研究論文

高温押出時の塑性流動が $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al}$ 複合材料の 繊維配向性および繊維長に及ぼす影響

奥宮 正洋*・恒川 好樹*
新美 格*・尾崎 勤**

Effect of plastic flow during hot extrusion on alignment
and length of fibers in $\delta\text{-Al}_2\text{O}_3/\text{Al}$ composites

Masahiro OKUMIYA*, Yoshiki TSUNEKAWA*
Itaru NIIMI* and Tsutomu OZAKI**

$\delta\text{-Al}_2\text{O}_3/\text{Al}$ composites were fabricated by high pressure infiltration and extruded at high temperatures. The plastic flow in extruded matrices is classified into two types, namely a laminar flow in the surface region and a turbulent flow in the core. The wider the laminar flow region, the better the fiber alignment obtained. The laminar flow region extends at lower V_f and lower extruding temperatures. Surface defects, fir-tree-type cracks, easily grow at high V_f . The $\delta\text{-Al}_2\text{O}_3/\text{Al}$ alloy has tensile strength twice as much as that the matrix alloy extruded in the same way.

Keyword: FRM, alignment, fiber length, plastic flow, hot extrusion

(Received July 28, 1986)

1. 緒 言

最近、複合材料は多方面で注目されており、なかでも繊維強化金属基複合材料（以下 FRM と呼ぶ）は工業製品への応用の開発過程にある。FRM の特性としては、比強度、比剛性、高温強度等があげられ、軽量化等の要求と一致し、我国でも自動車産業を始めとして、実際の部品に応用され始めている^{1),2)}。

FRM の強度は、繊維体積率 (V_f)、繊維配向性、繊維とマトリックス金属の界面状態の 3 項目に大きく影響される³⁾。繊維強化複合材料において高い強化効率を得るためには、強化繊維が負荷応力の方向と一致する配向性を持つ必要性があり⁴⁾、そのため、連続繊維強化複合材料においては、あらかじめ繊維を人為的に配向させなければならないという製造上不利な面が生じてくる。

一方、不連続繊維強化複合材料においては、強化繊維が配向性を持っていないプリフォーム材に、押出し^{5),6),7)}、圧延^{6),8)}等の 2 次加工を施し、成形と同時にマトリックス金属の塑性流動を利用し、比較的容易に 1 次

元、あるいは 2 次元の繊維配向を持たせることが可能である。繊維が 1 次元配向している不連続繊維による強化の場合、繊維のアスペクト比： l/d_f (l : 繊維長, d_f : 繊維径) が臨界アスペクト比： l_c/d_f (l_c : 臨界繊維長) 以上であれば、大きな強化効率を期待することができる。

本研究では、加圧溶浸して作製したプリフォーム材に、2 次加工として高温押出しを用い、プリフォーム材作製条件および押出条件と、強度に影響を与える要因である繊維長、繊維配向性、押出後の表面亀裂発生との関係を調査し、更に、高温押出しによつて繊維長が変化すること、繊維配向角が向上することをマトリックス金属の塑性流動との関係から説明することを試みた。

2. 供試材および実験方法

2.1 供試材

マトリックス金属には押出性が良好な Al-Mg-Si 合金 (JIS 6063 合金) を用い、強化繊維には溶融マトリックス金属と複合化を行う温度で劣化せず、溶融マトリックス金属と反応を起こさず、化学的にも安定であり、か

* 豊田工業大学工学部 (名古屋市)。Faculty of Engineering, Toyota Technological Institute (Nagoya).

** アイシン精機(株) (刈谷市)。AISIN SEIKI Co., Ltd. (Kariya).

Table 1 Chemical composition of fiber and matrix

Fiber							
Al ₂ O ₃	SiO ₂	Fe	Cr	Ni	Na	Mg	Ca
96~97	3~4	0.040	0.060	0.014	0.0875	0.013	0.052

Matrix								
Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Al
0.40	0.20	0.037	0.014	0.52	0.017	0.035	0.015	bal

つ SiO₂ を少量含むことによつて、熔融 Al 合金との濡れ性が高い⁹⁾ δ -Al₂O₃ 系の前駆体繊維化法¹⁰⁾によつて作製された繊維径 3 μ m の比較的細いものを選んだ。繊維径の細いことは、1)マトリックス金属との界面が増加する、2) 1本の繊維の破断に伴うエネルギー解放が少ない¹¹⁾等の長所がある。供試繊維とマトリックス金属の、化学組成を Table 1 に示す。

2.2 実験方法

強化繊維とマトリックス合金との複合化は加圧溶浸法を用い、Fig. 1 に示すオートクレーブ装置で行つた。

強化繊維は、1 mm 長に切断したものおよび無切断のもの 2 種類を用い、これを、目標 V_f (10, 20, 30, 35%) に応じてアルミナライトのつぼ中に充填し、成形体とした。 V_f 10%については指圧でるつぼに充填することが可能であつたが、 V_f 20%以上のものに関しては指圧で充填することが不可能であつたので、次のような 2 通りの方法を用いて充填を行つた。第一の方法は、少量ずつの繊維をハンドプレスを使用し目標 V_f に達するまで強制的に充填する方法であり、第二の方法は、るつぼ中に繊維が均一に充填されるよう、第一の方法でるつぼ中に充填された繊維の成形体を一度取り出しアセトン溶液中で分散し、再度るつぼへ流し込み、沈殿、乾燥する方法である。

第一の繊維充填方法を用いた場合は、加圧溶浸を次のように行つた。繊維の充填されたるつぼをオートクレーブ中のマトリックス金属溶解用アルミナるつぼ内へ装入し、オートクレーブ中の Al 合金を 730°C に加熱溶解し、20 分間保持した。次に、Ar ガスを用いオートクレーブ中の圧力を毎秒 5 kgf/cm² の割合で増加させ、最終的に 50 kgf/cm² とし、繊維成形体中へ Al 溶湯を溶浸させた。また、第 2 の繊維充填方法である沈殿乾燥法を用いた場合は、繊維成形体中に空気が残る鑄造欠陥になることを防止するために、Al 合金溶解前にオートクレーブ中を油回転ポンプで減圧した。

複合化されたるつぼを取り出し凝固させる際、引け巣が発生し内部欠陥となることを防止するため、下方からの一方向性凝固をさせた。

Fig. 1 Liquid metal infiltration apparatus using inert gas pressure. **Fig. 2** The construction of the hot extrusion machine.

ビレットを、直径 20 mm、長さ 30 mm に旋削後、Fig. 2 に示す縦型油圧式押出装置のコンテナに装入し、目標温度に加熱して、20 分間保持した後、高温押出しを行つた。ここで、押出速度および押出比は予備実験によつて長い繊維長が得られた押出速度 0.4 mm/s、押出比 4 の条件を用いた。

押出ダイスは、円錐ダイスの円錐部からストレート部に移るコーナー部を取り除き、押出材料がダイス内を流動する際の繊維折損を減少させるよう改良した無段角ダイスを用いた。更に押出材がダイス面と接する部分を少なくするためにダイスにバックリーフ部を設けた。ダイスの内側は研磨を行い、また、押出時にはダイスに潤滑剤を塗布した。

なお、押出温度の下限値はコンテナの強度から 560°C とし、上限温度はマトリックス金属が半溶融状態になり、液相が多く現われ、加熱時もしくは押出時にビレットからマトリックス金属のみが溶出分離して押出不可能となる 655°C とした。

繊維長は、強化繊維をマトリックス金属中から抽出し

た後、走査型電子顕微鏡 (SEM) 写真を用い測定した。繊維配向角は押出材断面の光学顕微鏡 (OM) 写真を用い、繊維と押出軸との傾きを配向角として測定した。

押出後の試験片のうち、表面欠陥のないものについては引張試験による強度評価も行つた。試験片形状は平行部長 20 mm、直径 10 mm とし、引張試験時のクロスヘッド速度は 1 mm/min とした。

3. 実験結果および考察

3.1 プリフォーム材の繊維充填状態および繊維長

3.1.1 繊維充填時の繊維長変化および充填方式による充填状態の違い

供試繊維を切断し 1 mm 長にそろえることを試みたが、切断後の繊維長を実測すると 50 μm から 1 mm 以上の範囲に分布しており、平均繊維長は約 550 μm であった。また、切断した繊維をるつぼへ充填する段階で繊維の折損が起こるため、平均繊維長は V_f ごとに異なり、指圧によつて充填された V_f 10% のものでは 270 μm 、ハンドプレスを用いて充填した V_f 20%、30% のものではそれぞれ 95 μm 、88 μm と、 V_f の上昇に伴つて繊維は短くなつていく。

一度るつぼ中に充填した繊維を取り出しアセトン中で分散させ再度充填する方法を用いると、るつぼに繊維を均一に充填することが可能となり、すべての V_f において加圧溶浸後に内部欠陥の存在しないものが作製可能となつた。よつて以後は、この繊維充填方法を用いた。

3.1.2 加圧溶浸時における繊維長変化

加圧溶浸時にも繊維折損は起こり、繊維充填後に比べて、更に繊維長は短くなる。ここで、加圧溶浸時の加圧速度と繊維長について調査すると、急激に 50 kgf/cm² まで加圧した場合、 V_f 10% で繊維長は約 60 μm と繊維充填時の約 1/4 以下であつたが、加圧速度を毎秒 5 kgf/cm² とすると、繊維の折損は少なくなり、 V_f 10% で 183 μm と充填時の 2/3、 V_f 20%、30% では充填後とほとんど変わらない繊維長を保持することが可能となつた。

また、るつぼへ 1 mm 長に切断した繊維を充填した場合と、無切断状態のままですつぼに充填した場合の、加圧溶浸後の繊維長および繊維長分布に違いは見られなかつた。よつて、以後の実験は無切断状態のままですつぼに充填した後、一度取り出しアセトン中で分散し再度るつぼ中に充填する方法を用いた。

3.2 押出温度、 V_f による押出材の流動状態

3.2.1 押出温度が流動性に与える影響

V_f と押出温度を変化させた場合の、押出材の流動状態の変化を Fig. 3 に示す。ここで、押出材中の流動状態を大別すると、ダイス壁面近傍のダイス壁面にそつて流れる層流流動と押出材中心部の乱流流動に分け

Fig. 3 Longitudinal cross-section of an $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al}$ billet extruded at 1:4 extrusion ratio (As polished).
(A) $V_f=20\%$, Extrusion Temperature = 580°C
(B) $V_f=20\%$, Extrusion Temperature = 600°C
(C) $V_f=20\%$, Extrusion Temperature = 620°C
(D) $V_f=30\%$, Extrusion Temperature = 580°C.

られる。

マトリックス金属の変形抵抗が高い低温側の押出しでは、押出材中心部とダイス壁面近傍の流動速度は相対的に近づき、Fig. 3(A) に示すようなダイス壁面近傍を流れる層流状態域の広い流動状態となる。

押出温度を上昇させると Fig. 3(B) に示すように中心部の乱流状態域が増加し、更に押出温度が上昇すると、Fig. 3(C) に示すように、乱流状態域が広がる。これは、押出温度を上昇させるとマトリックス金属の変形抵抗が低下し流動性が向上するため、コンテナおよびダイス壁面より摩擦力を受けるダイス壁面近傍流動よりも、押出材中心部流動の方が極端に速くなり、ダイス壁面近傍の押出軸に平行な層流状態域は減少し、押出材中心部を流れる乱流状態域が増加するためである。

3.2.2 V_f が流動性に与える影響

押出温度 580°C、 V_f 20% の条件で押出しを行つた Fig. 3(A) と、押出温度が同じで、 V_f を 30% と上昇させ押出しを行つた Fig. 3(D) を比較すると、高 V_f ほど、繊維がマトリックス金属の流動抵抗となつて流動性は低下するため、押出材のコンテナおよびダイス壁面から受ける摩擦力が上昇し、ダイス壁面近傍の流動は遅くなる。よつて押出材中心部とダイス壁面近傍の流動差が大きくなり、Fig. 3(D) に示す層流状態域の狭い流動状態になる。この押出材中の流動状態は、後述する繊維配向角並びに繊維長に大きな影響を与えるものである。

3.3 押出温度と V_f の表面亀裂発生に与える影響

押出しの際、押出材表面に亀裂が発生し易く、製品の強度に悪影響を及ぼすが、本研究においても、表面亀裂の発生する押出条件が認められた。押出比4, 押出速度0.4 mm/sで、押出温度と V_f について表面欠陥が発生する範囲を Fig. 4 に示す。 V_f を変化させた場合、表面亀裂の発生温度範囲は、 V_f の上昇に伴い狭くなり、 V_f 35% になると、すべての押出温度において表面亀裂の発生が見られた。表面亀裂の発生箇所はダイスアプローチ部からベアリング部へ移る付近であり、発生原因は、押出時にコンテナおよびダイス壁面と材料の間に摩擦が起り、この摩擦によつて材料は押出方向とは逆方向の引張力を受けるためである。

3.4 V_f と押出温度による繊維配向性変化

押出材を、中心部 (Center), 中間部 (Intermediate), 表面部 (Surface) の、半径方向に三等分し、各位置における繊維配向角が V_f と押出温度によつてどのように変化するかを Fig. 5 に示す。各 V_f とも表面部の配向性が優れており、押出温度が低いほど、かつ、 V_f が低いほど配向性は良好である。押出温度が低い場合、マトリックス金属の流動性は低下し、中心部と壁面部近傍の流速が近づき、繊維に配向性を持たせる層流状態域が中間部の方に広がり中間部の繊維配向性が高められる。また、低 V_f の場合、マトリックス金属がコンテナおよびダイス壁面より受ける摩擦力が減少しダイス壁面近傍と押出材中心部との流速が近づき、押出温度が低い場合と同様、層流状態域が広がり、中間部、更には中心部の繊維配向も高められた。 V_f 30% の場合、配向角が押出温度に余り影響を受けていないのは、 V_f が極端に高い場合、繊維間の相互作用が大きくなり、マトリックス金属の流動性が向上しても繊維の流動は影響を受け難いためである。

3.5 押出材繊維長

3.5.1 押出後の平均繊維長

マトリックス金属に繊維を複合化させ押出しを行う際に繊維折損が起こるが、これは繊維が流動するマトリックス金属から主として曲げ応力を受けるためである。押出温度による押出後の繊維長の変化を、各 V_f について測定し、その結果を Fig. 6 に示す。各 V_f とも押出温度が上昇するにつれて繊維長は長くなっており、特に、590°C から600°C に押出温度を上昇させた際の繊維長変化は大きい。

更に、 V_f 30% のピレットにおいて、押出温度を560°C から600°C まで上昇させると繊維長は長くなるが、押出温度620°C 以上では、それ以上繊維長は長くはならない。この現象を説明するために、マトリックス金属の示差熱分析および高温における比熱測定を行つたが、

Fig. 4 Influence of extrusion temperature and V_f on surface cracking.

Fig. 5 Variation of each part fiber orientation with extrusion temperature.

Fig. 6 Variation of fiber length with extrusion temperature.

621°C でマトリックス金属に液相が現われ始め、吸熱現象が始まり、比熱も変化を始めた。吸熱現象は659°C に終わっており、621°C から659°C の温度域においてマトリックス金属は液相と固相とが同時に存在する半溶融状態になっていることがわかった。よつて、押出温度が

620°C以上になると、マトリックス金属が半溶融状態域に達し液相が出現し始め、マトリックス金属から繊維が受ける応力が低下し、繊維の折損が少なくなるとともに、半溶融状態域で押出しを行つた場合、マトリックス金属の流動性が向上するため押出力は低下し、マトリックス金属から繊維に加わる力が減少することからも、繊維長が長くなる。

低 V_f のピレットほど流動性に優れるため、繊維のマトリックス金属から受ける曲げ応力が小さくなり、繊維長は長くなる。

3.5.2 押出材位置による繊維長

V_f 10%, 押出温度580°Cの押出材の各位置の繊維長は、中心部が最も短く、中心部から中間部へ向かうに従い長くなり、中間部において最も長い繊維長が得られた。表面部は中間部に比べ繊維長は若干短くなる。この傾向はダイス内での繊維配向角並びにマトリックス金属がダイスから受ける応力によつて説明できる。すなわち表面部ではダイス壁面から受ける応力は最も大きい、繊維配向が押出軸と平行に近い、繊維はマトリックス金属から曲げ応力を受け難く、比較的長い繊維が得られる。一方、中間部においては、表面部に比べて繊維配向は劣るものの、ダイス壁面から受ける応力は減少するため、最も長い繊維が得られる。また、ダイスから受ける応力が最も少ない押出材中心部では、マトリックス金属から繊維にかかる応力は少ないが、繊維配向はほとんど認められず、繊維には最も曲げ応力が加わり易い状態になっており、短い繊維が分布する。

押出温度580°C、600°Cにおける各位置の繊維長分布の傾向をみると、600°C押出しでは、押出材中心部と中間部、表面部との繊維長差は縮まっており、更には、 V_f が増加するにつれて、押出材中間部と表面部との繊維長差が縮まってくる傾向が見られた。これは、押出温度が580°Cの場合、マトリックス金属から繊維に加わる力は大きく、中心部の繊維は折れ易くなるが、ダイス壁面部を流れる押出軸に平行な層流状態域は、600°Cで押出した場合よりも広くなり、表面部から中間部へかけての繊維配向が向上し、かつ、繊維は折れ難くなるためである。

高 V_f のものほど、繊維がマトリックス金属の流動抵抗となるため、ダイス壁面部の流れは遅くなり、逆にダイス中心部の流動が速くなる。よつて、ダイス壁面部を流れる層流状態は減少し、低 V_f の押出しに比べ、中間部の繊維配向は劣り、中間部での繊維折損につながる。

3.6 引張試験結果

押出温度が上昇すると、繊維長は長くなり強度的にはプラスの要因となるが、配向性は低下し強度的にはマイナスの要因となる。この2つの相反する要因のうちど

Fig. 7 Variation of tensile strength with V_f .

らが引張強度に強い影響を与えるかを知るため、 V_f を10%一定とし、押出温度を580、600°Cの2条件とし引張試験片の作製を行い、比較実験を行つた結果、繊維長が長い600°C押出材の方が高い値を示した。しかし、580、600°C押出材表面部の繊維配向性はほとんど差がないため、繊維配向性と繊維長のどちらが大きく引張強度に影響を及ぼすかは決定はし難い。

また、 V_f を変化させて引張試験を行つた場合、マトリックス金属は延性に富む材料であるにも拘わらず、 V_f 10%ではほとんど延性を失つており、 V_f 20%, 30%では完全な脆性材料となつた。各 V_f における引張強度をFig. 7に示す。これによると、引張強度はマトリックス金属のみの場合 20.5 kgf/mm²であるのに対し、例えば、 V_f 30%では 42.1 kgf/mm²となり、105%の高い強化効率を示した。

破面のSEM観察を行つたが、繊維の抜けはほとんど見られず、また、EPMAを用いて繊維とマトリックスの界面について観察した結果、反応相はほとんど観察されなかつた。破面は、マトリックス金属が延びディンプル状となり、そのディンプル中心に破断した繊維が存在するという形態であつた。これと、引張試験で得られた、FRMが脆性材料となつている結果より、破壊は繊維のうち最も弱いものが破断した後、直ちに亀裂が伝播し、材料全体が瞬時に破断すると言える。

複合材料の引張強度に及ぼす影響として、繊維長、繊維配向角、繊維とマトリックス金属との界面強度があり、また、引張強度に及ぼす要因として、製造上の内部欠陥、繊維の押出材内部での分散状態、押出温度に左右される表面亀裂等があり、高い強化効率を目的とする複合材料を製造する場合にはこれらのマイナス要因を最初に除く必要がある。

4. 結 言

高温押出時の塑性流動が $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Al}$ 複合材料の繊維配向性、繊維長、表面亀裂発生および引張強度に及ぼす影響について調査し次のような結論を得た。

- (1) 繊維折損は、加圧溶浸時の加圧速度を遅くすることにより大幅に防止できる。
- (2) 高温押出時に表面亀裂の発生しない押出温度範囲は、 V_f の上昇に伴い狭くなり、 $V_f 35\%$ では、全押出温度で表面亀裂の発生が見られた。表面亀裂発生防止には、最適押出温度の選択、コンテナおよびダイス面と材料の良好な潤滑が必要である。
- (3) 押出材中心部は繊維配向性をほとんど持たないが、表面部は良好な繊維配向性を持つ。押出温度と V_f は繊維配向性に影響を及ぼし、低押出温度、低 V_f の場合に、高い配向性が得られる。
- (4) 押出温度と V_f は押出材の繊維長にも影響を与え、高押出温度、低 V_f の場合に押出力が少なくなり、繊維長の長い FRM が得られる。また、押出材中心部、中間部、表面部と分けて繊維長を測定した結果、中間部および表面部が比較的長い繊維長となつている。
- (5) 押出材の塑性流動は、押出材表面部の押出軸と平行な層流状流動と、中心部の乱流状流動に分けられ、流動状態は、 V_f と押出温度に大きく影響される。押出材表面の層流状態が厚い場合は、繊維配向性は良好で、繊維長も比較的長い。

(6) 繊維とマトリックス金属の密着性は良好で、かつ界面に反応相はほとんど存在せず、引張強度は、繊維長が長くなるほど高くなつている。なお、高 V_f のものほど脆性材料の特性を示す。

終わりに、本実験におけるマトリックス金属の示差熱分析および高温における比熱測定にしてお世話になつた豊田工業大学小林清志教授並びに研究室のみなさまに心から感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) T. Donomoto, K. Funatani, N. Miura and N. Miyake: *SAE Tech. Paper Series* No. 830252 (1983).
- 2) 林直善, 伴恵介, 桜井久之: 日本金属学会報, vol. 25, No. 6 (1986), 565.
- 3) 大蔵明光: 複合材料 (1984) p. 24, 東京大学出版会.
- 4) 例えば, Y. Abe, S. Horikiri, K. Fujimura and E. Ichiki: *4th Int. Conf. Composite Mater.* (1982), 1427.
- 5) W. L. Phillips: *2nd Int. Conf. Composite Mater.*, (1978), 567.
- 6) A. P. Divecha, S. G. Fishman and S. D. Karmarkar: *J. Met.* Vol. 33, No. 9 (1981), 12.
- 7) D. F. Hasson, S. M. Hoover and C. R. Crowe: *J. Mater. Sci.* 20 (1985), 4147.
- 8) D. L. McDanel: *Met. Trans.* 16A (1985), 1105.
- 9) M. G. Bader, T. W. Clyne, G. R. Cappleman and P. A. Hubert: *Composites Science* 23 (1985), 287.
- 10) 阿部康明: 日本複合材料学会誌 6 (1980) 3.
- 11) 香川豊: 複合材料 (1984) p. 172, 東京大学出版会.