

K-5

アルミニウムと窒化ケイ素とニッケルを用いた熱応力緩和型傾斜機能材料の積層条件の検討  
 Examination of Stacking Conditions in Functional Gradient Materials for Thermal Stress Relaxation  
 with Al, Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> and Ni

○羽畑泰成<sup>1</sup>, 小宮良樹<sup>2</sup>

Yasunari Uhata<sup>1</sup>, Yoshiki Komiya<sup>2</sup>

Abstract: In recent years, power semiconductors in many products with smaller and more powerful increase the self-heating. Therefore, we require materials with excellent thermal conductivity and light weight. In this research, we investigated functional gradient materials for thermal stress relaxation by continuous change. The objective of this research is to find the most optimum stacking conditions for functional gradient materials in Al-Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> composites. The first step is to obtain the physical properties for simulation. Thermal expansion coefficient and specific heat capacity were measured at each additive amount of Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>. As a result, the thermal expansion coefficient was found to follow the Turner and Kerner line, and the specific heat capacity was found to about 0.6 for all additive amount of Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>.

1. 緒言

近年ではパワー半導体を使用する製品は小型化、高性能が進んでおり、自己発熱量も増加している。ヒートシンクの部材には熱伝導性に優れ軽量であるアルミニウム(Al)を使用することが望まれており、パワー半導体デバイスに用いられる絶縁基板には機械的特性に優れた窒化ケイ素(Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>)基盤の採用が進んでいる。しかし、ヒートシンクに用いられる Al と絶縁基板に用いられる Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> では熱膨張係数に大きな差があり、接合部で熱応力によるひずみや割れが発生し、剥離が生じてしまう可能性がある。そこで、熱応力による剥離問題に対し、傾斜機能材料を用いることを考えた。パワー半導体の絶縁基板と放熱板の間に傾斜機能材料を挟むことにより、熱応力緩和や、部品の長寿化にも対応できると考えられる。

本研究では、Al-Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 複合材の傾斜機能材料の最適積層条件の決定を目的とする。この前段階として、シミュレーションに必要な物性値を求める必要がある。Al-Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 複合材に対し反応を促す Ni の添加を行い、物性値(熱膨張係数・比熱容量)と材料の焼結性について考察する。

2. 実験方法

2.1 焼結条件

Al を母材とする Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> と Ni の添加率を変化させた焼結体を作製した。Ni は Al と Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> の焼結助剤としての役割を持つため添加した。焼結には SPS 装置を使用した。Table 1 に各添加量に対する焼結条件を示す。以下、図および表内の mass% は省略して示すものとする。

2.2 表面観察と各物性値の測定方法

表面観察には焼結体の表面を研磨後、SEM, EDX を用い、熱膨張係数は TMA 装置を用いて 100°C~300°C の時

の値を算出、さらに比熱容量は DSC 装置を用い 150°C の時の値を算出した。

Table 1. Sintering conditions of the composites

Composite	Heating rate [°C/min]	Sintering temperature [°C]	Holding time [min]
Al-20Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	25	500	20
Al-20Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> -1Ni		500, 525	
Al-30Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub>		500, 525	30
Al-30Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> -1Ni			
Al-30Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> -3Ni			

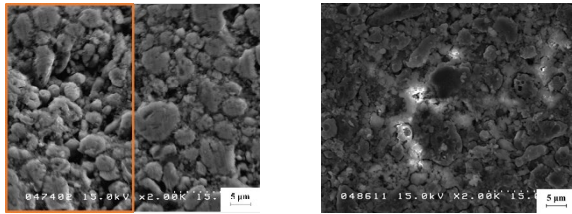
3. 実験結果および考察

3.1 Ni 添加による焼結性と多孔質化

Figure 1 に Al-30Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> と Al-30Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-3Ni の 2 次電子像、Figure 2 に Al-30Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-3Ni の EDX による元素分布画像を示す。Figure 1 の(a), (b)に示すように、Ni 添加によりポイド(空孔)の数が少なくなっているが、粒表面に小さな穴が複数空いていることが分かる。このことから、Ni は Al-Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 複合材料の緻密化を促進させると考えられるが Al と Ni の間で多孔質(ポーラス)材料を製造する際に用いられる焼結合成法の反応<sup>[1]</sup>が起きたと考えられ、多孔質化したと考えられる。Figure 2 では Ni が凝集しその一部が Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> と重なっている部分が存在している。これは、Ni と Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> の反応は約 800K から開始する<sup>[2]</sup>ため、今回の焼結温度(798K)では Ni の一部が反応を示す分布となったと考えられる。その他にも、Ni の凝集点では Al, N, Ni が重なる分布となっている。これは、Al 粉末と Ni 粉末は 400°C 程度で反応することが大高<sup>[3]</sup>により報告されており、本反

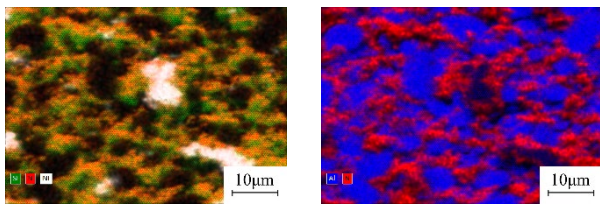
1: 日大理工・院 (前)・航宇 2: 日大理工・教員・航宇

応によって Al 粉末表面の  $Al_2O_3(g)$  が発生したことで、窒化アルミニウム( $AlN$ )の生成が促進されたと考えられる。



(a)Al-30Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>  
(In the orange frame)  
(b)Al-30Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-3Ni

Figure 1. SEM images before and after Ni addition



● : Al, ● : N, ● : Si, ○ : Ni

Figure 2. EDX images of Al-30Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-3Ni

### 3.2 Ni 添加が熱膨張係数に及ぼす影響

Figure 3 に Al-Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 複合材料の熱膨張係数の理論値と実験値を示す。理論値は, Turner<sup>[4]</sup>と Kerner の式<sup>[5]</sup>で算出したものであり, 青プロットは込宮<sup>[6]</sup>によって行われた実験値である。

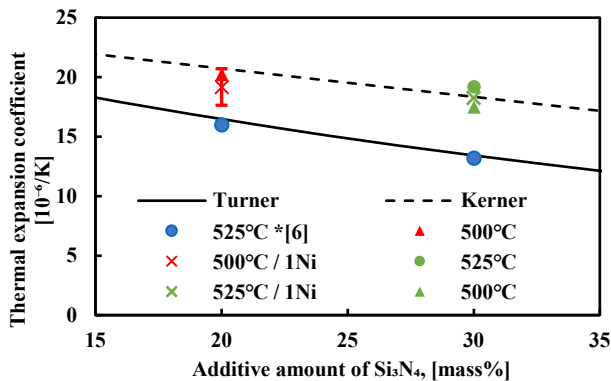


Figure 3. Thermal expansion coefficients

Figure 3 より各熱膨張係数は本研究の実験値では Kerner の線に沿う値を示し, 込宮の実験値は Turner の線に沿う値を示した。Turner の式は粒界でのせん断応力を考慮し, Kerner の式では粒界のせん断応力を無視した式である。

本研究では, Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> の分散程度が低いことから, Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 凝集し粒界面の面積が大きくなったため, せん断応力を考慮した Turner の線に沿った値となったと考えられる。また, Ni 添加は AlN の生成を促す  $Al_2O_3(g)$  の発生させる<sup>[3]</sup>が, Ni が凝集かつ微量なことから,  $Al_2O_3(g)$  が促されず, 値に変化が見られなかったと考えられる。

### 3.3 Ni 添加が比熱容量に及ぼす影響

Figure 4 に各添加量における比熱容量の値を示す。

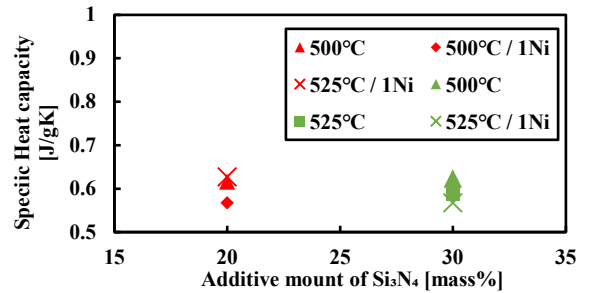


Figure 4. Changing specific heat capacity of the composites

Figure 4 より, 各条件において比熱容量の値に大きな差がなく, 値が 0.6J/g·K 程度に収束していることが分かる。文献<sup>[7]</sup>を見ると, Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> の添加率が 2.5~10mass% のときも添加率の変化による比熱の値の変化はほとんどなかった。このことから, 添加率による比熱容量への影響は考えにくい。また, Ni 添加量が微量であり, AlN の生成が促進されなかったことから, Ni 添加による値の変化がみられなかったと考えられる。

## 4. 結言

本研究では, Al-Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 複合材料および反応を促す Ni を添加した焼結体を作製し, 表面観察, 比熱容量, 熱膨張係数の測定を行った結果以下のことが分かった。

- 1) Ni 添加によりポイドは少なくなるが, 多孔質化が発生する。
- 2) Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> の添加率が 20, 30mass% の時, Ni の添加量 1mass% では熱膨張係数の値に変化は見られない。
- 3) Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> の添加率 20, 30mass% における比熱容量は 0.6 程度に収束する。また, Ni 添加による影響はほとんどない。

## 5. 参考文献

- [1] 金武直幸, 小橋眞: 燃焼合成法によるポーラス材料の開発, 高温学会誌, 第 34 巻, 第 2 号, pp45-47, 2008 年 3 月
- [2] 下尾聰夫, 小林康裕, 岡村清人: Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> と Ni との反応の速度論, Journal of the Ceramic Society of Japan, No. 100, Vol. 6, 808-814, 1992
- [3] 大高一貴: 日本大学大学院理工学研究科航空宇宙工学専攻修士研究, 平成 30 年度
- [4] P.S. Turner : J. Res. NBS, 37(1946), pp239-250
- [5] E.H. Kerner : Proc. Phys. Soc, 69B(1956), pp808-813
- [6] 込宮秀有: 日本大学大学院理工学研究科航空宇宙工学専攻修士研究, 令和 2 年
- [7] 平沢良男, 竹越栄俊, 井村定久, 清田文夫: アルミニウム-セラミックス系複合材料の熱定数の測定, 材料, 第 35 巻, 第 397 号, pp119-120