小特集・金属とセラミックスの接合における諸問題

総 論

諸 住 正 太 郎*

今後は、機能材料であろうと構造材料であろうと、何らかの形態で金属とセラミックスが相接して構成されることがますます多くなってくるであろう。その際、複合材料や金属・セラミックス接合体などでは金属とセラミックスとの間に強い接合が要求される。そして、その接合強度に対しては、金属とセラミックス間の生成相および境界構造に関連しての接合機構、熱膨張係数の差に由来する発生応力の効果、それによる破壊機構、誘起応力の緩衝法等多くの因子が影響を与える。現在、ある接合系では実用の域に達しているとはいえ、そのような系においてさえ、これらの因子についての知見が確立しているとはいえない。各要素因子について基本的な問題点をとらえ、それを解決して接合に関する基本学理を打ち立て、それらの組み合わせとして接合強度が解析されるよう研究が進められるべきであろう。その過程には、良質な接合体の製造技法、接合強度の正確な測定法、微細な割れを感知する非破壊検査法等実験技術の確立が必要である。

本小特集では、上述の要素因子および実験技術についての最近の話題を取りまとめるよう配慮がなされた。この章では、それに先立って、金属とセラミックスとの接合形態がどのようなものかについて若干説明を加えておく。

金属とセラミックスの接合界面として現実に得られているものを列挙すると次のようなものがある。

- (1) 金属とセラミックスが互いに拡散しあったり、化合物を作ったりせずに結合する。
- (2) 両者の間に反応を起こして中間層を形成して結合する。
- (3) 一方が他方に固溶するか、相互に拡散し、相手成

分を固溶して結合する。

(4) 金属またはセラミックス中の1つまたはそれ以上の成分が界面に拡散してきて相手材料と反応して結合する。

(5) 金属とセラミックスとは直接反応せず、セラミックス中の焼結助剤が金属(またはその中の成分)と反応して結合する。

(6) その他

(1)の例としては Stuttgart グループ⁽¹⁾が主張している Nb/Al₂O₃(サファイヤ)系がある。この例では格子像を観察して Nb と Al₂O₃ との格子のマッチングを組立てている。一方、著者ら⁽²⁾はそれ以前に同じ Nb/Al₂O₃(サファイヤ)系で界面付近の電子回折像を用いて解析し、両者の間に低次の Nb 酸化物 NbO_x が生成し、Al₂O₃ とよい格子整合性を保って結合していると報告している。このときの NbO_x の x は1よりもはるかに小さい数値であり、その結晶構造は Nb の立方晶の一方方向をわずかにひずませた正方晶構造であるから、これらの2つの実験結果は実質的に大きな差がないのかも知れない。これらに共通して考えられることは、Al₂O₃ の原子列に沿って Nb 原子が再配列することによって整合性が形成されるということである。

(2)の場合は、両者間に反応生成層が形成される。その層としてはガラス質か結晶質である。前者の場合は非晶質と結晶質との接合機構という問題に帰着し、化学的な結合形式が対象となろう。この際、たとえば Fe と Al₂O₃ とを接合するときのように、金属表面を改質するとよく接合する場合がある。この例では、Fe の表面に酸化物(FeO)を形成させて Al₂O₃ と結合させると、よく接合する⁽³⁾。このとき FeO と Al₂O₃ は複合酸化物を生成して結合し⁽³⁾、Fe と FeO との間は格子整合性が保たれているようである⁽⁴⁾。格子整合性をよく保つような反応生成物が作られる例としては、前掲の Nb/Al₂O₃ 接合での NbO_x の生成⁽²⁾や SiC/Ti/SiC 系での Ti₃SiC₂ の生成⁽⁵⁾などがある。

* 東北大学教授；金属材料研究所，現在：東北大学名誉教授
Preface in Metal-Ceramic Bonding ; Shotaro Morozumi
(The Research Institute for Iron, Steel and Other Metals,
Tohoku Univ. Sendai; Now, Emeritus Prof. of Tohoku Univ.)
1986年3月25日受理

(3) の場合は、全率固溶する金属同士ではごく普通に起こることであるから、金属とセラミックスの系でも材料の組合せと条件によっては起こりうるであろう。しかし、金属の場合は全率固溶の金属同士は結晶系が同じであり、格子定数も近い値をもつものであるから、金属とセラミックスとでは、そのような条件に合う系はごくまれであろう。

(4) の場合の例としては Ti を含む SUS321 鋼と Al_2O_3 との接合がある⁽⁶⁾。これでは鋼中の Ti と C が加熱により鋼表面上に拡散して TiC として偏析し、それが Al_2O_3 との接合に寄与しているとみられている。Ti を含まない鋼ではそれが起こらない。

銀ろうを用いた Si_3N_4 と鉄鋼との接合においても同様の現象がみられる⁽⁷⁾。この時、ろう中に含まれる Ti が Si_3N_4 側に偏析し、接合に大きく係わる。しかし、ここで注意すべきは Ti の量が必ずしも多い方がよいというわけではなく、適量が存在することと、Ti の役割割りに関する解釈である。この解釈の 1 つとしてはこの Ti はむしろ接合界面の清浄化に役立ち、本質的な接合はろう材の主成分と Si_3N_4 との反応によるという考え方があ

る。

(5) の場合は、反応焼結の SiC を Ge で接合する例⁽⁸⁾や常圧焼結 Si_3N_4 をガラスで接合する例⁽⁹⁾がある。前者では SiC 中の残留 Si と Ge とが全率固溶体を形成する。また、後者では焼結助剤として用いられている酸化物とガラスとの結合により接合がなされる。その他としては、接着剤などによるものがある。

これらの接合形態中、どれが目的の接合系に望まれるものか、またそれが実現できるかどうかは最初に述べた多くの因子に大きく依存する。それらの因子中、熱膨張係数の差により発生する応力がとくに重要なものであり、応力の解析法、接合強度の精確な測定評価法、応力の緩衝法等直接、間接的にそれに関与する技法や基礎知識の確立が肝要である。ここで、そのことを改めて強調しておきたい。

金属とセラミックスとの接合に関する研究は最近急速に進展しているが、わが国における研究内容を金属学会

の春秋講演大会に例をとってみよう。もちろん、このような接合の研究では、課題は材料の選択および組合せから接合反応および組織、接合強度の評価までの各段階にわたっており、とくに組織と強度とを関連させたものが多く、その研究内容を一義的に決めることはできないが、その力点の置き方から独断的に判断してみる。1985 年春では関連 13 篇の報告中、反応層の組織と接合部の強度に関するものがそれぞれ 5, 6 篇あり、そのほか、熱応力と試験法についてのものがそれぞれ 1 篇であった。同年秋のシンポジウム講演では、総数 18 篇中、同じく組織と強度がそれぞれ数篇であるが、熱応力や破壊について数篇とふえている。さらに今春(1986 年)は、総数が 30 篇をこえ、全体としてその数のがびてきており、その内容は反応および組織に関して 18 篇、強度関係 5 篇、応力関係 4 篇、その他気密性や接合法について 4 篇となっている。これらの研究はいまだ各論的であるが、今後数多くの研究の積重ねと結果の整理を行い、学問体系の確立へと向って進むであろう。これからが、実用的にも金属とセラミックスの接合における重要な時期であり、前途には多くの難問が横にわたっているものと思われる。それらを解決し、将来大きな成果があがることを切に期待したい。

文 献

- (1) M. Florjancic, W. Mader, M. Rühle and M. Turwitt: J. de Physique, Colloque C4, supplément, **46** (1985), 129.
- (2) S. Morozumi, M. Kikuchi and T. Nishino: J. Mater. Sci., **16** (1981), 2137.
- (3) 坂田君子: 固相接合の材料科学的基礎シンポジウム予稿, 日本金属学会, (1985), p. 17.
- (4) 坂田君子, 小川一行: 日本金属学会講演概要, (1986・4 月), p. 134.
- (5) S. Morozumi, M. Endo, M. Kikuchi and K. Hamajima: J. Mater. Sci., **20** (1985), 3976.
- (6) 土佐正弘, 吉原一紘, 新居和嘉: 日本金属学会講演概要, (1986・4 月), p. 386.
- (7) 白兼 誠, 中橋昌子, 竹田博光: 日本金属学会講演概要, (1985・4 月), p. 233.
- (8) 井関孝善, 山下和彦, 鈴木弘茂: 窯業協会誌, **89** (1981), 171.
- (9) 岩本信也, 梅咲則正, 飯塚健二: 日本金属学会講演概要, (1986・4 月), p. 129.