



H. Kita

S. Yamashita

炭化物系セラミックスの 接合におけるレーザー適用

北 英紀*, 山下 誠司**

1. 緒言

セラミック同士の接合にレーザーを用いると大きな省エネルギー効果をもたらすことが期待できる。レーザーによるセラミック接合における省エネ効果を説明するために電気炉を用いた場合との比較を考える。セラミックスの接合は原理的には接合部のみを加熱昇温すれば可能である。しかし炉を用いた加熱方法では接合剤と被接合材料全体を加熱するのみならず、その何百倍もの熱容量を有する電気炉本体を加熱するために膨大な熱エネルギーを費やすことになる。

一方、レーザーを用いると直径数ミリメートルのビームで数百キロワット以上のパワーを集中して照射することができ、かつ集光レンズなどを用いればセラミック接合点を数千度に昇温できるパワー密度を実現することも容易である。レーザービームは加工容器に設けた小さな窓から入射し材料を直接加熱するため容器そのものは常温に維持され、接合に必要なエネルギーは必要最小限とできる¹⁾。

金属同士の接合におけるレーザー応用は既に多くの研究例もあり、実用化も進んでいる^{2)~6)}。しかし、セラミックス同士の接合において、高いエネルギー密度を有するレーザーを照射した場合、吸収されたエネルギーは局所的に大きな温度勾配を生じせしめ、その結果、脆性材料であるセラミックスにはいわゆる熱衝撃破壊が起こってしまう。レーザーを用いた接合においてこれを回避する可能性はあるのだろうか。今回、材料選定(被接合材料・接合剤)、レーザー種別の選択、接合剤の配置方法、被接合材の設計、といった観点を総合的にとらえ、セラミック接合におけるレーザー利用の可能性について検討した結果について報告する。

2. 基本検討

2.1 材料選定(被接合材料・接合剤)

a) 被接合材料

セラミックスは非炭化物系と炭化物系に大別されるが、前者は特異な特性をもつものが多い。今回その中で、被接合材として炭化ホウ素(以下 B_4C)セラミックスを選択した。同材料は地球上に存在する物質の中でダイヤモンドに次いで二番目に硬く、軽量でセラミックの中でも最も高い比剛性(ヤング率と密度の比)を有する。こうした特徴を活かし次世代の半導体露光装置用部材、ロボット用アーム、摩耗部材、防護板などへの適用が期待されている^{7,8)}。

一方、 B_4C は接合が困難な上、破壊靱性値が小さいため加工研削時、表面に無数の微小亀裂が生じ強度低下を招く、といった欠点があり、炭化ケイ素などに比べて研究例ならびに、実用化に向けた技術開発の取組みは少なかつた。レーザープロセスにより、セラミックの中でも特に加工が困難であった B_4C を省エネルギーで安定した接合できる技術が確立できれば、 B_4C の用途開発、ならびにレーザーを利用したモノものづくりの技術開発に貢献できる。

b) 接合剤

熱衝撃破壊を回避するために、ビーム径を絞れるというレーザーの特徴を活かし、被接合体部(セラミック部)にエネルギーを吸収・発熱させるのではなく、金属系の接合剤にエネルギーを吸収させ溶融状態として被接合体との親和性により両者を密着させる方法が望ましいと考えた。炭化ホウ素の用途を考えると、接合体の融点は $600^{\circ}C$ 程度で十分であり、炭化物系セラミックスに対する各種金属の濡れ易さを考慮すると^{9,10)}、アルミあるいはその合金系が最も有望であると判断した。

実際に、アルミ箔を B_4C 間に介在させ炉内で加熱することにより溶融アルミニウムが B_4C に極めて濡れやすく、加工時に生じた無数の微小亀裂内の先端部(幅数十ナノメートル)まで浸透し、表面の微小亀裂を治癒するとともに、母材との反応により、母材強度を上回る高い接合強度が得られることを明らかにしている^{7,8)}。なお、純アルミの融点は $660^{\circ}C$ であるが、さらにケイ素を添加した合金は共晶反応を伴い、融点を $580^{\circ}C$ まで低下させることができる¹¹⁾。

2.2 レーザー種別の選択

一般的な金属材料は波長が短いほど光の吸収率が增大する傾向がある。一方、アルミニウム材においては、紫外領域を除くと $800\sim 850nm$ の波長帯域に光吸収の極大点がある特有な吸収特性を持っている^{2)~6)}。この波長帯域においては、アルミニウムはイッテルビウム レーザ($1070nm$)の吸収率(約5%)の3倍となる約15%の吸収率を有している。この特性に着目し、本研究では波長 $1070nm$ のレーザを加工点に照射する加工法を検討した。

2.3 接合剤の配置方法

予備実験として行った電気炉を利用した接合では、ア

*名古屋大学大学院工学研究科 教授

**名古屋大学大学院工学研究科 助教

ルミ箔を被接合体である B_4C ブロック間に挟み、加圧した状態で全体加熱を行ったが、この方法では、製作できる部品の形状に制約が大きく、また作業工程で不安定になりやすい。そこで、接合前処理として被接合体である B_4C の表面の接合部に選択的にアルミ系合金の厚膜を形成させておくことを試みることにした。電気化学手法（メッキ）でも厚膜形成は可能であったが、本報告では新たな試みとして粒子を高速で衝突させ、運動エネルギーを熱エネルギーに変換することで厚膜形成が可能なコールドスプレー法¹²⁾を利用した結果を報告する。

2. 4 被接合材の設計

接合により部品を作成する場合、被接合体同士を治具を用いて固定する方法が一般的であるが、大型化等を考えると治具の使用は形状上の制約を設けることになってしまう。そこで本研究では、治具等を使用せず、被接合体自身を機械的に組合せることで固定が可能で、レーザー接合に適した形状を新たに設計した。詳細は後述する。

表1 供試 B_4C セラミックスの主な物性値

密度 (g/cm^3)	ヤング率 (GPa)	曲げ強度 (MPa)
2.45	430	240 \pm 14

表2 Al-Si合金粉末の成分等

名称	Si含有量 (wt%)	平均粒径 (μm)
Al-8wt%Si粉末	8	106
Al-12wt%Si粉末	12	150
Al-15wt%Si粉末	15	125
Al-30wt%Si粉末	30	150

3. 実験方法

3. 1 被接合材料ならびに接合剤

被接合材料としては美濃窯業株式会社製の常圧焼結 B_4C を用いた。主な物性を表1に示す。後述する表面メタライズ用の原料としてヒカリ素材工業株式会社製のAl-Si合金粉末を用いた。表2に使用した合金の成分等を表2に示す。また、表面メタライズ以外に、アルミ系のペースト状のろう材を併用した試験も行った。

3. 2 接合前処理（表面のメタライズ）

コールドスプレー法により上記Al系合金粉末を B_4C 接合面に噴出し、被膜を作製した。常温または加熱した高圧ガスを特殊ノズルによって超高速に加速し、そのガス流の中心に粉末材料を投入することにより材料が加速されノズル出口より噴出し、固体のまま基材に衝突させる被膜形成技術である。基材に衝突した材料は、基材とともに塑性変形し、基材に付着する。この技術の利点は、作動ガス温度が融点より低いものを使用するため、溶射技術に比べ、省エネルギーで、また材料の酸化が少ないことから原材料の性質に近い被膜のものをつくる事ができる点である。さらに緻密な被膜を生成する事ができることも大きな利点である。図1にコールドスプレーの心臓部であるガンヘッドの外観

を示す。なお、今回の実験ではスタータック株式会社製低圧コールドスプレー装置を用いた。表3にコールドスプレー試験の条件を示す。



図1 コールドスプレー装置ガンヘッド¹²⁾

表3 コールドスプレー試験条件

粉末種類	作動ガス	ガス温度 ($^{\circ}C$)	ガス圧力 (Pa)
A30S	窒素	650	8.0×10^5
A15S	窒素	600	7.9×10^5
A12S	窒素	600	7.8×10^5
A8S	窒素	550	7.7×10^5

3. 3 レーザーによる接合試験

使用した装置の光学系概要を図2に示す。また試験条件の概略は以下の通りである。

- ・レーザー波長：1.07 μm
- ・定格出力：5000W
- ・ファイバーコア径： $\phi 0.2mm$

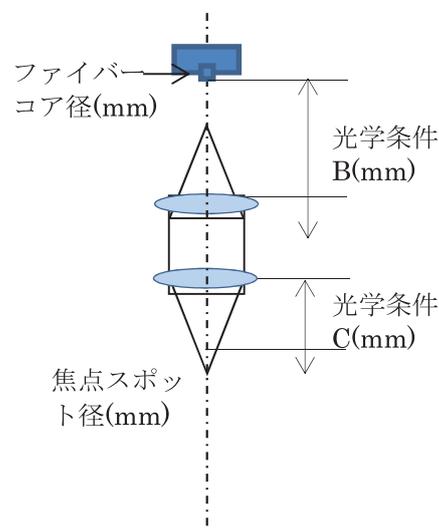


図2 レーザー装置の光学系の概略

4. 試験結果および考察

4. 1 メタライズあるいは接合材成分に関する検討

従来、純Alを接合材として使用していたが、今回、熱膨張係数差に由来する割れ発生抑制には、接合温度の低温化が必須と考え、メタライズ成分あるいは接合材としてAl-Si合金を選択した。図3にAl-Si合金の状態図を示す¹¹⁾。

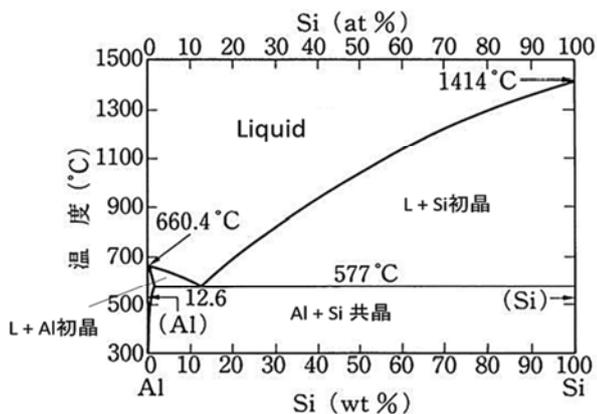


図3 Al-Si系平衡状態図

一般に2種類以上の金属を混ぜると、金属間の界面は、同一金属間の界面よりも不安定になり、基本的に融点が低下する。図3に示す通り、純Alの場合、融点は660°Cであるが、例えばAl-Si共晶組成では融点は590°Cと純Alに比べて約80°C温度を下げることができ、またバンドギャップが発生するためにレーザー吸収特性が改善され、より効率的に局所加熱できる可能性がある。さらに融解時に体積膨張率が負になるという特異な性質を有することが知られており、Si添加により体積膨張率を抑えることが可能である。

4.2 試験片形状の設計

当初、被接合体となる2枚のプレートの平面同士を突合せ、治具で固定することを試みたが、不安定であったため、プレートに厚さ約3mm、深さ10mmの切欠きを形成し、メタライズ処理後に、両者を嵌合した状態で接合処理を行うこととした。図4にその外観を示す。

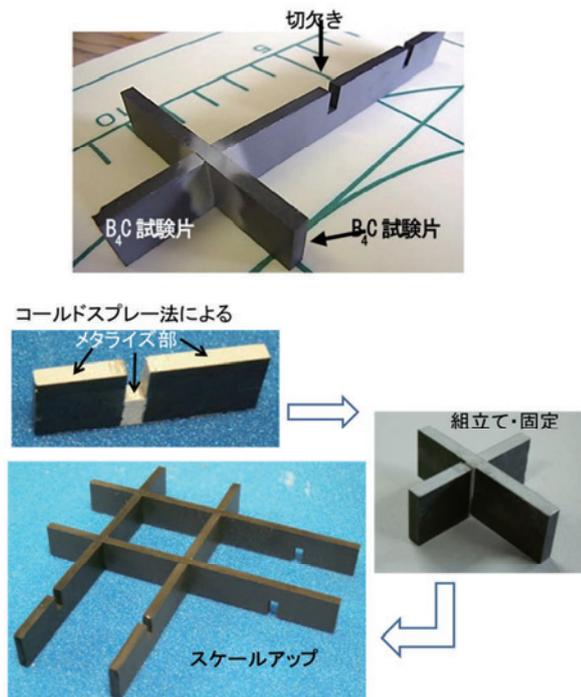


図4 2枚のプレートに切欠きを設け、嵌合により固定した試験片の外観ならびにスケールアップの工程

4.3 接合前処理（表面のメタライズ）試験結果

コールドスプレー法では、Si含有率が0wt%、8wt%、12wt%、15wt%、30wt%のAl-Si合金(A1xS, x=8,12,15,30)以下を用い、被膜を形成した。コールドスプレー法により作製した被膜は、物理的に固体表面に固着している。従って、一般にはアンカー効果、すなわち、適度に固体表面を粗加工で仕上げ、凹凸を設ける事により、固着しやすいとされる。そこで、本研究においても、コールドスプレー施工前に、各施工温度と同じガスで、微細なセラミックスの粉末を基材であるB₄C表面に高速で噴射し、表面を熱し、粗さを得る前処理施工を行った。その後、表3に示す条件でコールドスプレー法を行った。Si含有率が上がるとAl-Si合金の付着効率が悪くなり、ガス温度550°CではSi含有率30%のAl-Si合金の付着率が著しく悪かった。Si含有率が高い程、ガス温度を高温にすると付着率が上がった為、A8Sでは550°C、A15Sでは600°C、A30Sでは650°Cのガス温度で実験を行った。

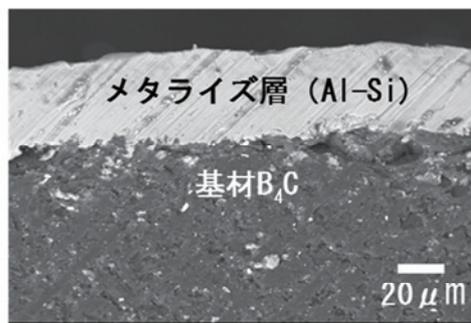


図5 コールドスプレーで形成したメタライズ層の断面SEM像

ここで、A12Sが最も低い融点を有するにも関わらず、A8Sの方がより低温の作動ガスで付着させることができたことから、コールドスプレー法においては、金属の塑性変形の影響が大きいと考えられる。Al-Si合金において、Si含有率が硬度に大きな影響を与えており、塑性変形の妨げになっている。純Alと比較してA30Sでは約20倍の硬度となっている。したがって、コールドスプレー法によってAl-Si合金被膜を形成する場合、Si含有率の制御が、被膜の密着率を高める上で重要である。図5にはA12Sをコールドスプレー法によって被膜形成した後の断面のSEM像を示す。同図から、基材と金属粒子の密着性は極めて良好であることを確認することができる。塑性変形だけではなく、運動エネルギーが固液相変化へと使用されている事も予測される。ここで、従来の接合技術では厚さ50μm程のアルミニウム箔が用いられていたのに対し、本技術では、21g/minという粉末量で被膜形成を行っているため、50μmの厚さの被膜を得るためには、接合面を100×100mm、金属粉末を純Al、噴射した粉末がすべて均一に被膜形成に用いられると仮定すると、以下の式が成り立つ。

$$0.10 \text{ m} \times 0.10 \text{ m} \times 50 \mu\text{m} \times 2.70 \text{ g/cm}^3 = 21 \text{ g/min} \times x \text{ min}$$

すなわち、粉末がすべて付着したと仮定した場合、0.1秒で被膜を形成することができる。また、図6には切欠き部(溝)を形成した B_4C プレートに、密着するように厚さを制御してAl-Si層を形成し、2枚のプレートの溝同士を嵌合により固定した試験片の外観を示す。

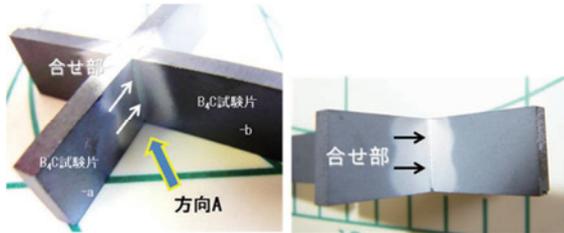


図6 切欠き部にメタライズした2枚のプレートを嵌合により固定した試験片の外観

従来のアルミ箔を配する接合方法では、単純形状品に限定されていたが、コールドスプレー法を適用し、かつその成膜速度を制御することで複雑な形状にも表面にAl-Si層を形成することが可能となった。

以上の結果からコールドスプレー法によるメタライズした被処理面が、平坦面であれば効率的に密着性の高い被膜を作製することが可能である。また、コールドスプレー法は作動ガス温度も融点以下であることから溶射技術などに比べて省エネルギーな被膜形成技術であるということや非平衡状態にある製膜が可能といった利点を有しており、接合の前処理に適用することで更なる設計の自由度が高めることができると考える。

4. 4 レーザーによる接合試験

前項に述べた方法にて、嵌合した2枚のプレートを更に固定治具を使って固定した。その様子ならびに、レーザー照射による接合の様子を図7に示す。



図7 試験片固定の様子ならびにレーザー照射の状況(右)

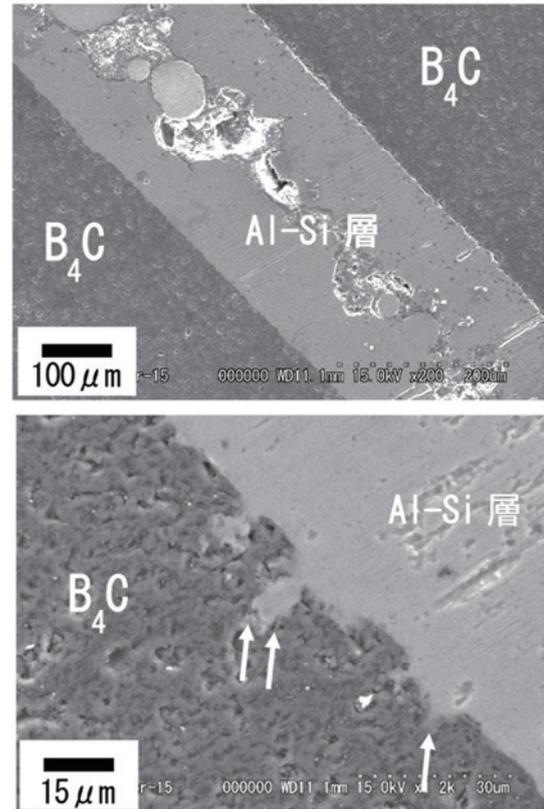


図8 レーザーを使って接合した界面のSEM像

当初、コールドスプレー法によりメタライズのみ施した面にて接合を行ったが、十分な密着強度を得る事が出来なかった。そこで図6に示す固定法に加えて、接合部近傍にペースト状のアルミを主成分とするろう材を塗布し、レーザーによる接合を行った。

接合後、試料をエポキシ樹脂を使って固定し、その状態で断面を切り出し、SEM観察を行った。その結果を図8に示す。界面近傍において、 B_4C 基材と接合層間の密着状況は良好であり、また基材表面の凹凸部に接合材である金属が回り込んでいる様子も観察された。

こうした事から、Al-Si系の合金を接合材として使用し、コールドスプレー法とレーザーを組み合わせることで、 B_4C 同士を短時間で接合できる技術の可能性を見出すことができた。

5. 結言

レーザーを使った局所加熱により B_4C 同士を短時間で接合できる技術可能性を明らかにすることを目的として、接合成分、メタライズ、レーザー照射条件に関して一連の検討を行った。その結果、共晶Al-Si系の合金を接合材として使用し、コールドスプレー法とレーザーを組み合わせることで、 B_4C 同士を全体加熱に比べて格段に少ないエネルギー消費で接合できる可能性を見出すことができた。

謝 辞

本研究は、平成 24 年度公益財団法人天田財団一般研究開発助成において実施いたしました。助成いただいた同財団に対しまして、ここに謝意を表します。

参考文献

- 1) 内田成明, 中野潤一他, ボロンカーバイド (B₄C) のレーザー融着に関する基礎研究, レーザー学会学術講演会 第 32 回年次大会予稿集(2012)
- 2) 坂元宏規岩瀬孝邦, 柴田公博, CO₂ レーザーおよび Nd : YAG レーザーによるアルミニウム合金の溶接におけるエネルギー吸収効率, レーザー研究, 146-150 (2003)
- 3) 阿部信行, 高出力半導体レーザーによる材料加工の現状, レーザー研究, 31, 5, (2003)
- 4) 内海 怜, 王静 波, 水谷正海, 本宮紀典, 藤井孝治, 片山聖二: アルミニウム合金の YAG レーザ・MIG ハイブリッド溶接における溶込み特性と溶接現象, 第 62 回レーザー加工学会論文集, 10-18 (2004)
- 5) 中芝伸一, 酒川友一他: アルミ材の脅威の接合効率を実現するハイブリッド LD YAG レーザ, ツールエンジニア, 46, 7, 44. (2005)
- 6) 中芝伸一, パルス Nd:YAG レーザによるアルミニウム合金および銅の溶接メカニズムに関する研究, 岡山大学学位論文(2014)
- 7) Kiyoto SEKINE, Takeshi KUMAZAWA, Wu-Bian TIAN, Hideki HYUGA, Hideki KITA, Journal of the Ceramic Society of Japan, 120, 207-210 (2012)
- 8) Kiyoto SEKINE, Takeshi KUMAZAWA, Wu-Bian TIAN, Hideki HYUGA, Hideki KITA, Journal of the Ceramic Society of Japan, 120, 303-399 (2012)
- 9) 荻野和己, 高温界面化学, アグネ技術センター(2008)
- 10) 野城清, 大石恵一郎, 荻野和己: 溶融純金属における固体酸化物の濡れ性, 日本金属学会誌, 52, 1, 72-78(1988)
- 11) 神尾彰彦編, アルミニウムの組織と性質, 軽金属学会出版
- 12) スタータックHP : <http://www.startack.com/whatcoldspray.pdf>