Al-5%および10%Mg合金の時効処理に伴う 引張性質およびセレーションの変化

金 大洲*・中山 栄浩**
(故)鷹合 徹也**・小野田義富**

Journal of Japan Institute of Light Metals, Vol. 48, No. 3 (1998), pp. 148-153

Changes in tensile properties and serration of Al-5 mass% and 10 mass% Mg binary alloys with aging treatment

Jin DAZHOU*, Yoshihiro NAKAYAMA**
Late Tetsuya TAKAAI** and Yoshitomi ONODA**

Tensile test was performed in order to investigate the effects of precipitates and solute Mg concentration on the tensile properties and serration of Al-5% and -10% Mg binary alloys aged at temperatures between 373 and 573 K. The obtained results are as follows: (1) The yield stresses of 10% Mg alloys aged at about 453 K increased due to the formation of a rod-like precipitate at the early stage of aging. (2) The elongation to fracture decreased with the precipitation of both particle-like and rod-like precipitates. (3) The strain, stress and maximum stress drop at the serration, were varied in relation to the flow stress affected by the formation of precipitates and the change in solute Mg concentration in the matrix.

(Received July 28, 1997)

Keywords: Al-Mg alloy, tensile properties, serrated yielding, precipitation, solubility

1. 緒 言

Mg濃度が5%を超えるAl-Mg合金では、室温あるいは比較的低温での時効処理に伴い各種機械的性質が変化することが知られている¹⁾。時効処理に伴う組織変化に関しては、形成される析出物並びに固溶Mg濃度の観点から前報²⁾で詳述した。本報では、このような組織変化が引張特性に与える影響に関して検討を加えた。Al-Mg系合金の応力-ひずみ曲線には、鋸刃状の荷重変動(セレーション)が観察される場合がある。セレーションは溶質原子と転位との相互作用に起因する³⁾と考えられており、固溶濃度、ひずみ速度および試験温度の観点から精力的に検討されている⁴⁾が、析出物の形成を伴う試料に関する報告⁵⁾は少ない。本研究では、セレーションに及ぼす析出物の影響についても検討を加えた。

2. 実験試料および実験方法

本実験で用いた試料は、Al-5%Mg合金[分析値(mass%): 4.99%Mg, 0.03%Fe, 0.02%Si, Al(残), 以下5%Mg合金]およびAl-10%Mg合金[10.15%Mg, 0.03%Fe, 0.02%Si, Al(残), 以下10%Mg合金]の2種類である。鋳造後、熱間および冷間圧延加工により、試料の板厚を1mmとした。673Kで2時間の溶体化処理を施した後、水中に急冷し、引続き時効処理を施した。時効温度は373~573Kの範囲に選

び、 10^7 sまで時効処理を加えた。溶体化処理後の平均結晶粒径は、5および10%Mg合金でそれぞれ50および100 μ mであった。引張試験片は、JIS7号に準拠し、板厚1mm、幅6mmおよび標点間距離9.8mmの試験片を板材の圧延方向と試験片の長手方向が平行となるように切出した。

引張試験はインストロンタイプの試験機を用い、室温で実施した。本実験でのクロスヘッド速度は2mm/minであり、初期ひずみ速度は $3.4 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ である。引張試験片の破断面は走査型電子顕微鏡(SEM)により観察した。

3. 実験結果

3.1 引張性質

Fig. 1に0.2%耐力の時効時間に対する変化を示す。溶体化処理状態(S.T.材)における10%Mg合金の耐力は、5%Mg合金と比較して47MPa大きな値を示す。この耐力の増加は、約5%のMg固溶量の増大によるものと解釈される^{*1)}。

5%Mg合金に373, 413および573Kの各温度で時効処理を加えた試料の耐力には変化が認められないが、453および493Kの時効温度では時間の延長に伴い耐力は低減する。耐

*1 結晶粒径が耐力に与える影響も考えられる。参考までに、ホールベッチの関係に従い耐力の減少量を求めると、5%合金(50 μ m)と比較して10%合金(100 μ m)では約3MPa耐力が減少することになる。

* 山梨大学大学院(〒400-8511 山梨県甲府市武田4-3-11)。Graduate school, Yamanashi University (4-3-11. Takeda, Kofu-shi, Yamanashi, 400-8511)

** 山梨大学工学部(甲府市)。Faculty of Engineering, Yamanashi University (Kofu-shi, Yamanashi).

Fig. 1 Changes in yield strength with aging time.

Fig. 2 Changes in fracture elongation with aging time.

力の同様な低下は10%Mg合金にも現れ、573 Kで時効した試料の耐力は時間の延長に伴い低下する。他方、413から493 Kで時効した10%Mg合金の耐力には時効硬化性がみられ、時効温度が低いほど耐力のピーク値は増大する。しかし、S.T.材からの増加割合は最大でも42%程度であり、Al-Mg-Si系などの時効硬化型合金と比較すると小さい。

破断伸びの変化をFig. 2に示す。S.T.材に関する破断伸びを両合金で比較すると、約5%のMg量の増加に伴い破断伸びは約20%向上し、従来の報告⁶⁾と定性的に一致する。5%Mg合金では耐力が減少する時効条件で破断伸びは低下するが、耐力が変化しない時効条件の破断伸びは一定である。一方、10%Mg合金で耐力が増大する時効温度(413~493 K)では、耐力の増大が始まる時効時間から破断伸びは80%から20%以下へと急激に低下する。また、573 K時効材の破断伸びは時効初期段階から20%以下となる。

破断伸びの低下の大きい10%Mg合金の破断面をSEM観察した。結果をFig. 3に示す。373 Kで時効処理を加えた試料の破断面は、大小多数のディンプルから構成されており、典型的な延性破断の様相を呈している。453 Kで時効した試料は、時効初期段階ではディンプルの形成を伴う延性的な破断面であるが、破断伸びが低下する時効時間(6×10^4 s)になるとディンプルの生成は認められず起伏の激しい破断面となる。破断伸びが20%以下に低下した試料(6×10^5 s)の破断面は、脆性的で平坦な粒界割れの部分と凹凸が激しく脆性的な部分との組合せにより構成されている。これらの部分は、粒界あるいは粒内析出物の界面に沿ってき裂が脆性的に伝播したことを示唆する。一方573 K時効材では、時効の初期段階から破断面全体が粒界割れとなる。時効時間の延長に伴い、矢印で示す析出物が破断面に多数観察されるようになるが、き裂が結晶粒界を伝播する傾向に変化はない。

3.2 セレーション

Al-Mg系合金の応力-ひずみ曲線上にみられるセレーションは固溶原子による転位の固着と固着雰囲気からの離脱の繰返しにより生じると考えられている³⁾。また、セレーション

の形態には、加工により形成される転位のもつれあるいはセル組織などの転位組織も影響を与えると考えられている⁴⁾。このような観点から、時効処理に伴う析出物の形成並びに固溶濃度の変化および変形の進展に伴うセル組織の形成が、セレーションの形態に与える影響が重要と思われるが、この点に関する検討は池野らにより行われている⁵⁾。池野ら⁵⁾はAl-10%Mg合金を523 Kで時効した場合を検討した。彼らの報告⁵⁾にもあるように、523 Kの時効温度で形成される析出物は、主に不整合な析出状態を有する安定相で転位との相互作用も弱く、したがって時効処理に伴う耐力の増加もわずか(約10%)である。一方、本研究のように時効条件を種々変化した場合には、析出物の状態は様々である。例えばピーク時効の条件ではS.T.材と比較して約42%もの耐力の増大が得られる。このような析出状況の相違は、セレーションの形態にも影響を与えると考えられる。

Fig. 4に5および10%Mg合金のS.T.材、時効材の公称応力-公称ひずみ曲線を示す。5%Mg合金のセレーションは、変形の初期段階から小さな荷重変動を生じ、変形量の増大に伴い荷重変動の振幅は連続的に増大する。10%Mg合金のS.T.材では、特定のひずみ量から荷重変動を生じるが、その後のひずみ量の増加に伴う荷重変動の様相は5%Mg合金とほぼ同様である。時効処理を加えた10%Mg合金では、ある変形量で突如として大きな荷重降下を生じセレーションが発現する場合、あるいはセレーションが発生せず破断に至る場合など多様である。

本実験で得られたセレーション発生時の臨界ひずみ ϵ_c を時効時間に対してプロットすると、Fig. 5に示す関係が得られる。両合金のS.T.材を比較すると、固溶濃度の増加に伴い ϵ_c は増大する。5%Mg合金を453 Kで 10^5 s以上時効すると ϵ_c が若干増大するが、他の時効温度では変化がみられず塑性変形の初期段階からセレーションが発生する。10%Mg合金の ϵ_c は、全体的には耐力と同様な変化を示すが、453 Kで 6×10^5 sの時効処理を施した試料および413 Kで 10^6 s以上の時効処理を加えた試料では、セレーションの発生がみられな

Fig. 3 SEM photographs of tensile tested Al-10%Mg fracture surface.

Fig. 4 Representative nominal stress-strain curves.

いま破断に至る。

セレーションの最大振幅 $\Delta\sigma_{\max}$ の時効時間に対する変化を Fig. 6 に示す。前述のように、本実験で観察される荷重変動の振幅は塑性変形の進行に伴い増大するため、 $\Delta\sigma_{\max}$ は応力-ひずみ曲線の最大荷重点近傍で測定される場合が多い。本実験で得られた S.T. 材の $\Delta\sigma_{\max}$ は、5%Mg 合金で 8.7 MPa および 10%Mg 合金で 8.6 MPa でありほぼ同等の値を示すが、これは $\Delta\sigma$ を増大する固溶濃度と $\Delta\sigma$ を低下する結晶粒度の影響^{4),7)} が重畳して現れたためと考えられる。5%Mg 合金では、453 K の時効温度で時効時間の延長に伴い $\Delta\sigma_{\max}$ は増大するが、その他の時効温度での $\Delta\sigma_{\max}$ には変化がみられずほぼ一定である。他方、10%Mg 合金では、耐力

Fig. 5 Changes in critical elongation with aging time.

が増大する時効条件で $\Delta\sigma_{\max}$ も増加する傾向が得られた。

4. 考 察

4.1 引張性質と組織

上述のように、供試材の引張性質は時効処理条件により種々変化する。以下では、前報²⁾で述べた組織変化との関連で考察を加える。

最初に析出物の状態について述べる²⁾。5%Mg 合金を 453 K 付近で時効すると、 10^5 s を過ぎる時間から析出物の形成

Fig. 6 Changes in maximum stress amplitude $\Delta\sigma_{\max}$ with aging time.

Fig. 7 Changes in Mg concentration with aging time.

が認められた²⁾。光学顕微鏡で観察を行うと、 10^5 s を過ぎる時効時間から粒状にみえる析出物が結晶粒界に優先析出している状況が確認された。時効時間の延長に伴い粒界の粒状析出物は連なるような形で成長するとともに、結晶粒内にも多数の粒状析出物が観察できるようになる。X線回折および示差熱分析により析出物に関する検討を行ったところ、粒状析出物は安定相⁸⁾ [β 相, Al_3Mg_2 (f.c.c.)] に対応するものと思われた²⁾。なお、373 K および 573 K の時効温度では析出物の形成はみられない。他方、10%Mg 合金を 453 K 付近で時効すると、 10^4 s を過ぎる時間から棒状の析出物が 3 方向に直行あるいは交差した組織になる²⁾。この棒状析出物に関して X線回折ならびに示差熱分析により検討を行った結果、棒状析出物は準安定相⁹⁾ [β' 相, Al_3Mg_2 (h.c.p.)] に対

Fig. 8 Plots of yield strength against Mg concentration.

応するものと考えられた²⁾。時効温度が 573 K の場合には、453 K で観察された析出物とは形状を異にする粗大な粒状析出物 (安定相) が粒界および粒内に観察された²⁾。

上述の析出物が形成されると、母相中の固溶 Mg 濃度が減少し、Al-Mg 系合金本来の強化機構である固溶強化の効果が低減することが予想される。参考までに、電気比抵抗の測定結果に基づき母相中の固溶 Mg 濃度を評価²⁾したところ、Fig. 7 に示す結果が得られた。前述した析出物の形成が著しい時効温度では、5%Mg 合金で約 40%、10%Mg 合金では約 60% の固溶 Mg 濃度の低下が示唆される。

Fig. 1 に示した耐力の増減は、析出物の形成および固溶 Mg 濃度の低下に依存すると考えられる。両者の寄与を詳細に検討するため耐力を母相中の固溶 Mg 濃度に対してプロットし、Fig. 8 に示した。図中の破線は、5 および 10%Mg 合金の S.T. 材に関するデータを直線で結んだ結果であり、この直線から固溶量が耐力に与える影響を知ることができる。ここでは、図面を簡略化するため時効時間は省略した。図に示した結果をみると、10%Mg 合金の 573 K 時効材および 5%Mg 合金ではいずれの温度で時効した試料の耐力も図中の破線上にプロットされることから、これらの試料でみられる耐力の減少は粒状安定相の析出に伴う固溶 Mg 濃度の低減に起因すると言える。一方、棒状析出物の形成が確認された 10%Mg 合金 (時効温度: 413~493 K) では、Mg 固溶量が減少を始める時効の初期段階で耐力は増大し、その後の Mg 濃度の減少に伴い耐力はピーク値を示したのち低下する。時効初期段階で形成される析出物は耐力を増大させるが、更なる時効処理の進展に伴いいわゆる過時効状態となり、加えて固溶量も低減するため耐力は低下したと考えられる。図に示した結果から、Mg による固溶強化と時効による析出強化とが耐力に対して同程度の寄与を及ぼすことが明らかとなった。

破断伸びと破断面の SEM 観察ならびに析出物の析出状況との対応関係について検討する。粒状および棒状析出物が形成される時効時間に至ると、ディンプルを伴う延性的な破断

面から、粒界あるいは粒内の析出物界面を脆性的にき裂が伝播したことを示唆する破断面へと破断の様相が変化し、破断伸びは急激に低下する。つまり、粒状安定相ならびに棒状準安定相の析出は、析出物界面のき裂伝播を促進し、破断伸びを低下させると考えられる。

4.2 セレーションと組織

池野⁴⁾によると、Al-Mg系合金で観察されるセレーションは以下の三つのタイプに分類できる。

タイプA：室温以下の低温で観察される。変形の初期段階でうねりに類似した周期の長い荷重変動を生じる。荷重変動が発生する臨界ひずみ ϵ_c は、試験温度の上昇に伴い低下する。

タイプB：室温付近で観察される。特定のひずみ量に達したときに突如として急激な荷重の低下を生じる。鋸刃状の荷重変動は、ひずみ量の増大に伴い振幅を増しながら継続する。臨界ひずみは温度上昇に伴い増大する。

タイプC：室温以上の高温で観察される。最大荷重点を過ぎたひずみ量において突如として荷重が低下し、セレーションが発生する。臨界ひずみは試験温度にあまり依存しない。

本実験で観察されたセレーション (Fig. 4) を、上記した三つのタイプのいずれかに分類することは厳密な意味においては困難である。変形の初期段階あるいは特定のひずみ量から鋸刃状の荷重変動が生じる点を考慮すると、AおよびBタイプのセレーションが混在しているものと思われる。しかし、荷重変動の振幅がひずみ量とともに増大する点、および本実験の試験温度が室温である点を考慮すると、Bタイプのセレーションに類似していると考えられる。そこで、以下では本実験で観察されたすべてのセレーションをBタイプとみなし検討を進める。

B型セレーションの発生に関しては、以下のように考えられている⁹⁾。B型セレーションが発生するような温度では、溶質原子の拡散速度が速いため変形の初期段階では溶質原子の雰囲気をひきずって転位は移動する。塑性変形量の増大に伴い転位密度は増大し転位の平均速度は見かけ上小さくなるが、転位の移動速度は様々であり速度の大きな転位の数も増すことになる。このような転位の中で、ある臨界速度を超えた転位が臨界量に達したときに、固着雰囲気からの転位の離脱に伴い急激な自由転位の発生が生じセレーションが発現すると考えられている⁹⁾。

一般に、塑性変形の増大に伴う転位密度の増大は10の数乗程度と大きく、転位の平均速度はその逆数で低下するため、速度の速い転位の数が増えると考えることには無理があると思われる。そこでB型セレーションの発生について次のように考えた。塑性変形の増大に伴う転位密度の増加は、溶質原子に固着されない転位を形成する。この転位の移動に伴い自由転位が急激に発生しセレーションを発現する。つまり、固着雰囲気にとらわれない臨界量の転位密度を与えるのに必要な塑性ひずみ量が ϵ_c であろう。

池野⁴⁾は、B型セレーションが溶質原子の拡散と転位の移動速度のみに起因するものであるならば、変形の進展に伴う $\Delta\sigma$ の増加を説明することは難しく、他の因子を考える必要があると報告している。三浦と山内¹⁰⁾は、B型セレーションが生じるような温度では溶質原子の拡散速度が大きく転位は溶質原子の雰囲気をひきずった状態で障害物に停止する

Fig. 9 Plots of critical stress σ_c against yield strength $\sigma_{0.2}$. σ_c is the stress for onset of serrated yielding.

が、交差すべりなどによりこの障害物を克服する際に多量の自由転位が発生するため、急激な荷重降下を生じ、これがセレーションとして観察されると考えた。池野⁴⁾は、この障害物は変形に伴う転位のもつれあるいはセル組織などの転位組織であり、これらの転位組織は変形量の増大とともに抵抗の大きさを増すことから、 $\Delta\sigma$ は変形量の増大に伴い増加すると考えた。

次に、本実験で得られた ϵ_c と $\Delta\sigma_{\max}$ の時効時間に対する変化について検討する。転位運動に大きな影響を与えない粒状安定相が析出する時効条件、あるいは棒状準安定相が粗大に析出し過時効状態となった時効条件では、析出物の形成に伴い固溶濃度が低減し溶質原子による転位の固着作用が小となるため ϵ_c は低下すると考えられる。一方、棒状準安定相が微細に析出する時効条件では、変形の初期段階から転位は溶質原子に固着されるだけでなく、析出物によっても運動を妨げられている。この状態では全体に変形しにくく、セレーションも生じにくいから、 ϵ_c は増大すると考えられる。つまり、セレーションの発生には、析出物の形成に伴う変形抵抗 (降伏応力) が重要な影響を与えると考えられる。そこで、セレーションが発生するときの臨界応力 σ_c を降伏応力に対してプロットし、Fig. 9に示す。多少のばらつきはみられるものの、降伏応力と σ_c は正相関の対応関係にあることが認められる。つまり、析出物の形成に伴う変形抵抗の増大がセレーションの臨界応力さらには臨界ひずみを高めていると言える。

$\Delta\sigma_{\max}$ の時効時間に対する変化について考察する。引張性質のところでは省略したが、5%Mg合金では453Kで時効した場合にのみ時効の進展に伴い引張強さが増大することを確認している。この変形抵抗の高まりにより453K時効材の $\Delta\sigma_{\max}$ が増大したと考えられる。10%Mg合金では棒状析出物の形成に伴う変形抵抗の増大が最大荷重点近傍で測定される $\Delta\sigma_{\max}$ を高めたと考えられる。時効が進展し過時効状態に至ると、変形抵抗が低減するため $\Delta\sigma_{\max}$ は低下したと思

われる。

以上から、セレーションは三浦と山内および池野らが述べたセル組織などの障害物が関与した状態で発生・持続するものと考えられる。彼らと異なる点として、本研究の試料には転位運動に対する影響が大きい析出物が存在するが、この析出物も上述の障害物の一部として作用すると思われる。

5. 結 言

種々の条件で時効処理を施した Al-Mg 系合金を実験試料に選り、時効処理に伴う析出物の形成および固溶 Mg 濃度の低下が、引張特性並びに引張変形中に生じるセレーションの形態に与える影響に関して実験的に検討を加え、以下に示す結論を得た。

(1) 粒状安定相が析出する時効条件での 5 および 10% Mg 合金の耐力は、固溶 Mg 濃度の低下に伴い減少する。他方、棒状析出物が形成される時効条件の 10% Mg 合金の耐力は、時効の初期段階で増大する。

(2) 粒状および棒状析出物の形成に伴い引張試験の破断伸びは低下した。破断面を観察したところ、破断伸びの低下は、粒界および粒内での析出物界面の割れに起因することが明らかとなった。

(3) セレーションが発生する際の臨界ひずみ、臨界応力およびセレーションの最大振幅は、析出物と固溶 Mg 濃度に関連する変形抵抗の増大に伴い増加した。

本研究の実施に際し、実験試料の提供並びに有意義な御意見を頂いたスカイアルミニウム㈱岡田健三氏に感謝申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 例えば、里 達雄，高橋恒夫，飯泉 仁，土井健治：軽金属，**34** (1984)，110.
- 2) 中山栄浩，鷹合徹也，金 大洲，山田雄司：日本金属学会誌，**61** (1997)，34.
- 3) 吉永日出男，栗下裕明：軽金属，**31** (1981)，359.
- 4) 池野 進，渡辺徹也，多々静夫：日本金属学会誌，**47** (1983)，231.
- 5) 池野 進，浦野寛幸，上谷保裕，多々静夫：軽金属，**38** (1988)，473.
- 6) 村上陽太郎ほか：アルミニウム材料の基礎と工業技術，軽金属協会，(1991)，315.
- 7) 池野 進，上谷保裕，多々静夫：日本金属学会誌，**48** (1984)，1163.
- 8) 神尾彰彦ほか：アルミニウムの組織と性質，軽金属学会，(1991)，256.
- 9) W. Charnock: Phil. Mag., **20** (1969)，427.
- 10) 三浦 精，山内英明：同志社大学理工学部研究報告，**13** (1972)，233.