アルミナセラミックスの熱衝撃疲労†

前 川 一 郎* 柴 田 博 司*
小 林 朗** 和 田 努***

Thermal Shock Fatigue of Al_2O_3 Ceramics

by

Ichiro MAEKAWA*, Hiroshi SHIBATA*, Akira KOBAYASHI**
and Tsutomu WADA***

The effects of a single thermal shock and its repetition on the initiation and growth of cracks were studied experimentally by using notched Al_2O_3 ceramics specimens. Various temperature differences were given by rapid cooling in water after heating at different temperatures in a furnace. The results obtained are summarized as follows;

1) The boiling point of water, instead of water temperature, seems to be appropriate as the low side temperature to determine the critical temperature difference for the initiation of a crack by a single thermal shock as well as for the increase of the crack density under the repetition of thermal shock of small temperature difference.

2) For the increase in the number of surface cracks including branched ones, the temperature of cooling water seems to be appropriate as the low side temperature under the repeated thermal shock conditions.

3) The threshold temperature difference to increase the crack density under the repetition of thermal shocks agreed with the critical temperature difference for crack initiation by a single thermal shock.

Key words : Al_2O_3 ceramics, Thermal shock, Fatigue, Crack density, Water quench

1 緒 言

半導体集積回路の高密度化が進み発熱量の増大するに伴って、基板として用いられるセラミックスの熱応力による破壊が問題となっている。また、セラミックスは金属材料に比べて熱伝導率が小さく、破壊挙動がぜい性的であるため急激な温度変化による熱衝撃破壊を生ずる場合が多く、熱応力に対する強度の解明は極めて重要な課題である。実用上は繰返し熱応力の作用を受ける場合の熱衝撃疲労挙動の解明が今後重要になるものと考えられる。

従来の熱衝撃疲労の研究においては、機械的応力下での疲労と同様なき裂の安定成長理論に基づく解析も行われている^{1),2)}。これらはいずれもき裂の寸法がごく小さい領域に限定し、き裂の発生の確認をもって熱衝撃疲労強度を決定している。微小なき裂を対象とする理由は、多くの実用状態では熱的応力と外部の機械的応力が重畳して作用するため、セラミックスの破壊に至る臨界き裂寸法は極めて小さいものが対象となることによる²⁾。しかし、熱衝撃疲労における破壊挙動は機械

力の作用の場合と異っており、き裂の進展挙動を明らかにすることは発生成長挙動の考察にも役立つものと考えられる。

そこで本研究ではアルミナセラミックスを用いて繰返し熱衝撃によるき裂の伝ば進展挙動の目視観察を行って考察した。

2 実 験 方 法

2・1 供試材

供試材料は電子部品の基板として広く用いられているアルミナセラミックスであり、その組成を Table I に示す。試験片形状は Fig. 1 に示したように中央部に切欠きを有する厚さ 1 mm の薄板試験片である。試験片の機械的性質および熱的性質を Table II に示す。試験片の製作は、スリップキャストによるシー

Table I. Chemical composition.
(wt %)

Al_2O_3	SiO_2	MgO	CaO
96	4		

† 原稿受理 昭和63年7月19日 Received July 19, 1988

* 正 会 員 東北大学工学部 仙台市荒巻字青葉, Faculty of Engineering, Tohoku University, Aramaki-Aoba, Sendai

** 正 会 員 東亜燃料工業(株) 埼玉県入間郡大井町, Toa Nenryo Kogyo K. K., Ohi-machi, Iruma-gun, Saitama

*** 学生会員 東北大学大学院 仙台市荒巻字青葉, Graduate Student, Tohoku University, Aramaki-Aoba, Sendai

Fig. 1. Dimension of specimen.

Table II. Mechanical and physical properties.

Young's modulus	294 GPa
Poisson's ratio	0.4
Bending strength	265 MPa
Compressive strength	1960 MPa
Thermal conductivity	$18.9 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$
Coefficient of thermal expansion	$7.5 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$

ト成形後試験片形状に打ち抜き、約 1770 K で常圧焼結して行われた。なお表面仕上げは行われていない。

実験に際して試験片中央部から優先的にき裂が発生するように、試験片の両端部の表面はアルミナセメントとアルミニウム板により被覆して保護した。

2・2 実験装置および実験方法

繰返し熱衝撃実験には Fig. 2 に示す水中投下型の装置を試作して用いた。高温炉および冷却水の設定温度に対する温度変動はいずれも $\pm 2 \text{ K}$ 以下である。冷却水は補助タンクで 3 段階の温度レベルに調節後、ポンプを用いて冷却槽に強制循環させた。これにより冷却槽内での温度分布が均一になるようにした。

試験片の加熱と冷却は試験片を高温炉中で 25 分間加熱後、冷却水中に約 0.2 m/s の速度で下ろし、5 分間冷却する方法で行った。試験片の上下には吊したワイヤを一定時間間隔において電気炉と冷却水の間を自動的に往復させて行った。その際のワイヤ長さの調節は位置制御用のマイクロスイッチと間欠リレーを介した巻取りモータにより行った。熱衝撃の繰返しにより発生した表面き裂の成長状態は、繰返しの途中で適

Fig. 2. Schematic diagram of experimental apparatus.

宜に観測し、き裂長さの測定に当っては、冷却後に加熱乾燥した試験片を大気中で徐冷した後に、き裂の目視観察を可能にするために市販のインクをき裂に浸透染色させて行った。

3 実験結果および考察

3・1 単発熱衝撃強度

平板を加熱後、急冷却すると試料の表面と内部の温度勾配のために表面には引張り応力が発生し、この表面に生じた最大引張り応力がその材料の引張り強度に達したときに破壊が起きる。発生する熱応力は材料の物性値や試料形状そして熱衝撃の激しさなどによって異なり、単純な形状における熱条件に対しては理論解が得られている。^{3),4)}しかし、本報のように試験片が切欠きを有すると多くの場合にき裂の初生は切欠き先端に見られることなどから単純な薄板形状に対する理論解をそのまま適用することはできない。また、機械的外力下ではぜい性的に全体破壊に至り易いが、熱衝撃の場合には適当な温度条件を選べば小き裂を発生させることができてその後のき裂成長挙動と区別して考察することができる。ここではその温度条件を試行によって選んだ。そうして、後で3・2節で述べる繰返し熱衝撃の結果と比較検討するために、可視的き裂が発生する限界温度を実験的に求めた。

実験の結果によると、冷却水温度 T_1 が 298, 318, 338 K のいずれの場合でも加熱温度 T_2 が 473 K 以下（熱衝撃温度差 ΔT は各 175, 155, 135 K）では試験片全体においてき裂の発生は認められず、 T_2 が 493 K（熱衝撃温度差は各 195, 175, 155 K）以上では必ずき裂の発生が認められた。したがって、き裂の発生には加熱温度 T_2 が影響を及ぼしていることになる。水中投下型の熱衝撃では冷却時に水の沸騰が生じ試料表面に蒸気の隔膜が発生して熱伝達を妨げるため、冷却媒体の温度としては水温ではなく水の沸点を用いた方が適当であることが指摘されている。^{2),5),6)}本実験結果においてもその影響があったものと考えられる。そこで、 T_1 を水の沸点 $T_B=373 \text{ K}$ とみなし、 T_2-T_B を熱衝撃温度差 $\Delta T'$ としてとると、き裂の発生に要する限界熱衝撃温度差 $\Delta T'$ は $100\sim 120 \text{ K}$ の間にあることになる。

3・2 繰返し熱衝撃によるき裂成長

単発熱衝撃によって小き裂を生成することができたが、次にその進展挙動も温度条件を適当に選んで観測できる。そのため繰返し熱衝撃実験は加熱温度 T_2 を 493, 513, 533, 553, 573 K とし冷却温度 T_1 を 298, 318, 338 K とし、これらの組合せにより 15 種類の熱衝撃条件下で行った。き裂の初期発生状況を Fig. 3 に示す。図にみられるように熱衝撃により切欠き部に発生したき裂は、繰返し数の増加と共に伸長し、分岐

Fig. 3. Example of surface crack development by thermal shock fatigue between T_2 (493 K) and T_1 (318 K).

していった。その後熱衝撃の繰返しにより多数の表面き裂が発生し、それらが連結することにより網目状に成長していった。き裂の成長方向は、その先端から最も損傷を受けていない領域に向かって進展していく傾向がみられる。繰返し熱衝撃の初期段階において、加熱温度 $T_2=493$ K ($\Delta T'=120$ K) から急冷却した場合には切欠き底からのみき裂が発生するが、 $T_2=533$ K ($\Delta T'=160$ K) 以上になると平滑部からもき裂が発生した。

そこで先ず、き裂発生状態を見るために発生き裂数と熱衝撃の繰返し数の関係を調べた結果を Fig. 4, 5, 6

に示す。発生き裂数は初め急激に増加した後ほぼ一定値となる。発生き裂数は加熱温度 T_2 が高くなるほど多くなるが、同一加熱温度に対しては冷却水温度が低いほど発生き裂数は多くなっている。したがって、その熱衝撃の効果は、単発熱衝撃によるき裂生成条件が高温側温度によって支配されたのとは異なり、冷却水の温度にも影響を受けた結果となっている。

以上のことから、繰返し熱衝撃の場合にはき裂の初生に対しては冷却水温度の影響がないが、その後の繰返しに伴う新たなき裂の発生数には冷却水温度の影響がみられることになる。この結果はき裂が存在しない平滑試験片とき裂が存在する試験片とにおいて、熱衝撃の効果異なることを示している。

一般にき裂が存在しない初期状態における熱衝撃は水とセラミックス表面間の熱伝達条件に影響を受けるはずである。この場合には、従来から指摘されているように加熱されたセラミックスが水中に投下されると冷却水がセラミックス表面上において沸騰するために、蒸気の隔膜が発生するから熱伝達はセラミックスと水蒸気との間で行われることになり、冷却側温度としては水の沸点を用いるべきものと考えられる。

一方、表面に比較的大きく伸びたき裂が存在する場合には、加熱されたセラミックスを水中に投下したときに、き裂面間に高温の空気が残存すると考えられる。

Fig. 4. Relation between the number of cycles of thermal shock fatigue and the number of cracks on surface ($T_1=298$ K).

Fig. 5. Relation between the number of cycles of thermal shock fatigue and the number of cracks on surface ($T_1=318$ K).

Fig. 6. Relation between the number of cycles of thermal shock fatigue and the number of cracks on surface ($T_1=338$ K).

このようなき裂面間の高温の空気存在は、冷却水からき裂内表面への熱伝達を著しく低下させる。したがって、冷却開始からある時間経過後に試験片表面の温度は水の沸点以下まで低下して冷却水温度にまで達した後でも、き裂内表面温度は残存高温空気によってある程度保持されており、き裂底と試験片の外表面との間の温度勾配は伸びたき裂のない平滑試験片に比べてより大きくなる可能性がある。このような機構では、冷却水温度が低いほどき裂近傍の最大熱応力は大きくなるため、き裂の分岐成長を伴った新たなき裂の発生が起こりやすくなる。その結果としてき裂発生数が多くなるものと考えられる。

Fig. 3 を見るとき裂の発生後の挙動は非常に複雑となり、単一き裂の成長過程だけを追跡していくことが困難になる。そこで、熱衝撃疲労における材料の損傷の進展を評価するために試験片の表面における単位面積当たりのき裂長さの総和としてき裂密度 a_d を定義して考察してみる。 a_d と熱衝撃繰返し数の関係を Fig. 7, 8, 9 に示す。各図中において a_d の繰返し数 N の増加に伴う変化はいずれも上に凸な傾向の曲線となり、 N の増加に伴ってき裂密度の増加量は飽和している。複数のき裂を有する材料の3次元モデルの解析によれば、 m 本の長さ L のき裂をさらに伸ばすのに必要な熱衝撃温度差は L が大きな場合には $mL^{5/2}$ に比例する。このことは同一の熱衝撃温度差の繰返しにおいてはき裂密度の増加量が次第に低下することを示しており、本実験結果とも定性的に対応している。

構造用セラミックス材料の実用状態では熱応力の他に機械的応力も重畳することが多いため、実用的な許容き裂寸法は小さいものである。したがって、熱衝撃疲労によるき裂の初期進展過程を明らかにすることが重要であると考えられる。そこで、熱衝撃の繰返しに伴いき裂密度が直線的に増加する熱衝撃疲労の初期的

Fig. 7. Relation between the number of cycles of thermal shock fatigue and the crack density on surface ($T_1=298$ K).

Fig. 8. Relation between the number of cycles of thermal shock fatigue and the crack density on surface ($T_1=318$ K).

Fig. 9. Relation between the number of cycles of thermal shock fatigue and the crack density on surface ($T_1=338$ K).

段階において、き裂密度の増加速度 $\Delta a_d / \Delta N$ を Fig. 7, 8, 9 の結果を用いて最小自乗法により直線近似して求めた。 $\Delta a_d / \Delta N$ と熱衝撃温度差 $\Delta T (= T_2 - T_1)$ の関係を Fig. 10 に、 $\Delta a_d / \Delta N$ と熱衝撃温度差 $\Delta T' (= T_2 - T_b)$ との関係を Fig. 11 に示す。Fig. 10 において見られるように $\Delta a_d / \Delta N$ と ΔT の関係は同一の ΔT に対して冷却水温度 T_1 が高いほど $\Delta a_d / \Delta N$ が大きくなっており、いずれも熱衝撃によるき裂成長に対しては温度差 ΔT だけでなく T_1 にも依存することがわかる。一方、水の沸点を冷却側温度とした Fig. 11 では、同一の $\Delta T'$ に対して $\Delta T'$ の低い範囲の $\Delta a_d / \Delta N$ はよく一致している。したがって、 $\Delta T'$ が低い範囲内においては、き裂密度の初期増加速度を決定する温度差として加熱温度と水の沸点との間の温度差 $\Delta T'$ をとれば $\Delta T'$ が小さい範囲では T_1 によらずほぼ同様な傾向を示す。しかしながら、熱衝撃温度差 $\Delta T'$ が増大すると、冷却水温度の効果が顕著に現れるようになり、冷却水温度の低い場合にはき裂密度の初期伝ば速

Fig. 10. The increase rate in crack density at the initial stage of thermal shock fatigue. The abscissa is the change in temperature between T_2 and T_1 .

Fig. 11. The increase rate in crack density at the initial stage of thermal shock fatigue. The abscissa is the change in temperature between T_2 and T_b (the boiling point of water).

度が急速に増大している。これは先に述べたように冷却水温度が低くなって熱衝撃温度差が大きくなると、新たなき裂の発生数が急増したことによるものである。一方、Fig. 11において、 T_1 が338 Kの場合には冷却水温度の影響が比較的少なく、 $\Delta a_d/\Delta N - \Delta T'$ 関係は直線的となって比例関係となっている。そこでこの関係を用いて338 Kにおけるき裂密度増加速度と熱衝撃温度差の関係を直線近似し $\Delta a_d/\Delta N$ が0となる点まで外挿することによりき裂密度が増加を開始する下限熱衝撃温度差を求めると約111 Kとなる。この下限熱衝撃温度差は、単発熱衝撃のき裂発生条件に相当するものであり、3・1節で述べたように単発熱衝撃において観察された可視的き裂の未発生温度差 $\Delta T' = 100$ Kと発生温度差 $\Delta T' = 120$ Kの中間の温度に位置する。以上のことから、熱衝撃疲労におけるき裂の初期伝ば挙動を予測するためには冷却媒体温度のき裂発生に対する効果を把握しておくことが大切であることがわかる。

いずれにしても、熱衝撃に際して適当な温度差を選べばき裂を入れることができ、安定な成長挙動が観測できることがわかったが、このことはセラミックス材料の予き裂導入法としての可能性も示唆しているように思われる。

4 結 言

アルミナセラミックスの板試験片を電気炉中で加熱したのち、水槽中に投下して急冷する方法により繰返し熱衝撃を作用させた。き裂の発生と伝ばを観測した結果をまとめると、次のようになる。

1) 単発熱衝撃によるき裂発生温度条件は、高温側温度 T_2 と冷却水温度 T_1 の温度差 ΔT ではなく、 T_2 と水の沸点 T_b との間の熱衝撃温度差 $\Delta T'$ を用いると実験結果をよく説明できる。

2) 繰返し熱衝撃によるき裂の分岐を含む新たなき裂の発生数は熱衝撃温度差が増大すると共に増加し、冷却水の温度に依存した。

3) 熱衝撃の繰返しに伴うき裂密度増加曲線の初期直線部分に対するき裂密度の増加速度を求めた結果、 $\Delta T'$ によって整理すると $\Delta T'$ の低い場合には T_1 によらずほぼ同一の上昇線に表示された。しかし、 $\Delta T'$ が大きくなると冷却水温度依存性があらわれた。

4) 初期き裂密度増加速度の $\Delta T'$ 依存性は、 T_1 が高く338 Kの場合には $\Delta T'$ が大きくなると共に直線的に増加するが、 T_1 が318 K以下の場合には非直線的に急激に増加する。前者のき裂密度増加速度と $\Delta T'$ の間に直線性が見られることから、熱衝撃疲労におけるき裂密度増加速度 $\Delta a_d/\Delta N$ に対するき裂成長の下限温度条件を求めた結果、単発熱衝撃におけるき裂発生温度条件と良い対応が見られた。

最後に本研究にご協力いただいた当科学生村山浩之君(現アルプス電気(株))、樋口忠明君(現日本電気(株))に感謝します。

参 考 文 献

- 1) “セラミックスの機械的性質”, Chap. 6 (1979) 窯業協会.
- 2) N. Kamiya and O. Kamigaito, J. Mater. Sci., **14**, 573 (1978).
- 3) W. D. Kingery, “Introduction to Ceramics”, p. 628 (1963) John Wiley and Sons, Inc., New York.
- 4) B. A. Boley and J. H. Weiner, “Theory of Thermal Stress”, (1960) John Wiley and Sons, Inc., New York.
- 5) R. W. Davidge and G. Tappin, Trans. Brit. Ceram. Soc., **66**, 405 (1967).
- 6) N. Kamiya and O. Kamigaito, J. Mater. Sci., **17**, 3149 (1982).
- 7) D. P. H. Hasselman, J. Amer. Ceram. Soc., **52**, 600 (1969).