

セラミックス／金属接合構造体に対する  
設計最適化のための基礎研究

朱 霞

平成十二年三月



セラミックス/金属接合構造体に対する設計最適化のための基礎研究

目次

第1章 緒言	
第1節 セラミックス適用技術における接合技術の位置づけ	1
第2節 セラミックス/金属接合技術の現状	1
1.2.1 接合の基本特性	1
1. 残留応力	2
2. 濡れ, 界面反応, 及び界面における物質移動	4
1.2.2 各種接合方法とその特徴	5
第3節 接合強度の試験・信頼性評価の現状	6
1.3.1 接合部材の強度試験	6
1.3.2 接合強度の信頼性評価	7
第4節 セラミックスの機能・構造部材への適用普及・拡大における今後の課題	8
第5節 本研究の目的	9
参考文献	9
第2章 セラミックス/金属接合部材の評価・解析のための基礎的検討	
第1節 緒言	11
第2節 応力解析方法	11
2.2.1 解析モデルと解析条件	11
2.2.2 塑性変形による弾塑性解析方法	13
2.2.3 クリープも考慮した残留応力解析	17
第3節 解析結果および考察	20
2.3.1 ロウ材の凝固過程における熱応力発生の上限度	21
2.3.2 クリープ現象に起因する残留応力の挙動	21
第4節 結言	25
参考文献	25
第3章 セラミックス/金属接合試験片に対する最適中間層厚さについての検討	
第1節 緒言	27
第2節 供試材	27
第3節 解析・試験方法	28
3.3.1 解析方法	28
3.3.2 曲げ強度試験	30
第4節 解析・実験結果および考察	30
3.4.1 中間層厚さと等価残留応力分布	30
3.4.2 4点曲げでの荷重-変位曲線と中間層厚さ依存性	32
3.4.3 残留応力再配分を考慮した重畳応力	33
3.4.4 破壊形態の分類	36
3.4.5 曲げ強度と接合条件の関係	36

3.4.6 接合強度のばらつき特性	37
3.4.7 中間層厚さに対する破壊力学的検討	38
第5節 結言	39
参考文献	46
第4章 セラミックス/金属接合試験片に対する残留応力と疲労特性についての検討	
第1節 緒言	41
第2節 実験方法と解析方法	41
4.2.1 供試材	41
4.2.2 実験方法	42
4.2.3 解析方法	43
第3節 解析結果	43
第4節 試験結果	45
4.4.1 引張強度およびばらつき特性	45
4.4.2 疲労強度特性	46
4.4.3 接合強度の統一的評価	47
第5節 考察	50
4.5.1 繰返し疲労過程における残留応力挙動	50
4.5.2 残留応力挙動を考慮した繰返し疲労強度	53
第6節 結言	55
参考文献	55
第5章 LPRM 中性子検出器における接合強度についての検討	
第1節 緒言	57
第2節 BRW 用中性子検出器および気密シール部品の構造と機能	57
第3節 解析モデルと解析条件	58
5.3.1 解析モデル	58
5.3.2 解析条件	59
第4節 解析結果と考察	60
5.4.1 接合残留応力解析	60
5.4.2 スウェリングに伴う内部応力の増加と破壊寿命	62
5.4.3 強度検証シミュレーション	68
第5節 結言	73
付録	73
第6章 真空バルブ容器における接合強度についての検討	
第1節 緒言	79
第2節 接合残留応力に及ぼす真空バルブ構造諸元の影響	80
6.2.1 真空シール端板の材質・板厚の効果	80
6.2.2 アルミナ円筒径の影響	85
6.2.3 接合構造強度に及ぼす残留応力の影響の定量的評価	89
1. 応力拡大係数と半円き裂長さの関係	89
2. 有効体積	91



3. 代表欠陥サイズの推定	91
第3節 接合冷却過程での冷却効果における検討	96
第4節 引張・圧縮試験解析による接合強度検証	97
第5節 真空バルブ容器の接合実験	97
第6節 結言	99
第7章 DBC法による半導体基板における接合強度についての検討	
第1節 緒言	101
第2節 実験および解析方法	101
7.2.1 DBC半導体基板および半導体モジュール	101
7.2.2 試験片・実験装置・実験方法	101
7.2.3 解析方法	106
第3節 実験および解析結果	107
7.3.1 実験結果	107
7.3.2 接合冷却過程における残留応力	109
7.3.3 破壊におけるき裂進展挙動の検討	109
7.3.4 DBC基板強度への $Al_2O_3$ 層厚さの影響	110
7.3.5 4点曲げ破壊強度への残留応力の影響	111
7.3.6 接合時間とアルミナ層の厚さとの関係	114
7.3.7 残留応力を考慮した長期信頼性	115
第4節 結言	116
参考文献	116
第8章 結論	
謝辞	120



## 第1章 緒 論

### 第1節 セラミックス適用技術における接合技術の位置づけ

有機材料、金属材料およびセラミックスを始めとする無機材料など、多くの材料が各分野で使用され、それぞれの材料はその特性の向上がさらに研究されている。しかし、どんな材料も長所があるとともに短所を持っていると考えるべきである。また、使い方により長所は短所にもなる。

セラミックスは耐熱性、耐食性、耐摩耗性、電気絶縁性、高圧縮強度性、あるいは軽量性などに優れた材料として期待され、各種機械・装置への用途開発が精力的に進められている。しかし、セラミックスは典型的な脆性材料であるため、機械的あるいは熱的衝撃に弱い、許容される欠陥サイズが小さい、強さのばらつきが大きい、遅れ破壊を起こす、あるいは難加工性であるなどの欠点も少なくない。

一方、金属材料は被研削性や塑性加工性などに優れ、冷間加工もできる材料が多く、また、安定した引張強度や高い靱性を有し極めて優れた構造材料である。しかし、耐圧縮性、耐磨性あるいは耐食性や耐酸化性などの耐環境性の点ではセラミックスよりかなり劣るものが多い。また、有機材料は加工性が非常によく、使い易いが、耐熱性が極めて低いという短所を持っている。

これらのように長所と短所を持つ各種材料は工業用材料として、単に競合するのではなく、共存共栄していくべきものであり、それぞれの特長を活かせる個所に使い、すなわち、適材を適所に使うことが必要であり、複合化していくと効果的である。

接合技術はセラミックスの応用に欠くことのできない複合化技術であるとともに、この接合技術の向上はセラミックスの適用分野を拡大する効果もあり、従来より常に研究開発が進められている。

以上のように、セラミックスと金属との接合は、金属がセラミックスの欠点を補い、セラミックスの優れた特性を十分に発揮させることができる。また、セラミックス部品を高度な装置や機器に使用する場合、単独での使用はごく希であり、最終的には他の材料、特に金属と組合せることが必要となる。このような観点から、セラミックスと金属の接合技術はセラミックスを実用化する上で極めて重要な技術であると言える<sup>(1)</sup>。

### 第2節 セラミックス/金属接合技術の現状

#### 1.2.1 接合の基本特性

良い接合体としての条件は、それぞれの用途、ニーズの内容により異なる。しかし、一般には、セラミックス接合体が具備すべき特性、条件は次の通りである。

(1) 接合強度が使用上十分な程度に高いこと



(2) 接合部が真空気密性であること

(3) 残留応力が小さいこと

(4) 使用に耐えるだけの耐熱性、耐食性、その他、使用される環境に耐えるだけ特性を持つこと

(5) 接合操作は比較的な簡単、再現性があること

(6) 廉価であること

このような特性を備えた接合構造体の製作に当たって、接合を効果的に行うためには、第1にセラミックスに無理な応力がかからないこと、第2にセラミックスと被接合材料(金属など)あるいは接合を促進させるために使用する介在物とがよくなじむこと、すなわち、相互にぬれたり、拡散、反応することが必要である<sup>(2)~(12)</sup>。

## 1. 残留応力

接合技術においては、セラミックスに無理な応力がかからないように接合プロセスで生じる残留応力を減少させることが最も重要である。一般にセラミックスの熱膨張係数は金属と比較すると著しく小さいため、高温での接合後、冷却過程において接合界面近傍に発生した熱応力がセラミックス部材内にも残留応力として残り、接合体の継ぎ手の強度を低下させる。また、弾性率の異なるセラミックス/金属接合部材に外力が作用すると、接合界面に応力集中が発生するため、やはり接合強度を低下させる要因となる<sup>(13)~(17)</sup>。それゆえ、この接合残留応力の低減に対する工夫こそ、外力による強度向上に有効である。

Fig. 1-1 に各種材料の熱膨張係数を示す<sup>(3)</sup>。セラミックスに無理な熱応力がかからないように被接合材料を選択することが必要である。接合の組合せの中でも、セラミックス/金属接合構造体の熱膨張係数差は、固着温度、材料の弾性係数などにより異なるが、多くの実験よれば下記の範囲が最適である<sup>(2)~(4)</sup>。

$$-5 \leq (\alpha_M - \alpha_C) \times 10^7 \leq 10$$

ここで、 $\alpha_M$  は金属の熱膨張係数であり、 $\alpha_C$  はセラミックスの熱膨張係数である。

また、熱膨張係数の差が大きいものとの組合せは原則的に避けるべきであるが、製品サイドからの必要性から接合せざるを得ない場合は、できるだけ残留応力が小さくなるような工夫を取り入れることが不可欠である。

接合残留応力を見積るためには、有限要素法 (FEM) や境界要素法 (BEM) を用いた数値解析が有効である<sup>(18)~(24)</sup>。これらの解析により接合残留応力を低減するための部品設計の最適化が事前検討できる。接合残留応力を低減するための方法としては Table 1-1 のように整理できる。

以上の方法を単独また複数採用すると効果がある<sup>(2)</sup>。



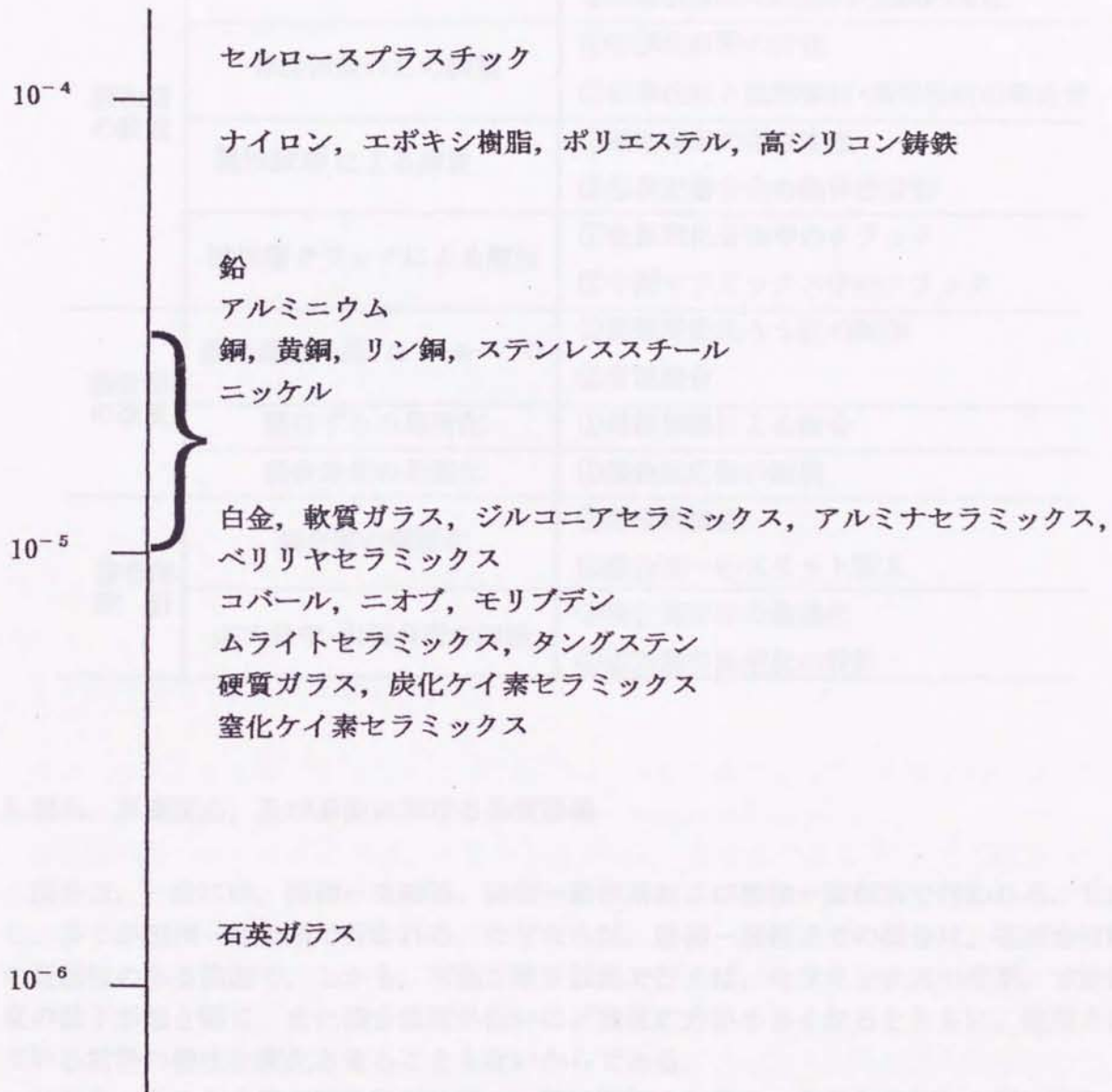


Fig.1- I Thermal expansion coefficients of materials

Table 1- I Relaxation method of residual stress in ceramic/metal joint

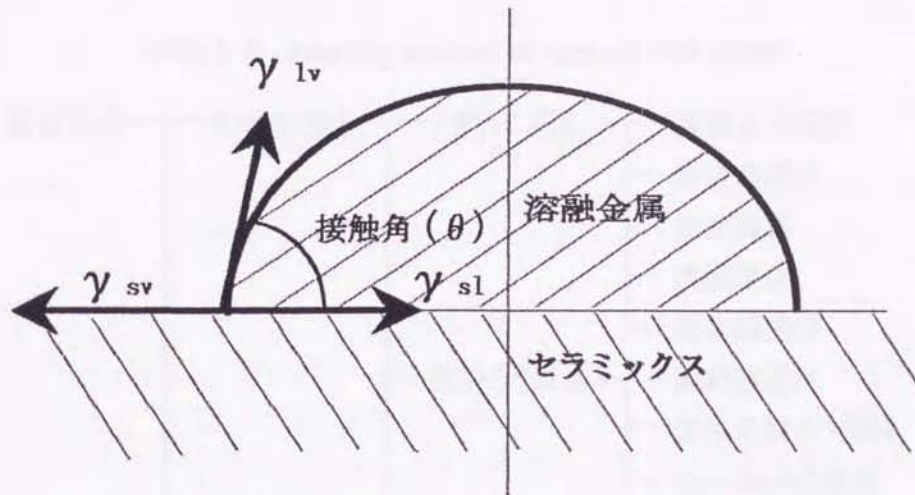
項目	目的	内容
緩和層の設置	熱膨張係数のマッチング $\Delta\alpha$	①中間の熱膨張係数材料の介在 ②熱膨張係数の段階的・連続的变化
	弾性係数のEの調整	①低弾性材料の介在 ②低弾性材と低膨張材・高弾性材の組合せ
	塑性変形による解放	①延性金属の塑性変形 ②形状記憶合金の擬弾性変形
	脆性層クラックによる解放	①金属間化合物中のクラック ②中間セラミックス中のクラック
接合法の改良	接合温度の低 $\Delta T \rightarrow \sim 0$	①高強度低温ろう材の開発 ②常温接合
	熱ひずみの局所化	①局部加熱による接合
	接合条件の最適化	①接合反応物の制御
接合部設計	接合部の離散化	①部分的接合 ②接合面へのスリット導入
	応力集中・引張負荷の回避	①接合部形状の最適化 ②応力集中部形状の設計

## 2. 濡れ, 界面反応, 及び界面における物質移動

接合は, 一般には, 固相-気相系, 固相-液相系および固相-固相系で行われる. しかし, 多くが固相-液相系で行われる. なぜならば, 固相-液相系での接合は, 被接合材料の耐熱性のある範囲で, しかも, 可能な限り低温で行えば, セラミックスの変形, 寸法精度の低下が起き難く, また接合温度が低いほど残留応力が小さくなるとともに, 使用されている材料の特性を変化させることもないからである.

セラミックスと金属の接合において, 一般に固相のセラミックスと金属との間に挿入した接合用金属を, 高温で熔融して界面で濡らしたのち, 冷却させて固着する. この濡れ性の良否こそが接合を左右する. Fig. 1-2 にセラミックスの熔融金属による濡れモデルを示す. 固相と液体間に作用する3つの表面張力成分の平衡状態が破れ, 固相-気相間の界面エネルギー ( $\gamma_{sv}$ ) が, 固相-液相および液相-気相間の界面エネルギーの和 ( $\gamma_{sl} + \gamma_{lv}$ ) より大きくなったとき濡れが生じる. この濡れ現象は固-液界面の接触角 ( $\theta$ ) で評価され, この角度が小さいほど濡れ性が良好であり, 完全に濡れの生じる場合の  $\theta$  角は計測不能 (ND) の小さな値になる<sup>(26)</sup>.





$\theta = 0^\circ$	$0^\circ < \theta < 180^\circ$	$\theta = 180^\circ$
$\gamma_{sv} \gg \gamma_{sl} + \gamma_{lv}$	$\gamma_{sv} = \gamma_{sl} + \gamma_{lv} \cdot \cos \theta$	$\gamma_{sv} \gg \gamma_{sl} + \gamma_{lv}$
完全に濡れる	濡れ領域	全く濡れない
$\gamma_{sv}$ : 固体と気体界面のエネルギー $\gamma_{sl}$ : 固体と液体界面のエネルギー $\gamma_{lv}$ : 液体と気体界面のエネルギー		

Fig.1-2 Model of molten metal wetting on the surface of ceramics

### 1.2.2 各種接合法とその特徴

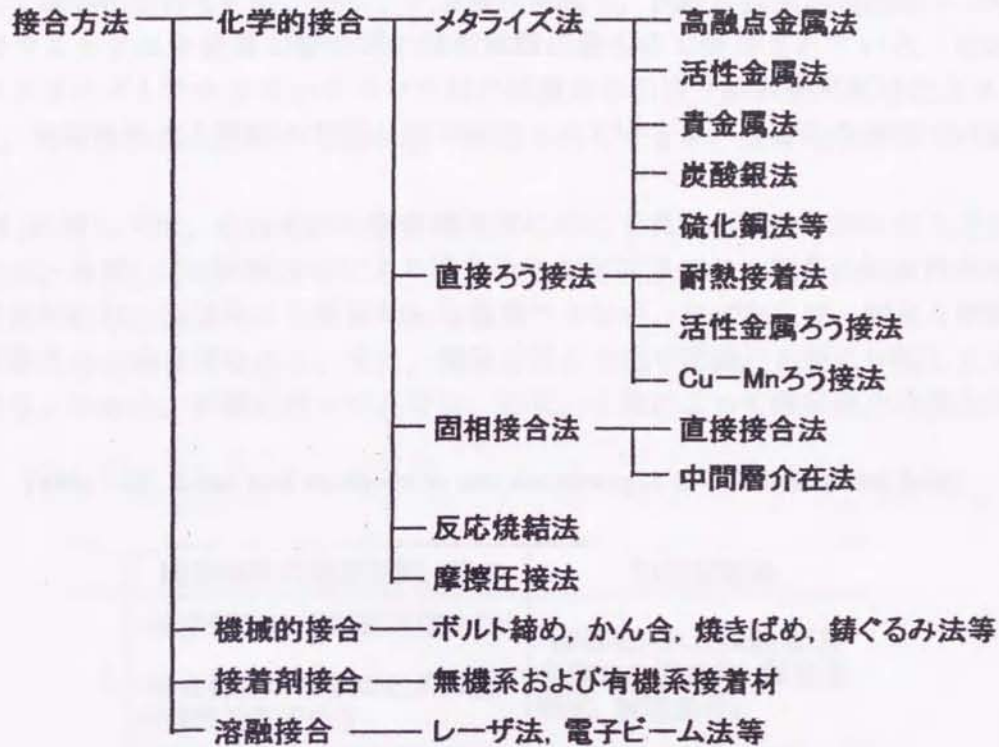
セラミックスと金属の接合法としては、Table1-IIに示すように、化学的接合法、機械的接合法、接着剤接合法、熔融接合法の4つの方法に大別される。

最も単純なプロセスと低コストの接合は接着剤による方法である<sup>(27)</sup>。この接合は気密性を問わないセラミックス間の接合や接合間隙の充填用として有効である。かん合や焼きばめなどの機械的接合法は材質の組合せに制限がなく、高温強度が保てるなどの理由から自動車エンジン<sup>(28)</sup>やガスタービン<sup>(29)</sup>などの小型から大型部品の接合に広範囲に利用されているが、問題点として、セラミックス側に可能な限り引張応力を避け、圧縮応力がかかるように接合部設計をする必要がある。一方では、このような問題点の回避として、優れた除熱機能と接合強度を要する接合法としてメタライズろう接合法<sup>(30)</sup>、直接ろう接合法、あるいは固相接合法<sup>(31)</sup>などの化学的方法が普及している。これらはいずれも接合材間あるいは接合部に挿入されるインサート材中の構成元素の移動により接合機能を発現させるもので、力学的強度、気密性、熱伝導性、導電性などに関して信頼性の高い接合ができる。また、これらの方法は大型装置による複雑な接合工程を必要とせず、それほどコスト高にもならない<sup>(32), (33), (34)</sup>。

典型的な電子用セラミックスであるAlNなどと金属接合には、活性金属法やメタライズ法などが使われているが、インサート層なしでセラミックス (AlN) と金属 (Cu) の強固



Table 1-II Jointing method of ceramic and metal



な接合が実現できる DBC (Direct Bonded Copper) 接合法も最も注目されている。接合原理は Cu-O 系の共晶反応であり, Cu 側固液共存領域を用い, AlN は表面を酸化して Cu と DBC 接合を行う<sup>(35), (36)</sup>。以上がセラミックス/金属接合技術の現状である。

### 第3節 接合強度の試験・信頼性評価の現状

接合特性評価の観点からセラミックスと金属の化学的接合における研究課題を列挙してみると, 接合の良否を判断する強度試験, 熱応力による接合部の残留応力測定, 接合界面の破壊靱性, 破壊エネルギーの測定, 構造解析, あるいは接合界面の欠陥検出などがある。ここでは, 強度試験と強度信頼性評価について述べることにする。

#### 1.3.1 接合部材の強度試験

セラミックスと金属の接合部の強度特性評価としては, 引張試験, 曲げ試験, せん断, ねじり試験などの多くの試験方法がある。しかも, 使用されている試験片の形状や試験治具類も様々であり, 現状では研究者間での絶対値比較は困難であり, 最適な接合方法を特定すること難しい。このような状況下で考慮すべきことは, 接合強度の評価目的に適した強度試験を行う必要があるということであり, この目的は Table1-III に示すように 2 つに大別できる<sup>(37)</sup>。

目的[I]に対しては, 接合技術の研究開発の初期段階で, 何らかの基準となるセラミッ



クスと金属接合体の強度試験方法が必要である。既に、セラミックス/金属接合試験片に対する曲げ試験 (JISR1601-1981, JISR1604-1987), 引張り試験 (JISR1606-1990) が JIS として標準化されている。特に, 4 点曲げ試験は, 試験片作製から試験までの簡便さから, セラミックスと金属の接合部の強度試験に最も多く使用されている。なお, ASTM では, メタライズしたセラミックスロウ付け試験片の引張り試験法が規格化され (ASTM-F19)<sup>(38)</sup>, 気密性検査も同時の可能な形で規定されているが, 基礎的な研究では使われていない。

目的[II]に対しては, それぞれの接合構造体に応じて異なる試験方法にならざるを得ない。それは, 目的[I]の試験方法により得られる測定結果では, 製品の強度保証を目的とした設計基準には, 直接的にも間接的にも適用できない。なぜならば, 製品と試験片とで接合残留応力の分布は異なるし, また, 製品と同じ方法で試験片を別に作製しても残留応力も異なり, しかも, 試験片のレベルでも, 形状, 寸法によって残留応力は異なるからで

Table 1-III Aims and methods to test the strength of ceramic/metal joint

	接合強度の測定目的, 観点	強度試験法
I	・接合強度の相対値比較を行う ・接合機構の解明のための接合強度比較を行う	・標準化された試験法(接合体の作製条件, 試験体形状, 試験条件)
II	・セラミックスを含む接合体の強度の絶対値を得る (要求強度に対する接合継手構造としての強度保証)	・実体の使用環境条件に則した単体の強度試験法

ある。したがって, 標準試験片の強度から製品の実強度を相対的に評価できても, 絶対的に評価することはできないと考えられる。

### 1.3.2 接合強度の信頼性評価

セラミックス単体での曲げ強度も大きくばらつくから, 曲げ試験には多くの試験片本数を必要とし, 測定結果はワイブル統計解析して統計量として表示される。また, 試験片強度から製品実強度を評価する際には体積効果を考慮する必要がある。なぜならば, セラミックス強度には寸法効果という出現するからである。一般に, セラミックス/金属接合材の場合, 破壊起点はセラミックス/ロウ材界面の極近傍におけるセラミックスであり, 接合残留応力が接合強度に大きく影響する。セラミックス/金属接合材の強度としては, 試験応力分布と残留応力の重畳応力分布場での潜在欠陥まわりの応力拡大係数により評価できるので, 欠陥のサイズおよび分散状態が強度のばらつきの支配因子になる。それを考慮できる有効体積によって強度レベルも影響を受けることになる。

実製品の強度評価を目的とする場合, 即時破壊強度よりもむしろ破壊靱性, 疲労, 応力腐食割れ, クリープ, エロージョン, 熱サイクル劣化, セラミックス/金属反応腐食など



の長期信頼性（耐久性）に関する諸特性が問題となる。強度試験では、即時破壊強度が高く破壊起点や破壊経路が接合界面でない接合体の場合でも、実製品では残留応力が効くので、SCG (Slow Crack Growth) の破壊経路としては、接合界面の極近傍にセラミックス内部になると考えられる。

#### 第4節 セラミックスの機能・構造部材への適用普及・拡大における今後の課題

セラミックスと金属の接合技術に関する現在までの研究では、接合部材としての高性能化、高機能化の要求の緊急性から、接合技術開発を中心とした実用化研究が先行した感が強い。一方、科学技術に目を向けた基礎的な研究、例えば、セラミックスと金属の化学的結合における接合界面の役割、組織、構成などに対する多面的な解析研究は、これからと言っても過言ではない。今後は、この分野の研究の重要度は接合部の強度や信頼性を向上させて行く上で、益々高まり、その発展に期待するところは大きい。

このような流れの観点から、セラミックスと金属の接合技術に関する今後の課題には次のものが挙げられる。

- (1) 高温における高接合強度を得る接合法の開発
- (2) 接合部位の大型化への対応
- (3) 接合部の応力解析の高精度化と残留応力測定精度の向上
- (4) 接合部の疲労データ、非破壊検査データの蓄積
- (5) 接合部の強度評価における標準化

(1)、(2) は高効率エンジンとして注目されている断熱ターボコンパウンドエンジンやガスタービンエンジンでのセラミックス化に必要となるもので、(1) では高融点ろうを用いたろう付け接合や固相接合などが期待され、(2) では残留応力を緩和する接合部の構造設計が重要となる。(3) では要素分割の最適化、解析に用いる正確な材料物性値の採取、微小部の非破壊による残留応力の高精度測定が必要となる。(4) は製品の寿命保証をする上で極めて重要であり、熱履歴や疲労過程における接合部位での微構造変化の確認が要求される。また、接合部の非破壊検査技術の発達は保証試験からの回避手段としても望まれる。

電子用セラミックスの代表格である AlN を例にとり、構造用セラミックスの応用分野と違い、接合技術に関する今後の課題を下記のように列挙する。

- (1) 接合部の高密度・微細化と接合強度の向上

例えば多層基板 PGA (Pin Grid Array) におけるピン数の増加と共に配線ピッチと接合面積はさらに微細化傾向にあり、単位面積当たりの接合強度も上昇させる必要がある。

- (2) 実機条件のシミュレーション

適用部品の使用環境を模擬した接合体の静的・動的評価、特に界面熱抵抗、耐候性、熱衝撃、機械・熱疲労などの測定データを蓄積すべきである。

- (3) 接合強度評価法の確立と標準化

特に電子用セラミックスにおいては、構造用セラミックスほど定量的に相互比較できる接合強度試験法が確立されていない。

- (4) 接合部非破壊検査と保証技術



UT, X線CT21), SAM (Scanning Acoustic Microscope) などが試みられているが, 微細化に伴い接合部欠陥の検出感度向上が更に求められる。

#### (5) 量産接合技術の確立

窒化物セラミックス接合はバッチ処理が基本であり, コスト高いの要因となっている。省力化, 連続化, 自動化を目指した生産技術は新たな視点で考える必要がある。

### 第5節 本研究の目的

上述のように, セラミックス/金属接合に対する技術は, 従来から多数の研究が行われ, 接合強度試験方法も標準試験片での評価としては一部には JIS 化もされている。また, 破壊の現象面からの実験的・解析的研究も盛んで行われてきた。しかし, 実接合構造部品に対する接合技術としては, 決して接合技術も強度評価も確立したと言えないのが現状である。

一方, セラミックス/金属接合構造体における接合強度の向上と接合信頼性の確保には, 試験片および接合実部品の破壊強度や寿命特性が, 形状・寸法や負荷モードなどに依存する残留応力やその分布あるいは特殊使用環境条件下での経時的材質変化や力学条件変化などの影響についても明らかにしておく必要がある。しかしながら, いずれの点に関しても, 普遍性のある定量的説明はほとんどなされていない。また, 破壊確率論的強度評価の信頼性設計への実際的な適用に当たっては, 強度のばらつき分布と強度の有効体積依存性を評価する上で最も基本的なパラメータであるワイブル係数 $m$ の推定値, 各試験ごとにより異なる値を示すことが多く, 材料固有のばらつきパラメータとしての評価方法が確立していない現状である。

このような背景から本研究では, セラミックス/金属の接合プロセスで生じる熱残留応力を考慮し, まず, 最初にセラミックス/金属接合試験片における中間層(Cu)厚さが接合強度に及ぼす影響, また, 接合残留応力も考慮した中間層厚さの最適化に関して, 破壊力学的観点から検討していく。次いで, セラミックスの基本強度特性としての疲労破壊も含めた破壊機構に基づく強度特性についても究明する。さらには, 実際のセラミックス接合部品としての中性子検出器・真空バルブ容器・DBC 半導体基板における構造上の残留応力および接合部位での局部残留応力の分布を FEM 解析で明らかにし, 破壊力学的観点から破壊メカニズムを究明し, これらの実部品に対する長期信頼性の破壊寿命や損傷・劣化挙動について, 信頼性工学に基づく確率論的予測方法を明らかにしていく。

以上のような成果を知見として, セラミックス/金属接合体の試験片と実構造部品に対して材料選定・構造設計・製造プロセスの最適化を検討し, また, 特殊環境における長期間供用中での接合構成部材の脆化やスウェリング現象が破壊寿命に及ぼす影響などを検討していく。

### 参考文献

- (1) 材料別 接合技術データハンドブック第2冊, セラミックス系接合。
- (2) 高塩治男, セラミックスの接合・接着技術集成, (株) アイピーシー, 1-275, 1985。



- (3) 高塩治男, ファインセラミックスの接合技術とその応用, 工業材料, 34(8), 25-74, 1996.
- (4) 高塩治男, セラミックスと金属の接合機械, 日本金属学会報, 24(2), 113-120, 1995.
- (5) 井関孝善, ほか3名, 日本セラミックス協会学術論文誌, 97, 710-714(1989).
- (6) 中橋昌子, 日本複合材料学会誌, Vol. 12, No. 5, 223-232.
- (7) 田中俊一郎, 素形材, Vol. 26, No. 10, 36-45(1985).
- (8) 河野顕臣, ほか3名, 日本金属学会誌, Vol. 49, No. 10, 876-883 (1985).
- (9) 白兼 誠, ほか3名, 日本金属学会秋期大会シンポジウム講演概要, No. 97, 200(1985).
- (10) 中尾嘉邦, ほか2名, 溶接学会全国大会講演概要, No. 39, 104-105(1986).
- (11) 田中俊一郎, 日本セラミックス協会年会講演集, 254(1988).
- (12) 田中 隆, ほか4名, 溶接学会全国大会講演概要, No. 41, 88-89(1987).
- (13) D.B.Bogy, J. Appl. Mech., 42, 93(1975).
- (14) 寺崎俊夫, ほか3名, 溶接学会論文集, 6, 284-288(1988).
- (15) 中尾嘉邦, ほか2名, 溶接学会論文集, 7, 275-282(1989).
- (16) 小林英男, ほか4名, 日本機械学会論文集 (A編), 55, 750-755(1989).
- (17) 瀬尾健二, ほか3名, 日本機械学会論文集 (A編), 55, 312-317(1989).
- (18) B. J. Dalagleshet al. Acet metal, 36, 2029-2035, (1988).
- (19) K. Suganuma et. al., J. Amer. Ceram. Soc., 68, C334-335(1984).
- (20) 古田日出男, ほか3名, 日本機械学会論文集 (A編), 55, 2527-2532(1989).
- (21) 日本接着協会編, 接着ハンドブック (第2版) (1971) P. 373, 日刊工業新聞社
- (22) 浜野義光, セラミックス, 18, 2(1983)112.
- (23) 宮田 寛, ほか1名, 機械の研究, 41, 2(1989)15.
- (24) G. R. van Houten, Ceram. Bull., 38, 6(1959)301.
- (25) 田中俊一郎, セラミックス, 25(1990)No. 3, 200-204.
- (26) 日本学術振興会将来加工技術第136委員会編, ファインセラミックス技術ハンドブック, pp335-380(1998).
- (27) 中橋昌子, ほか1名, セラミックス, 30(1995)No. 2.
- (28) 志智雄之, ほか3名, 日本セラミックス協会学術論文誌, 97, [11], 1354-57(1989).
- (29) 志智雄之, ほか2名, 日本セラミックス協会学術論文誌, 96, [9], 930-34(1989).
- (30) 井関孝善, セラミックス 24, (1989), No. 12.
- (31) 佐藤拓哉, ほか2名, 日本機械学会論文集 (A編), 58, 548, (1992-4).
- (32) 井関孝善, セラミックス, 24(1989)No. 12, 1151-1156.
- (33) 井関孝善, セラミックス, 30(1995)No. 2, 91-93.
- (34) 中橋昌子, ほか1名, セラミックス, 30(1995)No. 2, 102-105.
- (35) 水野谷信幸, ほか1名, 東芝レビュー, 41, 9(1986).
- (36) 杉浦康之, ほか1名, 東芝レビュー, 44, 8(1989).
- (37) 的場和夫, 窯業協会関東支部講習会資料, 第3回セラミックス特性の測定技術ノウハウ, 18-27(1986).
- (38) American Society for Testing Materials, ASTM.



## 第2章 セラミックス/金属接合部材の評価・解析のための基礎的検討

### 第1節 緒言

セラミックスは耐熱性や耐摩耗性などに優れた特質を持っている反面、靱性に乏しいという欠点があるが、その低靱性を補う方法として靱性の高い金属との接合が注目されている。セラミックス/金属接合は、通常、中間層を挿入し、高温において固相（拡散）接合や液相接合のロウ付けなどによって行われるため、接合体には冷却の過程で各材料の熱膨張係数の相違によって接合残留応力が発生し、接合材の強度に大きな影響を与える。<sup>(1)~(6)</sup>接合強度の向上と接合信頼性の確保には、接合残留応力を正確に評価することが重要である。したがって、接合プロセス条件や構造の寸法・形状の観点から、残留応力を減少するための最適化設計・製造プロセスを検討する必要がある。

セラミックス/金属接合構造部品に対して材料選定・構造設計・製造プロセスの最適化、また、特殊環境における長期間供用中での接合構成部材の脆化やスウェリング現象の強度への影響等を検討していくために、簡便な弾塑性解析手法として、接合構成部材の材料特性および熱物性の温度依存性を連続的に考慮できる数式化を図り、Visual Basic システムと汎用 FEM ソフト NASTRAN との組み合わせによる応力・強度解析システムを開発した。この開発の重要なポイントは汎用 FEM ソフト NASTRAN での弾性応力解析機能を活用し、解析データの間接データ処理およびデータ後処理に Visual Basic システムを駆使して接合部材の構造設計・製造プロセスの最適化、あるいは脆化やスウェリング現象による損傷・劣化挙動の解析に多面的な工夫が行えるようにしていることである。

そこで、本章では、このシステム開発における基本機能として、3次元変形拘束を受けるセラミックス/金属円筒接合体での接合プロセス冷却過程における熱応力の残留挙動に対して、クリープ現象も考慮した弾塑性変形解析を適用した結果、ならびに、中間層 Cu のクリープ現象による残留応力の緩和挙動に対する検討に適用した結果について報告する。なお、上述の構成部材の脆化やスウェリング現象による損傷・劣化挙動解析への適用などについては、次章以降の実部品への適用研究にて述べる。

### 第2節 応力解析方法

#### 2.2.1 解析モデルと解析条件

セラミックス/金属接合体としては、3次元変形拘束の接合構造を考え、紡錘型円筒のセラミックスに常圧焼結窒化珪素 ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ) を、内側テーパ付き円筒の金属にオーステナイト系ステンレス鋼 (SUS304) を用いた。塑性変形を利用する応力緩和中間層として無酸素銅板を両部材間にロウ材と共に挿入し、液相接合を行った。この接合方法としては Ti-Ag-Cu 系活性金属ロウ材を用いた活性金属法を、接合温度  $800^\circ\text{C}$ – $850^\circ\text{C}$ 、保温 15 分、真空



度の約  $1 \times 10^{-6}$  Torr の条件下で行った。この活性金属法は各材料の接合界面での化学反応および金属成分の相互拡散により、高強度な接合ができる。<sup>(7)~(9)</sup> 反応生成物層と金属拡散層の厚さは銀ろう層の厚さより薄くて強度が高いため、銀ろう層に含めることとした。窒化ケイ素とろう材との接合界面では2つの反応生成物層が約  $3 \mu\text{m}$  にわたって生成し、高強度の接合が起ることが分かっている。このうちセラミックスに近い側の層(第I層)は窒化チタンが主成分であり、ろう材に近い側の層(第II層)は窒化チタンとチタンミリスaidの共存する系となっている。ろう材と金属との接合界面は金属とろう材成分が相互に拡散し高強度で接合しており、これは一般的な金属同士のろう材付けと同じ接合機構となっている。したがって、接合体の解析モデルは窒化珪素 ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ )、銅 (Cu)、ステンレス鋼 (SUS304) と銀ろう (Ag-brazing) の4種類の材料から構成されていることになる。また、円筒構造接合体(以降、単に接合体と記す)の対称性を考慮し、接合体の1/2を軸対称モデルとした。接合体の構造と解析モデルをFig. 2-1に示す。境界条件は対称性を考慮し、線 A-B 部に上下対称条件を付け、それ以外では自由変形とした。なお、ろう材の厚さは  $50 \mu\text{m}$  とした。

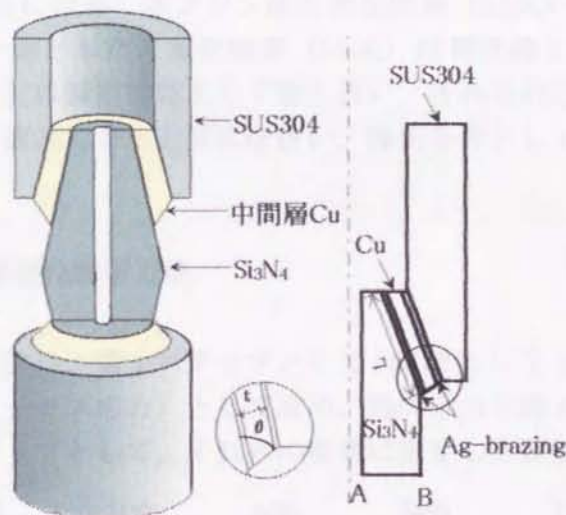


Fig.2-1 Jointing structure and analysis model

解析モデルの要素分割に対しては応力が集中する接合界面と端部近傍を細分割、その他の領域は粗分割とした。解析温度条件はろう材の熔融温度 ( $780^\circ\text{C}$ ) から室温まで ( $20^\circ\text{C}$ ) の冷却温度範囲である。ろう材の機械特性 (ヤング率  $E$ ,  $0.2\%$ 耐力  $\sigma_{0.2}$ , 引張り強さ  $\sigma_b$ ) の実験データ<sup>(10)</sup> は Fig. 2-2 に示すようになる。熱活性化過程に基づく理論式を用い、各特性の温度依存性を2つの実験データの間で直線近似した。ろう材の機械特性としての材料定数  $E$ ,  $\sigma_{0.2}$ ,  $\sigma_b$  は、次式のように推定できる。

$$E = E_R \cdot \exp\left\{-\frac{Q_E}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_R}\right)\right\} \quad (2-1)$$

$$\sigma_{0.2} = \sigma_{0.2,R} \cdot \exp\left\{-\frac{Q_{0.2}}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_R}\right)\right\} \quad (2-2)$$



$$\sigma_b = \sigma_{b,R} \cdot \exp\left\{-\frac{Q_b}{R}\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_R}\right)\right\} \quad (2-3)$$

ここで、 $E_R$ 、 $\sigma_{a.2,R}$ 、 $\sigma_{b,R}$ は室温の材料定数であり、 $R$ は気体定数である。いずれも $Q$ は活性化エネルギーであり、変形機構の違いにより各 $Q$ 値が異なってくる。もし、全温度域において全く同一機構により変形が発生すれば、活性化エネルギー値は一定値になる。しかし、室温から溶融温度までの全温度範囲において活性化エネルギー値が一定とすることは実際にはあり得ない。それゆえ、ある温度範囲だけ一定を示す場合は、ある1つの機構が変形に支配的な役割を果たし、その温度域での活性化エネルギーはその変形機構としての活性化エネルギーとなる。この概念に基づき、室温から溶融温度までを3温度域に分けてろう材に対して変形の活性化エネルギー値を3つの定数で近似した。なお、溶融温度の際には、機械特性を持っていないため、ゼロを仮定した。ろう材の機械特性としてのヤング率 $E$ 、0.2%耐力 $\sigma_{a.2}$ と引張強さ $\sigma_b$ の温度依存性はFig. 2-2に示すようになる。

室温における各材料物性値を Table 2-1 に示し、温度依存性のある Cu、SUS304 の物性値は Fig. 2-3 に示すようになる。ポアソン比と窒化珪素 ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ) の物性値は温度依存性が極めて小さいので、一定とした。窒化珪素 ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ) は弾性体とし、銅 (Cu) とステンレス鋼 (SUS304) とろう材は弾塑性体として取り扱い、それらの応力・ひずみ関係は線形ひずみ硬化則に基づく2直線による近似式を行い、降伏条件としてはミーゼス降伏条件を用いた。

## 2. 2.2 塑性変形による弾塑性解析方法

本研究での弾塑性解析法は、第1ステップとして NASTRAN により弾性解析を行い、全要素の応力を相当応力 (ミーゼス応力) として求め、降伏応力を越えている領域内の要素を明らかにした。第2ステップとして、それらの要素に限定した弾塑性解析を考え、見かけ

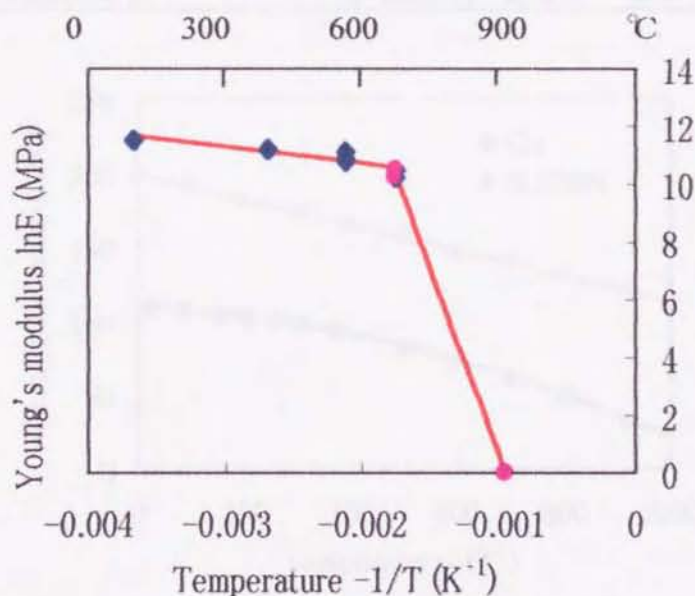


Fig.2-2 (a) Temperature dependence of the mechanical properties for B-Ag-8

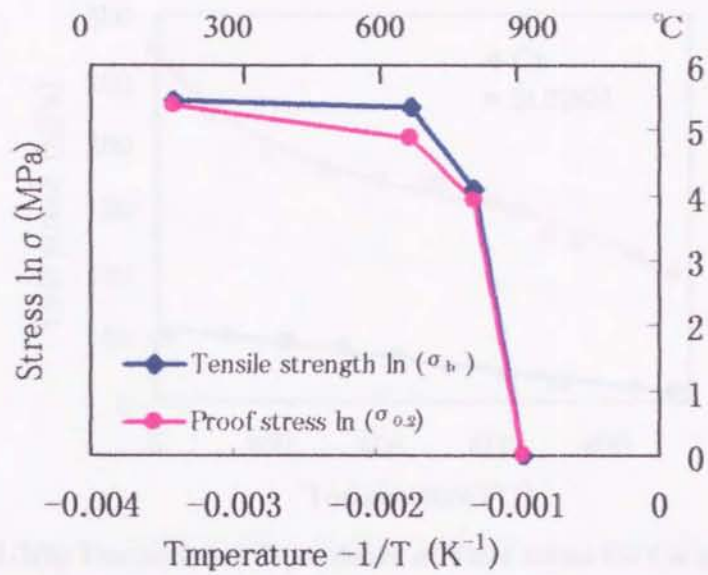


Fig.2-2 (b) Temperature dependence of the mechanical properties for B-Ag-8

Table 2-1 Mechanical properties and physical characteristics of used materials at room temperature

	Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	Cu	SUS304	Ag-brazing
Young's modulus (GPa)	320	110	196.5	99.07
Poisson's ratio	0.28	0.33	0.3	0.33
Thermal expansion coeff, ( $\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ )	3.2	17.12	17.5	3.2
Yield stress (MPa)		57	260	219.23
Tensile strength (MPa)	692.6	245	575	230.77

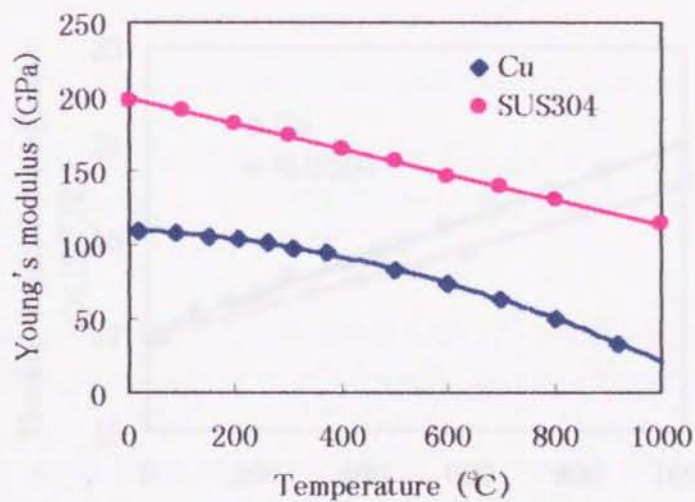


Fig.2-3(a) Temperature dependence of Yang's modulus for Cu and SUS304



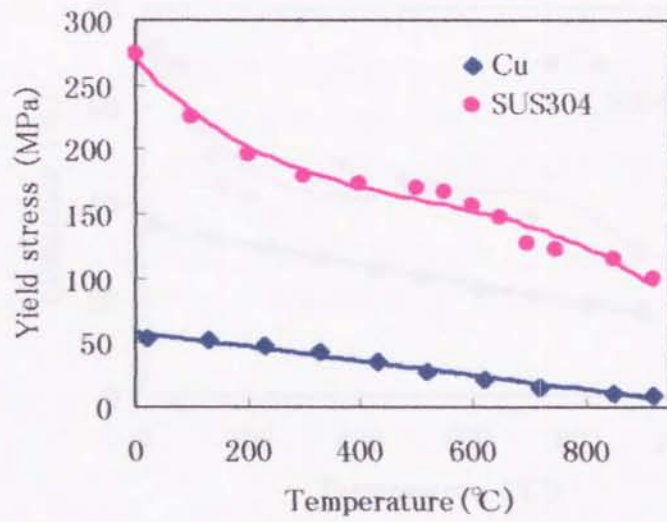


Fig. 2-3(b) Temperature dependence of Yield stress for Cu and SUS 304

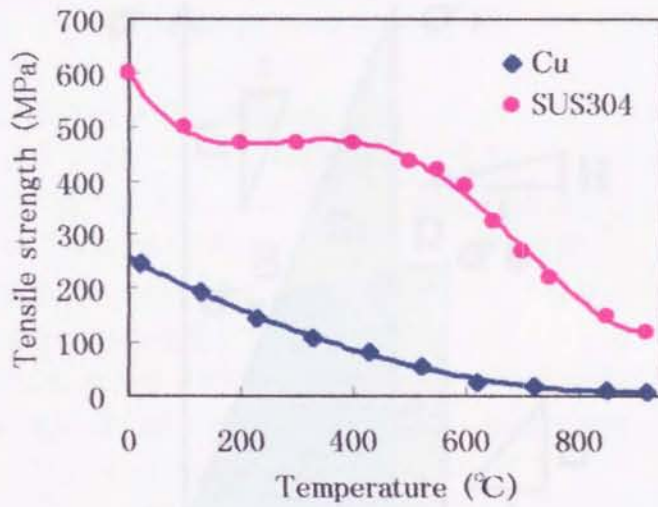


Fig. 2-3(c) Temperature dependence of tensile strength for Cu and SUS304

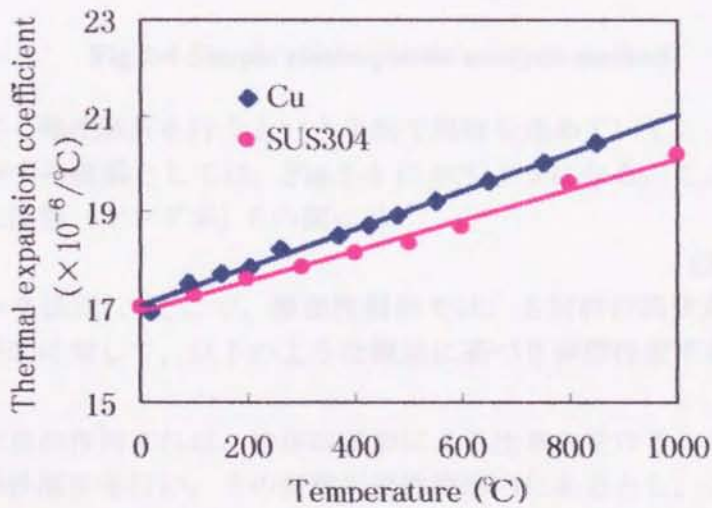


Fig. 2-3(d) Temperature dependence of thermal expansion for Cu and SUS304



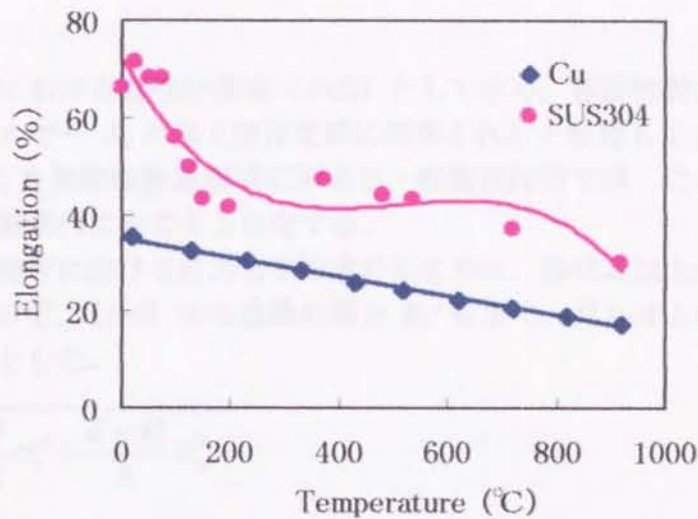


Fig. 2-3(e) Temperature dependence of elongation for Cu and SUS304

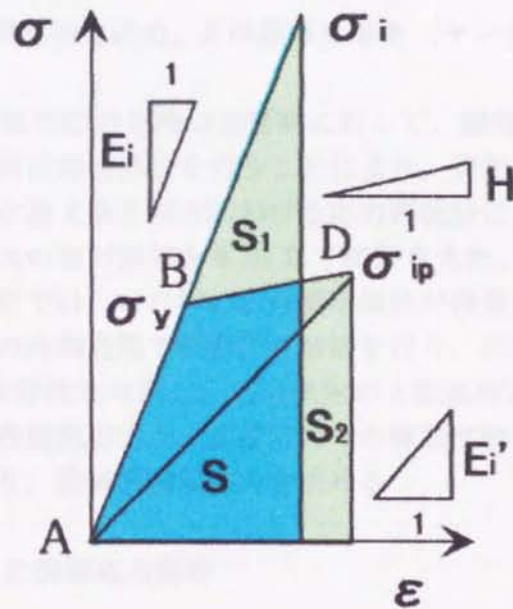


Fig. 2-4 Simple elasto-plastic analysis method

上のヤング率に基づく弾性解析を行うという手順で解析を進めていく。

相当応力-相当ひずみ線図としては、Fig. 2-4 に示すようになる。ここで、相当応力  $\sigma$  相当ひずみ  $\epsilon$  縦弾性係数（ヤング率） $E$ の間には

$$\sigma = E \cdot \epsilon \quad (2-4)$$

の関係がある（フック法則）。そこで、弾塑性解析では、各材料の降伏点を越えている相当応力  $\sigma$  を持つ各要素に対して、以下のような概念に基づき弾塑性変形挙動についての近似計算を行う。

物体に外部から荷重が作用すれば、物体は変形による仕事を受ける。そこで、解析の第1ステップとして弾性解析を行い、その変形が弾性変形内にあるとし、この仕事を弾性ひずみエネルギーとして弾性体に貯えられると考え、全要素に対してこの弾性ひずみエネルギー



ギーを、Fig. 2-4 における弾性計算域 ( $S+S_1$ ) として求め、弾塑性計算領域に囲まれない領域のひずみエネルギー  $S_1$  が全て塑性変形に消費されると仮定して、 $S_1$  と等しい塑性ひずみエネルギー  $S_2$  を弾塑性計算領域に求める。弾塑性解析では、この図での応力  $\sigma_i$  が降伏点を越えた各要素内に生じると仮定する。

そこで、弾塑性解析における応力分布を求めるために、降伏点以上の相当応力を持つ全要素に対して式 (2-5)、(2-6) から直線の傾き  $E_i'$  を求め、見かけ上のヤング率 (修正後ヤング率という) とした。

$$\sigma_p = \sqrt{\frac{H}{E} \sigma_i^2 + \frac{E-H}{E} \sigma_y^2} \quad (2-5)$$

$$E_i' = \sigma_p / \left( \frac{\sigma_p - \sigma_y}{H} + \frac{\sigma_y}{E} \right) \quad (2-6)$$

ここで、 $\sigma_i$  は要素  $i$  の弾性相当応力、 $E$  は縦弾性係数 (ヤング率)、 $H$  はひずみ硬化係数である。

次いで、降伏点以上の相当応力を持つ全要素に対して、縦弾性係数  $E$  から見掛上のヤング率  $E_i'$  に置き換えて再度弾性解析を行うことにより、弾塑性挙動を近似した弾塑性解析とした。なお、この置き換え修正解析における応力再配分による誤差修正はこの修正解析の繰り返しにより、最大の相対誤差を 0.01 以下に押さえた。

熱残留応力の弾塑性解析では、ロウ材の塑性変形抵抗が残留応力に対して影響を及ぼし始める温度から室温までの冷却過程で熱弾塑性解析を行う。材料の物性値の温度依存性と応力・ひずみ関係の温度依存性を考慮し、応力発生の上限温度から室温までの温度範囲を数段階に分け、前段階の残留熱応力との重畳応力での弾塑性解析を行いながら、一段階ずつを進めて行くことにより、最終熱残留応力を求める。

## 2. 2.3 クリープも考慮した残留応力解析

接合冷却過程における中間層 Cu の弾塑性変形のみならずクリープ変形挙動についても考慮した残留応力解析を行うことにする。

クリープ変形過程におけるひずみ  $\epsilon_c$  あるいはひずみ速度  $\partial \epsilon_c / \partial t$  と時間  $t$  の関係については、数多くの表示式がある。それらの関係を組合せた数多くのひずみ  $\epsilon_c$  と時間  $t$  の関係式の一つとして

$$\epsilon_c = \epsilon_0 + \epsilon_1 + \epsilon_2 = \epsilon_0 + \beta \cdot t^n + k \cdot t \quad (2-7)$$

がよく用いられる。<sup>11)</sup> 右辺第 1 項  $\epsilon_0$  は時間に依存しない瞬間ひずみ  $\epsilon_0$ 、第 2 項  $\beta t^n$  は遷移クリープによるひずみ  $\epsilon_1$ 、第 3 項  $k t$  は定常クリープによるひずみ  $\epsilon_2$  である。

(2-7) 式を時間で微分することにより

$$\partial \epsilon_c / \partial t = \beta \cdot n \cdot t^{n-1} + k \quad (2-8)$$

であるが、 $n$  は 1 より小さい正数であるから、 $t$  が小さい初期については、右辺の第 1



項が支配的となり、時間の経過と共にひずみ速度が漸減する遷移状態の第1期クリープを表す。  $t$  が大きくなると、第2項が支配的となり、ひずみ速度は一定値に近づき、定常状態の第2期クリープを表す。式(2-7)、式(2-8)において、 $\beta$ 、 $k$  は、一般に、温度および応力に依存すると考えられている。なお、 $n$  は材料定数である。

遷移クリープ速度  $\partial \epsilon_1 / \partial t$  と定常クリープ  $\partial \epsilon_2 / \partial t$  の関係が次式のように導出されている。<sup>(12), (13)</sup>

$$(\partial \epsilon_1 / \partial t) \cdot (\partial \epsilon_2 / \partial t)^{-1/n} = B \cdot t^{n-1} \quad (2-9)$$

ここで、 $n$ 、 $1/I'$  および  $B$  が材料定数として与えられる。定常クリープ速度  $\partial \epsilon_2 / \partial t$  がわかると、時間  $t$  における遷移ひずみ速度  $\partial \epsilon_1 / \partial t$  を近似的に求めることができる。通常の金属材料では、 $n = 0.03 \sim 1$ 、 $1/I' = 0.3 \sim 0.6$ 、 $B = 2 \sim 5$  である。純Cuの場合  $n = 0.33$ 、 $1/I' = 0.36$  であり、 $B$  は2とした。<sup>(11), (14)</sup>

定常クリープ速度  $k$  の応力・温度依存性は

$$k = A \exp(-Q/RT) \cdot \sigma^d \quad (\text{低応力域}) \quad (2-10)$$

$$k = A' \exp(Q/RT) \cdot \exp(D \cdot \sigma) \quad (\text{高応力}) \quad (2-11)$$

で与えられる。ここで、 $\sigma$  は一定に保たれる応力であり、 $A$ 、 $d$ 、 $A'$ 、 $D$ 、 $Q$  は応力に依存せず、温度のみに依存する材料定数である。銅の場合には、式(2-10)、式(2-11)は一つの応力関数式で表れ

$$k = A'' (\sinh \alpha \sigma)^m = \Phi(T, \sigma) \quad (2-12)$$

で与えられる。ここで、 $A''$ 、 $\alpha$  と  $m$  は一定温度では定数である。<sup>15)</sup>

式(2-7)、(2-8)、(2-9)、(2-12) から、クリープ特性曲線の式として、式(2-13)が得られる。

$$\epsilon_c = \epsilon_0 + B \cdot k^{1/I'} \cdot t^n / n + k \cdot t = \Psi(\Phi(T, \sigma), t) \quad (2-13)$$

そこで、残留応力に及ぼすクリープ現象の影響については以下のように解析的に検討する。

前述したように NASTRAN による弾塑性解析を行い、相当応力  $\sigma_{ip}$  とひずみ  $\epsilon_{i0}$  を求め

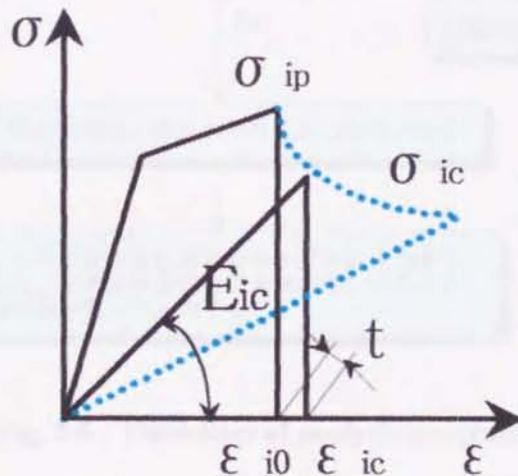


Fig. 2-5 Creep analysis method



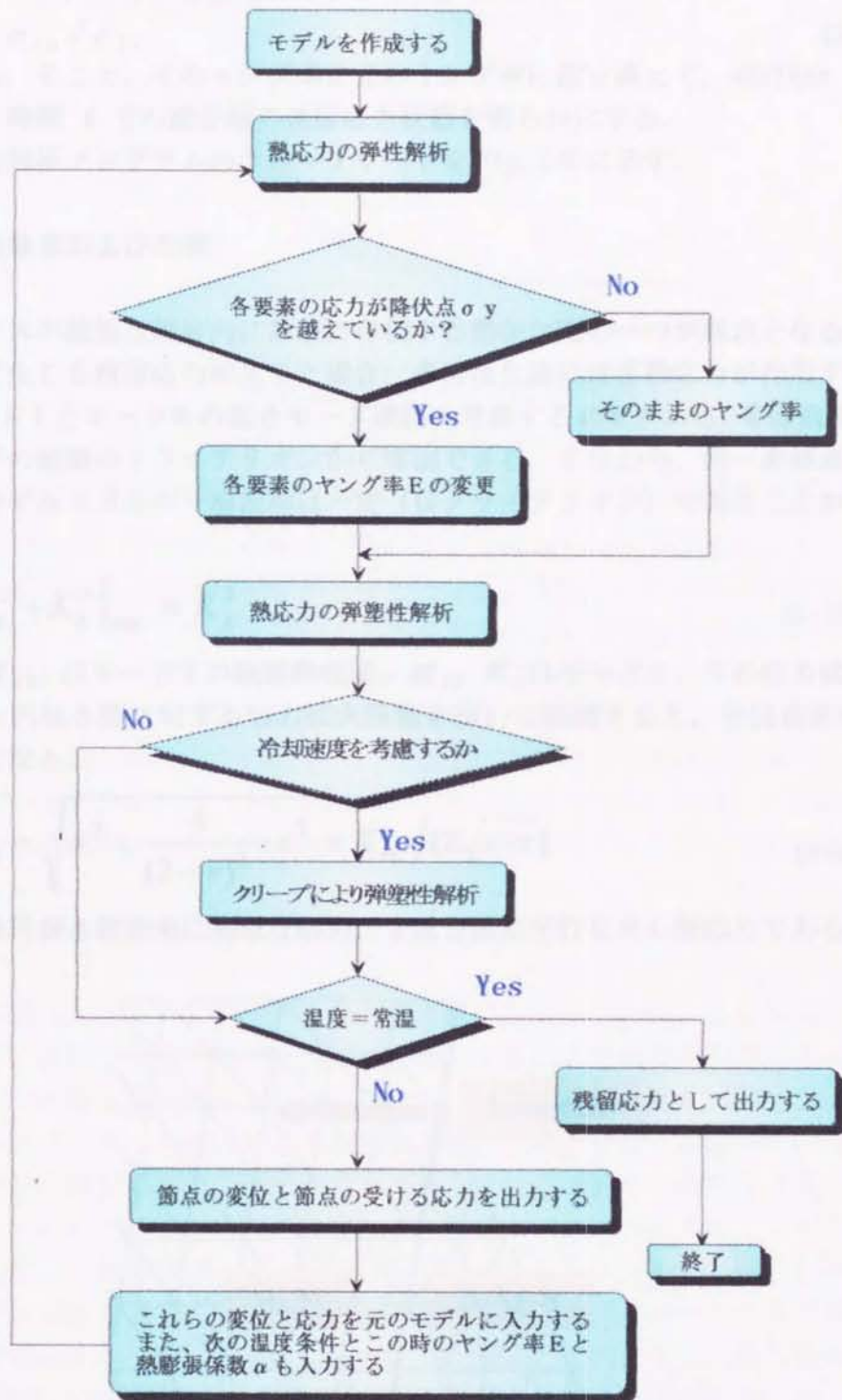


Fig. 2-6 Flowchart of analysis program



ると、Fig.2-5 に示すようになる。そこで、その応力と温度を一定にして、式 (2-13) によりクリープ変形を推定すると、時間  $t$  でのひずみは  $\epsilon$  になる。この  $t$  時間の間ににおける銅のクリープにより、見掛上のヤング率  $E_{ic}$  は

$$E_{ic} = \sigma_{ip} / \epsilon_{ic} \quad (2-14)$$

のようになる。そこで、そのヤング率を元のヤング率に置き換えて、NASTRAN により解析を再度行い、時間  $t$  での接合体の残留応力状態を明らかにする。

熱残留応力解析プログラムのフローチャートを Fig.2-6 に示す。

### 第3節 解析結果および考察

セラミックスの破壊は部材内に無数に存在する潜在欠陥の一つが起点となる。接合冷却過程において生じる残留応力が生じた場合、各潜在欠陥には多軸応力が作用することになるため、モードIとモードIIの混合モード破壊を考慮する必要がある。等価垂直応力  $\sigma_{eq}$  は混合モード下の破壊のクライテリオンから導出できる。すなわち、同一進展量での直進き裂に対するひずみエネルギー解放率は一定 (Gクライテリオン) であることから、次式が成り立つ。

$$\{K_I^2 + K_{II}^2\}_{\max} = K_{IC}^2 \quad (2-15)$$

ここで、 $K_{IC}$  はモードIの破壊靱性値、 $K_I$ 、 $K_{II}$  はモードI、IIの応力拡大係数である。そこで、円板き裂に対する応力拡大係数を用いて整理すると、等価垂直応力  $\sigma_{eq}$  は次式のようになる。

$$\sigma_{eq} = \sqrt{\sigma^2 + \frac{4}{(2-\nu)^2} \cdot \tau^2} = K_{IC} / (2\sqrt{c/\pi}) \quad (2-16)$$

ここで、 $\sigma$  は円板き裂表面に垂直な応力、 $\tau$  はき裂に平行なせん断応力である<sup>16), 17)</sup>。

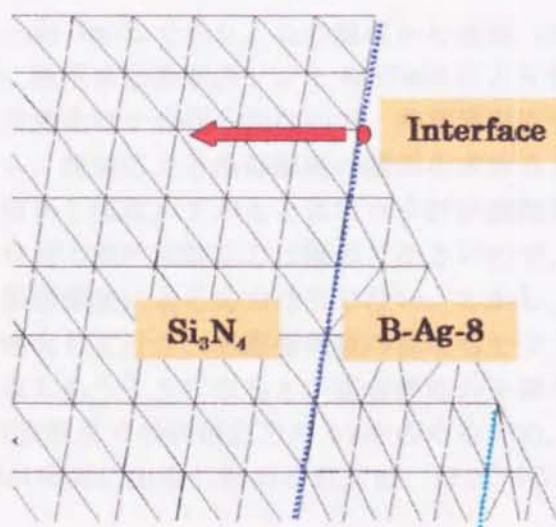


Fig.2-7 Magnified diagram in the field of stress concentration



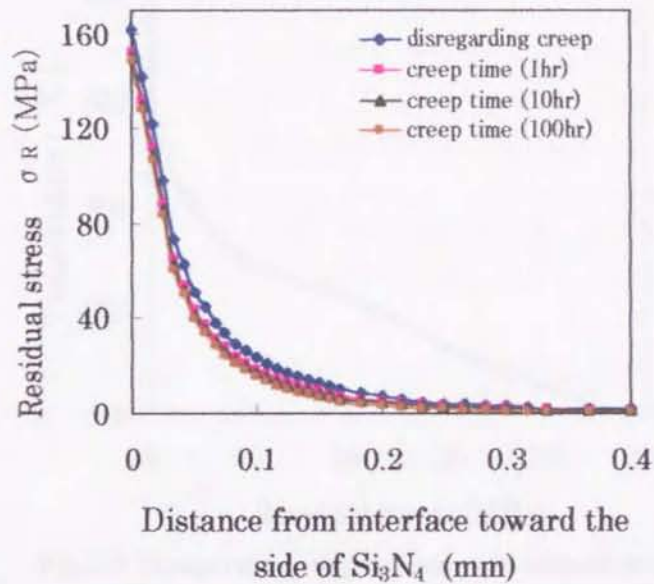


Fig.2-8 Distribution of residual stress with various cooling rates

そこで、本解析においては、全潜在欠陥に対して等価な円板き裂を仮定し、軸方向の垂直応力 $\sigma$ とせん断応力 $\tau$ を用いて等価垂直応力 $\sigma_{eq}$ に変換し、残留応力を評価することにする。ここでのモデルにおける破壊のクリティカルポイントは接合面端部の丸印領域であるので、この部位について評価することになる。そこで、接合面からの距離として、Fig. 2-7のように窒化ケイ素と銀ロウの接合面から対称軸方向にとり、その方向の応力分布をFig. 2-8に示す。接合界面から離れると共に残留応力は減少する傾向にある。各残留応力は接合界面よりわずかにセラミックス内部の位置で最も高い値となり、この部分が接合界面極近傍にある破壊のクリティカルな部分で、接合体の強度に大きな影響を及ぼす。

### 2. 3.1 ロウ材の凝固過程における熱応力発生の上限度

ロウ材の熔融温度は約 780°Cであり、この温度から室温 (20°C) まで冷却される場合について、前述と同様に汎用有限要素法ソフト NASTRAN により弾塑性解析を行った。なお、接合冷却過程での温度変化は十分緩やかなので、非定常温度分布の影響はない。

弾塑性解析結果から、残留応力と冷却温度の関係を求めると、Fig. 2-9 に示すようになる。接合体は接合温度から温度が下がると共にロウ材が液相から軟質態・固相に変わって行く。始めのうちはロウ材の塑性流動応力は極めて小さいので、セラミックス・金属いずれも自由に熱変形し、熱膨張差による応力は生じない。しかし、冷却が進むに連れて、ロウ材の塑性変形抵抗が増大して行き、熱膨張係数の異なるセラミックスと金属が接合界面でお互いに熱変形を拘束しあうようになると、接合熱応力を発生する。解析結果によると、550°Cまでの熱応力は室温までの残留応力の1%を占めるため、残留応力に対してロウ材の塑性変形抵抗の影響が現実に出現し始める温度は、ほぼ 550°Cであることが明らかになった。

### 2. 3.2 クリープ現象に起因する残留応力の挙動



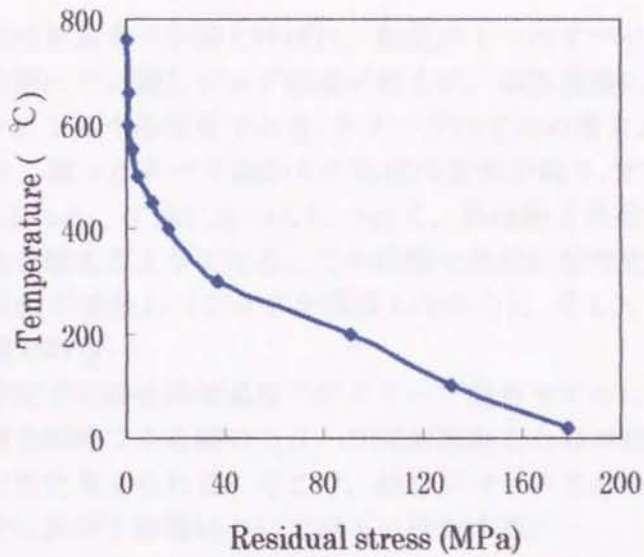


Fig.2-9 Temperature dependence of residual stress

残留応力に及ぼす接合冷却速度の影響の基礎的検討として、冷却過程での10段階の温度において温度を一定に保持する時間を変えて、クリープ変形進行に伴う接合熱応力の挙動について以下のように検討した。

銀ろうはAg-Cu合金であり、純金属銅や純金属銀に比べてクリープ速度が極めて小さいため、ほとんどクリープ発生しないと考え無視した。今回は中間層の銅のみクリープを考慮し、各段階でのクリープ時間を1時間・10時間・100時間の3種類として解析を行った。接合冷却過程における銅のクリープ変形挙動に伴う銅の塑性流動応力の挙動について、Cuのクリープ現象による相当残留応力 $\sigma$ と相当ひずみ $\epsilon$ の関係として着目してみると、Fig.2-10のようになることが解析的に明らかになった。この応力-ひずみ関係はクリープ試験から得られた典型的な応力-ひずみ曲線とよく一致している。<sup>(18)~(20)</sup>

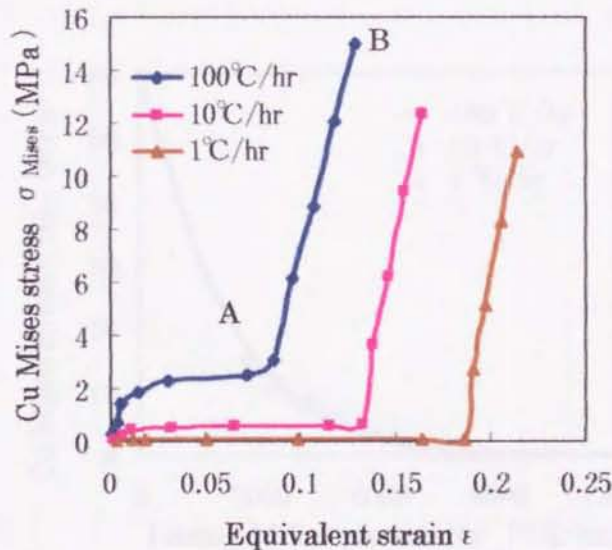


Fig.2-10 Relation between Cu Mises stress and strain with various cooling rates



この曲線の初期領域は容易すべり域と呼ばれ、転位が1つのすべり面上で動くためであり、その際、転位は次第にたい積しジョグ形成が起るが、結晶表面にすべり帯は現れず、塑性流動応力はわずかに上昇する程度である。クリープひずみの増大と共にA点に至ると、かなり急に硬化が起り、違ったすべり面からの転位の交差が起り、すべりの生じない転位“不動転位”が形成される。B点に近づくにつれて、熱揺動と負荷応力の作用が加わって転位がこれらの障害を越えるようになる。この段階で熱的に活性化された交差すべりはじまる。これらは転位が交差し（ジョグを形成しながら）、そしてジョグが転位と一緒に動くという変形機構である。

以上のように、本研究での接合冷却過程でのクリープ解析モデルに基づく結果は、一般的にクリープ変形機構を説明できる銅のクリープ変形抵抗応力の挙動と一致し、本解析法の妥当性を明らかにできた考えられる。そこで、接合プロセスでの冷却速度条件がセラミックスの接合残留応力に及ぼす影響について以下に検討する。

温度と時間の関数で与えられる冷却速度条件を考慮して、中間層銅およびセラミックスの両部材中に残留していく応力の挙動究明には、時間と温度の影響を同時に考慮できる次式のラーソンミラーパラメータ  $P$  を用いて整理する。

$$P = (T + 273) \times (c + \log t) \quad (2-17)$$

ここで、 $T$  は温度 (°C) であり、 $t$  は各温度での保持時間 (hr) であり、 $c$  は材料定数である。

Cu の相当残留応力  $\sigma_{Mises}$  とラーソンミラーパラメータ  $P$  の関係としては Fig. 2-11 に示すようになり

$$\sigma_{Mises} = \sigma_{Mises, max} \cdot \exp\left\{-\left(P/P_{M0}\right)^\alpha\right\} \quad (2-18)$$

のように表される。ここで、 $\sigma_{Mises, max}$  は 0 K (-273°C) における Cu の残留ミゼス応力値で、 $\sigma_{Mises, max} = 59.8 \text{ MPa}$  であり、 $P_{M0} = 2200 \text{ MPa}$ 、 $\alpha = 1.13$  である。また、この Cu のクリープ現象に依存するセラミックス  $\text{Si}_3\text{N}_4$  の残留応力  $\sigma_R$  とラーソンミラーパラメータ  $P$  の関係として

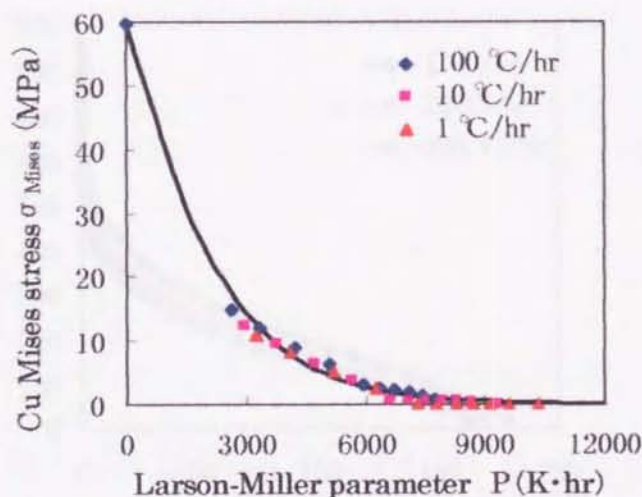


Fig.2-11 Relation between Cu Mises stress and Larson-Miller parameter



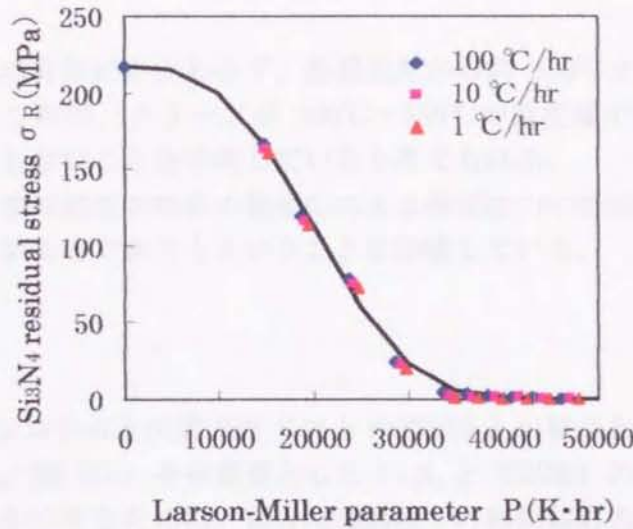


Fig.2-12 Relation between Cu Mises stress and Larson-Miller parameter

は Fig. 2-12 に示すよ

$$\sigma_R = \sigma_{R,max} \cdot \exp\left\{-\left(\frac{P}{P_{R0}}\right)^\beta\right\} \quad (2-19)$$

のように表される。ここで、 $\sigma_{R,max}$  は 0 K (-273°C) における  $\text{Si}_3\text{N}_4$  の残留応力値で、 $\sigma_{R,max} = 216.56\text{MPa}$  であり、 $P_{R0} = 20000\text{MPa}$ 、 $\beta = 3$  である。

式(2-18)、式(2-19)で表される残留応力  $\sigma_R$  とラソンミラーパラメータ  $P$  の関係式を用いることにより、如何なる冷却過程に対しても、セラミックスのみならず中間層銅に生じていく残留応力挙動を推測できる。

Fig. 2-13 に 1°C/hr, 20°C/hr, 200°C/hr 冷却速度での残留応力の挙動を示す。約 400°C 以上の温度域では、冷却速度が遅いほど、残留応力は明らかに減少しているが、400°C 以下の温度域での残留応力挙動はいずれも、冷却速度の差による影響はない。400°C までの残留応力の差が最終的な残留応力の差になっていることが明らかに認められる。また、ク

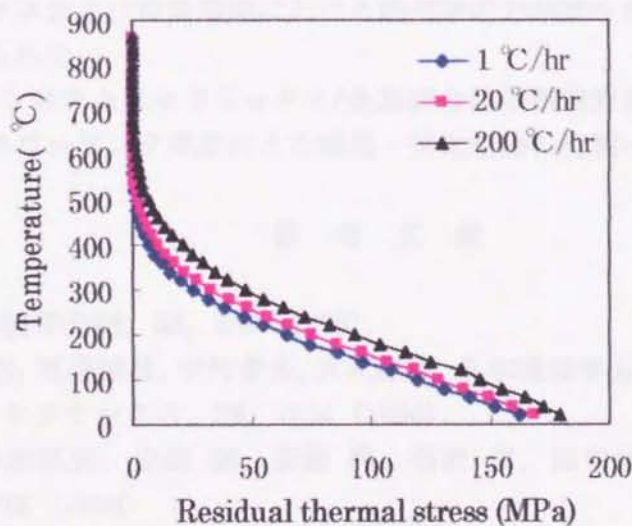


Fig.13 Temperature dependence of  $\text{Si}_3\text{N}_4$  residual Stress with various cooling rates



クリープ現象の考慮の有無にかかわらず，熔融温度から約 550℃までは残留応力を発生しないことがわかる．これは，クリープが 400℃～550℃の温度域でしか，冷却速度に依存する応力緩和に関与しないことを示唆していると考えられる．

以上のことは，冷却速度の制御の最適化による残留応力の低減が 400℃以上の温度で行なって初めて効果があるであろうということを示唆している．

#### 第4節 結 言

Visual Basic システムと汎用 FEM ソフト NASTRAN との組み合わせによる応力・強度解析システムを開発し，銅 (Cu) を中間層とした  $\text{Si}_3\text{N}_4$  と SUS304 の紡錘型円筒接合体における残留応力を明らかにするために，接合冷却過程での熱残留応力挙動および熱残留応力へのクリープ現象の影響に対する弾塑性解析への適用を行った．その適用により，得られた主な結果は下記の通りである．

(1) 400℃以上の温度域では，熱残留応力は中間層銅のクリープ現象により緩和されるが，約 550℃以上の温度域では銀ロウの塑性流動による変形吸収の方が残留応力の緩和に大きく影響するので，クリープ現象による効果は極めて小さい．また，400℃以下の低温域ではクリープ現象による熱応力緩和はほとんどなく，無視できる．

(2) ロウ材に変形強度が明瞭に出始める 550℃から 400℃の温度域で，冷却速度の影響によるセラミックス残留応力の低減が明瞭に認められる．したがって，冷却速度の制御の最適化によるセラミックス残留応力の低減は約 550℃から 400℃の温度で行なって初めて効果がある．

(3) 冷却速度によるセラミックス残留応力の低減は約 550℃から 400℃の温度域での冷却速度による中間層銅のクリープ現象によって完全に支配される．

(4) セラミックス/金属接合体における構成部材の材料特性および熱物性の温度依存性を数式モデル化し，中間層銅の弾塑性変形のみならずクリープ現象を考慮した接合冷却過程でのセラミックスおよび中間層銅における熱残留応力挙動を検討するのに有益な情報が簡便な手法で得られた．

(5) この解析システムはセラミックス/金属接合体の構造設計・製造プロセスの最適化，あるいは脆化やスウェリング現象による損傷・劣化挙動の究明への適用が期待できる．

#### 参 考 文 献

- (1) 小林英男，溶接学会誌，58，559 (1998)．
- (2) 轟 章小林英男，荒居善雄，中村春夫，大沢靖雄，日本機械学会論文集，A - 55，750 (1989)．
- (3) 田中俊一郎，セラミックス，25，1634 (1990)．
- (4) 栗田政則，井原郁夫，佐藤 誠，斎藤 明，福沢 康，田中俊一郎，日本機械学会論文集，A - 56，978 (1990)．
- (5) 佐藤拓哉，小林英男，荒居善雄，日本機械学会論文集，A - 57，2702 (1991)．
- (6) 羅 芳毅，小林英男，佐藤拓哉，朴 栄哲，日本機械学会論文集，A - 60，742 (1993)．
- (7) 志智雄之，有田雅晴，松清健二，松長正治，日本セラミックス協会学術論文誌，97，



1354 (1989).

- (8) 志智雄之, 有田雅晴, 松長正治, 日本セラミックス協会学術論文誌, **96**, 930 (1988).
- (9) 中橋昌子, 末永誠一, セラミックス, **30**, 102 (1995).
- (10) 結城良治, 許金泉, 武藤睦治, 日本機械学会論文集, **A-60**, 37 (1994).
- (11) F.K.G. オドクヴィスト, J. ハント共著, 村上澄男訳, クリープ強さの理論, PP. 12~14, (1967) 培風館.
- (12) T. Nishihara, S. Taira, K. Tanaka & M. Ohnami, Tech. Rep. Engg. Res. Inst., Kyoto Univ., 17-4 (1957), 18-2 (1958).
- (13) 大南正瑛, 材料試験, **8**, 199 (1959).
- (14) 平 修二, 機械の研究, **8**, 13 (1959).
- (15) Frank Garofalo 著, 足立正雄 訳, 金属クリープの基礎, P. 53 (1968) 丸善社.
- (16) 松井實, 梶田昌明, 山田直仁, セラミックス, **25**, 138 (1990).
- (17) 松尾陽太郎, 日本機械学会論文集, **A-46**, 605 (1980).
- (18) Iain Finnie, Willian R. Heller 著, 平 修二 監修, 鈴木房幸 訳, 工業材料のクリープ, P. 98 (1965) コロナ社.
- (19) Seeger, A., in R. Grammel (ed), " Deformation and Flow of Solids IUTAM Madrid Colloquium 1955 ", P.113, Springer-Verlag, Berlin, 1956
- (20) Gilman, J., Discussion on paper of W. Hibbard and C. G. Dunn, Symposium on Creep and Recovery, 1956, American Society for Metals, Cleveland, 1957.



### 第3章 セラミックス/金属接合試験片に対する最適中間層厚さについての検討

#### 第1節 緒言

セラミックスは耐熱性や耐磨耗性などに優れた特質を持っている反面、靱性に乏しいという欠点があり、重要な機械構造・部品への適用・拡大に不安の残るのが現状である。それゆえ、その低靱性を補う方法として靱性の高い金属との接合を活かした機械構造・部品へのセラミックス適用が安全性・信頼性の観点から期待されている。

セラミックスと金属の接合では、高温状態から室温まで冷却する過程での温度変化にともなって、両材料の熱膨張係数の違いからセラミックスと金属の間に大きな膨張差を生じ、セラミックス側の界面近傍に局所的な引張熱応力が発生し、残留応力として残ることになる。この残留応力はセラミックスの経時的な強度低下や遅れ破壊の要因となり、接合部材の強度信頼性に大きな影響を及ぼす<sup>(1),(2)</sup>。そこで、この残留応力を緩和するために、通常、セラミックスと金属の間に銅のような軟質金属を中間層として挿入し、残留応力の低減が図られる。

接合強度には、中間層厚さの影響が残留応力の低減としての働きだけでなく、セラミックス接合部材に作用する外力に対して塑性変形による応力緩和としての働きもあることが重要である。また、接合強度には、接合面仕上げ状態が、楔効果等の面から、影響することも考慮すべきである。このように接合部には接合強度を左右する重要な因子が含まれており、この接合強度についての基礎的研究は、接合構造部品に対する安全性設計基準を考えていく上で極めて重要である。

本章ではセラミックス/金属接合材の中間層厚さに注目し、接合試験片モデルに対する3次元弾塑性有限要素解析により、セラミックス界面近傍に生じる残留応力分布を求めた。その残留応力が生じている試験片モデルに対して、さらに、曲げ試験負荷応力を重畳させる解析によって、再配分する残留応力分布（以下では単に重畳応力と記す。）を求めた。その重畳応力分布における最大応力値に基づき、最適中間層厚さについて検討した。また、最適中間層厚さのみならず、接合面仕上げおよび仕上げ方向の影響も含めて、種々の条件の接合試験片を作製し、4点曲げ試験を行って実験的に確認した。

#### 第2節 供試材

供試材は無酸素銅 (Cu) を中間層とした常圧焼結窒化ケイ素 ( $\beta$ -Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>) とオーステナイト系ステンレス鋼 (SUS304) の接合材である。これは、接合ロウ材として SUS304/Cu 界面に B-Ag-8 (Ag: 59.6, Cu: 40.4 [atm%]) を、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/Cu 界面に Ti-Ag-Cu 系 (Ag: 67.8, Cu: 30.6, Ti: 1.6 [atm%]) を用いた活性金属法で接合している。両ロウ材厚さは 10  $\mu$ m である。接合試験片の寸法形状を Fig. 3-1 に示す。試験片には単一接合試験片 (TP A 試験片) と、複数切出し試験片 (TP B 試験片) の2系統を用いた。



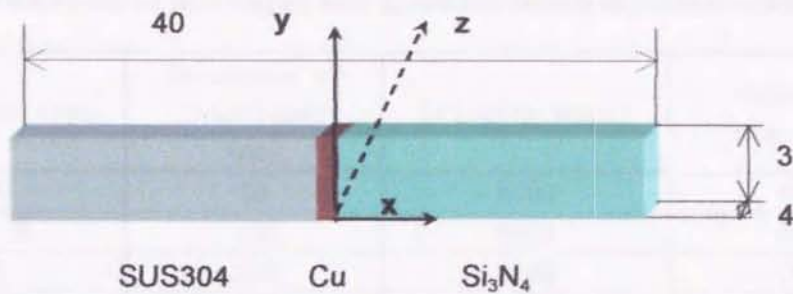


Fig.3-1 Shape of ceramics/metal joint specimen. (mm)

TP A 試験片はそれぞれの材料を 3.5×4.5mm の断面形状で接合した後、Fig. 3-1 のように加工されたものである。一方、TP B 試験片は断面形状 5×10mm で接合した後、試験片として 2 本切出したものである。それぞれ試験片の接合条件を Table 3-I に示す。

また、接合試験片はさらに中間層厚さ、接合研削面粗さおよび研削方向についてそれぞれ条件を変えたものを作製した。それらを Table 3-II に示す。ここで、研削方向 0° は試験片幅 4mm 方向に対して平行に研削加工されたものである。

### 第 3 節 解析・試験方法

#### 3.3.1 解析方法

接合冷却過程での高温域(850~550°C)では、ロウ材の塑性流動抵抗が低いので、セラミックスと金属は自由に熱収縮変形して残留応力がほとんど生じず無視できる。しかし、冷却が進み、550°C以下になってくると、ロウ材も変形抵抗が上昇し始め、セラミックスと金属の熱変形を拘束し残留応力が発生する。そこで、本解析ではロウ材を含めた Cu 中間層の変形強度が、セラミックスと金属の熱変形拘束に明瞭に影響し始める温度(550°C)から常温(20°C)までの冷却過程に対して、接合残留応力の解析を行った<sup>(3)</sup>。すなわち、降伏応力、熱膨張係数、ヤング率およびひずみ硬化係数等の温度依存性<sup>(4)~(6)</sup>を考慮するため 550°C→20°Cまでを 5 段階に分け、段階毎に前段階の残留応力とその段階での熱応力との重ね合せ応力に対して弾塑性解析を順次行った。また、曲げ試験での負荷上昇過程における接合残留応力の再配分も含めた応力挙動についても解析した。この解析手法<sup>(3)</sup>としては、試験負荷による曲げ応力分布と接合残留応力分布を重ね合わせて、再度、弾塑性解析を行う方法を取った。

解析には汎用構造解析プログラム (NASTRAN) と Visual Basic で独自に開発した弾塑性

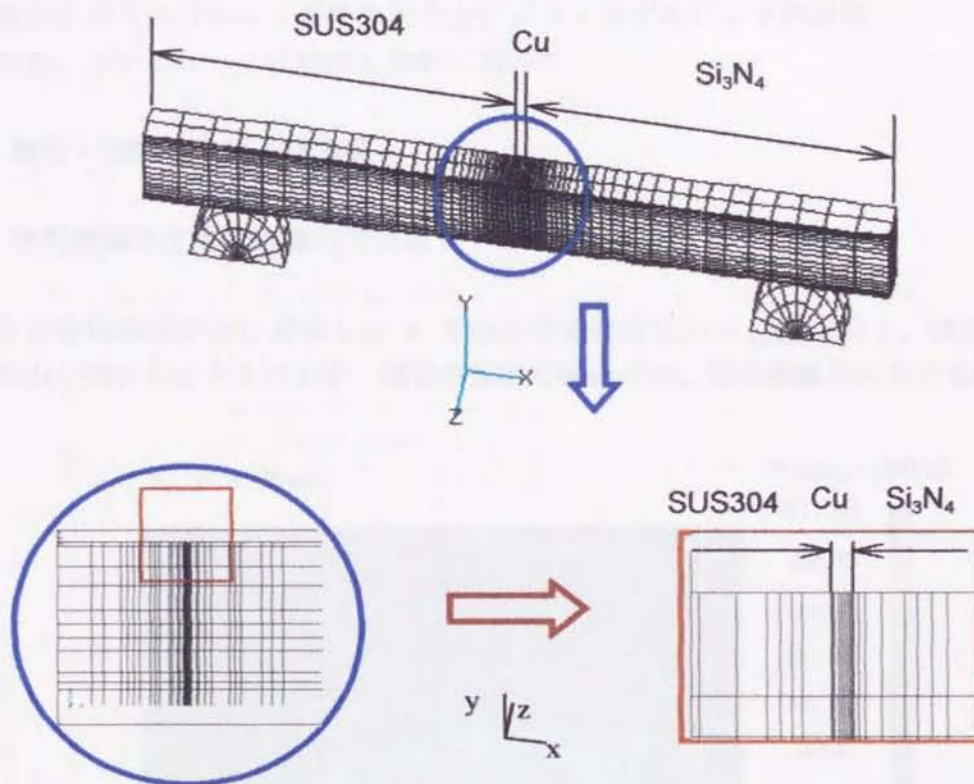
Table 3 - I Conditions of brazing

Specimen type	Joining temperature (°C)	Holding time (min)	Degree of vacuum (Torr)	Joining load (KPa)
A	800~850	15	$1 \times 10^{-6}$	49
B	840	25	$2 \times 10^{-5}$	4.5



Table 3 - II. Thickness of interlayer and grinding finish of joint surface in ceramics.

Specimen type	Thickness of interlayer ( $\mu\text{m}$ )	Grinding wheel	Grinding direction
A	50	#600	$0^\circ$
A, B	100	#600	$0^\circ$
B	200	#140	$0^\circ$
A, B	200	#600	$0^\circ$
A, B	200	#600	$90^\circ$
A, B	200	#1000	$0^\circ$
B	200	#1500	$0^\circ$
A	200	FL (Full Lapping)	$0^\circ$
A, B	300	#600	$0^\circ$



Detail of interface region by 2-dimensional display

Fig.3-2 3-dimensional analysis model of ceramic/metal joint

変換ソフト (NASTRAN による弾性解析より各素材の塑性変形領域を見だし、各素材物性の温度依存性を考慮した値に変換するプログラム) との組合せにより 3次元弾塑性解析手法を行った。解析モデルの形状・寸法はFig. 3-1に示す接合試験片の1/2幅3次元モデルとした。解析中間層厚さは 0.05, 0.1, 0.2, 0.3, 0.5, 0.8mm の6種類である。要素



分割例を Fig.3-2 に示す。ここで、解析された応力成分は節点に隣接する各要素の平均値をその節点に割り付けている。しかし、特異点（接合界面と自由縁の交点、すなわち  $x=0, y=0$ ）の極近傍（特異点の影響が最も現れる接合界面から 1 節点分の距離）で特異応力場の特性を正しく表すことができない。そのため軸方向（x 方向）の応力は特異点の影響を受けない十分に離れた位置に発生する最大応力で議論する。そこで、応力の集中する接合界面近傍の最小要素寸法を  $11.5\mu\text{m}$  に細分割した。解析は 8 節点ソリッド要素を用い、Cu 中間層厚さにより要素数 3456~3600、接点数 6480~6720 とした。なお、銀ロウ層は  $10\mu\text{m}$  以下と非常に薄く、塑性拘束が大きいいため Cu 中間層に含めて解析を行った。

### 3.3.2 曲げ強度試験

試験機はねじ式万能試験機を用い、JIS R 1624「ファインセラミックス接合の曲げ強さ試験方法」に準拠した 4 点曲げ試験治具（下スパン 30mm, 上スパン 10mm）にて試験を行った。試験環境は室温、大気中とした。試験条件は変位速度  $0.5\text{mm}/\text{min}$  とした。試験データは荷重およびクロスヘッド変位の出力をデジタルひずみアンプ内に取り込んだ後、コンピュータに保存し解析に用いた。

## 第 4 節 解析・実験結果および考察

### 3.4.1 中間層厚さと等価残留応力分布

後述する等価垂直応力に変換した x 方向の等価残留応力  $\sigma_{eq(Res)}$ （以下、残留応力と記す）分布の一例を Fig. 3-3 に示す。接合残留応力解析では、接合試験片における接合界面

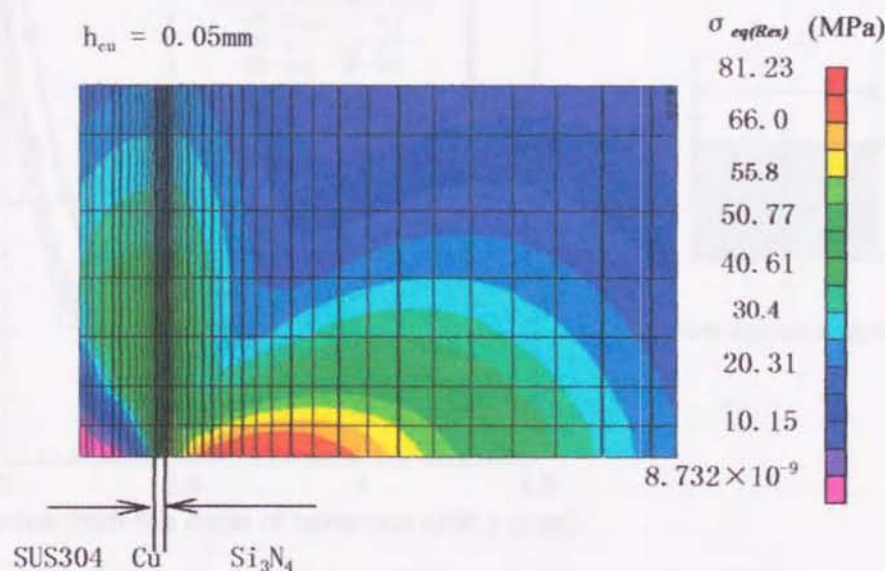


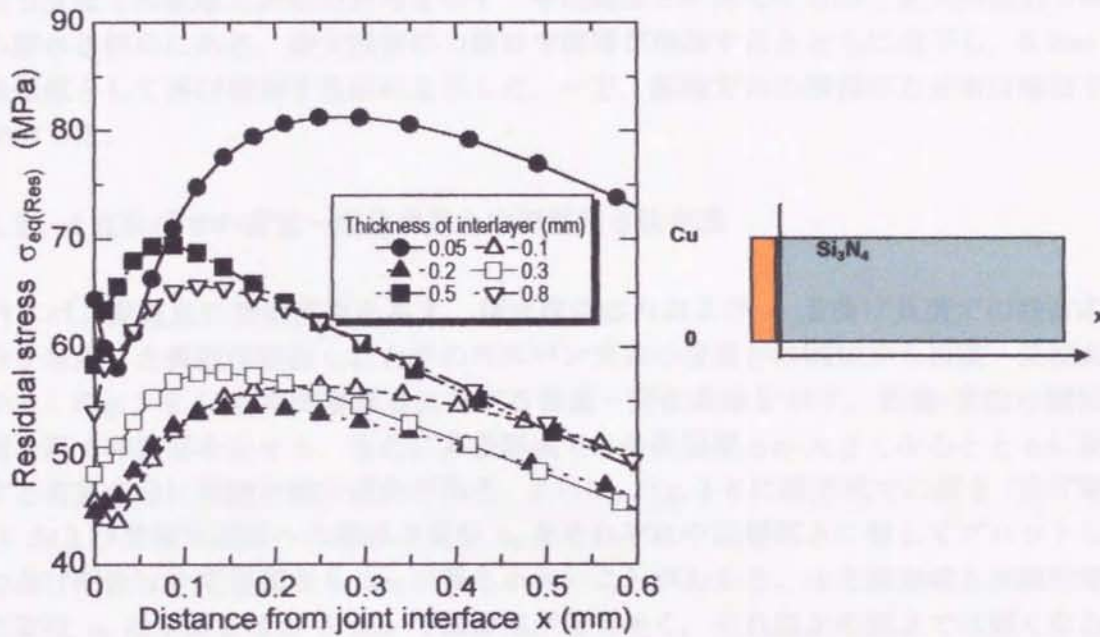
Fig.3-3. Distribution of equivalent residual stress against longitudinal direction on surface of ceramic side. (Interlayer thickness of 0.05mm)



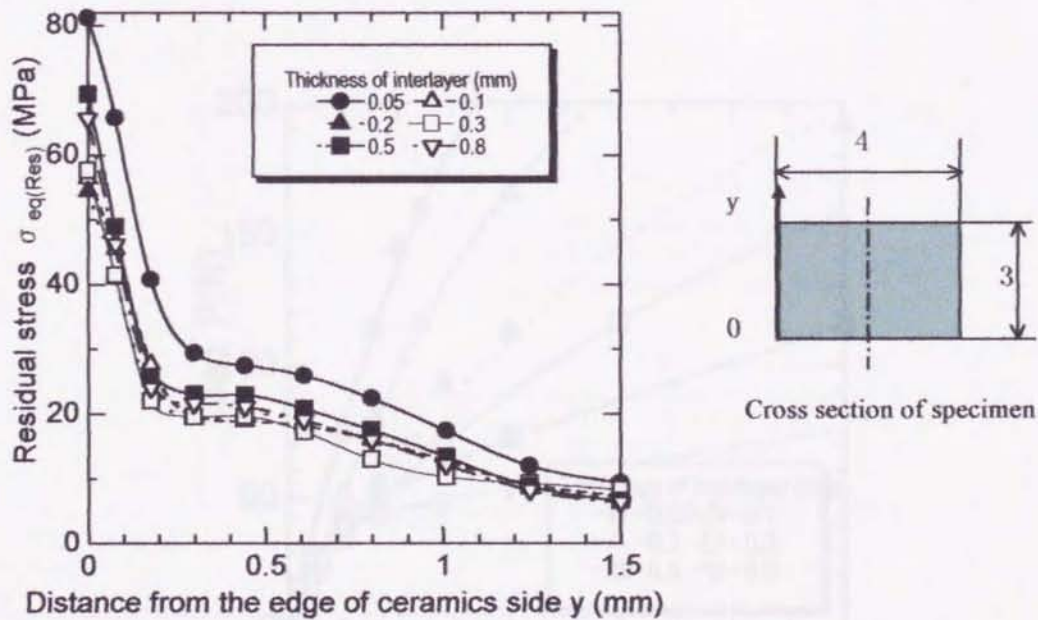
近傍での  $\tau_{xy}$  が顕著に生じるため、多軸応力状態での垂直応力  $\sigma_x$  とせん断応力  $\tau_{xy}$  を

$$\sigma_{eq} = \sqrt{\sigma_x^2 + \frac{4}{(2-\nu)^2} \tau_{xy}^2} \quad (3-1)$$

のような等価垂直応力  $\sigma_{eq}$  に変換して強度評価パラメータとして用いることにする。なお、



(a) Longitudinal direction on the surface of ceramics;  $y=0, z=0$ .



(b) Thickness direction on the surface of ceramics;  $x=x|\sigma_{eq(Res)max}, z=0$ .

Fig.3-4 Distributions of equivalent residual stress in several thickness of interlayer

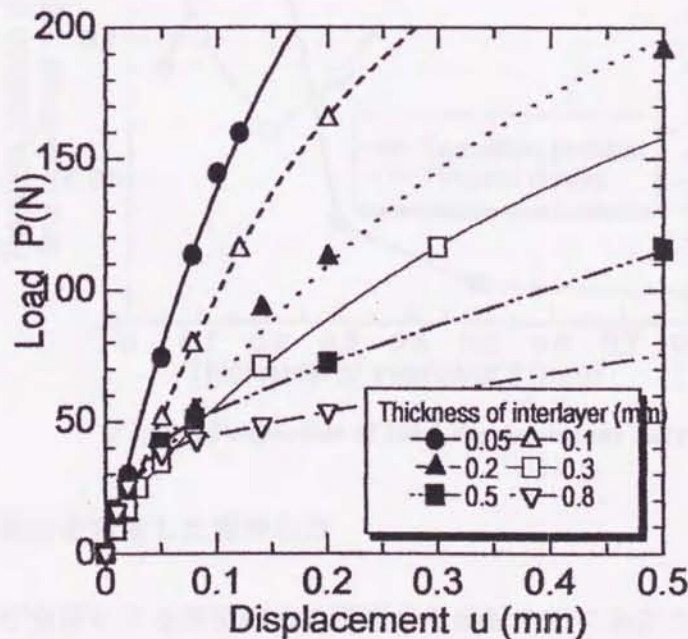


以下で議論される応力は全て等価垂直応力の x 方向成分 ( $\sigma_{eq,x}$ ) であり、以下では x を省略して表す。

Fig. 3-4 は各中間層厚さに対する等価残留応力  $\sigma_{eq(Res)}$  の分布を示す。Fig. 3-4 (a) はセラミックス側界面から長手方向応力分布を、Fig. 3-4 (b) は (a) の最大残留応力  $\sigma_{eq(Res)max}$  となる位置での板厚方向応力分布を示す。中間層厚さが薄くなるほど最大残留応力は界面から離れる傾向にある。最大残留応力値は中間層が増加するとともに低下し、0.2mm 付近を最低値として再び増加する傾向を示した。一方、板幅方向の残留応力分布は端部で最大値を示した。

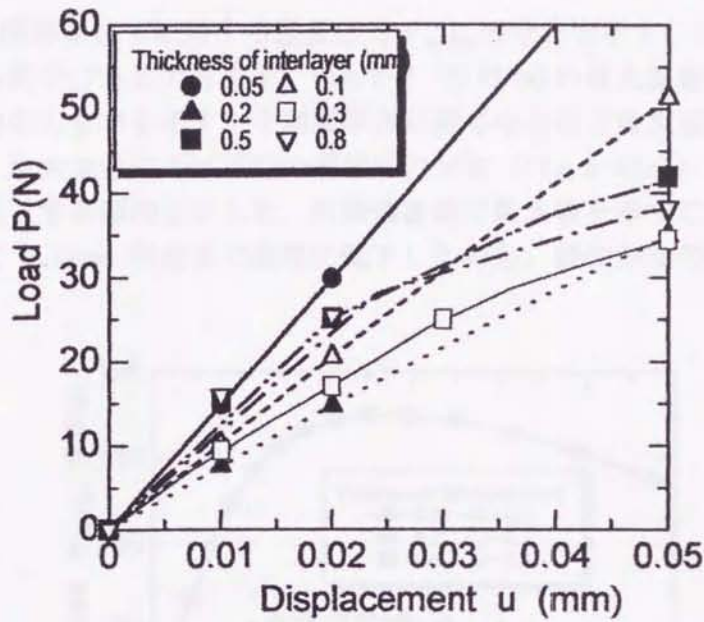
### 3.4.2 4点曲げでの荷重-変位曲線と中間層厚さ依存性

内スパン荷重点に強制変位を与え、接合残留応力および4点曲げ負荷での残留応力再配分を考慮した弾塑性解析したときの外スパン支点の荷重との関係から荷重-変位曲線を求めた。Fig. 3-5 に各中間層厚さに対する荷重-変位曲線を示す。荷重-変位の関係は線形域を経て非線形域を呈する。また、非線形域では中間層厚さが大きくなるとともに変位に対する荷重増分に明瞭な減少傾向がある。さらに、Fig. 3-6 に線形域での傾き(曲げ剛性:  $E I$ ) および非線形関係への遷移点変位  $u_T$  をそれぞれ中間層厚さに対してプロットした。その曲げ剛性は中間層厚さ 0.2mm が最も小さいことがわかる。また線形域と非線形域の遷移点変位  $u_T$  は中間層厚さ 0.2mm で線形域が最も長く、それ以上の厚さでは短くなる傾向を示す。以上のことは、接合材曲げ強度特性に銅中間層の変形挙動が大きな影響を有することを明瞭に示唆している。



(a) Load behavior included linear and non-linear region





(b) Load behavior of linear region

Fig.3-5 Relationships between displacements and the load in 4-point bending test

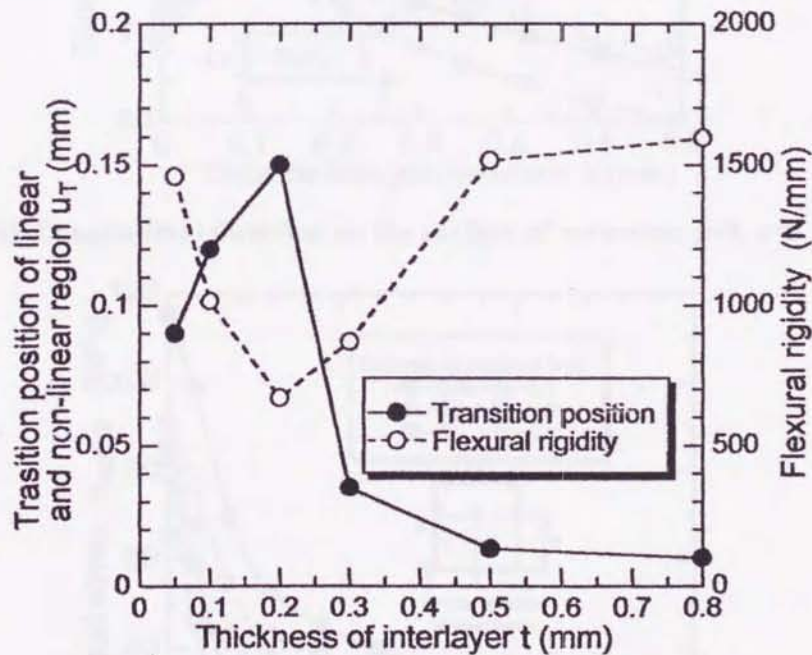


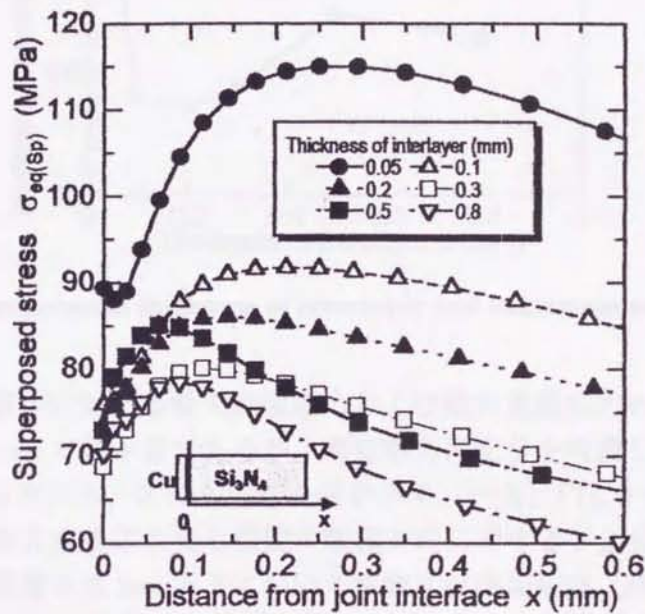
Fig.3-6 Properties of load-displacement curve

### 3.4.3 残留応力再配分を考慮した重畳応力

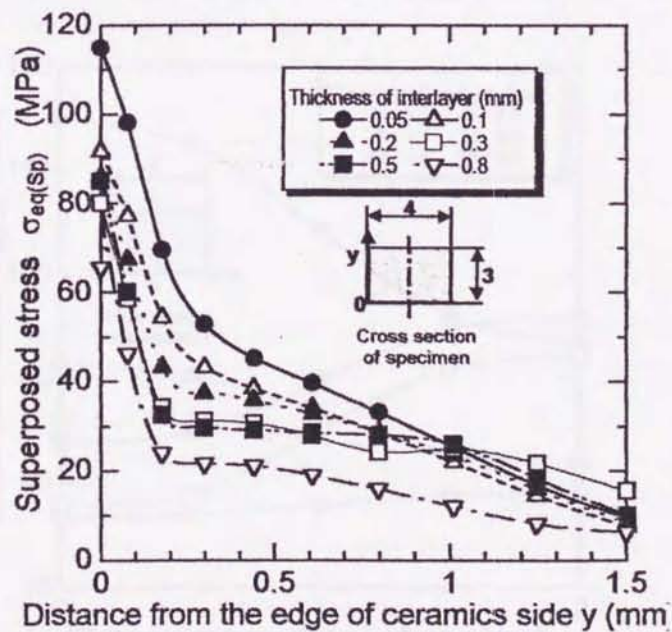
そこで、4点曲げ負荷による残留応力の再配分を解析するにあたり、いずれの中間層厚さの場合も変形が線形域内になるように、20N（公称応力 17MPa）を基準荷重とした。解析では、Fig.3-5 から基準荷重 20N に対応する強制変位  $u_e$  を求め、入力条件として最適中間層厚さ  $t$  の影響について検討した。



Fig. 3-7 は各中間層厚さ  $t$  に対する重畳応力  $\sigma_{eq(sp)}$  の分布を示す。Fig. 3-7 (a) はセラミックス側界面から長手方向応力分布を、Fig. 3-7 (b) は (a) の最大重畳応力  $\sigma_{eq(sp)max}$  となる位置での板厚方向応力分布を示す。中間層厚さが薄くなるほど最大重畳応力は界面から離れる傾向にある。最大重畳応力は初期の残留応力分布 (Fig. 3-4(a)) と異なり中間層が増加するとともに低下する傾向を示した。引張側表面で最大値を示すこの最大重畳応力は板厚方向に向かって 0.15mm 程度まで急峻に低下したのち、緩やかな勾配で低下する傾向がある。



(a) Longitudinal direction on the surface of ceramics;  $y=0, z=0$



(b) Thickness direction on the surface of ceramics;  $x = x | \sigma_{eq(Res)max}, z=0$

Fig.3-7 Distributions of equivalent superposed stress in several thickness of interlayer



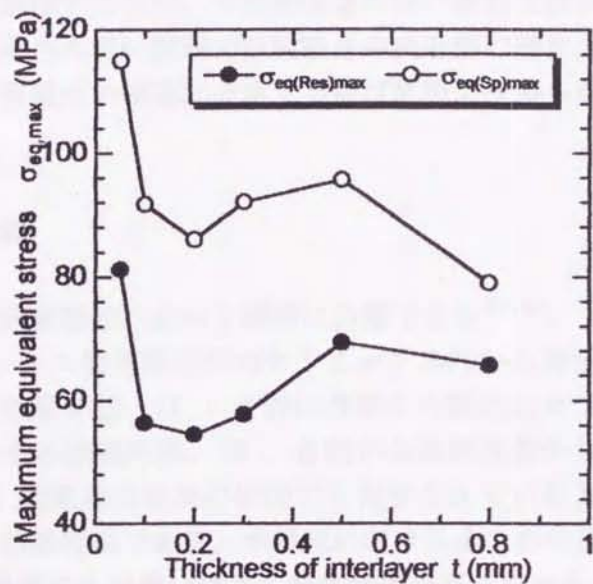


Fig.3-8 Relationships between thickness of interlayer and maximum equivalent stress

Fig.3-8 は中間層厚さに対する最大残留応力および最大重畳応力の両関係を示す。残留応力は中間層厚さ 0.2mm で最小値であるが、残留応力再配分を考慮した重畳応力では一端 0.2mm で極小値となったのち、0.8mm で最小値を示す。一方、Fig.3-9 は Fig.3-7(a) の各中間層厚さにおける最大重畳応力発生位置の板幅方向に対する  $\sigma_{eq}$  分布を示す。最大重畳応力発生位置は中間層厚さ 0.2mm 以下において試験片引張面端部 (座標値  $[x | \sigma_{eq(Sp)max}, 0, 0]$  および  $[x | \sigma_{eq(Sp)max}, 0, 4]$ ) であるのに対し、0.3mm 以上では引張面中央 (座標値  $[x | \sigma_{eq(Sp)max}, 0, 2]$ ) となっている。したがって、中間層厚さ 0.2mm ~ 0.3mm の間で板幅方

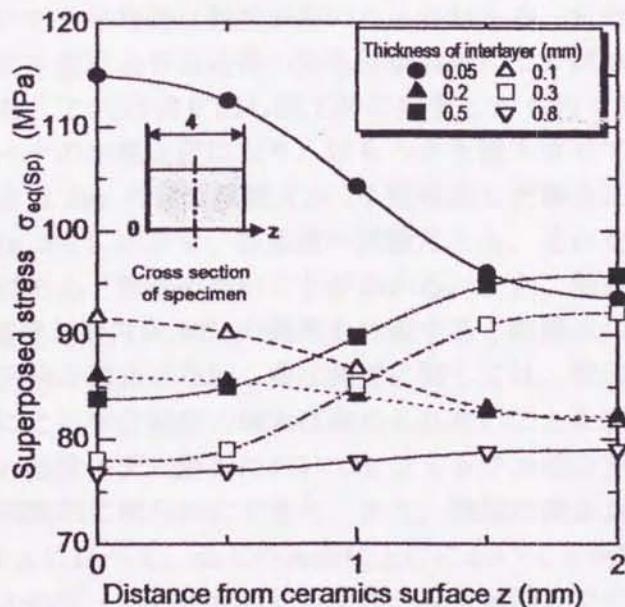


Fig.3-9 Distributions of the superposed stress toward width direction of specimen on the surface of ceramics side



向の応力分布状態が遷移するため、中間層厚さの薄い領域では試験片端部近傍の潜在欠陥から破壊し、中間層厚さの厚い領域では試験片中央近傍の潜在欠陥から破壊すると推察される。このような破壊起点の相違は後述する曲げ試験より得られた破面観察結果とよく対応している。

#### 3.4.4 破壊形態の分類

破面観察の結果、破壊形態は次の3種類に分類できる<sup>(7),(8)</sup>。

IC：き裂がセラミックス側界面近傍のセラミックス内から発生し、セラミックス中を界面に平行に進展する破壊形態。CC：き裂は界面から離れたセラミックスから発生し、セラミックス中を進展する破壊形態。IM：き裂が金属側界面から発生し、金属側界面を進展する破壊形態。IC型破壊は従来の研究でも報告されているように、接合体を曲げ試験した場合の典型的な破壊形態である。本研究における全ての中間層厚さにおいて認められた。CC型破壊は中間層厚さが薄いほど、発生確率が高くなった。また、IM型破壊は接合不良によるものである。

#### 3.4.5 曲げ強度と接合条件の関係

4点曲げ試験結果から中間層厚さと強度の関係を Fig. 3-10 に示す。本実験での中間層厚さの範囲では、平均値とばらつき幅から判断すると、接合強度は中間層厚さ 0.2mm で極大値を示し、Fig. 3-8 の傾向と一致すると言える。破壊形態に注目して強度の様子を観察すると、中間層厚さが薄くなると、破壊形態が多様化し、その強度レベルも著しく低下することが認められる。IC型破壊形態以外の破壊形態での強度は著しく低下してくる。

接合強度を TP A, B の系統別に比較すると、試験片 TP A は試験片 TP B に比べて、全ての中間層厚さにおいても平均的に強度が高いことがわかる。また、両系統材に対する曲げ試験前のセラミックス側接合界面近傍の染色探傷検査により試験片 TP B に微細な表面貫通き裂が観察された。これは切り出し加工時に発生したものであり、Fig. 3-10 に見られる低強度レベルデータの出現要因になり、ばらつきを増大させていると考えられる。

次に、中間層厚さ 0.2mm の接合試験片が IC 型破壊した場合に限定して、接合面仕上げと強度の関係を Fig. 3-11 に示す。各系統の試験片とも、それぞれ、表面仕上げ粗さが変化しても強度にはほとんど影響のないことがわかる。また、接合面研削方向が引張面に対して横方向 0° の結果と縦方向 90° の結果を比較すると試験片の系統によって多少の増減が認められるが、明確な傾向はない。曲げ強度に関しては、接合面仕上げを変えてのロウ材のアンカー効果による接合強度の増大は認められないことを明らかにできた。したがって、接合試験片での強度モデル解析においてセラミックス接合界面の表面粗さを考慮する必要がないことが実験的に明らかにできた。また、微細な表面貫通き裂を生じている試験片 TP B が試験片 TP A に比べて、全ての表面仕上げにおいても明瞭に低強度レベルにあり、極度に低強度レベルのデータの出現に対しては、接合試験片での強度モデル解析においても加工による微細な表面貫通き裂の存在を考慮する必要がある。



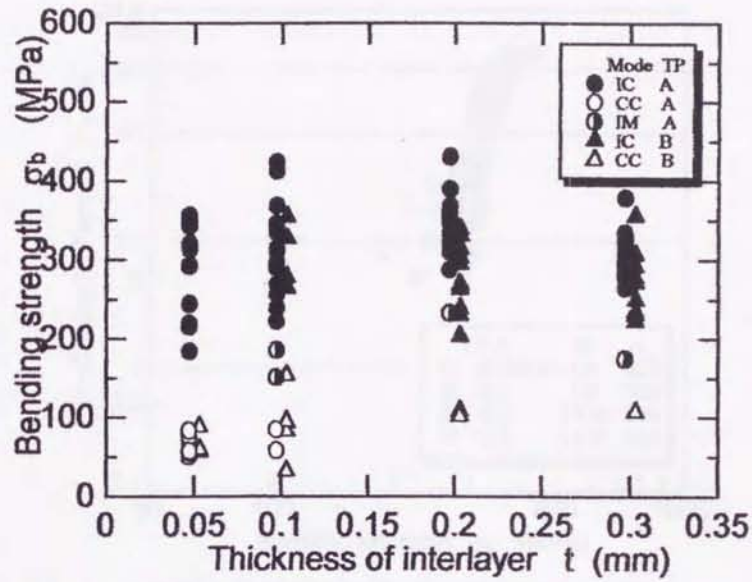


Fig.3-10 Relationship between bending strength and thickness of interlayer

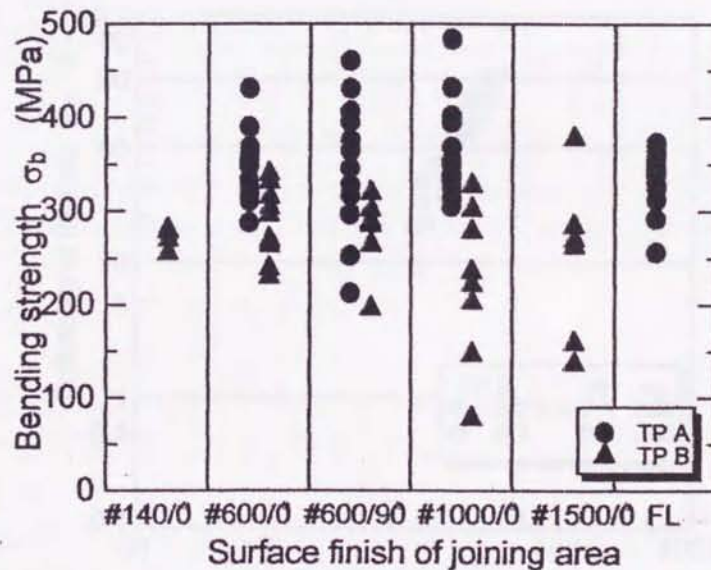
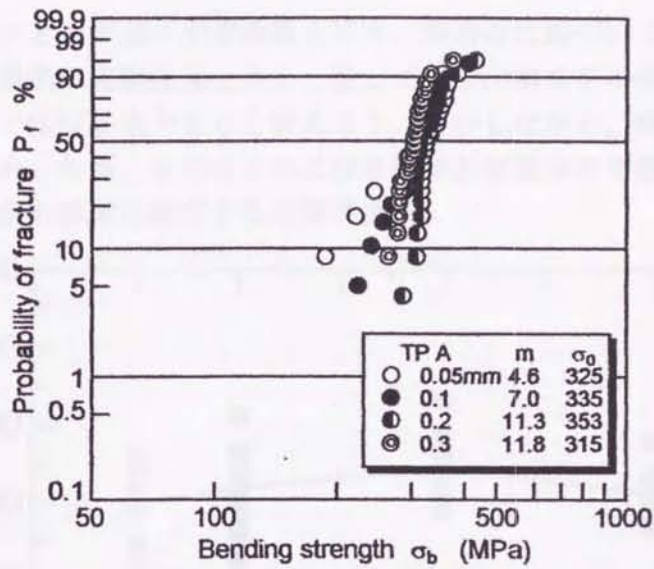


Fig.3-11 Relationship between bending strength and surface finish of joining area

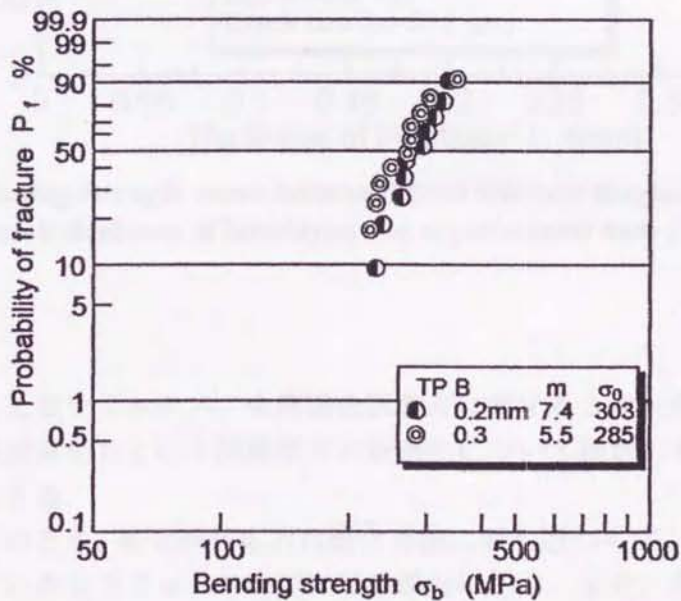
### 3.4.6 接合強度のばらつき特性

Fig. 3-12(a), (b)は、試験片系統別に IC 型破壊形態で同一破壊モードに限定して、試験片の曲げ強度についてワイブルプロットしたものである。試験片 TP A では、尺度母数  $\sigma_0$  は中間層厚さ 0.2mm で極大値を示し、Fig. 3-8 の解析結果と傾向的によく一致する。また、ワイブル係数  $m$  は中間層厚さの増大とともに増加するので、強度のばらつきとしては減少する傾向にある。これは Fig. 3-7 の重畳応力分布の応力場での評価を考慮すると、中間層厚さが増大するほど、表面欠陥の大きさの関与範囲が狭くなることに起因していると推察できる。一方、試験片 TP B が試験片 TP A に比べて強度レベルも低く、ワイブル係数  $m$  が小さいのは、加工による微細な表面貫通き裂の存在が起因している。





(a) Bending strength distributions of TP A



(b) Bending strength distributions of TP B

Fig.3-12 Weibull distribution of bending strength in each thickness of interlayer

### 3.4.7 中間層厚さに対する破壊力学的検討

Fig. 3-7(b) で示した板厚方向の重畳応力分布に注目すると、セラミックス表面近傍での高い応力場が接合部材の破壊を支配するものと考えられる。そこで、中間層厚さの異なる全ての解析モデルに対して、同じき裂長さの表面半円き裂  $2a (=30\mu\text{mm})$  が最大重畳応力の発生した位置に存在すると仮定する。そして、表面のき裂先端応力拡大係数  $K_I$  がセラミックスの破壊靱性値  $K_{Ic} (=6\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2})$  に達したときに、き裂が急速に進展して破壊に至るとする。このときの公称曲げ強度  $\sigma_f$  を各中間層厚さに対して推定した。なお、応力拡大係数  $K_{I(AB)}$  は、Newman-Raju の式<sup>9)</sup>を用いて計算した。Fig. 3-13 には TP A 試験片の IC



型破壊した試験データと推定曲げ強度曲線を示す。本解析に基づいて推定した各中間層厚さに対する曲げ強度挙動は実験結果と良く一致しており、本モデル解析は最適中間層厚さを導出する手法としてほぼ妥当であると言えよう。しかしながら、最大応力と破壊とは必ずしも一致しないため、今後、き裂長さおよびき裂発生位置等を考慮し、強度のばらつき特性を確率論的観点から詳細に検討する必要がある。

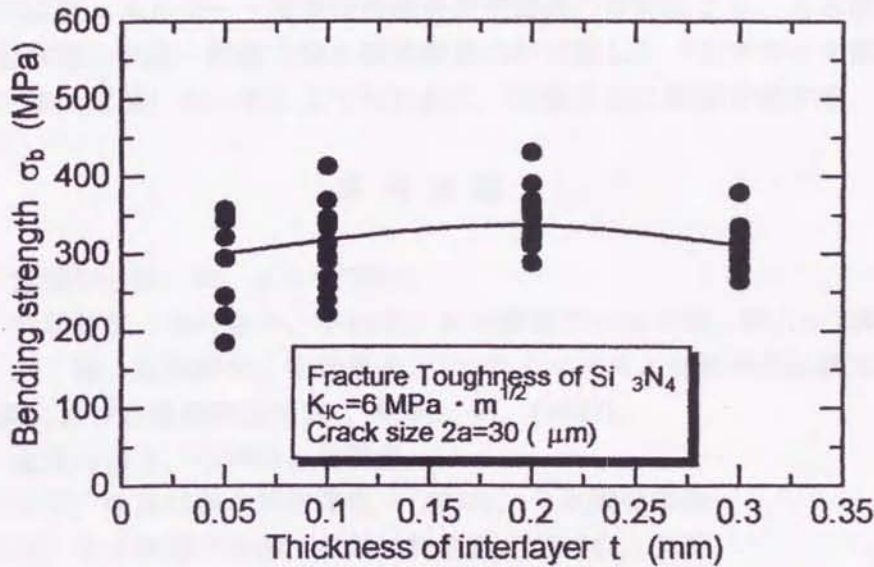


Fig.3-13 Bending strength curve estimated from fracture toughness of ceramic against each thickness of interlayer, and experimental data [TP A (IC)]

## 第5節 結言

中間層厚さを変えたセラミックス/金属接合試験片に対する3次元弾塑性有限要素解析および4点曲げ試験結果をもとに中間層厚さの最適化について検討した。得られた結果は下記のように要約できる。

中間層厚さ0.5mmのとき、最大残留応力は接合界面に最も近づくが、さらに薄くなると、接合界面から離れていきセラミックス内部に移る傾向にある。また、最大残留応力の大きさは中間層厚さが増加するとともに低下し、0.2mm付近で極小となり、再び増加する傾向を示す。

残留応力と試験作用応力との重畳応力は、残留応力分布の反映により、1)と同様な傾向を示す。引張側表面で最大値を示す最大重畳応力分布は板厚方向に急峻に低下したのち、緩やかな低下を示す。

本解析に基づき破壊力学的手法を用いて推定した各中間層厚さに対する曲げ強度挙動は実験結果の曲げ強度挙動と良く一致しており、中間層厚さ0.2mmで極大値を示した。

曲げ強度に関しては、接合面の表面仕上げを変えてのロウ材のアンカー効果による接合強度の増大は認められないのが確認できた。したがって、接合試験片での強度モデル解析には、セラミックス接合界面の表面粗さを考慮する必要がないことを実験的に明らかにできた。

以上の解析・実験結果や知見から、この標準接合曲げ試験片での最適中間層厚さは0.2mm



程度であると推定してよいと言えるが、最大応力と破壊とは必ずしも一致しないため、今後、き裂長さやき裂発生位置等のばらつきを考慮した確率論的観点からも更に詳細な検討を進める必要がある。

本研究の成果は、構成材料や寸法・形状の異なるセラミックス/金属接合材における中間層の材質や厚さの選定の最適化に有用な指針を示唆できる。

なお、本研究は新エネルギー・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」の一環として行われた。関係各位に謝意を表す。

### 参 考 文 献

- (1) 小林英男, 溶接学会誌, 58, p. 8 (1989).
- (2) 小林英男, 荒居善雄, 中村春夫, 中村実, 日本機械学会論文集, 55, p. 750 (1989).
- (3) 岡部永年, 朱 霞, 広部耕太, 中橋昌子, 「セラミックス/金属接合過程での熱応力及び残留応力挙動における基礎的な検討」, 材料, 48, (1999).
- (4) 石橋正著, 金属の強さ, (1966), 養賢堂.
- (5) 日本機械学会著, 金属材料の弾性係数, (1980), 日本機械学会
- (6) 日本金属学会, 日本鉄鋼学会編, 鉄鋼材料便覧, (1974), 丸善.
- (7) 小林英男, 中村春夫, 松永純, 竹下弘之, 日本機械学会材料力学部門講演会講演論文集, No. 98-5, Vol. A, p. 113 (1998).
- (8) 小林英男編, セラミックガスタービンの研究開発・セラミック部材接合技術の評価方法の開発, 8, p. 229 (1997), 日本溶接協会.
- (9) J. C. Newman, Jr and I. S. Raju : Eng. Fract. Mech., 15-1-5, 185 (1981p.).



## 第4章 セラミックス/金属接合試験片に対する残留応力と疲労特性についての検討

### 第1節 緒言

セラミックス/金属接合部材は、すでに自動車エンジン部品、真空バルブ容器、半導体基板などの構造・機能部品に使用されており、その接合はモノリシックセラミックスの弱点とも言われる低靱性および複雑形状の単純化を補う極めて有効な適用技術の一つである。しかしながら、セラミックス/金属接合部材の接合冷却過程において熱膨張係数の差に起因して熱応力が残留応力として部材内に生じる。特に接合部近傍のセラミックス内に発生した引張残留応力は、遅れ破壊や機械的破損のような強度信頼性に大きな影響を及ぼす<sup>(1),(2)</sup>。このような観点からセラミックス/金属接合構造が、より一層、安心して実製品に適用されるには接合残留応力の影響を適確に考慮して強度信頼性を評価できるようにする必要がある。

そこで、本研究ではセラミックス/金属接合試験片に対して繰返し引張疲労試験を行った。また、接合冷却過程で生じる残留応力および繰返し負荷・除荷過程における残留応力の再配分を有限要素法による弾塑性解析し、接合残留応力の影響を定量的に考慮した繰返し引張疲労強度特性について検討した。

### 第2節 実験方法と解析方法

#### 4.2.1 供試材

供試材は無酸素銅(Cu)を中間層とした常圧焼結窒化けい素( $\text{Si}_3\text{N}_4$ )丸棒と炭素鋼(S45C)丸棒との接合体である。供試材の各素材としての室温での材料特性表 Table 4-I に示す。接合方法は Ti-Ag-Cu 系のろう材を用いる活性金属法である。その接合条件を Table 4-II に示す。試験片は Fig.4-1 に示すような直径 6mm の丸棒接合試験片である。試験片に引張荷重を負荷するため、Fig.4-2 に示したアルミニウム合金製のタブ板を接合

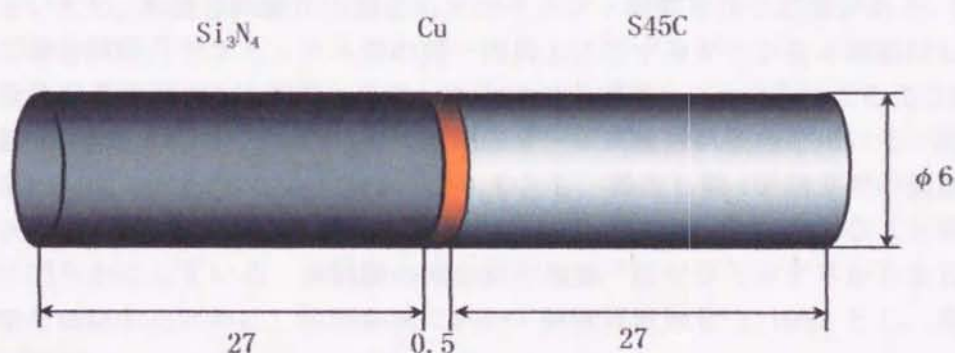


Fig.4-1 Shape and size of ceramic/metal joint

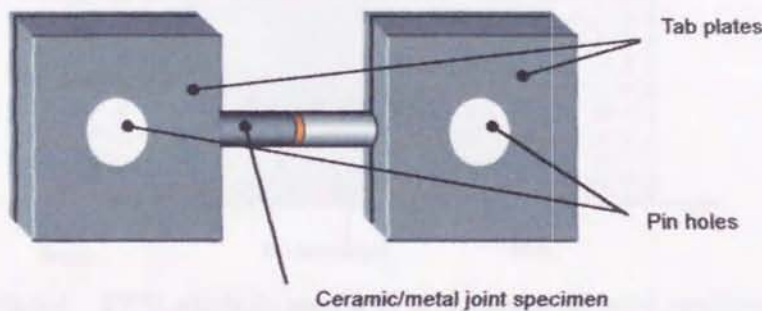


**Table 4-I Mechanical properties and physical characteristics of materials at room temperature**

	Young's modulus E (MPa)	Poisson's ratio $\nu$	Coefficient of expansion $\alpha$ ( $\times 10^{-6}/K$ )	Tensile strength $\sigma_B$ (MPa)
Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	304	0.27	3.03	-
Cu	108	0.33	17.7	70
S45C	206	0.3	12.0	550

**Table 4-II Conditions of brazing**

Brazing filler	Ti-Ag-Cu (50 $\mu$ m in thickness)
Joining temperature	800°C~900°C
Atmosphere	Vacuum, $1 \times 10^{-5}$ torr
Interlayer	Cu (0.5mm thick)



**Fig.4-2 Shape of the fatigue test specimen**

試験片両端部に熱硬化接着剤にて固定させた。なお、試験機治具への固定はピンのため、タブ板にはピン穴を加工した。

#### 4.2.2 実験方法

セラミックスのような脆性材料に対する単軸引張試験では強度特性への曲げ応力成分の影響が大きいため、本接合試験片の場合もアライメント調整を行う必要がある。JIS R 1606 に準拠して接合試験片セラミックス部の同一円周上にひずみゲージを4枚貼付した後、試験片に接合体引張強度の1/2荷重を荷重したときの曲げ率を10%以下になるよう調整した。

疲労試験には最大負荷容量 49kN の電気油圧サーボ式疲労試験機を用いた。試験条件は大気中室温において、正弦波、応力比  $R$  を 0.1 とし、繰返し数  $10^7$  回までの範囲とした。また、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 単体の破壊は繰返し効果が無視できる完全時間依存型であることを著者ら<sup>(3)</sup> は実験的に明らかにしている。本試験の接合材の破壊<sup>(4)</sup> はセラミックスから生じるので、時間依存型を確認するために、短寿命域において試験周波数を 1, 10Hz とし、長寿命域では 20Hz を用いた。



### 4.2.3 解析方法

接合冷却過程での高温域(850°C~550°C)では、ろう材の塑性流動抵抗が低いので、セラミックスと金属は自由に熱変形して残留応力が生じない。しかし、冷却が進むと、ろう材も変形抵抗が上昇し始め、セラミックスと金属の熱変形を拘束し残留応力が発生する。そこで、本解析ではろう材を含めた Cu 中間層の変形強度が、セラミックスと金属の熱変形拘束に明瞭に影響し始める温度(550°C)から常温(20°C)までの冷却過程に対して、接合残留応力の解析を行なった<sup>(5)</sup>。すなわち、降伏応力、熱膨張係数、ヤング率およびひずみ硬化係数等の温度依存性<sup>(6)~(8)</sup>を考慮するため 550°C→20°Cまでを数段階に分け、各段階毎に前段階の残留応力とその段階での熱応力との重畳応力に対して弾塑性解析を順次行っ

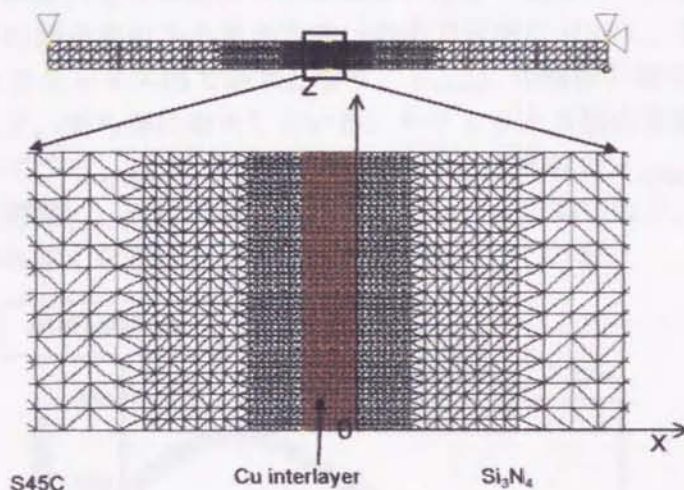


Fig.4-3 FEM analysis model of ceramic/metal joint specimen

た。また、単軸引張および繰返し疲労試験での負荷・除荷過程における接合残留応力の再配分も含めた応力挙動についても解析した。この解析手法<sup>(5)</sup>としては、各試験負荷による引張応力分布と接合残留応力分布を重ね合わせるにより再弾塑性解析を行った。

解析には汎用構造解析プログラム(NASTRAN)と Visual Basic で独自に開発した弾塑性変換ソフトと組合せにより、簡便な 3次元弾塑性解析手法を行った。解析モデルの形状・寸法は Fig. 4-1 に示す接合試験片に対して軸対称モデルとした。要素分割を Fig. 4-3 に示す。ここで、解析された応力成分は節点に隣接するガウス積分点の平均値をその節点に割り付けている。しかし、特異点(接合界面と自由縁の交点、すなわち  $x=0, y=0$ )の極近傍で特異応力場の特性を正しく表すことができない。そのため軸方向(x方向)の応力は特異点の影響を受けない十分に離れた位置に発生する最大応力で議論する必要がある。そこで、応力の集中する接合界面近傍の最小要素寸法を  $5\mu\text{m}$  に細分割した。要素数は 4236、節点数は 8800 である。解析は 6 節点三角形アイソパラメトリックス要素を用いた。なお、銀ろう層は非常に薄く、塑性拘束が大きいのため Cu 中間層に含めて解析を行った。

### 第3節 解析結果

セラミックスの破壊は部材内に無数に存在する潜在欠陥の一つが起点となる。接合冷却



過程において生じる残留応力や試験による引張応力が作用した場合、潜在欠陥には多軸応力が作用するので、モードIとモードIIの混合モード破壊を考慮する必要がある。そこで多軸応力に対しては引張軸方向の垂直断面に作用する垂直応力 $\sigma_x$ とせん断応力 $\tau_{xy}$ を

$$\sigma_{eq} = \sqrt{\sigma_x^2 + \frac{4}{(2-\nu)^2} \tau_{xy}^2} \quad (4-1)$$

のような等価垂直応力 $\sigma_{eq}$ に変換して強度評価に用いることにする。

Fig. 4-4は引張試験による応力と接合残留応力が重畳したときの等価垂直応力 $\sigma_{eq(Sp)}$ に着目し、セラミックス表面での界面から長手方向への応力分布を示す。

Fig. 4-5は $\sigma_{eq(Sp)}$ が最大となる位置での界面に平行な半径方向への応力分布図を示す。セラミックス表面での接合界面から長手方向への応力分布において、等価垂直応力 $\sigma_{eq(Sp)}$ は界面の極近傍のセラミックス内で最大となり、 $\sigma_{eq(Sp)}$ の値は、疲労試験における負荷応力レベルが高いほど、明らかに増大している。セラミックス接合界面近傍での半径方向への応力分布において、 $\sigma_{eq(Sp)}$ は最表面で最大の等価垂直応力 $\sigma_{eq(Sp)max}$ となり、その値は長手方向の場合と同様に、疲労試験における応力レベルが高いほど、明らかに増大している。また、表面から深くなるほど、 $\sigma_{eq(Sp)}$ の値は減少している。

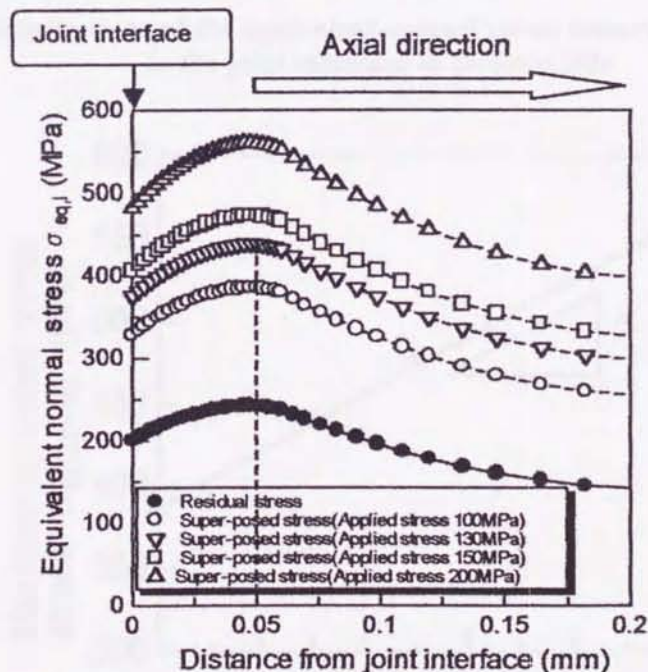


Fig.4-4 Distributions of the equivalent normal stress toward axial direction on the surface of ceramic side

引張試験による応力分布と接合残留応力分布の重畳応力分布における最大応力を等価垂直応力 $\sigma_{eq(Sp)}$ で表すと、その最大値 $\sigma_{eq(Sp)max}$ と公称引張応力 $\sigma_n$ との間には Fig. 4-6 に示すように

$$\sigma_{eq(Sp)max} = A\sigma_n + \sigma_{eq(Res)max} \quad (4-2)$$

のような直線関係で表される。ここで、 $\sigma_{eq(Res)max}$ は接合残留応力を等価垂直応力で表したときの最大値であり、等価垂直応力 $\sigma_{eq(Sp)}$ の増分係数 $A$ は1.55であった。



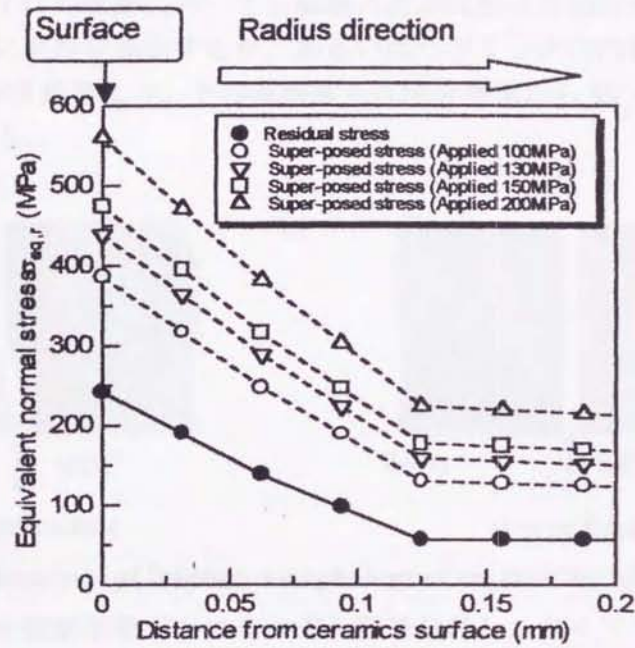


Fig.4-5 Distributions of the equivalent normal stress toward radius direction in the joint interface of ceramic side

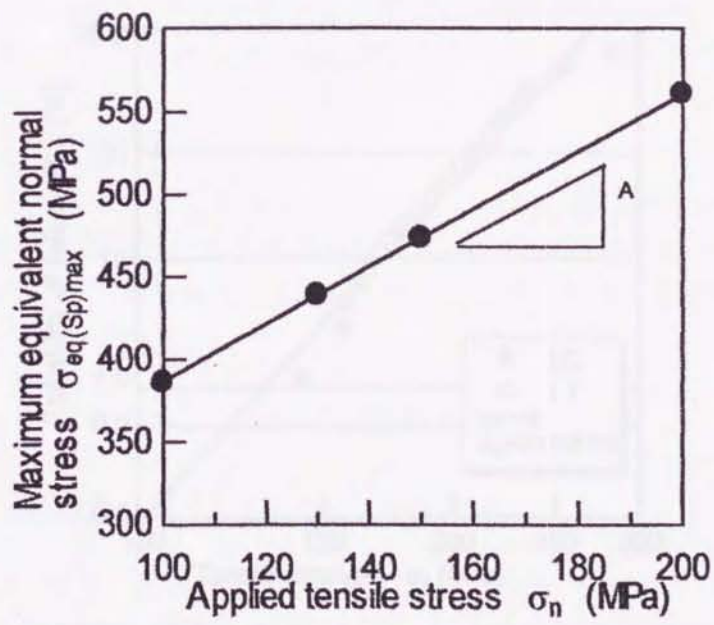


Fig.4-6 Relationship between the applied tensile stress and the maximum equivalent normal stress

第4節 試験結果

4.4.1 引張強度およびばらつき特性

Fig. 4-7 は 2 種に分類される接合体の破壊形態概略図を示す。IC 型破壊<sup>(9), (10)</sup>はセラミ



ックスの接合界面近傍を起点として破壊し、II型破壊<sup>(9),(10)</sup>はセラミックスとろう材の接合界面で破壊する。いずれの破壊においても破壊の起点は接合界面近傍のセラミックスを起点とし、界面に平行にき裂が進展するか、あるいはセラミックス内部へき裂が回折していくかの違いである。SEM観察より、その破壊起点は接合界面から40~50 $\mu$ m程度であり、解析結果とほぼ一致する。

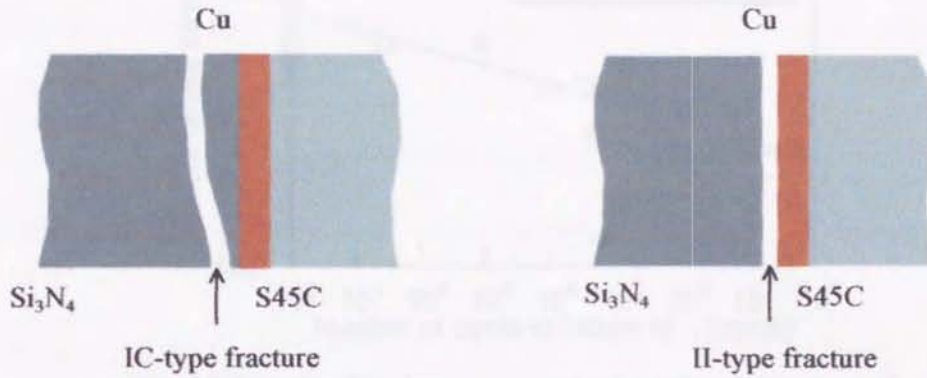


Fig.4-7 Illustrations of fracture morphology of ceramic/metal joint

Fig. 4-8 は引張強度を破壊形態ごとにそれぞれ記号分けし、ワイブル確率紙上にプロットしたものである。II型、IC型の両引張破壊強度 $\sigma_f$ とも同一ばらつき内強度として取り扱うことができる。また、 $\sigma_f$ は2母数ワイブル分布で非常によく近似できる。ここで、尺度母数 $\sigma_0$ は219MPa、ワイブル係数 $m$ は9であった。

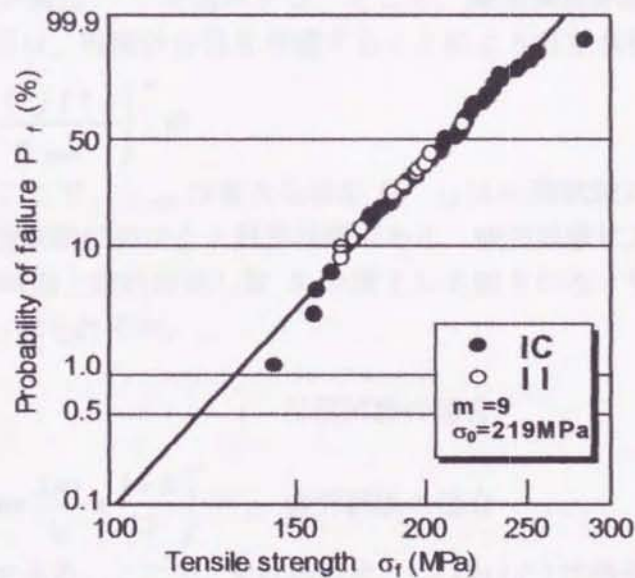


Fig.4-8 Weibull distribution of tensile strength of the joint

#### 4.4.2 疲労強度特性

Fig. 4-9 は公称引張応力 $\sigma_n$ と破断繰返し数 $N_f$ の関係を示す。疲労強度特性においても、引張強度特性と同様に破壊形態による相違は認められなかった。また、繰返し速度の影響も明確には表れていなかった。



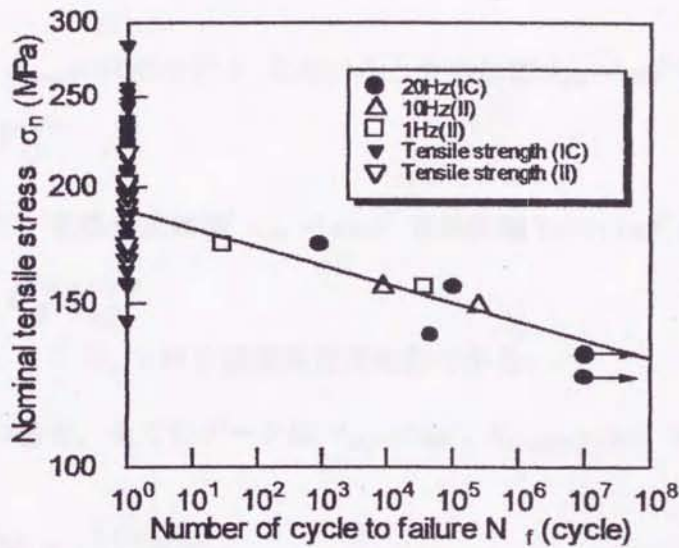


Fig.4-9 Relationship between nominal tensile stress,  $\sigma_n$  and number of cycles to failure,  $N_f$  in cyclic tensile fatigue test

#### 4.4.3 接合強度の統一的评价

II 型, IC 型の両破壊強度とも時間依存型破壊を呈するセラミックスを起点とした破壊であるので, 統一的评价法<sup>(3), (11)</sup>を適用する. そこで, 破壊強度試験データに対しては, 試験中の応力負荷時間は, 時間依存性を考慮することにより有効負荷時間  $t_{eff}$  として

$$t_{eff} = \int_0^{t_f} \left\{ \frac{\sigma_f(t)}{\sigma_{max}} \right\}^n dt \quad (4-3)$$

のように表される. ここで,  $\sigma_{max}$  は最大公称応力,  $t_f$  は引張試験における破壊までの時間であり, 繰返し疲労試験における 1 周期時間である. 疲労試験における累積有効負荷時間  $N_f t_{eff}$  は有効負荷時間と破断繰返し数  $N_f$  の積として表される. 引張試験および疲労試験の有効負荷時間  $t_{eff}$  はそれぞれ,

$$t_{eff} = \frac{t_f}{n+1} \quad : \text{引張試験の場合} \quad (4-4)$$

$$t_{eff} = \int_0^{t_f} \left( \frac{1-R}{2} \sin \frac{2\pi t}{t_0} + \frac{1+R}{2} \right)^n dt \quad : \text{疲労試験の場合} \quad (4-5)$$

のように表すことができる. ここで,  $R$  は応力比,  $t_0 (=1/f)$  は繰返し周波数  $f$  (Hz) の逆数である.

セラミックス内部に生ずる応力分布を考慮した有効体積  $V_{eff}$  は

$$V_{eff} = \int_v \left\{ \frac{\sigma_f}{\sigma_{max}} \right\}^m dv \quad (4-6)$$

として与えられる.

本研究において, 有効体積は有限要素解析された応力分布を考慮して式(6)を用いて算出した.



引張試験の場合、 $\sigma_{max}$ の代わりに $\sigma_f$ を用いると有効体積 $V_{eff}=1\text{mm}^3$ での基準化強度 $\bar{\sigma}_f$ は、

$$\bar{\sigma}_f = \sigma_f V_{eff}^{1/m} \quad (4-7)$$

のように表せ、また、有効負荷時間 $t_{eff}=1\text{sec}$ 、有効体積 $V_{eff}=1\text{mm}^3$ での基準化強度 $\tilde{\sigma}_f$ は

$$\tilde{\sigma}_f = \sigma_f t_{eff}^{1/n} V_{eff}^{1/m} \quad (4-8)$$

のように表される。ここで、 $n$ はき裂進展速度指数である。

繰返し疲労試験の場合、全てのデータは $V_{eff}=1\text{mm}^3$ 、 $N_f t_{eff}=1\text{sec}$ での基準化強度 $\tilde{\sigma}_f$ として、

$$\tilde{\sigma}_f = \sigma_f (N_f t_{eff})^{1/n} V_{eff}^{1/m} \quad (4-9)$$

で変換される。

基準化強度に対する2母数ワイブル分布が

$$P_f = 1 - \exp \left\{ - \left( \frac{\tilde{\sigma}_f}{\hat{\sigma}_0} \right)^{\hat{m}} \right\} \quad (4-10)$$

のように表されることを仮定すると、基準化強度の統計解析は、

$$\hat{\sigma}_0 = \left\{ \frac{1}{k} \sum_{i=1}^k \sigma_{f_i}^{\hat{m}_0} \right\}^{1/\hat{m}_0}$$

$$\hat{m} = \frac{k}{\sum \left\{ \ln \left( \frac{\tilde{\sigma}_{f_i}}{\hat{\sigma}_0} \right) \right\} \left\{ \left( \frac{\tilde{\sigma}_{f_i}}{\hat{\sigma}_0} \right)^{\hat{m}_0} - 1 \right\}} \quad (4-11)$$

のように最尤法によりワイブル係数 $\hat{m}$ および尺度母数 $\hat{\sigma}_0$ を推定できる。ここで、 $k$ は試験データ数、 $\tilde{\sigma}_{f_i}$ は試験データ数の $i$ 番目の最弱強度データである。

Fig. 4-10は引張試験における最大等価垂直応力 $\sigma_{eq(Sp)max}$ に対する基準化強度 $\tilde{\sigma}_{eq(Sp)max}$

$$\tilde{\sigma}_{eq(Sp)max} = \sigma_{eq(Sp)max} t_{eff}^{1/n} V_{eff}^{1/m} \quad (4-12)$$

をワイブル分布として示した。ここで公称引張応力 $\sigma_n$ に相当する $\sigma_{eq(Sp)max}$ は式(4-2)を用

いて求めた。 $\tilde{\sigma}_{eq(Sp)max}$ は、最尤法により2母数ワイブル分布で近似すると尺度母数 $\hat{\sigma}_0$ は

470MPaであり、ワイブル係数 $\hat{m}$ は11.7である。また、き裂進展速度指数 $n$ は繰返し疲労強度試験の結果より64となった。



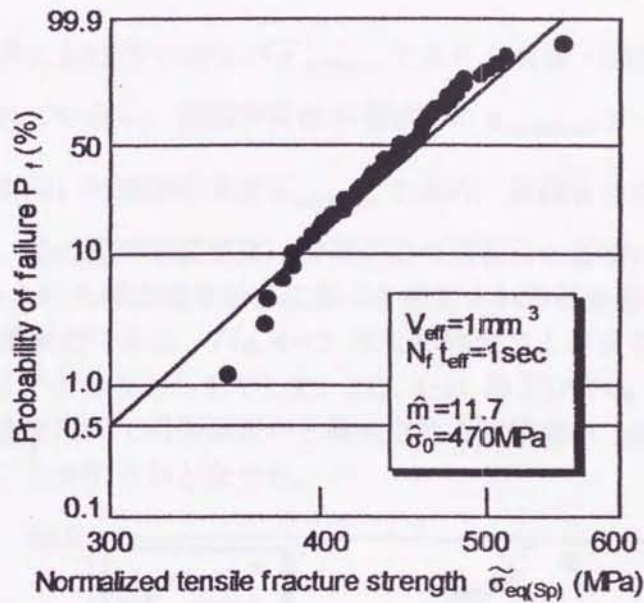


Fig.4-10 Weibull distribution of tensile strength normalized at the effective volume  $V_{eff}=1\text{mm}^3$  and cumulative effect hold time  $N_f t_{eff}=1\text{sec}$ .

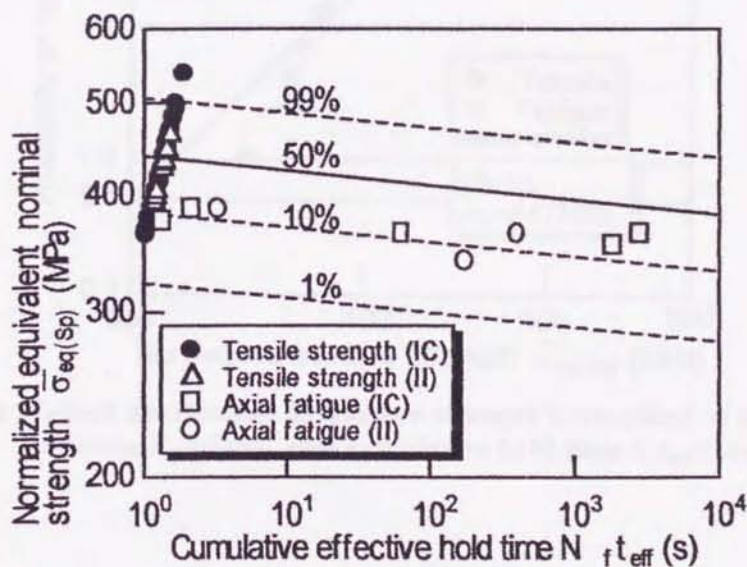


Fig.4-11 Relationship between cumulative effective hold time and the equivalent nominal strength normalized toward  $\sigma_{eq(Sp)max}$  in cyclic fatigue tests

繰返し疲労試験の場合の最大重畳等価垂直応力  $\sigma_{eq(Sp)max}$  に対する基準化強度  $\bar{\sigma}_{eq(Sp)max}$  は

$$\bar{\sigma}_{eq(Sp)max} = \sigma_{eq(Sp)max} V_{eff}^{1/m} \quad (4-13)$$

として表され、Fig. 4-11 はその  $\bar{\sigma}_{eq(Sp)max}$  と累積有効負荷時間  $N_f t_{eff}$  との関係で示した線図である。疲労試験での公称引張応力  $\sigma_n$  に相当する  $\sigma_{eq(Sp)max}$  は式(2)を用いて求めた。

したがって、疲労試験における1回目の $\bar{\sigma}_{eq(Sp)max}$ であり、負荷・除荷による残留応力の再配分の影響は考慮されていない。同図中には引張試験の $\sigma_{eq(Sp)max}$ データに対しても疲労試験と同様に式(4-13)を用いて基準化強度 $\bar{\sigma}_{eq(Sp)max}$ を求め、累積有効負荷時間 $N_f t_{eff}$ に対応させて示しているが、この即時破壊強度は残留応力の再配分の影響はない。さらに図中の直線はFig. 4-10に示された破壊確率分布に基づき推定される破壊確率1%, 10%, 50%, 99%の場合の遅れ破壊強度線図である。Fig. 4-12は引張強度および疲労強度に相当する基準化強度 $\bar{\sigma}_{eq(Sp)max}$ をワイブル分布として示した。Fig. 4-11およびFig. 4-12より、疲労強度データは統一的評価法を用いて引張強度から推定される破壊確率50%の静疲労強度よりも低強度レベルにあることが明らかとなった。

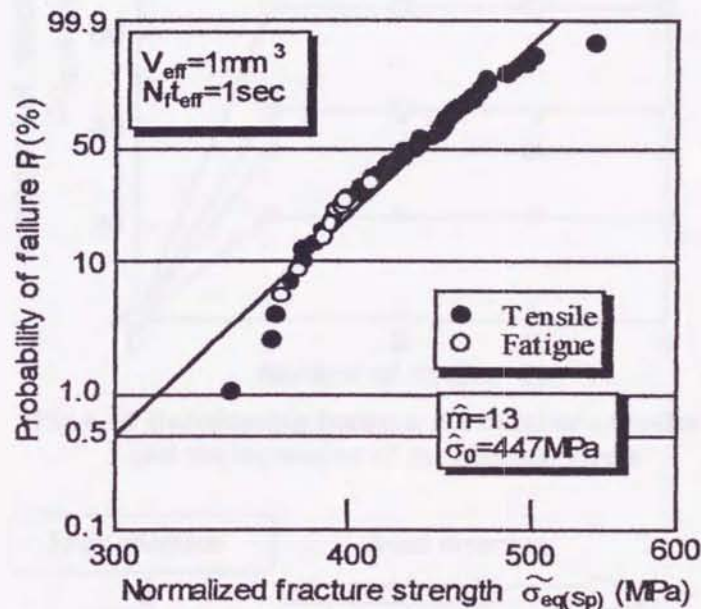


Fig.4-12 Weibull distribution of fracture strength normalized at the effective volume  $V_{eff}=1mm^3$  and cumulative hold time  $N_f t_{eff}=1sec$

## 第5節 考察

応力再配分に伴う等価残留応力の増大を考慮せずに $\bar{\sigma}_{eq(Sp)max}$ 値だけを考慮した場合、繰返し引張疲労強度は、引張強度から推定される静疲労強度と一致しないことがわかった。そこで、疲労過程での負荷・除荷サイクルによる残留応力挙動について3次元弾塑性解析を行い、接合部材の繰返し疲労強度特性に及ぼす残留応力の影響について以下で検討する。

### 4.5.1 繰返し疲労過程における残留応力挙動

Fig. 4-13は応力繰返し数 $N$ と等価垂直残留応力の増分 $\Delta\sigma_{eq(Res, Cy)}$ の関係を示す。1回目



の応力サイクルにより  $\Delta \sigma_{eq(Res, Cy)}$  は増大するが、2回目以降の応力サイクルでは  $\Delta \sigma_{eq(Res, Cy)}$  の値は一定になる傾向を示した。これは小林ら<sup>12)</sup>が解析した4点曲げ疲労条件の残留応力挙動とは異なった。この相違は負荷条件によるものであり、引張疲労条件では1回目の応力サイクルにより、中間層である銅の塑性変形が飽和することに起因すると考えられる。

Fig. 4-14 は繰返し負荷後のセラミックス表面軸方向に対する等価垂直残留応力分布  $\sigma_{eq(Res, Cy)}$  を示す。  $\sigma_{eq(Res, Cy)}$  は界面の極近傍で最大となり、1回の負荷・除荷サイクルのみ

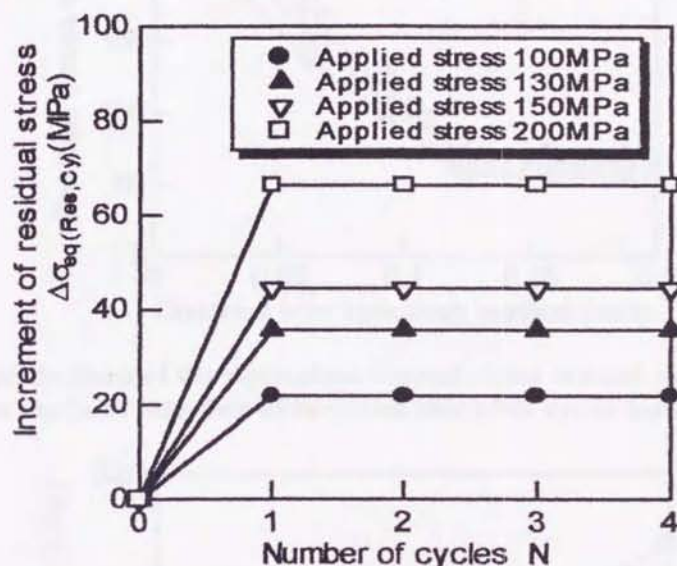


Fig. 4-13 Relationship between the number of cycles and the increment of the residual stress

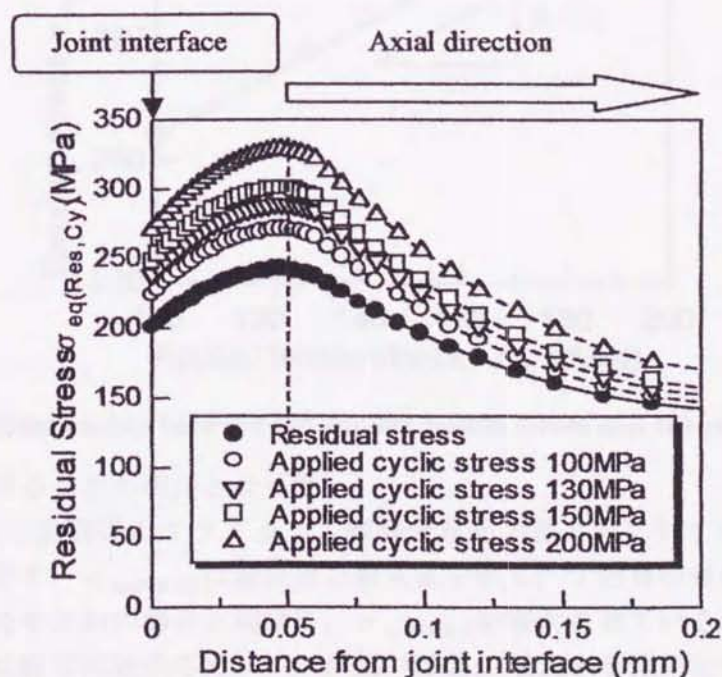


Fig. 4-14 Distributions of the equivalent normal stress toward axial direction on the surface of ceramics after cyclic loading

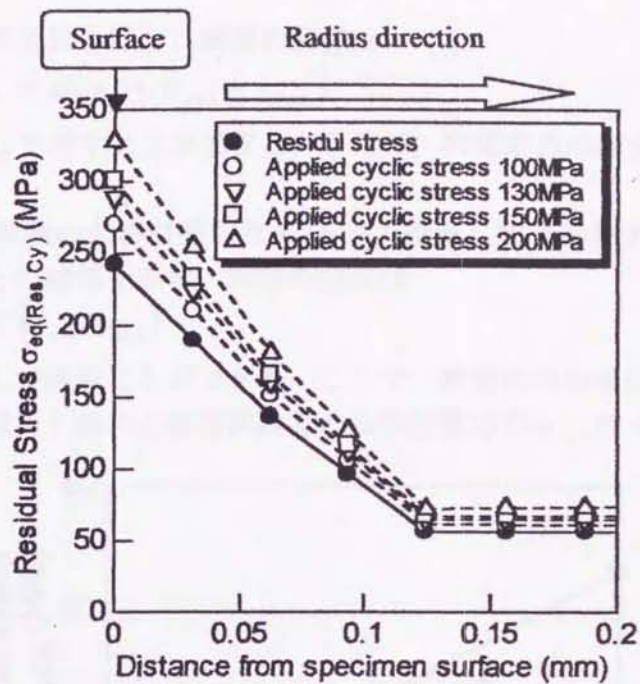


Fig.4-15 Distributions of the equivalent normal stress toward radius direction in the joint interface of ceramics side after cyclic loading

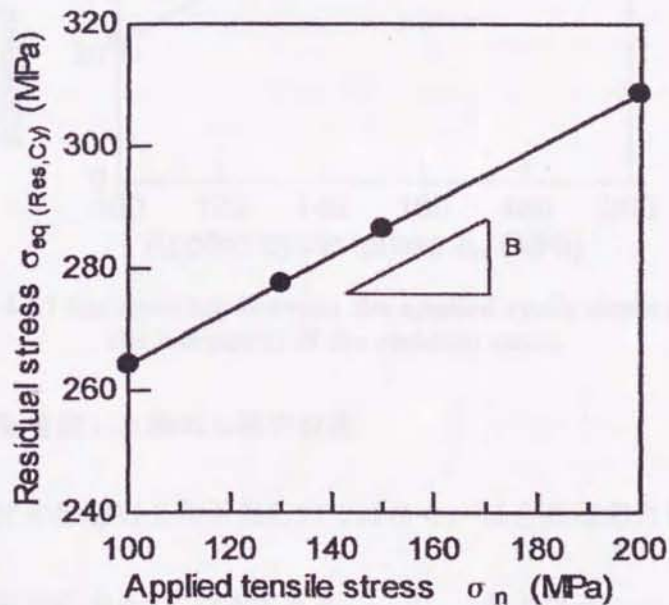


Fig.4-16 Relationship between the applied tensile stress and the residual stress

$\sigma_{eq(Res, Cy)}$ を増大させることが明かとなった。

Fig. 4-15 は繰返し負荷後のセラミックス側接合界面半径方向に対する等価垂直残留応力分布  $\sigma_{eq(Res, Cy)}$  を示す。  $\sigma_{eq(Res, Cy)}$  は最表面で最大値を示し、1回目の負荷・除荷サイクルはセラミックス側長手方向の場合と同様に、  $\sigma_{eq(Res, Cy)}$  を増大させている。また、両方向ともその  $\sigma_{eq(Res, Cy)}$  値は疲労試験の応力レベルが高いほど、増大する傾向を示すことも明らかになった。

Fig. 4-16 は疲労試験の公称引張応力  $\sigma_n$  と応力繰返し数  $N$  の増大に伴う最大等価垂直残



留応力  $\sigma_{eq(Res,Cy)max}$  との関係を示す。両者の関係は

$$\sigma_{eq(Res,Cy)max} = B(\sigma_n - \sigma_{eq(Sp)max}) \quad (4-14)$$

のように直線関係として表すことができる。ここで、残留応力の増分係数  $B$  は 0.39 である。

Fig. 4-17 は、疲労試験の公称引張応力  $\sigma_n$  と応力繰返し数  $N$  の増大に伴う等価垂直残留応力増分  $\Delta\sigma_{eq(Res,Cy)}$  との関係を示す。両者の関係は

$$\Delta\sigma_{eq(Res,Cy)} = C(\sigma_n - \sigma_{n,s}) \quad (4-15)$$

のように直線関係として表すことができる。ここで、残留応力の増分係数  $C$  は 0.44 であり、接合残留応力が増大し始める疲労試験での公称引張応力  $\sigma_{n,s}$  は 44.6MPa である。

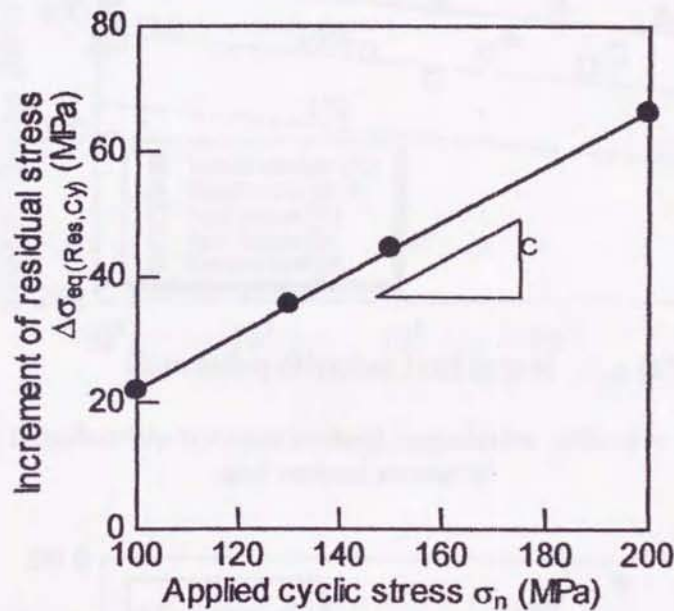


Fig.4-17 Relationship between the applied cyclic stress and the increment of the residual stress

#### 4.5.2 残留応力挙動を考慮した繰返し疲労強度

疲労試験での応力比の影響は公称引張応力ではなく、接合残留応力も含めて検討する必要がある。

疲労試験での公称引張応力  $\sigma_n$  に対応する  $\sigma_{eq(Res,Cy)max}$  および  $\sigma_{eq(Sp)max}$  値を、それぞれ、式(4-14)および式(4-2)から求め、残留応力を考慮した応力比  $R_{(Res)}$  を算出した。この  $R_{(Res)}$  値を用いて、式(4-5)から、残留応力を考慮した累積有効負荷時間  $N_f t_{eff(Res)}$  を求めた。つまり、この  $N_f t_{eff(Res)}$  は疲労試験での負荷・除荷における破断寿命  $N_f$  に対する残留応力増分  $\Delta\sigma_{eq(Res,Cy)}$  を考慮している。一方、疲労試験での有効体積  $V_{eff,Cy}$  は

$$V_{eff,Cy} = \int \left( \frac{\Delta\sigma_{eq(Res,Cy)}}{\sigma_{eq(Sp)max}} \right)^m dV \quad (4-16)$$

のように表わされる。

また、残留応力増分  $\Delta\sigma_{eq(Res,Cy)}$  の  $V_{eff,Cy}=1\text{mm}^3$  での基準化強度  $\bar{\sigma}_{eq(Res,Cy)}$  は

$$\bar{\sigma}_{eq(Res,Cy)} = \Delta\sigma_{eq(Res,Cy)} V_{eff,Cy}^{1/m} \quad (4-17)$$

のように与えられる。

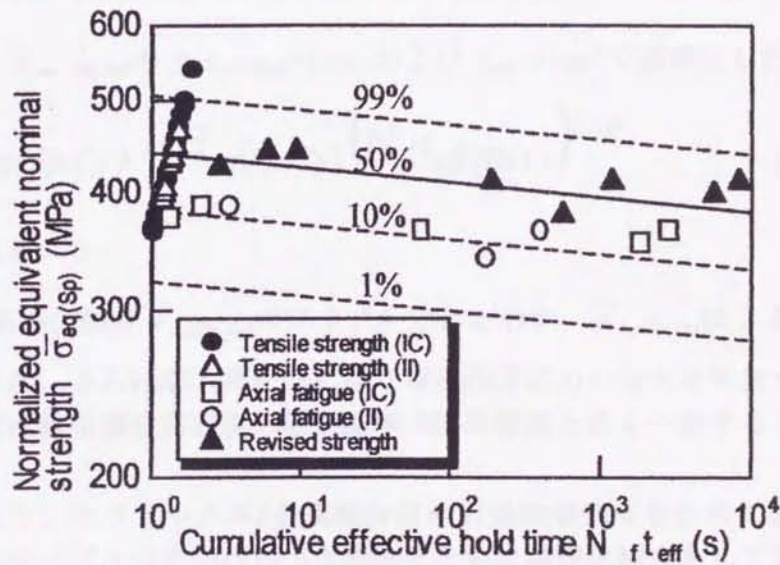


Fig.4-18 Relationship between revised cumulative effective hold time and revised strength

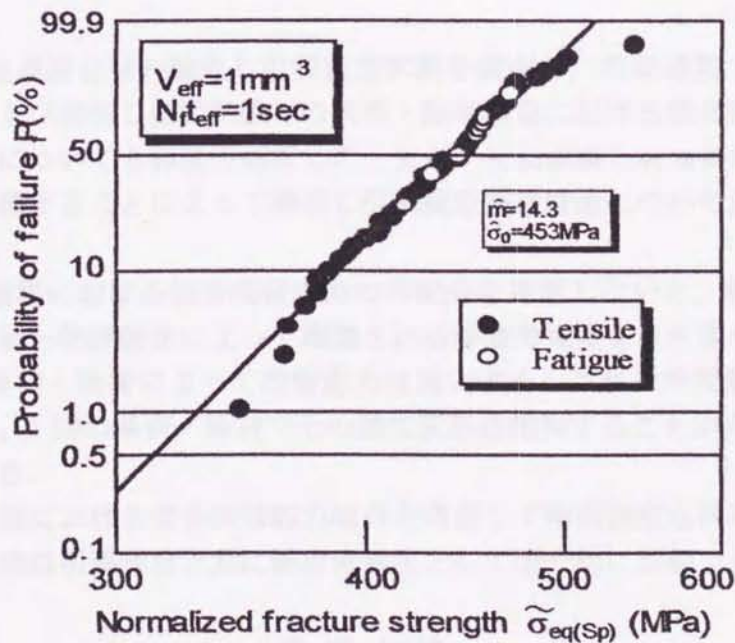


Fig.4-19 Weibull distribution of normalized fracture strength at the effective volume  $V_{eff}=1\text{mm}^3$  and cumulative hold time  $N_{f,eff}=1\text{s}$  considering the increment of the residual stress.



Fig. 4-18 は修正累積有効負荷時間  $N_f t_{eff(Res)}$  と修正強度  $\bar{\sigma}_{eq(Sp, Cy)}$  ( $=\bar{\sigma}_{eq(Sp)max} + \bar{\sigma}_{eq(Res, Cy)}$ ) との関係を示す。繰返し疲労強度に対して残留応力の再配分を考慮しない場合、図中の○および□印のように破壊確率 50%の静疲労強度よりも低強度レベルとなりうまく評価できなかった。しかしながら、残留応力の再配分を考慮した全疲労強度データは▲印のように式(4-2)および式(4-14)を用いることにより基準化強度として評価できた。

したがって、 $\bar{\sigma}_{eq(Sp, Cy)}$  の  $N_f t_{eff(Res)}=1\text{sec}$  および  $V_{eff}=1\text{mm}^3$  で基準化した強度  $\tilde{\sigma}_{eq(Sp, Cy)}$  は

$$\tilde{\sigma}_{eq(Sp, Cy)} = \bar{\sigma}_{eq(Sp, Cy)} \left( N_f t_{eff(Res)} \right)^{1/n} \quad (4-18)$$

のように表される。

Fig. 4-19 は基準化強度  $\tilde{\sigma}_{eq(Sp, Cy)}$  のワイブル分布を示す。 $\tilde{\sigma}_{eq(Sp, Cy)}$  は 2 母数ワイブル分布で良く近似できた。さらに応力再配分に伴う等価残留応力の増大を考慮することで、繰返し引張疲労強度は静引張疲労強度の破壊確率 50%の線図と良く一致することが明らかとなった。

以上の結果より、セラミックス/金属接合材の引張破壊強度を含めた全ての繰返し引張疲労破壊強度はワイブル分布のばらつき特性とともに基準化強度として評価することができる。

## 第6節 結 言

セラミックス/金属接合材の繰返し引張疲労試験を実施し、冷却過程で生じる接合残留応力、単軸引張および繰返し疲労試験での負荷・除荷過程における接合残留応力の再配分も含めた応力挙動についても弾塑性解析した。また、有効体積と有効負荷時間を考慮した等価垂直応力で評価することによって繰返し引張疲労強度特性について以下のことが明らかとなった。

- (1) 負荷・除荷過程における接合残留応力の再配分を考慮しないと、繰返し引張疲労強度は引張強度から統一的評価法によって推測される静疲労強度よりも過小評価になる。
- (2) 1 回の引張負荷・除荷によって残留応力は増大する。これは中間層である銅の塑性変形に起因するが、1 回の負荷・除荷でその塑性変形は飽和することから 2 回目以降、残留応力は一定となる。
- (3) 負荷・除荷過程における接合残留応力増分を考慮して時間強度も同時に修正すると、繰返し引張疲労強度は引張強度と共に静疲労強度として統一的に評価できる。

## 参 考 文 献

- (1) 小林英男, 溶接学会誌, 58-8, 8 (1989).
- (2) 小林英男, 荒居善雄, 中村春夫, 中村実, 日本機械学会論文集, 55-512, 750 (1989).

- (3) N.Okabe and H.Hirata, "Cyclic Fatigue in Ceramics", 254 (1995), Elsevier.
- (4) 高橋 学, 岡部永年, 小林英男, 材料, 47-12, 1221 (1998).
- (5) 岡部永年, 朱 霞, 広部耕太, 中橋昌子, 「セラミックス/金属接合過程での熱応力及び残留応力挙動における基礎的な検討」, 材料, 投稿中.
- (6) 石橋正著, 金属の強さ, (1966), 養賢堂.
- (7) 日本機械学会著, 金属材料の弾性係数, (1980), 日本機械学会
- (8) 日本金属学会, 日本鉄鋼学会編, 鉄鋼材料便覧, (1974), 丸善.
- (9) 小林英男, 中村春夫, 松永純, 竹下弘之, 日本機械学会材料力学部門講演会講演論文集, No.98-5, Vol.A, 113 (1998).
- (10) 小林英男編, セラミックガスタービンの研究開発・セラミック部材接合技術の評価方法の開発, 8, 229 (1997), 日本溶接協会.
- (11) 岡部永年, 平田英之, 材料, 40-457, 1341 (1991).
- (12) 許 張旭, 小林 英男, 日本機械学会論文集, 62-604 (1996)



## 第5章 LPRM 中性子検出器における接合強度についての検討

### 第1節 緒言

セラミックス/金属接合体の実例として取り上げている中性子検出器は、BWR (Boiling Water Reactor) において炉内出力監視の目的で局部出力領域モニター (LPRM: Local Power Range Monitor) として設置されている。この中性子検出器の気密シール部品がセラミックス/金属接合構造となっており、気密保持と絶縁保持の2つの機能を有している。しかし、この気密シール部品には製造プロセスでの冷却過程において、セラミックスと金属材料との熱膨張係数のミスマッチに起因した熱応力による破壊や残留応力が発生する。一方、セラミックスは中性子の照射を受けると、スウェリング (中性子照射による体積膨張) を起こす。長期信頼性の高い中性子検出器をめざした気密シール部品の開発には、この接合残留応力とセラミックスのスウェリングにともなう内部応力の増大および強度劣化を考慮することが極めて重要であり、この残留応力に対するセラミックスの強度信頼性を破壊力学的観点から明らかにする必要がある。

そこで、本研究では、紡錘型接合構造における残留応力のスウェリングにともなう挙動について弾塑性 FEM 解析に基づくシミュレーション解析を行ない、供用中での破壊寿命予測を行った。また、紡錘型接合構造に対する引張試験での強度検証についてもシミュレーション解析により検討した。

### 第2節 BWR 用中性子検出器および気密シール部品の構造と機能

局部出力領域モニター (LPRM: Local Power Range Monitor) 中性子検出器は BWR 炉内の燃料領域に設置され、局部的な出力や平均的な出力を監視するために用いられる。この検出器は炉心の軸方向に4ヶ所設置され、これらを一体化した検出器集合体は、炉心燃料の対象配置設計を考慮し、原則として16体の燃料集合体に1体の割合で炉心に配置される。110万 kWe クラスの BWR には、43体の LPRM 中性子検出器が装荷されている。

Fig. 5-1 に LPRM 中性子検出器の構造を示す。Fig. 5-1 に示すように、LPRM 中性子検出器はセンサ部とケーブル部から構成される。センサ部は陽極となる内部電極、中性子有感物質である  $U^{235}$  を塗布した陰極となる外部電極および電離ガスとなる1気圧の Ar ガスから構成される。このセンサ部は、炉内で使用中は  $\gamma$  線加熱で周囲の炉水温度より高温となる。そのため、ケーブル部側へセンサ部側の Ar ガスが移動してセンサ感度が低下し安全機能が損なわれることのない様に、ケーブル部にはセンサ部よりも若干高い圧力で Ar ガスを封入した後、気密シールによりセンサ部と隔離されている。

プラント運転中、センサ部に熱中性子が当たると陰極の  $U^{235}$  が核分裂を起こし、その際生じる核分裂生成物がセンサ部に封入されている Ar ガスを電離させる。一方、陽極と陰極には直流電圧が印可されているため電離ガスの移動に伴い  $10 \mu A \sim 100 \mu A$  程度の電流が流



れ、この電気信号を測定することによりプラントの出力状態(中性子束密度)を監視することができる。このため、気密シールには原子炉運転中でも  $10^9 \Omega$  以上の電気的な絶縁性確保が要求される。このような高温の照射場で耐久性を有し、かつ電気的な絶縁性のある材料としてセラミックスが選定されている。現在、気密シール用セラミックスとしてアルミナ ( $Al_2O_3$ ) が使用されている。また、セラミックスはオーステナイト系ステンレス鋼製構造部材に固定するために、ロウ付けにより金属部品と接合されている。

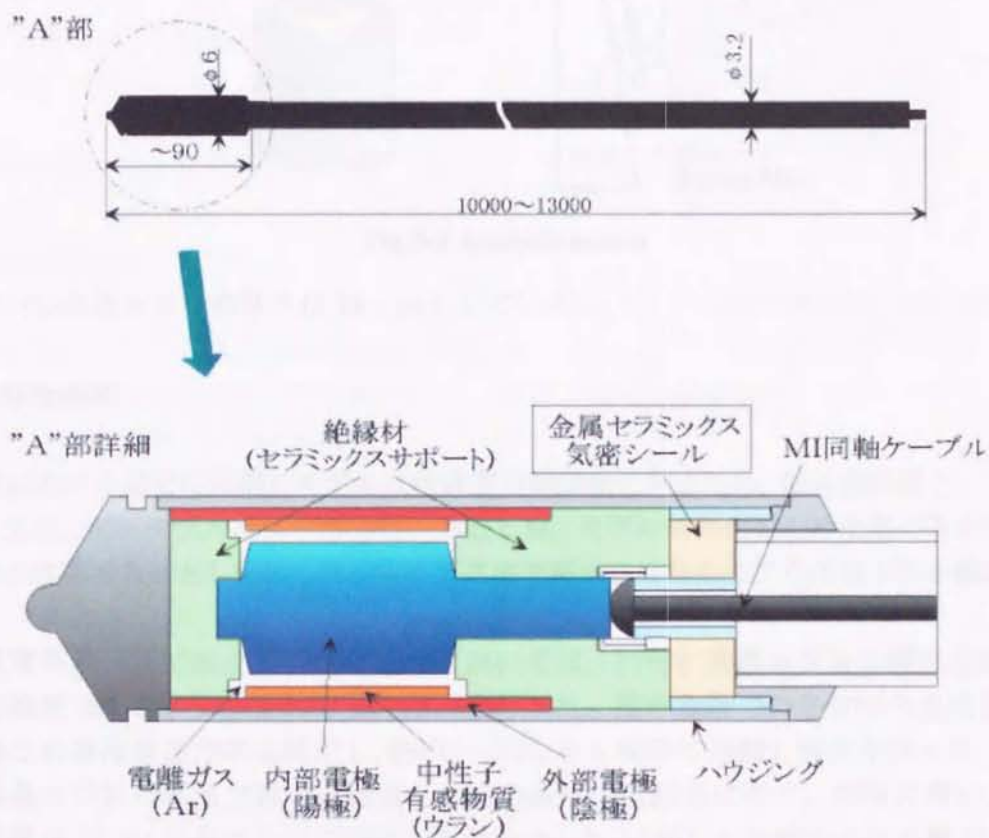


Fig.5-1 Local Power Range Monitor of Boiling Water Reactor

### 第3節 解析モデルと解析条件

#### 5.3.1 解析モデル

本解析では、Fig.5-2 に示すような解析モデルを用いた。この紡錘型接合構造はセラミックスにスウェリングを起こしにくい  $Si_3N_4$  を採用しており、 $Si_3N_4$  と SUS304 の間に自らの塑性変形により熱応力を緩和する効果を有する軟質金属(銅)製中間層が挿入されている。また、BWR では Ag フリーが要求されるため Ti-Cu 共晶ロウ材を用いているが、濡れ性が悪くフィレットを形成し難く、靱性がないため接合強度が低い。それゆえ、銅中間層の端部形状をフィレット形状に近づけることで強度を改善している。著者らは、すでに接合残留応力を緩和するために、銅中間層厚さや接合部傾斜角度の最適化を図っている。(付録参照)その結果より接合部傾斜角度は  $40^\circ$ 、銅中間層、SUS304 の厚さは 0.3mm とした。



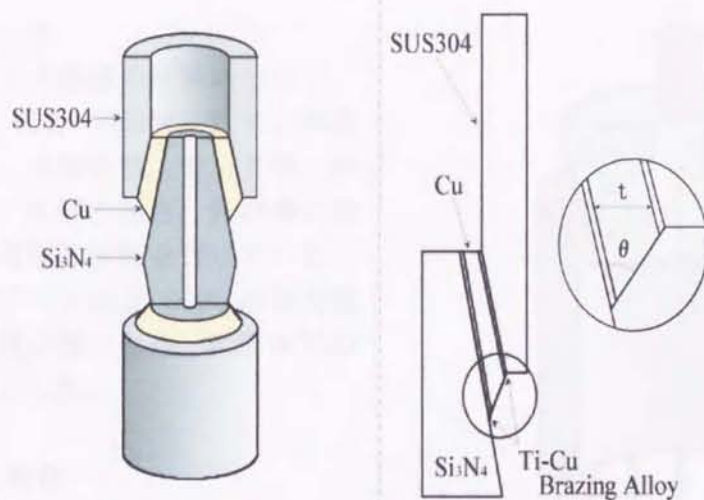


Fig.5-2 Analysis model

また、Ti-Cu 共晶ロウ材の厚さは  $15\mu\text{m}$  としている。

### 5.3.2 解析条件

本研究における接合体の解析モデルは紡錘型円筒形状であるため、軸対象問題として解析を行った。また、解析モデルは上下対称性があるため、モデル簡略化のため上部のみをモデル化し、上部と対称であるとし解析した。有限要素法で解くに当たりモデルの最上面を軸方向に拘束した。

解析温度条件としては、接合冷却過程においては、Ti-Cu 共晶ロウ材の塑性変形抵抗が開始する温度  $880^\circ\text{C}$  から常温  $20^\circ\text{C}$  まで冷却を行った。冷却段階での各材料の温度依存性を考慮するため段階冷却方式を採用し、 $880^\circ\text{C}$  ~  $20^\circ\text{C}$  を 5 段階に分割し解析を行った。この時、Ti-Cu 共晶ロウ材は高温で瞬時に凝固し、その後はほぼ脆性に近く、非常に硬い。Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> と銅中間層を Ti-Cu 共晶ロウ材で接合した場合、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> に接して生成する反応層の  $850^\circ\text{C}$  におけるビッカース硬さは 485 であった。従って Ti-Cu 共晶ロウ材の凝固収縮現象が接合残留応力に及ぼす影響はかなり大きいと考えられる。そこで、 $880^\circ\text{C}$  ~  $879^\circ\text{C}$  の  $1^\circ\text{C}$  の区間で Ti-Cu 共晶ロウ材の熱膨張係数を凝固収縮率に置き換えることにより Ti-Cu 共晶ロウ材の凝固収縮現象を考慮した。

中性子照射に伴う Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> のスウェリング現象解析は次のように行った。まず、接合残留応力解析を行った後、供用中の環境温度である  $290^\circ\text{C}$  にモデルを加熱するため一度、弾塑性解析を行う。(この状態を中性子照射期間 0 年とした。)

次に、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> の 1 年間当たりの体積膨張率は  $dV/V=0.005$  (1/year) として、 $dV/V=0.0027\sim 0.5324$  (1/year) に対応する 107 年までの体積膨張を考慮した。これは Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> の熱膨張係数を利用し、供用中温度  $290^\circ\text{C}$  から、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 部のみに温度を与えることにより中性子照射により Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> がスウェリングを起こしたことと等価とした。さらに中間層である銅の脆化を降伏強度の上昇としてモデル化し、内部応力の挙動解析を行った。

一方、引張試験での強度検証シミュレーションでは、接合残留応力解析に続けて Fig. 5-3 に示すように SUS304 脚部に軸方向の強制変位  $u=0.1, 0.2, 0.3\text{ mm}$  を与えた条件にて、



それぞれ解析を行った。

本解析で使用した4種類の材料について、温度依存性のある、Cu, SUS304, Ti-Cu 共晶ロウ材においては、各物性値、ヤング率、熱膨張係数、降伏点、引張り強さ、伸び率の温度依存性の特性を考慮し解析を行っている。なお、各材料のポアソン比と  $\text{Si}_3\text{N}_4$  の物性値は極めて温度依存性が低いため、常温  $20^\circ\text{C}$  の物性値とし、一定とした。

#### 第4節 解析結果と考察

##### 5.4.1 接合残留応力解析

$880^\circ\text{C} \sim 20^\circ\text{C}$  までの接合冷却過程における接合残留応力解析の結果を以下に報告する。まず、構造体接合の端部付近の応力分布を示したコンター図を Fig. 5-4 に示す。

この結果から、接合界面に沿って高い応力が発生し、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  内部に向かって急峻な応力分布が現れていることがわかる。接合冷却過程において、ロウ材である Ti-Cu の凝固収縮現象が  $\text{Si}_3\text{N}_4$  の残留応力に大きく影響しているといえる。 $\text{Si}_3\text{N}_4$  内部において最大等価垂直応力が発生する位置は、Fig. 5-4 中の矢印で示した位置である。そこでの応力値は、 $836 \text{ MPa}$  であった。この最大応力値を含むように、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  内部の残留応力分布を接合界面から半径方向にプロットしたものが、Fig. 5-5 である。

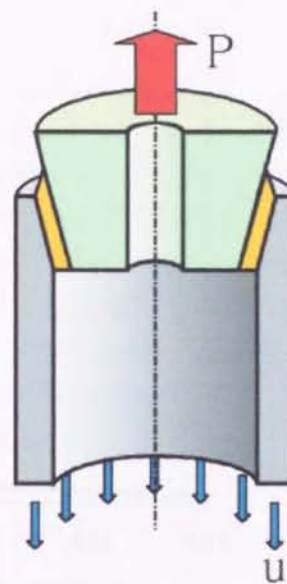


Fig.5-3 simulation model of a tensile test

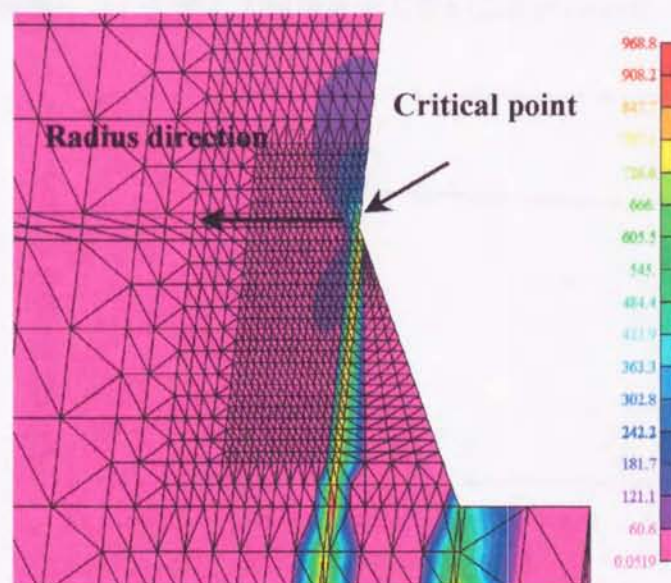
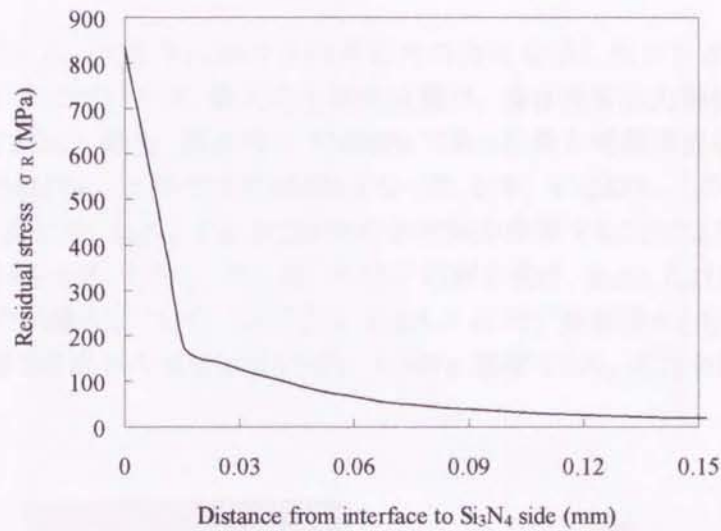


Fig.5-4 Contour diagram of residual stress

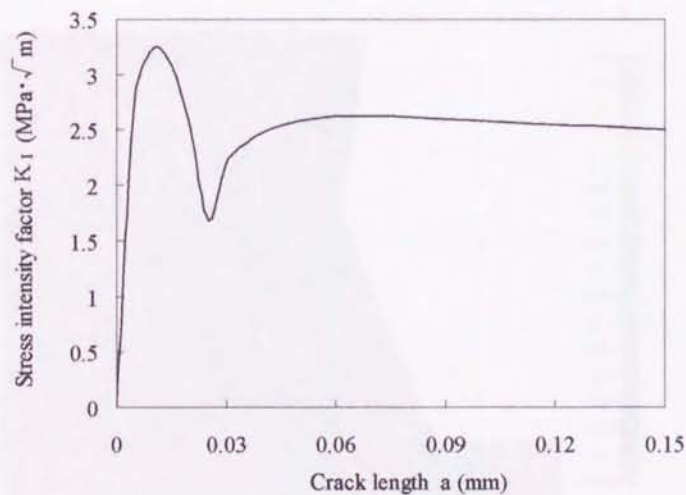




**Fig.5-5 Distribution of residual stress from interface To the inside of Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>**

この図からも、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>内部に向かって急峻な応力低下が確認できる。等価垂直応力で836 MPaであった最大値が、接合界面から15 μm内側では約160 MPaにまで低下している。その後、応力は接合界面から離れていくにつれて緩やかに減少していく。約1.3mm離れた紡錘型円筒Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>の一番内側では、接合残留応力は、ほぼ0 MPaである。

潜在き裂は残留応力が最大となる位置にあると仮定し、先程の応力分布を考慮して応力拡大係数で評価すると、応力拡大係数とき裂長さとの関係はFig. 5-6のようになる。応力拡大係数は最大で3.24 MPa・√mであり、破壊靱性値である5.80 MPa・√mに達していないことから、接合冷却過程において熱応力破壊を生じないことがわかる。



**Fig. 5-6 Relation between stress intensity factor K<sub>I</sub> and crack length a with various taper angles**

#### 5.4.2 スウェリングに伴う内部応力の増加と破壊寿命

中性子照射期間 0, 1.5, 10.6 年における内部応力の分布を示したコンター図を Fig. 5-7 に示す。まず, 0~1.5 年については, 最大応力発生位置は, 接合残留応力解析の場合と一致している。Fig.5-8 に示すように, 最初, 接合時に 836MPa であった最大等価垂直応力は, 0 年では 828MPa, 0.5 年では 836MPa, 1.5 年では 838MPa となった。0 年, すなわち, このモデルが供用温度 290°C に加熱された直後は,  $\text{Si}_3\text{N}_4$ , Cu, SUS304 の各材料が膨張することにより, 接合残留応力が多少緩和されたと考えられる。しかし, その後, 中性子照射を受け,  $\text{Si}_3\text{N}_4$  だけが膨張していくにつれて再び内部の応力が増大していく。このことは, Fig.5-9 に示す変形図からも明らかであるとはいえ, 0~1.5 年の期間では応力の増減はせいぜい 10MPa 程度であり, 応力分布にもさほど変化は

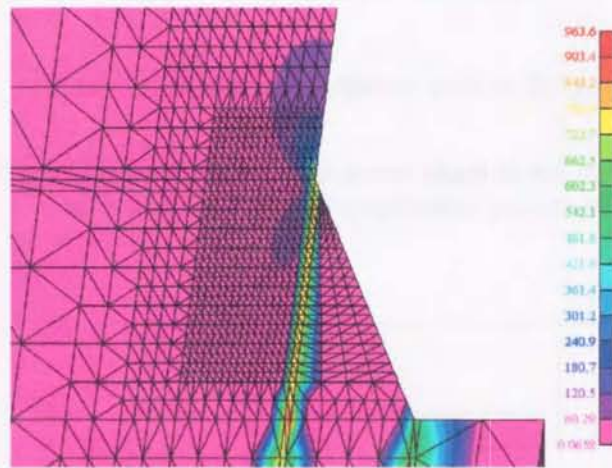


Fig.5-7(a) Neutron irradiation period: 0 year

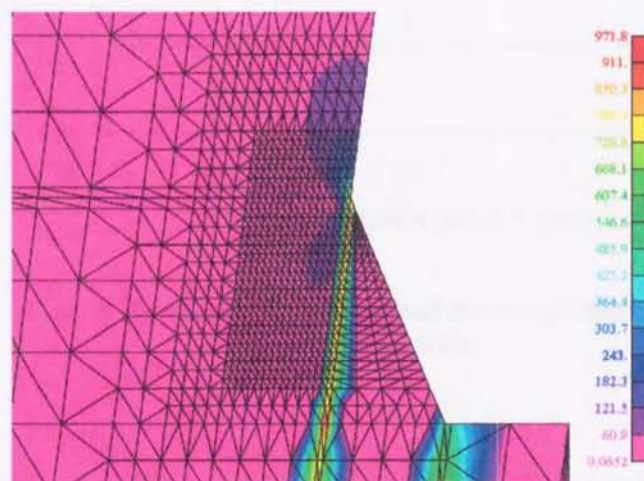


Fig.5-7 (b) Neutron irradiation period: 1.5 years



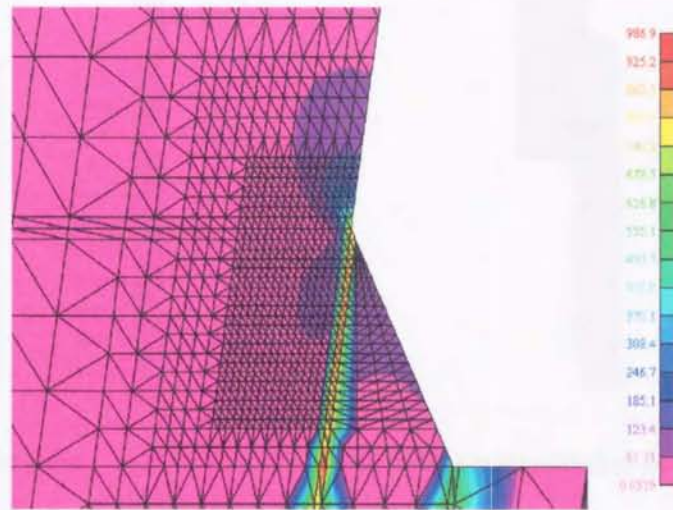


Fig.5-7(c) Neutron irradiation period: 0.6 years

Fig.5-7 Stress distribution contour chart in the side of  $\text{Si}_3\text{N}_4$  with various Neutron irradiation periods  $\text{Si}_3\text{N}_4$

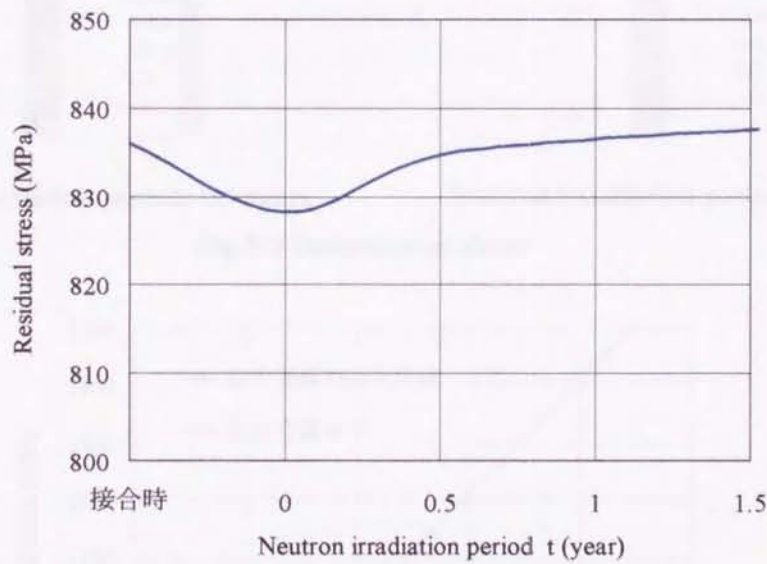


Fig.5-8 Relation between residual stress and neutron irradiation periods

見られない。しかし、長期間中性子照射を受けてくると、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  の膨張に加えて銅中間層の脆化などの影響が顕著に現れてくるため、最大応力値はうなぎ登りに増大していく。中性子照射期間に対する最大等価垂直応力の挙動を表したものが Fig.5-10 である。

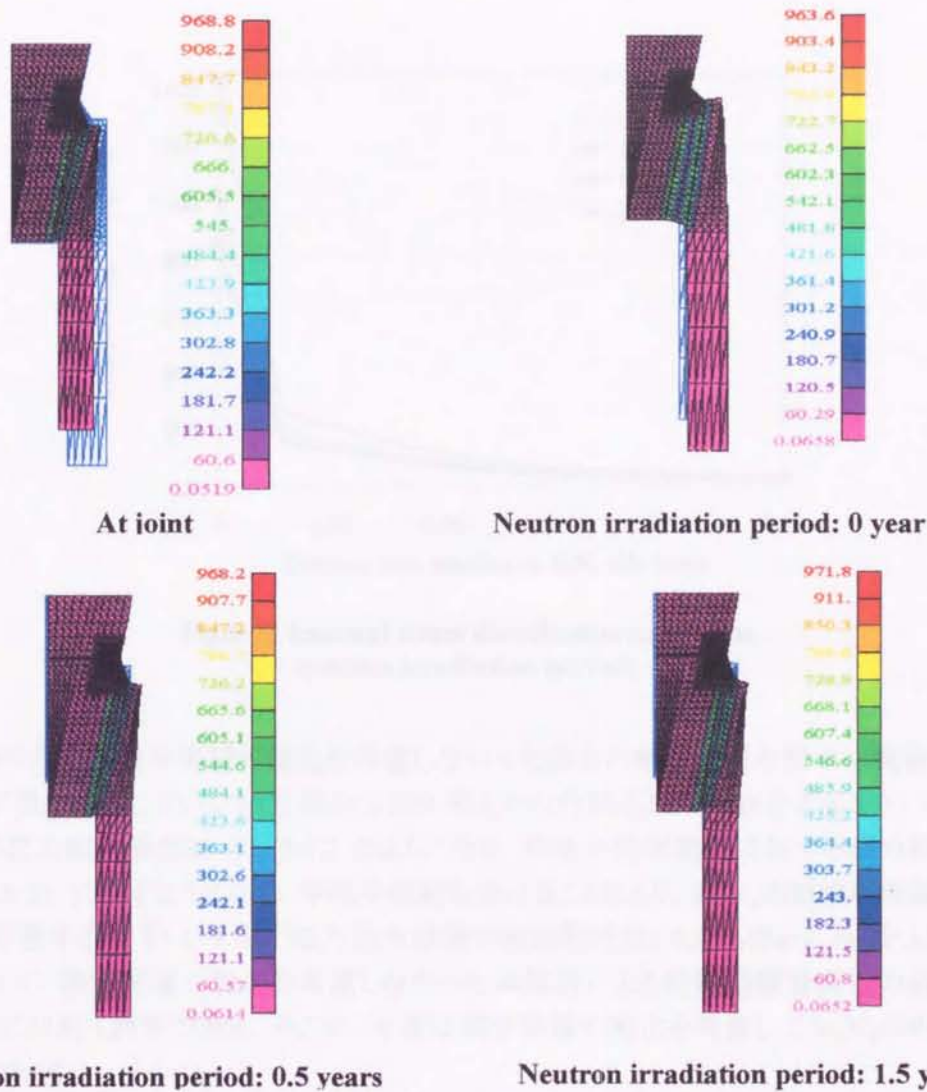


Fig.5-9 Deformation chart

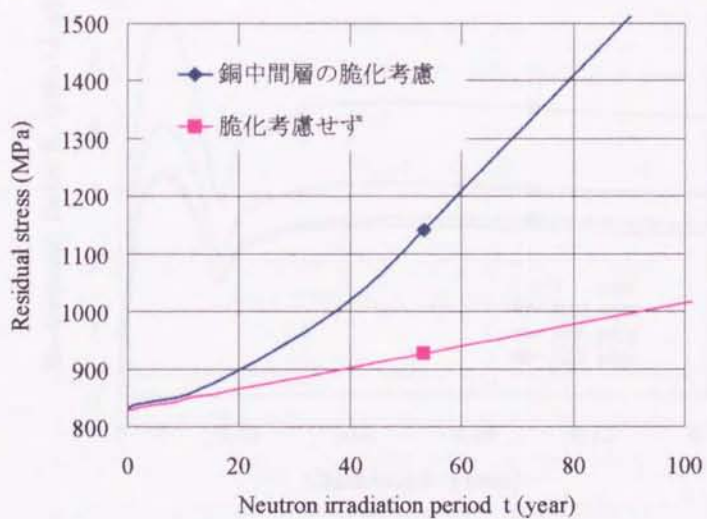


Fig.5-10 Behavior of the maximum equivalent normal stress to neutron irradiation period



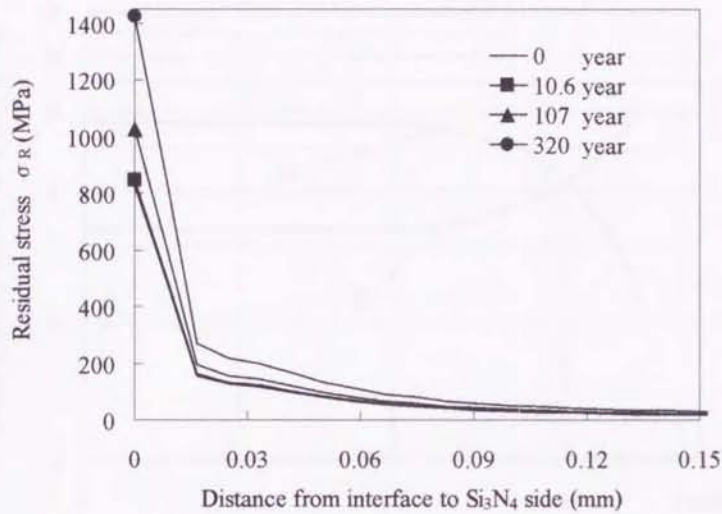


Fig.5-11 Internal stress distribution to various neutron irradiation periods

ここで、比較のために銅中間層の脆化を考慮しなかった場合の解析結果を簡単に報告する。まず、スウェリング現象を生じていく10.6年から320年までの内部応力の分布をFig.5-11に示す。また、その時の応力拡大係数はFig.5-12のようになる。中性子照射期間に対する応力拡大係数の挙動はFig.5-13に示すようになる。中性子照射を受けることにより、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>の破壊靱性値が低下していくことを考慮すると、約139年で応力拡大係数が破壊靱性値(4.21 MPa $\cdot\sqrt{m}$ )を上回り、破壊に至る。従って、銅中間層の脆化を考慮しなかった本解析による紡錘型接合構造の破壊寿命は破壊力学的には約139年である。そこで、今度は銅中間層の脆化を考慮してSi<sub>3</sub>N<sub>4</sub>の内部応力、破壊寿命を見ていく。

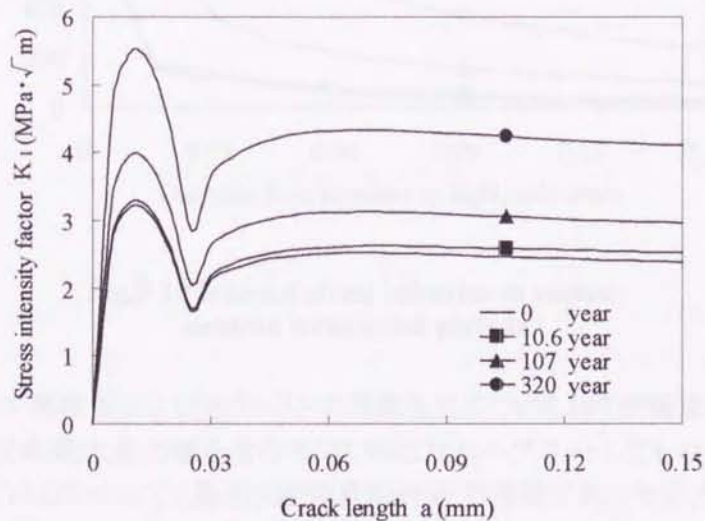


Fig.5-12 Relation between stress intensity factor and crack length

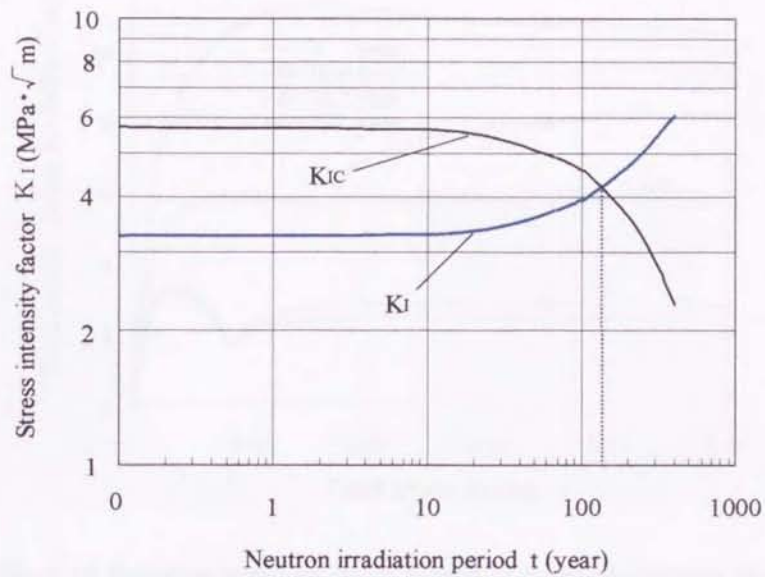


Fig.5-13 Behavior of stress intensity factor to various neutron irradiation periods

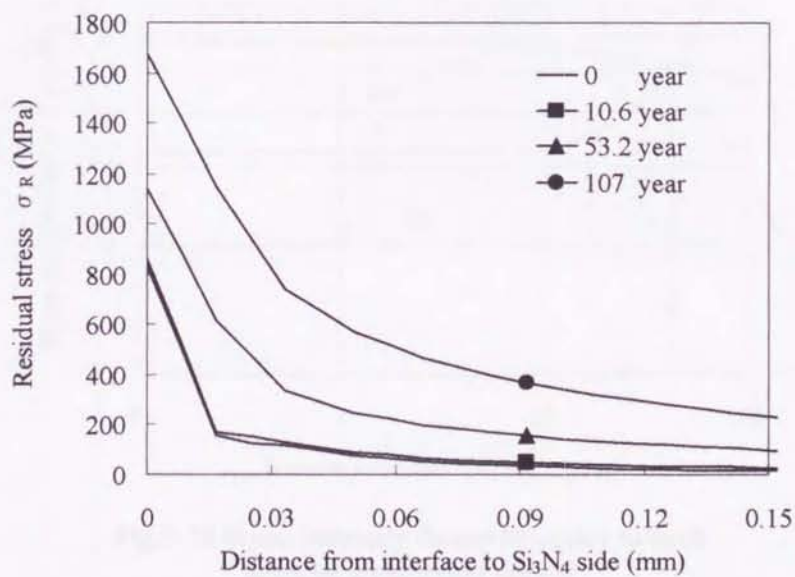


Fig.5-14 Internal stress behavior to various neutron irradiation periods

Fig.5-14 はスウェリング現象前およびスウェリング現象を生じていく107年後までの $\text{Si}_3\text{N}_4$ 内部の応力分布を、接合界面から最大応力値を含むように半径方向へプロットしたものである。 $\text{Si}_3\text{N}_4$ がスウェリング現象を生じていくにつれて、最初、接合界面付近で急峻であった応力勾配が、徐々に緩やかになっていくことがわかる。すなわち、長期間の中性子照射を受けてくると、接合界面付近だけでなく $\text{Si}_3\text{N}_4$ の内部にも比較的大きな応力発生領域が広がっていくということになる。また、その応力場における応力拡大係数とき裂長さの関係は、Fig.5-15に示すようになる。



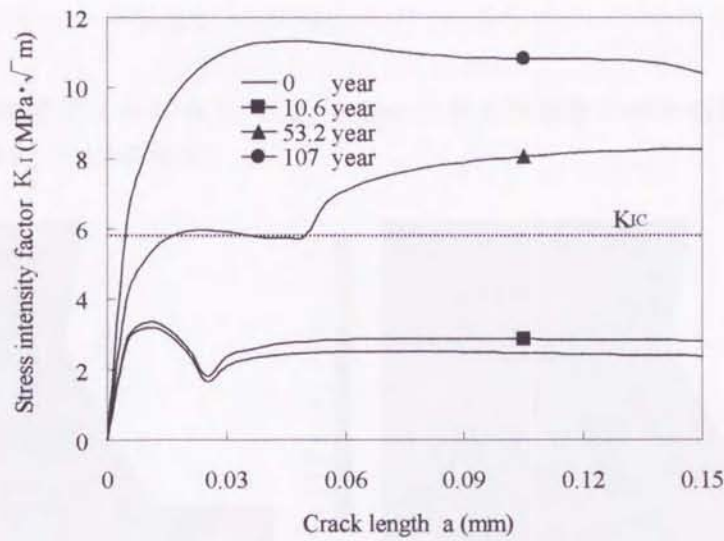


Fig.5-15 Relation between stress intensity factor and crack length

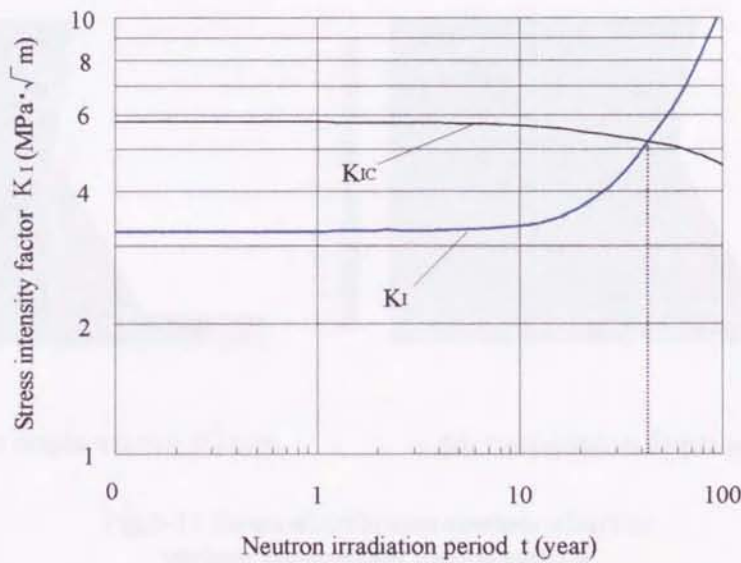


Fig.5-16 Stress intensity factor behavior to each neutron irradiation period

中性子照射期間に対する応力拡大係数の挙動は Fig.5-16 に示すようになる。中性子照射を受けることにより、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  の破壊靱性値が低下していくことを考慮すると、応力拡大係数が破壊靱性値 ( $5.27 \text{ MPa}\cdot\sqrt{\text{m}}$ ) を上回るのは約 41 年である。従って、この解析による紡錘型接合構造の破壊寿命は破壊力学的には約 41 年である。この結果は、中間層銅の劣化に伴う降伏強度の上昇を考慮しなかった場合の破壊寿命 139 年よりはるかに短くなる。

以上より、スウェリング現象による  $\text{Si}_3\text{N}_4$  の破壊は、接合残留応力が原因となっているということができ、接合残留応力を低減させることにより、この紡錘型接合構造の破壊寿命を延ばすことが可能となる。また、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  の材質劣化、中間層銅の脆化といった構造体全体の物理的な現象を考慮した強度・寿命信頼性が重要である。

### 5.4.3 強度検証シミュレーション

SUS304 脚部に強制変位  $u = 0, 0.1, 0.2, 0.3\text{mm}$  を与えた場合の解析結果を報告する。まず、コンター図を Fig. 5-17 に示す。

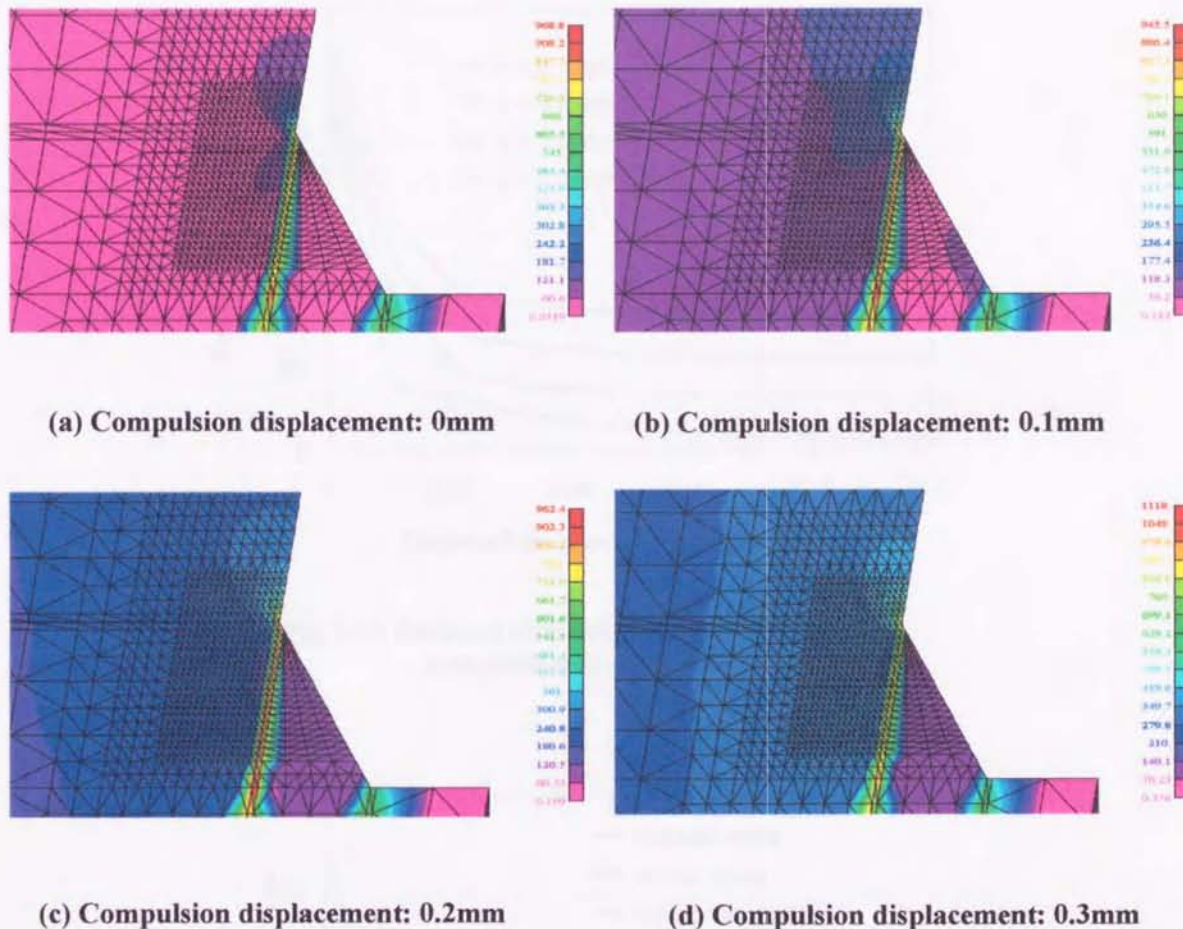


Fig.5-17 Stress distribution contour chart in various compulsion displacements

Fig.5-18 に解析から得られた各強制変位における応力分布を示す。ここで、強制変位  $u = 0\text{mm}$  というのは接合冷却過程において接合残留応力が発生した状態のことである。コンター図とこの図からもわかるように、それぞれの強制変位において、強制変位  $u = 0\text{mm}$  の場合の応力、すなわち接合残留応力に加えて引張応力が作用している。従って、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  の内部においても強制変位に対して、ある一定の応力が作用する。

そこで、Fig. 5-19～Fig. 5-21 で各強制変位における引張応力、公称応力、接合残留応力と引張応力との重畳応力を見てみると、すべての場合に同じ傾向が見られ、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  内部では引張応力が作用するのみである。また、注目すべきは各強制変位における引張応力で、接合冷却過程で高い応力が発生している接合界面付近では、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  の内部に作用している値より低くなっている。強制変位を  $u = 0.3\text{mm}$  まで与えた場合、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  の内部では約  $300\text{MPa}$  の引張応力が作用しているにもかかわらず、接合界面端部の最大応力発生位置では約  $180\text{MPa}$



程度しか作用していない。これは、銅中間層が塑性変形を起こしたことにより、 $\text{Si}_3\text{N}_4$ に作用する引張応力が緩和されている領域があるためである。

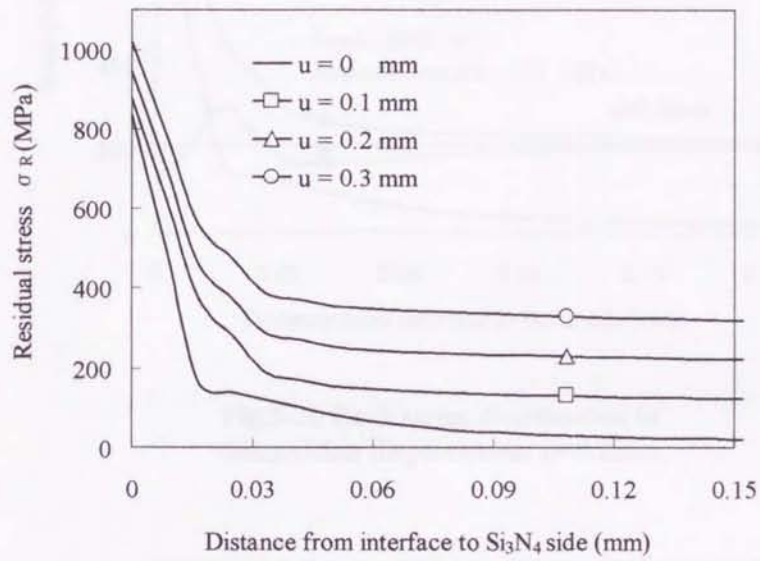


Fig.5-18 Residual stress distribution with various compulsion displacements

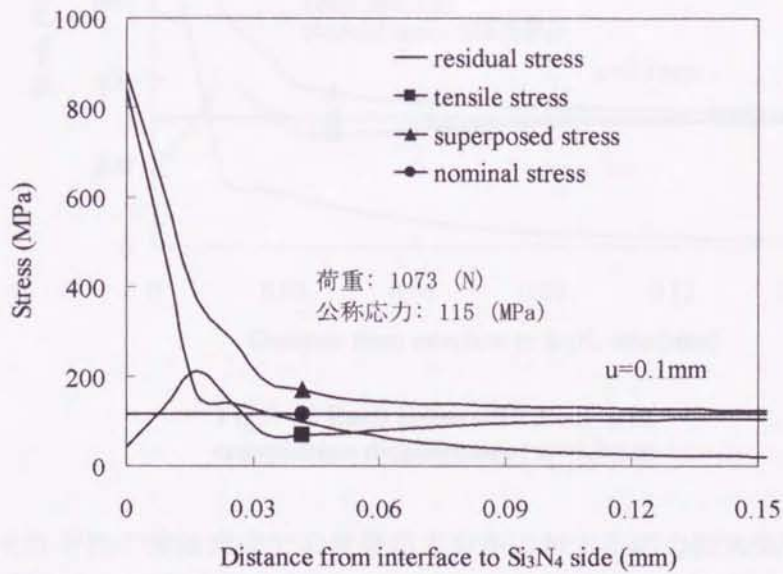
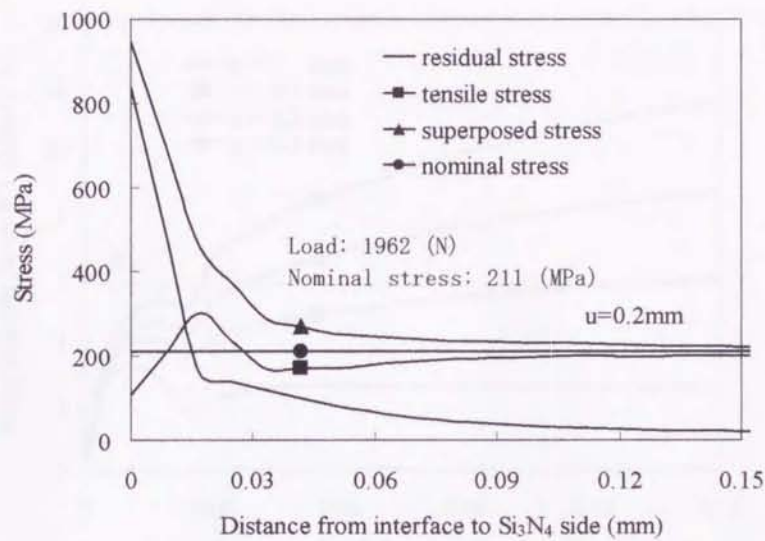
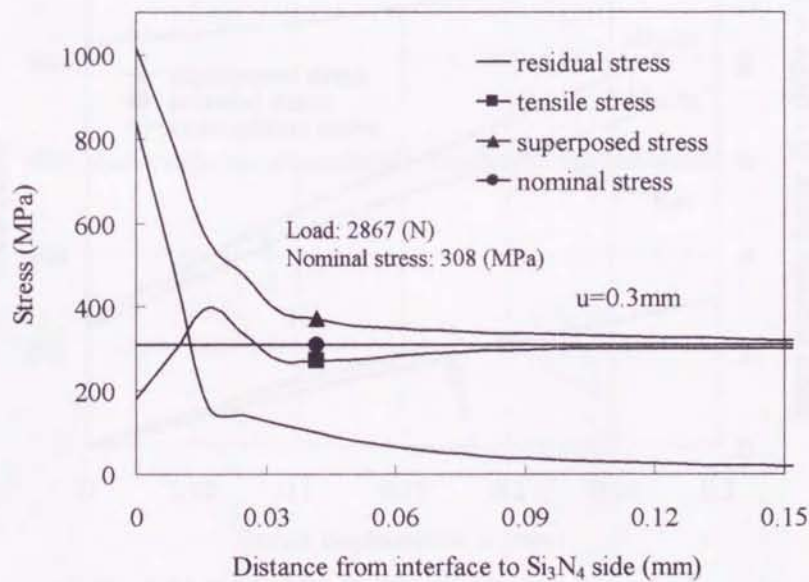


Fig.5-19 Each stress distribution in compulsion displacement  $u=0.1$ mm



**Fig.5-20 Each stress distribution in compulsion displacement  $u=0.2\text{mm}$**



**Fig.5-21 Each stress distribution in compulsion displacement  $u=0.3\text{mm}$**

Fig. 5-22 に、それぞれの強制変位での重畳応力分布に対する応力拡大係数とき裂長さの関係を示す。この図において接合界面付近では、高い応力が発生しているにもかかわらず、その急峻な応力勾配のために、強制変位が増しても応力拡大係数はあまり大きな値にはなっていない。それよりも、明らかに  $\text{Si}_3\text{N}_4$  の破壊は  $\text{Si}_3\text{N}_4$  の内部に作用している応力、つまり引張応力が原因となっていることがわかる。



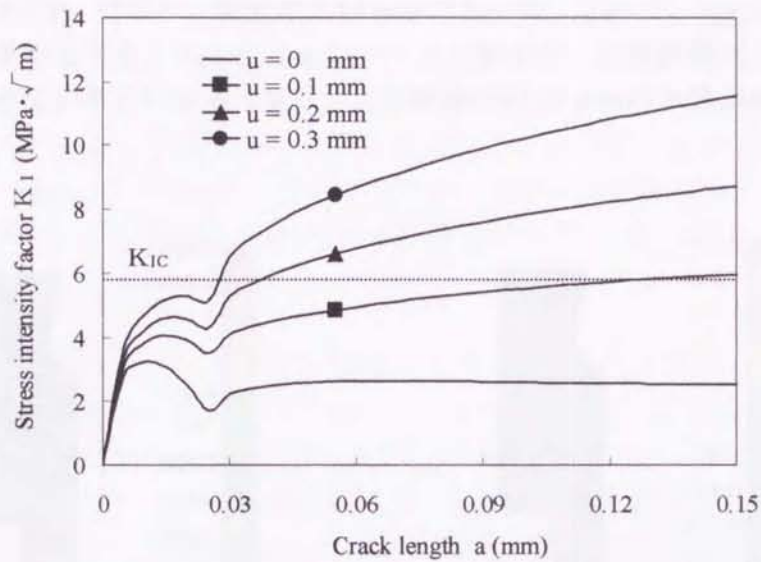


Fig.5-22 Relation between stress intensity factor and crack length in each compulsion displacement

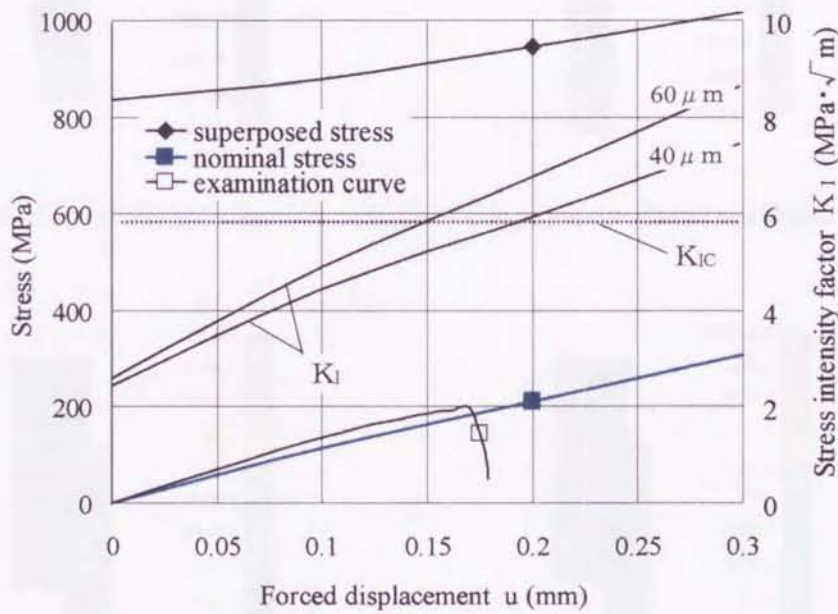
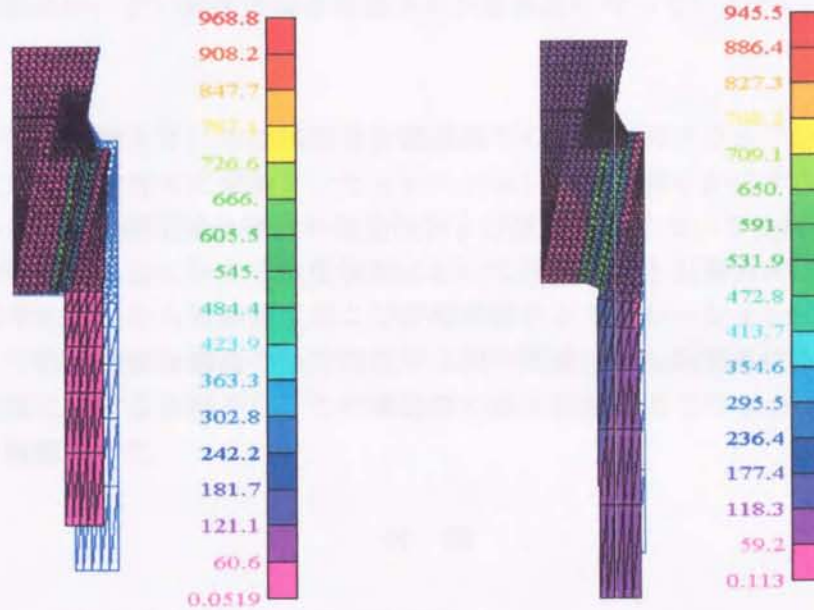


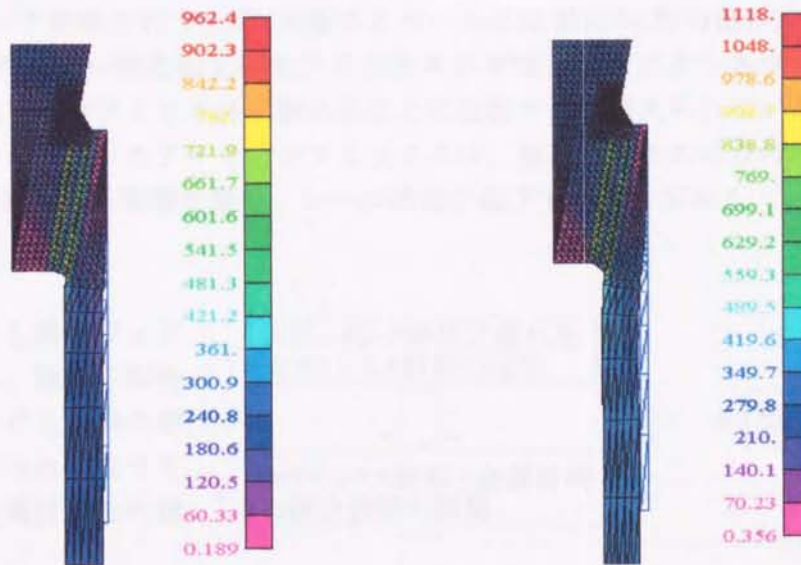
Fig.5-23 Behavior of superposed stress, nominal stress, and stress intensity factor

Fig. 5-23 は強制変位に対する重畳応力の最大値と公称応力の挙動および  $\text{Si}_3\text{N}_4$  の平均的な欠陥サイズの上限と下限である  $60\ \mu\text{m}$ ,  $40\ \mu\text{m}$  での応力拡大係数の挙動を示したものである。  $u=0\ \text{mm}$  での重畳応力については、接合残留応力のみで  $836\ \text{MPa}$  である。強制変位が増大するとともに  $\text{Si}_3\text{N}_4$  の内部に作用する応力は増大していくが、最大値の増大はそれほど見られない。これは、前述のように銅中間層の塑性変形が影響しているためである。 $\text{Si}_3\text{N}_4$  の破壊靱性値  $K_{IC}=5.80\ \text{MPa}\cdot\sqrt{\text{m}}$  に対応する強制変位は  $u_f=0.15\sim 0.18\ \text{mm}$  である。このときの公称応力は、約  $190\ \text{MPa}$  となる。従って、この解析による紡錘型接合構造体の引張強度としては、公称応力で約  $190\ \text{MPa}$  である。ところが一方、3本の試験片で

の平均強度は 198 MPa であり、変位は 0.17 mm であった。よって、Fig.5-19 中の応力-変位の実測線図と比較しても、このシミュレーション解析は、引張試験による変形挙動や強度を良く予測できているといえる。また、この破壊は約 50  $\mu$ m の欠陥が起点となり起こったと考えられる。



Compulsion displacement: 0mm (At joint)      Compulsion displacement: 0.1mm



Compulsion displacement: 0.3mm      Compulsion displacement: 0.2mm

Fig.5-24 Transformation chart in each compulsion



また、Fig. 5-24 に示す変形図から、この紡錘型接合構造体の軸方向変形挙動について検討してみると、銅中間層のせん断変形だけに支配されているということが明らかで、このことから、接合界面付近に作用する引張応力が緩和されており、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  の内部に作用する引張応力に比べて小さいということが説明できる。以上の結果より、接合冷却過程において  $\text{Si}_3\text{N}_4$  に 836MPa の接合残留応力が発生してはいるが、その影響は少なく、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  単体の場合の引張強度が、この紡錘型接合構造体の引張強度になっているということになる。

## 第5節 結 言

供用中に中性子照射を受ける紡錘型接合構造部での  $\text{Si}_3\text{N}_4$  のスウェリングによる残留内部応力の増大および強度劣化挙動をシミュレーション解析で明らかにするとともに、破壊力学的観点からこの紡錘型接合構造の健全性および破壊寿命について検討できた。

また、紡錘型接合構造に対する強度検証において残留応力と引張負荷応力の重畳応力をもとに破壊力学的観点から破壊強度および変形挙動をシミュレーション解析により明らかにできた。この紡錘型接合構造の軸方向変形は銅中間層のせん断変形に支配されている。また、引張強度に対する余裕から、この構造体の接合残留応力での  $\text{Si}_3\text{N}_4$  の遅れ破壊に対する健全性を確認できた。

## 付 録

### 1 セラミックス/金属接合における構造最適化

#### 1-1 現用材-円筒型接合構造

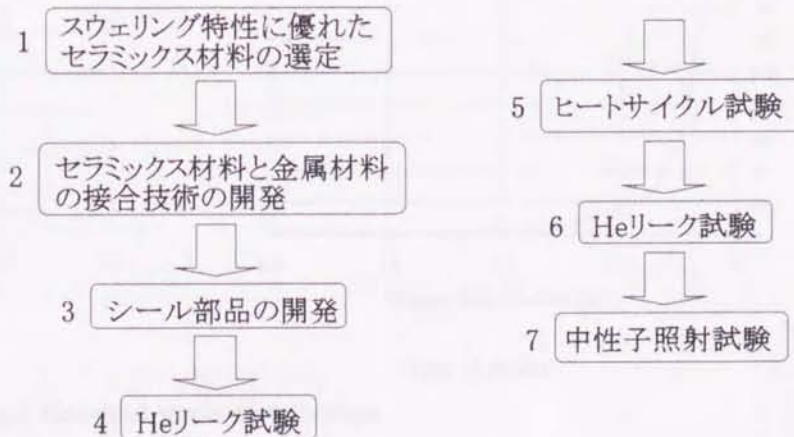
円筒型接合構造は Fig. 1 に示すように円筒セラミックスにコパールの内筒と外筒が接合されている。リーク試験を行うため、太径のコパールには SUS304 製円筒が溶接されている。

気密シールのシール機能低下はセラミックスが中性子照射によりスウェリングを起こし、応力が発生してセラミックスが割れることに起因すると考えられている。気密シールとして現在用いられているアルミナセラミックスは、金属材料とのロウ付け性は良好ではあるが中性子照射による影響を受け、シール機能が低下する場合がある。

#### 開発課題

アルミナよりも耐スウェリング特性に優れ、強度と靱性の高いセラミックス材料の選定、および選定されたセラミックス材料と金属材料との接合技術の開発。

#### 開発手順



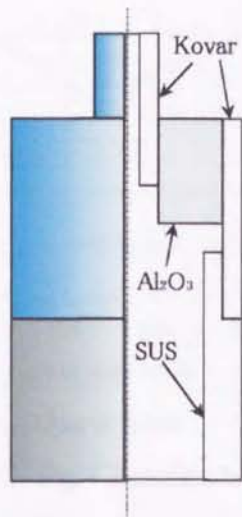


Fig.1 Cylinder type jointing structure for present

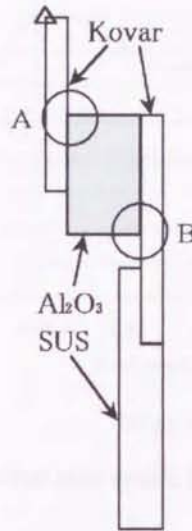


Fig.2 Analysis model of fig.1

1-2 現用材—円筒型接合構造に対して行った解析結果

現用材であるアルミナシール部品に対して行った接合残留応力解析の結果を以下に報告する。解析モデルは、Fig.2に示すようなモデルを用い、△の位置を完全拘束し、3次元軸対称問題として解析を行った。また解析温度条件としては、ロウ材である純銅ロウの凝固開始温度が1083℃であることから、ロウ材の塑性変形抵抗が影響し始める温度を1083℃とし、これから常温20℃まで冷却した。この接合冷却過程でアルミナに生じた残留応力を求めた。このとき、クリティカルポイントとなり得る応力集中が見られる場所はFig.3に示すA、Bの2カ所であり、それぞれの位置について残留応力分布を調べ、応力拡大係数を求めるとFig.4に示すような結果が得られた。

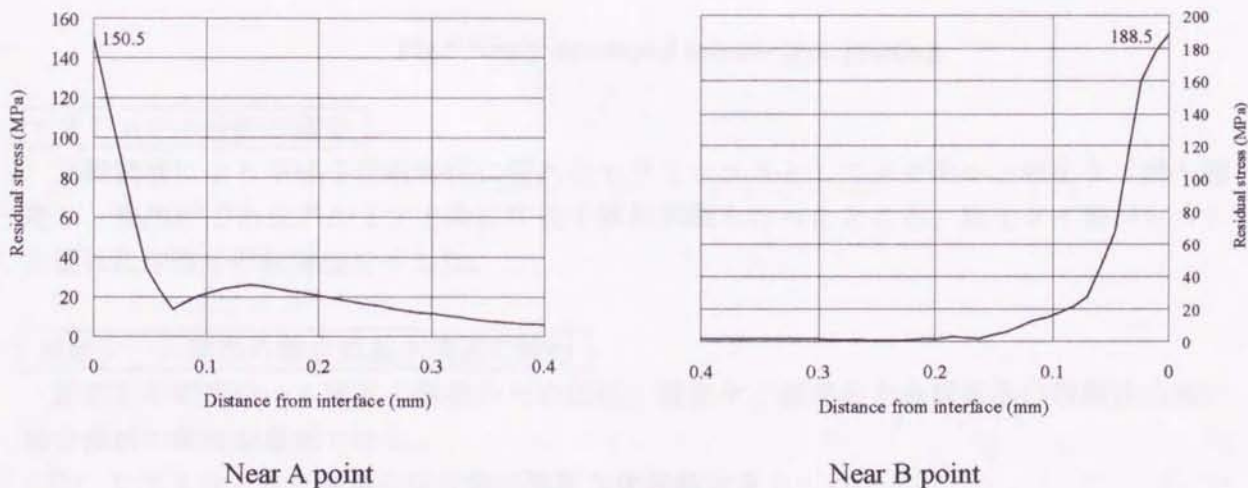
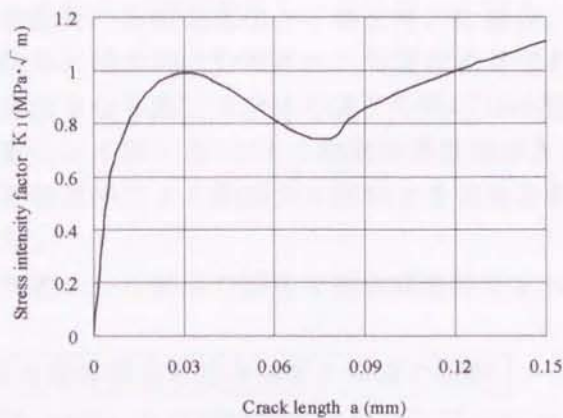
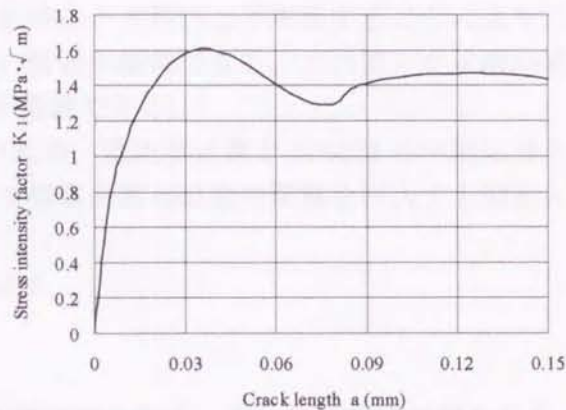


Fig.3 Residual stress distribution





Near A point



Near B point

Fig.4 Relation between stress intensity factor and crack length

### 1-3 新開発材—紡錘型接合構造

新開発した紡錘型接合構造はFig.5に示す。

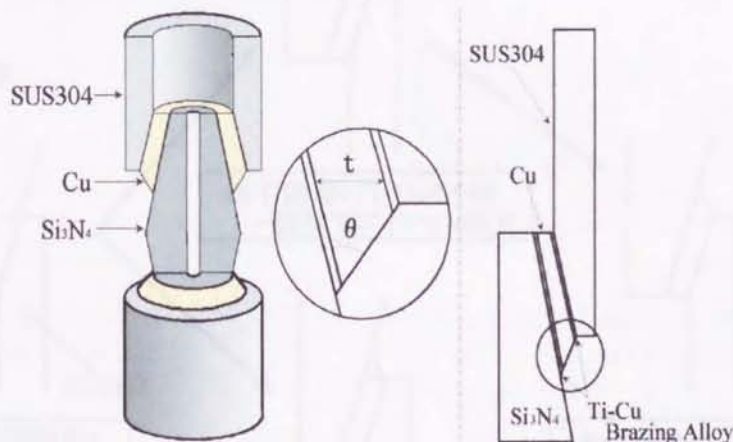


Fig.5 Newly developed spindle type jointing

#### セラミックス材料の選定

文献調査により中性子照射特性に優れたセラミックスとしてスピネルと窒化ケイ素を選定し、現用材であるアルミナと共に中性子照射試験を行ったところ、窒化ケイ素がもっとも優れた中性子照射特性を示した。

#### 気密シール部品の接合部基本構造の検討

安定した気密シール部品の開発のためには、窒化ケイ素部品と金属部品の信頼性の高い接合技術の開発が重要である。

- ① セラミックスと金属の接合部に強固な化学結合をつくる。
- ② 接合部に発生する応力を緩和する。

本設計の紡錘型窒化ケイ素を用いた場合、接合時に一方向に上下加圧することにより力が均等に接合部に分散されて均質な密着性の良い接合が期待できる。また窒化ケイ素の破損原因となり易いロウ材の偏りや熱応力の発生が低減できる。

窒化ケイ素と SUS304 の熱膨張係数差が大きいため、窒化ケイ素と SUS304 の間に自らの塑性変形により熱応力を緩和する効果を有する軟質金属(銅)製中間層を挿入する構造とした。

気密シール部品の接合部基本構造は Fig. 6 に示す。

#### 接合端部構造と接合強度の関連の検討

Ti-Ag-Cu ロウ材は端部に良好なフィレットを形成するため、高い引張強度が得られる。しかし、Ag は中性子照射により Cd に核変換し、その高い蒸気圧のためシール特性に悪影響を与えることが懸念されるため、Ag を含有しない Ti-Cu ロウ材を用いた。Ti-Cu ロウ材はフィレットが出来難く、接合強度が低い。よって中間層の端部形状をフィレット形状に近づけることで強度を改善している。

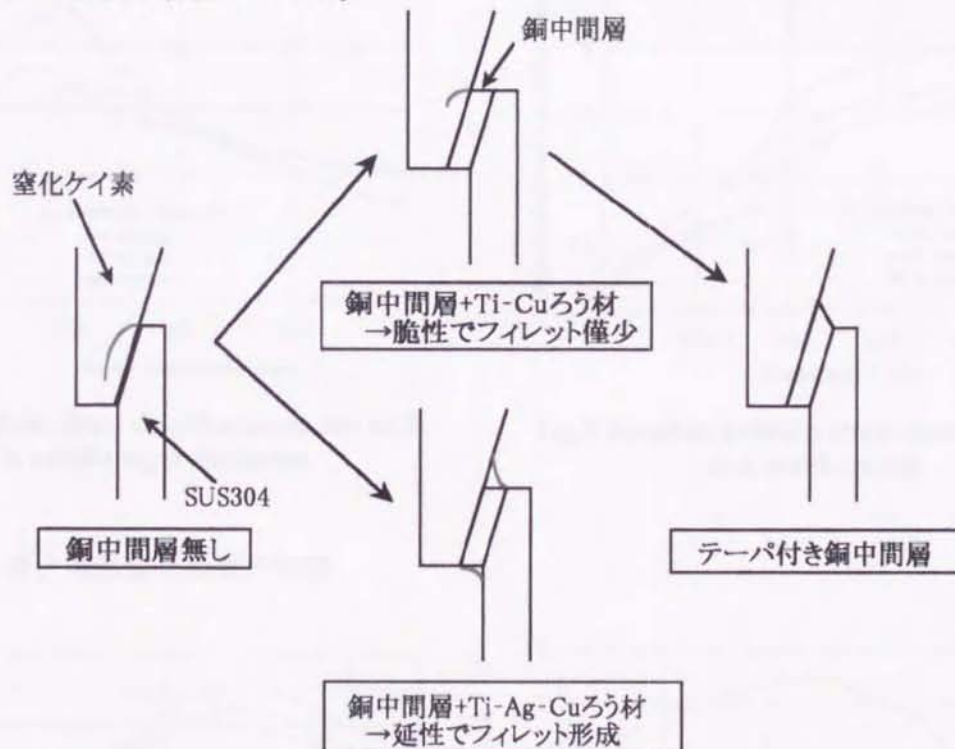


Fig.6 Basic structures of in joint part

#### 1-4 新開発材—紡錘型接合構造に対して行った解析結果

##### 1-4-1 銅中間層厚さの影響

紡錘型接合構造において、銅中間層の厚さが残留応力に及ぼす影響について検討したので、報告する。解析モデルは、Fig. 7 に示すようなモデルを用い、△の位置を軸方向に拘束し、3次元軸対称問題として解析を行った。また解析温度条件としては、880℃～20℃までとした。但し、解析モデルには Ti-Cu 供晶ロウ材の層は挿入しておらず、凝固収縮現象



は考慮していない。よって本文中の解析結果とは、応力の絶対値および分布に大きな差が生じている。しかし、ここでは銅中間層の厚さが残留応力にどのような影響を及ぼすのか、その傾向をおおまかにつかむことが目的と考え、また、その傾向はTi-Cu 供晶ロウ材の凝固収縮現象を考慮した場合も不変であると判断した。加えて、応力解析の簡略化と時間短縮のねらいもあった。後述の接合端部傾斜角度の影響についても、同様の理由でTi-Cu 供晶ロウ材の層は挿入していない。

この接合冷却過程で、銅中間層の厚さを0.1, 0.2, 0.3mmと変えた場合に、 $\text{Si}_3\text{N}_4$ に生じた残留応力をそれぞれ求めた。クリティカルポイント周辺での等価垂直応力分布と応力拡大係数はFig. 8, Fig. 9になった。この結果より、銅中間層の厚さは0.3mmを採用している。

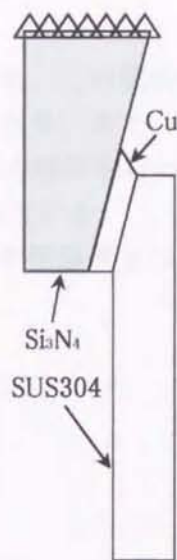


Fig. 7 Analysis model

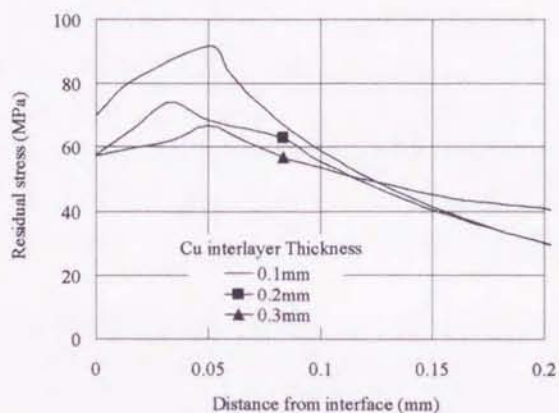


Fig. 8 Residual stress distribution in the each Cu middle layer thickness

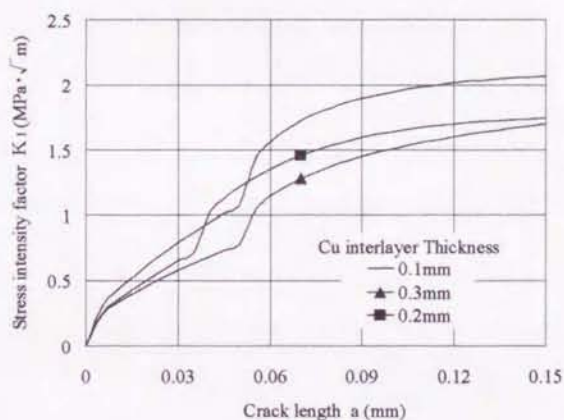


Fig. 9 Relation between stress intensity factor and crack length

#### 1-4-2 2 接合端部傾斜角度の影響

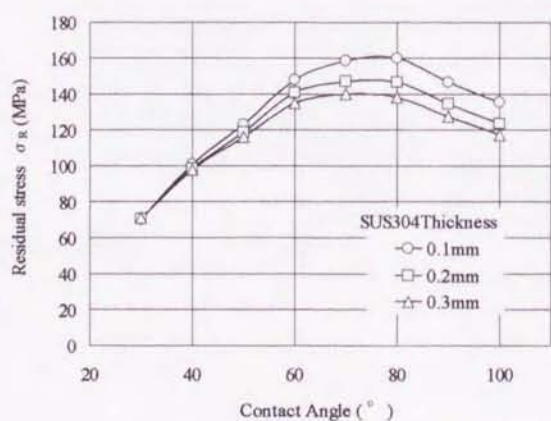


Fig. 10 Influence of angle value on joint residual stress

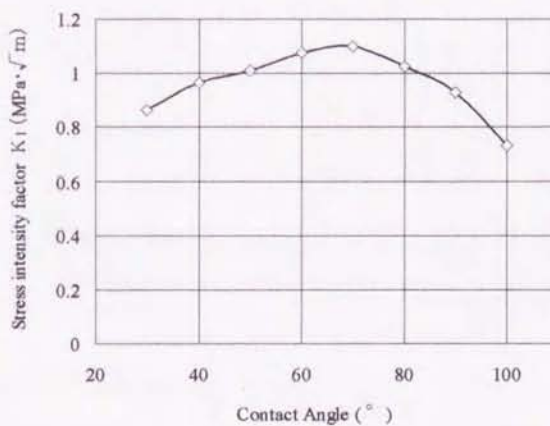
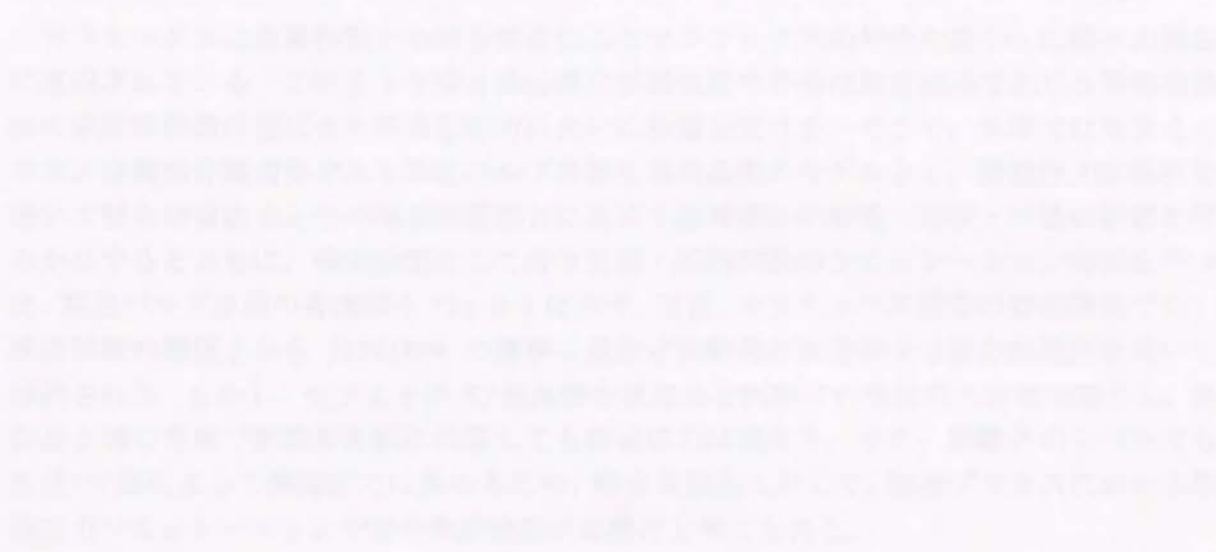


Fig. 11 Stress intensity factor in defect size 0.05mm

ここでは、接合端部傾斜角度の違いが残留応力に及ぼす影響を調べた。この傾斜角度を  $30^\circ$ 、 $40^\circ$ 、 $50^\circ$ 、 $60^\circ$ 、 $70^\circ$ 、 $80^\circ$ 、 $90^\circ$ 、 $100^\circ$  (傾斜なし) と変化させ、また、それぞれの場合において SUS304 厚さを 0.1, 0.2, 0.3mm と変えて接合残留応力解析を行った。その結果は、Fig. 10, 11 に示すようになる。ピーク値は、 $70^\circ$  付近に現れている。

以上の結果より、この紡錘型接合構造体の接合部基本構造として、銅中間層厚さは 0.3mm、接合端部傾斜角度は  $40^\circ$ 、SUS304 厚さは 0.3mm を採用した。





## 第6章 真空バルブ容器における接合強度についての検討

### 第1節 緒言

セラミックスは金属材料との接合構造によりセラミックスの特性を活かした種々の部品に適用されている。このような接合構造体の破壊強度や寿命は接合過程で生じる両構成部材の熱膨張係数の差による熱残留応力に大いに影響を受ける。そこで、本章ではセラミックス/金属接合構造体である真空バルブ容器を実部品例のモデルとし、弾塑性FEM解析を用いて接合残留応力とその接合残留応力に及ぼす金属部材の材質・形状・寸法の影響を明らかにするとともに、強度検証として行う引張・圧縮試験のシミュレーション解析を行った。真空バルブ容器の各種類をFig.6-1に示す。通常、セラミックス接合の技術開発では、強度試験の簡便さから JISR1604 の標準4点曲げ試験用の角棒突合せ接合試験片を用いて検討される。しかし、セラミックス/金属接合実部品と試験片の残留応力分布は違ふし、実部品と同じ方法で試験片を別に作製しても残留応力は異なり、また、試験片のレベルでも形状・寸法によって残留応力は異なるため、接合実部品に対して、接合プロセスにおける残留応力シミュレーションや接合強度検証が必要だと考えられる。



Fig.6-1 vacuum interrupter with various types

## 第2節 接合残留応力に及ぼす真空バルブ構造諸元の影響

### 6.2.1 真空シール端板の材質・板厚の効果

真空バルブ容器の概略図を Fig. 6-2 に示す。実部品の寸法に基づく Fig. 6-3 に示す解析モデルを作成した。アルミナ径  $D=44\text{mm}$ ，銅軸径  $d=14\text{mm}$  において，銅シール端板（斜線部）の板厚  $t$  を 0.1, 1, 2, 3, 10mm の 5 種類に変え，軸対称モデルとして解析した。解析温度条件はろう材の熔融温度（ $830^{\circ}\text{C}$ ）から室温（ $20^{\circ}\text{C}$ ）までである。なお，シール端板とアルミナ円筒の両部材に厚さが  $20\mu\text{m}$  のろう材を付けている。次に，端板の材質を SUS304 に変え，板厚  $t$  を 0.1, 0.5, 0.75, 1.5, 2, 5, 10mm の 7 種類にして，端板の材質・厚さが接合残留応力への影響を検討した。それらの解析結果はすべてのモデルに対して，残留応力の最大値がろう材とアルミナの界面からアルミナ側に少しずれた点に現れる。残留応力分布のコンター図を Fig. 6-4 に示す。外形表面から中心方向への残留応力分布を Fig. 6-5, 6 に，板厚と最大残留応力の関係を Fig. 6-7 に示す。変形図を Fig. 6-8, 9, 10, 11 に示す。

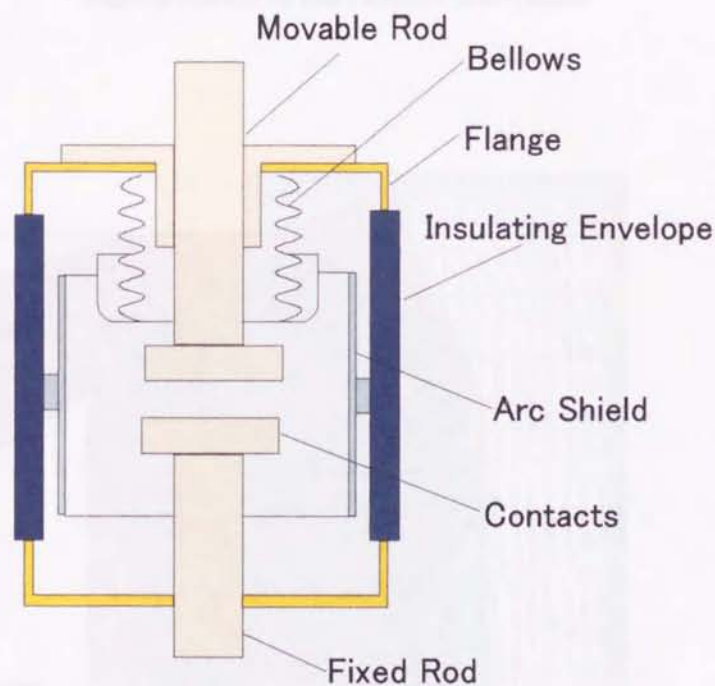


Fig.6-2 Diagram of a vacuum interrupter



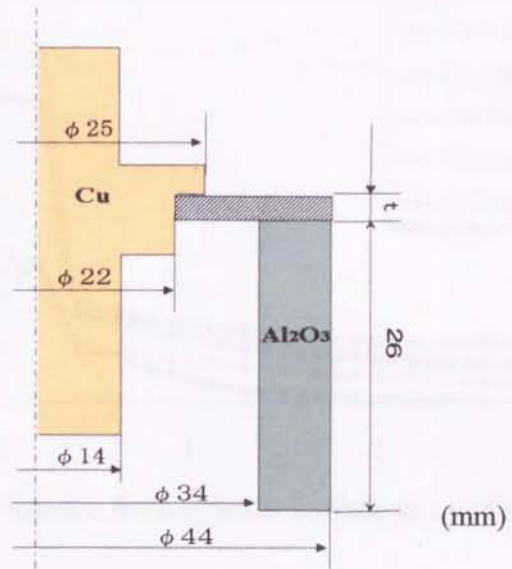


Fig.6-3 Model of the vacuum interrupter

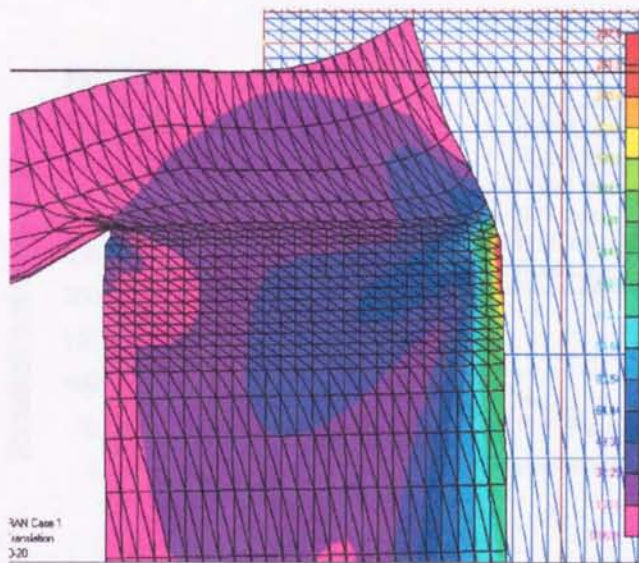
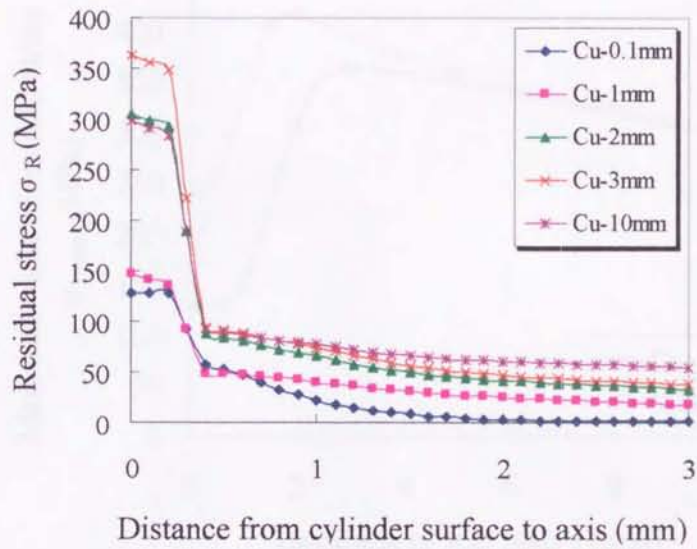
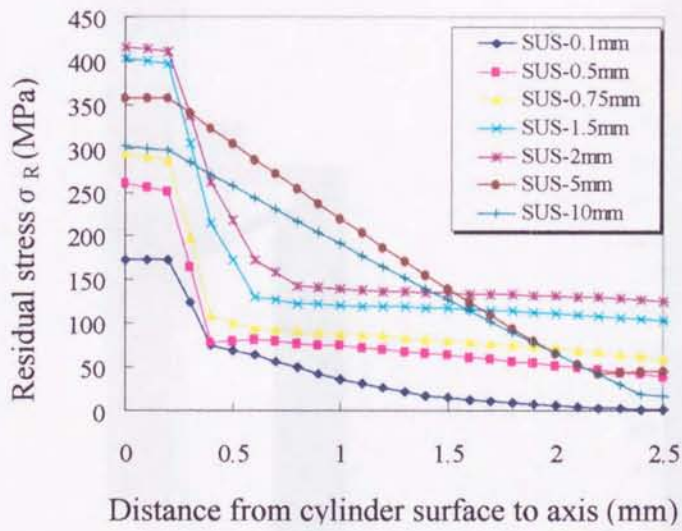


Fig.6-4 Contour diagram of residual stress  
 ( $t_{Cu} = 2\text{mm}$ )

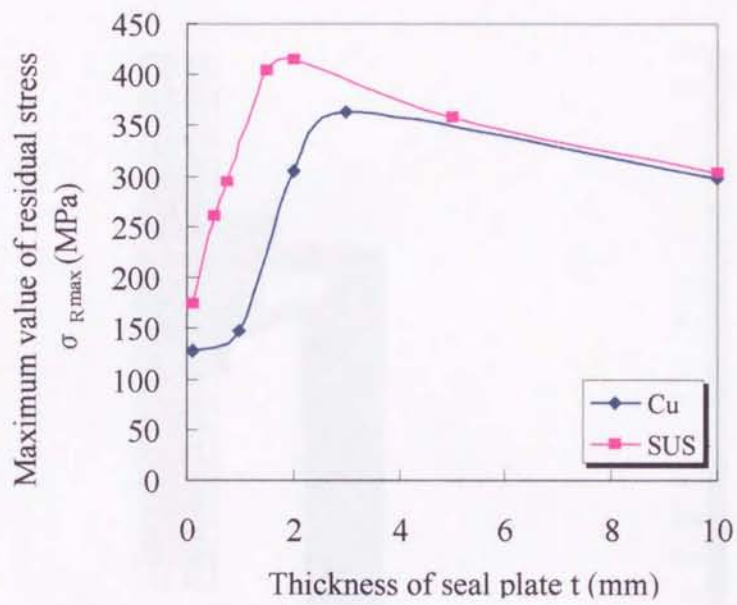


**Fig.6-5 Residual stress distribution with various seal plates in thickness (Cu)**

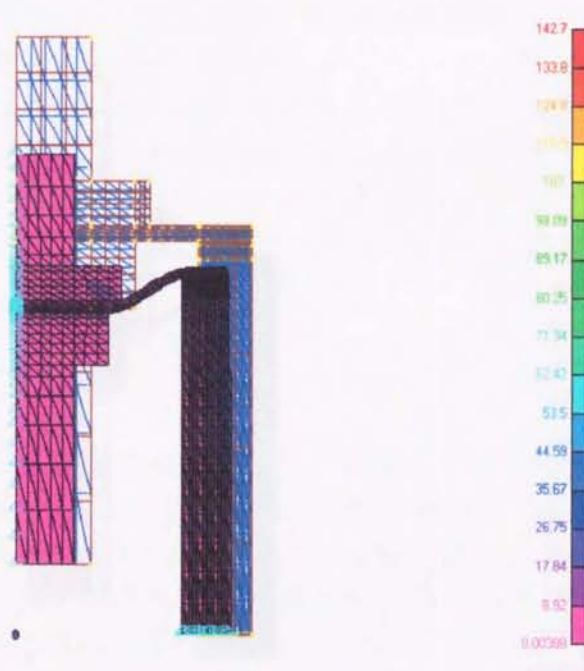


**Fig.6-6 Residual stress distribution with various seal plates in thickness (SUS304)**





**Fig.6-7 Relation between maximum value of residual stress  $\sigma_{Rmax}$  and thickness of seal plate  $t$**



**Fig.6-8 Deform diagram ( $t_{Cu}=1mm$ )**

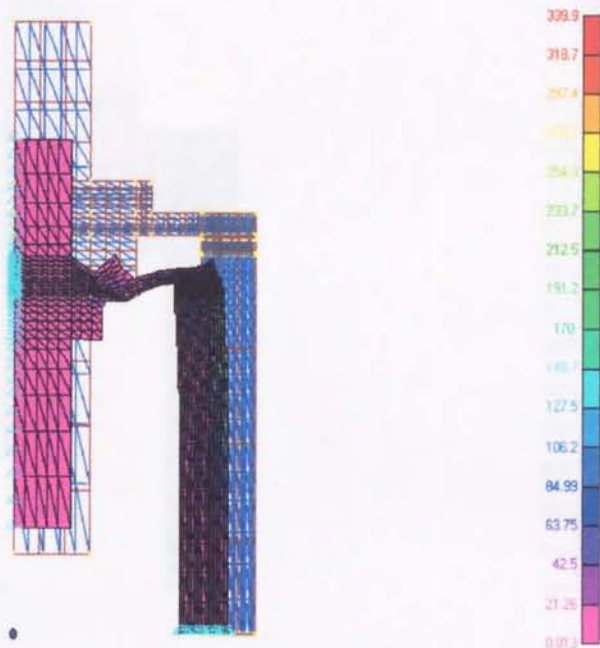


Fig.6- 9 Deform diagram ( $t_{sus}=1mm$ )

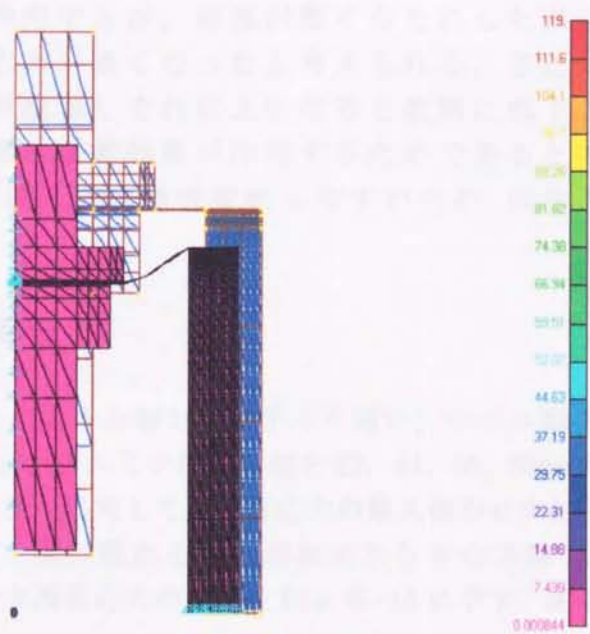


Fig.6-10 Deform diagram ( $t_{cu}=0.1mm$ )



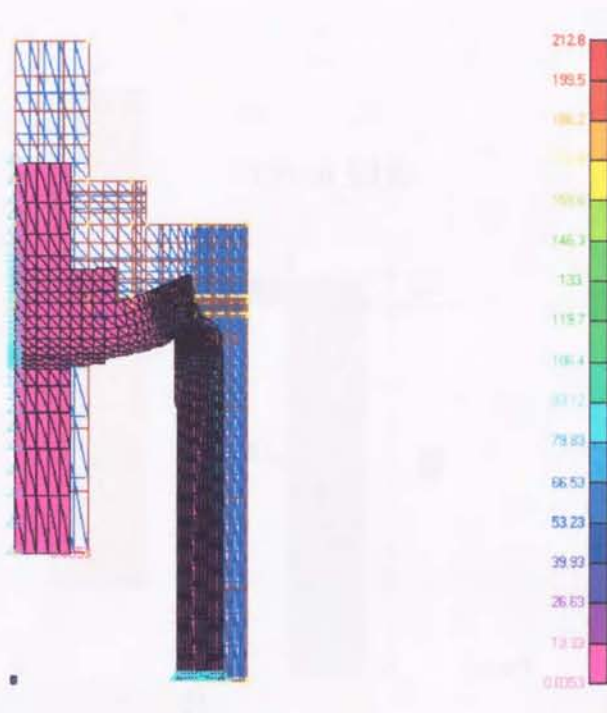


Fig.6-11 Deform diagram ( $t_{Cu}=5mm$ )

これらにより，シール端板の板厚が厚くなれば残留応力増加する傾向があり，板厚  $t_{Cu}=3$  (mm)， $t_{SUS304}=2$  (mm) 最大残留応力が発生し，その以上になると次第に低下することが分かる．これらは，接合冷却過程において金属端板は中心方向に収縮する力が作用するが，板厚が厚くなるにしたがい収縮力が増加するため，発生する残留応力が高くなったと考えられる．また，残留応力が最大となる付近で残留応力が飽和しそれ以上になると次第に低下していくのは，収縮力の増加以上に，金属の緩衝効果が作用するためであると考えられる．銅シール材は SUS304 シール材により塑性変形しやすいため，接合残留応力が低減させることもわかる．

### 6.2.2 アルミナ円筒径の影響

解析モデルは Fig.6-12 のような軸対称モデルを用い，シール端板の板厚を固定して (銅：2mm，SUS304：0.75mm)，アルミナ円筒外径を 22，44，66，88mm の 4 種類に変化させる．解析結果はすべてのモデルに対して，残留応力の最大値がロウ材とアルミナの界面からアルミナ側に少しずれた点に現れる．外形表面から中心方向への残留応力分布を Fig.6-13，14 に，板厚と最大残留応力の関係を Fig.6-15 に示す．変形図を Fig.6-16，17 に示す．

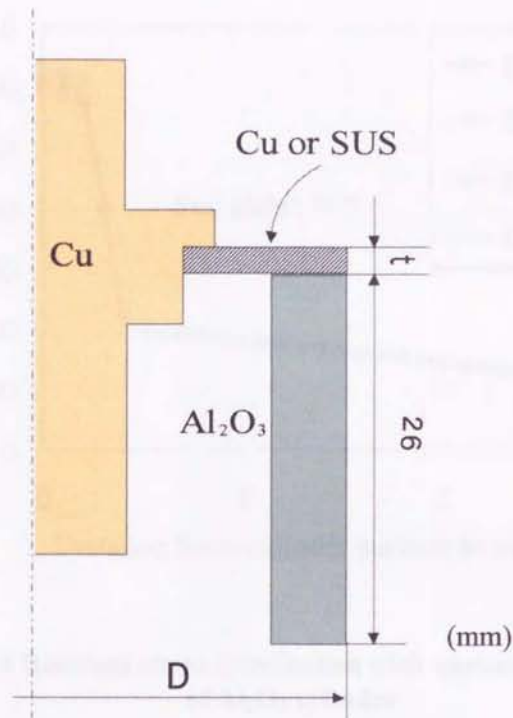


Fig.6-12 Analysis model fixed the dimensions of electrode and seal plate

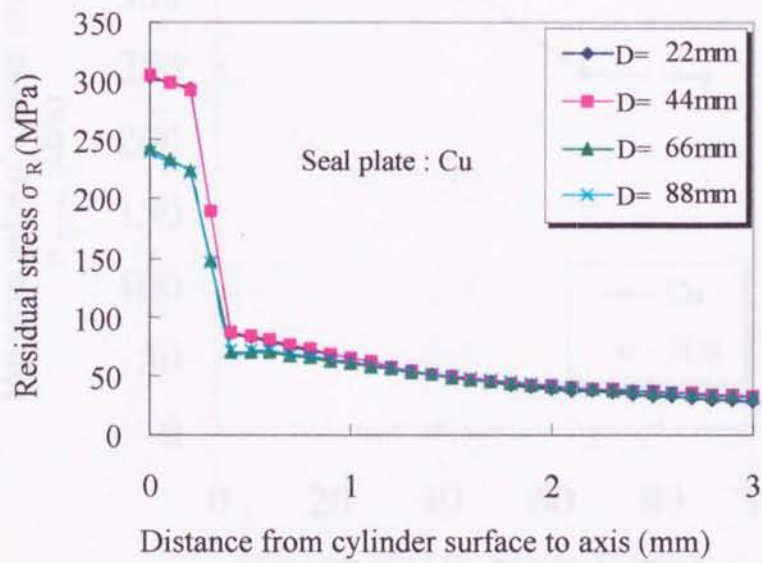


Fig.6-13 Residual stress distribution with various diameters of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> cylinder



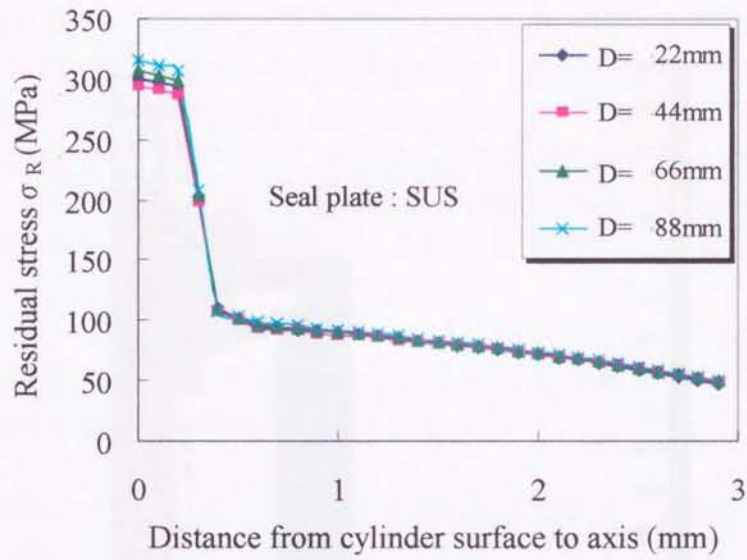


Fig.6-14 Residual stress distribution with various diameters of  $Al_2O_3$  cylinder

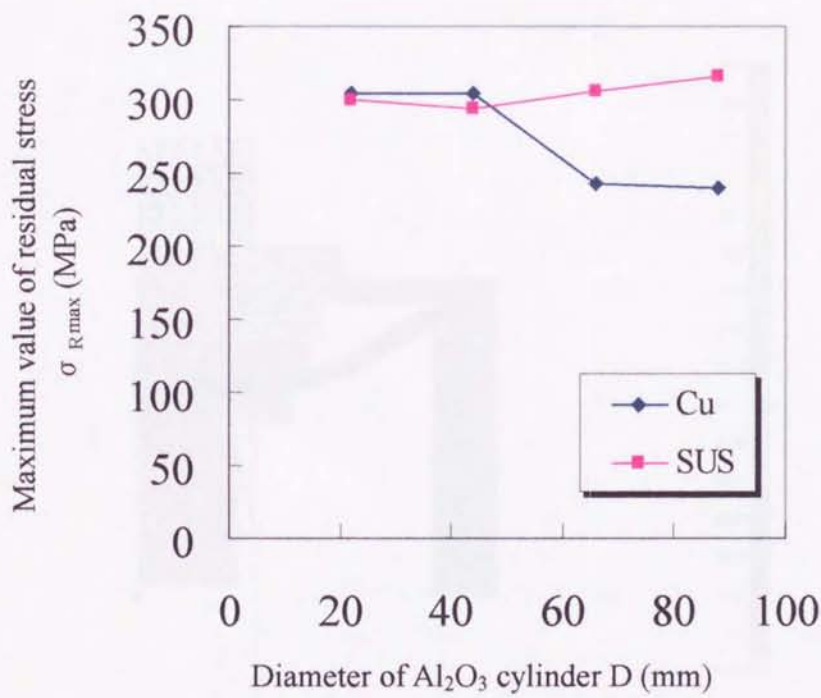


Fig.6-15 Relation between maximum value of residual stress and diameter of  $Al_2O_3$  cylinder

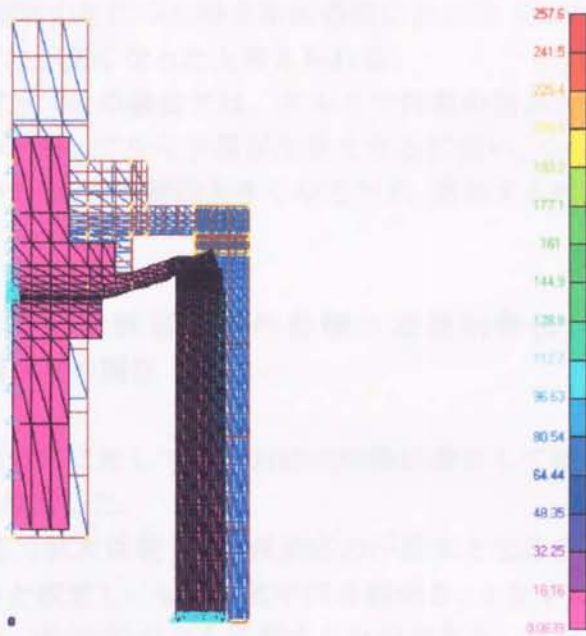


Fig.6-16 Deform diagram (D=4 mm,  $t_{Cu}=2mm$ )

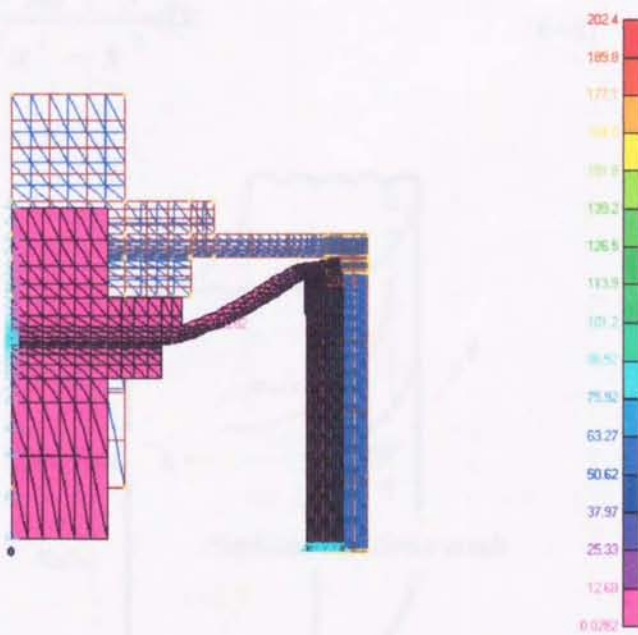


Fig.6-16 Deform diagram (D=88mm,  $t_{Cu}=2mm$ )



これらより、シール端板の材質が SUS304 の場合では、アルミナ円筒の径が大きくなれば、残留応力がほぼ比例的に増大することが分かる。これは、アルミナ径が大きくなるに従い、SUS304 端板の径が増加するにつれ接合冷却過程において SUS304 の収縮力が大きくなるため、発生する残留応力が高くなったと考えられる。

一方、シール端板の材質が Cu の場合では、アルミナ円筒の径が大きくなれば、残留応力が低下していることがわかる。アルミナ径が大きくなるに従い、Cu 端板の径が増加するにつれ接合冷却過程において Cu の変形が大きくなるため、発生する残留応力が低くなったと考えられる。

### 6.2.3 接合構造強度に及ぼす残留応力の影響の定量的評価

#### 1. 応力拡大係数と半円き裂長さの関係

次に、これらの残留応力分布に対して、応力拡大係数に着目して接合構造強度に及ぼす残留応力の影響を定量的に検討した。

Fig. 6-18 に示すように応力拡大係数  $K_I$  は、残留応力が最大となる位置に破壊の起点となりうる潜在欠陥が存在すると仮定し、 $a$  を表面半円き裂長さ、 $x$  を半径方向距離、 $\sigma_{Req}(x)$  を残留応力分布とした場合、式(6-8)のように表すことができる。

$$\begin{aligned}
 K_I &= \sqrt{\frac{a}{\pi}} \int_{-a}^a \frac{\sigma_{Req}(x)}{\sqrt{c^2 - x^2}} dx \\
 &= 2 \sqrt{\frac{a}{\pi}} \int_0^a \frac{\sigma_{Req}(x)}{\sqrt{a^2 - x^2}} dx
 \end{aligned}
 \tag{6-8}$$

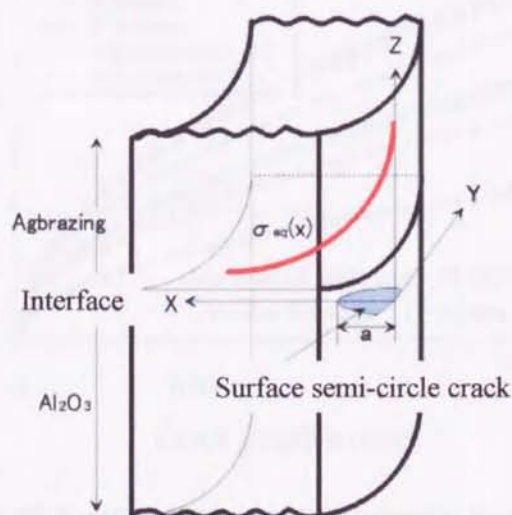


Fig.6-18 Position of a surface semi-circle crack

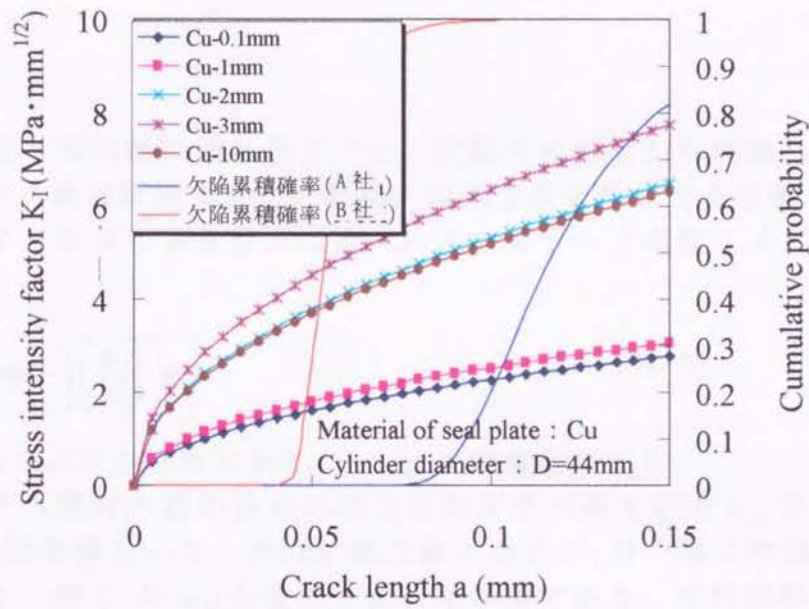


Fig.6-19 Relation between stress intensity factor  $K_I$  and crack length  $a$

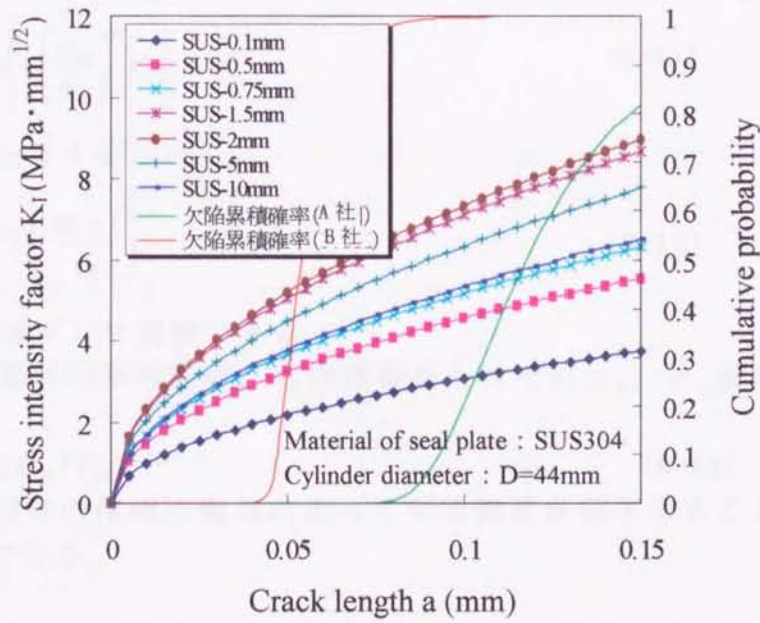


Fig.6-20 Relation between stress intensity factor  $K_I$  and crack length  $a$



アルミナ円筒の外径  $D$  ( $D=44\text{mm}$ ) を固定し、各シール端板の材質・板厚における応力拡大係数  $K_1$  と半円き裂長さ  $a$  の関係を Fig. 6-19, 20 に示す。

## 2. 有効体積

本論文の第 1 章緒論に述べたように、試験片の強度から実部品の強度を相対評価できるが、絶対評価できないため、体積効果を考慮する必要がある。

セラミックス部材の強度分布は次式に示すように 2 母数ワイブル分布で表せる。

$$P(\sigma) = 1 - \exp\left\{-\int_v \left(\frac{\sigma}{\sigma_0}\right)^m dv\right\} \quad (6-9)$$

ここで、 $m$  はワイブル係数であり、 $\sigma_0$  は尺度母数である。

セラミックス部材内部の各点の応力を部材中の最大応力  $\sigma_m$  で基準化し、次式の  $V_e$  を有効体積という。有効体積は最大応力  $\sigma_m$  が一様に作用する状態で置き換えたとき、同じ  $P(\sigma)$  を生ずるような体積である、当然実際の部材の体積より小さい。

$$V_e = \int_v \left(\frac{\sigma}{\sigma_m}\right)^m dV \quad (6-10)$$

これより式 (6-9) は次式となる。

$$P(\sigma) = 1 - \exp\left\{-\left(\frac{\sigma_m}{\sigma_0}\right)^m V_e\right\} \quad (6-11)$$

平均強度を  $\mu$  とすると

$$\mu = \sigma_0 V_e^{-1/m} \Gamma\left(\frac{m+1}{m}\right) \quad (6-12)$$

ここで、 $\Gamma(\cdot)$  はガンマ関数である。

ある 2 つの部材の平均強度、有効体積をそれぞれ  $\sigma_1$ 、 $\sigma_2$  及び  $V_{e1}$ 、 $V_{e2}$  とすると、

$$\sigma_2 / \sigma_1 = (V_{e1} / V_{e2})^{1/m} \quad (6-13)$$

これより、部材の体積の増加によって平均強度が低下することを定量的に推定することができる。

## 3. 代表欠陥サイズの推定

強度分布特性 (平均値  $\mu$ 、標準偏差  $\delta$ ) の異なる 2 種類のアルミナ接合試験片に対する JIS R 1622 に準拠し 4 点曲げ試験を行い、得られた試験結果を表 1 に示す。

Table.6-1 Distribution properties of 4 point bending strength for Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> joint specimens

材料	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (A社製)	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (B社製)
強度分布の平均値 $\mu$ (MPa)	300.255	380.793
強度分布の標準偏差 $\delta$ (MPa)	34.53	25.66
破壊靱性値 $K_I$ (MPa $\cdot$ mm <sup>1/2</sup> )	4.14	3.38

この4点曲げ強度分布は次式のような2母数ワイブル分布関数で表せる。

$$P(x) = 1 - \exp\left\{-\left(\frac{x}{\beta}\right)^m\right\} \quad (6-14)$$

$m$  を形状母数あるいはワイブル係数、 $\beta$  を尺度母数という。 $m$  は無次元量で、 $\beta$  は変量  $x$  と同じ次元をもつ。

確率密度関数  $f(x) = dP(x)/dx$  は

$$f(x) = \frac{m}{\beta} \left(\frac{x}{\beta}\right)^{m-1} \exp\left\{-\left(\frac{x}{\beta}\right)^m\right\} \quad (6-15)$$

となる。ワイブル分布の平均値  $\mu$  は

$$\mu = \int_0^{\infty} x f(x) dx = \beta \cdot \Gamma\left(1 + \frac{1}{m}\right) \quad (6-16)$$

となる。ここで、 $\Gamma(\ )$  はガンマ関数である。

ワイブル分布では、尺度母数  $\beta$  も分布の代表値として用いられる。式(6-14)より、 $P(\beta) = 1 - e^{-1} = 0.632$  であるから、 $\beta$  は累積確率 63.2% に対するパーセント点である。

次に分散  $\delta^2$  を求めると

$$\delta^2 = \int_0^{\infty} (x - \mu)^2 f(x) dx = \beta^2 \left[ \Gamma\left(1 + \frac{2}{m}\right) - \left\{ \Gamma\left(1 + \frac{1}{m}\right) \right\}^2 \right] \quad (6-17)$$

となる。したがって変動係数  $\eta$  は

$$\eta = \frac{\delta}{\mu} = \left[ \frac{\Gamma(1 + 2/m)}{\left\{ \Gamma(1 + 1/m) \right\}^2} - 1 \right]^{1/2} \quad (6-18)$$

となる。これからわかるように、 $\eta$  は  $m$  のみの関数で、 $m$  が増すほど  $\eta$  は小さくなる。 $1 \leq m \leq 50$  (セラミックスのワイブル係数は  $m = 10 \sim 15$  が多い) の範囲では

$$\eta \cong m^{-0.93} \quad (6-19)$$



で近似できる(参考文献)。この近似式の相対誤差は、 $1 \leq m \leq 50$ の範囲では最大3%である。

式(6-18)と式(6-19)により  $m$  求められる

$$m = (\mu/\delta)^{(1/0.93)} \quad (6-20)$$

式(6-17)から尺度母数推定値  $\beta$  を次式に示すように求められる。

$$\beta = \delta / \sqrt{\Gamma(1+2/m) - (\Gamma(1+1/m))^2} \quad (6-21)$$

この尺度母数推定値に基づいて信頼水準  $(1-\alpha)$  を考慮し尺度母数の揺らぎ区間を次式で推定できる。

$$\beta_0 = \beta \left\{ \frac{2k}{\chi^2(2k, 1-\alpha)} \right\}^{1/m} \quad (6-22)$$

ここで、 $k$  は標本数であり、 $\gamma$  は危険率である。 $\chi^2(\Phi, 1-\alpha)$  分布におけるパーセント点  $\chi^2$  の求め方を次のように述べる。

$$1-\gamma = 1 - \left( \frac{\chi^2}{2} \right)^{\Phi/2} \frac{\exp(-\chi^2/2)}{\Gamma(1+\Phi/2)} \left( \sum_{j=1}^{\infty} \frac{\Phi(\Phi-2)(\Phi-4)\dots\Phi(\Phi-2(j-1))}{(\chi^2)^j} \right) \quad (6-23)$$

ここで、自由度  $\Phi$  を与え、Newton-Raphson 法により  $\alpha$  に対応する  $\chi^2$  の値を求める。なお、 $\Gamma(1+\Phi/2)$  は先に求める。

セラミックス内部に潜在し破壊靱性値に達した代表欠陥サイズ  $a$  を次式により推定できる。

$$a = \frac{1}{\pi} \left( \frac{K_{IC}}{\phi\beta_0} \right)^2 \quad (6-24)$$

ここで、 $K_{IC}$  はセラミックスの破壊靱性値であり、 $\phi$  は形状係数である。4点曲げ試験から求めた代表欠陥サイズを Table 6-2 に示す。

Fig. 6-21, 22, 23, 24 は応力拡大係数のき裂長さを代表欠陥寸法として計算したもので、応力拡大係数が破壊靱性値を超えたときその板厚で破壊することが推定できる。

Table 6-2 Size of typical flaw  $a$  (mm)

材料	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (A社製)	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (B社製)
代表欠陥サイズ $a$ ( $\mu\text{m}$ )	109	51.6

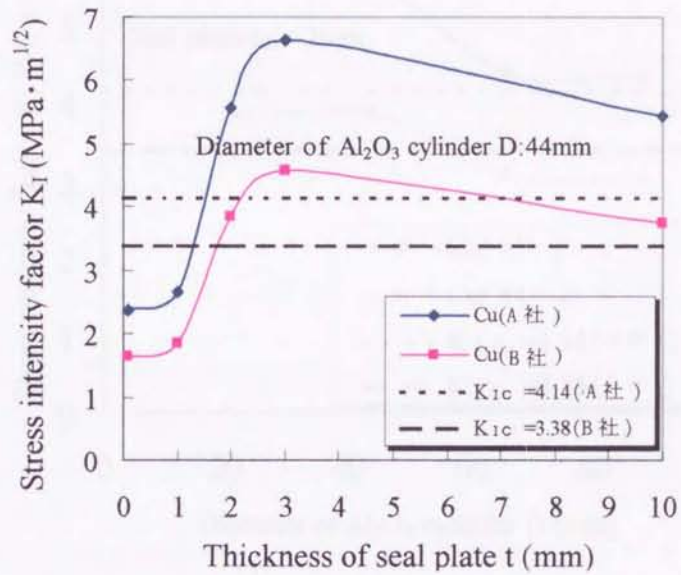


Fig.6-21 Relation between stress intensity factor of typical flaw and thickness of seal plate (Cu)

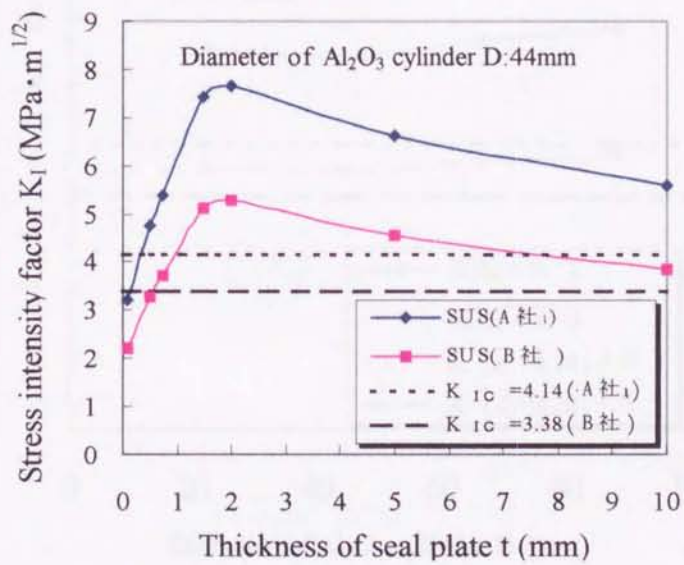


Fig.6-22 Relation between stress intensity factor of typical flaw and thickness of seal plate (SUS304)



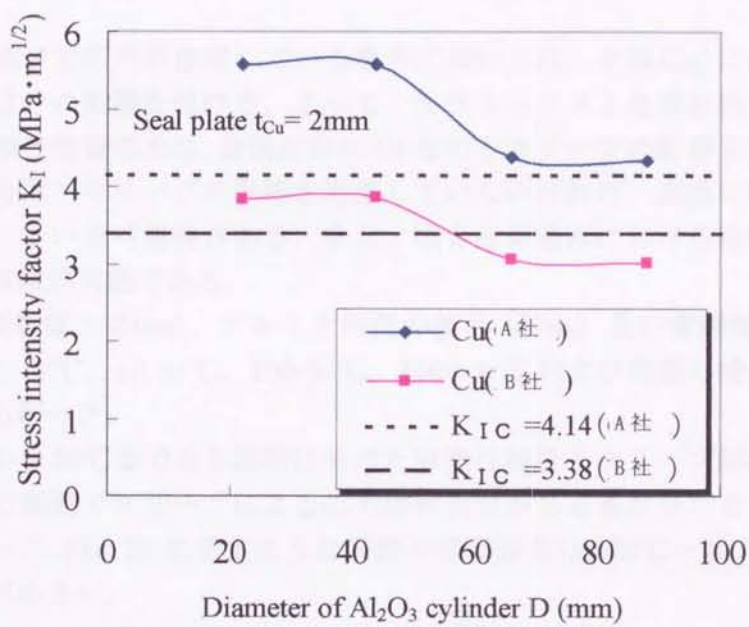


Fig.6-23 Relation between stress intensity factor  $K_I$  and diameter of  $Al_2O_3$  cylinder

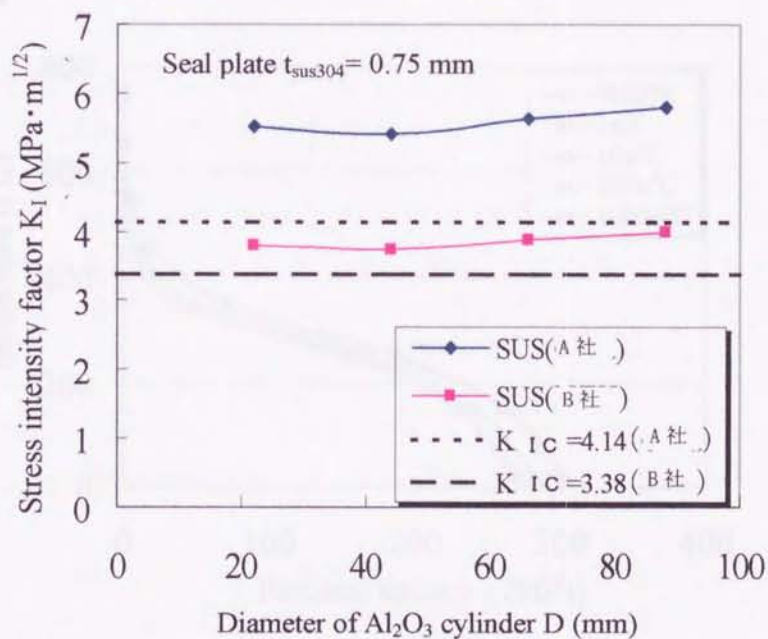


Fig.6-24 Relation between stress intensity factor  $K_I$  and diameter of  $Al_2O_3$  cylinder

### 第3節 接合冷却過程での冷却効果における検討

一般に、高温状態中で応力が作用している場合においては、金属(Cu)にはクリープ現象が起こり、構造体はその影響を受ける。よって、セラミックスと金属材料の接合冷却過程において発生する接合残留応力は、金属材料にCuなどのクリープの影響を強く受ける材料を使用している場合は、クリープの影響を考慮していないければ、実際に発生する残留応力よりも過大評価している可能性がある。また、接合冷却過程における冷却速度を制御すれば、残留応力の低減が可能である。

そこで、Cu 円板板厚  $t=2(\text{mm})$ 、アルミナ円筒の径  $D=44(\text{mm})$  及び電極軸径  $d=14\text{mm}$  において、冷却速度を  $1 \text{ S}/^\circ\text{C}$ 、 $10 \text{ S}/^\circ\text{C}$ 、 $100 \text{ S}/^\circ\text{C}$ 、 $1000 \text{ S}/^\circ\text{C}$  および実際の接合時における冷却速度による解析も行った。

Fig. 25 は  $830^\circ\text{C}$  から  $20^\circ\text{C}$  までを8段階に分けた弾塑性解析とクリープ解析の結果である。 $550^\circ\text{C} \sim 350^\circ\text{C}$  までの範囲でクリープによる応力緩和効果がある事が分かる。 $350^\circ\text{C}$  以下のクリープ効果は無かった。Fig. 26 に示すような実際の冷却速度は  $550^\circ\text{C} \sim 450^\circ\text{C}$  の冷却速度が速いので応力緩和が小さい。

標準接合過程での冷却速度の場合に比べて冷却温度制御の適用により残留応力を低減できることがわかった<sup>5)</sup>。また、このような冷却プロセス制御を考慮することにより、セラミックス/金属接合構造に対して多面的な最適化の検討が大いに期待できる。

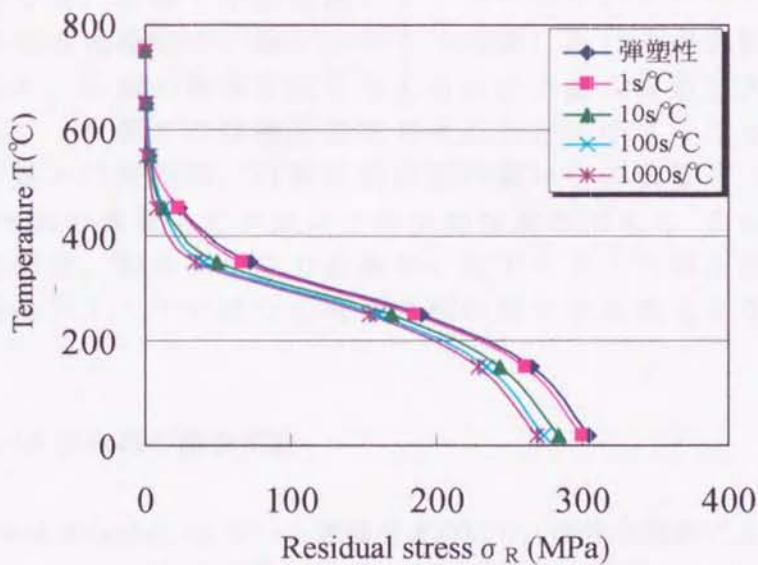


Fig.6-25 Effect of cooling rate on residual stress



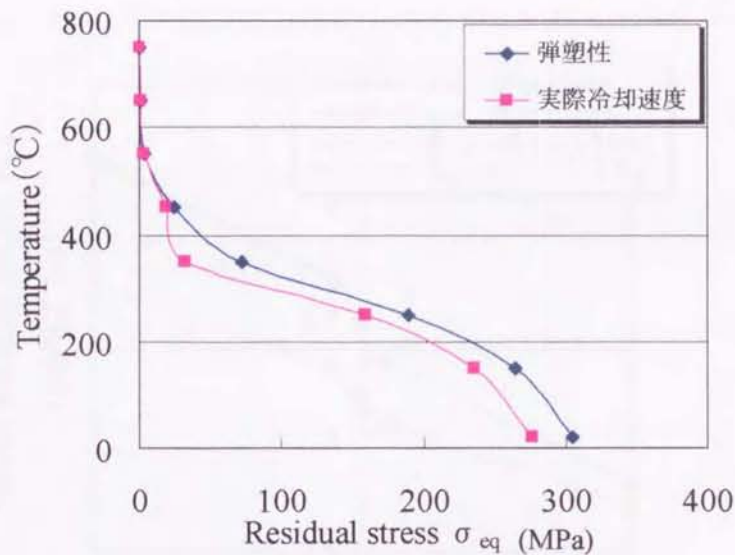


Fig.6-26 Effect of practical cooling rate on stress relaxation

#### 第4節 引張・圧縮試験解析による接合強度検証

強度検証試験における破壊強度を検討するならば、その試験による負荷応力と残留応力との重畳応力、またその重畳応力分布の応力場における潜在欠陥回りの応力拡大係数に着目する必要がある。そこで、Fig.6-4 のモデルの軸上端に強制変位を与え、引張・圧縮試験シミュレーションを行った。Fig.6-7 はアルミナ円筒外部の重畳応力が最大となる応力場における応力拡大係数と強制変位の関係であり、圧縮の強制変位を与えると応力拡大係数は大きくなり破壊靱性値を超えるが、引張りの強制変位を与えると逆に小さくなる。Fig.6-8 は、引張試験の荷重と円筒内部、円筒外部表面の銀ロウの重畳応力の関係を示したもので、円筒内部の重畳応力が銀ロウの引張強度を超える。これらのことより、圧縮試験の破壊は、接合残留応力の高かったアルミナ円筒外部を起点とし、引張試験の破壊はアルミナではなく円筒内部の銀ロウを起点となることが推定できる。

#### 第5節 真空バルブ容器の接合実験

アルミナ径  $D=44$  (mm) に Cu シール端板を  $830^{\circ}\text{C}$  で、活性金属法により接合した。Cu 円盤板厚  $t$  を  $2$  mm の 4 つで接合実験を行った。接合割れの写真を Fig. 29 に示す。その結果、いずれの場合においても炉から取り出したところ、接合冷却過程で熱応力破壊を引き起こした。その破壊形態はいずれも類似しており、セラミックスとロウ材接合界面において、セラミックス側で破断した。

これらの結果から、いずれの場合においても、接合冷却過程において、クリティカルポイントにおいて、接合残留応力により潜在欠陥にはたらく応力拡大係数が破壊靱性値に達

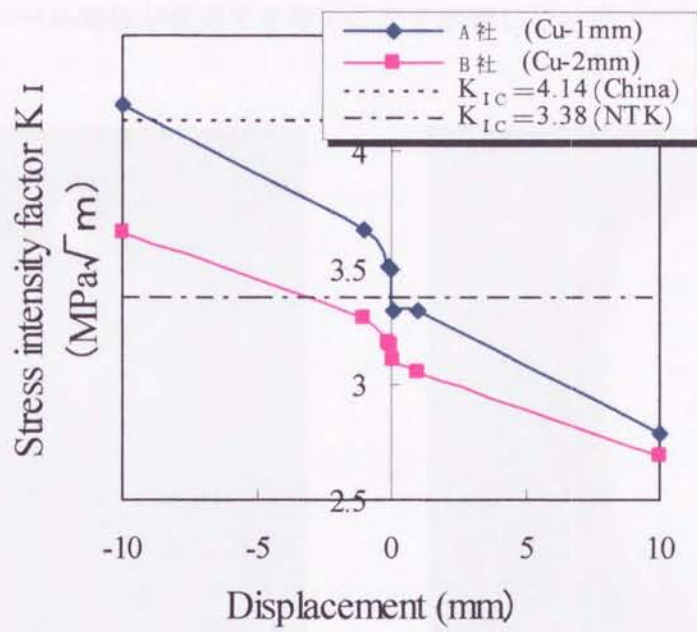


Fig.6-27 Relation between displacement and stress intensity factor

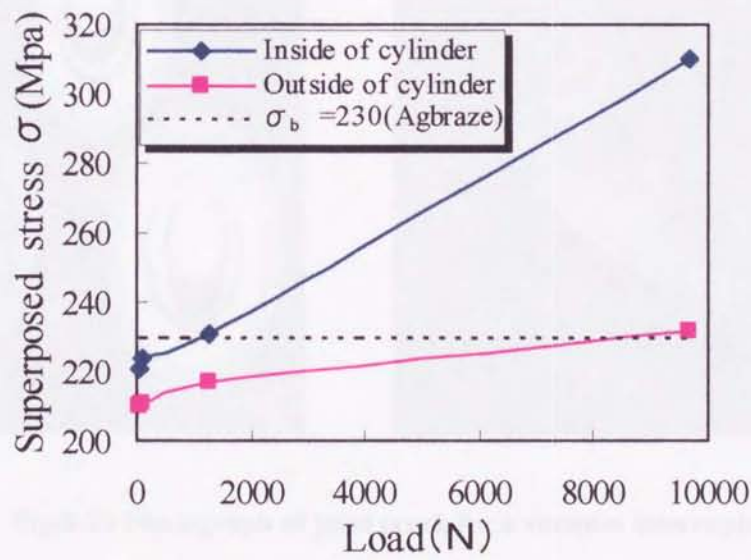


Fig.6-28 Relation between Load and Superposed stress on tensile

し熱応力破壊したと考えられる。



これらより、接合実験および残留応力解析の結果、本解析の妥当性が実験的に裏付けられ、2mmのCuシール端板が使用できないことを示唆している。



Fig.6-29 Photograph of joint crack for a vacuum interrupter

#### 第6節 結言

セラミックス/金属接合構造の最適設計において極めて重要である接合残留応力に対して、①接合冷却過程での発生挙動、②金属構成材の形状・寸法による応力緩和効果、③接合部材強度への影響などについて、破壊力学および信頼性工学の観点から言及した。要約

すると、下記のようになる。

1. セラミックス/金属接合構造体を評価するためには、残留応力を考慮する必要がある。また、セラミックス接合体強度は残留応力値のみでは評価できず、き裂近傍の応力場を考慮した応力拡大係数で評価しなければならない。

2. 構造体の寸法を検討し、その残留応力への影響のメカニズムを明らかにした。また、設計の最適化においては接合冷却過程の残留応力の影響だけでなく実機の使用条件を考慮しなければならない。

3. Cu などの接合冷却過程でのクリープ現象による残留応力緩和の影響を受けやすい材料を使用している場合は、クリープ現象の影響を考慮した解析を行う必要があり、接合冷却速度を制御することにより、残留応力を低減することができ、構造体強度を向上させることができる。

4. 本研究に使用した真空バルブの強度評価の場合、セラミックスにおける接合冷却過程の残留応力が支配的となる強度検証試験としては圧縮試験が適している。



## 第7章 DBC法による半導体基板における接合強度についての検討

### 第1節 緒言

現在、産業用機器に用いられている半導体部品の大電力化、高集積化、モジュール化などに伴って、半導体デバイス内での消費電力が増大している。その発生熱の放散に優れたAlNセラミックスを考慮して開発・実用化されているのがAlN-DBC基板である。このAlN-DBC基板は、DBC法によりAlNセラミックスとCuを接合したものである。DBC法とは、温度を約1050℃の温度雰囲気中で酸素濃度をコントロールした雰囲気中で、Cu接合面にCu-O共晶液相を生成させ、この液相をAlN表面のAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>層にぬらし、次いで常温まで冷却することにより、ろう材なしに銅とAlN基板とを直接接合する方法である。この場合、接合温度からの冷却過程において熱膨張係数の差により発生する熱応力による製造プロセスでの破壊、その熱応力が残留応力としてセラミックス界面に生じた場合の実使用条件下での熱サイクル応力によるセラミックスの遅れ破壊やその保証試験における残留応力の影響などが問題となる。

本研究ではDBC半導体基板におけるセラミックスの破壊強度に大きな影響を及ぼす接合残留応力に着目した強度評価を検討する。そこで、発生機構を念頭においた接合残留応力の低減、ならびにAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>層における潜在欠陥に着目した破壊力学に基づく破壊確率論的強度解析を行い、一次製造・設計評価のみならず長期供用信頼性評価に有益な強度評価法を確立するための基礎研究を行った。また、実際のDBC半導体基板の寸法での試験片に対して4点曲げ試験・静疲労試験を行い、破断における最大重畳応力での応力値評価、ならびに応力拡大係数評価を行った。

### 第2節 実験および解析方法

#### 7.2.1 DBC半導体基板および半導体モジュール

Fig. 7-1 に標準的なDBC半導体基板と半導体モジュールの写真を示す。DBC半導体基板は、薄板AlN基板上にCu回路板をDBC法によって直接接合したものである。主な特長としては、高放熱性、高電気絶縁性、優れたハンダ付け性、ボンディング性、小型高実装化が可能、大電流を流すことが可能、などがある。このようなことから、DBC半導体基板は大電力用半導体モジュールとして最適で、従来の基板のような複雑な構造を必要とせず、半導体の放熱および絶縁機能を発揮している。

#### 7.2.2 試験片・実験装置・実験方法

試験片は、DBC半導体基板の基材である薄板AlN (φ0.8×φ10×L40) 基板試験片と、その薄板AlN基板にDBC法による厚さ0.3mmの銅板を両面に接合したDBC半導体基板試験片を用いた。試験片の写真を図. 7-2 に、形状および寸法を図. 7-3 に示す。AlNセラミック

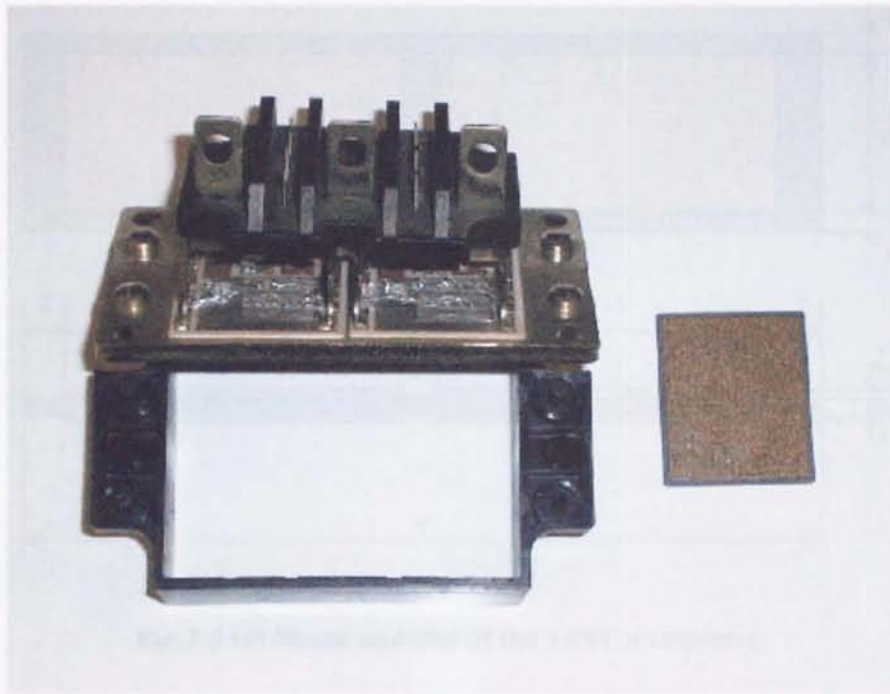


Fig.7-1 semi-conductor substrate and module jointed by DBC method

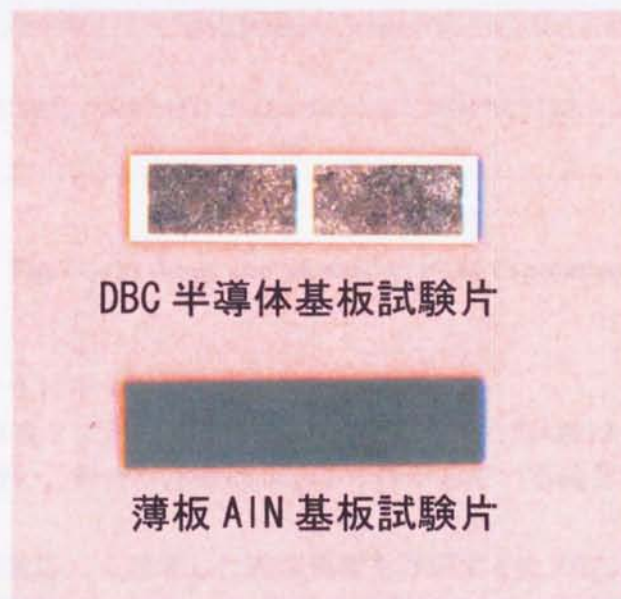


Fig.7-2 specimen of AlN/Cu semi-conductor substrate and AlN substrate



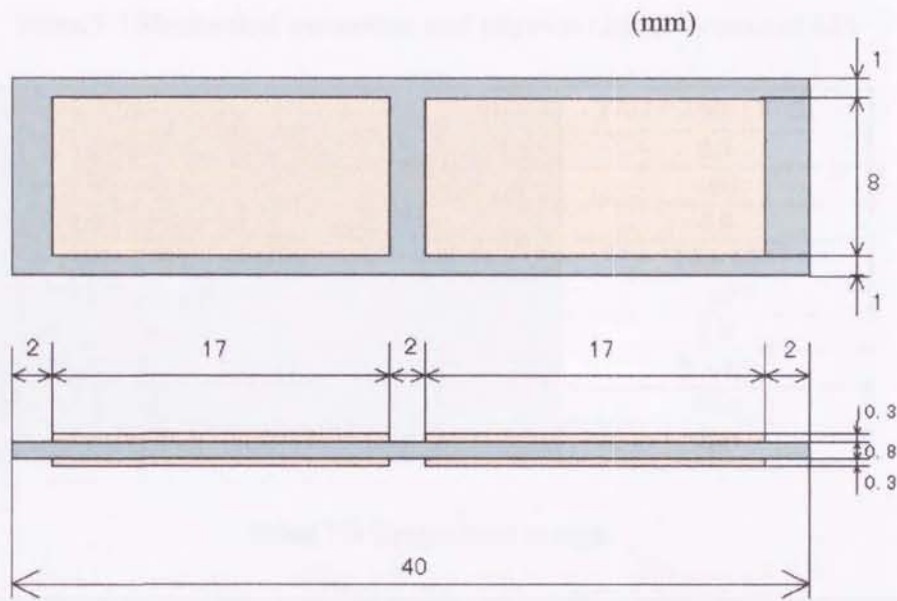


Fig.7-3 (a) Shape and size of the AlN/Cu specimen

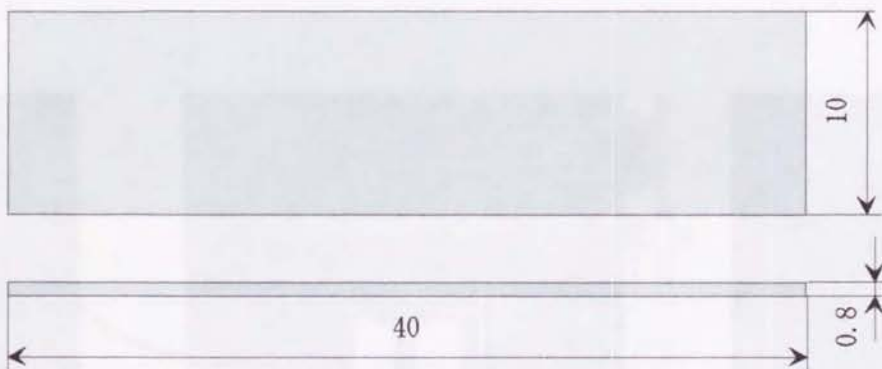


Fig.7-3 (b) shape and dimension of AlN specimen

スの特性値を Table. 7-1 に示す.

実験に用いた装置は表 2 に示す. 各試験片における 4 曲げ試験は Fig. 7-4 に示す電子式万能試験機を用いて行い, 静疲労試験は Fig. 7-5 に示している独自に作製した試験機を用いて行った.

DBC 半導体基板の残留応力を考慮した破壊強度を評価するために, DBC 半導体基板試験片に対して, 下部支点間距離を 30mm, 上部荷重点間距離を 10mm とした 4 点曲げ試験を常温大気中にて行った. また, DBC 半導体基板の基材である薄板 AlN 基板に対しても同様の条件の基で 4 点曲げ試験を行った.

基材である薄板 AlN に対する寿命評価として, 一定荷重保持の 4 点曲げ試験により静疲労試験を行った. 試験片概略図を Fig. 7-6 に示す.

**Table.7-2 Mechanical properties and physical characteristics of AlN**

名称・規格	TAN-160 (東芝)
密度 (g/cm <sup>3</sup> )	3.3
熱伝導率 (W/mk)	160
熱膨張係数 RT~500℃ (×10 <sup>-6</sup> /°C)	4.6
絶縁耐力 50Hz (kV/mm)	14~15
体積固有抵抗 (Ω·m)	>10 <sup>12</sup>
誘電率 1MHz	8.8
誘電正接 1MHz (×10 <sup>-4</sup> )	5~10
曲げ強度 (MPa)	350
ヤング率 (GPa)	330

**Table.7-3 Device used to test**

装置	型式	メーカー
電子式万能試験機	CATY-1010Z	米倉製作所
デジタル型動ひずみ測定器	DRA-101C	東京測器研究所
ひずみゲージ	KFG-2-120-C1-11L3M3R	共和電業



**Fig.7-4 Electronic versatile tester**



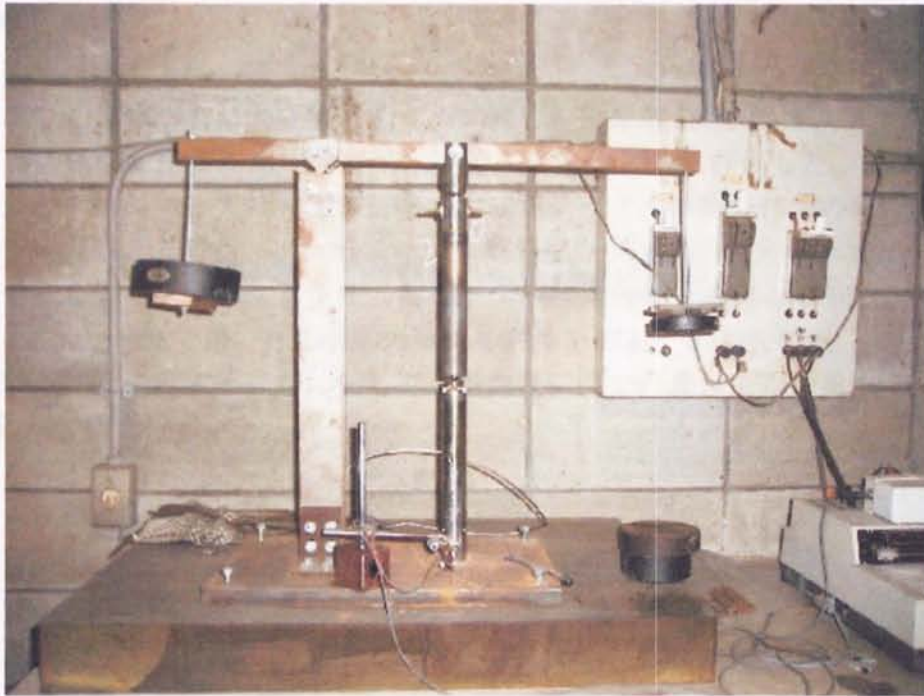


Fig.7-5 Static fatigue tester

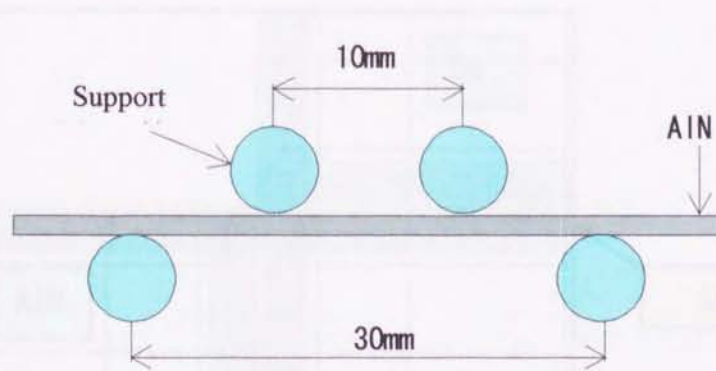
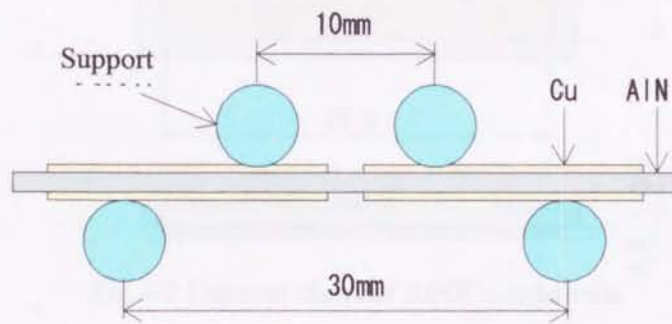


Fig.7-6 Concept chart of 4-point bending test and static fatigue test

### 7.2.3 解析方法

FEM を用いて残留応力および熱サイクル試験での残留応力の再配分に対する解析を行い、DBC 半導体基板に発生する熱応力挙動・残留応力を定量的に評価した。解析方法は、DBC 半導体基板モデルに対して接合冷却過程および熱サイクル試験条件での弾塑性解析を2次元平面ひずみ問題として行った。解析モデル概略図を Fig. 7-7 に示す。また、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  層を挿入している概略図を Fig. 7-8 に示す。解析モデルは対称性を考慮して DBC 基板の4分の1をモデルとした。FEM で用いた残留応力解析モデルを Fig. 7-9 に示す。

また、Fig. 7-10 に示すモデルに対して4点曲げ試験での最大破断荷重を与え FEM による4点曲げ試験解析を行った。

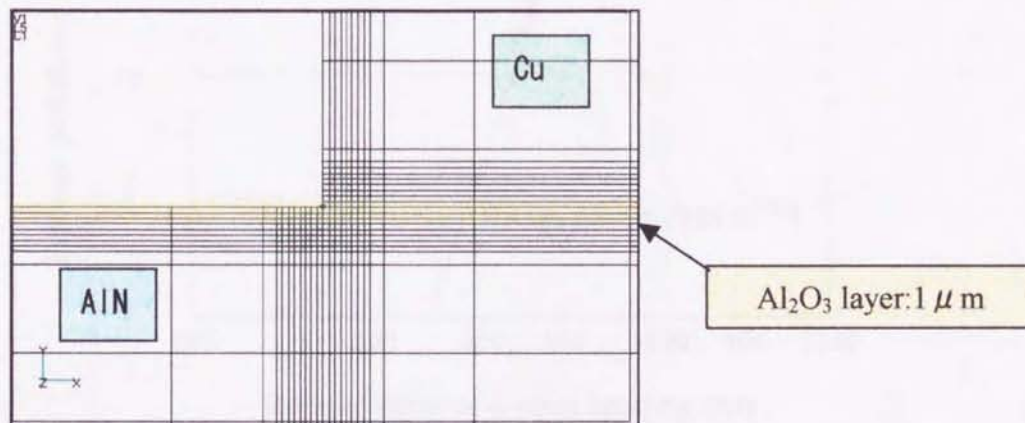
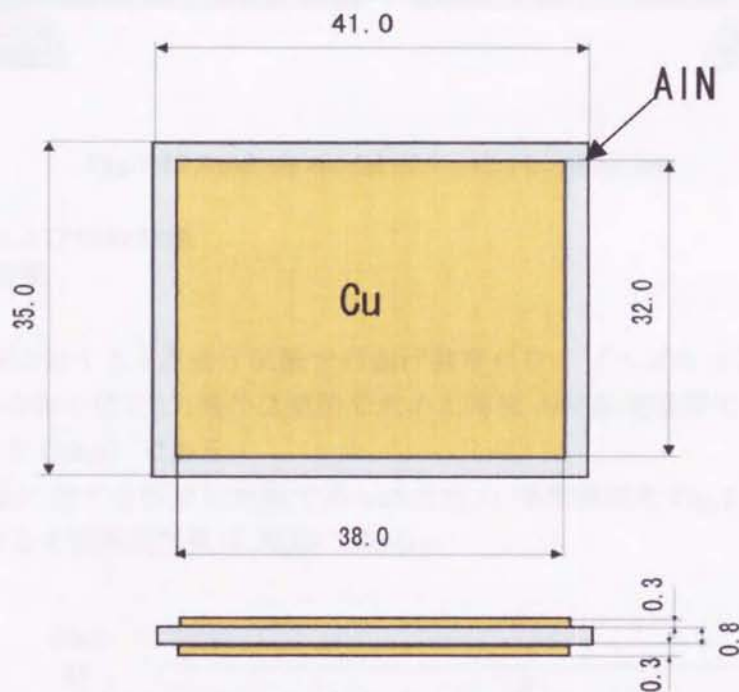






Fig.7-9 Analysis model of residual stress and thermal stress



Fig.7-10 Analysis model of 4-point bending test

### 第3節 実験および解析結果

#### 7.3.1 実験結果

薄板 AlN 基板に対する 4 点曲げ試験での曲げ強度のワイブルプロットを Fig.7-11 に示す。2 母数ワイブル分布を仮定し、最小 2 乗法で求めた薄板 AlN 基板強度のワイブル係数は 15.2、尺度母数は 384.8 (Mpa) である。

薄板 AlN 基板に対する静疲労試験で得られた応力-時間線図を Fig.7-12 に示す。この時の AlN 基板におけるき裂進展指数は 90.09 である。

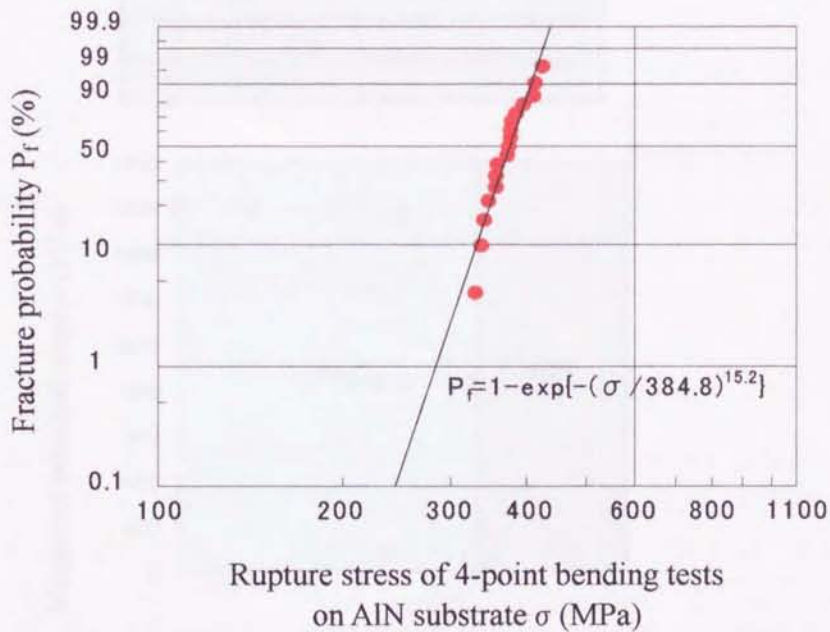


Fig.7-11 Weibull distribution of rupture stress for 4-point bending tests

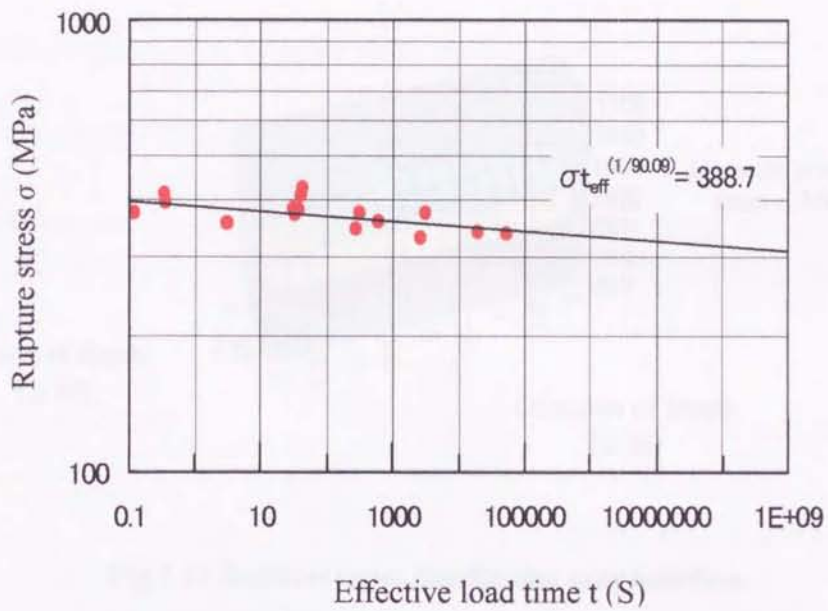


Fig.7-12 Static fatigue test results of AlN substrate

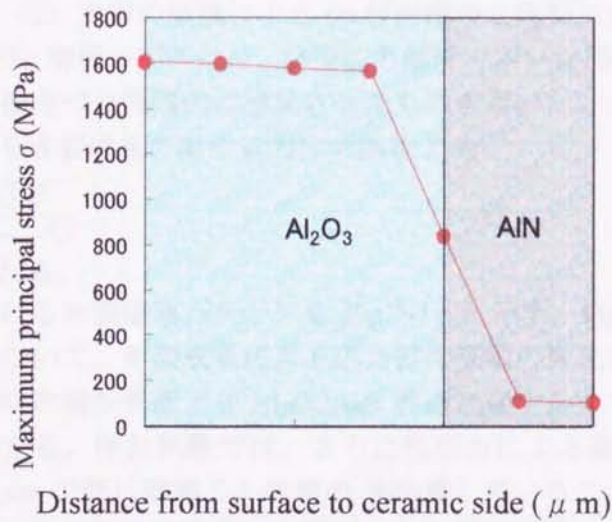
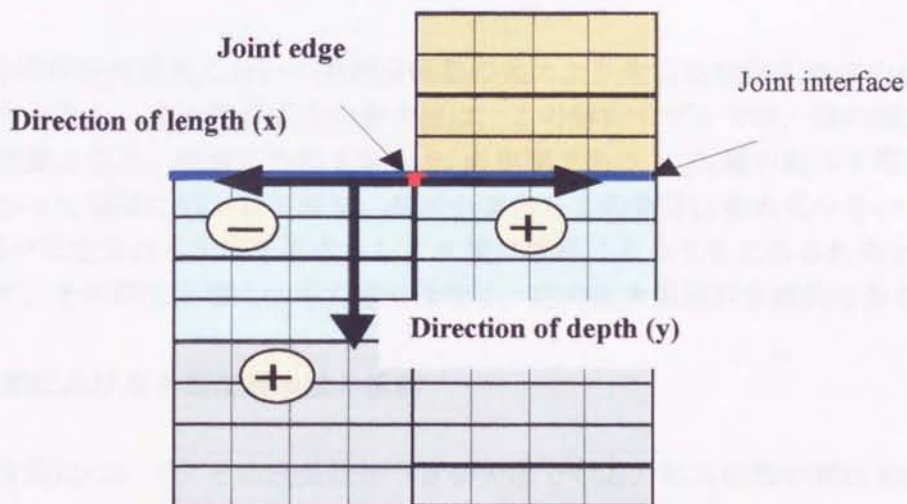


Fig.7-12 Stress distribution toward y direction



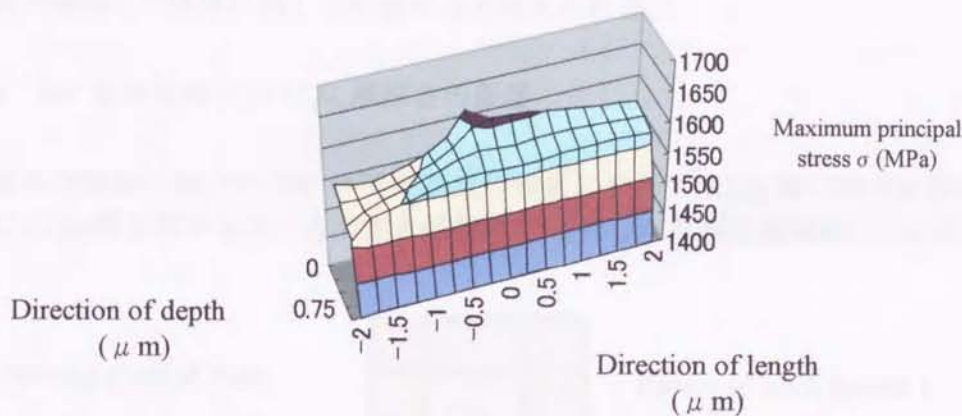


Fig.7-13 Residual stress distribution near interface

### 7.3.2 接合冷却過程における残留応力

DBC 接合時の冷却過程において熱膨張係数の差により生じる残留応力は Fig. 7-12 に示すような分布となる。接合残留応力の最大値は、この解析モデルでは、銅の端から 1 要素離れた接点位置となる。残留応力は AlN と Cu の中間である Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 層の約 3/4 厚さの位置から AlN に向かって急峻に低下しており、基板全体としての負荷は極めて小さい。基板の破壊は Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 層中に含まれる欠陥を基点としたき裂の成長によってもたらされると考えられる。したがって、その評価基準には応力値ではなく、応力拡大係数が合理的である。

### 7.3.3 破壊におけるき裂進展挙動の検討

上述のき裂について、その成長に伴うき裂先端での応力拡大係数の変化を検討した。なお、実際の保証試験での破壊形態は、基板深さ (Y) 方向の破壊によるセラミックス板の折損と、基板長さ (X) 方向の破壊による Cu 板剥離の 2 種類に分類される。ここでは前者の Y 方向破壊を扱う。解析モデルには、残留応力解析で用いた同じモデルに最大応力部から Y 方向へき裂を 1 接点ずつ段階的に進展させたものを用いた。これより、モデル全体のエネルギー開放率  $G$  からき裂成長の際の応力拡大係数  $K_I$  を

$$K_I = \sqrt{\frac{GE}{(1-\nu^2)}} \quad (7-1)$$

のように求められる。

この解析におけるき裂進展パターンを Fig.7-14 に示す。Fig.7-15 は接合残留応力のみが作用した場合について、き裂成長による応力拡大係数の変化を示している。Fig.7-15 より応力拡大係数はき裂が表面より Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/AlN 界面に達するまで増加し、それ以降は減少していくことがわかる。保証試験では、さらに熱応力による寄与分があるものの、Fig.7-15 において深さ 1 μm で既に破壊じん性値の 90% 達していることから残留応力の影響の大きさが十分推測できる。保証試験ではき裂が Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 層内で徐々に深さ方向に成長し、応力拡大

大係数が破壊じん性値に達して破壊すると考えられる。

### 7.3.4 DBC 基板強度への $Al_2O_3$ 層厚さの影響

残留応力解析において DBC 半導体基板の強度に及ぼす  $Al_2O_3$  層の厚さの影響を説明するために  $Al_2O_3$  層を厚くして、応力拡大係数  $K_I$  に着目したき裂進展解析を行った。

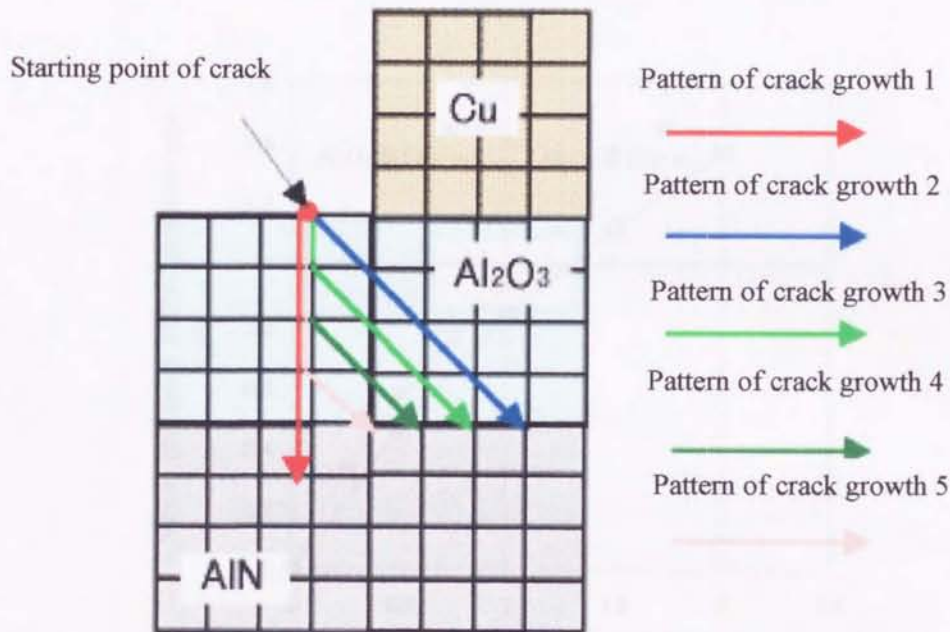


Fig. 7-14 Explanatory drawing of crack growth

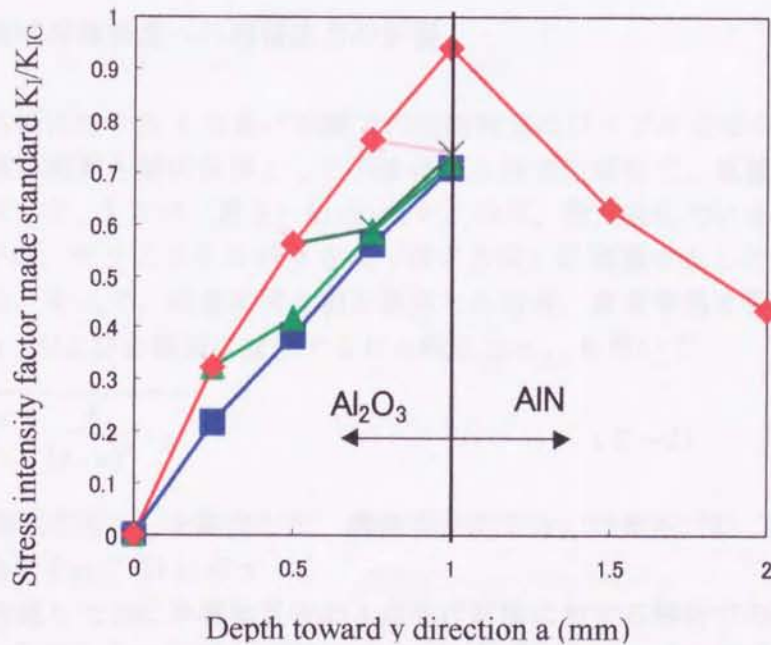


Fig. 7-15 Transition of stress intensity factor



Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>層厚さは上述した解析で使用している1μmと、新たに2μmのモデルで比較を行った。

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>層厚さ1μmと2μmでの基準化応力拡大係数  $K_I/K_{IC}$  とき裂長さ  $a$  の関係を Fig. 7-16 に示す。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>層厚さ1μmのモデルの場合、残留応力のみでは応力拡大係数が破壊靱性値に達しないのに対して、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>層厚さ2μmのモデルの場合、き裂長さ1.3μm付近で応力拡大係数が破壊靱性値に達しており、残留応力のみで破壊に至ることになる。したがって、破壊力学論的観点から Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>層の厚さが増加すると共に DBC 接合基板の機械的強度は低下していることがわかる。

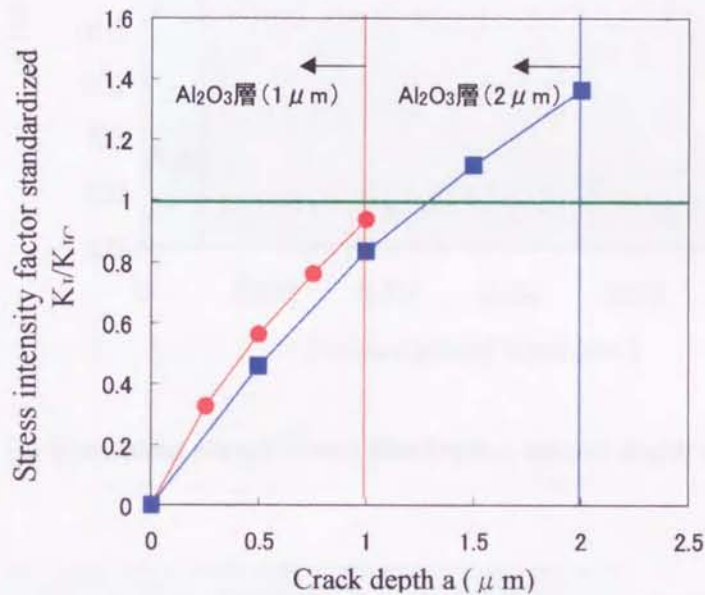


Fig.7-16 Relation between stress intensity factor and crack depth  $a$ ( $\mu\text{m}$ )

### 7.3.5 4点曲げ破壊強度への残留応力の影響

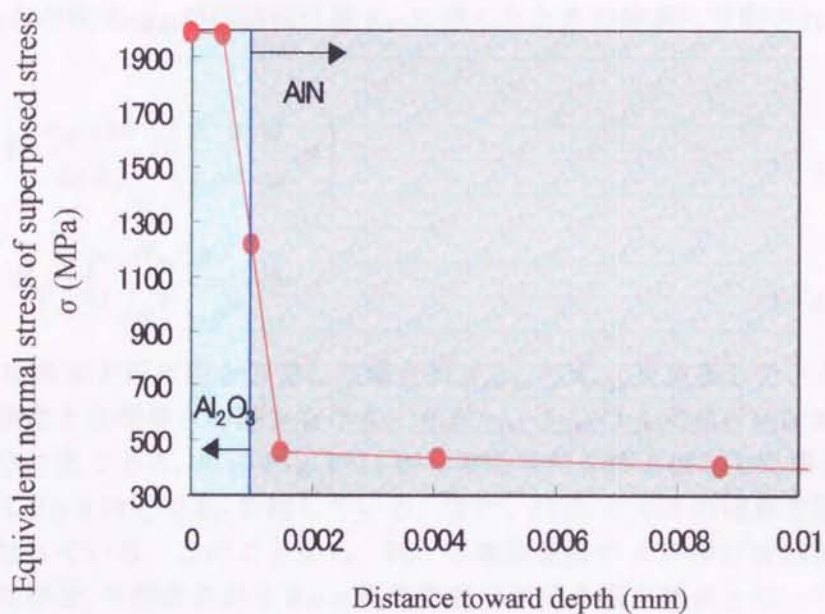
DBC 半導体基板に対する4点曲げ試験での破断荷重はワイブル分布の尺度母数で76.4Nである。この破断荷重を解析条件としてFEMによる弾塑性解析で、重畳応力(残留応力+曲げ応力)を求めた。X方向(長さ)応力 $\sigma_x$ が、ほぼ、最大主応力にあたり、実験的にも4点曲げ試験では、セラミックスがY方向(深さ方向)に破壊することからX方向応力に支配されている。そこで、表面半円き裂を仮定した場合、表面半円き裂面に直交するX方向の垂直応力 $\sigma_x$ およびき裂面に並行するせん断応力 $\tau_{xy}$ を用いて

$$\sigma_{eq} = \sqrt{\sigma_x^2 + \frac{4}{(2-\nu)^2} \tau_{xy}^2} \quad (7-2)$$

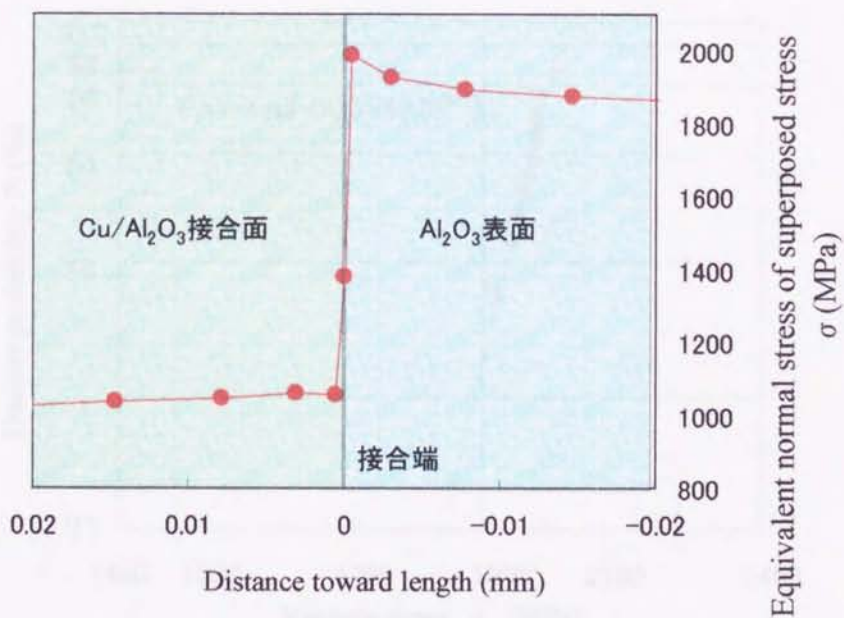
のように等価垂直応力 $\sigma_{eq}$ を算出した。等価垂直応力 $\sigma_{eq}$ の長さ(X)方向と深さ(Y)方向に対する分布を Fig. 7-17 に示す。

残留応力を考慮したDBC半導体基板の4点曲げ試験に対する解析での破断応力(重畳応力)のワイブル分布を Fig. 7-18 に示す。ワイブル係数は88.2、尺度母数は1988(MPa)であ

る。薄板 AlN 基板と比べると破断応力のばらつきが極めて小さくなっている。



(a) Equivalent normal stress distribution toward depth (y)



(b) Equivalent normal stress distribution toward length (x)

Fig. 7-17 Equivalent normal stress distribution



また, DBC 半導体基板強度の尺度母数 1988(MPa)は薄板 AlN 基板の曲げ強度 384.8(MPa)と比べてはるかに高い値を示している. そこで, この顕著な違いを明らかにするため, 下記のように応力拡大係数による評価を行った. DBC 半導体基板の 4 点曲げ破壊強度は,  $K_{I(Res)}$  と  $K_{I(4B)}$  との和  $K_{I(重畳)}$  が破壊靱性値  $K_{IC}$  に達したときの破壊に支配される.

$$K_{I(4B)} = H \frac{\sigma_B \sqrt{\pi b}}{E(k)} F\left(\frac{b}{t}, \frac{b}{a}, \frac{a}{w}, \phi\right) \quad (7-3)$$

$$K_{I(Res)} = 2 \sqrt{\frac{a}{\pi}} \int_0^a \frac{\sigma_{eq}(y)}{\sqrt{a^2 - y^2}} dy \quad (7-4)$$

Fig. 7-19 は表面半円き裂を仮定した場合の  $K_{I(Res)}$  と  $K_{I(4B)}$  を重畳したときの  $K_{I(重畳)}$  の基準化応力拡大係数とき裂長さの関係を示す. ただし,  $K_{I(4B)}$  は 4 点曲げ破断荷重 (尺度母数) に対して求めた値である. この Fig. 7-11 から表面半円き裂を仮定した場合には, き裂長さが  $0.8 \mu\text{m} \sim 1.2 \mu\text{m}$  付近で  $K_{IC}$  を越している. また,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  と AlN の境界で基準化応力拡大係数は最大となっている. このことから, DBC 半導体基板の 4 点曲げ破壊試験では, 残留応力を考慮した場合, き裂長さが  $0.8 \mu\text{m}$  程度の表面半円き裂が起点となって破壊に至っていることになる.

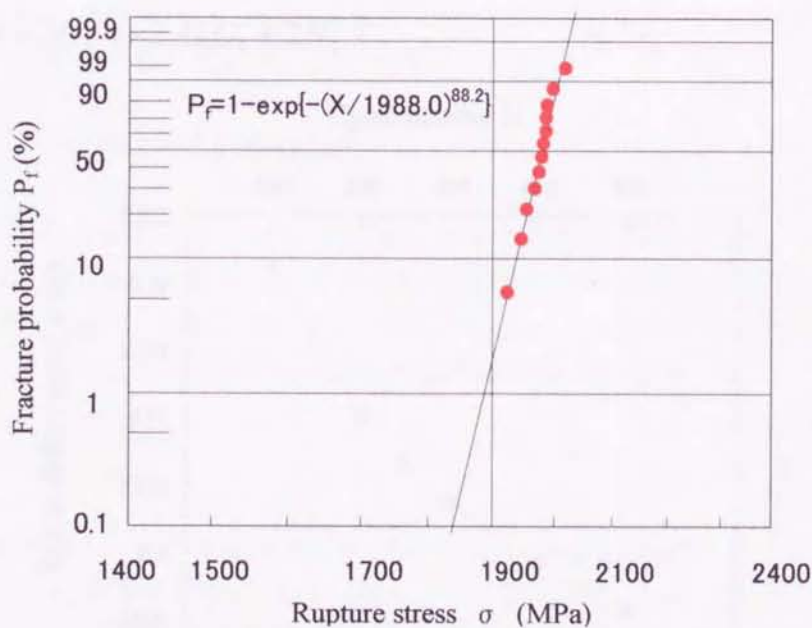


Fig 7-18 Weibull distribution of superposed stress

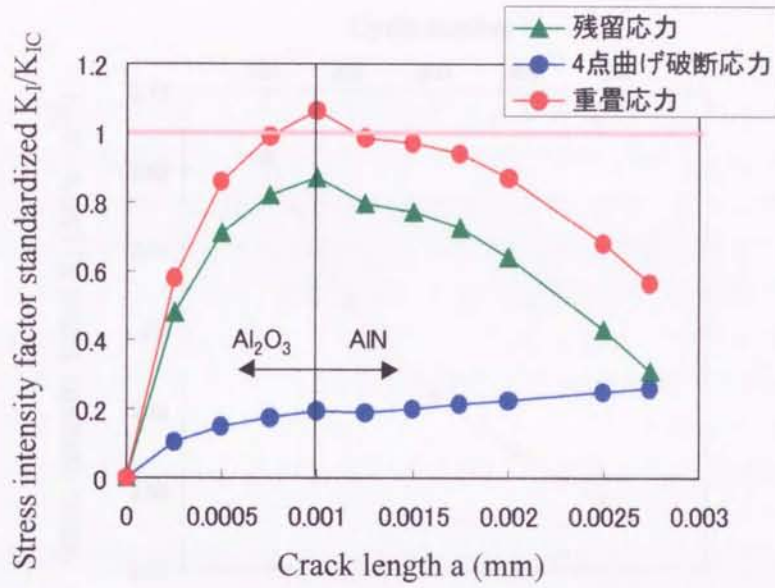


Fig.7-19 Transition of stress intensity factor standardized

7.3.6 接合時間とアルミナ層の厚さとの関係

AlN セラミックスは金属とぬれにくい性質があり, DBC 法により銅板を強固に接合する場合, AlN 表面に Cu-O の共晶とぬれやすい表面を形成させる必要がある. 化学反応は,

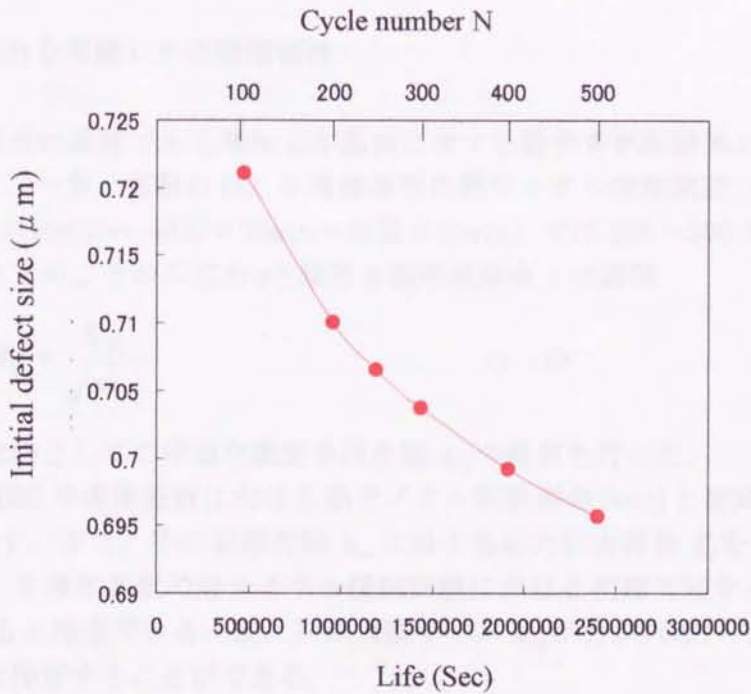
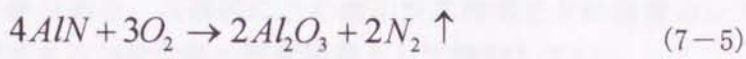


Fig.7-20 Relation between life and initial defect size



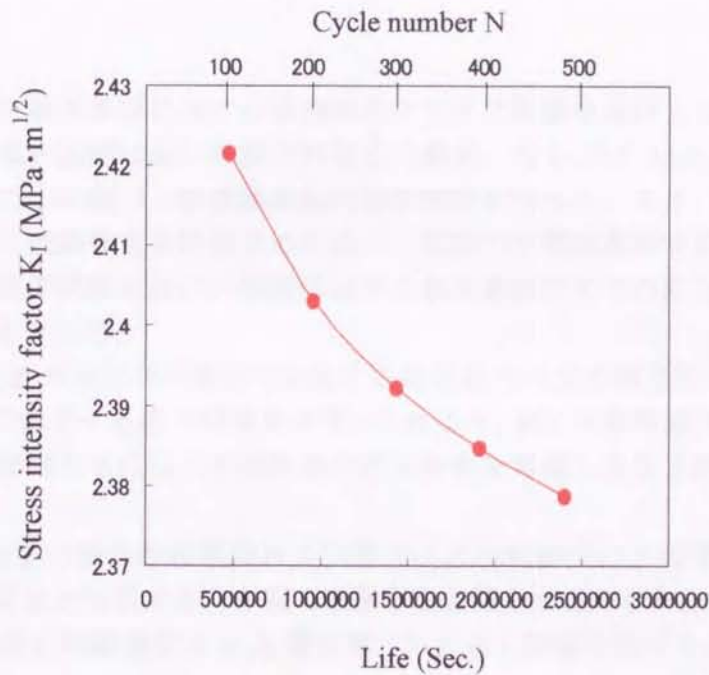


Fig.7-21 Relation between life and stress intensity factor

により起こり，一般に処理は大気雰囲気中ほぼ 1000℃以上で安定な  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  層を形成させることができる<sup>(1)</sup>。低温でこの酸化反応があまり発生しないので，冷却時間と生成したアルミナ層の厚さは無関係と考えられている。一般に酸化反応の時間は時間が経つにつれ酸化生成物が多くなり，酸化層が厚くなるとされている。従って，高温での反応時間を制御する必要がある。具体的にこの酸化反応時間をどの程度コントロールして最適な  $\text{Al}_2\text{O}_3$  層が生成できるかを今後の研究課題として検討していく。

### 7.3.7 残留応力を考慮した長期信頼性

DBC 半導体基板の基材である薄板 AlN 基板に対する静疲労試験結果から，き裂進展指数  $n$  は 90.1 である。一方，実際の DBC 半導体基板の熱サイクル保証試験（1 サイクル：125℃×30min→室温×10min→-40℃×30min→室温×10min）では 200～300 サイクルで破壊に至っている。これらのことから応力  $\sigma$  と臨界き裂形成寿命  $t$  の関係

$$\sigma_R t^{1/n} = \tilde{\sigma}_0 = \frac{K_{IC}}{\sqrt{\pi a_{eq}}} \quad (7-6)$$

を用いて初期欠陥としての等価な表面半円き裂  $a_{eq}$  の推定を行った。

Fig. 7-20 に DBC 半導体基板における熱サイクル試験寿命 (sec) と初期欠陥サイズ  $a_{eq}$  ( $\mu\text{m}$ ) の関係を示す。また，その初期欠陥  $a_{eq}$  に対する応力拡大係数  $K_I$  を Fig. 7-21 に示す。これより，DBC 半導体基板の熱サイクル保証試験における初期欠陥サイズ  $a_{eq}$  は 0.704～0.710  $\mu\text{m}$  であると推定できる。逆に初期欠陥サイズ  $a_{eq}$  が分かれば，Fig. 7-21 より熱サイクル試験寿命を推定することができる。

#### 第4節 結言

本研究ではDBC半導体基板における破壊強度に大きな影響を及ぼしている接合残留応力に着目し、発生機構を念頭においた接合残留応力解析，ならびに $Al_2O_3$ 層における潜在欠陥に着目した破壊力学に基づく破壊確率論的強度解析を行った。また，DBC半導体基板の残留応力を考慮した破壊強度を評価するために，実際の半導体基板寸法の試験片に対する4点曲げ試験・静疲労試験を行い，破断における最大重畳応力での応力値評価，ならびに応力拡大係数評価を行った。

(1) DBC半導体基板の接合冷却過程で発生する残留応力は反応相界面付近の $Al_2O_3$ 層からAlNにかけて急峻に低下する応力分布を示す。これより，DBC半導体基板の残留応力を考慮した強度信頼性を評価するには，き裂先端の応力分布を考慮した応力拡大係数での評価が必要である。

(2) DBC半導体基板の接合冷却過程および熱サイクル試験でのき裂進展に伴うき裂先端の応力拡大係数の変化を解明でき，き裂の進展挙動を明らかにできた。

(3) DBC半導体基板の破壊強度は $Al_2O_3$ 層の厚さに大きく影響を受ける。

(4) DBC半導体基板の4点曲げ強度は薄板AlN基板に比べて，極めて大きく，そのばらつきは極めて小さい。DBC半導体基板の破壊は約 $0.8\mu m$ の表面半円き裂を起点として生じている。

(5) 熱サイクル試験において，破壊起点となる初期欠陥サイズが明らかになった。また，初期欠陥サイズが分かれば，熱サイクル試験寿命を推定でき，長期信頼性寿命評価に対する知見が得られた。

#### 参考文献

1. 水野谷信幸・羽鳥雅一，東芝レビュー，41，9(1986)
2. 杉浦康之・岩瀬暢男，東芝レビュー，44，8(1989)
3. 岡村弘之，線形破壊力学入門，培風館



## 第8章 結論

セラミックスは耐熱性、耐食性、耐摩耗性、電気絶縁性、高圧縮強度性、あるいは軽量性などに優れた材料として期待され、各種機械・装置への用途開発が精力的に進められている。しかし、セラミックスは典型的な脆性材料であるため、機械的あるいは熱的衝撃に弱い、許容される欠陥サイズが小さい、強さのばらつきが大きい、遅れ破壊を起こす、あるいは難加工性であるなどの欠点も少なくない。

一方、金属材料は被研削性や塑性加工性などに優れ、冷間加工もできる材料が多く、また、安定した引張強度や高い靱性を有し極めて優れた構造材料である。しかし、耐圧縮性、耐磨性あるいは耐食性や耐酸化性などの耐環境性の点ではセラミックスよりかなり劣るものが多い。

それぞれの長を活かせる接合技術はセラミックスの応用に欠くことのできない複合化技術であるとともに、この接合技術の向上はセラミックスの適用分野を拡大する効果もあり、従来から、色々と、適用研究が進められてきている。

以上のように、セラミックスと金属との接合は、金属がセラミックスの欠点を補い、セラミックスの優れた特性を十分に発揮させることができる。また、セラミックス部品を高度な装置や機器に使用する場合、単独での使用はごく希であり、最終的には他の材料、特に金属と組合せることが必要となる。このような観点から、セラミックスと金属の接合技術はセラミックスを実用化する上で極めて重要な技術であると言える。

しかしながら、セラミックスの熱膨張係数は金属と比較すると著しく小さいため、高温での接合後、冷却過程において接合界面近傍に発生した熱応力がセラミックス部材内にも残留応力として残り、接合体の継ぎ手の強度を低下させる。また、弾性率の異なるセラミックス/金属接合部材に外力が作用すると、接合界面に応力集中が発生するため、やはり接合強度を低下させる要因となる。

接合強度評価、すなわち、セラミックス接合試験片や接合構造体に対する強度評価には、この接合残留応力を考慮することが重要であり、この残留応力と作用応力の重畳応力に対するセラミックス強度がセラミックス接合体強度となる。

そこで、本研究では、セラミックスと金属の接合プロセスで生じる熱残留応力を考慮し、まず、最初にセラミックス/金属接合試験片における中間層(Cu)厚さが接合強度に及ぼす影響、あるいは接合残留応力も考慮しての中間層厚さの最適化に関して、破壊力学的観点から検討した。次いで、セラミックスの基本強度特性としての疲労破壊も含めた破壊機構に基づく強度特性についても言及した。さらには、実際のセラミックス接合部品としての中性子検出器・真空バルブ容器・DBC 半導体基板における構造上の残留応力および接合部位での局部残留応力の分布をFEM解析で明らかにし、破壊力学的観点から破壊メカニズムを究明し、これらの実部品に対する長期信頼性の破壊寿命や損傷・劣化挙動について、信頼性工学に基づく確率論的予測方法を検討してきた。今後、これらの基本的な研究成果は、接合構造設計の最適化を図りながら、接合部材の強度や信頼性を向上させて、セラミック



スの実用化を着実に進めて行く上での基盤技術として大いに役立つと確信している。

各章総括すると次の通りである。

第1章は緒言であり、セラミックス適用技術における接合技術の位置づけを言及し、セラミックス/金属接合技術と接合強度試験・信頼性評価の現状について整理した。また、セラミックスの機能・構造部材への適用普及・拡大における今後の研究課題を言及する上で、本研究の目的について記述した。

第2章はセラミックス/金属接合部材の評価・解析のための基礎的検討である。セラミックス/金属接合構造部品に対して材料選定・構造設計・製造プロセスの最適化、また、特殊環境における長期間供用中での接合構成部材の脆化やスウェリング現象の強度への影響等を検討していくために、簡便な弾塑性解析手法として、接合構成部材の材料特性および熱物性の温度依存性を連続的に考慮できる数式化を図り、Visual Basic システムと汎用 FEM ソフト NASTRAN との組み合わせによる応力・強度解析システムを開発した。この開発の重要なポイントは汎用 FEM ソフト NASTRAN での弾性応力解析機能を活用し、解析データの中間データ処理およびデータ後処理に Visual Basic システムを駆使して接合部材の構造設計・製造プロセスの最適化、あるいは脆化やスウェリング現象による損傷・劣化挙動の解析に多面的な工夫が行えるようにしていることである。

第3章はセラミックス/金属接合試験片に対する最適中間層厚さについての検討である。本章ではセラミックス/金属接合材の中間層厚さに注目し、接合試験片モデルに対する3次元弾塑性有限要素解析により、セラミックス界面近傍に生じる残留応力分布を求めた。その残留応力が生じている試験片モデルに対して、さらに、曲げ試験負荷応力を重畳させる解析によって、再配分する残留応力分布（以下では単に重畳応力と記す。）を求めた。その重畳応力分布における最大応力値に基づき、最適中間層厚さについて検討した。また、最適中間層厚さのみならず、接合面仕上げおよび仕上げ方向の影響も含めて、種々の条件の接合試験片を作製し、4点曲げ試験を行って実験的に確認した。この成果は、構成材料や寸法・形状の異なるセラミックス/金属接合材における中間層の材質や厚さの選定の最適化に有用な指針を示唆できる。

第4章はセラミックス/金属接合試験片に対する残留応力と疲労特性についての検討である。セラミックス/金属接合材の繰返し引張疲労試験を実施し、冷却過程で生じる接合残留応力、単軸引張および繰返し疲労試験での負荷・除荷過程における接合残留応力の再配分も含めた応力挙動についても弾塑性解析した。また、有効体積と有効負荷時間を考慮した等価垂直応力で評価することによって繰返し引張疲労強度特性について以下のことが明らかとなった。

(1) 負荷・除荷過程における接合残留応力の再配分を考慮しないと、繰返し引張疲労強度は統一的評価法によって引張強度から推定される静疲労強度よりも過小評価になる。

(2) 1回の引張負荷・除荷によって残留応力は増大する。これは中間層である銅の塑性変形に起因するが、1回の負荷・除荷でその塑性変形は飽和することから2回目以降、残留



応力は、ほぼ、一定となる。

(3) 負荷・除荷過程における接合残留応力増分を考慮して時間強度も同時に修正すると、繰返し引張疲労強度は引張強度と共に静疲労強度として統一的に評価できる。

第5章はセラミックス/金属接合体の実部品—LPRM 中性子検出器における紡錘型接合構造についての強度検討である。この実部品において、接合残留応力に及ぼす応力緩和層としての中間層 Cu の脚部角  $\theta$  の影響を検討した。最適な脚部角  $\theta$  での紡錘型接合構造供試片に対する引張試験および残留応力も考慮した引張破壊強度の弾塑性 FEM 解析に基づくシミュレーションにより紡錘型接合構造に対する強度検証を行った。また、スウェリング現象を発生するに伴うセラミックスの内部応力挙動と強度劣化に注目し、セラミックスの強度信頼性を破壊力学的観点から明らかにした。

第6章はセラミックス/金属接合体の実部品—真空バルブ容器における接合強度についての検討である。本章ではセラミックス/金属接合構造体である真空バルブ容器を実部品例のモデルとし、弾塑性 FEM 解析を用いて接合残留応力とその接合残留応力に及ぼす金属部材の材質・形状・寸法・接合プロセスにおける冷却速度の制御の影響を明らかにするとともに、強度検証として行う引張・圧縮試験のシミュレーション解析を行った。また、実部品に対する強度検証試験も行ってこのシミュレーション解析の妥当性を検討した。

第7章はセラミックス/金属接合体の実部品—DBC 法による半導体基板における接合強度についての検討である。本章では DBC 半導体基板におけるセラミックスの破壊強度に大きな影響をおよぼす接合残留応力に着目した強度評価を考える。発生機構を念頭においた接合残留応力解析、ならびに  $Al_2O_3$  層における潜在欠陥に着目した破壊力学に基づく破壊確率論的強度解析を行い、一次製造・設計評価のみならず長期供用信頼性評価に有益な強度評価法を確立するための基礎研究を行った。また、実際の DBC 半導体基板の寸法での試験片に対して4点曲げ試験・静疲労試験を行い、破断における最大重畳応力での応力値評価、ならびに応力拡大係数評価を行って普遍的評価法について検討した。

## 謝 辞

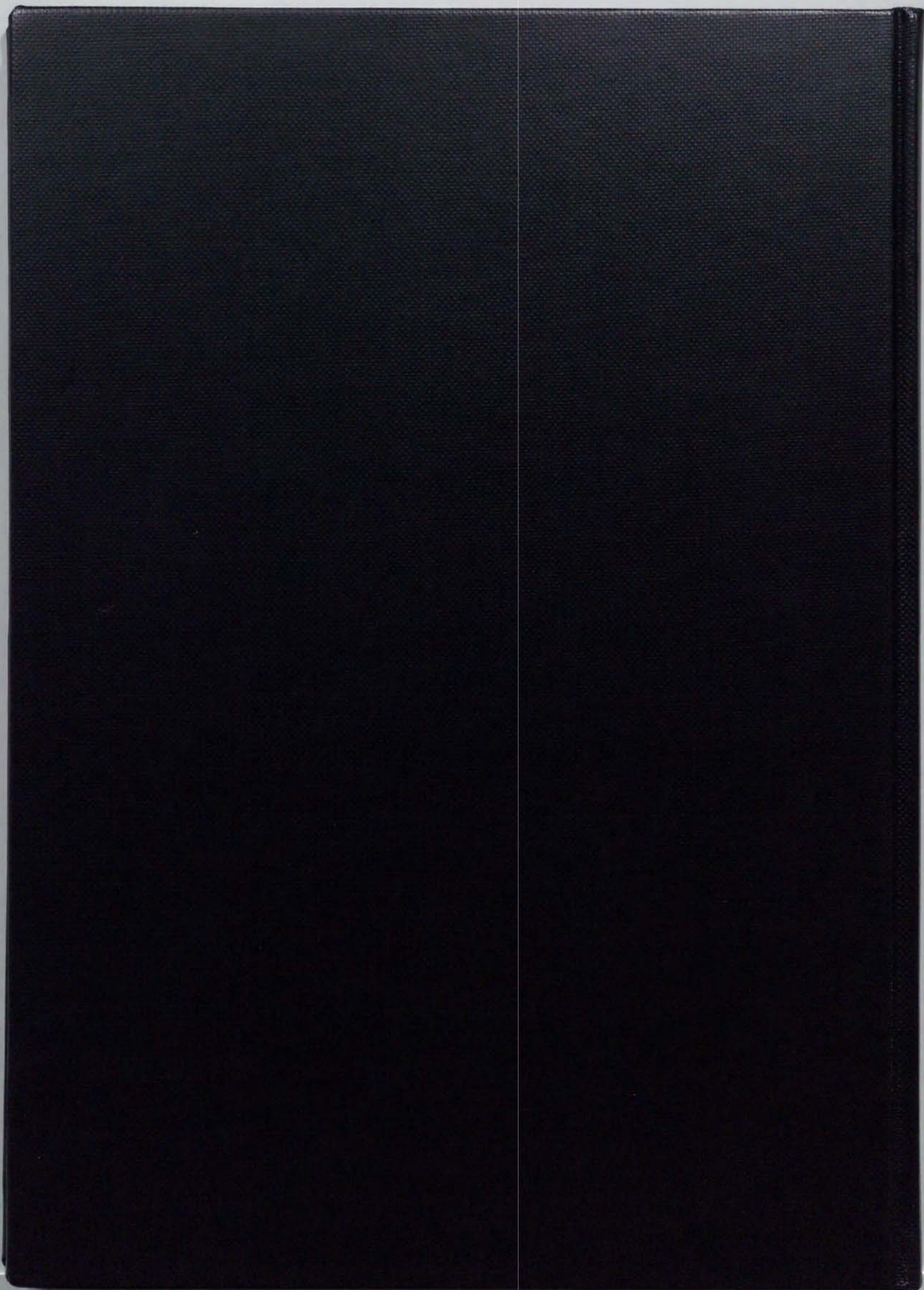
本研究を遂行するあたり、懇切なるご指導とご指示を賜りました愛媛大学教授 岡部永年博士に心から、厚くお礼を申し上げます。

本研究を進めるにあたり、愛媛大学講師 堤 三佳 博士、助教授 高橋 学博士、一柳 雅則 技官には、有益なご指導とご検討を頂き、厚くお礼を申し上げます。

解析・実験および結果の検討にご協力を賜りました愛媛大学大学院生 広部 耕太さん、桑原 義孝さん、田邊 康宏さん、長尾 裕さん、久保 寛尚さん、田井 和宏さん、岩隈 晴海さん、曾我 崇明さん、愛媛大学学部生 谷口 正司さん、山村 良樹さん、姫野 孝司さん、仲子 正裕さん、大谷 将司さん、石原 大資さん、市川 智也さん、河本 章一さん、濱本 勇さん、平井 伸一さん、藤原 辰弘さん、二神 博亘さんに心から感謝いたします。

本研究は、以上の方々を始め数多くの方々のご指導、ご援助を得てなされたものであり、本論文を終えるに当たり、これらの方々に深甚の謝意を表する次第であります。

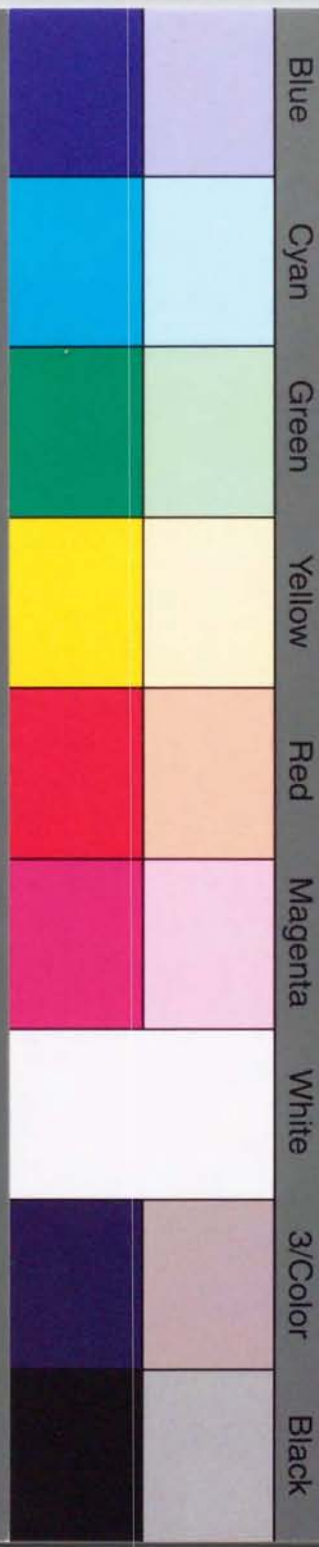




inches 1 2 3 4 5 6 7 8  
cm 1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 11 12 13 14 15 16 17 18 19

# Kodak Color Control Patches

© Kodak, 2007 TM. Kodak



# Kodak Gray Scale



© Kodak, 2007 TM. Kodak

**A** 1 2 3 4 5 6 **M** 8 9 10 11 12 13 14 15 **B** 17 18 19

