Al-4.5mass%Cu 合金の固液共存域での変形挙動

坂口 信人*・常川 雅功*・渡辺 良夫*

Journal of Japan Institute of Light Metals, Vol. 61, No. 2 (2011), pp. 66-71

Deformation behaviors of Al-4.5 mass% alloy in semi solid state

Nobuhito SAKAGUCHI*, Masanori TSUNEKAWA* and Yoshio WATANABE*

Deformation behaviors of Al-4.5mass%Cu alloys in semi solid state were investigated with tensile tests and their *in situ* observation. Deformation behaviors were classified into six stages (from stage I to stage VI, stage I was the lowest temperature range of semi solid state) by mechanical properties, morphologies of fracture surfaces and *in situ* observations during deformation. In the stages occurred hearing (stage V and stage VI), the deformation was caused by flow of liquid phase. Therefore, the elongation could not be evaluated as the ductility of material in these stages. The range of temperature appearing the hot tearing was restricted to narrow temperature range in semi solid state, and was classified to stage II to stage IV. The tensile test method to research deformation behaviors of aluminum alloys in semi solid state with high accuracy was developed.

(Received August 13, 2010 Accepted October 13, 2010)

Keywords: semi solid, deformation behavior, tensile test, *in situ* observation

1. 緒 言

アルミニウム合金の半連続鋳造 (DC 鋳造) やダイカストなどの鋳造工程では、凝固中の鋳塊に割れが発生することがある。この割れは「凝固割れ」と呼ばれ、1950 年代から多くの研究者によってその形成メカニズムが調査されている。近年、それらの成果は渡部らによってレビューされ、過去の研究結果からその形成メカニズムを「固液共存状態で残留液相によるヒーリングが不可能な状態のときに凝固収縮により発生した引張応力あるいはひずみがあるときの固液共存状態の強度あるいは破断ひずみを越えたときに発生する」とまとめている^{1),2)}。また、Eskin らは、固相率の変化に伴い割れの起点、伝播経路および破壊モードが変化することを予想している³⁾。そのため、凝固割れの形成メカニズムを解明するには、固相率の変化に伴う変形挙動の相違を正確に把握することが極めて重要であると考えられる。しかし、渡部らのレビューでも報告されているように、アルミニウム合金の固液共存域の機械的性質は多くの研究者によって調査されているものの^{1),2)}、その多くが引張強さや伸びに注目しており、固液共存域でのき裂発生状況や液相の動きなどの変形 (破断) 挙動について詳細に調査したものはほとんどない。

本研究では、アルミニウム合金の固液共存域での引張試験をその場観察し、その変形挙動の調査を行った。

2. 実験方法

2.1 供試材

供試材組成として、代表的な二元系合金である Al-Cu 系合金から広い固液共存域を有する Al-4.5mass%Cu を選択した

(以下 mass% は % と略記する)。Table 1 に示す成分の溶湯から DC 鋳造により直径 330 mm、長さ 700 mm の円柱状鋳塊を作製した。その円柱状鋳塊から 90 mm×35 mm×300 mm の角材を切出し、幅 3 mm、厚さ 4 mm、長さ 10 mm の平行部を有する引張試験片に加工した。加工した試験片の平行部内に 1 mm 間隔で 10 本の伸び測定用の標点を罫書いた。Fig. 1 に試験片のミクロ組織を示す。ミクロ組織はデンドライトの形態を示し、デンドライト二次アーム間隔は 34.8 μm、平均結

Table 1 Chemical composition (mass%)

Cu	Fe	Si	Mg	Ti	Al
4.44	0.05	0.03	0.01	0.02	Bal.

Fig. 1 Microstructure of Al-4.5%Cu ingot.

* 住友軽金属工業株式会社 研究開発センター (〒455-8670 愛知県名古屋市港区千年3-1-12)。Sumitomo Light Metal Industries, LTD., Research & Development Center (3-1-12 Chitose, Minato-ku, Nagoya-shi, Aichi 455-8670). E-mail: NOBUHITO_SAKAGUCHI@mail.sumitomo-lm.co.jp

Fig. 2 Schematic drawing of tensile test machine.

Fig. 3 Heating property of tensile test machine.

晶粒径は $153\mu\text{m}$ であった。また、試験片を切出した角材の残部から直径 3mm、長さ 0.5mm の円盤試料を作製し、示差熱分析を行ったところ、供試材の固相線温度は 549°C であることがわかった。

2.2 引張試験方法

2.2.1 引張試験機の構成

Fig. 2 に本研究にて使用した引張試験機の概略図を示す。試験片は Ar ガスで置換されたチャンバ内のジグ上に設置し、赤外線ランプにより加熱した。この加熱方法では試験片と同時にジグも加熱されるため、ジグからの抜熱がなく、ジグと試験片の界面での凝固を解消することができた。試験温度への加熱中もしくは保持中に熱膨張する試験片とそれを固定するジグとの間に生じる熱応力は、引張負荷時まで試験片をジグに固定しない方法を採用することで完全に解消することができた。チャンバ上部のガラス窓から引張試験中の試験片の変形挙動をその場観察した。

2.2.2 引張試験機の加熱条件

固液共存域での引張試験では、試験片の一部が溶解するため、試験片に直接熱電対を貼付けてその温度を計測することができない。そのため、本研究では試験片直下の当て板に指示熱電対を設置し (Fig. 2)、指示熱電対と試験片の温度差を考慮した加熱指示を与えることで試験片の温度制御を行った。引張試験機にて室温から 450°C まで 5°C/s 、 450°C から 550°C まで 0.5°C/s で加熱した後、 550°C で保持する指示を与えた場合の加熱特性を Fig. 3 に示す。指示熱電対の温度は保持指示後約 50s 経過した時点で安定し、試験片の温度は約 250s 後に安定した。また、試験片が安定する温度は指示値より約

Fig. 4 Schematic drawing of heating profile for tensile test.

Fig. 5 Schematic drawing of heat treatment conditions for investigation of micro segregation.

Fig. 6 Change in microstructures by heat treatment conditions. ①, ②, ③, ④ and ⑤ are shown in Fig. 5.

13°C 低くかった。この温度差 (ΔT) は試験片とジグの材質および形状によって決まるため、それらを適正化することで ΔT を $\pm 1.5^\circ\text{C}$ の精度で管理することが可能であった。また、試験片平行部中央と端部の温度差は小さく、試験片内の温度分布は $\pm 0.6^\circ\text{C}$ の範囲内であった。そのため、 ΔT を考慮して指示温度を設定し、試験温度で 250s 以上保持することで、引張試験時の試験片温度を上記の精度で保証できることがわかった。

Fig. 4 に本研究の引張試験での試験片加熱パターンを示す。室温からの急速加熱による過加熱を防止するため、固相線以下の 533°C で予備加熱を行い、同温度で 300s 保持して試験片の温度を安定させた。その後、固相線 (549°C) 以上の試験温度まで 5°C/s で加熱し、同様に 300s 保持して試験片の温度を安定させた後、引張試験を行った。

2.2.3 引張試験時のマイクロ偏析

本研究での引張試験では、試験片を室温から固液共存域まで加熱・保持した後に引張負荷を与えるが、試験温度での保持時間が長いと溶質元素の拡散が生じてマイクロ偏析の均質化が進行する。しかし、鋳造時の凝固割れ現象をより正しく評価するためには、マイクロ偏析が残存した状態が望ましい。そ

Fig. 7 Change in Cu contents of inside of grain and grain boundary by heat treatment conditions. (a) Result of SEM-EDX analysis. (b) Example of detecting points in SEM-EDX analysis. ①, ②, ③, ④ and ⑤ are shown in Fig. 5.

のため、引張試験における加熱条件でのマイクロ組織の変化を調査した。試験片を切出した角材の残材から直径6mm、長さ15mmの円柱試験片を作製し、高周波誘導加熱炉により564°Cでの引張試験時の加熱を模擬したFig. 5に示す5条件での熱処理を行った。Fig. 6に各条件のマイクロ組織を示す。固相線以下での予備加熱を行った条件 (Fig. 5 ①, ②) ではデンドライトの形態を呈したが、固相線以上の564°Cに加熱した条件 (Fig. 5 ③~⑤) では保持時間の増加に伴いデンドライトアームの形態が不明瞭になった。Fig. 7 (a) には各条件の粒界 (もしくはデンドライトアーム間) と粒内のCu濃度を走査型電子顕微鏡に付属するエネルギー分散型X線分光器 (SEM-EDX) により分析した結果を示す。なお、SEM-EDXによる元素分析は、各条件につき粒界および粒内でそれぞれ10点行った。また、粒界の分析点は晶出物を含まず、周囲の晶出物の形態から粒界もしくはデンドライトアーム間と推察される点 (例えばFig. 7 (b)) を分析した。引張試験における加熱条件 (Fig. 4) を模擬した条件 Fig. 5 ③では、粒内と粒界のCu濃度に差異が認められるものの、粒内のCu濃度は铸造まのものと比較して増加しており、マイクロ偏析の均質化が生じていることがわかる。粒内のCu濃度の上昇は予備加熱直後の条件 (条件①) でも生じており、高温で試験片を保持する場合には避けることができないと考えられる。そのため、本研究の引張試験機を使用する場合は、試験温度が保証できる範囲で可能な限り迅速に試験を行う Fig. 4 の加熱条件が最適であると考えられる。

また、一度凝固した鋳塊を加熱して得られる固液共存域と凝固時の固液共存域とは、マイクロ偏析に差があることに加え、固相の形態が異なる可能性がある。しかし、固液共存域での固相の形態を液相から分離して観察し、加熱時と凝固時とでその差異を検討することは非常に困難である。そのため、本研究では、加熱時と凝固時に得られる固液共存域での固相の形態の差異が機械的性質や変形挙動に及ぼす影響が小さく無視できると仮定し、実験を行った。

2.2.4 引張試験条件

Fig. 4 の条件で試験片を加熱後、クロスヘッド速度0.05 mm/s で引張試験を行った。荷重は引張試験機のロードセ

ルで検出した。また、試験片平行部の標点間隔を試験前と試験後で比較し、その差異で伸びを評価した。さらに、チャンバ上部のガラス窓から引張試験中の試験片の変形挙動をその場観察した。また、破断後の引張試験片の破面をSEMにより観察し、変形挙動解析の一助とした。

3. 試験結果および考察

3.1 機械的性質

Fig. 8 に Al-4.5%Cu の引張強さおよび伸びの温度変化を示す。また、Fig. 8 には後述する Al-4.5%Cu の変形挙動の分類も併記する。Fig. 8 では、伸びを2つの基準により表記した。1つは試験片平行部の標点間隔の中で、最も変形量が小さい値を伸びとして、「Elongation (minimum)」と表記し、ほかは試験片の平行部全体 (最も遠い標点間の距離) で伸びを評価し、「Elongation (all range)」と表記した。

固相線 (549°C) 以下の温度範囲では8~9MPa程度の比較的高い引張強さが得られるものの、559°Cから561°Cにかけての約3°Cの範囲で引張強さは1MPa程度まで急激に低下した。さらに、595°Cでは0.1~0.3MPaまで低下し、615°C以上では0.1MPa以下を示した。

伸びは559°Cから564°Cの約5°Cの範囲で急激に低下した。また、すべての試験温度で「Elongation (all range)」は「Elongation (minimum)」と比較して大きな値を示した。Fig. 9 に595°Cで引張破断させた試験片の引張方向の断面観察結果を示す。破断後の試験片の内部では、破断に至る主き裂以外にも微細なき裂が多数確認された。そのため、「Elongation (all range)」では、試験片平行部に存在するすべての微細なき裂が変形量に含まれてしまい、値が大きくなったと考えられた。一方、「Elongation (minimum)」では、試験片平行部の中で最も微細なき裂が少ない領域を評価しているため、値が小さくなったと考えられた。そのため、固液共存域での伸びをより正しく評価する指標としては、「Elongation (minimum)」が適当であると考えられた。

本研究で使用した引張試験機では、加熱範囲の大きさやジグ形状の制約により、試験片に与えることができる変位は10mm程度に制限される。559°C以下の試験温度では、伸び

Table 2 Classifications of deformation mechanism in semi solid state of Al–4.5%Cu

Low Temperature	Stage I	Very large uniform deformation is occurs.
Stage II	The strength of grain boundary decreases, and the ductility decreases remarkably. The ductile fracture in grain boundary occurs.
	Stage III	The strength decreases remarkably due to melting a part of grain boundary. Spikes which are unmelting part of grain boundary are observed on fracture surface.
	Stage IV	The strength and ductility decrease due to melting almost all grain boundary.
	Stage V	The healing, liquid flow into clacks or fracture surface, is observed. The migration of solid involving liquid flow is also occurred.
	High Temperature	Stage VI

Fig. 8 Change in mechanical properties and deformation behaviors.

Fig. 9 Cross section micrographs of sample tested at 595°C.

が非常に大きく、破断させることができなかった。それらについては、Fig.8中に「unbroken」として表記した。また、試験中に後述するヒーリング（き裂に液相が染出して、き裂が修復される現象）が生じたものについては伸びの評価を行わなかった。

3.2 変形挙動

前節で述べた機械的性質，引張試験その場観察および SEM による破面観察等から得られた結果をもとに，Al-4.5%Cu の固液共存域の変形挙動を **Table 2** に示す 6 つの領域（stage）に分類した。前述の Fig. 8 には Al-4.5%Cu の引張強さおよび伸びの温度変化に変形挙動の分類を併記した。以下に分類した各領域の特徴を述べる。

領域 I は固液共存域で最も低温で固相に近い領域である。そのため、その挙動は固相域の最も高温側での変形挙動でもある。強度は固相域と同等であり、延性も非常に大きい。**Fig. 10** に 545°C での引張試験前後の試験片外観を示す。試験片平行部が均一に変形し、約 10mm の変位（伸び：100%）

Fig. 10 Comparison of test piece surfaces before and after tensile test at 545°C.

Fig. 11 Comparison of test piece surfaces before and after tensile test at 559°C.

Fig. 12 SEM micrographs of fracture surface obtained by tensile test at 559°C.

を与えても破断しなかった。この領域では、粒界の強度が母相（粒内）の変形抵抗と同等もしくは大きいため、大きな塑性変形が生じたと考えられた。

領域Ⅱは、領域Ⅰと同等もしくはわずかに低い強度を示すものの、延性が低い領域である。**Fig. 11**に559°Cでの引張試験前後の試験片外観を示す。領域Ⅰとは異なり、大きな変形は確認されない。**Fig. 12**に559°Cの試験で得られた破面を示す。破面形態はいわゆる脆性破面とは異なり、低倍の観察では凹凸の激しい形態を示した。高倍の観察では、表面に微細なボイドやしわが確認され、延性破壊により形成された破面であると考えられた。そのため、この領域では、粒界が部分的に溶解しているものの、大部分は固相であり、固相が連結している部位が強度と変形を担うと考えられた。

領域Ⅲは、強度および延性が急激に低下する領域である。しかし、その強度は1~2MPa、伸びは1~2%程度であり、後

Fig. 13 SEM micrographs of fracture surface obtained by tensile test at 561°C.

Fig. 14 SEM micrographs of fracture surface obtained by tensile test at 595°C.

述する領域Ⅳと比べるといずれもわずかに高い。Fig. 13に561°Cの引張試験で得られた破面を示す。領域Ⅱの破面(Fig. 12)と同様に、低倍の観察にて凹凸の激しい形態を示した。しかし、高倍の観察にて、その表面に微細なボイドやしわは確認されず、大きさ数 μm の突起が多数確認された。領域Ⅲでは、領域Ⅱの状態よりもさらに粒界に生じる液相量が増加するため、強度および延性が低下すると考えられた。破面上で確認された突起は破断時に固相が連結していた部位の痕跡であると考えられた⁴⁾。

領域Ⅳでは、強度および延性が領域Ⅲからさらに低下し、ほとんど検出されなくなる(強度: 1MPa以下, 伸び: 1%以下)。Fig. 14に595°Cの引張試験で得られた破面を示す。領域ⅡおよびⅢの破面と比較すると、それらと同様に低倍の観察にて凹凸の激しい形態を示すものの、その凹凸は丸みを帯び、直径約200 μm の等軸粒の形態を呈した。この等軸粒の大きさは試験前の結晶粒径とほぼ等しく、結晶粒単位で凹凸が形成されていると考えられた。また、高倍の観察では、表面上にボイドや突起などの変形の痕跡は確認されなかった。そのため、領域Ⅳでは、粒界が完全に液相で覆われており、固相間の連結がほとんど消滅していると考えられる。しかし、後述する領域ⅤおよびⅥと比較すると、液相の量は少なく、液膜の厚さも薄いと推察され、試験片表面や破面からの液相の流出は表面張力により抑制されていると考えられた。

領域Ⅴは、破断時にヒーリングが確認される領域である。Fig. 15に615°Cでの引張試験のその場観察結果を示す。試験片に発生したき裂に周囲から液相が流込んでいる様子が確認された。また、領域Ⅴでは流込んできた液相で試験片が繋がり、ある程度の変位を与えても破断に至らなかった。これは、液相とともに残存する固相の移動が生じたためと考えられる。

領域Ⅵは、領域Ⅴと同様にヒーリングが確認される領域であるが、領域Ⅴよりも高温であり液相量が多いため、固相

Fig. 15 *In situ* observation of tensile test at 615°C.

Fig. 16 *In situ* observation of tensile test at 625°C.

の移動は生じない。Fig. 16に625°Cでの引張試験その場観察結果を示す。き裂に染出してきた液相は、領域Ⅴのように試験片をつなぐ役割を担わず、わずかな変位を与えると表面張力により分断された。

以上のように、固液共存域を6つの領域に分類した。渡部らが総括しているように^{1),2)}、凝固割れは、固液共存域にてヒーリングが生じないときに、凝固収縮によるひずみが材料の延性を超えた場合もしくは凝固収縮により生じる応力が材料の強度を超えたとき生じると考えられる。分類した6つの領域の中で、領域Ⅴおよび領域Ⅵでは割れが生じてヒーリングにより液相が補給されるため、それが成長する可能性は低いと考えられた。また、領域Ⅰでは非常に大きな延性を示し、凝固収縮によるひずみがそれを上回る可能性が非常に低く、凝固割れは生じないと考えられた。そのため、固液共存域の中でも凝固割れが生じるのは、ヒーリングが発生せず延性と強度が低い領域である領域Ⅱから領域Ⅳの挙動を示す温度範囲であると考えられた。

また、領域ⅤおよびⅥでは、試験片内の固体部の連結はほぼ失われており、見掛け上、液相が変形を担う。そのため、通常の塑性変形とは変形形態が異なり、試験片の伸びを塑性変形量として評価することはできないと考えられた。

4. 結 言

Al-4.5%Cu 合金の固液共存域での変形挙動の変化を調査し、以下の結果を得た。

(1) 固液共存域での変形挙動は、機械的性質、破面形態、引張試験その場観察で確認された破断挙動から6つの領域に分類される。

(2) 固液共存域の中で、凝固割れが生じる可能性がある温度範囲は、6つの変形挙動の中で領域Ⅱから領域Ⅳの挙動を示す限られた範囲である。

(3) ヒーリングが生じる領域Ⅴおよび領域Ⅵでは、見掛け上、液相が変形を担っており、伸びを塑性変形量として評価することはできない。

け上、液相が変形を担っており、伸びを塑性変形量として評価することはできない。

(4) 高い温度精度で固液共存域の機械的性質および変形挙動を評価することができた。今後、同手法を用いて凝固割れが生じやすい実用合金などの評価を行うことで、凝固割れの形成メカニズムが解明できる可能性がある。

参 考 文 献

- 1) 渡部智也, 木村亮介, 中澤 嵩, 千葉浩行, 田中宗平, 植木徹, 鳥山隆成, 吉田 誠: 軽金属, **58** (2008), 395-405.
- 2) 渡部智也, 木村亮介, 中澤 嵩, 千葉浩行, 田中宗平, 植木徹, 鳥山隆成, 吉田 誠: 軽金属, **58** (2008), 464-472.
- 3) D. G. Eskin and L. Katgerman: Metall. Mater. Trans. A, **38A** (2007), 1511-1519.
- 4) I. Farup, J. -M. Drezetl and M. Rappazl: Acta materialia, **49** (2001), 1261-1269.