特集号

研究論文

ひずみ導入した Al-7%Si-0.5%Mg 合金の
半熔融凝固組織

鄭 秉準*・市畑聡一郎**・里 達雄***
手塚 裕康***・神尾 彰彦***
才川 清二****・中井 清之****

Semi-solid solidification microstructures of a
strain-induced Al-7%Si-0.5%Mg alloy

Byung Jun JUNG*, Soichiro ICHIHATA**, Tatsuo SATO***
Hiroyasu TEZUKA***, Akihiko KAMIO***
Seiji SAIKAWA**** and Kiyoshi NAKAI****

The effect of strain induced to alloys prior to the semi-solid processing (SSP) on microstructures was investigated on a Al-7%Si-0.5%Mg alloy. The microstructural changes during heating and isothermal holding at a semi-solid state were examined on a strain-induced alloy. The strain was induced by cold-rolling with a reduction ratio of 10 to 30%. The effect of cold-rolling on producing spherical and grain-refined α phase increases with increasing the reduction ratio up to approximately 20% and almost saturates at higher reduction ratio than 20%. During heating to 580°C, the characteristic boundaries become visible on the inside of the dendrite-shaped α phase. Simultaneously, the eutectic silicon particles are partially melted and the liquid phase preferentially flows into the small capillaries of boundaries. With increasing temperature the boundaries become more distinctive and act to break down the dendrites into small grains. The boundaries are considered to be formed as a result of recrystallization. The isothermal holding at 580°C of semi-solid temperature region for up to 600 s has essentially no effect to increase the size of the α phase and to change morphologies.

Keywords: semi-solid processing, a strain-induced Al-7%Si-0.5%Mg alloy, spherical microstructure, partially melted, recrystallization

(Received June 6, 1997)

1. 緒 言

代表的な鋳造用アルミニウム合金である Al-7%Si-0.5%Mg 合金は A357 合金として知られ、優れた強度および靱性を有しており、航空機、自動車などの信頼性が要求される部品や構造材に広く用いられている^{1)~3)}。通常の鋳造法により製造した Al-7%Si-0.5%Mg 合金は、発達したデンドライト状の α 相とその周りを埋める共晶 Si 相からなる組織形態をもち、共晶部分には針状の鉄系化合物の晶出が観察され、また、 Mg_2Si 相の晶出が認められる場合もある。一般に、デンドライト組織および粗大な共晶組織ならびに金属間化合物は、鋳造欠陥の

発生および応力の集中源となるため機械的性質を低下させることが知られている。このようなデンドライト状の α 相を微細かつ球状化させることによって応力集中の抑制、鋳造時の割れ発生の防止、さらに、機械的性質の向上が図られることが期待される。

最近、電磁攪拌法、粉末攪拌キャスト、ひずみ導入による再結晶化法、スプレーフォーミング法およびコンボキャストなど、デンドライト状の α 相を微細化および球状化させる種々の方法が提案されている^{4),5)}。これらの中で、AZ91 マグネシウム合金の鋳塊にひずみを導入し、半熔融状態まで加熱後鋳造することにより、加熱途中で再結晶が生じ、その再結晶粒界から溶解が始まり、

* 東京工業大学大学院 (東京都)。Graduate student of Tokyo Institute of Technology (Meguro-ku, Tokyo)。

** 東京工業大学学生 (東京都) [現在: 静岡ガス(株) (静岡市)]。Undergraduate student of Tokyo Institute of Technology (Meguro-ku, Tokyo) [Present: Shizuoka gas (Shizuoka-shi, Shizuoka)]。

*** 東京工業大学工学部金属工学科 (東京都)。Department of Metallurgical Engineering, Faculty of Engineering, Tokyo Institute of Technology (Meguro-ku, Tokyo)。

**** 旭テック(株)材料開発部 (小笠郡)。Asahi Tec Corporation (Ogasagun, Shizuoka)。

Table 1 Chemical composition of alloy specimen (mass%)

Alloy	Si	Mg	Fe	Cu	Ti	Mn	Ni	Zn	Cr	Sr	Al
Al-7%Si-0.5%Mg	7.1	0.57	0.12	0.00	0.00	0.01	0.0025	0.01	0.0076	0.0105	bal.

微細な再結晶粒が単一の固相粒子となることが報告されている⁶⁾。この半溶融凝固法では、完全な液相状態から casting する場合に比べ、加熱温度が低いことによる金型への熱負荷の減少、凝固欠陥の低減、初晶 α 相の球状化およびコストパフォーマンスの向上などが可能となり、凝固過程における結晶粒の均質・微細化が実現できるとされている。ところが、通常の casting 法により得られるデンドライト状 α 相をもつ材料を半溶融状態まで加熱するだけでは α 相の球状化は困難であり、半溶融温度での長時間保持が必要とされ、得られる α 相の球状組織も粗大なものである。半溶融状態において液体と同様の良好な流動性を得るためには固相の微細かつ球状化が必要であり、半溶融凝固法において α 相の微細かつ球状組織を得るための組織制御がきわめて重要なポイントとなる。

したがって、本研究では、通常の金型 casting 法により製造した Al-7%Si-0.5%Mg 合金鑄塊を用い、冷間圧延によりひずみを導入し、その後半溶融状態で加熱することによりデンドライト状組織の破壊ならびに球状化する過程を観察・解析した。特に、半溶融温度域までの加熱途中ならびに等温保持した際のひずみ導入による微視的な組織変化について検討した。

2. 実験方法

供試材には、共晶 Si 相の改良処理のため Sr を微量添加した Al-7%Si-0.5%Mg 合金を用いた。金型温度をあらかじめ 150°C に予熱して一定温度に保持した後、金型に注湯して鑄造材を作製した。その化学組成を Table 1 に示す。鑄造材より試料を所定の大きさ（厚さ約 10 mm）に切出し、535°C-24 h の均質化処理後、ひずみ導入のため 10~30% の冷間圧延を施した。各試料を Fig. 1 に示すように高周波加熱装置内に設置し、室温から 500°C までは 1.4°C/s の昇温速度で、その後はオーバーシュートを防止するために昇温速度を下げ、約 540 s かけて目標温度（580°C）に加熱し、120 s および 600 s の等温保持後、直ちに水中に焼入れた。また、半溶融温度域に加熱する際、加熱途中の組織変化を調べるため、昇温途中の各温度（540°C~580°C）に達した後、試料を直ちに焼入れた。加熱時の試料温度の測定は、Fig. 1 に示すように試料の中央部分まで穴をあけて熱電対を差込んで行った。温度の測定誤差は $\pm 1^\circ\text{C}$ である。得られた試料の中央部を切断し、腐食および電解研磨後光学顕微

Fig. 1 Schematic illustration of experimental apparatus for semi-solid process.

鏡ならびに走査型電子顕微鏡（SEM）を用いて組織観察した。腐食には 0.5% HF を用い、一部では Lacombe 液（50% HCl, 47% HNO₃, 3% HF）を用いて腐食した。また、組織を定量的に評価するため画像解析装置を用い、 α 相の固相率、平均粒子直径および形状の変化について解析した。

3. 実験結果および考察

3.1 鑄造材および圧延材の組織

通常の鑄造法により作製した Al-7%Si-0.5%Mg 合金の鑄造材（as-cast 材）ならびにそれを均質化処理後約 20% の冷間圧延した試料（as-rolled 材）の光顕組織を Fig. 2 に示す。as-cast 材では、 α 相がよく発達したデンドライト状組織となり、この場合のデンドライトアームスペーシング（DAS）は約 23 μm であった。また、デンドライトの周りを埋める共晶部分には、Sr 添加により微細化した共晶 Si 相および鉄系化合物が観察される。as-rolled 材では、as-cast 材で観察されたデンドライト組織に大きな形態的な変化は認められない。しかしながら、as-cast 材では各デンドライトがある程度方向性を持った組織であるが、圧延を施すことによってその方向性が少しくずれた組織となっているのがわかる。ただし、デンドライト組織形態そのものはこの段階では明確に残存している。一方、共晶 Si 相は冷間圧延前の均質化処理のため球状化している。

Fig. 2 Optical micrographs of an Al-7%Si-0.5% Mg alloy.

(a) as cast specimen with a typical dendrite microstructure, (b) as-rolled specimen after homogenization at 535°C for 24 h, showing a microstructure composed of homogeneously distributed dendrite and spherical eutectic Si particles.

3.2 加熱途中の組織変化

20%の冷間圧延試料を半熔融温度の580°Cまで加熱していく途中の各温度から水中に焼入れした試料の組織変化をFig. 3に示す。冷間圧延試料を540および560°Cまで加熱した試料では、 α 相および共晶Si相はas-rolled材に比べて大きさや形状がほとんど変化していない。一方、565°Cまで加熱した試料では、 α 相の空隙に分布していた共晶Si相の溶解が観察される。なお、この温度はAl-Si二元共晶温度577°Cより低く、したがって、 Mg_2Si 相を含む三元共晶に関係しているものと考えられる。また、特徴的なこととして、 α デンドライトアーム内に黒い線状の境界が観察されはじめる。これは後述するように、溶けはじめた共晶Si相が液相として α 相中の特定の境界に入り込み、 α 相内に比較的確な境界として観察されるようになってきているものと考えられる。したがって、加熱のこの段階は α 相中の境界が明確にはじめ、 α 相の微細化および球状化が開始する初期過程である。また、570°C付近では、共晶Si相の溶解がさらに進んで、 α 相は共晶Si相の液相に取り囲まれた形

Fig. 3 Optical micrographs of an Al-7%Si-0.5% Mg alloy quenched from 540 to 580°C during heating after cold-rolled by 20%, previously homogenized at 535°C for 24 h.

態となり、それによって α 相の分断、粒状化が一層進展していく様子が観察される。さらに、575°Cでは、 α 相はほぼ球状となり、共晶Si相はほとんど溶解して球状の α 相を包囲するようになる。なお、580°Cまで加熱した場合は、 α 相はさらに球状化し、また、575°Cの場合と比べてやや粗大化している。一般的に、組織の球状化は界面エネルギーを駆動力として進展し、そのためにより球状に近い形に α 相の形状が変化していくと考えられるが、前述のような冷間圧延後半熔融温度域までの加熱途中の組織観察から、デンドライト状から粒状への α 相の形状変化には共晶Si相の挙動が大きく作用していることが見出された。

このような加熱途中のそれぞれの温度における共晶Si相の凝固組織について、特に、 α デンドライトアーム中に現れる境界に着目し、走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いて調べた結果をFig. 4に示す。540°Cまで加熱した試料では、冷間圧延前の均質化処理および高温までの加熱により共晶Si相の球状化が観察され、また、共晶Si相そのものは圧延率の増大と関係なくほとんど変形を受けていないことがわかる。565°Cの場合、加熱により共晶Si相の一部が溶けはじめ、そのときの液相部分が焼入れ時の急冷によりしだ状として現れている。また、液相は α デンドライトアーム中に浸透し、 α 相間の

Fig. 4 Scanning electron micrographs of microstructures shown in Fig. 3.

(a), (b): quenched from 540°C, (c), (d): quenched from 565°C, (e), (f): quenched from 570°C. Microstructures of (b), (d) and (f) are enlarged ones.

境界を形成するようになる。さらに、570および575°Cまで加熱した試料では、溶解した共晶Si相の量が増えて α 相間の境界が明確になる。ここで、加熱によって共晶Si相の部分的な溶解が起こり、そのために溶け残ったSi相は形状が若干変化する。すなわち、共晶Si相は均質化処理および高温までの加熱により当初はほぼ球状であったが、一部の共晶Si相の溶解とともに溶け残った共晶Si相が、過共晶合金における初晶Si相と類似の形状、すなわち、塊状に変化する。このような塊状のものはAl-Si-Mg系の状態図⁷⁾より、557°Cの三元共晶温度での液相と共晶が共存する領域において粗大化した共晶である⁸⁾。さらに、580°Cまで加熱すると共晶は完全に溶解するので塊状形態のSi相は観察されない。

共晶Si相の溶解により生じる液相が初晶 α 相のデンドライトアームのどの位置に入り込むかについて検討するために、20%冷間圧延後共晶Si相の部分的な溶解が起こる前段階の540°Cまで加熱した試料を用い、Lacombe液を用いて腐食した際の光顕組織をFig. 5に示す。Fig. 5の組織からわかるように、 α 相中に直線の境界が観察された。この境界は、冷間圧延により α 相中に導入された転位が加熱時により低いひずみエネルギー状態となるよう再配列し、さらに、加熱により再結晶

Fig. 5 Optical micrograph showing black lines in the α phase of an Al-7%Si-0.5%Mg alloy quenched from 540°C during heating after cold-rolled by 20%.

による亜粒界または小傾角粒界となったものである。このような直線の境界は、ひずみ導入して加熱したAC9B合金においても観察されている⁹⁾。さらに、高温に加熱することにより共晶Si相の溶解が起こり、この境界に液相が浸透して境界として明確に観察されたものと考えられる。この境界が α 相のデンドライトアームを分離し、 α 相の粒状、微細化を進行させると考えられる。

3.3 加熱後等温保持中の組織変化

冷間圧延した試料を半熔融温度まで昇温後、その温度で等温保持したときの保持時間中の組織変化を調べた。

Fig. 6に、10および20%の冷間圧延試料を580°Cで120および600 s保持したときの組織変化を示す。10%の圧延率では、デンドライト結晶に十分なひずみを導入することが難しかったことにより、600 sの等温保持によっても α 相の形状は十分球状になっているとはいえない。また、120 sの保持時間に対しても溶け残ったAl-Si二元共晶が観察された。一方、20%の圧延率では、580°Cで120 s保持した場合、 α 相はほぼ球状となり、共晶は完全に消滅して液相と固相とが均一に分布した組織となっている。一般に、圧延率の増加に伴って導入されるひずみ量は多くなり、このひずみエネルギーが試料中に蓄積され、それによって原子の再配列がより促進されるものと考えられる。すなわち、蓄積されたひずみエネルギーが原子の拡散をより促進する役割を果たす。したがって、蓄積したひずみエネルギーが高い20%の圧延試料では共晶部分の溶解がより短い時間に完了したものと考えられる。等温保持時間の増加に伴って α 相粒子のわずかな粗大化が観察される。また、共晶部分は微細化されており、この微細な共晶部分は、半熔融温度域までの加熱により液相状態になったものが急冷されたことにより形成される組織である。

Fig. 6 Optical micrographs showing microstructural change of an Al-7%Si-0.5%Mg alloy isothermally held after heated to 580°C under different rolling reduction ratio R .

(a) $R=10\%$, 120 s hold, (b) $R=10\%$, 600 s hold, (c) $R=20\%$, 120 s hold, (d) $R=20\%$, 600 s hold

3.4 α 相の固相率, 平均粒径および形状因子の評価

冷間圧延試料を半熔融温度の580°Cまで加熱した後, その温度で各時間等温保持した際の α 相の固相率は, いずれも約 $65 \pm 3\%$ で, 圧延率および保持時間に対してほとんど変化が認められなかった。

Fig. 7に冷間圧延試料を580°Cまで加熱・等温保持した際の α 相の粒度分布を示す。15%冷間圧延後加熱のみの試料では粒度分布において粗大粒子が数多く測定された。しかしながら, 120および600 sの等温保持によって共晶部分が完全に液相状態となり, デンドライトアーム内の再結晶粒への液相の入り込みによる α 相の微細化によって粗大粒子の割合が減少している。一方, 30%冷間圧延試料では, 加熱のみの段階ですでに粒子の微細化が達成され, 等温保持時間の増加に従って粒度分布のピークが粗大側に若干移動する傾向を示している。

Fig. 8に, 冷間圧延試料を580°Cまで加熱した後, 等温保持した際の平均粒子直径の変化を圧延率に対して示す。10%の冷間圧延後580°Cで600 s等温保持した試料および15%の冷間圧延後580°Cまでの加熱のみの試料では, 粗大粒子が数多く存在し, これが α 相の粒子直径として測定されているので, 平均粒子直径は増加する。一方, 圧延率の増加に従って平均粒子直径の減少が観察されたが, 20%以上の圧延率では圧延率の増加による平均粒子直径の減少はそれほど大きくない。一般的に, ひずみ量を増加させれば結晶粒の成長速度以上に新しい結晶粒の核生成速度が増大するので, 再結晶後の結晶粒径はひずみ量の増加により小さくなる。しかしながら, 本

Fig. 7 Distribution of equivalent diameter d of α phase for an Al-7%Si-0.5%Mg alloy isothermally held after heated to 580°C for 900 s under different rolling reduction ratio, $R=15\%$ and $R=30\%$. t_h represents holding time.

Fig. 8 Mean particle size $\bar{d}$ of α phase for an Al-7% Si-0.5% Mg alloy isothermally held after heated to 580°C for 900 s under rolling reduction ratio R . t_h represents holding time.

実験のように共晶温度以上に加熱すると組織微細化には逆効果をもち, 再結晶後の結晶粒径はより大きくなるので, ひずみ量を増加させても平均粒子直径の大きな減少を生じなかったと考えられる。また, 保持時間の増加に

Fig. 9 Shape factor $F(s)$ of α phase for an Al-7%Si-0.5%Mg alloy isothermally held after heated to 580°C for 900 s under different rolling reduction ratio, $R=15\%$ and $R=30\%$. t_h represents holding time. $F(s) = 4\pi A/P^2$ where, A = area of the grain, P = perimeter of the grain.

従って粒子の粗大化がある程度起こっているが、15～30%の圧延率では120 sの保持時間に対して平均粒子直径は70～80 μm であり、顕著な増加は認められない。

次に、 α 相の形状について検討した。Fig. 9に、冷間圧延試料を580°Cまで加熱した後、等温保持した際の α 相の形状変化を示す。ここで、形状変化を調べるために形状因子 $F(s)$ を用いた。形状因子 $F(s)$ は、 $F(s) = 4\pi A/P^2$ から求めた。 A は粒子の面積、 P は粒子の周囲の長さを示す。形状因子は0に近づくほど粒子の形がより扁平な楕円体となり、1は完全な球形を意味する。15%の冷間圧延後580°Cまでの加熱のみの試料では、組織および粒度分布からわかるように、デンドライトの分断が不完全で微細および粗大粒子が共存し、粒状ではないものが数多く存在しているので形状因子の小さいものが比較的多く存在する。その結果、等温保持により α 相の形状変化が観察され、形状因子の大きな α 相粒子が次

第に増加する。一方、30%冷間圧延試料では、580°Cまでの加熱のみの段階ではほぼ粒状化して形状因子が1に近い α 相粒子が多く、また、等温保持に伴う α 相の形状変化はほとんど認められなくなることがわかる。以上のように、圧延率の異なる α 相の球状化の進展挙動が形状因子 $F(s)$ により明瞭に示された。

4. 結 言

通常の金型鑄造により製造したAl-7%Si-0.5%Mg合金鑄塊を用い、冷間圧延によるひずみの導入および半溶融凝固を適用して初晶 α 相の微細・球状化について検討した結果、以下のことが明らかになった。

- (1) 10～30%の冷間圧延によりひずみを導入したAl-7%Si-0.5%Mg合金を半溶融凝固することにより、微細では球状の α 相とさらに微細な共晶組織が得られた。
- (2) ひずみ導入後半溶融温度に加熱する際、溶解した共晶Siの液相が α 相の再結晶粒界に入り込み α 相の微細化が達成された。
- (3) ひずみ量の増加とともに共晶Si相の溶解が短時間に完了し、 α 相はより微細化される。ただし、ひずみ量が20%以上では α 相の微細化効果はほぼ飽和した。
- (4) ひずみ導入後半溶融温度まで加熱し、そこで等温保持した際、 α 相粒子のサイズおよび形状に対して600 s程度の保持時間では顕著な変化は認められなかった。

なお、本研究の一部は(株)軽金属奨学会の研究助成金によったことを記し、感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) R. Cron and R. A. Zeuch: U. S. Patent no. 2, 908, 566 (oct 13, 1959).
- 2) Y. H. Tan, S. L. Lee and Y. L. Lin: Metall. Mater. Trans., **26A** (1995), 1195.
- 3) Y. H. Tan, S. L. Lee and Y. L. Lin: Metall. Mater. Trans., **26A** (1995), 2937.
- 4) D. K. Kirkwood and P. Kapranos: Casting Technology, (1989), 16.
- 5) P. Kapranos, D. H. Kirkwood and C. M. Sellars: Proc. 3rd Int. Conf. on the Semi-Solid Processing of Alloys and Composites, (1994), 117.
- 6) 松井 明, 関原一敏, 鎌土重晴, 小島 陽: 軽金属, **45** (1995), 15.
- 7) D. A. Granger, R. R. Sawtell and M. M. Kersker: AFS Transactions, (1984), 579.
- 8) K. P. Young and Rudolf Fitze: Proc. 3rd Int. Conf. on the Semi-Solid Processing of Alloys and Composites, (1994), 155.
- 9) 大西 智, 関原一敏, 平田幸四郎, 鎌土重晴, 小島 陽: 鑄造工学, **69** (1997), 316.