

© 1986 ISIJ

拡散接合の現状と将来



大 橋 修*

Current and Future in Diffusion Welding

Osamu OHASHI

1. はじめに

近年、原子力、宇宙・航空機工業をはじめとする諸工業の分野で、高度な性能をもつ材料の要求が高まり、材料の改良、開発が進められている。また、各種機器の性能向上と高信頼性の確保の上から、複雑な形状をした高度な機能をもつ部品の組立接合が要望されている。これら新しい材料の部品の組立て、接合技術の一つとして、拡散接合が注目されている。

拡散接合とは、被接合物を接触させ、被接合物を溶融することなく、大きな塑性変形を生じない程度に加熱加圧して接合する方法¹⁾、固相接合法の一種である。拡散接合では、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挿入して接合する場合がある。最近、Transient Liquid Phase Bonding²⁾とも呼ばれる接合面間のインサート金属を溶融して接合する方法が、特にニッケル基耐熱合金の接合に適用され普及しつつある³⁾⁴⁾⁵⁾。この方法を拡散接合とらう付のどちらに分類するかについては意見が分かれている。

拡散接合の特徴として、溶融溶接では極めて溶接が困難とされていた金属及び異種金属間の接合ができる。また、形状の点から溶融溶接が困難な中空部品の精密組立接合ができることなどがある。

現在、拡散接合の適用例としては、チタン合金⁶⁾⁷⁾及び溶融溶接が困難な異種金属⁸⁾やニッケル基合金の組立接合³⁾⁴⁾⁵⁾がある。しかし広く他の実用材料の接合に拡散接合が適用されるに至っていない。

チタン合金以外の鉄鋼材料をはじめとする一般金属材料、FRM や酸化物分散型合金などの複合材料及びセラミックスなどの新しい材料の組立接合法として、拡散接合法を信頼性の高いものに確立する必要がある。

本稿では、拡散接合の適用例、研究報告及び特許をもとに、拡散接合の現状と今後の課題について著者が日頃感ずる点について述べる。

2. 材料加工における拡散接合導入の意義

拡散接合の特徴の一つに、従来の接合法には不足している寸法精度が格段に優れていることがある。高精度の接合部品が得られるので、拡散接合のまま後加工なしで十分使用できる。

したがって、拡散接合には単に強度をもたせるための接続法という意味のほかに、精密組立接合法という特徴がある。

このように、拡散接合によれば精密組立接合できることから、従来の溶接法では困難であった複雑な形状、あるいは中空部品の接合が可能となり、また従来一体鍛造で製作されていた部品も接合構造に切りかえることができ、製造工程の合理化をはかることができよう。さらに拡散接合の特徴の一つに、アーク溶接などの溶融溶接法では困難な異種材料の接合、高融点金属、複合材料、セラミックスなどの接合ができることから、高価な材料を適切に利用して、製品の性能向上をはかることができる。

しかし、拡散接合は溶融溶接よりはるかに厳格な接合面の管理が要求され、また接合施工も複雑である。したがって、従来の溶接法に代わって用いられるものでなく、従来の溶接法では溶接できない金属材料、異種金属の接合に、また精密組立接合の分野に特徴を発揮しよう。その一端をつぎの適用例にみる事ができる。

3. 拡散接合の適用状況

最近、わが国において拡散接合によつて組み立てられた製品、試作品が急激に増えつつある。欧米では、宇宙・航空機工業の分野に適用例が圧倒的に多いのに比べ、わが国では民生部品が比較的多いのが特徴といえる。適用例は施工法から三つに大別できる。

3.1 液相のインサート金属を介する

本法はあまり圧力をかけずに接合面の密着をよくし、接合しやすくするため、インサート金属を用いてらう付

昭和 60 年 9 月 9 日 受付 (Received Sep. 9, 1985) (依頼解説)

* 金属材料技術研究所 工博 (National Research Institute for Metals, 2-3-12 Nakameguro Meguro-ku Tokyo 153)

のように熔融金属を介して接合する方法である。本法のポイントは接合温度に保持している間に、インサート金属を等温凝固させる点にある。

図1は電子レンジ用マグネトロン陽極筒の製作に際し、無酸素銅板を成形し、インサート金属 (Ag: 50, Cu: 50) を用いて接合した例⁹⁾である。

本法は元来が溶接困難なニッケル基合金の接合に開発されたものであり、JT9D ジェットエンジンのタービン静翼 (Alloy 713C 製) 同士²⁾⁵⁾ の接合に使用されている。

3.2 液相を介せず接合圧力が材料の降伏点以下

ある機能をもつ小型精密部品の組み立てに多く見られる。高い接合圧力に耐えられない組立接合で、最終仕上がり寸法に近い構成部材を使い、これらをあらかじめ所定の構造に組立配列し、1回の工程で精密接合するとい

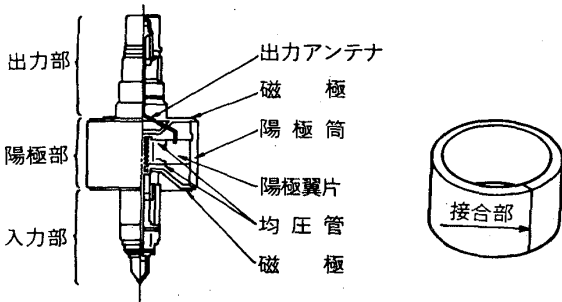


図1 電子レンジ用マグネトロン主要部の構造及び接合による陽極筒の製作

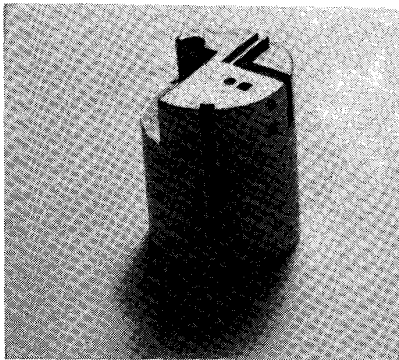


写真1 0.1 mm 厚のステンレス鋼板を積層した接合部品 (直径 10 mm, 高さ 15 mm)

う点に特徴がある。加圧には、ガス圧によるほか、治具材と接合材との熱膨脹係数の差を利用して加熱時に自動的に加圧する方法などがとられる。本法は従来の熱処理炉が利用でき、製作費、設備費が安いなどの利点がある。

写真1はフォトリソ加工した 0.1 mm 厚のステンレス鋼板を 150 枚積層して作られた部品¹⁰⁾ である。形状の違った板を積層することによつて、例えば写真1に見られるように上面から側面へと部品内で曲がつた丸い穴及び四角い穴を持った部品が製作できる。

このほか、電子計算機のプリンター用¹¹⁾¹²⁾及びジェットエンジン燃料制御用¹³⁾¹⁴⁾などの各種流体素子、複雑な冷却通路をもつタービン翼¹⁵⁾、放電加工用電極¹⁶⁾、宇宙実験用ミニチュアヒーター、ガスクロマトグラフィーのカラム¹⁴⁾の製作例がある。

3.3 液相を介せず接合圧力が材料の降伏点以上

接合面を密着させるのに、主にクリープ変形を用いる方法である。

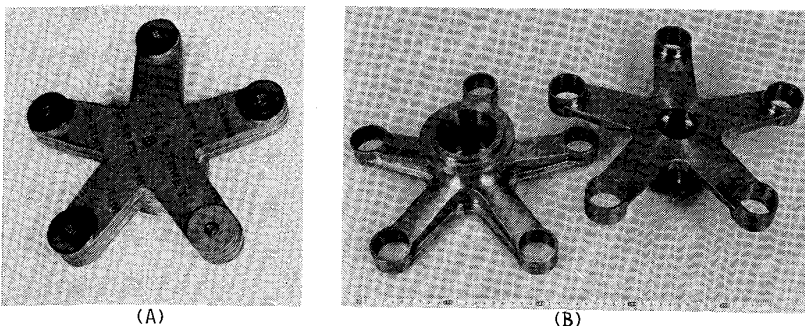
まず航空機工業でのチタン合金製の部品の製作例について述べる。写真2はヘリコプターローターハブ⁷⁾の製作例を示している。これは 5 mm のチタン合金板を対象部品に近い形状に切断し、積層拡散接合した後、機械加工して作られている。従来の鍛造材から削り出して製作する場合と比べ、本法では材料費の節約及び中空構造化が可能で、約 20% の軽量化につながる。

写真3は超塑性現象を利用して、成形と拡散接合を組み合わせて、複雑な形状の部品の製作例⁶⁾を示している。

このほか、ターボファンエンジン JT9D のホローファンハブ⁵⁾、中空コンプレッサブレード¹⁶⁾、中空タービン翼¹⁷⁾、各種ハニカム¹⁸⁾などの製作がある。

航空機工業以外の分野では、冷却溝をもつ銅板をステンレス鋼製の筒に内張りして作られた連铸用モールド¹⁹⁾、低合金製の回転羽根車⁵⁾²⁰⁾など拡散接合で組み立てられている。

写真4は各種クラッド鋼の製作例⁸⁾を示している。現在、最大 250 cm 角の各種クラッド鋼が拡散接合で製造され、これらを使つて、熱交換器、製鉄機械ライナー部品などが組み立てられている。



(A) チタン合金板の積層拡散接合 (B) 仕上加工

写真2 ヘリコプターローターハブの製作例

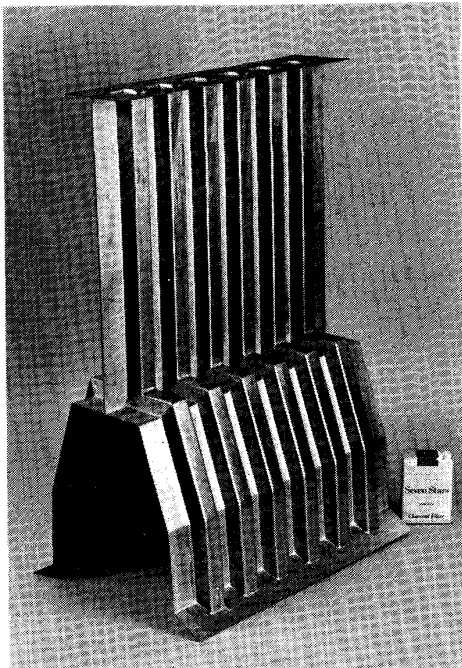
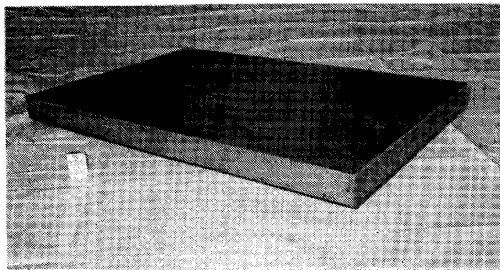
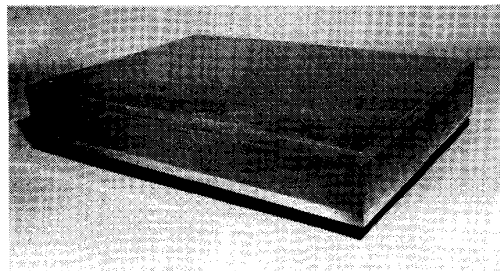


写真 3 成形と拡散接合を組み合わせて製作された航空機部品 (Ti-6Al-4V 合金製)



(A)



(B)

(A) キュプロニッケル クラッド鋼
(B) キュプロニッケル-鋼-SUS 316 三層クラッド鋼
写真 4 各種クラッド鋼

4. 研究論文に見られる現状

4.1 日本と米国との比較

日本及び米国での拡散接合に関する論文を対象に、その傾向を調べてみる。日本の論文は、溶接学会誌及び全国大会講演概要集の 81 年～84 年の拡散接合の論文 (34 件) を対象としている。米国の論文については、National Technical Information Service で「Diffusion

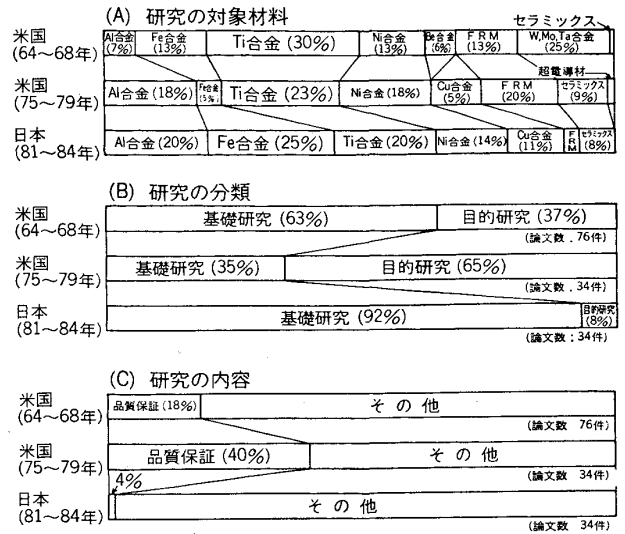


図 2 日本及び米国での発表論文に見られる傾向

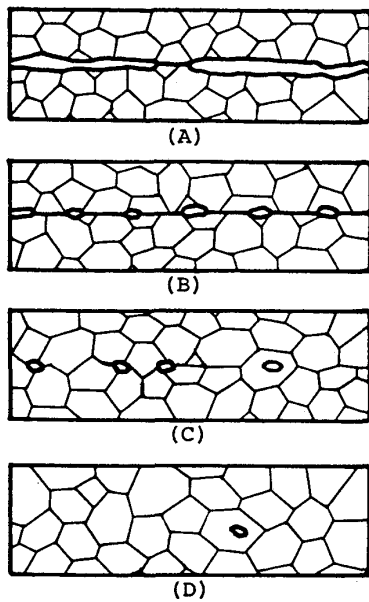
Welding」で検索した論文で、64 年～68 年の論文 76 件、75 年～79 年の論文 34 件について調べている。

図 2 (A) は研究の対象材料について示している。FRM は素材の製作に拡散接合を適用したものであり、その他の材料はいずれも同種及び異種の拡散接合に関するものである。米国では、近年チタン合金、高融点金属の接合が減少し、アルミニウム合金、FRM、セラミックスの接合が増加している。日本においてもここ 1～2 年金属学会での発表傾向からみても、セラミックスと金属との接合、それに FRM の製作に関する論文が急増している。このように、両国でいずれも新しい材料の接合に拡散接合が注目されている。また、経済構造の差によって考えられるが、日本ではアルミニウム、鉄、鋼合金の研究が相対的に多く、高融点金属の研究が少ないのが特徴である。

図 2 (B) は研究論文の内容を目的研究と基礎研究とに分けて、日本と米国の研究内容を比較したものである。「目的研究」とはその研究が「物」を製作することを直接の目的としている場合であり、その研究成果の対象物が明確にされている研究である。「基礎研究」とは具体的な用途や対象物を明確に意識した上での研究ではなく、拡散接合についての水準を上げるため、あるいは技術の基礎を蓄積することを目的とする研究である。

米国での 60 年代の研究は基礎研究が主であるが、70 年代には基礎研究が実を結び、対象物を意識した目的研究が逆に多くなっている。その結果、図 2 (C) の研究内容からみても、対象物の品質を確保するための非破壊試験法、接合部の力学、設計に役立つ接合部の性能評価の論文が多くなっている。

一方、日本では「物」を製作することを意識した研究が相対的に少なく、研究論文の内容からみて、日本での拡散接合の実用化が米国よりかなり遅れていることがう



- (A) 加熱前
 (B) 接合面の凹凸が変形する過程
 (C) 粒界の移動及び空隙が消失する過程
 (D) 体拡散によりすべての空隙が消失する過程

図3 拡散接合部の密着過程

かがえる。

4.2 研究内容

研究論文の大半が、各種材料の接合報告である。拡散接合継手の性能に十分な信頼性を確立するためには、接合機構や品質保証に関する研究が重要であるにもかかわらず、これらに関する研究は比較的少ない。次に接合機構や品質保証についての研究の現状について述べる。

4.2.1 接合面の密着に関連して

KING らは²¹⁾²²⁾、図3に示すような定性的なモデルの提案を行っている。(A)図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によって変形し密着箇所の面積が増加する。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してゆく。

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する。第3段階(D図)は結晶粒内にとりのこされた空隙が消失する過程である。これらの段階が重なりあつて進行する。

拡散接合部の密着面積を接合条件因子でもつて定量化する試みがある。モデル化した試験片から求めた高温での変形性能から評価する方法²³⁾、各機構²⁴⁾²⁵⁾(塑性変形、クリープ変形、体積拡散、界面拡散)を考慮して数値計算²⁶⁾する方法などが提案されている。しかし、この適用は狭い接合条件範囲に限られている。

密着面積の増加は主に拡散現象と関係することから、接合施工が高温度で長時間に及ぶことになる。

そこで、接合面の密着の促進法が検討され、接合面間に軟質材を挿入する方法、あるいは挿入金属を等温凝固させる方法、また材料によつては超塑性現象²⁷⁾を利用して接合する方法が効果的である。

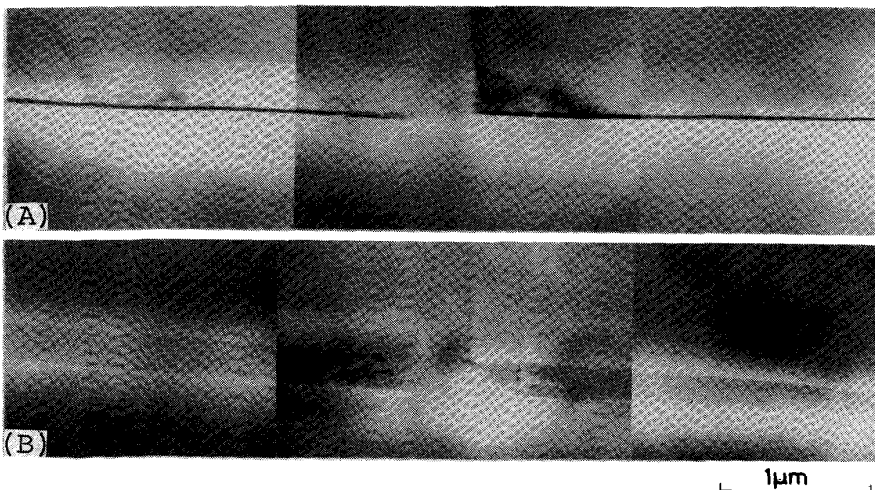
しかし、接合部品のごく大きさと形状が接合面の密着にどのように影響するか明らかにされていない。したがつて、部品の形状が変わると再度最適接合条件を探る実験を必要とすることが多い。また、接合面を密着させるのに、1軸加圧とHIPのような等方圧加圧のどちらがよいのか。さらに最適加圧時期、最適加熱方法など系統的な研究はまだない。したがつて、最適で、合理的な拡散接合装置が製作できないのが現状である。

4.2.2 接合面の皮膜に関連して

接合面の酸化皮膜は、密着部での接合を妨げる。接合部での皮膜の挙動については、接合部での電気抵抗の変化の測定²⁸⁾や最近の表面分析機器の発展もあり、明らかになりつつある。

写真5はアルミニウム接合部の透過型電子顕微鏡写真²⁹⁾である。接合界面に沿つた酸化物が一部で破壊されているものの、接合部に皮膜が残留しているのが確認される。

写真6はSUS 304ステンレス鋼の拡散接合部を走査型オージェ電子分光器内で破壊し、その破面の分析結



- (A) 接合界面が入射電子線(紙面に垂直)に平行
 (B) 接合界面が入射電子線(紙面に垂直)に対して30°傾斜

写真5 アルミニウムの接合部の透過型電子顕微鏡写真

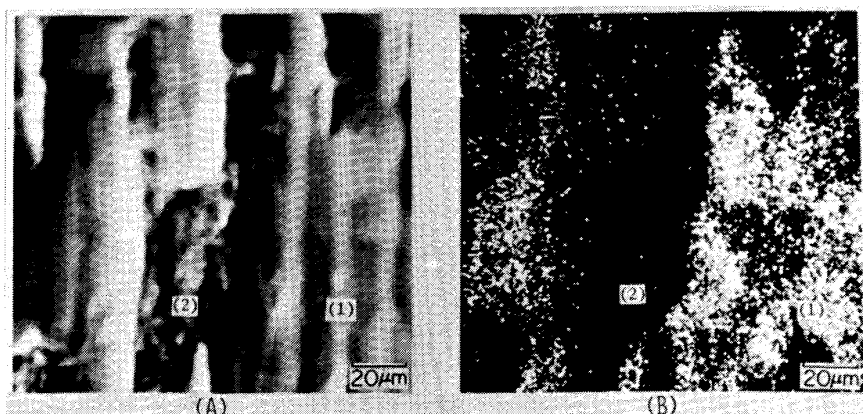


写真 6 SUS 304 ステンレス鋼の拡散接合部を走査型オージェ電子分光器内で破壊して得られた破面の2次電子像(A)と硫黄のオージェ電子像. 分析点(1)は未密着部,(2)は破断面.

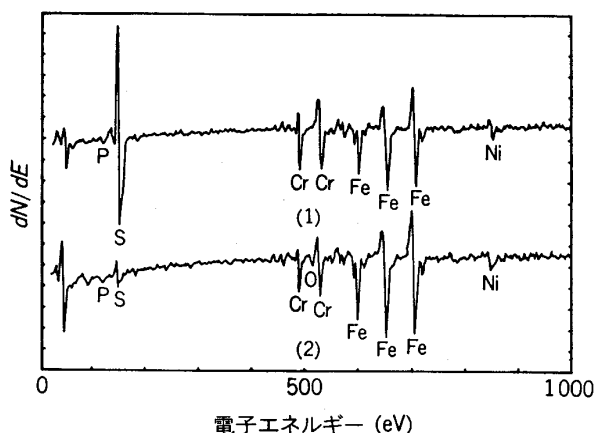


図 4 写真 6 上の分析点(1)及び(2)のオージェ分析結果

果³⁰⁾である。いま写真上で分析点(1)の未密着部と分析点(2)の破断面をそれぞれ分析した結果を図4に示す。未密着部には硫黄が偏析するが、破断面には接合前の接合面と比べて、酸素、炭素の量が大きく減少し、酸化皮膜は消失している。

拡散接合部での酸化皮膜の挙動は材料によつて異なり、図5に示すように、三つの型に分類される³¹⁾。

A型——接合面間の酸化皮膜が拡散接合の初期に消失し、酸化皮膜が拡散溶接部にそれほ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。

B型——拡散接合の初期段階に接合面の酸化皮膜が凝

集して、空隙内面及び密着部に介在物を形成する。接合の進行とともにさらに凝集が進み、また母材への酸素の拡散により、介在物量は減少する。銅、鉄及びステンレス鋼がこの型に属する。

C型——酸化皮膜が非常に安定で、拡散接合中に消失しない。接合部の変形により清浄面が露出し、わずかな接合箇所が得られる。アルミニウムがこの型に属する。

したがつて、アルミニウムは接合前に接合面を清浄化する必要があるが、グロー放電表面処理などが試みられ³²⁾、一応の成果が見られる。

このように、皮膜が拡散接合に大きく影響するが、接合前の接合面を簡便に評価する方法がまだない。また、接合雰囲気も接合面間の皮膜の挙動に大きく影響するにもかかわらず、最適な接合雰囲気が明確になつていない。その結果、大きな排気装置をもつた高価な拡散接合装置設置の原因にもなつている。

4.2.3 異種材料の接合に関連して

異種材料の接合報告は多くの場合、その最適接合条件を示すのにとどまつている。

異種材料の接合機構については、接合部の透過型電子顕微鏡観察から³³⁾、一部検討されているが、異種材料間の接合力の発生する機構については明らかになつていない。

異種材料間での相互拡散に伴う問題は、各種の組合せで報告されているが、系統的に論ずるまでに至つていな

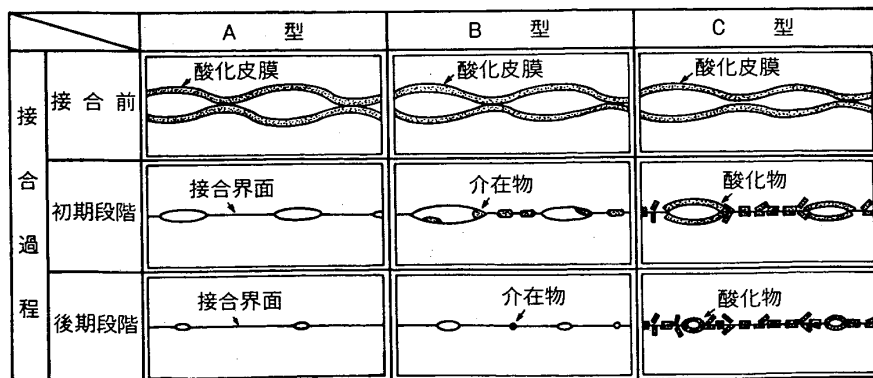


図 5 拡散接合部での酸化皮膜の挙動

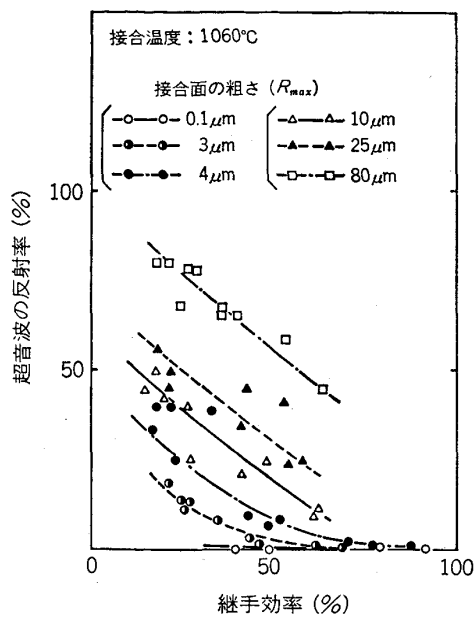


図6 SUS 304 ステンレス鋼の拡散接合部の超音波探傷

い。異種材料間での密着を促進すると、結果として相互拡散が大きくなり、性能劣化の原因ともなっている。また熱膨張係数の差に基づく応力の緩和策についての研究が、最近活発になつてきた。

今後、異種材料間の界面制御及び有効な熱応力緩和策の開発が望まれる。

4.2.4 接合部の品質保証に関連して

拡散接合の実用化に際して、非破壊試験法の確立が望まれているが、現在有効な非破壊試験法がないのが現状である。

拡散接合部の非破壊試験法として、超音波探傷法³⁴⁾³⁵⁾、電気抵抗測定法、応力下での AE 測定法³⁶⁾ などについて検討されている。この中では超音波探傷が有効である。しかし、図6に示すように、工業的に使用されている接合面の粗さが数 μm 以下の接合継手では、継手強さが母材の 50% にも達すると、もはや超音波の反射が少なく、性能評価が困難となる³⁵⁾。

したがって、拡散接合部の品質の保証は製造工程の管理に重点が置かれ、補助的に超音波探傷試験が併用されている。

継手の機械的性能と接合部の変形量とは関連があることから、変形量でもつて品質をモニタリングする場合も多い。今後品質安定化のため新しいモニタリング因子を求める必要がある。また接合部に要求される性能と許容される欠陥量との関係や継手形状の設計思想を確立しなければならない。

5. 特許に見られる傾向

特許を対象にその傾向を調べてみる。図7は、日本特許情報センターで、公開特許(出願日:46年~57年2

(A) 特許出願状況

**	*	46	47	48	49	50	51	52	53	54	55	56	57	計
A 社		1					4	7	9	8	10	9	3	51
B 社								2		1		3	1	7
C 社						1		3	1	4	3	1		13
D 社		2	1		5	1	1			2	5	7		24
外国		2		2		3	2	1		1	1	2		14
その他		1	1	4	3	2	7	10	4	6	11	14	5	68
計		6	2	6	8	7	14	23	14	22	30	36	9	177

* 出願年 ** 出願者

(B) 特許で対象となる材料

†	46	47	48	49	50	51	52	53	54	55	56	57	計
セラミックス											3	3	6
超合金	1		1		1	2	2	2		1	7	8	25
チタン	1		1		1	2	1			3			9
アルミニウム			1			4	3					1	11
銅					2	4	2			1			9
鉄			1	2	2	1	5						11

† 出願年 †† 材料

(C) 特許の内容

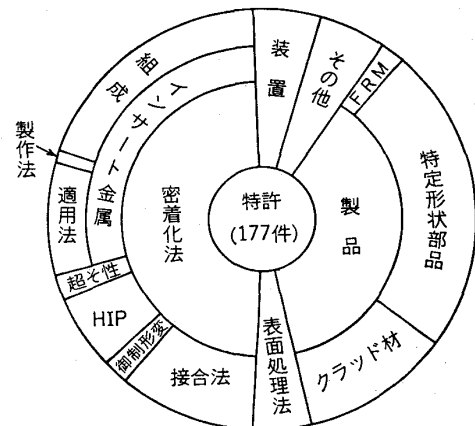


図7 特許に見られる傾向

月)について「拡散」と「接合」で検索し、年度別特許出願件数、対象となつている材料及び特許内容を示している。

図7(A)は年度別特許出願状況であるが、最近出題数が急激に増加している。その特許の約半数が2~3の企業に集中しており、大学や国公立研究機関の出願がほとんどないのが目を引く。

図7(B)は特許で対象となつている材料を示している。セラミックス、超合金が最近急増しており、新材料の接合に拡散接合が注目されているのがわかる。外国企業の出願の多くは超合金の接合に集中している。

図7(C)は特許のポイントを内容別に分類したものである。特許の約半数が接合面の密着法に関するものであり、インサート金属の利用によつて接合が試みられている。また、最近HIPを使つた特許が増加している。一方、表面処理法にポイントを置いた特許が比較的少な

い。インサート金属と母材との合金反応で表面処理も期待できることから、インサート金属の利用によつて、密着化と清浄化が同時にはかられ、接合されている。

拡散接合で、FRM, クラッド材, 特定形状部品などの製品を作ることを特徴とする特許も非常に多い。これら特許の中に接合面間に圧力を加えるのに工夫がこらされているものが多い。

このように、新材料の接合に、ある機能をもつた特定の品物を製作するのに、拡散接合が注目され、特許のポイントはインサート金属や接合面の加圧法などにある。

6. あとがき

上述のように、一部の分野で拡散接合は実用化しているが、今後広く機械工業の分野で本接合法が発展するには、まだ解決しなければならない課題も多い。

基礎的研究分野では拡散接合現象をさらに明らかにし、まず各種材料に対する接合条件選定法、及び接合性改善の目的でしばしば用いられるインサート金属選定法の確立がまたれる。さらに拡散接合は一般に接合時間が長いことから、時間をより短くする方法なども検討する必要がある。

つぎに実用化研究として、接合条件選定法など基礎的研究が進めばある程度解決するが、どのような接合雰囲気として、また加熱装置として何を用い、最高温度、圧力をいくらにすればよいかなど、生産装置、設備に必要な機能、性能の諸要求を明らかにする必要がある。また、いかにして接合面全面を均一に加圧し、かつ最終部品形状に近づけるか、さらに形状、寸法精度の再現性を高めるため、接合治具、部品形状及び継手形状の設計思想を確立しなければならない。

最後に、拡散接合が大きく飛躍するため、ぜひとも解決しなければならない問題として、接合部の品質保証がある。

本資料を取りまとめるのに際し、写真を提供していただいた大阪大学溶接工学研究所 池内建二博士、触化技術研究所 谷口善兵氏、三菱重工業株式会社広島研究所 平井章三氏及び名古屋航空機製作所 清藤晋一郎氏、それに引用させていただいた論文の著者の方々に深甚なる謝意を表します。

文 献

- 1) American Welding Society: Welding Handbook, Vol. III (1980)
- 2) D. S. DUVALL, W. A. OW CZARSKI and D. F. PAULONIS: W. J., 53 (1974), S 203
- 3) W. A. OW CZARSKI and D. S. DUVALL: Mater. Sci. Symp. New Trends in Mater. Process (1976), p. 301
- 4) G. S. HOPPIN and T. F. BERRY: W. J., 49 (1970), S 505
- 5) W. A. OW CZARSKI and D. F. PAULONIS: W. J., 60 (1981) 2, p. 22
- 6) 大隅 真, 高橋明男, 清水正治, 都筑隆之: 三菱重工技, 20 (1983), 4
- 7) 大隅 真, 清藤晋一郎, 坂本光正: 三菱重工技, 21 (1984) 1
- 8) 大前 堯, 深谷保博, 井上繁夫, 加藤 昭, 沖田正: 三菱重工技, 19 (1982) 4
- 9) 長岡弘二, 松崎 光, 松崎利行: 日本金属学会会報, 24 (1985), p. 415
- 10) 谷口善兵 (触化技術研究所): 私信
- 11) 山田 猛: 名古屋大学学位論文 (1983), p. 185
- 12) ニッコーン株式会社, カタログ, No. H-82
- 13) M. M. SCHWARZ: Modern Metal Joining Techniques, Wiley-Interscience (1969), p. 466
- 14) W. M. SPURGEON: Proc. Symp. on Welding, Bonding and Fastening (1972), p. 386
- 15) NAL ニュース (1980, 9月)
- 16) R. M. COGAN: Technical Report, AFML-TR-219 (1969)
- 17) C. G. NESSLER: Technical Report, AFML-TR-71-237
- 18) P. R. MCGOWAN: Technical Report, AFML-TR-66-419
- 19) 三菱重工業株式会社, カタログ, HD 40-03315
- 20) 河野顕臣, 才川至考, 佐々木敏美, 小出一征: 溶接学会溶接法, SW-1140-79
- 21) W. H. KING and W. A. OW CZARSKI: W. J., 46 (1967), S 289
- 22) W. H. KING and W. A. OW CZARSKI: W. J., 47 (1968), S 444
- 23) 大橋 修, 橋本達哉: 溶接学会誌, 45 (1976), p. 295
- 24) G. GARMONG, N. E. PATON and A. S. ARGON: Metall. Trans., 6A (1975), p. 1269
- 25) B. DERBY and E. R. WALLASH: Met. Sci., 16 (1982), p. 49
- 26) 西口公之, 高橋康夫: 溶接学会論文集, 3(1985), p. 303
- 27) E. D. WEISERT: Met. Progress, 110 (1977) 3, p. 33
- 28) 圓城敏男, 池内建二, 秋川尚史: 溶接学会誌, 51 (1982), p. 272
- 29) 圓城敏男, 池内建二, 古川 潔: 軽金属, 35 (1985), p. 388
- 30) 大橋 修, 田沼欣司, 吉原一紘: 溶接学会論文集, 3 (1985), p. 152
- 31) 大橋 修, 田沼欣司, 木村 隆: 溶接学会論文集, 投稿中
- 32) 大橋 修, 橋本達哉: 溶接学会誌, 45 (1976), p. 76
- 33) S. MOROZUMI, M. KIKUCHI, T. NISHINO: J. Mat. Sci., 16 (1981), p. 2173
- 34) R. J. REHDER and D. T. LOVELL: W. J., 49 (1970), S 213
- 35) 大橋 修, 橋本達哉, 木村勝美: 溶接学会誌, 48 (1979), p. 182
- 36) 大橋 修, 橋本達哉: 溶接学会講演概要集, 24 集, p. 240