HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	高剛性・超低密度炭素繊維/アルミニウム合金複合材料の製造研究
Author(s)	三島, 良直; 三浦, 誠司; 鈴木, 朝夫
Citation	日本航空宇宙学会誌, 42(489), 605-609 https://doi.org/10.2322/jjsass1969.42.605
Issue Date	1994-10-05
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/75273
Rights	著作権は日本航空宇宙学会に所属する
Type	journal article
File Information	J. Jpn Soc. Aero. Space Sci. 42(489) 605.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

一特　　集一

FMPT実験結果の概要

高剛性・超低密度炭素繊維/アルミニウム合金複合材料の製造研究*1

三島良直*2・三浦誠司*2
鈴木朝夫*2,3

Key Words: Microgravity, Composite, Aluminum Alloy, Carbon Fiber, Spaceshuttle

1. はじめに

宇宙空間の微小重力環境を利用して，地上では作成不可能な複合材料を製造することを目的として本実験を実施した．すなわち，合金を被覆した高剛性無機繊維の短繊維の集合体を被覆合金の融点以上に加熱・保持した後，冷却して合金を凝固させることによって短繊維間の結合を得て，なおかつ空隙を多く含み，したがって非常に軽い複合体を作ることが目的である．この実験を微小重力下で行う理由は，短繊維を3次元的にランダムに配列させることと，それらの表面に被覆した合金が溶解したときにその比重が無機繊維に比べて大きいことから重力下では重力方向に流れ，沈殿してしまうためである．シャトル実験に用いた試料は，直径8 μmの炭素繊維にAl-1 at%In合金を選択し，アルゴン雰囲気でイオンプレーティングによって，0.2～1 μm厚程度炭素繊維表面に被覆した後，約0.5 mm程の短繊維に切断し，石英管中に真空封入したものである．これを電気炉内でアルミニウム合金の融点（およそ670°C）以上である700°Cに加熱し，被覆層をいったん溶融した後冷却することにより短繊維間に結合が生じ，結果として空隙を多量に含む超低密度複合材料の作製が可能であると判断して微小重力実験を行ったのでその概要を述べる．

著者紹介



三島　良直（非会員）
昭和24年生．東京都出身．昭和48年東京工業大学工学部金属工学科卒業．昭和54年米国カリフォルニア大学バークレー校材料科学専攻博士課程修了　同校Assistant Research Engineer，東京工業大学精密工学研究所助手を経て，現在同助教授．Ph. D，工学博士．金属間化合物の物性研究等に従事．日本金属学会，日本鉄鋼協会，日本熱処理技術協会評議員．



三浦　誠司（非会員）
昭和38年生．東京都出身．昭和60年東京工業大学工学部金属工学科卒業．昭和62年東京工業大学総合理工学研究科材料科学専攻修士課程修了　同年東京工業大学精密工学研究所助手．博士（工学）．金属間化合物の物性研究等に従事．日本金属学会，日本鉄鋼協会．



鈴木　朝夫（非会員）
昭和7年生．千葉県出身．昭和30年東京工業大学理工学部金属工学科卒業．同年東京工業大学精密工学研究所助手，同助教授，同教授，工学部金属工学科教授を経て，現在北海道大学工学部金属工学科教授．東京工業大学名誉教授，工学博士．金属間化合物の物性研究等に従事．日本金属学会理事，日本熱処理技術協会理事．

2. シミュレーション実験[1)]

本実験で作製することを目的とする複合材料の概念と，このときに微小重力が果たす役割を明らかにすることを目的としてまずシミュレーション実験について示すこととする．

シミュレーションには素材として炭素繊維の代わりにナイロン線（釣り糸，直径約0.8 mm），繊維に対する被覆材としてワックスを用いた．はじめに，ナイロン線を80°C程度で溶かしたワックス浴の中をゆっくりとくぐらせることにより約0.2 mm厚のワックス被覆層を得た．このナイロン線を5 mm程度の長さに切ったものを試料として，これをパイレックスガラス製

*1 平成6年6月13日原稿受理　Fabrication of Ultra-Low Density, High Stiffness Carbon Fiber/Aluminum Alloy Composite on the Space Shuttle, SL-J
*2 東京工業大学精密工学研究所　Yoshinao MISHIMA, Seiji MIURA and Tomoo SUZUKI
*3 現在：北海道大学工学部金属工学科

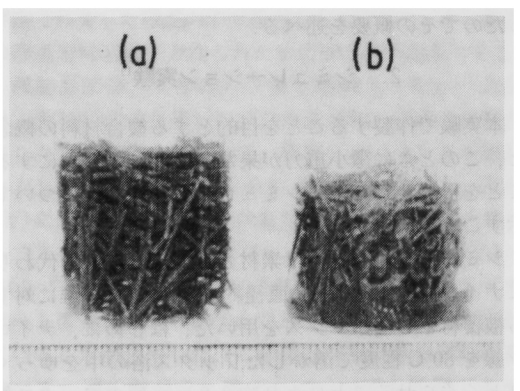
の容器2個に等量ずつ入れた．ワックスを被覆したナイロン線の比重は1より大きいため水とアルコールを混ぜて比重をこれと同じにした溶液を用意し，一つの容器をこれで満たし，他方の容器は水で満たした後，これらをワックスの融点以上の約80°Cの恒温槽中で加熱した．すなわち，前者においては微小重力下での素材の加熱がシミュレートでき，後者は重力下の比較実験となる．

容器から取り出した加熱後の試料の外観を第1図に示す．ここで(a)が微小重力下をシミュレートしたもので，(b)が重力下の結果である．いずれの場合も試料全体を加熱し，ワックスの融点以上に保持すると，ナイロン線はそのままワックスのみが溶融する．これを冷却するとワッススが固化し，このときナイロン線どうし接触している部分が結合する．この過程において，微小重力下と重力下で異なるのは次の2点であることが予測できる．

（1）重力下では加熱前の短線素材自体が2次元的に積層した状態となるのに対して微小重力下では3次元的にランダムに配向する．

（2）重力下では加熱によるワックスの溶融時にナイロン線より比重の大きいワックスが重力方向に流れ，沈殿するためナイロン線間の結合に寄与しない．

実際，第1図の(a)，(b)を比較すると，同量の試料の高さの相違から(1)が，またその外観から直接(2)が具現化していることがわかる．FMPTにおける実験では，ナイロン線のかわりに炭素繊維，ワックスのかわりにAl合金を用いて炭素短繊維集合体が3次元的にランダムに配向し，なおかつそれら繊維どうしの接触点でアルミニウム合金によって結合した多孔質複合材料を作製することが目的となる．

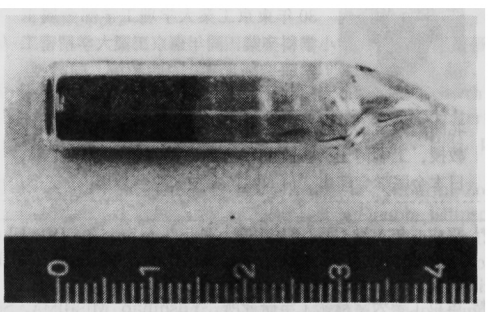


第1図 ワックスを被覆したナイロン線を用いたシミュレーション実験結果（aが微小重力下のシミュレーション）

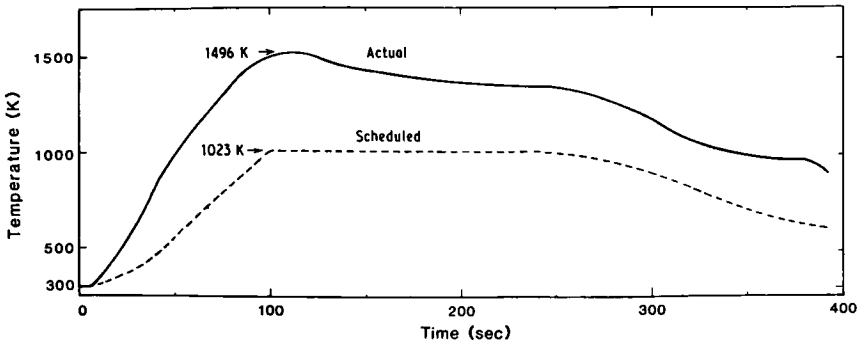
3. 予備実験

3.1 炭素繊維との適合性に優れたアルミニウム合金の開発[2] 本実験を行うにあたり，まず問題となったのは炭素繊維と純アルミニウムの濡れ性が非常に悪いことである．すなわち，炭素繊維に被覆したアルミニウムが溶融時に液滴状となり，有効に短繊維間の結合に寄与しないことになる．被覆金属として他の材料を用いることも考えられるが，複合材料の比重をなるべく小さくし，しかも結合点の強度も十分であるようにするためにはアルミニウムが最適である．したがって，予備実験としてアルミニウムを合金化することでこの濡れ性の問題の克服を図った．アルミニウムの2元状態図をいくつかのタイプに分類し，それぞれについて数種の元素を添加量を変えて合金化した．それらを炭素繊維にイオンプレーティングにより蒸着した後石英管に真空封入し，被覆相を加熱溶融後冷却したものの走査電子顕微鏡による表面観察を行うことにより，Pb，Tl，Inなどの低融点金属の微量添加がアルミニウムの炭素繊維に対する濡れ性を著しく改善することを見いだすに至った．

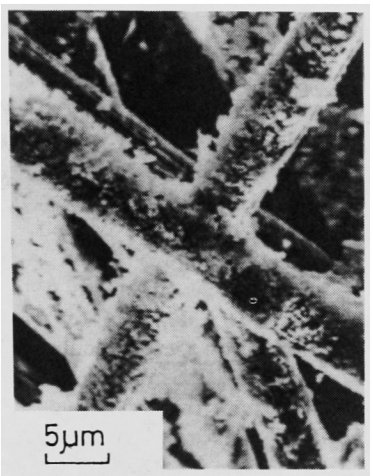
3.2 TT-500型ロケットによる予備実験[1] 本実験についてはTT-500型13号機ロケットを用いた予備実験が1983年8月に行われた．試料は高弾性炭素繊維（直径8 μm）に先に述べた予備実験で開発した炭素繊維との濡れ性に優れる合金のうち，Al-1 at%Tlをイオンプレーティングにより約1 μm蒸着した後，長さ約0.5 mm程度に切断したものを内径10 mmの透明石英管内に高さ15 mm程度となるように充填し，試料短繊維の集合体がロケットの打ち上げ時などに飛散しないようにするためにやはり石英製の押さえを管の内側に溶接により取り付けた後，真空封入した．試料の外観を第2図に示す．この石英カプセルはグラファイト製の容器に納められ，TT-500型ロケットの慣性飛行中に得られる約7分間の微小重力条件の間に加



第2図 TT-500型ロケットを用いた予備実験に使用した試料の外観



第3図　予備実験における試料加熱・冷却プロファイルの計画と実際



第4図　回収後の試料の走査型電子顕微鏡観察

熱，冷却されて無事回収された．

第3図に微小重力が得られる約7分間の試料加熱冷却曲線の計画（点線）と実際（実線）を示す　アルミニウム合金の融点は約670°Cであるため，加熱・保持温度はこれより高い750°C(1023 K)を予定した．しかし，図からわかるように実際には試料が1223°C (1496 K) まで加熱されたことが判明した．先にも述べたように炭素繊維とアルミニウムの間には炭化物反応があり，これにより475°C以上で界面にAl_4C_3が生成して繊維径の減少が起こるため，極力この反応を抑制する必要がある．また，この反応は約1000°C以上では非常に起こりやすくなることが報告されていることから，本実験におけるオーバーヒートにより繊維に相当の損傷があったと推察される．

石英カプセルを割って取り出した試料は充填したときの寸法のまま固化しており，炭素繊維とAl-1 at% Tl合金からなる複合材料が得られた．第4図には複合材料の構造を走査型電子顕微鏡により観察した結果を示すが，炭素繊維の表面は明らかに炭化物反応の進行により荒れているものの繊維間の結合は得られているのがわかる．

4．塔載実験装置とSL-J上での実験経過ならびに結果

4.1　実験装置の概要　本実験には連続加熱型電気炉（Continuous Heating Furance: CHF）が用いられた．CHFは，炉制御装置と炉本体からなり，複数個の試料の連続加熱溶融実験に供される．炉本体は炉体，配管系組立，真空マニホールド，塔載構造などからなる真空炉である．加熱冷却等の制御及び温度計測等は連続炉制御装置により行われる．

CHF本体は，炉体内に加熱室，冷却室各々2個を有し，これらは外部のモーターにより駆動されて移動及び回転動作を行う．試料カートリッジは真空チャンバー前面の挿入ポートより挿入されるが，このポートは計4個あり，各々が互いに90度の角度を持って配置されており，その位置に加熱室及び冷却室は回転・移動後停止する．この状態で冷却室の来ている挿入ポートのカートリッジを交換することができる．加熱室で加熱されているカートリッジ内の試料が溶融すると，制御装置の指令により駆動部が作動し，加熱室，冷却室が後退し90度回転後，前進して，加熱室が新しく挿入されたカートリッジの上に，冷却室は加熱されたカートリッジの上に来る．

カートリッジが変わっても加熱室の電源を切らないので，試料の加熱処理時間を大幅に短縮することができる．冷却室はカートリッジを周囲から取り囲む水冷等となっており，内部にヘリウムガスを吹き込んで伝熱を良くすることにより試料の急冷が可能である．

4.2　実験の経過ならびに結果

4.2.1　実験の進行状況　平成4年(1992年)9月12

日打上げ後，打ち上げ時から経過時間で0日の12：19にPSによりCHFの起動手順が開始され，引き続き本実験は0日13：13頃に開始し，0日の15：20頃終了した．すなわち，SL-Jによる一連のFMPT実験の冒頭に行われたものである．

CHFの作動は移動，回転，バルブ開閉等も正常であり，タイムシーケンス通り実行された．炉内真空度はCHF最初の加熱のため，10^{-2}～10^{-3} Torr台であった．加熱冷却制御は正常であり，プログラム通り実行された．また，試料交換等のPS操作も支障なく実行され，試料6本の実験が問題なく行われた．

4.2.2 科学的成果 回収した試料の構造，繊維間の結合状態などについて主として走査型電子顕微鏡による観察を行った．さらに，ミニインストロン試験機により圧縮試験を行って，得られた複合材料の機械的特性の評価を行った．その結果から，今後改良すべき実験的因子についての検討を行った．

回収した試料6本のうち試料番号CHF-33について試料ホルダーから取り出す前を第5図に，その先端部のタンタル製試料室から取り出した石英カプセル(第2図とほぼ同じ寸法)を第6図(上)に，そしてカプセルを破壊して取り出した複合材料を第6図(下)に示す．すべて実験が良好に行われたことを裏付ける外観であった．

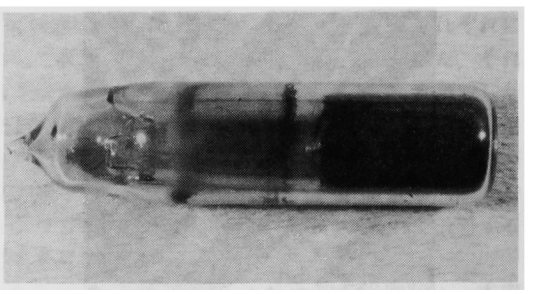
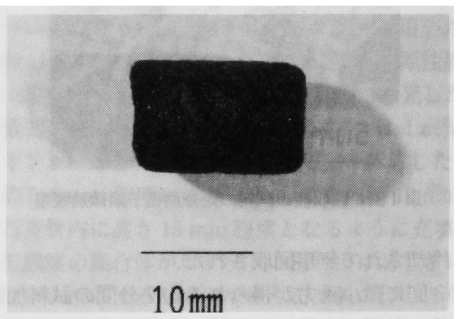
第7図は得られた複合材料の微細構造の走査型電子顕微鏡観察結果であり，短繊維がほぼランダムに配向し，繊維間で結合することにより，バルク材が得られたことがわかる．第8図は繊維間の結合の様子を，より高倍で観察したものであり，これをTT-500型ロケットによる予備実験の結果である第4図と比べると明らかに繊維間結合は良好である．作成した複合材料の密度は試料によって異なるが，概ねアルミニウムの密度の十分の一以下であり，今回提案した手法により空隙を多量に含む低密度複合材料の作成が可能であることを明らかにできたと結論できる．

予想と異なった点は，短繊維の配向が完全に3次元的なランダムなものではなく，比較的2次元的に積層した状態に近かったことと，溶融したアルミニウム合金が局所的に凝集し，その部分で繊維表面を均一に覆っていないために繊維間結合に寄与していない部分が認められたことであった．第9図にはそのような溶融アルミニウム合金が凝集し固化した部分の走査型電子顕微鏡写真を2例示す．これらの原因としては，試料の短繊維集合体がカプセル中で飛散しないようにするために封入する石英管内にとりつけた押さえが試料を若干圧縮していたこと，また溶融したアルミニウムの粘性，さらに炭素繊維との濡れ性が予想より低かったことが考えられる．

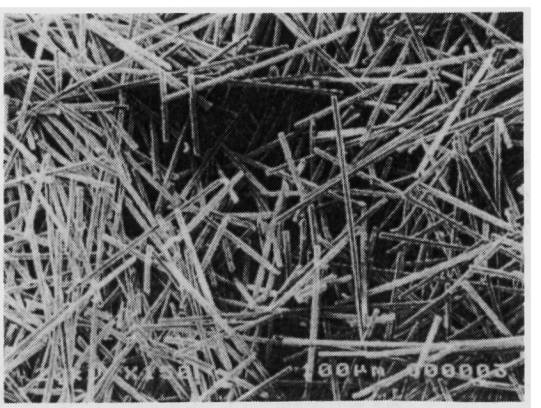
圧縮試験により求めた複合材料の強度ならびに剛性

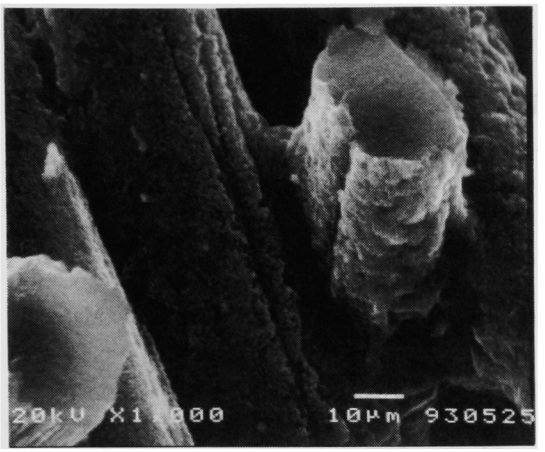


第5図 連続加熱型電気炉に挿入するサンプルホルダー

第6図 回収後の試料の外観．(上) サンプル (下) カプセルから取り出した複合材料


第7図 複合材料の微細構造（走査型電子顕微鏡観察）



第8図　複合材料中の短繊維間の結合（走査型電子顕微鏡観察）



第9図　複合材料中の溶融アルミニウム合金の凝集の走査型電子顕微鏡観察

については期待より低く，これは上に述べた繊維の配向が十分に3次元的にでなかったことと，さらに重要なこととしては溶融アルミニウム合金の局所的凝集により繊維間結合が起こらなかった箇所が分散しているため，それらが構造的な欠陥として強度低下の原因となっているためと考えられる．

5. 今後の課題と指針

今後の課題として，短繊維集合体の石英管への封入方法の検討，適正な炭素繊維/アルミニウム合金間の濡れ性が得られる加熱温度の選択，融液の凝集の起こり易さと溶融後の保持時間の関係についての検討等を行うことにより，複合材料の強度特性の向上を図ることができるであろう

以上述べてきたように，宇宙構造用に用いることが期待される複合材料の製造実験を計画し，いくつかの予備実験の後にスペースシャトルSL-Jによる微小重力実験に至り，実験としては大成功のうちに終わることができた．得られた複合材料では，強度的に満足のいく性能を得ることはかなわなかったが，目的とする構造が得られる目途がつき，素材の選択や実験方法には間違いがなかったと結論できたのは幸いであった．重要な実験結果として，繊維の3次元的配向を高めるための工夫と，均一な繊維間結合を得るための実験条件に関する多くの知見が得られたことは非常に意義が深く，今後の宇宙空間における材料研究の展開で必ずや，今回の経験を活かすことができると確信する．

参考文献

1) Mishima, Y., Hori, M., Suzuki, T. and Umekawa, S.: Fabrication of Carbon Fiber/Aluminum Composite under Microgravity, J. Mater. Sci., **21** (1986), pp. 2763-2766.
2) Kimura, Y., Mishima, Y., Umekawa, S. and Suzuki, T.: Compatibility between Carbon Fiber and Binary Aluminium Alloys, J. Mater. Sci., **19** (1984), pp. 3107-3114.