実 用 講 座

新接合技術の実際(1)
拡散接合*Practical Side of New Joining Method (1)
Diffusion Bonding*大 橋 修**
by Osamu Ohashi**

キーワード：Diffusion Bonding, Diffusion Joining, 拡散接合, 拡散溶接

1. 拡散接合とは

各種工業の分野で材料の開発・改良とともに、それら材料の組立て加工技術の開発が進められ、組立て接合技術として拡散接合が注目されている。

拡散接合は、JISで「母材を密着させ、母材の融点以下の温度条件で、塑性変形をできるだけ生じない程度に加圧して、接合面間に生じる原子の拡散を利用して接合する方法」と定義されている。用語として一時期「拡散溶接」が使用されたが、現在、拡散接合に統一されている。

拡散接合は固相接合法の一種で、接合しようとする材料同士を直接接合する場合と、接合面間にインサート金属を挟んで接合する場合がある。またそのインサート金属を溶かさずに接合する方法を固相インサート拡散接合、溶融して接合する方法を液相インサート拡散接合と呼んでいる。

溶接学会誌には、口頭発表や紙上発表からみた研究動向を「展望」と題して毎年掲載されている。図1は、本記事から、各種溶接・接合法についての研究報告数の推移をまとめたものである。

1980年代の新素材ブームで、接合法の一つとして拡散接合が検討されたことから、研究発表が急増した。最近、一時ほどではないが、接合に関わる基礎的な研究、例えば国家プロジェクトがスタートするなど、地についた基礎的な研究が活発に行われている。

拡散接合法の特徴として

- ① 材料的に溶融溶接が困難とされていた金属や、異種金属の接合ができる。
- ② 複雑な形状の部品や中空部品の組立て接合ができることに要約できる。

図1 各溶接・接合法についての研究報告数

*原稿受付 平成5年8月6日

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

本稿では、拡散接合の適用例、研究報告をもとに拡散接合について概説する。

2. 拡散接合の適用の具体例

拡散接合の特徴を生かした製品が数多く生産されるようになり、1986 年に界面接合研究委員会では拡散接合の適用例について、最初の調査が行われた¹⁾。

最近では第 3 回目の調査が行われている²⁾。

図 2 には、最近の適用例の一部を示す。(A)は産業用ガスタービンの燃焼器の製作例で、HIP を使って製作されている。壁面の構造は、内壁と外壁との間に多数のピンがサンドイッチされた積層構造となっており、外壁板の多数の穴から入った冷却空気が、効率的に内壁板を冷却する構造となっている。

(A) ガスタービン用高温燃焼器

(B) 熱間鋼材圧延用ロール

(C) 車両部品 成形用金型

(D) カムシャフト

(E) ケーブル保護管

(F) 連続焼鈍設備用
ラジエントチューブ

図 2 最近の拡散接合の適用例

(B)は熱間鋼材圧延用ロールで、HIP による特徴をうまく利用して、粉末の加圧焼結と同時に、粉末と板材の拡散接合を行っている。外層は高硬度・高耐摩耗性のある粉末ハイス、内層は高靱性鋼からなり、高性能の複合ロールとなっている。

(C)は車両部品の成形用金型で、内部には複雑な冷却水路がある。

(D)は自動車エンジン用カムシャフトの製作例である。中空シャフトと予備焼結したカム、温間鍛造したジャーナル及びギヤからなる。これらを組み合わせた後、焼結と同時にパイプに接合したものである。カムはFe-Cr-Mo-Cu-P-C系統結鋼で焼結時にFe-P-C系の液相が発生し、その際発生する収縮力も同時に接合に寄与している。

(E)はケーブル保護配管の接合例で、写真に示す治具で接合面にNi合金箔をはさんで、パイプを固定し、パイプを加熱して際の、加熱時の熱膨張を利用して加圧している。現地施工に成功した例である。

(F)は連続焼鈍設備用ラジアントチューブの製作例で、(E)と同様に熱膨張を利用して加圧しており、大径パイプの接合を行っている。

3. 拡散接合の適用例にみる傾向

拡散接合の適用について、製品の形状、材料の組合せ、採用目的、拡散接合の種類、加圧方法等について整理してみる。図3はその結果である²⁾。

拡散接合によって生産されている製品はクラッド材などの素材を除いて、大半が複雑な形状をした部品の組立であり、中空部品の組立が圧倒的に多い。

材料の組み合わせについては、異種金属材料の接合例が非常に多い。同種金属の接合時の材料としては、第1回の調査時には、チタン合金が多かったが、最近では鉄鋼材料が増える傾向にある。また、異種金属接合時の対象材料としては、銅合金と鉄鋼の接合、異種鉄鋼の接合が多く、いずれも相互拡散に伴う問題の少ない組合せである。

拡散接合の採用理由については、製品の高品質化、高性能化を目的としての採用例が多い。これに次いで形状的観点及び冶金学的観点等から他の方法では製作困難、コストダウン、軽量化の順となっている。

これらの採用目的を実現する拡散接合の方法としては、インサート金属を使用する方法が急増している。特に接合部に溶融する液相インサート拡散接合の増加が著しい。接合部に液相を発生させることにより、接合部の密着と表面処理もかね、接合部の品

製品の形状

中実部品 (38%)	中空部品 (62%)
------------	------------

材料の組合せ

同種 (34%)	異種 (66%)
----------	----------

同種材接合時の材料

Ti 合金 (39%)	Co 基 (8%)	鉄鋼 (46%)	銅 (8%)
-------------	-----------	----------	--------

異種材接合時の材料

銅合金-鉄鋼 (33%)	異種鉄鋼 (19%)	ステライト Ti,Fe (26%)	その他 (22%)
--------------	------------	-------------------	-----------

拡散接合の採用理由

コストダウン (23%)	高性能化 (40%)	↑	他の方法では不可能 (28%)
		軽量化 (9%)	

拡散接合の種類

直接拡散接合 (72%)	↑	液相インサート 拡散接合 (23%)
	固相インサート拡散接合 (5%)	

拡散接合時の加圧法

機械的加圧 (65%)	熱膨張 (11%)	HIP (24%)
-------------	-----------	-----------

図3 適用例にみる製品の形状、材料の組合せ、採用理由、種類、拡散接合時の加圧法

質の安定化が図られている。

また、この際の接合部への加圧法としては、油圧などの機械的加圧から、材料の熱膨張の差を利用した加圧、HIP による加圧など、加圧方法が多用化している。

拡散接合の適用例から分かるように、材料的には鉄鋼材料等の一般工業材料が多く使用されている。

拡散接合の適用例にみられる傾向として、

- ① 接合面にインサート金属を挿入して接合する方法
 - ② 加圧法として、加熱時の熱膨張を利用して加圧接合する方法
 - ③ HIP を利用して加圧して接合する方法
 - ④ これらを組み合わせて接合する方法
- が増える傾向にある。

このように、拡散接合法は精密部品及び中空部品の組立て接合技術として、機械加工の分野でその位

置を確立しつつある。

4. 拡散接合の過程

拡散接合には、インサート金属が溶融して接合する方法があるが、ここでは接合面間が固相状態で接合する接合過程について述べる。

4.1 接合の原理

固相接合の原理は、完全に平滑で清浄な材料同士を接触させれば接合すると考えられている。

最近、常温接合の研究で表面分析装置内で接合面を評価しながら接合が行われ、接合強さは表面の清浄さに大きく支配されることが確認されている³⁾。

拡散接合においても、表面の皮膜が消失すると接触部が接合することが確認されている⁴⁾。

接合開始温度は、接合面での表面皮膜の消失温度である。この表面皮膜の消失は、材料中の炭素による還元及び酸素の母材への溶解による。

接合開始温度は接合する材料の再結晶温度の $0.6 \sim 0.7 T_m$ (T_m : 融点 K) と考えられているが⁵⁾、このような温度領域は、接合面での表面皮膜の消失温度領域とほぼ一致している。

実在の接合面には微細な凹凸があり、また酸化物や吸着ガスなどの表面皮膜で覆われている。したがって、この接合面上の凹凸と表面皮膜が接合を妨げており、拡散接合の接合過程として、接合面の凹凸が変形して密着面積が増加する過程、及び密着部での表面皮膜の挙動が重要となる。

4.2 接合部の面積の増加過程

接合する材料同士を突き合わせて、加圧、加熱した際、接合部での接合面積が増加する過程は、図 4 のように考えられている⁵⁾。

(A)は常温で接合面を突き合わせた様子を示している。加熱・加圧した際、接合過程の第 1 段階(B 図)では、接触した突起部がクリープ変形機構によって変形し、密着面積が増加し、これと併行して、密着面を通して原子の拡散により接合が進行する。第 2 段階(C 図)では、変形よりも拡散が重要となり、拡散によって多くの空隙が消失し、一部の接合境界の移動が生じる。第 3 段階(D 図)では、結晶粒内に取り残された空隙が拡散によって消失する過程で、これらの各段階が重なりあって接合が進行する。

この接合部の面積を定量的にあらわす試みがなされている。円錐形状試験片と平坦面試験片を突きあわせての接合実験から、接合の初期の接合面積を実験的に算出する方法が提案されている⁷⁾。また、接合

図 4 拡散接合部の接合面積の増加過程
(A)加熱前
(B)接合面の凹凸がクリープ変形する過程
(C)粒界の移動及び空隙が消失する過程
(D)体積拡散により空隙が消失する過程

面積増加への原子の体積拡散、粒界拡散及び表面拡散の寄与を数値計算し、銅⁸⁾およびチタン合金⁹⁾について得られた接合面積の計算値と実測値がよく一致することが報告されている。

このように、接合面積の増加過程はクリープ変形機構をはじめとして、すべて拡散現象に律速されている。

4.3 接合界面での表面皮膜の挙動

接合する材料同士を突き合わせて加熱・加圧した際、接触した領域が接合するかどうかは、その界面での表面皮膜が大きく影響する。

各種材料について接合前後のオージェ分析の比較から、接合部での酸化皮膜の挙動を整理すると、図 5 のようになる^{10,11)}。

チタン型：接合面間の酸化皮膜が拡散接合の初期に消失し、酸化皮膜が接合部にほとんど影響を及ぼさない。チタン及びチタン合金がこの型に属する。

銅、鉄型：拡散接合の初期に接合面間の酸化皮膜が凝集して、接合部に介在物を形成し、接合の進行とともに凝集が進み、また母材への酸素の拡散により介在物の量が減少する。銅、鉄鋼材料がこの型に属する。介在物は材料中に含まれる不純物元素の酸

図5 拡散接合部の表面皮膜の挙動

接合雰囲気	大気	真空	水素	アルゴン
第1段階				
第2段階	銅 			
	鉄 			
	SUS 304 			
	チタン合金 			

図6 各種雰囲気中で拡散接合した際の接合部空隙中ガスの挙動

化物及び硫化物からなる。

アルミニウム型：酸化皮膜が非常に安定で、拡散接合中にほとんど消失しない。接合部の変形によって清浄面が露出し、わずかな接合箇所が得られる。純アルミニウムがこの型に属する。

加圧・加熱した際、接触箇所が接合するかは、その接触界面での表面皮膜の消失が鍵となる。接合中に表面皮膜が材料中に固溶、あるいは還元反応で、表面皮膜が消失して接合する。

4.4 接合部の空隙内のガス

接合部の空隙の中には、接合時の接合雰囲気ガスが残留することがあり、場合によっては接合部から空隙をなくするのは困難である。

超高真空中で拡散接合の継手を破断すると、空隙内から残留ガスが放出され、質量分析器でそのガス組成を知ることができる。

図6に、大気、真空、水素、アルゴンなどの接合雰囲気中で、各種の材料を接合した際の空隙内の残留ガスを示す¹²⁾。凹凸のある接合面を突き合わせて加熱・加圧すると、突起部が変形し、部分的に接合する。接合面間は当然接合雰囲気で満たされ、接合の進行とともに空隙内に雰囲気ガスが閉じ込められる。同図の第1段階ではこの状態を示している。こ

の空隙内に閉じ込められたガスは、拡散接合の進行とともに母材と反応して、量や組成が変化する。その状況を第2段階で示す。

アルゴン雰囲気中で接合すると、空隙内にアンゴンが残留し、空隙の消失を妨げる。実際アルゴン雰囲気中で接合した継手の機械的性質は真空中で接合した継手よりも劣る¹³⁾。

一方母材と反応するガス、たとえば酸化物、窒化物、水素化合物を形成する場合には、酸素、窒素、水素は空隙内には残らない。

母材と化合物を形成しないが、固溶するガスの場合は、空隙内のガス圧は母材に溶解しているガスの溶解量に平衡したガス圧になる。

拡散接合部で生じている現象、つまり接合面積の増加、表面皮膜の消失、空隙内のガスの残留など、すべて拡散現象と密接に関係している。この接合法が「拡散接合」と呼ばれるゆえんもこのあたりにある。

5. 拡散接合の将来

図1に示したように、拡散接合の研究は活発である。多くは各種材料の接合報告であるが、表1は材料よりも拡散接合現象にポイントをおいた主な研究の一覧である。

拡散接合で現在要望されている事項の一つに、接合の低温化・低圧力化がある。最近、その技術に向かって注目されている技術に、“アルゴンイオン衝撃による表面活性化常温接合”がある。

これは、接合する材料同士にアルゴンイオンを照射すると、常温でアルミニウム同士¹⁴⁾、銀と銅⁹⁾等が接合する。しかし、接合できる材料の組み合わせは限られており、金属では低融点の材料に限られている。

低融点の材料に限られるとすると、清浄面が接触して接合面で結合力が発生するのに、何か越えなければならない障壁（エネルギー）があるのかもしれない。

アルゴンイオン衝撃による“活性化”の意味を明かにすることが、拡散接合技術の発展の一つの鍵になるかもしれない。

将来の拡散接合技術の開発で、低い温度、圧力で簡単に接合できる方法とならんで、もちろん信頼性の高い接合法の確立が必要である。

最後に、拡散接合の適用例のデータシートの作成に協力された方々に厚く感謝致します。

表 1 研究がなされた主たる拡散接合テーマ

直接拡散接合

1. 接合現象に関する論文

- 接合面積の増加過程⁷⁻⁹⁾
- 接合部の皮膜^{10,11)}
- 接合部の電顕観察^{14,15)}
- 空隙部の残留ガス¹²⁾
- 変態の影響¹⁶⁾
- 合金元素の影響¹⁷⁾
- 接合面の結晶方位の影響^{18,19)}

2. 接合改善策に関する論文

- 半溶融の利用²⁰⁾
- 超塑性の利用²¹⁾
- 表面処理²²⁾
- HIP の利用²³⁾

3. 非破壊試験

- 超音波探傷²⁴⁾
- 電気抵抗²⁵⁾

液相インサート拡散接合

1. 接合機構に関する論文

- 母材の溶融現象²⁶⁾
- 等温凝固過程²⁷⁾
- 均一化過程²⁸⁾

参 考 文 献

- 1) 溶接学会界面接合研究委員会, IIWDoc. IA-337-86-OE
- 2) 接合学会界面研究委員会, 1993, 9 月
- 3) 加柴良裕, 町田一道: 超高真空中での常温接合, 本誌, 59 (1990), 100
- 4) 大橋 菅: ステンレス鋼の拡散接合に及ぼす表面組成の影響, 日本金属学会誌, 56 (1992), 579
- 5) 橋本, 岡本: 固相接合・ろう接, 産報出版, 1978
- 6) W. H. King, and W. A. Owczarski: "Diffusion Welding of Commercially Pure Titanium", W. J., 47 (1968), 444 S
- 7) 大橋, 橋本: 拡散接合に関する研究(第 2 報), 本誌, 45-2 (1976), 295
- 8) 西口, 高橋: 基本的な接合機構に基づく固相接合過程の定量的検討, 本誌論文集, 3 (1985), 303
- 9) G. Garmon, N. E. Paton and A. S. Argon: Attainment of Full Interfacial Contact Diffusion Welding, Metal Trans. A, 6 A (1975), 1269
- 10) 大橋, 田沼, 吉原: 拡散接合部の表面皮膜のオージェ解析, 本誌論文集, 3 (1985), 152
- 11) 大橋, 田沼, 木村: 拡散接合部の密着部での酸化皮膜の挙動, 本誌論文集, 4 (1986), 53
- 12) 大橋: 拡散溶接部の空隙内の残留ガスに及ぼす接合雰囲気の影響, 本誌論文集, 4 (1986), 514
- 13) 大橋, 雀部: 拡散接合部の機械的性能に及ぼす接合雰囲気の影響, 本誌論文集, 6 (1988), 98
- 14) 高橋, 高木, 須賀, Gibbesch, Elssner, 板東: Al/Al 常温接合対の組織的, 機械的及び電気的特性に及ぼす接合環境の影響, 日本金属学会誌, 55 (1991), 1002
- 15) 圓城, 池内, 古川: アルミニウムの拡散接合面における酸化皮膜の挙動, 軽金属, 35 (1985), 388
- 16) 大橋, 橋本: 同素変態の拡散溶接過程への影響, 本誌, 49 (1980), 24
- 17) 大橋, 雀部: アルミニウム合金の拡散接合部での酸化皮膜の挙動に及ぼす合金元素の影響, 本誌論文集, 7 (1989), 449
- 18) 大橋, 菅: モリブデン単結晶の拡散接合部の引張強さとねじりの角との関係, 本誌論文集, 10 (1992), 53
- 19) 佐藤, 宮崎, 幾原, 栗下, 吉永: <111> ねじり粒界を有する Si 双結晶の粒界構造と強度, 日本金属学会誌, 53 (1989), 536
- 20) 圓城, 池内: Al-Cu-Mg 系 2017 合金の拡散溶接, 本誌論文集, 2 (1984), 599
- 21) 大隅, 高橋, 清水, 都筑: チタン合金薄板構造物の超塑性/拡散接合による一体化加工法の研究, 三菱重工技報, 20 (1983-7), 1
- 22) 大橋, 橋本: グロー放電による表面処理, 本誌, 45 (1976), 76
- 23) 大橋, 海江田: SUS 304 ステンレス鋼拡散接合部の HIP 処理, 本誌論文集, 6 (1988), 493
- 24) 大橋, 橋本, 木村, 松本: ステンレス鋼拡散接合部の超音波探傷, 本誌, 48 (1979), 182
- 25) 圓城, 池内, 秋川: 拡散溶接の接合初期過程に対する酸化皮膜の影響, 本誌, 51 (1982), 272
- 26) 中尾, 西本, 篠崎, Kang, 堀: 液相インサート金属による母材の溶融現象, 本誌論文集, 6 (1988), 519
- 27) 中尾, 西本, 篠崎, Kang: 液相インサート金属拡散接合における等温凝固過程の解析, 本誌論文集, 7 (1989), 213
- 28) 中尾, 西本, 篠崎, Kang, 堀: 液相インサート金属拡散接合部の組織的検討, 本誌論文集, 7 (1989), 367