

## 窒化ケイ素のCu-Tiロウ接合界面組織

Joining of Silicon Nitride Using Cu-Ti Filler

王 建 義\*・石 田 洋 一\*・田 中 俊一郎\*

Jian-Yih WANG, Yoichi ISHIDA and Shun-ichiro TANAKA

## 1. は じ め に

高温材料として注目される窒化ケイ素はその強度特性が問題である。窒化ケイ素と超合金のベース材料であるニッケルの接合が成功すれば、窒化ケイ素の用途は広いと期待される。このため、窒化ケイ素と金属の接合に関する研究は非常に盛んになっている。とくに、窒化ケイ素とニッケルの固相接合はよく研究されている<sup>1)2)3)</sup>。しかし、この系の接合界面には一般に反応相ができ、接合強度を弱める。窒化ケイ素接合の一つの方式であるロウ接はロウ材を必要とするが、一般に信頼性という点で優れた方式なので、これを試みるべきである。

ロウ接は電子部品の封着で使用実績がある方式である。窒化ケイ素のロウ接は接合強度、量産性、信頼性などといった利点からとくに最近注目されている接合方法である。窒化ケイ素と金属の間にロウ材をいれた接合において、金属側の接合界面は金属とロウ材成分が相互に拡散し、高強度の接合を形成する。これは一般的な金属同士のロウ付けと同じこととなって、別に問題がない。これに対して、セラミックスとロウ材金属の接合界面に関しては、接合界面の反応生成物の分布や状態などがまだ明確に解析されていない。

ロウ接に際しては、界面での化学反応が前提であるが、逆に反応には必ず新しい反応相の生成が伴う。多くの場合この反応相はもろく、窒化ケイ素と隣接すると、両者とも応力を解除する能力がないため、界面強度を弱める原因となる。たとえばNi-P-Tiロウ<sup>4)</sup>およびAg-Cu-Tiロウ<sup>5)</sup>を用いた窒化ケイ素の接合は、いずれも界面にもろい反応層ができ、強度が低下した。この反応生成物はいずれも合金元素を多量に含有するものである。ここでは、合金元素の数を減らし、銅にチタンのみを添加したロウ材を使用して窒化ケイ素のロウ接を試み、界面にもろい反応層のない、より良好な接合体を得ることを目的とする。

## 2. 実 験 方 法

接合に使用したセラミックスは(株)東芝製の常圧焼結窒化ケイ素である。焼結助剤として $Al_2O_3$ や $Y_2O_3$ などを添加した。ロウ材は銅とチタンの共晶組成(Cu-28%Ti)に合わせたものである。チタンは窒化ケイ素との接合界面を活性化するのに必要な元素である。また、チタンの融点を下げるため、銅と合金化した。窒化ケイ素の間にロウ材をいれ、 $10^{-3}$ Paの真空中、 $1023K \times 10min$ で接合した。接合した試料をEPMAおよび電顕用の試料にし、観察した。用いた電顕はJEM1250超高压電顕、JEM4000FX分析電顕およびJEM2000EX高分解能電顕である。

## 3. 実 験 結 果

本接合系の室温強度(四点曲げ強度)は600MPaであるにもかかわらず、高温(873K)においても360MPaがある<sup>6)</sup>。Ag-Cu-Tiロウ接やNi-P-Tiロウ接より高い強度を示す。接合した試料を軽くイオン研磨して、SEMで観察した接合界面組織をFig. 1に示す。順次に大きく拡大している写真に示されるように界面のところが盛り上がっていることがわかった。これはNi-P-TiロウやAg-Cu-Tiロウによる窒化ケイ素接合の場合と同様に、界面に反応相ができ、その反応相のイオン研磨に対する抵抗が強いからである。Fig. 2は接合界面の低倍率透過電顕像である。一般に界面の反応相は研磨されにくく、二本の橋のように残っている。この写真上の先端(Fig. 2中の棒)を拡大して観察した。その界面組織をFig. 3に示す。窒化ケイ素に沿って非常に細長く、細かい粒子の集まる層が見られた。幅は $0.5\mu m$ くらいである。この微粒子の集まる層とロウ材の間に二種類の異なったサイズの反応生成物が見られた。それらは微粒子側の $0.2-0.3\mu m$ 程度の粒子と、ロウ材側の数 $\mu m$ の大きさの粗大粒子である。この粗大粒子は回折パターンおよび組成分析結果により、 $Ti_5Si_3$ であることがわかった。Fig. 4はこの粗大粒子の明視野、暗視野電顕像および回折パターンである。また、

\*東京大学生産技術研究所 第4部

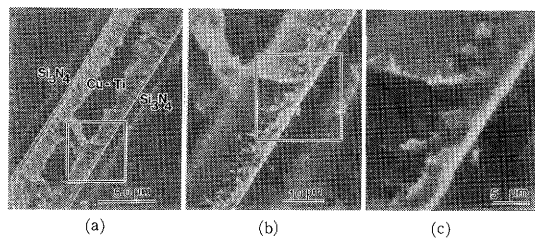


Fig. 1 窒化ケイ素のCu-Tiロウ接合界面のSEM像, (a)(b)(c)と順次に拡大した

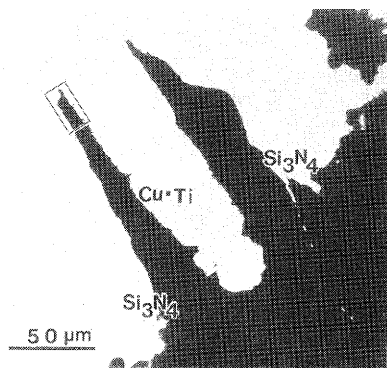


Fig. 2 Cu-Tiロウを用いた窒化ケイ素接合界面の低倍率TEM像

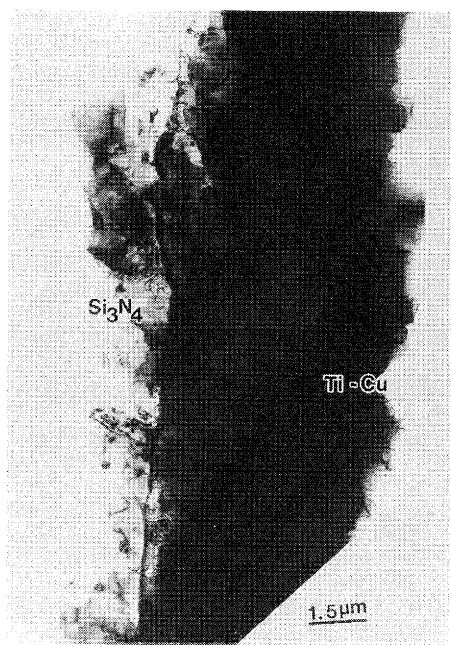


Fig. 3 Cu-Tiロウを用いた窒化ケイ素接合界面の透過電顕像

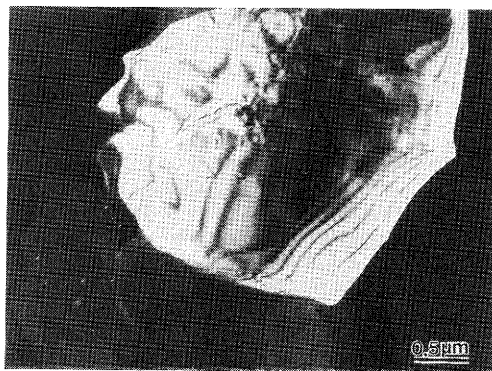
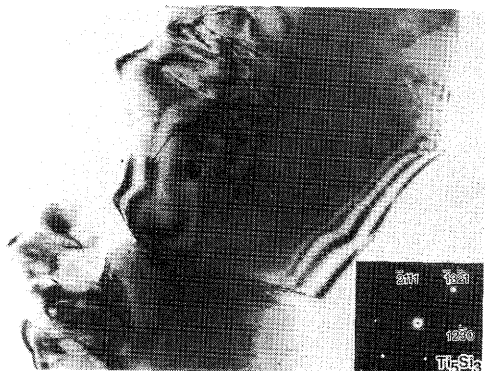


Fig. 4  $\text{Ti}_5\text{Si}_3$ の明視野と暗視野電顕像

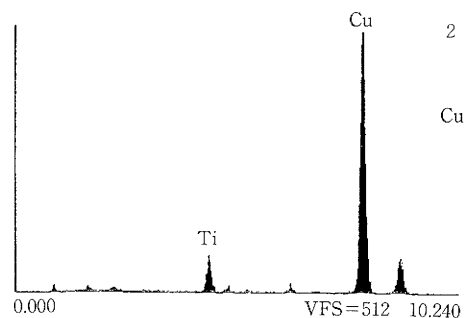
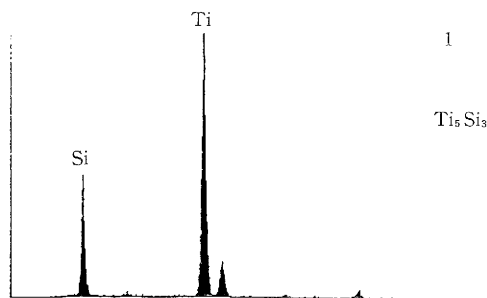


Fig. 5 界面の組成分析結果

## 研 究 速 報

Fig. 5に示すのはFig. 4上の二ヶ所の組成分析結果である。これによって、 $Ti_5Si_3$ はマトリックスのCu中に存在していることがわかった。Fig. 6に界面の微粒子の明視野、暗視野電顕像および回折パターンを示す。各面方位を表す微粒子であるため、回折パターンはハロー状の模様である。高分解能電子顕微鏡を用い、この微細粒子の組織または微細粒子と窒化ケイ素の界面を観察した。この微細粒子は高分解能写真により格子定数がTiNのそれと非常に近いため、TiNであると考えられる。残念ながら、マトリックスの格子像が現れていないので、微粒子のTiNはおたがいにつながっているか、それともなん

らかのものにのっているかを判定できない。また、Fig. 7に接合界面の組織の一例を示す。界面の近く1, 2, 3, 4を示す四ヶ所の組成をEDXで分析した。Fig. 8にそれらの組成分析結果を示す。1は窒化ケイ素であるが、シリコン以外にアルミニウムのピークも明らかに見られた。これは焼結助剤のアルミナが界面に集まることと考えられる。2のところは微粒子の集まる層である。組成分析結果は高分解能観察結果と一致しており、チタンのピークだけ検出された。したがって、微粒子層はTiNであることが明らかになった。また、微粒子のすぐとなりに0.2—0.3 $\mu m$ の粒子の3の組成はチタンとともにCuも検出された。これはTiとCuの化合物と考えられる。この0.2—0.3 $\mu m$ の粒子相はFig. 9に示す明視野、暗視野電顕

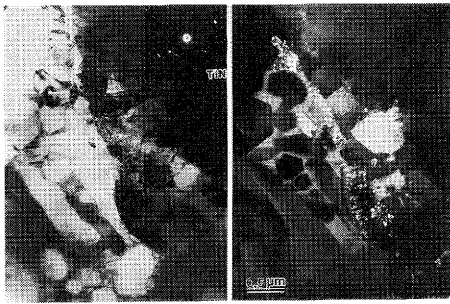


Fig. 6 Cu-Tiロウを用いた窒化ケイ素接合界面上の微粒子相の明視野と暗視野像

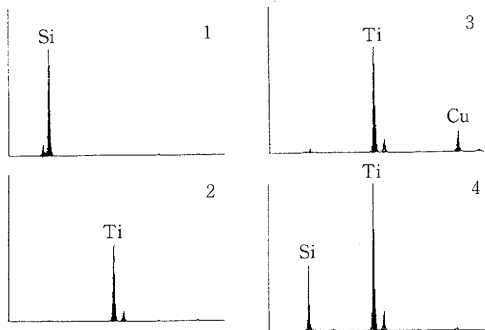


Fig. 8 接合界面の組成分析結果

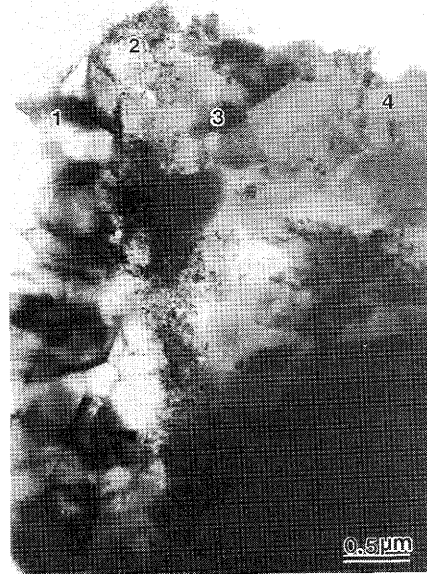


Fig. 7 Cu-Tiロウを用いた窒化ケイ素接合界面の組織

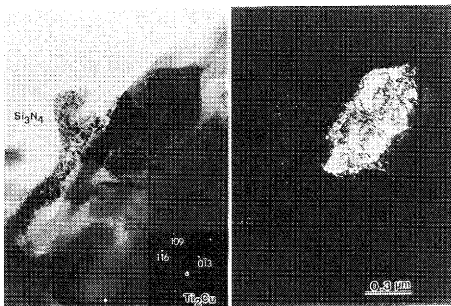


Fig. 9  $Ti_2Cu$ の明視野と暗視野電顕像

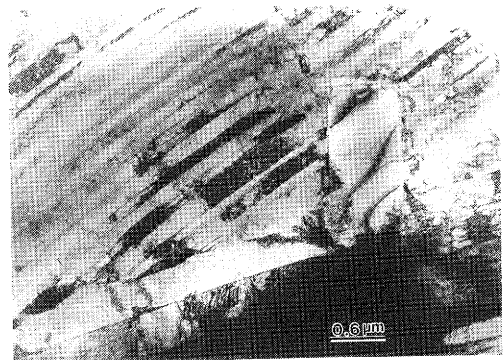


Fig. 10 Cu-Tiロウ材部分の電顕組織

