

# Al-Mg-Si 合金の機械的性質に及ぼす希土類 元素添加の影響\*

小林 義一\*\*・森山 実\*\*\*・堀内 富雄\*\*\*\*

## 1. 緒 言

Al-Mg-Si 合金は  $Mg_2Si$  を硬化要素とする熱処理合金で、少量の Mg と Si の添加のみで著しく時効硬化し、良好な機械的性質を示すため、その熱間加工性の良好なことと相まって、アルミサッシなどに多量に使用されている。またこの合金は微量の添加元素が、その機械的性質に著しい影響を及ぼすことも知られており、今までに Cu, Fe, Au, Mn などの微量添加が、この合金の機械的性質に及ぼす影響について研究報告されている<sup>(1)~(5)</sup>。筆者らの一人も、Mg と Si の量比や Fe, Cu の添加が、この合金の機械的性質に及ぼす影響について報告してきたが<sup>(6)~(8)</sup>、今回は非鉄金属用高力化添加剤としても知られる希土類元素が、この合金の機械的性質にどのような影響を及ぼすかについて実験したので、その結果を報告する。

## 2. 試料の作成と実験方法

### 2-1 試料の作成

試料としては、99.99%Al, 99.9%Mg および Al-24.3% Si 母合金を用い、内面をアルミナとケイ酸ソーダでライニングした30番黒鉛るつぼで Al-0.7% Mg-0.4% Si 合金を作成した。希土類の添加は、得られた Al-Mg-Si 合金を再度溶解し、これに市販のミッシュメタ

表1 試料の配合値と化学分析値 (%)

No.	配合 値			化 学 分 析 値				
	Si	Mg	T. RE	Si	Mg	Ce	T. RE	Al
R0	0.4	0.7	0.0	0.37	0.73	0.00	0.00	残り
R1	//	//	0.1	0.40	0.74	0.061	0.13	//
R2	//	//	0.2	0.40	0.75	0.11	0.23	//
R4	//	//	0.4	0.39	0.76	0.21	0.44	//

T. RE……希土類元素 (Ce, La, Nd, Pr, Sm)  
の合計を示す

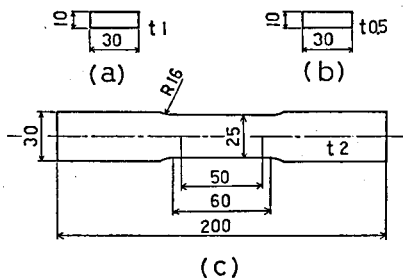


図1 試験片  
(a) かたさ測定用  
(b) 電顕組織観察用  
(c) 引張試験用

\* 昭和60年12月 日本金属学会北陸信越支部講演会において発表  
\*\* 機械工学科教授  
\*\*\* 機械工学科助手  
\*\*\*\* 機械工学科技官  
原稿受付 昭和61年9月29日

ル (Ce47.21%, La31.38%, Nd14.82%, Pr4.47%, Sm0.33%, Fe1.32%, その他0.47%) を加えて、総希土類元素が0, 0.1, 0.2および0.4%になるような4種類の合金を作成した。

鑄造条件としては、溶湯温度760°C, 鑄込温度710°Cとし、250°Cに加熱した20×70×170mmの金型に鑄造した。

このようにして得られた鑄塊を560°Cで8時間の均質化処理を行なったのち、表面を5mmずつ切削して除去し、10×60×150mmのスラブを作成した。更にこのスラブを熱間圧延で厚さ5mmにし、つづいて冷間で2mm, 1mm および0.5mmになるまで圧延し、それぞれ引張試験用, かたさ測定用および電顕組織観察用とした。これらの試験片の形状寸法を図1に、また試料の配合値と化学分析値を表1に示す。

2-2 実験方法

実験としては、図1に示された形状寸法の引張試験片, かたさ試験片および電顕組織観察用試験片を520°Cで1時間溶体化処理後2°Cの氷水中に焼入れし、その後直ちにシリコンオイル中で145°C, 175°Cおよび205°Cの3種類の温度で時効処理した。そして、所定の時間時効処理した試験片について引張試験とかたさ測定および電顕組織観察を行い、時効にともなう引張特性とかたさの変化および電顕組織の変化を調べた。なお、引張試験は島津オートグラフを使用し引張速度2mm/minで行ない、かたさはマイクロビッカース硬度計を使用し荷重500gで測定した。また、電顕組織観察としては、冷間圧延によって0.5mmまで薄くした試料について所定の熱処理を施した後、1%カセイソーダ水溶液ではぼ0.1mmまで薄くしてから、直径3mmの円板を打抜いて、デンマークのストルーアス社製テヌポールで電解研磨した。このときの研磨液の組成は、過塩素酸100ml, グリセロール200ml, メタノール700mlの混合液とし、液温-5°C, 電流0.12Aで電解研磨した。このようにして得られた試料を日本電子製JEM-100C型電子顕微鏡を使って、加速電圧100Kvで電顕組織観察を行なった。

3. 実験結果

図2~図4は希土類元素を0, 0.1, 0.2および0.4%添加したAl-Mg-Si合金を時効処理したときの時効時間の経過にともなうかたさの変化を示し、図2は時効温度145°Cの場合、図

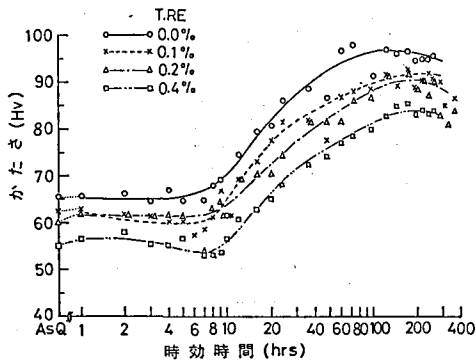


図2 時効処理したときのかたさに及ぼす希土類元素の影響 (溶体化処理 520°C×1hr, 時効温度145°C)

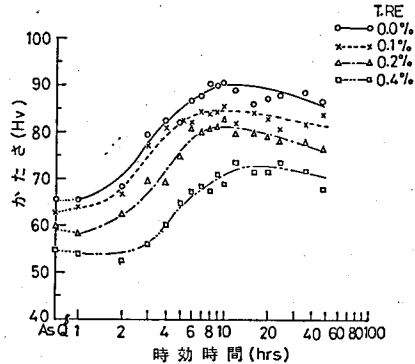


図3 時効処理したときのかたさに及ぼす希土類元素の影響 (溶体化処理 520°C×1hr, 時効温度175°C)

3は時効温度175°Cの場合そして図4は時効温度205°Cの場合である。これらによると時効温度145°Cの場合は、時効時間10時間まではかたさの変化は見られないが、それ以後かたさは上昇し始め、200時間の時効で最高値を示し、それ以後は過時効となりかたさは低下するが、希土類元素が多いほど最高かたさは低くなっている。時効温度175°Cの場合は、時効時間3時間からかたさの上昇が見られ、10時間で最高かたさを示し、それ以後はかたさは低下するが、やはり希土類元素が多く入っているほどかたさは低い。また時効温度205°Cの場合には、時効時間1時間からかたくなり始め、4時間で最高かたさを示し、それ以後は軟化が起るが、希土類元素が多く含まれるほどやはりかたさは

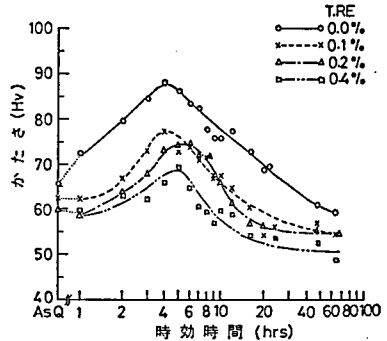


図4 時効処理したときのかたさに及ぼす希土類元素の影響 (溶体化処理 520°C×1hr) (時効温度205°C)

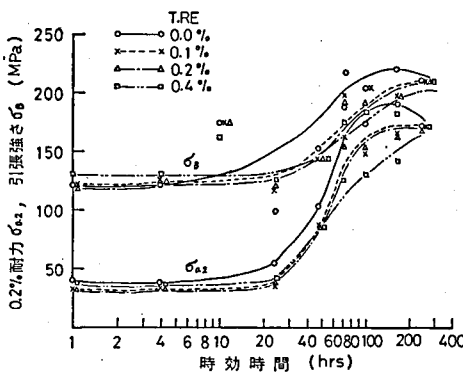


図5 時効処理したときの引張強さと0.2%耐力に及ぼす希土類元素の影響 (溶体化処理 520°C×1hr, 時効温度145°C)

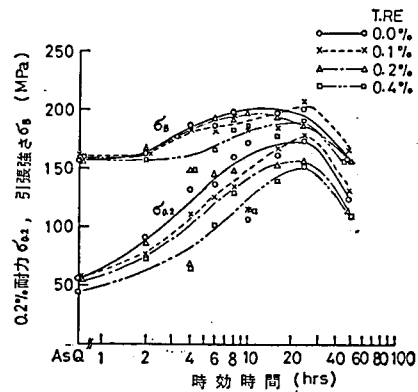


図6 時効処理したときの引張強さと0.2%耐力に及ぼす希土類元素の影響 (溶体化処理 520°C×1hr, 時効温度175°C)

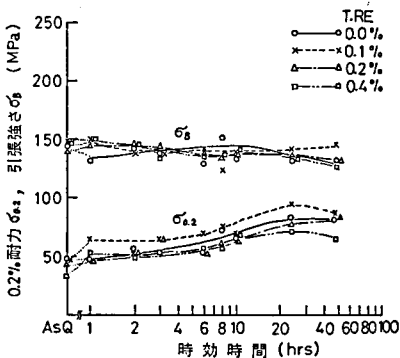


図7 時効処理したときの引張強さと0.2%耐力に及ぼす希土類元素の影響 (溶体化処理 520°C×1hr, 時効温度205°C)

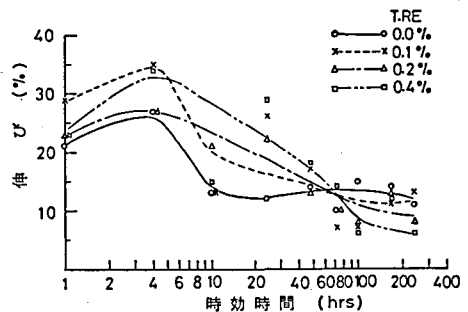


図8 時効処理したときの伸びに及ぼす希土類元素の影響 (溶体化処理 520°C×1hr, 時効温度145°C)

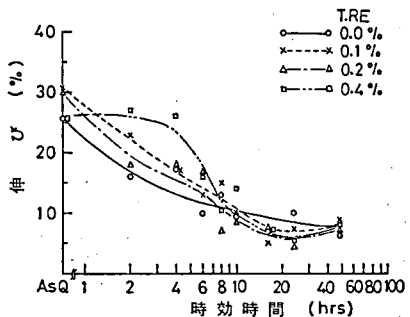


図9 時効処理したときの伸びに及ぼす希土類元素の影響  
(溶体化処理 520°C×1hr, 時効温度175°C)

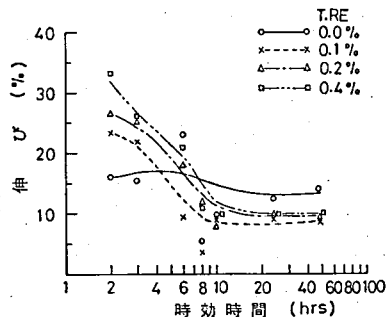


図10 時効処理したときの伸びに及ぼす希土類元素の影響  
(溶体化処理 520°C×1hr, 時効温度205°C)

低くなっている。また、焼入れ直後のかたさも希土類元素が多いほど低くなっている。

図5～図10は時効した試料の引張試験の結果を示し、図5は145°C時効のときの引張強さと0.2%耐力の変化、図6は175°C時効のときの引張強さと0.2%耐力の変化、図7は205°C時効のときの引張強さと0.2%耐力の変化、図8は145°C時効のときの伸びの変化、図9は175°C時効のときの伸びの変化そして図10は205°C時効したときの伸びの変化を示す。これらによると、引張強さと0.2%耐力は、時効時間の経過につれて上昇するが、とくに0.2%耐力の時効による上昇が著しい。また、希土類元素が多く含まれるほど引張強さと0.2%耐力の値は低くなっているが、かたさのときほどの著しい低下は認められない。しかし205°C時効の場合には引張強さ、0.2%耐力ともに時効硬化の現象はほとんど認められない。伸びは、時効時間が長くなるにつれて低下の傾向を示し、各々の時効温度における最高強度を示す時間近くになると、希土類元素が多く含まれるほど伸びの低下率は著しい。

以上のような時効にともなうかたさ、引張強さ、0.2%耐力および伸びの変化をまとめると図11～図13のようになる。図11は各時効温度

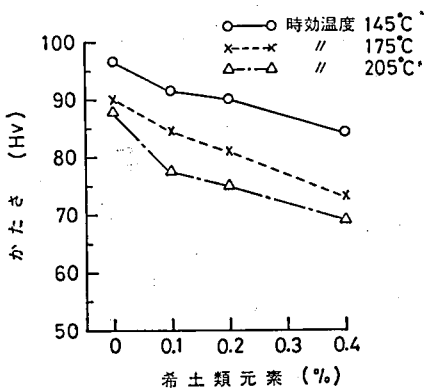


図11 最高かたさに及ぼす希土類元素の影響  
(溶体化処理 520°C×1hr)

と図11～図13のようになる。図11は各時効温度で時効させたときの最高かたさが希土類元素の添加によってどのように変化するかを示し、図12と図13は引張試験の結果で、各々の時効曲線における最高引張強さ、0.2%耐力および伸びが希土類元素によってどのように変化するかを示している。これらによると、時効温度が低い方が最高のかたさ、引張強さ、0.2%耐力は高い値を示し、またいずれの時効温度の場合も希土類元素が多く含まれるにつれて、かたさ、引張強さ、0.2%耐力は低下する。また伸びも希土類元素が多く含まれるにつれて低下する傾向を示している。

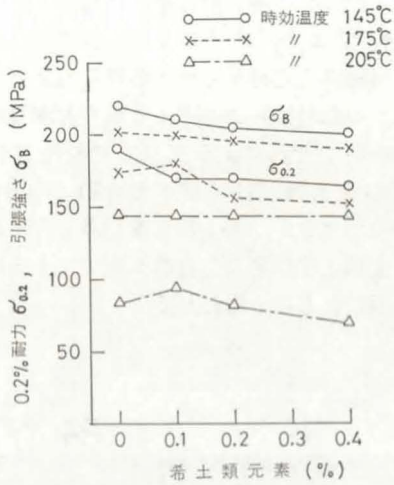


図12 最高強度に及ぼす希土類元素の影響 (溶体化処理 520°C × 1hr)

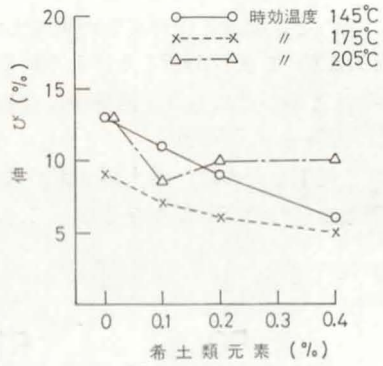


図13 最高強度を示したときの伸びに及ぼす希土類元素の影響 (溶体化処理 520°C × 1hr)

#### 4. 考 察

以上の実験により、希土類元素が多く含まれるほど焼入直後のかたさが低く、また時効にともなう最高かたさ、引張強さ、0.2%耐力、伸び等の機械的性質も希土類元素が多く含まれるほど低下することがわかった。そこで、希土類元素が Al-Mg-Si 合金にどのような作用を及ぼしているかを調べるために組織検査を行なった。

まず、希土類元素が多く含まれるほど焼入れ直後のかたさが低くなる原因を調べるために鋳塊の光学顕微鏡組織および圧延材の光学顕微鏡組織を調べた。写真1は鋳塊の光学顕微鏡組織で、写真の中の RO は希土類元素が 0%を示し、R1, R2, R4 はそれぞれ希土類元素が

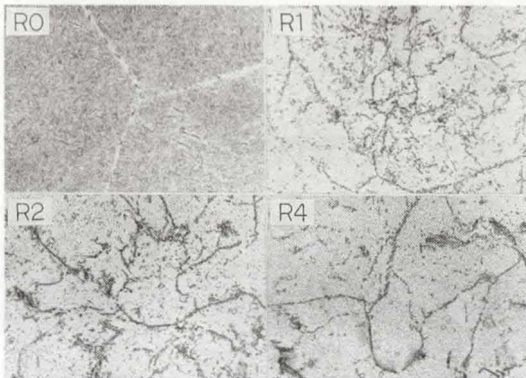


写真1 鋳塊の光学顕微鏡組織 (40×5) (均質化処理 560°C × 8hr → 空冷)

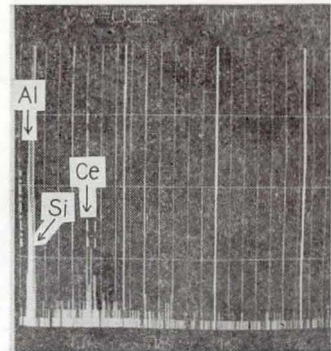


写真2 鋳塊中の析出物のX線分析結果

0.1, 0.2, 0.4%含まれていることを示す。これらによると、希土類元素が0%のときの鋳塊は粒界と粒内にわずかな  $Mg_2Si$  相が見られるのみであるが、希土類元素が含まれるものは粒界、粒内ともに黒い析出物が認められ、この析出物は圧延材を溶体化処理したあとも残っていた。そこで、この析出物が何であるかを調べるためにエネルギー分散形X線分析装置 (EMAX) でX線分析した。その結果を写真2に示す。それによると、Ce の特性X線とSi の特性X線が認められ、鋳塊中に存在する析出物は希土類とけい素の化合物 ( $R_2Si$ ) であることがわかる。これらのことから、焼入れ直後のかたさが、希土類元素が多く含まれるにつれて低下したのは、希土類元素が含まれると希土類とけい素の化合物が出来て、その結果、素地の部分の Si が少なくなって、かたさが低下したものと思われる。

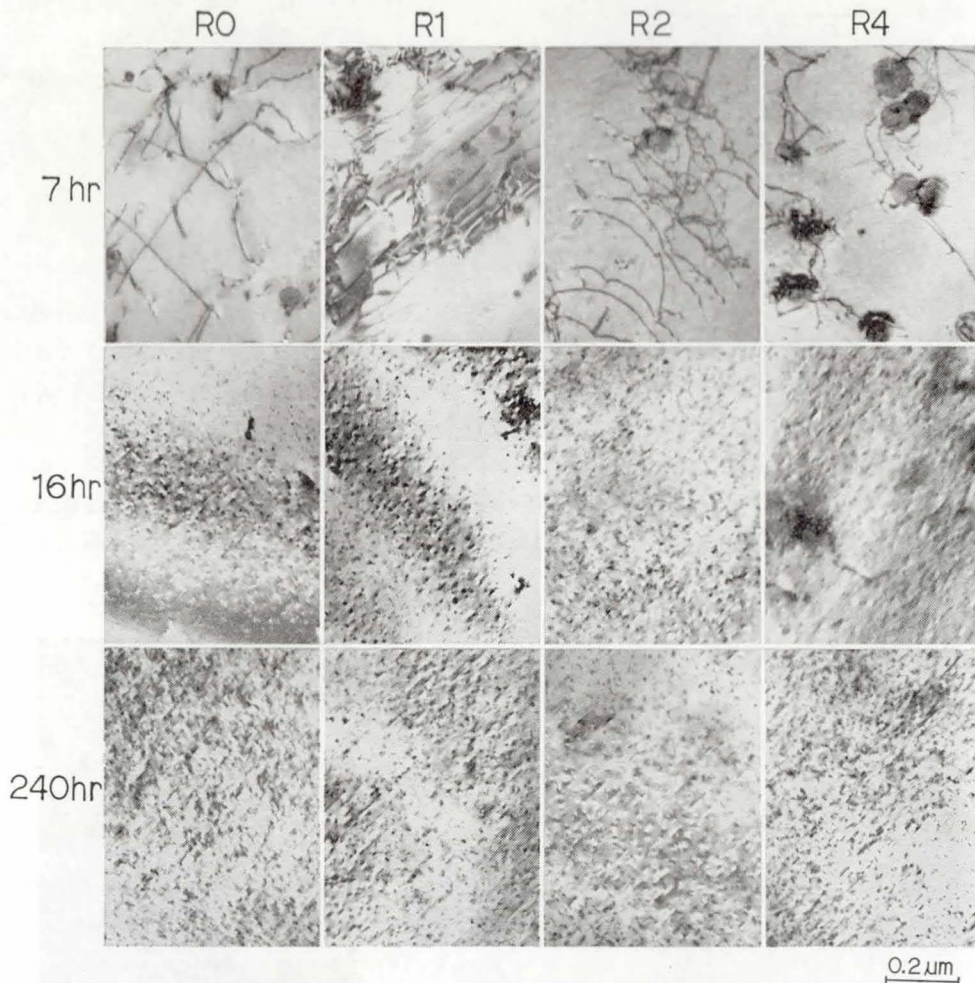


写真3 溶体化処理後145°Cで時効処理したときの透過電子顕微鏡組織の変化に及ぼす希土類元素の影響

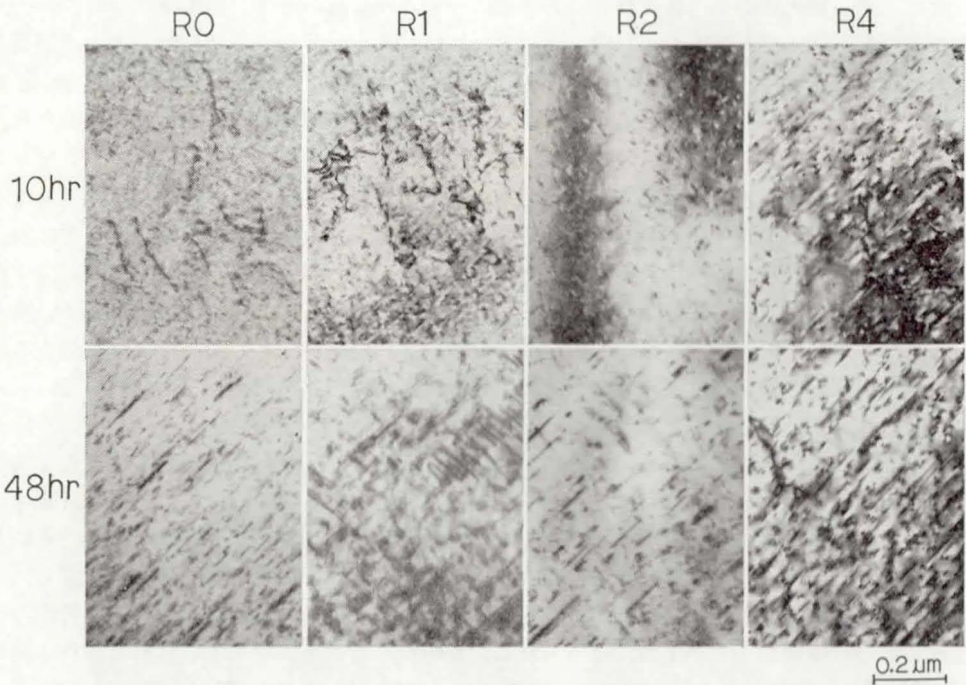


写真4 溶体化処理後175°Cで時効処理したときの透過電子顕微鏡組織の変化に及ぼす希土類元素の影響

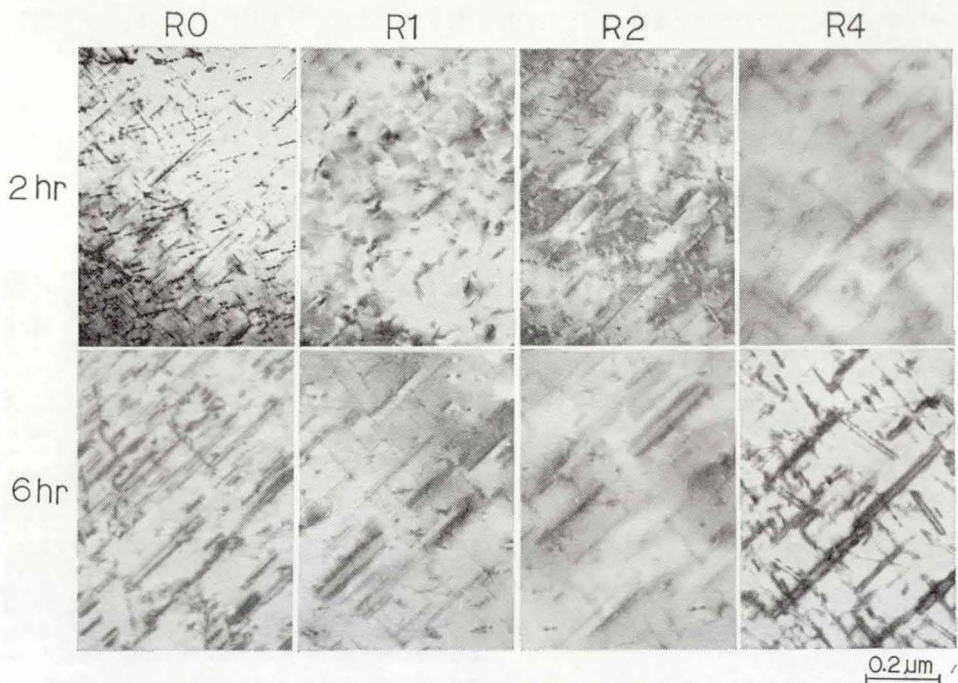


写真5 溶体化処理後205°Cで時効処理したときの透過電子顕微鏡組織の変化に及ぼす希土類元素の影響

次に、希土類元素が多く含まれるほど時効にともなう最高かたさ、引張強さ、0.2%耐力、伸び等の機械的性質が低下する原因を調べるために、各々の試料を時効したときの透過電子顕微鏡組織を調べた。写真3～写真5はその1例で、写真3は時効温度145°Cの場合、写真4は時効温度175°Cの場合そして写真5は時効温度205°Cの場合である。これらによると、145°Cの場合には、時効時間7時間では転位と球状の晶出物が見られるもののG.P.ゾーンは未だ認められないが、16時間になると非常に微細なG.P.ゾーンが認められるようになる。このG.P.ゾーンは36時間、240時間と時効時間が経過してもそれほど成長せず全面に微細に分布している。時効温度が低い場合の方が、最高かたさ、引張強さおよび0.2%耐力が高い値を示したのは、この微細なG.P.ゾーンのためと思われる。ただ希土類元素が多いほどゾーンとゾーンの間隔が大きくなりかつG.P.ゾーンの密度が低下しているように見える。時効温度175°Cの場合には、4時間では転位と球状晶出物のみが見られるもののG.P.ゾーンは認められず、10時間になるとG.P.ゾーンが認められ、希土類元素が多く含まれるほど大きく成長しかつ密度が低下している。24時間になるとG.P.ゾーンはますます大きく成長し、希土類元素が含まれる試料では棒状中間相 $\beta'$ ( $Mg_2Si$ )も認められる。更に48時間になると棒状中間相 $\beta'$ がすべての試料に認められ、希土類元素が多い試料は $\beta'$ 相も非常に大きく成長している。時効温度205°Cの場合には、2時間ですでにG.P.ゾーンが存在し、一部に棒状中間相 $\beta'$ も認められる。3時間ではG.P.ゾーンは一層成長し、希土類元素の含まれるものは中間相 $\beta'$ が全面に認められる。6時間になると、すべての試料に棒状中間相 $\beta'$ が全面に折出し、希土類元素が多い試料では一部折出相 $\beta$ ( $Mg_2Si$ )も認められる。

以上のように、希土類元素が含まれるとG.P.ゾーンの発生と成長が早く起り、かつG.P.ゾーンの密度が低下することが、かたさ、引張強さおよび0.2%耐力の低下の一つの原因と思われる。

写真6は希土類元素が0.2%含まれた試料を175°Cで24時間時効した試料に見られた晶出物の透過電子顕微鏡組織を示す。このように六角形の晶出物の周囲にG.P.ゾーンの全然存在しない領域が存在することも強度の低下のもう一つの原因と思われる。



写真6 溶体化処理後175°Cで24時間時効処理した試料に見られた晶出物(希土類元素0.2%)

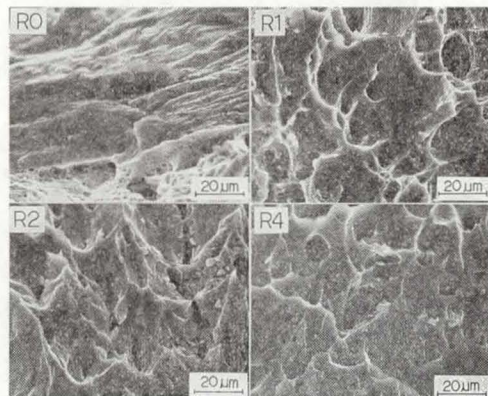


写真7 溶体化処理後175°Cで10時間時効処理後の引張破断面の走査電子顕微鏡組織



写真7は175°Cで10時間時効した試料の引張破断面の走査電子顕微鏡組織を示す。希土類元素が含まれていない場合には延性破壊の様子を示すが、希土類元素が含まれると深いディンプルが見られ、このディンプルは希土類元素が多くなるにつれて小さくなる傾向を示し、これによって亀裂の伝播が容易になることが考えられ、希土類元素が多いほど伸びが低下したことと良い対応を示している。

## 5. 結 論

Al-Mg-Si 合金に希土類元素を0, 0.1, 0.2および0.4%添加した合金を作成し、これを溶体化処理後145°C, 175°Cおよび205°Cで時効処理して、かたさ測定, 引張試験, 光学顕微鏡および電子顕微鏡組織観察などを行ない, Al-Mg-Si 合金の時効に及ぼす希土類元素の影響を調べたところ, 次のことがわかった。

- (1) 希土類元素が含まれると時効にともなう最高かたさ, 引張強さ, 0.2%耐力および伸びが低下するが, この原因は希土類元素が含まれるとG.P. ゾーンの発生と成長が早く起り, かつG.P. ゾーンの密度が低下することおよび希土類元素とSiの化合物( $R_2Si$ )ができて, その周囲にG.P. ゾーンが存在しない領域ができることが原因と考えられる。
- (2) 希土類元素が含まれると焼入れ直後のかたさも低下するが, この原因は希土類元素とSiの化合物( $R_2Si$ )ができて, 素地の部分のSiが少なくなったためと思われる。
- (3) 時効温度が低いときの方が強度は高くなるが, これは時効温度が低いときの方が微細なG.P. ゾーンが全面に生成し, かつ成長速度が遅いことが原因と思われる。

終りに, 本研究を行なうにあたり実験に御協力いただいた本校機械工学科卒業生金子謙一(現在上田日本無線株式会社), 井出めぐみ(現在東芝プロセスソフトウェア株式会社)の両君に感謝の意を表します。

## 参 考 文 献

- (1) 鈴木寿, 菅野幹宏, 白石泰久, 塙健三: 軽金属, 第29巻(1979)第12号, p. 575.
- (2) 鈴木寿, 伊藤吾朗: 軽金属, 第33巻(1983)第5号, p. 266.
- (3) 望月博, 藤川辰一郎, 平野賢一: 軽金属, 第21巻(1971)第8号, p. 505.
- (4) 池野進, 福持泰明, 上谷保裕, 多々静夫: 軽金属, 第36巻(1986)第7号, p. 429.
- (5) 平沢宏章, 磯部昌司: 軽金属, 第26巻(1976)第2号, p. 88.
- (6) 高橋恒夫, 小林義一: 軽金属, 第19巻(1969)第1号, p. 17.
- (7) 高橋恒夫, 小林義一, 小島陽: 軽金属, 第19巻(1969)第5号, p. 189.
- (8) 高橋恒夫, 小林義一, 時沢貢: 軽金属, 第23巻(1973)第6号, p. 248.