アルミ箔を用いた積層クラッド法による Fe-Al 系金属間化合物の作製

新野邊幸市 山本圭司*

松江工業高等専門学校機械工学科

J. Japan Inst. Metals, Vol. 69, No. 8 (2005), pp. 731-734
© 2005 The Japan Institute of Metals

Development of Fe-Al Intermetallic Compounds by a Lamination Cladding with a Commercial Al Foil

Kouichi Niinobe and Keiji Yamamoto*

Department of Mechanical Engineering, Matsue National College of Technology, Matsue 690-8518

A manufacturing process of Fe-Al intermetallic compounds was developed using a lamination cladding method with a pure Fe foil and a commercial Al foil. Fe foil with a size of 20 mm × 10 mm × 0.05 was wrapped in Al foil 9 times, followed by a heat treatment at temperature ranging from 913 K to 943 K. It was revealed that the reaction between Fe and Al occurred at temperatures more than 933 K, namely the melting point of Al, and a single FeAl₂ phase was uniformly formed. The specimens wrapped in Al foil 5 times and 3 times were prepared to obtain the specimens consisting of FeAl and Fe₃Al phases, respectively. However, the specimens heated at 933 K were composed of FeAl₂ and still retained Fe. The specimens heated at 933 K were subsequently heated at 1273 K. The FeAl and Fe₃Al phases were uniformly developed in the specimens wrapped in the Al foil 5 times and 3 times, respectively, revealing that the reheating at 1273 K was effective for the decomposition of the FeAl₂ phase.

(Received April 7, 2005; Accepted July 7, 2005)

Keywords: FeAl₂, FeAl, Fe₃Al, cladding, heat treatment

1. 緒 言

Fe-Al 系金属間化合物は耐食性や耐酸化性に優れ¹⁾, さらに原材料費が安価でリサイクル性にも富むことからステンレス鋼の代替材料として期待されている。しかしながら, 金属間化合物の塑性加工性は合金・金属よりも一般的に劣るため²⁾, 恒温鍛造や恒温圧延などの高価な熱間加工用の設備が必要となる。これに対して, 薄板もしくは箔からなる 2 種類の金属を交互に積層して形状付与後に金属間化合物へ合成すれば^{3,4)}, 金属間化合物を加工する工程を省くことができ, 難加工性の問題が解消される。Near net shape プロセスであるため, 切削加工によって無駄となる材料の比率も大幅に削減できる。さらには, 溶解・鋳造に比べて熱源が小さくて済むなど環境への負荷も少ない。そこで, 市販のアルミ箔を用いた Fe と Al の積層クラッド材を用いて, 熱処理により Fe-Al 系金属間化合物を合成する製造プロセスを開発することにした。本研究では鍛造・圧延を施さず積層のままの試料を用いて熱処理を行い, 合成に必要な加熱条件ならびに Fe と Al の量比が反応に及ぼす影響を明らかにした。

2. 実験方法

厚さが 0.012 mm からなる市販の Al 箔と, 冷間圧延された厚さが 0.05 mm で純度が 99.9% の Fe 箔を用いた。Fe 箔は 20 mm × 10 mm にハサミで切断して, 得られた Fe 箔に対して Al 箔を 9 回巻き付けた。Al 箔を巻き付けた Fe 箔を 4 個もしくは 5 個重ね合わせて, これを一つの試料片とした。試料片は酸化防止のために Ta 箔で包み込み, 石英ガラス管に封入した。石英ガラス管には真空排気後, Ar ガスを充填した。熱処理条件を Table 1 に示す。Al の融点が 933 K 程度であることを考慮して, 加熱温度は Al の融点近傍とした。保持時間は 10.8 ks, 一部の試料は 86.4 ks として, 冷却は空冷とした。Al 箔を 9 回巻き付けた試料は A19 と称する。本手法では Al 箔を重ねるのではなく巻き付けている。このため試料の両端で Al 量が多くなるがその影響は少

Table 1 Heat treatment conditions for A19.

Temperature (K)	Time (ks)	
943	10.8	—
933	10.8	—
923	10.8	86.4
913	10.8	86.4

* 松江工業高等専門学校学生 (Undergraduate Student, Matsue National College of Technology)

ないと判断した。この他、Al 箔を 5 巻もしくは 3 巻した試料を作製した。それぞれを A15 と A13 と称する。A15 と A13 の熱処理条件は A19 の結果を反映させ、適宜変更したので結果にて示す。Al 箔を 9 回巻き付けた場合、Fe と Al の量比から理論的に得られる金属間化合物は FeAl_2 であると見込まれる。同様に Al 箔を 5 巻と 3 巻した試料で、Fe と Al が反応して均一組成の化合物が生成したとすると、それぞれ FeAl と Fe_3Al となる。熱処理後の試料は中心部で切断して、切断面を機械研磨して、粒径 $3\text{ }\mu\text{m}$ のダイヤモンド砥粒で鏡面仕上げした。組織観察には光学顕微鏡と反射電子検出器付きの走査型電子顕微鏡を用い、組成分析にはエネルギー分散型特性 X 線分析装置を用いた。

3. 実験結果および考察

Fig. 1 には A19 を所定の温度で 10.8 ks だけ加熱して得られた試料の光学顕微鏡像を示す。Al の融点より低い 913 K と 923 K で熱処理した試料では Fe と Al の積層ままの状態であることが分かる。これに対して、Al の融点以上となる 933 K と 943 K では Fe 箔と Al 箔が交互に積み重なった状態が消滅しており、単色なコントラストから判断してほぼ単一相と思われる相が生成している。ただし、多数の箇所で破断・粉砕して極めて脆いことが伺える。Fig. 2 には A19 を Al の融点以下の温度で 86.4 ks だけ加熱して得られた試料の光学顕微鏡像を示す。Fig. 1 に示した 10.8 ks だけ加熱した場合と同様で、Fe と Al が積層ままの状態である。この結果より、本手法で Fe と Al が反応を起こすには Al の融点以上の加熱温度が必要である、言い換えると Al の融解が必要であることが分かる。Fig. 3 には未反応ままの試料と反応した試料のうち、それぞれ典型的な試料の走査型電子顕微鏡像を示す。923 K で 86.4 ks 加熱した試料(Fig. 3(a))では白いコントラストの Fe 箔と灰色のコントラストの Al 箔が確認できる。933 K で 10.8 ks だけ加熱した試料(Fig. 3(b))では、Fig. 1(c) に示した光学顕微鏡像では確認されなかった白いコントラストの第 2 相が確認できる。Fig. 4 には Fig. 3 に示した試料について、所定の点で元素分析した結果を示す。Fig. 4(a) より、白いコントラストの Fe 部(点 A)では Fe の

Fig. 1 Optical microstructures of A19 heat-treated for 10.8 ks at (a) 913 K, (b) 923 K, (c) 933 K and (d) 943 K.

Fig. 2 Optical microstructures of A19 heat-treated for 86.4 ks at (a) 913 K and (b) 923 K.

Fig. 3 SEM images of A19 heat-treated (a) for 86.4 ks at 923 K and (b) for 10.8 ks at 933 K.

Fig. 4 Element analysis profiles of A19 heat-treated (a) for 86.4 ks at 923 K and (b) for 10.8 ks at 933 K.

ピークのみ、灰色のコントラストの Al 部(点 B)では Al のピークのみが検出され、定量の結果から点 A では Fe の濃度が 100.0 at%, 点 B では Al の濃度が 99.64 at%であった。Al 部には Fe に相当する白い粒子が確認できるが、これらは素材のアルミ箔にも認められることから、アルミ箔の製造時に付着したものと見られる。したがって、Al の融点以下で 86.4 ks と比較的長時間の熱処理を行っても Fe と Al の両原子の固相拡散は起こらないことが分かる。Fig. 4(b)より、中心部に存在する白いコントラストの相(点 C)は Fe 濃度が 99.63 at%で Al が固溶していない。元の Fe 箔の芯部に Fe が残ったと考えられる。一方、灰色のコントラストの相(点 D)は Al 濃度が 65.17 at%で、ほぼ FeAl_2 相に相当する組成を持っている。Fig. 3(b)に示した灰色のコントラスト域について 40 点以上の点分析を行ったところ、場所に依存せず Al 濃度が 66 ± 1.5 at%ではほぼ均一の組成であることが分かった。したがって、Al の融点以上に加熱すると一部 Fe が残留するものの、ほぼ FeAl_2 相の単相からなる試料が得られることが分かった。

Al9 の結果から本手法では Al の融解が必要であることが見出されたため、Al5 および Al3 については加熱温度を Al の融点以上の 933 K と 943 K とし、保持温度は短時間で済むと判断して 3.6 ks に短縮した。Fig. 5 には新たに設定した条件のもとで熱処理した Al5 と Al3 の光学顕微鏡像を示す。Fig. 1(c),(d)に示した Al9 の結果と同様に、Al の融点以上に加熱すると Fe 箔と Al 箔が交互に積み重なった状態が消滅して反応が起こっていることが示唆される。Fig. 5(c), (d)より Al3 では粉碎した様子が認められず脆さが改善していることが分かる。Fig. 6 には Al5 と Al3 の走査型電子顕微鏡像と元素分析の結果を示す。Fig. 3(b)に示した Al9 と比較して残存する白いコントラストの Fe 部の割合が多く、しかも Al5 と Al3 を比較すると Al3 の方がその割合が高いことが分かる。元素分析の結果、Al5 と Al3 のいずれでも白いコントラストの Fe 部(点 A および点 C)の Fe 濃度は 99 at%以上で Al のピークはほとんど検出されない。さらに、灰色のコントラストの Al 部(点 B および点 D)では Al の濃度が 65 at%程度で FeAl_2 相に相当していた。以上の結

果は Al9 の場合と一致しており、生成した金属間化合物の種類は Al の巻数に依存せず、 FeAl_2 相だけであったことを示している。また、残存する Fe の量は Al の巻数、すなわち Al の量に依存していて、Al の量が減少すると残存する Fe の割合が増加する。一方で、生成する FeAl_2 相の割合は Al の巻数が増加すると言える。

933 K で熱処理した場合、Fe は残存するものの Al は FeAl_2 相に変化してすべて消滅する。熱処理温度を例えば 1273 K などの Al の融点より比較的高い温度域に設定しなかった理由は、Al が完全に液相となり元の薄板状の形態が損なわれる点を防ぐためであった。しかしながら、一度 933 K で熱処理すればこのような懸念はない。そこで、933 K で熱処理し、続いて 1273 K に加熱する 2 段階熱処理を試みることにした。なお、Fe-Al 2 元系状態図⁹⁾によれば FeAl_2 相の融点は 1423 K 程度であるため、1273 K の加熱で FeAl_2 相が融解することはない。Fig. 7 には Al5 と Al3 を 933 K で 3.6 ks 保持後、さらに 1273 K で 3.6 ks 保持した試料の走査型電子顕微鏡像を示す。Fig. 6 の 933 K で熱処理した 1 段

Fig. 5 Optical microstructures of Al5 and Al3 heat-treated ((a) and (c)) for 3.6 ks at 933 K and ((b) and (d)) for 3.6 ks at 943 K, respectively.

Fig. 6 Element analysis profiles of the specimens heat-treated for 3.6 ks at 933 K: (a) Al5 and (b) Al3.

Fig. 7 SEM images of the specimens heat-treated for 3.6 ks at 933 K followed by heating for 3.6 ks at 1273 K: (a) Al5 and (b) Al3.

階目までの試料とは形態が異なり、ほぼ単一相から構成されていることが分かる。40 点に及ぶ点分析の結果、Al5 の平均 Al 濃度は 47.14 at%，Al3 では 26.29 at% であり、それぞれ FeAl 相と Fe₃Al 相の Al 濃度に対応する。したがって、Al5 と Al3 を 2 段階熱処理すると先に生成した FeAl₂ 相と残存する Fe 相は消滅して、それぞれ FeAl 相と Fe₃Al 相が生成する。Fe 箔と Al 箔の所定の量比から想定される金属間化合物が、単相でかつ均一な組成にて生成することが判明した。Al の融点近傍である 933 K では Al 量に依存せず FeAl₂ 相のみが生成したことから 933 K で FeAl₂ 相は安定でありその温度域では分解しない。しかしながら、1273 K では FeAl₂ 相は残存する Fe 相と反応して FeAl 相や Fe₃Al 相を生成したと思われる。本研究で行った無加圧の積層クラッド法では箔は密着せずに剥離する、また亀裂が多いなどの欠点がある。そこで、圧延や鍛造により箔を密着させた後で加熱する、もしくは圧延・鍛造と同時に加熱することで完全に密着した一つの部材が合成できると予想している。

4. 結 言

アルミ箔を用いた積層クラッド法により Fe-Al 系金属間化合物を作製して、熱処理条件と Al の巻数の影響を調査した結果、次の結果が得られた。

(1) Al の融点以下では Fe と Al 間の反応は起こらず、Al の融点以上で Al が融解すると反応が起こる。

(2) Al の融点直上の温度域で生成する金属間化合物は Al の巻数に依存せず FeAl₂ 相のみである。

(3) Al の融点直上の温度域で生成する FeAl₂ 相の割合は Al の巻数を多くすると増加して、残存する Fe の割合は減少する。

(4) Fe が残存する試料に対して、Al の融点直上で熱処理した後でさらに 1273 K に加熱する 2 段階熱処理を施すと、FeAl₂ と Fe は消滅して Fe 箔と Al 箔の量比に対応した FeAl や Fe₃Al が生成する。

文 献

- 1) N. S. Stoloff: Mater. Sci. Eng. **A258**(1988) 1-14.
- 2) For example, T. Tsujimoto, K. Hashimoto and M. Nobuki: Mater. Trans. JIM **33**(1992) 989-1003.
- 3) T. Yamada, K. Park, S. Kikuchi and H. Fukutomi: Collected Abstracts of the 2001 Autumn Meeting of the Japan Institute of Metals (2001) 301.
- 4) H. Ogata, A. Nishimoto, K. Nakao and K. Akamatsu: Collected Abstracts of the 2002 Autumn Meeting of the Japan Institute of Metals (2002) 353.
- 5) Binary Alloy Phase Diagrams, ed. by U. R. Kattner and T. B. Massalski, (ASM International, Material Park OH 1990) 147.