Si₃N₄ 焼結体の機械的特性に関する微構造的な研究

菅野幹男・佐竹忠昭・来次浩之・藤本裕二*・佐藤 啓**・菅沼栄一**

山形大学工学部機械システム工学科, 992 米沢市城南 4-3-16

*(株)東芝, 230 横浜市鶴見区末広町 2-4

**山形県工業技術センター, 990 山形市沼木字車の前 683

A Microstructural Study of Mechanical Properties in Si₃N₄ CeramicsMikio SUGANO, Tadaaki SATAKE, Hiroyuki KISUKI, Yuuji FUJIMOTO*
Hiraku SATO** and Eiichi SUGANUMA**

Department of Mechanical Systems Engineering, Faculty of Engineering, Yamagata University, 4-3-16, Jonan, Yonezawa-shi 992

*Toshiba Inc., 2-4, Suehiro, Tsurumi-ku, Yokohama-shi 230

**Yamagata Research Institute of Technology, 683, Kurumanomae, Numagi, Yamagata-shi 990

[Received October 12, 1990; Accepted March 22, 1991]

To clarify the effect of microstructure on crack growth behavior in Si₃N₄ ceramics, fracture toughness and three-point bending tests have been carried out for pressureless sintered (PLS) and hot-pressed (HP) Si₃N₄ specimens. As to the hot-pressed Si₃N₄ ceramics, the specimens were cut out parallel (HP-TL) and perpendicular (HP-SL) to the hot-pressing direction respectively for studying the anisotropy of mechanical properties. Microstructures subsequent to crack growing were characterized on the fracture surface and in the process zone wake by optical and scanning electron microscopies. The anisotropy was discernible in fracture toughness and bending strength, but hardly in microhardness. The process zone wake was damaged more severely in the HP-TL specimen than in the HP-SL one. The X-ray diffraction line profiles and pole figure analyses showed a preferred orientation of the β -phase in hot-pressed Si₃N₄. The HP-TL specimen had a fracture toughness and a bending strength about 10 percent greater than the HP-SL specimen. Pulling-out of elongated grains was more frequently observed on the fracture surface of the PLS specimen. The results obtained were discussed in connection with the preferred orientation of elongated β -phase grains from the microstructural points of view.

Key-words : Microstructural analysis, Anisotropy, Fracture toughness, Bending strength, Hot-pressed Si₃N₄

1. 緒 言

Si₃N₄ は焼成時に柱状の β 相結晶粒を生成する。Lange¹⁾によってホットプレス焼成の場合には β 相柱状粒の c 軸が加圧方向に対して垂直に配向する傾向があり、機械的特性に約20%の異方性を生じること、また、結晶粒形状を等軸形から柱状形にすることにより Si₃N₄ 材の破壊エネルギーは約4倍に、強さは約2倍に増大すること等が報告された。

一方では、機械的強度特性の異方性は、破壊が材料中の潜在傷や介在物等から発生する際の破壊エネルギーの異方性に起因するとの考えもある^{2),3)}。しかし、いずれも強度

異方性の成因に関する定説とまでには至っていない。また、これらは主として曲げ強さについて調べられたものであり、他の特性についての報告例は更に少ないようである⁴⁾。既存材料の特性を正しく理解することは、材料の利用のみならず新しい材料開発の基礎としても極めて重要である。

本研究は、常圧及びホットプレス Si₃N₄ 焼結体の破壊機構を微構造との関係で究明しようとするものである。特に、ホットプレス焼結体については試験片を焼成時の加圧方向に対して異なる2方向から採取し、破壊靱性、曲げ強さ及び硬さの異方性を調べるとともに破面とき裂周辺の微構造観察を行った。常圧焼結体との結果の比較から、 β 相柱状粒の組織学的配向との関係において検討する。

2. 実験方法

供試材には東芝製の Si₃N₄-Y₂O₃-Al₂O₃ 系常圧 (TSN-03) 及びホットプレス (TSN-02) Si₃N₄ 焼結体を使用した。き裂進展特性の異方性を調べるために、ホットプレス焼結体 (HP 材) から破壊靱性試験片を図1に示す形状と寸法のシェブロンノッチ付き SB (Short bar) 試験片を成形加工した。切欠形状は深さ $a_0=6.35$ mm, 幅 $t=0.4$ mm。

Fig. 1. Shape and dimensions of short bar (SB) specimen with chevron notch. $a_0=6.35$ mm and $t=0.4$ mm.

Fig. 2. Specimen preparation from the hot-pressed Si_3N_4 compact (a) and photomicrographs showing top surface microstructure obtained from the HP-TL, -SL and PLS specimens respectively (b). The arrows indicate the hot-pressing direction.

mm, 先端角度 $\alpha=58.0^\circ$ である。試験片の採取は、焼成時の加圧軸に対して試験荷重方向が垂直でき裂進展面が平行 (TL 材) 及び試験荷重方向が平行でき裂進展面が垂直 (SL 材) の 2 種類について行った (図 2 (a))。破壊靱性試験には Terra Tek 社製のフラクトメータを用いた。本測定装置では、 K_{Ic} 値は最大荷重をもとに演算処理されたデジタル数値として出力される方式となっている。実験は、試験荷重と荷重点開口変位の関係を X-Y 記録計に同時記録しながら行った。曲げ試験は、支点間距離を 15 mm に定めた 3 点曲げ法に基づき、各材料とも最少 10 本の試験片について実施した。試験片は、破壊靱性試験片表面から $1.5 \times 2.0 \times 19$ mm の小片を曲げ試験時の引張り側表面が破壊靱性試験片のき裂進展面と平行で、かつ、両試験片間で長軸が一致する方向に切り出した。試験片の引張り側表面は SiC エメリー紙 #1500 まで機械研磨後、ダイヤモンドペースト #2000 でラッピング仕上げした。表面粗さは、最大高さ $R_{\max}=0.6 \mu\text{m}$ であった。微小硬さは、微小硬度計 M 型 (島津製作所製) により試験荷重 500 g, 保持時間 30 s の条件で測定した。微構造解析には光学顕微鏡、走査型電子顕微鏡 (SEM) (X-560 型 XMA: 日立製) と X 線回折法を用いた。X 線回折強度は、RAD- γ A (理学電機製) により Cu K α 線を管電圧 40 kV, 管電流 100 mA の条件で測定した。また、極点図の測定には RAD-II B とポールフィギュア測定装置 (理学電機製) を使用した。Cu K α 線を 40 kV, 30 mA の管電圧と管電流の条件で Schultz 反射法に基づき走査範囲 $\alpha=20^\circ \sim 90^\circ$ で測定した。

常圧焼結体 (PLS 材) の実験は、異方性に関連する事項を除き、すべて上述の HP 材と同様に行った。

3. 結果及び考察

3.1 微構造解析

図 2 (b) は、HP 材と PLS 材のき裂進展面に平行な表面を機械研磨後にエッチング処理し、SEM 観察したものである。一般的傾向として、HP-TL 材は表面と垂直に配列する柱状粒 (以後垂直配向柱状粒と記述) の数が多く、平

行に横たわる柱状粒 (以後水平配向柱状粒と記述) は少ない。それに比して HP-SL 材では水平配向柱状粒もかなり多く観察される。また、PLS 材には HP 材に比べて大きな気孔が数多く含まれる。柱状粒の形状は各材料間に顕著な差は認められず、平均長径が $3 \mu\text{m}$ でアスペクト比は約 5 であった。

き裂面に平行な HP 材試料表面をディフラクトメータ法により測定した X 線回折強度曲線の結果を図 3 (a) に示した。 β - Si_3N_4 相 (以後 β 相と記述) の回折強度ピーク値の高い方から上位 3 面を示すと HP-TL 材では (101), (200), (210) の順となるが、HP-SL 材では (200), (210), (101) の順となり、両材間で異なる。両材とも β 相以外に α - Si_3N_4 相 (以後 α 相と記述) からの回折線も含んでいる。材料に含まれる α 相の体積分率は回折強度曲線のピーク値に基づいて次式により求めることができる⁵⁾。

$$C\alpha/(\alpha+\beta) = \frac{I_\alpha(210) + I_\alpha(201)}{I_\alpha(210) + I_\alpha(201) + I_\beta(200) + I_\beta(210)} \times 100$$

図 3 (a) から求められる値を上式に代入すると、HP-TL 材で $C\alpha/(\alpha+\beta)=17.4\%$ 、HP-SL 材で $C\alpha/(\alpha+\beta)=11.2\%$ となり、両材で異なる結果が得られる。この結果は、HP 材の α 相体積分率には試験片採取方向による異方性が存在することを意味している。上式中の α 相の回折強度 ($I_\alpha(210) + I_\alpha(201)$) は、HP-TL 材で 1125 cps, HP-SL 材では 1120 cps となり、両材間にはほとんど差はない。一方、 β 相の回折強度 ($I_\beta(200) + I_\beta(210)$) は、HP-TL 材が 5350 cps であるのに対して HP-SL 材では 8860 cps となり互いに異なった値を示す。それゆえ、上で求めた HP 材の α 相体積分率の異方性は、試験片採取方向に由来する β 相回折強度曲線の相違に起因していると理解される。このような異方性は、構造敏感な複合材料の機械的強度特性や複合則に基づいて扱われる材料評価に影響すると考える。

同様の測定を PLS 材のき裂面に平行な表面及び垂直な縦断面について行った。図 3 (b) はその結果である。PLS

材の場合、両測定面で測定した X 線回折強度曲線にほとんど差は認められない。また、 α 相からの回折強度が HP 材に比べて非常に低い。HP 材の場合と同様、上式により α 相の体積分率を求めると PLS-SIDE 面では 4.4%, PLS-TOP 面では 4.1% となり、両面ではほぼ同じ値を得る。それゆえ、PLS 材の場合は体積分率に試験片採取方向による異方性はないと判断される。

HP 材 β 相の回折強度を最大強度との相対強度比として求め、表 1 に表示した。HP-TL 材と HP-SL 材の同じ面指数間の比較から、指数 (hkl) の $l \neq 0$ となる六方晶構造の基底面や錐面の場合は HP-TL 材の相対回折強度が高く、 $l=0$ となる柱面の相対回折強度は HP-SL 材の方が高い値を示している。これは、HP-SL 材では β 相柱状粒の c 軸が加圧軸に対して垂直に配向する傾向があることを意味する。この結果は Lange¹⁾ や岩崎ら⁶⁾ の報告と一致する。

図 4 の {200} 面極点図の測定結果にも同様の傾向が認められる。図は、き裂進展面と平行な面について測定したもので、図中の数値は極密度分布の等高線レベルを表す。HP-TL 材と比較して HP-SL 材では高レベルの領域が中央付近に集中的に分布する傾向を示すことから、HP-SL 材は柱面が測定面にほぼ平行（つまり c 軸が測定面法線と垂直）に配向する結晶粒を数多く含んでいることを示している。

以上の X 線回折法により得られた結果は、HP-Si₃N₄ 材の材料強度特性には試験片採取方向に依存する異方性があり、定量的評価には β 相柱状粒の異方性を考慮した取扱が必要であることを示唆するものである。

3.2 破壊靱性、R 曲線と組織配向

破壊靱性値 (K_{Ic}) の測定結果を図 5 に示した。測定は各材料とも 15 個の試験片について行い、その平均値に標

Table 1. Peak-height ratios from the X-ray diffraction intensity of hot-pressed Si₃N₄ for the surfaces parallel (HP-TL) and perpendicular (HP-SL) to the hot-pressing direction.

h k l		Powder diffraction file	I / I ₁₁	Specimens	
				HP-TL I / I _{max}	HP-SL I / I _{max}
1 1 0	2 0			1 3	1 3
2 0 0	8 5			6 4	1 0 0
1 0 1	1 0 0			1 0 0	4 0
2 1 0	1 0 0			5 1	8 8
1 1 1	9			1 7	1 6
2 0 1	3 5			2 2	1 7
2 2 0	5			8	1 0
2 1 1	5			4	8
3 1 0	2 0			2	1 0
3 0 1	7 0			2 9	2 5
2 2 1	2 0			1 2	1 2
3 1 1	9			6	4
3 2 0	3 5			9	1 3
0 0 2	3 5			1 9	1
4 1 0	2 0			8	1 2

準偏差 (I) を付記して表示した。PLS 材がもっとも高い値を示し、HP 材間の比較では HP-TL > HP-SL となり、HP 材の K_{Ic} 値は試験片採取方向によって異方性を示すことが分かる。

各材料の破壊靱性試験後の破面形態を SEM 観察して得られた典型的な例を図 6 に示した。HP-TL 材破面 ((A) 図) には、柱状粒の横断面形状を呈する結晶粒の破面形態が多く観察される。これは、垂直配向柱状粒をき裂が粒内破壊によって進展したことを物語っている。この場合の微視的破面形態は、柱状粒横断面単位の凹凸からなる。また、HP-SL 材破面 ((B) 図) には、垂直配向柱状粒の横断面のほか、多くの水平配向柱状粒の抜けた痕跡が認められる。き裂先端に柱状粒が水平配向する場合、き裂は粒内破壊で進展するよりも柱状粒の柱面粒界に沿う進展形態を取りやすい状況にあると解釈される。これと類似の結果は、Bowen ら⁷⁾ や来次⁸⁾ の透過型電子顕微鏡 (TEM) による

Fig. 3. X-ray rocking curves measured on the surface parallel to crack plane in the HP-TL and -SL specimens (a) and on the top and side surfaces in the PLS specimen (b), respectively.

Fig. 4. {200} pole figures of the surface parallel to crack plane of the hot-pressed Si₃N₄ short bar specimens (HP-TL and HP-SL).

き裂進展挙動の観察においても得られている。ほかに、少数の垂直配向粒引き抜き痕が HP-TL 材と HP-SL 材とともに観察された。量的には、HP-TL 材の方が HP-SL 材よりも若干多く観察される傾向はあったが、両材間にそれほど顕著な差が認められなかった。これは、HP 材では両材間で β 相柱状粒の垂直配向に差があっても粒界結合強度が高いため、垂直配向柱状粒はそれほど容易に引き抜かれることによると考えられる。それゆえ、HP 材よりも粒界結合強度の低い PLS 材 (C 図) の破面には、引き抜き垂直配向柱状粒の痕跡が HP 材よりもかなり多く観察される。このような垂直配向柱状粒の引き抜き現象は、図 5 の PLS 材の破壊靱性値向上に有効に作用していると推察される。

図 7 は、各材の R 曲線を SB 法によって求めたものである。き裂進展抵抗 (K_R) は、破壊靱性試験において同時測定した荷重-荷重点開口変位の関係から、Barker⁹⁾の考えを基礎とする岡田ら¹⁰⁾の方法に従って次式により求めた。

$$K_I = \chi^{-1/2} P_F [d(r^{-1})/ds]^{1/2}$$

ここで、 P_F はフラクトメータの荷重出力を、 r は荷重-荷重点開口変位曲線の傾きの比を、 s はき裂進展面積をそれ

Fig. 5. Comparison of fracture toughness among the variously prepared specimens. I: standard deviation.

ぞれ表し、 χ は $d(r^{-1})/ds$ の最小値である。各材料とも相対き裂長さ $a/w \approx 0.55$ (a : 切欠深さを含みき裂長さ, w : 試験片長さ) で K_R 値は最小となり、その後上昇に転ずる傾向を示す。最小値経過後の曲線の傾きは HP-TL 材が HP-SL 材よりも大きくなっている。このような R 曲線の経過は同じシェブロンノッチ試験片を用いた他の研究者の結果にも認められ^{10)~12)}、以下の微構造解析結果と密接に関連していると解釈される。

図 8 は、破壊靱性試験片のき裂進展面に垂直な縦断面の切欠底部におけるき裂発生の様相をノマルスキー式微分干涉顕微鏡で観察したものである。観察は、き裂が試験片長さの途中まで進展した段階 ($a/w \approx 0.6$ に相当) で試験を中断し、シェブロンノッチ底部を含むように切断した縦断面について行った。切欠底部では、図示のように、複数のき裂発生が起こっている場合が多い。発生したき裂は間もなく成長合体するかまたはき裂進展に優位な条件の 1 個だけが進展して、安定破壊段階を経た後最終破断へと推移する。更に、図には主き裂から分岐したと推察されるき裂跡 (∇ 印) がき裂進展方向に対して約 $15^\circ \sim 25^\circ$ の傾斜角度で観察される。これらの分岐き裂の長さは切欠底部近くでは約 $100 \mu\text{m}$ 程度あるが、切欠底部から離れたところでは約 $10 \mu\text{m}$ 程度に短くなり、また、その数も減少する傾向にある (図 9 (A))。図 7 の R 曲線が $a/w < 0.5$ の領域でいくぶん高いき裂進展抵抗値を示した後最小値の経過を迎える現象は、切欠底部近くで分岐き裂形成やその数がより多く、き裂進展とともに漸減する現象と関係していると解釈

Fig. 7. R -curves for the variously prepared specimens. a : crack length including the notch depth a_0 , w : specimen length. The a/w at notch root is 0.33.

Fig. 6. Fractomicrographs showing appearances characteristics of the fracture surface after fracture toughness test for each specimen.

Fig. 8. Nomarski contrast optical photomicrograph taken of a longitudinal section showing appearance of crack initiation at notch root (HP-TL specimen). The symbol (▽) indicates crack branching.

される。図9は図8と同様の手法で、HP-TL、-SL及びPLS各材のき裂進展形態 ($a/w=0.6$ に相当)とき裂周辺のプロセスゾーンウェイク発達の様相を観察したものである。図中、プロセスゾーンウェイクはき裂両側の損傷域幅としてき裂の太さによって識別できる。損傷域幅はPLS材で最も顕著に強く現れ、HP-TL、HP-SLの順に弱くなっている。これと対応してき裂進展様相もより直線的形態を呈するようになる。また、PLS材ではき裂進展経路途上に気孔の存在が認められる ((C)図右側)。き裂は進展過程で気孔との連結・合体を伴いながら成長することを示唆している。よく発達したプロセスゾーンウェイクを示す材料は多くの微視き裂やき裂分岐を含み、図5においても高い破壊靱性値を示している。それゆえ、プロセスゾーンウェイクの性状がき裂進展挙動や破壊靱性値と密接に関連すると理解される。プロセスゾーンウェイク発達への影響因子には、ホットプレス Si₃N₄ 材ではき裂近傍の β 相柱状粒配向が、また、PLS材では気孔の存在や β 相柱状粒の引き抜き現象が挙げられる。後者のPLS材のき裂進展過程で、き裂が気孔と合体する際には、き裂先端部に局所的応力緩和が生じるであろう。よく発達したプロセスゾーンウェイクの形成やき裂と気孔との合体に伴う局所的応力緩和等の理由から、PLS材の R 曲線はHP材よりも全体的に高い値を示すと理解される。かくして、HP材間の K_{Ic} 値の差は主として β 相柱状粒の配向性に基づく破壊形態の相違に起因し、HP材とPLS材間の差はPLS材に認められた気孔とき裂の相互作用ならびに β 相柱状粒の引き抜き現象に関連すると考えられる。

3.3 曲げ強さ及び硬さと微構造

各材料について測定した曲げ強さの結果を図10に標準偏差を付して示した。加工法の曲げ強さへの影響を知るため、ダイヤモンドカッターで切断したままの試験片ならびにエメリー紙とラッピングによる機械研磨で表面仕上げを施した試験片を用意し、双方とも各10~15本を試験して平均値を求めた。曲げ強さの場合は、 K_{Ic} とは反対に、HP材の方がPLS材より高い値を示す。しかし、HP材間では、曲げ強さもHP-TL>HP-SLとなり、 K_{Ic} と同様の大小関係である。つまり、破壊靱性値や曲げ強さの試験

Fig. 9. Nomarski contrast optical photomicrographs (longitudinal section) showing appearances of damage zones formed along a growing crack in each specimen. The symbol (▽) indicates crack branching. The a/w is 0.6.

片採取方向に依存する大小関係は、同じ製造条件の材料間では採取方向によらず保存されるが、異なる製造条件の材料間では保存されない。この事実は、破壊靱性値と曲げ強さは必ずしも同一因子で支配されないことを示唆している。また、図10には、切削したままの材料の方が、機械研磨で表面仕上げを施したものよりも曲げ強さは高くなる傾向が認められる。この傾向は加工条件にも大いに左右されると考えられるが、曲げ強さは加工法にも依存することを示唆しており、興味ある結果である。

曲げ試験後の破面を光学顕微鏡とSEMによる巨視的な

Fig. 10. Comparison of bending strength among the variously prepared specimens. I: standard deviation.

らびに微視的観察によって破壊形態と破壊発生個所を調べた。巨視的破壊形態は図11(A)のマッチング写真に見られるようにミラー、ミスト及びハックルの各部分から構成される。(B)、(C)図にはミラー部とハックル部のSEM観察結果を示した。ミラー部は柱状粒の粒内破壊を主とし、ハックル部は結晶粒が塊りとなって破壊したことを示す微視的形態を呈している。破壊源は引張り側表面及び表面直下層の欠陥がほとんどであった。図12は、破壊源のSEM観察の例である。欠陥の種類は気孔、異質物が主で、本実験では表面研磨条痕が直接破壊源となった例はほとんど認められなかった。著者らの経験では、研削条痕が試験片長軸方向に平行であれば、 $R_{max}=3.6\mu\text{m}$ 以下の表面粗さは曲げ強さにそれほど影響を及ぼさない結果を得ている⁸⁾。破壊源となる表面や内部（稀にはあるが）の異質物は、EDXによる分析の結果、Siを主成分とし微量のAlを含むことが分かった。内部異質物の周辺には、小さな気孔の凝集体からなる約 $50\mu\text{m}$ の大きさの空洞が認められた。

この空洞は、伊藤ら¹³⁾の報告と同様の理由によって、焼結助剤として添加された Al_2O_3 の凝集によって形成されたものと考えられる。本実験に用いたような小試験片の場合は、大試験片に比べて中立軸方向への曲げ応力勾配が大きい。そのため、試験片表面に存在する欠陥からのき裂進展は欠陥底部から厚さ方向へ向かうよりも表面に沿って幅方向へ向かう方が力学的に有利な状況にあると理解される。また、曲げ強さは引張り側表面の性状に極めて敏感であることより、図10の加工法による差異は加工変質層の深さや残留応力等の相違に依存して生じたものと推察する^{14),15)}。

微小硬さの測定結果を図13に示した。各値は20以上の測定点の平均値として求めた。結果にやや $\text{HP-TL} < \text{HP-SL}$ の傾向は認められるものの、両材間の差は僅少である。PLS材の硬さはHP材に比べてかなり低い値であった。

3.4 ホットプレス Si_3N_4 焼結体の異方性

図5と図10の結果から破壊靱性値と曲げ強さの試験片採取方向による異方性の度合を $\text{HP-SL}/\text{HP-TL}$ の比として求め、表2に示した。破壊靱性値も曲げ強さもともに両材の相対強度比の値は約0.9と得られた。それゆえ、前述

Fig. 12. SEM photomicrograph showing fracture origin observed on the fracture surface after three-point bending test.

Fig. 11. Optical and scanning electron photomicrographs showing the fracture surface morphology after three-point bending test, in which the specimen broke down at $\sigma_b=952\text{ MPa}$. Matching pairs (A) and SEM photomicrographs taken of the areas corresponding to the fracture mirror and hackle regions in (A) respectively ((B), (C)).

の X 線回折法により得られた結晶学的異方性と考え合わせ、HP 材の配向性による機械的強度特性の異方性はおおよそ10%程度と判断される。この値は、Lange¹⁾による曲げ強さの結果が約20%であることに比べて小さい。これは、材料の組成や製造条件等の相違に由来すると推察される。両結果ともホットプレス Si₃N₄ 材の使用に際しては、機械的特性に関して試験片採取方向の考慮が重要であることを示している。

4. 結 言

ホットプレス Si₃N₄ 焼結体 (HP 材) の焼成時の加圧方向に対してき裂進展面が平行 (HP-TL 材) 及び垂直 (HP-SL 材) となるように採取した SB 試験片の破壊靱性値、3 点曲げ強さと硬さの測定を行い、機械的特性の異方性を調べた。微構造解析ならびに常圧焼結材 (PLS 材) 結果との比較検討により、次の諸事項に関する知見を得た。

(1) HP 材の β -Si₃N₄ 相から得られた X 線回折強度曲線は、HP-TL 材と HP-SL 材間で相違するが、 α -Si₃N₄ 相の回折強度曲線には両材間に差はほとんど認められなかった。また、PLS 材の表面と側面から測定した結果には、 α -Si₃N₄ 相にも β -Si₃N₄ 相にも差はなかった。それゆえ、HP 材の場合、X 線回折強度曲線に基づいて α 相、 β 相の体積分率の定量的評価や両相の体積分率を使って機械的強度特性の評価を行う際には、 β 相回折強度の異方性を考慮する必要がある。

Fig. 13. Comparison of Vickers microhardness among the various prepared specimens. I: standard deviation.

Table 2. The ratios of fracture toughness and bending strength between the HP-TL specimen and the HP-SL one in the hot-pressed Si₃N₄ ceramics.

	HP-SL	HP-TL	HP-SL/HP-TL
Fracture toughness (MPa·√m)	4.3	4.7	0.91
Bending strength (MPa)	1) 862	941	0.92
	2) 892	980	0.91

1): Mechanically polished surface.

2): Machined surface.

(2) SB 法で求めた破壊靱性値と 3 点曲げ強さには、HP-TL と HP-SL 材間に約10%の異方性が認められた。破壊靱性値、3 点曲げ強さともに HP-TL > HP-SL となり、いずれも HP-TL 材が優れた特性を示す。硬さは HP-TL < HP-SL の傾向を示すものの、両材間の差は僅少である。しかし、PLS 材との比較では、HP 材は曲げ強さと硬さにおいて優り、破壊靱性値は劣る。つまり、破壊靱性値と曲げ強さの大小関係は、同じ製造条件の材料間では採取方向によらず保存されるが、異なる製造条件の材料間では保存されない。

(3) SB 試験片縦断面の微構造観察により、プロセスゾーンウェイクの発達には HP 材間では HP-TL 材の方が HP-SL 材よりも顕著であり、PLS 材は HP 材よりも更に顕著であった。このプロセスゾーンウェイク発達の度合いは、破壊靱性値やき裂進展抵抗曲線の結果と密接に関連する。

(4) 破壊形態から見た特徴的き裂進展挙動として、HP-TL 材では垂直配向柱状粒をき裂が切断しながら粒内破壊するのに対して、HP-SL 材では水平配向柱状粒の粒界に沿って進展したと思われる痕跡が多く観察された。破面の柱状粒引き抜き痕跡は HP-TL 材に若干多く認められる傾向はあるが、HP-SL 材との間にそれほど顕著な差はなかった。PLS 材には柱状粒引き抜き痕が HP 材よりもかなり多く観察された。

(5) ホットプレス Si₃N₄ 焼結体の破壊靱性値と 3 点曲げ強さには β 相柱状粒の配向性に起因する異方性が存在する。しかし、硬さではあまり顕著でない。

謝 辞 本研究の一部は日本板硝子材料工学助成会の援助により行われたものであり、ここに記して感謝の意を表します。

(1987年1月第25回窯業基礎討論会において一部発表)

文 献

- 1) F. F. Lange, *J. Am. Ceram. Soc.*, **56**, 518-22 (1973).
- 2) R. Kossowsky, *J. Mater. Sci.*, **8**, 1603-15 (1973).
- 3) J. E. Weston, *J. Mater. Sci.*, **15**, 1568-76 (1980).
- 4) 鈴木弘茂編, “高温セラミックス材料”, 日刊工業 (1985) pp. 157-58.
- 5) O. Yeheskel and Y. Gefen, *Mater. Sci. Engng.*, **71**, 95-99 (1985).
- 6) 岩崎秀夫, 泉 守, *材料*, **30**, 1044-50 (1981).
- 7) L. J. Bowen and T. G. Carruthers, *J. Mater. Sci.*, **13**, 684-87 (1978).
- 8) 来次浩之, 工学修士論文, 山形大学 (1987) pp. 61-62.
- 9) L. M. Barker, *Int. J. Fracture*, **15**, 515-36 (1979).
- 10) 岡田 明, 広崎尚登, 的場和夫, *窯協*, **95**, 559-61 (1987).
- 11) 小林英男, 中村春夫, 北山 厚, 山本節雄, 日本機械学会論文集, **A-54**, 1080-85 (1988).
- 12) 阪口修司, 若井史博, 加藤英純, 島田 忠, 窯業協会昭和61年年会講演予稿集 (第一分冊), 359-60 (1986).
- 13) 伊藤正治, 酒井清介, 伊藤 勝, *材料*, **30**, 1019-24 (1981).
- 14) 松野外男, 伊藤正治, 奥田 博, *セラミックス*, **16**, 546-53 (1981).
- 15) 奥田 博, 伊藤正治, *材料*, **32**, 823-29 (1983).