窒化ケイ素セラミックスの電氣的接合

江畑 儀弘・香山 正憲・岩佐美喜男・木下 実

奥田 浩司*・高井 博史*・西 徳三*

(大阪工業技術試験所, 563 池田市緑丘 1-8-31)

*(株) ダイヘン, 532 大阪市淀川区田川 2-1-11)

Electrical Joining of Silicon Nitride Ceramics

Yoshihiro EBATA, Masanori KOHYAMA, Mikio IWASA, Makoto KINOSHITA

Koji OKUDA*, Hiroshi TAKAI* and Tokumitsu NISHI

(Government Industrial Research Institute, Osaka, 8-31, Midorigaoka 1-chome, Ikeda-shi 563)

(*Daihen Corp., 2-1-11, Tagawa, Yodogawa-ku, Osaka-shi 532)

Sintered silicon nitride ceramics were joined, employing the joule heating by electric current through the joining paste containing CaF_2 . The flexural strength of the joint was dependent on the thickness of the joint layer. The thickness was controlled by the time of joule heating. For instance, heating for 10 minutes gave the thickness about 10 to 30 μm . This sample showed the maximum strength around 300 MPa up to 800°C. But the strength decreased rapidly above 900°C, perhaps because of the softening of the joint layer.

[Received June 28, 1988; Accepted September 16, 1988]

Key-words: Electrical joining, Silicon nitride, Flexural strength, Joint layer, Reacted layer

1. 緒 言

セラミックスを構造成材料として広範囲に使用するためには、セラミックス同士又はセラミックスと異種材料とを接合する技術が必要であり、各種接合方法が提案されている^{1)~4)}。これらの方法のほとんどが被接合体全体を高温炉中に入れる全体加熱方式であるが、大型、長尺物の接合に対しては設備上又は母材劣化などの点で問題であり、局部加熱方式が望まれている。

著者らは局部加熱方式の一つである、通電によるジュール発熱を利用した電氣的接合方法について研究を進めている^{5), 6)}。今回は常圧焼結窒化ケイ素同士の電氣接合を行い、その接合方法、接合メカニズム、及び接合強度について検討を加えた。

2. 実 験

接合試料には市販の常圧焼結窒化ケイ素 (Si_3N_4) を用いた。そのかさ比重は 3.20、ヤング率は 290 GPa、硬度は 16 GPa、破壊靱性は 6.0 $\text{MN}/\text{m}^{3/2}$ である。

接合プロセスの概要を図 1 に示した。2 個の Si_3N_4 ブロック (形状 15×15×20 mm) の接合面 (15×15 mm) に CaF_2 を主体とする接合剤ペーストをスクリーン印刷法により約 150 μm の厚さに塗布する。これらの接合面を重ね合せ、電氣接合装置の固定治具にセットし、プロパンガス炎により 700°~800°C まで予備加熱する。この程度の温度になるとペーストの電氣抵抗はかなり低下しているので、電極間に高電圧を印加するとアーク放電を

通してペーストに電流が流れ始める。そのジュール発熱によってペーストは更に加熱され、十分な導電性を得、接合に必要な温度に到達することができる。通電電極は接合長方向で任意パターンの往復移動ができる構造となっている。均一な加熱が行えるように、電極移動パターンや通電電流値を制御した。通電時間を変化させることによる接合状態の変化を調べた。

以上のようにして得られた接合体から 3×4×40 mm

Fig. 1. Process of electrical joining.

- (A) coating samples with joining paste by screen printing,
- (B) setting up in joining fixer,
- (C) preheating by gas flame to 700°~800°C,
- (D) joule heating by electric current through joining paste, and then (E) cooling down.

の試験片を4本切り出し、常温、高温での強度測定を行った。強度は外スパン 30 mm、内スパン 10 mm の4点曲げ、クロスヘッドスピード 0.5 mm/min で測定した。高温試験は試験片を電気炉内の曲げ治具にセットし、20°C/min の昇温速度で目的温度まで加熱、10 分間保持した。

接合面に垂直な切断面を鏡面研磨し、光学顕微鏡による接合状態の観察、EPMA による拡散状態の調査などを行った。

3. 結果と考察

通電時間をいろいろと変化させた場合の、接合体の常温4点曲げ強度と接合層の厚さの関係を図2に示した。なお、横軸の接合層厚さについては、光学顕微鏡により測定した試験片の引張応力面での最大最小の範囲を示している。通電時間が長くなるとともに接合層厚さは減少している。接合層が厚すぎると破断は接合層内で起こり、破面は多数の粒状突起物で覆われていた。また、接合層が薄すぎるとポアが発生したり、部分的に接合剤が消失

Fig. 2. Relation between thickness of joint layer and flexural strength of joint.

Fig. 3. Optical micrograph of polished surface perpendicular to joint layer of a sample with maximum strength.

して母材面同士が接している状態になっていた。このいずれの場合も接合強度は極端に低下するので、通電時間の調整により接合層厚さを最適に制御する必要がある。今回の試料については、10 分程度の通電により接合層厚さ 10~30 μm が得られ、強度が最大になることが分かった。

この最大強度を示す接合試料の切断面の光学顕微鏡写真が図3である。初期母材のポアが消失し、より緻密化したとみられる層（以下、反応層と呼ぶ）が接合層の両側に幅 300~500 μm にわたって形成されていることが分かる。この切断面で接合層に垂直に EPMA による元素分析した結果が図4である。ここで縦軸は接合層中央部の元素量を1として規格化している。これによると、接合剤の成分である Ca が母材側へ、また Si_3N_4 の焼結助剤である Y, Al が接合層内へ相互に拡散している。この拡散領域が前記反応層領域とほぼ一致していることから、接合剤中の CaF_2 又はそれが酸化された CaO が初期母材中のポアを充填することにより反応層が形成されるのではないかと推定される。そのメカニズムについては現在更に検討中である。

最大常温強度を示す通電時間で作製された接合体について、4点曲げ強度の測定温度による変化を母材強度とともに図5に示した。800°C までは約 300 MPa でほぼ常温の強度を維持しているが、900°C 以上になると急激

Fig. 4. Line analysis by EPMA around joint layer.

Fig. 5. Flexural strength of joint and sintered Si_3N_4 , as functions of temperature up to 1000°C.

に低下し、1000°C では10 MPa 程度まで落ちてしまう。破断面を観察すると800°C 以下では母材内で破断しているのに対し、900°C 以上では接合層内で破断している。900°C 以上では応力-歪曲線に塑性域が認められたり、破断面に糸状になった接合剤が観察されることがあるなどの点から、高温強度低下は接合層の軟化が原因であると考えられる。常温においても、母材強度に比較して、接合体は完全に母材内で破壊しているにもかかわらず、約半分の強度となっている。この原因としては、残留応力の影響や母材の劣化などが考えられる。現時点では常温、高温強度ともまだいくらか不十分であり、新たな接合剤の開発、接合条件の検討も必要であると思われる。

4. 総 括

通電によるジュール発熱を利用した電気的接合方法により、CaF₂系接合剤を用いて常圧焼結窒化ケイ素同士の接合を行った。通電時間により接合層の厚さが変化、

接合強度も変化する。この試料では10分程度の通電により、接合層厚さ10~30 μm が得られ、接合強度が最大となった。800°C までは約300 MPa とその強度を維持するが、900°C 以上になると接合層の軟化により強度は急激に低下した。

謝 辞 本研究は基盤技術研究促進センターの融資を受けて行われたものである。関係者の方々に深甚なる謝意を表する。

文 献

- 1) 江畑儀弘, 木下 実, セラミックス, **18**, 17-22 (1983).
- 2) 井関孝善, 機械の研究, **39**, 1203-08 (1987).
- 3) D.N. Coon, R.L. Tallman and R.M. Neilson, *Advanced Ceram. Mater.*, **3**, 154-58 (1988).
- 4) 柴田良昌, 服部善憲, 川村光義, ニューセラミックス, **1**, 91-98 (1988).
- 5) 香山正憲, 西 徳三, 玉利信幸, 木下 実, 江畑儀弘, 窯協, **94**, 1197-200 (1986).
- 6) 速水諒三, 機能材料, No. 9, 21-27 (1986).