相互溶解度とぬれ性と接合強さとの相関*

ろう付におけるぬれ性と接合強さについて(第二報)

渡辺 健彦** 岡根 功** 雀部 謙**

Relationship between Wettability, Bond Strength and Mutual Solubility*

—Wettability and Bond Strength in Brazing (2nd report) —

by Takehiko Watanabe** Isao Okane** and Ken Sasabe**

In this report, the relationship between wettability, bond strength and mutual solubility was discussed on the basis of experimental results shown in the previous report. Consequently, taking a microscopic view of bonded layer of brazed joint, it may be said that wettability has a close relation to mutual solubility and bond strength of brazed joint has also, that is, the greater mutual solubility is, the better wettability is and the larger bond strength is. So, it may be given as a conclusion that wettability and bond strength in brazing are related closely through a factor of mutual solubility between solid base metal and liquid filler metal.

1. 緒 言

前報¹⁾では、ろう付において基本的で重要である母材金属とろう材金属間の相互溶解度とぬれ性と接合強さとの関連を知るべく、種々実験を行い、その結果を示した。本報では、得られた実験結果に対して考察を加え、溶解度とぬれ性と接合強さについて論じる。

2. 相互溶解度と接合強さについての考察

前報で述べたように、相互に溶解度があり、中間相を形成しないろう材金属と母材金属との組み合わせにおいては、接合強さは大きく、中間相が形成される場合には、接合強さは非常に小さかった。また、平衡状態図上で相互溶解度がほとんどないと考えられている組み合わせにおいて、かなりの接合強さが見られた。

さて、接合境界部に中間相が形成される場合には、Fe-Znの組み合わせを始めとして、本実験のほとんどの場合、破断は母材金属と中間相の間に生じており、その接合強さは小さかったが、これは、母材金属と中間相との間の接合力が小さいということを意味しているものと思われる。前報に示したFe-Znの平衡状態図やFig. 1のFe-Sn³⁾、Fig. 2のCu-Cd³⁾およびFig. 3のNi-Sn³⁾の各平衡状態図を見て分かるように、Fe-Znの場合のFeと ϵ_1 相あるいは δ 相、Fe-Snの場合のFeと θ 相、Cu-Cdの場合のCuと ϵ 相やNi-Snの場合

のNiと δ 相というように、接合境界面に形成された中間相と母材金属との間には、ろう付温度において、相互に溶解度がないことから、接合部に形成された中間相格子と母材金属格子との間には不整合な状態がその大勢を占めていると考えられ、その間に作用する接合力としては、電子の介入によって生じる金属的な結合が少なく、代わりにファン・デル・ワールス力や偶発的に生じた機械的な噛合力の割合が多くなったと予想され、結果として母材金属と相互に溶解度のない中間相が形成される場合には、その間の接合強さは小さくなり、母材金属と中間相との界面で破断したものと考えられる。なお、中間相が形成された場合の接合力は付着型の接合力であろうということは石井⁴⁾によっても指摘されている。

従来示されている平衡状態図^{2,3)}上では、相互に溶解度がほとんどないと考えられるろう材金属と母材金属の組み合わせにおいて、かなりの接合強さがみられたが、これらの場合、実際には若干の溶解度のあることが指摘されており、現に実測されている。例えば、Fe中のAgは0.0004~0.0006 wt%，Cdは0.0002~0.0004 wt%と報告されている⁵⁾。このような極くわずかの溶解度に加え、ろう付現象は活性な清浄表面同士の間での反応であることから、さらに溶解度が増していることが考えられ、母材とろう材金属の表面近傍は固溶体が形成されていることが予想され、母材金属と相互に溶解度をもたない中間相が形成される場合よりも界面での金属的な結合が多くなっているものと思われる。

このようにして、界面を通しての双方間の相互溶解度

*原稿受付 昭和53年5月16日(昭和53年度春季全国大会にて発表)

**正 員 金属材料技術研究所 Member, National Research Institute for Metals

Fig. 1 Equilibrium phase diagram of Fe-Sn system

Fig. 2 Equilibrium phase diagram of Cu-Cd system

Fig. 3 Equilibrium phase diagram of Ni-Sn system

が増すにつれて、金属的結合も多くなり、前報で示した I グループ金属におけるような大きな接合強さになっていくものと推察される。

さて、相互溶解度の増大に伴ない、接合強さの増加が予想されるわけであるが、それでは、母材金属とろう材金属と相互に溶解度を有する中間相が形成された場合には、それら界面での接合強さは大きくなると予想される。例えば、Cu-Zn の場合がそれに相当するものと思われる。Fig. 4 はその接合部の組織であるが、 ϵ 中間相と γ 中間相が形成されており、破断はろう材内で生じ、中間相との界面での破断はみられなかった。これは Fig. 5 の Cu-Zn の平衡状態図³⁾からも分かるように、 ϵ 中間相、 γ 中間相と Cu 母材および Zn ろう材との間には、ろう付温度において、相互に溶解度が存在することから、これらの界面での整合性が増して金属的結合が多くなり、結果として接合強さが大きくなり、ろう材金属

Fig. 4 Microscopic structure of bonded layer of Cu-Zn system (×240)

Fig. 5 Equilibrium phase diagram of Cu-Zn system

Fig. 6 Equilibrium phase diagram of Cu-Al system

Fig. 7 Equilibrium phase diagram of Fe-Al system

よりも強くなったために、ろう材内破断になったものと思われる。

さらに、接合部に形成された中間相と母材、ろう材金属との間の溶解度や中間相間の溶解度の有無によって、界面での接合強さが大きく変化する好例として、Cu-Al と Fe-Al の組み合わせがある。

相互溶解度のある場合が Cu-Al の組み合わせで、その平衡状態図²⁾を Fig. 6 に示す。また、相互溶解度のな

Fig. 8 Changes of tensile strength due to development of intermediate phases at the bonded interfaces of brazed joints of Cu-Al and Fe-Al systems. Both Cu-Al(1) and Fe-Al(1) were not held at the melting temperature of filler metal. Both Cu-Al(2) and Fe-Al(2) were held at the melting temperature of filler metal.

い例として Fe-Al の組み合わせがあり、その平衡状態図²⁾を Fig. 7 に示す。双方の組み合わせにおいて、ろう材の融点直上まで加熱をして、保持をしない場合 (Cu-Al(1) および Fe-Al(1) に相当) と、30 sec 間保持をして接合面に中間相を顕著に発達せしめた場合 (Cu-Al(2) および Fe-Al(2) に相当) の接合強さの変化の様子を Fig. 8 に示す。これから分かるように、中間相と母材、ろう材金属間に相互溶解度のある Cu-Al の場合には、接合部での中間相の発達に伴い、接合強さのかなりの上昇がみられる。Fig. 9 に Cu-Al(1) の場合の破断面組織を示す。Al と θ 相の共晶部と白い θ 相が見られ、破断は θ

相と Cu 母材の界面で生じていた。Fig. 10 は Cu-Al(2) の場合である。写真の上部は Al と θ 相との共晶組織であり, 中央部には, この共晶組織に接して白くみえる θ 相と, Cu 母材に接して黒くみえる β 相, さらに, それに接して γ_2 相が存在している。なお, θ 相と γ_2 相との間には状態図からみると, さらに他の中間相が存在するようであるが, 明らかではない。この場合, 破断は, 中間相内で生じていた。

次に, 中間相と母材, ろう材金属間に相互溶解度がない Fe-Al の場合には, 接合部での中間相の発達に伴い, 接合強さの低下がみられる。Fig. 11 に Fe-Al(1) の場合の破断部の組織を示す。Al と θ 相の共晶組織がみられ, 破断はこの共晶部と Al ろう材部の境界部で生じていた。次に, Fig. 12 に Fe-Al(2) の場合の組織を示す。接合部には Al と θ 相の共晶組織, θ 相と η 相と ζ 相の混在組織, それに Fe 母材に接した ζ 相がみられる。破断は, θ 相と η 相との混在組織と Al ろう材の境界部で生じていた。

このように, 母材金属とろう材金属の接合部に中間相

が形成されても, 中間相と母材金属あるいはろう材金属との間に相互溶解度が存在する場合には, それらの界面での接合強さは大きくなり, 界面破断は生じないことが示されて, 相互溶解度の有無が, 接合強さの大小と密接な関係にあることが, これからも推察される。

以上のことから, 冒頭でも述べたように, 母材金属とろう材金属間に相互溶解度がありながら, 中間相が形成された場合には, 本実験における多くの組み合わせにおいてみられたように, その接合強さは小さかったが, これは, 中間相と母材, ろう材金属との間に相互溶解度が存在しないことに起因していると考えられ, 接合部をミクロに見て, そこに形成された中間相間あるいは, 中間相と母材, ろう材金属との間の界面を新たな接合界面と考えれば, 相互溶解度と接合強さとの間には密接な関係があるといえ, 相互溶解度の大きい場合, 接合強さは大きく, 逆に相互溶解度の小さい場合には接合強さは小さくなると言える。

Fig. 9 Microscopic structure of bonded layer of Cu-Al (1) system ($\times 240$)

Fig. 11 Microscopic structure of bonded layer of Fe-Al (1) system ($\times 240$)

Fig. 10 Microscopic structure of bonded layer of Cu-Al (2) system ($\times 600$)

Fig. 12 Microscopic structure of bonded layer of Fe-Al (2) system ($\times 240$)

3. 接合強さとぬれ性

前節において、接合部をミクロな観点からなかめ、母材金属とろう材金属間の相互溶解度と接合強さについて論じてきた。次に、相互溶解度とぬれ性については、母材金属とろう材金属間に相互に溶解度があり中間相を形成しない場合に、一番ぬれ性が良く、続いて中間相が形成される場合、そして相互に溶解度がない場合に一番ぬれ性が悪いという傾向にあることを前報において示したが、接合界面に形成された中間相と母材金属間に相互に溶解度が存在しないような場合には、その間のぬれ性が悪いことが予想されることから、接合部をミクロな観点からなかめ、上述までのことを総合すれば、接合強さとぬれ性との間には、相互溶解度という因子を仲介して密接に関連づけられていると予想される。

この接合強さとぬれ性との間の密接な相関を示す好例として、Cu の含有量を種々変化させた、Ag-Cu 2 元合

Fig. 13 Influence of Cu contents in Ag on contact angle and bond strength of Fe base metal joint brazed by Ag-Cu filler metals

○ Contact Angle, ● Tensile strength

金のろう材と Fe 母材金属との組み合わせの場合がある。なお、実験方法は前報に示した通りである。Fig 13 に、そのぬれ性と接合強さの実験結果を示す。Ag 中の Cu の含有量の増加とともに、ぬれ性は増し、ほぼ並行して接合強さも増加しており、非常に良い相関が認められる（○印は接触角を、●印は引張破断強さを示す）。この場合、Ag 中の Cu 含有量が 9%までは、破断は界面で生じており、それ以上になるろう材内破断も生じて、28%Cu では完全なろう材破断を呈していた。

なお、界面に中間相が形成される場合、ぬれ性と接合強さとの間に密接な関係が存在するか否かは明らかではなく、今後の課題である。

4 結 言

ろう付において、基本的な重要な母材金属とろう材金属間の相互溶解度と接合強さとぬれ性について、一連の実験を行い、接合部の金属組織や、引張破断位置などの観察を通して、種々考察を行ってきた。結果として、接合部をミクロな観点から検討すると、界面での接合強さは、界面での双方間の相互溶解度と密接に関連しており、また、ぬれ性も相互溶解度と密接に関連していることが言え、さらに、一般的にぬれ性と接合強さは相互溶解度という因子を仲介して、密接に関連づけられていると言えそうである。

参 考 文 献

- 1) 渡辺健彦他 ろう付におけるぬれ性と接合強さについて（第一報），本誌，48—7（1979）
- 2) Metals Handbooks ASM vol 8 (1973)
- 3) M HANSEN Constitution of Binary Alloys, McGraw Hill New York 1958
- 4) 石井勇五郎 ろう付現象 本誌 34—8（1965） 734
- 5) A E ROACH et al Scoring Characteristics of Thirty Eight Different Elemental Metals in High Speed Sliding Contact With Steel, Trans ASME, 78-11 (1956), 1659