

粉末押出法による VGCF 強化アルミニウム複合材料の作製と特性評価

早大材研 ○小川文男 早稲田大学[院] 鯉淵仁志 甲津裕之

茂木優一 早大材研 増田千利 物材機構 西村聡之

Fabrication of VGCF Reinforced Aluminum Composites by Powder Extrusion and Evaluation of their Properties

Fumio OGAWA, Hitoshi KOIBUCHI, Hiroyuki Kohzu,

Yuichi MOGI, Chitohi MASUDA and Toshiyuki NISHIMURA

1 緒 言

気相成長炭素繊維(VGCF)は軽量かつ熱伝導、機械的強度に優れているため複合材料の有望な強化材である。アルミニウム(Al)を VGCF および類似した構造を持つ多層カーボンナノチューブ(MWCNT)で強化した複合材料は自動車の構造材、半導体部品の放熱基板への適用が期待されており、近年、作製法の研究が行われている。しかし、優れた強度、熱伝導率を持つ複合材料を作製できたとの報告は少ない。この理由として以下が考えられる。

- (1) VGCF および MWCNT は寸法が非常に小さいため、作製時に材料内に空孔ができ、材料性能を低下させる。
- (2) VGCF および MWCNT は長手方向の性能は非常に優れているが、横方向は低いという異方性を有している。

複合材料を温間で押出加工することで材料内の空孔が低減され、VGCF の方向(配向)も揃えられると考えられる。強化材と Al の混合粉末を焼結により固化した後、押出加工した研究がなされており、緻密でかつ強度に優れた複合材料が得られている¹⁾。本研究では短時間、低コストで高性能な複合材料の作製を目的として、焼結などの固化の過程を経ずに、複合材料を作製する粉末押出について検討を行った。まず、VGCF と Al 粉末のボールミルによる混合について検討した後、押出加工によって複合材料を作製した。そして硬さ、強度、熱伝導率を測定して材料作製法と性能の関係について考察した。

2 材料作製と特性評価

2.1 Al 粉末と VGCF の混合 VGCF(昭和電工; 平均直径 150nm, 平均長さ 10-20 μ m), Al 粉末(高純度化学研究所; 平均直径 30 μ m)を Fritsch 製遊星ボールミルで機械的に混合した。Al 粉末, VGCF 合計 40g, ステンレス製ボールをアルゴンガス雰囲気中のグローブボックス内でステンレス製ミル容器に装入了。ボールと材料粉末の重量比は 20:1 とした。ただし、混合中における Al 粉末の粒成長を抑えるためにミリング助剤としてステアリン酸($C_{17}H_{35}COOH$)を重量で 1.5%添加した。VGCF 含有率は 0, 1, 3, 5%とし、混合条件は 200rpm 3 時間とした。混合粉末を回収後、SEM 観察を行った。また、粉末内部の VGCF の分布を確認するため、粉末を樹脂埋めして研磨し、硝酸水溶液で腐食して、SEM 観察した。また、顕微ラマン分光によって VGCF の損傷度合を評価した。

2.2 粉末押出による複合材料の作製と評価 押出加工中の酸化を防ぐため、粉末を Al1050 製の容器に真空封入した。具体的にはテーパ付き容器に粉末を詰め、放電プラズマ焼結装置を用いて、常温で真空挽き後に荷重を負荷し、テーパ付き蓋を押し込んだ。この容器を機械加工した後、ダイス半角 60° のコンカルダイスを用いて、温度 500°C, ラム速度 2mm/min で押出加工した。押出比は 9, 16 とした。作製した複合材料についてビッカース硬さ、熱伝導率、引張強度を測定した。

3 結果と考察

Fig. 1 (a)に VGCF の体積含有率 3%, (b)に 5%における粉末内部の観察結果を示す。

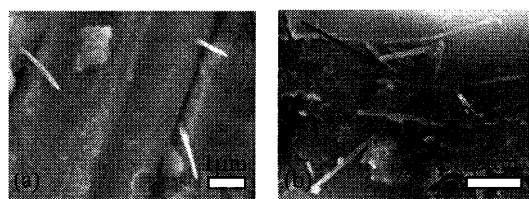


Fig. 1 SEM image of inside the mixed powder
(a) V_f 3% (b) V_f 5%

V_f 1%, 3%では多くの箇所でも Al 中に VGCF が一本ずつ取り込まれている。一方、 V_f 5%では矢印に示すように束になって Al 中に取り込まれていた。SEM 観察では VGCF は元の形状を留めているようであるが、ラマン分光での D バンドと G バンドの強度比 I_D/I_G は 1.27 であり、混合によって VGCF の切断、あるいは表面のアモルファス化が起きていると予想される。

複合材料の押出方向に平行な断面の SEM 観察を行った。 V_f 1%, 3%では腐食を行わない状態ではあまり空孔は見られなかったが、 V_f 5%では多く見られた。Fig. 1 (b)に示したような、VGCF が束になっている箇所が空孔の原因になった、あるいは VGCF 含有率が高いため粉末が脆化して押出中に割れが生じたと考えられる。Fig. 2 に押出方向に垂直な面の硬さの測定結果を示す。少量の VGCF の添加によって硬さが大きく向上していることがわかる。押出比 16 では 9 に比べて、硬さがわずかに上昇しているが、これは押出比の影響により VGCF の配向が変化したためと考えられる。

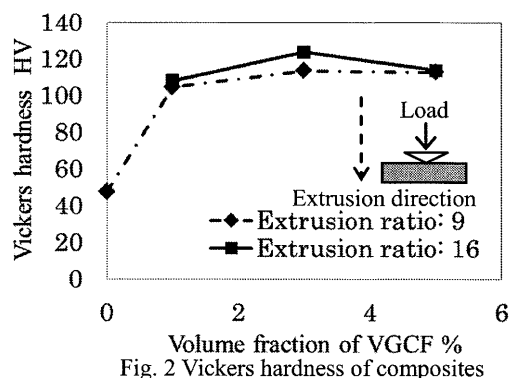


Fig. 2 Vickers hardness of composites

配向を調べるため、断面を硝酸で腐食して VGCF を露出させた。時計回りの方向を正として、押出方向に対する配向を測定した。Fig. 3 に $V_f 1\%$ についての繊維配向分布を示す。押出により、完全ではないものの押出方向を中心に VGCF の方向を揃えることができていることがわかる。押出比 16 においては 9 に比較してわずかながら配向分布が改善している。本研究において最も配向が揃っている条件は $V_f 1\%$ 押出比 16 であった。

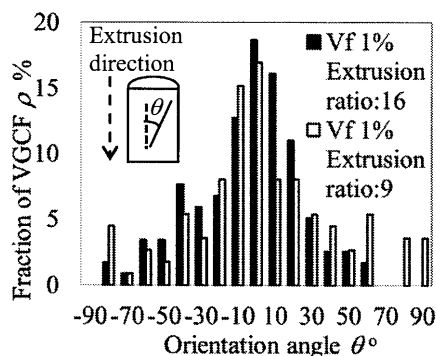


Fig. 3 Orientation distribution of VGCF in composites

熱伝導率は VGCF を添加するほど低下する結果となった。ただし、押出比 16 では 9 に比べて高い値が得られ、空孔の低減、VGCF 配向の改善によると考えられる(図省略)。Fig. 4 に $V_f 1\%$ 、純 Al の引張試験結果を示す。

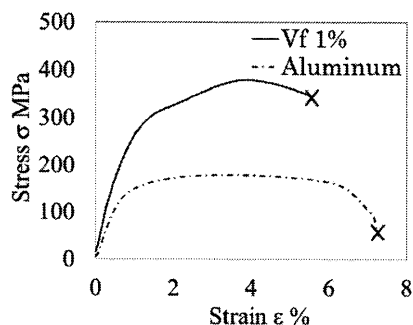


Fig. 4 Stress-strain curve of composite and pure aluminum (Extrusion ratio: 16)

純 Al, 1%では引張強度は 179.3MPa, 379.9MPa であった。また、3%ではひずみを正確に測定できなかったため、図は省略するが引張強度は 386.9MPa であった。本研究では少量の VGCF 添加で高強度の複合材料が作製できた。強度、強化効率は過去の研究と比較しても遜色ない値であった^{1), 2)}。ここで、強化機構を検討するため、強度の

理論値 σ_c を以下により算出した。

$$\sigma_c = \frac{\int_{-\pi/2}^{\pi/2} \rho(\theta) \sigma(\theta) d\theta}{\int_{-\pi/2}^{\pi/2} \rho(\theta) d\theta} \quad (1)$$

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

$\rho(\theta)$ は SEM 観察により得られた、複合材料中の VGCF の配向分布である。VGCF の方向が完全に揃っているとした時の強度 σ_L は Kelly-Tyson model から算出した。ただし、母材の性質は純 Al のそれと等しいとし、界面領域は完全降伏すると仮定した。 τ_{LT} , σ_T は母材のせん断強度、引張強度である。計算結果を Fig. 5 に示す。

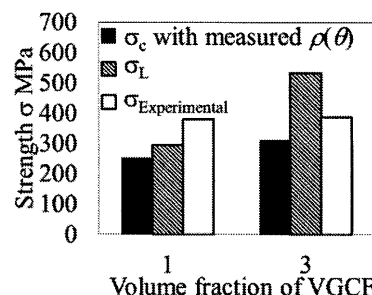
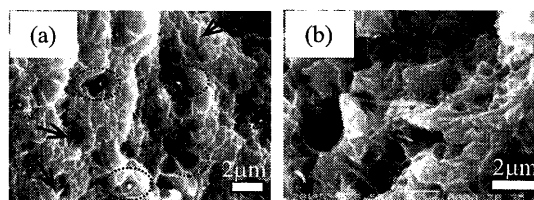


Fig. 5 Experimental and theoretical composite strength

$V_f 1\%$ では実験値は理論値 σ_c および σ_L よりも大きくなるがこの原因としては、(1)純 Al から母材の性質を推定しているが、現実には結晶粒径が異なり、耐力などが異なる可能性がある (2)材料作製による残留応力、強化材が転位の運動を阻害する効果³⁾を考慮していないなどが挙げられる。母材の結晶粒径、材料定数取得方法についてはさらに検討する必要がある。 $V_f 3\%$ では実験値は σ_c と σ_L の間にあった。Fig. 6 に破面を示す。 $V_f 1\%$ では矢印のように一部 VGCF の引抜けが見られるが、点線で囲まれた破断したような箇所も多く見られる。周りにはディンプルが観察され、十分な応力伝達が存在したことを示唆している。 $V_f 3\%$ では破面に平行な VGCF も多く見られた。 $V_f 1\%$ では配向が比較的揃っているのに対し、 $V_f 3\%$ では不十分で 0° , 180° 付近のものも多いためである。このような箇所を起点として母材の破壊が進んだため、 $V_f 3\%$ では VGCF の含有率が高いにも関わらず、 $V_f 1\%$ と強度が大きく変わらなかったと考えられる。

Fig. 6 Fracture surface of composites (a) $V_f 1\%$ (b) $V_f 3\%$

参考文献

- 1) H. Kwon, D. H. Park, J. F. Silvain, A. Kawasaki, Compos.Sci. Tech., **70**, 546(2010)
- 2) H. J. Choi, G. B. Kwon, G. Y. Lee, D. H. Bae, ScriptaMaterialia, **59**, 360(2008)
- 3) Y. T. Zhu, W. R. Brumenthal, T. C. Lowe, J. Mat. Sci., **32**, 2037(1997)