論文

圧縮ねじり加工による Al-Fe 合金の晶出物微細化と機械的特性

久米 裕二* 大田 真一郎**

小橋 眞* 金武 直幸**

Precipitate Refinement and Mechanical Property of Al-Fe Alloy
Prepared by Compressive Torsion Processing

Yuji KUME*, Shinichiro OTA**,

Makoto KOBASHI* and Naoyuki KANETAKE*

(Received on May 7, 2012)

The compressive torsion process (CTP) was applied to the preparation of Al-4wt%Fe casting alloy in order to refining large precipitates of Al-Fe intermetallic compounds and improving their mechanical properties. To examine the effects of CTP conditions on precipitate refinement and tensile property, CTP was carried out under different processing temperatures (373-573K) and different numbers of torsional revolutions (1-30 times). Large primary Al_3Fe precipitates hundreds of micrometers in diameter are broken and refined to 20 μm or below by the severe plastic flow in CTP. Such precipitate refinement and uniform dispersion were promoted with increasing number of torsional revolutions and with decreasing process temperature. The tensile property of the alloy processed by CTP was remarkably improved compared with that of the cast alloy before CTP. It was 1.7 times in tensile strength and about 8 times in total elongation. Thus, it was concluded that CTP is very effective in refining large precipitates and improving the ductility of Al-Fe alloy.

Key words: severe plastic deformation process, microstructure refinement, Al-Fe alloy, mechanical property, compressive torsion process.

1. 緒言

自動車の燃費向上のために軽量化材料の一層の高性能化と適用拡大が模索されている。エンジンでも燃焼効率の向上のみならず軽合金化が進んでおり、ピストンでは Al-Si 系合金ダイカストが主流になっている。この合金は熱膨張係数が小さく、耐摩耗性、鋳造性にも優れるが、Fe, Ni などの耐熱性向上元素を多く添加できないことから、性能の向上に限界が見えている。

機械的特性の向上や品質の安定性に対しては、鍛造法による高性能ピストンの量産技術¹⁾や鍛造ピストン用アルミニウム合金の開発²⁾が進められている。また、耐熱性や耐久性の向上のためには、アルミニウム中に Fe や Ni などの遷移金属を添加して、金属間化合物を微細に析出分散させることが有効である³⁾。しかし、アルミニウム中の Fe は、共晶組成がアルミニウム側に非常に近い。そのため、鋳造素材では Fe を多量に添加すると硬いが脆い Al-Fe 系化合物が共晶でなく初晶として晶出するため粗大に伸長し、強

度や延性、そして疲労特性が著しく低下する^{4),5)}。しかし、過共晶組成でも晶出物を微細分散させると強度と延性を兼ね備えた優れた合金となるため、急冷凝固アルミニウム粉末合金の開発^{2),6),7)}や粉末冶金ピストンの開発⁸⁾が進められている。しかしながら、高性能な粉末冶金ピストンでは、材料コストや製造コストが需要拡大の大きな障害となっている。そこで、粉末合金と同程度の Fe を含有しても晶出物が微細に分散して、通常の展伸用合金と同様に鍛造できる高性能アルミニウム合金の開発が望まれる。

近年、強ひずみ加工法によって金属材料の微視組織、特に結晶粒を微細化して高機能を発現する検討が盛んに行われ、アルミニウム合金にも適用されている⁹⁾。著者らは、円柱状の被加工材に圧縮負荷と回転ねじり負荷を同時に付与する圧縮ねじり加工法を用いて、金属の組織制御や粉末あるいはチップ状金属の緻密固化成形の検討を行っている¹⁰⁾。アルミニウム合金の組織制御については、結晶粒の微細化や、初晶あるいは共晶 Si 相の微細分散化による機械的特性の改善について検討している¹¹⁾⁻¹⁴⁾。圧縮ねじり加工法は、静水圧下で巨大せん断ひずみを連続して付与することが特徴であり、延性に乏しい材料や脆い第二相の多い材料の組織制御に有効である^{13),14)}。ECAP (Equal Channel

* 名古屋大学大学院工学研究科, 〒464-8603 名古屋千種区不老町
Graduate school of Engineering, Nagoya University, Furo-cho, Chikusa-ku,
Nagoya 464-8603, Japan.

** 名古屋大学大学院工学研究科 大学院生, 同上
Graduate student, ibid.

Angular Pressing) 法でも、背圧を付与して静水圧下で加工すると、粗大な化合物を析出した Al-Fe 合金の組織微細化が可能である¹⁵⁾。

本研究では、Fe を多量に添加したアルミニウム合金に圧縮ねじり加工を適用して、晶出物を加工のみで微細に均一分散させ、機械的特性、特に延性を改善して鍛造などの二次加工ができる合金の開発を目的としている。本報では、Al-Fe 二元系合金において、粗大に伸長した晶出物の微細化の可能性を検証し、微細分散の程度と加工後の引張特性に対する回転回数と加工温度の影響について検討した。

2. 実験方法

2.1 圧縮ねじり加工法

Fig. 1 に圧縮ねじり加工法の模式図を示す。本加工法の詳細は既報¹⁰⁾の通りであるが、温度制御した円柱状のコンテナに被加工材を装填し、上下ダイスによって圧縮負荷と回転ねじり負荷を同時に付与する。被加工材は円柱形状を変えることなく、静水圧下で連続的に巨大せん断ひずみが導入される。本加工法の原理は、High Pressure Torsion (HPT) 法^{16),17)}と類似であるが、大きな相違点は次のようである。HPT 法では薄板状の被加工材に巨大な面圧力 (GPa レベル) を付与して、極めて薄い表層部のみに巨大ひずみを導入する。本加工法は、100MPa 程度の低い圧力下で円柱状の被加工材全体に巨大ひずみを導入する。供試材は Al-4wt%Fe 合金の鍛造材で、 $\phi 40\text{mm} \times 10\text{mm}$ の円柱試料を用いた。本加工法の加工条件としては加工温度、圧縮圧力、回転回数、回転速度が挙げられるが、本実験では圧縮圧力を 100MPa、回転速度を 5rpm とし、加工温度を 373K~573K、回転回数を 1~30 回転に変化させて加工を行った。回転回数は上下ダイス各々の回転回数であり、1 回転で相対的には 720° の回転変位が付与される。

2.2 微視組織と特性評価

圧縮ねじり加工後の円柱試料は Fig. 2 のように直径を含む縦断面で切断し、片側上部の 9 ヶ所を光学顕微鏡を用いて微視組織観察を行った。観察部位 1,4,7 は中心軸上、観察部位 7,8,9 は高さ中央部である。組織写真から Al-Fe 化合物粒子のみ抽出し、画像解析処理によって粒子の最大長と

アスペクト比を定量的に評価した。また、走査型電子顕微鏡を用いてアルミニウム素地の結晶粒観察を行った。また、Fig. 3 に示すように、引張試験片を切り出し、室温で引張試験を行った。

3. 実験結果および考察

3.1 微視組織と特性評価

(1) 晶出物の微細化 加工前の供試材の微視組織を Fig. 4 に示す。最大数百 μm のアスペクト比で 10 程度の粗大な柱状や、花びら状の初晶 Al_3Fe と、数十 μm の針状の共晶 Al_3Fe が不均一に分散している。

Fig. 5 は、加工温度 373K、回転回数 1 回転で加工した試料の、縦断面 9 ヶ所の微視組織である。円柱試料の回転ねじり変形では、半径位置に比例したせん断ひずみが付与される。 $\phi 40\text{mm} \times 10\text{mm}$ の円柱試料の上下 1 回転の加工では、せん断ひずみは中心軸の 0 から外周部の約 25 (2500%) まで変化する。従って、半径位置によって晶出物の状態は異なっている。回転軸付近の部位 1,4,7 では供試材に見られた粗大な晶出物がほぼそのまま残存しているのに対し、それ以外では晶出物が分断されている。しかし、その分断の様子は高さ方向位置によって異なっている。試料上端に近い部位 2,3 では大部分の晶出物が数十 μm 以下になり、初晶、共晶の区別が不明確になってアルミニウム素地中へ均一に分散している。高さ方向中央部の 8,9 では、晶出物の多くは分断されているものの 100 μm 程度の晶出物も多数観察され、均一に分散するまでには至っていない。試料内のひずみ分布は、半径に依存するだけでなくコンテナ内面の摩擦拘束によって高さ方向にも均一とはならず、高さ中央に向かってひずみが小さくなることが分かっている¹⁸⁾。Fig. 6 は、 Al_3Fe 晶出物の微細分散の様子を示す顕微鏡写真であ

Fig. 1 Schematic illustration of compressive torsion process (CTP)

Fig. 2 Observation points for microstructure

Fig. 3 Tensile specimen machined from compressive torsion processed cylinder

る。写真は 373K で 1 回転加工を行った試料の観察位置 4, 5, 6 付近で観察している。細長く脆い金属間化合物の晶出物は、アルミニウム素地のせん断変形に抵抗するため応力集中が起こり、アスペクト比が大きい晶出物は細かく分断される。そして、微細分散した晶出物には、これを破壊するような大きな応力集中が生じなくなるため、アルミニウム素地中に分散すると考えられる。分断直後にはその場所に空隙が生ずるものの、高圧下での大きな塑性流動である

Fig. 4 Microstructure of cast alloy before CTP in (a) low and (b) high magnification

ため空隙は消滅し、晶出物とアルミニウム素地が混練されるように均一分散して行くと考えられる。試料内部に付与されるひずみ量と晶出物の微細化過程との詳細な関連については、別に検討考察して報告する予定である。

Fig. 5 Microstructure of specimen after CTP at 373K with 1 revolution

Fig. 6 Al_3Fe precipitates broken and dispersed in Aluminum matrix during CTP

Fig. 7 Microstructure at points 2, 7 and 8 of specimen after CTP at 373K with different revolutions

100μm

Fig. 8 Cumulative frequency of maximum particle length of precipitates after CTP at 373K with different revolutions at points 2, 7 and 8

Fig. 9 Aspect ratio as a function of maximum particle length of precipitates after CTP at 373K with 20 revolutions at points 8

Fig. 10 Cumulative frequency of maximum particle length of precipitates after CTP at different temperature with 30 revolutions at points 2 and 8

(2) 回転回数の影響 加工温度 373K で回転回数 5~30 回転で加工した試料の観察部位 2,7,8 の微視組織を **Fig. 7** に示す。また、各観察部位における晶出物の画像解析処理から求めた最大長の分布を、面積基準の累積頻度で **Fig. 8** に示した。1 回転の加工で晶出物の大部分が数十 μm 以下になった部位 2 では、5 回転で 9 割以上の晶出物が 20 μm 以下まで微細化するとともに、均一分散する。しかし、それ以上の加工では大きな変化はない。高さ中央で半径中央部に位置する部位 8 では、1 回転では微細化も均一分散も不十分であったが、5 回転で微細化は大きく進み、さらに回転回数の増加で微細化と分散の程度が進んでいく。そして 20 回転以上で部位 2 と同様に、9 割以上の晶出物が 20 μm 以下になって均一分散する。一方、回転軸上の高さ中央にある部位 7 では、1 回転では数百 μm の粗大晶出物がそのまま残っていたが、5 回転では全体が 100 μm 以下になり、回転回数とともにさらに微細化して、30 回転では 9 割以上の晶出物が 30 μm 以下に微細化して均一分散する。加工にともなう微細化挙動は試料内の場所によって異なり、ダイス面（試料端面）に近い外周部ほど微細分散が早く起こり、回転回数の増加に伴って半径方向および高さ方向の中央部まで微細化領域が広がっていく。回転軸上は幾何学的にせん断ひずみが 0 であるが、半径 1mm の位置では 30 回転では約 37（3700%）のひずみが導入される。これは、部位 2 付近の半径 10mm の位置が 3 回転で導入されるひずみと同等である。従って、回転軸付近でも隣接部分とのひずみ勾配が極めて大きく、部位 8 でも 30 回転では部位 2 の 3~5 回転程度のひずみの付与が予想される。

回転回数の増加に伴い試料全体で均一な微細化が進展し、20 回転以上の加工後で回転軸近傍を除いた試料全体で晶出物の 9 割以上が 20 μm 以下に微細化され、回転軸付近でも 30 μm 程度に微細化される。微細化の進展は 20~30 回転でほぼ飽和状態となる。**Fig. 9** は加工温度 373K で 20 回転加工した時の晶出物の最大長とアスペクト比（長軸/単軸の長さ比）の分散図を示す。最大長が 20 μm となった晶出物のほとんどが、アスペクト比 3 以下となっている。そして、20 回転以上では、アスペクト比も最大長と同様にほぼ飽和していた。アスペクト比が小さくなると、前述のように大きな応力集中が生じなくなるため、一定のアスペクト

Fig. 11 Tensile stress-strain curves of Al-4%Fe alloy before and after CTP at 373K with different revolutions

Fig. 12 Fracture surfaces of tensile specimen (a) before and after CTP at 373K with different revolutions of (b) 5, (c) 10 and (d) 30 times

比になると分断による微細化は難しくなると考えられる。

(3) 加工温度の影響 Fig. 10 に, 加工温度 373K, 473K, 573K と変えて 30 回転で加工した試料の部位 2 と 8 における晶出物の最大長の累積頻度を示す。加工温度が低いほど晶出物の微細化が進み, 573K と 373K の加工では平均長さで 10μm 以上の差が見られる。これは, 加工温度が低いほどアルミニウム素地の変形抵抗が高くなり, 同じひずみ量でも晶出物に生じる内部応力が高くなるためである。また, 加工温度によって部位 2 と 8 の微細化の程度に差があり, 低温加工ほど両部位の微細化の差が少なく, すなわち試料全体で均一に微細化される。これは加工温度によるアルミニウム素地の加工硬化能の差によるものと考えられる。加工温度が低い方がアルミニウム素地の加工硬化が大きく, 円柱端部で付与される回転ねじり変形が高さ方向に伝わり易く, 十分な回転回数の付与後には端部付近 (部位 2) と高さ中央付近 (部位 8) との微細化の差異が少なくなると考えられる。

3.2 引張試験結果

Fig. 11 に, 加工温度 373K で 1~30 回転で加工した試料中, 試験片 5 番 (Fig.3) の応力-ひずみ曲線を加工前 (鋳造材) の結果と共に示す。加工前の鋳造材は, 強度が 100MPa 以下で全伸びも 5% 以下であるのに対し, 加工後には強度も

Fig. 13 Grain structure of Al-4%Fe alloy (a) before and after CTP at 373K with different revolutions of (b) 5, (c) 10 and (d) 30 times

Fig. 14 Tensile stress-strain curves of Al-4%Fe alloy before and after CTP at 373K, 473K and 573K with 30 revolutions

伸びも大きく向上した。1 回転の試料では伸びの向上は見られないが, 強度が 1.7 倍に向上し, 図には示されていない中心部 1 番の試験片でも, 強度は 5 番より 50MPa ほど低い程度で鋳造材よりは向上していた。5 回転後には強度と共に伸びも大きく向上し, 1 番の試験片以外は鋳造材の 3~4 倍に向上した。10 回転以上の加工では強度が 1.5 倍程度の向上であるのに対して, 伸びが大きく向上して, 10 回転で約 6 倍, 20 回転以上で約 8 倍の 30% 以上の全伸びを示した。また, 10 回転以上では 5 本の試験片に大きな差異はなく, 加工後のいずれの場所でも同様の引張特性を示した。圧縮ねじり加工によって, 延性が顕著に向上することが確認できた。

Fig. 12 は, 加工前および 373K で 5, 10, 30 回転加工後の引張試験片の破面を示す。加工前の鋳造材には粗大な晶出物の破断が多数観察され, 脆性的に破断していることが分かる。一方, 5 回転以上の加工後の破面では粗大な晶出物の破断は見られず, 微細化した 20~30μm の晶出物を起点とするディンプルと 10μm 以下の細かいディンプルが多数観察され, 加工前とは全く異なる延性破面である。

加工後の引張特性の変化には, 前述の晶出物の微細化と共にアルミニウム素地の結晶粒の微細化効果も考えられる。

そこで、加工前および 373K で 5, 10, 30 回転加工後の半径中央付近のアルミニウム素地の結晶粒の観察結果を Fig.13 に示す。なお、組織写真中の白色粒子は Al_3Fe である。加工前の鑄造材の結晶粒は $100\mu\text{m}$ 以上であるのに対して、加工後には $5\mu\text{m}$ 以下にまで微細化していることが分かる。5 回転後には $1\sim 3\mu\text{m}$ 程度の微細な結晶粒が観察され、再結晶粒と思われるが塑性流動による繊維組織に沿った形で存在している。10 回転以上では 5 回転より粒径が大きく $5\mu\text{m}$ 程度の等軸状の結晶粒となっている。各試料の加工温度条件は 373K であるが、加工発熱により回転回数が多いほど加工終了時の試料温度が上昇している。試料に接しているコンテナ内面近傍での温度測定では、5 回転後には約 400K であるが、20 回転以上では 500K 近くまで上昇した。このことから、5 回転では Al_3Fe 晶出物の微細化に加えて、加工硬化とアルミニウム素地の結晶粒微細化により、高い強度を維持したまま伸びが向上したと考えられる。一方 10 回転以上では、晶出物の微細化が進むと同時に、加工発熱による試料温度の上昇によって再結晶と結晶成長も促進されて、強度上昇が抑制される一方で延性が大きく向上したものと考えられる。

Fig. 14 は、加工温度を 373K, 473K, 573K と変えて 30 回転の加工を行った試料の試験片 5 番の応力-ひずみ曲線を示す。いずれの加工温度でも加工前の鑄造材より強度と伸びが向上しており、特に伸びは 30%前後に達した。373K の低温加工で引張強度と全伸びがともに最大となるのは、加工硬化と晶出物の微細分散によるものと考えられる。

今後は、鍛造温度やピストンの使用温度を想定した高温での機械的特性を検討する予定である。

4. 結 言

過共晶 Al-4%Fe 合金の鑄造材を圧縮ねじり加工し、晶出物の微細分散化や加工後の引張特性に対する回転回数と加工温度の影響を検討した結果、以下のことが明らかになった。

- 1) 圧縮ねじり加工によって、鑄造時に晶出した粗大な Al-Fe 金属間化合物の微細化と均一分散が可能であった。
- 2) 加工中の高圧下での塑性流動によって、長さ数百 μm 以上の柱状晶出物は分断を繰り返して $20\mu\text{m}$ 以下に微細化し、アルミニウム素地中に均一に分散した。
- 3) 晶出物の微細化は、円柱試料の端面近くの外周部から生ずるが、回転回数を増やすことによって微細化領域は試料中央部に拡大して、 $\phi 40\text{mm} \times 10\text{mm}$ の円柱試料では、20 回転以上の加工でほぼ試料全体が $20\mu\text{m}$ 以下に微細化して均一に分散した。
- 4) 今回の加工温度範囲では、加工温度が低いほどアルミニウム素地の変形抵抗が高いため、晶出物がより微細に分

断し易いが、ある程度のアスペクト比になると微細化は飽和する。また、回転数が増すと加工発熱による試料温度の上昇のため、アルミニウム素地の再結晶粒の成長が見られる。

- 5) 373K で 20 回転以上の加工を行うと、晶出物の 9 割以上が $20\mu\text{m}$ 以下に微細化され、アルミニウム素地の結晶粒径は $5\mu\text{m}$ 程度に微細化される。
- 6) 圧縮ねじり加工した Al-4%Fe 合金の強度と延性はともに大きく向上し、引張強度が 1.5~1.7 倍、全伸び約 8 倍と、特に延性を著しく改善できる。

最後に、本研究に使用した供試材料は日軽金アクト(株)にご提供頂いたことを記し、深謝いたします。

参 考 文 献

- 1) 山縣裕・小池俊勝：軽金属, **49-4** (1999), 178-182.
- 2) 小池俊勝・山縣裕・金武直幸：軽金属, **51-5** (2001), 267-272.
- 3) 小宮山芳朗・内田邦彦・郡市政広：軽金属, **28-8** (1978), 377-387.
- 4) 小林俊郎：軽金属, **54-8** (2004), 333-347.
- 5) 黒木康徳・田中徹・里達雄・神尾彰彦：軽金属, **50-3**, (2000), 116-120.
- 6) 申熙澤・菅又信・金子純一：軽金属, **41-1** (1992), 38-44.
- 7) 松木賢司・木本勉・向上・時澤貢・横手隆昌・楠井潤・藤井一男：軽金属, **46-4** (1996), 189-194.
- 8) 山縣裕・小池俊勝：軽金属, **48-1** (1998), 52-59.
- 9) 堀田善治：軽金属, **60-3** (2010), 134-141.
- 10) 金武直幸：塑性と加工, **50-578** (2009), 32-36.
- 11) 金武直幸・伊藤孝至・青野圭太郎・久米裕二：軽金属, **56-1** (2006), 34-38.
- 12) 久米裕二・小橋眞・金武直幸：塑性と加工, **48-562** (2007), 1007-1011.
- 13) 田原正太郎・久米裕二・小橋眞・金武直幸：塑性と加工, **50-577** (2009), 109-113.
- 14) 坂田和俊・久米裕二・小橋眞・金武直幸：軽金属学会第 115 回秋期大会講演概要, (2008), 345-346.
- 15) Stolyarov, V. V., Lapovok, R., Brodova, I. G. & Thomson, P. F.: Mater. Sci. Eng., **A357**, (2003), 159-167.
- 16) Segal, V. M., Reznikov, V. I., Drobyshevskiy, A. E. & Kopylov, V. I.: Russian Metall., **1** (1981), 99-105.
- 17) Zhilyaev, A. P., Nurislamova, G. V., Kim, B. K., Baro, M. D., Szpunar, J. A. & Langdon, T. G.: Acta Mater., **51** (2003), 753-765.
- 18) Kume, Y., Motohashi, M., Kobashi, M. & Kanetake, N.: Mater. Sci. Forum, **654-656** (2010), 1247-1250.