焼結拡散接合法の開発

浅香 一夫

日立粉末冶金(株)粉末冶金事業部機械部品設計部, 〒271 松戸市稔台520.

Diffusion Bonding of Ferrous Compacts during Sintering

Kazuo Asaka

Mechanical Parts Design Dept., Powdered Metals Product Div., Hitachi Powdered Metals Co., Ltd.,
520 Minoridai, Matsudo 271.

Received March 27, 1995

SYNOPSIS

This report indicates the technical key-points of diffusion bonding method of iron-based green compacts during sintering comparing with the sinter-fit bonding method and some applications.

The key-points are the material selections for assembled compacts which should be based on the difference of thermal expansion curves of both materials during sintering, the additive elements selections which should be based on the diffusion coefficient into iron, the fit clearance which should be maintained in the region of press fitting, the shape of iron powders and densities of green compacts.

Most of applications of this technique are complex shaped parts of copy machines. And recently, the production of automotive engine parts is also started using this technique.

KEY WORDS

diffusion bonding, green assembly, dilatometric curve

1 緒 言

粉末冶金法は複雑形状の機構部品をニアネットシェイプで安価に製造する方法であるが、金型の作動条件等に基づき、一回の成形で形成できる部品形状には限界がある。このような一体では型出しが不可能な形状の部品を製造する方法として、いくつかの接合法が開発され、実用化されている。

焼結部品の接合法は焼結中の接合と焼結後の接合に大別できる¹⁾。焼結中の接合法としては固相状態で接合する焼結ばめ法や焼結拡散接合法と、大量の液相の発生を伴う銅溶浸接合法やろう付法及び液相拡散接合法がある。また焼結後の接合法としては圧入やかし

め等の機械的接合法や溶接法及び接着法等がある。なかでも焼結中の接合法はいずれも粉末冶金法独特の接合法としてそれぞれ開発された技術である。

特に焼結中固相状態で接合する焼結ばめ法は1970年代には実用化されている^{2, 3)}技術で、圧粉体で組み合わせた後、一体で焼結するだけの簡便な工程であるため、接合のコストが低く、かつ部品の寸法精度が優れていることが特長である。ただし、他の接合法と比較すると必ずしも接合強度は高くなく、一般の部品の製造には適用しにくかった。

そこで、筆者等は圧粉体組み合わせ接合法の接合強度に及ぼす各要因の影響を検討し、焼結時に拡散接合

させ、高い接合強度を得ることができる焼結拡散接合法を開発した⁴⁻⁸⁾。本報は焼結拡散接合法の開発過程で得られた実験結果を基に、本接合法の概要について報告する。

2. 実験方法

原料鉄粉は $-150\mu\text{m}$ の還元鉄粉（川崎製鐵㈱製 KIP 270MS）を中心に、 $-150\mu\text{m}$ のアトマイズ鉄粉（㈱神戸製鋼所製アトメル300M）も使用した。本文では特記しない限り使用した鉄粉は還元鉄粉とした。銅粉は $-63\mu\text{m}$ の電解銅粉（福田金属箔粉工業㈱製 CE15）を、ニッケル粉は平均粒径が約 $7\mu\text{m}$ のカーボニルニッケル粉（INCO社製）を、炭素粉は平均粒径が $6\mu\text{m}$ の天然黒鉛粉（Sowth Western 社製）を用いた。Table 1 は

Table.1 Chemical composition of iron powders (mass%)

Powder	C	Si	Mn	P	S	Fe
KIP270MS	0.002	0.05	0.23	0.012	0.008	Bal.
ATOMEL300M	0.001	0.02	0.17	0.013	0.014	Bal.

原料鉄粉の成分を示す。これらの粉末を所定の組成になるように配合し、さらに成形用潤滑剤としてステアリン酸亜鉛を1mass%添加した後、Vミキサーで30min混合した。

次に各混合粉を金型内で加圧成形し、密度が $6.4\sim 6.9\text{Mg}/\text{m}^3$ の圧粉体を作製した。本文では特記しない限り圧粉体の密度は $6.7\text{Mg}/\text{m}^3$ とした。圧粉体の形状であるが、焼結過程における熱膨張曲線の測定に用いる試験片は $5\text{mm}\times 15\text{mm}\times 5\text{mm}$ の短冊状とした。また接合強度の測定に用いる試験片は $\phi 10\text{mm}\times \phi 30\text{mm}\times 10\text{mm}$ の大きさのリング状試験片を内側の部材（以下「インナー」と記す）として、また $\phi 30\text{mm}\times \phi 40\text{mm}\times 5\text{mm}$ の大きさのリング状試験片を外側の部材（以下「アウター」と記す）として組み合わせ、その後一体で焼結して作製した。本実験では両圧粉体の組み合わせ寸法差の影響を検討するため、 $\phi 29.95\sim \phi 30.08\text{mm}$ の範囲で外径の異なる4種類のコアを用いてアウターを成形し、圧粉体の寸法を調整した。なお、両圧粉体の組み合わせ寸法差は次式で定義した。

$$[\text{組み合わせ寸法差}] = [\text{アウターの内径}] - [\text{インナーの外径}]$$

本文では特記しない限り組み合わせ寸法差は $-20\pm 10\mu\text{m}$ とした。

圧粉体の焼結は温度：1400K、時間：30min、雰囲気

Fig.1 Method of measuring the bonding strength.

：ブタン変性ガス の条件で行った。

試験片の熱膨張曲線は縦型の示差熱膨張計を用い、試験片を荷重20gで固定し、窒素ガス雰囲気中で室温から1400Kまで昇温後、20min保持し、その後室温まで降温して測定した。この時の昇降温速度は10K/minとした。

Fig.1 は試験片の接合強度の測定方法を示す。接合強度はアムスラー型試験機を用い、内径が $\phi 35\text{mm}$ の治具上に配置した試験片のインナー部を、外径が $\phi 25\text{mm}$ の柱状治具を介して加圧し、破壊時の最大負荷を接合強度として測定した。また、接合状態を観察するため焼結体の断面を研磨後、顕微鏡で観察した。

3. 実験結果及び考察

3.1. 焼結ばめ法

前述のように、圧粉体を組み合わせ焼結して一体化する接合法は複雑形状部品を製造する方法として古くから用いられている。この場合、焼結後の寸法変化を利用した焼きばめ式であったため、組み合わせる材質には大きな制約がある。この組み合わせる材質の選定における基本的な考え方は概ね次の通りである。

(1) 焼結後の寸法が圧粉体より膨張する材料をインナーに、収縮する材料をアウターに用いる。

例1) アウター：Fe-3mass%Ni-0.6mass%C

インナー：Fe-1.5mass%Cu-0.7mass%C

(以下mass%を省略し Fe-1.5Cu-0.4Cのように記す)

(2) 焼結後の寸法が圧粉体よりともに膨張する材料の場合、より膨張する材料をインナーに用いる。

例2) アウター：Fe-1.5Cu-1.0C

インナー：Fe-1.5Cu-0.7C

(3) 焼結後の寸法が圧粉体よりともに収縮する材料の場合、より収縮する材料をアウターに用いる。

例3) アウター：Fe-3Ni-0.4C

インナー：Fe-0.4C

なお、インナーとアウターの組み合わせ寸法差は、アウターの内径がインナーの外径より $0 \sim 40 \mu\text{m}$ 程度大きくなるように設定している。

Fig. 2 は例1) に示す材料の組み合わせでの組み合わせ寸法差と接合強度との関係を示す。本図で組み合わせ寸法差の正の領域が焼結ばめ法による接合強度を示している。接合強度の絶対値は低いものの、組み合わせ寸法差が大きいてもある程度の値を示し、焼きばめの効果が見られる。さらに組み合わせ寸法差を負にすれば、接合強度は従来より約2倍にも向上している。しかし、これでも基材強度の約1/2 にしかない。

Fig. 2 Relation between fit clearance and bonding strength of shrink-fitted specimens. Specimens consist of Fe-1.5Cu-0.7 inner and Fe-3.0Ni-0.6C outer which are sintered at 1400K for 30min. in endothermic gas.

3.2. 焼結拡散接合法

従来考えられてきた焼きばめ法に対し、圧粉体の組み

Fig. 3 Dilatometric curves of Fe-1.5Cu-0.7C and Fe-1.5Cu-1.0C compacts in N_2 gas.

合わせ寸法差を負に設定するとともに、焼結時の熱膨張量の差に基づいて組み合わせる材料を選定すると、焼結時に拡散接合が可能となる。この結果、基材とはほぼ同等の高い接合強度を得ることができる。

Fig. 3 は Fe-1.5Cu-0.7C と Fe-1.5Cu-1.0C 圧粉体の焼結過程における熱膨張曲線を示す。これまでは焼結後の寸法変化、すなわちFig. 3 のB 部を基準に、B 部で膨張の大きい Fe-1.5Cu-0.7C をインナーとして組み合わせ、焼きばめ効果を利用して接合していた。これに対し本方法はFig. 3 のA 部で熱膨張量の大きい Fe-1.5Cu-1.0C をインナーとして組み合わせ焼結することで、焼結中、インナーの外径とアウターの内径を接触させ、その接触面を通して C, Cu 及び Fe 等の元素を拡散させ、強固な金属結合を得ることができる。

Fig. 4 は Fe-1.5Cu-0.7C と Fe-1.5Cu-1.0C とを組み合わせた場合の組み合わせ寸法差と接合強度との関係を示す。Fe-1.5Cu-1.0C インナーとFe-1.5Cu-0.7C アウターとの組み合わせA が拡散接合法の考え方による組み合わせで、その逆の組み合わせB が焼結ばめ法の考え方による組み合わせである。拡散接合法の組み合

Fig. 4 Relation between fit clearance and bonding strength of joined specimens sintered at 1400K for 30min in endothermic gas. Curve A shows the combination of Fe-1.5Cu-1.0C inner and Fe-1.5Cu-0.7C outer which is based on the diffusion bonding method. Curve B shows the opposite combination to A

わせA の接合強度は組み合わせ寸法差が $-20 \sim 0 \mu\text{m}$ で最大となり、その値は 30kN 以上に達している。接合強度が 30kN 以上の試験片のほとんどは接合面では

破壊せず、基材が座屈していることより、基材とほぼ同等の接合強度を示していると考えられる。焼結ばめ法の組み合わせBは組み合わせ寸法差が $30\text{ }\mu\text{m}$ 以下の広い範囲である程度の接合強度を示している。ただし、その値は $5\sim 10\text{ kN}$ と低く、接合部の状態を観察するために断面を切断した試験片は接合面から分離してしまったことより、これらの試験片は金属的には接合していないと考えられる。

Fig.5 は組み合わせA の試験片の接合状態を示す。組み合わせB の試験片は前述のように試験片の切断の過程でインナーとアウターとが分離したため、接合状態は観察できなかった。組み合わせA の試験片の接合

Fig.5 The microstructures of diffusion bonded specimen which consists of Fe-1.5Cu-1.0C inner and Fe-1.5Cu-0.7C outer and sintered at 1400K for 30min. in endothermic gas.

状態を観察すると、接合面に気孔が露出している部分を除いて両部材はよく拡散接合し、パーライト等が接合面を通して成長している様子が解る。

このように焼結過程における熱膨張量の差を基準にして組み合わせる圧粉体の組成を選定すれば、焼結で拡散接合し、高い接合強度を得ることができる。この場合組み合わせ寸法差を負に設定することが必要である。これはインナーとアウターとを接合面でより近接させるのに有効であるためと考える。両部材を拡散接合させるためには、各元素が拡散する温度領域で両部材を接触させることが必須条件となるからである。ただし、組み合わせ寸法差をさらに負で大きく設定すると接合強度は逆に低下している。この原因については別途検討していきたい。

Fe-Cu-C 系統結材以外の材料でも同様の方法で拡散

接合させることができる。ただし、この場合は添加する元素の焼結温度における γ -Fe 中への拡散係数を考慮する必要がある。

Fig.6 はFe-Cu 系インナーと Fe アウター、及びFeインナーとFe-Ni 系アウターとをそれぞれ組み合わせた場合の Cu 及び Ni の添加量と接合強度との関係を示す。Fe-Cu 系インナーと Fe アウターとの組み合わせ

Fig.6 The relation between bonding strength and Cu or Ni content. Curve A shows the combination of Fe-Cu inner and Fe outer. Curve B shows the combination of Fe inner and Fe-Ni outer. Specimens are sintered at 1400K for 30min. in endothermic gas.

せA ではインナー中の Cu 添加量が多いほど接合強度は高くなる。ただし、Cu添加量が 3mass% 以上になると接合強度はほぼ 35kN の値に収束している。一方、Fe インナーと Fe-Ni系アウターとを組み合わせた場合、接合強度は Ni の添加量が 2mass% までは増加しているが、2mass%以上では添加量を増加してもほとんど増加していない。しかも、この接合強度は約 18kN で、FeとFe-Cu 系との組み合わせの約1/2 である。

Fe-Ni 系材料は焼結過程での熱膨張量が Fe 系材料より小さい。そこで Ni は拡散接合を促進する添加元素として有効であると考えられるが、焼結温度である 1400K での γ -Fe 中への拡散係数は Cu の約 1/10 であるため⁹⁾、Fe とFe-Cu 系との組み合わせより接合強度が低くなったものとする。したがって一般の焼結部品の製造に用いられている添加元素の中で、拡散接合を促進するために添加する元素としては γ -Fe 中への拡散係数の大きいC,P 及び Cu 等が適していると思われる。

拡散接合を促進するためには組み合わせる両部材の

Table2 Relation between the bonding strength and kinds of iron powders used in the inner and outer. The inner consists of Fe-1.5Cu-1.0C and the outer consists of Fe-1.5Cu-0.7C which are sintered at 1400K for 30min. in endothermic gas.

Iron powder of the inner	(kN)	
	Atomized	Reduced
Atomized	16.5	27.0
Reduced	32.0	33.5

組成と同様に，使用する鉄粉の形状も重要な因子である．Table2はFe-1.5Cu-1.0C インナーとFe-1.5Cu-0.7C アウターとを組み合わせた場合の接合強度に及ぼす鉄粉の影響を示す．なお鉄粉としては一般の焼結部品の製造に用いられているアトマイズ鉄粉及び還元鉄粉を検討した．インナーとアウターの両部材とともに還元鉄粉を用いて作製した場合，その接合強度は両部材ともにアトマイズ鉄粉を用いた場合の約2倍の値を示している．またインナーあるいはアウターのどちらか一方に還元鉄粉を用いた場合の接合強度は，両部材ともにアトマイズ鉄粉を用いた場合と比較し 10kN 以上

も高い値を示し，特に還元鉄粉のインナーとアトマイズ鉄粉のアウターとを組み合わせた場合，還元鉄粉同士を組み合わせた場合とほぼ同等の接合強度を示している．これらの結果から本技術を用いて焼結部品を製造する場合，インナーまたはアウターの少なくともどちらか一方に還元鉄粉を用いることが望ましいと結論できる．

Fig.7 はインナー及びアウターとともにアトマイズ鉄粉または還元鉄粉を用いた場合の接合部の顕微鏡組織を示す．アトマイズ鉄粉を用いた場合，接合面上には気孔が多く観察でき，接合面であることがすぐに判別できる．これに対し還元鉄粉を用いた場合，接合面であることが容易には判別しにくく，高い接合強度を得られることを裏づけている．この理由はアトマイズ鉄粉が比較的球形に近い形状を呈しているのに対し，還元鉄粉は不規則な形状を呈していること¹⁰⁾，及び還元鉄粉の比表面積はアトマイズ鉄粉の約1.5 倍と大きいことである．

さらに接合強度に影響を及ぼす要因としては組み合わせる両圧粉体の密度がある．Fig.8 は接合強度に及ぼす圧粉体の密度の影響を示す．この場合組み合わせた両部材はFe-1.5Cu-1.0C インナーとFe-1.5Cu-0.7C

Fig.7 Relation between bonding states and used iron powders. In this case, the inner consists of Fe-1.5Cu-1.0C and the outer consists of Fe-1.5Cu-0.7C. Specimens are sintered at 1400K for 30min. in endothermic gas.

アウターである。接合強度はアウターの密度が高いほど高い値を示す。これは密度が高いほど接合面に占める気孔の割合が減少し、接合面の有効な面積が増加するためである。ただし、インナーの密度がアウターの密度より高くなると接合強度は低下している。この結果アウターの密度は高いほど接合強度は高くなり、またアウターとインナーの密度が同等であると高い接合強度を得ることができることがわかる。これはインナーとアウターの内外径の肉厚差と関係すると考える。この点に関してはさらに検討を加えたい。

Fig.8 Relation between the bonding strength and the density of assembled green compacts. Specimens consist of Fe-1.5Cu-1.0C inner and Fe-1.5Cu-0.7C outer which are sintered at 1400K for 30 min. in endothermic gas.

通常、焼結部品は必要特性に応じてスチーム処理や浸炭焼入れ処理等の熱処理が施される。他の接合法ではこれらの熱処理を行うと接合面で焼割れ等の問題が生じることが考えられるが、焼結拡散接合法では接合面が基材とほぼ同等の金属組織を呈しているため、接合後の熱処理も問題なく行うことができる。

Fig.9 はFe-1.5Cu-1.0C インナーとFe-1.5Cu-0.7C アウターとを組み合わせた場合の接合強度に及ぼすスチーム処理の影響を示す。焼結体とスチーム処理体の接合強度はほぼ同等で、むしろスチーム処理体の接合強度が高くなる傾向を示す。

4. 焼結拡散接合法の適用部品例

当社は焼結拡散接合法による焼結部品の量産を1983年より開始し、複写機用部品を中心に適用部品を拡大

1995年8月

Fig.9 The influence of steam treatment on bonding strength. Specimens consist of Fe-1.5Cu-1.0C inner and Fe-1.5Cu-0.7C outer. Sintering is taken place at 1400K for 30min. in endothermic gas and steam treatment is taken place at 840K for 60min.

するとともに、生産量も大幅に拡大してきた。また最近では自動車部品にも適用され、あらためてその信頼性が実証されている。

Fig.10は複写機用部品であるダブルギヤのインナーとアウター、及び組み合わせ後の形状を示す。本部品はFe-1.5Cu-1.0C インナーとFe-1.5Cu-0.7C アウターを組み合わせ、焼結して一体化した後スチーム処理を施している。この場合、インナーは還元鉄粉を、アウターはアトマイズ鉄粉を用い、ともに密度 6.7Mg/m^3 の条件で作製している。また、インナーとアウターは組み合わせ寸法差を $-30 \sim 0\mu\text{m}$ になるように成形体の寸法を設定して圧入で組み合わせている。

Fig.10 Shapes of the outer and inner and their assembled compacts of double gear for copy machine which is one of the applications of the sinter diffusion bonding method.

Fig.11は複写機部品及び二輪車部品への本技術の適用例を示す。これらの複写機部品はいずれも Fig.10

に示すダブルギヤと同様の材料と条件で製造し、防錆処理としてスチーム処理を施している。また二輪車部品は表面処理として浸炭焼き入れ・焼き戻し処理を行っている。

Fig.11 Some applications of the sinter diffusion bonding method.

Fig.12は自動車部品への適用例であるアイドルスプロケットを示す。左側が本技術を用いて作製した部品であり、また右側が本技術を用いる以前に切削を前提として作製していた焼結素材である。本技術を用いることにより焼結体の重量を45%以上も低減でき、加工工程の削除とあわせて大幅なコストの低減を図ることができた。さらに成形工程で大スプロケットに肉抜き穴を形成でき、自動車部品として20%以上の重量を低減できた。なお本部品は組み合わせ材料、接合面の形状、及び量産工程中の非破壊検査法等について日産自動車株式会社殿と共同で開発を進め、完成したもので¹⁰⁾、現在当社の他に日産自動車株式会社殿の内製工場でも本部品を生産している。本部品は自動車への最初の適用部品として、本接合技術の信頼性の高さを立証した部品といえる。

Fig.12 Comparison of a sinter diffusion bonded idler sprocket of automotive engine and sintered blank currently used which was machined.

4. 結 言

以上、筆者等が開発した圧粉体の焼結拡散接合法について、接合強度に及ぼす主要な要因の影響を中心に概説した。それらの要点をまとめると以下の通りである。

- 1) インナーとアウターを組み合わせ際の組み合わせ寸法差は、アウターの内径がインナーの外径より0～60μm程度小さくなるように設定する。すなわち、圧入等の方法でインナーとアウターとを組み合わせる。
- 2) 組み合わせる材料組成は焼結中の熱膨張量の差に基づき選定する。すなわち、熱膨張量の大きい材料をインナーに用いる。
- 3) 各材料の添加元素としてはγ-Fe中への拡散係数の大きい元素を選定する。
- 4) 鉄粉は比表面積の大きい粉末を用いる。
- 5) インナーとアウターの密度は同等とする。

本接合技術はすでに多くの部品の生産に応用され、さらに最近自動車部品の生産も開始したことより、今後適用部品がますます拡大するものと期待している。ただし説明すべき現象も多く、引き続き検討していきたい。

謝 辞

今回の受賞に際し、これまで多くのご指導、及びご援助を賜った日立粉末冶金株式会社、及び日産自動車株式会社の方々、並びに当協会の諸先生方に厚く御礼申し上げます。

文 献

- 1) 日本粉末冶金工業会編：焼結機械部品，技術書院（1987），279
- 2) The Metalworking Weekly STEEL, Oct.3(1966) 33
- 3) S.Altemeyer: Machine Design, (1975) May 15
- 4) 浅香一夫，早坂忠郎：粉体粉末冶金協会講演概要集昭和58年度春季大会，(1983) 70.
- 5) 浅香一夫，早坂忠郎：粉体粉末冶金協会講演概要集昭和58年度秋季大会，(1983) 44.
- 6) K.Asaka, T.Hayasaka: Metal Powder Report, 39 (1984) 347.
- 7) J.Sakai, K.Asaka: Proceedings of the 1986 International Powder Metallurgy Conference and Exhibition, (1986) 717.
- 8) 浅香一夫：粉体および粉末冶金 42 (1995)
- 9) 日本金属学会編：金属データブック改訂2版，(1984) 24.
- 10) H.Imazato, Y.Kishi, A.Fujiki, Y.Hirano, T.Uemura: Proceeding of 1993 Powder Metallurgy World Congress Kyoto, (1993) 467.