

学 位 論 文 題 名

セラミックスとアルミニウム合金接合のための 低融点ろう材と応力緩衝構造の開発

学位論文内容の要旨

セラミックスは軽量・高温強度・耐摩耗性・電気絶縁性などに優れた性能を有し、一方、アルミニウム合金は塑性加工や熱処理を行うことにより強度と剛性に優れた特性を発揮する。従って、両者を複合化させることにより、耐摩耗性に優れた軽量材の開発が期待されている。

本論文では、低融点ろう材を開発し、熱応力を緩衝することのできる構造・熱処理手法を開発することによってセラミックスとアルミニウム合金の高強度接合体を得ることを目的として行われたものであり、接合機構の解明とともにこの接合法を用いてセラミック超音波ホーンを開発・実用化している。

本論文は7章より構成されている。

第1章では、セラミックスとアルミニウム合金の特性に関する基礎的特徴を述べた後、両者を接合するために解決すべき課題を抽出し、その工学的背景と本研究の目的について詳述している。本研究のセラミックスとアルミニウム合金のろう付技術の開発において下記4つの課題を挙げ検討を行った。

- ①高強度アルミニウム合金に対して、773K 程度でろう付が可能な低融点ろう材の開発。
- ②実用性を高めるための低融点ろう材の箔化技術の開発。
- ③セラミックスとアルミニウム合金の接合による残留応力を緩和する構造の開発。
- ④セラミックスとアルミニウム合金の接合体の溶体化处理・水冷および時効処理法の開発。

第2章と3章において、上記課題①の項目について、検討した結果を述べている。低融点ろう材の開発において JIS アルミニウム合金ろう材の融点より約 60K 低い Al-27.1Cu-4.7Si 合金に着目し、セラミックスとアルミニウム合金の接合におけるろう材への適用を検討した。接合温度 813K では、接合強度は数 MPa と低いが、833K では約 65MPa の接合強度が得られ、さらに、接合後に 723K の低温後熱処理を施すことにより 813K での接合温度で最大約 65MPa を得ることができた。これらの結果から、本合金がろう材として適用が可能であると判断し、本研究の低融点ろう材の開発における基本組成と決定した。

また、接合強度は、接合温度の上昇や接合後の低温熱処理によって増加するのは、

接合時に界面に形成した Al_2Cu 連続層が分解し、接合界面 Al_2Cu 層が不連続化することに起因する。また、 Al_2Cu 層が不連続化を補助するものとしてアルミニウム合金に微量含まれる Mg が表層の酸化皮膜を破壊し、ろう材成分、特に、 Cu のアルミニウム合金内部への拡散を促進させて Al_2Cu 相の晶出を低減させることを明らかにした。ろう材の基本組成である $\text{Al}-27.1 \text{ mass}\% \text{Cu}-4.7 \text{ mass}\% \text{Si}$ 合金の融点をさらに低下させる第4元素として、 Zn が最適元素であると明らかにした。

第4章では、上記②の項目について、ろう材箔の製造法として液体急冷法を提案し、ろう材箔の製造条件を明らかにした。このろう材箔を用いることにより、窒素中733Kでのアルミニウム合金とセラミックスの接合が約180MPaと高強度で可能となった。 Zn が最適元素であるのは、 Zn が Al に対する Cu の固溶限を増加させ、 Cu のアルミニウム合金内部への拡散を促進するとともに、接合界面 Al_2Cu 層の生成を抑制するためであることを明らかにした。最大接合強度が得られたろう材組成は $\text{Al}-13.6 \text{ mass}\% \text{Cu}-2.4 \text{ mass}\% \text{Si}-50 \text{ mass}\% \text{Zn}$ であった。その固相点および液相点は693Kと697Kであった。接合強度は接合層のアルミニウム母相の硬度と相関があり、硬度が最も低い場合、接合強度は最大値となる。この接合層の硬度について、低 Zn 添加域では Zn は Cu のアルミニウム合金内部への拡散を促進し、接合層の粒界への Al_2Cu 晶出が減少することにより、接合層のアルミニウム母相の硬度は低下し接合強度は高くなる。しかし、50mass% Zn 以上では、 Zn は接合層のアルミニウム母相の硬度を高くするため接合強度を低下させる。つまり Zn と接合強度の相関（メカニズム）が明らかになった。

第5章では、上記③と④について、接合熱処理により焼き鈍された接合体のアルミニウム合金に対する溶体化・水冷および時効処理の手法を検討することにより、高強度接合体の開発を行った。セラミックスとアルミニウム合金の接合においては、熱膨張係数差に起因する残留応力、更には溶体化・水冷および時効処理により負荷される熱応力を低減する応力緩衝構造を検討した。その結果、下記応力緩衝構造と接合後のアルミニウム合金に対する溶体化・水冷処理に部分水冷法を適用することにより、時効処理後も200MPaの接合強度を得ることができ、高強度接合体として構造材への適用が可能となった。

セラミック/A1050 (厚さ 0.5mm) /A5052 (厚さ 0.5mm) /A2024

また、アルミニウム合金 A2024 と A7075 との接合比較検討において、A7075 との接合では強度が大幅に低下することが分かった。これは、A2024 より A7075 の熱膨張係数が大きいこと、更には熱処理における A7075 の寸法変化が A2024 より大きく、残留応力が大きいため接合強度を低下させたと考えられた。

第6章では、このように新規の低融点ろう材および接合技術を応用し、製品化したセラミック超音波ホーンについて紹介し、アルミニウム合金の特性を生かし、弱点である耐摩耗性をセラミックスで改善した事例を示した。

第七章は、本論文の総括である。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 成 田 敏 夫
副 査 教 授 毛 利 哲 雄
副 査 教 授 大 貫 惣 明
副 査 教 授 黒 川 一 哉

学 位 論 文 題 名

セラミックスとアルミニウム合金接合のための 低融点ろう材と応力緩衝構造の開発

セラミックスは軽量・高温強度・耐摩耗性・電気絶縁性などに優れた性能を有し、一方、アルミニウム合金は塑性加工や熱処理を行うことにより強度と剛性に優れた特性を発揮する。従って、両者を複合化させることにより、耐摩耗性に優れた軽量材の開発が期待されている。

本論文では、セラミックスとアルミニウム合金の特性に関する基礎的特徴を述べた後、両者を接合するために解決すべき課題を抽出し、その工学的背景と本研究の目的について詳述している。低融点ろう材を開発し、熱応力を緩衝することのできる構造・熱処理手法を開発することによってセラミックスとアルミニウム合金の高強度接合体を得ることを目的として行われたものであり、接合機構の解明とともにこの接合法を用いてセラミック超音波ホーンを開発・実用化している。

本研究では、セラミックスとアルミニウム合金のろう付技術の開発において解決すべき下記の4課題を抽出し、実験的に検討した。

- ①高強度アルミニウム合金に対して、773K程度でろう付が可能な低融点ろう材の開発。
- ②実用性を高めるための低融点ろう材の箔化技術の開発。
- ③セラミックスとアルミニウム合金の接合による残留応力を緩和する構造の開発。
- ④セラミックスとアルミニウム合金の接合体の溶体化处理・水冷および時効処理法の開発。

上記課題①の低融点ろう材の開発において JIS アルミニウム合金ろう材の融点より約 60K 低い Al-27.1Cu-4.7Si 合金に着目し、セラミックスとアルミニウム合金の接合におけるろう材への適用を検討した。接合温度 813K では、接合強度は数 MPa と低い、833K では約 65MPa の接合強度が得られ、さらに、接合後に 723K の低温後熱処理を施すことにより 813K での接合温度で最大約 65MPa を得ることができることを示した。これらの結果から、本合金がろう材として適用が可能であると判断し、本研究の低融点ろう材の開発における基本組成と決定した。また、接合強度は、

接合温度の上昇や接合後の低温熱処理によって増加するのは、接合時に界面に形成した Al_2Cu 連続層が分解し、接合界面 Al_2Cu 層が不連続化することに起因することを提案している。また、 Al_2Cu 層が不連続化を補助するものとしてアルミニウム合金に微量含まれる Mg が表層の酸化皮膜を破壊し、ろう材成分、特に、 Cu のアルミニウム合金内部への拡散を促進させて Al_2Cu 相の晶出を低減させることを明らかにした。ろう材の基本組成である $Al-27.1\text{ mass}\%Cu-4.7\text{ mass}\%Si$ 合金の融点をさらに低下させる第4元素として、 Zn が最適元素であると明らかにしている。

上記②の項目、ろう材箔の製造法、として液体急冷法を提案し、ろう材箔の製造条件を明らかにした。このろう材箔を用いることにより、窒素中 733K でのアルミニウム合金とセラミックスの接合が約 180MPa と高強度で可能となった。 Zn が最適元素であるのは、 Zn が Al に対する Cu の固溶限を増加させ、 Cu のアルミニウム合金内部への拡散を促進するとともに、接合界面 Al_2Cu 層の生成を抑制するためであることを明らかにした。最大接合強度が得られたろう材組成は $Al-13.6\text{ mass}\%Cu-2.4\text{ mass}\%Si-50\text{ mass}\%Zn$ であった。その固相点および液相点は 693K と 697K であった。接合強度は接合層のアルミニウム母相の硬度と相関があり、硬度が最低のとき接合強度は最大値となることを明らかにしている。この接合層の硬度について、低 Zn 添加域では Zn は Cu のアルミニウム合金内部への拡散を促進し、接合層の粒界への Al_2Cu 晶出が減少することにより、接合層のアルミニウム母相の硬度は低下し接合強度は高くなることをいあんでいる。しかし、50mass% Zn 以上では、 Zn は接合層のアルミニウム母相の硬度を高くするため接合強度を低下させる。つまり Zn と接合強度の相関（メカニズム）性を明らかにした。

上記③と④について、接合熱処理により焼き鈍された接合体のアルミニウム合金に対する溶体化・水冷および時効処理の手法を検討することにより、高強度接合体の開発を行った。セラミックスとアルミニウム合金の接合においては、熱膨張係数差に起因する残留応力、更には溶体化・水冷および事項処理により負荷される熱応力を低減する応力緩衝構造を検討した。その結果、下記応力緩衝構造と接合後のアルミニウム合金に対する溶体化・水冷処理に部分水冷法を適用することにより、時効処理後も 200MPa の接合強度を得ることができ、高強度接合体として構造材への適用が可能となった。

セラミック/A1050（厚さ 0.5mm）/A5052（厚さ 0.5mm）/A2024

また、アルミニウム合金 A2024 と A7075 との接合比較検討において、A7075 との接合では強度が大幅に低下することが分かった。これは、A2024 より A7075 の熱膨張係数が大きいこと、更には熱処理における A7075 の寸法変化が A2024 より大きく、残留応力が大きいため接合強度を低下させることを明らかにした。本研究で提案した低融点ろう材および接合技術を応用し、アルミニウム合金の特性を生かし、弱点である耐摩耗性をセラミックスで改善した事例として、セラミック超音波ホーンを開発した。

これを要するに、著者は、低融点ろう材とその接合技術を開発することによってアルミニウム合金/セラミック製超音波ホーンの開発に成功したもので、セラミックス材料と接合工学に貢献するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格あるものと認める。