窒化珪素と炭化珪素の破壊靱性の簡便評価手法の検討*

中 村 春 夫^{*1}, 小 林 英 男^{*1}
先 崎 正 文^{*2}, 岡 部 永 年^{*3}Simple Evaluation Method of Fracture Toughness for Si₃N₄ and SiCHaruo NAKAMURA, Hideo KOBAYASHI,
Masafumi SENZAKI and Nagatoshi OKABE

A simple technique was developed to introduce fatigue precrack to a through-notched compact specimen of Si₃N₄ and SiC. First, a compressive load was applied to introduce damage at the notch tip. Nucleation of damage can be easily detected by a pop-in sound. Then, a fatigue crack was introduced by cyclic tensile loading. By using precracked specimens, usefulness was confirmed for fracture toughness, fatigue crack growth, and stress corrosion cracking tests. In both cases, it was found that fracture mechanics characteristics are successfully evaluated when the fatigue crack increment from the notch tip was larger than the notch tip radius.

Key Words: Fracture Toughness, Ceramics, Fatigue Precrack, Compact Specimen, Through-Notched Specimen

1. 緒 言

構造用セラミックスは製造時の固有欠陥を有しており、強度評価に際しては破壊力学的手法が有用であり、現在平面ひずみ破壊靱性や疲労き裂進展特性などの基礎データの集積が望まれている。しかし、試験片に疲労予き裂導入が困難なため従来手法の適用が困難であり、代替手法として、(1) 繰返し圧縮による予き裂導入法⁽¹⁾、(2) Single Edge Precracked Beam (SEPB)法⁽²⁾、および(3) シェブロン切欠き(CN)試験片を用いる方法⁽³⁾が開発されてきている。また、(2)のSEPB法⁽⁴⁾⁽⁵⁾、(3)のCN試験片法⁽⁶⁾については、発生したき裂からさらに疲労き裂を導入して適用性の向上が図られている。

一方、コンパクト試験片を用いる従来手法に関しては、開口変位や背面ひずみ等を用いてき裂長さを制御して試験を行う種々のソフトウェアの蓄積があり、コンパクト試験片への予き裂簡便導入法の開発が望まれる。しかし、(1)、(2)の手法は適用が3点曲げ、4点曲げ試験片に限定され、また(3)の手法の場合には試験片の加工が容易ではない。

本研究では、窒化珪素と炭化珪素を供試材とし、貫通切欠きコンパクト試験片に対する簡便な疲労予き裂

導入法を開発した。そして、予き裂試験片を用いて平面ひずみ破壊靱性試験、疲労き裂進展試験および応力腐食割れき進展試験を行い、その有効性を確認した。

2. 材料および試験方法

常圧焼結窒化珪素と炭化珪素を供試材とした。材料定数を表1に示す。試験片は厚さ10 mmの貫通切欠き1/2インチコンパクト(CT)試験片($a/W = 0.6$, a :切欠き長さ, W :試験片幅)であり、切欠き先端曲率半径は $\rho = 0.5, 1.0$ mmとした。なお、応力拡大係数 K の算出に際して、切欠きの効果は無視した。

疲労き裂進展試験は、荷重制御、正弦波形、繰返し速度 $f = 25$ Hzで、応力比 $R = 0.1, 0.5, 0.8$ について室温・大気中で行った。応力拡大係数範囲 ΔK 漸減

表1 材料定数

Material	Si ₃ N ₄	SiC
Flexural strength (MPa)	882	539
Compressive strength (MPa)	3920	
Hardness (GPa, P=4.9kN)	14.7	17.8
Young's modulus (GPa)	274	402
Density (Mg/m ³)	3.22	3.10

* 平成3年8月23日 実製品の信頼性創造技術において講演、原稿受付 平成4年7月30日。

^{*1} 正員、東京工業大学工学部(〒152 東京都目黒区大岡山2-12-1)。

^{*2} 日立建機(株)土浦工場(〒300 土浦市神立町650)。

^{*3} 正員、(株)東芝重電技術研究所(〒230 横浜市長谷区末広町1-9)。

図1 圧縮負荷方法

試験は次式に基づき、き裂進展量 $\Delta a = 0.2 \text{ mm}$ ごとに荷重 P を漸減させて行った⁽⁷⁾。

$$d\Delta K / da = C \Delta K \dots\dots\dots (1)$$

ただし、定数 $C = -0.08 \text{ mm}^{-1}$ である。 ΔK 漸増試験は $P = \text{一定}$ で行った。疲労き裂閉口は背面ひずみ除荷弾性コンプライアンス法により、 $f = 0.1 \text{ Hz}$ で測定した。き裂長さは試験片両面を鏡面研磨し、光学顕微鏡で測定した。

平面ひずみ破壊靱性 K_{Ic} 試験は変位制御（クロスヘッド速度 $= 2.5 \times 10^{-5} \text{ m/sec}$ ）で行った。なお、比較のため 1/2 インチ、 $\rho = 0.05 \text{ mm}$ のシェブロン切欠き（C N）試験片も用いた⁽⁸⁾。

応力腐食割れき裂進展試験は応力拡大係数 K 漸減試験（ $\Delta a = 0.1 \text{ mm}$ ごとに P を漸減）および $P = \text{一定}$ 試験で行った。なお、漸減勾配は式（1）に準じた。

3. 結果および考察

3.1 圧縮損傷の導入 窒化珪素の貫通切欠き試験片に図1に示すような圧縮負荷を行い、切欠き底に予き裂導入を試みた。図1(a)に示すピン負荷（ $\rho = 0.5 \text{ mm}$ ）の場合、引張り負荷での破壊荷重 P_c （ $\approx 1.2 \text{ kN}$ ）の約3倍で、ピン穴が破断した。図2において、切欠き底近傍の点（ r, θ ）での垂直応力 σ_y は、 $\rho/2 \leq r < \rho$ 、 $\theta < 1$ の範囲において次式で与えられる⁽⁹⁾。

$$\begin{aligned} \sigma_y &= K [f(\theta)\rho/2r + g(\theta)] / \sqrt{2\pi r} \\ f(\theta) &= \cos(3\theta/2) \\ g(\theta) &= \cos(\theta/2) \{1 + \sin(\theta/2) \sin(3\theta/2)\} \dots\dots (2) \end{aligned}$$

ここで、 K は切欠きをき裂とみなした見掛けの応力拡大係数である。切欠き底での $|\sigma_y|$ の最大値は、式（2）に $r = \rho/2$ 、 $\theta = 0$ を代入することにより、次式で与えられる。

図2 切欠き底近傍の座標系

$$\sigma_{y\max} = 2K / \sqrt{\pi\rho} \dots\dots\dots (3)$$

図1(a)の場合、ピン穴破断時の $\sigma_{y\max} \approx -1500 \text{ MPa}$ は圧縮強度 σ_c （ $= 3920 \text{ MPa}$ ）の約40%であり、切欠き底には損傷が認められない。

また、図1(b)のロールを介した剛体負荷の場合、試験片背面が曲げ強度 $\sigma_y \approx 880 \text{ MPa}$ に達して、リガメントが破壊に至った（応力は破壊ひずみより推定、 $P_c \approx -6.4 \text{ kN}$ ）。

一方、上下面平行負荷の図1(c)場合、 $P_i \approx -155 \sim -160 \text{ kN}$ （ $\rho = 1 \text{ mm}$ ）、 $-130 \sim -135 \text{ kN}$ （ $\rho = 0.5 \text{ mm}$ ）で切欠き底に局所的な材料の剥離、欠落を生じた。この P_i で除荷したところ、試験片表面には約 $100 \mu\text{m}$ の微視割れが認められた。微視割れ面は切欠き面と平行であり、単純圧縮試験の破壊面（荷重軸に平行）とは一致しないことから、き裂発生は除荷時の引張残留応力に起因していると考えられる。したがって、圧縮時に局所的な塑性変形を生じていることが示唆される。図1(c)のコンパクト試験片を上下面に負荷を受ける中央切欠き試験片（試験片幅 $2 \times 1.25W$ 、き裂長さ $2 \times (a + 0.25W)$ ）の半分とみなせば、見掛けの K は近似的に次式で与えられる⁽¹⁰⁾。

$$\begin{aligned} K &= \sigma \sqrt{[\pi(a+0.25W)]} \\ &\times h [(a+0.25W)/1.25W, 0.5H/1.25W] \quad (4) \end{aligned}$$

図3 Δa - N 関係

ここで、 σ は試験片上下端での公称応力、 H は試験片高さ (図 1(c) 参照)、 h は無次元係数である。式(3)、式(4)によれば、上記の損傷発生荷重 P_i での $|\sigma_{\max}|$ は圧縮強度 σ_c の約 1.5 倍 ($\rho = 1$ mm)、1.8 倍 ($\rho = 0.5$ mm) である。また、 $|\sigma_y| > |\sigma_c|$ を満足する範囲は $x < 200 \sim 250$ μm である。ただし、本材料の場合、圧縮強度では降伏を生じないので、実際の降伏範囲はそれ以下と考えられる。以下では、これを圧縮損傷試験片と呼ぶ。炭化珪素の場合、 $P_i \approx -85$ kN ($\rho = 0.5$ mm) で同様に圧縮損傷を生じた。

荷重が損傷発生荷重 P_i の約 2 倍に達すると、試験片背面に平行な面で、切欠き先端から破壊が生じた。したがって、 P_i は破壊荷重よりかなり小さく、かつ損傷発生時に Pop-in 音を生じるので、圧縮損傷の導入は比較的容易に行うことが可能である。

3.2 予き裂の導入 Ewart と Suresh は片側切欠き試験片について、繰返し圧縮による予き裂導入法を提案している⁽³⁾。しかし、圧縮損傷試験片に $-P_i \sim 0$ の片振圧縮荷重繰返しを与えた場合、数 10 回の荷重繰返しでリガメントが不安定破壊し、き裂長さの制御が困難である。

一方、圧縮損傷試験片に K_{Ic} の約 90% の引張り荷重繰返しを与えることにより、き裂が発生、進展する。窒化珪素について、最大応力拡大係数 $K_{\max} = 4.7$ $\text{MPa}\sqrt{\text{m}}$ ($< K_{Ic} \approx 5.5$ $\text{MPa}\sqrt{\text{m}}$)、応力比 $R = 0.1$ の場合、荷重繰返し数 N とき裂長さ増分 Δa の関係の一例を図 3 に示す ($\rho = 0.5$ mm)。き裂進展速度 da/dN はき裂進展に伴い減少し、最小値をとった後に再び増大する。 $K_{\max}$ や ΔK が小さい場合には、 da/dN は単調に減少し、き裂は停留に至る。いずれにせよ、 K_{Ic} 以下の $K_{\max}$ で予き裂導入が可能である。

3.3 破壊靱性試験 $\Delta a \geq \rho$ の予き裂試験片について、破壊靱性試験により求まる K_{Ic} に及ぼす疲労予き裂導入時の $K_{\max}$ の影響を図 4 (a)(窒化珪素)と(b)

(a) Si_3N_4

(b) SiC

図4 K_{Ic} に及ぼす $K_{\max}$ の影響

(炭化珪素) に示す。 $K_{\max}$ によらず K_{Ic} はほぼ一定(= 5.3 $\text{MPa}\sqrt{\text{m}}$: 窒化珪素, 3.4 $\text{MPa}\sqrt{\text{m}}$: 炭化珪素)である。ASTM規格の K_{Ic} 試験方法 E399 の予き裂導入条件は次式で与えられる⁽¹¹⁾。

$$K_{\max}/K_{Ic} < 0.6 \quad (>0.65, >0.79) \dots (5)$$

$$-1 \leq R \leq 0.1 \quad (0.1, 0.1) \dots (6)$$

$$K_{\max}/E < 0.00032 \sqrt{\text{m}} \quad (1.4 \times 10^{-5}, 0.7 \times 10^{-5}) \quad (7)$$

ここで、 E は縦弾性係数である。括弧内の数値はそれぞれ窒化珪素と炭化珪素の値であり、式(5)を満足していない。ただし、ASTM規格の上限($K_{\max}/K_{Ic} = 0.6$)に近い $K_{\max}/K_{Ic} = 0.65$ の結果が $K_{Ic}/K_{\max} = 1.0$ の結果と一致していることから、 K_{Ic} は予き裂導入時の荷重履歴の影響を受けず、式(5)の条件は必要ではないと結論される。なお、 $\Delta a < \rho$ の予き裂試験片の K_{Ic} は上記の値より若干大きく、正確な評価には $\Delta a \geq \rho$ を満足する必要がある。

一方、貫通切欠き試験片 ($\Delta a = 0$) および圧縮損傷試験片の破面には、図 5 に示すように切欠き底の複数箇所からき裂が発生し、それらがき裂進展に伴い合

体した痕跡が認められる。窒化珪素について、 K_{Ic} と合体に至るまでの距離 δ_{max} の関係を図6に示す。上記の2種類の試験片の結果(△印, □印)は、 K_{Ic} の過大評価を与え、過大評価量は δ_{max} と一義的な関係にある。すなわち、 K_{Ic} を正確に評価するためには、き裂発生を単一平面に限定する必要がある(予き裂導入, CN試験片の採用)⁽¹²⁾。

比較のために、圧子押し込み法(I F法)により次式

(a) 切欠き先端の微視き裂

(b) 破面様相 (Si₃N₄)

図5 微視き裂の発生と破面様相

を用いて、試験片ごとの K_{Ic} を簡便評価した。

$$K_{Ic} = 0.016 (E/H_v)^{0.5} P/c^{1.5} \dots\dots (8)$$

ここで、 H_v はビッカース硬度、 $P = 98 \text{ kN}$ は押し込み荷重、 $2c$ は圧痕き裂長さである⁽¹³⁾。結果を図4に破線で併記した。I F法における K_{Ic} の評価式は必ずしも確立していないが、本実験で用いた材料の場合に式(8)から評価される平均値は、予き裂試験片の結果と一致する。

以上から、 $\Delta a \geq \rho$ の場合には、破壊靱性が正確に評価され、結果に圧縮損傷の影響はないことが結論される。

3.4 疲労き裂進展試験 窒化珪素について、 $\Delta a \geq \rho$ における ΔK 漸減試験結果および ΔK 漸増試験結果を白抜き印で図7に示す。図中で、○印, △印, □印はそれぞれ $R = 0.1, 0.5, 0.8$ の結果である。応力比の増大に伴い、データは加速側に位置する。なお、 $\Delta a < \rho$ の結果(●印)は、 $\Delta a \geq \rho$ の結果(○印)よりも減速側に位置する($R = 0.1$)。

図7 $da/dN - \Delta K$ 関係 (Si₃N₄)

図6 $K_{Ic} - \delta_{max}$ 関係 (Si₃N₄)

図8 $K_{Op}/K_{max} - K_{max}$ 関係 (Si₃N₄)

き裂開口応力拡大係数 K_{op} と K_{max} の関係を図 8 に示す。 $R = 0.1$ の場合、 K_{op}/K_{max} は K_{max} の減少に伴い単調に増大する。き裂開口の支配因子としては、破面粗さと脱落破片のくさび効果が考えられる。なお、試験条件が同一でも、き裂開口レベルは試験片ごとに若干異なる (○印, ●印参照)。一方, $R = 0.5, 0.8$ の場合、き裂開口は認められない。

da/dN と有効応力拡大係数範囲 $\Delta K_{eff} (= K_{max} - K_{op})$ の関係を図 9 に示す。結果は応力比 (○印, △印, □印) と試験片 (○印, ●印) に依存しており、応力比効果はき裂開口により説明できない。

なお、前述したように、圧縮損傷試験片の破面上の切欠き底近傍には複数の段差が認められる (図 5 参照)。 Δa が小さな領域においてこれがき裂開口を生じることが考えられるが、 $\Delta a < \rho$ の結果も図 9 の結果と相違しないことから、図 7 の $\Delta a < \rho$ における減速はき裂開口に起因したものではない。原因として、(1) 切

図9 $da/dN - \Delta K_{eff}$ 関係 (Si_3N_4)

図10 $da/dN - K_{max}$ 関係 (Si_3N_4)

欠きをき裂とみなすことによる K の過大評価, (2) き裂発生が切欠き底の複数箇所が生じ、それらが同一平面に位置していない効果 (き裂の分岐効果), (3) 圧縮損傷時の複数微視き裂発生による弾性係数の変化あるいは塑性変形に起因した残留応力 (き裂先端で引張り、後方で圧縮) ⁽¹⁴⁾, が考えられる。(1)と(2)の場合、減速効果はき裂進展に伴い単調に減少する。一方, (3) の場合、初期加速の後に遅れ遅延を生じる。図 3 の結果を参照すれば、上記の効果のうちで、(3) の効果が支配的と考えられる。

以上から、 $\Delta a \geq \rho$ の場合には、疲労き裂進展特性が正確に評価されることが結論される。

da/dN と K_{max} の関係を図 10 に示す。ただし、両軸のスケールは図 7、図 9 と同じである。 $R = 0.1$ と $R = 0.5$ の結果は一致し、中間速度領域において次式の Paris 則が成立する (da/dN : m/cycle, K_{max} : MPa $\sqrt{m}$)。

$$da/dN = 7.36 \times 10^{-22} (K_{max})^{20.3} \dots \dots \dots (9)$$

$R = 0.8$ の結果はそれらより若干減速側に位置している。ただし、図 7 や図 9 と比較して分散帯はかなり狭く、特に高 K_{max} 領域に関しては、疲労き裂進展の支配力学因子は K_{max} であると判断される。

$R=0.1$ の $da/dN - K_{max}/K_{Ic}$ 関係を窒化珪素 ($K_{Ic} = 5.3 \text{ MPa} \sqrt{m}$) と炭化珪素 ($K_{Ic} = 3.4 \text{ MPa} \sqrt{m}$) の場合について図 11 に示す。炭化珪素の式 (9) のべき数 (≈ 64) は窒化珪素よりもかなり大きく、下限界応力拡大係数の相対値 $K_{max,th}/K_{Ic}$ も前者が大きい。また、それらに繰返し速度 ($f \geq 1 \text{ Hz}$) は影響を及ぼしていない。

3.5 応力腐食割れき裂進展試験 窒化珪素の応

図11 $da/dN - K_{max}/K_{Ic}$ 関係

図12 $da/dt - K_{max}$ 関係 (Si_3N_4) 図13 SCCの実験結果に基づく da/dN の予測

力腐食割れ(SCC)き裂進展速度 da/dt と K_{max} の関係を図12に示す。結果は次式で表示される (da/dt : m/sec, K_{max} : MPa $\sqrt{m}$)。

$$da/dt = 2.16 \times 10^{-77} (K_{max})^{100} \quad (10)$$

ここで、 t は時間である。疲労き裂進展速度が K_{max} 依存性を示すことから、応力腐食割れの介在が示唆される。そこで、上式を応力腐食割れの下限界 K_{Iscc} ($= 4.6 \text{ MPa } \sqrt{m}$) 以上の K_{max} で1周期にわたり積分し、図12を $da/dN - K_{max}$ 関係に換算した。結果を疲労き裂進展速度の実験結果と比較して図13に示す。高応力比($R=0.8$)の場合には応力腐食割れに基づく予測結果は実験結果より若干減速側に位置するが、勾配はほぼ一致しており、応力腐食割れの介在が示唆される。一方、低応力比($R=0.1$)の場合、 K_{max} が K_{Ic} 近傍での

み両者は一致する。以上から、 K_{max} あるいは R の上昇に伴い応力腐食割れが介在するようになり、これが、高 K_{max} 域で da/dN が K_{max} 依存性を示す理由と考えられる⁽⁶⁾。

4. 結 言

常圧焼結窒化珪素と炭化珪素を供試材とし、貫通切欠きコンパクト試験片に対して、簡便な疲労予き裂導入法を開発した。そして、予き裂試験片を用いて破壊靱性試験、疲労き裂進展試験および応力腐食割れき裂進展試験を行い、その有効性を確認した。得られた結果を以下に示す。

(1) 圧縮負荷で切欠き先端に損傷を与えることにより、平面ひずみ破壊靱性 K_{Ic} 以下の引張り荷重繰返しでき裂が発生し、進展する。圧縮時にはPop-in音が発生し、かつ損傷発生荷重が圧縮破壊荷重よりかなり低いので、圧縮損傷の導入は比較的容易に行われる。

(2) 切欠き底からのき裂進展量が切欠き先端曲率半径より大きければ ($\Delta a \geq \rho$)、 K_{Ic} が正確に評価される。そして、疲労予き裂導入時の荷重履歴は K_{Ic} に影響を及ぼさない。

(3) $\Delta a \geq \rho$ ならば、疲労き裂進展速度 da/dN が正確に評価される。そして、切欠き底近傍のき裂面段差は da/dN に影響を及ぼさない。

(4) 高 K_{max} 領域あるいは高応力比での da/dN の支配力学因子は最大応力拡大係数 K_{max} であり、これは応力腐食割れの介在に起因している。

文 献

- (1) Ewart, L. and Suresh, S., *J. Mater. Sci. Letter*, **5** (1986), 774.
- (2) 野瀬・藤井, 窯業協会昭和61年年会予稿集, (1986-4), 36.
- (3) Chevron-Notched Specimens; Testing and Stress Analysis, *ASTM Spec. Tech. Publ.*, **855** (1984).
- (4) 田中・ほか2名, 材料, **38**-425(1989), 137.
- (5) 宮原・ほか3名, 機論, **57**-538, A(1991), 1326.
- (6) 岸本・ほか2名, 材料, **36**-409 (1987), 1122.
- (7) ASTM Standard, E647-88, (1988).
- (8) 小林・ほか3名, 機論, **54**-501, A(1988), 1080.
- (9) Creager, M. and Paris, P. C., *Intl. J. Fract. Mech.*, **3** (1967), 247.
- (10) Ishida, M., *Intl. J. Fract. Mech.*, **7** (1971), 301.
- (11) ASTM Standard, E399-90, (1990).
- (12) 小林・他3名, 材料, **35**-395 (1986), 892.
- (13) Anstis, G. R., et al., *J. American Ceramic Soc.*, **64** (1980), 533.
- (14) Ewart, L. and Suresh, S., *J. Mater. Sci.*, **22** (1987), 1173.