圧力制御型周期運動を用いたアルミニウム自発的溶融凝固接合におよぼす圧力および温度の影響*

川上 博士**, 児玉 聖也***

Effect of pressure and temperature on self-induced fusion solidification bonding of Aluminum
by pressure controlled periodic motion*

by KAWAKAMI Hiroshi** and KODAMA Seiya***

Isothermal fusion and solidification of bonding interfaces occur by the self-induced fusion solidification bonding. Reaction diffusion between base metal and insert metal obtains the phase transformation at the bonding interface. Aluminum oxide film between aluminum base metal and copper insert metal obstacles the reaction diffusion. The collision between the oxide film and the metals produces the fracture of the oxide film and the reaction diffusion of each metal. Higher bonding pressure increases the joint strength and the bonding area. The deformation of the bonding interface under the static loading condition and the compression depth of the periodic motion under the dynamic loading condition are increased also with the increase of the bonding pressure. Both of compression deformation and depth promote fracture of aluminum oxide film. Increase of bonding pressure decrease bonding temperature to improve the deformation resistance of aluminum base metal. Bonding temperature affects also the joint strength and the bonding area by the change of the coefficients of reaction diffusion. Suitable bonding pressure and temperature condition obtains high joint strength and bonding area.

Key Words: Aluminum, Bonding, Copper, Diffusion, Eutectic reaction, Fusion, Solidification, Periodic motion, Pressure control

1. 緒 言

接合界面に存在するアルミニウム酸化膜の接合阻害効果が大きいために、アルミニウム大気中接合を行うにあたっては接合プロセスに酸化膜除去過程が必要となる¹⁻⁶⁾。固相接合法では、表面酸化を抑制する目的で真空雰囲気^{7,8)}、酸化膜の化学的除去⁹⁾の利用が行われている。付加的な酸化膜成長抑制および除去を行わない環境負荷低減に配慮した大気中自発的溶融凝固接合では母材とインサートメタルからなる接合部の大気中等温溶融と等温凝固により接合を可能にする^{10,11)}。接合界面のマイクロ変形により分断された酸化膜は反応拡散により生じた溶融領域内を流動し、接合界面からの幾何学的消失が生じる。また、接合界面自体も溶融溶解と同じく消失する。ただし、アーク溶接部に比べ溶融領域は非常に小さくなる。このため、低荷重、小変形による接合条件の選択が可能である。銅インサートメタルを用いた場合には、アルミニウム母材に対して高融点インサートメタルであるため、固相界面における相互拡散による接合部の組成変化が起きない限り、接合部溶融は開始しない^{6,12)}。接合界面における相互拡散に必要となるアルミニウム酸化膜破壊は界面マイクロ変形により生じることが知られてい

る¹³⁻¹⁵⁾。このことより、接合面同士を周期的に衝突させることで効率的な酸化膜破壊促進が可能になることが予想される。周期運動の制御変数として、接合圧力と変位量が挙げられるが、変位制御を用いた場合には接合面同士の接触位置が移動すると、接合圧力が変動するため酸化膜破壊に大きな影響を与える接合面の接触状態が変動する。そのため、接合界面に与える最高圧力を制御変数とすることが有用である。また、最高圧力の増加が界面衝突をより強力なものとさせることで、酸化膜破壊すなわち接合プロセスをさらに促進させると予想される。しかしながら、適用する周期運動における最高圧力を増加させるときには、母材の高温変形抵抗を増加させるために接合温度を低下させる必要がある。接合温度の低下は相互拡散における拡散係数を減少させ、接合プロセスの進行に悪影響をおよぼす^{16,17)}。このように、接合プロセスの進行には、等温溶融および等温凝固を支配する相互拡散係数とその前提として必要な金属面接触を達成させる酸化膜破壊面積(接合面積)が関係する。それぞれ、接合温度と接合圧力が関係因子となる。そこで、本研究では自発的溶融凝固接合が実施可能な温度において、銅インサートメタルを用いたアルミニウムの大気中自発的溶融接合におよぼす接合圧力および接合温度の影響を調べた。

2. 実 験 方 法

供試材は母材として工業用純アルミニウム 1050($\phi 6$, $\ell=30$)、インサートメタルとして市販純銅箔(純度 99.96%,

*受付日 平成29年10月12日 受理日 平成30年3月12日

**正 員 三重大学 Member, Mie University

***学生員 三重大学大学院(現:三菱自動車工業株) Student member, Graduate School of Engineering, Mie University (Present address: Mitsubishi Motors Corporation.)

$\phi 6$, $t=50\mu\text{m}$)を用いた。接合面に対する前処理として湿式一方向研磨を行った。また、母材およびインサートメタルは互いの研磨方向が交差するように配置し、接合装置内で上下方向に設置した。Fig.1に示すように、試験片は電気炉内で平均加熱速度 1K/s により接合温度に昇温加熱した。加熱中は上部試験片に連結されたリニアアクチュエーター(最小分解能: $2\mu\text{m}$)を試験片下方に設置したロードセルからの信号とあらかじめ決めた接合圧力設定値によりフィードバック制御を行った。この圧力設定値は昇温および冷却においては一定接合圧力を保持するために、また周期運動においては最高接合圧力を制御するために用いられた。一定接合圧力下で接合温度に 50s 保持した後に、リニアアクチュエーターを用いて周波数 1Hz の周期運動を接合界面に与えた。上部試験片の降下により下部試験片に与えられた接触圧力測定値が圧力設定値に到達した時、フィードバック制御により運動方向は反転し、上部試験片を決められた高さ $320\mu\text{m}$ まで引き上げた。引上げ動作が完了すると再び降下が始まり同様の接合圧力制御により、周期運動を繰り返した。本接合実験の冷却過程においても、加熱過程と同様にリニアアクチュエーターは定接合圧力状態を維持するよう動作させた。本研究では、温度 $853\text{K}\sim 873\text{K}$ 、接合圧力設定値 $0.5\text{MPa}\sim 1.25\text{MPa}$ および接合温度での保持時間 $100\text{s}\sim 1000\text{s}$ の範囲で接合実験を実施した。接合温度における荷重および変位履歴をデーターロガーにて 10ms 間隔で記録した。なお、本実験では試験温度において試験片長手方向

の長さ変化を示す変位が 1mm 程度を超えた場合は加圧による不適当な変形が発生したとみなし、実験を中断した。Fig.2に本接合プロセス初期における変位履歴および接合圧力履歴の一例を示す。いずれの接合条件においても周期運動における最高接合圧力は、制御の遅れから定接合圧力時の圧力値にくらべて大きな値を示した。継手強度は引張試験により評価した。接合面積の測定においては接合部溶融による形成される押出部を除いた原断面積内を測定範囲とした。破断面の顕微鏡観察では非接合面に未破壊の酸化膜および未拡散反応領域の存在を確認した。得られた接合面積と原断面積との比を接合面積率とし、これを酸化膜破壊の進行度に関するパラメータとした。

3. 実験結果

Fig.3およびFig.4に接合実験結果および破断面の一例を示す。接合温度 853K の場合、Fig.3(a)に示すように接合時間 400s の時点では、いずれの圧力条件においても接合を開始させることができなかった。Fig.4(a)にこの時間範囲における典型的な破断面を示す。観察面全体において観察されたのは銅インサートメタル表面であり、アルミニウムとの反応拡散による合金形成の痕跡は認められなかった。 500s 以降では、接合圧力によっては接合強度が得られるようになった。接合開始時間は、高圧力条件で短時間となった。また、高圧力条件になるほど短時間で大きな接合面積が得

Fig.1 Histories of experimental parameters.

Fig.2 Examples of displacement and bonding pressure at initial period of periodic motion.

Fig. 3 Experimental results of joint strength and bonding area ratio.

られることが分かった。継手強度に関しては、Fig. 3(c)に示すように高圧力条件では図中点線で示す母材強度58MPaに比べて50%程度の接合強度が得られた。接合面積に関する結果と同様に低接合圧力条件では、接合時間の延長にともなう接合強度の増加は認められなかった。Fig. 4(b)はこの時間範囲における破面の一例で、破面の一部に黒色の酸化膜だけでなく銅インサート金属そのものが残存していることが分かった。接合温度873K、600sにおける観察結果(Fig. 4(c))との比較からインサート金属全面が反応拡散により溶融していないことから、本観察結果は接合温度低温化による相互拡散係数の低下にともない、接合プロセス進行速度が低下したことを示していると考えられる。

接合温度873Kの場合、接合時間100sより接合面積が得られ、接合圧力設定値0.85MPa以上の接合条件では接合時間の増加とともに接合面積は増加した。また、接合面積率は接合圧力に比例する傾向を示した。継手強度に関しても接合圧力設定値1.05MPaおよび1.25MPaでは接合面積と同様に接合圧力の増加とともに継手強度が大きくなる傾向が見られた。なお、接合面積が増加したにも関わらず継手強度(真応力)が低下するのは脆弱な金属間化合物相(Al_2Cu もしくは AlCu)の影響と考えられる¹⁸⁾。1.25MPa、700sにおいて得られた最大継手強度は56MPaとなり母材強度の約95%となった。これはインサート金属厚さ100 μm により定接合圧力条件(893K、1.05MPa、10K/s、500s)下で得られた継手強度56.3MPa¹⁵⁾とほぼ同じ値であった。酸化膜破壊に

(a)853K, 1.25MPa, 400s

(b)853K, 1.25MPa, 800s

(c)873K, 1.25MPa, 600s

Fig. 4 Fracture surfaces at each bonding condition.

は破壊に必要な変形を与えるインサート金属/母材界面のマイクロ変形が重要であり、十分なマイクロ変形量を確保するためにはインサート金属自体の厚さはある程度の厚さが必要かと考えられたが、本実験結果より、周期的高圧力条件を用いることで接合に必要なインサート金属厚さを低減できる可能性が示された。同様に、接合温度も低減できる可能性が示された。一方、0.85MPaに関しては高圧力条件で得られた接合面積と継手強度との比例関係から予想される継手強度に比べて実際の継手強度は低い値を示すこととなった。この強度低下は接合部で生成された脆弱な金属間化合物相の接合強度への悪影響^{15,18)}の他に接合面積不足から未接合部により形成される接合部に対する楕円状切欠の長軸が増加することによる切欠(接合部外周)先端での応力集中係数の増加によりもたらされたものと考えられる。また、高圧力条件にくらべて強度上昇が緩やかであることから低圧力条件では金属間化合物相の分解のための相互拡散による濃度均質化が遅れることが示唆される。ただし、拡散進行度に対して接合圧力がこのような影響を与えることができるのかは不明である。

Fig.5 は接合圧力 1.05 MPa における接合温度 873 K 到達時点（接合時間 0 s）での接合界面に関する電子顕微鏡観察結果とそれらの結果に基づいて作成した模式図を示す。本観察条件では Fig.3 より接合プロセス開始時期の接合界面における生成相の存在形態を観察したことになる。上部試験片の一部に共晶組織（ $\alpha + \text{Al}_2\text{Cu}$ ）が観察されたことから、この領域が接合プロセスの進行により接合温度で溶融した領域であることがわかった。アルミニウム濃度の高い溶融部先端では、共晶組織の他に多数のアルミニウムの α 相の生成も確認することができた^{6,15}。Fig.5(a) の SEM 観察結果において、銅インサート金属上表面近傍に逆ハの字形状を呈する膜についてアルミニウム、銅および酸素を対象とした EPMA 面分析結果を Fig.5(b) に示す。大気中加熱された Al/Cu 界面では成長した銅酸化膜がアルミニウム酸化膜に変化することが知られている^{6,15}。本分析結果は逆ハの字形状膜は同様に变化したアルミニウム酸化膜であることを示した。また、銅インサート金属下表面位置では銅酸化膜が部分的にアルミニウム酸化膜に変化していることがわかった。銅インサート金属上表面に生成したアルミニウム酸化膜（Fig.5(a) 内矢印）は中央付近で分断されていることが分かった。この溶融領域中央付近の分断された狭小領域を通してアルミニウムと銅の相互拡散が生じ、接合界面において溶融が生じることが観察された。ただし、酸化膜は一カ所において分断され、このような顕微鏡組織変化を与えているものの酸化膜自体は連続的な形状を示している。金属/アルミニウム酸化膜間の強度は非常に小さく、継手強度を発現する接合部としてみなすことはできない。すなわち、銅インサート金属上方では接合部の溶融は生じているが、Fig.5(a) において観察される溶融接合界面の大半が未接合部である。銅インサート金属下方では接合プロセスの進行による溶融がおきていないため、インサート金属下表面では Fig.4(a) と同様の表面が観察される。このため、Fig.3(b) および (d) に示すように、接合面積率および継手強度はいずれもゼロとなった。Fig.5(a) および (b) における観察結果とこれまでに得られた知見^{6,15,19}をもとに作成した模式図を Fig.5(c) に示す。界面変形により生じたインサート金属上表面のア

ルミニウム酸化膜の分断が起き、上部試験片 (Al) とインサート金属 (Cu) との反応拡散により溶融領域が生成された。溶融領域底面に位置する酸化膜に関しては銅酸化膜からアルミニウム酸化膜への部分的な変化は起きているが、この時点では酸化膜の分断が起こっておらず、酸化膜の拡散阻害効果により溶融領域と下部試験片との反応拡散は生じていない。また、最初期では酸化膜内に円盤状の破壊が起こりインサート金属部に生じる溶融領域の形状は半球状となるが、本溶融領域の形状はインサート金属厚さ方向における溶融進行速度が等しくなった円柱状を呈した。インサート金属上端および下端位置における反応拡散に関して、Fig.5(a) に示した酸化膜の幾何学的変化により分断個所からの両位置への溶質 (Al) 移動距離がほぼ等しくなることおよびインサート金属厚さ 50 μm の範囲における厚さ方向の温度変化がなく両位置での相互拡散係数が等しくなっていることが推測され、前述した酸化膜による拡散阻害が組み合わされることで円柱状の反応拡散層が形成されたと考えられる。

4. 接合条件の影響

4.1 静的接合圧力

本接合実験では Fig.1(c) および Fig.2(b) に示したように、昇温開始から接合温度到達時（接合時間 0 s）から 50 s までの時間において、接合圧力が定圧力状態になるように制御を行った。Fig.6 に接合温度 873 K 到達時点 (0 s) における接合面中心付近の断面形状を示す。なお、この時点では Fig.3(a) に示したように接合面積率はゼロである。そのため、本図が示す断面形状は接合プロセス開始前の接合界面形状を示している。接合圧力が増加するにつれて、接合界面マイクロ変形により凹凸部の高低差が大きくなった。また、接合圧力 1.25 MPa においては、高低差がサブミリメートルオーダーまで大きくなるとともに長周期のうねり形状となる界面変形も新たに生じることがわかった。高接合圧力による界面変形の増加傾向と接合強度の増加傾向は一致した。すなわち、接合界面とともに表面酸化膜が変形することで、酸化膜破壊すなわち接合プロセスが促進されるものと考えられる¹⁵。

Fig.5 Electron microscopic observations and schematic diagram of cross section area of bond at initial bonding period; 873 K, 1.05 MPa, 0 s.

Fig.6 Change of cross-sectional shape by bonding pressure at bonding time of 0s.

4.2 動的接合圧力

周期運動中に得られた荷重および変位履歴から、接合界面圧縮過程において接合界面に与えた変形エネルギーと変形量を求めることができる。変形エネルギー(J)は1回の周期運動において接合界面圧縮が開始した(測定荷重値がゼロ以上になる)時点から荷重(N)–変形量(m)曲線が描く面積を逆向きの変位になる時点まで積算することで得た。本論文では最長接合時間(700sもしくは1000s)までのエネルギーの平均値を用いた。Fig.7に各接合条件において得られたエネルギーおよび圧縮変形量の平均値と接合圧力設定値との関係を示す。Fig.7(a)に示すように変形エネルギーは接合圧力および接合温度の増加とともに増加した。また、本実験温度範囲では、接合圧力がエネルギー増加に対して大きな寄与度を持つことがわかった。

また、Fig.7(b)に示すように変形量は圧力値1.05MPaまでは接合圧力および接合温度の増加とともに顕著に増加したが、1.05MPa以上においても変形量の大きな増加はおきなかったが、Fig.7(a)に示したように圧縮エネルギーは増加した。また、低接合強度を示した接合温度853Kの低接合圧力条件において低い変形量を示した。これらの実験結果とFig.3に示す接合実験結果と比較すると、圧縮エネルギーと圧縮変形量が大きい接合条件すなわち、高接合圧力条件において接合面積の大きい継手が得られることが分かった。接合温度853K、接合圧力0.85MPaと1.05MPaで得られた結果の比較により圧縮変形量と接合結果に密接な関係性が見られ

Fig.7 Effect of bonding pressure on compression energy and depth.

Fig.8 Effect of bonding temperature on diffusion coefficients.

た。動的圧力条件に関しても前項で述べた静的圧力条件と同じく接合界面変形を与えることで酸化膜破壊を促進することがわかった。さらに、適正な界面変形量が得られる条件では、変形エネルギー(最高荷重)が酸化膜破壊に影響を与えることが分かった。

4.3 接合温度

本実験では、接合温度を低下させることで変形抵抗性を増加させ、付与可能な接合圧力を増加させた。その反面、温度低下にともない相互拡散係数が減少することで接合プロセスを阻害することが予想された。温度低下にともない拡散係数の変化を、Fig.8に示す。図中の相互拡散係数は $D_{\text{Cu in Al}}$ がアルミニウム中の銅の拡散係数を、 $D_{\text{Al in Cu}}$ が銅中アルミニウムの拡散係数をそれぞれ示している。 $D_{\text{Al in Cu}}$ にくらべて $D_{\text{Cu in Al}}$ の方が大きい。すなわち、アルミニウム母

材への銅の拡散が銅インサートメタルへのアルミニウムの拡散よりも速く進行する。この相互拡散係数の差異は Fig.5 に示したようにアルミニウム母材の溶融が銅インサートメタルの溶融よりも速く進行する現象を引き起こす形でも接合プロセスに影響を与える。図では各温度での拡散係数と温度 893 K での拡散係数との比である拡散係数比を用いた。温度 873 K において相互拡散係数はおおよそ半減した。しかしながら、本実験では Fig.3 に示したように 873 K における最高強度は 56 MPa すなわち母材強度の約 95% の値を示し、良好な結果が得られた。これは酸化膜破壊に必要な界面変形を平易にさせる厚いインサートメタル ($t=100\mu\text{m}$) を使用し、酸化膜成長抑制と相互拡散係数増加を与える加熱条件 (893 K, 1.05 MPa, 10 K/s, 500 s) を用いた継手強度 56.3 MPa¹⁵⁾ とほぼ同じ値であった。本結果より酸化膜が障壁となるアルミニウムの大気中自発的溶融凝固接合において、接合温度の低下にともなう接合プロセス阻害効果があっても接合圧力の増加にともなう接合プロセス促進効果の方が大きい場合にインサートメタル使用量低減、接合温度低温化が可能となり接合性が改善されることが明らかとなった。

5. 結 言

圧力制御型接合界面周期運動を用いたアルミニウムの大気中自発的溶融凝固接合における接合圧力および接合温度の影響を検討した結果、以下のことが分かった。

- 1) 周期運動に用いる接合圧力値を増加させると得られる接合強度が増加した。継手効率は約 95% が得られた。
- 2) 接合圧力値を増加させるとインサートメタルを薄くすることができ、インサートメタル使用量の低減が可能であることがわかった。
- 3) 昇温時の定接合圧力状態で用いる接合圧力値を増加させると、接合プロセス開始前の接合界面変形が大きくなることがわかった。
- 4) 周期運動制御に用いる接合圧力値の増加は接合界面に与える変形エネルギーと変形量を増加させることがわかった。
- 5) 昇温時の定接合圧力値および周期運動時の接合圧力値の増加は酸化膜破壊を進行させ、接合プロセスの促進に寄与することが明らかとなった。
- 6) 接合温度すなわち相互拡散係数の低下による接合プロセス阻害効果より接合圧力の増加による促進効果の方が大きい場合に接合性が改善された。

謝 辞

本研究は JSPS 科研費 15K06464 の助成を受けたものです。

参 考 文 献

- 1) H.A. Mohamed, J. Washburn: Mechanism of Solid State Pressure Welding, *Welding Journal*, Vol.62, No.4(1975), 302s-309s.
- 2) O. Ohashi, T. Hashimoto, Study on Diffusion Welding (Report 1), *Journal of the JWS*, Vol.45, No.1(1976), 76-81(in Japanese).
- 3) T.Enjo, K. Ikeuchi, N. Akikawa: Effect of Oxide Film on the Early Process of Diffusion Welding, *Journal of the JWS*, Vol.51, No.3(1982), 272-279 (in Japanese).
- 4) O. Ohashi, K. Tanuma, K. Yoshihara: Auger Microanalysis of Surface Film on Diffusion Welded Interface, *Quarterly Journal of the JWS*, Vol.3, No.1(1985), 152-158 (in Japanese).
- 5) T. Watanabe, H. Sorita, A. Sutoh, A. Yanagisawa, O. Ohashi, S. Sato: Eutectic Bonding of Al Pipe to Cu Pipe, *Quarterly Journal of the JWS*, Vol.16, No.1(1998), 35-44 (in Japanese).
- 6) H. Kawakami, J. Suzuki, J. Nakajima: Bonding Process of Al/Cu Dissimilar Bonding with Liquefaction in Air, *Quarterly Journal of the JWS*, Vol.25, No.1(2007), 51-58 (in Japanese).
- 7) D. Hauser, P.A. Kammer, J.H. Dedrick: Solid-state Welding of Aluminum, *Welding Journal*, Vol.53, No.1(1966), 11s-22s.
- 8) O. Ohashi, K. Sasabe: Effect of Welding Atmosphere on Mechanical Properties of Diffusion-welded Joint, *Quarterly Journal of the JWS*, Vol.6, No.1(1988), 98-103 (in Japanese).
- 9) Japan Welding Society: 溶接・接合便覧, Maruzen(2003), 981-991(in Japanese).
- 10) Y. Natsume, K. Ohsasa, Y. Tayu, T. Momono, T. Narita: Numerical Modeling of the Transient Liquid-phase Diffusion Bonding Process of Al Using Cu Filler Metal, *ISIJ International*, Vol.43, No.12(2003), 1976-1982.
- 11) Y. Imae, K. Kimura, H. Kawakami, J. Suzuki: Evaluation of Cu, Zn and Sn for Al bonding in Air, *Journal of Light Metal Welding & Construction*, Vol.46, No.11(2008), 518-522(in Japanese).
- 12) K. Nishiguchi, Y. Takahashi, A. Seo: Formation Mechanism of Liquid Phase by Reaction Diffusion during Diffusion Bonding, *Quarterly Journal of the JWS*, Vol.8, No.1(1990), 336-342 (in Japanese).
- 13) O. Ohashi, K. Tanuma, T. Kimura: Behavior of Oxide Film on Intimate Contact Zone of Diffusion Weld, *Quarterly Journal of the JWS*, Vol.4, No.1(1986), 53-59 (in Japanese).
- 14) Y. Takahashi, T. Koguchi, K. Nishiguchi: Effect of Bulk Deformation on Viscoplastic Adhering Process =A Numerical Study of Solid State Pressure Welding, *Journal of Engineering Materials and Technology*, Vol.115, No.4(1993), 171-178.
- 15) H. Kawakami, Y. Imae, J. Suzuki: Effect of Bonding Conditions on Vacuum Free Self Fusion Solidification Bonding of Aluminum, *Journal of Light Metal Welding & Construction*, Vol.50, No.11(2012), 312-319(in Japanese).
- 16) Y. Funamizu, K. Watanabe: Interdiffusion in the Al-Cu System, *Transactions of the JIM*, Vol.12, No.3(1971), 147-152.
- 17) Y. Du, Y.A. Chang, B. Huang, W. Gong, Z. Jin, H. Xu, Z. Yuan, Y. Liu, Y. He, F.Y. Xie: Diffusion Coefficients of Some Solutes in fcc and Liquid Al, *Material Science and Engineering A* 363(2003), 140-151.
- 18) O. Ohashi, T. Hashimoto, Study on Diffusion Welding (Report 1), *Journal of the JWS*, Vol.45, No.7(1976), 590-597(in Japanese).
- 19) H.Kawakami, M. Fujiwara, N. Nakanima, T. Kawabe, J.Suzuki: アルミニウムと銅の大気中拡散接合の影響因子, 第75回界面接合研究委員会資料, IJ-6-07(2007), 1-23.