

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

長 隆郎*

1. 緒言

一般に、セラミックスは高い強度と耐熱特性を有しているものの加工が難しく、このことが使用範囲を制限している。それゆえセラミックスと金属との接合が重要な技術として注目されている。接合の方法としては、ろう付け法、拡散接合法、摩擦圧接法など様々な方法が提案され、また研究されている。ろう付け法は、先に示した方法の中でも幅広い系に対応できる実用的な方法である^(1,2)。接合を行う際のパラメーターには、接合温度、時間、圧力および雰囲気などの因子が挙げられる⁽³⁾。接合部の強度はこれらの因子に大きく影響を受けるが、特にセラミックスと金属を接合する際には、次に示す二つの因子が特に重要になってくる。

1. 界面反応による、セラミックスの劣化
2. 熱膨張係数の違いにより生じる、接合部残留応力⁽⁴⁾

CrispinとNicholasはAl₂O₃/アルミニウム合金系における濡れ性と接合性の関連を調査し、濡れ性のよい系では、接合性も良好であることを示した⁽⁵⁾。

そこで本研究では、フィラーメタルを用いたAl₂O₃とアルミニウムとの接合を取り扱い、フィラーメタル組成、接合温度、接合時間などの接合パラメーターと接合強度の相関関係を調査することにした。

2. 実験方法

2-1 試料の準備

アルミナディスク、アルミニウム棒およびフィラーメタルの形状の概略を図1に示す。アルミニウム棒には1050Al合金を用いた(表1)。アルミニウム棒(直径10mm)は接合面を研磨し、接合面の表面粗さは0.4μm以下である。フィラーメタル(直径10mm, 厚さ150μm)には、低融点アルミニウム合金であるAl-Cu, Al-Si, Al-Mg合金を用いた。Al₂O₃ディスク(99.5%pure, 0.1%SiO₂)には直径20mm, 厚さ5mmのものを用いた。平均表面粗さは0.6μmであった。接合に先立って、アルミニウム棒、フィラーメタル、Al₂O₃ディスクはアセトン中で脱脂した後、乾燥させた。

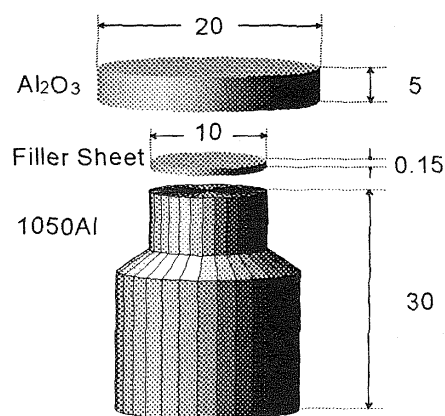


図1. 実験に用いた試料

表1. 1050Al合金の化学組成

	Cu	Si	Fe	Mn	Mg	Zn	Cr
1050Al	0.00	0.10	0.14	0.05	0.01	0.00	0.00

表2. 実験条件

Atmosphere	Heating Rate	Processing Temperature	Holding Time	Applied Pressure
1×10 ⁻⁶ torr	0.33K/s	873K, 823K	1.7ks (0, 3.5, 5.3ks)	1.0MPa

2-2 実験装置

試料の接合には真空ホットプレスを用いた。ホットプレスの概略図を図2に示す。加熱はグラファイトヒーターにより行い、2273Kまで加熱することができる。接合用の試料は、図2に示すようにホットプレス中に設置した。試料設置後、ホットプレス中を脱気し、昇温速度0.33K/sで加熱した。その他の実験条件は表2に示すとおりである。

2-3 引張り試験

接合後の試験変は、クロスヘッド速度0.5mm/sの条件の下で引張り試験を行った。引張り荷重荷重方向は接合面に垂直方向であり、接合強度は最高荷重を接合部断面積(78.5mm²)で除した値を用いた。

3. 結果と考察

3-1 保持時間の影響

図3にAl₂O₃/1050Al系試料の接合時間と接合強度の関係を示す。接合は873Kで行い、Al-10mass%Mg, Al-10mass%Si, Al-10mass%Cu合金をファラーメタルとして用いた。図3に示すように、いずれの系においても接合時間の増加と共に、接合強度が上昇する。しかしながら、Al-Mg系フィラーを用いた試料に関しては接合時間が5.3ksを越えると接合強度の低下が見られた。この試料の界面を走査電子顕微鏡(SEM)およびX線マイクロアナライザー(EPMA)で調査し、EPMAによる元素のライン分析の結果を図4に示す。それによればAl-Mg系フィラーを用いた試料では界面にマグネシウムが濃縮している様子が明らかである。このようなマグネシウムの濃縮相は接合時間が短い系では見られない。また、Al-Si, Al-Cu系フィラーメタルを用いた系においても、EPMAで観察できるような反応相は存在しない(図5)。このように、Al-Mg系フィラーを用いた場合には、接合時間が5.3ksになると界面反応が過剰に生じた結果、Al₂O₃が劣化し接合強度が低下したものと考えられる。

3-2 フィラー組成の影響

図6に接合強度に及ぼすシリコンと銅の添加量の影響を示す。但し、Al-Si系共晶温度は850Kであるので、823Kでの接合行っていない。図6によれば、873Kで接合した試料に関しては、シリコンおよび銅含有量の増

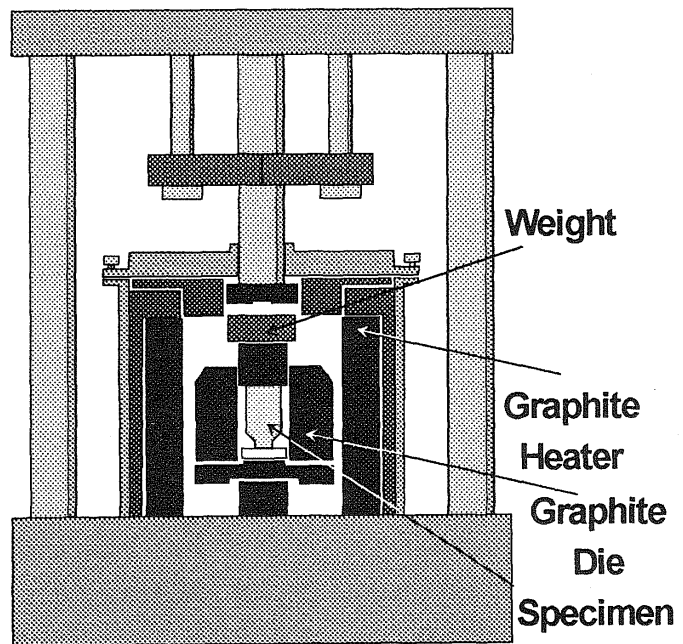


図2. ホットプレスの概略図

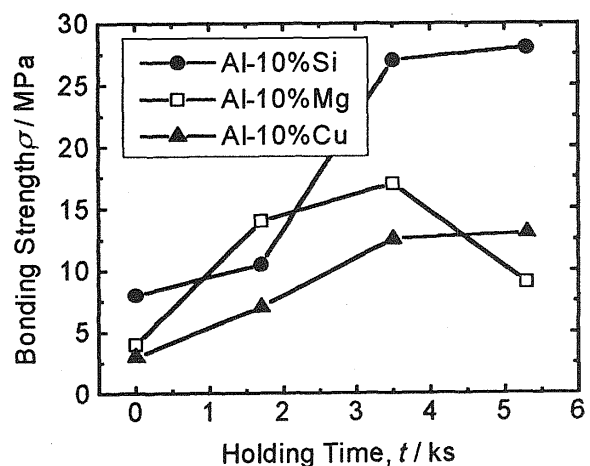


図3. 各種フィラー材を用いたときの接合強度

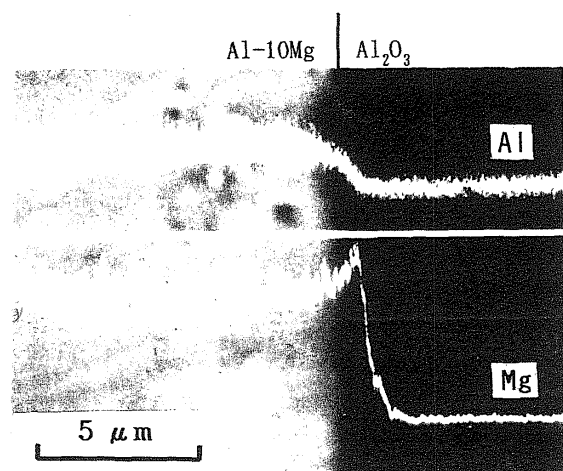


図4. Al₂O₃/Al界面のSEM像およびEPMAライン分析結果(接合時間:5.3ks, フィラー:Al-10%Mg)

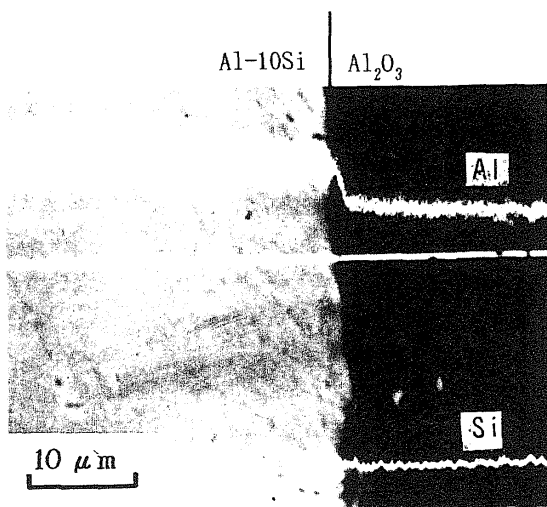


図5. Al_2O_3/Al 界面のSEM像およびEPMAライン分析結果 (接合時間: 5.3ks, フィラー: Al-10%Si)

加とともに接合強度が上昇している。しかしながら、Al-Cu系フィラーを用いた試料において、低温の823Kでは接合されなかった。

図7にはAl-Mg系フィラーを用いたときの接合強度とマグネシウム濃度との関連を示している。Al-Mgフィラーを用いた場合にも、フィラー材中のマグネシウム濃度が高くなるにつれて接合強度も高くなっていることが明らかである。また、823Kにおいても接合が可能である点が特徴的である。アルミニウム合金の表面酸化皮膜の形態を解析した大橋等によると、マグネシウムを含有する合金は、高い接合性が得られることが報告され⁶⁾、また、マグネシウムは表面活性元素であり、 Al_2O_3 との相互作用が強いため、結合強度を高める働きを有する。但し、過剰な界面相互作用は、 Al_2O_3 の劣化をもたらすので、接合時間の制御には注意を要する。図8 (a) はAl-40Mgフィラーシートを用い、接合時間5.3ksの接合を行った試料の縦断面を示す。写真から明らかなように Al_2O_3 中にクラックが生じている。このような、熱残留応力によるクラックは、他のフィラーシート

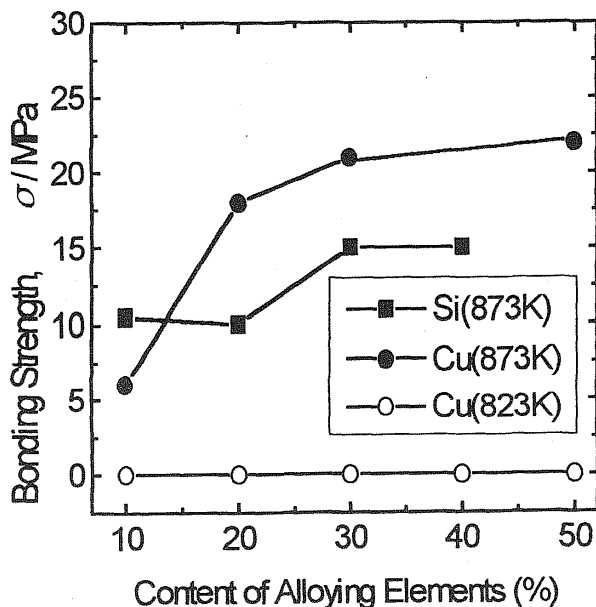


図6. 接合強度に及ぼすフィラー中シリコンおよび銅濃度の影響 (接合時間: 1.7ks)

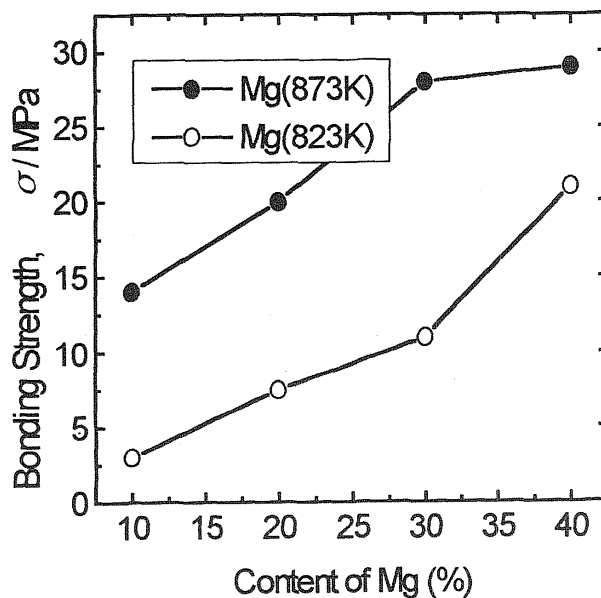


図7. 接合強度に及ぼすフィラー中マグネシウム濃度の影響 (接合時間: 1.7ks)

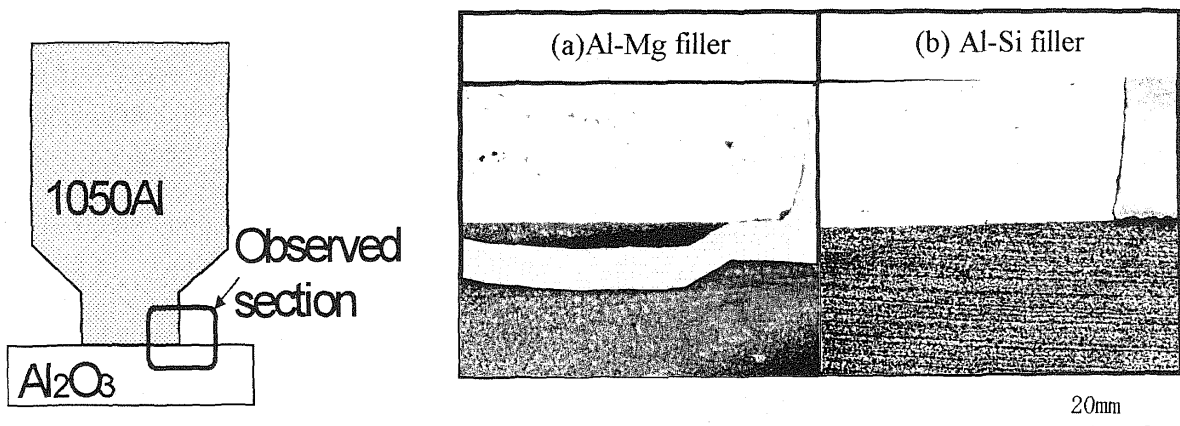
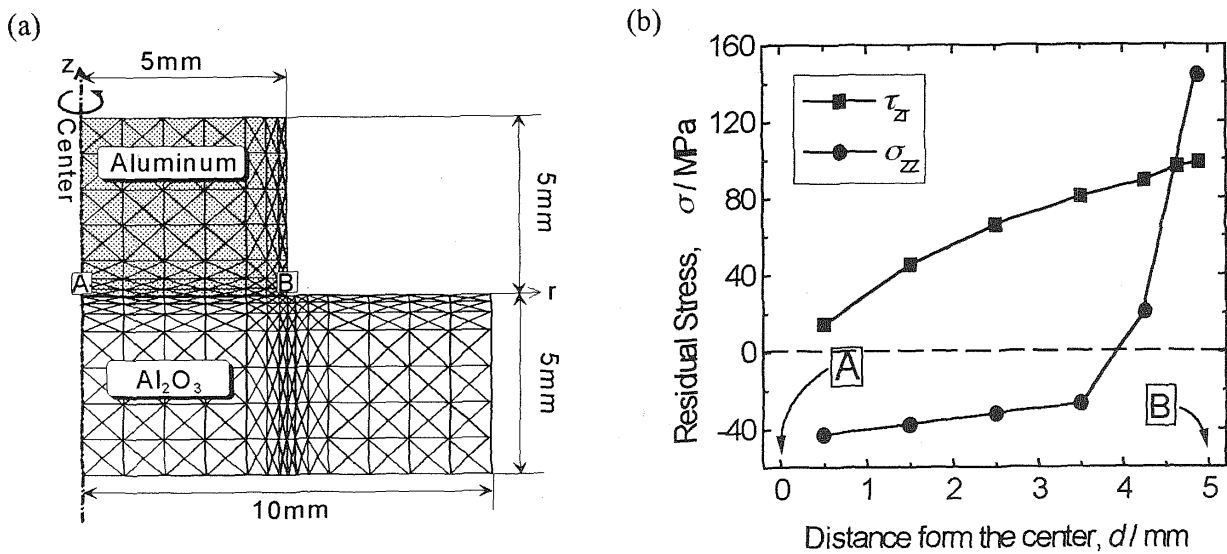


図8. 接合体の縦断面（接合時間：5.3ks, 接合温度：873K） (a) Al-40Mgをフィラーとして用いた試料 (b) Al-40Siをフィラーとして用いた試料



(c)

Specimen	Young's Modulus	Yielding Stress	Poisson Ratio	Coefficient of Linear Thermal Expansion	Temperature Drop
Al ₂ O ₃	368GPa	-	0.236	7.0×10 ⁻⁶ /K	500K
1050Al	69.7GPa	103MPa	0.330	2.7×10 ⁻⁵ /K	

図9. (a) 有限要素解析に用いた要素分割, (b) 界面における熱残留応力の計算結果 (図中A, B点は試料の中心および界面端を示す.) (c) 供試材の機械的性質

を用いた系では見受けられない(図8 (b)). すなわち、高い濃度のマグネシウムと長時間の接合時間により、 Al_2O_3 が劣化し、熱応力によるクラックが生じていることが確認できる。

ここで、試料中の熱応力の解析を有限要素法弾塑性解析にて行った。図9 (a)に試料のメッシュ分割を示す。解析は軸対象で行った。界面における熱残留応力(σ_z :軸方向引張り応力, τ_{rz} :界面せん断応力)の解析結果を図9 (b)に示す。これにより、界面端(図9中B点)において特に引張りの残留応力が高く、この点を起点としてクラックが発生したことが予想できる。

4. 結論

Al_2O_3/Al 接合を行い、接合強度に及ぼす各種接合パラメーターの影響について測定した。接合はアルミニウム合金系フィラーシートを用いるろう付け法により行い、以下に示す結果を得た。

1. 接合時間が0-5.3ksの範囲では、接合強度は接合時間とともに増加する傾向にある。しかしながら、Al-Mg系フィラーを用いたときには、接合時間が5.3ksになると、急激な接合強度の低下が見られる。
2. X線マイクロアナライザーにより解析した結果、接合時間5.3ksの試料では、界面においてマグネシウムの高い偏析が観察された。
3. マグネシウムを含むフィラーシートでは、接合温度823Kにおいても接合が可能であった。

引用文献

1. Hyoung-Keun Lee, Sun-Hyo Hwang, Jai-Young Lee, J.Mater.Sci., 28 (1993) p1765
2. M.Ueki, M. Naka and I. Okamoto, J.Mater.Sci., 23 (1988) p2983
3. 圓城等:軽金属, 39, (1989) p58
4. M.G.Nicholas, D.A.Mortimer, L.M.Jones and R.M.Crispin, J.Mater.Sci., 25 (1990) p2679
5. R.M.Crispy and M.G.Nicholas, J.Mater.Sci., 11, (1976) p17.
6. 牧等:軽金属, 40 (1990) p75
7. O.Ohashi and K.Sasabe, Welding International, 4 (1990) p775