

Ag-Cu ろうによりろう付けした $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}_3\text{N}_4$ 接合体の接合特性と 界面構造に及ぼす活性金属の影響

森園靖浩・中田隆司*・西田 稔・千葉 昂

熊本大学工学部材料開発工学科, 860 熊本市黒髪 2-39-1

*熊本大学大学院生, 860 熊本市黒髪 2-39-1

Effect of Active Metal on Bonding Characteristics and Interfacial Structure of the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}_3\text{N}_4$ Joints Brazed by Ag-Cu Filler Metal

Yasuhiro MORIZONO, Takashi NAKATA*, Minoru NISHIDA and Akira CHIBA

Department of Materials Science and Resource Engineering, Faculty of Engineering, Kumamoto University,
2-39-1, Kurokami, Kumamoto-shi 860

*Graduate Student, Kumamoto University, 2-39-1, Kurokami, Kumamoto-shi 860

[Received January 11, 1995, Accepted May 12, 1995]

Joining of Si_3N_4 to Si_3N_4 was carried out using Ag-Cu filler metal containing Ti, Zr, V and Nb as an active metal. Bonding treatment was performed at 1173 to 1473 K for 1h in a vacuum. The shear strengths of the joints brazed at 1173 to 1473 K using active filler metals containing Ti and Zr were 150 to 250 MPa. The fracture position of the joints after shear test was the filler metal or mixture of the filler metal and Si_3N_4 . On the other hand, the average shear strengths of the joints brazed at 1373 K using active filler metals containing V and Nb were 144 and 163 MPa, respectively. The fracture position of the joints using these filler metals was the interface between filler metal and Si_3N_4 in all cases. The active filler metals containing Ti and Zr yielded TiN and ZrN fine grains close to the Si_3N_4 . No fine grains were observed in the joint using active filler metal containing V and coarse columnar grains of V_3Si were observed. Therefore, it is concluded that the fine grains of the nitrides formed close to the Si_3N_4 is responsible for the substantial bonding between filler metal and Si_3N_4 .

Key-words: Si_3N_4 , Ag-Cu filler metal, Active metal, Nitride, Silicide, Fine grains

1. 緒 言

セラミックスは、一般に高温強度、耐食性、耐摩耗性に優れていることから、その製造技術の向上に伴い、高温構造用材料として利用されている。しかしながら、靱性や加工性に欠けるという難点をもつため、実際の応用では、靱性に富む金属材料あるいはセラミックス同士を接合して用いることが必要となる。このため、セラミックスの接合には種々の方法が提案され¹⁾、その中でも Ti などの活性金属を含有したろう材を用いる活性金属ろう付け法は、比較的容易な接合プロセスであるとともに高い接合強度が得られることから、幅広く利用されている。

活性金属ろう付け法による Si_3N_4 の接合には、Ag-Cu-Ti や Cu-Ti をはじめ、多くのろう材が使用されている²⁾。

しかしながら、ろう材- Si_3N_4 間の接合性や反応に関する研究は主に Ti を活性金属として用いたろう材に対して行われ^{3)~6)}、V など他の活性金属を含むろう材については報告が少ない状況にある⁷⁾。したがって、 Si_3N_4 の接合に対するろう材中の活性金属の効果をj知るためには、Ti 以外の活性金属を含むろう材についても、接合特性と Si_3N_4 近傍に生成する反応相の種類や形態との関係を明らかにする必要がある。

本報では、VA 族の Ti, Zr, VA 族の V, Nb の 4 種類の活性金属を含む Ag-Cu ろう材により $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}_3\text{N}_4$ 接合体を作製し、接合強度と界面構造の観点から、活性金属の有効性を比較検討したので、その結果を報告する。

2. 実験方法

2.1 接合体の作製

Si_3N_4 は 7 mm × 7 mm × 5 mm の形状の常圧焼結体（東芝製、トスナイト）であり、接合面を 9 μm のダイヤモンドペーストで研磨し、脱脂後、接合実験に供した。

ろう材として、2 枚の 0.15 mm 厚さの Ag-Cu 板（日本電球工業製、BAG-8）の間に 20~25 μm 厚さの Ti, Zr, V, Nb の各金属箔（日本電球工業製）を挿入して用いた。

接合は、 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Ag-Cu}/\text{金属箔}/\text{Ag-Cu}/\text{Si}_3\text{N}_4$ の順に Mo 製治具に固定後、真空横型加熱炉にて 1173~1473 K, 1h の条件で行った。加熱速度は 10 K/min であり、接合後は室温まで炉冷した。

2.2 強度試験及び破面の X 線回折

接合強度は、インストロン型引張試験機を用いて、室温でせん断試験により評価した。試験時のクロスヘッドスピードは 0.5 mm/min である。

更に、試験後の破面について X 線回折（島津製作所製、XD-3）を行い、反応生成物を同定した。

2.3 界面組織の観察

光学顕微鏡観察及び電子プローブ X 線マイクロアナライザー（EPMA：島津製作所製、EMX-SM）組成分析を

行うため、試料を界面に垂直に切断後、 $3\ \mu\text{m}$ のダイヤモンドペーストで研磨し、鏡面に仕上げた。

Si_3N_4 に接して形成される反応層の層厚測定は光学顕微鏡写真を用いて行った。反応層厚は、一つの試料につき任意の6個所を測定し、2個の試料の平均とした。

また良好な接合強度を示した接合体については、ろう材/ Si_3N_4 界面における反応生成物の同定及びその形態を調べるため、透過型電子顕微鏡 (TEM) 観察を行った。接合後の試料を界面に垂直に厚さ約 $0.5\ \text{mm}$ に切断し、ダイヤモンドペーストにより厚さ約 $0.15\ \text{mm}$ まで研磨後、超音波加工機を用いて $3\ \text{mm}\phi$ のディスク状に打ち抜いた。更に、これを Ar^+ イオン研磨してTEM試料とした。観察には日本電子製JEM-2000FX (加速電圧: $200\ \text{kV}$) を使用した。

3. 結果及び考察

3.1 Ti 及び Zr を用いた接合体の強度と界面組織

図1にAg-Cu+Tiろう材 (以下、活性金属の種類によってTiろう材等と略記する) 及びZrろう材を用いた接合体のせん断強度と接合温度との関係を示す。せん断試験は一つの接合条件につき3回行い、その平均値を図中に示した。Tiろう材では、 $1173\sim 1373\ \text{K}$ で接合した試料は $225\sim 250\ \text{MPa}$ のはば一定した高い強度を示すが、高温側の $1473\ \text{K}$ で $205\ \text{MPa}$ に幾分低下する。一方、Zrろう材の場合、接合温度が $1173\ \text{K}$ では強度値は $196\ \text{MPa}$ であり、 $1273\ \text{K}$ になると $163\ \text{MPa}$ に低下する。また、 $1373\ \text{K}$ で接合した試料は本研究における最高強度である $265\ \text{MPa}$ を示すが、 $1473\ \text{K}$ では $159\ \text{MPa}$ に再び低下する。この結果、Zrろう材を用いた接合体の強度はTiろう材の場合に比べて接合温度に影響されやすいことが分かる。

本研究におけるせん断試験後の接合体の破断箇所は、 Si_3N_4 内部で破断した場合を除くと、模式的に図2のような4種類に分類される。図中の(I)はろう材内部からの破断、(II)は Si_3N_4 の破壊を伴うろう材内部からの破断、(III)及び(IV)はろう材/ Si_3N_4 界面からの破断を示す。Ti

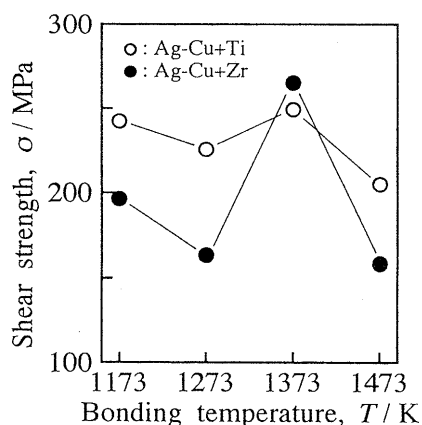


Fig. 1. Shear strength of the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}_3\text{N}_4$ joints brazed at 1173 to $1473\ \text{K}$ for $1\ \text{h}$ using Ag-Cu+Ti and Ag-Cu+Zr active filler metals.

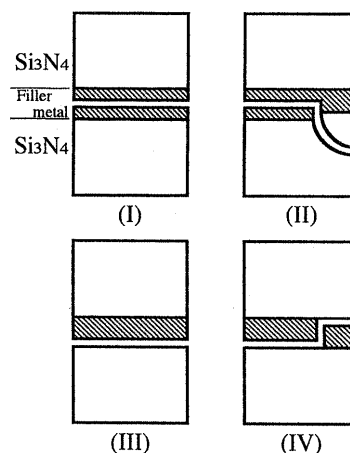


Fig. 2. Schematic illustrations of fracture position of the brazed $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}_3\text{N}_4$ joints after shear strength test; (I) filler metal, (II) mixture of filler metal and Si_3N_4 , (III) and (IV) the interface between filler metal and Si_3N_4 .

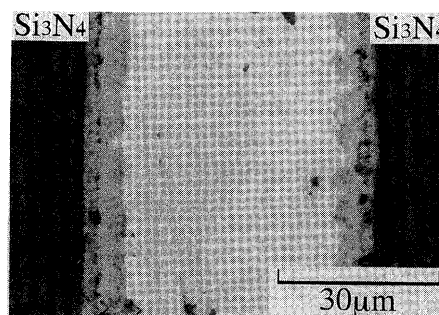


Fig. 3. Optical micrograph of the interface in the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}_3\text{N}_4$ joint brazed at $1473\ \text{K}$ for $1\ \text{h}$ using Ag-Cu+Ti active filler metal.

ろう材及びZrろう材を用いた接合体における破断箇所は Si_3N_4 内部や(I)、(II)のタイプであり、強固なろう材/ Si_3N_4 界面が形成されていると考えられる。

図3は、Tiろう材を用いて $1473\ \text{K}$ で接合した試料の界面の光学顕微鏡写真である。すべての接合温度において、あらかじめ挿入したTi箔は熔融し、 Si_3N_4 に接して反応層を形成する。この反応層は、 $1273\ \text{K}$ 以下では単一層として観察されたが、 $1373\ \text{K}$ 以上になると図中に見られるように2種類の反応層が認められる。図4は、 $1473\ \text{K}$ で接合した試料の界面のEPMAによる面分析結果である。図中(a)は二次電子像、(b)~(e)はTi, Ag, Cu, Siの特性X線像である。図3に見られる2種類の反応層に相当するTi分布の変化が図4(b)に認められる。 Si_3N_4 側の反応層では、Ti濃度が高いことより、TiNが主に生成していると考えられる。一方、Ti濃度が低い反応層にはAg, Cu, Siの分布も認められる。この反応層の領域では、AgやCuは共晶組織に相当する分布を示すことから、Tiケイ化物がAg-Cu共晶と混在した状態にあると思われる。ここで、TiNと考えられる反応層の厚さは $1373\ \text{K}$ では約 $1\ \mu\text{m}$ 、 $1473\ \text{K}$ では約 $3\ \mu\text{m}$ である。接合温度が $1273\ \text{K}$ 以下の場合、この反応層は非常に薄いため、光学顕微鏡観察

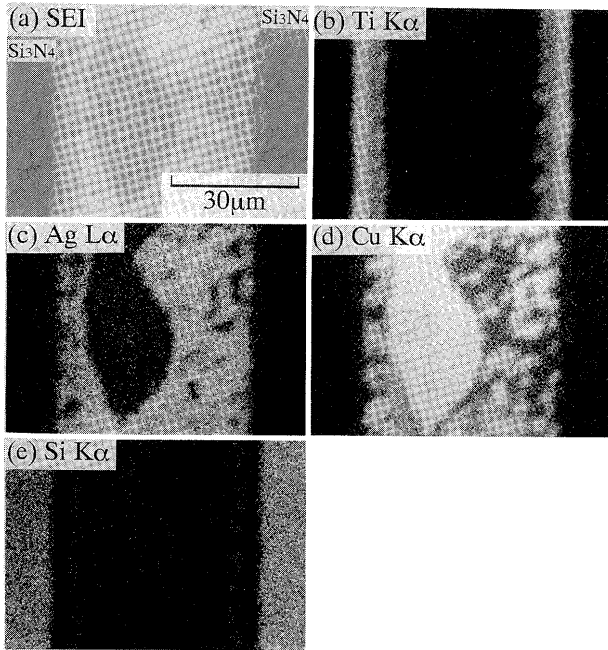


Fig. 4. EPMA micrographs of the interface in the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}_3\text{N}_4$ joint brazed at 1473 K for 1h using Ag-Cu+Ti active filler metal; (a) secondary electron image, (b) Ti $K\alpha$ image, (c) Ag $L\alpha$ image, (d) Cu $K\alpha$ image, (e) Si $K\alpha$ image.

では Ti ケイ化物に相当する領域のみが認められた。

図 5 は、Ti ろう材を用いた接合体のせん断試験後の破面の X 線回折結果であり、(a) は接合温度が 1173 K、(b) は 1473 K である。両者の場合とも、Ag や Cu の回折強度が大きいことから、大部分は Ag-Cu 共晶からの破断と考えられるが、反応層を構成する Ti 窒化物や Ti ケイ化物のピークも認められる。1173 K で見られる TiSi_2 のピークは接合温度の上昇とともに減少する一方、1473 K では TiN の (111) 回折ピークがはっきりと認められる。また、図 4 (b) の Ti 濃度が低い反応層には Ti ケイ化物として

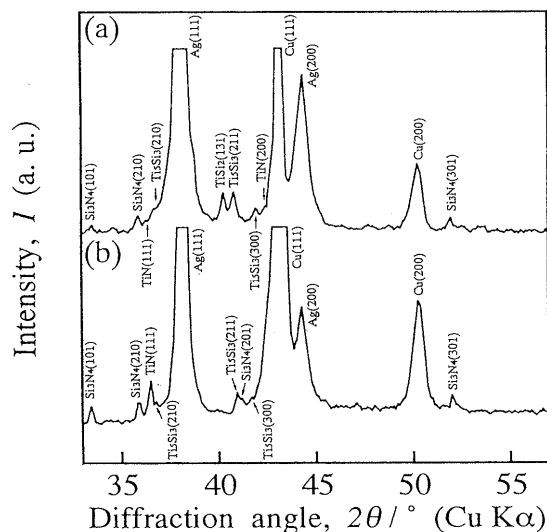


Fig. 5. X-ray diffraction patterns of fracture surface of the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}_3\text{N}_4$ joints brazed at (a) 1173 K and (b) 1473 K for 1h using Ag-Cu+Ti active filler metal.

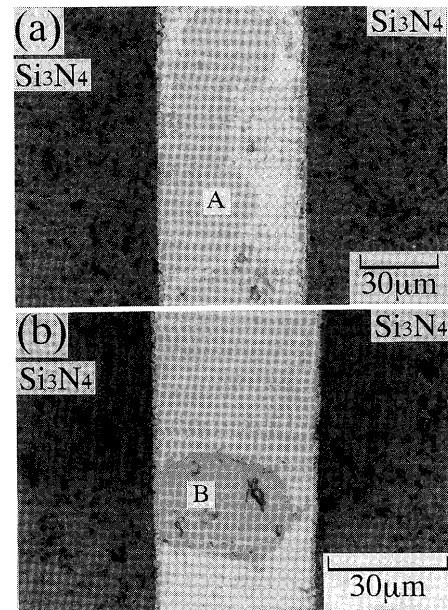


Fig. 6. Optical micrographs of the interface in the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}_3\text{N}_4$ joints brazed at (a) 1273 K and (b) 1373 K for 1h using Ag-Cu+Zr active filler metal.

Ti_5Si_3 が生成していることが分かる。なお、これらの接合体の反対側の破面に対する X 線回折においても同様な結果が得られている。したがって、Ti ろう材を用いて 1473 K で接合した試料では、せん断試験時の破断が厚く生成した TiN や Ti_5Si_3 から生じたことが強度低下の一因と考えられる。

図 6 は、Zr ろう材を用いた接合体の界面の光学顕微鏡写真である。(a) は接合温度が 1273 K、(b) は 1373 K の場合であり、後者は図 1 に示す接合強度が急激に上昇した接合体に相当する。1273 K では、塊状の化合物 (図中 A) が接合界面全体にわたり連続的に観察され、また厚さ約 $2\ \mu\text{m}$ の反応層が Si_3N_4 に接して生成する。一方、1373 K では、塊状の化合物 (図中 B) はろう材中に散在し、 Si_3N_4 に接する反応層の層厚も約 $1\ \mu\text{m}$ に減少している。図 7 は、1273 K で接合した試料の界面の EPMA 面分析の結果であり、(a) は二次電子像、(b)~(d) は Zr, Ag, Cu の特性 X 線像である。この結果、二次電子像中 A で示す図 6(a) の化合物は、Zr 箔と Cu 及び少量の Ag とが反応したものと考えられる。一方、1373 K で接合した試料についても同様の分析を行った結果、図 6(b) の B の化合物には Zr, Cu, Si の分布が認められた。したがって、図 6 の A と B は異なる化合物であり、ろう材中の構成相は 1273~1373 K の温度域で変化すると考えられる。

図 8 は、Zr ろう材を用いた接合体における破面の X 線回折の結果である。(a) は接合温度が 1273 K、(b) は 1373 K であり、またこれらの反対側の破面においても同様なピークが得られている。1273 K では、Ag や Cu のほかに Cu_5Zr 化合物に相当するピークも認められる。このことより、図 6(a) の A の化合物は少量の Ag が固溶した Cu_5Zr と考えられる。一方、1373 K では、Ag, Cu, ZrN, ZrSi_2

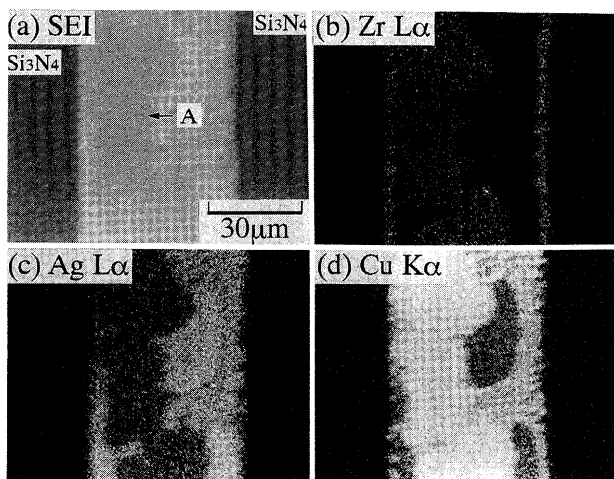


Fig. 7. EPMA micrographs of the interface in the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}_3\text{N}_4$ joint brazed at 1273 K for 1h using Ag-Cu+Zr active filler metal; (a) secondary electron image, (b) Zr $L\alpha$ image, (c) Ag $L\alpha$ image, (d) Cu $K\alpha$ image.

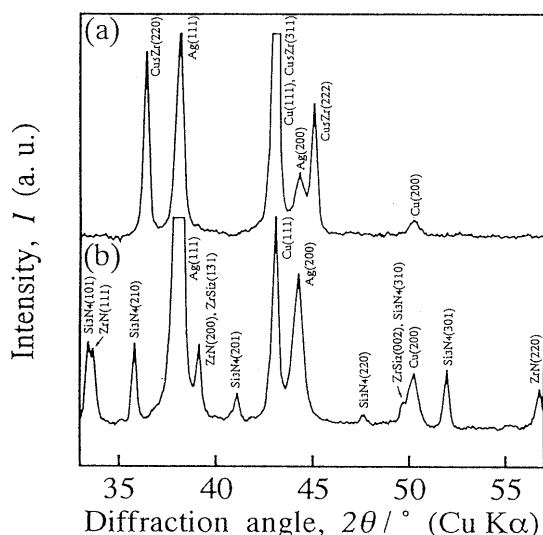


Fig. 8. X-ray diffraction patterns of fracture surface of the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}_3\text{N}_4$ joints brazed at (a) 1273 K and (b) 1373 K for 1h using Ag-Cu+Zr active filler metal.

のピークが認められ、1273 Kの場合とは異なる傾向を示している。ここで、Cu-Zr 二元系状態図上の Cu_5Zr に相当する領域は1373 K付近で液相であることから⁸⁾、1273~1373 Kの温度域で起こるろう材中の組織変化は、 Cu_5Zr の溶解に起因すると考えられる。

これらの結果より、Zr ろう材を用いた接合体の強度は、1273 K 以下の接合温度では Ag-Cu 共晶-Cu₅Zr 間の界面強度に支配されるのに対し、1373 K 以上では Ag-Cu ろう材の強度及び Ag-Cu 共晶-反応層間の界面強度に支配されると考えられる。なお、1473 K で接合した試料の強度低下は、破面の X 線回折において、回折角 30~35° 付近に ZrSi_2 や $\text{Cu}_4\text{Zr}_3\text{Si}_2$ に相当するピークが認められ、また後述するように、1473 K では ZrN 微細粒の粗大化が予想されることから、これらの影響によるものと思われる。

Ti ろう材又は Zr ろう材を用いた $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}_3\text{N}_4$ 接合体では、接合温度の上昇に伴うろう材中の組織変化が接合強度に大きく影響し、ろう材/ Si_3N_4 界面においては、後の TEM 観察結果に示すように、微細な TiN 及び ZrN の生成により強固な界面が形成されていると考えられる。

3.2 V 及び Nb を用いた接合体の強度と界面組織

図 9 に V ろう材及び Nb ろう材を用いた接合体の平均せん断強度と接合温度との関係を示す。両者の場合とも、接合温度の上昇とともに強度が増加する傾向にあり、1373 K で接合した試料では V ろう材で 144 MPa、Nb ろう材で 163 MPa の最高値を示す。更に接合温度が 1473 K になると、強度は低下し、特に Nb ろう材では 29 MPa に急激に低下する。両ろう材を用いた接合体は図 2 の(Ⅲ)又は(Ⅳ)のタイプですべて破断した。この結果は、Ti ろう材や Zr ろう材と比較して、ろう材/ Si_3N_4 界面の強度が低いことを示している。

図 10(a) は V ろう材、(b) は Nb ろう材を用いて 1473 K で接合した試料の界面の光学顕微鏡写真である。いずれの場合も、接合界面の中央部に帯状の化合物が認められる。EPMA 分析の結果、この化合物は微量の Ag や Cu が拡散した残留 V 箔又は残留 Nb 箔であることが分かった。一方、 Si_3N_4 に接した反応層には V 又は Nb とともに Si の分布も EPMA により認められた。しかしながら、特に V ろう材の場合、Ti ろう材を用いて 1473 K で接合した試料と反応層厚がほぼ等しいにもかかわらず、図 4 (b) の Ti 濃度の変化に相当する V の分布は見られなかった。このことは、反応層を構成する窒化物とケイ化物が混在している可能性を示唆している。Ag-Cu ろう材については、その一部が界面からはみ出し、球状の塊を形成していた。なお、接合温度 1173~1473 K での接合界面の組織変化は、反応層厚を除いて、認められなかった。

図 11 は、各種ろう材を用いた接合体における接合温度と Si_3N_4 近傍に生成した反応層の厚さとの関係を示したものである。ここで、Nb ろう材を用いて 1173 K 及び 1273 K

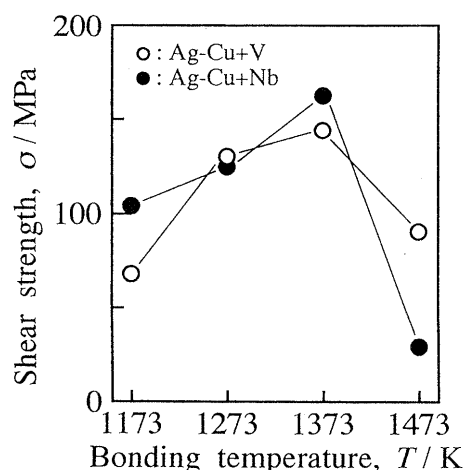


Fig. 9. Shear strength of the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}_3\text{N}_4$ joints brazed at 1173 to 1473 K for 1h using Ag-Cu+V and Ag-Cu+Nb active filler metals.

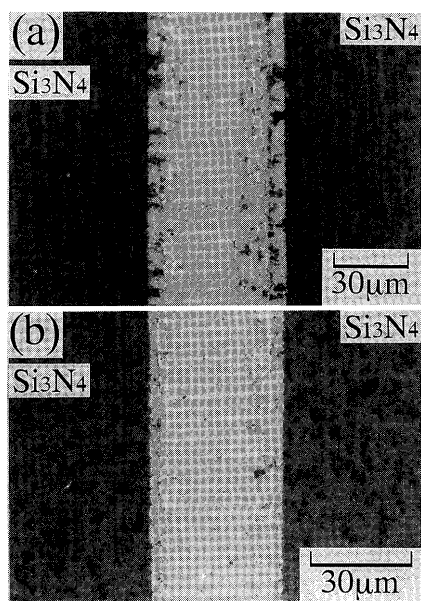


Fig. 10. Optical micrographs of the interface in the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}_3\text{N}_4$ joints brazed at 1473 K for 1h using (a) Ag-Cu+V and (b) Ag-Cu+Nb active filler metals.

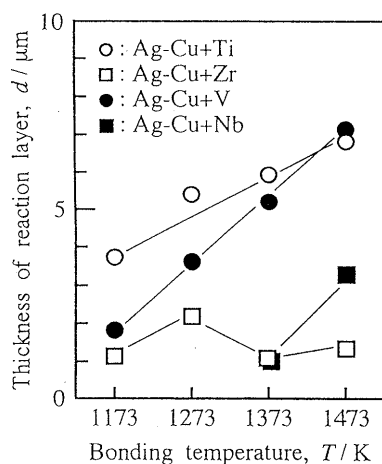


Fig. 11. Thickness of reaction layer formed at the interface between filler metal and Si_3N_4 in the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}_3\text{N}_4$ joints brazed at 1173 to 1473 K for 1h using Ag-Cu+Ti, Ag-Cu+Zr, Ag-Cu+V and Ag-Cu+Nb active filler metals.

で接合した試料では、反応層が非常に薄く、その厚さは測定できなかった。Ti ろう材やV ろう材では、反応層の厚さは接合温度に対してほぼ直線的に増加する。V ろう材の場合、接合温度が100 K 上昇するごとに反応層厚が約 $2 \mu\text{m}$ 増加しており、反応層の成長はTi ろう材の場合に比べて顕著である。Zr ろう材を用いた場合の反応層は、1173~1273 K ではTi ろう材の場合と同様な傾向で成長するが、1373 K 以上ではろう材中の組織変化に伴い層厚が約 $1 \mu\text{m}$ に減少する。またNb ろう材における反応層の成長は、1373 K 以上でV ろう材と同様な傾向を示す。この結果から、V ろう材やNb ろう材では Si_3N_4 との反応が接合温度の上昇に伴って顕著に起こると考えられる。

図12にNb ろう材を用いた接合体のせん断試験後の破面

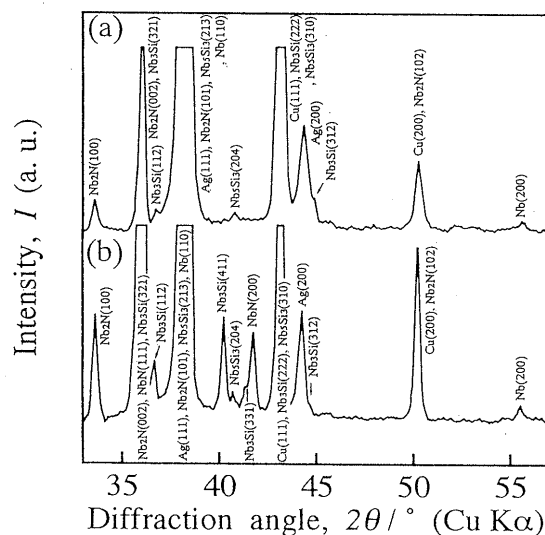


Fig. 12. X-ray diffraction patterns of fracture surface on the filler metal side of the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}_3\text{N}_4$ joints brazed at (a) 1373 K and (b) 1473 K for 1h using Ag-Cu+Nb active filler metal.

のX線回折の結果を示す。(a)は接合温度が1373 K、(b)は1473 Kであり、図9において急激な強度低下が見られた温度域に相当する。反応層を構成する窒化物やケイ化物に着目すると、1473 Kでは、 Nb_2N や Nb_3Si の回折強度が1373 Kの場合より大きく、また回折角 40° 付近で NbN , Nb_3Si , Nb_5Si_3 のピークが認められる。V ろう材を用いた接合体についても同様に行った結果、1373 Kでは V_2N , V_3Si が、1473 Kでは V_2N , V_3Si , V_5Si_3 がそれぞれ認められた。一方、これらの接合体の反対側の破面に対するX線回折では、窒化物やケイ化物のピークも認められたが、大部分のピークは Si_3N_4 であった。

したがって、V ろう材やNb ろう材を用いた $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}_3\text{N}_4$ 接合体では、接合温度の上昇とともに活性金属と Si_3N_4 との反応が顕著になり、それにより生成した窒化物やケイ化物がろう材/ Si_3N_4 界面の強度低下をもたらすと考えられる。このような結果は、V箔をインサートした Si_3N_4 とMoの固相接合においても報告されている⁹⁾。

3.3 TEMによる微細構造観察

Ti やZrを用いた接合体とVやNbを用いた接合体では、せん断試験時の破断個所が異なることから、 Si_3N_4 に接した反応相も異なった形態を呈することが予想される。そこで、ろう材/ Si_3N_4 界面をTEMにより観察し、反応相の形態を比較した。

図13(a)は、Zr ろう材を用いて1373 Kで接合した試料で観察されたZrN微細粒の明視野像である。この微細粒は Si_3N_4 に接して層状に生成しており、平均粒径は約 $0.05 \mu\text{m}$ である。また、この領域のろう材側では、微細粒に接してAg-Cu共晶やZrケイ化物が観察される。ZrN微細粒層の生成は、1273 Kで接合した試料においても同様に認められた。

Ti ろう材を用いた接合体においても Si_3N_4 に接してTiN微細粒層が観察された。この場合、1173 Kで接合し

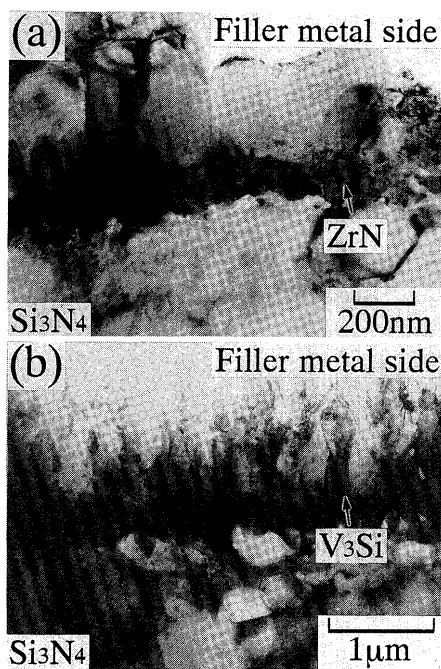


Fig. 13. TEM micrographs of reaction product formed in contact with Si_3N_4 in the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}_3\text{N}_4$ joints brazed at 1373 K for 1h using (a) Ag-Cu+Zr and (b) Ag-Cu+V active filler metals.

た試料における微細粒の平均粒径は約 $0.05\ \mu\text{m}$ であったが¹⁰⁾、接合温度1473 Kでは平均粒径約 $0.1\ \mu\text{m}$ に成長していた。この粒成長は、図1に見られるように、Tiろう材またはZrろう材を用いて1473 Kで接合した試料の強度低下の一因と考えられる。

図13(b)は、Vろう材を用いて1373 Kで接合した試料におけるろう材/ Si_3N_4 界面の明視野像であり、 Si_3N_4 に接して V_3Si の柱状晶が観察される。本観察では、 Si_3N_4 に接した領域に微細粒層がまったく認められないことから、この領域は V_2N や V_3Si の粗粒が混在した組織であると考えられる。また、これまでの実験結果から、Nbろう材を用いた接合体においてもこれと類似した組織を呈すると思われる。

Vろう材における実験結果を考慮すると、TiN/ Si_3N_4 界面あるいはZrN/ Si_3N_4 界面からはせん断試験時の破断が生じないことより、窒化物微細粒層は強固なろう材/ Si_3N_4 界面の形成に寄与していると考えられる。このような微細粒層の効果は、TiNが Si_3N_4 とエピタキシー関係を保ちながら形成される傾向にあるとの報告⁴⁾からも支持される。また図11に示すように、Vろう材では接合温度の上昇に伴う反応層の成長がTiろう材の場合に比べて著しいことから、微細粒層の存在が反応層成長の抑制にも寄与した可能性がある。

したがって、活性金属としてTiやZrを含むろう材を用いた Si_3N_4 の接合では、活性金属の窒化物微細粒層によ

り、ろう材/ Si_3N_4 界面に強固な結合が形成されるため、高強度の接合体が得られたと考えられる。

4. 結 論

活性金属としてTi, Zr, V, Nbを含むAg-Cuろう材により $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}_3\text{N}_4$ 接合体を作製し、活性金属の有効性を比較検討した。得られた結果は次のとおりである。

(1) Tiろう材やZrろう材を用いた接合体のせん断強度は、接合温度1173~1473 Kで150~250 MPaである。破断が主にろう材内部で生じるため、接合強度はろう材中の組織に影響されやすく、特にZrろう材の場合にその影響が大きい。

(2) Vろう材やNbろう材を用いた接合体の強度は、接合温度1373 Kでそれぞれ144 MPa, 163 MPaの最高値を示し、1473 Kになると低下する。これらの接合体の破断箇所はすべてろう材/ Si_3N_4 界面であるため、接合強度は窒化物やケイ化物からなる反応層と Si_3N_4 との界面強度に支配される。

(3) Tiろう材やZrろう材では、 Si_3N_4 に接して窒化物微細粒層がTEMにより観察される。一方、Vろう材では Si_3N_4 に接して V_3Si の柱状晶が観察され、微細粒層の存在は認められない。微細粒層には、ろう材/ Si_3N_4 界面に強固な結合を形成すると同時に、反応層の成長を抑制する可能性がある。したがって、活性金属ろう付け法による Si_3N_4 の接合では、界面反応により Si_3N_4 に接して活性金属の窒化物微細粒層を生成することが、高強度の接合体を得るうえで重要である。

謝 辞 本研究を遂行するに当たり、有益な御助言を頂いた新日本製鉄(株)の植木正憲氏に対して厚く御礼申し上げます。本研究の一部は(財)谷川熱技術振興基金研究助成金、(財)池谷科学技術振興財団研究助成金及び熊本市人づくり基金の援助のもとに行われました。

文 献

- 1) 井関孝善, セラミックス, 29, 51-58 (1994).
- 2) 田中俊一郎, 溶接技術, 37, 84-89 (1989).
- 3) 奈賀正明, 田中 扶, 岡本郁男, 溶接学会論文集, 4, 597-603 (1986).
- 4) S. Tanaka, Proc. of the MRS International Meeting on Advanced Materials, Vol. 8, Tokyo (1989) pp. 91-96.
- 5) 志智雄之, 有田雅晴, 松清健二, 松長正治, セラミックス論文誌, 97, 1354-57 (1989).
- 6) 中橋昌子, 白兼 誠, 竹田博光, 日本金属学会誌, 53, 1153-60 (1989).
- 7) 中尾嘉邦, 西本和俊, 才田一幸, 中村壽志, 堅田寛治, 溶接学会論文集, 7, 136-42 (1989).
- 8) 日本金属学会, “金属データブック”, 丸善 (1993) p. 532.
- 9) 伊藤義郎, 菅野昌義, 神保智巳, 北村和正, 日本金属学会秋期大会シンポジウム講演概要 (1989) pp. 114-15.
- 10) 森園靖浩, 西田 稔, 千葉 昂, J. Ceram. Soc. Japan, 101, 1363-68 (1993).