研 究

光学および原子間力顕微鏡による WC-Co 超硬合金破面のミクロ的面积と
破面形成エネルギーの見積り

築場 豊, 林 宏爾

東京大学生産技術研究所, 〒106 港区六本木7-22-1.

Estimation of Microscopic Fracture Surface Area and Formation Energy of
Fracture Surface of WC-Co Cemented Carbide by Using Optical
and Atomic Force Microscopes

Yutaka Yanaba and Koji Hayashi

Institute of Industrial Science, The University of Tokyo, 7-22-1 Roppongi, Minato-ku, Tokyo 106.

Received December 24, 1996

SYNOPSIS

The heights of bending fracture surface of WC-10mass%Co cemented carbide were measured by using OM (optical microscope) and AFM (atomic force microscope) in order to estimate the one-dimensional roughness of the surface (R^O and R^A , respectively) and then the microscopic fracture surface area (S_{if}) and S_{if}/S_{mf} term in our proposed equation of $\sigma_m = \psi K_{IC} S_{mf}^{1/2}$ (S_{mf} : macroscopic fracture surface area of one test piece, σ_m : flexural strength, ψ : shape factor including the ratio of S_{if} or true fracture surface area (S_{if}) to S_{mf} , K_{IC} : fracture toughness). Next, the value of $\gamma + P$ (formation energy of fracture surface, γ : specific surface energy, P : specific plastic deformation work) in the prior equation of $V \sigma_m^2 / 18E = (\gamma + P) S_{if} + E_k$ (V : volume of specimen, on which stress operates, E : Young's modulus, E_k : kinetic energy of flying fragments) was evaluated. The results obtained were as follows;

- 1) The $\overline{R^O}$ and $\overline{R^A}$ were 1.27 and 1.43, respectively, and thus, $S_{if} \{= S_{mf} (\overline{R^O} \overline{R^A})^2\}$, $S_{mf} = 96 \text{ mm}^2$ and S_{if}/S_{mf} were calculated to be 317 mm^2 and 3.30, respectively.
- 2) The value of $\gamma + P$ was estimated to be $6.7 \times 10^{-4} \text{ J/mm}^2$.
- 3) The physical rationality of the equation of $\sigma_m = \psi K_{IC} S_{mf}^{1/2}$ should be examined furthermore by investigating the correctness of this value of $\gamma + P$ or S_{if} and also the dissipatoin energy by vibration accompanied by crack propagation.

KEY WORDS

fracture toughness, surface roughness, fracture surface area, atomic force microscope, cemented carbide.

1 緒言

著者らは, WC-Co超硬合金などの硬質材料について, 曲げ破壊時には, エネルギー保存則に基づいて, 曲げ破壊試片に蓄積されている弾性歪エネルギー ($V \sigma_m^2 / 18E$; V は応力の負荷された試片体積, σ_m は3点曲げ破壊強さおよび E はヤング率)が主として破面形成エネルギー ($(\gamma + P) S_{if}$; γ および P はそれぞれ単位破面面積あたりの破面の表面エネルギーおよび塑性変形仕事, S_{if} は曲げ破壊によっ

て生じる複数の破片の持つ真の総破面面積)に変換されると仮定すると, (1) σ_m , 破壊靱性(K_{IC})および破面の総マクロ的面积(S_{mf})の3者間に下記の式(1)の関係が成り立つことを理論的に導出するとともに, (2)WC-10mass%Co超硬合金および Si_3N_4 基セラミックスについては式(1)が示す通り, σ_m と $S_{mf}^{1/2}$ との間には直線関係が成り立ち, かつ, 両試料の同関係直線の傾きの比は実測の K_{IC} の比に等しいことを実験的に明らかにしている¹⁾.

$$\sigma_m = \psi K_{IC} S_{mf}^{1/2} \quad (1)$$

ここで ψ は破面の粗さの程度すなわち S_{tr}/S_{mf} 項などを含む係数である。この式において、破面面積としては、本来、 S_{mf} ではなくて S_{tr} を用いるべきであるが、後者の S_{tr} 測定は極めて困難であること等の理由により、上記の ψ を設定して S_{mf} を用いている¹⁻⁶⁾。

しかし、式(1)の物理的妥当性すなわち上記のエネルギー保存則に基づく仮定が正しいことを証明するためには、既報の停止亀裂⁴⁾や破片の飛散運動エネルギー⁵⁾の他に、 S_{tr} や亀裂伝播時の振動(音波)による散逸エネルギーの値なども知る必要がある。本研究では、前者の S_{tr} に対して、 S_{mf} に比べてより近い値である総ミクロの破面面積 S_{tr} を、WC-10mass%Co超硬合金について、光学顕微鏡(OM; Optical Microscope)および原子間力顕微鏡(AFM; Atomic Force Microscope)を用いて測定

し、次に、式(1)の前提式中の $\gamma+P$ すなわち破面形成エネルギーの値を概算した。

2 試料および実験方法

試料としては、既報²⁾の、3点曲げ破壊(スパン; 20mm)させた、WCの平均粒度 $1.2\mu\text{m}$ のWC-10mass%Co中炭素超硬合金試片(寸法; $3 \times 4 \times 36\text{mm}^3$)の内、 σ_m が最大(3.26GPa)であった試片の破片のなかで破壊の起源を含むものの破面を用いた。その概観図をFig.1(a)に示す。既報^{5,6)}の S_{mf} の測定においては、破面全体を、X-Y軸マイクロメータによって間隔を一般に 0.5mm の格子点に分割し、各格子点のZ座標をレーザ変位計(LDM; Laser Displacement Meter)を用いて測定した後、最隣接する3点で構成される3角形の素面積をヘロンの公式を用いて算出し、素面積を破面全体に渡って合計する方法を用いている。この方法によって

Fig.1(a)-(d) Schematic illustrations of a sequence of measurement of fracture surface roughness in this study. (a)Fracture surface of WC-Co cemented carbide fragment. (b)Height-distance diagram obtained by using laser displacement meter (LDM) with interval of measured points of 0.5mm . Points O_p and O_p' are the vertically projected points of O and O' to X or horizontal axis, respectively. (c)The diagram by using optical microscope (OM) with interval of $2\mu\text{m}$. The degree (R^0) of one dimensional roughness is expressed as the ratio of total length of the height line (curved line; —) to the length of straight dashed line (----). The length of line AA' is expressed 7 times larger than the actual length. (d)The diagram by using atomic force microscope (AFM) with interval of 4nm .

得られた上記の破片のマクロ的面积は 29mm^2 であり、全破片の総マクロ的面积すなわち S_{mr} は 96mm^2 (停止亀裂の形成する破面の面積⁹⁾も含めた値)であった。この S_{mr} と、以下に示す方法により求めた破面の一次元的凹凸の程度 R とを用いて、ミクロ的面积 S_{ir} を見積った。すなわち、(1)同破面内、破壊の起源⁷⁾からかなり離れている、試片中立面近くの領域をOMにより観察し、観察面上で、上記のレーザ変位計の測定点間隔である 0.5mm すなわち $500\mu\text{m}$ の長さを持つ任意の直線、例えば、レーザ変位計によって得られる破面の高さ-直線上の距離の関係概念図であるFig.1(b)における直線 $\overline{OO'}$ の横軸(図(a)のX軸)上への投影線 $\overline{O_pO_p'}$ を $2\mu\text{m}$ 間隔に分割した。次に、各分割点の高さを、分割点の焦点が合うように高さ方向へOMの試料台を動かした距離を試料台付属のマイクロメータを用いて測定(精度 $1\mu\text{m}$)することにより求めた。そして、Fig.1(c)に模式的に示すように破面の高さ-直線上の距離の関係図を作成し、(折れ線 $\overline{OO'}$ の長さ)/(直線 $\overline{OO'}$ の長さ)の値(R^0)を算出した。同様にして、他に5本の線すなわち合計6本の線(3本は厚み方向(Fig.1(a)のX軸方向)に平行、他の3本は幅方向(Y軸方向)に平行)についての値の平均値($\overline{R^0}$)を求め、これを直線 $\overline{OO'}$ 上の破面の一次元的凹凸の程度とした。観察場所は、上記の領域の他に、破壊の起源の近傍(白点⁸⁾外の領域についても行った。

続いて、(2)同破面をAFMにより観察し、観察面上で、 R^0 算出時の測定点間隔である $2\mu\text{m}$ すなわち

2000nm の長さを持つ任意の直線、例えばFig.1(c)の直線 $\overline{AA'}$ (実長の約7倍の長さで表示)の横軸上への投影線 $\overline{A_pA_p'}$ 上の破面の高さ(精度 20nm)を 4nm 間隔で測定し、Fig.1(d)に模式的に示すような破面の高さ-直線上の距離の関係図を作成し、(曲線 $\overline{AA'}$ の長さ)/(直線 $\overline{AA'}$ の長さ)の値(R^A)を算出した。測定した6本の線についての値の平均値($\overline{R^A}$)を求め、これを直線 $\overline{AA'}$ 上の破面の一次元的凹凸の程度とした。

観察部分の破面の凹凸の程度が破面全体にわたって等しいと仮定すると、 $S_{ir}=S_{mr}\times\overline{R^0}\times\overline{R^A}$ すなわち $S_{ir}=S_{mr}(\overline{R^0}\overline{R^A})^2$ となる。この式と S_{mr} 、 $\overline{R^0}$ および $\overline{R^A}$ の実測値を代入することにより、WC-10mass%Co超硬合金試片の破面の S_{ir} の値および S_{ir}/S_{mr} 比を見積った。そして、式(1)の前提式の一つである $V\sigma_m^2/18E=(\gamma+P)S_{ir}+E_k$ の式^{1,5)}(E_k :飛散破片の運動エネルギー⁵⁾)中へ、 $S_{ir}=S_{mr}$ と仮定して S_{ir} ならびに V 、 σ_m 、 E および E_k ⁵⁾の値を代入し、 $\gamma+P$ の値を見積った。そして、以上の結果より、式(1)の物理的妥当性についても検討した。

3 実験結果および考察

Photo.1(a)-(e)に合金破面のOM像の一例を示す。ここで各写真の横方向は、試片の厚み方向(Fig.1(a)のX軸方向)に一致させてある。各写真とも、焦点が合っている部分と合っていない部分があるが、これは、破面の凹凸が著しいことと、OMの焦点深度が小さいことに基づくことはいうまでもない。この現象を利用して、破面の高さを

Photo.1(a)-(e) Optical micrographs of fracture surfaces of WC-10mass%Co cemented carbide. The values of distance from the origin denoted with an arrow in photo.1(a) and height are shown below each micrograph. The horizontal direction in these photographs is parallel to that of specimen thickness or X axis in photo.1(a) (unit; μm). The measured points are on the connecting line of one pair of arrows on both side of photographs ($\times 1,500\times 0.8$).

測定した。写真(a)上の焦点の合っている部分(矢印)を原点とし、原点を通る水平線上(組写真の左と右に示す矢印を結ぶ直線上)で右側へ2, 4, 6および8 μm 離れた部分の焦点が合うように、高さ方向へOMの試料台を動かして撮影した写真がそれぞれ写真(b), (c), (d)および(e)である。各写真の下部に、原点からの距離と高さを示した。

このようにして得られた破面の高さ-直線上の距離の関係図の一例をFig.2に示す。この図の破面の一次元的凹凸の程度 R^0 は1.374と見積られた。そして、試片の幅方向および厚み方向の各3本の直線における R^0 はそれぞれ1.178, 1.215, 1.294および1.208, 1.313, 1.374(Fig.2)であり、各方向の平均値はそれぞれ1.23および1.30となり、後者の方が大であった。また、合計6本の直線における R^0 の平均値($\bar{R}^0$)は1.26であった。観察場所を破壊の起源の近傍とした場合の、試片の幅方向および厚み方向の各3本の直線における R^0 はそれぞれ1.144, 1.220, 1.316および1.239, 1.347, 1.406であり、各方向の平均値はそれぞれ1.23および1.33となり、この場合も後者の方が大であった。また、合計6本の直線における $\bar{R}^0$ は1.28であり、上記の中立面近くの領域での値とほぼ等しかった。両者の平均値は1.27であった。

Photo.2に中立面近くの破面のAFM像を示す。ここで横方向は、Photo.1の場合と同様、試片の厚み方向と一致させてある。AFM像においては、一般的に言って、SEM像と同様に、黒い部分に比べて白い部分は高いことを表わすが、破面のレブリカTEM像の組織⁹⁾を考慮すると、Photo.2において、滑らかな部分がWC分散粒であり、凹凸の著しい部分がCo結合相であると考えられる。写真

Fig.2 Height of fracture surface-distance diagram by using OM. The degree (R^0) of one dimensional roughness {refer to Fig.1(c)} is estimated as 1.374. Length of scale of longitudinal axis is twice as that of horizontal axis.

の上下および左右に付した6組の矢印(w1-w1, w2-w2, w3-w3およびt1-t1, t2-t2, t3-t3)を結ぶ直線は測定場所を示す。各測定直線の距離はいずれも2000nm(2 μm , OM観察時の測定間隔長)である。Fig.3に、AFMによる上の破面の高さ-直

Photo.2 Atomic force micrograph of fracture surface of WC-10mass%Co cemented carbide ($\times 100,000 \times 0.42 \times 0.8$). The roughness was measured on connecting lines of six pairs of arrows t1-t1, ..., and w3-w3.

Fig.3 Height of fracture surface-distance diagram by using AFM. R^4 is estimated as 1.553. Length of scale of longitudinal axis is twice as that of horizontal axis.

線上の距離の関係図の一例(直線t2-t2)を示す。曲線の大きな谷から次の大きな谷までの距離は一般にほぼWC分散粒の寸法(1~1.5 μ m)に一致した。図における曲線の一次元的凹凸の程度 R^A は1.553と見積られた。また、これ以外の5組の矢印すなわちw1-w1, w2-w2, w3-w3およびt1-t1, t3-t3を結ぶ直線上の R^A はそれぞれ1.406, 1.301, 1.264および1.419, 1.619であり、各方向の平均値はそれぞれ1.32および1.53であった。この場合も R^O の場合と同様、前者より後者的の方が大であった。そして、合計6本の直線上の平均値($\bar{R}^A$)は1.43であった。OMの場合と異なり、他の場所については以下の理由により R^A を測定しなかった。すなわち、(1) R^O は上記のように場所にほとんど依存していない、(2) R^A は上記のようにほぼWC分散粒の寸法を単位として決まると考えられることなどから、 R^A は場所によって余り変わらない、と考えられたためである。

そこで、 R^O および R^A のいずれも破面全体に渡ってほぼ等しいとして、既述の $S_{fr}=S_{mf}(\bar{R}^O\bar{R}^A)^2$ の式により S_{fr} および S_{fr}/S_{mf} 項の値を求めると、それぞれ317mm²および3.30であった。Table 1には、上記の測定条件と結果をまとめて示した。すなわち、破面の一次元的凹凸の測定手段・条件・精度、測定距離・点数、 R 、 $\bar{R}$ および $\bar{R}^2$ 、ならびにOMによる測定結果から見積られるミクロ的面积すなわち

$S_{mf}\times\bar{R}^{O2}$ 、OMおよびAFMによる測定結果から見積られるミクロ的面积すなわち $S_{mf}\times\bar{R}^{O2}\times\bar{R}^{A2}$ ならびにそれらの S_{mf} に対する比を同表中に示した。また参考値として、レーザ変位計を用いて破面の角の点のみについて高さを測定し、ヘロンの公式を用いて算出したマクロ的面积⁶⁾およびその S_{mf} に対する比を示した。なお、 R^O および R^A のいずれについても、試片の幅方向に比べて厚み方向(測定場所における亀裂伝播方向とほぼ同一)の値の方が大となったことは、亀裂伝播に伴う音波(振動)が亀裂伝播路に対して影響し、亀裂の巨視的伝播方向に対して直角方向へ亀裂の屈曲が起きることを示唆している。

上記の $S_{fr}=317\text{mm}^2$ が S_{fr} に等しいとして、 $V=240\text{mm}^3$ 、 $\sigma_m=3.26\text{GPa}$ 、 $E=570\text{GPa}$ および $E_k=0.15E_{es}(E_{es}=V\sigma_m^2/18E)^{5)}$ を、式(1)の前提式の一つである $V\sigma_m^2/18E=(\gamma+P)S_{fr}+E_k^{1.5)}$ に代入すると、本研究で用いたWC-10mass%Co超硬合金の単位破面面積当たりの $\gamma+P$ は $6.7\times10^{-4}\text{J/mm}^2$ と見積られた。

一般の鉄鋼材料の $\gamma+P$ は約 $10\times10^{-4}\text{J/mm}^2$ であることが知られている¹⁰⁾。WC-Co系超硬合金については、破面の近傍のCo結合相は塑性変形するが、WC硬質相はほとんど塑性変形しない⁹⁾ことが分かっている。したがって、WC-Co系超硬合金の $\gamma+P$ の値は金属材料における値より小さくなると考えら

Table 1 Methods of measurement and their conditions of the roughness of fracture surface, degree of roughness R , R^O and R^A , estimated microscopic fracture surface area (S_f), etc..

Methods and conditions					Degree of roughness (R)		Average value of R ($\bar{R}$) and $\bar{R}^2$	Microscopic fracture surface area (S_f) (mm ²)	Ratio of S_f to S_{mf}
Apparatus	Interval of measured points	Accuracy	Length and numbers of measured lines		width	thickness			
			Direction of width	Direction of thickness					
Laser displacement meter	4mm or 3mm	0.2 μ m	4mm 1	3mm 1	—	—	—	86	0.90
Laser displacement meter	0.5mm	0.2 μ m	3mm 3	3mm 3	1.000 1.008 1.017	1.091 1.107 1.131	$\bar{R}^L=1.06$ $\bar{R}^{L2}=1.12$	96	1
Optical microscope (near neutral plane)	2 μ m	1 μ m	500 μ m 3	500 μ m 3	1.178 1.215 1.294	1.208 1.313 1.374	$\bar{R}^O=1.26$ $\bar{R}^{O2}=1.59$	152.6	1.59
Optical microscope (near fracture source)					1.144 1.220 1.316	1.239 1.347 1.406	$\bar{R}^O=1.28$ $\bar{R}^{O2}=1.64$	157.4	1.64
Atomic force microscope	4nm	20nm	2000nm 3	2000nm 3	1.264 1.301 1.406	1.419 1.553 1.619	$\bar{R}^A=1.43$ $\bar{R}^{A2}=2.04$	317.0	3.30

れるが, 実際, 本研究で見積られた $\gamma+P$ の値は $10 \times 10^{-4} \text{J/mm}^2$ より小さい値の $6.7 \times 10^{-4} \text{J/mm}^2$ であった。しかし, この $6.7 \times 10^{-4} \text{J/mm}^2$ という値は, 本合金のCo体積率が約16%であることを考えると大きすぎる($10 \times 10^{-4} \times 0.16 = 1.6 \times 10^{-4} \text{J/mm}^2$)。この原因は, 本研究のAFM像における高さの測定精度(20nm)が原子寸法のオーダー(0.2nm)より著しく大きいことから, $\overline{R^A}$ したがって S_{tr} 値が真の値 S_{tr} よりもかなり小さくなっているためではないかと思われる。原子オーダーの凹凸の程度 R^A が R^A と同じ値(1.43)とすると, $S_{tr} = S_{tr} R^{A^2} = 317 \times 2.04 = 647 \text{mm}^2$ となる。これを上式に代入して $\gamma+P$ を見積ると $3.3 \times 10^{-4} \text{J/mm}^2$ となり, 上記の $1.6 \times 10^{-4} \text{J/mm}^2$ にさらに近づくが, やはり大きい。今後, $\gamma+P$ の精密な値または S_{tr} の値を調べると共に, 亀裂伝播時の振動(音波)などによる散逸エネルギー¹⁰⁾などを調べることで, $\sigma_m = \psi K_{IC} S_{mf}^{1/2}$ 式の物理的妥当性をさらに検討したい。

4 総括

光学顕微鏡(OM)および原子間力顕微鏡(AFM)を用いて, WC粒度 $1.2 \mu\text{m}$ のWC-10mass%Co超硬合金の破面について, 一次元的凹凸の程度(それぞれ $\overline{R^O}$ および $\overline{R^A}$)と総ミクロ的面積 S_{tr} を測定し, 著者らの提唱している $\sigma_m = \psi K_{IC} S_{mf}^{1/2}$ 式(σ_m : 曲げ強さ, ψ : 形状係数, K_{IC} : 破壊靱性, S_{mf} : マクロ的破面面積)の前提式である $V \sigma_m^2 / 18 E = (\gamma + P) S_{tr} + E_k$ 式(V : 応力負荷体積, E : ヤング率, γ : 表面エネルギー, P : 塑性変形仕事, S_{tr} : 真の破面面積, E_k : 飛散破片の運動エネルギー)における $\gamma+P$ などを見積り, 以下の諸結果を得た。

(1) $\overline{R^O}$ および $\overline{R^A}$ はそれぞれ1.27および1.43であった。

したがって, $S_{tr} (= S_{mf} (\overline{R^O} \overline{R^A})^2)$ および S_{tr}/S_{mf} 項は, それぞれ 317mm^2 および3.30となった。

(2) 上記の S_{tr} の値を S_{tr} に等しいと仮定し, かつ V の値などを前提式に代入して, $\gamma+P = 6.7 \times 10^{-4} \text{J/mm}^2$ の値を得た。

(3) 今後, $\gamma+P$ の精密な値または S_{tr} の値を調べると共に, 亀裂伝播時の振動による散逸エネルギーなどを調べることで, $\sigma_m = \psi K_{IC} S_{mf}^{1/2}$ 式の物理的妥当性をさらに検討する必要がある。

文献

- 1) 築場 豊, 林 宏爾: 日本金属学会誌, 58 (1994), 1327.
- 2) 築場 豊, 林 宏爾: 粉体および粉末冶金, 42 (1995), 417.
- 3) Yutaka Yanaba and Koji Hayashi: Mater. Sci. Eng. A, 209(1996), 169.
- 4) 築場 豊, 林 宏爾: 粉体および粉末冶金, 43 (1996), 526.
- 5) Yutaka Yanaba and Koji Hayashi: J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallur., accepted.
- 6) 築場 豊, 林 宏爾: 日本金属学会講演概要, 第116回(1995), 238.
- 7) 築場 豊, 趙 源丞, 林 宏爾: 日本金属学会誌, 57(1993), 1352.
- 8) Hisashi Suzuki and Koji Hayashi: Planseeberichte für Pulvermetallurgie, 23(1975), 24.
- 9) 林 宏爾, 鈴木 寿, 川勝一郎: 日本金属学会誌, 32(1968), 216.
- 10) 兵頭申一: 力学物性, 実験物理学講座10, 和田 八三久編, 共立出版, (1968), 308.