

超音波法によるセラミックス/金属接合材の
界面破壊過程の実測および評価*荒居 善雄*¹, 土田 栄一郎*¹
内藤 政克*², 小林 英男*³Measurement and Evaluation of Interface Fracture Processes
in Ceramic-Metal Joint by Ultrasonic MethodYoshio ARAI, Eiichiro TSUCHIDA,
Masakatsu NAITO and Hideo KOBAYASHI

Fracture processes in the bending of Si_3N_4 -steel joints were investigated. The initiation stresses of interface fracture and cracked areas were measured by the ultrasonic method. The results obtained are as follows. (1) The increase of the ultrasonic echo height corresponds to the increase of the specimen compliance. Using the ultrasonic method, the interface fracture process can be detected. (2) The interface crack grew on the interface in a stable manner with increasing stress intensity factor, K_I . (3) At the maximum stress, the interface crack deflected to the ceramic side in an unstable manner. The criterion for the deflection is that the stress intensity factor K_I for the interface crack taking into consideration the joining residual stress component must reach the K_{Ic} for Si_3N_4 .

Key Words: Ceramic-Metal Joint, Fracture Process, Ultrasonic Method, Interface Fracture, Residual Stress, Fracture Mechanics

1. 結 言

セラミックスの優れた特性を構造材料として活用する方法として、金属との接合が試みられている⁽¹⁾。セラミックス/金属接合材の強度評価を行うにあたっては、接合界面の破壊機構に基づいた支配力学因子を明らかにすることが重要である⁽²⁾⁽³⁾。接合材の破面観察結果によれば、き裂は接合界面端部から界面上を進展した後、セラミックス側へ屈折している⁽⁴⁾⁽⁵⁾。一方、結城らは、界面に導入した予き裂に対する界面破壊力学パラメータを用いて接合材の強度を評価している⁽⁶⁾⁽⁷⁾。しかし、平滑な接合材の強度試験によって得られる荷重を用いて界面破壊力学パラメータを評価する場合、界面破壊過程を実測し、き裂長さと荷重の対応を明らかにした評価を行う必要がある。

そこで本研究では、 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S45C}$ 接合材について四点曲げ強度試験を行い、斜角超音波法を用いて、接合界面からの反射エコー高さと応力の関係を測定し、得られた実験結果と接合残留応力および界面き裂の応力

拡大係数の解析結果を用いて、界面破壊抵抗、不安定破壊条件について評価を行った。

2. 実験方法

セラミックス/金属接合材は東芝製であり、セラミックスには常圧焼結窒化けい素(TSN03)を、金属には構造用炭素鋼S45Cを用い、中間層にCuを用いて活性金属法で接合を行った。供試材の力学的性質を表1に、接合条件を表2に示す。試験片形状および寸法を図1に示す。

試験片の幅 W は 15 mm、試験片厚さ B は 6.6 mm である。四点曲げ試験は、内スパン 30 mm、外スパン 90 mm であり、寸法以外は JIS-R-1601 に準拠して行った。図2(a)を参照して、曲げ試験中に斜角探傷法により接合界面セラミックス側からの反射エコー高さを連続的に測定した。なお、曲げ試験片には切欠きを導入していない。

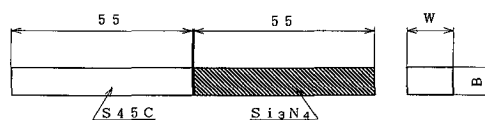


図1 試験片形状(単位: mm)

* 原稿受付 1994年10月24日。

*¹ 正員, 埼玉大学工学部 (〒338 浦和市下大久保 255)。*² 埼玉大学大学院。*³ 正員, 東京工業大学工学部 (〒152 東京都目黒区大岡山2-12-1)。

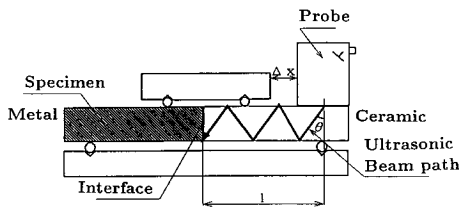
超音波受信およびエコー電圧測定にはデジタル超音波探傷器 USD-10(クラウトクレマ製)を用いた。斜角超音波探触子 WSY4(クラウトクレマ製)の空化けい素への屈折角 θ は 46° 、超音波モードは横波であり、中心周波数は 4 MHz である。

試験片にひずみゲージを貼付し、曲げ試験中のひずみを測定した。試験片幅方向中央のセラミックス側界面上を原点として、長手方向に x 軸(正をセラミックス側)を取った座標でひずみゲージ中心位置を表せば、金属側には $x = -10$ mm に 1 点、セラミックス側では $x = 3$ mm と $x = 10$ mm に 2 点貼付した。ゲージ長さは 2 mm である。

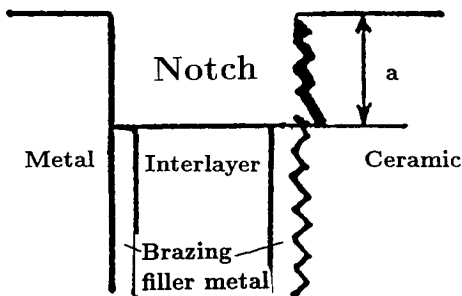
四点曲げ試験時と同一条件の較正実験によって、界面き裂面積とエコー高さの関係を実験的に求めた。図 2 (b) を参照して、貴金属用の糸のこ(刃幅 0.3 mm)により、 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Cu}$ の界面に直角二等辺三角形形状のコーナ切欠きを、一辺が $a = 0.5, 1, 1.5, 2, 2.5, 3, 3.5$ mm の七とおりについて導入した。コーナ切欠きを導入したのは、四点曲げ試験後の破面観察結果に基づく破壊起点形状と対応させるためである。界面切欠きか

表 1 力学的性質

	Si_3N_4	Cu	S45C
E(GPa)	304	108	206
ν	0.27	0.33	0.30
$\alpha (\times 10^{-6})$	3.0	17.7	12.0



(a) 負荷方法と超音波経路



(b) コーナ切欠導入位置(較正試験のみ導入)

図 2 曲げ試験および較正試験方法

らの反射エコー高さ A は、 $a = 1$ mm 時の反射エコー電圧 H_{c1} と切欠導入前の反射エコー電圧 H_{c0} の差を基準にとり、次式によってデシベルで整理した。

$$A = 20 \log_{10} \frac{H - H_{c0}}{H_{c1} - H_{c0}} \dots \dots \dots (1)$$

ここで、 H は各界面切欠長さの界面反射エコー電圧 [V] である。図 3 に、エコー高さ と切欠面積の関係を示す。エコー高さ A は切欠面積 s の増加に伴い増加し、その増加率は s の小さい場合に大きく、 s の増加に伴い小さくなる。曲げ試験において測定したエコー高さ A [dB] から、き裂面積 s [mm²] を評価するために、図 3 の結果を最小二乗法によって近似し、面積 s をエコー高さ A の関数として表した。得られた実験式を以下に、近似曲線を図 3 に実線で示す。

$$-32.98 \leq A < 0 \text{ において,} \\ s = 0.015A + 0.5 \dots \dots \dots (2)$$

$$0 \leq A < 30 \text{ において,} \\ s = 0.0032A^2 + 0.0932A + 0.4692 \dots \dots \dots (3)$$

曲げ試験時のエコー高さ [式(1)の A] から次式によって増幅率を補正した A_{ex} をき裂長さの算出に用いた。

$$A_{ex} = A_c - A_E + 20 \log_{10} \frac{H - H_0}{H_{c1} - H_{c0}} \dots \dots \dots (4)$$

ここで、 A_c は較正試験時の増幅率 [dB]、 A_E は曲

表 2 接合条件

Brazing filler	Ti-Ag-Cu
Temperature	1073 ~ 1123K
Atmosphere	Vacuum. 1.3×10^{-3} Pa
Interlayer	Cu (thickness 0.2mm)

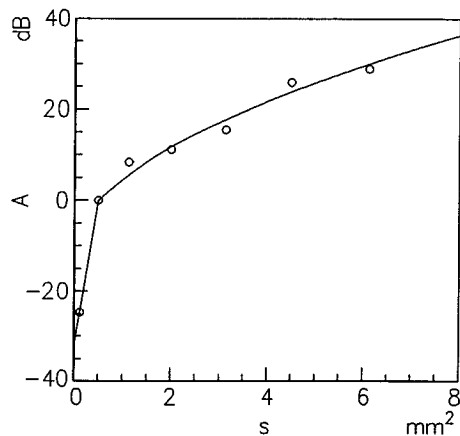


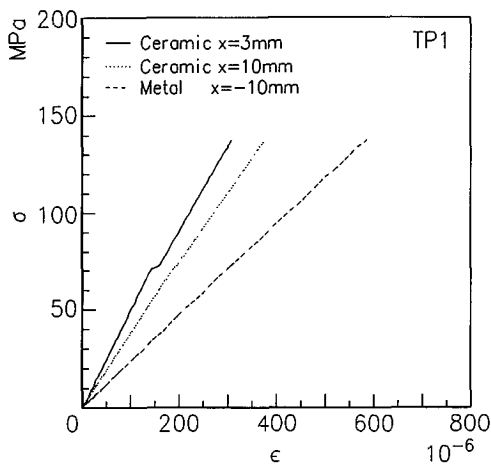
図 3 エコー高さ と切欠面積の関係

げ試験時の増幅率 [dB], H_0 は各曲げ試験片における試験前の界面反射エコー電圧 [V], H は曲げ試験時の反射エコー電圧 [V] である。

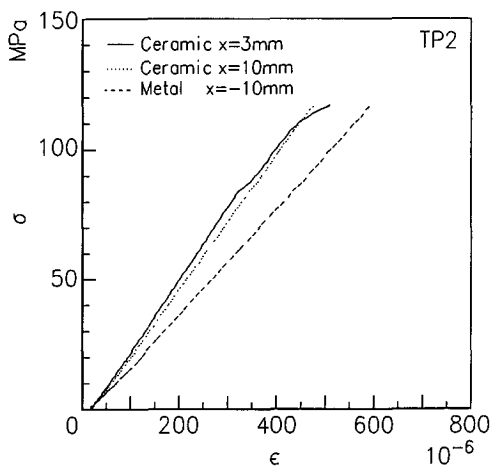
3. 実験結果

公称曲げ応力 σ と引張側表面のひずみ ϵ の関係を図4に示す。実線で示す接合界面近傍 ($x=3\text{ mm}$) のひずみ測定結果において、 $\sigma=68.3\text{ MPa}$ (TP1) および 77.8 MPa (TP2) 以降、コンプライアンスは増加し、 σ と ϵ の関係は非線形挙動を示している。点線で示すセラミックス側 $x=10\text{ mm}$ の場合と破線で示す金属側 $x=-10\text{ mm}$ の場合、 σ と ϵ の関係の非線形性は極めて小さい。

エコー高さと応力の関係を図5に示す。図の縦軸は



(a) 試験片 TP1 の場合



(b) 試験片 TP2 の場合

図4 公称曲げ応力とひずみの関係

式(1)を用いて算出したエコー高さ A である。エコー高さの増加は探傷位置(接合界面)における不連続面(界面き裂)の発生・進展に対応していると考えられる。図4における非線形挙動の開始応力は、図5においてエコー高さが急増した応力に等しい。すなわち、エコー高さの増加と試験片のコンプライアンスの増加は対応しており、超音波法によって接合界面における界面き裂の発生・進展を実測可能である。その後のエコー高さの漸増は界面き裂の進展を表すと考えられる。

図6に破面形態の模式図を示す。両試験片とも、試験片コーナ部に Si_3N_4 と中間層(銅)の界面が、二等辺三角形形状に露出している。この二等辺三角形の一边を界面き裂長さ a とすれば、き裂面積は $s=a^2/2$ となる。較正実験結果 [式(2), (3)] に、曲げ試験において得られたエコー高さ A_{ex} を代入することにより、き裂面積 s を算出し、界面き裂長さ a を評価した。

き裂長さと応力の関係を図7に示す。応力が破断応力の約1/2まで増加して、初めて界面き裂が発生し、その長さは破断時のき裂長さの約70%に達した。その

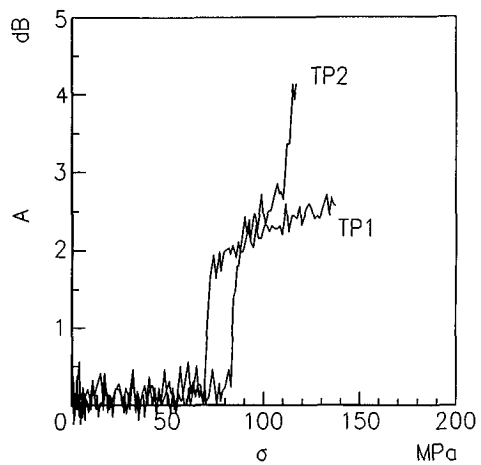


図5 エコー高さと応力の関係

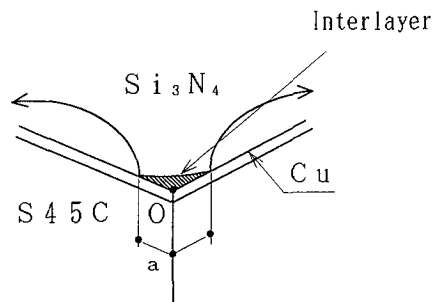


図6 破面形態の模式図

後、応力の増加に伴い、安定き裂進展挙動を示した、不安定破壊時のき裂長さは破面観察結果とほぼ一致した。

4. 界面破壊過程の評価

図8を参照して、接合界面端部($x=0, y=0$)近傍には、次式で示されるような界面端を特異点とする応力特異場が形成される⁽⁶⁾。

$$\sigma_x = \frac{I_1}{\sqrt{2\pi} y^\lambda} \dots\dots\dots (5)$$

$$\tau_{xy} = \frac{I_2}{\sqrt{2\pi} y^\lambda} \dots\dots\dots (6)$$

ここで、 I_1, I_2 は界面に作用する垂直応力、せん断応力の特異場の強さであり、 λ は特異性の指数である。

著者らは前報において、セラミックス/金属接合残留応力特異場に及ぼす接合体寸法の影響を弾塑性有限要素法を用いて解析した⁽⁹⁾。前報の材料組合せは本報と同一であるので、接合残留応力の弾塑性有限要素解

析方法については詳細を省略するが、前報と同様の方法により、強度試験に用いた両試験片形状における接合残留応力を解析した。解析結果の一例として、セラミックス側端部に沿った σ_x の分布を両対数グラフとして図9に示す。丸印が有限要素解析結果であり、 $x/B \leq 0.1$ の解析結果を用いて両対数直線関係を最小二乗法近似した結果を実線で示す。この実線の特異応力場と仮定して残留応力特異場の強さ I_1^r, I_2^r と指数 λ を算出した。幅15mm、厚さ6.6mmの場合の解析結果は、 $I_1^r = 16.67 \text{ MPa}\cdot\text{m}^\lambda, I_2^r = 7.10 \text{ MPa}\cdot\text{m}^\lambda, \lambda = 0.25$ であった。

界面き裂の破壊力学パラメータとして、小規模降伏の概念に基づく線形破壊力学パラメータ(応力拡大係数やエネルギー解放率等)と、弾塑性破壊力学パラメータ(J 積分等)が考えられる。セラミックス/金属接合界面き裂の場合、き裂先端塑性域はセラミックス側では存在せず、軟質金属である中間層側では存在するがセラミックスと被接合金属(本研究ではS45C)の強い

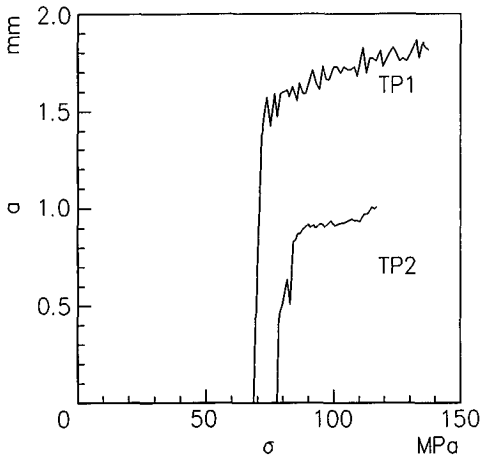


図7 き裂長さと応力との関係

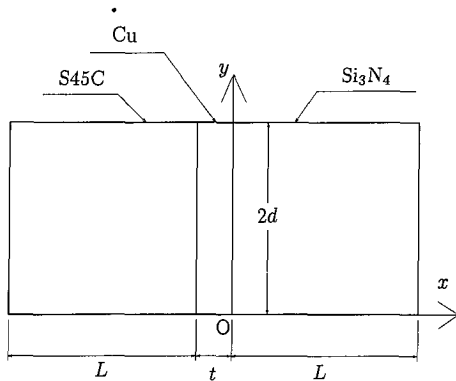


図8 三層接合材モデルと座標系

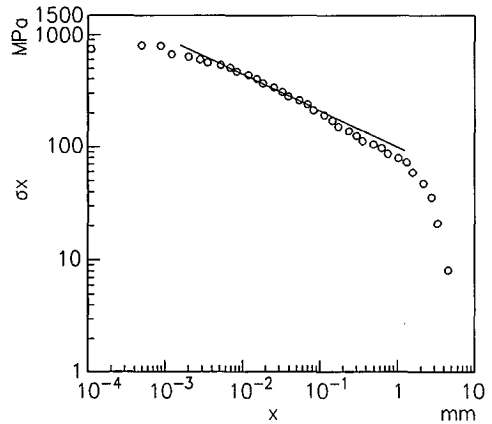


図9 σ_x と x の関係(有限要素解析結果)

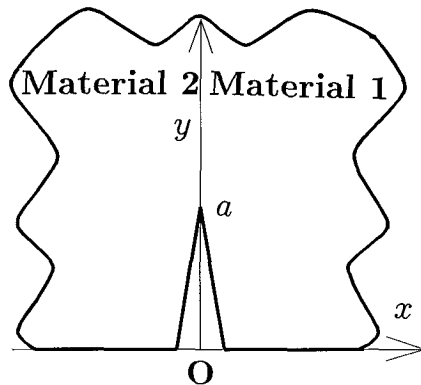


図10 界面端き裂のモデル

拘束を受ける。このような特異な塑性域をもつき裂の破壊力学パラメータの有効性は、現在のところ明らかにされていない。本研究では試みの第一歩として、線形破壊力学パラメータを採用し、前述のとおり、接合残留応力の値の評価に際してのみ、弾塑性解析を行った。

Hutchinson らに従って図 10 に示すような界面き裂の複素応力拡大係数 K を次式で定義する⁽¹⁰⁾。き裂先端近傍 $y-a \rightarrow 0$ において次式が成り立つ。

$$(\sigma_x + i\tau_{xy}) = \frac{K(y-a)^{i\epsilon}}{\sqrt{2\pi(y-a)}}, \quad x=0 \dots (7)$$

$$K = K_1 + iK_2 \dots (8)$$

ここで、 a は界面き裂長さ、 i は虚数単位、 ϵ は接合された二つの材料の弾性係数から定まる異材定数であり、次式によって与えられる。

$$\epsilon = \frac{1}{2\pi} \ln \left[\left(\frac{\mu_1 + 1}{\mu_2 + 1} \right) / \left(\frac{\mu_2 + 1}{\mu_1 + 1} \right) \right] \dots (9)$$

ここで、 μ_j は横弾性係数、 ν_j は平面ひずみ状態において $3-4\nu_j$ 、平面応力状態において $(3-\nu_j)/(1+\nu_j)$ をとる材料定数、 ν_j はポアソン比であり、記号の添字は 1, 2 をとり、接合された二つの材料に対応する。著者らは Rice らによる半無限界面き裂に集中力が作用する場合の K を用いて、図 11 に示すように接合残留応力場における界面き裂の応力拡大係数の算出式を重ね合わせの原理に基づき次式のように求めた⁽¹¹⁾⁽¹²⁾。

$$K^R = K_1^R + iK_2^R \dots (10)$$

$$K_1^R = \frac{\cosh(\pi\epsilon)}{\sqrt{\pi}} \int_0^a \sqrt{\frac{2}{\xi}} [\sigma_x^R(\xi) \cos(\epsilon \ln \xi) + \tau_{xy}^R(\xi) \sin(\epsilon \ln \xi)] d\xi \dots (11)$$

$$K_2^R = \frac{\cosh(\pi\epsilon)}{\sqrt{\pi}} \int_0^a \sqrt{\frac{2}{\xi}} [\tau_{xy}^R(\xi) \cos(\epsilon \ln \xi) - \sigma_x^R(\xi) \sin(\epsilon \ln \xi)] d\xi \dots (12)$$

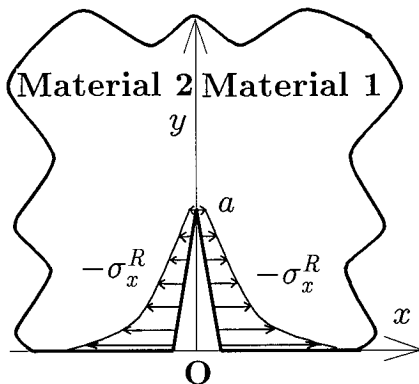


図 11 重ね合わせの原理に基づく接合残留応力の応力拡大係数の評価

ここで、 $\xi = a - y$ は界面き裂上、き裂先端を原点とし、き裂面方向を正としてとった座標である。接合残留応力場 σ_x^R, τ_{xy}^R は弾塑性有限要素解析結果による特異応力場の強さ I_1^R, I_2^R と指数 λ を考慮した次式で近似する。

$$\sigma_x^R = I_1^R y^{-\lambda} - c, \quad [0 \leq y \leq B/2] \dots (13)$$

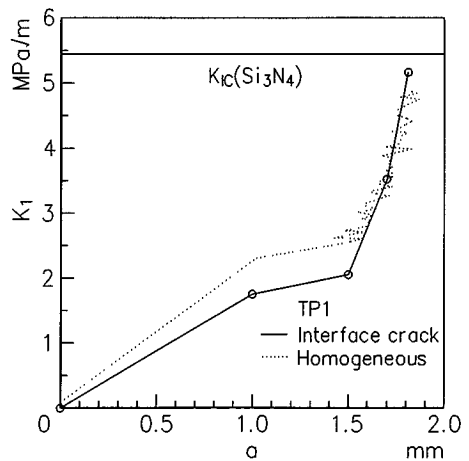
$$\sigma_x^R = I_1^R (B-y)^{-\lambda} - c, \quad [B/2 \leq y \leq B] \dots (14)$$

$$\tau_{xy}^R = I_2^R y^{-\lambda} - d, \quad [0 \leq y \leq B/2] \dots (15)$$

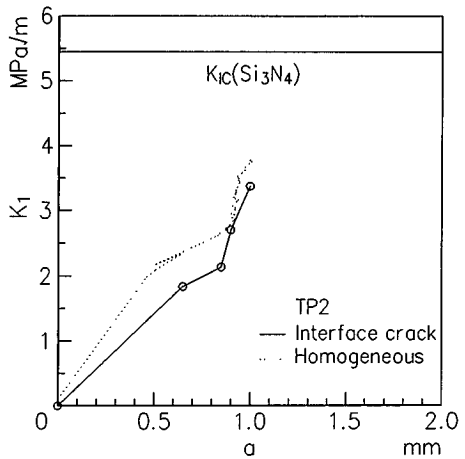
$$\tau_{xy}^R = -I_2^R (B-y)^{-\lambda} - d, \quad [B/2 \leq y \leq B] \dots (16)$$

ここで、定数 c は x 方向の力の釣合いから、 d は τ_{xy}^R の分布の対称性から決定した。

Rice らによれば、無限遠方で一様引張応力 σ およびせん断応力 τ を受ける無限板中の長さ $2a$ の界面き裂の応力拡大係数は、次式によって表される⁽¹¹⁾。



(a) 試験片 TP1 の場合



(b) 試験片 TP2 の場合

図 12 K_1 とき裂長さの関係

$$K^L = \{(\sigma - 2\varepsilon\tau) + i(\tau + 2\varepsilon\sigma)\} \sqrt{\pi a} (2a)^{-i\epsilon} \dots (17)$$

式(10), (11), (12), (17)を用いて, 次式に示すような補正係数を考慮し, 接合残留応力と一様曲げを受ける異材界面コーナき裂の応力拡大係数を算出した。

$$K = \frac{m_1}{m_2} K^R + m_1 K^L \dots (18)$$

ここで, m_1 は片側コーナき裂の補正係数であり⁽¹³⁾, m_2 は半無限き裂の補正係数⁽¹⁴⁾である。

図12に界面き裂の複素応力拡大係数 K の実部 K_1 とき裂長さ a の関係を示す。図中の実線が, 異材界面を考慮した応力拡大係数であり, 点線は異材界面を考慮しない均質材のき裂とみなした場合の応力拡大係数である。不安定破壊時の応力拡大係数は異材界面の考慮の有無にかかわらずほぼ等しく, 本研究の材料組合せと残留応力のレベルの場合, 均質材における応力拡大

大係数でも良好に, 接合材の界面き裂の K を評価できると考えられる。試験片 TP1 の場合, 界面き裂の発生・進展に伴い, 界面破壊抵抗が増加し, K_1 が Si_3N_4 の K_{IC} に達したときに不安定破壊したと考えられる。試験片 TP2 の場合, K_1 が Si_3N_4 の K_{IC} より, やや低い値で, 不安定破壊に至ったと考えられる。

界面き裂のセラミックス側への屈折条件を議論する場合, 界面き裂の複素応力拡大係数 K の実部 K_1 のみならず虚部 K_2 の考慮が必要である⁽⁷⁾。図13に界面き裂の進展に伴う K_2 と K_1 の関係を示す。 K_2 と K_1 は, ほぼ比例関係にあるが, K_2 は K_1 の 1/4 程度と小さかったため, TP1 の場合にセラミックス側への屈折条件を K_1 のみで記述できたものと考えられる。

次式に示す界面き裂のエネルギー解放率 G を計算し, き裂長さとの関係の評価した⁽¹⁰⁾。

$$G = \frac{(K_1^2 + K_2^2) \left\{ \frac{1-\nu_1}{\mu_1} + \frac{1-\nu_2}{\mu_2} \right\}}{4 \cosh^2 \pi \epsilon} \dots (19)$$

エネルギー解放率 G とき裂長さ a の関係を, 図14に示す。図の横線は Si_3N_4 の G_{IC} を示す。TP1 の場合, G が Si_3N_4 の G_{IC} の倍程度で界面き裂が Si_3N_4 側へ屈折し, TP2 の場合, G が Si_3N_4 の G_{IC} にほぼ達したときに Si_3N_4 側へ屈折した。

振動特異性を無視すれば, 前述の $K_1 = K_{IC}$ の破壊基準がモード I の破壊基準であるのに対して, $G = G_{IC}$ の破壊基準は K_1 と K_2 を考慮した混合モードの破壊基準である。試験片 TP1 と TP2 の不安定破壊時の実験結果を, K_1 と K_{IC} の関係で考えると, TP1 はほぼ $K_1 = K_{IC}$ で不安定破壊し, TP2 は K_1 が K_{IC} の 2/3 程度で不安定破壊した。同様に G と G_{IC} の関係で考えると, TP1 は G が G_{IC} の 2 倍程度で不安定破壊し, TP2 はほぼ $G = G_{IC}$ で不安定破壊した。界面破壊開始

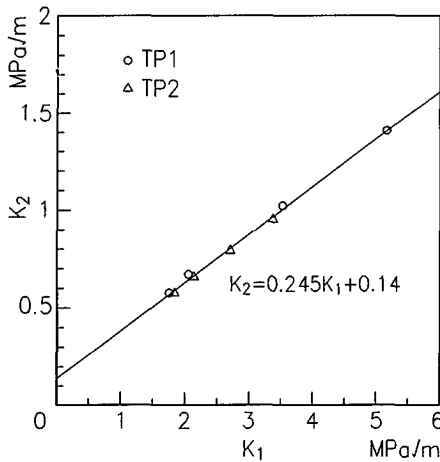


図13 K_2 と K_1 の関係

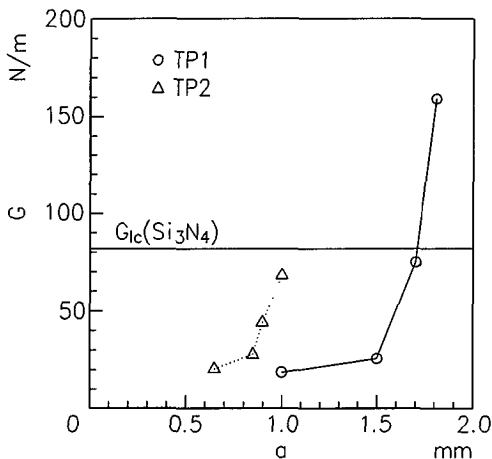


図14 エネルギー解放率とき裂長さの関係

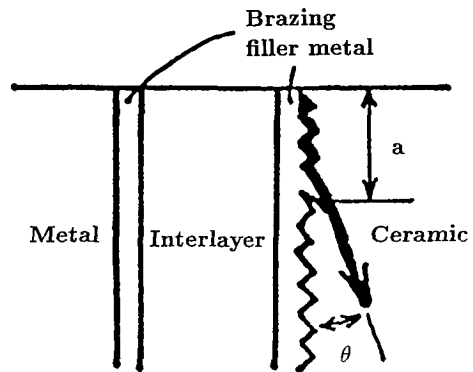


図15 界面破壊過程の模式図

および安定き裂進展過程における両試験片の相違点は、界面き裂長さであり、試験片 TP1 は界面破壊開始時に一気に 1 mm 程度の界面き裂が発生し、その後、安定き裂進展を生じている。試験片 TP2 は界面破壊開始時の界面き裂長さが 0.3 mm と短く、その後の安定き裂進展量も小さい。TP1 と TP2 の接合残留応力は端部に集中するため、外力の影響に対して接合残留応力の影響は、き裂長さが短い場合に大きいと考えられる。不安定破壊の開始条件に差が生じた原因として、き裂長さの相違が考えられるが、詳細な検討は今後の課題としたい。

以上の結果を界面の破壊過程の観点から検討する。図 15 に示すように、破壊の開始位置は接合界面端部である。接合界面端部の応力特異場の強さが界面破壊靱性に達したときに界面破壊が開始すると考えられる。本研究では試験片形状が一とおりでため、接合界面端部の力学パラメータと界面破壊開始現象の関係を評価するに至っていない。この点に関しては今後の課題としたい。応力拡大係数の増加に伴い、界面き裂は界面上を安定に進展した。すなわち、界面き裂の破壊抵抗はき裂進展に伴い上昇する。最後に、最大応力時に界面き裂の応力拡大係数 K_I がセラミックス単体の破壊靱性値に達して、界面き裂はセラミックス内へ屈折し、不安定き裂進展に至った。接合材の曲げ強度はこの界面き裂のセラミックス内への屈折時の荷重に対応する。

5. 結 言

$\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S45C}$ 接合材について四点曲げ強度試験を行い、斜角超音波法を用いて、接合界面からの反射エコー高さとの関係性を測定し、得られた実験結果と接合残留応力および界面き裂の応力拡大係数の解析結果を用いて、界面破壊抵抗、不安定破壊条件(セラミックス内への屈折条件)について評価を行った。得られた結果を要約すれば、以下のとおりである。

(1) エコー高さの増加と試験片のコンプライアンスの増加は対応しており、超音波法によって接合界面

における界面き裂の発生・進展を実測可能である。

(2) 応力が破断応力の約 1/2 まで増加して、初めて界面き裂が発生し、その長さは破断時のき裂長さの約 70% に達した。その後、応力の増加に伴い、安定き裂進展挙動を示した。

(3) 応力拡大係数の増加に伴い、界面き裂は界面上を安定に進展した。すなわち、界面き裂の破壊抵抗はき裂進展に伴い上昇する。安定き裂進展量が比較的に長い場合、最大応力時に応力拡大係数がセラミックス単体の破壊靱性値に達して、界面き裂はセラミックス内へ屈折し、不安定き裂進展に至った。安定き裂進展量が比較的に短い場合、最大応力時にエネルギー解放率がセラミックス単体の破壊靱性値に達して同様の不安定破壊を開始した。接合材の曲げ強度はこの界面き裂のセラミックス内への屈折時の荷重に対応する。

本研究の一部は新エネルギー・産業技術総合開発機構の委託により、日本溶接協会セラミック部材接合技術の試験・評価方法の研究委員会が実施した「セラミック部材接合技術の試験・評価方法の開発」研究の一環として行われた。関係各位に謝意を表する。

文 献

- (1) 岩本・須賀, セラミックス接合工学, (1990), 1, 日刊工業新聞社.
- (2) 小林, 機論, 57-535, A(1991), 473.
- (3) 小林, 機論, 60-577, A(1994), 1913.
- (4) 浅見・新開・田中, 材料, 38-428(1989), 490.
- (5) 小林・荒居・長島, 材料, 40-453, A(1991), 35.
- (6) 武藤・湯本, 機論, No. 900-50(1990-8), 185.
- (7) 結城・許・武藤, 機論, 60-569, A(1994), 37.
- (8) Bogy, D. B., *Trans. ASME, J. Appl. Mech.*, 35(1968), 460.
- (9) 荒居・小林, 機論, 59-559, A(1993), 627.
- (10) Hutchinson, J. W., Mear, M. E. and Rice, J. R., *Trans. ASME, J. Appl. Mech.*, 54(1987), 828.
- (11) Rice, J. R. and Sih, G. C., *Trans. ASME, J. Appl. Mech.*, 32(1965), 418.
- (12) 荒居・土田, 機論, No. 910-17(1991-3), 151.
- (13) Murakami, Y. 編, *Stress Intensity Factors Handbook*, 2 (1987), 728, Pergamon Press.
- (14) 岡村, 線形破壊力学入門, (1976), 214, 培風館.
- (15) 小林・中村・轟・朴・小出・谷合, 機論, 60-569, A(1994), 65.