

MgOセラミックスの引張破壊強度，き裂伝ば挙動 およびX線回折プロファイル

瀧本 昭夫*・広沢 耕造**・藤井 敏男*・戸田 靖彦**・岩谷 健治*

Fracture Strength and Crack Propagation Behaviour of MgO Sheet Specimens under Tension and an Analysis of X-ray Diffraction Profile under Bending

Akio TAKIMOTO, Kouzou HIROSAWA, Toshio FUJII, Yasuhiko TODA and Kenji IWATANI

Abstract

Small-size smooth specimens of the high purity MgO and the similar fine-ceramics sheet materials are fractured under tension at room temperature. Here, the specimen's design and size and the way of loading tensile force, used for the previous investigation on the fracture of SIALON sheet specimen, are employed and the variation and scattering in fracture strength due to the materials i.e., the high purity MgO and the other five kinds of similar fine-ceramics materials, are studied and compared. A center-notched and a single edge-notched medium-size tensile sheet specimens having various tip-radius are fractured under tension at temperatures of 20°C and 1000°C. Notched fracture strength is found to be controlled by not only the notch geometries but also the stress field around the notch tip-radius due to the thermal expansion. Fracture strength, of course, shows the strong dependence on the notch tip-radius (ρ) down to $\rho \approx 15\mu\text{m}$ and it shows very little dependence at $\rho < 15\mu\text{m}$, and we estimate the fracture toughness value of the high purity MgO sheet specimen based on the fracture strength of the specimens having $\rho \approx 15\mu\text{m}$.

The crack propagation behaviour of the MgO sheet specimen during a cycle of heating up to 1000°C and cooling down to 20°C under free hanging in the furnace is examined. The crack proceeded straightly in the first stage and curved upside or/and downside and then it stopped. The detail mechanism of this phenomena is very complicated and is not known at present. The average crack propagation velocity of the single edge-notched specimen is measured at 300°C and 20°C. The former gives about 53m/s and the latter does about 1830m/s and this says that the average crack velocity is faster the stronger the fracture strength.

Analysis of the X-ray diffraction pattern (Cu target) is made for the MgO sheet specimen at various elastic strain under bending. The integrated intensity ratio and the relative half-width ratio of the (111) peak profile show the more correspondence than the other planes' profiles with respect to the elastic tensile strain and the former decreases with increasing the strain and the latter increases with increasing the strain.

*機械工学科

**宇部興産(株)

1. 緒 言

ぜい性材料やセラミックスの破壊強度は試験片形状、負荷様式、試験方法によって変わることは古くから知られており、その統計的な解析はワイブルの報告⁽¹⁾に端を発している。種々のファイン・セラミックスも当然のことながらそれに基づいて物性が解析され、そのm値は材料のばらつきを示すパラメータとして広く使われている。ファイン・セラミックスの破壊強度はその試験の容易さなどから平滑、単純形状試験片での曲げ試験によるのが主であるが、瀧本らは引張試験の平滑破壊強度のみならず、き裂伝ば速度測定および強度・速度による破面形状や破面模様変化を測定できる薄板状小型平滑試験片形状と引張試験方法を提唱している⁽²⁾⁽³⁾。ここでは同試験片を用いたAブランドMgOを中心としてそれに類するファイン・セラミックス材料の同試験を行い、材料による引張破壊強度およびワイブル値の比較・検討することを目的とした。また、同MgO板材の中央および片側切欠き試験片の室温および高温(1000°Cまで)での引張試験をし、切欠き形状および試験温度による破壊強度変化などを検討した。MgOは熱膨張率が他のファイン・セラミックスに比べ約2倍の大きさを示すことから加熱・冷却時のき裂伝ば挙動の解明も大切な問題と考えられる。急加熱・急冷却時の熱衝撃割れ発生状況の定性的な観察なども行っているが、ここでは、無負荷状態での片側き裂の加熱・冷却過程におけるき裂伝ば挙動や300°Cおよび室温での同試験片の引張試験における平均き裂伝ば速度測定などを報告した。

次に、強制負荷ひずみとX線プロファイル変化の相関性が得られれば、MgO工業用焼成品の平面部や曲部(R部)の加工による残留応力の情報が得られるものとして、X線回折装置上に設置できる小型曲げ試験治具を設計し、上記関係を求めた結果を報告した。試験数が充分とは言えないが、(111)面回折プロファイルによる積分強度および相対半幅幅値と曲げひずみの間に相関関係が得られた。

ここには、これまで得られている結果を報告したが、MgOファイン・セラミックスについてはまだ種々の重複試験をして物性を正確に把握する必要がある。

2. 実験方法

MgOおよびそれに類似する5種類のセラミックスの、2mm厚板材平滑試験片の引張破壊強度およびそれら材

質による強度のばらつきを比較するためFig. 1 (a)の小型引張試験片による室温での破壊試験を行なった。セラミックスの多くは曲げ試験により行われているが、ここでは上記引張試験片を用いた。この試験片形状は瀧本ら⁽²⁾⁽³⁾が先にサイアロン引張試験片の破壊強度、き裂伝ば速度および前2者と破面上に現れるうろこ状模様の関係を定量的に求めるのに用いたもので、ぜい性プラスチックUPによる多数の引張破壊試験片にてその形状および引張負荷方法を吟味した⁽⁴⁾⁽⁵⁾⁽⁶⁾のものである。次に、中型の中央および片側切欠き試験片の強度や、それらに及ぼす切欠き深さおよびその先端半径による影響を定量的に求めるために用いたのがFig. 1, (b)で、それに同図(b'), (c)の中央切欠きをつけたものと同図(d)の片側切欠きをつけたもの(以後、Single edge notched tensionをSENTと略す)を用いた。中央切欠き試験片は室温から1000°Cまで、SENT試験片は室温および300°Cで破壊試験を行なった。SENT試験は室温から1000°Cに至るまでの加熱過程で破断してしまうため(たとえ、自由懸垂状態で徐々に加熱しても)、300°C以上の温度による破壊挙動は求め難い。

上記、中型SENT試験片は自由懸垂状態において加熱過程で、き裂が伝ばするため、試験片の自重だけによる1サイクルの加熱・冷却(加熱速度50°C/hr~200°C/hrで1000°Cまでおよび冷却速度50°C/hr~400°C/hr)におけるき裂伝ば挙動を調べた。また、金細線スパッタリング・速度ゲージおよびDSAなどによる⁽⁷⁾⁽⁸⁾⁽⁹⁾室温および300°Cでの中型SENT試験片の引張試験におけるき裂伝ば速度を求めた。

MgOの焼結実用品を機械加工する時、しばしば加工によるき裂が生じる。焼結状態および焼結後高温(1200°C)長時間加熱焼鈍状態での結晶格子ひずみまたは応力の情報を得るため、Fig. 1 (e)の試験片で曲げ応力下の引張り側表面で種々の結晶面によるX線回折プロファイルを調べた。X線回折装置上での試験片の曲げはFig. 2の4点曲げ治具を用い、中央に短冊状MgO試験片(2mm厚)を、その両側にガイド用としてS50C焼鈍材の同一形状試験片を取り付けた。MgO試験に直接ひずみゲージを貼付したのものによる試験とMgOおよびS50C両試験片にゲージを貼付したものなどによる曲げ試験より、あらかじめ、両者のひずみゲージ出力を表した直線関係も一部使用した。

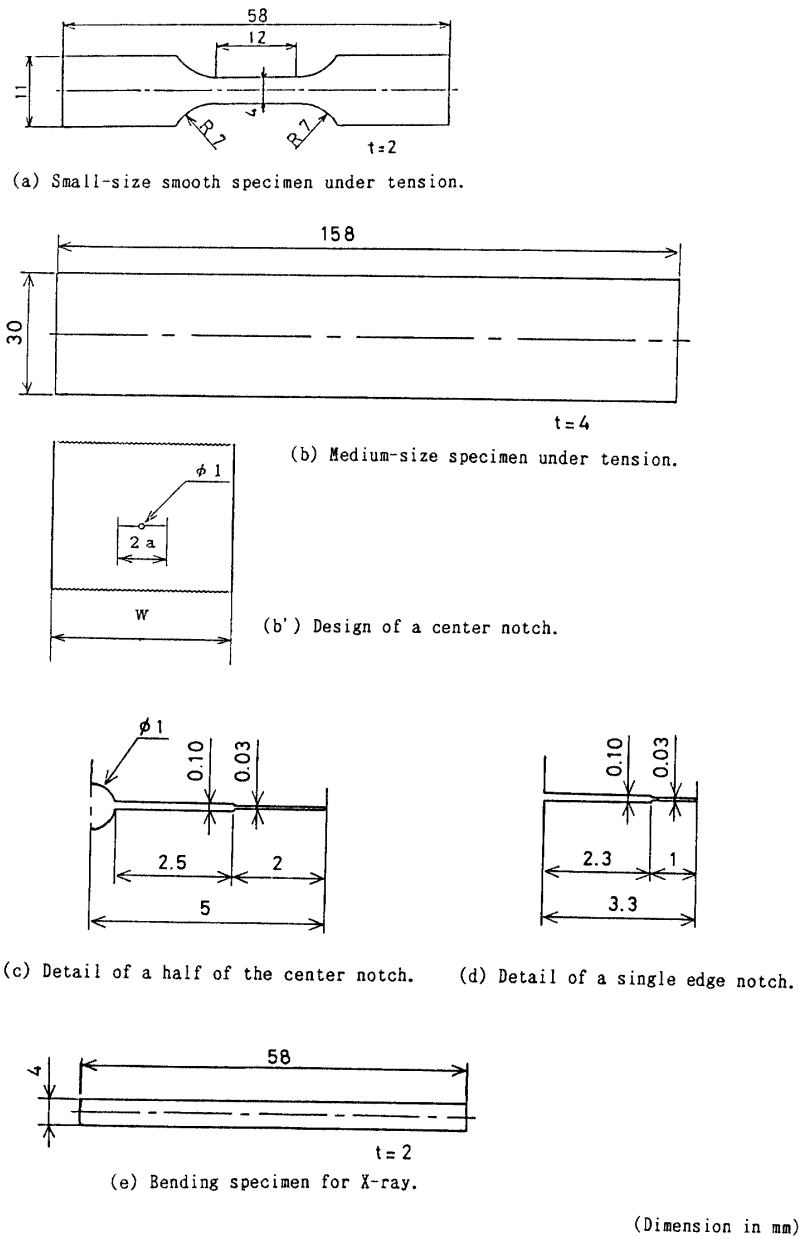


Fig. 1 Specimen designs.

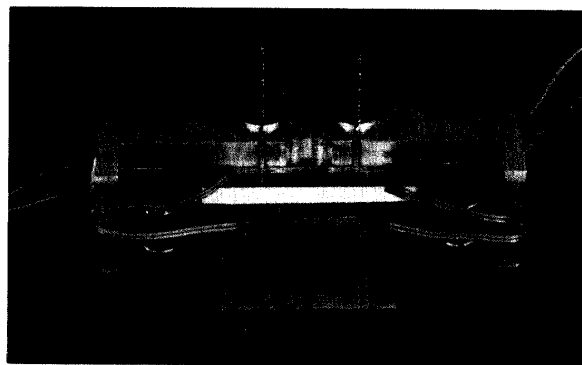


Fig. 2 Bending jig for X-ray diffraction. A MgO Specimen is set at the center and one of each S50C-specimen is set separately at its both sides.

3. 結果および検討

3.1 平滑および切欠き引張試験片の破壊強度

小型平滑試験による引張破壊強度比と破壊確率の関係をFig. 3および4に示した。前者は3種類のMgOの結果を比較したもので、平均破壊強度はグレードの高いAブランド品が179.7MPaと強く、またWeibullのm値(メジアン・ランク法による値)も16.2と大きく、安定した材質を表している。グレードの低いとされるBブランド品は強度が141.8MPaと弱くなり、m値も8.61と極端に低い。Cブランド品は強度があまり高くないものの、m値が大きく、破壊強度のばらつきの少ないことが分かる。この図に示したように、Fig. 1(a)の小型平滑引張試験片は、前報⁽²⁾⁽³⁾のように、き裂伝ば速度やそれによる破面模様変化の研究に適しているのみならず、セラミックスの材質比較もできることを示している。Fig. 4はAl₂O₃系セラミックスの結果を比較したもので、前図に比べ現時点では試験数が少ないが(目下、破壊試験継続中)、強度比と破壊確率の関係をよく表しており(何れの曲線にも相関係数 Γ 値を付記した)、前図のMgOに比べ平均破壊強度は大きくなっているが、m値が小さく、強度のばらつきが大きくなっている。これら両図に示したように、Fig. 1(a)の試験片形状による室温引張破壊で6種類のセラミックスの材質比較がよく示されている。

次に、Fig. 5にぜい性プラスチック(UP)および

サイアロンにより求めたSENT試験片の切欠き先端半径および切欠き深さによる破壊強度の関係を示した。基本的には弾性応力集中係数はき裂長さ(c)の1/2乗にまた、き裂先端半径(ρ)の-1/2乗に近似的に比例し $[K_t=1+2\sqrt{c/\rho}]$ 、破壊強度は K_t に逆比例することになるが、材質や試片形状などにより、上記単純な関係が成立し難いのはよく知られている。中でも、 ρ が小さくなるとその傾向が一段と明白になる。図は ρ 値が一定値以下になると、破壊強度が殆ど一定値に近付かなくなるか、又はその変化率が非常に小さくなることを示している。UPでは $\rho=14\sim 15\mu\text{m}$ 以下では鋭い切欠き先端の塑性域の拡がりに強度が左・右されているのであろうし⁽⁴⁾、実用のSIALONでも切欠き深さ(ND)が約13~22%では $\rho=11\mu\text{m}$ 位で強度低下が非常にゆるやかになっている⁽⁴⁾。1000°Cの強度変化はよりその傾向が顕著である。同様な関係を中型MgO、SENT試験片で調べたのがFig. 6で、現時点では試験片数が少ないが同様な傾向がみられる。図中実線は $\rho=50\mu\text{m}$ の破壊強度を基準として、 ρ による強度低下傾向を求めたものである。同図には種々のNotch寸法を持つ約50本のSIALON試験片の結果($\rho=1000\mu\text{m}$ の強度を基準としたもので $\rho=11\sim 15\mu\text{m}$ までのデータ)による同破壊強度減少傾向を求めた曲線⁽⁴⁾を引用し、破線で示した。SIALON、MgO両セラミックスとも $\rho=15\mu\text{m}$ までの試験データを求めてあるが、それ以下の値は、これら曲線を外挿したものであり、曲線通り強度が更に減少するとは限らない[事実、曲線通り破壊強度が減少すれ

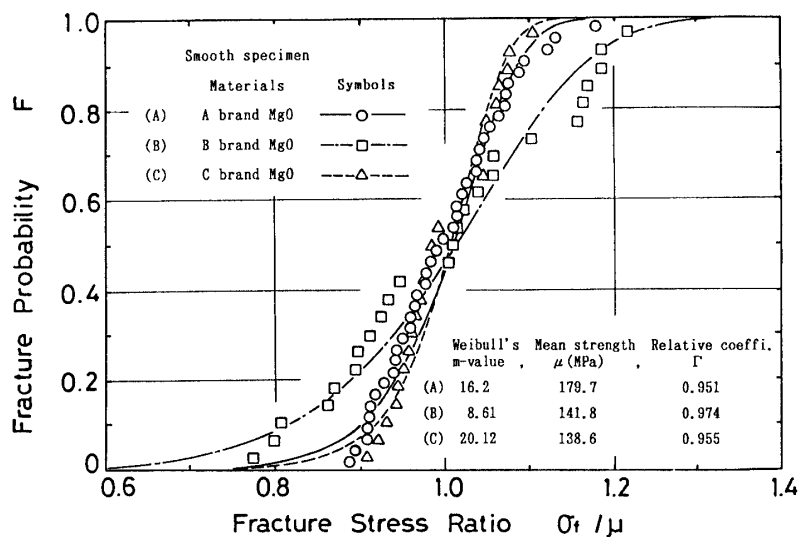


Fig. 3 Comparison of the variation and scatter of the fracture strength of small-size specimen under tension (MgO ceramics).

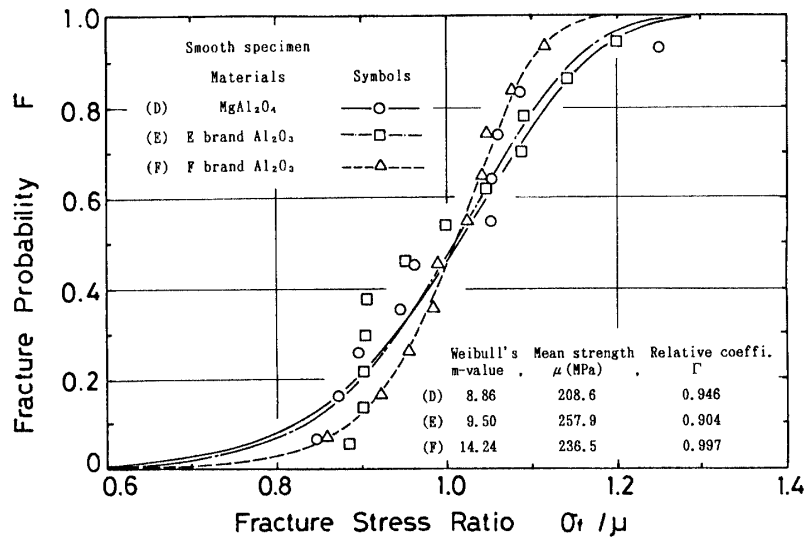


Fig. 4 Comparison of the variation and scatter of the fracture strength of small-size specimen under tension (Al₂O₃ ceramics).

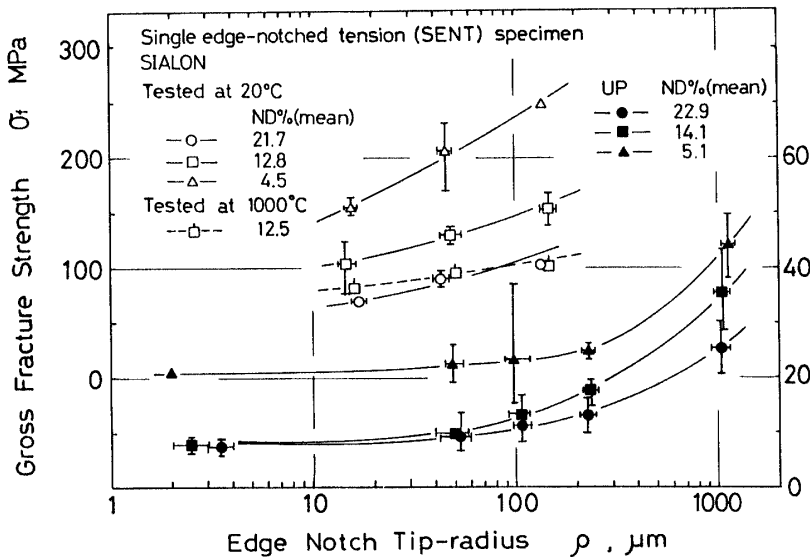


Fig. 5 Relation between fracture strength and the edge notch tip-radius for the brittle plastics of UP and SIALON.

ば, SIALONやMgOの K_{Ic} 値はこれ迄に報告されている値より可成り(≒ 1/2位に)低くなり, 不都合となる]. Fig. 7はFig. 6の片側切欠き付き破壊試験により, ASTMの式に基づいて K_c を求めたもので(ここでは試験片板厚が4 mmのため面応力破壊靱性値として表した)黒印は実験値で, 各々の切欠き深さの値を参考迄に別々に表してみた. 何れの試験結果も $\rho \approx 15\mu\text{m}$ で $K_c \approx 2.0$ の値を示している. ちなみに, 一般的に報告されているMgOの K_{Ic} (面ひずみ破壊靱性値)は約 $2.1\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$

である. 上述の様に $\rho \approx 15\mu\text{m}$ より更に小さな切欠き先端半径による破壊強度がFig. 6の如く減少するとして $\rho \approx 5\mu\text{m}$, $\rho \approx 3\mu\text{m}$, $\rho \approx 1\mu\text{m}$ での K_c 値を仮に求めてみると白印の値となり, 前記 $K_{Ic} = 2.1\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ より更に小さくなる事が分かる. 実際の破壊現象は或る程度小さな ρ 値以下では, その先端の塑性変形域が支配していると考えられ, 実質的には約 $\rho \approx 15\mu\text{m}$ 前後の値が報告されているとも云える.

Fig. 8は中央切欠き引張試験片 (ASTM規格により

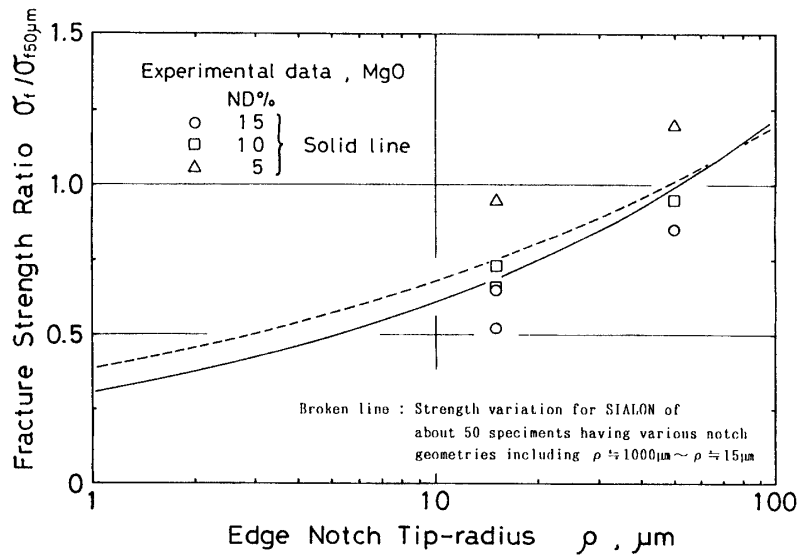


Fig. 6 Experimental variation of fracture strength due to the edge notch tip-radius.

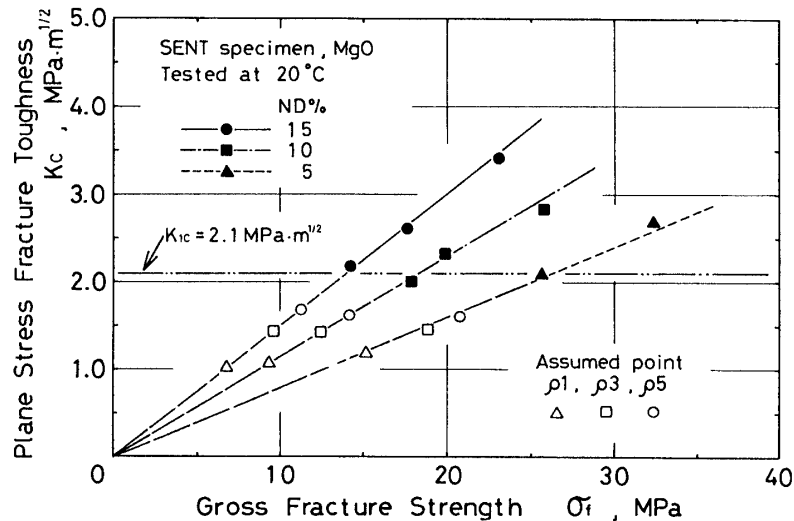


Fig. 7 Relation between plane stress fracture toughness and gross fracture strength. The effect of the edge notch tip-radius at each notch depth is given.

ND≒33%とした。)の1000°Cおよびその中間温度(約490°C)での破壊強度変化とSENT試験片(ND≒11%)による強度変化(前にも述べたように、SENT試験では300°C以上の温度では自然に破壊してしまい、破壊データが得難い)を対比したものである。前者は温度上昇と共に強くなり、逆に、後者は強度低下を示している。これは、後述のFig.10に引用したようにMgOの熱膨張率が大きいために生じると考えられる。これらデータは何れも $\rho \approx 15 \mu m$ による試験片の結果である。Fig. 9

は、Fig. 8の破壊強度から K_{Ic} を算出したもので、初期切欠き長さによる影響が含まれた K_{Ic} 値と比較しても、強度上昇と共に同様な変化曲線を示している。中央切欠き引張試験片は切欠きの周辺が連続な(詳しくは粒子の結合体ではあるが)固体に囲まれた状態で、切欠きをとじこめた固体の熱膨張率が切欠き先端の応力状態を変える(大なる圧縮状態を生じる?)ことによる強化であると考えられ、逆に、SENT試験片では加熱により、切欠き先端の応力状態が室温のそれから変わ

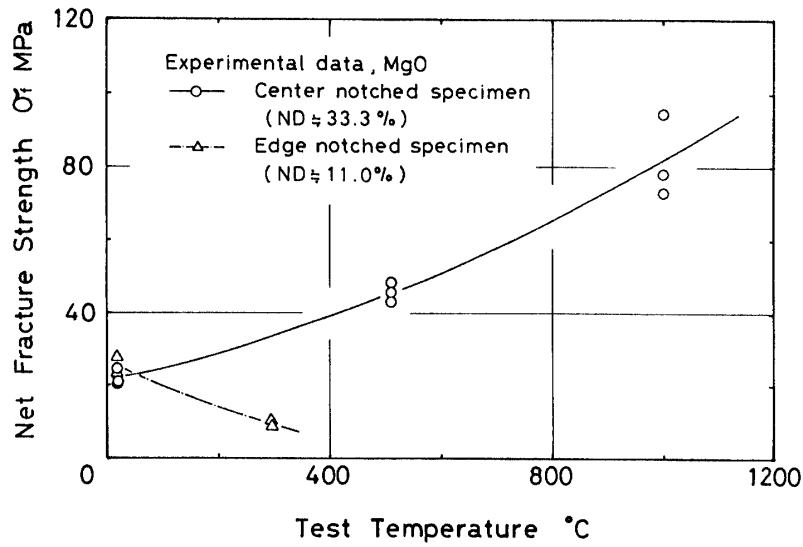


Fig. 8 Experimental variation of fracture strength due to the test temperature.

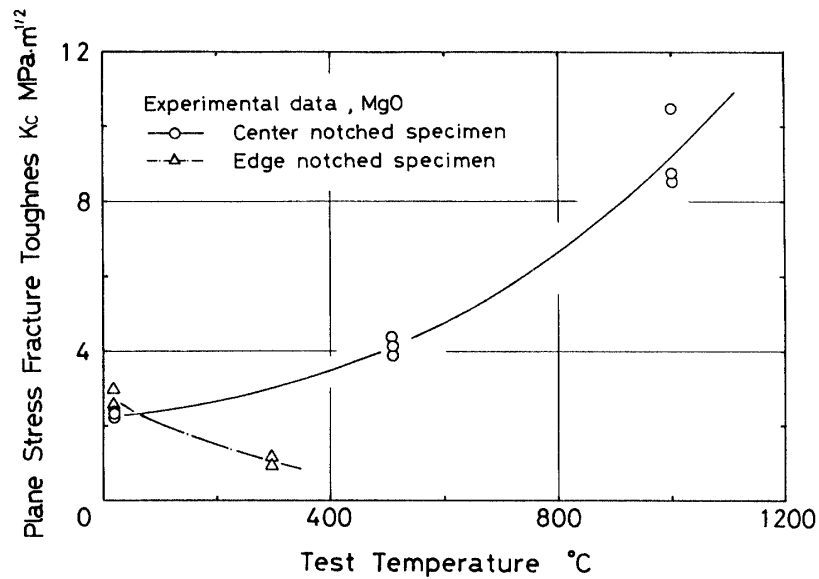


Fig. 9 Experimental variation of Kc due to the test temperature.

る(大いなる引張状態に?)ことによるものであろう。Fig.10には他に報告されている⁽¹⁰⁾種々のセラミックスの線熱膨張率(%)を参考までに引用した。MgOはAl₂O₃の約2倍以上の大きな値を示している。

3.2 き裂伝ば挙動

中型, SENT試験片は室温より約300°C以上に加熱することにより, 引張治具の重さと自重により破壊してしまう。今, 切欠き先端半径を $\rho = 15\mu\text{m}$ 一定とし, そ

の深さを5%~15%まで変化させた試験片を約10本用意し, 炉中に自由懸垂し, 室温から1000°Cまで加熱し, 一定時間(約30分)保持し, その後室温まで冷却する加熱・冷却サイクルにより片側き裂が進展する状態を調べた。加熱・冷却速度は50°C/hr~200°C/hr(加熱)および50°C/hr~400°C/hr(冷却)の範囲内で種々行った。上記結果では何れも, 初期切欠きが一部直進進展した後, 上又は下方へ曲折して進展するか, 上・下双方に分岐進展して停止した。各一例をFig.11に示した。

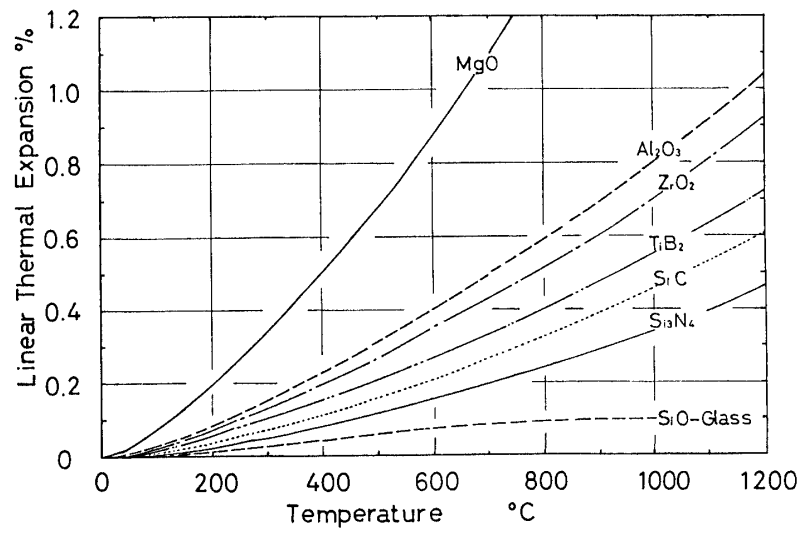


Fig.10 Comparison of linear thermal expansion of various ceramics.

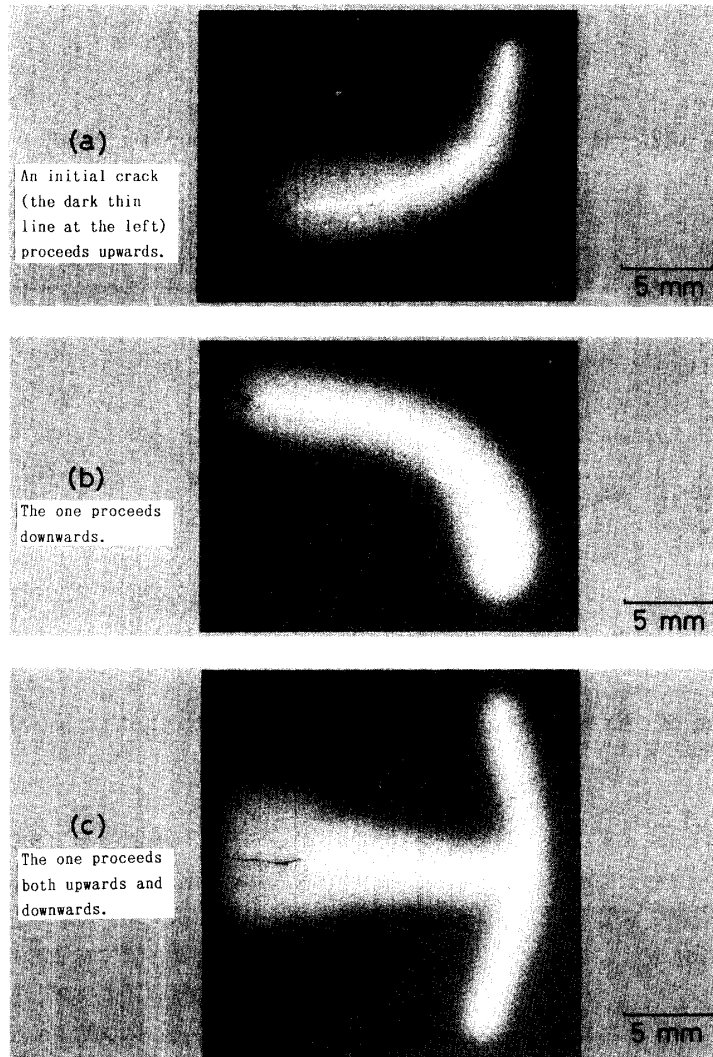


Fig.11 Three examples of crack propagation behaviour of a SENT specimen at the condition of free hanging in the furnace during a cycle of heating and cooling.

炉中に自由懸垂した試験片の自重により温度変化と共にき裂が伝ばすると考えられるが、そのメカニズムの詳細は現在不明である。切欠き深さが浅いもの (ND≒5%即ち、き裂長さ≒1.5mm) や深いもの (ND≒15%即ち、き裂長さ≒4.5mm) によるき裂進展挙動やき裂直進進展長さ [図中 (c)] に一定の傾向がみられない。これらの現象は固体の熱膨張、強度、き裂先端の熱応力状態およびき裂進展によるその変化、き裂進展と共に変化する曲げ応力成分など、いろいろな要因が重複してき裂伝ば挙動が支配されているのであろう。300°C以下の温度では、負荷応力を加えなければき裂が進展しないので、この温度域では引張負荷によるき裂伝ば速度測定ができる。スパッタリングした金細線、速度ゲージおよびDSAなどにより測定したSENT試験片 ($\rho \approx 15 \mu\text{m}$) の平均き裂伝ば速度は、室温で約1830 m/s、300°Cで約53m/sを得ている。破壊強度や K_{Ic} 値が大きいほど (Fig. 8, 9を参照)、平均き裂伝ば速度が大きいことが分かる。

3.3 曲げ試験片によるX線回折プロファイル

焼成したMgO製品を機械加工する時に破壊を生じ易いのは、結晶格子のひずみの影響ではないかとの疑問がある。実用製品の形状は大、小様々であり、その形状や大きさにより焼成MgO製品の格子ひずみが異なるのは当然であろう。ここでは、Fig. 1 (e) に示した小型短冊状試験片に弾性曲げひずみを加え、焼成・切断加工のままの状態およびその短冊状試験片を空気中にて1100°C、12hr焼鈍したもののX線回折ピークを求め解析

してみた。まず、Fig. 2 に示した治具でひずみゲージを貼付したMgO試験片のみを曲げて破壊させた時の曲げひずみを求め、約10本の平均値として 679×10^{-6} のひずみ値を得た。実際の試験は、MgO試験片に直接ひずみゲージを貼付したもの (試験片の裏側に) とMgO試験片を治具中央に置き、その両側にS50C材の同一形状の試験片を並べ、S50Cの均一モーメント域に各々2枚のひずみゲージを貼付したものによる曲げひずみ測定の両者又は何れかを用いた。S50Cのひずみを用いたものでは、あらかじめ求めていたMgOとS50Cの両ひずみ出力の直線関係、Fig. 12を用いてMgOのひずみを算出した。

Fig. 13は (111) 回折面による積分強度 (コンピュータによる積分強度およびプランメータによる積分強度の両測定値が含まれている。なお両者の値は殆ど一致することを確かめている) と弾性曲げひずみの関係を示している。焼成・切断加工のままの値 (白丸、実線) は破断ひずみの約50%までひずみの増加と共に減少し、それ以後は余り変化していない。同試験片を空気中、1100°Cで12時間焼鈍したもの (白四角、破線) はデータ数が少ないが同様な関係を示すものと考えられる。即ち、(111) 回折面の積分強度は弾性曲げひずみ (引張り側) に割合よく対応していることが分かる。他の回折面の同様な解析もしているが、これほどの対応を示さなかった。なお、図中、記号はそれらの平均値を付記した数字は試験数であり、上・下線の長さはそれらのばらつきを示している。ばらつきの大きなデータが得られているが、その上限値、平均値、下限値、何

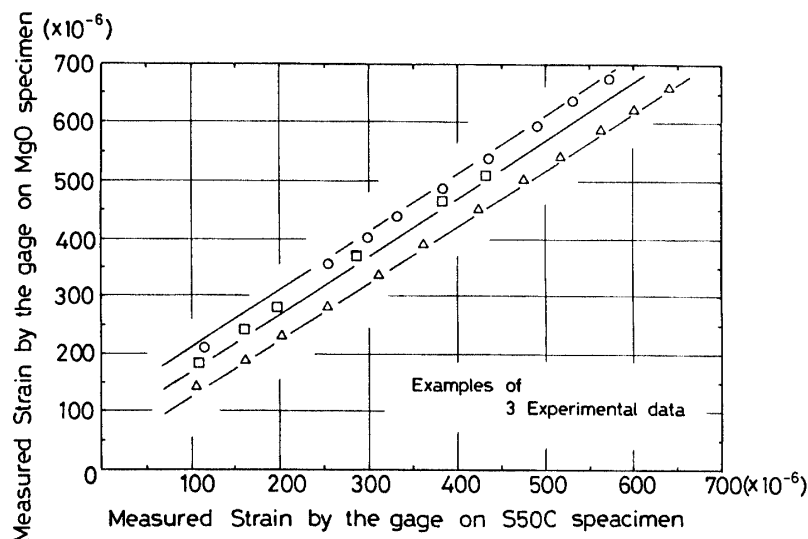


Fig. 12 Linear relationship of the strain measured by the gages on MgO and S50C specimens.

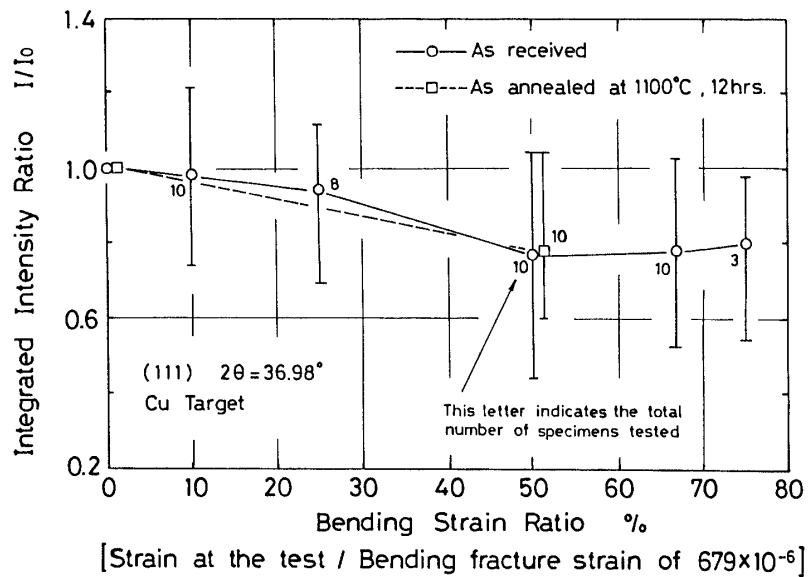


Fig.13 Experimental relation between the integrated intensity ratio and the elastic bending strain.

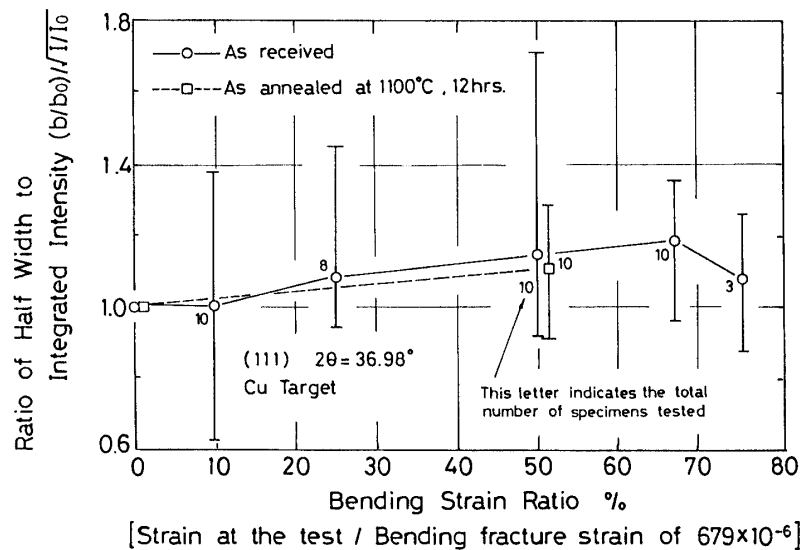


Fig.14 Experimental relation between the relative half-width ratio and the elastic bending strain.

れの値の変化をみても上述の傾向は明らかである。次にFig.14は(111)面回折プロファイルの相対半幅幅比を示している。用いたMgOセラミックスでは回折プロファイルが各試験片により前図の如く、割合ばらつきが大きいため、回折プロファイルの半幅幅比をそのピークの積分強度比で除した値で示してみた。相対半幅幅比は弾性曲げひずみと共に、やはり横軸50%ひずみ近傍までは平均値のみならず、上限値および下限値が増加している。一般に積分強度比が小さくなり、半幅幅

比が増えれば、回折面の格子ひずみ(又は残留応力)がより大きくなるとも考えられるが、それと類似した傾向が表れている。これらデータは曲げ試験片の引張り側表面によるものである。材料表面の加工および焼鈍状態のひずみの詳しいことについては現状では詳しく言及しがたいが、(111)回折面のこれら値は弾性曲げひずみに対応したデータを示している。上記、報告値は回折条件(Cuターゲット, 30kV, 24mA)を一定として行った結果で、MgOの一定回数の試験前後に必

ず純銅試験片を用いた回折ピークをとり, X線出力の安定状態を確認しながら慎重に行った結果でも, 図示したばらつきを示すことから判断して, ここで用いた焼成MgOの回折プロファイルの変動幅が大きいことは確かであろう。

4. 結 言

1. ここで用いた小型平滑試験片寸法・形状はファイン・セラミックスの引張平滑破壊強度, き裂伝ば速度およびそれによる破面模様変化の研究のみならず, 引張応力下におけるファイン・セラミックスの材質による m 値の比較・検討にも適している。
2. AブランドMgOセラミックスは同類の他のセラミックス材に比べ強度のばらつきが小さく, 安定した材質である。
3. AブランドMgOの切欠き破壊強度は切欠き先端半径 ρ , (切欠き深さ一定 $\approx 33\%$ の場合) の大きい域では ρ 値と共に大きく減少するが, $\rho \approx 15\mu\text{m}$ 以下では強度減少は非常に小さい。
4. 室温における同切欠き破壊強度は中央切欠きおよび片側切欠きによる差が小さい(約5.5MPaの違い)。
5. 中央切欠き付き試験片の破壊強度は室温における値 (17.3MPa) より1000°Cでの値 (68.3MPa) の方が大きい。
6. 片側切欠き付き試験片の破壊強度は室温における値 (22.6MPa) より300°Cでの値 (8.6MPa) の方が小さい。
7. 片側切欠き付き試験片の自由懸垂状態でのき裂進展挙動は加熱・冷却サイクル中に直進伝ば後, 上または下へ曲がるか, 上・下両側に分岐して進展する。
8. 片側切欠き試験片の引張応力下での平均き裂伝ば速度は温度上昇とともに減少し20°Cで約1830m/sおよび300°Cで約53m/sを示した。
9. 強度の大・小は平均き裂伝ば速度の大・小に対応している。

10. 弾性曲げ試験における負荷引張ひずみの増加によりAブランドMgOの(111)面回折プロファイルの積分強度比は減少し, 同ピークの相対半価幅は増加している。

謝 辞

この研究はマグネシア系焼結体の機械的特性に関する基礎研究として宇部興産株式会社, 無機材料研究所との共同研究として行われたものの一部で, 研究を遂行するに当たり色々と御支援戴いたことに謝意を表します。また, 種々の実験およびデータ整理には当時, 研究生であった兼清智幸君(現, 日立金属株式会社), 武政賢治君(現, 帝人株式会社)および坂本裕紀(現, 日産自動車株式会社)の協力を得たことに感謝致します。

参考文献

- 1) W. Weibull, Proc. Roy. Swed. Inst. Eng. Res., No151, (1939)
- 2) 瀧本, 末久, 機構論, No.875-1, (1987), 34.
- 3) 瀧本, 末久, 機論, 55-519, A, (1989), 2237.
- 4) 瀧本, 池田, 兼清, 機構論, No.915-1, (1991), 91.
- 5) 瀧本, 兼清, 永井, 機構論, No.935-1, (1992), 348.
- 6) 兼清, 山口大学大学院 修士論文, (1993).
- 7) 瀧本, 小田, 藤井, 機論, 54-507, A, (1985), 2039.
- 8) 瀧本, 他3名, 機論, 55-518, A, (1989), 2130.
- 9) 瀧本, 他3名, 機論, 55-519, A, (1989), 2220.
- 10) R. B. Koteljnikov 他(日ソ通信社翻訳部訳)「超高融点材料便覧」日ソ通信社, (1977), 原典出版は1969年

(平成5年4月15日受理)