凝固しつつある Al-Cu 系および Al-Si 系 二元合金鋳物の破断挙動

大滝 光弘* ・ 小林 敬一**
本間 梅夫*** ・ 雄谷 重夫****

Fracture of solidifying binary Al-Cu and Al-Si alloy castings

Mitsuhiro OHTAKI*, Keiichi KOBAYASHI**

Umewo HONMA*** and Shigeo OYA****

Tensile strength and apparent deformation of solidifying Al-2~20%Cu and Al-2~7%Si alloy castings were determined by use of a tensile test apparatus newly designed. The alloys complete solidification through four stages with lapse of time. The alloys in stage I fail out of the final solidification zone of specimen. Those in stage II rapidly lower the deformation. Those in stage III minimize the deformation and noticeable strength. And those in stage IV show rapid increase both of deformation and strength. Crystallization of eutectic has no effect on the change of deformation and strength through solidification. When the alloy contains more of solute, strengthening delays and the apparent deformation increases. The grain refined alloy has high deformation. Generation of microcracks at dendrite interfaces and their propagation are dominant factors governing deformation. They also depend on such structural variables as fraction solid, grain size and cell size in solidifying alloys.

Keywords: Al-Cu alloy castings, Al-Si alloy castings, apparent deformation, solidification fracture

(Received September 10, 1985)

1. 緒 言

凝固の進行に伴う合金の割れ発生あるいは破断の尺度は、これまでの多くの研究^{1)~5)}で、引張強さあるいは収縮応力であった。しかし、これらを各固相率での破断に対応する因子として用いることはできず、これらに代わる因子として破断伸びの有効性が示唆されている^{5), 6)}。林ら⁷⁾は、鋳型内で凝固しつつある Al-Zn 系合金の凝固末期での破断伸びを荷重-伸び曲線から求めているが、彼らの方法では低固相率での伸びの測定が不可能であり、また測定結果におよぼす試験片内の温度分布の影響が考慮されていない。松田ら⁸⁾はアーク溶接中に発生する凝固割れを光学顕微鏡で観察し、割れ発生までの最小歪を測定して、Fe-0.08~0.50%C 合金における温度-

延性曲線の相違が初晶の凝固形態に依存することを示唆している。

著者らは、凝固しつつある引張試験片最終凝固部での局部伸びを“みかけの変形能(以下変形能)”と規定し、その測定装置を考案した。そして、Cu-Zn 系固溶体合金および包晶合金での凝固の進行に伴う破断の挙動が、変形能を用いて有効に検討できることをすでに報告した⁹⁾。今回は、共晶を晶出する代表的合金である Al-Cu および Al-Si 合金の凝固時の破断を変形能の変化から検討した。

2. 実験方法

供試合金は Al-2~20%Cu および非改良型の Al-2~7%Si 合金とした。Al-33%Cu 母合金, Al-13%Si 母合

* 早稲田大学理工学部 (東京都) (現在古河電工㈱ (栃木県))。Faculty of Science and Engineering, Waseda Univ. (Tokyo) (Presently, Furukawa Electric Co. (Tochigi)).

** 早稲田大学大学院理工学研究科 (東京都) (現在古河電工㈱ (栃木県))。Graduate School of Science and Engineering, Waseda Univ. (Tokyo) Presently, Furukawa Electric Co. (Tochigi).

*** ㈱ダイヤ・リサーチ (東京都)。Dia Research Institute (Tokyo).

**** 早稲田大学鋳物研究所 (東京都)。The Castings Research Laboratory, Waseda Univ. (Tokyo).

Fig. 1 Mold part of the tensile test apparatus.

Fig. 2 Testing conditions of solidifying Al-4.5%Cu alloy castings.

金 (AC3A 地金) および工業用純アルミニウム (99.85%純度) を所定の組成に配合した後、非金属抵抗炉内の黒鉛のつぼ中で再溶解し、脱ガス (六塩化エタン 0.2%), 鎮静後, Fig. 1 に示す引張試験用鋳型 (予熱温度 $423 \pm 10\text{K}$) に固定端部から 993K で注湯した。

鋳型は鋳鉄製金型で、鋳型側壁中央部には断熱材 (2 mm 厚) を貼付け、さらにその中央部に断熱材 (1 mm 厚) を貼付けて、試験片中央部に肉厚減少部を設け、その位置が最終凝固部となるようにした。試験片の上下面も断熱材 (12.5 mm 厚) でおおった。断熱材および金型への塗型は行わなかった。

この鋳型に前記の条件で鋳造すると、凝固界面は試験片の中央部に向かって進行し、最終凝固部での鋳型側壁からの凝固殻の形成は認められなかった。Fig. 2 に Al-

Fig. 3 Measurement method of tensile strength of solidifying Al-Cu and Al-Si alloy casting.

4.5%Cu 合金の無負荷未破断試験片 (以下基準試験片) の長手方向各位置における凝固時間と温度分布を示す。肉厚減少部内は凝固時間がほぼ等しく、均一温度で凝固が進行し、最終凝固部となっている。

今回実験を行ったすべての合金で、最終凝固部は等軸晶組織であった。Al-Cu 系合金では Cu 量が増すにつれて結晶粒が微細になり、そして初晶デンドライトが細かく複雑になっていた。Al-Si 系合金では Al-Cu 系合金よりも結晶粒径の変化が小さく、 $0.7 \sim 1\text{mm}$ であった。

試験片の最終凝固部が凝固開始後所定の時間に達した時、ロードセル (容量 500kg) を介して、引張速度 (可動端部の移動速度) 1mm/s で静荷重を負荷し、試験片を肉厚減少部で瞬間的に破断させた。Fig. 3 に示されるように、この間の温度と荷重の変化が記録される。引張強さは破断荷重から、また変形能 $\delta(\%)$ * は破断した試験片の肉厚減少部の長さ l を測定し次式から求めた。

$$\delta = (l - l_0) / l_0 \times 100$$

ここで基準長さ l_0 は、基準試験片の肉厚減少部の長さである (ただし、基準試験片では最終凝固部に割れが発生しない)。

3. 実験結果

3.1 凝固過程における引張強さと変形能の変化

3.1.1 Al-Cu 系合金

Fig. 4(a) は Al-4.5%Cu 合金の、(b) は Al-20%Cu 合金の試験片最終凝固部での冷却曲線と破断時の引張強さおよび変形能を示す。図中の矢印は試験片が破断しな

* 試験片の最終凝固部の局部伸びとして測定される変形能を、凝固しつつある金属が破断するまでその形状を維持できる能力と定義する。

Fig. 4 Changes of tensile strength and apparent deformation with lapse of time in (a) Al-4.5%Cu and (b) Al-20%Cu alloy.

Fig. 5 Schematic illustration of the changes of tensile strength and apparent deformation through solidification in aluminum alloys.

Fig. 6 Changes of tensile strength through solidification in binary Al-Cu alloys.

Fig. 7 Changes of apparent deformation through solidification in binary Al-Cu alloys.

ったことを示す。どの合金も、凝固末期に小さな変形能とわずかな引張強さを持ち、凝固終了直前に変形能の最小値を示す。変形能の急激に減少する状態でも、最終凝固部において試験片は破断しており、磯部ら⁵⁾の指摘するように、明らかな引張強さが検出される以前のこの状態でも、無視できる程度 (10^{-2} MPa オーダー) の引張強さをもつといえる。共晶を晶出する Al 合金での凝固の進行に伴う変形能と引張強さの変化が模式的に Fig. 5 に示される。凝固過程は Cu-Zn 系合金と同様に 4 段階に区分される；ステージ I（凝固開始から t_a まで）：最終凝固部以外で破断し、変形能は著しく大きいと考えられる、ステージ II (t_a から t_b まで)：変形能が急激に減少、ステージ III (t_b から t_c まで)：明らかな強度増加が認められるが、変形能が非常に小さく脆弱、ステージ IV (t_c から凝固完了 (t_e) まで)：変形能と引張強さが急増。

最終凝固部での共晶凝固の開始は、Fig. 4 に示されるように、凝固過程の区分とは無関係である。すなわち、凝固末期での合金の脆性は晶出第 2 相の有無と無関係な、固相率の増加に伴う現象である。

Al-Cu 系 2 元合金での凝固の進行に伴う引張強さの変化を Fig. 6 に、変形能の変化を Fig. 7 に示す。 t_a/t_e は Al-2~15%Cu 合金で約 0.6、Al-20%Cu 合金で約 0.75 である。 t_b/t_e は Cu 量が増すにつれて大きくなる。ステージ III で、Cu 量が増すにつれて、引張強さの増加度は小さくなり、変形能は大きくなる。Al-2 および 4.5% Cu 合金での t_c/t_e は Al-10~20%Cu 合金のそれよりも小

Fig. 8 Changes of tensile strength through solidification in binary Al-Si alloys.

Fig. 9 Changes of apparent deformation through solidification in binary Al-Si alloys.

さい。Al-10~20%合金での t_c/t_0 はほとんど同じである。

3.1.2 Al-Si 系合金

Al-Si 系 2 元合金での凝固の進行に伴う引張強さの変化を Fig. 8 に、変形能の変化を Fig. 9 に示す。 t_0/t_0 は 0.5~0.55 である。 t_b/t_0 は Si 量が増すにつれて大きくな

Fig. 10 Changes of apparent deformation through solidification in Al-4.5%Cu alloys having different grain size.

る。ステージⅢで、引張強さの増加度は Si 量に無関係であるが、変形能は Si 量が増すにつれて大きくなる。

3.2 引張強さおよび変形能の変化と結晶粒径

結晶粒径の異なる Al-4.5%Cu 合金の変形能- t/t_0 曲線を Fig. 10 に示す。粗大結晶粒（粒径 2.60 mm）試験片は脱ガス処理を行わず、溶湯を 1073K まで加熱して、微細結晶粒（粒径 0.07 mm）試験片は Al-5%Ti-1%B 母合金により Ti を 0.5% 添加し、脱ガス処理後の溶湯の最高加熱温度を 1023K として、それぞれ 993K で casting して得られた。結晶粒径が小さくなるにつれて、 t_c/t_0 および t_b/t_0 は大きくなり、そして同じ t/t_0 における変形能の値も大きくなる。

3.3 破面の観察

Fig. 11 に、凝固中の各段階における破面 SEM 像を示す。(a)ステージⅡでは破断するまでに成長していたデンドライトの回りに、破断以後に形成された細かなデンドライトが観察される。(b)ステージⅢでは、デンドライトが隣接するデンドライトとの接触部ですべった痕跡が認められる。しかしデンドライト自体が破壊された痕跡は観察されなかった。(c)ステージⅣではデンドライト間隙の固化しつつある液膜部でデンドライトが引き離されている。

Fig. 12 に、試験片破断部近傍のマイクロ組織を示す。矢印は引張方向である。(a)は $t/t_0=0.93$ で破断させた Al-4.5%Cu 合金、(b)は $t/t_0=0.94$ で破断させた Al-4.5%Cu-0.5%Ti 合金、(c)は $t/t_0=0.98$ で破断させた Al-20%Cu 合金である。試験片は既報⁹⁾と同様に、凝固方向と

Fig. 11 SEM fractographs of specimens ruptured in (a) stage II, (b) stage III and (c) stage IV.

ほぼ垂直に脆性破断をしていた。破断面近傍にはマイクロクラックが観察され、その数と大きさはAl-4.5%Cu合金で著しい。

Fig. 13に、未破断試験片最終凝固部のマイクロ組織を示す。矢印は引張方向である。(a)はAl-4.5%Cu合金、(b)はAl-4.5%Cu-0.5%Ti合金、(c)はAl-20%Cu合金のFig. 6およびFig. 10中に矢印で示された試験片である。Fig. 13は、試験片が脆性破断する以前に、デンドライト界面でマイクロクラックが形成されたことを示している。Fig. 13(a), (b)に示されるように結晶粒が微細になるとマイクロクラックの大きさは小さくなる。Fig. 13(c)は、マイクロクラックが引張方向に拡大され、引張方向と垂直方向への伝播は共晶によって抑制されていることを示す。

4. 考 察

4.1 凝固過程での合金の変形能

Fig. 7, Fig. 10およびFig. 12, Fig. 13に示されるよう

Fig. 12 Microscopic profiles of ruptured specimen. (a) Al-4.5%Cu, (b) Al-4.5%Cu-0.5%Ti and (c) Al-20%Cu.

に、変形能の大きな合金ほど脆性破断以前に形成されたマイクロクラックは小さくそして少ない。これらのマイクロクラックは、Fig. 13(b)に示されるように、デンドライトセルの3重点を起点として発生した後、デンドライトセル境界に沿って伝播し、デンドライト-デンドライト界面あるいはFig. 11(c)に示されるようなデンドラ

Fig. 13 Microscopic profiles of unruptured specimen. (a) Al-4.5%Cu, (b) Al-4.5%Cu-0.5% Ti and (c) Al-20%Cu.

イトー共晶界面に形成される。これらのマイクロクラックの伝播あるいは凝集によって試験片が破断すると考えられる。すなわち、本実験で測定している変形能はデンドライト界面でのマイクロクラックの発生およびそれらの伝播あるいは凝集の尺度として扱うことができる。

4.2 凝固の進行に伴う合金の脆化挙動

Fig. 5 に示されるような凝固過程での合金の脆化は、

Cu-Zn 系固溶体合金および包晶合金での著者らの報告⁹⁾でも同様に認められ、本質的には固相率の増加に伴う現象であり、晶出第 2 相には依存しない現象である。すなわち、合金は晶出相の成長過程とそれに伴う残留液相の挙動とに応じて、ステージ I～IV までの 4 段階を経て凝固を終了する。

液相中に晶出相が浮遊している凝固初期段階には、残留液相および晶出固相の流動が容易であり、試験片の形状を変えて変形できる（ステージ I）。凝固が進行してデンドライト網が形成されると残留液相の流動はデンドライト間隙に限定され^{10)~13)}、試験片は破断時にその形状を維持できるようになる。デンドライト間の残留液相の流動は固相率の増加に伴い困難になる^{10)~13)}。この段階ではマイクロクラックの発生および伝播が残留液相の流動によって抑制されるため、固相率の増加に伴い変形能は急激に小さくなる（ステージ II）。さらに固相率が高くなると、高橋らが指摘するようにデンドライト間の残留液相は流動できなくなり、その流動停止固相率は強度発生固相率と一致する¹⁰⁾。この段階ではマイクロクラックの発生および伝播は、残留液相の補給がないために極めて容易であり、変形能は非常に小さい。またデンドライト間に液膜として存在する残留液相の厚さは固相率の増加に伴い薄くなり、液膜の表面張力による引張強さの明らかな増加が認められる（ステージ III）。液膜部の固化が始まると試験片はほぼ固体に近い性質を示し、マイクロクラックの発生および伝播に要する荷重が大きくなり、引張強さと変形能が急増する（ステージ IV）。

4.3 凝固過程での変形能と凝固組織形態

Al-Cu 系合金における変形能の最小値と結晶粒径との関係を Fig. 14 に示す。実線は Al-Cu 2 元合金での、点線は結晶粒径の異なる Al-4.5%Cu 合金での関係を示す。Fig. 14 は変形能が結晶粒径だけでなく Cu 量にも依存していることを示している。共晶率の高い合金ほど変形能が大きい、これを単に共晶量の増加に起因すると考えるのは不合理である。Fig. 4 にも明らかなように、共晶凝固の開始は凝固の進行に伴う変形能の変化には無関係である。

変形能の大きさがデンドライト界面におけるマイクロクラックの発生および伝播の程度に支配されるならば、合金の変形能は以下の理由で凝固組織形態に依存する。各固相率でのマイクロクラックの発生および伝播の程度は、残留液相のなす 2 面角と合金の固液界面エネルギーとによって定まるデンドライトセルの 3 重点での界面エネルギーの大きさに支配され、それは晶出相の量（固相率）だけでなく晶出相の種類、大きさや形状、そして晶出相の結晶方位関係にも依存するからである。

Fig. 13(a), (b) は結晶粒の微細化がマイクロクラック

Fig. 14 Effect of grain size on the minimum value of deformation in Al-Cu alloys.

の形成および伝播を抑制することを示している。また晶出第2相である共晶は初晶デンドライトの周囲に、それよりも微細な共晶セルとして成長し、Fig. 11(c), Fig. 13(c)に示されるように、デンドライト-共晶界面でのマイクロクラックの形成および伝播を抑制する。従って、結晶粒径の小さな合金ほど、そして共晶を低固相率で晶出する合金ほど Fig. 7, Fig. 10および Fig. 14に示されるように、各固相率での変形能が大きくなる。

一方、デンドライト成長が著しい合金ほどデンドライト間の残留液相が流れにくく、流動停止固相率は低下する^{11)~13)}。凝固中に排出された溶質の濃化はデンドライトの枝の根本部で著しい。従ってCu量の多い合金ほど、複雑なデンドライトの根本部に共晶を晶出しやすく、(デンドライト+共晶)セルのネットワークの形成が遅れ、流動停止固相率が高くなると予測される。このため、Fig. 6に示されるように、Cu量の増加に伴い t_b/t_0 は大きくなる。

Al-Si系合金においてもSi量の増加に伴うデンドライトセルサイズの減少および共晶の成長挙動の変化によって変形能が大きくなるといえる。

5. 要約および結論

著者らの考案した引張試験装置を用い、共晶の晶出を伴い、しかも結晶粒径の異なるAl-2~20%Cu合金およびAl-2~7%Si合金の凝固過程での引張強さおよび最終

凝固部の局部伸びとして表される変形能を測定した。

(1) 変形能は凝固しつつある合金でのマイクロクラックの発生および伝播の尺度として考えることができる。

(2) 合金は、晶出相の成長過程およびそれに伴う残留液相の挙動に応じて、試験片の形状を変えて変形できる状態(ステージI)、変形能が急激に減少する状態(ステージII)、明らかな強度増加が認められるが変形能が非常に小さく脆弱な状態(ステージIII)および引張強さと変形能が急激に増加する状態(ステージIV)を経て凝固を終了する。

(3) 共晶を晶出するAl-2~20%Cu合金およびAl-2~7%Si合金では溶質量が増すにつれて、引張強さの発生が遅れ、そして変形能が大きくなる。また結晶粒の微細化は変形能を大きくする。

(4) 変形能の大きさはデンドライト界面におけるマイクロクラックの発生および伝播の程度に支配され、凝固組織形態(固相率、晶出相の大きさ、形状や種類等)に依存する。

なお、本研究で用いた費用は文部省科学研究費の助成によるものであり、また一部には軽金属奨学会の費用を充当した。最後に研究遂行に協力された大和製作所(株)の丸山智尚氏に感謝いたします。

参考文献

- 1) 小林帛男：軽金属，**36** (1959)，21.
- 2) 高瀬孝夫，万谷泰一郎：鋳物，**32** (1960)，191.
- 3) 小林俊雄，大平五郎：鋳物，**38** (1966)，795.
- 4) S. Engler and L. Henrichs: *ALUMINIUM*, **49** (1973)，731.
- 5) 磯部俊夫，久保田昌男，北岡山治：鋳物，**50** (1978)，235.
- 6) I. I. Novikov: *Russian Castings Production*, **4** (1960)，167.
- 7) 林清謙，中田 毅：鋳物，**54** (1982)，599.
- 8) 松田福久，中川博二，本田義興，松原安宏：鉄と鋼，**68** (1982)，A141.
- 9) 雄谷重夫，大滝光弘，小林敬一：日本金属学会誌，**49** (1985)，746.
- 10) 高橋忠義，工藤昌行，市川 洌：日本金属学会誌，**44** (1980)，1089.
- 11) 雄谷重夫，神戸洋史：日本金属学会第92回大会予稿集 (1983)，519.
- 12) K. Murakami, A. Shiraishi and T. Okamoto: *Acta Metall.*, **31** (1983)，1417.
- 13) K. Murakami, A. Shiraishi and T. Okamoto: *Acta Metall.*, **32** (1983)，1423.