大気中におけるアルミニウムの 接合に関する一検討*

川 上 博 士**

One Approach for Bonding of Aluminum in Atmosphere*

by KAWAKAMI Hiroshi**

キーワード

アルミニウム, 銅, 異材接合, Al-Cu系二元合金平衡状態図, 共晶接合, ろう付け, 液相拡散接合, 固相拡散接合

1. はじめに

異材溶接・接合のニーズに関するアンケート調査^{1, 2)}によると、今後期待されるものとしては主にアルミニウムの異材継手が望まれているとの結果が得られている。その大きな理由として、軽量化および導電性が挙げられている。

アルミニウム-銅継手の場合、アルミニウムは銅に比べて電気伝導度は若干劣るものの、比重は銅の約1/3である。銅からアルミニウムへの一部置き換えの場合には軽量化、反対にアルミニウムから銅の場合には導電性の向上が達成できるものと考えられる。

現在、アルミニウムの溶接・接合に関して、レーザ溶接³⁾、摩擦攪拌接合 (Friction Stir Welding; FSW)⁴⁾、液相拡散接合 (Transient Liquid Phase Bonding; TLP Bonding)⁵⁾など各種溶接・接合法の適用に関する研究が行われている。

本研究は、“できる限り簡便な装置および方法でアルミニウムの接合が行えないか”との筆者の単純な疑問をもとに実施しているものである。まず初めに、本研究はその緒についたばかりで、基礎段階にあることをお断りしておきたい。ここでは、これまでに得られた実験結果^{6, 7)}をもとに本研究を紹介させて頂くことにする。

2. アルミニウム酸化膜について

アルミニウム (Al) は地表近く (地殻存在度) では酸素 (O)、ケイ素 (Si) に次ぐ存在量であることが知られ

ている。しかしながら、アルミニウムと酸素の親和力が強く、還元反応をおこすために必要な電気エネルギーが登場する1800年代半ばまでアルミニウムを元素として得ることができなかった⁸⁾。

このように、アルミニウム表面に生成した酸化膜 (Al_2O_3) は非常に強固なものであり、その性質によってアルミニウムに防食性を与えている。最近では、熱酸化によって生じるアルミニウム酸化膜についてその構造が検討されつつある⁹⁾。その反面、表面に生成した酸化膜は溶接・接合にとっては阻害因子となることがよく知られている。アルミニウムの溶接・接合性向上のために、アーク溶接における陰極点でのクリーニング作用、フラックス、コーティングによる表面活性化、機械的ブラッシングを利用した酸化膜除去および不活性ガス雰囲気および真空を利用した酸化膜成長の抑制をそれぞれの溶接・接合法に応じて行うのが一般的となっている¹⁰⁾。

3. アルミニウムと銅の異材接合における問題点

表1にアルミニウムと銅の物性値¹⁰⁾の比較を示す。(1) 加熱に必要なエネルギー：銅に比べて、アルミニウムの融点は約400 K低い。熱伝導度は両者とも銅と比べて大きい値を示す。そのために局部加熱が困難となる。また、電気抵抗率が小さいことから、ジュール発熱により溶接・接合 (抵抗溶接など) を行う場合には、銅に比べて高電流・短時間の電気エネルギーが必要となる。(2) 溶接欠陥：アルミニウムの線膨張係数は高く、溶接ひずみを生じやすい。凝固収縮率に関して銅は鋼とほぼ同じであるが、アルミニウムは大きい値を示し、凝固割れ感受性が高くなる。

上述のようにアルミニウムと銅の異材溶接・接合を行う場合には、材料間の物性値の差異が問題となる。例え

*原稿受付 平成16年4月5日

**正 員 三重大学工学部 Member, Faculty of Engineering,
Mie University

表 1 アルミニウムと銅の物性値

物性値	Al	Cu
比重 (293K)	2.69	8.94
融点 K	933	1356
熱伝導率 W/m・K	238	394
電気抵抗率 $10^{-8}\Omega\cdot\text{m}$ (293K)	2.69	1.67
線膨張率 $10^{-6}/\text{K}$ (273~373K)	23.5	17.0
凝固収縮率 vol%	6.26	4.05

ばアルミニウムと銅を突合わせた状態で銅の融点まで加熱した場合、アルミニウムが先に溶融するため、溶け落ちにより溶接困難となる場合がある。また、接合中に生成する金属間化合物は、接合強度に影響をおよぼすものと考えられる。

加えてアルミニウムの接合では、前述した表面酸化膜が問題となる。このため、簡便な装置・方法によってアルミニウムの接合を行う場合、アルミニウム酸化膜除去および成長抑制を接合プロセスからできるだけ省略することが必要となる。

4. 接合中の相変化

本研究では、大気中において①Al-Cu系アルミニウム合金(A2024:Al-4.4Cu)を中間材とした純アルミニウム(A1070)の接合および②純アルミニウム(A1070)と純銅(C1020)の異材接合について検討を行っている。便宜上、①および②の接合を、それぞれAl/Al-Cu接合およびAl/Cu接合と表記することにする。

Al/Al-Cu接合ではアルミニウム(固相)/Al-Cu合金(液相)拡散、Al/Cu接合では接合初期にアルミニウム(固相)/銅(固相)拡散がおきる。このとき、接合部ではAl-Cu系二元合金平衡状態図で示される相変化が生じるものと思われる。次に、個々の接合プロセスにおいて生じる相変化を示す。

4.1 Al/Al-Cu接合

本接合法は、上述したように中間材であるAl-Cu合金(A2024)の液相線付近に加熱して生じる液相(L)/固相(母材)もしくは固液二相(L+α)/固相間の拡散を利用した接合法である。中間材および母材の銅濃度と生成相の関係を図1に示す。溶融したAl-Cu合金(L)から母材であるアルミニウムへの銅の拡散が始まると時間の進行とともに、中間材の銅含有量が減少し始める(図中右向き矢印)。接合温度において中間材の銅濃度が液相線濃度となったとき、中間材の凝固(L→L+α)が開始する。そして、中間材が固相線濃度に到達したときに等温凝固(α)が完了する。接合完了後の加熱保持では、拡散による接合部顕微鏡組織の均質化がおきる。また、母材側への銅の拡散(図中左向き矢印)による合金化により、

図 1 Al/Al-Cu 接合において生じる相変化

図 2 Al 側界面近傍において生じる Al/Cu 接合による相変化

接合部近傍の強度向上が期待できる。

4.2 Al/Cu接合

本接合法はAl/Al-Cu接合とは異なり、接合初期におきる固相拡散を利用して接合を行うものである。アルミニウムと銅を突合わせて、図2に示すAl-Cu系二元合金平衡状態図Al側の共晶温度付近で接合を行う。簡単のため、接合界面Al側(上図斜線部)において生じる相変化を下記に述べる(下図矢印)。加熱中に固相拡散が始まると、アルミニウムはα相となる。拡散が進行すると、界面の銅濃度は固相線濃度となる。そのとき界面は固液共存(L+α)となり、Al側界面の一部の溶融(α→L+α)が開始する。時間の進行とともに、接合界面は全て液相となる。さらに拡散が進行し液相線濃度を越えた場合、再び接合界面は固液共存となり、接合界面の凝固が開始する(L→L+θ)。Al側界面の銅濃度が固相線濃度となった場合、界面全領域がθ相へと変態するため、このとき等温凝固が完了する。

しかし、アルミニウムと銅を直接突合わせた場合、時間の進行とともに接合界面の隣接領域(上図斜線部より

図3 接合装置概略図

右側)でも液化-等温凝固が繰り返されることに注意しなければならない。このとき、過度の接合部の変形および金属間化合物の成長が生じるため、本接合では接合界面が溶融した時点が最適条件になることが予想される。

5. 実験方法

供試材として、純アルミニウム、Al-Cu合金および純銅の丸棒(φ6)を用いた。本研究では、図3に示す。加熱および温度制御部、試験片固定および荷重部から構成される接合装置を使用した。試験片は大気開放型電気抵抗炉を用いて加熱し、大気中もしくは窒素ガス雰囲気における接合実験を行った。窒素ガスの電気抵抗炉への流入量は流量計を用いて調節した。接合中の温度測定は接合界面から約2mmの位置に設置したアルメルクロメル熱電対を用い、温度制御を行った。また、温度が均一な領域は、接合界面を中心に30mm幅であり、加熱速度は0.5K/sであった。

接合温度範囲はAl/Al-Cu接合では923~903K、Al/Cu接合では、893~853Kとした。接合時間については本実験では900s以内として、その時間内での接合について評価した。接合圧力は0.17~0.7MPa(本実験では0.5~2kgf)の範囲の低圧力を用いることにより装置の簡便化を計っている。

接合面には機械切断により生じたバリを除去する目的での#2000耐水研磨紙を用いた研磨およびアセトン脱脂による前処理を行った。

6. 実験結果

これまでに得られた実験結果^{6,7)}を下記に示す。5で述べたように、本研究では大気中および窒素ガス雰囲気において接合実験を行った。

6.1 Al/Al-Cu 接合

図4に、大気中、接合圧力0.35MPaでの引張試験結果を示す。接合温度923Kの場合、接合温度到達時(保持時間0s)から接合が認められ、保持時間の増加とともに引張荷重は増加した。接合温度913Kの場合、保持時間

図4 Al/Al-Cu 大気中接合の引張試験結果

図5 Al/Al-Cu 接合開始温度-時間図

180sから接合が始まり、923Kと同様に保持時間とともに引張荷重は増加した。なお、接合温度923K、酸素濃度2.4vol%の場合に最高値(約1700N)が得られた。

接合開始時間(引張荷重500Nが得られた時間)と接合温度との関係を示したものが図5である。接合雰囲気酸素濃度の低下および接合圧力の増加とともに、接合開始時間は短時間側へ移行した。本実験において、アルミニウム表面の溶出¹⁰⁾の有無については明らかではないが、A2017合金を直接突合わせて拡散溶接を行った場合¹³⁾と同様に中間材の液相が少量になった場合でも、接合可能と思われる。また、中間材を過共晶合金¹²⁾とすることで、さらに低温度での接合が可能になるものと考えられる。

6.2 Al/Cu 接合

図6に初期加圧力0.70MPaで大気中接合した場合の引張試験結果を示す。接合温度893Kでは、接合時間300sにおいて接合が開始した時点で引張荷重は最高値を示し、その後保持時間の増加とともに引張荷重は減少した。このとき、過度の変形および金属間化合物の成長が見られた。また、接合開始時間は接合温度の低下とともに長時間側へ移行した。

図7に図5と同様に接合開始時間と接合温度の関係を

図6 Al/Cu 大気中接合の引張試験結果

図7 Al/Cu 接合開始温度-時間図

を示す。0.35 MPa の場合、大気中接合は 893 K のみ可能であったが、接合雰囲気酸素濃度の低下につれて接合可能温度は 853 K まで低下した。0.70 MPa の場合では、大気中での接合可能温度は 873 K まで低下した。酸素濃度 2.4 vol% の場合では接合温度到達時点で接合が認められる場合が多かった。

本実験結果から、大気中接合における接合可能温度を低下させるためには、初期圧力を増加させることが有効であると思われる。等温・等加圧による接合を試みたが、母材破断する接合体を得ることができなかった。接合部の変形および金属間化合物^{14, 15)}生成抑制のために、接合温度・荷重履歴を検討する必要があると考える。

7. 終わりに

このように、本接合法を用いてアルミニウムの大気中接合が可能であることを示すことができた。しかし、現時点ではさらなる接合条件の低温度・短時間化および接合体の高強度化を達成する必要があると考える。具体的には、①接合部の形状制御、②接合機構の解明、③酸化皮膜¹⁶⁾の影響、④接合強度におよぼす金属間化合物層の影響に関する検討を当面の課題として、今後の研究に取り組んでいきたいと考えている。

また、本研究では Al-Cu 系に着目して実験を実施したが、アルミニウムと他金属との異材接合への応用についても検討したいと思っている。

参考文献

- 1) 中田一博, 牛尾誠夫: 異材溶接・接合のニーズと今後の技術開発の動向, 溶接学会誌, 71-6 (2002), 418-421.
- 2) 新エネルギー・産業総合開発機構: 平成13年度「異材溶接技術の基礎研究」, 公開用報告書 PDF.
- 3) 片山聖二: レーザ異材溶接, 溶接学会全国大会講演概要, 第71集 (2002), F-33-F-38.
- 4) 佐藤裕, 粉川博之: 摩擦攪拌溶接 (FSW) 技術, 溶接学会誌, 72-1 (2003), 27-30.
- 5) 田湯善章: アルミニウム合金の TLP 接合における接合界面の観察, 大阪大学接合科学研究所共同研究報告 Vol. 1998 (1998), 57-58.
- 6) 藤原正典, 川上博士, 鈴木実平: 溶接学会全国大会講演概要, 71 (2002), 324-325.
- 7) 川上博士, 鈴木実平, 藤原正典: 溶接学会全国大会講演概要, 73 (2003), 326-327.
- 8) 日本金属学会: 非鉄材料 (1987), 1-7.
- 9) L. P. H. Jeurgens, W. G. Sloof, F. D. Tichelaar, E. J. Mittemeijer: Structure and morphology of aluminium-oxide-films formed by thermal oxidation of aluminium, Thin Solid Films, 418 (2002), 89-101.
- 10) 日本金属学会: 金属データブック改訂 3 版 (1993), 11-16.
- 11) 溶接学会: 溶接・接合便覧 (1990), 1003-1028.
- 12) 宮崎邦夫, 玉村健雄, 落合和泉: 共晶反応を用いたアルミニウムの圧接, 溶接学会論文集, 7-2 (1989), 175-181.
- 13) 圓城敏男, 池内健二: Al-Cu-Mg 系 2017 合金の拡散溶接, 溶接学会論文集, 2-4 (1984), 599-605.
- 14) 中西恒雄, 近藤一夫, 中村光雄, 米沢征寿: Al-Cu 熱間圧接継手の高温長時間加熱の影響について, 溶接学会誌 45-12 (1976), 1023-1028.
- 15) M. KOBERNA, J. FIALA: INTERMETALLIC PHASES INFLUENCING THE BEHAVIOR OF Al-Cu JOINTS, Journal of Physics and Chemistry of Solids, 54-5 (1993), 595-601.
- 16) 大橋修, 雀部謙: アルミニウム合金の拡散溶接部での酸化皮膜に及ぼす合金元素の影響, 溶接学会論文集, 4-1 (1986), 53-181.