ガス圧焼結窒化ケイ素のき裂進展挙動

飯尾 聡・丹羽倫規・多島 容・渡辺正一

日本特殊陶業(株)中央研究所, 485 小牧市大字岩崎2808

Crack Propagation Behavior in Gas Pressure Sintered Silicon Nitride

Satoshi IIO, Tomonori NIWA, Yo TAJIMA and Masakazu WATANABE

R & D Center, NTK Technical Ceramics, NGK Spark Plug Co., Ltd., 2808, Iwasaki, Komaki-shi 485

[Received May 30, 1991; Accepted November 21, 1991]

The crack propagation behavior in gas pressure sintered Si_3N_4 was investigated under cyclic and static loading by 3-point bending for pre-cracked specimens by indentation on the center of the mirror finished tensile surfaces. Crack propagation occurred under cyclic loading with a maximum applied stress below the applied stress at which crack propagation stagnated under static loading, showing that crack propagation velocity under cyclic loading was higher than that under static loading. Although intergranular crack propagation with crack-bridging was observed in both cases under cyclic and static loading, crack-bridging, observed after static loading, was found to be fractured by the subsequent cyclic loading. It was thought that the crack shielding force by crack-bridging, which is effective for restraining crack propagation under static loading, was decreased by cyclic loading, resulting in faster crack propagation under cyclic loading than under static loading.

Key-words : Silicon nitride, Cyclic fatigue, Static fatigue, Pre-cracked specimen, Residual stress

1. 緒 言

近年、窒化ケイ素のエンジン部品、産業用部品などへの応用が進められているが¹⁾、構造部品として窒化ケイ素を使用する際にはその疲労特性を把握することが重要である。窒化ケイ素の疲労に関しては種々の試験片形状、試験条件での研究が行われており、予き裂のない試験片については時間依存型の疲労挙動を示すことや^{2),3)}、応力比の影響を受けることなどが報告されている^{4)~6)}。一方、予き裂を有する試験片については繰り返しの影響があることが確認されており^{7)~14)}、それに与える予き裂長さの影響なども検討されている^{11),12)}。

著者らはこれまでにガス圧焼結窒化ケイ素を試料として、室温大気中における疲労挙動に与える予き裂長さ、周波数、応力比の影響等を調査し、予き裂のない試験片では静疲労寿命と繰り返し疲労寿命は時間で整理できる時間依存型の疲労挙動、予き裂のある試験片では繰り返し数依存型の疲労挙動で、繰り返し疲労寿命が静疲労寿命に比べて明らかに短くなること等を報告した^{2),14)}。

本研究では、予き裂を導入した試験片を用いて、疲労寿命を決定するき裂進展速度を直接測定すること、及び、き

裂進展状況の観察によりき裂進展メカニズムを解明し、繰り返し疲労と静疲労で寿命が異なる理由を明らかにすることを試みた。

2. 実験方法

実験に供した窒化ケイ素は、焼結助剤として Al_2O_3 及び Y_2O_3 を添加したガス圧焼結窒化ケイ素であり、その特性を表 1 に示す。

上記窒化ケイ素を140番のダイヤモンド砥石を用いて研削加工することにより、JIS R 1601に基づく形状 ($3 \times 4 \times 40$ mm) の試験片を作製した。得られた試験片の引張面 (4×40 mm の面) を鏡面仕上げし、その中央部に 49N の荷重でビッカース圧子を圧入して予き裂 (予き裂長さ $2c \approx 180 \mu\text{m}$) を導入した。

上記の予き裂入り試験片に対して、室温大気中で油圧サーボ式疲労試験機を用いて、スパン30 mm の3点曲げにより静荷重あるいは繰り返し荷重を負荷することにより疲労試験を行った。繰り返し疲労試験は、周波数10 Hz、応力比 (R) 0.1の正弦波波形で行った。

進展して行くき裂の表面長さは試験を一時中断し、光学顕微鏡を用いて400倍の倍率で測定した。また、静荷重下及び繰り返し荷重下で進展した表面き裂の様子を走査型電子顕微鏡 (SEM) により詳細に観察した。

3. 結果及び考察

図 1 に最大負荷応力228 MPa で繰り返し荷重を加えたときの繰り返し数 (N) と表面き裂長さ ($2c$) の関係を示す。き裂は、最初荷重の繰り返しに伴い急速に進展し、次いで徐々にき裂進展量が減少し、再びき裂進展量が増加し破断直前には急速なき裂進展が生じていることが分かる。このグラフ上の各点を滑らかな曲線で近似し、任意の

Table 1. Properties of gas pressure sintered silicon nitride (GPSSN).

Density (g/cm^3)	Young's Modulus (GPa)	Vickers Hardness (GPa)	Fracture Toughness by SEPB ($\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$)	Thermal Expansion Coefficient ($1/\text{K}$)	Thermal Conductivity ($\text{W/m}\cdot\text{K}$)
3.23	320	14.3	6.0	2.8×10^{-6} (r.t.-800°C)	27

Fig. 1. Crack propagation curve under cyclic loading at 228 MPa (10 Hz, $R=0.1$).

き裂長さでその曲線に対して接線を引くと、その勾配からき裂進展速度 ($V=dc/dN$) を求めることができる¹³⁾。一方、応力拡大係数については、本研究ではビッカース圧子打ち込みによりき裂を導入しているため、そのときの塑性的変形によって生じる引張残留応力を考慮する必要がある、表面き裂先端の最大応力拡大係数 ($K_{I\max}$) はビッカース打ち込みによる残留応力項 (K_r) と負荷応力項 (K_s) の和で与えられる。 K_r に関しては、Anstis らにより(1)式で表されることが報告されている¹⁵⁾。

$$K_r = \chi (E/H)^{1/2} P/c^{3/2} \quad (1)$$

χ : 定数

E : ヤング率

H : ビッカース硬度

P : ビッカース打ち込み荷重

c : 表面き裂長さの半長

K_s に関しては、き裂形状が半円あるいは半楕円状であるならば Raju-Newman の解¹⁶⁾を用いて曲げ応力 ($\sigma_{\max}$) が負荷されているときの表面におけるき裂先端の K_s を求めることができる。本研究においては、き裂進展中の表面き裂長さだけが測定可能で、き裂深さ (a) を測定することはできない。繰り返し荷重負荷後に試料を即時破断させ、破断面の SEM 観察を行ったところ、図 2 に示したように、繰り返し荷重により進展したき裂の最終時点のアスペクト比 (a/c) は 0.68 であることが観察された。そこで、初期き裂はアスペクト比が 1 の半円状き裂で、き裂進展に伴ってき裂形状は半楕円状に変化し、そのときのアスペクト比は初期き裂から最終き裂まで直線的に変化すると仮定すると、 K_s を計算することができる。

上述の方法により、図 1 の結果から、最大応力拡大係数-き裂進展速度線図 ($K_{I\max}$ - V 線図) を求めた結果を図 3 に示す。残留応力を無視すると ($K_r=0$)、図 3 中に●印で示したように V 字形の $K_{I\max}$ - V 線図が得られた。これは初期き裂の状態では K_s よりも K_r の影響が大きく、き裂進展に伴い、残留応力の影響が小さくなるためと考え

Fig. 2. SEM picture of fracture surface of specimen fast fractured after cyclic loading test at 228 MPa.

Fig. 3. $K_{I\max}$ - V diagram obtained by cyclic loading test.

られる。き裂進展速度と応力拡大係数は、き裂進展に伴うき裂進展抵抗の変化がないならば 1 対 1 に対応する、すなわち、 $K_{I\max}$ - V 線図が一本の線になるはずである。そこで以下の方法により(1)式における χ の値を決定した。上述の V 字形の $K_{I\max}$ - V 線図においてき裂進展速度が最小となっているデータ点 (最小点) よりも $K_{I\max}$ が小さいデータ点の一つを選び、その点のき裂進展速度を挟んで、かつ、最も近いき裂進展速度を有する 2 点を最小点よりも $K_{I\max}$ が大きいデータ点の中から選択し、直線近似を行うと同じき裂進展速度に対して二つの $K_{I\max}$ が求まる。これらの差を、 χ を変化させながら、最小点よりも $K_{I\max}$ が小さいデータ点の各々について求め、その絶対値の総和が最小になるように χ の値を決定した。このようにして残留応力を考慮して求めた $K_{I\max}$ - V 線図を図 3 中に○印で示す。このときの χ は 0.011 であり、Anstis らが種々のセラミックス材料の実験結果を基に報告している値 (0.016) とは異なった値を示した。したがって、 χ は唯一性のある定数ではなく、材料の種類や実験方法等によって異なった値を示す可能性がある。残留応力を考慮すると、

本実験では $K_{I\max}$ が $4.7 \sim 5.2 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ の範囲、き裂進展速度が $2.5 \times 10^{-10} \sim 2 \times 10^{-8} \text{ m/cycle}$ の範囲の $K_{I\max}$ - V 線図を測定できたことになる。得られた $K_{I\max}$ - V 線図は逆 S 字曲線をしており、き裂が進展するための $K_{I\max}$ のしきい値 (K_{Ith}) が存在するように思われた。この結果は、ラプチャー試験により得られた逆 S 字形の最大応力-破断時間線図 (S-T 線図)¹⁴⁾ と類似の傾向であった。これらの結果は、き裂進展速度と寿命というアプローチの違いはあるものの、疲労特性として良く対応していると考えられた。本実験のき裂進展特性の測定結果はき裂の進展に伴ってそのアスペクト比が直線的に変化すると仮定に基づくものであり、今後実際のき裂のアスペクト比変化を何らかの方法で確認する必要がある等の問題点を残しているが、ラプチャー試験に比べて少ない試験片数でかつ短時間に疲労寿命評価を行える可能性のあることが分かった。なお、図 3 中に示した K_{Ic} 値 ($5.3 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$) はこの試験片を即時破断させ、その破壊応力を用いて上述の応力拡大係数の計算方法に従って求めたものであり、SEPB 法を用いて測定した K_{Ic} 値 ($6 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$) よりも小さい値となった。

図 4 に 287 MPa の応力で静荷重を負荷したときの荷重負荷時間 (t) と表面き裂長さの関係を示す。静荷重下でも繰り返し荷重下と同様に最初き裂は急速に進展し、次第にき裂進展量が減少したが、その後き裂は急速に進展して破断に至ってしまった。このき裂進展曲線よりき裂進展速度 ($V=dc/dt$) を求め、上述の繰り返し荷重下の場合と同様に $K_{I\max}$ - V 線図を求めた結果を図 5 (○印) に示す。なお、残留応力項の計算には繰り返し荷重下の場合と同じ χ の値を用いた。また、繰り返し試験の結果を、単純に 10 cycle が 1 s として時間基準のき裂進展速度に変換し、同図中にプロット (●印) した。図から明かなように、同じき裂進展速度を与える $K_{I\max}$ の値は繰り返し荷重下の方が静荷重下に比べて小さい、すなわち繰り返し荷重下では明らかに静荷重下よりもき裂が進展しやすいことが分かる。加えて、繰り返し荷重下では $K_{I\max}$ の働く有効時間は実際の荷重負荷時間よりもかなり短く、したがって、その差は更に大きいものと考えられる。また、静荷重下で

は測定した領域内ではき裂の進展に伴い $K_{I\max}$ が大きくなるとき裂進展速度が遅くなるように計算された。これは、静荷重下と繰り返し荷重下のき裂進展のメカニズムの差によって生じているものと考えられる。

静荷重下と繰り返し荷重下のき裂進展速度を直接比較するために、一本の試験片を用いて、最初負荷応力 245 MPa で静荷重を加え、その後に最大負荷応力 199 MPa で繰り返し荷重を加えたときの荷重負荷時間あるいは繰り返し数と表面き裂長さの関係を図 6 に示す。静荷重下では表面き裂長さが約 $400 \mu\text{m}$ で停留したが、その後 199 MPa という静荷重下よりも低い最大負荷応力の繰り返し荷重下では比較的短時間でき裂が急速に進展することが観察され、Horibe の報告¹³⁾ と同様、繰り返し荷重下では静荷重下よりも明らかにき裂が速く進展することが確認された。

繰り返しによる疲労の加速現象のメカニズムとしては、き裂先端における非線形プロセスゾーンの影響¹⁷⁾、材料に内在する残留応力の影響¹⁸⁾、き裂面の不整合 (Indentation 損傷¹⁸⁾、結晶粒破片のかみ込み¹⁰⁾ 等が提唱されているが、静荷重下及び繰り返し荷重下の疲労試験の結果¹⁴⁾ ではこれらの仮説を裏付ける結果は得られていない。

Fig. 5. $K_{I\max}$ - V diagram obtained by static loading test, compared with $K_{I\max}$ - V diagram obtained by cyclic loading.

Fig. 4. Crack propagation curve under static loading at 287 MPa .

Fig. 6. Crack propagation curve under static loading at 245 MPa and subsequent cyclic loading at 199 MPa .

静荷重下と繰り返し荷重下のき裂進展メカニズムの差を明らかにするために、図6に示した試料に対して、静荷重負荷後と繰り返し荷重負荷後のき裂をSEMにより観察し、き裂進展状況の比較を行った。図7に観察部位の模式図を示し、静荷重負荷後のA点及びB点の様子と、繰り返し荷重負荷後のA点、B点及びC点の様子をそれぞれ図8及び図9に示す。

静荷重下では、主に粒界破壊によりき裂が進展しており、き裂先端のかなりの領域 ($30\mu\text{m}$ 以上) においてき裂の不連続部分が観察された。また、粒子架橋が起こって

Fig. 7. Schematic of SEM observation positions of surface crack in the sample to which static and subsequent cyclic loading were applied.

Fig. 8. SEM pictures of point A and point B in Fig. 7 after static loading.

Fig. 9. SEM pictures of point A, point B and point C in Fig. 7 after static and subsequent cyclic loading.

いるところも多く観察され、その領域はき裂先端から $80\mu\text{m}$ 離れたところにまでも及んでいた。なお、図8中に矢印で示した白い組織の部分でき裂が分岐している様子が観察されるが、これは金属不純物粒子であり、その周りに特異な応力場が発生してき裂進展を妨げているものと考えられる。

繰り返し荷重下では、静荷重下と同様に主に粒界破壊によりき裂が進展しているが、静荷重負荷後にき裂が不連続になっていた部分や粒子架橋を生じていた部分が破壊され、き裂が連結している様子が観察された。また、き裂先端部分では、静荷重下の場合と同様に、かなりの領域にき裂の不連続部分や、粒子架橋が観察された。

以上の結果から、静荷重下と繰り返し荷重下におけるクラック進展メカニズムの違いを考察し、図10に模式図で示した。静荷重の場合、き裂に負荷応力以外の力が働いていなければ、き裂先端では負荷応力による応力拡大係数 (K_{app}) がそのまま働き、静荷重下のき裂の応力拡大係数 (K_{static}) は $K_{static} = K_{app}$ となる。ところがき裂の不連続部分や粒子架橋の存在がSEMにより観察されていることから、き裂の遮蔽効果 (ΔK_{static}) がクラックウェイクの領域で働き、き裂先端には K_{app} よりも小さい $K_{static} = K_{app} - \Delta K_{static}$ が働くことになる。一方、繰り返し荷重下では、静荷重下でき裂が進展したときに生じていたき裂の不連続部分や粒子架橋が破壊されながらき裂が進展する様子がSEM観察で確認されたことから、き裂の不連続部分や粒子架橋部分の粒子の結合力が繰り返し荷重により低下して、その結果、き裂遮蔽効果 (ΔK_{cyclic}) が著しく小さくなっているものと考えられる ($\Delta K_{cyclic} \ll \Delta K_{static}$)。その結果、繰り返し荷重下におけるき裂先端の K 値が静荷重下に比べて大きくなり ($K_{cyclic} > K_{static}$)、繰り返し荷重下のき裂進展速度が静荷重下のき裂進展速度よりも速くなったものと考えられる。なお、この説明は図3に示した破壊靱性値がSEP法で求めた値よりも小さい結果となったこととも矛盾しない。すなわち、SEP法においてポップインにより導入された予き裂には粒子架橋が存在していて、繰り返し荷重により導入されたき裂の場合よりも高いき裂進展抵抗を示したものと解釈される。

Manietteらはガス圧焼結窒化ケイ素の R カープ挙動を

Fig. 10. Schematic of difference of crack propagation mechanisms under static and cyclic loadings.

コンパクトテンション試験片を用いて測定し、上昇型の R カーブ挙動で、1 mm 程度の遷移領域が存在することを確認している¹⁹⁾。本研究で用いた試料は試験片形状やき裂形状が異なっているものの、静荷重下ではき裂先端から 80 μm 程度離れた領域においても粒子架橋が観察されていることから、同様に R カーブ挙動を示していると考えられる。そして図5に示したように、繰り返し荷重下と静荷重下で測定した $K_{I\text{max}}-V$ 線図が異なり、静荷重下ではき裂進展に伴いき裂進展速度が遅くなる挙動が観察されたのは、静荷重下と繰り返し荷重下では R カーブ挙動が異なっており、静荷重下の方がき裂進展に伴うき裂進展抵抗の上昇が大きく、き裂進展に伴って増大する負荷応力による $K_{I\text{max}}$ の増大よりも上回ったためと推察される。

上述のき裂進展状況は表面き裂を観察したものであり内部のき裂状態までは明らかにしていない。しかし、静疲労後と繰り返し疲労後の破断面を観察した結果、両者の破面には差が認められないことと¹⁴⁾、上述のように静荷重下と繰り返し荷重下でき裂進展経路に差がないことを併せて考えると、焼結体内部でも表面と同様な過程でき裂が進展しているものと考えられる。

以上の結果から、粒子架橋により高靱性化されている材料は繰り返し荷重下での疲労劣化を受けやすいと考えられ、今後、高靱性化と繰り返し疲労抵抗向上を両立させる研究が必要になると思われる。

4. 結 言

ビッカース圧子を圧入することにより予き裂を導入したガス圧焼結窒化ケイ素試験片の室温大気中におけるき裂進展挙動を調査した結果、以下の結論を得た。

(1) 繰り返し荷重下及び静荷重下共に、き裂進展曲線(繰り返し数あるいは時間とき裂長さの関係)を求めることができた。

(2) 上記のき裂進展曲線から求めた K_I-V 線図はラプチャー試験により求めた $S-T$ 線図と比較的良好に対応しており、き裂進展速度の測定は短時間で、かつ少数の試験片により疲労寿命を予測する有効な手段となる可能性がある。

(3) 静荷重下ではき裂が停留した試料にそれよりも低い応力で繰り返し荷重を負荷すると、き裂が進展すること

が観察され、明らかに繰り返しによるき裂進展の加速が生じることが確認された。

(4) 繰り返し荷重下、静荷重下のいずれの場合も粒子架橋を伴った粒界破壊が主であるが、静荷重下で粒子架橋が観察された試料に繰り返し荷重を与えると粒子架橋の部分が破壊されていることが分かった。

(5) 以上の結果から、静荷重下と繰り返し荷重下でき裂進展速度が異なるのは、静荷重下ではき裂の遮蔽に作用していた粒子架橋が、繰り返し荷重下では破壊されその遮蔽効果が低下することに起因すると考えられた。

(1990年9月第2回秋季シンポジウム発表)

文 献

- 1) 服部善憲, 機能材料, 9, 32-42 (1989).
- 2) Y. Tajima, K. Urashima, M. Watanabe and Y. Matsuo, "Ceramic Materials and Components for Engines", The Am. Ceram. Soc., Inc. (1988) pp. 719-28.
- 3) 大塚昭夫, 石原泰之, 東郷敬一郎, 昭和63年日本材料学会疲労シンポジウム予稿集 (1988).
- 4) 榊田昌明, 相馬隆雄, 松井 實, 小田 功, セラミックス論文誌, 96, 277-83 (1988).
- 5) 榊田昌明, 山田直仁, 相馬隆雄, 松井 實, 小田 功, セラミックス論文誌, 97, 520-24 (1989).
- 6) 山内幸彦, 酒井清介, 伊藤 勝, 大司達樹, 兼松 渉, 伊藤正治, 名古屋工業技術試験所報告, 35, 179-84 (1986).
- 7) T. Kawakubo and K. Komeya, J. Am. Ceram. Soc., 70, 400-05 (1987).
- 8) 山内幸彦, 酒井清介, 伊藤 勝, 大司達樹, 兼松 渉, 伊藤正治, 名古屋工業技術試験所報告, 35, 325-30 (1986).
- 9) 岸本秀弘, 上野 明, 河本 洋, 材料, 36, 1122-27 (1987).
- 10) 岸本秀弘, 上野 明, 河本 洋, 藤井康義, 材料, 38, 1212-17 (1989).
- 11) 上野 明, 岸本秀弘, 河本 洋, 森 英俊, 第5回破壊力学シンポジウム講演論文集 (1989) pp. 6-10.
- 12) 岸本秀弘, 上野 明, 河本 洋, 藤井康義, 朝倉幹男, 第5回破壊力学シンポジウム講演論文集 (1989) pp. 16-20.
- 13) S. Horibe, J. Mater. Sci. Lett., 7, 725-27 (1988).
- 14) 丹羽倫規, 浦島和浩, 多島 容, 渡辺正一, セラミックス論文誌, 99, 296-99 (1991).
- 15) G. R. Anstis, P. Chantikul, B. R. Lawn and D. B. Marshall, J. Am. Ceram. Soc., 64, 533-38 (1981).
- 16) I. S. Raju and I. C. Newman, Jr., Engng. Fract. Mech., 11, 817-29 (1979).
- 17) 小林英男, 川久保 隆, 日本金属学会会報, 27, 757-65 (1988).
- 18) 堀部 進, 鉄と鋼, 第75年第4号 (1989) pp. 578-86.
- 19) Y. Maniette, M. Inagaki and M. Sakai, J. Europ. Ceram. Soc., 7, 255-63 (1991).