

二相合金の加工の研究*

美馬源次郎^{**} 堀 茂 徳^{***}

Genjirō Mima and Shigenori Hori: A Study on the Two Phase Alloys by Cold Rolling.

Generally, the industrial alloys consist of several phases, for example, as solid solution, intermetallic compound and non metallic inclusion. Therefore, the deformation process of those alloys by rolling differs from that of alloys with homogeneous structure, and then the internal stresses occur. We studied the deformation process of the 2nd phase due to rolling on Cu-Zn, Cu-Sn, Cu-Al and Sn-Sb alloys of composition with two phases. The experiments have been described by statistical methods using a microscope.

The results obtained are as follows: in alloys consisting of a softer or a harder 2nd phase with the matrix, a softer 2nd phase undergoes greater deformation than the matrix and a harder one tends to deform less than the matrix. The rolling goes forward leading to a similar behavior is flow strength of the both phases with progressive reduction. The following equation which corrected Unckel's formula contained these experiments, $\frac{\Delta h}{h} / \frac{\Delta H}{H} = Q^{1-Vi/Vm}$, where $\Delta h/h$ is the deformation degree of the 2nd phase, $\Delta H/H$ the average percentage reduction of the test-piece, V_i/V_m the relative hardness of the both phases and a is obtained by the experiment, and in our investigation a is 3.0. If the 2nd phase particle has an irregular shape, the flow of the matrix is disturbed remarkably and the defect of the material shows a tendency to increase with rolling.

(Received March 18, 1952)

I. 緒 言

工業用金属材料は機械的諸要求を満足するため、自然發生的に一般に二相あるいはそれ以上の相、例えば地質となる固溶体以外の他の固溶体、金属間化合物あるいは非金属

介在物等より構成されている。これらの材料を加工すると普通各相は各々その變形度を異にするため不均一な塑性變形を起して材料内に内部歪を生じ、あるいはそれがため遂には材料に破壊を起し、その結果材料の被加工性を著しく低下することがある。それ故工業用金属材料の被加工性の研究には地質相および第二、第三相の相關的變形過程を追求することは極めて大切なことである。しかしこの方面における研究は非常に尠く、たゞ Scheil⁽¹⁾ および Unckel⁽²⁾

** 大阪大學工學部

*** 富山大學工部

* 1951年4月本會東京大會に發表

の報告がみられるのみである。Unckel は第二相粒子の變形度が地質相との相対的硬度の差異に基づく点についてのみ考察した。しかし乍ら著者等はこれら第二相粒子の變形はその容積比、分布状態、形状および大きさ等にも著しく依存するものと考え研究を行った。

工業用金属材料中の第二相を地質相の機械的性質に對比して大別すれば、(i) α 眞鍮中の β 固溶體の如く軟い固溶體中に存在する比較的硬い固溶體 (ii) 反対に硬い固溶體中に介在する軟い第二相 (iii) 比較的軟い固溶體中における硬い相例え化合物。なお上記三つの場合の他灰鉄中の黒鉛の如く軟くしかも脆い第二相の場合もあるが、本研究においては前三例のみを採り上げることにした。すなわち Cu-Zn, Cu-Sn, Cu-Al および Sn-Sb 系合金の二相を顯す組成の合金について冷間壓延を行い、第二相の變形經過を顯微鏡によつて統計的に研究し、あわせて Unckel の結果を検討した。

II. 試料の作成

第二相の容量はすべて地相の 1/2 とし、かつ第二相粒子

Table 1

Cu	Electrolytic Copper	
Al	99.8 %	Al
Zn	99.99 %	Zn
Sn	99.97 %	Sn
Si	99.5 %	Si
Sb	99.98 %	Sb

の大きさも一定とした。更に Cu-Sn 系試料について β 相を第二相と考え、粒子の大きさの違いと粒子の變形度との関係をも調べるために第二相粒子の大きさを變化した

Table 2 Chemical Composition and Heat-Treatment.

Specimen	Composition wt %	Working		Annealing		Average Grain Size of the 2nd Phase mm	Microhardness before the Rolling	
		Temp °C	Reduction %	Temp °C	Time hr		Matrix	2 nd Phase
A	Cu 89.9 Al 10.1	room temp	15	500	5	0.019	66	146
B	Cu 62.0 Zn 38.0	400	24	600	7	0.045	124	67
C	Cu 79.0 Sn 21.0	room temp	9.3	500	6	0.018	87	307
D	Cu 95.2 Si 4.8	600	18.5	700	5.5	0.005	—	—
E	Sn 81.0 Sb 19.0	300	38.4	200	36	0.020	21	60
F	Al 82.0 Cu 18.0	500	21	500	30	0.005	32.6	290

Table 3 Chemical Composition and Heat-Treatment.

Specimen	Composition wt %	Working		Annealing		Average Grain Size of the 2nd Phase mm
		Temp. °C	Reduction %	Temp. °C	Time hr	
Ga	Cu 60 Zn 40	500	50	550	0.7	0.010
Gb	Cu 60 Zn 40	500	55	550	2.0	0.018
Gc	Cu 60 Zn 40	500	55	550	3.5	0.026

(1) E. Scheil, Z. Metallk., 27(1935), 199.
 (2) H. Unckel, J. Inst. Metals, 61(1937), 71.

試料をも作った。

合金材料としては Table 1 に示す如き純度の金属を使用し、各試料とも 130 g 宛クリトル爐にて熔製し 15×7×150 mm³ の金型に鑄込んだ。熔解に際しては食鹽または鹽化アンモンをフラックスとして使用し炭素際にて充分攪拌を行った。次に試料の結晶粒子を所望の大きさに、かつその形状をポリゴンにするために鑄造後高温壓延または冷間壓延し、さらに各々の材料に適合した熱処理を施した。Table 2 および 3 は試料の化學成分および熱処理を示す。

III. 實驗方法

加工度と第二相粒子の變形經過との關係を調べるに當り、ある特定の第二相粒子について變形經過を追跡して行くことは全く困難であるため、本實驗では各加工ごとに 60 乃至 150 箇の結晶粒子について變形量の平均値を統計的に求めた。このためには試料の組織を特に均等にしなければならぬから、試料は試験前にその両端を十分に鏡檢した。

加工は冷間壓延によつて行い數%または十數%の加工度ごとに鏡檢試片を切りとつた。試片は顯微鏡の微動装置によつて動かし網の目の中に入つた第二相粒子の大きさを接眼マイクロメーターを用いて 1/1000 mm まで測定した。また地質相および第二相粒子の硬度は岡田教授等の顯微鏡硬度計⁽³⁾で荷重 5g を用いて測定した。しかし硬度の測定は焼鈍試料においてのみ可能であつた。

IV. 實驗結果および考察

1. 地質相および第二相粒子の機械的性質の差異がおよぼす影響について

横軸に試料の平均加工度をと、縦軸に各々の平均加工度に對應する第二相粒子の變形度をとつて Table 2 の試料についての實驗結果を示すと Fig. 1 の如くである。圖において 45°

の鎖線は第二相粒子の變形度が試料の平均加工度に等しい場合の結果で、換言すれば單一相の合金の線圖に相應する。今この線を單相線と名づけよう。單相線より上方にある線圖は第二相粒子の硬度が地質相の硬度よりも低く第二相粒子の變形度が大きい。單相線より下方にある線圖は第二相の硬度が地質相のそれより高くよつて第二相粒子の變形度が試料の平均加工度、從つてまた地質相の變形度よりも少い。加工度が小さい單相

(3) 岡田, 栗山, 木谷, 上村, 本誌, 13(1949), No. 3, 29

軟い相の變形度は極めて大きく硬い相の變形度は著しく小さい。しかして加工度がある値に達すると相對的に軟い相

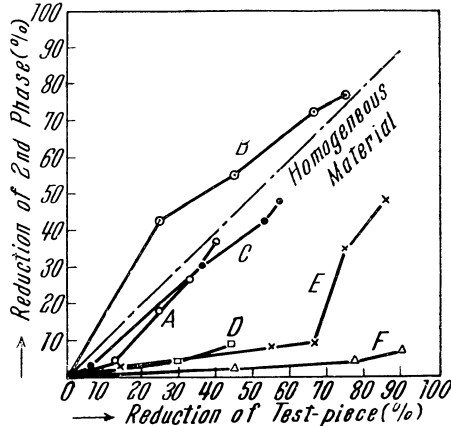


Fig. 1 Percentage Reduction of 2nd Phase as Function of Percentage Reduction of Test Piece.

の變形度は次第に減少し、硬い相の變形度は次に増大し線圖は漸して單相線の側に曲がる。

Fig. 2 α 曲線および β 曲線を各々の相の應力-歪曲

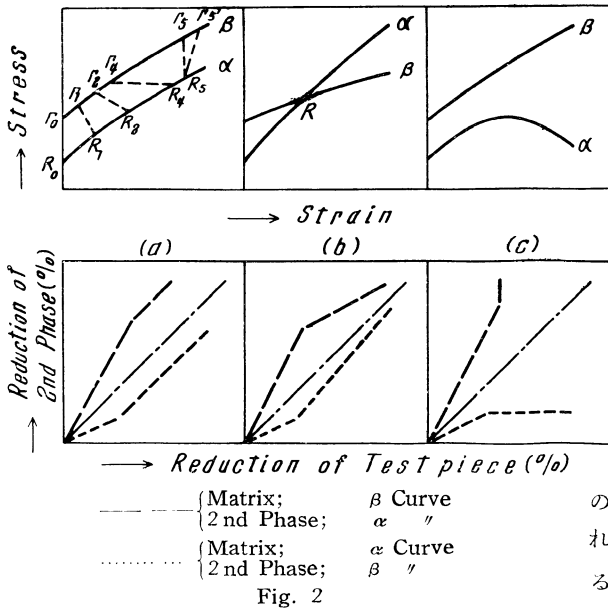


Fig. 2

線としこれら二相から成る合金を加工するとき、兩相の應力-歪曲線が交わらないような (a) 圖の如き場合においては、兩相の變形度は例えば點 (R_1, r_1), 點 (R_2 と r_2) あるいは點 (R_3 と r_3), との如く相對應すると考えられる。しかしたとえ加工が増大しても點 (R_5 と r_5), 殊に點 (R_5 と r_5') とのようには相對應しないものと考えられる。何故なれば強度の大きなものが弱いものよりもより多く變形する程の應力が地質相に集中するとは考えられない。加工度が増すに従つて一般に兩相の強度の差が小さくなり、線圖は單相線の側に向い、單相線に殆んど平行に直線的になるものと考えられる。次に (b) 圖の如き性質を有する二相からなる合金系において、各相共 R より更に大なる應力を受

けるときは、線圖は R を越えたときに様相を異にし α 曲線で表わされる相の變形が少くなる筈である。従つて線圖は單相線の側に折れ遂には單相線を切ることも考えられる。試料 B は第二相が α 曲線、地質相が β 曲線なる (b) 圖の場合に屬するものと考えられる。(c) 圖の如くいずれかの相が加工軟化する場合には、ある強加工度以上の加工により、その相の強度が減少して變形し易くなり他の相の變形量は極めて少くなるものと考えられる。試料 E は地質相が α 曲線なる場合に相當するものと考えられるが、線圖は反對に單相線の側に向つてゐる。これは第二相の量が多いこと、形状が不規則なことによる複雑な應力干涉の結果、第二相粒子が壊れたためと考えられる。また反對に第二相が加工軟化する場合には線圖は單相線と背方向に

上方に向うものと考えられる。

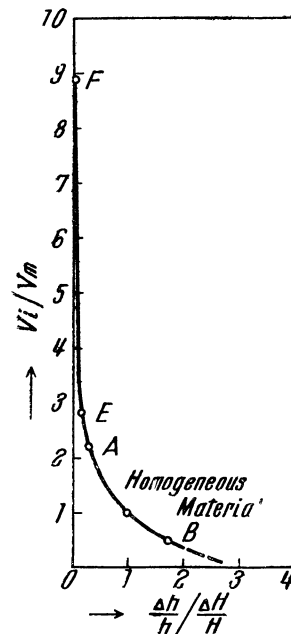


Fig. 3 Relation between $\frac{\Delta h}{h} / \frac{\Delta H}{H}$ and V_i/V_m .

第二相粒子の加工度すなわち (粒子の厚さの減少量)/(粒子の元の厚さ) [= $\Delta h/h$] と試料の平均加工度すなわち (試料の厚さの減少量)/(試料の元の厚さ) [= $\Delta H/H$] との比を横軸にとり、第二相の硬度 (V_i) と地質相の硬度 (V_m) との比を縦軸にとつてそれぞれの實驗結果をプロットすると Fig. 3 の如くなる。この Fig. 3

の曲線は Unckel の示した曲線 (V_i/V_m の代りにそれぞれの相の降伏點の比 K_i/K をとつたもの) と全く相似である。次に Unckel はこの曲線と $\frac{\Delta h}{h} / \frac{\Delta H}{H} = e^{1-K_i/K}$ とお

いて考察を行つてゐるが、氏の實驗では縦軸が殆んど零、すなわち $K_i/K \approx 0$ のとき横軸は 1.4 となり著者等の結果では $V_i/V_m \approx 0$ のとき $\frac{\Delta h}{h} / \frac{\Delta H}{H} \approx 3$ となる。いま

$\frac{\Delta h}{h} / \frac{\Delta H}{H} = e^{1-K_i/K}$ が正しいとすれば、 $K_i/K = 0$ のとき $\frac{\Delta h}{h} / \frac{\Delta H}{H} = e$ となり、この結果は Unckel の示した式は

われわれの實驗結果には不適當なることを示すばかりでなく、Unckel 自身の實驗結果にも適合しないことを示している。そこで第二相粒子の量、分布状態、形状および大きさ等を考慮に入れて $\frac{\Delta h}{h} / \frac{\Delta H}{H} = e^{1-V_i/V_m}$ とおくことが

より適當と考えられる。しかして今 $a = 1.5$ および $a = 3.0$

はそれぞれ Unckel および著者等の実験結果を満足する。

2. 第二相の量および分布状態の影響

地質相に含まれる第二相の量が増加すれば第二相の存在のために生ずる地質相の流れの乱れは互に干渉するため、その流れの乱れは第二相の量の増加と共に著しく複雑となる。第二相による応力分布の乱れが相互に干渉し始める如き第二相の臨界量を正確に決めることは甚だ困難であるが、その密算は次の如く考えることが出来る。今半径 r なる第二相粒子の存在が地質相の応力分布に影響する範囲の半径を R とし、相隣れる第二相粒子の影響が相互に干渉しない第二相粒子の最大含有率 $P(\%)$ を求めれば

$$P = 4/3\pi r^3 \rho_i / [4/3\pi(R^3 - r^3)\rho_m + 4/3\pi r^3 \rho_i] \times 100(\%) \\ \approx \rho_i / (R/r)^3 \rho_m + \rho_i - \rho_m \times 100(\%)$$

ただし ρ および ρ_n はそれぞれ第二相および地質相の密度である。

いま $R = n \cdot r$ とせば

$$P \approx \rho_i / n^3 \rho_m + \rho_i - \rho_m \times 100(\%)$$

ところで少くとも實用合金においては第二相と地質相は平衡状態圖で相隣接する相なる故、その密度すなわち ρ_i と ρ_m とは一般に著しき差異はなく $n^3 \rho_m$ に比し $\rho_i - \rho_m \approx 0$ とみなすことが出来る。従つて、

$$P \approx \rho_i / n^3 \rho_m \times 100(\%) \text{ となる。}$$

今例を鐵—セメント系にとつてみれば

$$P \approx \rho_{\text{Fe}_3\text{C}} / n^3 \rho_{\text{Fe}\alpha} \times 100(\%) \\ \approx 7.73 / n^3 \times 7.85 \times 100(\%) \\ \approx 98 / n^3 \quad (\%)$$

今 $n=3, 4$ あるいは 5 とすれば、 P はそれぞれ 3.64% 、 1.54% あるいは 0.79% となる。また容積比 ($r^3/l^3 = 1/n^3$) では $n=3, 4$ あるいは 5 のときそれぞれ 3.70% 、 1.56% あるいは 0.80% となる。弾性の異なる異物質を含む材料に応力がかかつた時の応力分布状況の解析は未だ明らかでないが、空洞を含有する様に張力がかかつた際の空洞附近の応力分布に関する問題は既に Southwell, Goodiner⁽⁴⁾ および Larmor⁽⁵⁾ によつて解析せられている。その結果によれば空洞の中心より空洞の半径の約 5 倍離れた範囲外では殆んど応力集中は消失する。空洞の場合の結果がそのままの場合に當てはまるとは考えられないが、応力集中を起す範囲には著しき差異はないものと考えられる。従つて今假に $n=5$ をとればその隣れる第二相粒子によつて応力集中が干渉し始める如き第二相の含有率 P は、球状化した前記炭素鋼では約 $0.8\% \text{Fe}_3\text{C}$ すなわち約 0.1% 炭素鋼に相當することになる。また Table 2 に示した本研究に用いた試料では $r^3/l^3 = 1/2$ なる故、 $n=1.26$ となり、Unckel の $63\% \text{Cu}, 27\% \text{Zn}$ および $10\% \text{Pb}$ の試料においては $\rho_\alpha = 8.5, \rho_{\text{Pb}} = 11.3$ として $n=2.24$ となる。すなわちいずれの場合においても粒子は相互に干渉

する位置に分布されていると考えられる。第二相も地質相も壓延度が増すと共に粒子は統計的には當然扁平になつて行くが、各粒子についてみれば上記の如き理由により互に干渉する粒子密度なるに加え、分布状態に不均一なところがあるため流れの乱れが相互に干渉して第二相粒子の一部分あるいは全體が廻轉を起すものも相當生じ必ずしも凡ての第二相粒子が壓延面に平行な扁平板状になるものとは考えられない。事實この廻轉する傾向は形状が變形し難い粒子程甚しいことが実験により確認された。

兩相間の結合力の強弱もまた加工時における第二相粒子の變形経過に相當影響すると考えられる。

3. 形状および大きさの影響

試料 C および E における第二相粒子は金屬間化合物であり、常温ではこの粒子の硬度は地質相の硬度に比し著しく高い。しかし Cu-Sn 系の δ 化合物は試料の加工度の小さい間においてもその變形度は比較的大きく表われている。また Sn-Sb 系合金については加工度 75% 前後から第二相粒子の變形度が急に大きくなつたように現われた。しかしこれは Photo. 1 に示せる如く、第二相の δ

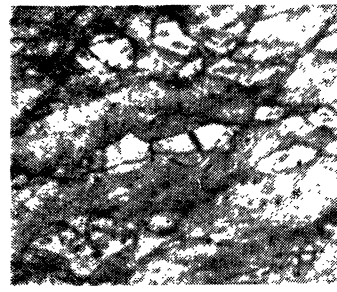


Photo. 1 55% Rolled Cu-Sn Alloy.

化合物は細かく壊れたため變形度が真に急増したためではない。また Sn-Sb 系合金でも第二相の割れの傾向は加工度約 75% 以上において顯著になるのが認められた。これは第二相粒子の形状が不規則なために地質相

の流れを亂し、その角ばつた部分に應力が局部的に集中し、多くの場合その劈開面で割れを生ずるのであると考えられる。これに對し第二相粒子が球状あるいはこれに近い形状の場合には内部應力は粒子の周邊に中心對稱的に分布し、組織を不規則的に亂すことが少い。試料 F はその好例で CuAl_2 相の如く、その硬度が地質相の硬度に比し著しく高い場合でもその形状が球状の場合では割れは認められなかつた。なお Photo. 1 にみられた如き壊れた第二相粒子間隙は地質相の流れにより僅かなから填められる。

Fig. 4 は Table 3 の試料についての結果である。圖に明らかな如く、実験に使用した程度の粒度の違いでは殆んど變化は認められない。今第二相粒子の大きさと地質相の流れの亂れの程度との關係を考えてみるに、前述した如く粒子の存在のために生ずる応力集中度は粒子半径の兩數なる故、その応力集中が殆んど消失する位置すなわち應力か不均一分布をする範囲は粒子の中心より粒子半径の n 倍の範囲内と決定することが出来る。従つて單位體積中の粒子の量 q 、形状および分布状態等が同じであるとき、

(4) R. V. Southwell, Phil. Mag., (1926); J. N. Goodiner, Trans. Amer. Soc. Mech. Eng., 55 (1933), 39.

(5) J. Larmor, Phil. Mag., 33(1892), Series 5.

(6) 五弓, 本誌, 1(1943), 24

互視的にみれば地質相の應力分布が亂される範圍は粒子の大きさに無關係に n^3q と看做することができる。しかしながら粒子の半径をそれぞれ r および $p \cdot r$ として粒子

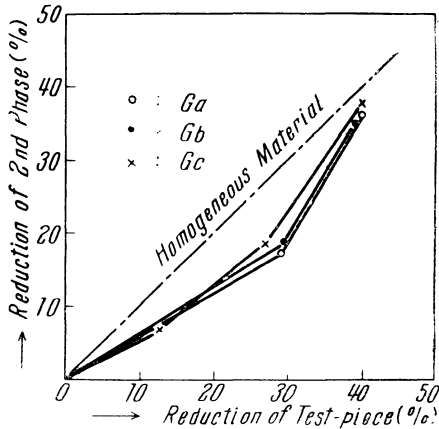


Fig. 4 Percentage Reduction of 2nd Phase as Function of Percentage Reduction of Test Piece.

の存在に起因する應力分布の不均一なる範圍の割合を求めれば $1:p^3$ となり、粒子附近に生ずる流れの亂れる部分の廣さは粒子が大きい程急激にその範圍を増加することになる。すなわち顯微鏡的にみれば流れの不均一さが著しく増大することになる。従つて粒子は細かい方がより均質に、すなわち欠陥をより少く加工することができると考えられる。

V. 結 言

以上 Cu-Zn, Cu-Sn, Cu-Al および Sn-Sb 系合金の二相で構成される組成の合金について、冷間壓延を行い第二相粒子の變形の経過を研究したが、結果の概要を纏めると次の如くである。

(1) 第二相の硬度が地質相の硬度よりも低いものは、第二相粒子の變形度が試料の平均加工度よりも大きい。第二相の硬いものでは第二相粒子の變形度が地質相の加工度よりも小さい。しかして加工度が増すと兩相の強度の差が小さくなる。すなわち硬度は材料中の第二相粒子の加工と變形量との關係を一義的に支配する。

(2) 軟い第二相の變形は殆んど地質相の變形に左右されるが、硬い第二相は變形され難く割れ易い。變形の進行経過は第二相粒子の硬度、量、分布状態および形状等に著しく影響される。

(3) 二相構成合金の壓延においては合金の種類に關係なく、第二相粒子の變形度と試料の平均加工度との關係は凡て $(\frac{\Delta h}{h} / \frac{\Delta H}{H} = v^{1-1/3} r^3 m)$ 曲線を満足する。

(4) 第二相の量が増加すれば粒子近傍の不均一分布の應力が相互に干涉し、加工によつて地質相の流れの攪亂されることが著しくなる。

(5) 第二相粒子は壓延により統計的には加工度の増加と共に次第に扁平になつて行くが、各粒子についてみれば必ずしも加工度と共に扁平にならず廻轉する粒子も相當數ある。この傾向は形状の變化し難い粒子程顯著である。

(6) 第二相粒子の形状が尖端をもつ如き場合には、粒子の存在のために生ずる應力の局部的集中は著しくなり地質相に裂壊の生ずる原因となる場合がある。

(7) 第二相粒子の細かい範圍内——粒子が地質相の粒界に網状に分布するが如きことのない場合——では加工によつて受ける粒子の變形量は粒子の大小に殆んど影響されない。

終りに御懇篤な御配慮を頂いた阪大工學部井本正介氏に對し心からお禮を申し上げます。また顯微鏡硬度測定に際し御便宜を賜つた阪大熔接工學教室岡田教授等に深く感謝致します。