A356 アルミニウム合金鋳物の組織と引裂靱性に及ぼす 高温溶体化処理の影響*

原田 陽平**・田村 信一***・熊井 真次**

Journal of The Japan Institute of Light Metals, Vol. 61, No. 5 (2011), pp. 213-219

Effects of high-temperature solutionizing on microstructure and tear toughness of A356 cast aluminum alloy*

Yohei HARADA*, Shinichi TAMURA*** and Shinji KUMAI**

A356 alloy was cast into permanent molds and subjected to T6 heat treatment. Two solutionizing (solution heat treatment) temperatures (540°C and 560°C) were used, with the holding time for each varied between 0 min and 240 min. Tear test specimens of 4 mm in thickness were machined from the castings. Tear toughness (UEp: unit crack propagation energy) was obtained from load-displacement curves. With increasing solutionizing holding time, eutectic silicon particles were found to become larger and mean interparticle distance was found to increase. The UEp of specimens solutionized at the higher temperature (560°C) increased with holding time until 120 min but decreased with longer holding times. SEM observation of fracture surfaces after tear testing revealed dimples originating from dispersed silicon particles within the eutectic phase. Fine dimples were also observed in the eutectic aluminum region in specimens with reduced UEp. These fine dimples were different from the dimples found to originate from the eutectic silicon particles.

(Received February 17, 2011 Accepted February 26, 2011)

Keywords: A356 alloy, solutionizing, tear toughness, morphological change, eutectic silicon particle

1. 緒 言

A356 (JIS-AC4CH) は、代表的な熱処理型鋳造用アルミニウム合金の一つである。また、この合金は鉄の含有量を低く抑えたプレミアム合金として知られ、強度と靱性がともに要求される航空機や自動車などの足回り部材に幅広く使用されている。この合金の組織は初晶 α -Al 相と共晶 Al/Si 相で構成され、共晶 Si 粒子は Al 母相内でサンゴ状に観察される。また、この合金は通常、溶体化処理から水焼入れ、自然時効処理、人工時効処理までを行う T6 処理を施して使用されている。溶体化処理は、Al 母相を過飽和固溶体とし、その後の人工時効処理によって析出強化させるために必要な熱処理である。一般的に高温で行われるため、溶体化処理中に共晶 Si 粒子の形態が変化し、合金の力学的特性に大きな影響を及ぼすことが知られている^{1),2)}。

近年、生産効率の向上の観点から、熱処理時間の短縮が望まれている。T6 処理の時間は主に、溶体化処理時間や自然時効時間、人工時効時間に分類される。したがって、T6 処理時間を短縮するためには、溶体化処理時間の短縮が時効時間の短縮と同様に有効である。溶体化処理時間は更に、(a) 昇温時間 (試料温度を室温から溶体化処理温度まで昇温するのに必要な時間) と (b) 溶体化処理温度での等温保持時間

に分類される。従来の溶体化処理温度 (540°C) よりも高温での溶体化処理は、等温保持時間短縮のための効果的な方法であると考えられる。また、溶体化処理温度まで高速に昇温することによっても、溶体化処理時間の短縮が期待できる。

高温での溶体化処理は共晶 Si 粒子の形態変化にも大きな影響を及ぼすと考えられる。しかしながら、A356 アルミニウム合金における共晶 Si 粒子の形態変化や引裂靱性に及ぼす高温溶体化処理の影響を調査した研究例は少ない。本研究では、従来よりも高温で溶体化処理を施した A356 アルミニウム合金鋳物を用いて、合金の組織と引裂靱性に及ぼす高温溶体化処理の影響を調査した。

2. 実験方法

2.1 供試材

本研究で用いた材料は A356 アルミニウム合金であり、日本鋳造工学会軽合金研究部会での鋳造、熱処理、機械加工によって作製された引裂試験片を提供していただき供試材とした。

2.2 鋳造

A356 アルミニウム合金インゴットは電気炉にて溶解した後、共晶 Si 粒子の改良処理のため溶湯中に少量の Sr を添加した。また、溶湯中の水素含有量を減らすために、Ar ガス

* 本論文は Materials Transaction, Vol. 52, No. 5 (2011), 848-855 に掲載したものである。

** 東京工業大学大学院総合理工学研究科 (〒226-8502 神奈川県横浜市緑区長津田町 4259)。Department of Materials Science and Engineering, Tokyo Institute of Technology (4259 Nagatsuta-cho, Midori-ku, Yokohama-shi 226-8502). E-mail: harada.yah@m.titech.ac.jp

*** 東京工業大学大学院生 (横浜市) [現在: (株)シマノ (堺市)]。Graduate Student, Tokyo Institute of Technology (Yokohama-shi). [Present: SHIMANO INC. (Sakai-shi, Osaka)].

を吹込む脱ガス処理を行った。脱ガス処理後、710~730°Cの溶湯を金型温度 140~160°C の JIS-H5202 舟金型³⁾ に铸込んだ。铸造材の平均化学組成は、Al-7Si-0.35Mg-0.13Fe-0.13Ti-0.005Sr (mass%) である。

2.3 熱処理

铸造材の熱処理には電気炉を用いた。溶体化処理温度を 540°C または 560°C とし、室温から 535°C または 555°C (昇温時、オーバーシュートを避けるための温度) までの昇温時間を 30 min とした。試料温度が 535°C または 555°C に達した後、時間を溶体化処理温度での等温保持時間と定義し、0 min から 240 min まで変化させた。

溶体化処理後、铸造材を水冷し、室温で 24 h 以上の自然時効処理をした後、155°C で 6 h の人工時効処理を行う T6 処理を施した。

また、流動層炉を用いた急速昇温によっても溶体化処理を施した。溶体化処理温度を 560°C とし、室温から 555°C までの昇温時間を 5 min とした。

溶体化処理後の熱処理は、前述の条件と同様である。

2.4 引裂試験

熱処理後の铸造材の中央部から、Fig. 1 に示すような引裂試験片を採取した。引裂試験片のノッチ方向は、引裂試験の際にき裂が铸造材の上方から下方に進展するようにした。試験片サイズは 28×56×4 mm³ であり、60° V ノッチの深さは 10 mm である。本研究に用いた引裂試験片は ASTM B871⁴⁾ に規定された標準試験片よりも小型であるが、小型引裂試験片の有用性については、アルミニウム合金铸造材を用いた靱性評価によって以前に調査されている⁵⁾。本論文では引裂試験片を铸造材に施された熱処理条件に従って、“S_{xxx} シリーズ” または “S_{xxx-yyy}” と呼称する。ここで、xxx は溶体化処理温度 (°C) を示し、yyy は溶体化処理温度での等温保持時間 (min) を示す。特に、急速昇温による熱処理を施された試験片については、“S_{xxx}^{*} シリーズ” または “S_{xxx-yyy}^{*}” のようにアスタリスクで区別する。引裂試験はインストロン型試験機を用いて、室温、クロスヘッド速度 0.5 mm/min で行った。得られた荷重-変位曲線から単位き裂進展エネルギー (UEp: unit crack propagation energy) を求め⁶⁾、引裂靱性を評価した。

2.5 組織観察

共晶 Si 粒子の形態変化を調査するために、試験片の研磨面を光学顕微鏡 (OM) にて観察した。また、粒子サイズなどの定量的な測定には画像解析ソフトウェアを用いた。粒子の平均直径および平均粒子間距離はそれぞれ式 (1) および

式 (2) で計算した。ここで、 d は粒子の直径、 N は粒子数、 A_i は粒子の断面積、 l は粒子間距離、 R は粒子半径、 V_v は粒子の体積率である。また、試料の研磨面を 90 ml H₂O-15 ml HCl-10 ml HF 水溶液と 75 ml H₂O-25 ml HNO₃ 水溶液を用いてエッチングし、共晶 Si 粒子の形態を走査型電子顕微鏡 (SEM) にて詳細に観察した。また、引裂試験後の破断面も SEM にて観察した。

$$d = \sqrt{\frac{4 \sum_{i=1}^N A_i}{\pi N}} \quad (1)$$

$$l = \frac{4R(1-V_v)}{3V_v} \quad (2)$$

3. 実験結果および考察

3.1 組織と引裂靱性に及ぼす高温溶体化処理の影響

溶体化処理温度での等温保持時間と UEp の関係を Fig. 2 に示す。S₅₆₀ シリーズは S₅₄₀ シリーズと比較して UEp が大きかった。また、S₅₄₀ シリーズの UEp は等温保持時間の延長とともに増加した。S₅₆₀ シリーズの UEp も等温保持時間が 120 min までは増加したが、その後は減少した。

S₅₄₀₋₀ および S₅₄₀₋₂₄₀ の OM 写真を Fig. 3 に示す。初晶 Al (白色) のデンドライトセル境界に、共晶 Si 粒子 (黒色) および Al-Fe 系金属間化合物粒子 (灰色) が分散している組織が観察された。また、溶体化処理温度での等温保持時間が 240 min の試験片では、共晶 Si 粒子は Fig. 3(b) に示すように粗大かつ球状を呈していた。S₅₆₀₋₂₄₀ の OM 写真を Fig. 4 に示す。S₅₄₀₋₂₄₀ と同様に、粗大かつ球状を呈する共晶 Si 粒子が観察された。A356 アルミニウム合金を Al-Si-Mg 三元系共晶温度 (およそ 560°C) 以上である 570°C で 180 min 等温保持する熱処理を行った際に、合金中の共晶相が局所的に融解した報告例がある⁷⁾。本研究においては、S₅₆₀₋₂₄₀ の組織中に共晶相が融解した痕跡は観察されず、局所的な融解なしで、従来の溶体化処理温度 (540°C) よりも高温 (560°C) での溶体化処理が達成できたといえる。また、S₅₄₀₋₀ および S₅₆₀₋₀ のデンドライトアーム間隔 (DAS) はそれぞれ 14 μm および 21 μm であった。等温保持時間が増加しても DAS は一定であるため、熱処理を施す以前の铸造組織の段階から、S₅₄₀ シリーズと S₅₆₀ シリーズの DAS に差異があったものと考えられる。

S₅₄₀₋₀、S₅₄₀₋₆₀ および S₅₆₀₋₀ の SEM 写真を Fig. 5 に示す。これらの試験片は腐食液を用いてエッチングしているため、共

Fig. 1 Schematic diagram of tear test specimen.

Fig. 2 Relation between solutionizing holding time and UEp.

Fig. 3 Optical micrographs. Solutionizing temperature and holding time: (a) 540°C, 0 min, (b) 540°C, 240 min.

Fig. 4 Optical micrograph. Solutionizing temperature and holding time: 560°C, 240 min.

晶 Si 粒子の形態を詳細に観察することができた。A356 アルミニウム合金中の共晶 Si 粒子の形態は、溶体化処理中にサング状から球状へと変化することがよく知られている。 S_{540} シリーズの場合、溶体化処理温度での等温保持時間が 60 min の段階で、共晶 Si 粒子の形態は球状となっていた (Fig. 5(b))。一方、 S_{560} シリーズの共晶 Si 粒子の形態は、等温保持を開始した 0 min の段階ですでに球状を呈していた (Fig. 5(c))。つまり、溶体化処理温度 (560°C) への昇温過程に、共晶 Si 粒子は球状へと形態変化したと考えられる。560°C での高温溶体化処理の場合、従来の温度 (540°C) と比較して Si 原子はより容易に拡散することができ、共晶 Si 粒子はより短時間で形態変化を起こすことが可能であったと考えられる。

溶体化処理温度での等温保持時間と共晶 Si 粒子の平均直径の関係を Fig. 6 に示す。ここで、共晶 Si 粒子の平均直径は、粒子が球状であると仮定して計算した。 S_{540} シリーズの

Fig. 5 SEM micrographs (deeply etched specimens). Solutionizing temperature and holding time: (a) 540°C, 0 min, (b) 540°C, 60 min, (c) 560°C, 0 min.

Fig. 6 Relation between solutionizing holding time and mean eutectic Si particle size.

場合、共晶 Si 粒子の形態は、等温保持時間が 60 min 以上で球状であった。したがって、 S_{540} シリーズにおける共晶 Si 粒子の平均直径は、等温保持時間が 60 min 以上でプロットした。等温保持時間の延長とともに、共晶 Si 粒子は粗大化した。また、 S_{560} シリーズの共晶 Si 粒子は、 S_{540} シリーズと比

Fig. 7 Relation between solutionizing holding time and mean interparticle distance between eutectic Si particles.

Fig. 8 Relation between solutionizing holding time and mean area of Al-Fe intermetallic compound particles.

Fig. 9 SEM micrograph (deeply etched specimen). Solutionizing temperature and holding time: 560°C, 240 min.

Fig. 10 Relation between solutionizing holding time and maximum stress (σ_{max}) in S_{560} series.

較して粗大であった。溶体化処理温度での等温保持時間と共晶 Si 粒子の平均粒子間距離の関係を **Fig. 7** に示す。共晶 Si 粒子の粒子間距離は、等温保持時間の延長に従って増加した。

溶体化処理温度での等温保持時間と Al-Fe 系金属間化合物

Fig. 11 Relation between solutionizing holding time and wave length (λ) of regression curve for S_{560} series.

Fig. 12 SEM micrographs of fracture surfaces after tear testing. Solutionizing temperature and holding time: (a) 540°C, 0 min, (b) 540°C, 90 min, (c) 540°C, 240 min.

粒子の平均断面積の関係を **Fig. 8** に示す。 S_{540} シリーズの場合、粗大な化合物粒子が等温保持時間の初期に微細化していく様子がうかがえる。一方、 S_{560} シリーズの場合、試験片が溶体化処理温度に達した際には化合物粒子はすでに微細化していた。また、ある時点で微細化した化合物粒子は等温保持時間をそれ以降延長しても、粒子サイズに変化はなかった。**Fig. 9** に $S_{560-240}$ の SEM 写真を示す。細かく分断した Al-Fe 系金属間化合物粒子が観察された。A356 アルミニウム合金は、鉄の含有量を低く抑えた合金であるため、試料中の Al-Fe 系金属間化合物粒子の量は共晶 Si 粒子と比較すると非常に少ない。したがって、UEp に及ぼす Al-Fe 系金属間化合物粒子の影響は非常に小さいと考えられる。

本研究において、UEp は引裂試験で得られた荷重-変位曲線を余弦曲線で回帰する方法を用いて評価している⁶⁾。ここで得られる回帰曲線の最大応力 ($\sigma_{\max}$) と波長 (λ) が UEp のパラメータである。溶体化処理温度での等温保持時間と S_{560} シリーズにおける $\sigma_{\max}$ および λ の関係を **Fig. 10** および **Fig. 11** にそれぞれ示す。等温保持時間が増加しても $\sigma_{\max}$ は一定であった。一方、等温保持時間と λ の関係は UEp との関係 (**Fig. 2**) とよい一致を示した。 λ は試料の延性を表すパラメータであるため、本研究における試料の靱性 (UEp) は延性に大きく依存していることがわかった。

Fig. 12 に S_{540-0} 、 S_{540-90} および $S_{540-240}$ における引裂試験後の破断面の SEM 写真を示す。破断面は共晶 Si 粒子を起源としたディンプルで覆われていた。試料が引張荷重を受けた際、共晶 Si 粒子の周囲にボイドが発生し、隣接するボイドが連結していくことでき裂が進展し、試料が破断する。ボイドの発生、連結によって形成されたディンプルが試料の破断面に表れていることから、引裂試験により発生したき裂は共晶領域

を伝播したと考えられる。また、ディンプルは溶体化処理温度での等温保持時間の延長に伴って大きくなっていった。これは、等温保持時間と共晶 Si 粒子の形態変化を示した結果 (**Fig. 6**, **Fig. 7**) とよく一致する。共晶 Si 粒子の平均粒子間距離が増加すれば、延性な Al 母相はより多く伸びることができ、大きなディンプルを形成する。したがって、共晶 Si 粒子の平均粒子間距離が増加するほど UEp は増加する。

Fig. 13 に S_{560-0} 、 S_{560-90} および $S_{560-240}$ における引裂試験後の破断面の SEM 写真を示す。これらの試料の破断面もディンプルで構成されていた。また、等温保持時間の延長に伴って、ディンプルは大きくなっていった。ここで、 S_{560} シリーズの UEp は等温保持時間が 120 min までは増加したが、それ以上に等温保持時間が増加すると $S_{560-240}$ のように UEp が減少した点について注目する。 $S_{560-240}$ では **Fig. 13(c)** の矢印で示したように、非常に微細なディンプルも観察された。これらの微細なディンプルは、共晶領域に分散した Si 粒子を起源とする粗大なディンプルとは明らかに異なる。**Fig. 13(d)** は、 $S_{560-240}$ で観察された微細なディンプル部分を拡大した SEM 写真である。ディンプルの底に非常に微細な粒子が観察された。

T6 処理を施した A356 アルミニウム合金では、過飽和固溶体から微細な β'' - Mg_2Si 粒子が析出する過程で Al 母相の時効硬化が起こる。Zhang は時効過程で β'' - Mg_2Si 粒子が形成される際に、Mg 原子と結合しなかった過剰な Si 原子が、共晶 Al 相内に析出すると報告している⁸⁾。その際、共晶領域では Al 母相と共晶 Si 粒子の熱膨張係数差より生じる熱応力によって転位密度が増加しているため、その高密度の転位が Si 粒子の不均質核生成を効果的に促進し、転位に沿って Si 粒子が析出すると説明している。また、溶体化処理の水焼入れの過程で冷却速度を遅くした場合、高温で Si 原子が拡散する時

Fig. 13 SEM micrographs of fracture surfaces after tear testing. Solutionizing temperature and holding time: (a) 560°C, 0 min, (b) 560°C, 90 min, (c) (d) 560°C, 240 min.

間が増えるために、Si 原子は容易にクラスタを形成することができ、後の時効処理で Si 粒子が析出する際にそのクラスタが核生成のための前駆体となっている可能性も述べている。

本研究において、高温で長時間の溶体化処理を施した $S_{560-240}^*$ の共晶領域部でのみ、微細な粒子が観察された。微細なディンプルの底で観察された微細な粒子は、時効処理中に析出した Si 粒子であると考えられる。共晶 Si 粒子の平均粒子間距離が比較的短い場合、過剰な Si 原子は周囲に存在する共晶 Si 粒子へと十分に拡散することができる。ところが、高温かつ長時間の溶体化処理によって共晶 Si 粒子の平均粒子間距離が大きくなると、過剰な Si 原子は共晶 Si 粒子間の Al 母相中に析出してしまふ。引裂試験の際、析出した微細な Si 粒子の周囲に微細なボイドが形成されることで、延性な Al 母相が大きく伸びることを妨げていると考えられる。結果的

Fig. 14 SEM micrographs (deeply etched specimens of S_{560}^* series). Solutionizing temperature and holding time: rapidly heated at: (a) 560°C, 0 min, (b) 560°C, 10 min.

Fig. 15 Relation between solutionizing holding time and mean interparticle distance between eutectic Si particles in S_{560}^* series.

Fig. 16 Relation between solutionizing holding time and U_{Ep} in S_{560}^* series.

Fig. 17 SEM micrograph of fracture surface after tear testing for $S_{560-240}^*$.

Fig. 18 (a) Typical SEM micrograph of fracture surface after tear testing for S_{560}^* series; (b) magnified SEM micrograph of casting defect. Solutionizing temperature and holding time: rapidly heated at 560°C, 30 min.

に、 $S_{560-240}^*$ のように高温かつ長時間の溶体化処理を行った試料では、UEp が低下する。

3.2 流動層炉を用いた高速昇温の影響

高速昇温した S_{560-0}^* および S_{560-10}^* の SEM 写真を Fig. 14 に示す。2.3 節で述べたように、これらの試料は流動層炉を用いて溶体化処理温度である 560°C まで急速に昇温した。 S_{560}^* シリーズの共晶 Si 粒子の形態は、溶体化処理温度での等温保持時間が 10 min の段階で球状を呈していた。 S_{560-0}^* の共晶 Si 粒子は、温度が溶体化処理温度 (560°C) に達した際にはすでに球状へと変化していた (Fig. 5(c))。高速昇温した S_{560}^* シリーズの場合、共晶 Si 粒子の形態変化が起こるまでに必要な熱処理時間を昇温中に確保できない。したがって、共晶 Si 粒子が形態変化するためには、 S_{560}^* シリーズでの等温保持時間より長い保持時間が必要であったと考えられる。溶体化処理温度での等温保持時間と共晶 Si 粒子の平均粒子間距離の関係を Fig. 15 に示す。 S_{560}^* シリーズの粒子間距離は S_{560}^* シリーズよりも若干大きかった。また、溶体化処理温度での等温保持時間と UEp の関係を Fig. 16 に示す。共晶 Si 粒子の平均粒子間距離はわずかながら大きかったにもかかわらず、 S_{560}^* シリーズの UEp は S_{560}^* シリーズよりも小さかった。Fig. 17 に $S_{560-240}^*$ における引裂試験後の破断面の SEM 写真を示す。高速昇温した試料であっても、高温かつ長時間の溶体化処理を施した $S_{560-240}^*$ において、共晶 Al 母相中に析出した微細な Si 粒子を起源とする微細なディンプルが観察された。また、 S_{560}^* シリーズの破断面には、Fig. 18 に示すような铸造欠陥がいくつか観察された。材料の UEp は共晶 Si 粒子の形態だけではなく、このような铸造欠陥にも大きく影響を受ける。 S_{560}^* シリーズと S_{560}^* シリーズは、それぞれ異なる時期に铸造された材料である。現段階では、 S_{560}^* シリーズでのみ観察された铸造欠陥が、溶体化処理を施す以前からすでに材料中に含まれていたものと推察している。高速昇温した S_{560}^* シリーズにおける UEp に関しては、今後更に詳細な調査が必要である。

4. 結 言

A356 アルミニウム合金の溶体化処理を従来の温度 (540°C) よりも高温 (560°C) で行い、共晶 Si 粒子や Al-Fe 系金属間化合物粒子の形態に及ぼす高温溶体化処理の影響や、それらの形態変化が合金の引裂靱性 (UEp) に及ぼす影響を調査した。高温での溶体化処理により、共晶 Si 粒子のサンゴ状から球状への形態変化が促進された。共晶 Si 粒子の平均粒子間距離は、溶体化処理温度での等温保持時間の延長に伴って増加した。また、従来の温度で溶体化処理を施した S_{540}^* シリーズの UEp は、等温保持時間の延長に伴って増加した。一方、高温溶体化処理をした S_{560}^* シリーズの UEp は、等温保持時間が 120 min までは増加したが、その後は減少した。UEp の増加は共晶 Si 粒子の平均粒子間距離の増加によるものと推察される。しかしながら、粒子間距離が大きくなりすぎると、UEp を低下させる要因となる。UEp の低下した試料では、共晶 Al 母相中に析出した微細な Si 粒子を起源とする微細なボイドが形成されており、延性な Al 母相が十分に伸びるのを阻害したと考えられる。

謝 辞

本研究を進めるにあたり多大なるご協力を頂きました、日本铸造工学会軽合金研究部に深く感謝申し上げます。

参 考 文 献

- 1) L. Pedersen and L. Arnberg: Metallurgical and Materials Transactions A, **32A** (2001), 525–532.
- 2) D. Apelian, S. Shivkumar and G. Sigworth: AFS Transactions, 89–138 (1989), 727–742.
- 3) JIS Handbook, Non-ferrous Metals, Japanese Standard Association, (2001), pp. 957–965.
- 4) ASTM Standard, Designation: B871-96, Standard Test Method for Tear Testing of Aluminum Alloy Products, (1996), pp. 602–608.
- 5) H. Zhu, S. Kumai, T. Tanaka and A. Sato: Material Transactions, **45** (2004), 1714–1721.
- 6) S. Kumai and A. Mukaiyama: J. JFS, **79** (2007), 671–675.
- 7) M. Koga, N. Ohnishi, Y. Iizuka, T. Takaai and Y. Nakayama: Journal of Japan Institute of Light Metals, **43** (1993), 297–302.
- 8) D. L. Zhang: Materials Science Forum, 217–222 (1996), 771–776.