

# Ag-Cu-Ti系ろう材と人工ルビーの接合界面反応

齊 藤 修

## Reaction of Ag-Cu-Ti Filler Metal to Synthetic Ruby during Brazing Operation.

Osamu SAITOH

### 要 約

ろう付け過程で形成される活性金属ろうと人工ルビーとの反応層を、走査型電子顕微鏡、X線マイクロアナライザー、X線回折法により検討し、得られた結果より接合界面反応を推察した。その結果、反応層はチタン濃度の異なる2層より構成され、ルビー最近接部でルビー分解反応とチタン酸化物の生成反応が、その外層ではCu, Al, Tiを主体とする金属間化合物の生成反応が進行する。

### 1. 緒 言

活性金属ろう付け法<sup>1)</sup>による人工ルビーと金属の接合性を検討する目的で、前報では接合強度に及ぼすろう材へのチタン添加量、および接合温度の影響について検討を行った。その結果、ろう材へのチタン添加量の増加、接合温度の上昇に伴って、接合界面に脆弱な反応相が成長し、接合強度の低下を示すことがわかった。そこで、接合強度に及ぼす接合時間の影響について検討するとともに、ルビーろう材界面に形成される反応相の構成を詳細に解析し、ろう付け過程で進行するルビーろう材接合界面反応について検討した。

### 2. 実験方法

#### 2-1 接合時間の影響

適正な接合条件を把握するためには、接合時間の影響についても検討しておく必要がある。そこで前報<sup>2)</sup>の結果から高温側で接合強度の低下を示した7 mass%Ti添加ろう材の1223Kでの接合、及び良好な接合性を示した4 mass%Ti添加ろう材の1123Kでの接合について接合時間の影響を検討した。接合材料、接合試験材の接合方法、及び接合試験材の強度評価方法は前報と同様の方法<sup>2)</sup>を用いた。

#### 2-2 ルビーろう材接合界面の構造

セラミックスと金属のろう接では、セラミックスろう材接合界面の反応層の構造<sup>3)</sup>が、接合強度に大きな影響を及ぼすものと考えられる。そこで、ルビー同士を接合し、X線マイクロアナライザー (EPMA) X線回折法により接合界面の構造を解析した。また、得られた結果より、ルビーろう材接合界面反応<sup>4)</sup>について推察した。

### 3. 実験結果及び考察

#### 3-1 接合時間の影響

図1は、高温側で接合強度の低下を示した7 mass%Ti添加ろう材による1223Kの接合について、接合時間の影響を検討した結果である。

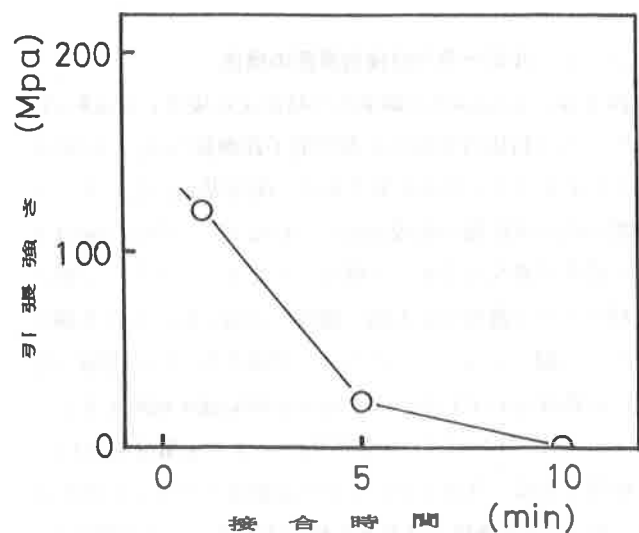


図1. 接合試験材の引張試験結果  
(7 mass%Ti-AgCu, 1223K)

接合時間が10分以上では、接合強度は極めて低い5 MPa程度の値を示したが、接合時間の短縮に伴って接合強度は増加し、接合時間1分では100MPa以上の高い接合強度を示した。このろう材の高温長時間側の接合強度の低下は、接合界面に脆弱な反応層が形成されることに起因<sup>2)</sup>する。接合時間の短縮により、接合強度の上昇が得られるのは、

これらの脆弱層の形成が抑制されるためと考えられる。図2は、良好な接合性を示した4 ass%Ti添加ろう材の1123Kでの接合について、接点時間の影響を検討した結果である。接合時間1分でも高い接合強度を示しており、接合時間の影響は少ないものと考えられる。

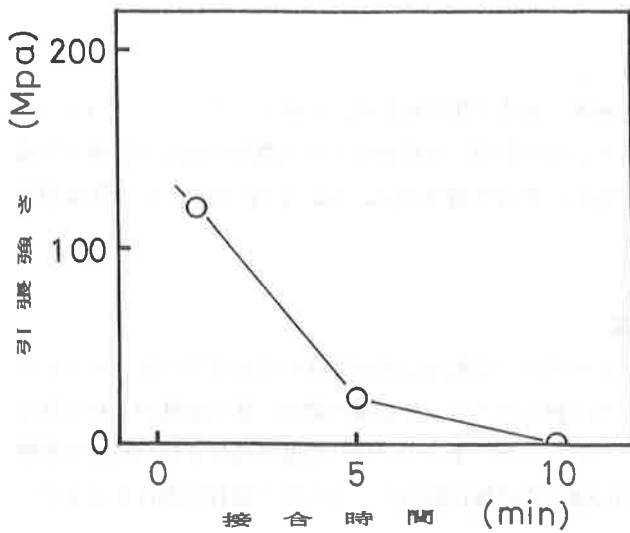


図2. 接合試験材の引張試験結果  
(4 mass%Ti-AgCu, 1123K)

### 3-2 ルビーろう材接合界面の構造

図3は、4 mass%Ti添加ろう材により接合した試料の、ルビーろう材接合界面の走査型電子顕微鏡写真、及びEPMAによるライン分析結果である。接合界面には、チタン濃度の高い反応層の形成が認められるが、この反応層はチタン濃度の異なる2層より構成されており、ルビーに近い領域にチタン濃度が最も高い領域(A層)が、その外側にチタン、銅、アルミニウム等より構成されている領域(B層)が形成されている。図4は反応層領域を横断するようにAg, Cu, Ti, AlについてEPMAにより定量分析を行った結果である。A層では80%近い高濃度のチタンが検出され、Ag, Cuも微量ではあるが検出される。一方B層には、チタン、銅、その他ルビーの分解により生成したアルミニウムが検出される。

さらに反応層の外側のろう材領域では、ろう材の主成分であるAg, Cuが検出され、Agは主にマトリックス領域に、Cuは第2相領域に主に存在している。また、各金属元素量の総和は、ろう材領域ではほぼ100%となっているが、B層、A層領域では100%以下の値となっており、特にA層領域ではつ85%程度の値を示している。これは、本分析では金属元素だけを分析しており、ルビーの主成分である

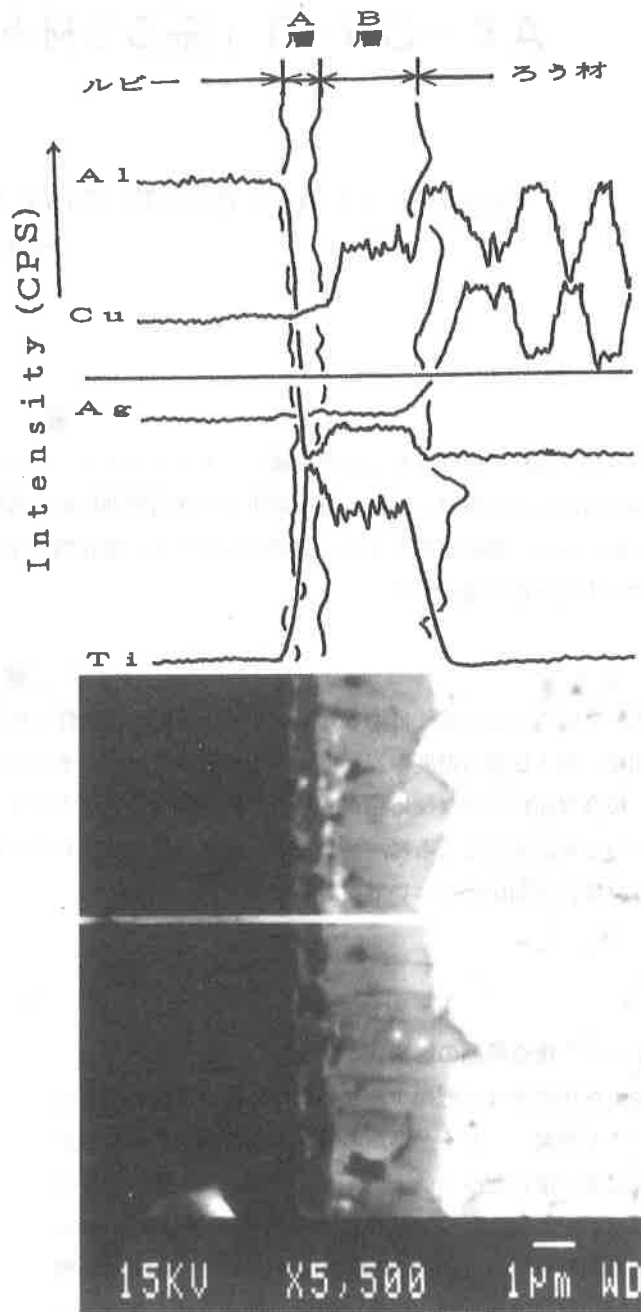


図3. ルビー/ろう材界面のEPMAライン分析結果  
(4 mass%Ti-AgCu, 1243K, 30min)

酸素の分析を行っていないために生じた結果である。つまり、A層、B層領域には、ルビーの分解により生成した酸素がかなり存在しているものと考えられる。図5はルビー表面をろう材でメタライズした後、ろう材部分の厚さがほぼ20µmになるように研磨した試料に対し、X線回折を行った結果である。AlTi, CuTi, AlCu等の化合物に相当する回折ピークが認められるが、EPMA分析結果を考慮すると、これらの化合物は主にB層領域に生成しているものと考えられる。図6は、ろう材部分をさらに10µm程度に研磨した後、X線回折を行った結果である。チタン酸化物に

相当する回折ピークが認められるが、これらは主にA層領域に生成しているものと考えられる。以上の分析結果より、ろう付け過程で進行するルビー-ろう材接合界面反応を推察し図式化すると図7のようになる。すなわち、A層領域ではろう材中のTiがルビー-ろう材界面に優先的に偏寄し、ルビー中へ拡散または表面を侵食することにより、ルビーを分解する反応が進行する。ルビーの分解により生成したOは、Tiとチタン酸化物を生成するが、AlはA層領域からB層領域に拡散し、ここでTi、Cuと金属間化合物を形成する反応が進行するものと推察される。

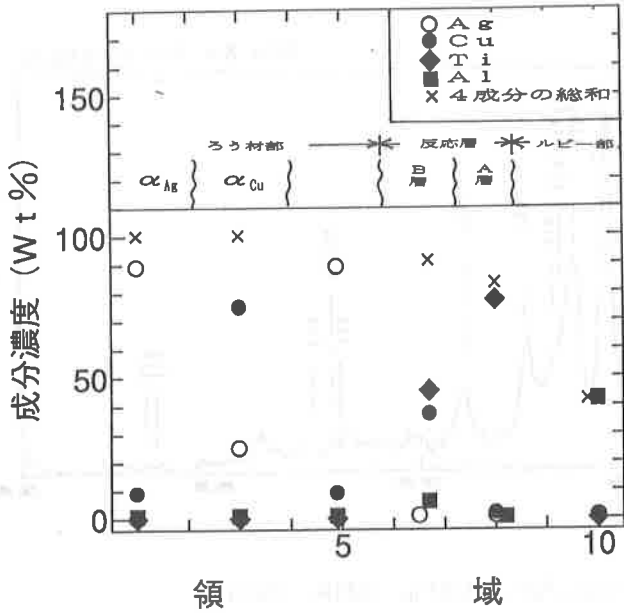


図4. ルビー/ろう材接合界面の点分析結果 (4 mass%Ti-AgCu, 1243K, 30min)

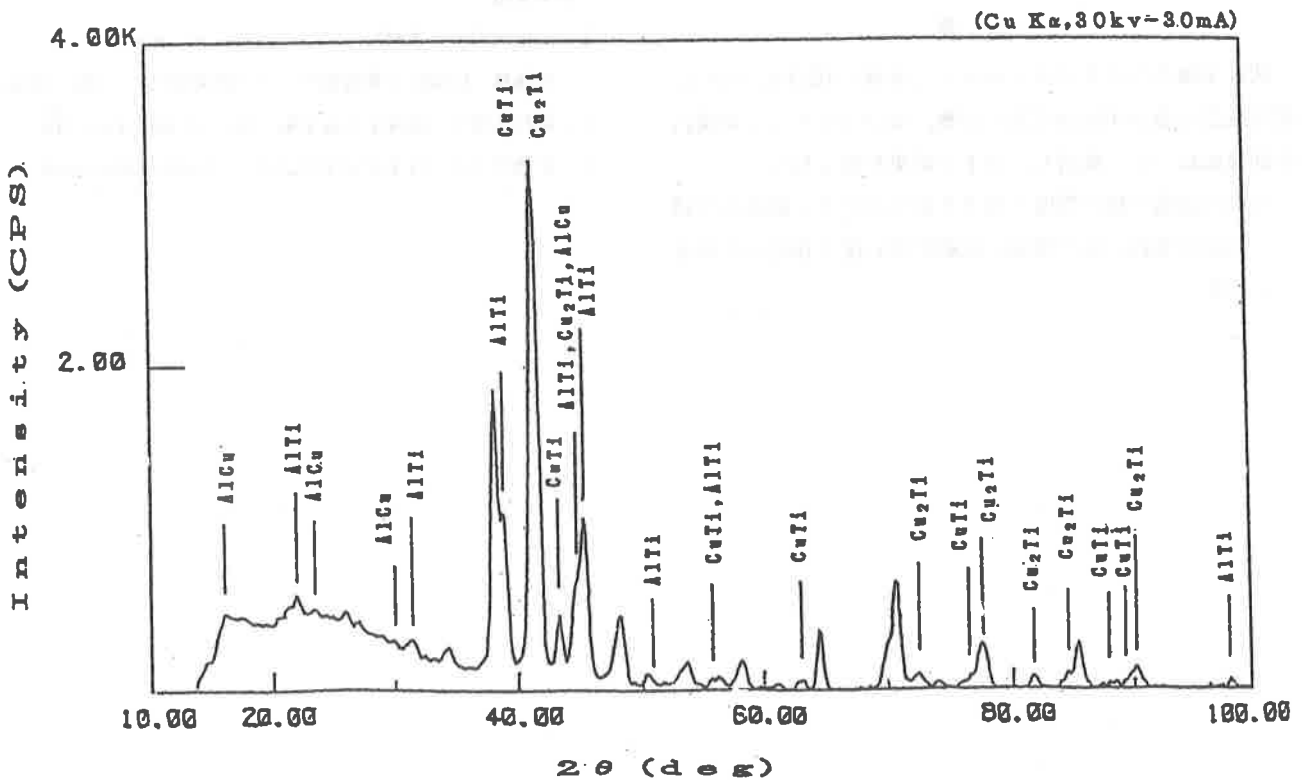


図5 ルビー/ろう材接合界面のX線回折結果 (7 mass%-AgCu, 1223K, 15min)

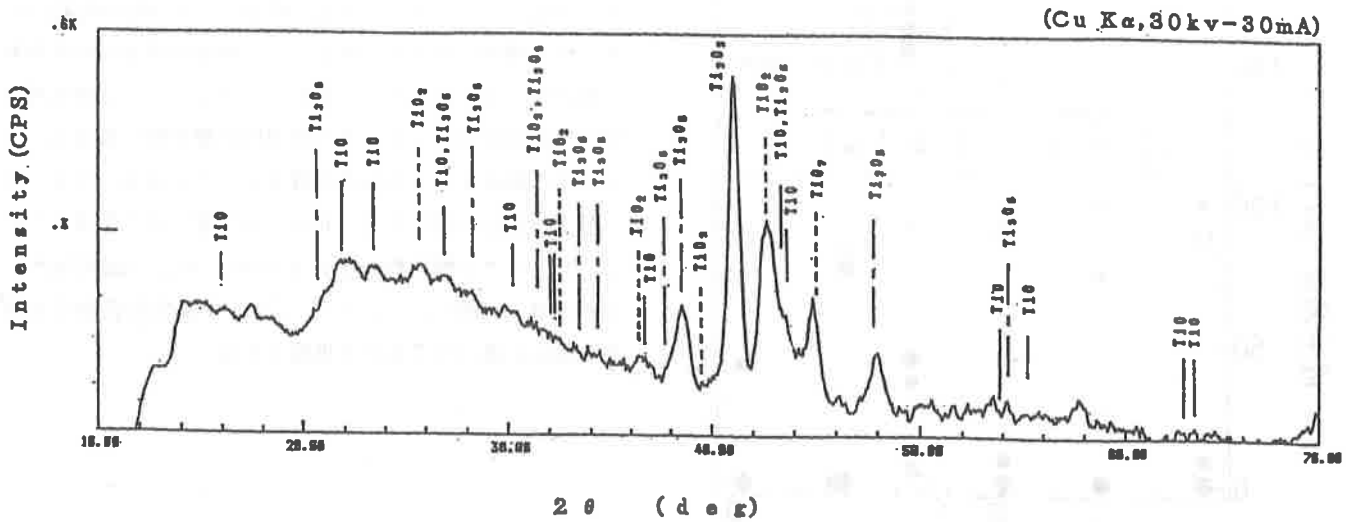


図6 ルビー/ろう材接合界面のX線回折結果 (7 mass%Ti-AgCu, 1223K, 15min)

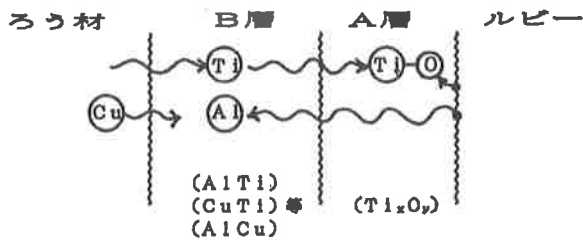


図7 ルビー/ろう材接合界面反応の概略図

- (2) 適正接合条件下では、接合時間1分程度の短時間接合で、高い接合強度が得られる。
- (3) ルビー-ろう材の反応層は、チタン濃度の異なる2層より構成され、ルビー最近接部でルビーの分解反応が、その外層で金属間化合物層の生成反応が進行する。

#### 4. 結 言

活性金属ろうによる人工ルビーと金属の接合について、接合強度に及ぼす接合時間の影響、及びルビー-ろう材接合界面反応について検討し、以下の結果が得られた。

- (1) 高温側で接合強度の低下を示す高チタン添加ろう材の接合部は、接合時間の短縮に伴い接合強度の上昇を示す。

#### 参考文献

- 1) 高塩治男：工業材料, 34, (1986) 8, 36~37
- 2) 齊藤修：山梨県工業技術センター研究報告, 7, 60 (1993)
- 3) 岡村久宜ら：溶接学会論文集, 8, (1990) 272~279
- 4) 中橋昌子ら：日本金属学会誌53, (1989) 1153~1160