

炭素繊維強化 SiC セラミックスの 破壊前駆過程における内部摩擦

小川 裕之[†] 西野 洋一 浅野 滋

名古屋工業大学材料工学科

J. Japan Inst. Metals, Vol. 59, No. 8 (1995), pp. 788-792

Internal Friction and Microplasticity of Carbon-Fiber-Reinforced SiC Ceramics

Hiroyuki Ogawa, Yoichi Nishino and Shigeru Asano

Department of Materials Science and Engineering, Nagoya Institute of Technology, Nagoya

Mechanical responses of carbon-fiber-reinforced SiC ceramics before fracture were measured in the strain range below 2×10^{-3} by two experimental methods: mechanical hysteresis and internal friction. Load-deflection curves were obtained by the three-point bending deformation in loading-unloading cycles. A little permanent strain was found after the first cycle even in the range where fracture never occurred. A closed hysteresis loop was observed after several cycles and stabilized with a symmetrical shape after more than twenty cycles. Such a stabilized hysteresis loop is attributed to the steady-state microplastic deformation and may cause the amplitude-dependent internal friction.

Internal friction was measured in the fundamental mode of free-free resonant vibration as a function of strain amplitude. With increasing the amount of prestrain in the bending deformation, internal friction increased and became sensitive to the strain amplitude. The amplitude-dependent internal friction in the composites is considered to originate from fiber pull-out or microcrack propagation. The internal friction data were analyzed on the basis of the microplasticity theory and converted into the plastic strain expressed as a function of stress. Therefore, it becomes possible to non-destructively study the forerunning process of fracture of the fiber-reinforced ceramics.

(Received December 21, 1994)

Keywords: carbon fiber, fiber reinforced ceramics, SiC, mechanical hysteresis, internal friction, amplitude dependence, microplasticity, fracture

I. 緒 言

通常のセラミックスは、金属のような塑性変形を起さず、弾性変形が終了すると直ちに破壊する。一方、繊維強化セラミックスは、荷重-変位曲線において最大荷重に達する以前からわずかに非線形な力学応答を示したのち破壊する。したがって、最大荷重に達する以前に見られる非線形応答は、破壊に至るまでの過程を反映したものといえる。つまり、繊維強化セラミックスにおいては、通常のセラミックスでは検出できない破壊前駆過程における力学応答を容易に調べることができる。

弾性的な変形領域において、わずかでも非線形な力学応答を示す場合、繰返し変形を行うと荷重-変位曲線に力学的ヒステリシスを形成する。このような力学的ヒステリシスは、これまでに金属をはじめとしてさまざまな材料について観察されている⁽¹⁾⁻⁽⁵⁾。これは 10^{-4} 程度のひずみ領域の塑性変形にもとづく現象であり、一般に微小塑性と呼ばれている。このような力学的ヒステリシスに起因する現象として、さらに小さな変形領域では、内部摩擦の振幅依存性の検出が原理的に可能であ

る⁽⁶⁾⁻⁽⁸⁾。内部摩擦の振幅依存性は、弾性的な振動変形のもとで測定され、 10^{-6} 程度のひずみ領域において非線形な力学応答をとらえたものである。ところが、内部摩擦の振幅依存性を調べた研究のほとんどは金属材料を対象としたものであり⁽⁹⁾⁻⁽¹⁵⁾、セラミックスのような脆性材料についてはあまり行われていない。

われわれはこれまでに内部摩擦の振幅依存性を測定することで、熱衝撃によりマイクロクラックを導入したセラミックスの力学応答を調べてきた⁽⁴⁾⁽⁵⁾⁽¹⁶⁾。その結果、通常のセラミックスでは内部摩擦の振幅依存性は検出されないが、マイクロクラックを導入した場合には、振幅依存性が顕著に現れることを報告した⁽⁵⁾⁽¹⁶⁾。さらに、このような内部摩擦の振幅依存性を破壊前駆過程の現れと考え、微小塑性理論⁽⁷⁾⁽⁸⁾にもとづいて、非線形な力学応答の定量的評価を行った⁽⁵⁾。しかしながら、この場合は熱衝撃という手段により、マイクロクラックを導入した状態のみを評価したものであって、弾性変形から巨視的破壊への移行過程における力学応答の変化について調べてはいない。

本研究では繊維強化セラミックスを取り上げ、曲げ変形によって、破壊に至るまでの荷重-変位曲線における非線形応答を調べた。試料が巨視的な破壊を開始するまでの力学応答を検出するために、最大荷重に達する以前の状態で力学的ヒステリシ

[†] 名古屋工業大学大学院生

スを観察し、さらに小さい変形領域で内部摩擦の振幅依存性を測定した。このようにして得られた内部摩擦データを微小塑性理論⁽⁷⁾⁽⁸⁾により解析し、 10^{-9} のオーダーの塑性ひずみ成分を応力の関数として算出した。この結果をもとにして、繊維強化セラミックスにおける破壊以前の微小塑性を定量的に評価し、さらに、破壊前駆過程における変形特性について検討を行った。

II. 実験方法

測定材料には、SiC(イビデン製、ペータランダム)をマトリックスとして、ピッチ系炭素長繊維(ペトカ製、HM-50、繊維径 10 μm)を一方向に強化した繊維強化セラミックス(C/SiC)を用いた。C/SiCは、フィラメントワインディング法⁽¹⁷⁾を用いて複合化を行った後、Ar 雰囲気中、焼結温度 2123 K、プレス圧約 380 kg/cm^2 の条件下でホットプレス焼結によって作製した。繊維の体積分率はおよそ60%であった。試験片は焼結体から試料の長手方向に繊維が配向するようにダイヤモンドカッターにより切り出した後、#400のダイヤモンド砥石で研削し、80 mm \times 10 mm \times 1 mm のサイズに成形した。

力学的ヒステリシスの測定は、支点間距離を 50 mm として 3 点曲げ変形による負荷-除荷試験で行った。試料中央部の最大たわみ変位の測定には差動トランス(島津、DT-2S-SP)を用い、たわみ変位速度は 0.2 mm/min で一定とした。負荷-除荷試験はインストロン型試験機を用いて行い、コンピューターによってたわみ変位を制御した。実際には 0.98 N のバイアス荷重をかけた状態で負荷-除荷を行い、このとき、最大たわみ変位を段階的に増加させることにより、破壊に至るまでの内部状態を変化させた。さらに、最大たわみ変位を一定にして、約 50 回まで負荷-除荷試験を繰り返すことにより、定常状態における力学的ヒステリシスを観察した。

内部摩擦の測定は室温、真空中において 1500 Hz 前後の自由端横振動法で行った。試料を一定振幅で 60 s 間共振させたのち、励振を止め、自由減衰の時間変化をレベルレコーダー(Onsoku, ORL-20)に記録した。このような減衰曲線は、振幅の対数値を時間に対して連続的に記録したものであり、振幅の対数値に応じて接線の傾きを読みとることによって、内部摩擦の尺度である対数減衰率を算出した。また、対数減衰率に対する実験変数として、試料中央部の振動振幅値から算出したひずみ振幅の最大値を用いた。

III. 実験結果

1. 曲げ変形における力学応答

Fig. 1 は、C/SiC について、3 点曲げ変形により得られた荷重-変位曲線を示したものである。この図から、繊維強化セラミックスの荷重-変位曲線は、通常のセラミックスとは異なり、巨視的な破壊が生じる以前から非線形な力学応答を示し、また、最大荷重に達した後も、荷重が急激にゼロまで低下しないことがわかる。本研究では、巨視的な破壊以前に生じる非線形応答に着目し、このような変形領域における力学特性を負荷-除荷試験と内部摩擦測定によって調べ、繊維強化セラミックス

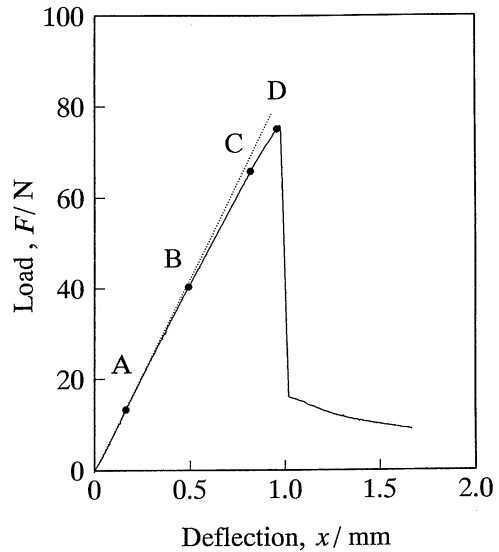


Fig. 1 A load-deflection curve for carbon-fiber-reinforced SiC measured by the three-point bending deformation.

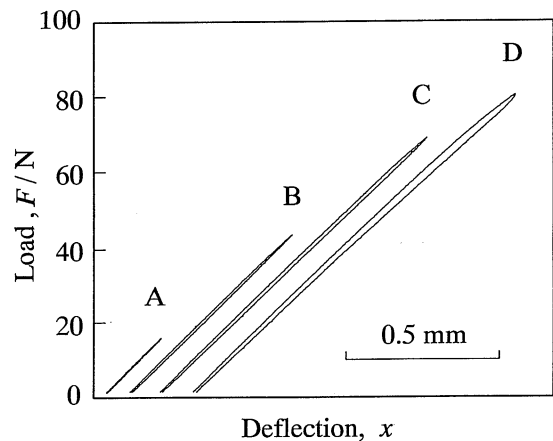


Fig. 2 Mechanical hysteresis under the loading-unloading condition with variation of the deflection amplitude for carbon-fiber-reinforced SiC. The specimen was not unloaded completely; the bias load was 0.98N. The deflection of 0.5 mm amounts to the strain ϵ of 1.15×10^{-3} .

の破壊への移行過程における力学応答について検討を行った。なお、図中の A から D までの各点は、力学的ヒステリシスの観測点を示し、同時に、内部摩擦測定における予ひずみの量を示すものである。

Fig. 2 は、Fig. 1 で示した A, B, C, D の各点に対応するひずみ量において、負荷-除荷試験を行った結果である。支点間距離が 50 mm に対して、最大たわみ変位 0.5 mm の目盛りを図中に示したが、これは試料内のひずみの最大値が 1.15×10^{-3} に相当する。変形の小さい A の場合、負荷過程においてわずかな非線形性が現れるが、負荷-除荷試験の 1 回目から閉じたヒステリシスループが得られた。このような力学応答の非線形性は、変形の増大とともに顕著になり、B, C, D の場合に

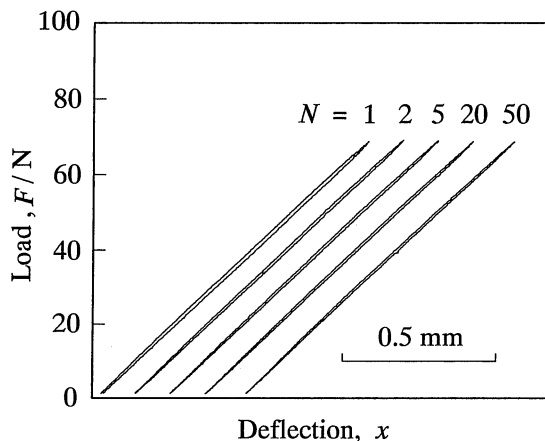


Fig. 3 Successive series of hysteresis loops under the loading-unloading condition with a constant deflection amplitude ($\epsilon=2 \times 10^{-3}$) for carbon-fiber-reinforced SiC. N denotes the number of cycles. The specimen was not unloaded completely; the bias load was 0.98N.

は、1回目の除荷後にわずかな残留ひずみを生じるようになった。

Fig. 3は、試料の最大たわみ変位を一定として、負荷-除荷試験を繰返し行ったときの測定結果である。なお、このときの最大たわみ変位は、試料内のひずみの最大値が 2×10^{-3} に相当し、Fig. 1においてはCの状態に対応する。繰返し数 N が増加するにしたがって残留ひずみは減少していき、5回程度の繰返しによって閉じたヒステリシスループを形成した。このときのループ面積は約 6×10^{-4} Jで、1回目のループ面積の約2/3であった。5回目以降も、ヒステリシスループの形状はわずかに変化していくが、20回までの繰返しによって、その形状はほとんど変化しなくなり、ループ面積は 5.5×10^{-4} Jでほぼ一定となった。その後、50回までの繰返しによっても破壊することはなかった。曲げ変形による負荷-除荷試験を繰返すことで、定常化したヒステリシスループが得られるということは、定常的な振動変形において減衰が生じることを意味する。このような現象は内部摩擦として測定することが可能である。そこで、これより小さい変形領域での力学応答を調べるため、内部摩擦の振幅依存性の測定を行った。

2. 内部摩擦の振幅依存性

Fig. 4は、C/SiCについて、内部摩擦のひずみ振幅依存性を測定した結果である。この図の縦軸は、対数減衰率として実測された内部摩擦 δ_{av} †、横軸はひずみ振幅の最大値 ϵ_{max} である。内部摩擦の測定は、 10^{-7} ~ 10^{-5} のオーダーのひずみ領域で行っており、これはFig. 3の力学的ヒステリシスの観察に比べてはるかに小さい。またここには、Fig. 1で示したA, B, C, Dの各点のたわみ量において、負荷-除荷試験を1回だけ行って予ひずみを与えた後の内部摩擦の変化を同時に示した。

† 通常、内部摩擦の測定は弾性的共振を利用しており、内部摩擦の実測値は各位置の内部摩擦の値 δ を試料全体にわたって平均したものに相当する。その意味で実測値を δ_{av} で表す。

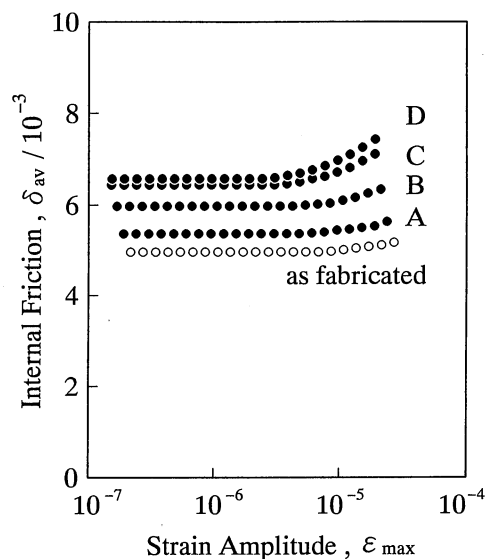


Fig. 4 The measured internal friction δ_{av} plotted against the maximum strain amplitude ϵ_{max} for carbon-fiber-reinforced SiC. The open circles are the data before deformation and the closed ones after the first cycle of loading-unloading deformation in Fig. 2.

図には示していないが、繊維強化していないSiC焼結体の内部摩擦は 4×10^{-4} と非常に小さく、このひずみ領域では振幅依存性はまったくみられなかった。しかし、図中に白丸で示すように、繊維強化した場合の内部摩擦は、上記の値に比べ10倍程度大きくなっており、さらに振幅依存性がわずかではあるが生じていた。この結果は、複合化によって、数多くの欠陥がマトリックスや界面に導入されたためと考えている。内部摩擦が振幅に依存するということは、材料自体の力学応答が非線形で履歴性をもつことを意味する。つまり、この結果をみるかぎりには、繊維強化セラミックスが 10^{-5} のオーダーのひずみ領域において、わずかな塑性変形を生じていることを示している。Fig. 1のA, B, C, Dに相当する曲げ変形を行うことによって、内部摩擦の値は全体的に増加していくとともに、振幅依存性も顕著になった。

IV. 考 察

1. 破壊前駆過程における非線形応答

本研究では、C/SiCに対し負荷-除荷試験によって、Fig. 2に示すような力学的ヒステリシスを観察した。過去にも複合材料についてヒステリシスは報告されているが⁽¹⁸⁾⁻⁽²¹⁾、本研究で得られた力学的ヒステリシスは、さらに小さなひずみ領域での力学応答である。

このような変形試験では、Fig. 3に示すように、負荷-除荷サイクルの1回目には除荷後に残留ひずみが生じる。しかし、変形を繰返すことによってヒステリシスループは閉じていき、最終的にはループ形状が一定となった。これは、変形初期には不可逆な状態変化が起きているものの、変形の繰返しによって、新たな状態変化が生じていないことを示している。したがって、セラミックスなどの脆性材料において見られる非線形応

答は、巨視的破壊にいたる途中の情報を含んでおり、この意味で、脆性破壊の前駆過程を研究する手がかりといえる。しかし、このような非線形性の変化を3点曲げ変形によって得られる荷重-変位曲線から正確に読みとることは困難であり、以下に示す内部摩擦の測定結果が十分に定量性を持った情報を提供する。

負荷-除荷試験を1回だけ行って予ひずみを与えた試料に対して内部摩擦を測定した結果、Fig. 4 に示すように、変形を与えていない場合に比べ測定値に変化が見られる。特に残留ひずみが生じるような曲げ変形を行った場合には、内部摩擦の絶対値が増加するだけでなく、その振幅依存性も顕著になる。このような変形にもなる内部摩擦の変化は、繊維強化プラスチックについて Matsushita ら⁽²²⁾が以前に報告した結果と同様の傾向を示している。

一般に内部摩擦は、振幅に依存しない成分と依存する成分との和として表すことができる。Fig. 4 より振幅に依存しない内部摩擦は、破壊の進行にもなって増加することがわかる。この結果は、Nishino ら⁽¹⁶⁾が報告したマイクロクラックを含むセラミックスの場合ともよく一致しており、一般的に言えば、振幅に依存しない内部摩擦の変化は、試料に蓄積されたダメージの量に対応すると考えられる。一方、内部摩擦が振幅に依存する場合は、材料の力学応答が非線形性にもとづく履歴性を持つことを意味しており、Fig. 4 の結果は、予ひずみを与えることで力学応答の非線形性が顕著になっていくことを示している。一般に、複合材料において得られる非線形な力学応答は、繊維とマトリックスの界面でのすべりやマトリックスが多くの箇所でおぼろげに破壊することによって生じることが知られている⁽¹⁸⁾⁻⁽²²⁾。このことから、巨視的な破壊が生じないようなひずみ領域においても、変形を行うことによって、微視的にはクラックの発生や進展が起きていることが考えられる。

本研究の内部摩擦測定では、測定中に内部状態が変化しないように、1回の自由減衰過程において対数減衰率の変化を測定している。さらに、内部摩擦は繰返し測定によって変化しないことから、内部摩擦の測定中に不可逆な状態変化は起きていないと考えられる。このことは、荷重-変位曲線において検出することが困難であった破壊前駆過程に関する情報が、内部摩擦の振幅依存性の測定によって、非破壊で検出できることを意味している。

2. 微小塑性理論にもとづくデータ解析

内部摩擦の振幅依存性データは、微小塑性理論⁽⁷⁾⁽⁸⁾にもとづいて解析を行うことにより、塑性ひずみと応力の関係に換算することができる。そこで以下において、繊維強化セラミックスの塑性ひずみの算出を試みる。

微小塑性理論によるデータ解析は、転位モデルを仮定することなく現象のみに着目するため、金属に限らず、セラミックスについても適用できる⁽⁵⁾⁽¹⁶⁾。Fig. 3 の観察結果から、ヒステリシスループの形状は、以前にセラミックスについて報告されているのと同様に⁽⁴⁾⁽⁵⁾、離脱型ループではなく摩擦型ループであることがわかる。このような場合、内部摩擦(δ)と塑性ひずみ(ϵ_p)との換算式は次のように与えられている⁽⁷⁾⁽⁸⁾。

$$\epsilon_p(\sigma) = \frac{\sigma}{E} \left\{ \frac{1}{4} \delta \left(\frac{\sigma}{2} \right) + \frac{1}{2} \int_0^{\sigma/2} \frac{\delta(\sigma_0)}{\sigma_0} d\sigma_0 \right\} \quad (1)$$

ここで、 E はヤング率であり、 $\sigma_0 = E\epsilon_0$ は応力振幅である。このとき $\delta(\sigma_0)$ は均一なひずみ分布のもとで測定される内部摩擦であり、以下では実測値 $\delta_{av}(\epsilon_{max})$ と区別して、真の内部摩擦と呼ぶことにする。

本研究では、式(1)の適用を簡単にするために Fig. 4 に示した実測値を次のような実験式で近似した。

$$\delta_{av}(\epsilon_{max}) = A\epsilon_{max}^n + B \quad (2)$$

ここで、 A, B および n は実験からきまる定数である。ところが、式(1)に与えられているのは真の内部摩擦であり、実測値 δ_{av} ではない。そこで、ひずみ分布の平均化を行って、 δ_{av} から δ への換算をする必要がある。本研究のように自由端横振動の基準モードの場合、換算結果は次のようになることが報告されている⁽⁸⁾⁽²³⁾。

$$\delta(\epsilon_0) = AK(n)\epsilon_0^n + B \quad (3)$$

$$K(n) = \frac{\sqrt{\pi} n + 3}{2} \frac{\Gamma\left(\frac{n+4}{2}\right)}{\Gamma\left(\frac{n+3}{2}\right)} \quad (4)$$

ここで、 Γ はガンマ関数を表すものとする。Fig. 5 は、式(3)にしたがって、Fig. 4 における内部摩擦の実測値から換算された真の内部摩擦である。変形にもなる定性的な変化については、Fig. 4 の実測値と同様であるが、内部摩擦のひずみ振幅に対する変化は実測値よりも急激になっている。

さらに式(3)のひずみ振幅に依存する項を式(1)に代入し、内部摩擦から $\epsilon_p(\sigma)$ の換算式を求めると次のようになる⁽⁷⁾⁽⁸⁾。

$$\epsilon_p(\sigma) = A \frac{n+2}{2^{n+2}n} K(n) \left(\frac{\sigma}{E} \right)^{n+1} \quad (5)$$

Fig. 6 は、式(5)によって得られた ϵ_p と σ の関係を示したものである。この結果は通常の応力-ひずみ曲線とは縦軸と横軸が逆になっており、特に、縦軸はひずみの塑性成分のみを表し

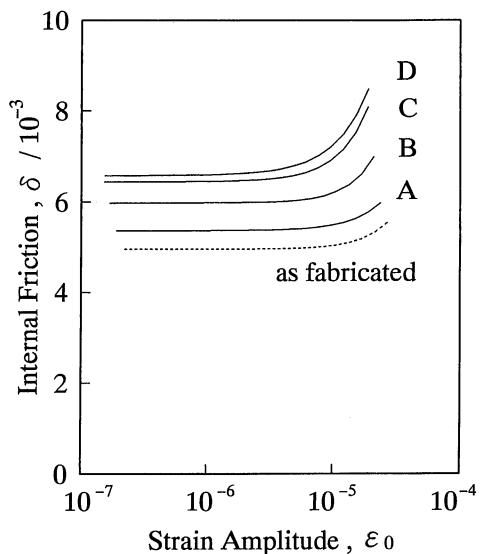


Fig. 5 The intrinsic internal friction δ expressed as a function of strain amplitude ϵ_0 . The broken line is the data before deformation and solid ones after deformation. The curves were obtained from Fig. 4.

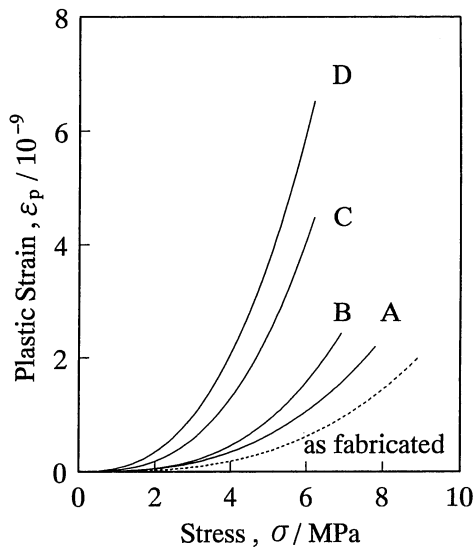


Fig. 6 The microplastic strain ϵ_p expressed as a function of stress σ . The broken line is the data before deformation and solid ones after deformation. The curves were calculated from Fig. 5.

ている。この図から、破壊応力の1%程度の応力によって、 10^{-9} のオーダーの塑性ひずみが非線形的に増加していることがわかる。しかも、このようなひずみ領域においても、曲げ変形の予ひずみの増加とともに、塑性ひずみの増加率は顕著になっていることがわかる。このような傾向は、Fig. 2に示した力学的ヒステリシスにおける非線形性の変化とも定性的に一致していた。つまり、内部摩擦データを解析することで得られた塑性ひずみは、Fig. 2に示した負荷曲線における弾性的直線からのずれに相当するものと考えることができる。

本研究では、セラミックス基複合材料の微小なひずみ領域における力学応答を、内部摩擦の振幅依存性によって精度よく検出した。内部摩擦は内部構造に敏感な物性値であり、振幅依存性が生じる機構として、繊維の引き抜けやマイクロクラックの存在が考えられる。また、微小塑性理論にもとづいてデータ解析を行うことにより、微小ひずみ領域における塑性ひずみと応力の関係が得られる。したがって、内部摩擦の振幅依存性を調べることにより、弾性変形から巨視的破壊への移行過程を系統的に追跡できる。

V. 結 言

本研究では、繊維強化セラミックスに対し、巨視的な破壊が開始する以前のひずみ領域において、繰返し負荷-除荷試験と内部摩擦の振幅依存性の測定を行い、破壊への移行過程における力学特性について調べた。得られた結果は次のようにまとめられる。

(1) 巨視的破壊の開始以前に、荷重-変位曲線上に力学的ヒ

ステリシスが観察でき、負荷と除荷を繰返すことによって定常的なヒステリシスループを形成した。

(2) 定常ループの形状は、これまで金属材料で観察されているものとはほぼ同じ形状であった。このような定常ループは、弾性的振動の減衰の原因となるものであることから、さらに小さいひずみ領域における力学応答を内部摩擦測定によって調べることができる。

(3) 繊維強化セラミックスの内部摩擦は、予ひずみを与える以前からわずかな振幅依存性を示したが、予ひずみの増加とともに内部摩擦の値は増加し、特に振幅依存性は、予ひずみが巨視的破壊に接近するほど顕著になった。

(4) 内部摩擦の振幅依存性データを微小塑性理論により解析し、 10^{-9} 程度の塑性ひずみを応力の関数として算出した。このような微小塑性領域における非線形な力学応答によって、巨視的破壊への移行過程が非破壊的に評価できた。

文 献

- (1) J. M. Roberts and N. Brown: *Trans. AIME*, **218**(1960), 454.
- (2) P. Lukáš and M. Klesnil: *Phys. Status Solidi*, **11**(1965), 127.
- (3) S. B. Kustov, S. N. Golyandin and B. K. Kardashev: *Sov. Phys. Solid State*, **30**(1988), 1248.
- (4) Y. Nishino, H. Ogawa and S. Asano: *Phil. Mag. Lett.*, **66**(1992), 313.
- (5) 小川裕之, 西野洋一, 浅野 滋: *日本金属学会誌*, **57**(1993), 389.
- (6) N. Brown: *Microplasticity*, Ed. by D. J. McMahon, Jr., John Wiley & Sons, New York, (1968), 45.
- (7) S. Asano: *J. Phys. Soc. Japan*, **29**(1970), 952.
- (8) 浅野 滋: *日本金属学会会報*, **20**(1981), 21.
- (9) 奈良井 弘, 浅野 滋: *日本金属学会誌*, **46**(1982), 253.
- (10) R. B. Schwarz and L. L. Funk: *Acta Metall.*, **31**(1983), 299.
- (11) A. B. Lebedev and S. B. Kustov: *Phys. Status Solidi (a)*, **116**(1989), 645.
- (12) 後藤 肇, 西野洋一, 浅野 滋: *日本金属学会誌*, **55**(1991), 848.
- (13) A. B. Lebedev: *Sov. Phys. Solid State*, **34**(1992), 1008.
- (14) 森田正子, 浅野 滋: *日本金属学会誌*, **57**(1993), 1006.
- (15) A. Kohyama, S. Saito, H. Tezuka and S. Sato: *Proc. of the Second Int. Conf. on Composite Interfaces (ICCI-II)*, Cleveland, Ohio, USA, (1988), 259.
- (16) Y. Nishino, T. Murayama and S. Asano: *Phil. Mag. A*, **65**(1992), 1187.
- (17) K. Nakano, A. Kamiya, H. Ogawa and Y. Nishino: *J. Ceram. Soc. Japan*, **100**(1992), 472.
- (18) D. B. Marshall, B. N. Cox and A. G. Evans: *Acta Metall.*, **33**(1985), 2013.
- (19) T. Kotil, J. W. Holmes and M. Comninou: *J. Amer. Ceram. Soc.*, **73**(1990), 1879.
- (20) A. W. Pryce and P. A. Smith: *J. Mater. Sci.*, **27**(1992), 2695.
- (21) W. A. Thomas, M. W. Kopp and J. M. Sanchez: *J. Amer. Ceram. Soc.*, **76**(1993), 2175.
- (22) K. Matsushita, S. Nishijima, T. Okada and T. Okamoto: *J. de Physique*, **46**(1985), C10-569.
- (23) S. Asano: *Phil. Mag.*, **30**(1974), 1155.