参 考 文 献

- 1) 安藤, 中村「点溶接における通電加熱, 冷却に関する熱時間定数について」溶接学会誌 26-9, 12 (1957) 558-563, 742-747.

- 2) 仲田, 西川, 肥田, 梶原「高電流密度・短時間通電方式抵抗突合せ溶接法」溶接学会誌49-4 (1980) 274-278.
3) 仲田, 西川, 藤本, 玉井「高電流密度・短時間通電方式スポット溶接法とその特徴・特質」本誌 2-1 (1984) 137-142.

固相接合における界面拡散の過渡現象とその促進効果*

西口 公之**高橋 康夫**高橋 邦夫***

Transient Behaviour of Interface-Diffusion in Solid State Bonding and The Enhancement-Effect*

by Kimiyuki Nishiguchi**, Yasuo Takahashi** and Kunio Takahashi***

The process of solid state diffusion bonding is analyzed, noting the transient behaviour of interface-diffusion, which is an atom-flow along a bonded interface-boundary. A non-linear partial differential equation for the interface-diffusion is led by proposing a two-dimensional bonding model. Numerical calculations are performed with Euler method. It is indicated that an enhancement of the bonding process is caused by the transient behaviour when the bonding pressure is frequently removed, although it is negligible in a conventional diffusion bonding. So, "pulse-pressure bonding", in which the pressure is repeatedly applied at intervals of τ_{off} (pressure-off interval), is proposed according to the calculated results. Influence of τ_{off} on the enhancement-effect is numerically and experimentally examined. It is shown that τ_{off} is a very important factor as a period of "relaxation" in order to attain an effect of the transient behaviour. And also, it is suggested that the enhancement-effect becomes striking with reducing the pressure-on interval τ_{on} , when τ_{off} is suitably determined.

It is stated in conclusion that the bonding process enhanced by the transient behaviour is successful even if τ_{off} is less than τ_{on} , that is, the pulse-pressure method can be useful to enhance the bonding process under a high vacuum condition.

Key Words: Solid State Bonding, Interface-diffusion, Diffusion Bonding

1. 緒 言

従来の固相(拡散)接合では, 静的な圧力を接合面に与え, 長時間(数十分から数十時間)高温に保持するという手法が採用されている^{1,2)}. このような場合, 粉末冶金(ホットプレス)の焼結現象と同様に³⁾, 接合部形成⁴⁾は, 接合初期の過渡現象⁵⁾が無視され, 接合期間の大部分にわたって定常状態で進行するものと考えられている⁴⁻⁷⁾. しかし, 短時間で接合を達成させるときや, 加圧力を頻繁に変動させる場合には, 過渡現象は無視できなくなると考えられる. 固相接合の分野において, この過渡現象の影響を理論的に研究した例は見あたらない. そこで, 本研究では, 基本的な接合機構⁴⁾の一つでもあり, しかも広範囲の条件下で優勢となり得る界面拡散を取り上げ⁸⁾, この機構による過渡現象の接合過程に対する効果を理論的に検討し, 接合過程の促進方法を提案する.

2. 接合モデルとその前提条件

モデル化にあたっては, 前報⁴⁾の二次元接合モデルを採用し, 同種金属材料で密着プロセス⁶⁾が律速する高温・高真空下での接合過程を対象とする. また, 接合圧力 P が, 接合面に垂直に作用する場合を前提とする.

接合開始時の密着量は, 弾塑性変形による接合表面の凸部 (Fig. 1 (a)) の押しつぶれ現象から生じるが, 前報⁴⁾

Fig. 1 Illustrations of a two-dimensional model for bonding process (cross section).

(a) A model of faying surface, (b) Configuration of arrayed voids during bonding.

* 原稿受付 昭和60年10月23日 昭和60年度秋季全国大会及び昭和60年11月第7回マイクロ接合研究委員会で発表

** 正 員 大阪大学工学部 Member, Osaka University, Faculty of Engineering

*** 学生員 大阪大学大学院 Student Member, Osaka University, Graduate School

1*) 接合部形成過程とは, 接合面上の空隙を消失し, 密着部が増大していくプロセスと定義する.

2*) 接合条件を適当に定めると, 優勢機構が時間経過に伴い, 変形(塑性及びクリープ)機構から拡散(界面又は体積)機構へ変化していくが, 6) これを過渡現象とは呼ばない. 各機構は接合開始直後から作用し, それらが定常へ飽和するプロセスを過渡現象と呼ぶことにする.

3*) 密着プロセスを担う機構として, 他に, 体積拡散やクリープ変形などがある⁶⁾. 実際の過渡現象はこれらを連立したものとして生じるが, 取り扱いが複雑になるため, 最も取り扱いの簡単な界面拡散のみによる過渡現象を解析する.

と同様に、弾性変形分を無視し、塑性理論(すべり線解析⁴⁾)に基づいて決定した⁴⁾。この初期密着以後の接合過程はすべて界面拡散(Fig. 1(b)の界面 OO' に沿う拡散)によって進行するものとした。接合進行中、母相は弾性体とし、接合面上のポイドは、Fig. 1(b)に示すレンズ形状(角 α 一定)を保ちながら収縮するものとした⁴⁾。また、接合界面の移動現象(マイグレーション)は生じないと仮定した⁵⁾。

3. 拡散方程式

Fig. 2 に固定座標 $x-y$ 及び移動座標 $\xi-\eta$ を定義する。 $\xi-\eta$ 座標は応力状態(付録参照)を求める際必要となる。モデル化した配列ポイドの周期性・対称性から、座標の範囲を斜線部の領域に限定する。界面は、その厚さ δ_b (Fig. 3 参照) が十分小さいので $x(\xi)$ 軸 ($w \leq x \leq L$) に含まれるものとする。

界面に作用する垂直応力 T_n (圧力を負) と界面中の原子の過剰化学ポテンシャル $\Delta\mu$ との間には、原子体積を Ω とすると $\Delta\mu = -T_n\Omega$ なる関係があり、また、原子の流束 J_b は、

Fig. 2 Definition of Cartesian coordinates ($x-y$) and ($\xi-\eta$).

Fig. 3 Schematic illustrations of bond-interface and void-tip.

*4) 接合過程を最初から追うときは、この仮定に従って X の初期値 X_0 を与えたが、界面拡散の過渡現象だけを検討する場合は、適当な値を与えている。

$$J_b = -\frac{D_b}{kT\Omega} \nabla \Delta\mu \quad \dots\dots(1)$$

と表現できる^{4,7)}。ここで、 k はボルツマン定数、 T は絶対温度、 D_b は界面(自己)拡散係数である。

Fig. 3 に接合界面近傍の概念図とその拡大図を示す。図中の β は、単位時間に、界面の単位体積当りに、母相からわき出てくる原子数を表わし、位置 x と時間 t の関数で、拡大図における物質収支(体積一定条件)から、

$$\beta(x, t) = \nabla \cdot J_b(x, t) \quad \dots\dots(2)$$

となる^{4,7,8)}。このわき出し β によって、母相は界面に接している部分から消失していき、その分だけ界面に向かって変位する。この変位量 u は、剛性変位量 u_r と弾性変位量 u_e から成り、 β との関係は、体積一定条件から、

$$\frac{\partial u}{\partial t} + \delta\Omega\beta = 0 \quad \dots\dots(3)$$

となる。式(3)に式(2)を代入し、[付録]から数値解析に必要な微分方程式(4)が求まる($\delta_b = 2\delta$)。

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left\{ \frac{(1-\nu^2)}{EX} \theta a_n c_n \right\} \\ = \frac{D_b \delta_b \Omega}{2kTX^4} \theta \left\{ \frac{1}{a_n} \sum_{i=1}^{\infty} a_i^2 c_i - \frac{1}{2} a_n^4 c_n \right\} \quad \dots\dots(4) \end{aligned}$$

($n=1, 2, 3, \dots$)

ここで、 E はヤング率、 ν はポアソン比、 θ は、

$$\theta = X \left(\frac{\gamma_s}{r} X - L \sigma_B \right) \quad \dots\dots(5)$$

と表わせる。式中の γ_s は表面張力、 σ_B は接合面に遠方から加えた垂直平均応力($=-P$)である。なお、 r , X , L は Fig. 2 を、また、 a_n , c_n は[付録]を参照のこと。

4. 計算方法

式(4)は無数個の非線形連立微分方程式を表わすので、数値解析するには適当でない。そこで、初期応力分布 T_{n0} の残差法近似の精度、定常への収束性及び計算時間の短縮を考慮して、項数を15 ($n=1 \sim 15$) として数値計算を行なった。 c_n の増分 Δc_n は、微小時間 Δt を与えて式(4)から、

$$\Delta c_n = (\Delta t / \tau) \left\{ (2/a_n^2) \sum_{i=1}^{15} a_i^2 c_i - a_n^3 c_n \right\} \quad \dots\dots(6)$$

と近似した。ここで、 τ (タイムパラメータ) は、

$$\tau = 4(1-\nu^2)kTX^3/(ED_b\delta_b\Omega) \quad \dots\dots(7)$$

であり、時間の次元を有している。

界面上の応力分布の初期条件は、周期的配列ポイドを有する接合面に遠方から垂直平均応力 σ_B が作用する場合として、Muskhelishvili の応力関数⁹⁾ から求め、

$$T_{n0}(x) = \sqrt{2} \sigma_B \sin \left(\frac{\pi x}{2L} \right) \left\{ \cos \left(\frac{\pi w}{L} \right) - \cos \left(\frac{\pi x}{L} \right) \right\}^{1/2} \quad \dots\dots(8)$$

とした⁵⁾。 u_e , u_r の増分 Δu_e , Δu_r は[付録]の式(A-3), (A-4) から求め、さらに、ポイドの曲率半径 r の増分 Δr と X の増分 ΔX は、(A-6) 式を基にして計算した。

以上の計算を繰り返すこと(オイラー法)により、界面拡散の過渡現象をシミュレートした。なお、接合対象

*5) [付録]の式(A-2) $\eta=0$ を式(8)に適用し ($n=1 \sim 15$)、残差法を用いて、係数 c_n の初期値を与えた。

材料は酸化皮膜の影響の少ない純銅とし、その物性値は前報⁶⁾で記したものを採用した。

5. 計算結果による検討

Fig. 4 は界面拡散によるボイドへのはき出し流束 $\hat{J}_{Tip}$ の時間的変化を示すもので、定常流束値（破線）を単位として表わし、横（時間）軸もタイムパラメータ τ で割り無次元化している。図中の接合条件は、接合機構領域図の作成から、実際の接合中に界面拡散の優勢が予測される条件の一例として採用した⁶⁾。図に見るように、はき出し流束 $\hat{J}_{Tip}$ は、接合開始 ($t/\tau=0$) から $t/\tau \approx 0.01$ までは、定常値に比べて高く過渡現象の影響が認められるが、 $t/\tau \approx 0.05$ では、破線に収束してしまう。単純に、 $\hat{J}_{Tip}$ の時間的変化だけから判断すると、 $t/\tau \geq 0.05$ で定常接合状態になるように見える。しかしながら、 $\hat{J}_{Tip}$ の累積量 $\int_0^t \hat{J}_{Tip} dt$ 及び次に示す界面 $O'O'$ 上での過剰化学ポテンシャル $\Delta\mu$ と弾性変位量 u_e の時間的変化を調べると、過渡現象の影響は $t/\tau \approx 0.1$ まで続くことがわかる。

Fig. 5 は Fig. 4 の過渡期間中の界面 $O'O'$ 上での $\Delta\mu$ と u_e の分布変化を示す図である。 $t=0$ における $\Delta\mu$ には O 及び O' 付近の大きなピークのはかに振動成分が見られるが、後者は初期応力分布 T_{n0} の残差法近似によるもので、数値計算の際、 $t/\tau = 2 \times 10^{-5}$ 以内で消失したのでこの振動成分の影響は以下に述べる過渡現象の予測に関して無視できると判断した。 $\Delta\mu$ のピーク部の原子

Fig. 4 Variation of diffusion-outflow $\hat{J}_{Tip}$ to void-surface with time.

Fig. 5 Change in distributions of $\Delta\mu$ and u_e with time.

は、 $J_b \propto -\text{grad } \Delta\mu$ なので、ボイド表面に流出すると同時に、界面 $O'O'$ の中点 M に向っても拡散する。その結果、 u_e は O 及び O' 近傍で負に、中央部 M で正となり、 $t \approx 0.1\tau$ で定常の分布形態となる。このように、過渡期間は τ を尺度として $t=0 \sim 0.1\tau$ まで続くことになる。そこで、(7) 式をもとに τ の具体的な X 依存性を示すと、Fig. 6 のようになる。例として $T=1000\text{ K}$ では、 $X < 2.5\text{ }\mu\text{m}$ で $\tau < 50$ 秒なので、過渡期間は 5 秒 (0.1τ) 以下となり、通常の拡散接合では無視されることがわかるが、 X を $4.5\text{ }\mu\text{m}$ 以上になると $\tau \geq 300$ 秒となり、数秒間 (0.01τ) は過渡現象の効果が期待できる。もし、この期間を繰り返し再現できれば、接合促進につながるようになる。

これを実現する最も簡単なものとして、圧力をいったん除去し、残留化学ポテンシャルを緩和消失させ、再び圧力を印加するという操作を繰り返す手法が挙げられる。Fig. 7 は、この手法を検討する第 1 歩として、接合中に圧力除去がなされた場合はき出し流束の時間的変化を計算したものである。この図から圧力除去後の逆拡

Fig. 6 X -dependences of time-parameter τ .

Fig. 7 Variation of $\hat{J}_{Tip}$ with time, when the bonding pressure is removed at $t=2$ sec.

散(EFG)は、加圧期間のはき出し量(ABCD)に比べ十分小さいことがわかる。GHの部分では $\hat{J}_{Tip} > 0$ となっているが、これは表面張力 γ_s 又は表面曲率 $1/r$ に起因するはき出し量である。

Fig. 8はFig. 7の各点A~Hに対応する $\Delta\mu$ の界面 $O'O'$ 上の分布を示したものである。圧力を除去した直後には弾性変位 u_e に起因する(c)のような残留化学ポテンシャルが生じるが、時間経過とともに、最初は急速に減衰し((e)~(f))、その後次第に($t > 2.20$ 秒)、緩やかな減衰となって、遂には(h)のような分布形態で飽和する。(h)の状態では再加圧すると、(a)の状態が再現できるが、このような繰り返しでは、圧力除去期間 τ_{off} (pressure-off interval)に比べてかなり長くなり、接合を促進させる立場からは都合がわるい。そこで、 $\tau_{off} = \tau_{on}$ として過渡現象再現性の計算を試みた。

Fig. 9は、その結果の一例である。図中の τ_{on} の値(2.0秒)は、タイムパラメータ τ をもとに、 0.01τ 以

Fig. 8 Distributions of $\Delta\mu$ for A~H of Fig. 7.

Fig. 9 Variation of $\hat{J}_{Tip}$ with time for $\tau_{on} = \tau_{off} = 2$ sec.

下の区切りの良い値として決めた。図からわかるように、再印加時 $t = 4 \sim 6$ 秒でも、 $\hat{J}_{Tip}$ は定常値より十分高くなっている。このことは、 τ_{off} をある程度短くしても過渡現象の再現がかなり保証されていることを意味している。Fig. 10はこのことを考慮に入れて考案したパルス圧力法(a)と従来から行なわれている静的圧力法(b)における加圧法の違いを定性的に図示したものである。パルス圧力法で接合過程を促進させるには、Fig. 4~6の検討から、 τ_{on} は 0.01τ 以下であることが必要であり、短いほど有利である*6。一方、 τ_{off} は、その零への極限が静的圧力法に帰着するので、むやみに短くすることはできない。このことから、 τ_{on} 間の流出量 $\int_{\tau_{on}}^{\tau_{on} + \tau_{on}} \hat{J}_{Tip} dt$ に対する τ_{off} の影響を詳細に検討することが必要となる。これを数値計算により確かめた具体例が Fig. 11 であり、圧力印加回数 N を横軸として表わしている。図にみるように、 $\tau_{off} = 2.0$ 秒では(図(a))、パルス圧力を繰り返し印加し続けても、1パルス

Fig. 10 Methods of applying the bonding pressure.

Fig. 11 Influence of pressure-off interval τ_{off} on integrated outflow per one pulse.
(a) $\tau_{off} = 2.000$ sec, (b) $\tau_{off} = 0.005$ sec.

*6) Fig. 7 から示唆できるように、 τ_{on} を短くするに従い、1パルス当りのはき出し流出量の定常値に対する比 (Fig. 12 の実線値) は急激に増大する。したがって、脚注に記すように適切な τ_{off} ($\leq \tau_{on}$) を定めるなら、接合促進の立場から有利になる。また、接合初期では、式(7)の τ が小さくなるので、 τ_{on} を接合後期より小さくする方がより有利である。

Fig. 12 Effect of τ_{off} on saturated value of integrated outflow per one pulse.

当りの流出量は $N=2$ でわずかに減少するが、それ以後はほぼ一定となり、定常流出量（破線）の約 2.4 倍にも達する。一方、 $\tau_{off}=0.005$ 秒と圧力除去期間を短くすると（図 (b)），第 2 パルス目以降の流出量は第 1 パルス目に比べてかなり低下し、その飽和値（回数 N を増したとき、1 パルス当りの流出量が収束する値）は定常値よりは高いが、 $\tau_{off}=2.0$ 秒のその約 1/2 になる。Fig. 12 はこの飽和値の τ_{off} 依存性を計算した結果である。図において、飽和流出量（実線）は $\tau_{off} \approx 0.1$ 秒（0.00031 τ ）で定常値（破線）の約 2 倍あるが、 τ_{off} がそれより短くなると急激に減少し、定常値に等しくなってしまう。一方、 $\tau_{off} \geq 0.35$ 秒（0.001 τ ）では、 τ_{off} の変化に鈍感であることがわかる。図の条件では、 τ_{off} を 0.35 ～ 2 秒にすると接合が促進されることになる^{*7}。

以上のことから、パルス圧力法において、 $\tau_{on} < 0.01 \tau$ とし、 τ_{off} を τ_{on} より（約 1/4 程度）短くしても過渡現象による接合促進効果が期待できる。

6. 実験的検討

6.1 実験方法

供試材としては、本研究の前提条件に適する無酸素銅（純度 99.998 wt%）を使用した。接合試片は、前報と同様に作製し、Fig. 1(a) に示した表面凹凸の代表寸法 L と h_{00} の最頻度値を、それぞれ $L=8.0 \mu\text{m}$ 、 $h_{00}=1.0 \mu\text{m}$ にした。接合中のモデルの近似（Fig. 1(b)）に対しては、前報⁴⁾ で記したように L と h_{00} の値に対する角 α とし、 $\alpha=0.18 \text{ rad}$ に近似した。

接合は、高真空下（約 $1 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ ）での突き合せ接合法により行ない、荷重は接合面に垂直にのみ作用するよう印加した。パルス圧力法における圧力形状は極力矩形に近づけたが、衝撃荷重を加えないよう注意した^{*8}。あらかじめ接合を行ない接合率を約 60% とし、これを初期条件として Fig. 10 に示した 2 通りの加圧法で接合実験を行なった。接合条件は予測計算から実験可能な条件として決定し、接合温度 T 、接合圧力 P を、それぞれ T

*7) 一般的な τ_{off} の範囲は、表面凹凸の大小、接合率 S 、温度 T 及び τ_{on} にも依存し、本研究では求めるに至っていない。しかし、タイムパラメータ τ をもとに、 τ_{on} を決め、それに見合う τ_{off} を Fig. 12 と同じように定めることは可能である。

*8) 加圧は空圧シリンダを用いて、また、そのオンオフは電磁弁の自動開閉により行なった。シリンダのストロークを短かく調節することにより衝撃荷重のかからないほぼ矩形波状の圧力を発生することができた。圧力測定は、大気圧成分が試料に負荷されないよう工夫した接合治具に取りつけたロードセルで行なった。

Fig. 13 Effect of τ_{off} on percent bonded area S .

$=1000 \text{ K}$ 、 $P=2.5 \text{ MPa}$ とし、また、パルス圧力法における τ_{on} 、 τ_{off} は、本研究で用いた接合装置の性能を考慮して、 $\tau_{on}=2.0$ 秒、 $\tau_{off}=0.4 \sim 2.0$ 秒とした。静的圧力法とパルス圧力法による接合過程の進行度合の差は接合率 S によって測定した。なお、接合率 S の求め方は前報⁵⁾ に従った。

6.2 実験結果及び考察

Fig. 13 は、静的圧力法とパルス圧力法による接合進行の違いを示す実験結果である。圧力負荷期間の総和 $\Sigma \tau_{on}$ を一定（8000 秒）とし、 τ_{off} を変えて^{*9}、静的圧力法とパルス圧力法による接合後の接合率 S の違いを図示している。静的圧力法の実験結果は図中の ○印（○印が平均値、I 印がばらつき）のみであり、それ以外の実験点（●印）はすべてパルス圧力法によるものである。図中の破線は、定常接合モデルによる計算結果で、実線が過渡現象を考慮した場合のものである。Fig. 12 から推察できるように、 $\tau_{off} \geq 0.35$ 秒では接合進行速度が τ_{off} によって大きく変化しないと考えられたので、実線の計算に際しては、圧力除去期間中に残留 4μ が十分消失しうと仮定している。したがって、実線はパルス圧力法によって達成される接合率の予測レベルである。

Fig. 13 において、静的圧力法では $S \approx 65\%$ 程度であるが、パルス圧力法では $S \geq 80\%$ を呈し、実験結果は、 τ_{off} とともにわずかに増加する傾向を示す。この増加の傾向は、接合進行にともなうタイムパラメータ τ の増大が、表面凹凸のふぞろいによって助長され、接合進行に対して τ_{off} 依存性を生じさせたと考えられるが、 $S_0=60\%$ に対する Fig. 12 の計算結果からは説明できず、詳しい理由はわからない。しかし、Fig. 13 の実験結果（接合率レベルの差）は予測計算を一応支持するもので、パルス圧力法によって界面拡散の過渡現象が繰り返して再現し、その結果、接合率が静的圧力法より増大したものと考えられる。

Fig. 14 は、接合破面の SEM 写真である。ディンプル状の灰色がかった白い部分が接合部で、黒い個所が残留ボイドに相当する⁵⁾。写真 (a)、(b) が静的圧力法、写真 (c) がパルス圧力法によるものである。(a) と (c) で

*9) 接合中、 τ_{off} は一定としている。

Fig. 14 Fractographs of bond-interface of Cu.

は、 $\Sigma \tau_{on}$ を、(b)と(c)では接合時間 t_B を等しくして比較している。写真から明らかなように、静的圧力法では、 $t_B=10000 \sim 20000$ 秒で、ほとんど接合率が増加していないにもかかわらず、パルス圧力法では、残留ボイドがかなり消失し、接合が進行していることがわかる。この事実から、 τ_{on} 、 τ_{off} を適切に与えさえすれば、パルス圧力法は、接合を促進する上で、静的圧力法より有利な接合法になるといえる。

以上に述べてきたように、界面拡散の過渡現象は通常の拡散接合では無視できるが、パルス圧力法のように、接合中圧力を頻繁に変動させる場合には、密着プロセスを把握する上で、非常に重要となる。

7. 結 言

本研究では、接合装置の都合上、 τ_{on} を2秒以下にした接合実験は行っていないが、数値計算による予測から、もし、残留 4μ の緩和期間 τ_{off} を適切に決め、 τ_{on} を、2秒よりさらに短くすると接合時間はより短縮できると考えられる。

本研究で明らかになった主な事柄を要約すると、下記のようになる。

(1) 固相接合における界面拡散の過渡現象は、式(7)に示したタイムパラメータ τ を時間の尺度として記述でき、その過渡期間は約 0.1τ で、その効果が期待できる期間は約 0.01τ 以内である。

(2) 酸化皮膜の影響が無視できるような高真空中、も

しくは、密着プロセスが律速する条件下における固相接合では、圧力負荷期間 τ_{on} 及び圧力除去期間 τ_{off} をタイムパラメータ τ から適切に定めたパルス圧力法を使用することにより、その接合過程を促進することが可能である。すなわち、パルス圧力法は静的圧力法より接合促進上有利な接合法といえる。

参 考 文 献

- 1) W.A. Owczarski and D.F. Paulonis; Application of Diffusion Welding in USA, *Welding J.* **60** (1980), 22~33.
- 2) 井上陽一; HIPの拡散接合への応用, *溶接*, **54**, No. 1 (1985), 55~55.
- 3) B.H. Alexander and R.W. Balluffi; The Mechanism of Sintering of Copper, *Acta Metall.* **5** (1957), 666~677.
- 4) 西口公之, 高橋康夫; 基本的な接合機構に基づく固相接合過程の定量的検討(第1報), *溶接学会論文集*, **3**, No. 2 (1985), 67~53.
- 5) 同上(第2報), 同書, **3**, No. 2 (1985), 73~79.
- 6) 西口公之, 高橋康夫, 小口力; 接合機構領域図による固相接合過程の検討, *溶接学会論文集*, **3**, No. 2 (1986) 33~38.
- 7) B. Derby and E.R. Wallach; Theoretical Model for Diffusion bonding, *Metal Sci.* **16** (1982), 49~57.
- 8) R. Raj; Transient Behaviour of Diffusion-Induced Creep Rapture, *Metall. Trans.* **6A** (1955), 1499~1509.
- 9) 石田誠; き裂の弾性解析と応力拡大係数, 破壊力学と材料強度講座 **2**, (1976) 培風館 p. 18~19 及び p. 86.

〔付 録〕 界面近傍の応力分布(平面ひずみ状態)と界面拡散方程式の導出

界面 $O O'$ 上で剪断応力 τ_{xy} が零になるように応力関数 Φ を与えると式(A-1)のようになる。

$$\Phi(\xi, \eta) = \theta \sum_{n=1}^{\infty} (1 + a_n \eta) c_n \exp(-a_n \eta) \sin a_n \xi + \kappa \dots (A-1)$$

ここで、 $a_n = (2n-1)\pi/2$, θ は X と σ_B に関係する項で、 c_n は規格化条件 $\sum_{n=1}^{\infty} a_n \cdot c_n = 1$ を満たす係数、 κ はボイドの表面張力 γ_s の効果を考慮した項で、 $\kappa = (\gamma_s/r) \times (X\xi + w)^2/2$ と定める。式(A-1)は $\nabla^2 \Phi = 0$ を満たし、これから、各応力成分 σ_x , σ_y , τ_{xy} が求まり、応力-ひずみ関係式から各ひずみ成分 ϵ_x , ϵ_y , γ_{xy} ($\epsilon_z = 0$) が求まる。応力の y 成分 σ_y を示すと、

$$\sigma_y = -\frac{\theta}{X^2} \sum_{n=1}^{\infty} a_n^2 c_n (1 + a_n \eta) e^{-a_n \eta} \sin a_n \xi + \frac{\gamma_s}{r} \dots (A-2)$$

となる。 θ は、力のつり合い条件式 $\left[\int_w^L \sigma_y dx \right]_{y=0} = L \cdot \sigma_B$ から本文の式(5)のように与えられる。

変位の y 成分 u_y は、 $u_y = \int \epsilon_y dy$ から与えられ、拡散現象による弾性変位量 u_e と $u_e = [u_y]_{y=0, t=t} - [u_y]_{y=0, t=0}$ の関係にある^{*10}。したがって、 $\partial u_e / \partial t$ は、

$$\frac{\partial u_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial t} \left\{ \frac{2(1-\nu^2)}{E \cdot X} \theta \sum_{n=1}^{\infty} a_n c_n \sin a_n \xi \right\} \dots (A-3)$$

と表わすことができる。一方、剛性変位量 u_r は、界面からボイドへの原子流出に起因する母相の陥没量で、 $\partial u_r / \partial t = -(D_b \delta / KTX) [grad \Delta \mu]_{x=w}$ の関係が成立する。ゆえに、

$$\frac{\partial u_r}{\partial t} = -\frac{D_b \delta \Omega}{X^2 kT} \theta \sum_{n=1}^{\infty} a_n^3 c_n \dots (A-4)$$

*10) $[u_y]_{t=0}$ の基準は便宜上 $y = +\infty$ とし、 $[u]_{y=0, t=0}$ は10次関数に差近似して数値計算に使用した。

となる ($\therefore d\mu = -T_n \Omega$, $T_n = [\sigma_y]_{y=0}$). 本文の式 (1), (2) を式 (3) へ代入し, 式 (A-3), (A-4) を使用すると,

$$\frac{\partial}{\partial t} \left\{ \frac{2(1-\nu^2)}{E \cdot X} \theta \sum_{n=1}^{\infty} a_n c_n \sin a_n \xi \right\} = \frac{\partial_b D_b \Omega}{2X^4 kT} \theta \left\{ \sum_{n=1}^{\infty} a_n^3 c_n - \sum_{n=1}^{\infty} a_n^4 c_n \sin a_n \xi \right\} \cdots \cdots (A-5)$$

となる. この両辺に $\sin a_m \xi$ を乗じ (m は自然数), $\xi=0 \sim 1$ まで ξ で積分し, 直交条件を利用すると式 (4) が導出できる.

なお, 周期的配列ボイドの曲率半径 r の変化率 $\partial r / \partial t$ (文献 (4) の真の変化率に当る) は, 次のようにして求まる. すなわち, ボイドの単位長さ当りの体積 $V(t)$ は, $V(t) = r^2(t) (2\alpha - \sin 2\alpha)$ であり, この微小変化量 ΔV は, 体積一定条件から $\Delta V = 4L \Delta u_r$ と表わすことができるので,

$$\frac{\partial r}{\partial t} = \frac{2L}{r(2\alpha - \sin 2\alpha)} \frac{\partial u_r}{\partial t} \cdots \cdots (A-6)$$

となる. X の増分 ΔX は $\Delta X = -\Delta r \sin \alpha$ から求まる⁴⁾.

ろう接時における Cd の挙動について —ヒュームの場合—

西田 隆法**, 稲垣 道夫***, 宮本 栄****

Behavior of Cadmium on Brazing —Problems Associated with Fumes—*

by Takanori Nishida**, Michio Inagaki*** and Sakae Miyamoto****

The production of fumes during brazing is a well-known phenomenon. One of the most important problems associate with such fumes is cadmium due to this element's hazardous nature.

In the present work, the behavior of cadmium fumes during brazing was closely examined for BAg-1 and BAg-3, the typical silver filler metals containing cadmium.

The conclusions drawn from the experiments conducted are as follows:

- 1) The amount of fumes produced by either BAg-1 or BAg-3 was found to increase as the heating temperature increased when the optimum brazing temperature range was exceeded. This phenomenon can well be explained by the secondary electron images obtained by EPMA.
- 2) For the both types of filler metals, the cadmium contents of the fumes produced remained as low as less than 0.80% and 0.70% for BAg-1 and BAg-3, respectively, when brazing was conducted at a heating temperature within the optimum temperature range. When this range was exceeded, however, the cadmium content of the fumes increased as the temperature increased.
- 3) For this experimental device, so long as the heating temperature was kept within the optimum brazing temperature range, Cd concentration of fumes in the air can be controlled less than the WES (9007) control limit. When this range was exceeded, however, the fume concentration surpassed the WES limit by an amount which increased in proportion to the temperature employed.

Key Words: Fumes, Cadmium, BAg-1, BAg-3, Brazing

1. 緒 言

ろう接時にろうからヒュームが発生する現象については, すでに著者らは会誌¹⁾において報告している. この結果 Cd を含有するろうは他のろうよりヒューム発生量が少いことがわかった. しかしろう接時に発生するヒュームにおいて最も問題となるのはその有毒性からして Cd である. Cd が特に一般に関心を持たれるようになったのは昭和43年5月イタイタイ病が Cd による公害病と認定されてからである. Cd ヒュームを一定量以上²⁾, 呼吸器を通じて吸入すると急性中毒症状が現われ, 長期間吸入すると慢性中毒症状を呈するようになる.

急性中毒症状としては不快感, 悪寒からはげしい咳, はきけなどで²⁾, 慢性中毒症状としては腰, 骨盤などの疼痛から骨の変化, 腎障害, 気管支肺炎像などである³⁾. このように人体に対して種々の障害をもたらす Cd の取扱については厳しい注意が必要である.

しかし反面, Cd はろうの融点を下げ, そのぬれ性を向上させ, 他の金属とのなじみの良さなど, その効能は価格の面とともに他の元素では代替できないものがある.

以上のように Cd を含有するろうは他のろうに比較してヒュームの発生量こそ少い¹⁾が毒性を持つので, ろう接施工においては充分な配慮が必要である.

本実験は Cd を含有する代表的なろうである銀ろうの BAg-1, BAg-3 を用いて, ろう接時における Cd ヒュームの挙動について詳細に検討した.

2. 実験方法

2.1 ヒューム捕集装置

ヒューム捕集装置としてはすでに会誌¹⁾において発生

* 原稿受付 昭和60年11月1日 昭和59年度秋季全国大会で発表

** 正 員 職業訓練大学校 Member, The Institute of Vocational Training

*** 正 員 日本溶接技術センター Member, The Japan Welding Technology Center

**** 正 員 職業訓練大学校 Member, The Institute of Vocational Training

*1 急性中毒の場合, 動物実験から $8.63 \text{ mg/mg}^{(2)}$ と呈示されている.