破壊前駆過程におけるアルミナの微小塑性†

小川 裕之‡ 西野 洋一 浅野 滋

名古屋工業大学材料工学科

J. Japan Inst. Metals, Vol. 57, No. 4 (1993), pp. 389-393

Microplasticity of Alumina in Forerunning Process of Fracture

Hiroyuki Ogawa, Yoichi Nishino and Shigeru Asano

Department of Materials Science and Engineering, Nagoya Institute of Technology, Nagoya

Mechanical hysteresis in alumina with microcracks has been investigated by a loading-unloading test in the microstrain range around 10^{-4} and examined in comparison with the strain amplitude dependence of internal friction. While there remains a permanent strain after the initial loading, successive cyclic loading stabilizes the mechanical response, resulting in a single closed hysteresis loop with a symmetrical shape. Such a stabilized hysteresis loop is responsible for the internal friction based on the friction mechanism and can be attributed to the microplasticity in the forerunning process of fracture. With increasing strain amplitude, the area enclosed by the stabilized hysteresis loops increases remarkably. Since the loop area determines the energy loss per cycle, its strain amplitude dependence is considered to arise from the same origin as that of internal friction. The internal friction data have also been analyzed on the basis of the theory of microplasticity. The stress-strain responses thus obtained show that the microplastic strain of the order of 10^{-9} increases nonlinearly with increasing effective stress. The variation in the microplastic flow stress corresponds well to the decrease in the macroscopic fracture strength resulting from the formation of microcracks and crack propagation.

(Received November 17, 1992)

Keywords: alumina ceramics, fracture, microplasticity, mechanical hysteresis, internal friction, strain amplitude dependence, nonlinear hysteretic strain

I. 緒 言

セラミックスは、通常、金属のような塑性変形を起こさず、弾性変形から直ちに破壊へと移行する。したがって、セラミックスの破壊現象を明らかにするためには、破壊の前駆過程における変形挙動を詳細に調べることが必要となる。このような微小なひずみ領域での力学応答を観測する方法として、力学的ヒステリシスの観察や内部摩擦の振幅依存性の測定がある。

降伏以前のひずみ領域で繰返し変形を行った場合、応力-ひずみ曲線上にヒステリシスループが形成されることがある。このような力学的ヒステリシスは、これまで多くの金属・合金について観察されており⁽¹⁾⁻⁽³⁾、 10^{-4} 程度のひずみ領域における微小塑性に基づく現象であることが知られている。一方、内部摩擦の測定は 10^{-6} 程度のひずみ振幅のもとで行われるため、測定中に巨視的な塑性変形は見られない。しかし、内部摩擦の値がひずみ振幅に依存する場合には、材料の力学応答が非線形であり、微視的にいえば応力-ひずみ曲線がヒステリシスを描くことを意味している。つまり、内部摩擦の振幅依存性は力学的ヒステリシスに起因する現象であるが⁽⁴⁾⁻⁽⁶⁾、従来の研究ではそれぞれ相互に独立な現象として扱われてきた⁽¹⁾⁻⁽³⁾⁽⁷⁾⁻⁽⁹⁾。

このような微小塑性に関する研究の多くは金属材料を対象にしたものであり、セラミックスのような脆性材料についての研究はあまり行われていない⁽⁶⁾⁽¹⁰⁾。最近、Nishino ら⁽¹⁰⁾はクラックを含むアルミナについて内部摩擦の振幅依存性を調べ、セラミックスにおいても破壊の前駆現象として金属のような塑性変形が生じていることを指摘した。さらに、微小塑性理論⁽⁴⁾に基づいて、内部摩擦の振幅依存性データを解析し、セラミックスの微小塑性領域における力学応答を定量的に評価した。一方、セラミックスの力学的ヒステリシスについては、これまで直接観察された例⁽⁶⁾はあまりない。そのため、力学的ヒステリシスと内部摩擦の振幅依存性との現象的な相互関係についてはほとんど明らかにされていない。

本研究では、代表的なセラミックスとしてアルミナを取り上げ、破壊の前駆過程をモデル化するために、熱衝撃によってマイクロクラックを導入した。これらの試料について曲げ試験により力学的ヒステリシスを検出し、同一試料に対して内部摩擦の振幅依存性を測定した。とくに、ヒステリシスループの形状に着目してひずみ振幅の影響を系統的に調べ、内部摩擦の振幅依存性と比較して現象的な相互関係を検討した。また、観測された力学的ヒステリシスに対する微小塑性理論により、内部摩擦データを解析して 10^{-9} 程度の塑性ひずみを応力の関数として算出した。このような塑性ひずみと応力の関係は、通常の引張試験で得られる応力-ひずみ曲線に対応するものであり、この結果をもとにアルミナの微小塑性を定量的に評価した。

† 1991年10月日本金属学会秋期大会において発表

‡ 名古屋工業大学大学院生

II. 実験方法

試料には純度99.5%のアルミナ基板(NTK, HA995)を用い、ダイヤモンドカッターにより $80 \times 10 \times 1 \text{ mm}^3$ のサイズに成形した。熱衝撃試験は、試料を炉内で目的温度まで加熱して 3.6 ks 保持後、273 K の氷水中に投下して急冷することで行った。このときの熱衝撃温度差(ΔT)を変化させることによりクラックの量を制御した。十分に乾燥させた試料について、まず内部摩擦を測定し、その後、同一試料に対して力学的ヒステリシスを観察した。

力学的ヒステリシスの観察は負荷-除荷を1サイクルとした曲げ試験により行った。繰返し負荷-除荷変形は、インストロン型試験機を用いてスパン長さ 50 mm の3点曲げ試験で行い、このときの変形速度は 0.5 mm/min で一定とした。試料中央部の最大たわみ変位の測定には差動トランス(島津, DT-2S-SP)を用い、荷重と変位を X-Y レコーダによって同時に記録した。

内部摩擦の測定は室温、大気中において、1500 Hz 前後の自由端横振動法で行った。実際には、試料を一定振幅で 60 s 間振動させた後、励振を止め、自由減衰の時間変化を減衰曲線としてレベルレコーダ(Onsoku, ORL-20)に記録した。このような減衰曲線は振動振幅の対数値を時間に対して記録したものであり、1本の減衰曲線において、それぞれの振動振幅における接線の傾きを読みとることで対数減衰率を算出した。また、内部摩擦の測定では実験変数として試料中央部の最大ひずみ振幅を用いた。

III. 実験結果

1. 力学的ヒステリシス

著者らはこれまでに、クラックを含むアルミナについて繰返し負荷-除荷変形を行い、得られた力学的ヒステリシスの物理的意味を明らかにした⁽⁶⁾。とくに、熱衝撃によってクラックを導入した試料においては、応力とひずみの関係は非線形となり、あたかも塑性変形が起きているような挙動を示すことがわかった。さらに、繰返し変形によって閉じたループを形成し、最終的には形状の変化しない定常化したヒステリシスループとなることを確認した。しかし、このような力学的ヒステリシスと内部摩擦の振幅依存性との現象的な相互関係については明らかにされていない。そこで本研究では、繰返し負荷-除荷変形によって得られた定常的なヒステリシスループに着目し、ループ形状に対するひずみ振幅の影響について詳細に調べた。

Fig. 1 に、 $\Delta T=400 \text{ K}$ の熱衝撃を与えた試料について、一定荷重のもとでの繰返し変形によるヒステリシスの形状変化を示す。図の縦軸と横軸は、実測値である荷重とたわみ変位で示したが、それぞれ応力とひずみに対応するものである。これから、1回目の負荷-除荷サイクルにおいては、除荷後に大きな残留ひずみを生じていることがわかる。すなわち、変形の初期段階ではクラックの伝播のような不可逆的な内部状態の変化が起きていると考えられる。しかし、5回程度の繰返しによって閉じたループを形成し、その後100回までの繰返し変形を行っ

Fig. 1 Series of hysteresis loops under loading-unloading cycles for alumina subjected to thermal shock of $\Delta T=400 \text{ K}$; N denotes the number of cycles. The specimen was cyclically loaded to the same load level of 9.8 N but not unloaded completely; the bias load was 0.98 N.

ても破壊することではなく、同一形状のヒステリシスループが再現性よく得られた。この100回目のヒステリシスループについて詳細に見てみると、10回目のループと形状、面積ともほぼ一致していることがわかった。このことは、10回程度の繰返し変形によってヒステリシスループがすでに定常化していることを示唆している。このような結果は、金属の繰返し変形で観察されている現象と極めてよく似たものである⁽¹⁾⁻⁽³⁾。Fig. 2 に、各種の温度差(ΔT)の熱衝撃を与えた試料について定常化したヒステリシスループを示す。参考のために、 $\Delta T=600 \text{ K}$ の試料の結果も示してある。 $\Delta T=200 \text{ K}$ の試料では、クラックは導入されていないので応力とひずみの関係は線形となり、熱衝撃を与えていない試料と同様に弾性的挙動を示した。しかし、熱衝撃温度差が大きくなるほど定常ループの幅や面積が大きくなり、また、見かけのヤング率が低下していることがわかる。

Fig. 2 Stabilized hysteresis loops under a loading-unloading condition for alumina subjected to thermal shock; ΔT is the quenching temperature difference. The specimens were cyclically loaded to the load level of 9.8 N.

Fig. 3 Series of stabilized hysteresis loops under a loading-unloading condition for alumina subjected to thermal shock of $\Delta T=400$ K. The specimen was cyclically loaded as a function of strain amplitude.

次に、ひずみ振幅の増加過程および減少過程において、ループ形状におよぼすひずみ振幅の影響を調べた。 $\Delta T=400$ Kの試料について、各ひずみ振幅で得られた定常ループをFig. 3に示す。ひずみ振幅の増加過程では、いずれのひずみ振幅でも1回目の負荷-除荷サイクルによって残留ひずみを生じ、開いたヒステリシスループが得られた。しかし、各ひずみ振幅での繰返し変形によって閉じたループを形成し、最終的にはFig. 3に示すように一定の形状を持つ定常ループとなった。この図から、ひずみ振幅が大きくなるに伴って、定常ループの幅や面積が増加していることがわかる。一方、ひずみ振幅の減少過程では、1回目の負荷-除荷サイクルにおいて閉じたループを形成し、その後の繰返し変形によってもループ形状はほとんど変化しなかった。このときのループの形状は、ひずみ振幅の増加過程における定常ループと比較して大きな違いは見られず、同一のひずみ振幅で比較するとループ面積はほとんど一致していた。

2. 内部摩擦の振幅依存性

Fig. 4は、熱衝撃温度差(ΔT)の異なる試料について、内部摩擦のひずみ振幅に対する変化を測定した結果である。ここで用いた試料はFig. 2に示したものと同一であるが、内部摩擦の測定は負荷-除荷試験の前に行った。熱衝撃を与えていないアルミナの内部摩擦は、図中に点線で示すように 3×10^{-4} と非常に小さく、またひずみ振幅に対する変化は見られなかった。クラックを含むアルミナについて内部摩擦を測定した結果は、次のようにまとめることができる。

- (1) 振幅に依存しない内部摩擦は、 ΔT が増加すると著しく大きくなる。
- (2) 振幅に依存する内部摩擦は、 ΔT が増加すると大きくなり、さらに振幅に対する変化も急激になる。
- (3) 内部摩擦が振幅に依存し始める点は、 ΔT の増加に伴って低振幅側へ移行する。

以上の結果は、熱衝撃を与えたアルミナについて従来から報告されている結果⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾とも一致している。今回の内部摩擦の

Fig. 4 The measured value of internal friction δ plotted against the maximum value of strain amplitude $\epsilon_{\max}$. ΔT is the quenching temperature difference.

測定は 10^{-6} のオーダーのひずみ振幅で行われており、そのひずみ領域は力学的ヒステリシスの観察に比べて2桁ほど小さいものである。しかしながら、本研究ではこれらの測定を同一の試料について行っているため、内部摩擦の測定結果と力学的ヒステリシスの観察結果とは定性的には対比することができる。

IV. 考 察

1. 力学的ヒステリシスと内部摩擦の相互関係

内部摩擦の測定値である対数減衰率 δ は、物理的には次のようなエネルギー表現によって意味づけられる。

$$\delta = \frac{\Delta W}{2W}$$

ここで、 W は振動体の力学的エネルギーであり、 ΔW は振動1サイクルあたりの損失エネルギーである。とくに、 ΔW は荷重-変位曲線上に描かれるヒステリシスループの面積に等しくなる。このことは、内部摩擦が力学的ヒステリシスに起因する現象であることを意味している。つまり、Fig. 3とFig. 4の観察結果は相互に関係するものであるが、両者を直接比較するのは困難である。そこで、内部摩擦データに対応するように、Fig. 3で得られた各ヒステリシスループの面積を試料中央部の最大ひずみ振幅に対してプロットした結果をFig. 5に示す。内部摩擦の振幅依存性は1本の減衰曲線から求められるので、ループ面積の計算にはひずみ振幅の減少過程で得られたヒステリシスループを用いた。Fig. 5において、熱衝撃温度差の大きい試料ほど各ひずみ振幅でのループ面積が大きく、また、ひずみ振幅に対するループ面積の増加も顕著になっている。このようなひずみ振幅依存性はFig. 4の内部摩擦の結果と定性的に一致している。

ところで、力学的ヒステリシスの観察は内部摩擦の測定に比

Fig. 5 The area of stabilized hysteresis loop ΔW plotted against the maximum value of strain amplitude $\epsilon_{\max}$. ΔT is the quenching temperature difference.

Fig. 6 The microplastic strain ϵ_p expressed as a function of stress σ . ΔT is the quenching temperature difference. The curves are obtained from the results in Fig. 4.

べて2桁も大きいひずみ領域で観察されているが、ヒステリシスの測定精度は内部摩擦に比べてあまりよくないという問題がある。そのため、セラミックスにおける微小塑性を定量的に評価するには、内部摩擦の振幅依存性データを解析することが必要となる。

2. 内部摩擦の振幅依存性の解析

内部摩擦の振幅依存性は振動変形でのみ意味を持つ力学応答であるが、微小塑性理論⁽⁴⁾によりデータ解析することにより、引張試験で得られるような塑性ひずみと応力の関係に換算することができる⁽¹⁰⁾⁻⁽¹³⁾。この場合、特定の転位モデルを仮定することなく現象のみに着目してデータ解析を行うので、金属に限らず、セラミックスに対しても適用することができる⁽¹⁰⁾。データ解析に際しては、まず力学的ヒステリシスの形状を規定しておかなければならない。今回の観察結果から、セラミックスにおけるヒステリシスループは、振動1サイクルに対して1つの閉じたループを示しており、また、その形状は離脱型のように非対称なものではなく、むしろ摩擦型のように対称形である⁽⁴⁾⁽⁶⁾ことがわかる。このような形状のヒステリシスループは、アルミナの負荷-除荷サイクルによるクラックの開口変位と荷重の関係においても観察されている⁽¹⁴⁾。つまり、セラミックスにおいても、微小なひずみ領域では金属⁽¹⁾⁻⁽³⁾やイオン結晶⁽¹⁵⁾と同様に摩擦型ヒステリシスが実現していることが結論できる。

Nishino ら⁽¹⁰⁾は以前に、セラミックスにおける内部摩擦の振幅依存性データを解析し、塑性ひずみを応力の関数として算出した。今回は、実測された摩擦型ヒステリシスに対する微小塑性理論により、Fig. 4 に示した内部摩擦の振幅依存性データを解析した。Fig. 6 は塑性ひずみ ϵ_p と応力 σ の関係を表しているが、通常の応力-ひずみ曲線とは違って縦軸と横軸が逆になっている。これから、1 MPa 程度の変形応力のもとで 10^{-9}

のオーダーの塑性ひずみが非線形に増加していくことがわかる。すなわち、微細なクラックが導入されたセラミックスにおいて、通常の引張試験では検出できないほど微小な塑性変形が生じていることを示している。しかも、このような微小塑性領域においても、 ΔT が大きくなるほど応力-ひずみ曲線は低応力側へシフトしていくことがわかる。この応力低下の傾向は、これまで破壊試験により調べられてきているように、熱衝撃を受けると破壊強度が著しく低下する⁽¹⁶⁾⁽¹⁷⁾ことと定性的には一致している。

内部摩擦の実験では、測定中に内部状態が変化しないように1回の振動減衰過程に着目して測定を行っている。さらに、内部摩擦の測定値は繰返し測定によっても変化しないことから、測定中にクラックの発生や伝播など不可逆な変化は起きていないと考えられる。したがって、内部摩擦の測定は、微小なひずみ領域における力学応答を非破壊で精度よく検出できるので、セラミックスのような脆性材料の非破壊試験としても有効な方法である。

V. ま と め

本研究では、クラックを含むアルミナについて力学的ヒステリシスを観察し、さらに内部摩擦の振幅依存性と対比して現象的な相互関係を検討した。得られた結果は次のようにまとめられる。

(1) 10^{-4} 程度のひずみ領域における負荷-除荷サイクルにより、応力-ひずみ曲線上にヒステリシスループが観察された。とくに、変形初期には除荷後に永久ひずみを生じたが、繰返し変形により閉じたヒステリシスループが定常的に得られた。つまり、セラミックスの破壊前駆過程においては金属のような微小塑性が生じている。

(2) 定常ループの形状から判断して摩擦型のヒステリシスが実現している。これは、金属や合金で観察されているものと同じである。

(3) 定常ループの面積はひずみ振幅とともに著しく増加し、現象的には内部摩擦の振幅依存性に対応している。また、ひずみ振幅の増加過程における定常ループと減少過程で得られたループの形状に大きな違いは見られなかった。

(4) 内部摩擦の振幅依存性データを微小塑性理論により解析し、 10^{-9} 程度の塑性ひずみを応力の関数として算出した。このような微小塑性領域における変形応力の変化は、クラックの発生や伝播による破壊強度の低下と定性的には一致している。

本研究の一部は、名古屋工業大学共同研究センターの研究プロジェクトとして(財)ファインセラミックスセンターとの共同研究により行われたことを付記し、関係各位に謝意を表する。

文 献

- (1) J. M. Roberts and N. Brown: Trans. AIME, **218**(1960), 454.
- (2) N. Brown and R. A. Ekvall: Acta Metall., **10**(1962), 1101.
- (3) P. Lukáš and M. Klesnil: Phys. Stat. Sol., **11**(1965), 127.
- (4) S. Asano: J. Phys. Soc. Japan, **29**(1970), 952.
- (5) N. Brown: *Microplasticity*, Ed. by C. J. McMahon, Jr., John Wiley & Sons, New York, (1968), 45.
- (6) Y. Nishino, H. Ogawa and S. Asano: Phil. Mag. Lett., **66**(1992), 313.
- (7) V. A. Chelnokov, V. A. Stepanov and N. L. Kuz'min: Sov. Phys. Solid State, **12**(1970), 649.
- (8) R. B. Schwarz and L. L. Funk: Acta Metall., **31**(1983), 299.
- (9) K. Matsushita, S. Kuratani, T. Okamoto and M. Shimada: J. Mater. Sci. Lett., **3**(1984), 345.
- (10) Y. Nishino, T. Murayama and S. Asano: Phil. Mag. A, **65**(1992), 1187.
- (11) 奈良井 弘, 浅野 滋: 日本金属学会誌, **46**(1982), 253.
- (12) 後藤 肇, 西野洋一, 浅野 滋: 日本金属学会誌, **55**(1991), 848.
- (13) Y. Nishino, Y. Okada and S. Asano: Phys. Stat. Sol. (a), **129**(1992), 409.
- (14) G. Vekinis, M. F. Ashby and P. W. R. Beaumont: Acta Metall. Mater., **38**(1990), 1151.
- (15) S. B. Kustov, S. N. Golyandin and B. K. Kardashev: Sov. Phys. Solid State, **30**(1988), 1248.
- (16) D. P. H. Hasselman: J. Am. Ceram. Soc., **52**(1969), 600.
- (17) D. P. H. Hasselman: J. Am. Ceram. Soc., **53**(1970), 490.