

炭素繊維強化炭素(C/C)複合材料の疲労き裂進展挙動

山本 晴生*

Fatigue Crack Propagation Behavior of Advanced Material (Carried out C/C Composites Sheet under Plane Bending)

by Haruo Yamamoto

1. 緒言

炭素繊維強化炭素複合材料 (Carbon Fiber Reinforced Carbon Composites 以後はC/C複合材料という)は耐熱性, 耐摩擦性, 電気伝導性などに優れた工業材料で例えば, コンコルド, エアバスなどのプレーキ材として実用化⁽¹⁾している。プレーキ材にC/C複合材料を用いることの利点は特に, 耐熱性, 高熱伝導性, 低熱膨張率などのほか, 大幅な耐久性や制動性能の向上が期待できることにあり, コストを考慮しても競合材料である鉄鋼材料に勝てるからである。C/C複合材料の比重は1.6~1.9と非常に軽量で, 鉄鋼の約1/4であるので航空宇宙分野においては絶対的に有利である。また, 1400°C以上においても, あらゆる耐熱材料の中で最も高い比強度を示す材料である。さらに, 2000°Cまで強度を保持すると言われ, 現在最も注目されている複合材料である。C/C複合材料の繊維による強化方法には一般の樹脂マトリックス複合材料と同じく, 一方向強化, 二方向強化, 三方向強化などがある。また, C/C複合材料の代表的な製造方法にはホットプレス法, HIP法, CVD法, 樹脂含浸法などがある。さらに, 樹脂成分の一部が揮発してできる気孔にピッチを含浸させ, 炭化・黒鉛化を繰り返すことによって高密度化をはかり高強度のC/C複合材料を得ることができる。特に, 宇宙航空用の複合材料として期待が高い材料はC/C複合材料である。宇宙ステーションを中心に月, 惑星探査が1990年後半から2000年には始まろうとしている。この宇宙ステーション構築には約20回位の材料運搬が必要である。この運搬用シャトルの構造材料には耐熱材料であり, 高い比強度の複合材料が是非必要であり, C/C複合材料がその最有力候補の材料である。一方, 21世紀初頭に向けて, 航空宇宙関係ではスペースプレーン (有翼宇宙住還機), SST (超音速輸送機), HST (極超音速輸送機), エネルギー関係では石炭ガス化発電, 核融合炉などの様々な先駆的技術が計画されている。これらの計画を実現させるには1000°C~2000°Cの超高温に耐えることのできる材料の開発が必要であり, さらに材料の性能評価技術の確立も必要である。スペースプレーンはマッハ数8, 高度約26kmを巡航し, 大気圏再突入時の空力加熱によって機体の表面が超高温に達し, 先端部は1800°Cになることが予想される。

C/C複合材料の機械的および力学的特性の研究は各国で, 特に米国の軍事研究との絡み

*理工学部機械工学科助教授 材料力学, 材料強度学

により未公開のものが多く、世界的にみた研究の進行を押し量ることは極めて困難である。

C/C複合材料は宇宙航空を初めとする将来の構造材料として期待されている先進繊維強化複合材料であり、そのためには材料性能評価の確立が必要である。

わが国では、NASDA(宇宙開発事業団)が開発を進めている宇宙住還機HOPEが大気圏再突入時に淀み点で1600°Cを越えると予想され、耐熱材料のC/C複合材料が最も適用度が高い材料として有望視されている。

C/C複合材料の強度の理論的・実験的検討については、単純な一方向強化材料に対するものが多く行われている。現実的な多方向強化C/C複合材料に関しては各研究所独自の材料性能判定試験程度の悲客観的データの報告を散見する程度である。すなわち、現在行われている金属材料や繊維強化プラスチックにおける評価手法をC/C複合材料の材料性能評価にそのまま流用するものであった。ところが、C/C複合材料の内部構造や破壊形態はこれらの従来材料とは全く異なるものである。したがって、材料強度を支配する因子を抽出して、さらなる強度改善への指針を得ることが急務の問題であり、今後の材料開発研究を促進するためにも有意義なことである。

国内においては通商産業省の「次世代産業基盤技術研究開発制度」が整備されている。特に、通商産業省工業技術院物質工学工業技術研究所の複合材料構造研究室においては系統的な研究が高橋ら⁽²⁾によって行なわれ、次のような研究成果が発表されている。

C/C複合材料の強度試験過程の直接観察および破断試験片の組織観察に重点を置いた研究においては、破壊靱性値ならびにRカーブの定量的評価を行うと同時にその温度依存性を明らかにしている。さらに、C/C複合材料の複合則的分析においては、特に、製造時の熱処理によって生じる残留応力を算出し、強度発現率の低下との定性的対応を明らかにしている。

竹村ら⁽³⁾は平織りカーボン布強化積層板の引張疲労損傷と破壊について発表している。その結果は、繰返し負荷応力による剛性低下について述べている。剛性低下の原因は繊維と母材間のdebondingすなわち、繰返し応力の負荷によって、縦/横繊維束間の層間はく離が発生するためであると考察している。

孫ら⁽⁴⁾は平織りガラスロービングクロス積層材の静的引張応力下の破壊機構について研究している。AE法によるAEパラメータと材料に生じる損傷の進行過程の関係を観察している。また、切欠き部または試験片の表面にインクを注入および含浸させて、表面損傷と表面から内部にいたる損傷を検出するインク着色法を用いて、損傷モードと織り構造の関係に着目し、巨視的および微視的に観察して、次の結果を発表している。荷重と変位曲線は弾性過程、緯糸の界面はく離とその累積過程、樹脂割れおよび糸間はく離とその累積過程の三つの領域に分けられる。なお、これらの損傷モードおよび累積過程は平織の織り構造に強く依存して、積層板の積層数にはあまり関係ないようである。

川田ら⁽⁵⁾はC/C複合材料の静的曲げ破壊特性は材料成形時に生じたポイドにより、板厚の減少率は大きくなっている。また曲げ強度の分布と相関関係が認められた。したがって、材料の強度の出現は強化繊維の断面形状の差異による、機械的接着強度の差に起因するところが大きく、材料の成形には十分な注意が必要である。また、試験後の試験片には、外観上の変化は認められなかったが、内部を観察すると高強度繊維のT300は縦繊維の破断を伴った脆性的な破壊を起こしている。また、HTAは内部に潜在する微視き裂が、最弱面(繊維/マトリックス界面)を選択して進む破壊である事が分かった。

また、その他の多くの研究成果がある。その大部分の研究は材料の基礎的研究で、機械的性質や力学的特性などの究明であり、C/C複合材料が宇宙住還機に適用可能な材料であるかを判断する、材料評価技術の確立はなされていない。C/C複合材料の特に、高信頼性、高安全性を保有して長期間の使用に耐える設計指針を得ることが必要であり、例えば、繰返し応力が負荷する場合の材料の耐疲労特性や破壊機構を究明することは有意義である。

そこで、本研究はC/C複合材料に平面曲げ繰返し応力が負荷する場合の疲労き裂の発生および疲労き裂進展挙動に注目して、材料の破壊機構の検討を行い疲労損傷について報告する。特に、リモート顕微鏡を用いて試験片の表面および側面に発生するマクロ的な疲労き裂の発生と成長を観察するものである。本論文においては、試験片側面に発生する層間はく離の長さおよび形状と負荷応力との関係について究明する。また、破壊形態すなわち、疲労破壊した後の疲労き裂の形態と繰返し負荷応力の大きさとの関係についても究明し、C/C複合材料の破壊事故解析に役立つ資料を得ることを研究目的とするものである。なお、本論文は、平均応力が伴わない両振りの場合について報告する。

2. 実験方法

2.1 試験片

供試材は繊維直径が約 $8\mu\text{m}$ の東邦レーヨン製HTAのPAN(ポリアクリロニトリル、 $(\text{C}_3\text{H}_3\text{N})_n$)系(Polyacrylonitrile)平織りのC/C複合材料である。なお、供試材は焼成温度が異なる、C/C-501材とC/C-503材の2種類である。供試材の主要な仕様および特性は表1に示すとおりである。

試験片の形状・寸法は図1に示すように、中央部に曲げ応力が集中するようにしてある

表1. C/C複合材料の主な特性

項目	C/C-501 材	C/C-503 材
短繊維含有率	65%	50%
焼成温度	1873K	3273K
比重	1.5	1.7
曲げ強度	150MPa	120MPa
引張強度	147MPa	127MPa
曲げ弾性係数	53GPa	76GPa
熱膨張係数	$1.5 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$	$1.5 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$

(注) 曲げ強度と曲げ弾性係数は各5本の平均値である。
統計的な処理を行っているが、省略する。

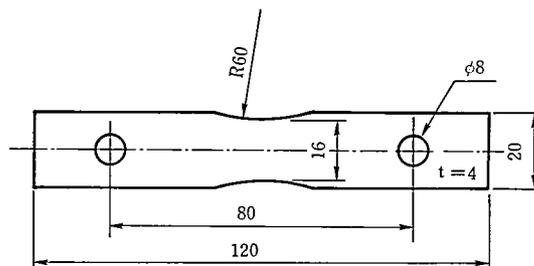
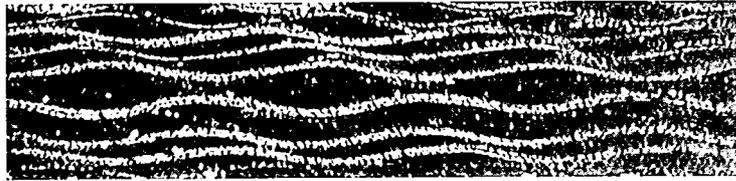
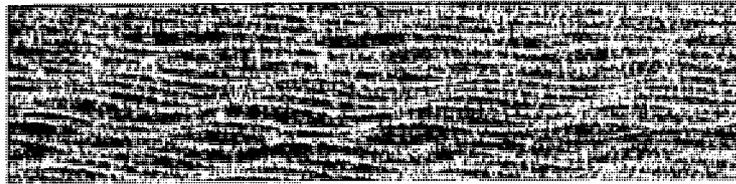


図1. 試験片の形状および寸法



(a) 501系の側面(焼成温度1873K)



(b) 503系の側面(焼成温度3273K)

図2. 試験片の側面の断面顕微鏡写真

が、応力集中係数は約1.05である。また、応力負荷前の501材および503材の2種類の試験片中央部の側面の顕微鏡写真を図2示す。

2.2 疲労試験機

使用した疲労試験機は、容量が98Nmの島津製曲げねじり疲労試験機(TB-10)で、応力繰返速度は33Hzである。本試験機は荷重一定型の試験機であり、試験片に疲労き裂が発生するか、または層間はく離が生じると、曲げ剛性が低下して曲げモーメントによる変形量が増加して自動的に試験機は停止する。したがって、試験片が完全に分離破壊していなくとも試験機は停止するので、その応力繰返し数を疲労寿命として表示する。

なお、本試験機は任意の平均応力を負荷することができる。

2.3 疲労き裂の計測方法

本試験における曲げ応力の値は面外曲げモーメントを断面係数で除した公称応力である。き裂の長さおよび形状は試験片が疲労破壊を生じた場合は試験片を試験機から取り外し、試験片の側面および試験片表面を観察する。また、疲労破壊を生じない場合は、試験機から試験片を取り外し、試験片の側面を観察する。なお、き裂の観察には(株)キーエンス製VH-5910リモート顕微鏡(拡大率20~200倍)を用いて写真撮影を行った。

3. 実験結果および考察

3.1 平滑材のS-N曲線

焼成温度が1873k(1600°C)の試験片を501系と称し、焼成温度が3273k(3000°C)の試験片を503系と称する。図1に示した平滑材に一定応力振幅を負荷したときの疲労寿命試験の結果を示す。表2は焼成温度1873k(1600°C)の501系の試験片における疲労寿命を示し、110MPaを負荷したときには、材料の静的曲げ強度に近いために繰返し応力を負荷するこ

表 2. 焼成温度1873KのC/C-501材の疲労寿命

応力振幅 (MPa)	破断繰返し数 N_f	試験片番号 TPNO	備 考
110	×	1-5	大変形を生じ実験不可能
100	3.09×10^4	1-6	疲労破壊
100	3.61×10^4	1-2	疲労破壊
90	8.55×10^6	1-4	未破断
75	3.66×10^6	1-3	未破断
50	1.14×10^7	1-1	未破断

表 3. 焼成温度3273KのC/C-503材の疲労寿命

応力振幅 (MPa)	破断繰返し数 N_f	試験片番号 TPNO	備 考
130	×	3-3	大変形を生じ実験不可能
115	4.00×10^2	3-4	疲労破壊
100	2.15×10^5	3-5	疲労破壊
90	2.79×10^4	3-6	疲労破壊
85	1.09×10^7	3-5	未破断
80	7.74×10^6	3-7	疲労破壊
70	9.16×10^5	3-1	疲労破壊

とが不可能であった。表 3 は焼成温度が3273k (3000°C) の503系の試験片における疲労寿命を示し、130MPaの応力負荷は501系の試験片と同様に材料の静的曲げ強度に近いために繰返し応力を不可能であった。501系および503系の平滑材に負荷応力100MPa以下の一定応力振幅負荷時の破断繰返し(疲労寿命)との関係をS-N曲線で示すと、図3のようになった。図の縦軸は応力振幅を普通目盛りで、横軸は疲労寿命を対数で示す。図中の○印は、501系、焼成温度が1873k(1600°C)の結果を示し、●印は503系、焼成温度が3273k(3000°C)の結果を示した。○印の501系はバラツキが少なく、繰返負荷応力が100MPaから僅か10MPa減少した90MPaにおいては、 10^7 回まで疲労破壊を生じない。一方、図3の●印は503系の結果を示すが、疲労寿命にバラツキが生じて、疲労限度を特定することができなかった。この原因は現在において十分な考察を行っていないので明らかではない。ここで、503

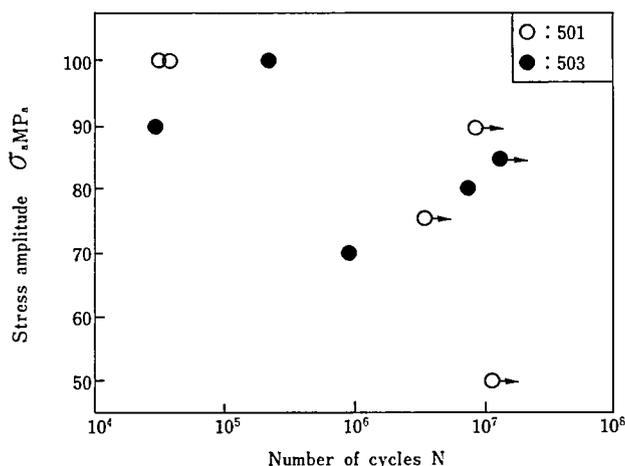


図 3. C/C複合材料のS-N曲線

系の試験片は焼成温度が3273kと超高温であるために材質が501系に比較して脆性材料に変化して、繰返し応力負荷時に疲労き裂、または層間はく離が発生して疲労破壊する。切削時の傷は切欠きに相当し、その有無が影響して疲労寿命にバラツキが生じたものと考えている。

それぞれの疲労限度を特定することは、特に●印の503系で難しいことを前述したが、各材料の静的曲げ試験における比例限度の50MPa～80MPaと良い一致を示していることが分かった。なお、信頼性の高い材料の疲労特性、特に疲労限度に対する統計的な実験研究を今後行う必要がある。

3.2 平滑材の側面の層間はく離の状況について

図3に示したS-N曲面において、多数回の繰返し曲げ応力を負荷しても疲労破壊に至らなかった試験片の側面を徠キーエンス製VH-5910リモート顕微鏡(拡大率20～200倍)を用いて観察を行った。その結果を次に示す。

試験片に負荷した曲げ応力は両振りの面外曲げ応力であるので、試験片表面の曲げ応力は最大となる。したがって、層間はく離は試験片側面の表面に近いほど発生することが予想できる。負荷応力の大きさに比例して層間はく離は発生し、長さも長くなる。また、負荷応力が小さくなると層間はく離が発生していない。しかし、この結果は 10^7 回におけるものであり、さらに曲げ応力を繰返し負荷すると層間はく離が発生するものと思われ、低応力振幅を多数回負荷した実験を今後、実施することが必要であると考えている。

応力負荷後の試験片側面に発生している層間はく離を観察した結果を次に示す。

図4は焼成温度が1873k(1600°C)の501系の試験片に50MPaの曲げ応力を 1.14×10^7 回負

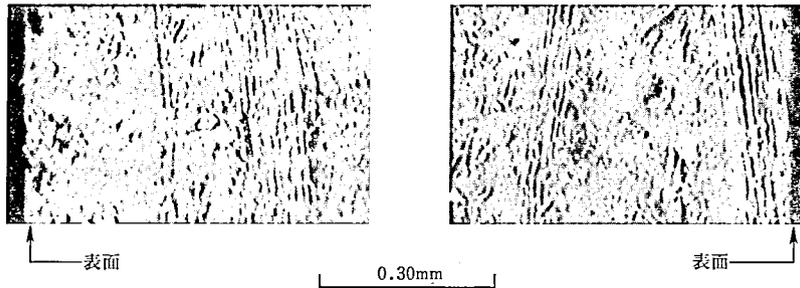


図4. 501系の材料に50MPaを 1.14×10^7 回負荷後の顕微鏡写真(未破断, 1-1)

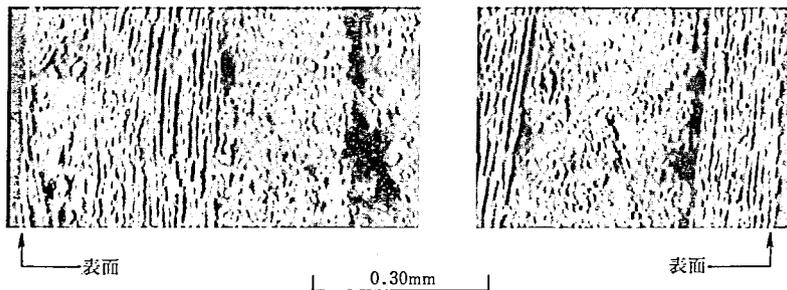


図5. 501系の材料に75MPaを 3.66×10^6 回負荷後の顕微鏡写真(未破断, 1-3)

荷しても疲労破壊を生じなかったときの試験片側面の顕微鏡写真である。試験片の中央部の側面の表面に近いところを観察した結果、層間はく離は発生していない。

図5は501系の試験片に75MPaの曲げ応力を 3.66×10^6 回負荷したときの観察結果であり、表面から約0.3mm程度のところに層間はく離が発生している。

図6は501系の試験片に90MPaの曲げ応力を 8.55×10^6 回負荷したときの観察結果である。層間はく離が発生し、その拡大写真を示す。

図7は焼成温度が3273k (3000°C)の503系の試験片に85MPaの曲げ応力を 1.09×10^7 回負荷としたときの観察結果である。

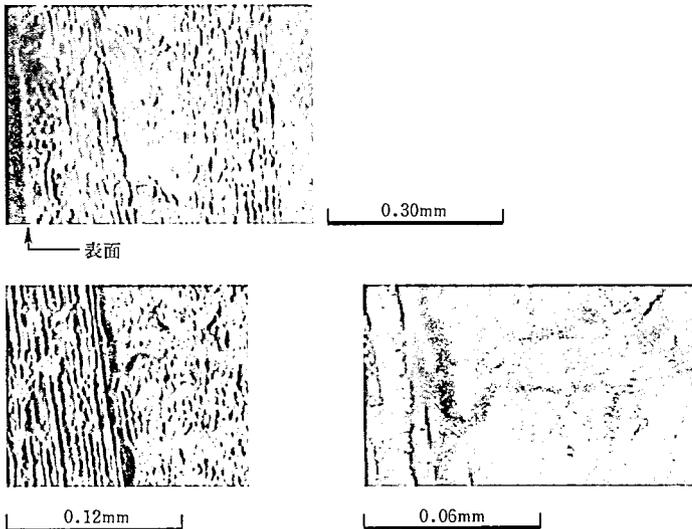


図6. 501系の材料に90MPaを 8.55×10^6 回負荷後の顕微鏡写真（未破断，1-4）

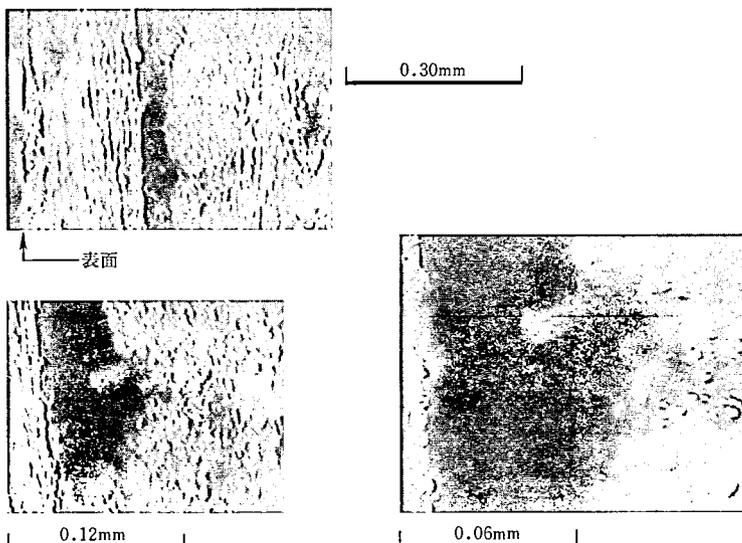


図7. 503系の材料に85MPaを 1.09×10^7 回負荷後の顕微鏡写真（未破断，3-5）

3.3 疲労破壊形態と負荷応力の大きさ

図3に示したS-N曲線において、 10^7 回以前に疲労破壊を生じた試験片の側面の疲労き裂

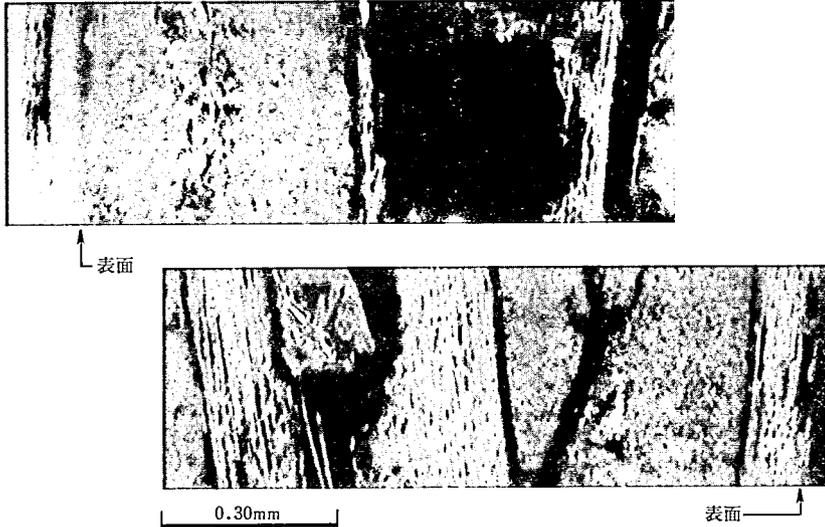


図8. 501系の材料に110MPaを負荷し、大変形を生じた後の顕微鏡写真(1-5)

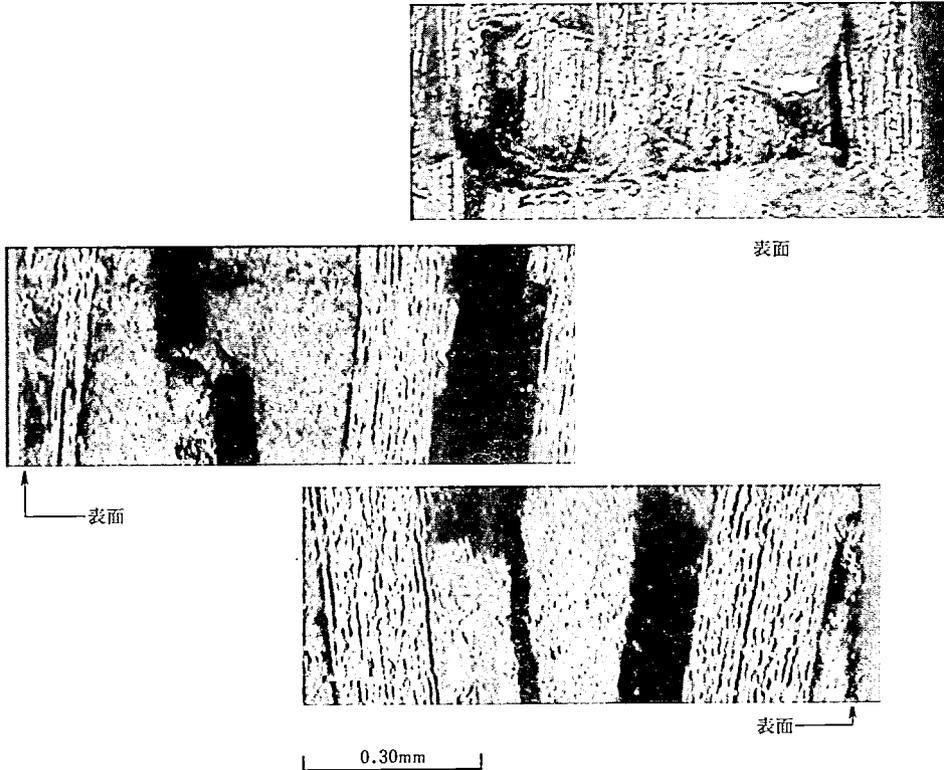


図9. 501系の材料に100MPaを 3.09×10^4 回負荷後破断した試験片の顕微鏡写真(1-6)

の形状を観察した結果を次に示す。

図8は焼成温度が1873k(1600°C)の501系に110MPaを負荷したが大変形が生じて、繰返し応力を負荷できなかった試験片側面のマクロ写真である。大変形が生じたので、顕著な層間はく離が発生していることを示している。

図9は焼成温度が1873k(1600°C)の501系に100MPaを負荷し、疲労破壊した試験片側面のマクロ写真である。明瞭な層間はく離が発生している。

図10は図9と同様に100MPaを負荷した試験片側面のマクロ写真である。

図11は焼成温度が3273k(3000°C)の503系に130MPaを負荷したが大変形が生じて、繰返し応力を負荷できなかった試験片側面のマクロ写真である。

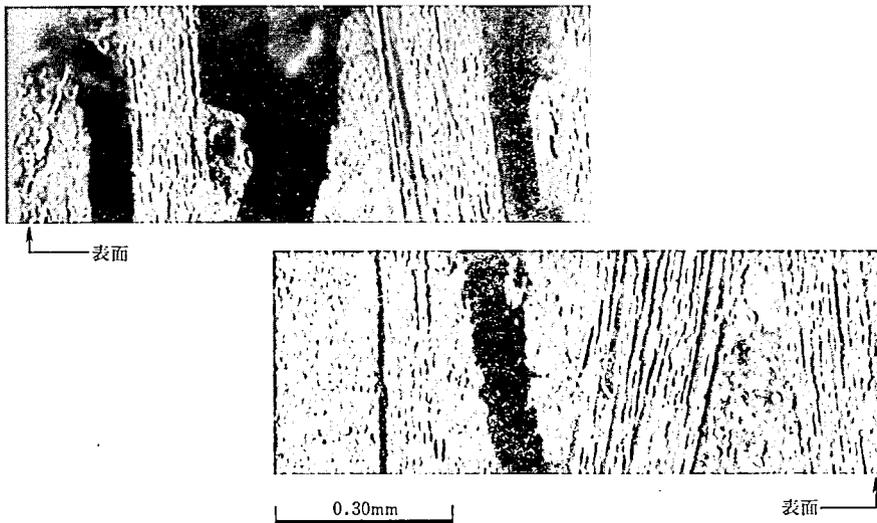


図10. 501系の材料に100MPaを 3.61×10^4 回負荷後破断した試験片の顕微鏡写真(1-2)

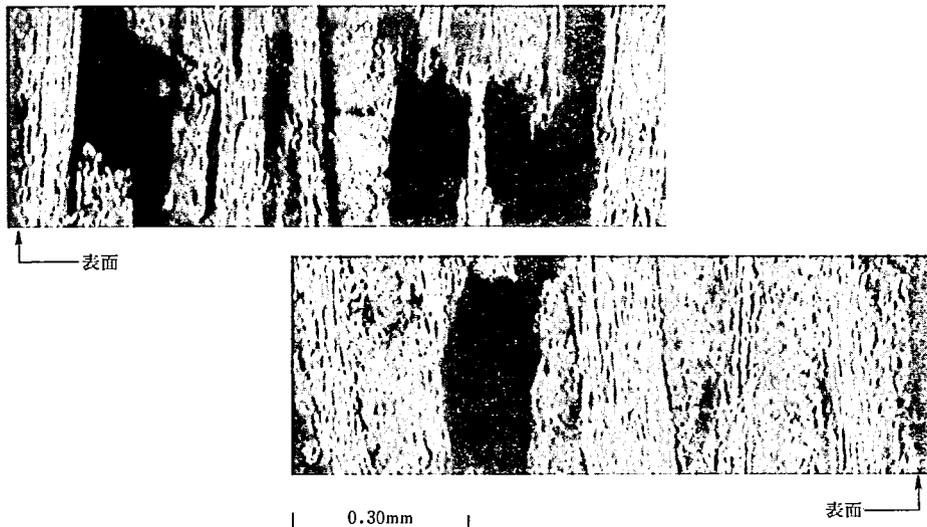


図11. 503系の材料に130MPaを負荷し、大変形を生じた後の顕微鏡写真(3-3)

図12は、503系に115MPa、図13は90MPa、図14は80MPaを負荷した後に疲労破壊した試験片側面のマクロ写真である。

なお、503系において、負荷応力100MPaおよび70MPaの試験片は疲労破壊を生じたときに、完全に分離破壊が生じている。図15に両者の破断面のマクロ写真を示す。

以上の結果から、負荷応力と側面の疲労き裂または層間はく離の形状を考察すると、負荷応力が大きいほど層間はく離は大きく、さらに長くなっている。また、負荷応力が小さくても、試験結果として疲労寿命が短い場合は疲労き裂が長くなる。また、層間はく離を生じ、き裂の開口は大きくなっている。今後、多くの実験を実施して、負荷応力と層間はく離の大きさとの関係が明らかになることはC/C複合材料の破壊事故の防止や事故発生後

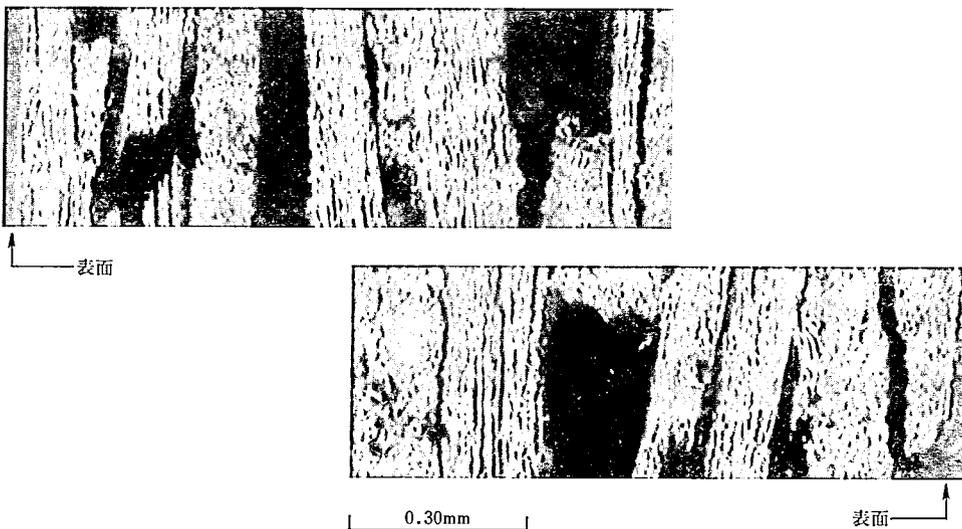


図12. 503系の材料に115MPaを 4.00×10^7 回負荷後破断した試験片の顕微鏡写真 (3-4)

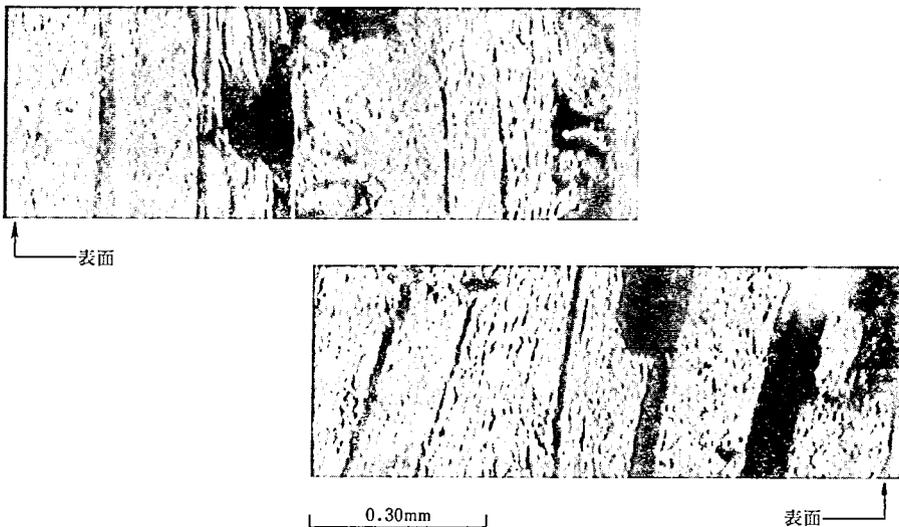


図13. 503系の材料に90MPaを 2.79×10^4 回負荷後破断した試験片の顕微鏡写真 (3-6)

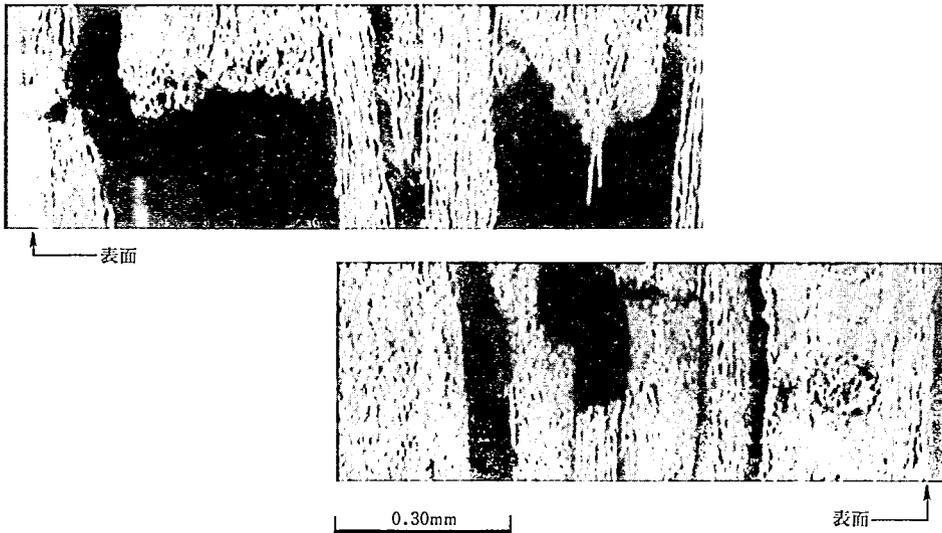


図14. 503系の材料に80MPaを 7.74×10^6 回負荷後破断した試験片の顕微鏡写真 (3-7)



(a)100MPaを 2.15×10^5 回負荷後の
分離破壊破断面の顕微鏡写真(3-2)



(b)70MPaを 9.16×10^5 回負荷後の
分離破壊破断面の顕微鏡写真(3-1)

図15. 503系の材料において分離破壊を生じた試験片の顕微鏡写真

の負荷応力の大きさの解析に役立つ資料を得ることができるものとする。

4. 結論

焼成温度1873k (1600°C) の試験片501系と焼成温度が3273k (3000°C) の試験片503系の平滑材に一定応力振幅を繰返し負荷した、試験片の側面の層間はく離の発生と疲労破壊を生じた応力の大きさと試験片表面の疲労破壊形態との関係を実験的に明らかにし、次の結果を得た。

- (1) 焼成温度1873k (1600°C) の試験片501系の疲労特性をS-N曲線で示すと、有限疲労寿命の勾配は非常に小さくなり、 10^7 回における疲労限度は90MPaである。
- (2) 焼成温度3273k (3000°C) の試験片503系のS-N曲線の有限疲労寿命の勾配は大きく、かつ、疲労寿命にバラツキを生じている。
- (3) 本研究で明らかにしたC/C複合材料の疲労限度は材料の静的曲げ強度試験における比例限度の50MPa~80MPaと良い一致を示している。
- (4) しかし、低い応力レベルを多数回負荷したときの疲労特性を今後究明し、信頼性の高い疲労強度を求めることが必要である。

なお、今後の研究課題については、

- (1) 一定応力における疲労寿命のバラツキと統計的な考察
- (2) 平均応力が伴う場合の疲労破壊機構の解明
- (3) 低応力下を多数回負荷したときの層間はく離の発生と進展挙動
- (4) 変動応力下の疲労寿命の推定法の確立

などがある。今後、研究成果を発表する予定である。

謝辞

本研究を遂行するに当たっては、通産省工業技術院物質工学工業技術研究所の複合材料部複合材料構造研究室長の剣持潔氏と高橋淳氏から試験片の提供を受けた。衷心より御礼申し上げます。さらに、貴重な御助言をいただいたことを深く感謝致します。なお、本研究は、平成5年度の卒業研究の一部であり、卒業研究生の高村満春君および田中剛君の協力を得たことを記します。

参考文献

- 1 (1) 香川 豊, 八田博志 共著『セラミックス基複合材料』 pp266 アグネ承風社 1990年
- (2) 高橋 淳, 剣持 潔, 林 龍一『C/C複合材料の強度特性評価』 第70回期通常総会講演会 講演論文集 930-9 pp144 1993年 (日本機械学会)
『C/C複合材料の高温き裂進展過程の直接観察と高酸化メカニズムの解明』 第70回期通常総会講演会 講演論文集 930-9 pp147 1993年 (日本機械学会)
- (3) 竹村兼一, 藤井 透『平織りカーボン布強化積層板の引張り荷重下における疲労損傷および破壊に関する研究』 日本機械学会論文集 (A編) 59巻 559号 pp218 1993年 (日本機械学会)
- (4) 孫 峰, 他3名『平織ガラスロービングクロス積層板の破壊機構』 材料, 第38巻 第427号 pp360 1989年 (日本材料学会)
- (5) 川田宏之, 他4名『C/C Compositeの曲げ破壊特性』 一強化繊維の差異が破壊に及ぼす影響一 日本複合材料学会誌 19巻 2号 pp72 1993年 (日本複合材料学会)