研 究

パルス通電接合面間での挿入粉末挙動

近藤 克哉^{☆1}, 油座 健二^{☆2}, 和田 光司^{☆3}, 大橋 修^{☆4}^{☆1}新潟工業短期大学, 〒950-2076 新潟市西区上新栄町 5-13-7.^{☆2}新潟大学工学部機械システム工学科, 〒950-2181 新潟市西区五十嵐 2 の町 8050, [(現)日軽新潟(株), 新潟市北区太郎代 1572-19].^{☆3}SMC (株), 〒300-2493 つくばみらい市絹の台 4-2-2.^{☆4}新潟大学自然科学研究科, 〒950-2181 新潟市西区五十嵐 2 の町 8050.

Behavior of Powder as Interlayer Materials of Joints in Pulsed Electric Current Bonding

Katsuya Kondou^{☆1}, Kenji Yuza^{☆2}, Kouji Wada^{☆3} and Osamu Ohashi^{☆4}^{☆1}Niigata College of Technology, 5-13-7 Kamishin'ei-cho, Nishi-ku, Niigata 950-2076, Japan.^{☆2}Dept. Mech. sys., Fac. Eng., Niigata University, 8050 Ikarashi Nino-cho, Nishi-ku, Niigata 950-2181, Japan.^{☆3}SMC Co., Ltd., 4-2-2 Kinunodai, Tsukubamirai, 300-2493, Japan.^{☆4}Graduate School of Science and Technology, Niigata University, 8050 Ikarashi Nino-cho, Nishi-ku, Niigata 950-2181, Japan.

Received September 28, 2007

SYNOPSIS

In pulsed electric current bonding, local heating at the contact area is accelerated. As the results, it is afraid that the powder as interlayer materials of joints is dispersed during the bonding. In this study 6063Al joints using powder as interlayer were formed at various bonding conditions such as powder (composition, mass), bonding pressure and electric wave (frequency, duty ratio). The powder loss and melted area at bonded joints were investigated to clarify the behavior of powder.

It was found that the powder is dispersed and melted around bonded interfaces during the pulsed electric current bonding. Powder loss ratio and melted area ratio at the joints increase with the increase of powder mass, initial current, duty ratio, and the decrease of bonding pressure. Phenomena of dispersion and melting using powder as interlayer are not affected by the current frequency and powder composition. The phenomenon of powder dispersion depends on the gas emission of H₂O and H₂ from powder. The decrease of powder mass and the initial current, and the increase of bonding pressure are recommended in the selection of bonding conditions to decrease the gas emission.

KEY WORDS

powder, interlayer materials, bonding, pulsed electric current bonding, aluminum alloy

1 緒 言

通電接合法は被接合材にパルス状の電流を通電して、接合部で発生するジュール熱を用いて接合する固相接合法である。本通電接合法についての適用研究も活発で、接合時の通電初期の電流波形¹⁾及び通電接合条件の選定指針等^{2,3)}についても検討されている。

本法は、接合部を直接加熱することができることから、ヒーターを用いて接合部を傍熱する間接加熱法と比較して、接合部を効率的に加熱できる特徴を持っている。この観点から、通電接合法は接合部の効率的な加熱接合法として注目されている⁴⁾。

接合物を接触させて通電接合する際、接合面間での発熱量は、接触面間の電気抵抗と通電電流に大きく依存する。また、

電気抵抗は接合面の表面粗さと接合圧力等に依存する^{2,3)}。接合面間の発熱量を増加させる方法として、接触抵抗を増加させる方法が考えられる。

そこで、接合面間の発熱を促進するため、接合面間の接触抵抗を増加させることを目的として、接合面間に粉末を挿入して接合する方法に着目した。さらに、Ti と Al-1Mg の二種類の粉末の混合粉末を使用することで、接合中に両粉末の燃焼合成反応が発生して^{5,6)}、さらに接合部を効率的に加熱出来る可能性もある。このように、接合面間に粉末を挿入することで、接合部の効率的な加熱も期待できるが、接合部に挿入した粉末が飛散し、接合面間からの脱落も予想される。

本研究では、接合面間に挿入した粉末の挙動(粉末の減少量、溶融量)と、通電接合条件因子(粉末の組成、粉末量、圧

力, 電流波形)との関係について検討し, 挿入粉末の飛散・脱着を減少させ, 通電接合する際の接合条件因子の選定指針について検討した。

2 実験方法

供試材は 6063Al 合金で, その組成は, 0.44Si-0.21Fe-0.03Cu-0.01Mn-0.01Cr-0.01Ti-0.50Mg-Al である。この供試材を直径 30 mm, 長さ 25 mm に機械加工し, 丸棒形状の接合試料を作製した。その端面を接合面とした。その接合面の粗さは, Rz: 50 μ m である。接合の直前に, これら接合材をアセトン中で超音波洗浄した。

接合面に挿入した粉末は, Al-1Mg 粉末 (組成: 0.22Si-1.1Mg-Al), Ti 粉末 (組成: 0.006Fe-0.001Cr-Ti) で, 平均粒径はそれぞれ 130 μ m, 45 μ m である。

接合に際しては, 真空容器内に接合試料を突き合わせて設置し, カーボンスペーサーで挟み, 電極間に設置した。接合圧力で加圧後, 雰囲気圧力が 6 Pa 以下に真空容器内を排気後, 所定の電流を直接通電して昇温し, 接合温度近傍で初期の通電電流を低下させて接合温度を制御し, 接合温度に 5 min 間保持した。接合圧力は通電接合中一定に保持した。接合温度は, 接合界面から 5 mm 離れた個所に, K 熱電対を固定して測定した。使用したパルス通電接合装置は, PLASMAN CSP-II-5SS (エスエスアロイ製) である。本実験で使用したカーボンスペーサー (東洋炭素製, ISO-88) の形状は直径 60 mm, 高さ 20 mm の円盤形状である。

接合中に放出されるガスの組成と分圧測定には, ガス分析装置を用いた。ガス分析装置は, アネルバ製 M-100QA-F 四重極型質量分析計とターボ分子ポンプから構成される。本装置は, バリアブル・リーク・バルブを介して真空容器に接続した。ガス分析装置内の雰囲気圧力を 1×10^{-3} Pa 以下に排気後, バリアブル・リーク・バルブを開き, 真空容器内のガスを導入して, ガス分析した。分析条件は, 質量数 0~60 の範囲として, この間 6 s で走査し, 接合中の放出ガスを連続的に記録した。

に記録した。

通電接合条件によっては, 粉末が飛散し, 接合面間の粉末量が減少する。接合前後の粉末の質量減少割合を粉末減少率と定義した。また, 破面には部分的に熔融箇所が観察される。接合面上でのその面積割合から熔融面積率と定義した。

3 実験結果

まず最初に, 接合面間に粉末を挿入して, 真空中, 直流電流 2500 A, 接合圧力 0.7 MPa, 温度 600 $^{\circ}$ C, 時間 5 min 保持して接合した。接合面間には, Al-1Mg 粉末 (0.566 g), Ti 粉末 (0.988 g) 及び両粉末を原子比で 1:1 に混合した粉末 (0.950 g) の 3 種類の粉末を挿入した継手を作製し, 挿入粉末の種類の影響を検討した。粉末量は, 密度が 100% となった時, いずれの粉末挿入時でも, 厚さが 0.31 mm となるように選定した。混合粉末では通電接合時, 燃焼合成で接合面がさらに加熱されることを期待して使用した。

Fig.1 は, 接合後, 継手を曲げ破壊して, その破面の観察例を示す。(A) は Al-1Mg 粉末, (B) は Ti 粉末, (C) は Al-1Mg と Ti の混合粉末挿入時の破面写真である。いずれの場合も, 破壊は粉末層内で発生した。(A) の Al-1Mg 粉末挿入時の場合, 粉末層の他, 粉末が接合面間から脱落して Al 合金地金が直接観察される箇所と, 熔融箇所が観察される。(C) の混合粉末挿入時も, 似たような破面形態を示した。一方, (B) の Ti 粉末使用時には, 熔融箇所が観察されなかった。

そこで, 接合面でのこの粉末の飛散・減少と, 熔融に着目して, 各種の継手から粉末の減少率 (接合前後の質量差を接合前の質量で割った割合), 熔融面積率 (熔融箇所の面積割合) を測定した。

Fig.2 には各種の接合温度の継手の粉末減少率と接合温度との関係, Fig.3 には接合面での熔融面積率と接合温度との関係を示す。いずれも, 接合面間には Al-1Mg 粉末 (0.566 g), Ti 粉末 (0.988 g) 及び両粉末を原子比で 1:1 に混合した粉末 (0.950 g) の 3 種類の粉末を挿入した継手を作製し, 挿入粉末の種類の

D.C2500A, 600 $^{\circ}$ C, 0.31 mm, in vacuum

Fig.1 Fracture of joints with (A) Al-1Mg powder, (B) Ti powder and (C) Al-1Mg-Ti powder.

Fig.2 Effect of bonding temperature on powder loss ratio of joints with Al-1Mg powder, Ti powder and Al-1Mg-Ti powder.

Fig.3 Effect of bonding temperature on melted area ratio of joints with Al-1Mg powder, Ti powder and Al-1Mg-Ti powder.

影響を検討した。Fig.2の粉末減少率の結果から、Al-1Mg粉末、TiとAl-1Mg混合粉末の減少率は、Ti粉末よりも大きい。そして、接合温度が100°Cの継手においても、粉末の減少が見られる。Fig.3は溶融部の面積測定から算出した溶融面積率の結果であるが、Al-1Mg粉末、TiとAl-1Mg混合粉末の継手では、溶融量はTi粉末よりも大きい。また、通電直後で接合温度が100°Cの継手においても、粉末が飛散し、接合面間の粉末の溶融した継手がある。

通電接合による粉末の飛散時期を観察するため、通電前後の接合試料の外観を観察した。その結果をFig.4に示す。(A)は試料を装置に取り付けた際の写真であるが、接合試料取り付け時に、粉末が接合面から少し脱落する事が多い。(B)は、真空中に排気後の外観写真である。排気により粉末間の大気も

排気されるが、この排気による粉末の飛散はない。(C)は接合部に約1s通電後の外観写真で、試料温度は約50°Cとなった。接合試料の温度は低いが、接合面間の粉末が脱落して、スペーサー上に飛散しているのが分かる。粉末の飛散量は、試料取り付け時よりも、通電による粉末の飛散量が圧倒的に多く、粉末の飛散率は通電に依存する。

次に、混合粉末で大きな溶融促進効果が観察されなかったことから、Al-1Mg粉末を用いて、接合圧力、粉末量、電流値と波形等の粉末減少率、溶融面積率への影響について検討した。

Fig.5に、挿入粉末Al-1Mgの減少率、溶融面積率に及ぼす接合圧力の影響を示す。粉末の減少率、溶融率とも、接合圧力の増加とともに、減少した。

D.C2500A, 0.5MPa, 0.31 mm, in vacuum

Fig.4 Dispersed powder appearance at joints (A) as set in chamber, (B) as evacuated and (C) after heated for 1 s.

Fig.5 Effect of bonding pressure on powder loss ratio and melted area ratio at joints.

Fig.7 Effect of electric current at bonding on powder loss ratio and melted area ratio at joints.

Fig.6 Effect of powder mass on powder loss ratio and melted area ratio at joints.

Fig.8 Effect of duty ratio of electric current on powder loss ratio and melted area ratio at joints.

Fig.6は粉末量の減少率, 溶融面積率に及ぼす挿入粉末の影響を示す. 粉末量が減少すると, 粉末の減少率, 溶融面積率が減少した.

次に電流値, パルス波形(デューティー比, 周波数)の影響について検討した. 本実験では通電開始直後から通電電流を一定に保持し, 接合温度近傍で, 電流を減少させ, 接合温度に保持している.

Fig.7は, この通電初期の電流値を変化させて, 接合圧力0.7 MPa, 接合温度300°C, 粉末量: 0.566 gでの接合結果である.

通電初期の電流値が増加すると, 接合部の加熱速度も増加する. 図に見られるように, 通電初期の電流値の増加とともに, 粉末の減少率, 溶融率ともに増加した.

次に, パルス波形の影響について検討した. 本装置は, 接合部に矩形波の電流を流すことができる. そこで, 矩形波形の周波数を1 Hzとして, デューティー比を変化させた. デューティー比とは, 1周期での矩形波形の通電時間割合で, 25, 50, 75%と変化させた.

Fig.8はデューティー比の接合部の粉末減少率と溶融面積率

への影響を示す。デューティー比の増加とともに、粉末の減少率、溶融面積率とも増加した。

Fig.9は、周波数の接合面間の粉末減少率、溶融率への影響を示す。パルスの周波数は、接合部の粉末の飛散、溶融状況にほとんど影響しない。

以上の結果、接合面に粉末を挿入して通電接合すると、接合面間の粉末が飛散する。接合部の粉末が飛散して減少する割合は、接合圧力の低下、挿入粉末量の増加、初期通電電流の増加とともに、大きくなった。また、電流の波形の観点からは、周波数には関係なく、デューティー比の増加とともに接合部の粉末が飛散し、減少しやすい。また、粉末の減少量の大きい継手には、接合部での溶融量も大きくなる傾向にある事が明らかとなった。

4 考 察

粉末を接合面間に挿入して通電接合した際、粉末が溶融、飛散等の現象が見られ、これらの現象は接合条件因子に依存することが明らかとなった。粉末が飛散して、接合面間の粉末が減少する原因について考察する。

測定した粉末の減少率、溶融面積率に測定結果のばらつきが大きいのは、これは接合面間に均一に粉末を挿入することは困難であることから、測定結果のばらつきは粉末の挿入状態のばらつきに依存すると考える。

まず、Al-1MgとTiの混合粉末で燃焼合成は期待できるが^{5,6)}、実際の接合部には、局所的な溶融が確認できるのみであった。しかし、Al-1Mg粉末とTi粉末の単独粉末を挿入した場合と比較して、溶融領域に大きな差異は認められず、混合粉末使用時の優位性は特に観察されなかった。

本実験での挿入粉末部の形状は円盤状である。最大厚さ0.6

mmであり、粉末の平均粒径は、Al-1Mg粉末で130 μ m、Ti粉末で45 μ mである。接合粉末の断面部で、数個のAl-1Mg粉末と数個のTi粉末の混合層と考えられる。ナノレベルでAlとNiを1000層程度積層した箔を使用することで、接合部のみを加熱して接合する技術が報告されている⁷⁾ことから、粉末粒子径をさらに小さくする事で、燃焼合成が期待できる。

接合面に粉末を挿入して通電接合すると、Fig.2, Fig.3に示すように、接合面間の粉末が飛散、溶融する。Al-1Mg粉末と比較し、Ti粉末の溶融面積率が低いのは、Ti粉末の溶融点が高いことが考えられる。この接合面間の粉末の減少量は、接合圧力の低下、挿入粉末量の増加、初期通電電流の増加とともに、大きくなった。また、電流の波形の観点からは、周波数には影響されない。これは、通電パルス周波数が変化しても、デューティー比が一定なこと、通電電力は一定で、周波数は接合面間の発熱量に影響しない。その結果、粉末の減少率と溶融率が増加すると考えられる。

次に、この粉末の飛散が発生する理由について検討する。接合時の接合容器内の雰囲気圧力の変化から検討する。通電開始とともに接合雰囲気圧力が上昇し、最大値到達後減少する。通電による圧力変化を測定した。

Fig.10には、接合面間にAl-1Mg粉末及びTi粉末を挿入して通電接合した時と、粉末を使用しない時の接合雰囲気圧力変化の測定結果を示す。接合雰囲気圧力の変化は、通電直後にガスが放出され、接合雰囲気圧力が大きく上昇している。Al-1Mg粉末を挿入した時の圧力変化が大きい。Ti粉末挿入時の圧力変化が粉末を使用していない時より少ない原因は、

Fig.9 Effect of pulse frequency of electric current on powder loss ratio and melted area ratio at joints.

Fig.10 Change of atmosphere pressure at joints with Al-1Mg powder, Ti powder and no powder during bonding.

Fig.11 Relationship between powder loss ratio and change of atmosphere pressure at various bonding conditions.

Tiが加熱下でのガス吸収性が優れ、ガス吸収したためと考えられる。

次に、各種条件で接合した際の、この雰囲気圧力の変化と粉末減少率との関係を整理した結果をFig.11に示す。図は、粉末量、接合圧力、電流、周波数、デューティー比を変化させた時の結果である。ばらつきが大きい、接合雰囲気圧力の変化が大きくなると、粉末減少率が増加する傾向にあることが分かる。

次に、接合雰囲気の変化の原因を検討するため、粉末からガスが放出されていることが予想されることから、接合装置に超高真空中に排気した質量分析装置を接続して、接合中に放出されるガス分析を行った。その結果をFig.12に示す。図は、Al-1Mg粉末を接合面に挿入した時の結果で、接合温度、雰囲気圧力（全圧、水素（質量数：2）分圧、水蒸気（質量数：18）分圧）の時間的変化を示している。質量分析装置においても同じように接合中の接合雰囲気圧力の変化が観察される。接合初期の圧力変化は、水蒸気がほとんどである。しかし、粉末の温度の上昇とともに、突発的に水素の放出が見られる。接合の初期の接合部の温度が低い時には水蒸気の放出、高温では、水素の放出が支配的となる。

この水素放出について検討するため、先の接合と同じような昇温速度で、純Al、Al-2.5Mg、Al-10Mg粉末をカーボン型に挿入して焼結した時のガス分析と、各種Al粉末を熱分析した時のガス分析とを比較した。その結果、粉末の焼結時のガスの発生は、水蒸気の発生に引き続き、水素の発生が見られた。Mgの添加量の影響はなく、使用粉末の組成の影響はなかった。しかし、熱分析時では、純Alでは焼結時と発生挙動は同傾向で、水蒸気の発生に引き続き、水素の発生が見られた。Mg含有合金では、水素の放出は減少した。水素の放出は、Al粉末を接合面に挿入した接合時、Al粉末の焼結時に

Fig.12 Compositions of emitted gas at joints with Al-1Mg powder during bonding.

見られる。この水素の放出はAl粉末の加圧下での挙動と考えられる。Alの塑性変形中に水素の放出が観察されるとの報告がある⁸⁾。本実験での水素放出挙動はAl粉末の変形に一因あると考えられる。

以上の結果、接合面に粉末を挿入して通電接合すると、接合圧力の低下、粉末量の増加、初期の通電電流を増加させると、接合面間の電気抵抗で接合面間が局部的に加熱される。その結果、局部的な熔融を発生する。同時に粉末が急速に加熱されることから、粉末表面から水蒸気の放出と、さらにAl-1Mg粉末の塑性変形による水素の放出がある。このガス放出で接合面間の粉末が飛散する。

接合面に粉末の挿入は、接合部を効率的に加熱する事となるが、粉末の飛散で、接合面に粉末が均一に分布しない継手となる。

従って、粉末を接合面に挿入して接合する場合は、粉末量、初期の電流を低下させ、接合圧力を大きくして、接合面間でのガス発生を少なくする接合条件を選定する必要がある。

5 結 言

接合面に挿入した粉末の挙動と、通電接合条件因子との関係について検討し、挿入粉末の飛散・脱落を減少させ、通電接合する際の接合条件因子の選定指針について検討した。

- (1) 接合面に粉末を挿入して通電接合すると、接合面間の粉末が飛散する。この接合面間の粉末の減少量は、接合圧力の低下、挿入粉末量の増加、初期通電電流の増加とともに、大きくなる。また、電流の波形の観点からは、周波数には関係なく、デューティー比の増加とともに接合部の粉末が飛散しやすい。
- (2) 粉末の飛散は、接合面間からの発生する水蒸気と水素による。
- (3) 粉末の飛散と同時に、粉末の熔融が観察される。Al-1Mg粉末とTi粉末の単独粉末を挿入した場合と比較して、溶

融領域に大きな差異は認められず、混合粉末使用時の優位性は特に観察されなかった。

- (4) 粉末を接合面間に挿入して接合する場合は、粉末量、初期の電流を低下させ、接合圧力を大きくして、接合面間でのガス発生を少なくする接合条件を選定する必要がある。

文 献

- 1) H.Furuhata, N.Chikui and O.Ohashi: "Effect of Initial Electric Current on Joints of Bonded SUS304 Stainless Steel Using a Pulse Electric Current Bonding Process", J. Japan Inst. Metals, **68**(2004)511-514.
- 2) N.Chikui, H.Furuhata, N.Yamaguchi and O.Ohashi: "Guidelines for Using Pulsed Electric Current Bonding on Stainless Steel", J. Japan Inst. Metals, **69**(2005)715-718.
- 3) N.Chikui, H.Furuhata, K.Wada and O.Ohashi: "Effect of Electric Current Wave on Joints in Pulsed Electric Current Bonding", J. Japan Inst. Metals, **70**(2006)146-149.
- 4) N.Chikui, H.Furuhata, N.Yamaguchi and O.Ohashi: "Comparison of Joints by Pulse Electric Current Bonding and Diffusion Bonding", J. Japan Inst. Metals, **68**(2004)515-518.
- 5) A.Hibino: "Numerical Analysis of Phase Control Conditions in TiAl Combustion Synthesis", J. Jpn Soc. Powder Powder Metallurgy, **44**(1997)1107-1114.
- 6) Y.Kaieda and N.Oguro: "Oxidation Characteristics of TiAl-Mn Material Produced by Combustion Synthesis Process and Sintered by Plasma Activated Sintering", J. Jpn Soc. Powder Powder Metallurgy, **49**(2002)969-973.
- 7) <http://www.rntfoil.com/technology/tech.html>
- 8) K.Koyama, G.Itoh and M.Kanno: "Observation of Impurity Hydrogen Evolved from Aluminum and Titanium Alloys during Deformation by means of Hydrogen Microprint Technique", J. Japan Inst. Metals, **62**(1998)790-795