プレパックプレス加圧法における加圧力のシラスバルーン-Al-12% Si 合金複合材材質におよぼす影響*

長田 純夫**・今川 耕治**・北原 晃**
秋山 茂**・上野 英俊**・徳広祐之輔**

Effect of applied pressure on the Shirasu Balloon-Al-12% Si alloy composites produced by the pre-pack press pressure method.*

UDC 669.715:782+549.514.5:539.4:621.74.04

NAGATA Sumio**, IMAGAWA Koji**, KITAHARA Akira** AKIYAMA Shigeru**,
UENO Hidetoshi** and TOKUHIRO Yunosuke**

The Shirasu Balloon, developed by Kyushu Government Industrial Research Institute and produced from acidic volcanic ejecta and having a form of glassy hollow microsphere, has been used to produce Shirasu Balloon-Al composite by the pre-pack pressure casting method. Although it has many favourable properties such as light and heat resisting, heat insulating, and shock absorbing properties, this composite has less favourable mechanical properties. In the present study, effects of applied pressure in the pre-pack casting on the density and the mechanical properties of the composite have been examined. The main results obtained are as follows:

- (1) The larger applied pressure produces the better mechanical properties and the larger density.
- (2) The density of the composite is directly related to the strength of the Shirasu Balloons under the hydraulic pressure.
- (3) The impact strength is less sensitive to the applied pressure than the tensile and the transverse strength.
- (4) The maximum specific mechanical strength is obtained when 60 kg/cm² is applied for the composite with 150~297 μ balloons, 40 kg/cm² for the with 297~420 μ balloons and 20 kg/cm² for the with 420~590 μ balloons.
- (5) The production of lighter and stronger composites requires the application of enough pressure to fill all the gap between the balloons with molten metal and the use of the strong balloons which can endure the high pressure to be required.

(Received April. 3, 1973)

1. 緒 言

著者らは、先に、ガラス質微細中空球いわゆるシラスバルーンとAlを初めとする低融点金属との複合材を製造した¹⁾。この複合材は比重が基地金属の半以下になり、耐熱性および断熱性に富み、衝撃吸収性にも優れているので、今後、新しい工業材料としての利用面が期待される。

一般に複合材の製造方法として、古くから溶液浸透法があるが、シラスバルーン-金属系複合材を得るには、一種の溶液浸透法であるプレパックプレス加圧法²⁾が最も

実用性に富んでいることを著者らは経験した。そこで、本実験においては、基地金属として Al-12% Si 合金を用い、プレパックプレス加圧法で本複合材を製造するとき、加圧力の複合材比重および機械的性質におよぼす影響を検討した。

2. 実験方法

複合素材として、金属には市販の Al-12%Si 合金を、シラスバルーンには鹿児島県古江産のシラスから製造された粒径 150~297 μ , 297 μ ~420 μ , および 420~590 μ の三種の大きさのシラスバルーンを用いた。

* 軽金属学会第42回春期大会 (47-5) に発表した。第一報

** 九州工業技術試験所 (佐賀県鳥栖市) Government Industrial Research Institute, Kyushu. (Tosu, Saga-ken)

Fig. 1 Apparatus used for making samples.

A: fixed table B: mold C: heater D: upper ram E: lower ram F: carbon discs G: load cell H: sample I: insulator J: cooling water

Fig. 1 に試料作製に要した50トン油圧プレスの一部を描いた。プレス中央の固定テーブル(A)には直径 100 mm, 高さ 200 mm の空間を持つ金型(B)が設置され, この金型の周囲には棒状ヒータ(C)が埋められて金型を予熱する。固定テーブルの上下には独立して作動するスライドテーブルを有し, 上方ラム(D)は加圧用として, 下方ラム(E)は金型底面用として用いられた。

まず, 下方ラムでスライドテーブルを固定テーブルに押し付け, 直径 100 mm, 高さ 40 mm の炭素円板(F)を金型内に装入する。次いで, 所定のシスラパルーン約400ccを型内に注ぎ, 直径 100 mm, 網目 420μ のステンレス網をその上部に載せる。ヒータで金型および内部のシスラパルーンが 300°C になるまで加熱した後, 別の電気炉で溶解された Al-12% Si 合金を 750°C で注入し, 所定の加圧力, 加圧速度でパンチを押した。溶湯は加圧開始後約15秒で凝固完了することが予備実験の結果明らかになっているので, 加圧保持時間は30秒とした。試料と金型, および金型とパンチ間の焼付防止のため, 金型内面にはりん片状黒鉛を塗布し, 加圧は黒鉛製パンチを介して行なった。

加圧力は約 8 kg/cm^2 から約 540 kg/cm^2 までの間を適当に選択採用し, その測定はパンチ上部に取りつけたロードセル(G)で総荷重を試料ごとに測定して算出した。

加圧速度 (パンチ下降速度) は 50 mm/sec に固定した。

このようにして得られる直径 100 mm, 高さ約 50 mm

Fig. 2 Shapes and dimensions of test pieces.

A: impact test pieces.

B: tension test piece

C: transverse test piece

の試料を円板状に三等分し, 中段の円板から **Fig. 2**にしたがって衝撃試片, 引張り試片, および抗折試片をそれぞれ切り出し, 各強度試験を行なった。強度試験後の各試片から比重測定試片を切り出し, 比重測定に供した。

3. 実験結果

3. 1 加圧力と比重の関係

同一円板から得られた3個の試片の比重の平均値をその円板の比重とした。**Fig. 3**はその結果を示す。比重は

(a) Middle part of the sample. (b) Bottom part of the sample.

Fig. 3 Variations of specific gravity with the applied pressure.

(a) Applied pressure; 8 kg/cm², fraction of fractured Shirasu Balloons; 4.8%. (b) Applied pressure; 28 kg/cm², fraction of fractured Shirasu Balloons; 42.2%. (c) Applied pressure; 540 kg/cm², fraction of fractured Shirasu Balloons; 100%.

Photo 1 Structural variations of the composite with the increase of the applied pressure. ($\times 20$)

加圧力の増加と共に上昇するが、これはシラスバルーンが破壊するためであることは容易に想像される。したがって、複合材の比重はシラスバルーンの破壊情況、換言すればシラスバルーン自身の耐圧強度と密接な関係がある。シラスバルーン粒径が小さいほど耐圧強度が大きく、破壊する量も少ないので、Fig. 3 でも粒径の小さいシラスバルーンを使用した複合材ほど、同一加圧力においては、比重が小さいことを示している。

今一つ加圧力と比重の関係で特徴的なのは、各曲線に変曲部が見られることである。このことについては 4.2 で考察する。

Photo 1 は加圧力によって変化する複合材組織の代表

Fig. 4 Variation of tensile strength with the applied pressure.

例である。加圧力の増加とともにシラスバルーンの破壊量も増え、破壊されたシラスバルーン内部には溶湯が浸入している。このようにシラスバルーンは破壊後も原形をほぼ維持しているのは興味深い。Photo 1 に併記されている破壊率は、試片内の 6 mm $\times$ 9 mm の面積に含まれる約 400 個のシラスバルーンを観察し、破壊しているシラスバルーンの全体に対する割合を測定して得られたものである。

3. 2 加圧力と引張強さの関係

加圧力の増加とともに複合材の比重が増大したように引張り強さも同じような傾向で増加することを Fig. 4 は示している。しかし、シラスバルーン粒径による引張り強さの差はほとんど見られない。シラスバルーンは粒径が小さいほど耐圧強度が大きく、複合材強度には好結果をもたらす。一方、粒径が大きくなると、それ自身の耐圧強度は小さくなるが、複合材の比重を増大させ、やは

Fig. 5 Variation of transverse strength with the applied pressure.

り複合材強度を増す効果がある。つまり、粒径の大小にかかわらず引張り強さは加圧力の増加とともに増大していく。

Fig. 4 には加圧力に対する比強度の変化を併記した。比強度曲線はいずれも極大値を持ち、この点はFig. 3 の変曲部とほぼ一致する。この現象は強度の面から見た本複合材の最適加圧力を見出すための目安となるものである。150~297 μ のシラスパルーンを用いた複合材に対しては約 60 kg/cm², 297~420 μ のそれに対しては約 40 kg/cm², 420~590 μ のそれに対しては約 20 kg/cm² の各加圧力が最適であると判定される。

3. 3 加圧力と抗折強度の関係

Fig. 5 は加圧力と Fig. 2 に示される抗折試片を 50 mm の支点間距離で抗折試験を行なったときの破断荷重の関係を示す。破断荷重に加圧力に対してほぼ直線的に変化し、シラスパルーン粒径による差もほとんど認められない。したがって、Fig. 5 は一本の直線で、加圧力と抗折破断荷重の関係を表示した。併記されている比抗折破断荷重曲線はやはり極大値を持ち、その時の加圧力は Fig. 4 の場合と一致する。

3. 4 加圧力と衝撃値の関係

Fig. 6 は加圧力による複合材衝撃値の変化を示す。引張り強さおよび抗折力に加圧力に対して鋭敏に変化するのに対し、衝撃値はかなり鈍感である。すなわち、加圧力 10 kg/cm² における引張り強さ、抗折破断荷重、および衝撃値の各値を 100 としたとき、加圧力 500 kg/cm² におけるそれぞれの強度指数は、引張り強さ 600、抗折破断荷重 400、衝撃値 170 である。Fig. 6 に併記された比衝撃値曲線は Fig. 4 および Fig. 5 が極大値を示した加圧力で最大値をとっている。

さらに Fig. 6 はシラスパルーン粒径の大きいほど衝撃値は高くなっていることを示している。衝撃値は一般に材料の靱性と密接な関係にある。本複合材の靱性を示

Fig. 6 Variation of impact value with the applied pressure.

す一基準として抗折試験におけるたわみ量を測定した。その結果を Fig. 7 に掲げる。加圧力 20 kg/cm² 以下では明らかに粒径の大きい複合材ほどたわみ量も大きく靱性に富むことを示している。また、加圧力とともにたわみ量は減少する傾向にあり、これが複合材の衝撃値を加圧力が増してもそれほど増大させない大きな原因でもある。

4. 1 考 察

4. 1 加圧力増加に伴う強度上昇について

加圧力増加に伴い複合材強度が上昇する現象を、粒径 297~420 μ のシラスパルーンを含む複合材を例に取り、金属組織的に検討した。

Photo 2, Photo 3, および Photo 4 は加圧力 8 kg/cm², および 540 kg/cm² で作製された試料の引張破断面を肉眼、光学顕微鏡、および走査型顕微鏡で観察した結果である。

Photo 3 は破断面を真横から観察した場合で、破断面は紙面に垂直になっている。Photo 3 (a) から明らかに、加圧力が低い場合の二次元的に見た破断線はか

Fig. 7 Relation between the applied pressure and deflection in the transverse test.

(a) Applied pressure; 8 kg/cm²
(b) Applied pressure; 540 kg/cm²

Photo 2 Macrostructures of fractured surfaces. ($\times 2$)

(a) Applied pressure; 8 kg/cm² (b) Applied pressure; 540 kg/cm²

Photo 3 Observations of the same specimen in Photo 2 from the parallel direction to the fractured surface. ($\times 50$)

(a) Applied pressure; 8 kg/cm

(b) Applied pressure; 540 kg/cm

Photo 4 Stereoscan micrographs of the same specimen in photo 2. ($\times 150$)

なり入りくんでいる。このことは破断線が複合材の最弱部を優先して伝ったことを暗示する。複合材の最弱部は内在する果やき裂などの空隙部であろう。Photo 4 (a)はこのような空隙部がシラスバルーン間隙に確かに存在していることを示している。このような空隙部の強度は無に等しく、破断線が伝わるのに最も都合がよい。

一方、加圧力が高い場合はこのかような空隙部が存在しないので、Photo 3 (b) が示すように破断線ははるかなになめらかなものとなる。Photo 4 (b) はシラスバルーン間隙がほぼ完全に溶湯で埋められ、加圧力が高くなると強度が上昇する現象をよく説明している。

以上の検討により、本複合材をより軽くより強くするためには、シラスバルーン間隙を溶湯で十分満たしうだけの加圧力と、その加圧力で破壊しないだけの耐圧強度を有する強力なシラスバルーンが必要である。シラス

バルーン間隙を溶湯で満たすための圧力については次節で触れる。

4. 2 比重曲線の形状について

Fig. 3 の比重曲線は変曲部を有し、実験誤差とも考えられないので考察を加えた。

本複合材の比重がシラスバルーンの破壊情況と密接な関係にあることは 3.1 で示した通りであるが、さらに詳しく検討するために、粒径 $297 \sim 420 \mu$ のシラスバルーンを含む複合材を例に取り、その比重と含まれているシラスバルーンの破壊率の関係調べた。その結果、Fig. 8 が示すように両者はほぼ直線的な関係にあることが実証された。ちなみに相関係数は 0.978 で、直線の回帰式は、

$$y = 1.43x + 0.99 \quad (1)$$

x : 破壊率, y : 比重

と計算された。

そこで、Fig. 3 の縦軸を(1)式の関係にしたがつて破壊率に置換すると、加圧力-比重-破壊率の相互関係を同一図に描くことができ、Fig. 9 が得られる。圧力の大小にかかわらずシラスバルーンの破壊率と複合材比重はよく一致している。

このようにシラスバルーン破壊率で複合材比重が決まるならば、比重曲線の変曲部を検討するにはシラスバルーン耐圧強度と複合材比重の関係を検討する必要がある。

Fig. 10 は本実験で用いた三種のシラスバルーンの耐圧強度分布を示すヒストグラムである。耐圧強度は小型圧力容器にシラスバルーンおよび水を充満し、窒素ガスにより所定の圧力を加えた後、破壊沈降したシラスバルーンの全体に対する割合で表示した。Fig. 10 は横軸が対数目盛であるから、シラスバルーンの耐圧強度は対数正規分布をするとみなしてよい。したがって、圧力に対する水中破壊率の累積分布曲線は傾斜したS字形を取るはずである。**Fig. 11** の黒丸印を結ぶ曲線がこれに相当する。

複合材の比重がシラスバルーンの破壊率だけで決まる

Fig. 8 Variation of specific gravity of samples with fractured Shirasu Balloon fraction.

Fig. 9 Relation between the applied pressure and specific gravity and fractured Shirasu Balloon fraction.

理想状態なら Fig. 11 の水中破壊率曲線は理想比重曲線でもある。つまり、Fig. 9 と同じように Fig. 11 の縦軸に比重と破壊率を同時に目盛ることができる。ただし、破壊率0および1を比重1.16および2.64に対応させたことについては説明の便宜上次節で述べる。

Fig. 11 には Fig. 3 の 297~420 μ のシラスバルーンを含む複合材の比重曲線を併記した。これにより、実際の比重と理想比重との差が明らかになる。両者を比較すると次の3点が注目される。(1)加圧力 25 kg/cm² 以上では実測値が理想値より低いが、両者の増加の仕方は似たような傾向にある。(2)加圧 25 kg/cm² 力以下では、両者の変化の仕方に明らかに差があり、圧力が低いほど実測値は理想値から離れていく。

(1)は、シラスバルーン破壊率から理想比重を計算するとき、破壊したシラスバルーン内には完全に溶湯が浸入していると仮定したのに対し実際の試料では破壊したシラスバルーン内にも条件に応じて多少の空間が残っているためと解釈される。

(2)に対して次のように考えられる。加圧力の低い場合実際の試料では Photo 4 (a) にも見られるようにシラスバルーン集合体間隙が完全に溶湯で満たされていない。

Fig. 10 Histograms of Shirasu Balloon strength under hydraulic pressure.

Fig. 11 Comparison of specific gravity of the samples with calculated one.

いったん溶湯で完全に満たされても凝固収縮を押しつぶすだけの圧力は作用していない。このような空隙部が実測値を理想値から遠ざける。

実測比重曲線が理想比重曲線に重なり、かつ両曲線の曲率が同符号となる約 25 kg/cm^2 以上の加圧力で、シラスバルーン集合体間隙は十分に溶湯で満たされると想像される。上記の論理を Fig. 3 の他の二本の曲線に当てはめれば、 $150 \sim 297 \mu$ のシラスバルーンを含む複合材に対しては約 35 kg/cm^2 が、 $420 \sim 590 \mu$ のシラスバルーンを含む複合材に対しては約 15 kg/cm^2 がシラスバルーン集合体間隙を十分に溶湯で満たすための臨界圧とみなすことができる。複合材の諸比強度がそれぞれの臨界圧よりも若干高い圧力で極大または最大となるのも理解される。

4.3 複合材の理想比重について

シラスバルーンと基地金属の混合比および個々の複合素材の比重が与えられれば、複合材の理想比重は簡単に計算される。

$297 \sim 420 \mu$ のシラスバルーンを含む複合材の顕微鏡組織を線分析することにより、シラスバルーンと基地金属の体積混合比を測定すると、信頼度95%で 63.5 ± 3.5 : 36.5 ± 3.5 であった。この粒径のシラスバルーンの比重は0.30、Al-12%Si合金の比重は2.66なので、溶湯で完全に満たされたシラスバルーンの見掛け比重は2.63となる。ここで1個のシラスバルーンの気孔率を木村らの「半径 r のシラスが発泡すると半径 $2r$ のシラスバルーンになる」という報告³⁾に基づいて⁷⁾として計算した。

そこで破壊率 x の複合材の理想比重 γ_i は

$$\gamma_i = 0.3(0.635 \pm 0.035)(1-x) + 2.63(0.635 \pm 0.035)x + 2.66(0.365 \pm 0.035)$$

$$\therefore 1.56x + 1.08 \leq \gamma_i \leq 1.40x + 1.24 \quad (2)$$

となる。Fig. 11 において水中破壊率0および1に対する理想比重は上記(2)式の平均値から、1.16および2.64と

求められる。

5. 結 言

シラスバルーン-Al-12%Si合金系複合材をブレパックプレス加圧法で製造するときの複合材材質におよぼす加圧力の影響を検討し、次の結果を得た。

- (1) 加圧力の増加とともに複合材の比重および機械的性質は上昇する。特に、比重はシラスバルーンの耐圧強度と密接な関係がある。
- (2) 複合材の衝撃値は引張り強さおよび抗折強度に比べて加圧力の影響が少なく、またシラスバルーン粒径の大きい複合材ほど高い値を示した。
- (3) 比強度が最大または極大になるような加圧力が存在し、その加圧力は粒径 $150 \sim 297 \mu$ のシラスバルーンを含む複合材に対し約 60 kg/kg/cm^2 、 $297 \sim 420 \mu$ のそれに対し約 40 kg/cm^2 、 $420 \sim 590 \mu$ のそれに対し約 20 kg/cm^2 であった。
- (4) より軽く、より強い複合材を得るにはシラスバルーン集合体間隙を十分に溶湯で埋めつくすだけの加圧力と、その加圧力に耐えうる強力なシラスバルーンが必要である。
- (5) シラスバルーンの耐圧強度は対数正規分布するとみなしてよい。

終りに本研究を遂行するにあたり、終始適切な助言をいただいた九州工業技術試験所長、本田英昌博士に厚大な謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) 本田、徳広、北原、秋山、上野：たとえば金属、(1971, 6, 15), **58**.
- 2) 今川、長田、北原、秋山、上野、徳広：軽金属、**23** (1973), 282
- 3) 木村、陣内、諫山：窯業協会誌、**80** (1972), 84.