気孔によるき裂の進展効果を考慮したぜい性破壊モデルの提案†

石原正博* 高橋常夫**

Proposal of a Brittle Fracture Model Based on Pore and Crack Interaction Effect

by

Masahiro ISHIHARA* and Tsuneo TAKAHASHI**

The brittle fracture model taking into account of the interaction between pores and cracks is proposed in this paper. The model is applicable to the prediction of tensile strength of graphite materials. In the model, pores are assumed as initial cracks, and cracks are treated by the fracture mechanics method with statistical approach. From comparison between the experimental tensile strength data and the analytical results of the proposed model, it was found that the model predicts not only fairly good the mean tensile strength but also the tensile strength distribution of graphite materials, leading to the validity of the proposed model. Furthermore, it was found that the graphite with larger pore and high porosity is predicted to have a larger pore/grain interaction effect. The grain size dependence on strength is also predicted to have the same trend as the experimental results observed for ordinary ceramics.

Key words: Brittle fracture, Graphite, Tensile strength, Strength distribution, Fracture mechanics, Statistical treatment

1 緒言

セラミックス材料は構造用セラミックスと機能性セラミックスに大別され、さまざまな分野への応用が期待されている。構造用セラミックスでは、強度を的確に予測することが重要であり、強度予測のための破壊モデルとして、最弱リンク説として知られるワイブル強度モデル¹⁾や複数の破壊原因が競合して強度が定まるとした競合リスク理論をもとにした強度モデル²⁾等が提案されてきた。これらのモデルは、いずれもマクロな強度特性を確率論的な観点から扱うものであるが、微細組織と強度特性との関連性が重要となる材料開発等の分野にはあまり有用ではない。

これに対して、近年、気孔分布等の微細組織の情報を考慮できるより現実的な破壊モデルが、Burchellにより黒鉛材料に対して提案された³⁾。このモデルでは、気孔が破壊に影響するものと考え、初期き裂の分布として気孔サイズの分布を仮定し、破壊力学と確率論とを組み合わせる手法により、平均強度のみならず強度分布も予測可能である。しかしながら、引張強度の予測のみに適用可能であるため、曲げ強度等の応力が分布している状態で強度予測が可能となるように中西⁴⁾らや高橋⁵⁾によりモデルの拡張が検討されるとともに、その適用性についての検討が行われている。また、Viennetらは⁶⁾このモデルで扱っている粒子破壊じん性値 (particle fracture toughness) に関する実験および解析的検討を行っている。このように、Burchell モデルは微細組織とマクロな強度特性との相関性が扱えるという優位性から、いろい

ろな研究者によりモデルの改良やモデルの適用性等についての検討が行われてきた。

しかしながら、Burchell モデルでは、結晶粒の破壊によりき裂が初期き裂の状態から序々に進展するものと仮定しているが、このき裂進展のモデル化においてき裂と気孔との相互作用が考慮されていない。

そこで、本研究においては、より現実に近い破壊のプロセスを考慮したぜい性破壊モデルとして、き裂進展時のき裂と気孔との相互作用を考慮したぜい性破壊モデルを提案する。

2 ぜい性破壊モデル

本研究において提案するぜい性破壊モデルは、き裂進展時のき裂と気孔との相互作用が考慮できるようにBurchellの提案した破壊モデルを拡張したものである。すなわち、き裂が進展し気孔に当たったときにき裂の進展が促進される効果をモデル化したもので、より現実に近い破壊のプロセスが考慮でき、黒鉛材料に適用可能なものである。

黒鉛の結晶は六方晶系に属し、Fig. 1に示すように六角網目状の面方向に共有結合で結ばれ、面間はファン・デル・ワールス結合で積層された構造となっている。⁷⁾このため、黒鉛の結晶は a 軸方向と c 軸方向では高い異方性を示し、基底面に沿う方向にへき開破壊し易い構造となっている。

ここで提案するぜい性破壊モデルでは、黒鉛の結晶粒の破壊について、Fig. 2に示すように長さ c のき裂が結晶粒に面し、結晶粒の基底面方向がき裂より角度 θ だけ

† 原稿受理 平成 13 年 5 月 22 日 Received May 22, 2001

* 正 会 員 日本原子力研究所核熱利用研究部 〒311-1394 茨城県東茨城郡大洗町成田, Dept. of Advanced Nuclear Heat Tech., Japan Atomic Energy Res. Inst., Higashiibaraki-gun, Ibaraki, 311-1394

** 日本原子力研究所核熱利用研究部 〒311-1394 茨城県東茨城郡大洗町成田, Dept. of Advanced Nuclear Heat Tech., Japan Atomic Energy Res. Inst., Higashiibaraki-gun, Ibaraki, 311-1394

Fig. 1. crystal structure of graphite.

Fig. 2. Brittle fracture model with fracture mechanics treatment.

傾いているときには、基底面に沿う方向にへき開破壊するようにき裂が進むことを仮定している。き裂面から角度 θ 傾いた1個の結晶粒が破壊する確率 P_i は、次式で与えられる。³⁾

$$P_i = \frac{4}{\pi} \cos^{-1} \left(\frac{K_{IC}}{K_i} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (1)$$

ここで、 K_{IC} は結晶粒子のへき開破壊じん性値、 K_i は長さ c のき裂が無遠慮で引張応力 σ を受ける場合の応力拡大係数で

$$K_i = \sigma \sqrt{\pi c} \quad (2)$$

である。Fig. 3 に示すように試験片の幅を b 、結晶粒の大きさを平均粒径長さ a の立方体とし、幅 b 内にある結晶粒全てが破壊したとき、き裂が a だけ進むものと仮定する。ここで、気孔率を考慮した幅 b 内に存在する結晶粒の数 n_b により、気孔によるき裂の進展効果を考慮する。すなわち、幅 b 内に存在する結晶粒の数 n_b を、材料の気孔率を ξ とし、

$$n_b = \frac{b(1-\xi)}{a} \quad (3)$$

で与える。ここで、 ξ は次式により定義する。

Fig. 3. Cubic grain arrangement in the brittle fracture model.

$$\xi = \frac{\gamma_{th} - \gamma}{\gamma_{th}} \quad (4)$$

なお、 γ_{th} は黒鉛の理論密度 ($\gamma_{th} = 2.26 \text{ g/cm}^3$)、 γ は黒鉛の気孔を含む実際の密度である。

したがって、幅 b 内の結晶粒が全て破壊する確率 P_f は、結晶粒の数が n_b であるので

$$P_f = (P_i)^{n_b} = \left[\frac{4}{\pi} \cos^{-1} \left(\frac{K_{IC}}{\sigma \sqrt{\pi c}} \right)^{\frac{1}{3}} \right]^{n_b} \quad (5)$$

で求められる。式 (5) で計算される確率は、き裂の長さの観点から考えると、長さ c のき裂が $c+a$ の長さとなる確率でもある。したがって、長さ $c+a$ のき裂が $c+2a$ となる確率は、

$$P_f = \left[\frac{4}{\pi} \cos^{-1} \left(\frac{K_{IC}}{\sigma \sqrt{\pi(c+a)}} \right)^{\frac{1}{3}} \right]^{n_b} \quad (6)$$

となる。すなわち、長さ c のき裂が $c+2a$ のき裂長さに成長する確率は、式 (5) と式 (6) の積により求めることができる。このように、順次き裂の成長を考えると、長さ c のき裂が $c+ia$ の長さに成長する確率は、

$$P_f = \prod_{i=0}^{n_b} \left[\frac{4}{\pi} \cos^{-1} \left(\frac{K_{IC}}{\sigma \sqrt{\pi(c+ia)}} \right)^{\frac{1}{3}} \right] \quad (7)$$

で計算できる。ここで、両辺の対数を取り式を整理すると、

$$\ln P_f = n_b \cdot \sum_{i=0}^{n_b} \left[\frac{4}{\pi} \cos^{-1} \left(\frac{K_{IC}}{\sigma \sqrt{\pi(c+ia)}} \right)^{\frac{1}{3}} \right] \quad (8)$$

となる。上式は、積分近似することにより

$$\ln P_f \approx n_b \cdot \int_0^{n_b} \left[\frac{4}{\pi} \cos^{-1} \left(\frac{K_{IC}}{\sigma \sqrt{\pi(c+ia)}} \right)^{\frac{1}{3}} \right] di \quad (9)$$

で表せる。ここで、引張応力 σ のもとにき裂が成長し、 $c+ia$ の長さに達したとき結晶粒の破壊確率が $P_i = 1$ と

るものとする。式 (9) はこのき裂を起点として全体破壊を生じる確率を表すことになる。すなわち、式 (9) により $P_i = 1$ となる i により 1 個のき裂を起点とした全体破壊の確率が計算できる。

一方、初期き裂の確率密度関数を $f(c)$ とすると、初期き裂長さが c と $c + dc$ の間にある確率は $f(c)dc$ で与えられる。式 (9) の破壊確率は初期き裂長さ c を一定として扱ってきたが、実際には初期き裂長さも確率分布をしている。したがって、初期き裂長さに確率分布を考慮すると、単一き裂に応力 σ が作用したときの破壊確率 P_F は、式 (9) の破壊確率を便宜上 $P_f(\sigma, c)$ と簡略化して表すと、

$$P_F = \int_0^{\infty} f(c) \cdot P_f(\sigma, c) dc \quad (10)$$

で表される。したがって、単一き裂に応力 σ が作用したときの非破壊確率 P_s は、

$$P_s = 1 - P_F \quad (11)$$

となる。ここで、試験片中に存在する単位体積あたりの気孔数を N 、体積を V とすれば、引張応力が作用する 2 次元のき裂モデルを考えると、1 個のき裂あたりに 2 個のき裂先端が存在することから、 $2NV$ 個のき裂先端が存在することになる。このため、試験片の非破壊確率 P_{stotal} は、

$$P_{stotal} = (P_s)^{2NV} \quad (12)$$

となる。したがって、試験片の破壊確率 P_{ftotal} は、

$$P_{ftotal} = 1 - P_{stotal} \quad (13)$$

となる。

3 実測値との比較

3・1 引張強度の比較

原子炉用微粒等方性黒鉛（東洋炭素佛製、IG-110 黒鉛）および原子炉用粗粒準等方性黒鉛（米国、UCAR 社製、PGX 黒鉛）について、中西らは微細構造の画像解析により、Burchell モデルのパラメータを実測するとともに、引張強度試験を実施している。⁴⁾ここでは、彼らの得た微細構造に関するパラメータおよび強度試験データを用いて、提案モデルによる引張強度の予測を行い実測値との比較検討を行う。

Table I は中西らが微細構造の画像解析により得たモデルパラメータを示したものである。⁴⁾なお、初期き裂の確率密度関数として中西らが定めた対数正規分布を用いた。この対数正規分布は、黒鉛材料の気孔サイズ分布として良く合うものとされている。³⁾ここで、表中の Pore deviation parameter, S_d は、変動係数（標準偏差／平

均值）を C_v とすると、

$$S_d = C_v + 1 \quad (14)$$

の関係にある。

引張強度の予測では、引張応力 σ を順次変化させながら式 (13) により計算される破壊確率を数値計算により求めた。Fig. 4 は IG-110 黒鉛および PGX 黒鉛の引張強度の予測値と中西らによる実測データとを比べたものである。○印は実測データ、×印は予測強度を示している。図からわかるように、提案モデルは平均強度のみならず強度分布ともよく一致していることがわかる。

3・2 強度の確率分布の比較

次に、強度分布が実測データと予測値でどの程度一致しているのかについて、ワイブル分布、正規分布および対数正規分布プロットすることにより検討する。

Fig. 5 (1) および (2) はワイブル確率紙に IG-110 黒鉛および PGX 黒鉛の実測値と予測値をプロットしたもので、引張強度は平均強度で規格化している。×印、○印はそれぞれ予測強度および実測強度を、また破線、実線はそれぞれの最適近似直線を示している。なお、 r はワイブル分布に対する相関係数を示している。両黒鉛ともに予測値の方が実測値よりも若干最適近似直線の勾配が緩やかであるもののワイブル分布に良く一致している。

Fig. 6 (1), (2) および Fig. 7 (1), (2) はそれぞれ正規確率紙および対数正規確率紙に実測値と予測値をプロットしたものである。実測値、予測値ともに対数正規分布よりは正規分布によく当てはまる傾向を示している。

これらの図から、予測値の強度分布も実測データとよく一致していること、また確率分布への適用性については、実測値、予測値ともに対数正規分布よりは正規分布あるいはワイブル分布によく当てはまる傾向を示していることがわかる。

4 Burchell モデルとの比較

気孔によるき裂進展効果が考慮されていない Burchell モデル³⁾と提案モデルによる予測値を比較する。解析対象としては、密度が高密度のもの (2.0g/cm^3) および低密度のもの (1.5g/cm^3) の 2 種類とし、密度および単位

Table I. Input parameter for proposed brittle fracture model.⁴⁾

Model parameters used in brittle fracture model	Graphite	
	IG-110	PGX
Grain size (μm)	50	762
Number of pores ($\times 10^8/\text{m}^3$)	26.2	0.187
Mean pore size (μm)	18.4	238
Pore deviation parameter, S_d	2.0	1.73
Particle K_{IC} ($\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$)	0.225	0.225
Density (g/cm^3)	1.78	1.74

Fig. 4. Comparison between experimental data⁴⁾ and analytical results.

Fig. 5. Weibull probability plot of tensile strength.

体積あたりの気孔数以外は Table I に示した IG-110 黒鉛と PGX 黒鉛の値⁴⁾を用いた。なお、気孔サイズの平均値と分布のパラメータを固定したため、密度の変化にともない単位体積あたりの気孔数を変化させている。このため、実際の黒鉛では密度が高いものほど粒径が小さくなり気孔サイズも小さくなっているが、解析では粒径、気孔サイズを一定の条件で密度のみを変化させている。

Fig. 6. Normal probability plot of tensile strength.

Fig. 8 (1)および (2) は IG-110 黒鉛および PGX 黒鉛の入力条件で密度を変化させた場合の予測値を比較したものである。両黒鉛とも、低密度のものの方が Burchell モデルと提案モデルとの予測値の差が大きくなっている。これは、低密度のものほど気孔が多く存在するため、気孔によるき裂進展効果が現れたためである。

また、両黒鉛について比較すると、微粒の IG-110 黒鉛では Burchell モデルと提案モデルとの差は小さいが、粗粒の PGX 黒鉛ではその差が大きくなっている。これは、IG-110 黒鉛では気孔サイズが小さく、気孔によるき裂進展効果はあまりないが、PGX 黒鉛では気孔サイズが大きく、気孔によるき裂進展効果が顕著に現れたためである。したがって、気孔サイズが大きく密度の小さな黒鉛、す

(1) IG-110 graphite

(2) PGX graphite

Fig. 7. Log-normal probability plot of tensile strength.

なわち気孔率の大きな黒鉛では、気孔によるき裂進展効果が大きく現れることがわかる。

ここで、Fig. 4 に示した実測データについて、提案モデルと Burchell モデルを比較してみる。Fig. 9 (1) および (2) は提案モデルによる予測値を×印で、Burchell モデルによる予測値を△印で実測データと比較したものである。図より、IG-110 黒鉛では両者の予測値にほとんど差はなく、実測値とよく一致しているのに対し、PGX 黒鉛では Burchell モデルの方が高めの予測値を与えていることがわかる。すなわち、気孔サイズが大きく密度の小

(1) IG-110 graphite

(2) PGX graphite

Fig. 8. Pore and crack interaction effect on tensile strength.

(1) IG-110 graphite

Fig. 9. Comparison between proposed and Burchell models.

さな黒鉛では気孔によるき裂進展効果を考慮する必要があることを示唆するものである。なお、黒鉛材料は400℃以上の高温域で酸素等が存在すると酸化反応を起こし、CO₂やCO等のガスとなり内部に多数の気孔を生じ、これが破壊の起点となり強度低下を生じることから、この酸化損傷を受けた黒鉛の強度が問題となる場合がある。¹⁰⁾このような場合には気孔によるき裂進展効果を考慮する必要がある。

5 解 析 例

提案モデルを用いた解析例として、粒子サイズの違いによる引張強度への影響について調べる。入力パラメータはTable Iに示した両黒鉛のうち、粒径以外は同じ値を用いた。

Fig. 10はIG-110黒鉛およびPGX黒鉛の入力パラメータのうち粒径のみ変化させて求めた平均引張強度を粒径の $1/2$ 乗で整理してプロットしたものである。いわゆるHall-Petchの関係にあれば直線上にデータが並ぶが、図からわかるように粒径を小さくしていくと直線関係からずれてくる。これは、アルミナ等いろいろなセラミックス材料についても実測されている挙動である。⁸⁾この挙動については、粒径が比較的大きな領域では粒径より小さな初期き裂が破壊時には粒径と同程度の寸法に達しこれが破壊源となると考えられ粒径依存性が大きく現れるが、一方、粒径の小さな領域では初期き裂寸法がすでに粒径をこえる領域で、粒径依存性が小さくなるためとされている。⁹⁾このように、セラミックス材料で一般的に言

われている強度の粒径依存性が、提案モデルにより黒鉛材料でも予測された。

6 結 言

より現実に近い破壊のプロセスを考慮したぜい性破壊モデルとして、き裂進展時のき裂と気孔との相互作用を考慮したぜい性破壊モデルを提案した。提案モデルは、初期き裂として気孔サイズを仮定し、破壊力学と確率論とを組み合わせたもので、平均引張強度のみならず引張強度の分布も予測可能なものである。提案モデルを用いた解析により、以下のことが明らかとなった。

(1) 実測データと提案モデルの予測値との比較検討の結果、予測モデルは平均強度のみならず強度分布もかなりよく実測データと一致する。

(2) また、気孔サイズが大きく気孔率の高いものほど気孔によるき裂進展効果が大きい。

(3) さらに、引張強度の粒径依存性の予測値は、従来セラミックスで実測されていた挙動と同様なものである。

最後に、ここで提案したぜい性破壊モデルは黒鉛材料について適用可能なものであるが、一般的なセラミックスの強度についても結晶のへき開し易い方向を考慮して式(1)を書き換えることにより応用可能なものと考えられる。

参 考 文 献

- 1) W. Weibull, Proc. Royal Swedish Institute for Engineering Research, **151** (1953).
- 2) たとえば、松尾陽太郎、村田博隆、材料, **33**, 101 (1984).
- 3) T. Burchell, Carbon, **34**, 297 (1996).
- 4) K. Nakanishi, T. Arai and T. Burchell, Proc. Int. Sympo. on Carbon, Tokyo, 332 (1998).
- 5) T. Takahashi, M. Ishihara, S. Baba and K. Hayashi, Proc. 1st World Conf. on Carbon, EUROCARBON 2000, Berlin, 397 (2000).
- 6) L. Viennet, S. Khellafi, L. Coustenoble, B. Allard, D. Dumas and D. Rouby, Proc. 1st World Conf. on Carbon, EUROCARBON 2000, Berlin, 409 (2000).
- 7) たとえば、炭素材料学会, “改訂炭素材料入門”, 第1章 (1984) 共立出版.
- 8) たとえば、R. W. Rice, “Mechanical Properties of Ceramics and Composites”, Part I, Chapter 3 (2000) Marcel Dekker, Inc.
- 9) 日本セラミックス協会編, “セラミック工学ハンドブック”, 第4編 (1989) 技法堂出版.
- 10) M. Ishihara, S. Shiozawa and T. Oku, Nuclear Safety, **38**, 51 (1997).

Fig. 10. Grain size effect on tensile strength.