6061アルミニウム合金のセレーションに及ぼす 時効処理の影響*

中山 栄浩**・成毛康一郎***

Journal of Japan Institute of Light Metals, Vol. 51, No. 7 (2001), pp. 346-350

Effect of aging treatment on serration of 6061 aluminum alloy*

Yoshihiro NAKAYAMA** and Koichiro NARUKE***

6061 aluminum alloy was aged and tensile tested in order to investigate the effect of the microstructure changes on the serration of the stress-strain curve. The serration was clearly observed for the solution treated specimen and disappeared gradually with proceeding of aging. Stress drops like a sawtooth became small at the first stage of aging treatment and then the serration disappeared with increasing the critical strain, while no noticeable changes in stress fluctuation like a swell. The aging treatment at temperatures below 298 K eliminated the serration by forming clusters, and the aging at temperatures above 353 K eliminated the serration by generating G.P. zones.

(Received November 8, 2000)

Keywords: 6061 aluminum alloy, serration, aging treatment, cluster, G.P. zone

1. 緒 言

引張試験を行うと、荷重-変位曲線上に荷重変動（セレーション）を生じることがある。セレーションの発生は、試料表面にリュースダース帯に類似したひずみ模様の形成を伴い製品の外観を損ねるため、工業的にはセレーションの発生を抑制することが重要となる。アルミニウム合金のセレーションに関する報告は数多くみられるが、それらの報告の大部分はAl-Mg系合金に関連するもので、他のアルミニウム合金に関する報告^{1)~8)}は意外に少ない。近年、環境問題を背景に、自動車の軽量化が声高に叫ばれている中で、Al-Mg-Si系合金をボディパネルに使用することが検討され、一部で実用化されている。プレス加工などを施し、ボディパネルの成形を行う場合には、セレーションに基づくひずみ模様の発生を抑制することが必須となる。セレーションは溶質原子と転位との相互作用により発生することから、時効硬化型合金では溶体化あるいは時効処理に依存してセレーションの発生状況が特徴的に変化すると思われる。以上の背景から、Al-Mg-Si系合金における微細組織の変化がセレーションに与える影響を明らかにすることは、本系合金に関する報告例が少ないこ

と、および工業的な観点からも重要と思われる。そこで本研究では、種々の温度で時効処理を施した場合に生じる微細組織の変化とセレーションとの対応関係について検討を加えた。

2. 実験試料

実験試料には6061合金相当の試料を用いた。化学成分の分析結果をTable 1に示す。Si含有量がJIS規格の上限、Mg含有量が下限に相当し、Mg₂Siバランス組成よりSiが0.3 mass%程度過剰であることが実験試料の特徴である。試料の平均結晶粒径は約60 μmである。803 Kで1.8×10³ s保持した後、氷水中へ急冷した試料に263~453 Kの温度範囲で時効処理を施した。

3. 実験方法

インストロンタイプの試験機を用い、クロスヘッド速度が0.5 mm/min（初期ひずみ速度：8.5×10⁻⁴ s⁻¹）の条件下で引張試験を実施した。試験温度は303 Kである。1条件当たりの試験片本数は2本を基準として、必要に応じて適宜追加した。JIS 7号に準じる板状引張試験片（標点間距離：9.8

Table 1 Chemical composition of a specimen (mass%)

	Si	Fe	Cu	Mg	Cr	Mn	Zn	Ti	Al
JIS 6061	0.40~0.80	~0.70	0.15~0.40	0.80~1.20	0.04~0.35	~0.15	~0.25	~0.15	bal.
Applied specimen	0.80	0.18	0.42	0.85	0.14	0.05	0.06	0.02	bal.

* 軽金属学会第98回春期大会（平成12年5月）で一部発表。

** 山梨大学工学部機械システム工学科（〒400-8511 山梨県甲府市武田4-3-11）。Department of Mechanical System Engineering, Faculty of Engineering, Yamanashi University (4-3-11 Takeda, Kofu-shi, Yamanashi 400-8511).

*** 山梨大学大学院（甲府市）。Graduate Student, Yamanashi University (Kofu-shi, Yamanashi).

Fig. 1 Change in 0.2% proof stress with aging time.

mm, 板厚: 1.0 mm, 幅: 6.0 mm) を試験片の長手方向と圧延方向とが平行となるように採取した。直流 4 端子法により 100 mA を通電した際の電位差を 273 および 77 K で測定することにより, 試料の電気比抵抗の比 (Resistivity Ratio: $R.R. = \rho_{273K} / \rho_{77K}$, 以下 R.R. と記載) を求めた。試験片形状は $1 \times 3 \times 120$ mm である。示差熱分析装置による検討では, 重量を 10.0 mg に調整した試料を 10 K/min (0.167 K/s) の割合で昇温した際の熱流を測定した。この場合, 同一重量を有する純アルミニウム (99.99 at%) をリファレンスに用いた。ところで, Al-Mg-Si 系合金では溶体化処理直後から微細組織に変化を生じることが懸念されるので, 急冷から 15 分以内に測定あるいは実験が実施できるように試料準備を行った。

4. 実験結果

最初に, 機械的性質の一例として, 0.2% 耐力の時効時間に対する変化を Fig. 1 に示す。時効温度が高いほど短時間の時効処理で耐力は増大する傾向を示すが, 333 K を境に耐力の増大する状況が若干異なる。333 K より低温の時効温度では, 時効時間の延長に伴う耐力の増大は下に凸の曲線で表されるが, 333 K を越える高温では上に凸の曲線となることから, これらの時効温度範囲における耐力の増大には異なる微細組織の変化が関与していることが示唆される。

時効処理に伴うセレーシヨンの状態を捉えるため, 室温 (298 K 程度) で保持した試料の荷重-変位曲線を Fig. 2 に示す。図に示した結果から明らかなように, 溶体化処理 (S.T.) 直後の状態で荷重の変動幅 (荷重振幅) ならびに荷重変動の発生頻度が最大であることから, セレーシヨンは最も激しく生じている。室温で放置すると, 時間の経過に伴い荷重振幅と発生頻度は減少し, 3.6×10^5 s の時間に至るとセレーシヨンは消失する。S.T. 材では塑性変形の開始と同時にセレーシヨンが発生することから, セレーシヨンが発生する際のひずみ (臨界ひずみ) はゼロとなるが, 時効時間の経過に伴い臨界ひずみは増大する。

荷重変動の状態を詳細に観察するため, 荷重-変位曲線を拡大して Fig. 3 に示す。図では塑性変形が進んだ段階 (変位: 約 4 mm) について示したが, 時効の進展に伴いいくつ

Fig. 2 Load-displacement curves of specimens solution treated and aged at room temperature.

Fig. 3 Enlarged load-displacement curves of specimens solution treated and aged at room temperature.

かの特徴が観察される。S.T. 状態の試料には, うねりに類似した周期の長い不規則な荷重変動 (うねり成分) の上に, 規則的な周期を有し垂直的な荷重の低下と上昇とを繰返す荷重変動^{*1} (鋸刃成分) が重ね合されたような複雑な荷重の変動がみられる。このようなセレーシヨンの形態は, Al-Mg 系合金で観察される A+B タイプの荷重変動⁹⁾ に類似している。時効が進展すると, 主に鋸刃成分の荷重振幅が減少するとともに鋸刃成分の周期はやや増加する。時効時間が 1.08×10^4 s に至ると鋸刃成分はほぼ消失し, うねり成分のみの荷重変動となる。時効時間の更なる延長に伴い, うねり成分の荷重振幅はわずかに低減するものの, 臨界ひずみの増大に付随してセレーシヨンは消滅するようである。

以上の時効処理に伴うセレーシヨンの変化を定量的に示すため, 荷重振幅と発生頻度について次のような整理を行った。塑性ひずみ ε に対する応力振幅 $\Delta\sigma$ と発生頻度 N の対応関係を室温で時効した試料について求め, Fig. 4 に示した。ここでは, 各データの横軸に対応するひずみを中心に

*1 S.T. 材で観察される鋸刃状の荷重変動では, 約 0.2 秒の間に荷重は瞬間的に低下し, その後, 0.5~1.0 秒程度の時間を費やして荷重が増加することを確認した。

Fig. 4 Changes in mean amplitude and frequency of stress drop with plastic strain. Specimens were aged at room temperature.

Fig. 5 Changes in mean amplitude and frequency of stress drop with aging time.

±1%のひずみ領域で $\Delta\sigma$ と N の測定を行った。ひずみが1%増加する間に生じる荷重変動の平均的な回数を発生頻度 N 、その際の平均的な荷重の変動幅を公称応力に換算した値を応力振幅 $\Delta\sigma$ として求めた。S.T. 材や 1.08×10^3 s時効材では、変形の初期段階で応力振幅が小さく、発生頻度が大きい、塑性変形の進展に伴い発生頻度は減少し、応力振幅は増大する。つまり、変形の進展に伴いセレーションの状態が粗になる。時効が進んだ試料では、発生頻度が顕著に低下し、ひずみとともに応力振幅が増大しない点の特徴である。

いくつかの時効温度において時効時間に対する応力振幅や発生頻度の変化を求めた結果をFig. 5に示す。ここでは、Fig. 4の結果を参照して、18~22%の塑性ひずみ範囲について応力振幅などの測定を行った。図に示した結果から、いずれの時効温度でも、時効処理の進展に伴い応力振幅と発生頻度の双方が同時に減少し、セレーションが消滅に至る状況が理解できる。

Fig. 6 Plot of critical strain against aging time.

Fig. 7 Arrhenius plot of critical strain. Time was obtained from 15% increase in critical strain.

応力振幅などと同様に、セレーションの特徴を表す臨界ひずみ ϵ_c の時効処理に伴う変化をFig. 6に示す。いずれの時効温度でも時効時間の延長に伴い臨界ひずみは増大することから、セレーションの発生は時効処理の進展に伴い抑制されると言えるが、時効温度に関連して次に述べる特徴がみられる。時効温度が高温で時効時間が短時間の場合にやや複雑な変化を示すものの、263~298 K (低温側) および353~403 K (高温側) の各時効温度範囲では、同一の臨界ひずみに達するまでに必要となる時効時間が時効温度の上昇に伴い規則的に短縮される傾向にある。しかし、低温側および高温側の両時効温度の間には関連がみられない。また、中間の時効温度である333 Kの臨界ひずみは、他の時効温度における臨界ひずみと比較しても、非常に複雑な変化を示す。臨界ひずみの時効温度依存性をさらに明瞭とするため、臨界ひずみが15%に達する際の時効時間を時効温度に対してArrheniusプロットするとFig. 7に示す関係が得られる。図に示した結果から明らかなように、低温側と高温側で異なる依存性が得られる。Arrheniusの関係式に従い、各温度範囲における見掛けの活性化エネルギーを求めると、72.2 (263~298 K) および54.7 kJ/mol (353~403 K) となる。時効処理に対する

Fig. 8 Change in resistivity ratio with aging time.

臨界ひずみの変化が低温側と高温側で異なることから、セレーシヨンの発生（臨界ひずみ）に影響を及ぼす組織的な変化が両温度範囲で相違していることが示唆される。

5. 考 察

前述のように、時効処理に伴う微細組織の変化がセレーシヨンの状態および発生に影響を与える。また、高温側と低温側でセレーシヨンの発生に影響を及ぼす組織変化が異なることが推測された。以下では、時効処理に関連する組織変化について具体的に検討する。

Al-Mg-Si 系合金の時効析出過程は池野や松田らにより精力的に検討されており、詳細は彼らの解説¹⁰⁾を参照して頂きたいが、一般的には、クラスタ→G.P. ゾーン→準安定相→安定相の順に相分解が進展すると言われている。この組織変化に関連する比抵抗の変化は、クラスタの形成に伴い増大するが、G.P. ゾーン以降の組織変化では減少する。本研究では、前述の R.R. を用いて微細組織の考察を行うが、R.R. の定義からわかるように、同一の組織変化に対して R.R. は比抵抗と逆の変化を示す。

本研究で得られた時効処理に伴う R.R. の変化を Fig. 8 に示す。298 K 以下の低温側の時効温度では、いずれの時効温度でも時効時間の延長に伴い R.R. は低下する傾向を示すことから、クラスタの形成が示唆される。時効温度が 298 K の場合、短時間の時効処理でクラスタの形成は著しいが、 10^5 s を越える時効時間に至ると析出が飽和するようである。263 および 274 K では 10^4 s を過ぎる時効時間からクラスタの形成が始まり、 10^5 s を越える時効時間でもクラスタの形成は飽和しない。他方、353 K 以上の高温で時効処理を施した場合、短時間の時効処理あるいは 353 および 373 K の時効温度では、S.T. 材と比較して小さな R.R. を示すものの、時効時間の延長に伴い R.R. が増加する傾向を示すことから、G.P. ゾーンや準安定相などの析出が示唆される。

R.R. に対して相反する効果を有するクラスタと G.P. ゾーンとが共存する場合には、R.R. の変化から微細組織の状態を推定することは困難となる。たとえば、403 K の時効温度では、S.T. 状態からいったん低下した R.R. が時効時間の延長に伴いもとの値まで回復している。このような R.R. の

Fig. 9 Heat flow curves of solution treated and aged specimens. Specimens show equivalent value of resistivity ratio.

変化を生じる原因として、三つの組織変化を考えることができる。①時効の初期段階で形成されたクラスタが母相に固溶する。②クラスタの構造が変化し、G.P. ゾーンに移行する。③クラスタはそのまま、新たに G.P. ゾーンが形成される。

等しい R.R. の値を示す 403 K で 3.6×10^5 s の時効処理を加えた試料と S.T. 状態の試料に関する熱分析曲線を Fig. 9 に示す。時効初期段階に形成されるクラスタなどの析出物に関しては意見の相違もみられるが、本系合金の熱分析曲線で観察される吸熱および発熱反応は、およそ次のように考えられている^{10)~12)}。453~473 K 付近に生じる吸熱反応はクラスタの再固溶、493~523 K 付近の発熱反応は G.P. ゾーンの析出、および 553~573 K 付近の発熱反応は準安定相の析出に相当する。S.T. 材では G.P. ゾーンおよび準安定相の析出に関連する明瞭な発熱反応とクラスタの再固溶に伴うわずかな吸熱反応^{*2}が観察される。403 K 時効材では、G.P. ゾーンの析出に対応する発熱反応が消失し、クラスタの再固溶に対応する吸熱反応（S.T. 材の場合より若干高温側に移動している）が明瞭となる。このことから、時効初期段階で形成されたクラスタに加えて、新たに G.P. ゾーンが析出したことによ

り、403 K 時効材の R.R. が S.T. 材の値まで回復したと考えられる。

セレーシヨンがほぼ消滅する時効条件の試料について、熱分析を行うと Fig. 10 に示す結果が得られた。298 K 以下で時効処理を施した低温時効の試料では、クラスタの再固溶に関連する吸熱反応が増大する。一方、353 K 以上の高温で時効した試料では、主として G.P. ゾーンの発熱反応が消失している点が明瞭に観察される。したがって、低温時効ではクラスタの形成に伴い、高温時効では G.P. ゾーンの形成に伴

*2 この場合の吸熱反応は、熱分析の昇温過程で生成されたクラスタが母相へ再固溶する際の熱変化を現すと考えられる。

Fig. 10 Heat flow curves of solution treated and aged specimens. Specimens were aged until serration disappeared.

いセレーションが消滅すると言える。

上述のように、クラスタおよびG.P.ゾーンの形成に伴いセレーションは消滅するが、セレーションの原因となる溶質原子はMgあるいはSi原子のいずれであろうか。Mg原子がセレーションを誘発することはよく知られているが、Si原子もセレーションの原因となりうることを小林ら¹³⁾は報告している。本研究では、S.T.状態で最も顕著なセレーションが観察され、時効に伴いセレーションは消失する。G.P.ゾーンはMgおよびSi原子の双方を含んだ析出物であるため、いずれの原子がセレーションの原因であるか特定することはできない。他方、クラスタについては、時効初期段階で形成される微細かつ不安定な相であり、検討が困難であることからその構造に関しては現在でも統一的な結論が得られていない。Siのクラスタ、Mgのクラスタおよび両者を含んだ複合クラスタ^{*3}などさまざまである¹⁰⁾。したがって、現状で

*3 微細G.P.ゾーンと呼ぶ研究者もあり、述語の統一がなされていない。

はセレーションの原因となる溶質原子を特定することは困難である。今後、セレーションの温度依存性、ひずみ速度依存性あるいはMgとSi含有量を系統的に変化させた試料に関して詳細な実験を行うことにより、Al-Mg-Si系合金で観察されるセレーションの原因を明らかにすることができると思われる。

6. 結 言

6061合金を実験試料に選び、種々の温度で時効処理を施した場合に生じる微細組織の変化とセレーションとの対応関係について系統的に検討を加えた。その結果、以下の内容が明らかとなった。6061合金に生じるセレーションは溶体化処理状態で最も顕著に観察されるが、時効処理の進展に伴い消滅した。最初に鋸刃成分の荷重変動が減衰し、うねり成分の荷重変動に明瞭な変化がみられない状態で、臨界ひずみの増大に伴いセレーションが消滅することを確認した。353 K以上で時効処理を加えた場合にはG.P.ゾーン、298 K以下で時効処理を加えた場合にはクラスタの形成に伴いセレーションが消滅することを明らかにした。

本研究は、(株)軽金属学会・アルミニウム合金の動的変形と強度研究部会の研究活動の一環として行われたことを付記するとともに、実験試料をご提供頂いた(株)神戸製鋼所中井 学氏に感謝申し上げる。

参 考 文 献

- 1) 横田耕太郎, 小松原俊雄, 里 達雄, 神尾彰彦: 軽金属, 42 (1991), 149.
- 2) 金谷輝人: 軽金属学会第91回秋期大会講演概要, (1996), 189.
- 3) 金谷輝人, 吉岡和樹, 田代 勤: 軽金属, 47 (1997), 110.
- 4) 金谷輝人: 軽金属学会第92回春期大会講演概要, (1997), 211.
- 5) 金谷輝人: 軽金属, 47 (1997), 559.
- 6) 金谷輝人: 軽金属, 47 (1997), 696.
- 7) 金谷輝人, 山本陽城: 軽金属, 48 (1998), 48.
- 8) 中井 学, 江藤武比古: 軽金属学会第97回秋期大会講演概要, (1999), 37.
- 9) 中山栄浩: 日本金属学会誌, 64 (2000), 1257.
- 10) 松田健二, 池野 進: 軽金属, 50 (2000), 23.
- 11) 鈴木 寿, 菅野幹宏, 白石泰久: 軽金属, 28 (1977), 233.
- 12) I. Dutta, S. M. Allen and J. L. Hafley: Met. Trans. A, 22A (1991), 2553.
- 13) 小林俊郎, 新家光雄, 池田浩一: 軽金属, 36 (1986), 555.