研究論文

繊維プリフォームに対する最適加圧含浸条件の検討

山内 利夫*・西田 義則**

A consideration on suitable infiltration conditions for
molten metal into fibrous preforms

Toshio YAMAUCHI* and Yoshinori NISHIDA**

The infiltration of molten metal into fibrous preforms using the squeeze casting technique was investigated by the calculation based on the analytical equations obtained in the previous papers to elucidate the infiltration phenomena. The preform top surface pressure and the location of infiltration front are obtained by these equations when the infiltration speed is given. The calculation was performed on the preform top surface pressure and the compressive deformation of preforms as parameters of the initial volume fraction of fibers, infiltration speed and pre-heat temperature. The radius of a fiber is the most effective factor on the preform top surface pressure among various factors. The deformation of the preform starts when the preform top surface pressure exceeds the compressive strength of the preform. Therefore, if the preform top surface pressure does not exceed the compressive strength, homogeneous composites are expected to be obtained without any deformation. On the contrary, the gradiently distributed fiber composites are possibly produced by controlling the infiltration speed.

Keywords: squeeze casting, metal matrix composite, fiber, compressive deformation, theoretical calculation

(Received January 23, 1995)

1. 緒 言

加圧含浸法による金属基複合材料の製造は、ピストン^{1),2)}やシリンドライナー³⁾に見られるように、機能向上を必要とする部位だけを複合化できると同時に、ニアネットシェイプで製造できる生産性に優れた方法であり、多くの製品に採用されている。しかし、プリフォームの予熱温度、溶湯温度、溶湯の加圧含浸速度等の複合化条件や、繊維体積率、繊維の方向性や繊維径等のプリフォーム諸条件により、複合化過程でプリフォームが金属溶湯の圧力で圧縮変形する⁴⁾ことがある。特に、ウィスカのような繊維径の小さい場合は顕著に現れる。

そのため、加圧含浸法でもプリフォームの圧縮変形の発生しない条件や、圧縮変形量を制御する条件の検討が必要となっている。しかし、今までに加圧含浸のメカニズムについて多くの研究^{5)~9)}が行われているが、これらの理論ではプリフォームの加圧含浸中の圧縮変形について説明ができなかった。

著者らはすでに、SiC ウィスカ、ほう酸アルミニウムウィスカおよびアルミナ短繊維を用いてアルミニウムとの複合化実験を行い、そのデータをもとにダルシーの法則を適用し加圧含浸挙動の解明を行ってきた^{10)~13)}。そして、含浸挙動をほぼ明らかにすることができた。これ

らの研究で得られた解析式は、ラム加圧による加圧含浸現象を示す一般式である。

本研究ではこれらの解析式の変数の影響を調べることで、各種複合材料に適した最適製造条件を明らかにすることを目的とした。

2. 解析方法

2.1 含浸現象の解析のための条件

セラミックス繊維の成形体であるプリフォーム中に金属溶湯が流れる場合、レイノルズ数は十分小さく、ダルシーの法則を適用することができるものとする。また、金属溶湯は非圧縮性流体とし、含浸現象は圧力差による力と粘性抵抗が支配的であり、運動量保存における慣性力は無視できるものと考え、ダルシーの法則の微分型が式(1)、連続の式が式(2)のようになる。

$$\frac{\partial p}{\partial x} = -\frac{\mu u}{K} \quad (1)$$

$$\frac{\partial u}{\partial x} = 0 \quad (2)$$

ここで、 u ：流体が単位面積、単位時間に流入する量（以後これを含浸速度という）、 μ ：流体の粘性係数、 K ：プリフォームの透過率、 p ：圧力、 x ：距離とする。

本研究では、含浸現象の解析のために以下の条件を置

* スズキ(株) (浜松市)。Suzuki Motor Corporation (Hamamatsu-shi, Shizuoka)。

** 名古屋工業技術研究所 (名古屋市)。National Industrial Research Institute of Nagoya (Nagoya-shi, Aichi)。

く。

- ① プリフォーム表面圧力は、加圧開始時点でゼロから上昇し始める。
- ② 未含浸部分のプリフォームには、プリフォーム表面圧力と同じ圧力が加わる。
- ③ プリフォーム強度（加圧力で変形が開始するときの応力）に達するまで、プリフォームの圧縮変形は起こらない。しかし、この圧力を越えると圧縮変形が開始する。
- ④ 含浸が完了している部分のプリフォームの圧縮変形は起こらない。
- ⑤ プリフォーム中にアルミニウム溶湯が浸入し繊維と接触すると瞬時に熱交換が行われる。
- ⑥ 計算を簡単にするため、空気層の背圧は無視する。
- ⑦ プリフォームの厚さは無限に続くものとする。

ここで、溶湯温度が凝固点温度（純金属の場合）または、共晶温度（共晶合金の場合）で、プリフォームの予熱温度がこの温度よりも低いときの凝固現象を考える。凝固相は繊維の表面を核として晶出し、繊維の回りに層を形成する。そして、熱交換で固相になった金属で繊維が太くなる。すると、熔融金属と繊維の熱交換は、式(3)で表すことができる⁵⁾。

$$V_f \rho_f C_f (T_m - T_f) = (1 - V_f) \rho_m F H \quad (3)$$

ここで、 T_m ：金属の初期温度（凝固点温度または共晶温度）、 T_f ：プリフォームの初期温度、 C_f ：繊維の比熱、 H ：金属の凝固潜熱、 ρ_m ：金属の密度、 ρ_f ：繊維の密度、 F ：金属が一部凝固しているときの固相率、 V_f ：プリフォームの繊維体積率とする。

熱交換で固相になった金属は、繊維の体積増加分となったとすると、みかけの繊維体積率 V_f' は式(4)で表される。

$$V_f' = V_f + (1 - V_f) F \quad (4)$$

このとき、繊維長さ L はそのまま、繊維半径が初期 R_0 から R_1 になったとすると、次の関係式が得られる。

$$R_1 = R_0 \left(1 + \left(\frac{1}{V_f} - 1 \right) F \right)^{1/2} \quad (5)$$

2.2 解析に用いる計算式

2.2.1 浸透開始圧力

プリフォームに溶湯が浸入を開始するには、セラミックス繊維と金属溶湯との濡れ性の悪さが原因となる浸透開始圧力がある。プリフォームへの浸透開始圧力 P_c は式(6)で表される⁹⁾。

$$P_c = - \frac{4 V_f \gamma \cos \theta}{d_f (1 - V_f)} \quad (6)$$

ここで、 γ ：融体表面張力、 θ ：繊維と融体間接触角、 d_f ：繊維直径とする。

2.2.2 粘性係数

計算での粘性係数 μ は、式(7)を用いた¹⁴⁾。

$$\mu = \mu_0 \exp (E / R T) \quad (7)$$

ここで、 μ_0 ：初期粘性係数、 R ：ガス定数（8.3144 J/Kmol）、 T ：温度、 E ：活性化エネルギーとする。

2.2.3 透過率

式(1)のダルシーの法則より定義される透過率は、流体がプリフォーム中を通過するときの抵抗を示し、繊維体積率、繊維径、繊維の配向性等に影響される。そこで、プリフォーム中のウィスカ分布はランダムであると考え、流体の流れが繊維方向に平行な場合の透過率の式¹⁵⁾（式(8)、Langmuirの式）と、直角の場合の透過率の式（式(9)、Happelの式）の平均値を用いた。

$$\frac{K_1}{R^2} = \frac{1}{4 V_f} \left(-\ln V_f - \frac{3}{2} + 2 V_f - \frac{V_f^2}{2} \right) \quad (8)$$

$$\frac{K_2}{R^2} = \frac{1}{8 V_f} \left(-\ln V_f + \frac{V_f^2 - 1}{V_f^2 + 1} \right) \quad (9)$$

2.3 解析式

ラム加圧による加圧含浸法では、式(1)で示す熔融金属の含浸速度 u はラム速度により決まる。したがって、含浸速度 u が時間の関数として与えられたとき、溶浸先端位置 x_f とプリフォーム表面圧力 P_s を含浸速度 u の関数として得ることができる。含浸が開始すると、浸透抵抗のため P_s は時間とともに上昇し始める。

まず、式(2)は時間一定では場所により u は変わらないことを意味している。したがって、式(1)を時間一定で考えると、 x についての常微分方程式と考えることができるため x で積分する。次に、入ってきた熔融金属 u のうちで uF が溶浸先端で凝固すると考える。加圧含浸現象の解析手順は前報で示した通りであり、ここでは結果のみを示す。ところで、プリフォームの圧縮が開始する時間を t_1 とすると、圧縮変形開始後のプリフォーム表面圧力 P_s は式(10)、溶浸先端位置 x_f は式(11)で与えられる。

$$P_s = \frac{\mu u (1 - F)}{K_0' (1 - V_f')} \int_0^{t_1} u \, dt + \mu u \int_{t_1}^t \frac{u (1 - F)}{K (1 - V_f')} \, dt - \frac{4 V_f \gamma \cos \theta}{d_f (1 - V_f)} \quad (10)$$

$$x_f = \frac{1 - F}{1 - V_f'} \int_0^{t_1} u \, dt + \int_{t_1}^t \frac{u (1 - F)}{1 - V_f'} \, dt \quad (11)$$

3. 結果と考察

上述の解析式を用いて、セラミックス繊維（SiC ウィスカ、ほう酸アルミニウムウィスカおよびアルミナ短繊維）にアルミニウム溶湯を含浸させたときのプリフォーム表面圧力（負荷圧力）とプリフォームの圧縮変形を計算した。

3.1 含浸へ影響を与えるファクター

3.1.1 浸透開始圧力

繊維と金属溶湯との濡れによる浸透開始圧力 P_c は、繊維径によって大きく変わる。式(6)より、直径 $3\mu\text{m}$ のアルミナ短繊維での P_c は 1 MPa 以下、直径 $0.6\mu\text{m}$ の SiC ウィスカでは P_c が $1\sim 3\text{ MPa}$ 程度である。

3.1.2 粘性係数

金属溶湯の粘性係数は、式(7)より、アルミニウムの場合、 1000 K で $1.09 \times 10^{-3}\text{ Ns/m}^2$ 、 1100 K で $0.91 \times 10^{-3}\text{ Ns/m}^2$ と 100 K の違いが約 10% ほど圧力に影響する。また、マグネシウムの場合は 1000 K で $0.96 \times 10^{-3}\text{ Ns/m}^2$ でありアルミニウムより約 5% 低い値である。

3.1.3 透過率

解析式では熔融金属の含浸方向が繊維に平行な場合の透過率 K_1 と垂直な場合の透過率 K_2 の平均を用いた。 K_1 と K_2 では約 1.5 倍ほど K_1 の方が大きい。また、 V_f が 20% から 30% になると透過率は約 $1/3$ 倍となる。SiC ウィスカとアルミナ短繊維の透過率は $4.7 \times 10^{-14}\text{ m}^2$ と $1.2 \times 10^{-12}\text{ m}^2$ で 25 倍の差がある。これは、式(8)と式(9)から知られるように、透過率に対し繊維半径は 2 乗で影響するためである。

3.1.4 予熱温度

金属溶湯が凝固点温度（または共晶温度）で、プリフォームの予熱温度がこの温度よりも低い場合、金属溶湯から凝固相が発生する。プリフォームの温度が低いほど凝固による固相の割合は高くなる。金属溶湯として 933 K に溶解した純アルミニウムを SiC ウィスカプリフォームに含浸させたとき、 V_f が 20% のプリフォームでは予熱温度が 733 K 、 533 K 、 303 K と小さくなるに従って固相率が 0.11 、 0.22 、 0.37 と大きくなる。固相率が大きくなると見かけの繊維体積率 V'_f も大きくなり、加圧含浸に必要な圧力はさらに大きくなる。また、 V_f が 41.5% で予熱温度が 303 K のとき、固相率は 1 となり、溶湯は完全に凝固してプリフォーム中に金属溶湯は含浸しなくなる。したがって、プリフォームの予熱温度は含浸現象に対して重要な要因である。

3.2 プリフォーム強度

プリフォームの性質は、強化材の形状、性質そして成形時に用いるバインダの量などにより、ソフトなプリフォームとハードなプリフォームに分類することができる。もちろん、その中間の性質のプリフォームもある。一般に、バインダを少量または無添加で成形した繊維のプリフォームの場合、プリフォームにある程度の応力が加わると、繊維が湾曲し、ソフトに変形が開始する。しかし、多量のバインダを用いて成形したプリフォームの場合、応力が加わっても変形しにくく、限界応力に達すると亀裂が生じる。この限界応力または変形を開始する

応力をプリフォーム強度（圧縮強度）とする。ソフトなプリフォームの場合の強度は、プリフォーム成形時に加えた応力によって決まるものと考え、前報で検討した結果、種々の実験結果とよく一致することから正しいものと考えられる。ここでは、ソフトなプリフォームだけを用いた。SiC ウィスカ、ほう酸アルミニウムウィスカおよびアルミナ短繊維（以後、SiC、9A2B、AO とする）のプリフォームを金型内で圧縮したときの圧縮応力（この応力をプリフォーム成形応力に相当するものとする）と V_f を測定し、プリフォームが金属溶湯の圧力で圧縮変形をする状況を想定した結果を Fig. 1 に示した。 V_f が 20% の SiC プリフォーム強度は 5 MPa であるが、9A2B および AO では 2.5 MPa 、 0.5 MPa と小さい。さらに、 V_f が 30% では SiC、9A2B、AO の順でプリフォーム強度は 20 MPa 、 8 MPa 、 3 MPa となり、繊維によって明らかなプリフォーム強度差がある。したがって、溶湯が含浸する圧力でプリフォームの圧縮変形や割れの発生が異なることになる。

3.3 解析式の計算

解析式を応用し、繊維体積率、含浸速度およびプリフォームの予熱温度に対する浸透距離と圧力およびプリフォームの圧縮開始点の関係を計算で求めた。計算の条件は Table 1 に示す。計算で使った各繊維の特性は前報^{(10)~(13)}での値を用いた。ただし、熔融金属は純アルミニウムとしプリフォーム高さは 40 mm とする。

3.3.1 プリフォーム表面圧力の計算

Fig. 2 はプリフォームとして SiC を用いて Table 1 の condition 1 のときの、含浸速度に対する浸透距離とプリフォーム表面圧力の関係を示した。含浸速度 u が 10 、 20 、 40 mm/s と増加するに従って、含浸終了圧力は 10.2 、 23.7 、 70.0 MPa と高くなる。さらに、解析式から

Fig. 1 Relationship between the compressive stress applied for the preform fabrication and the volume fraction of fibers.

Table 1 Conditions for the calculation

Conditions	1	2	3
Volume fraction (%)	20	20, 25, 30	20
Pressure speed (mm/s)	10, 20, 40	20	20
Pre-heat temperature (K)	933	933	300, 500, 700, 900
Molten metal temperature (K)	1073	1073	933

Fig. 2 Relationship between the infiltration distance and pressure at the preform surface of SiC whisker when the infiltration speed is taken as a parameter.

高さ40 mmのプリフォームは含浸時の圧力の影響で36.8, 32.2, 26.6 mmと圧縮変形し、含浸を完了していることもわかる。含浸速度が遅いほどプリフォームの変形開始は遅く、変形も少ない。一方、もしプリフォームがハードで脆い性質であったら、プリフォーム表面圧力がプリフォーム強度に達した時点(位置)でプリフォームは破壊を開始する。

Fig. 3はプリフォームとしてSiCを用いてTable 1のcondition 2のときの、繊維体積率に対する浸透距離と圧力の関係を示した。含浸開始圧力 P_i は V_f が20, 25, 30%の順で1.3, 1.7, 2.2 MPaである。また、含浸終了圧力は23.7, 37.6, 59.2 MPaで、そのときのプリフォーム高さは32.2, 34.9, 36.4 mmであり、 V_f が高いほど圧縮変形は小さい。

Fig. 4はプリフォームとして9A2Bを用いてTable 1のcondition 1のときの、含浸速度に対する浸透距離と圧力の関係を示した。含浸速度が10, 20, 40 mm/sと増加するに従って、含浸終了圧力は4.9, 11.0, 33.9 MPaと高くなる。高さ40 mmのプリフォームは含浸時の圧力の影響で36.7, 31.1, 25.3 mmと圧縮変形し、含浸を完了している。**Fig. 2**のSiCと比較すると、圧縮後のプリ

Fig. 3 Relationship between the infiltration distance and pressure at the preform surface of SiC whisker when the initial volume fraction is taken as a parameter. The infiltration speed is 20 mm/s. **Fig. 4** Relationship between the infiltration distance and pressure at the preform surface of $9\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{B}_2\text{O}_3$ whisker when the infiltration speed is taken as a parameter.

フォーム高さは各 V_f についてSiCとほぼ同じであるが、含浸時のプリフォーム表面圧力は9A2Bの方が低い。これは、9A2Bのプリフォーム強度が低いため、低い圧力で圧縮変形が起こるからである。

Fig. 5はプリフォームとしてSiCを用いてcondition 3のときの、プリフォームの予熱温度に対する浸透距離と圧力の関係を示した。予熱温度が900 Kでは最後まで溶湯は含浸するが、700, 500 Kでは100 MPaの圧力でも未含浸部分が4.3, 12.0 mm発生する。また、300 Kでは圧力上昇途中で固相率が1に近くなり含浸が停止する。

3.3.2 プリフォーム圧縮変形の計算

Fig. 6はプリフォームとしてSiCを用いてcondition 1のときの、含浸速度に対する浸透距離と繊維体積率の

Fig. 5 Relationship between the infiltration distance and pressure at the preform surface of SiC whisker when the pre-heat temperature of the preform is taken as a parameter. The infiltration speed is 20 mm/s.

Fig. 6 Relationship between the infiltration distance and the volume fraction of SiC whisker when the infiltration speed is taken as a parameter.

関係を示した。プリフォーム表面圧力がプリフォーム強度の 5 MPa に達したとき、圧縮が開始する。含浸速度が 10, 20, 40 mm/s と増加するに従って、圧縮変形開始距離 L_0 は 17.6, 8.8, 4.4 mm と小さくなる。また、はじめ V_f が 20% のプリフォームは V_f が 25.3, 31.3, 42.6% になり、含浸速度の増加に従い圧縮される。ここで、含浸速度のコントロールで L_0 の制御および変形後の圧縮量も制御することが可能であることがわかる。

Fig. 7 はプリフォームとして SiC を用いて condition 1 および 2 のときの、プリフォーム圧縮開始距離 L_0 を示した。 V_f が 20, 25, 30% のプリフォーム強度は 5, 10, 20 MPa であり、 V_f が増加するに従って、 L_0 は大きくなる。 V_f が 30% で含浸速度が 10 mm/s のときの L_0 は 31.3

Fig. 7 Relationship between the start point of compressive deformation, L_0 , and the initial volume fraction of SiC whisker.

Fig. 8 Relationship between the start point of compressive deformation, L_0 , and the initial volume fraction of each fiber. The infiltration speed is 20 mm/s.

mm と大きく、圧縮変形しにくいことがわかる。したがって、プリフォーム高さが L_0 よりも低いとき、プリフォームの変形は発生せず、均一な複合材料が得られることになる。

Fig. 8 はプリフォームとして SiC, 9A2B および AO を用いて condition 2 の L_0 を示した。SiC と 9A2B を比較すると V_f が 20% ではほぼ同じであるが、 V_f が 30% では SiC の方が大きくなっている。負荷圧力とプリフォーム強度の兼ね合いで圧縮状況が異なる例である。AO のプリフォーム強度は小さいが、繊維半径が大きく透過率が非常に大きい。そのため、圧力は高くならず L_0 は大きくなる。

Fig. 9 はプリフォームとして SiC を用いて condition

Fig. 9 Change in the SiC whisker volume fraction with the infiltration distance when the pre-heat temperature is taken as a parameter with the infiltration speed of 20 mm/s.

3のときの、浸透距離と繊維体積率の関係を示した。プリフォームの予熱温度が900, 700, 500, 300 Kと低くなるに従って、 L_0 は8.0, 4.5, 2.5, 1.3 mmと小さくなる。また、変形後の圧縮量も大きくなり、浸透距離に限界があることがわかる。したがって、プリフォームの予熱温度で L_0 や変形後の圧縮量の制御も可能と言える。

4. 結 言

加圧含浸現象を解析した式を用いて、その式に含まれる各種パラメータの影響を調べることで、色々な複合材料を製造できることが明らかになった。そして、種々の目的に沿った最適な製造条件が存在することも明らかになった。得られた主要な結果を要約すると、次のようである。

(1) プリフォームの圧縮または割れの開始点はプリフォーム強度以上の圧力が加わったときに発生する。

(2) 負荷圧力が濡れによる浸透開始圧力以上かつ、プリフォーム強度以下のとき、プリフォームの圧縮変形は発生せず熔融金属は含浸し、均一な複合材料が得られる。

(3) 含浸速度の設定で負荷圧力は制御でき、加圧含浸法でも圧縮変形のない均質な複合材料の製造は可能である。

(4) プリフォームの予熱温度を含め、複合化条件を設定することでプリフォームの圧縮の変化量を制御することができる。

参 考 文 献

- 1) T. Yamauchi: SAE Paper, No. 911284.
- 2) T. Donomoto, N. Miura, K. Funatani and N. Miyake: SAE Paper, No. 830252.
- 3) 林 直義, 伴 恵介, 桜井久之: 日本金属学会会報, **25** (1986), 565.
- 4) 西田義則, 今井恒道, 山田 守, 松原弘美, 白柳格: 軽金属, **38** (1988), 515.
- 5) 長田純夫, 松田公扶: 鋳物, **53** (1981), 300.
- 6) 福永秀春, 合田公一: 日本機械学会論文集 (C編), **49** (1983), 1808.
- 7) T. W. Clyne, M. G. Bader, G. R. Cappleman and P. A. Hurbert: J. Mater. Sci., **20** (1985), 85.
- 8) S. Y. Oh, J. A. Cornie and K. C. Russell: Metall. Trans., **20A** (1989), 527.
- 9) A. Mortensen and J. A. Cornie: Metall. Trans., **18A** (1987), 1160.
- 10) 山内利夫, 西田義則: 日本金属学会誌, **58** (1994), 552.
- 11) T. Yamauchi and Y. Nishida: Acta Metall. Mater., **43** (1995), 1313.
- 12) 山内利夫, 西田義則: 日本金属学会誌, **58** (1994), 1436.
- 13) 山内利夫, 西田義則: 日本金属学会誌, (印刷中).
- 14) 日本金属学会編: 金属データブック.
- 15) G. W. Jackson and D. F. James: Can. J. Chem. Eng., **64** (1986), 364.