

Title	固相接合によるSiCセラミックスと金属の接合体における界面反応機構に関する研究
Author(s)	深井, 卓
Citation	大阪大学, 2000, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/42131">https://hdl.handle.net/11094/42131</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名	深井卓 <small>たかし</small>
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第 15440 号
学位授与年月日	平成12年3月24日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科生産加工工学専攻
学位論文名	固相接合による SiC セラミックスと金属の接合体における界面反応機構に関する研究
論文審査委員	(主査) 教授 奈賀 正明  (副査) 教授 小林紘二郎 教授 西本 和俊 教授 松縄 朗

### 論文内容の要旨

本論文は、SiC と金属界面における各反応相の形成過程、成長挙動、拡散経路およびその接合体の強度について研究した結果をまとめたものであり、以下の10章から構成されている。

第1章は緒論であり、これまでの研究現状および本研究の目的と研究内容を述べている。

第2章では、本研究で用いた固相接合方法と実験装置について説明している。

第3章では、V 箔と SiC の固相接合を行い、SiC と V の界面における反応生成物の形成過程を解明し、各反応層について成長の見かけの活性化エネルギー  $Q$  と速度定数  $k_0$  を求め、各相の成長速度を明らかにしている。拡散経路は  $\text{SiC}/\text{V}_3\text{Si}_3\text{Cx}/\text{V}_3\text{Si}/\text{V}_2\text{C}+\text{V}/\text{V}$  であり、従来の三元状態図を訂正し、さらに、SiC 側の界面に  $\text{V}_3\text{Si}_3\text{Cx}$  が形成され、成長すると強度は低下することを明らかにし、その接合最適条件を見い出している。

第4章では、 $\alpha\text{Fe}$  箔と SiC の固相接合を行い、反応生成物の形成過程を解明し、拡散経路は  $\text{SiC}/\text{Fe}_3\text{Si}+\text{C}/\text{Fe}_3\text{Si}/\text{Fe}$  であることを明らかにしている。また、各反応相の  $Q$  と  $k_0$  の値を求め、 $\text{Fe}_3\text{Si}+\text{Graphite}$  の形成により  $\text{Fe}_3\text{Si}$  の成長速度が遅くなることを明らかにしている。また、接合体の強度は、 $\text{Fe}_3\text{Si}+\text{Graphite}$  混合層の厚さに依存することを示している。

第5章では、Co 箔と SiC の固相接合を行い、反応生成物の形成過程を調べ、各反応相の成長速度を解明している。拡散経路は  $\text{SiC}/\text{CoSi}+\text{C}/\alpha\text{Co}_2\text{Si}+\text{C}/\alpha\text{Co}_2\text{Si}/\alpha\text{Co}(\text{Si})/\text{Co}$  であり、接合強度については、SiC 側に CoSi 層が形成されると著しく低下し、反応相の層厚さに依存することを明らかにしている。

第6章では、Ni 箔と SiC の固相接合を行い、反応生成物の形成過程を解明している。拡散経路は  $\text{SiC}/\text{Ni}_2\text{Si}+\text{C}/\text{Ni}_3\text{Si}_2+\text{C}/\text{Ni}_3\text{Si}/\text{Ni}$  であり、また層中の  $\text{Ni}_3\text{Si}_2$  相は  $(10\bar{1}0)$  面が界面に平行になるように、面内回転しながら界面に垂直方向、即ち  $[10\bar{1}0]$  方向に優先成長していることを見い出している。さらに、接合体強度は、反応相全体の層厚さに依存するが、優先成長相がクラックの伝播を妨げ、高い強度が得られることを明らかにしている。

第7章では、Zr 箔と SiC の固相接合を行い、反応生成物の形成過程を調べ、各反応相の成長挙動を解明している。拡散経路は  $\text{SiC}/\text{ZrC}/\text{Zr}_5\text{Si}_3\text{Cx}/\text{Zr}_2\text{Si}/\text{ZrCx}/\text{Zr}$  であり、また、接合体の強度は、反応相の層厚さに依存するが、 $\text{Zr}_5\text{Si}_3\text{Cx}$  相と  $\text{Zr}_2\text{Si}$  相の界面構造が六方晶/正方晶であるために整合性が悪く、他の系に比べて著しく低いことを明らかにしている。

第8章では、高強度の得られた  $\text{SiC}/\text{Ni}/\text{SiC}$  接合体に注目し、界面に形成される反応層を制御する事を目的とし

ている。接合にはNiとSiCの界面に、反応性の低いMoを挿入し、SiC/Mo/Ni/SiCおよびSiC/Mo/Ni/Mo/SiC接合体を作製している。これにより、SiC/Ni接合体において、Niケイ化物の反応を抑制するには、Moが有効であり、イオンスパッタ法でMoの厚さを薄くすることにより、SiCと整合性の良い界面が得られることを明らかにしている。

第9章では、本研究の結果とこれまでに報告された他の金属、特にIVa (Ti)、Va (Nb, Ta)、VIa (Cr, Mo, W) 族の金属を含めた各種金属とSiCの反応機構、拡散経路、界面反応相の層配列形態、反応性を統一的に検討している。さらに、SiCと金属接合体の強度に及ぼす界面層構造の影響について明らかにしている。

第10章では、本研究で得られた結果をまとめ、総括している。

## 論文審査の結果の要旨

本論文では、セラミックス (SiC) と金属 (IVa, Va, VIa) 接合体において、SiC/金属界面の層構造および反応相の形成過程、成長挙動を明らかにすると共に、接合体強度における界面層構造の制御について検討したものであり、本研究の成果を要約すると以下の通りである。

- (1) SiCと炭化物形成元素M (V, Zr)との反応において、界面に形成される生成相は、炭化物 ( $V_2C$ 、VC、 $ZrCx$ 、 $ZrC$ )、ケイ化物 ( $V_3Si$ 、 $Zr_2Si$ ) および三元化合物T相 ( $V_5Si_3Cx$ 、 $Zr_5Si_3Cx$ ) が非同時に形成されることを明らかにしている。すなわち、金属側に粒状 (塊状) の炭化物相 ( $V_2C$ 、 $ZrCx$ )、SiC側に層状のケイ化物相 ( $V_3Si$ 、 $Zr_2Si$ ) が形成される。その後、SiCとケイ化物 ( $V_3Si$ 、 $Zr_2Si$ ) 相の間に、層状の三元化合物 ( $V_5Si_3Cx$ 、 $Zr_5Si_3Cx$ ) および層状の炭化物 ( $ZrC$ ) が形成され、これにより界面に形成される全ての反応相が出現し、SiCと金属間に拡散経路が完成することを見出している。
- (2) SiCと非炭化物形成元素であるM (Fe, Co, Ni) においては、各種ケイ化物 ( $M_3Si$ 、 $Ni_{11}Si_{12}$ 、 $M_2Si$ 、 $CoSi$ ) が形成されることを明らかにしている。すなわち、SiC側にはグラファイト (G) を含む各種ケイ化物層 ; ( $M_3Si$ 、 $Ni_{11}Si_{12}$ 、 $M_2Si$ 、 $CoSi$ ) + G 混合層が生成し、金属側には、各種ケイ化物単層が形成される。FeおよびNiにおいては、反応初期段階で拡散経路が完成し、その後、既存の各反応層の厚みのみが変化することを示している。一方、Coの場合、高温側で $CoSi$ +Graphite混合層がSiC側に形成され、拡散経路は完成することを見出している。
- (3) 反応層成長現象について、各反応系の反応層全体の成長は放物線則が成立することを明らかにしている。SiCと金属の固相接合において、IVa, Va, VIa族の金属については、 $Ti > V \geq Cr > Mo > Zr > Nb > Ta$ の順にSiCとの反応性が高いことを見出している。すなわち、同一周期、同一族では、原子番号の小さい原子ほど形成される化合物が熱力学的に安定であり、成長速度も速く、反応性は高いことを明らかにしている。一方、非炭化物形成元素であるVIII族 (Fe, Co, Ni) の金属では、 $Fe > Ni > Co$ の順に反応性が高いことを見出している。また、非炭化物形成元素 (Fe, Co, Ni) の方が、炭化物形成元素 (V, Zr) より反応性が高いことを示している。
- (4) SiCと各金属接合体のせん断強度については、いずれの系においても、界面相がある厚さの場合にSiC/金属接合体は最大強度を示し、その厚さ以上になると強度が低下することを示している。この反応層の最適条件は、各系において、形成される化合物の種類によって異なり、層中のクラック (空孔) 等の欠陥の生成量および各化合物とSiCの熱膨張係数差に依存することを明らかにしている。また、SiC/金属接合体の中で、Ni系が最も高い強度を示しており、これは、優先成長した $Ni_{11}Si_{12}$ 相が破壊のクラックの伝播を妨げるためであり、従って、接合体の最適強度を得るには、反応層の厚さとその反応相の種類の制御および界面に対する結晶方位の制御も重要であることを明らかにしている。

以上のように、本論文は、固相接合によるSiCセラミックスと各種金属 (V, Zr, Fe, Co, Ni) の接合体について、各反応相の形成過程、成長挙動、拡散経路および接合体の強度に及ぼす界面相構造の変化等について明らかにしている。さらに、IVa (Ti)、Va (Nb, Ta)、VIa (Cr, Mo, W) 族の金属を含めた各種金属とSiCの反応機構、拡散経路、界面反応相の層配列形態、反応性を統一的に検討している。これらは、SiCと金属接合体の界面反応機構、相成長挙動、界面層構造と接合体強度の関係を理解する上で基礎となり得るもので、接合科学に新しい知見を与えるものとして生産加工工学に寄与するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。