

窒化けい素の熱衝撃による動的熱応力と繰返し熱衝撃下の  
微小き裂進展特性\*石原 外 美\*<sup>1</sup>, 五嶋 孝 仁\*<sup>1</sup>  
野村 幸 司\*<sup>2</sup>, 石崎 崇 史\*<sup>2</sup>Cyclic Crack Growth Behavior and Dynamic Thermal Stresses  
of Silicon Nitride under Repeated Thermal Shock TestsSotomi ISHIHARA, Takahito GOSHIMA,  
Koji NOMURA and Takashi ISHIZAKI

Dynamic thermal stresses and cyclic crack growth behavior produced by a single and repeated thermal shocks were studied on silicon nitride. Thermal shock was applied to a square shaped bar specimen using the improved water-quenching method. It was clarified that the cyclic crack growth rates,  $da/dN$ , under the repeated thermal shock tests are represented by the following expression,  $da/dN = 9.35 \times 10^{-6} (K_{\max} - 1.36)^{3.14}$ . In addition, the experimentally observed maximum thermal stresses,  $\sigma_{\max}$ , for silicon nitride in the present study as well as those for cemented carbides and cermets in the previous report can be approximated by the expression,  $\sigma_{\max} = 0.704 \alpha E \Delta T - 57.74$ , where  $\alpha, E, \Delta T$  denote a linear coefficient of expansion, Young's modulus of the materials and applied temperature differences at thermal shocks, respectively. By using this expression we can directly evaluate the maximum thermal stresses induced by the thermal shocks without temperature measurements.

**Key Words:** Fatigue, Thermal Shock, Thermal Stresses, Crack Propagation, Ceramics, Biot's Factor

## 1. 緒 言

窒化けい素セラミックスは内燃機関用部品や高周波焼入れ用ジグなど、過酷な熱的環境下での実用化が期待されるため、機械的特性に加え耐熱衝撃性の把握が重要になる。セラミックス材料の熱衝撃抵抗に関する研究<sup>(1)-(6)</sup>はこれまで数多くなされてきたが、これら研究の大半が臨界冷却温度差  $\Delta T_c$  を調査したものである。高温環境のもとでセラミックスを使用するためには、繰返し熱衝撃下のき裂進展特性、並びに破壊靱性値を明確にすることが必要と思われるが、現時点では必ずしも十分な結果が得られているとは言えない。従来の熱焼入れ形熱衝撃実験では、高温試験片を冷却媒体に投入したとき、試験片と冷却媒体の界面において局部的に沸騰・蒸発が生じ、熱伝達率が大きく変化する。このため熱伝達率を知ることは実験的にも理論的にも困難である。本実験の改良熱衝撃実験法では、熱衝撃時の試験片内部に発生する温度分布が高さ方向のみの一次元温度分布になるように工夫する。そして

試験片と冷却媒体の熱伝達率がわからなくとも、その熱的境界条件の結果として生じる一次元温度分布を実測することにより、熱衝撃時に試験片内部に発生する動的熱応力を評価しようとするものである。

著者らは、これまで改良した焼入れ形熱衝撃実験法を用いて超硬合金およびサーメットの繰返し熱衝撃下のき裂進展特性を明らかにしてきた<sup>(9)-(11)</sup>。ついでこの方法によって得られる繰返し熱衝撃下のき裂進展特性、並びに不安定き裂進展開始時の臨界熱衝撃応力拡大係数  $K_{IC}$  が、実験で用いた試験片寸法と冷却媒体に依存せず、材料固有の熱衝撃特性を与えることを示した<sup>(12)</sup>。本熱衝撃実験法の有用性を確認するためには、超硬合金、サーメット以外の他の硬脆材料についてもその有効性を確認しておく必要がある。

本研究では既報<sup>(9)-(12)</sup>の改良熱衝撃実験法を用いて、窒化けい素セラミックスの繰返し熱衝撃下の微小疲労き裂進展特性を明らかにした。

## 2. 試験片および実験方法

**2.1 試験片** 用いた試験片素材は、市販の窒化けい素、京セラ社製の SN-220 である。高分解能顕微鏡を用いて同材の窒化けい素結晶粒形状を調査した結果、平均サイズは 1~2.5  $\mu\text{m}$ 、平均アスペクト比は

\* 原稿受付 1998年5月28日。

\*<sup>1</sup> 正員、富山大学工学部 (☎930-8555 富山市五福3190)。\*<sup>2</sup> 富山大学大学院。

E-mail: ishi@eng.toyama-u.ac.jp

2.56 であり比較的丸みを帯びた形状を有することがわかった。化学成分並びに機械的性質をそれぞれ表1 および表2 に示す。試験片は  $8 \times 4 \times 25$  mm の矩形形状であり、冷却面をダイヤモンドペーストにより鏡面に仕上げた後実験に供した。

**2・2 熱衝撃試験法** 鏡面に仕上げた試験片の冷却面にピッカース硬度計により  $150 \sim 200 \mu\text{m}$  の予き裂を導入した。その後繰返し熱衝撃実験を行い、任意の繰返し数ごとにき裂長さ  $2a$  を光学顕微鏡によって約 400 倍から 1000 倍で測定した。得られたき裂進展曲線より、き裂進展速度  $da/dN$  と応力拡大係数  $K_{\text{max}}$  の関係を求めた。

冷却面の試験片下面を除いたすべての面を断熱するために、図1に示すように耐火パテでこれらの面を被覆した。その後、試験片を炉中で約 50 分加熱し、内部温度分布が定常になったことを確認した後すばやく 293 K の冷却媒体に試験片下面のみを接触させ熱衝撃を与えた。冷却時間は約 5 分である。冷却媒体として水を用いた。繰返し熱衝撃実験は、図2に示すようにタイマ制御の小形モータを用いて試験片を炉と冷却媒体の間を上下させることにより行った。その他の実験方法については既報<sup>(9)~(12)</sup>に述べているので詳細な記述を省略する。

**2・3 温度分布測定** 熱衝撃時の試験片高さ方向への温度分布を熱電対を用いて測定した。窒化けい素は導電性がないためスポット溶接により熱電対を試験

片に取付けることができないので、図3に示すように試験片底面よりそれぞれ 0, 1, 2, 4, 8 mm の高さで直径 1 mm の穴をあけ、そこに直径 0.2 mm のアルメルクロメル熱電対を差し込み耐火パテで固定した。この際試験片厚さの中央に熱電対先端が位置するようにした。穴による温度分布のかく乱が予想されたが、冷却面からの距離に対する温度分布を調べたところ、穴による不自然な局部的温度上昇、下降が見られず平滑な温度曲線を得ることができ、また、複数回の測定においてもばらつきの少ない測定結果が得られたので、その影響は小さいものとみなした。

予備実験より試験片の長手方向と幅方向への温度変化は小さく、試験片の高さ方向にのみ大きいことから、本熱衝撃実験では冷却面から試験片高さ方向への一次的温度分布が生じていることを確認した。測定は任意の加熱温度ごとにそれぞれ 5 回行い、これらの平均したものを冷却曲線として、熱衝撃時の動的熱応力の計算に用いた。

**2・4 熱応力解析** 試験片内部の温度変化が高さ方向に大きく生じ、幅、長手方向への変化がわずかであることを確認しているため、試験片長手方向 ( $x$  軸) の発生熱応力は測定された冷却面からの距離  $y$  と時間  $t$  に対する温度変化  $T(t, y)$  より次の一次元温度分

Table 1 Chemical compositions of the material [wt.%]

Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	Al	Y	W
Bal	2.50	2.30	1.80

Table 2 Mechanical properties of the material

Coefficient of linear expansion	$3.20 \times 10^{-6}$
Young's modulus (GPa)	294
Poisson's modulus	0.28
$K_{\text{IC}}$ (MPa <sup>1/2</sup> )	5.7
Bending Strength (MPa)	588

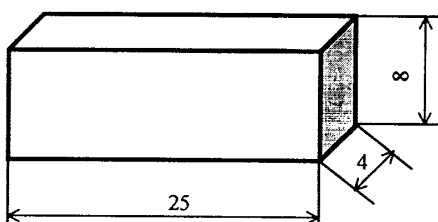


Fig. 1 Shape and dimensions of the specimen

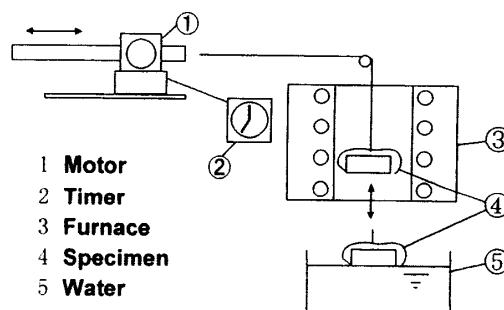


Fig. 2 A schematic illustration of the thermal shock testing equipment

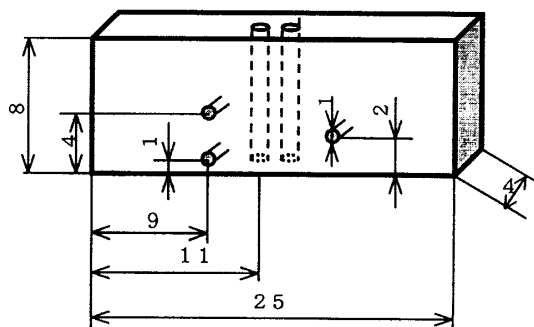


Fig. 3 Hole locations to set thermo-couples for measuring temperature distribution in a direction of specimen height at thermal shock tests

布に対応する熱応力評価式<sup>(13)(14)</sup>を用いて計算できる。

$$\begin{aligned} \sigma_x(t, y) = & -\frac{\alpha ET(t, y)}{1-\nu} \\ & + \frac{1}{2c(1-\nu)} \int_0^{2c} \alpha ET(t, y) dy \\ & + \frac{3y}{2c^3(1-\nu)} \int_0^{2c} \alpha ET(t, y) y dy \dots \dots \dots (1) \end{aligned}$$

ここで  $\alpha$ ,  $E$ ,  $\nu$  はそれぞれ線膨張係数, ヤング率, ポアソン比,  $2c$  は試験片高さ,  $t$  は時間,  $T$  は温度である。この際, 式(1)中の積分の評価は数値積分によった。また, 各物性値はその温度依存性を考慮しなければならないが, 本実験温度域では大きな温度依存性を示さないので本実験温度域の平均値を用いた<sup>(15)(16)</sup>。

**2.5 応力拡大係数解析** 予き裂試験片の温度分布はき裂による温度分布のかく乱により平滑試験片のそれとは異なる可能性があるが, 本実験で測定してい

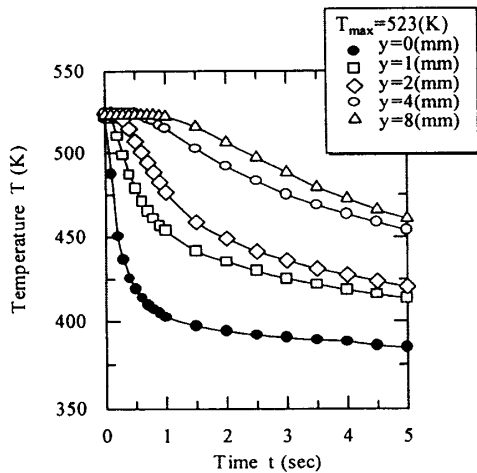


Fig. 4 Change of temperatures with an elapsed time at several locations of the specimen

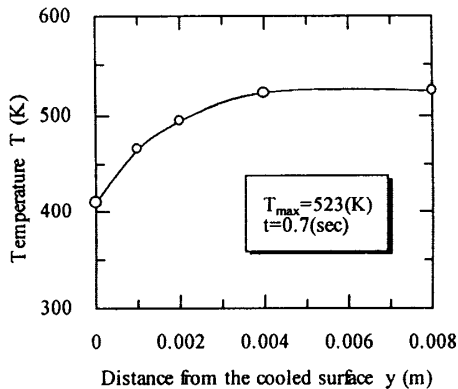


Fig. 5 Temperature distribution in the  $y$  direction of the specimen at an elapsed time of 0.7 s after thermal shock

るき裂は長さが  $300 \mu\text{m}$  以下の微小表面き裂であるから上記の温度分布のかく乱は無視できると仮定した。応力拡大係数  $K_{\text{max}}$  は, 熱衝撃時の応力分布がこう配を持つことから, 曲げを受ける表面き裂に対する Newman-Raju の式<sup>(17)</sup>を用いて算出した。 $K_{\text{max}}$  の計算にあたって, 表面き裂のアスペクト比  $b/a$  ( $b$ : き裂深さ,  $a$ : き裂半長) はこれまでの窒化けい素の機械的疲労試験の実験結果<sup>(19)(20)</sup>を考慮して, き裂長さに依らず  $b/a=0.58$  一定とした。また, 応力拡大係数  $K_{\text{max}}$  の計算において, き裂進展に有効なのは引張応力だけと考えられるので, 熱衝撃1サイクル中の最大熱応力  $\sigma_{\text{max}}$  を用いて計算した。

### 3. 実験結果

**3.1 温度変化** 平滑試験片を用いて熱衝撃時の試験片高さ方向への温度分布を測定した。

図4は, 一例として試験片加熱温度  $523 \text{ K}$  で熱衝撃を与えた際の試験片各部における温度の経時変化を示したものである。図4より,  $y=0$ , すなわち冷却面では, 熱衝撃開始時に急激な温度変化が認められるが, 時間経過に伴いその変化は緩やかになっている。また, この変化は冷却面から遠ざかるほど小さくなっている。この傾向は既報<sup>(9)~(12)</sup>の超硬合金, サーメットを用いた実験結果と定性的に同一である。

図5は, 熱衝撃後  $0.7$  秒経過時の  $y$  方向への温度分布を示したものである。図5でも超硬合金の場合と同じように冷却面近傍において急激な温度変化が認められ, 冷却面から離れるほどその変化は小さくなる。

**3.2 熱応力** 実験より求めた温度分布  $T(t, y)$  を式(1)に用いることにより, 試験片各部の発生熱応力とその経時変化を調査した。図6は, 一例として試験片加熱温度  $523 \text{ K}$  から熱衝撃を与えた際の試験片

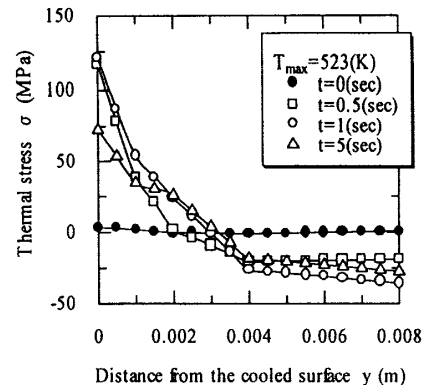


Fig. 6 Distributions of thermal stresses near the cooled surface

内部に発生する熱応力分布とその経時変化を示したものである。

図6より任意時間の最大熱応力は常に冷却面において生じ、その値は引張りであることがわかる。なお、この結果は他の実験でも共通して認められた。

図7は、冷却面の最大熱応力  $\sigma_{cool}$  の経時変化を示したものである。図7からわかるように、発生熱応力は熱衝撃開始時から急激に増加し、約0.5秒から1.0秒の間に最大値を示しその後緩やかに減少することがわかる。

**3・3 発生最大熱応力と加熱温度の関係** 図8は、1回の熱衝撃で冷却面に生じた最大動的熱応力  $\sigma_{max}$  と試験片加熱温度  $T_{max}$  の関係を示したものである。なお図中には、本実験と同一の試験片形状、冷却媒体、冷却温度を用いて得られた超硬合金の結果<sup>(12)</sup>も破線で示してある。

図8より、試験片加熱温度が増加するにつれて発生最大熱応力は増加し、その間には直線関係が成立することがわかる。このような傾向は超硬合金におけるものと同一であるが、窒化けい素における直線の傾きは超硬合金より緩やかであり、一定の加熱温度  $T_{max}$  を

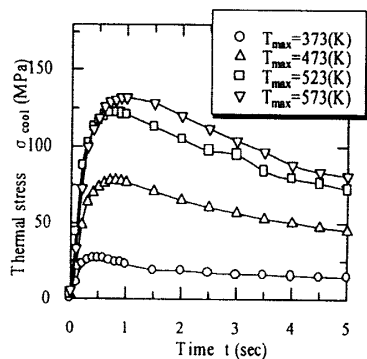


Fig. 7 Change of the thermal stresses at the cooled surface with an elapsed time for several heating temperatures  $T_{max}$

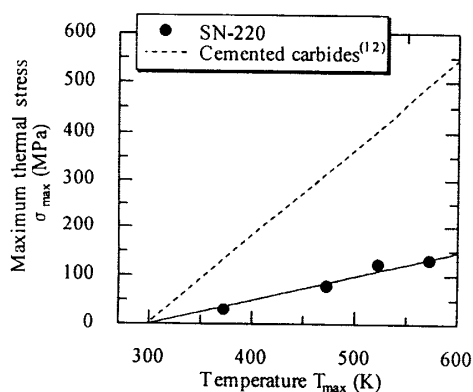


Fig. 8 Changes of the maximum dynamic thermal stresses as a function of heating temperatures of the specimen

与えても、発生熱応力は窒化けい素のほうが超硬合金よりも小さいことがわかる。

**3・4 繰返し熱衝撃下のき裂進展特性** 図9は、窒化けい素 SN-220 の繰返し熱衝撃下のき裂進展速度  $da/dN$  と応力拡大係数  $K_{max}$  の関係を示したものである。図中には、比較のために超硬合金の  $da/dN$ - $K_{max}$  関係<sup>(12)</sup>も併せて示してある。

図9より、窒化けい素セラミックスにおいても、3種類の異なった温度差を与えて得られた繰返し熱衝撃下のき裂進展速度は  $K_{max}$  によって一義的に規定され、このような傾向は図中の超硬合金と同様である。

また一定の  $K_{max}$  値におけるき裂進展速度を比較すると、窒化けい素のき裂進展速度は超硬合金のそれよりも速いことがわかる。窒化けい素の  $da/dN$  は  $K_{max}$  の関数として次式で近似できる。

$$da/dN = 9.35 \times 10^{-6} (K_{max} - 1.36)^{3.14} \dots \dots \dots (2)$$

**3・5 き裂の微視的進展形態と破面観察** 繰返し熱衝撃下のき裂の微視的進展形態の観察を行った。図10は  $K_{max} \approx 2.85 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$  における繰返し熱衝撃下で進展したき裂先端近傍の様相を SEM により観察したものである。図10よりき裂は粒界を縫うようにジグザグ状に進展しており、このようなき裂進展形態は機械的疲労下の観察結果<sup>(19)</sup>と同様である。

図11は窒化けい素 SN-220 の繰返し熱衝撃試験における破断面のき裂最深部 ( $K_{max} \approx 2.46 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ , き裂長さ  $760 \mu\text{m}$ ) の SEM 写真である。図11からわかるように破面は主として粒界割れを呈し、粒界ファ

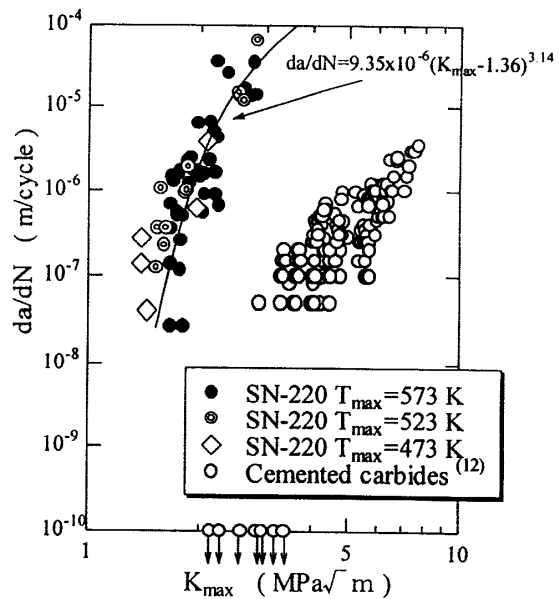


Fig. 9 The relationship between crack growth rate,  $da/dN$ , and the maximum stress intensity factor,  $K_{max}$ , for silicon nitride

セット上にほとんど模様が存在しないことから、脆性的形態を示すことがわかる。また図中矢印で示すように、粒子の引抜きのあとも多く観察された。

4. 考 察

本実験の熱衝撃の厳しき、すなわち熱衝撃時に試験片内部に発生する最大熱応力の大きさを見積もるために、ビオ数の評価を試みた。ビオ数は、 $Rh/\lambda$  ( $R$ : 代表寸法,  $h$ : 熱伝達率,  $\lambda$ : 熱伝導率) で与えられる。一般に熱衝撃時の熱伝達率と熱伝導率は、試験片と冷却媒体との界面状態や時間の関数として複雑に変化するため、ビオ数の計測は容易ではない。そこで本研究では式(3)の Becher らの最大応力とビオ数の関係式<sup>(8)</sup>を用いてビオ数を評価した。ここで、 $\beta_i$  はビオ数、 $\sigma_{max}$  は最大熱応力、 $\sigma_{max}^*$  は無次元最大熱応力、また  $\Delta T$  は冷却温度差である。

$$\frac{1}{\sigma_{max}^*} = 1.5 + \frac{3.25}{\beta_i} - 0.5 \exp\left(-\frac{16}{\beta_i}\right) \dots\dots\dots (3)$$

ただし

$$\sigma_{max}^* = \frac{(1-\nu)\sigma_{max}}{E \cdot \alpha \cdot \Delta T} \dots\dots\dots (4)$$

図12は以上のようにして評価したビオ数  $\beta_i$  と

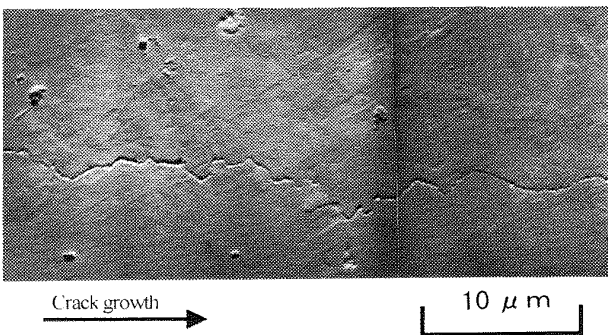


Fig. 10 Crack morphology near the crack-tip after receiving the thermal shock damages for silicon nitride

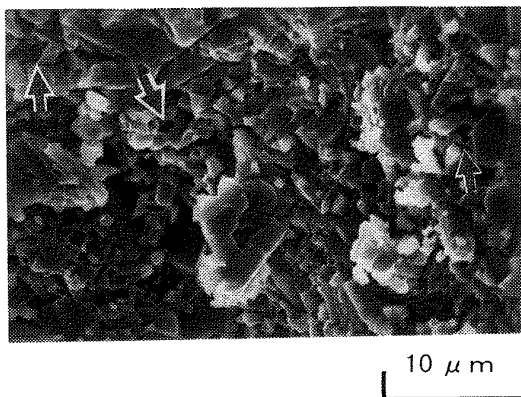


Fig. 11 Fracture surface of silicon nitride observed after the repeated thermal shock experiment

$aE\Delta T$  の関係を示したものである。図中には既報<sup>(11)</sup>の超硬合金並びにサーメットの結果も併せてプロットしてある。図12より、本実験範囲では、 $aE\Delta T$  の増加とともに窒化けい素のビオ数は1.3~2.8まで、また超硬合金およびサーメットのビオ数は2.5~8程度まで増加していることがわかる。また、同一材料では、 $\alpha, E$  を温度に依らず一定とみなすと  $\Delta T$  の増加とともにビオ数は増加することがわかる。 $\beta_i$  と  $aE\Delta T$  の間には両対数グラフ上で直線関係が存在することから、窒化けい素、並びに工具材(超硬合金、サーメット)に対して、それぞれ次の実験式を得た。

$$\beta_i = 0.134(aE\Delta T)^{0.53} \quad (\text{for SN-220})$$

$$\beta_i = 1.62 \times 10^{-3}(aE\Delta T)^{1.2}$$

(for Cemented carbides & cermets)

.....(5)

図13は熱衝撃実験で求めた最大熱応力と  $aE\Delta T$  の関係を示したものである。図中には既報<sup>(11)</sup>の超硬合金並びにサーメットの結果も併せてプロットしてある。図13より  $aE\Delta T$  の増加とともに最大熱応力は増加し近似式として次式を得た。この関係は3種類の材料に対して共通して適用できる。

$$\sigma_{max} = 0.704aE\Delta T - 57.74 \dots\dots\dots (6)$$

したがって熱衝撃時の温度分布測定を行わなくても、線膨張係数  $\alpha$ 、縦弾性係数  $E$  を知るにより、式(6)より直接熱衝撃時の最大熱応力を見積もることができる。ただし、上記近似式の使用は試験片形状・寸法、並びに冷却媒体が同一であることを前提としており、試験片寸法、冷却媒体が異なる場合には熱衝撃時の試験片内部の温度分布を測定する必要がある<sup>(12)</sup>。今後さらに他の硬脆材料の熱衝撃を実施し、式(6)の適用範囲を定める必要があろう。

なお、式(6)の  $\sigma_{max}-aE\Delta T$  関係が材質に依存しな

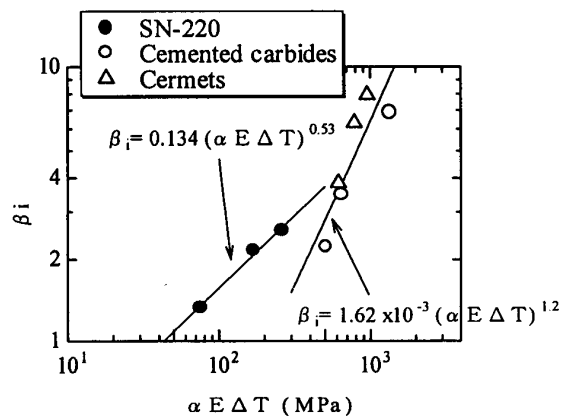


Fig. 12 The relationship between Biot's factor and the calculated thermal stress,  $aE\Delta T$  for both silicon nitride (SN-220) and tool materials (cemented carbides and cermets)

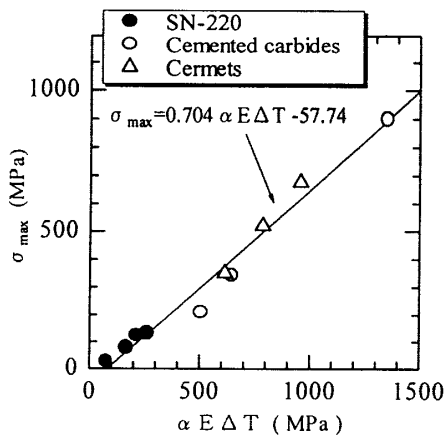


Fig. 13 The relationship between the maximum thermal stresses,  $\sigma_{\max}$ , and the calculated thermal stress,  $\alpha E \Delta T$

いものに対し、式(5)の  $\beta_i - \alpha E \Delta T$  関係が材質に依存することは、一見矛盾する。注意すべきは、式(6)が、実験による最大熱応力のみを用いて得られた結果であるのに対し、式(5)が、実測の最大熱応力値と Becher の提案した式(3)を用いて得られた結果であることである。ピオ数は、熱衝撃時に時間の関数として変化するものであって、式(3)が与えるように必ずしも一定値ではない。式(5)と式(6)が一見矛盾する原因は現在必ずしも明らかではないが、式(3)の本実験結果への適用限界、並びに精度等に問題があるものと考えられ、今後検討する必要がある。

## 5. 結 言

窒化けい素を用いて繰返し熱衝撃下のき裂進展特性を調査した。得られた結果は以下のように要約される。

(1) 窒化けい素の熱衝撃負荷時に発生する最大熱応力は熱衝撃開始時から約 0.5 秒から 1.0 秒の間に冷却面に生じた。

(2) 冷却面に生じる最大熱応力は試験片加熱温度の増加に伴って増加しその間には直線関係が成立する。

(3) 改良熱衝撃実験法を用いて、窒化けい素の繰返し熱衝撃下のき裂進展特性を明らかにした。 $da/dN$  [m/cycle] は熱衝撃温度差に依らず

$K_{\max}$  [MPa $\sqrt{m}$ ] によって一義的に規定され、 $da/dN = 9.35 \times 10^{-6} (K_{\max} - 1.36)^{3.14}$  なる関係を得た。

(4) 繰返し熱衝撃下のき裂はジグザグ状に進展し、また破面も粒界割れで占められていた。

(5) 本改良熱衝撃実験は、ピオ数で 1~8 程度の熱衝撃の厳しさを与えた。ピオ数は  $\alpha E \Delta T$  とともに増加する。

(6) 熱衝撃最大熱応力  $\sigma_{\max}$  [MPa] と  $\alpha E \Delta T$  [MPa] の間に  $\sigma_{\max} = 0.704 \alpha E \Delta T - 57.74$  なる関係を得た。これは窒化けい素、超硬合金、サーメットに依らない。したがって物性値  $\alpha$ ,  $E$  を知ることで熱衝撃時の最大熱応力を見積もることができる。

## 文 献

- (1) 西川直宏・高鐵・高津学, 材料, **42** 476(1993), 507-511.
- (2) 西川直宏・高鐵・ほか 3 名, 材料, **41**-464(1992), 561-566.
- (3) 佐久間俊雄・ほか 2 名, 機論, **58** 547, A (1992), 470-475.
- (4) 佐久間俊雄・ほか 2 名, 機論, **58**-552, A (1992), 1424-1429.
- (5) 木村雄二, 機論, **59**-561, A (1993), 1373-1377.
- (6) Niihara, K., Singh, J. P. and Hasselman, D. P. H., *J. Mater. Sci.*, **17** (1982), 2553-2559.
- (7) Singh, J. P., Tree, Y. and Hasselman, D. P. H., *J. Mater. Sci.*, **16** (1981), 2109-2118.
- (8) Becher, P. F., Lewis, D., Carman, K. R. and Gonzalez, A. C., *Ceramic Bulletin*, **59** (1980), 542-546.
- (9) Ishihara, S., ほか 3 名, *Proc. 1st. Int. Symp. Thermal Stresses '95*, (1995), 147-150, Hamamatsu.
- (10) Ishihara, S., ほか 3 名, *Proc. 6th Int. Fatigue Congress, Fatigue '96*, (1996), 1633-1638, Berlin.
- (11) 石原外美・ほか 3 名, 機論, **62**-598, A (1996-6), 1327-1332.
- (12) 石原外美・ほか 3 名, 機論, **63** 610, A (1997-6), 1191-1197.
- (13) 竹内洋一郎, 熱応力, (1989), 13-14, 日新出版.
- (14) 小倉啓二・西川出・ほか 2 名, 機講論, No. 930-71(1993-11), 49-50.
- (15) 篠原耕治・ほか 2 名, 粉体および粉末冶金, **40**-1(1993), 29-32.
- (16) 鈴木寿, 超硬合金と焼結硬質材料(基礎と応用), (1986), 2, (株)丸善.
- (17) Newman, J. C. Jr. and Raju I. S., *NASA Technical Paper 1578*, (1979).
- (18) Becher, P. F., Lewis, D., Carman, K. R. and Gonzalez, A. C., *Ceramic Bulletin*, **59**-5 (1980), 542-546.
- (19) 石原外美・ほか 3 名, 機論, **63**-610, A (1997-6), 1183-1190.
- (20) 原裕志, 富山大学修士論文, (1996), 19.