延性/脆性積層材料のき裂進展に関する数値解析的アプローチ*

朴 永 朝 榎 学

東京大学大学院工学系研究科材料学専攻

J. Japan Inst. Metals, Vol. 65, No. 11 (2001), pp. 1002-1007
© 2001 The Japan Institute of Metals

Numerical Analysis Approach for the Crack Propagation in Ductile/Brittle Layered Materials

Young Jo Park and Manabu Enoki

Department of Materials Engineering, School of Engineering, The University of Tokyo, Tokyo 113-8656

In order to obtain the materials design ensuring the best performance for the ductile/brittle layered materials, the factors controlling fracture mode, single or multiple cracking, were investigated by numerical analysis. A new method, which can deal with dynamic behavior of crack propagation, was developed to predict crack nucleation toughness (K_N) and crack propagation resistance (R-curve). An *in-situ* cracking phenomenon was demonstrated successfully by constructing finite elements containing cracking element in the brittle layer, in such a way that the elastic modulus of cracking element goes to zero when it reaches the fracture stress of brittle layer. Calculated critical thickness ratio, $(t_m/t_c)_{cri}$, for the transition from single cracking to multiple cracking showed good agreement with the reported experimental values. Work-hardening of ductile layer is effective for multiple cracking, and residual compressive stress in brittle layer contributes to enhanced resistance for crack propagation. The proposed method was also expected to apply other fracture problems of crack propagation including the effect of loading configuration (plane stress or plane strain), work-hardening and residual stress.

(Received April 24, 2001; Accepted September 12, 2001)

Keywords: layered materials, single cracking, multiple cracking, finite element method (FEM), cracking element, intermetallic

1. 緒 論

異種元素間の高温度反応による化合物の合成において、反応の駆動力として反応熱を用いる自己発熱反応 (Self-propagating High temperature Synthesis, SHS) が古くから知られている。1960 年代の後半から主に旧ソ連を中心としてこれに関する盛んな研究が行われ、多数の金属、セラミックス、金属間化合物および複合材料等がすでに商用化されている¹⁾。その中で金属間化合物は高融点、高強度ならびに化学的安定性を有し、かつ軽量であることから高温構造材料として有望なものがあるが、一般に著しく脆いため塑性加工が困難で、信頼性に欠けるため、現在のところ構造材料としては実用に供せられていない。その改善策として、ホウ素などの第 3 元素添加による金属間化合物単体の高靱化²⁻⁵⁾および延性材料との複合化によるき裂進展抵抗の向上が模索されてきた⁶⁻¹¹⁾。特に後者の場合において延性相の形状は層状のものが他の粒子分散あるいは繊維分散より効果的であるため¹²⁾、出発材として金属の薄膜を使った金属/金属間化合物積層材料の開発に関心が高まっている。しかしながら、薄膜間の自己発熱反応には大きな問題点があって、金属間化合物層の中央部に積層面に平行な欠陥 (Fig. 1(a)) が生じ、力学

特性の多大な低下をもたらすことが指摘されてきた⁷⁻¹¹⁾。最近、我々の研究グループでは臨界厚さより薄い薄膜を用いることによって欠陥の少ない積層材料を作製し (Fig. 1(b))、その破壊挙動の定量化のための研究を進めている。

延性/脆性積層材料のき裂進展に関しては、様々な応用が期待される金属/セラミックス系の拡散接合体による複合材料を中心として精力的に研究が行われてきた¹²⁻¹⁷⁾。その結果予き裂が積層面に垂直な場合、予き裂面に平行な単一面き裂 (single cracking) とマイクロクラッキングが脆性層の上下に広がる多重き裂 (multiple cracking) といった異なる破壊形態が観察され、いくつかの説明がなされている^{14,16,17)}。特に、多重き裂により主き裂の応力集中が大幅に緩和されるため、その破壊形態をコントロールする因子を明らかにしようとする努力が進行中である。Fig. 2 はそれらの模式図であり、ここで a は予き裂の長さ、 t_m , t_c はそれぞれ金属、セラミックスの厚さを表す。Shaw ら¹⁴⁾によって隣接脆性層 (C1 層) でのき裂生成は、RKR 理論¹⁸⁾を適用して小規模降伏条件での弾性解析が有効であることが証明された。また、Huang ら¹⁶⁾はシアラグ (shear lag) モデルにより、単一面き裂と多重き裂の破壊クライテリオンである臨界厚さ比 $(t_m/t_c)_{cri}$ を求めて、延性層の割合が臨界値を超える場合多重き裂になると提案した。その後 Hwu ら¹⁷⁾はこれの修正を行い、金属層の強度に依存する弾性解析あるいはシアラグ解析を併用することによって実験結果と一致する説明が得られ

* 2000 年 3 月 29 日日本金属学会春期大会において発表

Fig. 1 Defect formation in Ni/Ni-Al layered materials.
(a) Ni(100 μm)-Al(100 μm), (b) Ni(40 μm)-Al(12.5 μm).

Fig. 2 Schematics of fracture mode.
(a) single cracking, (b) multiple cracking.

た。しかしながら、計算の便宜上試験片は無限体を仮定し実際の境界条件とは異なること、脆性層(C1層, C2層)の応力は層の厚さ方向の平均値を取ったこと、ブリッジング層(M1)の加工硬化を無視したこと、各層の絶対厚さの影響および熱残留応力の存在を考慮していないこと等から完全な解析になっているとはいえない。

そこで本研究では、新しく開発されている少欠陥金属/金属間化合物を含む延性/脆性積層材料に対して、上記の問題点を解決する数値解析法を確立することと、この手法を用いて材料設計を行い、最大の力学特性が発揮される最適条件を採すことを目的とした。

2. き裂進展の数値シミュレーション

開発した数値シミュレーションの妥当性の検証をするため、4点曲げき裂進展試験の場合は各層の厚さ、予き裂の長さを含む試験片の形状寸法はHwuら¹⁷⁾の実験値通りを用いた。Al/Al₂O₃, Cu/Al₂O₃, Ni/Al₂O₃系積層材料の4点曲げき裂進展試験片における金属層(Al, Cu, Ni)の厚さ(t_m)はすべて300 μm であり、アルミナ層の厚さを変えることによって $t_m/t_c=0.8, 2.3, 5.0$ を得た。試験片はこの数字に金属名をつけて区別した。報告によればAl/Al₂O₃系, Cu/Al₂O₃系は $t_m/t_c=5.0$ から, Ni/Al₂O₃系は $t_m/t_c=2.3$ から多重き裂が観察された¹⁷⁾。金属とアルミナがそれぞれ8枚, 9枚ずつから

Fig. 3 Coefficient of thermal expansion as a function of temperature.

なる最外側にアルミナが現れる形であり、予き裂は真中のアルミナ層を貫通し次の金属層との界面に止まっている。今回の計算は破壊形態が多重き裂に変わる厚さ比, $(t_m/t_c)_{\text{cri}}$, およびその直前の厚さ比での単一面き裂だけに対して行われた。

2.1 熱残留応力の数値シミュレーション

拡散接合積層材料(Al, Cu, Ni/Al₂O₃)の接合温度(それぞれ640°C, 1020°C, 1250°C)では応力ゼロとし、室温に下げたとき各層に生じる熱残留応力の計算を試みた。有限要素は軸対称の4接点要素で構成され、冷却過程において十分な徐冷を想定し試験片には温度勾配が発生しないことを仮定した。各層の力学特性のデータはHwuら¹⁷⁾の報告値を、また熱膨張係数の温度依存性はFig. 3の文献値¹⁹⁾を用いた。

2.2 き裂進展抵抗および引張試験の数値シミュレーション

き裂進展の観察は表面を対象に行われるため、メッシュは

平面応力の 4 接点要素で構成した。これは Shaw ら¹⁴⁾の報告でき裂先端部のひずみ測定による応力と平面応力条件の解析的な応力が一致する報告からも妥当である。4 点曲げの荷重点距離は内部、外部がそれぞれ 10 mm, 20 mm であり、試験片幅は 3 mm とし、厚さは層の厚さ比 (t_m/t_c , $t_m = 300 \mu\text{m}$) の変化で与えられた。接合(反応)温度までの加熱による組織変化および弾性層による塑性拘束を受け、金属層の力学特性は常温の出発材とは大きく異なることが知られている。本研究の計算の場合も、両面き裂サンドイッチ試験の引張試験で実験的に得られた各金属層の有効降伏強度 (σ_{eff})¹⁷⁾ をそのまま使用した。有効降伏強度は Al, Cu, Ni においてそれぞれ 116 MPa, 146 MPa, 311 MPa である。単一面き裂と多重き裂を判断するクライテリオンとしては、Huang ら¹⁶⁾により提案されたように、C1 層でのき裂核生成後 C2 層での最大応力 (σ_{tip}) と C1 層の生成されたき裂上下での最大応力 (σ_{wake}) との比較を用いた (Fig. 2)。この際、アルミナ層の破壊クライテリオンは前述した RKR 理論によるものであった。即ち、外部負荷による応力集中が脆性層の破壊強度 (σ_f) に達したときアルミナ層にはき裂が発生する。

$$\text{単一面き裂: } \sigma_{\text{tip}} = \sigma_f > \sigma_{\text{wake}} \quad (1)$$

$$\text{多重き裂: } \sigma_{\text{wake}} = \sigma_f > \sigma_{\text{tip}} \quad (2)$$

このメカニズムを数値計算により実現するためアルミナ層の一部にき裂要素 (cracking element) を設けた。き裂要素は破壊強度以下ではその力学特性は他のアルミナ層の要素と同じで、要素の応力が破壊強度に達すると弾性係数がゼロになってき裂の役割を果たすものとした。アルミナ層内にき裂要素を設ける場所は、き裂要素のないメッシュで予備計算を行い一番高い応力が発生する位置にした。以上のやり方で平面応力と平面ひずみ、加工硬化と完全塑性および熱残留応力が破壊形態に及ぼす影響を調べた。

3. 結果および考察

最初に、開発したき裂要素の有効性を Fig. 4 の図から確認した。ノッチのない延性/脆性積層材料の 3 点曲げ負荷の際、最大引張応力面の脆性層でのき裂発生前後の応力分布を図に示した。図の横軸は荷重点反対側からの距離を試験片厚さで正規化した値であり、縦軸は積層面に平行な方向の垂直応力成分を脆性層の破壊強度 (σ_f) で正規化した値である。各層は同じ厚さを有するものとし、最外郭は延性層となっている。脆性層の破壊強度 (σ_f) に達する直前の外部荷重 (実線) の場合、荷重点から遠くなるほど応力は高くなり、弾性係数の高い脆性層により大きい応力が生じることが分かる。破壊荷重に達して脆性層にき裂が発生すると (破線)、その部分の応力はゼロになり、発生したき裂の両端に著しい応力集中が発生することが図から明らかである。このような *in-situ* でき裂生成およびその進展を取り扱える手法は、き裂進展に関する問題のアプローチ法としてこれからの応用が期待される。

Fig. 5 は予き裂の長さが試験片厚さの半分である金属 (Al, Ni) / Al_2O_3 系の、4 点曲げ負荷の際のき裂進展抵抗の計算結果である。相対的に高い弾性係数と強度を示す Ni に対して、力学特性の類似な Al と Cu の積層材料はほぼ一致する

Fig. 4 Stress field before and after cracking. (M: metal, C: ceramic)

Fig. 5 Resistance for crack progression. (plane stress, work-hardening)

計算結果を示したため、これからは Ni および Al 積層材料だけに関して述べる。図で 'th' の付いた計算は熱残留応力を考慮した場合である。リガメント部のアルミナ層はわずか 4 層だけであるため、リガメント部に強く影響を受ける第 3, 4 層の破壊は意味を持たない。従って、図には第 1, 2 層 (Fig. 1 の C1 層, C2 層) の破壊による結果だけを示した。数値計算の条件は後で詳しく論じるが、平面応力および金属層の加工硬化を考慮に入れた結果であり、実験で観察された厚さ比と同じ値で破壊形態の遷移が認められた。即ち、Al / Al_2O_3 系は $t_m/t_c = 5.0$ にて、また Ni / Al_2O_3 系は $t_m/t_c = 2.3$ から多重き裂になり、この場合第 1 層 (C1 層) 以外の層ではき裂進展は見られなかった。計算された破壊抵抗値は文献の実験値¹⁷⁾と一致する傾向が確認された。また、第 1 層のき裂生成の応力拡大係数は $12\text{--}22 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ と計算され、

$$K_N = \sigma_f (\pi t_m)^{1/2} \quad (3)$$

で近似される $12.3 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ より大きいことが分かる¹³⁾。この原因としては上の式(3)において金属層の物性パラメータは反映されていないことと、アルミナ層に圧縮の熱残留応力が働いていることがあげられる。なお、実測においての K_N 値のばらつきは、アルミナ層の厚さに関係なく一定破壊強度(σ_f)のみを考慮したことが原因であると考えられる。一般にセラミックスは Weibull 係数の小さい強度分布を有することや、データに用いたアルミナ層はスリップキャスト方法で作製されたことに着目すれば、より薄い層であるほど破壊強度は大きくなって、それに従い K_N 値は増加することが予測される。

き裂進展抵抗に関するより詳しい予測のため、単一面き裂

Fig. 6 Resistance for crack progression approach by developed method and large-scale bridging model.

を見せた 2.3Al 試験片に対して各層の枚数を 2 倍にして、アルミナの第 4 層までき裂進展させた場合の結果を Fig. 6 に示した。上側に膨らんで一定値に飽和する一般的な形と違って下側に膨らんで増加するき裂進展抵抗が得られた。これは試験片の自由境界の影響および延性層のブリッジング効果に起因する。そこで、大規模ブリッジング (Large-Scale Bridging, LSB) による計算結果と一緒にプロットし、本研究のき裂要素を用いた数値計算との比較検討を行った。ブリッジング領域において均一、かつ一定のき裂開口応力 σ_t を仮定すれば、積層材料の破壊靱性, K_{comp} , は次式で表すことができる¹²⁾。

$$K_{\text{comp}} = K_0 + f \sigma_t \int_B h(a, x) dx \quad (4)$$

ここで、 K_0 はき裂生成の破壊靱性値 K_N を、 f は延性層の体積率を、 $h(a, x)$ はき裂形状に依存する重み関数 (weight function)²⁰⁾ を、 B はブリッジング領域の長さを意味する。なお、き裂開口応力 σ_t としては前述の Al の有効降伏応力である 116 MPa を用いた。図から分かるように LSB の結果は有限要素法の値より低くなり、その原因は次のように考えられた。ブリッジングのき裂開口応力はき裂開口変位に依存すること²¹⁾ や加工硬化の影響を受け一定ではないことがあげられる。式(4)を用いることにより比較的容易に解析を行うことができるが、その値は実際の効果を過少評価していることが、今回の計算により分かった。

実験観察の報告でそれぞれ単一面き裂と多重き裂を示した 2.3Al と 5.0Al 試験片について、応力解析を行った結果を Fig. 7 に示した。図において横軸は予き裂先端からき裂進展方向の距離であり、縦軸は垂直応力 (σ_{xx}) をアルミナ層の破壊強度で正規化した値である。即ち、Fig. 7(a) のように予き裂に平行な path yy の方が先に式(1)を満足すれば単一面き裂が、Fig. 7(b) のように予き裂に垂直な path xx の方が先に式(2)を満たす場合は多重き裂がそれぞれ優先するため、実験観察と今回の数値シミュレーションはよい一致を示

Fig. 7 (a) Single cracking at 2.3Al vs., (b) multiple cracking at 5.0Al. (refer to Fig. 2 for the configuration of path)

した。

Fig. 5 の計算で、もう一つ注目すべき発見は本研究のように積層面に垂直なき裂進展の場合、熱残留応力の存在はき裂進展抵抗を向上させることと破壊形態には影響を与えないことである。これらのことは熱残留応力分布のプロット (Fig. 8) から次のように理解できた。Fig. 8 において、横軸には接合温度を融点で正規化した値を、縦軸には各層の平均残留応力を表した。単一面き裂を示す 2.3Al, 0.8Ni 試験片のアルミナ層には 150 MPa 前後、多重き裂の 5.0Al, 2.3Ni 試験片には 350 MPa 程度の圧縮応力が推定される。前述した通りこの圧縮残留応力は、実質的にはアルミナ層の破壊強度の増加を意味するため、高靱化の機構として作用した。熱残留応力が破壊形態には直接的関係を示さない理由は、アルミナの第 2 層以上の部分においては残留応力による応力場より外部負

Fig. 8 Residual thermal stress calculated by FEM.

Fig. 9 Plane stress vs. plane strain at 2.3Al. (a) plastic strain, (b) equivalent von Mises stress.

荷による応力場の方が支配的であることが認められた。

次に、平面応力と平面ひずみ (Fig. 9) および加工硬化 (Fig. 10) の破壊形態に及ぼす影響に関する考察を行った。有限要素構成の説明の際、今回用いた試験片形状の場合は平面応力支配であることを明らかにした。Fig. 9 は実験観察から単一面き裂を示した 2.3Al 試験片を対象とし、平面応力または平面ひずみの場合を想定したとき、き裂先端前方の領域における積層面に平行な方向の塑性ひずみおよび von Mises 応力 (Fig. 9(b)) のプロットである。アルミナの第 1 層 (C1 層) でき裂生成が期待される $K_I = 12 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 付近の負荷条件で M1 層の塑性ひずみは、平面ひずみの場合はほぼゼロであり平面応力の場合はある程度の値を持っている (Fig. 9(a))。有効降伏応力で正規化した Von Mises 応力の分布も塑性ひずみに似た傾向を示している。この結果から、脆性層の破断は金属層の塑性ひずみによって誘導される引張り応力に起因することが推定される。多重き裂が見られる 5.0Al 試験片を用いて、Al 層を次の式で定義される加工硬化指数 $n=0.2$ の場合と完全塑性を仮定した場合のそれぞれにおいて、M2 層での塑性ひずみを Fig. 10 に示した。

$$\sigma_t = \sigma_0 (\epsilon_t / \epsilon_0)^n \quad (5)$$

ここで、 σ_t , σ_0 は真応力, 降伏応力を, ϵ_t , ϵ_0 は真ひずみ, 降伏ひずみである。前者 ($n=0.2$) の方は C2 層付近の M2 層の塑性ひずみがほぼゼロであるが、後者 ($n=0$) の方はより大きい塑性ひずみを有する。Fig. 9 の考察と同様に、物理的にありえない完全塑性を仮定すると金属層の変形による応力伝播が生じて実験観察とは異なる単一面き裂優先になった。以上の考察から検証できる平面応力および加工硬化の条件下での数値解析を行った場合、実験の観察と一致する破壊形態が予測できた。この手法の妥当性が立証できたと考えられる。

4. 結 論

構造材料の新素材として金属/セラミックス、または金属/

Fig. 10 Effect of work-hardening on fracture mode. (a) $n = 0.2$, (b) $n = 0$

金属間化合物などの延性/脆性の組み合わせによる積層複合材料の開発およびその信頼性評価が求められている。本研究では、積層材料のき裂進展過程において熱残留応力を含む、隣接脆性層でのき裂生成とその後の単一面き裂および多重き裂に関する数値解析法を提案し、その妥当性の検討を試みた。即ち、破壊応力以上の負荷の際、弾性係数をゼロに設定したき裂要素を有限要素の内部に設けることによって、き裂核生成の応力拡大係数(K_N)および破壊抵抗(R-curve)のような動的なき裂進展の解析が可能になった。また、高靱化のためのもっとも有効な手段である多重き裂が得られるような材料設計の可能性を示すことができた。正確なクライテリオンの導出のためには、各層の単体および拘束されたときの力学特性、残留応力および界面物性のデータが要求される。高いアスペクト比により確実に延性層のブリッジングが得られる延性/脆性積層材料の独特な破壊挙動から、延性層の改質によるさらなる力学特性の向上が期待される。

文 献

- 1) J. A. Munir: Ceramic Bulletin **67**(1988) 342-349.
- 2) K. Aoki and O. Izumi: J. Japan Inst. Metals **43**(1979) 1190-1196.
- 3) C. T. Liu, C. L. White and J. A. Horton: Acta Metall. **33**(1985) 213-229.
- 4) T. Ogura, S. Hanada, T. Masumoto and O. Izumi: Metall. Trans. A **16A**(1985) 441-443.
- 5) E. P. George, C. T. Liu and D. P. Pope: Acta Mater. **44**(1996) 1757-1763.
- 6) U. Anselmi-Tamburini and Z. A. Munir: *Combustion and plasma synthesis of high temperature materials*, ed. by Z. A. Munir and J. B. Holt, (VCH, New York, 1991) pp. 100-105.
- 7) D. E. Alman, J. C. Rawers and J. A. Hawk: Metall. Mater. Trans. A **26A**(1995) 589-599.
- 8) J. C. Rawers and D. E. Alman: Comp. Sci. and Tech. **54**(1995) 379-384.
- 9) P. Zhu, J. C. M. Li and C. T. Liu: Mater. Sci. Eng. A **A239-240**(1997) 532-539.
- 10) M. Enoki, K. Sakai, B. N. Kim and T. Kishi: J. Japan Inst. Metals **63**(1999) 838-843.
- 11) D. S. Chung, Y. Tomita, M. Enoki and T. Kishi: J. Japan Inst. Metals **63**(1999) 1043-1052.
- 12) D. R. Bloyer, K. T. Venkateswara Rao and R. O. Ritchie: Metall. And Mater. Trans. A **29A**(1998) 2483-2496.
- 13) H. C. Cao and A. G. Evans: Acta Metall. Mater. **39**(1991) 2997-3005.
- 14) M. C. Shaw, D. B. Marshall, M. S. Dadkhah and A. G. Evans: Acta Metall. Mater. **41**(1993) 3311-3322.
- 15) M. Y. He, F. E. Heredia, D. J. Wissuchek, M. C. Shaw and A. G. Evans: Acta Metall. Mater. **41**(1993) 1223-1228.
- 16) Y. Huang, H. W. Zhang and F. Wu: Int. J. Solids Structures **31**(1994) 2753-2768.
- 17) K. L. Hwu and B. Derby: Acta Mater. **47**(1999) 529-543.
- 18) R. O. Ritchie, J. F. Knott and J. R. Rice: J. Mech. Phys. Solids **21**(1973) 395-410.
- 19) A. Goldsmith, T. E. Waterman and H. J. Hirschhorn: *Handbook of thermophysical properties of solid materials*, (Pergamon Press, Oxford, 1961) vol I pp. 39-51, pp. 247-259, pp. 445-461, vol III pp. 33-35.
- 20) T. Fett and D. Munz: *Stress intensity factors and weight functions for one-dimensional cracks*, (Southampton, U. K.: Computational Mechanics Pub., 1997) pp. 128-142.
- 21) M. F. Ashby, F. J. Blunt and M. Bannister: Acta Metall. **37**(1989) 1847-1857.