炭素繊維強化炭素複合材料における
破壊靱性評価の有効性*八 田 博 志^{*1}, 向 後 保 雄^{*1}
浅 野 英 之^{*2}, 川 田 宏 之^{*3}Applicability of Fracture Toughness Concept
to Fracture Behavior of Carbon/Carbon CompositesHiroschi HATTA, Yasuo KOGO,
Hideyuki ASANO and Hiroyuki KAWADA

Carbon/Carbon (C/C) composites have attractive mechanical properties such as superior specific strength and high elastic modulus at high temperature exceeding 2000°C in an inert atmosphere. However, mainly due to lack of knowledge of design criteria, C/C composites have not been used in primary heat resistant structures. For example, almost no unified explanation has been given about fracture behavior of C/C composites. The objective of this paper is to examine whether the linear elastic fracture mechanics (LEFM) is able to be applied to a C/C composite. The LEFM is tried to apply to fracture behavior in tensile tests of the double-edge notched and compact tension specimens and in the four-point bending test of the single-edge-notched specimens. It was found that the results of three kinds of fracture tests can be consistently and rationally explained by the LEFM concept with the aid of *R*-curve behavior if the pre-crack length is long enough to be able to neglect the notch tip radius. From fractographic observation it was found that *R*-curve behavior of the C/C composite was mainly attributed to the fiber-bridging effect near the notch tip.

Key Words: Composite Material, Fracture Criterion, Fracture Toughness, Stress Intensity Factor, Net Section Stress, Point-stress Criterion, *R*-Curve Behavior

1. 緒 言

炭素繊維強化炭素マトリックス複合材料(Carbon/Carbon composite; 以下C/Cと略記)は軽量・低密度かつ比強度・比弾性・耐熱衝撃性に優れ, 特に不活性雰囲気中では2000°C以上まで高強度を保つため, 超高温構造部材として期待されており, 今後スペースプレーンや極超音速機などへの応用が期待されている。しかしながら, C/Cに関しては既存の設計データも少なく, これまで一次構造部材への適用例はほとんど報告されていない。C/Cを構造部材として使用するためには, 同材料の設計基準を明確にする必要があり, 中でも最も重要な課題は, C/Cの破壊基準を明らかにすることといえよう。

C/Cに関する破壊基準としては, これまでにき裂や円孔等の応力集中源を有する部材に対して, 平均応力基準⁽¹⁾と破壊靱性基準⁽²⁾という二つの全く相いれないものが提唱されている。通常C/Cの破壊挙動は, 類似した挙動を示すセラミックス複合材料(CMC;

Ceramic matrix composites)といっしょにして論じられることが多いが, これらの材料系は複雑な破壊様相を呈するため, 破壊現象は一意的に定義されていない。例えば, Evansら⁽²⁾⁻⁽⁴⁾は, CMCの破壊を三つのパターンに分類し, 各種CMCの破壊モードと素材特性の関係を論じているが, その中でC/Cには破壊靱性基準が有効であると報告している。一方, 同じ報告中でC/Cは引張強度よりもせん断強度が極端に弱い。ため, き裂先端でせん断型の微視的破壊が生じ, このせん断型の損傷によりき裂先端の応力集中は大幅に緩和するとも述べられている。すなわち, 後者の場合はノッチ不感性を示し, 破壊力学は有効ではないことになる。同様な結論は他の研究者も得ており, C/Cは完全なノッチ不感性を示すとする報告もなされている⁽¹⁾。

以上のように, C/Cの破壊基準は現段階で明確に定義されているとはいいがたい。そこで本研究では, 0°/90°直交および疑似等方積層のC/C複合材料を供試材料とし, C/Cの各種破壊現象に線形破壊力学(LEFM)を適用することによって, LEFM評価の妥当性を検討した結果を報告する。多様な境界条件下における破壊現象を観察するため, 3種類の異なる破壊試験を行った。

* 原稿受付 1997年2月28日。

*¹ 正員, 宇宙科学研究所(☎229-8510 相模原市由野台3-1-1)。*² 早稲田大学大学院(☎169-8555 東京都新宿区大久保3-4-1)。*³ 正員, 早稲田大学理工学部。

2. 実験方法

2.1 供試材料 供試 C/C 複合材料は、プリフォームドヤーン法⁽⁵⁾ によるアクロス社製のもので強化繊維は Torayca-M40, 繊維体積含有率は 50% である。一方向強化材を積層した 0°/90° 直交積層および 0°/45°/90°/-45° の疑似等方積層 (QI) 材の 2 種類を用いた。材料の代表的機械特性を表 1 に示す。

材料は 300 mm 角で 3 mm または 10 mm 厚さの形で入手し、図 1 に示す形状・寸法に切り出して破壊試験を行った。試験片厚さは、CT (Compact Tension specimen) ; 10 mm, DEN (Double-end-notched specimen) ; 3 mm, SENB (Single-edge-notched specimen) ; 10 mm とした。いずれの試験片においても予き裂はダイヤモンドワイヤソーで先端半径 0.15 mm に仕上げた。試験機には島津製作所製オートグラフ AG 5000 A を用い、クロスヘッドスピードは変位制御 0.1 mm/min とした。また、き裂発生荷重点を特定するために、AE 法を用いた。

2.2 試験方法

(1) CT 試験 破壊靱性値の予き裂長さ依存性を評価するため、予き裂長さ比 a/W を 0.4, 0.5 および 0.6 の三とおりに変化させた試験片を準備した。また、き裂進展抵抗 (R) 曲線を得るため、除荷-負荷を繰返した。このとき、開口変位 (COD) をクリップゲージで測定し、荷重 (P)- COD 線図と以下の式⁽⁶⁾ を用い、コンプライアンス法によりエネルギー解放率 G_I を算出した。

$$G = \frac{P^2 \partial C}{2B \partial a} \dots \dots \dots (1)$$

ここで、 P, B, C, a はそれぞれ荷重、板幅、コンプライアンスおよびき裂長さである。実験時には、き裂の発生が容易に識別できるように研磨 (1200 番の研磨紙を使用) した表面に薄く白塗料を塗り、き裂を CCD 拡大カメラで観察してき裂進展量 (開口変位) とコンプライアンス関係の妥当性を確認した。またエネルギー解放率 G_I はそれぞれ以下の式⁽⁷⁾ を用いて応力拡大係数 K_I に換算した。

$$G_I = K_I^2 \left(\frac{S_{11} S_{22}}{2} \right)^{1/2} \left[\left(\frac{S_{22}}{S_{11}} \right)^{1/2} + \frac{2S_{12} + S_{66}}{2S_{11}} \right]^{1/2} \dots \dots \dots (2)$$

ここで S_{ij} はコンプライアンステンソル成分である。

(2) 両側切欠 (DEN) 試験 C/C の破壊基準として破壊靱性値と実断面平均応力の二つが提唱されている。そこで DEN 試験では両破壊基準の差を際立たせるため、予き裂長さ比を $a/W=0.5$ (a ; 予算裂長さ, W ; 試験片幅) で一定とし、き裂長さ (または試験片幅) を変化させた結果から両破壊基準を比較検討した。応力拡大係数は最大荷重から次式⁽⁸⁾ を用いて評価した。

$$K_{\max} = \sigma \sqrt{\pi a} \left(1 + 0.122 \cos^4 \frac{\pi \xi}{2} \right) \sqrt{\frac{2}{\pi \xi} \tan \frac{\pi \xi}{2}} \dots \dots \dots (3)$$

(a) CT specimen

(b) DEN specimen

(c) SENB specimen

Fig. 1 Geometry and dimensions of specimens

Table 1 Mechanical properties of C/C composites

Property	0°/90°	QI
Tensile Strength MPa	150	125
Young's Modulus GPa	75.8	54.0
Shear Modulus GPa	6.87	23.8
Poisson's Ratio	0.272	0.345

ここで σ は試験片平行部の平均応力、 ξ は $2a/W$ である。

(3) 四点曲げ(SENB)試験 破壊靱性値に予き裂長さ依存性がないことを確認するため、予き裂長さ比 a/W を0.4, 0.5および0.6の三とおりに変化させた。本試験においても、除荷-負荷を繰返しき裂進展抵抗(R)曲線を式(1)および式(2)を使って求めた。

3. 実験結果

3.1 CT試験 CT除荷負荷試験における荷重-

Fig. 2 Relation between load and crack opening displacement in a CT test of the 0°/90° C/C composite

Fig. 3 R-curve behavior in the CT and the SENB tests

開口変位曲線(P - COD 線図)の代表例を図2に示す。除荷点と再負荷点がほぼ一致するため、繊維などの損傷はほとんどないものと推定された。そこで再負荷曲線の直線部(図中B)により、コンプライアンス曲線を描いた。図2を基に式(1)および式(2)を使って R 曲線を描いた結果を図3に示す。 P - COD 線図で非線形を生じ始める点(図2の矢印)でき裂進展の開始を評価すると、 K_I の初期値は図示のように5ないし6 $\text{MPa}\sqrt{\text{m}}$ となった。この値は予き裂長さに依存せず、積層構成(0°/90°材およびQI材)にも依らなかった。 K_I はき裂進展後急激に上昇し、最大(飽和)値も予き裂長さや積層構成によらずほぼ同一値に収束した。 R 曲線の立上りにCTとSENBで違いが見られるが、これはき裂の安定成長を促すCTと不安定破壊が顕著に現れるSENBの試験片形状の差異によるものと考えられる。

3.2 DEN試験 0°/90°材およびQI材のDEN

(a) 0°/90° laminate

(b) Quasi-isotropic laminate

Fig. 4 Fracture strength in the DEN tests as a function of pre-crack length

試験結果を図4(a)および(b)に示す。図中縦軸は最大荷重を試験片の断面積で割った見かけの応力 (Gross stress) であり、予き裂部分の最小断面積で評価した実断面平均応力 (Net stress) が平滑材の強度に一致する位置を水平な実線で示した。実断面平均応力基準から予想される応力に比べると実験値は、き裂長さが短い場合は高い値を、長い場合には低い値を示すことから、実断面平均応力基準は適用できないことがわかる。なお、比較の対象とした平滑材の強度は30本以上の平均値であり、試験片幅に対する依存性も顕著ではないことを確認した⁽¹⁾。一方、図中の太実線は、臨界応力拡大係数 K_{Ic} を $7.5 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ とし、線形破壊力学基準を適用した結果である。これより、全き裂長さにわたってプロットが $K_{Ic}=7.5 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ の曲線上に乗ることがわかり、C/C への線形破壊力学評価適用の妥当性が推定される。

3.3 SENB 試験 $0^\circ/90^\circ$ 材の P -COD 線図を図5に示す。図5を基に、コンプライアンス法と式(1)および式(2)を使って求めた R 曲線を図3に重ねて示す。SENB 試験の P -COD 線図においては、CT 試験ほどはっきりとした非線形への遷移点は見られなかったが、4.1 節に示す AE 測定法でき裂進展の開始を評価すると K_{Ic} の初期値は、5 ないし $6 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ となった。SENB 試験ではき裂の進展とともに破壊は不安定になる。それに対応して R 曲線は、図3に示す

Fig. 5 Relation between load and crack opening displacement in a SENB test of the $0^\circ/90^\circ$ C/C composite

ようにき裂長さが短いときに上昇するが、その後急激に減少した。この破壊抵抗の減少域は、荷重点の圧縮荷重の影響で現れたものと解釈でき、 R 曲線の上昇域の始め付近のみを有効と判断した。

4. 考 察

4.1 き裂進展開始点の特定 R 曲線挙動を起こす材料系においては、き裂進展開始点を特定し、そのときの破壊靱性値を求めることは極めて重要である。各種の破壊靱性試験において、き裂は最大荷重点に達する前に進展し始めている可能性があり、本研究ではき裂進展開始点を特定する方法として AE 法を用いた。CT 試験と SENB 試験について、AE 計測の結果と荷重-時間 (P -COD) 曲線をそれぞれ図6(a)および(b)に示す。き裂発生点として AE Event の発生率 (Event rate) の立上り点 (図中の網掛け部の時間) を仮定し、この点のき裂進展抵抗値を K 基準で求めると、5 ないし $6 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ が得られた。この値は荷重-き裂

(a) CT test

(b) SENB test

Fig. 6 Relation between a load and crack opening displacement curve (COD) and AE data

開口変位線図の非線形開始点から求めた図3の初期値にほぼ一致している。このことは、既述の破壊靱性評価におけるR曲線の初期値5ないし6 MPa $\sqrt{m}$ の妥当性を示唆するものといえる。

AE信号の立上り時間(Rise time)を信号継続時間(Duration)で割った値をWaveform ratio(W. ratio)⁽⁹⁾と定義すると、図6(a)および(b)に示すように、Event発生率の立上り点はW. ratioが安定する(変動が緩やかになる)点にほぼ一致した。確率的に言えば、W. ratioの安定は、材料の損傷に由来するカウント数が急増し、ノイズに起因する信号数を圧倒した点とも解釈できる。

4.2 Point Stress基準のDEN試験結果への適用

図7に示したようなき裂先端近傍における応力分布において、静的強度を越える応力集中領域は荷重の増加に伴い徐々に広がる。点応力基準(Point Stress criterion)⁽¹⁰⁾は、この静的強度を越えた領域の広がり、材料によって決まる特性距離 d_0 になったときに最終破壊に至るとする仮説である。繊維強化プラスチックに関しては、点応力基準は応力集中源を持つ材料の強度を良く整理できる仮説とみなされている⁽¹⁰⁾。点応力基準の適用結果を図8に示す。図8において、き裂先端半径を考慮した場合の応力分布は、き裂先端をだ円に近似した式(4)⁽⁸⁾で与えた。

$$\frac{\sigma_y(x,0)}{\sigma_{un}} = a \left[2 + \left(\frac{b}{\rho} \right) \left(1 + \frac{x^2}{b^2} \right) \right] / 2 \left[1 + \left(\frac{b}{\rho} \right) \left(1 + \frac{x^2}{b^2} \right) \right]^{3/2} \quad \dots\dots\dots (4)$$

ここで b はリガメント長さの半分、 ρ はき裂先端半径、 a は応力集中係数である。図8より、 d_0 として0.35 mmを仮定すると、点応力基準は図中のすべての実験結果を良く説明することがわかる。破壊時には、特性距離内の荷重方向応力は静的強度を越えてお

(σ_{UN} : Strength for the smooth specimens)

Fig. 7 Illustrative drawing for the point stress

り、 d_0 領域内の材料はなんらかの損傷を受けているはずである。したがって、 d_0 はき裂先端近傍の損傷領域の大きさを表す指標となることがわかる。

d_0 は予き裂長さやリガメント部に比べて小さい。金属の塑性域がこのように小さい場合、Irwinの塑性補正 r_p^* の考え方⁽¹¹⁾が有効である。Irwinは、き裂前縁の塑性域の広がり r_p^* で与えられるとき、応力拡大係数が式(5)で近似できることを示した。

$$K_I = \sigma \sqrt{\pi a^*} F\left(\frac{a^*}{W}\right) = \sigma \sqrt{\pi(a + r_p^*)} F\left(\frac{a + r_p^*}{W}\right) \quad \dots\dots\dots (5)$$

式(5)は塑性領域についての補正であるが、本研究の損傷領域(d_0)でも同様な応力緩和が起こると考えることができ、近似的には式(5)を使って損傷領域の影響を見積もることができよう。そこで、次式を使って

$$r_p^* = 2r_p = \frac{1}{\pi} \left(\frac{K_I}{\sigma_y} \right)^2 \quad \dots\dots\dots (6)$$

損傷領域 r_p^* を見積もると、約0.5 mmが得られ点応力基準の0.35 mmと類似した値が得られる。ここで、

(a) 0°/90° laminate

(b) Quasi isotropic laminate

Fig. 8 Evaluations of DEN test results by the point stress criterion

式(6)の σ_y および K_{Ic} には、平滑材の静強度および臨界応力拡大係数(R 曲線の初期値)を代入した。この0.35 mmあるいは0.5 mmという距離は、クラックの長さやリガメント部分に比べて十分小さいため、式(5)に代入すれば損傷(応力緩和)域が応力拡大係数に及ぼす影響が小さいことは明らかである。実際、図4の実験結果に式(5)を適用した結果を図9に示す。

図中の実線、波線および点線は、それぞれ線形破壊力学、点応力理論およびIrwinの補正の結果を示している。図9から、予き裂長さが長いところでは、 a に対して r_p^* の大きさが無視できるくらい小さく r_p^* の効果は無視でき、また予き裂長さが短いところでもその効果は、実験のばらつきに比べて依然無視できる範囲にあることが確認できる。

以上の結果から、本研究の実験結果においては、損傷領域が十分小さく、線形破壊力学でいうところの小規模降伏相当の状態が起っており、線形破壊力学の基準で破壊を定義できたものと考えられる。以上の結果は、予き裂長さに対してき裂先端半径が十分に小さい部材に対して有効な結果と解釈できよう。

4.3 R 曲線挙動と DEN 試験結果 CT 試験および四点曲げ試験で得られた R 曲線は、初期値が5ないし6 MPa $\sqrt{m}$ と一致したものの、図3に示すように、その後の挙動にばらつきを見せた。これは試験片形状に差異があるため、それぞれに特有の破壊モードが存在するためと考えられる。CT 試験後の予き裂先端部をSEMで観察した結果を図10に示すが、写

真中予き裂先端に大きな引抜けによる穴が観察される。この穴の大きさはほぼ3000フィラメントの炭素繊維束の大きさに一致しており、このことから、 R curve 初期の急激な破壊抵抗の上昇は、予き裂先端部で繊維束による強力なブリッジングが起こったためと解釈できる。この予き裂先端のブリッジング領域は0.5 mm程度で、点応力理論における既述の特性距離 d_0 とほぼ一致する。したがって既述のダメージゾーン内で起こった損傷は、主として繊維束単位のはく離ではないかと推定される。

CT 試験および四点曲げ試験で得られた R 曲線の初期値は5~6 MPa $\sqrt{m}$ であった。一方DEN試験で得られた初期値は $K_{Ic}=7.5$ MPa $\sqrt{m}$ であった。両者の値は異なるが、DEN試験の値は特性距離程度の損傷が起こった後の値であり、図3に示すように、 R 曲線でき裂が特性距離(0.35 mm)程度進展した後の値を見ると $K_{Ic}=7.5$ MPa $\sqrt{m}$ であり、試験相互の矛盾はない。

以上の破壊靱性試験の結果、すべてのデータ間に矛盾はなく、積層タイプのC/C複合材料に関しては、破壊靱性値が破壊の有効なクライテリオンになっていることがわかる。

4.4 強度上昇の機構 DEN試験において、き裂長さが極めて短い試験片では、実断面(き裂部の最小断面積)で整理した強度が平滑材強度を上回る現象が観察された。これは、一見不思議な現象のように考えられるが、以下のように説明できるものと思われる。

C/Cの平滑材強度が、強化繊維強度から例えば複合則を予想されるものに比べて著しく低い⁽¹²⁾ことは周知のことである。一般にこの低強度は、C/Cの破壊が

Fig. 9 Application of the Irwin's rectification for small scale damage zones to the results of the DEN tests

Fig. 10 SEM micro-photograph of a fracture surface by the CT test

低破断ひずみのマトリックスの破壊に支配されているためと考えられている⁽¹³⁾。例えば本研究のC/Cでは、強化繊維の破断ひずみは0.6%であるが、C/Cのそれは0.2%である。マトリックスの拘束がC/C中で強化繊維の保有強度を十分に発揮させることを妨げているのであれば、なんらかの理由でマトリックスおよび界面が破壊し、マトリックスの拘束が解放されれば、繊維強度がより有効に生かし得る状況が出現する可能性は高いものと考えられよう。本研究の場合には、応力集中点近傍の損傷領域内では、上述のようなマトリックスの拘束の解放が部分的に起こって強度が上昇し、その損傷(強度上昇)領域がリガメントの大部分を占めるようになったために図示のような高強度が観察されたものと推定される。

5. 結 言

さまざまな形状を持つ試験片を用いて破壊試験を行い、C/C複合材料の破壊のクライテリオンについて考察した結果、以下のことが確認された。

(1) 切欠長さが切欠先端半径に比べて大きい場合、C/C複合材料はノッチ感性性を示し、破壊は線形破壊力学基準に支配される。

(2) 線形破壊力学が適用できるのは、き裂先端の損傷領域が0.35 mmと小さく、金属材料という小規模降伏に相当するためと推定された。

(3) き裂先端損傷領域の広がり、約0.35 mmで、炭素繊維束の寸法とほぼ一致した。

(4) AE法を用い、Event rateとWaveform Ratioに着目して材料固有のき裂進展開始点を特定す

ることができた。

(5) 供試C/C材の破壊靱性値は5から6 MPa√mであった。

文 献

- (1) Kogo, Y., Hatta, H., Kawada, H. and Machida, T., Effect of Stress Concentration on Tensile Fracture Behavior of Carbon-Carbon Composites, *J. Compos. Mater.*, in contribution.
- (2) Heredia, F. E., Spearing, S. M., Mackin, T. J., He, M. Y., Evans, A. G., Mosher, P. and Brondsted, P., Notch Effects in Carbon Matrix Composites, *J. Am. Ceram. Soc.*, **77-11** (1994), 2817-2827.
- (3) Cady, C., Heredia, F. E. and Evans, A. G., In-Plane Mechanical Properties of Several Ceramic-Matrix Composites, *J. Am. Ceram. Soc.*, **78-8** (1995), 2065-2078.
- (4) Evans, A. G. and Zok, F. W., Review: The physics and mechanical of fibre-reinforced brittle matrix composites, *J. Mater. Sci.*, **29** (1994), 3857-3896.
- (5) 向後保雄・八田博志・大蔵明光, 東京工芸大学工学部紀要, **17** (1994), 50-58.
- (6) 中沢一・小林英男, 固体の強度, (1976), 52, 共立出版.
- (7) 福田博・高雄善裕・影山和郎, 高性能複合材料の実験的評価, (1990), 146, 古今書院.
- (8) 岡村弘之, 線形破壊力学入門, (1976), 29, 培風館.
- (9) NF ELECTRONIC INSTRUMENT MUSIC ソフト取扱説明書.
- (10) Whitney, J. M. and Nuismer, R. J., Stress Fracture Criteria for Laminated Composites Containing Stress Concentration, *J. Comp. Mater.*, **8** (1974), 253-265.
- (11) 例えば, 國尾武・中沢一・林郁彦・岡村弘之, 破壊力学実験法, (1988), 63-67, 朝倉書店.
- (12) 新エネルギー・産業技術総合開発機構, 平成四年度調査報告書, NEDO-ITK-9209.
- (13) Fitzer, E. and Huttner, W., Structure and strength of carbon/carbon composites, *J. Phys. D : Appl. Phys.*, **14** (1981), 347-371.