

ホットプレス窒化ケイ素の曲げ強度および破壊じん性に 及ぼすヌープ圧こんき裂長さとの試験片寸法の影響†

原 田 昭 治* 野 田 尚 昭*
遠 藤 達 雄* 永 野 光 芳**

Effects of Artificial Crack Length and Specimen Size on Bending Strength and Fracture Toughness of Hot-Pressed Silicon Nitride

by

Shoji HARADA*, Naoaki NODA*

Tatsuo ENDO* and Mitsuyoshi NAGANO**

Three-point bending and fracture toughness tests were conducted on two kinds of hot-pressed silicon nitride. To examine the size effect on the bending strength, two kinds of different sized specimens were prepared. The bending strength of the large specimens showed a lower mean value and a larger scatter than that of the small specimens. The Weibull statistics gave insufficient explanation on these differences because the Weibull modulus differed depending on the specimen size.

For the fracture toughness tests, a semicircular crack with a radius of $50\mu\text{m}$ to $1400\mu\text{m}$ long was introduced on each specimen surface with the aid of Knoop indentation. The relationship between the fracture stress σ_F and the Knoop-indented crack length $2c$ was examined. Up to a critical value of $2c_c$, σ_F was insensitive to $2c$. For $2c > 2c_c$, σ_F decreased with increasing $2c$. The value of $2c_c$ differed depending on the materials. The fractographic observation revealed that for $2c < 2c_c$, the fracture origin was mostly located either at inclusions or defects.

Key words : Hot-Pressed silicon nitride, Bending strength, Fracture toughness, Size effect, Critical crack length

1 緒 言

耐熱性や耐摩耗性などの点において従来の鉄鋼材料に比べ優れた性質を有するセラミックスが新素材の一つとして注目され、その用途も拡大されつつある。並行して、その強度評価についてもさかんに研究が行われ、また、材料開発の立場からも、より優れた性質を得るための製造技術が研究されている。

本報では、切削工具用として開発された二種類のホットプレス窒化ケイ素について、その各種強度を総合的に研究する第一歩として、三点曲げ強度および破壊じん性試験を行い、曲げ破壊強度および破壊じん性におよぼす材質および試験片寸法の影響を検討した。

セラミックスの強度の評価方法としては、曲げ試験の結果から、ワイブル係数を材料定数とみなして有効体積¹⁾の考え方をを用いる強度予想が一般に行われている。本実験では、この方法が本供試材について妥当であるかどうか、大小二種類の試験片それぞれ20本ずつ用いて検討した。また、破壊じん性の評価方法としては、

ここではヌープ圧子押込みによるCSF法を用い、最近問題となっている欠陥寸法と破壊応力の関係が²⁾⁻⁷⁾、材質と試験片寸法にどのように依存するか調べた。さらに破面観察も行い、供試材と強度特性について考察した。

2 試験片材料および実験方法

供試材は $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-Y}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ 系の二種類のホットプレス窒化ケイ素 A 材および B 材である。両材の常温での材料諸特性値を Table I に示す。A 材と B 材の製法の違いは、窒化ケイ素に添加する焼結助剤の異なる点にある。A 材では、針状結晶粒子が発達して針状粒子が互いにかみあった結晶組織となっているが、

Table I. Material properties.

Material	A	B
Density (g/cm ³)	3.225 ~ 3.228	3.287 ~ 3.290
Hardness (H _v A)	92.3 ~ 92.8	93.8 ~ 94.4
Flexural strength (MPa)	800 ~ 1150 (Average : 950)	620 ~ 1370 (Average : 810)

† 原稿受理 昭和62年11月6日 Received Nov. 6, 1987

* 正会員 九州工業大学 北九州市戸畑区仙水町, Kyushu Institute of Technology, Sensui-cho, Tobata-ku, Kitakyushu

** 日本タングステン(株) 福岡市南区清水, Nippon Tungsten Co., Shimizu, Minami-ku, Fukuoka

結晶間空けきがあるために B 材と比べて低硬度になっている。一方、B 材は A 材の助剤にさらにち密化促進剤となる焼結助剤を添加しているため、A 材と同じような針状組織となっている上に、理論密度に対する相対密度では B 材の方が高く、結晶のち密化による高硬度が達成されている。Table I における曲げ強度は JIS R 1601 に基づく三点曲げ試験片 20 本の結果である。〔試験片寸法（幅 4 mm，高さ 3 mm，スパン長さ 30 mm）表面あらさ $R_{max}=0.7 \mu\text{m}$ （長手方向）， $R_{max}=2.3 \mu\text{m}$ （板厚方向）〕

Fig. 1 に本研究で用いた試験片の形状を示す。試験片寸法は Fig. 1 に示す大小二種類とし、それぞれについて三点曲げ強度および破壊じん性試験を行った。試験片の表面はレジソボンド 240 番の砥石で長手方向に沿って研削加工した。表面粗さは、試験片の長手方向に $R_{max}=0.7 \mu\text{m}$ ，板厚方向に $R_{max}=2.3 \mu\text{m}$ である。試験片のりょうは 0.2mm の面取りを施した。破壊じん性の評価は、ヌープ圧子押込みにより半円形き裂を導入した試験片を三点曲げにより破壊させることにより行った。き裂導入に用いた荷重は 4.9N~294N の範囲である。ヌープ圧子押込みによる残留応力の影響を除去するため、ヌープ押込み後空气中で 1000°C，1 時間の焼なましを施し、実験に供した。曲げ試験は圧縮試験機（島津万能試験機，最大容量 0.98MN）を用い、クロスヘッド速度約 0.3 mm/min で実施した。試験後、走査型電子顕微鏡を用いて破面観察し、破壊発生 の 起 点 を 調 べ た。

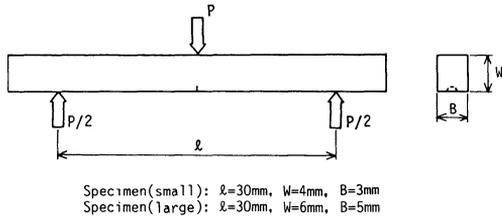


Fig. 1. Geometry of the specimens tested.

3 実験結果と考察

3・1 曲げ強度の寸法効果

ホットプレス窒化ケイ素 A 材および B 材について、Fig. 1 に示す大小二種類の平滑試験片それぞれ 20 本を用い、三点曲げ強度を測定した。Fig. 2 ~ Fig. 5 は得られた曲げ強度と平均値ランク法による累積破壊確率の関係をワイブル確率紙上にプロットしたものである。また、Table II は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たものである。従来セラミックスの寸法効果による強度低下は、有効体積の考え方を用いてワイブル統計により評価されている。すなわち、二種類の試験片の有効体積を V_{E1} 、 V_{E2} とす

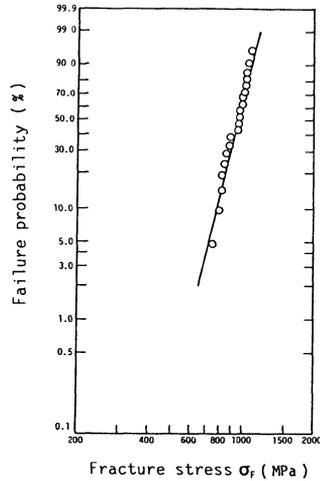


Fig. 2. Weibull plot of the bending strength (material A, small specimen).

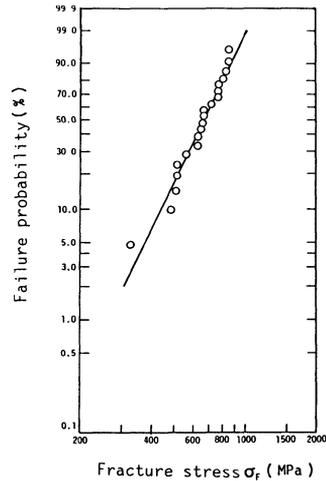


Fig. 3. Weibull plot of the bending strength (material A, large specimen).

れば、それぞれの平均強度 μ_1 、 μ_2 は次式で与えられる。¹⁾

$$\frac{\mu_2}{\mu_1} = \left(\frac{V_{E1}}{V_{E2}} \right)^{\frac{1}{m}} \quad (1)$$

三点曲げの場合、有効体積は $V_E = WB\ell/2(m+1)^2$ (W 、 B 、 ℓ は試験片の幅、高さ、スパン長さ) となることから、本研究で用いた二種類の試験片 4×3

Table II. Fracture stress and Weibull modulus.

Material	Fracture stress (MPa)	Weibull modulus
A (Small)	934 ± 102	9.60
(Large)	840 ± 150	5.24
B (Small)	775 ± 85	9.76
(Large)	658 ± 140	4.47

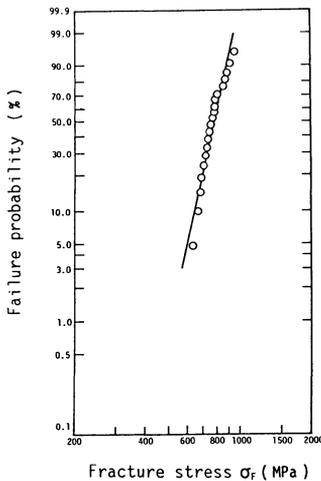


Fig. 4. Weibull plot of the bending strength (material B, small specimen).

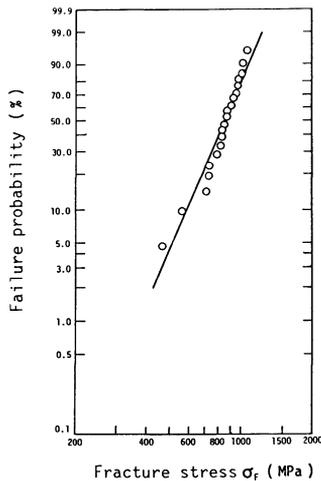


Fig. 5. Weibull plot of the bending strength (material B, large specimen).

×30 と 6×5×30 の平均強度比は

$$\frac{\mu_2}{\mu_1} = (0.4)^{\frac{1}{m}} \quad (2)$$

この場合、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によらず一定の値であることを前提としている。しかしながら、試験片形状を変えて測定した m の値は、これまでに得られた実験結果において必ずしも一致しておらず、本研究の場合にも Fig. 2 ~ Fig. 5 に示す結果で確認されるように試験片寸法の違いにより異なっている。Table III は本研究で使用した大小二種類の試験片の平均曲げ強度比について、それぞれ 20 本の試験片から求めた m の値を用い、式 (2) より求めた予測値と実際の実験結果から得られ

Table III. Ratio of the mean strength for large specimens to that for small specimens.

Material	Experiment	Eq.(2)
A	0.899	$0.909(m=9.60) \sim 0.840(m=5.24)$
B	0.849	$0.910(m=9.76) \sim 0.815(m=4.47)$

る値を比較して示したものである。用いる m の値によって実験値と予測値が一致する場合としない場合がある。

3・2 破壊じん性試験

Fig. 6 ~ Fig. 9 は A, B 材それぞれ大小二種類の試験片にヌープ圧子押し込みにより半円形き裂(表面長 $50\mu\text{m} \sim 1400\mu\text{m}$)を導入し、破壊応力 σ_f (ヌープき裂導入部の公称曲げ応力) とヌープき裂長さ $2c$ の関係をまとめたものである。○はヌープき裂から破壊した試験片で、●は図中に示された寸法のヌープき裂が破壊発生起点とならず、介在物や空孔など材料にあらかじめ含まれていた欠陥から破壊した試験片を表す。また、No Crack と記されているデータ (◐) は、平滑試験片の結果 (Table II) である。ヌープき裂から破断した試験片については、電子顕微鏡による破面観察によって、正確なき裂長さを求め整理している。き裂形状は Fig. 10 に示すようにほぼ半円形であった。破壊応力とき裂長さの関係は、Fig. 6 と Fig. 7 および Fig. 8 と Fig. 9 の比較により、大小二種類の試験片でほとんど差がないことが分かる。一方、A 材の場合 $2c \geq 150\mu\text{m}$ でヌープき裂が破壊の起点となるのに対して、B 材では $2c \geq 200\mu\text{m}$ でヌープき裂から破壊が発生しており、破壊発生起点となるヌープき裂の限界寸法は両者で異なっている。

三好らは、常圧焼結窒化ケイ素を用いた 4 点曲げによる同様な実験において、 $2c \geq 150\mu\text{m}$ でヌープき裂が破壊起点となることを示した⁶⁾。本研究は 3 点曲げによって行われており、曲げモーメントが最大となる試

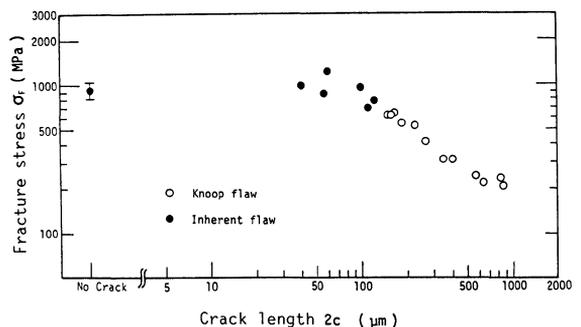


Fig. 6. Relationship between the Knoop indented crack length and the fracture stress (material A, small specimen).

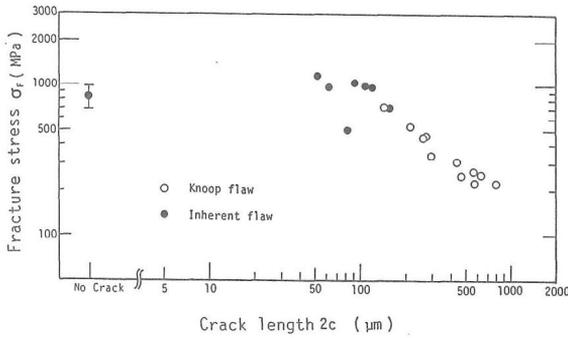


Fig. 7. Relationship between the Knoop indented crack length and the fracture stress (material A, large specimen).

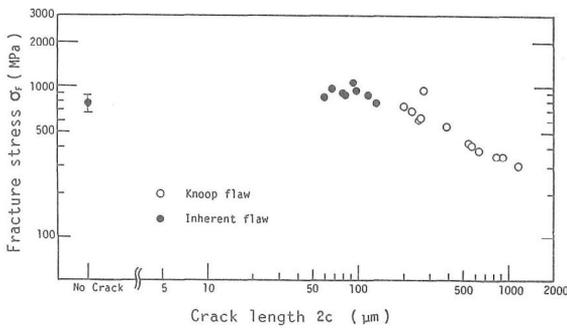


Fig. 8. Relationship between the Knoop indented crack length and the fracture stress (material B, small specimen).

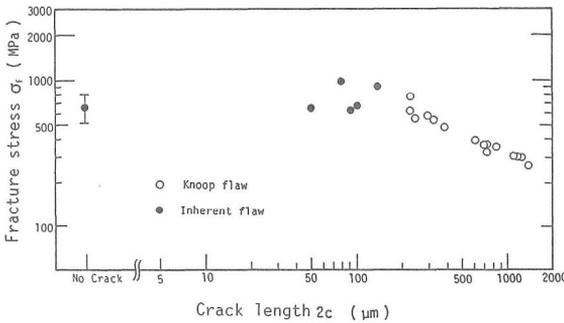


Fig. 9. Relationship between the Knoop indented crack length and the fracture stress (material B, large specimen).

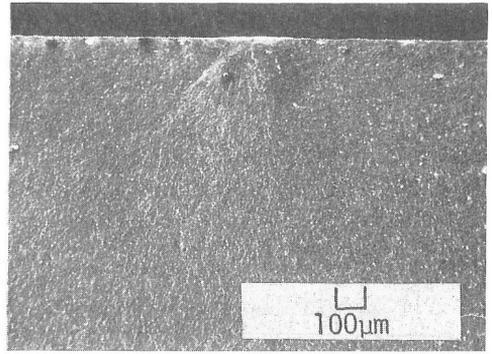


Fig. 10. An example of a semicircular surface crack initially introduced by the Knoop indentation (material A).

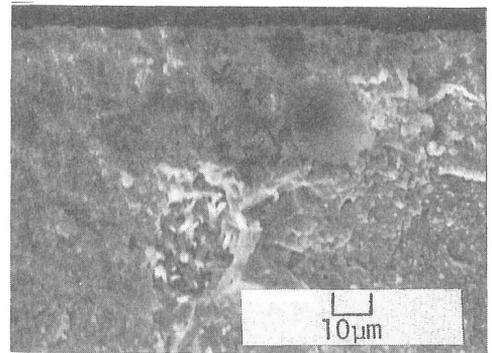


Fig. 11. An example of the fracture origin at a pore (material A).

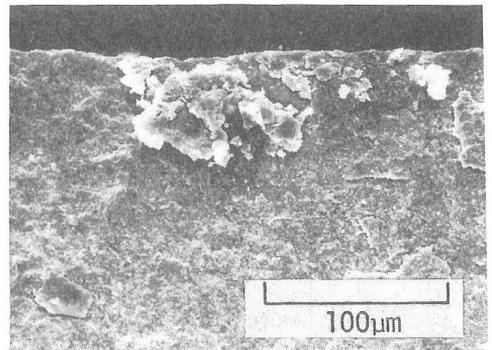


Fig. 12. An example of the fracture origin at an inclusion (material B).

試験片中央部にヌーブき裂を導入しているため、破壊起点がヌーブき裂となる確率が高いものと当初予想された。しかし、ヌーブき裂が破壊の起点となる限界寸法は上述のように三好らの結果と同程度かむしろ大きかった。これは本実験に用いた A, B 材が比較的大きな介在物を多く含んでいるため、ヌーブき裂が破壊発生起点となりにくかったことによるものと考えられる。

Fig. 11 および Fig. 12 は、ヌーブき裂以外が破壊の発生点となった場合の破面観察の例を示したもので、Fig. 11 では空孔が、Fig. 12 では介在物が起点となり破壊している。Fig. 12 に示すような介在物は、曲げ試験片の破面においても A, B 材ともに多くの場合に観察され、特に低応力で破断した試験片には大きな介在物（最大 100 μm 程度）が観察されることが多かった。このような介在物は、焼結前に粉末をかくは

んする目的で混ぜた Al₂O₃ ボールの破片であると考えられる. Table IV はヌープき裂が破壊発生起点となった場合について, Raju-Newman の式により求めた破壊じん性の平均値と標準偏差を示したものである. 破壊じん性値は製法の違いにより異なっている. しかし, 電子顕微鏡による破面観察では, 両者の破面の状態や, 破壊起点となった介在物, 空孔等に明確な違いは認められなかった.

Table IV. Fracture toughness (MPa m^{1/2}).

Material	A	B
Specimen (Small)	6.07±0.84	8.99±0.36
Specimen (Large)	5.99±0.97	8.79±0.63
Average	6.01±0.88	8.88±0.53

3・3 焼なましの影響

Fig. 8 と Fig. 9 に示した結果より, B 材ではヌープき裂以外の欠陥から破壊した試験片の曲げ強度 (図中の●) が, ヌープき裂を導入していない平滑試験片の平均曲げ強度よりもいくぶん高い傾向を示すことが理解される. ヌープき裂を導入した試験片についてはすべて 1000°C 1 時間の焼なましを施しているのので, 熱処理が B 材の曲げ強度に影響を及ぼしていることも考えられる. そこで A, B 両材の平滑材に焼なましを施し, この点について検討した. 両材の破壊応力 ~ 累積破壊関係をそれぞれ Fig. 13 および Fig. 14 に示す. Fig. 2 と Fig. 13 および Fig. 4 と Fig. 14 を比較すると, A, B 材ともに曲げ強度の焼なましによる向上が認められる. 特に B 材では曲げ強度のばらつきも小さくなっていることがわかる.

Table V は, A, B 材について 10 箇所測定したヌープ硬さ (測定荷重 9.8N) の平均値と曲げ強度の平

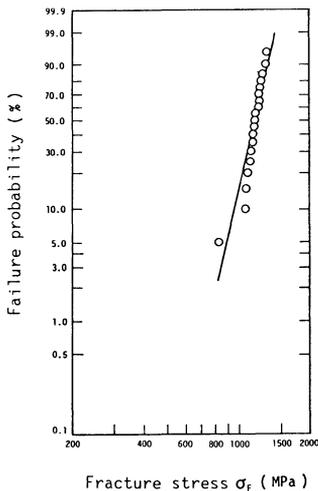


Fig. 13. Weibull plot of the bending stress after annealing (material A, small specimen).

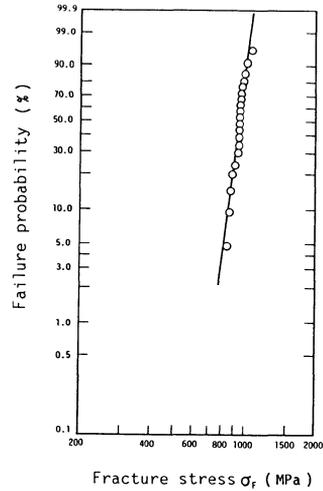


Fig. 14. Weibull plot of the bending stress after annealing (material B, small specimen).

Table V. Comparison of the Knoop hardness, fracture stress and Weibull modulus between before and after annealing.

	Hardness (HK)	Fracture stress (MPa)	Weibull modulus
Material A before annealing	1395	934±102	9.60
after annealing	1320	1181±113	9.60
Material B before annealing	1512	775±85	9.76
after annealing	1136	952±55	18.0

均値と標準偏差およびワイブル係数を熱処理前後で比較して示したものである. 焼なましによって, A 材では 26%, B 材では 23%, 曲げ強度が上昇している. この理由として, 研削加工により生じた試験片表面の加工キズが焼なましによって crack healing を起こした可能性が考えられる. また, B 材では, 熱処理による曲げ強度の改善とともに, ワイブル係数 *m* が大きくなっている. この理由として, 焼なましによる母地の硬さの低下により B 材が潜在的に有する介在物などの欠陥が破壊強度へ及ぼす影響が小さくなったことが考えられる.

4 結 言

焼結方法の異なる二種類のホットプレス窒化ケイ素 A 材および B 材を用いて, 三点曲げ試験ならびに CSF 法による破壊じん性試験を行い以下の結果を得た.

(1) A, B 両材の曲げ強度は寸法効果を示し, 大小試験片でそれぞれ 10% および 15% の強度差を示した. また, ワイブル指数も試験片寸法依存性を示し, 有効体積の考え方を用いて上記の強度差を説明することはできなかった.

(2) 破壊応力とヌープ圧子押し込み導入法によるき裂

長さの関係を調べた結果、ヌープき裂が破壊発起点となる限界き裂長さは、A、B材でそれぞれ150 μm と200 μm で、試料により異なった。一方、走査型電子顕微鏡による破面観察結果では両者の破面の状態や破壊起点となった介在物、空孔等に明確な差は認められなかった。

(3) 1000°C 1時間の焼なまし熱処理により、A、B材ともに曲げ強度が改善された。この理由として、試験片表面の加工キズが焼なましによって crack healing を起こした可能性が考えられる。またB材では熱処理によりワイブル係数も顕著な増加を示した。これは焼なましによる硬さの低下によって、B材が潜在的に有する欠陥の破壊強度への影響が小さくなったことによるものと考えられる。

実験の遂行と結果の整理に協力いただいた卒論生、井樋哲也君（現豊田自動織機製作所(株)）と野中隆治君（現マツダ(株)）に感謝します。

（昭和62年6月25日 第4回破壊力学シンポジウムにて講演）

参 考 文 献

1) セラミックスの機械的性質，窯業協会，セラミックス編

集委員会講座小委員会編（1979）。

- 2) R. W. Rice, S. W. Freimann and J. J. Mechlskey, Jr., J. Amer. Ceram. Soc., **63**, 129 (1980).
- 3) R. F. Cook, B. R. Lawn and C. J. Fairbanks, J. Amer. Ceram. Soc., **68**, 604 (1985).
- 4) 高橋一郎，宇佐美三郎，中門公明，宮田 寛，志田 茂，窯業協会誌，**93**，186（1985）。
- 5) S. Usami, H. Kimoto, I. Takahashi and S. Shida, Eng. Fract. Mech., **23**, 745 (1986).
- 6) 三好俊郎，海老原理徳，佐々 正，日本機械学会論文集，A-**53**，267（1987）。
- 7) 逆井基次，宮島達也，第4回破壊力学シンポジウム講演論文集，165（1987）。
- 8) G. K. Bansal and W. H. Duckworth, Fracture Mechanics of Ceramics, **3**, 189, edited by R. C. Bradt *et al.*, (1978) Plenum Press.
- 9) 山田敏郎，星出敏彦，古屋博章，材料，**33**，28（1987）。
- 10) J. C. Newmann, Jr. and I. S. Raju, Eng. Fract. Mech., **15**，185 (1981).
- 11) 大司達樹，酒井清介，伊藤 勝，山内幸彦，兼松 涉，伊藤正治，窯業協会誌，**94**，38（1986）。