研究論文

大気中における Al-Sn 系合金の拡散接合に
及ぼす接合表面あらさの影響

伊藤 勲*・乙黒 靖男*・佐俣 宏明**

Effect of surface roughness on diffusion welding
of Al-Sn alloys in the atmosphere

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

The effect of surface roughness on the diffusion weldability of Al, Al-Sn and Al-Sn-Mg alloys in the atmosphere and in a vacuum (about 0.1 Pa) have been investigated. Welding surfaces were polished either with #800 grinding paper, or with 3 μm diamond powder, or electrolytically. The welding was carried out at 773 K for 3.6 ks under a pressure of 2 MPa. Results obtained are summarized as follows:

- 1) Magnesium reduces a part of the oxidation film at the interface during welding, being contained in liquid tin phase. The degree of reduction is high and the best weldability is obtained when Mg distributes homogeneously at the welding interface.
- 2) Grinding of surface with 3 μm diamond powder is best for the homogeneous distribution of Mg.
- 3) Weldability is better in the atmosphere than in the vacuum. This behavior is prominent in Al-0.5Sn-1Mg/Al-0.5Sn-1Mg couple polished with diamond powder.
- 4) When the couple mentioned above is welded under the applied experimental condition where the temperature is much lower than melting point of Al, nearly complete weldability is obtained even in the atmosphere.

Keywords: atmospheric diffusion welding, surface roughness, Al-Sn Alloy, Al-Sn-Mg alloy, shear fracture strength

(Received April 21, 1992)

1. 緒 言

前報¹⁾で、従来困難とされてきた大気中でのアルミニウム合金の拡散接合が可能であることを示した。この際、アルミニウム中に複合添加したすずとマグネシウムが有効な役割を果たした。すなわち、接合時の加熱によりアルミニウム中に点在するすずおよびすずが付随して存在するマグネシウムは溶解し、圧力により接合界面に押出され、界面の気密性を確保しながら、同時に酸化皮膜を破壊する。溶出したマグネシウムは、さらに接合面の酸化皮膜を還元破壊する。以上の酸化皮膜の破壊作用および界面の気密性の向上により、大気中でのアルミニウム合金の拡散接合が可能となった。その際、工学的な立

場から、主として接合試料表面あらさを研磨紙#800に絞っているが、3 μm のダイヤモンド研磨粉による表面仕上げを施した接合継手は、さらに良好な接合結果が得られることを報告している。

拡散接合に及ぼす表面あらさの影響について、大橋等は、銅を用いて報告している²⁾。圓城らは³⁾、銅、チタンおよびアルミニウムを用いて以下のように報告している。すなわち、「接合表面を粗くするとともに、接合表面の凹凸の変形に伴う酸化皮膜の破壊が促進され、金属的接触部が増加するが、一方では接合界面におけるボイドの粗大化を招く。したがって、接合表面粗さは、これら2つの効果の重要性を勘案して決めるべきである。」としている。次に、表面あらさにも関係して、アルミニ

* 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)。

ウムの酸化皮膜の破壊および表面の活性化を目的とした各種表面処理, たとえば, 大橋らのグロー放電⁴⁾あるいは圓城らのワイヤブラシ仕上げや電解研磨^{5), 6)}と接合性の関連性が報告されている。また, 強固な酸化皮膜を有するアルミニウムの拡散接合では, 接合温度を融点 (933 K) 直下の非常に高い温度にするか, 接合部に大きい塑性変形を与えないと, 高い接合強さは得られないとも報告されている^{5), 7)}。以上の報告は, すべて真空中での接合処理に関するものであり, アルミニウム合金の大気中での拡散接合は大変難しいものとされてきた。

そこで, 今回はこの接合性に及ぼす接合表面あらかさの影響について調べるとともに, 接合雰囲気の影響についても検討を加え, 真空中と大気中の処理の比較を行った。

2. 実験方法

使用したアルミニウム合金は, 前報¹⁾と同じ Al, Al-0.5Sn^{*1}, Al-0.5Sn-1Mg を用いた。Al は 99.99%, Sn および Mg 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。これらの試料は数回の中間焼なましを加えて 5 mm まで冷間圧延したのち, 773 K で 86.4 ks の焼きなましを行った。この試料から 20 mm $\times$ 10 mm $\times$ 5 mm の大きさの試片を切出し, 以下の 3 種類の研磨を施した。①前報¹⁾の #800 研磨紙の仕上げ (以下 #800 で表す)。② 3 μ m ダイヤモンド研磨粉によるバフ仕上げ (以下 D で表す)。③電解研磨による仕上げ (以下 E.P で表す)。電解研磨にはりん酸 (820 ml), 硫酸 (135 ml), クロム酸 (160 g), 水 (100 ml) の混合液を使用した。

Fig. 1 には, 触針式粗さ測定器 (K.K 小坂研究所 SE-30H) で測定した研磨方法と粗さの関係を示した。平均粗さ (Ra) は, #800 研磨で約 0.2 μ m, E.P 研磨は研磨時間など条件のばらつきによって 0.18~0.25 μ m と幅を持つが約 0.2 μ m, そして D 研磨が一番滑らかで約 0.02 μ m を示した。

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-1Mg, Al-0.5Sn/Al-0.5Sn および Al-0.5Sn-1Mg/Al-0.5Sn-1Mg の 5 種類とした。一つの継手については同じ研磨仕上げ同士の試片を組合わせた。

各接合試片を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た。接合面は 10 mm $\times$ 20 mm の面とした。拡散接合処理は既報^{1), 8)}と同じ装置を用い, 主に大気中で, 一部は約 0.1 Pa の真空中で行った。処理条件

Fig. 1 Relation between surface roughness and methods of surface grinding, such as #800 paper polishing, buff polishing with 3 μ m diamond powder, and electrolytic polishing.

は, 前報¹⁾の大気中の接合結果を参考にして, 処理時間 3.6 ks, 圧力 2 MPa, 処理温度 773 K にほぼ統一した。試料は, シリコニット炉を用い, 773 K の設定温度まで 0.6 ks で加熱した。処理時間としては, 加熱開始から冷却開始までの時間とした。処理後の継手の縮み変位は, Al/Al, Al-0.5Sn/Al-0.5Sn および Al-0.5Sn-1Mg/Al-0.5Sn-1Mg でそれぞれ約 20%, 17% および 5% であった。

接合後, 継手を高速度カッターにより接合面に垂直に二分割し, 一方を組織観察および EPMA による接合面近傍の組成分析用試料, 他方をせん断強度試験用試料とした。組織観察は, 1 μ m のダイヤモンド粉末研磨剤を用いてバフ研磨した後, 電解研磨, 電解腐食を施して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, 既報⁸⁾で使用した自家製の治具に試料を固定して, クロスヘッド速度 0.01 mm/s で行った。

3. 実験結果および考察

接合前のアルミニウム合金の結晶粒は, 前報¹⁾に示したように数 100 μ m の大きさからなり, それら粒内さらに粒界にも大きさ 5~10 μ m の Sn 粒が点在していた。また, マグネシウムについても Sn 粒に付随して点在していた。

Al/Al はすべての実験条件で接合しなかった。Fig. 2 に, 773 K-2 MPa-3.6 ks 接合処理後の接合界面近傍の組織に及ぼす粗さおよび接合雰囲気 (大気中と真空中) の影響の代表例として, Al-0.5Sn/Al-0.5Sn および Al-0.5Sn-1Mg/Al-0.5Sn-1Mg についての光学顕微鏡組織

*1 試料組成は mass% で統一した。

Fig. 2 Optical micrographs of Al-0.5Sn/Al-0.5Sn and Al-0.5Sn-1Mg/Al-0.5Sn-1Mg joints bonded for 3.6 ks at 773 K under a pressure of 2 MPa in the air and in a vacuum. The notation for surface finishing is the same as Fig. 1.

を示した。いずれも写真中央部の黒く見える線が、接合界面に対応している。この界面部分にわずあるいはわずとマグネシウムが集積しており (Fig. 5 および Fig. 6 参照), その量および状態が線の太さや連続性としてあらわれている。この結果において,

(1) 同じ粗さおよび同じ雰囲気で両継手の線を比較すると (E.P 研磨については真空中処理は行っていない), Al-0.5Sn/Al-0.5Sn より Al-0.5Sn-1Mg/Al-0.5Sn-1Mg の方が線は細く連続性を示している。

(2) 同一処理条件で粗さの影響に着目すると, #800 研磨, D 研磨そして E.P 研磨と移るにつれて, 線は細くなっている。

(3) 雰囲気の影響に着目すると, 真空中の方が大気中処理より線が細い。

以上の傾向は, Fig. 5 に示す元素分布とよく対応している。

まず, (1)の継手による影響について述べると, 接合界面に溶け出したすず (融点505 K) よりマグネシウムを含むすずの方が, Sn と Mg_2Sn ¹⁾ の共晶反応 (融点473 K)⁹⁾により, 低い融点を示し, 湯流れがよりよくなることが考えられる。さらに, 前述のマグネシウムは, 接合試料表面の酸化皮膜アルミナを還元破壊し¹⁾, 接合界面の広がりに対する抵抗を小さくすることも考えられる。以上, 二つの理由により, Al-0.5Sn/Al-0.5Sn に比較して Al-0.5Sn-1Mg/Al-0.5Sn-1Mg の方が, 界面に残留したすずとマグネシウムが少量で均一 (線が細く, 連続) になったものと思われる。

次に, (2)の粗さの影響について述べる。接合面が滑らかなほど, 熔融 Sn (すずとマグネシウム) は界面に広

がりやすいであろう。このことから, #800研磨試料より D 研磨試料の接合部の Sn (すずとマグネシウム) 量が少なく, また連続性を有したものと考えられる。ところで #800 研磨と E.P 研磨の平均粗さは, ともに約 $0.2\mu m$ を示していた。しかし, E.P 研磨試料の接合部の Sn (すずとマグネシウム) 量は, D 研磨より少なく, またところどころで途切れている。これについて, 滑らかさのもう一つの重要な要素である凹凸の周期は, E.P 研磨面では他の二種類の研磨面より大きく (Fig. 1 参照), そのため E.P 研磨面は他の研磨面より輝いている。これが, 上記の原因と考えられる。

最後に, (3)の接合雰囲気の影響について述べる。大気中の接合においては, 熔融 Sn (すずとマグネシウム) が界面の隙間を満たすまでは, 大気に触れた接合面の酸化は進み, 熔融 Sn (すずとマグネシウム) の酸化部分への広がりが, 悪くなることが考えられる。このため, 大気中での接合界面の Sn (すずとマグネシウム) は不連続に, そして塊状をなすものと思われる。

Fig. 3 に, Al-0.5Sn/Al-0.5Sn と Al-0.5Sn-1Mg/Al-0.5Sn-1Mg の 3.6 ks-2MPa 処理について, 大気中で処理した継手のせん断破壊強度に及ぼす処理温度と試料研磨方法の影響を示した。この強度の値は, 実験誤差などから約 $\pm 5\%$ のばらつきを含む。また, 573 K 処理は, 未接合を示している。この結果より, 両継手に共通して, 処理温度が高いほどせん断破壊強度が高く, さらに, 研磨の強度に及ぼす影響については, #800 研磨と E.P 研磨で大差なく, D 研磨が良好な結果を示している。また, 両継手間の差を見ると, Al-0.5Sn-1Mg/Al-0.5Sn-1Mg のほうが高い破壊強度を示し, さらに, 各

Fig. 3 Relation between shear fracture strengths, bonding temperatures and surface polishing methods for Al-0.5Sn/Al-0.5Sn and Al-0.5Sn-1Mg/Al-0.5Sn-1Mg joints bonded for 3.6 ks under a pressure of 2 MPa in the air.

種研磨効果の差も Al-0.5Sn-1Mg/Al-0.5Sn-1Mg で顕著である。D 研磨で 55 MPa の強度^{*2}を有する継手の破壊は、他の継手と同様に接合界面で生じたが、ときには界面近傍のアルミニウム合金母材で生じた。

まず、D 研磨継手が最も高い強度を示した結果に考察を加える。界面への溶融すずの浸出に伴う酸化皮膜の破壊の程度には、研磨方法による差は無視できるものと考えられる。D 研磨の場合、継手の両試片の接触点、他の研磨に比較して、一番多いであろう。そのため、この接触点部分の塑性変形による酸化皮膜の破壊効果が重畳されたため、D 研磨による高い強度を示したものと考えられる。また、マグネシウム添加した継手が高い強度を示した原因は、マグネシウムによる酸化皮膜の還元反応が加味されたためと考えられる。また、マグネシウムは界面に広がったほうが、界面での酸化皮膜破壊の可能性が高くなる。しかし、E.P 研磨の場合には、マグネシウムは界面に広がりやすく、界面から外への流失が考えられる (Fig. 2 参照)。このため、E.P 継手が D 研磨継手より低い強度を示したものと思われる。

^{*2} この継手のせん断破壊強度として、55 MPa 以上の値を示す場合が多かった。しかし、Al-0.5Sn-1Mg の母材強度は約 55 MPa を得ている⁸⁾。したがって 55 MPa 以上の値には、試験の際の試料の変形による曲げ応力の影響が加算されたものと思われる。このため、Fig. 3 では 55 MPa の値に止めている。

Fig. 4 Relation between shear fracture strengths, polishing methods and bonding atmospheres for Al/Al, Al-0.5Sn/Al-0.5Sn (Sn/Sn), Al-0.5Sn-1Mg/Al-0.5Sn-1Mg (Mg/Mg), Al/Al-0.5Sn (Al/Sn) and Al/Al-0.5Sn-1Mg (Al/Mg) joints bonded at 773 K for 3.6 ks under a pressure of 2 MPa.

Fig. 4 に、大気中と真空中の雰囲気中で 773 K-3.6 ks-2 MPa 処理したものについて、D 研磨と #800 研磨継手の接合強度を示した。その結果、① Al/Al は接合せず、② すべて同一継手での比較において、大気中処理は、真空中処理より高い接合強度を示し、③ #800 研磨継手ではその差は小さく、D 研磨を施した Mg 添加試料を含む継手では、その差が顕著である。さらに、④ D 研磨継手は、接合雰囲気によらず、#800 継手より高い接合強度を示している。⑤ 各種継手の接合強度は、両雰囲気中でマグネシウム添加試料同士、Al/Al-0.5Sn-1Mg、すず添加試料同士、そして Al/Al-0.5Sn の順番に低くなる傾向を示している。

①の結果は、接合試料表面凹凸の塑性変形による酸化皮膜の破壊だけでは、アルミニウム同士の接合は不可能であることを示している。また、②および③、特に③の原因としては以下のように考えた。すなわち、真空中処理の場合には、界面に浸出した溶融すず (すずとマグネシウム) は、大気中処理と異なり、界面により広がりやすく、一部試料外への流失も考えられる。#800 研磨面より滑らかな D 研磨面では、その流失量も多い。その結果、Mg 添加に関係する継手で強度差が顕著にあらわれた。⑤の結果は、すずとマグネシウムの界面への溶出による酸化皮膜の破壊と、さらにそのマグネシウムによる酸化皮膜の還元反応から説明されよう。

Fig. 5 は、Al-0.5Sn-1Mg/Al-0.5Sn-1Mg 継手について Fig. 2 と同じ処理条件での継手断面の SEM 像とすず

Fig. 5 Scanning electron micrographs and characteristic X-ray images of Al-0.5Sn-1Mg/Al-0.5Sn-1Mg joints bonded under the same condition as Fig. 2.

とマグネシウムのX線像を示したものである。この結果、接合界面へのすずおよびマグネシウムの集積に対する試料研磨および接合雰囲気の影響は、Fig. 2の界面における黒い線の幅やその連続性に対応していることがわかる。#800研磨継手では、大気中および真空中処理にかかわらず、界面でのすずおよびマグネシウムの集積が顕著に認められる。しかし、その量は大気中処理のほうが多い。

なお、Al-0.5Sn/Al-0.5Snでは、#800研磨およびD研磨継手とも、処理雰囲気にかかわらず界面でのすずの集積がAl-0.5Sn-1Mg/Al-0.5Sn-1Mg以上に顕著に認められた。

以上の結果には、Fig. 2で述べた考察がそのまま適用できる。

Fig. 6に、継手のせん断破面のSEM観察および元素分布の結果を示す。試料としては、773 K-3.6 ks-2 MPa処理したAl-0.5Sn-1Mg/Al-0.5Sn-1Mgを代表例として選び、大気中処理における各種粗さの影響と、D研磨継手で真空中処理の影響を示した。この破面観察では、Fig. 5ですずおよびマグネシウムの集積が明確でなかった継手でも、これら元素が点在して集積していることがわかった。大気中のD研磨試料では、延性破

面特有のディンプルが観察され、良好な接合がなされたことを示唆している。このことは、せん断試験の結果と一致している。さらに、すずとマグネシウムの分布は対応しており、これらの元素はD研磨試料において、雰囲気にかかわらず大気中処理の#800研磨およびE.P研磨試料より均一に点在して分布している。この良好な元素分布の均一性が、良好な接合に対応しているものと考えられる。

これまでの結果から、良好な接合は、接合の強化に有効な添加元素Mgが、界面に均一に分散できるような接合面の粗さと雰囲気が与えられたとき、得られることが明らかになった。本実験では、D研磨試料の大気中処理がこの条件を満足するものであった。

ここで、従来の結果と本実験結果の比較検討を行う。

本実験においては、酸化皮膜の破壊作用として、これまで考えられてきた接合表面凹凸部の塑性変形による働き、さらにすず添加効果あるいはすずとマグネシウムの複合添加効果を考えた。

まず、本実験において、凹凸部の塑性変形だけが酸化皮膜の破壊に寄与した場合、その接合性の判定資料としてアルミニウム同士の未接合結果を考える。これより、本実験条件では、塑性変形だけの寄与では接合は不可能

Fig. 6 Scanning electron micrographs and characteristic X-ray images of the shear fracture surfaces of Al-0.5Sn-1Mg/Al-0.5Sn-1Mg joints bonded under the same condition as Fig. 2.

であることがわかる。

そこで、すず添加効果と粗さの関係について考察する。アルミニウム中のすずは、接合のさい圧力により界面に溶出し、その部分の酸化皮膜を破壊する。このため、すずの溶出部として接合面の凹凸による接触点を考えたとき、これまでの報告のように粗い表面での大きな塑性変形による皮膜の破壊^{3),5),7)}あるいは表面の活性化^{4),5)}を必要とせず、その部分の接合は進行する。接触点の密度は、本実験ではダイヤモンド研磨試料が最大と考えられ、接合強度の結果に対応している。以上の接合機構により、従来のアルミニウムの融点 (933 K) に近い処理温度^{5),7)}よりかなり低い773 Kで、さらに、これまでの真空中の処理^{3)~7)}に限定されず、大気中での接合が可能となった。

次に、すずとマグネシウムの複合添加効果について考察する。この場合には、前述のすず添加による酸化皮膜の破壊と、そのあとに続くマグネシウムの還元作用による皮膜破壊の重畳効果が期待される。このため、接合性については基本的にはすずのみ添加と同様に、ダイヤモンド研磨仕上げが最良と考えられる。

なお、マグネシウム添加の効果については、圓城は¹⁰⁾マグネシウムを含む6063アルミニウム合金の拡散接合に

において、マグネシウムは酸化皮膜を還元し、接合性の向上に有用であることを報告している。この場合、界面へのマグネシウムの補給量は、アルミニウム合金中の体拡散によるもので、本実験の溶融すずによって界面に運ばれる量と比較して著しく少ない。本実験では、接合処理後の界面におけるマグネシウムの集積がこのことを裏付けている。

本実験のマグネシウム添加継手の接合強度は、界面に溶出した多量のマグネシウムの皮膜破壊効果により、すず単独添加継手の接合強度を大きく超える値を示した。ただし、接合性を大幅に向上させるためには、マグネシウムが界面により広く均一に分布し、さらに外部に逃げることなく界面に留まる必要がある。界面でのマグネシウムの広がり、滑らかで粗さの小さい表面で、そして真空中の処理の方が良い。しかし、より滑らかな表面を有する電解研磨の継手では大気中の処理でも、またより小さい粗さのダイヤモンド研磨継手では真空中処理で、マグネシウムは溶融すずとともに界面を伝わって外部に逃散してしまい、高い接合強度は得られなかった。本実験では、ダイヤモンド研磨試料を大気中で処理した場合、上記の必要条件を満足し、同時にすず添加効果を最大に発揮する条件とも一致し、良好な接合継手が得られ

た。以上の理由で、わずとマグネシウムの複合添加継手では、わず単独添加継手より、大気中と真空中処理における接合強度の差が大きく現れた。

4. 結 言

Al-Sn 合金の拡散接合に及ぼす接合面粗さ（研磨紙 #800 研磨，3 μm ダイヤモンド粉研磨，電解研磨）の影響について調べ，以下の結果が得られた。

(1) わずと複合添加されたマグネシウムは，接合時に圧力によりわずとともに界面に溶け出し，接合面の酸化皮膜を還元して，接合性を良好にする。そのため，マグネシウムが界面に均一に分布すると，その効果は大きい。

(2) マグネシウムの均一分布に対して，ダイヤモンド粉研磨が最適であった。

(3) 高い接合強度は，真空中より大気中において得られた。この現象は，ダイヤモンド粉研磨した Al-0.5Sn-1Mg/Al-0.5Sn-1Mg で顕著であった。

(4) ダイヤモンド粉研磨した Al-0.5Sn-1Mg/Al-0.5

Sn-1Mg については，大気中 3.6 ks-2 MPa の処理で，アルミニウムの融点よりかなり低い 773 K で，大変良好な接合が得られた。

参 考 文 献

- 1) 伊藤 勲，乙黒靖男，佐俣宏明：軽金属，**42** (1992)，383.
- 2) 大橋 修，橋本達哉：溶接学会誌，**45** (1976)，485.
- 3) 圓城敏男，池内健二，秋川尚史：溶接学会誌，**51** (1982)，1028.
- 4) 大橋 修，橋本達哉：溶接学会誌，**45** (1976)，76.
- 5) 圓城敏男，池内健二，古川 潔：軽金属，**35** (1985)，388.
- 6) 圓城敏男，池内健二：高温学会誌，**14** (1988)，36.
- 7) G. E. Metzger: Weld. J., **57** (1978)，37.
- 8) 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.
- 9) M. Hansen and K. Anderko: Constitution of Binary Alloys, McGraw-Hill, (1958)，919.
- 10) 圓城敏男：軽金属，**39** (1989)，58.