

圧子圧入 (IF) 法によるセラミックスの破壊じん性試験法

— 信頼性向上と国際標準化への取り組み —

宮崎 広行^{1*}、安田 公一²、吉澤 友一¹

圧子圧入法 (IF法) は試験片寸法・形状の制約が少なく、試験手法が簡便なことからセラミックスの破壊じん性試験法として、産業界で欠かせない存在である。しかし、従来手法では測定精度に劣ることや、算出式が多数存在し、どの式を使うべきかの統一的な見解がなく、国際的な取引に支障をきたしていた。そこで我々は顕微鏡の測定倍率を高くしてき裂長さの読み取り誤差を低減し、測定値の信頼性を改善する手法を開発した。また、この手法を使って最適な算出式を選定した。さらに国内外18試験機関の協力を得てラウンドロビン試験を行い、開発した手法の再現性を確認した。これらのバックデータに支えられて国際規格を発行することができた。

キーワード: 圧子圧入法、破壊じん性、セラミックス、国際標準化

Test method for fracture toughness of monolithic ceramics by indentation fracture (IF) method

—Improvement of reliability and international standardization activity—

MIYAZAKI Hiroyuki^{1*}, YASUDA Kouichi² and YOSHIZAWA Yu-ichi¹

The indentation fracture (IF) method is necessary for evaluation of fracture toughness of ceramics due to its simple test procedure and low sample size limitations. However, the conventional method is inferior in measurement accuracy, has many calculation formulas, and there is no unified view as to which formula should be used, which hinders international transactions. We developed a technique to improve the reliability of the measured values by increasing the magnification of the microscope to reduce the crack length reading error. Using this technique, we were able to select the optimal calculation formula. The round robin tests were conducted with the cooperation of 18 domestic and overseas testing institutions, and the reproducibility of the developed method was verified. Backed by these back data, we were able to publish the international standard.

Keywords: Indentation fracture (IF) method, fracture toughness, ceramics, international standardization

1 はじめに

既存の構造用セラミックス製品には、回路基板で使われるセラミックス放熱基板やセラミックベアリングボール、切削工具、セラミックターボチャージャー等多種多様な形状、寸法のものが数多く存在する。これらセラミックス製品の多くは部品としてシステムに組み込まれており、セラミックス製品の信頼性がシステムの信頼性を左右することから、セラミックス製品の機械特性はシステムの設計に必須である。セラミックスの主要な機械特性には、強度や弾性率の他破壊じん性がある。破壊じん性は表面や内部にき裂を有する材料の破壊に対する抵抗力を示す指標であり、セラミックス材料においては表1に示すような値を示す。部分

安定化ジルコニアは、強度、じん性ともに優れることから、高い応力や衝撃による破損の恐れが少なく、刃物や工具、歯科用インプラントに使用される。窒化ケイ素は、部分安定化ジルコニアに比べて室温での強度・じん性にかなわないものの、高温での特性に優れることから、高温高応力下での信頼性が必要とされるターボチャージャーやディーゼルエンジンのグロープラグ、切削工具等に使われている。これに対し、アルミナや炭化ケイ素等は、その高い耐摩耗性や化学的安定性を活かした用途に向いているが、破壊じん性が比較的小さいために高い応力が掛かる環境ではあまり利用されない。このように破壊じん性の大小によりセラミックスの機械的信頼性が評価される。実際に JIS R 1669

1 産業技術総合研究所 マルチマテリアル研究部門 〒463-8560 名古屋市守山区下志段味ヶヶ洞 2266-98、2 東京工業大学 物質理工学院 〒152-8552 目黒区大岡山 2-12-1-S7-14

1. Multi-Material Research Institute, AIST 2266-98 Anagahora, Shimoshidami, Moriyama-ku, Nagoya 463-8560, Japan *E-mail: h-miyazaki@aist.go.jp, 2 Tokyo Institute of Technology 2-12-1-S7-14 Ookayama, Meguro-ku 152-8552, Japan

Original manuscript received December 6, 2019, Revisions received April 21, 2020, Accepted April 28, 2020

表1 代表的なセラミックスの破壊じん性値

材料	破壊じん性値 (MPa・m ^{1/2})
部分安定化ジルコニア	6～8
窒化ケイ素	5～7
アルミナ	3～4
炭化ケイ素	2～5
ガラス	0.5～1

「転がり軸受球用窒化けい素材の基本特性及び等級分類」においては、破壊じん性をもとに製品グレードのクラス分けが行われており、破壊じん性の測定値の誤差が2～3割もあるようでは、製品のクラス分けに意味がなくなり、製品をその性能に合った適正価格で販売することが難しくなることが予想される。そこで、セラミックス製品の国際市場での公正な取引を進めるためには、破壊じん性の優劣を正しく定量的に評価するための国際規格が不可欠となる。

2 セラミックスにおける破壊じん性試験法の概要と課題

金属材料を中心に開発されてきた破壊じん性測定法においては、寸法の比較的大きな試験片に巨視的なき裂を導入し、平面ひずみ状態での破壊荷重または破壊応力から臨界応力拡大係数、 K_{IC} を次式により算出する。

$$K_{IC} = (P/BW^{3/2}) Y \quad (1)$$

ここで、 P は破壊荷重、 B は試験片厚さ、 W は試験片の幅、 Y はき裂形状因子である。この式は線形破壊力学に基づいて導かれたものであり、セラミックスの破壊じん性試験においても適用されている。金属を対象とした試験方法と異なる点としては、金属材料においては鋭いき裂を導入するのに、試験片に切欠き加工をしたのちにサイクル荷重を

負荷することにより、その切欠き先端からいわゆる疲労予き裂を比較的容易に発生、成長させることができるのに対し、セラミックスでは疲労予き裂を導入することが困難であるという点である。このためセラミックスにおける予き裂の導入方法としては、ポップイン (音を発して急激にき裂が進展するが、試験片の破断にまでは至らず、き裂進展が途中で停止する現象)、V字の切欠き、安定成長等による予き裂導入で破壊じん性を測定する手法が提案されている。代表的なセラミックスの破壊じん性試験法を図1に、その特徴を表2に示す。Single Edge Precracked Beam (SEPB) 法は、特殊な治具を使ってポップインにより試験片表面の中央部に直線的な予き裂を発生させ、その試験片に3点曲げ試験を行い、破断後の破面観察から測定したき裂長さ、曲げ試験で得られた破壊荷重から破壊じん性を算出する方法である。Single Edge V-Notched Beam (SEVNB) 法では、試験片表面の中央部に切断砥石で導入した切欠きの底部を、ダイヤモンド砥粒でV字の切欠きに研磨加工し、その試験片に3点曲げ試験を行い、破壊じん性を求める方法である。Chevron Notched Beam (CNB) 法では、試験片中央に切欠き加工により切り残された3角形部分 (リガメント) を形成し、その試験片に3点曲げ試験を行い、破壊じん性を求める方法である。これらの巨視的なき裂を導入する方法は、いずれも $3 \times 4 \times 36$ mm の棒状試験片に予き裂を導入後、3点曲げ試験による破壊荷重を測定し (1) 式を使って破壊じん性を求めるため理論的根拠が明確であるが、予き裂の導入をはじめとして試験の実施は容易とは言い難い。これに対し、圧子圧入法 (Indentation Fracture、以下 IF 法と呼ぶ) では、鏡面研磨した試験片表面にピッカース圧子を圧入し発生した圧痕の対角線長さ $2a$ とき裂長さ $2c$ を測定して、破壊じん性を決定する方法である。極小試験片 (例えば $5 \times 5 \times 5$ mm 程度) であっ

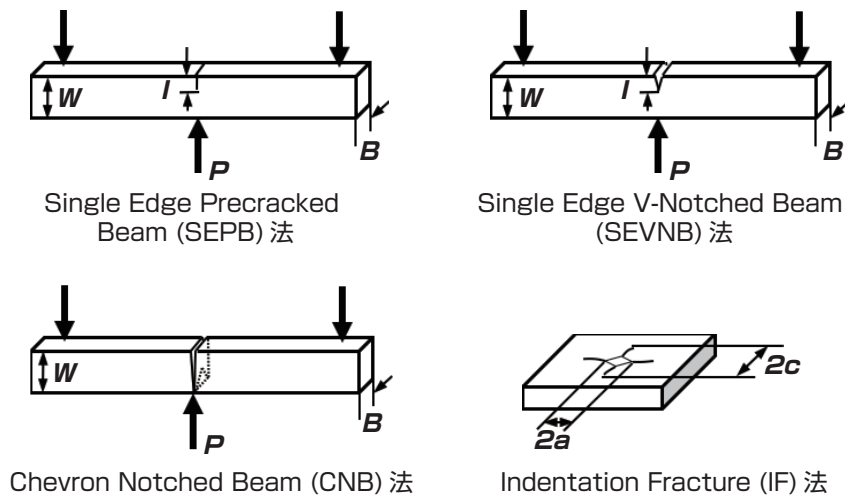


図1 セラミックスの代表的な破壊じん性試験法

表2 セラミックスの代表的な破壊じん性試験法の特徴値

測定方法	試験片サイズ (mm)	予き裂導入方法	特徴
SEPB 法	3×4×36 3×4×18	ビッカース圧痕 +ポップイン	長い貫通き裂が得られる
SEVNB 法	3×4×36	切欠き+ダイヤモンド砥粒によるV字研磨加工	先端の鋭いVノッチを用いる
CNB 法	3×4×36	3角リガメントによる安定成長	き裂長さの測定不要、破壊エネルギーも測定できる
IF 法	最小で5×5×5以上あれば可	鏡面にビッカース圧痕	小さい試験片でも測定可能 半経験的である

でも測定することが十分に可能であるうえに、ビッカース硬さ試験機があれば容易に測定できるというメリットがあるが、破壊じん性の算出式が半経験式に基づくものであり理論的背景が明確ではないという特徴を持つ。

一般にセラミックスの微細構造は製造プロセス条件に敏感であることから、同じ出発原料から同一作製条件で焼成しても、体積や形状に依存して微細構造が変化し、その結果として機械特性が異なるものとなってしまうことが多い。例えば、直径数 mm のベアリングボールの機械特性は、同一原料、同一条件で焼成された数センチ角のバルク体の機械特性と同じになる保証はない。このために、セラミックス製品の機械特性は製品自体を使って評価することが望ましい。しかし、セラミックスの破壊じん性や破壊強度の試験法の国内・国際規格においては、3×4×18～36 mm の棒状試験片が規定されているため、このサイズの試験片を切り出すことのできない小型セラミックスの評価は困難な状況であり、このような微小セラミックス製品にも適用可能な試験方法として IF 法は欠かせない。さらに、測定の容易さや装置導入コストが比較的安価等の優位性も加わり、IF 法は産業界等で広く一般的に使われている。

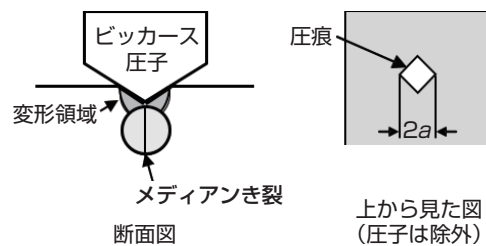
しかし、IF 法には測定値の再現性が低い、破壊じん性の算出式が複数あるといった大きな問題点がある。そこで、国内外の多くのユーザーから現有の光学顕微鏡やビッカース硬度計等の装置で破壊じん性の評価が可能である IF 法を再検討してほしいという要望があり、これを受けて、我々は従来から指摘されてきたき裂長さの読み取り誤差を低減させ、測定値の信頼性を改善させるために、IF 法の測定方法の問題点の探索と具体的な改善手法の検討に取り組んだ。また、破壊じん性算出式の選定にあたっては、信頼性の高い SEPB 法による結果との相関の完全性を重視した。さらに、国内外の試験機関によるラウンドロビン試験を経て、我々が見出した IF 法の改善手法の再現性を確認し、多くのユーザーを対象とする国際規格を発行する

に至った。以下の章では、各項目についてより詳細に述べていくこととする。

3 従来のIF法による破壊じん性試験法の概要と問題点

図2にビッカース圧子の押し込みによるき裂の生成の様子を示す。ビッカース圧子の圧入により圧痕とその直下に変形領域が形成され、押し込み荷重がある臨界値に達すると、圧子の直下にほぼ円形のメディアンき裂が生成する。このき裂は材料内部に発生するものであり試験片の表面には達していない。また、このき裂は互いに直交する2組のき裂からなる。ビッカース圧子を引き上げながら除荷していくと、このメディアンき裂は表面に向かって進展し、表面き裂にまで成長し、いわゆるメディアン・ラディアルき裂を形成する。図3に炭化ケイ素上のビッカース圧痕の金属顕微

(a) 圧子圧入時の様子



(b) 除荷後の様子

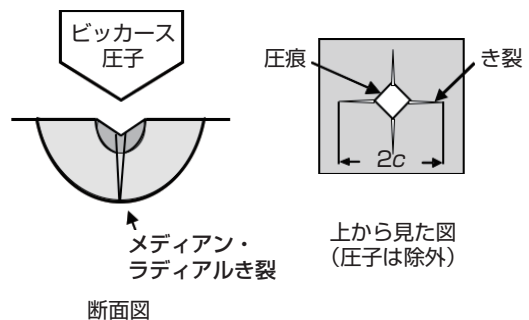


図2 ビッカース圧子圧入によるき裂の生成

表3 代表的なIF法の破壊じん性算出式の定数

提案者	n	A	発表年
Lawn-Fuller	0	0.0726	1975
Tanaka	0.25	0.035	1984
Niihara-Morena-Hasselmann	0.4	0.0309	1982
Anstis-Chantikul-Lawn-Marshall	0.5	0.016	1981
Lawn-Evans-Marshall	0.5	0.0175	1980
Miyoshi-Sagawa-Sasa	0.5	0.018	1985
Shetty-Rosenfield-Duckworth	0.5	0.023	1985

鏡写真を示す。ここで、除荷後にき裂が成長する駆動力は、圧子下で圧縮変形された領域が、除荷後にその周囲にもたらず残留引張応力場にあると考えられている。巨視的なき裂を比較的大きな試験片に導入する破壊じん性測定法では応力場が理論的に解析されているのに対し、IF法における残留応力場は複雑であり、現段階では厳密な理論的取り扱いが困難である。このため破壊じん性の算出式としては、式の導出に使われた弾塑性解析法の相違から数多くの式が提案されており、メディアン・ラディアルき裂に対して、そのほとんどは、一般的には以下のように表現される。

$$K_{\text{LIFR}} = A(E/HV)^n (F/c^{1.5}) \quad (2)$$

ここで、 K_{LIFR} はIF法による破壊じん性で、 E はヤング率、 HV は圧痕寸法から求まるビッカース硬さ、 F は押し込み試験力、 c はき裂長さの半分、 n は指数、 A は定数である。定数 A は巨視的なき裂を比較的大きな試験片に導入する破壊じん性測定法で求めた破壊じん性値と一致するように実験的に決定される場合が多い。代表的な破壊じん性算出式の n と A を表3に示す。IF法は測定の簡便さと試験片寸法の制約がほとんどないことから、1970年代後半から開発されて以来、セラミックス業界で広く一般に使われており、特に $3 \times 4 \times 18 \sim 36$ mm の棒状試験片を取り出せない小型セラミックス製品の破壊じん性評価に欠かせないものとなっている。しかし、国際的に算出式が統一されておらず、各自がそれぞれ異なる算出式により評価を行うケースが散見された。同じ測定データを用いても、算出式が異なると異なる破壊じん性を与えることになることから、2つの異なるセラミックス製品の比較に際し、それぞれ異なる算出式で計算された破壊じん性を比較しても、製品の優劣を比較することができないという問題が生じた。このために業界からは統一した算出式の導入による国際標準化が長らく要望されてきた。

さらに、セラミックスの破壊じん性試験の海外専門家から

IF法は不適切な試験方法とみなされていることもあって^{[1][2]}、これまで国際規格化されることはなかった。その主な理由は以下の2つである。

- (1) 測定精度に劣り、異なる試験機関間の測定値の再現性が乏しい^{[2][3]}。
- (2) 定数 A と n が少しずつ異なる算出式が20以上提案されているが、どの算出式においても、巨視的なき裂を比較的大きな試験片に導入する破壊じん性測定手法で測定した破壊じん性値とIF法の破壊じん性値との相関性が不完全である^[4]ことから、どの式が最適であるかが決まっていない。

興味深いことに、IF法の批判者たちは問題点を指摘し、その原因がIF法の理論が根本的に誤っているせいであると主張するばかりで、なぜ測定値の再現性に劣るのか、なぜ巨視的なき裂を比較的大きな試験片に導入する破壊じん性測定法での破壊じん性値との相関性が劣るのかといったことについて、十分な調査を行ってこなかった。

4 研究開発のシナリオ

IF法の国際標準化にあたっては、上記の海外専門家から指摘された①測定値の再現性が低いことと、②破壊じん性算出式が複数あるといった問題点を解決しなければならないのは明らかである。そこで、まずは図4に示すように①破壊じん性の再現性が低い原因について検討を行うこととした。その結果、き裂長さの読み取り誤差が破壊じん性のばらつきの主因であることがわかったことから、次に、測定の容易さ、コスト等を勘案しつつ、き裂長さの高精度測定法の開発を行った。開発した手法については、国内外のラウンドロビン試験により、再現性が改善されたかを検証することとした。

一方、②算出式が複数あるという問題に対しては、異なる研究者がそれぞれの算出式を導出する際に使ったデータの測定方法を調査し、使われた測定方法があまり信頼性の高いものではないことを見出した。精度に劣るデータが多く

の算出式を生む原因の一つであり、また、そのようなデータをもとに IF 法自体が批判されていることから、高精度のデータを取り直して議論する必要があると考えられた。そこで、開発した高精度測定法による破壊じん性と、SEPB 法

による破壊じん性との相関性を検討することとした。また、そのデータを使って最適な破壊じん性算出式の選定を行うこととした。このように、これまで問題とされてきた懸念事項を解決し、高精度測定法と破壊じん性算出式の選定を通して、国際標準化へ取り組んだ。

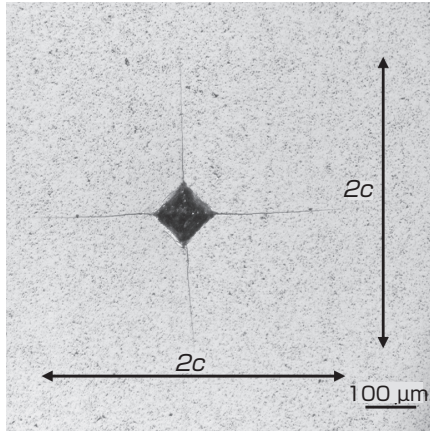


図3 炭化ケイ素に導入されたビッカース圧痕とき裂の金属顕微鏡写真 (圧入荷重:196 N、対物レンズ10倍、従来の一般的な測定方法を示す。)

5 IF法の問題点の克服

5.1 従来手法による試験機関間の測定値のばらつきの原因

IF 法の再現性の検証を目的として、日本セラミックス協会の「バルクセラミックスの信頼性革新に関する研究会」の協力のもと、国内の主要なセラミックスメーカー4社と、6大学、2公的研究機関の計12試験機関による国内ラウンドロビン試験を実施した。まず初めに、これまで一般的に行われてきた対物レンズと接眼レンズをそれぞれ10倍としてき裂全部を一つの視野に収めて、この視野の中で圧痕とき裂長さを読み取る (図3) という従来の手法について検討した。図5の黒丸は、図3の炭化ケイ素試料を供試材

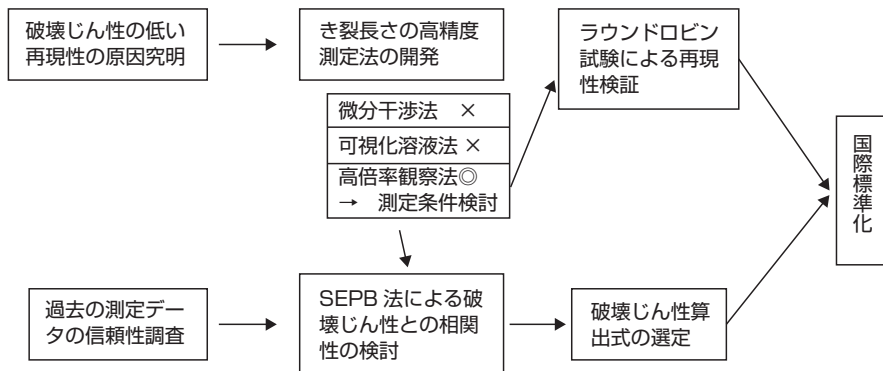


図4 圧子圧入 (IF) 法によるセラミックスの破壊じん性試験法の国際標準化のためのシナリオ

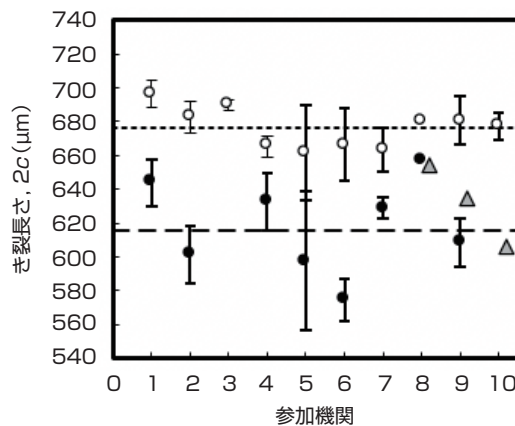


図5 炭化ケイ素を供試材とした IF 法の国内ラウンドロビン試験でのき裂長さの測定結果^[5]。●は10倍の対物レンズ (従来法) での測定値を示し、▲は10倍の対物レンズと CCD カメラで撮影した画像をソフトウェアで約400倍に拡大して測定した値を示す。○は対物レンズを40~50倍として測定顕微鏡 (新提案法) (No. 1~4)、または、硬度計のステージ移動 (新提案法) (No. 5~10) により測定した値を示す。エラーバーは標準偏差を示す。N=5~8。

表4 従来のIF法による破壊じん性測定の不確かさ評価

記号	要因	標準不確かさ (%)	感度係数	標準不確かさ (%)
$u(a)$	圧こん寸法測定の不確かさ	0.582	0.8	0.466
$u_s(a)$	標準器の校正の不確かさ	0.263		
$u_r(a)$	寸法測定繰返しの不確かさ	0.519		
$u(c)$	き裂長さの測定の不確かさ	0.965	-1.5	1.448
$u_s(c)$	標準器の校正の不確かさ	0.067		
$u_r(c)$	寸法測定繰返しの不確かさ	0.963		
$u(f)$	試験力測定の不確かさ	0.108	0.6	0.065
$u(E)$	ヤング率測定の不確かさ	0.214	0.4	0.086
合成標準不確かさ (%)				1.52
拡張不確かさ (%) ($k=2$)				3.04

とした国内ラウンドロビン試験結果を示している^[5]。き裂長さ $2c$ は、約 580 ~ 660 μm と大きくばらつき、この結果、Niihara の式^[6] で算出した破壊じん性は約 3.4 ~ 4.4 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ と試験機関の間で大きく異なるものとなった (図6の黒四角)^[5]。ここで、研究機関1における破壊じん性の測定の不確かさの要因を表4に示した。破壊じん性の算出式には Niihara の式を使って、(2)式でのピッカース硬度 HV に、 $HV=1.854F/4a^2$ を代入した次式を不確かさの計算に用いた。

$$K_{\text{IFRR}} = 0.042E^{0.4}F^{0.6}a^{0.8}c^{-1.5} \quad (3)$$

表4より、破壊じん性測定の不確かさの大部分がき裂長さの測定の不確かさに起因していることがわかる。またこ

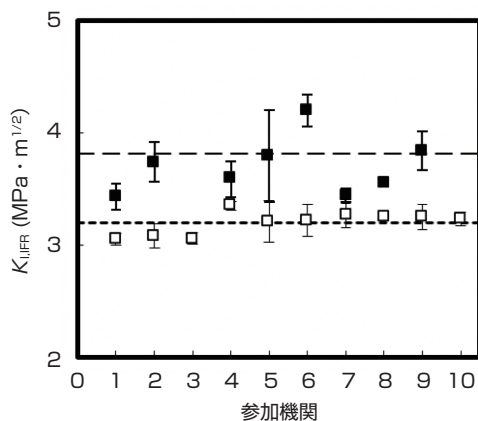


図6 炭化ケイ素を供試材としたIF法の国内ラウンドロビン試験での破壊じん性の測定結果^[5]。■は10倍の対物レンズ(従来法)での測定値を示し、□は対物レンズを40~50倍として測定顕微鏡(新規提案法)(No.1~4)、または、硬度計のステージ移動(新提案法)(No.5~10)により測定した値を示す。エラーバーは標準偏差を示す。N=5~8。

れとは別に、試験片を回収し圧痕とき裂の寸法を後述する高倍率観察法を用いて我々が測定したところ、約 700 μm とほぼ一定の値が得られ、き裂長さ自体のばらつきは小さいことや、各機関で読み取ったき裂長さが我々の値よりも 40 ~ 120 μm ほど短いことがわかった。これにより、従来の破壊じん性測定値のばらつきは、き裂長さ自体のばらつきが原因ではなく、き裂長さの読み取り誤差が測定者ごとに大きく異なることに起因することが明らかとなった。

5.2 き裂長さの高精度測定法の開発

き裂長さの読み取り時に誤差が生じることは、図3から見てわかるように、き裂先端を特定するのが難しいことに由来する。そこで、き裂長さを正確に測定するためにはき裂先端の視認性を向上する必要があり、その手法には①き裂先端のコントラストを高める、②き裂先端の解像度を上げる、の2通りがあげられる。そこでまず、コントラストを高める方法として、き裂にインク等の顔料を浸透させる手法の検討を行ったところ、アルミナ等白色のセラミックスには有効であるが、炭化ケイ素等の黒色のセラミックスには使えないことがわかった。また、水分による低速き裂成長を防ぐために水分を含まないインクを選択しなければならないという問題があった。これに対し、我々は圧こん導入後の試料表面に透明塗料を薄く塗布し乾燥させることで、き裂先端を着色する方法を見出した。これは、き裂に透明塗料が浸透すると、乾燥後のき裂周囲の透明膜の厚みが僅かに減少し、光の干渉色が変わることを利用したものである。この方法により炭化ケイ素のき裂長さの読み取り誤差を低減できることがわかった^[7]。しかし、この方法では透明塗料の塗布量をコントロールし一定の膜厚を得ることが難しいことや、他のセラミックスでの検討が行われておらず、まだ発展段階にある手法と言える。この他に、微分干

渉法による観察により、き裂長さの読み取り誤差を低減できることが、後述する高倍率観察法との比較によりわかった。しかし、微分干渉機能の付いた光学顕微鏡は高価であるうえに、オペレーターにも知識が要求されることから、広く一般のユーザーを対象とした方法とは言えない。次にき裂先端の解像度を上げる方法の最たる例として、走査型電子顕微鏡 (SEM) を使って倍率1万倍でき裂先端の位置を同定する方法を検討した。この場合、従来法のようにき裂長さを1つの視野の中で測定することはできないので、代わりに上のき裂先端を画面中央に合わせて試料テーブルの位置を記録し、その後、テーブルを移動して反対のき裂先端を画面中央に合わせて試料テーブルの位置を再度記録し、テーブルの移動量からき裂長さを求めた (図7)。この手法によりき裂の位置を1 μm の精度で特定することができたが、SEM 観察用試料の準備に手間がかかることや、操作に時間がかかるという問題があった。一般的に破壊じん性の測定自体、測定の繰返しのばらつきを考えると1 μm の高精度で測定する必要性がないうえに、IF 法は操作の簡便さが魅力とされており、製造現場においても誰もが簡単に測定できることが必要と考えられる。さらに現有

の光学顕微鏡や硬さ計等の装置を使った測定を多くのユーザーが要望していることを考慮すると、微分干渉法による測定や SEM による測定は、多くのユーザーを対象とした IF 法の標準化には向いていないと言える。

それならば、き裂先端の解像度を改善する簡単な方法として、光学顕微鏡の観察倍率を大きくすれば良いと思われるだろう。しかし、単に観察倍率を上げるだけでは必ずしも解像度を改善できるとは限らない。例えば、対物レンズを10倍として CCD カメラで撮影した画像をソフトウェア上で約600倍程度に拡大した観察例を図8左に示す。全体としてぼやけており、き裂先端がどこかがわかりにくい。実際にこの方法でき裂長さを測定しても、図5の△で示すようにき裂長さは、従来法で測定した値とあまり違わなかった。これに対して、50倍の対物レンズと CCD カメラで撮影した画像を同じ倍率に拡大した写真を図8右に示す。分解能が著しく向上しき裂先端まではっきりと観察できることがわかる^[5]。この違いは光学顕微鏡の2点分解能から説明できる。光学顕微鏡の2点分解能 δ は、 $\delta = 0.61 \lambda / NA$ で与えられる。ここで λ は光の波長、 NA は対物レンズの開口数である。開口数は一般的に倍率の高いものほど大き

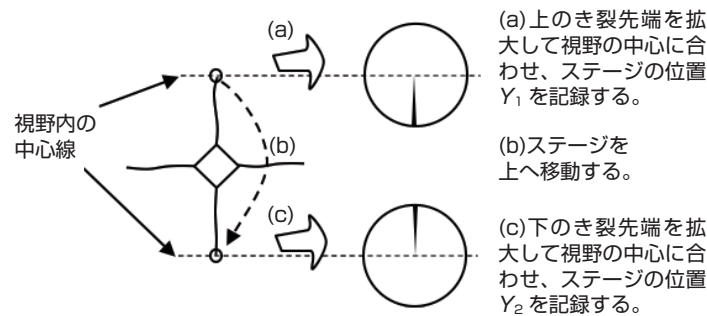


図7 き裂両端を高倍率で観察し、ステージ移動量からき裂長さを測定する方法。き裂長さは $Y_2 - Y_1$ から求められる。

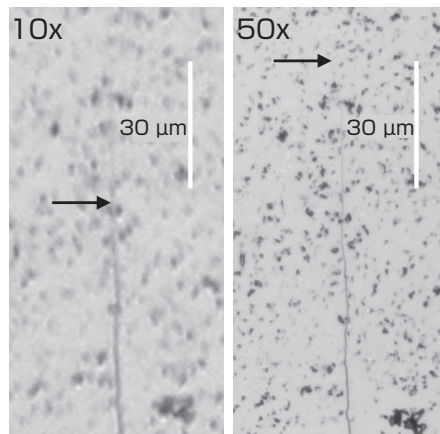


図8 炭化ケイ素上のき裂先端を10倍(従来の倍率)、又は、50倍(新提案の倍率)の対物レンズで観察した金属顕微鏡写真。図中の矢印は認識できるき裂先端の位置を示す。

い。ここで一例として2点分解能を計算すると、我々の有する10倍と50倍の対物レンズの開口数はそれぞれ0.2と0.55であり、光の波長が600 nmの場合、10倍の対物レンズの分解能は1.83 μm 、50倍の対物レンズの分解能は0.67 μm となった。つまり、低倍の対物レンズを使って撮影した画像をソフトウェアで拡大する手法では、分解能の悪い画像を単に拡大するだけで解像度の改善にはつながらないので、開口数の大きな高倍率の対物レンズを使い、分解能を改善することが必要であることがわかった。この他、顕微鏡の照明方法にも注意が必要である。白色のセラミックス等透光性が多少ある場合、側射照明を使うと、表面下のき裂を誤って観察してしまう可能性があることがわかった。これを防ぐために同軸落射による照明が望ましいと言える。

き裂長さ測定への高倍率観察法の効果を確認するために、測定顕微鏡に50倍の対物レンズと10倍の接眼レンズを装着し、同軸落射照明でき裂先端の位置を同定し、図7に示した試料ステージを移動する方法でき裂長さの測定を行ったところ、研究機関1のき裂長さの測定の標準不確かさは0.558%となり、従来法の約60%まで減少させることができた。この結果、破壊じん性の合成標準不確かさは0.94%となり、SEPB法による標準不確かさが1.06%であったことと比べると、SEPB法と遜色ない精度で測定ができていたことがわかった。この高倍率観察法は、手持ちのビッカース硬度計に40~50倍の対物レンズを装着でき、ステージが縦横にマイクロメーターで移動可能であるならば採用できるし、もしくは、ビッカース硬度計のすぐわきに測定顕微鏡を置き、圧痕導入後に測定顕微鏡で圧痕とき裂長さを測定するというやり方も可能であり、広く産業界でも利用できる手法であることから、IF法の標準的な手法として望ましい。そこで、この新たな測定法の有効性を検証することを目的として、国内ラウンドロビン試験を再度実施した。図5の白丸は対物レンズを40~50倍にして測定顕微鏡、または、硬度計のステージ移動によりき裂長さを測定する新提案法で得られたき裂長さの国内ラウンドロビン試験結果を示す。き裂長さのばらつきは約660~700 μm と、従来手法で得られたばらつきの約半分となり、同時に各参加機関内でのばらつきも小さくなっている。この結果、各参加機関の破壊じん性の値も図6の白四角に示すように3.2 $\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ でほぼ一定となっている。他の代表的な構造用セラミックスである窒化ケイ素やアルミナを使って国内ラウンドロビン試験を実施し、この新提案法によれば破壊じん性値の良好な再現性を得ることができることを明らかにした^{[8][9]}。このように、き裂先端の位置の決定を高倍率の対物レンズを使って行い、き裂長さをステージ

の移動により測定することで、それぞれを正確に行うことが可能となり、再現性の改善が可能であることがわかった。

5.3 SEPB法による破壊じん性値との相関性

5.3.1 過去の測定データの信頼性推移

幾つかのセラミックスを使った時のIF法による破壊じん性値と、IF法以外の測定法による破壊じん性値との相関性が、どの算出式を使っても劣ることが海外の一部専門家にIF法が批判されてきた主な理由である。しかし、これまで述べてきたように従来のIF法で測定された測定値は精度に劣るものであるから、果たしてそのような信頼性に劣るデータを基にして、IF法の有効性を議論することが妥当であるかは疑問が残る。そこで、過去の文献における測定データの信頼性を再調査することにした。

まず、過去の文献を評価する基準として、1) IF法におけるき裂長さ測定精度、2) 比較となるIF法以外の破壊じん性測定法の精度、3) 測定対象となるセラミックス試料の妥当性があげられる。1) に関して言えば、前述したように従来手法による測定では精度が不十分であり、高倍率観察とステージ移動を組み合わせた手法、または、微分干渉法等の特別なテクニックで測定されたものでなければ、信頼性あるデータとみなすことはできない。一方、巨視的なき裂を比較的大きな試験片に導入する破壊じん性測定法に関しては、IF法の開発が行われていた1980年代では十分に確立されたものではなく、さまざまな測定法が使われていた。しかし、その後の研究によりSEPB法やSEVNB法、CNB法等が信頼性の高い測定法として認識され国際標準化されたのに対し、それ以外の一部の方法は測定精度の低いものであることが判明し、今ではほとんど使われていない^[10]。したがって、過去の文献において使われている破壊じん性測定法によっては、データの信頼性が不十分であることもあり得る。最後の3) 測定試料の妥当性については、IF法の測定原理から考察する必要がある。前述したようにIF法の測定原理として、圧子下で圧縮変形された領域から発生する残留応力場が、き裂の進展の駆動力と考えられている。ここでもし、圧縮変形された領域が高密度化してしまうと残留応力自体が減少するので、IF法での破壊じん性が見積りに狂いが生じてしまう。近年の研究によりガラスが高圧縮応力下において緻密化することが知られ、IF法の測定に適さないことが明らかとなった^[11]。しかし、IF法の開発当時はこの現象がほとんど知られておらず、ガラスやガラスセラミックスを測定対象に含めた研究も行われてきた。

これらの判定基準を基にIF法に関する主要な23文献の実験データを精査した^[12]。その中でも引用が多い主要な論文について、上記の判定基準にしたがって測定精度

表5 主要なIF法の文献における破壊じん性の測定精度とガラス試料の有無 (文献[12]より抜粋)

発表年	著者	IF法の測定精度	比較とする破壊じん性測定法の測定精度	ガラス試料の有無
1976	Evans & Wilshaw	×	○	有
1976	Evans & Charles	×	×	無
1980	Lawn-Evans-Marshall	×	×	有
1981	Anstis-Chantikul-Lawn-Marshall	○	×、○	有
1982	Niihara-Morena-Hasselman	×	×、○	無
1989	Ponton & Rawlings	×	×	有
2007	Quinn & Bradt	○	○	無

と測定試料に関して表5にまとめた。IF法による測定に関してみると、高い精度を確認できるのは、Anstisら^[13]と、Quinn & Bradt^[2]の報告しか見当たらない。比較とする破壊じん性の測定に信頼性が高い手法だけを使っているのは、Evans & WilshawとQuinn & Bradtの2件のみである。一方、測定試料として不適切なガラス試料を使っていないのは、Evans & CharlesとNiihara-Morena-Hasselman、Quinn & Bradtだけである。これより、上記の3つの条件を同時にクリアできるのは実のところ、Quinn & Bradtしかないことになる。しかし、彼らの測定試料は窒化ケイ素のみであり、引き合いに使った他の研究者の炭化ケイ素のデータの測定精度が不確かであるので、相関性を議論することは適切でない。ここで、IF法の批判者たちが、IF法とIF法以外の測定法での破壊じん性値の相関が悪いという根拠として引用するPonton & Rawlingsのデータ^[4]の信頼性を見てみると、IF法の測定値の信頼性に欠けるのみならず、不適切な破壊じん性測定法が使われており、さらには、ガラス試料も使われている。この測定データを使ってIF法の有効性を議論することは適切と言えず、したがって、海外の専門家が批判するIF法とIF法以外の測定法との破壊じん性値の相関性が劣るとする主張には確固としたデータの裏付けがないことが明らかとなった。しかしこのことは同時に、巨視的なき裂を比較的大きな試験片に導入する測定法とIF法との破壊じん性値の相関性があるかどうかはわからないということであり、IF法の有効性を議論するためには、これら3条件を満たす正しい測定により、相関性を実際に調べる必要が生じた。

5.3.2 各種セラミックスでの測定

表3に示した破壊じん性算出式の中でも、世界的にもっともよく使われていると思われるAnstis^[13]、Niihara^[6]、Miyoshi^[4]の3式を使って、IF法による破壊じん性とSEPB法での破壊じん性との相関性を調べた^[15]。幾つか

の構造用セラミックスを供試材とし、我々が開発した高倍率観察法によるIF法での測定値と、SEPB法による破壊じん性値との相関性を図9～図11に示す。どの図においても、IF法による破壊じん性はSEPB法による破壊じん性にほぼ比例している。図9はAnstisの式を使ってIF法の破壊じん性を算出したグラフである。ほとんどのセラミックスにおいてIF法の値はSEPB法の値の7～8割程度しかなく、これらの破壊じん性の拡張不確かさ($k=2$)はIF法とSEPB法ともに約0.1～0.2MPaであり、統計的に見ても明らかな有意差があった。一方、Miyoshiの式を使った場合、図10に示すように、ホットプレス法により作製した微粒からなるアルミナ(図中の△)と微粒の窒化ケイ素(図中の○●)のIF法の値が、SEPBの値とかなり近い値を示したが、統計的に有意差が認められた。一方、固相焼結炭化ケイ素以外のサンプルのIF法の値はSEPBの値よりも約1～2割ほど小さくなった。これに対し、Niiharaの式の場合、IF法の破壊じん性が増大してすべてのデータ点がグラフの上側に移動した(図11)。この結果、窒化ア

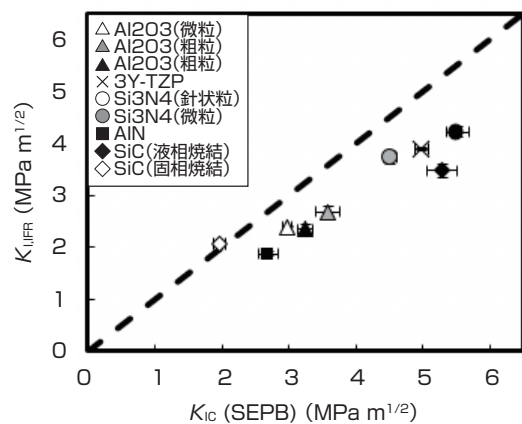


図9 主要な構造用セラミックスにおけるSEPB法による破壊じん性 K_{IC} と、Anstisの式により算出したIF法の破壊じん性 K_{LIFR} との相関性。き裂の長さは新提案法で測定した。エラーバーは標準偏差を示す。N=3～8。

ルミ (■) と 液相焼結の炭化ケイ素 (◆) では、IF 法と SEPB 法との間に統計的に有意差が認められなかった。一方、粗粒のアルミナ (▲) では、IF 法の値と SEPB 法の値は比較的近い値となったが有意差が認められ、他のアルミナや窒化ケイ素、3Y-TZP においては IF 法の値が 1~3 割ほど大きくなった。このように材料ごとに見ていくと、必ずしも、IF 法による破壊じん性が SEPB 法の破壊じん性に近い値を与えるとは言いきれない場合もあるが、全体の傾向としては、IF 法と SEPB 法での測定値の間に正の相関性が認められ、IF 法の妥当性が確認できた。

これまで海外専門家からは IF 法の測定精度が劣ることや、巨視的なき裂を比較的大きな試験片に導入する測定法での破壊じん性値との相関に劣ることが問題視されてきたが、我々の取り組みにより、IF 法の測定精度が改善され、

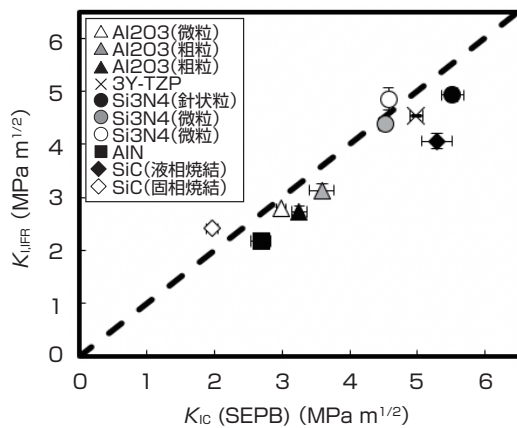


図 10 主要な構造用セラミックスにおける SEPB 法による破壊じん性 K_{IC} と、Miyoshi の式により算出した IF 法の破壊じん性 $K_{I,IFR}$ との相関性^[15]。き裂の長さは新提案法で測定した。エラーバーは標準偏差を示す。N=3~8。参考文献 [15] から許可を得て再掲。

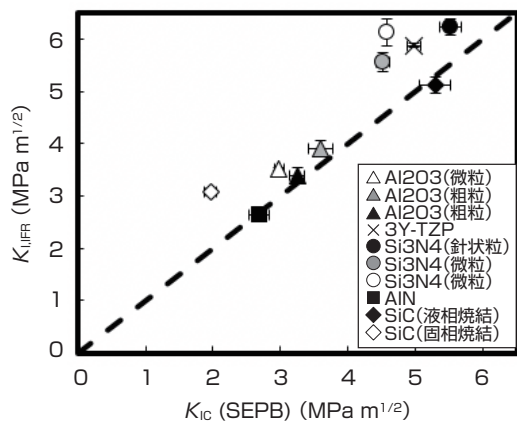


図 11 主要な構造用セラミックスにおける SEPB 法による破壊じん性 K_{IC} と、Nihara の式により算出した IF 法の破壊じん性 $K_{I,IFR}$ との相関性^[15]。き裂の長さは新提案法で測定した。エラーバーは標準偏差を示す。N=3~8。参考文献 [15] から許可を得て再掲。

SEPB 法での破壊じん性との相関も悪くないことが明らかとなった。これにより、高倍率観察法による IF 法を使った破壊じん性試験法を国際標準化することが妥当であると考えられた。

6 国際規格化に向けた取り組み

6.1 セラミックス材料の破壊じん性に関する測定法や国際標準化等に関する歴史的経緯

1920 年代から 1950 年代にかけて、Griffith、Irwin、Weibull 等により線形弾性脆性固体の破壊現象に関する古典論が構築され、セラミックスの破壊現象を理解するための破壊エネルギーや破壊じん性という概念が与えられた。1960 年代になると、破壊じん性の測定のために DCB (Double Cantilever Beam) 法や CNB 法をはじめとする金属材料での破壊じん性試験法が使われはじめ、1970 年代になるとセラミックスの破壊じん性がより広範囲に検討されるようになった。しかし、多くの測定法において鋭いき裂の導入が難しいという問題があった。これに対して、1970 年代後半には IF 法の開発が行われ、その測定の簡便さから 1980 年代に多くの研究が行われ数多くの算出式が提案された。さらに 1980 年代後半には Nose らにより予き裂の導入が比較的容易である SEPB 法が開発された^[16]。

日本においては、SEPB 法による測定値との比較により、多くの IF 法の算出式の中から Miyoshi の式が選定されて、SEPB 法と IF 法が 1990 年に JIS R1607「ファインセラミックスの破壊じん性試験方法」として制定された。しかし、海外においては、同時期に最適な IF 法の式を選出する調査が Ponton ら^[4]により行われたが、いずれの式も不十分であるとみなされた。VAMAS プロジェクト^[3]においても国際規格化が検討されたこともあったが、再現性や SEPB 法との相関性等に問題があるとされて規格化は見送られた。また、ASTM 等他の規格にも採用されることはなかった。

比較的大きな試験片に巨視的なき裂を導入する各種破壊じん性測定法に関しても、再現性や異なる測定法間での整合性等の検討が行われた結果、一部の測定法は不適切であることが明らかとなり、SEVNB 法や、SCF (Surface Crack in Flexure) 法が開発された。これらの各種破壊じん性測定法の見直しを踏まえて、1999 年に ASTM C1421 において、SEPB 法、SCF 法、CNB 法の 3 種がセラミックスの破壊じん性試験法として規格化された。これに引き続き、ISO が 2003 年から 2005 年にかけてこの 3 試験法の国際規格をそれぞれ発行し、2008 年には SEVNB 法の国際規格が発行された。

これらの試験法はすべて静的かつ線形域での破壊を対象としたものである。これは、セラミックスが室温では塑

性変形をせず非線形的な破壊挙動を示さないことによる。一方、1400 °C の高温においては、窒化ケイ素が非線形的な破壊挙動を示すことから、金属材料を対象に開発された弾塑性破壊じん性 JIC 試験が 1990 年代初頭に行われた例があるが^[17]、高温構造材料としてのセラミックスの研究開発が下火になるにともない、高温での非線形破壊じん性試験はほとんど行われていないのが現状である。動的破壊じん性に関しては、ホプキンソン棒法による衝撃試験による測定^[18]や、落重型衝撃試験装置を使った測定^[19]が 1980 年代後半に行われた例があるが、現在では動的破壊じん性に関する報告を目にするのはあまりない。このように 2008 年に SEVNB 法が国際規格として発行されて以来、新たな破壊じん性試験法の国際規格化の動きは見られず、工業的に広く使われている IF 法の国際規格化は取り残されたままであった。

6.2 算出式の選定

国際標準化にあたりまず問題となったのは、算出式を統一すべきかどうかということであった。各国や各組織でこれまで頻繁に使われてきた算出式が異なり、各国、各組織としてはこれまで使ってきた式をそのまま継続して使いたいという要望がある。例えば、日本では Miyoshi の式が JIS R 1607「ファインセラミックスの破壊じん性試験方法」に採用されており、一方、ヨーロッパでは Anstis の式が比較的好く使われてきた。また、アメリカでは Niihara の式も多用されてきた。このため、算出式を 1 つに絞らず、代表的な式を併記するという考えも考えられた。しかし、もし仮に複数の式を併記した場合、式によって得られる値が異なることから、規格のユーザーにとっては、異なる式で計算された破壊じん性を比較しても意味をなさず、セラミック製品の優劣を判断することが難しくなってしまう。国際規格を作成する目的は、セラミックスの機械特性を直接比較して、製品の優劣を判断することであるから、複数の式を併記することは国際規格化の目的を大いに損ねてしまう。このため国際規格においては IF 法の算出式を一つに統一することとなった。

では、どの式を使うべきかという問題になる。基本的には、SEPB 法等の標準的な手法で測定した破壊じん性値と比較的によく一致する算出式が望ましいのは言うまでもない。5.3.2 で述べたように Anstis の式で破壊じん性を求めた場合、ほぼすべてのセラミックスで SEPB 法による破壊じん性値よりも小さな値となることから、適当ではないだろう。Miyoshi の式の場合、微粒のアルミナや微粒の窒化ケイ素で IF 法の計算値が SEPB 法の値に近い値となったが有意差があり、他のセラミックスでは全体的に小さな値を与えた。これに対し、Niihara の式の場合、窒化アル

ミ、液相焼結炭化ケイ素で有意差が認められなかったものの、全体的に大きめの値を与えていたことから、Miyoshi と Niihara のどちらの式も甲乙つけ難い。しかし、国際的な認知度を比較すると、Miyoshi の式は、日本の論文誌に日本語の論文で発表されたものであることから、海外では一部の専門家を除きほとんど知られていないのに対し、Niihara の式の海外での知名度は高い。また、転がり軸受球用窒化ケイ素材に関する ISO 26602 において、すでに Niihara の式が採用され、Niihara の式が破壊じん性の算出式として国際的に認識されつつある。以上のことから、Niihara の式を採用することとした。

6.3 用語の選定

SEPB 法等のき裂を導入した棒状試験片による標準的な破壊じん性の試験方法は、線形破壊力学で定義されたモード I の臨界応力拡大係数の評価として理論的根拠が明確である。これに対し、IF 法での測定は半経験式に基づくものであり理論的背景が明確ではないことから、海外においては、SEPB 法等の標準的破壊じん性測定法による破壊じん性 K_{IC} と、IF 法による測定値は厳密に区別すべきであるとされてきた^{[11][2]}。これを受けて、IF 法を使った転がり軸受球用窒化ケイ素の測定値は、ISO 26602 において IF 法による「破壊抵抗、 $K_{I,IFR}$ 」と定義され、海外において定着しつつある。また、5.3.2 で述べたように、ごく一部のセラミックスにおいて、IF 法による測定値と SEPB 法による測定値は統計的に有意差がないものの、他の多くのセラミックスでは有意差があることがわかった。これらのことから、ファインセラミックス全般を対象とした IF 法においても、「破壊抵抗、 $K_{I,IFR}$ 」という用語を国際規格において採用することとした。

6.4 国際ラウンドロビン試験による新提案法での再現性の検証

我々が新たに提案した IF 法の再現性については、国内でのラウンドロビン試験により良好な結果が得られたが、国際規格化においては国際的に再現性を検証する必要がある。また、試験手順が国外においても実施が容易であることを確認しなければならない。そこで、国内ラウンドロビン試験で使ったアルミナ、窒化ケイ素、炭化ケイ素の試料を海外の 6 試験機関に送付して、国際ラウンドロビン試験を行った^[20]。結果の一例として、窒化ケイ素のき裂長さや破壊じん性の測定結果を図 12 と図 13 に示す。き裂長さは各機関でほぼ一定となり、その結果得られた破壊じん性も極めてばらつきの少ない結果となった。このことから、国際的に IF 法の再現性が妥当であることが確認された。

6.5 ISO 専門委員会での活動

国際ラウンドロビンでの再現性の確認後に、ISO/TC206

「ファインセラミックス」委員会 2015 年韓国済州島総会において、今回開発した IF 法の破壊じん性試験法を将来提案として説明した。国内外の計 18 機関によるラウンドロビン試験での再現性や、IF 法と SEPB 法での破壊じん性値の相関性といった実験データを示すことで、従来の問題点が解決され国際規格として準備ができていないことを十分にアピールすることができた。翌年春に国際規格案を TC206 委員会に提案し、新業務項目として審議すべきかを問う投票に臨んだ。投票の結果、国際ラウンドロビン試験に参加したドイツからエキスパート 2 名の選出があり、この他にマレーシア、インドネシア、日本の計 4 か国からエキスパートが選出され新業務項目として審議がスタートした。この投票時において以下の技術的コメントが寄せられた。

- a) Niihara の式以外にも、Anstis の式等複数の式を併記すべきでないか。

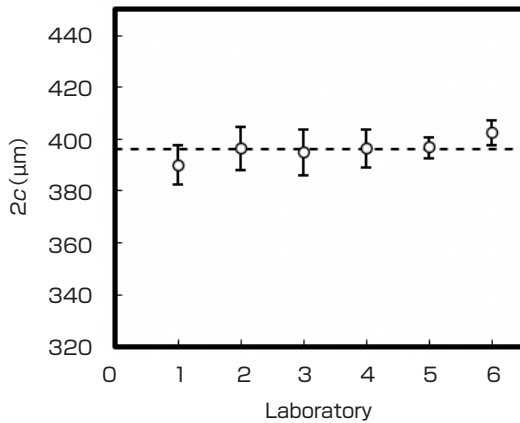


図 12 窒化ケイ素を供試材とした IF 法の国際ラウンドロビン試験でのき裂長さの測定結果^[20]。き裂の長さは新提案法で測定した。エラーバーは標準偏差を示す。N=6～11。参考文献 [20] から許可を得て再掲。

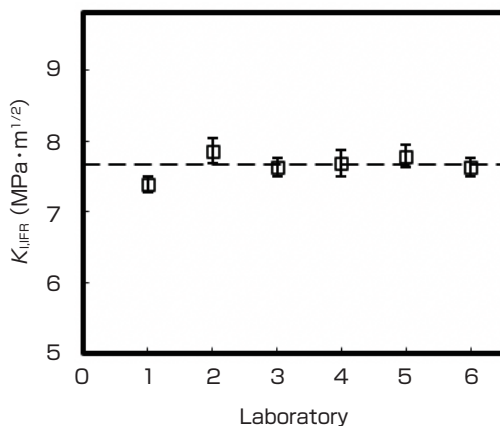


図 13 窒化ケイ素を供試材とした IF 法の国際ラウンドロビン試験での破壊じん性の測定結果^[20]。き裂の長さは新提案法で測定した。エラーバーは標準偏差を示す。N=6～11。参考文献 [20] から許可を得て再掲。

- b) どうして Niihara の式を選出したのか。その正当性を説明するべきである。

これに対し、6.2 で検討した内容をエキスパートに説明し、了承を得ることができた。その他、試料表面下に水平に広がるラテラルクラック (水平き裂) や、多孔質セラミックスに対する取扱いに関する注意を規格本文に追記する等の微修正を経て、ISO 21618 「室温での圧子圧入法によるモノリシックセラミックスの破壊抵抗試験法」が 2019 年 3 月に発行された。

7 まとめ

試験片の寸法・形状の制約が少なく、試験手法が簡便なことからセラミックスの破壊じん性測定に多用されてきた IF 法であるが、従来の測定手法では測定精度に劣ることや、算出式が多数存在することからこれまで国際規格化されることがなかった。これに対し我々は、き裂長さの読み取り誤差を低減し、測定値の信頼性を改善する手法を開発した。また、この手法を使って最適な算出式を選定することができた。そして、国内外の計 18 機関によるラウンドロビン試験での再現性といった十分なバックデータをもとに、国際規格を発行することができた。IF 法による破壊じん性値は、セラミックス部品の特性を示すカタログ値として記載され、その製品が構造用材料として使用に耐えるかの判断基準とされる他、JIS R 1669 においては窒化ケイ素製のベアリングボールの等級分類の指標にも使われている。構造用セラミックス製品の製造に携わる方々をはじめ、その製品のユーザーにとっても IF 法は欠かせないと思われることから、多くの方々にこの国際規格を使って正確な破壊じん性の測定に役立てていただきたいと願っている。

謝辞

ラウンドロビン試験による再現性改善に関する研究は、公益社団法人 日本セラミックス協会のバルクセラミックスの信頼性革新に関する研究会 (代表者：東京工業大学、安田公一) のご協力のもとに行われました。また、国内での標準化委員会の運営は、一般社団法人 日本ファインセラミックス協会の協力のもとに行われました。ここに記して、本研究会、および、ラウンドロビン試験参加機関、日本ファインセラミックス協会の皆様に感謝の意を表します。

参考文献

[1] G. D. Quinn: Fracture toughness of ceramics by the Vickers indentation crack length method: A critical review, *Ceram. Eng. Sci. Proc.*, 27, 45–62 (2006).

[2] G. D. Quinn and R. C. Bradt: On the Vickers indentation fracture toughness test, *J. Am. Ceram. Soc.*, 90 (3), 673–680 (2007).

[3] 淡路英夫, 山田達也, 奥田 博: セラミックスの破壊靱性ラウンドロビンテスト結果報告, *J. Ceram. Soc. Jap.*, 99 (1149), 417–422 (1991).

[4] C. B. Ponton and R. D. Rawlings: Vickers indentation fracture toughness test. Part 2. Application and critical evaluation of standardized indentation toughness equations, *Mater. Sci. Tech.*, 5 (10), 961–976 (1989).

[5] H. Miyazaki, Y. Yoshizawa and K. Yasuda: Round robin on indentation fracture resistance of silicon carbide ceramics by using a powerful optical microscope, *Ceram. Int.*, 39 (1), 611–617(2013).

[6] K. Niihara, R. Morena and D. P. H. Hasselman: Evaluation of K_{Ic} of brittle solids by the indentation method with low crack-to-indent ratios, *J. Mater. Sci. Lett.*, 1, 13–16 (1982).

[7] H. Miyazaki, Y. Yoshizawa: Novel measurement technique of crack length for indentation fracture (IF) method using high contrast image of crack tips through thin film coating, *J. Euro. Ceram. Soc.*, 35 (10), 2943–2948 (2015).

[8] H. Miyazaki, Y. Yoshizawa and K. Yasuda: Improved accuracy of the measurements of indentation fracture resistance for silicon nitride ceramics by the powerful optical microscopy, *Ceram. Int.*, 39 (8), 9499–9504 (2013).

[9] H. Miyazaki and Y. Yoshizawa: Refined measurements of indentation fracture resistance of alumina using powerful optical microscopy, *Ceram. Int.*, 40, 2777–2783 (2014).

[10] R. Morrell: Fracture toughness testing for advanced technical ceramics: Internationally agreed good practice, *Adv. Appl. Ceram.*, 105 (2), 88–98 (2006).

[11] S. Yoshida, J.-C. Sangleboeuf and T. Rouxel: Quantitative evaluation of indentation induced densification in glass, *J. Mater. Res.*, 20 (12), 3404–3412 (2005).

[12] H. Miyazaki and Y. Yoshizawa: A reinvestigation of the validity of the indentation fracture (IF) method as applied to ceramics, *J. Euro. Ceram. Soc.*, 37 (15), 4437–4441 (2007).

[13] G.R. Anstis, P. Chantikul, B. R. Lawn and D. B. Marshall: A critical evaluation of indentation techniques for measuring fracture toughness. I. Direct crack measurements, *J. Am. Ceram. Soc.*, 64 (9), 533–538 (1981).

[14] 三好俊郎, 佐川暢俊, 佐々 正: 構造用セラミックスの破壊じん性評価に関する研究, *日本機械学会論文集 (A編)*, 51, 2489–2497 (1985).

[15] H. Miyazaki and Y. Yoshizawa: Correlation of the indentation fracture resistance measured using high-resolution optics and the fracture toughness obtained by the single edge-notched beam (SEPB) method for typical structural ceramics with various microstructures, *Ceram. Int.*, 42 (6), 7873–7876 (2016).

[16] T. Nose and T. Fujii: Evaluation of fracture toughness for ceramic materials by a single-edge-precracked-beam method, *J. Am. Ceram. Soc.*, 71 (5), 328–333 (1988).

[17] N. Miyahara, Y. Mutoh, K. Yamaishi and T. Oikawa: Fracture toughness and transition of fracture behavior of silicon nitride at elevated temperature, *J. Soc. Mt. Sci., Japan*, 41 (465), 892–898 (1992).

[18] 岸田敬三: セラミックスの動的強度, *生産と技術*, 46 (1), 62–64 (1994).

[19] T. Kishi, N. Takeda, B.-N. Kim and K. Suzuki: Dynamic

fracture toughness of ceramics, *J. Ceram. Soc., Japan*, 97 (1131), 1392–1397 (1989).

[20] H. Miyazaki and Y. Yoshizawa: International round-robin test on an improved indentation fracture (IF) method performed through high-magnification microscopy with a traveling stage, *Ceram. Int.*, 41 (10) Part A, 13271–13276 (2015).

執筆者略歴

宮崎 広行 (みやざき ひろゆき)

1991年東京工業大学大学院修士課程修了、博士(工学)。東京工業大学助手を経て、現在、産業技術総合研究所主任研究員。主に無機構造材料の機械特性試験法の開発や、パワーモジュール用メタライズ基板の耐熱疲労特性の評価を行い、工業標準化に関する研究にも従事。この研究では、高倍率測定法の開発、SEPB法での破壊じん性との相関性の調査、ISO規格化に取り組んだ。



安田 公一 (やすだ こういち)

1985年東京工業大学大学院総合理工学研究科修了、博士(工学)。1997年より東京工業大学物質理工学院准教授。専門はエンジニアリングセラミックスとその複合材料の破壊力学と信頼性解析。この研究では、ラウンドロビン試験のコーディネイト、国内の標準化専門委員会での意見の取りまとめ、ISO素案作成等に従事した。



吉澤 友一 (よしざわ ゆういち)

1985年東北大学大学院修士課程修了、博士(工学)。日本原子力研究所研究員、東京大学工学部助手、東北大学素材工学研究所助手を経て、現在、産業技術総合研究所マルチマテリアル研究部門長。酸化セラミックスの組織制御と機械的特性の研究に従事。この研究では、セラミックス業界での破壊じん性試験法に対するニーズの把握、種々のセラミックスの破壊じん性試験法に関するアドバイスをを行った。



査読者との議論

議論1 全体について

コメント (清水 敏美: 産業技術総合研究所)

この論文は、脆性材料であるセラミックスの産業応用や実用化にとって非常に重要な機械的性質の一つである破壊じん性の試験方法に焦点をあてたものです。特に、産業界で広く採用されているにもかかわらず、これまで統一的な見解や算出式がなかった圧子圧入 (IF) 法を取り上げ、従来の測定値の信頼性を改善する手法を提供し、国際規格を発行するに至ったシナリオが述べられています。以上の点から、シンセシオロジー誌にふさわしい内容と考えます。

コメント (藤井 賢一: 産業技術総合研究所)

この論文は、セラミックスの破壊じん性試験法のなかでも特に圧子圧入 (IF) 法の信頼性について評価したものです。他の試験法との比較や従来のデータの再評価などを通じて IF 法の信頼性を改善する手法を提案し、この分野における国際標準化に貢献したという点で優れた内容の論文であると考えられます。

議論2 種々の破壊じん性試験法について

コメント (清水 敏美)

初稿をまず読み終えた率直な感想です。高精度なき裂長さ測定を目指すと言いつつ、何故、最先端の高精度・表面欠陥測定装置類とは異なる反射型光学顕微鏡の明視野観察に固執するのか、何故、比較的信頼性が劣る IF 法に固執するのか、正直、理解に苦しみました。しかし、幾度と読み返していくうちに、この論文が目指した意義や趣旨がやっと見えてきました。しかし、おそらく専門家ではない一般の読者は、著者が意図する重要な意義を理解できず、査読者が最初に抱いた誤った感想を持たれるのではないかと危惧します。なぜなら、導入部の数章において、その後続く議論のあらずのポイントが的確に記述されていないためだと考えます。言い換えれば、破壊じん性測定において、他の信頼性のある破壊じん性試験法の長所や短所を俯瞰しながら記述した後、IF 法の説明に移行すべきと考えます。導入部の記述は最後まで議論の根幹となりますので非常に重要と考えます。

回答 (宮崎 広行)

本文の第 2 章第 1 段落の後半において、セラミックスの代表的な破壊じん性試験法として SEPB 法、SEVNB 法、CNB 法、IF 法を個別に取り上げて説明を加えました。さらに、図 1 と表 2 を用いてそれら試験法の特徴を説明しました。次に、微小セラミックス製品にも適用可能な試験方法として、IF 法が欠かせないこと、さらに、測定の容易さや装置導入コストが比較的安価などの優位性も加わり、IF 法が産業界などで広く一般的に用いられていることを強調しました。しかし、IF 法には測定値の再現性が低い、破壊じん性の算出式が複数あるといった大きな問題点がありました。そのため、国内外の多くのユーザーから現有の光学顕微鏡やビッカース硬度計等の装置で破壊じん性の評価が可能である IF 法を再検討してほしいという要望がありました。これを受けて、著者らは従来から指摘されてきたき裂長さの読み取り誤差を低減させ、測定値の信頼性を改善させるために、IF 法の測定方法の問題点の探索と具体的な改善手法の検討に取り組みました。また、破壊じん性算出式の選定にあたっては、信頼性の高い SEPB 法による結果との相関の完全性を重視しました。その結果、国内外の試験機関によるラウンドロビン試験を経て、著者らが見出した IF 法の改善手法の再現性を確認し、多くのユーザーを対象とする国際規格を発行するに至ったわけです。

コメント (藤井 賢一)

材料試験の分野では非常に多くのじん性試験法があると考えられます。そこで、まずは第 1 章と第 2 章において、それら種々の破壊じん性試験法の全体概要を図や表などで説明し、その上で IF 法の特徴や概要を述べた方が、一般の読者にはわかりやすいと思います。

回答 (宮崎 広行)

第 2 章「セラミックスにおける破壊じん性試験法の概要と課題」の中で、第 1 段落前半において、金属材料とセラミックス材料において一般的な、巨視的なき裂を比較的大きな試験片に導入し、破壊応力から破壊じん性を計算する方法を説明しました。そして、金属材料と異なる点として巨視的なき裂を導入することが難しいことや、き裂を導入する方法がいくつかあることも説明しました。第 1 段落後半では、代表的なセラミックスの破壊じん性の測定法である SEPB 法、SEVNB 法、CNB 法について、図 1 と表 2 を用いて特徴や概要を記述しました。また、これに引き続き、IF 法の特徴として、①鏡面研磨した試験片表面にビッカース圧子を圧入し発生した圧痕の対角線長さとき裂長さを測定して、破壊じん性を決定する方法であること、②極小試験片 (例えば $5 \times 5 \times 5$ mm 程度) であっても測定することが十分に可能であるうえに、ビッカース硬さ試験機があれば容易に測定できるというメリットがあること、③破壊じん性の算出式が半経験式に基づくものであり理論的背景が明確ではない、という点に言及しました。

議論3 IF法の特徴と概要

コメント (清水 敏美)

IF 法が測定の準備や操作の簡便さ故に産業界など多くのユーザーがいることが述べられています。そのため著者らは、走査型電子顕微鏡の使用に関しては、それほどの精度が必要ないこと、準備や操作が大変であること、等の理由により多くのユーザーに不向きであると記述しています。さらに、微分干渉法の光学顕微鏡においても高価であり、理解に専門的知識が必要であるため不向きであると記述しています。測定法の選択において、一般のユーザー、広く産業界でも利用可能といった内容の必要条件は非常に曖昧です。高精度な測定手法を求めるのであれば、できるだけコスト、操作や準備の容易さ、等を求めながら最先端の測定法を求めるべきと思いますが。

回答 (宮崎 広行)

この研究の出発点は、セラミックス業界からの「操作が簡便で広く普及している IF 法を国際規格化して欲しい」というものでした。精度が高く理論的にも正しい SEPB 法などの測定法は既にありましたが、それらの測定法はセラミックス業界の現場ではほとんど使われておらず、IF 法がもっぱら使用されているとのことでした。そのため、高精度な測定手法を求めるという要望はなく、簡便さという IF 法のメリットを最大限に生かしながら、如何に IF 法の測定精度を向上するかが著者らに課せられた課題でした。言い換えれば、研究の出発点において既に、測定法としては「多くのユーザーが現有の光学顕微鏡やビッカース硬度計などの装置で破壊じん性の評価が可能な IF 法」が基本的に選択されていました。

質問・コメント (藤井 賢一)

多くの破壊じん性試験法があるなかで、著者らが IF 法に着目し、その改良に取り組んだ理由について説明して下さい。標準サイズの試験片を切り出すことのできない小型や板状のセラミックスにも適用できるから、ということなのでしょうか。

回答 (宮崎 広行)

まずは、セラミックスの各種破壊じん性の試験法と IF 法の違いを記述しました。さらに、IF 法であれば、標準サイズの試験片を切り出すことのできない小型のセラミックスにも適用できるという点に注目し、その改良に取り組んだことがわかるように第 2 章に詳しい説明を加えました。

議論4 測定の「不確かさ」について

コメント (藤井 賢一)

従来、IF 法は測定精度に劣り、他の方法で測定した破壊じん性との相関性が悪いことを理由に、IF 法は不適切な試験方法であるとみなされていました。しかし、著者らはき裂長さの測定を高精度化する手法 (図 7) を開発し、高倍率の顕微鏡を使うことで、より信頼性の高い測定結果が得られるようにしました。高倍率の顕微鏡でサンプルを観測しながら、サンプルを載せたステージを移動させ、その移動量からき裂長さを測定することで、測定の偏りやばらつきを減らすことが可能となり、IF 法の精度向上に繋がったと考えます。そこで、測定の偏りやばらつきに関連して、図 5、図 6、図 12、図 13 に掲載されているエラーバーをどのようにして導いたのかについての説明が欲しいところです。

計測の分野では通常「不確かさ」という概念で標準偏差や系統効果を見積もり、それらの合成から標準不確かさ (包含係数 $k = 1$) や拡張不確かさ (包含係数 $k = 2$ など) として測定の不確かさを評価します。IF 法における破壊じん性値は式 (2) から導かれますが、その不確かさをどのようにして見積もったのか、すなわち、き裂長さ測定における標準偏差や偏り、その他のパラメータの不確かさや系統効果などについて、典型的な場合だけでも良いので、不確かさプロジェクト表などを活用しながら、定量的に説明して下さい。その上で、他の測定法による測定の不確かさも評価しながら、測定法の優劣を比較し、測定結果の違いが統計的に有意なのかどうかを議論してほしいかがでしょうか。

回答 (宮崎 広行)

図 5、図 6、図 12、図 13 のエラーバーが、標準偏差であることと、N 数を追記しました。また、図 9、図 10、図 11 においてもエラーバー

が標準偏差であることと、N 数を追記しました。従来の IF 法の破壊じん性測定の不確かさのバジェット表を表 4 に作成しました。表 4 によると、き裂長さの測定の標準不確かさは 0.965 % となり、破壊じん性測定の標準不確かさに及ぼす寄与は 1.448 % ありました。これに対し、圧こ寸法測定の不確かさによる寄与は 0.466 %、試験力測定の不確かさの寄与は、0.065 %、ヤング率測定の不確かさの寄与は 0.086 % であり、破壊じん性測定の合成標準不確かさの大半をき裂長さの測定の不確かさが占めていることがわかりました。この結果を 5.1 節の半ばで説明しました。また、新規提案法によるき裂長さ測定の不確かさは、0.558 % となり、従来手法の約 60 % まで減少させることができたことや、その結果として、破壊じん性測定の標準不確かさが、0.94 % となり、これは SEPB 法による破壊じん性の標準不確かさ 1.06 % とほとんど同じであり、SEPB 法と遜色ない精度で測定できていることがわかりました。このことを 5.2 節の第 3 段落で言及しました。

議論5 圧子圧入時の破壊抵抗の算出式

質問 (清水 敏美)

圧子圧入時の破壊抵抗の算出式 (2) ですが、IF 法自体が理論に基づかない半経験的な手法であるのに対し、どのように導出されたのですか。

回答 (宮崎 広行)

IF 法が開発されることになったきっかけは、き裂長さが経験的に破壊じん性に関係することを Palmqvist が見出したことです。その後、弾性 / 塑性応力場を考慮した次元解析などにより、き裂長さ、圧こ寸法、押し込み荷重と破壊じん性の関係を求める式が幾つか提案されました。ここでは、最も代表的な式である Lawn-Evans-Marshall (LEM) の式を例にとり説明します。このモデルの特徴は、圧子下に形成された圧縮変形域が圧子の除去後に膨張しようとする力が、変形域周辺に引張応力場を形成し、この応力場がき裂形成の駆動力となると考えます。

圧痕周りの塑性変形域の半径を b とすると、この領域に導入される塑性ひずみは、 δV を圧痕の体積、 V を塑性変形域の体積、圧こ寸法を $2a$ とすると、

$$\delta V/V \approx (a/b)^3 \cot \phi \quad (1)$$

ここで、 ϕ は圧子の頂角 (136°) の半分です。この塑性ひずみは静水圧縮応力 p_b

$$p_b \approx k(\delta V/V) \approx E(a/b)^3 \cot \phi \quad (2)$$

を塑性変形域内に発生させると考えます。ここで、 k は体積弾性率、 E はヤング率で、ここで体積弾性率からヤング率に直すときのポアソン比の効果は、あまり影響がないと考えて無視します。十分に発達したき裂 ($c \gg b$ 、 c は半円状き裂の半径) では、この圧縮応力は塑性域外側に発生したき裂面に対して引張の集中力 P_b

$$P_b = (\pi/2)b^2 p_b \quad (3)$$

を作用させると考えられます。

半径 c の半円状き裂に集中力が作用した時の応力拡大係数 K_R は次式で与えられることが理論的に知られています。

$$K_R \approx f(\theta) P_b / c^{1.5} \quad (4)$$

$f(\theta)$ は角度の関数で、自由表面の影響を考慮するために導入されたものです。一般的に $f(\theta)$ は 1 近くの値でとても緩慢に変化します。

(4) 式に (2) 式、(3) 式を代入すると、

$$K_R \approx f(\theta) (\pi/2) E (a/b) a^2 \cot \phi (1/c^{1.5}) \quad (5)$$

一方、硬さ H は押し込み荷重 P と

$$H = P / (2a^2)$$

という関係を持つので、(このモデルではビッカース硬さ HV でなく、押し込み荷重を投影面積で割った H を用いているので係数が HV の時と異なります)

$$K_R \approx P (1/c^{1.5}) f(\theta) (\pi/4) (E/H) (a/b) \cot \phi \quad (6)$$

さらに、Hill の“膨張空孔”問題の解を応用すると塑性域の大きさは次式で (E/H) と近似的に関連付けられます。

$$b/a \approx (E/H)^m (\cot \phi)^{1/3} \quad (7)$$

ここで、 $m \approx 1/2$ です。(7) 式を (6) 式に代入すると、

$$K_R \approx P (1/c^{1.5}) f(\theta) (\pi/4) (E/H)^{1/2} (\cot \phi)^{2/3} \quad (8)$$

さらに定数項を $a = f(\theta) (\pi/4) (\cot \phi)^{2/3}$ としてまとめると、次式が得られます。

$$K_R = a (E/H)^{1/2} (P/c^{1.5}) \quad (9)$$

平衡状態においては、応力拡大係数 K_R は、破壊じん性 K_{LIFR} と等しいと考えられるので、本文中の (2) 式と同じ以下の式が得られます。

$$K_{LIFR} = a (E/H)^{1/2} (P/c^{1.5}) \quad (10)$$

この LEM モデルでは、定数 a の理論的な導出はしておらず、巨視的なき裂を比較的大きな試験片に導入する破壊じん性試験法で得られた破壊じん性 K_{IC} と $P/c^{1.5}$ を比べることにより、経験的に定数 a は、0.0175 が適当であるとしています。これまで多くの研究者が異なるモデルを立てて破壊じん性の算出式を提案していますが、殆どにおいてこのように定数 a が最終的には経験的に求められていることから、半経験的な式となっています。

議論6 メディアン・ラディアルき裂について

コメント (藤井 賢一)

本文と重複してもよいので、読者に伝えるために、メディアン・ラディアルき裂とはどのようなものであるかを、わかりやすく回答にも記述して下さい。

回答 (宮崎 広行)

ビッカース圧子の押し込みによるき裂生成の様子を図 2 に示しました。まず、ビッカース圧子が圧入されると、圧痕とその直下に変形領域が形成され、押し込み荷重がある臨界値に達すると、圧子の直下にはほぼ円形のメディアンき裂が生成します。このき裂は材料内部に発生するものであり試験片の表面には達していません。このき裂は互いに直交する 2 組のき裂からなります。ビッカース圧子を引き上げながら除荷していくと、このメディアンき裂は表面に向かって進展し、表面き裂まで成長し、いわゆるメディアン・ラディアルき裂を形成します。この説明を第 3 章の第 1 段落に記載しました。

議論7 開口数や同軸落射照明の推奨数値

質問 (清水 敏美)

光学顕微鏡において 10 倍の対物レンズより開口数の大きい 40 ~ 50 倍の対物レンズを用いて課題が解決したとあります。しかし、同じ倍率であっても開口数が異なる対物レンズがあります。同軸落射照明や開口数は定量的に推奨数値を示す必要はないのでしょうか。これらの定量的な数値条件も測定誤差に影響を与えると考えますが。

回答 (宮崎 広行)

測定顕微鏡やビッカース硬度計の顕微鏡などの 4 種類の対物レンズを調べると、各装置に取り付けられる対物レンズは、各倍率で 1 種類しかなく、一つの倍率に対し異なる開口数の対物レンズを選択することはできないようでした。また、これらの対物レンズの開口数 NA は、例えば、10 倍の対物レンズでは、 $NA=0.2 \sim 0.3$ の間にあり、40 ~ 50 倍の対物レンズでは $NA=0.55 \sim 0.75$ となっており、同じ倍率のレンズであれば、装置によらず NA は似たような値となり、また、倍率の増加とともに増大していました。おそらく、明視野像観察で、ある程度の作動距離が必要とされる測定顕微鏡や硬さ計の場合には、倍率と開口数の間に最適な関係があるのではないかと思います。そこで、市販の装置を用いている限り、対物レンズの倍率が 40 ~ 50 倍であれば、 NA は 0.5 以上となり、十分な分解能が得られると予想できます。このようにレンズの開口数の推奨数値を示さずとも倍率を指定することで、必要とされる開口数が得られると思われるので、開口数の推奨値を示さず倍率のみの指定としました。同軸落射照明に関して、制御できるのは光量だと思われませんが、最適な光量は、測定対象物ごとに観察者にとって最も見やすくなるように調整するものであり、一概に一定の数値を決めるのは難しいと思われます。また、測定顕微鏡や硬さ試験機の顕微鏡では照射している光量が数値で表示されることはほとんどないので、推奨数値を示したと

しても実際に設定することは難しいと思います。

議論8 Niiharaの式の採用について

質問 (清水 敏美)

「6.2 算出式の選定」において、JIS R 1607 に採用された Miyoshi の式を採用せずに、Niihara の式を採用したのは国際的な知名度や認知度のためとあります。和文か欧文かによって科学的根拠の信頼性を判断することに少し疑問が残りますが、一方、苦渋の選択であったことも理解できます。ISO の新業務項目として審議すべきかを問う投票においても複数の式を併記すべきとの意見が挙げたとあります。6.2 で検討した内容を説明して了承を得たとありますが、何が一番大きな決め手となったのでしょうか。議論の経緯に関して、詳しい説明をお願いします。

回答 (宮崎 広行)

海外エキスパートへの回答において、①算出式を1つにしなれば、国際規格化する意味がないこと、②海外エキスパートが考えている Anstis や Shety の式で算出した破壊じん性は、SEPB 法による破壊じん性との相関性が悪いが、それに比べて Niihara の式による破壊じん性は、SEPB 法との相関性が優れること、③ Niihara の式が転がり軸受球用窒化ケイ素材に関する ISO 26602 において既に採用され Niihara の式が算出式として国際的に認知されつつあること、の3点を説明しました。コメントをした海外のエキスパートに直接確認したわけではないので、どれが一番の決め手となったかは推測の域を出ませんが、おそらく②の説明において、実測データをもとに、Niihara の式を用いた時に SEPB 法との相関性が良好になることを明らかにしたことが、決め手になったものと思います。