

セラミックス板のレーザ突合せ溶接技術の開発

大阪産業技術研究所 応用材料化学研究部

主任研究員 園村 浩介

(2020年度 奨励研究助成(若手研究者枠) AF-2020235-C2)

キーワード: アルミナセラミックス, レーザ突合せ接合, メタライズ処理

1. 研究の背景と目的

レーザを用いたろう付け^{1,2)}は、従来の雰囲気炉を使用した手法と比べて、大気中かつ局所加熱により短時間で接合出来る等のメリットがある。本接合技術は炉を使用しないため、部材の大きさの制限がなく、接合する周辺部材への熱の影響が少ない。本接合技術が確立されれば、電子電気機器に使用される小さなセラミックス部品から構造材のような大型のセラミックス部材の接合まであらゆる分野で適用でき、高い生産性をもたらすことが期待される。

一般に、セラミックスのろう付けは、セラミックスに対するろう材(金属)のぬれ性、ならびにそれら材料の熱膨張差による熱応力が接合強度に大きく影響する。レーザを用いたろう付けについても、セラミックスへのろう材のぬれ性の改善、ならびに熱膨張差の低減が課題となる³⁾。

これまでセラミックスと金属の接合について、摩擦攪拌現象を用いてセラミックスのメタライズ処理を行ってきた^{4,5)}。摩擦攪拌にて Al_2O_3 板端面上にMgをメタライズ処理した結果、23 MPa程度の強度で強固に接合された。この摩擦攪拌によるメタライズ処理は、セラミックス上に強固にメタライズ膜を形成させることができるため、急速加熱冷却過程を伴う突合せレーザ接合の前処理として効果的であり、ぬれ性の改善も期待できる。またメタライズに使用する金属を、線熱膨張係数が $5 \times 10^{-6}/K$ のMoに変更することで、 Al_2O_3 の値($6.5-8.8 \times 10^{-6}/K$)と同程度となり、熱膨張差を低減がすることが出来る⁶⁾。このような背景のもと、 Al_2O_3 板同士の突合せレーザ接合が可能となると考えられるが、検討された報告は無い。

そこで、本研究では良好な接合体を得ることを目指して、前処理として摩擦攪拌にて Al_2O_3 板の端面にMoをメタライズ処理した後に、いくつかのレーザ接合条件(メタライズ処理の有無、出力、インサート材の種類や厚さ、板の固定方法)を変更し、接合ならびに評価を行った。

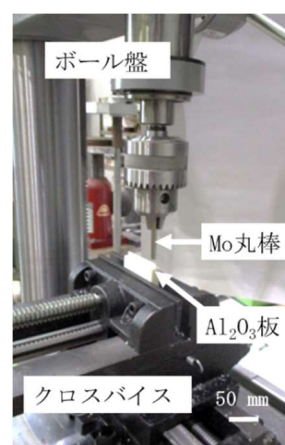
2. 実験方法

2.1 メタライズ処理

供試材として厚さ1 mmの Al_2O_3 板(相対密度が99.5%, 純度が99.5%)のものをを用い、メタライズには、直径6 mmのMo棒(純度99.95%)を用い、インサート材として厚さ10, 20 μm のMo箔(純度99.95%)を用意した。摩擦攪拌にてセラミックス板の端面をメタライズするため、ボール盤(HiKOKI製B23S)及びクロスバイスを使用した。装置のチャック部にMo棒を装着し、ステージ側はクロス

バイスを取り付け、セラミックス板端面が上になるように板を挟んで固定した。なお、Mo棒の可動性を向上させるため、ステージ台を水平から3°傾けて固定した。回転数は1590 min^{-1} とし、Mo棒をセラミックス板端面に押し付けながら、セラミックス板端面上を移動させて、線状にメタライズを行った(図1)。

図1 ボール盤を用いたメタライズ処理



金属膜の付着力は卓上型引張り圧縮試験機(A&D製MCT-2150)を用いて評価を行った。直径4 mm、長さ70 mmの炭素鋼棒をアクリル樹脂系接着剤でメタライズ膜に固定し、室温、速度10 mm/minにて面直方向に破断するまで引張り試験を行った。測定された最大荷重を付着した面積で規格化し、付着力とした。結晶学的な性質については、X線回折装置(リガク製Smart Lab)を用いて評価した。Cu K α 線を用い、40 kV、150 mAの出力にて測定した。

2.2 突合せレーザ接合

メタライズされた面同士を突き合わせてバイスに固定し、連続発振レーザ(IPG社製YLR-200-AC)にてレーザを両面から照射した(図2)。波長1070 nm、出力46, 又は69 W、走査速度10 mm/s、最小スポット径30 μm であった。Arガスを15 l/minにて流しながら不活性雰囲気中で、表1, 2に示した6条件にて実施した。図3に示したように、条件1-3は治具によりセラミックス板を固定せずに、メタライズの有無、インサート材の種類、出力を変更した。次に、条件4-6については、バイスに固定する前に予め、治具によりセラミックス板を固定し、Niインサート材の厚さを変更した。

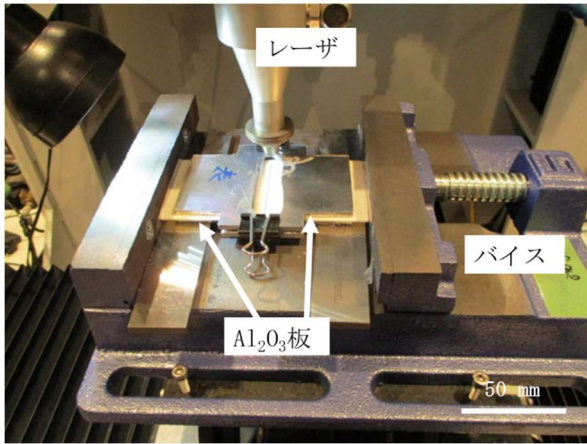


図2 レーザ突合せ接合

表1 接合条件 1-3 (治具による板の固定無し)

条件	メタライズの有無	インサート材	出力
1	有	20 μm Mo 箔 (2枚)	69 W
2	無	20 μm Mo 箔 (2枚)	69 W
3	有	20 μm Ni 箔 (2枚)	46 W

表2 接合条件 4-6 (治具による板の固定有り)

条件	インサート材
4	20 μm Ni 箔 (2枚)
5	10 μm Ni 箔 (2枚)
6	10 μm Ni 箔 (1枚)

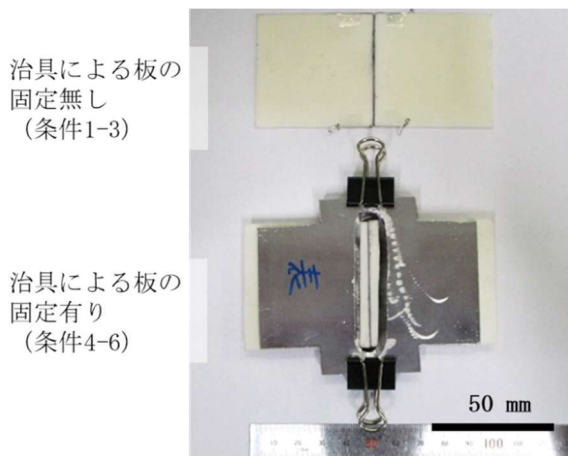


図3 治具による板の固定の有無

接合体の接合強度は、卓上型引張圧縮試験機 (A&D 製 MCT-2150) を用いて評価した。接合体の片方の板には、アクリル樹脂系接着剤にて炭素繊維のフックを取り付けた。図4に示すように、接合体の片方の板をチャックで固定し、もう片方のフックを掛けて、室温、速度 10 mm/min にて接合の面直方向に破断するまで引張り試験を行った。測定された最大荷重を接合された面積で規格化し、引張強度とした。接合界面の元素分析は走査電子顕微鏡-エネルギー分散型 X 線分析 (日立ハイテック製 TM3030Plus) にて、15 kV の加速電圧で実施した。接合破断面の結晶学的な性質については、X 線回折装置 (リガク製 Smart Lab) を用いて評価した。Cu K α 線を用い、40 kV, 150 mA の出力にて測定した。

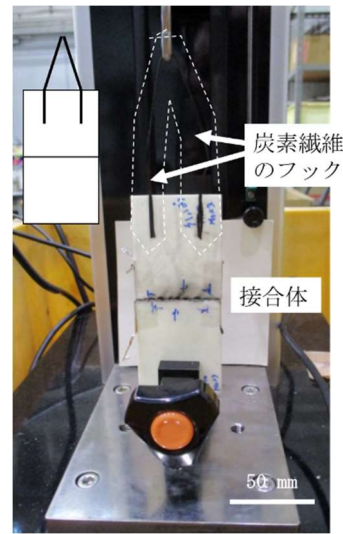


図4 接合体の引張強度試験

3. 実験結果

3・1 Al₂O₃ 板端面への Mo メタライズ処理

ボール盤にてクロスバイスを動かしながら、Al₂O₃ 板端面に線状に Mo 膜を形成することに成功した (図5)。図6に示すように、Mo 膜表面に凹凸が観察されることなく、滑らかな膜が形成されている。



図5 Al₂O₃ 板端面への Mo メタライズ処理の様子

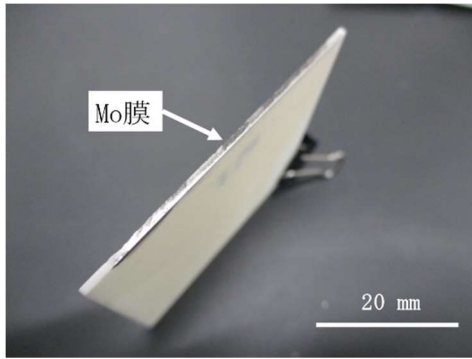


図6 Al₂O₃板端面に形成されたMo膜

付着力評価の結果、図7に示したように炭素鋼製棒とMo膜との間のアクリル樹脂系接着剤にて破断したため、Mo膜とAl₂O₃板端面との間の付着力は7.16 MPa以上の強度であることが分かった。摩擦攪拌にてメタライズ処理を行うことで、強固な金属膜が形成されたことが明らかとなった。

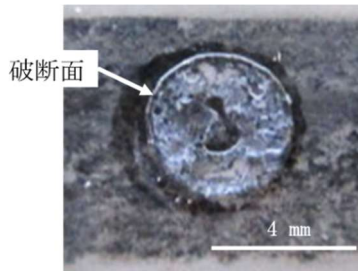


図7 Mo膜の付着力評価後、炭素鋼製棒とMo膜との間のアクリル樹脂系接着剤にて破断し、観察された破断面

3.2 条件1-3でのレーザ突合せによる接合体作製の可否ならびに接合体の評価

図8に示すように条件1および3において良好な接合体が得られた。一方、メタライズ処理を行っていない条件2では接合されず、図9に示すようにAl₂O₃板端面において未反応のAl₂O₃とMoが観察された。この原因は、熔融されたMoによるAl₂O₃のぬれ性が良くなかったためである。レーザ突合せ接合においても、前処理によるセラミックスのぬれ性の改善が効果的であることが確認された。

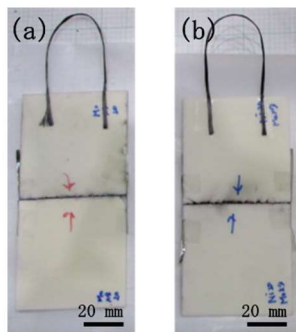


図8 (a)条件1及び(b)条件3にて得られた接合体

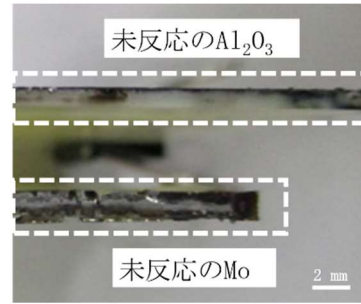


図9 条件2にて得られた接合体の破断面

引張強度評価の結果、条件1及び3の接合体の引張強度はそれぞれ0.21および0.63 MPaであった。条件3の接合体の引張強度が高いことが分かった。一方、条件1の接合体の引張強度が低かった理由として、インサート材のMo箔が十分に熔融しなかったためだと考えられる。Mo箔を熔融させるためには、より高出力での接合が必要である。しかしながら、現行の出力において、Al₂O₃板の接合界面付近に平行にクラックが見られた(図10)。条件1の出力が高かったために熱衝撃によりクラックが生じたと思われる。このことより、Al₂O₃板の接合においては、インサート材はMo箔よりもNi箔の方が良好である。また条件3の接合体における破断面の一部においてAl₂O₃板内部での破壊が見られた(図11)。接合界面の強度の方がAl₂O₃板内部の強度よりも高かったため、板内部で破壊が見られたと考えられる。

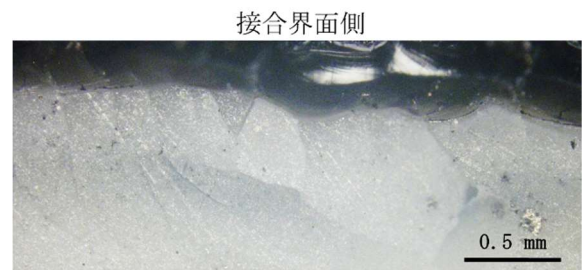


図10 条件1にて得られた接合体の界面付近のクラック

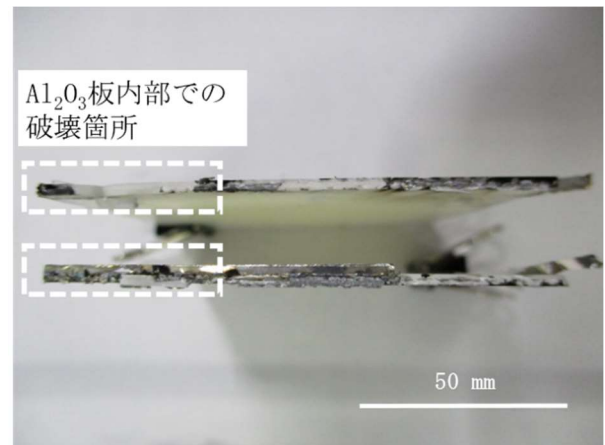


図11 条件3にて得られた接合体の破断面

条件3の接合体における界面付近の断面観察結果を図12に示す。突合せした Al_2O_3 板同士は0.5 mm程度ずれて接合されていた。この原因については、バイスを用いて Al_2O_3 板同士を突合せた際に既にずれて固定されていた、あるいはレーザーによりMo膜及びNi箔が熔融し、 Al_2O_3 板同士が滑りながら凝固されたためだと考えられる。このことから、密着面積が大きい接合体を得るためには、上下方法から治具で固定する必要があると考えられる。

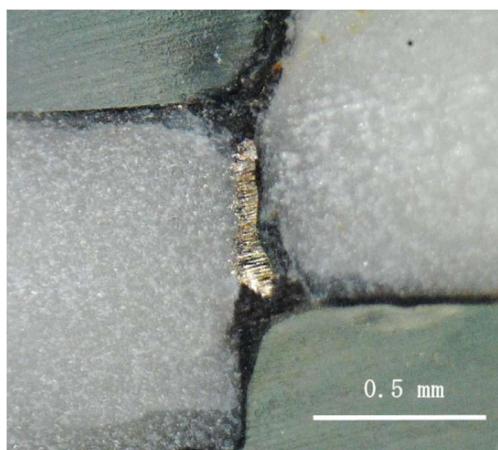


図12 条件3の接合体における界面付近の断面

図13に条件3の接合体における界面の電子顕微鏡写真ならびに元素分析結果を示す。レーザー接合後もMoが、Ni内部に拡散することなく、 Al_2O_3 板端面に存在していることが分かった。レーザー接合は、急速加熱冷却を伴うプロセスであるため、接合に悪影響を及ぼす可能性がある化合物の形成を抑制することができることと示唆された。化合物の有無については、走査透過電子顕微鏡等を用いた詳細な分析が必要である。

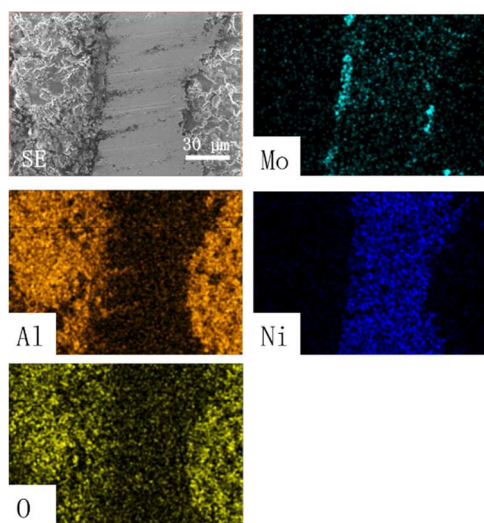


図13 条件3の接合体における界面の元素分析結果

また条件3の接合体における破断面の結晶学的な調査を行った結果、 Al_2O_3 、Ni、Mo由来のピークが見られ、他の化合物由来のピークは見られなかった。ただし、図14に示すように、Ni由来のピークに割れが見られた。これは、Niの一部にAlが置換され、格子が歪んだことにより生じたことと示唆される。図12に示すようにレーザー接合後、 Al_2O_3 板端面の形状に変化が見られ、Arガスを流しながら接合したことから、 Al_2O_3 の一部が昇華し、Ni箔と反応したと考えられる。

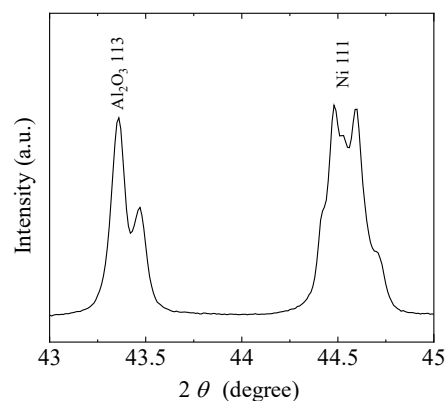


図14 条件3の接合体における回折プロファイル

3.3 条件4-6でのレーザー突合せによる接合体作製の可否ならびに接合体の評価

いずれの条件においても接合することが可能であり、接合体が得られた(図15)。

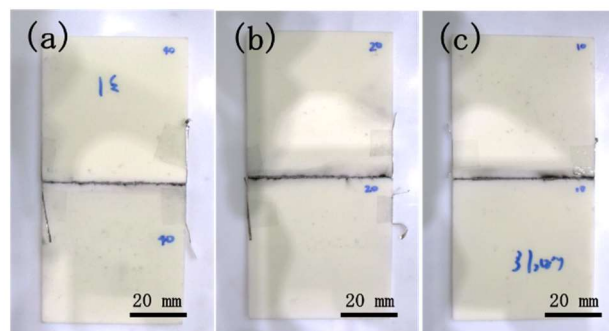


図15 (a) 条件4, (b) 条件5, および (c) 条件6にて得られた接合体

引張強度評価の結果、条件4-6の接合体の引張強度はそれぞれ0.22、0.50、および0.06 MPaであった。出力ならびにインサート材が同条件であったにもかかわらず、条件3より条件4が低かった理由として、 Al_2O_3 板を治具で固定することにより、バイスによる突合せ方向の力が弱くなり、引張強度が低かったと思われる。条件4-6の中では、条件5の接合体の引張強度が最も高かった。一般に、セラミックス同士をろう付けする際、厚いインサート材は界面内部に欠陥が入りやすいため、必要以上の厚さは強度の低下をもたらす。また薄すぎても、十分な強度は得られない。条

件 6 の接合体の引張強度は、他に比べて極端に低かった。これはインサート材の厚さの問題だけではなく、使用した最小スポット径 30 μm のレーザーが、インサート材を含む Al_2O_3 板の接合界面近傍に広く照射され、 Al_2O_3 板に悪影響を及ぼしたと考えられる。

条件 4 の接合体における界面付近の断面観察結果を図 16 に示す。 Al_2O_3 板を治具で固定することにより、 Al_2O_3 板同士は、ずれることなく接合されていた。また接合界面の両端には欠損が見られた。これはレーザー照射により Al_2O_3 が昇華したためだと思われる。 Al_2O_3 板をより厚くすることで密着面積が増加し、接合強度の向上が期待できる。



図 16 条件 4 の接合体における界面付近の断面

4. 結言

Al_2O_3 板同士のレーザー突合せ接合において、摩擦攪拌によるメタライズ処理の有効性を検証しつつ、良好な接合体を得ることを目指して、レーザー接合条件（メタライズ処理の有無、出力、インサート材の種類や厚さ、板の固定方法）を変更し、接合ならびに評価を行い、以下の知見を得た。

- 1) Al_2O_3 板端面のぬれ性改善のために、前処理として Mo 膜を形成することが有効である。
- 2) レーザ出力が高い場合、 Al_2O_3 板接合界面付近にクラックが生じてしまうため、より低出力での接合が望まれる。
- 3) インサート材は、部材の使用環境を考慮しつつ、低融点かつ低い線膨張係数のものが良好である。本研究で

は Mo 箔より Ni 箔を用いた接合体の引張強度が高い。

- 4) Al_2O_3 板同士の突合せ方向の力が強い方が、接合強度が高い。
- 5) Al_2O_3 板を上下方向から治具で固定することにより、接合部において、ずれが無い接合体が得られる。
- 6) 上下方向から治具で固定した Al_2O_3 板の接合体において、インサート材の厚さ 20 μm の接合体が最も引張強度が高い。

今後の課題は、より厚いセラミックス板を接合することである。レーザー条件や材料の選定により、厚いセラミックス板の接合が実現可能であると考えられる。

謝 辞

本研究開発は、公益財団法人天田財団 2020 年度奨励研究助成（若手研究者枠）により行われたものであり、ここに深く感謝の意を表します。また本研究を遂行するにあたり、大阪産業技術研究所の片桐一彰氏、山口拓人氏、田中慶吾氏、尾崎友厚氏、長谷川泰則氏、田中努氏、垣辻篤氏から多大なるご助言、ご協力を賜ったことに深く感謝いたします。

参考文献

- 1) M. Rohde, I. Sudmeyer, A. Urbanek, M. Torge, Joining of alumina and steel by a laser supported brazing process, *Ceram. Int.* 35 (2009) 333-337.
- 2) K. Nagatsuka, Y. Sechi, K. Nakata, Dissimilar joint characteristics of SiC and WC-Co alloy by laser brazing, *J. Phys.: Conf. Ser.* 379 (2012) 012047.
- 3) 速水諒三:セラミックスの接着と接合技術,シーエムシー出版 (2002) 49-68.
- 4) H. Sonomura, T. Ozaki, K. Katagiri, Y. Hasegawa, T. Tanaka, A. Kakitsuji, Metallization of Al_2O_3 ceramic with Mg by friction stir spot welding, *Ceram. Int.* 48 (2022) 864-871.
- 5) 園村浩介, 尾崎友厚, 片桐一彰, 山口拓人, 長谷川泰則, 田中努, 垣辻篤:摩擦攪拌スポット溶接を用いたアルミナセラミックスのメタライズ, 溶接学会全国大会講演概要 (2021) 146-147.
- 6) B.D. Dunn, *Materials and Processes*, Springer Praxis Books 2016.