超塑性接合した Y-TZP, Y-TZP/アルミナ複合材料の繰り返し疲労特性

永野孝幸・若井史博*

スズキ(株)開発第二部, 432-91 静岡県浜松市高塚町 300
*名古屋工業技術研究所構造プロセス部, 462 名古屋市北区平手町 1-1

Cyclic Fatigue Behavior of Superplastic Diffusion Bonded Y-TZP and Y-TZP/Alumina Composite

Takayuki NAGANO and Fumihiro WAKAI*

Development Division II, Suzuki Motor Corporation, 300, Takatsuka-cho, Hamamatsu-shi 432-91

*Structure Formation Process Department, National Industrial Research Institute of Nagoya, 1-1, Hirate-cho, Kita-ku, Nagoya-shi 462

[Received February 25, 1994; Accepted July 21, 1994]

Cyclic bending fatigue tests were performed on Y-TZP, Y-TZP/ Al_2O_3 composite (3Y20A), and superplastic diffusion-bonded materials. The relation between the maximum stress ($\sigma_{\max}$) and the number of cycles to failure (N) was expressed as $N=B/\sigma_{\max}^n$. The fatigue exponents (n) of Y-TZP and 3Y20A were 26 and 61, respectively. Every fatigue specimen of 3Y20A-3Y20A bonded material was fractured at the bonding interface with the fatigue exponent of 24. In the fatigue test of TZP-TZP bonded material, 33% of specimens were fractured at the bonding interface with the fatigue exponent of 16. The fatigue exponent of TZP-TZP bonded materials which were fractured at Y-TZP part was the same with that of Y-TZP. When fracture occurred at the bonding interface, ground marks were observed on the fracture surface. The bonded materials were more susceptible to cyclic fatigue than the base materials.

Key-words: Superplasticity, Fatigue, Diffusion, Bonding, ZrO_2 , Al_2O_3 , Composite

1. 序 論

難加工材料であるセラミックスを実用化するためにはセラミックスの接合は重要な技術である。著者らはセラミックスの超塑性現象を利用して拡散接合を行い、適切な条件下では接合強度は母材強度とほぼ等しくなることを示した^{1)~4)}。また、この接合技術を利用して、塑性加工と接合を同時に行う SPF/DB 法の一例として ZrO_2 - Al_2O_3 系傾斜機能材料を試作した⁵⁾。

一方、セラミックスを構造材料として使用する場合、その機械的特性や寿命予測に必要な疲労特性の解明が不可欠である。一般にセラミックスの疲労破壊は静的な引張り応力下での潜在欠陥の成長による強度低下が原因と考えられており、疲労の研究は主に静応力下で行われてきた。近年、繰り返し応力下による疲労の研究が盛んとなり、寿命低下、亀裂進展の加速、亀裂開閉口挙動の存在などが確認されている。セラミックスの実用化においてはその難加工特性から接合体が用いられる可能性が高い。また、その使用環境は長期間、振動にさらされることが予測され、繰り

返し応力による疲労破壊現象の解明が必要である。セラミックスの繰り返し疲労特性に関する研究の多くは単一材料で行われており、接合体において繰り返し疲労特性の研究を行った例⁶⁾はほとんどない。

そこで、本研究では超塑性接合した接合体の繰り返し曲げ疲労試験を行い、接合体と母材の疲労特性の違いを検出した。

2. 実験方法

2.1 試験片作製

接合体作製に用いた材料は 3 mol% Y_2O_3 部分安定化正方晶ジルコニア (Y-TZP, Tosoh Co., Ltd., 商品名 ZYS), Y-TZP/アルミナ複合材料 (3Y20A, Tosoh Co., Ltd., 商品名 Super-Z) である。Y-TZP/アルミナ複合材料は 3 mol% Y_2O_3 部分安定化正方晶ジルコニアマトリックス中に 20 mass% のアルミナ粒子が分散した複合材料であり、3Y20A と略記する。原料粉末は 40 MPa の圧力で 1 軸プレスした後、300 MPa の圧力で CIP 成形した。ジルコニアは大気中、1673 K、2h の条件で常圧焼結した。3Y20A は大気中、1673 K、1h の条件で焼結した後、Ar 中で 1773 K、0.5h、100 MPa の条件で HIP 処理した⁷⁾。表 1 に主な物性を示した。焼結体密度はアルキメデス法で測定した。粒径は切片法で測定した。なお、粒径の計算には以下の式を使用した。

$$d=1.776L \quad (1)$$

ここで、 d : 平均結晶粒径、 L : 平均切片長さである。3Y20A 複合材料は大気中、1723~1773 K、110 min の熱処理によって、スパン 15 mm の 3 点曲げ試験における強度が 2300 MPa から 1500 MPa 程度に低下することが報告されている²⁾。本実験では接合体の疲労特性を同じ母材強度レベルで比較するため、3Y20A は、あらかじめ、接合温度で接合時間に相当する時間、大気中で熱処理した焼結体を曲げ試験片に加工して使用した。したがって、表中の 3Y20A 複合材料の強度値は熱処理後の JIS R1601 に基づく 4 点曲げ強度である。Y-TZP 及び Y-TZP/アルミナ複合材料の超塑性変形特性については別報で述べた^{8),9)}。接合用試料は 200 番のダイヤモンドホイールで研削し、その

Table 1. Chemical Composition and Physical Properties of Base Materials

Material	Composition/mass%		Density / 10^3 kg m^{-3}	Bending strength /MPa	Weibull modulus	Grain size / μm	Thermal expansion / 10^{-6} K^{-1}
	ZrO ₂	Al ₂ O ₃					
TZP	99.7		6.05	790	18	0.59	12.0
3Y20A	79.9	20.0	5.50	1320	7.5	0.77	11.2

後、15×25 mm の接合面は400番のダイヤモンドホイールで200 μm 研削して、最終形状を15×25×20 mm とした。研削方向はすべて試験片の長手方向に対して平行に行った。接合面の表面粗さ (R_{max}) は3 μm 以下であった。接合は大気中、1748 K で高温万能材料試験機 (Instron model 1186) を用いて行った。試料を SiC 治具上にセットし、接合温度1748 K に昇温した後、クロスヘッド速度 0.05 mm/min で加圧した。圧力が12.5 MPa に達した時点で荷重制御に切り替え、歪量が10%になった時点でクロスヘッドを停止し、30分間保持した後、炉冷した。得られた接合体はダイヤモンドカッターで切り出し、400番のダイヤモンドホイールで長手方向に200 μm 研削して3×4×36 mm の曲げ試験片を作製した。接合試験片は一つの接合体から15本ずつ、それぞれ各30本作製した。接合試験片及び母材の強度は JIS R1601 に基づく 4 点曲げ試験で測定した。接合体の強度試験及び母材強度試験に用いた試験片の本数はそれぞれ10本ずつであった。

2.2 疲労試験

疲労試験は母材である Y-TZP と 3Y20A 複合材料及びおのおのの母材を組み合わせる超塑性接合した接合体 (TZP-TZP, TZP-3Y20A, 3Y20A-3Y20A), 計5種類の試験片に対して実施した。疲労試験には電気油圧サーボ式疲労試験機 (島津サーボパルサ EHF-FD1-10LA 型) を使用した。試験雰囲気は室温、大気中である。治具はスパン10~30 mm のムライト製 4 点曲げ治具を使用した。疲労試験に使用した試験片の本数は各20本であった。周波数は20 Hz で波形は正弦波を使用した。応力比 (R) は0.1である。なお、疲労試験においてサイクル数が 10^7 回を数えたものは打ち切りデータとして扱った。

接合後の接合界面の組織及び疲労試験後の破断面は走査型電子顕微鏡 (SEM) 観察した。

3. 結果と考察

図1に TZP-3Y20A 接合体の接合界面の SEM 写真を示す。接合界面が超塑性変形によって完全に密着化していることが分かる。TZP-TZP, 3Y20A-3Y20A 接合体についても同様に SEM 観察を行ったが、同種材料の組み合わせで界面が完全に密着化していることから、母材と接合界面の識別をすることは困難であった。

各材料の接合強度試験の結果を表2に、疲労試験の結果を図2に示した。図2における 10^0 のプロットは各材料の

Fig. 1. SEM micrograph at the bonding interface of TZP-3Y20A.

Table 2. Bonding Strength of Bonded Materials

Specimen	Bonding strength
3Y20A-3Y20A	980 MPa
TZP-TZP	670 MPa
TZP-3Y20A	780 MPa

即時破断強度である。3種の接合体のうち、同種材料の組み合わせである3Y20A-3Y20A 接合体の場合、接合強度は母材強度の74%であり、接合強度試験においても、また、疲労試験においてもすべての試験片が接合界面で破壊した。TZP-TZP 接合体の接合強度は母材強度の85%に達した。接合強度試験において接合界面で破壊した試験片は10%であった。疲労試験においては33%の試験片が接合界面で破壊し、残りは母材部分で破壊した。したがって、接合界面で破壊する確率は接合強度試験よりも疲労試験の方が高かった。一方、異種材料の組み合わせである TZP-3Y20A 接合体は接合強度試験、疲労試験ともすべての試験片が TZP 側で破壊した。これは、TZP-3Y20A 接合体の場合、TZP 側に接合時の残留引張り応力が存在することが原因と考えられる。

母材の4点曲げ試験と接合体の接合強度試験におけるワイブル係数を比較すると3Y20A の7.5に対し3Y20A-3Y20A は7.1とはほぼ同じ数値であった。Y-TZP の18に対し、TZP-TZP 接合体は13, TZP-3Y20A は32を示した。田中らは窒化ケイ素の回転曲げ疲労試験を行い、一定の応

Fig. 2. Results of cyclic bending fatigue tests of (a) 3Y20A-3Y20A and 3Y20A, (b) TZP-TZP and Y-TZP, and (c) TZP-3Y20A.

力レベルにおける疲労寿命分布はワイブル分布に従うことを報告している¹⁰⁾。したがって、今回、疲労試験に用いた接合体はほぼ同じサンプル数で母材と疲労寿命を比較検討することが可能である。

ここで、図2において、測定点を直線近似すると、最大応力 $\sigma_{\max}$ と破断に至った繰返し数 N の間には次式が成立する。

$$N = B / \sigma_{\max}^n \quad (2)$$

ただし、 B は材料定数、 n は疲労指数である。図中の直線及び破線は打ち切りデータを除いた疲労破断データを最小二乗法で近似することにより求めた。表3に直線近似による材料定数と疲労指数の結果を示した。直線近似によって計算された B 値は各材料の接合強度値及び4点曲げ強度値の $\pm 5\%$ 以内の数値であった。山田らは疲労寿命のばらつきが最小二乗法により計算した n の推定値に及ぼす影響をモンテカルロシミュレーションにより検討し、その結果、負荷応力5水準、各水準データ6個、サンプル数計30個、ワイブル係数15の場合、61の n 値に対する標準偏差は24であることを報告した¹¹⁾。本実験におけるジルコニアの n 値は彼らの n 値の1/3程度なので、本実験における n 値の有効数字は1けた程度であると考えられる。

同種材料の組み合わせである3Y20A-3Y20A接合体の場合、接合体の疲労破断データのばらつきは母材よりも大きかった。しかしながら、即時破壊における母材強度のワイブル係数7.5に対し、接合強度のワイブル係数は7.1とほぼ同じ値であった。また、母材と接合体の疲労指数を比較すると、母材の61に対して、接合界面で破壊する接合体の疲労指数は24と低かった。

TZP-TZP接合体の疲労破壊においては、母材破壊の場合と接合界面での破壊の場合とが混合している。そこで、疲労破壊データを母材破壊と接合界面破壊との二つに分けて疲労指数の計算を行い、その結果を表4に示した。TZP-TZP接合体の母材破断データから計算した疲労指数は26となり、母材であるY-TZPの疲労指数26と一致した。接合体が接合界面で破壊した場合、疲労指数は母材破壊する場合の疲労指数26より小さな値16を示した。接合体の疲労指数が母材の疲労指数より小さくなるという結果は3Y20A-3Y20A接合体の場合と同じであった。

異種材料の組み合わせであるTZP-3Y20A接合体の場合、すべてTZP側で破壊した。接合体の疲労指数は24であり、母材のY-TZPの疲労指数である26とほぼ同じ値であった。異種材料の組み合わせであるTZP-3Y20A接合体ではTZPと3Y20A複合材料の熱膨張係数の差より、接合体のTZP側には約240 MPaの引張り応力が残留していると計算されるので、接合体強度及び疲労強度はY-TZPよりも低いことが予想される。しかしながら、接合体の接合強度は780 MPaとY-TZPの強度790 MPaとほとんど同等であった。また、繰返し疲労特性は B 値が804、 n 値が24とY-TZPの B 値750、 n 値26よりやや高い疲労強度を示した。この理由としては、超塑性接合時の圧縮変形の際に内部欠陥の収縮や消滅が起こってY-TZP側の強度が増加したためと考えられる。実際に、著者らはY-TZP、Y-TZP/アルミナ複合材料、ムライト、ムライト/ジルコニア複合材料の超塑性接合による強度増加を観察している^{2),3)}。つまり、TZP-3Y20A接合体の疲労強度は高温圧縮変形による強度増加と残留引張り応力とで決定されている。

図3に接合体と母材の疲労試験後の破断面のSEM写真を示す。図3(a)、(b)は3Y20A-3Y20A接合体、TZP-TZP接合体において、接合界面で破壊した試験片の破面の典型例である。破壊は接合界面に沿って起こっており、

Table 3. Fatigue Data Calculated by the Least Square Method

Specimen	B	n
3Y20A	1310	61
3Y20A-3Y20A	1010	24
Y-TZP	750	26
TZP-TZP	706	23
TZP-3Y20A	804	24

Table 4. Fatigue Data of TZP-TZP Calculated by Fracture Part

Specimen	Fracture part	B	n
TZP-TZP	Base material	678	26
	Bonding interface	813	16

Fig. 3. SEM micrographs of fracture surface after cyclic bending fatigue tests of (a) 3Y20A-3Y20A and (b) TZP-TZP.

Fig. 4. SEM micrograph of black area on fracture surface in Fig. 3(b).

平坦で接合前の研削痕が見られた。

図4に図3(b)中で黒く島状に見える領域の側面からのSEM写真を示す。この領域では疲労試験時の亀裂進展が接合界面から数十 μm のところで伝播したことが分かる。

したがって、TZP-TZP 接合体の n 値が接合界面と母材では異なること、接合界面で疲労破壊した試験片の破面には研削後が見られることから、超塑性接合により作製された接合体の接合界面の疲労メカニズムは母材の疲労メカニズムと異なっていると考えられる。

4. 結 論

Y-TZP と Y-TZP/アルミナ複合材料 (3Y20A) を母材として、各材料を組み合わせた接合体を超塑性接合により作製し、母材及び接合体の繰返し曲げ疲労試験を行った。得られた結果は以下のとおりである。

(1) 最大応力 σ_{max} と破断までのサイクル数 N との間には $N=B/\sigma_{\text{max}}^n$ が成立した。Y-TZP と 3Y20A 複合材料の疲労指数 (n) は26と61であった。

(2) 3Y20A-3Y20A 接合体の繰返し疲労においては、すべての試験片が接合界面で破壊した。疲労指数は24を示し、母材に比べて著しく低かった。

(3) TZP-TZP 接合体では接合界面で疲労破壊した試験片は33%だけであった。母材部分で破壊した場合の疲労指数は Y-TZP と同一であった。接合界面で破壊した場合の疲労指数は16であった。

(4) 3Y20A-3Y20A 接合体、TZP-TZP 接合体ともに接合界面で破壊した場合には、破面に研削痕が見られた。

(5) TZP-3Y20A 接合体は TZP 側で疲労破壊した。接合体の TZP 側には残留引張り応力が存在するが、接合時の圧縮変形によって TZP の強度が増加するため、接合体の強度と疲労特性は母材である Y-TZP の特性と同等かそれより向上した。

文 献

- 1) T. Nagano, H. Kato and F. Wakai, "Proceedings of MRS International Meeting on Advanced Materials, Vol. 7, Superplasticity", Ed. by M. Kobayashi and F. Wakai, Materials Research Society, Pittsburgh (1989) pp. 285-92.
- 2) T. Nagano, H. Kato and F. Wakai, *J. Am. Ceram. Soc.*, 73, 3476-80 (1990).
- 3) T. Nagano, H. Kato and F. Wakai, *J. Mater. Sci.*, 26, 4985-90 (1991).
- 4) T. Nagano and F. Wakai, *J. Mater. Sci. Lett.*, 投稿中.
- 5) T. Nagano and F. Wakai, *J. Mater. Sci.*, 28, 5793-99 (1993).
- 6) 笹木一憲, 元家勝彦, 川崎 正, 日本機械学会中国四国支部総会講演会論文集, Vol. 30 (1992) pp. 7-9.
- 7) K. Tsukuma, K. Ueda and M. Shimada, *J. Am. Ceram. Soc.*, 68, C4-5 (1985).
- 8) F. Wakai, S. Sakaguchi and Y. Matsuno, *Adv. Ceram. Mater.*, 1, 259-63 (1986).
- 9) F. Wakai and H. Kato, *Adv. Ceram. Mater.*, 3, 71-76 (1988).
- 10) 田中道七, 境田彰芳, 日本機械学会論文集, A53, 1566-73 (1987).
- 11) 山田直仁, 中筋善淳, 阪井博明, 日本セラミックス協会第6回秋期シンポジウム講演予稿集 (1993) p. 340.