

アルミナ/SUS 304 鋼接合体の高温せん断強度特性評価*

松原雅昭*¹, 伊藤 勲*¹, 坂本賢治*¹
小棚木 光明*², 吉川州彦*³Shear Strength Evaluation of Al₂O₃/SUS 304 Joints
at Elevated TemperaturesMasaaki MATSUBARA*⁴, Isao ITOH, Kenji SAKAMOTO,
Mitsuaki KOTANAGI and Kunihiko YOSHIKAWA*⁴ Gunma University, Dept. of Mechanical System Engineering, Tenjin-cho, Kiryu-shi, Gunma, 376-8515 Japan

This paper describes strength evaluation of Al₂O₃/SUS 304 joints subjected to interlaminar shear at elevated temperatures. The jig developed enables us to evaluate shear strengths of ceramics/metal joints at elevated temperatures. The shear strengths of them decrease with increasing temperature. The crack generally initiates at the upper and lower sides of the interface, a brazing filler. It grows into Al₂O₃ after stable growth and becomes unstable till 873 K (I C type fracture). The crack propagates along the interface till unstable fracture from 1 173 K (II type fracture). The crack behavior shows a mixed mode of I C and II types at 973 K and 1 073 K (I C + II type fracture). Larson-Miller Parameter is valid for creep rupture tests under shear loading. The fracture modes are the I C type under the condition of low temperature and short time and the II type under the long-term condition.

Key Words: Ceramic/Metal Joint, Shear Strength, Interlaminar Shear, Creep, Material Testing, Fractography, Bonding

1. 緒 言

エネルギー変換型傾斜機能材料⁽¹⁾の電極材料/絶縁材料接合に見られるセラミックス/金属接合体のような異種材料接合体の強度評価試験方法は基本的には曲げ型, 引張型およびせん断型に大別される。従来, セラミックス/金属接合体の強度評価研究に用いられている試験方法のほとんどが曲げ型あるいは引張型を採用している。曲げ型試験を用いるのは⁽²⁾・⁽³⁾・⁽⁴⁾, セラミックスの強度評価試験方法の延長と位置付けられており, 最近日本工業規格の中に規定された引張型試験に関しては, 日本工業規格に規定された金属材料引張試験に準拠している場合や独自の方法を採用している場合がある⁽⁵⁾・⁽⁶⁾。このようにセラミックス/金属接合体の強度評価に関する研究が盛んに行われているが, その多くは常温強度に関するものであり, 高温強度に関する試験評価研究はごく限られたものとなっているのが現状である⁽⁷⁾・⁽⁸⁾。せん断型試験は特別な加工が不要などの観点から簡便ではあるが, 試

験に際して曲げや摺動抵抗の影響を除去できないことが従来の欠点であった。また, せん断型試験の結果として得られる強度が接合材の強度を合理的に表わしているか否かが重要な検討課題となっている⁽⁹⁾。

著者らはこれらの状況に鑑み, せん断型試験で問題となる曲げや摺動抵抗の影響を可能な限り除去でき, かつ高温での試験を可能とする試験用治具を考案した。考案したせん断型試験治具は既存のオートグラフやクリープ試験機に組み込み可能である。さらに, 考案した試験治具を用いて代表的なセラミックス/金属接合体であるアルミナ/SUS304鋼接合体について, 高温せん断強度試験およびクリープ破断試験を実施した。本報告においては, これらの研究成果について述べる。

2. 供試材料および実験方法

2・1 耐熱接合材料試験片 緒言でも述べたように, 供試耐熱接合材料としてアルミナ/SUS304鋼接合体を用いた。それぞれの供試材料は直径4mmのロッドから長さ10mmに切断し, 接合面を耐水研磨紙で#800まで研磨後, アルコール中で超音波洗浄を行った。接合用ろう材には銀ろうBAg-8に2wt%チタンを添加した厚さ0.12mmの改良材を用いた。図1に接合実施前の供試接合材料試験片の状況を示す。

* 原稿受付 1999年1月20日。

*¹ 正員, 群馬大学工学部 (☎376 8515 桐生市天神町1-5-1)。*² 正員, 石川島播磨重工業(株) (☎235-0031 横浜市磯子区新中原町1)。*³ 正員, 住友金属テクノロジー(株) (☎660 0891 尼崎市扶桑町1-8)。

E-mail: matsubar@me.gunma-u.ac.jp

接合は 7×10^{-3} Pa 以下の真空雰囲気中で赤外線加熱炉を用いたろう付けにより行った。ろう付けに際しての温度制御条件は加熱速度 + 10K/min, ろう付け温度 1323K・保持時間 30min, 冷却速度 - 6 K/min である。

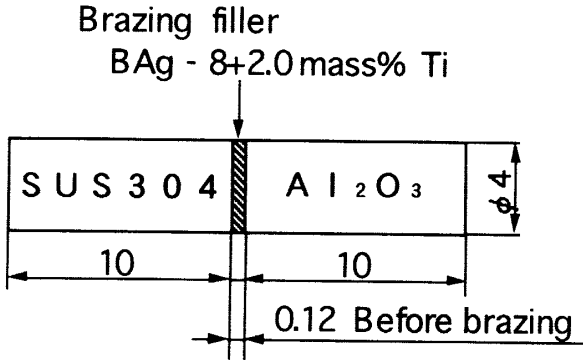


Fig.1 Specimen configuration.

2.2 せん断強度評価試験用治具 以下に本研究において考案したせん断型試験を可能とする試験治具について説明を行う。本試験治具は次の特徴を有す

る：(1)せん断型試験において問題となる曲げや摺動抵抗の影響が除去可能, (2)既存の試験機に容易に組み込み可能および(3)治具を耐熱材料で製作することによって高温での試験が実施可能。図2に本試験治具を用いたせん断型試験の概念を断面図の形式で示す。治具の構成は、治具本体、カラーおよびボールの3要素からなる。治具本体とカラーは耐熱合金インコネル713C製およびボールはアルミナセラミックス製である。治具本体は上下に二分割される。治具本体上下部共にスライド面中央に試験片取り付け孔を設けてある。治具本体下部の試験片取り付け孔は貫通孔となっており、SUS304鋼に取り付けられた熱電対を側面から引き出せるようになっている。カラーとボールの位置を決める保持部をスライド面下端に設けてある。カラーとボールはスライド面の摺動抵抗を小さくし、試験片にせん断力のみを負荷するためのものである。本治具の摺動抵抗を測定したところ、1223Kで30N程度であった。したがって低強度レベルでの試験を除き、本治具を用いてせん断強度評価試験は実施可能であると判断される。治具本体、カラーおよびボールの間で $50 \mu\text{m}$ の

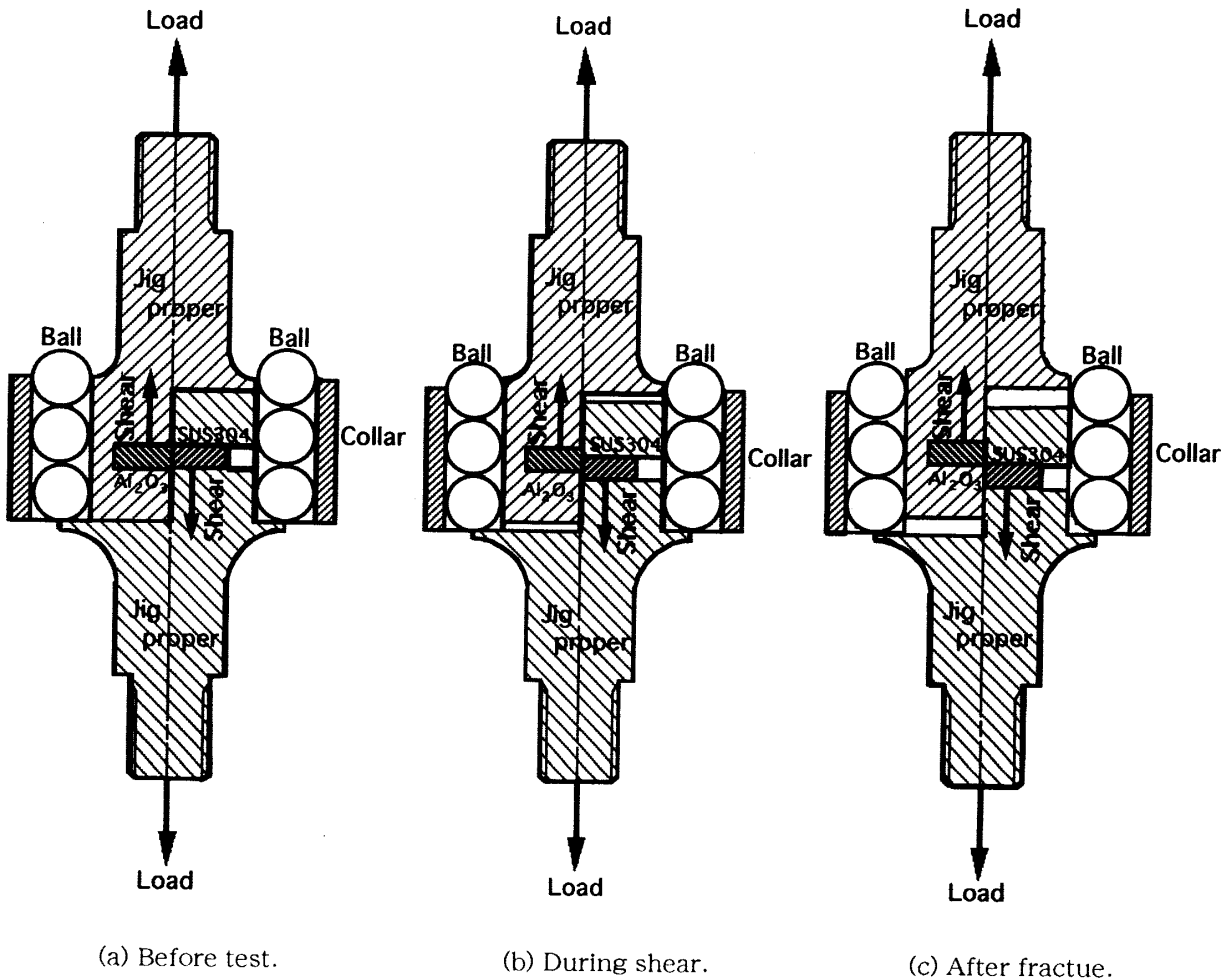


Fig.2 Jig for shear strength test.

クリアランスをとることにより、治具本体のスライド運動に際して試験片に曲げ荷重が加わることが抑止し、試験片に純せん断荷重を負荷することが可能となる。Ni基単結晶超合金同士の接合試験片を用いた高温せん断強度およびクリーブ破断試験において、接合面にある厚さ0.5mm程度のNiろうのみでせん断変形していることを確認している⁽¹⁰⁾。この結果から判断して、本治具を用いれば試験断面でせん断荷重のみが加わっているものと考えられる。せん断試験の実施に際しては、治具本体のスライド面と供試接合材料の中央にあるろう材の位置が一致するようにして試験を行った。

2・3 実験装置 高温せん断強度試験にはオートグラフを用い、参考のため試験に際しては荷重-クロスヘッド変位関係を記録した。せん断クリーブ破断試験には単一アームレバー式クリーブ試験機を用いた。高温せん断強度試験およびせん断クリーブ破断試験共に、温度制御は加熱炉と試験片の温度を測定することにより行った。

3. 実験結果および考察

3・1 高温せん断強度試験 図3にせん断強度(破断時の荷重をせん断面の断面積で除した値)と試験温度の関係を示す。図より、せん断強度は試験温度673 Kまで温度上昇と共に漸減し、673 Kと873 Kの間で急減し、873 K以上では再び漸減することがわかる。1223 K以上の試験温度では荷重負荷前に破断し、せん

断強度は測定できなかった。これはろう材 BAg-8の主成分である銀の溶融点が1233 Kであり、1223 Kにおいてはろう材が溶融状態に近い状態となり、その強度が急激に低下したために荷重負荷前に破断に至ったことが原因であると考えられる。

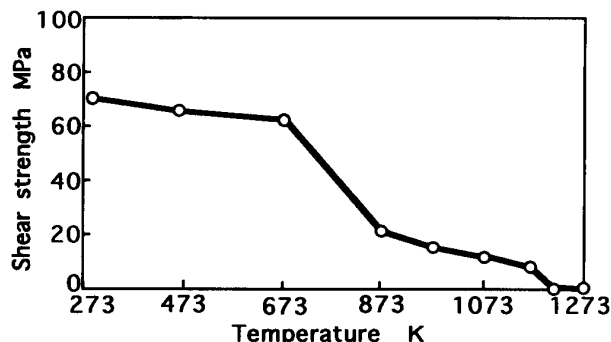


Fig.3 Shear strength as a function of temperature.

図4には高温せん断強度試験において観察された破壊形態の概要を示す。観察された破壊形態は、小林ら^{(4), (8)}がセラミックス/金属接合体の四点曲げ試験で観察してきたものとほぼ類似のものとなっている。試験温度 873 K以下で観察された破壊形態は、試験片上下部の表面の接合界面からき裂進展が始まり、その後き裂がアルミナ側に屈折して最終破壊する。これはセラミックス/金属接合体の一般的な破壊形態

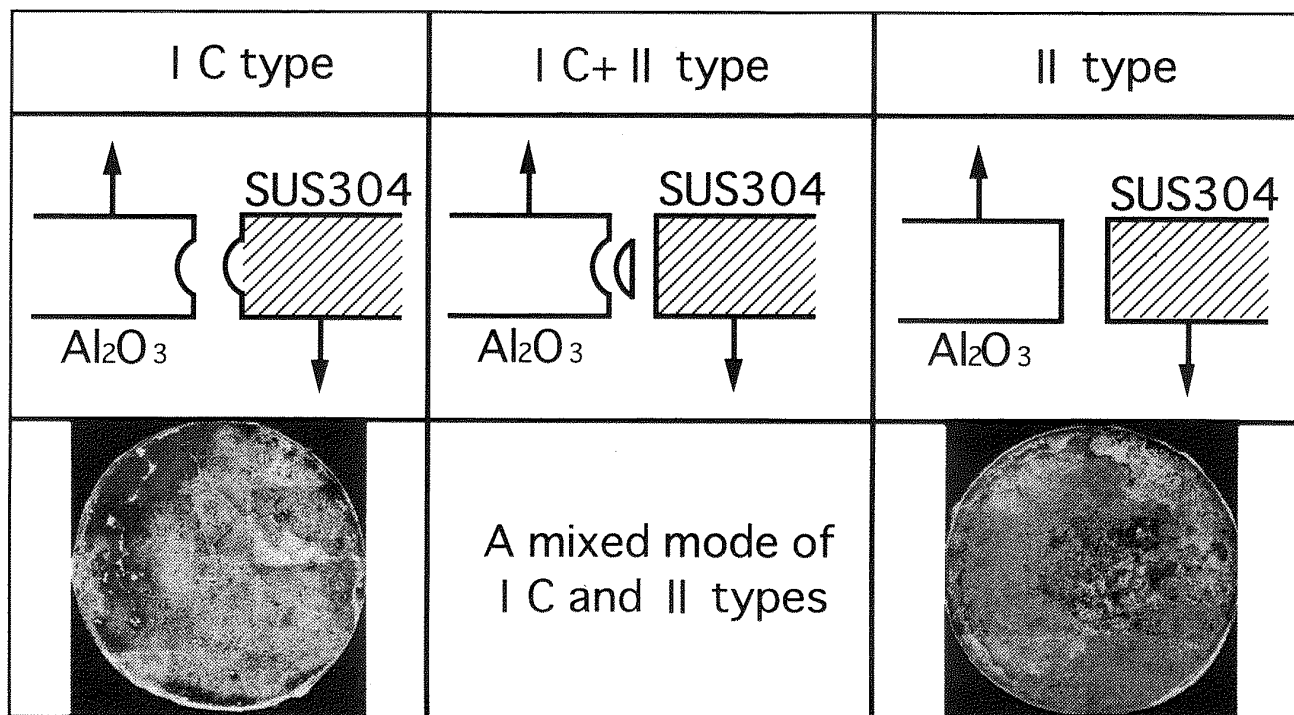


Fig.4 Schematic illustrations and fractographs of fracture pattern.

である(ⅠC型破壊)。試験温度1173Kで観察された破壊形態は、き裂がそのまま接合界面を進展して最終破壊している(Ⅱ型破壊)。これらの試験温度の中間領域に当たる973および1073Kで観察された破壊形態は、ⅠC型およびⅡ型破壊の混合モードと考えることができ、表面の接合界面からき裂進展が始まり、アルミナ側と接合界面の両方で最終破壊を起こしていた(ⅠC+Ⅱ型破壊)。このように高温せん断強度試験における破壊形態は、初期に接合界面でき裂が発生した後にアルミナ側に屈折して最終破壊に至るⅠC型破壊、そのまま接合界面で最終破壊するⅡ型破壊およびこの両タイプの混合モードであるⅠC+Ⅱ型破壊の3ケースに分類される。この3ケースの高温せん断破壊機構は概略次のように考えられる：(1)高温せん断過程で接合界面に沿って試験片上部および下部にき裂が発生する。(2)き裂が進展して臨界寸法に達すると、残りの接合部が負荷荷重に耐えられなくなり破断に到る。この破壊機構はせん断加工の際にポンチとダイスの間で被加工材料がせん断する過程に類似しているものと考えられる。破壊形態が3ケースに分かれる理由は次のように考えられる：(1)試験条件が比較的低温であるⅠC型破壊の場合には、接合界面のろう材の強度が十分に保たれており、せん断過程で接合界面に発生したき裂を起点として、延性に乏しいアルミナ側で最終破壊が起こる。(2)試験条件が比較的高温であるⅡ型破壊の場合には、試験温度がろう材の熔融温度に近づくために、接合界面の強度が著しく低下し、高温せん断過程で接合界面に発生したき裂を起点とし、き裂はそのまま接合界面に沿って進展し最終破壊する。(3)これらの中間温度領域であるⅠC+Ⅱ型破壊の場合には、アルミナと接合界面の強度がほぼ同じレベルにあることが推定され、このためにアルミナ側と接合界面の両方で最終破壊が同時に発生するものと考えられる。以上より、高温せん断強度試験における破壊形態は試験温度におけるろう材の強度に支配されていることが明らかとなった。図4にはⅠC型およびⅡ型破壊のSUS304鋼側の破面の走査電子顕微鏡写真を併せて示す。ⅠC型破壊の破面では、破面上下部に初期のせん断過程で生じたと考えられる酸化の著しいき裂発生部分(上下部の黒い部分)があり、破面中央部にはろう付けされたアルミナ(中央の白い部分)がそのまま残っている。このアルミナの部分が最終破壊した箇所である。Ⅱ型破壊の破面では、周辺部に沿って酸化の著しい初期せん断過程で生じたと考えられるき裂発生部分(周辺部の黒い部分)がある。中央部にはSUS304鋼側界面に残存付着し、酸化したろう材のろう材が観察される。

走査電子顕微鏡による破面の観察結果は先に記した破壊機構と破壊形態との関係を裏付けるものである。

3・2 せん断クリーブ破断試験 図5はクリーブ破断試験の結果であるせん断応力(負荷荷重をせん断面の断面積で除した値)－破断時間関係を3・1で述べた破壊形態と関連付けて示したものである。アルミナ/SUS304鋼接合体の接合界面に対するせん断クリーブ破断試験においても、接合状態と強度そのものに起因するデータのばらつきはあるものの概略通常の耐熱金属材料の引張型クリーブで得られるのと同様の結果が得られた。すなわち、同じ温度であれば応力が高いほど、また同じ応力であれば温度が高いほど破断時間は短くなる傾向を示す。図中の白抜きマークはⅠC型破壊、黒塗りマークはⅡ型破壊および半黒塗りマークはⅠC+Ⅱ型破壊の破壊形態であったことを示す。図より、概略の傾向として低温短時間側でⅠC型破壊、高温長時間側でⅡ型破壊およびその中間領域においてⅠC+Ⅱ型破壊となっていることがうかがわれる。3・1で説明した高温せん断強度試験の場合と対比して、せん断クリーブ破断試験における破壊機構は定性的に次のように説明できるものと考えられる：(1)試験条件が比較的低温・短時間でクリーブの影響が小さい場合には、接合界面のろう材の強度が十分に保たれており、クリーブ損傷過程で接合界面に発生したき裂を起点として、延性に乏しいセラミックス側で最終破断するⅠC型破壊となる。(2)試験条件が高温あるいは長時間となりクリーブの影響が顕著になると、接合界面のクリーブ破断強度が著しく低下し、クリーブ損傷過程で接合界面に発生したき裂を起点として、界面に沿った最終破断が起こりⅡ型破壊となる。(3)これらの中間試験条件の場合には、低下した接合界面のクリーブ破断強度とアルミナの強度がほぼ同じレベルにある

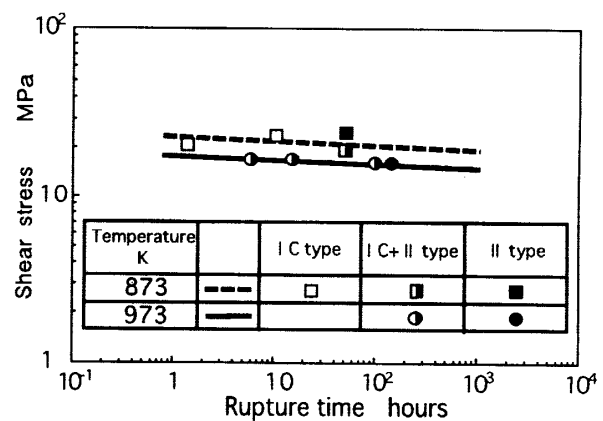


Fig.5 Shear stress versus rupture life for $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SUS304}$ joint.

と推定され、このためにアルミナ側と接合界面の両方で破壊が同時に発生する I C + II 型破壊となる。

図 6 はせん断応力と Larson-Miller パラメータ⁽¹²⁾ の関係を示す。Larson-Miller パラメータ LMP は

$$LMP = T(C + \log tr) \times 10^{-3} \quad (1)$$

で与えられる。ここで、 T : 試験温度(K), tr : 破断時間(hours)および C : 定数である。定数 C は耐熱金属材料の引張型クリーブ破断試験では 20 の値を通常用いる。本研究では接合構造を対象としており、かつ負荷形式もせん断型と引張型とは異なるため、実験結果から C の値を決定した。その結果 $C = 13.5$ の値が得られた。図 6 では LMP の評価にこの $C = 13.5$ を用いている。図より、図 5 の場合と同様におよそせん断応力と Larson-Miller パラメータの間に一対一の対応関係があるようである。従来の耐熱金属材料の引張型クリーブ破断試験の場合と同様に、せん断クリーブ破断試験においても Larson-Miller パラメータを用いた実験データの外挿補間の可能性がうかがわれる。すなわち、せん断クリーブ破断試験においても高温短時間のデータを用いて、長時間側のデータを推定できる可能性がある。これらの結果を総合すると、接合試験片のせん断クリーブ破断試験についても従来の耐熱金属材料の引張型クリーブ破断試験と同様の評価が可能であると考えられる。今後の課題としてせん断ひずみの計測を含む更なる取得データの充実、残留応力の影響の評価および設計を念頭に置いた引張型強度との等価性の検討が必要となる。

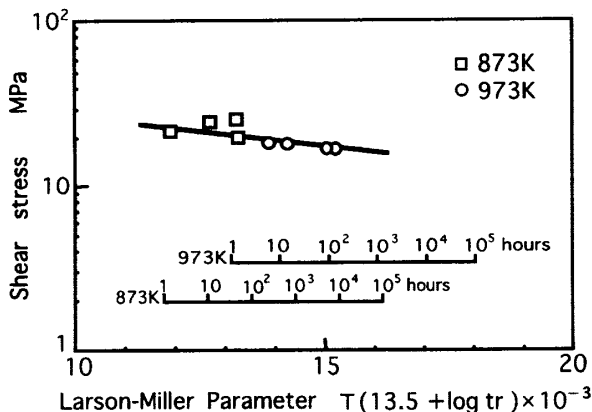


Fig. 6 Master rupture curve for $Al_2O_3/SUS304$ joint.

4. 結 言

本研究では、高温で試験可能なせん断型試験治具を考案し、アルミナ/SUS304 鋼接合体について、高温

せん断強度試験およびクリーブ破断試験を実施した。得られた結果は下記の通りである。

- (1) せん断型試験で問題となる曲げや摺動抵抗の影響を可能な限り除去でき、かつ高温での試験を可能とする治具を考案した。
- (2) 高温せん断強度は温度の上昇と共に低下し、破壊形態は 873K までアルミナで最終破断 (I C 型破壊)、1173 K では界面破壊 (II 型破壊) および 973 ~ 1073 K では両者の混合モード (I C + II 型破壊) であった。これらの破壊形態の違いは当該温度のろう材強度の影響を受けたものと考えられる。
- (3) せん断クリーブ破断試験についても、従来の引張型クリーブ破断試験結果に適用されてきた Larson-Miller パラメータを用いたデータ外挿の可能性がうかがわれる。また、せん断クリーブ破断試験における破壊形態は低温短時間側で I C 型破壊、高温長時間側で II 型破壊となった。

本研究の一部は平成 5 ~ 7 年度科学技術振興調整費「傾斜構造形成によるエネルギー変換材料の開発に関する研究」(小泉光恵研究推進委員会委員長)の一環として行われると共に、文部省科学研究費補助金平成 7 年度一般研究 (C)「エネルギー変換型傾斜機能材料のせん断クリーブ特性評価」の援助を得たものであり、併せて深謝致す次第である。研究の遂行にご協力戴いた群馬大学乙黒靖男教授、元群馬大学大学院生木ノ内宏明君および住友金属テクノロジー(株)浅野鐵夫氏、高尾哲氏および永田三郎氏に深甚なる謝意を表す。

文 献

- (1) 科学技術庁研究開発局, 平成 4 年度科学技術振興調整費「傾斜構造形成による機能変換材料の開発に関する調査報告書」, (1993).
- (2) 小林・ほか 3 名, 機論, 55-512, A(1989), 750-755.
- (3) 小林・ほか 2 名, 材料, 40-453, (1991), 689-694.
- (4) 許・小林, 機論, 63-609, A(1997), 983-988.
- (5) 浅見・白木, 機論, 59-561, A(1993), 1202-1207.
- (6) 古口・ほか 3 名, 機論, 59-560, A(1993), 1114-1119.
- (7) 海老原・門田, 機論, 57-541, A(1991), 2036-2041.
- (8) 白木・ほか 4 名, 機論, 62-598, A(1996), 1513-1518.
- (9) 小林, セラミックス, 30-2, (1995), 110-113.
- (10) 松原・ほか 7 名, 第 36 回高温強度シンポジウム前刷集, (1998), 84-87.

(11) 小林・ほか 5 名, 機論, 60-569, A(1994), 65-70.

(12) Larson, F.R. and Miller, J., Trans. ASME, 74-7, (1952), 765-775.
