異種材料接合における界面評価

瀬知啓久*, 吉村幸雄*

Interface Estimation on Dissimilar Material Joining

Yoshihisa SECHI and Yukio YOSHIMURA

部材の高付加価値化に有効な異種材料接合について、局所的かつ短時間での加熱が可能であり、母材の材質劣化 抑制に優れたレーザブレイジング法を取り上げ、接合界面を評価した。超硬合金基材に窒化ホウ素を接合する異種 材料接合について、h-BNとWC-Co合金の異材接合界面の評価並びにせん断強度試験を行ったところ、Ag-Cu-Tiろう/ h-BN接合界面にはTiNを主成分とする反応相が生成していると推察され、密着性は良好であった。また、反応相の生 成状況には、ろう材中のTi含有率が影響していると考えられ、せん断試験において破断した部位は、ろう付部近傍 のh-BN側であった。

Keyword : laser brazing, Boron Nitride, Tungsten Carbide

1. 緒 言

ろう付を用いた接合技術は電気・電子,機械など多くの 工業分野で使用され,また,日常生活品にまで広く用いら れている。この技術は,他の方法では接合の困難な材料や 形状に適し,かつ精密で大量生産に向くなど多くの利点を 持っている。

また,近年,各種製品の高付加価値化のため,新規な組 み合わせの接合への取り組みが行われている。ところが, これらの異種材料接合体には,接合時の加熱による接合界 面近傍での材質劣化や,熱応力-ひずみの発生に起因する接 合欠陥が生じやすいなどの問題点がある。

そこで、本研究では局所的かつ短時間での加熱が可能で あり、母材の材質劣化抑制に優れたレーザブレイジング法 を取り上げ、超硬合金基材に窒化ホウ素を接合する異種材 料接合界面の断面観察、元素分析、密着性評価ならびにせ ん断強度測定を行ったので報告する。

2. 実験方法

供試材料には,超硬合金としてISO使用分類K10相当材 (93~95mass%WC-4~5mass%Co)を,窒化ホウ素として高 純度h-BN(相対密度 82.5%,純度99mass%以上,5mm× 5mm×3.5mm t)を使用した。セラミックスの接合には活性

Pulsed YAG Output (kW)	1.7
CW LD Output (kW)	0.02
Pulse frequency (Hz)	100
Scanning speed (mm/s)	$0.1 \sim 1.6$

長1 レーザブレイジング条件

*素材開発部

材が重要な作用を及ぼすことから,活性材として代表的な Tiを含有する活性金属ろう材(70.2mass%Ag-28.1mass%Cu -1.7mass%Ti;以下,ろう材Aと表記),(71.07mass%Ag-27.68mass%Cu-1.25mass%Ti;以下,ろう材Bと表記)を用 いた。

ベース材である超硬合金と窒化ホウ素の間にろう材を挟 み,真空排気後,Ar雰囲気中で表1の条件にてろう付を行 い,試料を作製した。

作製した試料について、低速ダイヤモンド切断砥石で水 冷しながら切断し、冷間硬化樹脂に埋め込み、エメリー紙 #120~#800による研磨加工を施した後、最終的に1μmダイ ヤモンド粒子でバフ研磨加工を行い、断面観察用試料を作 製した。

断面の組織観察ならびに元素分析には、電子プローブマ イクロアナライザ(日本電子株式会社製 JXA-8621MX,以下 EPMA)を用いた。

作製した試料の接合界面の密着性の評価ならびに接合部 面積の測定には,超音波顕微鏡(日立建機ファインテック 株式会社製 HSAM220)を用いた。

せん断強度の測定は,材料試験機(株式会社島津製作所 製 AGS-5kNB)を用い,クロスヘッドスピード 0.5 mm/min の条件にて試験した。

3. 結果及び考察

3. 1 ろう材Aを用いた場合

ろう材Aを用いた試料の接合界面端部を観察した低倍の SEM写真を図1に示す。静滴法による測定ではないものの, 画面右側のWC-Co合金/ろう材の接触角は鋭角を示してお り、ろう材とWC-Co合金の濡れ性が良好であることが分か る。また、h-BN/ろう材の接触角も鋭角を示しており、ろう材とh-BNの濡れ性も同様に良好であることが分かる。WC -Co合金/ろう材界面、h-BN/ろう材界面ともに、写真左側に向かってろう材が広がっていることからも、それぞれの濡れ性が良好であることが考えられる。

なお,画面左側中央部の黒色部分は,ろう材が存在して いない領域である。



図1 接合界面端部の断面観察結果(ろう材Aを使用)

ろう材Aを用いた試料の接合界面のSEM写真を図2に示 す。WC-Co合金/ろう材界面は平滑であり、かつ密着してい ることが分かる。一方、h-BN/ろう材界面は細かく入り組 んでいる様子がうかがえる。これは、h-BNの表面の微細な 開気孔部分に溶融したろう材が入り込んだことによると考 えられ、ろう材とh-BNの濡れ性は良好であると推定される。



図2 接合界面の断面観察結果 (ろう材Aを使用)

図3に、ろう材Aを用いた試料におけるh-BN/ろう材界 面のEPMAによる面分析結果を示す。a)は、図2左上部のh-BN/ろう材界面を拡大したものである。b)~d)は、それぞ れa)の領域におけるAg、N、Tiの面分析結果である。 a)に 見られるように、界面付近に白色相が存在する。 b)~d)か らは、同領域にTiとNが多く分布していることが分かる。こ れらの結果から、h-BN/ろう材界面での1~2 μ m程度の厚 さをもつTiNを主成分とする反応相の生成が推察される^{1) 2}。



図3 h-BN / Ag-Cu-Tiろう材接合界面の 面分析結果(ろう材Aを使用)

図4に,ろう材Aを用いた試料の外観及び界面の超音波 顕微鏡像をa)及びb)に示す。

a)の中央正方形の白色部分はh-BN, その周辺の金属光沢 部分は基材WC-Coである。また, b)の中央部黒色の領域が接 合界面で溶融したろう材である。内部に大きな空隙が見ら れないことから, h-BNとWC-Coに挟まれたろう材の密着性が 良好なことが分かる。なお,図4b)周辺部の白い部分は,ろ う材の量が不足したためにろう材が存在していない領域で ある。



図4 ろう材Aを用いた試料の観察結果

a)試料外観

b) 超音波顕微鏡による界面観察

このようにして作製した異材継手のせん断試験を実施し たところ、破断はろう付部近傍のh-BN側から生じ、せん断 強度は、平均6.5MPaであった。破断発生部位が接合界面か らではなく、h-BN側であることから、接合界面が健全であ ることが示唆される。

3.2 ろう材Bを用いた場合

ろう材Bを用いた試料の接合界面端部を観察した低倍の SEM写真を図5に示す。静滴法による測定ではないものの, WC-Co合金/ろう材の接触角は鋭角を示しており,ろう材と WC-Co合金の濡れ性が良好であることが分かる。また,図1 と比較して、h-BNの凹凸により明確にはなっていないが、 h-BN/ろう材の接触角も鋭角を示している。このことから、 ろう材とh-BNの濡れ性も同様に良好であると考えられる。 WC-Co合金/ろう材界面、h-BN/ろう材界面ともに、写真



図5 接合界面端部の断面観察結果(ろう材Bを使用)



図 6 接合界面の断面観察 結果(ろう材Bを使用)

左側に向かってろう材が広がっていることからも、それぞ れの濡れ性が良好であることが確認できる。

なお,画面左側中央部の黒色部分は,ろう材が存在して いない領域である。

ろう材Bを用いた試料の接合界面のSEM写真を図6に示 す。ろう材Aを用いた場合と同様に、WC-Co合金/ろう材界 面は平滑であり、かつ密着していることが分かる。また、 h-BN/ろう材界面も細かく入り組んでいる様子が分かる。 これは、h-BNの表面の微細な開気孔部分に溶融したろう材 が入り込んだことによると考えられ、ろう材とh-BNの濡れ 性は良好であると推定される。一方、h-BNにろう材が入り 込んだ部分は、黒っぽい色相を呈している。

図7 a)は、図6右上部のh-BN/ろう材界面を拡大したも のである。これらの結果から、h-BN/ろう材界面での2 μ m程度の厚さをもつTiNを主成分とする反応相の生成が推 察される^{1) 2)}。しかし、図2に見られるように白色相は比較 的明確でなく、黒っぽい外観を呈している。このとき、ろ



図 7 h-BN / Ag-Cu-Tiろう材接合界面の面分析 結果(ろう材 B を使用)



- 図8 ろう材Bを用いた試料の観察結果
 - a)試料外観
 - b) 超音波顕微鏡による界面観察

う材B中のTi含有率は、ろう材Aと比較して0.45%少ないが、このことが原因となり、h-BN/ろう材界面でのTiNを主成分とする反応相の生成量が減少し、外観上の相違が生じたものと推察される。

図8a)及びb)にそれぞれろう材Bを用いた試料の外観及 び界面の超音波顕微鏡像を示す。ろう材の密着性は、図7 の場合と同様に良好なことが分かる。なお、図8b)周辺部 の白い部分は、ろう材の量が不足したためにろう材が存在 していない領域である。

このようにして作製した異材継手のせん断試験では,破 断はろう付部近傍のh-BN側より生じ,平均8.7MPaのせん断 強度であった。ろう材Aの場合と同様に,破断発生部位が 接合界面からではなく,h-BN側であることから,接合界面 が健全であることが示唆される。

4. 結 言

h-BNとWC-Co合金の異材接合を行い,接合界面の評価並び にせん断強度試験を行ったところ,次のことが明らかに なった。

- (1) Ag-Cu-Tiろう/h-BNの接触角ならびにAg-Cu-Tiろう/ WC-Coの接触角は鋭角を示し、それぞれの濡れ性は良好で あった。
- (2) Ag-Cu-Tiろう/h-BN接合界面の濡れ性は良好であり、 ろう材A、ろう材Bのいずれの場合においても、h-BNの 表面の微細な開気孔部分に溶融したろう材が入り込む様 子が観察された。
- (3) ろう材A,ろう材Bのいずれの場合においても、Ag-Cu-Tiろう/h-BN接合界面には、同領域にTiとNが多く分 布しており、 $1 \sim 2 \mu m$ の厚みをもったTiNを主成分とす る反応相が生成していると推察される。
- (4) ろう材A,ろう材Bを使用した場合におけるSEM観察 結果から,反応相の生成状況に外観上の差異がみられた。

これには、ろう材B中のTi含有率がろう材Aと比較して0.45%少ないことが影響しているものと考えられる。

- (5) 超音波顕微鏡を用いた接合界面の非破壊観察から,ろう材A,ろう材Bのいずれの場合においても、内部に大きな空隙が見られず、密着性は良好であることが明らかとなった。
- (6) 作製した試料のせん断試験を実施したところ,ろう材 Aの場合,せん断強度は平均6.5MPaであり,ろう材Bの 場合,せん断強度は平均8.7MPaであった。また,ろう材 A,Bのいずれの場合も,これらの破断発生部位が接合 界面からではなく,h-BN側であることから,接合界面が 健全であることが示唆される。

今回得られた知見としては、活性材を含有するろう材を 用いたレーザブレイジング法が異材接合に有効であるこ と、ろう材の濡れ性や接合界面の反応相生成に対して、活 性材の含有量が大きく影響すること、さらには異材接合に おける接合界面の密着性評価の重要性が挙げられる。これ

らを考慮して接合を行うことで、製品の高付加価値化につ ながる新規な組み合わせの異種材料接合への展開が期待さ れる。

謝 辞

本研究は、大阪大学接合科学研究所の共同研究員制度を 利用して行いました。また、研究を進めるにあたって有益 な助言を賜りました、大阪大学接合科学研究所 中田一博 教授,津村卓也助手に謝意を表します。

参考文献

- M. G. Nicholas, et. al., J. Mater. Sci., 25 (1990) 2679-2689
- S. D. Peteves, Ceramics International, 22(1996) 527-533