分離を前提とした接合：可逆的インターコネクション

細田 直江^{*}，Liu YANG^{*}，京極 好孝^{**1}，須賀 唯知^{*}

A Bonding Method Which is Designed for Separating at the Interface: Reversible Interconnection

Naoe HOSODA^{*}，Liu YANG^{*}，Yoshitaka KYOGOKU^{**1} and Tadatomo SUGA^{*}

^{*}東京大学先端科学技術研究センター（〒153 東京都目黒区駒場4-6-1）

^{**}Research Center for Advanced Science and Technology, The University of Tokyo (4-6-1 Komaba, Meguro-ku, Tokyo 153)

概要 接合界面で分離することを前提とした接合法として、界面組織制御による可逆的インターコネクションを提案した。接合は表面活性化常温接合法を適用し、分離は加熱により界面に脆弱な層を形成させて行った。この手法に適用できる典型的な例としてAl-ステンレス(SUS304)の常温接合・加熱分離実験を行い、手法の有効性を明らかにした。接合体は823Kで2時間加熱することにより界面に FeAl_2 、 Fe_2Al_5 、 $\text{Fe}_{24}\text{Al}_{13}$ などの合金層を形成し、Alとこの合金層との間で機械的な外力を加えることなく分離することを示した。

Abstract

A novel approach to reversible interconnection has been proposed to carry on recycle of materials smoothly for the protection of the environment. The new means of reversible interconnection is defined as a bonding method which is designed for separating at the interface. In this proposition, "direct bonding" is realized by "the surface activated bonding (SAB) method at room temperature" and "separation" by "control of reactions at the interface". The concept of the reversible interconnection is demonstrated for the case of Al-austenitic stainless steel system. Al and stainless steel has been jointed successfully by SAB method at room temperature. The interface obtained a high bond strength value. By heating the joint at 823K in a vacuum atmosphere, a brittle layer was precipitated at the interface and then the joint can be separated at the interface between Al and the intermediate layer without applying any external mechanical force.

Key Words : Environment, Disassembly, Bonding, Al, Stainless Steel

1. 緒言

現在、大量生産されている高機能性を有した人工物の多くは、異種の物質・材料が複合化された構造となっている。これらの接合体はほとんどリサイクル設計がなされておらず、界面での分離は困難であった。再資源化を行う場合、分離に大きなエネルギーを投じたり、また複合材料中の精錬し難い元素は、トランプエレメントによるスクラップ品位の低下などの問題が生じている。材料レベルでリサイクルを潤滑に行うためには、接合部の分離・分解性を考慮した設計が重要である。そこで我々は、分離を前提とした接合法「可逆的インターコネクション」を提案する。

可逆的インターコネクションは、機械的締結手段においては自明のこととされている。一方有機材料を用いた接着ではなく分離を前提とした接着もあり、可逆的インターコネクションは比較的实现しやすい。これに対して無機材料、金属などの接合界面での可逆性を実現することは、はんだを除いては従来まったくといってよいほど試みられてい

なかった。

従来の無機材料に対する直接接合は、拡散接合や超音波接合などの固相接合にせよ、ろう付け・はんだ付けなどの液層接合にせよ、基本的に熱・圧力などのエネルギーを接合のために投入し、界面で反応を生じさせ、結合を実現するものであった。ところがこの反応は多くの場合十分に制御されておらず、結果的に接合体には反応層の形成による変質や熱ひずみの残留などの負荷をもたらすことになる。またこれを分離するとすると、その矛盾も明らかである。直接接合に際して、脆弱な反応層が存在したり、接合母材の変質があれば、分離とは接合部の破壊にほかならず、結局可逆的な分離は原理的にも不可能になる。

これに対して可逆的インターコネクションにおいては、まず界面形成に際しては、接合にのみ必要な最低限のエネルギーを投入することで理想的な原子レベルでの直接接合を実現する。一方、界面分離に際しては、接合界面での反応制御によって分離を実現する手法による、閉ループのインターコネクションを可能とする。

ここで提案する界面制御による可逆的インターコネクションは、無機材料の直接接合を室温で行い、接合部の加熱

脚注 ※1：現在、日本電気株式会社生産技術材料本部

により脆い反応物を生成し分離させるものである。無機材料の直接接合はこれまでほとんどの場合、加熱を伴う方法で行われているため、脆い反応生成物を生じるような材料の組み合わせはそもそも接合自身が困難であった。本研究では、反応生成物が形成されにくい室温での接合を実現するため、表面活性化による常温接合を行った^{1), 2)}。この手法は、金属材料表面を安定化させている酸化物層や有機物などの吸着物を真空中で高速原子照射により除去し、活性な表面を創り出し、活性な固体表面同士を直接接合するものである。

本研究ではAlとステンレス(JIS SUS304)を対象に実験を行い、可逆的インターコネクションの手法の一例として紹介する。

2. 実験手順

99.99%の多結晶Alと市販されているステンレス鋼(SUS304)を接合試料として用いた。Alは5 mm×5 mm×10mmの角柱を準備し、接合面を曲率半径25mmの球面状に加工した。接合面はエメリー紙およびアルミナ砥粒を用いて鏡面研磨を行った。研磨による歪みを除去するため、真空中で357K、2時間焼鈍した。その後、280K程度に保たれた過塩素酸30%エタノール溶液中で電解研磨を行った。

ステンレスは厚さ0.4mmの10mm×10mm板を準備し、接合面をエメリー紙およびアルミナ砥粒を用いて鏡面研磨を行った。

2.1 常温接合の手順

本実験で使用した常温接合装置は、超高真空装置に表面活性化のための高速原子銃、圧接のためのロードセル、表面分析のためのオージェ電子分光分析器(AES)、を設備したものである(Fig. 1)。

表面活性化はAr-高速原子線(FAB)をステンレス側に60分、Al側に7分照射して行った。照射後の表面は活性であるため、真空装置内を搬送する間に残留ガスが再吸着し、

Fig. 1 Schematic view of the surface activated bonding machine

露出時間によっては接合強度を低下させる原因となる¹⁾。本研究では試料を圧接室まで搬送した後、接合直前までFAB照射を行った。圧接は荷重約300Nで、60秒保持して行った。接合強度は引張試験を行い、破断荷重を接合面積で割った値を強度として算出した。引張試験後の破断面はAES (オージェ電子分光) 分析を行い、接合界面は、SEM (走査型電子顕微鏡)、TEM (透過電子顕微鏡) を用いて観察した。

2.2 加熱分離の手順

常温接合した試料は、573～823Kの温度で1～2時間真空中(10^{-3} Pa)で加熱し、その後10K/minの速度で室温まで冷却した。加熱後の接合界面および加熱分離後の破面は、AES, SEM, EDS, EDX (エネルギー分散型X線分析)、X線回折により観察を行った。

3. 実験結果および考察

3.1 常温接合実験

Alとステンレス表面上へのFAB照射によるクリーニング効果をAESで観察した結果を、Fig. 2 a)とb)に示した。照射前に表面酸化層および吸着物と見られるOやCなどのピークは照射により除去されていることがわかる。Alとステンレスは表面を真空中で清浄・活性化した後、両表面同士を300Nで接触させた。その結果、Alとステンレスは常温でも接合することが可能であることがわかった。常温接合体の全体像をFig. 3に示す。上側の棒状試料がAlで下側の

Fig. 2 Auger spectra of (a) the Al and (b) the stainless steel surfaces before and after FAB irradiation

Fig. 3 A view of the Al-Stainless steel joint

Fig. 4 Cross sectional view of the interface of Al-stainless steel joint created by the surface activated bonding method at room temperature

Fig. 5 TEM overall view (a) and HRTEM image (b) of the interface boundary in stainless steel/aluminum joints created by the surface activated bonding method

板状試料がステンレスである。接合体界面付近の断面のSEM像、およびTEM像をFig. 4とFig. 5に示した。常温接合により作られたAl-ステンレスの界面はSEMによる断面観察では接合面全体において急峻な接合界面を作っていることが観察されている。界面をTEMで拡大して観察した結果、この接合体は数nmのアモルファス層を介して接合されていた。このアモルファス層はFig. 6に示したように

Fig. 6 Micro-EDS analysis of the intermediate layer and neighboring matrix, taken from 5 nm-nominal illuminated area. (a) aluminum matrix, (b) the intermediate layer, (c) stainless steel matrix

SiとOとCで構成されていた。この接合体の接合強度は引張試験により、約20MPaであることがわかった。Fig. 7に引張試験後の破面を示す。両破面上にはAlのディンプルパターンが見られ、破壊は界面および界面近傍のAl側で生じたものと考えられる。

3.2 加熱分離実験

573Kと823Kの2つの温度で、1時間および2時間保持して分離実験を行った。573Kで2時間加熱実験を行った試料の場合、はく離は見られなかった。SEMによる接合界面観察においても変化は見られていない。Fig. 8に引張試験後の破面を示した。引張試験による接合強度は加熱なしの試料と比較してほとんど変化が見られず、Alは加熱処理しない接合体のときと同様にステンレス表面に残っているのがみられ、破壊も同様に界面および界面近傍のAl側で生じている。

823Kで1時間加熱を行った試料はまだ接合しており、断面のEDXの結果から界面での反応により生成した層は、

a) Stainless steel

a) Stainless steel

a) Al

b) Al

b) Al

b) Stainless steel

Fig. 7 SEM fractography of (a) Stainless steel and (b) Al interfaces after tensile test

Fig. 8 SEM fractography of (a) Stainless steel and (b) Al interfaces heated at 573K after tensile test

Fig. 10 SEM fractography of (a) Al and (b) Stainless steel interfaces after heat-treatment at 823K

Fig. 9 Cross section view of the Al-stainless steel interface after heating at 823K for 3.6ks operated by SEM and EDX line analysis profiles of the interface

Alリッチな層であることがわかった(Fig. 9)。

823Kで2時間加熱した試料は、機械的な外力を特別に印加することなしに分離した。分離した試料表面をAES分析とX線回折を行った結果、Al側にはFeその他のステンレス中の構成成分は検出されず、ステンレス側には FeAl_2 、 Fe_2Al_5 、 $\text{Fe}_{24}\text{Al}_{76}$ などの合金層が検出された。分離はこれらの反応生成物層とAlとの界面で生じていた。Fig.10に示したようにステンレス側表面はかなり凹凸があるのに対し、Al側は比較的滑らかな破面の形状をしていた。両破面のモロロジーが一致しないことから、Alと生成物層の間にはかなりの空隙が存在していたと思われる。Alリッチな合金は脆い性質を有することから³⁾、界面での分離はAlリッチな合金層の形成と、この合金層とAlの界面に生じた空隙が接合強度を低下させる原因であると考えられる。

4. まとめ

異種の物質・材料の複合化された構造をもつ人工物の材

料レベルでのリサイクル性を高める手段として、界面での分離を前提とした接合法の新しい概念を提案した。ここで提案した手法は、界面に脆弱な反応生成物を形成するような接合材料の組み合わせに適しており、接合を低温で行うことのできる表面活性化常温接合を適用することにより実現されることを示した。

この手法に適用できる典型的な例としてAl-ステンレス(SUS304)の常温接合・加熱分離実験を行い、手法の有効性を明らかにした。接合体は823Kで2時間加熱することにより、界面に FeAl_2 、 Fe_2Al_5 、 $\text{Fe}_{24}\text{Al}_{76}$ などの合金層を形成し、Alとこの合金層との間で機械的な外力を加えることなく分離することを示した。

謝 辞

本研究の一部は、文部省科学研究費補助金一般研究B(課題番号07455285)の補助により行われたものであることを付記する。

(1996.9.24-受理 1996.10.14-再受理)

文 献

- 1) T.Suga, Y.Takahashi, H.Takagi, B.Gibbesch and G.Elsner : "Structure of Al-Al and Al-Si₃N₄ interfaces bonded at room temperature by means of the surface activation method", Actametall. mater. Vol.40, Suppl. SI33-7, 1992.
- 2) T.Suga : "Room Temperature Bonding", Bull.Japan Inst. Metals, Vol.29, 944-7, 1990.
- 3) N.F.Kazakov : "Diffusion Bonding of Materials", Pergamon Press, 1985.