セラミックスの破壊靱性

志 波 光 晴* 岸 輝 雄**

1. 脆性材の強度と靱性

セラミックスは脆性材料であるため、材料や製品の表面、あるいは内部に存在する微小な欠陥(最も弱い部分)が破壊の起点になりき裂を進展させる。その強度は材料内部の最弱部に支配されるのでワイブル分布に従う強度分布を示し、強度のばらつきが大きく、また、靱性は塑性変形がないため強度の上昇とともに上昇するが多い。

このことは、次のように扱えると理解しうる。き裂材の強度評価には、線形破壊力学が適用され、半無限体に $2a$ の貫通き裂が存在し、負荷応力が σ のとき、応力拡大係数 K は次式で与えられる⁽¹⁾。

$$K = \sigma \sqrt{\pi a} \quad (1)$$

K がモード I の臨界応力拡大係数 K_{IC} に達すると、 $K \geq K_{IC}$ の条件で破壊が生ずる。ここで、破壊の起点となる欠陥の大きさ a_c が一定であれば、強度 σ_c は

$$\sigma_c = K_{IC} / \sqrt{\pi a_c} \quad (2)$$

で与えられ、強度と靱性は比例することになる。しかしこの関係は、 K_{IC} の大小に拘らず、同一の欠陥が起点

表1 負荷応力が曲げ破断応力 σ_B の50%の場合の許容限界き裂寸法 $2a_c$ 。

	$K_{IC}(\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2})$	$\sigma_B(\text{MPa})$	$2a_c(\text{mm})$
Al_2O_3	4.0	500	0.17
Si_3N_4	4.8	1000	0.06
$\text{ZrO}_2\text{-Y}_2\text{O}_3$	6.0	600	0.27
SiC	3.0	600	0.06
チタン合金	50	1200	4.6
アルミ合金	35	500	13.0
マルエージ鋼	90	2000	5.4
鋳 鉄	20	500	4.2

* 東京大学研究員；先端科学技術研究センター

** 東京大学教授；先端科学技術研究センター
Fracture Toughness of Ceramics; Mistuharu Shiwa, Teruo Kishi (Research Center for Advanced Science and Technology, The Univ. of Tokyo, Tokyo)
Keywords: fracture toughness, ceramics, crack initiation, crack extension resistance curve, crack arrester, crack extension, micro crack toughening, moment tensor, acoustic emission source characterization
1988年6月1日受理

となり、同じ破壊機構を取る臨界的取扱いである。臨界欠陥の大きさおよび破壊機構が異なるとこの関係は成立しない。逆に、臨界応力が曲げ応力 σ_B の1/2の場合の許容欠陥大きさ a_c は次式で与えられる。

$$a_c = 4K_{IC}^2 / \pi \sigma_B^2 \quad (3)$$

表1⁽²⁾に示すように、セラミックスでは a_c は100 μm 前後と小さな値を取ることに注目すべきであろう。

2. R 曲線と強度

脆性破壊においても、塑性変形を伴わず、不安定破壊に至るものと、狭い領域に限定された塑性変形(プロセスゾーン)が生じ、安定き裂成長が見られた後に不安定破壊にいたる場合がある。セラミックスにおいても安定き裂成長が見られるものがあり、破壊靱性値がき裂の進展と共に上昇するき裂進展抵抗曲線(R 曲線)を描く場合があり、高靱性材開発においても注目されている。この挙動を理解するには、エネルギー解放率 G を用いた検討がなされている。

G はき裂進展力(crack extention force)とも呼ばれ、応力拡大係数 K と線形では以下の関係を有する。

$$G = K^2 / E' \quad (4)$$

ここで、平面応力状態では $E' = E$ であり、平面ひずみ状態では $E' = E / (1 - \nu^2)$ となる。ただし、 E はヤング率、 ν はポアソン比である。

エネルギー的に不安定破壊が生ずる条件は、き裂進展時に単位面積のき裂を生じるのに必要な仕事をき裂進展抵抗 R (crack extention resistance) と書けば、 $G - R \geq 0$ となる。このことは、き裂が一度進行し始めても、その後、 R が G を越えることがあれば、き裂の進行は停止(arrest)することを意味し、このような機構をクラック・アレスタ(crack arrester)と呼ぶ。

このように、破壊靱性値には、き裂が発生するときの破壊靱性値 K_{IC} と、一度発生したき裂が新たに進展するときの破壊抵抗としての靱性値 K_{IR} 、そして、破断時の破壊靱性値 $K_{I\max}$ の3つがあることになる。図1に、例として3種類のR 曲線を示す⁽³⁾。c, d, e 曲線共にその破壊靱性値 K_0^0 が等しいためき裂を進展させるのに必要な初期応力(σ_c)は等しい。しかし、その後の曲

図1 R曲線挙動と強度の関係。

線が異なるため、 $K_{I\max}$ は、 $e > d > c$ の順で大きくなっている。最終不安定破壊は、 $G \geq R$ 、すなわち図の点線と実線の接点で生ずることになり、そのときの強度 σ_f は、勾配の大きさと与えられ $d > c > e$ の順で低下することになる。このことは、最も $K_{I\max}$ の大きい材料が最も強度が低いことになり、上昇型 R 曲線を取る材料の強度は、R 曲線の勾配に依存することになり、R 曲線の導出が重要となる。

大きな塑性変形によってき裂進展抵抗 R を向上できないセラミックスでは、破壊靱性値がき裂の進展と共に変化するためには、塑性変形とは異なったクラック・アレスタが存在するが、これらの諸機構は後の章で詳しく検討する。

3. 靱性評価法

表 2 に、主な破壊靱性試験法の長所と短所をまとめて示す⁽⁴⁾。試験法の相違により、得られる値に大きな違いが見られ、測定法により、 K_{IC} が 1.5 倍～2 倍も異なる⁽⁵⁾。破壊靱性試験では、まず、き裂先端の曲率半径を原理的にはセラミックスを構成する原子間距離と同一オーダーにしなければならない。しかし、予き裂導入操作により残留応力や、マイクロクラックの発生があって、 K_{IC} を評価しているのか K_{IR} を評価しているのかが不明になる。そこで、ここでは各試験方法で得られる破壊靱性値を、 K_{IC} と K_{IR} という二つの観点から、予き裂を導入しない試験法と導入する試験法に分類し検討してみる。

(1) 予き裂を導入しない試験法

(i) 圧子圧入法

圧子圧入法には、IM (Indentation Microfracture) 法があり、簡便なことから多様されている。ビッカース圧

表 2 破壊力学試験片・評価法。

試験片・負荷方法	長 所	短 所
(1) [巨視的ノッチ・き裂を有する試験片]		
(a) Single Edge Notched Bend Bar; Single Edge Pre-Cracked Bend Bar	小型試験片；種々の雰囲気・温度で測定可能、プリクラック導入易	安定き裂成長が困難なため K_I vs. V 、 K_R vs. Δa の測定が出来ない
(b) Compact Tension	比較的小型の試験片；厳密な解析が可能；R 曲線の評価が一応可能	負荷用治具の固定部位加工が困難；高温測定が困難
(c) Double Cantilever Beam	厳密な解析が可能； K_I vs. V 、 K_R vs. Δa の測定が可能	負荷治具固定部位の加工が困難；き裂を直進させるための横溝が必要；横溝が解析を複雑にする
Tapered DCB	K_I がき裂長さに依存しない	試験片の機械加工が困難
Constant Moment DCB	K_I がき裂長さに依存しない	負荷治具等の構造が複雑
Wedge Loaded DCB	安定き裂成長；R 曲線の測定が容易	くさびと試験片の間の摩擦が K_I の解析を困難にする
(d) Double Torsion	K_I がき裂長さに依存しない；高温試験が容易	き裂縁が湾曲するため K_I の解析に問題がある
Load-Relaxation	き裂速度 (V) の測定にき裂の直接観察を必要としない	試験機の緩和が誤差を与える； $V > 10^{-7}$ m/s に測定範囲が限られる
Constant Load	き裂速度の測定にき裂の直接観察を必要としない	比較早いき裂速度、 $V > 10^{-6}$ m/s の測定に限られる
(e) Chevron Notch Short Bar Short Rod	プレクラッキングが不要	K_I vs. a の厳密解に 3 次元数値解析が必要； K_I vs. V 、 K_R vs. Δa の解析が複雑、上昇 R 曲線試片に適用不可
(2) [微視的欠陥を有する試験片]		
(a) Indentation Fracture	極小試験片で評価が可能	残留応力、ラテラルクラックが解析を困難にする；半経験式を用いる；微視き裂と粒界との微視的相互作用の効果が明らかにされていない
(b) Controlled Surface Flaw	試験片形状が単純；高温測定が容易；自然キズに近い	残留応力の除去が必要；キズ寸法の厳密な測定が困難
(c) Indentation Strength-in-Bending	キズ寸法の測定が不要；高温測定が可能	半経験式を用いる

子圧入により生じた表面き裂の長さから K_{IC} を求めるため試験片の表面粗さ、および表面の残留応力が大きく影響する。この方法では、生成されたき裂の長さが各片とも等しく、かつ試験片の平均結晶粒径の 10 倍以上なければ K_{IC} としての取扱いに問題がある。さらに、圧子圧入の残留応力が定量的に評価できず、 K_{IC} よりむしろ K_{IR} を評価していると考えられる。

(ii) 切り欠き加工法

試験片に加工する切り欠きの種類により、CN(Chevron Notch)法、SR(Short Rod)法、SENB(Single Edge Notched Beam)法、DCB(Double Cantilever Beam)法がある。いずれも切り欠き先端からき裂を生成させるので、先端曲率半径と表面粗さが測定値に依存するという問題点を有している。このなかで、CN 法は、自然き裂に成長した点で K_{IC} を評価するので、原理的には有効な手法であるが、上昇 R 曲線を有する材料には適用できない欠点を持つ。

(2) 予き裂を導入する試験法(圧子圧入予き裂導入法)

圧子圧入予き裂法には、SEPB(Single Edge Pre-cracked Beam)法、CFS(Controlled Surface Flaw)法、ISB(Indentation Strength-in-Bending)法がある。

ビッカース圧子を試験片に圧入し、これらの予き裂が入った試験片を、3点曲げまたは 4点曲げを行い K_{IC} を求める。これらの方法では、予き裂の状態に対する対策と評価が問題となる。CFS 法での残留応力除去のためにアニーリングや機械研削を行い損傷がある場合は、予き裂の状態を複雑にしてしまう可能性がある。ISB 法は、経験式により残留応力の効果を考慮しているが定量的性に問題が残る。SEPB 法では、ポップインで生成した予き裂から K_{IC} を求める最も有効な手法と考えられるが、ポップインの有無がはっきりしないため厳密な意味で K_{IC} なのか K_{IR} なのかの判定が難しく今後の検討が待たれる。

以上、現在の所、評価法は規格化されるに至っていないが、SEPB 法を中心に規格化を進め、簡易法として IM 法の役割を明確にすべきと考える。また、セラミックスにおける R 曲線の重要性から当然 CT 法、DCB 法が用いられるべきであろう。

4. 破壊のメカニズム

脆性破壊では、最も弱い部分から破壊が進展するとされているが、実際の破壊のプロセスは図 2 に示すように、酸化物系セラミックスではき裂が進展するのに先行して、き裂先端にマイクロクラックが生じ、それが成長-合体してある臨界値に達したときにき裂進展が生じることが

図 2 先行マイクロクラックの発生と巨視き裂進展。

図 3 人工欠陥寸法と曲げ強度の関係。

観察されている。図 3 も興味ある結果であるが、これは人工欠陥と曲げ強度を模式図に示したものである。欠陥の大きさ a_1 が $a_1 > a_c$ の領域では、強度 σ_c と a_1 の間には $K_{IC} = \sqrt{\pi a_1}$ の関係で表される関係が成り立つ。しかしながら $a_1 < a_c$ では σ_c はほぼ一定となる⁽⁶⁾。 $a_1 < a_c$ の領域でも σ_c が一定となることにより、破壊力学的には破壊はき裂が成長して a_c の大きさになり破断したものと推定される。以上図 2、図 3 より、自然欠陥の場合には、巨視的き裂成長に先行してマイクロクラックの生成-成長-合体プロセスが存在するケースが多いといえる。破壊靱性 K_{IC} を理解するには、このマイクロクラックと材料組織の関連とこの破壊機構を明らかにすることが不可欠と言え、今後の研究が期待される。

5. 靱性向上の材料学

— Micro Crack Toughening —

き裂進展抵抗としての靱性を向上させるには、き裂先端の応力集中を緩和し、破壊に要するエネルギーを大きくする必要がある。高温以外では塑性変形に期待できないセラミックスでは、クラック・アレスタとして

- ① 相変態(transformation)
- ② マイクロクラッキング(microcracking)
- ③ き裂の湾曲(crack bowing)
- ④ き裂の偏向(crack deflection)
- ⑤ 引き抜き(pull out)
- ⑥ 架橋効果(bridging)
- ⑦ 残留ひずみエネルギー効果(shielding effect)

などが考えられる。①の相変態はジルコニアなどの限られた材料のみ適用可能なので、②、③、④、が粒子分散系を含んだセラミックス焼結体の重要な高靱性化機構となる。図 4 にジルコニアの強靱化機構をまとめた模式図⁽⁷⁾と結果を示す。相変態以外の機構も働いたと考えられるが、定量的に各々の機構の寄与を明確にするには至っていない。また、図 5 は鈴木による高靱化機構の因子と寄与をまとめたものである⁽⁸⁾。⑤、⑥は、ウイスカーや粒子分散による複合化が有望視されており、ウイスカー等によるき裂の湾曲、偏向など③、④に関連したものとも考えられる(図 6)⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾。③、④は局所的不均一き裂であり、マイクロクラックの形成・進展とも理解でき②も含んでいると考えることができよう。図 7⁽¹¹⁾に示した、⑦のマイクロクラック形成による主き裂の応力集中緩和(shielding effect)に基づく靱性向上は理論的にも可能性が証明されており、塑性変形に期待できない脆性材料

図 4 ジルコニアセラミックスの強化機構。

微構造因子	破壊靱性		高靱化機構
	低	高	
粒形状	球状 (等軸状)	板状 柱状 (繊維状)	クラック・ディフレクション
粒径		最適粒径 (残留応力あり)	粒子引き抜け
境界性状	粒界相なし	粒界相あり (ガラス相など)	マイクロクラッキング
	粒内破壊	粒界破壊	
気孔	多	少	高ヤング率
		最適気孔	クラックのピン止め

図 5 セラミックス焼結体の微構造と破壊靱性の主な関係。

にとっては重要な機構である。図 8 に主き裂先端にマイクロクラックが様々な方位、位置大きさに生じたときの K_I の方位依存性を示す⁽¹²⁾。 $K_I < K_I^0$ なる範囲では見か

(a) き裂の偏向

(b) 引き抜き

(c) 架橋効果

図 6 ウイスカーや粒子分散による強化機構。

図 7 プロセスゾーンとプロセスゾーンウェイク。

図8 K_I のマイクロクラックの方位,位置依存性.

け上靱性が向上し, 主き裂面上から少し離れて上下に生じたマイクロクラックにより, K_{IC} が 30~40% 上昇する可能性が示された. したがって, 複合化を含めて適当に壊れやすい組織の導入 “マイクロクラックタフニング”, そして, 多くの機構を同時に利用する “マルチタフニング” が靱性向上の新しい手法であり, それを支配する主き裂先端に生ずるマイクロクラックの挙動, すなわちその生成合体過程を理解する重要性が理解されよう.

6. マイクロクラックの定量化

前章で靱性を理解し, 靱性向上を図るためには, 微視組織と, 負荷中に生ずるマイクロクラックの問題が重要になることを示した. しかしながら現状では, マイクロフォーカス X 線, 高周波超音波透過探傷, 超音波顕微鏡などを用いても, 10~20 μm の欠陥の検出は難しい. 以下にマイクロクラックの定量的評価法を示したい.

(1) アイゲンストレイン

個々のマイクロクラックを理解するには, 図9に示すようにそれらの①発生位置, ②大きさ, ③割れモード, ④割れ面の傾き, ⑤形状などを定量的に求める必要がある. これらの性質を与えるものとして, マイクロメカニクスの分野ではアイゲンストレイン(eigen strain)が, また同じ内容が地震学ではサイスミック・モーメント・テンソル(seismic moment tensor)なる概念が与えられている.

最も重要なモード I の引張開口型のマイクロクラックの場合, 図9の上図に示すように ΔA_3 を割れの面積, ϕ_3 を割れの大きさとするこのモーメントテンソル D_{jk} は,

$$D_{33} = (\lambda + 2\mu) \Delta A_3 \phi_3 \quad (5)$$

で与えられ, D_{33} が求められると割れ体積 $\Delta A_3 \phi_3$ が直接求められる. ここで, λ, μ はラーメの定数である. また以下のような破壊力学の取扱いにより, 割れの寸法

図9 引張り開口型(モード I)のマイクロクラック生成に伴うモーメントテンソルとその時間関数.

が定量的に求められる⁽¹³⁾.

$$a = (\alpha / \pi_2 \cdot \sigma_y / \sigma_2 \cdot D_{33})^{1/3} \quad (6)$$

ここに, σ は一様負荷応力, σ_y は降伏応力, α は $\alpha = 1 \sim 2$ なる定数である.

アイゲンストレインの大きさは, 図9の下図に示すような時間の関数として与えられるので, 割れ生成時間 $\Delta\tau$ が求められると, 平均割れ速度 v が次式で与えられ, 脆性・延性を示す尺度として用いられる.

$$v = 2a / \Delta\tau \quad (7)$$

また, 割れ速度 v に加えて D_{jk} は, 個々のマイクロクラックの割れの傾き角, および割れモード, すなわちモード I, モード II, III (せん断型) に関する情報を与え, 形状以外の割れの情報を定量的に示す有効なパラメータである^{(14)~(17)}.

(2) AE 原波形解析

筆者らは, この D_{jk} を実験的に求める AE 原波形解

図10 AE の発生(D_{jk}), 伝播($G_{ij,k}$), 計測(S_i)と検出波形($V(t)$).

図 11 AE 原波形解析によるアルミナの CT 試験片を用いた破壊靱性試験におけるプロセスゾーン内に生じたマイクロクラックの寸法分布 (靱性向上に寄与するマイクロクラックと急速破壊に結びつくクラックの分類)。

析手法を開発し、マイクロクラックの定量解析から新たな破壊靱性評価に取り組んでいる。図 10 に AE 原波形解析の模式図を示す。図 11 は、 Al_2O_3 の破壊靱性試験結果を模式的に示したものである⁽¹⁸⁾。マイクロクラックの大きさに二つの分布があり、小さい寸法の分布 - I は、破壊抵抗の上昇に寄与する有効なクラック、そして、大きい寸法の分布 - II は最終不安定破壊に直結し、危険なクラックと言え、AE 原波形解析により 10~20 μm 程度のマイクロクラックが定量評価されるに至っている。

7. 今後の展望

セラミックスの靱性向上には、単に均質な nm に注目した材料開発のみではなく、主き裂の応力集中を緩和する適当な大きさのマイクロクラックの導入が重要な課

題となる。そして、その機構の有効活用には、従来の破壊靱性評価とは異なった μm オーダーの個々のマイクロクラックの定量的評価法が必要になる。その可能性の一つを示したのが AE 原波形解析と言える。しかし、この手法はまだ生まれたばかりであり、超音波、放射線を含んだ定量的な非破壊計測法の開発と共に大きな発展が期待される。すなわち、非破壊計測・評価に立脚した破壊機構の解明を進めることにより、新しい高信頼性セラミックスの開発が期待されると言えよう。評価技術からの材料開発も探るべき一つの方向と言えよう。

文 献

- (1) 岡村弘之：線形破壊力学入門，初版，培風館，(1976)。
- (2) 岸 輝雄：日本機械学会第 644 回講習会教材，1987，東京，機器の損傷検出技術と寿命評価手法。
- (3) 逆井基次：固体物理，23(1988)，209。
- (4) 逆井基次：セラミックス，23(1988)，480。
- (5) T.Kishi and S.Wakayama：Proc. 4th Int. Symp. of Fracture Mechanics of Ceramics, Blacksburg U.S.A., (1985)。
- (6) S.Usui, H.Kimoto, I.Takahashi and S.Shida：Engineering Fracture Mechanics, 23(1986)，4, 745。
- (7) 佐藤次雄，島田昌彦：セラミックス，21(1986)，613。
- (8) 鈴木恵一郎：セラミックス，21(1986)，590。
- (9) 井上茂夫，内山哲夫，新原皓一：セラミックス，21(1986)，621。
- (10) 宮田 昇：材料，37(1988)，361。
- (11) 宮田 昇：セラミックス，21(1986)，605。
- (12) M.Kachnov and E.Montagut：Engineering Fracture Mechanics, 25(1986)，5/6, 625。
- (13) 榎 学，岸 輝雄，木原諄二：日本金属学会誌，52(1988)，405。
- (14) K. Aki and P. G. Richard：Quantitative Seismology Vol.1, W. H. Freeman and Company, San-Francisco, (1980)，p.599。
- (15) N.N.Hsu and S.C.Hardy：in Elastic Waves and Non-Destructive Testing of Materials, Y. H. Pao ed., Am. Soc. Mech. Eng., New York, (1978)，p.85。
- (16) A.N.Ceranoglu and Y.H.Pao：Appl. Mech., 48(1981)，125。
- (17) 村 外志夫，森 勉：マイクロメカニクス，初版，培風館，(1976)。
- (18) T.Kishi and S.Wakayama：Fracture Mechanics of Ceramics, Plenum, 8(1986)，85。