特 集 号

研究論文

加圧鋳造法によるアルミニウム基 SiC ウィスカー
強化複合材料の力学的性質吉野 正樹* ・ 岩成 弘美**
新家 光雄*** ・ 小林 俊郎***

Mechanical properties of SiC whisker reinforced aluminum alloys

Masaki YOSHINO*, Hiroyoshi IWANARI**
Mitsuo NIINOMI*** and Toshiro KOBAYASHI***

Microstructures and mechanical properties of silicon carbide whisker (SiCw) reinforced aluminum alloys fabricated by the pressure casting method were investigated. The SiCw reinforced aluminum alloys fabricated under the pressure of 90 MPa are superior to those fabricated under the lower pressure than round 90 MPa in the mechanical properties. The failure of SiCw reinforced aluminum alloys is associated with the failure of SiCw and the interface decohesion between whiskers and matrix. These composites are strengthened by increasing the interface bonding between SiCw and matrix, i.e., the interface cohesion is strengthened by the accelerating the interface reaction. The proper addition of the highly reactive lithium to aluminum matrix makes the interface cohesion tight and results in lower density and greater strength composites.

Keywords: SiC whisker reinforced aluminum alloys, mechanical properties, pressure casting method, Al-Li alloys

(Received May 17, 1988)

1. 緒 言

金属基複合材料では、各種の金属と強化材との組合せが考えられているが、その中でもアルミニウム基複合材料が最も広く研究されているといえよう。これは、アルミニウム基複合材料が比強度および比弾性率等の他にも製造の容易性の点で、より優れた性質を有しているためと考えられる。

現在、金属基複合材料を製造する方法には、粉末冶金法、ホットプレス法あるいは加圧鋳造法などがある。この中でも、加圧鋳造法は、複合化に高い温度を必要とするが、複合化時間が短く、二次加工の必要性が少ないので、生産性に優れた製造法になりうると考えられる¹⁾。

そこで本研究では、加圧鋳造法を用い、製造上重要である加圧力を変化させてアルミニウム基 SiC ウィスカー (SiCw) 強化複合材料を製造し、ミクロ組織および力学的性質などを調べることによって、最適な複合材料の製造条件を検討した。さらに、最適製造条件下で SiC ウィスカーの体積率を変化させた複合材料およびアルミニウムマトリックスにリチウムを添加した複合材料を作製し、これらの諸特性につき検討した。

2. 実験方法

現在では、強化材として、連続繊維よりもプリフォームの作製が容易で二次加工が可能なウィスカーが注目されている。このため、本研究では強化材に Table 1 に

* 豊橋技術科学大学大学院 (豊橋市) [現在: リコー株式会社 (東京都)]. Graduate School of Toyohashi University of Technology (Toyohashi-shi, Aichi) [Present: Ricoh Co. Ltd (Tokyo)].

** 豊橋技術科学大学大学院 (豊橋市). Graduate School of Toyohashi University of Technology (Toyohashi-shi, Aichi).

*** 豊橋技術科学大学生産システム工学系 (豊橋市). Department of Production Systems Eng., Toyohashi University of Technology (Toyohashi-shi, Aichi).

Table 1 Properties of SiC whisker used

Density:	$3.19 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$
Diameter:	$0.1 \sim 1.0 \text{ }\mu\text{m}$
Length:	$30 \sim 100 \text{ }\mu\text{m}$
Tensile strength:	$3 \sim 14 \text{ GPa}$
Elastic modulus:	$400 \sim 700 \text{ GPa}$
Crystal structure:	$\beta\text{-SiC}$
Chemical analysis:	SiC > 98.00 SiO ₂ < 0.1 Ca < 0.05 Co < 0.05 Fe < 0.05

Fig. 1 Schematic drawing of the apparatus used.

その性状を示す SiC ウィスカーを使用し²⁾, マトリックスに純度99.99%の純アルミニウムを使用した。Fig. 1 に示す実験装置を用い, 金型内であらかじめ SiC ウィスカーを厚さ15 mm のプリフォームに成形後, 800°C の純アルミニウム溶湯を金型温度550°C でプリフォーム (温度450°C) 上に流入させ, 3 分間加圧保持後, 鋳造試験料を取り出し水冷した。また, 同様にアルミニウム-リチウム基 SiC ウィスカー強化複合材料も作製した。

これらの試料の力学的性質を調べるために, マイクロビッカース硬さ試験 (荷重50 g), Fig. 2 に示す各試験片を用いての引張試験および動的破壊靱性試験を行った。引張試験は, インストロン型試験機を用い, クロスヘッド速度0.5 mm/min で行った。一方, 動的破壊靱性試験は, $a_0/W=0.55$ (a_0 : 初期き裂長さ, W : 試験片幅) になるように試験片に疲労予き裂を導入し, 容量14.7 J の計装化シャルピー衝撃試験機を用いて, 衝撃速度1.13 m/sec, 付加エネルギー容量1.26 J の条件で衝撃試験を行い, 最近当研究室で開発した CAI システム³⁾を用いて動的弾塑性破壊靱性値 (J_d) を算出した。

また, 各試料を研磨後, 5% HF 水溶液によって化学

Fig. 2 Geometry of specimens. (a) Tensile specimen. (b) Fatigue cracked Charpy specimen for dynamic fracture toughness test.

腐食した後, 光学顕微鏡によるマイクロ組織観察を行った。引張および動的破壊靱性試験後の破面については, 走査型電子顕微鏡により観察した。さらに, ウィスカーとマトリックス界面につき, SEM を用いた EDX 分析および Auger 電子分光分析装置を用いて元素分析を行うと共に, X 線回折装置によりターゲットに Cu, フィルターに Ni を用いて試験組織を構成する各相の変化を広領域にわたって同定した。

3. 実験結果および考察

3.1 力学的性質に及ぼす加圧力の影響

Fig. 3 に本加圧鋳造法により, 加圧力を変化させて製造したアルミニウム基 SiC ウィスカー (以下 Al-SiCw) 複合材料の硬さおよび引張特性を示す。加圧力の増加に伴い, 硬さ, 引張強さおよび0.2%耐力は上昇し, 伸びが低下するのがわかる。Fig. 4 に加圧力に伴う動的破壊靱性値 (J_d 値) の変化を示す。 J_d 値は加圧力の増加に

Fig. 3 Tensile properties and Vickers hardness as a function of pressure in Al-20%SiCw composites (0.2%Y.S.: 0.2% proof stress, U.T.S.: ultimate tensile strength).

Fig. 4 Dynamic fracture toughness (J_d) as a function of pressure in Al-20%SiCw composites, and typical load deflection curve at each pressure cast Al-20%SiCw composites. (a) 32 MPa, (b) 132 MPa.

Fig. 5 SEM micrographs of the fracture surfaces of pressure cast Al-20%SiCw composites after tensile test.

- (a) 32 MPa pressure cast
- (b) 62 MPa pressure cast
- (c) 92 MPa pressure cast
- (d) 132 MPa pressure cast

伴って減少する傾向を示している。このことは、このときの荷重-変位曲線の例を示した Fig. 4(a), (b) より明瞭に理解することができる。硬さ、引張強さ、0.2%耐力および動的破壊靱性値のいずれも、加圧力が約90 MPa 付近で一定値へと近づく傾向にある。これは、加圧力が90 MPa 以上になると空孔がほとんど見られなく

Fig. 6 EDX analysis for the whisker-matrix interface of pressure cast Al-20%SiCw composites.

なり、SiC ウィスカーが一様に分布するようになった観察結果と一致している。

Fig. 5 に各試料の引張試験後の破面の観察結果を示す。加圧力の増加に伴い、ウィスカーの引抜け量が減少していくのがわかる。すなわち、高加圧力の試料の方がウィスカーへの応力の伝達が良好になり、引張強さが上昇する。つまり加圧力の増大により、ウィスカーおよびマトリックス間の界面反応が高まり、界面の接着強度が向上したと考えられる。

そこで、ウィスカーおよびマトリックス界面近傍を5%ふっ酸液で化学腐食した検鏡試料について SEM 観察して EDX 分析したところ、ウィスカーよりビーム径中心が約0.2 μm 離れた所(ただしビーム径は約1 μm ある)で Fig. 6 に示す結果が得られた。加圧力の増大に伴い Al のピークに対して、Si のピークが明らかに高くなっているのがわかる。この場合には SiC ウィスカー中からの X 線強度も重量していると考えられるが、その強度はほぼ一定と考えられるので、加圧力の増大に伴って界面反応に伴う Si 量が増加したと思われる。Fig. 7 には、各加圧铸造後の試料を粗研磨およびバフ研磨後、マトリックスおよび界面を含む広領域での X 線回折を行った結果を示す。加圧力の増大に伴って、界面反応相と考えられる Al_4C_3 , (Al, Si), Al_4SiC_4 相などのピークが増大し、その数も多くなっていくのが認められる。(なお、Si 単体の生成も予測されるが、本実験における精度内では明確に把握できなかった)。これより、加圧力の増大に伴う界面反応の活性化が明らかであり、複合材料の強度が界面反応に影響されることがわかる。界面反応層の厚さについては特に同定していないが、詳細は今後検討したい。

3.2 力学的性質に及ぼす SiC ウィスカー体積率の影響

前節の結果より、加圧铸造法による製造加圧条件を約

Fig. 7 X-ray diffraction patterns of the pressure cast Al-20%SiCw composites.

Fig. 8 Change in tensile properties and Vickers hardness of 92 MPa pressure cast Al-SiCw composites with volume fraction of whisker (0.2%Y.S.: 0.2% proof stress, U.T.S.: ultimate tensile strength).

90 MPa (実測値は92 MPa) と定め、SiC ウィスカーの体積率を20~40%と変化させて Al-SiCw 複合材料を作製し、その力学的性質の変化を調べた。

Fig. 8 に各体積率の Al-SiCw 複合材料のビッカース硬さおよび引張特性を示す。SiC ウィスカーの体積率の増加と共に、硬さおよび強度特性が増大し、伸びが減少するのがわかる。Fig. 9 に動的破壊靱性値と SiC ウィスカーの体積率との関係を示す。SiC ウィスカーの体積率の増加に伴い、 J_d 値は減少するが、その減少割合は比較的小さい。

Fig. 9 Change in dynamic fracture toughness (J_d) and tensile strength of 92 MPa pressure cast Al-SiCw composites with volume fraction of whisker.

ところで、複合材料の強化材が短繊維の場合、次式で表される強度の複合則が提出されている⁴⁾。

$$\sigma_c = \beta \sigma_f (1 - l_c / 2\bar{l}) V_f + \sigma_m (1 - V_f) \quad (1)$$

ここで、 σ_c は複合材料の強度、 σ_f は繊維の強度、 l_c は繊維の臨界長さ、 $\bar{l}$ は平均繊維長さ、 V_f は繊維体積率、 σ_m はマトリックスの強度および β は配向係数であり、完全なランダム配向の場合、 β は $1/6$ ⁵⁾、 $1/8$ ⁶⁾、あるいは 0.18 ⁷⁾ などの値が報告されている。そこで、 σ_m の実測値および Table 1 より $\sigma_f = 8.5$ GPa (平均値) を使い、 $\bar{l} = l_c$ 、 $\beta = 1/6$ 、 $1/8$ および 0.18 の場合につき、式(1)を用いて、各 SiC ウィスカーの体積率での σ_c を計算すると、Fig. 9 に示すようになる。同図中に示す本研究で行った加圧鋳造法によって得られた Al-SiCw 複合材料での実測結果は、ウィスカーの体積率の増加に伴い、ほぼ直線的に引張強さ (σ_c に相当する) が上昇する。この実測結果について、 $\sigma_f = 8.5$ GPa、および $\bar{l} = l_c$ として式(1)を用いて β を求めると $\beta = 0.22$ となった。この値は、前述した $\beta = 1/6$ 、 $1/8$ および 0.18 より大きな値となっている。Millière ら⁸⁾ は、鋳造法によって製造した SiC 繊維強化 Al-Si 合金で同様な現象を報告しており、その原因として(1) SiC 繊維の体積率の増加と共に、凝固組織が微細化すること、および(2) SiC 繊維およびマトリックスとの熱膨張係数の差により生じる SiC 繊維-マトリックス界面近傍の残留応力が SiC 繊維の体積率の増加と共に増大することの2点を挙げている。本研究での上記現象の原因もこれと同様であると推定されるが、この点を明らかにするためにはさらに詳細な検討が必要である。しかし、必要な強度を計算によってほぼ予測できると考えられ、本研究の Al-SiCw 複合材料の製造法および製造条件が十分満足しうるものであると判断される。

Fig. 10 に、各試料の動的破壊靱性試験後の破面観察結果を示す。甲羅状ディンプルがいずれの破面にも認められ、各ディンプル中にはウィスカーの端部や断面が観

Fig. 10 SEM micrographs of fracture surfaces of 92 MPa pressure cast Al-SiCw composites with different volume fraction of whisker after dynamic fracture toughness test.

Fig. 11 Fracture mechanism of Al-SiCw composites.

- (a) Void initiation at short whisker end and long whisker fail at critical length.
- (b) Void growth and coalescence at whisker end.
- (c) Interface decohesion at whisker end.
- (d) Al-SiCw composite fracture by coalescence of large voids.

察される。一方、絞りを伴わない小洞、あるいは引抜けたウィスカーも存在している。ウィスカー強化複合材料の破壊には、ウィスカーの応力の伝達が有効に行われ、その結果ウィスカーの破断を生じる場合と、ウィスカーとマトリックスとの界面はく離により、ウィスカーの引抜けを生じる場合とがあると考えられる。Nutt⁹⁾らは、ウィスカー端部、特にコーナーの部分から界面はく離が発生しやすいことを指摘している。これらの点を模式的

に示せば、ウィスカー強化複合材料の破壊は、まず Fig. 11(a)のように、長いウィスカーでは臨界長さの位置でウィスカーの破断が生じ、同時に短いウィスカーの端部でまず界面はく離が発生する。次いで、それらの位置でボイドが発生し、成長 (Fig. 11(b), (c)) 後、連結し、複合材料全体の破壊 (Fig. 11(d)) に至ると考えられる。このため、Fig. 10に示したように、SiC ウィスカーの体積率の増加に伴い、甲羅状ディンプルが小さく、浅くなり、数を増すことが首肯される。一方、ウィスカーの引抜けは、ウィスカーおよびマトリックス間の接着強度が低く、ウィスカーの途中から界面はく離を生じ、その結果一気に引抜けることによって生成されと考えられる。

以上より、ウィスカー強化複合材料の強度の増加には、ウィスカーおよびマトリックス間の接着強度を増大させ、界面はく離を防ぐことが重要であると考えられる。

3.3 力学的性質に及ぼすリチウム添加の影響

アルミニウムおよび SiC ウィスカーの界面接着力を増大させるために、界面反応量をより多くすることが考えられる。マトリックスに反応性の高いマグネシウムやリチウムなどの元素を添加することにより達成できるといわれている¹⁰⁾。また、リチウムの添加では、より大きな密度の低下が期待でき、比強度および比弾性率の増大が同時に期待できる。そこで、アルミニウムマトリックスにリチウムを1.5~4.1 wt%添加し、複合材料を製造した (99.99%アルミニウム溶湯に Ar 雰囲気中で99.99%リチウムを添加と同時にかくはんし、鑄込み温度780°Cおよび加圧力90 MPaで製造)。Fig. 12にリチウム添加に伴う複合材料の引張特性の変化を示す。この場合、鑄造のままおよび T6 処理 (460°Cで30分溶体化処理後急冷し、191°Cで10時間の人工時効) を施した場合の両

Fig. 16 Low energy Auger analysis on whisker-matrix interface and matrix of Al-4.1%Li-20%SiCw composites.

びマトリックス間の全面的な脆性はく離破壊によると思われる形跡が多く認められるようになる。**Fig. 15**に各リチウム量添加 Al-SiCw 複合材料の X 線回折結果を示す。2.7 wt% リチウム添加量以上では、 LiC_{16} のピークが確認できる。**Fig. 16**は、4.1 wt% リチウム添加 Al-SiCw 複合材料のマトリックスおよびマトリックス-SiC ウィスカー界面の Auger 分析結果を示す。マトリックスに比べ、マトリックス-SiC ウィスカー界面でリチウムのピークがより強く検出されており、リチウム地金中およびウィスカー中の共通の不純物元素である Ca のピークが現れている。これより、リチウムの添加と共にマトリックスおよび SiC ウィスカー間に過剰反応が生じ、脆性な炭化物系の相形成が増加し、不純物元素も濃化するものと思われる。このため、ウィスカーへの応力伝達はなされるが、ある応力に達するとウィスカー・マトリックス界面が脆性的にはく離破壊するため、伸びが減少したと思われる。つまり界面反応量にも適正な範囲がある点を示唆する結果となっている。

4. 結 言

本研究では、生産性の高い加圧鑄造法により、アルミニウム基 SiC ウィスカー強化複合材料を製造し、主としてその力学的性質につき検討し、次の結論を得た。

(1) 本研究で用いた加圧鑄造装置では、加圧力を約 90 MPa とした場合に最も良好なアルミニウム基 SiC ウィスカー強化複合材料を製造することができた。この条件下で製造したアルミニウム基 SiC ウィスカー強化複合材料では、SiC ウィスカーの体積率の増加と共に、強度特性が上昇したが、伸びや動的破壊靱性は逆に低下した。

(2) SiC ウィスカー強化複合材料の破壊はウィスカーの破断、ウィスカー端部での界面はく離に起因するボイドの生成、あるいはウィスカーとマトリックス界面ではく離に伴う引抜けによって発生する。さらにリチウムを含む場合には、ウィスカーとマトリックス界面で過剰な反応が起こった場合、脆性相が生成して界面での脆性はく離破壊が起こるようになる。

(3) マトリックスに適正な範囲でリチウムを添加することにより界面反応が促進され、有効に強度特性を向上させることができた。リチウムの添加は、密度の減少をもたらし、比強度および比弾性率の向上が期待できるため、アルミニウム-リチウム基 SiC ウィスカー強化複合材料として将来性が期待できる。

参 考 文 献

- 1) 浅沼 博, 廣橋光治: 金属, **57** (1987), 12, 35.
- 2) 炭化けい素ウィスカー: 東海カーボン株式会社カタログ.
- 3) 小林, 伊藤, 白井: 金属, **57** (1987), 8, 39.
- 4) W. H. Bower and M. G. Bader: *J. Mater. Sci.*, **7** (1972), 1315.
- 5) H. L. Cox: *Brit. J. Appl. Phys.*, **3** (1952), 72.
- 6) H. Fikuda and T. W. Chou: *J. Mater. Sci.*, **17** (1982), 1003.
- 7) J. C. Fisher: General Electric Report (RL-450), (1950).
- 8) C. Millière and M. Suery: *Materials Science and Technology*, **4** (1988), 41.
- 9) S. R. Nutt and J. M. Duva: *Scripta METALLURGICA*, **20** (1986), 1055.
- 10) D. Webster: *Advances in Composite Materials*, **2** (1980), 1165.