

## [研究報告]

# セラミックスとアルミニウム合金のろう接合

高橋 幾久雄\*、桑嶋 孝幸\*、川原 正弘\*  
亀田 和夫\*\*

## Joining of Ceramics and Aluminium Alloy

TAKAHASHI Ikuo\*, KUWASHIMA Takayuki\*, KAWAHARA Masahiro\*  
KAMETA Kazuo\*\*

In this study, for relaxation of thermal stress between ceramics and aluminium alloy on joining, aluminium alloy sprayed copper metal was joined with ceramics. Aluminium alloy are sprayed copper and ceramics was metallized hard brazing include active metal. Tensile strength at the joining part aluminium alloy with  $Al_2O_3$  is  $4 N/mm^2$  and tensile strength at the joining part aluminium alloy with  $ZrO_2$  is  $11 N/mm^2$ .

Keyword: Ceramics, Alumina, Zirconia, Aluminium Alloy, Soft Solder

### 1 緒言

低密度で比強度が高く、耐食性に優れているアルミニウム合金は、耐摩耗性や耐熱性が他の金属に比べて劣る。一方、セラミックスは金属では得られない耐摩耗性、耐熱性、耐食性を有している。アルミニウム合金製装置や設備の必要個所に必要厚さだけセラミックスを張り付けることができる複合化技術の開発が望まれている。セラミックスとアルミニウム合金の複合化方法は種々試みられているが、本研究では、接合の容易さからろう接法について検討を行った。

ろう接において、問題となるのは2つの接合基材の熱膨張係数が大きく異なるために、接合後の冷却過程で、熱応力が発生することである。即ち、この残留熱応力によって、基材内に亀裂が発生し、接合強さが低下する。本研究では、発生する熱応力を緩和するために、アルミニウム合金の接合面に銅を溶射し、緩和層を形成した。また、ろうとのぬれ性を向上させる目的から、セラミックスの接合面には活性金属ろうをメタライジングした。この両基材の軟ろう接法による接合を試み、その適用性について検討した。

### 2 研究方法

#### 2-1 供用セラミックス基材

接合に用いたセラミックス基材はアルミナと部分安定化ジルコニアの2種類で、これらの粉末をプレス及

びCIPで成形後、電気炉で焼結した。形状は円盤状で、プレス成形時の直径は30mm、厚さは7mmであるが、焼結後の直径はアルミナが25mm、ジルコニアは23mmで、厚さは5mmになるように両面を研削加工で仕上げた。供用セラミックス基材の物性値を表1に示す。

セラミックスのメタライジング方法は、チタンを含有する活性金属ろう(66.9wt%Ag-27.5wt%Cu-2.54wt%Ti)の厚さ0.2mmの箔を真空雰囲気炉中で1103Kに加熱して行った。具体的には下からセラミックス、活性金属ろう、セラミックスと同じ径の黒鉛板、活性金属ろう、セラミックスの順序に積み重ねて加熱し、活性金属ろうを溶融した。冷却後に黒鉛板をカットし、ブラストで黒鉛を除去した。

表1 供用セラミックス基材の物性値

因子	$Al_2O_3$	$ZrO_2$
密度 ( $g/cm^3$ )	3.9	6.0
硬さ (HMV)	1800	1300
曲げ強さ ( $N/mm^2$ )	441	1176
熱膨張係数 ( $\times 10^{-6}/K$ )	6.9	8.1

現在 \* 岩手県工業技術センター 金属材料部 岩手県盛岡市飯岡新田3-35-2  
\*\* 岩手大学 工学部 材料物性工学科 岩手県盛岡市上田4-3-5

2-2 供用アルミニウム合金

接合に用いたアルミニウム合金はA6061 (Al-Mg-Si系)で、その化学組成を表2に示す。形状は円柱状で、それぞれのセラミックスと同じ直径に、長さは30mmに機械加工した。片端面には接合強さを測定するために、M16のネジ切り加工を施している。

試験に用いたアルミニウム合金の熱膨張係数をセラミックスとともに図1に示すが、アルミニウム合金の熱膨張係数はセラミックスの3倍以上である。

アルミニウム合金の接合面への溶射は、プラズマ溶射装置と溶射用ロボットを用いて、自動で行った。下地溶射にアルミニウム合金と溶射皮膜の密着力を高めるために、ニッケルクロム合金を、その上に延性の高い銅を約0.4mm厚さに溶射して、熱応力緩和層を形成した。このアルミニウム合金基材は緩和層を773Kで水素還元して、接合に供した。

表2 アルミニウム合金の化学組成 (wt%)

Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Al
0.65	0.16	0.20	0.020	0.88	0.705	0.096	残

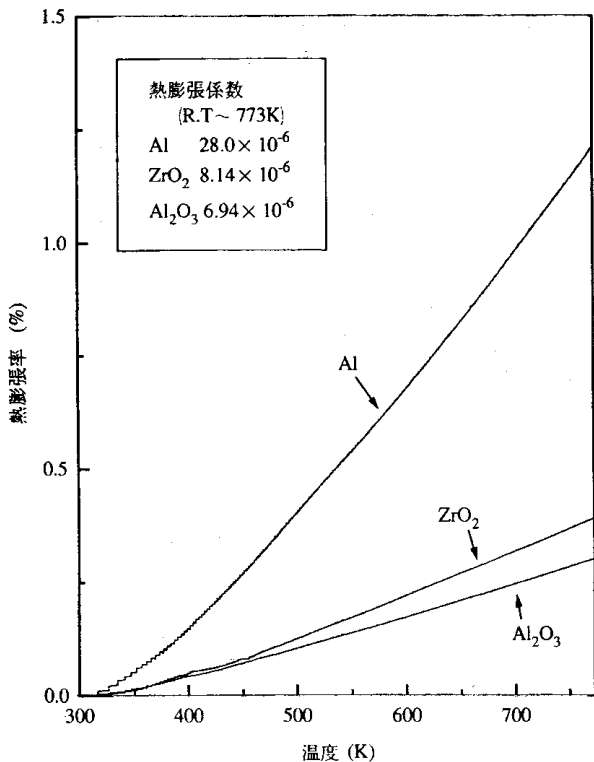


図1 セラミックス及びアルミニウム合金の熱膨張係数と熱膨張率

2-3 供用ろう材と接合方法

供試したろう材は特注で購入したカドミウム-亜鉛-銀系の軟ろう材 (77.54wt%Cd-17.35wt%Zn-5.11wt%

Ag)で、鉛-錫系軟ろう材の2倍以上の強さと473K程度の耐熱性を有している<sup>(1)</sup>。形状は厚さ0.5mmの箔である。このろう材の熱重量 (TG) 及び示差走査熱量 (DTA) 測定結果を図2に示す。昇温速度はいずれも6 K/minである。TGから約623Kでろう材が蒸発し始めることを、DTAからはろう材の固相線温度が523K、液相線温度が593Kであることが示される。

ろう接は雰囲気加熱炉を用いて、最初に0.13Paまで真空にした後、アルゴンガスに置換して、アルゴンガスフローで行った。両基材を黒鉛ブロックを加工した治具で図3の接合形状に示すように固定し、更なる上に150gの重りを乗せて行った。ろうの厚さを一定にするため、ろう部分に径0.05mmのタングステンワイヤを2本挿入した。

ろう接の熱サイクルは図2の結果から、図4に示す熱サイクルで、最高加熱温度を563Kから683Kまで30Kステップの5水準に変化させた。昇温速度は6 K/min、保持時間は30分、冷却は炉冷である。

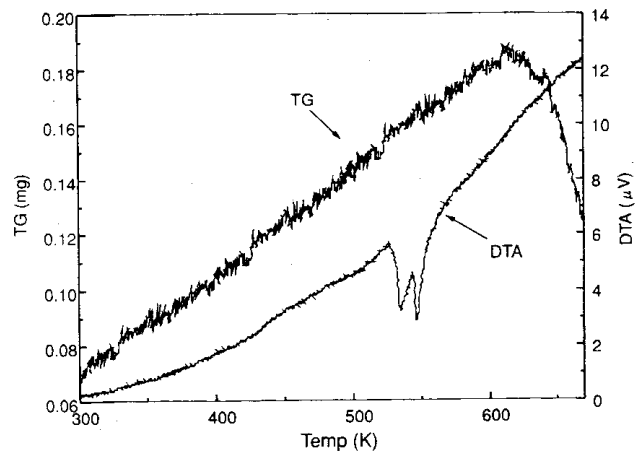


図2 軟ろう材の熱重量及び示差走査熱量測定結果

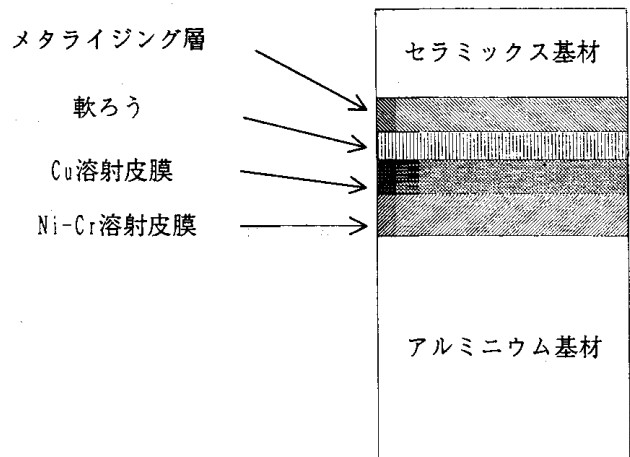


図3 セラミックスとアルミニウム合金の接合形状

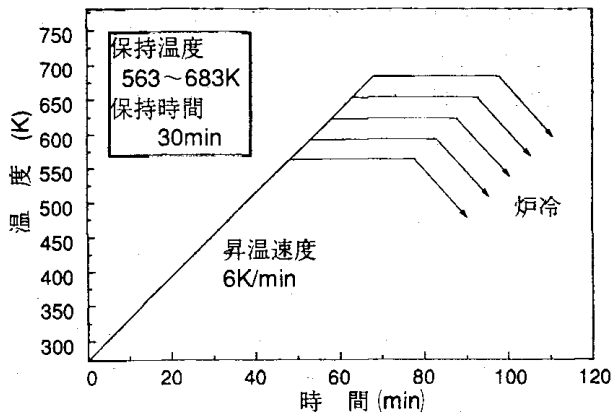


図4 ろう接の熱サイクル

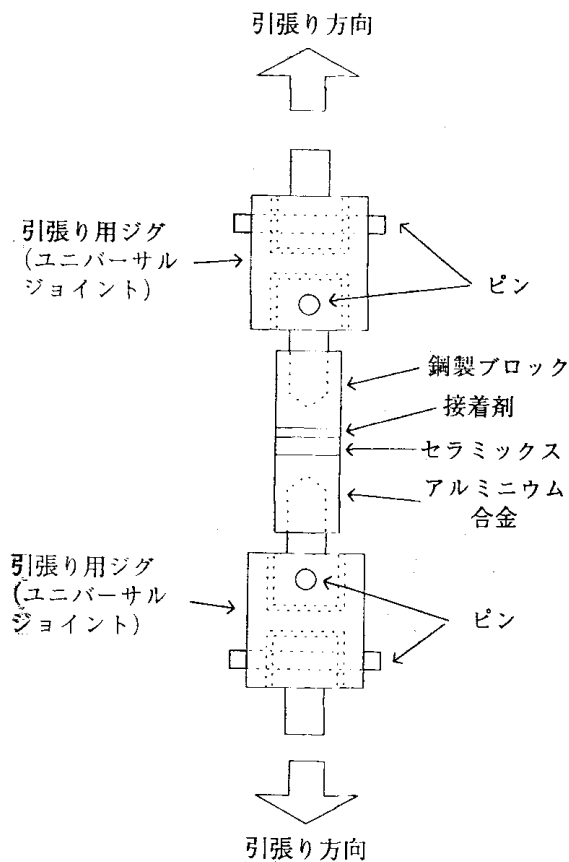


図5 接合強さの測定方法

2-4 接合体の評価方法

同一条件で4体の接合を行い、3体を接合強さの測定に、1体をSEM観察やEPMAとX線回折法による接合部断面の定性分析に用いた。

接合強さは、アルミニウム基材と同形状のブロックを鋼材で作成し、それと接合体をエポキシ系の接着剤で接合し、図5に示すような治具を用いて、精密材料試験機で上下方向に引っ張って測定した。

3 研究結果及び考察

3-1 接合体の接合強さ

ろう接した接合体は肉眼検査、また一部の接合体は浸透探傷検査を行ったが、セラミックスに接合による亀裂の発生は認められなかった。これは軟ろう接で、接合温度が低いことと、溶射による熱応力緩和効果によるものと推定している。

接合強さの測定結果を図6に示す。セラミックスがアルミナの場合の破断箇所は、623K以下の接合温度ではアルミナ基材内で、接合部分からカップコーン状に破断している。ろう接部の強さはこれ以上であると推定できるが、セラミックス基材内で破断していることは、本報のろう接方法では熱応力の緩和効果が充分でないことを示している。

セラミックスがジルコニアの場合は同じように623K以下の接合温度で比較的高い接合強さを示している。破断箇所はアルミニウム合金と溶射皮膜の界面と界面近傍の溶射皮膜内であり、ろう接部の強さはこれ以上であると推定できる。

アルミナとジルコニアは図1に示したように、熱膨張係数が異なり、アルミニウム合金の熱膨張係数に近いジルコニアは熱応力の発生が少ないことと、アルミナに比べて曲げ強さが高いことにより接合強さが高くなっていると思われる。アルミニウム合金と溶射皮膜の密着力は熔融あるいは半熔融した溶射材料がアルミニウム合金基材の凹凸部に投錨効果で結合している、いわゆる物理的結合によるが、アルミニウム合金の投錨効果に対する強さがそれほど高くないため、密着力が弱かったものと考えられる。

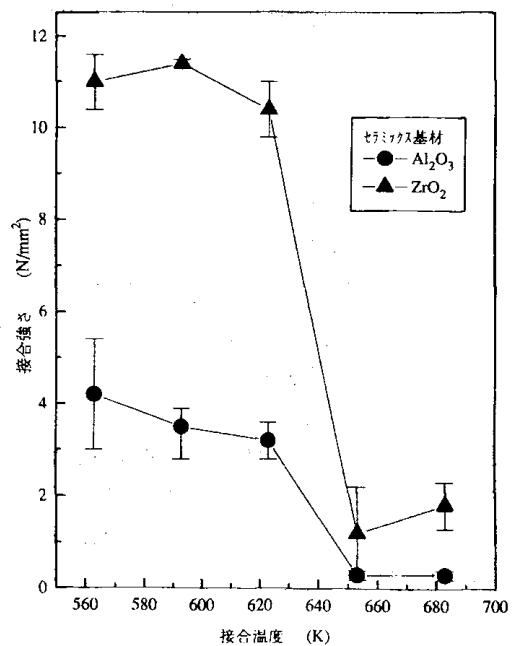


図6 接合体の接合強さ

### 3-2 接合部の分析

接合温度が653K以上ではアルミナ、ジルコニア共に接合強さは低くなる。破断箇所はいずれもろう接部であった。このことは、ろう接終了後に加熱炉内の壁にカドミウム粉末が付着していること、また、図2で示したように、TGが500K付近より減少していることから、カドミウムの蒸発に起因していると考えられる。

図7はろうのX線回折法による定性分析試験結果である。上段は購入ろう材、中段は接合強さが高い593Kに30分加熱したろう材、下段は接合強さが低かった683Kで接合して、接合強さを測定した破面に対する結果である。購入材はカドミウムが77%以上含まれているために、カドミウムのピークが高くなっている。593Kに加熱したろう材の分析結果は購入材とよく一致しているが、683Kに加熱するとほとんどが $Cd_3Ag$ の化合物になっている。即ち、ろう構成成分の変化が、ろうの接合強さを低下させるものと推測される。

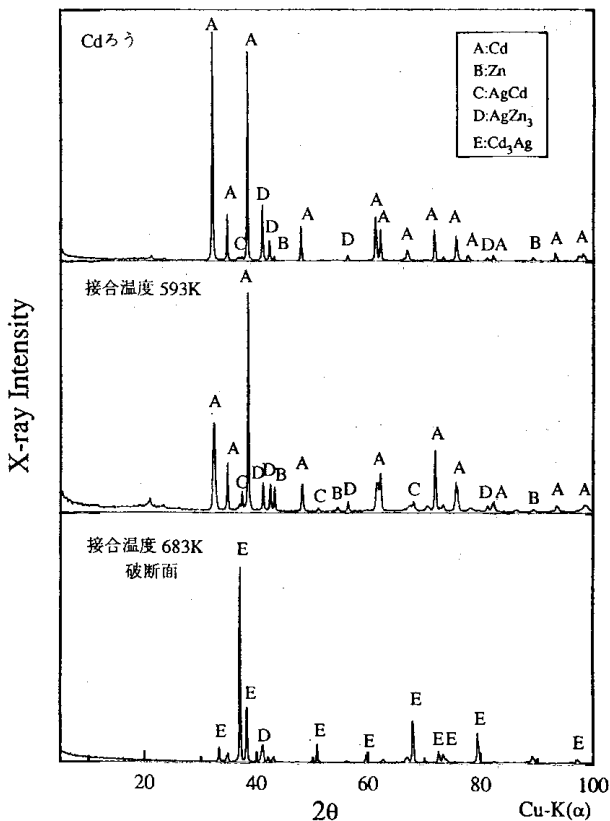


図7 ろう材のX線回折試験結果

図8はジルコニア接合体で一番接合強さが高かった接合部断面のSEM像を示す。溶射層のアルミニウム合金側すなわちニッケルクロム溶射皮膜に気孔が認められる。接合強さが比較的高かったジルコニア接合体の破断箇所はアルミニウム合金と溶射皮膜の界面及び界面近傍の皮膜内であることから、この気孔が破断の初期段階の亀裂発生に寄与しているものと思われる。

接合温度を変化させた接合体の断面をEPMAで定性分析した。分析データはカラー表示であるが、本稿の白黒表示では判別が難しいが、原データから以下のことが言える。

例として図9は上記SEM像と同じ接合体の分析結果を示す。アルミニウム合金のメタライジングでセラミックスと活性金属ろう界面に活性金属ろう中のチタンが凝縮している。この凝縮化合物はセラミックスのメタライジング時にチタンとセラミックスが反応することにより、アルミナの場合は $TiO$ 、ジルコニアの場合は $Ti_2O$ が主に生成している<sup>(2)</sup>と推定される。

軟ろう中の垂鉛はろう層の両端に凝縮するが、接合温度が高くなるほどアルミニウム合金基材の溶射皮膜側に特に多く凝縮する傾向が認められた。また、ろう層の中心部はカドミウムリッチとなるが、接合温度が高くなるとカドミウムの量が少なくなることも確認した。即ち、接合温度が高くなると、ろうの化合物構成が変化し、本来のろうの接合強さを低下させることが、ろう部で破断する一因と思われる。

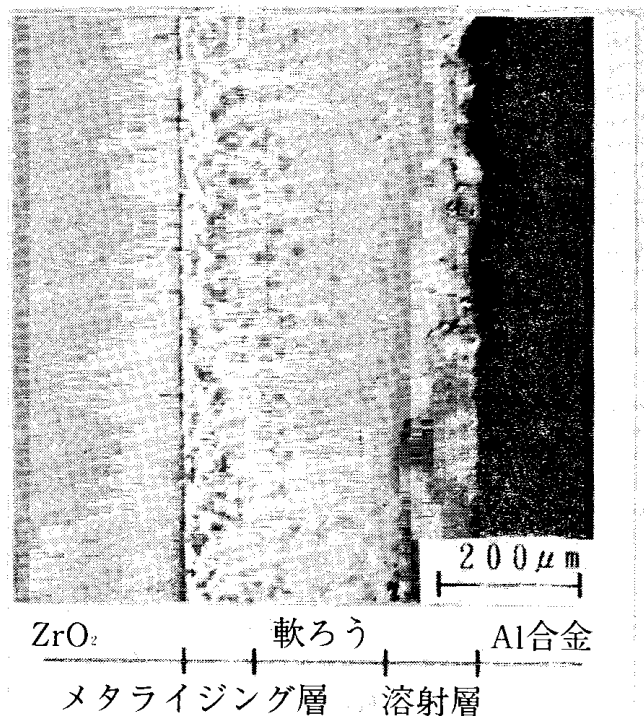


図8 接合部断面のSEM像 (接合温度: 593K)

### 4 結 言

セラミックスとアルミニウム合金の軟ろうを用いる接合試験の結果を総括すると、次のとおりである。

- (1) 接合温度の最適条件は623K以下であり、最大接合強さはアルミナ接合体で $4N/mm^2$ 、ジルコニア接合体で $11N/mm^2$ 得られる。ただしこの値は硬ろうを用いる接合に比べて低い。

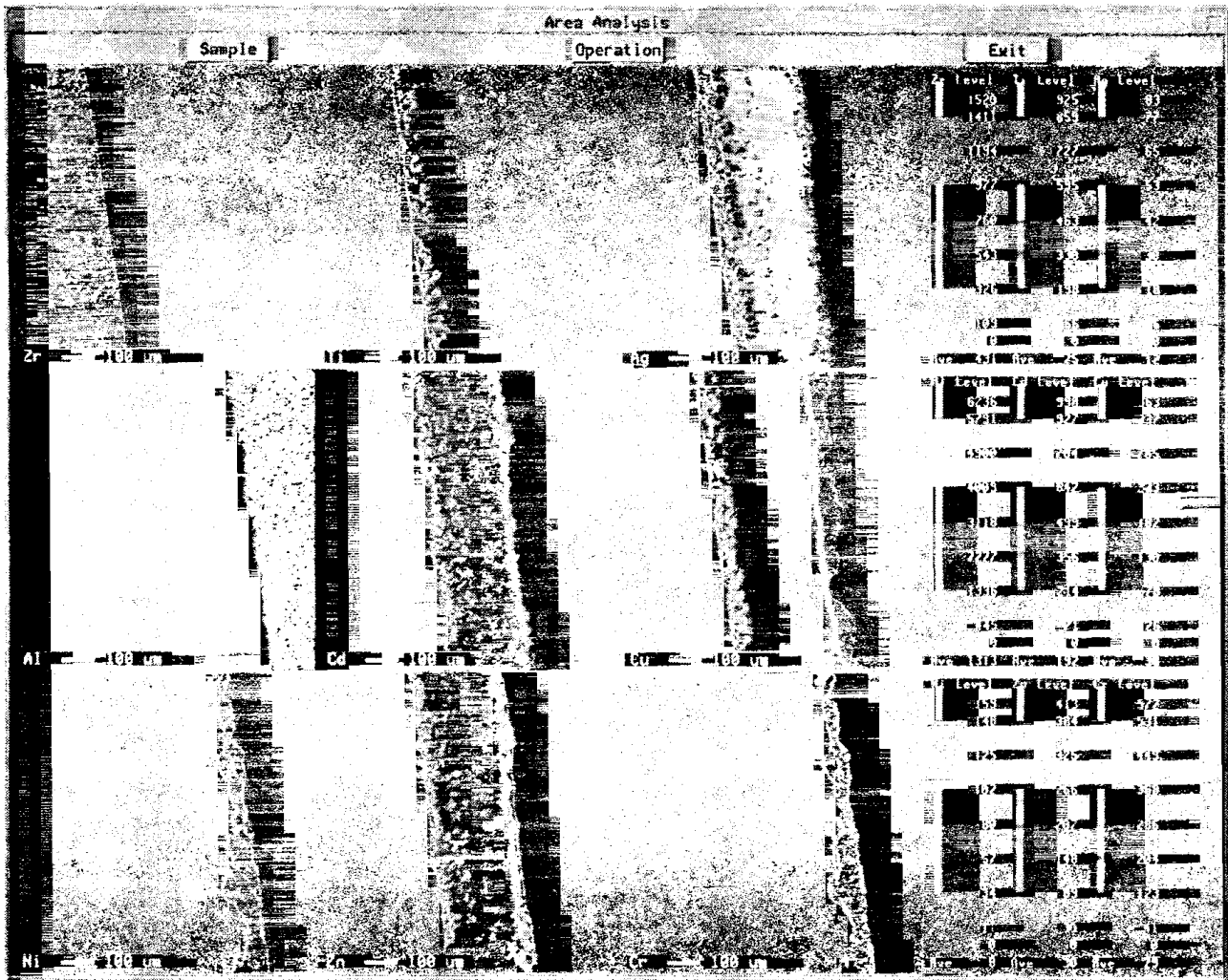


図9 接合体断面のEPMA分析結果 (セラミックス:  $ZrO_2$ 、接合温度: 593K)

- (2) 接合後のろうの組成は、接合温度623K以下では購入ろう材と同じである。653K以上の接合温度ではろう材内に、 $Cd_3Ag$ の化合物が生成し、金属カドミウム含有量を低下させるために、接合強さは大きく低下する。
- (3) 溶射による熱応力緩和層は、接合時にセラミックス内に亀裂を発生させず、効果が認められる。しかし、623K以下の接合温度で接合したアルミナ接合体は、接合強さ測定時にセラミックス内で破断しており、完全には緩和できないことも判明した。

本研究の遂行に協力をいただいた岩手大学学生当時菊池恵介君に感謝します。

#### 要 約

セラミックスとアルミニウム合金は熱膨張係数大きく異り、かつアルミニウム合金は融点が低いので、軟ろう

接合を試みた。接合で発生する熱応力はアルミニウム合金の接合面に銅を溶射して緩和した。セラミックスの接合面には活性金属ろうをメタライジングした。

この結果、接合強さはアルミナで  $4\text{ N/mm}^2$ 、ジルコニアで  $11\text{ N/mm}^2$  が得られ、硬ろうに比べ強くはなかったが、健全に接合できることを確認した。

キーワード: 接合 セラミックス アルミナ  
ジルコニア アルミニウム合金 軟ろう

#### 参考文献

- (1) ろう接便覧編集委員会編: ろう接便覧
- (2) 川原等: 自由曲面を有するセラミックスと金属の接合技術の研究, 東北・北海道ブロック広域共同研究成果集, pp.22-33 (1992)