研究論文

パルス加圧排気鑄造法による Al_2O_3 粒子/6061
アルミニウム合金複合材料の作製*

武 高輝**・河野 紀雄***

高橋 恒夫***・渡辺 久藤***

Fabrication of Al_2O_3 /6061 particles composite
materials by pulse squeeze exhaust casting

Gaohui WU**, Norio KOUNO***

Tuneo TAKAHASHI*** and Hisahuji WATANABE***

The fabrication process named as pulse squeeze exhaust casting was developed. In comparison with the squeeze exhaust casting the process was characterized by controlling the press applied the molten metal in the manner of pulse, so that the air in the preform was fully exhausted. By this process the 6061 aluminum alloy composites containing Al_2O_3 particles of $0.15\ \mu\text{m}$ diameter have been successfully fabricated. The tensile strengths of samples with 30 vol% Al_2O_3 particles were 500 MPa in the as-cast and 637 MPa in the extruded conditions, and the elongation of extruded one were 8% at room temperature and 32% at 200°C , respectively.

Keywords: pulse squeeze exhaust casting, composite material, Al_2O_3 particle, Al_2O_3 /6061, tensile strength

(Received October 19, 1993)

1. 結 言

粒子強化および短繊維強化金属基複合材料の複合方法のうち、加圧鑄造法は複合に要する時間が短く、鑄造による成形性が高く、生産性に優れているなどの利点がある^{1,2)}。しかし加圧鑄造の際、しばしばプリフォーム中に存在した空気が圧縮されたまま複合材料の中に残り、材質に悪い影響を与えるという欠点があると考えられている。

また一般に、粒子強化複合材料の粒子径が小さいほど強度が高くなるが³⁾、粒子径が小さくなるとともに同一体積率で粒子の表面積が大きくなり、粒子間の間隙も小さくなり、溶湯の流動抵抗が大となる。このため、加圧鑄造法による複合化は比較的難しくなり、特に、粒子径が $1\ \mu\text{m}$ 以下での報告は少ないのが現状である⁴⁾。

複合材料の実用化には、高強度で緻密な複合材料を製造することが重要な課題であると考えられる。前報⁵⁾では、筆者らが考案した加圧排気鑄造法により、直径 $0.15\ \mu\text{m}$ の Al_2O_3 粒子を用い、かつ20%~40%までの体積率で空隙率が低い、高強度の複合材料が得られた。しかしこの方法では空気の排出がまだ完全ではないと考えられる。

そこで本研究では、加圧排気鑄造の際に溶湯の浸入段階において加圧力をコントロールすることにより、溶湯の補給方式をパルス状に加え、空気の排出効率をあげ、欠陥がより少なく機械的性質がより高い粒子分散強化複合材料の作製を試みた。この方法を以下ではパルス加圧排気鑄造と称する。また作製した Al_2O_3 /6061アルミニウム合金複合材料の機械的性質を評価するとともに、この方法における溶湯の浸入過程および組織の緻密化の成因等を調べた。

2. 実験方法

本研究では、パルス加圧排気鑄造法を従来の加圧鑄造および加圧排気鑄造の方法と比較するために、プリフォームとしての粒子充填方法、押出条件、空隙率測定方法、引張条件などの実験条件は前報⁵⁾と同じようにし、また実験材料も同じ粒子とマトリクス合金を採用した。すなわち、 Al_2O_3 /6061アルミニウム合金複合材料の作製は、市販の平均直径 $0.15\ \mu\text{m}$ のアルミナ粒子および6061アルミニウム合金を用い、金型温度 $710\sim 720^\circ\text{C}$ 、溶湯温度 $860\sim 880^\circ\text{C}$ 、圧力 $73\ \text{MPa}$ 、ラムスピード $0.5\sim 0.6\ \text{mm/s}$ の条件で行った。

前報⁵⁾では、加圧鑄造の初期に加圧曲線に示す圧力は

* 軽金属学会第75回秋期大会 (1988. 11) で一部発表。

** 哈爾濱工業大学 (哈爾濱市)。Harbin Institute of Technology (Harbin-shi, China)。

*** 千葉工業大学 (習志野市)。Chiba Institute of Technology (Narashino-shi, Chiba)。

Fig. 1 Variation of applied pressure with time in pulse squeeze-exhaust casting.

急激に上昇するが、臨界圧力になると溶湯がブリフォーム中に浸入し始めるため、圧力曲線の変化が緩やかになり、空気は主にこの段階で排出されることが明らかになった。パルス加圧鋳造方法では、この空气の排出段階において、プレスマシンのラムを降下-停止-降下-停止…降下と4~6回繰返し作動して、溶湯の浸入具合を調整する。この場合、Fig. 1に示すように加圧曲線のB-C段階にパルス状の圧力変化が現れる。

また、溶湯浸入過程を知るために普通の加圧鋳造法と加圧排気鋳造法およびパルス加圧排気鋳造法において、溶湯の浸入途中で圧力を除き、金型を急冷した。この急冷鋳塊の縦断面を浸透探傷剤で染色処理して複合途中の試料のマクロ組織を観察した。

3. 実験結果

3.1 パルス加圧方式による複合状態の改善

Fig. 2に示すのは、浸透探傷剤で染色処理した Al_2O_3

粒子の体積率が30%の急冷鋳塊縦断面のマクロ組織である。前報からわかるように、従来の加圧鋳造法の場合、溶湯は加圧曲線の昇圧段階で金型の周りに沿って流込み、次第にブリフォームの中心方向へ浸入し、空気をこの中心部分に押し退ける。Fig. 2(a)では、未複合の中心部に向けて気孔群が帯状に分布しており、溶湯の浸入状態を示している。

加圧排気鋳造法の場合、底面に排気口のある密閉されていない金型を用いるため、溶湯は主に上から下へ浸入すると同時に、空気を底面に押し退け、底部の排気口より大部分が排出される。Fig. 2(b)によると、残った空気による気孔は帯状に分布しているがFig. 2(a)より量が少なく、かつ底部に向かっている。

一方、パルス加圧排気鋳造法で得られたマクロ組織をFig. 2(c)に示すが、帯状に分布している気孔がほとんど認められなく、かつ溶湯は試料全体に浸入し、均一な組織となっている。

Fig. 3(a)(b)(c)には、Fig. 2に示した Al_2O_3 の体積率が30%の鋳造方法の異なる3種の鋳造材の上部のミクロ組織を示す。これによると、従来の加圧鋳造法での組織はFig. 3(a)に示すように粗くかつ部分的に複合していないと思われる大きな黒い欠陥の部分があり、欠陥部の直径が最大 $8\mu\text{m}$ のものもあった。一方、Fig. 3(b)の加圧排気鋳造法で作製したものは欠陥が少なく、かつ $1\mu\text{m}$ 以下と小さくほぼ均一な組織を示しており、さらにパルス加圧排気鋳造法で作製したものはFig. 3(c)のとおりに欠陥がさらに少なくなり極めて微細な組織を示した。これより、三つの方法で作製した複合材料の組織には大きな違いがあることが明らかである。

3.2 複合材料の空隙率および硬さ

材料の緻密性を調べるために鋳造材の空隙率と室温の硬さを測った。その結果をFig. 4に示す。図に示すように空隙率は、加圧鋳造においては Al_2O_3 粒子の体積率が大きくなるにつれて3%から5%へと上昇する傾向を示すが、加圧排気鋳造の場合は、いずれも1%程度とな

Fig. 2 Macrostructures in the time of composite processing of Al_2O_3 /6061 composite billet by various squeeze casting methods (volume fraction: 30%). (a) squeeze casting (center), (b) squeeze-exhaust casting (bottom), (c) pulse squeeze-exhaust casting (bottom).

Fig. 3 Microstructures of as-cast Al_2O_3 /6061 composite materials by various squeeze casting methods (etched by 5% NaOH for 30 s, volume fraction: 30%). (a) squeeze casting, (b) squeeze-exhaust casting, (c) pulse squeeze-exhaust casting.

Fig. 4 Influence of volume fraction on porosity and hardness of as-cast Al_2O_3 /6061 composite materials.

Fig. 5 Tensile strength of as-cast Al_2O_3 /6061 composite materials by various squeeze casting methods.

り、さらにパルス加圧鋳造の場合は、それ以下の値となつて緻密性が増したことを示している。

また、パルス加圧排気鋳造では、硬さの変化が材料の緻密性とよく対応し、体積率が30%の場合には、HV218になり、普通の加圧鋳造のHV163より大幅に上昇した。またパルス加圧排気鋳造材の他の鋳造材との空隙率と硬さの差は、いずれも Al_2O_3 粒子の体積率が低い場合では小さく、体積率が高くなると大になっている。このことより、複合化が困難とされている高体積率の場合、パルス加圧の効果がより顕著に現れることがわかった。

3.3 複合材料の引張強さおよび伸び

Fig. 5 は、各方法で作製した鋳造材の室温引張強さを示す。図でわかるように、作製方法の違いによって引張

強さかなり違いがある。体積率30%の材料については、従来の加圧鋳造が102 MPaであるのに対して、加圧排気鋳造では380 MPa、パルス加圧排気鋳造の方は503 MPaの値となり、従来の加圧鋳造のものより強さが5倍ほど向上したことが明らかになった。なおパルス加圧排気鋳造では、他の方法より体積率による引張強さの差が顕著になっている。

Fig. 6 には、体積率30%の押出材の高温引張試験結果を示す。室温における引張強さは、従来の加圧鋳造の場合412 MPa、加圧排気鋳造の場合は617 MPa、またパルス加圧鋳造の場合は637 MPaの最高値を示していた。いずれも温度の上昇とともに引張強さは低下し、200°Cでは三つの方法で作製した材料はほぼ等しい274 MPaとなり、400°Cでは、約137 MPaの値となった。しか

Fig. 6 Change of tensile strength (TS.) and elongation (EL.) with temperature for extruded Al_2O_3 /6061 composite materials.

し、伸びの値には大きな違いがみられ、従来の加圧鋳造したものの伸びはいずれの温度でも1%程度にすぎないが、加圧排気材では室温で5%、200°Cでは22%となり、またパルス加圧排気鋳造したものでは、室温における8%から200°Cで最高の32%にも達した。

また、加圧排気およびパルス加圧排気鋳造した試料の伸びが250°Cまでは温度の上昇とともに増加する傾向は、図上に破線で示した6061合金の場合と大体同じ傾向である。

4. 考 察

4.1 パルス加圧時の溶湯浸入過程

パルス加圧排気鋳造法により材料の緻密性が向上することは、溶湯の浸入と複合過程に関係があると考え、これを解析するために溶湯の浸入モデルを検討した。

Fig. 1の加圧曲線に示すように、溶湯の浸入段階でラムの降下をコントロールすることによって溶湯浸入の圧力をパルス状に変える。ラム行程の進行または停止ということは、溶湯の補給または停止のことを意味し、加圧曲線上に現れた圧力は、注湯部における溶湯にかかっている圧力であり、ブリフォーム内に浸入した溶湯にかかっている圧力は、 Al_2O_3 粒子の表面張力および粒子間隙からの流動抵抗により、浸入深さの増加に従って急激に減少し、溶湯浸入のフロントまでではほぼ零になると考えられる⁶⁾。一般に、溶湯がブリフォーム中に浸入すると圧力損失が生じる。注湯部の圧力は、外部加圧力と近似できると考えれば、溶湯浸入帯部フロントの圧力は減少し、粒子の表面張力とつり合っていると考える。

Fig. 7に加圧鋳造（加圧排気鋳造を含め）とパルス加圧排気鋳造の複合過程モデルを示す。Fig. 7(a)は溶湯

Fig. 7 Schematic explanation for permeation of molten metal.

浸入時の加圧曲線 B-C 段階の一部を拡大して示した。この図で普通の加圧鋳造の加圧曲線は点線で、パルス加圧鋳造の加圧曲線は実線で示した。Fig. 7の(b)(c)(d)はそれぞれの時刻の溶湯の浸入状態の模式図である。

普通の加圧鋳造とパルス加圧排気鋳造による差異は、まず溶湯の補給方式、すなわち、溶湯の連続補給と断続補給との違いであり、次に、ブリフォームに浸入した溶湯にかかっている圧力分布の変化、すなわち、注湯部から浸入先端までの圧力勾配が一定であるか、それともその勾配が繰返し変化するかということであると考えられる。

普通の加圧の場合、時刻 t_1 では、圧力が臨界圧力 (B 点) を越えているので、溶湯は粒子間の弱いところからブリフォーム内に優先的に浸入していき、かつ溶湯は連続的に補給されるから、Fig. 7(b)に示すように、いくつかの溶湯の“川”ができる。これらの“川”は長手方向（金型の上部から下部へ）に延びる一方、横にも広がる。しかし“川”内の溶湯の流動抵抗が小さく、また溶湯が連続して補給されているので溶湯の長手方向への浸入は速いと考えられる。このように、溶湯はブリフォーム内に長くかつ細い“川”をいくつも作るものと思われる。この“川”の流れに伴って粒子間の空気を“川”の前方と両側に押し退ける。“川”が成長して一定の幅になる。 t_2 時刻になると、隣接する“川”が合流し、Fig. 7(c)に示すように“川”の両側に押し退けられて空気が閉じ込められる。“川”が長いほど“川”と“川”の間に残った空気が多くなり、そこが気孔の集合部となる。そして、Fig. 2(a)(b)に観察されたように未複合部は中心部または底部に向かい帯状の跡として残り、溶湯の流れ経路を示すことになる。

加圧排気鋳造の場合では金型底面に排気口があるため、溶湯は主に上から下へ浸入していき、ブリフォーム中の空気は下へ押し退けられ、一部分が排気口から排出

Fig. 8 SEM micrographs of tensile fracture surface of extruded Al_2O_3 /6061 composite materials.

されるようになるが気孔はまだ残り、底面に向かうようになったと考える。

一方、パルス加圧排気鑄造では、 t_1 時刻でラムの進行を止める。この時点でも溶湯は残留圧力によってまたブリフォーム中に浸入していくので、圧力曲線に現れた圧力は緩やかに下がる。このラムの進行を止めた $t_1 \sim t_2$ 間では、“川”の基部の圧力が“川”の先端の圧力より大なため、先端部の進行は停止するが残留圧力により“川”はゆっくりと横に広がってお互いに合流し、ブリフォーム内の溶湯浸入部の前面は Fig. 7(d) に示すように加圧鑄造の場合より比較的平坦になる。そしてこの際“川”の間にはさまれた空気的大部分は溶湯前面のブリフォーム中に押しやられるものと思われる。その結果、Fig. 2(c) に示すように“川”の間に閉じ込められた気泡は存在しないかまたは極めて少なくなるのであろう。次に $t_2 \sim t_3$ の加圧段階では、圧力は急激に上昇する。その上昇速度は加圧曲線上より A-B 段階までの速度の約30倍と推定される。このような急激な衝撃的加圧のため、Fig. 3 に示すような複合しにくい Al_2O_3 粒子集団中にも溶湯が浸入できると予想される。このことより、Fig.

2(c) の写真に示したような“川”の痕跡が見えない緻密な組織が形成されたものと考えられる。

4.2 パルス加圧排気鑄造による Al_2O_3 粒子/6061 アルミニウム合金複合材料の強さとじん性

以上の空隙率の測定、組織の観察および溶湯浸入モデルなどの検討により、鑄造方法の違いによって、複合材料の組織の緻密性に差異が生じ、このことより、材料の機械的性質が異なることがわかった。

Fig. 8 には加圧排気鑄造とパルス加圧排気鑄造した押出材の室温、200、400°Cの引張破断面の SEM 写真を示す。破断面はいずれもディンプル状であり、6061 合金母相がこの複合材料に延性を付与していることがわかる。

加圧排気鑄造での試料では、引張温度が200°Cまで上昇しても破面の様子は室温のものとはほとんど変化せず、ディンプルの底面には露出した Al_2O_3 粒子が観察された。

一方、パルス加圧排気鑄造で作製した試料では、室温および200°Cで引張った試料の破断面には、欠陥が観察されず、ディンプル底面に露出した Al_2O_3 粒子は加圧排気鑄造のものよりさらに少なくなっており、パルス加圧

によって粒子とマトリックスの結合はさらによくなっていることを裏付けている。400°Cでは、各種試料ともに Al_2O_3 粒子とマトリックスの界面が剝離され、粒子の脱落が多数観察された。

パルス加圧排気鑄造した複合材料について、各温度で高い伸びを有することは、気孔や未複合部などの欠陥が少ない微細な組織によるためであり、また、伸びはマトリックス合金の塑性および界面の結合状態にも関係があるものと考えられる。引張温度が高くなるにつれてマトリックスの塑性変形は容易になるが²⁾、一方ではマトリックスと粒子の界面の結合強度が下がる。ある温度（たとえば250°C）までは、粒子とマトリックスの界面結合強度がマトリックスの破断強度より高いため、温度の上昇とともにマトリックスの6061合金の塑性変形が起こりやすくなるとともに複合材料の伸びも高くなると考えられる。引張温度が更にあがると、界面の結合力が低下するため、低応力で界面が剝離し、マトリックスの塑性変形がさらに起こりやすくなるにもかかわらず複合材料の伸びは急激に低下すると考えられる。

また、300°Cを越えた高温において、いずれの複合材も引張強さと伸びは下がりほぼ同じ値になったのは、この条件の下で界面強度の劣化によって粒子の強化の役割は失われたためであろう。この場合、試料の機械的性質を左右するものは主にマトリックスとなる。したがって、排気による組織の緻密化による強化効果がなくなり、いずれの鑄造法で作製した複合材料ともほぼ同じ引張強さと伸びとなったのであろう。

5. 結 言

加圧排気鑄造において、溶湯の浸入段階にパルス状の

加圧を行うパルス加圧排気鑄造法を考案した。この方法による Al_2O_3 /6061アルミニウム合金粒子強化複合材料の組織および機械的性質を検討した。その結果、次のことを明らかにした。

(1) パルス加圧排気鑄造によって未複合部のない極めて均一微細な組織の複合材料が得られた。

(2) パルス加圧排気鑄造により複合材料の引張強さは向上し、 Al_2O_3 粒子体積率が30%の場合、鑄造材では500 MPaの室温引張強さが得られ、押出材では室温で637 MPa、200°Cでは274 MPaの値となり、伸びは室温で8%、200°Cでは32%の値を示した。このことより、パルス加圧排気鑄造法により機械的性質が高くかつ延性に優れた粒子強化複合材料が得られた。

(3) パルス加圧排気鑄造による複合材料の機械的性質、特に伸びの向上は、溶湯の浸入方式をコントロールすることにより、空気の排出が十分に行われ、残留空気による欠陥が減少し、かつ緻密な組織が得られたためである。

参 考 文 献

- 1) 福永秀春：軽金属学会第76回春期大会講演概要集，(1989)，28.
- 2) 小原嗣朗，浅田修司：軽金属，**37** (1987)，483.
- 3) E. Orowan: "Dislocations in Metals", AIME, 1954, p. 128.
- 4) N. Izzat, E. S. Dwarakadasa, S. K. Goel and A. R. Ismail: J. Mater. Sci. Lett, **2** (1983), 750.
- 5) 武 高輝，河野紀雄，渡辺久藤，高橋恒夫：軽金属，**40** (1990)，176.
- 6) 木内 学：生産研究，**34** (1982)，179.
- 7) 日本金属学会編：金属便覧，(1971).