セラミックスの熱衝撃疲労抵抗性の確率論的評価*

佐久間 俊雄^{*1}, 岩田 宇一^{*1}, 岡部 永年^{*2}

Probabilistic Estimation of Thermal Shock Fatigue Resistance of Ceramics

Toshio SAKUMA, Uichi IWATA and Nagatoshi OKABE

The remaining strength of ceramics after repeated thermal shocking was analyzed theoretically, and the probability of crack occurrence was predicted. In this analysis, the Weibull statistical theory of fracture was applied to repeated thermal shocking of ceramics assuming that thermal shock fracture of ceramics was due to crack growth from one of initial flaws. For the verification of this proposed analysis, tests on alumina, silicon carbide and silicon nitride samples with various diameters were conducted under various repeated thermal shock conditions of water quenching. As a result, analytical results were found to be in good agreement with results of repeated thermal shock tests. Thus, the probability of crack occurrence can be evaluated from the normalized fracture strength using effective volume and effective stress hold time.

Key Words: Thermal Shock, Thermal Shock Fatigue, Ceramics, Probabilistic Method, Probability of Crack Occurrence, Two-Parameter Weibull Analysis, Water Quenching

1. 緒言

セラミックスは耐熱性、耐摩耗性に優れているが、高温構造部材として高温環境中で使用する場合、使用環境下で発生する熱衝撃応力が破壊の原因となる。熱衝撃による破壊は、材料中に存在する初期欠陥を起点として発生するため、欠陥の大きさの分布に強く影響を受ける。このため熱衝撃応力を受けた材料の残存強度は、セラミックスの材料強度のばらつきを考慮して確率論的に評価する必要がある。著者らは前報において耐熱衝撃性を確率論的に検討し⁽¹⁾、強度設計に適用できる評価方法を提案した⁽²⁾。しかし、セラミックスは1回の熱衝撃応力で破壊に至らない場合でも、これを多数回繰り返すと破壊に至る。

セラミックスの熱衝撃疲労に関して、熱衝撃疲労後のき裂進展挙動⁽³⁾⁽⁴⁾、曲げ強度の変化⁽⁵⁾等が報告されているが、疲労特性を確率論的に評価した報告はほ

とんどない。従って、強度設計の信頼性を高めるためにも、熱衝撃疲労に対する特性を明らかにすると共に疲労強度の確率論的評価法を確立する必要がある。

本報は、熱衝撃時に材料中に発生する熱応力の分布およびその時間変動を考慮し、ワイブル統計理論により熱衝撃疲労後の残存強度を理論解析し、任意の寸法・形状および急冷条件に対する材料固有の耐熱衝撃疲労性を確率論的に評価する方法を提案している。

2. 熱衝撃疲労実験

2.1 実験装置および方法 熱衝撃疲労実験は、セラミックスの破壊の原因となる熱応力に関与する材料の物理的性質、寸法および熱衝撃温度差に着目して行なった。実験装置は、供試片を加熱する電気炉（ゴールドイメージ炉）、供試片落下装置、冷却水槽および温度制御装置等により構成されている。図1に水中急冷法による熱衝撃疲労実験装置を示す。

供試片は、前報⁽⁶⁾に示したように支持棒にピン連結し、支持棒とともに自由落下させた。供試片の加熱位置から水面までの落下高さ、および水中の落下距離

* 1994年8月19日 第72期全国大会において講演、原稿受付 1994年9月27日。

^{*1} 正員、(財)電力中央研究所 (〒201 狛江市岩戸北2-11-1)。

^{*2} 正員、(株)東芝重電技術研究所 (〒230 横浜市鶴見区末広町1-9)。

はそれぞれ600mmとした。急冷水は、予め沸騰脱気したイオン交換水を用い、温度は293Kの一定温度に制御した。また、1熱衝撃温度差条件に用いた供試片の本数は5本とし、熱衝撃実験前後のき裂有無の確認は蛍光探傷法により行なった。

2・2 供試片 セラミック供試片の材質には常圧焼結のアルミナ、炭化けい素および窒化けい素を用いた。供試片は、前報⁽⁶⁾で提案した液中突入時に雰囲気ガスを取り込まない形状であり、表面粗さは円柱部が0.2a、円錐部が0.4aとし、加工後熱処理を施してある。図2に供試片の形状および寸法を示す。

供試片のばらつき特性パラメータである形状母数 m および尺度母数 σ_0 は、4点曲げ試験結果を基にワイブル統計解析して推定した。4点曲げ試験は、室温、クロスヘッド速度0.5mm/min、下支点間距離 $L_1=30$ mm、上支点間距離 $L_2=10$ mmの条件で行ない、破壊荷重 W および破壊に至るまでの時間 t_f をそれぞれ測定した。なお、曲げ試験に用いた供試片は繰り返し熱衝撃実験に用いたものと同一の焼成ロッドであり、材種、寸法に対してそれぞれ25本とした。

Fig.1 Schematic of repeated thermal shock tests apparatus.

Fig.2 Shape and dimensions of specimen.

3. 実験結果

3・1 ばらつき特性パラメータ 直径 D の円柱供試片の4点曲げ破壊強度は、次式により求められる。

$$\sigma_f = \frac{8(L_1 - L_2)W}{\pi D^3} \quad \dots\dots\dots (1)$$

破壊確率の割り付け方法にはメディアンランク法、対称試料分布法およびミーンランク法等があるが、モンテカルロシミュレーションによるデータ適合性の検討によると、メディアンランク法が最も適合性がよいと報告されている⁽⁷⁾。メディアンランク法による破壊確率 P_{fi} は、低強度データからの順位数 i およびデータ数 n_f を基に次式のように割り付ける。

$$P_{fi} = \frac{i - 0.3}{n_f + 0.4} \quad \dots\dots\dots (2)$$

図3は、炭化けい素の4点曲げ強度をワイブルプロットした結果である。破壊強度データは、図に示すように供試片の寸法により異なる。また、同一の寸法であっても焼成ロッドにより異なる。従って、ばらつき特性パラメータは焼成ロッド、寸法ごとに異なり、同様に試験条件によっても異なる。そこで、試験条件、寸法・形状等によらない材料固有のばらつき特性パラメータを破壊強度の有効負荷時間 t_{eff} および有効体積 V_{eff} を考慮して以下のようにして求めた。

曲げ試験で得られた破壊強度データ σ_f に対し、次式で与えられる基準化強度 $\tilde{\sigma}_f$ に変換する。ここで基準化強度は、試料に作用した応力の単位体積および単位時間当たりに対応する応力であり、等価な潜在欠陥条件下での等価な負荷時間条件に対する遅れ破壊強度を材料固有の特性値として表わすことになる。

$$\tilde{\sigma}_f = \sigma_f (t_{eff})^{1/n} (V_{eff})^{1/m} \quad \dots\dots\dots (3)$$

ここで、4点曲げ試験における有効負荷時間および有効体積はそれぞれ次式で求められる。なお、 V_0 は最大支点間の幾何学的体積、 $\Gamma(\cdot)$ はガンマ関数である。

Fig.3 Weibull plots of fracture strength of silicon carbide.

$$t_{eff} = \int_0^{t_f} \left(\frac{\sigma(t)}{\sigma_f} \right)^n dt = \frac{t_f}{n+1} \quad \dots\dots\dots (4)$$

$$\frac{V_{eff}}{V_o} = \frac{\left(1 + \frac{L_2}{L_1} m\right)}{\pi (m+1)(m+2)} \cdot \frac{\Gamma\left(\frac{m}{2} + \frac{1}{2}\right) \Gamma\left(\frac{1}{2}\right)}{\Gamma\left(\frac{m}{2} + 1\right)} \quad \dots\dots (5)$$

このようにして得られた基準化強度 $\tilde{\sigma}_f$ に対してワイブル統計解析を行ない、2母数ワイブル分布のパラメータである形状母数 m および尺度母数 σ_o を繰り返し計算により求めた。ただし、き裂進展速度指数 n については、アルミナは $n=44$ 、炭化けい素は $n=37$ および窒化けい素は $n=55^{(1)}$ とした。図4に繰り返し計算のフローチャートを、表1に焼成ロッドごとのばらつき特性パラメータを示す。

3・2 き裂発生起点 図5は、窒化けい素が繰り返し熱衝撃を受けた時に発生したき裂進展の様子を示したものである。同図は、蛍光探傷によって現われたき裂模様を粘着テープに転写し、これを平面に展開して写真撮影したものである。

繰り返し回数 N および熱衝撃温度差 ΔT は、同図(a)が $N=1$, $\Delta T=530K$, (b)が $N=20$, $\Delta T=500K$ の場合である。1回の熱衝撃でき裂が発生した場合も、また、繰り返し熱衝撃を受けてき裂が発生した場合も、いず

(a) $N=1$ ($\Delta T=530K$),

(b) $N=20$ ($\Delta T=500K$),

Fig.5 Crack patterns observed in silicon nitride after repeated thermal shocking.

れもき裂は1点より進展していることが分かる。また、き裂の進展の様子は、 ΔT が小さいほど発生する熱応力が小さくなるために、同図(b)のほうがき裂進展の程度は小さい。

3・3 き裂発生率 表1に示した材種、寸法の供試片を用いて繰り返し熱衝撃実験を行なった結果を図6～8に示す。図においてき裂発生率 P_o は次式で定義した。

$$P_o = \frac{k_c}{k} \times 100 \quad (\%) \quad \dots\dots\dots (6)$$

Fig.4 Flow chart for normalized analysis of fracture strength of ceramics.

Table 1 Shape and scale parameter of specimens used.

Specimen	D(mm)	m	σ_o (MPa)
Al ₂ O ₃	7.5	18.7	332
SiC	7.5	8.3	387
	10	7.7	309
Si ₃ N ₄	3.5	9.4	766
	5.0	11.6	712
	7.5	7.1	1108

Fig.6 Crack occurrence ratio of alumina after repeated thermal shocking.

Fig.7 Crack occurrence ratio of silicon carbide after repeated thermal shocking.

Fig.8 Crack occurrence ratio of silicon nitride after repeated thermal shocking.

ここで、 k は 1 熱衝撃温度差条件に用いた供試片の本数、 k_c はき裂の発生した本数である。実験では、 $k=5$ で繰り返し熱衝撃実験を行なった。例えば、10回目に 1 本き裂が発生した場合の発生率は $P_o=1/5$ で 20% となる。11回目以降は残りの 4 本で繰り返し熱衝撃実験を行なう。従って、50回目にき裂が更に 1 本発生した時の発生率は $P_o=1/4$ で 25% となる。

図 6 は、直径 $D=7.5\text{mm}$ のアルミナ供試片の各熱衝撃温度差に対するき裂発生率を示したものである。熱衝撃温度差 ΔT が小さくなると共にき裂が発生するまでの繰り返し回数 N が増加する。図 7 は $D=7.5\text{mm}$ および 10mm の炭化けい素、また、図 8 は $D=3.5\text{mm}$ 、 5mm および 7.5mm の窒化けい素に対するき裂発生率と繰り返し回数との関係をそれぞれ示したものである。き裂発生率と熱衝撃の繰り返し回数との関係は図 6 の場合と同様であり、また、寸法による影響も見ることができる。

4. 熱衝撃疲労後のき裂発生確率

セラミックスを構造強度部材としての適用を考える場合、熱衝撃後の残存強度の変化よりも、材料にき裂が発生するか否かが重要であり、き裂が発生しなければ残存強度も低下しない。しかし、同一の熱衝撃条件を与えても、セラミックスの強度にばらつきがあるため、き裂の発生は確率的となる。従って、セラミックスの耐熱衝撃性は、材料のばらつき特性を考慮して確率論的に評価する必要がある。さらにこれを定量的に評価するためには、熱衝撃試験条件に対応する熱応力の大きさ、その時間変動および分布等が重要な要素となる。

4.1 熱衝撃疲労後の残存強度解析 セラミックスの破壊強度は、初期潜在欠陥寸法 a からの低速き裂進展によって支配され⁽⁸⁾、最大応力を σ_{max} 、き裂進展速度指数を n とすると、セラミックス部材全体の破壊

確率 P_f は、前報⁽¹⁾に示したように次式で与えられる。

$$P_f = 1 - \exp \left[- \left(\frac{\sigma_{max} (t_{eff})^{1/n} (V_{eff})^{1/m}}{\sigma_o} \right)^m \right] \dots\dots (7)$$

従って、セラミックスの破壊強度特性は、有効体積 V_{eff} と有効負荷時間 t_{eff} によって左右され、そのばらつきはワイブル分布をすることになる。

セラミックスが繰り返し熱衝撃を受けた後に発生するき裂は、図 5 に示したように 1 点より進展し、またき裂の発生起点は、前報⁽²⁾にも示したように同一の熱衝撃条件であっても供試片ごとに異なる。

従って、熱衝撃疲労時の熱応力に対するセラミックスの破壊強度も、セラミックス部材に存在する初期欠陥からのき裂進展に依存すると仮定できる。

熱衝撃時に生じる熱応力の最大主応力に着目し、その時間変動 $\sigma(t)$ に対する有効負荷時間 t_{eff}^* 、また、その時の最大主応力分布 $\sigma(r, \theta, z)$ を基に有効体積 V_{eff}^* をそれぞれ求めると、熱衝撃疲労における基準化負荷 $\Delta\sigma$ は、熱衝撃の繰り返し数 N を考慮することにより次式で与えられる。

$$\Delta\sigma = \sigma_{max} (N t_{eff}^*)^{1/n} (V_{eff}^*)^{1/m} \dots\dots\dots (8)$$

ここで、 σ_{max} は熱衝撃時にセラミックス部材に発生する最大引張応力であり、次式で定義した無次元最大引張応力 σ_{max}^* とビオ数 Bi とは図 9 に示す関係⁽¹⁾にある。

$$\sigma_{max}^* = \frac{(1-\mu)\sigma_{max}}{aE\Delta T}, \quad Bi = \frac{\alpha_m D}{2\lambda} \dots\dots\dots (9)$$

ここで、 a 、 E 、 μ 、 λ はセラミックスの線膨張係数、ヤング率、ポアソン比および熱伝導率であり、セラミックスの初期温度と急冷水温度との平均温度における値である。また α_m は平均熱伝達率であり、前報⁽⁹⁾で示したように熱衝撃温度条件とそれに対応するセラミックスおよび水の物性値から求められる。

従って、熱衝撃時に発生する最大熱応力 σ_{max} は、

Fig.9 Dimensionless maximum thermal stress in relation to Bi number.

熱衝撃条件となるセラミックスの材種、寸法、初期温度および急冷水の温度から求めることができる。

次に、熱衝撃時の有効負荷時間 t_{eff}^* および有効体積 V_{eff}^* は、それぞれ次式で求められる。

$$t_{eff}^* = \int_0^t \left(\frac{\sigma_i(t)}{\sigma_{imax}} \right)^n dt \quad \dots\dots\dots (10)$$

$$V_{eff}^* = \int_V \left(\varphi \frac{\sigma(r, \theta, z)}{\sigma_{max}} \right)^m dV \quad \dots\dots\dots (11)$$

ここで、 σ_{imax} はセラミック部材の微小要素 i における最大熱応力、 $\sigma_i(t)$ は要素 i の時間 t における熱応力である。また、 $\sigma(r, \theta, z) \geq 0$ のとき $\varphi = 1$ 、 $\sigma(r, \theta, z) < 0$ のとき $\varphi = 0$ である。

図10は、図2に示した供試片形状に対して有限要素法による数値解析により得られた最大熱応力が発生する要素における熱応力の時間変化から式(10)を基に得られた有効負荷時間を Bi 数との関係で示したものである。また図11は、同様な方法で式(11)を基に有効体積を Bi 数との関係で示したものである。これらの有効負荷時間および有効体積は、最大熱応力と同様にいずれも熱衝撃条件に対応して求められる。

従って、熱衝撃疲労後のセラミックスの残存強度 σ_R は、次式のように与えられることになる。

Fig.10 Effective stresses hold time at quenching into water in relation to Biot number.

Fig.11 Effective volume at quenching into water in relation to Biot number.

$$\sigma_R(t_{eff}^*)^{1/n} (V_{eff}^*)^{1/m}$$

$$= \sigma_0 \{ \ln(1-P_f) \}^{1/n} \cdot \sigma_{max} (N t_{eff}^*)^{1/n} (V_{eff}^*)^{1/m} \quad (12)$$

また、熱衝撃疲労時にセラミックスにき裂が発生する確率は $\sigma_R = 0$ の時であり、この時の熱衝撃応力 σ_{max} とき裂発生確率 P_c との関係は次式で与えられる。

$$P_c = 1 - \exp \left[- \left(\frac{\sigma_{max} (t_{eff}^*)^{1/n} (V_{eff}^*)^{1/m}}{\sigma_0} \right)^m \right] \quad \dots\dots\dots (13)$$

4.2 き裂発生確率の推定 熱衝撃疲労時にき裂の発生する確率は式(13)で求められる。また熱衝撃時の最大熱応力 σ_{max} 、有効負荷時間 t_{eff}^* および有効体積 V_{eff}^* は Bi 数との関係で示されている。従って、これらの値は、熱衝撃条件であるセラミックスの材種・寸法、ばらつき特性パラメータおよび急冷温度差条件から求めることができる。

そこで繰り返し熱衝撃実験結果を基に、き裂が発生した熱衝撃条件に対応する破壊強度を次式に示す基準化強度 $\tilde{\sigma}_{th}$ に変換する。

$$\tilde{\sigma}_{th} = \sigma_{max} (N t_{eff}^*)^{1/n} (V_{eff}^*)^{1/m} \quad \dots\dots\dots (14)$$

またき裂発生確率は、式(2)に従いメディアンランク法により割り付ける。図12は、基準化強度およびき裂発生確率の解析手順を示したものである。解析ではまず、セラミックスの種類、寸法およびばらつき特性パラメータ等の初期条件および熱衝撃温度条件に対して Bi 数の計算を行なう。 Bi 数の計算では、それぞれの温度条件に対するセラミックス、水の物性値および

Fig.12 Flow chart for probability of crack occurrence after repeated thermal shocking.

水の平均沸騰熱伝達率を求め、各セラミックスおよび急冷条件に対する Bi 数が求められる。次に、得られた Bi 数に対応する最大熱応力、有効負荷時間および有効体積から式(14)に基づき基準化強度を求め、また、式(2)に基づきき裂発生確率を求める。

図13～15は、繰り返し熱衝撃実験の結果を基に、上記の方法で求めたアルミナ、炭化けい素および窒化けい素に対する基準化強度とき裂発生確率をワイブル

プロットしたものである。また図中の各直線は、セラミックスのばらつき特性パラメータに対して式(13)より得られる理論解析結果である。セラミックスの材種・寸法、熱衝撃温度差および繰り返し回数の熱衝撃疲労条件に対し、理論解析により導いた熱衝撃疲労後のき裂発生確率の推定結果は、実験結果と良く一致することが分かる。またこの推定法では、機械的強度試験である4点曲げ試験と熱的強度試験である熱衝撃試験のそれぞれの強度データを応力が作用する時間および分布を考慮した有効負荷時間および有効体積を用いた基準化強度に変換して評価した。従って、試験条件の異なる強度データも作用する負荷条件を考慮した基準化強度に変換することにより統一的に評価することができる。

5. 結 言

セラミックスの熱衝撃疲労後の強度特性を確率論的に検討した。すなわち、熱衝撃破壊も材料中に存在する初期欠陥からのき裂進展により破壊するとの基に、熱衝撃疲労時のき裂発生確率を理論的に導き、各材種、寸法に対する繰り返し熱衝撃実験結果を基にき裂発生確率の推定法を検証した。その結果、熱衝撃疲労時のき裂発生確率は、セラミックス固有の破壊強度、すなわち有効負荷時間、有効体積を考慮した基準化強度から推定できることを明らかにした。

従って、実セラミックス部品の耐熱衝撃強度設計においては、セラミックス材料固有のばらつき特性パラメータを予め求め、適用環境下における熱衝撃条件に対する実セラミックス部品の熱応力解析を有限要素法等により行なうことにより、熱衝撃温度差、繰り返し回数に対する破壊確率を推定することができ、設計許容応力を決定するのに適用することができる。

文 献

- (1) 佐久間・岩田・高久・岡部, 機論, 58-547, A (1992), 476-481.
- (2) 佐久間・岩田・高久・岡部, 機論, 59-557, A (1993), 131-136.
- (3) 秋山・木村・関谷, 材料, 38-435, (1989), 1415-1421.
- (4) 前川・柴田・和田, 材料, 39-445, (1990), 1380-1384.
- (5) 久留島・石崎, セラミックス, 101-5, (1993), 596-599.
- (6) 佐久間・岩田・高久, 機論, 57-543, A (1991), 2741-2746.
- (7) 田中・岡部・境田, 材料, 36-405 (1987), 563-569.
- (8) 岸本・上野・河本, 材料, 36-409 (1987), 78-83.
- (9) 佐久間・岩田・高久, 機論, 58-552, A (1992), 1424-1429.

Fig.13 Probability of crack occurrence of alumina after repeated thermal shocking.

Fig.14 Probability of crack occurrence of silicon carbide after repeated thermal shocking.

Fig.15 Probability of crack occurrence of silicon nitride after repeated thermal shocking.