



Title	Si3N4接合用Ni-Si-Tiろう合金の開発と接合性評価
Author(s)	高瀬, 秀樹
Citation	大阪大学, 2006, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/46817">https://hdl.handle.net/11094/46817</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。

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

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

The University of Osaka

氏名	高瀬秀樹
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第 20312 号
学位授与年月日	平成 18 年 3 月 24 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当 工学研究科機械システム工学専攻
学位論文名	$\text{Si}_3\text{N}_4$ 接合用 Ni-Si-Ti ろう合金の開発と接合性評価
論文審査委員	(主査) 教授 奈賀 正明 (副査) 教授 久保 司郎 教授 澁谷 陽二 教授 池内 建二

#### 論文内容の要旨

本論文は耐熱性の高い Ni 系ろう合金の開発とその  $\text{Si}_3\text{N}_4$  に対する接合性を、ろう合金の  $\text{Si}_3\text{N}_4$  に対する接触角測定および、それらろう合金を用い作製された  $\text{Si}_3\text{N}_4$  同士接合体または  $\text{Si}_3\text{N}_4$  と金属の接合体のせん断強度測定より、評価したもので、以下の 6 章より構成された。

第 1 章の緒言では、セラミックスのろう付け方法について概説し、従来のセラミックス接合用ろう合金の研究について概観した。さらに従来のろう合金の問題点を示したのち、本研究の目的について述べた。

第 2 章は開発したろう合金とその接合性評価のための接触角測定法、ろう付け法、作製した接合体の機械的性質の評価法および界面の分析法について述べた。

第 3 章では、高価な Ag を含まない Cu-5Si-XTi (X=3, 5, 10, 15) ろう合金の開発とその  $\text{Si}_3\text{N}_4$  に対する接合性を評価した。ろう合金中の Ti 添加量が、3 at% 以上の Cu-ろう合金は、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  を濡らし、接合に用いられることを明らかにした。Cu-5Si-XTi ろう合金を用いた  $\text{Si}_3\text{N}_4$  接合体強度は、Ti 量と共に増加することを示した。また、ろう合金中の Ti 増加にともなう溶融合金中の Ti と  $\text{Si}_3\text{N}_4$  との反応により  $\text{Si}_3\text{N}_4$  の界面付近に生成される TiN と  $\text{Ti}_5\text{Si}_3$  の量が増加し、これに伴い接合強度が上昇することを明らかにした。

第 4 章では、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  接合用 Ni-Si-Ti ろう合金を開発するために、Ni-Si-Ti 系三元合金の液相面を調べた。そして Si 量を 20 at% と一定とし、Ti 量を 5 at% から 15 at% まで変化させた耐熱性の高い Ni-20Si-XTi (X=5, 7.5, 10, 12.5, 15) ろう合金の開発について述べた。また、Ti 量が 7.5 at% 以上で  $\text{Si}_3\text{N}_4$  を濡らすこと、および、Ni-20Si-XTi ろう合金を用いて作製した  $\text{Si}_3\text{N}_4$  接合体のせん断強度は、合金中の Ti 量が 10 at% で 282 MPa の最高値を示すことを明らかにした。さらに Ni-20Si-10Ti ろう合金を用い  $\text{Si}_3\text{N}_4$  と金属とのろう付けを行い、開発された Ni ろう合金は優れた実用性を持つことを明らかにした。また、Ni-20Si-10Ti ろう合金を用いた  $\text{Si}_3\text{N}_4$  接合体の高温強度は、673 K まで徐々に上昇し、試験温度 973 K においても室温の 282 MPa より高い 330 MPa の値を維持しており、その  $\text{Si}_3\text{N}_4$  接合体は 973 K においても良好な耐熱性を持つことを示した。すなわち、Cu-5Si-10Ti ろう合金にくらべ、Ni-20Si-10Ti ろう合金を用いた  $\text{Si}_3\text{N}_4$  接合体は、良好な耐熱性を示すことを明らかにした。

第 5 章では、Ni-20Si-10Ti ろう合金を用いて作製した  $\text{Si}_3\text{N}_4$  接合体が高い強度を示す理由として、2 種類の効果があることを明らかにした。すなわち第一には、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  接合体における接合層の厚さは約  $50 \mu\text{m}$  と薄く、接合層の厚さの効果が存在すること明らかにした。第二には、Ti 量の増加にともなう  $\tau_4\text{-Ni}_{16}\text{Si}_6\text{Ti}_7$  相の増加による接合層の機

械的性質の改善効果があることを明らかにした。

## 論文審査の結果の要旨

近年、機械工業やエネルギー分野において使用エネルギーの効率化のために高温に耐えるセラミックスと金属材料を組み合わせ、より性能の良い機械部品を生み出す接合技術の開発が要求されている。本論文では、まずこれまで使用されている高価な Ag を含まない Cu-Si-Ti ろう合金を開発し、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  に対する接合性を調べるとともに、より耐熱性の高い Ni-Si-Ti ろう合金を開発し、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  に対する接合性を接触角測定と開発したろう合金を用いて作製した  $\text{Si}_3\text{N}_4$  接合体のせん断強度測定より明らかにしている。また、作製した  $\text{Si}_3\text{N}_4$  接合体が優れたせん断強度を示す機構を解明している。

まず、Si 量を 5 at% と一定とし、Ti 添加量が 3 at% 以上の Cu-Si-Ti ろう合金は、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  を濡らし、接合に用いられることを明らかにしている。また、ろう合金中の Ti 増加にともない溶融合金中の Ti と  $\text{Si}_3\text{N}_4$  との反応により  $\text{Si}_3\text{N}_4$  の界面付近に生成される TiN と  $\text{Ti}_5\text{Si}_3$  の量が増加し、接合強度が上昇することを明らかにしている。

次に、Ni-Si-Ti 系三元合金の液相面を調べることにより Si 量を 20 at% と一定とし、Ti 量を 5 at% から 15 at% まで変化させた耐熱性の高い Ni-20Si-XTi ろう合金の開発している。また、Ti 量が 7.5 at% 以上で  $\text{Si}_3\text{N}_4$  を濡らすことを明らかにするとともに、Ni-20Si-XTi ろう合金を用いて作製した  $\text{Si}_3\text{N}_4$  接合体のせん断強度は、合金中の Ti 量が 10 at% で 282 MPa の最高値を示すことを明らかにしている。

また、Ni-20Si-10Ti ろう合金を用いた  $\text{Si}_3\text{N}_4$  接合体の高温強度は、試験温度とともに徐々に上昇し、試験温度 973 K においても室温強度より高い 330 MPa の値を維持しており、その  $\text{Si}_3\text{N}_4$  接合体は 973 K においても良好な耐熱性を持つことを示している。すなわち、Cu-Si-Ti ろう合金にくらべ、Ni-Si-Ti ろう合金を用いた  $\text{Si}_3\text{N}_4$  接合体は、良好な耐熱性を示すことを明らかにしている。

さらに Ni-20Si-10Ti ろう合金を用い  $\text{Si}_3\text{N}_4$  と金属とのろう付けを行い、開発された Ni ろう合金は優れた実用性を持つことを明らかにしている。

Ni-Si-Ti ろう合金を用いて作製した  $\text{Si}_3\text{N}_4$  接合体が高い強度を示す理由として、2 種類の効果があることを明らかにしている。すなわち第一には、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  接合体における接合層の厚さは約  $50\ \mu\text{m}$  と薄く、接合層の厚さの効果が存在すること明らかにしている。第二には、Ti 量の増加にともなう  $\tau_4\text{-Ni}_{16}\text{Si}_6\text{Ti}_7$  相の増加による接合層の機械的性質の改善効果があることを明らかにしている。

以上のように、本論文は耐熱性の高いセラミックス接合用 Ni-Si-Ti ろう合金を開発し、それら合金の  $\text{Si}_3\text{N}_4$  に対する接合性を濡れ性および接合強度より学術的に明らかにするとともに、セラミックスの工学的な実用性を高めるのに貢献するものである。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。