超音波による窒化珪素セラミックスの評価*

岩 崎 秀 夫** 泉

守***

Acoustic Characterizations of Si_3N_4 Ceramics

by

Hideo IWASAKI and Mamoru IZUMI

(Toshiba Research and Development Center, Toshiba Co., Kawasaki)

In the hot-press sintered ceramics, their longitudinal and transverse wave velocities exhibited anisotropies characterized by the "Quasi-uniaxial symmetry" represented by the principal axis parallel to the pressure direction in hot-pressing. Velocities propagating perpendicular to the hot-press direction were somewhat faster than those propagating parallel to the hot-press direction. Velocity differences between the "parallel" and the "perpendicular" directions were estimated to be about 5% in Si_3N_4 . For convenience' sake, elastic constants were evaluated from the velocity values measured in the hot-press direction. The propagation loss factors at room temperature were measured by longitudinal and transverse waves in the frequency range of 30 to 130 MHz. Loss factors exhibited the frequency dependent characteristics proportional to the square of frequency.

Acoustic Emission (AE) associated with slow crack growth was observed at room temperature in the atmosphere by using the double torsion technique in which the cross-head speed of $10\mu/\text{min}$ was adopted. A close relationship between the AE patterns and the fracture surface structure was clearly recognized. Averaged crack growth velocities and stress intensity factors were calculated to be 10^{-4}m/s and $5.1 \times 10^6 \text{kgm}^{-3/2}$, respectively. In addition, it was confirmed that the AE count rate, dN/dt , was linearly proportional to the crack growing velocities in the range of the order of 10^{-4}m/s .

The Si_3N_4 cylinder (168 mm diameter with 15 mm thickness and 93 mm axial length) with the thin hole-type-model defects processed by the laser drilling was prepared to confirm the performance of the conventional ultrasonic NDT apparatus. The sizes of the model defects were chosen as 150, 320, and 500μ . Detectability of the defects with the size of about 50μ was confirmed by echo detection due to refracted transverse waves of 5 MHz in the water immersion method.

(Received Mar. 13, 1981)

キー・ワード：窒化珪素セラミックス，音速，弾性定数，アコースティック・エミッション，欠陥検出

1 序 言

非酸化物系セラミックス，特に Si_3N_4 セラミックスの研究，開発が発展するに従い，この材料の耐高温，高強度性に対して構造材料の観点から大きな期待が寄せられている。そして，すでに高温ガスタービンなどの構造材料の見地からの研究も進められており，同時にその材料特性，信頼性などの評価の手法確立への要求も大きい¹⁾。

一方，超音波（主に固体内弾性波）による材料特性評価，特に非破壊検査（NDT）は，金属材料の分野ですでに長い歴史があり，消化された技術として研究，

生産の場で広く利用されている。そして，セラミックスの分野でも，セラミックス構造材料の開発に伴い，超音波応用の手法は材料特性評価，欠陥検出，強度予測を中心に発展しつつある^{2)~7)}。

このような状況をふまえて，本論文では著者らが現在までに試みてきた，セラミックス，特に Si_3N_4 材に対する超音波応用の評価手法について述べる。はじめに，弾性定数との関連において，ホットプレス焼成セラミックスでの焼成時加圧方向を特異軸として特徴づけることのできる縦波および横波伝ば速度の異方性について述べ，次いで，縦波，横波伝ば時の減衰定数の周波数依存性を示す。また，将来予想される複雑外形の構造部品の信頼性評価法としての応用を念頭におき，き裂進展に伴う Acoustic Emission (AE) の特性につ

* 原稿受理 昭和56年3月13日

** 正 会 員 東京芝浦電気(株)総合研究所 川崎市幸区小向東芝町

*** 東京芝浦電気(株)総合研究所 川崎市幸区小向東芝町

いて述べ、き裂進展速度および破面の状態と AE 特性の関係を示す。最後に、現在容易に利用できる超音波探傷器により、 Si_3N_4 円筒表面にレーザー加工した Model Defects を利用して、どの程度の寸法の欠陥まで検出できるかを実験的に示す。

2 縦波、横波伝ば速度と伝ば損失および弾性定数

伝ば速度は、X-, Y-cut の水晶振動子 (10 MHz, 10 mm ϕ) を縦波および横波用変換子として用い、Matec 社製の標準装置で Pulse-echo-overlap 法により測定した。測定はすべて室温で行った。

ホットプレス焼成した円板状各種セラミックスから、Fig. 1 に示す方向に切り出した試料での、各方向の縦波および横波伝ば速度の測定例を Table I に示した。試料の標準的な寸法は、Z 方向 (厚み) を 10 mm, X および Y 方向を 20 mm とした。速度の測定結果には、ホットプレス焼成時の加圧方向を特異軸とする、試料に共通な伝ば速度の異方性がみられる。

Fig. 1. Transducer configurations for acoustic wave velocity anisotropy measurements.

Table I. Acoustic wave velocity anisotropies in hot-press sintered ceramics.

Material	Mode Velocity	Longitudinal (km/sec)		Transverse (km/sec)			Density (g/cm ³)
		V_1	V_2	V_3	V_4	V_5	
Si_3N_4	21	10.5	11.0	5.97	6.05	6.21	3.278
	97	10.4	11.0	5.95	6.03	6.22	3.273
AlN	1	10.5	10.7	6.22	6.29	6.29	3.266
	2	10.3	10.5	5.96	6.02	6.05	3.261
PZT-like ceramic	2	4.24	4.30	2.16	2.17	2.17	8.119
	3	4.21	4.30	2.15	2.17	2.17	8.128
PbTiO_3	6	4.33	4.35	2.55	2.59	2.60	7.909
	7	4.33	4.37	2.56	2.60	2.61	7.914
Mn-Zn ferrite		6.90	6.99	3.48	3.51	3.53	5.120

この異方性の原因として、ホットプレス焼成時の加圧方向と関連する、結晶粒の特定結晶軸の選択的配向が考えられるので、速度測定用試料の、焼成時加圧方向に平行および垂直な切り出し面での X-線相対回折強度を測定した。その結果、ここで着目したホットプ

Table II. X-ray diffraction peak intensity anisotropies in hot-press sintered Si_3N_4 ceramics.

Reflection (hkl)	Relative Intensity		
	No. 97		$\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ JCPDS 9-258
	Parallel section	Normal section	
100	25	27	17
110	30	36	20
200	81	100	85
101	100	19	100
210	71	91	100
111	7	1	9
201	26	8	35
220	5	5	5
211	2	3	5
310	7	11	20
301	28	16	70
221	9	5	20
311	3	3	9
320	10	13	35
002	15	1	35
410	5	7	20
112	2	1	3
321	26	21	14
202	6	1	17
500	2	4	17
411	12	11	85
330	3	5	20
212	11	3	85

レス焼成セラミックスの内、 Si_3N_4 のみが結晶の配向を示した。 Si_3N_4 の場合、Table II に示すように、焼成時加圧方向と平行な切り出し面において、結晶の C-軸を含む結晶面 (hkl) からの回折強度が大となっている。一方、焼成時加圧方向と垂直な切り出し面では、C-軸を含まない結晶面 (hk0) による回折強度が大である。このことは、結晶の C-軸が焼成時加圧方向と垂直な方向に配向していると解釈できる。この結果は、Lange および Nuttall らの測定結果とも一致している。

Si_3N_4 材での伝ば速度異方性の原因が結晶軸の配向によると考えるなら、その異方性は焼成時加圧方向を主軸とする六方晶的対称性で記述でき、そこでは、 $V_3 = V_4$ の関係が成立せねばならない¹⁰⁾。しかし、この関係は Si_3N_4 材ばかりでなく、結晶軸方向の配向のないセラミックスにおいても認められない。したがって、速度の異方性は結晶軸の配向のみに起因するものでないと解釈できる。また、普通焼成した PZT 系セラミックスでは、伝ば速度は等方性を示す。

一方, 等方性固体の1軸的加圧の際の, 加圧方向およびそれと垂直方向の縦波, 横波伝ば速度の変化の状況も考慮すると, ホットプレス焼成セラミックスでの伝ば速度の異方性の原因は, ホットプレス焼成に起因する残留応力に関係すると考えられる。残留応力は, 一般にアニールにより減少すると考えられるので, 試料の一部について熱処理し, その前後での速度を比較した。その結果, アニール後においては V_1 と V_2 , および V_3 , V_4 , V_5 間の速度差は小さくなる傾向を示した。したがって, ホットプレス焼成セラミックスでの縦波および横波伝ば速度の異方性は, ホットプレスに起因する残留応力が重要な役割を果たしていると考えられる。

ここに示したように, ホットプレス焼成セラミックスには, 縦波および横波速度に異方性があるため, 速度データから弾性定数を算出するとき, 異方性を考慮する必要がある。しかし, 通常は速度の代表値として V_1 および V_3 を選び, 等方体弾性定数を算出している。このようにして求めた弾性定数を Table III に示した。

Table III. "Isotropic elastic constants" reduced from acoustic wave velocities of V_1 and V_3 .

Materials		C_{11}	C_{44} ($\times 10^{10}$ dyne/cm 2)	C_{12}	E	Poisson's ratio ν
Si_3N_4	21	359	117	125	294	0.258
	97	354	116	122	291	0.256
AlN	1	363	127	110	312	0.232
	2	343	116	111	288	0.244
PZT-like ceramics	2	146	38	71	100	0.326
	3	144	37	69	99	0.325
PbTiO_3	6	148	56	45	127	0.233
	7	148	52	45	128	0.231
Mn-Zn ferrite		244	62	119	165	0.329

セラミックス内を縦波, 横波が伝ばするときに受けるエネルギー損失は, セラミックスの粒構造と測定時の周波数に大きく依存する。損失は一般に減衰定数 α で評価され, それは通常パルス弾性波の多重反射波振幅の指数関数的減衰特性を利用して測定する。 α の測定も, 伝ば速度同様, Matec 社の標準的測定装置を用いて行った。 Si_3N_4 セラミックスの, 焼成時加圧方向に伝ばする縦波および横波に対する減衰定数の周波数依存性の1例を Fig. 2 に示した。この例では, α は周波数, f , の2乗に比例しているが, 多くの試料で測定すると, α は f^1 と f^2 に比例する領域内に分布する。

Fig. 2. Frequency dependent properties of acoustic wave propagation loss factors observed by longitudinal and transverse waves at room temperature.

3 き裂進展に伴うアコースティック・エミッション (AE)

Si_3N_4 からなる構造部品を応力下におき, AE の検出を通して, 強度の信頼性評価が可能否かを考える場合, Si_3N_4 セラミックスで, 制御されたき裂進展の下での AE 特性を把握しておく必要がある。

AE 特性測定に際し, Double Torsion (DT) 法を利用した。また, 試料寸法, 形状ならびにき裂誘導の

Fig. 3. Schematic diagram of double torsion apparatus (a) and sample size and geometry (b).

ための溝の状況と、DT 用治具および加圧装置を模式的に示したのが Fig. 3 である。圧子には先端を球面状に仕上げた鋼棒（直径 2 mm）を用いた。圧子の変位速度は回転数の制御できるモーターを用いて調整できるようにした。圧子の変位量は差動トランスを用いて、また、加圧力は DT 治具の下に取付けたロードセルを用いて、ともに電気信号に変換し測定、記録した。通常の測定では、圧子の変位速度を $10 \mu\text{m}/\text{min}$ に選んだ。DT 治具を配した AE 計測システムの構成図を Fig. 4 に示す。増幅器系の周波数帯域は $10 \text{ KHz} \sim 2 \text{ MHz}$ であり、総合増幅度は、通常 70dB に選んでいる。また、AE 変換子は、 200 KHz 近傍で最大感度約 $4 \text{ kV}/\text{m}/\text{s}$ を有している。¹²⁾

Fig. 4. Block-diagram of AE measuring system with the double torsion holder.

AE 特性としては、AE 発生頻度、発生総数および AE 波振幅（実効値電圧計出力）に着目し、これに加圧力、圧子変位量を加え、レコーダーで記録した。

一定の圧子変位速度の下でのき裂進展に際し、き裂は誘導溝に沿って直線的に進行する場合と、ジグザグに方向を変えながら進行する場合とがある。き裂進展がジグザグであった場合（B-1試料）と、直線的であった場合（B-2試料）での、同一測定条件下における AE 波振幅と加圧力変化を示したのが Fig. 5 である。き裂がジグザグな経路をたどるときには、き裂が進行方向を変える箇所で、き裂の分岐、破面のわん曲が観測される。Fig. 6 に、B-1試料でみられるき裂分岐点での破面の状態と、B-2試料での平坦な破面の状態を示した。

B-1試料において、実効値電圧計で測定される大振幅 AE 信号の数と巨視的なき裂分岐点の数はよい一致を示している。き裂進展が直線的で、その巨視的破面が平坦である B-2試料では、実効値電圧計で測定されるほどの大振幅 AE の発生はないに等しい状態である。B-1、B-2試料においてカウンターで計測された AE 発生頻度、発生総数および平均のき裂進展速度、き裂

Fig. 5. Typical AE patterns presented by RMS voltmeter output, during crack growing process by double torsion method.

Fig. 6. Crack growing patterns on fracture surfaces.

進展時の平均の加圧力、またその大きさを用いて計算した K_I の値を示したのが Table IV である。 K_I の計算に際し、 Si_3N_4 材のポアソン比として 0.25 を用いた。

Table IV. Relationships between AE patterns and crack growing characteristics.

Sample	Averaged crack growth velocity ($\times 10^{-4}$ m/s)	AE total count	AE count rate (Event/min)	Force during crack growth (kg)	K_I ($\text{kg m}^{-3/2}$)
Si_3N_4 B-1	1.56	525	42	15.5	6.1×10^5
Si_3N_4 B-2	2.35	135	16.6	11.7	4.6×10^5

き裂進展時の平均の加圧力は試料ごとに変化し、それは12~16 kg の範囲に分布した。そして、き裂がジグザグに進展した試料での平均の加圧力の方が、直線的で平坦なき裂進展を示した試料での平均加圧力に比べて一般に2~3 kg 大きくなる傾向を示した。これがジグザグなき裂進展を示した試料での K_I の値を大きくする原因になっている。

一般に、DT 法におけるき裂進展速度、 V_c は次式¹³⁾で与えられる。

$$V_c = (1/BP)((dy/dt - (dP/dt)(aB+C)) \quad (1)$$

ここで、 y は圧子変位、 P は加圧力、 a はき裂長さ、 B 、 C はそれぞれ Si_3N_4 の弾性的性質、試料寸法、DT 治具構造に依存する定数である。一定の圧子変位速度のもとでも、き裂進展過程で P が変動し、 (dP/dt) が値をもてば V_c は加速または減速を受ける。B-1 試料で、大振幅 AE の発生を伴うき裂分岐の生ずる前駆現象として、加圧力の増加傾向が観測されるが、この状況では $(dP/dt) > 0$ 、 $(aB+C) > 0$ であるから V_c は減少傾向となる。そして、き裂分岐点に近づく過程で、 $(dy/dt) \leq (dP/dt)(aB+C)$

となれば、き裂進展は停止し、加圧力の増大を待って、き裂分岐が生ずると、そのとき、加圧力は不連続的に元に近い値にもどり、き裂は再び進展を始めると考えられる。

き裂進展の全過程で、 $(dP/dt) \sim 0$ とみなせるような直線的き裂進展を示した試料での平均のき裂進展時間、試料長、および加圧力とにより B の値を、またき裂発生以前の加圧過程での加圧力と圧子変位量とにより C の値を求めると、それぞれ次のようになる。

$$B = 6 \times 10^{-5} (\text{kg})^{-1}, C = 3 \times 10^{-3} \text{mm} (\text{kg})^{-1}$$

したがって、 $(dy/dt) = 10 \mu/\text{min}$ の場合、 $a = 10 \text{ mm}$ 、および $a = 50 \text{ mm}$ を想定したとき、 (dP/dt) の値が 3 kg/min および 1.6 kg/min 以上になれば $V_c \sim 0$ となることが推測できる。B-1 試料で、き裂分岐が生ずる前段過程における加圧力変化率 (dP/dt) の大きさは、加圧力変化データの解析から、き裂進展の停止を招く値に達する場合のあることがわかる。したがって、B-1 試料でのき裂分岐発生に起因する加圧力変化によるき裂進展速度の低下または一時停止が、き裂進展に要する時間を長くし、結果として平均のき裂進展速度が小さく算出されると解釈できる。

以上の考察から、AE 特性、 K_I の値、および平均の

Table V. Relationships between AE count rate, dN/dt (sec^{-1}), and the displacement velocity, dy/dt .

Sample	dy/dt	10(μ/min)	20(μ/min)	30(μ/min)
C-1		15	30	67
C-2		18	36	43
C-5		15	20	35
Average		16	29	48
Ratio		1	1.8	3

き裂進展速度などの諸量は、き裂進展過程が直線的でかつ $(dP/dt) \sim 0$ の場合と、ジグザグの場合とは、直接比較できないことが理解できる。各試料間での K_I 値のばらつきなどを考慮すると、AE の発生頻度と、き裂進展速度との関係を求める場合、同一の試料におけるき裂進展過程で、圧子変位速度を変化させ、結果としてのき裂進展がジグザグでなく、また、 $(dP/dt) \sim 0$ の状況が、各圧子変位速度の下で成立していると認められるデータを利用すべきである。そこで、同一試料でのき裂進展過程で、圧子変位速度を10, 20, 30 μ/min と変化させたときの AE 発生頻度の変化を測定した。整理した測定結果を Table V に示す。この測定では、増幅器系の総合増幅度が90dB に選んである。AE の発生頻度 dN/dt は圧子変位速度に直線的に比例して増加しているといえよう。したがって、 Si_3N_4 セラミックスでの AE 発生頻度は、

$$dN/dt \propto V_c$$

であり、 V_c と K_I 間の関係

$$V_c = AK_I^n$$

を考慮すれば、AE 発生頻度は次のように表すことができる、¹³⁾

$$dN/dt \propto K_I^n.$$

4 Model Defects の検出

セラミックスにおいては、存在する10~20 μ 程度の欠陥が、応力下で破壊の芽となり、強度を著しく低下させることが予想されている。したがって、 Si_3N_4 材による構造部品の製造に際しては、このような欠陥検出のための NDT の手法を確立することが重要である。

ここでは当面の実用化を考慮して、現在容易に利用できる超音波探傷器（東京計器、UM 731）により、5 MHz の波を用いる水浸法で、どの程度の大きさの表面欠陥まで検出できるかを、Model defects で確認

した結果について述べる。

試料としては、外径 168 mm、肉厚 15 mm、軸長 93 mm の Si_3N_4 円筒を用い、これの表面にレーザー加工機により表面での直径が 500, 320, 150 μ である細孔状の Model defects をもうけた。Defects の深さは、直径のほぼ 3 倍と推定されている。Fig. 7 に示した配置で、円筒の直径の延長上に位置する回転可能な縦波用 5 MHz 探触子の傾斜角 θ 、円筒表面への入射角 γ 、および Si_3N_4 円筒内への縦波、横波の屈折角 φ_L および φ_T は試料と探触子との位置関係および Snell の式を用い、水中縦波速度と、 Si_3N_4 での縦、横波速度を与えることにより計算できる。 φ_L 、 φ_T 、 γ を θ の関数として計算した結果を Fig. 7 に示した。 Si_3N_4 円筒内での縦および横波に対する探触子の臨界傾斜角はそれぞれ 3.4° 、 5.9° と算出された。

Fig. 7. Relationships between an oblique angle of acoustic transducer and incident-, refraction-angles in water- Si_3N_4 boundary in the water immersion bath.

水浸法による探傷実験装置は、水槽中で Si_3N_4 円筒を回転し、さらに非焦点型探触子（ビーム径約 10 mm ϕ ）を円筒の軸と平行に移動できる構造となっている。Model defects は表面近傍に存在するので探触子の傾斜角は Si_3N_4 円筒内での横波に対応する臨界角に選んだ。 Si_3N_4 円筒の表面全体を超音波ビームで走査する場合、水中での円筒の回転速度に比べて十分に遅い速度で探触子を移動させた。通常、円筒の回転速度を 1/8 回転/sec に選び、探触子の移動速度は 3~5 mm/min の範囲に調整した。

欠陥からの反射波振幅に比例した直流電圧が、探傷器出力として得られるので、探触子を移動させながらその電圧をペンレコーダーの記録紙上に画かせた。円筒の回転速度が、レコーダーのペンの応答速度に比べて速いため反射波に対応する直流出力電圧の変化にレコーダーのペンの振れを完全に応答させることはでき

(Defect size 320 μ)

Fig. 8. Echo amplitude due to 320 μ model defect recorded on the chart as a function of time.

Fig. 9. Relationship between defect sizes and echo amplitudes on the chart.

(a) ~50 μ

(b) ~160 μ

Fig. 10. Echo patterns due to "natural defects". The defect sizes were estimated to be (a) 50 μ and (b) 160 μ , respectively.

なかったが、記録紙上のペンの振れは、検出された Model defects の直径によく比例した。Fig. 8 には、探触子の移動とともにレコーダーに記録された反射波振幅の変化を、320 μ の Model defect の場合について示した。Model defects の直径と、反射波振幅に比例する記録紙上でのペンの振れとの関係は、Fig. 9 に示すように、直線で近似できる。

Si_3N_4 円筒の表面全体を走査したとき、“自然欠陥”

によると思われるいくつかの反射波が検出された。その状況を Fig. 10 に示した。Fig. 9 に示した反射波振幅と Model defect の直径との関係を利用して計算すると、これら“自然欠陥”の大きさは 50μ および 160μ に対応すると推定できた。

5 総括——今後の問題

ホットプレス焼成セラミックス研究の一環として、 Si_3N_4 材における縦波、横波の速度異方性の存在を明らかにし、伝ば速度からの弾性定数の算出に際し、この異方性に注意すべきことを指摘した。

減衰定数とセラミックスの内部構造との関係は、なお研究途上にあるが、減衰定数に着目し材料強度を非破壊的に評価する方法も提案されており、これを可能にするためにも、高温での減衰定数のデータ収集への努力が必要である。

Double Torsion 法によるき裂進展に伴う AE 特性がき裂形態およびき裂進展速度との関係において明らかになった。しかし、AE 計測法を信頼性評価の手法として実用化するためには、さらに結晶粒径、焼成時加圧方向などを考慮して AE 特性を把握する必要がある。

NDT の手法として、既存の設備、技術により 5 MHz の横波を用いて 50μ 程度の表面近傍欠陥の検出が可能であることを示した。

なお、現在 Si_3N_4 材での NDT の手法として、高い周波数の表面波応用、Photo-Acoustic Spectroscopy (PAS) の応用、さらに Scanning Laser Acoustic Microscope (SLAM) などの研究が進行中であり、これらの方法が本稿で述べた超音波法、AE 法などに加えて、将来のセラミックス構造部品類の評価法として、それぞれ独立に機能すると信じている。

(昭和56年3月13日 第5回セラミック材料部門委員会にて講演)

参 考 文 献

- 1) 高原北雄, 末松勝利, セラミックス, **15**, 967 (1980).
- 2) 岩崎秀夫, セラミックス, **12**, 240; 342; 431 (1977).
- 3) Evans, A. G., G. S. Kino, B. T. Khuri-Yakub, and B. R. Tittman, Materials Evaluation, April, 85(1977).
- 4) Khuri-Yakub, B. T., G. S. Kino, 1977 Ultrasonic Symposium Proceedings, IEEE cat. No. 77 CH1264-1 SU, 53 (1977).
- 5) Khuri-Yakub, B. T., G. S. Kino, and A. G. Evans, J. Am. Ceram. Soc., **63**, 65 (1980).
- 6) Tittman, B. R., O. Euck, L. Ahlberg, M. DeBily, F. Cohen-Tenoudji, A. Jungman, and G. Quentin, J. Appl. Phys., **51**, 142 (1980).
- 7) Evans, A. G., B. R. Tittman, L. Ahlberg, B. T. Khuri-Yakub, and G. S. Kino, J. Appl. Phys., **49**, 2669 (1978).
- 8) Lange, F. F., J. Am. Ceram. Soc., **56**, 518 (1973).
- 9) Nuttall, K., D. P. Thompson, J. Mater. Sci., **9**, 850 (1974).
- 10) Auld, B. A., "Acoustic Fields and Waves in Solids", **1**, p. 388, John Wiley & Sons, (1973).
- 11) Hughs, D. S., and J. L. Kelly, Phys. Rev., **92**, 1145 (1953).
- 12) Iwasaki, H., M. Izumi, and Y. Yamashita, Proceedings of 2nd Meeting on Ferroelectric Materials and Their Applications, Kyoto, V-4, (1979).
- 13) Evans, A. G., J. Mater. Sci., **7**, 1137 (1972).
- 14) Fouch, J. J., R. L. Thomas, Y. H. Wong, J. Schuldiess, and J. Srinivasan, J. Opt. Soc. Am., **70**, 562 (1980).
- 15) Khandelwal, P. K., P. W. Heitman, A. J. Silversmith, and T. D. Wakefield, Appl. Phys. Letters, **37**, 779 (1980).
- 16) Kupperman, D. S., Lee Pahis, D. Yuhas, and T. E. McGraw, Ceramic Bulletin, **59**, 814 (1980).
- 17) Dalgleish, B. J., P. L. Pratt, R. D. Rawlings, and A. Fakhr., Mater. Sci. Eng., **45**, 9 (1980).
- 18) Tsai, R. L., and R. Raj, J. Am. Ceram. Soc., **63**, 513 (1980).
- 19) Evans, A. G., and L. J. Graham, Acta Metallurgica, **23**, 1303 (1975).