

## パルス通電接合法による異材接合

## Joining Dissimilar Materials by Pulsed Electric Current Bonding

西本 明生\*  
Akio NISHIMOTO

Key Words: Dissimilar Materials, Pulsed Electric Current Bonding, Surface Modification, Diffusion Bonding, Spark Plasma Sintering

## 1. 緒言

近年、パルス状直流大電流通電技術を用いた焼結技術が開発され、大きな注目を集めている。20年ほど前に開発されたこの技術は、放電プラズマ焼結法（SPS法：Spark Plasma Sintering）あるいはパルス通電焼結法（PECS法：Pulsed Electric Current Sintering）といわれ、新しい傾斜機能材料や複合材料の作製法として注目されている。このSPS・PECS法はグラファイト製の型内に材料粉末を充填し加圧した後、圧粉体粒子間に数Vの低電圧で平均数1,000Aの直流パルス電流を印加し、その際に粒子間に発生する放電プラズマ、局部発熱、ジュール熱拡散および電解拡散などを複合的に利用することにより、常圧焼結やホットプレス法などの従来法に比べ低温度域、短時間での焼結を可能とするユニークな合成加工法である<sup>1-3)</sup>。またこのSPS・PECS法は、ホットプレス（HP）法、熱間等方加圧（HIP）法、雰囲気炉などによる従来の焼結法に比べて、焼結技術の熟練不要、取り扱い操作の容易さ、高い再現性、安全性等の点において優れた特徴を有している。

以上のような特性を活かして、このSPS・PECS法を従来の固化成形の観点で使用されるだけでなく、新たな技術展開として表面改質技術や接合技術への研究が急速に進んでいる<sup>4-11)</sup>。本接合法は「放電プラズマ焼結接合法」あるいは「パルス通電接合法」などと呼ばれ、粉体を用いる焼結接合、薄板同士の接合、粉体を一切使用しない固体同士の接合など様々な形態での接合加工が可能な方法である。

以下では、パルス通電接合法による異種金属およびセラミックス／金属の異材接合の例として、マグネシウム合金とアルミニウム合金、タンゲステンと銅、アルミナセラミックスと銅および炭化ケイ素セラミックスと銅とのパルス通電接合に関する研究を紹介し、界面微細組織が接合強さに与える影響について概説する。

## 2. マグネシウム合金とアルミニウム合金との接合

## 2.1 実験目的

近年、CO<sub>2</sub>排出量の削減が世界的な課題となっており、機械部品の軽量化が注目されている。現在、アルミニウム合金は機械的性質および加工性に優れ、また軽量化の効果を期待できることから幅広く応用されている。実用合金のなかにはさらに高比強度であるマグネシウム合金があるが、室温での延性に乏しいため、現在では応用範囲がかなり限られている。その応用範囲を補完できる、アルミニウム合金とマグネシウム合金の接合技術が必要とされている。そこでPECS法を応用し、マグネシウム合金とアルミニウム合金の接合を試み、接合後の断面および引張試験後の破面を観察することにより、接合条件が接合強さにおよぼす影響を調査した。

## 2.2 試料および接合方法

マグネシウム合金（AZ31）およびアルミニウム合金（A6061）の直径20mmの丸棒を長さ25mmにマイクロカッターを用いて切断し、その端面をエメリー紙#1200まで湿式研磨した。接合は、放電プラズマ焼結装置（住友石炭鉱業㈱製、型式SPS-1020）を用いて行った。AZ31およびA6061の両試料をグラファイト製ダイスに装填し、上下パンチを介して電極間に挟み込んだ。その後真空中に排気し、油圧プレスにより所定の加圧力で保持しながら、直流パルス電流を印加することにより加熱を行った。接合条件は保持温度673K、荷重12.5MPa、保持時間を0, 3.6, 7.2, 10.8, 21.6, 32.4および43.2ksと変化させた。接合部の強度評価は、接合継手を2×8×50mm<sup>3</sup>に加工後、引張試験により評価した。引張試験はインストロン型試験機を用いて、クロスヘッド速度0.50mm/minにて行った。

## 2.3 実験結果

保持時間0ksの試料は接合不可能であった。3.6ksおよび7.2ksの試料は接合強度がきわめて弱く、10.8, 21.6, 32.4

\* 関西大学化学生命工学部 化学・物質工学科（〒564-8680 大阪府吹田市山手町3-3-35）  
Department of Chemistry and Materials Engineering, Faculty of Chemistry, Materials and Bioengineering, Kansai University  
(3-3-35 Yamate-cho, Suita, Osaka 564-8680 Japan)

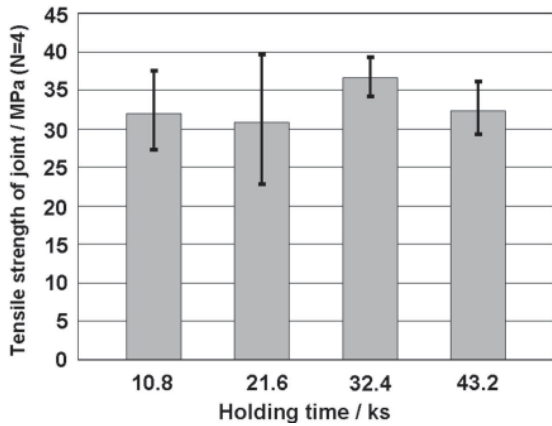


Fig. 1 Relationship between tensile strength and holding time of AZ31/A6061 joints.

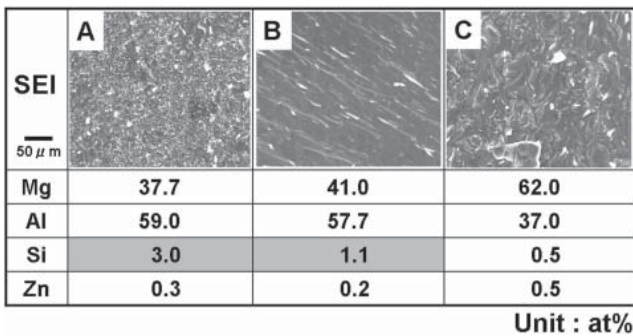


Fig. 2 SEM micrograph and EDX analysis of tensile fracture surface of the AZ31 side of the AZ31/A6061 joint bonded for 32.4 ks at 673 K.

および 43.2 ks の試料は接合強度が十分に健全に接合が可能であった。健全な接合部では、SEM-EDX 分析の結果、いずれの試料でも接合界面に拡散層が明瞭に存在しており、保持時間が長くなるにつれて厚さが厚くなる傾向がみられた。

Fig. 1 に継手の引張試験の結果を示す。最大引張強さは保持時間によらずほぼ一定となり、保持時間による影響はみられないことから、接合部に生成した金属間化合物の強さが主として寄与したと考えられる。引張試験後の AZ31 側破面の EDX による面分析の結果を Fig. 2 に示す。破面は A ~ C の 3 種類の形態に分類され、A および B では Mg : Al の組成比は約 4 : 6 でほぼ等しく、Si 量に差がみられた。これより Si 含有量が、破壊機構に大きく影響をおよぼしていることがわかった。とくに、Si 含有量が増加することで、Mg<sub>2</sub>Si が優先的に形成され、母材である Al を純化させ、延性が向上したのではないかと考えられる。

### 3. タングステンと銅との接合

#### 3.1 実験目的

タングステンは耐熱性や高熱伝導性を有しているため、

電極材料として利用されている。一方、銅は高い熱伝導率を有し、ヒートシンクなどに用いられる。これらの特性を利用してタングステン/銅継手はプラズマ対向機器のダイバータとしての期待がなされている<sup>12-14)</sup>。しかし、タングステンと銅は融点が大きく異なり、溶融接合法による一体化は一般的に難しいとされており、拡散接合、摩擦圧接および HIP 接合が適用されている<sup>15-20)</sup>。そこで、タングステンと銅との接合にパルス通電接合法が適用できないかと考え、接合を試みた。

#### 3.2 試料および接合方法

タングステン (W) および無酸素銅 (Cu) の接合用試片の形状はいずれも直径 10 mm、厚さ 5 mm であり、いずれの接合表面も研磨により鏡面に仕上げた。接合に関しては W と Cu は融点が大きく異なるため、インサート材の適用についても検討した。用いたインサート材は、市販のニオブ (Nb) 粉末 (粒径 50 μm) およびニッケル (Ni) 粉末 (粒径 150 μm) である。

W および Cu の研磨面の間にインサート材を挟んだ試料をグラファイト製ダイスに装填し、上下パンチを介して電極間に挟み込んだ。その後真空中に排気し、油圧プレスにより所定の加圧力で保持しながら、直流パルス電流を印加することにより加熱を行った。接合条件は保持温度 1073 および 1173 K、荷重 130 MPa、保持時間 1.8 ks である。接合部の強度評価は、接合継手を後加工することなく、そのまま試験機に取り付けて引張試験により評価した。引張試験はインストロン型試験機を用いて、クロスヘッド速度 0.20 mm/min にて行った。

#### 3.3 実験結果

W と Cu はパルス通電法により接合が可能であった。Fig. 3 にインサート材を用いずに直接接合した継手の断面組織観察の結果を示す。他のインサート材を用いた場合も同様の組織が観察された。継手界面にはクラックやボイドなどの欠陥は認められなかった。また、界面反応層の生成も認められない。Fig. 4 に Ni 粉末をインサート材として適用した継手の EDX 分析の結果を示す。母材の Cu とインサート材の Ni の界面で Cu と Ni が相互拡散している様子が認められたが、W と Ni 粉末インサート材との接合界面には反応層は認められなかった。

継手の引張試験の結果を Fig. 5 に示す。破断は全ての継手において Cu 母材中で生じていた。継手の最大引張強さは全ての継手において保持温度の増大により大きくなった。Nb 粉末インサート材を用いた場合およびインサート材を用いない場合の継手の引張強さは Ni 粉末インサート材を用いた継手のそれよりも小さくなり、またばらつきが大きかった。Ni 粉末を用いた継手の引張強さは 250 MPa であり、この値は拡散接合や摩擦圧接で得られた継手のそれと同程度であった<sup>15, 18, 19)</sup>。引張試験後の破面の観察より、Ni 粉末

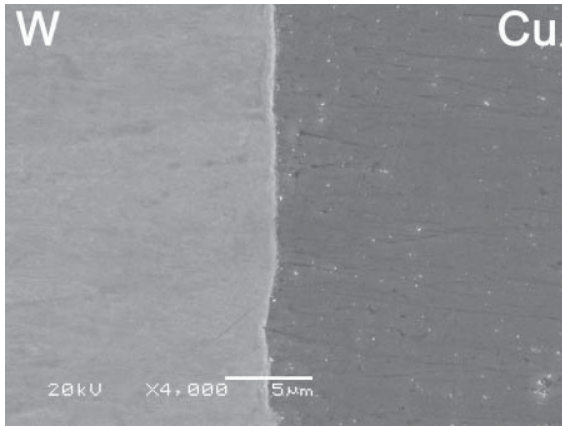


Fig. 3 SEM micrograph of the W/Cu joint interface bonded for 1.8 ks at 1173 K without an intermediate layer.

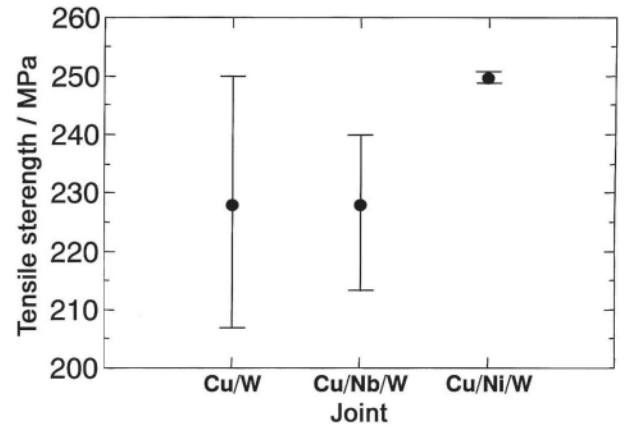


Fig. 5 Effect of intermediate layer on the tensile strength of W/Cu joints bonded for 1.8 ks at 1173 K.

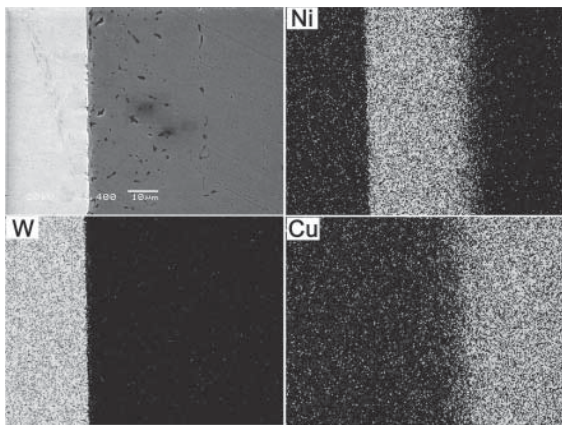


Fig. 4 SEM micrograph and EDX images of W/Cu joint bonded for 1.8 ks at 1173 K with an intermediate layer of Ni powder.

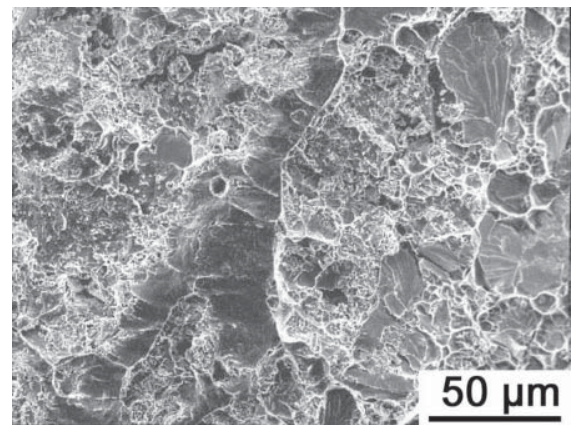


Fig. 6 Tensile fractured surface of the W side of the joint bonded for 1.8 ks at 1173 K with an intermediate layer of Ni powder.

インサート材を用いた継手においては Cu の塑性変形および W への Cu の付着が認められた。この結果は継手界面の接合強さが大きいことを示唆している。Ni 粉末インサート材を用いた継手の引張試験後の W 側の破面観察の結果を Fig. 6 に示す。多くのディンプル破面が認められ、これは Cu が延性破壊したことを示している。ディンプルの量は Ni 粉末インサート材を用いた継手でもっとも多かった。このことが引張強さのばらつきの低下の原因と考えられる。

#### 4. アルミナおよび炭化ケイ素セラミックスと銅との接合

##### 4.1 実験目的

セラミックスと金属の接合についてはこれまで拡散接合やろう付の研究が数多く報告されている<sup>21-26)</sup>。しかしパルス通電接合法をセラミックスと金属との接合に適用した報告例は少ない<sup>5, 7, 8, 10)</sup>。そこでパルス通電法によるセラミックスと金属との接合として、アルミナおよび炭化ケイ素セラミックスと銅とのパルス通電接合を行い、界面微細組織

が接合強さに与える影響について調査した。

##### 4.2 試料および接合方法

用いたセラミックス試片は、耐熱衝撃性および靱性に優れているアルミナ ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) および炭化ケイ素 (SiC) である。一方、金属側試片としては、無酸素銅 (Cu) を用いた。セラミックスおよび Cu の接合用試片の形状はいずれも直径 16 mm、厚さ 5 mm であり、いずれの接合表面も研磨により鏡面に仕上げた。拡散接合やろう付法と同様、パルス通電法においてもセラミックスと金属との間にインサート材を用いて接合を行った。用いたインサート材は、チタン (Ti) の市販箔 (厚さ 100  $\mu\text{m}$ )、Cu および Ti 粉末 (粒径それぞれ 100, 250  $\mu\text{m}$ )、およびそれらの混合粉末である。

セラミックスおよび Cu の研磨面の間にインサート材を挟んだ試料をグラファイト製ダイスに装填し、上下パンチを介して電極間に挟み込んだ。その後真空に排気し、油圧プレスにより所定の加圧力で保持しながら、直流パルス電

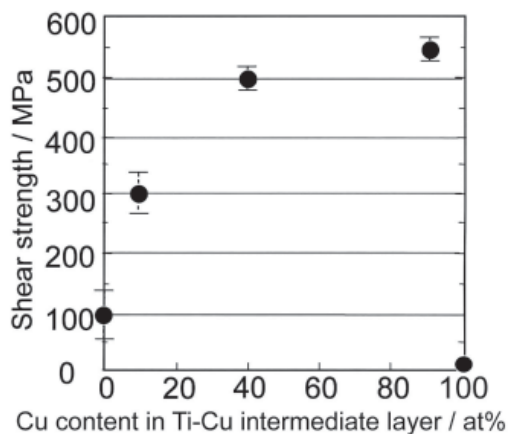


Fig. 7 Effect of Cu content of in the Ti-Cu intermediate layer on shear strength of the Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> joint bonded for 3.6 ks at 1073 K by PECS.

流を印加することにより加熱を行った。接合条件は保持温度 923 ~ 1173 K、荷重 30 MPa、保持時間 3.6 ks である。接合部の強度評価は、接合継手を後加工することなく、そのまま治具に取り付けてせん断試験により評価した。せん断試験はインストロン型試験機を用いて、クロスヘッド速度 0.10 mm/min にて行った。

#### 4.3 アルミナセラミックスと銅との接合

PECS 法による Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と Cu との接合はインサート材なしには起らない。一方、Ti 粉末のインサート材や Ti と Cu の混合粉末のインサート材を用いることにより接合が可能であった。せん断試験の結果、せん断強さは Ti-Cu 混合粉末インサート材中の Cu 量に依存することがわかった。その結果を Fig. 7 に示す。10% Ti - 90% Cu 混合粉末インサート材を用いた継手のせん断強さは 550 MPa であり、Ti 粉末インサート材を用いた継手のそれよりも約 5 倍大きかった。継手の機械的性質に対して Ti-Cu 混合粉末インサート材に最適な Cu 量が存在することを示唆している。

#### 4.4 炭化ケイ素セラミックスと銅との接合

PECS 法による SiC と Cu との接合はインサート材なしには起らない。一方、インサート材として Ti 箔、Ti 粉末、Ti と Cu の混合粉末のいずれを用いても 923 ~ 1173 K の接合温度で接合が可能で、そのせん断強さは 20 ~ 43 MPa であった。そのせん断破断位置はいずれも接合界面ではなく、SiC 中である。この割れは、セラミックスと金属との熱膨張係数の差に起因する残留熱応力の影響を受けて、セラミックス中を割れが進展する場合に典型的なものである。したがって界面の接合強さはせん断強さよりかなり高いものと推察できる。本研究においてはパルス通電により活性金属である Ti が SiC 表面酸化皮膜を還元する効果があり、SiC と Ti-Cu 合金の清浄表面同士の接合が達成されること

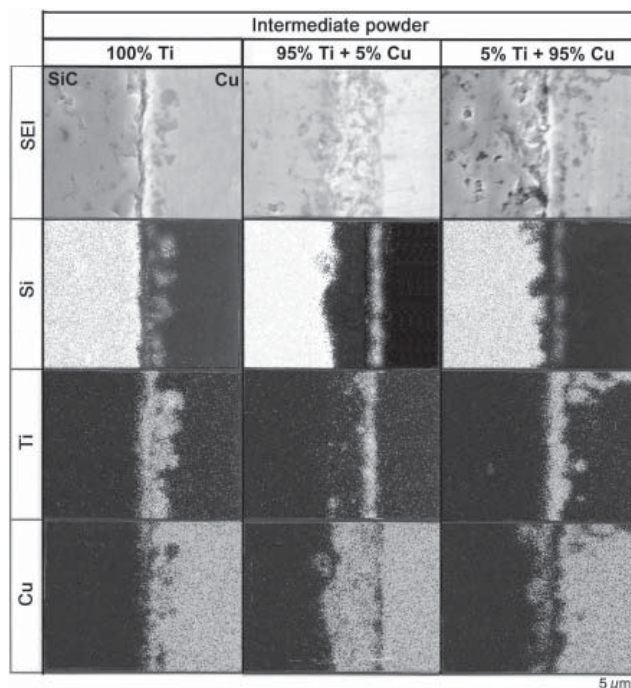


Fig. 8 SEM micrograph and EDX images of SiC/Cu joints bonded for 3.6 ks at 1173 K with an intermediate layer of 100% Ti, 95% Ti + 5% Cu, and 5% Ti + 95% Cu.

により、SiC/Cu 界面の接合強さの低下を示さなかったと考えられる。

インサート材として Ti 粉末、Ti と Cu の混合粉末を用いて接合した継手の界面近傍における SEM による組織観察の結果、接合条件 923 K、3.6 ks の試料においては、未反応の Ti が厚く残るが、接合温度 973 K 以上では未反応の Ti はなくなり、接合温度の増加とともに界面層の厚さの増加が確認できた。

つぎに、界面部における元素分布を調べるために EDX により面分析した結果を Fig. 8 に示す。接合条件 1073 K、3.6 ks の試料では、界面部に Ti の濃化した層が存在していた。この層は接合温度の増加とともに厚くなり、1173 K では Ti 濃化層とともに、SiC 母相に隣接して SiC を浸食するような形で厚さ約 10 μm の Cu の濃化層が認められた。すなわち、SiC と Cu の接合界面では、Cu 濃化層と Ti 濃化層の 2 重の界面層が形成されていることがわかる。

さらに界面部の TEM 観察を行うと、界面近傍の反応層の形成が明瞭に確認できる。Ti 箔インサート材を用いた継手の界面部の観察例を Fig. 9 に示す。SiC 母相と Cu 母相との間の厚さ約 500 nm の領域に、2 層から成る界面層が観察される。これらの層の Cu 母相側からの制限視野電子線回折法 (SAD) による回折図形を解析した結果、この層は TiC と指数付けでき、さらに SiC 母相に隣接した層からの SAD 図形では、Cu の回折スポットが認められた。また、同じ

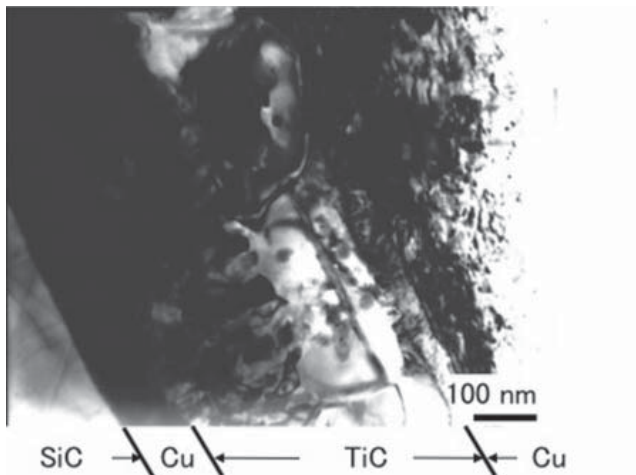


Fig. 9 TEM micrograph structure of SiC/Cu joint interface with Ti foil intermediate layer bonded for 3.6 ks at 1123 K.

領域で行ったEDX分析結果より、これらの層のうちのSiC側がSiを固溶した銅固溶体層（以後、Cu層と略す）であり、Cu側がTiC層であることがわかる。さらに別の視野の観察を行った結果、前述したような界面層が形成されていた。これらの結果から、Ti箔、Ti粉末、TiとCuの混合粉末をインサート材として用いた場合の界面構造はSiC母相/Cu層/TiC層/Cu母相となることがわかる。SiC母相に隣接してCu層が形成することについては、773 K以上の温度でCuによりSiCの分解反応が生じうること、熱力学的な説明によりなされている<sup>27)</sup>。したがって、本研究においてもSiCの分解反応が進行することによりCu層が形成され、Cu中に固溶できないCはTiと反応することによりTiC層を形成したと考えられる。

## 5. まとめ

パルス状直流大電流通電技術を用いた放電プラズマ焼結法（SPS法）あるいはパルス通電焼結法（PECS法）といわれる焼結技術を異種金属やセラミックスと金属の異材接合に適用した。本稿ではパルス通電接合法による異材接合の例として、マグネシウム合金とアルミニウム合金、タンタムと銅、アルミナと銅および炭化ケイ素セラミックスと銅のパルス通電接合に関する研究を紹介し、界面微細組織が接合強さに与える影響について概説した。

## 謝辞

本稿で紹介したパルス通電接合に関する研究は、関西大学の赤松勝也名誉教授との共同で行われた。また一部の研究については大阪大学接合科学研究所の池内建二名誉教授とも共同で行われた。この場をお借りして感謝申し上げる。

## 引用文献

- 1) M. Tokita: J. Soc. Powder Technol. Jpn., **30** (1993) 797.
- 2) R. Orru, R. Licheri, A. M. Locci, A. Cincotti and G. Cao: Mater. Sci. Eng. R, **63** (2009) 127.
- 3) M. Mulukutla, A. Singh and S. P. Harimkar: JOM, **62-6** (2010) 65.
- 4) H. Furuhashi and O. Ohashi: J. Japan Inst. Metals, **67** (2003) 448.
- 5) A. Nishimoto, K. Nakao, K. Akamatsu and K. Ikeuchi: J. Japan Inst. Metals, **67** (2003) 432.
- 6) K. Saida, R. Tsuduki and K. Nishimoto: J. Japan Inst. Metals, **68** (2004) 419.
- 7) J. Fan, L. Chen, S. Bai and X. Shi: Mater. Lett., **58** (2004) 3876.
- 8) H. Fujiwara, M. Tokuhara, K. Ameyama and S. Akishita: J. Soc. Mat. Sci. Japan, **54** (2005) 470.
- 9) A. Nishimoto and K. Akamatsu: Solid State Phenom., **127** (2007) 289-292.
- 10) A. Nishimoto, K. Akamatsu and K. Ikeuchi: Mater. Sci. Forum, **539-543** (2007) 2882.
- 11) A. Nishimoto and K. Akamatsu: Plasma Process. Polym., **6** (2009) s941.
- 12) I. Smid, M. Akiba, G. Vieider and L. Plochl: J. Nucl. Mater., **258-263** (1998) 160.
- 13) V. Barabash, M. Akiba, A. Cardella, I. Mazul, B. C. Odegard Jr, L. Plochl, R. Tivey and G. Vieider: J. Nucl. Mater., **283-287** (2000) 1248.
- 14) K. Sato, K. Ezato, M. Taniguchi, S. Suzuki and M. Akiba: J. Nucl. Sci. Technol., **42** (2005) 643.
- 15) O. Ohashi, K. Matsushita and T. Watanabe: Quart. J. Jpn. Weld. Soc., **16** (1998) 319.
- 16) G. S. Zou, J. Yang, A. P. Wu, G. H. Huang, D. K. Zhang, J. L. Ren and Q. Wang: J. Mater. Sci. Technol., **19**, Suppl. 1 (2003) 189.
- 17) C.B. Wang, Q. Shen, Z. G. Zhou and L. M. Zhang: J. Mater. Sci., **40** (2005) 2105.
- 18) M. Aritoshi, K. Okita, K. Ikeuchi and M. Ushio: Quart. J. Jpn. Weld. Soc., **14** (1996) 495.
- 19) M. Aritoshi, K. Okita, K. Ikeuchi and M. Ushio: Quart. J. Jpn. Weld. Soc., **20** (2002) 309.
- 20) S. Saito, K. Fukaya, S. Ishiyama and K. Sato: J. Nucl. Mater., **307-311** (2002) 1542.
- 21) K. Hamada, M. Kureishi, M. Ueda, T. Enjo and K. Ikeuchi: Quart. J. Jpn. Weld. Soc., **3** (1985) 483.
- 22) S. Morozumi, M. Endo, M. Kikuchi and K. Hamajima: J. Mater. Sci., **20** (1985) 3976.
- 23) T. Yano, H. Suematsu and T. Iseki: J. Mater. Sci., **23** (1988) 3362.
- 24) M. Naka, J. Feng and J. C. Schuster: Quart. J. Jpn. Weld. Soc., **14** (1996) 338.
- 25) C. Iwamoto, H. Ichinose and S. I. Tanaka: Philos. Mag. A, **79** (1999) 85.
- 26) M. Maeda, O. Igarashi, T. Shibayanagi and M. Naka: Mater. Trans., **44** (2003) 2701.
- 27) A. Nishimoto, M. Ando, M. Takahashi, M. Aritoshi and K. Ikeuchi: Mater. Trans. JIM, **40** (1999) 953.