

熱応力バッファ・インサート材によるアルミニウム／アルミナ接着

名古屋大学 工学部 材料プロセス工学科

教授 長 隆郎

(平成3年度研究開発助成 AF-91015)

1. 研究の背景

現在、省エネルギーさらには地球温暖化などの環境問題に端を発して、自動車あるいは鉄道車両など輸送機関の軽量化が急務となっている。この観点に立つとき、耐熱性に優れたセラミックスと軽いアルミニウムとを接着することは新しい構造材料開発という点において、きわめて重要である。一方、このセラミックスとアルミニウムの熱膨張率には大きな差異があり、この接合には両者の中間の熱膨張率を持つインサート材の挿入が熱応力緩和のために得策である。しかも、このインサート材にはアルミニウムの溶融

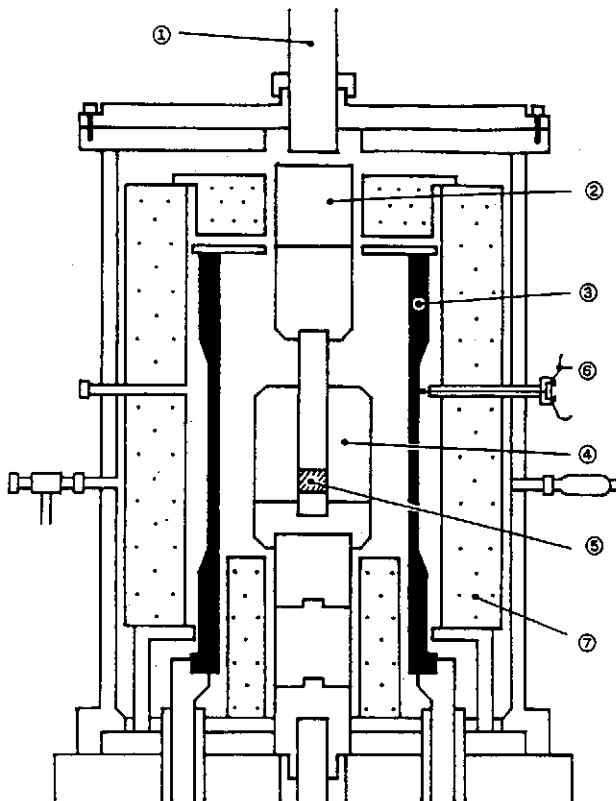
温度以下の低温においてセラミックスとアルミニウムの両方に良好な濡れ性を示し、また脆弱な界面反応層を過度に形成しないことが要求される。

本研究ではこの要求を満たすインサート材の開発、さらにはこれを用いたときのアルミニウム／アルミナ間接合強度、界面現象およびインサート材の熱膨張率の測定を行い、その関係について検討した。

2. 研究方法

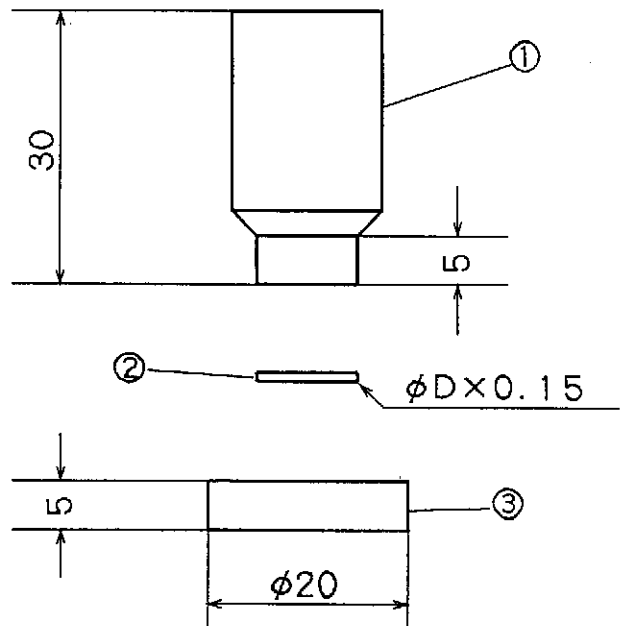
2.1 接合実験

接合実験にはFig. 1のホット・プレスを用いた。被接着アルミニウム母材には純アルミニウムおよびAl-Mg合金(5056)を用いた。試料形状はFig. 2に示すが、アルミナとの突き合わせ部については旋盤にて直径を調整した。被接着面は旋盤研削のままとし、平均面粗さは $0.4\mu\text{m}$ であった。インサート材にはアルミニウム合金を使用し、添加



- ① プレス・ロッド
- ② 付加荷重
- ③ グラファイト・ヒーター
- ④ グラファイト・ダイス
- ⑤ 試料
- ⑥ 熱電対
- ⑦ グラファイト・ウォール

Fig. 1 ホット・プレスの概略図



- ① アルミニウム母材
- ② インサート材
- ③ アルミナ・ブロック

Fig. 2 試料形状図

成分はシリコン、銅、マグネシウムを選択し、濃度はそれぞれ10~50%とした。

インサート材の作製は次の方法による。高周波誘導溶解炉にて各種アルミニウム合金を溶解し、攪拌後金型に铸造した。冷却後押し出しを行い、さらに直径を旋盤にて被接着アルミニウム母材の直径に合わせた。これからリファイン・カットにて薄板状試料を切りだし、湿式研磨(#500)によって厚さ $150 \pm 10 \mu\text{m}$ になるように厚さを調整した。

なお、接着用アルミナには0.1% SiO_2 を含む高純度アルミナ円盤($\phi 20\text{mm} \times 5\text{mm}$)を用いた。平均面粗さは $0.6 \mu\text{m}$ であった。

実験操作はFig. 2に示すように、アルミニウム母材、インサート材およびアルミナ・ブロックを重ね合わせた後、上下に工具鋼製の治具を介して黒鉛ダイス内に設置した。これをホット・プレス中に装着後、炉内を 10^{-6}Torr 以下の真空に引き、負荷圧力0.5~3.0MPaにおいて、目的温度まで0.17K/secで昇温し、所定時間保持した。接合温度は873Kを基本とし、保持時間は0~5.3ksecとした。

接合後、接合面に垂直な方向にオートグラフにより引張試験を行なった。なお、チャックへの試料取り付けにはFig. 3に示した治具を使用した。破断後の試料破面を写真撮影するとともに、場合によってはOHPフィルム上に輪郭を書き取り、画像解析装置(PIAS)を用いて破面解析を行なった。また、界面について光学顕微鏡、SEMおよびEPMA観察を行なった。

2.2 インサート材の熱膨張率測定

計測はFig. 4に示すように、石英管内部に熱膨張率を測

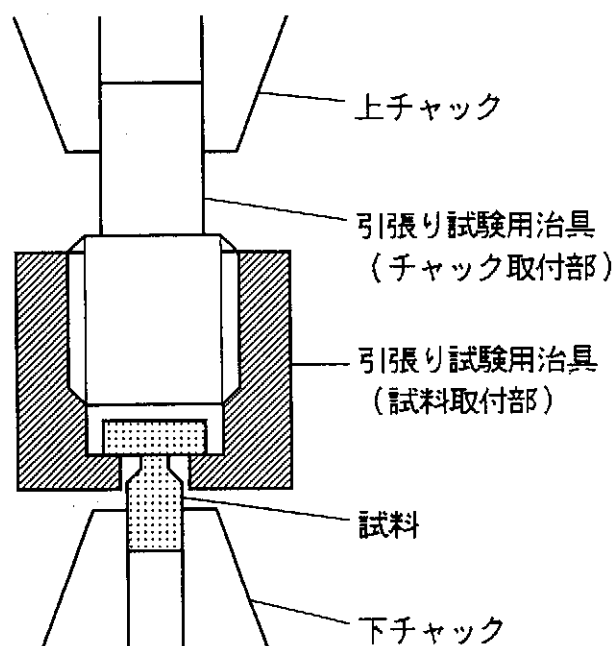


Fig. 3 引張試験用治具

定するインサート材、さらにその上下にアルミナ管をセットし、石英管下部からアルゴン・ガスを流すとともに、アルミナ管上部にダイヤル・ゲージを装着して行なった。まず、試料上下のアルミナ管の熱膨張量を補正するために、熱膨張率既知のマグネシウム・ロットを用いて各温度における膨張量を計測し、次に目的のインサート材に取り替えて熱膨張量を計測後、両計測結果からインサート材の真の熱膨張量あるいは熱膨張率を求めた。なお、試料の大きさは、 $\phi 7.5\text{mm} \times 100\text{mm}$ とした。

3. 実験結果

3.1 接合強度の時間依存

温度873K、圧力1.0MPaにおいて、Al-10wt% Si、Al-10wt% Cu、Al-10wt% Mgをインサート材として用い、アルミニウム/アルミナ間接合を行なった。その結果、Fig. 5に示すように、Al-Si系、Al-Cu系およびインサート材を使用しない純アルミニウム系においては、接合時間が長くなるにつれて接合強度が上昇した。一方、Al-Mg系の場合には、接合初期においては最も接合強度が高くなが、3.5ksec以上では逆に低下することが明らかになった。

破断位置を知るために破断界面を観察した結果、Al-Si系ではアルミナ内部での破断割合が低く、大部分は界面破断となっていた。これは後述するように、Al-Si系の熱膨張率が低いことに起因すると思われる。

一方、Al-Cu系ではアルミナ内破断割合が80~90%と高い。そこで界面部分をSEMにより拡大観察した結果、界面部分のアルミナはメタルによって浸食され、凹凸が激し

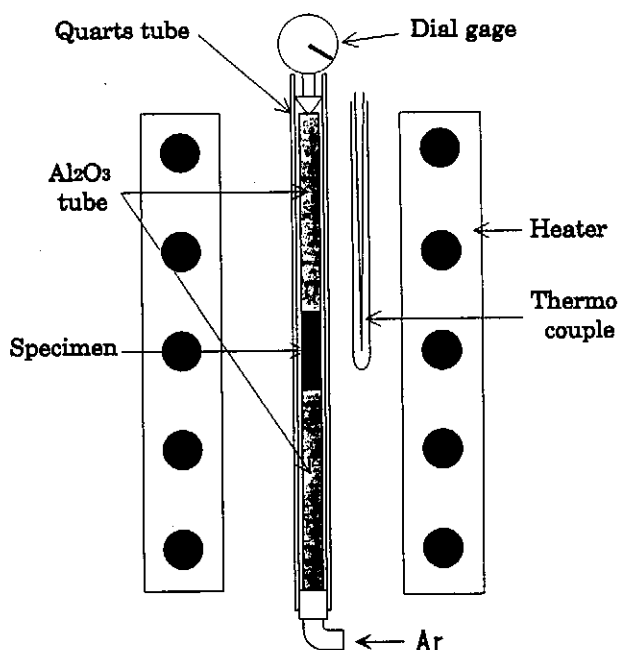


Fig. 4 熱膨張係数測定装置の概略図

いことが明らかになった。したがって、この系の場合には、このアンカー効果によって界面接合強度が向上し、アルミナ内破断割合が高くなったと思われる。しかしながら、Al-Cu系の熱膨張率はアルミニウムと大差なく、インサート材による熱応力緩和はそれほど期待できない。

また、Al-Mg系においては1.7ksecまではアルミナ内での破断割合が高いが、その後これが低下し、界面破断割合が高くなった。この1.7ksec以後の結果は、EPMAによっては正確に捕らえられなかったが、界面近傍において $MgAl_2O_4$ など脆弱な反応生成物の形成によると思われる。しかも、後述するように、マグネシウムはアルミニウムの熱膨張率を高くするので、この点のみを取り上げれば、マグネシウムはインサート材添加成分としては必ずしも有効な成分ではない。

3.2 接合強度の接合圧力依存

Al-10wt% Mg系インサート材を用い、温度873K、時間1.7ksecにて接合圧力の影響を測定した。その結果、接合強度は3.0MPaまでの範囲においては圧力の上昇とともに上昇した。

3.3 接合強度に及ぼすインサート材中の合金成分濃度の影響

温度873K、圧力1.0MPa、時間1.7ksecにて接合した結果、接合強度はシリコン濃度の増加につれて上昇した。ところで、Al-Si系状態図によれば、12.6wt% Si付近に共晶点があり、Al-10wt% Si系インサート材は本実験温度では完全な液相となる。このことから、この組成のインサート材の場合が最大接合強度を示すと予想した。しかしながら、実際にはこの予想に反した。これはシリコンによる熱緩和効果が如何に大きいかを示している。

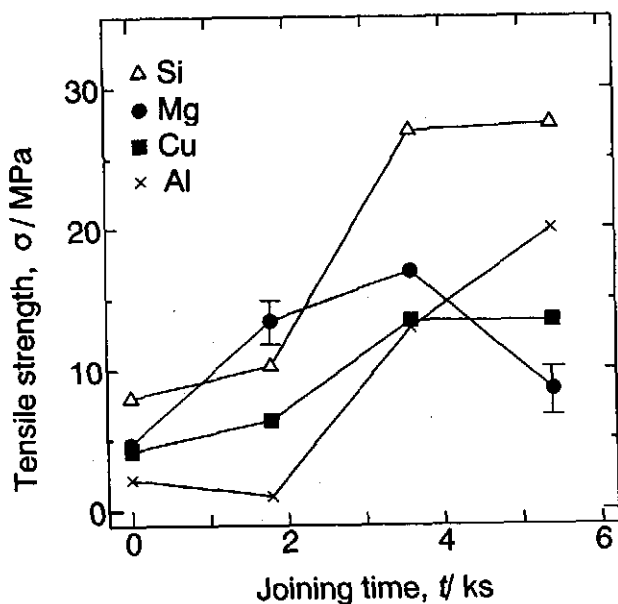


Fig. 5 接合強度に及ぼす時間の影響

一方、Al-Cu系においては30wt% Cuまでは接合強度は上昇したが、40wt% Cuにおいて一旦低下後、50wt% Cuにおいて再度上昇した。これは熱膨張率が低いと予想される金属間化合物 $CuAl_3$ の存在によると思われる。

また、Al-Mg系では、1.7ksecという短い接合時間が幸いして、マグネシウム濃度の上昇につれて接合強度が大きくなった。これはマグネシウムの強い反応性に起因すると思われる。

3.4 接合強度に及ぼす被接着アルミニウム材組成の影響

これまで用いた被接着アルミニウム材の純アルミニウムをAl-Mg系の5056合金に変更し、温度873K、圧力1.0MPa、時間1.7ksecにおいてAl-Mg系およびAl-Cu系インサート材を用いて接合した。しかしながら、接合強度に対する顕著な影響は認められなかった。

3.5 アルミニウム系インサート材の熱膨張率

アルミニウム合金の熱膨張率を測定した結果、20~100°C間での平均熱膨張率として次のような値を得た。純Al: $23.3 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ 、Al-10wt% Si: $17.9 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ 、Al-10wt% Cu: $20.5 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ 、Al-10wt% Mg: $23.9 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ となり、Al-Cu系の熱膨張率はやや低下するが、シリコンによる熱膨張率低下は顕著であり、インサート材として適していることを示す。また、Al-Mg系では純アルミニウムより逆に熱膨張率が大きくなった。

このほか、粒子分散アルミニウム複合材料においては、粒子配合率を増大するにつれて熱膨張率が低下することが明らかになった。したがって、粒子分散Al-Si複合材料を用いれば、さらに低い熱膨張率のインサート材開発が可能となる。この点については、目下研究中である。

4. 結 言

アルミニウム/アルミナ間に熱応力バッファ・インサート材を用いて接合し、次の結論を得た。

- 1) Al-10% Si、Al-10% Cu、Al-10% Mg合金インサート材を用い、温度873K、圧力1MPaで接合した結果、Al-Si系では接合時間とともに接合強度は高くなり、Al-Cu系ではこれがやや上昇、Al-Mg系は約3.5ksec以後は低下した。
- 2) Al-10% Mg合金インサート材を用い、温度873K、時間1.7ksecにおいて接合強度に及ぼす接合圧力の影響を測定した結果、接合強度は3MPaまでの範囲においては圧力の上昇とともに増大した。
- 3) 温度873K、圧力1MPa、時間1.7ksecにおける接合強度は、いずれの系もインサート材中の合金成分濃度が40%までは上昇した。
- 4) 接着強度への被接着アルミニウム材組成の影響は顕著

でなかった。

- 5) SEM、EPMAによっては界面での反応相生成を明確に出来なかった。
- 6) 熱膨張率を測定した結果、20~100℃間での平均値として、純Al; $23.3 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ 、Al-10%Si; $17.9 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ 、Al-10%Cu; $20.5 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ 、Al-10%Mg; $23.9 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ となり、 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ の $8 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ に

対してはAl-10%Si系が最も適切であり、各インサート材が示す熱膨張率と接合強度との間には、強い依存関係が成立することを示すことが出来た。

本研究は天田金属加工機械技術振興財団の研究開発助成によって遂行したことを付記し、深謝の意を表します。