応力集中と界面破壊

須 賀 唯 知*

1. はじめに

異相界面の力学的挙動、特に界面破壊は、接合強度を評価する上で扱わなければならない重要な問題であり、構造材料を意図したセラミック-金属接合のみならず、界面機能を利用した機能性デバイスにおいても、界面の形成と表裏一体となった基本的な現象だと言える。異相界面領域の破壊は、界面ないしは界面近傍に内在するき裂や、負荷のもとで成長したき裂を起点として発生する場合が多く、特にセラミックのような脆性材料を含む接合体では、その後のき裂の伝播による破壊モードが接合強度の大きさ、あるいはその統計的ばらつきに直接影響を及ぼす。

この接合界面領域のき裂の進展は、界面の不均一な組織や欠陥の分布、接合母材の機械的特性・強度の違い、残留応力・負荷形式などを反映してさまざまな形態を呈するが、特に弾性歪みの不適合は、接合界面エッジ部や界面き裂先端に均質材には見られぬ特異な応力集中効果をもたらす。

本稿は、異相界面の破壊現象を扱うときにありがちな材料学的問題と力学的問題の混同からくる混乱を避けるため、問題をまず連続体モデルによって力学的側面から整理し、セラミック-金属接合を例にとって、接合強度の評価や界面の破壊過程を扱う上での1つの指針を示そうと試みるものである。

2. エッジ効果

セラミックスと金属の弾性係数は一般にかなり異なるため、負荷を受ける接合体の界面には歪みの不適合が生じ、その結果、接合部のエッジに大きな応力集中が発生する。図1は、弾性係数の異なる2つの等方弾性体から成る接合体が一樣な引張応力を受ける場合の応力分布を、有限要素法により計算したものである⁽¹⁾。図に示す

ように接合部エッジで応力は特異性を示す。2相から成る弾性体の応力場は、一般に各相 $j(j=1, 2)$ のヤング率 E_j (ないしはせん断弾性係数 μ_j)、ポアソン比 ν_j の4つの弾性係数に依存するが、このような平面問題では次式で与えられる2つのパラメータ α, β (Dundurs' Composite Parameter) のみに依存し、取扱いはかなり簡単になる⁽²⁾。

$$\begin{aligned}\alpha &= (k(\chi_1 + 1) - (\chi_2 + 1)) / (k(\chi_1 + 1) + (\chi_2 + 1)) \\ \beta &= (k(\chi_1 - 1) - (\chi_2 - 1)) / (k(\chi_1 + 1) + (\chi_2 + 1)) \quad (1) \\ k &= \mu_2 / \mu_1, \quad \chi_j = 3 - 4\nu_j\end{aligned}$$

$\alpha = \beta = 0$ は均質材に相当し、 α, β が大きいほど接合の

図1 一樣引張を受ける接合体のFEMによる応力解析⁽¹⁾。図左：接合面上の引張応力 σ_y の分布，図右：引張応力 σ_y の分布等高線。

* 東京大学助教授；工学部精密機械工学科
Stress Concentration and Interfacial Failure in Metal-Ceramic Bonding: Tadatomo Suga (Faculty of Eng., The Univ. of Tokyo, Tokyo)
Keywords: interfacial failure, ceramic-to-metal joints, fracture energy, fracture resistance, interface crack, fracture mechanics, stress concentration
1986年3月27日受理

異方性は強くエッジ部での応力集中も大きい。多くの金属-セラミックの組合せで $\alpha-2\beta>0$ が成立するが、SiC/Mo などのように、 $\alpha-2\beta<0$ となる場合もある。後者の条件下では、界面に大きなせん断応力が作用するものの、エッジ部には引張りの応力集中がない特異な応力分布となる。すなわち、この範囲にある組合せは弾性係数は異なっても力学的適合性は良い訳で、接合材選択の1つの目安になる。現在、種々の場合について境界要素法による解析を進めているが、エッジ部についてはき裂先端と同様の特異性を考慮した解析が必要であり、応力分布の解釈についても十分注意を払う必要がある。

さて、このエッジ部の応力集中効果は、接合体の破壊が多くの場合エッジ部から始まる点に認められるが、また、界面き裂のき裂縁形状にも影響を及ぼす。図2は、ガラス/エポキシ接合の界面破壊において観察されたもので⁽¹⁾、均質材に見られる凸型のき裂縁形状と異なり、側面エッジ部の破壊が先行する特異なき裂進展を示している。ただ、このようなエッジ部の応力集中は、接合面の未接合部による応力の分散や、マイクロクラックの成長、金属側の塑性変形、エッジ部のだれなどのため、緩和される場合が多く、実際、 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}$ ⁽¹⁾やプラズマ溶射 ZrO_2/SUS ⁽³⁾等の界面破壊では凹型のき裂縁形状はそれほど顕著には現れない。

図2 ガラス/エポキシ界面を進展するき裂縁形状の模式図⁽¹⁾。

3. き裂の進展と界面破壊の条件

接合強度の評価は、実用的な観点から、単純な引張り・曲げ・せん断を仮定した接合平滑試験片の破壊応力をパラメータとして行われるのが通常である。しかし、破壊の際のエッジ部の応力は、前述のような種々の緩和のため正確に評価するのは難しく、また破壊の起点となる欠陥の大きさにも依存する。さらに、接合界面領域の欠陥の分布や幾何学的不均一性の如何によっては、全く界面で破壊しない場合や破壊モードが様でない場合もあり、接合強度の意味自体が問題となる。

より物理的意味の明確な接合界面強度は、き裂の伝播

径路を制御しつつ、き裂の進展に対する抵抗を測定する、破壊力学的手法による必要があると思われる⁽⁴⁾。界面強度パラメータとしては、界面破壊靱性 K_0 と界面破壊エネルギー G_0 が使われる。これらはき裂先端の負荷を表す応力拡大係数 K 、あるいはエネルギー解放率 G がき裂進展の際に取る値に相当する。応力拡大係数は、き裂にかかる負荷をき裂先端の応力場で評価するものであり、なんらかの界面き裂モデルが必要である⁽⁵⁾。一方のエネルギー解放率は、き裂進展に際し解放される力学的エネルギーを意味し、単位面積当りの界面の分離に必要な可逆的および不可逆的エネルギーの両者を含んでいる。

界面領域の破壊モードは、組織の不均一性や負荷形態に依存するため一般的予測は難しいが、弾性歪みの界面での不一致はここでも影響してくる。

一様な曲げないしは引っ張りを受けるセラミック/金属/セラミック層状接合体の界面に、あるいは界面に平行に微小なき裂が存在する場合を考える。このき裂に関して、 K, G は次式で与えられる⁽¹⁾。

$$\left. \begin{aligned} K &= K_0 Y_K, \\ G &= K^2 (1 - \beta^2) / E^* = K_0^2 Y_G / E^* \\ Y_G &= Y_K^2 (1 - \beta^2) \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

ここに、 K_0 は外部荷重に比例し試験片の寸法に依存する係数、 Y_G はき裂の長さ a にはほぼ比例し、金属層の厚み d 、き裂の界面からの距離 h などに依存する修正係

図3 セラミック/金属/セラミック接合体中のき裂の応力拡大係数 K とエネルギー解放率 G の、界面からの距離 h に対する依存性⁽¹⁾。

図4 破壊の起点と破壊モードの関連.

数, E^* は有効弾性係数で次式で与えられる.

$$E^* = ((1 + \chi_1) / \mu_1 + (1 + \chi_2) / \mu_2) / 16 \quad (3)$$

修正係数 Y_G は個々のケースについて有限要素法などにより解析的に求める必要がある. 図3にき裂長さ a , 金属層の厚み d が一定の場合の K および G の h に対する依存性を模式的に示す. 図中 Y_{iso} は均質体の修正係数である. K で表した負荷は界面で不連続になるのに対し, G は連続である点に注意されたい. またセラミック内のき裂への負荷は, 界面に近づくに従って大きくなるが, 薄い金属層内ではほぼ一定である. この解析から推論される破壊の起点と破壊モードとの関係を図4に示した. 界面強度が大きい場合, 破壊は界面に沿うセラミック内で生じる傾向にあり, このとき見かけの強度はセラミック母材の強度よりも小さくなる. これは接合体の破壊試験において, 実際によく経験される現象である. 接合反応によってセラミックの組織が劣化したり, マイクロクラック・欠陥など損傷を受けることが原因である場合も多いと考えられるが, このような力学的要因が働くことも見落とせない点である.

4. 界面破壊エネルギーと接着仕事

Al_2O_3/Nb の固相接合は, 10^{-4} Pa 以下の真空中, 1000~1500 K の加熱で Al_2O_3 が Nb によって還元分解し, さらに加圧による Nb の塑性流動・拡散によって, 接合面が密着することにより進行する. アルミ, 酸素は

図5 Al_2O_3/Nb 固相接合体の破面. (a) Nb 側, (b) Al_2O_3 側. 図6 Al_2O_3/Nb 固相接合体の Al_2O_3 および接合界面の破壊強度⁽¹⁾.

ニオブ中に拡散するものの, この接合条件下では界面に反応相を生成しない⁽⁶⁾. 界面領域の破壊は, 破面の AES 分析でもほぼ理想的な界面破壊となっており, 界面破壊過程を調べるための格好の試料を提供する. 図5に破面の SEM 像を示す.

図6はこの接合体の破壊強度を接合面からの距離 h に関してプロットしたものである⁽¹⁾, 黒丸で示した見かけの Al_2O_3 の破壊強度は, 前述のように界面に近づくに従って低下しているが, 修正係数による補正によってほぼ

一定となり、母材強度の $G_{IC}=26 \text{ J/m}^2$ に一致する。界面の近くで僅かに上昇するのは、き裂先端に近い Nb が塑性変形し応力を緩和したためと考えられる。

この Al_2O_3 の破壊エネルギーに比べ、界面破壊エネルギー G_C は 43 J/m^2 とかなり大きい。にもかかわらず、実際に界面破壊が生ずるのはなぜであろうか。

すでに述べたように、破壊エネルギーは理想的な破壊エネルギーのほか、破壊に伴うエネルギーの不可逆的散逸の項を含んでいる。理想破壊エネルギーは、界面については接着仕事 W_A 、接合母材については表面エネルギーの 2 倍 2γ に相当し、濡れ角や groove 角の測定から算出される⁽⁷⁾。表 1⁽⁸⁾ に見るように界面破壊エネルギーの不可逆部分は 98% にも達する。界面破壊が生じて実際に測定される破壊エネルギーがアルミナ単体の破壊エネルギーより大きいのは、この散逸エネルギーの寄与が大きいので、これを除いた接着仕事は 0.8 J/m^2 でアルミナの理想破壊エネルギー $2\gamma=2.2 \text{ J/m}^2$ よりも小さくなっている。

表 1 理想破壊エネルギーと破壊エネルギー、破壊靱性値の比較⁽⁸⁾。

	表面エネルギー ないしは接着仕事 W_A (J/m^2)	破壊エネルギー G_{IC} ないしは G_C (J/m^2)	散逸エネルギーの割合 (%)	破壊靱性値 K_{IC} ないしは K_C ($\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$)
Al_2O_3 99.7% Nb	2.18	26.1	91.6	3.25
Nb	5.46	1477	99.6	13.4
$\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}$	0.82	43.4	98.1	2.88

このエネルギー散逸項の内分けを評価するため、界面破壊エネルギー G_C を

$$G_C = \rho_A (\phi_A + a_1 \gamma_1^p + a_2 \gamma_2^p) \quad (4)$$

と表す。ここに、 ρ_A ：接合部の面積比、 ϕ_A ：接合面の粗さなどによる幾何学的因子、 γ_1^p, γ_2^p ：セラミック、金属各々単体の破壊における散逸エネルギー、 a_1, a_2 ：界面破壊におけるエネルギー散逸の寄与を表す因子であり、エネルギーの散逸が連続体モデルから求まるき裂先端の塑性域の大きさに比例すると仮定すれば

$$\left. \begin{aligned} a_1 &= (K_C/K_{IC(1)})^2/\rho_A \\ a_2 &= (K_C/K_{IC(2)})^2/\rho_A \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

で与えられる。これを計算すると式(4)のアルミナに対応する第2項は 9.1 J/m^2 、ニオブに対応する第3項は 33.1 J/m^2 となり、当然予想されるように、塑性変形能の大きいニオブ側でのエネルギー散逸の寄与の大きいことが示される。

さて以上のように、実際の界面破壊エネルギーに対し、接着仕事の値の上での寄与は高々数%にしか過ぎないが、このことは、接着仕事は界面強度に影響を及ぼさないということを意味しているのだろうか。

実際はその逆で、各種金属と Al_2O_3 の接合強度は、そ

表 2⁽⁸⁾ Al_2O_3 単結晶(サファイア)/Nb 界面の破壊エネルギー G_C (J/m^2)。

	Nb-多結晶	Nb-単結晶(110)
$\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$	26	>150 $[\bar{1}1\bar{2}0]//[1\bar{1}0]$
$\text{Al}_2\text{O}_3(1\bar{1}00)$	55	74 $[0001]//[001]$
		110 $[\bar{1}1\bar{2}0]//[001]$

図 7 サファイア/Nb 接合界面の格子像⁽⁶⁾。

の接着仕事に敏感に依存することが知られている⁽⁹⁾。また単結晶の $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}$ 接合では、表 2 に示すように、界面での結晶方位関係が接合強度に著しい影響を与える⁽⁸⁾。 $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)//\text{Nb}(110)$ の界面破壊エネルギー G_C は他の方位に比べて特に大きく、図 7 に示す格子像では、安定な $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ 面のファセットの形成が界面に認められている⁽⁶⁾。定量的な関係はまだ明らかではないが、このような安定な界面の形成が界面エネルギーの低下、すなわち接着仕事の増大をもたらすことは十分に予想され、それが巨視的な接合強度の増加として現れるわけである。実際、式(4)、(5)から

$$G_C = \rho_A (\phi_A W_A + \phi_A W_A a^* / (1 - a^*)) \quad (6)$$

が得られる。ここに、

$$a^* = E^* / (1 - \beta^2) (\gamma_1^p / (E_1^* G_{IC(1)}) + \gamma_2^p / (E_2^* G_{IC(2)}))$$

式(6)の第2項のエネルギー散逸項は接着仕事 W_A に比例している。すなわち、エネルギー散逸項は破壊が生じて初めて現れるものであって、その大きさはやはり接着仕事 W_A に依存し、それが結果的に巨視的な界面強度を決めているということが分かる。

以上のモデルはかなり荒っぽい、均質材中の介在物と転位の相互作用の解析においても同様の結果が得られており⁽¹⁰⁾、界面き裂についても、マイクロメカニックス的手法を適用する事により、さらに精密な議論が可能になるものと思われる。

文 献

- (1) 須賀唯知：日本金属学会講演概要，(1985・10月)，p.201.
- (2) D.G.Bogy：J. Appl. Mech., **42** (1975)，93.
- (3) T.Suga, I.Kvernes and G.Elssner：J. Werkstofftech., **15** (1984)，3741.
- (4) T.Suga：J. Werkstofftech., **16** (1985)，122.
- (5) T.Suga and G.Elssner：J. Physique, **46-C4** (1985)，657.
- (6) M.Florijancic, W.Mader, M.Ruehle and M.Turwitt：J. Physique, **46-C4** (1985)，129.
- (7) R. M. Pilliar and J. Nutting：Phil. Mag., **16** (1967)，181.
- (8) G.Elssner, T.Suga and M.Turwitt：J. Physique, **46-C4** (1985)，597.
- (9) J.T.Klomp：Proc. Seiken Int. Symp. Internal Structure, Properties and Diffusion Bonding, Tokio, (1985).
- (10) M.L.Jokl, V.Vitek and C.J.McMahon：Acta Met., **28** (1980)，1479.

談 話 室

雑 感

佐久間 健 人*

過日、英国 Birmingham 市郊外の Wolverhampton にある GKN Technology 社を訪問する機会を得た。この町の周辺では昔、石炭および鉄鉱石がとれ、石炭が盛んに焚かれていたので、そのススによって町全体が黒ずんでいたそうである。“Book of British Towns”という書物には、Wolverhampton は“the Capital of the Black Country”とよばれていたと書かれている。しかし、今では石炭暖房は姿を消し、黒い町と呼ばれていたという昔の面影は無い。

GKN Technology 社は、この町の一角に広い敷地を有し、きちんと配置された研究所の建物群と芝生に囲まれた恵まれた環境の中にある。“我社を訪問する最高の方法は、ヘリコプターを使って町中を通らずに、直接我社の敷地に降り立つことである”といった案内者の説明には、かなりの真実味が感じられた。

GKN Technology 社は、GKN グループとよばれる自動車関連部品を製造する国際的企業 200 社の中の 1 社であり、同グループの技術開発に関連した仕事を担当している。同社は、新技術および新材料の開発に熱心であり、長期的視野に立って開発および研究がなされている様子に感銘を受けた。その研究内容は、予め準備された美しいスライドを使ってなされたが、特に印象深かった

表 1 新発明のなされた年度と開発までに要した年数。

	発明年度(年)	開発年度(年)	ギャップ(年)
ボー ル ペ ン	1888	1946	58
ジ ッ パ ー	1891	1923	32
ラ ジ オ	1900	1918	18
蛍 光 灯	1901	1938	37
ヘ リ コ プ タ ー	1904	1936	32
コ ダ ク ロ ー ム	1921	1935	14
テ レ ビ ジ ョ ン	1923	1936	13
連 続 鋳 造	1927	1952	25
ナ イ ロ ン	1927	1938	11
ベ ニ シ リ ン	1928	1943	15
ジェ ッ ト エ ン ジ ン	1928	1941	13

のは表 1 の内容のスライドであった。これは、工業技術史上重要な新発明がなされた年度と、その開発に要した年数をまとめたものである。いずれも、我々の日常生活に深くとけこんでいるものばかりであるが、発明後、実用化に至るまでには 10 年以上の長い年月を要している。このことは、真に革新的な技術開発には息の長い努力が必要であることを物語っている。とはいっても、表 1 を見ると、開発までに要した年数は年を追って短くなってきており、この表にのせられていない最近の発明の中には、これよりずっと短期間で実用化がなされたものも多いであろう。しかし、重要な材料や技術の開発は、長期的視野に立った研究の蓄積の中から生まれてくるものであろうし、また、古い発明の中に次の発明のヒントが隠されているように思う。一流の研究者と話をしていると、過去の有名な発明のなされた背景や経過、およびそれにまつわるエピソードに精通している方々が多いのに驚かされる。新材料や技術の開発に携わっていても、時には過去の技術の発達の経過を振り返ってみる“ゆとり”が欲しいものである。

* 東北大学助教授；工学部材料加工学科