- M.E., **238**, 196-200 (1967).
 11) 村上恵一, 田中弘文, 佐藤健朗, 橋本邦男, 市村一彦,
 窯協, **76**, 253-63 (1968).
 12) R. Kondo, M. Daimon, E. Sakai and H. Ushiyama,
J. Appl. Chem. and Biotechnol., **27**, 191-97 (1977).

論文・Paper

耐火物の Acoustic Emission 特性に及ぼす 熱衝撃条件及び材質の影響

(耐火物の熱衝撃による破壊現象の研究, 第2報)

熊谷正人・内村良治・川上辰男*

(川崎製鉄(株)技術研究所)
 (* 川崎炉材(株)技術研究所)

耐火物の熱衝撃による破壊挙動を解明するために, 著者らは先に AE 法を導入し, パネルスパーリング試験法と組み合わせて検討を進めた。

本報でも同じ装置を用いて, 熱衝撃条件や耐火物の材質が AE 特性に及ぼす影響について検討した。

その結果, (1) マグネシア質耐火物では, 加熱速度, 試験片形状又は試験片への拘束力が大きくなるにつれて, AE 特性, すなわちき裂の伝ば挙動が変わり, き裂が不安定的に伝ばする傾向が顕著となる。(2) マグネシア・ドロマイト質耐火物では, 試験条件を変えても, AE 特性, すなわちき裂の伝ば様式には顕著な差は認められなかった。(3) 材質による損傷過程の違いを反映して, 耐火物の AE 特性には顕著な差が認められ, 本報では五つのパターンに分類できた。(4) マグネシア・ドロマイト質耐火物では, AE 計数総数と実炉における成績及び熱衝撃損傷パラメーター R_{st} の間によい相関が認められ, AE 計数総数の多少によって耐熱衝撃性を判定できる。

(1978 年 10 月 31 日受付)

Effects of Thermal Shock Conditions and Properties of Refractories on the Acoustic Emission Characteristics

(Studies on Fracture Behavior of Refractories under
Thermal Shock Conditions, Part 2)

Masato KUMAGAI, Ryoji UCHIMURA and Tatsuo KAWAKAMI*

(Research Laboratories, Kawasaki Steel Corp., Chiba-shi 260
 (* Research Laboratories, Kawasaki Refractories Corp., Ako-shi 678-02)

Thermal stress fracture behavior of various refractories was studied using an acoustic emission technique and a panel spalling method. Effects of thermal shock conditions such as heating rate on acoustic emission characteristics, that is, on crack propagation process were also studied.

As heating rate, specimen dimension or restraining force increased, magnesia refractory exhibited more and more unstable crack propagation. On the other hand, magnesia-dolomite refractories exhibited stable crack propagation and the propagation behavior was scarcely affected by the difference of the thermal shock conditions.

Measurements on magnesia, magnesia-dolomite, magnesia-chromite and high-alumina refractories have demonstrated that each specimen material exhibited different acoustic emission characteristics corresponding to the difference of thermal shock damage behavior. These acoustic emission characteristics were classified into five patterns in the present study.

Because good correlation was obtained among AE total rinddown count, service performance and thermal shock damage resistance parameter R_{st} for magnesia-dolomite refractories, it is effective to use the acoustic emission technique for evaluating thermal shock damage resistance of refractories such as magnesia-dolomite. [Received October 31, 1978]

Key-words : Acoustic emission, Panel spalling, Refractory, Thermal stress fracture, Thermal shock damage resistance, Crack propagation

1. 結 言

耐火物の熱衝撃による破壊現象を解明するために、著者らは先に Acoustic Emission (AE) の手法を導入し、パネルスポーリング試験法と組み合わせて検討を進めた。そして、耐火物の AE 特性が耐火物の内部におけるき裂の発生、伝ば過程をよく反映することを示し、2, 3 の材質について熱衝撃による損傷過程の違いを明らかにするとともに、AE 法の今後の応用に対する展望を得るに至った。ここでは、前報¹⁾の装置を用いて、加熱速度、試験片に対する拘束、試験片形状等の試験条件や耐火物の材質が AE 特性すなわち耐火物内部におけるき裂の発生、伝ば挙動、ひいては耐火物の損傷過程に及ぼす影響について検討した。また、試料の中に、実炉において異なったスポーリング挙動を示す耐火物を加え、AE 法による耐熱衝撃性の実験室的な評価と工業的な実績判定との対比を行った。前記の諸条件の影響や、実験結果と実炉での成績の対応を明らかにできれば、耐火物の窯炉での熱衝撃による損傷過程を解明できるだけでなく、耐火物にとって合理的な築炉、操業条件が見いだせることになり、AE 法の応用に対する可能性も、より一層大きくなると考えられる。

2. 実 験

2.1 試 料

実験に用いた耐火物の物理的、化学的性

質を表 1, 2 に示す。この表で、M はマグネシア質、D-1 ~D-9 はマグネシア・ドロマイト質、A はアルミナ質、MC-1 及び MC-2 はマグネシア・クロム質耐火物であり、M, D-1, A は第 1 報¹⁾で用いたものと同じものである。D-2~D-4 は D-1 と同様にして得られた耐火物であり、市販品はいずれも大型のタール含浸品であったので、所定形状の試験片を切り出したのち、脱炭してから実験に供した。D-1~D-4 は類似した物性値をもつが、D-4 は CaO を均一分散させたもので D-1~D-3 とは微細構造が異なっている。また、同じくマグネシア・ドロマイト質耐火物である D-5~D-9 は、精錬炉の内張に使用した際、熱的スポーリング挙動に差の認められたものである。すなわち、D-7 はスポーリングの顕著な材料であり、D-5, D-8 も若干スポーリングによる

Table 2. Typical properties of refractories.

Sample	D-5	D-6	D-7	D-8	D-9
Porosity (%)	15.1	13.6	12.0	14.4	15.0
Specific gravity	2.95	2.96	3.08	2.96	2.96
Modulus of rupture, S (kg/cm^2)	R.T.	113	123	120	153
	800°C	139	182	142	154
	1100°C	83	98	62	86
	1400°C	36	67	25	46
Modulus of elasticity, E ($10^4 \text{ kg}/\text{cm}^2$)	R.T.	75	83	102	97
					85
Fracture energy γ_{wof} ($10^4 \text{ erg}/\text{cm}^2$)	—	10.8	7.2	11.5	11.4
$\sqrt{\gamma_{\text{wof}}/E}$ ($\propto R_{st}$) ($\times 10^{-3} \text{ cm}^{1/2}$)	—	3.64	2.68	3.48	3.70
Chemical composition (wt%)	MgO	91.5	90.5	90.5	87.0
	CaO	6.5	8.1	8.1	11.0
	$\text{SiO}_2 + \text{Al}_2\text{O}_3 + \text{Fe}_2\text{O}_3$	1.0	1.3	1.3	2.0

Table 1. Typical properties of refractories.

Sample	M	D-1	D-2	D-3	D-4	A	MC-1	MC-2
Porosity (%)	13.8	15.0	14.4	15.6	13.9	16.4	14.9	14.8
Specific gravity	3.01	2.96	2.98	2.95	3.00	3.24	3.11	3.13
Compressive strength ($\text{kg}\cdot\text{cm}^{-2}$)	545	263	358	401	500	1580	562	640
Modulus of rupture, S ($\text{kg}\cdot\text{cm}^{-2}$)	R.T.	215	119	120	115	104	310	65
	800°C	160	86	150	83	103	—	69
	1100°C	57	58	52	76	60	—	78
Modulus of elasticity, E ($10^4 \text{ kg}\cdot\text{cm}^{-2}$)	121	75	75	75	75	130	44	79
Chemical composition (wt%)	MgO	94	90.5	91.5	91.5	92.5	—	78.6
	CaO	0.8	8.1	6.5	6.5	6.5	—	0.7
	SiO_2	2.6	*1.3	*0.85	*0.85	*0.91	4.21	0.7
	Al_2O_3	0.6	—	—	—	—	92.3	4.9
	Cr_2O_3	—	—	—	—	—	2.81	9.3
	Fe_2O_3	0.5	—	—	—	—	—	3.3

* $\text{SiO}_2 + \text{Al}_2\text{O}_3 + \text{Fe}_2\text{O}_3$

損傷を示し、D-6、D-9 はほとんどその傾向を示さない材料である。これらを試料とすることによって、AE 法による耐熱衝撃性の評価と実炉における耐火物の挙動の対応を求めることができる。MC-1 と MC-2 は化学組成や気孔率は類似しているが、弾性率や強度に大きな違いがある。

2.2 実験装置

既報¹⁾の装置を使用した。この装置のうち、パネル部分の外周は鋼製の剛体枠で囲まれている。試験片の側面（4面）に拘束を加えた状態で測定を行う場合には、鋼製枠の上面及び側面から、厚鋼板を介して耐火物パネルをボルト締めした。ボルトの締めつけにはトルクレンチを使用して一様な拘束を与えるようにした（図 1）。

2.3 実験方法

AE の測定方法、試験片に対して熱衝撃を与える方法、熱衝撃を与えた後の耐火物の調査方法は、前報¹⁾の方法と基本的には同じである。

(1) AE の測定

計数総数と計数率の形でを行い、試験片表面温度との対応という形で整理した。

(2) 加熱速度の影響

試料 M、D-1 の 65×114×230 mm の直方体形状（以下、並形形状と記す）の試験片を用い、全く拘束を与えない条件下で、試験片表面の加熱速度を以下の範囲で変え、1300℃ 又は 1400℃ まで加熱した後、3℃/min の冷却速度で低温域まで徐冷した。なお、40℃/min 以上の加熱速度は、電気炉による加熱では得られないため、酸素-プロパンバーナーを用いたガス炉によって得た。

Fig. 1. Schematic illustration of panel spalling apparatus.

M : 2.2~26.7℃/min

D : 3.0~50.0℃/min

加熱過程で AE の測定を行った。

(3) 拘束条件の影響

試料は M、D-1 の 2 種で、試験片形状はいずれも並形形状である。試験片表面の加熱速度は M の場合 13.3℃/min、D-1 の場合 20℃/min で、加熱過程において AE の測定を行った。試験片に対する拘束条件は、試料 M について、(i) 周囲からの拘束が全くない場合、(ii) y 方向だけから拘束した場合、(iii) y、z 方向から拘束した場合、(iv) y、z 方向から拘束し、加熱前に締めつけた場合、の 4 通りであり、試料 D-1 について、(v) 周囲からの拘束が全くない場合、(vi) y、z 方向から拘束した場合、(vii) y、z 方向から拘束し、加熱前に締めつけた場合、の 3 通りであった。

(4) 試験片形状の影響

試料は M、D-1 の 2 種、加熱速度は M の場合 13.3℃/min、D-1 の場合 20℃/min いずれも周囲から拘束を加えず、加熱過程で AE 測定を行った。試験片形状は、いずれも直方体で、表 3 のように、M は 3 種類、D-1 は 4 種類である。測定に際しては、いずれの試験片とも、230 mm（長さ）の方向が温度こう配の方向となるように配置した。(a)、(d) は、加熱面が並形寸法のもの、(b)、(e) は、幅方向の寸法が並形と同じで、厚さ方向の寸法が並形の半分の平板状のもの、(c)、(f) は (b)、(e) と同じ断面積を有するが、形状が正方形に近いもの、(g) は断面形状が大きいもの、である。

Table 3. Specimen dimension.

M		D-1	
Specimen	Dimension (mm)	Specimen	Dimension (mm)
(a)	65×114×230	(d)	65×114×230
(b)	30×114×230	(e)	33×114×230
(c)	65×55×230	(f)	65×51×230
		(g)	148×148×230

(5) 耐火物材質と AE 特性

実験に供した耐火物は、表 1、2 に示した 13 種類である。加熱速度は 10° 又は 20℃/min とし、試験片形状は並形で、周囲からの拘束は与えていない。

(6) AE 測定を終了した試験片の調査

常温まで徐冷した試験片については、曲げ強度、動弾性率の測定を行い、き裂の発生、伝ば状況について調べた。曲げ試験片の採取方法、曲げ強度、弾性率の測定方法については前報とほぼ同様である。

3. 実験結果

3.1 パネルスポーリング試験条件の影響

3.1.1 加熱速度

M 及び D-1 の AE 特性に及ぼす加熱速度の影響を 図 2, 3 に示す. また, 熱衝撃を与えた試料の x, y, z 方向の弾性率の低下及び試料の長さ方向に沿って採取した 曲げ試験片の残存強度をそれぞれ 図 4, 5, 6, 7 に示す.

M では, 図 2 のように, 加熱速度が小さい場合, 表面

Fig. 2. Total ringdown count versus hot face temperature during heating for magnesia refractory M at different heating rates.

Fig. 3. Total ringdown count versus hot face temperature during heating for magnesia-dolomite refractory D-1 at different heating rates.

温度 920°C 付近で AE 計数の急増が観測され, それ以上の温度域では計数率そのものは高いがほぼ一定している. 加熱速度が大きくなるにつれて, AE 計数は次第に階段状の増加傾向を示すようになるが, 計数総数の絶対値としては小さくなる傾向にある. 熱衝撃を受けた耐火

Fig. 4. Ratio of elastic moduli of specimen subjected to thermal shock (heated up to 1400°C at different heating rates and cooled down slowly) to elastic moduli of original specimen for magnesia refractory M.

Fig. 5. Variation of residual bending strength with heating rate for magnesia refractory M.

Fig. 6. Ratio of elastic moduli of specimen subjected to thermal shock (heated up to 1400°C at different heating rates and cooled down slowly) to elastic moduli of original specimen for magnesia-dolomite refractory D-1.

Fig. 7. Variation of residual bending strength with heating rate for magnesia-dolomite refractory D-1.

物をみると、加熱速度が大きくなるにつれて、加熱面に平行なき裂の発生する位置が加熱面に近くなる傾向にあり、外観観察でもき裂の存在が明確になり、更にき裂を含む曲げ試験片の残存強度も小さくなる。また、 x , y , z 方向の弾性率も著しく低下し、加熱速度が大きくなるにつれて試験片の損傷の程度が大きくなることを示している。

一方、D-1 では、いずれの加熱速度でも AE 計数の急増は観測されず、AE 計数総数も加熱速度によって大きく変化はしない。しかし、単位時間当たりの AE 計数でみれば、加熱速度とともに大きくなり、オシロスコープ上の観察によれば、AE 波の振幅も大きくなる傾向にある。熱衝撃を受けた耐火物をみると、加熱速度が大きくなるにつれて弾性率の低下が顕著になり、加熱面に平行なき裂を含む曲げ試験片の残存強度も小さくなる。

3.1.2 拘束条件

M 及び D-1 の AE 特性に及ぼす拘束条件の影響を図 8, 9 に、また、熱衝撃を受けた耐火物の x , y , z 方向の弾性率の低下を図 10, 11 に示す。

M では、拘束がない場合に比べて、拘束力の働いている場合の方が AE 計数総数は少なくなる傾向にある。AE 特性が実験ごとに若干異なった様相を呈するが、拘束条件が厳しくなるにつれて、AE 計数の階段状に増加する傾向は顕著になる。また、拘束を加えた場合には、1200°C 以上の高温域で試験片の割れによる可聴音を発生するが、その際 AE 計数が急増することは少なく、それ以上の温度域では AE の発生が少なくなる。なお、拘束力の下で熱衝撃を受けた耐火物は、加熱面から 50 mm 付近で加熱面に平行なき裂によって 2 個に分断されていて、拘束力が大きくなると、 y , z 方向弾性率の低下が小さくなる傾向にある。

D-1 では、拘束力が働いている場合 AE 計数総数は少なくなり、AE 計数の急増はみられずに、拘束力がな

Fig. 8. Total ringdown count versus hot face temperature for magnesia refractory M under different restraining conditions at the rate of 13.3°C/min.

— : Free
 - - : Restrained from expansion in y direction.
 . . : Restrained from expansion in y and z direction.
 - · - : Compressed and restrained in y and z direction before testing.

Fig. 9. Total ringdown count versus hot face temperature for magnesia-dolomite refractory D-1 under different restraining conditions at the rate of 20°C/min.

— : Free
 - - : Restrained from expansion in y and z direction.
 . . : Compressed and restrained in y and z direction before testing.

い場合と同様にゆるやかな AE 特性が得られた。前述の M の場合とは異なり、拘束した場合に高温域で可聴音を発生することはないが、ある温度以上で AE が急に減少する場合がある。なお、拘束力の下で熱衝撃を受

Fig. 10. Ratio of elastic moduli of specimen subjected to thermal shock (heated up to 1400°C at the rate of 13.3°C/min and cooled down slowly) to elastic moduli of original specimen for magnesia-dolomite refractory M under different restraining conditions.

— : Free
 - - : Restrained from expansion in y and z direction.
 ··· : Compressed and restrained in y and z direction before testing.

Fig. 11. Ratio of elastic moduli of specimen subjected to thermal shock (heated up to 1400°C at the rate of 20°C/min and cooled down slowly) to elastic moduli of original specimen for magnesia-dolomite refractory D-1 under different restraining conditions.

— : Free
 - - : Restrained from expansion in y and z direction.
 ··· : Compressed and restrained in y and z direction before testing.

けた耐火物は、加熱面に平行なき裂によって2分され、 y , z 方向の弾性率の低下が小さく、特に加熱面から 70 mm 以上の深さでは、弾性率の低下はほとんどない。

3.1.3 試験片形状

M 及び D-1 の AE 特性に及ぼす試験片形状の影響を 図 12, 13 に示す。また、熱衝撃を受けた耐火物の弾性率の低下及び試料の長さ方向に沿って採取した曲げ試験片の残存強度を 図 14, 15, 16, 17 に示す。

M では、 yz 面形状が小さくなると、AE 計数が最初に急増する温度域が高温側にずれる。特に、 yz 面が正

Fig. 12. Total ringdown count versus hot face temperature for various specimen size of magnesia refractory M at the rate of 13.3°C/min.

Fig. 13. Total ringdown count versus hot face temperature for various specimen sizes of magnesia-dolomite refractory D-1 at the rate of 20°C/min.

Fig. 14. Ratio of elastic moduli of specimen subjected to thermal shock (heated up to 1400°C at the rate of 13.3°C/min and cooled down slowly) to elastic moduli of original specimen for various sizes of magnesia refractory M.

Fig. 15. Residual bending strength for various specimen sizes of magnesia refractory M subjected to thermal shock (heated up to 1400°C at the rate of 13.3°C/min and cooled slowly), see in Fig. 4 (b).

Fig. 16. Ratio of elastic moduli of specimen subjected to thermal shock (heated up to 1400°C at the rate of 20°C/min and cooled down slowly) to elastic moduli of original specimen for various sizes of magnesia-dolomite refractory D-1.

Fig. 17. Variation of residual bending strength with specimen size.

方形に近い形状 (c) では、高温側にずれるだけでなく、AE 計数の増加が階段状からゆるやかな増加に変わる傾向がある。計数総数を $y-z$ 面の単位断面積当りに換算して比較しても形状 (c) の計数総数は特に少ない。また、熱衝撃を受けた耐火物では、形状 (c) で弾性率の低下が小さく、曲げ試験片の残存強度も大きい。形状 (a), (b) では損傷程度の差は小さい。

Fig. 18. Total ringdown count per unit cross section parallel to the hot face versus hot face temperature for various specimen sizes of magnesia-dolomite refractory D-1 at the rate of 20°C/min.

D-1 では、 $y-z$ 面形状が大きくなるにつれて、AE 計数総数は多くなり、AE 計数総数を $y-z$ 面の単位面積当りに換算しても試験片形状とともに多くなる傾向が顕著である (図 18)。また、形状が大きくなると、AE 波の強度も大きくなる傾向にあるが、AE 計数は形状によらず滑らかに増加する。熱衝撃を受けた耐火物では、形状の大きい (d), (g) で弾性率の低下が大きい。 $y-z$ 面の面積が等しい (e), (f) を比べると、 $y-z$ 面が正方形に近い (f) で弾性率の低下が小さく、曲げ試験片の残存強度も大きい。

3.2 耐火物材質と AE 特性

加熱速度 10° 及び 20°C/min で加熱した場合について、各種耐火物の AE 特性を 図 19, 20, 21 に示す。これらの図から、耐火物の材質によって AE 特性に顕著な差が認められる。本実験の範囲内では、これらの AE 特性を次の五つのパターンに分類することができる。

- (1) 高温域まで AE 計数の少ないもの……MC-1.
- (2) 計数率は比較的高いが、計数の急増が認められないもの……D-1, D-2, D-3.
- (3) (2) と類似した AE 特性であるが、より低温域 (~300°C) から AE が観察され、高温域で高い計数率となるもの……D-4.

(4) 幾つかの温度域で AE 計数が急増し、階段状に近い AE 特性を示すもの……M.

(5) ある温度域で AE 計数が急増するが、より高温域ではゆるやかな増加率であるもの……A.

これらの AE 特性を模式的に示したのが 図 22 である。MC-2 は (2) に比較的近い AE 特性とも言えるが、図 23 のように AE 計数率の温度変化で比較するとそ

Fig. 19. Total ringdown count versus hot face temperature for various refractories.

Fig. 20. Total ringdown count versus hot face temperature for various refractories.

Fig. 21. Total ringdown count versus hot face temperature for various refractories.

の違いが明らかになる。なお、パターン(1)以外は外観又は切断面において加熱面に平行なき裂が認められ、弾性率の低下も大きかった。

材質的に、その耐熱衝撃性に問題を持ち、なおここではその試料も多様なものとなっているマグネシア・ドロマイト質耐火物について、その AE 特性を整理すると

Fig. 22. Typical acoustic emission patterns of various refractories.

Fig. 23. Plots of count rate versus hot face temperature for magnesia-dolomite and magnesia-chrome refractories.

Fig. 24. Total ringdown count versus hot face temperature for five magnesia-dolomite refractories.

次のようになる。D-1～D-4のうち、D-4で特にAE計数総数が多くなっており、熱衝撃を受けた耐火物の弾性率の低下も大きい傾向にある。類似のAE特性を示すD-1～D-3のAE発生パターンを詳細に比較するために、AE計数率の温度変化によって表したのが図23である。この図で注目されるのは、D-1及びD-3の場合D-2に比べて低温側に長くすそを引くようなAE発生パターンとなっている点である。

D-5～D-9のAE特性を図24に示す。熱衝撃により実炉で著しいはく落を起こしたD-7は、AE測定で

Fig. 25. Relation between total ringdown count and thermal shock damage resistance parameter.

も計数総数が極めて多く、実炉でほとんどはく落のなかった D-6 と D-9 は AE 計数総数が少なくなっている。更に、実炉でこれらの中間の成績を示した D-5 及び D-8 は、AE 計数総数でも中間的な値をとっている。このように、精錬炉での熱衝撃による損傷程度と本実験での AE 計数総数の間にはよい対応がみられる。

表 2 には、D-5～D-9 の熱衝撃損傷パラメーター $R_{st}^{2)}$ の計算に必要な物性値及び $\sqrt{r_{wof}/E}$ の値をまとめて示し、図 25 には $\sqrt{r_{wof}/E}$ と AE 計数総数の関係を示す。なお、本報では、熱膨張率は試料間で一定として考慮に入れていない。ここで、 r_{wof} は、新しい破面を単位面積だけ生成するのに必要な、いわゆる破壊エネルギーであり、Work of Fracture 法³⁾によって求めたものである。試料が 4 種だけではあるが、 R_{st} と AE 計数総数の間にはよい相関が認められ、AE 計数総数が多いものほど R_{st} の小さくなる傾向がうかがえる。

4. 考 察

4.1 熱衝撃による 損傷挙動とこれに及ぼす 実験条件の影響

4.1.1 加熱速度の影響

M の場合、加熱速度が大きくなるにつれて階段状の AE 特性が顕著になることは、加熱速度が小さい場合、き裂の安定的な伝ばが支配的であるのに対し、加熱速度が大きくなるにつれて、き裂がより不安定的に伝ばしやすくなることを示唆するものとみられ、加熱速度によって、き裂の伝ば様式が変化しているものと考えられる。更に、この種の、き裂が不安定的に伝ばしやすい耐火物では、損傷の程度は AE 計数総数とは対応せず、むしろ、AE 計数の温度変化のパターンに、すなわち AE 計数の急増がどの程度起こったかということによく対応している。

一方、D-1 の場合、本実験の加熱速度の範囲では、AE 計数総数はほぼ一定で、AE 計数の急激な増加も認められないことから、いずれの加熱速度でもき裂は比較的安定に伝ばしたものと推察される。しかし、加熱速度が大きくなると、耐火物の損傷は大きくなることから、一般に、き裂が安定伝ば挙動を示す耐火物の損傷は、単位時間当たりの AE 計数 dN/dt とよい相関を持つと考えられる。M でみられる AE 計数の急増が $dN/dt \rightarrow \infty$ の場合であると考えれば、耐火物の種類にかかわらず、 dN/dt の大きいもの、すなわち大きな AE 波が急激に発生する傾向にあるものほど熱衝撃による損傷が大きいと考えてもよいように思われる。ただ、現段階では、耐火物内の AE の機構についてほとんど解明されていないこと、耐火物内の音波の減衰が考慮されていないこと及び AE の絶対計測がなされていないことなどのために、AE 特性の解釈には細心の注意が必要であり、定量的な議論には問題が残されている。

4.1.2 拘束条件の影響

M の場合、拘束力が大きくなると AE 特性がますます階段状になるのは、拘束力のために微小き裂の発生やき裂の安定伝ばは抑えられるが、ある温度でき裂が一気に進展すること、すなわちき裂の不安定伝ば・停止・不安定伝ばの傾向が顕著になっていくことを示唆している。特に、 y, z 方向から締めつけた場合には、 y, z 方向の弾性率の低下が小さいことから、この場合の AE 特性は、主に加熱面に平行なき裂の不安定伝ばの繰り返しを反映したものであることが推察される。ただ、拘束を加えた場合には、拘束のない場合に比べて AE 特性にばらつきがあり、これは試験片の拘束条件が必ずしも一定していなかったことに起因していると考えられる。拘束した場合に、1200°C 以上の温度域で発生する可聴音は、その直後から AE 発生が急減することなどから考えて、試験片が加熱面に平行なき裂によって二つに分断されたことを示すものであろう。ただ、可聴音の発生が必ずしも AE 計数の急増に結びつかないことから、試験片が最終的に二つに分断される際に発生する弾性波は低周波数側に偏ったスペクトルを持っているものと考えられる。

一方、D-1 では、拘束した場合 AE 計数は少なくなるが、これは試験片の弾性率の低下が y, z 方向で小さくなることに対応しており、拘束力のために、 y, z 方向の熱応力によるき裂の発生や伝ばが抑えられたことによるものであろう。ただ、D-1 では、拘束した場合でも AE 計数が急増することはないことから、拘束力の変化によって、き裂の伝ば様式は観測しうるほど変化せず、あくまで安定的に伝ばしていると考えられる。

4.1.3 試験片形状の影響

M の場合、 y, z 面形状が小さくなれば、同程度の損傷

でも AE 計数総数が少なくなるのは当然であるが、ここで重要なのは計数総数ではなく AE 計数の増加のしかたである。yz 面が正方形に近い形状 (c) は、形状 (a), (b) に比べて AE 計数の増加が顕著でないことから、き裂の伝ばはより安定的であり、その結果として損傷も小さかったと考えられる。換言すれば、耐火物形状が小さくなるにつれて発生熱応力も小さくなり、大きな形状の耐火物を小さな加熱速度で加熱した場合と同じ効果がもたらされたとと言える。

D-1 では、yz 面形状が大きくなっても AE 計数の急増が認められなかったことから、本実験の範囲では形状によってき裂の伝ば様式には顕著な差を生じなかったと考えられる。しかし、形状が大きいものほど、単位時間当たりの AE 計数 dN/dt が大きく、大振幅の AE も多い傾向にあり、これらのことが大きな損傷に結びついていると推定される。M の場合と同様な表現をとれば、大形状の試験片では、小さい試験片を大きい加熱速度で試験したと同様の効果がもたらされると言える。

なお、本実験の場合、AE 波の振幅に関しては、オシロスコープ上あるいは実効値電圧計を通して観測しただけであるため、詳細な議論は難しいが、今後試験条件の影響について更に立ち入った解析を行うためには、AE 振幅分布等の測定も必要であろう⁴⁾。

4.2 AE 特性と耐火物の耐熱衝撃性の関係について

種々の耐火物についての AE 測定から、材質によって AE 特性すなわち損傷過程に大きな違いのあることが明らかである。ここでは、耐火物の耐熱衝撃性の評価という観点から、マグネシア・ドロマイト質耐火物を対象に若干考察する。

AE 特性については、試験条件が同一であれば、単位時間当たりの AE 計数が耐火物の損傷とよく対応することがこれまでの結果からいえる。したがって、マグネシア・ドロマイト質耐火物のようにき裂が安定的に伝ばし、しかも各試料の間で音波の減衰に大きな差がないと考えられる耐火物では、AE 計数総数で耐熱衝撃性を評価することは妥当と考えられる。一方、Hasselman によれば²⁾、耐火物の耐熱衝撃性を評価する場合、熱応力によって発生するき裂が不安定に伝ばするような耐火物では、パラメーター R''' によって、またき裂が安定的に伝ばする耐火物では、パラメーター R_{st} によって評価するのが妥当であるとされている。マグネシア・ドロマイト質耐火物の場合、本実験の通常の条件下では、前述のようにき裂は安定的に伝ばするから、パラメーター R_{st} をもとにして考えるのが妥当であろう。D-6~D-9 を例にとると、図 25 に示したように、AE 計数総数が多いものほど R_{st} が小さくなる傾向にある。このことは、き裂の安定伝ばする同種材料間の耐熱衝撃性を、AE 計数総数によって評価できることを裏づけるものと言える。

なお、き裂が安定的に伝ばする耐火物でも、異種材質の場合には AE の発生機構や音波の減衰特性が異なるなどの影響もあるため、単純に AE 計数総数だけで比較するのは難しい。なお、前述のように、熱衝撃損傷パラメーターによって耐火物の耐熱衝撃性を評価する場合でも、使用条件下における耐火物のき裂の伝ば様式を知ることが必須であることから²⁾、AE 法を用いたパネルスポーリング試験はこの意味でも有効といえよう。

ところで、本報では D-1~D-3 のように酷似した耐火物間の損傷挙動、ひいては耐熱衝撃性の差を明確にすることはできなかったが、AE 計数率の温度変化 (図 23) の低温領域では多少違いがみられることから、今後のデータの集積、整理によってより精度の高い耐熱衝撃性の評価も可能と考えている。

5. 結 論

AE 法により、片面から急速に加熱した耐火物の損傷挙動を調べ、熱衝撃条件や材質の影響について検討するとともに、AE 法の耐熱衝撃性評価手段としての可能性についてもあわせて検討した。

(1) マグネシア質耐火物では、加熱速度、試験片形状あるいは試験片への拘束条件の違いによって、AE 特性、換言すればき裂の伝ば挙動が変わる。加熱速度、試験片形状あるいは周囲からの拘束力が大きくなるにつれて、き裂が不安定的に伝ばする傾向が顕著となる。

(2) マグネシア・ドロマイト質耐火物では、試験条件を変えても、AE 特性すなわちき裂の伝ば様式には顕著な差は認められない。しかし、試験条件によって耐火物の損傷程度には差が現れる。また、損傷の程度は、単位時間当たりの AE 計数の多少とよい相関を示す。

(3) 材質による損傷過程の違いを反映して、耐火物の AE 特性には顕著な差が認められる。本報で使用したマグネシア質、マグネシア・ドロマイト質、マグネシア・クロム質、アルミナ質耐火物は、五つの AE 発生パターンに分類できる。

(4) 音波特性が類似している同材質の耐火物の耐熱衝撃性は、同じ熱衝撃条件下では AE 計数総数の多少によって判定できる。5 種のマグネシア・ドロマイト質耐火物について、AE 法による結果と実炉における成績及び熱衝撃損傷パラメーター R_{st} の間によい相関のあることが確認された。

(5) 音波特性等が異なり、AE 計数総数で耐熱衝撃性を評価できない場合でも、AE 法は、き裂の伝ば挙動をよく反映するので、耐熱衝撃性評価の際に重要な役割を果たす。

(6) 今後、AE 法によって耐火物の熱衝撃破壊挙動を詳細に解明し、ひいては耐熱衝撃性の評価を精度よく行うためには、AE 特性に関するデータを集積、整理す

るとともに、耐火物における AE の発生機構の解明や音波の伝ば特性を明らかにすることが重要である。

文 献

1) 熊谷正人, 内村良治, 川上辰男, 窯協, **87**, 259-67(1979).

2) 例えば, D.P.H. Hasselman, *Trans. Brit. Ceram. Soc.*, **74**, 59-65 (1975).

3) 例えば, A.G. Evans, "Fracture Mechanics of Ceramics", Vol. 1, Ed. R.C. Bradt et al., Plenum Press (1973) p. 17-48.

4) 仲佐博裕, 非破壊検査, **27**, 236-44 (1978).

論文・Paper

加熱中における無添加 β -SiC 圧粉体の微構造変化

長谷貞三・鈴木弘茂・富塚 功*

(東京工業大学 原子炉工学研究所)
(* 科学技術庁 金属材料技術研究所)

高純度な β -SiC 微粉末 (平均粒径 $\sim 0.1 \mu\text{m}$) の圧粉体をヘリウム ($\text{O}_2 < 1 \text{ ppm}$ 及び露点 -74°C) 中で 2100°C まで $5.5^\circ\text{C}/\text{min}$ で加熱した。加熱中、圧粉体は全くち密化を示さなかったが、その微構造は著しく変化した。この過程を SEM 及び TEM で観察した結果、次のことが分った。

(1) 1630°C までの加熱で、粒子間に接合及び合体が生じた。しかしながら、合体して生じた大きな粒子はいろいろな方位を持つ出発粒子径に近いサイズの粒子から成っていた。

(2) 1900°C になると粒界の移動による結晶の成長が見られたが、やはり粒子間の形態変化の方が粒界の移動より速やかであった。

(3) 2100°C までの加熱中、局部的には、粒子の合体によってほとんど理論密度に近いち密な領域が出現するが、同時に気孔の合体も生じ、全体として全くち密化しない。

(4) 2 面角の分布を測定し、最頻値が 92° であることが分った。この値から粒界エネルギー対表面エネルギーの比 ($r_{\text{gb}}/r_{\text{sv}}$) は 1.39 と求められ、SiC のち密化にとって熱力学的な制限は存在しないことが分った。

(1978 年 11 月 1 日受付)

Microstructure Development of Undoped Compact of β -SiC during Heating

Teizo HASE, Hiroshige SUZUKI and Isao TOMIZUKA*

(Research Laboratory for Nuclear Reactors, Tokyo Institute of Technology, Meguro-ku 152)

(* National Research Institute for Metals, Meguro-ku 153)

Compacts of highly pure β -SiC powder with an average size of about $0.1 \mu\text{m}$ were heated up to 2100°C at a heating rate of $5.5^\circ\text{C}/\text{min}$ in helium ($\text{O}_2 < 1 \text{ ppm}$ and dew point -74°C). Although no apparent shrinkage was observed on the compacts, scanning and transmission electron microscopic observation revealed remarkable microstructural changes during the heating.

The results obtained were as follows:

(1) After heating up to 1630°C , joining and coalescence among particles were observed in the compact. It was found that the coalesced grain was polycrystalline and consisted of many differently oriented grains, of which size was in the range of 0.1 to $0.3 \mu\text{m}$.

(2) In the compact heated up to 1900°C , the grain growth by about ten times in size was observed, although extensive morphological change among particles occurred without appreciable grain-boundary migration.

(3) During heating up to 2100°C , some parts of the compact was densified almost to its theoretical density, and development of pores took place in other parts. Thus no densifica-