Al₂O₃ 管/金属フランジ構造部材の接合製作に関する研究*

深谷 保博**, 和田 宏一**, 末田 稔***, 真鍋 幸男**, 松本 隆博***, 小林 敏郎**

Study on Bonding of Al₂O₃ Tube/Metal Flange*by Yasuhiro Fukaya**, Hirokazu Wada**, Minoru Sueda***,
Yukio Manabe**, Takahiro Matsumoto*** and Toshiro Kobayashi**

New bonding method and adequate joint structure for residual thermal stress relief at bonding Al₂O₃ tube to metal flange were investigated.

Main results obtained are as follows.

- (1) Ag-Cu-Ti brazing after Cu₂O+Cu plating on Al₂O₃ tube and sandwich joint structure using assisted Al₂O₃ tube snipped thin Kovar flange were established.
- (2) It was confirmed that cavity coupler, ion accelerator tube brazed by the above mentioned method had excellent leak tight property ($<1 \times 10^{-9}$ Torr·l/s) and this vacuum brazing method could replace Mo-Mn process.

Key Words: Al₂O₃, Brazing, Sandwich joint structure, Leak tight property, Residual stress

1. 緒 言

各種機器の高性能化が進められるにつれ、各種物性にすぐれた性能を有するセラミックスを金属材料に接合して用いる要求が増大している¹⁻³⁾。

対象部材としては、セラミックス板を金属板に接合する平板部材、セラミックス管を金属板や金属管に接合する管部材及びセラミックス軸を金属軸に接合する軸部材などに分類される。

本報告は、このうちセラミックス管に金属板を接合する部材として、高周波加速空洞カプラ及びイオン加速管を取上げ、Al₂O₃ 管/金属フランジ接合に対する新しい接合法の導入と継手部の残留応力緩和をはかる組立法について検討した結果を述べる。

2. 対象部材と要求性能

2.1 対象部材

緒言で述べたように、加速空洞カプラ及びイオン加速管を対象としたが、基本構造が両者ともほぼ同じであるので、加速空洞カプラを代表して、その概要を Fig. 1 に

Fig. 1 Cavity coupler.

示す。

両部材とも、絶縁性確保の点から、管材には Al₂O₃ が採用される。また、Al₂O₃ 管を装置本体に取付ける必要があるため、Al₂O₃ 管の端面に金属フランジを接合し、これを介して取付け溶接される。このため、フランジの材質は、予熱なしで健全なアーク溶接やろう付ができることが要求され、更に、使用上発錆のないものが必要のため、オーステナイト系ステンレス鋼又はコパルに限定される。フランジの板厚については、溶接性の点から 0.5 mm 以上が必要で厚い方が好ましい。一方、Al₂O₃ 管の形状については、その長さを若干変動させうる構造スペース上の余裕を有している。

2.2 要求性能

継手部は、He リークテストで 1×10^{-9} Torr·l/s 以下の耐気密性が要求され、リークにつながる接合部のボイドや接合不良の生成及び Al₂O₃ 管の微小割れ発生は全く許されない。

このため、接合欠陥がなく継手強度にすぐれる接合法及び接合条件を選定すると共に接合時の Al₂O₃ 管の微小割れ発生を防止する有効な残留応力緩和法の設定が必要となる。

3. 接合法の選定

3.1 現行法

Al₂O₃ 管の端面に Mo や Mn の粉末をバインダで混合してペースト状にしたものを塗布し、加湿還元雰囲気中で 1573~1973 K 付近に加熱してメタライジングした後、この上に Ni メッキし、Ag ろうを用いて金属フランジと接合する Mo-Mn 法^{4,5)}と呼ばれる方法で製作されている。この Mo-Mn 法は上記加熱能力を持つ加湿還元炉が必要なことやメタライジング、メッキ、ろう付という多工程を踏むことから、簡易な接合法の確立が求められている。

3.2 提案法

セラミックスの接合では、継手形状により加圧接合が可能なものと加圧接合が適しないものとに区分けされる。管継手では、基本的には加圧接合が可能であるが、接合材どうしや接合材と加圧体間の平坦度に対する要求が酷しく、僅かな片当たりが生じてもセラミックスの損

*原稿受付 平成5年1月11日 平成4年5月 第28回界面接合研究委員会で発表

**正 員 三菱重工業(株) Member, Mitsubishi Heavy Industries Ltd.

*** 三菱重工業(株) Mitsubishi Heavy Industries Ltd.

傷を招くことになる。このため、ろう付タイプの強制加圧を行わない接合法が望ましいと言える。

また、残留応力の緩和の点から、熱負荷を小さくすることが有効であり、できる限り接合温度の低い接合法を選定する必要がある。

こういった点から、接合法としてはろう付法を用いることとし、通常の真空炉で施工が可能であると共に凝固温度も約1060 Kと低い Ag-Cu-Ti ろう付⁸⁻⁹⁾に着目した。そして、 Al_2O_3 とのぬれ性改善及び継手強度特性の向上をはかるため、 Al_2O_3 に 20wt% Cu_2O +80wt%Cu の複合材を約10 μm プレーティングした後、Ag-27.5wt%Cu-2.0wt%Ti 箔を用いてろう付する方法 (以後、 Cu_2O +Cu/Ag-Cu-Ti ろう付と呼ぶ) を採用することとした。

本法の Al_2O_3 へのぬれ性及び継手強度については、既に報告済^{10,11)}であるが、 Cu_2O +Cu/Ag-Cu-Ti ろう付は、通常の Ag-Cu-Ti ろう付に比べ、 Al_2O_3 へのぬれ性で約2.5倍(99% Al_2O_3)~5倍(96% Al_2O_3)、継手強度(せん断強度)で約1.2倍(99% Al_2O_3 /コパル継手)~1.4倍(96% Al_2O_3 /コパル継手)の特性を有している。

4. 残留応力緩和法の設定

4.1 検討した残留応力緩和法の概要

セラミックスと金属の接合体における残留応力緩和法としては、①接合材料面からの対応策(熱膨張係数差低減法、剛性低減法)、②接合条件面からの対応策(接合温度低減法)、③接合体形状面からの対応策(応力緩和構造法)があげられる¹²⁾。

具体例をみると、熱膨張係数差低減法ではセラミックスに対して熱膨張差の小さい金属材料を採用する方法のほか、セラミックスと金属の間にその中間の熱膨張係数を有する単一^{13-15,26)}又は複数傾斜層^{16,25,27)}を挿入する方法がある。剛性低減法では軟質金属^{14,17-20,26)}、傾斜強度金属^{16,25,27)}あるいは複合材料^{21,22)}などを中間層として挿入する方法が提案されている。また、接合温度低減法では低温接合(常温接合)、応力緩和構造法では界面端部形状の適正化¹²⁾やサンドイッチ構造^{23,24)}の適用などが示されている。

本部材では、①の接合材料面からの対応策として、セラミックスに対し熱膨張係数差の小さい金属材料を選択する最も単純な方法と、③の接合体形状面からの対応策として、金属材料の剛性低減及び継手部のサンドイッチ構造を取上げ、検討を行った。

4.2 検討した残留応力緩和法の具体案

加速空洞カプラを対象に材料組合せの適正化、フランジの減厚による剛性低下及びサンドイッチ継手構造の採用による残留応力の緩和効果を検討した。その概要を Fig. 2 に示す。

まず、下記2ケースの材料組合せ(ケース1~2)について調査した後、適正組合せのものについて、金属フランジの減厚(ケース3)及び厚肉、薄肉両フランジにおける補助 Al_2O_3 管の取付接合(ケース4)の効果を検討した。

ケース1 Al_2O_3 管→SUS304 フランジ (板厚:3.0 mm)

ケース2 Al_2O_3 管→コパルフランジ (板厚:3.0 mm)

ケース3 Al_2O_3 管→コパルフランジ (板厚:0.5 mm)

ケース4 Al_2O_3 管→コパルフランジ→補助 Al_2O_3

Fig. 2 Investigated method for residual thermal stress relief.

管 (板厚:0.5, 3.0 mm)

金属フランジの減厚による残留応力の緩和は、接合冷却時に相対熱変形が与えられた場合、発生する力はフランジの剛性(断面積)に依存するため、板厚を薄くしてこの力の減少をはかり、残留応力の緩和を狙うものである。

また、補助 Al_2O_3 管の取付接合による残留応力の緩和は、 Al_2O_3 管端に異材を接合すると、熱膨張係数差の違いにより曲がり変形が生じ、大きな曲げ応力の発生が考えられるため、対称的に補助 Al_2O_3 管を接合し、変形の対称化による曲げ応力の低減で残留応力の緩和を狙うものである。

(1) 解析法

FEMで弾性応力解析を行った。残留応力を定量的に解析するためには、高温からの冷却過程の材料の挙動を考慮した熱弾塑性解析が必要であるが、ここでは、材料特性値や形状パラメータの違いによる残留応力の差異を定性的に把握することに重点を置き、弾性解析とした。

解析モデルを Fig. 3 に示す。長い円筒条件が成立する管長さとし、 Al_2O_3 管は接合界面から97 mm離れたところ(Al_2O_3 管全長の1/2)、フランジは折り曲がり起点までの4 mmと折り曲がりの後、接合界面から4 mm上方のところまでを解析領域とする軸対称体とした。図中に座標系及び境界条件をあわせて示す。管の半径方向を r 、周方向を θ 、軸方向すなわち接合界面に直角方向を z とし、接合界面から97 mm離れた Al_2O_3 管の内径位置で z 方向の変位を拘束した。

また、解析に用いた要素分割を Fig. 4 に示す。要素は矩形要素を主体とし、最小要素は接合界面近傍の Al_2O_3 中で $0.28 \times 0.30 \text{ mm}$ とした。

荷重条件としては、 Al_2O_3 、鋼に比べ厚さが薄いろう材

Fig. 3 Analyzed model.

Table 1 Values used for calculation.

Material	Young's modulus MPa (R. T.)	Poisson's ratio	Thermal expansion ratio (R. T. - 922 ~ 1073K)
Al_2O_3	3.43×10^5	0.25	7.9×10^{-6}
Fe-Ni-Co alloy	1.37×10^5	0.32	10.3×10^{-6}
SUS304	1.93×10^5	0.25	18.7×10^{-6}

の存在を無視し、接合体中で温度勾配がつかず、均熱状態でろう材の凝固温度 (1063 K) から室温 (298 K) まで冷却すると仮定した時の温度差を熱負荷として与えた。

なお、解析に用いた材料定数を Table 1 に示す。熱膨張係数は室温からろう材の凝固温度付近までの平均熱膨張係数、ヤング率及びポアソン比は温度変化に対し、一定値 (室温値) とした。

(2) 解析結果

解析は、管の周方向の応力 (σ_θ)、軸方向すなわち接合界面に直角方向の応力 (σ_z)、半径/軸方向のせん断応力 (τ_{rz}) 及び最大主応力 (σ_1) を取上げて行った。

まず、補助 Al_2O_3 管の取付け接合を行わない場合について、フランジ材質を SUS304 及びコパールと変えて継手部に発生する応力分布を解析したが、接合界面及び接合界面近傍の Al_2O_3 管の内外表面部に最も大きな応力発生が認められた。Fig. 5~6 に分布状況を示す。

接合界面では、フランジ材質に拘らず内外径端又はその近傍で応力レベルが高くなり、引張応力については内径端、せん断応力については外径端近傍で最大となった。また、その最大値は SUS304、コパールの順に低下し、 Al_2O_3 管と金属フランジの熱膨張係数差の減少で残留応力が緩和されることが判る。

一方、 Al_2O_3 管の内外表面部では、フランジ材質に拘らず接合界面近傍の Al_2O_3 中に大きな引張応力の発生が認められ、その最大値は SUS304、コパールの順に低下して、接合界面の場合と同様に Al_2O_3 管と金属フランジの熱膨張係数差の減少が残留応力緩和に大きく寄与することが判る。

次に、金属フランジにコパールを用いた場合について、フランジ板厚の減厚及び補助 Al_2O_3 管の取付け接合による残留応力の緩和効果を検討した。接合界面では最大主応力 (σ_1) 及び半径/軸方向のせん断応力 (τ_{rz})、 Al_2O_3 管の内外表面部では最大主応力 (σ_1) を取上げ、解析した結果を Fig. 7~8 に示す。

これより、フランジ板厚を減厚し、補助 Al_2O_3 管の取付け接合を行うと、接合界面及び Al_2O_3 管内外表面部とも、補助 Al_2O_3 管の取付け接合を行わない場合に発生する応力ピークを大きく低減でき、すぐれた残留応力緩和効果の認められることが判った。

すなわち、セラミックス管への金属フランジの取付け接合体においては、セラミックスと金属の熱膨張係数差

Fig. 4 Mesh division for calculation of finite element method.

Distance from internal face of tube (mm)

Fig. 6 Thermal stress distribution (surface of Al_2O_3 tube).

Fig. 5 Thermal stress distribution (bonding interface).

Fig. 7 Thermal stress distribution at reduction of flange thickness and use of assisted Al_2O_3 tube (bonding interface).

Fig. 8 Thermal stress distribution at reduction of flange thickness and use of assisted Al_2O_3 tube (surface of Al_2O_3 tube).

を小さくする材料組合せを採用した後、金属フランジの減厚と補助セラミックス管の取付け接合を行うと、継手部の剛性低下と変形の対称化により、更に、残留応力の緩和効果が期待されると言える。

5. 実体試作

接合法として、3項で選定した $\text{Cu}_2\text{O}+\text{Cu}/\text{Ag}-\text{Cu}-\text{Ti}$ ろう付、継手として4項で設定した薄肉コパールフランジを用いた補助 Al_2O_3 管の取付け継手を適用し、高周波加速空洞カプラ及びイオン加速管の実体試作を行った。

構成部材の Al_2O_3 管は SiO_2 及び CaO を焼結助剤とした常圧焼結品で、継手特性試験に用いたものと同じである。機械的性質として曲げ強度262 MPa (ワイブル係数16.6) を有し、材料定数としては先に Table 1 で示した値を持つ。フランジは $\text{Fe}-29\text{wt}\%\text{Ni}-16\text{wt}\%\text{Co}$ のコパールを用い、ろう材は $\text{Ag}-27.5\text{wt}\%\text{Cu}-2.0\text{wt}\%\text{Ti}$ の組成を有する50 μm 厚さの箔を用いた。

なお、 Al_2O_3 管への $\text{Cu}_2\text{O}+\text{Cu}$ のプレーティングは、るつば内に無酸素銅を挿入し、雰囲気圧を 2.7×10^{-3} Pa に減圧後、所定酸素量を流入し、プラズマ溶解せしめて行った。酸素量は蒸発した Cu の20wt%が Cu_2O となるよう、流入量調整を行い、773 K に予熱した Al_2O_3 管端面にプレーティングした。

Note) Electrode(Kovar) was used at ion accelerator

Fig. 9 Bonding process.

Fig. 10 Shape and dimension (left: cavity coupler, right: ion accelerator tube).

Fig. 11 Composed parts (ion accelerator tube).

次に、接合手順を Fig. 9、供試部材の形状寸法を Fig. 10 に示すと共に、部材組立状況をイオン加速管の場合を代表して写真で示す。Fig. 11 は部材の外観、Fig. 12 は部材の炉内セット状況を示す。接合終了後は治具を取外し製作を完了するが、Fig. 13 は加速空洞カプラ及びイオン加速管の試作完了モデルを示す。

Fig. 12 Setting in vacuum furnace.

Fig. 13 Fabricated model (left: ion accelerator tube, right: cavity coupler).

試作の結果、接合部にろう切れなどの接合不良は認められず、Al₂O₃ 管とコパールフランジのずれなど寸法精度も所定値に入り優れた接合結果を示した。

6. 性能確認

性能検証をリーク試験で行った。Fig. 14 にイオン加速管の場合を代表して He リーク試験結果の一例を示す。加速空洞カブラ、イオン加速管いずれもリーク量は要求値の 1×10^{-9} Torr・l/s 以下を満足し、従来からの Mo-Mn 法にかわって通常の真空ろう付法により、部品の製作が可能になることが立証された。

これは、Al₂O₃ に Cu₂O+Cu をプレーティングすることで Ag-Cu-Ti ろうの Al₂O₃ へのぬれ性を向上させたことと、フランジ及び加速用電極を Al₂O₃ 管との熱膨張係数差の小さいコパールとして薄肉化し、かつ、フランジに補助 Al₂O₃ 管を取付けた継手を適用したことによって、継手部の接合時の残留応力が低下し、微小割れの発生が完全に抑えられたためと考えられる。なお、コスト面から補助 Al₂O₃ 管を用いないで金属フランジを安価な SUS304 (板厚 3 mm) とし、他は全て上記カブラと同一仕様としたものの試作も行ったが、Al₂O₃ 管に割れが発生しリークした。4 項の検討結果から予想されたこ

Fig. 14 Test result of leak.

Fig. 15 Practical use of ion accelerator tube.

とはあるが、応力緩和の重要性が検証されると共に提案した応力緩和法の有効性が評価、傍証された。

なお、Fig. 15 に本法で製作したイオン加速管を用いて稼動中のイオン注入装置を示す。

7. 結 言

Al₂O₃ 管/金属フランジ接合に対して、Mo-Mn 法にかわる接合法の導入と継手部の残留応力緩和をはかる組立法について検討した。得られた結果を要約すると次のとおりである。

(1) 対象部材に高周波加速空洞カブラ及びイオン加速管を取上げ、接合法として Al₂O₃ 管端の接合面に Cu₂O+Cu をプレーティングした後、Ag-Cu-Ti ろう付する方法、残留応力緩和法としてフランジ材料を Al₂O₃ 管との熱膨張係数差の小さいコパールとして薄肉化し、かつ、フランジに補助 Al₂O₃ 管を取付けた継手構造を適用する組立法を設定した。

(2) 本法で製作した両部材とも、所定の He リーク試験 (1×10^{-9} Torr・l/s 以下) に合格し、通常の真空炉で接合組立が可能ながことが立証された。

(3) すぐれた接合結果が得られたのは、継手部の剛性低下と変形の対称化によって残留応力が低下し、Al₂O₃ 管の微小割れの発生が完全に抑えられたことが主因と考えられる。

参 考 文 献

- 1) 速水；ニューセラミックスの接合プロセスとその応用 (I)，溶接学会誌，55-8 (1986)，469-474。
- 2) 小山田，藤井；ニューセラミックスの接合プロセスとその応用 (II)，溶接学会誌，55-8 (1986)，475-482。
- 3) 大見，柴田；IC 製造完全自動化に向けて，空気清浄，30-4 (1992)，330-342。
- 4) H.E. Pattee; Joining Ceramics to Metals and Other Materials, WRC bulletin, 178 (1972), 10-21.
- 5) 高塩；Mo-Mn 法によるアルミナ・セラミックスと金属との封着，窯業協会誌，79-9 (1971)，330-333。
- 6) H. Mizuhara, K. Mally; Ceramic to Metal Joining with Active brazing Filler Metal, Weld. J., 64-10 (1985), 27-32.
- 7) H. Mizuhara, E. Huebel; Joining Ceramic to Metal with Ductile Active Filler Metal, Weld. J., 65-10 (1986), 43-51.
- 8) A.J. Moorhead, H. Keating; Direct Brazing of Ceramics for Advanced Heavy-Duty Diesels, Weld. J., 65-10 (1986), 17-31.
- 9) E.O. Ballard, E.A. Meyer; Brazing of Large-Diameter Ceramic Rings to Niobium Using an Active Metal Ticusil Process, Weld. J., 64-10 (1985), 37-42.
- 10) 深谷，平井，小林；Cu₂O+Cu+Ag-Cu-Ti インサート法による Al₂O₃ と鋼の接合，本論文集，8-4 (1990)，62-66。
- 11) 深谷，平井，小林；Cu₂O+Cu+Ag-Cu-Ti インサート法で得ら

- れる Al_2O_3 と鋼接合部の継手強度特性, 本論文集, 8-4 (1990), 67-73.
- 12) 豊田: インターフェイスメカニクス<異材接合界面の力学>, 理工学社 (1991), 121-154.
- 13) 河野, 山田, 横井: Al インサート材によるセラミックスと金属の接合, 日本金属学会秋季大会一般講演概要, 116 (1984).
- 14) 山田, 岡本, 北村, 関口, 東: セラミックス-金属接合体に発生する熱応力の弾塑性解析, 日本金属学会春季大会一般講演概要, 173 (1986).
- 15) 中尾, 西本, 才田, 中村, 堅田: Si_3N_4 と金属接合継手における残留応力に関する検討, 本論文集, 7-2 (1989), 109-116.
- 16) 渡辺, 川崎, 村橋: Mo-ジルコニア系熱応力緩和型焼結傾斜機能材料の試作, 素材物性学雑誌, 1-1 (1988), 36-44.
- 17) 田中, 遠藤: セラミックス/金属接合体における金属緩衝層の効果, 日本金属学会秋期大会一般講演概要, 461 (1986).
- 18) 白兼, 竹田, 中橋: Si_3N_4 -鉄鋼接合材の高温強さに及ぼす応力緩衝層の効果, 日本金属学会秋季シンポジウム講演予稿(1985), 200-201.
- 19) 岡本, 菅沼: 新しい固相接合技術(その3)熱応力の問題, 素形材, 26-8 (1985), 33-41.
- 20) 中尾, 西本, 才田, 堅田: Si_3N_4 と金属接合体における反応層及び Cu 富化層の形成現象, 本論文集, 7-4 (1989), 109-115.
- 21) 白兼, 竹田, 中橋: Si_3N_4 -金属接合における応力緩衝層の効果 II, 日本金属学会春季大会一般講演概要, 174 (1986).
- 22) 白兼, 竹田, 中橋: Si_3N_4 -金属接合における応力緩衝層の効果 III, 日本金属学会秋季大会一般講演概要, 462 (1986).
- 23) 浜田, 暮石, 八木, 植田, 圓城, 池内: アルミナセラミックスと鋼板の接合(割れ防止法), 本論文集, 4-1 (1986), 73-78.
- 24) 金, 山本, 袁: セラミックス/金属の固相接合が抱える力学的課題に対する考察, 本論文集, 8-3 (1990), 20-25.
- 25) 川崎, 渡辺: 傾斜組成制御した多層中間層をもつ金属/セラミックス接合体における熱応力の有限要素解析, 日本金属学会誌, 51-6 (1987), 525-529.
- 26) 山田, 関口, 岡本, 東, 北村: セラミック/金属接合体の熱応力緩和, 耐熱金属材料第123委員会研究報告, 27-2 (1986), 265-273.
- 27) 木村, 川崙: 接合体の熱応力の解析(IV)-傾斜機能材料の中間層一, 粉体及び粉末冶金, 37-2 (1990), 116-299.
- ~~~~~