飛行時間法による炭化ケイ素粒子強化アルミニウム 合金複合材料の中性子応力測定[†]

秋庭 義明* 木村 英彦*
田中 啓介* 神山 崇**

Stress Measurement of Silicon Carbide Particulate Reinforced Aluminum Alloy by Time-of-Flight Neutron Diffraction

by

Yoshiaki AKIYAMA^{*}, Hidehiko KIMURA^{*}, Keisuke TANAKA^{*} and Takashi KAMIYAMA^{**}

The loading stresses in a monolithic aluminum alloy and an aluminum alloy reinforced with silicon carbide particles were measured by time-of-flight neutron diffraction method. Under uniaxial loading, the longitudinal and transverse strains were measured by high resolution powder diffractometer, Sirius, at KENS. The elastic constants measured by the neutron diffraction method were compared with the values predicted by analytical models. The intensity of Al200 diffraction was high enough to determine the lattice strain in both longitudinal and transverse directions. The elastic constants agreed well with the predicted values. For the composite, the loading stresses in each constituent phase of the aluminum alloy and the silicon carbide particles were measured. Diffractions from SiC102, SiC110 and Al200 were suitable for determination of lattice strains. The measured strains were compared with the values predicted by the inclusion models. When the diffraction intensity is sufficiently high, the measured elastic constants are close to the predicted values. The macro stress calculated by the rule of mixture agreed very well with applied stress.

Key words : Neutron stress measurement, Time of flight, Metal matrix composite, Phase stress, Elastic constant

1 緒 言

環境負荷低減化や高効率化の要求が高まるなか、構造用材料には、従来にも増して高比剛性、高比強度、高機能が求められるようになってきた。複合材料は構成素材特有の特徴を組み合わせることによって、要求される特性を発現することが可能で、従来の単一素材では達成し得なかった特性を付与できる可能性があるため、多くの分野で開発研究が進められている。特に、金属基複合材料は、軽量強化材と組み合わせることによる比強度、比剛性の向上のみならず、耐摩耗性や耐熱性、耐食性といった面でも大きな向上が期待でき、交通運輸産業や航空宇宙産業で開発が進められている。

金属基複合材料の製造にあたっては、異種材料を混合もしくは最終構成形態に固定した後に、比較的高温度で一体化させる場合が多い。このとき、異種材料の組み合わせであるために線膨張係数が異なる組み合わせとなる場合も多く、製造過程で残留応力が導入されることが避けられない。このような残留応力は、材料全体としての強度や機能に大きな影響を及ぼすため、これを評価・制御することが、複合材料の開発に際しては不可欠となる。^{1), 2)}

従来、構造用材料の残留応力の測定には、X線法が広く適用されてきている。X線法では、結晶性材料中の格

子間隔の変化からひずみを測定して応力を算出するために、非破壊的に応力が測定できる利点があり、多くの産業分野で実用技術として用いられている。しかしながら、実験室X線装置では、用いられるエネルギーが限られ、X線の侵入深さが材料の表面下数十 μm 程度の場合が多く、強化材もしくは母材の構成単位寸法がX線の侵入深さよりも大きい場合には、部材表面における応力解放の影響が顕著となり、高精度な応力評価が困難となる問題があった。

一方、中性子を用いた場合、その侵入深さが数ケタ大きいために、材料内部の情報を得ることができ、さほど表面の影響を考慮せずに応力状態が評価できる。³⁾中性子法では、単色中性子を用いる角度分散法、白色のパルス中性子を用いた飛行時間法が用いられる。既報では原子炉からの定常中性子を用いて、角度分散法によって各種材料の応力測定を行った。^{4), 5)}高精度に応力を測定するためには、複数の回折面からの情報を利用することが有効であるが、角度分散法では、一度に測定できる角度範囲が限られるため、複数の回折面からの情報を得る場合には、波長の変更をはじめとして、多くの時間が必要とされた。一方、飛行時間法では、多くの回折面の情報を同時に得ることができるという利点を有している。現在

[†] 原稿受理 平成 16 年 10 月 5 日 Received Oct. 5, 2004

* 正 会 員 名古屋大学工学研究科 〒464-8603 名古屋市中種区不老町, Dept. of Mech. Sci. Eng., Nagoya Univ., Chikusa-ku, Nagoya, 464-8603

** 正 会 員 高エネルギー加速器研究機構 〒305-0801 つくば市大穂, High Energy Accelerator Res. Organization, Oho, Tsukuba, 305-0801

J-PARC (Japan Proton Accelerator Research Complex) では、高強度パルス中性子源の開発が進められており、今後中性子応力測定における飛行時間法の役割がますます大きくなるものと予想されるが、回折強度をはじめとして応力測定のための最適な測定条件については不明な点も多い。

本研究では、高エネルギー加速器研究機構のパルス中性子回折装置 Sirius を用いて、アルミニウム合金単体および炭化ケイ素粒子 (SiCp) 強化アルミニウム合金複合材料の負荷状態でのその場ひずみ測定を行い、回折弾性定数を決定するとともにその測定精度について検討した。

2 実験方法

2・1 供試材および試験片

材料には 2024-T6 アルミニウム合金単体および体積含有率 20% の SiC 粒子強化アルミニウム合金 (SiCp/Al2024-T6) を用いた。SiC 粒子の平均粒径は $3\mu\text{m}$ である。材料は粉末冶金法によって作製され、素材ピレットを $\phi 20\text{mm}$ の丸棒に押し出し比 12 で押し出した材料である。熱処理は機械加工後、 495°C で 2 時間保持後氷水に急冷し、その後 190°C で 8 時間保持後、空冷する T6 処理である。Fig. 1 に光学顕微鏡による組織写真を示す。押し出し方向と平行な面で黒い粒子リッチな領域と白いマトリックスリッチな領域がバンド状に分布している。マトリックスリッチ領域におけるアルミニウム相の平均粒径は約 $5\mu\text{m}$ であり、アルミニウム合金単体の場合の粒径に等しい。Table I に押し出し方向に平行な方向に対する機械的性質を示す。複合化することによって、ヤング率および引張強さはそれぞれ約 50% および 15% 大きくなっているのに対して、伸びは 67% 低下している。

中性子応力その場測定に用いた試験片形状を Fig. 2

Fig. 1. Microstructure of SiCp/Al2024.

に示す。試験片の長手方向が押し出し方向と平行になるように採取した。ゲージ部の試験片直径は 4mm である。試験片は機械加工によって外形を切削加工した後に、エメリー紙で #1200 番まで研磨して仕上げた。

2・2 中性子測定

中性子測定は、高エネルギー加速器研究機構の高分解能粉末回折装置 Sirius で行った。本装置は、全飛行距離 40m で、ディスクチョッパーおよび 3Qc スーパーミラーガイドを有しており、 90° バンクにおける最高分解能は $\Delta d/d$ で 0.4% である。本研究では 2 つの 90° バンクを用いて、軸方向およびそれと垂直方向の回折データを同時に収集した。 90° バンクでは、水平な入射ビームに対して、水平方向に 20° 、垂直方向に 60° の回折データの積算値が、その領域内の平均値として得られる。試験片は、応力制御の引張装置によって、応力一定に負荷した。測定時間は、アルミニウム合金単体で 20min 、複合材料で 60min とした。回折データは、格子面間隔範囲で約 0.05 から 0.3nm である。

2・3 格子ひずみと応力

飛行時間法では、格子ひずみは波長 (λ) もしくは飛行時間 (TOF) の変化によって求められる。

$$\varepsilon = \frac{\Delta\lambda}{\lambda} = \frac{\Delta\text{TOF}}{\text{TOF}} \quad (1)$$

得られた回折データは、回折面間隔に対する回折強度のデータに変換し、個々の回折面に対してピーク解析を行い、各回折面での回折面間隔変化を抽出した。ピーク位置よりも小さい場合には、ガウス曲線とローレンツ曲線の混合関数とし、ピーク位置以上ではガウス曲線と指数関数の混合関数として回折データを近似することからピーク位置を決定した。このときの未知数は、ピーク位置を含めて 8 個であり、残差二乗和が最小となるようにこれらの未知数を決定した。

軸方向ひずみ (一軸引張荷重下でのひずみ ε_1) と、それに垂直な横方向ひずみ ($\varepsilon_2 = \varepsilon_3$) が得られると、相応力は次式で求めることができる。

Fig. 2. Shape and dimensions of tensile specimen.

Table I. Mechanical properties of Al2024 and SiCp/Al2024.

Material	Young's modulus E (GPa)	0.2% proof stress $\sigma_{0.2}$ (MPa)	Tensile strength σ_B (MPa)	Elongation ε_f (%)	Vickers hardness H_V
Al2024	75.4	412	540	19.1	173
SiCp/Al	114	465	625	6.2	200

$$\sigma_1 = \frac{E}{1+\nu} \left\{ \varepsilon_1 + \frac{\nu}{1-2\nu} (\varepsilon_1 + \varepsilon_2 + \varepsilon_3) \right\} \quad (2)$$

ここで, E および ν は回折弾性定数である.

複合材料では, 母相および強化相での相応力が得られると, 複合則によって巨視的応力 σ_1' が求められる.

$$\sigma_1' = \langle \sigma_1 \rangle_p f + \langle \sigma_1 \rangle_m (1-f) \quad (3)$$

ここで, $\langle \sigma_1 \rangle_m$ および $\langle \sigma_1 \rangle_p$ はそれぞれ母相 (アルミニウム合金) および強化材 (SiC) の相応力の平均値であり, f は強化材の体積含有率である.

3 実験結果および考察

3・1 引張負荷下における変形挙動

アルミニウム合金単体および複合材料に単調引張負荷を行い, 荷重負荷下における格子ひずみを測定した. Fig. 3 にその場測定中に得られた負荷応力とクロスヘッド変位の関係を示す. 図中の□印はアルミニウム合金単体, ○印は複合材料の結果である. アルミニウム合金単体については 440MPa まで, 複合材料では 500MPa まで負荷した後に除荷した. 単体では 400MPa 以上で, 複合材料では 450MPa 以上で顕著な塑性変形が認められた.

3・2 中性子回折

それぞれの材料について得られた回折プロファイルを図 4 に示す. $TOF(\mu\text{sec})$ と回折面間隔 $d(\text{nm})$ の関係

Fig. 3. Relation between applied stress and displacement.

は, Si の回折結果をもとに次式で近似できる.

$$d = \frac{TOF}{153550.992} \quad (4)$$

図中の実線は, 散乱ベクトルが試料長手方向に平行な場合で, 破線はそれと垂直な場合のプロファイルである. アルミニウム合金単体の場合は, 押出し材のために集合組織が発達しており, 例えば Al111 や Al220 回折では,

(a) Monolithic aluminum alloy Al2024

(b) Composite SiCp/Al2024

Fig. 4. Relation between diffraction intensity and lattice spacing.

方向によって回折強度が大きく異なる。これに対して複合材料の場合は、若干の集合組織は認められるが、アルミニウム合金単体ほど顕著ではない。ただし、Al111やAl220回折にはSiC相の回折が混合するため、ひずみ測定には適さない。またSiC相は、ランダムな方位で分散しているため、散乱ベクトルの方向によらずに回折強度はほぼ等しいことがわかる。

3・3 アルミニウム合金単体の回折弾性定数

アルミニウム合金とSiCでは、線膨張係数が異なるため、無負荷状態で残留応力が存在するが、本研究では負荷応力に対する変化に着目し、無負荷状態での回折面間隔を基準として格子ひずみを算出した。Fig. 5に負荷応力と格子ひずみの関係を示す。(a)は荷重負荷方向のひずみである。図中の実線は、Table Iに示した機械的な弾性定数である75.4GPaを示している。図中には5つの回折面から得られた関係を示しているが、その差は大きくない。また、図中のデータにはFig. 3に示したように塑性変形領域について得られたデータも含まれているが、ほぼ直線で近似可能であり、塑性変形の影響はさほど顕著ではない。これは、角度分散法で得られた結果⁴⁾とほぼ同様である。

Fig. 5 (b)は荷重軸に垂直方向のひずみに関するものである。集合組織のために、得られる回折面が限られてお

り、ここではAl200およびAl220の二つのデータを示している。図中の実線は、やはり機械的な弾性定数75.4GPaとポアソン比0.325より得られる関係を示している。

塑性変形領域を除いて、350MPaまでのデータを用いて直線近似することによって荷重軸方向の弾性定数を求めた結果をTable IIにまとめた。表中のCIは68.3%信頼限界である。参考として単結晶の弾性定数⁶⁾を用いてKrönerモデル⁷⁾より解析的に求めた弾性係数 E_{cal} を併せて示した。 E/E_{cal} は測定によって得られた弾性係数と解析値との比である。なお、解析では集合組織の影響は考慮していない。回折強度は、負荷過程に大きくは変化しておらず、平均値を示した。回折強度が800カウント(バックグラウンドに対するピーク強度の比が約260)以上では、信頼限界が2GPa以内で、弾性定数の比も10%以内となる。

Table IIIは横ひずみに関する結果をまとめたもので、ここでは E/ν を比較基準として用いた。Table IIに比較して全体的に信頼限界の値が大きくなるが、回折強度が300カウント(バックグラウンドに対するピーク強度の比が約100)以上では、信頼限界が14GPa以内に、解析値との比は12%以内となる。

Table II. Elastic constant in longitudinal direction.
(monolithic Al2024)

Diffraction line hkl	Intensity I count	Youngs modulus E GPa	Confidence limit CI GPa	E_{cal} GPa	E/E_{cal}
111	2800	66.2	1.4	72.5	0.91
200	800	65.9	1.7	66.7	0.99
222	240	64.7	2.8	72.5	0.89
511	80	66.3	4.8	67.8	0.98
400	70	71.8	2.7	66.7	1.08
311	30	60.1	5.1	69.3	0.87
422	25	81.1	9.6	71.0	1.14
331	15	38.9	27.9	71.4	0.55
420	5	47.5	33.4	69.4	0.69

Table III. Elastic constant in transverse direction.
(monolithic Al2024)

Diffraction line hkl	Intensity I count	Elastic constant E/ν GPa	Confidence limit CI GPa	$(E/\nu)_{cal}$	$(E/\nu)/(E/\nu)_{cal}$
220	350	217.6	13.9	205.9	1.06
200	320	210.2	7.1	188.5	1.12
420	40	135.6	29.2	199.3	0.68
422	30	119.3	28.3	205.9	0.58
400	30	57.2	134.9	188.5	0.30
440	25	89.5	43.2	205.9	0.43
331	22	111.0	33.7	207.8	0.53
311	15	105.6	46.2	199.1	0.53
111	10	67.1	36.4	212.5	0.32

(a) Longitudinal direction

(b) Transverse direction

Fig. 5. Relation between applied stress and lattice strain. (monolithic Al2024)

3・4 複合材料の回折弾性定数

複合材料のアルミニウム合金相について得られた結果を Fig. 6 に示す。図中の実線および破線は Eshelby-Tanaka-Mori モデル⁸⁾とセルフコンシステントモデル⁹⁾より得られる結果で、参考として示した。計算にはアルミニウム合金相の弾性定数として機械的な値である 75.4GPa とポアソン比 0.325 を用いた。SiC 相については、Kröner モデルによってランダム方位を仮定した機械的な値として得られる 450GPa とポアソン比 0.114 を用いた。単結晶の弾性定数は Arlt らの値を用いた。¹⁰⁾ Table IV には、SiC 相の各回折面に対する Kröner モデルによる回折弾性定数を示した。混合ピークに対しては理論回折強度の比、またそれらによる重み付き平均を（必ずしも厳密な手法ではないが）、機械的な値とともに示した。Fig. 3 に示したように、巨視的には 450MPa 以上で直線関係からずれ、塑性変形が認められたが、Fig. 6 では、300MPa 以上で直線より上方にずれ始めており、その相異の原因については今後さらに検討が必要である。Fig. 6 (b) は荷重軸に垂直方向のひずみ変化を示すが、ほぼ解析結果にも近く、塑性変形の影響は顕著には認められない。

SiC 相について得られた結果を Fig. 7 に示す。荷重軸方向ひずみについては、300 ～ 400MPa で直線関係より下方にずれて、アルミニウム相の塑性変形によって、強化材のひずみが弾性域で得られる関係よりも大きくなることからわかる。Fig. 7(b) は横方向のひずみ変化であるが、ひずみ量が小さく、ばらつきも大きい。

Table V には、負荷応力と軸方向ひずみとの比をまとめた。負荷応力が 300MPa までのデータを直線近似して求めた。各モデル解析結果については、機械的弾性定数を用いて得られた結果に対して、機械的弾性定数と各回折面に対する弾性定数の比を乗じた値も示した。なお、SiC 相については、Table IV に示すように複数の回折情報を含んでいるため、それらの重み付き平均値を用いた。SiC 相ではモデル計算値よりも 10% 程度小さく、アルミニウム相は逆に大きな値となった。回折強度が高いほど信

頼限界は小さくなる。Table VI には横方向ひずみに関する結果を示すが、軸方向ひずみの傾向とほぼ同様である。

一軸負荷であるため $\sigma_2 = \sigma_3$ と仮定すると、各応力成分を求めることができる。Table VII にその結果をまとめる。回折強度が 300 カウント（バックグラウンドに対するピーク強度の比が約 30）より大きな SiC102, SiC110, Al200 の結果について見ると、 σ_1/σ_a は SiC 相では若干大きく、アルミニウム相では低い。これは角度分散法で得られた結果⁴⁾と同様の傾向である。厳密には、 f の正確な測定や、SiC 相の弾性定数の実測が必要と考えられる。複合則から得られるマクロ応力は、SiC 相の 2 つの回折面の平均値を用いると $\sigma_1'/\sigma_a = 0.98$, $\sigma_2'/\sigma_a = 0.05$ であり、負荷応力にほぼ一致する。

4 結 言

高エネルギー加速器研究機構の高分解能粉末回折装置 Sirius にて、アルミニウム合金単体および炭化ケイ素粒子強化アルミニウム合金複合材料を用いて、荷重負荷下における相応力を中性子飛行時間法によって測定した。得られた主な結果を以下にまとめる。

(1) 飛行時間法を用いることによって、複数の回折面に対するひずみ解析が可能で、回折強度が高くなるほど

Table IV. Elastic constant calculated by Kröner model for SiCp phase.

Diffraction line hkl	Young's modulus E GPa	Poisson's ratio ν	Relative intensity	Weighted average	
				E GPa	ν
101	462.7	0.106	1	462.7	0.106
102	449.4	0.117	1	476.0	0.089
006	512.8	0.051	0.72		
110	468.8	0.102	1	460.5	0.106
108	441.6	0.117	0.44		
116	433.1	0.129	1	441.0	0.122
202	462.7	0.106	0.23		
1.0.10	453.8	0.106	0.23		
Mechanical	449.7	0.114	-

(a) Longitudinal direction

(b) Transverse direction

Fig. 6. Relation between applied stress and lattice strain in aluminum phase. (composite SiCp/Al2024)

(a) Longitudinal direction

(b) Transverse direction

Fig. 7. Relation between applied stress and lattice strain in SiC phase. (composite SiCp/Al2024)

Table V. Elastic properties in longitudinal direction.
(SiCp/Al2024)

Diffraction line	Intensity I count	$\sigma_a / \varepsilon_{\text{long}}$ GPa			
		Experiment	Confidence limit	Self-consistent	ETM
SiC102	509	242	11	267	289
SiC110	318	218	14	258	280
SiC101	163	254	33	260	281
SiC116	180	206	48	247	268
Al200	663	95	2	80	77
Al311	146	91	15	83	80
Al222	292	100	7	87	83
Al511	105	98	8	81	78

Table VI. Elastic properties in transverse direction.
(SiCp/Al2024)

Diffraction line	Intensity I count	$\sigma_a / \varepsilon_{\text{Trans}}$ GPa			
		Experiment	Confidence limit	Self-consistent	ETM
SiC102	437	-1041	166	-1382	-1569
SiC110	279	-689	150	-1337	-1518
SiC101	137	-8423	2383	-1343	-1526
SiC116	173	-748	525	-1281	-1454
Al200	288	-285	31	-263	-249
Al311	127	-230	41	-273	-259

Table VII. Loading phase stresses in composite.

Diffraction line	Experiment		Self-consistent		ETM	
	σ_1 / σ_a	σ_2 / σ_a	σ_1 / σ_a	σ_2 / σ_a	σ_1 / σ_a	σ_2 / σ_a
SiC102	1.914	-0.314	1.571	-0.148	1.453	-0.121
SiC110	2.005	-0.509				
SiC101	1.854	0.159				
SiC116	2.052	-0.387				
Al200	0.732	0.039	0.857	0.037	0.887	0.030
Al311	0.703	-0.086				

信頼限界は小さくなり、高精度測定が可能である。

(2) アルミニウム合金単体の回折弾性定数は、回折強度が高い場合 Kröner モデルによる計算結果とほぼ一致した。

(3) 複合材料に塑性変形が生じると、母材では弾性範囲で予測される関係よりも軸方向ひずみが小さくなり、強化材では大きくなった。

(4) 複合材料の各構成相の応力は、十分回折強度が高い場合にはマイクロメカニクスモデルによる予測値に近い値が得られたが、母相では若干小さく、強化相では大きくなり、角度分散法の測定結果と同様の傾向であった。

(5) アルミニウム合金相および SiC 相の応力から複合則によって予測されるマクロ応力は、負荷応力にほぼ一致した。

参考文献

- 1) H. M. Ledbetter and M. W. Austin, Mater. Sci. Eng., **89**, 53 (1987).
- 2) C. Person and T. Ericsson, "Residual stress III" edited by H. Fujiwara, T. Abe and K. Tanaka, p.82 (1992) Elsevier Appl. Sci.
- 3) K. Tanaka, Y. Akiniwa and M. Hayashi, Mater. Sci. Res. Int., **8**, 165 (2002).
- 4) 秋庭義明, 田中啓介, 竹園拓也, 林 眞琴, 皆川宣明, 森井幸生, 材料, **47**, 755 (1998).
- 5) Y. Akiniwa, K. Tanaka, N. Minakawa and Y. Morii, Mater. Sci. Res. Int., **6**, 281 (2000).
- 6) G. Simmons and H. Wang, "Single Crystal Elastic Constants and Calculated Aggregate Properties: A Handbook" Aluminum 10086, p.7 (1971) M. I. T. Press.
- 7) E. Kröner, Z. Phys., **151**, 504 (1958).
- 8) T. Mori and K. Tanaka, Acta Metall., **21**, 21 (1973).
- 9) T. Mura, "Micromechanics of Defects in Solids" p.428 (1987) Martinus Nijhoff Publ.
- 10) G. Arlt and G. R. Schodder, J. Acoust. Soc. Am., **37**, 384 (1965).