窒化けい素セラミックスの静疲労き裂進展挙動に 及ぼす微細構造の影響[†]

北 條 浩* 柴 田 浩 貴** 神 谷 信 雄***
大 塚 昭 夫**** 宮 田 隆 司*****

Influence of Microstructure on the Static Fatigue Crack Growth of Silicon Nitride Ceramics

by

Hiroshi HOHJO*, Hirotaka SHIBATA**, Nobuo KAMIYA***,

Akio OTSUKA**** and Takashi MIYATA*****

Static fatigue crack growth tests of several silicon nitride ceramics with various microstructures were carried out by a constant moment method. Correlations between the static fatigue crack growth behavior and microstructures, such as the size and distribution of grains and the fraction of rod-like grains, were investigated.

The experimental results showed the following tendency. The larger average grain size, the higher fatigue crack growth resistance. The more uniform distribution of grain size, the higher gradient of fatigue crack growth resistance curve for crack length ranging to about 5 mm. And the fraction of rod-like grains was not so correlative to crack growth resistance.

Furthermore, a grain bridging model which may explain the influence of microstructure on fatigue crack growth behavior was proposed. In this model, the bridging force reducing effective stress intensity is described as a function of crack opening displacement and size and interval of bridging grains. The simulation showed that the more uniform distribution of grain size, the higher fatigue crack growth resistance. Also, the larger average grain size and the more fraction of rod-like grains, the higher fatigue crack growth resistance. These results were conformed qualitatively by the experimental results.

Key words : Silicon nitride ceramics, Microstructure, Static fatigue, Fatigue crack growth resistance, Grain bridging

1 緒 言

近年、窒化けい素の材料設計において、微細構造制御により強度と破壊じん性を同時に向上させる試みが盛んに行われている^{1)~3)}。窒化けい素は一般に等軸状粒子と柱状粒子の混合組織を有している。高強度化のためには結晶粒を全体的に微細化することが効果的であるが、高じん化は結晶粒の粗大化、特に柱状粒子の粗大化により達成されており、高強度化の微細構造制御と矛盾する。したがって、強度と破壊じん性の同時向上のための材料設計には、粒径の絶対値のみでなく、その分布や柱状粒子の割合などの最適化といった、より巧みな微細構造制御が必要となる。さらに、実用上重要な疲労特性について考えると、疲労挙動に及ぼす微細構造の影響は複雑である^{4)~7)}。粗大粒子や柱状粒子による破面間の架橋が主な強化機構となることがわかっているものの、架橋粒子の大きさ、分布、破壊形態、粒界相の強度などの影響は明らかでない。疲労特性向上のための明確な材料設計指針は得

られていないのが現状である。また、疲労の場合は、き裂長さによっても微細構造の影響は異なり、微小き裂の発生・進展挙動が長いき裂の進展挙動から類推できるかどうか明らかでない。

本報では、微細構造の異なる5種類の窒化けい素セラミックスについて、一定応力拡大係数下での長いき裂の静疲労き裂進展試験を行い、結晶粒径やその分布、柱状粒子の割合といった微細構造がき裂進展挙動に及ぼす影響を調べた。また、粒子架橋現象がき裂進展挙動に及ぼす影響をシミュレートするため、微細構造を反映させた粒子架橋モデルを提案し、その結果と実験結果とを対比することにより微細構造と疲労き裂進展挙動との関係について考察した。

2 実験方法

2・1 供試材

実験に用いた材料は、微細構造の異なる5種類の窒化けい素(A1, B1, C, E, F)である。A1およびB1材

† 原稿受理 平成8年5月2日 Received May 2, 1996

* 正 会 員 (株)豊田中央研究所 〒480-11 愛知県愛知郡長久手町, Toyota Central Res. & Dev. Labs., Inc., Aichi-gun, Aichi, 480-11

** 名古屋大学大学院 〒464-01 名古屋市中千種区不老町, Graduate Student, of Nagoya Univ., Chikusa-ku, Nagoya, 464-01

*** (株)豊田中央研究所 〒480-11 愛知県愛知郡長久手町, Toyota Central Res. & Dev. Labs., Inc., Aichi-gun, Aichi, 480-11

**** 正 会 員 岐阜職業能力開発短期大学校 〒501-05 岐阜県揖斐郡大野町, Gifu Polytechnic College, Ibi-gun, Gifu, 501-05

***** 正 会 員 名古屋大学工学部材料機能工学科 〒464-01 名古屋市中千種区不老町, Dept. Mat. Sci. & Eng., Nagoya Univ., Chikusa-ku, Nagoya, 464-01

は既報⁸⁾で、C、E および F 材は既報⁵⁾でそれぞれ用いた材料で、焼結助剤の種類や量、焼結条件等はすべて異なる。焼結助剤の種類や量は強度特性に少なからず影響するが、ここでは結晶粒子の寸法や形態、分布などの幾何学的特徴に注目して疲労特性との関係を調べることとした。ECR プラズマによりエッチングした試料表面を SEM により写真撮影し、2次元断面上の各構成粒子について (株) ピアス製画像解析装置 LA525 により短径、長径、および、アスペクト比を計測した。供試材の

Fig. 1. Microstructures of materials etched by ECR plasma.

微細構造の SEM 写真を Fig. 1 に、微細構造の定量化結果および破壊じん性値を Table I にそれぞれ示す。粒径の分布形状 d_{80}/d_p は粒径分布の広さを累積個数割合 80 % の粒径 d_{80} と最頻粒径 d_p の比で表したもので、この値が大きいほど粒径分布が広いことを意味する⁵⁾。また、柱状粒子の個数割合 R_L は 2 次元断面上のアスペクト比が 3 以上の粒子が占める割合とした。

2・2 静疲労き裂進展試験

静疲労き裂進展試験は CM (Constant Moment) 法^{8),9)}により行った。CM 法の試験装置の概略図を Fig. 2 に、試験片形状を Fig. 3 にそれぞれ示す。CM 法では応力拡大係数 K 値が次式で与えられる。

$$K = TL/\sqrt{It}, \quad I = bh^3/12 \quad (1)$$

この式からも明らかなように、CM 法では、 K 値がき裂長さに無関係となり、 K 値制御試験を比較的容易に

Fig. 2. Apparatus used for constant moment type crack growth tests.

Fig. 3. Specimen dimensions.

Table I. Microstructures and fracture toughness of materials used.

Material			Al	Bl	C	E	F
Micro-structure	Grain size	Average $\bar{d}$, μm	0.395	0.434	0.594	0.362	0.866
		Mode d_p , μm	0.300	0.380	0.330	0.175	0.550
		Characteristic of distribution d_{80}/d_p	4.20	3.05	2.35	3.02	2.05
	Fraction of rod-like grains R_L		0.093	0.086	0.086	0.135	0.088
Fracture toughness K_c (SEPB), $\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$			6.0	6.4	6.5	7.1	9.5

行うことができる。ただし、後述の FEM 解析によると、数 mm までのき裂長さ 20 mm を越えるき裂長さにおいては、解析値が式 (1) より約 3 % 高くなる。本報では、各材料について狭い範囲の K 値で実験を行っている (Fig. 4 参照)、き裂長さの短い範囲でのこの誤差は大きく、補正が必要となる。予き裂の導入は、薄いダイヤモンドホイールにより入れたシェブロン切欠きからき裂を少し進展させ、その後、き裂ウェイクを除くため、薄いダイヤモンドホイールによりき裂先端部を 0.3 mm 程度残して切込みを入れることにより行った。切欠きを含めた初期き裂長さ a_0 は 3 mm とした。

3 結果および考察

3・1 静疲労き裂進展試験結果

Fig. 4 に各供試材で種々の一定の K 値を負荷したときのき裂長さ a とき裂進展速度 da/dt の関係を示す。高じん性材料である F 材では、き裂の進展開始直後からき裂が偏向する傾向が強いために、安定して得られたデータが少なく、これらの図から、いずれの材料においても、 K 値がある値以下ではき裂が進展するのに伴って進展速度が低下し、ある長さ進展したのち最終的には停止することがわかる。

このようにき裂の進展に伴って進展が減速し最終的に停留するのは、き裂ウェイクの粒子架橋効果などのためき裂進展抵抗が増大するためと考えられる。高じん性の F 材以外の材料では、 K 値がある値以上ではき裂は減速することなくほぼ一定の速度で進展するが、その限界応力拡大係数は E 材で最も高く、A1 材で最も低い。これは破壊じん性値の大小にほぼ対応している。

3・2 “ Δa - K ” 関係

Fig. 5 は Fig. 4(a) の結果のうち重なる点などを一部省

略して線図で簡略化して示したものである。この図で、き裂進展速度 $da/dt=10^{-5}$, 10^{-6} , 10^{-7} m/sec の線と実験結果の a - da/dt 関係との交点のき裂長さを読み取ってき裂進展量 $\Delta a (=a-a_0)$ と K 値の関係をプロットすると、Fig. 6 に示す Δa - K 関係が得られる。この時の K 値は後述の FEM 解析を基に補正した値である。図中の曲線は、各供試材で $da/dt=10^{-6}$ m/sec の点を次式のようなべき乗関数で近似した曲線である。

$$K=Q(\Delta a)^m \quad (2)$$

ここで、 Q , m は材料定数である。

Fig. 6 は、同じ進展速度でき裂進展を続けさせるためには、き裂長さの増大に伴って、より大きな K 値を負荷する必要があることを示している。静疲労におけるこのようなき裂進展抵抗のレベルは、SEPB 法で求めた破壊じん性値の大小におおよそ一致している。一方、その傾きには、破壊じん性値と異なる傾向がみられる。

3・3 微細構造とき裂進展抵抗の関係

Fig. 6 に示したき裂進展速度 $da/dt=10^{-6}$ m/sec の場合のき裂進展抵抗曲線の、き裂長さの比較的短い領域

Fig. 4. Crack velocity as a function of crack length in silicon nitride ceramics.

Fig. 5. Schematic drawing of relations between crack velocity and crack length shown in Fig. 4 (a).

($\Delta a=1, 3$ mm)における勾配を求め、微細構造との関係をプロットした結果を Fig. 7 に示す。き裂進展抵抗曲線の勾配は、粒子架橋等による応力遮へいの強さを表すものと考えられる。¹⁰⁾ F 材のき裂進展抵抗曲線の勾配は他の材料に比べて大きいため、傾向線がその影響を強く受けるが、大略、次のような傾向が認められる。結晶粒径の平均値や最頻値は、き裂進展抵抗曲線の勾配とあまり良い相関が認められないが、粒径の最も大きい F 材で勾配が最も大きく、おおよそ粒径の大きいものの方がき裂進展抵抗曲線の勾配が大きい。また、粒径分布の広さとき裂進展抵抗の関係について見ると、 d_{80}/d_p が小さい、すなわち、粒径分布が狭いもののほどき裂進展抵抗曲線の勾配が大きくなる傾向があり、粒径分布の最も狭い F 材で勾配が最も大きかった。一方、柱状粒子の割合 R_L とき裂進展抵抗の関係は、あまり良い相関が認め

Fig. 6. Relation between crack extension and crack growth resistance in static fatigue of silicon nitride ceramics.

られなかった。粒径や柱状粒子割合とき裂進展抵抗との関係においてあまり強い相関が認められなかった理由については、ここで取り上げた以外の影響因子、例えば、面積基準平均粒径など異なる尺度での微細構造因子や、粒界相の厚みや強度といった別の因子を考える必要があり、今後の課題である。

3・4 粒子架橋モデルによる微細構造の影響の解析

上記の微細構造とき裂進展抵抗の関係は、Fig. 8 に示すような粒子架橋や、き裂が粒界に沿ってジグザグに進展することによる破面間の相互作用を反映しているもの

Fig. 7. Correlation between microstructure and gradient of crack growth resistance curve in static fatigue of silicon nitride ceramics.

Fig. 8. Typical example of grain bridging (Material Al).

と考えられる。ここでは、微細構造がき裂進展抵抗に及ぼす影響を調べるため、粒子架橋の力学モデルを提案し、き裂進展のシミュレーション解析を行った。

本モデルでは、き裂進展速度が低下し停留する現象はすべて粒子架橋によるものとし、粒子架橋により実効的な K 値が低下したと考える。実効的な K 値、すなわち、有効応力拡大係数 K_{eff} は、公称の応力拡大係数を K_a 、粒子架橋による応力拡大係数を K_b として次式で与えられる。

$$K_{\text{eff}} = K_a - K_b \quad (3)$$

Fig. 9 に示すように、主き裂上に架橋する粒子が存在するとき、き裂の開口とともに粒界に局部的にはく離が生じ、粒界が完全にはく離するまでは架橋粒子の弾性変位がき裂の開口に対応する。粒界がはく離した後は粒界がすべり、抜け出し過程で摩擦力が生じる。この摩擦力の原因は焼結時の圧縮残留応力と考えられる。

ここではまず、本研究で用いた CM 法がき裂長さによらず一定の K 値制御試験となることを確認するため、試験片の形状について FEM による 2 次元弾性解析を行った。 K 値の算出には、J 積分法を用いた。試験片に一定の曲げモーメントを与え、き裂長さ $a=5, 10, 15, 20$ mm の時の K_a およびき裂開口変位 U を求めた。 U の分布は K 支配領域（特異応力場）をはずれたところでは試験片形状とき裂長さに依存するため、き裂長さの関数として求めた近似式により表した。そして、架橋粒子の位置 x における K_{eff} によるき裂開口変位を U_x とし、架橋力 P を次式のように与えた。

$$\left. \begin{aligned} P(x) &= P_0 U_x / U_c & U_x &\leq U_c \\ P(x) &= P_0 (1 - U_x / U^*) & U_c < U_x \leq U^* \\ P(x) &= 0 & U^* < U_x \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

ここで、 P_0 は材料定数で、 U_c は粒子界面が完全にはく

Fig. 9. Grain bridging model.

離するときの開口変位、 U^* は粒子が完全に抜け出るときの開口変位である。次に、この架橋力 P による K_p を上と同様に FEM を使い、き裂長さ a およびき裂先端からの距離 x の関数として求めた。このように、架橋粒子の位置におけるき裂開口変位に応じて K_p が定まるので、 K_p のき裂全長にわたる総和が粒子架橋による応力遮へい効果 K_b となる。これを式 (3) に代入して新たな K_{eff} を計算し、 U_x を再度計算する。以上の計算を繰返し、収束する K_{eff} の値を求めた。 U^* や U_c は架橋粒子の粒径 d に比例すると考えてよいから、ここでは仮に $U^* = d/2$, $U_c = U^*/10$ とした。また、 P_0 の値は、粒子架橋によってき裂が完全に閉口し停留するときのき裂長さが実験結果と同じ 10 mm 程度になるように、試行錯誤により定めた。さらに、微細構造の影響を調べるため、粒径 d 、粒径分布幅 Δd 、架橋粒子間隔 dx を基準値 ($d=2 \mu\text{m}$, $\Delta d/d=0.0$, $dx=50 \mu\text{m}$) に対して変化させて解析を行った。粒径分布の広さの影響は、粒径 d の値に乱数発生によってある幅 Δd の分布を与えることにより模擬した。

Fig. 10 に CM 法における K 値一定の検証の結果を示す。 K 値はほぼ一定の値に制御されるが、き裂長さ $a=2.75, 20$ mm で K 値が式 (1) による計算値より約 3 % 高くなった。前述の Fig. 6 の $\Delta a-K$ 関係は、Fig. 10 をもとに作成した校正曲線を用いて Fig. 4 の K 値を補正してプロットした。

Fig. 11 に 1 個の架橋粒子による K_p の、架橋位置に伴

Fig. 10. Relation between crack length and stress intensity factor in constant moment method.

Fig. 11. Relation between stress intensity factor due to grain bridging and location of bridging grain for various crack length.

う変化を示す。き裂先端から架橋粒子までの距離が短い場合は、架橋粒子が遠ざかるにつれ K_p が減少するが、ある位置で K_p は極小値を示し、それ以降漸増することがわかる。

微細構造の影響のシミュレーション結果を Fig. 12 に示す。粒径を小さくする（2点鎖線）と、あるき裂長さ以上で基準粒径の場合（実線）よりも K_{eff} が大きくなり、粒子架橋の効果が飽和してしまう。また、架橋粒子の粒径が一定の場合（ $\Delta d/d=0$ ）に比べて粒径分布を広くする（1点鎖線）と、 K_{eff} は若干大きくなり、粒子架橋による寄与 K_b が小さくなった。そして、基準の計算条件の場合（実線）との差はき裂長さの増大とともに大きくなり、き裂進展抵抗の増加割合、すなわち、 dK_b/da ($=-dK_{eff}/da$) も小さくなった。このことは、 d_{80}/d_0 が大きい、すなわち、粒径分布が広いと、き裂進展抵抗曲線の勾配が小さくなるという、Fig. 7(c) に示した傾向と定性的に一致している。Fig. 9 に示したき裂開口変位と架橋力の関係の模式図において、 U_c や U^* は架橋粒子の粒径 d に比例すると考えてよい。すなわち、 $U_c=d/k$ 、 $U^*=d/k'$ (k, k' は定数) とおくことができる。極端に粒径の小さい（細い）柱状粒子は、その位置でのき裂開口変位 U_x が U^* より大きい場合がほとんどで、き裂先端の極近傍の、開口変位の小さな位置でしか架橋粒子として作用しないと考えられる。また、逆に粒径の大きい（太い）柱状粒子は、 $U_x < U_c$ の場合がほとんどで、き裂開口変位の大きな、すなわち、き裂先端からかなり後方の位置でしか架橋粒子として作用しないと考えられる。したがって、架橋粒子の粒径が $d=kU_c$ の近傍に集中して分布した場合と比べると、粒径分布が広い場合は、粒径が極端に小さいか、あるいは、大きな柱状粒子をき裂が通過する確率が高くなるため、架橋効果が小さくなるものと考えられる。

さらに、モデルの仮定からすれば必然的ではあるが、架橋粒子の間隔を狭くする（点線）、すなわち、架橋する柱状粒子が多いと、 K_{eff} が基準の計算条件の場合より小さくなった。また、その差がき裂長さの増大に伴っ

Fig. 12. Simulation of the influence of microstructure on effective stress intensity factor.

て大きくなり、き裂進展抵抗の増加割合が大きくなった。実験結果では、柱状粒子の割合とき裂進展抵抗曲線の勾配はあまり相関性がなかったが、柱状粒子をき裂に垂直な方向に配向制御した場合の破壊じん性が大きく向上するとの報告例¹¹⁾もあり、柱状粒子を増やすことはき裂進展抵抗の向上に有効であると考えられる。

以上のように、粒子架橋モデルによる解析の結果は、実験で得られた微細構造とき裂進展抵抗の関係と定性的ではあるが一致している。

4 結 言

微細構造の異なる5種類の窒化けい素セラミックスについて、一定応力拡大係数下での静疲労き裂進展試験を行い、結晶粒径やその分布、柱状粒子の割合がき裂進展挙動に及ぼす影響を調べ、以下のような結論を得た。

- (1) き裂進展抵抗曲線の勾配は結晶粒径の平均値や最頻値とはあまり良い相関が認められなかったが、粒径の大きいものほど高くなる傾向にあった。
- (2) 数 mm 程度のき裂長さまでのき裂進展抵抗曲線の勾配は、結晶粒子の粒径分布が狭いほど大きくなる傾向が認められた。
- (3) 柱状粒子の割合はき裂進展抵抗とあまり良い相関が認められなかった。
- (4) 粒子架橋モデルにより微細構造がき裂進展抵抗に及ぼす影響を解析した結果、粒径が大きいほど、また、粒径分布が狭いほどき裂進展抵抗の増加割合が大きくなり、上記の実験結果と定性的に一致した。

(平成7年9月27日 日本材料学会第8回破壊力学シンポジウムにて講演)

参 考 文 献

- 1) M. Mitomo and S. Uenosono, J. Amer. Ceram. Soc., **75**, 103 (1992).
- 2) W. Hermel, M. Herrmann and Ch. Schubert, Proc. 3rd Euro-Ceramics, **3**, 391 (1993).
- 3) M. J. Hoffmann and G. Petzow, Pure & Appl. Chem., **66**, 1807 (1994).
- 4) 高津 学, 大矢寛二, 安藤雅史, 日本セラミックス協会学術論文誌, **98**, 490 (1990).
- 5) 北條 浩, 山田 明, 猿木勝司, 神谷信雄, 材料, **45**, 55 (1996).
- 6) A. J. Pyzik and D. R. Beaman, J. Amer. Ceram. Soc., **76**, 2737 (1993).
- 7) C.-W. Li, S.-C. Lui and J. Goldacker, J. Amer. Ceram. Soc., **78**, 449 (1995).
- 8) 大塚昭夫, 菅原宏人, 兪 成根, 材料, **41**, 1279 (1992).
- 9) S. W. Freiman, D. R. Mulville and P. W. Mast, J. Mater. Sci., **8**, 1527 (1973).
- 10) R. F. Krause, J. Amer. Ceram. Soc., **71**, 338 (1988).
- 11) 今村寿之, 平尾喜代司, M. E. Brito, 鳥山素弘, 神崎修三, 日本セラミックス協会'96年会講演予稿集, p. 396 (1996).