

2022年9月

関西大学審査学位論文

軽金属基複合材料のエンジン部品適用に向けた研究

府山 伸行

《論題》

軽金属基複合材料のエンジン部品適用に向けた研究

《概要》

本研究では軽金属の物性を効果的に向上させる可能性を持つ複合強化技術を対象に、中小企業でも比較的適用しやすい液相プロセスにて耐摩耗性や耐熱性を高めたエンジン部品の実現を目指した。一般的なセラミック系繊維、新規な金属間化合物系繊維強化材によるそれぞれの複合強化技術について、製法・設計の最適化や機械的性質向上の観点から、モデル実験、構成方程式などで理論構築を行い、2つのエンジン部品製造を通じて有効性を検証することを目的とした。

① Al_2O_3 繊維強化 AC8A アルミニウム合金複合材料をライニング層とする耐摩耗摺動特性を向上させた小型アルミニウム合金エンジンハウジングへの適用を目指した。ラジコンヘリ向けロータリーエンジン (RE) ローター (排気量 30 cc) を設計し、最適化した空隙欠陥を最小限とする低圧浸透条件によって試作し、従来の Ni めっきと比べ摩耗量が約 1/15、Cr めっきと比べ相手材攻撃性は約 1/8 に改善する効果が得られた。優れたエンジン出力特性を示すなど、低圧での溶湯浸透法による複合強化技術の道筋を得た。

② FeCrSi 繊維強化 AC8A アルミニウム合金複合材料は、高出力・低燃費の自動車用エンジンに対応するため、燃焼部の高温強度・疲労特性を向上させたアルミニウムピストンへの適用を目指した。頭頂部の部分強化位置は幅や厚みを可変させた強度シミュレーションを行い、最大主応力値を抑えた。得られた最大主応力値をもとに、導出した高温変形構成方程式を活用することで、使用高温域でのひずみ速度レベルを概算可能となった。このひずみ速度下で自動車エンジンの耐久年数 (時間) を勘案したピストンクリアランス精度の維持について、設計の許容を考察できた。

本研究成果により軽量部品の効率的な設計・製造が可能となり、地域産業における中小企業の基盤技術強化に繋がることを期待される。

《各章の要旨》

第 1 章は、研究の背景として、環境問題や軽量化の要望を受けた複合強化技術の多様性と高度化に向け、従来の複合強化技術の技術要素と課題を整理した。本研究ではセラミック系繊維、金属間化合物系繊維強化材によるそれぞれの複合強化技術について、製法・設計の最適化や機械的性質向上の観点から、理論構築を行う研究指針を示すことで、本研究の意義と目的を明確化した。

第 2 章は、耐摩耗摺動特性が期待されるセラミック系強化材を使用した軽金属基複合材料の製法のうち液相法での課題解決のため、①溶湯攪拌法の水モデル実験や②溶湯浸透法のガス圧力モデル実験やを通じて空隙率や分散性に関して基盤研究を行った。

①溶湯攪拌法のうち固液共存状態のコンポキャストを可視化した水モデル実験により、半熔融状態の見かけの粘性に及ぼす攪拌条件の影響および強化材の投入方法について評価した。さらに実際にセラミック系強化材としてホウ酸アルミニウム粒子およびウィスカを、マトリックスとして AZ91D マグネシウム合金を使用し、コンポキャストした複合材料を作成し、その作製条件と組織の関係を調査した。

水中における可視化モデル実験をもとに、コンポキャスト時のガス欠陥の抑制や、強化材体積率と固相率の関係性について分散性を指標に構築した。固相率 20%まではみかけ上完全液体 (0%固相率) と同じように流動することから、20 %fs と 0 %fs では強化材粒子は同じ分散挙動を示す一方、33 %fs ではマトリックスの対流が低減したために、ブレード付近においても強化材が均一に分散するなど十分な粘性で

あることを見出し、最適なコンポキャスト条件を確認できた。ブレードにより直接巻込まれたガスおよび強化材中に捕捉されているガスを可視化することで、適切なブレードから液表面までの距離、ブレードの回転数を調整し、マトリックスの粘性がガスの巻込みを低減させた。特に、強化材はマトリックスの下に置き、ブレードにより直接強化材を攪拌することで、マトリックスと強化材を完全に混合することができた。このモデル実験結果から実铸造し、強化材体積率 10 %、固相率は約 30 vol% (853 K) で作製することにより、マトリックスの対流が低減させ、ブレード付近においても強化材を均一分散させることができた。また、強化材として粒子よりもウイスカ形態を用いた場合、見かけの粘性がさらに上昇することで初晶の分断効果が増すことも明らかにした。

②溶湯浸透法による浸透圧力制御は、強化材料の予備成形体(プリフォーム)に母材となる軽金属溶湯を、強度や耐摩耗性を損なわない最低限の圧力で浸透させる新しい取り組みである。高圧(約 50 MPa 以上)で浸透させるものが一般的で専用装置が必要であり、製造コストが問題視されていた。高圧浸透と同等の強度特性を有する、低圧での浸透条件確立を目的に、一般的なセラミック繊維(Al_2O_3)で強化した AC8A アルミニウム合金基複合材料を作製し、浸透圧力による空隙(気孔)形成状態や引張強度への影響を調査した。

ガス加圧による溶湯浸透モデル実験により、濡れにくいとされる Al_2O_3 繊維間に確認される気孔(数 μm)の面積率と浸透圧力の関係性について高温強度特性を指標に構築した。目標の気孔面積率(1 % 以下)と高温強度(高圧 50 MPa と同等)が得られるガス圧力は 1.3 MPa であり、これ以上不要で飽和する関係性を見出し、最小限の低圧浸透条件を確認できた。 Al_2O_3 繊維強化複合材の引張強度は、室温において浸透圧力すなわち気孔率の影響が大きく、高圧 50 MPa 材と比べ低圧 0.8 MPa 材は 40%程度低下するものの、高温域(503 K 以上)での引張強度の差は縮小した。これは高温でのマトリックスの延性向上に伴う気孔に対する感受性の低下と推定される。

第 3 章は、セラミック系強化材である Al_2O_3 繊維で強化したアルミニウム合金基複合材料に関し、機械的特性のうち DLC コーティングによるさらなるトライボロジー特性の向上を目指した基礎研究を行った。繰り返し回数異なる積層 DLC 膜を成膜することにより、コーティングの亀裂や剥離を引き起こす圧縮残留応力の低減を図るとともに、基材中の強化材体積率との関係性も調査した。

積層 DLC 膜のナノインデンテーション試験の結果、強化材体積率が増加しても硬さやヤング率にほとんど変化なく、基材の影響は受けなかった。一方、積層数は 2 層から 4 層に増加させたことにより硬さに違いは見られなかったが、ヤング率は減少していた。よって積層回数を増加させることで積層 DLC 膜の残留応力が減少し、膜のヤング率を調整できること明らかにできた。

硬さとヤング率から表される 3 つの指標、弾性ひずみ限界(H/E)、塑性変形に対する抵抗力(H^3/E^2)、破壊に対する抵抗力(H^2/E)は、いずれも 2 層より 4 層 DLC 膜の条件が高くなる。つまり膜の耐摩耗性、耐久性ともに 4 層 DLC 膜の方が 2 層 DLC 膜よりも優れていること、破壊に対する抵抗力(Irwin Orowan-Griffith ケース)などで理論構築できた。

セラミックボールとの平面往復摩擦摩耗試験の結果、摩耗減量や剥離に至る臨界回数は、基材の強化材体積率の増加や DLC 積層数の増加とともに改善することがわかった。強化材体積率による改善は、基材全体の硬さやヤング率の向上に起因し、DLC 積層数による改善は、ナノインデンテーション試験での優れた 3 つの指標で整理できる。一方で摩擦係数は DLC 積層回数が低い 2 層 DLC 膜の方が、同じ硬さでありながら大きいヤング率を有しているので、変形しにくく、接触面積が減少するため、低減が図れた。

第 4 章は、高温域での機械的性質向上に大きく関与する金属間化合物系繊維強化材の反応性を制御する基礎研究を行った。金属系強化材はセラミック系強化材と比較し、熱処理時等の界面反応による強度劣化が問題視されている。 FeCrSi 繊維強化軽金属複合材料の as-cast 時の界面反応性や、溶体化

処理温度を変化させた際の界面反応層の形成状態を調べ、高温強度特性への影響を評価した。

①FeCrSi 繊維強化 AC8A アルミニウム合金複合材料の場合、溶体化処理温度 773 K, 処理時間 3.6 ks 以上で Al-Fe 系金属間化合物の界面反応生成物の形成が始まり、溶体化処理温度 788 K では繊維表面にさらに均一生成し、化合物厚さも 10 μm 前後に達した。溶体化処理温度 763 K 付近では処理時間 14.4 ks においても反応生成物が生じない条件を把握した。本複合材料はマトリックスの JIS 推奨 (JIS H 5202) 溶体化処理温度 783 K から 763 K に変更した場合、マトリックス時効生成物量が少ないために硬さ、引張強度も数%低下したが、573 K での高温疲労強度は応力振幅 60 MPa において 10^7 回以上に達し、溶体化処理温度 783 K 材の 10^6 回より大幅に改善され、実用熱処理条件を確立できた。

②FeCrSi 繊維強化 AXE522 マグネシウム合金複合材料の場合、as-cast 時に Al-Ce 化合物の界面反応が確認された。各試験温度において、マグネシウム合金単体よりも高い引張強度を有し、界面化合物の影響はなかった。特に 523 K 以上では AC8A アルミニウム合金(T6)よりも高い引張強度を有した。

アルミニウム合金およびマグネシウム合金をマトリックスとする FeCrSi 繊維/軽金属複合材料の引張強度は、試験温度の上昇に伴い、繊維による強化効率は向上した。線形複合則および Baxter 理論式を用い、室温では界面せん断強度の低い理論値に近い値を示し、高温では、界面せん断強度の高い理論値に近い値を示す傾向を明らかにした。高温域では繊維がマトリックスから径方向に圧縮応力を受け、みかけの界面せん断強度が向上したことで強化効率が高くなることを理論構築できた。

第 5 章は、高温強度が期待される金属間化合物繊維系強化材を使用した FeCrSi 金属繊維強化 AC8A アルミニウム合金複合材料の最適設計に必要な強度予測に関する基礎研究を行った。高温用構造材料として使用温度領域での強度予測は部品設計で重要な課題である。高温変形挙動の構成方程式算出は、これまでに実用的な鋳物用共晶 Al-Si 系を母相としたアルミニウム合金基複合材料データが少なく、かつ強化相が粒子から連続繊維までの考慮は困難であった。高温圧縮試験を行うことにより、高温強度と変形機構を明らかにし、高温変形の構成方程式を導出を試みた。

FeCrSi 繊維の体積分率の増加により、AC8A/FeCrSi_f の流動応力は増加した。流動応力 σ とひずみ速度の間には線形関係は $\epsilon^{-1/5}$ (応力指数 $n=5$) により良い直線近似が得られ、しきい応力を算出することができた。加えて、しきい応力も FeCrSi 繊維の体積分率の増加により向上が見られた。AC8A/FeCrSi_f の高温変形の活性化エネルギーは 15 vol% では 159 kJ/mol, 20 vol% では 143 kJ/mol であり、純アルミニウムの格子拡散の活性化エネルギーである 142 kJ/mol と良い一致を示したことから、AC8A/FeCrSi_f の高温変形は母相の格子拡散律速であると考えられる。FeCrSi 繊維体積分率の増加によるしきい応力の上昇、格子拡散と転位芯拡散といった変形機構の違いおよび亜結晶粒界のピン止めとして働く粒子間隔を考慮することにより、AC8A/FeCrSi_f の高温変形の構成方程式【20vol%: $\epsilon=0.9 \times 10^5 (G_0/kT) (\sigma-\sigma_0/G)^5 D_L$ 】が算出できた。得られた構成方程式を用いることで、FeCrSi_f/AC8A のひずみ速度依存性および温度依存性を有した塑性変形挙動の理論構築が初めて可能となった。加えて、粒子間隔 λ も考慮したマイクロ組織から解析結果と構成方程式を用いた数値解析結果は良く一致しており、信頼性も保証した。得られた共晶合金基複合材料の構成方程式は、アルミニウム合金複合材料の高温強度向上のために、母相中の分散粒子もしくは複合材の粒子間隔を小さくすればよいという設計指針を数式化できており、高温強度の概算が可能となるため、自動車部品用の高温用構造材料として、共晶 Al-Si 合金基複合材料を使用する際に活用できると考えられる。

第 6 章は、各強化材による 2 つの複合材に関して、製法・設計の最適化や機械的性質向上の観点から研究成果を実製品製造を通じて有効性を検証した。

①Al₂O₃ 繊維強化 AC8A アルミニウム合金複合材料をライニング層とする小型アルミニウム合金エンジンハウジングへの適用を目指した。ラジコンヘリ向けロータリーエンジンローター (排気量 30 cc) を設計し、第 2 章で最適化した空隙欠陥を最小限とする低圧浸透条件によって試作し、従来の Ni めっきと比べ摩耗

量が約 1/15, Cr めっきと比べ相手材攻撃性は約 1/8 に改善する効果が得られた。優れたエンジン出力特性を示すなど、低圧での溶湯浸透法による複合強化技術の道筋を得た。

②FeCrSi 繊維強化 AC8A アルミニウム合金複合材料は、高出力・低燃費の自動車用エンジンに対応するため、燃焼部の高温強度・疲労特性を向上させたアルミニウム合金ピストンへの適用を目指した。頭頂部の部分強化位置は幅や厚みを可変させた強度シミュレーションを行い、最大主応力値を抑えた。得られた最大主応力値をもとに、第 5 章で導出した高温変形構成方程式を活用することで、使用高温域でのひずみ速度レベルを概算可能となった。このひずみ速度下で自動車エンジンの耐久年数(時間)を勘案したピストンクリアランス精度の維持について、設計の許容を考察できた。

第 7 章は総論として、本研究により得られた知見をまとめ、今後の展開など総括を行った。

以上

博士論文

軽金属基複合材料のエンジン部品適用に向けた研究

Research for application of light metal matrix composites to engine parts

2022年5月

府山 伸行

目 次

第 1 章「緒 論」

1.1 複合材料の背景(環境問題, 軽量化)	1
1.2 複合材料の技術要素	2
1.2.1 強化材選定	2
1.2.2 複合強化設計	2
1.2.3 複合化手法	3
1.2.3.1 固相プロセス	3
1.2.3.2 液相プロセス	4
1.3 複合材料製造技術の課題	5
1.4 本論文の構成	7
参考文献	10

第 2 章「セラミック強化軽金属複合材料の溶湯法における分散性と空隙率の改善」

2.1 緒言	12
2.2 実験方法	
2.2.1 溶湯攪拌法	
2.2.1.1 供試材料	14
2.2.1.2 溶湯攪拌の可視化モデル実験	15
2.2.1.3 溶湯攪拌による複合材料の実証作製	16
2.2.2 溶湯浸透法	
2.2.2.1 供試材料	17
2.2.2.2 ガス圧力による低圧での溶湯浸透モデル実験	18
2.2.2.3 複合材料の機械的特性評価	19
2.3 実験結果と考察	
2.3.1 固液共存状態における強化材の溶湯攪拌条件と組織の関係	
2.3.1.1 可視化モデルによるガス巻き込みと粘性の関係	20
2.3.1.2 可視化モデルによる液高さと回転数のガス巻き込みの関係	21
2.3.1.3 可視化モデルにおける強化材の投入方法の影響	22
2.3.1.4 可視化モデルによるガス気泡の様子	23
2.3.1.5 半熔融状態における初晶の攪拌への効果	24
2.3.1.6 半熔融状態における強化材形態の攪拌への効果	25
2.3.1.7 複合材料ビレット断面における強化材の分散性	26
2.3.1.8 複合材料ビレット断面における初晶の分散性	27
2.3.2 強化材成形体への溶湯浸透条件による空孔率と機械特性の関係	
2.3.2.1 浸透圧力による空孔の形成状態	28
2.3.2.2 浸透圧力と空孔量の関係	29
2.3.2.3 空孔の強度への影響	30
2.3.2.4 浸透圧力と高温強度の関係	31
2.3.2.5 強化材 Ni コーティングの空孔量への影響	32

2.3.2.6 強化材 Ni コーティングの機械的特性への影響	34
2.4 小括	35
参考文献	36

第3章「セラミック強化軽金属基複合材料の積層 DLC コーティングによる表面特性の改善」

3.1 緒言	38
3.2 実験方法	
3.2.1 供試材料	39
3.2.2 積層 DLC の成膜	41
3.2.3 DLC 膜の機械特性試験	42
3.3 実験結果と考察	
3.3.1 DLC 積層膜の構造	43
3.3.2 DLC 膜の密着性	44
3.3.3 DLC 膜の機械的特性	46
3.3.4 DLC 膜の耐摩擦性	49
3.3.5 DLC 膜の耐摩耗性	50
3.3.6 DLC 膜の耐久性	51
3.4 小括	52
参考文献	53

第4章「金属繊維強化軽金属基複合材料の界面反応による高温強度への影響」

4.1 緒言	55
4.2 実験方法	
4.2.1 供試材料	56
4.2.2 油圧プレス機による溶湯浸透実験	59
4.2.3 熱処理および材料物性評価試験	60
4.3 実験結果と考察	
4.3.1 FeCrSi/Al 複合材料	
4.3.1.1 溶体化処理条件による FeCrSi/Al の界面反応特性	61
4.3.1.2 硬さおよび引張強度への界面反応層の影響	64
4.3.1.3 FeCrSi 繊維の引張破面形態	65
4.3.1.4 疲労強度と界面反応層の関係	66
4.3.2 FeCrSi/Mg 複合材料	
4.3.2.1 複合化時における FeCrSi/Mg の界面反応特性	68
4.3.2.2 引張強度への界面反応層の影響	69
4.3.2.3 FeCrSi 繊維の引張破面形態	71
4.3.2.4 引張強度の複合則と実験値との比較	73
4.3.2.5 引張弾性率の複合則と実験値との比較	74
4.3.2.6 引張強度の Baxter 理論と実験値との比較	75
4.3.3 FeCrSi 繊維による高温域での強化効率向上メカニズム	
4.3.3.1 繊維/マトリックスの界面反応の効果	77
4.3.3.2 繊維とマトリックスの線膨張係数差による残留応力の効果	78

4.3.3.3 試験温度による変形機構の効果	79
4.4 小括	80
参考文献	81

第5章「金属繊維強化軽金属基複合材料の高温強度予測」

5.1 緒言	82
5.2 実験方法	
5.2.1 高温変形構成方程式の考え方	83
5.2.2 圧縮試験	85
5.2.3 ヤング率測定	88
5.3 実験結果と考察	
5.3.1 ヤング率と温度の関係	89
5.3.2 流動応力のひずみ速度依存性	90
5.3.3 しきい応力の温度依存性	91
5.3.4 活性化エネルギーの算出	93
5.3.5 FeCrSi/AC8A の構成方程式	94
5.3.6 粒子間距離 λ を考慮した構成方程式	95
5.3.7 構成方程式の実際の粒子間距離 λ による信頼性検証	97
5.4 小括	98
参考文献	99

第6章「軽金属基複合材料のエンジン部品への適用」

6.1 緒言	100
6.2 実験方法	
6.2.1 ラジコンヘリ用小型ロータリーエンジンの設計と実体評価	
6.2.1.1 小型ロータリーエンジンの設計	101
6.2.1.2 ローターハウジング摺動面の高温湿式下での耐摩耗試験	104
6.2.1.3 低浸透圧力でのアルミ複合材料ローターハウジングの作製	105
6.2.1.4 小型ロータリーエンジン搭載無人ヘリコプターの製作	106
6.2.2 自動車エンジンピストンの設計シミュレーションと実体評価	
6.2.2.1 設計解析モデルと計算方法	107
6.2.2.2 エンジンピストンの熱衝撃試験	109
6.3 実験結果と考察	
6.3.1 セラミック強化軽金属基複合材料による小型ロータリーエンジンハウジング	
6.3.1.1 複合材料の高温湿式耐摩耗性	110
6.3.1.2 複合強化ローターハウジングの浸透不良	112
6.3.1.3 複合強化ローターハウジングの切削加工性	113
6.3.1.4 小型ロータリーエンジンの出力特性	114
6.3.1.5 複合強化ローターハウジング内面の耐久性	116
6.3.1.6 小型ロータリーエンジン搭載無人ヘリコプターの飛行試験	117
6.3.2 金属繊維強化軽金属基複合材料による自動車エンジンピストン	
6.3.2.1 エンジンピストン複合強化位置による相当応力の計算	118

6.3.2.2	構成方程式によるエンジンピストン設計の安全性検証	120
6.3.2.3	エンジンピストンの熱衝撃特性	121
6.4	小括	123
	参考文献	124
第7章「総括」		125
謝辞		129
本論文の基礎となる発表論文		130

第 1 章

「緒 論」

1.1 複合材料の背景(環境問題, 軽量化)

CO₂ 排出量の増加による地球温暖化は深刻な環境問題である。主な原因として輸送機器, 特に自動車部門からの排出量が日本においては全体の 20 %以上であると報告されている¹⁾。このように, 資源の枯渇の観点からも自動車の燃費向上は必須である。自動車の燃費向上においては内燃機関における運動部品の軽量化または内燃機関と電動機の併用によるハイブリッド化とともに EV 化の流れが押し寄せている。加えて, カーボンニュートラルなどの地球環境問題への意識の高まりにともなって製造業の各分野でも省エネルギーや省資源, 有害物質の低減についての取り組みが社会的課題となっている。自動車や航空機といった輸送機器の軽量化は, 燃料消費量の削減および省エネルギーにつながるため, 軽量かつ高強度, 耐食性を持つ材料を選ぶことが重要となる。これらに用いられる金属ベースの材料において, すでに金属単体で得られる特性は限界を迎えつつある。

そこで, 材料の複合化によって, 単体では決して得られない特性を得ることが期待されている。複合材料は, 母材(composite matrix)と強化材(reinforcing element)を組合せて, 双方の長所によってお互いの短所を補う材料である。複合材料の起源は古代メソポタミアの日干し煉瓦や日本の藁を混ぜた土壁にまで遡ると言われる。樹脂分野の複合材料は, 米国において軍用機の燃料タンク用に開発されたガラス繊維強化プラスチックに端を発し, 航空宇宙分野では構造物の軽量化と高強度高剛性が最も重要視されることから開発が進んだ。そして今日, スポーツ用品, 小型船舶, 航空機, 住宅関連等にも広く実用化されている。

金属をセラミックスなどで強化した複合材料は, 金属基複合材料(Metal Matrix Composite : MMC)と呼び, 1940 年代から研究開発が進められてきた^{2~8)}。金属基複合材料の始まりは, 1960 年頃に行われた鋳造法による銅のタングステン繊維強化と言われている。特に, アルミニウム合金, マグネシウム合金のような軽合金では, 複合化の手法を探ることで比強度・比剛性を大幅に改善できるものとして注目され, 粒子強化, 短繊維強化およびウイスカ強化アルミニウム, マグネシウム複合材料の研究が盛んに行われた^{9~34)}。そのうちのいくつかの軽金属基複合材料が航空宇宙産業や自動車産業をはじめとする多くの産業分野で広く製造・使用されつつある^{35~39)}。

このように, MMC は日常生活の一部となっている。世界の MMC 市場の収益は, 2012 年に 2 億 2870 万米ドル, 2019 年には 3 億 3930 万米ドルとなっており, 2020 年から 2027 年までの年平均成長率(CAGR)は 6.4%と予想されている^{40,41)}。軽金属基の複合材料のターゲットは, 省エネルギーが要求される自動車, 鉄道, 航空機などの移動体において軽量でありながら高強度, 高耐摩擦性能, 高耐熱である特徴を利用して開発が進められ, 内燃機関のピストンやシリンダブロック等の部品やブレーキディスク, 航空機構造部品等への適用で実用化されている。また高熱伝導性, 高剛性という特徴に注目して, 電子回路基板への適用に向けても開発が進められている⁴²⁾。一般的なセラミック強化材も複合化製法の改善で引き続き利用が伸びるとともに, 新規に開発されている金属系強化材も複合化特性の解明が進めば用途拡大が期待される。

また複合材料の特性は, マトリックスと分散(強化)相の特性によって決まるので, 比較的複合結果が予測しやすく, 各種特性は複合則によって算出することができる。しかし, 実際には複合部界面の反応や強化材の偏在などによって特性は理論値よりも劣化し, 目的の性質を持つ複合材料を作製することは容易ではない。かつ我が国の 99%以上を占める中小・小規模事業者でも容易に使い, 経済的で安定した品質を得るための多様性を持った製造プロセス開発や素材開発が必要である⁴³⁾。

1.2 複合材料の技術要素

軽金属基複合材料の主な技術要素としては、Fig. 1-1 に示す①強化材選定、②複合強化設計、③複合化方法と考えられる⁴²⁾。

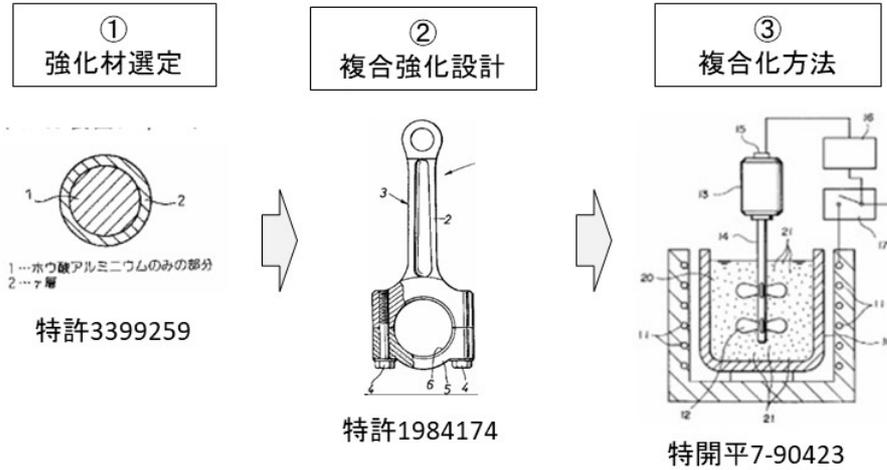


Fig. 1-1 Main technical elements of light metal matrix composites.

1.2.1 強化材選定

強化材の材質にはセラミックス、炭素、金属、金属間化合物がある。炭化物や酸化物など一般的なセラミックス系が中心であるが、異種の金属または金属と非金属からなり、もとの元素とは異なった結晶構造を示すもので規則的に配列している新規な金属間化合物系が有望である。例えばアルミニウム合金マトリクス中の TiAl 金属間化合物なども強化材としても使用される。

金属間化合物の強化材は金属とセラミックスの中間の特性を持ち、靱性向上や摩擦時の低攻撃性等を期待して使用されている。強化材として用いられる W, Mo, ステンレス鋼などの金属繊維は、Al マトリックスに対して濡れ性が高い。一方、Al は活性な金属であり、セラミックスばかりでなく、強化金属繊維と反応したり溶解する。従って、この系の製造は反応・溶解の抑制が中心となる。Al マトリックスの MMC の使用可能温度(500 K 以下)では W, Mo ほどの耐熱性を必要としないので、ステンレス鋼系の繊維を用いた MMC の研究が多い。また製造時の高温はともかく、使用温度では反応の進行も大きくない。従って製造条件さえ制御できれば、反応抑制層を必要としない。このような視点から、集合線引きで製造したステンレス繊維を、高圧鋳造法により短時間で Al 合金に複合化し、反応・溶解の起こるまえに冷却して製品とれたものが実用化されている⁴⁴⁾。

1.2.2 複合強化設計

まず、製品に要求される性能を満足するための材料特性を定めるところからはじまる。その特性を得るためにマトリックスと強化材それぞれの種類、形態、配合率、内部組織等を設計する技術、複合材料と他の材料とを組み合わせる最適な構造・配置を設計する技術(シミュレーション、構成方程式等)からなる。

1.2.3 複合化手法

技術の中心となる複合化手法には、Fig. 1-2 に示す通り大きく分けて固相プロセスと液相プロセスの 2 種類がある^{44,45)}。このうち主な固相プロセスは粉末法，拡散接合法，液相プロセスは溶融攪拌法（コンポキャストリング法），溶湯浸透法である。

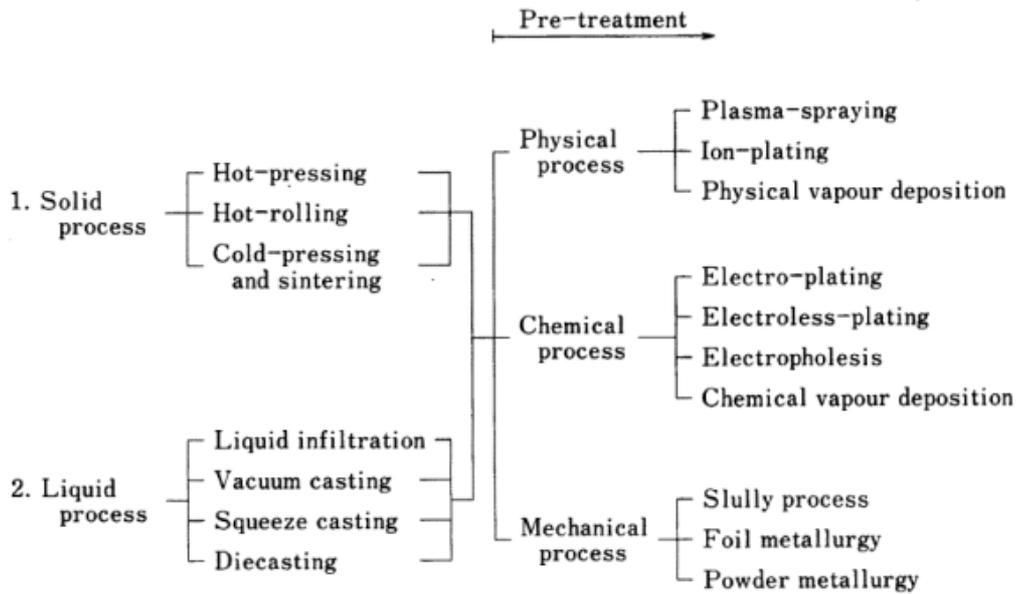


Fig. 1-2 Fabrication process of MMCs. ⁴⁴⁾

1.2.3.1 固相プロセス

強化材とマトリックス金属粉末の予備成形体を，マトリックス金属が溶解しない温度で圧力を加えて MMC を成形する方法を総称して固相プロセスという。融点直下の温度で熱と圧力を加えてマトリックス金属の塑性流動と自己拡散を利用して複合化させる。液相プロセスに比べて Table 1-1 のような長所を持つ一方で，固相プロセスにはのような短所がある⁴⁶⁾。

Table 1-1 Advantages and disadvantages of solid phase processes.

長 所	短 所
高融点金属およびマトリックス金属と濡れ性が悪い繊維に対しても適用可能	複雑な形状の MMC 部品の成形が困難
繊維配向と繊維体積率の調整が比較的容易	液相プロセスと比較し，低い生産性 付帯装置を含め，特殊な設備が必要

①粉末法

金属粉末と強化材である粒子や短繊維を均一に混合し，熱と圧力をかけて互いに結合させ加熱焼結する^{47~57)}。繊維体積率の調整が容易であるが，強化材の体積率が大きくなると焼結し難くなるため，ウイスカの場合で約 25 vol%，粒子の場合で約 40 vol%が上限とされている。また製品形状が比較的単純なものに限られるが，正味形状に近い製品の成形ができる。マトリックス金属を粉末にしなければならない上，

粉末の取り扱いに問題が残り、焼結時に不均一な収縮が起こることがある。

②拡散接合法

連続繊維(長繊維)強化複合材料の製造方法で、金属箔の上に繊維を交互に積層させて、ホットプレス(hot press : HP)で加圧焼結を行うことによって複合材料を製造する^{58~59)}。マトリックス金属を溶かさないうちに特徴があり、液相プロセスと比べてセラミックス繊維の損傷が少ない。繊維表面に溶射や蒸着といった手段でマトリックス金属を被覆して、この繊維を積層して加圧焼結する方法もある。

1.2.3.2 液相プロセス

融点直上の温度で溶融したマトリックス金属を液相流動によって、溶湯中に強化材攪拌混合させたり、強化材予備成形体(プリフォーム)に溶湯を浸透させて MMC を成形する方法を総称して液相プロセスという。液相プロセスは固相プロセスに比べて **Table 1-2** のような長所を持つが、一方でマトリックス金属が溶解、凝固過程を経るので、次のような短所がある⁴⁵⁾。

Table 1-2 Advantages and disadvantages of liquid phase processes.

長 所	短 所
液相流動を利用するため、複合化に要する時間が短く、生産性が良好	プロセス温度が高いため、マトリックスとの反応による繊維の損傷が発生し易い
金型の使用によって、複雑形状の部品が正味形状に近い形で製造可能	凝固に伴う欠陥(引け巣, 偏析, 不均一分散など)が発生しやすい
製造設備が簡単であり、従来の生産設備を用いることが可能	高融点金属マトリックスは適用困難。Al, Mg 合金マトリックス等の低融点合金に適用が多い

①溶湯攪拌法

溶融金属を攪拌しながら強化材である粒子または短繊維、ウイスカを添加し、複合後鑄型に注湯して凝固させ MMC を製造する^{60,61)}。比較的簡単な工程で高いコストパフォーマンスで実現できるが強化材の均一分散が難しく、また強化材体積率を 30 vol%以上とすることは困難と言われている。また添加粒子径が所定の値以下になると、添加粒子が溶湯から分離しやすいとともに、添加粒子の凝集が発生しやすい等の問題点がある。

また、完全液体中と違い、固相線と液相線の間で固相と液相が共存する温度領域に保持し、強攪拌することで改良した半溶融攪拌法(コンポキャスト)が開発された^{62~68)}。デンドライト状(dendritic)に成長していた固相を破壊し球状粒子とすると、流動性のよいスラリー(slurry)が得られる。このスラリーは完全に液体である状態より粘性が高いため、攪拌しながらセラミックス系の粒子を添加すると内部に容易に粒子を巻き込むことが可能である。

②溶湯浸透法

主に強化材の粒子、短繊維またはウイスカで多孔質のプリフォームを製造しそれにマトリックスの金属溶湯を含浸させるもので、加圧浸透^{69~87)}するものと非加圧で自発的浸透^{88,89)}させるものの2種類がある。

加圧浸透は、強化材の粒子または短繊維(ウイスカ)の多孔質プリフォームに溶融金属を接触させ加圧して溶融金属を浸透させて複合化する。圧力を発生させるにはパンチを用いた機械的圧力、ガス圧などの方法がある。最終加圧力として 500~1,000 気圧を利用する方法を高圧鑄造法という。利点としては、
a) 濡れ性の良くない強化材でも複合化が可能。b) 圧力下での凝固時間が短いのでマトリックスと強化材

の界面反応を抑制できる。c) 凝固時間が短いのでマトリックス金属の組織が微細化する。d) 製品に必要な部分複合化が可能である。等があげられる。しかし、基本的には鑄造プロセスであるので、マイクロ偏析およびマクロ偏析が残り、そのために強度の信頼性が低いという短所がみられる。

1.3 複合強化技術の課題

軽金属基複合材料の主要な課題は、1.2.3 で述べたプロセス短所や特許出願傾向からも以下に集約している⁴³⁾。

【製法・設計の最適化】・・・強化材分散性向上，含浸不良防止，強度予測式構築など

【機械的性質の向上】・・・界面反応抑制，強度，耐熱性，耐摩耗性の付与など

これらの課題に対する解決手段は、部品の使用環境を考慮し、1.2 に前述した複合材の特性が決まる「強化材選定」、効果的に複合部の配置する「複合強化設計」、製造欠陥の少ない「複合化手法」の組み合わせで見出せる。本研究では、中小企業にも適用しやすい液相プロセスに絞り込み、「強化材選定」、「複合強化設計」、「複合化手法」の組み合わせで課題解決し、実体 2 部品での検証まで行った。

① 耐摩耗摺動部材に向け、一般的なセラミック系繊維を選定し、溶湯攪拌法の水モデル実験や溶湯浸透法のガス圧力モデル実験を通じて空隙率や分散性を詳細に調査するとともに、積層型 DLC コーティングによりさらに表面特性の向上させた従来研究はみられない。

② 耐熱部材に向け、新規な金属系繊維を選定し、熱処理前後の界面反応層の形成状態、高温強度特性への影響を理論式から調査するとともに、高温変形挙動の構成方程式を算出し設計指針を示した研究は皆無と言っても過言でない。

このように、各強化材の複合材料に関して、製法・設計の最適化や機械的性質向上の観点から、モデル実験、構成方程式などで理論構築を行う研究例はなく、さらに実製品製造を通じて有効性を検証することは工業的にも重要な知見を与えるものと考ええる。

Fig.1-3 に複合強化技術の課題を解決する本研究の概念図を示す。

テーマ「軽金属基複合材料のエンジン部品適用に向けた研究」

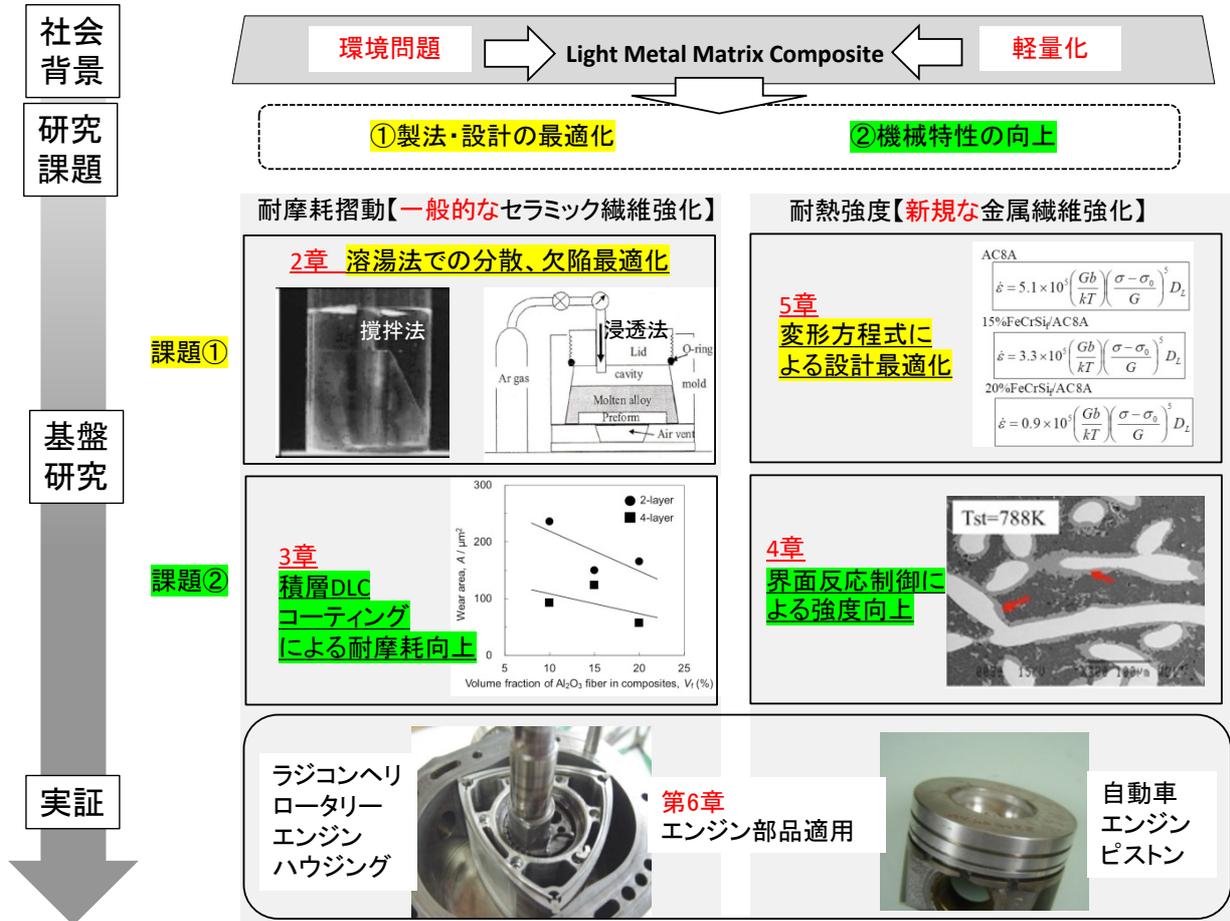


Fig. 1-3 Flow chart of this investigation.

1.4 本論文の構成

本研究では、軽金属の物性を効果的に向上させる可能性を持つ複合強化技術を対象に、耐摩耗性や耐熱性を高めたエンジン部品の実現を目指した。一般的なセラミック系繊維、新規な金属間化合物系繊維強化材によるそれぞれの複合強化技術について、製法・設計の最適化や機械的性質向上の観点から、モデル実験、構成方程式などで理論構築を行い、実製品製造を通じて有効性を検証しようとした。

以下に本論文の基本構成について述べる。

第1章は緒論であり、軽量化技術の多様性と高度化に向けた従来の軽金属基複合材料の要素技術と課題を整理した。このうち、セラミック系繊維、金属間化合物系繊維強化材に着目し、課題である製法・設計の最適化や機械的性質向上の観点から、理論的な制御の可能性など、本研究の意義と目的について述べている。

第2章においては、耐摩耗摺動特性が期待されるセラミック系強化材を使用した軽金属基複合材料の製法を改善するため、①溶湯浸透法のガス圧力モデル実験や②溶湯攪拌法の水モデル実験を通じて空隙率や分散性に関して基盤研究を行った。

①溶湯浸透法では、高圧浸透と同等の強度特性を有する、低圧での浸透条件確立を目的に、セラミック繊維 (Al_2O_3) で強化した AC8A アルミニウム合金基複合材を溶湯浸透モデル実験で作製し、浸透圧力による空隙(気孔)形成状態を詳細に調査するとともに、高温引張強度への影響を明らかにしている。

②溶湯攪拌法では、固液共存状態での混合(コンポキャスト)を可視化した水モデル実験により、半熔融状態の見かけの粘性に及ぼす攪拌条件の影響および強化材の投入方法について明らかにし、実際にセラミック系強化材としてホウ酸アルミニウム粒子・ウィスカを、マトリックスとして AZ91D マグネシウム合金を使用し、コンポキャストした複合材料を作成して、その作製条件と組織の関係を調査している。

第3章では、セラミック系強化材である Al_2O_3 繊維で強化したアルミニウム合金基複合材料に関し、機械的特性のうち DLC コーティングによるさらなるトライボロジー特性の向上を目指した基礎研究を行った。繰り返し回数異なる積層 DLC 膜を成膜することにより、コーティングの亀裂や剥離を引き起こす圧縮残留応力の低減を図るとともに、基材中の強化材体積率との関係性も調査している。

第4章では、高温域での機械的性質向上に大きく関与する金属間化合物系繊維強化材の反応性を制御する基盤研究を行った。金属繊維系強化材はセラミックス系強化材と比較し、熱処理時等の界面反応による強度劣化が問題視されており、FeCrSi 繊維強化アルミニウム合金およびマグネシウム合金基複合材について as-cast や溶体化処理温度違いによる界面反応層の形成状態、高温強度特性への影響を理論式を交えて調査している。

第5章においては、高温強度が期待される金属間化合物系繊維強化材を使用した FeCrSi 金属繊維強化 AC8A アルミニウム合金複合材料の最適設計に必要な強度予測に関する基礎研究を行った。高温用構造材料として使用温度領域での強度予測は部品設計で重要な課題であるため、強化相が粒子から連続繊維までの考慮できる高温変形挙動の構成方程式の算出を試みている。

第6章においては、各強化材による2つの複合材に関して、製法・設計の最適化や機械的性質向上の観点から研究成果を実製品製造を通じて有効性を検証した。

①セラミック系繊維強化複合材料では、低圧での溶湯浸透法によって空隙欠陥量を最小限にした Al_2O_3 繊維強化 AC8A アルミ合金をライニング層とするアルミエンジンハウジング(排気量 30cc)を設計・試作し

た。従来 Ni めっきと比べ摩耗量や相手材攻撃性の改善効果を明らかにしている。

②金属系繊維強化複合材料では、界面反応制御によって燃焼部の高温強度・疲労特性を向上させた FeCrSi 金属繊維強化 AC8A アルミニウム合金複合材料をアルミエンジンピストンへの適用した。高温強度構成方程式を活用し、ヘッドの部分強化位置は幅や厚みや最適設計しながら、従来セラミック強化よりも金属繊維強化エンジンピストンが熱衝撃亀裂進展を制御する効果を見出している。

第 7 章においては、本研究で得られた結果を取りまとめて述べる。

Fig. 1-4 は、本研究内容のフローチャートを示している。

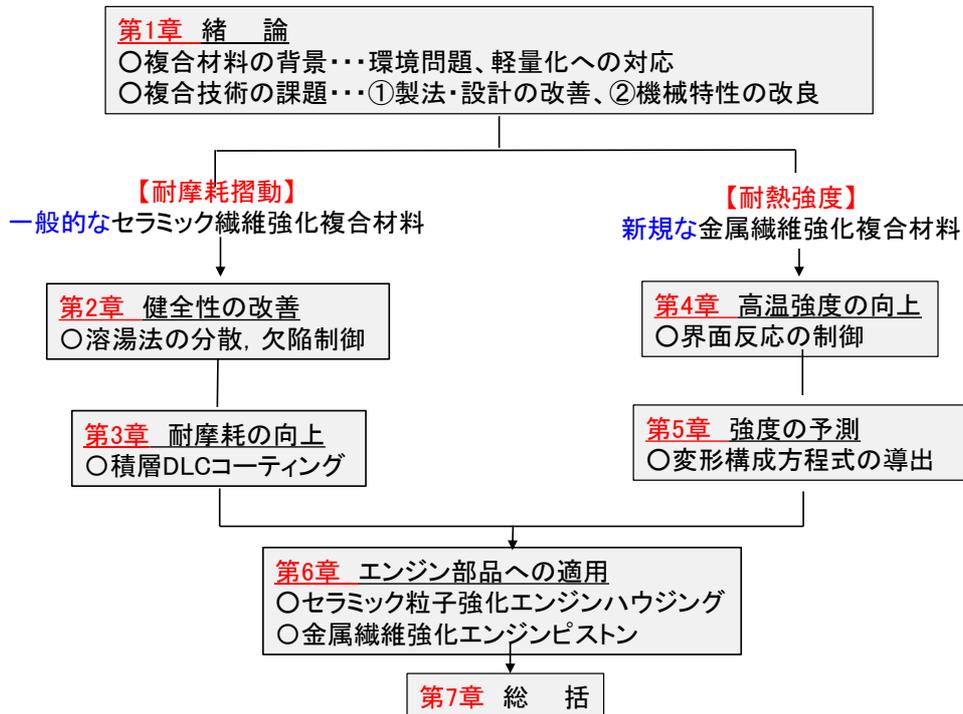


Fig. 1-4 Flow chart of this investigation.

参考文献

- 1) 地球温暖化とバイオマス: 地球温暖化対策推進本部 (2003).
- 2) T. W. Clyne, P. J. Withers: Solid State Science Series (1993).
- 3) 日本複合材料学会編: "複合材料ハンドブック" (1989), 1134.
- 4) 平野陽三: "新材料成形加工辞典" (1989), 388.
- 5) S. Suresh, A. Mortensen and A. Needleman: "Fundamentals of Metal Matrix Composites", Butterworth-Heinemann, (1993).
- 6) Y. Nishida: "Introduction to Metal Matrix Composites", Corona, (2001).
- 7) 香川豊, 大蔵明光: 繊維強化複合金属 (CMC 出版).
- 8) 日本複合材料学会出版委員会: 複合材料を知る辞典 (アグネ), 16.
- 9) M. Yoshida, S. Takeuchi, J. Pan, G. Sasaki, N. Fuyama, T Fujii and H. Fukunaga: Adv. Compos. Mater. **10** (2001), 255.
- 10) M. Yoshida, S. Takeuchi, J. Pan, G. Sasaki, N. Fuyama, T Fujii and H. Fukunaga: Adv. Compos. Mater. **8** (1999), 259.
- 11) J. Kaneko, M. Sugamata, J. S. Kim, M. Kon and In : "Magnesium alloys and their applications" (2000), 222.
- 12) 恒川好樹, 奥宮正洋, 新美格, 山田忠彦: 鋳物, **60** (1988), 596.
- 13) R. Vaidya and J. J. Lewandowski: Mater. Sci. Eng., **A220** (1996), 85.
- 14) E. Candan, H. Ahlatci, H. Cimenoglu: Wear, **247** (2001), 133.
- 15) M. I. Pech-Canul, R. N. Katz and M. M. Makhlor: J. Mater. Process. Technol., **108** (2000), 68.
- 16) M. K. Aghajian, M. A. Rocazella, J. T. Burke and S. D. Keck: J. Mater. Sci., **26** (1991), 447.
- 17) B. S. Rao and V. Jayaram: Acta Mater., **49** (2001), 2373.
- 18) G. Sasaki, M. Yoshida, N. Fuyama and T. Fujii: J. Mater. Proc. Technol., **131** (2002), 151.
- 19) C. G. Kang and Y. H. Seo: J. Mater. Proc. Technol., **61** (1996), 241.
- 20) E. Neussl and P. R. Sahn: Compos., A **32** (2001), 1077.
- 21) V. Michaud and A. Mortensen: Compos., A **32** (2001), 981.
- 22) H. Lianxi and W. Erde: Mater. Sci. Eng. A, **278** (2000), 267.
- 23) J. F. Mason, C. M. Warwick, P. J. Smith, J. A. Charles and T. W. Clyne: J. Mater. Sci., **24** (1989), 3934.
- 24) 菅沼克昭, 佐々木元, 藤田輝昭, 徳勢允宏: 日本金属学会誌, **55** (1991), 1358.
- 25) 菅沼克昭: 粉体および粉末冶金, **41** (1994), 1352.
- 26) J. F. King, T. E. Wilks, G. D. Wardlow: Magnesium, **26** (1997), 1.
- 27) H. Kaneda, Y. Sano and M. Suzuoki: Suzuki Technical Review, **23** (1997), 44.
- 28) 鎌土重晴, 新川貴啓, 和田貴樹, 小島陽: 軽金属, **46** (1996), 71.
- 29) 新川貴啓, 影山洋, 鎌土重晴, 小島陽: 軽金属, **46** (1996), 650.
- 30) 菅沼克昭: 軽金属, **40** (1990), 936.
- 31) 新美格, 奥宮正洋, 倉持公一, 杉本猛: 鋳物, **66** (1994), 263.
- 32) K. U. Kainer, J. Schroder and B. L. Mordike: Magnesium, **18** (1989), 6.
- 33) 中川昌也, 和田貴樹, 鎌土重晴, 小島陽: 軽金属, **45** (1995), 21.
- 34) J. S. Kim, 菅又信, 金子純一: 日本金属学会誌, **55** (1991), 521.
- 35) H. N. Yoshimura, Marcelo C. Goncalves and Helio Goldenstein: Key Eng. Mater., **127-131** (1996), 985-992.

- 36) T. Donomoto, N. Miura, K. Funatani and N. Miyake: SAE Tech. Paper Series, No. 830252 (1983).
- 37) G. Upadhyay and K. K. Saxena: IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng., **1116** (2021), 012022.
- 38) Y. Kagawa, E. Nakata: J. Mater. Sci. Lett. **11** (1992) 176.
- 39) 菅沼克昭, 佐々木元, 藤田輝昭, 鈴木信幸: 軽金属, **41** (1991), 297.
- 40) M. Nataraju and P. Prabhakara Rao: AIP Conf. Proc., **2317** (2021), 050022.
- 41) J. V. Christy, R. Arunachalam, A.-H. I.Mourad, P. K. Krishnan, S. Piya and M. Al-Maharbi: J. Manuf. Process., **59** (2020), 287-301.
- 42) 平成 15 年度 特許流通支援チャート 軽金属基複合材料 2004 年 3 月 独立行政法人工業所有権総合情報館
- 43). 中小企業白書 (2000 年版) .
- 44) 塩田一路: 鉄と鋼, **75** (1989), 1448-1452.
- 45) 西田義則: 金属基複合材料入門 (コロナ社) 33.
- 46) 西田義則: 金属基複合材料入門 (コロナ社) 34.
- 47) K. Akechi and Z. Hara: Trans. JIM, **20** (1979), 51.
- 48) T. G. Nieh, R. A. Rainen and D. J. Chellman: ICCM5 (1985), 825.
- 49) R. B. Bhagat: J. Mater. Sci., **24** (1989), 1496.
- 50) N. Morimoto and G. Ouchi : JILM, **38** (1988), 658.
- 51) T. T. Long, T. Aizaka, M. Aise and M. Morita: JSCM, **51** (1987), 864.
- 52) S. Lee, T. H. Kim and D. Kwon : Metall. Mater. Trans., **25** (1993), 187.
- 53) N. Shi, R. J. Arsenault, A. D. Krawitz and L. F. Smith : Metall. Trans., **24** (1993), 187.
- 54) K. Akechi and Z. Hara : Trans. JIM, **20** (1979), 70.
- 55) A. A. Das and S. Chatterjee: Metal. Mat. Techol., **13** (1981), 137.
- 56) A. P. Divecha, S. G. Fishman and S. D. Karmarkar: J. Metals, **33**(1981), 12.
- 57) E. Koya, Y. Hagiwara, S. Miura, T. Hayashi, T. Fujiwra and M. Onoda: SAE (1994).
- 58) 篠原嘉一, 本田紘一, 大蔵明光: 鉄と鋼, **76** (1990), 278.
- 59) 川本直樹: 新東技報, **18** (1998), 61.
- 60) F. A. Badia and P. K. Rohatgi : Trans. AFS, **77** (1969), 402.
- 61) F. A. Badia, D. F. MacDonald and J. R. Pearson: Trans. AFS, **79** (1971), 265.
- 62) D.B. Spencer, R. Mehrabian and M.C. Flemings: Metall. Mater. Trans., **3** (1972), 1925.
- 63) M.C. Flemings, R. Mehrabian: Trans. AFS **81** (1972), 81.
- 64) F. A. Giroto, L. Albingre, J. M. Quenisset and R. Naslain: J. Metals, **39** (1987), 18.
- 65) K. Miwa, T. Ikeda and T. Ohashi: 2th Inter. Conf Proc. Semi-Solid Alloys and Comp., (1992), 398.
- 66) R. Mehrabian, R. G. Riek and M. C. Flemings: Metall. Trans. B, **5** (1974), 1899.
- 67) R. Mehrabin, A. Sato and M. C. Flemings: JILM, **11** (1975), 177.
- 68) A. Sato and R. Mehrabin: Metall. Trans. B, **7** (1976), 443.
- 69) K.F. Sahn: Verbundwerkst. Tag., **1** (1974), 269.
- 70) 松原弘美, 西田義則, 山田守, 白柳格: 軽金属, **39** (1989), 338.
- 71) A.Sato and R. Mehrabian: Metall. Trans. B, **7** (1976) , 443.
- 72) H. Fukunaga: JILM, **38** (1988), 740.
- 73) E. Nakata: JSCM, **2** (1982), 19
- 74) T. Takenaka and M. Fukazawa : SAE Paper No.881189, (1988).
- 75) K. Akutagawa, H. Ohtsuti, R. Hasegawa and M. Miyazaki: SAE Paper No.870441, (1987).
- 76) F. K. Chi, R. D. Austen, R. D. Maier and T. W. Krucek: SAE Paper No.870440, (1987).
- 77) B. J. Lee, Y. S. Park and T. Lim: SAE Paper No.940809, (1994).

- 78) M. R. Myers and F. Chi: SEA Paper No.910833, (1991).
- 79) M. J. Olonnor and F. E. Wawner: SEA Paper No.940810, (1994).
- 80) R. D. Maier, T. W. Krucek, M. D. Smale and B. O. Budinger: SEA Paper No.930183, (1989).
- 81) H. Kashiwaya, A. Nagata, M. Morita and T. Nishimura: Toshiba Review, **41** (1986), 126.
- 82) D. L. Zhang, C. Brindley and B. Cantor: J. Mater. Sci., **28** (1993), 2267.
- 83) T. Lim, Y. H. Kim, C. S. Lee and K. S. Han: J. Compos. Mater., **26** (1992), 1062.
- 84) C. Mroz: ACSB, **9** (1993), 89.
- 85) A. Afonso, G. Ferran and F. Chi: SEA Paper No.910632, (1991).
- 86) T. J. Bedwell: SEA Paper No.980595, (1989).
- 87) J. Dinwoodie: SEA Paper No.870437, (1987).
- 88) M.K. Aghajanian, N.H. Macmillan, C.R. Kennedy, S.J. Luszcz and R. Roy: J. Mater. Sci., **24** (1989), 658.
- 89) M.K. Aghajanian, M.A. Rocazella, J.T. Burke and S.D. Keck: J. Mater. Sci., **26** (1991), 447.

第 2 章

「セラミック強化軽金属複合材料の溶湯法における分散性と空隙率の改善」

2.1 緒 言

耐摩耗摺動特性が期待されるセラミックス系強化材を使用した軽金属基複合材料の溶湯法の分散性や空隙率に関する課題解決のため、①溶湯攪拌法の水モデル実験、②溶湯浸透法のガス圧力モデル実験を通じた基盤研究を行った。

①溶湯攪拌法

溶湯攪拌法のうち半熔融・半凝固状態(以下コンポキャスト法)による複合材料作製方法に関する研究が数多く行われている^{1)~3)}。

コンポキャストの特徴として、以下のような事柄が挙げられる⁴⁾。

(1) 半熔融スラリー中の固相粒子が強化材の浮上・沈降を防止し、その濡れ性や比重差に関係なく均一に分散させることができる。

(2) 主に半熔融状態で取り扱うため、マグネシウムの酸化・燃焼という危険性を低減することができる。

(3) 固相が一部晶出した状態で加工するために凝固時に収縮量が減少し、ポロシティ量の欠陥が減少する。

(4) 凝固時の潜熱が一部放出されているので、加工用金型への熱負荷が軽減し寿命が延びる。

一方コンポキャスト法の欠点として、複合材料中に多くの空隙が存在するため、機械的性質が低下することが挙げられる。この空隙は攪拌子のブレードによってガスが直接巻込まれることに加えて、半熔融状態では見かけの粘性が非常に高くなるため、一度巻込まれたガス気泡が抜けにくくなることが原因となり生じたものである。また、半熔融・半凝固プロセスにより作製したモノリシックマグネシウム合金^{5~7)}の問題点として初晶である α 相の粗大化による機械的性質の低下が挙げられる。 α 相の粗大化は、攪拌による相同士の衝突・合体および攪拌中の等温保持によるオストワルト成長が主な原因であると考えられている。

本章は、コンポキャスト法を可視化したモデル実験により、半熔融状態の見かけの粘性に及ぼす攪拌条件の影響および強化材の投入方法について明らかにすることを目的とした。また、近年、ほう酸アルミニウムがマグネシウム合金の強化材として優れることが明らかとなっている^{8~10)}。そこで、強化材としてほう酸アルミニウム粒子およびウイスカ(以下、 $\text{Al}_{18}\text{B}_4\text{O}_{33}$ 粒子、 $\text{Al}_{18}\text{B}_4\text{O}_{33}$ ウイスカと記す)を、マトリックスとしてマグネシウム合金である AZ91D を使用し、モデル実験より得られた最適製造条件を用いて、コンポキャスト法により複合材料を作製し、その作製条件と組織の関係について明らかにした。

②溶湯浸透法

溶湯浸透法は、短繊維またはウイスカなどの強化材を予備成形(プリフォーム)し、このプリフォームに溶湯を高圧で注入して複合化する液相プロセスの一つである。セラミック系強化材など母材と濡れにくい系は有効では有効な方法である。この方法では、溶湯攪拌法のような全体強化と違い、プリフォームが複合部となり、製品の機械的特性、特に強度を部分的に変化させることができるのが特徴である。1974年にドイツの K.F. Sahn¹¹⁾によって SiC ウイスカ強化アルミニウム合金複合材料が製造され、熱間プレスで製造されたものよりも高い強度を有することを報告した。日本でもセラミック強化アルミニウム複合材の製造例が見られはじめると、高圧 casting は量産性に優れ、工業用途に最も適した方法であると考えられ、1980年代には、広く研究されされていた^{12~25)}。

このうち、 Al_2O_3 繊維は、炭素繊維や SiC 繊維に比べて比強度が比較的低いが、耐摩耗性に優れているため、MMC の耐摩耗性を向上させる研究が行われていた^{26~31)}。この Al_2O_3 短繊維強化アルミニウム複合材料は、1983年にディーゼルエンジンのピストン³²⁾の製造に採用され、その後、生産性と製造コスト

が重要視される自動車産業や電子産業に広く採用されてきた。1989年には SiC ウィスカ強化アルミニウム合金複合材がロータリー圧縮機³³⁾、1990年には Al₂O₃ とカーボンのハイブリッド繊維がガソリンエンジンのシリンダースリーブ³⁴⁾、1992年には Al₂O₃-SiC 短繊維がクランクシャフトダンパ³⁵⁾に採用されるようになった。これらの部品はいずれも溶湯浸透法で製造されており、効率的な製造方法であることがわかる。

溶湯浸透法の圧力は 100 MPa 以上の高圧を付与することが一般的であり、専用メカプレス機やプリフォームの変形などの課題は残る³⁶⁾。このため、ガス圧などによる低圧化が研究され始めた³⁷⁾。この低圧化に伴う未浸透欠陥量の調査や機械的特性との関係の報告は少ない^{38~39)}。特にエンジン部品など高温強度を得るためには、欠陥量を必要最低限に抑えた適切な圧力条件が必要である。

本章では、Al₂O₃ 繊維強化アルミニウム合金複合材料の低圧での溶湯浸透条件の確立を目指し、浸透圧力と欠陥量の関係を調査し、強度特性への影響を明らかにした。また濡れ性向上を目的に強化材表面への無電解 Ni めっきの効果も検証した。

2.2.実験方法

2.2.1 溶湯攪拌法

2.2.1.1 供試材料

セラミック系強化材には、比較的安価で粒子、ウイスカ形態のラインナップを持つ四国化成工業㈱のホウ酸アルミニウムを選定した。Table 2-1 にホウ酸アルミニウムの特性、Fig. 2-1 に $\text{Al}_{18}\text{B}_4\text{O}_{33}$ 粒子(平均粒径 8 μm , PF-08)および $\text{Al}_{18}\text{B}_4\text{O}_{33}$ ウイスカ(直径 0.5~1.0 μm , 長さ 10~30 μm , M-20)の SEM 写真を示す。

Table 2-1 Characteristics of the fiber.

Chemical structure	$9\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{B}_2\text{O}_3$
Chrystal structure	Orthorhombic
Lattice constant	
a axis (100)	0.76874 nm
b axis (010)	1.5013 nm
c axis (001)	0.56643 nm
Whisker axis	c axis
Length	10~30 μm
Diameter	0.5~1.0 μm
Melting point	1420~1460 $^\circ\text{C}$
Density	2.93g/cm ³
Young' modulus	400GPa
Tensile strength	8GPa
Moh's hardness	7
Thermal expansion coefficient	$4.4 \times 10^{-6}/\text{K}$
axial	$1.9 \times 10^{-6}/\text{K}$
radical	

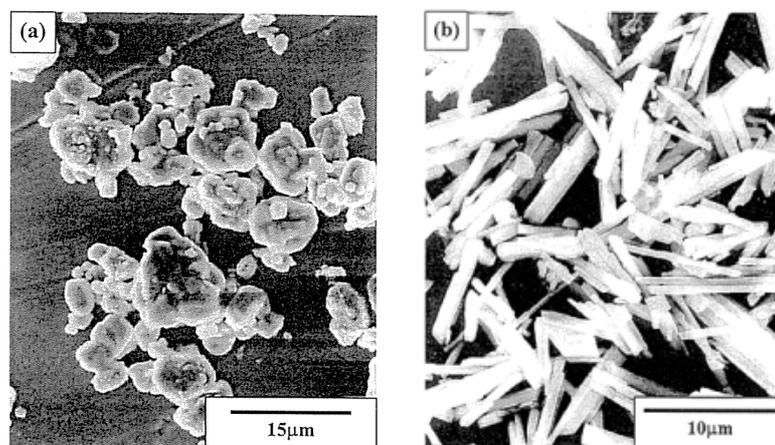


Fig. 2-1 SEM images of the reinforcements.
(a) $\text{Al}_{18}\text{B}_4\text{O}_{33}$ particle and (b) $\text{Al}_{18}\text{B}_4\text{O}_{33}$ whisker

2.2.1.2 溶湯攪拌の可視化モデル実験

可視化モデル装置の概略図を Fig. 2-2 に示す。AZ91D マグネシウム合金の半溶融状態(853 K 固相率 33 %)における見かけの粘性は約 2000 mPa・s である⁶⁾。そこで、半溶融状態のモデルとして、ほぼ同じ粘性⁴⁰⁾であるグリセリン(290 K, 2000 mPa・s)を可視化モデル実験のためのマトリックスとして使用した。また、AZ91D の溶融状態(923 K, 1 mPa・s)のモデルとして、水(293 K, 1 mPa・s)を使用した。次に、強化材の投入方法について検討するために、モデル実験の強化材に Al₁₈B₄O₃₃ 粒子(四国化成工業株製, 平均粒径 8 μm, PF-08)を用いた。

半溶融攪拌では、強化材の分散性ならびに初晶の粒形状に及ぼす因子として攪拌子の形状が挙げられ、様々な攪拌子を用いて研究されている⁴¹⁾。鎌土⁶⁾の報告によれば、メカニカルアロイング処理で用いられるアトライタ型の攪拌子を使用した場合、α 相同士 of 合体が促進され、その結果 α 相の粗大化が確認されている。本研究では Fig. 2-2 に示されるようなパドル型の攪拌子を使用した。パドル型攪拌子は半径方向に強い対流を起こす特徴を有する。本攪拌子の材質は SUS430 である。

透明なアクリル容器に、所定の温度のグリセリンまたは水を注ぎ、攪拌の様子をビデオカメラによって撮影した。その際、アクリル容器の底を氷水で冷却することにより、マトリックスの温度を一定に保った。なお、本モデル実験は鎌土らの方法を参考にした⁶⁾。

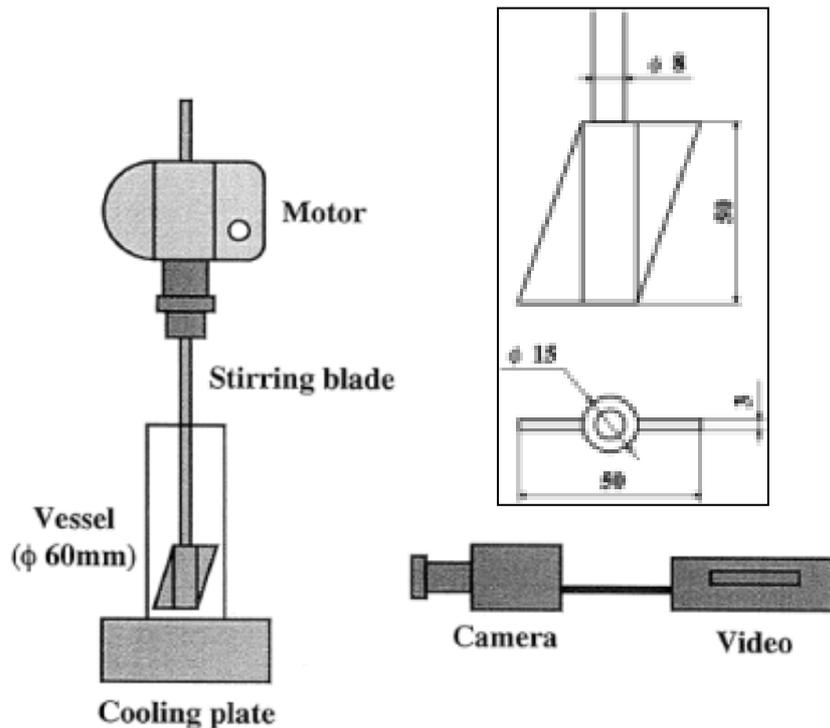


Fig. 2-2 Schematic representation of stirrer apparatus.

2.2.1.3 溶湯攪拌による複合材料の実証作製

モデル実験で得られたガス欠陥の導入しない条件で Fig. 2-3 で示す溶湯攪拌装置にて実際の複合材料の作製を行った。強化材として、四国化成工業(株)製の $Al_{18}B_4O_{33}$ 粒子(平均粒径 $8 \mu m$, PF-08)および $Al_{18}B_4O_{33}$ ウィスカ(直径 $0.5\sim 1.0 \mu m$, 長さ $10\sim 30 \mu m$, M-20)の 2 種類を使用した。また、マトリックスとして AZ91D マグネシウム合金を使用した。

複合材料の作製方法としては、強化材の体積率が 10 %になるように秤量し、あらかじめ鉄鋼製(S45C)のるつぼの中にマトリックスと強化材を挿入しておく。その際、強化材の上にマトリックスを置いた。まず合金を 903 K まで昇温して完全熔融状態にした後、攪拌を行いながら、所定の固相率(fraction of solid, %fs)(863 K=20 %fs, 853 K=33 %fs)まで冷却し、その温度で等温保持しながら 1.2 ks 攪拌後水冷することで複合材料を得た。このときの冷却速度は約 0.05 K/s である。攪拌子はモデル実験で用いたものを用いた。また、比較として熔融状態 923 K(0 %fs)で攪拌した複合材料も作製した。

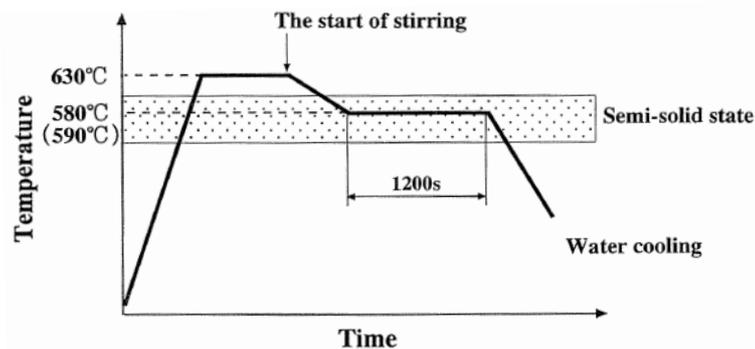
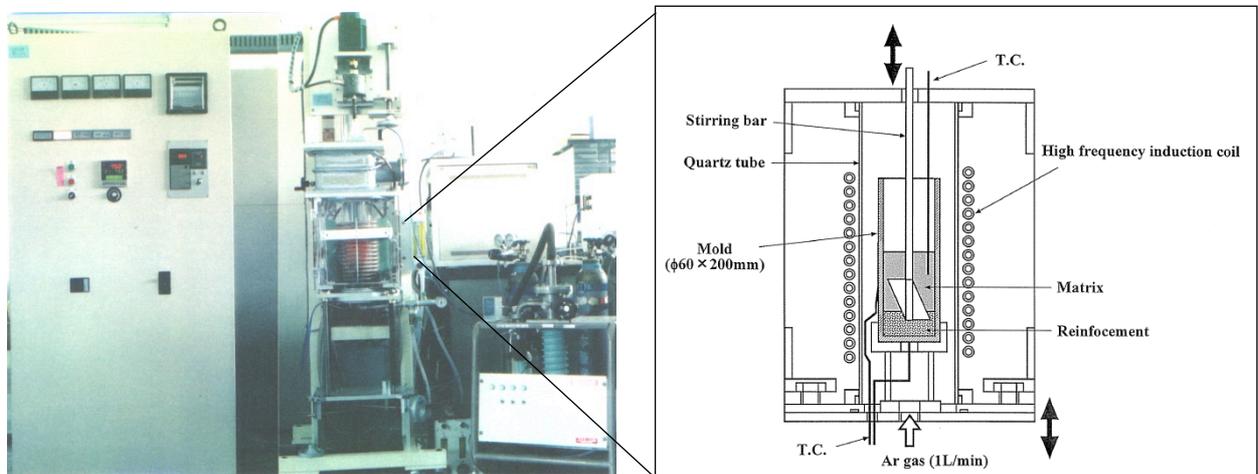


Fig. 2-3 Apparatus and Schematic illustration of sem-solid stirring machine.

2.2.2 溶湯浸透法

2.2.2.1 供試材料

セラミック系強化材には、Table 2-2 の特性を持つ Al_2O_3 ファイバー (SAFFIL 社. RF グレード) を強化材に使用した。また、マトリックスへの濡れ性および機械的特性向上を向上を目的に、 Al_2O_3 繊維上への無電解ニッケルめっき(奥野製薬工業(株)トップニコロン TOM-LF)も検証した。めっき液の組成は、Ni-8~10 質量%P であり、323 K の浴温で処理した。Fig. 2-4 に、Ni めっき被覆した Al_2O_3 繊維の断面 EDX マッピング分析を示す。めっき層の厚さは約 $0.5 \mu\text{m}$ であった。強化材プリフォームは 3 mass% SiO_2 バインダーを配合し、 $\phi 100 \times h 15 \text{ mm}$ の円盤形状とし、体積率を 15 % に調整した。

Table 2-2 Characteristics of the fiber.

Chemical composition (mass%)	$\sigma\text{-Al}_2\text{O}_3$: 95~97	SiO_2 : 3~5
Tensile Strength (GPa)	2	
Diameter (μm)	3	
Young's modulus (GPa)	300	
Density (g/cm^3)	3.3	

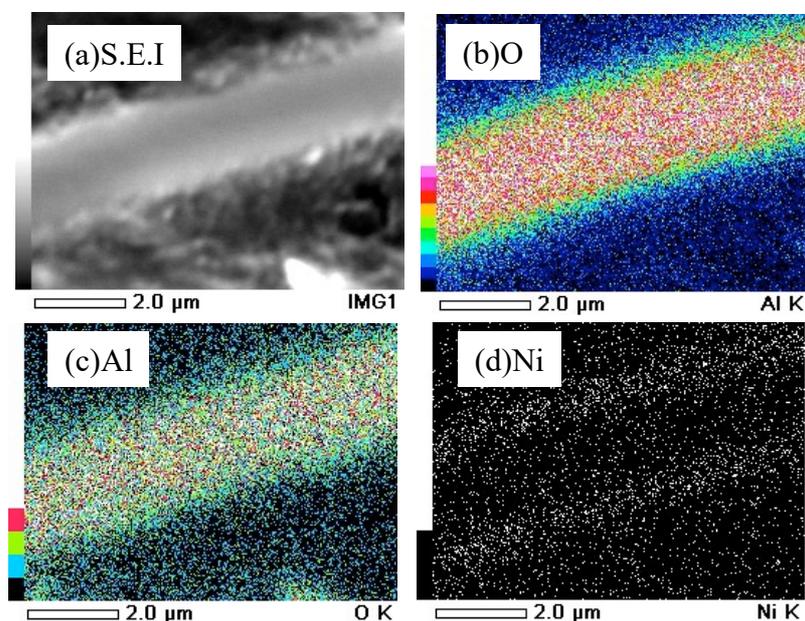


Fig. 2-4 EDX mapping analyses of Ni plated Al_2O_3 fiber.

2.2.2.2 ガス圧による低圧での溶湯浸透モデル実験

Table 2-3 にプリフォームへの溶湯浸透条件を示す。Fig. 2-5 に、ガス圧を利用した低圧での溶湯浸透モデル実験の模式図に示す。ガス圧力は 0.4~1.3 MPa で調整した。アルミニウム合金は、JIS AC8A 合金 (Al-Si-Cu-Ni-Mg) を用いた。予熱したプリフォームを金型に設置し、溶融アルミニウム合金を金型に注ぎ、蓋をした後すぐに所定の圧力を加えた。比較のために油圧プレスを使用して 50 MPa の高圧で溶湯浸透した複合材料も作製した。プランジャ速度は 4 mm/s に設定した。

Table 2-3 Experimental conditions of infiltration molten alloy into preform with pressure.

Matrix alloy AC8A(mass%)		Al-11~13Si-0.8~1.3Cu -0.8~1.5Ni-0.7~1.3Mg
Temperature of molten metal (K)		1073
Temperature of preform (K)		873
Temperature of mold (K)		473
Infiltration Pressure (MPa)	Low- infiltration process	0.4,0.8,1.3
	High-onfiltration process 【Squeeze casting】	50

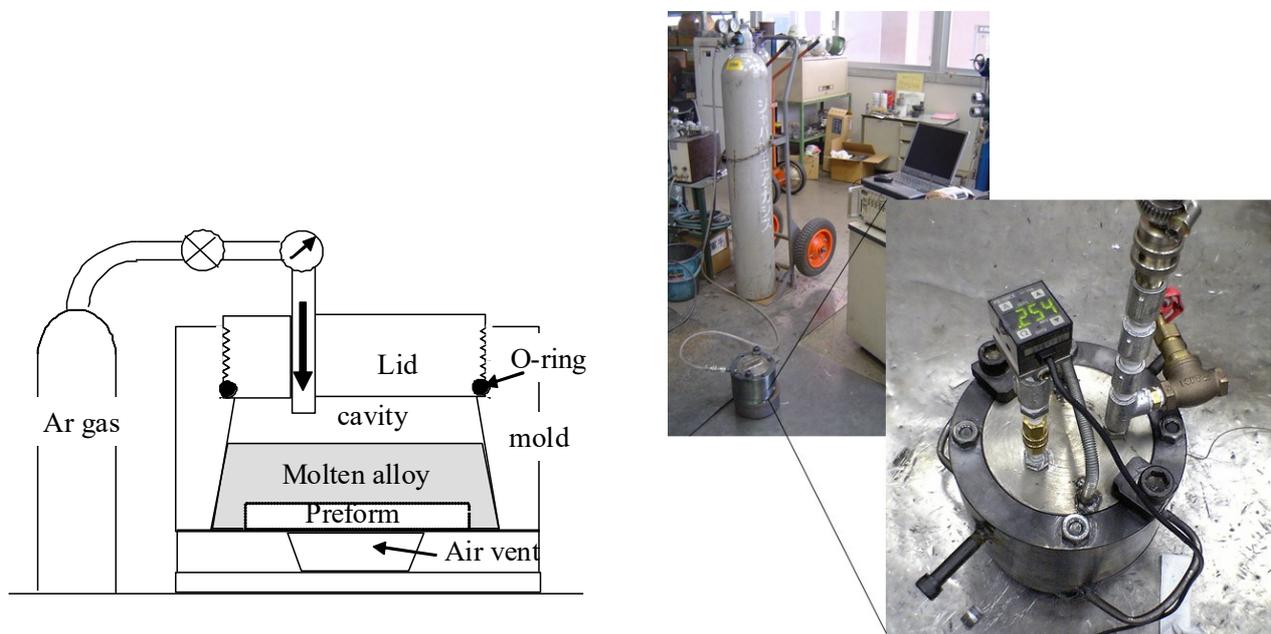


Fig. 2-5 Schematic illustration of the experimental apparatus of low-pressure infiltration method.

2.2.2.3 複合材料の機械的特性評価

鑄造試料には T7 熱処理 (溶体化温度 773 K, 時効温度 503 K) を施した。浸透不良による空隙率は光学顕微鏡による断面組織 ($\times 400$) から画像解析ソフトにより計算した。試料切断面を鏡面研磨し, 金スパッタコーティングすることで, 空隙部とのコントラストを付け, 二値化画像解析を容易にした。

機械的特性は引張試験と衝撃試験を実施した。シャルピー試験片は標準型 (10 \times 10 \times 55 mm) を用いた。

2.3 結果と考察

2.3.1 固液共存状態における強化材の溶湯攪拌条件と組織の関係

2.3.1.1 可視化モデルによるガス巻き込みと粘性の関係

ガスの巻き込みに及ぼす粘性の影響を示す。**Fig. 2-6** はマトリックスとして水およびグリセリンを用いた場合の攪拌の様子である。水を用いた場合は、攪拌により液表面が大きく変形し、ブレードが直接ガスを巻き込んでいる。しかし、水の粘性は低いため一度巻き込まれたガス気泡がすぐに抜けてしまい、液体中にガス気泡はまったく観察されなかった。一方、グリセリンを用いた場合は、液表面の変形が水の場合に比べてかなり小さくなるが、粘性が高いため一度巻き込まれたガスが抜けにくくなっており、攪拌中に多くのガス気泡が観察された。

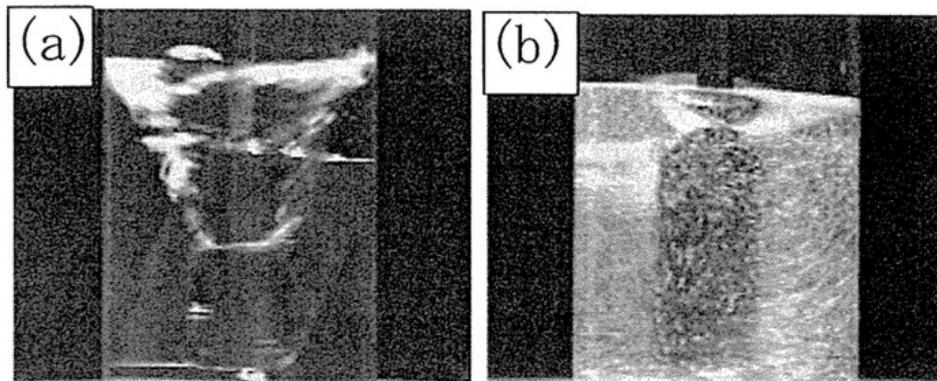


Fig. 2-6 Influence of the viscosity on entrapping gas. The height of the matrix and rotational speed of the blade are 70 mm and 500 rpm, respectively.

(a) Water and (b) glycerin, which are used for the molten and semi-solid condition models.

2.3.1.2 可視化モデルによる液高さと回転数のガス巻込みの関係

次に液高さと回転数のガス巻込みの関係を示す。Fig. 2-7 は液高さと回転数の影響を示したものである。液高さ 70 mm, 回転数 500 rpm のとき, 著しいガスの巻込みが観察された。これは, 攪拌により液表面が変形し, ブレードが直接ガスを巻込んでいるためである。しかしながら, 液高さを 80 mm 以上, すなわちブレードから液表面までの距離を 20 mm 以上とする, あるいは回転数を 400 rpm に落とすことにより, ガスの巻込みを低減することができる。これは, ブレードから液表面までの距離が離れること, また回転トルクが落ちることにより, 攪拌によって生じる表面の渦流凹みが低減するためである。

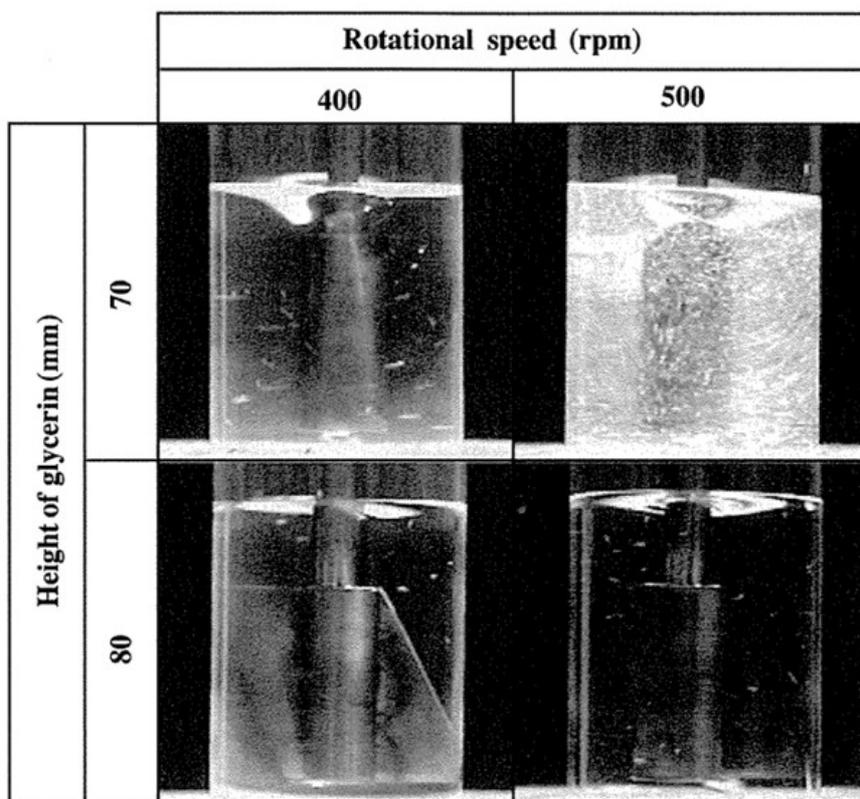


Fig. 2-7 Relationship between rotational speed of the blade and height of glycerin.

2.3.1.3 可視化モデルによる強化材の投入方法の影響

次に強化材とマトリックスを混合した場合を考える。**Fig. 2-8** は強化材をマトリックスに対して上部および下部に置いた場合の攪拌の様子である。なお、強化材の体積率は実際に複合材料を作製するときと同じ10%とした。強化材をマトリックスに対して下部に置いた場合ではいずれの回転数においても完全に混合した。強化材を下部に置くと、ブレードが直接強化材を攪拌するため完全に混合することができたと思われる。一方、上部に置いた場合では、一部の粒子が混合せずにそのままの状態が残っていた。これは、グリセリンの粘性が非常に高いことと粒子がぬれにくいため、グリセリンの流動による強化材粒子の取込みが起こりにくかったためであると考えられる。これより、強化材はあらかじめ金型下部に置いておく方がよい。

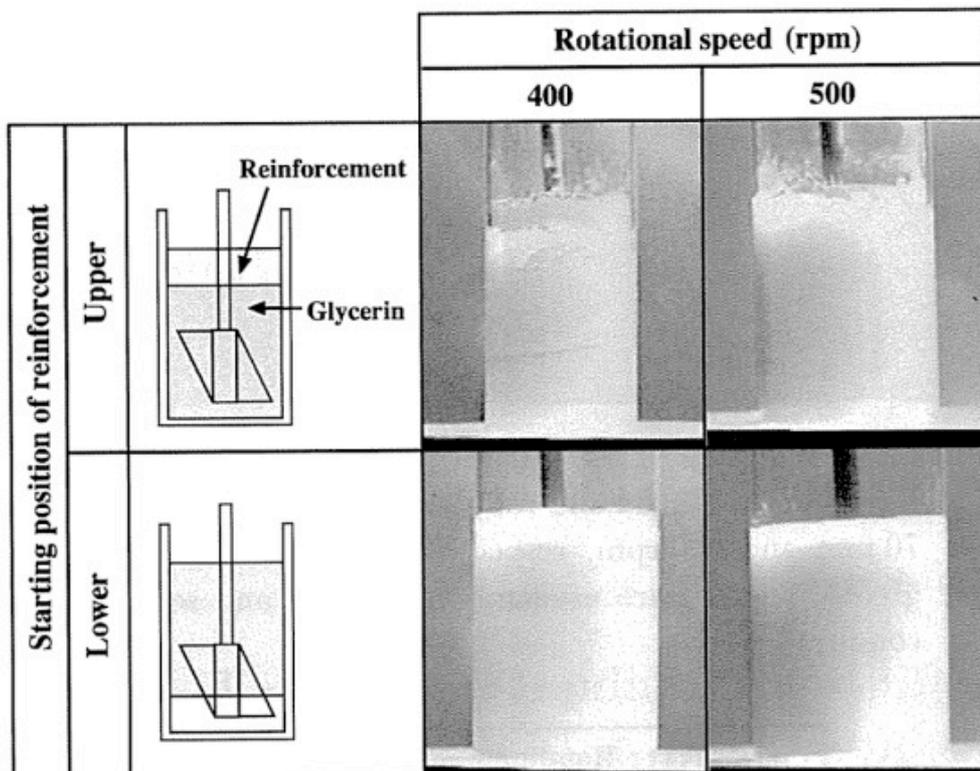


Fig. 2-8 Relationship between rotational speed of the blade and setting position of reinforcement. Volume fraction of the reinforcement is 10 vol% and stirring time is 300 s.

2.3.1.4 可視化モデルによるガス気泡の様子

次に攪拌終了直後の様子を示す。**Fig. 2-9** は攪拌終了後の液表面を示しており、多くのガス気泡が観察される。マトリックスの高さを 80 mm とし、攪拌子による直接的なガスの巻き込みを生じないような条件で行っているため、これらのガス気泡は最初から強化材粒子に補足されていたガス(粒子間の隙間に存在しているガス)である。このことから、複合材料中のガス気泡は、ブレードによる直接的なガスの巻き込み、および最初から強化材中に捕捉されているガスが原因となり生じたものであると考えられる。**Fig. 2-6(a)**の結果より、半熔融状態に比べ熔融状態の方が明らかにガスが抜けやすいため、強化材中に捕捉されているガスを低減するためにはマトリックスを一度完全熔融状態とすることが必要であると思われる。

以上の結果より、空隙の低減には強化材中に捕捉されたガスを抜き、さらにガスの巻き込みが生じない液高さおよびブレード回転数の条件で複合材料の作製を行うことが、必要であることがわかった。

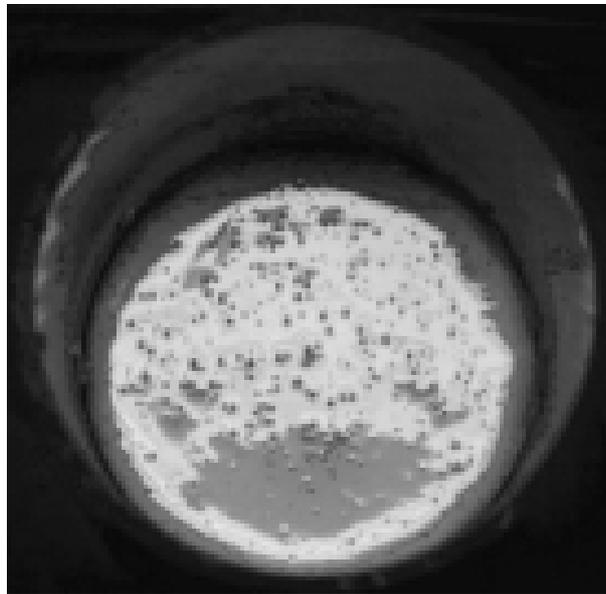


Fig. 2-9 Appearance of the glycerin surface after stirring.

2.3.1.5 半熔融状態における初晶の攪拌への効果

モデル実験により得られた最適製造条件により複合材料を実証作製した。すなわち、攪拌子の回転数 500rpm, マトリックスの液高さ 80mm とし, 強化材の投入方法としてマトリックスに対し, 強化材をあらかじめ下部に置いた。

Fig. 2-10 は各固相率における複合材料の組織である。黒い粒状のものが $\text{Al}_{18}\text{B}_4\text{O}_{33}$ 粒子を, 白い部分が固相を, 灰色の部分が $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ (以下 β 相と記す) を示している。固相率 20 %fs および 33 %fs では, 球状化した α 相が見られた。これは, 半熔融状態で晶出した α 相 (以下, 初晶と記す) である。また, 初晶以外の領域は半熔融状態時に液相であった部分 (以下, 液相と記す) である。固相率 20 %fs および 33 %fs の組織は初晶が完全に分断せずに凝集しており, さらに初晶の周りは β 相で覆われていることから 0 %fs に比べ β 相がネットワークを形成している。20 %fs と 33 %fs の組織を比較すると, 固相率の違いによる初晶の晶出量以外にほとんど差が見られないが, 20% fs の方が初晶の粒径が若干大きくなっている。一方, 0% fs では複合材料中に $\text{Al}_{18}\text{B}_4\text{O}_{33}$ 粒子の凝集体の塊が **Fig. 2-10(a)** 中, 黒い領域として見られた。強化材は複合化前の状態で粒子の集合体として存在しており, 熔融状態での攪拌だけではこの塊を壊すことができないことを示している。一方, 20 %fs および 33 %fs では, このような大きな $\text{Al}_{18}\text{B}_4\text{O}_{33}$ 粒子の塊は見られなかった。

このことから, 半熔融状態における初晶の効果として, 初晶が機械的にこの塊を壊すことと, 見かけの粘性が上昇することによって生じる大きなせん断力が強化材を分断することの二つがあると考えられる。また, いずれの固相率条件においても $\text{Al}_{18}\text{B}_4\text{O}_{33}$ 粒子は, β 相内に取り込まれている。また, 熔融マグネシウムは $\text{Al}_{18}\text{B}_4\text{O}_{33}$ に対する濡れ性がよく⁴²⁾, AZ91D 合金についても完全に濡れると考えられる。

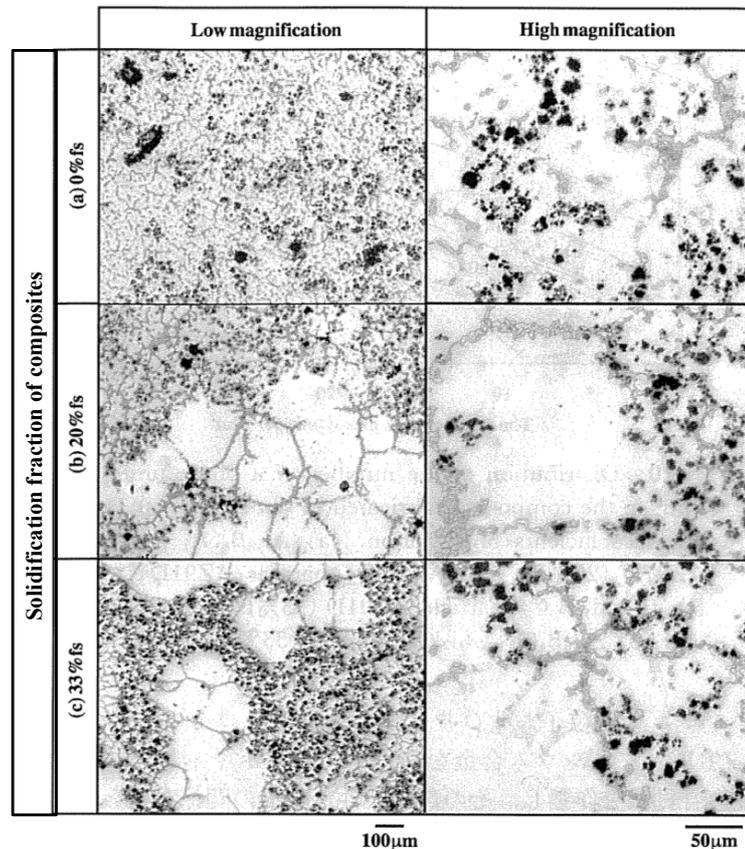


Fig. 2-10 Influence of fabrication temperature on microstructure in 10 vol% $\text{Al}_{18}\text{B}_4\text{O}_{33}$ particle/AZ91D composites. Solid fraction of (a), (b) and (c) are 0%fs, 20%fs and 33%fs, respectively.

2.3.1.6 半熔融状態における強化材形態の攪拌への効果

Fig. 2-11 は強化材として $\text{Al}_{18}\text{B}_4\text{O}_{33}$ 粒子およびウイスカを用いた場合の組織である。なお、複合材料の固相率は 33 %fs である。初晶に注目すると、ウイスカの方が初晶の粒径は小さく、さらに比較的分散しているようである。これは、粒子に比べウイスカは高いアスペクト比を持つため、お互いが絡まった状態で存在しており、粒子を用いた場合に比べて攪拌時の複合材料の見かけの粘性がさらに上昇し、初晶の分断効果が増したためであると考えられる。

さらに、ウイスカを用いた複合材料では、粒子の場合に比べて初晶同士の間隙に強化材が入りこんでいる。これは、粒子の直径が $8\ \mu\text{m}$ であるのに対してウイスカの直径は約 $1\ \mu\text{m}$ と細くなっていることで、狭い初晶間隙に入りやすくなったためと考えられる。また、ウイスカの凝集体は見られず、よく分散していた。

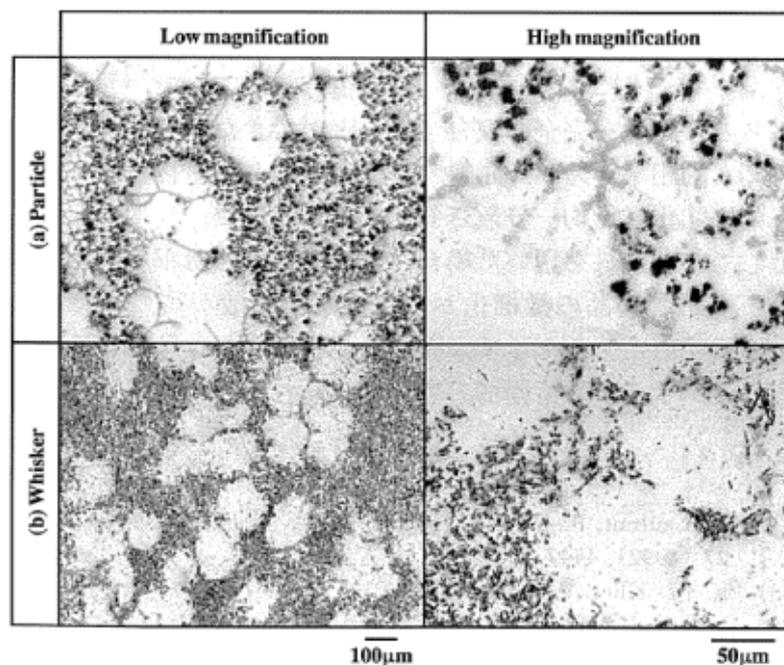


Fig. 2-11 Influence of reinforcement on microstructure of the AZ91D matrix composites fabricated under the condition of 33 %fs. (a) and (b) of the reinforcements are 10 vol% $\text{Al}_{18}\text{B}_4\text{O}_{33}$ particle and whisker, respectively.

2.3.1.7 複合材料ビレット断面における強化材の分散性

強化材の分散性を評価するために、光学顕微鏡写真を用いて、ビレットの各位置における強化材の面積率を測定した。その結果を **Fig. 2-12** に示す。固相率 0 % で作製した場合 (**Fig. 2-12 (a)**)、ビレットの各位置における強化材の面積率に着目すると、半径中心部の Middle、すなわちビレットの中央部における強化材の面積率が最も低くなっていた。これは、熔融状態ではマトリックスの流動が速いため、強化材が遠心力により金型の外側にはじき出されたものである。また、20 %fs で作製した場合 (**Fig. 2-12 (b)**)、0%fs のものに比べて各位置における面積率のばらつきは減少しているが、同じくビレットの中央部の面積率が低くなっている。

固相率 20 % までは見かけ上通常の液体と同じように流動することから⁴³⁾、20 %fs と 0 % では強化材粒子は同じ分散挙動を示したと考えられる。一方、強化材として $\text{Al}_{18}\text{B}_4\text{O}_{33}$ 粒子を用いて 33 %fs で作製した複合材料 (**Fig. 2-12 (c)**) では、ビレット半径中心部の Lower における強化材面積率が低くなっているが、0 %fs や 20 %fs の場合とは違い、ビレット中央部での面積率の低下は見られなかった。これは、0%fs、20%fs に比べて 33 %fs ではマトリックスの対流が低減したために、ブレード付近においても強化材が均一に分散したと考えられる。

さらに、 $\text{Al}_{18}\text{B}_4\text{O}_{33}$ ウィスカを用いた場合 (**Fig. 2-12 (d)**) では、半径中心および半径外側のいずれにおいても面積率の差がほとんど見られない。このことから、33 % という固相率は、強化材を複合材料ビレット中に均一に分散させるのに十分な粘性であると考えられる。

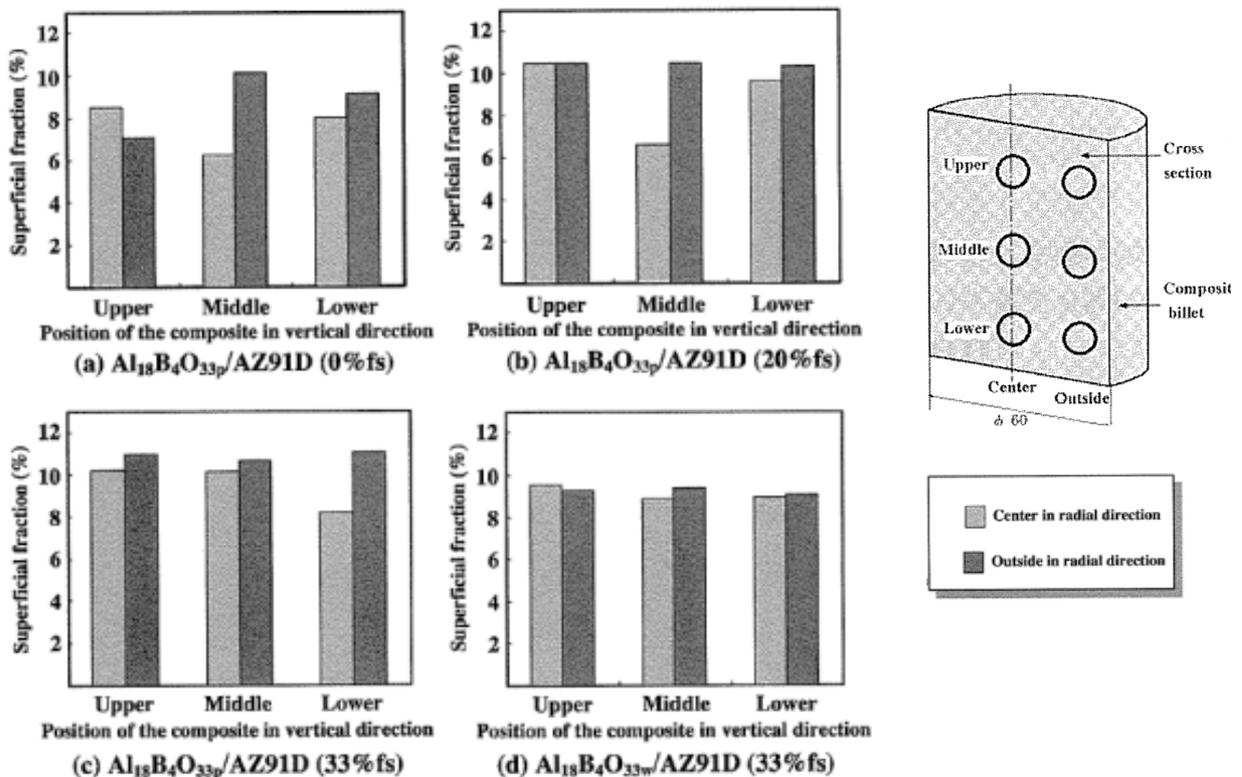


Fig. 2-12 Relationship between superficial fraction of the reinforcement in the composite and positions of the composite.

2.3.1.8 複合材料ビレット断面における初晶の分散性

複合材料における初晶の分散性を評価するために、1 mm² 当たりの初晶の個数とその個数分布を調べた。その結果を Fig. 2-13 に示す。固相率 33 %fs および 20 %fs で作製した複合材料は、共に初晶の個数が 0、すなわち初晶がまったく存在しない領域が存在している。さらに他の複合材料に比べ、20 %fs で作製した複合材料の初晶の頻度ピークは、低個数側で見られる。これは固相率 33 %fs に比べ、20 %fs の方が晶出する初晶の割合が少なく、さらに粗大であることを示す。一方、33 %fs で作製した複合材料では、20 %fs に比べてピークが右にずれており、幅広い分布になっていることから、初晶の分散性は他の複合材料に比べて悪い。

強化材にウィスカを用いた場合、初晶の平均個数が増加しており、さらに、比較的分布も狭くなることから、粒子を用いた場合よりも初晶が均一に分散している。初晶の粒径の場合と同じく、金属スラリーの見かけの粘性が上昇し、その結果ブレードによる初晶の分断効果が増したためであると考えられる。

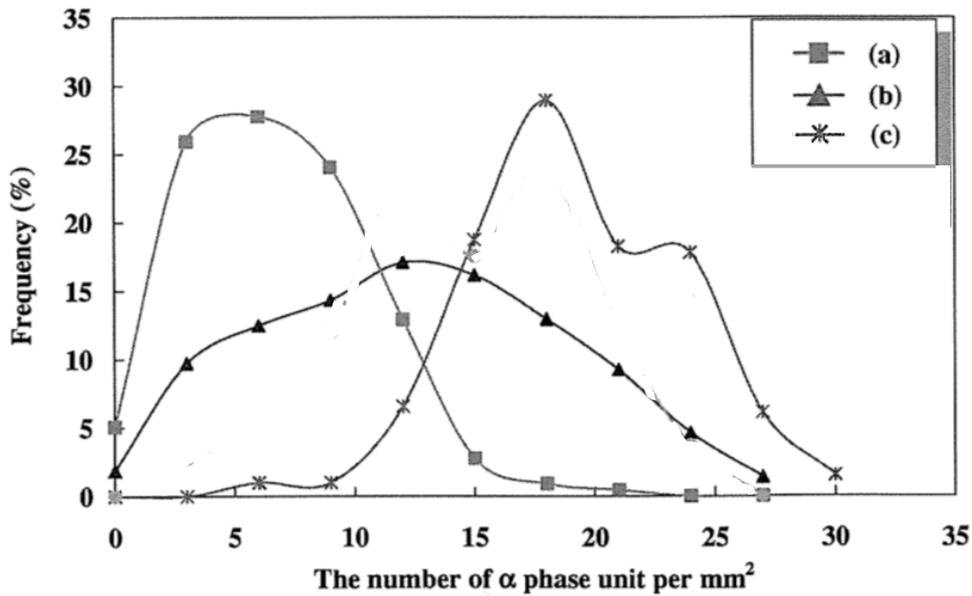


Fig. 2-13 Distribution of the number of a phase unit per mm² in the composites fabricated in semi-solid state and those coefficients of variation.

(a) Al₁₈B₄O₃₃ particle/AZ91D (20%fs), (b) Al₁₈B₄O₃₃ particle/AZ91D(33%fs), (c) Al₁₈B₄O₃₃ whisker/AZ91D (33 %fs).

2.3.2 強化材成形体への溶湯浸透条件による空孔率と機械特性の関係

2.3.2.1 浸透圧力による空孔の形成状態

溶湯浸透時における Al_2O_3 繊維とマトリックス間の空孔(未浸透部)の形成状態を調査した。**Fig. 2-14** ガス加圧力0.8 MPaにおける複合材料の断面写真を示す。おもに繊維間に直径 $3\ \mu\text{m}$ 前後の空孔が見られる。**Fig. 2-15** にガス圧力を可変させたときの複合材料の断面写真を示す。撮影エリアは約 $200\times 200\ \mu\text{m}$ のサイズである。空孔量はガス圧増加に伴って減少して行くことがわかる。油圧プレスで50 MPaの高加圧力で溶湯浸透させた場合も、視野によっては空隙がない場合があったが、完全に無くなることはなかった。なお、この空孔直径は加圧力に依存せずほぼ同じであった。

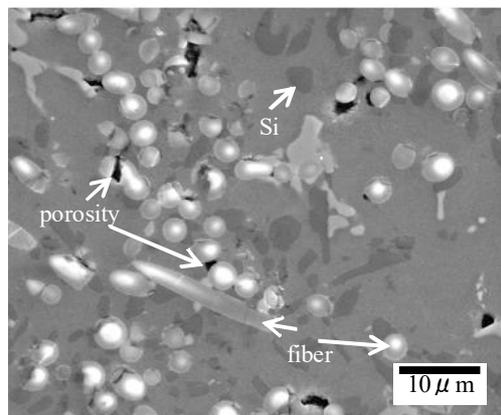


Fig. 2-14 SEM photograph of porosity in composites fabricated by pressure infiltration casting. (infiltration pressure: 0.8 MPa)

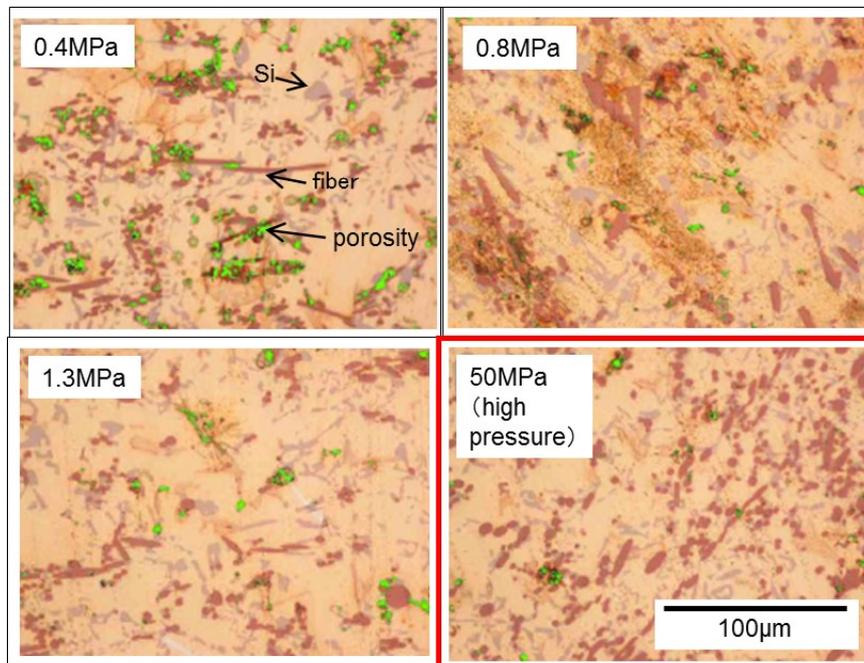


Fig. 2-15 Optical micrographs of porosity in composites fabricated by pressure infiltration casting. (infiltration pressure: 0.4~0.8 MPa)

2.3.2.2 鋳造圧力と空孔量の関係

Fig. 2-15 で撮影した空孔を画像解析して断面中の空孔面積を求めた。Fig. 2-16 に、浸透圧力と空孔量の関係を示す。空隙量を1%以内に抑制するには、ガス圧は1.3 MPa 以上必要なことが分かる。ガス圧の低圧浸透は、油圧プレスの高圧浸透と同レベルの平均空孔量までは至っていない。しかし、ガス圧 1.3 MPa の最低空孔量は、高圧 50 MPa の最高空孔量とに近似しており、機械的特性も近似している可能性がある。

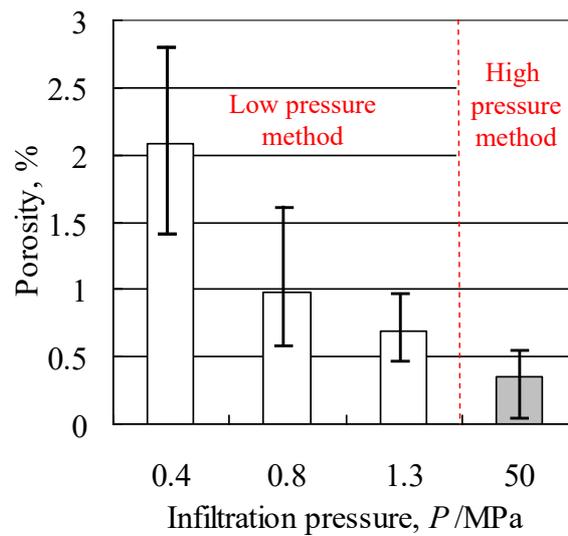


Fig. 2-16 Effect of infiltration pressure ranging 0.4 MPa to 50 MPa on porosity.

2.3.2.3 空孔の強度への影響

Fig. 2-17 に、浸透圧力が 0.8 MPa と 50 MPa の複合材料について、室温および高温引張りした結果を示す。試験温度全域で浸透圧力が低い、すなわち空孔量が多い複合材は強度が低いことがわかる。特に室温での引張強度は浸透圧力 50 MPa と比べ、浸透圧力 0.8 MPa が約 40 % 低下していた。一方、503 K 以上の高温領域では、両複合材料の引張強度の差が縮小する傾向が見られる。これは、高温でのマトリックスの延性の増加に伴って、空孔の亀裂感受性が低下したためと推定される。

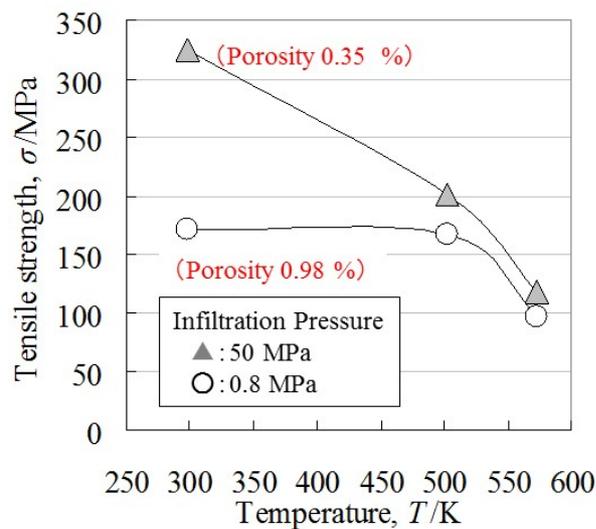


Fig. 2-17 Effect of infiltration pressure at 0.8 MPa and 50 MPa on tensile strength at various temperatures.

2.3.2.4 浸透圧力と高温強度の関係

Fig. 2-18 に各浸透圧力で作製した複合材料の 503 および 573 K における高温引張強度を示した。ガス圧による浸透圧力を 0.4, 0.8, 1.3MPa と高めるに従い、高圧 50 MPa で溶湯浸透した複合材料の高温引張強度に近似してゆく。浸透圧力 1.3 MPa (空孔量 1 %以下) の場合は、高圧 50 MPa の高温強度とほぼ同等と言える。複合材料中に占める空孔量が 1 %レベルの場合の高温強度は、G. Requena らにより、拡散クリープは加速されるものの、573 K における高温引張特性に影響を及ぼさないと報告されており、本研究結果と一致している⁴⁴⁾。このように、573 K での良好な高温強度を得るためには、空孔量を 1 %以内に制御できる 1.3 MPa 程度の浸透圧力を付与する必要がある。

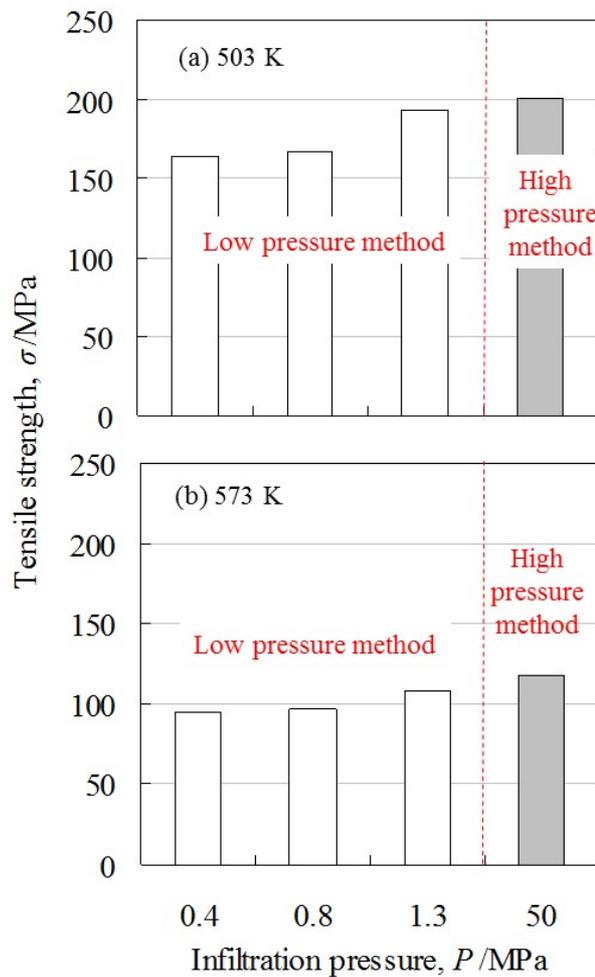


Fig. 2-18 Effects of infiltration pressure ranging from 0.4 MPa to 50 MPa on tensile strength at 503 K and 573 K.

2.3.2.5 強化材 Ni コーティングの空孔量への影響

Niめっきコーティングした強化材の溶湯浸透に与える影響を検討した。Fig. 2-19 に複合材料断面の未浸透部を検出できるカラーチェック結果を示す。高圧浸透 50 MPa と同等レベルの欠陥量を実現する浸透圧力 1.3 MPa の条件で、Niめっきの効果を検証したところ、カラーチェック反応はほぼ同じであった。強化材表面の改質は未浸透部の低減に、明瞭な効果がない可能性がある。

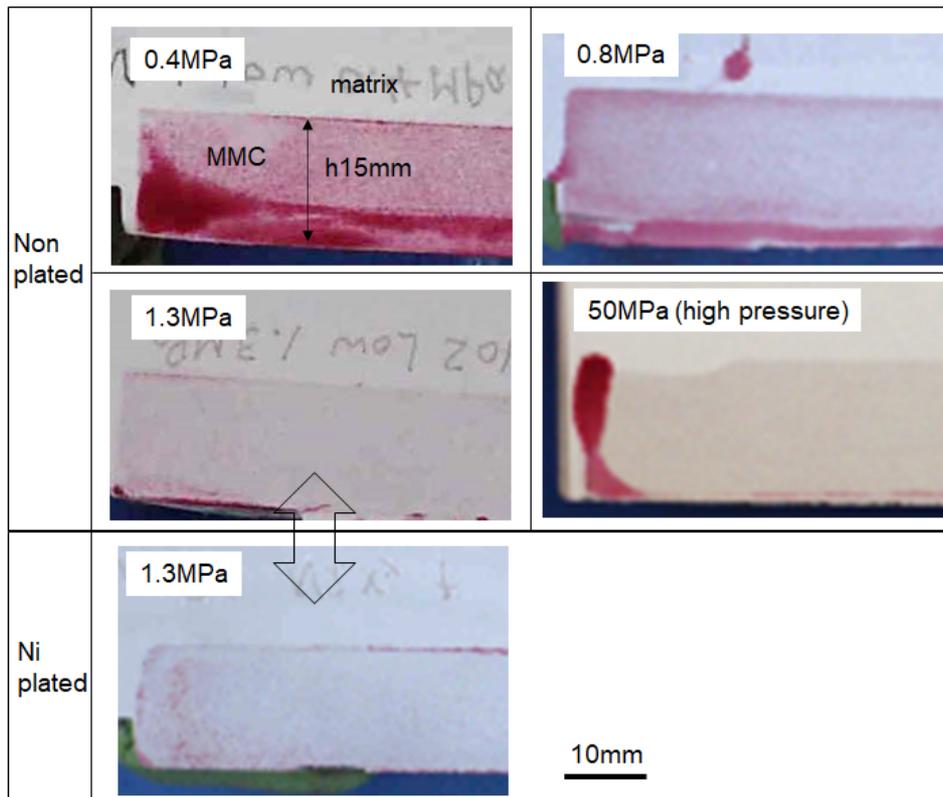


Fig. 2-19 Color check test of cross section of metal matrix composite.

Fig. 2-20 に、Niめっき Al₂O₃ 繊維強化アルミニウム合金複合材料の断面 EDX マッピングを示す。溶湯浸透後も強化材表面には Ni, P がわずかながら検出されている。以下の反応式に示すニッケル層と熔融アルミニウム合金との反応報告もあり^{45, 46)}、複合化後には Niめっき層か Al-Ni 化合物層が繊維とマトリクス間に形成されると推定される。

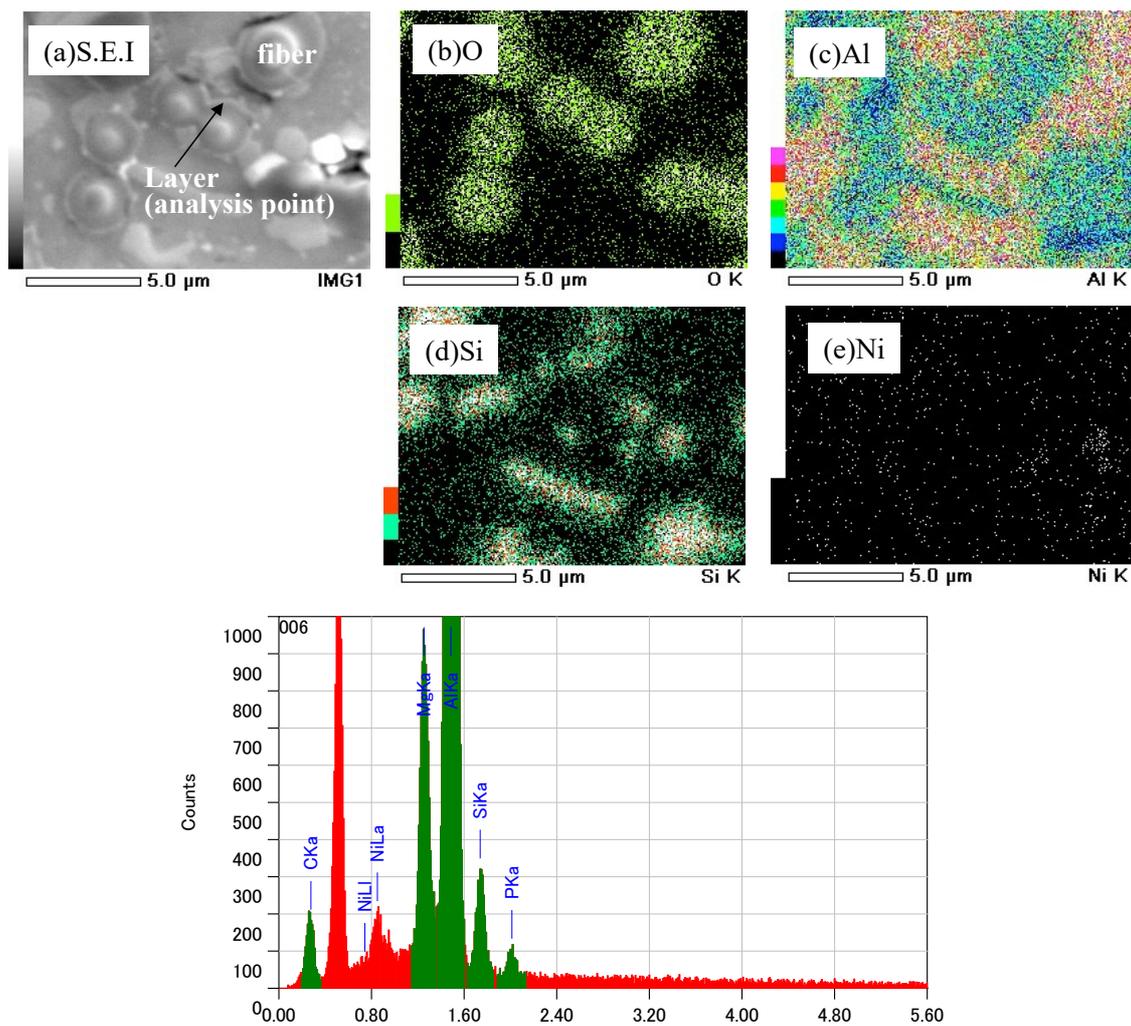
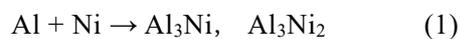


Fig. 2-20 EDX mapping analyses and spectrum of composites reinforced by Ni-plated- Al₂O₃ fibers.

2.3.2.6 強化材 Ni コーティングの機械的特性への影響

Fig. 2-21 に Ni めっきコーティングした強化材の強度および衝撃吸収エネルギー測定結果を示す。欠陥量の最も少なくなる高圧 50MPa で浸透させた複合材料を用いた。室温 298 K では引張強度および衝撃吸収値は下がるが、高温 573 K では両物性値は向上している。特に衝撃エネルギーは約 3 割向上している。このように Ni めっき層は未浸透の空孔量は低減できないが、繊維とマトリックス界面の結合力を高め、高温延性を改善する効果が期待される。

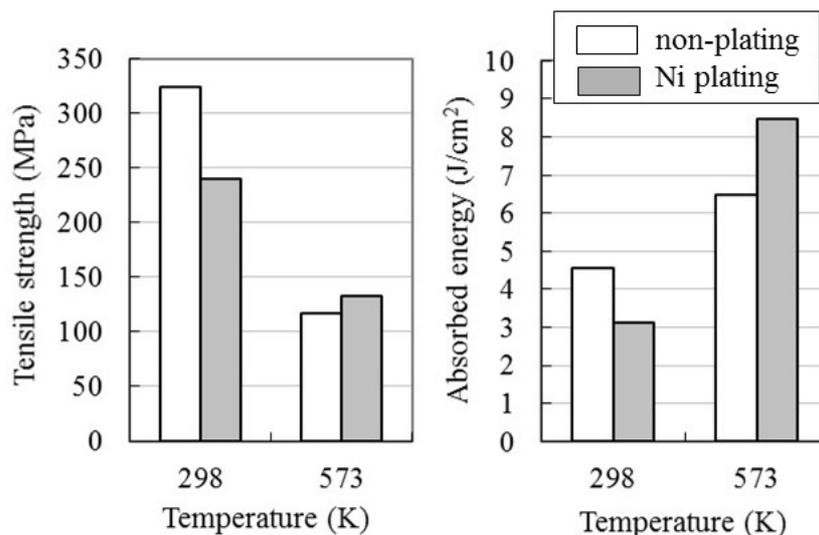


Fig. 2-21 Effect of the Ni plating on tensile strength and absorbed energy of the Charpy type at 298 K and 573 K (infiltration pressure: 50 MPa).

2.4. 小 括

耐摩耗摺動特性が期待されるセラミックス系強化材を使用した軽金属基複合材料の溶湯法の分散性や空隙率に関する課題解決のため、①溶湯攪拌法の水モデル実験、②溶湯浸透法のガス圧力モデル実験を通じた基盤研究を行った結果以下の結論を得た。

①溶湯攪拌法

コンポキャスト法を可視化したモデル実験により、半熔融状態の見かけの粘性に及ぼす攪拌条件の影響および強化材の投入方法について明らかにした。さらに強化材としてホウ酸アルミニウム粒子およびウイスカを、マトリックスとして AZ91D マグネシウム合金を使用し、コンポキャスト法により複合材料を作製し、その作製条件と組織の関係を明らかにした。得られた結果は、以下の通りである。

(1) 可視化モデル実験の結果より、コンポキャスト法で作製した複合材料中のガス欠陥は、ブレードにより直接巻込まれたガスおよび強化材中に捕捉されているガスが原因であった。また、ブレードから液表面までの距離、ブレードの回転数、およびマトリックスの粘性がガスの巻込みに影響を及ぼすことがわかった。さらに、強化材はマトリックスの下に置き、ブレードにより直接強化材を攪拌することで、マトリックスと強化材を完全に混合することができた。

(2) 実体実験では強化材体積率 10 vol%，固相率 33 %fs で作製することにより、マトリックスの対流が低減したために、ブレード付近においても強化材が均一複合材料ビレット中に強化材を均一分散させることができた。また、強化材としてウイスカを用いた場合、見かけの粘性がさらに上昇することで同様の効果が得られた。

②溶湯浸透法

低圧での溶湯浸透条件の確立を目指し、 Al_2O_3 繊維強化アルミニウム合金複合材料の浸透圧力と欠陥量の関係を調査し、強度特性への影響を明らかにした。また濡れ性向上を目的に強化材表面への無電解 Ni めっきの効果も検証した。本研究から得られた結果は以下の通りである。

(1) ガス圧による溶湯浸透モデル実験により、浸透圧力の増加に伴って未浸透の空孔率は低減した。浸透圧力 1.3 MPa に高めることで、高圧 50 MPa の空孔量約 1 % に近似させることができた。また、未浸透の空孔は強化材繊維の間に見られ、その大きさは直径数ミクロンであり浸透圧力値によりそのサイズは変わらない。

(2) 低圧浸透での複合材は、高圧浸透での複合材と比べ室温強度は低いですが、503 K 以上の高温強度は近似する。これは、高温でのマトリックスの延性の増加に伴って孔の亀裂感受性が低下したためと考えられる。

(3) 低圧での溶湯浸透における繊維上の Ni めっきは、空孔率を明瞭に低下する効果は見割れなかった。一方で、複合化後に繊維とマトリックスの間に Ni めっきの残留もしくは Al-Ni 化合物層が形成されることで、高温での引張強度と吸収エネルギーは向上した。

参考文献

- 1) V. Laurent, P. Jarry, G. Regazzoni and D. Apelian: *J. Mater. Sci.*, **1-27** (1992), 4447.
- 2) E.M. Klier, A. Mortensen, J.A. Cornie and M.C.Flemings: *J. Mater. Sci.*, **26** (1991), 2519.
- 3) 佐藤彰: 鋳物, **62** (1990), 12.
- 4) 日本塑性加工学会: 第 165 回塑性加工シンポジウム (1995)
- 5) 人見高久, 由茂明, 鎌土重晴, 小島陽: 軽金属, **42** (1992), 504.
- 6) 鎌土重晴, 由茂明, 人見高久, 小島陽: 軽金属, **42** (1992), 734.
- 7) 松井伸司, 関原一版, 鎌土重晴, 小島陽: 軽金属, **45** (1995), 15.
- 8) 佐々木元, 魅力軍, 吉田誠, 番進, 福永秀春: 日本金属学会誌, **63** (1999), 577.
- 9) 佐々木元, 吉田誠, 福永秀春: まてりあ, **39** (2000), 519.
- 10) G. Sasaki, M. Yoshida, J. Pan, N. Fuyama, T. Fujii and H. Fukunaga: *Mat. Sci. Forum*, **350-351** (2000), 215.
- 11) K. F. Sahm : *Verbundwerkst. Tag.*, **1** (1974), 269.
- 12) T. Takenaka and M. Fukazawa: *SAE Paper No.881189*, (1988).
- 13) K. Akutagawa, H. Ohtsuti, R. Hasegawa and M. Miyazaki: *SAE Paper No.870441*, (1987).
- 14) F. K. Chi, R. D. Austen, R. D. Maier and T. W. Krucek: *SAE Paper No.870440*, (1987).
- 15) B. J. Lee, Y. S. Park and T. Lim: *SAE Paper No.940809*, (1994).
- 16) M. R. Myers and F. Chi: *SEA Paper No.910833*, (1991).
- 17) M. J. Olonnor and F. E. Wawner: *SEA Paper No.940810*, (1994).
- 18) R. D. Maier, T. W. Krucek, M. D. Smale and B. O. Budinger: *SEA Paper No.930183*, (1989).
- 19) H. Kashiwaya, A. Nagata, M. Morita and T. Nishimura: *Toshiba Review*, **41** (1986), 126.
- 20) D. L. Zhang, C. Brindley and B. Cantor: *J. Mater. Sci.*, **28** (1993), 2267.
- 21) T. Lim, Y. H. Kim, C. S. Lee and K. S. Han: *J. Comps. Mater.*, **26** (1992), 1062.
- 22) C. Mroz: *ACSB*, **9** (1993), 89.
- 23) A. Afonso, G. Ferran and F. Chi: *SEA Paper No.910632*, (1991).
- 24) T. J. Bedwell: *SEA Paper No.980595*, (1989).
- 25) J. Dinwoodie: *SEA Paper No.870437*, (1987).
- 26) S. Harakawa and Y. Aabe: *JSCM*, **17** (1991), 152.
- 27) C. M. Friend: *J. Mater. Sci.*, **22** (1987), 3005.
- 28) J. Dinwoodie, E. Moore, C. A. J. Langman and W. R. Symes: *ICCM5* (1985), 671.
- 29) C. M. Friend and S. D. Luxton: *J. Mater. Sci.*, **23** (1988), 3173.
- 30) 今井恒道, 西田義則, 松原弘美, 白柳 格, 馬渕 守: 塑性と加工, **30** (1989), 1540.
- 31) K. C. Chen and C. G. Chao: *Metall. Mater. Trans.*, **26A** (1995), 1035
- 32) T. Komatsubara, S. Okajima, Y. Ohogata and H. Hoshino: *Sanyo Technical Review*, **20** (1988), 107.
- 33) H. Ushio, N. Hayashi, K. Shibata and T. Ebizawa: *JILM*, **40** (1990), 787.
- 34) 大木島 純, 小栗 彰, 横井 徹: 日本金属学会会報, **31** (1992), 324.
- 35) S. Osada and K. Matsuda: *JFCS*, **53** (1981), 300.
- 36) 西田義則, 松原弘美, 白柳 格, 鈴木鎮夫: 日本金属学会会報, **19** (1980), 895-902.
- 37) N. Oda: *J. Japan Foundry Eng. Soc. CHUUSIKOKU*, **24** (2001), 36-39.
- 38) J. Pora, P. Le Vacon, C. Carre, P. Santini, C. Schneider and P. Merle: *Proc. Int. Conf. Compos. Mater.*, **26** (1995) II.19-II.
- 39) Z. Zhang, S. Long and H. M. Flower: *Composites*, **25** (1994), 380-392.

- 40) 化学便覧改訂 3 版基礎編 II, II-53.
- 41) 西尾敏幸, 小林慶三, 三輪謙治, 尾崎公洋, 浅野滋, 名古屋工業技術研究報告, **44** (1995), 75.
- 42) M. Yoshida, H. Date, J. Pan, G. Sasaki and H. Fukunaga: ICCM11-13, (2001), paper1213.
- 43) 岡野忍: 塑性と加工, **41** (2000), 1162.
- 44) G. Requena and H. P. Degischer: Mater. Sci. Eng. A, **420** (2006), 265-275.
- 45) C. L. Tsao and S. W. Chen: J. Mater. Sci., **30** (1995), 5215-5222.
- 46) M. Matsumuro and T. Kitsudo: Rep. Technol. Res. Inst. Osaka Pref., **20** (2006), 63-67.

第 3 章

「セラミック強化軽金属基複合材料の積層 DLC コーティングによる表面特性の改善」

3.1 緒 言

第 2 章にてセラミック強化アルミニウム合金複合材料の溶湯法における強化材の分散性と含侵不良のポイド欠陥に関する最適化に関して報告できた。その一方でエンジン部品を想定した摺動環境では、耐凝着性・耐摩耗性は鋳鉄と比較するとまだ不十分である¹⁾。特にアルミニウム凝着が発生すると凝着摩耗につながるため、耐凝着性は最重要な特性の一つである。

ダイヤモンドライクカーボン(DLC)はアモルファスカーボンを主骨格とする材料のうち比較的高い硬さを有するものの総称である^{2, 3)}。一般に、アモルファスカーボンには、 sp^3 、 sp^2 、さらには sp^1 のサイトが混在しており、DLC の組成は、三元系の相図で簡単に示すことができる。DLC は高い硬さ以外にも耐摩耗性などのユニークな特性から優れたコーティング材料として知られている。さらに、DLC は多くの金属、セラミックスに対して摩擦係数 μ が 0.1~0.3 と低摩擦力を示す。そのためアルミニウムや鉛といった凝着を起こしやすい材料に対しても優れた摺動性能を示すことから、トライボコーティング特性に優れており、低摩擦材料としての利用が期待されている⁴⁾。このような優れた特徴を持つが、膜内部に存在する大きな圧縮残留応力が存在しており、これが原因となりコーティングの亀裂や剥離を引き起こす可能性があり基材との密着性に劣る^{5, 6)}。この圧縮残留応力は DLC 膜と基材の硬さや熱膨張率の違いによるものや膜の構造による固有応力から構成されている⁷⁻¹¹⁾。軟質な基材への成膜の際は、膜厚が薄い場合基材の塑性変形による影響を受けやすいため¹²⁾、DLC 膜の厚膜化により耐久性を向上させることが望ましい¹³⁾。しかし、一般的に DLC 膜の内部応力は膜厚に比例して増加するため、厚膜化が困難であるとされる¹⁴⁾。そこで DLC 膜単層で厚膜を成膜するより、中間層を導入しつつ厚膜 DLC を成膜する方が、残留応力を低減させることができることが知られており、多層構造を形成することで、耐摩耗性を向上させる報告例が多数存在している¹⁵⁻²⁰⁾。しかし、AMC の複合材配合比率と積層 DLC 膜の関係性の研究はこれまで行われていない。

そこで本章ではアルミニウム合金(AC8A ; Al-Si-Cu-Ni-Mg)を Al_2O_3 繊維で強化したアルミニウム合金基複合材料(Al-alloy MMC)を基材とし、繰り返し回数の異なる積層 DLC 膜を成膜することにより、機械的特性やトライボロジー特性に与える影響を調査した。

3.2 実験方法

3.2.1 供試材料

基材には **Table 3-1** に示す Al_2O_3 繊維 (SAFFIL 社, RF グレード) で強化したアルミニウム合金 (AC8A; Al-Si-Cu-Ni-Mg) の複合材料を用いた。複合化は **Fig. 3-1** に示す油圧プレス機を用いた溶湯浸透法で行った。無機バインダーを配合した Al_2O_3 繊維のプリフォームを金型底面に配置し、油圧プレスを用いて、高圧で溶湯を浸透させることで複合材料を作製した。

Table 3-1 Characteristics of the Al_2O_3 fiber.

Chemical composition	$\sigma\text{-Al}_2\text{O}_3$: 95~97 mass%
Tensile Strength	2 GPa
Diameter	3 μm
Young's modulus	300 GPa
Density	3.3 g cm^{-3}

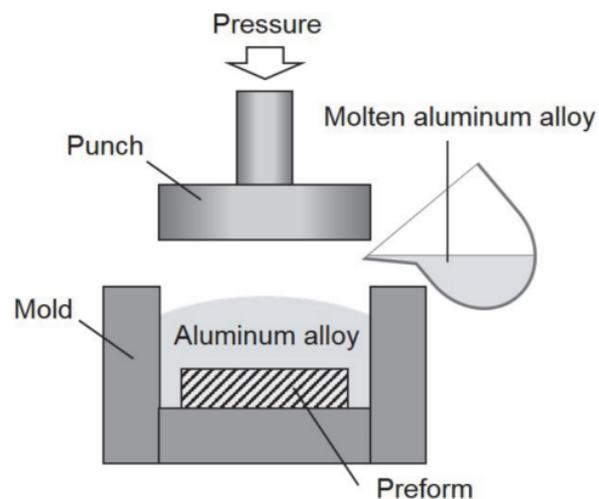


Fig. 3-1 Schematic drawing of Infiltrating Process.

鑄造条件を **Table 3-2** に示す。Al₂O₃ 繊維の体積率は 10%、15%および 20%の 3 種類を準備した⁴⁾。**Fig. 3-2** に複合材料の断面組織を示す。Al₂O₃ 繊維は各体積率で比較的均一に分散していた。

Table 3-2 Casting conditions for preparation of Al alloy MMC.

Alloy	AC8A (Al-Si-Cu-Ni-Mg)
Melt pouring temperature	1038 K
Preform preheating temperature	773 K
Die temperature	523 K
Applied pressure	30 MPa

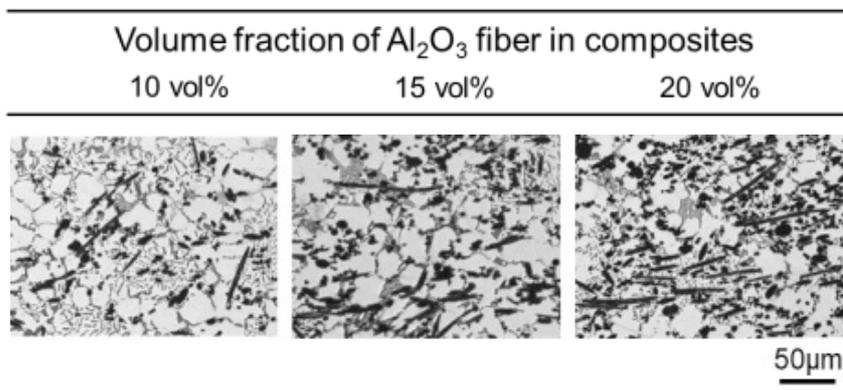


Fig. 3-2 Microstructures of Al₂O₃ fiber reinforced AC8A.

3.2.1 積層 DLC の成膜

本研究では積層 DLC 膜の密着性を向上させるために Si を含有した DLC 膜を中間層として導入した。Si-DLC 中間層および積層 DLC の成膜には、神港精機 (株) 製の高周波プラズマ CVD 装置 (ACV-1060D) を使用した。Fig. 3-3 に DLC 膜の概略図を示す。Si-DLC 中間層の成膜条件は、テトラメチルシラン ((CH₃)₄Si; TMS) ガス流量 10 mL min⁻¹ (sccm), メタン (CH₄) ガス 100 mL min⁻¹ (sccm) を混合させてそれを原料ガスとし、成膜時間を 15 min に固定し成膜した。中間層の成膜後、積層 DLC 膜を成膜した。積層 DLC (a-C:H) 膜は原料ガスとして CH₄ ガスおよび C₂H₂ ガスの 2 種類の炭化水素ガスを用いて 2 層および 4 層の膜を作製した。成膜時間は中間層を含め全膜厚が約 1.9 μm となるように時間を設定した。成膜条件は Table 3-3 および Table 3-4 に示す。その他の成膜時の条件としては、RF 電力を 800 W, 温度を 443 K と設定した。2 層および 4 層のいずれの膜も最表層は C₂H₂ を原料として成膜した DLC 膜である。

成膜後、電子プローブマイクロアナライザー (EPMA) (日本電子 (株), 型式: JXA-iSP100) による断面組織観察, 高周波グロー放電発光分光分析 (GD-OES) ((株) 堀場製作所, 型式: GD-Profilier2) による深さ方向の元素分析を行った。

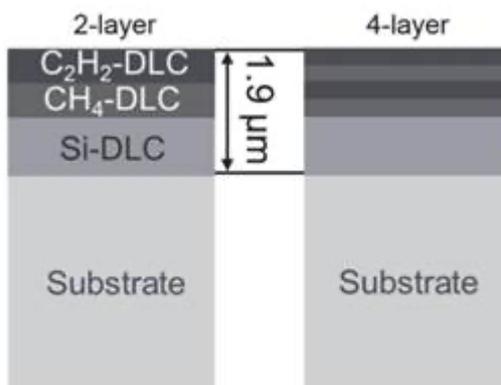


Fig. 3-3 Schematic diagram of DLC film.

Table 3-3 Processing conditions for 2-layer DLC films.

Film	Gas	Gas flow rate / mL min ⁻¹	Time / min
CH ₄ -DLC	CH ₄	100	80
C ₂ H ₂ -DLC	C ₂ H ₂	100	24

RF power : 800 W Temperature : 443 K

Table 3-4 Processing conditions for 4-layer DLC films.

Film	Gas	Gas flow rate / mL min ⁻¹	Time / min
CH ₄ -DLC	CH ₄	100	40
C ₂ H ₂ -DLC	C ₂ H ₂	100	12
CH ₄ -DLC	CH ₄	100	40
C ₂ H ₂ -DLC	C ₂ H ₂	100	12

RF power : 800 W Temperature : 443 K

3.2.1 DLC 膜の機械特性試験

機械的特性は、ロックウェル圧痕試験による密着性評価、往復動摩擦試験(新東科学(株), 型式: type-40)による DLC 膜の耐摩擦性, 耐摩耗性, 耐久性の評価およびナノインデンテーション試験機(ELIONIX Inc., Japan, 型式: ENT-2100)を用いた評価を行った。摩耗面積 A は式(1)で算出した。

$$A = \pi r^2 \times \frac{\theta}{360} - \frac{w(r-d)}{2} \quad (1)$$

ここで w は摩耗幅, d は摩耗深さ, r はボールの半径, θ はボールが試料と接触している部分の長さを扇型の弧の長さにとり半径を r としたときの中心角である。ロックウェル圧痕試験ではアルミニウム合金では硬さが低いと判断し, A スケール(荷重: 588 N)で試験を行い, 圧痕を光学顕微鏡にて観察しそれぞれの圧痕周囲の剥離状態などをドイツの規格 VDI3198 に基づき HF1 から HF6 で評価した²¹⁾⁻²³⁾。

3.3 実験結果と考察

3.3.1 DLC 積層膜の構造

Fig. 3-4 に DLC コーティング後の試料断面の反射電子像を示す。DLC 膜の下部の基材でその組成のばらつきによりコントラストの違いが現れているが、すべての条件において $1.7\sim 2.0\ \mu\text{m}$ の膜厚で成膜がされていることが確認できた。

また、Fig. 3-5 に各 DLC 膜の GD-OES 分析の結果を示す。試料最表面部において GD-OES 分析装置の室内の残留水素や試料表面での吸着層等の影響を強く受け、H の発光強度の上昇を示しているが、H の発光強度の変化より DLC 層中にて多層化されていることが確認された。すなわち、2 層の DLC 膜では第一層の H の発光強度が第二層のそれよりも低くなっており、原料ガス中の分子内 H 量に対応している。4 層の DLC 膜においても H の発光強度が 4 層に対応して変化している。また、積層 DLC 膜とアルミニウム合金基複合材料基材との間には C、Si および Al の傾斜的な濃度変化が認められることから、Si DLC 中間層の形成を示している。以上より、中間層を含めた膜厚が約 $1.9\ \mu\text{m}$ の積層 DLC 膜であることを確認できた。

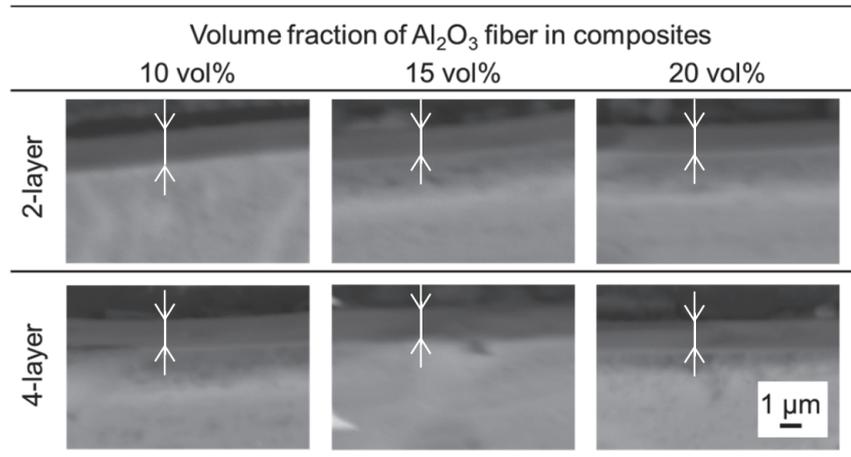


Fig. 3-4 Cross-sectional BEI image of each DLC film.

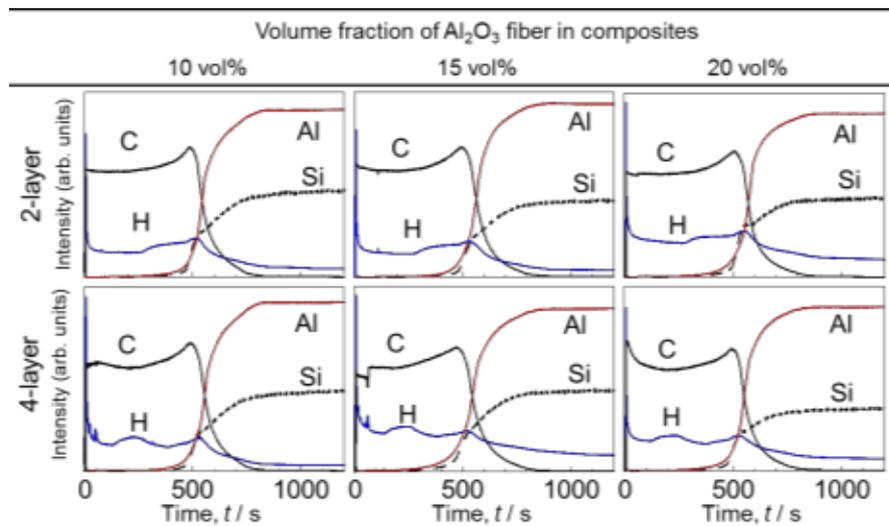


Fig. 3-5 GD-OES depth profile of DLC film.

3.3.2 DLC 膜の密着性

Fig. 3-6 にロックウェル圧痕試験後に行った光学顕微鏡観察の結果を示す。Fig. 3-6 より未処理材では圧痕周辺にしわ状の塑性変形領域が確認されたが、DLC コーティング後ではそれが小さくなっていることがわかった。また、DLC コーティングを施した試料には圧痕周方向にリング状の亀裂であるリングクラックが見られた。このクラックが生じる理由としては、表面の半径方向応力が接触半径の外側で引張の最大値をもつためである^{24), 25)}。つまり、試料表面に基材自体の大きな塑性変形があったためリングクラックが発生したと考えられる²⁶⁾。

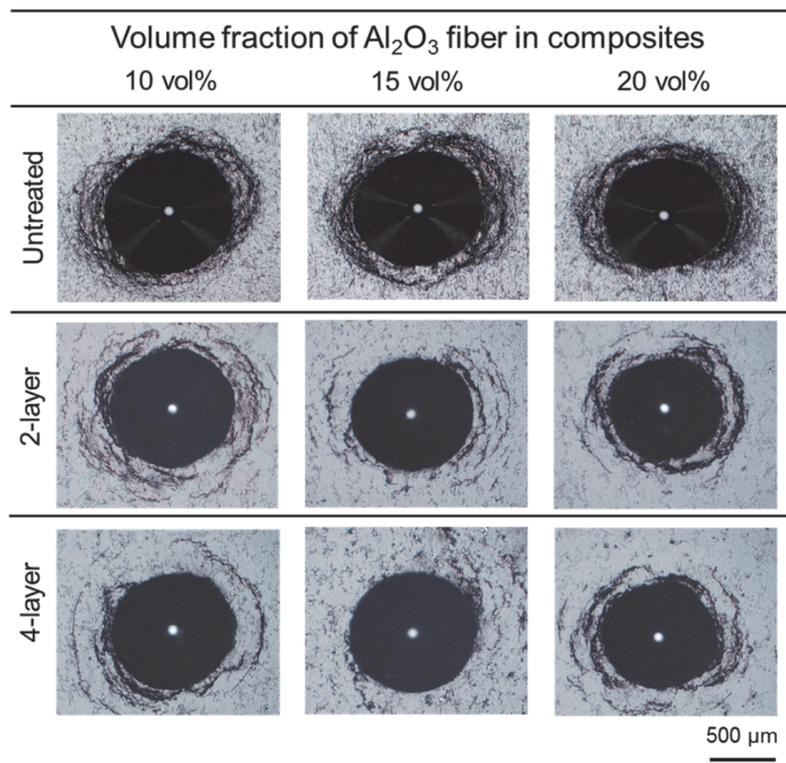


Fig. 3-6 Optical microscope images of each DLC film after Rockwell indentation test.

Fig. 3-7 に圧痕周囲を拡大した画像およびロックウェル圧痕試験後の評価を示す。圧痕周囲に Fig. 3-7 の矢印に示す半径方向の亀裂が確認されたが、剥離領域は確認されなかった。これよりいずれの条件も HF2 と判断し、良好な密着性を示すことがわかった。

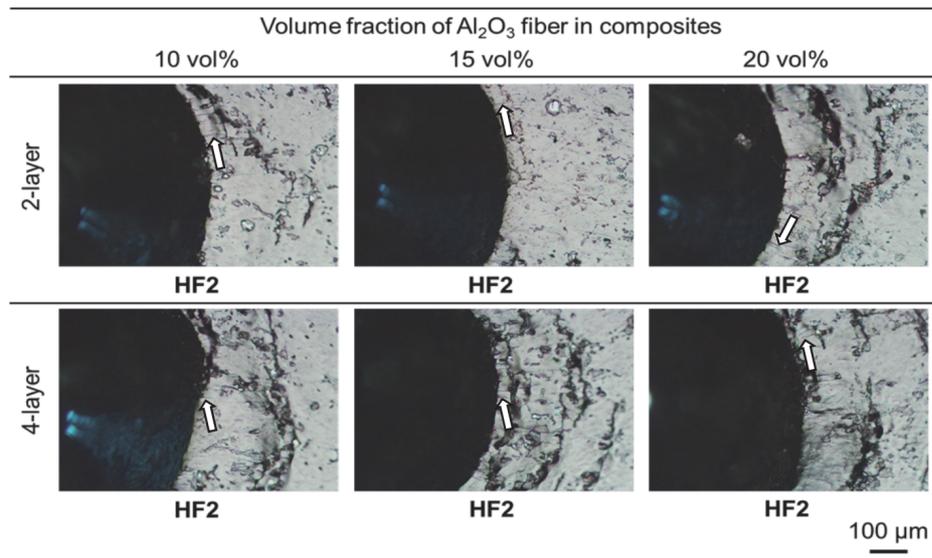


Fig. 3-7 Enlarged view of the area around the indentation after Rockwell indentation test.

3.3.3 DLC 膜の機械的特性

各荷重での荷重-変位曲線、硬さおよびヤング率を測定するために、100 mN、5 mN および 0.1 mN にてナノインデンテーション試験を行った。複合材体積率 10 % の DLC 膜に対し、100 mN の荷重で実施したナノインデンテーション試験より得られた荷重-変位曲線を **Fig. 3-8** に示す。この荷重で行ったナノインデンテーション試験は積層数に関わらず基材中の繊維強化材を多く含んでいる領域と含んでいない領域の影響を受け、押し込み深さが一定にならなかった。

押し込み深さが大きかった際および押し込み深さが小さかった際をそれぞれ図中に示す。ナノインデンテーション試験におけるポップイン発生荷重を明瞭にするため荷重 F を押し込み深さ h で微分した微分データから発生荷重を調査した。**Fig. 3-8** より押し込み深さが大きいほど第 1 ポップイン(荷重-変位曲線の屈曲)が低荷重で生じ、押し込み深さが小さいほど大荷重で生じることがわかった。ポップインは圧痕付近で発生する亀裂あるいは破壊の進展に起因すると考えられる²⁷⁾。よって、基材が硬いことによって DLC 膜中に亀裂が発生しにくくなっていることが示唆される。つまり複合材体積率が增大することで基材が強化され、それに伴い DLC 膜の耐久性が向上することが予想される^{18), 19)}。また、**Fig. 3-8** に示す押し込み深さが大きかった際の典型的な荷重-変位曲線より、積層数の増加に伴いポップイン数も多くなることが確認された。これは、積層数を増加させたことで界面数が増えたことに起因すると考えられる。界面が増えたことで、界面での微小な剥離が起こったためポップインとして現れたと考えられる^{18), 19), 28), 29)}。

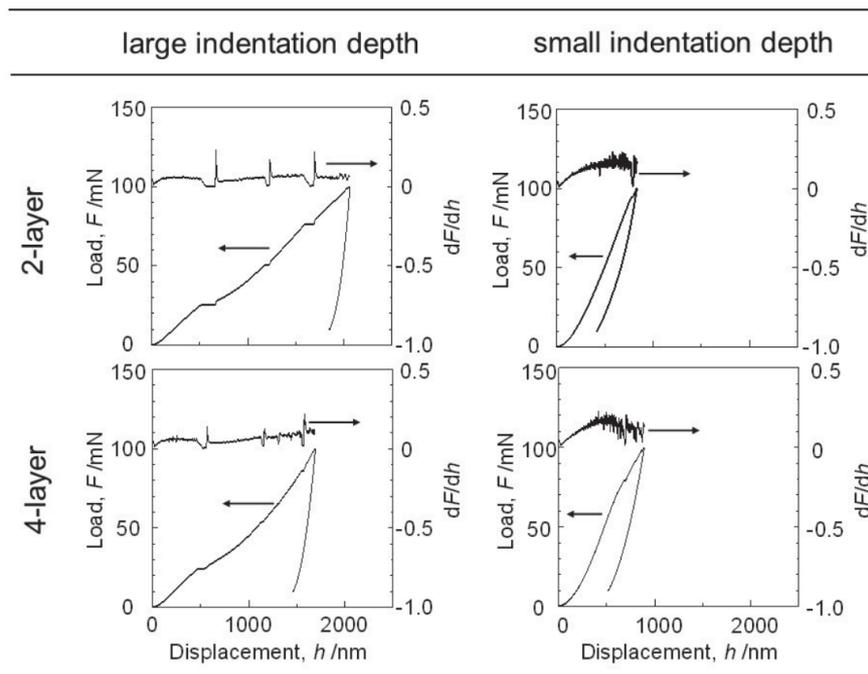


Fig. 3-8 Representative load-displacement curves for samples with different number of layers performed at a test load of 100 mN for a sample with 10% composite volume fraction.

Table 3-5 および **Table 3-6** に積層 DLC 膜の硬さやヤング率を評価するために押し込み深さが膜厚の 1/10 以下となるように荷重を設定 (5 mN) して行ったナノインデンテーション試験の結果を示す。

2 層 DLC 膜および 4 層 DLC 膜のいずれも複合材体積率の違いによる硬さおよびヤング率の差は見られなかった。しかし、4 層 DLC 膜ではヤング率が小さくなることがわかった。また、Greenwood と Williamson が塑性指数 ϕ を定義しており、 H/E が大きくなると ϕ が小さくなり、弾性接触する³⁰⁾。さらにナノ硬さ H は降伏強度 σ_y に比例するため、 H/E が破壊に至るまでの弾性ひずみつまり弾性ひずみ限界の指標となることが知られている³¹⁾。さらに H^3/E^2 や H^2/E というパラメータがある。Johnson の報告によれば塑性変形を開始するのに必要な荷重は H^3/E^2 と関連している。そのため、この比率は可塑性指数、つまり塑性変形に対する抵抗力として知られている³¹⁾⁻³³⁾。最後に、 H^2/E は破壊に対する抵抗力 (Irwin Orowan-Griffith ケース) を定義し、エネルギー放出率 (弾性率で表される) は破壊までの臨界応力 (硬さで表される) の 2 乗に比例する³⁴⁾。弾性エネルギーを蓄える能力が高い材料は高い H^2/E を特徴とする³⁵⁾。

Table 3-5 Indentation hardness and indentation Young's modulus of 2-layer DLC film tested at 5 mN load.

Volume fraction of Al ₂ O ₃ fiber in composites (%)	H_{IT}/GPa	E_{IT}/GPa	H/E	H^3/E^2	H^2/E
10	21.0 ± 0.4	172 ± 5	0.122	0.314	2.57
15	20.4 ± 1.3	170 ± 4	0.121	0.298	2.47
20	21.7 ± 1.1	183 ± 19	0.118	0.303	2.56

Table 3-6 Indentation hardness and indentation Young's modulus of 4-layer DLC film tested at 5 mN load.

Volume fraction of Al ₂ O ₃ fiber in composites (%)	H_{IT}/GPa	E_{IT}/GPa	H/E	H^3/E^2	H^2/E
10	21.5 ± 0.1	168 ± 2	0.128	0.353	2.76
15	21.3 ± 1.8	166 ± 10	0.128	0.352	2.74
20	21.1 ± 1.9	163 ± 10	0.129	0.352	2.72

Table 3-5 および **Table 3-6** より複合材体積率が増加しても硬さやヤング率, それらを用いた比率にほとんど変化が見られなかったことから, 基材の影響は受けなかったことがわかった。その一方で積層数を 2 層から 4 層に増加させたことによって硬さに違いは見られなかったがヤング率は減少していた。

硬さがほとんど変化しなかった理由としては, 膜厚自体の変化や各 DLC 膜の膜厚の割合に変化がなかったためと考えられる。ヤング率が減少した理由については, 多層化したことによる薄膜の圧縮残留応力の減少が考えられる。界面が増えたことで積層 DLC 膜の圧縮残留応力が緩和されることが知られており, また伊藤らは膜の残留応力とヤング率に関係性があることを報告している³⁶⁾。つまり, 積層回数を増加させることで積層 DLC 膜の残留応力が減少し, それとともに膜のヤング率も減少したと思われる^{18), 19), 30), 36)}。硬さとヤング率から表される H/E , H^3/E^2 , H^2/E いずれも 4 層 DLC 膜の条件が高かった。これより耐摩耗性, 膜の耐久性ともに 4 層 DLC 膜の方が 2 層 DLC 膜よりも優れていることが予測される。

Table 3-7 に押し込み荷重を 0.1 mN に下げて行ったナノインデントーション試験の結果を示す。**Table 3-7** より複合材体積率, または積層数を変化させても硬さおよびヤング率には大きな変化はみられなかった。これは, 0.1 mN と低荷重のため 2 層および 4 層 DLC 膜のいずれも最表面に形成されている C₂H₂-DLC 膜のみの影響を受けているためである。

Table 3-7 Indentation hardness and indentation Young's modulus of each DLC film tested at 0.1 mN load.

Volume fraction of Al ₂ O ₃ fiber in composites (%)	2-layer DLC		4-layer DLC	
	H_{IT}/GPa	E_{IT}/GPa	H_{IT}/GPa	E_{IT}/GPa
10	19.8 ± 1.7	196 ± 11	19.7 ± 1.5	195 ± 10
15	18.7 ± 1.4	200 ± 15	20.3 ± 1.5	194 ± 5
20	20.7 ± 2.5	204 ± 16	19.0 ± 1.9	209 ± 5

3.3.4 DLC 膜の耐摩擦性

Fig. 3-9 にアルミナセラミックボール($\phi 10$ mm)を相手材とし, 2.0 N(200 gf), 4.9 N(500 gf), 9.8 N(1000 gf)の各荷重で行った, 2層 DLC 膜および4層 DLC 膜ごとに平均化させた往復摺動試験中の摩擦係数を示す。Fig. 3-9 より2層 DLC 膜, 4層 DLC 膜ともに低荷重になるほど低摩擦係数を示すことがわかった。また, 4.9 N 以下では積層数による違いは見られなかったが, 4.9 N 以上の荷重では2層 DLC 膜が4層 DLC 膜の試料よりも低摩擦係数を示すことがわかった。

このような傾向を示した理由としては, 低荷重になるほど試料とボールの接触面積が小さくなったことや, 積層 DLC 膜の最表面層の DLC 膜, すなわちヤング率の大きい C_2H_2 -DLC 膜の影響が大きくなり試料とボールの接触面積が減少したため, 積層回数を変化させたことによる影響は小さくなったと考えられる³⁷⁾。4.9 N 以上の荷重で試験を行った際に, 2層 DLC 膜の変形に対する抵抗力が4層 DLC 膜より高かったためと考えられる。Table 3-5 および Table 3-6 に示した2層 DLC 膜および4層 DLC 膜のヤング率より, 2層 DLC 膜は4層 DLC 膜よりも大きいヤング率を有していることがわかる。そのため大きいヤング率を有していた2層 DLC 膜は4層 DLC 膜よりも変形しにくく, 試料とボールの接触面積が減少したため, 低摩擦係数を示したことが考えられる³⁷⁾。

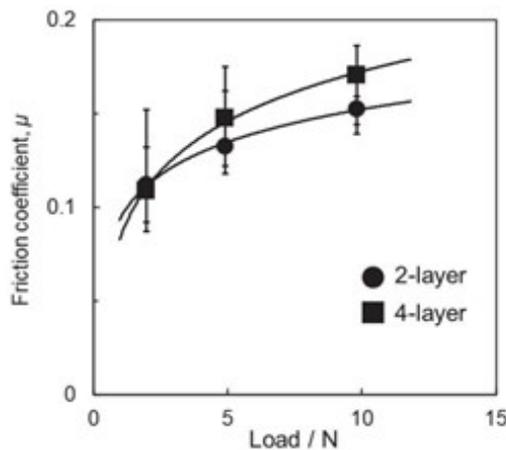


Fig. 3-9 Coefficient of friction of 2-layer DLC or 4-layer DLC film at each load after reciprocating sliding test.

3.3.5 DLC 膜の耐摩耗性

Fig. 3-10 に 9.8 N (1000 gf) の荷重で 1000 m の往復摺動試験後の摩耗痕を示す。また, Fig. 3-10 からクラックが確認されない領域を摩耗幅と見なし, 算出した摩耗面積を Fig. 3-11 に示す。Fig. 3-11 より積層数の増加とともに摩耗面積が小さくなっていったことがわかった。

この結果は, Table 3-5 および Table 3-6 に示したナノインデンテーション試験の結果より予測された通りであった。Table 3-5 および Table 3-6 に示した H/E , H^3/E^2 および H^2/E において, 4 層 DLC 膜はいずれも 2 層 DLC 膜よりも大きい値を示した。これはつまり, 4 層 DLC 膜が破壊に至るまでの弾性ひずみや塑性変形に対する抵抗, 弾性エネルギーを蓄える能力が高いことを指している³¹⁾⁻³⁵⁾。以上のような特性を有していたため 4 層 DLC 膜は 2 層 DLC 膜より摩耗しにくく, Fig. 3-10 および Fig. 3-11 に示したような摩耗幅および摩耗面積の小さい摩耗痕となったことが考えられる。

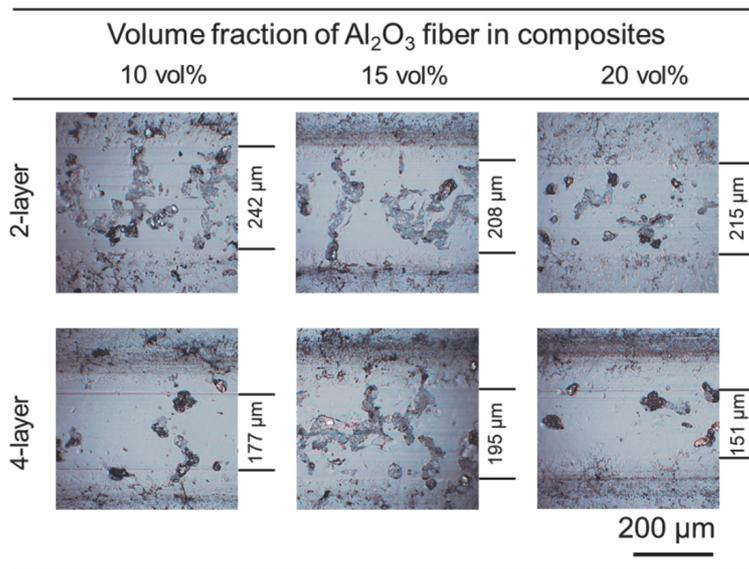


Fig. 3-10 Observation of wear marks after reciprocating sliding test at 9.8 N.

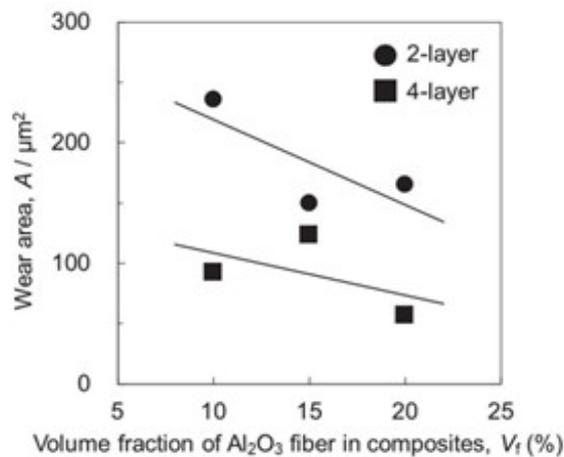


Fig. 3-11 Wear area after reciprocating sliding test at 9.8 N.

3.3.6 DLC 膜の耐久性

Fig. 3-12 に 2 層 DLC 膜および 4 層 DLC 膜の臨界剥離回数を示す。往復摺動試験中に摩擦力が急激に上昇したとき距離を臨界剥離回数とした。Fig. 3-12 より複合材体積率や積層数の増加とともに臨界剥離回数が増加することがわかった。

複合材体積率の増加による臨界剥離回数の増加は、基材全体の硬さやヤング率の向上に起因していると思われる。積層数の増加による臨界剥離回数の増加は、Table 3-5 および Table 3-6 に示したナノインデンテーション試験の結果より予測された通りであった。Table 3-5 および Table 3-6 に示した H^3/E^2 および H^2/E において、4 層 DLC 膜はいずれも 2 層 DLC 膜よりも大きい値を示した。3.3.5 で示したように、 H^3/E^2 および H^2/E が高いということは塑性変形に対する抵抗力や弾性エネルギーを蓄える能力が高いということを指している。そのため、 H^3/E^2 および H^2/E の大きい 4 層 DLC 膜は耐久性が 2 層 DLC 膜よりも高かったことが考えられる³¹⁾⁻³⁵⁾。よって積層数の増加とともに臨界剥離回数が増加したと考えられる。

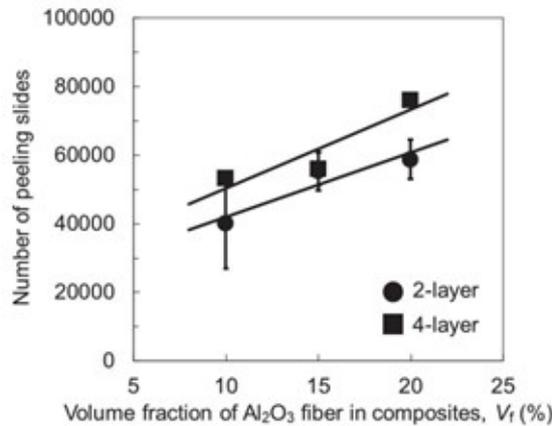


Fig. 3-12 Number of peels for each DLC film during reciprocating test at 9.8 N.

3.4 小 括

アルミニウム合金を Al_2O_3 繊維で強化したアルミニウム合金基複合材料を基材とし、繰り返し回数異なる積層 DLC 膜を成膜することにより、機械的特性やトライボロジー特性に与える影響を調査することを目的として研究を行った結果、以下のようなことがわかった。

- (1) 複合材体積率の増加とともに積層 DLC 膜の耐久性が向上する。
- (2) 積層数を増加させることでヤング率が減少し H/E などの硬さとヤング率から表される比率が増大する。
- (3) ヤング率が大きい 2 回積層 DLC 膜は摩擦係数が 4 回積層 DLC 膜よりも小さくなったが、摩擦摩耗試験後の摩耗幅が小さくなった。
- (4) ナノインデンテーション試験を用いた膜の耐久性などの予測は有用である。

参 考 文 献

- 1) 額見哲也, 加藤 晃, 大河内幸男, 杉山雅彦: まてりあ, **36** (1997), 349-351.
- 2) J. Robertson: Pure Appl. Chem., **66** (1994), 1789-1796.
- 3) 上坂裕之: J. Plasma Fusion Res., **90** (2014), 76-83.
- 4) 池永 勝: 高機能化のための DLC 成膜技術, 日刊工業新聞社(2007), 1-11.
- 5) C.H. Hsueh and E. R. Fuller: Mater. Sci. Eng. A, **283** (2000), 46-55.
- 6) C.H. Hsueh and E. R. Fuller: Scr. Mater., **42** (2000), 781-787.
- 7) A. Mani, P. Aubert, F. Mercier, H. Khodja, C. Berthier and P. Houdy: Surf. Coat. Technol., **194** (2005), 190-195.
- 8) Y. Q. Fu, J. K. Luo, A. J. Flewitt, S. E. Ong, S. Zhang and W. I. Milne: Appl. Surf. Sci., **252** (2006), 4914-4918.
- 9) P. Wang, X. Wang, T. Xu, W. Liu and J. Zhang: Thin Solid Films, **515** (2007), 6899-6903.
- 10) L. Xiao, Z. Chen, C. Feng, L. Liu, Z. Q. Bai, Y. Wang, L. Qian, Y. Zhang, Q. Li, K. Jiang and S. Fan: Nano Lett., **8** (2008), 4539-4545.
- 11) K. Siraj, M. khaleeq-ur-Rahman, M. S. Rafique, M. Z. Munawar, S. Naseem and S. Riaz: Appl. Surf. Sci., **257** (2011), 6445-6450.
- 12) 山中久彦: 日本金属学会会報, **14** (1975), 111-123.
- 13) N. Ravi, V. L. Bukhovets, I. G. Varshavskaya and G. Sundararajan: Diam. Relat. Mater., **16** (2007), 90-97.
- 14) 國次真輔, 野村博郎: 表面技術, **60** (2009), 527-532.
- 15) W. Zhang, A. Tanaka, B. S. Xu and Y. Koga: Diam. Relat. Mater., **14** (2005), 1361-1367.
- 16) Z. Xu, H. Sun, Y. X. Leng, X. Li, W. Yang and N. Huang: Appl. Surf. Sci., **328** (2015), 319-324.
- 17) Y. Lin, A. W. Zia, Z. Zhou, P. W. Shum and K. Y. Li: Surf. Coat. Technol., **320** (2017), 7-12.
- 18) H. Maruno and A. Nishimoto: Surf. Coat. Technol., **354** (2018), 134-144.
- 19) 丸野英伸, 西本明生: 日本金属学会誌, **83** (2019), 82-86.
- 20) Y. Kobayashi and A. Nishimoto: Mater. Trans., **62** (2021), 271-277.
- 21) Daimler Benz Adhesion Test, Richtlinien no. 3198, Verein Deutscher Ingenieure (VDI), Dusseldorf: VDI-Verlag, (1992), 7-12.
- 22) W. Heinke, A. Leyland, A. Matthews, G. Berg, C. Friedrich and E. Broszeit: Thin Solid Films, **270** (1995), 431-438.
- 23) C. C. Chen and F. N. Hong: Appl. Surf. Sci., **243** (2005), 296-303.
- 24) R. Ikeda, M. Hayashi, A. Yonezu, T. Ogawa and M. Takemoto: Diam. Relat. Mater., **13** (2004), 2024-2030.
- 25) 林 一夫, 袁 方: 日本機械学会論文集 A 編, **64** (1998), 30-35.
- 26) T. Takamatsu, H. Ichikawa, T. Matsumura and T. Kawasaki: J. Soc. Mater. Sci., Japan, **47** (1998), 819-824.
- 27) S.-R. Jian, T.-H. Fang, D.-S. Chuu and L.-W. Ji: Appl. Surf. Sci., **253** (2006), 833-840.
- 28) Z. N. Farhat, Y. Ding, D.O. Northwood and A. T. Alpas: Surf. Coat. Technol., **89** (1997), 24-30.
- 29) H. Holleck and V. Schier: Surf. Coat. Technol., **76-77** (1995), 328-336.
- 30) J.A. Greenwood and J.P. Williamson: Proc. R. Soc. London A, **295** (1966), 300-319.
- 31) X. Chen, Y. Du and Y.-W. Chung: Thin Solid Films, **688** (2019), 137265.
- 32) K.L. Johnson: Contact Mechanics, 1st ed. Cambridge University Press, Cambridge, UK, (1985), 155.
- 33) O. S. Panwar, R. K. Tripathi and S. Chockalingam: Mater. Exp., **5** (2015), 410-418.

- 34) Y. T. Pei, P. Huizenga, D. Galvan and J. Th. M. De Hosson: *J. Appl. Phys.*, **100** (2006), 114309.
- 35) M. A. Garrido, A. Rico, M. T. Gómez, M. Cadenas, J. E. Fernández Rico and J. Rodríguez: *J. Therm. Spray Technol.*, **26** (2017), 517-529.
- 36) 伊藤義康, 斉藤正弘, 宮崎松生: 日本機械学会論文集 A 編, **60** (1994), 141-146.
- 37) Y.-R. Jeng, S. Islam, K-T. Wu, A. Erdemir and O. Eryilmaz: *J. Mech.*, **33** (2017), 769-776.

第4章

「金属繊維強化軽金属基複合材料の界面反応による高温強度への影響」

4.1 緒言

高出力・低燃費の自動車用エンジンに対応するため、燃焼部の高温強度・疲労特性を向上させたピストンの開発が急務となっている。セラミックスの繊維やウイスカなどを分散させた金属基複合材料(MMC)で部分補強したピストンが実用化され、金属系繊維強化材も検討され始めた¹⁻³⁾。金属繊維で強化された金属複合材料は、セラミック繊維で強化された複合材料よりもはるかに大きな延性と破壊靱性を有する⁴⁾。環境面からも、炭化ケイ素(SiC)を始めとするセラミックス短繊維を強化繊維として適用した場合、その繊維径(数 μm)の細さから吸入による人体への影響が危惧されている。一方、金属繊維は 15~150 μm の繊維径を持ったため、吸入の可能性は低く、人体影響について安全性が高いと言われている⁵⁾。

一般的に、W, Mo, ステンレス鋼などの金属繊維強化材は、セラミック系強化材と比べ軽金属マトリックスに対して濡れ性が高いとされる⁶⁾。それ故に、Al, Mgなどの軽金属材料は活性な金属であり、強化金属繊維と反応したり溶解する恐れもある。従って、この系の複合材料の製造は反応・溶解の抑制が課題となる。例えば、軽金属マトリックスのMMCの使用可能温度(500 K以下)では、W, Moほどの耐熱性を必要としないので、ステンレス鋼系の繊維を用いたMMCの研究が多い。よって、使用温度では反応の進行も大きくないので、製造時の反応制御が重要となる。このような視点から、ステンレス鋼繊維を代表とする金属繊維強化材を、溶湯浸透法により短時間で軽金属に複合化し、反応・溶解の起こる前に冷却して製品とされたものが実用化されている⁷⁾。しかし、複合化後にはマトリックス自身の熱処理による時効強化される場合も多く、773 K以上となる溶体化処理時の強化材界面反応による強度特性への影響を研究することは重要である^{8,9)}。

本章では金属繊維強化材のうち優れた高温度強度を持つ新規に開発された FeCrSi 金属繊維¹⁰⁻¹²⁾を用い、溶湯浸透法によってマグネシウムおよびアルミニウムと合金の複合材料を作製した。熱処理前後(溶体化処理)における界面反応層の形成状態、高温強度特性への影響を検討した。

4.2 実験方法

4.2.1 供試材料

金属繊維には、Fig. 4-1に示す溶湯抽出法¹²⁾により作成したFe-Cr-Si繊維(日本発条株式会社製)を用いた。Fe-Cr-Si繊維の特性をFig. 4-2に、外観をFig. 4-3に示す¹³⁾。ステンレス鋼であるSUS系より強度が高く、高温伸びに優れるなど次世代の強化材として用途開発が期待されている。溶湯抽出法は熔融状態の合金から繊維(ϕ 20~40 μ m)を直接作製可能であり、塑性加工工程が不要なため、難加工材(SUS, Ti等)の繊維化に有利である。このウェブ状の細線(平均繊維径 ϕ 40 μ m, 長さ5~50mm)を二次元配向がランダムな薄いシートにプレス加工し、このシートを積層してプレス成形した後、真空加圧焼結(1200 °C)を行ってプリフォームを作製した^{10,14,15)}。Fig. 4-4にプリフォーム作製工程のイメージ図を示す。繊維体積率は20 vol%になるよう調整した。

マトリックスには、エンジンピストンなどの高温環境で利用が想定される、マグネシウム合金とアルミニウム合金を検討した。マグネシウム合金には、耐熱マグネシウム合金であるAXE522(Mg-5Al-2Ca-2RE)合金を用いた。アルミニウム合金にはエンジンピストンで実用例が多いAC8A(Al-Si-Cu-Ni-Mg)合金を用い、各合金での強化材/母材の反応形態を調べた。

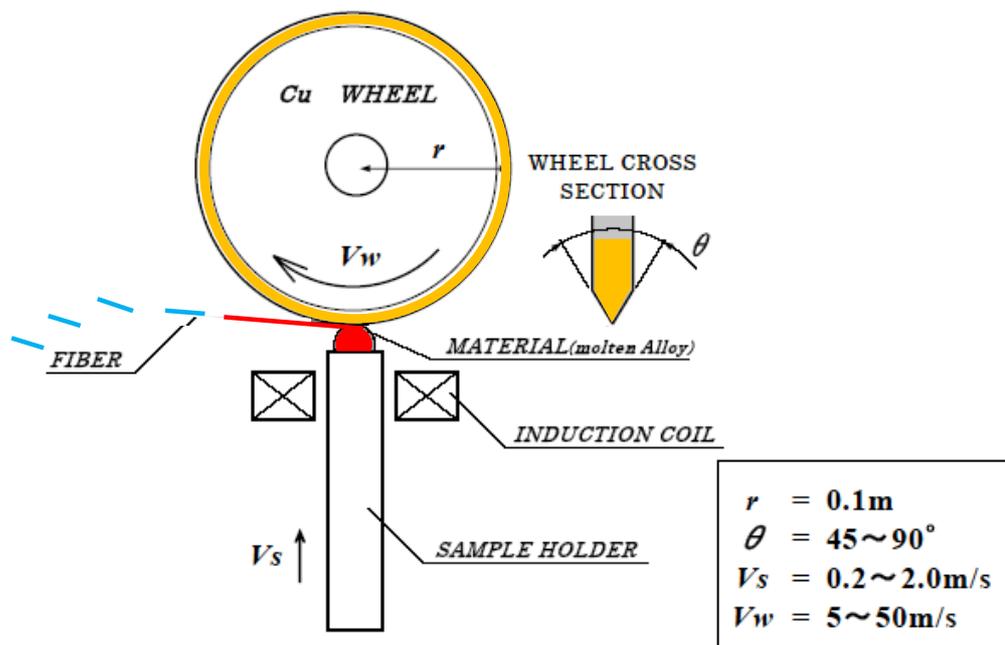


Fig. 4-1 Schematic drawing of melt extraction method. ¹³⁾

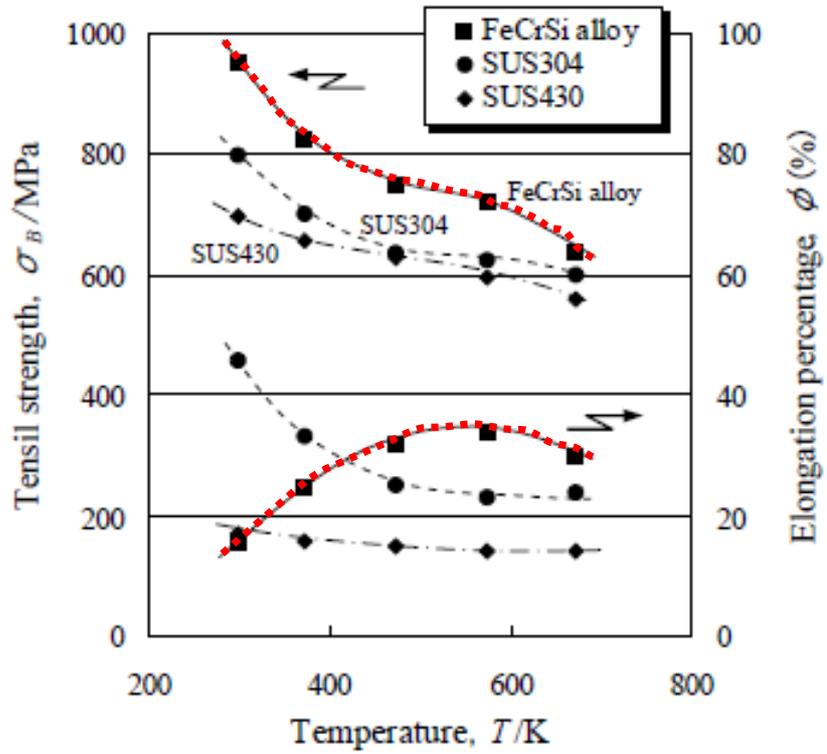


Fig. 4-2 Mechanical properties of FeCrSi alloy.¹³⁾

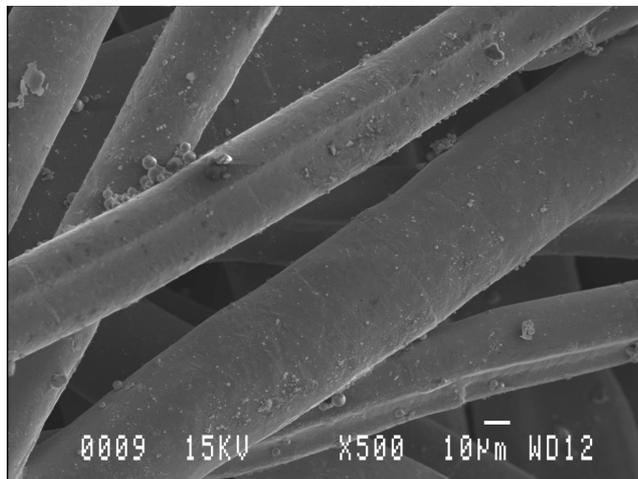


Fig. 4-3 SEM image of metal fiber.

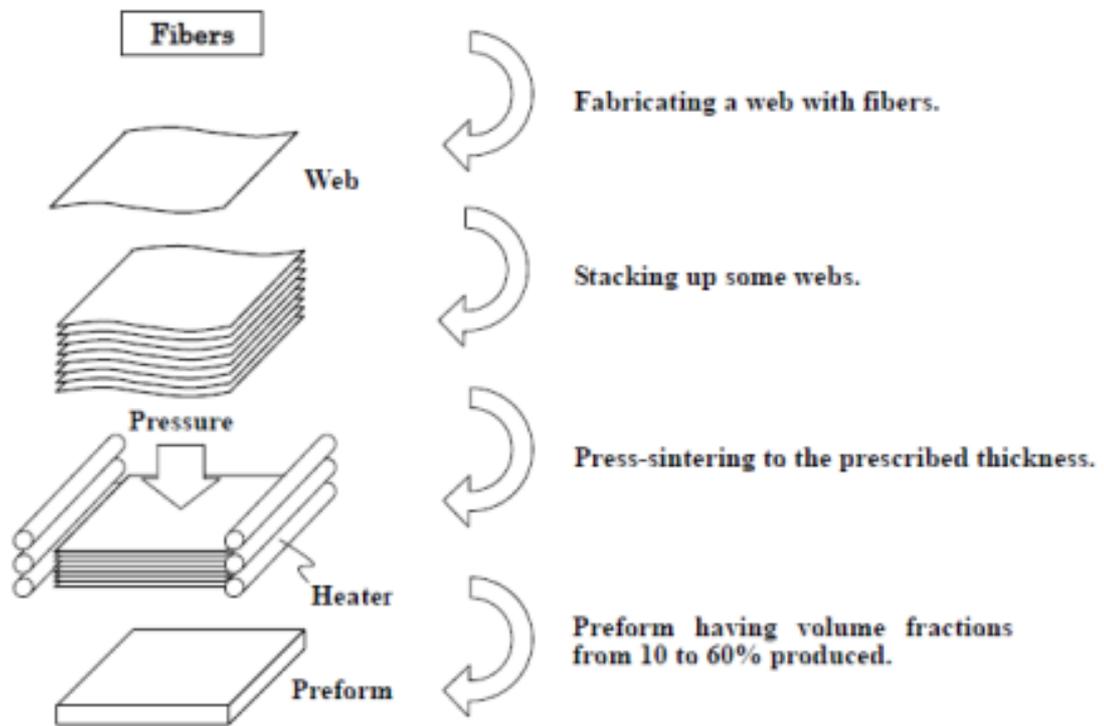


Fig. 4-4 Method for production preforms. ¹³⁾

4.2.2 油圧プレス機による溶湯浸透実験

複合化は Fig. 4-5 に示す油圧プレス機を用いた溶湯浸透法で行った。プリフォームを金型底面に配置し、溶湯を油圧プレスを用いて、高圧で浸透させることで FeCrSi 繊維強化複合材料を作製した。各合金使用時の鑄造条件を Table 4-1 に示す。

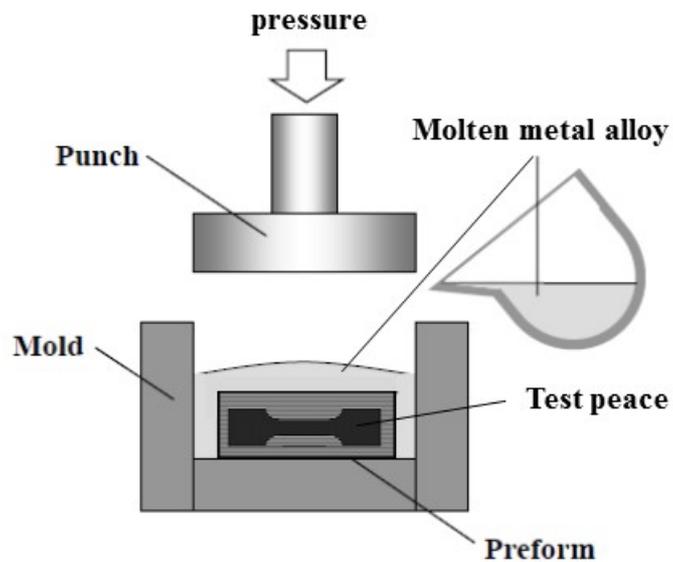


Fig. 4-5 Schematic drawing of Infiltration Process.

Table 4-1 Casting conditions.

	Aluminum matrix composite	Magnesium matrix composite
alloy	AC8A (Al-Si-Cu-Ni-Mg)	AXE522 (Mg-5Al-2Ca-2RE)
Melt pouring temperature	1023K	973K
Preform preheating temperature	573K	773K
Die temperature	523K	423~473K
Applied pressure	100MPa	250MPa

4.2.3 熱処理方法および物性評価試験

アルミニウム合金として用いた, AC8A (Al-Si-Cu-Ni-Mg) は熱処理型合金で, JIS が推奨する T6 熱処理は, 溶体化処理温度 (T_{st}) が 783 K, 処理時間が 14.4 ks である。よって, FeCrSi/Al 合金複合材料は溶体化処理温度を 743 K~793 K に変化させ, 界面反応の形成状態を調査した。時効処理条件 (453 K, 21.6 ks) を JIS 規格で一定とした。

一方, マグネシウム合金として用いた AXE522 (Mg-5Al-2Ca-2RE) は希土類を含む非熱処理型の合金である。よって, FeCrSi/Mg 合金複合材料は, 製造直後の as-cast の状態で界面反応を調査した。

繊維/マトリックス界面の微細構造は, 光学顕微鏡, 走査型電子顕微鏡 (SEM), エネルギー分散型 X 線分光法 (EDS) により解析した。引張試験および硬さ試験は, 室温から 573 K までの温度で行った。FeCrSi/Mg 合金複合材料の強度試験は比較材として AC8A アルミニウム合金 (T6 熱処理) を選定した。また, FeCrSi/Al 合金複合材料のみ疲労強度も調査した。小野型の回転曲げ疲労試験機を用いて, 一定の振幅荷重 (amp:60 MPa) にてエンジン環境を想定した 573 K で実施した。なお, 引張および疲労試験片は Fig. 4-5 に示すように引張方向が複合化時の加圧方向に対して垂直になるように採取した。

4.3 実験結果および考察

4.3.1 FeCrSi/Al 複合材料

4.3.1.1 溶体化処理条件による FeCrSi/Al の界面反応特性

強化材界面反応層の形成に対する溶体化処理の影響を検討した。Fig. 4-6 は、763~788 K で溶体化処理された複合材料の横断面の SEM 顕微鏡写真を示す。FeCrSi 繊維と α 相および微細な共晶 Si よりなっている。反応生成物は、773 K での溶体化処理後に繊維/マトリックス界面に沿っていくつかのスポットで形成されていた。従って、JIS が推奨する 783 K の溶体化処理温度は、反応領域の温度であった。これらの反応生成物の数とサイズは、溶体化処理温度の上昇に伴い増加した。反応層の厚さは、788 K での溶体化処理後に 10 μm 以上に達した。

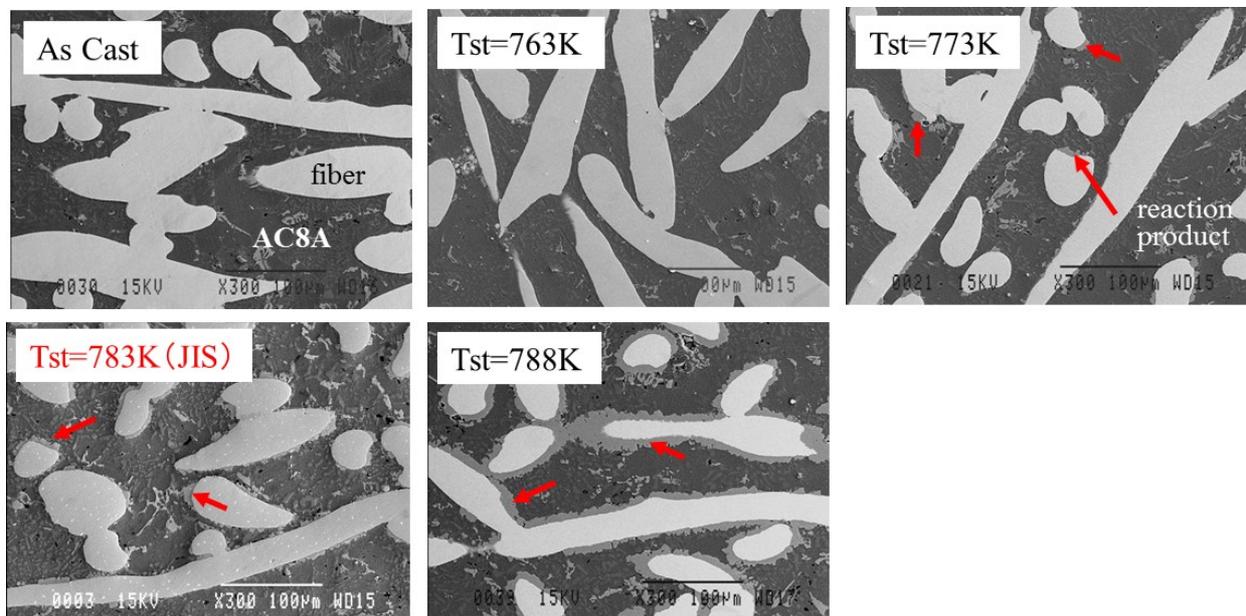


Fig. 4-6 SEM micrographs of composites solution-treated at 763 K – 788 K (14.4 ks).

Fig. 4-7 に 773 K での溶体化処理時の反応開始時間を調査した結果を示す。規定時間 14.4ks の 1/4 である 3.6 ks ですすでに反応は開始していた。

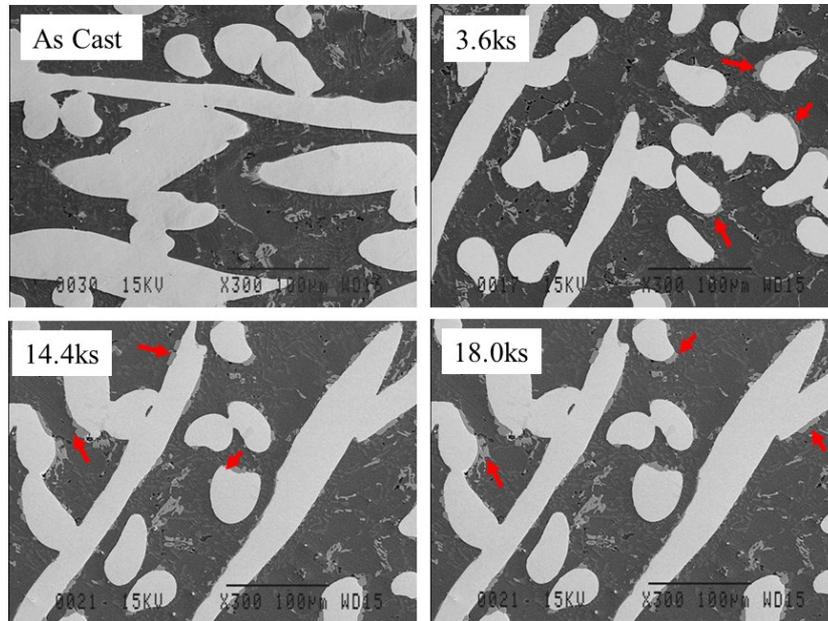


Fig. 4-7 SEM micrographs of composites solution-treated at 773 K.

Fig. 4-8に788 Kで溶体化処理した複合材料の断面微細構造およびEDSマッピングを示す。Al-Fe金属間化合物が繊維/マトリックス界面で形成されていることがわかる。これまでの研究で、Alリッチな金属間化合物は固体拡散焼鈍でも観察されている^{8,9)}。反応生成物の組成物は、EDS分析により濃度傾斜は無く、60%Al-23%Fe-7%Cr-10%Siであった。なお、点在している数 μm のSiは母材中の析出粒子である。

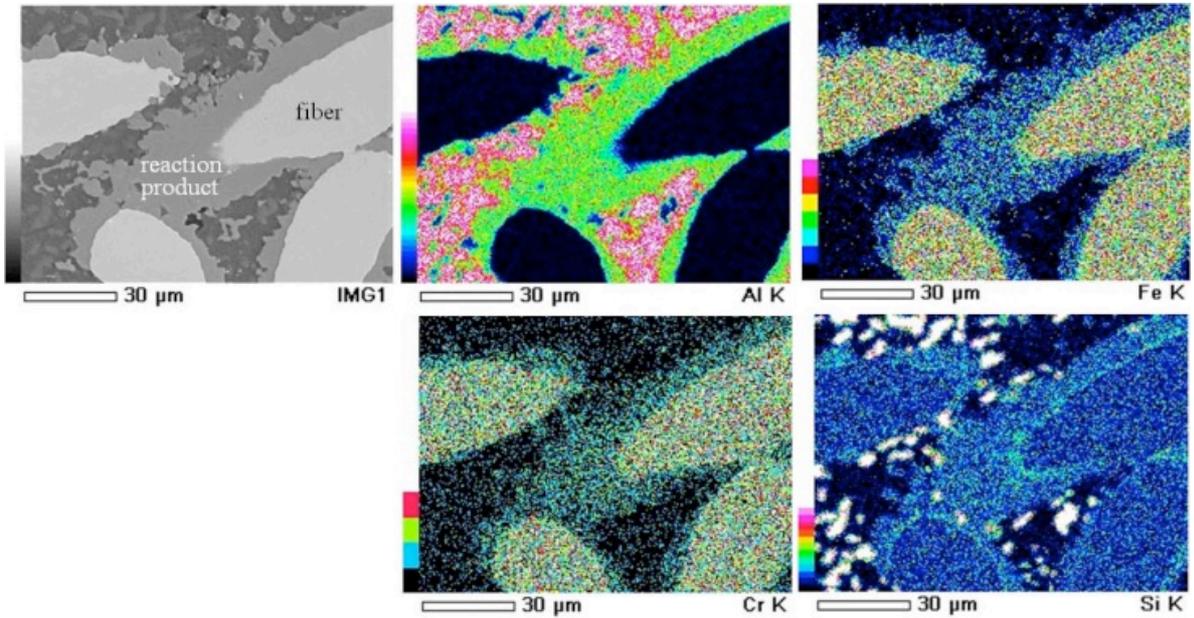


Fig. 4-8 Cross-sectional microstructure and EDS mapping of composite solution-treated at 788 K.

4.3.1.2 硬さおよび引張強度への界面反応層の影響

Fig. 4-9は、溶体化処理温度(T_{st})の違いによる、室温(298 K)および高温(573 K)での硬さと引張強度に及ぼす影響を調査した。マトリックスのJIS推奨(JIS H 5202)溶体化処理温度は783 Kである。

硬さおよび引張強度は、溶体化処理温度(T_{st})が上がるとともに増加した。その増加幅はほぼ一定であり、前述のAl-Fe金属間化合物の界面反応有無の影響は少なく、溶体化固容量の違いが大きいと推定される。界面反応した複合材料($T_{st}=783$ K:JIS)の引張強度は、界面反応のない複合材料($T_{st}=763$ K)のそれよりも約10%高かった。Ni基合金の金属繊維(例えばインコネル601)で強化した複合材料も界面反応生成物ができ、延性は低下するものの、引張強度は向上する同様な報告がみられる⁸⁾。

なお室温においては高温と違い、各溶体化処理温度(T_{st}) 全域で複合化により硬さは上昇するものの、強度は低下していた。室温と高温では界面反応の有無に関わらず、強化材自身の特性や強化材/マトリックスの界面せん断強度など強化機構が異なる可能性がある。ここで、界面反応のない複合材料(溶体化処理温度763 K)の最大引張強度を、マトリックスの最大引張強度で除し、百分率としたものを強化効率と定義し比較した。Fe-Cr-Si繊維によるAlマトリックスの強化効率は、室温では95%であるが、573 Kの高温域では138%と高温域での強化効率が高いことがわかる。

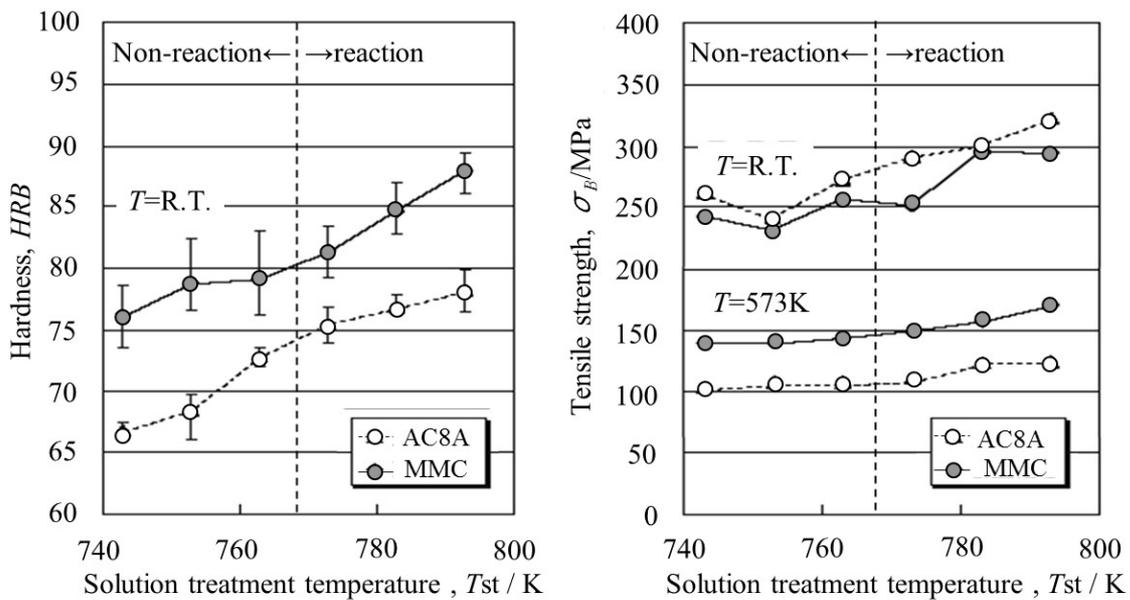


Fig. 4-9 Effect of solution treatment temperature on hardness and tensile strength at 298 K and 573 K.

4.3.1.3 FeCrSi繊維の引張破面形態

Fig. 4-10に界面反応のない溶体化処理温度763 Kで処理した複合材料の引張試験後の破面を示す。プルアウトした繊維は、破面には多く認められず、マトリクス中のFe-Cr-Si金属繊維の濡れ性が良好であることを示す。

MMCの強度は高温域ではAC8Aマトリクスの強度よりも高く、逆に室温ではAC8Aマトリクスの強度よりも低い。繊維のみに着目すると、破壊形態は室温では脆性的であるが、高温では延性的な様式を呈している。繊維自身の強度特性(**Fig. 4-2**)は、SUSとは違い室温よりも高温域で延性が高い。前述のとおりFe-Cr-Si繊維によるAlマトリクスの強化効率、室温よりも573 Kの高温域で大幅に改善されており、繊維自身の特性が影響している可能性もある。

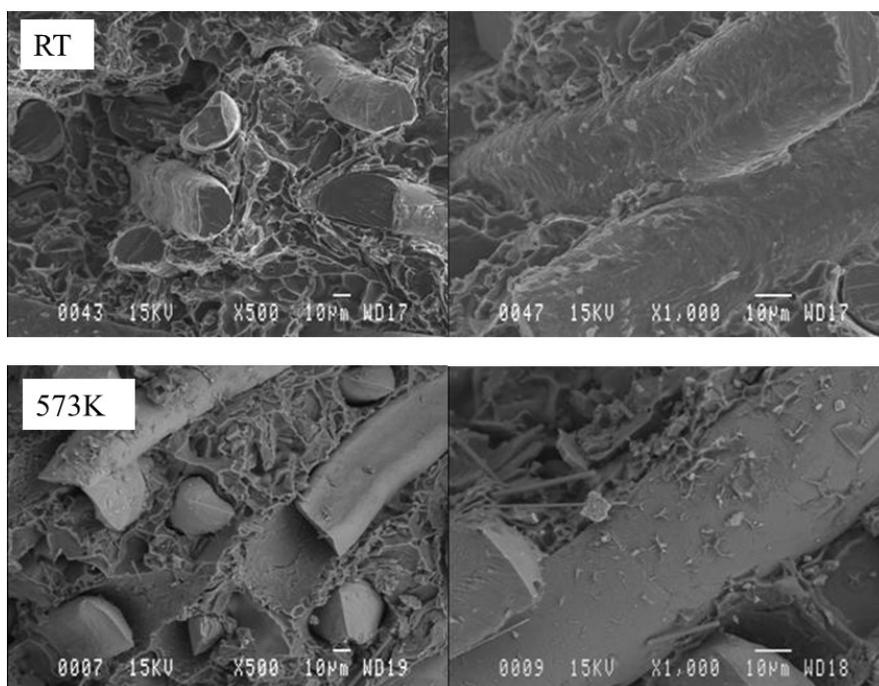


Fig. 4-10 SEM micrographs of the fracture of tensile specimens of composites solution-treated at 763 K.

4.3.1.4 疲労強度と界面反応層の関係

Fig. 4-11に573 Kにおける疲労破壊の到達回数と溶体化処理温度の関係を示す。JIS溶体化処理温度 ($T_{st}=783\text{ K}$) では界面反応が起こり、疲労寿命が 1×10^7 サイクルに達することが出来なかった。一方で、界面反応の生成を抑えた複合材料 ($T_{st}=763\text{ K}$) は、 1×10^7 サイクルを越え、疲労寿命を大幅に改善した。これは界面反応生成物の厚さがサイクル数を低下させていることを示唆している。

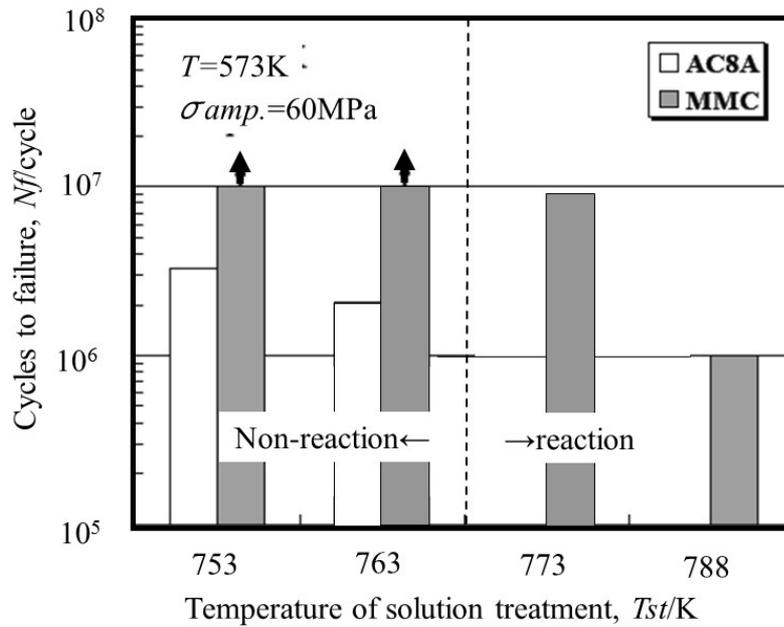


Fig. 4-11 Relationship between number of cycles to fracture and solution treatment temperature.

Fig. 4-12に573 Kにおける疲労試験後の試験片表面の断面組織を示す。界面反応する複合材料 ($T_{st}=788$ K)は、反応生成物である脆いAl-Fe金属間化合物に無数の割れが発生しており、これを起点として疲労強度が低下したと推定できる。

一方、界面反応生成物を含まない複合材料($T_{st}=768$ K)の場合には、繊維を迂回しマトリックスのみ横断するクラックが見られた¹⁶⁾。界面反応生成物が無いため、繊維によって亀裂は一旦分断されており、繊維自身のネッキング領域もみられことから、疲労寿命が向上できたと考えられる。このように、本複合材料の溶体化処理温度は高温強度を下げるが、疲労強度が高まる763 Kが適正であるといえる。

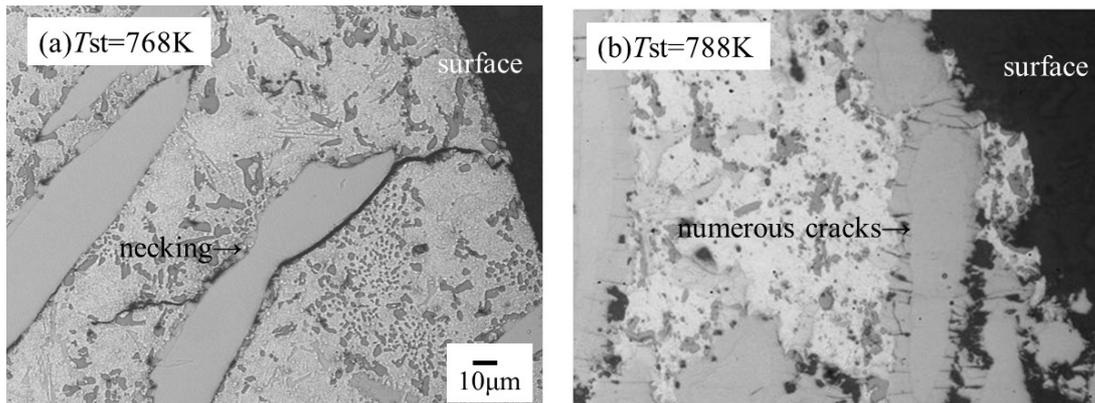


Fig. 4-12 Cross-sectional optical micrograph of the rapture situation of fatigue fracture surface.

4.3.2 FeCrSi/Mg 複合材料

4.3.2.1 複合化時における FeCrSi/Mg の界面反応特性

Fig. 4-13 に示すように、複合化時(As-cast)において繊維/マトリクス界面には 10 μm 前後の長さの針状化合物が観察される。EDS 分析からマトリクスの晶出化合物である Al-Ce 化合物相であると考えられる。強化材の Fe とマトリクスの Mg は中間化合物を生成しないのでこの結果は妥当である。一方、マグネシウム合金元素の Al は Fe と反応する可能性があるが、複合化時の温度プロファイルでは SEM および EDS から界面反応生成物は認められなかった。

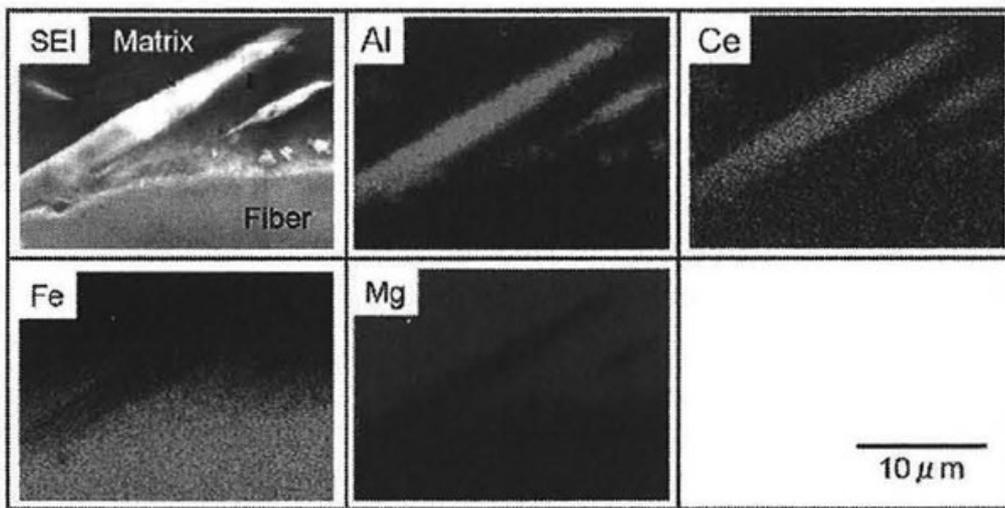


Fig. 4-13 EDS mapping of interface between FeCrSi fiber and AXE522 magnesiumu alloy.

4.3.2.2 引張強度への界面反応層の影響

Fig. 4-14 に室温から 573 K までのそれぞれの応力-ひずみ曲線を示す。ひずみ量はクロスヘッド移動量を標点間距離で除して算出した。423~573 K では、室温と比較して伸びが増加していることがわかった。マトリックス合金単体において、試験温度の上昇に伴い伸びが増加していることが報告されており、室温では 3 %程度であるが、523 K では 14 %程度まで増大する¹⁷⁾。それゆえ、マトリックスの延性によって繊維間を塑性流動し、複合材料の伸びが増加したものと考えられる。

Fig. 4-15 と Fig. 4-16 に各試験温度における最大引張強度と 0.2%耐力をそれぞれ示す。0.2%耐力はオフセット法により算出した、室温から 573 K のすべての試験温度において、複合材料の最大引張強度、0.2%耐力は、マトリックス合金単体に比べ向上した。複合化時(As-cast)において観察された繊維/マトリックス界面には 10 μm 前後の長さの針状化合物(Al-Ce 系)は、調査した室温および高温領域の引張強度特性に大きな影響はないと推定される。

各試験温度における複合材料の最大引張強度を各試験温度のマトリックスの最大引張強度で除し、百分率としたものを強化効率と定義し比較した。Fe-Cr-Si 繊維による Mg マトリックスの強化効率は、室温では 108 %であるが、573 K の高温域では 177 %と高温域での強化効率が高いことがわかる。また、473 K では複合材料の最大引張強度は JIS-AC8A と同程度であるが、523 K 以上における最大引張強度は JIS-AC8A よりも高く、高温強度に優れた複合材料であることがわかる。前述した 4.3.1.2 のとおり、Al マトリックス(AC8A 合金)でも室温よりも高温での強化効率が高く同じ傾向がある。

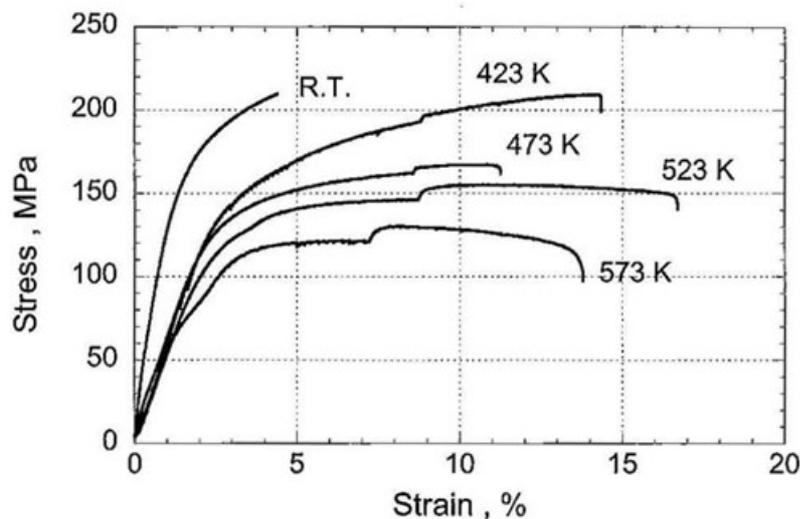


Fig. 4-14 Stress-Strain curves of the composites at various temperature.

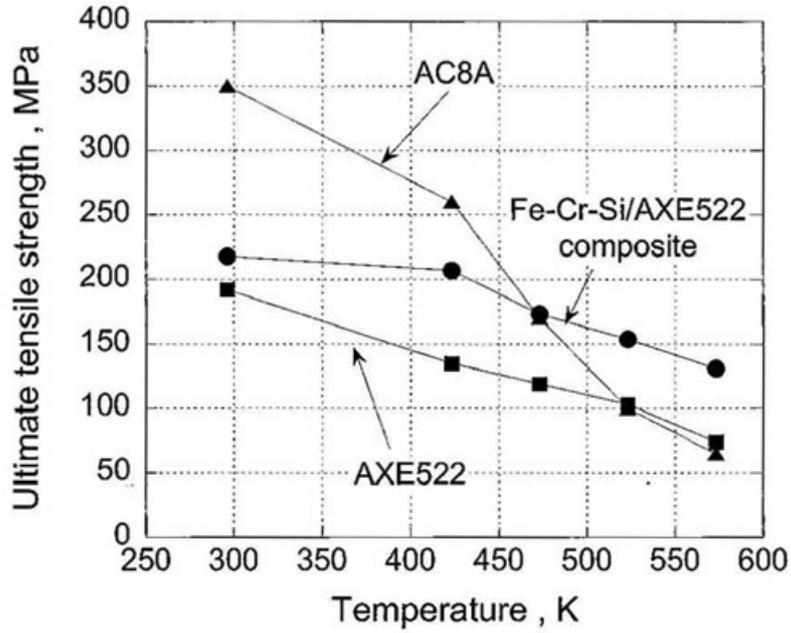


Fig. 4-15 Relationship between test temperature and tensile strength.

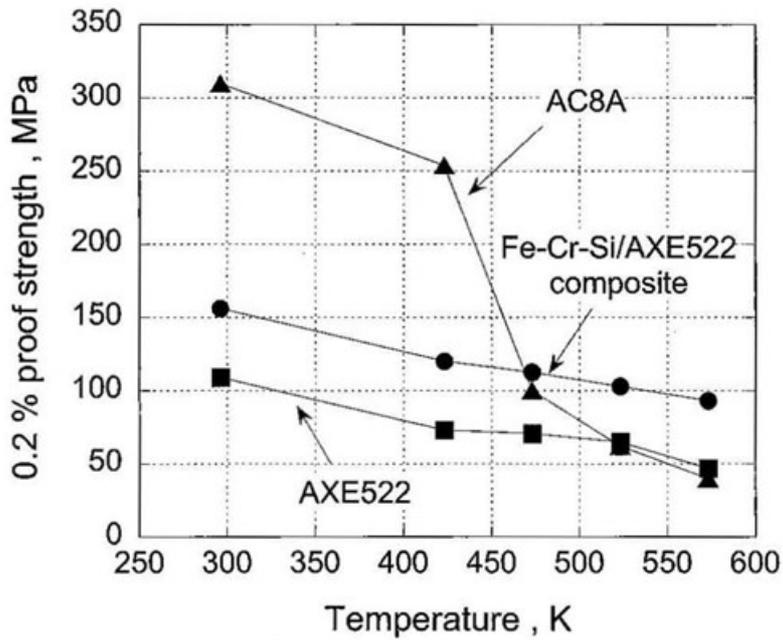


Fig. 4-16 Relationship between test temperature and 0.2% proof strength.

4.3.2.3 FeCrSi 繊維の引張破面形態

Fig. 4-17 に各温度における引張試験片の破面を示す。引張試験破面において、573 K の破面では矢印で示す激しい凹凸が観察されたが、室温および 423 K の破面では観察されなかった。また、室温と 573 K の試験片の織りはそれぞれ 0.5%、17.3 %であった。

全ての試験湿度の引張破面において、423 K の破面に矢印で示すような繊維の引き抜け(プルアウト)が観察された。繊維のプルアウトが起こる場合、マトリックス中の埋込長さ l の繊維に引張応力 σ を加えると、界面にはせん断応力 τ が加わる。繊維端面の接着強さを無視すると、 σ と τ の関係は力の釣合いより次式で表される¹⁸⁾。

$$\sigma \times A_f = 2\pi r \tau l \quad (1)$$

ここで、 r は繊維径、 A_f は繊維の断面積を示す。ここで σ が繊維の破壊強度 σ_f になったときは、繊維が破断する。プルアウト長さ l_p で繊維が破断したとき、力の釣り合いは、

$$\sigma_f \times A_f = 2\pi r \tau_c l_p \quad (2)$$

$$\tau_c = \frac{\sigma_f A_f}{2\pi r l_p} \quad (3)$$

ここで、 τ_c は界面せん断強度を示す。 A_f は試験温度に関わらず一定であるため、繊維の破壊応力が一定の場合、接着面積 $2\pi r l_p$ が小さいほど、界面せん断強度は高くなる。つまり、プルアウト後の全繊維の表面積が小さいほど、界面せん断強度が高い。しかし、本研究で用いた Fe-Cr-Si 繊維は試験温度の上昇に伴う強度低下が報告されており、573 K における繊維の引張強度は室温の 70 %である⁷⁾。この割合よりも、プルアウト後の全繊維の表面積の室温に対する 573 K の割合が小さいとき、界面せん断強度の向上を示唆する。

そこで、各試験温度の引張破面全体に対する観察されるプルアウトした繊維の表面積を画像解析ソフトにより求めた。**Fig. 4-18** に各試験温度の室温に対する破面のプルアウトした繊維の面積率を示す。引張破面におけるプルアウトした繊維の面積率は、試験温度の上昇に伴い減少し、573 K の繊維の面積率は室温の 55 %であった。これは繊維自身の強度低下の割合(70 %)より小さく、室温よりも高温の方が界面せん断強度が高いことを示唆している。

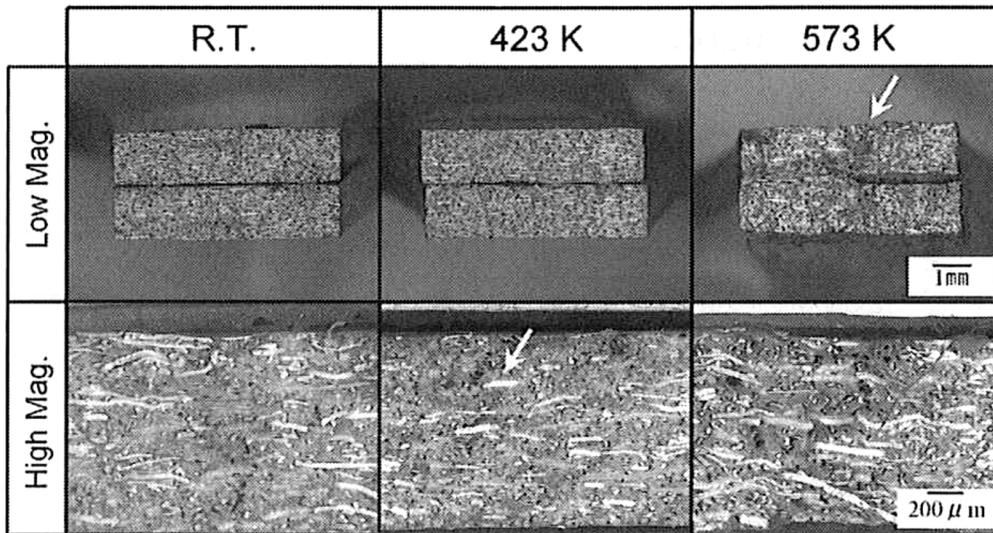


Fig. 4-17 Appearances and microstructures of fracture surface of composites.

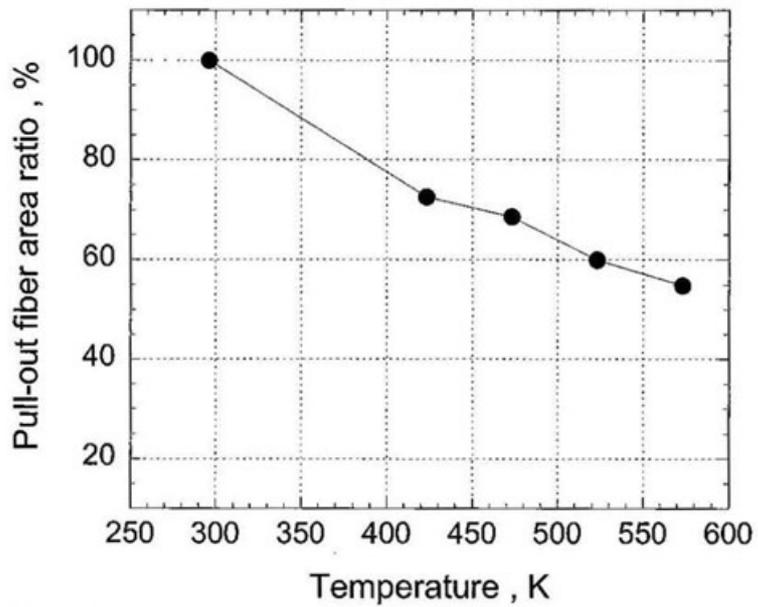


Fig. 4-18 Relationship between test temperature and pull-out fiber area ratio.

4.3.2.4 引張強度の複合則と実験値との比較

複合材料の引張強度は線形複合則を用いて、引張応力負荷方向と繊維軸方向により次式で算出することができる²⁰⁾。

$$U = \beta U_f V_f + U_m (1 - V_f) \quad (\text{繊維軸と平行方向}) \quad (4)$$

$$\frac{1}{U} = \frac{1}{U_f} V_f + \frac{1}{U_m} (1 - V_f) \quad (\text{繊維軸と垂直方向}) \quad (5)$$

ここで、 U は複合材料の引張強度、 U_f は繊維の引張強度、 U_m はマトリックスの引張強度、 V_f は繊維体積率を示す。 β は繊維の配向係数で、一次元配向の場合は 1、二次元ランダム配向の場合は 1/2、三次元ランダム配向の場合は 3/8 である。また、繊維軸方向と引張応力負荷方向が同じ場合において、繊維の配向係数を用いて、繊維の配向方向を考慮した理論強度の算出をすることができる、理論値の算出には、各試験温度における繊維の引張強度¹⁹⁾、マトリックスの引張強度の実験値をそれぞれ用いた。このとき、繊維の配向方向が引張応力軸と平行な場合、すなわち式(4)における配向係数を 1 として算出した理論値を上限とし、一方、繊維の配向方向が引張応力軸と垂直な場合、すなわち式(5)を用いて算出した理論値を下限とした。

Fig. 4-19 に示すように、室温から 473 K では理論値の下限よりも小さい値を示したが、理論値と実験値との差は室温よりも 473 K の方が小さかった。さらに高温の 573 K の実験値は、理論値の上限と下限の間の値を示した。573 K においては、二次元ランダム配向の理論値に近づいた、線形複合則は、界面の完全密着を前提としているため、理論値に近づくことは、界面せん断強度が向上していることを示唆している。それゆえ、この観点からも高温になるにつれて、界面せん断強度が向上したと推測される。

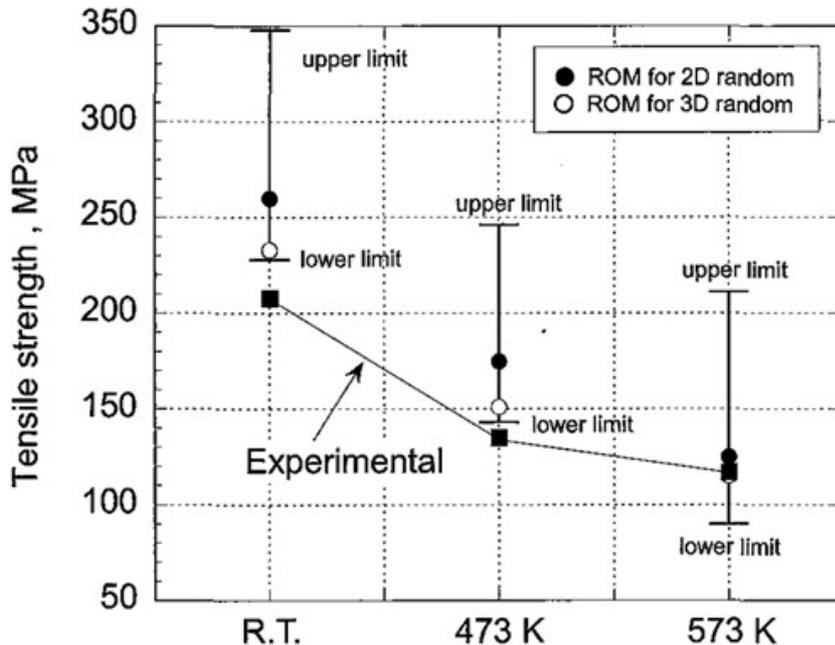


Fig. 4-19 Relationship between the theoretical and the experimental strengths.

4.3.2.5 引張弾性率の複合則と実験値との比較

複合材料の理論弾性率において、式(4),(5)の繊維、マトリックスの引張強度の項を各々の弾性率として、各試験温度の繊維の弾性率¹⁹⁾、マトリックスの弾性率の実験値より算出を行ったこのとき、引張強度同様、繊維の配向を考慮し、二次元ランダム配向と三次元ランダム配向について、理論値の算出を行った、**Fig. 4-20** に引張弾性率の実験値と理論値との比較を示す。引張弾性率は、引張強度と異なり、室温、473 K、573 Kのすべての温度において理論値の上限と下限の間の値をとっていることから、すべての温度域において理論域の弾性率を有していることがわかった。

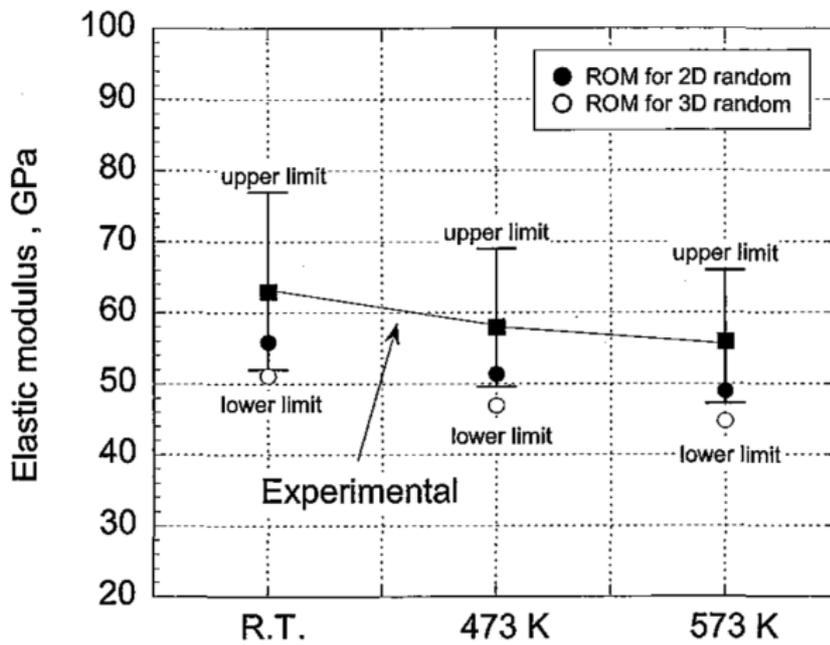


Fig. 4-20 Relationship between the theoretical and the experimental elastic moduli.

4.3.2.6 引張強度の Baxter 理論理論と実験値との比較

不連続繊維強化複合材料の引張強度の理論換算式に Baxter が報告している理論式がある^{21,22)}。不連続繊維が二次元ランダムに配向した複合材料の引張強度 σ_c は、不連続繊維が引張荷重負荷方向に θ の角度にしたときの複合材料の引張強度 $\sigma(\theta)$ を用いて算出することができ、それらは式(6)、(7)によって表される。本複合材料における Fe-Cr-Si 繊維の配向は Fig. 4-17 において、試験片厚さ方向の Fe-Cr-Si 繊維の配向を見出すことが困難であり、三次元ランダムというよりはむしろ二次元ランダムに配向していると考えられる。

$$\sigma_c = \frac{2}{\pi} \int_0^{\frac{\pi}{2}} \sigma(\theta) d\theta \quad (6)$$

$$\sigma(\theta) = \left[\frac{\cos^4 \theta}{\sigma_L^2} + \left[\frac{1}{\tau_c^2} - \frac{1}{\sigma_L^2} \right] \sin^2 \theta \cos^2 \theta + \frac{\sin^4 \theta}{\sigma_T^2} \right]^{-\frac{1}{2}} \quad (7)$$

ここで、 τ_c は複合材料のせん断強度、 σ_L は $\theta=0^\circ$ の時すなわち繊維に平行な方向の複合材料の引張強度、 σ_T は $\theta=90^\circ$ の時、すなわち繊維に垂直な方向の複合材料の引張強度を表す。

繊維に平行方向の複合材料の引張強度は、繊維の臨界長さと繊維長の関係によって用いられる式が異なる。Kelly-Tyson による臨界長 l_c には以下の式で表される²³⁾。

$$l_c = \frac{r_f \sigma_f}{\tau_c} \quad (8)$$

ここで、 σ_f は繊維強度、 r_f は繊維半径、 τ_c はマトリックスと繊維の界面せん断強度である。マトリックスと繊維の界面せん断強度をマトリックスの降伏強度と等しいと仮定し²⁴⁾、各試験温度の繊維の引張強度、繊維半径を代入して、以下算出した

算出した各試験温度における臨界長さ(103 μm)は、本研究で使用した Fe-Cr-Si 繊維の繊維長(5~50 mm)より短いことがわかった。この場合、繊維に平行方向の複合材料の引張強度 σ_L は、式(9)を用いて算出するのが妥当とされている。

$$\sigma_L = V_f \sigma_f \left(1 - \frac{l_c}{2l}\right) + (1 - V_f) \sigma_m \quad (9)$$

一方、繊維に垂直方向の複合材料の引張強度 σ_T は、繊維/マトリックスの界面結合の強さによって、以下に分けられている。界面せん断強度がマトリックスの引張強度 σ_m よりも大きい場合は、

$$\sigma_T = \sigma_m \quad (10)$$

となり、界面せん断強度が σ_m よりも小さい場合は、

$$\sigma_T = \sigma_m \left[1 - 2 \left(\frac{V_f}{\pi} \right)^{\frac{1}{2}} \right] \quad (11)$$

を用いて算出する。つまり、式(7)に式(10)を代入したときに理論引張強度は最大値をとり、式(11)の時に最小値をとる。 σ_m 、 τ_c (マトリックスの降伏強度)には、Fig. 4-15、4-16 に示す各温度における値を用いた。

以上の計算の結果得られた Baxter による理論値と実験値との比較を Fig. 4-21 に示す。線形複合則同様、室温では、界面せん断強度の弱い理論値に近い値を示し、高温では、界面せん断強度の高い理論値に近い値を示した。これは、線形複合則同様、高温での界面せん断強度の向上を示唆している。

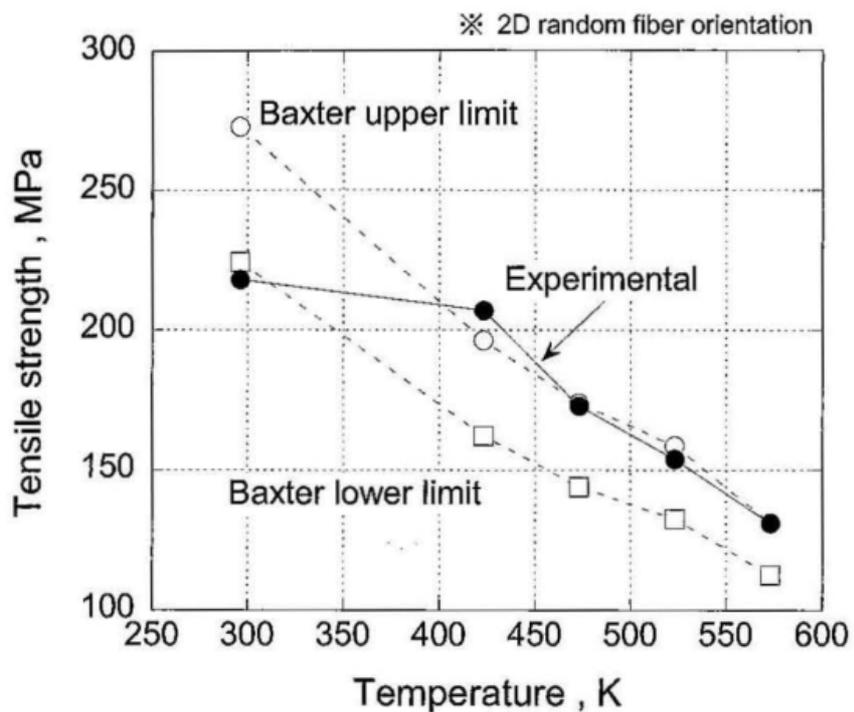


Fig. 4-21 Relationship between the theoretical and the experimental tensile strengths.

4.3.3 Fe-Cr-Si 繊維による高温域での強化効率向上メカニズム

4.3.3.1 繊維/マトリックスの界面反応の効果

FeCrSi 繊維/Mg 複合材料は繊維のプルアウトした面積および、繊維/マトリックス界面せん断強度を考慮した理論式との比較によって、試験温度の上昇による界面せん断強度の向上が 4.3.2.6 にて示唆された。しかし、元々マトリックスの主成分である Mg と強化材の主成分である Fe は中間生成物を生成しないと考えられるので、試験温度の上昇に伴う繊維/マトリックス界面の接合状態の変化は考えにくい。

FeCrSi 繊維/Al 複合材料においても、室温よりも高温の方が Fe-Cr-Si 繊維による強化効率が高いという同様の傾向を 4.3.1.2 にて報告した。マグネシウム合金マトリックスと違い溶体化温度によりアルミニウム合金マトリックスは Fe と反応し中間化合物を生成する。反応を抑制した FeCrSi 繊維/Al 複合材料の引張強度は、室温では JIS-AC8A よりも低いため、界面反応によるアンカー効果が強度に寄与しているとは考えられない、つまり、高温の方が強化効率が高い理由は、繊維/マトリックス間の界面反応ではなく、他のメカニズムによるものと考えられる。

4.3.3.2 繊維とマトリックスの線膨張係数差による残留応力の効果

Fe-Cr-Si 繊維とマトリックスの線膨張係数差によって複合材料作製時から冷却した際に、界面に残留圧縮応力が発生する。Oel と Frechette によると、繊維マトリックス界面の圧縮応力 σ_r は、次式で表される²⁵⁾

$$\sigma_r = \frac{E_f E_m}{E_m(1-\nu_f) + E_f(1+\nu_m)} \Delta\alpha\Delta T \quad (12)$$

ここで、 E は弾性率、 α は線膨張係数、 ν はポアソン比を示し、添え字の f , m は繊維とマトリックスを示す。 ΔT は複合材料作製温度と試験温度との温度差であり、 $\Delta\alpha = \alpha_m - \alpha_f$ である。この式によると、試験温度の上昇に伴い、 ΔT が小さくなるため、残留圧縮応力は緩和される。そのため、マトリックスが繊維をクランプする力は減少する。それゆえ、線膨張係数差による界面せん断強度の向上は考えられない。

4.3.3.3 試験温度による変形機構の効果

Table 4-2 に FeCrSi 繊維/軽金属複合材料の強化効率のまとめと、Fig. 4-22 に室温における複合材料の引張破断面写真を示す。T6 熱処理で硬化したアルミニウム合金は塑性流動を起こしにくく、矢印に示す破面に観察される繊維はネッキングも起こさず脆性破断している。強化効率は 95 %となり、マトリクス単体より悪化してる。また、マグネシウム合金の方はすべり系が基底面のみであるため、塑性流動を起こしにくい。そのため、プリフォームは塑性変形を起こさず、繊維のみが塑性変形を受け強化効率は 108 %に留まる。矢印に示すように、破面に観察される繊維はネッキングを起こしており、塑性変形を受けたことが確認できる。

しかし、高温(423 K 以上)ではマグネシウム合金でもすべり系が基底面柱面、錐面であるため、塑性流動が可能になる、FeCrSi 繊維/Mg 複合材料の場合、破断面の絞りが室温(0.5 %)に比較して 573 K(17.3 %)の方が大きくなったということは、プリフォームが塑性変形を起したと考えられる。プリフォームの絞りが起きると、引張方向に垂直な面の繊維間隔は小さくなる。すると、繊維間隙のマトリクスは塑性流動を起こし、このとき繊維に対して径方向の圧縮応力がマトリクスからかかると考えられる繊維はマトリクスから径方向に圧縮応力を受けると考えられるため、繊維/マトリクス間の界面せん断応力(摩擦力)が増大する。高温域でプリフォームの絞りが増大するために、高温になるにつれて界面せん断応力は増大し、見かけの界面せん断強度が向上すると考えられる。これは、Baxter 理論式における高温域での界面せん断強度の向上を示唆したことと一致する。よって、FeCrSi 繊維/軽金属複合材料の強度特性は、マトリクスの変形機構が異なることにより、強度の向上を果たしていると推定される。

Table 4-2 Reinforced efficiency by FeCrSi fiber.

	Aluminum matrix composite (AC8A alloy)	Magnesium matrix composite (AXE522 alloy)
RT	95%	108%
573 (K)	138%	177%

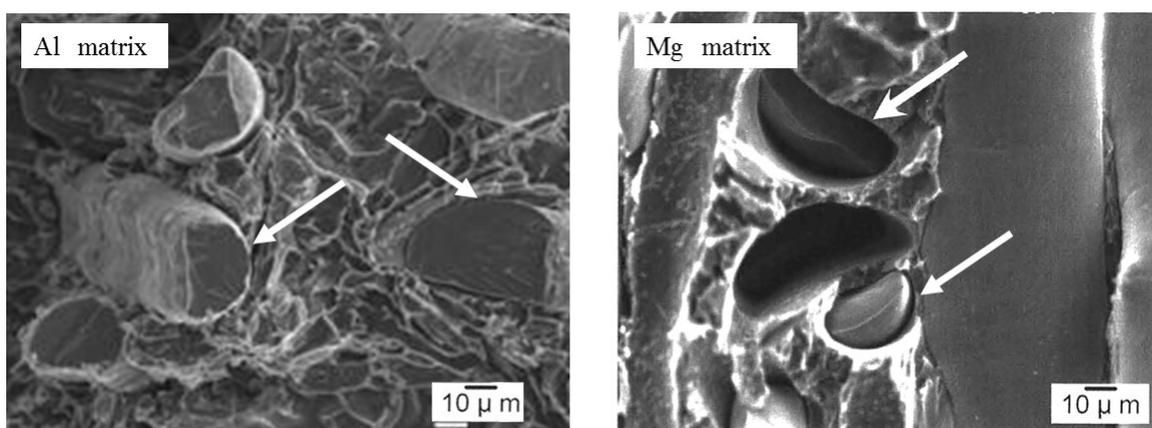


Fig. 4-22 Fracture surface of composites at room temperature.

4.4 小 括

本章では優れた高温強度を持つ FeCrSi 金属繊維を用い、溶湯浸透法によってマグネシウムおよびアルミニウムと合金の複合材料を作製した。複合化時や熱処理前後(溶体化処理)における界面反応層の形成状態、高温強度特性への影響を検討した結果、以下の結論を得た。

- (1) FeCrSi 繊維/AC8A アルミニウム合金軽金属複合材料は、JIS 推奨溶体化処理温度 783 K 時に Al-Fe 化合物の界面反応が確認された。溶体化温度を 763 K に下げると、界面反応は抑制され、高温引張強度は低下するものの、化合物を起点とした高温疲労強度の低下を抑制できた。
- (2) FeCrSi 繊維/AXE522 マグネシウム合金複合材料は、as-cast 時に Al-Ce 化合物の界面生成物が確認された。各試験温度において、マグネシウム合金単体よりも高い引張強度を有し、界面化合物の影響はなかった。特に 523 K 以上では AC8A アルミニウム合金(T6)よりも高い引張強度を有した。
- (3) FeCrSi 繊維/軽金属複合材料の引張強度は、試験温度の上昇に伴い、繊維による強化効率は向上した。高温域では繊維がマトリックスから径方向に圧縮応力を受け、みかけの界面せん断強度が向上したことで強化効率が高まったと推定される。

参考文献

- 1) T. Shiraishi and A. Katsuya: Preprints of Industry- Academia- Government collaboration Meeting of Kanagawa Prefecture (2002), 2302.
- 2) N. Fuyama, A. Terayama, T. Fujii, T. Hagiwara, T. Shiraishi, A. Katsuya and G. Sasaki: Preprints of National Meeting of Jpn. Foundry Eng. Soc. (2006) , 62.
- 3) Y.B. Choi, G. Sasaki, K. Matsugi, S. Kondoh and O. Yanagisawa: Key Eng. Mater. **326-328** (2006) , 1741.
- 4) F. Boland, C. Colin, C. Salomon and F. Delannay: Acta Mater., **46** (1998), 6311.
- 5) 神山宣彦: 安全衛生コンサルタント, **24** (2004), 42.
- 6) 塩田一路: 鉄と鋼, 75 (1989), 1448.
- 7) 伴 恵介, 林 直義: 自動車技術会学術講演会前刷集, (1985), 645.
- 8) F. Boland, C. Colin and F. Delannay: Metall. Mater. Trans. A, **29A** (1998), 1727.
- 9) C. Salmon, C. Colin, R. Molins and F. Delannay: Mater. Sci. Eng. A, **334** (2002), 193.
- 10) 勝矢晃弘: 特許公開 2003-73711 金属繊維多孔質体の製造方法
- 11) 鈴木健, 白石透, 高橋隼男, 勝矢晃弘: 特許公開 平 10-259463 金属細線及びそれを用いた多孔質マット
- 12) A. Inoue, A. Katsuya, K. Amiya and T. Masumoto: Mater. Trans., JIM, **36** (1995), 802.
- 13) 日本発条(株) Metal fibers技術資料
- 14) A. Katsuya: Jpn. Published Patent, 73711, (2003)
- 15) A. Inoue, A. Katsuya, K. Amiya and T. Masumoto: Mater. Trans. JIM, **36** (1995), 802.
- 16) W. Zhang, M. Gu, J. Chen, Z. Wu., F. Zhang and H. E. Deve: Mater. Sci. Eng. A, **341** (2003), 9
- 17) 小池精一, 鷺頭和裕, 田中重, 馬場開, 木皮和男: Honda R&D Technical Review, **14** (2002), 135.
- 18) 宮入裕夫: 複合材料入門基礎と応用(裳華房), (1997), 72-74.
- 19) 白石透, 勝矢晃弘: 神奈川県産学公交流研究発表会要旨集, (2002), 2303.
- 20) 藤井太一, 座古勝: 複合材料の破壊と力学(実教出版), (1978), 13-14.
- 21) W.J. Baxter: J. Mater. Sci., **33** (1998), 5703.
- 22) W.J. Baxter and A.K. Sachdev: Metall. Mater. Trans., **30A** (1999), 815.
- 23) A.Kelly and W.R.Tyson: J. Mech. Phys. Solids, **13** (1965), 329.
- 24) M. Russell-Stevens, D.C. Plane, J. Summerscales, P.Schulz, and M. Papakyriacou: Mater. Sci. Technol., **18** (2002), 501.
- 25) H.J. Oel and V.D. Frechette: J. Am. Ceram. Soc., **69** (1986), 342.

第 5 章

「金属繊維強化アルミニウム合金基複合材料の高温強度予測」

5.1 緒言

世界的に自動車の排気ガス規制が厳しくなる状況にあることから、エンジン等の高温用構造材料の更なる軽量化および高温強度向上が切望されている。現在、エンジンのピストン用材料は高温耐摩耗 Al 合金である AC8A(Al-12%Si-1%Ni-1%Cu-1%Mg)が主流であるが、523 K 以上では強度が急激に低下する¹⁾。そのため、現在求められる軽量かつ優れた高温強度を Al 合金の単体で達成することは困難であると考えられており、Al 合金を金属繊維や硬質セラミック粒子により強化した様々な Al 合金基複合材料が開発されてきた²⁾。

そこで第 4 章では、铸造性や耐摩耗性に優れ、熱膨張しにくい鋳物用合金である共晶 Al-Si 合金の AC8A を母相とした Fe₇₅Cr₂₀Si₅ 連続繊維強化複合材料(以下、FeCrSi_f/AC8A と記述する。)に注目し、優れた引張強度³⁾や疲労特性⁴⁾について述べた。実用化を目指し使用温度域での部品設計を容易にするためには、より複雑なひずみ速度依存性および温度依存性を有した塑性変形挙動を明らかにする必要がある。

これまでに Al 基複合材料の高温変形の構成方程式は母相が純アルミニウムや展伸用 Al 合金で数多く報告されている⁵⁻¹⁰⁾。しかし、本材料である共晶系 Al 合金を母相とした Al 合金基複合材料の高温変形の構成方程式の報告は少ない⁹⁾。また、これまでに報告されている Al 合金基複合材料の構成方程式は研究者によって異なっている⁹⁾。そこで、本章では FeCrSi_f/AC8A の変形機構を明らかにし、高温変形の構成方程式の構築を行い、高温用構造材料としての設計に役立てることを目的とした。

5.2 実験方法

5.2.1 高温変形構成方程式の考え方

高温変形の構成方程式は一般的には以下の式¹¹⁾で与えられており、鉄鋼¹²⁾、Al合金¹³⁾、Mg合金¹⁴⁾、Sn合金¹⁵⁾など多くの純金属や合金で用いられている。

$$\dot{\varepsilon} = A \left(\frac{Gb}{kT} \right) \left(\frac{b}{d} \right)^p \left(\frac{\sigma - \sigma_0}{G} \right)^n D_0 \exp\left(-\frac{Q}{RT} \right) \quad (1)$$

$\dot{\varepsilon}$ ひずみ速度

A 定数

G 剛性率【 $G = E / (2(1 + \nu))$ 、 E ヤング率、 ν ポアソン比 (0.321¹⁶⁾)】

b バーガースベクトルの大きさ(2.86×10^{-10} m)

d 結晶粒径

p 粒径指数

k ボルツマン定数 ($1.380\,649 \times 10^{-23}$ J K⁻¹)

T 絶対温度

σ 流動応力

σ_0 しきい応力

n 応力指数

D_0 拡散係数の振動数項

Q 活性化エネルギー

R 気体定数 (8.31 JK⁻¹mol⁻¹)

変形機構によって、定数、応力指数、拡散係数は変化する。ヤング率はヤング率と絶対温度の関係式から得た値を解析に用いた。

Table 5-1 にこれまでに Al 合金基複合材料で報告されている高温変形の構成方程式をまとめた。なお、**Table 5-1** における A_1 から A_6 は定数、 λ は粒子間距離、 α と a は強化定数、 D_L は格子拡散係数 ($D_L = D_{0L} \exp(-Q_L / RT)$: D_{0L} は格子拡散係数の振動数項、 Q_L は格子拡散の活性化エネルギー) である。Al 合金基複合材料の構成方程式は研究者によって異なっていることが分かる。そこで、本研究では式(1)の一般的な構成方程式から出発して Al 合金基複合材料の構成方程式を検討した。

Table 5-1 Constitutive equation for the high temperature deformation of aluminum alloys matrix composites.

Investigators and Materials	Descriptions
Nieh ⁵⁾ SiC _f /6061	$\dot{\epsilon} = A_1 \sigma^n \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right)$
Nardone and Strife ⁶⁾ SiC _f /2124	$\dot{\epsilon} = A_2 \left(\frac{\sigma - \sigma_0}{E}\right)^n \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right)$
Pandey <i>et al.</i> ⁷⁾ SiC _p /Al	$\dot{\epsilon} = A_3 \left(\frac{\lambda}{b}\right)^3 \left(\frac{\sigma - \sigma_0}{E}\right)^8 D_L$
Park and Mohamed ⁸⁾ SiC _p /6061	$\dot{\epsilon} = A_4 \left(\frac{\lambda}{b}\right)^3 \left(\frac{(1-\alpha)\sigma - \sigma_0}{G}\right)^8 \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right)$
Liao and Huang ⁹⁾ Al ₂ O ₃ _f /AC8A	$\dot{\epsilon} = A_5 \left(\frac{E}{T}\right) \left(\frac{\sigma - \sigma_0}{E}\right)^5 \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right)$
Hosokawa and Higashi ¹⁰⁾ Si ₃ N ₄ _p /Al	$\dot{\epsilon} = A_6 \left(\frac{\lambda}{b}\right)^3 \left(\frac{\sigma - \sigma_0}{aG}\right)^8 D_L$

5.2.2 圧縮試験

温度一定条件下で圧縮試験中のひずみ速度を変化させる方法により、流動応力の温度依存性とひずみ速度依存性を調べた。Fig. 5-1 に圧縮試験機の外観、Fig. 5-2 にひずみ速度条件、Fig. 5-3 に圧縮試験片の外観を示す。

圧縮試験片(直径 6 mm, 高さ 8 mm)は、4.2.2 の方法にて作製した FeCrSi_f/AC8A から、Fe₇₅Cr₂₀Si₅ 繊維シートの積層方向と圧縮方向が平行になるように機械加工により採取した。測定対象は、母相となる AC8A 単体と AC8A の母相に体積分率 Vf が 15 vol%, 20 vol% の Fe₇₅Cr₂₀Si₅ 繊維を複合した 15%FeCrSi_f/AC8A および 20%FeCrSi_f/AC8A とした。Fig. 5-4 に AC8A および FeCrSi_f/AC8A の溶体化処理後のマイクロ組織を示す。AC8A ではデンドライト状の α 相および微細な共晶 Si よりなっていた。一方で、15%FeCrSi_f/AC8A と 20%FeCrSi_f/AC8A では幅 40 μm 程度の FeCrSi 繊維と α 相および微細な共晶 Si よりなっていた。なお、FeCrSi_f/AC8A および AC8A の試験片は 763 K で 4 時間保持した後、水中に急冷し、溶体化処理を行った。4.3.1.1 で報告の通り、溶体化処理温度が 763 K を超えると Fe₇₅Cr₂₀Si₅ 繊維と AC8A との界面で反応が起こり、その結果、疲労特性が低下するので本溶体化温度としている。

試験温度は 648, 673, 723 K の 3 種類とし、ひずみ速度は 3.0×10^{-5} , 1.0×10^{-4} , 3.0×10^{-4} , $1.0 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ の 4 種類とした。真ひずみが $\epsilon = 0.6$ になるまで $3.0 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ のひずみ速度で行い、他のひずみ速度においては真ひずみが $\epsilon = 0.2$ 毎にひずみ速度を増加させ試験を行った。ひずみ速度急変試験とは、ひずみ速度を増加させる試験方法であり、一本の試験片から複数個の定常ひずみ速度と流動応力の関係を得ることが出来る試験方法である。試験片の両端面と上下圧縮治具間での摩擦拘束による樽形変形の影響を極力少なくするために、二硫化モリブデンを塗布した。流動応力は真ひずみ 0.1 における真応力とした。

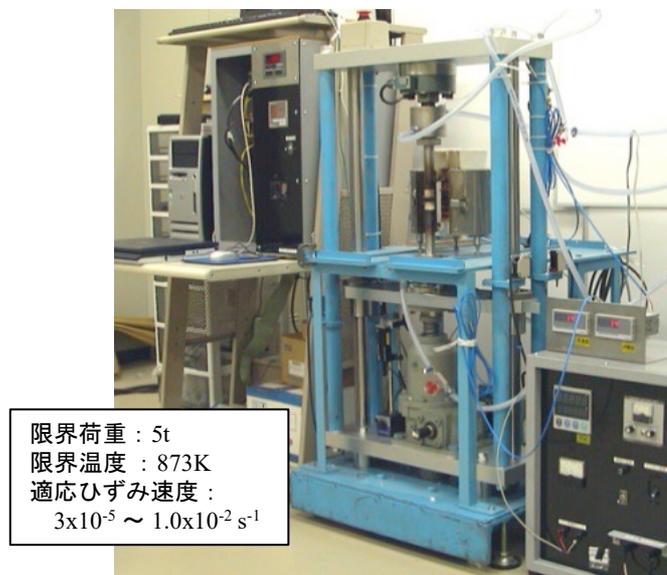


Fig. 5-1 Appearance of the compression testing machines.

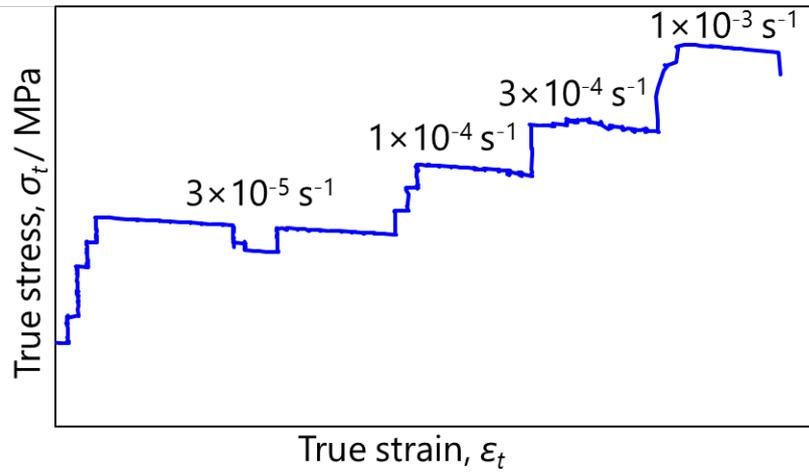
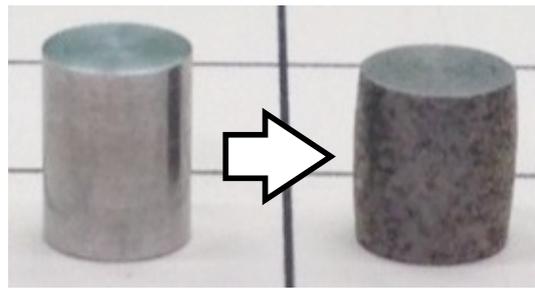


Fig. 5-2 Schematic diagram of strain rate change test.



$\Phi 6\text{mm}$, L8mm

Fig. 5-3 Specimen geometry for compression test.

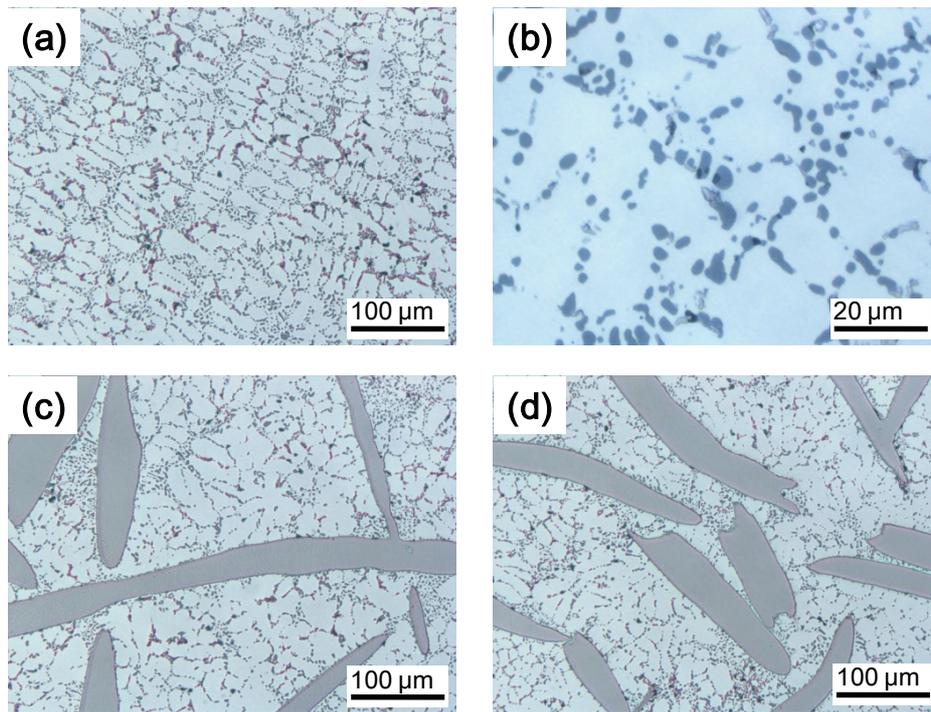


Fig. 5-4 Microstructures of AC8A and FeCrSi fiber reinforced AC8A after heat treatment: (a) low magnification of AC8A , (b) high magnification of AC8A , (c) 15%FeCrSi_f/AC8A and (d) 20%FeCrSi_f/AC8A.

5.2.3 ヤング率測定

ヤング率を自由共振法式ヤング率測定装置を用いて横共振法により-15~40°Cの温度領域において測定した。一つの温度条件につき2回測定を行った。共振法とは、試験片に機械的または電氣的に強制振動を与えて共振周波数(固有振動数)を計測し、この共振周波数からヤング率(縦弾性係数)を計算する測定法である。強制振動には縦振動、横振動、捻り振動があり、縦および横振動の共振周波数からヤング率が求まり、捻り振動の共振周波数から剛性率(横弾性係数)が求まる。横共振法とは強制振動が横振動の測定方法である。ヤング率測定用試験片の形状は幅 10 mm, 長さ 60 mm, 厚さ 1.5 mm とし、Fe₇₅Cr₂₀Si₅ 繊維シートの積層方向と厚さ方向が平行になるように採取した。**Fig. 7-5** に自由共振法式ヤング率測定装置(日本テクノプラス EG-HT)の外観および横共振試験中の様子を示す。

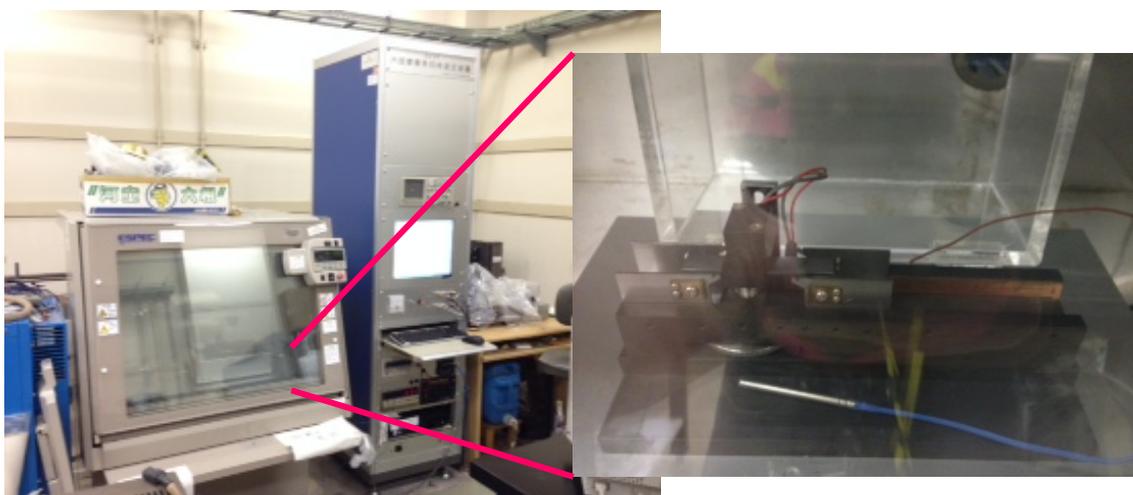


Fig. 5-5 Appearance of apparatus for measurement of Young's modulus (EG-HT).

5.3 実験結果と考察

5.3.1 ヤング率と温度の関係

Fig. 5-6 に AC8A および FeCrSi_f/AC8A のヤング率と温度の関係を示す。ヤング率は温度に対して線形に変化しており、温度の上昇とともに小さくなっていた。Fig. 5-6 より等方弾性体であると仮定して計算しヤング率 E と絶対温度 T の関係式を得た。AC8A では E [GPa] = $89.181 - 0.0357T$, 15%FeCrSi_f/AC8A では E [GPa] = $103.87 - 0.0398T$, 20%FeCrSi_f/AC8A では E [GPa] = $106.52 - 0.0413T$ であった。いずれの温度でも、FeCrSi 繊維の体積分率が大きくなるにつれてヤング率は大きくなっていた。

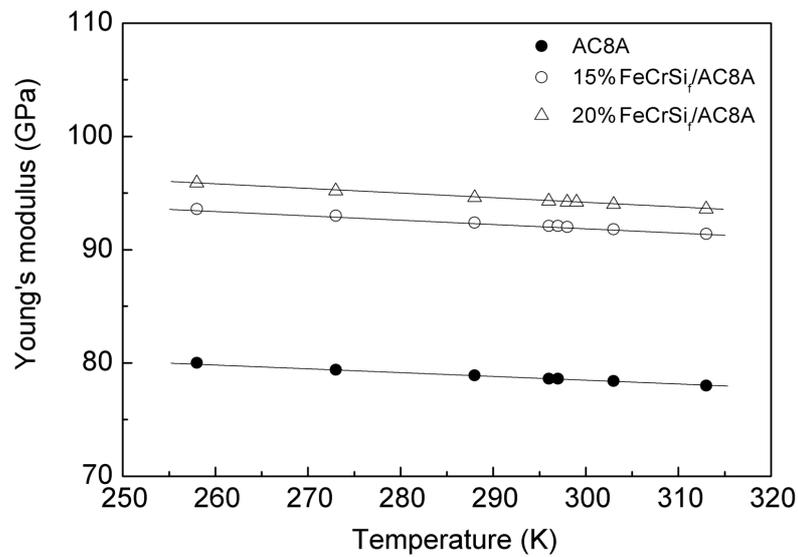


Fig. 5-6 Young's modulus as a function of temperature for AC8A, 15%FeCrSi_f/AC8A and 20%FeCrSi_f/AC8A.

5.3.2 流動応力のひずみ速度依存性

Fig. 5-7 に 648, 673, 723 K での AC8A および FeCrSi_f/AC8A のひずみ速度と流動応力 σ の関係を示す。流動応力は、従来どおりの温度依存性とひずみ速度依存性を示しており、温度が高いほど流動応力は低く、ひずみ速度が大きいくほど流動応力は高くなっていった。Fig. 5-7 から算出したひずみ速度に対する見かけの応力指数は AC8A では 5~9 であり、15%FeCrSi_f/AC8A では 10~15 であり、20%FeCrSi_f/AC8A では 16~17 であった。この見かけの応力指数の値は過去の Al 合金基複合材料の報告と同様⁵⁻¹⁰⁾に、純アルミニウムや展伸用 Al 合金の応力指数より大きい値である。本実験範囲の温度、ひずみ速度では、FeCrSi_f/AC8A の流動応力は、AC8A より大きく、さらに FeCrSi 繊維の体積分率の増加に伴い、大きくなっていった。すなわち FeCrSi 繊維の複合化により高強度化が達成されたことが分かる。

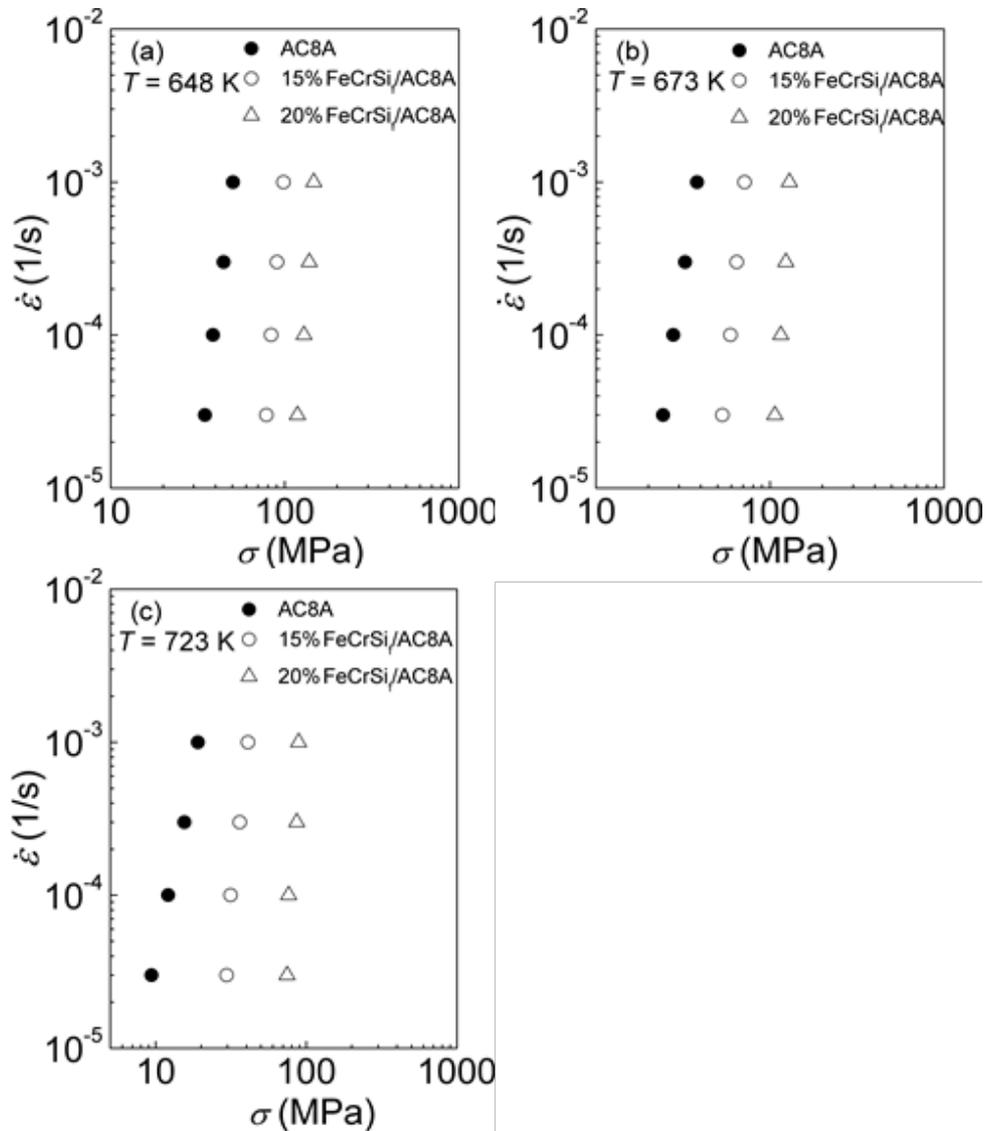


Fig. 5-7 Relationship between flow stresses and strain rates for AC8A, 15%FeCrSi_f/AC8A and 20%FeCrSi_f/AC8A at (a) 648 K, (b) 673 K and (c) 723 K.

5.3.3 しきい応力の温度依存性

式(1)を書き直すと以下の様に流動応力 σ と $\dot{\epsilon}^{1/n}$ の間には式(2)の線形関係が成立する⁸⁾。

$$\sigma = G \left[A \left(\frac{Gb}{kT} \right) \left(\frac{b}{d} \right)^p D_0 \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \right]^{-1/n} \dot{\epsilon}^{1/n} + \sigma_0 \quad (2)$$

そこで、 $\dot{\epsilon}^{1/n}$ ($n=2, 3, 5, 7, 8$)を σ に対して両対数でプロットし、 $\dot{\epsilon}=0$ への外挿により σ_0 を見積もった⁸⁾。用いた n の値の中で5の場合が最もよい直線近似が得られたため、この値を用いてしきい応力を算出した。**Fig. 5-8**にしきい応力の算出に用いた σ と $\dot{\epsilon}^{1/5}$ の両対数の関係を示す。**Fig. 5-9**にしきい応力の温度依存性を示す。しきい応力は、温度とともに減少する傾向にあり、どの温度でもAC8Aに比べてFeCrSi_f/AC8Aの方が大きく、FeCrSi繊維の体積分率の増加に伴い、大きくなっていった。

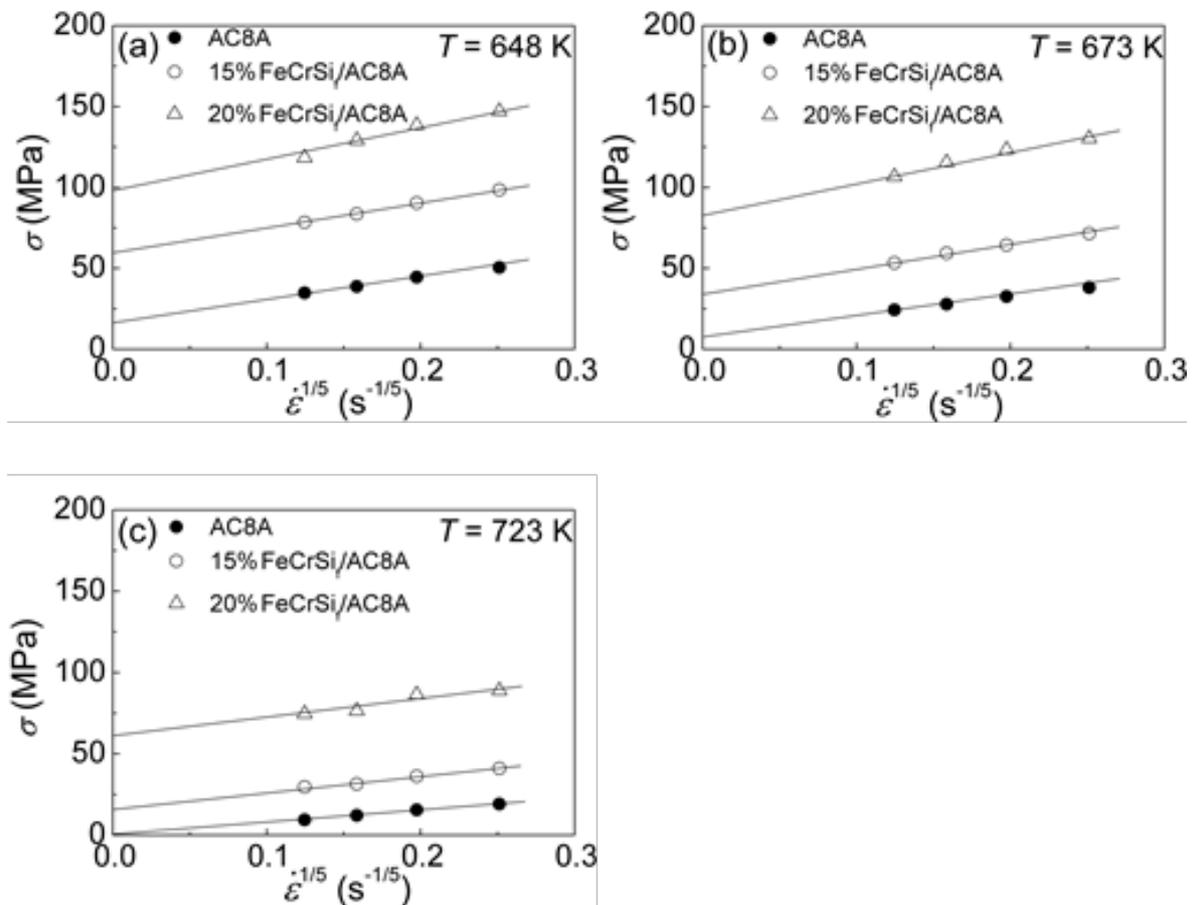


Fig. 5-8 Relationship between flow stresses and compensated strain rates, $\dot{\epsilon}^{1/5}$, for AC8A, 15%FeCrSi_f/AC8A and 20%FeCrSi_f/AC8A at (a) 648 K, (b) 673 K and (c) 723 K.

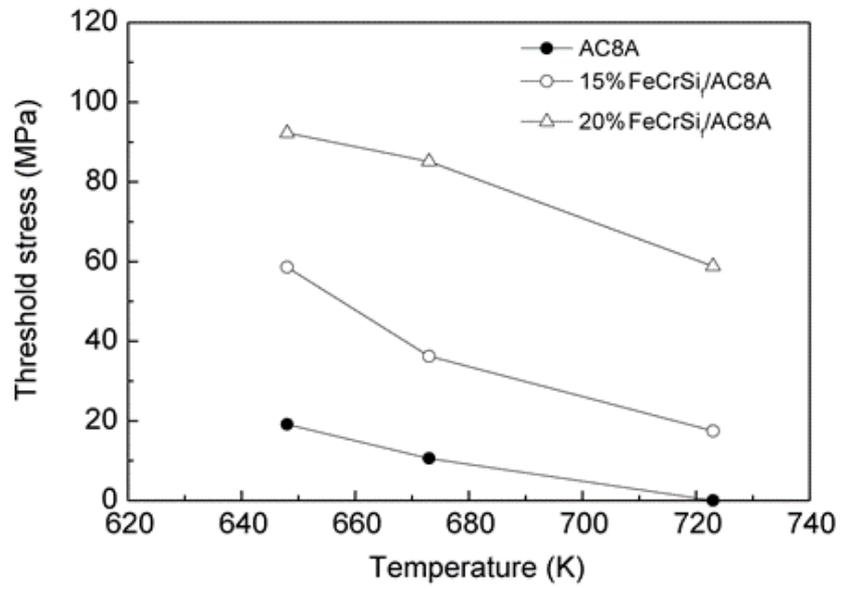


Fig. 5-9 Temperature dependence of the threshold stress for AC8A , 15%FeCrSi_f/AC8A and 20%FeCrSi_f/AC8A.

5.3.4 活性化エネルギーの算出

式(1)を変形して $1/T$ で微分すれば次式を得る。

$$Q = -R \left\{ \frac{d \ln(\dot{\epsilon} kT / Gb)}{d(1/T)} \right\} \Big|_{(\sigma - \sigma_0)/G} \quad (3)$$

この式から温度、剛性率などで補正したひずみ速度のアレニウスプロットから活性化エネルギーが算出できることが分かる。**Fig. 5-10** に $\dot{\epsilon} kT / (Gb)$ のアレニウスプロットを示す。ただし、縦軸は $(\sigma - \sigma_0)/G = 1.0 \times 10^{-3}$ における値とした。活性化エネルギーは AC8A では 126 kJ/mol, 15%FeCrSi_f/AC8A では 140 kJ/mol, 20%FeCrSi_f/AC8A では 138 kJ/mol と算出された。Al の格子拡散の活性化エネルギー 142 kJ/mol¹⁷⁾ であることから判断して, AC8A および FeCrSi_f/AC8A の変形は格子拡散に律速されていると考えられる。

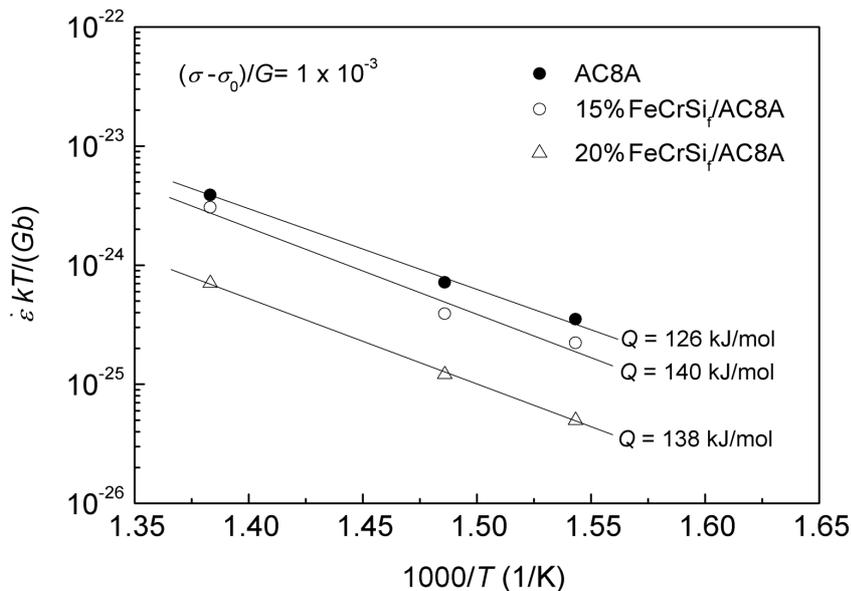


Fig. 5-10 Temperature dependence of the normalized strain rate, $\dot{\epsilon} kT / (Gb)$, for AC8A, 15%FeCrSi_f/AC8A and 20%FeCrSi_f/AC8A.

n 値が 5 であること, そして格子拡散に近い活性化エネルギーから考えて, 本材料の支配的な変形機構は格子拡散律速の転位上昇運動による転位クリープであると考えられる¹⁸⁾。転位クリープが支配的な変形機構の時は, 粒径指数は $p = 0$, すなわちひずみ速度は粒径依存性を示さない¹¹⁾。そのため, 本材料では式(1)の $(b/d)^p$ については無視できる。

5.3.5 FeCrSi/AC8A の構成方程式

$\dot{\varepsilon}/D_L(kT/Gb)$ を $(\sigma - \sigma_0)/G$ に対してプロットした結果を **Fig. 5-11** に示す。ここで、格子拡散係数 D_L は $D_L = D_{0L} \exp(-Q_L/RT)$ (格子拡散の振動数因子 $D_{0L} = 1.70 \times 10^{-4} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, 純アルミニウムの格子拡散の活性化エネルギー $Q_L = 142 \text{ kJ/mol}$)¹⁷⁾である。剛性率 G はヤング率と絶対温度の関係の実験結果から算出された値である。**Fig. 5-11** において、全ての温度での結果が各材料ごとに同一直線で近似することができる。**Fig. 5-11** の直線より本材料の構成方程式は次式で与えられる。

$$\text{AC8A:} \quad \dot{\varepsilon} = 5.1 \times 10^5 \left(\frac{Gb}{kT} \right) \left(\frac{\sigma - \sigma_0}{G} \right)^5 D_L \quad (4)$$

$$15\% \text{FeCrSi/AC8A:} \quad \dot{\varepsilon} = 3.3 \times 10^5 \left(\frac{Gb}{kT} \right) \left(\frac{\sigma - \sigma_0}{G} \right)^5 D_L \quad (5)$$

$$20\% \text{FeCrSi/AC8A:} \quad \dot{\varepsilon} = 0.9 \times 10^5 \left(\frac{Gb}{kT} \right) \left(\frac{\sigma - \sigma_0}{G} \right)^5 D_L \quad (6)$$

本研究で得られた構成方程式を用いることで、FeCrSi/AC8A のひずみ速度依存性および温度依存性を有した塑性変形挙動の予測が初めて可能となった。本研究で得られた構成方程式を用いることで、FeCrSi/AC8A の高温強度の概算が可能となるため、高温用構造材料として使用する際に活用できるものと考えられる。

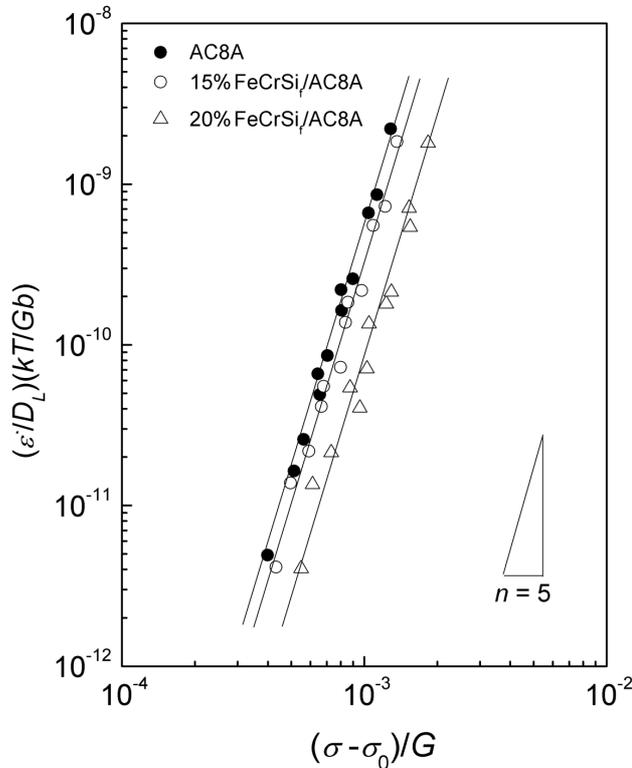


Fig. 5-11 The relationships between normalized strain rate, $\dot{\varepsilon}/D_L(kT/Gb)$, and normalized effective stress, $(\sigma - \sigma_0)/G$, for AC8A, 15%FeCrSi/AC8A and 20%FeCrSi/AC8A.

5.3.6 粒子間距離 λ を考慮した構成方程式

Al および Al 合金でも格子拡散律速の転位上昇運動による転位クリープが良く観察されている¹⁹⁻²⁰⁾。Al 単体と Al 合金基複合材料における構成方程式の違いを理解することは、高温強度に優れた Al 合金および Al 合金基複合材料を開発するのに有用な知見を与えてくれるものと期待される。

純アルミニウムと本材料との比較を行うため、**Fig. 5-12** に本材料だけでなく純アルミニウムについても $\dot{\epsilon}/D_L(kT/Gb)$ を $(\sigma - \sigma_0)/G$ に対してプロットした結果を示す。ただし、純アルミニウムの実験結果は Servi と Grant²⁰⁾による報告値である。**Fig. 5-12** において純アルミニウムに比べて AC8A および FeCrSi/AC8A の実験結果は高応力側に位置している。言い換えれば、純アルミニウムに比べて AC8A および FeCrSi/AC8A は何らかの機構により高強度化されていることが分かる。

Sherby らは、転位下部組織の発達途中では、亜結晶粒径と共にひずみ速度も変化することを指摘している²¹⁾。Sherby ら²¹⁾によれば瞬間的なひずみ速度は次式で与えられる。

$$\dot{\epsilon}_i = K\lambda_b^3 \sigma^n \quad (7)$$

ここで K は定数であり、 λ_b は亜結晶粒径である。分散粒子や繊維を含む場合、亜結晶粒はピン止めされるため λ_b は粒子間隔 λ に固定される²¹⁾。そのため、本材料の構成方程式次式は次式のように書き換えることができる。

$$\dot{\epsilon} = A \left(\frac{\lambda}{b} \right)^3 \left(\frac{Gb}{kT} \right) \left(\frac{\sigma - \sigma_0}{G} \right)^5 D_L \quad (8)$$

Raj と Pharr²²⁾は亜結晶粒径と流動応力の関係を調べ、次式を得ている。

$$\frac{\lambda_b}{b} = 23 \left(\frac{G}{\sigma} \right) \quad (9)$$

Fig. 5-12 で示した純アルミニウムの流動応力は 1.7 MPa から 8.1 MPa の範囲にある。そのため、式(9)を用いて、純アルミニウムの亜結晶粒径の範囲は 18 μm から 77 μm と計算した。18~77 μm の中央値は 48 μm である。**Fig. 5-12** で示した純アルミニウムは全て亜結晶粒径が中央値の 48 μm に固定されている ($\lambda = 48 \mu\text{m}$) と仮定すれば、純アルミニウムの全ての実験結果は次式で表される同一直線で近似することができる。

$$\dot{\epsilon} = 1.2 \times 10^{-7} \left(\frac{\lambda}{b} \right)^3 \left(\frac{Gb}{kT} \right) \left(\frac{\sigma - \sigma_0}{G} \right)^5 D_L \quad (10)$$

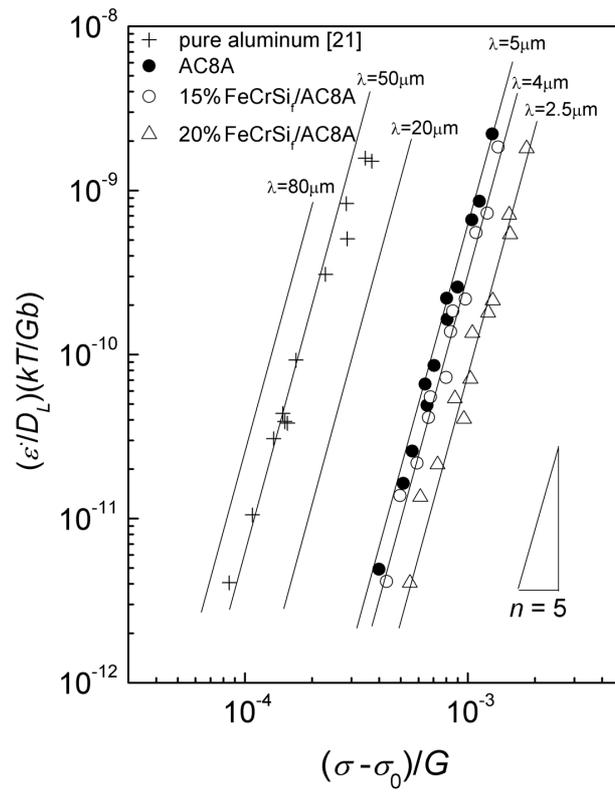


Fig. 5-12 Prediction of the strain rate by means of the phenomenological subgrain size relation is given by the solid lines for six different values of λ .

5.3.7 構成方程式の実際の粒子間距離 λ による信頼性検証

純アルミニウム については、GinterとMohamed²³⁾によれば、流動応力が0.5 MPaの時に亜結晶粒径が28 μm であると電子顕微鏡観察から報告しており、48 μm という値は妥当であると判断した。Fig. 5-12 には式(10)を用いて複数の λ ($\lambda = 80, 50, 20, 5, 4, 2.5\mu\text{m}$)で数値解析した予測結果も示した。

AC8Aについては、Fig. 5-4で示したマイクロ組織写真を画像解析ソフト(粒子解析 Ver. 3)により二値化処理して粒子の円相当径と面積分率を測定した。Fig. 5-13 に円相当径の分布を示す。粒子の円相当径の平均値は 3.2 μm , 最頻値は 2.2 μm であった。粒子の面積分率は 20.7 %であり、AC8A(Al-12%Si-1%Ni-1%Cu-1%Mg)にはSi, Ni, Cu, Mgが合計15 mass%程度含まれており、そのほとんどがSi, Al₃Ni, Al₂Cu, Mg₂Siとして析出すること²⁴⁾から考えて、妥当であると判断した。平均粒子間隔 $\bar{\lambda}$ を次式²⁵⁾により算出した。

$$\bar{\lambda} = \sqrt{\frac{2}{3} \left(\left(\frac{\pi}{V_f} \right)^{1/2} - 2 \right) \bar{r}} \quad (11)$$

ここで、 \bar{r} は粒子の平均粒径、 V_f は粒子の体積分率である。粒子の体積分率には面積分率を代用し、粒子の平均粒径には円相当径を代用して用いた。粒子の円相当径がマイクロ組織写真の解析より得られた3.2 μm もしくは2.2 μm とすると、平均粒子間隔は4.9 μm もしくは3.4 μm と算出された。Fig. 5-12 においてAC8Aの実験結果は $\lambda = 5 \mu\text{m}$ と $\lambda = 4 \mu\text{m}$ の範囲に収まっており、マイクロ組織の解析結果と構成方程式を用いた数値解析結果は良く一致している。この一致は式(10)の信頼性を保証するものである。

式(10)から導かれるAl合金基複合材料の高温強度向上のための設計指針は、母相中の分散粒子もしくは複合材の粒子・繊維を均質に分散させることで粒子間隔を小さくすることである。

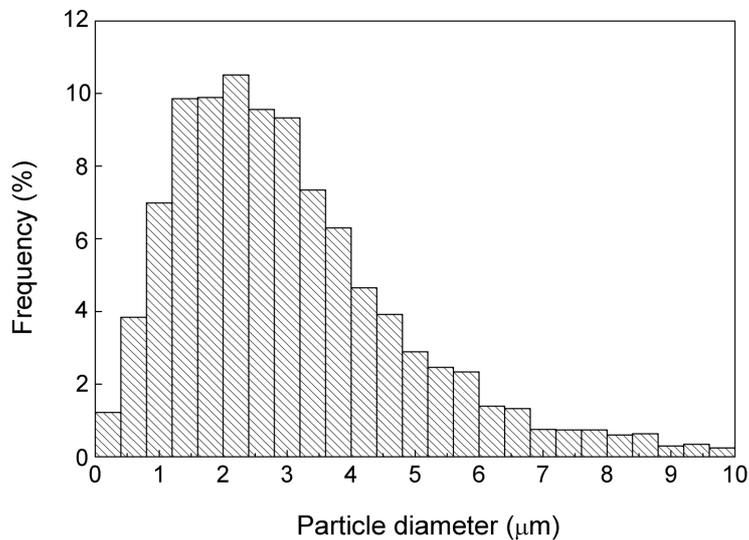


Fig. 5-13 The distribution of particle diameter for AC8A.

5.4 小 括

本章では AC8A および FeCrSi_f/AC8A の高温での変形挙動を評価し、その変形機構を検討した。以下に得られた主な知見を示す。

- (1) ヤング率は温度の上昇とともに小さく、FeCrSi 繊維の体積分率の増加とともに大きくなっていった。AC8A に較べて FeCrSi_f/AC8A の流動応力は大きく、FeCrSi 繊維の体積分率の増加に伴い、流動応力が大きくなっていった。すなわち FeCrSi 繊維の複合化により AC8A の高強度化が達成された。
- (2) ひずみ速度に対する見かけの応力指数の値は FeCrSi_f/AC8A では 10 以上の大きな値であった。しかし、しきい応力を考慮すると、AC8A と FeCrSi_f/AC8A のいずれも応力指数の値は 5 であり、活性化エネルギーは Al の格子拡散の活性化エネルギーに近かった。そのため、変形機構は格子拡散律速の転位上昇運動による転位クリープであると考えられた。
- (3) AC8A と FeCrSi_f/AC8A の高温変形の構成方程式が構築できた。得られた構成方程式と純アルミニウムの構成方程式との比較を行った結果、Al 合金基複合材料の高温強度向上のためには、母相中の分散粒子もしくは複合材の粒子間隔を小さくすれば良いという設計指針を得た。

参 考 文 献

- 1) H. Morihito: J. Jpn. Foundry Eng. Soc., **58** (1986), 473-478.
- 2) N. Fuyama, A. Terayama, T. Fujii, H. Tani, S. Danjo and G. Sasaki: Mater. Sci. Forum, **638-642** (2010), 933-938.
- 3) S. Okamoto, M. Taki, T. Hagihara and N. Fuyama: Trans. Jpn. Soc. of Mech. Eng., Part A, **73** (2007), 68-371.
- 4) N. Fuyama, A. Terayama, T. Fujii, T. Shiraishi, Y. Miyake and G. Sasaki: Mater. Sci. Forum, **654-656** (2010), 2696-2699.
- 5) T.G. Nieh: Metall. Trans. A, **15** (1984), 139-146.
- 6) V.C. Nardone and J.R. Strife: Metall. Trans. A, **18** (1987), 109-114.
- 7) A.B. Pandey, R.S. Mishra and Y.R. Mahajan: Acta Metall. Mater., **40** (1992), 2045-2052.
- 8) K.T. Park and F.A. Mohamed: Metall. Mater. Trans. A, **26** (1995), 3119.
- 9) C.S. Liauo and J.C. Huang: Mater. Sci. Eng. A, **271** (1999), 79-90.
- 10) H. Hosokawa and K. Higashi: Metall. Mater. Trans. A, **37** (2006), 2947-2953.
- 11) R.S. Mishra, T.R. Bieler and A.K. Mukherjee: Acta Metall. Mater., **43** (1995), 877-891.
- 12) N. Harada, T. Uesugi, Y. Takigawa and K. Higashi: ISIJ Int., **57** (2017), 550-557.
- 13) T. Uesugi, M. Kawasaki, M. Ninomiya, Y. Kamiya, Y. Takigawa and K. Higashi: Mater. Sci. Eng. A, **645** (2015), 47-56.
- 14) K. Hirai, I. Takeuchi, Y. Takigawa, T. Uesugi and K. Higashi: Mater. Sci. Eng. A, **551** (2012), 19-24.
- 15) N. Hamada, M. Hamada, T. Uesugi, Y. Takigawa and K. Higashi: Mater. Trans., **51** (2010), 1747-1752.
- 16) J.H. Lee and Y.C. Park: Compos. Eng., **5** (1995), 1423-1431.
- 17) T.S. Lundy and J.F. Murdock: J. Appl. Phys., **33** (1962), 1671-1673.
- 18) S.L. Robinson and O.D. Sherby: Acta Metall., **17** (1969), 109-125.
- 19) M.S. Soliman: J. Mater. Sci., **28** (1993), 4483-4488.
- 20) I.S. Servi and N.J. Grant: JOM, **3** (1951), 909-916.
- 21) O.D. Sherby, R.H. Klundt and A.K. Miller: Metall. Trans. A, **8** (1977), 843-850.
- 22) S.V. Raj and G.M. Pharr: Mater. Sci. Eng., **81** (1986), 217-237.
- 23) T.J. Ginter and F.A. Mohamed: J. Mater. Sci., **17** (1982), 2007-2012.
- 24) S. Kitaoka, C. Fujikura and A. Kamio: J. Jpn. Inst. of Light Metals, **38** (1988), 426-446.
- 25) A.J.E. Foreman and M.J. Makin: Philos. Mag. A, **14** (1966), 911-924.

第 6 章

「軽金属基複合材料のエンジン部品への適用」

6.1 緒 言

セラミックおよび金属繊維系強化材による 2 つの複合材に関して、製法・設計の最適化や機械的性質向上の観点から研究成果を実製品製造を通じて有効性を検証した。

① Al_2O_3 繊維強化 AC8A アルミニウム合金複合材料をライニング層とする小型アルミエンジンハウジングへの適用を目指した。ラジコンヘリ向けロータリーエンジン(RE)ローター(排気量 30cc)を設計し、第 2 章で最適化した空隙欠陥を最小限とする低圧浸透条件によって実体試作し、従来 Ni めっきと比べ摩耗量の比較やエンジン出力特性を検証した。

②FeCrSi 繊維強化 AC8A アルミニウム合金複合材料は、高出力・低燃費の自動車用エンジンに対応するため、燃焼部の高温強度・疲労特性を向上させたアルミピストンへの適用を目指した。頭頂部の部分強化位置は幅や厚みを可変させた強度シミュレーションし、第 5 章で導出した高温変形構成方程式を活用することで、使用高温域でのひずみ速度レベルの概算して設計の許容を考察するとともに、実体試作したピストンの熱衝撃特性を検証した。

6.2 実験方法

6.2.1 ラジコンヘリ用小型ロータリーエンジンの設計と実体評価

6.2.1.1 小型ロータリーエンジンの設計

チェーンソーや芝刈り機などの可搬機器，無線制御ヘリコプターなどに使用される小型エンジンは，レシプロエンジンが主流である。従来のレシプロエンジンと比べ，ウォンケル型ロータリーエンジン(RE)は，エンジンの容積，排気ガスの排出，振動¹⁾などの点で有利である。REの基本構造はシンプルで，高いエンジン速度領域で2ストロークエンジンに比べて高いパワーを生み出せる。日本の自動車会社の一つが，過去40年にわたってREを開発してきた。このようにREは，主に約600cc^{2, 3)}の排気量を持つ自動車用エンジン用に開発が限定されている。

REの重要なパーツは，ローター，サイドハウジング，ローターハウジングである。鋳鉄製ローターの3つのコーナーに取り付けられたアペックスシールは，ローターハウジングの内側の表面を非常に高速で移動している。高い摩擦力が発生するため，内部表面は損傷を防ぐために強化が必要である。これまでのREについては，アルミニウムローターハウジングの内面は高圧ダイカスト法(鋳ぐるみ)により鉄をライニングしていた。従って，無人ヘリコプター用小型REの重要な課題は，コンパクトな設計による軽量化と耐摩耗性の両立であり，第2章，3章で確立したAl₂O₃繊維強化AC8Aアルミニウム合金複合材料のライニングが効果的である。

まず，コンパクトなREを開発するために，燃焼室の設計を見直した。無人ヘリコプター用の非常に小さなREの排気量は，日本の自動車メーカーによって製造された最新のREを参照した。このRE(REcar)は250 PS (184 kW)の最高出力を発生させる654 cc x 2ロータリーエンジンである。ホビー用の無人ヘリコプターに用いる小型REの目標出力を6 PSとした場合には，排気量の計算値は約30ccとなる。

次に，エンジンの効率を向上させるため，小型RE(REheli)に最適な寸法を調べた。REのピストン変位と熱効率は，各次元によってほぼ定義される。排気量(VH)の計算式は次のとおりである⁴⁾。

$$VH(cc) = 3\sqrt{3} \cdot R \cdot e \cdot B. \quad (1)$$

VH: piston displacement (cc) 行程容積(排気量)

R: generating radius (mm) 生成半径

e: eccentric distance (mm) 偏心距離

B: rotor thickness (mm) 回転子の厚さ

また，エンジンの熱効率を向上させるためにはS/V比が重要である。ここでSは燃焼室表面積(mm²)，Vは燃焼室容積(mm³)である。S/V比を小さくすると，熱効率(冷却損失)が改善する。REcarのS/V比は，仕様の値を使用して計算すると約0.8であった。REcarの燃焼室形状と同様の場合，排気量30ccの計算S/V比は約2.3に増加する。

Fig. 6-1 は、排気量を30ccに固定した S/V 比に対する複数の寸法の影響を示す。トロコイド係数(K)は、ローター頂点が描く R と偏心距離 e で割った値である。トロコイド係数 K によってローター形状は変化する。 K が小さいとコンパクトなハウジング形状となるが、アペックスシール部分の揺動角は大きくなる。逆に K が大きければ揺動角は小さくなるが、ハウジングが大きくなる。部品点数が少なく小型軽量な特質を生かしたい市販自動車ロータリーでは係数(K) = 6 付近に設定されてきた。この図から、 K と B が減少するにつれて S/V 比が低下することを示している。本研究では、REheli の寸法は S/V 比 = 2.3 に近似するよう設定した。

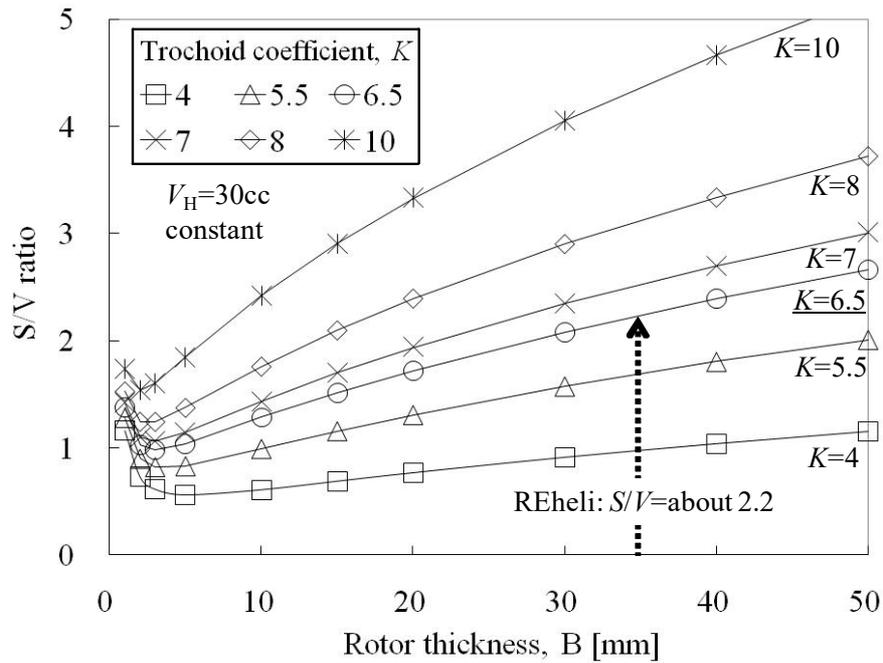


Fig. 6-1 Effect of several dimensions on the S/V ratio fixed the piston displacement to 30 cc.

無人ヘリコプター用の REheli の設計仕様を **Table 6-1** に示す。計算した REheli の S/V 比は約 2.2 のため、非常に小さい RE の場合において最小の熱効率が期待できる。また、REheli の排気系は、無人ヘリコプターのエンジン速度の範囲がほとんど高速のため、ペリフェラルポートタイプを採用した。

Table 6-1 Specifications of the small RE (REheli) for unmanned helicopter.

	Development : (REheli)	Reference: (REcar)
Applications	unmanned helicopter	car
Piston Displacement: V_H (cc)	30 × 1	654 × 2
Eccentric distance: e (mm)	5	15
Generating Radius: R (mm)	32.5	105
Rotor thickness: B (mm)	35	80
Trochoid coefficient: $K (=R/e)$	6.5	7.0
Compression ratio	9.3	10.0
Exhaust Type	Peripheral Exhaust	Side Exhaust
Max. Power (PS/rpm)	6.0/13000 (Target)	250/8500

6.2.1.2 ローターハウジング摺動面の高温湿式下での耐摩耗試験

アルミナセラミック繊維で複合強化したアルミローターハウジングの摺動特性を評価するため、エンジン環境を模した高温湿式摩耗試験を行った。Fig. 6-2 に示す高温オイルバスを付属した 3 ピンオンディスクマシンで行った。サンプルディスクは、Table 6-2 のとおり Al₂O₃ セラミック繊維強化アルミニウム合金マトリックス複合材料と 2 種類のめっき品を用いた。比較材のめっき種は Cr めっき(サーテック・mmc JAPAN 株式会社;スリフトクロム MC1, 900 HV), Ni めっき(奥野製薬工業株式会社;トップニコロン TOM-LPH, 700 HV)である。アルミニウム合金(A2017 T4, 130 HV)も試験した。相手ピンは硬さ 250 HV の FCD450 を用いた。摩耗特性は、摩擦係数および減量測定から分析した。テスト条件は周速 1.2 m/s, 加圧力 30 および 45 MPa とし、周長 3300 m にて行った。モーターオイル浴の温度は 373K とした。摩耗試験後のディスクの摩耗面を SEM で撮影し、摩耗機構を考察した。

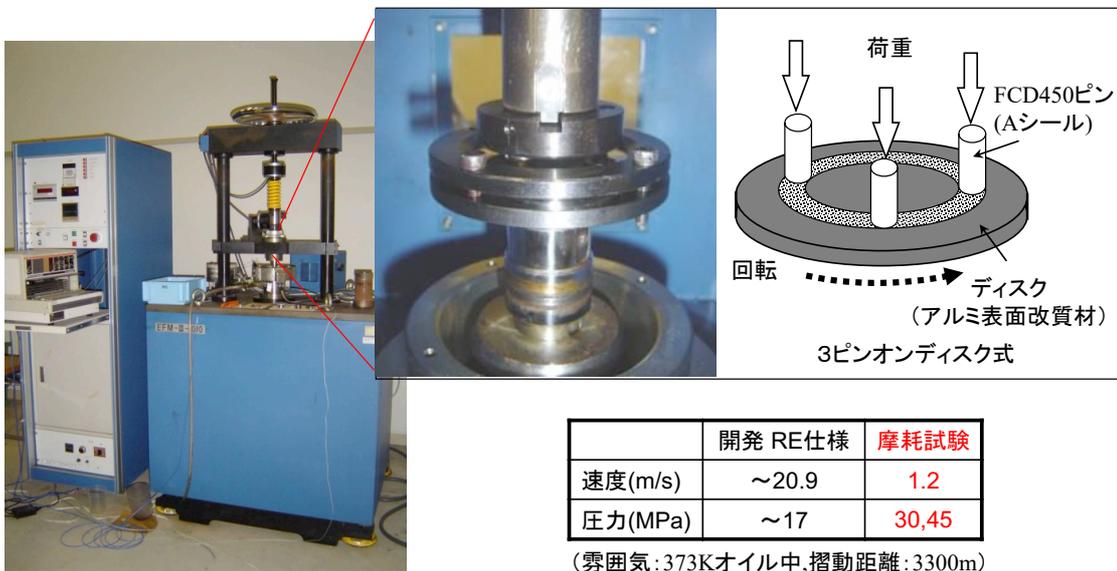


Fig. 6-2 Friction and wear test by pin-on-disk method.

Table 6-2 Disc material used for friction and wear tests.

名称		硬度	備考
複合強化	アルミナセラミック繊維	HV 120	繊維径5μm, 体積率15%, AC8A
メッキ	非熱処理Ni	HV 700	低Pタイプ
	硬質Cr	HV 900	車載REに使用実績あり

6.2.1.3 低浸透圧力でのアルミ複合材料ローターハウジングの作製

ローターハウジングの内面のみを部分強化するため、強化材の予備成形体(プリフォーム)を作製し、第2章で検討したガス圧力を使用した低圧の溶湯浸透法で部分強化を行った。Fig. 6-3にプリフォーム作製装置である水中攪拌吸引脱水成形装置を示す。Al₂O₃ セラミック繊維の体積率が15%となるよう楕円形リング状(φ85×t10 mm)に成形した。

Fig. 6-4に複合強化に際して用いた、ガス圧を利用した溶湯浸透装置を示す。予熱したリング状プリフォームを金型にセットし、熔融アルミニウム合金(AC8A)を金型に注ぎ込み、50 ton プレスで型締め後、ガス圧を素早く加えようと浸透させた。第2章成果をもとにガス圧力は2.0 MPaとした。

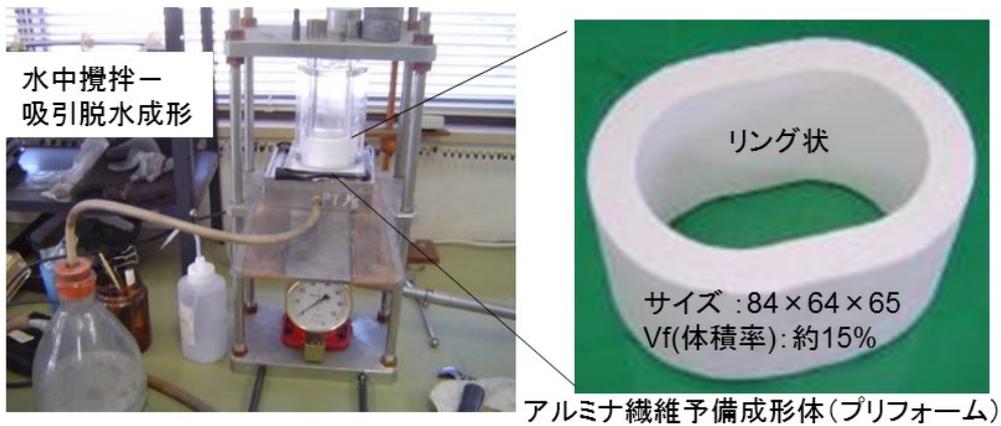


Fig. 6-3 Preforms of reinforcing material used for the inner surface of the rotor housing.

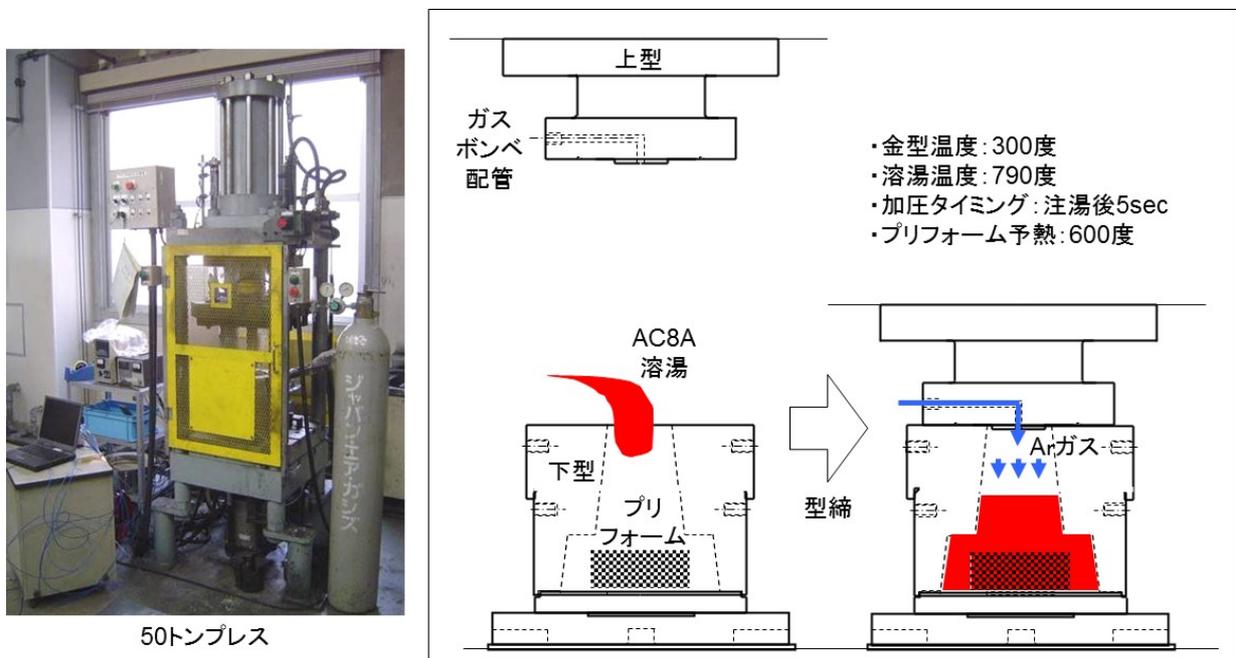


Fig. 6-4 Appearance of low-pressure infiltration device for rotor housing.

6.2.1.4 小型ロータリーエンジン搭載無人ヘリコプターの製作

MMC ローターハウジングを使用して、無人ヘリコプター用 RE(1 ローター, 30 cc)を作製した。Fig. 6-5 に組み上がりのイメージ図を示す。ローターとサイドハウジングは、アルミニウム合金で作られている。Ni めっきアルミニウム合金ローターハウジングも比較として使用した。出力性能は、10,000~15,000 rpm の高速領域で測定した。30 時間連続運転後のハウジング表面の損傷を比較評価した。また小型無人ヘリコプターに本 RE を装備し、飛行試験も行った。

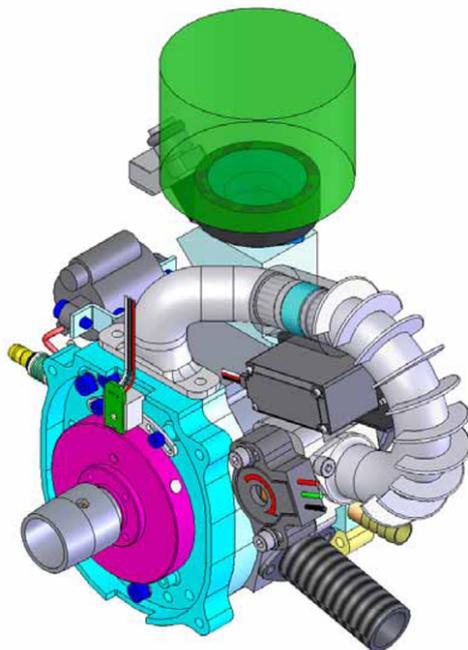


Fig. 6-5 Schematic diagram of rotary engine for unmanned helicopter.

6.2.2 自動車エンジンピストンの設計シミュレーションと実体評価

6.2.2.1 設計解析モデルと計算方法

自動車エンジン用ピストンを複合材料で強化する場合、軽量化を損なわずかつコストアップを抑えるため頭部に効率的に配置することが重要である。このため、温度解析および応力解析での設計シミュレーションが有効とされる。

ガソリンエンジン用の簡略化したピストンモデルで燃焼時の温度解析を行った一例を図を **Fig. 6-6** に示す。ピストンサイズは外径約 90 mm、高さ約 50 mm で、材質は一般的な AC8A アルミニウム合金である。モデルは 4 面体 10 節点要素を用いて、18,649 個に分割した。高出力エンジンの場合は頭頂部は約 300 °C に上昇する一方、スカート部は 100 °C 付近に留まるなど広範囲な温度分布を示した。このような高温の頭頂部を中心に、第 4 章で実証した高温強度に優れる FeCrSi_p/AC8A を配置することで、高性能ピストンの開発が期待できる。

この温度分布解析結果をもとに、エンジンピストンの弾性応力解析 (I-DEAS) を行った。**Fig. 6-7** に示すように、ピストン頭部へ幅、厚さをパラメータに配置し、相当応力から最適位置を検討した。FeCrSi_p/AC8A の強化材体積率は 20 % とした。ヤング率は第 5 章の実測結果から等方弾性体と仮定し、各解析温度での線形近似値を用いた。一般の自動車用エンジンの燃焼室内の燃焼圧力は 6 MPa 程度であるが、高出力エンジンをターゲットとし、ピストンの頂面に z 軸の負の向きに等分布荷重として圧力 p を 7.5 MPa を加えた。また、ピストン・ピン穴の上側の面の z 軸方向の変位を拘束した。

以上の条件下で得られたピストン部材の内部に発生する最大となる主応力解析値が設計許容であるかは、材料の強度に達した時、破損を生じると考える一般的な「最大主応力説」で検討した⁵⁾。本説はガラスなどの脆性材料で良く当てはまるとされる。さらに、本研究では第 5 章で得られた高温変形構成方程式から使用高温環境でのひずみ速度を概算し、自動車エンジンの耐久年数 (時間) を勘案したピストンとシリンダの組み込み精度の維持の観点から設計許容であるか考察を試みた。

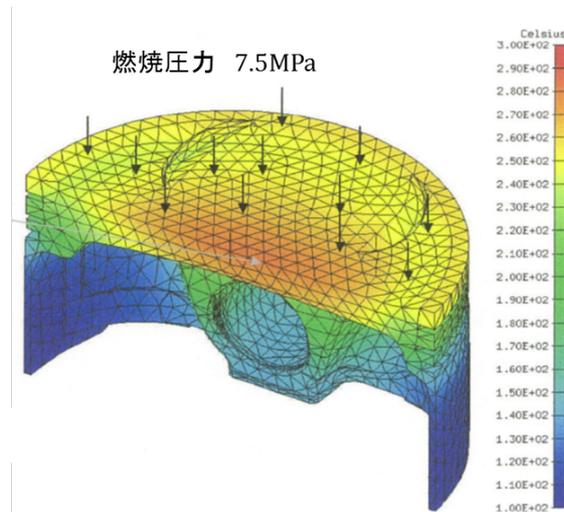


Fig. 6-6 Analysis simplified piston model and of distribution temperature.

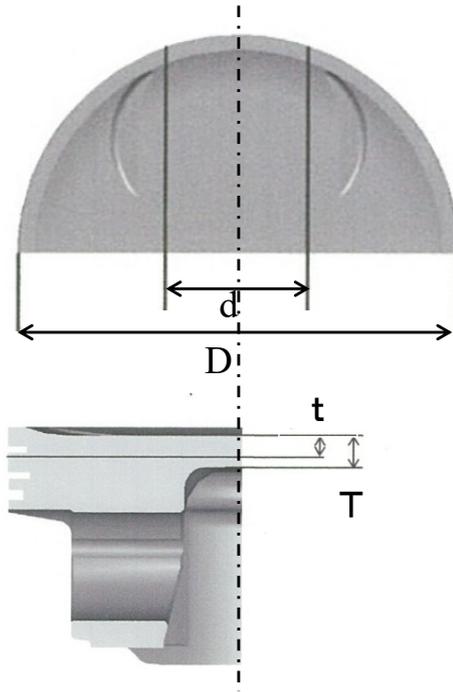


Fig. 6-7 Design parameters for the arrangement of composite materials in the piston head.

6.2.2.2 エンジンピストンの熱衝撃試験

高温強度特性に優れる $\text{FeCrSi}_p/\text{AC8A}$ の熱衝撃特性を、頭頂部(リップ部)の内周面を複合強化した **Fig. 6-8** に示す実体エンジンピストンを用いて評価した。**Fig. 6-9** に熱衝撃試験機および冷却温度チャートを示す。エンジンピストンを、水中から炉内(623 K)まで約 10 s の繰り返し熱衝撃を加え、表面からの亀裂進展性の確認した。比較対象はセラミック系強化材とし、 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{AC8A}$ の実体ピストンを用意した。亀裂の発生は目視で確認し、断面組織観察にて進展距離などを調査した。

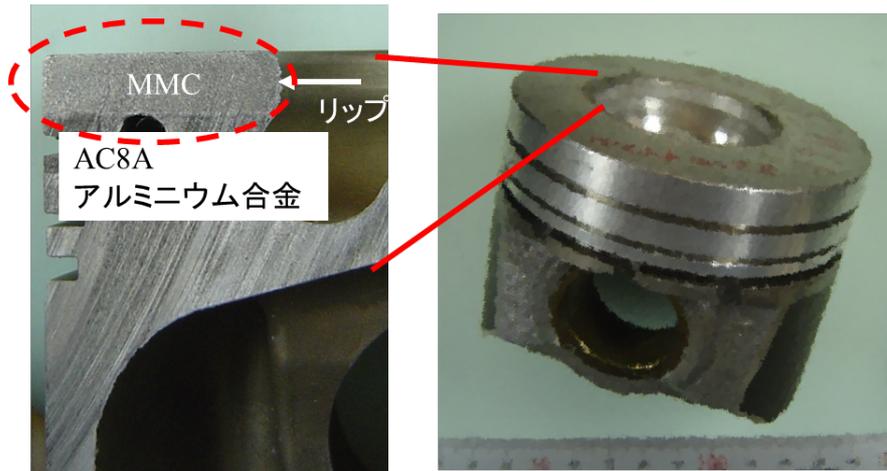


Fig. 6-8 Appearance of piston head for automobile engine.

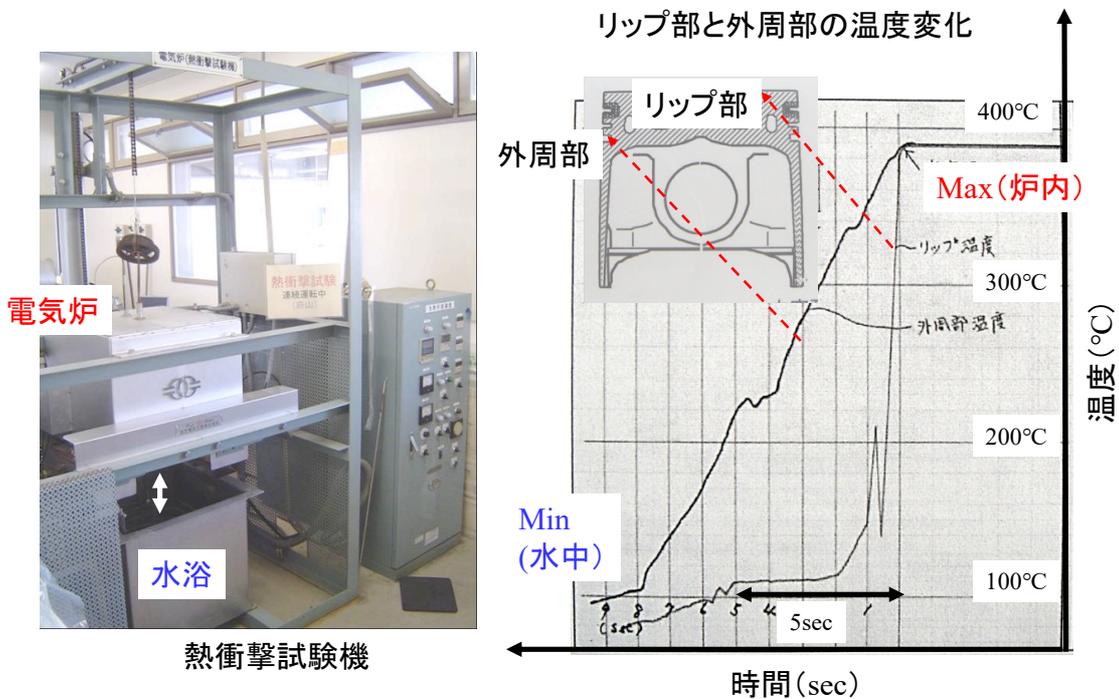


Fig. 6-9 Appearance of thermal shock testing machine.

6.3 実験結果と考察

6.3.1 セラミック強化軽金属基複合材料による小型ロータリーエンジンハウジング

6.3.1.1 複合材料の高温湿式耐摩耗特性

Fig. 6-10 にローターハウジングの表面層として検討した、複合材料および比較めっき材の実使用環境に近似させた高温湿式摩擦摩耗試験結果を示す。耐摩耗性および相手材攻撃性に優れた材料は、 Al_2O_3 繊維強化アルミニウム合金複合材料であった。複合材料の重量損失は、面圧 30 MPa で Ni めっきと比較して 5.8 mg から 0.4 mg と約 1/15 であり、相手材攻撃性は Cr めっきと比べ 31.7 mg から 4.2 mg と約 1/8 に改善した。また、複合材料は面圧を 45 MPa まで上げて、重量損失と相手材攻撃性はほとんど変わらなかったが、比較めっき材料は大幅に増加した。

無人ヘリコプタ小型 RE の摺動温度と速度は、本摩擦摩耗試験よりも高い。 Al_2O_3 繊維強化アルミニウム合金複合材料の摩耗特性は乾式の場合、摩耗減量が 100°C 以上で大幅に増加し、摺動速度によっても溶融摩耗形態に移行する報告例がある^{6,7)}。このように、実使用速度域での耐摩耗性は懸念されるが、自動車用 RE の従来 Ni めっきよりも摩擦係数も低く代替方法として期待できる。

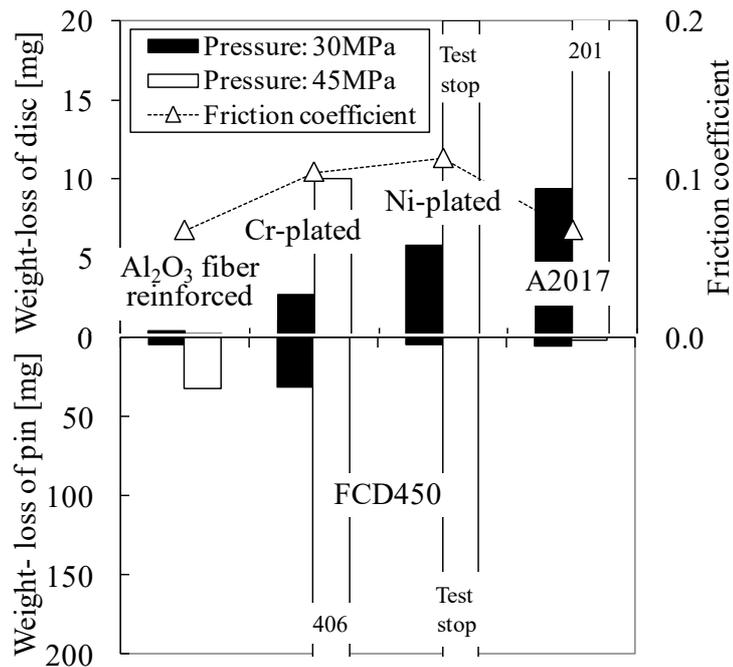


Fig. 6-10 Weight-loss after wear test and friction coefficient.

Fig. 6-11 に、30 MPa の負荷で試験した複合材料と Ni めっき材料の摩耗試験前後の表面写真を示す。Ni めっき材料の場合、溝はより大きく、より深まった。一方、複合材料の摩耗面は比較的滑らかで繊維の脱落もなかった。これらの溝は微細で、繊維の近くの塑性変形は僅かであった。これは、繊維がアルミニウムマトリックスの塑性変形を制限できることを示しており、これが複合材料の耐摩耗性の良い理由となっている⁸⁾。さらに、複合材料の摩擦係数は、Ni めっき材料の摩擦係数よりも低かった。複合材料の溝がオイルポケットとして機能したため、摩擦係数が 0.1 を下回った可能性が高い。

このように、アルミナ繊維強化複合材料をローターハウジングに適用するにあたり、高温湿式においては第 3 章で検討 DLC した積層 DLC コーティング処理と同等以上の耐摩擦係数、耐摩耗性能が得られる可能性が高いため、コーティング処理せず実体品を試作した。

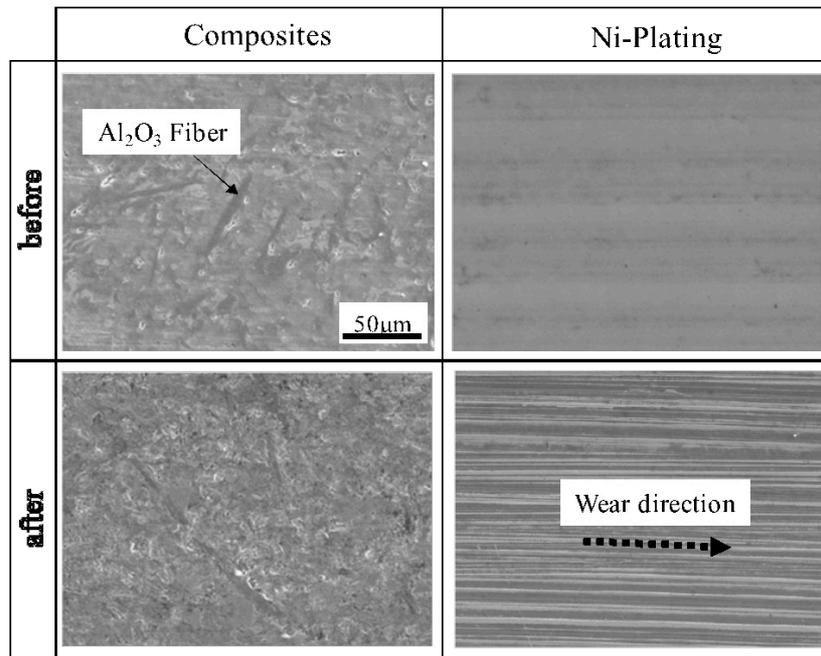


Fig. 6-11 SEM images of worn surface tested at 30 MPa load before and after wear test.

6.3.1.2 複合強化ローターハウジングの浸透不良

Fig. 6-12 にガス圧を利用した溶湯浸透で作製した複合強化ローターハウジング鋳物について、鋳込みあがりの断面写真を示す。底面にセットされていたリング状プリフォーム(アルミナ繊維強化材)は、浸透時に大幅な位置ズレや崩壊、潰れは見られず、複合強化されていた。しかし、高さ方向にアスペクト比が高いリング形状のため、溶湯浸透時に内部空気の排出が難しい。加圧タイミングや保圧時間などによっては、複合部にガス抜け不良の空洞や未浸透が点在したが、第2章の成果のとおり空孔量を1%レベルに抑えた複合強化ローターハウジング鋳物が得られた。

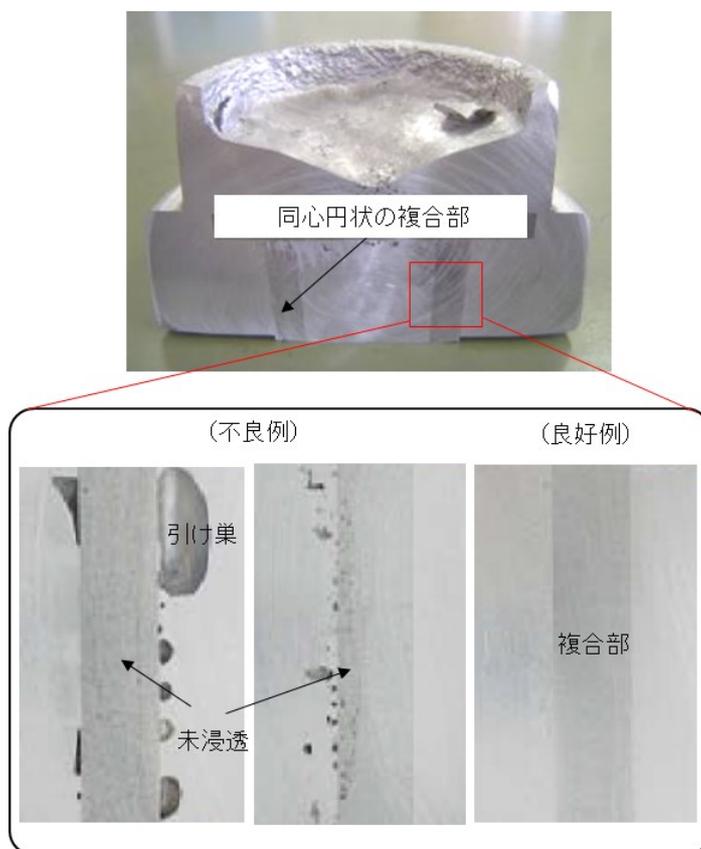


Fig. 6-12 Photograph of a cross-section of a rotor housing by the low-pressure impregnation method.

6.3.1.3 複合強化ローターハウジングの切削加工性

2.0 MPa の圧力で溶湯浸透した複合材料をローターハウジングに切削加工した。Fig. 6-13 にエンドミルによる加工状況を示す。セラミック系強化材による複合部の加工時間は、複合化していない母材部と比較して約 4 倍を要した。複合部の削りシロを最小限にする鋳造方案が重要である。複合部が表層となるローターハウジングの内側には細孔などの目視欠陥はなかった。

Fig. 6-14 に仕上げ加工後のアルミ複合材料ローターハウジングを示す。ローターハウジングの重量は、厚さ 5 mm だけ内側を部分補強したため、ほとんど増加していない。



Fig. 6-13 Photograph of rotor housing in the process of end milling.

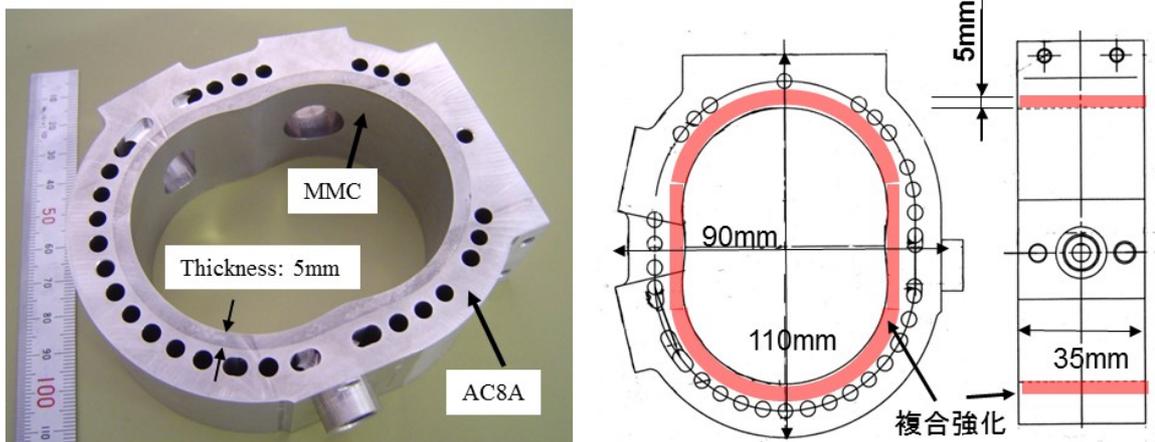


Fig. 6-14 Photo of MMC rotor housing fabricated by the low-infiltration method.

6.3.1.4 小型ロータリーエンジンの出力特性

アルミニウム合金基複合材料ロータリーハウジングを用い、小型ロータリーエンジン(1 ローター, 30 cc)を製作した。Fig. 6-15 に外観および内部を示す。小型ヘリ搭載前に本エンジン単体にて性能計測を実施した。

Fig. 6-16 に小型 RE の出力, トルク, 燃料消費曲線を示す。MMC ローターハウジングで作られた小型 RE の最高主力は 14,000rpm で目標 6 PS 付近の 5.3 PS に達した。MMC ローターハウジングモデルのエンジン出力性能は, Ni めっきロータリーハウジングモデルと比較して約 10%向上傾向があった。MMC ローターハウジングモデルの燃費は, Ni めっきロータリーハウジングモデルに比べてほぼ一定であった。Ni めっきと比べ複合材料の摩擦係数が低いことが影響している可能性がある。複合強化はエンジン出力, トルクがめっきと比べ上回る傾向も見られるなど, アルミロータリーハウジングに適した表面改質であることが判明した。

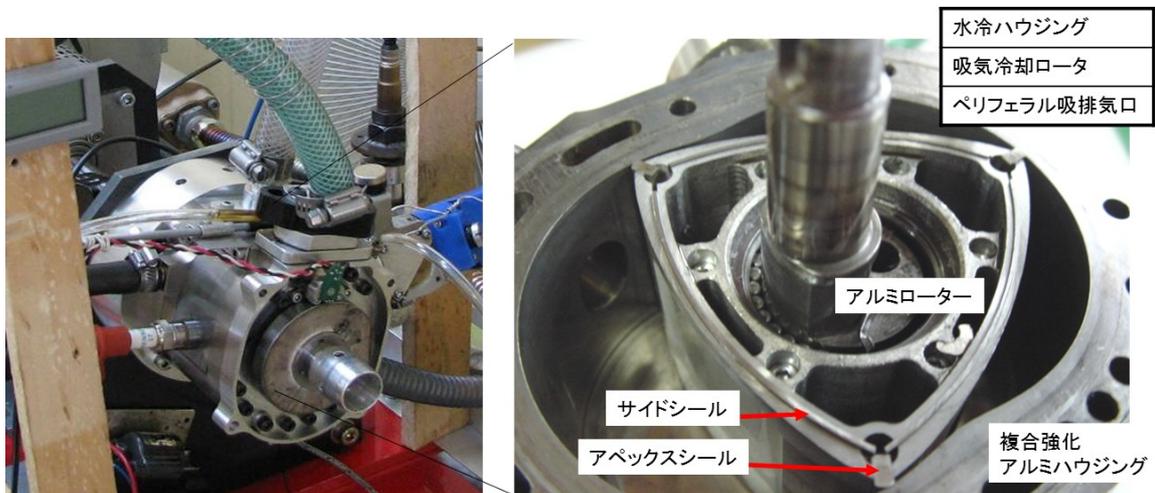


Fig. 6-15 Appearance of rotary engine for unmanned helicopter.

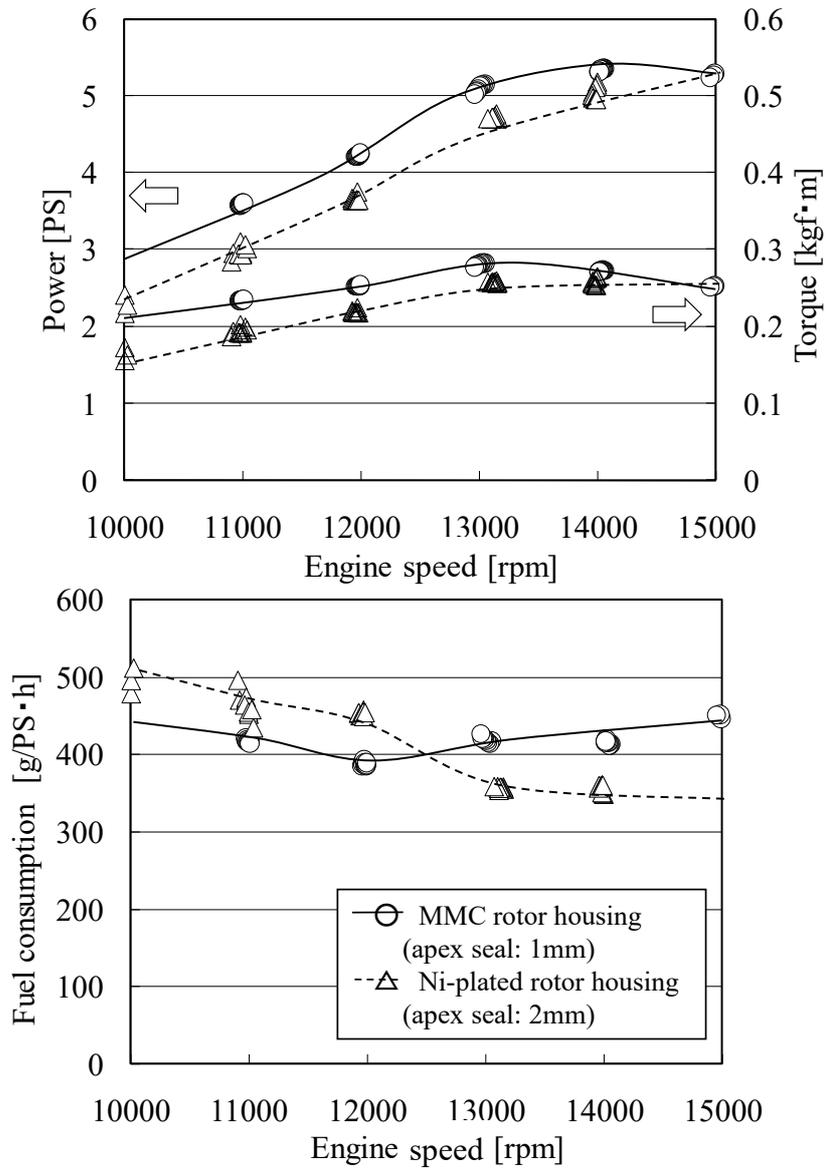


Fig. 6-16 Engine output performance and fuel consumption of the REheli.

6.3.1.5 複合強化ローターハウジング内面の耐久性

複合材料を使用したローターハウジングの内面は、30 時間運転しても破損しなかった。一方、Ni めっきを使用したハウジングは摩耗はなかったものの、部分的に Fig. 6-17 に示すようにめっき下部に剥離部分が見られた。MMC ローターハウジングモデルはめっきに見られる密着不良の恐れはなく耐久性が高まると推定される。

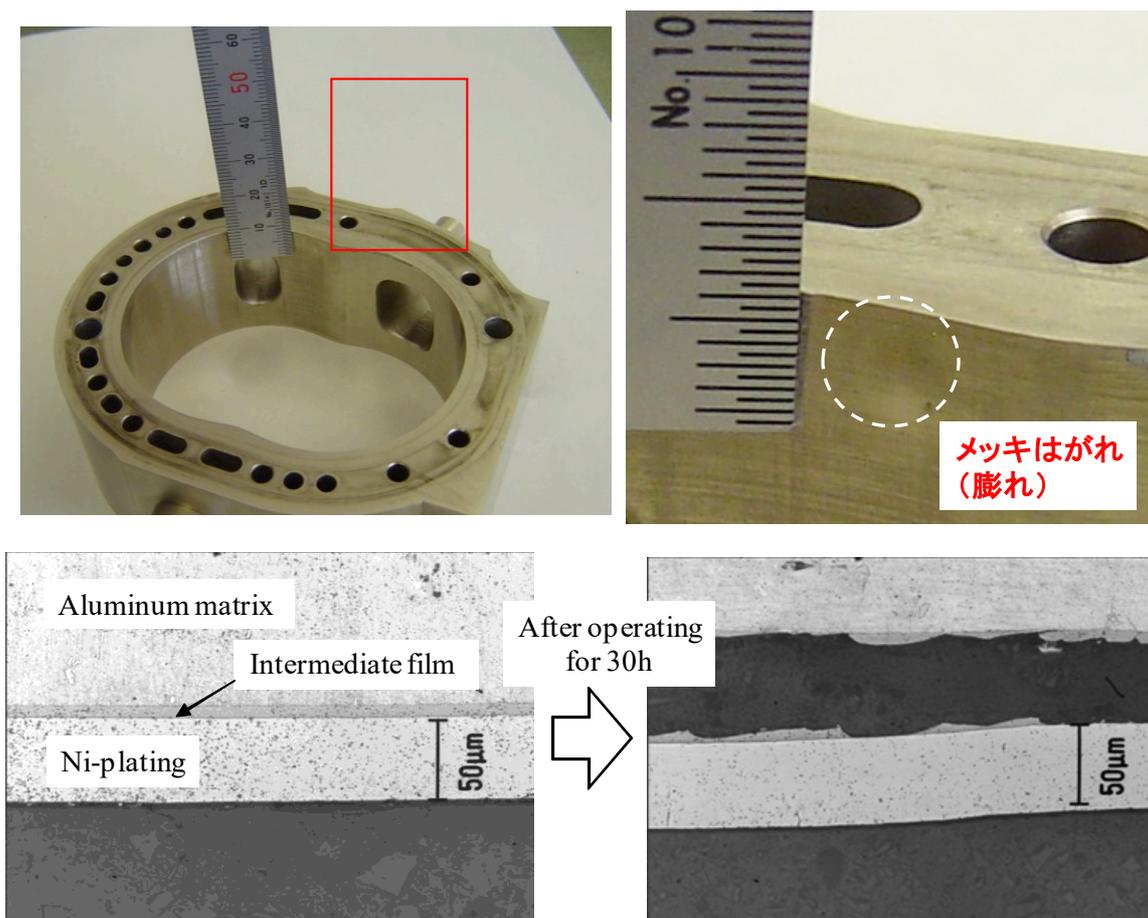


Fig. 6-17 Flaking off part on the surface of the Ni-plated rotor housing after operating for 30 hours.

6.3.1.6 小型ロータリーエンジン搭載無人ヘリコプターの飛行試験

Fig. 6-18 に小型無人ヘリコプターのフィールドでの飛行試験を示す。小型 RE を搭載した無人ヘリコプターは安定飛行に成功した。RE は無人ヘリコプターでの使用において、従来の 2 ストロークレシプロエンジンと比較し、低振動の制御安定性や低排気ガスなど高い効果が期待される。



Fig. 6-18 Photos of the flight test of the small unmanned helicopter equipped with the REheli.

6.3.2 金属繊維強化軽金属基複合材料による自動車エンジンピストン

6.3.2.1 エンジンピストン複合強化位置による相当応力の計算

Fig. 6-19 にピストン頭部の上部 1/2, 幅全周で MMC で補強した場合の相当応力の分布を示す。ピストン頂面に燃焼圧力が加わる場合、ピストンピンを支点としてピストン頭部は z 軸方向にたわむため、頂面には大きな引張応力が生じる。また、ピストンピンの長手軸方向に大きな引張応力が分布している。このことから、ピストンピンの長手軸方向に亀裂が生じることが予測される。実際に使用したピストンもピストンピン長手軸方向に亀裂が生じることが多いので、この計算結果は実際の現象をうまく表現できている。

ピストン頭部が MMC 薄板で補強されたとしても、ピストン(クラウン)全体としての剛性はほとんど変わらない。このように全体のたわみ/ひずみそのものは大きく変わらず、ピストン頭部のひずみ量はほぼ同じではあるが、a)AC8A のみの場合と比較し、b)MMC で強化した場合は、ヤング率の大きい MMC の方が相当応力が高くなる傾向がみられている⁹⁾。

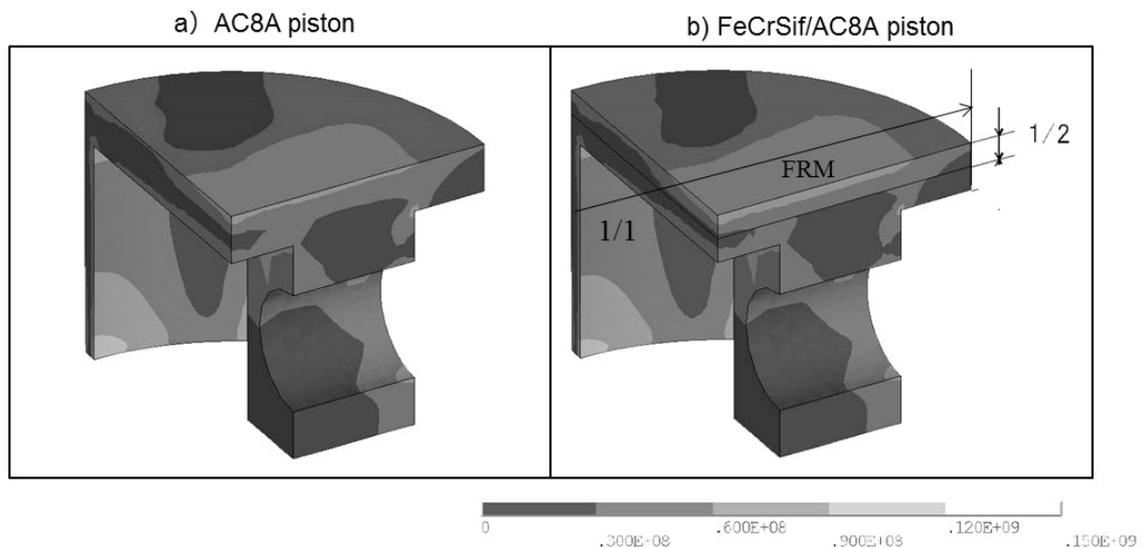


Fig. 6-19 Distribution of equivalent stress of AC8A.

このように、精度の高い応力解析結果を利用すれば、AC8A アルミニウム合金で造られたピストンのどの部分をMMCで補強すればよいか検討可能と考える。Fig. 6-20 にAC8A アルミニウム合金のピストン頭部へ幅、厚さをパラメータにMMCを配置し、相当応力を比較した。

AC8A アルミニウム合金単体の場合、ピストン頭頂部の相当応力の最大値は 65.7 MPa であり、AC8A 合金の 300 °Cにおける引張破断強度 105 MPa と比べ約 37 %の裕度があることが分かった。

MMC で補強した場合は、幅を広くしてもピストン頭頂部の相当応力の最大値は 100 MPa 前後で推移しており、ピストン(クラウン)全体の剛性への影響度はあまり大きくなく、全体のたわみ(ひずみ)の変化はとて小さいと言える。一方で頭頂部上面から MMC 厚さが増えるにつれ、ピストン(クラウン)全体としての剛性が上がり、たわみ(ひずみ)が小さくなり、応力も小さくなる傾向が見られ、影響度は大きいことが分かった。MMC の厚さ 3/4 の時に相当応力の最大値は 83.4 MPa を示し、MMC 強化のパラメータ中、最小の相当応力値となった。この値は MMC の 300°Cにおける引張破断強度 145MPa と比べ約 42%の裕度がある。以上のようにMMCにより頭頂部の高温強度特性を高めながら、破断に至る裕度も約 5 %高めており、本手順により最適な配置位置のシュミレートできると考える。

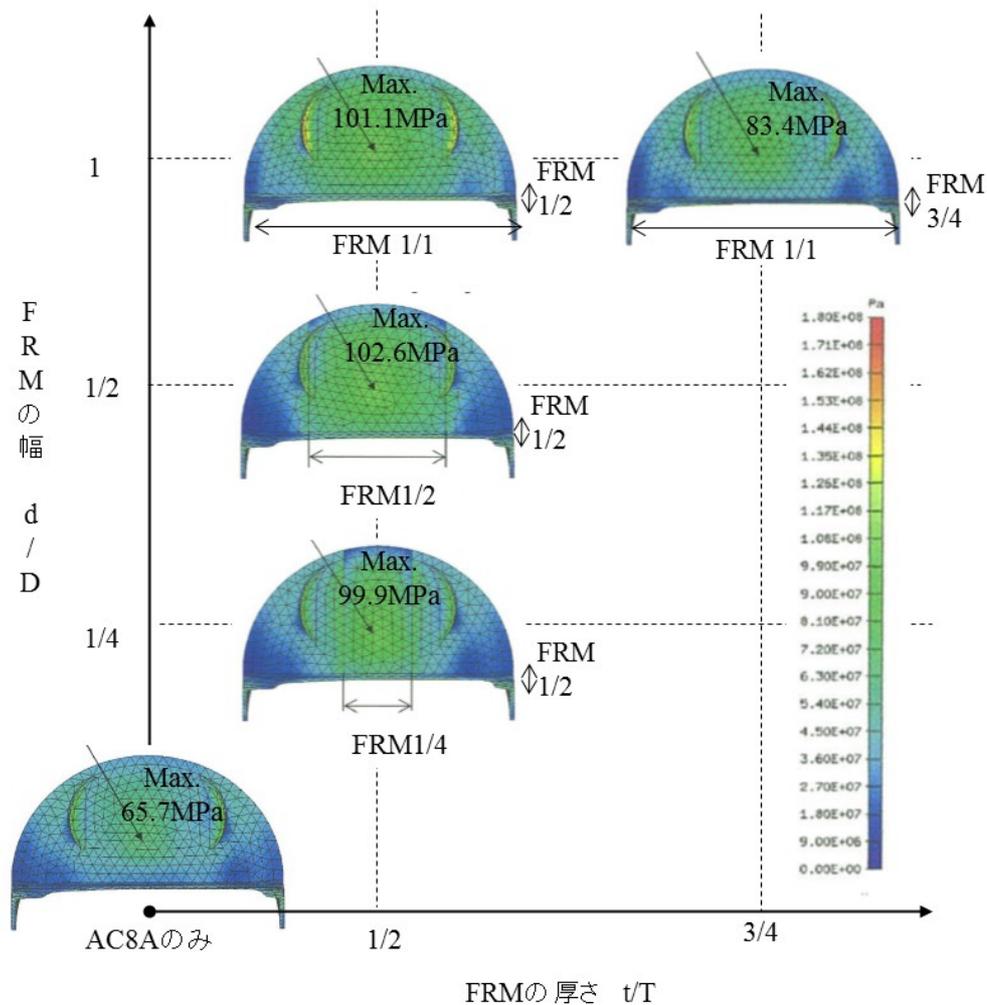


Fig. 6-20 Distribution of equivalent stress of AC8A and MMC.

6.3.2.2 構成方程式によるエンジンピストン設計の安全性検証

前述のようにピストン部材の内部に発生する最大となる主応力解析値が設計許容であるかは、材料の破断強度 (UTS) に達した時、破損を生じると考える「最大主応力説」で考え、その裕度で判定した。本項では第 5 章で得られたしきい応力 σ_0 、高温変形構成方程式から設計許容を検討した。

Fig. 5-9 に示したとおり、375 °Cにおける MMC (20 vol%) のしきい応力 σ_0 は 92 MPa であり、主応力解析した温度 300 °Cにて、しきい応力は 92 MPa を上回ることが明らかである。このように主応力解析した温度 300 °Cにおいて、最適配置した MMC に働く主応力解析値は 83.4 MPa であり、変形が開始するしきい応力に達することはなく、設計は許容範囲と考えられる。

また、使用高温環境でのひずみ速度を算出し、自動車エンジンの耐久年数(時間)を勘案したピストンとシリンダの組み込み精度の維持の観点から設計許容であるか考察を試みた。頂上面に配置した MMC (20 vol%) が、より厳しい 375 °C の燃焼環境下にさらされ、しきい応力 σ_0 92 MPa を僅か 1 MPa 上回ったと仮定した場合、第 5 章の変形構成方程式の式(6)からひずみ速度 $\dot{\epsilon} = 2.1 \times 10^{-12} \text{s}^{-1}$ が導かれる。自動車の平均的な耐用年数を 10 年と仮定し、日中 8 h 連続運転したとすれば、約 175 万時間エンジンが稼働したこととなる。このひずみ速度、時間数にて、約 90 mm 直径のピストンは約 0.02 mm の変形が予測される。この変形量はエンジンの出力性能を左右するピストンクリアランス値の精度に影響を及ぼす。

$$\text{ピストンクリアランス値} = \text{シリンダボア内径} - \text{ピストン外径} \quad (2)$$

ピストンクリアランスは高性能自動車用エンジンの場合、0.030~0.050 mm が指定されており¹⁰⁾、予測値約 0.02 mm は調整範囲の許容限度内である考察が可能である。このように変形構成方程式はエンジンピストンの設計許容を導きだす新たな視点を提供できる。

6.3.2.3 エンジンピストンの熱衝撃特性

Fig. 6-21 に試作ピストンのリップ部に対する熱衝撃試験後の外観を示す。Al₂O₃ セラミック繊維強化タイプが 10² 回オーダーで円周方向に等間隔で数か所の亀裂が確認された。その進展速度は速く、亀裂は大きくなった。一方、FeCrSi の金属繊維強化タイプは 10³ 回オーダーでも表面の酸化や無数のクラックらしきむしれが見られるが、大きな亀裂は確認されなかった。

Fig. 6-22 に熱衝撃試験後の亀裂断面組織の観察結果を示す。に Al₂O₃f/AC8A の亀裂は多岐に分離せず一直線上に進展していることがわかる。FeCrSi_f/AC8A は無数のクラックが発生しているものの亀裂は分散し表層で停止している。金属系繊維はセラミック系繊維と比べ、高温における靱性の高さから亀裂進展を抑制する効果をエンジン部品で実証できた。



Fig. 6-21 Appearance of crack at piston head lip after thermal shock test.

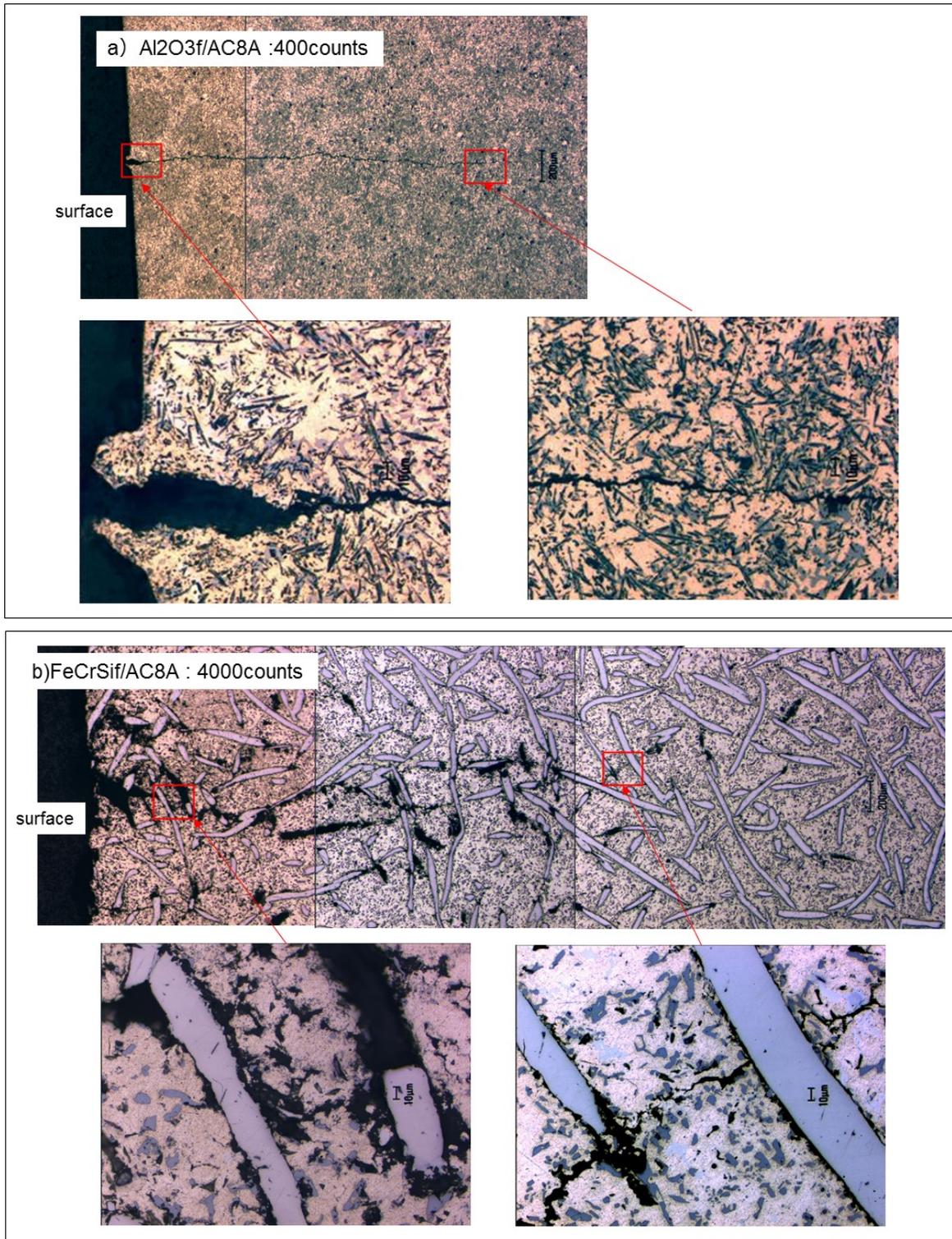


Fig. 6-22 Optical micrograph of crack at piston head lip after thermal shock test.

6.4 小 括

① Al_2O_3 繊維強化 AC8A アルミニウム合金複合材料をライニング層とする小型アルミニウムエンジンハウジングへの適用を目指し、以下の結論を得た。

- (1) Al_2O_3 繊維強化アルミニウム合金複合材料は各種めっきとくらべ、湿式高温摩耗試験結果から耐摩耗性、相手材攻撃性に優れることを明らかにした。この複合材料の摩耗損失は、Ni めっき材料と比較して 1/15 であった。繊維とマトリックスの間にオイルポケットを形成し、摩擦係数は 0.1 以下に低下した。
- (2) ガス圧力 (2 MPa) での溶湯浸透法により、 Al_2O_3 繊維によって内部表面を部分強化したアルミニウムローターハウジングを欠陥なく作製できた。ハウジング内面 5 mm のみを部分強化したため、ローターハウジングの重量はほとんど変化なく、軽量性は損なわれなかった。
- (3) 複合強化ローターハウジングを取り付けた小型 RE(1 ローター, 30 cc) の最大出力は、高速域で目標付近の 5.3 PS に達した。従来の Ni めっきローターハウジング仕様は、出力、トルクは低く、30 時間後にめっきの剥離も見られ不利だった。この RE を搭載した小型無人ヘリコプターは従来レシプロエンジンより振動、排出ガスは少なく、安定飛行に成功した。

② FeCrSi 繊維強化 AC8A アルミニウム合金複合材料は、高出力・低燃費の自動車用エンジンに対応するため、燃焼部の高温強度・疲労特性を向上させたアルミピストンへの適用を目指し、以下の結論を得た。

- (1) $\text{FeCrSi}/\text{AC8A}$ で強化したエンジンピストンの強度シュミレーションを行い、得られた最大主応力値をもとに高温変形構成方程式を活用することで使用高温域でのひずみ速度レベルを概算可能となった。このひずみ速度下で自動車エンジンの耐久年数(時間)を勘案したピストンクリアランス精度の維持の新たな観点から設計の許容を考察できた。
- (2) $\text{FeCrSi}/\text{AC8A}$ を頭頂部へ組み込んだエンジンピストンの熱衝撃特性は、セラミック系の $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{AC8A}$ と比べ亀裂までに至る回数は長く、発生した亀裂は表層で留まるなど亀裂進展性に優れることを実証した。

参 考 文 献

- 1) Information on <http://www.mazda.com/mazdaspirit/rotary/>.
- 2) M. Ohkubo, S. Tashima, R. Shimizu, S. Fuse and H. Ebino: 2004 SAE World Congress, **3** (2004), 8.
- 3) T. Yamada and Y. Moriyoshi: Proceedings of 13th Small Engine Technology Conference (SETC2007), (2007), 007-32-0098.
- 4) K. Yamamoto: The Rotary Engine (Nikkan Kogyo Shimbunsha. LTD), 1969, 33.
- 5) 大路清嗣, 中井善一: 『材料強度』コロナ社, (2010).
- 6) Y.H. Liu, J. Du, S.R. Yu and W. Wang: Wear, **256** (2004), 275.
- 7) C.S. Lee, Y.H. Kim, K.S. Han and T. Lim: J. Mater. Sci., **27** (1992), 793.
- 8) S. C. Kurnaz: Mater. Sci. Eng. A, **346** (2003), 108.
- 9) 寺山朗, 府山伸行, 小村勇樹, 萩原多津美; 広島県立西部工業技術センター研究報告, **48** (2005), 65-67.
- 10) 例えば(株)HKS ピストンキット製品説明書 E04131-T59010-00.

第 7 章

総 括

地球環境問題や電動化への対応が急務となる中、軽量化は中小企業において共有の課題であり、特にアルミニウムやマグネシウムを中心とした軽量素材の成形技術に対し、従来よりも多様かつ効率的な開発支援が望まれている。

本研究では軽金属の物性を効果的に向上させる可能性を持つ複合強化技術を対象に、中小企業でも比較的適用しやすい液相プロセスにて耐摩耗性や耐熱性を高めたエンジン部品の実現を目指した。セラミックス繊維、金属間化合物系繊維強化材によるそれぞれの複合強化技術について、製法・設計の最適化や機械的性質向上の観点から、モデル実験、構成方程式などで理論構築を行い、実製品製造を通じて有効性を検証することを目的とした。

本論文は次の 7 章から構成されるもので、各章の概要は以下のとおりである。

第 1 章は、研究の背景として、環境問題や軽量化の要望を受けた複合強化技術の多様性と高度化に向け、従来の複合強化技術の技術要素と課題を整理した。本研究では一般的なセラミック系繊維、新規な金属間化合物系繊維強化材によるそれぞれの複合強化技術について、製法・設計の最適化や機械的性質向上の観点から、理論構築を行う研究指針を示すことで、本研究の意義と目的を明確化した。

第 2 章は、耐摩耗摺動特性が期待されるセラミック系強化材を使用した軽金属基複合材料の製法のうち液相法での課題解決のため、①溶湯攪拌法の水モデル実験や②溶湯浸透法のガス圧力モデル実験やを通じて空隙率や分散性に関して基盤研究を行った。

①溶湯攪拌法のうち固液共存状態のコンポキャストを可視化した水モデル実験により、半熔融状態の見かけの粘性に及ぼす攪拌条件の影響および強化材の投入方法について評価した。さらに実際にセラミック系強化材としてホウ酸アルミニウム粒子およびウイスカを、マトリックスとして AZ91D マグネシウム合金を使用し、コンポキャストした複合材料を作成し、その作製条件と組織の関係を調査した。

水中における可視化モデル実験をもとに、コンポキャスト時のガス欠陥の抑制や、強化材体積率と固相率の関係性について分散性を指標に構築した。固相率 20%まではみかけ上完全液体(0%固相率)と同じように流動することから、20 %fs と 0 %fs では強化材粒子は同じ分散挙動を示す一方、33 %fs ではマトリックスの対流が低減したために、ブレード付近においても強化材が均一に分散するなど十分な粘性であることを見出し、最適なコンポキャスト条件を確認できた。ブレードにより直接巻込まれたガスおよび強化材中に捕捉されているガスを可視化することで、適切なブレードから液表面までの距離、ブレードの回転数を調整し、マトリックスの粘性がガスの巻込みを低減させた。特に、強化材はマトリックスの下に置き、ブレードにより直接強化材を攪拌することで、マトリックスと強化材を完全に混合することができた。このモデル実験結果から実鑄造し、強化材体積率 10 %、固相率は約 30 vol% (853 K) で作製することにより、マトリックスの対流が低減させ、ブレード付近においても強化材を均一分散させることができた。また、強化材として粒子よりもウイスカ形態を用いた場合、見かけの粘性がさらに上昇することで初晶の分断効果が増すことも明らかにした。

②溶湯浸透法による浸透圧力制御は、強化材料の予備成形体(プリフォーム)に母材となる軽金属溶湯を、強度や耐摩耗性を損なわない最低限の圧力で浸透させる新しい取り組みである。高圧(約 50 MPa 以上)で浸透させるものが一般的で専用装置が必要であり、製造コストが問題視されていた。高圧浸透と同等の強度特性を有する、低圧での浸透条件確立を目的に、一般的なセラミック繊維 (Al_2O_3) で強化した AC8A アルミニウム合金基複合材料を作製し、浸透圧力による空隙(気孔)形成状態や引張強度への

影響を調査した。

ガス加圧による溶湯浸透モデル実験により、濡れにくいとされる Al_2O_3 繊維間に確認される気孔(数 μm)の面積率と浸透圧力の関係性について高温強度特性を指標に構築した。目標の気孔面積率(1%以下)と高温強度(高圧 50 MPa と同等)が得られるガス圧力は 1.3 MPa であり、これ以上不要で飽和する関係性を見出し、最小限の低圧浸透条件を確認できた。 Al_2O_3 繊維強化複合材の引張強度は、室温において浸透圧力すなわち気孔率の影響が大きく、高圧 50 MPa 材と比べ低圧 0.8 MPa 材は 40%程度低下するものの、高温域(503 K 以上)での引張強度の差は縮小した。これは高温でのマトリックスの延性向上に伴う気孔に対する感受性の低下と推定される。

第 3 章は、セラミック系強化材である Al_2O_3 繊維で強化したアルミニウム合金基複合材料に関し、機械的特性のうち DLC コーティングによるさらなるトライボロジー特性の向上を目指した基礎研究を行った。繰り返し回数異なる積層 DLC 膜を成膜することにより、コーティングの亀裂や剥離を引き起こす圧縮残留応力の低減を図るとともに、基材中の強化材体積率との関係性も調査した。

積層 DLC 膜のナノインデンテーション試験の結果、強化材体積率が増加しても硬さやヤング率にほとんど変化なく、基材の影響は受けなかった。一方、積層数は 2 層から 4 層に増加させたことにより硬さに違いは見られなかったが、ヤング率は減少していた。よって積層回数を増加させることで積層 DLC 膜の残留応力が減少し、膜のヤング率を調整できること明らかにできた。

硬さとヤング率から表される 3 つの指標、弾性ひずみ限界 (H/E)、塑性変形に対する抵抗力 (H^3/E^2)、破壊に対する抵抗力 (H^2/E) は、いずれも 2 層より 4 層 DLC 膜の条件が高くなる。つまり膜の耐摩耗性、耐久性ともに 4 層 DLC 膜の方が 2 層 DLC 膜よりも優れていること、破壊に対する抵抗力 (Irwin Orowan-Griffith ケース)などで理論構築できた。

セラミックボールとの平面往復摩擦摩耗試験の結果、摩耗減量や剥離に至る臨界回数は、基材の強化材体積率の増加や DLC 積層数の増加とともに改善することがわかった。強化材体積率による改善は、基材全体の硬さやヤング率の向上に起因し、DLC 積層数による改善は、ナノインデンテーション試験での優れた 3 つの指標で整理できる。一方で摩擦係数は DLC 積層回数が低い 2 層 DLC 膜の方が、同じ硬さでありながら大きいヤング率を有しているので、変形しにくく、接触面積が減少するため、低減が図れた。

第 4 章は、高温域での機械的性質向上に大きく関与する金属間化合物系繊維強化材の反応性を制御する基礎研究を行った。金属系強化材はセラミック系強化材と比較し、熱処理時等の界面反応による強度劣化が問題視されている。 FeCrSi 繊維強化軽金属複合材料の as-cast 時の界面反応性や、溶体化処理温度を変化させた際の界面反応層の形成状態を調べ、高温強度特性への影響を評価した。

① FeCrSi 繊維強化 AC8A アルミニウム合金複合材料の場合、溶体化処理温度 773 K、処理時間 3.6 ks 以上で Al-Fe 系金属間化合物の界面反応生成物の形成が始まり、溶体化処理温度 788 K では繊維表面にさらに均一生成し、化合物厚さも 10 μm 前後に達した。溶体化処理温度 763 K 付近では処理時間 14.4 ks においても反応生成物が生じない条件を把握した。本複合材料はマトリックスの JIS 推奨(JIS H 5202)溶体化処理温度 783 K から 763 K に変更した場合、マトリックス時効生成物量が少ないために硬さ、引張強度も数%低下したが、573 K での高温疲労強度は応力振幅 60 MPa において 10^7 回以上に達し、溶体化処理温度 783 K 材の 10^6 回より大幅に改善され、実用熱処理条件を確立できた。

② FeCrSi 繊維強化 AXE522 マグネシウム合金複合材料の場合、as-cast 時に Al-Ce 化合物の界面反応が確認された。各試験温度において、マグネシウム合金単体よりも高い引張強度を有し、界面化合物の影響はなかった。特に 523 K 以上では AC8A アルミニウム合金(T6)よりも高い引張強度を有した。

アルミニウム合金およびマグネシウム合金をマトリックスとする FeCrSi 繊維/軽金属複合材料の引張強度は、試験温度の上昇に伴い、繊維による強化効率は向上した。線形複合則および Baxter 理論式を用い、

室温では界面せん断強度の低い理論値に近い値を示し、高温では、界面せん断強度の高い理論値に近い値を示す傾向を明らかにした。高温域では繊維がマトリックスから径方向に圧縮応力を受け、みかけの界面せん断強度が向上したことで強化効率が高くなることを理論構築できた。

第5章は、高温強度が期待される金属間化合物繊維系強化材を使用した FeCrSi 金属繊維強化 AC8A アルミニウム合金複合材料の最適設計に必要な強度予測に関する基礎研究を行った。高温用構造材料として使用温度領域での強度予測は部品設計で重要な課題である。高温変形挙動の構成方程式算出は、これまでに実用的な鋳物用共晶 Al-Si 系を母相としたアルミニウム合金基複合材料データが少なく、かつ強化相が粒子から連続繊維までの考慮は困難であった。高温圧縮試験を行うことにより、高温強度と変形機構を明らかにし、高温変形の構成方程式を導出を試みた。

FeCrSi 繊維の体積分率の増加により、AC8A/FeCrSi_f の流動応力は増加した。流動応力 σ とひずみ速度の間には線形関係は $\epsilon^{-1/5}$ (応力指数 $n=5$) により良い直線近似が得られ、しきい応力を算出することができた。加えて、しきい応力も FeCrSi 繊維の体積分率の増加により向上が見られた。AC8A/FeCrSi_f の高温変形の活性化エネルギーは 15 vol%では 159 kJ/mol, 20 vol%では 143 kJ/mol であり、純アルミニウムの格子拡散の活性化エネルギーである 142 kJ/mol と良い一致を示したことから、AC8A/FeCrSi_f の高温変形は母相の格子拡散律速であると考えられる。FeCrSi 繊維体積分率の増加によるしきい応力の上昇、格子拡散と転位芯拡散といった変形機構の違いおよび亜結晶粒界のピン止めとして働く粒子間隔を考慮することにより、AC8A/FeCrSi_f の高温変形の構成方程式【20vol%: $\epsilon=0.9 \times 10^5 (G_b/kT) (\sigma-\sigma_0/G)^5 D_L$ 】が算出できた。得られた構成方程式を用いることで、FeCrSi_f/AC8A のひずみ速度依存性および温度依存性を有した塑性変形挙動の理論構築が初めて可能となった。加えて、粒子間隔 λ も考慮したマイクロ組織から解析結果と構成方程式を用いた数値解析結果は良く一致しており、信頼性も保証した。得られた共晶合金基複合材料の構成方程式は、アルミニウム合金複合材料の高温強度向上のために、母相中の分散粒子もしくは複合材の粒子間隔を小さくすればよいという設計指針を数式化できており、高温強度の概算が可能となるため、自動車部品用の高温用構造材料として、共晶 Al-Si 合金基複合材料を使用する際に活用できると考えられる。

第6章は、各強化材による2つの複合材に関して、製法・設計の最適化や機械的性質向上の観点から研究成果を実製品製造を通じて有効性を検証した。

①Al₂O₃ 繊維強化 AC8A アルミニウム合金複合材料をライニング層とする小型アルミニウム合金エンジンハウジングへの適用を目指した。ラジコンヘリ向けロータリーエンジンローター(排気量 30 cc)を設計し、第2章で最適化した空隙欠陥を最小限とする低圧浸透条件によって試作し、従来のNiめっきと比べ摩耗量が約 1/15, Crめっきと比べ相手材攻撃性は約 1/8 に改善する効果が得られた。優れたエンジン出力特性を示すなど、低圧での溶湯浸透法による複合強化技術の道筋を得た。

②FeCrSi 繊維強化 AC8A アルミニウム合金複合材料は、高出力・低燃費の自動車用エンジンに対応するため、燃焼部の高温強度・疲労特性を向上させたアルミニウム合金ピストンへの適用を目指した。頭頂部の部分強化位置は幅や厚みを可変させた強度シミュレーションを行い、最大主応力値を抑えた。得られた最大主応力値をもとに、第5章で導出した高温変形構成方程式を活用することで、使用高温域でのひずみ速度レベルを概算可能となった。このひずみ速度下で自動車エンジンの耐久年数(時間)を勘案したピストンクリアランス精度の維持について、設計の許容を考察できた。

第7章は総論として、本研究により得られた知見をまとめ、今後の展開など総括を行った。

本研究では、軽金属複合強化技術の技術要素である「強化材選定」、「複合強化設計」、「複合化手法」の組み合わせで課題解決し、多様な自動車エンジン部品への適用を目指してプロセス改良を行っ

た。

特に本論文はモデル実験，構成方程式などを活用し，製法・設計の最適化や機械的性質向上の観点から最適化を図り，2つのエンジン部品への実用性を実証したものである。本研究成果により軽量部品の効率的な設計・製造が可能となり，地域産業における中小企業の基盤技術強化に繋がることが期待される。

謝 辞

本研究を遂行するにあたり、終始懇切なるご指導、ご鞭撻を賜りました関西大学 化学生命工学部 化学・物質工学科 西本明生教授に深甚なる感謝の意を表します。論文内容をご校閲頂くとともに、多くの有益なご助言、ご教示を賜りました関西大学 星山康洋教授、丸山 徹教授に深く感謝を申し上げます。

研究当初から複合材料実験、解析を円滑に遂行する機会を与えていただいた広島大学 大学院先進理工系科学研究科 佐々木元教授、早稲田大学 理工学術院 創造理工学部 吉田 誠教授に心よりお礼を申し上げます。さらに、大阪公立大学 工業高等専門学校 東 健司校長(大阪府立大学 名誉教授)、大学院物質化学生命系専攻 マテリアル工学分野 瀧川順庸教授、大学院 情報学研究科 学際情報学専攻 上杉徳照准教授には、大阪府立大学大学院博士課程在籍時に理論構築に向けた機会を与えていただきました。終始懇切なるご指導、ご助言を賜りまして謹んで御礼申し上げます。

本研究は、研究当時大学院生でおられた広島大学 原 俊輔氏、早稲田大学 魚住久雄博士、大阪府立大学 青木良晃氏、関西大学 岡田皓稀氏をはじめとした関係研究室諸氏の協力なくしては成し遂げることができませんでした。惜しみないご協力を頂きましたことに感謝の意を表します。

本研究を遂行するに際し、ヒロボー株式会社様、日本発条株式会社様、コルベンシュミット株式会社様をはじめとした民間企業様から試料のご提供、ご指導を含め、多大なる支援をいただき心から感謝の意を表します。

研究の実施にあたって、ご理解とご支援を賜りました、広島県立総合技術研究所 西部工業技術センターの歴代のセンター長ならびに次長各位に深く御礼申し上げます。また実験を遂行するにあたり、さまざまにご支援、ご協力をして頂きました同工業技術センターの歴代部長ならびに関係職員各位に心より厚く御礼申し上げます。

さいごに、材料工学科 学部生時代の卒業研究テーマも「軽金属基複合材料」でした。これまで長く携わることができ、深い縁を感じております。研究者としての基礎を築いていただいた、指導教官の中尾先生、故岡先輩に感謝申し上げます。

本論文の基礎となる発表論文

No.	論文題目	著者名	発表誌名	本論文との対応
1	Modeling of compocasting process and fabrication of AZ91D magnesium alloy matrix composites	G. Sasaki M. Yoshida <u>N. Fuyama</u> T. Fujii	Journal of Materials Processing Technology, Vol. 130-131, pp. 151-155 (2002).	第 2 章
2	コンポキャスト法による Al ₁₈ B ₄ O ₃₃ /AZ91D マグネシウム合金複合材料の作製条件と組織の関係	佐々木元 原 俊輔 吉田 誠, <u>府山伸行</u> 藤井敏男	軽金属, 52 巻 5 号, pp. 216-220 (2002).	第 2 章
3	Effects of infiltration conditions on mechanical properties of Al ₂ O ₃ fiber reinforced aluminum alloy composites by pressure casting	<u>N. Fuyama</u> A. Terayama T. Fujii T. Hagiwara Y. Omura G. Sasaki	Journal of the Japan Society for Heat Treatment, Vol.49 Special Issue 1. pp.353-356 (2009)	第 2 章
4	積層 DLC コーティングによるアルミニウム合金基複合材料の表面特性の改善	<u>府山伸行</u> 岡田皓稀 長岡 孝 西本明生	軽金属, 第 72 巻 5 号, pp265-270(2022).	第 3 章
5	Improvement of surface properties of aluminum alloy-based composites by multi-layer DLC coating	<u>N. Fuyama</u> K. Okada T. Nagaoka A. Nishimoto	Materials Transactions 投稿中	第 3 章
6	Fe-Cr-Si 繊維強化マグネシウム合金基複合材料の作製と機械的特性	魚住久雄 小林健太 白石透 勝矢晃弘 佐々木元 増田千利 <u>府山伸行</u> 藤井敏男 吉田誠	鑄造工学, 80 巻 5 号, pp. 265-271 (2008).	第 4 章
7	Effect of interfacial reaction on high temperature properties of Fe-Cr-Si fiber reinforced AC8A aluminum composites	<u>N. Fuyama</u> A. Terayama T. Fujii T. Shiraishi Y. Miyake G. Sasaki	Materials Science Forum, Vol. 654-656, pp. 2696-2699 (2010).	第 4 章

8	FeCrSi 繊維強化 Al 合金基複合材料の高温変形構成式の構築	府山伸行 青木良晃 上杉徳照 瀧川順庸 東 健司	材料, 67 卷 11 号, pp.1000-1005 (2018).	第 5 章
9	Properties of small rotary engine housing fabricated by aluminum alloy matrix composites	<u>N. Fuyama</u> A. Terayama T. Fujii H. Tani S. Danjo G. Sasaki	Materials Science Forum, Vol. 638-642, pp. 933-938 (2010).	第 6 章