耐熱マグネシウム合金半凝固射出成形材の 凝固割れ感受性評価

藤井 敏男*・山本 元道**・篠崎 賢二**・三澤 亮太***
永井 淳嗣****・吉田 誠*****・田中 達也*****

Journal of The Japan Institute of Light Metals, Vol. 63, No. 6 (2013), 223–228
© 2013 The Japan Institute of Light Metals

Evaluation of solidification cracking susceptibility of heat-resistant magnesium alloy produced by semi-solid injection molding process

Toshio FUJII*, Motomichi YAMAMOTO**, Kenji SHINOZAKI**, Ryota MISAWA***
Atsushi NAGAI****, Makoto YOSHIDA***** and Tatsuya TANAKA*****

New tentative semi-solid injection molding machine for magnesium alloy which was able to control solid fraction from 0 to 30% was developed. The solidification cracking susceptibility of the heat-resistant magnesium alloy containing 4% Al and 3% Ca fabricated by semi-solid injection molding and die-casting were investigated. The critical strain for solidification cracking of the magnesium alloy was obtained by U-type hot cracking test using in-situ observation method. High temperature ductility curve between liquidus and solidus temperatures were compared with semi-solid injection molding and die-casting. As result, solidification cracking susceptibility of semi-solid injection molding process with solid fraction of 25% was better than that of die-casting.

(Received November 19, 2012 Accepted March 28, 2013)

Keywords: semi-solid process, injection molding, heat-resistant magnesium alloy, solidification cracking, fracture strain

1. 緒 言

比剛性が高いマグネシウム合金はアルミニウム合金よりも軽量で、樹脂系材料よりもリサイクル性に富み、軽量化材料として期待されている。このため現状では、マグネシウム合金はダイカスト¹⁾やチクソモールディング²⁾により、自動車部品、パソコン、カメラなどの筐体に多く適用されている。しかしながら、マグネシウム合金を自動車等の重要保安部品の部材として適用された例は少ない。この理由の一つにマグネシウム合金の耐熱性とクリープ特性がアルミニウム合金に比べ低いことがあげられる。

近年、耐熱性やクリープ特性を向上させた難燃性マグネシウム合金の一つとしてCaを添加した合金^{3)~5)}が開発されている。しかしながら、Caを含むマグネシウム合金は铸造性が悪く、凝固割れが発生しやすいとされている^{3)~5)}。この問題を解決する手段として、新たな射出成形法である半溶

融・半凝固プロセスが提案されている^{6),7)}。本成形法では、原理上、凝固する際に収縮量が小さいため、凝固割れが発生しにくく、さらに、微細組織が得られ、ダイカスト成形よりも機械的特性が向上すると言われている^{3),4)}。

すでに著者らは高い固相率で成形できる新たな半凝固プロセスを考案^{8),9)}した。本方法は耐熱マグネシウム合金溶湯を連続冷却しながら半凝固で攪拌し、半凝固スラリーを射出成形するプロセスであり、その射出成形装置の試作と最適射出条件をすでに報告^{8),9)}した。そこで、本報告では、開発した半凝固射出成形プロセスによって凝固割れの発生が抑制できるかどうかについて、凝固割れ感受性評価金型を使って調べた。さらに、拘束緩和式U型高温割れ試験機を用いて半凝固材の高温延性曲線^{10),11)}を求め、半凝固組織そのものの凝固割れ感受性の評価を行った。

* 広島県立総合技術研究所西部工業技術センター (〒737-0004 広島県呉市阿賀南2-10-1)。Hiroshima Prefectural Technology Research Institute (2-10-1 Agaminami, Kure-shi, Hiroshima 737-0004). E-mail: t-fujii@seibu-kg.pref.hiroshima.jp

** 広島大学大学院工学研究院 (東広島市)。Graduate School of Engineering, Hiroshima University (Higashi-Hiroshima-shi, Hiroshima)。

*** 広島大学大学院工学研究科大学院生 (東広島市) [現在: (株)神戸製鋼所]。Graduate School of Engineering, Hiroshima University (Higashi-Hiroshima-shi, Hiroshima) [Present: Kobe Steel, Ltd.]。

**** 広島大学大学院工学研究科大学院生 (東広島市) [現在: (株)NTN]。Graduate School of Engineering, Hiroshima University (Higashi-Hiroshima-shi, Hiroshima) [Present: NTN Corporation]。

***** 早稲田大学各務記念材料技術研究所 (東京都)。Kagami Memorial Research Institute for Materials Science and Technology, Waseda University (Shinjyuku-ku, Tokyo)。

***** 同志社大学理工学部 (〒610-0321 京都府京田辺市多々羅都谷1-3)。Department of Mechanical and Systems Engineering, Doshisha University (1-3 Tataramiyakodani, Kyotanabe-shi, Kyoto 610-0321)。

Table 1 Chemical compositions of magnesium alloys (mass%).

Al	Mn	Ca	Si	Cu	Ni	Fe	Mg
4.03	0.37	3.17	0.02	0.0001	0.0005	0.002	Bal.

Table 2

(a) Conditions of semi-solid injection molding.

Slurry temperature (°C)	592, 602, 640
Plunger speed (m/s)	1.5
Pressure (MPa)	70
Die temperature (°C)	200

(b) Conditions of die casting.

Slurry temperature (°C)	720
Plunger speed (m/s)	2
Pressure (MPa)	90
Die temperature (°C)	150

(c) Conditions of squeeze casting.

Slurry temperature (°C)	720
Plunger speed (m/s)	0.2
Pressure (MPa)	100
Die temperature (°C)	250

2. 使用材料および実験方法

2.1 使用材料

実験に用いたCa添加の耐熱マグネシウム合金の化学組成を **Table 1** に示す。また、熱分析によって求めたこの材料の液相線温度は612°C、固相線温度は522°Cであった。開発した型締め力2MNのマグネシウム合金用半凝固射出成形機⁹⁾を用いて **Table 2(a)** の成形条件により、幅100mm、長さ120mm、厚さ5.5mmの平板を作製した。

Fig. 1 に半凝固射出成形機のスラリー生成部および射出部の概略図を示す。上部のホッパーで溶けたマグネシウム合金はその下部からスクリー上部に流れ、所定の固相率の半凝固スラリーを生成するため、バレル、プランジャ、シャットオフバルブおよびノズルの温度がそれぞれの領域の加熱ヒータで制御されている。ここでは、プランジャ部に近い、バレル設定温度を半凝固スラリーの代表温度とした。

比較材として、0.9MNダイカストマシンを用い、**Table 2(b)** の成形条件により幅60mm、長さ150mm、厚さ7mmの平板を作製し、また、2.5MNのスクイズキャストマシンを用いて **Table 2(c)** の成形条件により幅100mm、長さ60mm、厚さ12mmの平板を作製した。なお、ダイカスト成形およびスクイズキャスト成形の溶湯温度は湯回り不良を防止するため、液相線温度より約100°C高い720°Cとした。これら平板から高温引張試験用および凝固割れ発生限界ひずみ測定用の試験片を作製した。また、これら試料の平均結晶粒径をEBSDにより測定した。

2.2 高温引張試験

Fig. 2 に高温引張試験片の形状を示す。ダイカストおよびスクイズキャスト成形した平板から直径6mm、長さ100mmの丸棒試験片を切出した。なお、半凝固射出成形材は板厚が

Fig. 1 Schematic illustration of screw and plunger parts in the tentative semi solid injection molding machine. **Fig. 2** Tensile test specimen for measuring the mechanical properties at high temperature of magnesium alloys. **Fig. 3** Appearance and dimension of solidification crack susceptibility test mold and a test sample by using semi-solid injection molding.

5.5mmの平板であるため、一部に平面を有する直径6mmの丸棒状試験片とした。その試験片中央を高周波誘導加熱によって300°Cから固相線温度522°C付近に急速加熱した後、引張試験¹¹⁾を行い、各温度における応力ひずみ曲線から、解析に必要な物性値を求めた。

2.3 その場観察法による高温延性曲線の取得方法

成形した平板から幅10mm、長さ100mm、板厚4.5mmの板を切出し、前報¹⁰⁾で提案した拘束緩和式U型高温割れ試験治具を用いて、凝固割れ発生限界ひずみをその場観察法に

(a) Relationship between apparent Young's modulus and temperature

(b) Relationship between 0.2% proof stress and temperature

(c) Relationship between strain hardening coefficient and temperature

Fig. 4 Mechanical properties of magnesium alloys.

Fig. 5 Thermophysical and physical properties of magnesium alloys for using in thermal stress analysis which was calculated with software JMatPro.

によって求めた。スラリー温度 592°C, 602°C, 640°C で成形した試料の凝固割れ発生限界ひずみと温度との関係を取得し、各スラリー温度での固液共存温度域における高温延性曲線¹⁰⁾を得た。

2.4 凝固割れ感受性評価方法

凝固割れ感受性評価金型¹¹⁾の概略図を Fig. 3 に示す。凝固収縮する際、両端部に設けた拘束部 (A) によってそのコーナーにひずみが発生し、本実験では、主にゲート側拘束部コーナーに凝固割れが発生した。このコーナーの全周囲長さに対する凝固割れが発生した長さの割合を求め、凝固割れ率¹¹⁾とした。拘束距離 $L=105\text{mm}$ 、チルタイム 5s において、Table 2(a) に示す半凝固射出条件のうちスラリー温度 592°C で成形した場合の凝固割れ率と Table 2(b) に示すダイカスト条件で成形した場合の凝固割れ率を比較した。

2.5 熱応力連成解析方法

凝固割れ感受性評価金型におけるひずみ解析においては節点数約 140,000、要素数約 720,000 の四面体 1 次要素の 1/2 対称モデルとした。特に、凝固割れが生じるコーナー付近での要素の大きさは 0.5mm とした。熱応力解析は線形硬化弾塑性体モデルとし、解析に必要な物性値 (みかけのヤング率, 0.2% 耐力, 加工硬化係数) は前報¹¹⁾と同様な方法で実測し、これらの物性値を Fig. 4 に示す。その他の物性値は JMatPro で算出し、Fig. 5 に示す。解析にはこれらの物性値を入力し、熱応力連成解析が可能な鋳造シミュレーションソフト ProCAST を使い、実機鋳造で凝固割れが発生したゲート側拘束部コーナーにおいて凝固中に生じるひずみを求めた。ここでは、凝固割れ発生に寄与するひずみとして、局所的な領域での等価的なひずみという意味で相当塑性ひずみを採用した。

3. 半凝固射出成形法で作製したマグネシウム合金の組織形態

固相率を変量させるため、状態図上で固相率を 0% (640°C), 15% (602°C), 30% (592°C) と概算し、これらの温度をスラリー生成部の設定温度とし半凝固射出成形を行った。Fig. 6 は作製された試験片の凝固組織である。この組織写真から点算法により求めた固相率は 7.5% (640°C), 11.8% (602°C), 25.4% (592°C) であり、640°C の場合を除き、目標固相率よりも少し低い値であった。いずれの組織においても初晶の粒径は 100~150 μm であり、残りの液相が凝固した部分は微細な共晶組織を呈している。

Fig. 6 The metallographic structure photographs by the semi-solid temperature condition.

Fig. 7 Solidification cracking rate on test mold for each processing.

4. 実機鋳造での凝固割れ感受性

Fig. 7は拘束端距離 $L=105\text{mm}$ の金型を用い、固相率が25.4%での半凝固射出成形材とダイカスト成形材で凝固割れが発生した試料の凝固割れ率を測定した結果である。割れが観察された試料の凝固割れ率の平均は固相率25.4%の半凝固射出成形の場合14%、ダイカスト成形の場合67%であった。ダイカスト成形では10個中すべての試料において凝固割れが観察され、凝固割れ率が高いが、半凝固射出成形では13個中11個の試料で凝固割れが観察されず、凝固割れが観察された2個の試料の凝固割れ率も小さい。したがって、半凝固射出成形によって凝固割れ発生が抑制できることがわかった。

5. 半凝固射出成形による凝固割れ感受性の改善機構

5.1 高温延性曲線と凝固割れ感受性の関係

拘束緩和式U型高温割れ試験治具を用いて半凝固射出成形による固相率25.4%、11.8%および7.5%の試験片の凝固割れ発生限界ひずみと温度との関係をそれぞれFig. 8(a)~(c)の●に示す。また、比較としてダイカスト成形による結果をFig. 8(d)に示す。これらの点を滑らかに結んだ線が高温延性曲線である。

凝固割れ感受性を評価する指標として限界負荷ひずみ速度CST (Critical strain rate for temperature drop) が用いられている^{12)~14)}。このCSTはFig. 8に示すように、液相線温度から高温延性曲線に接する直線と横軸との角度で定義^{13),14)}され

ている。ここでは、データ点が少ないため、固相線温度付近において最も小さい凝固割れ発生限界ひずみのプロット点を通る直線の角度をCSTとし、CSTと固相率の関係をFig. 9に示した。固相率の増加とともにCSTは増加し、凝固割れ感受性は固相率の増加とともに低くなると考えられる。

また、ダイカスト成形材のCSTに比べ、半凝固射出成形材のCSTは大きく、半凝固射出成形材の凝固割れ感受性はダイカスト成形材のそれに比べて低いと考えられる。

5.2 ひずみ解析による凝固割れ発生予測

Fig. 8の570°Cから550°Cにかけて増加する3本の曲線は、拘束端距離 $L=105\text{mm}$ 、65mm、25mmと変化させた場合、凝固割れ感受性評価金型においてゲート側拘束部コーナ付近に発生する相当塑性ひずみを解析によって求めた結果である。コーナのひずみ変化曲線と高温延性曲線の関係から凝固割れの発生を予測¹¹⁾すると、Fig. 8(a)の固相率25.4%の半凝固射出成形では、どの拘束端距離においてもコーナのひずみ変化曲線と高温延性曲線が交差しないため、凝固割れは発生しないと考えられる。一方、Fig. 8(b)および(c)の固相率11.8%および7.5%の半凝固射出成形の場合、 $L=105\text{mm}$ 、65mmの最終凝固付近において、コーナのひずみ変化曲線と高温延性曲線が交差するため、凝固割れが発生する可能性があると考えられる。Fig. 8(d)のダイカスト成形の場合、 $L=105\text{mm}$ 、65mmにおいて、コーナのひずみ変化曲線と高温延性曲線が交差するため、凝固割れが発生すると考えられる。 $L=25\text{mm}$ では、どの成形条件でも凝固割れは発生しないと考えられる。

以上のことから、凝固時に負荷されるひずみを考慮した割れ発生予測において、固相率25.4%の半凝固射出成形はダイカスト成形に比べて、凝固割れが発生しにくいことがわかった。

また、拘束端距離105mmの場合、拘束部コーナ部において固相線温度近傍に到達した時に生じる相当塑性ひずみは、半凝固射出成形の固相率が25.4%では2.9%、固相率が11.8%では4.9%、固相率が7.5%では5.4%、ダイカスト成形では6.2%となっており、固相率の増加によって拘束部コーナ部に発生するひずみは小さくなっている。さらに、その他の拘束端距離においても同様の傾向がみられる。

したがって、半凝固射出成形では固相率の増加とともに金型内で発生するひずみが小さくなるため、凝固割れの発生を抑制できると考えられる。

Fig. 8 Relationship between equivalent plastic strain and critical strain.

Fig. 9 Relationship between critical strain rate for temperature drop and fraction of solidification for semi-solid injection molding and die casting.

5.3 凝固割れ発生限界ひずみに及ぼす組織の影響

Fig. 9より半凝固射出成形材のCSTがダイカスト成形材に比べて大きいこと、半凝固成形材の凝固割れ感受性の低下に及ぼす組織的な要因について考察を加えた。

5.3.1 共晶量

JMatProを用いた計算では、本合金組成におけるAlおよび

Caの平衡分配係数はそれぞれ0.27および0.014であった。602°Cのとき、固相率が約15%のスラリーで半凝固射出成形した際の共晶量は約5.0%、720°Cの溶湯をダイカスト成形した際の共晶量は約4.3%であり、両者にはほとんど差がない。また、固相線温度も半凝固射出成形材では532°Cで、ダイカスト成形材の526°Cと大きく変わらない。このことより、本装置で成形できる固相率30%までの半凝固スラリーでは、固液共存温度域はほとんど変わらず、また共晶量もほとんど同じであるため、共晶量が凝固割れに及ぼす影響は小さいと考えられる。

5.3.2 結晶粒径

熱分析によって求めたこの材料の液相線温度は612°C、固相線温度は522°Cで、熔融状態から凝固させるダイカスト成形の場合、固液温度領域は89°Cであるので、この温度差の収縮が起こる。それに比べ、592°Cの半凝固射出成形の場合69°Cの温度差の収縮しか発生しないため、コーナ部の凝固収縮に伴うひずみ量は小さくなり、凝固割れは発生しにくくなると考えられる。それに加えて、中田らによれば、高力アルミニウム合金では結晶粒径が小さくなると凝固割れ感受性が低下することが報告¹²⁾されている。Fig. 6に示したように半凝固射出成形材の凝固組織は100~150 μm の球状の初晶と非常に微細な共晶組織との混合組織となっていた。そこで、

Fig. 10 Boundary orientation maps for measuring grain diameter.

Fig. 11 Relationship between critical strain rate for temperature drop and mean grain diameter for each process.

EBSDを使って、初晶を除く部分の平均結晶粒径を調べ、ダイカスト成形材やスクイズキャスト成形材との平均結晶粒径を比較した。

Fig. 10はEBSDを用いたOIM (Orientation Imaging Microscopy) 解析により方位差が15°以上で結晶粒界があるとして求めたBoundary orientation mapである。この解析から各成形プロセスにおける平均結晶粒径を求め、Fig. 11に平均結晶粒径とCSTとの関係を示す。半凝固射出成形材の初晶を除く部分の平均結晶粒径はいずれの固相率においても約10μmとダイカスト成形材の36μmやスクイズキャスト成形材の46μmに比べ小さい。しかしながら、固相率を変化させた半凝固射出成形材においては、平均結晶粒径に差がないもののCSTは、固相率25.4%材と固相率7.5%および11.8%材では大きな差があり、CSTに対する結晶粒径の影響は見られない。また、固相率7.5%および11.8%材とスクイズキャスト成形材およびダイカスト成形材のCSTを比較しても結晶粒径が大きく変化しているにもかかわらず、CSTに差が見られない。これらの結果から、本研究で用いた材料の範囲では、凝固割れ感受性に及ぼす結晶粒径の影響は認められない。

以上の結果より、半凝固射出成形材そのものの凝固割れ感受性に及ぼす組織の影響は明確ではなく、今後の検討課題とする。

6. 結 言

本研究では、開発した半凝固射出成形装置を用いて、固相

率7.5%、11.8%および25.4%の4mass%Al, 3mass%Caを含むマグネシウム合金を成形し、従来のダイキャスト法やスクイズキャスト法で成形した合金とともに凝固割れ発生限界ひずみを測定し、凝固割れ感受性の比較を行った。得られた結果を以下に要約する。

(1) 拘束緩和式U型高温割れ試験治具を用いて半凝固射出成形材、ダイカスト成形材およびスクイズキャスト材の凝固割れ発生限界ひずみを求め、固液共存温度領域における高温延性曲線を得ることができた。

(2) 固相率を7.5%、11.8%および25.4%と変化させたマグネシウム合金のCSTは、固相率が増加するとともに増加し、凝固割れ感受性は固相率の増加とともに低下することがわかった。

(3) ダイキャスト法、スクイズキャスト法、固相率25.4%の半凝固射出成形法で作製されたマグネシウム合金のCSTはそれぞれ 1.6×10^4 , 3.3×10^4 , $8.6 \times 10^4 / ^\circ\text{C}$ であり、半凝固射出成形法によって凝固割れ感受性が低下することがわかった。

(4) 高温ひずみ解析と高温延性曲線を考慮した凝固割れ発生予測を行った結果、半凝固成形材は凝固割れが発生しにくいことがわかった。

参 考 文 献

- 井藤忠男, 白井秀友: 軽金属, **42** (1992), 707-719.
- 附田之欣, 齊藤 研: 軽金属, **47** (1997), 298-305.
- 小島 陽: 軽金属, (2008), 526-548.
- 坂本和夫, 山本研一: 軽金属, **52** (2002), 437-441.
- 川畑博之, 西野直久, 相川智広, 大竹和実, 弦間喜和: 軽金属, **60** (2010), 596-601.
- 岡野 忍: 軽金属, **47** (1997), 598-604.
- 鎌土重晴, 小島 陽: 軽金属, **50** (2000), 682-688.
- 田中達也, 今井田豊, 篠崎賢二, 吉田 誠, 藤井敏男: 同志社大学理工学研究報告, **47** (2007), 209-215.
- 田中達也, 今井田豊, 篠崎賢二, 吉田 誠, 藤井敏男: 同志社大学理工学研究報告, **51** (2010), 89-97.
- 藤井敏男, 山本元道, 篠崎賢二, 光藤和昭: 軽金属, **63** (2013), 8-13.
- 藤井敏男, 山本元道, 篠崎賢二, 光藤和昭: 軽金属, **63** (2013), 14-20.
- 中田一博: Al-Zn-Mg3元系高力アルミニウム合金の溶接凝固割れ感受性の改善に関する研究, 大阪大学博士論文(1993), 71-73.
- 仙田富男, 松田福久, 高野元太, 渡辺 潔, 小林忠明, 松坂 矯: 溶接学会誌, **41** (1972), 709.
- 仙田富男, 松田福久, 高野元太: 溶接学会誌, **42** (1973), 48.