

# イオンプレーティングによる $\text{Si}_3\text{N}_4$ と銅との摩擦圧接

—セラミックスと金属の固相接合 (第一報)—

安藤 正昭・宮野 泰治

## Friction Bonding of $\text{Si}_3\text{N}_4$ to Cu by Ion-Plated Insert Metal Solid State Bonding of Ceramics to Metal (Report I)

Masaaki ANDO and Taiji MIYANO

(1997年11月28日受理)

Friction bonding of ceramics ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ) to oxygen free copper has been conducted with Niobium and Titanium ion-plated intermediate layer thickness of  $0.8\sim 1.0\ \mu\text{m}$ . Obtained joints provided the tensile strength of  $37.2\sim 64.7\ \text{MPa}$ . Mixed layers of intermediate metal and intermediate compound phase were not observed at bond interface by optical microscope observation.

### 1. 緒 言

窒化ケイ素 ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ) は、ファインセラミックスの中では強度、靱性および耐熱衝撃性などの機械的特性に優れていることから、構造用途においてエンジン部品はじめ工具、軸受、バネなどに製品化されはじめて<sup>1)</sup>。しかし、セラミックスは強度信頼性が低いことから、適用範囲はまだまだ広いとは言えない。そこで、金属との複合材や金属との接合によって強度を補うことで、工業材料としての用途が飛躍的に増えることが産業界から期待されている。

セラミックスと金属の接合は、一般的な熔融溶接は極めて困難である。セラミックスの融点が高いので、セラミックスと金属の接合には、素材を熔融せずに接合する、いわゆる固相接合による多くの研究が行われている<sup>2~7)</sup>。著者は以前に、炭化ケイ素 ( $\text{SiC}$ ) と Cu との摩擦圧接において、Ti と Nb の活性金属箔をインサート材とする接合の報告をしている<sup>8~12)</sup>。本研究は、 $\text{SiC}$  よりさらに機械的特性の優れた  $\text{Si}_3\text{N}_4$  と Cu との固相接合に、継手性能の向上を目的として、Ti と Nb のインサート材を金属箔厚さよりも薄くするために、接合面にイオンプレーティングを行って摩擦圧接を試みたものである。

### 2. 実験方法

本研究に用いた接合試片は、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  を焼結助剤として常圧焼結された窒化ケイ素 ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ) セラミックスと無酸素銅 (Cu) で、いずれも直径16 mm の丸棒である。 $\text{Si}_3\text{N}_4$  セラミックスの接合面は機械仕上げのまま、Cu の接合面はバフ研磨仕上げした。これら試片をアセトン中で超音波洗浄の後、イオンプレーティング装置にセットされ、 $10^{-3}\text{Pa}$  台の真空チェンバー内で接合面を10分間 Ar イオン衝撃した後、Ti 膜および Nb 膜をイオンプレーティングした。用いられた高周波励起方式のイオンプレーティ

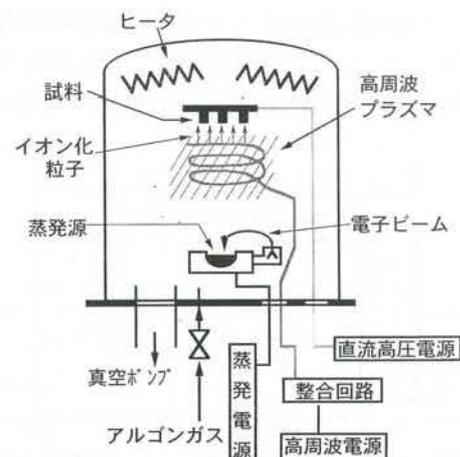


図1 イオンプレーティング装置の概略

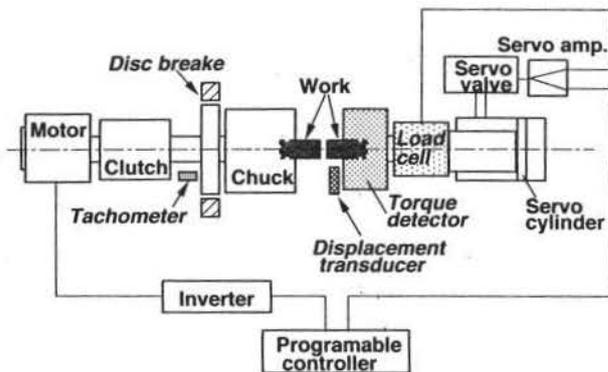


図2 摩擦圧接装置の構成

ング装置 (JEOL LC-8P) の概略を図1に示す。イオンプレーティング材料のTi及びNbは純度99.9%の市販のペレットである。接合にはブレーキ式摩擦圧接機 (日東制機 FF-20型) が用いられ、油圧サーボで推力制御が行われる。図2にブレーキ式摩擦圧接機の構成の概略を示す。接合試片の一方をイオンプレーティング試片として、 $\text{Si}_3\text{N}_4$ を回転側、Cuを非回転側として、圧接中のNbおよびTi膜の酸化を防ぐため、液体窒素を注ぎながら摩擦圧接を行った。製作された接合継手を治具を用いてインストロン型材料試験機 (島津オートグラフ10T) で引張強度を調べ、光学顕微鏡で接合界面の組織観察した。

### 3. 実験結果と考察

#### 3.1 イオンプレーティング

イオンプレーティングは、蒸発させた金属原子をイオン化してプラズマ雰囲気とし、電界で加速して基板に衝突させて薄膜を形成する方法であり、真空蒸着とスパッタリングが複合された技術と考えられる。基板がプラズマ中にあるため、イオン化されたArガスと金属粒子によって基板表面が叩かれるので、クリーニング効果が得られる。従って、この方法で形成された薄膜は、基板との密着性が非常に高

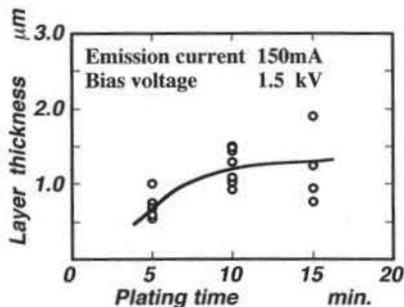


図3 Ti膜の形成厚さ

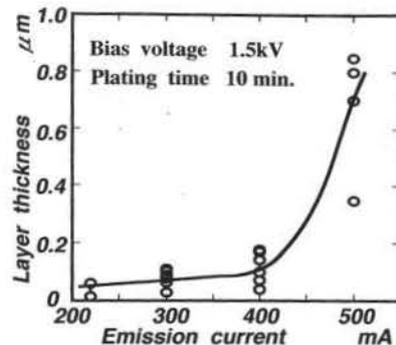


図4 Nb膜の形成厚さ

く、また、プラスチックやセラミックスなどの絶縁体にも薄膜を形成できる特長がある<sup>13-15)</sup>。

これまでに著者等が、摩擦圧接にインサート金属として用いたNbおよびTi箔の厚さは $20\ \mu\text{m}$ であるが、市販のTi箔は $2\ \mu\text{m}$ までなので、これよりも薄いTi膜とNb膜を得るために、カバーガラスにTiとNbのイオンプレーティング膜を形成し、イオンプレーティング条件を求めた。イオンプレーティングされたTiとNbの被膜厚さを表面粗さ計 (Taylor-Hobson社製フォームタリサーフ120) で測定した。エミッション電流を $150\ \text{mA}$ 、バイアス電圧 $1.5\ \text{kV}$ とした時、イオンプレーティング時間と形成されるTi膜の厚さの関係を図3示す。測定値にはバラツキがあるが、時間とともにTi膜の厚さは増加し、プレーティング時間10分で約 $1\ \mu\text{m}$ 程度のTi膜が形成される。さらにイオンプレーティング時間を増してもTi膜の厚さ増加は緩やかなカーブを描き、被膜厚さは飽和するものと考えられるので、15分以上の測定は行っていない。一方、Nbは融点が $2740\ \text{K}$ で、Tiの融点 $1998\ \text{K}$ よりも非常に高いので、エミッション電流を大きくしなければNbの溶融蒸発は得られない。そこでイオンプレーティング時間を10分間として、エミッション電流に対するNb膜厚さを測定した結果が図4.である。エミッション電流が $400\ \text{mA}$ 以上になると形成されるNb膜厚さが急激に増す。エミッション電流 $400\sim 500\ \text{mA}$ 付近でNbの蒸発が活発になると考えられ、エミッション電流 $500\ \text{mA}$ で約 $8\ \mu\text{m}$ 程度のNb膜が得られる。以後の接合試片のNb膜とTi膜のイオンプレーティング条件は、それぞれNbの場合 $500\ \text{mA}$ 、10分間、Tiの場合エミッション電流 $150\ \text{mA}$ 、10分間として行った。また、いずれも高周波出力は $400\ \text{W}$ で行われた。

金属側にイオンプレーティングした場合とセラミックス側にイオンプレーティングした場合のTi膜

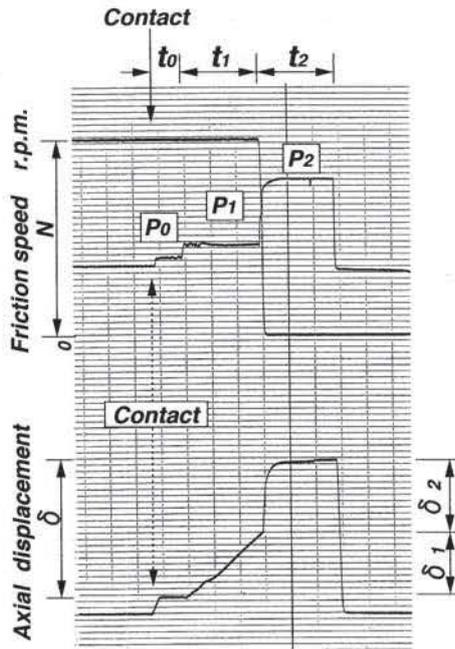


図5 摩擦圧接記録チャート

と Nb 膜それぞれの厚さには相違が生じ、また、それぞれに形成される Ti 相および Nb 相にも相違があることも推定されるが、本報告においては接合に主眼をおき、それらについては改めて調べることにする。

### 3.2 摩擦圧接

本実験に使用した摩擦圧接装置はブレーキ式摩擦圧接機で、国内においてはこの方式が最も多く用いられている<sup>16)</sup>。ブレーキ式摩擦圧接機による圧接サイクルは、予備摩擦、摩擦過程およびアプセット過程からなる。予備摩擦後、摩擦過程で試片の接合面は摩擦熱で急激に温度上昇し、このときの摩擦圧力によって軸方向の変形が始まる。回転停止と同時にアプセット推力を加えることにより、さらに変形が増すことになる。一連の接合サイクルにおける圧接パラメータを次のようにする。予備摩擦圧力： $P_0$  [MPa]、予備摩擦時間： $t_0$  [sec]、摩擦圧力： $P_1$  [MPa]、摩擦時間： $t_1$  [sec]、アプセット圧力： $P_2$  [MPa]、アプセット時間： $t_2$  [sec]、軸方向の変形長さ： $\delta$  [mm]、摩擦速度（回転数）： $N$  [rpm]とする。これらは圧接行程中に電磁オシログラフによって図5のように記録される。予備実験を経た後、本実験における圧接条件は、Nb イオンプレーティングした試片については、アプセット圧力： $P_2 = 70$  [MPa]、アプセット時間： $t_2 = 2$  [sec]とし、Ti イオンプレーティングした試片については、アプセ

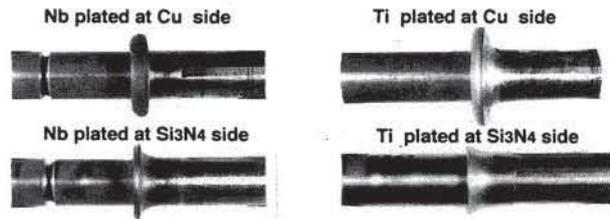


写真1 摩擦圧接継手

ット圧力： $P_2 = 30$  [MPa]、アプセット時間： $t_2 = 2$  [sec]とした。Ti および Nb いずれの場合も予備摩擦圧力： $P_0 = 10$  [MPa]、予備摩擦時間： $t_0 = 1$  [sec]、摩擦圧力： $P_1 = 20$  [MPa]、摩擦時間： $t_1 = 3$  [sec]、摩擦速度： $N = 3200$  [rpm]とした。得られた摩擦圧接継手を写真1に示す。箔を用いた摩擦圧接の場合と同様に、Nb インサートの方が Ti インサートの場合よりも変形量大きい。また、Cu 側にイオンプレーティングした継手のバリ変形量大きい。変形量は、図5のオシログラフに認められるように、摩擦過程における変形量  $\delta_1$  とアプセットによる変形量  $\delta_2$  が加わった分が総変形量としてバリが形成される。 $\delta_1$  は摩擦熱によって上昇した試片の温度と摩擦圧力に依存する。Cu 側に Ti や Nb をイオンプレーティングした場合には、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> と金属の摩擦となり、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 側にイオンプレーティングすると金属と金属の摩擦となる。従って、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> と金属の摩擦熱が高いことが推察されるが、これには摩擦係数や熱伝導などが深く関わっている。また、Nb と Ti インサートの変形量の相違も、インサート金属の物性と接合機構に関連する現象であることが考えられるが、これらの解明は今後の大きな課題として残されている。

### 3.3 接合継手の引張強度

摩擦圧接継手についての強度評価のために、インストロン型試験機で引張試験を行った。Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 側はチャックで把握することが困難なので、引張試験を行う試片は、写真1の左方の継手のようにあらかじめ試片の Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 側に溝加工しており、この溝に合わ

表1 継手の引張試験結果

Joint	Ion-Plating Metal	Ion-Plating Side	Strength (MPa)	Fractured site
Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /Cu	Nb	Cu side	42.7	Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub>
Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /Cu	Nb	Cu side	64.7	Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub>
Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /Cu	Nb	Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> side	37.2	interface
Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /Cu	Ti	Cu side	51.0	Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub>
Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /Cu	Ti	Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> side	42.1	Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub>

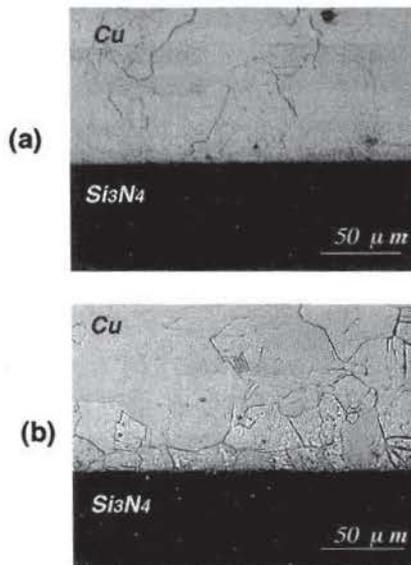


写真2 接合界面組織 (a) Nb i.p. (b) Ti i.p.

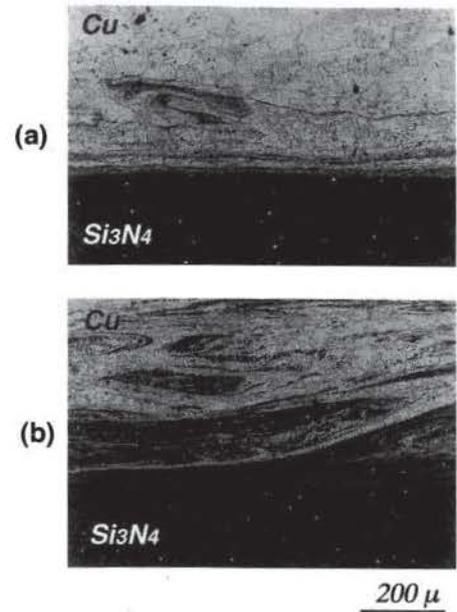


写真3 接合界面組織 (a) Nb 箔 (b) Ti 箔

せたチャック把握用の治具を使用して、クロスヘッド速度0.1 mm/sec. で引張試験を行った。得られた結果を表1.に示す。Nb, Ti いずれも金属側にイオンプレーティングした継手の強度が高い。箔インサートによる摩擦圧接継手では、Nb 箔で42.6~75.3 MPa, Ti 箔で~39.3 MPa の引張強度が得られているので、本実験で得られた継手強度は、Nb では同じ程度、Ti ではイオンプレーティング継手の方が高い強度を得たことになる。Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 側での破断なのであつきはあつたが、強度試験のサンプル数を増やして、さらに検討する必要がある。また、Nb インサートの強度が Ti インサートよりも高い強度を示したことも、箔を用いた場合と同じ傾向である。しかし、ここでもインサート金属 Ti および Nb の作用や接合機構に関わる大きな課題が残される。

### 3.4 接合界面の組織観察

写真2に接合界面近傍の光学顕微鏡による組織観察結果を示す。これらは Cu 側にイオンプレーティングした接合継手の接合界面であるが、Ti および Nb のいずれの接合界面にも混合層や拡散層らしいものは認められない。写真3に箔インサートによる摩擦圧接継手の接合界面組織を示すが、界面近傍にはインサート金属との混合層が300~500 μm にわたって観察された。しかし、写真2のイオンプレーティングを用いた摩擦圧接界面には、このような混合層の形成は界面全体にわたって見受けられない。界面近傍の組織には大きな相違があるが、強度的に

は大きな差異はないと判断できる。セラミックス/金属の継手は、高温環境での適用が考えられ、界面近傍や界面には他の介在物は存在しないことが望ましい。そのような視点から、イオンプレーティングした継手界面は、箔インサート継手界面よりも良好な界面であると考えられるが、継手界面についてはさらに詳細に調べることが必要である。

## 4. 結 言

Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> と Cu との摩擦圧接において、接合面に Nb および Ti をイオンプレーティングした試料の接合が試みられ、得られた結果を次のように要約する。

- (1) Nb および Ti 膜を約0.8~1.0 μm の厚さでイオンプレーティングする条件が求められた。
- (2) Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 側あるいは Cu 側のいずれに Nb および Ti をイオンプレーティングしても摩擦圧接継手が得られた。
- (3) 継手の引張強度は、Nb および Ti 箔を用いた場合の摩擦圧接継手と同等な強度を有する。
- (4) 接合継手界面には、インサート金属との混合層や化合物相は観察されない。

本研究は、大阪大学接合科学研究所の共同利用研究において行われ、摩擦圧接は兵庫県工業技術センターにおいて、イオンプレーティングは秋田県工業技術センターにおいて行われたことを記し、皆さまに深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 三友, 窒化ケイ素セラミックス 2, 内田老鶴圃, 1990
- 2) Y. KAGAWA, J. Mat. Sci. letter, 1062-1066, 4. 1985
- 3) K. SUGANUMA, Mat. Sci. and Tech, Nov. 1986
- 4) 諸住, 金属, 1392-1400, 54-12, 1990
- 5) 岡村, 溶接, 272-286, 8-2, 1990
- 6) 森園, セラミックス協学術論, 1363-1368, 101-12, 1993
- 7) 矢野, 金属, 89-93, 59-1, 1995
- 8) 西本・池内・安藤, 溶接講演概要, 240-243, 59, 1996
- 9) 西本・池内・安藤, 金属講演概要, 283, 119, 1996
- 10) 西本・池内・安藤, 金属講演概要, 227, 120, 1997
- 11) 西本・安藤, 金属講演概要, 314, 121, 1997
- 12) 西本・安藤, 溶接講演概要, 266-267, 61, 1997
- 13) 長田, 低温プラズマ材料化学, 産業図書, 1994
- 14) 上田, ドライブレーティング, 槇書店, 1989
- 15) 小沼, プラズマと成膜の基礎, 日刊工業新聞社, 1993
- 16) 摩擦圧接研究会, 摩擦圧接, コロナ社, 1979