超塑性 Al-5.5Mg-2.4Si 合金の変形特性[†]

岩 崎 源* 正 木 泰 幸** 森 隆 資***
東 健 司**** 谷 村 眞 治**** 小松原 俊 雄*****

Deformation Characteristics of Superplastic Al-5.5Mg-2.4Si Aluminium Alloy

by

Hajime IWASAKI*, Yasuyuki MASAKI**, Takasuke MORI***

Kenji HIGASHI****, Shinji TANIMURA****

and Toshio KOMATSUBARA*****

Deformation characteristics of a superplastic Al-5.5Mg-2.4Si prepared by a simple processing consisting of continuous casting, homogenization and cold rolling were examined. Strain rate sensitivity showed a maximum of 0.52 at 863K at a strain rate of $1 \times 10^{-2} \text{s}^{-1}$. The strain rate was 1 or 2 order higher than that of superplastic I/M 7475 or 5083 aluminum alloys. It is clear that the higher strain rate was obtained by a fine grain structure including a lot of sub-grains. The fine microstructure is due to retardation of recrystallization and grain growth at higher temperatures than 823K by secondary phase particles composed of Al, Si and Mn, which sometimes include Cr too. A maximum elongation of 900% was obtained at a lower strain rate of $1 \times 10^{-4} \text{s}^{-1}$ at 863K while elongation was only 270% at the higher strain rate of $1 \times 10^{-2} \text{s}^{-1}$. This decrease of elongation may be due to the increase in volume fraction of cavities which increases with increasing strain rate. Cavities are sometimes observed near the secondary phase particles of Mg₂Si.

Key words : Superplasticity, Continuous casting, aluminum alloy, Secondary phase particle, Cavitation, Elongation

1 緒 言

超塑性変形に適した熱的安定性の高い、微細結晶粒組織を有する板材が、これまでに Cu 系、Al 系、Fe 系合金において数多く開発されている¹⁾。しかしながら、いずれの合金系においても微細結晶粒組織を作るために、通常の製造工程より多くの加工と熱処理工程が設けられており、その製造費用が膨大なものとなっている。それゆえ製造工程の簡略化が望まれている。最近、AL-Li-Zr 系合金において、冷間圧延組織のままの板が、高温変形中に再結晶組織となり、微細結晶粒組織を形成することにより、超塑性挙動を示すことが報告され、新しいプロセスにつながるものとして注目されている^{2),3)}。

本研究は、超塑性材の製造プロセスを一段と簡略化するために、連続製造圧延材を冷間圧延した状態で用いるを試み、この板の超塑性特性を調べることを

目的とした。対象とした合金系は、耐食性に富み、溶接が可能であって建築用材料として需要の多い、Al-Mg-Si 系合金である。この材料について、変形応力、伸び値、空洞量に及ぼすひずみ速度、変形温度および結晶粒径などの影響を調べるとともに、変形中の組織変化を透過電子顕微鏡により調べた。

2 実 験 方 法

2・1 供試材

供試材の化学組成は、Table I に示す。その製造はすべてスカイアルミニウム工業(株)で実施した。製造工程は、連続製造圧延、均質化処理および冷間圧延からなっている。まず、連続製造圧延により板厚 6 mm と

Table I. Chemical compositions of specimen (wt %).

Mg	Fe	Si	Mn	Cr	Ti	Al
5.50	0.11	2.40	0.49	0.01	0.01	bal.

[†] 原稿受理 平成 4 年 3 月 9 日 Received Mar. 9, 1992

* 正 会 員 姫路工業大学工学部材料工学科 〒671-22 姫路市書写, Dept. of Mat. Sci. & Eng., Himeji Inst. of Tech., Shosha, Himeji, 671-22

** 姫路工業大学大学院 (現 セイコーエプソン(株) 〒392 諏訪市大和), SEIKO-EPSON Elect. Co., Yamato, Suwa, 392

*** 姫路工業大学工学部材料工学科 〒671-22 姫路市書写, Dept. of Mat. Sci. & Eng., Himeji Inst. of Tech., Shosha, Himeji, 671-22

**** 正 会 員 大阪府立大学工学部機械工学科 〒593 堺市学園町, Dept. of Mech. Eng., Univ. of Osaka Pref., Gakuen-cho, Sakai, 593

***** スカイアルミニウム(株) 〒366 深谷市上野台, Sky Aluminium, Co. Ltd., Uwanodai, Fukaya, 366

した後, 773K, 7.2 ks の均質化処理を行い, 冷間圧延にて最終板厚 1.6 mm とした. その後再結晶焼なましは行っていない.

2・2 超塑性引張試験

引張試験片は, 幅 5 mm, 平行部長さ 10 mm, 肩部半径 5 mm の寸法形状を有し, 引張応力軸を圧延方向と平行に切り出した. 引張試験機のクロスヘッド速度をコンピュータ制御し, 定ひずみ速度の引張試験を行った. 荷重および変位をコンピュータに入力し, 真応力, 真ひずみの計算および X-Y プロットへの出力を行わせた. 引張試験機には, $\pm 1\text{K}$ の均熱域長さ 150 mm を有する三分割制御型の加熱炉を取り付けた. 引張試験は大気中で行ない, 試験開始前の炉内で保持時間を 1.8 ks とした. 変形応力のひずみ速度依存性は, ひずみ速度 $5 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ から $2 \times 10^{-1} \text{ s}^{-1}$ までの広い範囲にわたって, 一本の試験片から求めることのできるひずみ速度急変法を用いた. また, 定ひずみ速度で引張変形中のひずみ速度感受性指数 m 値を測定するために, ひずみ速度を 25% 変化させるジャンプ試験を行った. 組織観察は, 光学顕微鏡および走査電子顕微鏡と透過電子顕微鏡を用いて行い, EDX による元素分析も同時に行った.

光学顕微鏡観察では, 試料を鏡面研磨後, Ga 処理による腐食を行った. 粒径測定は線切断法を用い, 圧延方向 (L), 板幅方向 (LT) および板厚方向 (ST) の各方向について行い, 相乗平均による平均粒径を求めた.

3 実験結果

3・1 流動応力のひずみ速度依存性

供試材の, 723–863 K の各試験温度における $\log \sigma$ – $\log \dot{\epsilon}$ 曲線を Fig. 1 に示す. 流動応力は, 温度の上昇とともに低下するが, 特に 823K 以上の温度でその傾向が著しい. この曲線の傾きで表されるひずみ速度感受性指数 m 値の変化を Fig. 2 に示す. 最大 m 値は, 863K, $1.0 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ 付近で 0.53, 843K, $5 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ で 0.42, 823K, $2 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ で 0.30 である. 823K 以

Fig. 1. Relationship between $\log$ true stress and $\log$ strain rate at various temperatures.

Fig. 2. Variations of strain rate sensitivity, m value, with strain rate at various temperatures.

下の温度では最大 m 値は温度低下とともに小さくなり, m 値の温度依存性は見られなくなる. また, m 値が最大となるひずみ速度は温度の上昇により高ひずみ速度側へシフトしている. これは各試験温度でのミクロ組織の相違から起こる傾向であると思われる. 本材料は, 高温変形前に再結晶処理を施しておらず, 冷間圧延あがりのままで引張試験に供している. それゆえ, 変形温度までの昇温過程および変形開始までの保持時間の間に回復および再結晶が進行するが, その程度は試験温度によって異なる. すなわち, 823K 以下の試験温度では, Fig. 3(a) に示すようにまだ十分に再結晶が完了しておらず, 一部転位組織の残留した回復組織になっている. また, 粒界の傾角も小さいものと推測される. それゆえ, この温度域での m 値が小さくまた, その温度依存性も小さいものと考えられる. 一方, 843 K 以上の高温では, Fig. 3(b) に示すように再結晶がかなり進行し, 平均結晶粒径が $6 \mu\text{m}$ 程度の微細な再結晶組織が得られる. 一部転位が存在するがその程度は 823K 以下の組織と比べ著しく少なく, 粒界の傾角も大きくなっているものと考えられる. こ

Fig. 3. TEM photographs showing microstructures after annealing at 803K (a) and 863K (b) for 1.8 ks.

のような再結晶した微細組織を有する材料は一般に大きな応力のひずみ速度依存性を示すことはよく知られており、本研究でも同様な結果が得られている。

3・2 真応力と真ひずみの関係

Fig. 4 は 823K, 843K, 863K におけるひずみ速度 $1 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1} \sim 3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ の真応力-真ひずみ曲線を示す。Fig. 4 にみられるように、試験温度 823K と 843K は変形初期においてわずかな加工硬化があり、その後、一度応力低下を起こし、再び顕著な加工硬化を生じて破断に至るという特徴的な挙動を示す。加工硬化、加工硬化の程度は、温度上昇とともに減少し、また、ひずみ速度の低下とともに減少する。またそれにともない応力の極小点は、高ひずみ側へシフトしている。そして、変形温度 863K においては変形後期における加工硬化も加工硬化も、一段と弱くなり、ひずみ速度の低い $3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ においては変形初期から破

Fig. 4. True stress-true strain curves for various strain rates at 823K (a), 843K (b) and 863K (c).

断まで連続した加工硬化を示している。このような試験温度あるいはひずみ速度による変形挙動の相違は、この試料の組織変化と、それにとりなう変形機構の変化に起因するものと思われる。すなわち、823K 以下の低い試験温度では変形初期はまだ回復組織が残留するので、ひずみにともなう粒界傾角の増加が生じるものと推測される⁷⁾。この傾角の増加とともに粒界すべりが主変形機構になると思われる。823K 以上の高温では変形前に再結晶がほぼ完了するので、変形初期から粒界すべりを主とする変形が進む。この場合には粒成長にとりなう加工硬化が変形量全体にわたって観察される⁸⁾。

3・3 変形中の m 値の変化

Fig. 5 に 823K, 843K および 863K における変形中の m 値の変化を 3 種類のひずみ速度について示す。各温度とも、変形初期 ($\epsilon=0.4$) での m 値は Fig. 2 において示した値とほぼ一致している。各温度とも

Fig. 5. Variation of strain rate sensitivity, m value, with true strain for strain rates at 823K (a), 843K (b) and 863K (c).

Fig. 6. Changes in grain size during annealing at 823K, 843K and 863K.

m 値の変化は、ひずみ速度によって異なった挙動を示している。すなわち各温度とも、低ひずみ速度の $3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ では変形初期の m 値は低く、変形が進行するにしたがって増加し、最大値にいたりその後減少する。一方、ひずみ速度 $1 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ および $3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ では、変形初期においてほぼ一定値をとり、変形後期で急激に減少する。Fig. 4 に示した応力-ひずみ曲線と対応させてみると、 m 値の低下するひずみが応力-ひずみ曲線上の軟化から硬化に変わる点に近いことがわかる。 m 値の変化は組織変化およびそれにもなう変形機構の変化をあらわしており、応力の極小点前後において変形機構の変化があることがうかがえる。

3・4 ひずみ誘起結晶粒成長

Fig. 6 は、変形温度と同じ 823K, 843K および 863K における静的加熱における結晶粒径の変化を示す。この結晶粒径には、亜結晶粒と再結晶粒の区別はなされていない。この図から、加熱温度が 823K, 846K および 863K の高温であるにもかかわらず結晶粒成長は 7 ks の保持においてわずか $1 \mu\text{m}$ であることがわかる。また温度による差異も小さいことがわかる。このように本合金は高温における組織の安定性に優れている。Fig. 7 は変形温度 823K, 843K および 863K における変形にもなう結晶粒径の変化を 3 種類のひずみ速度について示している。これらの図に示した結晶粒径は、静的結晶粒成長分も含んでいるが、

Fig. 7. Changes in grain size during deformation for various strain rates at 823K (a), 843K (b) and 863K (c).

Fig. 6 の静的粒成長の結果からも分かるように、その比率はきわめて小さく、ほとんどひずみ誘起の動的粒成長とみなすことができる。この図からひずみ誘起粒成長は、温度が高いほど、またひずみ速度が低いほど大きく、ひずみに対しほぼ直線的関係を有することがわかる。Fig. 8 は結晶粒成長の様子を示す光学顕微鏡

Fig. 8. Microstructures showing grain growth during deformation at strain of $3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ at 863K.

Fig. 9. Changes in cavity volume fraction with true strain for various strain rates at 823K (a), 843K (b) and 863K (c).

写真の一例である。本合金は耐食性に優れているため、組織観察には、通常の化学腐食液（例えばパーガー腐

食液⁹⁾）では結晶粒界の顕出が困難であった。それゆえ、ガリウムによる粒界腐食法を用いた。ガリウムによる粒界腐食は、亜粒界をも顕出するといわれている。Fig. 8(a)において数 μm 程度の微細な結晶粒が観察されるが、これらが亜結晶粒である可能性は強く、変形が進むと Fig. 8(c) のように数 μm 程度の微細な結晶粒が消滅することから、これら亜結晶粒は合体し成長したものと考えられる。その他の等軸の結晶粒は変形とともに成長し、同時に応力軸の方向にわずかに伸張していることが認められる。この結晶粒の伸張は結晶粒成長の機構と関係があると思われるが、その詳細は解明されていない。

3・5 空洞の発生

Fig. 9 は、温度 823K, 843K および 863K での変形における空洞体積率の変化を 3 種類のひずみ速度について示している。843K 以上の高温では空洞体積率は温度が高いほど少なく、各温度ともひずみ速度が低いほど少ない。また、823K ではその空洞体積率のひずみ速度依存性はほとんどない。Fig. 10 は 863K で 0.5 hr 加熱後、ひずみ速度 $3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ および $3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ でひずみ 1.0 まで変形した時の第二相粒子および空洞の分布状態を示す鏡面研磨後の組織である。組織中の黒く見える第二相粒子は Mg_2Si である。空洞体積率の 1% の Fig. 10(a) では、空洞がこの粒子を取り巻くように所々で発生しているのが認められる。これに対し、空洞体積率 7% の Fig. 10(b) では、空洞がいくつかの第二相粒子間を連ねる形で広がっている様子が多く観察される。さらに Fig. 11 に示す SEM 写真から、空洞の表面は滑らかな丸みのある多くの突起から構成されていることが分かる。腐食後の組織写真では空洞は常に結晶粒界に存在することが確認できるので、この場合も空洞は Mg_2Si 粒子を起点とし、結晶粒界に沿って成長しているものと考えられる。このように Mg_2Si 粒子は空洞の発生および成長に関係しているものと思われる。

Fig. 10. Microstructures showing distribution of secondary phase particles of Mg_2Si and cavities in deformed specimens at strain rate of $3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ (a) and $3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ (b) at 863K with cavity volume fractions of 1% and 7%, respectively.

Fig. 11. SEM photograph of the specimen shown in Fig. 10(b).

3・6 破断伸びの変化

Fig. 12 は破断伸び値と温度およびひずみ速度との関係を示す。この図から、温度 863K で、ひずみ速度 $1 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ において最も大きい伸び 900% を示すことがわかる。また 843K, および m 値が 0.3 と低い 823K においても 400% 程度の大きな伸び値がひずみ速度 $3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ で得られている。しかもひずみ速度が、 $3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ と増しても 200% 以上の伸びを示している。このように本合金の伸びは、温度が低くなるほどひずみ速度の影響が少なくなり、高くなるとひずみ速度の影響が顕著である。破断伸びは m 値の増加および空洞体積率の減少により増大すると考えられている。本報告では各温度における m 値のひずみ速度依存性は、Fig. 2 で見るかぎり破断伸びのそれとは逆であるが、Fig. 5 のように m 値はひずみとともに変化し、低ひずみ速度の場合を除いてひずみとともに減少するので、このことを考慮するとやはり破断伸びは基本的には m 値の大小で説明できるように思われる。また、Fig. 9 に示した空洞体積率の減少する傾向も破

Fig. 12. Elongation to failure versus strain rate at various temperatures.

断伸びの増加する傾向と一致している。この結果より破断伸びは変形中の m 値および空洞体積率と強い相関性をもつと思われる。言い替えると大きなひずみ量にわたって比較的大きな m 値を保持するような変形条件において、さらに空洞体積率のより小さい条件において、より大きな伸び値が得られるものと推測される。

4 考 察

最近、微細結晶粒超塑性材である Al-Cu-Zr, Al-Li-Zr 合金において、再結晶工程を省略した加工組織をもつ合金が、高温変形中に動的再結晶し、高ひずみ速度での超塑性性能を示すことが報告されている。この場合再結晶粒の高温安定性は Al_3Zr の微細析出粒子により得られている。本報告では、Al-Mg-Si 合金に、Zr に代わるものとして Mn および Cr を添加している。これら添加元素の高温安定性効果を TEM 観察により検討した。

Fig. 13 は 863K において 0.5 hr 保持した場合の TEM 組織を示す。Fig. 13 (a) は Fig. 11 で述べた Mg_2Si 粒子を示している。この粒子の形状は等軸の多角形で、大きさは $0.4 \mu\text{m}$ 以上で一定していない。この粒子は結晶粒内、粒界双方に存在する。しかもその周りでは転位密度が一段と高くなっていて、転位セルおよび亜粒界形成に関与するとともに、再結晶の核サイトの働きをしているように思われる。Fig. 13 (b) は Al, Si, Mn および Cr を含む第二相粒子で、大きさは $0.5 \mu\text{m}$ 以下と Mg_2Si 粒子より小さい。この粒子も結晶粒内、粒界の双方に存在するが、図に示すように、この粒子は結晶粒界をピンニングし、結晶粒成長を抑止する働きをもっているように思われる。

つぎに、Fig. 14 は変形温度 863K, ひずみ速度 $3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ でひずみ 0.1 を与えたときのミクロ組織を示す。結晶粒内の転位密度は変形開始直前に比べて、

Fig. 13. TEM photographs showing interaction between secondary phase particles and dislocation after annealing at 863K for 0.5 hr. (a) particles of Mg_2Si , (b) particles composed of Al, Si and Mn elements.

Fig. 14. TEM photographs showing interaction between secondary phase particles and dislocation after deformation up to strain of 0.1 at 863K and at strain rate of $3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. (a) particles of Mg_2Si . (b) particles composed of Al, Si and Mn.

著しく減少している。Fig. 14 (a) は、 Mg_2Si 粒子の周辺を示している。変形開始直前にあった多くの転位は消滅し、代わって粒子を取囲むように結晶粒界が明瞭に現れている。そして粒子の近傍にはコントラストのない、空洞となっている部分が観察される。これは、第二相粒子をもつ粒界三重点における調整機構の不調による空洞生成と考えられる。そしてこの空洞生成に Mg_2Si 粒子が関与していることがわかる。Fig. 14 (b) はさきに述べた Mn, Cr からなる粒子が粒界および粒内にあって、粒界移動あるいは転位の移動を抑制している様子を示している。結晶粒界近傍には平行に並んだ転位があって、それらの端が粒界に達している。本試験条件では、 m 値が 0.5 程度とかなり大きいので、主たる変形機構が粒界すべりであることはほぼ確実であることから、これらの転位は粒界すべりに関わりをもつものと思われる。粒界すべりは、格子転位が粒界面上を上昇運動とすべり運動の複合運動をすることによって引き起こされ、それゆえ、粒界すべりと結晶変形との間に密接な関係のあることが示されている¹⁰⁾。超塑性変形機構においても同様の変形機構が提唱されており、粒界近傍の格子転位が、粒界すべりおよびそれにとまなう応力集中の緩和に役だつとするマントル理論がある¹¹⁾。Fig. 14 (b) は、粒界転位をもつ結晶粒界および、粒界近傍の格子転位を示す。これらの格子転位は、粒界に障害物がないことから、粒界から発生した転位ではなく、粒界に取り入れられる過程にある格子転位であると思われる。以上の TEM 観察結果から、本合金においては Mn, Cr を含む第二相粒子により結晶の高温での組織安定化が図られていることは明らかであり、加えて、 Mg_2Si 粒子は空洞の発生場所の一つであることがわかる。

5 結 言

超塑性アルミニウム合金の製造プロセスの簡略化を目的として、連続铸造圧延、均質化焼なまし冷間圧延のみの工程で製造された Al-5.5%Mg-2.4%Si 合金板について、超塑性挙動と組織変化を調べ、次の知見を得た。

(1) 本合金の冷間圧延による加工組織は、823K 以上の高温、0.5 hr の静的加熱でほとんどが回復し、連続再結晶組織になるが、863K でも一部亜結晶粒が残る。一方、変形をとまなう動的加熱では 823K 以上で連続再結晶が急速に進む。

(2) この再結晶の遅滞は、

Al, Si, Cr および Mn からなる第二相粒子による高温での組織安定化効果によるものである。

(3) 本合金の超塑性特性のうち m 値は、863K の高温で最も優れ、ひずみ速度 $2 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ で最大値 0.52 が得られる。このひずみ速度は他の超塑性アルミニウム合金より 1 桁から 2 桁高ひずみ速度である。

(4) 破断伸びは温度 863K、ひずみ速度 $1 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ で最高 900% を示し、高温ほど、また低ひずみ速度ほど増大する傾向にある。これは、空洞体積率の減少する方向と一致し、超塑性特性のなかで空洞体積率が破断伸びに最も強い影響を与えることを示す。

(5) 以上の結果から、最終焼なましを省略した本合金は優れた超塑性特性をもつことがわかる。

(平成 3 年 5 月 10 日 日本材料学会第 22 回超塑性加工春季講演会にて講演)

参 考 文 献

- 1) 東 健司, 軽金属, **39-11**, 145 (1989).
- 2) 松木賢二, 日本金属学会報, **26-4**, 263 (1987).
- 3) 宮川松男・小林 勝, 日本金属学会報, **25-1**, 8 (1986).
- 4) 東 健司, 日本金属学会報, **29-1**, 22 (1990).
- 5) 岩崎 源, 入江佳洋, 速水哲博, 東 健司, 伊藤太一郎, 軽金属, **39-11**, 798 (1989).
- 6) 大塚正久, 堀内 良, 日本金属学会誌, **48-12**, 1143 (1984).
- 7) 東 健司, 材料, **38**, 373 (1989).
- 8) 岩崎 源, 正木泰幸, 東 健司, 谷村眞治, 伊藤太一郎, 速水哲博, 材料, **41**, 17 (1992).
- 9) Gunter Petzow, 松井源太郎訳, “金属エッチング技術”, p. 44 (1978) アグネ
- 10) 渡辺忠雄, 材料科学, **17**, 78 (1980).
- 11) R. C. Gifkins, Metall. Trans., A, **7A**, 1225 (1976).