炭化ケイ素繊維強化 Al 合金の破壊挙動

砥 綿 真 一* 山 田 銑 一*

J. Japan Inst. Metals, Vol. 50, No. 3 (1986), pp. 336-341

Fracture Behaviour of Silicon-Carbide Fiber-Reinforced Aluminum Alloys

Shin'ichi Towata* and Sen'ichi Yamada*

Silicon-carbide fiber (Nicalon®)-reinforced aluminum alloys were fabricated by the squeeze casting process. The effects of alloying elements, Ni, Cu, Si and Mg, on the fracture behaviour of the composites were investigated by the three point flexural test and acoustic emission measurement.

The longitudinal flexural strengths of the composites were 1.25 GPa for pure aluminum matrix, 1.1 GPa for Al-5%Ni, 0.75 GPa for Al-4.5%Cu, 0.43 GPa for Al-3%Si and 0.25 GPa for Al-5%Mg alloy matrix. The acoustic emission counts for pure aluminum matrix accumulated up to the maximum flexural stress was largest, and the flexural fracture occurred with gradual crack propagation. For matrices containing alloying elements, Ni, Cu, Si and Mg, the acoustic emission counts were less than those for pure aluminum matrix, and the fracture of those matrices occurred drastically with fast crack propagation around the maximum stress. Second phase platelets were preferentially crystallized around the fibers and affected the crack propagation. However, second phases of whisker-like Al_3Ni in the Al-5%Ni matrix less affected the propagation.

(Received September 13, 1985)

Keywords : *silicon-carbide fiber, aluminum-nickel, aluminum-copper, aluminum-silicon, aluminum-magnesium, composite, fiber-reinforced metal, flexural test, acoustic emission*

I. 緒 言

有機ケイ素重合体より溶融紡糸し、焼成して得られる炭化ケイ素繊維⁽¹⁾⁻⁽³⁾は Al 合金の強化材として注目されている。本繊維と Al 合金より成る繊維強化金属(以後 FRM と呼ぶ)の製造法として種々の方法が提案されている⁽⁴⁾⁻⁽⁶⁾。この中でも、高圧凝固鑄造法は部品形状に近い形が容易に得られることから注目を浴びている。本方法では繊維と溶融 Al が高温で接触する。したがって、繊維とマトリックスの適合性、それに及ぼす Al 合金の添加元素の影響などは重要な問題であり、反応による繊維の劣化や濡れ性などに関する研究⁽⁷⁾⁻⁽⁹⁾に主眼がおかれてきた。しかし、添加元素によっては凝固の際に晶出物や析出物を生成し⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾、これらの相が FRM の破壊に影響することも十分考えられる。すなわち、化学蒸着法で作製されたボロン繊維や炭化ケイ素繊維のような太い繊維(〜200 μm)を用いた FRM ではその影響は小さいと考えられるが、高圧凝固鑄造法ではしなやかな細い繊維(〜20 μm)が多く用いられており、繊維の直径はマトリックス中の晶出物や析出物と同程度の大きさとなるので、それらの相の影響も考慮する必要がある。

本研究では高圧凝固鑄造法で作製した炭化ケイ素繊維と

種々の Al 合金より成る FRM を用いて曲げ試験と同時にアコースティックエミッション(以後、AE と呼ぶ)測定を行い、FRM の強度や曲げ破壊挙動とマトリックスの金属組織との関係について調べることを目的とした。

II. 実験方法

炭化ケイ素繊維として日本カーボン(株)製“Nicalon”(平均繊維直径: 15 μm)を用いた。マトリックスとして、純 Al, Al-5%Ni, Al-4.5%Cu, Al-3%Si および Al-5%Mg の各合金を用いた。FRM の作製は高圧凝固鑄造法⁽¹²⁾で行った。複合時の繊維予熱温度と Al 合金溶湯温度は各合金の液相線温度より約 60 K 高い温度とした。

FRM 試料より長さ: 100 mm, 幅: 8.6 mm, 厚さ: 1.8 mm の平板試験片を採取し、表面を #800 までのエメリー紙にて研磨した後に、島津製オートグラフ DSS-5000 試験機で 3 点曲げ試験を行った。試験条件は圧子半径: 5 mm, 支点半径: 2 mm, 支点間距離: 90 mm, クロスヘッド移動速度: 3.3×10^{-2} mm/s である。

3 点曲げ試験の際に、Dunegan/Endevco 3000 装置を用いて AE 測定を行った。AE センサーとして 140 kHz 付近に最大感度を有する Model S 9204 を用い、試験片の引

* 株式会社豊田中央研究所 (Toyota Central Research & Development Laboratories, Inc., Aichi)

張応力側の支点より 20 mm の位置に取り付けた。雑音除去のためにハイパスフィルター (100 kHz) を通し、総合利得 87dB に増幅してイベント数、リングダウン数および AE 振幅分布を一定時間 (6 s) 毎に荷重出力とともにマイコン (HP 9825B) で記録した。

III. 実験結果

1. FRM の強度と破面

Fig.1 に 3 点曲げ試験で得られた繊維軸方向の強度を示

Fig.1 Flexural strength of silicon-carbide fiber-reinforced aluminum alloys.

Fig.2 Scanning electron micrographs of flexural fracture surfaces.

(a) Al-5%Ni and (b) Al-4.5%Cu matrix composites.

す。曲げ強度は純 Al マトリックスで最も大きく約 1.25 GPa であった。Al-5%Ni マトリックスの場合には 1.1 GPa、次いで Al-4.5%Cu マトリックスが 0.75 GPa の強度を示した。Al-3%Si と Al-5%Mg マトリックスの場合には先報の結果⁽¹⁰⁾と同様に著しく低い強度であった。

Fig.2 に示す走査電顕による破面観察では、いずれの FRM でも繊維の引き抜けは少なく、繊維とマトリックスの接着性は良好であった。マトリックス部に着目すると、純 Al の場合には先報⁽¹⁰⁾でも示したように大きなディンプルパターンがみられた。Al-5%Ni マトリックスでは Fig.2 (a) に示したように繊維の周囲に微細なディンプルパターンが多くみられ、その中に共晶 Al_3Ni と思われる針状物がみとめられた。Al-4.5%Cu マトリックスでは Fig.2 (b) 中の矢印で示したように、繊維に隣接し、脆性的に破壊した相がみられた。これは共晶 CuAl_2 と考えられる。また、これらの脆性破壊相に隣接した繊維の破面は平滑であった。Al-3%Si と Al-5%Mg マトリックスの場合については先報の結果⁽¹⁰⁾と同様であるので写真は省略したが、Al-3%Si マトリックスでは繊維の破壊起点に共晶 Si と思われる脆性破壊相がみられた。また、Al-5%Mg マトリックスでは繊維とマトリックス界面に反応層がみられ、繊維の縦割れも多くみとめられた。

2. マトリックスの金属組織

Fig.3 は繊維軸に平行な断面を走査電顕で観察した結果である。なお、断面は研磨後、10%NaOH 水溶液にてエッチングを行った。純 Al マトリックスの場合にはエッチングむらによる多少の凹凸はあるが、繊維とマトリックス界面には何ら反応層はみとめられなかった。Al-5%Ni マトリックスでは Al_3Ni と思われる針状の微細な晶出物 (直径: 約 $0.2\text{ }\mu\text{m}$) が多数みられた。Al-4.5%Cu マトリックスでは CuAl_2 と思われる粗大な晶出物があり、繊維に隣接したものと繊維同士を連結するように晶出したものとがみられた。Al-3%Si マトリックスでは繊維表面に付着した晶出物と繊維を連結するように晶出したものとがみられた。先報の結果⁽¹²⁾より、晶出物は共晶反応による Si と考えられる。Al-5%Mg マトリックスの場合にはマトリックス中に晶出はほとんどみられないが、繊維とマトリックスの界面部に厚さ約 $1.5\text{ }\mu\text{m}$ の反応層がみとめられた。

3. 抽出繊維の強度

10%NaOH 水溶液を用いて FRM 中より抽出した繊維について単繊維引張試験を行った。条件は試料数: 40 本, ゲージ長: 20 mm, クロスヘッド移動速度: $8.3 \times 10^{-3}\text{ mm/s}$ である。結果を Table 1 に示す。純 Al マトリックスに比べて Al-5%Ni と Al-4.5%Cu マトリックスではやや低い強度を示すが、繊維の劣化は小さかった。Al-3%Si と Al-5%Mg マトリックスではほかのマトリックスの場合に比べて著しい劣化がみられた⁽¹⁰⁾。

抽出繊維の強度を用いて複合則 (式 (1)) より FRM 強度

Fig.3 Scanning electron micrographs of matrix regions in longitudinal cross section of composites.

(a) Pure aluminum, (b) Al-5%Ni, (c) Al-4.5%Cu, (d) Al-3%Si and (e) Al-5%Mg matrix composites.

Table 1 Strengths of fiber extracted from composites and those predicted by the the simple rule of mixture.

matrix	V_f	σ_m	σ_f	σ_c	σ_F	σ_F/σ_c
pure Al	0.56	0.05	2.22	1.27	1.25	0.98
Al-5%Ni	0.57	0.15	1.92	1.16	1.1	0.95
Al-4.5%Cu	0.62	0.19	2.04	1.34	0.75	0.56
Al-3%Si	0.57	0.13	1.23	0.76	0.43	0.57
Al-5%Mg	0.59	0.22	0.37	0.31	0.25	0.81

V_f : volume fraction of fiber.

σ_m : tensile strength of matrix (GPa).

σ_f : tensile strength of fiber (GPa).

σ_c : tensile strength of composite by ROM (GPa).

σ_F : flexural strength of composite (GPa).

を求め、測定した曲げ強度の平均値と比較した。結果を Table 1 に示す。

$$\sigma_c = \sigma_f \cdot V_f + \sigma_m (1 - V_f) \quad (1)$$

ここで σ_c , σ_f , σ_m はそれぞれ FRM, 繊維, マトリックスの強度, V_f は繊維体積率を表す。複合則による強度 σ_c と曲げ強度 σ_F の比 σ_F/σ_c † は純 Al, Al-5%Ni および Al-5%Mg マトリックスでは 0.81~0.98 であるのに対して, Al-4.5%Cu と Al-3%Si ではそれぞれ 0.56 と 0.57 であった。この結果は FRM の強度に対して繊維の強度以外の

† 複合則による強度 σ_c は引張強度について示されたものである。ここでは各 FRM の強度の相対的比較のため σ_F/σ_c を用いた。

要因が影響することを示唆している。

4. 曲げ試験における AE

3点曲げ試験において、負荷開始より破壊に至るまでの AE を測定した。結果を Fig.4 に示す。横軸は圧子点における最大たわみ量, 縦軸は最大曲げ応力, 単位時間当たり (6 s) に観測されたイベントとリングダウンのカウンタ数を表す。

いずれの FRM でも曲げ応力はたわみ量に対してほぼ直線的な変化を示した。純 Al マトリックスの場合、イベント数は曲げ応力で約 0.7 GPa (破壊応力の 60%) までは著しい増加を示したが、その後はほぼ一定となった。リングダウン数はイベント数と類似の傾向を示した。Al-5%Ni マトリックスの場合にはイベント数とリングダウン数ともに純 Al マトリックスの場合より少なく、破壊応力まではほぼ直線的に増加した。破壊直前でリングダウン数は急激な増加を示した。Al-4.5%Cu マトリックスの場合には同じ曲げ応力で比較するとイベント数とリングダウン数ともに純 Al マトリックスの場合より少なく、Al-5%Ni マトリックスよりも多い結果であった。また、イベント数は破壊まで単調に増加し、リングダウン数は破壊直前で著しい増加を示した。Al-5%Ni と Al-4.5%Cu マトリックスの場合には AE の発生は純 Al マトリックスよりやや高応力側で始ま

Fig.4 Acoustic emission event and ringdown count rate as a function of maximum deflection for silicon-carbide fiber-reinforced aluminum alloys. (a) Pure aluminum, (b) Al-5%Ni, (c) Al-4.5%Cu, (d) Al-5%Mg and Al-3%Si matrix composites.

Fig.5 Differential amplitude histogram. The stress levels indicated in the figure are 60, 80 and 100 per cent of fracture stress.

(a) Pure aluminum, (b) Al-5%Ni, (c) Al-4.5%Cu, (d) Al-3%Si and (e) Al-5%Mg matrix composite.

った。また、曲げ応力の増加にともなうイベント数の増加率は純 Al と Al-4.5%Cu マトリックスではほぼ同じであるのに対して、Al-5%Ni マトリックスの場合にはそれよりも小さかった。

Al-3%Si と Al-5%Mg マトリックスの場合には低い曲げ応力で破壊し、AE の発生は純 Al マトリックスより低応力側で始まった。イベント数とリングダウン数は曲げ応力の増加とともに著しく増加し破壊に至った。Al-5%Mg マトリックスではイベント数とリングダウン数がほかのマトリックスに比べて非常に少ない時点で破壊した。

5. AE 振幅分布

Fig.5 は各 FRM の曲げ試験において曲げ破壊応力の 60%, 80%, および 100% の応力レベルまでに計測された AE 振幅分布を示す。いずれのマトリックスにおいても分布のピークを示す振幅は約 37 dB にあり、曲げ応力の増加にともなうピーク位置の変化はみとめられなかった。分布形状に着目すると、純 Al マトリックスでは高振幅側にすそ広がり比較的になだらかな分布であった。また、50 dB 以上の振幅をもつ AE は破壊応力の 60% の応力レベルですでに計測され、曲げ応力とともに増加した。Al-5%Ni, Al-4.5%Cu および Al-3%Si の各マトリックスの場合には 37 dB をピークとする鋭い分布を示し、50 dB 以上の AE は破壊応力の 80% 以上の応力レベルで計測された。Al-5%Mg マトリックスの場合にはイベント数が非常に少なかったが、高振幅側の AE が比較的によく、例えば、37 dB 付近の AE に対する 80 dB 付近の AE 数の比は、ほかのマトリックスに比べて相対的に大きいようにみられた。

IV. 考 察

AE は複合材料の破壊を解明する有用な情報として知られている⁽¹³⁾。しかし、FRM の場合には繊維、マトリックス、界面、晶出または析出物などの多くの AE 発生源があり、このことが発生した AE とその発生源を対応させることを困難にしている。曲げ試験より得られた AE の結果を用いて、FRM の強度や破壊に及ぼすマトリックスの影響について考察する。

FRM では AE の発生は次のような事象によって起こると考えられる。

- (1) 繊維の破断
- (2) 界面の破壊
- (3) マトリックスの塑性変形
- (4) 晶出物や析出物の破壊
- (5) き裂の伝播

まず、純 Al マトリックスについてみると、(4) 晶出物や析出物はなく、また、Fig.3 のように反応生成物もみられない。この場合の AE 発生開始時の曲げ応力は約 0.05 GPa であった。繊維とマトリックスが弾性変形すると仮

定して複合則より計算すると繊維は 0.07 GPa、マトリックスは 0.03 GPa を応力分担している。この値は純 Al の降伏応力 0.02 GPa を越えており、AE 発生開始時にはマトリックスの一部はすでに塑性変形状態にある。したがって、本実験の AE 測定条件下では(3)マトリックスの塑性変形による AE は計測されにくいと考えられる。実際に、高圧凝固鑄造法によって作製した、繊維を含まない純 Al と Al-4.5%Cu 合金を用いて、同一条件で測定を行ったが、ほとんど AE は計測されなかった。したがって、低応力レベルより計測される 37 dB を中心とする AE は(1) または(2)によるものと推察される。また、50 dB 以上の AE は繊維の破壊より大きなき裂の発生、すなわち(5)にともなう AE に対応すると考えるのが妥当であろう。

これらの結果より純 Al マトリックスの FRM の破壊は、まず曲げ応力の増加とともに個々の繊維または界面の破壊が継続的に発生し、曲げ破壊応力の約 60% の応力レベルより繊維の破断点を連結するようなき裂が発生し、最終的にはそれらのき裂が連結して破壊に至ると考えられる。

Al-5%Ni および Al-4.5%Cu マトリックスの場合には FRM の強度は純 Al マトリックスより低い。FRM の強度は繊維の強度に大きく左右されるが、Cu や Ni を添加した場合、Table 1 に示したように繊維の劣化は純 Al の場合とほぼ同じと言える。また抽出した繊維の強度を用いて複合則より計算した FRM の強度 σ_c と曲げ強度 σ_F の比 σ_F/σ_c は Al-5%Ni マトリックスでは純 Al の場合とほぼ同じ値 0.95 であるのに対して Al-4.5%Cu マトリックスでは 0.56 であった。したがって、FRM の強度には繊維の強度以外の要因も影響を及ぼすと考えられる。

また、Al-5%Ni と Al-4.5%Cu マトリックスの場合には、曲げ試験時の AE の発生が純 Al の場合より高応力側で始まり、イベント数やリングダウン数が純 Al マトリックスより少ないという特徴がみられた。これらは Ni や Cu の添加によってマトリックスの降伏応力が増加し、加工硬化も加わって繊維の応力分担が軽減されるためと考えられる。比較的高応力レベルから高振幅の AE が発生することや破壊直前でリングダウン数が増加することについては、破壊応力付近で発生したき裂が急速に伝播して破壊に至るためと考えられる。さらに、Al-5%Ni マトリックスの 0.83 GPa と Al-4.5%Cu マトリックスの 0.74 GPa で AE 振幅分布を比較すると、ほぼ同一曲げ応力レベルであるにもかかわらず、高振幅側、特に 50 dB 以上の AE 数は後者の方が多い。AE 振幅は解放されるエネルギーの大きさに対応しているといわれており⁽¹⁴⁾、振幅の大きいもののほど開口するき裂の面積も大きいことが考えられる。したがって、Al-4.5%Cu マトリックスの方がき裂が伝播しやすいと推察される。これは Fig.3 にみられるように Al-4.5%Cu マトリックスでは脆弱で粗大な CuAl_2 が晶出して、Al-5%Ni マトリックスでは微細な Al_3Ni

が分散していることや、ウィスカー状の Al_3Ni は高強度⁽¹⁵⁾であることなども矛盾しない結果である。繊維周囲に晶出した $CuAl_2$ は繊維の破壊の起点として作用することも考えられるが、AE は純 Al マトリックスより Al-4.5%Cu マトリックスの方が高応力側で発生していることやカウント数も少ないことを考慮すると、破壊の起点としてよりもむしろ伝播に作用すると思えるのが妥当であろう。

Al-3%Si や Al-5%Mg マトリックスの場合には繊維が劣化する。したがって、AE が純 Al マトリックスよりも低応力側より発生するのは劣化した繊維の破壊によるものと考えられる。しかし、繊維の劣化は Al-5%Mg マトリックスの方が著しいにもかかわらず、AE の発生は Al-3%Si の方が多い。これはマトリックス中の共晶 Si の破壊⁽¹⁶⁾または繊維上に付着した Si による破壊の起点としての作用によるものと考えられる。共晶 Si は繊維同士を連結するように晶出したものも観察され、 σ_F/σ_c 値は 0.57 で Al-4.5%Cu マトリックスの場合とほぼ同じ値であることなどから、き裂の伝播にも作用すると思われる。

Al-5%Mg の場合、マトリックス中には晶出物は観察されなかったが、厚さ約 1.5 μm の界面反応層が存在しており、繊維の破壊の起点として作用することは十分推察できる。

V. 結 言

高圧凝固鑄造法で作製した炭化ケイ素繊維強化 Al 合金の曲げ試験、AE 測定および組織観察を行い、下記の結果が得られた。

(1) FRM の強度は純 Al マトリックスで最も大きく 1.25 GPa を示した。Al-5%Ni では 1.1 GPa、Al-4.5%Cu では 0.75 GPa、Al-3%Si では 0.43 GPa、Al-5%Mg では 0.25 GPa であり、各合金元素添加によって FRM の強度は低下する傾向を示した。

(2) 曲げ試験におけるアコースティックエミッション (AE) について、破壊に至るまでの AE 数は純 Al マトリックスで最も多かった。同一応力レベルでは Al-5%Ni マトリックスの場合にイベント数、リングダウン数ともに最も少なかった。AE 発生開始時の曲げ応力は Al-5%Ni で最も大きく、次いで Al-4.5%Cu、純 Al、Al-3%Si および Al-5%Mg の順であった。

(3) Al-5%Ni マトリックスでは繊維の劣化は小さい。マトリックス中の晶出物は微細なウィスカー状であるためにき裂伝播への影響は小さい。

Al-4.5%Cu では繊維の劣化は小さい。しかし、粗大な晶出物はき裂伝播を促進するために、FRM 強度が低下する。

Al-3%Si では繊維は劣化する。さらに、晶出物の Si がき裂伝播を促進するために、FRM 強度は著しく低下する。

Al-5%Mg では晶出物はほとんどみられないが、繊維が著しく劣化しており、FRM 強度は最も低い値であった。

文 献

- (1) S.Yajima, J.Hayashi, M.Omori and K.Okamura: *Nature*, **261**(1976), 683.
- (2) S.Yajima, K.Okamura, J.Hayashi and M.Omori: *J.Amer. Ceram. Soc.*, **59**(1976), 324.
- (3) S.Yajima, H.Kayano, K.Okamura, M.Omori, J.Hayashi, T.Matsuzawa and K.Akutsu: *Amer. Ceram. Soc. Bull.*, **55**(1976), 1065.
- (4) S.Yajima and K.Okamura: *J. Mater. Sci.*, **15**(1980), 2130.
- (5) 中田栄一, 香川 豊, 寺尾星明, 小原孝則, 鈴木鎮夫, 井沢紀夫: 軽金属学会第 61 回講演概要, (1981), 69.
- (6) 香山 晃, 井形直弘, 石川敏功, 寺西春夫, 今井義一: 日本鉄鋼協会第 109 回, (1985), 講演概要集 II, 475.
- (7) 葛西靖正, 斎藤 誠, 浅田千秋: 日本複合材料学会誌, **5**(1979), 56.
- (8) 小原嗣朗, 武藤範雄: 日本金属学会誌, **45**(1981), 411.
- (9) R.Warren and C-H. Andersson: *Composites*, **15**(1984), 101.
- (10) 砥綿真一, 山田銃一: 日本金属学会誌, **48**(1984), 1192.
- (11) 福永秀春, 合田公一: 日本機械学会論文集 (A 編), **50**(1984), 1054.
- (12) 砥綿真一, 山田銃一: 日本金属学会誌, **47**(1983), 159.
- (13) J.H.Williams, Jr. and S.S.Lee: *J. Comp. Mater.*, **12**(1978), 348.
- (14) 尾上守夫: アコースティックエミッションの基礎と応用, コロナ社, (1976), 47.
- (15) R.W.Hertzberg, F.D.Lemkey and J.A.Ford: *Trans. Met. Soc. AIME*, **233**(1965), 342.
- (16) A.Gangulee and J.Gurland: *Trans. Met. Soc. AIME*, **239**(1967), 269.