

拡散接合 その1

—拡散接合の現状と拡散接合の実用例—

大 橋 修*

1・1 拡散接合とは

1・1・1 拡散接合の位置付け・定義

現在の溶接・接合法は、母材を熔融するか否かで分類され、融接法、ろう接法、固相接合法に大別される。融接法とは、アーク、電子ビームなどの熱源で、溶接棒(使用しない時もある)を溶かすと同時に母材(接合される材料)も多く溶かす。しかし、ろう接では母材をほとんど熔融しない。ろうの濡れによって母材になじませて接合する方法で、母材はほとんど溶かされない。

固相接合法は母材の融点以下の温度で行う接合であり、固相接合法には、拡散接合の他、摩擦圧接、鍛接、熱間圧接、常温圧接(冷間圧接)、爆発圧接、ガス圧接などがある。これらの接合法は、下記のようにJISで定義されている⁽¹⁾。

摩擦圧接：母材を接触させ、加圧しながら接触面を相対運動によって摩擦熱を発生させ、アプセット圧力を加えて行う圧接。

鍛接：加熱した母材を打撃または加圧して行う高温圧接。

熱間圧接：母材の接合部の加熱治具による圧接。

常温圧接：外部から熱または電流を加えることなく、母材を室温で圧縮して、局部的に塑性変形を加えて行う圧接法。

爆発圧接：火薬の爆発による衝撃圧力を利用して行う接合。

ガス圧接：ガス炎で接合部を加熱した後、さらに溶加材なしで加圧して行う圧接法。

拡散接合は、図1.1(a)に示すように、接合面が酸化されないように制御された雰囲気中で接合材料を積層する。引き続き、この積層体を加熱・加圧し、原子の拡散を利用して接合する方法である。JISの定義⁽¹⁾では、「母材を密着させ、母材の融点以下の温度条件で、塑性変形をできるだけ生じない

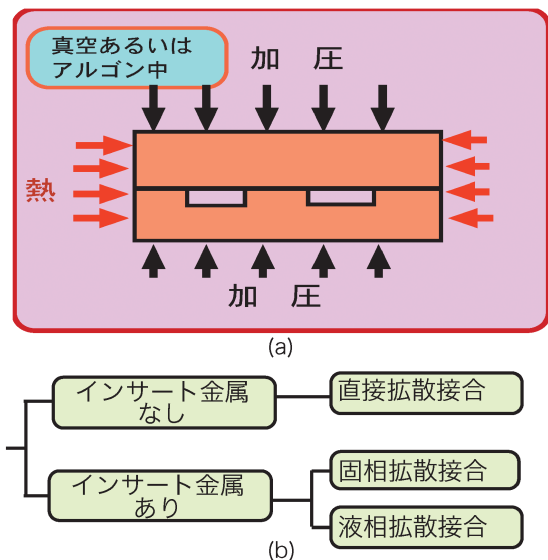


図1.1 (a)：拡散接合法と(b)：拡散接合の分類。(オンラインカラー)

ように加圧して、接合面間に生じる原子の拡散を利用して接合する方法」とある。

溶接・接合法の名称のほとんどは、「加熱・加圧する手段」に由来する。一方、拡散接合の名称は、接合部の完全化(表面皮膜の除去、接合面の密着)のため、金属原子の拡散を利用する「接合機構」に由来し、名称の観点が他の溶接・接合法と異なる。

拡散接合(diffusion welding)の用語は、原子力関係部品の接合時、部品の形状変化を少なくする目的での論文⁽²⁾で、1958年に初めて使用された。それ以前は、国内では「鍛接」、「圧接」、「固相接合」、欧米では「solid phase

* WELLBOND；代表(東京理科大学・客員教授)

Diffusion Welding—Trend and Application of Diffusion Welding—; Osamu Ohashi (WELLBOND (Visiting Professor, Tokyo University of Science), Tsukubamirai)

Keywords: diffusion welding, diffusion bonding, solid phase welding, trend of diffusion welding, application of diffusion welding

2018年7月2日[doi:10.2320/materia.57.443]

welding」⁽³⁾が使用されていた。これ以降、接合体を少ない変形で接合することに着目した研究は、拡散接合と呼ばれる。なお、「diffusion welding」を「拡散溶接」と翻訳した事から、1980年代の一時期「拡散溶接」と呼ばれた時期がある。

1・1・2 拡散接合の分類・特徴

拡散接合は、図1.1(b)のように分類される。拡散接合では、接合促進の目的で接合面間に第3金属を挟んで接合する場合がある。この挟む金属を「インサート金属」と呼ぶ。インサート金属が固相状態で接合する場合と、インサート金属が溶融して母材をほとんど溶融することなく接合する場合がある。前者を「固相拡散接合」、後者を「液相拡散接合」、あるいは「TLP 接合」⁽⁴⁾(Transient Liquid Phase Diffusion Bonding)と呼ぶ。

拡散接合の特徴は、接合過程での形状変化が少ないことから、成形した部材を積層接合することで、複雑・中空部品を製造できることにある。

- ・接合による変形が少ない。形状変化が少ないことが特徴。
- ・面接合ができることから、微細な中空構造の部品の積層接合が可能。

1・1・3 本入門講座での執筆内容

本入門講座は全4回で、拡散接合の現状、実用例と装置、接合過程、接合の改善策、接合部の評価等について概説する。

- ・第1回目 拡散接合 — 拡散接合の現状と拡散接合の実用例 —
- ・第2回目 拡散接合 — 金属を接合するには、接合装置、接合面積の増加過程、接合面の皮膜の挙動 —
- ・第3回目 拡散接合 — 清浄化・密着化からの改善策、異種金属の接合、液相拡散接合 —
- ・第4回目 拡散接合 — 接合部の金属学的・機械的評価、気密性、接合部の非破壊評価 —

1・2 最近の拡散接合研究動向

1・2・1 拡散接合研究論文・特許の推移

Scopus(スコーパス)⁽⁵⁾は、エルゼビアが提供する世界最大級の研究論文の文献データベースである。検索サイトScopusを利用して、キーワード「diffusion welding」で、2017年8月検索した。その結果を、図1.2に論文の発表件数の発表年推移を示す。論文発表は、1965年から始まり、年とともに増加している。日本からの発表件数は、1980年代の新素材ブーム時にピークを迎え、それ以後減少。最近是中国からの発表の増加が著しい。これまでの発表件数の国別順位は、中国、日本、ロシア、ドイツ、ウクライナ、トルコ、アメリカとなっている。最近、日本からの拡散接合の論文数は減少し、2～3件/年である。

特許情報の分析に基づく技術動向調査は、企業や大学等に

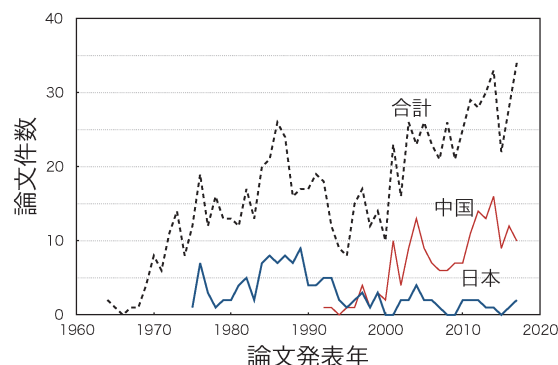


図1.2 論文件数の発表年推移。(オンラインカラー)

おける研究開発テーマや技術開発の方向性を知る上で極めて有効である。

経済産業省・特許庁は、毎年技術特許調査報告書を公表している。接合技術に関しては、平成25年度・特許出願技術動向調査報告書(概要)(構造材料接合技術)⁽⁶⁾がある。本報告は、2001年から2011年まで、主要国で出願された「構造材料の接合技術」の調査結果である。他の溶接法と比較して、拡散接合の出願件数は少ない。拡散接合の出願数の多い企業から、新日鉄住金(37件)、ユニテッド・テクノロジーズ(米、24件)、日産自動車(21件)、ボーイング(米、21件)となっている。

1・2・2 国立研究機関・大学の研究予算の推移

国立研究機関・大学等の研究予算での、各種溶接法の研究の推移について、科学研究費助成事業データベース(KAKEN)⁽⁷⁾から整理した結果を示す。本データベースは、文部科学省および日本学術振興会が交付する科学研究費助成事業に関するものである。

溶接法別の実施課題数の発表年推移を図1.3に示す。図は「溶接法の名称の記載のある研究課題数」で整理している。1980年代の新素材ブーム時、拡散接合の研究が活発であったが、2000年以降研究はない。拡散接合に続き、レーザー溶接、接合の低温化が可能となる摩擦攪拌接合、常温接合、超音波接合等の接合法の研究へ推移している。現時点では「拡散接合」は新しい技術ではなくなり、研究予算を取りにくい接合技術となっている。

1・3 拡散接合適用の動向

1・3・1 古代の匠に見る拡散接合

(1) 水銀を利用した液相拡散接合

藤ノ木古墳(6世紀第4四半期)から出土した勾玉の製作に液相拡散接合が適用されている。図1.4にその接合法を示す。水銀と金合金を混合して金アマルガムを作製。勾玉形状に銅板を成形し、隙間(接合部)と表面に、金アマルガムを塗布して加熱。水銀が蒸発して金メッキと同時に接合⁽⁸⁾も成し遂げている。また、見尾山第1号古墳(広島県、古墳時代後

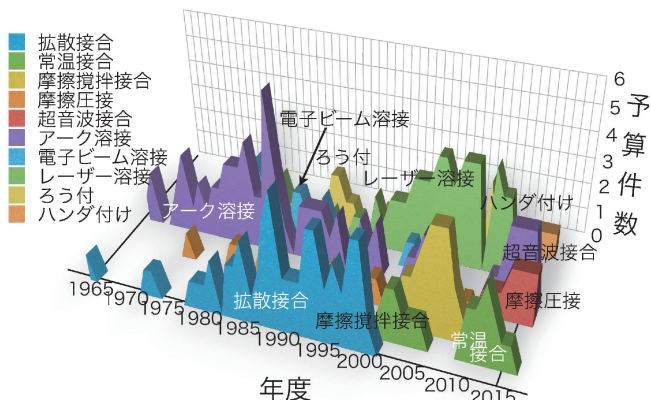


図1.3 各種溶接法の研究予算の推移。(オンラインカラー)

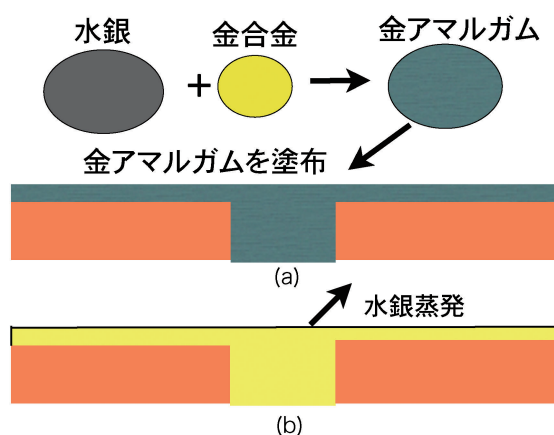


図1.4 接合部に、(a)：金アマルガムを塗布後、(b)：加熱して水銀を拡散させての液相拡散接合。(オンラインカラー)

期)から出土した銀製の耳環には、接合部と考えられる箇所から水銀が検出された。接合部での水銀の存在は、銀アマルガムを用いた接合の可能性を示唆している⁽⁹⁾。

接合面間の合金から水銀を飛散・拡散させて接合する手法は、まさに現代の液相拡散接合である。

(2) 截金での金箔の焼き合わせ接合

截金⁽¹⁰⁾とは、金箔5～6枚の積層接合金箔を線状に裁ち切り、線状の接合金箔で文様を描く装飾技法である。飛鳥時代から仏像彫刻等を美しく飾るために使用され、現在は茶道具や工芸品にも応用される伝統工芸の一つである。京都迎賓館(2005年開館)・藤の間の舞台扉にも施されている。

鎌倉時代の仏像の頭部(図1.5(a))が截金(線状の接合金箔)で装飾されている。截金における金箔同士の接合は「金箔の焼き合わせ」と呼ばれる。その接合法は、図1.5(b)に示すように、灰で覆った炭火の上を積層した金箔を、息を吹きかけながらゆっくり移動させ、積層金箔を約20秒間200～300℃加熱。引き続き、図1.5(c)のように金箔を和紙に挟んで指で加圧して接合している⁽¹¹⁾。金箔表面は有機物(アルカリ金属石鹸等)で被覆されており、金箔同士は固着しない。接合時にはこの有機物を金箔表面から取り除き、大気中で金箔同士

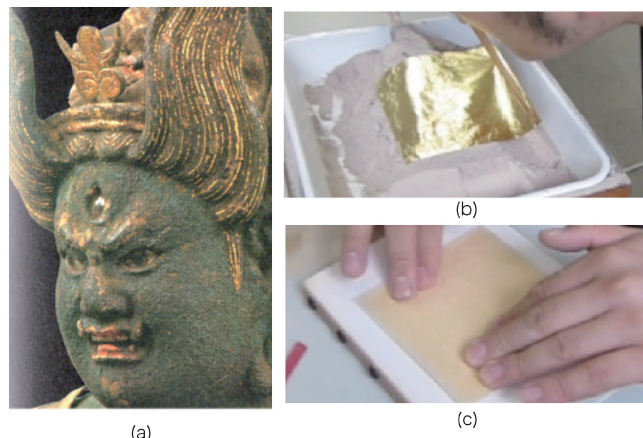


図1.5 (a)：截金で装飾された仏像の頭部、「金箔焼き合わせ」工程での、(b)：加熱と、(c)：和紙間に挟んでの加圧接合。(オンラインカラー)

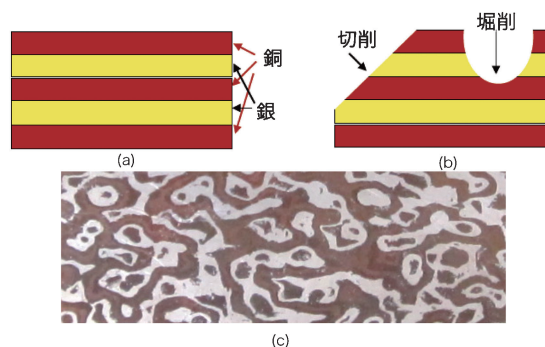


図1.6 銅と銀板の(a)：積層接合体を、(b)：切削・掘削で凹凸化後、(c)：平坦化して木目模様を形成。(オンラインカラー)

の接合がなされている。古代の巧は、金箔表面の有機物制御で、「接合の防止」と「接合」を使い分けている⁽¹¹⁾。

(3) 木目金での銀合金と銅合金の共晶拡散接合

木目金とは、江戸時代に刀の鐔を製作するのに使用された技法である⁽¹²⁾。図1.6(a)のように、色合いの異なる銀、銅積層接合体をドリルで表面層に局部的に穴をあけ、また切削して局部的に表面層を取り除く。このように加工した積層接合体を、材料が軟化する温度500～600℃程度に加熱後、加熱下で圧延あるいはハンマーで叩いて薄く平坦化。(c)のように平坦となった薄板表面には木目文様が現れる。「木目状の仕上げる技法」および「木目状に仕上がった材料」は、「木目金」、あるいは「杓目銅」、「杓目金」と呼ばれる。(a)の金属板の積層接合工程では、銀(融点：961℃)と銅(融点：1085℃)の接合界面で溶け始める(共晶温度：779℃)ことを確認して、接合している⁽¹³⁾。本手法は、接合面での共晶反応を利用した「共晶拡散接合」である。

1・3・2 約30年前の報告書に見る実用例

拡散接合の実用例については、溶接学会の界面接合研究委員会が、1989年にアンケート調査を行なっている⁽¹⁴⁾⁽¹⁵⁾。

図1.7(a)は同種金属の実用例で、F-15航空機の取り付け金具である。7枚のチタン合金板を積層接合した部品で、従来の鍛造品から削り出す方法に比べて、大幅なコストダウンに成功した。(b)は異種金属の実用例で、半円形状の銅棒とSUS316ステンレス鋼を接合した電極の実用例である。(c)は液相拡散接合の実用例で、自動車用エンジンカムシャフトの実用例である。中空シャフトと予備焼結したカム、温間鍛造したジャーナルやギヤなどを組み合わせた後、焼結と同時にパイプに接合している。カムは、Fe-Cr-Mo-Cu-P-C系焼結鋼で、焼結時にFe-P-C系の液相が発生、その際発生する収縮力も、同時に接合に寄与している。

当時の拡散接合の実用化について、各種の観点から整理した結果を図1.8に示す。材料の組み合わせの観点からは、異種金属の接合例が多い。同種金属の接合では鉄鋼同士の接

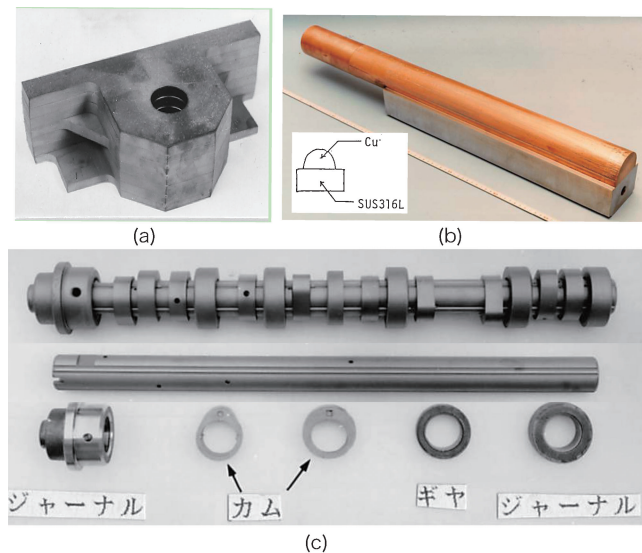


図1.7 拡散接合の実用例、(a)：F-15航空機の取り付け金具、(b)：銅とステンレス鋼を接合した電極、(c)：カムシャフト。(オンラインカラー)

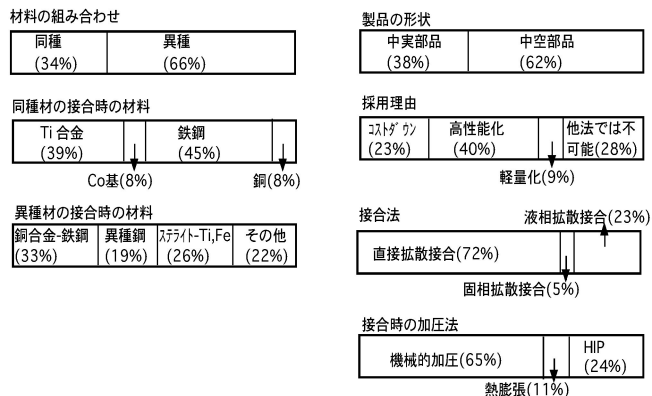


図1.8 拡散接合の実用例に見る、材料の組み合わせ、同種金属接合時の材料、異種金属接合時の材料、製品の形状、採用理由、接合法、接合時の加圧法。

合、異種では鉄鋼と銅の接合が多い。製品の形状では、中空部品の組み立て接合であり、採用理由として高性能化、他法では制作不可能となっている。接合法としては、ほとんどが直接拡散接合で、機械的な2軸加圧法となっている。

当時、同種金属の実用例11件、異種金属の実用例19件、液相拡散接合の実用例13件が報告されている。ここで表1.1に生産実績の多い実用例を抜粋して、その製品と接合条件を示す。

これら30年前の拡散接合条件は、今も変わるはずがない。強いて言えば、接合面の加工精度の向上で、表面粗さが低下したことから、低い接合温度で接合できる。本表での接合条件は、現在でも参考になる。

最近、拡散接合業者に試作品の接合を依頼しても、接合条件の情報は得られない。また、拡散接合の実用例は、めったにお目にかかれない。

これは「ココム(COCOM)事件」に原因がある。ココムとはNATOのもとで自由主義国から共産圏への輸出統制のため設立された委員会、日本も加盟していた。1987年東芝機械COCOM違反事件が新聞誌上を賑わしたことがある。ハイテク技術である拡散接合で作られた製品がCOCOM関連での問題化を避けるため、この事件以降、企業が拡散接合の実用例の公表を避けるようになった。ソ連が崩壊して、ココムは有名無実化した現在も、「公表せずの姿勢」は現在も続いている。

1・3・3 現在の拡散接合の実用例

最近、東京ビックサイト等の展示会で、拡散接合の実用例の情報を得ることができる。拡散接合の実用例の一例を、図1.9に示す。(a)は、ipod classicの外観で、その中央のホイール部の様子を示す。このホイールを用いて選曲、音量調整、早送り、巻き戻し、画像・動画閲覧などすべての操作を直感的にできる。(b)のように、このホイール(クリッププレート)は電子部品と接続されている。クリッププレートは0.7mmの薄いプレートで、表裏ハーフエッチングしたSUS304ステンレス鋼箔を3枚積層拡散接合した精密な5段構造を形成している。累計2500万個生産されたことから、これまでに最も多く生産された拡散接合品と言える。

(c)はフォトエッチングしたSUS304ステンレス鋼箔(0.1mm厚)を7枚積層した接合例である。微細な複雑形状を接合できるとともに、本形状の試料を300枚も積層して、貫通穴位置がぶれることなく積層する技術も各社確立している。側面をデジタル顕微鏡で観察すると、熱腐食された結晶粒界が明確に観察でき、外観観察では良い接合状況である。

形状的に大きな拡散接合品としては、水素ステーション向けの熱交換器(d)が組み立てられている。また、近年アルミニウム合金の中空部品の接合例(e)が増加している。使用合金は6061合金が圧倒的に多い。

拡散接合の実用例では、近年フォトエッチングした金属箔を積層接合した製品の開発が多く見られる。これは金属箔の表面粗さが、0.5μm(Rz)程度に低下した。鏡のような金属

表1.1 日本での拡散接合による製品名とその接合条件(1989年).

No.	製品名	材 料	組合せ	採用目的	以前の 製作法	接 合 条 件						生産実績
						温度 (℃)	時間 (h)	圧力 (MPa)	雰囲気	表面処理	インサート 金属	
1	F-15航空機の取 り付け金具	Ti-6Al-4V	同種	コストダウン	無垢材から 削り出し	900	2	2.9	真空	酸洗	なし	414 パーツ
2	ロケット燃料ボ ンプ用インペラ	Ti-5Al-2.5Sn	同種	高性能化	なし	900～960	1	5～10	真空	脱脂処理	なし	120個
3	冷凍機用膨張 タービンロータ	Ti-6Al-4V	同種	高性能化	なし	960	2	15	真空	脱脂処理	なし	26個
4	電極	Cu-SUS316	異種	他の方法では 製作不可能	なし	800～1000	0.2～2	5～20	真空	6 S 以下	なし	100本
5	管板	(SUS316, キュ アップロ Ni)-炭 素鋼	異種	コストダウン	圧延, 縛着 クラッド	800～1000	0.5～2	10～30	真空	6 S 以下	Ni	1000本
6	製鉄機械チヨッ クライナー	黄銅-炭素鋼	異種	コストダウン	銅合金無垢 材	700～800	0.5～2	5～20	真空	6 S 以下	なし	100枚
7	ダイヤモンド	18 k ゴールド	異種	高性能化	ろう付け	700	0.17	10	真空	酸洗	なし	4 億円 /年
8	粒子加速器冷却 板	銅-SUS316L	異種	他の方法では 製作不可能	なし	800～1000	0.5～2	5～20	真空	6 S 以下	なし	50枚
9	カムシャフト	(Fe-Cr-Mo- Cu-P-C)-炭素 鋼管	異種	高品質化, 軽 量化	鋳造	1110	0.5	収縮力	還元	なし	なし	累計 230万本

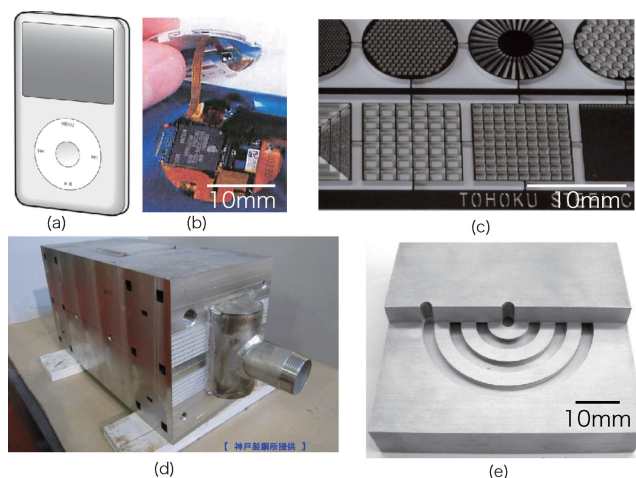


図1.9 展示会等で見る拡散接合の実用例．(a)：ipod，(b)クリッププレート(SGK 提供)，(c)：複雑精密微細部品の接合(東北特殊鋼提供)，(d)：水素ステーション用熱交換器(神戸製鋼提供)，(e)：アルミニウム合金の中空部品(ヤマテック提供)．(オンラインカラー)

箔を製作する技術の進歩は、接合界面に空隙のない拡散接合部の完全化に大きく寄与している。

文 献

- (1) 日本工業規格, 溶接用語—第2部: 溶接方法, JIS Z 3001-2: 2013.
- (2) S. J. Paproski, H. S. Hodge and C. B. Boyer: Second United Int. Con. on the Peaceful Use of Atomic Energy, (1958).
- (3) R. F. Tylecote: The Solid Phase Welding of metals, Edward Arnold Ltd., (1968).
- (4) D. S. Duvall, W. A. Owczarski and D. F. Paulonis: W. J. **53** (1974), 203s-214s.
- (5) <http://jp.elsevier.com/online-tools/scopus>
- (6) https://www.jpo.go.jp/shiryuu/pdf/gidou-houkoku/25_kou-zouzairyou.pdf
- (7) <https://kaken.nii.ac.jp>
- (8) 奈良県立橿原考古学研究所: 斑鳩藤ノ木古墳第2.3次調査報告書, 分析と技術編, (1993).
- (9) 広島県埋蔵文化財調査センター: 灰塚ダム建設に伴う埋蔵文化財発掘調査報告書(3), (1998).
- (10) 有賀祥隆: 日本の美術, 373号, 鍍金と彩色, (1997).
- (11) 大橋修他: 日本金属学会春期講演概要, (2018), 73.
- (12) 高橋正樹: 木目金の教科書, 東京美術, (2014).
- (13) 燕市産業資料館編: 鍍金・木目金 金工の美 人間国宝玉川宣夫作品集, 燕市, (2011).
- (14) 溶接学会: 界面接合研究委員会: IJ-40-90.
- (15) 大橋修: 溶接学会誌, **69**(2000), 465-474.



大橋 修

★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★

1966年	富山大学工学部電気工学科卒業
1966年	科学技術庁金属材料技術研究所 入所
1996年	新潟大学自然科学科研究科へ出向
2009年	新潟大学自然科学研究科 退官

専門分野：接合，界面科学

◎基礎から応用までの「拡散接合研究」に従事。退官後は、設立したWELLBONDを通して、接合に関わる「情報発信」と「コンサルティング」の他、「接合プロセスの開発経緯」の調査等に従事。

★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★