2 ppmNa を含む Al-5%Mg 合金の高温延性に及ぼす ひずみ速度の影響

山田 浩之*・堀川敬太郎**・小林 秀敏**

Journal of Japan Institute of Light Metals, Vol. 57, No. 1 (2007), pp. 25-29

Effect of strain rate on hot ductility in Al-5mass%Mg alloys containing 2 ppm of sodium

Hiroyuki YAMADA*, Keitaro HORIKAWA** and Hidetoshi KOBAYASHI**

An impact tensile test was performed by means of the split-Hopkinson bar method to clarify the influence of strain rate on high temperature embrittlement in Al-5%Mg alloys containing traces of sodium. When the specimen was tested at a strain rate of 500 s^{-1} , the hot ductility of the Al-5%Mg-2ppm Na alloy decreased with increasing testing temperature, and the recovery of the ductility above 400°C was not identified. As a result of the impact test, the temperature lowering the hot ductility shifted to higher temperature in comparison with the quasi static test. Intergranular fracture was observed around 300°C in both the quasi static test and the impact test. However, area fraction of the intergranular fracture decreased in the impact test around 300°C . Observation of intergranular fracture surfaces revealed that a number of intergranular dimples were observed at grain boundary after the quasi static test, while the ledge patterns were observed at grain boundary after the impact test. It was also clarified that the high temperature embrittlement was suppressed by 200 ppm of bismuth addition below 400°C even when the specimen was deformed at high strain rate of 500 s^{-1} .

(Received July 10, 2006 Accepted September 20, 2006)

Keywords: Al-Mg alloy, split-Hopkinson bar method, impact, high temperature embrittlement, sodium

1. 緒 言

固溶体硬化型合金である Al-Mg 系合金は、常温の耐食性・強度・延性等の機械的性質が優れている。しかしながら、 200°C から 400°C の高温度域では、マグネシウムを 5% 含む粗粒多結晶 Al-Mg 合金の場合、粒界割れに基づく延性の低下（高温脆化）を起こすことが従来より報告¹⁾されている。この高温脆化は、熱間圧延加工時の耳割れ、わに口割れ等と密接に関連しているとされており、その抑制が実用的にも重要な問題となっている。

この Al-Mg 合金の高温脆化は合金中の極微量不純物に大きく依存することが報告されている²⁾。高純度のアルミニウム (99.999%)、マグネシウム (99.98%) を原料地金としてナトリウム量を 0.1 ppm 以下に低減させた Al-5%Mg 合金では、延性と温度の関係でみられる高温脆化の谷がほぼ消失する。したがって、高温脆化現象は Al-5%Mg 合金中に含まれる ppm オーダの極微量の不純物ナトリウムにより生じた現象であると考えられている²⁾。一方、ナトリウムと親和力の高いビスマスやアンチモンをナトリウムと同量以上 Al-5%Mg 合金へ添加することにより、高温脆化が生じなくなることも報告されている³⁾。

これまで、比較的ひずみ速度の小さい範囲 ($10^{-5} \sim 10^{-1} \text{ s}^{-1}$) で Al-Mg 合金の高温延性に及ぼすひずみ速度の影響が調べられており、ひずみ速度が大きいほど延性-温度曲線に出現する延性低下の谷が、形状が不変のまま高温側に移行することが明らかにされている¹⁾。しかしながら、不純物ナトリウムの影響が考慮された Al-5%Mg 合金の高温延性に対するひずみ速度の影響についてはこれまで明らかにされていない。Al-Mg 系合金の熱間加工を制御する上で、不純物とひずみ速度の影響を包括して理解するのは重要であるといえる。

そこで本研究では、2 ppm ナトリウムを含む高純度 Al-5%Mg 合金を用いて、高温脆化に及ぼすひずみ速度の影響を調査した。また、高温脆化抑制作用のあるビスマスを微量添加した Al-5%Mg-2ppmNa 合金の高温衝撃引張特性についても合わせて検討した。

2. 実験方法

原料地金として純度 99.999 mass% Al (Na < 0.5 mass ppm), 99.98 mass% Mg (Na < 9 mass ppm), 母合金として Al-0.06 mass% Na, Al-2 mass% Bi 合金を用いてアルゴン雰囲気中で Al-5%Mg-2ppm Na 合金（以下、2Na 合金とする）および Al-5%Mg-2ppm Na-200ppm Bi 合金（以下、2Na-200Bi 合金

* 大阪大学大学院基礎工学研究科機能創成専攻大学院生 (〒560-8531 大阪府豊中市待兼山町1-3)。Graduate Student, Department of Mechanical Science and Bioengineering, Graduate School of Engineering Science, Osaka University (1-3, Machikaneyama, Toyonaka-shi, Osaka, 560-8531).

** 大阪大学大学院基礎工学研究科機能創成専攻(豊中市)。Department of Mechanical Science and Bioengineering, Graduate School of Engineering Science, Osaka University (Toyonaka-shi, Osaka).

とする)を溶製した(以下, mass%, mass ppm はそれぞれ %, ppm と表す)。溶製した鋳塊に対し, アルゴン雰囲気中で均質化処理 (430°C, 18h) を行った後, 冷間スエーピング加工 (加工度: 70%), 旋盤加工により平行部 $\phi 4\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ を有する丸棒引張試験片を作製した。作製した合金の化学組成は **Table 1** に示す通りで Mg 以外は molppm である。すべての試験片に対して, 510°C, 30 分で焼なましを行った後に水焼入れすることにより, 平均結晶粒径を約 $300\text{ }\mu\text{m}$ に調整した。

準静的引張試験は室温から 450°C の温度範囲において島津オートグラフ (容量: 5kN) を用いて初期ひずみ速度一定 ($\dot{\epsilon}=8.3 \times 10^{-5} \sim 8.3 \times 10^{-3}\text{ s}^{-1}$) で行った。試験温度は熱電対を試験片に接触させることにより測定し, 所定の温度に達した後に引張試験を開始した。

衝撃引張特性の評価には, 衝撃試験法の中でも信頼性の高い方法の一つとされているスプリット・ホプキンソン棒法を用いた。この試験方法では, 2 本の弾性丸棒間に挟み込んだ試験片の動的応力-ひずみ関係を精密に測定することができる。**Fig. 1** に小川らの試験装置⁴⁾を参考にして本研究室で独自に作製したスプリット・ホプキンソン棒型衝撃引張試験装置の概略図を示す。入力棒 (S45C 製) の直径は 20mm, 長さは 3.0m であり, 出力棒 (S45C 製) の直径は 20mm, 長さは 1.5m である。入出力棒間に挟まれた試験片を, 0.9MPa の空気圧で加速された 5052 アルミニウム合金製の打出し管が入力棒の端部に設けたヨークに衝突するとひずみパルス (入射波: $\epsilon_i(t)$) が入力棒中を伝播する。試験片に到達したひずみパルスの一部は入力棒に反射し (反射波: $\epsilon_r(t)$), 残りは試験片を通じて出力棒に透過される (透過波: $\epsilon_t(t)$)。本研究で用いた打出し管の長さ L は 1.0m, 炭素鋼およびアルミニウム合金製の弾性棒内を伝わる縦弾性波速度 c_0 は約 $5.0 \times 10^3\text{ m/s}$ である⁵⁾ ので持続時間 $2L/c_0 \approx 400\text{ }\mu\text{s}$ のひずみパルスが伝播することになる。入出力棒上に軸対称に貼り付けた 2 枚の半導体ひずみゲージ (KYOWA: KSP-2-120-E4) より得られたひずみパルスをブリッジ回路, 動ひずみ計を経てデジタルオシロスコープ (IWATSU: DS-4264M) に取り込み, 電圧波形解析を行うと次式 (1)–(3) より, ひずみ ϵ , ひずみ速度 $\dot{\epsilon}$, 応力 σ が得られる⁶⁾。

Table 1 Chemical compositions of Al-5%Mg alloys (mol ppm)

Alloy	Mg*	Bi	Na	Si	Fe	Al
2Na	5.1	—	1.8	16	2.9	Bal.
2Na-200Bi	5.1	190	1.6	19	—	Bal.

*mass%

$$\epsilon = \frac{2c_0}{l_s} \int_0^t (\epsilon_i(t) - \epsilon_r(t)) dt \quad (1)$$

$$\dot{\epsilon} = \frac{2c_0}{l_s} (\epsilon_i(t) - \epsilon_r(t)) \quad (2)$$

$$\sigma = \frac{AE}{A_s} \epsilon_t(t) \quad (3)$$

ここで, 入出力棒のヤング率, 断面積をそれぞれ E , A , 試験片平行部の初期長さ, 初期断面積をそれぞれ l_s , A_s とする。

高温衝撃引張試験時の試験片の加熱は環状の赤外線ゴールドイメージ炉を用いて行い, 200°C から 500°C の各試験温度で 30 分間等温保持した後, 引張試験を開始した。試験温度は準静的試験と同様に熱電対を試験片に接触させることにより測定した。(2) 式より, 試験装置性能 (入射波の大きさ) と試験片形状から本試験機で得られる平均ひずみ速度は $\dot{\epsilon} \approx 500\text{ s}^{-1}$ であった。

延性の尺度は断面減少率, 破断伸び (試験後, 試験片を付き合わせて測定した伸び) を測定することにより評価した。破断後, 走査型電子顕微鏡 (SEM) による破面観察を行った。

3. 実験結果および考察

3.1 2Na 合金の高温における衝撃引張特性

Fig. 2 に 2Na 合金の温度変化による準静的試験と衝撃試験の断面減少率の変化を示す。ひずみ速度 10^{-3} s^{-1} までの準静的試験においては, ひずみ速度の上昇に伴い延性低下の谷の

Fig. 2 Effect of strain rate on hot ductility in an Al-5%Mg-2ppmNa alloy.

Fig. 1 Split-Hopkinson bar apparatus for impact tensile test.

幅は広がっているが、谷の深さはひずみ速度によらずほぼ一定の値（約5%）であった。2Na合金では、従来より報告されている¹⁾ ひずみ速度の上昇に伴う脆化の谷の高温側への移行ではなく、脆化開始温度がほぼ同程度で、谷の幅のみが広がる傾向を示した。一方、衝撃試験では、400°C付近以上での高温延性の回復がなくなることが明らかになった。また、衝撃試験では準静的試験とは異なり、延性低下の開始温度が高温側に移行することがわかった。

Fig. 3 に2Na合金の各試験温度における動的応力-ひずみ曲線を示す。試験温度の上昇に伴い、応力が低下することがわかる。室温から300°Cにおける試験片では負荷時間が短いために破断までデータが採取できていないが、400°C以上で伸びの低下が認められる。

ひずみ速度 10^{-4}s^{-1} の準静的試験（以下、準静的試験はひずみ速度 10^{-4}s^{-1} を表す）において最も高温脆化が顕著に現

Fig. 3 Stress-strain curves of an Al-5%Mg-2ppmNa alloy deformed at a strain rate of 500s^{-1} .

Fig. 4 Fracture surfaces of an Al-5%Mg-2ppmNa alloy tested at 300°C by static test a) and by impact test b).

Fig. 5 Intergranular fracture surfaces of an Al-5%Mg-2ppmNa alloy tested at 300°C by static test a) and by impact test b).

れる300°Cにおける破断伸び、断面減少率をみると、衝撃試験では破断伸びが26%であるのに対し、準静的試験で6%と大きな差が認められた。断面減少率にも同様のことがみられ、衝撃試験では31%であるのに対し、準静的試験で5%であった。**Fig. 4** に2Na合金の300°Cにおける準静的試験と衝撃試験の破断面SEM像の比較を示す。準静的試験、衝撃試験いずれも粒界割れをしているが、準静的試験の場合と比べて、衝撃試験では粒界破面率が低下している。

脆化温度域における粒界破面率の低下の原因を明らかにするために、準静的試験と衝撃試験後の粒界破断面SEM像の比較を行った(**Fig. 5**)。準静的試験においては、粒界破面上に粒界キャビティの痕跡を示す粒界ディンプルが高密度に観察されたのに対して、衝撃試験においては、粒界ディンプルの密度は準静的試験と比較すると非常に少なく、代わりに粗大すべり帯の痕跡を示すレッジ模様が多くの観察された。さらに、300°C衝撃試験でわずかに観察された粒界ディンプルの数密度は温度の上昇とともに減少し、500°Cで破断させた粒界面ではほとんど観察されなかった。したがって、衝撃試験における粒界破面率の低下の原因は破断の形態が変化したためであると推測される。衝撃試験において粒界ディンプルが非常に少なくなった原因として、破断に要する時間が準静的試験と比較して非常に短い(10^{-6}s)ため、変形中の粒界キャビティの成長が困難であった可能性が考えられる。一方、粒界でのレッジ模様は、粒内の粗大すべりが生じているものを示すものであり⁷⁾、粒界に対して応力集中の局在化が生じていると考えられる。今後、組織観察に基づく粒界近傍の変形を観察することで高温衝撃変形による破断のプロセスを詳しく解析する必要がある。

衝撃試験では試験片の破断が非常に短い時間で起こるため、塑性変形による断熱的な温度上昇を考慮する必要がある

る。温度上昇は次式で表すことができる⁸⁾。

$$\Delta T = \beta \frac{1}{\rho C_p} \int_0^{\epsilon_p} \sigma d\epsilon_p \quad (4)$$

ここで、 ΔT は温度上昇、 C_p は定積比熱、 ρ は密度、 ϵ_p は塑性ひずみである。 β は塑性仕事の熱への変化の割合を示しており、林ら⁹⁾によって純アルミニウムでは約0.95であることが報告されている。2Na合金において破断まで採取できた400°Cと500°Cの温度上昇を計算すると、400°Cで約38°C、500°Cで約11°Cの温度上昇が生じると算出される。したがって、高温脆化を示す温度では塑性変形による断熱的温度上昇の影響は小さいものと判断できる。

温度補償を行ったひずみ速度を表す Zener-Hollomon パラメータ ($Z = \dot{\epsilon} \exp(Q/RT)$: Q は Al の自己拡散活性化エネルギー、 R は気体定数、 T は試験片の絶対温度) を用いて高温延性を整理することにより、不純物 Na がどの温度域に強く影響を与えているかを考察する。2Na合金の高温延性を Zener-Hollomon パラメータで整理した図が Fig. 6 である。高温延性の低下が生じる低温の高 Z 領域において曲線は一致せず、この領域において不純物 Na の影響が顕著であると考えられる。一方、低 Z 領域では、曲線がほぼ一致しており、高温での延性の回復には不純物 Na の影響は小さいと考えられる。

3.2 高温衝撃引張特性に及ぼす微量 Bi 添加の影響

Bi による高温脆性の抑制³⁾が衝撃試験でも生じるかを調査するために 2Na-200Bi 合金を用いて 2Na 合金と同様の検討

Fig. 6 Reduction in area as a function of Zener-Hollomon parameter in an Al-5%Mg-2ppmNa alloy.

を行った。

Fig. 7 に 2Na-200Bi 合金の温度変化による準静的試験 ($\dot{\epsilon}=8.3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$) と衝撃試験 ($\dot{\epsilon}=500 \text{ s}^{-1}$) の断面減少率の変化を示す。室温においては 2Na 合金と同様に大きな違いは見られないが、400°C までは衝撃試験でも約 70% の高延性を示すことが明らかになった。

Fig. 8 に 2Na-200Bi 合金を 300°C および 500°C で衝撃引張破断させた場合の破断面の SEM 像を示す。先に Fig. 4 に示した 2Na 合金では 300°C において粒界破壊を起こしていたが、2Na-200Bi 合金の場合では同温度で延性破壊に変化していることがわかる。2Na-200Bi 合金の室温から 400°C までの間の高延性は破壊の形態が粒界破壊から粒内破壊に変化したことによるものといえる。これらのことから、衝撃変形時においても 400°C 以下では微量 Bi 添加によって粒界の Na が粒界より除去されたことにより、高温脆化が抑制されていると推測される。

しかしながら、2Na-200Bi 合金においても 500°C の衝撃試験では粒界割れによる急激な延性低下が観察された。粒界破断面の SEM 観察を行うと Fig. 8 (b) に示すように粒界の表面に直径 1 μm 程度の球状の析出物が観察される。本研究で用いた 2Na-200Bi 合金は、準静的試験や衝撃試験の結果、Bi の融点 (271°C) 付近では延性低下が生じないことから、Al-Bi 系合金で報告¹⁰⁾されているような Bi 相の溶融の影響は小さ

Fig. 7 Effect of strain rate on hot ductility in Al-5%Mg-2ppmNa alloys with and without 200 ppm Bi addition.

Fig. 8 Fracture surfaces of an Al-5%Mg-2ppmNa-200ppmBi alloy tested by impact test at 300°C a) and 500°C b).

いものと考えられる。500°Cの衝撃試験では粒界に存在するBi相以外の低融点のNaBi化合物（融点： $T_m=446^{\circ}\text{C}$ ）等の溶融が生じて延性の低下を生じた可能性が考えられる。

4. 結 言

Al-5%Mg合金の高ひずみ速度による高温領域の不純物Naの影響を明らかにするために、高純度Al-5%Mg-2ppmNa合金とAl-5%Mg-2ppmNa-200ppmBi合金を用いて準静的引張試験と衝撃引張試験を行った。得られた結果は以下の通りである。

(1) 準静的引張試験でみられた高温領域での断面減少率の回復現象が衝撃引張試験では観察されない。

(2) 準静的試験における高温延性低下の開始温度は、ひずみ速度の変化に関係なくほぼ一定であるのに対して、衝撃試験では延性低下の開始温度は高温側に移行する。

(3) 衝撃試験では、高温脆化領域において観察される粒界破断面にレッジ模様がよく観察された。

(4) 400°C以下の衝撃試験では、200ppmBi添加によって

2ppmのNaに起因した高温脆化の抑制効果が認められる。

参 考 文 献

- 1) 大塚正久, 堀内 良: 日本金属学会誌, **48** (1984), 688.
- 2) 堀川敬太郎, 倉本 繁, 菅野幹宏: 軽金属, **48** (1998), 371.
- 3) K. Ueda, K. Horikawa and M. Kanno: Scripta Materialia, **37** (1997), 1105.
- 4) 小川欽也: 軽金属, **51** (2001), 175.
- 5) W. Johnson: IMPACT STRENGTH OF MATERIALS, Edward Arnold, (1972), 5.
- 6) 横山 隆: 第三回衝撃工学フォーラム, 日本材料学会衝撃部門委員会, (2004), 45.
- 7) S. Kuramoto, G. Itoh and M. Kanno: Metallurgical and Materials Transactions A, **27A** (1996), 3081.
- 8) R. Smerd, S. Winkler, C. Salisbury, M. Worswick, D. Lloyd, M. Finn: International journal of Impact Engineering, **32** (2005), 541.
- 9) T. Hayashi, H. Yamaura, O. Shigeru: Proceedings of 20th Japan congress on materials research, (1977), 94.
- 10) D. D. Perovic, G. C. Weatherly and W. A. Miller: Acta Materialia, **36** (1988), 2249.