セラミックス-金属接合継手の強度評価 に関する解析的研究

向 井 喜 彦* 村 田 雅 人*
大 沢 健 二** 山 本 柁 道**

Analytical Evaluation of Thermal Stress Fracture in Ceramic-Metal Bonded Joints

by

Yoshihiko MUKAI*, Masato MURATA*

Kenji OSAWA** and Masamichi YAMAMOTO**

Thermal stress fracture in 96% alumina-kovar bonded joints was studied by thermal elasto-plastic analysis. Thermal stress fracture of this joint occurred at the center of the alumina plate at about 873K during post bonded heating and the fracture was detected by AE measurements. This phenomena was able to be simulated analytically by thermal elasto-plastic FEM and the stress normal to the direction of the bonded line was found to be a good parameter for thermal stress fracture. As the result of this analysis, it is predicted that the sensitivity of alumina for thermal fracture becomes higher with increasing the plate thickness of Alumina or Ag metallized layer.

Key words : Alumina, Kovar, Thermal elasto-plastic FEM, Acoustic emission, Ceramic-metal bonding, Thermal stress

1 緒 言

セラミックスは構造要素の一部として金属と接合して使用されることが多く、実験段階から実用段階に入っているものも多数見られる。しかしその強度評価法は必ずしも確立されておらず、ほとんどが現物試験である。したがって、強度予測が困難で実用上強度設計に支障をきたしている。そこで、本研究ではセラミックス金属接合材における熱応力破壊について Al_2O_3 -コバル接合材を用いて加熱冷却にともなう割れを熱弾塑性有限要素法^{(1),(2)}によってシミュレートし、その破壊の予測の可能性について検討を加えた。

2 供試材料ならびに実験方法

供試材料には 96% Al_2O_3 とコバル (29% Ni, 17% Co 鋼) 接合材を用いた。接合継手は 96% Al_2O_3 を Ag でメタライズしコバルに銀ろうにより接合し作成した。その試験片形状を Fig. 1 に示す。

継手材の熱応力破壊試験としては試験片を炉中で均一加熱冷却を行い、セラミックス部にき裂を発生させた。実験の模式図を Fig. 2 に示す。試験片コバル裏面に Type 304 の AE、導波管を溶接し、温度変化による摩擦を防ぐために途中導波管を静水中で冷却しその先端にトランスデューサーを設置した。AE 測定条

Fig. 1. Dimension of ceramic-metal bonded specimen.

Fig. 2. Block diagram of AE measurement for detecting thermal stress fracture in ceramic-metal bonding specimen.

件としてはゲインを 90dB とし、またしきい値は 1 V の条件で 1 秒間の AE のカウントレートならびに

† 原稿受理 昭和63年4月1日 Received Apr. 1, 1988

* 正会員 大阪大学工学部 吹田市山田丘, Faculty of Engineering, Osaka University, Yamadaoka, Suita

** 関西電力㈱総研 尼崎市若王寺, The Kansai Electric Power Co., INC, Nakohji, Amagasaki

トータルカウントを測定した。なお、電氣的ノイズを除去する目的でその信号の包絡線を取り可聴低周波に変換したものを実効型電圧計を用いて測定しそれらと比較した。また、試験片の温度はCA熱電対をコパールにスポット溶接し、直接測定した。

3 Al_2O_3 -コパール接合部の熱応力破壊特性

セラミックス-金属接合部の加熱冷却過程における破壊特性について検討を行った。

Fig. 3 は、各試験片を電気炉中で加熱（加熱速度： $3.07 \times 10^{-2} \text{K/sec}$ ）冷却を行った場合の温度変化とAEの発生状況をみたものである。AEは加熱過程において最高温度到達の少し前まではまったく発生せず、冷却の段階で頻度高くAEの発生が認められた。このことは最大加熱温度直前に小さいき裂が入り、以下冷却過程においてき裂が成長していることを示している。つぎに、実際に接合材に発生した割れを観察した。Fig. 4 は、試験片の側面の割れ発生状況を模式的に示したものである。

Fig. 3. Typical example of AE measurement in heating and cooling process.

Fig. 4. Illustration of cracks in Al_2O_3 -Kovar bonded specimen.

4 セラミックス-金属接合材の熱応力破壊に関するシミュレーション

4.1 熱弾塑性有限要素解析理論

熱応力試験における割れ発生の時期や場所について解析的な検討を行うため、非定常熱伝導解析から温度分布を求めて熱弾塑性解析により応力分布を求める。平面問題を対象としたが、式の展開は一般性をもたせるため3次元をもとに行った。非定常熱伝導基礎方程式を次に示す。

$$\rho c \frac{\partial T}{\partial t} = \lambda \left(\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right) + \dot{Q} \quad (1)$$

($\lambda_x = \lambda_y = \lambda_z = \lambda$)

T : 温度, ρ : 密度, λ : 熱伝導率

c : 比熱, $\dot{Q}$: 発熱率

ガラーキン法を用いて形状関数マトリックス $[N]$ を重み関数とすると次のように表わせる。

$$\int_{V_e} [N]^T \left\{ \lambda \left(\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right) + \dot{Q} - \rho c \frac{\partial T}{\partial t} \right\} dV = 0 \quad (2)$$

つぎに境界での熱放射による熱流束を $q (= \sigma F(T^4 - T_r^4))$ とすると

グリーンの定理より

$$\begin{aligned} & - \int_{V_e} \lambda \left(\frac{\partial [N]^T}{\partial x} \frac{\partial [N]}{\partial x} + \frac{\partial [N]^T}{\partial y} \frac{\partial [N]}{\partial y} \right. \\ & \left. + \frac{\partial [N]^T}{\partial z} \frac{\partial [N]}{\partial z} \right) dV | \phi(t) \\ & - \int_{S_e} q [N]^T dS + \int_{V_e} \dot{Q} [N]^T dV \\ & - \int_{V_e} \rho c [N]^T [N] dV \frac{\partial \phi(t)}{\partial t} = 0 \end{aligned} \quad (3)$$

V_e : 要素領域, S_e : 要素境界, σ : ステファンボルツマン定数, F : 修正係数, T_r : 放射源の温度が得られる。すなわち有限要素の式として

$$[k] \phi + [c] \left\{ \frac{\partial \phi}{\partial t} \right\} = \{f\} \quad (4)$$

ただし

$$\begin{aligned} [k] &= \int_{V_e} \lambda \left(\frac{\partial [N]^T}{\partial x} \frac{\partial [N]}{\partial x} + \frac{\partial [N]^T}{\partial y} \frac{\partial [N]}{\partial y} \right. \\ & \left. + \frac{\partial [N]^T}{\partial z} \frac{\partial [N]}{\partial z} \right) dV \\ & + \int_{S_{S_2e}} \alpha_d [N]^T [N] dS + \int_{S_{S_1e}} \alpha_r [N]^T [N] dS \\ [c] &= \int_{V_e} \rho c [N]^T [N] dV \\ \{f\} &= \int_{V_e} \dot{Q} [N]^T dV - \int_{S_{S_2e}} q_0 [N]^T dS + \int_{S_{S_1e}} \alpha_c T_c [N]^T dS \\ & + \int_{S_{S_1e}} \alpha_r T_r [N]^T dS \end{aligned}$$

q_0 : S_2 上での熱流束, T_c : 外部温度, V_e : 要素領域, ϕ : 節点温度ベクトル, $[k]$: 熱伝導マトリックス, $[c]$: 熱容量マトリックス, $\{f\}$: 熱流束マトリックス, α_c : 熱伝達係数, $\alpha_r = \sigma F(T^4 + T_r^4)$

以上、要素剛性方程式を全体に拡張し

$$[K] \Phi + [c] \left\{ \frac{\partial \Phi}{\partial t} \right\} = \{F\} \quad (4)$$

ここで大文字は全体方程式を表わす。

つぎに時間に関する離散化の方法としてクランク・ニコルソン差分式を用いた。

時刻 $t + \Delta t/2$ (Δt : 微小時間増分) での節点温度ベクトルは

$$\left\{ \Phi \left(t + \frac{\Delta t}{2} \right) \right\} = \frac{1}{2} (\{ \Phi(t - \Delta t) \} + \{ \Phi(t) \}) \quad (5)$$

時刻 $t + \Delta t / 2$ での節点温度ベクトルの時間微分は

$$\left\{ \frac{\partial \Phi}{\partial t} \left(t + \frac{\Delta t}{2} \right) \right\} = \frac{\{\Phi(t + \Delta t)\} - \{\Phi(t)\}}{\Delta t} \quad (6)$$

これを整理すると

$$\begin{aligned} & \left(\frac{1}{2}[\mathbf{K}] + \frac{1}{\Delta t}[\mathbf{c}] \right) \{\Phi(t + \Delta t)\} \\ & = \left(-\frac{1}{2}[\mathbf{K}] + \frac{1}{\Delta t}[\mathbf{c}] \right) \{\Phi(t)\} + \{\mathbf{F}\} \end{aligned} \quad (7)$$

となる。 $\{\Phi(t)\}$ が既知であれば式(7)より非定常熱伝導問題は逐次解くことができる。

つぎに熱弾塑性有限要素法としては同一の三角形一次要素を用いて解析を行った。熱弾塑性問題では初期ひずみは温度増分 $\dot{T}$ に関係した量であるから

$$\{\dot{\sigma}\} = [\mathbf{D}]\{\dot{\epsilon}\} - [\mathbf{C}]\dot{T} \quad (8)$$

と表わされる。但し、ここで $[\mathbf{D}]$: 弾塑性マトリックス, $[\mathbf{C}]$: 温度増分に対する熱応力項。

つぎに、各有限要素の節点変位増分と荷重増分の関係は仮想仕事の原理によって求めることができる。結果として次の剛性方程式を得る。

$$\{\dot{\mathbf{P}}\} = \int [\mathbf{B}]^T [\mathbf{D}] [\mathbf{B}] dV \{\dot{\mathbf{d}}\} - \int [\mathbf{B}]^T [\mathbf{C}] \dot{T} dV \quad (9)$$

$$\equiv [\mathbf{K}]\{\dot{\mathbf{d}}\} - \{\dot{\mathbf{L}}\} \quad (10)$$

ここで、 $[\mathbf{K}]$ は剛性マトリックス, $[\mathbf{L}]$ は等価節点力増分であり、それぞれ式(11), 式(12)のようになる。

$$[\mathbf{K}] = \int [\mathbf{B}]^T [\mathbf{D}] [\mathbf{B}] dV \quad (11)$$

$$[\mathbf{L}] = \int [\mathbf{B}]^T [\mathbf{C}] \dot{T} dV \quad (12)$$

それを全要素に拡張すると全体剛性方程式

$$\{\dot{\mathbf{P}}\}_a = [\mathbf{K}]_a \{\dot{\mathbf{d}}\}_a - \{\dot{\mathbf{L}}\}_a \quad (13)$$

を得る。ただし平面応力を仮定すると弾性域

$$[\mathbf{D}] = [\mathbf{D}^e] = \frac{E}{1 - \nu^2} \begin{bmatrix} 1 & \nu & 0 \\ \nu & 1 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1 - \nu}{2} \end{bmatrix} \quad (14)$$

$$\begin{aligned} [\mathbf{C}] = [\mathbf{C}^e] = [\mathbf{D}^e] & \left(\begin{bmatrix} \alpha \\ \alpha \\ 0 \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} \frac{\partial \alpha}{\partial T} \\ \frac{\partial \alpha}{\partial T} \\ 0 \end{bmatrix} \dot{T} \right. \\ & \left. - \frac{1}{E^2} \frac{\alpha E}{\partial T} \begin{bmatrix} \sigma_x - \nu \sigma_y \\ \sigma_y - \nu \sigma_x \\ 2(1 + \nu) \tau_{xy} \end{bmatrix} \right) \end{aligned} \quad (15)$$

ν : ポアソン比

α : 線膨張係数

塑性域

$$[\mathbf{D}] = [\mathbf{D}^p] = [\mathbf{D}^e] - \frac{1}{S} \begin{bmatrix} S_1^2 & S_1 S_2 & S_1 S_3 \\ & S_2^2 & S_2 S_3 \\ \text{Sym} & & S_3^2 \end{bmatrix} \quad (16)$$

$$\begin{aligned} [\mathbf{C}] = [\mathbf{C}^p] = [\mathbf{D}^p] & \left(\begin{bmatrix} \alpha \\ \alpha \\ 0 \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} \frac{\partial \alpha}{\partial T} \\ \frac{\partial \alpha}{\partial T} \\ 0 \end{bmatrix} \dot{T} - \frac{1}{E^2} \frac{dE}{dT} \right. \\ & \left. \begin{bmatrix} \sigma_x - \nu \sigma_y \\ \sigma_y - \nu \sigma_x \\ 2(1 + \nu) \tau_{xy} \end{bmatrix} \right) - \frac{2}{3} \frac{\sigma_y}{S} \begin{bmatrix} S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{bmatrix} \frac{\partial \sigma_y}{\partial T} \end{aligned} \quad (17)$$

σ_y : 降伏応力

また、塑性変形量を決定する λ は¹⁾

$$\begin{aligned} \lambda = \frac{1}{3S} & \left(\begin{bmatrix} S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{bmatrix}^T \begin{bmatrix} \dot{\epsilon}_x \\ \dot{\epsilon}_y \\ \dot{\gamma}_{xy} \end{bmatrix} - \begin{bmatrix} S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{bmatrix}^T \begin{bmatrix} \alpha \\ \alpha \\ 0 \end{bmatrix} \right. \\ & \left. + \begin{bmatrix} \frac{\partial \alpha}{\partial T} \\ \frac{\partial \alpha}{\partial T} \\ 0 \end{bmatrix} \dot{T} + \begin{bmatrix} S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{bmatrix}^T \begin{bmatrix} \sigma_x - \nu \sigma_y \\ \sigma_y - \nu \sigma_x \\ 2(1 + \nu) \tau_{xy} \end{bmatrix} \right. \\ & \left. \frac{1}{E^2} \frac{dE}{dT} \dot{T} - \frac{2}{3} \frac{\partial \sigma_y}{\partial T} \dot{T} \right) \end{aligned} \quad (18)$$

ここでは平面応力場を対象としたので

$$S_1 = \frac{E}{1 - \nu^2} (\sigma'_x + \nu \sigma'_y), \quad S_2 = \frac{E}{1 - \nu^2} (\nu \sigma'_x + \sigma'_y),$$

$$S_3 = \frac{E}{1 + \nu} \tau'_{xy}$$

$\sigma'_x, \sigma'_y, \tau'_{xy}$ は偏差応力

$$\text{また, } S = \frac{4}{9} \bar{\sigma}^2 \mathbf{H}' + S_1 \sigma'_x + S_2 \sigma'_y + S_3 \tau'_{xy}$$

なお、材料の硬化関数として移動硬化則を採用した。¹⁾

4・2 解析方法ならびに結果

Fig. 5 は本解析に用いたモデルとその要素分割の1例である。これは実際の試験片との対応を示したもので試験片中央における 1/2 モデルとした。応力状態はき裂が表面より入ったことを考慮し、平面応力とした。

Fig. 6 は実験より得られたプロセス冷却—加熱—冷却曲線を示したものである。まず、最初の冷却は接合継手の接合温度 893K より空冷したものに相当し、冷却が進むにつれて残留応力が発生してくる。それにづく加熱—冷却は熱応力を与えるために電気炉中で 873K まで加熱し、その後冷却したものに相当する。以下にこの曲線の近似式を示す。

$0 < t \leq 132000 \text{ sec}$ (冷却)

$$T = \frac{2.7 \times 10^6}{t + 4.4 \times 10^3} + 273.15 \text{ (K)} \quad (19)$$

$132000 < t \leq 152000 \text{ sec}$ (加熱)

$$T = 2.9 \times 10^{-2} (t - 132000) + 273.15 \text{ (K)} \quad (20)$$

$152000 < t \leq 162000 \text{ sec}$ (冷却)

(b) Mesh division
Fig. 5. FEM model.

Fig. 6. Thermal cycle.

$$T = \frac{2.7 \times 10^6}{t - 14.7 \times 10^4} + 273.15(K) \quad (21)$$

また、非定常熱伝導解析における時間増分は、加熱については速度が十分に小さいことから 200sec とし、冷却については初期において速度が大きいのので 50 sec とした。

つぎに、本解析に用いたコパール、銀、アルミナの各材料定数を示す。^{4),5)}

$$\begin{aligned} \langle \text{Kovar} \rangle \\ E &= \frac{10^7}{T - 200} + 50000 \quad [\text{MPa}] \\ \sigma_y &= \frac{3.2 \times 10^4}{T - 50} + 90 \quad [\text{MPa}] \\ H &= \frac{9.2 \times 10^6}{T + 740} - 3400 \quad [\text{MPa}] \\ \alpha &= 1.3 \times 10^{-8} T + 1.02 \times 10^{-5} \quad (250 \leq T \leq 900[\text{K}]) \\ c &= 468 \quad [\text{J/kg} \cdot \text{deg}] \quad \lambda = 17.0 \quad [\text{J/m} \cdot \text{s} \cdot \text{deg}] \\ \rho &= 8300 \quad [\text{kg/m}^3] \quad \nu = 0.3 \end{aligned}$$

$\langle \text{Ag} \rangle$

$$E = 2(1 + \nu) \cdot G(T) \quad [\text{MPa}]$$

$$\sigma_y = \frac{G(T)}{G(T_0)} \cdot \sigma_y(T_0) \cdot \Gamma(T) - 190 \quad [\text{MPa}]$$

$$\begin{aligned} G(T) &= -1.0 \times 10^4 (T/T_m)^2 - 9.8 \times 10^3 (T/T_m) \\ &\quad + 3.3 \times 10^4 \\ \Gamma(T) &= 0.73(T/T_m)^2 + 0.32(T/T_m) + 0.96 \\ T_m &= 1234[\text{K}] \quad \sigma_y(T_0) = 220[\text{MPa}] \quad T_0 = 300[\text{K}] \end{aligned}$$

$$\alpha = 2.5 \times 10^{-9} T + 1.9 \times 10^{-5} \quad (200 \leq T \leq 1000[\text{K}])$$

$$\nu = 0.367$$

$$c = 248 \quad [\text{J/kg} \cdot \text{deg}] \quad \lambda = 418 \quad [\text{J/m} \cdot \text{s} \cdot \text{deg}]$$

$$\rho = 10490 \quad [\text{kg/m}^3]$$

$\langle \text{Al}_2\text{O}_3 \rangle$

$$E = 300000 [\text{MPa}]$$

$$\alpha = 6.0 \times 10^{-6}$$

$$\nu = 0.27$$

$$c = 1018 \quad [\text{J/kg} \cdot \text{deg}] \quad \lambda = 25.0 \quad [\text{J/m} \cdot \text{s} \cdot \text{deg}]$$

$$\rho = 3900 \quad [\text{kg/m}^3]$$

但し、 H は直線硬化則における勾配、 $H = \bar{\sigma} / (\int d\epsilon_p)$ である。

また以上に示した解析方法を Fig. 7 にフローチャート

Fig. 7. Flow chart of thermal elasto-plastic analysis.

として示す。

アルミナ-コパル接合材における解析結果として、非定常熱伝導を扱った熱弾塑性解析結果を Fig. 8 に示

Fig. 8. Result of unstationary state thermal elastoplastic analysis.

す。各層における代表要素を同図(a)に示す。同図(b)はそれぞれの要素における熱サイクル曲線であるが、各要素ともほぼ同じ熱サイクルを示している。各要素における界面に平行な向きの σ_x について検討した結果を同図(c)に示す。また(d)は(c)を温度軸で整理したものである。また Fig. 9 は中央断面における σ_x の分布を見たものである。アルミナにおいては、接合プロセス後室温に冷却された段階で大きな圧縮の残留応力が働いているのがわかる。そして再加熱時において最高到達温度でアルミナは張力に変化している。

したがって実際の熱応力破壊試験において AE が最高到達温度直前から発生しはじめた結果と本解析結果は良好に対応し、その温度範囲では Al_2O_3 の破壊応力に達している。このことは、本解析が現実と矛盾せず妥当であることを示しており、以下、本解析法をもとにアルミナ板厚、銀メタライズ層の厚さの影響について述べる。

Fig. 9. σ_x distribution along y -axis ($x=0$) under several Al_2O_3 thickness conditions.

Fig. 10 はアルミナ板厚を変化した時のアルミナ-銀界面代表要素の残留応力, 最高温度到達時の σ_x について示した結果である。代表要素重心は試験片中央よりずれる事やくり返し計算によるまるめの誤差の累積などによって必ずしも十分に高精度の演算であるとはいえないが, 傾向的にはアルミナ板厚の増大により最高温度到達時の σ_x は上昇し, 割れ易くなることが予想される。すなわち, アルミナ板厚はあまり厚くしない方が良いと思われる。つぎに, 銀メタライズ層の厚さについて検討した結果を Fig. 11 に示す。アルミナの場合と同様に銀メタライズ層の厚さが増加するにつれて残留応力は減少するが最高到達温度時の σ_x も増大し, 割れ感受性を増大させる。

Fig. 10. Effect of Al_2O_3 thickness on residual stress and σ_x at 873 K.

Fig. 11. Effect of Ag thickness on residual stress and σ_x at 873 K.

以上より, アルミナ-金属接合材における割れ感受性を低下させるには, アルミナ板厚は薄い程有利であり, メタライズ層も同様に薄くする必要があることが予測された。

5 結 論

以上, 得られた結果を要約すると次の通りである。

(1) アルミナ-コパール接合材の熱応力破壊は最高到達温度 873K 近傍もしくはその直前で発生し, 発生位置はアルミナ中央表面であった。

(2) アルミナ-コパール接合材の熱応力破壊について非定常熱弾塑性解を行った結果, はほぼ熱伝導を考えない均一加熱で近似できることが明らかになった。

(3) 最高到達温度域における σ_x はほぼ材料の破壊応力に等しくなることから, 本解析法は妥当であり, σ_x が破壊に対する有効なパラメータとなることがわかった。

(4) アルミナに働く熱応力を低下させる為の接合材各層厚さについては, アルミナ厚さ, 銀メタライズ層厚さが薄い程有効であることが推定された。

(5) 室温における接合後のアルミナでの残留応力は, アルミナが厚い程圧縮応力が大きく, 構造体として有効であるが, 銀メタライズ層が厚くなるほど圧縮応力は低下するので注意を要する。

おわりに, 本研究の推進に御協力頂いた当時大阪大学修士課程, 布施圭一君, 同, 林善弘君に謝意を表します。

(昭和63年2月10日 第39回セラミック材料部門委員会にて講演)

参 考 文 献

- 1) 山田嘉昭, “塑性・粘弾性” (1972) 培風館。
- 2) 矢川元基, 宮崎則幸, 有限要素法による熱応力・クリープ熱伝導解析, p. 115-134 (1985) サイエンス社。
- 3) 上田幸雄, 中長啓二, 金 裕哲, 村川英一, 溶接学会誌, 55, 6, 336 (1986)。
- 4) W. Köster, Z. Metallkde, 29, p. 145-158 (1937)。
- 5) 村田雅人, 向井喜彦, 第43回日本材料学会フラクトグラフィ部門委員会, (1987)。