研究論文

Al-Mg および Al-Si 合金を溶融インサート材に用いた
セラミックスとアルミニウムの接合*

牧 清二郎**・中村 雅勇**

Joining of ceramics to aluminum using Al-Mg
and Al-Si alloys as fusible insert*

Seijiro MAKI** and Masao NAKAMURA**

Joining of aluminum (A1100) and four kinds of ceramics, Si_3N_4 , SiC , Al_2O_3 and PS-ZrO_2 (partially stabilized), was attempted by using Al-Mg and Al-Si alloys as fusible insert. Effects of insert composition and joining parameters, such as temperature, time, pressure, cooling rate and amount of insert, on the bond strength were investigated. The results obtained are as follows: (1) Both aluminum alloys worked successfully on the joining, and relatively high bond strength was obtained at the compositions, 5–20 wt%Mg and 5–10 wt%Si. (2) Joining at temperatures below 878 K using the Al-Mg alloy insert, however, gave rise to high thermal stress, which decreased the bond strengths of Al_2O_3 and SiC remarkably. (3) A use of Al-Si alloy insert can be recommended when thermal stress becomes a serious problem. (4) Al-10 wt%Mg alloy can be recommended as suitable insert for Si_3N_4 and SiC , and Al-5 wt%Si alloy for PS-ZrO_2 and Al_2O_3 . (5) The following measures are effective to reduce the thermal stress in use of the Al-Mg alloy insert; i) to minimize the amount of the insert, ii) to increase joining temperature and/or time, and iii) to decrease the rate of cooling after joining.

Keywords: joining, ceramics, insert, aluminum alloys, reactive element

(Received June 21, 1989)

1. 緒 言

個々の材料の持つ優れた特性の効果的利用を背景に、最近、材料の複合化に高い関心が集まっている。セラミックスと金属の接合もその例外ではない。セラミックスの優れた高温特性が注目されて、現在、その接合対象が鋼や耐熱金属に向いている^{1)~3)}が、軽量であることが要求される分野などでは、今後、アルミニウムとの接合も重要になってくると考える。セラミックスと金属の接合では熱膨張の相違による熱応力が大きな問題^{3)~5)}となるが、アルミニウムは軟金属であることから、この問題の相当の回避が期待される。そのため、熱応力の緩衝材としての利用も一部で検討されている^{6),7)}。セラミックスとアルミニウムの接合に関する研究は多いが、それらはアルミニウムやアルミニウム合金をろう材としたセラミ

ックス同士^{8),9)}、あるいはアルミニウム以外の金属とセラミックスの接合⁶⁾についてであり、接合温度はアルミニウムの融点よりはるかに高い。アルミニウムとの接合を対象にするとすれば、接合のための加熱はその融点より低くしなければならない。アルミニウムはそれ自体活性な金属であるが、そのような低い温度で比較的安定なセラミックスを相手に、また、逆に活性で酸素との親和性が高いことから、その接合には少なからぬ問題が散在すると予想される。したがって、高い接合強度を得るには、一工夫が必要と考える。このように考えると、接合反応促進の観点から、固相より物理化学的に活性な液相の利用に大きな魅力を感じる。すなわち、その接合法としては溶融インサート材を用いた液相接合が有効と考えられる。

そこで本研究では、活性な元素を合金成分とし、かつ

* 軽金属学会第75回秋期大会(昭和63年11月)で一部発表。

** 豊橋技術科学大学生産システム工学系(豊橋市)。Department of Production Systems Engineering, Toyohashi University of Technology (Toyohashi-shi, Aichi).

Table 1 Properties (flexural strength σ_f , linear thermal expansion coefficient α and Young's modulus E) of ceramics used for the experiments

Ceramics	σ_f /MPa	$\alpha/10^{-6} \text{ deg} \cdot \text{s}^{-1}$	E /GPa
Si_3N_4	690	3.7	280
SiC	450	4.6	420
Al_2O_3	390	7.7	370
PS-ZrO_2	1180	10.4	210

アルミニウムより低い融点をもつ Al-Mg 合金¹⁰⁾および Al-Si 合金¹¹⁾に注目し、これらを熔融インサート材とする各種のセラミックスとアルミニウムの接合を試み、接合強度へのインサート材の組成、接合温度などの接合条件の影響を調べ、その可能性と問題点を探った。

2. 実験方法

2.1 供試材料

セラミックスには、ちっ化物、炭化物、酸化物系をそれぞれ代表する、ちっけい素（以下 Si_3N_4 と記す）、炭化けい素（以下 SiC と記す）、アルミナ（以下 Al_2O_3 と記す）および部分安定化ジルコニア（以下 PS-ZrO_2 と記す）をとりあげ、それらの常圧焼結体（ $\phi 15 \text{ mm}$ ）を実験に用いた。それらセラミックスの曲げ強さ、熱膨張係数、ヤング率を **Table 1** に示す。特性値はメーカーのカタログ値である。アルミニウムには工業用純アルミニウム（A1100, $\phi 10 \text{ mm}$ ）を用い、インサート材にはつぎのような混合粉末の圧粉体（ $\phi 8 \text{ mm} \times \sim 0.5 \text{ mm}$ ）を用いた。Al-Mg 合金のインサート材については Al-40 wt%Mg 合金粉末（機械粉碎、 -150 mesh 、融点 724 K ）を、また Al-Si 合金については Al-25 wt%Si 合金粉末（ガスアトマイズ、 -200 mesh 、液相生成温度 850 K （共晶温度））を主原料に、これらをアルミニウム粉末（ガスアトマイズ、 -150 mesh ）と混合し、所定の組成のものを得た。

2.2 接合実験および接合条件

2.2.1 試料形状

Fig. 1 に接合実験に用いた試料の形状を示す。セラミックスはダイヤモンドブレード（CD-SD140B）を用いて厚さ 6 mm に精密切断したものであり、アルミニウムは旋削加工したものである。インサート材は先に述べた混合粉末 50 mg を加圧力 100 MPa で直径 8 mm のディスク状に圧粉成形したものである。接合面は、セラミックスは切断のまま、アルミニウムは旋削のままで、いずれもアセトンで超音波洗浄した。

2.2.2 接合実験

接合は、セラミックスとアルミニウムの間にインサート材をはさみ、**Fig. 2** に模式図を示した治具（ステンレ

Fig. 1 Shape and size of specimens used for joining. (mm)

Fig. 2 Schematic drawing of jig used for joining.

Table 2 Joining conditions mainly applied

Item	Value
Degree of vacuum/Pa	~ 0.13
Temperature/K	878
Time/ks	3.6
Pressure/MPa	3
Cooling rate/ $\text{deg} \cdot \text{s}^{-1}$	~ 0.2
Amount of insert/mg	50

ス鋼製）に図のようにセットした後、治具全体を一端封じの石英管に入れて真空に引き、電気抵抗加熱炉で所定の温度に所定の時間加熱して行った。なお、接合のための加圧力はバネによってかけた。

2.2.3 接合条件

主に適用した接合条件を **Table 2** に示す。加熱時間は所定の接合温度に達してからの保持時間であり、接合温度は、アルミニウムのろう付での加熱温度¹²⁾を参考に決めた。インサート材の組成と接合強度の関係を調べた一連の実験ではこの条件を適用した。また接合条件の影響を調べた実験においても、この条件を基準にした。

2.3 接合強度の評価および破断形態の分類

2.3.1 接合強度の評価

接合した試料は、**Fig. 3** のように治具にセットし、油圧サーボ試験機により 19.6 N/s の負荷速度にて引張り、破断させた。接合強度は最大破断荷重 P を接合面積 A （ $\phi 8 \text{ mm}$ ）で除して求めた。

2.3.2 破断形態の分類

破断した試料の破断面を目視により観察し、その状態

Fig. 3 Tensile debonding test.

- Mark Location of fracture
 A : Ceramic/insert interface
 B : Insert
 C : Ceramic with shallow pit
 D : Ceramic with deep pit
 E : Chucking part of aluminum

Fig. 4 Classification of debonding types according to location of fracture.

を Fig. 4 に模式的に示す 5 形態〔記号 (A)～(E)〕の単独または混合形態として分類した。(A)はセラミックスとインサート材の界面での破断、(B)はインサート材での破断である。(C)と(D)はいずれもセラミックスでの破断であるが、(C)はセラミックスのえぐれ方が比較的浅いもの、(D)はえぐれ方が深いものである。熱応力によってセラミックスにクラックが発生したような場合には(D)のようになり、接合強度も著しく低くなる。(E)はアルミニウムのチャック部での破断である。なお単独か混合かの判断は占有面積率20%を基準とした。接合強度の結果には、これらの記号を併記した。

3. 実験結果および考察

Fig. 5 Variations of bond strength with (a) Mg content for Al-Mg insert and (b) Si content for Al-Si insert. Debonding type is indicated by the marks A-E (see Fig. 4).

3.1 インサート材の組成と接合強度の関係

Fig. 5 に、各セラミックスに対するインサート材の組成と接合強度の関係を示す。比較の意味で、アルミニウム同士の接合結果(---×---)も示した。

3.1.1 Al-Mg 系インサート材

Fig. 5(a)をみてわかるように、セラミックスによって接合強度の組成依存性は異なる。各セラミックスについて最高の接合強度をみてみると、Si₃N₄は20 wt%Mgにて53 MPa、SiCとAl₂O₃は40 wt%Mgにてそれぞれ32 MPaと33 MPa、PS-ZrO₂は5 wt%Mgにて66 MPaとなっており、Si₃N₄とPS-ZrO₂に対して比較的高い接合強度が得られている。5～20 wt%Mg組成におけるSiCとAl₂O₃の接合強度が著しく低いが、破断形態がいずれも(D)であることから、熱応力の影響が大きいと示唆される。また、破断がセラミックスとインサート材の界面でないことから、逆に、セラミックスとインサート材の間

Fig. 6 Micro Vickers hardness of Al-Mg and Al-Si inserts after joining as a function of Mg or Si content. (Test load: 100 gf)

の結合が相当に強固であると示唆される。アルミニウム同士の接合結果も考慮に入れ、この結果から判断すると、Al-Mg系のインサート材については、Mg含量5~20 wt%が適当と言える。ただし、SiCとAl₂O₃に対しては、熱応力緩和のための何らかの対策を構じる必要がある。これについては後に述べる。

3.1.2 Al-Si系インサート材

Fig. 5(b)をみると、Si₃N₄を除き、いずれもSi含量が低い方が接合強度が高くなっている。特に、PS-ZrO₂については5 wt%Siにて破断形態が(E)のアルミニウムの破断強度(約80 MPa)以上の接合強度を示した。他のセラミックスについて最高の接合強度をみてみると、Si₃N₄が10 wt%Siにて44 MPa、SiCとAl₂O₃が5 wt%Siでそれぞれ45 MPaと44 MPaとなっている。この結果から判断すれば、Al-Si系のインサート材については、Si含量5~10 wt%が適当と言える。

SiCとAl₂O₃に注目して、Al-Mg系(5~20 wt%Mg)とAl-Si系(5~10 wt%Si)インサート材での接合強度を比べてみると、いずれのセラミックスともAl-Si系の方が高い。破断形態をみてみると、Al-Mg系では(D)であるがAl-Si系では(C)となっており、Al-Si系での熱応力が小さいと示唆される。理由の一つに、Al-Si合金の低熱膨張特性¹³⁾が挙げられるが、これだけでは低Si含量での接合強度の向上が理解し難い。すなわち、熱膨張係数はSi含量が高いほど小さくなるので、Si含量が高い方が熱応力が小さくなり接合強度は高くなると考えられる。しかし、実験結果は逆である。

ここで熱応力について考えてみる。インサート材を含めた金属側の降伏応力が低ければ、その変形によって熱

応力は緩和される。つまり金属側の降伏応力の大小により熱応力の大小は左右される。アルミニウムはその合金に比べれば降伏応力が低いので、インサート材に用いているアルミニウム合金の降伏応力の大小が接合強度に影響していると予想される。降伏応力の大小は、変形抵抗と強い相関を示す硬さ値¹⁴⁾の大小からも知ることができる。そこで、アルミニウム同士の接合(878 K)での接合後のインサート材の中央部分のマイクロビッカース硬さを測定してみた。Fig. 6はその結果である。Al-Si系では、母材のアルミニウム(●)に比べ、25 wt%Siでは少し高いが、5および10 wt%Siでは増加はわずかである。これに対し、Al-Mg系では母材のアルミニウムの2倍以上になっている。以上から、Al-Si系インサート材では、その低熱膨張特性と低い降伏応力によって、熱応力が小さく抑えられていると結論される。一方、Al-Mg系インサート材では、その高い降伏応力によって高い熱応力が発生し、これが比較的強度の低いAl₂O₃やSiCでの接合強度を著しく低下させていると結論される。

Fig. 5の結果は、溶融インサート材としてのAl-Mg合金とAl-Si合金の有効性を示すものであるが、接合強度は、PS-ZrO₂を除くと、最高でもアルミニウムの破断強度の半分程度であり、必ずしも十分とは言えない。高い接合強度を得るには、接合温度を含めた接合条件の検討、とりわけ、Al-Mg系インサート材については熱応力軽減のための対策が必要である。

3.2 接合条件の影響

接合強度へのインサート材の組成の影響は大きいですが、これ以外に、接合温度、加熱時間、加圧力、接合後の冷却速度、インサート材の量といった接合条件によっても左右される。そこで先に有効性が示唆されたインサート材について、これらの影響を調べ、高い接合強度を得るための条件を探った。特に、高い熱応力が発生するAl-Mg系インサート材については、その低減という観点から検討を加えた。

3.2.1 加圧力

固相接合である拡散接合では、加圧力が高いほど接合界面での密着度の向上を反映して高い接合強度が得られる。液相接合であるこの場合にも、そのような効果があるか調べてみた。Fig. 7に、Si₃N₄に対する結果の例を示す。Al-Mg系インサート材では加圧力が高いほど高い接合強度が得られている。しかし、Al-Si系ではそのような挙動は見られない。この結果から判断する限りでは、Al-Si系については加圧による接合強度の向上は期待できないが、Al-Mg系では加圧を高くした方がよいと言える。

3.2.2 加熱時間

Fig. 7 Effect of joining pressure on bond strength.

Fig. 8 Effect of joining time on bond strength.

Fig. 8 に加熱時間と接合強度の関係を示す。Al-10 wt%Mg インサート材の結果 (Fig. 8(a)) をみると、Si₃N₄ と SiC については、加熱時間の影響が大きく、時間

が長いほど高い接合強度が得られている。特に、SiC では7.2 ks と10.8 ks の間で急激な向上がみられ、10.8 ks でアルミニウムの破断強度 (約80 MPa) 以上の接合強度が得られた。Al₂O₃ については加熱時間を長くしても、破断形態が(D)で接合強度は低いままであった。PS-ZrO₂ については、加熱時間が長いと、わずかであるが逆に低下傾向がみられた。

Fig. 8(b) の Al-5 wt%Si インサート材の結果をみると、PS-ZrO₂ を除けば、いずれも時間の増加と共に強度は向上している。しかし、Al-Mg 系インサート材に比べその増加割合はあまり大きくない。PS-ZrO₂ は3.6 ks までは加熱時間と共に接合強度は増加し、3.6 ks でアルミニウムの破断強度 (約80 MPa) 以上の接合強度が得られた。しかし、それ以上では逆に低下した。

Fig. 8 の結果からは、PS-ZrO₂ を除けば、いずれのインサート材とも加熱時間は長い方がよいと言える。なお本実験では、混合粉末の圧粉体をインサート材に用いているので、比較的長時間の加熱を必要としているようであるが、均一合金のインサート材を用いれば、もう少し時間の短縮が可能と考える。

3.2.3 接合温度

Fig. 9 に接合温度と接合強度の関係を示す。Al-10 wt%Mg インサート材での結果 (Fig. 9(a)) をみると、PS-ZrO₂ の898 K での結果を除けば、温度が高いほど接合強度が高くなっている。特に、878 K 以下では著しく接合強度が低い Al₂O₃ と SiC において、前者が888 K、後者が878 K を境に接合強度が急激に上昇している。破断形態の変化の様子から、それらの向上は熱応力の低減によると考えられる。これに関連して、Fig. 10 に、Al-10 wt%Mg インサート材によるアルミニウム同士の接合での、接合後のインサート材の中央部分のマイクロビッカース硬さと接合温度の関係を示す。高い接合温度 (878 K) で硬さは低下しており、878 K より高い接合温度ではさらに低下するものと予想される。温度が高いことで、インサート材中の Mg の蒸発¹⁵⁾や母材アルミニウム中への拡散が活発となり、インサート材の低合金化が進んでいると考えられる。

Fig. 9(b) の Al-5 wt%Si インサート材での結果をみる。Si₃N₄ を除くと大きな変化はみられないが、Al-Si 合金の低い降伏応力を反映して、Al₂O₃、SiC とも比較的高い接合強度を示し、そしていずれも888 K で最高値を示した。Si₃N₄ については878 K と888 K の間で急激な上昇をみせ、898 K で最高値74 MPa を示した。PS-ZrO₂ については878, 888, 898 K いずれの接合温度でもアルミニウムの破断強度 (約80 MPa) 以上の接合強度が得られた。

3.2.4 冷却速度

Fig. 9 Effect of joining temperature on bond strength.

Fig. 11 に冷却速度と接合強度の関係を示す。Fig. 11(a) は Al-10 wt%Mg インサート材での結果であるが、冷却速度が遅い方が高い接合強度が得られている。強度の低い Al₂O₃ や SiC において顕著で、特に SiC での向上は著しい。接合強度の向上は熱応力の低下によると考えられる。PS-ZrO₂ での冷却速度の影響が小さいが、これは、Table 1 からわかるように、他のセラミックスに比べて、熱膨張係数が大きく、かつ強度が高く、さらに弾性係数が小さいことから、熱応力の影響がもともと小さいことによるものと考えられる。

Fig. 11(b) の Al-5wt%Si インサート材での結果をみても、Si₃N₄ を除けば冷却速度の影響はそれほど大きくない。Al-Mg 合金に比べ Al-Si 合金は降伏応力が低く、熱応力の影響がもともと小さいことによると考えられる。

Fig. 10 Micro Vickers hardness of Al-10 wt%Mg insert after joining as a function of joining temperature. (Test load: 100 gf)

Fig. 11 Effect of cooling rate on bond strength.

Fig. 11 の結果は、接合強度への冷却速度の影響が大きいことを示しており、冷却速度を遅くすることが接合強度の向上に大変有効であることがわかる。冷却速度を

Fig. 12 Effect of amount of insert on bond strength.

遅くすることで接合強度が向上するのは、その冷却過程で金属側にクリープ変形が生じ、これにより熱応力の緩和が計られ、残留応力が小さくなるためと考える。Fig. 11での遅い冷却速度の結果は、接合温度から冷却速度を制御したものであるが、このように全温度領域について冷却速度を遅くしなくても、降伏応力が高くなり始める温度 (200~250°C) より下の温度領域について遅くしてやれば十分その効果を得ることができる。SiCとAl₂O₃について、接合温度から250°Cまでを0.2 deg·s⁻¹で冷却し、それ以下の温度領域を0.04 deg·s⁻¹で徐冷した結果では、前者に対して接合強度は徐冷しない場合の3.9 MPaから61.7 MPaへの向上、後者においても6.7 MPaから22.0 MPaへの向上が認められた。

3.2.5 インサート材の量

高い熱応力の原因はインサート材に用いているアルミニウム合金にある。したがって、その量を少なくすれば熱応力は低減すると考えられる。本研究では、圧粉体をインサート材に用いているので、その重量を変えて影響を調べてみた。Fig. 12にAl-10 wt%Mg インサート材での結果を示す。予想されたようにインサート材の量が少ない方が高い接合強度が得られ、降伏応力の高いAl-Mg系インサート材の利用に際しては、その量を必要最小限に抑えることが重要であることがわかった。インサート材無しの接合では、きわめて低い接合強度しか得られないので、Fig. 12の結果は最適なインサート材の量が存在することを示唆している。高い接合強度を示している30 mgのインサート材を均一合金の板として厚さを試算すると230 μmであり、最適なインサート材はこれ以下の厚さのものと云える。

4. 結 言

構造用セラミックスとして一般的なSi₃N₄, SiC, Al₂O₃およびPS-ZrO₂とアルミニウムの接合に、活性な元素

を合金成分とし融点がアルミニウムより低いAl-Mg合金とAl-Si合金を溶融インサート材に用いることを、粉末冶金の手法を適用して試み、以下の結果を得た。

(1) いずれの合金も接合に対して有効に作用し、Al-Mg系では5~20 wt%Mg, Al-Si系では5~10 wt%Si組成で比較的高い接合強度が得られた。

(2) Al-Mg系インサート材では、接合温度が低い場合には高い熱応力が発生し、特に、強度の低いAl₂O₃やSiCにおいて接合強度が著しく損なわれた。

(3) Al-Si合金では、降伏応力が低く、熱応力の発生が小さいので、熱応力が問題になるような場合にはAl-Si系インサート材の利用が望まれる。

(4) 接合条件の影響も含め総合的に判断すると、Si₃N₄とSiCにはAl-10 wt%Mg合金、また、PS-ZrO₂とAl₂O₃にはAl-5 wt%Si合金が適当なインサート材として推奨される。

(5) Al-Mg系インサート材での熱応力の低減策として、つぎの方法が有効である。(i)発生源であるインサート材そのものの量を必要最小限に抑える。(ii)Mgの蒸発や母材アルミニウムへの拡散を利用してインサート材の降伏応力を下げるべく、接合温度を高くしたり加熱時間を長くする。(iii)金属側のクリープ変形を利用して熱応力を緩和させるべく、接合後の冷却速度を遅くする。

参 考 文 献

- 1) K. Suganuma, T. Okamoto, Y. Miyamoto, M. Shimada and M. Koizumi: *Mat. Sci. and Tech.*, **2** (1986), 1156.
- 2) F. Hatakeyama, K. Suganuma and T. Okamoto: *J. Mater. Sci.*, **21** (1986), 2455.
- 3) 浜田邦彦, 暮石正義, 植田正弘, 圓城敏男, 池内建二: *溶接学会論文集*, **3** (1985), 483.
- 4) K. Suganuma, T. Okamoto, M. Koizumi and M. Shimada: *J. Mater. Sci. Lett.*, **4** (1985), 648.
- 5) 浜田邦彦, 暮石正義, 八木崇晴, 植田正弘, 圓城敏男, 池内建二: *溶接学会論文集*, **4** (1986), 73.
- 6) 河野顯臣, 山田俊宏, 横井和明: *日本金属学会誌*, **49** (1985), 876.
- 7) M. G. Nicholas and R. M. Crispin: *J. Mater. Sci.*, **17** (1982), 3347.
- 8) T. Izeki and M. G. Nicholas: *J. Mater. Sci.*, **14** (1979), 687.
- 9) 井関孝善, 山下和彦, 鈴木弘茂: *窯業協会誌*, **91** (1983), 11.
- 10) M. Hansen: *Constitution of Binary Alloys*, McGraw Hill, (1958), 106.
- 11) Idem: *ibid.*, 133.
- 12) 川瀬 寛: *軽金属*, **36** (1986), 514.
- 13) 日本鋳物協会編: *鋳物便覧*, 丸善 (1973), 1373.
- 14) 中村雅勇, 戸澤康壽: *塑性と加工*, **16** (1975), 668.
- 15) 川瀬 寛, 石川和徳: *軽金属溶接*, **21** (1983), 61.