

KAREN  
04452280

図・本誌

作

# 応力負荷状態にある金属基複合材料の ミクロ組織変化の解析と制御

(課題番号04452280)

平成5年度科学研究費補助金(一般研究B)  
研究成果報告書

名古屋大学図書	
和B	83937

平成6年3月

研究代表者 金武直幸  
(名古屋大学工学部助教授)

# は し が き

本報告書は、平成4・5年度の2年間に文部省科学研究費補助金（一般研究B）を受けて行われた研究「応力負荷状態にある金属基複合材料のマイクロ組織変化の解析と制御」の経過と成果をまとめたものである。

分散強化型金属基複合材料の二次加工プロセスやその構造部材としての使用を考える特、応力負荷状態でのその材料の挙動を予測し、その加工プロセスや使用環境に適した特性の材料を設計できることが望まれる。そのために複合材料の構成要素である強化粒子、マトリックス金属そしてその界面の、応力負荷状態での挙動を解析し、さらにその挙動に対する製造プロセスの影響を調べて、複合材料の製造プロセスにおいてそれら構成要素の特性を制御するための基礎的情報を得ることを目的として、本研究が立案され実施された。

まず平成4年度には、走査型電子顕微鏡（SEM）内での引張り試験によって、応力負荷に伴う複合材料のマイクロ組織の変化をその場観察する試験法を検討した。そして平成5年度には粉末押出し法と溶湯攪拌法とによってアルミニウム基複合材料を作製し、各材料についてこのSEM内引張り試験を行って、それらのマイクロ組織の変化を解析した。本報告書では緒言に続く2つの章でそれらの成果をまとめている。

## 研究組織

研究代表者：金 武 直 幸（名古屋大学・工学部・助教授）

研究分担者：小 橋 真（名古屋大学・工学部・助手）

## 研究経費

平成4年度	5,500 千円
平成5年度	1,600 千円
計	7,100 千円

## 研究発表

### (1) 学会誌等

- 1) 金武直幸・野村正裕・長 隆郎  
粒子強化型金属基複合材料の微視変形過程のSEM内その場観察  
日本金属学会誌、投稿中.
- 2) 金武直幸・野村正裕・長 隆郎  
球状粒子分散アルミニウム合金の引張り負荷による微視的変形挙動  
日本金属学会誌、投稿中.
- 3) 金武直幸・野村正裕・長 隆郎  
製造法の異なるSiC/アルミニウム複合材料の微視的変形・破壊挙動  
日本金属学会誌、投稿中.

### (2) 口頭発表

- 1) 齊木 一・金武直幸・長 隆郎  
塑性変形を受けたAl203/6061合金複合材料の機械的性質と微視組織  
日本金属学会秋期大会、1992年10月.
- 2) N. Kanetake, T. Choh  
Microscopic Fracture in Particle Dispersed Aluminum Matrix Composite  
under Plastic Straining  
9th Int. Conf. on Composite Materials, 1993-7.

# 目 次

I. 緒 言	1
II. SEM内引張り試験	3
1. 実験方法	3
1-1 供試複合材料	3
1-2 試験方法	4
1-3 試験片形状	5
2. 結果および考察	5
2-1 試験片の応力・ひずみ分布	5
2-2 微視亀裂の分布	9
3. まとめ	16
III. アルミニウム基複合材料の微視的変形挙動	16
1. 実験方法	16
1-1 複合材料の作製	16
1-2 SEM内引張り試験	20
2. 結果および考察	20
2-1 Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 粒子分散アルミニウム基複合材料	20
2-1-1 微視組織の変化	20
2-1-2 微視亀裂の解析	25
2-2 SiC粒子分散アルミニウム基複合材料	28
2-2-1 微視組織の変化	28
2-2-2 微視亀裂の解析	32
3. まとめ	36
IV. 結 言	37
参 考 文 献	38

## I. 緒 言

不連続繊維やセラミック粒子を分散強化した金属基複合材料は、高比強度の新しい構造用材料としてその実用化が期待されている。中でも自動車産業や機械産業の分野において、構造部品の軽量化が可能なアルミニウム合金をマトリックスとする複合材料は、強度と耐磨耗性を兼ね備えた新しい材料としての実用化に可能性を秘めている。しかし今まで各方面で様々な試作部品が検討されてはいるものの、積極的な実用化はなされていないのが現実である。その大きな理由の一つとして、それをニア・ネット・シェイプの最終製品に加工する技術の遅れが挙げられる。このような量産部品に利用するためには、安価な二次加工技術が必須の条件とされる。

切削加工はそもそも量産部品には適さないと同時に、複合材料の場合には硬い強化材料の存在でその切削性自体が大きな課題として挙げられる。不連続繊維強化型金属基複合材料では、強化繊維のプリフォームを使った加圧鋳造法が最も一般的で、実用化の面でも他の加工技術に比べてかなり進んでいる。しかし幾つかのノウ・ハウを伴うプリフォームの成形という、この材料特有の加工プロセスを必要とし、しかも複雑形状品への適用はかなり困難である。一方粒子強化型金属基複合材料では、溶湯中あるいは半熔融中で攪拌混合後に鋳造する方法が安価な方法として考えられるが、強化粒子の増加に伴う粘性の増大による鋳造性の悪化など、複雑形状品への利用にはやはり幾つかの問題を残している。

その中でもう一つの可能性ある選択として、二次塑性加工を利用した量産部品の成形が挙げられる。すなわち比較的安価な方法で作成した棒状あるいは板状の複合材料「素形材」を、鍛造加工など塑性加工して複雑形状の最終製品にするプロセスである。分散強化型金属基複合材料は、高温ではもちろん、室温でもある程度の塑性加工が可能であり、しかもマトリックス金属の結晶粒微細化や空孔の除去など組織の改善、加工硬化や集合組織強化などによる特性の向上、あるいは不連続繊維や強化粒子の特定方向への配向による強化など、加

工に伴う材質の改善が期待できる。また生産性の良さによるプロセスコストの低減は、既に多くの金属材料で実証されており、複合材料の積極的な実用化への大きな道になり得ると考えられる。研究代表者らはこのような観点から、分散強化型アルミニウム基複合材料の二次塑性加工性を検討するために、その鍛造性<sup>(1), (2)</sup>や変形抵抗の見積もり<sup>(3)-(5)</sup>に関連した研究を進めている。

しかし言うまでもなく、複合材料は異種のマトリックス材料と強化材料、そして両者の界面から構成されており、従来の金属材料の塑性加工には無い、この材料特有の問題が幾つか考えられる。すなわち塑性加工中の多様な応力状態での負荷により、各構成要素が複雑に挙動して、その結果加工後の材料特性が劣化することも十分に予想され、実際にその様な事実が幾つか報告されている<sup>(2), (6)-(8)</sup>。従って加工によるその様な材質の劣化をできるだけ押さえて、材質改善の効果が最大限発揮できるように、加工条件の最適化を行うことが必要となる。そのためには種々の応力負荷状態での各構成要素の挙動や、それに伴う材質の変化を十分に把握しなければならない。

また一般に複合材料の大きな特徴は、望まれる特性に合わせて構成要素の組み合わせを任意に設計できることであるが、分散強化型複合材料ではその様な予測・設計は未だ不可能である。特に複合材料が構造用強度部材として使用される時には、外力負荷の下でのそれら構成要素の挙動を十分に考慮した材料特性の予測評価が要求される。ところが分散強化型複合材料の場合には連続繊維強化型に比べて、それらの挙動が大変複雑であるため未だ十分に把握されておらず、それを考慮した材料設計ができないのが現状である。このこともやはり、この材料の積極的な実用化を遅らせている大きな原因の一つであり、どうしても解決されるべき問題である。

そこで本研究は分散強化型金属基複合材料の構成要素である、強化粒子、マトリックス金属そしてその界面が、応力負荷状態の下でどのような挙動を示すかを直接観察して詳細に解析すること、さらにその挙動に対する製造プロセスの影響を調べて、複合材料の製造プロセスにおいてそれら構成要素の特性を制御するための基礎的情報を得ることを目的とした。そのためにまず、荷重負

荷装置を組み込んだ走査型電子顕微鏡（SEM）を用いて、SEM内での引張り試験によって負荷応力の増加に伴う複合材料のマイクロ組織の変化をその場観察する試験法について検討した。その後Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粒子およびSiC粒子を分散させたアルミニウム合金の複合材料を、粉末押し出し法と溶湯攪拌法とによって作製し、各材料についてSEM内引張り試験を行って、それらのマイクロ組織の変化をその場で直接観察してその挙動を解析した。

## II. SEM内引張り試験

### 1. 実験方法

#### 1-1 供試複合材料

使用した複合材料は市販のAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粒子分散強化型アルミニウム基複合材料（DURALCAN）である。この材料は溶湯攪拌後に鑄造して製造されたもので、マトリックスのアルミニウム合金成分はTable 1のようであり、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粒子の体積率は15%である。鑄造のままで受け入れられたこの材料の粒子分散状態がそれ程良くないことと、使用する試験片が板状である必要性から、10mm厚さに切り出した材料を、500°Cで熱間圧延して1mmの薄板に加工した。Fig. 1は圧延後の試料内の粒子分散状態を示す組織写真である。粒子の分散状態は必ずしも均一ではなく、粒子のクラスターも観察される。ここで行う実験は試験片形状の検討など試験方法の確立が大きな目的であり、どちらかと言うと組織的不均一の存在による、微視亀裂などの発生し易い試料の方がその検討に適している

Table 1 Chemical composition of matrix aluminum alloy (wt%).

Mg	Si	Fe	Cu	Ti	Cr	Zn	Mn	V	Be	Al
0.92	0.76	0.28	0.22	0.10	0.07	0.06	0.04	0.01	0.003	bal.

とも考えられる。

## 1-2 試験方法

日立製作所製S-2300型走査型電子顕微鏡（SEM）に、インストロン社製のサーボパルサー式負荷装置を組み込んだその場観察用試験機を利用して、SEM内で試料に静的引張り負荷を与えて、組織の変化を連続的に観察した。負荷装置は初期設定された負荷方法（経路）に従って、様々な引張りあるいは圧縮負荷を与えることが可能である。本実験では組織の連続的なその場観察をできるだけ容易にするために、0.1mm/minの遅い速度で単純な引張り比例負荷を与えた。連続観察中に組織の写真撮影を行うため、適当なところで一時的に負荷を停止した。また同時に試験中の荷重と変位をパソコンを利用したデータ記録装置で測定した。

圧延後の薄板複合材料を次項で述べるような試験片に切削加工した後、試験片の片面を機械研磨し、さらにマトリックスのアルミニウム合金をわずかに除去するために電解研磨をして、SEM内観察用の試験片とした。

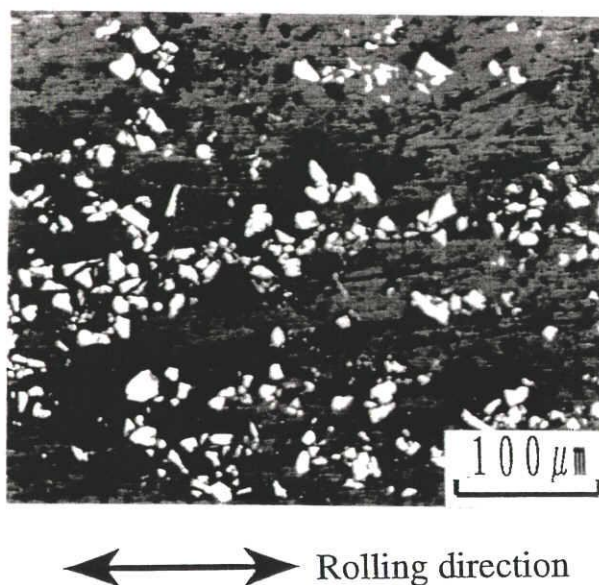


Fig. 1 Microstructure of rolled composite.



### 1-3 試験片形状

S E M内で負荷中の組織の変化を連続的に観察するためには、その試験片の形が大変重要である。観察を容易にするためにはできるだけ特定の場所で組織変化の観察ができることが望ましい。すなわち微視亀裂の発生などの組織変化が生ずる場所を事前に特定しておいて、その付近を連続的に観察することである。しかしこの場合には応力集中など、試験片の形状に起因する付加的な因子が組織変化に影響を及ぼす可能性が大きくなり、材料本来の組織的欠陥による微視亀裂の発生などを捉えることが難しくなる。本研究の目的は静的負荷による複合材料の構成要素の挙動を調べることであり、そのためにはできるだけ広い領域で一様な応力状態が実現されることが望ましい。それによって微視亀裂の発生などの組織的劣化と、その際の負荷応力の値とを関係付けて考察することが可能となる。

このような考え方の下にFig. 2のような2種類の試験片形状について、実験及び解析計算の両面から各試験片の特徴を検討した。試験片(a)は通常の薄板引張り試験片の平行部の中心に小さい穴をつけた形状であり、微小亀裂の発生の開始をその付近に特定しようとするものである。一方(b)は同じ平行部の中央をさらに細くした形状であり、できるだけ応力状態を一様にしたままで、微小亀裂の発生領域を狭くしようとするものである。まず2つの試験片形状について、引張り負荷の下で試験片中央付近の応力やひずみの分布がどのようになるかを予測するために、弾塑性有限要素法による解析計算を行った。この計算では材料を均質な連続体と仮定して、予め供試複合材料の引張り試験から求めた特性値や応力-ひずみ曲線を入力データとして、マクロ的な応力およびひずみの分布を計算した。一方実験では両者の試験片について、微小亀裂の発生場所やその時点、あるいはその分布状態や進展の状況などを比較検討した。

## 2. 結果および考察

### 2-1 試験片の応力・ひずみ分布

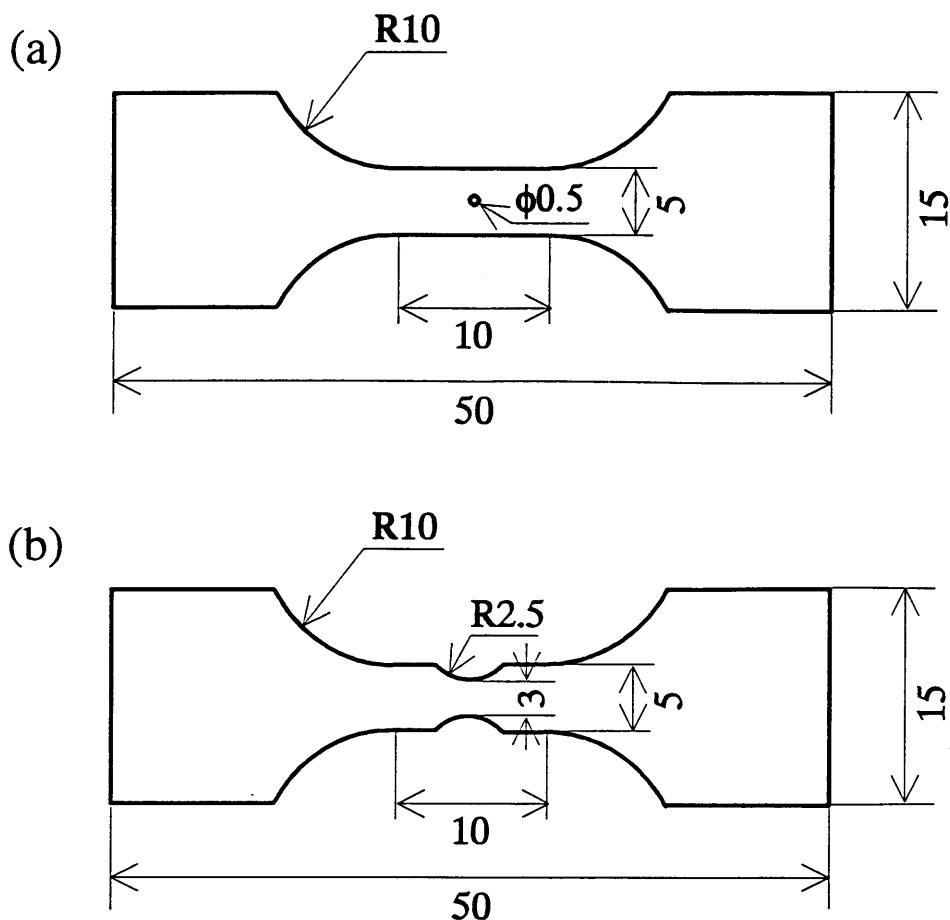
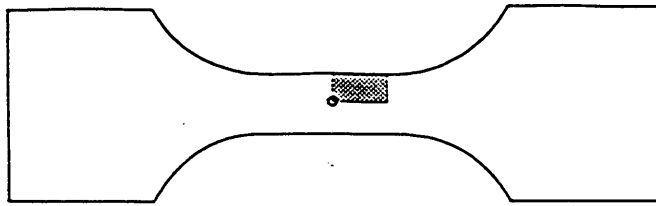


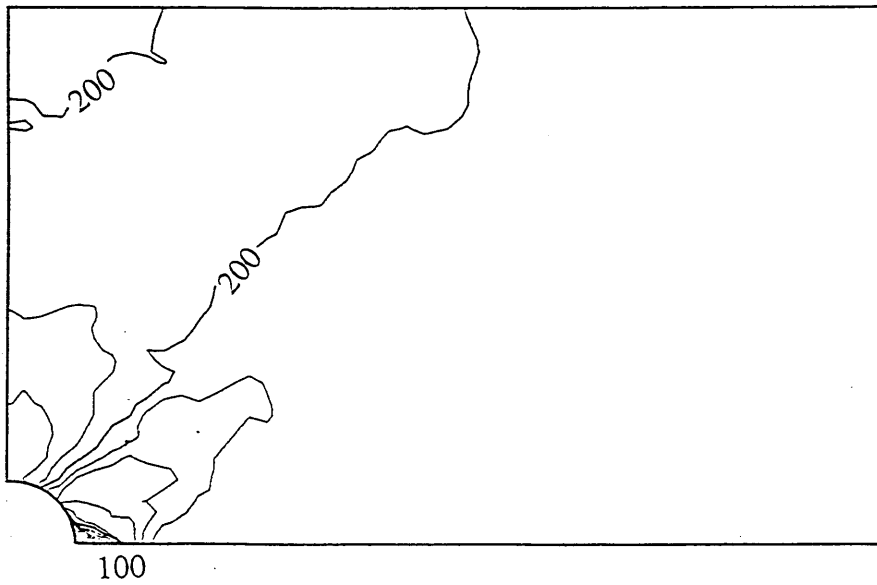
Fig. 2 Two types of specimens for in situ tensile test in SEM.

2つの試験片形状について、引張り応力を負荷した時のマクロ的な応力と歪みの分布の計算結果について説明する。外的引張り負荷に対して材料内部での微小亀裂の発生など組織的劣化に大きく影響を及ぼすのは、各部の引張り応力とひずみ量であると考えられるので、Figs. 3, 4に両試験片での引張り方向応力と相当塑性ひずみの分布を示してある。

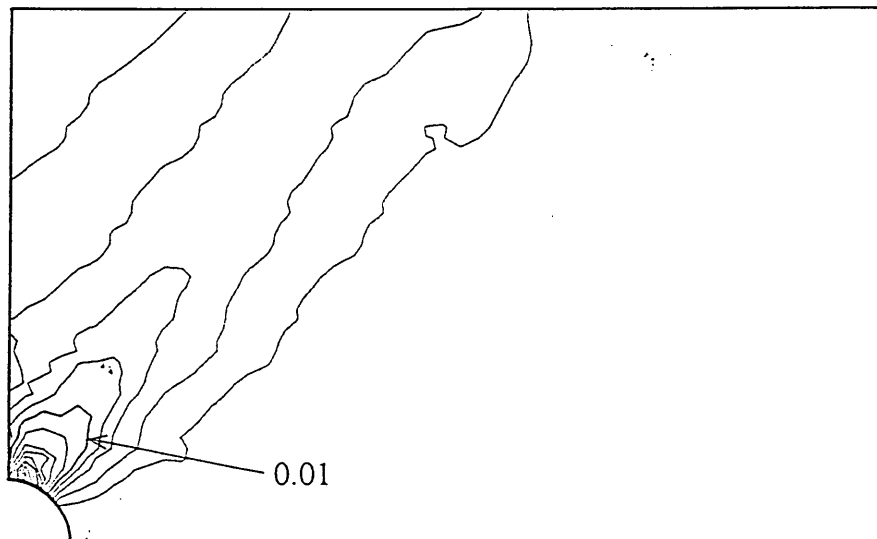
まず平行部中央に小さい穴をつけた試験片(a)では、当然予測されることではあるが、引張り方向に垂直な幅断面内の穴縁で応力・ひずみ共に最大となり、その付近の応力勾配はそれ程大きく変化はしないが、ひずみ勾配がかなり大きく、塑性変形が穴縁に集中する。さらに応力の高い領域すなわち塑性ひずみの大きい領域は、穴縁から引張り方向に対して45°に広がる帯状の領域であ



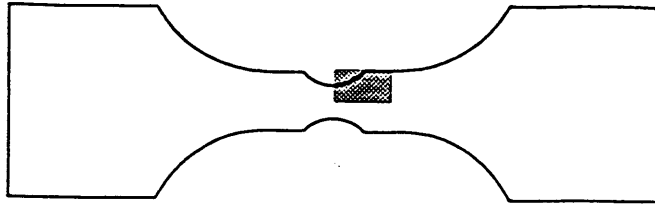
(a) Stress in tensile direction (Increment of contour: 20MPa)



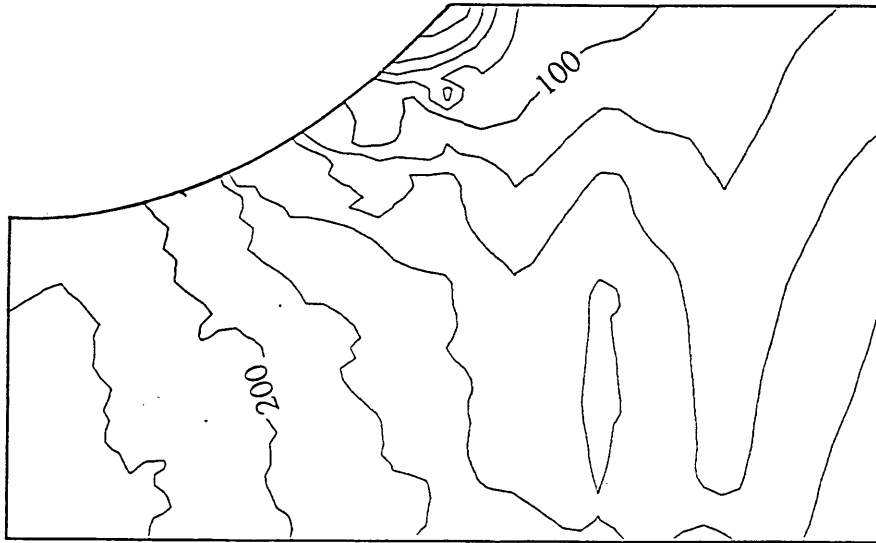
(a) Equivalent strain (Increment of contour: 0.002)



Fig, 3 Calculated stress and strain distributions in tensile specimen with small center hole.



(a) Stress in tensile direction (Increment of contour: 20MPa)



(a) Equivalent strain (Increment of contour: 0.002)

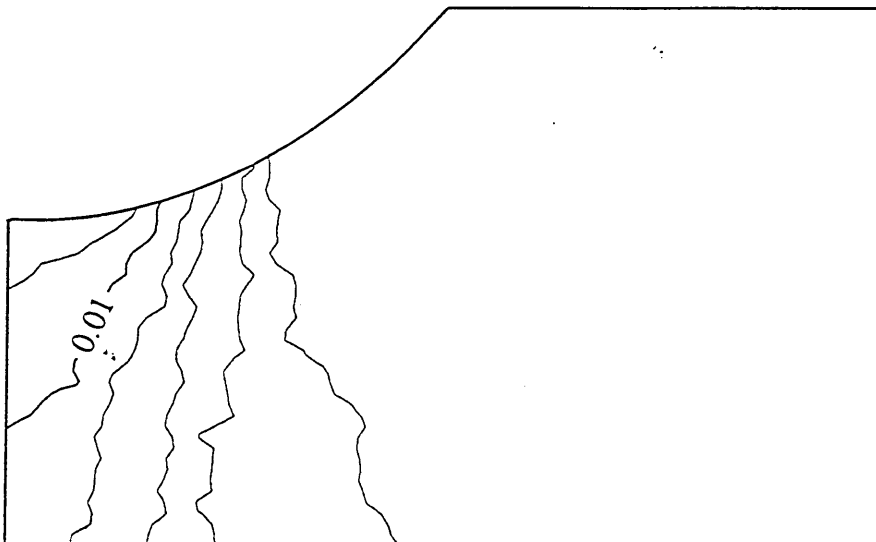


Fig. 4 Calculated stress and strain distributions in tensile specimen with narrow center.

る。従って最小断面幅部の応力分布はそれ程大きな不均一はないものの、試験片面内での分布はかなり不均一となる。このことから微小亀裂の発生は穴縁で生ずることが十分予測でき、それを判別するためにはその場所を固定して観察することで可能になる。しかしひずみ勾配がかなり大きく、変形量の大きい部分が特定の狭い場所に限定されることから、この応力状態の不均一による組織の劣化と、材料そのものの組織的不均質による劣化とを区別することが難しくなる。

一方平行部の中央を比較的大きい丸み半径で細くした試験片(b)では、その丸み部近くでの応力の集中はなく、ひずみ勾配も緩やかである。そして丸み部に挟まれた幅減少部での応力・ひずみの等高線は、いずれもほぼ幅方向に引かれていることから、その付近での引張り応力と相当塑性ひずみの幅方向分布は比較的一様であると言える。これらの分布状態はもちろん丸み部の半径に依存するが、応力・ひずみの分布を幅方向にできるだけ均一で、長手方向にはある程度の応力勾配を持たせるためには、この程度が適当であると判断される。このように応力分布が幅方向で比較的均一になることから、微小亀裂の発生など組織の劣化を特定して観察することは難しいものの、応力やひずみの局所化など試験片形状に起因することは少なく、材料そのものの不均質など本質的な要因によるものだけを観察することが可能となる。また微小亀裂発生時の外力を最小断面積で除した平均応力を、組織的な劣化と関連付けて材料の特性を評価することも可能となる。

## 2-2 微視亀裂の分布

Figs. 5, 6は2つの試験片について引張り負荷を与えたときの組織的劣化の様子である。図中の公称応力-公称ひずみ曲線は、同じ供試材料について通常の引張り試験を別に行って測定したものである。前述のようにSEM内で負荷中の荷重と変位を同時に測定しているが、計算結果からも分かるように応力とひずみの分布は一様ではないため、最小幅断面部の平均応力は算出できるものの、そのひずみを算出することは不可能である。そこでSEM内負荷における最大公称応力と通常の引張り試験における最大公称応力（引張り強さ）と

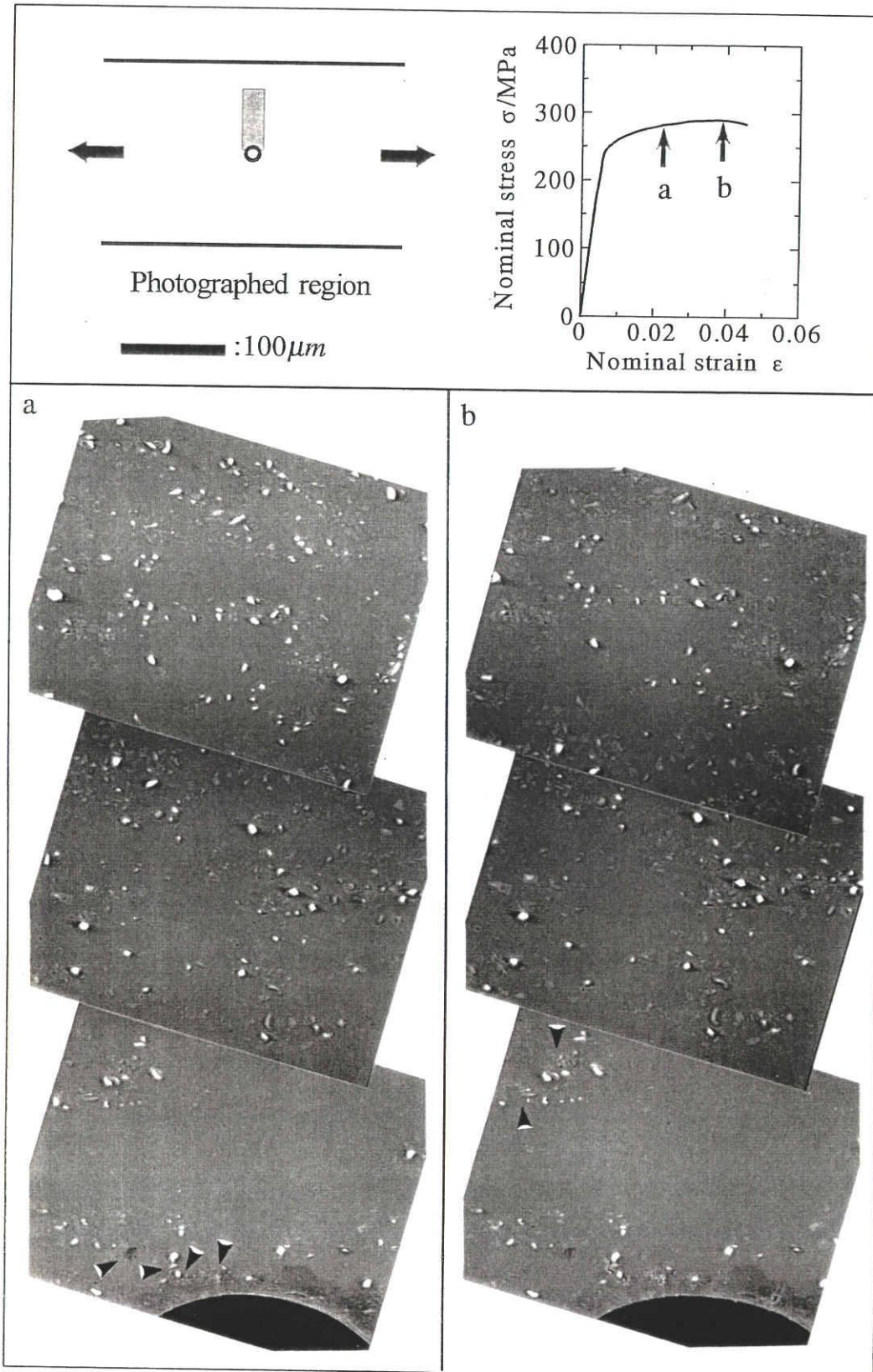


Fig. 5 Micrographs in specimen with small hole during tensile loading.

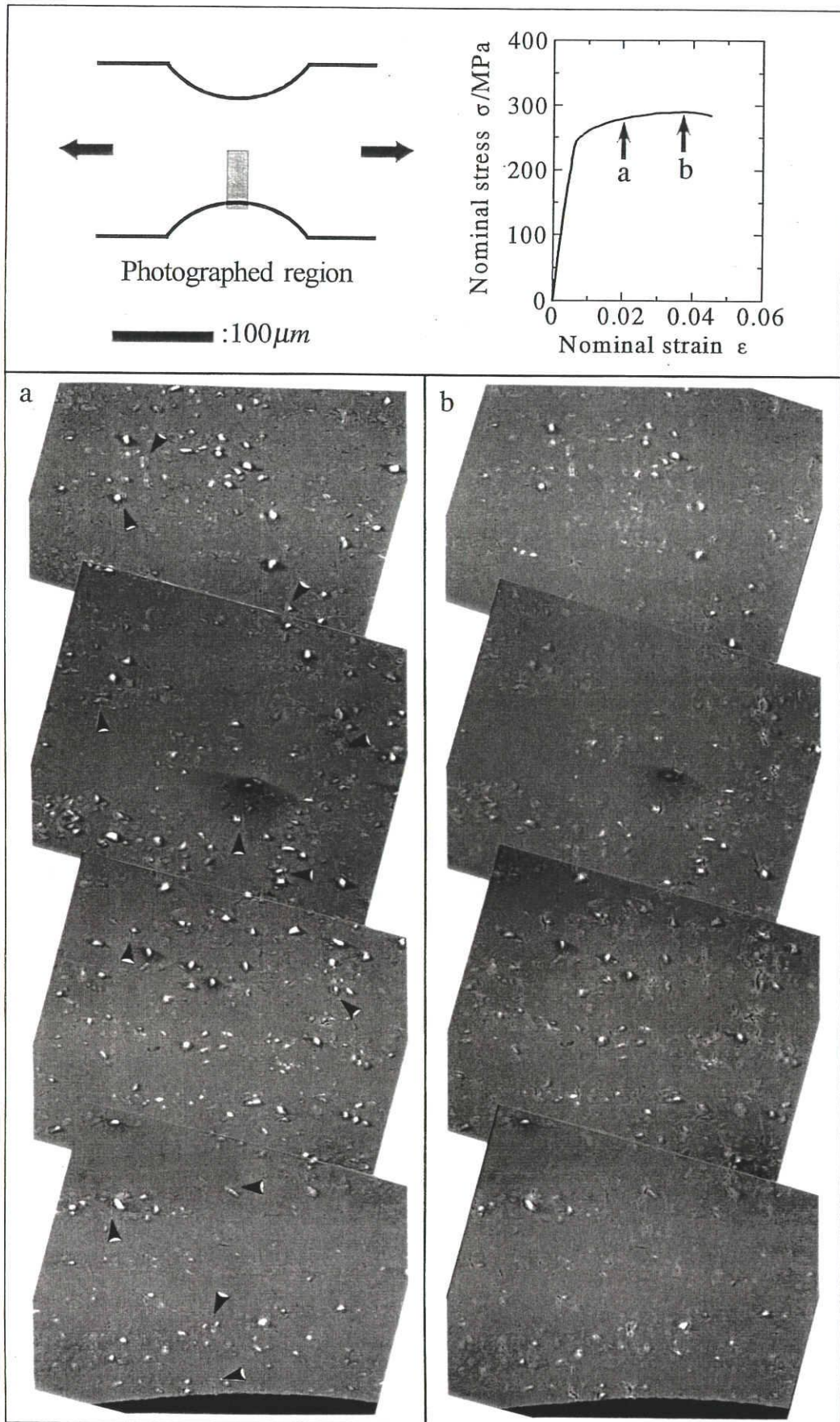


Fig. 6 Micrographs in specimen with narrow center during tensile loading.

を比較した結果、どちらの試験片でも大きな差が無いことを確認したので、SEM内観察中の平均負荷応力を便宜的に通常の引張り試験における公称応力—公称ひずみ曲線上に示すこととした。図中に示してあるようにそれぞれの試験片で最少断面積付近を連続的に観察した結果、その付近に初めて微小亀裂が確認できた時点(a)と、さらに変形が進み最高荷重に達した時点(b)での組織写真が図に示されている。

中央に小さい穴をつけた試験片では、予想されたように穴縁近傍で最初の亀裂が確認された。負荷荷重が増加しても亀裂の数はそれほど大きく増えることはなく、最高荷重点でも先に確認された亀裂の拡大や穴縁近傍や少し離れたところに新たな亀裂が確認される程度である。このように負荷がかなり進んでもその発生は穴縁近傍に限られるため、確かに亀裂発生を観察は容易であるが、粒子の分散状態が均一ではない材料や、粒子のクラスターや界面の不完全な結合など部分的に組織的欠陥を持つ材料では、その組織的欠陥の場所と穴の位置との兼ね合いが影響して、いつも同じ観察結果が得られないことも考えられる。

一方中央を細くした試験片では、幅方向の広い範囲でほぼ同時に幾つかの亀裂が初めて確認された。そして荷重が増すにつれその亀裂の拡大とともに数が増えていき、最高荷重点では分散しているほとんどの粒子の場所に亀裂が見られるようになる。幅方向のほぼ全域で亀裂が発生するため、まさに最初の発生を捉えることは不可能であるが、わずかな負荷の変化のうちに多くの亀裂が発生するためその時間的ずれはそれほど問題ではない。そして組織的欠陥が部分的に存在する場合でも、それが幅方向のどこかにあれば微視亀裂の発生を捉えることは可能であり、外的負荷と組織的劣化の関連を議論するためには適している。

いずれの試験片においても初めて微小亀裂の発生を確認したのは最高荷重よりかなり前であり、降伏応力と最高応力のほぼ中間時点である。そしてその後の負荷荷重の増加に対して、その亀裂は多少拡大するもののマトリックス中へ大きく進展することはない、最高荷重点を過ぎるまで亀裂の数が増えるもの



の、それらが結合する様子はほとんど見られない。中央に穴をつけた試験片では、SEM内で観察していた部分 (Fig. 5に示された部分) ではそれ程亀裂の数の増加は見られないが、計算予測された応力・ひずみの分布や、最終的な破断位置が引張り方向に対して傾いていることから、観察位置から外れた部分での亀裂の発生が予想される。

そこで破断後の試験片について、もう少し広範囲での微小亀裂の発生状態を観察した。その結果がFigs. 7, 8である。これらの観察結果はFigs. 3, 4の計算結果とよく一致する結果となっている。中央に穴をつけた試験片では負荷中に観察されたように、穴縁近傍に幾つかの亀裂が見られるものの、その前方の試験片側面に近づくにつれて亀裂はあまり見られない。しかし穴縁から斜め前方に広がる領域では、穴縁から離れた側面に近い場所でも亀裂が見られる。このことはFig. 3の応力・ひずみ分布の計算結果から予想されたことであり、SEM内中で観察していた領域から外れた領域で亀裂が多数発生していたことが分かる。すなわちこの試験片でも穴縁で初期に微小亀裂が発生した後、それに引続いてあるいはほぼ同時に、そこから斜めに広がる領域で亀裂が発生していたことが予想される。しかし負荷中にその様な斜めに広がる領域を予測して連続観察することは容易なことではなく、やはりこの形状の試験片はあまり適切ではないと考えられる。

一方中央を細くした試験片では、負荷中に観察された結果と同様に、最小断面幅部に亀裂が多く見られるのに対して、そこから離れた部分では亀裂の発生があまり見られない。したがってFig. 6に示した領域を連続観察すれば、ある程度均一な静的応力下での微視亀裂の発生など組織的劣化をその場観察することができるものと判断される。

最後に本研究で使用した複合材料で見られた代表的な微視亀裂をFig. 9に示す。ここで使用した複合材料は前述のように溶湯攪拌法で作成したアルミナ粒子分散アルミニウム基複合材料の鑄造材を高温圧延したものであるが、静的負荷後に多く見られる亀裂は、粒子とマトリックスの界面の剥離と粒子クラスター付近での剥離が連結した比較的大きな亀裂である。粒子そのものの割れも

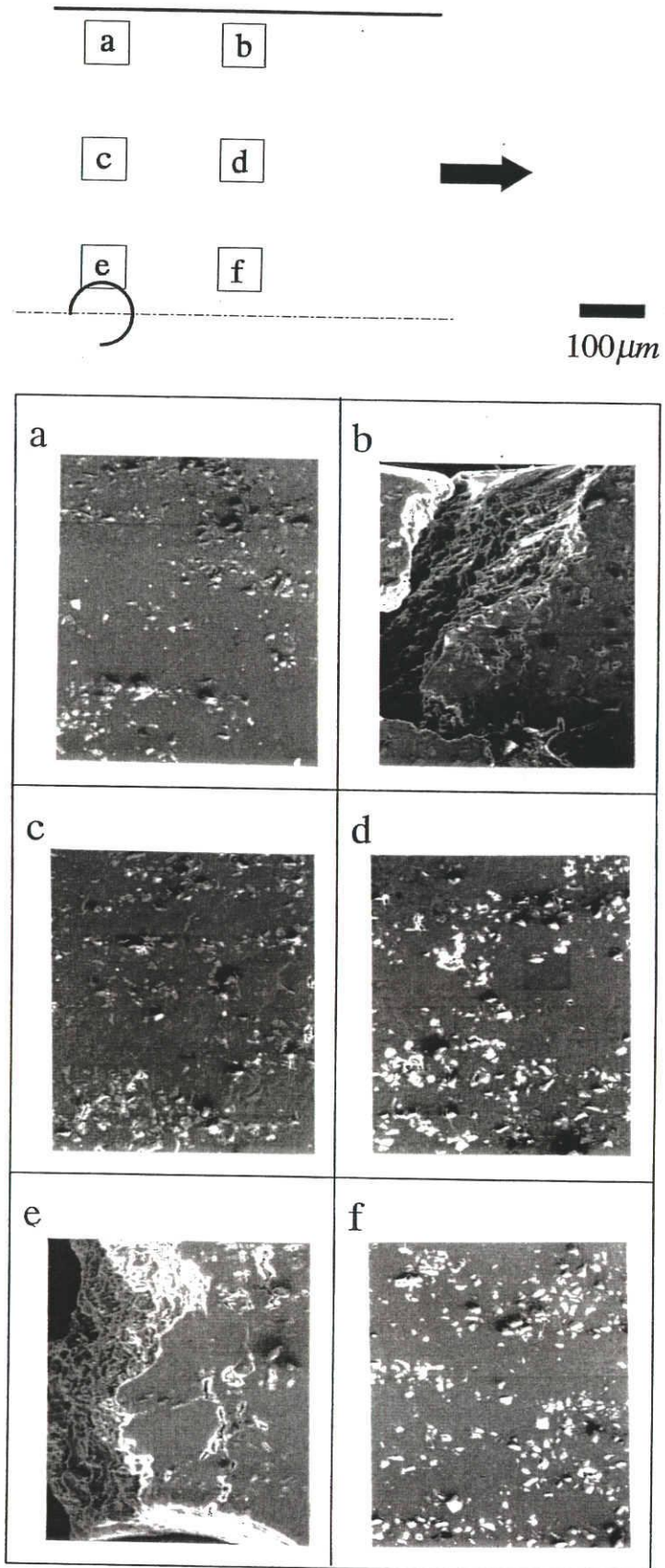


Fig. 7 Distribution of microcrackes in specimen with small hole.

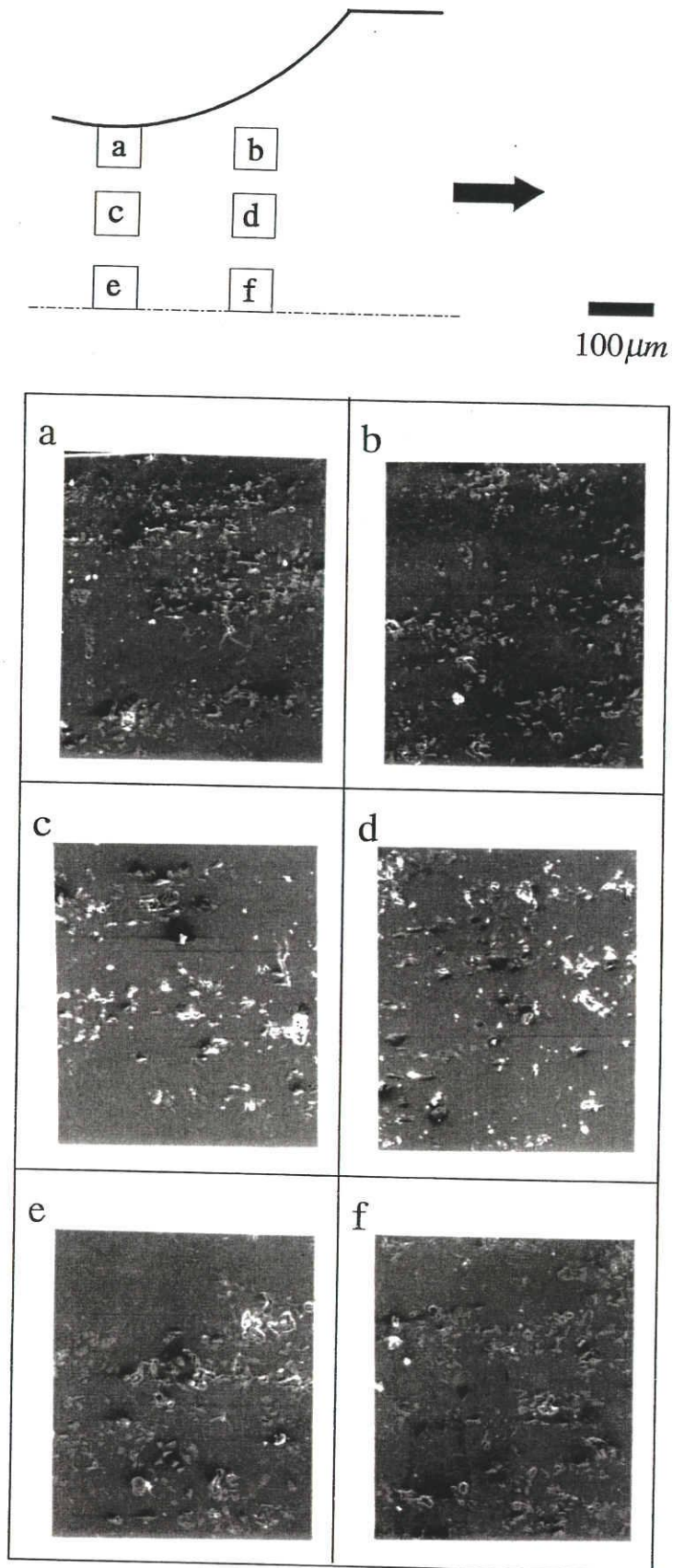


Fig. 8 Distribution of microcracks in specimen with narrow center.

幾つか見られるが、その数はそれほど多くはない。これらの微視亀裂は高温圧延後の静的負荷前の組織観察ではまったく見られていないことから、何れも静的引張り負荷により生じた組織的劣化である。

複合材料の機械的特性を評価するとき、通常引張り試験による強度を測定してその優劣を比較しているのが現状であるが、外的負荷の下では最高荷重よりはるかに低い負荷荷重によって微視組織的な劣化が起こっている。複合材料を複雑な形状の最終製品に二次加工する際に外的負荷は避けられないが、その際に微視組織の劣化による強度特性の劣化が予測される。すなわち素材としての複合材料の特性がそのまま生かされた製品に加工できないことであり大きな問題となる。一方内部での微視組織の劣化をできるだけ遅らせることは、すなわちその材料の強度特性を向上させることである。従って材料の製造プロセス条件と、外的負荷による微視組織の劣化との関連を詳細に把握することが、より高強度の複合材料を開発するための適切な情報を与え得ることとなる。

### 3. まとめ

通常引張り試験片の平行部の一部を、その幅の半分程度の丸み半径で細くした試験片を用いることにより、その最小幅断面においてほぼ均一な応力状態の下での組織の変化を観察できることが分かった。その場合には試験片の形状に起因する微視亀裂の発生は少なく、材料そのものの組織的欠陥による組織の劣化を観察することができる。またその時の荷重を最小断面積で除した平均応力は、組織的劣化が生ずる時の巨視的応力として評価することができる。

## Ⅲ. アルミニウム基複合材料の微視的変形挙動

### 1. 実験方法

#### 1-1 複合材料の作製

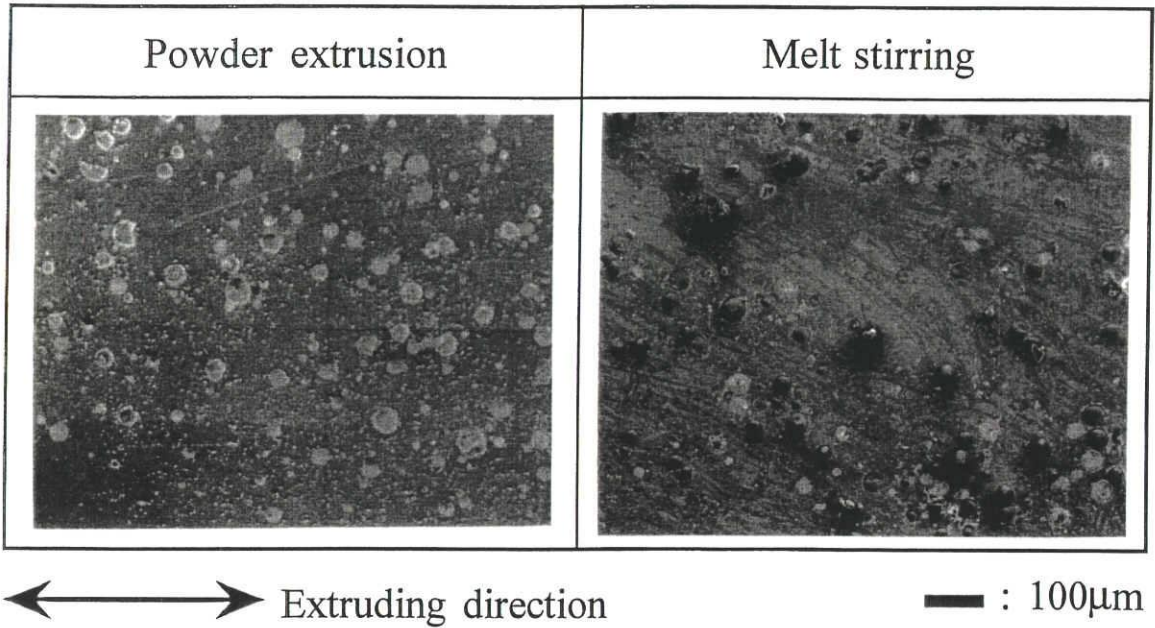
Table 2 Chemical composition of matrix aluminum alloys (wt%).

	Mg	Si	Fe	Cu	Cr	Zn	Mn	Ti	Al
Powder alloy	1.11	0.60	0.42	0.34	0.19	0.01	0.01	-	bal.
Ingot alloy	0.86	0.68	0.20	0.32	0.04	0.02	0.05	0.02	bal.

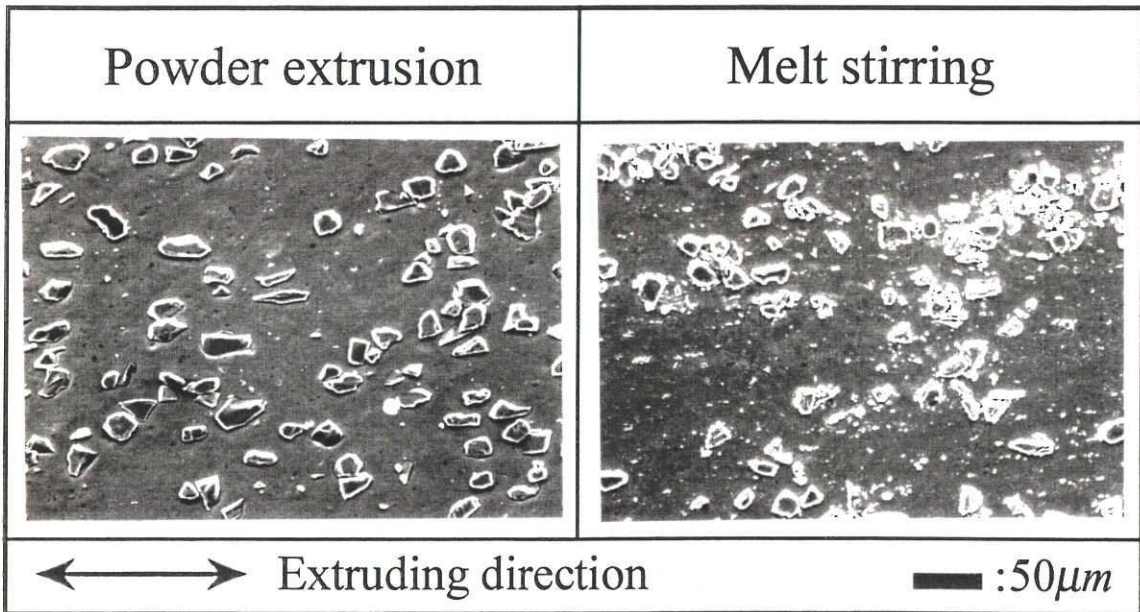
本実験には6061アルミニウム合金中にAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>およびSiC粒子を分散した複合材料を、粉末押出し法と溶湯攪拌法とによって作製して使用した。マトリックス合金として、前者には6061合金の空気アトマイズ粉末を、また後者には6061合金押出し材をそれぞれ使用し、両者の各合金成分は Table 2 に示すとおりである。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粒子は平均粒径25 $\mu$ mの球状粒子で、体積率は10%である。複合材料の強化粒子としては多少大きめであり、強度特性の向上にはそれ程期待できる材料ではない。しかし応力負荷の下での微視的挙動を調べるシミュレーション実験的な要素も考え、粒子のクラスターなどの無いできるだけ分散状態の均一な材料を得ることや、粒子の形状に起因する内部応力の乱れの影響を少なくすることを考慮して、比較的大きめの球状粒子を選択した。またSiC粒子は平均粒径14 $\mu$ mで、その体積率はやはり10%である。

粉末押出し法<sup>(1), (5)</sup>では、必要量に秤量した6061合金粉末と強化粒子粉末とをV型混合器を用いて十分に混合し、その混合粉末を773Kで高温押出しして直接固化成形した。押出しは平面ダイスを用いた後方押出しで、押出し比31で、幅10mm、厚さ2mmの板状の複合材料試料を作製した。

一方溶湯攪拌法<sup>(9), (10)</sup>では、必要量の6061合金をMgO坩堝に入れ、高周波誘導炉を用いてAr雰囲気中で溶解し、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粒子の場合は1373Kに、SiC粒子の場合は1023Kにそれぞれ保持する。そこへアルミニウム箔に包んだ所定量の各粒子を添加した後、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粒子の場合は2880秒間、SiC粒子の場合は450秒間アルミナ棒で手動攪拌する。溶湯上や溶湯/坩堝間に粒子粉末が認められないのを確認した後攪拌を終了し、そのまま金型に鑄造した。凝固した試料を、先の粉末押出し法と同じ条件で押出しを行い、やはり同じ形状の板状試料を作製した。



(a) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/6061 Composite



(a) SiC/6061 Composite

Fig. 9 Micrographs of composites fabricated with powder extruding and melt stirring methods. (Longitudinal section of extruded composites)

Fig. 9は両者の方法で作製した各複合材料の、押し出し方向に平行な断面の組織写真である。(a)の $Al_2O_3$ 粒子分散複合材料の方は粒子が比較的大きいためどちらの方法でも、粒子の大きなクラスターや押し出し方向への配向もなく、一つ一つの粒子が比較的良好に分散している様子が分かる。一方(b)のSiC粒子分散複合材料では、粉末押し出し法による場合2・3の粒子が密接している所もあるものの、マトリックス中に各SiC粒子が比較的一様に分散している。またSiC粒子は不規則形状であるが、特に細長い粒子ではその長軸方向が押し出し方向を向いていることがわかる。溶湯攪拌法によるものでは、SiC粒子がクラスターとなって存在していることが多く、粉末押し出し法ほど分散状態が良好ではない。

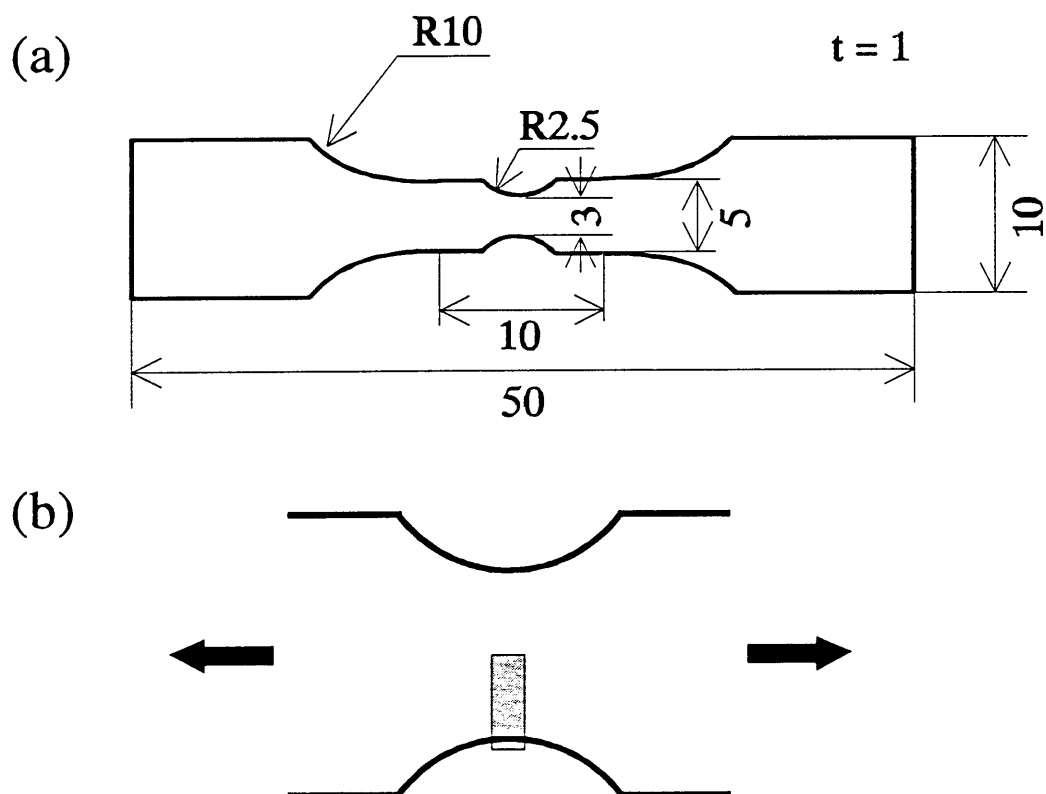


Fig.10 (a) Specimen for in situ tensile test in SEM and (b) observed and photographed region.

## 1-2 SEM内引張り試験

作製した各複合材料について前章で検討し確立した方法によって、走査型電子顕微鏡 (SEM) 内で静的引張り試験を行い、応力の増加に伴う組織の変化を連続的に観察した。前章で検討した結果を基に、作製した板状の複合材料をFig. 10(a)のような試験片に切削加工した後、試験片の両面を機械研磨し、さらに研磨傷の除去とSEM観察を容易にするため、片面のマトリックス合金をわずかに除去する電解研磨をして観察用の試験片とした。そしてSEM内で引張り試験中に図(b)に示す付近を連続的に観察することによって、材料そのものの組織的原因による組織の劣化の様子を観察した。

## 2. 結果および考察

### 2-1 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粒子分散アルミニウム基複合材料

#### 2-1-1 微視組織の変化

Fig. 11は両複合材料について、通常の引張り試験を別に行って測定した公

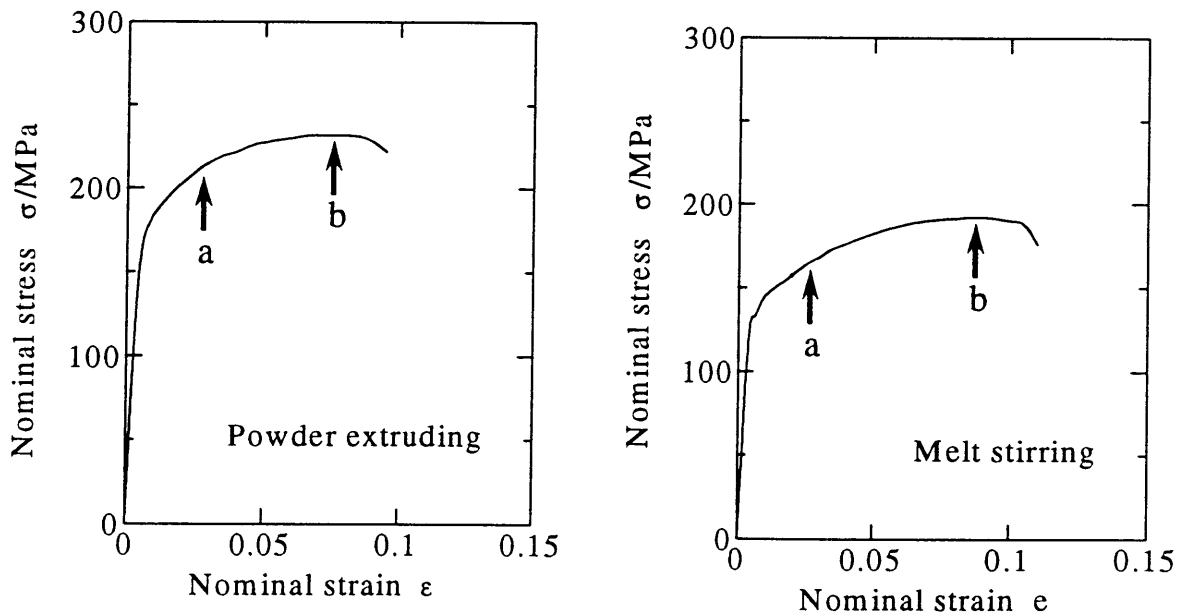


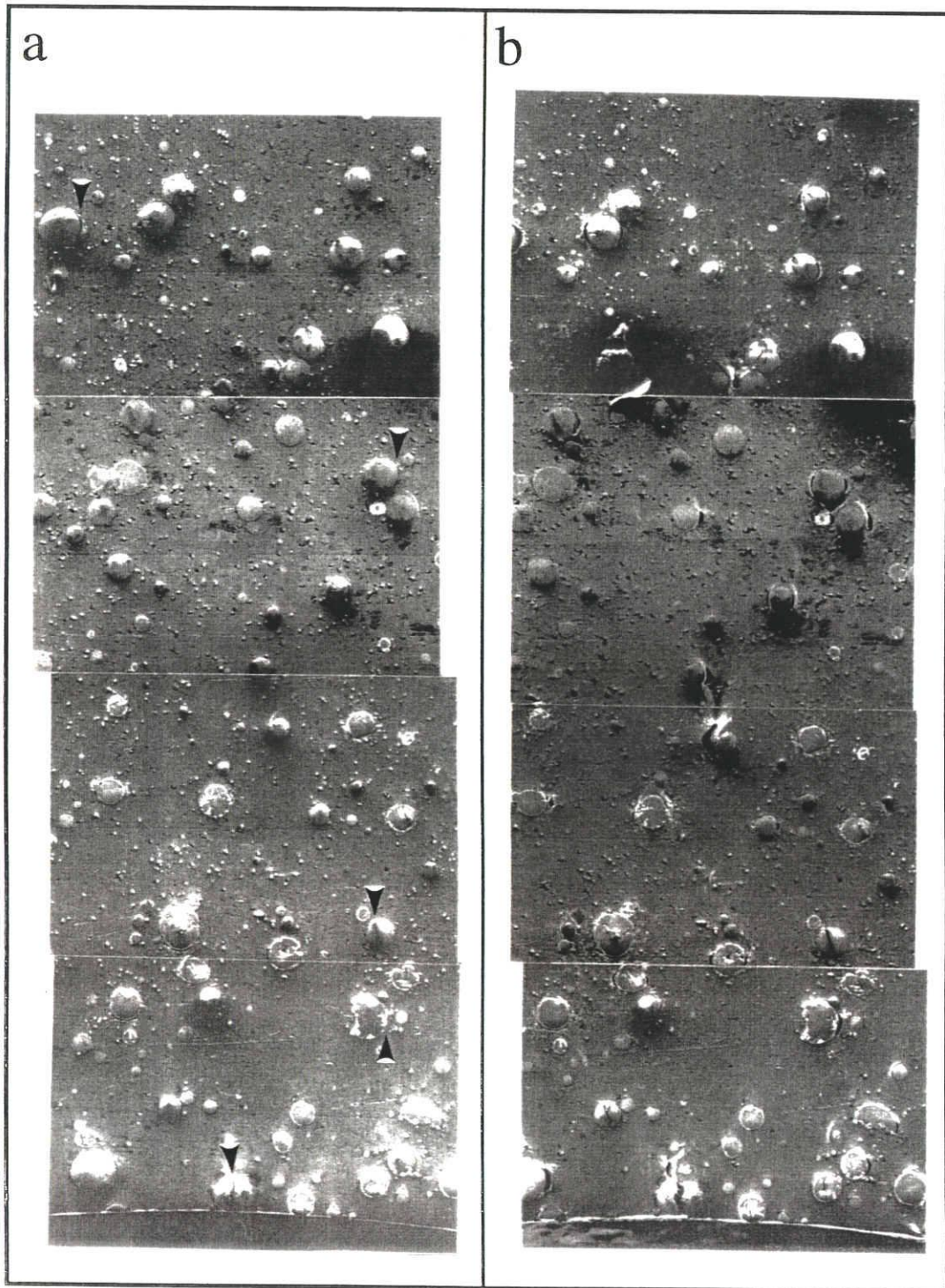
Fig.11 Nominal stress - strain curves of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/6061 composites.



称応力-公称ひずみ曲線である。溶湯攪拌法に比べて粉末押し出し法による材料の強度特性がかなり高いことが分かる。このことは一般的な傾向であるが、粉末合金を使用したことによるマトリックスの結晶粒微細化や酸化皮膜の分散効果による理由の他に、ここでは次のことも理由として考えられる。溶湯攪拌法による複合材料の製造において、 $Al_2O_3/Al-Mg$ 合金系では $Al_2O_3$ より $MgO$ の方が安定であるため、 $Al_2O_3$ と $Mg$ とが反応する可能性があり、また1373Kで2880秒間攪拌混合するプロセスにおいて、 $Mg$ が蒸発することも予想される。そのためマトリックス中の合金成分である $Mg$ が減少して、マトリックスの強度特性そのものが本来の6061合金より低下したことも考えられる。

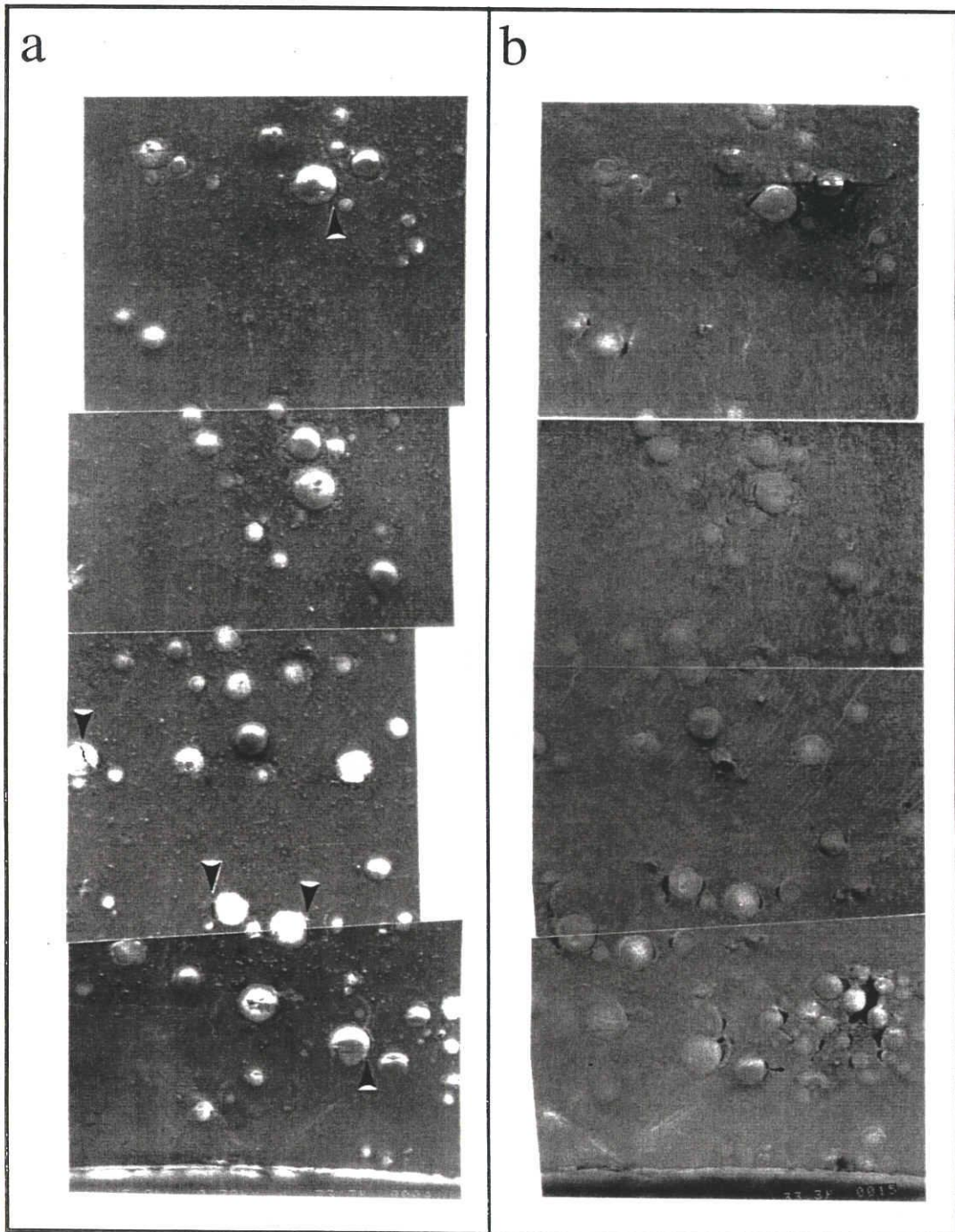
SEM内の引張り試験中にも荷重と変位を測定しているが、Fig. 10のように平行部を持たない試験片であるため、最小幅断面部の平均応力（公称応力）は算出できるものの、そのひずみを算出することは不可能である。そこでSEM内引張り試験における降伏応力や最大公称応力（引張り強さ）と通常の引張り試験におけるそれらを比較した結果、大きな差が無いことを確認したので、組織観察時の平均負荷応力やひずみの大きさを便宜的かつ直感的に示すために、通常の引張り試験における公称応力-公称ひずみ曲線を用いることとした。

それぞれの複合材料でFig. 10(b)に示した領域付近を連続的に観察した結果、微小亀裂が可視的に初めて確認できた負荷点 a と、さらに変形が進み最高荷重点の負荷点 b で観察された組織写真がFig. 12（粉末押し出し法）とFig. 13（溶湯攪拌法）である。どちらの材料でも、降伏応力の負荷が過ぎ、最高荷重点の応力（引張り強さ）との中間付近の応力負荷で、粒子/マトリックス界面の剥離や粒子の割れによる微視亀裂の発生が認められた。この時点での平均応力は各材料の引張り強さよりはるかに低いものの、材料内部の応力分布はかなり複雑で、粒子付近では大きな応力が作用していることは当然予想される。また溶湯攪拌法による材料の方が微視亀裂の観察された平均応力が低いが、その材料のマトリックス中には大きなせん断変形を示す縞模様が見られ、ひずみ量はかなり大きくなっていることが予測できる。このように比較的低い



— :50 $\mu$ m

Fig.12 Micrographs of powder extruding composite at loading points shown in Fig.11.



— :50μm

Fig.13 Micrographs of melt stirring composite at loading points shown in Fig.11.

負荷応力すなわち平均ひずみにおいて、既に内部には微視亀裂が発生していることが分かる。

さらに負荷応力が増していき最高荷重点に達すると、ほとんどすべての粒子に剥離や割れが見られる。すなわち負荷点 a から b の間に微視亀裂の数がどんどん増していくことを意味している。しかしこの間、先に発生した微視亀裂は開口して口が大きくなるものの、マトリックスの延性のためその中へ進展することはなく、従ってほとんどの粒子に亀裂が生じるまで全体の破断には至らない。特に溶湯攪拌法による材料のマトリックスには、大きな変形を意味する縞模様ははっきりと見える。そしてマトリックスが延性の限界に達してほとんどの粒子に亀裂が発生した後に、それらが急速に連結して破断する。

どちらの材料でも微視亀裂の大部分は界面の剥離によるもので、粉末押出し法の材料においてわずかに粒子の割れが見られ、その粒子には剥離は見られない。それら微視亀裂の代表例をFig. 14に示す。Fig. 12, 13, 14の組織はいずれも事前に研磨された試験片表面の観察結果であるが、それが内部の様子を

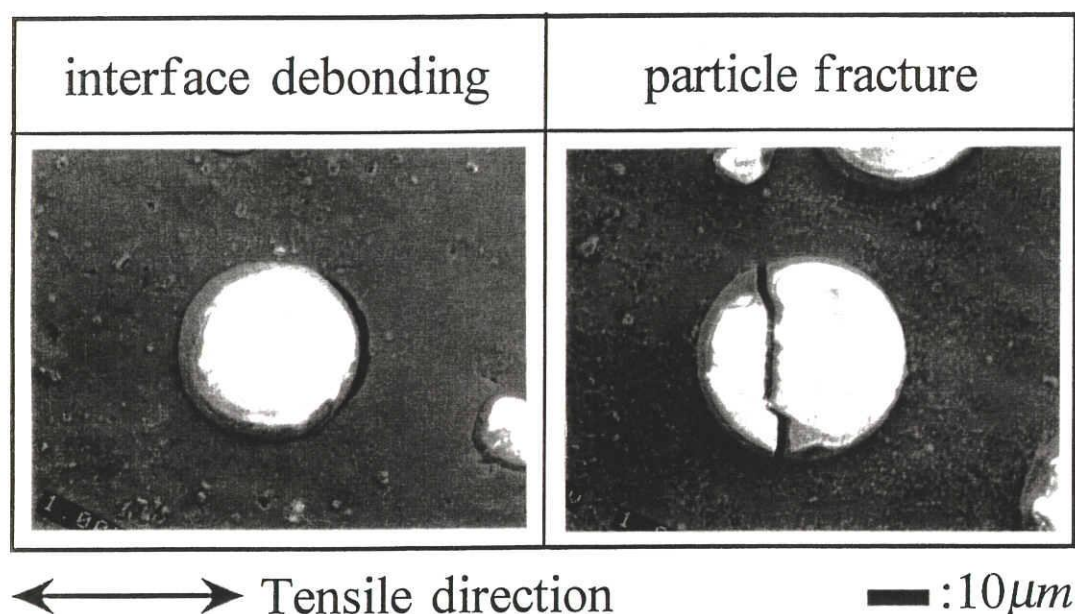


Fig.14 Typical microcracks, interface debonding and particle fracture.

そのまま表しているかどうかには疑問が残る。そこで変形途中の試験片を取り出し、長時間の電解研磨を行って、表面から200 $\mu\text{m}$ 程度（板厚の約1/5）の材料を研磨除去した後の組織を観察した。この除去層の厚さは平均粒子径の約8個分に相当し、その結果をFig. 15に示す。図は粉末押出し材料の結果であるが、材料内部においてもまったく同様に界面の剥離や粒子の割れが見られ、その程度も同じ様であることが確認できる。もちろん溶湯攪拌法の材料でも同じで、Fig. 12, 13に示したような変形中の微視組織の劣化は、内部でも同じ様に起こっていることが確認でき、表面の連続観察によって材料全体の様子をほぼ把握できると判断される。

### 2-1-2 微視亀裂の解析

破断後の破面において観察された粒子の様子から、微視組織の劣化の様子

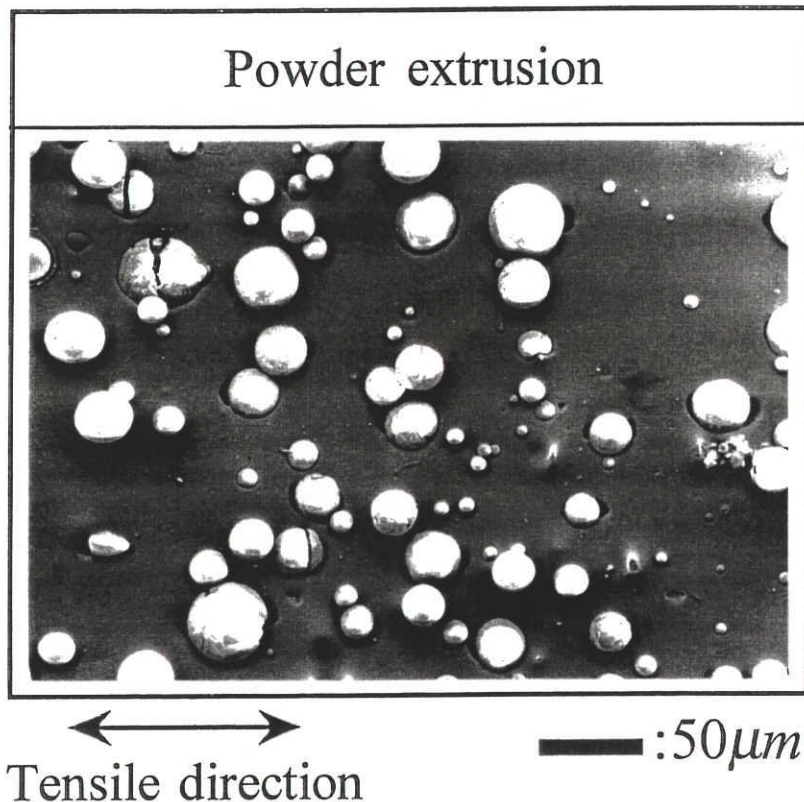
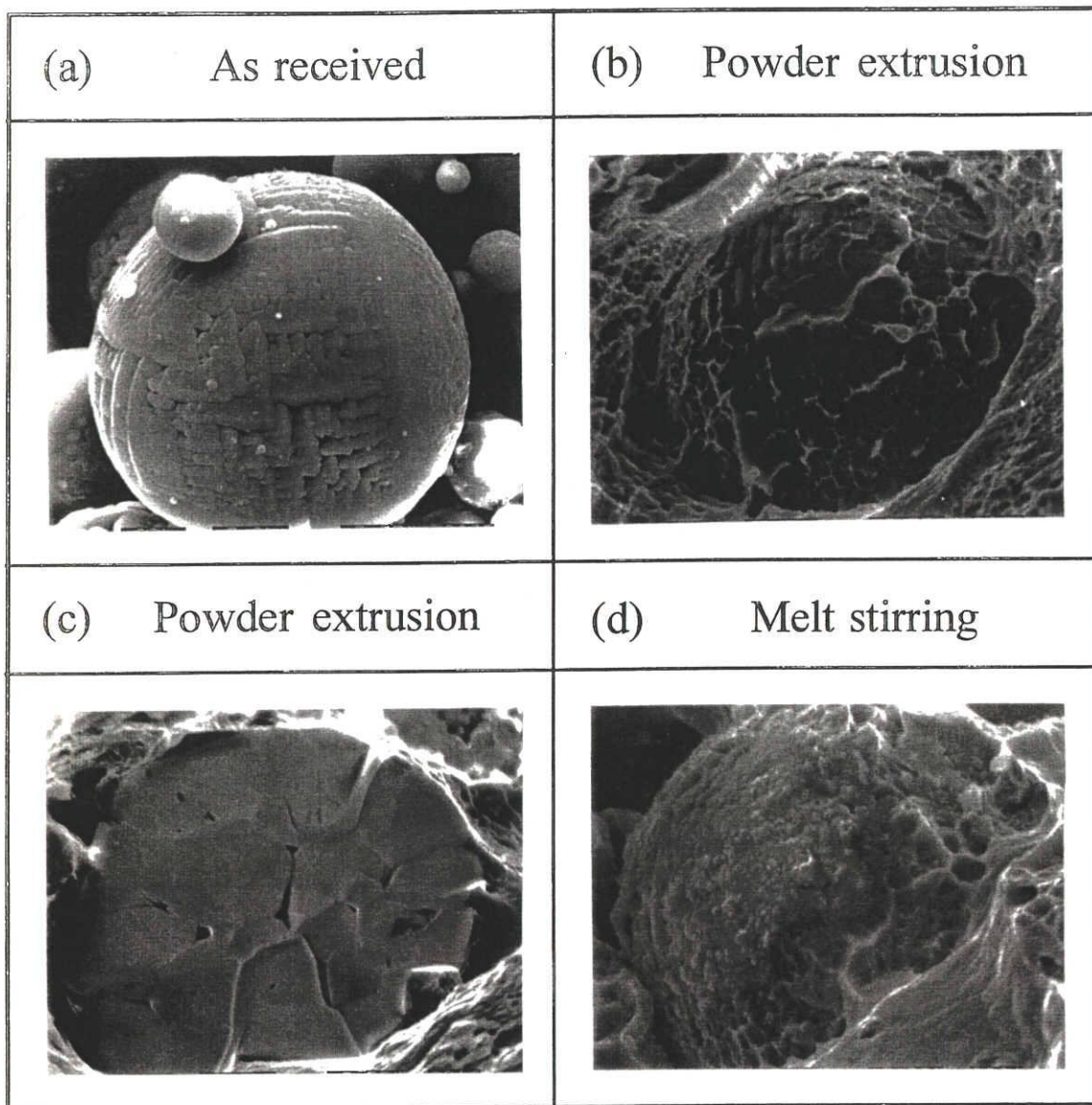


Fig.15 Microstructure observed in the inside section of deformed composite.

とその原因を分析する。Fig. 16は両材料の破面で観察される粒子の代表的な様子を示している。図の(a)は本研究の複合材料に使用した球状アルミナ粒子の外観で、この粒子は高温溶射法によって作製されたもので、その表面にはアルミナ結晶の成長過程を示すような細かい凹凸が見られる。

粉末押出し法による複合材料では、前述のように変形中に界面の剥離と粒子の割れとの両方が生じ、従って破面にも図の(b), (c)のようにその両者の粒



— :10 $\mu$ m

Fig.16 Features of particles as received and observed in fracture surface.

子が見られる。界面の剥離によって現れた粒子(b)の表面には、アルミニウム合金の細かいディンプルが多く見られ、その大きさはマトリックス中のものと同じぐらいである。このことから、高温粉末押し出し法によって直接固化成形した複合材料中の粒子とマトリックスの結合は比較的強く、界面付近のマトリックスの延性限界によって剥離粒子面に細かいディンプルが生じたことが予測できる。しかしその表面の一部に、図(a)に示した元のアルミナ粒子の表面がそのまま残っているのが見られる。すなわち複合材料作製時に、粒子の全面でマトリックスとの結合が完全に行われず、一部に未結合の部分を残したものと思われる。そのため引張り変形中にその部分が起点となり、界面の剥離を起こしたものと予測できる。その様な未結合の部分が存在しない粒子や、存在しても引張り応力の方向と一致しないときには、結合している部分の界面強度が比較的強いと予想されることから、界面の剥離は起こらず、(c)のように粒子の割れが生じると考えられる。

一方溶湯攪拌法による複合材料では、微視亀裂のほとんどが界面の剥離によるものであり、破面に見られるのも剥離によって分離した粒子とそのマトリックスの窪みである。図の(d)はその様な粒子の一つである。同じ界面の剥離による粒子の表面でも、(b)の粉末押し出し法によるものとは、その様子が大きく異なる。(d)の場合には粒子の表面にディンプル破面はあまり見られず、元の粒子表面とも異なる凸凹の荒い面である。この破面はいかにも脆い破断状況を表しており、他の粒子の観察でも、結合不足によるような元の粒子そのものの表面は見られなかった。すなわちこの材料の場合には界面の結合強度は弱く(脆く)、そのためにその剥離が起こるものと推測される。

この破面の粒子表面をEDXを用いて元素分析をしたところ、Mgが約9%存在していることが確認できた。溶湯攪拌法のマトリックス合金のMg成分は0.86%であり、粒子表面にMgがかなり偏析していることが予測される。前述したように、一般に $Al_2O_3/Al-Mg$ 合金系では合金成分のMgと $Al_2O_3$ とが反応して、 $MgO$ あるいは $MgAl_2O_4$ のスピネルを形成すると考えられている。従って溶湯攪拌法による複合材料ではアルミナ粒子の表面に、このような化合物の生成が

予想され、それらは脆くて界面の結合強度が弱くなり、剥離による微視亀裂が生ずるものと考えられる。

## 2-2 SiC粒子分散アルミニウム基複合材料

### 2-2-1 微視組織の変化

Fig. 17はやはり両複合材料について、通常の引張り試験を別に行って測定した公称応力-公称ひずみ曲線である。溶湯攪拌法に比べて粉末押し出し法による材料の強度特性がかなり高いことが分かる。このことは一般的な傾向であり、粉末合金を使用したことによるマトリックスの結晶粒微細化や酸化皮膜の分散効果が理由として考えられる。また降伏後の加工硬化の程度は溶湯攪拌法による材料の方が多少大きく、最高荷重点までの一様伸びはほとんど同じであるものの、その後破断までの局部伸びは粉末押し出し法の材料の方が大きいことが分かる。

それぞれの複合材料でFig. 10 (b)に示した領域付近を連続的に観察し、Fig. 17中の3つの応力点 (a, b, c) での組織写真がFig. 18 (粉末押し出し法) とFig. 19 (溶湯攪拌法) である。aは微小亀裂が可視的に確認できた

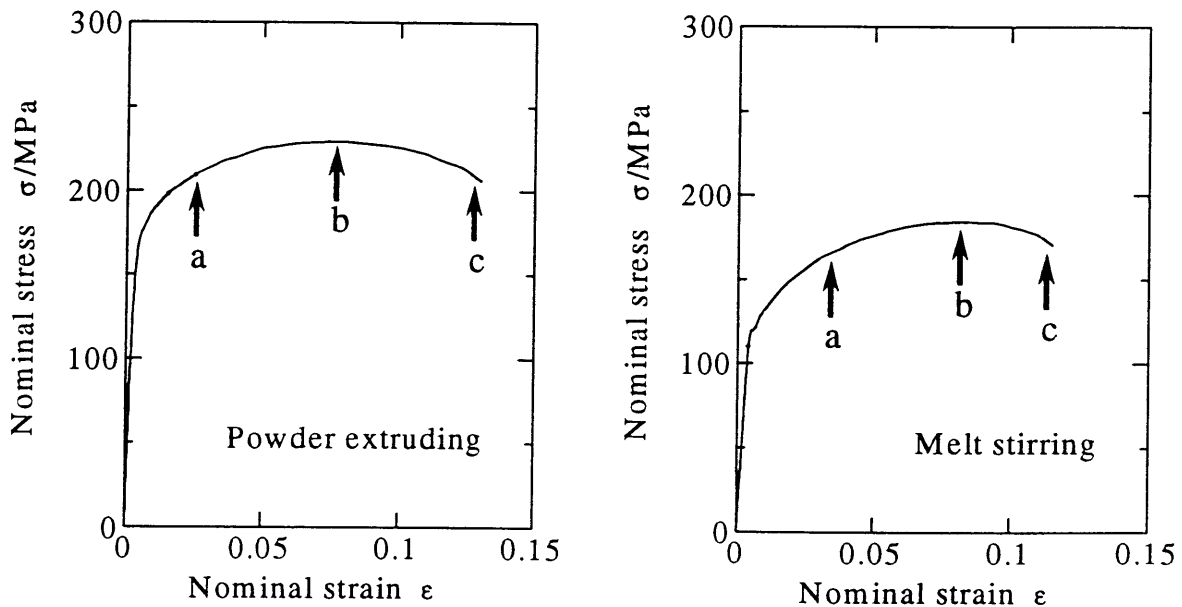
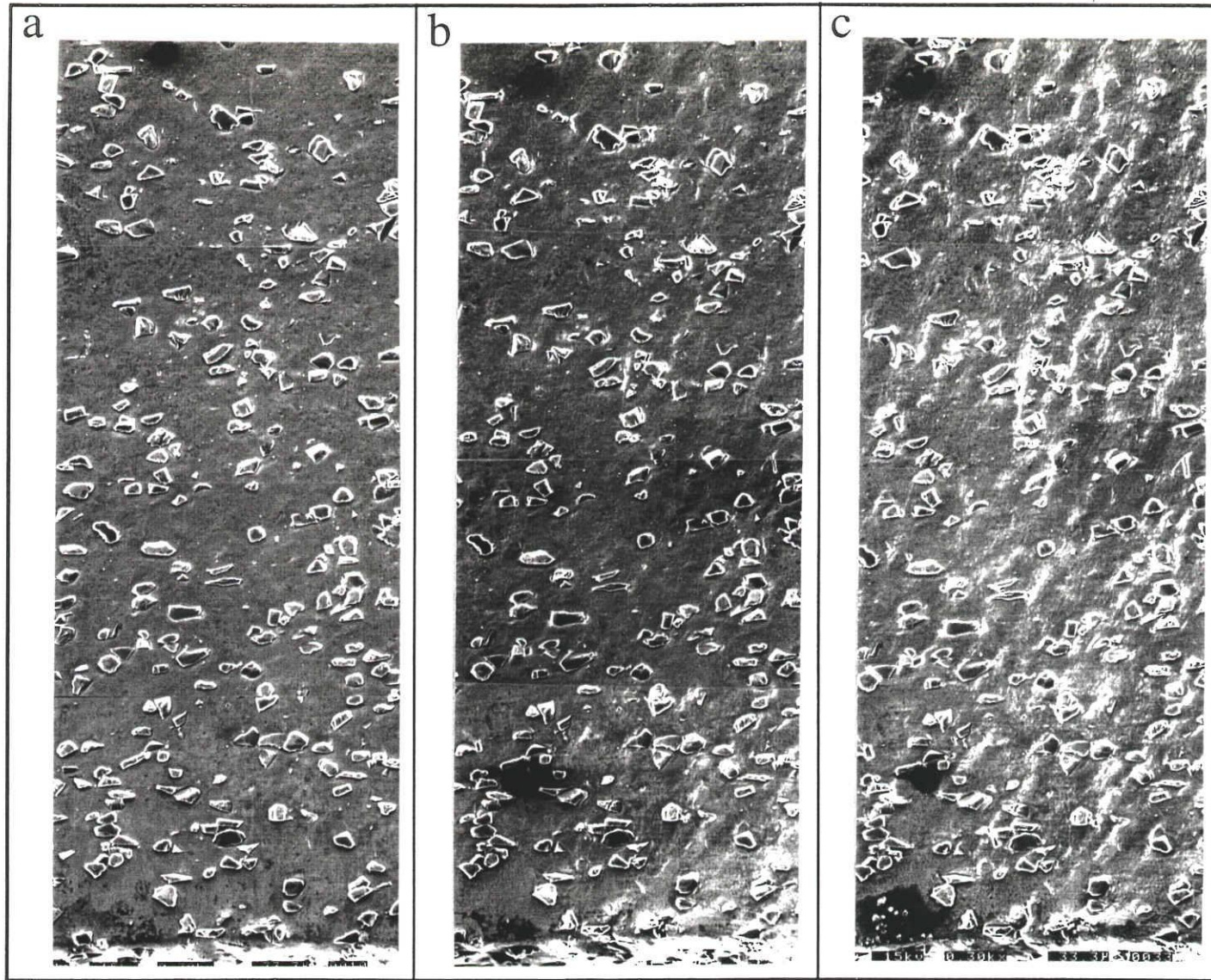


Fig.17 Nominal stress - strain curves of SiC/6061 composites.





— :50 $\mu$ m

Fig.18 Micrographs of powder extruding composite at loading points shown in Fig.17.

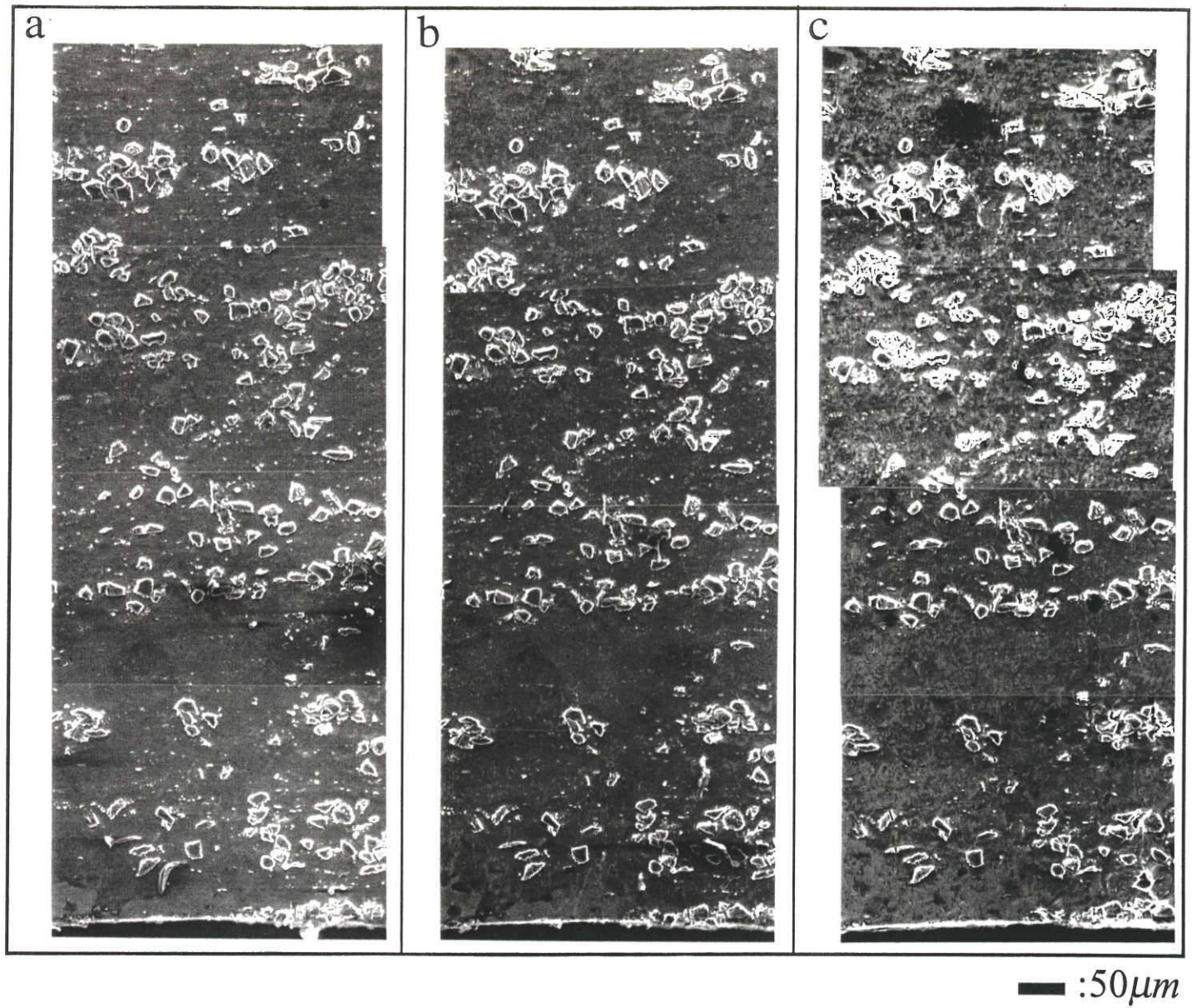


Fig.19 Micrographs of melt stirring composite at loading points shown in Fig.17.

点、bは最高応力点付近、そしてcは破断時に分離した部分のすぐ隣を観察している。どちらの材料でも、降伏後に塑性変形が始まって比較的早い時点、すなわち最高引張り応力との中間付近の応力負荷で微視亀裂の発生が認められるものの、その微視亀裂の様子やその後の変化については材料によって異なっている。

粉末押出し法による材料では、引張り方向に比較的細長い粒子の幾つかに、粒子／マトリックス界面の剥離や粒子の割れによる微視亀裂が発生する。Fig. 17の応力－ひずみ曲線から、その時の巨視的ひずみは数%程度であることが予想される。その後負荷応力が増すとその微視亀裂の口が多少開くものの、マトリックスの延性のためにその中に進展することはない。そして他の粒子に新たに微視亀裂が発生して、最高荷重点付近では半分以上の粒子に微視亀裂が見られ、その多くは界面の剥離によるものである。その後の局部変形の増加においては、微視亀裂の数はそれほど増えることはなく、各亀裂の口がさらに大きくなる。しかし破断時の分離線の近くにおいても、それらの亀裂はやはりマトリックス中に進展することはない、強化粒子程度の長さを保ったままである。そしてマトリックス中には、その大きな塑性変形をあらゆる波状の様相が見られる。従って巨視的引張り負荷により、塑性変形開始とともに比較手早い時期に材料内部に微視亀裂が発生し、変形の進行と共にその数が増していつて、最終的に多数の微視亀裂を含んだマトリックスの延性限界によって、巨視的な破断限界が支配されると考えられる。

一方溶湯攪拌法による材料では、前述のように粒子のクラスターが存在するために、そのクラスター中に粒子／マトリックス界面の剥離による微視亀裂の発生が見られる。Fig. 17で分かるようにこのときの応力は粉末押出し法による材料の場合よりはるかに低い、材料内部の応力分布はかなり複雑で、特に複数の粒子が集まったクラスター付近では、マトリックス部分が希薄でその部分に作用する局所応力は大きくなり、従ってその部分の変形量も大きくなることが予想される。その後さらに負荷応力が増すと、クラスターを中心に微視亀裂の数が増えると同時に、近い亀裂同士が連結して比較的大きな亀裂に進展

するものが見られる。従って最高荷重点付近では、粉末押出し法に比べて亀裂の数は少ないように見えるが、逆に大きな亀裂が存在している。そして破断時においては、クラスター内の粒子のほとんどを連結するほどの大きな亀裂がいくつも存在している。このように溶湯攪拌法による材料では、粒子クラスターの存在によって、特に最高荷重点以後の微視亀裂の拡大が大きいことが分かる。

以上のことを考慮してFig. 17の応力-ひずみ曲線を再考すると、両材料において最高荷重点までは微視亀裂の状況にそれほど大きな差はなく、従って両者の一様伸びにはあまり差が見られないが、その後溶湯攪拌法の材料では微視亀裂の連結や拡大が大きく、そのために破断までの局部伸びが粉末押出し法より小さくなるものと考えられる

### 2-2-2 微視亀裂の解析

Fig. 20は両複合材料の最高荷重点付近での代表的微視亀裂の様子を示している。粉末押出し法による材料では、前述のように不規則形状粒子の長軸が押出し方向、すなわち引張り方向を向いていることが多いので、その様な粒子の

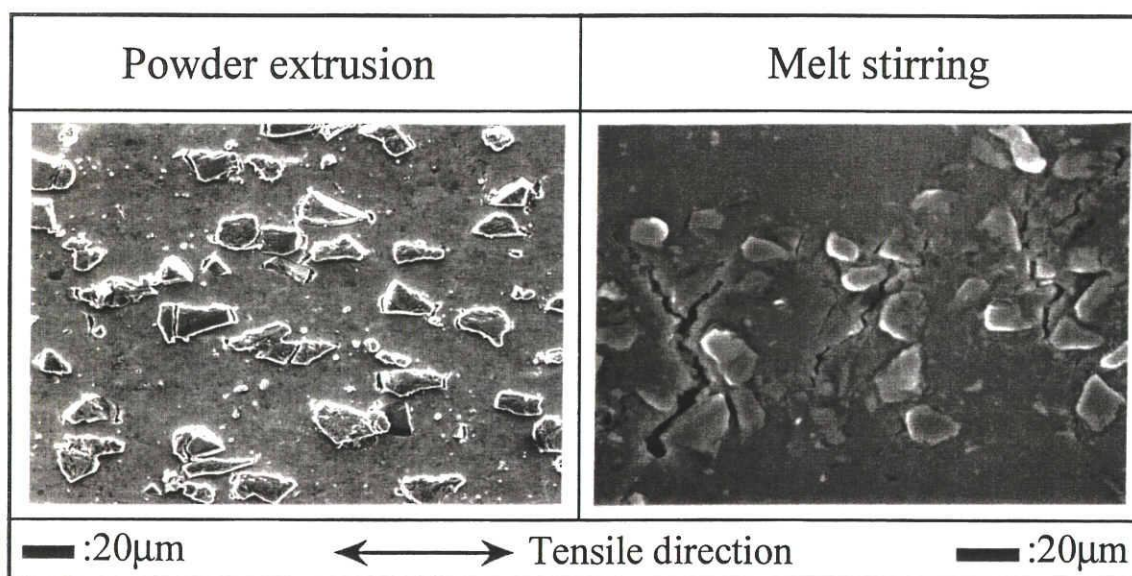
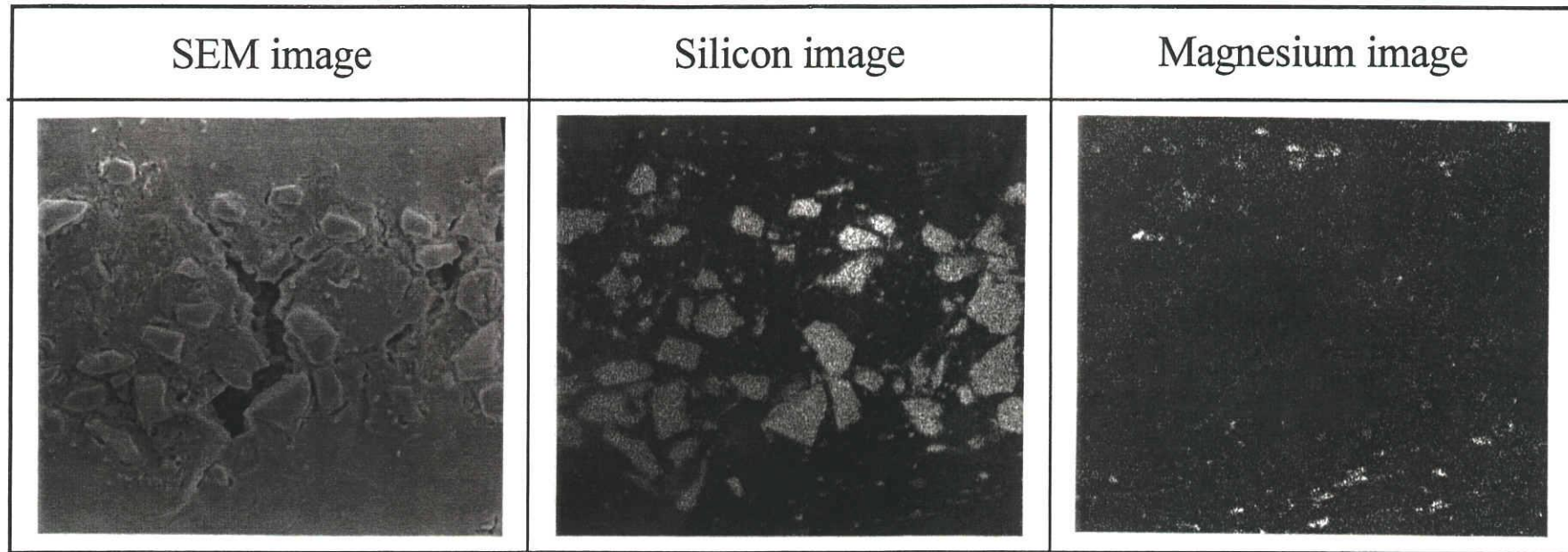


Fig. 20 Typical microcracks observed in both composites.

両端の細い界面に剥離による微視亀裂が生じているものが多く見られる。また粒子内の割れもその短軸に沿った割れが多く、これらの微視亀裂はマトリックス中には進展しないため、ほとんどが粒子の平均粒径以下、すなわち $10\mu\text{m}$ 以下の微視亀裂である。

一方溶湯攪拌法による材料に見られる亀裂のほとんどは粒子クラスター内のものである。変形初期には界面の剥離による微視亀裂が生じ、その後近くの亀裂がその付近のマトリックスを通して連結することとなり、結果的に最高荷重点付近ではクラスター内をジグザグに結ぶ粒子数個分、すなわち $50\text{mm}$ 以上の長さの亀裂が生じる。マトリックスの6061アルミニウム合金は主にMgとSiを合金成分としており、SiC/Al-Mg-Si系の溶湯法では合金成分のMgとSiの反応およびMgとSiCとの反応により、マトリックス中に $\text{Mg}_2\text{Si}$ の生成が考えられる。この反応性生成物は細かく分散される場合には特に問題ないであろうが、大きな生成物として特に強化粒子近くに生じると、強化粒子の複合効果が阻害されることも予想される。そこでクラスター内の亀裂付近の状況を調べるためにEPMAによる元素分析を行った。その結果、Fig. 7に示されるように、粒子の無いマトリックス中にMgとSiが重なる細かい生成物の可能性が少し見られるものの、粒子や亀裂の付近には特にMgが偏析している部分は見られず、EPMAで分析できる程度の生成物は、この亀裂の発生には関係していないと判断される。

最後に破断試験片の破面の観察結果をFig. 22に示す。粉末押出し法による材料では、表面の組織観察から予測されるように、マトリックス合金の延性破断によるディンプルの中に各粒子の穴が見られる。このマトリックス中のディンプルは粉末法による材料らしくかなり細かいものである。粒子の中にはその全面あるいは一部に、マトリックスと同じアルミニウム合金のディンプルを着けたものが幾つか見られる。このディンプルの様子から、粉末押出し法によって直接固化成形した複合材料中の粒子とマトリックスの結合は比較的強く、界面付近のマトリックスの延性限界によって剥離による微視亀裂が生じたものと予測される。また一部分にディンプルを着けているものは、粒子の全面でマト



— :20 $\mu$ m

Fig.21 EPMA analysis of microcrack occurred in melt stirring composite.

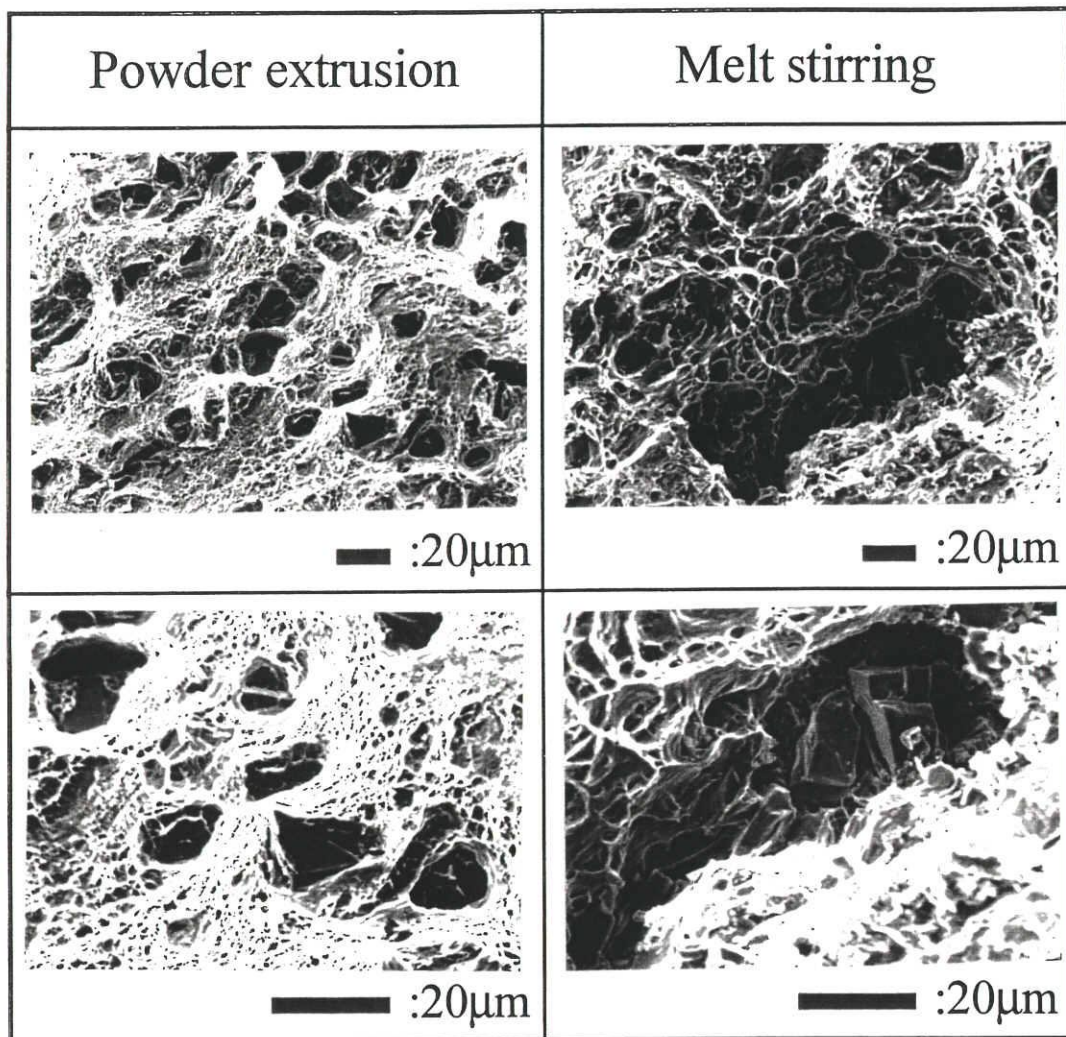


Fig. 22 fracture surfaces of both composites.

リックスとの結合が完全に行われず、一部に未結合の部分を残したものと思われる、そのため引張り変形中にその部分が起点となり、界面の剥離を起こしたものと予測できる。粒子破面の全面にディンプルが見られないものは、その多くが粒子内部の割れによってできた破面であると予測される。

溶湯攪拌法による材料の破面では、複数個の粒子が固まって存在する大きな穴が見られる。その中の粒子表面にはアルミニウムのディンプルなど、マトリックスが付着した様子はないが、穴の中の粒子が立体的に現れていることや、前述の表面観察で粒子の割れはほとんど見られなかったことから、界面剥離により粒子表面がそのまま現れたものと予測される。このことはクラスター

状に固まった粒子の間にマトリックス合金が完全に充満されなかったことも予測できる。またこの付近にマトリックスのディンプルと粒子とが混在するのも見られるが、クラスターの中にできた亀裂は複数の粒子界面の微視亀裂が、マトリックスを通して連結されてできていることを考えれば理解できる現象である。

### 3. まとめ

(1) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粒子分散アルミニウム合金複合材料では、どちらの製造法による材料でも粒子はほぼ一様に分散しており、降伏応力と引張り強度との中間程度の平均応力の引張り負荷によって、粒子／マトリックス界面の剥離や粒子の割れによる微視亀裂の発生が見られた。

(2) さらに負荷応力が増すと新しく発生する微視亀裂の数が増すものの、先に発生した微視亀裂は開口して大きくなるが、マトリックスの延性のため破断直前まで進展することはない。

(3) 粉末押出し法で作製した複合材料では、界面の剥離と粒子の割れの両者が見られるが、界面が剥離した粒子の表面にはマトリックス合金の細かいディンプルと同時に、元の粒子そのものの表面がそのまま残っている。従って界面の結合強度は比較的強いものの、未結合部分の存在によって剥離が生じ、未結合部分が少なければ粒子の割れが多くなると考えられる。

(4) 溶湯攪拌法による材料では界面の剥離だけが見られ、その粒子の表面はかなり脆い破面で、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粒子と合金成分のMgとの反応による脆い化合物の生成が予想される。

(5) SiC粒子アルミニウム合金複合材料について、粉末押出し法による材料では各粒子がほぼ一様に分散したが、溶湯攪拌法による材料には粒子のクラスターが比較的多く見られた。従って変形の進行による微視亀裂の様子は異なるが、どちらの材料でも降伏応力と最高引張り応力との中間程度の平均引張り応力によって、粒子／マトリックス界面の剥離や粒子の割れによる微視亀裂の発生が見られた。



(6) 粉末押出し法による材料では、引張り方向（押出し方向）に向いた比較的細長い粒子の両端の界面での剥離が多く見られ、わずかに粒子の割れも見られる。これらの微視亀裂は応力が増しても、多少その口が大きくなるものの、マトリックスの延性のため破断直前まで進展することはない。

(7) この材料の破断面に観察される粒子の表面には、その全面あるいは一部にマトリックス合金のディンプルが付着しており、複合材料製造時の界面の結合強度は比較的強いものの、未結合部分も存在していることが予想される。

(8) 溶湯攪拌法による材料では、最初の微視亀裂発生はクラスター内の粒子界面の剥離によるものであり、応力の増加によって同様の微視亀裂の数が増すと同時に、複数の亀裂がマトリックスを通して連結して、粉末押出し法に比べてかなり大きい亀裂に進展していく。このことは両材料の引張り試験における局部伸びの差と関連着けられる。

## IV. 結 言

本研究は分散強化型金属基複合材料の構成要素である、強化粒子、マトリックス金属そしてその界面が、応力負荷状態の下でどのような挙動を示すかを直接観察して詳細に解析すること、さらにその挙動に対する製造プロセスの影響を調べて、複合材料の製造プロセスにおいてそれら構成要素の特性を制御するための基礎的情報を得ることを目的として、大きく2つのことを検討し幾つかの成果と新しい知見が得られた。まず1つとして、荷重負荷装置を組み込んだ走査型電子顕微鏡（SEM）を用いて、SEM内での引張り試験によって応力の増加に伴う複合材料のマイクロ組織の変化をその場観察する試験法について検討した。そしてほぼ均一な引張り応力状態の下で、材料そのものの組織的欠陥による微視組織の劣化を連続的に観察できる試験法を確立した。この試験法では試験片表面の組織観察であるが、試料内部でも同様の変化が生じていることが確認され、すなわち応力負荷状態の下でその変化と微視組織の変化と

の関係を実験観察することが可能となった。

その後 $Al_2O_3$ 粒子およびSiC粒子を分散させたアルミニウム合金の複合材料を、粉末押出し法と溶湯攪拌法とによってそれぞれ作製し、各材料についてこのSEM内引張り試験を行って、それらの応力負荷によるマイクロ組織の変化を直接観察してその挙動を解析した。その結果応力負荷に伴う塑性変形の進行と共に、比較的小さい巨視的ひずみにおいて材料内部に、マトリックス／粒子界面の剥離や粒子そのものの割れによる微視亀裂が発生することがわかった。その微視亀裂はマトリックスの延性のために進展することではなく、負荷応力の増加と共にその数が増してゆく。またこれらの微視亀裂の形態や変化の様子は、その材料の製造プロセスによって大きく異なることも明らかとなった。

本研究により応力負荷を受ける金属基複合材料のマイクロ組織の挙動を解析することができ、製造プロセスにおいてそれを制御するための基礎的知見を得ることができた。しかし本研究は単純な引張り応力の負荷に限られており、今後さらに圧縮応力や組合わせ応力の負荷による材料内部のマイクロ組織の変化や、それらマイクロ組織の変化に起因するであろう応力負荷後の複合材料の特性の変化を系統的に調べる必要がある。そしてそれらの解析の結果を基に、各種応力履歴後の複合材料の特性変化を予測し、それを制御する方法を確立することが期待される。

## 参 考 文 献

- (1) 金武直幸, 中村直文, 寺田定広: 軽金属, 40(1990), 271.
- (2) 金武直幸, 尾崎昌保, 長 隆郎: 軽金属, 42(1993), 672.
- (3) 金武直幸, 中村直文: 塑性と加工, 31(1990), 536.
- (4) 金武直幸, 大平浩史: 塑性と加工, 34(1993), 1046.
- (5) 金武直幸, 尾崎昌保, 長 隆郎: 塑性と加工, 34(1993), 1332.
- (6) D. J. Lloyd: Acta Metall., 39(1991), 59.

- (7) T. Mochida, M. Taya and D. J. Lloyd: Mater. Trans. JIM, 32 (1991), 931.
- (8) A. F. Whitehouse and T. W. Clyne: Acta Metall., 41(1993), 1701.
- (9) 長 隆郎, 海老原次郎, 沖 猛雄: 軽金属, 38(1998), 600.
- (10) 小橋 真, 長 隆郎: 日本金属学会誌, 54(1990), 76.