

## HIP 焼結窒化けい素の引張強度とその寸法効果\*

原田 昭 治\*<sup>1</sup>, 野田 尚 昭\*<sup>1</sup>  
上原 修\*<sup>2</sup>, 永野 光 芳\*<sup>3</sup>Tensile Strength of Hot Isostatic Pressed Silicon Nitride  
and Effect of Specimen DimensionShoji HARADA, Nao-Aki NODA,  
Osamu UEHARA and Mitsuyoshi NAGANO

Tensile and three-point bending tests were conducted on a hot isostatic pressed silicon nitride. To examine the size effect on the tensile strength, two kinds of different-sized round test specimens were prepared. A special chucking device utilizing a powder cushion between the specimen and the grip surface was used to promote good alignment with increasing load. The percentage of bending stress at the fracture was less than 5%. The mean tensile strengths of large and small specimens were 63% and 74% of the mean value obtained by the three-point bending test on the same material, respectively. The Weibull modulus determined by the large and small tensile specimens were smaller than that in the case of the three-point bending test. These results indicate that care should be taken in Weibull-statistics-based strength comparison for different-sized specimens and different loading conditions.

**Key Words:** Ceramics, Tensile Properties, Size Effect, Weibull Modulus, Bending Strength, Silicon Nitride

## 1. 緒 言

近年, 設計における要求性能の高度化の必要性が高まってきており, それに伴って新しい材料の開発が盛んに行われている。HIP (Hot Isostatic Press, 熱間等方加圧) を利用したセラミックスの焼結方法は, (1) 均一で密化された組織が得られ強度と信頼性が高められること, (2) 焼結助剤の量を少なくしても焼結可能であり, 高温強度向上が期待できること, (3) 複雑形状物の焼結が可能であることなどの理由により, 構造用セラミックスの製造技術の一つとして注目されている。

セラミックスのような典型的な脆性材料を引張試験する場合, 偏心荷重の発生や試験片つかみ部の集中荷重の問題が生じる。このため静的強度の測定には JIS で定められている曲げ試験が広く行われ, ワイブル係数を用いて有効体積を比較して引張強度を予測する方法が従来から取られている<sup>(1)</sup>。その際, ワイブル係数

は試験片の寸法あるいは負荷形式によらない材料定数であることを前提としているが, 最近その仮定が必ずしも成立しないデータがいくつか報告されている。表 1 にその一例を示す。田中らの行った常圧窒化けい素の実験では, 三点曲げと引張りでワイブル係数は 14.9 から 9.2 に低下している<sup>(2)</sup>。また, 大司らのホットプレス窒化けい素の実験でも, 三点曲げと引張りでワイブル係数は 14.2 から 8.6 に低下している<sup>(3)</sup>。このようにワイブル係数が異なる理由として, 大司らは応力こう配が存在する曲げに対して一様な応力分布となる引張りで試験片内部の欠陥の強度への影響が異なるこ

表 1 セラミックスの三点曲げ強度と引張強度の比較

Authors		Bending	Tension
Tanaka et al <sup>(2)</sup> .	Average fracture stress (MPa)	897	451
	Weibull modulus	14.9	9.2
Ohji et al <sup>(3)</sup> .	Average fracture stress (MPa)	1030	764
	Weibull modulus	14.2	8.6

\* 平成 2 年 9 月 24 日 第 68 期全国大会講演会において講演, 原稿受付 平成 2 年 8 月 29 日。

\*<sup>1</sup> 正員, 九州工業大学工学部 (〒804 北九州市戸畑区仙水町 1-1)。

\*<sup>2</sup> 九州工業大学大学院。

\*<sup>3</sup> 日本タングステン(株) (〒811-21 福岡県粕屋郡宇美町大字宇美大谷 3351)。

とを指摘している。

そこで本研究では寸法の異なる2種類のHIP焼結窒化けい素の引張試験片を用いて、引張強度の寸法効果を一様な応力分布の状態ではとるとともに、それらを三点曲げ強度とも比較し、ワイブル係数と有効体積または有効表面積を用いてセラミックスの引張強度を曲げ強度から推定する方法の妥当性について検討した。

## 2. 供試材および試験片形状

供試材は $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-Y}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ 系のHIP焼結窒化けい素〔日本タングステン(株)製〕である。大小2種類の引張試験片ならびに三点曲げ試験片を同一粉末より $\text{N}_2$ ガス雰囲気中にて予備焼結して、その後HIP処理にてほぼ理論密度近くまで密化し作製した。組織写真を図1に、材料定数およびJISR 1601に基づく三点曲げ試験の結果を表2および図2に示す。三点曲げの試験片寸法は幅4mm、高さ3mm、スパン長さ30mmであり、試験片本数は30本である。試験片表面は

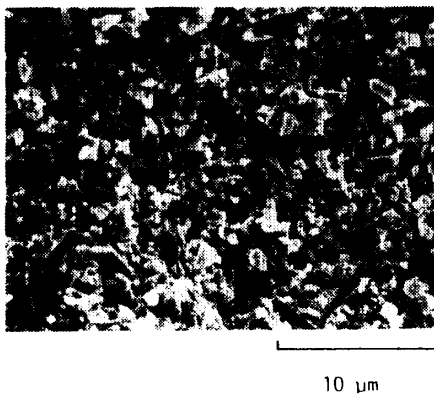


図1 供試材の組織写真

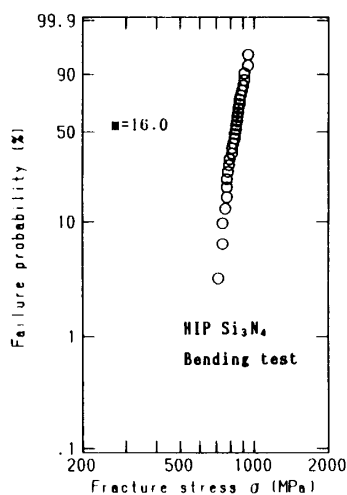


図2 JIS三点曲げ試験結果のワイブルプロット

1500番(粒径 $10\mu\text{m}$ )のダイヤモンドホイールでラップ仕上げし、表面粗さは $R_a=0.020\mu\text{m}$ 、 $R_{\text{max}}=0.18\mu\text{m}$ である。HIP処理によりワイブル係数 $m=16.0$ を得ている。図3に引張試験片大および小の形状を示す。試験片最小断面部は試験片大は2000番(粒径 $8\mu\text{m}$ )のダイヤモンドホイールで、試験片小は粒径 $9\mu\text{m}$ のダイヤモンドペースト(手仕上げ)でラップ仕上げした。表面粗さは試験片大で $R_a=0.057\mu\text{m}$ 、 $R_{\text{max}}=0.47\mu\text{m}$ 、試験片小で $R_a=0.072\mu\text{m}$ 、 $R_{\text{max}}=0.66\mu\text{m}$ である。

## 3. 実験装置および実験方法

セラミックスの引張試験方法として、これまで、試験片両端部に金属片を接着し金属片と試験機をピンで接合する方法<sup>(4)</sup>や、窒化ほう素粉末を試験片支持材料としたパウダクション法<sup>(5)</sup>、試験片支持材料にアルミニウムを用いる方法<sup>(2)(6)</sup>などが提案されている。本研究では試験片形状をButtonhead形の丸棒試験片として、パウダクション方式を採用した。パウダには市販のBN粉末を使用した。図4に試作した引張試験用治具を示す。引張試験片小ではパウダを使用しなくても十分に小さい曲げ応力で実験可能であることが予備実験の段階で明らかとなった。そこで小試験片の場合、試行により曲げひずみが最小となる試験片と治具の接触状態を確認した後引張試験を行った。すべての引張試験片には試験片最小断面部中央に $120^\circ$ 間隔で

表2 供試材の材料定数

Density	3.28 ~ 3.29
Hardness $H_{\text{Ra}}$	92.0 ~ 92.5
Bending strength	$833 \pm 58$ MPa
Fracture $K_{\text{Ic}}$ toughness	6.5 ~ 7.0 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$

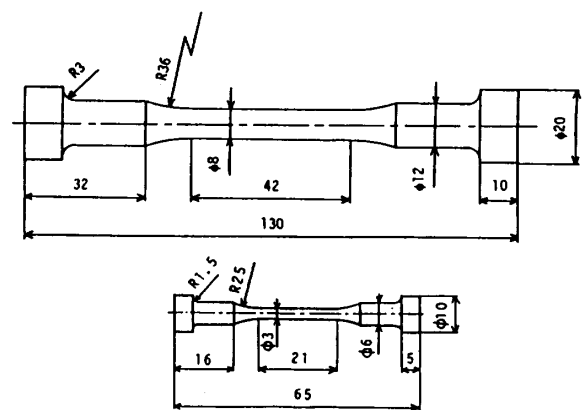


図3 試験片形状

3枚装着したひずみゲージによって測定したひずみをもとに曲げひずみ成分を次式から求めた<sup>7)</sup>。

$$\epsilon_B = 2\{[\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2 + \epsilon_3^2 - (\epsilon_1\epsilon_2 + \epsilon_2\epsilon_3 + \epsilon_3\epsilon_1)]^{1/2}\}/3 \dots\dots\dots (1)$$

$$\epsilon_T = (\epsilon_1 + \epsilon_2 + \epsilon_3)/3 \dots\dots\dots (2)$$

$$\%bending = \epsilon_B \times 100 / \epsilon_T \dots\dots\dots (3)$$

$\epsilon_1, \epsilon_2, \epsilon_3$  : ひずみゲージによる測定値

$\epsilon_B$  : 曲げひずみ

$\epsilon_T$  : 軸引張ひずみ

実験には万能引張圧縮試験機 (島津製作所オートグ

ラフ AG-10 TC) を使用した。クロスヘッド速度は約 0.1 mm/min である。引張試験後 SEM により破断面の観察を行い、破断起点を調べた。

4. 実験結果

HIP 焼結窒化けい素の引張試験片大 11 本, 小 10 本を用いて引張試験を行った。図 5 および図 6 に試験片全部について測定した各荷重段階での曲げ成分を示す。縦軸はそのときの軸引張ひずみに対する曲げひずみの割合である。曲げ成分は荷重の増加とともに減少し、破断時での曲げ成分はいずれの場合も 5% 以内に入っており、引張試験としてほぼ許容し得る範囲である。

図 7 および図 8 に破断後の試験片の一例を示す。例に示すように全試験片とも最小断面部において破断し

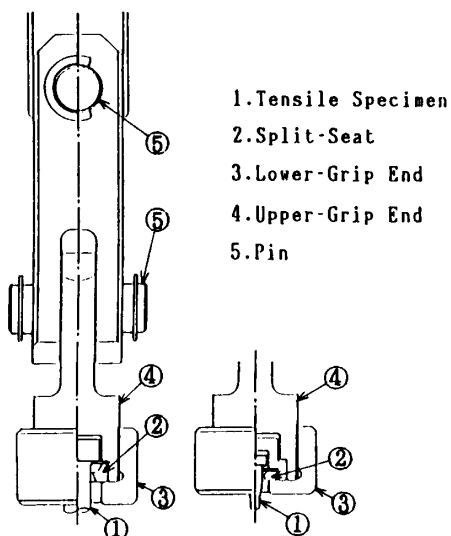


図 4 引張試験用治具

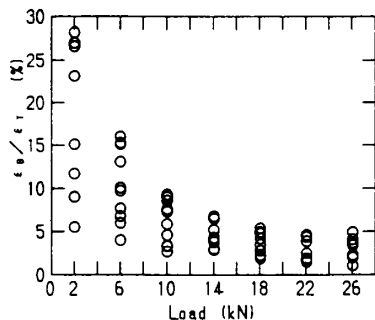


図 5 引張試験片大の曲げ成分の変化

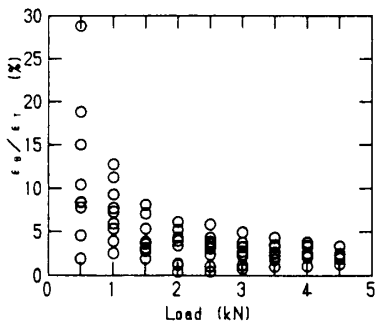


図 6 引張試験片小の曲げ成分の変化



図 7 破断後の様子 (大)



図 8 破断後の様子 (小)

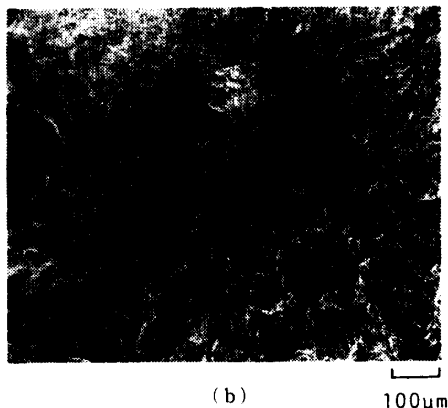
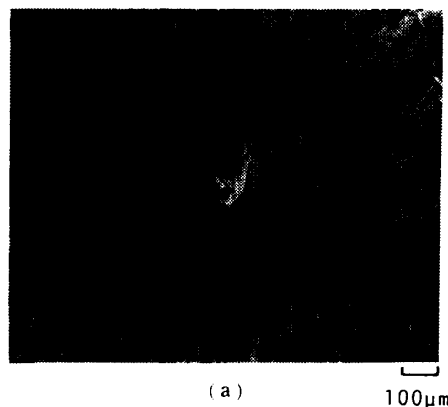


図 9 破壊起点の例

た、図9にSEMによる破断面の観察の結果、破断起点のはっきりしたものの一例を示す。これらの破壊起点は試験片表面より(a)が1000 μm程度、(b)が300 μm程度内部に観察された。破壊の起点は不可避不純物もしくは焼結体中の粗大粒成長に起因するものと思われる。他の破壊した試験片についてもSEMによる破面観察を行ったが、多くの場合には破壊発生起点を同定することは困難であった。

図10および図11に引張試験の結果をワイブル確率紙上にプロットした結果を示す。累積破断確率は  $F(x)=i/(n+1)$  ( $i=1\sim n, n$ : サンプル数) で計算した。2種類の寸法で行った引張試験およびJIS三点曲げ試験により求めた破壊応力の平均値と標準偏差ならびにワイブル係数をまとめて表3に示す。緒言にも述べたようにセラミックスの寸法効果による強度低下や負荷形式の違いによる強度変化をワイブル統計によって評価する場合、強度のばらつきを表すワイブル係数

$m$ は材質が同じであれば試験片形状、負荷形式によらず一定であることを前提としている。しかしながら本実験結果では、過去の研究にみられるように三点曲げに対し引張りではワイブル係数が低下している。また、ほぼ一様とみなせる引張応力状態における実験でも試験片寸法によって  $m$  の値は変化し、試験片寸法が大きいほど  $m$  が小さくなるという結果が得られた。表4に引張試験で得られた縦弾性係数の平均値および標準偏差、変動係数を示す。

5. 考 察

表5にセラミックスに関するワイブル係数  $m$  の試験片寸法または負荷形式依存性を調べた過去の研究結果を示す。Trantinaら<sup>(8)</sup>の実験では、炭化けい素では  $m$  が一定となるが、アルミナでは  $m$  が一定とならないことが示されている。松永らは<sup>(9)</sup>各試験で得られた  $m$  の値に若干ばらつきがあるのは、試験片本数が少ないため  $m$  の算出精度が低下したのが原因としている。一方、山田ら<sup>(10)</sup>、田中ら<sup>(2)</sup>、大司ら<sup>(3)</sup>、原田ら<sup>(11)</sup>は  $m$  =一定の仮定に多少疑問があることを述べている。これらの実験結果はいずれも曲げと引張りや三点曲げと平面曲げといった異なる負荷条件のもとで、有効体積が小さいほど  $m$  が大きくなるという結果を得ており、本実験結果と定性的には一致している。同様な傾向は谷口ら<sup>(12)</sup>の計算機実験によっても得られている。

表6は本研究で使用した試験片の平均強度の比(引張強度/曲げ強度)について、実際の実験結果とワイブル統計と有効体積または有効表面積の考え方をを用いて

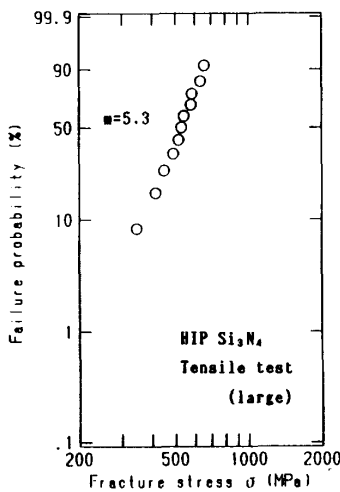


図10 引張試験(大)の結果のワイブルプロット

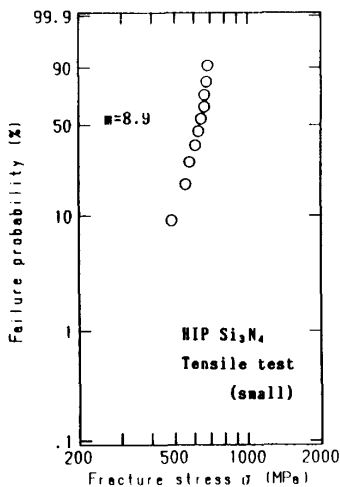


図11 引張試験(小)の結果のワイブルプロット

表3 試験結果

Test	Fracture stress (MPa)	Weibull modulus
Tension (large)	522 ± 84	5.3
Tension (small)	618 ± 64	8.9
3-Point bending	833 ± 58	18.0

表4 縦弾性係数

	Mean value (GPa)	Standard deviation (GPa)	Coefficient of variation (%)
Large	298.7	4.6	1.8
Small	303.3	5.3	1.5
Average	300.8	5.4	3.3

予測される値とを比較したものである。異なる寸法の試験片の有効体積と有効表面積を ( $V_{E1}, S_{E1}$ ), ( $V_{E2}, S_{E2}$ ) とするとき、それぞれの試験片の平均強度の比  $\mu_2/\mu_1$  は次のように与えられる<sup>(1)</sup>。

$$(\mu_2/\mu_1) = (V_{E1}/V_{E2})^{1/m} \dots\dots\dots (4)$$

$$(\mu_2/\mu_1) = (S_{E1}/S_{E2})^{1/m} \dots\dots\dots (5)$$

三点曲げの有効体積と有効表面積は幅  $W$ 、高さ  $B$ 、スパン長さ  $L$  のとき、次式で与えられる<sup>(1)</sup>。

$$V_E = WBL / \{2(m+1)^2\} \dots\dots\dots (6)$$

$$S_E = 2L(W+B)(m+2) / 4(m+1)^2 \dots\dots\dots (7)$$

一軸引張りの場合は、直径  $d$ 、長さ  $l$  として次式で与えられる。

$$V_E = \pi d^2 l / 4 \dots\dots\dots (8)$$

$$S_E = \pi dl \dots\dots\dots (9)$$

式(4)または式(5)を用いる場合、通常  $m$  = 一定を仮定して計算するが、本実験で得られた  $m=16.0$  (三点曲げ) と  $m=5.3$  (引張り(大)) の範囲で得られる予想値の変化を表6に示している。用いる  $m$  の値によってたまたま予想値と実験値が一致する場合もあるが、多くの場合一致しない。図12および図13に各試験片の平均強度と有効体積の関係ならびに平均強度と有効表面積の関係を両対数線図に示す。図中の実線は、三点曲げまたは引張試験(大)の結果を基準として式(4)または式(5)を用いて引いた予測強度であり、直線のこう配は  $(-1/m)$  である。三点曲げ試験で得られた  $m=16.0$  を用いて、有効体積から引張試験片の強度を推定する場合 [図12(a)] 予想値と実験値はかなりよく一致するが逆に、引張試験大で得られた  $m=5.3$  を用いて、三点曲げ強度を予想する場合、予想値は過大な値を与える [図12(b)]。

6. 結 言

本研究では、HIP焼結窒化けい素を対象とし、寸法の異なる2種類の丸棒引張試験片を準備し、引張強度とその寸法効果を調べた。得られた結果をまとめると以下ようになる。

表5 過去の研究結果

Author	$m = \text{const}$ or $m \neq \text{const}$	Testing method	Number of sample	Effective volume $v_e$ (mm <sup>3</sup> )	Weibull modulus $m$
G.G. Trantina et al <sup>(10)</sup> . (1978)	$m = \text{const}$	3-point bending	24	1.15	6.3
		3-point bending	24	13.8	7.4
		spin	21	829.3	6.4
		spin	12	7487.6	7.7
Matsusue et al <sup>(11)</sup> . (1982)	$m = \text{const}$	3-point bending	57	1.8	8.9
		3-point bending	10	12.8	7.4
		4-point bending	15	82.5	7.4
		tension	13	300	9.8
		rotation	9	2193	8.1
Matsusue et al <sup>(12)</sup> . (1982)	$m = \text{const}$	3-point bending	58	25	8.4
		3-point bending	20	22.8	11.7
		4-point bending	20	95.9	11.4
		tension	25	185.3	7.7
		rotation (notched ring)	18	1.9	12.8
		3-point bending	59	3.4	5.3
		3-point bending	20	31.5	8.4
		4-point bending	20	115.0	5.1
		tension	27	213.2	5.5
		Yamada et al <sup>(13)</sup> . (1984)	$m \neq \text{const}$	3-point bending	20
bending	large			7.8	
Tanaka et al <sup>(12)</sup> . (1985)	$m \neq \text{const}$	3-point bending	38	small	14.9
		tension		large	9.2
Ohji et al <sup>(13)</sup> . (1986)	$m \neq \text{const}$	3-point bending	40	small	14.2
		tension		large	8.6
Harada et al <sup>(11)</sup> . (1988)	$m \neq \text{const}$	3-point bending	20	1.8	9.60
		3-point bending	20	11.6	5.24
		3-point bending	20	1.8	9.76
		3-point bending	20	15.0	4.47

表6 引張強度と曲げ強度との平均強度の比 (実測値と予測値の比較)

Specimen	Experiment	Eq(4)	Eq(5)
Large	0.827	0.802 ( $m=16.0$ ) ~0.314 ( $m=5.3$ )	0.728 ( $m=16.0$ ) ~0.457 ( $m=5.3$ )
Small	0.742	0.710 ( $m=16.0$ ) ~0.518 ( $m=5.3$ )	0.808 ( $m=16.0$ ) ~0.645 ( $m=5.3$ )

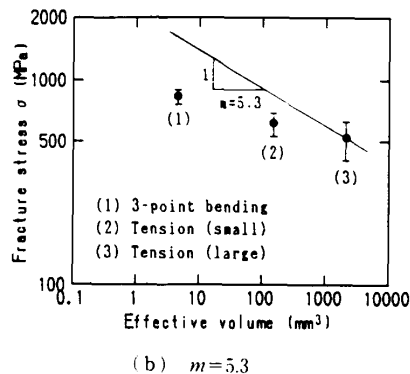
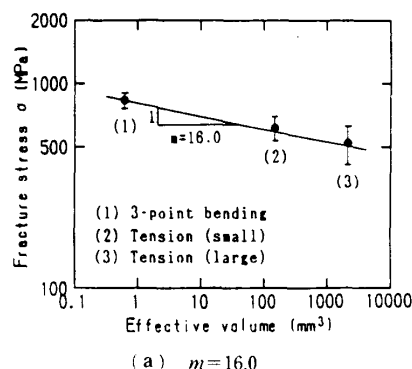


図12 有効体積と破壊応力の関係 (直線は三点曲げまたは引張試験大の結果を基にした予想強度)

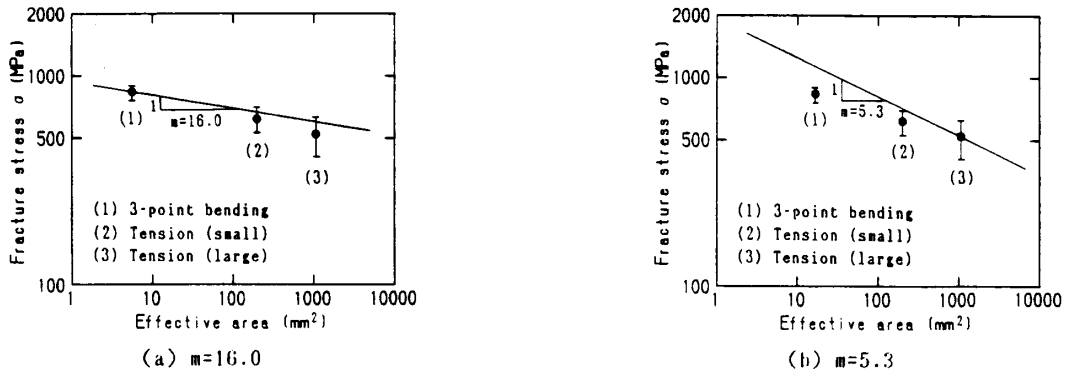


図 13 有効表面積と破壊応力の関係 (直線は三点曲げまたは引張試験大の結果を基にした予想強度)

(1) 試験片大では BN 粉末を試験片支持材料に使用するパウダクション方式を用いることにより、また、試験片小では試行により曲げひずみが最小となる試験片と治具の接触状態を確認することにより、引張試験を実施した。その結果破断時の曲げ成分をいずれも 5% 以内にするのが可能であり、このような方法がセラミックスの引張試験に有効であることが明らかとなった。

(2) 引張試験片大 11 本、小 10 本を用いて得られた引張強度の平均値と標準偏差は試験片大で  $552 \pm 94$  MPa、試験片小で  $618 \pm 69$  MPa となった。これらは JIS 三点曲げ強度 ( $833 \pm 58$  MPa) に対して、それぞれ 63%、74% 程度となった。また縦弾性係数の平均値として 300.9 GPa が得られた。

(3) 破壊応力を 2 母数ワイブル分布で近似したときのワイブル係数の値は、引張試験片大で 5.3、小で 8.9、三点曲げで 16.0 となり、試験片寸法ならびに負荷条件依存性を示した。三点曲げ試験で得られた  $m=16.0$  を用いて有効体積から引張試験片の強度を推定する場合、予測値と実験結果はかなりよく一致するが逆に、引張試験 (大) で得られた  $m=5.3$  を用いて、三点曲げ強度を予測する場合、予測値は過大な値を与え

る。このことから考えて、セラミックスの強度評価に  $m$  = 一定としてワイブル統計を用いる方法は正しい結果を与えない場合があるので注意が必要である。

本研究は平成元年度科研費奨励研究 (A) の援助を受けた。パウダクション方式については旭硝子阿部弘博士より種々のご助言をいただいた。深く感謝する。実験と結果のまとめを手伝っていただいた卒論生山崎千寿君にお礼申し上げる。

## 文 献

- (1) 例えば、窯業協会編集委員会講座小委員会編、セラミックスの機械的性質、(1979)、21、窯業協会。
- (2) 田中・境田、材料、34-379 (1985)、461。
- (3) 大司・ほか 5 名、窯業協会誌、94-10 (1986)、1056。
- (4) 松末・高原・橋本、窯業協会誌、90-4 (1982)、168。
- (5) Lange, F. F. and Diaz, E. S., *J. Testing and Evaluation*, 6-5 (1978), 320。
- (6) 岸本・上野・河本・浦、材料、33-424 (1989)、32。
- (7) Grant, C., *J. Strain Analysis*, 7-4 (1972)、261。
- (8) Trantina, G. G. and Johnson, C. A., *Fracture Mechanics of Ceramics*, 3 (1978)、177, Plenum Press。
- (9) 松末・高原・橋本、窯業協会誌、90-5 (1982)、280。
- (10) 山田・星出・古屋、材料、33-364 (1984)、28。
- (11) 原田・野田・遠藤・永野、材料、37-419 (1988)、28。
- (12) 谷口・北住・山田、材料、38-435 (1989)、64。