アルミニウムでろう接したチタン接合継手の引張強さ[†]

竹下 晋正 松井 一彦^{††}

福井大学工学部機械工学科

J. Japan Inst. Metals, Vol. 57, No. 11 (1993), pp. 1339-1345

Tensile Strength of Titanium Joint Brazed with Aluminum

Kunimasa Takeshita and Kazuhiko Matsui

Department of Mechanical Engineering, Faculty of Engineering, Fukui University, Fukui

Titanium was brazed with aluminum by varying the filler metal thickness and brazing time in order to change the microstructure of the joint. The layer of intermetallic compound Al_3Ti , the thickness of which increases proportionately with the increase in square root of brazing time, is formed at the interface between filler and base metals.

The aluminum layer thickness of 25 μm affords the joint of highest tensile strength, the value of which is 250~280 MPa. The growth of Al_3Ti layer thicker than 10 μm causes the drop in tensile strength of joint.

A finite element analysis considering various fracture criteria is also carried out. The experimental results is discussed in comparison with the results of calculation.

(Received June 2, 1993)

Keywords: brazing, titanium, joint strength, tensile strength, microstructure, finite element analysis

I. 緒 言

ろう接継手の引張強さは、接合間隙や接合界面部に生成する化合物相の成長度合に強く影響を受ける。例えば、継手の引張強さは一般に接合間隙が0.05~0.3 mm程度のとき最大となることが報告されている⁽¹⁾⁽²⁾。また銅をSn-Pb合金でろう接した継手の引張強さは、ろう接温度が523~533 Kでは190 MPaであるが623 Kでは100 MPaまで低下し、その原因は接合界面部に生成する金属間化合物 η 相が発達しすぎるとされている⁽³⁾。接合間隙が狭くなることによって継手の引張強さが増大する理由については、低強度部であるろう接材の塑性拘束効果によって説明されている⁽⁴⁾。しかしながら低強度部であるろう接材の厚さが非常に薄くなった場合に何故継手の引張強さが逆に低下するのか、あるいは継手の引張強さが最大となるろう接材の厚さはどのようにして決まるか、さらには金属間化合物の成長度合は継手の引張強さにどのような形で影響するのかという点については必ずしも明確にされていない。

そこで本研究ではこのような現状をふまえ、アルミニウムによるチタンのろう接を行い、ろう接部の組織が継手の引張強さに及ぼす影響を明らかにすることを試みる。なお本研究の対象として、ろう接材をアルミニウム、母材をチタンとした理由は、接合界面部に生成するチタンアルミナイドの力学的特性が比較的良く調べられているため、後述する解析を行う上での便

宜を考えてである。

II. 実験方法

ろう接材には純度99.5%、厚さ5, 10, 50, 100 μm のアルミニウム箔を、母材には純度99.3%、厚さ1 mmのチタン板を使用した。

Fig. 1にろう接継手の作製手順と、引張試験に用いたろう接継手の形状および寸法を示す。まず放電加工機を用いて切り出した母材チタンの接合面に機械的研磨を施した後、アセトンおよびエタノールで脱脂し、さらに腐食液(HNO_3 : 10 ml, HF : 5 ml, H_2O : 40 ml)で化学研磨した後、蒸留水で洗浄した。次に脱脂、洗浄を施したアルミニウム箔を母材チタンの接合面どうし突き合わせて挟み込み、チタンの突起部分を利用して治具で固定した。ろう接は真空中($\sim 10^{-2}$ Pa)で行った。ろう接温度は953 Kとし、保持時間(ろう接時間)は1, 60, 600, 1800, 2700, 3600 sとした。ろう接温度までの昇温速度は1 K/sとし、ろう接後は真空炉中で冷却した。

ろう接後の継手は突起部分を放電加工機で切断し、切断面を#1500までのエメリー紙で研磨を施し、引張試験のための試験片とした。引張試験にはインストロン型試験機を用い、試験速度は 10^{-3} mm/sとした。切断した突起部分は切断面を機械的に研磨した後、接合部の組織観察、微小焦点X線回折用の試料とした。なお組織観察の際には観察面を硫酸水(H_2SO_4 : 20 ml, H_2O : 80 ml)で腐食した。接合部の組織観察および引張試験後の破断面観察には走査型電子顕微鏡(SEM)を用い、同

[†] 1992年10月日本金属学会秋期大会において発表

^{††} 福井大学大学院生、現在：新日本製鉄(株)津製鉄所

Fig. 1 Brazing procedure and specimen used for the tension test.

時にエネルギー分散 X 線分光器 (EDX) で観察面でのチタン濃度分布も調べた。接合部に存在する結晶相の同定は微小焦点 X 線回折 ($\text{CuK}\alpha$ 線, コリメータ径 $100\ \mu\text{m}$) による回折図をもとに行った。

Ⅲ. 解析方法

ろう接継手に引張荷重が作用した際の接合部の応力分布を検討するために、有限要素法による解析を行った。用いたプログラムは直列法のユニット分割法による 2 次元弾塑性解析プログラム⁽⁵⁾である。

Fig. 2(a) に解析で考慮したろう接継手の部分 (斜線部) を示す。**Fig. 2(b)** に示した直方体は **Fig. 2(a)** の斜線部である。ろう接継手試験片の板幅、板厚は **Fig. 1** に示すように 15, 1 mm と板厚に比べて十分に板幅が大きい。板幅が板厚の 10 倍もあれば板幅方向の塑性変形が拘束され平面ひずみ状態として近似しうること⁽⁶⁾と、上下左右の対称性を考慮して、**Fig. 2(b)** に示すようにこの直方体中央縦断面の四分の一の領域 (斜線部) で解析を行った。**Fig. 3** に本解析で用いたメッシュを示す。要素には x 方向に 3 節点を有する 6 節点アイソパラメトリック四辺形要素⁽⁷⁾を用い、総要素数 600 個で計算した。

接合部には後述するようにチタン、金属間化合物 Al_3Ti およびアルミニウムが層状に存在する。解析に用いたこれらの材料定数を **Table 1** に示す。ここで E , σ_y , ν はヤング率, 降伏応力, ポアソン比である。 C 値, n 値は、各々の塑性域でのひずみ硬化特性を $\bar{\epsilon}_p = C(\bar{\sigma}/\sigma_y)^n$ の形で近似させたときの定数である。ここで $\bar{\epsilon}_p$, $\bar{\sigma}$ は相当塑性ひずみ, 相当応力である。なおチ

Fig. 2 Segment of tension test specimen considered (a) and illustration of quarter model adopted (b) in FEM analysis.

タンの材料定数はろう接継手試験片と同一形状の試験片で引張試験を行い、得られた応力-ひずみ曲線から求めた。アルミニウムの材料定数は文献⁽⁸⁾⁻⁽¹⁰⁾から引用した。 Al_3Ti のヤング率とポアソン比は Reuss の方法を用いて弾性ステイフネス定数から計算によって求めた⁽¹¹⁾。 Al_3Ti の降伏応力については不明であるが硬さは既知であることから、他の Ti-Al 系金属間化合物の硬さと降伏応力の関係⁽¹²⁾をもとに、この値を推定した。また C 値, n 値の値は $\text{Ti}_{25}\text{Cr}_8\text{Al}_{67}$ 焼鈍材料の圧縮応力-ひずみ曲線⁽¹²⁾から求めた値で代用した。

Table 1 Mechanical properties used for FEM analysis.

	C value	n value	Young's modulus E (GPa)	Yield strength σ_y (MPa)	Poisson's ratio ν
Al	0.002	3.4	71	19.5	0.33
Al_3Ti	0.002	10	214	730	0.16
Ti	0.002	11	105	265	0.30

Fig. 3 Mesh division for FEM analysis.

Fig. 4 SEM micrograph of a brazed joint(a) and corresponding Ti element distribution inspected by EDX(b).

IV. 結果および考察

1. 接合部の組織

Fig. 4 に接合部の SEM 写真およびチタン濃度分布像を示す。母材チタンとろう接材であるアルミニウムの接合界面部に化合物の生成が認められる。X 線回折結果からこの化合物は、 Al_3Ti と同定された。 Al_3Ti は Fig. 4 に見られるように不規則な形ではあるが、巨視的にはアルミニウムとチタンの接合

界面部で層状に生成している。この Al_3Ti 層の厚さを $\delta_{\text{Al}_3\text{Ti}}$ とすると、Fig. 5 に示すように $\delta_{\text{Al}_3\text{Ti}}$ はろう接時間 t の増加に伴って増大する。 $\delta_{\text{Al}_3\text{Ti}}$ と $\sqrt{t}$ の間には直線関係が成立していることから、 Al_3Ti 層の成長が拡散過程によって律速されていることがうかがえる。 $\sqrt{t}$ が $42.4 \text{ s}^{1/2}$ 以上の場合、直線の傾きを平方した値は $2.1 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ となり、953 K における Al_3Ti 中の Al および Ti の相互拡散係数の値 $5.0 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}^{(13)}$ と同程度である。しかしながら $\sqrt{t}$ が $42.4 \text{ s}^{1/2}$ 以下の場合、直線の傾きを平方した値は $3.6 \times 10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$ であり、 5.0×10^{-12}

Fig. 5 Al_3Ti layer thickness as a function of square root of brazing time.

Fig. 6 Variation in tensile strength of brazed specimens with Al and Al_3Ti layer thicknesses.

m^2/s と比べて二桁ほど小さな値である。これは母材接合面のチタン酸化皮膜によって拡散過程が抑制されているためと思われる。

2. 継手の引張強さ

Fig. 6 にアルミニウム層の厚さ δ_{Al} (Fig. 4 参照) および Al_3Ti 層の厚さ $\delta_{\text{Al}_3\text{Ti}}$ と継手の引張強さ σ_{TS} の関係を示す。 $\delta_{\text{Al}_3\text{Ti}}$ が 1~8 μm と薄い場合も 10~30 μm と厚い場合も、 δ_{Al} が 25 μm 程度のとき σ_{TS} は最大となり、それらの値はそれぞれ 280, 250 MPa 程度である。 δ_{Al} が 25 μm より厚くなると σ_{TS} は次第に低下し、低強度部であるアルミニウム単体の引張強さ 100 MPa 程度⁽⁹⁾ に漸近する。また σ_{TS} は $\delta_{\text{Al}_3\text{Ti}}$ にも影響を受け、 δ_{Al} がいずれのときも $\delta_{\text{Al}_3\text{Ti}}$ が 1~8 μm と薄い場合の σ_{TS} は $\delta_{\text{Al}_3\text{Ti}}$ が 10~30 μm と厚い場合のそれよりも大きい。

3. 破断面と破壊様式

引張試験を行ったろう接継手はすべて接合部で破断した。Fig. 7 に破断面の SEM 写真とチタン濃度分布像を示す。アルミニウム層の厚さ δ_{Al} が 3 μm と非常に薄い(a)の場合、破断

面は全面 Al_3Ti で構成されている。しかしながら破断面は平坦な面ではなく不規則な段差を伴った面であり、段差の縁がめくれあがっている。 δ_{Al} が 17 μm で継手の引張強さがほぼ最大値を示す(b)の場合、破断面は大部分 Al_3Ti で構成されているが、チタン面も一部分認められる。また破断面は(a)の場合と同様に平坦な面ではなく不規則な段差を伴った面であり、さらに破断面凸部にディンプルが観察される。 δ_{Al} が 55 μm の(c)の場合も破断面は大部分 Al_3Ti で構成されているが、チタン面も一部分認められ、さらにはアルミニウム層内での延性破壊に伴うディンプルが認められる。 δ_{Al} が 150 μm の(d)の場合、破断面には全面ディンプルが認められる。

破断面観察から(d)の場合は明らかにアルミニウム層内での延性破壊によってろう接継手は破断したと考えられる。しかしながら δ_{Al} が(d)の場合よりも小さい(a), (b), (c)の場合は破断面に Al_3Ti やチタンが認められ、 Al_3Ti 層内での脆性破壊あるいは Al_3Ti 層とチタンとの界面部でのせん断破壊がろう接継手の破断に結びついたとも考えられる。あるいは(c)の場合には破断面に一部ディンプルが観察され、(b)の場合には前述したように破断面凸部に小さなディンプルが観察され、さらには(a)の場合にも Fig. 8 に示すように破断面の段差の縁に小さなディンプルが観察されることから、これらの場合も(d)の場合と同様にアルミニウム層内でのボイドの成長がろう接継手破断の契機であったとも考えられる。

4. 有限要素法による解析

有限要素法による接合部での応力解析と、破断面観察をもとに想定される以下の3つの破壊条件から、Fig. 6 に示される接合部の組織と継手の引張強さに関する実験結果について検討する。

(1) 界面部でのせん断破壊

Fig. 7 で接合部が(b), (c)の場合、破断面に Al_3Ti やチタンが認められることから、 Al_3Ti 層とチタンとの界面部でのせん断破壊によってろう接継手が破断することが想定される。この場合の破壊条件は、Fig. 3 において x 方向に作用するせん断応力の最大絶対値 $|\tau_{yx}|_{\text{max}}$ が、ある限界値 τ_c に達したときに界面部で破壊が生ずるという条件が考えられる⁽¹⁴⁾。

Fig. 9 に $\tau_c = 2 \text{ MPa}$ とした場合の、アルミニウム層の厚さ δ_{Al} と破断荷重 F の関係を示す。 Al_3Ti 層の厚さ $\delta_{\text{Al}_3\text{Ti}}$ が 10 μm の場合には破断荷重は δ_{Al} が 25 μm のとき最大となり、Fig. 6 の実験結果と同様の傾向を示す。しかしながら 2.5, 5 μm の場合には δ_{Al} が 25 μm のとき F は最大とはならず、実験結果の傾向とは異なっている。

(2) Al_3Ti 層での脆性破壊

Fig. 7 で接合部が(a), (b), (c)の場合、破断面に脆性相である⁽¹²⁾ Al_3Ti が認められることから、 Al_3Ti 層内での脆性破壊によってろう接継手が破断することが想定される。脆性材料の破壊条件としては、実験結果と比較的よく一致するとされている最大主応力説⁽¹⁵⁾がある。この条件では、各要素についての最大主応力 σ_1 の最大値 $(\sigma_1)_{\text{max}}$ がある限界値 σ_c に達したときに、 Al_3Ti が破壊することにより、ろう接継手が破断する。

Fig. 10 に $\sigma_c = 37 \text{ MPa}$ とした場合のアルミニウム層の厚さ δ_{Al} と破断荷重 F の関係を示す。 Al_3Ti 層の厚さ $\delta_{\text{Al}_3\text{Ti}}$ がい

Fig. 7 SEM micrographs of the fracture surfaces opposed each other and corresponding Ti element distribution inspected by EDX; (a) $\delta_{Al}=3 \mu m$, $\delta_{Al_3Ti}=8 \mu m$, $\sigma_{TS}=263 \text{ MPa}$, (b) $\delta_{Al}=17 \mu m$, $\delta_{Al_3Ti}=3 \mu m$, $\sigma_{TS}=283 \text{ MPa}$, (c) $\delta_{Al}=55 \mu m$, $\delta_{Al_3Ti}=3 \mu m$, $\sigma_{TS}=250 \text{ MPa}$, (d) $\delta_{Al}=150 \mu m$, $\delta_{Al_3Ti}=4 \mu m$, $\sigma_{TS}=129 \text{ MPa}$.

れの場合も δ_{Al} が増加するにつれて F は単調に減少し, Fig. 6 に示される実験結果の傾向とは異なっている.

(3) アルミニウム層内での延性破壊

Fig. 7 の (d) の場合, 破断面には全面ディンプルが観察されることから, この場合は明らかにアルミニウム層内での延性破壊によってろう接継手は破断したと考えられる. さらに Fig. 7 の (a), (b), (c) の場合, 前述したように破断面の一部に小さなディンプルが観察されることから, これらの場合もアルミニウム層内でのボイドの成長によってろう接継手が破断するとも考えられる.

延性破壊におけるボイドの発生については Le Roy ら⁽¹⁶⁾が, またボイドの成長については Rice, Tracey⁽¹⁷⁾ が条件式を提示

している. それらによると, 平均垂直応力 σ_m (主応力の三成分 $\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3$ の平均値) と相当応力 $\bar{\sigma}$ が大きいほどボイドは発生しやすく, また σ_m が大きいほどボイドは成長しやすい. 延性破壊の条件式はいくつか提案されている⁽¹⁸⁾⁻⁽²⁰⁾. ここでは植村が提案している条件式⁽¹⁸⁾をもとに, アルミニウム層内での延性破壊の条件式として, $(\bar{\sigma} + \alpha \cdot \sigma_m)_{max} = \sigma_c$ を仮定した. この条件式では, 各要素の $(\bar{\sigma} + \alpha \cdot \sigma_m)$ の最大値 $(\bar{\sigma} + \alpha \cdot \sigma_m)_{max}$ がある限界値 σ_c に達したときにアルミニウム層内での延性破壊が生じ, その結果ろう接継手が破断するとしている. なお σ_m に係数 α を掛けたのは, 延性破壊に対する $\bar{\sigma}$ と σ_m の効果の度合いが必ずしも同一ではないことに留意してである.

Fig. 11 に上述した破壊条件式で $\alpha = 1.8$, $\sigma_c = 53 \text{ MPa}$ と

Fig. 8 An enlarged view of the fracture surface in Fig. 7(a). Note that dimpled rupture is observed at a stepped site of the fracture surface.

Fig. 9 Variation of fracture load with Al and Al₃Ti layer thicknesses in the case where the shear fracture mode is supposed.

した場合のアルミニウム層の厚さ δ_{Al} と破断荷重 F の関係を示す。Al₃Ti 層の厚さ δ_{Al_3Ti} がいずれの場合も δ_{Al} が 25 μm のとき F は最大となり、かつ δ_{Al} が同一のとき δ_{Al_3Ti} が大きいほど F は低下しており、Fig. 6 に示される実験結果と同様の傾向を示している。なお F が最大となるときの δ_{Al} の値は係数 α を大きくするにつれて増大し、 $\alpha=2.5$ とした場合は $\delta_{Al}=50 \mu m$ のとき F は最大となる。

5. 引張強さと塑性拘束効果

接合部に低強度部(本研究ではアルミニウム層)を含む突き合わせろう接継手の引張強さは、Fig. 6 に示されるように低強度部の厚さが薄くなると増大するが、薄くなりすぎると逆に低下

Fig. 10 Variation of fracture load with Al and Al₃Ti layer thicknesses in the case where the brittle fracture mode is supposed.

Fig. 11 Variation of fracture load with Al and Al₃Ti layer thicknesses in the case where the ductile fracture mode is supposed.

する。低強度部の厚さが薄くなるにつれて、ろう接継手の引張強さが低強度部単体のそれよりも上昇する理由については、低強度部における塑性拘束の観点から説明されている⁽⁴⁾。すなわ

ち低強度部が高強度部に挟まれているろう接継手に引張力が作用すると、低強度部の変形が高強度部によって拘束されるいわゆる塑性拘束が生じ、低強度部の内部では多軸応力状態となる。この状態下では引張軸方向と直交する方向にも応力が発生しているため、低強度部単体を引張った場合と同じ量の引張方向の変形を生じさせるのにより大きな引張力が必要となる。したがって塑性拘束の効果からは低強度部の厚さが薄くなるほど継手の引張強さは単調に増大し、母材の引張強さに近づくことになる。

しかしながら Fig. 6 に示されるように、低強度部の厚さが薄くなりすぎると、継手の引張強さは逆に低下する。Colbus らは、ろう接間隙が狭くなるとろう接材の間隙への流入が困難になり、その結果として接合欠陥が増加するために継手の引張強さが低下するとしている⁽²⁾。ところが本実験の場合は初めから母材の間隙にろう接材であるアルミニウムを挟み込んでいることから、ろう接間隙が狭い場合にもろう接材は接合面全体に十分供給されている。それにもかかわらずアルミニウム層が薄い場合、継手の引張強さは低下する。同様の結果は Lehrer らが 4130 鋼を純銀でろう接した場合に、接合部にボイドのない完全な継手であるにもかかわらず、ろう接材の厚さが薄くなると継手の引張強さは低下することを報告している⁽²¹⁾。これらのことは、ろう接材厚さが薄い場合に継手の引張強さが低下する原因は、ろう接継手作製時に導入される接合欠陥ではないことを示唆している。

上述したように低強度部の厚さが薄くなると、その内部では多軸応力状態になり、主応力の三成分 $\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3$ の平均値で表される平均垂直応力 σ_m の値は増大する。 σ_m の増大は継手の引張強さの増加をもたらすが、一方では前述したようにボイドの発生・成長を助長する。その結果ろう接継手作製時には接合部に欠陥が導入されていなくても、低強度部の厚さが薄くなると、より小さな引張荷重によって欠陥(ボイド)が生ずるために継手の引張強さは低下すると考えられる。Fig. 11 に示されるように、低強度部のアルミニウム層内での延性破壊を想定した解析結果は、低強度部の厚さが薄い場合に継手の引張強さが低下する実験結果の傾向を定性的にはあるが説明しうる。

V. 結 論

アルミニウムによるチタンのろう接を行い、接合部の組織がろう接継手の引張強さに及ぼす影響について検討した。得られた結果を以下に示す。

- (1) ろう接時に、ろう接材のアルミニウムと母材のチタンの

界面部に金属間化合物 Al_3Ti が生成し、 Al_3Ti 層の厚さはろう接時間の平方根に比例して厚くなる。

- (2) ろう接継手の引張強さは、接合部のアルミニウム層の厚さが 25 μm 程度のとき最大となり、その値は 250~280 MPa である。アルミニウム層の厚さが 25 μm よりも厚くなると、継手の引張強さはアルミニウム単体の引張強さ 100 MPa 程度まで低下する。

- (3) 接合部の Al_3Ti 層の厚さが 10 μm を境として、薄い場合の方が厚い場合よりも継手の引張強さは大きい。

- (4) 接合部のアルミニウム層の厚さが厚い場合のみならず、薄い場合にもろう接継手の破断面にディンプルが観察される。

- (5) アルミニウム層内での延性破壊を想定した弾塑性有限要素法による解析結果は、実験結果を定性的にはあるが一律に説明しうる。

文 献

- (1) 川勝一郎：ろう接工学，朝倉書店，(1972)，77.
- (2) J. Colbus C. G. Keel and G. M. Blanc: The Welding J., **41**(1962), 413-s.
- (3) 川勝一郎：ろう接工学，朝倉書店，(1972)，76.
- (4) 豊田政男：インターフェイスマカニクス，理工学社，(1991)，112.
- (5) 三好俊郎，白鳥正樹，座古 勝，坂田信二：有限要素法構造要素の変形・破壊挙動の解析，実教出版，(1976)，70.
- (6) 豊田政男：インターフェイスマカニクス，理工学社，(1991)，169.
- (7) 鷺津久一郎，宮本 博，山田嘉昭，山本善之，川井忠彦：有限要素法ハンドブック I 基礎編，培風館，(1981)，245.
- (8) 田村 博：材料物性，朝倉書店，(1973)，118.
- (9) 寺井士郎：アルミニウムハンドブック，軽金属圧延工業会，(1978)，26.
- (10) 中沢一郎：材料力学，産業図書，(1973)，8.
- (11) 中村森彦：日本金属学会会報，**30**(1991)，404.
- (12) 間淵 博，中山 豊：日本金属学会会報，**30**(1991)，24.
- (13) F. J. J. van Loo and G. D. Rieck: Acta Metall., **21**(1973)，61.
- (14) 鷺津久一郎，宮本 博，山田嘉昭，山本善之，川井忠彦：有限要素法ハンドブック II 応用編，培風館，(1981)，305.
- (15) 安土幸一郎：材料力学(2)，コロナ社，(1970)，168.
- (16) G. Le Roy, J. D. Embury, G. Edward and M. F. Ashby: Acta Metall., **29**(1981)，1509.
- (17) J. R. Rice and D. M. Tracey: J. Mech. Phys. Solids, **17**(1969)，201.
- (18) 植村益次：塑性と加工，**1**(1960)，13.
- (19) 大矢根守哉：日本機械学会誌，**75**(1972)，596.
- (20) 小坂田宏造，綿谷晶廣，関口秀夫：日本機械学会論文集(第1部)，**43**(1977)，1251.
- (21) W. H. Lehrer *et al*: Proceedings of the ASME, **60**(1960)，610.