爆発圧接境界の熔融層の研究(第1報)*

石井 勇五郎** 恩 沢 忠 男**
生 沼 利 亮*** 村 越 誠***A Study of Fusion Layer in Explosive Bonded
Boundary (Report 1)*by Yugoro Ishii**, Tadao Onzawa**, Toshiaki Oinuma*** and
Makoto Murakoshi***

Abstract

Dissimilar metals were bonded by using linear explosive and the constitution of fusion layer of bonded boundary was determined by X-ray microanalyser. The combination expected to form an intermetallic compound was estimated by X-ray diffractometer. The following results were obtained:

1) The fusion layer of combination (Ag-Cu, Cu-Ni, etc.) which was expected to make eutectic reaction or produce a solid solution formed a uniform solid solution.

2) The combination giving an intermetallic compound in equilibrium diagram was investigated by X-ray diffractometer. It was ascertained from X-ray diffraction pattern that the fusion layer consisted of an intermetallic compound. To determine the variety of intermetallic compound was difficult, because X-ray diffraction line was weak. An intermetallic compound of which the constitution resembled the experimental constitution of fusion layer was formed.

3) The fusion layer expected to fuse and mix existed on the bonded boundary of Ag-Fe in a un-solid solution (photo. 8), but the constitution was uniform.

1. ま え が き

爆発圧接の研究は最初火薬の非常に大きい爆圧によって生ずる金属の高速の挙動を非粘性、非圧縮流体として扱ったときに導入された金属の理論から発展し¹⁾、その後金属の高圧時の体積変化を表わす Hugoniot 曲線を用いて、金属の流れの中に発生する衝撃波の理論から、圧接可能な条件がみいだされた²⁾³⁾。

現在では圧接機構の理論的な研究以上に、火薬と設定条件の技術的な研究が発達して、工業的にもその圧接境界部に熔融層をほとんど含まず、じゅうぶん強い圧接が行なわれるようになった⁴⁾。圧接を生ずる因子となるいろいろの現象に関する基礎的な研究はまだ少ないが、圧接境界部の金属組織を明らかにすることは最近さかに行なわれるようになり、境界層に生成される合金の組成に関して少しずつ明らかになった³⁾⁴⁾。圧接境界部は熔融層を伴わず直接接合している部分と、複雑な熔融層(合金層)を伴う部分にわけて考えられるが、この実験は圧接境界部を研究する目的で、圧接境界に熔融層が生

じた試料について、その熔融層の組成や、その熔融層の中にみられる金属間化合物について、X線マイクロアナライザー、X線回折などにより検討した。

2. 実験方法

試料は Ag, Al, Cu, Fe, Ni, Ta, Ti, Zr の金属を二元平衡状態図からいろいろの場合を仮定して組合せをつくり、比較的熔融層のしやすい設定条件のもとで、線圧接を行なった。板厚は Ta のみ 0.4 mm ではかは 1.0 ~ 2.0 mm を使用した。

圧接境界部の熔融層の組成とその結晶組織の決定を行なった。熔融層の組成の決定は、試料の圧接境界部を斜めに切断して、X線マイクロアナライザーによる濃度分布曲線を取り、また反射電子線像、吸収電子線像、特性X線像を撮影した。また接合している金属のいっぽうを機械研磨や化学研磨で除去し、熔融層の幅を広くしてX線回折像をとった。その解析により熔融層の金属間化合物を決定した。

X線マイクロアナライザーによる濃度分布曲線から真の濃度を知るためには、補正を必要とするため熔融層の組成の平均値を決定する際には、質量吸収効果と原子番号効果の補正を行なった。

* 原稿受付 昭和44年1月24日(42年度秋季全国大会に発表)

** 正 員 東京工業大学 Member, Tokyo Institute of Technology

*** 東京工業大学 Tokyo Institute of Technology

X線回折による回折線の同定は ASTM カードによった。それには同じ形の金属間化合物に対していくつかの異なった回折線が記載してあるが（たとえば γ -CuTi, δ -CuTi など）それらを区別せず、 δ , γ などの記号は省略して化合物の形（たとえば CuTi）だけ書いた。

3. 実験結果および考察

溶融層を斜めに切断した試料について、その境界層の組織と溶融層の組成を、顕微鏡観察、X線マイクロアナライザーによる濃度分布およびX線回折像などで調べた金属間化合物について以下にその結果を述べる。

1) 固溶体を有する組合せ

1-1) Ag-Cu (共晶系)

Photo. 1 に顕微鏡写真 (a) と X 線マイクロアナライザーによる吸収電子線像 (b) を示す。(斜めに切断して試料の接合境界部の観察を行ないやすくしたために

波状境界が一定の周期を持って現われ Cu 相がとびとびになっている。Photo. 4 を除いてほかの写真も同じである。切断面は圧接境界面にほとんど平行で数度以内の角である) 顕微鏡写真では黒い Cu 相のまわりの溶融層ははっきりしないが、吸収電子線像では白い Cu 相に接して灰色の溶融層がみられる。この写真の溶融層内では固溶体相を形成していると考えられる。X線マイクロアナライザーによる線分析によれば、その組成は29~49% Cu のばらつきをもっている。(補正平均組成 38%Cu) X線回折像では Cu と Ag の線のみであった。

1-2) Cu-Ni (全率固溶系)

この系は以前からよく研究されており、その溶融層の組成は圧接条件に関係なく $60 \pm 5\% \text{Cu}$ とする報告がある。⁴⁾ Photo. 2 に圧接境界の顕微鏡写真 (a) と X 線マイクロアナライザーの $\text{NiK}\alpha$ 特性 X 線像 (b) を示す。顕微鏡写真では溶融層ははっきりしないが、 $\text{NiK}\alpha$

Photo. 1 (a) The structure of explosive bonded layer of Ag-Cu
(b) The absorbed electron photograph in same situation of (a)

Photo. 2 (a) The structure of explosive bonded layer of Cu-Ni
(b) The $\text{NiK}\alpha$ specific X-ray photo graph in same situation of (a)

Fig. 1 Copper concentration curve of fusion layer of Cu-Ni (agree with black line in photo. 2)

特性X線像では白い Ni 相に隣接して熔融層がみられる。顕微鏡写真の中の黒い線はX線マイクロアナライザーによる線分析の跡で、熔融層の近くの CuK α 線の線分析の結果を Fig. 1 に示す。Fig. 1 の 20 μ から 30 μ における 55~65%Cu が熔融層の部分に相当している。(補正平均組成 56%Cu) Photo. 2 (b) では Ni 相, Cu 相と熔融層ははっきり分離しているとみられるが, Fig. 1 ではその境界線は濃度勾配がゆるやかである。

1-3) Ti-Zr (全率固溶系)

顕微鏡写真を Photo. 3 に示す。Ti と Zr の間に熔融層がみられる。大部分の組合せでは熔融層は急冷によると考えられる不均一な組成になっているが、この Ti-Zr の組成は 47%Ti と比較的均一な組成をなしている。

Photo. 3 The structure of explosive bonded layer of Ti-Zr

1-4) Cu-Fe

平衡状態図では Cu と Fe の固溶体とその中間の混合した相からなっている。熔融層の組成は 67~72%Cu (補正平均組成 70%Cu) である。

2) 金属間化合物を有する系

固溶体のみあらわれると考えられる系と比較して、平衡状態図で金属間化合物相のあらわれる系は、圧接境界

に、もろい化合物のできる可能性が高い。これらの系の熔融層は大部分X線回折像の解析から、かなり弱い金属間化合物の線が認められる。これらの線の強度は弱くいずれの試料についてもはっきり固定できない。熔融層の生成が短時間、非平衡状態で行なわれたことを考えると、金属間化合物の存在を確実に決められないにしても、不規則格子をしたこれらの相(規則格子の存在の可能性はほとんどないと思われる)がわずかでも存在している可能性はあるといえる。以下それらの系についてその結果を述べる。

2-1) Ti-Ni

Photo. 4 は接合境界に垂直に切断した断面写真で境界の白い相が熔融層である。その組成は 60~80%Ni (補正平均組成 76%Ni) とかなり不均一である。Fig. 6 (a) は接合面に平行に Ti を取り去った境界のX線回折

Photo. 4 The structure of explosive bonded layer of Ni-Ti

像の写真である。Ti のもっとも強度の大きい回折線は (011) 面の 2.24 Å の線であるが、この線が Fig. 6 (a) に存在したとしても非常に弱い、このため Ti のほかの線はないとみられる。Ni のもっとも強い線は (100) 面の 2.03 Å の回折線であるが、これが Fig. 6 (a) の 2.07 Å の線に相当するとみてよい。1.75 Å, 1.24 Å の線が Ni による回折線とすると残った線はほぼ Ni₃Ti と NiTi₂ の線に相当する。この中でもっとも強い 1.99 Å の線は Ni₃Ti (78.6%Ni) の最強の線 1.95 Å になると考えられる (Ni の最強の線 2.03 Å が 2.07 Å の回折線に致一するとして修正すれば、その差 0.04 Å を 1.99 Å から引くと 1.95 Å と修正される) また Ni₃Ti のほかの線もほぼ一致する。NiTi₂ (38.0%Ni) の線もかなりよくあっているが、その回折線の相対強度がかなり異なり、熔融層の組成が 76%Ni であることなどから存在の可能性はうすいと思われる。したがってこの熔融層には Ni₃Ti の相の方が存在していると考えられる。

以下の組合せについても同じ方法で金属間化合物の存在の可否を判定した。

2-2) Ti-Cu

Photo. 5 に顕微鏡写真を示す。溶融層が境界にみられる。Fig. 2 は $\text{CuK}\alpha$ 線の線分析結果を示す。その組成は 68~75%Cu (補正平均組成 71%Cu) ここでは溶融層内の組成は比較的均一である。X線回折像によると、 CuTi とそれによく似た回折線をもつ Cu_3Ti との可能性が高く、その溶融層の組成からみるとそれぞれの金属間化合物が混合して存在していると考えられる。

Photo. 5 The structure of explosive bonded layer of Ti-Cu

Fig. 2 Copper concentration curve of fusion layer of Ti-Cu (agree with black line in photo. 5)

2-3) Ti-Fe

この系は実用上よく使用される。溶融層の組成は33~40%Ti (補正平均組成 34%Ti) である。Fig. 6 (b) は Ti を取り去った溶融層のX線回折像で Fe と Ti に該当する強い線を除くと Fe_2Ti が強い $2.00\text{\AA}$ (100) とほかの強い線に一致する。 Fe_2Ti (30.0%Ti) は組成から考えて溶融層に存在していることは確定的である。

2-4) Ni-Zr

Fig. 6 (c) は Ni を除いた溶融層のX線回折像である。Zr と NiZr , Ni_5Zr との線は重複する部分が多いが

$2.03\text{\AA}$ の線は Zr の線ではなく、 NiZr あるいは Ni_5Zr の線に相当するため、そのいずれかあるいは両方が溶融層に存在していると考えられる。

2-5) Ni-Ta

溶融層のX線回折像では Ta, Ni の線しか該当しないが、その組成が 78%Ta になることから NiTa (76%Ta) の相が存在していることも考えられる。

2-6) Fe-Ta

溶融層の組成に大きなばらつきがあるため均一な单相をなしていない (補正平均組成 77%Ta) Fe_2Ta が存在しているという報告がある⁴⁾。

2-7) Cu-Ta

Photo. 6 に境界層の顕微鏡写真を示す。この写真では溶融層の存在がはっきりしない。しかし Fig. 3 に示した $\text{TaL}\alpha$ 線の線分析曲線では 30~40%Ta に部分的に均一な組成を示す溶融層がある。(補正平均組成 37%Ta) X線回折像では Cu と Ta の線だけである。

2-8) Al-Cu

Photo. 7 に境界層の顕微鏡写真を示す。中間の白い相が溶融層である。斜めに切断してあるためかなり幅広

Photo. 6 The structure of explosive bonded layer of Ta-Cu

Fig. 3 Tantalum concentration curve of fusion layer of Ta-Cu

Photo. 7 The structure of explosive bonded layer of Al-Cu

Fig. 4 Copper concentration curve of fusion layer of Al-Cu

く存在しているが、垂直に切断すると幅はかなり狭い。Fig. 4 に $\text{CuK}\alpha$ 線の線分析曲線を示すが、70~80%Cu の組成をなしている。(補正平均組成 68%Cu)
Fig. 6 (d) は Al を取り去った溶融層の X 線回折像で Cu を除いたあとの線は Al_2Cu と Al_4Cu_9 に相当するが、線の一致の程度とその強度比の点で Al_4Cu_9 の方が可能性は高い。しかし組成が 68%Cu であるため Al_4Cu_9 (84.1%Cu) のみ存在しているといえないが、 Al_2Cu (54.2%Cu) など結晶構造のよく似た相との混合ということが考えられる。

2-9 Al-Fe

溶融層の組成は 61~64%Al (補正平均組成 63%Al) である。X 線回折像から Fe と Al の回折線とみられる線を除くと、 $1.77\text{ \AA}$ 、 $1.25\text{ \AA}$ 、 $1.06\text{ \AA}$ の線が残る、これは Al_5Fe_2 に一致する。 Al_3Fe は Fe と回折線の重なるものが多いが、 $1.77\text{ \AA}$ 、 $1.25\text{ \AA}$ の線は対応している。 $1.06\text{ \AA}$ の線は対応しない、この線は Al_5Fe_2 の回折線とみられる。しかしこれだけではどちらが存在しているかは判定できないが、 Al_5Fe_2 (54.6%Al)、 Al_3Fe (59.2%Al) のいずれも溶融層の組成に近いことから、両方ある

いはどちらかが存在していることは確かである。 Al_2Fe があるとする報告もある⁵⁾。

2-10 Al-Ni

X 線回折像の観察から Al_3Ni_2 、 Al_3Ni など可能性が高い。溶融層の組成が 55~68%Al (補正平均組成 5.7%Al) であるため Al_3Ni (58.0%Al) の組成に近く、その中に Al_3Ni_2 (40.8%Al) がいくらか存在しているかもしれない。

2-11 Al-Ti

溶融層の組成が 53~62%Al (補正平均組成 57%Al) であるのでそれから TiAl_3 (62.8%Al) の存在が考えられる。

3) 完全不固溶な系

3-1 Ag-Fe

この系は状態図的に完全に不固溶なものとされているが、接合境界には溶融層が認められる。この組織の顕微鏡写真と、同じ部分の X 線マイクロアナライザーの反射電子線像、および $\text{FeK}\alpha$ 線像を Photo. 8 (a)(b)(c) に示す。顕微鏡写真で中間にみられる少し黒い相が溶融層である。Fig. 5 に示した線分析曲線からその組成は

Fig. 5 Silver concentration curve of fusion layer of Ag-Fe (agree with black line in photo. 8(a))

一定値を示さず、60~90%Ag のばらつきをもってゐる。(補正平均組成 89%Ag) また反射電子線像によると Fe と Ag の中間にみられる溶融層では Ag の中に Fe が点状に分散しているのがみられる。X 線回折像にも Ag と Fe の線しか観察されなかった。したがって不固溶な系であるから Ag の中に Fe が小さい粒としてあらわれた不均一混合相と考えられる。

3-2 Ag-Ni

17~41%Ni (補正平均組成 27%Ni) のばらつきがあることから Ag-Fe と同じ不均一混合相と考えられる。

Photo. 8 (a) The structure of explosive bonded layer of Ag-Fe
(b) The reflected electron photograph in same situation of (a)
(c) The FeK α specific X-ray photograph

Fig. 6 The X-ray pattern of fusion layer of (a) Ti-Ni, (b) Fe-Ti, (c) Ni-Zr and (d) Al-Cu.

4. 結 論

各種金属の組合せを用いて、線状爆発圧接を行ないその圧接境界部にできる溶融層の組織とその組成を測定した結果、次の結論を得た。

1. 平衡状態図から溶融層に固溶体が生成されると考えられる組合せでは、比較的均一な組成を有している。

2. 平衡状態図で金属間化合物がみられる組合せのうちかなりの組合せについて溶融層に金属間化合物がX線回折より存在することがみいだされた。しかしX線回折の回折線は非常に弱いので、金属間化合物の結晶形を決

めるのは困難であった。

3. まったく固溶しない Ag-Fe に対して接合境界にとけて混合した層が存在している。しかしその組成は不均一で Ag と Fe が粒状に混合していることがX線マイクロアナライザーの反射電子線像から考えられた。Ag-Ni でも同じであった。

5. 結 言

データの量が少なく、溶融境界層の組成のじゅうぶん解析が行なえなかったが、今後ともこの分野の研究はますます重要性を増すと考えられる。終りに試料を作っ

ていただきました旭化成工業株式会社の山本一元氏に深く感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) G. Birkhoff, D. P. MacDougall, E. M. Dugh and G. I. Taylor; J. Appl. Phys. 19, 563 (1948)
- 2) J. M. Walsh, R. G. Shreffler and F. J. Willing; J. Appl.

Phys. 24, 349 (1953)

- 3) G. R. Cowan and A. H. Holtzman; J. Appl. Phys. 34, 928 (1963)
- 4) A. H. Holtzman; Proceedings of a NATO Advanced Study Institute Organized Cent Institute for Industrial Research, p. 489
- 5) E. S. Wright and A. E. Bayce; Ibid p. 448

次 号 予 告

特 別 講 演

Portvin Lecture のテキスト邦訳

《溶接の物理学的ならびに金属学的な姿》……………斎藤 彝 人 訳

資 料

《海 洋 開 発》

海洋開発の最近の状況と今後のみとおし……………佐々木 忠 義

海洋開発用機器と構造物用鋼材……………{ 鈴木 春 義
岡 本 淳 二 郎

わが国における海洋機器の製作例

大型海洋構造物……………{ 有 田 行 雄
雨 宮 保 彦

潜水調査船……………寺 井 清

論文および報告

X線回折法によるアルミニウムの疲労変形の研究……………{ 仙 田 富 男
松 加 藤 光 昭

減圧気中のアーク溶接現象に関する研究(第2報)……………{ 山 本 利 雄
島 田 弥 弥

鋼材溶接継手の亜鉛浴加熱急冷による疲れ強さの改善(第3報)……………{ 益 本 光 功
岩 田 正 正

リン銅ろう合金による接合部の衝撃強さに関する研究……………{ 川 勝 一 郎
有 賀 正 正

X断面部材の溶接割れに関する研究(第3報)……………{ 森 脇 良 一
藤 野 真 之

シンポジウム

44年度春季全国大会シンポジウム論文

文 献 紹 介

研 究 速 報