炭化けい素の静疲労強度に及ぼす温度の影響*

町田 隆志^{*1}, 太田 裕之^{*1}
中門 公明^{*1}, 宮田 寛^{*2}

Influence of Temperature on Static Fatigue Strength of Silicon Carbide

Takashi MACHIDA, Hiroyuki OHTA,
Kimiaki NAKAKADO and Hiroshi MIYATA

The temperature dependence of the static fatigue behaviours of SiC was examined. The experimental result of the fatigue strength which can be represented using Larson-Miller plots indicates that the thermally activated processes such as oxidation and viscous flow of grain boundaries are dominant in the elevated temperature static fatigue. However, the temperature dependence of the static fatigue strength becomes unclear with the decrease of the temperature because the influence of the scatter of the defect sizes becomes relatively stronger. The static fatigue crack growth shows complicated behaviour involving the crack velocity reduction and crack arrest. So that the static fatigue limit below which the crack does not show the extension possibly exists. The new fatigue design rules for structural ceramics based on the defect size and temperature dependence of static fatigue strength is proposed.

Key Words: Ceramics, Silicon Carbide, Fatigue, Static Fatigue, Temperature Dependence, Crack Growth, Design Rule

1. 緒 論

構造用セラミックスは、耐熱性、耐食性、耐酸化性に優れ、金属の耐熱性の限界を超えた高温領域での、構造部材として期待されている^{(1)~(5)}。しかしながら、セラミックスは欠陥感受性があり、強度のばらつきも大きい。これらの欠点を補償する設計技術の開発が急務とされるが、瞬時破壊に対しても十分とは言えない状況にある^{(6)~(9)}。さらに、高温機器の長期信頼性を確保するためには、セラミックスの高温疲労、高温クリープ等の長時間強度の検討と設計技術の開発も必要であるが、これらのことは着手され始めたにすぎない^{(10)~(26)}。

先に、著者らは上記の観点に立って、構造用セラミックスの中でも最も耐熱性に優れる炭化けい素について、高温疲労に及ぼす諸因子の影響を検討した⁽²⁷⁾⁽²⁸⁾。すなわち、1400℃における静疲労試験および繰返し疲労試験を実施し、炭化けい素の高温疲労は、

(1) 大気中では顕著であるが、真空中では明確ではなく、大気雰囲気強く影響されること、

(2) 疲労寿命は負荷時間に依存し、負荷繰返し数にはあまり依存しないこと、

(3) 実在欠陥に近い微小き裂の進展挙動は、き裂の減速・停留を伴う複雑な挙動を示し、その進展則として、応力拡大係数のべき乗則は、必ずしも成立しないこと、

などを明らかにした。

このような複雑なき裂進展挙動の結果として、窒化けい素等では、ある応力以下では破壊に到らない静疲労限度が存在する可能性を指摘した。この結果、静疲労限度の欠陥寸法依存性に基づく、新たな長時間寿命設計指針について提案した⁽⁶⁾⁽²⁵⁾⁽²⁶⁾⁽²⁸⁾。

本報では、さらに炭化けい素の高温疲労挙動に及ぼす温度の影響を明らかにするため、1000℃~1400℃の範囲における静疲労寿命およびき裂進展挙動等について検討を加えた。

2. 実験方法

実験は、主に以下の3項目について行った。

- (1) 高温静疲労寿命の欠陥寸法依存性
- (2) 高温静疲労寿命の温度依存性
- (3) 微小き裂の進展挙動の温度依存性

2・1 供試材 供試材としては、B₄Cを焼結助剤

* 原稿受付 平成2年9月13日。

^{*1} 正員、(株)日立製作所機械研究所 (〒300 土浦市神立町502)。

^{*2} 正員、(株)日立製作所日立研究所 (〒300 日立市幸町3-1-1)。

とする炭化けい素 SiC を用いた。本供試材の物理的性質を表 1 に示す。静疲労試験は、四点曲げにて行い試験片は JIS R 1601 に準じた断面 $3\text{ mm} \times 4\text{ mm}$ 、長さ 37 mm の角柱とした。試験は、セラミックス特有の潜在欠陥によるデータのばらつきを避けるため、主に表面に人工欠陥を導入したき裂材について行った。人工欠陥としては、ビッカース圧子により約 $200\text{ }\mu\text{m}$ の表面半円き裂 (Controlled Surface Flaw, 以下 CSF 材と称する) を導入した。き裂導入に伴う残留応力の影響を排除するため、真空中で $1400\text{ }^{\circ}\text{C} \times 6\text{ h}$ の熱処理を施した後試験に供した。

2・2 静疲労試験 静疲労寿命の測定は、上記 CSF 材に所定の死荷重を付与し、破壊までの時間を測定することにより行った。死荷重はクリープ試験機 (容量 10 KN 、抵抗線加熱式大気炉付) により、曲げ試験片の人工欠陥がその引張側の中央に、かつ引張方向と直角になるように負荷した。支点間隔は、引張側で 30 mm 、圧縮側で 10 mm である。試験温度は $1000\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、 $1200\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、 $1400\text{ }^{\circ}\text{C}$ の三段階とし、CSF 材の温度分布が均一となるように、昇温度約 15 min 間保持した後所定の死荷重を付与し、破壊までの時間を測定した。

き裂の進展挙動は、一定時間負荷した後降温し、室温にて光学顕微鏡によりき裂長さを測定、この方法を破壊もしくはき裂の停留まで繰返すことにより、き裂長さと負荷時間の関係を得た。き裂長さの測定は、照

明をき裂材に対し斜め上方より当て、黒い母材表面にき裂が白く浮かび上がるようにして測定した。負荷応力は各温度に対して五段階とした。

3. 実験結果およびその考察

3・1 瞬時破壊強度の温度依存性 静疲労強度の評価に先立って、基礎となる瞬時破壊強度の温度依存性について検討した。前報⁽²⁷⁾⁽²⁸⁾の結果によれば、高温静疲労挙動は大気雰囲気の影響を強く受けるので、瞬時破壊強度についても大気中と真空中 (約 $5.0 \times 10^{-3}\text{ Pa}$) の二つの環境下で検討した。

図 1 に CSF 材 (表面き裂径 $D \approx 200\text{ }\mu\text{m}$) の $1000\text{ }^{\circ}\text{C} \sim 1400\text{ }^{\circ}\text{C}$ における破壊強度を示す。CSF 材の場合、真空中の強度は温度によらずほぼ一定値を示す。これに対し、大気中での強度は $1000\text{ }^{\circ}\text{C}$ では真空中の場合と顕著な差はみられないが、 $1200\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、 $1400\text{ }^{\circ}\text{C}$ では、真空中より強度が高くなる傾向がみられる。これは、セラミックスと大気との反応で生成した酸化物による、き裂の修復、治癒効果に由来すると考えられる^{(27)~(29)}。 $1400\text{ }^{\circ}\text{C}$ では、 15 min 程度の保持で、この効果が現れることがわかる。

図 2 には、平滑材の $1000\text{ }^{\circ}\text{C} \sim 1400\text{ }^{\circ}\text{C}$ における、瞬時破壊強度を示す。平滑材の場合、破壊強度は温度、雰囲気によらずほぼ一定で、CSF 材のような温度依存性はみられない。しかし、その強度分布は、約 100 MPa に及ぶ広いばらつきを示している。この原因は、試験片表面に潜在欠陥として $50 \sim 100\text{ }\mu\text{m}$ の気孔、加工損傷等が存在し、本来 CSF 材と同様に温度、雰囲気の影響を受けると考えられるが、潜在欠陥のばらつきの影響が温度、雰囲気の影響より強く現れ、みかけ上温度依存性がみられない結果となっている。

図 3 には、室温 $\sim 1400\text{ }^{\circ}\text{C}$ における破壊強度と欠陥

表 1 供試材の物理的性質

Material	Density $\rho\text{ (Mg/m}^3\text{)}$	Young's Modulus $E\text{ (GPa)}$	Poisson's Ratio ν
SiC	3.1	418	0.15
Coefficient of Thermal Expansion $\alpha\text{ (}10^{-6}/^{\circ}\text{C)}$	Vickers Hardness $H_v\text{ (GPa)}$	Fracture Stress (R.T.) $\sigma_f\text{ (MPa)}$	Weibull Modulus m
4.02	27	450	7.7

図 1 CSF 材の破壊強度の温度依存性

図 2 平滑材の破壊強度の温度依存性

寸法の間係を、自然欠陥と人工欠陥の場合について示す。自然欠陥に関しては、室温の場合についてのみ検討したが、前述の平滑材のほかに、寸法の異なる3種類の平滑引張試験片(断面2 mm×4 mm, ϕ 6 mm, ϕ 12 mm)についても、破壊試験を行った。平滑試験片における欠陥寸法の測定は、走査電子顕微鏡での破面観察により行い、寸法は欠陥の外包絡円の直径で評価した。高温の試験は、人工欠陥を有する四点曲げ試験片(CSF材)についてのみ行ったが、大気中の諸影響を排除するため真空中にて測定した。き裂寸法は半円き裂径 D にして60~1200 μm (等価き裂寸法⁽³⁰⁾⁽³¹⁾ a_e で15~300 μm)の範囲とした。

図3の結果は、自然欠陥、人工欠陥によらず、破壊強度と欠陥寸法の間係はほぼ1本の曲線上に整理されることがわかる。また、等価き裂寸法で $a_e=50 \mu\text{m}$ 以上(表面半円き裂径 D で200 μm 以上)の欠陥に対しては、線形破壊力学の間係が成立し、破壊靱性値 K_{Ic} は、約3.0 $\text{MPa}\sqrt{\text{m}}$ であることを示している。しかしながら、50 μm 以下の欠陥寸法については、 K_{Ic} 一定の条件よりも低い応力で破壊することがわかる。

図3 破壊強度と欠陥寸法の間係の温度依存性

図4 高温静疲労寿命の欠陥寸法依存性

また、この破壊条件は $R.T \sim 1400^\circ\text{C}$ の温度範囲では、温度に依存しないことが明らかである。

3.2 高温静疲労寿命の欠陥寸法依存性 微小き裂材の高温静疲労寿命に及ぼす初期欠陥寸法の影響について検討した。

図4にき裂寸法の異なるCSF材と平滑材の、1400 $^\circ\text{C}$ における負荷応力と静疲労寿命の間係を示す。結果はいずれの場合も遅れ破壊挙動を示し、またき裂寸法が大きいほど低い応力で破壊することを示している。また、本供試材は約50~100 μm の自然欠陥を含んでいるが、直径 $D=60 \mu\text{m}$ のCSF材の結果は平滑材の場合とほぼ一致している。初期欠陥寸法が同一ならば自然欠陥、人工欠陥を問わず寿命が評価でき、人工欠陥による評価が有効であることを示している。

図4の結果を初期応力拡大係数と破壊寿命の間係に整理して、図5に示す。結果は初期き裂寸法に依存し、初期き裂長さが小さいほど、低い初期応力拡大係数で破壊に到ることを示している。これは、図3の瞬時破壊の欠陥寸法依存性の結果と同様に、き裂寸法の小さい範囲では線形破壊力学の整理は適用できないことを示している。

3.3 高温静疲労寿命の温度依存性 図6に、大

図5 初期応力拡大係数と破壊寿命の間係

図6 高温静疲労寿命の温度依存性(CSF材)

気中 1000℃～1400℃ における CSF 材(表面半円き裂径 $D \approx 200 \mu\text{m}$)の負荷応力と静疲労寿命の関係を示す。いずれの温度においても、負荷応力の低下とともに破壊寿命は長くなる遅れ破壊現象を示す。また、両対数表示におけるこの配は、温度が高くなるにつれて大きくなるがわかる。

図 7 には、平滑材の静疲労寿命に及ぼす温度の影響を示すが、CSF 材の場合と異なり、1000℃、1200℃の温度では、応力と破壊寿命の関係にこの配がほとんどみられない。

図 8 には、図 6 および図 7 の結果の Larson-Miller プロットを示す。 $T(\log t_f + C)$ の算出にあたっては、破壊寿命を考慮して時間 t_f は秒(s)で、温度 T は絶対温度(K)を単位とし、パラメータ C としては 20 を用いて整理した。結果は図 6 および図 7 において独立であったデータが、1本の曲線上によく整理され、高温静疲労挙動が本質的に熱活性過程に支配されることを意味している。これは、前報⁽²⁷⁾⁽²⁸⁾で述べたように、炭化けい素の高温疲労挙動の支配因子と考えられる酸化反応や粒界層の粘性流動が、熱活性過程であることから理解される。

また、平滑材の 1000℃、1200℃ において、破壊寿命に応力依存性がみられないのは、図 6 の CSF 材における応力-破壊寿命関係のこの配が小さいことから理解されるように、この温度範囲では酸化反応や粒界層の粘性流動等の高温静疲労挙動の支配機構が活発でなく、瞬時破壊強度の場合と同様に、潜在欠陥のばらつきの影響のほうが強く現れる結果と考えられる。

3.4 き裂進展挙動の温度依存性 次に、高温静疲労寿命を支配するき裂進展挙動に及ぼす温度の影響について検討する。

前報⁽²⁷⁾では、1400℃ の場合について検討し、実在

欠陥寸法程度のき裂の進展は減速・停留を含む複雑な挙動を示すことを明らかにした。本報では、さらにき裂の進展挙動に及ぼす温度の影響として 1000℃、1200℃ の二段階についても検討を加えた。初期き裂径およそ 200～250 μm とし、負荷応力レベルは各温度に対し、それぞれ五段階とした。

図 9(a)～(c)に、き裂長さ a と負荷時間の関係を示す。また、図 10(a)～(c)には、図 9(a)～(c)の結果の理解を容易にするため、応力拡大係数を基に整理した結果を示す。応力拡大係数の算出は、次の Newman-Raju の式⁽³²⁾によった。

$$K_I = (\sigma_t + H\sigma_b)F\sqrt{\frac{\pi a}{Q}}$$

ただし、 σ_t, σ_b は板に作用する引張り σ_t と曲げの公称応力、 a はき裂深さ、 Q, F, H はだ円形状の有効幅を補正する係数である。また、き裂の偏平化の影響は、破面でのき裂の表面長さ $2c$ と深さ a の関係を求めることにより考慮した。

図 9、10 に示されるように、いずれの温度においても負荷応力が高い場合には、き裂は比較的単調に進展して破壊に到っている。やや負荷応力が低い場合には、き裂は進展後減速し、いったん停留した後再び加速して破壊に到ることがわかる。さらに負荷応力が比較的低い場合、初期き裂は全く進展せず、最終段階で進展を開始して、破壊に到ることがわかる。しかし本実験の時間範囲ではあるが、ある負荷応力以下ではき裂が全く進展する徴候が認められない結果が得られた。

この結果はおおむね各温度レベルに共通するが、1400℃ では同じ応力拡大係数に対して進展挙動は同一ではなく複雑な様相を示すことがわかる。き裂の進展量は温度が高いほど大きく、また、き裂進展の全く見られない応力レベルは、温度が高いほど低下する傾向を示している。

図 7 高温静疲労寿命の温度依存性(平滑材)

図 8 高温静疲労寿命の Larson-Miller プロット

4. き裂先端の状況と破壊過程の検討

4.1 き裂先端での支配要因 以上の複雑なき裂進展挙動は、前報⁽²⁷⁾⁽²⁸⁾で考察したように、き裂先端での応力場の強さ、粒界層の流動、酸化劣化等なき裂進展の加速要因と、生成酸化物によるき裂の接着・治癒の減速要因の両者に影響されると考えられる。負荷応力の高い場合には、応力場の強さの影響が大きく現れ、き裂は単調に進展して破壊に到る。また、負荷応力が

やや低い場合には、き裂端の接着・治癒等の減速要因の影響が相対的に強くなり、き裂の減速・停留が生じやすくなる。さらに負荷応力が下がると加速要因と減速要因が平衡し、その結果き裂はほとんど進展せず、最終段階において損傷の蓄積により、き裂進展が開始し破壊に到る。また、下限界値に相当するある応力以下では、き裂は全く進展しないと考えられる。

図 11 には、各条件における初期き裂長さや破壊時もしくは停留時のき裂長さを示すが、破壊時のき裂長

(a) 1000 °C

(a) 1000 °C

(b) 1200 °C

(b) 1200 °C

(c) 1400 °C

(c) 1400 °C

図 9 き裂長さとの関係

図 10 き裂進展挙動の応力拡大係数による整理

さと負荷応力の関係は、図3で示した破壊条件に一致しており、高温疲労における破壊条件は、瞬時破壊の条件と変わらないことがわかる。したがって、炭化けい素の高温静疲労において破壊するか否かは、き裂が停留することなく、瞬時破壊条件を満たすある限界き裂長さまで成長するかどうかによって依存している。

4・2 破面写真による破壊過程の検討 1000℃と1400℃におけるき裂前縁近傍の拡大写真を図12に示すが、1000℃では、予き裂と負荷後のき裂進展領域の区別は必ずしも明確ではない。これに対し1400

℃では、予き裂と最終脆性破面との間に明らかに粒界破面が存在している。

また図13には、き裂前縁近傍の予き裂面内の性状を示す。1000℃では、結晶粒内の微小孔周囲と粒界に沿って若干のガラス状物質の生成が見られる。これに対し、高温になるに従い予き裂面に生成するガラス状物質は増加し、1400℃ではほぼ全面がガラス状物質に覆われている。

以上の結果から、高温になるほど粒界層が流動化するが、前報⁽²⁷⁾で述べたように、真空中では高温静疲労は顕著とならないことから、酸化反応が粒界層の流動化に寄与している可能性も考えられる。この酸化反応は予き裂面内に酸化物質層(SiO₂)を生成するが、SiはSiO₂になる際に、体積が約2.2倍に膨張し、予き裂面に対し粘着もしくは接着する効果をもたらしやすい。この結果、酸化反応は複雑なき裂進展挙動の原因の一つになると考えられる。

5. 高温疲労設計指針

以上の結果から、炭化けい素の高温静疲労において

図 11 高温静疲労き裂の進展挙動

図 12 き裂前縁近傍の破面写真

図 13 き裂前縁近傍の予き裂面内の性状

図 14 非破壊検査および保証試験に基づく高温疲労設計指針

はき裂の減速・停留現象が存在し、ある応力以下ではき裂は成長しても停留するか、もしくは、全く成長しない静疲労限度が存在する可能性が示唆された。また破面観察により、粒界層の流動、酸化生成物等の支配因子についても理解された。窒化けい素ではこのような現象が顕著に現れる場合があり、前報⁽²⁵⁾⁽²⁶⁾では高温静疲労限度の欠陥寸法依存性に基づいた設計指針について検討した。

すなわち、図 14 のように高温静疲労限度と欠陥寸法の間には一対一の対応関係がある点に着目し、非破壊検査で許容欠陥寸法以上の欠陥を持つ部品をスクリーニングすれば、許容欠陥寸法に対応した最低保証強度を設定することができる。この最低保証強度に各種不確定要因を考慮した安全率を加味することにより、高温静疲労に対しても信頼性の確保が可能となる。また、高温静疲労限度と瞬時破壊強度の欠陥寸法依存性に相似性があることを考慮すると、図中の保証試験を利用した設計指針も考えられる。すなわち、室温もしくは高温における瞬時破壊強度曲線を利用した保証試験の実施により、高温静疲労に対する許容寸法以上の欠陥を選別することにより、高温での長時間の使用を保証することができる。

さらに本研究の結果によれば、高温静疲労限度は初期欠陥寸法を一定とすると、温度と共に低下する傾向が見出された。図 15 には高温静疲労限度と温度との関係の模式図を示す。領域 A の負荷応力が作用した場合には、部品は瞬時に破壊し、領域 B の負荷応力に対しては瞬時には破壊しないが、長時間作用による静疲労現象で破壊に到る。領域 C の負荷応力に対しては、瞬時破壊、高温静疲労破壊ともに生じない。したがって、この関係を利用することにより以下の設計指針が考えられる。

すなわち、あらかじめ実験により、許容欠陥寸法に対する瞬時破壊強度および高温静疲労限度と温度との

図 15 高温静疲労限度と温度の関係

関係を求めておく。一定温度で、許容寸法以上の欠陥を含む部品を非破壊検査もしくは保証試験により選別すれば、C の領域で使用することにより長期の信頼性は確保され、また B、C の領域で使用により瞬時破壊に対する信頼性を確保することができる。

6. 結 言

炭化けい素の高温静疲労強度に及ぼす温度の影響を明らかにすることを目的として、1000℃～1400℃で静疲労寿命およびき裂の進展挙動について検討し、以下の結論を得た。

(1) 微小欠陥材の瞬時破壊強度は、欠陥の修復効果により温度とともに上昇するが、平滑材では欠陥寸法のばらつきの大きさに影響され必ずしも顕在化しない。

(2) 欠陥寸法が同一であれば、自然欠陥と人工欠陥の高温静疲労寿命は同一の評価が可能であるが、欠陥寸法の異なる微小欠陥材の静疲労寿命は、初期応力拡大係数では整理されず、線形破壊力学的には評価できない。

(3) 炭化けい素の静疲労寿命については、Larson-Miller 形整理が可能で、支配過程は本質的に熱活性的である。

(4) き裂進展は、減速、停留を伴う複雑な挙動を示すが、ある応力以下では、き裂進展の見られない高温静疲労限度が存在する可能性がある。

(5) 高温静疲労限度の欠陥寸法依存性および温度依存性に基づき、設計指針について検討した。

文 献

- (1) 原・ほか 3 名, 機論, No. 870-10(1987-0), 111.
- (2) 宮田・町田, 機械の研究, 41-2(1989), 249.
- (3) 宮田, 機論, No. 890-77(1989), 17.
- (4) 宮田・ほか 5 名, 機論, 54-505, A(1988), 1700.
- (5) Machida, T., ほか 7 名, ASME, Fossil Fuel Combustion Symposium, PD-30(1990), 183.

- (6) 宮田・ほか2名, 機論, 56-527, A(1990), 1654.
(7) 宮田, 日本材料学会セラミックス構造部品の設計技術と品質保証シンポジウム講演前刷集, (1989) 1.
(8) Hamanaka, J., *ibid.*, (1989), 19.
(9) Okabe, N., *ibid.*, (1989), 31.
(10) Govila, R. K., *J. Mater. Sci.*, 18(1983), 1967.
(11) Kawai, M., ほか2名, *Fracture Mechanics of Ceramics*, 6(1983), 587, Plenum.
(12) Quinn, G. D. and Quinn, J. B., 文献(11)の603ページ.
(13) Evans, A. G., ほか2名, *Metal. Trans., A*, 6(1975), 707.
(14) Mendiratta, K. G. and Petrovic, K. J., *J. Am. Ceram. Soc.*, 61(1978), 226.
(15) Evans, A. G. and Wiederhorn, S. M., *J. Mater. Sci.*, 9(1978), 270.
(16) Evans, A. G., *J. Mater. Sci.*, 7(1972), 1137.
(17) Govila, R. K., *J. Am. Ceram. Soc.*, 63-5/6(1980), 319.
(18) Dalglish, B. J. and Evans, A. G., *ibid.*, 68-1(1985), 44.
(19) Blumenthal, W. and Evans, A. G., *ibid.*, 67-11(1984), 751.
(20) 岡部・ほか3名, 材料, 38-430(1989), 783.
(21) 新田・ほか2名, 日本鉄鋼協会高温強度研究委員会第2回高温疲労試験分科会資料, (1985).
(22) 岸本・ほか3名, 日本材料学会高温強度部門委員会第35期第5回高温部門委員会資料, (1987), 11.
(23) 高橋・ほか2名, 機論, 52-482, A(1986), 2378.
(24) 町田・ほか2名, 機論, 53-492, A(1987), 1558.
(25) Usami, S., ほか2名, *Eng. Fract. Mech.*, 25-4(1986), 483.
(26) Usami, S., ほか4名, *Advanced Materials for Severe Service Application*, (1988), 119. Elsevier Applied Science.
(27) 町田・宮田, 機論, 55-516, A(1989), 1701.
(28) 町田・ほか3名, 圧力技術, 28-1(1990), 4.
(29) 宮田・ほか2名, 日本材料強度学会誌, 21-2(1986), 45.
(30) 木本・ほか2名, 機論, 51-471, A(1985), 2482.
(31) 高橋・ほか4名, 窯業協会誌, 93-4(1985), 186.
(32) Newman, J. C. and Raju, I. S., *Eng. Fract. Mech.*, 15-1/2(1981), 185.