

120 ジルコニアとAg-Bi合金の拡散接合

Diffusion bonding of ZrO₂ and Ag-Bi alloy

学 潘 厚宏 (群馬大学)

○ 飯島 恵吾 (群馬大学)

井口 智博 (群馬大学)

正 伊藤 勲 (群馬大学)

Houhong PAN, Graduate Student of Gunma University (Kiryu-shi Gunma)

Keigo IJIMA, Graduate Student of Gunma University (Kiryu-shi Gunma)

Tomohiro IGUCHI, Graduate Student of Gunma University (Kiryu-shi Gunma)

Isao ITOH, Faculty of Engineering, Gunma University (Kiryu-shi Gunma)

Key Words: Diffusion Bonding, ZrO₂, Bi, Ag-Bi alloy

1. 緒言

近年の工学、工業の著しい発展に伴い、材料に対する要求も次々と多様、複雑化してきている。このような多種多様な要求には、セラミックスの特性に加え、他の材料の特性も付与する必要性があり、異種材料との接合や複合化が検討されてきている。

特に、セラミックスと金属の接合においては、熱膨張差に起因する熱応力の発生は大きな問題となる。そこで、本研究室では、本研究室で開発した拡散接合法(AI-Sn法)を用い、AI-Sn合金をインサート合金とし、セラミックスと金属の接合に関する研究を積極的に行い、良好な結果を得てきた。しかし、接合試料間にAIが残ってしまう事で耐熱性が低くなる事が確認できた。

そこで今回の研究では、セラミックスとしてZrO₂を、金属としてAgを選び接合実験を行った。Agは耐酸化性に優れておりAIに比べ耐熱性の上でも優れているため、インサート合金としての耐熱性の向上が期待される。また、AI-Sn法に代わりのBiをAgに添加する事で、BiがSnと同様に接合の際の熱応力の緩和等の役割を果たし良好な接合に寄与するのかどうかを検討する事を目的とする。

2. 実験概要

2.1 接合試料

- ① Pure Ag, Ag-Xmass%Bi (X:0.5,1.0,2.0)
寸法 (20mm×10mm×5mm)
接合面 9μm ダイヤモンド研磨
- ② ZrO₂ (京セラ製:Z201-N ラップ仕上げ):
寸法 (20mm×10mm×6mm)

*試料組成 mass%に統一し、mass%は省略する。

2.2 実験方法

試料の下側をZrO₂、上側をPure Ag及びAg-Bi合金として接合装置に設置し、温度 1073K、時間 3.6,7.2,14.4ks、圧力 2.4MPaで接合を行い、後ファインカッターで2分割し、一方をせん断試験用に、もう一方をEPMAによる組織観察及び破断面観察用に使用する。また、最もせん断強度が得られた条件において、高温せん断試験を行う。

3. 実験結果および考察

3.1 せん断試験結果(室温)

まず、重力偏析について述べる。重力偏析が起きるとBiが合金内に均等に点在しなくなってしまう。そこでEPMAによりX線像でBiを観察したがBiが大変微量であるため確認する事が非常に困難であった。そこでダイヤモンド粉末研磨剤で3μmまで研磨した試料の表面を光学顕微鏡(OLYMPUS製TE-II)を用いて、観察したところBiがAg中にほぼ均一に点在していた。これより、試料の重力偏析は起きていない。

(1) Pure Agの場合

Fig.1にせん断試験結果を示す。

Fig.1のPure Ag/ZrO₂の結果では全体的に強度が得られており、長時間、高圧力において高い接合強度が得られるという傾向が出ている。また、接合条件 1073K-4MPa-14.4ksにおいて50MPaという高い値が得られた。この要因として、接合圧力を高くする事で、接合面積が増す事と、接合時間を長くする事で拡散が促進されたという事が挙げられる。

(2) Ag-Bi合金の場合

Fig.1より、Biの添加量が0.5%,1.0%においてはPure Agと同様に長時間、高圧力において高い強度が得られ、また接合条件 Ag-1.0Bi/ZrO₂ 1073K-4MPa-14.4Ksでは65MPaの接合強度が得られた。しかし、Biの添加量が2.0%では強度と呼べるような値はほとんど得られていない。このことから、接合界面にBiが多く存在する事は接合強度を低下させる要因である事が分かる。

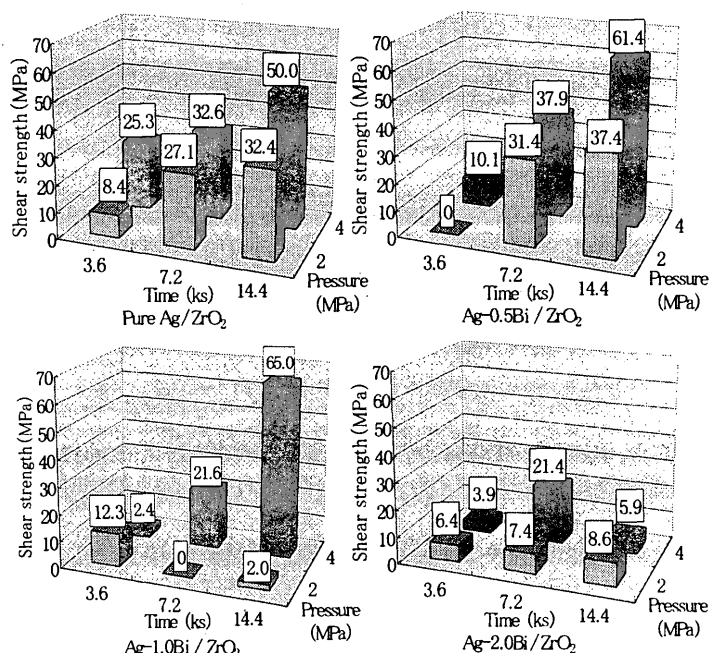


Fig.1 The result of tensile shear fracture test

3.2 高温せん断試験

3.1の結果の中で高い強度の得られた条件 Pure Ag/ZrO₂ 1073K-4MPa-14.4ks 及び、Ag-1.0Bi/ZrO₂ 1073K-4MPa-14.4ks において高温雰囲気でのせん断試験を行った。実験温度は100Kごとにせん断試験を行い結果をFig.2に示す。ここで、横軸は試験温度、縦軸はせん断強度である。

この図から見られるように温度の上昇に伴い Pure Ag 継手は、なだらかに強度が低下するのに対し Ag-1.0Bi 合金継手においてはグラフの勾配が急であり、約400KでPure Ag継手の接合強度を下まわってしまう。これはBiの融点に関係があると考えられる。Biの融点はAgに比べ低く、およそ544Kであり、この付近になると接合界面に濃縮したBiが軟化し接合強度を低下させる事が考えられる。すなわち、高温雰囲気においてBi添加は実用的であるとは言えない。

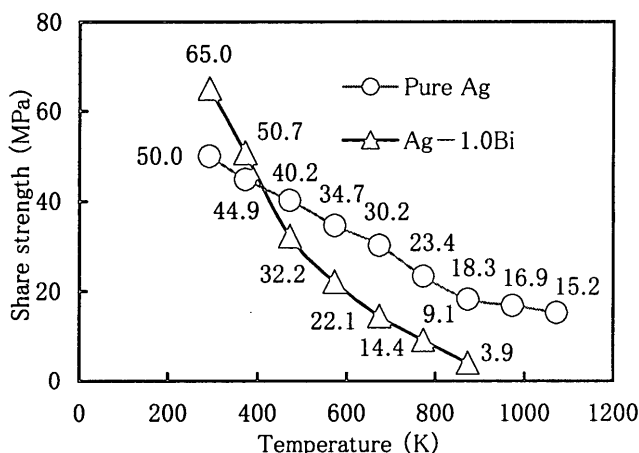


Fig.2 Relation between share strength and testing temperature of copple of ZrO₂ and Ag-Bi alloy

3.3 EPMAによる組織観察及び元素分析

接合界面の組織観察及び元素分析をEPMA(JEOL JXA-8600)を用いて行い、接合条件 Ag-0.5Bi/ZrO₂ 1073K-4MPa-14.4ksの接合界面近傍のSEM像(×500)及びX線像をPhoto.1に示す。まず、BiのX線像では接合界面にBiが押し出されていることが確認できないが、これはBiの添加量が0.5%と極めて微量であったためである。さらに、3.1で述べたようなBiの添加量が増すとせん断強度が低下するという事から、Biは接合界面に存在し接合に関係していると考えられる。また、Photo.1のSEM像から接合界面に反応生成物は確認されなかった。次に、金属とセラミックスの接合において熱応力が原因でセラミックス側に亀裂を生じるが今回の実験では確認されなかった。これはAgが比較的軟材であり、塑性変形する事により接合部における熱応力の緩和効果が働いたものと考えられる。

3.4 EPMAによる破断面の観察

まず、Photo.2にAg-1.0Bi/ZrO₂ 1073K-4MPa-3.6ksのAg側破断面及び、Photo.3にAg-2.0Bi/ZrO₂ 1073K-4MPa-7.2ksのAg側破断面のSEM像(×500)及びX線像を示す。Photo.2ではAgにZrO₂とBiの付着が確認出来る。この事は、ほぼ初期接合界面で破断したことを示している。Photo.3ではPhoto.2と同様にAg側にZrO₂とBiの付着が見られる。また、SEM像を見るとAgがせん断変形し、破断した事がわかる。この二枚の写真から、Biが接合界面に存在する事が確認出来る。

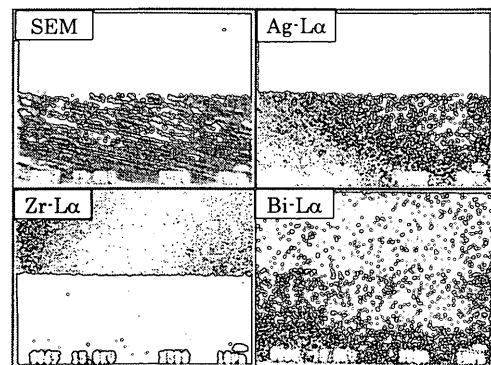


Photo.1 Ag-0.5Bi / ZrO₂ 1073K-4MPa-14.4ks
SEM image and characteristic X-ray images of a cross section

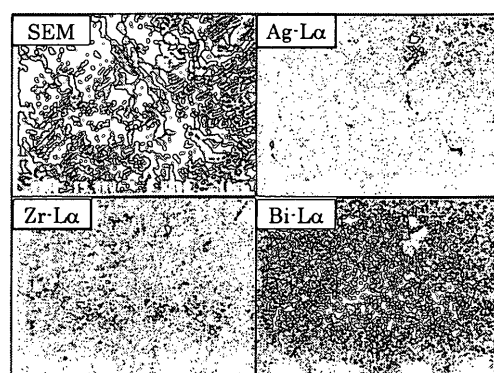


Photo.2 Ag-1.0Bi / ZrO₂ 1073K-4MPa-3.6ks
SEM image and characteristic X-ray images of the fracture surface (Ag side)

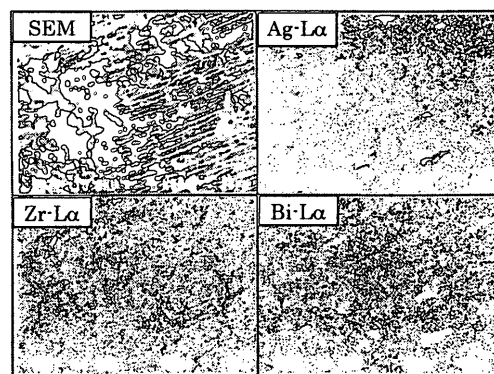


Photo.3 Ag-2.0Bi / ZrO₂ 1073K-4MPa-7.2ks
SEM image and characteristic X-ray images of the fracture surface (Ag side)

4. 結 言

Pure Ag 及び Ag-Bi 合金と ZrO₂ の接合において、以下の事が分かった。

- (1) Agに添加されたBiは添加量を増やすと接合強度を低下させることが分かった。
 - (2) Biの添加量が1.0%までならば大気中におけるAg-Bi合金とZrO₂の実用的な拡散接合が可能であることが分かった。
 - (3) 高温領域では接合界面のBiが溶け出し接合を妨げるため、Ag-Bi合金継手の使用はあまり期待出来ない。
- しかし、本研究室で得られたAl-Sn合金継手の結果に比べ、約200Kの耐熱性の向上が得られた。