Al-1%Mg₂Si-0.4%Si 合金の加工熱処理 による延性の改善

池野 進* ・ 山本 有一**
上谷 保裕*** ・ 多々 静夫*

Improvement of ductility by thermo-mechanical treatment in Al-1%Mg₂Si-0.4%Si alloy

UDC: 669.715'721'782-12: 539.4.016

Susumu IKENO*, Yuichi YAMAMOTO**, Yasuhiro UETANI***
and Shizuo TADA*

Effects of thermo-mechanical treatment on mechanical properties of the alloy were investigated by tensile tests. When Al-1%Mg₂Si-0.4%Si alloy is cold rolled by 30% and aged at 150°C, intergranular fracture becomes predominant with prolonged aging time and the elongation reduces to 2% or less. If the amount of deformation is as high as 90% in this case, both tensile strength and elongation increase with an increase in aging time. The elongation at the maximum strength during aging is remarkably improved from that obtained by aging just after solution treatment. The elongation at the maximum strength during aging lowers at elevated aging temperatures after cold rolling.

(Received July 13, 1984)

1. 緒 言

時効硬化型合金である Al-Mg₂Si 基合金においては、化学量論組成の合金に比べ、時効硬化能が大きいこと、熱間加工性が良い¹⁾ことなどから、Si を過剰に含む成分の合金が注目されている。しかし、Si 過剰型合金では粒界割れが生じて延性が劣化することに難点がある²⁾。

従来、Al-Mg₂Si 基合金に加工熱処理を適用することにより、強度の改善をはかるといった研究が幾つかなされ、加工熱処理が有効であると報告されている^{3)~7)}。

一方、本系合金の加工熱処理による延性の改善に対する研究は少ない。金子⁵⁾は6061合金を予備時効後に加工し、さらに最終時効をほどこすといった加工熱処理を加えると、強度の改良は見られるが、延性の改善効果がないと報告している。

しかし、近年宇野と馬場⁸⁾が本系合金を溶体化処理後直ちに加工を加えて時効処理を行うという加工熱処理を適用し、延性の改善を試みた。その結果、本系合金に

Cr を添加した合金や、化学量論組成より Mg を過剰に含む合金においてはあまり効果が得られなかったが、Si を過剰に含む合金において著しい延性の改善効果が得られたと報告している。彼らの結果を見ると、Si 過剰型合金において、こうした処理では20%加工材よりも50%と加工度の高い材料において、より延性の改善が大きいようである。金子⁵⁾も述べているように、加工熱処理によつて材料を強化すると、その強化の一部が加工硬化によつて得られるので、幾分延性が低下すると考えられる。それにもかかわらず、宇野と馬場の結果では加工度の高い方が延性が大きい傾向が見られ、これは異常な効果のように思われる。

本報告はこのような観点から、主に Si 過剰型合金に加工熱処理をほどこす時の加工度の影響を調べ、延性の改善に対する主因を明らかにしようと試みたものである。

また、加工熱処理をほどこした時の延性の変化を引張り試験により測定し、加工度および時効温度を変化させ

* 富山大学工学部 (高岡市)。Faculty of Engineering, Toyama University (Takaoka)。

** 富山大学大学院 (高岡市)。現大平洋製鋼(株)。Graduate School, Toyama University (Takaoka)。Presently at Pacific Steel Maf. Co.

*** 富山県立技術短期大学 (射水郡)。Toyama Prefectural College of Technology (Imizu)。

て種々の組合せの処理を行い、延性の改善に最も適当と思われる処理を検討した結果についても報告する。

2. 実験方法

99.99%Al, 99.9%Mg および99.0%Si インゴットを大気中で溶解鑄造し、Al-0.96%Mg₂Si-0.39%Si 合金を作製した。また、比較のためにAl-0.96%Mg₂Si 合金も同時に作製した。両合金の化学分析値を **Table 1** に示す。

本文中では Al-0.96%Mg₂Si 合金を基合金と称し、0.39%Si を過剰に添加した合金を Si 過剰合金と呼ぶ。

これらの試料を熱間および冷間圧延で、最終厚さが1 mm になるような所定の厚さにした後、575°C で1時間の溶体化処理後に氷水中へ急冷した。その時の結晶粒度は基合金で約 900 μm 、Si 過剰合金で約 600 μm であった。その後、0, 30, 60, 90%の冷間圧延を経て時効した試料、および溶体化処理後に予備時効を行い、さらに30, 60, 90%の冷間圧延を加え、続いて最終時効をほどこす処理を行った試料を作製した。

時効処理は、250°Cは塩浴中、それ以下の温度のものはシリコン油中で行った。

引張り試験片は熱処理時に形成した酸化膜をエメリー紙で研磨して除去した後、電解研磨で表面を鏡面に仕上げた。試験片形状は平行部長さ 20 mm、幅 6 mm、厚さ 0.8 mm の板状とした。

引張り試験機はインストロン型の島津製オートグラフ DSS 5000 型を用い、初期歪速度 $9.52 \times 10^{-4}/\text{sec}$ で行なった。

また、引張り変形中に生ずる試験片表面のすべり模様をノマルスキー型微分干渉顕微鏡で観察した。

Table 1 Analysis of specimens

Alloy	Si (wt%)	Mg (wt%)	Mg ₂ Si (wt%)	excess Si or Mg (wt%)
base	0.35	0.62	0.96	0.01Mg
excess Si	0.74	0.61	0.96	0.39Si

3. 実験結果

3.1 機械的性質

Fig. 1 および **Fig. 2** にそれぞれ基合金と Si 過剰合金を溶体化処理後に200°Cで時効した時の0.2%耐力、引張り強さおよび伸びを示した。

図からわかるように、いずれの合金においても時効時間の増加とともに0.2%耐力および引張り強さが上昇し、ピークを迎えた後減少する。一方、伸びは時効時間が増すにつれはじめ減少し、最低値を過ぎた後わずかに上昇する。また、最高強さ時の伸びは、基合金に比べ Si 過

Fig. 1 0.2% yield stress, ultimate tensile strength and elongation as functions of aging time at 200°C in base alloys.

Fig. 2 0.2% yield stress, ultimate tensile strength and elongation as functions of aging time at 200°C in excess Si alloys.

剰合金の方が小さいことがわかる。

Al-Zn-Mg 系合金においては、あらかじめ予備時効して析出させ、その後加工をほどこした後最終時効を行って、さらに析出を生じさせるといった加工熱処理法が強度および延性の改善に有効とされている⁹⁾。

そこで、作製した基合金および Si 過剰合金の両者を200°Cで種々の時間予備時効し、続いて30%の加工を加え、さらに250°Cで最終時効して最高強さが得られた時の引張り強さおよび伸びの値を **Fig. 3** と **Fig. 4** に示した。

図からわかるように、基合金においてはこのような方法による加工熱処理の延性に対する効果は少ないように思われる。一方、Si 過剰合金においては、溶体化後直ちに加工し、続いて時効した場合はその最高強さ時に約10%の伸びが得られており、加工をほどこさない試料の最高強さ時における伸びが約2%であるのに対し、5倍以上の伸びの改善効果が見られる。しかし、予備時効後に加工した試料では伸びの改善は見られない。従って、宇野と馬場⁹⁾も報告しているように、Si 過剰合金においては Al-Zn-Mg 合金とは異なり、伸びが減少する段階

Fig. 3 Ultimate tensile strength and elongation as functions of preaging time in base alloys.

Fig. 4 Ultimate tensile strength and elongation as functions of preaging time in excess Si alloys.

まで予備時効すると、その後の加工および時効処理によつては伸びの改善効果が期待できない。そこで以後は溶体化処理後に直ちに加工し、その後150~250°Cで時効した時の機械的性質の変化に注目して述べる。

Fig. 5~Fig. 7はSi過剰合金を溶体化処理後に、それぞれ30, 60, および90%の加工を加え、続いて150°Cで時効した時の機械的性質の変化を示した図である。

Fig. 5からわかるように、30%加工試料においては、時効時間の経過とともに0.2%耐力、引張り強さが上昇

Fig. 5 0.2% yield stress, ultimate tensile strength and elongation as functions of aging time at 150°C after cold rolling by 30% in excess Si alloys.

Fig. 6 0.2% yield stress, ultimate tensile strength and elongation as functions of aging time at 150°C after cold rolling by 60% in excess Si alloys.

Fig. 7 0.2% yield stress, ultimate tensile strength and elongation as functions of aging time at 150°C after cold rolling by 90% in excess Si alloys.

し、最高値に達した後減少する。一方、伸びは0.2%耐力および引張り強さが上昇し始める段階で一旦大きくなり、引張り強さが最高値をとる段階では減少する。この傾向は宇野と馬場⁹⁾の結果にも若干認められる。しかし、彼らの結果と異なり、引張り強度が最大値をとる段階での伸びが約2%と小さい値となる。従つて同じ加工熱処理法を用いても、条件によつては強度が高く、伸びも改善されるといった効果は得られていない。けれど

も、Fig. 6およびFig. 7からわかるように、加工度が高くなるにつれ、引張り強さが最高値をとる時の伸びの値が大きくなり、従来調べられていなかった高加工度である90%加工材では約12%と大きく、顕著な伸びの改善効果が見られる。

Fig. 8は以上のSi過剰合金における結果と基合金の結果を併記したもので、両合金を各加工度で加工した後150°Cで時効した時の最高引張り強さ時における機械的性質の変化をそれぞれ記している。

図から見られるように、基合金の伸びは加工度が大き

Fig. 8 0.2% yield stress, ultimate tensile strength and elongation at maximum strength at 150°C as functions of rolling reduction in base and excess Si alloys.

Fig. 9 Relations between aging temperature and 0.2% yield stress, ultimate tensile strength and elongation at maximum strength during aging after cold rolling by 90% in base and excess Si alloys.

くなると、わずかに大きくなるようであるがほとんど変わらない。一方、Si過剰合金では加工度が高くなるほど伸びは大きくなり、90%加工材では基合金に比べ引張り強さも大きく、伸びも大きく、こうした加工熱処理法はSi過剰合金に非常に有効であることが本結果によりわかった。

一般に時効温度が高くなると強さは減少するが、その時の伸びは大きくなるといわれている^{10),11)}。

そこで、Fig. 9に基合金およびSi過剰合金を溶体化処理後に90%の加工を加え、150°C、200°C、250°Cで時効した時の最高引張り強さ時における0.2%耐力、引張り強さおよび伸びの値を示した。

図から見られるように、両合金とも時効温度が高くなると引張り強さが低下している。伸びは基合金においては時効温度の上昇につれて極めてわずかに上昇しているようであるが、一方、Si過剰合金においては基合金と異なり、時効温度が高くなると伸びが減少するような傾向が存在することがわかった。

以上の結果から考えられることは、Si過剰合金に加工熱処理を行って延性の改善をはかる場合は、予備時効は行わず、溶体化処理後に直ちに加工を加えるのが妥当な方法である。またその時の加工度は高い程効果がある。さらに加工後の時効温度は150°C以下といった低温であることが有利である。

3.2 破断面および組織観察

Photo 1は基合金およびSi過剰合金を200°Cで時効

Photo 1 Transmission electron micrographs of the specimens aged at 200°C. (a) for 240 min in base alloy. (b) for 300 min in excess Si alloy.

し、最高引張り強さが得られた時の透過電顕組織である。両合金ともに粒界近傍に P.F.Z. が存在し、粒界上に粒状の優先析出物が見られる。また、Photo 1(a)の基合金に比べ、(b)の Si 過剰合金において粒界上の優先析出物が高密度に分布していることがわかる。Aucote と Evans²⁾ はこうした粒界析出物の分布、形状あるいは量の相違が Si 過剰型合金において基合金よりも伸びが小さいことの原因としている。

加工熱処理材においては、Fig. 5 に見たように、Si 過剰合金の30%加工材を150°Cで時効すると時効時間とともに伸びが上昇し、その後引張り強さが増すにつれて減少する。Photo 2 はその時の透過電顕組織変化である。

Photo 2(a)に見るように、30%加工時には転位はセル組織をとっている。時効時間とともに引張り強さがわずかに上昇し、伸びも上昇した段階では、加工時に形成された転移のセル組織にほとんど変化が見られない (Photo 2(b)参照)。一方、さらに時効時間が増して伸び

が2%と小さくなる段階では Photo 2(b)に見られたようなセルはあまり明瞭ではなく、若干転位が回復して解消されたように見られた。そして Photo 2(c)に見るように、粒内に棒状の中間相と思われる析出物が見られ、また、Photo 1(b)に見られたような明瞭な P.F.Z. は観察されなかった。このように加工熱処理材に P.F.Z. が認め難いことは宇野と馬場⁸⁾も報告している。また、Photo 2(c)では粒界の一部しか見られないため認められないが、試料の粒界上には粒状の優先析出物が認められた。

Photo 2 のような組織を持つ試料を引張った時の破断面を Photo 3 に示す。時効時間とともに伸びが上昇する段階では、Photo 3(a)のように延性破断の様相が見られるが、時効時間が増して伸びが減少した段階では Photo 3(b)のように粒界破断の様相を示している。このように加工熱処理材においても伸びが小さい時には粒界破断を起こすことが明らかとなった。またその一部を拡大すると、Photo 3(c)に見られるように小さいディンプル

Photo 2 Transmission electron micrographs of excess Si alloys. (a) as rolled (b) and (c) for 10 min and 10000 min, respectively, after cold rolling by 30%.

Photo 3 Scanning electron micrographs of fracture surface in excess Si alloys aged at 150°C after cold rolling by 30% for (a) 10 min and (b) 1000 min (c) is an enlarged structure of (b).

ルが見られる。

Photo 4(a)は Si 過剰合金の90%加工材で、**Photo 4(b)**はこれを150°Cで時効したときの透過電顕組織である。

これから見られるように、引張り強さが高く伸びも約12%と大きい段階 (Fig. 5 参照) でも加工によって導入された転位組織は解消したようには見られない。また、この時の破断面は粒内破断の様相を示していた。

Photo 5 は Si 過剰合金の90%加工材を250°Cで10,000分時効した時の透過電顕組織であり、引張り強さが低く、伸びが約20%と大きかった時の組織である。これからわかるように、再結晶した微細な結晶粒が分布しており、同時に粗大な粒状の平衡相および Si と思われる析出物が見られる (矢印)。また、これら析出物は特に粒界に優先して析出しているようには見られなかった。

Photo 4 Transmission electron micrographs of excess Si alloys. (a) as rolled (b) aged at 150°C for 30 min after cold rolling by 90%.

Photo 5 Transmission electron micrographs of excess Si alloys aged at 250°C for 10000 min after cold rolling by 90%.

4. 考 察

以上の結果から、本系合金に加工熱処理をほどこすと、特に Si 過剰合金において伸びの改善効果が著しいことがわかったので、以下に Si 過剰合金の加工熱処理効果について考察する。

宇野と馬場⁸⁾も述べているように、一般に時効性アルミニウム合金の破壊は(1)結晶粒度、(2)P.F.Z.の幅、(3)粒内析出物の性状による変形様式の変化、(4)粒界析出状態が考えられる。いま(1)の結晶粒度は Si 過剰合金での平均結晶粒径は約 600 μm とほぼ一定であるため、本結果にはほとんど影響しないと考えられる。そこで以下に(2)~(4)の因子を順に考察する。

まず、P.F.Z.については、通常時効硬化型のアルミニウム合金においては P.F.Z. が存在しており、粒界破断で延性が低下する場合は、破壊は粒界の3重点または粒界上の析出粒子より発生し、その後主に P.F.Z. を伝播すると考えられている¹²⁾。

Aucote と Evans²⁾によれば、本系合金においては、粒界は析出粒子のために応力集中で発生したマイクロボイドが合体しやすく、このため割れが伝播しやすくなる。すなわち、粒界割れの主因は粒界析出物にあるとしている。

また Swelling^{13),14)}は、ボイドは P.F.Z. の境界付近に形成される転位壁内で発生し、これが転位壁内を伝播することにより割れが生ずるとしている。

このように、粒界析出物および P.F.Z. の粒界破断に対する役割は異なつた解釈がなされており、本結果からは、加工を加えない単なる時効処理を行った場合は、粒界破断の主因が粒界析出物であるか P.F.Z. であるかという結論は得られなかった。

一方、Si 過剰合金の30%加工材を150°Cで時効すると、引張り強さの最高値付近では伸びが減少し、わずか2%となる。その時の破断面は顕著な粒界破断型であり、小さなディンプルが見られる。この時の電顕組織によると、粒界上の優先析出物は認められるが、顕著な P.F.Z. が認められない。従つて、この処理の場合は Swelling^{13),14)}の指摘するような P.F.Z. が関与する延性の劣化効果は少ないのではないかと推察される。

P.F.Z. が認められなくなる原因としては、宇野と馬場⁸⁾は、加工後に時効する場合は塑性変形により導入された転位や空孔が粒界近傍での核生成場所になるため、中間相の析出が促進されたためであろうとしている。

本結果においても、**Photo 5**に見られるように粒内析出物は棒状の中間相と考えられ、彼らの結果と一致する。

次に、粒内析出物による変形様式についてであるが、

粒界破断の要因の一つとして粗大なすべり帯の役割が指摘されている^{15),16)}。粒内に粗大なすべり帯が形成され、これが粒界にあたる場所では非常に大きな応力集中が生ずるため、顕著な粒界破壊の原因となるというのである。いま、Si 過剰合金の加工しない材料で顕著な粒界破断を示す試料では、**Photo 6(a)**に見られるように、試料表面でのすべり帯は粗く直線的に見られる。このような粗いすべり帯は、一般に粒内析出物が運動転位により剪断されやすく、一旦剪断されると次々に運動転位が剪断して進む時に形成されると考えられる^{2),8)}。

一方、**Photo 6(b)**に見られるように、Si 過剰合金に30%の加工を加え、その後150°Cで10分間時効して伸びが約10%と大きく、粒内破断の様相を示す試料では、**Photo 6(b)**に比べ、明らかに細かく密なすべり帯が見られる。

このような細かいすべり帯が形成される原因として

Photo 6 Optical micrographs of specimen surface at maximum strength deformed up to 2% in excess Si alloys. (a) aged at 150°C for 10000 min (b) aged at 150°C for 10 min after cold rolling by 30% (c) aged at 150°C for 1000 min after cold rolling by 30%.

は、加工時に導入された転位により転位の移動が阻害され、転位の平均自由行程が短くなること、および粒内析出物が粗大な中間相であり、析出物が運動転位によつて剪断され難くなることが考えられる。

さて、**Photo 6(c)**であるが、これはさらに時効時間が増して伸びが約2%と小さくなり、粒界破断が生ずる試料のものである。この時のすべり帯は**Photo 6(a)**に比べ明らかに細かく、粒界破断に対し感受性の鈍い変形組織であろうと思われる。宇野と馬場⁸⁾は、本系合金を加工熱処理することによつて伸びの改善効果が得られるとの説明を、顕著なP.F.Z.と粒界析出物の抑制および粒内析出物が粗大化した中間相となり、その結果粗大なすべり帯の形成が抑制されることによる、すなわち、上記三因子の複合作用によると推論している。しかし、本結果によると、加工熱処理材では顕著なP.F.Z.が存在しなくても、また、粗大なすべり帯が形成されなくても粒界破断が生じて延性が劣化した。従つて、この処理で伸びが極端に小さくなる最も大きい要因は、粒界析出物の優先的析出物およびその成長であると思われる。すなわち、粒界析出物と弱い基地との界面でマイクロボイドが発生し、それが連続伝播して破断にいたるので、**Photo 3(c)**の破断面に見られるような粒界上での小さなディンプルの形成が起ると思われる。いま、光顕および透過電顕の観察結果からは、粒界析出物の間隔がほぼ1μmであり、ディンプルの間隔とほぼ一致する(**Photo 3(c)**参照)。しかし、析出物の大きさが小さいためか、元素分析ができず、ディンプル1個に析出物1個が対応するかどうかは分からなかった。詳細の解明は今後の課題である。

Si 過剰合金において加工度が90%と高くなると、150°C時効で、引張り強さが高い状態で伸びが減少しないのは、加工時に導入された転位の解消がほとんどない(**Photo 4**参照)ために、優先析出物の核生成場所が粒内にも多量に存在し、粒界上に粗大な析出物が集中して析出することが抑制されることによるものと思われる。

5. 結 言

Al-1%Mg₂Si 基合金に加工熱処理をほどこし、その機械的性質を引張り試験により測定したところ、以下のような結果を得た。

- 1) 溶体化処理後に直ちに加工し、続いて時効をほどこすといった加工熱処理法を用いると、Al-1%Mg₂Si 合金においては若干の引張り強さの上昇は見られるが、伸びの改善効果は得られなかった。一方、Al-1%Mg₂Si に0.4%Si を過剰に含む合金においては、引張り強さが上昇し、同時に伸びも大きくなるといった顕著な機械的性質の改善効果が得られた。

- 2) その時の加工度は高い程効果が顕著であり、30%と低い加工度ではその後の時効により強度は増すが、伸びが2%と小さくなった。その原因は、もとの結晶粒界に優先析出が生ずることにより粒界破断が生ずるためであると考えられる。
- 3) このような加工熱処理をほどこす場合に、Al-1% Mg₂Si 合金においては、時効温度が150~250°Cへと高くなるにつれて最高引張り強さが減少し、その時の伸びがわずかに上昇する。一方、0.4%Siを過剰に含む合金では時効温度が高くなるほど最高引張り強さが減少し、その時の伸びも減少した。
- 4) 本報で用いた加工熱処理法による延性の改善は、結晶粒界への優先析出物の生成、成長の抑制が最も大きい要因と思われる。従つて、優先析出の核生成場所が、試料全体に均一に分布するに十分な高い加工度と、核生成場所となるような、加工によつて導入された転位などの欠陥が、温度を上げることにより解消し難いような低温での時効温度を組み合わせることが有利な方法であろう。

本研究の破断面観察は大阪大学溶接工学研究所の走査型電子顕微鏡にて遂行させて頂いた。便宜をはかつて頂いた方々に深く感謝申し上げるとともに、試料の分析を

して頂いたホクセイアルミニウム㈱に御礼申し上げます。また、本研究の実施に際し、一部軽金属奨学会の御援助を頂いたことを付記し、併せて感謝申し上げます。

参 考 文 献

- 1) A. Zoller and A. Ried: *Aluminium*, **41** (1965), 626.
- 2) J. Aucote and D. W. Evans: *Metal Sci.*, **12** (1978), 57.
- 3) 平田, 松尾: 日本金属学会誌, **36** (1972), 1159.
- 4) H. J. Rack and R. W. Krenzer: *Met. Trans.*, **8A** (1977), 335.
- 5) 金子: 軽金属, **27** (1977), 49.
- 6) 金子: 軽金属, **27** (1977), 384.
- 7) 池野, 角地, 前, 多々: 軽金属, **33** (1983), 3.
- 8) 宇野, 馬場: 日本金属学会誌, **45** (1981), 405.
- 9) F. Ostermann: *Met. Trans.*, **2** (1971), 2897.
- 10) 森永, 室町, 嵯峨, 財満: “金属材料学” 朝倉書店, 東京 (1974).
- 11) 馬場, 吉田: 日本金属学会会報, **22** (1983), 115.
- 12) 小林: 軽金属, **32** (1982), 539.
- 13) P. Swellinger: *Aluminium*, **55** (1979) 136.
- 14) P. Swellinger: *Z. Metallk.*, **71** (1980) 520.
- 15) J. M. Dowling and J. W. Martin: *Acta Met.*, **24** (1976), 1147.
- 16) J. D. Evensen, N. Ryum and J. D. Embury: *Mater. Sci. Eng.*, **18** (1975), 221.