

局所加熱による接合界面の制御

瀬知啓久^{*}, 吉村幸雄^{**}

Control on Material Joining Interface Using Local Heating Process

Yoshihisa SECHI and Yukio YOSHIMURA

異材接合に有効なろう付手法の一つである局所加熱技術におけるろう材の挙動を明らかにするために、接合界面付近の温度分布や加熱状況について実験を行った。加熱にはレーザーによる局所加熱法を用い、接合界面の温度制御を試みた。超硬合金基板に窒化ホウ素を接合する異種材料接合において、基板部分を局所加熱することで基板に接触したろう材を融点以上に加熱可能であった。さらに非接触による温度測定を行い、加熱領域から離れた部分の加熱状況を確認することが出来た。作製した試料のせん断強度は平均6.5MPaであり、接合界面が健全であることが示唆された。

Keyword : laser brazing, boron nitride, tungsten carbide, infrared thermometer

1. 緒 言

ろう付法をはじめとする異種材料接合は、それぞれの部材の特徴を組み合わせることで、部材の高付加価値化を容易に実現可能とする手法の一つである¹⁾。この技術は、他の方法では接合の困難なセラミックス/金属材料の接合や形状の複雑なロケットエンジンノズルスカートなどの接合に適している。セラミックスと金属をろう付するには、金属との濡れ性の悪いセラミックス表面を改質する必要がある²⁾。一般的には、セラミックス表面をメタライズにより予め改質した後、大気中で使用可能な金属ろう材を使用するケースが多いが、この方法では工程が複雑になる問題点がある。一方、Tiをはじめとする活性金属を添加したろう材(活性金属ろう材)を用いると、ろう付と同時に表面改質が進行するためメタライズ工程の省略が可能である。しかし、活性金属の酸化を抑制するため 10^4 Pa程度の高真空中で加熱する必要が出てくる。このレベルの真空を維持したまま加熱可能な真空炉の場合、加熱に少なくとも数時間を要するため、接合部材が長時間高温に曝されてしまう問題点がある。このため、加熱に弱い材料では材質の劣化による歩留まり低下が懸念される。

さらに、多品種少量生産が必要となる高純度セラミックス/金属接合の実用化にあたっては、歩留まりの向上とともに、多品種少量生産に対応したプロセスの確立が必要とされる。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、接合欠陥が生じやすいなどの問題点がある³⁾。特に加熱に弱い材料の場合、長時間の加熱は材質の劣化につながることから、短時間での加熱が可能かつ他品種少量生産に対応したろう付法の開

発が必要とされている。

窒化ホウ素は様々な機能性を有する材料であり、特に六方晶窒化ホウ素(以下、h-BNと表記)は耐熱性に優れるとともに固体潤滑機能も有する⁴⁾。また、粉末冶金により製造される超硬合金(以下、WC-Coと表記)は、金属の中でも低熱膨張かつ高剛性であり、セラミックスと組み合わせる材料として優れた特徴を持つ。しかし、窒化ホウ素と金属とのろう付に関しては一部の研究⁵⁻⁸⁾が行われているのみである。これは、他のセラミックスと比較してh-BNと金属の濡れ性が悪く、ろう付が困難であることに起因する。このことから、h-BNとのろう付が可能となればそれ以外のセラミックスとのろう付は容易に行われることが推測される。

ろう付の際にレーザーを加熱源として用いるレーザーブレイジング⁹⁾は、これまでセラミックス/金属接合に多用されてきた炉内での加熱を必要とせず、局所的な短時間加熱が可能であり、長時間加熱によって劣化する母材のろう付適用が可能となる特徴を持つ。しかし、加熱を行う上で重要となるレーザー加熱条件とろう材加熱温度の相関について、これまでに詳細な検討がなされていないのが現状である。

そこで本研究では、加熱手段とし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ーブレイジングを取り上げ、工具等の小型部品の多品種少量生産に対応した高純度セラミックス/金属接合を確立するために必要な、レーザーを加熱源として用いた場合の加熱温度並びに接合界面の制御を行うことを目的とした。

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)を用い、窒化ホウ素と

^{*}素材開発部

^{**}素材開発部(現 企画情報部)

表 1 レーザ加熱条件

Pulsed YAG Average Output (kW)	0 - 0.134
CW LD Output (kW)	0.02 - 0.1
Pulse frequency (Hz)	100

しては、焼結助剤無添加のホットプレス法にて作製された高純度h-BN(相対密度 82.5%, 純度99mass%以上, 5mm×5mm×3.5mm t)を使用した。緒言でも述べたように、セラミックスの接合には活性材が接合界面の改質や反応に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)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雰囲気中で試料を作製した。

本実験では、加熱源としてレーザーを用いた。レーザー照射条件は、表 1 に示すとおりである。低温域に関しては、レーザー出力の比較的小さな、波長808nmの連続発振半導体レーザーを単独で照射した。連続発振半導体レーザーの最大定格出力以上の加熱には、波長1064nmのNd:YAGパルスレーザーを重畳した同軸照射を用いた。なお、良好な加熱特性を得るため、照射径はjust focusより若干under focus側である0.5mmφとした。

加熱中の温度については、WC-Co基板裏面の温度を熱電対により測定し、h-BNの温度については、最小測定径1mmφの放射温度計(CHINO株式会社製IR-FA 検出素子:InGaAs, 測定波長1.55μm ε:0.8)により試料上面の温度を測定した。試料作製及び温度測定の様式図を図 1 に示す。

作製した試料の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。

せん断強度の測定には、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 の条件にて接合界面に荷重を加えた。測定により得られた荷重を接合部面積で除することで単位面積あたりのせん断強度を算出した。

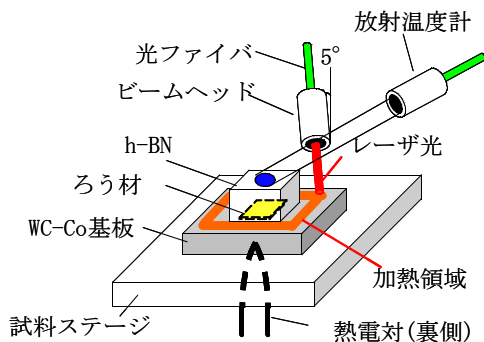


図 1 試料作製・温度測定の様式図

3. 結果及び考察

3. 1 加熱温度の制御と温度測定

WC-Co基板裏面の温度プロファイルを図 2 に示す。レーザー光による局所加熱を用いることにより、数十秒程度の極めて短時間で試料を加熱できることが分かる。また、表 1 に示した条件でレーザー光の出力を制御することにより、図 2 に示すように試料の加熱温度を制御可能となる。WC-Co基板裏面の温度が約600℃以上の場合、ろう材が熔融するとともに、良好な接合が得られた。このときのレーザー照射条件すなわち本研究におけるレーザー加熱の最適条件を表 2 に示す。今回実験に用いたろう材熔融温度は、約800℃であり¹⁰⁾、基板の加熱面と裏面の温度差が約200℃前後生じている。この温度差が生じた原因について、以下のような仮定に基づいて検証を試みた。

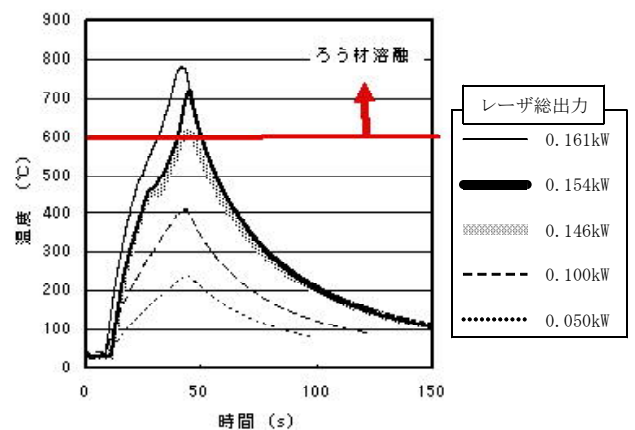


図 2 WC-Co基板裏面の温度プロファイル

表 2 レーザ加熱の最適条件

Pulsed YAG Average Output (kW)	0.134
CW LD Output (kW)	0.02
Pulse frequency (Hz)	100

ここで、熱が超硬合金基板の厚さ方向にのみ一次元的に流れる無限平板に近い状態であると仮定する¹¹⁾。図 3 に示すように厚さ l のWC-Co基板の片面温度(界面の温度)が T_1 、基板裏面温度が T_2 でWC-Coの熱伝導率が λ であるとき、基板内部の温度分布と、基板を通過する熱流速を求めてみる。

一次元、定常状態とすると、熱伝導の基礎方程式は

$$\frac{d^2T}{dx^2} = 0 \tag{1}$$

となる。境界条件は、

$$x = 0 : T = T_1 \quad (2)$$

$$x = l : T = T_2 \quad (3)$$

である。(1)を2度積分すると(積分定数: C_1, C_2)

$$T = C_1 x + C_2 \quad (4)$$

となる。(2), (3)の条件から C_1, C_2 が求められ,

$$T = T_1 - \frac{T_1 - T_2}{l} x \quad (5)$$

となる。すなわち、内部の温度分布は直線分布となる。

また、 x 軸に直角な面を通る熱流速 q [W/m^2] は、

$$q = -\lambda \frac{dT}{dx} = \frac{T_1 - T_2}{l / \lambda} \quad (6)$$

となる。実験結果と文献値から、

$$q = 6.366 \times 10^6 \text{ [W/m}^2\text{]} \quad (7)$$

$$\lambda = 80 \text{ [W/(m K)]} \quad (8)$$

(5)に(6)を代入し、さらに(7), (8)の値を代入すると、

$$T_1 = T_2 + 160 \quad (9)$$

さらに変形して、

$$T_1 - T_2 = 160 \quad (10)$$

となる。この結果と実際の測定結果を比較すると、比較的良好一致を示していることが分かる。すなわち、WC-Co基板裏面で測定された温度がろう材熔融温度と比較して低くなっている要因は、基板部分での温度低下に起因すると推察される。

このことから、局所加熱によるWC-Co基板のろう材熔融温度以上への加熱が可能であることや熱電対による裏面の温度測定が良好に行われていることが明らかとなった。

図4に熱電対によるWC-Co基板裏面の測定温度と、放射温度計によるh-BN上面の測定温度の相関を示す。放射温度計による測定は、接触による温度変化の影響を低減しつつ対象物の温度測定を行うことが可能となる利点を持つ。本研究の場合、熱電対によるWC-Co基板裏面の測定温度に対し、放射温度計を用いたh-BN上面の測定温度は100℃程度高い値であり、正の相関を示していることが分かる。この相関関係から、基板の裏面温度を測定することにより、接合界面の加熱温度を推算できることがわかる。また、h-BN上面の温度がWC-Co裏面の温度より高い値を示している原因として、h-BNとWC-Coの熱伝導率の差(h-BN: 25-40W/(mK), WC-Co: 80W/(mK))による放熱の違いなどが考えられる。

従って、WC-Coを局所加熱することで、h-BNにも熱が伝わることでろう材が熔融し、良好な加熱が可能となることが分かった。また、局所加熱を行う場合、基板裏面の温度を熱電対で測定した予備測定を実施することで、放射温度計による温度測定が実用的なものとなることが推察される。

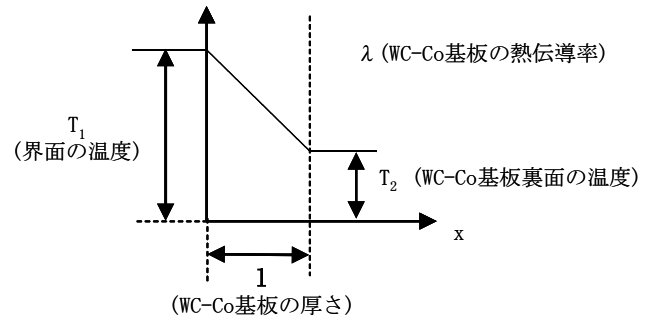


図3 界面の温度とWC-Co基板裏面の温度

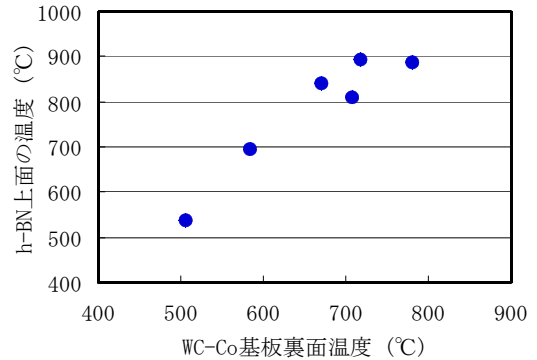


図4 WC-Co基板の裏面温度(熱電対)とh-BN上面の温度(放射温度計)の相関

3. 2 作製試料の接合界面評価及びせん断強度測定

ろう付温度として最も適していると思われる加熱温度は800-900℃の範囲である。この温度域に加熱できる条件で作製した試料から、接合断面評価並びにせん断強度測定を実施した。ここで、接合断面評価に関しては参考文献¹²⁾と同様な結果が得られた。断面の元素分布状況や接合界面の形状、ろう材の密着性ならびに接合面積の測定等の詳細については、こちらを参照されたい。

超音波顕微鏡を用いて接合面積を算出した後、試料のせん断試験を行った。破断は、いずれの試料においてもろう付部近傍のh-BN側より生じていた。

図5に、接合部のせん断強度と累積破壊確率を算出した結果を示す。平均せん断強度は式(11)に示すワイブル分布関数を用いて算出した。

$$\ln \ln(1-F)^{-1} = m \ln \sigma - m \ln \sigma_0 \quad (11)$$

ここで F は累積破壊確率、 m はワイブル係数、 σ_0 は尺度パラメータである。本研究では、式(11)において累積破壊確率 F を計算するために、サンプル数が小さくても比較的信頼できる、メジアン・ランク法を用いた。

$$F = (i - 0.3) / (n + 0.4) \quad (12)$$

ここで n はサンプル数、 i は順序数(データの低い順)である。平均せん断強度 μ は、式(13)を用いて算出した。

$$\mu = \sigma_0 \Gamma(1 + 1/m) \quad (13)$$

ガンマ関数 $\Gamma(x)$ は、式(14)で示される。

$$\Gamma(x) = \int_0^{\infty} e^{-t} t^{x-1} dt \quad (x > 0) \quad (14)$$

得られた平均せん断強度 μ は、6.5MPaであった。また、すべての試料における破断発生部位は接合界面からではなく、h-BN側であった。この原因は、実験に用いた高純度h-BN自体の強度が低いことに起因すると考えられる。また、図5に示すように、ワイブルプロットが直線分布を示すことから、破壊の要因は単一モードを示すと推測される。また、ワイブル係数 m は4.6と比較的低い値を示しており、各強度値の最大値と最小値の差が大きく、広い範囲にわたる強度分布を示していることが分かる。この分布はセラミックスに起因する破壊特有の傾向と考えられる。

従って、h-BNとWC-Coレーザーブレイジング接合におけるせん断破壊は、接合界面からではなく、h-BN母材からの破壊であると示唆される。このことから、接合界面が健全であることが推察される。

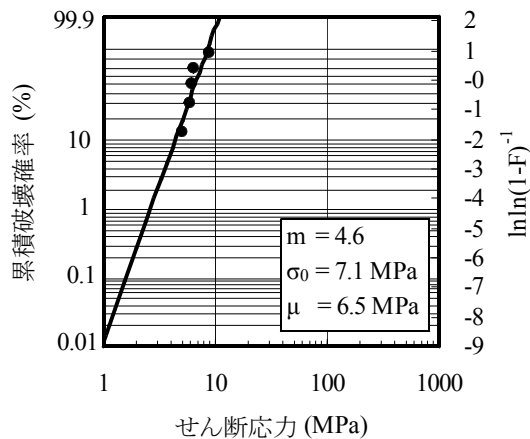


図5 接合部のせん断強度と累積破壊確率

4. 結 言

局所加熱技術を用いたh-BNとWC-Coの異種材料接合を行い、レーザー出力の可変による加熱温度の制御や温度測定手法の比較によるを行うと共に、接合界面の評価や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) WC-Co基板を局所加熱する際のレーザー出力を制御することで、接合界面の温度制御が可能である。その際に、h-BNにも熱が伝わることでろう材が溶融する。

(2) 局所加熱を行う場合、基板裏面の温度を熱電対で測定した予備測定を実施することで、放射温度計による温度測定が実用的なものとなる。

(3) 作製した試料のせん断強度は平均6.5MPaであった。

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、ワイブルプロットの結果から、接合界面が健全であることが示される。

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ならびに文部科学省「全国共同利用附置研究所連携事業（金属ガラス・無機材料接合技術開発拠点）」の一環として行われた。また、研究を進めるにあたって有益な助言を頂いた、大阪大学接合科学研究所所長 中田一博教授、津村卓也助教に謝意を表す。なお、この研究に用いた放射温度計（非接触式温度測定システム）は、財団法人JKAの補助金を受けて導入した機器を利用した。

参 考 文 献

- 1) H. Qun, et. al., Weld. J. , **60** (1981) 17-21.
- 2) Y. Nakao, et. al., ISIJ Int. , **30** (1990) 1142-1150.
- 3) W. Wlosinski, Fueg. Keram. Gla. Met. , (1985) 22-36.
- 4) R. H. Biddulph, Proc. 1st Euro. Symp. Eng. Ceram. , (1985) 45-61.
- 5) J. Felba, et. al., Vac. , **62** (2001) 171-80.
- 6) A. K. Chattopadhyay, et. al., J. Mat. Sci. , **28** (1993) 5887-5893.
- 7) M. G. Nicholas, et. al., J. Mater. Sci. , **25** (1990) 2679-2689.
- 8) S. D. Peteves, Ceramics International, **22** (1996) 527-533.
- 9) H. Hanebuth, et. al., Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng. , **2207** (1994) 146-153.
- 10) Y. Sechi, et. al., Smart Processing Technology, **2** (2008) 27-30.
- 11) 小林清志, 飯田嘉宏: 新版移動論, (1989) 74-75.
- 12) 瀬知啓久, 吉村幸雄: 鹿児島県工業技術センター研究報告 **19** (2005) 33-36.