

異種材の接合技術に関する研究(まとめ)

—金属とセラミックスの接合技術—

井坂 昭雄* 鴨志田 武**

1. はじめに

近年、製品の高精度、高信頼性、高機能等の要求がますます強くなっている傾向にある。このような現状に対応するため新素材を接合などにより複合化し機能を高める方法が数多く試みられている。

しかし、これら多くの接合方法が研究開発がされているにもかかわらず、セラミックスと金属接合体が広く適用されていないのが現状である。これらの理由として、接合材の物性に基づく諸現象、接合界面での反応等が十分解明されておらず接合体の信頼性が確立されていないことがあげられる。

そこで、本研究はセラミックス接合体の信頼性向上を目的としてセラミックスと金属の直接接合における接合条件の検討や強度評価¹⁾、界面の元素挙動解析、気密性評価²⁾及び応力緩和法等について検討した。

2. 実験方法

2.1 供試材料

実験に使用した材料は92%アルミナ、ニッケル合金(42%Ni残Fe)を用いた。

ろう材は、市販の活性金属ろう材を使用した。その成分を表1に示す。

接合強度試験用の接合材の大きさは、アルミナ25×25×10 t、金属φ8×50mmとした。

気密性試験用の試験片の形状は、φ8アルミナ管肉厚1 mm長さ7.5mmとし両側を42Ni合金で接合し密封管とした。

残留応力の測定には、セラミック、金属共に6×6×6mmの大きさとした。

表1 ろう材の成分

ろう材		No. 1	No. 2	No. 3	No. 4	No. 5
組成 wt %	A g	52.0	63.0	—	62.0	—
	C u	27.25	35.25	92.75	32.25	—
	T i	1.25	1.75	2.25	1.75	76.0
	I n	12.5	—	—	—	—
	S i	—	—	3.0	—	—
	N i	—	—	—	—	24.0
	S n	—	—	—	1.0	—
	A l	—	—	2.0	—	—
接合温度		740	840	1035	840	1,030

2.2 接合装置及び接合方法

ろう付けは、真空雰囲気炉を用い 2×10^{-3} Pa以下の真空中で昇温速度10 /minで設定温度まで加熱し設定時間保持し冷却速度10 /minで300 まで冷却しその後炉冷した。接合にはSUS304製の治具を使用した。

2.3 接合部の評価

強度評価は、インストロン型材料試験機を用い引張強度を測定した。引張速度は0.5mm/minである。引張試験は3本行いその平均値を引張強度とした。

接合面分析は、EPMAを使用し接合状態及び元素分布や拡散状態について調べた。

2.4 気密性試験法

気密性の評価は、マイクロエレクトロニクス試験方法及び手順MIL-STD-883Cの1014.7の規格に準じてHeリークディテクタで測定した。

2.5 残留応力測定と応力解析シミュレーション

残留応力の評価は、微小部X線回折装置により並傾法—3軸揺動法により測定した。

応力解析は、3次元CAEシステム(HP9000モデル730)、対話型総合CAEソフト(IRIS)、熱応力解析ソフト(COSHC1 S/D)を用い接合材の形状変化による熱応力分布状態の変化を調べた。温度荷重としては、720tに設定した。計算に用いた物性値を表2に示す。

表2 物 性 値

材 質	熱膨張係数 $\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$	ヤング率 Kg/mm^2	ポアソン比
アルミナ	7.8	27000	0.23
42Ni合金	11	14800	0.25

3. 結果及び考察

3.1 接合条件の影響

3.1.1 濡れ性

ろう付けによる接合では接合材の表面が良く濡れることが重要である。

ぬれはろう付け時の真空度が大きく影響することがわかった。良好なぬれ性を得るためには少なくとも10-5Torr以下の真空度が必要である。10-4TorrになるとTiが酸化されぬれ性は悪化する。

3.1.2 ろう材の種類と強度

ろう材の種類と強度の関係を図1に示す。

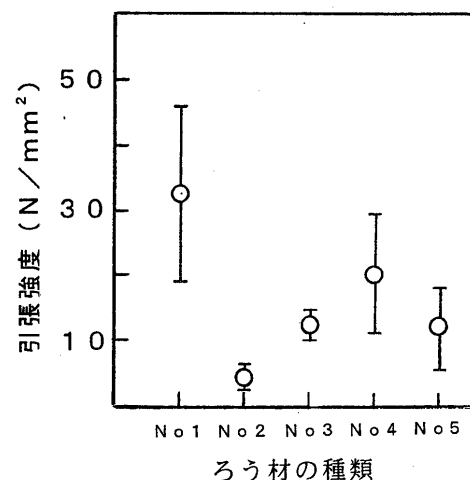


図1 ろう材の種類と強度

接合強度は、活性金属ろうの種類によって差が見られた。また、ろう付け温度が低いほど高い傾向を示した。

No.3, No.5ろう材は接合界面は強固に接合しているにも関わらずセラミック部から破断して強度は低い。これは、ろう付け温度が高いことに影響していると思われる。温度が高いほど両者の熱膨張率の差からセラミックの内部応力が大きくなり強度が低くなる。接合温度の低いNo.1の強度が1番高いことから残留応力が強度に大きく影響していることが推定される。

3.1.3 保持時間と強度

接合温度740 で保持時間を変化させた場合の接合強度を図2に示す。

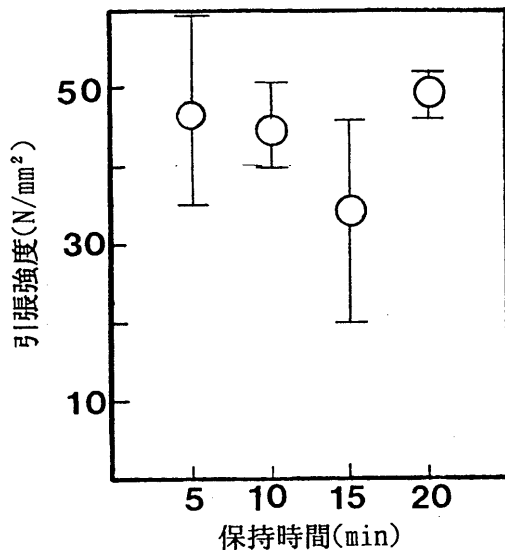


図2 保持時間の影響

引張強度として40N/mm²以上の強度が得られた。

また、保持時間の変化により、接合強度に大きな変化はなかった。15分保持においてやや接合強度は低くなったが、これは引張時の芯ずれなどによる応力集中が発生し強度低下が生じたものと思われる。

一般的に活性金属を用いた接合においては、接合温度が高い場合や保持時間が長い場合に接合界面に脆弱な反応層が形成され強度低下が起こるといわれている。³⁾しかし、今回の接合条件では、このような脆弱な反応層の形成が起こらなかったことを接合部のEPMA分析により確認した。

3.1.4 その他の影響

セラミックスの表面状態は、強度に影響を及ぼした。表面研磨したものは焼成のままよりも高い強度を示し強度のばらつきも少ない。セラミックス表面の微細クラックを押さえることが重要である。

ろう材の厚さにより強度は変化した。これはろう材の成分組成や形状などにより最適厚さは変化すると思われる。

また、同一ロットで強度のばらつきが見られることから強度の評価法についても応力集中を避けるなど十分考慮する必要がある⁴⁾。

3.2 気密性

接合条件を変化させた場合の気密性について評価した。接合条件は、接合温度、時間、荷重を変化させた。

接合は1条件について25個行いその不良率で評価した。その結果を図3に示す。

接合温度及び保持時間の変化に対しては、大きな影響は及ぼさない。これは強度試験結果と一致し強度と気密性には相関関係があると思われる。

接合時の荷重及びアルミナ素材の違いは、気密性に大きく影響した。接合時の荷重はクリアランスを一定にする効果があり、また素材の違いは焼結助剤成分などの差により濡れ性に変化を及ぼすことなどから気密性に影響したと思われる。

不良限界値： $5 \times 10^{-8} \text{ mbar} \cdot \ell / \text{sec}$

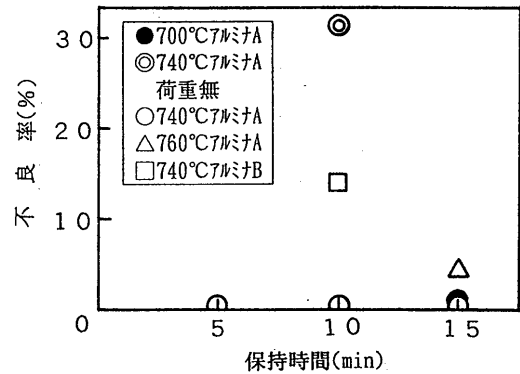


図3 気密性評価試験結果

3.3 接合面の元素挙動

接合部断面の組成像を図4に元素分布を図5 (a), (b)に示す。Ag, Inは合金層を形成し42合金の粒界に沿って約20μmほど拡散していることがわかる。

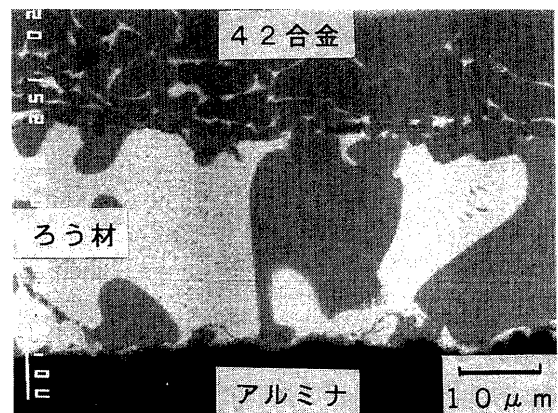


図4 接合断面組成像

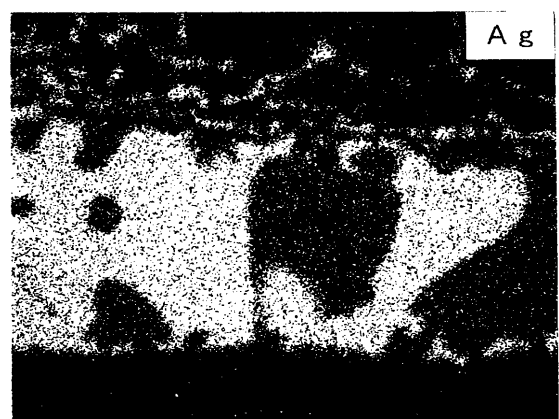


図5 (a) 元素分布像

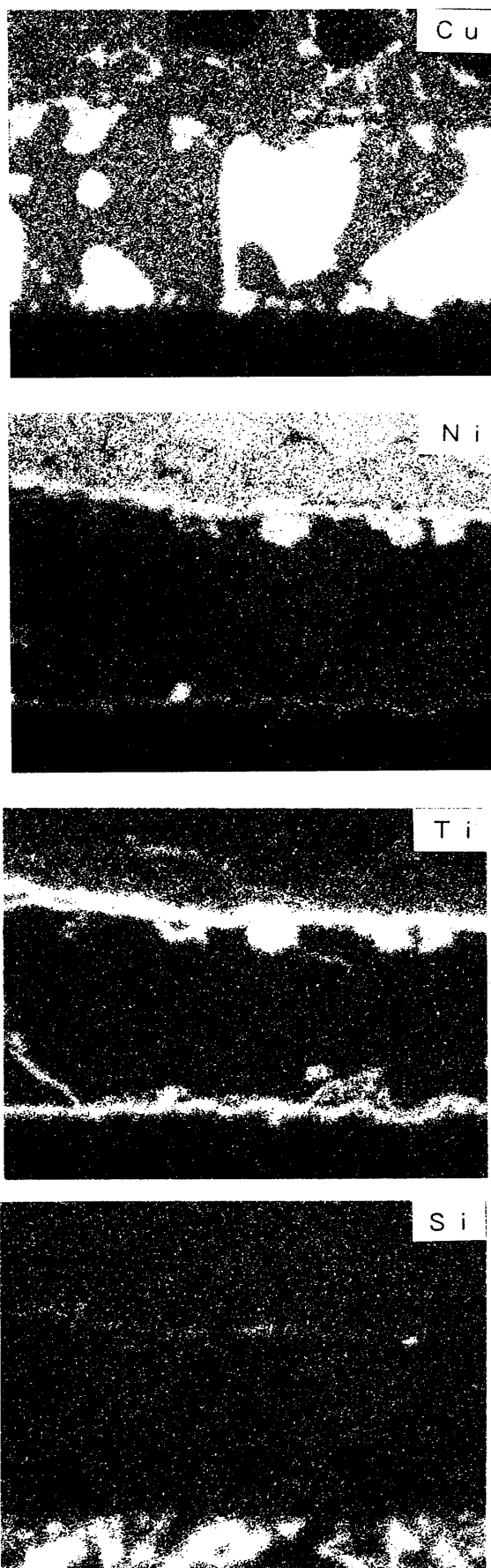


図5 (b) 元素分布像

活性成分のTiはアルミナ及び42合金界面に偏析しNi-Fe-Ti-Si相を形成している。アルミナはろう材中への拡散は

見られない。このことはろう成分とアルミナとの反応はなく焼結助剤としてのSiO₂などの酸化物と反応し接合していると思われる。活性金属による接合では焼結助剤の成分が濡れ性や接合性に重要となる。

3.4 応力緩和法

3.4.1 残留応力測定

中間層にソフトメタルを用いその弾性塑性変形により熱膨張差を緩和させる方法の効果について検討した。

中間緩衝材有り(CU1.0mm)と緩衝材無しのものについて残留応力を比較した。測定は図6に示すように、接合面に直角方向のアルミナ側を0.5mm間隔で3mmまで測定した。測定は3軸揺動型微小部X線回折装置を用いた。

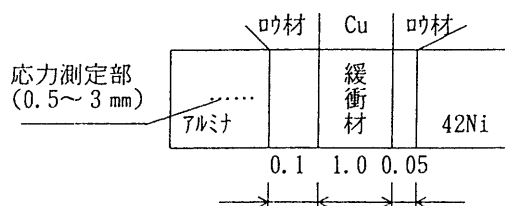


図6 残留応力測定試料(緩衝材有り)

接合界面から3mmまでの応力分布を図7に示す。

緩衝材を入れることにより1mm~2.5mmの範囲で残留応力は低下した。これは緩衝材により有る程度の残留応力の緩和効果が現れたためと思われる。

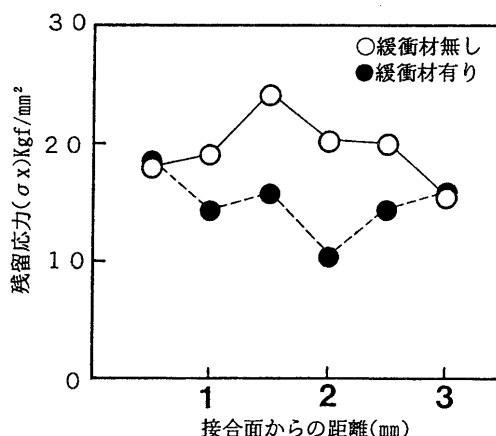


図7 残留応力に及ぼす緩衝材の効果

3.4.2 緩衝材と強度

緩衝材として3種類の銅板 (t=0.3, 0.5, 1.0mm) について比較した。その結果を図8に示す。

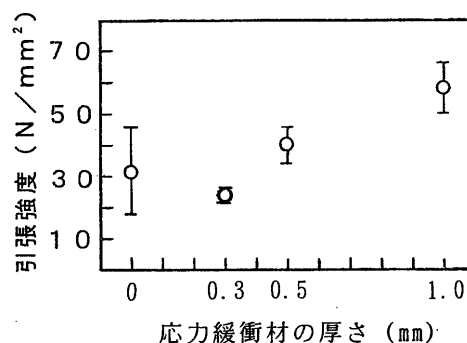


図8 緩衝層厚さと強度の関係

銅板の厚さが増すほど接合強度が大きくなる。中間層を入れることにより熱応力が緩和され接合強度が向上したと考えられる。しかし、接合強度は緩和層の厚さ依存性を持つため緩和層厚さの最適化を計る必要がある。

3.4.3 応力解析シミュレーション

4. 接合部の形状変化による熱応力のシミュレーションを行った。モデル形状は円柱と角柱で行った。接合面積は表3に示す。その最大ミーゼス値を図9に示す。また、円柱、角柱の応力分布状態を図10, 11に示す。

表3 接合面積(mm²)

資料番号	角 柱	円 柱
NO. 1	16	12.56
NO. 2	36	28.27
NO. 3	64	50.26
NO. 4	100	78.54

接合面積が少ないほど応力は小さくなっている。また、応力分布は円柱の場合均一化しているが角柱では尖って入るところに応力が大きく現れている。応力を緩和するには接合面積、形状を考慮する必要がある。

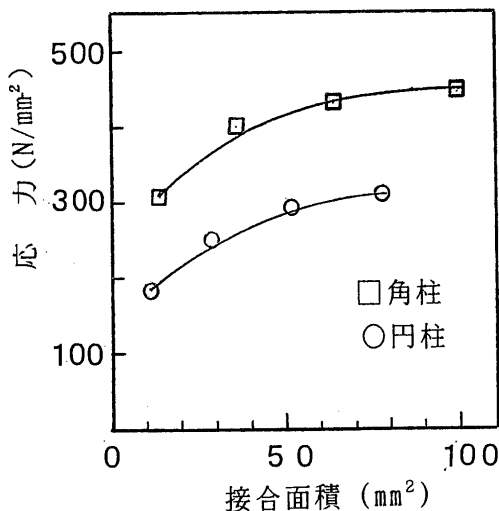


図9 接合面積と強度



図10 円柱の応力分布状態

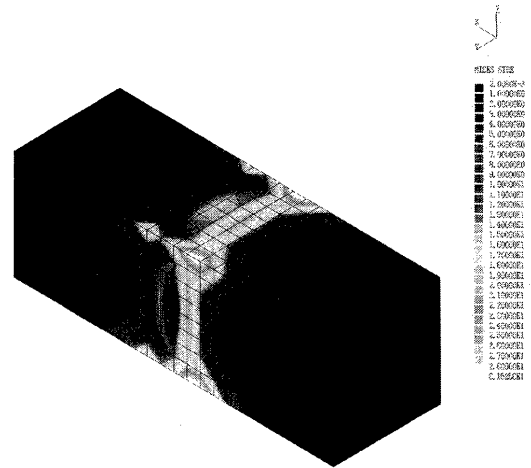


図11 角柱の応力分布状態

4. まとめ

活性金属ろうによる直接接合について検討した結果以下のようなことが判明した。

- 1) 活性金属ろう材による直接接合では、 10^{-3} Pa以下の真空度が必要である。
- 2) アルミナと42Ni合金の直接ろう付けにより最大76.6N/m²の強度を得た。
- 3) セラミックス表面状態は、強度に影響を及ぼし表面粗さの小さい方が強度が高くなる。
- 4) 熱膨張係数に差がある場合ろう材の接合温度が低い程強度は高くなる。
- 5) 引張強度試験の信頼性を高めるためには、偏荷重を防止する工夫が必要である。
- 6) 接合時間の変化は、接合強度に影響を及ぼさなかった。
- 7) 42Ni合金との接合ではセラミック側表面には、引張応力が残留し緩衝材は、残留応力の緩和に有効である。
- 8) 緩和層の厚さにより接合強度に違いがある。
- 9) 直接接合化の場合最適接合条件範囲が狭いため接合条件のコントロールを厳密に行う必要がある。
- 10) 熱応力は、接合面積により変化し接合形状により応力集中が生じるために形状の最適化を図る必要がある。

最後に残留応力の測定に御協力して下さった日本電子株式会社の湊一郎氏並びに解析に御協力願った当センターの大高氏に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 茨城県工業技術センター研究報告第21号, 38～42
- 2) 茨城県工業技術センター研究報告第22号, 16～18
- 3) 最近のろう接・拡散接合技術 溶接学会界面接合研究委員会編, 72～73
- 4) 最近のろう接・拡散接合技術 溶接学会界面接合研究委員会編, 208