研究論文

SiC ウィスカ/AC4A アルミニウム合金複合材料の
高温強度および複合部とマトリクス部の境界強度青柳 成俊*・河原 一郎**
中川 昌也**・小島 陽***High temperature strength and strength of boundary between matrix
part and composite part for SiC whisker/AC4A aluminum alloy compositeNaritoshi AOYAGI*, Ichiro KAWAHARA**
Masaya NAKAGAWA** and Yo KOJIMA***

High temperature strength of SiC whisker reinforced AC4A aluminum alloy composite, and the boundary strength between matrix part and composite part were examined. The composites were fabricated by melting infiltration method using a die-casting machine. High temperature strengths of composite and matrix parts were measured by 3-point bending test at 293 K, 273 K, 473 K, 523 K, 573 K and 623 K under as-cast conditions. The boundary strength was measured by 4-point bending test at room temperature after heat treatments at 293 K, 373 K, 473 K, 573 K and 623 K for 3600 seconds in vacuum. The composite strength up to 473 K is approximately 810 MPa which is equal to 1.5 times of matrix strength, and even when the test temperature is increased to 623 K from 473 K, the composite strength is still held to be more than 500 MPa. Up to a heat treatment temperature of 473 K, the boundary strength, about 480 MPa, is equal to a half of the composite strength and lower than the matrix strength by 25%. When the heat treatment temperature exceeds 473 K, the boundary strength gradually decreases with increasing temperature. Every specimen fails at boundary between matrix and composite parts in bending tests for measuring boundary strength.

Keywords: SiC whisker, aluminum alloy, pressure infiltration technique, high temperature strength, boundary

(Received December 29, 1992)

1. 緒 言

軽金属をマトリクスとした複合材料は中高温構造材料としての適用が期待され、優れた特性の発現とその解明に多くの研究が行われている。近年においては自動車エンジンのシリンダブロックに複合材料を採用するなど¹⁾、一部ではすでに実用化の領域へと進展しつつある。現在アルミニウム合金やマグネシウム合金部品の多くは一般的に鋳造法やダイカスト法で作製されており、複合材料

を採用する場合でもこれらの技術を基本とした優れた生産プロセスが要求され则认为られる。

複合材料を使用する場合の複合化形態を考えると、全体を複合化する場合と特定部分だけを複合化する場合に分けられる。たとえば、従来にはアルミナ繊維で部分的に複合化したインペラーやアルミナ粒子で耐摩環部分を複合化したピストンの開発が報告²⁾されている。このような部分的に複合化した複合材料においては、複合材料自体の特性を調査するとともに、複合化部分とマトリク

* 長岡工業高等専門学校 (長岡市)。Department of Mechanical Engineering, Nagaoka National College of Technology (Nagaoka-shi, Niigata).

** 長岡技術科学大学大学院 (長岡市)。Graduate School, Nagaoka University of Technology (Nagaoka-shi, Niigata).

*** 長岡技術科学大学 (長岡市)。Department of Mechanical Engineering, Nagaoka University of Technology (Nagaoka-shi, Niigata).

Table 1 Chemical composition of AC4A aluminum alloy (mass%)

Cu	Si	Mg	Zn	Fe	Mn	Ni	Pb	Sn	Ti	Al
0.18	9.05	0.50	0.15	0.31	0.44	0.04	0.01	0.01	0.02	bal.

ス部分の境界部の特性を把握することが重要となる。材料内の境界部は機械的・物理的性質の変化する不連続部とみなされ、特に熱膨張係数の違いに起因する内部応力の発生や不均質変形などが問題になるものと考えられる。

本研究では以上のことから、SiC ウィスカ/AC4A アルミニウム合金複合材料を加圧溶浸法で作製し、複合部とマトリクス部の高温強度を個々に調査するとともに、基本的な境界部分の強度を調べるため複合部とマトリクス部の境界の強度（以下、境界強度と略記する）に及ぼす熱処理の影響について検討することを目的とした。

2. 実験方法

2.1 複合材料の製造

マトリクスとなるアルミニウム合金の化学組成と SiC ウィスカの化学組成および特性をそれぞれ **Table 1** および **Table 2** に示す。アルミニウム合金は鑄造用合金として一般的な AC4A 合金を用いた。

複合材料は以下の方法で作製した。最初に均質なウィスカブリフォームを得るために、界面活性剤として一般に使用されているベンゼンスルホン酸ナトリウム水溶液中（約0.43 mass%： $\text{RC}_6\text{H}_4\text{SO}_3\text{Na}$ ）に、受け入れ状態で凝集しているウィスカを投入し、超音波攪拌により分散および攪拌を促進させた。その後413 Kの温度で乾燥し、ふるいに通したのちハンドプレスによりみかけの体積率15%を持つφ22 mmの成形体にした。さらに、この成形体を温度973 K 時間600 sで焼成してブリフォームとした。

一方、アルミニウム合金を電気炉を用いて953 Kで溶解し、Ar ガスバブリングによる脱ガス処理を施して注湯準備を完了させておき、前述の要領で作製したブリフォームをダイカスト機のスリーブ部に取付け、アルミニウム合金を注湯後、通常のダイカスト操作により複合化させた。なお、ブリフォームはダイカスト機で加圧溶浸する直前に473 Kの温度で予熱を施している。

複合化時の溶湯温度、金型温度はそれぞれ1073 K、413 Kとした。またダイカスト条件（加圧溶浸条件）は射出速度0.6 m/s、射出圧力52.3 MPa、圧力保持時間20 sとした。

2.2 試験方法

複合部とマトリクス部の高温強度は高温3点曲げ試験

Table 2 Chemical composition and properties of SiC whisker used

crystal structure	β type	
diameter	0.3~0.6	(μm)
length	5~15	(μm)
aspect ratio	10~40	
density	3.20	(g/cm^3)
apparent density	0.04~0.1	(g/cm^3)
specific surface area	2~4	(m^2/g)
thermal expansion	5.0×10^{-6}	($/^{\circ}\text{C}$)
SiC contents	99	(mass%)
impurities: SiO_2	under 0.5	(mass%)
Ca	0.05	
Co	0.05	
Fe	0.05	
Cr	0.05	
Mg	0.02	
Al	0.08	
cluster	under 1	(mass%)

により評価した。試験片の寸法は幅3 mm、高さ3 mm、長さ15 mmであり支点間距離10 mmとした。なお、3点曲げ試験はas-cast状態（熱処理なし）の試料を用い、試験温度に到達後、600 s保持した後に行った。

一方、境界強度を4点曲げ試験により評価した（境界強度は4点曲げ強さを意味する。以下同様）。なお、比較のため一部マトリクス部と複合部の4点曲げ強さも同時に測定した。4点曲げ試験は境界強度に及ぼす熱処理の影響を調べる目的で、as-cast状態のほかに373 K、473 K、573 K、623 Kの各温度で真空中にて3.6 ks保持後、空冷した試料を評価した。さらに境界強度に及ぼす冷却速度の影響を調べるため、各温度保持後水中へ急冷した試料も評価した。4点曲げ試験片の採取位置を**Fig. 1**に示す。後述するようにウィスカは複合部中で三次元ランダムに存在するため特に採取方向は考慮していない。また、採取したマトリクス部の組織に異方性はないことを確認した。4点曲げ試験片寸法は3点曲げ試験片と同様で、下部スパン長さ12 mm、上部スパン長さ4 mmとして境界位置が中央に位置するように切出した。なお、4点曲げ試験による境界強度評価は接合体の曲げ試験で一般的に用いられている方法であり、JIS R1601-1981

Fig. 1 Schematic illustration of extracted positions and dimensions of 4-point bending test specimens used.

「ファインセラミックスの曲げ強さ試験方法」に準じている。

曲げ試験は両方ともインストロン万能試験機を使用してクロスヘッドスピード0.5 mm/min で大気中にて行った。また、曲げ試験後の破面観察は走査型電子顕微鏡を使用して行った。硬さ試験はビッカース試験機を使用し荷重9.8 N の条件下で行った。複合部中の元素分析は波長分散型 X 線検出器を備えた EPMA を使用して Cu ターゲット、加速電圧25 kV の条件下で行った。

3. 実験結果および考察

3.1 複合部の組織と硬さ

マトリクス部と複合部の組織を Fig. 2 に示す。マトリクス部の組織 (Fig. 2(c)) は初晶と共晶組織で構成されているのに対して、複合部の組織 (Fig. 2(a)) は初晶と共晶が明瞭に認められず微細である。またウィスカは Fig. 2(b) に示すように均一に分散している。Fig. 3 は複合部のマトリクスを10%希塩酸で溶解しウィスカを露出させた試料の SEM 像を示すがウィスカは三次元ランダムに存在していることがわかる。なお、ここでの試料は界面活性剤で分散処理したプリフォームを使用しているが、未処理のプリフォームを使用した場合には溶湯浸透時の圧力でプリフォームは壊れていた。したがって、プリフォーム内部の均質性はプリフォーム強度に直接影響を及ぼし、ウィスカ凝集体を含んだままのプリフォームは加圧などの外力を受けた際に、凝集体とその周囲との境界で破壊しやすいと考えられる。

複合部およびマトリクス部の硬さ測定位置ならびに測定結果を Fig. 4 に示す。硬さ測定は加圧溶浸方向 (Fig. 4(a)) ; 半径を固定し高さ方向で測定、H-dir.) および加圧溶浸方向に垂直な位置 (Fig. 4(b)) ; 高さを固

Fig. 2 Microstructures of composites and matrix. (a) Optical micrograph of composite, (b) Scanning electron micrograph of composite and (c) Optical micrograph of matrix.

Fig. 3 Scanning electron micrographs of deeply etched composite.

定し半径方向で測定、R-dir.) で行っている。その結果、プリフォーム中への溶湯流入部分よりも溶湯出口部分が硬く、また壁周囲が硬くなっている。これは溶湯浸透時の圧力により、これらの部分でウィスカが密になったことが原因と考えられるが、同様な傾向が高圧鋳造法で複合材料を作製した場合にも報告されている³⁾。硬さ測定結果は、厳密には場所により複合部中のウィスカ体積率が異なることを示唆しているが、アルキメデス法により求めた曲げ試験片中の平均ウィスカ体積率は約23%と算出された。

3.2 複合部とマトリクス部の高温3点曲げ強さ

複合部とマトリクス部の高温3点曲げ強さの結果を Fig. 5 に示す。マトリクス部の曲げ強さ (以下マトリクス部強度と呼ぶ) は室温~473 K の温度範囲で約550 MPa を保つが、523 K 付近で強度は低下する。573 K ではマトリクスの軟化により試験治具が試料に食いこみ、曲げ強さは測定できなかった。一方、複合部の曲げ強さ (以下複合部強度と呼ぶ) は室温~473 K の温度範囲で

Fig. 4 Measurement position (a) and distribution of Micro Vickers hardness in composite and matrix. (b) height direction, (c) radius direction.

約810 MPaと一定で、この温度範囲での複合部強度はマトリクス部強度の約1.5倍と優れている。また623 Kでも複合部強度は500 MPa以上を維持し、本製法で作製した複合部は特に473 Kを超えてからの著しい強度低下はない。代表的に試験温度473 Kにおける曲げ試験後の破面をFig. 6に示す。マトリクス部の破面は初晶あるいは共晶部分での破壊の様相を呈しているが、複合部ではウィスカの破断を伴った微細なディンプルが破面全体に観察される。

3.3 複合部中の元素分析結果

複合部とマトリクス部の境界近傍における光顕組織ならびにEPMA面分析結果をそれぞれFig. 7およびFig. 8に示す。Fig. 7に示すように境界よりも数百μm複合部側の組織中に白い晶出物が帯状に点在している。また、Fig. 8はAl, Si, Mg元素の面分析結果であるが、

Fig. 5 Changes in high temperature strength of composite and matrix (3-point bending test).

Fig. 6 Scanning electron micrographs of fracture surfaces after 3-point bending tests at 473 K. (a), (b)–matrix (c), (d)–composite. (a), (c) low mag. (b), (d) high mag.

Fig. 7 Microstructures of composite area close to boundary between matrix part and composite part. (a) low mag. (b) high mag.

他の報告⁴⁾にあるような境界付近でのMgやSi元素の偏析は認められない (Fig. 8(a)においてビッカース圧痕の見える方が複合部)。EDS分析によれば白く見える晶

Fig. 8 X-ray images of the composite area close to boundary between matrix part and composite part. (a) SEI (b) Al-K α (c) Mg-K α (d) Si-K α .

Fig. 9 EDS analysis of precipitates in as-cast composite.

出物は、Fig. 9に示すようにAl-Si-Fe-Mn系晶出物で、溶湯がプリフォーム内に侵入してくる過程で晶出したと思われる。この晶出物が境界強度に及ぼす影響については後述する。

ところで、界面活性剤の複合部中への残存やウィスカとの反応の有無をX線回折により調べたが、回折ピークからは認められなかった。本試料の作製方法は溶湯温度1073 K、プリフォームの予熱温度473 Kでありマトリクスとウィスカの接触時間が短く比較的瞬時に複合化を完了して凝固するため、as-cast状態でも複合部中に破壊の起点となりやすい粗大な晶出物は生成されにくいと考えられる。

Fig. 10 Typical load-displacement curves of (a) composite (b) matrix and (c) boundary without heat treatment in the 4-point bending tests at room temperature.

Fig. 11 Effect of heat treatment temperature on composite, matrix and boundary strength.

3.4 境界強度と熱処理の影響

Fig. 10はas-cast状態の(a)複合部強度、(b)マトリクス部強度および(c)境界強度を4点曲げ試験により測定した時の荷重-変位曲線を示す。曲線(c)は曲線(a)のようにはほとんど塑性変形しないで破壊に至る傾向を示している。これは境界部の4点曲げ試験における破壊が、マトリクス部中で起こらず複合部/マトリクス部の境界で起こることを示唆している。この3つの曲線の形は熱処理した試料においても同様であった。

熱処理後空冷した試料の4点曲げ試験結果をFig. 11に示す。境界強度は熱処理温度が473 Kまでは約480 MPaであり、この値は複合部強度のおよそ半分、マトリクス部強度よりもおよそ25%低下している。また、熱処理温度が473 Kを超えると境界強度とマトリクス部強度は温度の増加とともに緩やかに低下する。一方、複合部強度は熱処理温度によらず約900 MPa一定である。

Fig. 12は代表的にas-cast状態の境界強度を測定した後

Fig. 12 Fracture surfaces of specimens after measuring boundary strength by 4-point bending test at 293 K.

(a) Appearance of fracture morphology, (b) Scanning electron micrographs of fracture surface on composite side (b) and matrix side (c).

の破面ならびに破壊した試料の外観を示す。明らかなように境界部に沿って破壊が進行し (Fig. 12(a)), 複合部側およびマトリクス部側の破面 (Fig. 12(b), (c)) においてはウィスカがマトリクスからはがれた様相がわかる。破壊が境界部に沿って進行することから境界部付近の晶出物は境界強度にほとんど影響しないと考えられる。

Fig. 13は, Fig. 12の複合部側の破面中に観察されたウィスカの拡大写真を示す。ウィスカがマトリクスよりはがれた様子(a)ならびにウィスカの pull-out(b)が認められ, pull-out したウィスカ表面上にはマトリクスと考えられる付着物がわずかに観察される。この部分に関する限り, ウィスカ/マトリクス界面がマトリクス部強度よりも強いことを示唆するものであるが, ほとんどの部分はウィスカ/マトリクス界面で破壊していた。したがって, 境界強度がマトリクス部強度よりも低い原因は, 低い界面接着強度のためと考えられる。

熱処理後の冷却方法において空冷した場合と氷水中へ急冷した場合の境界強度の比較を **Fig. 14**に示す。図中には急冷した試料の複合部とマトリクス部の硬さの変化も示してある。623 K までの境界強度は, 急冷した試料よりも空冷した試料で高い。さらに, 標準的な溶体化処理温度である 798 K にて保持後急冷した試料の境界強度は, as-cast 状態の境界強度とほぼ同一となっている。この温度で急冷した試料のマトリクス部組織を観察したところ, 共晶 Si が粒状化した Si として現れていた。一方, 硬さ測定の結果 as-cast 状態で複合部は HV200 程度, マトリクス部は HV100 程度であり, マトリクス部は 473 K から 623 K の範囲で軟化している。しかし, 798 K では HV100 とほぼ as-cast 状態の硬さに匹敵する。

Fig. 13 Scanning electron micrograph showing whiskers pulled out matrix on composite side after boundary bending test (test temperature, 293 K). (a) low mag. (b) high mag.

Fig. 14 Effect of heat treatment temperature on bending strength and Vickers hardness of each specimen at different cooling rate. Applied load was 98N.

一方, 複合部の硬さはいずれの熱処理温度においても著しい低下はなく, 798 K では as-cast 状態の硬さをやや上回っている。結果として境界強度は, 溶体化温度で保

Fig. 15 Changes in bending strength with heat treatment conditions; solution treatment (798 K $\times$ 36 ks W.Q.) and aging at 433 K.

持後に急冷しても低下することはない、溶体化処理が可能であることが示された。そこで、AC4A アルミニウム合金の標準的な溶体化処理 (798 K で 36 ks 保持後急冷) を試料に施し、境界強度を測定した。またマトリクスの強化は境界部の強化につながると考えられるため、溶体化後に人工時効 (時効処理は 433 K で 31.6 ks) を行う T6 処理を施した試料の境界強度も測定した。その結果を Fig. 15 に示す。溶体化処理状態の境界強度は平均 390 MPa と as-cast 状態よりも若干低下するが、時効処理により平均 570 MPa と著しく向上する。つまり境界強度は、マトリクスと同様の熱処理により向上させることが可能であると言える。

4. 結 言

SiC ウィスカ強化アルミニウム合金複合材料を加圧溶浸法により作製した。その複合部の高温強度および複合部とマトリクス部の境界強度に及ぼす熱処理の影響について調べた。その結果以下の知見が得られた。

(1) 複合部の高温強度を 3 点曲げ試験で評価した。その結果、試験温度 473 K までの曲げ強さは複合部で 810 MPa、マトリクス部で 550 MPa を示し、複合部強度はマトリクス部強度の約 1.5 倍と優れた。さらに、623 K での試験温度においても複合部強度は 500 MPa 以上を保持した。

(2) 複合部とマトリクス部の境界強度を 4 点曲げ試験で評価した。その結果、境界強度はマトリクス部強度よりも低く、その原因は低い界面接着強度のためと考えられる。しかし、境界強度はマトリクスと同様の T6 処理により向上できることがわかった。また、境界部付近に存在する晶出物は境界強度に影響しないと考えられる。以上のことから部分的に複合化した材料においては境界強度を考慮することが必要となる。

参 考 文 献

- 1) 牛尾英明, 林 直義: 軽金属, **41** (1991), 778.
- 2) 菅沼徹哉, 田中淳夫: 鉄と鋼, **75** (1989), 1790.
- 3) 菅沼克明, 佐々木元, 藤田輝明, 鈴木信幸: 軽金属学会第 81 回秋期大会概要集, (1991. 11).
- 4) 菅沼克明, 藤田輝明, 新原酷一, 鈴木信幸: 鉄と鋼, **75** (1989), 1534.