SiC/Al 合金プリフォームワイヤの 強度とそのばらつきに及ぼす熱処理の影響*

福永秀春^{*1}, 合田公一^{*1}, 魯云^{*2}

Effect of Heat Treatment on Strength and Its Scatter of SiC/Al Alloy Composite Wires

Hideharu FUKUNAGA, Koichi GODA and Yun LU

A tensile test was carried out on the two kinds of SiC fiber-reinforced Al alloy composite wires, SiC/pure-Al and SiC/Al-5.7 % Ni, which were quenched or annealed. The effect of the matrix hardness and microstructural change on the tensile strength and its scatter has been investigated. The results showed that the SiC/Al-5.7 % Ni composite wires maintained a higher strength than the SiC/pure-Al composite wires after the wires were quenched from a temperature up to 450°C, and it had less strength than SiC/pure-Al after being heated to a temperature over 550°C. The scatter of the strength of SiC/Al-5.7 % Ni wire increased as quenching temperature increased, but the strength of SiC/pure-Al wire had no change in scatter. The results above were explained by the matrix microstructure, and by the tensile strength of the extracted fibers.

Key Words: Fiber Reinforced Metals Heat Treatment, Microstructure, Tensile Strength, Statistical Treatment, SiC Fiber, Al-Ni Alloy

1. 結 言

FRM(Fiber Reinforced Metals)は優れた比強度, 比剛性, 耐熱性を持つ新素材として注目されている。プリフォームワイヤは近年新しく開発された FRM の中間複合材の一つで, そのままあるいはそれを用いての再複合によりいろいろな形状および寸法の複合材が製造できる⁽¹⁾。このプリフォームワイヤの優れた性質を生かし機械部品への応用するためには, その強度およびばらつきを調べるとともにそれを左右する要因を究明しておくことが必要である。現在のところ, この材料についてマトリックスの合金化^{(2)~(4)}, 高温強度⁽⁶⁾⁽⁷⁾, 熱安定性⁽⁸⁾などが研究されているが, これらの研究は界面反応による繊維強度の低下, 合金化によるマトリックス特性の改善に議論が集まり, 熱履歴によるマトリックス特性の変化とそのプリフォームワイヤの強度への影響はあまり触れられていない。また, FRM の強度のばらつきとその影響要因を知ることは重要であるが, いまだ十分に調査されていない。

そこで本研究は, 連続 SiC(ニカロン)繊維強化 Al

合金プリフォームワイヤを用い, 引張強度とばらつきに及ぼす熱処理の影響を調査するとともに, その要因を検討したものである。

2. 実験方法

2・1 試料および熱処理 試料には, 約 500 本の連続 SiC 繊維束に Al 合金を溶浸して作られた直径 0.5 mm のプリフォームワイヤ(日本カーボン製)を用いた。マトリックスは純 Al, Al-5.7 % Ni の二種類である。以下, それぞれ SiC/pure-Al, SiC/Al-5.7 Ni と記す。熱処理はいずれもアルゴン雰囲気中 200°C ~ 600°C の温度範囲で焼入れあるいは焼なましを行い, 加熱保持時間は 10 min とした。なお焼入れは, 加熱保持後ただちに中(約 20°C)で行いマトリックスの組織を固定させた。

2・2 引張試験および顕微鏡組織の観察 引張試験はインストロン形引張試験機にエアージャックを取付けて行い, 荷重はロードセルの信号を動ひずみアンブを介してペンレコーダに記録した。試験条件は, ゲージ長さ 50 mm, 引張速度 0.5 mm/min とした。強度およびそのばらつきを調べるための標本の大きさとして, 試料本数はいずれも約 40 本とした。

顕微鏡組織は粒度の異なる数種のダイヤモンド研磨

* 原稿受付 平成 2 年 4 月 13 日。

^{*1} 正員, 広島大学工学部 (〒724 広島市西条町下見)。

^{*2} 准員, 広島大学大学院。

材を用いて複合材を注意深く研磨し、5% HF 水溶液を腐食液として組織を現出させた。マトリックス組織の変化を確かめるため微小硬度計で10点測定(荷重10 g)してその平均値をマトリックスの硬度とした。また、プリフォームワイヤの断面組織写真から繊維の体積含有率(V_f)を測定した。

2.3 抽出繊維の引張試験 加熱による繊維強度の変化を考慮するため10% NaOH 水溶液でプリフォームワイヤのマトリックスを溶かして繊維を抽出し、その単繊維強度を測定した。このとき、ゲージ長さは10 mm、引張速度は0.2 mm/minとし、試料本数を60本とした。

3. 実験結果

3.1 引張実験結果 図1 a)およびb)はそれぞれ焼入れしたSiC/Al-5.7 NiおよびSiC/pure-Al プリフォームワイヤの引張試験結果をワイブル確率紙上にプロットしたものである。図2は焼入れ熱処理したプリフォームワイヤの強度(図1)および焼なましたその強度を熱処理温度に対してプロットしたものである。これらの図から、熱処理温度450°CまではSiC/

pure-Al よりSiC/Al-5.7 Niのプリフォームワイヤの強度が約125 MPa ほど高いことおよび熱処理温度400°CまではSiC/pure Al もSiC/Al-5.7 Ni も強度はほとんど変わらないことがわかる。また、SiC/pure Al の450°C処理の強度は供試材よりわずか2.2%だけ低下し、焼入れ温度の上昇に対し大きな低下が認められないのに対し、SiC/Al-5.7 Ni は450°Cを超えると強度は大幅に低下することが認められる。例えば、焼入れ温度600°Cの場合にはSiC/Al-5.7 Ni のほうは供試材より37.2%ほど低下したのに対し、SiC/pure-Al は14.1%しか低下していない。またSiC/Al-5.7 Ni の強度は焼なましたものは350°Cまで焼入れのそれと同じぐらいであるが、それ以上の温度では低下が大きい。これらの結果はSiC/Al-5.7 Ni がマトリックスにAl-Al₃Ni 共晶を持っているに対して、SiC/pure-Al のほうは α 相単相だけであるから、熱処理によるマトリックス特性の変化や反応による繊維強度の低下などの点から検討しなければならない。

3.2 強度のばらつき 図3および図4は、それぞれSiC/Al-5.7 Ni およびSiC/pure-Al プリフォームワイヤの強度ワイブル形状母数および変動係数C. V. に及ぼす熱処理温度の影響を示したものである。図からわかるように、SiC/Al-5.7 Ni は熱処理温度の上昇とともに形状母数は小さくなり、変動係数C. V. は大きくなるのに対して、SiC/pure-Al はほとんど変わらず、形状母数 m がほぼ27ぐらいで、変動係数C. V. が約4%である。すでに行った高温引張試験⁷⁾によれば、SiC/Al プリフォームワイヤは温度が高くなるにつれ、そのばらつきはやや大きくなる。これらの結果に対する要因として、熱処理によるマトリックス特性の変化および抽出繊維強度特性の変化などから調べる必要がある。

3.3 抽出繊維強度 図5は抽出繊維の引張試験結果の一例をワイブル確率紙上にプロットしたもので

図1 焼入れ熱処理をしたプリフォームワイヤの引張強度のワイブル確率紙上のプロット

図2 熱処理をしたプリフォームワイヤの強度と温度の関係

ある。図6は抽出繊維の強度とそれから計算した強度保持率(σ_0/σ_R :熱処理材からの抽出繊維強度/供試材からの抽出繊維強度)を熱処理温度とともに示したものである。この結果により、600°Cに焼入れしたSiC/Al-5.7Niからの抽出繊維の強度保持率はSiC/pure-Alのそれより低いことがわかる。すなわち、熱処理によりSiC/Al-5.7Niの抽出繊維の強度は大きく低下する。これは高温保持中にマトリックス中のNiがSiC繊維と反応し、繊維が損傷したものと考えられる。このことは図2に示したように、450°C以上のSiC/Al-5.7Niの強度が大きく低下する原因の一つと

図3 SiC/Al-5.7Ni プリフォームワイヤの強度のばらつきに及ぼす熱処理温度の影響

図4 SiC/pure-Al プリフォームワイヤの強度のばらつきに及ぼす焼入れ熱処理温度の影響

考えられる。しかし、どの熱処理温度でもSiC/Al-5.7Niの抽出繊維はSiC/pure-Alのそれより高い強度を示したので、単に抽出繊維の強度から図2のプリフォームワイヤの強度の温度依存性を説明できるものではない。すなわち、熱処理によって変化するマトリックスの組織変化についても考慮する必要がある。

3.4 マトリックスの組織および硬度 図7は焼入れ温度にともなうSiC/Al-5.7Niの顕微鏡組織を

図5 抽出単繊維の強度のワイブル確率紙上のプロット

図6 抽出繊維の強度および強度保持率(σ_0/σ_R :強度保持率)

図 7 SiC/Al-5.7 Ni ブリフォームワイヤの顕微鏡組織

示したものである。Al-5.7% Ni 合金は共晶成分に近く焼入れ状態ではマトリックス組織がほとんど共晶 Al-Al₃Ni である。しかし焼入れ温度が 350°C を超えると共晶がだんだん消滅し、600°C になると観察されなくなることがわかる。図 8 は二種のブリフォームワイヤ内のマトリックスの硬度測定結果である。これによれば、SiC/Al-5.7 Ni のマトリックスの硬度は 300°C ぐらいから著しく低下し、その組織の変化と対応していることがわかる。これに対して、SiC/pure-Al は熱処理を受けてもマトリックスはなんら変化が起こらないので、マトリックスの硬度 (H_V) もほぼ一定 (31 kgf/mm² ぐらい) である。Al-Al₃Ni 基共晶合金では、焼なましにより共晶は細かく粒状化されることおよび粒状化が進むにつれ強度の低下することが報告されている⁽⁹⁾。すなわち、本実験の SiC/Al-5.7 Ni の組織とマトリックスの硬度の変化は共晶 Al-Al₃Ni の粒状化によるものと考えられる。

4. 考 察

4.1 ブリフォームワイヤの強度に及ぼす要因 高温保持による繊維強度の低下および熱処理によるマトリックス特性の変化の二つの要因を複合則 (ROM) を用いて検討する。まず抽出繊維の強度を用いて複合則によりブリフォームワイヤの強度を計算した。次に引張試験によって得たブリフォームワイヤの強度を 10 mm のゲージ長さのものに換算した。この換算は次のように行った。いま、ブリフォームワイヤの強度が 2 母数ワイブル分布に従うと仮定すると、累積確率 $F(\sigma)$ は次式で表される。

図 8 ブリフォームワイヤ内のマトリックスの微小硬度

$$F(\sigma) = 1 - \exp\{-(L/L_0)(\sigma/\sigma_0)^m\} \quad \cdots \cdots (1)$$

ここでは、 L はゲージ長さであり、 L_0 は基準とするゲージ長さ、 m 、 σ_0 はそのときのワイブル母数である。また、寸法効果は次式によって評価できる。

$$\sigma_{10} = (50/10)^{1/m} \sigma_{50}$$

ここで

σ_{10} : ゲージ長さ 10 mm のときの強度の平均値

σ_{50} : ゲージ長さ 50 mm のときの強度の平均値

である。

図 9 には 2 種類のブリフォームワイヤの複合則による強度保持率 σ_0/σ_R (熱処理後の強度/熱処理前の強度) と引張試験による強度の保持率を示した。ここで強度保持率を用いて考察するのは、図 2 と図 5 に示した

ように、2種類のプリフォームワイヤの供試状態の強度および抽出繊維の強度とそのばらつきが違って直接比較できないからである。複合則は次式を用いた。

$$\sigma_c = \sigma_f V_f + \sigma_m (1 - V_f) \dots\dots\dots (2)$$

ここで σ_f は抽出繊維の強度を、 V_f はプリフォームワイヤの断面写真から測定した繊維体積率(純Alマトリックス材： $V_f=34.9\%$ 、Al-5.7%Niマトリックス材： $V_f=32.7\%$)を用いた。また、 σ_m は複合材破壊時のマトリックスの負担する応力であり、マトリックスの強度が熱処理によって不変と考えるとき、pure-Alについては100 MPaとし、Al-5.7%Niについては200 MPaとした⁽¹¹⁾また、それが熱処理温度に依存すると考えるときは便宜上、微小硬度に比例するものとし、図8の結果を利用した。

いま、マトリックスの強度特性が熱処理によって変化しないとすると、複合則による強度保持率は高温保持による繊維強度の低下だけに依存し、表1の最初の列のように計算される。ところが、SiC/Al-5.7Niは熱処理によってマトリックスの強度が低下するので、この低下を考慮すると表1の第2の列のように計算される。表1と図9において、SiC/pure-Alでは複合則による強度保持率と実験値とが一致しているので、プリフォームワイヤの強度低下は高温保持による繊維の強度低下だけによるもの(図9)と考えられる。SiC/Al-5.7Niでは400℃まで共晶Al-Al₃Niが完全に粒状化されていらないからSiC/pure-Alと同じようにプリフォームワイヤの強度低下は高温保持による繊維の強度低下だけによるものと考えられる。ところで、SiC/Al-5.7Niの熱処理温度が600℃の場合は図9において実験値と複合則値がかなり離れているが、これは共晶Al-Al₃Niの粒状化が進行しているのでプリフォー

ムワイヤの強度低下は繊維の強度低下だけではなくマトリックスの組織変化による強度低下も効くようになってくることを意味している。熱処理によってAl₃Niの共晶が粒状化したが、この形態変化が複合材強度に効いたとは考え難い。したがって、マトリックスの強度低下を考慮してもなお複合則による強度保持率が実験によるそれに比べて高いことは、プリフォームワイヤの強度に及ぼすマトリックスの組織変化の影響がその変化による強度低下分に上乗せして効くこと、言い替えれば、記述の簡単な複合則で表せない要因があることを示している。本実験ではこの要因を具体的に見い出せなかったが、熱処理に伴うマトリックスの加工硬化特性の変化、プリフォームワイヤのいたるところに観察される繊維配向のみだれ、界面強度などが関与しているのではないかと考えられる。

上述の考察から図2のプリフォームワイヤの引張試験結果を説明すると、SiC/Al-5.7Niではマトリックスがほとんど共晶Al-Al₃Niであるから、応力伝達能が強く、強化繊維の強度も高い(図6)ので350℃まで高い強度を示しているが、400℃から繊維強度が低下するとともに共晶が粒状化しはじめ、600℃になると細かく粒状化され、応力伝達能が弱められ、プリフォームワイヤの強度が急に下がると考えられる。一方、SiC/pure-Al材でのマトリックスは単純な α 相なので、応力伝達能が弱く、強化繊維もSiC/Al-5.7Niのそれに比べ若干弱かった(図6)ので450℃ぐらいまでの強度はSiC/Al-5.7Niより低い。しかし、熱処理によるマトリックスの変化は起こらず、550℃以上ではSiC/Al-5.7Niのより強いと考えられる。

4.2 プリフォームワイヤのばらつきに及ぼす要因

藤井ら⁽¹²⁾は複合則に基づいて繊維強化プラスチック(FRP)の強度とその分布への影響要因を検討し、マトリックスが弱くなるとFRPの強度の変動係数は大きくなる結果を得ている。また著者ら⁽¹⁰⁾は、シアラグモデルを用いて、高温でのマトリックスのせん断降伏強度の低下にともなうFRMの強度をモンテカルロシミュレーションによって推定した。そして高温になるに従って、破断繊維に起因する応力集中範囲が広がり、強度のばらつきは大きくなることを指摘した。さらに、

図9 熱処理を受けたプリフォームワイヤの強度保持率

表1 抽出繊維強度を用いた複合則によるプリフォームワイヤの強度保持率(σ_0/σ_R)およびその実験値

FRM	マトリックス強度不変		マトリックス強度変化考慮		実験値	
	400℃	600℃	400℃	600℃	400℃	600℃
SiC/pure-Al	0.98	0.87	0.98	0.87	0.98	0.85
SiC/Al-5.7Ni	0.95	0.82	0.93	0.78	0.98	0.83

本実験と同様な SiC/pure-Al プリフォームワイヤの高温引張試験結果を図 10 に引用する⁽⁷⁾。これから、温度が高くなるにつれ強度のばらつきが大きくなっていることが認められ、本実験で用いた SiC/Al-5.7 Ni と同じ傾向にあることがわかる。一方、SiC/pure-Al は熱処理を受けてもマトリックスの硬度はなんら変化せず、複合材強度のばらつきはほとんど変わらなかった。以上のことから、複合材の強度のばらつきは、強化繊維のばらつきのほかにマトリックスが負担できる応力レベル（変形抵抗）に関係があり、たとえば、マトリックスの耐力が小さいほど FRM の強度のばらつきは大きくなると考えられる。

5. 結 言

本研究は、2 種類の SiC/Al 合金プリフォームワイヤに熱処理を施し、引張試験を行って強度とそのばらつきを調査するとともに、マトリックスの強度がプリフォームの強度とばらつきに及ぼす影響を検討したものである。得られた結果は、以下のとおりである。

(1) SiC/pure-Al および SiC/Al-5.7 Ni プリフォームワイヤは、焼入れの温度が 450°C までは強度低下が少ない。その温度以上では SiC/pure-Al より SiC/Al-5.7 Ni の強度の低下が大きく、600°C の焼入れ処理では SiC/pure-Al および SiC/Al-5.7 Ni の強度保持率がそれぞれ 0.85 および 0.63 であった。

(2) SiC/pure-Al の強度のばらつきは熱処理温度に依存せず一定であったが、SiC/Al-5.7 Ni ではその温度が高くなるにつれ大きくなった。この変化はマトリックスの硬度の変化に対応することが確かめられた。

(3) 本実験の範囲内で、いわゆる強度の複合則はマトリックスの強度の変化に追従できないと考えられる。

図 10 試験温度の上昇に伴う SiC/Al プリフォームワイヤの強度のばらつき

文 献

- (1) 今井・ほか 3 名, 鉄と鋼, 75-9(1989), 1555-1562.
- (2) Igata, N., ほか 5 名, 31 st International SAMPE Symposium, (1986-4), 1561-1570.
- (3) Imai, Y., ほか 2 名, 20th International SAMPE Technical Conference, (1988-9), 1-12.
- (4) 手塚・ほか 3 名, 文献(1)の 1470-1477 ページ.
- (5) Okura, A. and Ide, T., Interfaces in polymer, Ceramic and Metal Matrix Composites, (1988), 643-656, Elsevier Science Publisher.
- (6) Favry, Y. and Bunsell, A. R., Composite Science and Technology, 30(1987), 85-97.
- (7) 細谷・ほか 3 名, 日本機械学会第 67 期全国大会概要集, (1989), 38-39.
- (8) 大西・第 4 回次世代産業基盤技術シンポジウム-金属・複合材料技術-予稿集, (1987-11), 335-342.
- (9) 柳沢・ほか 2 名, 第 10 回軽金属技術講演概要, (1988-4), 22-33.
- (10) Goda, K. and Fukunaga, H., Composites Science and Technology, 35(1989), 181-193.
- (11) Mondolfo, L. F., Aluminum Alloys: Structure and properties, (1976), 00, Butterworth & Co (Publishers) Ltd, p. 339.
- (12) 藤井・ほか 1 名, 材料, 27-303(1978), 57-62.