

21Ni-6Cr-Fe/36Ni-Feバイメタル製造における 圧接温度の影響

石尾 雅昭*・梅田 正和*・井上 博史*²・森井 賢二*²

Effect of Roll Bonding Temperature on 21Ni-6Cr-Fe/36Ni-Fe Bimetal Production

Masaaki ISHIO, Masakazu UMEDA, Hirofumi INOUE and Kenji MORII

Synopsis : The warm bonding process for 21Ni-6Cr-Fe/36Ni-Fe bimetal has been studied and we have confirmed that bond strength was improved drastically. Furthermore, the cause of improved bond strength has been pursued and the effect of warm bonding has been examined. The bond strength of warm bonded bimetal at 200°C was about doubled than that of cold bonded bimetal at room temperature. As a result of observation of the bonded surface separated from the bonded part, as for the warm bonded bimetal, tight bond traces were magnified 2.5 times than those of the cold bonded bimetal. Adsorption water on the surface of the material is released by heating before bonding, so oxygen which remained on the bonded part declined sharply. A calculated result of the relationship between bonding reduction and bond contribution area agreed with very well a tendency of measured results of the relationship between bonding reduction and bond strength. Therefore, the reason why the bond strength of warm bonding is higher, can be explained by the expansion of the bond contribution area. The bonding reduction can decrease in warm bonding, because the bond strength of the warm bonding at 200°C at 50% reduction is equal to the bond strength of the cold bonding at room temperature at 65% reduction. The range of manufacturing will be expanded in the case of warm bonding because a bonding load was reduced 30%.

Key words: cold bonding; warm bonding; bimetal; invar alloy; clad metals; bond strength; diffusion annealing; scratch brushing; bond contribution area.

1. 緒言

金属複合板は単独材料では実現困難な特性が得られることや、複数の機能を同時に付与したり、単独材料の欠点を補うことができることから注目され、開発が進められてきた。電気・電子材料の分野では真空管用材料やバイメタルを始めとして、半導体リードフレーム、放熱基板、磁気ヘッド、接点、各種電池ケース・リード、導電性バネ、ろう付け封止材等、近年用途拡大が著しい^{1,2)}。

金属複合板製法の一つである冷間圧接法は、コイル素材を用いて連続的に圧延接合することから、熱間圧接法や爆着法に比較して精度が良く、薄板厚の長尺コイルが歩留まりよく得られる特徴がある。また構成素材の選択や接合比率および形態の自由度も大きい³⁾。しかしながら、圧接に際しては大きな圧下率を要し、過酷な潤滑条件になるため、製造可能寸法は比較的薄板に限定されてきた。

冷間圧接による接合機構および接合強度に影響を与える因子については、いくつかの研究事例⁴⁻¹²⁾があり、圧下率と温度が接合強さを左右する重要因子であることが知られている。アルミ等比較的融点材料をクラッドする場合、接合強さ改善に対する加熱効果が顕著¹³⁻¹⁵⁾であるが、鉄系材料同士の組み合わせでは、温間加熱効果は明らかにされて

おらず、量産適用されていなかった。

今回我々は、バイメタル(JIS, C2530-TM2・145・R80)の構成材である21Ni-6Cr-Fe、36Ni-Fe合金を用いて温間圧接実験を行った結果、冷間圧接時に素材を200°C程度に加熱することによって接合強さが著しく向上することを確認し、接合界面の調査を通じてこの理由を考察した。そして、接合に要する圧下率を低減できることから、冷間圧接の長所を損なうこと無しに、製造可能範囲を拡大し得ることや、量産上の付随効果も確認したのであわせ報告する。

2. 供試料

Table 1に供試合金の化学組成を示す。バイメタルの構成材として一般的なオーステナイト系合金を高膨張側(High Expansion Side, 以後HESと表わす)とし、Invar合金を低膨張側(Low Expansion Side, 以後LESと表わす)として、各々板厚2.0 mmのコイル素材を準備した。

Table 1. Chemical composition of test materials used. (mass%)

	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Fe
High expansion side	0.020	0.24	0.80	0.010	0.001	20.90	5.60	bal.
Low expansion side	0.018	0.07	0.35	0.003	0.001	36.10	0.07	bal.

平成11年2月24日受付 平成11年4月15日受理 (Received on Feb. 24, 1999; Accepted on Apr. 15, 1999)

* 住友特殊金属(株) 金属電子材事業部 (Electronic Materials Division, Sumitomo Special Metals Co. Ltd., 2-19-1 Minamisuita Suita 564-0043)

*² 大阪府立大学 工学部 (College of Engineering, Osaka Prefecture University)

3. 実験方法

3.1 温間圧接法の概要

本プロセスの概要をFig. 1に示す。素材は長尺コイル材を脱脂洗浄後、Scratch-brushing (1st stage)を施す。次に2種類(HES, LES)の素材を重ね合わせて、加熱しつつ圧延接合(2nd stage)する。さらに圧延接合後、拡散熱処理(3rd stage)工程に進む。この一連の工程Three-Step-Process¹⁶⁾を通過した複合板は、圧延、絞り加工など種々の塑性加工に耐える。なお2nd stageの加熱温度は100~400°C程度であり、赤熱状態のピレットを圧着する熱間圧接法とはプロセスが本質的に異なる。

3.2 接合強さの評価および接合界面の観察

Table 1の供試料を用いて冷間、および温間圧接試験を行った。接合状況を引張り剥離試験ならびに、剥離面のSEM観察、EPMA分析、さらに断面SEM観察、断面から界面のEPMA分析を通じて評価した。接合強さはFig. 2の様に接合界面を開き、引張り試験機にて剥離に要する荷重を測定した。この荷重を試験片幅(w)で除した値(単位幅あたりの剥離に要した荷重)を接合強さと定義した。なお接合前素材について、特にその表面をオージェ分析装置にて調査し、酸化被膜が接合強さに及ぼす影響を考察した。また、圧接圧延荷重、トルク、複合板完成品板厚変動の調査を通じて操業面での効果(品質向上、製造可能範囲の拡大)を確認した。

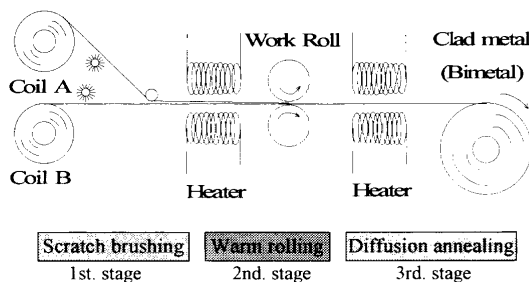


Fig. 1. Conception of the warm bonding process.

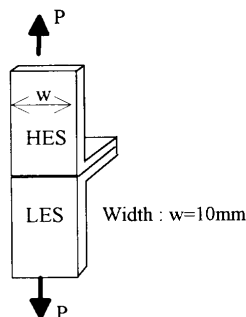


Fig. 2. Specimen of peeling test by tension. (Tension speed: 5 mm/sec)

4. 実験結果

4.1 圧接条件と接合強さ

まず常温および150, 200, 300°C, 圧下率63%にて温間圧接(2nd stage)を行い、拡散焼鈍(3rd stage)前の試料を用いて接合強さを評価した(Fig. 3)。接合時の温度が上昇するにつれて接合強さは向上し、僅か150~300°C程度の加熱によって冷間圧接時の2倍の強さが得られた。次に拡散焼鈍温度の影響を調査した。圧接圧下率53%にて、冷間圧接と200°C温間圧接を行い、900, 1000, 1100°C, 180 secの条件で各々拡散焼鈍を施した後、接合強さを測定した(Fig. 4)。拡散焼鈍温度の上昇に伴い、特に1000°C以上の加熱で接合強さは顕著に向上するが、この実験においても、温間圧接材は冷間圧接材の約2倍の接合強さが得られた。

4.2 接合界面(剥離面)観察結果

Fig. 5は接合界面を剥離し、HESとLESそれぞれの剥離面のSEM観察写真である。剥離面には接合していた痕跡が広範囲に認められた。剥離面を10 μ mメッシュ間隔(面積: 1.76×10^{-10} m², 観察点: 196ポイント)でSEM観察し、各交点での接合痕跡を3段階(接合痕跡: ①強; 深い凹凸, ディンプルパターン強, ②中; 浅い凹凸, ディンプルパターン弱, ③弱; 浅い凹凸, ディンプルパターン確認でき

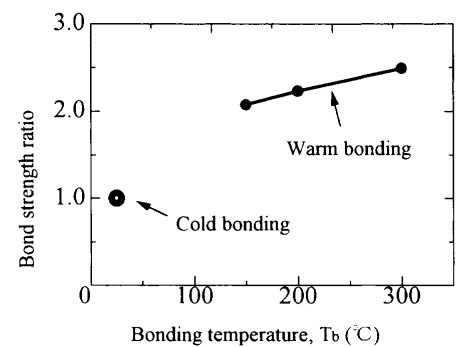


Fig. 3. Relationship between bonding temperature and bond strength ratio for bonded specimens at 63% reduction before diffusion annealing. (Bond strength ratio=Warm bonding strength/Cold bonding strength)

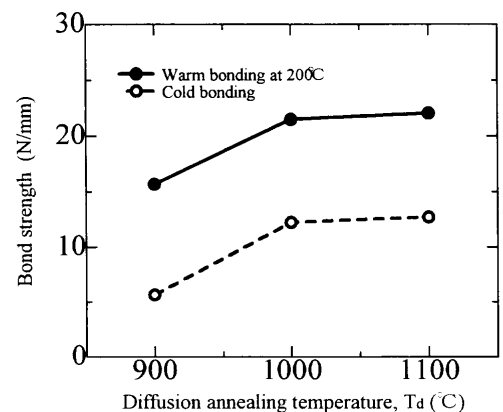


Fig. 4. Effects of bonding and diffusion annealing temperatures on bond strength.

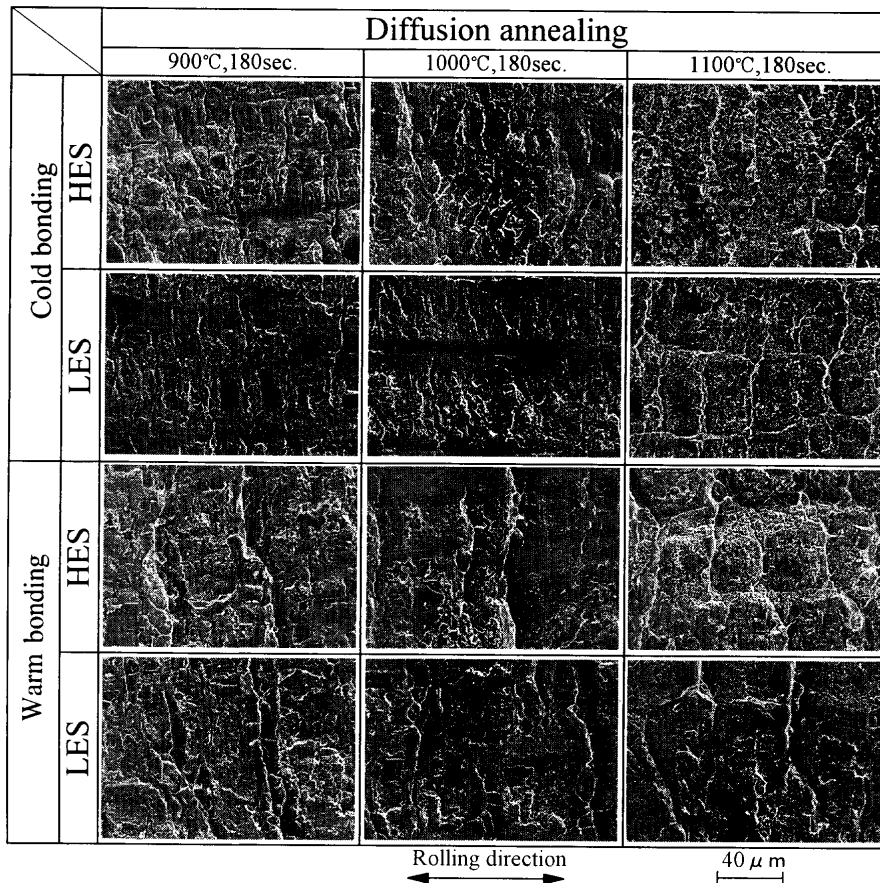


Fig. 5. Secondary electron images of HES and LES bonded surfaces after peeling.

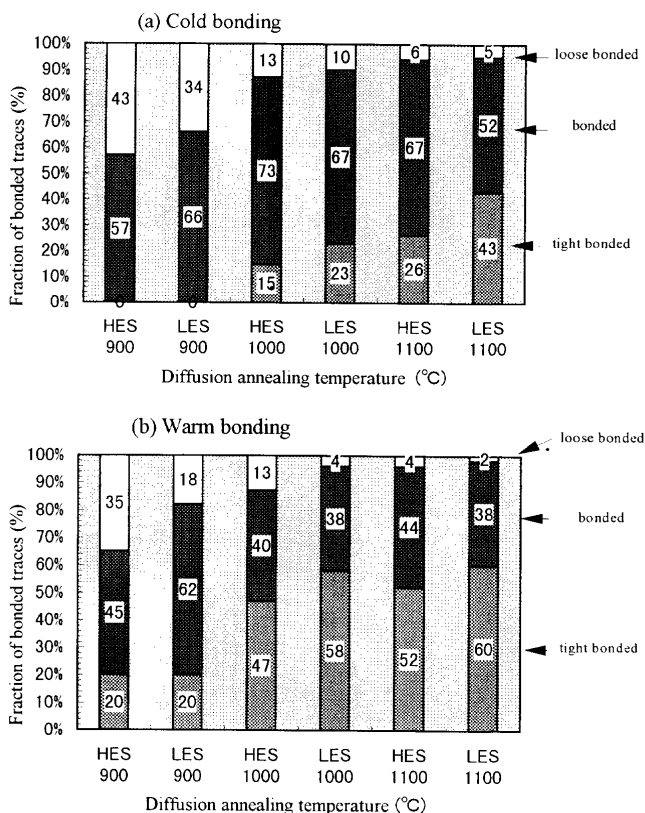


Fig. 6. Fraction of the bonded traces in each surface that was separated from bonded state.

ず)に分類した結果を Fig. 6 に示す。HES と LES それぞれの剥離面に対し、温間圧接材は強固な接合痕跡が冷間圧接材の 1.5~3 倍観察された。拡散焼鈍温度の影響を調査したところ、温間圧接材の 900°C 焼鈍材では面積の 20% に強固な接合痕跡が存在し、1000°C においては約 50% が強固な痕跡になっている。しかしながら冷間圧接材には 900°C においては強固な接合痕跡が認められず、1000°C に加熱しても僅か 15%~20% にすぎない。このように温間圧接材は比較的焼鈍温度の低い段階から強固な接合痕跡が観察できた。

4.3 接合界面 (断面) 観察結果

Fig. 7 は接合界面を断面から SEM を用いて観察した組成像である。接合界面には、1st stage の Scratch-brushing で導入された加工硬化層の残存が認められるが、冷間圧接材と比較して、温間圧接材の加工硬化層の残存面積は少ない。界面長さから加工硬化層長さを差し引いた接合長さは、温間圧接材は冷間圧接材の 1.3 倍であった。

5. 考察

5.1 温間加熱による接合界面の変化

温間加熱によって素材表面に酸化被膜が厚く成長した場合には、接合強さの低下が懸念される。そこで Scratch-

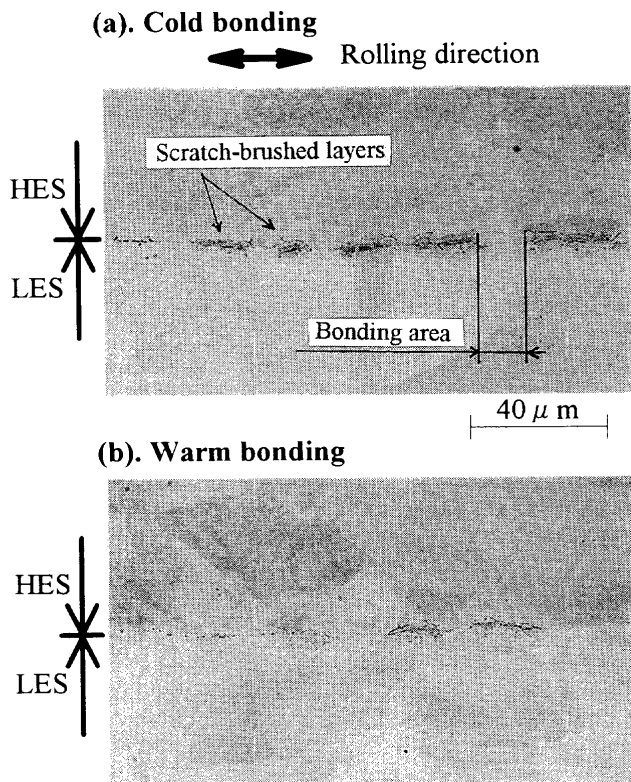


Fig. 7. Composition images of transverse sections for cold and warm bonding specimens. Bonding reduction: 57%, Warm bonding temperature: 200°C, Diffusion annealing: 900°C, 180 sec.

brushing後大気中で一定時間加熱した後、一旦冷却し、圧接を含む種々試験を行ない、温間加熱温度の上限値を検討した。Fig. 8は、素材に対しそれぞれの温度で加熱処理(前処理)を施した後に、冷間圧接、拡散焼鈍を行い、剥離試験によって接合強さを調査した結果である。100~300°Cの前処理を施したものは、顕著に接合強さの向上(約1.5倍程度)が認められる。なお素材表面の酸化被膜の厚み(Fig. 9)は、300°Cを越えて加熱すると著しく成長する。400°Cの前処理を施した場合、皮膜厚みは1000 Å以上に成長し、接合強さも低下する。また試験片断面から接合界面における拡散状況(Fig.10)を調査したところ、共にFe, Ni, Cr, 各元素の相互拡散が観察されその厚みは約10 μm程度であった。また加熱処理(200°C)後、圧延接合した試験片の界面酸素レベルが低く、特に温間圧接(加熱後冷却せずに直ちに圧接)した試験片では接合界面の酸素ピークがほぼ消失していた。Thermal Desorption SpectrometerによってScratch-brushing後の素材の放出ガス分析を行ったところ、低温加熱によって、水分が放出されることを確認した。そして一度加熱した素材からの再放出は少ないことがわかった。これらの結果から、温間加熱によって圧接前に素材表面に吸着していた水分が放出されることが接合強さの向上に寄与すると考えられる。

5.2 温間圧接による接合強さ向上

4.2の接合痕跡観察や、4.3の界面断面における加工硬

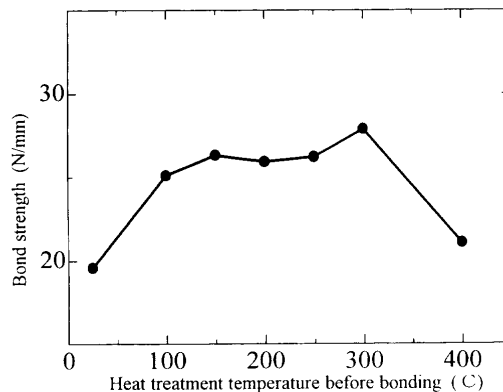


Fig. 8. Effect of the heat treatment before cold bonding on bond strength of bimetal. Cold bonding specimens were rolled at a 60% reduction at room temperature after heat treatment at 100, 150, 200, 250, 300, and 400°C in air, and finally, annealed at 1000°C for 180 sec in a hydrogen after rolling.

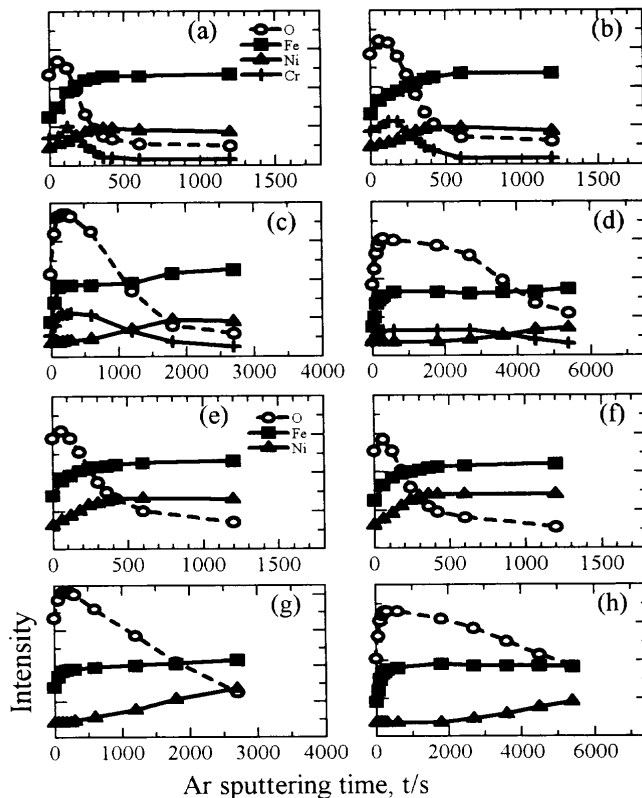


Fig. 9. AES depth profiles of HES and LES specimens just before cold bonding after heat treatment at various temperatures.

- (a) HES before heat treatment
- (b) HES after heat treatment at 150°C for 300 sec
- (c) HES after heat treatment at 300°C for 300 sec
- (d) HES after heat treatment at 400°C for 300 sec
- (e) LES before heat treatment
- (f) LES after heat treatment at 150°C for 300 sec
- (g) LES after heat treatment at 300°C for 300 sec
- (h) LES after heat treatment at 400°C for 300 sec

化層の残存観察の結果から、接合機構をFig.11のようにモデル化した。Scratch-brushingした素材表層(図中記号①)は、焼鈍された内層に比べ著しく硬化(Fig.12)しており、塑性変形能は低下している。なお、この硬化層は300°C程

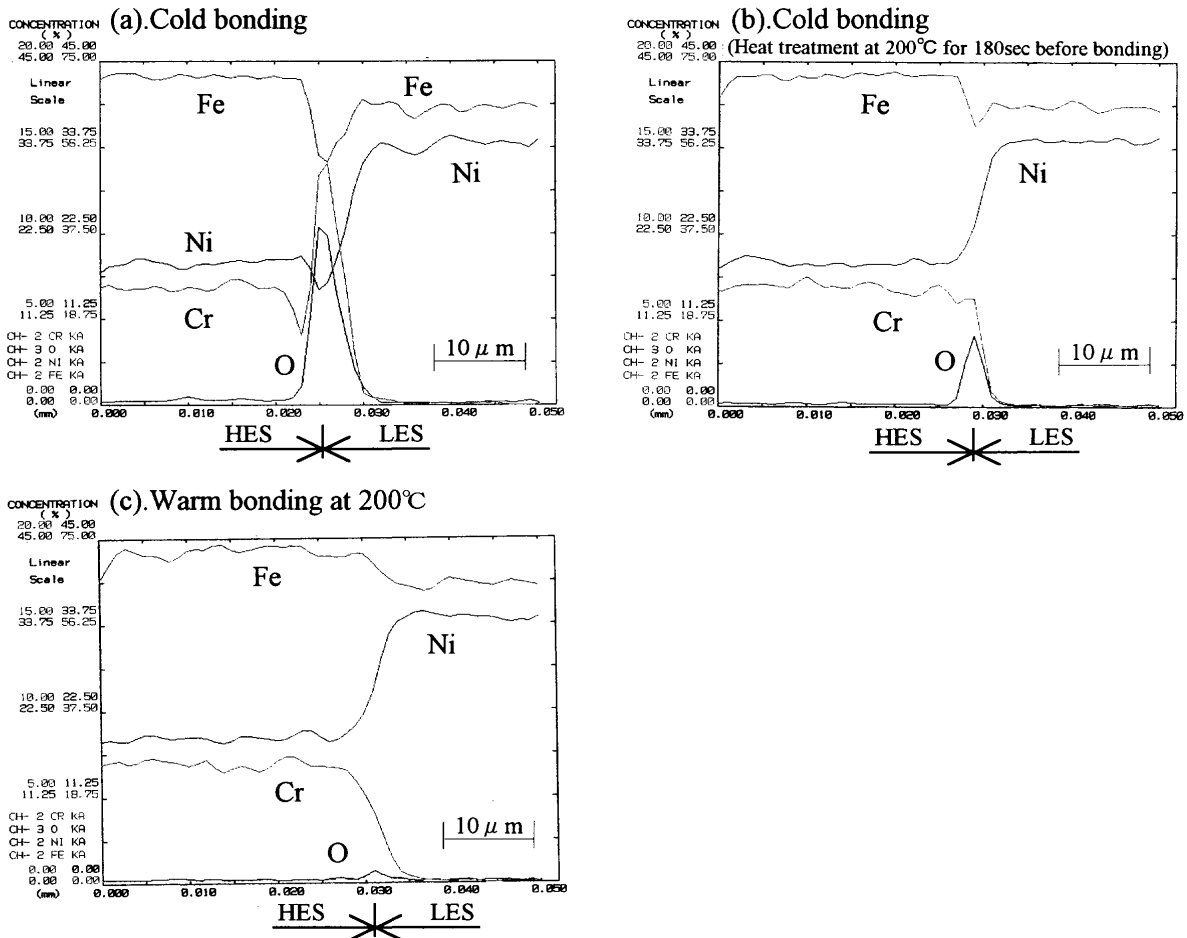
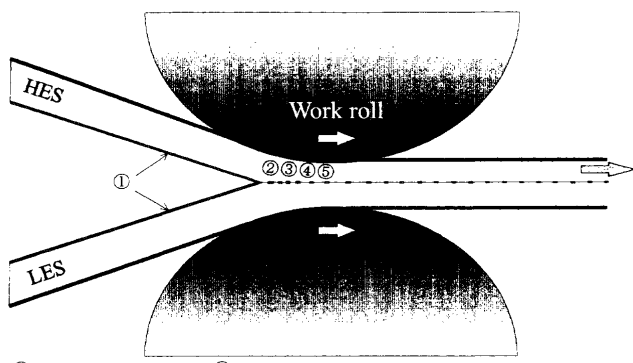


Fig. 10. EPMA line analysis at interfaces of diffusion annealed specimens at 900°C for 180 sec after cold and warm bonding. (Bonding reduction: 60%)
 (a) Cold bonding (b) Cold bonding (Heat treatment at 200°C for 180 sec before bonding) (c) Warm bonding at 200°C



- ①. Scratch-brushed layers. ②. Micro cracks in scratch-brushed layers.
- ③. Exposing underlying base metal through cracks. ④. Base metal mutual bonding.
- ⑤. Expansion of bonding area.

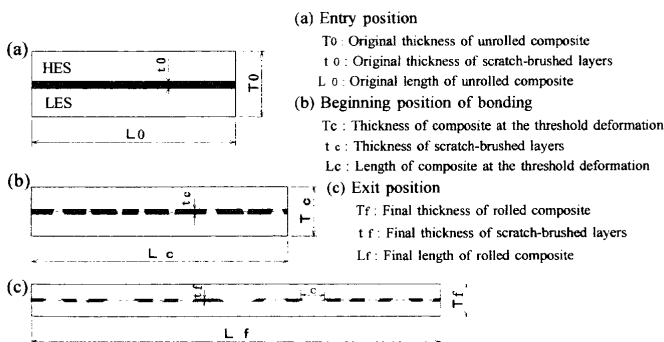


Fig. 11. Conceptual diagram of warm bonding mechanism by rolling.

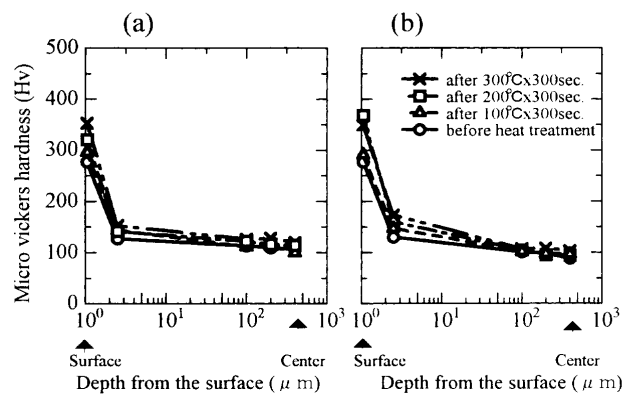


Fig. 12. Hardness distribution of the transverse section of scratch-brushed specimens after heat treatment from the surface to the center.
 (a) Scratch- brushed HES specimens
 (b) Scratch- brushed LES specimens

度の加熱では軟化せず、むしろ若干硬化する。こうした前処理を施した面を対向させて圧延すると、ロール接触弧内において変形初期時に、この加工硬化層に亀裂(②)を生じる。亀裂はロールの出側に向かって変形が進むにつれて、大きく開口し基材金属の新生面が露出(③)する。さらに変形が進むにつれて、基材金属は対向面にまで押出され、新

生面同士が接合(④)する。接合面積は、ロール出側に向かって変形が終了するまでさらに拡大(⑤)する。

上記モデルを数式化し、接合寄与面積の定量化を試みた。Fig.11中の記号を用いて、原板の長さ L_0 あたりの亀裂開口数を n 、平均亀裂開口長を C とすると、亀裂開口に要する圧延圧下率(臨界圧下率： R_c)は、(1)式で示される。

$$R_c = (T_0 - T_c) / T_0 = (L_c - L_0) / L_c \dots\dots\dots (1)$$

最終圧下率： R_f は、

$$R_f = (T_0 - T_f) / T_0 = (L_f - L_0) / L_f \dots\dots\dots (2)$$

$$L_f = L_c + n \cdot C \dots\dots\dots (3)$$

接合に寄与する面積比率： S は、 L_f に対する亀裂開口長の総和の比率であると考え、(4)式で表わされる。

$$S = n \cdot C / L_f \dots\dots\dots (4)$$

(4)式に(1)、(2)、(3)式を代入し、(5)式が得られ、最終圧下率と臨界圧下率のみで整理できる。

$$S = \{1 - (1 - R_f) / (1 - R_c)\} \dots\dots\dots (5)$$

なお4.2の接合界面観察結果から、亀裂開口長の短いものは接合強さの向上にはほとんど寄与せず、亀裂開口長と接合強さに相関があることから、平均亀裂開口長が接合強さを左右すると考え、 S を N で除した(6)式を接合寄与率として定義した。ここで N は亀裂開口数の割合を表わし、「冷間圧接材の亀裂開口数/温間圧接材の亀裂開口数」とした。

$$S_R = S / N \dots\dots\dots (6)$$

Fig.13は、温間圧接と冷間圧接における圧下率と接合強さの関係を調査した結果である。接合強さの測定ができる最低の圧下率を R_c とすると、温間圧接の R_c は約35%、冷間圧接は40%である。さらに接合界面の観察結果から、冷間圧接材の平均亀裂開口長は短く、単位長さあたりの亀

裂開口数は、温間圧接材の1.3倍であった。また、熱処理後冷間圧接をしたものの R_c は40%であるが、平均亀裂開口長は温間圧接材と同様に長かった。そして、圧接後に界面に残存する加工硬化層の厚みは、温間圧接材と同様に冷間圧接材よりも厚かった。これらの結果から(5)および(6)式を使って接合強さに寄与する面積比率Fig.14(a)ならびに接合寄与率Fig.14(b)を求めた。圧下率と接合寄与率の関係は、実績値Fig.13(圧下率と接合強さの関係)の傾向とよく一致した。

5.3 温間圧接法の効果

温間圧接法の効果は接合強さの向上のみならず、操業面での効果が期待できると考えられる。

冷間圧接法と同様の接合強さを得るには、200°C温間圧接法では、圧接圧下率を約10%低減できる。さらに変形抵抗が約15%下がることから、本実験においては圧延機に対する負荷(圧延加重、トルク)は約30%低減できた。

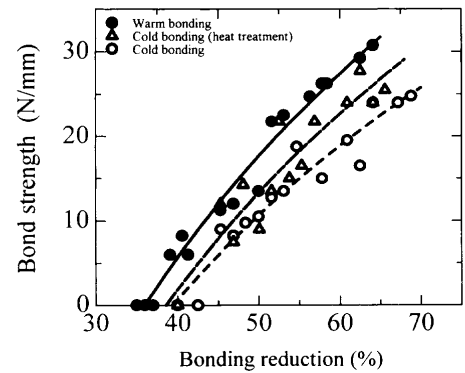


Fig. 13. Effects of bonding reduction and temperature on bond strength of bimetal. Warm bonding specimens were rolled at 200°C in air, and annealed at 1000°C for 180 sec in a hydrogen atmosphere after rolling. Cold bonding specimens were rolled at room temperature, and annealed at 1000°C for 180 sec in a hydrogen atmosphere after rolling. As another cold bonding examination, cold bonding was done at room temperature after heat treatment at 200°C before rolling, and annealed at 1000°C for 180 sec in a hydrogen atmosphere after rolling.

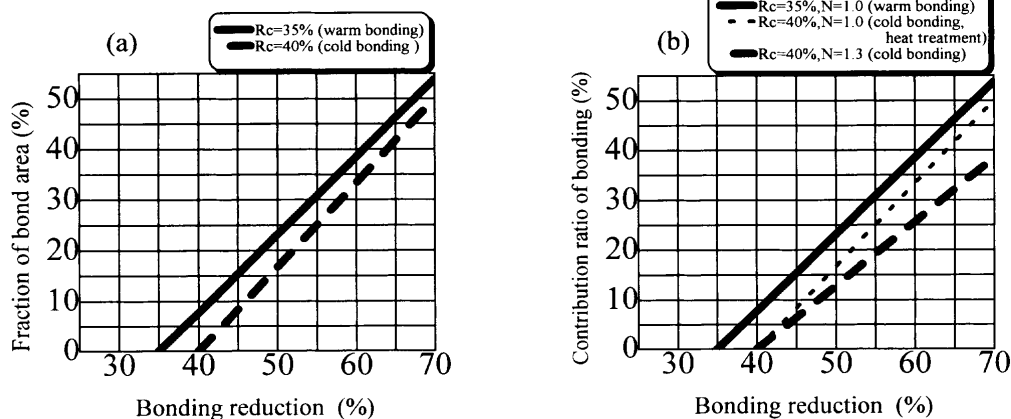


Fig. 14. Calculated fraction of bond area (a), and contribution ratio of bonding (b) as a function of bonding reduction. (N: Ratio of micro cracks number=number of micro cracks by cold bonding/number of micro cracks by warm bonding)

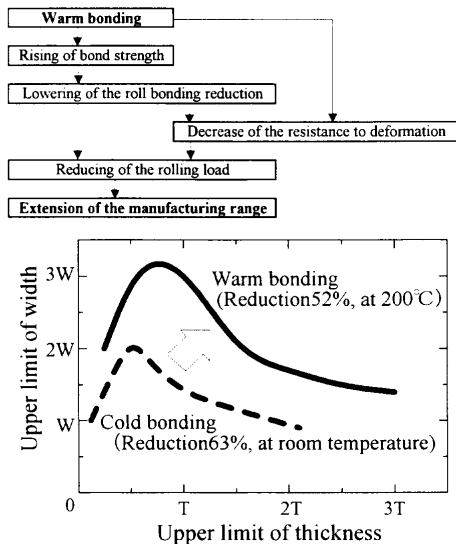


Fig. 15. Extension of the manufacturing range by the warm bonding method.

その結果、圧接圧延製造可能範囲（板厚、板幅）が大幅に拡大(Fig.15)されることや、他に製品シートクラウンの削減や板厚変動の抑制効果が期待できると考えられる。

6. 結言

21Ni-6Cr-Fe, 36Ni-Fe 合金を用いた温間圧接試験を通じて次の知見を得た。

(1) 各々の合金素材を Scratch-brushing 後、200°C に加熱しつつ圧延接合した場合、常温接合の約2倍の接合強さが得られた。

(2) 接合界面（剥離面）観察の結果、強固な接合痕跡の全接合面積に占める割合が温間圧接材では冷間圧接材の2.5倍に拡大していた。

(3) 素材表面の吸着水分は温間加熱によって放出され、接合後界面に残留する酸素レベルも大幅に低下する。ただし大気加熱の場合、300°C を越えると素材表面の酸化被膜が厚くなりすぎ接合強さが低下し始めることから、100~300°C が適当である。

(4) 温間圧接のメカニズムを、Scratch-brushing で生成した素材表層加工硬化層の圧接圧延時の亀裂開口モデルで考察し、接合寄与率を算出したところ、実績値の傾向とよく一致しており、温間圧接材の接合強さが高い原因は、臨界圧下率の低減と接合寄与率の拡大で説明できる。

(5) 冷間圧接において65%圧下率で得られた接合強さは、200°C 温間圧接の場合、50%圧下率で得られるため圧接圧下率の低減が可能である。これにより圧接圧延負荷が大幅に削減され、製造可能範囲が拡大する。

文 献

- 1) M.Ishio: *J. Jpn. Soc. Technol. Plast.*, **32** (1991), 27.
- 2) K.Yamaji: *Kinzokuzairyou*, **11** (1969), 98.
- 3) M.Ishio: *Tetsu-to-Hagané*, **75** (1989), 716.
- 4) L.R.Vaidyanath, M.G.Nicholas and D.R.Milner: *Br. Weld. J.*, **6** (1959), 13.
- 5) L.R.Vaidyanath and D.R.Milner: *Br. Weld. J.*, **7** (1960), 513.
- 6) K.J.B.McEwan and D.R.Milner: *Br. Weld. J.*, **9** (1962), 406.
- 7) J.A.Cave and J.D.Williams: *J. Inst. Met.*, **101** (1973), 203.
- 8) P.K.Wright, D.A.Snow and C.K.Tay: *Met. Technol.*, **1** (1978), 24.
- 9) N.Bay: *Weld. Res. Supplement*, **5** (1983), 137-s.
- 10) N.A.Cantalejos and G.Cusminsky: *J. Inst. Met.*, **100** (1972), 20.
- 11) N.Bay: *J. Eng. Ind.*, **101** (1979), 121.
- 12) S.Maki, M.Nakamura, T.Matsuda and N.Nagai: *J. Jpn. Soc. Technol. Plast.*, **30** (1989), 71.
- 13) T.Nakamura, K.Kondo, A.Sugimoto and H.Kihara: *Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng., C*, **50** (1984), 1089.
- 14) T.Nakamura and K.Kondo: *J. Jpn. Soc. Technol. Plast.*, **28** (1987), 1150.
- 15) W.Thiele, V.Schumacher and S.Werner: *Z. Metallkd.*, **58** (1967), 670.
- 16) G.Durst: *J. Met.*, **3** (1956), 328.