266
50. 安藤, 仲田, 西田 : “アプセット・バット溶接における接合面の酸化介在物の分散・微細化機構”, 溶接学会誌, **40** (1971), 1140~1148
51. 斎藤, 須藤 : “真空融解法による金属マンガンのアルミニウム中の酸素の定量”, 日本金属学会誌, **39** (1975), 368~373
52. M. Hansen : “Constitution of Binary Alloys”, McGraw-Hill Book Company, 1958
53. R. F. Tylecote, D. Howd and J. E. Furmidge : “The Influence of Surface Films on the Pressure Welding of Metals”, Brit. W. J., **5** (1958), 21~38
54. M. O'Brien, C. R. Rice and D. L. Olson : “High Strength Diffusion Welding of Silver Coated Base Metals”, W. J., **55** (1976), 25~27
55. 難波 : “Bi 蒸着膜の成長過程とその断面構造”, 応用物理, **6** (1971), 639~644
56. 橋本, 岡本 : “固相溶接・ろう付”, 溶接全書, 産報出版, 1969
57. 雀部, 岡根 : “ろう接継手の機械的性質 (第II報)”, 溶接学会誌, **47** (1978), 115~120

## 本論文に関連した発表論文

- (1) 拡散接合に関する研究 (第1報) - グロー放電による表面処理 -, 溶接学会誌, 45 (1976), 76~81
- (2) 拡散接合に関する研究 (第2報) - 接合過程への接合温度, 時間, 圧力の影響について -, 溶接学会誌, 45 (1976), 295~301
- (3) 拡散接合に関する研究 (第3報) - 接合過程への表面粗さの影響 -, 溶接学会誌, 45 (1976), 485~491
- (4) 拡散接合に関する研究 (第5報) - イオンめっきによるインサート金属挿入法 -, 溶接学会誌, 45 (1976), 649~656
- (5) 拡散接合に関する研究 (第6報) - 材料の高温変形特性と接合特性との関係 -, 溶接学会誌, 46 (1977), 19~25
- (6) 同素変態の拡散溶接過程への影響 - 拡散溶接に関する研究 (第8報) -, 溶接学会誌, 49 (1980), 24~29
- (7) 銀をイオンめっきした材料の大気中拡散溶接 - 拡散溶接に関する研究 (第9報) -, 溶接学会誌, 49 (1980), 647~651
- (8) Effect of Surface Treatment by Glow Discharge on Diffusion Weldability, Trans. Nat. Res. Inst. Metals, 19 (1977), 112~118
- (9) Effect of Creep Deformation on Characteristics of Diffusion Welded Joints, Trans. Nat. Res. Inst. Metals, 21 (1979), 121~129
- (10) Effect of Surface Roughness on Diffusion Welded Joints, Trans. Nat. Res. Inst. Metals, 24 (1982), 202~206
- (11) 拡散溶接部の表面皮膜のオージェ解析 - 拡散溶接部での表面皮膜の挙動に関する研究 (第1報) -, 溶接学会誌投稿中
- (12) 拡散溶接部での酸化皮膜の消失機構 - 拡散溶接部での表面皮膜の挙動に関する研究 (第2報) -, 溶接学会誌投稿予定

