高アルミナ質セラミックスの破面と アコースティックエミッション†

北 川 茂*

Fracture Surface and Acoustic Emissions in High-Alumina Ceramics

by

Shigeru KITAGAWA*

Three-point bending fracture tests were carried out on three kinds of high alumina ceramics. The specimens were partially cracked by thermal shock before the fracture tests. The test results could be better evaluated in terms of nominal fracture stress, σ_c , using the effective transversal area, rather than the critical stress intensity factor, K_{Ic} . The results evaluated through K_{Ic} depended on the pre-crack length. However, σ_c 's were almost independent of the crack length. Little topographic difference between the thermally-shocked and mechanically fractured surfaces was observed. For pure alumina specimens consisting of coarse grains, transgranular cracks were mainly observed on the thermally pre-cracked surface, while intergranular cracks were major on the mechanically fractured surface.

Acoustic emissions were also monitored, and those signals were recorded using a transient memory recorder. The magnitude of the signals was large for porous mullite ceramics and small for fine-grain alumina ceramics. For mullite ceramics, the fracture stress obtained from cyclic loading was about 30% higher than that from monotonic loading. Cyclic step patterns with about 10 to 20 μm spacings were observed on the cyclic fracture surface.

キー・ワード：セラミックス，破面，アコースティック・エミッション，破壊強度

1 緒 言

ファインセラミックスが機械部品として，または高温部材として用いられるようになり，その強度評価法が改めて問題となっている．ぜい性であるセラミックスは，グリフィスの理論に基づく臨界応力拡大係数 K_{Ic} が強度評価のパラメータとして最適であるとされ，広く用いられているが， K_{Ic} の評価値は潜在欠陥（必ずしもき裂ではない），人工き裂，切欠きなどによって多少異なるようである．しかし，これらを系統的に比較検討したものはほとんど無いといつてよい．また，切欠き深さ^{1,2)}によって K_{Ic} が変ることに対する修正係数の導入が行われている．等方均質物質中の潜在き裂に対して導入されたグリフィスの理論を，多孔質であるもの，または多結晶であるぜい性材にそのまま適用することについては疑問が生じる．微視的には不均質で異方性である大部分のセラミックスにおいて，それぞれの材質固有のき裂進展強度が存在することは予測できるが，必ずしも K_{Ic} 評価が最良の評価法とは思われない．そこで，本研究では熱衝撃により導入した予き裂試験片の曲げ強度をしらべ，破面トポグラフィとアコースティックエミッション（AE と略記する）の特徴の対比を行い，破壊機構について考察すると共に，

き裂を有する場合の強度評価法について一つの提案を行うものである．

2 強度評価法

いま熱衝撃により試験片の一部にき裂を導入した場合について考える．試片の断面が長方形の場合，Fig. 1 に示すようにき裂長さが両側面で異なるのが一般的である．そこで，試片の一端にき裂を入れ，曲げ破断するときの有効断面係数を次のように求める．高さ d ，厚さ t ，き裂の短い側の長さを a_1 ，長い側のそれを a_2 とし，平均き裂長さ $\bar{a}$ を $(a_1 + a_2)/2$ に等しいとおく．このとき，断面係数 Z は近似的に

$$Z = (d - \bar{a})^3 t / 6(d - a_1) \quad (1)$$

となる．したがって，破断時の曲げモーメントを M_c とすると，呼称応力 σ_c は上記 Z を用いて

$$\sigma_c = M_c / Z \quad (2)$$

で与えられることになる．

Fig. 1. Fracture surface and dimensions.

† 原稿受理 昭和59年8月20日 Received Aug. 20, 1984

* 正 会 員 福井大学工学部 福井市文京, Faculty of Engineering, Fukui University, Bunkyo, Fukui

他方、臨界応力拡大係数 K_{Ic} の算出は上記 $\bar{a}$ と元の断面による断面係数による破断応力 σ' を用いて、

$$K_{Ic} = \sigma'_c Y \sqrt{\bar{a}} \quad (3)$$

で与えられる。Y は $\bar{a}/d$ によって変る係数であるが、 $0.1 \leq \bar{a}/d \leq 0.2$ の範囲では Y はほぼ一定で、 $\sqrt{\pi}$ の値に近いので、 $Y = \sqrt{\pi}$ とおき、 $\bar{a}/d \geq 0.3$ では Y の値を変えた。

なお、セラミックスはき裂を有する場合、き裂の存在しない場合に比較して大幅に強度が低下するので、き裂がない場合の破断応力 σ_{c0} と、き裂がある場合の破断応力 σ_c の比 λ

$$\lambda = \sigma_{c0} / \sigma_c \quad (4)$$

を求めて、 λ をき裂感度（強度低下率）と呼ぶ。

3 破断試験および AE モニタ

3.1 供試試料

本研究では高アルミナ質の3種類の材質について実験を行った。供試試料の化学組成および気孔率を Table I に示す。なおこれらの試料は日本化学陶業(株)より提供を受けたものである。試片形状としては Fig. 2 に示すように多少異なる2種類のものを用いた。試片Aはダイヤモンドカットでこの形状に仕上げたものであるが、試片Bは焼成後の形状で、仕上げカットは行っていない。

これらの試験片を小形の炉中で250~350℃の温度で約30分保持したのち、中央の片側に水を少量つけて、熱衝撃によるき裂を入れた。インクを浸透させて、側面からき裂長さ測定したが、さらに破断後破面上においても予き裂長さを測定し、予き裂形状もしらべた。

Table I. Materials.

Material	Chemical composition (%)					Porosity	Grain size (μm)
	Al ₂ O ₃	SiO ₂	CaO	MgO	Na ₂ O		
KM (Mullite)	60	38	0.4		0.2	0.21	
HD (91% Alumina)	91	7	0.4	0.7	0.3	0.09	2~7
SSA-S (99.5% Alumina)	99.5	0.1			0.05	0.10	5~20

Fig. 2. Specimens.

3.2 破断試験

三点曲げ破断試験の概要を Fig. 3 に示す。支点間距離は試片Aのとき 35 mm、試片Bのとき 60 mm とした。マイクロメーターでゆっくり手動または低速モーター駆動によりこの一端を押えることにより、ロー

Fig. 3. Schematic of test apparatus.

ドセルを介して試片に荷重を与えた。手動では破断までに30分~2時間程度の時間をかけて、モーター駆動では10回転/分のモーターから更に約1/100に減速して、0.5~1 kgf/min の荷重速度で行った。なお一部の試片については破断近い荷重で約2日間一定荷重保持の試験を行った。また一部の試片については繰返し荷重による破断試験も行った。R=0.6 で正逆転させ、最初最大荷重を予想(準静的)破断荷重の90%にセットし、2000回ごとに0.5 kgf ずつ増加させた。なお、この場合は毎分約10回(約1 kgf/sec)の割合いで負荷・除荷を繰返した。

3.3 AE モニタ

試片の下に導波棒(長さ約22 mmの鋼線)を介してAEセンサを取りつけ、信号を増幅した後トランゼントメモリ(8ビット・1 μ 秒, 2 kW)に記憶させ、ペンレコーダーにAE波を描かせた。また、各イベントごとにパルスを生じさせ、短時間(1秒以内)に多数生じた場合はパルス高がその数(AEレート)にほぼ比例するようペンレコーダーに記録し、同チャートに荷重も記録して、荷重とAEの関係が分るようにした。なお、AE波は導波棒およびセンサの共振関係より約100 kHzを中心とした波が捕えられた。

4 破断試験結果

3種の試料で、A、B両形状の予き裂試験片についての曲げ破断試験結果を Table II に示す。それぞれの初期き裂長さ a 、破断応力 σ_c 、および臨界破断応力拡大係数 K_{Ic} の他に、負荷方法(荷重速度を示したものは自動)と多湿(湿らせた脱脂綿で巻く)および乾燥(直前に300℃で30分以上乾燥)などの条件をも付記してある。さらに各 σ_c および K_{Ic} の一連の結果の下にき裂長さとの相関係数 r を示す。

破断試験結果は、き裂長さおよび各種条件にかかわらず、あるばらつき範囲で σ_c はほぼ一定またはき裂長さ依存性は小さいとみなし得るが、 K_{Ic} についてみると、HD材のAグループおよびSSA-S材では r は大きく、明らかにき裂長さが増す程 K_{Ic} は大きくなる傾向がみられる。KM材でも多少その傾向がみられ

Table II. Results by monotonic loading.

Materials	Pre-crack length $\bar{a}$ mm	Fracture stress σ_c kgf/mm ²	Critical stress intensity factor K_{Ic} kgf/mm ^{3/2}	Condition
KM A	0	18		
	1.3	2.4	3.4	Manual
	2.0	2.3	3.5	Manual
	2.0	2.4	3.6	Manual
	2.2	2.4	3.5	Manual
	2.0	2.3	3.5	High humid
	2.1	2.5	3.7	Dried
	2.0	2.4	3.6	Holded
		($r=0.00$)	($r=0.62$)	
KM B	1.1	2.4	3.6	0.5 kg/min
	1.7	1.7	2.7	0.5 kg/min
	2.0	2.0	3.2	0.5 kg/min
	3.6	2.0	3.3	Manual
	3.6	2.7	4.2	Manual
	3.7	3.1	4.9	Manual
		($r=0.51$)	($r=0.61$)	
HD A	0	25		
	0.9	6.9	9.0	Manual
	1.0	8.2	11.0	Manual
	1.2	7.6	11.6	Manual
	1.9	8.2	12.3	Manual
	1.9	8.2	12.3	High humid
	1.0	7.8	10.4	Dried
	1.2	7.6	10.6	Holded
		($r=0.62$)	($r=0.84$)	
HD B	1.2	7.0	10.3	Manual
	1.4	7.4	11.5	0.5 kg/min
	1.4	9.9	15.3	Manual
	2.4	8.5	13.6	0.5 kg/min
	3.0	9.6	15.0	Manual
		($r=0.52$)	($r=0.59$)	
SSA-S A	0	30		
	0.9	11.9	15.5	Manual
	1.0	11.3	15.2	Manual
	1.0	12.2	16.4	Manual
	1.8	12.0	18.0	Manual
	1.0	12.2	16.4	High humid
	2.0	11.5	17.6	Dried
	1.8	12.0	18.0	Hold
		($r=-0.17$)	($r=0.90$)	
SSA-S B	0.5	11.1	12.6	1 kg/min
	2.0	11.3	18.1	Manual
	2.3	10.9	17.2	Manual
		($r=-0.16$)	($r=0.95$)	

 r : correlation coefficient to the crack length

Table III. Crack sensitivity.

Material	Crack sensitivity λ
KM	7.6
HD	3.1
SSA-S	2.7

る。なお、破断強度は本実験の場合のようにゆっくり負荷した場合には、荷重速度および多湿、乾燥の条件にはほとんど無関係であると思われる。

これらの結果にみられるように、 K_{Ic} にはき裂長さ依存性がみられるので、むしろ有効断面破断応力 σ_c と無き裂材（微視欠陥は存在するかも知れない）の破断応力 σ_{c0} との比 λ を求め、これを Table III に示す。

Table IV. Results of cyclic loadings.

Condition	Fracture stress σ_c kgf/mm ²
Monotonic	2.35
Cyclic	2.7
	2.8
	3.2
	3.3
	3.0
Mean	3.0

このように、き裂が存在すると強度が急激に低下するが、材質によってその程度を表す λ の値が大きく異なることが分る。

繰返し荷重の場合は、KM 材についての結果しか得られなかったが、その結果を Table IV に示す。準静的強度 σ_c の平均値も付記したが、いずれも繰返し荷重の場合の方が、破断荷重および応力は大きくなっている。これらについての考察は後に行う。

5 破面観察および AE

各試片の熱衝撃部（き裂始端より 1 mm 以内）(a)と、曲げ破断部(b)の破面を Fig. 4~6 の(a)(b)に示す。両者の区別は目視では明確であるが、SEM ではあまり明確ではない。しかし、SSA-S 材では詳細に観察すると熱衝撃き裂(a)は粒内割れが多く、機械的破断き裂の部分(b)はほとんど粒界割れである。KM 材は大部分 Mullite の割れの特徴が見られ、両者の特徴的差異は認められない。HD 材では前者(a)は KM 材に似ているが、後者(b)には粒界割れの特徴がみられる。

繰返し荷重の場合の側面を Fig. 7 に、破面の繰返し荷重き裂進展部を Fig. 8 に示す。Fig. 7 にみられるように、熱衝撃により入れた初期き裂と、最終破断部との間には繰返し荷重によるき裂進展部（矢印部）

(a) By thermal shock.

(b) By monotonic loading.

Fig. 4. Fracture surface of KM.

Fig. 5. Fracture surface of HD.

Fig. 6. Fracture surface of SSA-S.

Fig. 7. Side view of cracks. Arrows show the cracks which were propagated by cyclic loadings.

Fig. 8. Fracture surface by cyclic loadings.

が 0.5~1 mm 認められ、目視破面観察でも明りょうに認められる。その部分を拡大したのが Fig. 8 であり、写真の右上から左下にき裂が進展したと思われるステップが見られる。各ステップの大きさは 10~20 μm である。

これらの破面と対応して、AE パターンにも固有の特徴が認められる。それらを Fig. 9 に示す。KM 材はき裂が気孔から気孔へと大きくステップ状に進展するので、AE も大きく連続的であり、HD 材では粒径が小さく粒界割れが多いので AE は小さくパルス状である。SSA-S 材では両者の中間の特徴を示している。

AE 発生時に一事象ごとに一つのパルスを生じさせ、これをレコーダーに記録すると共に、音として聞くことができるようにした。破断直前に連続的にパルスを生じた。とくに KM 材では連続的に生じ始めて破断までに 0.5~2 秒程度の時間を要す（他は 0.1 秒前後の短時間である）。そこで、KM 材ではこの音を聞きながら、連続パルスを生じ始めたとき直ちに荷重を低下させ、破断を中止させることができる。その例を Fig. 10 に示す。連続的にパルスを生じるとレコーダーの事象率電圧が上昇している（荷重をそのまま保持

Fig. 9. AE patterns.

Fig. 10. Load and AE events.

すれば破断に至る)が、そのとき荷重を低下させると AE の発生が止まる。再負荷するとき、低下させる直前の荷重までは AE はほとんど生じることなく、それよりかなり高い (10~20%) 荷重まで AE は発生せず、破断もしない。すなわち、KM 材ではこのように一度破断直前に荷重を下げると、多くの場合再負荷による破断応力は上昇した。また、準静的荷重では事象率電圧上昇時に荷重を下げ、再度インクを浸透させたが、このときの初き裂からのき裂進展は認められなかった。

繰返し荷重の場合は、モーター駆動の機械的雑音が混入するため、AE 観察はできなかった。

6 考 察

6.1 破面と AE との関係

気孔の多い KM 材では、き裂は気孔から気孔へとステップ状に進展し、その際開放される弾性エネルギーはかなり大きいと思われる。そのことが AE 信号の大きさとなって裏付けられている。しかも、一度どこか大きくき裂が進む (そのときの開放エネルギーが大きいこと) は、AE 信号波の初めの部分で大きいことである (わかる) とき、それに伴って数回の AE を生じるようなき裂の進展がある。また、き裂進展量 (幅×長さ) と AE の関係を求めてないので、AE の波形解析からき裂進展量を求めることはできないが、今後岸らの方法を用いれば、定量的扱いも可能となるであろう。

結晶粒の大きい SSA-S 材では、破面写真からもわかるように、大部分が粒界き裂伝ばで、このときの AE は単発型と連発型の両者が現れたが、いずれも KM 材と比較すると小さく、き裂伝ばステップに伴って開放される弾性エネルギーは比較的小さいことを示している。さらに結晶粒の小さい HD 材ではほとんど単発型の AE を生じており、きわめて微量のき裂進展ステップしか生じてないことを示している。このように、AE はき裂進展の特徴をよく表しており、破壊の動的機構を解明するのに有力な手段と思われる。

6.2 繰返し荷重の結果について

繰返し荷重の場合、KM 材では準静的荷重の場合よりかなり大きな応力で最終破断に至っている。これは、AE 事象率が増大 (き裂が連続的に進展を始めた) した時点で荷重を低下させ、再負荷時に破断応力が上昇することと対応している。すなわち、繰返し荷重では、き裂が進展し始めても、直ちに荷重が下がるのでき裂は停止し、再負荷時には更に荷重を上昇させなければき裂が進展しない。そして、順次荷重を上げて、ある程度定常にき裂が進展するようになって、き裂進展速度と応力レベルおよびその時間との関係から、1 サイクルごとのき裂進展量が決まり、それが 10~20 μm のステップとして現れたものと思われる。そして、き

裂がある程度進展すると、残り有効断面は減少し、最終破断に至ったと考えられる。

6.3 全体として

セラミックスの AE 観測は、多くの場合ダブルトリクション法で、ゆっくりき裂を進展させる場合について行われる。その場合も材料による AE の特徴を把握することは可能であるが⁴⁾、強度との対応などについては問題があると思われる。今回の実験のように、三点 (または四点) 曲げによる破断試験では、一般に荷重のコントロールは困難であり、き裂進展量を定量的に観測することはきわめて困難である。しかし、今後の改良によって、AE とき裂進展量との関係を求めることが可能であろう。

セラミックスの強度評価において、無き裂材 (欠陥は含まれているが検知できない) に対しては呼称応力で示し、き裂材においてはき裂長さ依存性のある K 値を用いるのでは一貫性がなく、ユーザーとしては困ると思われる。今回提案したように、き裂材においてもき裂長さ依存性の小さい呼称応力を用いると、ある程度以上の大きさのき裂を有する材料の強度低下率を見積ることができ、ユーザーとして安全率を考えるうえで都合がよいと思われるので、一般的検討が望まれる。

7 ま と め

高アルミナ質の 3 種類のセラミックス試料に熱衝撃により予き裂を入れ、三点曲げ破断を行って次のような結果を得た。

- (1) 破断強度評価として、実効断面の呼称応力で整理した結果、1~2 mm 程度のき裂長さにおいては破断応力 σ_c はき裂長さに依存せず、ほぼ一定値となったが、 K_{Ic} で整理するとき裂長さ依存性が現れた。
- (2) 無き裂材の強度と予き裂材の強度の比を求め、き裂感度を導入した。
- (3) KM 材では、繰返し荷重による破断応力は準静的負荷応力より高くなった。そして、繰返し荷重によるき裂進展あとが肉眼でも認められ、破面に 10~20 μm のステップが認められた。
- (4) KM 材ではき裂が気孔から気孔へステップ状に進展するため AE は大きく連発的であり、粒径の小さい HD 材では AE は小さく単発的であった。またやや結晶粒径の大きい SSA-S 材ではこれらの中間的特徴の AE を生じた。

(昭和59年6月28日 第4回フラクトグラフィシンポジウムにて講演)

参 考 文 献

- 1) T. T. Shih and J. Opoku, Engng. Fracture Mech., **12**, 479 (1979).
- 2) W. F. Brown and J. E. Srawley, ASTM STP 410 (1967).
- 3) 例えば、岸 輝雄, 材料科学, **19**, 261 (1983).
- 4) 例えば、岩崎秀夫, 材料科学, **19**, 273 (1983).