研究論文

大気中における Al-Sn 系合金の拡散接合

伊藤 勲*・乙黒 靖男*・左俣 宏明**

Diffusion welding of Al-Sn alloy in the atmosphere

Isao ITOH*, Yasuo OTOGURO* and Hiroaki SAMATA**

Effects of Sn or/and Mg addition on the diffusion weldability of aluminum alloy were investigated. The welding treatment was carried out in the temperature range from 573 to 873 K for 1.8, 3.6 and 7.2 ks under the pressure of 1, 2 and 4 MPa in the atmosphere, respectively. The liquid Sn containing Mg filled the interface and prevented the interface from an attack of the air which oxidized the surfaces of specimens. Mg in the liquid Sn reduced a part of the oxidation film at the interface. Both Sn and Mg addition showed the almost same shear strength as that of Al-Mg alloy, which was remarkably higher than that obtained by the single addition of Sn.

Keywords: diffusion welding, Al-Sn alloy, Al-Sn-Mg alloy, interface, shear strength

(Received January 9, 1992)

1. 緒 言

アルミニウム合金における拡散接合の難しさは、試料表面に熱的に安定でまた強固な酸化皮膜が形成されるためとされている。著者らはこの皮膜の破壊のために母材のアルミニウムにはほとんど固溶しないわずの少量の添加を試み、同時にまた接合強度の向上を目的として各種元素とすずの複合添加を試みてきた。この結果、真空処理ではあるがアルミナと Al-Sn 合金の接合¹⁾および銅と Al-Sn 合金の接合²⁾において大変良好な結果を得た。この場合、添加元素 Sn の役割を要約すると以下の三つになる。1) 接合時の加熱によりすずは溶け、圧力により接合界面に押し出され、酸化皮膜を破壊する¹⁾²⁾。2) この際試料内部の熔融すずは各種添加元素を接合界面まで一緒に運ぶ¹⁾²⁾。3) 界面に形成された Sn 層は熱応力を緩和する¹⁾。また上記いずれの接合においても Sn との複合添加元素 Mg は接合強度を大幅に高める効果を示した。

以上のすず添加の働きを考慮し、大気中での Al-Sn 系合金の拡散接合が可能であるものと考え本実験を行った。

これまで報告されているアルミニウム系合金の拡散接合について触れる。最初に大気中での接合を試みたのは、橋本と大橋³⁾で、工業用純アルミニウムの接合面にワイヤブラン掛けし、その後歪28%に相当する常温圧接を施した後、448 K で約600 s の熱処理を行い、ほぼ母材強度に等しい接合強度を得ている。また田沼と橋本⁴⁾は雰囲気圧力 5×10^{-6} Torr, 1×10^{-4} Torr および 760 Torr のそれぞれの圧力で工業用純アルミニウムにワイヤブラン掛けし、その後それぞれの雰囲気圧力で約573 K までの各温度で約230 MPa の圧力のもとに120 s の熱処理を施した。この結果760 Torr の雰囲気ではよい接合は得られていない。さらに大橋と橋本⁵⁾は大気中での接合を目的の一つとしてアルミニウムを含む各種金属接合面に銀イオンめっきを施し、アルミニウムについては圧力約5 MPa、加圧時間240 s で処理温度773 K までの接合を試みている。しかしあまりよい接合結果は得られていない。このほか宮崎ら⁶⁾はアルミニウム合金同士の接合にインサート材として Al-Si 合金を用い、Al-Si 合金の共晶反応を利用して圧接を行い、良好な接合結果を得ている。

次に真空雰囲気で行われたアルミニウム合金の拡散接

* 群馬大学工学部 (桐生市)。Faculty of Engineering, Gunma University (Kiryu-shi, Gunma)。

** 群馬大学大学院 (桐生市)。Graduate Student, Gunma University (Kiryu-shi, Gunma)。

合に関する報告について触れる。圓城ら⁷⁾は、工業用純アルミニウムの接合面に①ワイヤブラシ掛け、②ワイヤブラシ掛けに続く電解研磨、③エメリー紙(#1200)研磨の後電解研磨のいずれかを施し、圧力2 MPa、加圧時間1.8 ksで893 Kから923 Kまでの処理を行った。この結果923 K処理ではすべての試料が接合したが、893 K処理では②の研磨方法でのみ接合が得られた。この原因として②の研磨方法が一番良く接合界面の酸化皮膜を破壊するためとしている。また圓城ら⁸⁾はMgを約0.5%含むA6063合金同士の拡散接合(接合温度893 K、真空度 10^{-2} Pa、接合圧力1 MPa、接合時間1.8 ks)で、接合引張強さとして母材強度とほぼ等しい40 MPaを得ている。彼らは $4\text{Al}_2\text{O}_3 + 3\text{Mg} \rightarrow 3\text{MgAl}_2\text{O}_4 + 2\text{Al}$ 反応により生成したと思われる MgAl_2O_4 のほかにMgOを確認しており、このMgによる Al_2O_3 の還元反応が母材アルミニウム合金同士の結合を促進したものと結論している。このほか、超高真空でのアルミニウム合金同士の圧接についても報告されている^{9), 10)}。

これまでの報告から、アルミニウム合金同士を接合するためには、表面酸化皮膜 Al_2O_3 を破壊して基地同士の接触を図ること、そのためには表面にワイヤブラシ掛けその他の表面処理を施すか、またはマグネシウムを添加することが有効であることがわかる。

本実験では、酸化皮膜の破壊のために試料表面に特別な処理を施さずに、アルミニウム中へのすず添加を採用し、さらにすずとマグネシウムの複合添加を試みた。その結果、大気中の処理でもAl-0.5Sn-1.0Mg合金同士の接合においては良好な結果を得ることができたので報告する。

2. 実験方法

使用したアルミニウム合金は前報¹⁾と同じアルミニウム、Al-0.5Sn^{*1}、Al-0.5Sn-1.0Mgを用いた。アルミニウムは99.99%、すずおよびマグネシウムは99.9%を使用した。アルミニウム合金は大気中で溶解し、塩化亜鉛で脱ガスの後 $\phi 40$ mmの金型に鋳造した。これらの試料に数回の中間焼きなましを加えて5 mmまで冷間圧延したのち、773 Kで86.4 ksの焼きなましを施した。この試料から20 mm×10 mm×5 mmの大きさのものを切出し、研磨紙で#800まで磨き接合試料とした。

接合の組み合わせはAlとAl対(以降この対をAl/Alと表示し、他の対も同様に表示する)、Al/Al-0.5Sn、Al/Al-0.5Sn-1.0Mg、Al-0.5Sn/Al-0.5SnおよびAl-0.5Sn-1.0Mg/Al-0.5Sn-1.0Mgの5種類とした。

アルミニウム合金とも接合処理前にエタノール中で

0.6 ksの超音波洗浄を施し、接合面を10 mm×20 mmの面とした。拡散接合処理は前報¹⁾と同じ装置を用い、大気中で行った。処理条件として、処理時間1.8 ks、3.6 ks、7.2 ks、圧力1.0 MPa、2.0 MPa、4.0 MPa、処理温度573 K、673 K、773 K、873 Kを選択した。なおAl/Al-0.5SnおよびAl/Al-0.5Sn-1.0Mgについては圧力4 MPaについてのみ実験を行った。試料部はシリコニット炉を用いて室温から加熱した。いずれの場合も設定処理温度以下100 Kまでは約0.6 ksで急加熱され、残りの100 Kの加熱には約1.2 ks要した。処理時間としては加熱開始から冷却開始までの時間で示した。

接合処理後の各合金における縮み変位の最大値(873 K、4 MPa、7.2 ksの時の縮み量)は、アルミニウムとAl-0.5Sn合金で差なく約60%、そしてAl-0.5Sn-1.0Mgで約50%であった。

接合後、継手を接合面に垂直に高速度カッターで二分割し、一方を組織観察および接合面近傍の組成分析用試料とし、他方をせん断強度試験用試料とした。組織観察は1 μm のダイヤモンド粉末研磨剤を用いてパフ研磨した後、電解研磨、電解腐食を施してから光学顕微鏡により行った。せん断試験は万能引張試験器(島津RES-10)を用い、前報で使用した自家製の治具¹⁾に試料を固定して、クロスヘッド速度0.01 mm/sで行った。せん断試験後破面についてX線回折(JDX-11PA)を行った。

3. 実験結果および考察

接合前のアルミニウム合金の組織は数100 μm の結晶粒を示し、その中に大きさ5~10 μm のすず粒が粒内および粒界上に点在していた。またマグネシウムについてもすず粒に付随して集積点に在っていた。処理前の光学顕微鏡組織およびEPMAによる元素分析結果をFig. 1に示した。

最初に接合に及ぼす試料表面粗さの影響について述べる。他の対より良好な結果が得られると思われるAl-0.5Sn-1.0Mg/Al-0.5Sn-1.0Mgについて、端面に①研磨紙(#800)仕上げ、②研磨紙(#800)の後の3 μm のダイヤモンド研磨粉によるパフ研磨仕上げ、または③研磨紙(#800)の後の電解研磨(りん酸、硫酸、クロム酸溶液)仕上げを施した。これらの対を圧力4 MPa、温度873 Kで接合し(時間は3.6 ks)、継手のせん断破壊強度を調べた。ここで、継手のせん断破壊強度がアルミニウム合金母材のせん断破壊強度55 MPa¹⁾と等しいとき、完全な接合と定義する。その結果、②および③ではほぼ完全な接合(この接合状態についてFig. 5およびFig. 6の後に説明)が得られ、①ではアルミニウム合金の母材せん断破壊強度55 MPaの約7割にあたる40 MPa強のせん断強度が得られた。今回はより工学的な観点か

*1 試料組成はmass%で統一した。

Fig. 1 Optical micrographs and characteristic X-ray images of specimens before the treatment.

ら、①の研磨紙（#800）仕上げについて調べた結果を報告する。表面仕上げと接合強度の関係についてはおって報告する予定である。

次に、接合結果について簡単に触れておく。全般的な傾向として圧力および接合温度が高くなるほど、また処理時間が長くなるほど良好な接合が得られた。しかし Al/Al はすべての実験条件で接合しなかった。

次に、各接合継手の界面近傍の元素分布に及ぼす圧力の影響を873 K-7.2 ks 処理材について調べた。また処理時間の影響を873 K-2 MPa 処理材について調べた。

圧力の影響の代表例として、Al-0.5Sn-1.0Mg/Al-0.5Sn-1.0Mg における $\text{SnL}\alpha$ および $\text{MgK}\alpha$ の X 線像を Fig. 2 に示した。この結果より、いずれの試料でも接合界面にすずの濃縮およびそれに対応したマグネシウムの濃縮が認められるが、濃縮量の圧力依存性はほとんど認められない。Al-0.5Sn/Al-0.5Sn でもすずの分布についても同様の結果が得られた。

また、いずれの接合対 (Al-0.5Sn/Al-0.5Sn, Al-0.5Sn-1.0Mg/Al-0.5Sn-1.0Mg, Al/Al-0.5Sn, Al/Al-0.5Sn-1.0Mg) においても、界面へのすずあるいはすずおよびマグネシウムの濃縮は認められたが、濃縮量や分布の明確な処理時間依存性は認められなかった。ただし Al/Al-0.5Sn および Al/Al-0.5Sn-1.0Mg では界面への Sn および Mg の濃縮量は Al-0.5Sn/Al-0.5Sn あるいは Al-0.5Sn-1.0Mg/Al-0.5Sn-1.0Mg の濃縮量に比較してかなり少なかった。

以上のようにすずあるいはすずおよびマグネシウムの分布が圧力および処理時間の影響をあまり受けなかったのは、いずれの処理においても試料内部から界面へのすず（すずおよびマグネシウム）の供給と界面に沿ってのすず（すずおよびマグネシウム）の試料外部への流出が同時に進行しているためと思われる。

Fig. 3 には圧力 4 MPa、温度873 K で3.6 ks 接合処理した Al-0.5Sn-1.0Mg/Al-0.5Sn-0.1Mg 継手のせん断破

Fig. 2 Characteristic X-ray images of Al-0.5Sn-1.0Mg/Al-0.5Sn-1.0Mg joints bonded for 7.2 ks at 873 K under the pressure of 1 MPa, 2 MPa and 4 MPa.

Fig. 5 Relation between shear fracture strengths, bonding temperatures and loaded pressures for Al-0.5Sn/Al-0.5Sn and Al-0.5Sn-1.0Mg/Al-0.5Sn-1.0Mg joints welded for 7.2 ks.

理材ではほぼ完全な接合を示している。

Fig. 6 に Al-0.5Sn/Al-0.5Sn および Al-0.5Sn-1.0Mg/Al-0.5Sn-1.0Mg について圧力 4 MPa の時のせん断破壊強度と処理温度 (573 K~873 K) および処理時間 (1.8 ks, 3.6 ks, 7.2 ks) との関係を示した (ここでも強度零は未接合を表す)。この結果から処理時間が長くなるにつれて、また処理温度が高くなるにつれて接合強度が高くなる事が分かる。さらに Mg 添加材は無添加材より、良好な接合結果を示している。Al-0.5Sn/Al-0.5Sn では873 K-7.2 ks 処理でこの系最大の約40 MPa の強度を示している。一方 Al-0.5Sn-1.0Mg/Al-0.5Sn-1.0Mg は、処理時間7.2 ks, 処理温度873 K および773 K でほぼ完全な接合を示し、1.8 ks と短時間の処理でも873 K で約40 MPa とかなり良好な接合を示している。

Fig. 5 および Fig. 6 の Al-0.5Sn-1.0Mg/Al-0.5Sn-1.0Mg において、せん断破壊強度50 MPa と示した結果について説明を補足する。これらアルミニウム合金同士の接合対のせん断引張試験においては、両片とも軟金属のため、せん断強度が50 MPa に近づくと接合したまま1 mm 近い不均一な変形を示し、そのため引張に加えて曲げ成分が入ってしまい正確なせん断引張試験が不可能になった。このためこの時点でせん断試験を中止した。しかし、この50 MPa という強度は Al-0.5Sn-1.0Mg のせん断破壊強度約55 MPa¹⁾に近いこと、さらに試験中の対の大きな変形を示したことから、これらの対について

Fig. 6 Relation between shear fracture strengths, bonding temperatures and bonding time for Al-0.5Sn/Al-0.5Sn and Al-0.5Sn-1.0Mg/Al-0.5Sn-1.0Mg joints welded under the pressure of 4 MPa.

Fig. 7 Relation between shear fracture strengths, bonding temperatures and bonding time for Al/Al-0.5Sn and Al/Al-0.5Sn-1.0Mg joints welded under the pressure of 4 MPa.

はほぼ完全な接合とみなした。

Fig. 7 に Al/Al-0.5Sn および Al/Al-0.5Sn-1.0Mg について圧力 4 MPa の時のせん断破壊強度と処理温度および処理時間との関係を示す。両継手ともほとんど同じ接合強度を示しているが、最大でも約20 MPa にとどま

り Al-0.5Sn/Al-0.5Sn のそれよりはるかに劣る。ところで圧力 4 MPa, 温度 873 K で 14.4 ks の処理を行った場合には Mg 添加効果が認められ, 接合強度は前者の対では約 28 MPa, 後者の対では約 36 MPa となった。このように拡散対の一片がアルミニウムだと, マグネシウム添加効果が短時間処理では現れない。この原因の解明は今後の課題としたい。

なお Fig. 5~Fig. 7 において, 継手の破断はすべて接合界面で起きた。また強度のばらつきは約 $\pm 5\%$ である。

Al/Al 対では接合しないこと, Al/Al-0.5Sn および Al/Al-0.5Sn-1.0Mg 対よりも Al-0.5Sn/Al-0.5Sn 対で良好な接合が得られたと, しかも最も良好な接合は Al-0.5Sn-1.0Mg/Al-0.5Sn-1.0Mg 対で得られたことより, アルミニウム合金の拡散接合に対するアルミニウム中への Sn 添加の有用性が確認できた。この原因として, すでに報告^{1),2)}したとおり, Sn 添加による表面酸化皮膜の破壊効果が考えられる。またずっとマグネシウムの複合添加効果の原因として, 従来の報告^{1),2)}と同様にすずの酸化皮膜の破壊効果に加えて, すずとともに接合界面に運ばれたマグネシウムによる Al_2O_3 酸化皮膜の還元作用が考えられる。

4. 結 言

大気中におけるアルミニウム合金同士の拡散接合に及ぼすすず添加およびすずとマグネシウムの複合添加効果を調べ以下の結果を得た。

(1) 純アルミニウム同士の対は接合しなかった。この結果からすすず添加の有用性が確認でき, その原因はすずによるアルミニウム合金試料表面の酸化皮膜破壊にある

と考えた。

(2) Al-0.5Sn-1.0Mg/Al-0.5Sn-1.0Mg 対は Al-0.5Sn/Al-0.5Sn 対よりも高い接合強度を示した。前者の対では処理条件によっては, ほぼ完全な接合も得られた。この結果からすすずとマグネシウム複合添加の有用性が確認できた。この原因としてすすず添加効果に加えて, マグネシウムによる Al_2O_3 酸化皮膜の破壊効果を考えた。

(3) 以上の結果から, Al-Sn 合金の大気中での接合の可能性が確認できた。

終わりに, 本実験に協力頂いた小川宏二氏に深く感謝する。

参 考 文 献

- 1) 伊藤 勲, 乙黒靖男, 長谷川圭司, 山上哲也, 松岡秀範: 軽金属, **41** (1991), 245.
- 2) 伊藤 勲, 乙黒靖男, 長谷川圭司: 軽金属, **41** (1991), 590.
- 3) 橋本達哉, 大橋 修: 溶接学会誌, **40** (1971), 632.
- 4) 田沼欣司, 橋本達也: 溶接学会誌, **40** (1971), 875.
- 5) 大橋 修, 橋本達也: 溶接学会誌, **49** (1980), 847.
- 6) 宮崎邦夫, 玉村建雄, 落合和泉: 溶接学会論文集, **7** (1989), 175.
- 7) 圓城敏男, 池内健二, 古川 潔: 軽金属, **35** (1985), 388.
- 8) 圓城敏男: 軽金属, **39** (1989), 58.
- 9) 船久保熙康, 赤池正剛: 日本金属学会誌, **46** (1982), 935.
- 10) 高橋 裕, 高木秀樹, 須賀唯知: 日本金属学会誌, **55** (1991), 1002.