

損傷許容性発現先進無気孔型 SiC の強度特性に対する 負荷速度依存性の検討[†]

松田 伸也^{*} 高橋 学^{**} 岡部 永年^{***}

Study for Loading Rate Dependence on Strength Properties of Advanced Pore-Free SiC with Damage Tolerance

by

Shinya MATSUDA^{*}, Manabu TAKAHASHI^{**} and Nagatoshi OKABE^{***}

Advanced Pore Free SiC (APF-SiC) developed by newly improved reaction sintering method has excellent property such as super-high strength and damage tolerance ability by preceding failure of uniformly dispersing residual metallic silicon particles. In order to clarify effects of damage tolerance on strength property of this material, we have researched by carrying out 4-point bending tests at loading rates. As the result, at above loading rate of 0.5mm/min, it is found that the fracture strengths increase slightly with increasing loading rate. It is considered that delay fracture depended on the time from starting of slip of inclusion to fracture occurs in this material. One the other hand, it is found that the fracture strengths also increase at below loading rate of that. Generally, strength of the residual metallic silicones inviting damage tolerance decreases with decreasing loading rate since slow crack growth occurs. Then a lot of internal energy accumulated by loading is released with decreasing loading rate in this material. Therefore it is considered that resistance toward slip of inclusions increases and this behavior causes damage tolerance in this material, where can be theory explained by effects loading time. Moreover, it is suggested that unified strength estimation method proposed by Okabe et al.¹⁰⁾ would be effectively to estimates strength property of material with damage tolerance ability.

Key words : Advanced Pore-Free SiC, Loading rate, Residual metallic silicon, Inclusion, Delay-fracture, Effect loading time, Unified strength estimation method, Damage tolerance

1 緒 言

セラミックスは、金属材料に比べて耐熱性、耐摩耗性、耐食性などの優れた性質を有するため、半導体部品やガスタービン・自動車用ターボチャージャなどの過酷環境下で使用される構造部材として適用が幅広く期待されている。現在、軽量性・高剛性に着目したセラミックスボールが大きな実績を上げており、主に精密部品である工作機、HDD スピンドルモータや過酷環境下でのターボポンプなどの他に、コモンレールシステムにおける逆流防止弁用ボール¹⁾のようなローテク分野においても、使用条件の高負荷化により金属材料に替わる材料として利用されている。

またこれまで低じん性であるセラミックスを構造材料として実用化するために、信頼性の高い金属材料との複合化^{2)~4)}や、損傷許容性の発現により高じん化を狙ったセラミックス基複合材料(ex. CMC)⁵⁾が創生され研究されている。しかしいずれも高コストとなる他材料との複合化によるじん性改善策であり、セラミックス母材自体の低じん性改善の成果はこれまでほとんど挙げられてなかった。そこで本研究で対象とする損傷許容性を発現する先進無気孔型 SiC (Advanced Pore-Free Silicon Carbide ; 以下

APF-SiC と称する。)は、新種改良した反応焼結法によって改善されたセラミックス材料である。⁶⁾APF-SiC は、ミクロンオーダーの炭化ケイ素 (SiC) および炭素 (C) 粉末からなる圧粉母材に従来の焼結法より多くの金属ケイ素 (Si) を含浸させているので、多くの SiC が反応生成され、SiC 粒界に遊離 Si が均一に充填している無気孔の SiC 先進材料である。しかも無気孔であることから高強度であり、反応焼結法を用いているため焼結温度が低いので、接合部材や複合セラミックスに比べて低コストである。また APF-SiC は均一に分散している遊離 Si が優先して損傷することによって損傷許容性を発現する。また従来のモノリシックセラミックス破壊とは異なる破壊メカニズム(次節にて紹介する。)であることを明らかにした。^{7)~9)}

本研究では、負荷速度を変化させた 4 点曲げ試験を行い、曲げ強度特性に及ぼす損傷許容性の影響を調査した。そして実験結果から負荷速度の相違による破壊機構を考察し、これらに基づいて損傷許容性を考慮した有効負荷時間を導出して整理することによって強度特性を理論的に検討した。さらに評価の一検討として統一的評価法¹⁰⁾の有効性について検討した。

[†] 原稿受理 平成 19 年 5 月 17 日 Received May 17, 2007 ©2008 The Society of Materials Science, Japan

^{*} 愛媛大学大学院理工学研究科 〒790-8577 松山市文京町, Graduate student, Graduate school of Sci. and Eng., Ehime Univ., Bunkyo-cho, Matsuyama, 790-8577

^{**} 正 会 員 愛媛大学大学院理工学研究科生産環境工学専攻 〒790-8577 松山市文京町, Graduate school of Sci. and Eng., Ehime Univ., Bunkyo-cho, Matsuyama, 790-8577

^{***} 正 会 員 愛媛大学キャンパス・イノベーションセンター 〒108-0023 東京都港区芝浦, Campus innovation center, Ehime Univ., Minato-ku, Tokyo, 108-0023

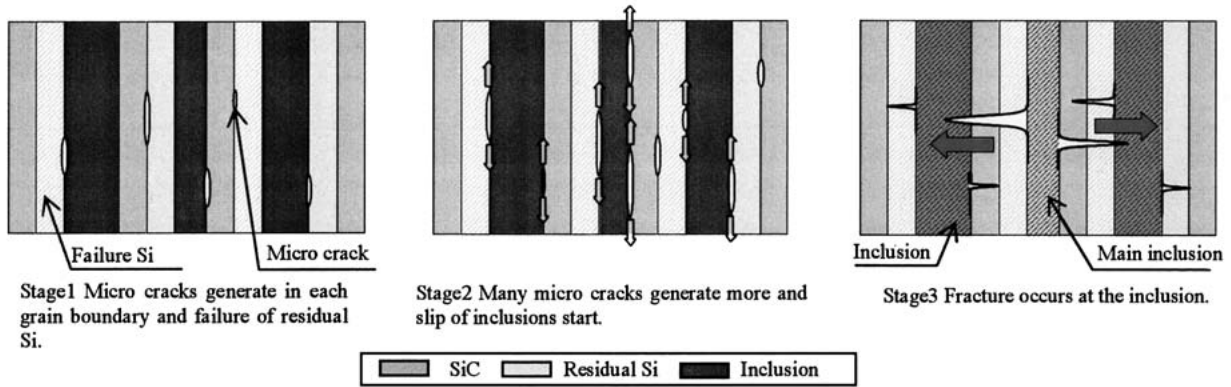


Fig. 1 Fracture process.

2 APF-SiC の破壊メカニズム

従来のモノリシックセラミックスは、製造された段階で残存する数十 μm オーダーの複数の欠陥の内の一つを起点として破壊し、そのバルク強度は欠陥の大きさおよび分布状況に支配される。しかしこのような欠陥が存在しない本材料は、予期されなかった複数の反応していない炭素 (C) の塊 (以後、介在物と称する。) が点在しており、これを起点として破壊が起こる。そのためバルク強度およびそのばらつきは介在物の大きさおよび分布に支配される。

Fig. 1 に破壊プロセスの概略図を示す。Stage 1 では、負荷を受けることによって各粒界からの微小き裂の発生や、複数の遊離 Si が損傷する。Stage 2 では、負荷の増大に伴って遊離 Si の損傷量が増大し、介在物の境界でき裂が発生して取り囲むように進展し、これのすべりが始まる。Stage 3 ではすべりを起こしている複数の介在物のうちの一つのまわりの応力拡大係数 K が臨界値 K_C を超えると、不安定破壊に突入し、それと同時に他の介在物や、損傷した遊離 Si から誘起されて破壊する。そのため本材料は多くの破片を伴う破壊を起こす。以上のことから、一つの介在物を起点として破壊を起こすと考えられるため、本材料は最弱リンクモデル説に基づいた時間依存型の遅れ破壊であると仮定することができる。

3 試験方法

3.1 供試材

供試材は、参考文献 (6) に基づいて製造し、提供された APF-SiC である。試験片の形状は矩形形状であり、寸法は $4 \times 3 \times 40\text{mm}$ である。なお、APF-SiC の微構造は参考文献 (6) とほぼ同等である。また JIS 規格に基づいて調査した供試材の室温での機械的特性を Table 1 に示す。

3.2 4点曲げ破壊試験

4点曲げ破壊試験は、ファインセラミックスの曲げ強さ試験方法 (JIS R 1601¹¹⁾) に準じて大気中室温環境にて実施した。また4点曲げ治具 (上スパン $L_1 = 10\text{mm}$, 下スパン $L_2 = 30\text{mm}$) は、容量 2kN の万能試験機に設置した。試験負荷条件は、破壊までのクロスヘッド変位速度を一定とし、0.03, 0.5 および 50mm/min の3つの速度について実験を行った。また破壊強度 σ_f は、

$$\sigma_f = \frac{3P_f(L_2 - L_1)}{2wt^2} \quad (1)$$

より評価した。ここで P_f は破断荷重 [N] である。

Table 1 Mechanical properties.

Young's modules E [GPa]	Poisson's ratio ν	Fracture toughness K_{IC} [MPa $\cdot$ m ^{1/2}]	Vickers hardness H_V
361	0.16	4.1	2364

4 試験結果

4.1 4点曲げ破壊強度

製造された試験片数に限りがあるため、データ数は非常に少ないが、Fig. 2 は各々の負荷速度での破壊強度を2母数ワイブル確率紙上に整理しており、Table 2 は最小二乗法により推定した負荷速度 0.5mm/min での形状母数 m および尺度母数 σ_0 を示す。ここで、Fig. 2 において負荷速度 0.03mm/min のワイブル線図はデータ数に信頼性がないため、仮想線として引いている。負荷速度 50mm/min での破壊強度 σ_{f-fast} は、データは一つではあるが負荷速度 0.5mm/min での破壊強度 σ_{f-usu} のプロット上にある。そのため σ_{f-fast} と σ_{f-usu} はほぼ同等であると推察される。一方、負荷速度 0.03mm/min での破壊強度 σ_{f-low} は、 σ_{f-usu} や σ_{f-fast} のプロットよりも右側に位置

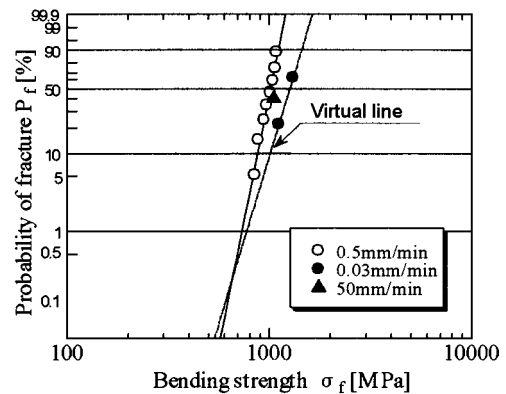


Fig. 2 2-parameter Weibull distributions of fracture strengths at loading rates.

Table 2 Weibull parameters at loading rate of 0.5mm/min.

Shape parameter m	Scale parameter σ_0 [MPa]
11.9	1021

しているため強度は高くなると推察される。よって、 σ_{f-low} と σ_{f-usu} および σ_{f-fast} のばらつきも、支配要因が各々で異なると考えられ、これらのことについて後ほど考察する。

4・2 巨視的な破壊形態の観察

Fig. 3に各負荷速度での試験片の損傷状態を示す。すべてAPF-SiCの特徴である多くの破片の脱落を伴う破壊である。しかしながら負荷速度の低下に伴い破片の数は増加している。ここで負荷速度0.03mm/minでの損傷状態は、破壊強度が他の負荷速度の破壊強度より高いため損傷が激しいと考えられる。しかし負荷速度50mm/minの破壊強度は、負荷速度0.5mm/minの破壊強度とほぼ同等であるため、損傷形態はほぼ同じになると考えられるが、損傷形態には明らかな相違が認められた。

5 考 察

5・1 損傷許容性の負荷速度依存性

本材料は優れた損傷許容性を有するので、強度特性の考察を行うにあたり損傷許容性創出に対する負荷速度の影響について考察した。

本材料の損傷許容性は、主に遊離金属ケイ素 (Si) が優先して損傷することで発現する。そもそも一般的なSiはぜい性材料であり、ヤング率は約176GPa、曲げ強度は約98MPa程度であるため機械的特性は非常に低い。¹²⁾ また他のセラミックス材料と同様にSCG (Slow Crack Growth) 破壊を起こすので、強度は負荷速度に支配される。¹³⁾ このことから、本材料に分布している遊離Siの特性もこれとほぼ同等の特性を有すると推察される。したがって損傷許容性の発現量は負荷速度の低下に伴って増加すると考えられる。このことは、Fig. 3に示した破壊した試験片の破片数は負荷速度の低下に伴って増加する関係とよく一致する。なぜなら遊離Siの損傷量の増加は破損した試験片の破片の数の増加をもたらすからである。

5・2 強度特性と損傷許容性

Fig. 4は、Fig. 2の破壊強度 σ_f を応力速度 $\dot{\sigma}$ との関係に整理した線図を示す。ここで $\dot{\sigma}$ は負荷速度一定の試験において、任意の公称破壊強度 σ_f と実負荷時間 t_f の関係より、

$$\sigma_f = \dot{\sigma} t_f \quad (2)$$

のような見かけ上の線形関数として算出した。Fig. 4のようにJIS規格に基づく標準負荷速度0.5mm/minでの曲げ強度を標準とすると、それぞれ2つの領域に整理することができ、これを遷移点と仮定した。ここで各領域における強度特性の相違を破壊メカニズムの観点から考察した。

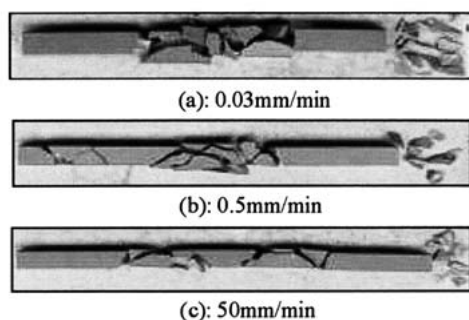


Fig. 3 Fracture morphologies at loading rates.

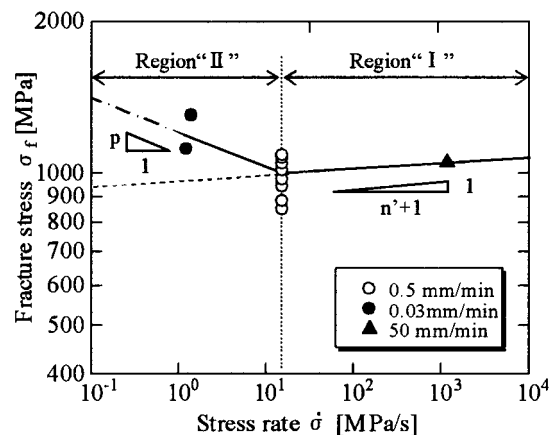


Fig. 4 σ_f - $\dot{\sigma}$ curve.

(領域 “I”)

負荷されて蓄えられた内部エネルギーは、遊離Siが損傷することに費やされるよりも、複数の介在物がすべることに多く費やされる。そのため破壊の起点となる介在物のすべりはほとんど抑制されず、破壊が起こる。よってこの領域は、従来のモノリシックセラミックスに見られる遅れ破壊であると考えられ、 σ_f およびそのばらつき m_I は各ロッドに残存する介在物の大きさおよび分布量のみ依存すると推察される。このことからこの領域における強度がほぼ同等であったのは、介在物のすべりによる安定破壊がほとんど起こらずに不安定破壊へと突入して破壊しているためと言えよう。

(領域 “II”)

負荷されたエネルギーは主に遊離Siの損傷に費やされ、介在物のすべりが一時的に停留する。そして遊離Si量には限りがあるため、ある臨界値間際になると損傷がほとんど発生しなくなる。その後、ほとんどの負荷エネルギーが介在物粒界においてき裂が発生・進展することや、すべることに費やされて破壊を起こす。すなわち強度上昇の原因は、損傷許容性の発現により見かけ上のじん性値が上昇するためである。このような現象は既往の研究において静疲労試験結果からも見られている（この詳細は文献(9)を参考のこと）。このことから強度のばらつき m_{II} は各ロッドによって異なる、内在する介在物の大きさおよび分布に加えて、損傷許容性によって上昇する見掛け上のじん性値の量を決定する遊離Siの分布量にも支配されると推察される。

これらの結果より、本材料は負荷速度の如何によらず介在物がすべり始めて、破壊に至るまでの時間に支配される遅れ破壊であり、強度のばらつきは、 $m_I < m_{II}$ となると推察される。また σ_f - $\dot{\sigma}$ 線図にて仮定した遷移点は、介在物のすべりに対して損傷許容性による見掛け上の抵抗値が現れる限界点であると推察される。

5・3 破壊強度に及ぼす損傷許容性の影響に対する理論的考察

考察した破壊強度に及ぼす損傷許容性の影響に対してさらに理論的な観点から検討した。本材料は、時間依存型破壊であるが、負荷速度が極めて遅い場合、損傷許容性の影響により強度上昇が生じるため、従来のように応

力速度 $\dot{\sigma}$, つまり実負荷時間 t_f のみでは説明することができない. そこで本材料は次式に示すような介在物がすべり始めて破壊するまでの時間である有効負荷時間 $t_{eff}^{14)}$

$$t_{eff} = \int_0^{t_f} \left(\frac{\sigma}{\sigma_{max}} \right)^n dt = \frac{t_f}{n+1} \quad (3)$$

を用いた. ここで右辺は曲げ試験の場合の式を示しており, n はいわゆる遅れ破壊時のき裂進展速度より決定する材料定数である.

Fig. 4 に示した領域 “I” のように損傷許容性が発現しない場合, 曲げ強度 σ_f と t_f の関係は一般式を用いて,

$$\sigma_f = C t_f^{-\frac{1}{n'}} \quad (4)$$

のような近似式で表した. ここで, C は介在物のすべりを抑制することができる有効な損傷許容性発現量によって決まる任意定数, n' は介在物のすべり速度である. よって領域 “I” での有効負荷時間 t_{eff-I} は, n' を用いて

$$t_{eff-I} = \frac{t_f}{n'+1} \quad (5)$$

として評価した. また, σ_f は t_{eff} を用いて,

$$\sigma_f = C [t_{eff}(n'+1)]^{-\frac{1}{n'}} \quad (6)$$

のように表される. 一方, 領域 “II” での σ_f と t_f の関係は, Fig. 4 における傾き p を用いることによって,

$$\sigma_f = C t_f^{p/(1+p)} \quad (7)$$

のように表すことができる. ここで p は損傷許容性の発現に関する一パラメータとみなした. よって, 領域 “II” での損傷許容性を考慮した有効負荷時間 t_{eff-II} は, 式 (6) と式 (7) より,

$$t_{eff-II} = \frac{t_f^{-n'p/(1+p)}}{n'+1} \quad (8)$$

として評価した. Fig. 5 に σ_f と t_{eff} の関係を示す. このように全データを σ_f と t_{eff} の関係にすることで一次近似直線によって表すことができる. したがって破壊強度は負荷速度によらず, 介在物のすべりが始まって破壊までの時間依存型破壊であることが明らかとなった. このことから負荷速度 0.5mm/min で仮定した損傷許容性発現の遷移点は妥当であると言えよう. しかしながら, 本研究ではデータ数が非常に少なく信頼性に欠けるためこの遷移点は若干前後することに留意する必要がある.

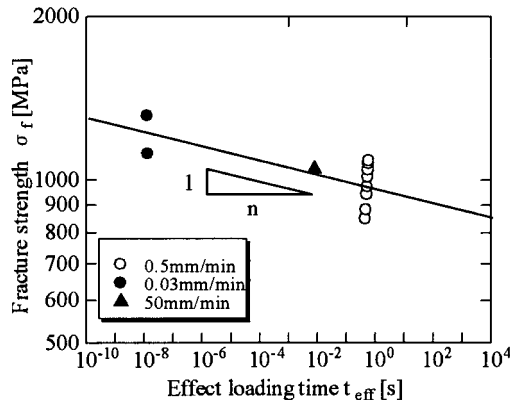


Fig. 5 Relationship between fracture strength and effects loading time.

5・4 負荷速度依存性を考慮した評価法への示唆

これまで金属材料は強度信頼性が高いため, 機械構造物の疲労設計には, 主に実験的調査に基づいた S-N 線図が用いられており, 経時破壊に対して簡易的に評価することができる. しかしセラミックス材料は, 金属材料のように塑性変形による著しい応力緩和を伴わないため, ワイブル分布を用いた確率論的手法による評価が重要となる. そこで, 本材料は介在物がすべり始めて破壊するまでの時間依存型遅れ破壊であり有効負荷時間 t_{eff} を用いることによって破壊強度は整理できることが明らかとなったため, 岡部らによって提唱されている統一的評価法の適用を試みた.

各領域のばらつきを考慮するため, 各ロッドの大きさや応力状態に依存する各有効体積 V_{eff} を次式より算出した.

$$V_{eff} = \int_V \left(\frac{\sigma}{\sigma_{max}} \right)^m dV \quad (9-1)$$

$$V_{eff-I} = \frac{V(m_I + 3)}{6(m_I + 1)^2} \quad (9-2)$$

$$V_{eff-II} = \frac{V(m_{II} + 3)}{6(m_{II} + 1)^2} \quad (9-3)$$

さらにこれらと t_{eff} を考慮し次式のように各領域の基準化強度 $\tilde{\sigma}_f$ を推定した.

$$\tilde{\sigma}_f = \sigma_{f-I} t_{eff-I}^{\frac{1}{n}} V_{eff-I}^{\frac{1}{m_I}} \quad (10-1)$$

$$\tilde{\sigma}_f = \sigma_{f-II} t_{eff-II}^{\frac{1}{n}} V_{eff-II}^{\frac{1}{m_{II}}} \quad (10-2)$$

ここで m_I , m_{II} , t_{eff-I} , t_{eff-II} , V_{eff-I} , V_{eff-II} , σ_{f-I} , σ_{f-II} は各領域 “I” (負荷速度 ≥ 0.5 mm/min) と “II” (負荷速度 < 0.5 mm/min) における形状母数, 有効負荷時間, 有効体積, 破壊強度である. ここで, 本実験データを整理するにあたって, 負荷速度 50mm/min での形状母数は負荷速度 0.5mm/min のものを用い, 負荷速度 0.03 mm/min での形状母数は Fig. 2 より最小二乗法によって算出した仮想値を用いた. よってすべての $\tilde{\sigma}_f$ を確率変数とすると, 理論的にも導かれる 2 母数ワイブル分布を前提として累積破壊確率 P_f は,

$$P_f = 1 - \exp \left\{ - \left(\frac{\tilde{\sigma}_f}{\tilde{\sigma}_0} \right)^m \right\} \quad (11)$$

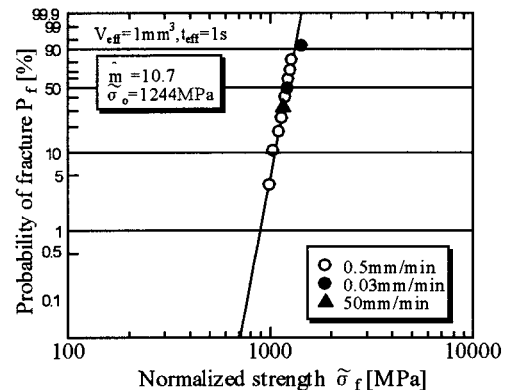


Fig. 6 2-parameter Weibull distribution of normalized strength.

のように表せ, Fig. 6 ように 2 母数ワイブル分布によって近似することができ, 負荷速度の如何によらず損傷許容性の発現を考慮して強度を統一的に整理することができる.

それゆえ, 応力と破断時間との確率論的關係は,

$$\sigma_f t_{eff}^{\frac{1}{n}} = \tilde{\sigma}_0 \sqrt[n]{\ln(1-P_f)^{-1} / V_{eff}} \quad (12)$$

のように表される. Fig. 7 に式 (12) から推定した破壊確率 $P_f = 1, 10, 50, 99.9\%$ での破断時間強度特性と実験データのプロットを示す. よってこのことから損傷許容性を有する材料の強度特性を評価するためには, 確率論的に破壊強度と有効負荷時間の関係として整理することが有用であることを示唆している.

6 結 言

本研究では, 負荷速度が及ぼす曲げ強度特性の調査を行い, 負荷速度の相違による破壊機構を考察した. そしてこれらに基づいて損傷許容性を考慮した有効負荷時間を導出して整理することによって強度特性を理論的に検討し, さらに評価法として統一的評価法の検討を試みた. これらの要点を以下に述べる.

(1) 本材料は, 負荷速度が約 0.5mm/min 未満になると, 損傷許容性の創出により見かけ上のじん性値の上昇によって強度は上昇する. そのため強度のばらつきは, 残存する介在物の大きさおよび分布に加えて損傷許容性の創出量にも依存する. このことは, 損傷許容性を考慮した有効負荷時間で整理することによって明らかにされた.

(2) 本材料の破壊はすべて負荷速度によらず介在物がすべり始めて破壊するまでの時間に依存した遅れ破壊であり, 有効負荷時間による評価が有効である. したがって, 損傷許容性を有する材料の強度特性を評価するためには統一的評価法を適用することが有効であることを示した.

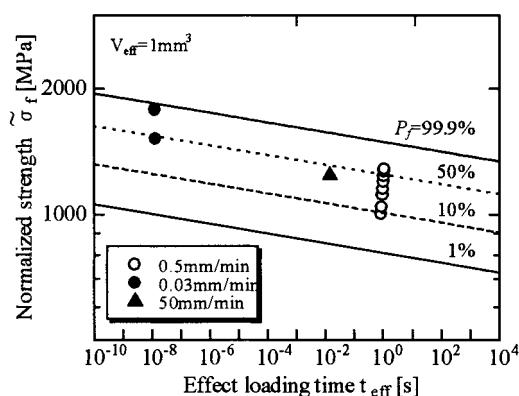


Fig. 7 Diagram of delayed fracture properties normalized all data of fracture strength.

参 考 文 献

- 1) Y. Abe, N. Okabe, M. Takahashi, S. Toyota and K. Fujiki, "Contact strength analysis within the backflow valve ceramic ball", Proceedings of the Mechanical Engineering Congress, 2006 Japan (MECJ-06), pp.201-202 (2006) The Japan Society of Mechanical Engineers.
- 2) N. Okabe, M. Takahashi, X. Zhu, K. Kagawa and M. Maruyama, "Residual stresses and fatigue strength properties of ceramic/metal joints", The Society of Materials Science, Japan, Vol.48, No.12, pp.1416-1422 (1999).
- 3) M. Takahashi, N. Okabe, X. Zhu, K. Kagawa and H. Kobayashi, "Study on optimum thickness of interlayer in ceramic/metal joints", The Society of Materials Science, Japan, Vol.49, No.8, pp.905-911 (2000).
- 4) X. Zhu, N. Okabe, M. Takahashi and M. Nakahashi, "Influence of joint structure of ceramic-metal on its residual strength", The Society of Materials Science, Japan, Vol.54, No.7, pp.741-747 (2005).
- 5) N. Okabe, "Ceramic matrix composite with multi-functional properties", Journal of the Japan Society of Mechanical Engineers (1996).
- 6) S. Suyama, Y. Itoh, A. Kohyama and Y. Katoh, "Development of high strength reaction-sintered silicon carbide", Journal of the Ceramic Society of Japan, Vol.109, pp.315-321 (2001).
- 7) S. Matsuda, M. Takahashi and N. Okabe, "Fracture mechanism of pore-free ceramics", Proceedings of Mechanical Engineering Congress, 2006 Japan (MECJ-06), pp.201-202 (2006) The Japan Society of Mechanical Engineers.
- 8) S. Matsuda, H. Ohfuji, M. Matsushita, M. Takahashi and N. Okabe, "Micro Observation and mapping analysis on fracture surface of advanced pore-free SiC", 6th annual meeting (2007) The Society of Materials Science, Japan (Shikoku Branch).
- 9) S. Matsuda, M. Takahashi and N. Okabe, "Fracture properties for advanced pore-free SiC dispersing of Si particles", The Japan Society of Mechanical Engineers, Vol.73, No.732, pp.926-933 (2007-8).
- 10) N. Okabe and H. Hirata, "Cyclic fatigue in ceramics", Elsevier Science B. V. and The Society of Materials Science, Japan (1995), pp.245-276 (1995).
- 11) Japan Society for the Promotion of Science, "Technology handbook of fine ceramics", pp.153-155 (1998) Uchida Rokakuho Publishing Co., Ltd..
- 12) T. Ando, "Hakumakuzairyo no Onchippu Hipparishiken narabini Hiroshiken", (2001) NAGOYA university (In Japanese).
- 13) T. Tsuchiya, "Mechanical reliability in MEMS", Reliability Engineering Association of Japan, Vol.27, No.2, pp.105-112 (2005).
- 14) M. Takahashi, N. Okabe and H. Kobayashi, "Probabilistic estimation of fracture strength considering loading time in ceramics/metal joints", The Society of Materials Science, Japan, Vol.48, No.11, pp.1288-1293 (1999).