Al₂O₃ 多結晶体におけるき裂偏向破壊挙動の解析†

金 炳男†† 岸 輝雄

東京大学先端科学技術研究センター

J. Japan Inst. Metals, Vol. 58, No. 11 (1994), pp. 1256-1262

Analysis of Crack Deflection Fracture Behavior of Al₂O₃ Polycrystals

Byung-Nam Kim and Teruo Kishi

Research Center for Advanced Science and Technology, The University of Tokyo, Tokyo

A crack deflection model reported previously to explain fracture behavior of ideal polycrystalline materials, is applied to analyze fracture behavior of Al₂O₃ polycrystals. For anisotropic effects within a grain, the experimental results on single crystal Al₂O₃ are used, and crack propagation through a grain is considered. The calculated fracture toughness and propagation angle when a crack propagates in an anisotropic single crystal are combined with the crack deflection model. As a result, the fracture toughness, transgranular fracture ratio and distribution of crack propagation angle are calculated as a function of grain boundary toughness.

The maximum fracture toughness obtainable in the equiaxed Al₂O₃ polycrystals is estimated to be about 4.8 MPa√m which is about 3 times that of single crystals, when the grain boundary toughness is 1.4 MPa√m. The primary reason for the increased toughness of polycrystals over that of single crystals is attributed to crack path restriction at triple and quadruple points. The predicted theoretical relationship between fracture toughness and transgranular fracture ratio showed good agreement with the experimental results. Also the predictions for the distribution of crack propagation angle are consistent well with the experiments.

(Received September 30, 1993)

Keywords: fracture toughness, transgranular fracture ratio, grain boundary toughness, crack path restriction, Al₂O₃ single crystal, slow crack growth, knoop indentation

I. 結 言

多結晶体は粒と粒界で構成されているが、その破壊靱性は粒内および粒界各々の破壊靱性値より高いことが知られている⁽¹⁾。通常、多結晶体の破壊靱性は単結晶へき開面の靱性の2~3倍であり、粒界の破壊靱性は粒内靱性(単結晶)の約半分という報告がある⁽²⁾。このような単結晶と多結晶の破壊靱性の関係を、前回の報告⁽³⁾ではき裂の粒界偏向および進展経路の拘束という概念をモデル化して定量的な解析を行った(以下、多結晶体におけるき裂偏向モデルと呼ぶ)。ここで、き裂進展経路の拘束とは、板厚方向に隣り合うき裂先端が各々異なる方向に進展した場合、次の破壊はこれら2つのき裂面をつなぐようにき裂進展経路が拘束されることである。

Faber と Evans⁽⁴⁾はき裂が界面にぶつかると必ず偏向するとの仮定下でき裂の偏向過程を解析しているが、この仮定は粒内破壊と粒界破壊が混在する多結晶体の破壊においては成立しない仮定であり、界面性質の影響が考慮されていないモデルであるといえる。これに対して著者らの多結晶体におけるき裂偏向モデル⁽³⁾ではき裂が粒界で偏向するかしないか等の条件を考慮した計算を行っている。その解析結果によると、多結晶体の破

壊挙動は粒界の破壊靱性に大きく依存し、力学的性質としての破壊靱性は粒界の強さによって単結晶体のそれより高くなることも低くなることも可能であるが、大体多結晶体の破壊において粒内破壊が起きると多結晶体の破壊靱性は単結晶体より高くなると結論された。そして、多結晶体が持ち得る最大の破壊靱性は単結晶体の約3倍であった。しかし、このモデル解析⁽³⁾では等方体の結晶粒を仮定しているので、破壊靱性の粒内異方性を持つ実際の材料に対しては直接適用できない欠点がある。き裂の偏向はき裂先端近傍での力学的な条件と材料学的な条件によって決まるので⁽⁵⁾、粒内に破壊靱性の異方性が存在する場合はき裂の粒内偏向の影響も考慮しなければならない。そこで、本研究では多結晶体内での粒内偏向の効果を考慮するために、Al₂O₃ 単結晶体に対する破壊靱性の実験結果から得られた破壊靱性の粒内異方性分布の結果⁽⁶⁾を多結晶体におけるき裂偏向モデル⁽³⁾と合わせ検討することにより、Al₂O₃ 多結晶体の破壊挙動の粒界破壊靱性依存性などを明確にし、その破壊靱性を絶対値として評価した。さらに、実験結果との比較から本モデルの有効性を確かめ、Al₂O₃ 多結晶体における破壊機構としてのき裂偏向破壊の重要性を示した。

II. Al₂O₃ 単結晶内でのき裂偏向

前報のき裂偏向モデルでは粒内破壊靱性一定の等方体結晶粒

† 1992年10月日本金属学会秋期大会において発表

†† 東京大学大学院生、現在：東京都立大学

で構成されている理想的な多結晶体の破壊を対象としているので、粒内破壊時のき裂経路はき裂先端近傍の応力状態だけで決定された。これに対して、実際の結晶は破壊靱性の異方性を持っており、粒内でのき裂経路も異方性の影響を受けてもっと複雑になる。しかし、このことは等方性結晶粒の粒界にぶつかったき裂の場合と同様に解析することができる。粒内および粒界の破壊靱性を各々 K_{ct} , K_{cb} とした場合、き裂が粒内に進む際の見かけ上の破壊靱性 (K_{ca}) は K_{ct} であり、粒界に偏向進展する際には

$$K_{ca} = \frac{K_{cb}}{f(\theta, \phi)} \quad (1)$$

となる。ここで、 $f(\theta, \phi)$ は tilt 角度 θ , twist 角度 ϕ のき裂偏向による応力拡大係数への影響因子で⁽³⁾⁽⁷⁾⁽⁸⁾, $f(\theta, \phi) \leq 1$ である。すなわち、き裂が粒界に進むか粒内に進むかはどちらが進みやすいかという単純な判定基準から決定されるので、き裂は K_{ca} の低い方向に進展する。

同様に、き裂が異なる破壊靱性を持つ無数の結晶面と交差した場合、この中でどちらの面に進むかという競合が生じるが、き裂は式(1)による見かけ上の破壊靱性が一番低い方向に進展する(この場合、 K_{cb} は各結晶面の破壊靱性)。このような粒内での異方性は粒内でのき裂進展経路を決める重要な因子であるが、これは単結晶の異方性を持って表すことができる。

単結晶内の特定の結晶面に対する破壊靱性の予測は主に表面エネルギーの計算によって行われてきた⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾。しかし、Al₂O₃ 単結晶の場合、実験値と一致しないことから問題があり⁽¹¹⁾、また、単結晶内には無数の結晶面が存在し、これらすべての面に対する実験または計算は事実上不可能である。そこで、本研究では近似的に求められる理論的な破壊エネルギー(破壊靱性)がその結晶面に垂直方向のヤング率と関係することに着目した。

まず、破壊エネルギー (γ_t) の推定には Gilman⁽¹²⁾ によって次の式が提案されている。

$$\gamma_t = \frac{E}{d} \left(\frac{a}{\pi} \right)^2 \quad (2)$$

ここで、 E はヤング率、 d は原子面または破壊面間距離、 a は破壊が起こる臨界距離である。また、線形破壊力学によると、破壊靱性 (K_c) と破壊エネルギーの間には

$$\gamma_t = \frac{K_c^2}{2E} \quad (3)$$

の関係があり、式(2)および式(3)から

$$K_c = E \sqrt{\frac{2}{d}} \left(\frac{a}{\pi} \right) \quad (4)$$

となる。この式は破壊靱性とヤング率間のある関係を示しており、Al₂O₃⁽¹³⁾ を含む Si⁽¹⁴⁾, SiO₂⁽¹⁵⁾, MgAl₂O₄⁽¹⁶⁾ 等多くの単結晶の実験から線形の比例関係が報告されている。しかし、これらはほとんどの実験は低指数面に対する破壊実験であり、高指数面に対する実験結果を含めると非線形的な関係が得られた⁽⁶⁾。また、式(4)においてもヤング率は面間距離に依存することが考えられ非線形な K_c - E 関係が予想されるが、両者の解析的な関係に関してはまだ報告されていない。一方、Al₂O₃ 単結晶の場合、次の関係が実験的に求められた⁽⁶⁾。

$$K_c = b \exp(Em) + c \quad (5)$$

Fig. 1 Variations of fracture toughness in single crystal Al₂O₃.

ここで、 b, c, m は実験的に定まる定数で各々 1.9×10^{-13} MPa√m, $1.5 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$, $1/15 \text{ GPa}^{-1}$ である。この式と Al₂O₃ 単結晶内でのヤング率⁽¹⁷⁾を用いると、任意の結晶面に対する破壊靱性値を予測することができる。Fig. 1はこのようにして得られた Al₂O₃ 単結晶内での破壊靱性の分布を表しているが、多くの面が $2 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 以下の低い破壊靱性を示し平均破壊靱性値も $1.53 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ で、多結晶体の値の約半分となっている。

次に、単結晶内でのき裂の偏向は、Fig. 1で特定の結晶面に存在するき裂面が特定の結晶方向に進展する時、式(1)による見かけ上の破壊靱性をすべての偏向方向に対して計算を行い、一番抵抗の低い偏向方向を探すことにより決定した。例えば、モード I の応力状態で(0001)面に存在するき裂の進展方位が[1010]方位である時、き裂面を中心にな上かの片側で tilt 角度のみ ($\phi=0$) に対する結晶面の破壊靱性の分布は Fig. 1で(0001)→(1010)方向に変化する。そして、き裂がこれらの方向に進む際の見掛け上の破壊靱性は式(1)より求められ、偏向角度に対して表すと Fig. 2([1010]で表示)のようになる。この際、き裂は30°に tilt 偏向する際の見掛け上の破壊靱性が一番低い($1.6 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$)ので、き裂はこの方向に進展する。また、き裂面を中心にな別の片側で tilt 角度のみ ($\phi=0$) に対する結晶面の破壊靱性の分布は、Al₂O₃ 単結晶の対称性から Fig. 1で(0001)→(1100)方向に変化し、き裂偏向時の見掛け上の破壊靱性は Fig. 2([1100]で表示)に示したようになる。この場合はき裂が32°に偏向する際の破壊靱性が一番低い($1.8 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$)。したがって、モード I の応力状態で(0001)面に存在して進展方向が[1010]方向であるき裂を偏向角度 $-\pi/2 \leq \theta \leq \pi/2$ ($\phi=0$) の範囲で考えると、進展方向は[1010]方位に30°偏向した角度であり、その際の見掛け上の破壊靱性は $1.6 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ である。

このような計算を twist 偏向も考慮しすべての結晶面、結晶方位に対して行くと、単結晶内で任意のき裂が進展する際の偏向角度および見掛け上の破壊靱性の確率分布が得られる。Fig. 3(a)は Al₂O₃ 単結晶内で任意の平面き裂 ($\theta, \phi=0$) がモー

Fig. 2 Apparent fracture toughness of the (0001) plane crack propagating into the $[10\bar{1}0]$ and the $[\bar{1}100]$ direction.

Fig. 3 Distribution of (a) apparent fracture toughness and (b) deflection angle, when arbitrary cracks propagate in single crystal Al_2O_3 under mode I loading.

モード I の応力状態で進展する際、見掛け上の破壊靱性の確率分布 $K_D(0, 0)$ を表しているが(添字 D は分布を意味する)、ほとんどが $1.5 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 近傍に集中していることが分かる。すなわち、結晶面自体の破壊靱性は $1.5 \sim 4.8 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ の範囲の値を

とるが、進展する際の破壊靱性はもっと低くなり Al_2O_3 単結晶の平均的な破壊靱性は $1.53 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 程度である(この場合の進展は式(1)の有効性より微小偏向進展を意味する)。同様に、平面き裂に対する進展角度の確率分布 $A_D(0, 0)$ が得られ、tilt 角度 θ および twist 角度 ϕ に対して各々積分した形で表すと Fig. 3(b) のようになる。この結果から Al_2O_3 単結晶内で平面き裂が進展する際、 30° 以上の偏向はほとんどないと考えられる。

一方、 Al_2O_3 単結晶内で混合モード状態にあるき裂の進展の場合にも同様な計算を行い、 θ, ϕ に偏向したき裂が単結晶内を進展する時の見掛け上の破壊靱性の確率分布 $K_D(\theta, \phi)$ 、進展角度の確率分布 $A_D(\theta, \phi)$ 等を求めた。このような単結晶内での破壊靱性および進展角度の分布は、多結晶体内ではき裂が粒内に進む際の破壊靱性および進展角度を表していると考えられ、 Al_2O_3 多結晶体の破壊過程を解析する際に用いられた。

III. Al_2O_3 多結晶体の破壊挙動に対するモデル解析

多結晶体におけるき裂偏向モデルでは、粒内き裂(先端が粒界で止っている平面き裂)、粒界き裂(先端が粒界で曲がっている偏向き裂)、混合き裂(粒内および粒界き裂の混合型で粒内き裂が結晶粒 1 つ分進展したき裂)の 3 つのき裂タイプに対する進展挙動を計算したが、本研究では多結晶体破壊における粒内異方性の影響を調べるのが目的であるので、粒内破壊時の見掛け上の破壊靱性の計算過程について簡単に述べることにし、詳しい計算⁽³⁾に関しては省略する。

破壊靱性に異方性のある粒内にき裂が進む際には、進展方向および見掛け上の破壊靱性にはある確率的な分布を持って進展することが Fig. 3 の結果より分かったが、ここでは計算を簡単にするため粒内進展時の見掛け上の破壊靱性としては $K_D(\theta, \phi)$ の各々の平均値を用いた。したがって、モード I の応力状態にある平面き裂の進展である粒内き裂の場合は、粒内の破壊靱性は $K_D(0, 0)$ の平均値である $1.53 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ と等しいと仮定して多結晶体の破壊靱性 K_{CT} と粒内破壊率 T_{IT} を求めた(ここで、 K_c は破壊靱性、 T_f は粒内破壊率を表し、添字 T, I, M は各々粒内き裂、粒界き裂および混合き裂を意味する)。粒界き裂の場合は、角度 θ, ϕ に偏向しているき裂が粒内に進展する際の破壊靱性が $K_D(\theta, \phi)$ の各々の平均値と等しいと仮定して多結晶体の破壊靱性 K_{CI} と粒内破壊率 T_{II} を求めた。そして、混合き裂の場合は、粒内き裂が結晶粒を 1 つ進んだ時、先端が粒内に進み粒内き裂となる割合は T_{IT} であり粒界に進み粒界き裂となる割合は $1 - T_{IT}$ であるので、次式より混合き裂の破壊靱性 K_{CM} および粒内破壊率 T_{IM} を近似的に求めた。

$$K_{CM} = T_{IT}K_{CT} + (1 - T_{IT})K_{CI} \quad (6a)$$

$$T_{IM} = T_{IT}T_{IT} + (1 - T_{IT})T_{II} \quad (6b)$$

以上のようにして求めた粒内き裂、粒界き裂および混合き裂の破壊靱性、粒内破壊率の粒界破壊靱性に対する依存性を Fig. 4 に示す。ここで、Fig. 4(a) の破壊靱性は平面ひずみの場合で、Fig. 4(b) の粒内破壊率は平面応力の場合につき計算したが、この理由に関しては後述する。Fig. 4(b) で粒界の破壊靱性が単結晶の破壊靱性以上高い場合は(約 $1.53 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 以上)、き裂は 100% 粒内破壊を起こし、多結晶体の破壊靱性は単結晶体の破壊靱性と同じになる。つまり、この領域では粒

Fig. 4 Dependence of (a) fracture toughness and (b) transgranular fracture ratio of Al₂O₃ polycrystals on grain boundary toughness for three different crack types.

界が単結晶より幾ら強くなってもき裂はすべて粒内に進み破壊靱性としては変わらないことを意味する。Fig. 4(a)で粒内き裂に比べて粒界き裂の破壊靱性が高くなっているが、後者においてはき裂が最初から粒界で偏向されているため偏向効果の分高くなっている。

粒界の破壊靱性が単結晶の靱性値(1.53 MPa $\sqrt{m}$)より低くなるにつれて、き裂の粒界偏向が起こり粒内破壊率は低下し0に漸近していく。一方、き裂の粒界偏向が起こると、3重点および4重点でのき裂進展経路の拘束を招くようになり、このような経路拘束は粒界の幾何学的な関係から、粒界破壊が多い程または粒界破壊靱性が低い程多く発生する。しかし、3重点および4重点粒界での経路拘束による見かけ上の破壊靱性は式(1)により粒界破壊靱性が低くなる程低くなるので、粒界破壊または経路拘束の多結晶体の破壊靱性への寄与は粒界破壊靱性に対してピークを示し、粒界が適当な破壊靱性を持っている時最大の破壊靱性が得られることになる。Al₂O₃多結晶体の場合、Fig. 4(a)の計算結果から予測される最大破壊靱性値は

単結晶体の約3倍である。この最大靱性値を発現する粒界破壊靱性の値は同じ粒界破壊靱性の多結晶体であってもき裂のタイプによって異なるが、粒内と混合き裂の場合は約1.25 MPa $\sqrt{m}$ 程度、粒界き裂の場合は約1.4 MPa $\sqrt{m}$ 程度である。そして、その時の破壊挙動としての粒内破壊率はFig. 4(b)から各々推定できる。

ここで、一つ強調しておきたいのは破壊挙動の重要性である。例えば、Fig. 4(a)で粒界き裂の破壊靱性が2.5 MPa $\sqrt{m}$ になる粒界の破壊靱性は約1.0 MPa $\sqrt{m}$ と1.5 MPa $\sqrt{m}$ の二つの値が存在する。すなわち、力学的な観点から見れば粒界破壊靱性1.0 MPa $\sqrt{m}$ と1.5 MPa $\sqrt{m}$ の多結晶体は同じ材料である。しかし、破壊挙動(粒内破壊率、き裂縁に沿った局所的な破壊靱性の分布、き裂進展角度等)は全然異なっており、材料学的には全く別の材料である。汎用性の高い破壊モデルを作るためには、このような破壊挙動の差まで説明できるようにしなければならない。

Fig. 4(b)は破壊挙動の中でも粒内破壊率に関する結果であるが、多結晶体におけるき裂偏向モデルではき裂が粒界と交差する角度に対する確率およびき裂の進展経路が求められるので、き裂進展の角度に対しても同じように計算できる。多結晶体内でのき裂進展角度の分布も粒界破壊靱性の影響を受けるが、Fig. 5は粒界の破壊靱性が0.6と1.2 MPa $\sqrt{m}$ である場合、平面応力条件下で混合き裂が進展する際の tilt 角度の分布を表している(tilt 角度も実験的には試験片の表面から測定されるので、平面応力の条件で計算した)。粒界の破壊靱性が低くなると、き裂は粒界に進む傾向が強くなり、分布は全体的に高角度側に移動する。逆に粒界が強くなると粒内破壊率が高くなり、進展角度の分布はFig. 3(b)に示した単結晶内での tilt 角度分布に近づくようになる。

IV. 実験との比較および考察

1. 破壊靱性と粒内破壊率

以上のAl₂O₃多結晶体内でのき裂偏向破壊モデルの有効性を検証するため、多結晶体アルミナに対する実験を行った。用

Fig. 5 Distributions of tilt angle estimated for the mixed crack type of two different grain boundary toughnesses.

Table 1 Properties of sintered aluminas.

Specimen	Sintering condition (Vac.)	Density (g/cm ³)	Grain size (μm)	Transgranular fracture ratio T_{tm} (%)	Fracture toughness (MPa√m)		
					$K_{\text{AE(SEP)}}$	$K_{\text{AE(CSF)}}$	$K_{\text{max(CSF)}}$
ALA	1600°C-3 h	3.96	7~8	14	2.39		
ALB	1500°C-2 h	3.93	7~8	11	2.40		
ALC	1500°C-4 h	3.95	7~8	20	2.56		
ALE	1500°C-10 h	3.96	7~8	44		2.16	3.53
ALF	1550°C-1.5 h	3.94	5~6	39		2.55	3.52
ALG	1500°C-5 h	3.93	7~8	37	2.84	2.30	3.30
ALH	1500°C-15 h	3.95	7~8	35		2.52	3.53
AKS-30	—	3.96	4~5	19	2.22	2.09	2.90

$K_{\text{AE(SEP)}}$: from rapidly increasing load of AE in SEPB method

$K_{\text{AE(CSF)}}$: from rapidly increasing load of AE in CSF method

$K_{\text{max(CSF)}}$: from maximum load in CSF method

いたアルミナはすべて助材なしで hot press により作製されたが、粒内破壊率(粒界破壊靱性)に制御する目的で焼結条件を色々変えた焼結を行った。粒径一定の等軸結晶粒で構成されかつ理論密度約99%以上の緻密な多結晶体は粒界の性質だけで特徴付けられると考えられ、Fig. 4 のように粒界強さの変化で破壊靱性も粒内破壊率も変わると予想される。不純物がほとんどないアルミナで粒界の強さを決定するのは、粒界を構成する原子配列の安定さにある⁽¹⁸⁾。粒界の原子は粒内に比べて不規則的に配列しているが、この不規則さが少なくなればなる程粒界は安定し強くなると考えられ、粒界を強くするためには高温で長時間保持する必要があると思われる。本実験では Table 1 に示したように1500°C近傍で焼結を行ったが、焼結時間を変化させ粒内破壊率が変わるよう試みた。また、粒内破壊率を測定しやすくするため真空中で焼結を行い粒径をある程度大きくしてあるが、10 μm 以内には収めてある。

作られた試料を表面研磨、thermal etching して組織を出した後、bridge indentation 法⁽¹⁹⁾により大体 1.0 mm/min の速度で予き裂を導入し、予き裂に対する側面観察から粒内破壊率を求めた。粒内破壊率の測定は Fig. 6 に示すようにき裂進展経路の中で粒内を通っている facet の数を数えることによってその比率から求めた。ここで、き裂進展経路を表面から観察して粒内破壊率を求めているので、Fig. 4(b)において平面応力の条件下で計算を行っている。一般的には破面から粒内破面率が測定されるが、粒径が小さい場合、粒内破壊と粒界破壊との判

別が難しい等問題点があり本研究では以上の方法を採用した。

また、粒内破面率より前者の粒内破壊率がき裂偏向モデル上の粒内破壊率(T_i)に一致している点も一つの理由である。測定結果、粒内破壊率は10~45%のものが得られ、10%以下と45%以上の粒内破壊率を持つ焼結体の作製には助材の添加等が必要であると思われる。

一方、多結晶体の破壊靱性は Fig. 4(a) の計算結果より、同じ材料(粒界破壊靱性が同じである多結晶体)であっても対象とするき裂のタイプによって異なることが Fig. 4 より予想されているが、本実験ではき裂の進展速度を変えることによって同じ材料内で3種のき裂の導入を試みた。すなわち、き裂の進展速度が大であると粒内破壊が起こりやすいことが知られているので⁽²⁰⁾、(1)速いき裂形成速度による粒内き裂、(2)遅いき裂形成速度による粒界き裂、(3)両者の中間速度による混合き裂の導入を試み、各々のき裂が進展する際の破壊靱性を測定した。ここで、き裂形成速度に伴う問題に関しては後述する。

ヌープ圧痕によって最初に導入されるき裂はき裂形成速度が割合高いことから大体き裂の粒内進展が生じ、このき裂のタイプは粒内き裂に近いと予想される。さらに、このヌープき裂を予き裂とする破壊靱性試験(CSF 法)を行うと、Al₂O₃ の場合ある程度応力腐食の影響で大体粒界破壊による安定成長を起こした後不安定破壊が生じるので⁽²¹⁾、不安定破壊開始時のき裂タイプはき裂先端が粒界に存在する粒界き裂になる。破壊靱性試験後の破面を観察すると、この粒界破壊による安定成長の影響でヌープき裂領域(粒内き裂)と安定成長領域(粒界き裂)ははっきりと判別でき、き裂寸法も各々測定できる。後は、各々のき裂進展時の応力(荷重)さえ分かれば、粒内および粒界き裂の破壊靱性が求まることになる。ここで、不安定破壊開始時の荷重(最大荷重)は分かるので、最大荷重と粒界き裂の寸法から得られる破壊靱性、 $K_{\text{max(CSF)}}$ は粒界き裂の破壊靱性(K_{cl})に近いことが予想される。一方、破壊靱性試験時に AE(Acoustic Emission)センサーを試験片に取付け、AE の急増点から安定成長開始時の荷重を求めた。き裂が成長を始めると放出される弾性波の数はある程度連続的に増加するので、その開始点を AE 曲線から決定すれば大体急増点となる。この急増点に対応する荷重と粒内き裂の寸法から得られる破壊靱性、 $K_{\text{AE(CSF)}}$ は粒内き裂の破壊靱性(K_{ct})に近いことが予想される。ここで、ヌープき裂に対する応力拡大係数の計算には Fett によっ

$$\text{transgranular fracture ratio} = \Sigma t / (\Sigma t + \Sigma i)$$

Fig. 6 Method for obtaining the value of transgranular fracture ratio.

て拡張された Newman と Raju の式⁽²²⁾を用いている。

これに対して, bridge indentation 法により導入されるき裂の形成速度はヌープき裂と安定成長の中間に当たるので, き裂は粒界の強さによって粒界と粒内を選択的に進む混合き裂となり, この混合き裂を予き裂とする破壊靱性試験法(SEPB 法)で求められる破壊靱性, $K_{AE(SEPB)}$ は混合き裂の破壊靱性, K_{CM} に近いと予想される。SEPB 法の場合にもある程度安定成長が起きているが, CSF 法の場合とは違って不安定破壊時のき裂長さが明確に確認できないことから, AE 急増点での荷重と安定成長を開始する際のき裂長さで $K_{AE(SEPB)}$ を求めた。この結果, 破壊靱性は Table 1 で示したように, AE 急増点では $2.5 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 前後, 不安定破壊時は $3.5 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 前後の値が得られ, 焼結温度および焼結時間の差による破壊靱性値の変化はあまり見られなかった。また, Table 1 では住友化学製のアルミナ多結晶体(AKS-30)に対する実験結果も示されている。

モデル解析においては粒界破壊靱性の変化による破壊靱性および粒内破壊率の変化が計算されているが(Fig. 4), この2つの結果を合わせると, 粒内破壊率と破壊靱性間の理論的な関係が得られる(Fig. 7)。Fig. 7 では粒内破壊率として混合き裂の結果を用いたが, これは粒内破壊率の実験値が混合き裂からの測定値であるためである(長く進展したき裂は混合き裂に近いと考えられる)。この混合き裂進展時の粒内破壊率は粒界破壊靱性値のみに依存するため, 多結晶体におけるき裂偏向モデルから新しい材料学的なパラメータとして提案された⁽³⁾。予想通りに $K_{max(CSF)}$ と $K_{AE(SEPB)}$ は各々粒界き裂および混合き裂の結果とよく一致していることから, Fig. 7 の粒内破壊率と破壊靱性の理論的な関係は粒内破壊率10~45%の間ではかなり有効性を持っていると言える。このような実験結果は別のアルミナからも得られている⁽²³⁾。しかし, 粒内き裂の破壊靱性として予想された $K_{AE(CSF)}$ は粒内き裂の方より混合き裂と一致する結果となり, ヌープき裂は粒内き裂より混合き裂であったことが推測される。ヌープき裂部の表面および破面観察からも粒界破壊を起こした部分が相当見られ, ヌープ圧痕によるき裂形成速度では完全な粒内破壊は得られないことが分かった。また, ヌープ圧痕まわりの残留応力⁽²⁴⁾による安定破壊(粒界破

壊)がヌープき裂先端で局所的に起こり, 結果的には混合き裂になっていた可能性も考えられる。

Fig. 7 で破壊靱性は最初に粒内破壊率とともに増加するが, ある限界値を越えると逆に下がる傾向が見られ, 最大の破壊靱性を発現するアルミナの粒内破壊率は, 粒界き裂の場合は約70%で, 混合き裂の場合は約40%である。すなわち, 高い破壊靱性のアルミナを得るためにはある程度の粒内破壊率を持つように作らなければならない。

一方, モデル解析では破壊挙動の粒界破壊靱性依存性を予測しているが, 粒界破壊靱性を求める有効な手法はまだ出されていないので, Fig. 4 の結果に対する直接的な検証はできなかった。しかし, Fig. 7 のように破壊靱性と粒内破壊率にまとめることによって, 初めて粒界破壊靱性の値が知らなくても実験的な比較が可能になった点が本モデルの大きな特徴である。

2. き裂偏向角度

粒内破壊率とは逆の傾向を持つのがき裂の偏向角度である。粒内破壊率が減少すると粒界での偏向が著しくなり偏向角度は大体大きくなるが, 実際のき裂偏向角度の分布はどうなっているかを混合き裂に対する測定から求めてみた。偏向角度は主き裂の進展方向に対する各偏向き裂の角度を測ることによって求めたが⁽²⁵⁾, Fig. 8(a)は粒内破壊率19%, すなわち推定粒界破壊靱性 $1.1 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ のアルミナに対する実験およびモデル解析によるき裂偏向角度(tilt)の分布を表している。解析結果は実験結果とよく一致しており, 本き裂偏向モデルによりアルミナの破壊挙動がかなり説明できると言える。一つ実験では35°近傍で小さいピークが現れている。このようなピークは他の多結晶体においても観察される現象で⁽²⁵⁾⁽²⁶⁾, 多結晶体粒界の独特な3次元構造に起因していると考えられる。これに対して, モデル解析結果では35°近傍で分布の傾きが変わってはいるが, ピークは現れていない。これは混合き裂の計算を簡単にするため, 式(6)で混合き裂を単純に粒内と粒界の混合として計算したのが原因の1つであると考えられる。もっと正確に計算を行うためには, 粒内き裂を結晶粒一つ分進展させた時の進展角度の分布を考慮する必要がある。

このピークをもう少し詳しく解析する意味で粒内偏向と粒界偏向を分けてみた。すなわち, Fig. 8(a)はき裂全体に対する角度分布であるが, これを粒内進展時と粒界進展時に分けて整理すると Fig. 8(b)のようになる。明らかにピークは粒界偏向で現れており, Fig. 8(a)に比べてより顕著に現れている。一方, モデル結果では全然現れていないことから, 計算上の問題はあがあるが, 本き裂偏向モデルは修正する必要があると考えられる。前に挙げた混合き裂計算上の問題点以外にも, 本モデルでは粒内または粒界き裂の破壊単位として1つのき裂面が3重点または4重点を通過する場合として設定している。しかし, この他にも二つのき裂面, 例えば二つの粒界き裂面が一つの3重点または4重点を通過する場合も合わせて考えなければならない。これに加えてもう一つ考えられる原因は残留応力の影響である。多結晶体では熱膨張係数に異方性がある結晶粒間の mismatch によって粒界には残留応力が発生する⁽²⁷⁾。この残留応力が粒界の破壊靱性に变化をもたらすので, 多結晶体の破壊挙動はもっと複雑になり, 本モデルによる破壊挙動の予測には

Fig. 7 Relationships between fracture toughness and transgranular fracture ratio in polycrystalline alumina.

Fig. 8 Comparison of the calculated distribution of tilt angle with the observed one for (a) total deflection path and (b) respective deflection paths.

限界があると言える。それにしても Fig. 8(a)で見られるように、全体的な偏向角度はかなり説明できるモデルとなっている。

V. 結 論

多結晶セラミックスの破壊をき裂偏向機構でモデル解析を行いき裂の偏向と破壊靱性の関係を定量化した結果、以下のように Al_2O_3 多結晶体に対する実験結果とよく一致する結果が得られ、粒径の小さい Al_2O_3 多結晶体ではき裂の偏向が主な破壊機構であると結論できる。

(1) き裂の粒内での偏向効果は Al_2O_3 単結晶体でのき裂進展挙動を計算することにより考慮したが、 Al_2O_3 単結晶の平均破壊靱性と偏向する際の見かけ上の平均破壊靱性がほぼ同じ $1.53 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ となり、き裂の粒内偏向による多結晶体の破壊靱性への影響はほとんど無いと考えられる。しかし、多結晶体の破壊挙動の一部(き裂の粒内進展角度の分布)は単結晶体内でのき裂偏向を考慮することによって説明できるようになった。

(2) 多結晶体の破壊靱性はき裂のタイプによって異なるが、

Al_2O_3 多結晶体が持ち得る最大の破壊靱性は粒界き裂の場合の $4.8 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ と予測され、この値は単結晶体の約 3 倍である。そして、この最大破壊靱性値は粒界破壊靱性が $1.4 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ である時あるいは粒内破壊率が約 70% の時に得られる。

(3) 本モデルでは粒界の破壊靱性をパラメータとして Al_2O_3 多結晶体の破壊靱性および粒内破壊率等が計算されているが、これらの結果から破壊靱性と粒内破壊率間の理論的な関係が得られ、粒界破壊靱性の値を知らなくても実験結果と絶対値として比較できるようになっている。そして、実験結果との一致は本き裂偏向モデルの多結晶セラミックスへの適用可能性を示している。

(4) き裂偏向角度の分布もモデルと実験の結果が大体一致し、破壊挙動の予測においてもき裂偏向モデルは有効である。

(5) き裂の偏向と破壊靱性に関しては、単純にき裂が偏向すれば破壊靱性も上昇すると定性的に考えられてきたが、本モデルによりき裂の偏向と破壊靱性の関係を定量化することが可能となった。

文 献

- (1) S. S. Smith and B. J. Pletka: *Fracture Mechanics of Ceramics*, Plenum Press, New York, Vol. 6 (1983), 189.
- (2) R. W. Rice, S. W. Freiman and P. F. Becher: *J. Am. Ceram. Soc.*, **64** (1981), 345.
- (3) 金 炳男, 岸 輝雄: 日本金属学会誌, **57** (1993), 998.
- (4) K. T. Faber and A. G. Evans: *Acta Metall.*, **31** (1983), 565.
- (5) M. Y. He and J. W. Hutchinson: *Int. J. Solids Structures*, **25** (1989), 1053.
- (6) B. N. Kim and T. Kishi: *AUSTCERAM92*, Ed. by M. J. Bannister, CSIRO Publications, Melbourne, Australia, (1992), 876.
- (7) B. R. Lawn and T. R. Wilshaw: *Fracture of Brittle Solids*, Cambridge University Press, Cambridge, (1975), 68.
- (8) B. Cotterell and J. R. Rice: *Int. J. Fract.*, **16** (1980), 155.
- (9) R. L. Stewart and R. C. Bradt: *J. Mater. Sci.*, **15** (1980), 67.
- (10) J. Ziolkowski: *Surface Sci.*, **209** (1989), 536.
- (11) P. W. Tasker: *Advances in Ceramics*, Columbus Press, Ohio, Vol. 10 (1984), 176.
- (12) J. J. Gilman: *J. Appl. Phys.*, **31** (1960), 2208.
- (13) M. Iwasa and R. C. Bradt: *Advances in Ceramics*, Columbus Press, Ohio, Vol. 10 (1984), 176.
- (14) 林 国郎, 辻本真司, 岡本泰則, 西川友三: 材料, **40** (1991), 405.
- (15) 岩佐美喜夫, 上野 力, R. C. Bradt: 材料, **30** (1981), 1001.
- (16) R. L. Stewart and R. C. Bradt: *J. Mat. Sci.*, **15** (1980), 67.
- (17) J. B. Wachtman, Jr., W. E. Tefft, D. G. Lam, Jr., and R. P. Stinchfield: *J. Res. Natl. Bur. Std.*, **64A** (1960), 213.
- (18) K. J. Morrissey and C. B. Carter: *J. Am. Ceram. Soc.*, **67** (1984), 292.
- (19) T. Nose and T. Fujii: *J. Am. Ceram. Soc.*, **71** (1988), 328.
- (20) W. J. Yang, C. T. Yu and A. S. Kobayashi: *J. Am. Ceram. Soc.*, **74** (1991), 290.
- (21) J. J. Mecholsky: *J. Am. Ceram. Soc.*, **64** (1981), 563.
- (22) T. Fett: *I. J. Fracture*, **33** (1987), R47.
- (23) 安田公一, 多々見純一, 麻田和敏, 松尾陽太郎, 木村脩七: *J. Ceram. Soc. Japan*, **101** (1993), 1384.
- (24) D. B. Marshall: *J. Am. Ceram. Soc.*, **66** (1983), 127.
- (25) K. T. Faber and A. G. Avans: *J. Am. Ceram. Soc.*, **66** (1983), C-94.
- (26) G. Pezzotti, I. Tanaka and T. Okamoto: *J. Am. Ceram. Soc.*, **73** (1990), 3039.
- (27) Y. Fu and A. G. Evans: *Acta Metall.*, **33** (1985), 1515.