

Al-Mg-Si系合金の再結晶集合組織形成に及ぼす冷間圧延率の影響

Effect of Cold Rolling Reduction on Development of Recrystallization Textures in an Al-Mg-Si Alloy

竹田 博貴
Hiroki Takeda日比野 旭
Akira Hibino高田 健
Ken Takata

概要 Al-Mg-Si系合金板材において、再結晶集合組織の形成に及ぼす冷間圧延率の影響について調査を行った。Cube ($\{001\}\langle 100\rangle$) 方位密度は冷間圧延率に応じて劇的に変化し、67%を超える高冷間圧延率では急減した。一方、Cube方位の急減に伴いCube_{ND}方位 ($\{001\}\langle 520\rangle$)、R方位 ($\{123\}\langle 634\rangle$)、P方位 ($\{011\}\langle 111\rangle$)の方位密度は増加した。部分再結晶組織の観察から、このCube方位密度の減少、およびCube_{ND}、R、P方位の発達の主要因は粒子促進核生成 (PSN) 機構によるものと推察され、また、再結晶組織の発達には再結晶粒と周囲のマトリックス (圧延集合組織) の方位関係が重要であることが示唆された。

Abstract : The effect of cold rolling reduction on development of recrystallization textures in an Al-Mg-Si alloy was investigated. The orientation density of Cube ($\{001\}\langle 100\rangle$) texture after the annealing at 833 K decreased dramatically at over 67% cold rolling reduction. However, Cube_{ND} ($\{001\}\langle 520\rangle$), R ($\{123\}\langle 634\rangle$), and P ($\{011\}\langle 111\rangle$) textures increased with decreasing orientation density of Cube. The decrease in orientation density of Cube and the increase in orientation density of Cube_{ND}, R, and P were assumed to be mainly caused by particle stimulated nucleation (PSN). In addition, this study suggested that development of recrystallized textures was affected by orientation rotation relationships between recrystallized grains and surrounding deformed matrix.

1. はじめに

軽量、高耐食性、高リサイクル性など優れた特性を有するアルミニウムおよびその合金は、輸送機器、電気・電子機器、容器包装、土木建築、産業機械など幅広い分野で使用されており、さらなる利用拡大を図るためには機械的特性やそれに起因する成形性をより一層向上させることが効果的である。各種特性の支配因子の1つとして集合組織の制御が挙げられ、例えば、アルミニウム合金の再結晶集合組織の主方位であるCube方位 ($\{001\}\langle 100\rangle$) は、曲げ加工性を大きく改善する方位であることが報告されている^{1), 2)}。厳しい曲げ加工が施されることがあるAl-Mg-Si系合金板材において、Cube方位の制御は重要であり近年研究が行われている。稲垣は50～98%の冷間圧延を施したAA6111合金を573 Kで保持したところ、高冷間圧延率側でCube方位密度が劇的に向

上することを報告している³⁾。一方で、AA6022合金に40～80%の冷間圧延を施し823 Kで保持した松本らの調査では、高冷間圧延率側でCube方位密度が増加するケース、減少するケースの両者が報告されており⁴⁾、Cube方位の形成が冷間圧延率の影響を受けることは明らかである。しかし、これらの報告では、異なる冷間圧延率で圧延された板厚不同の各試験片間において生じる、焼鈍時の昇温速度の差異が除外されておらず、純粋な冷間圧延率の変化がCube方位の形成に及ぼす影響についてはまだ明らかにされていない。

本研究では、Cube方位の変化を明確化することを目的として再結晶熱処理後にCube方位が強く発達するAl-Mg-Si系合金板材を供試材として用い、異なる板厚のサンプルでも昇温速度を同一に制御することで、再結晶集合組織の形成、特にCube方位の形成に及ぼす冷間圧延率の影響について調査を行った。

2. 実験方法

Al-0.51 mass%Mg-0.94 mass%Siを主成分とするAA6022合金相当の熱間圧延板(板厚3.0 mm)を供試材とした。この供試材にラボ冷間圧延機を用いて0% (板厚3.0 mm; 熱間圧延まま), 67% (板厚1.0 mm), 83% (板厚0.5 mm), 92% (板厚0.25 mm)の各種圧延率で冷間圧延を行った後、完全再結晶組織を得るため、雰囲気温度を843 Kに保持した大気炉内で材温が833 Kに到達するまで加熱し水冷を行った。以降、この熱処理を再結晶熱処理と呼ぶ。なお、板厚が異なることに起因する各種圧延材の昇温速度の差異を除くために、熱処理を施す際の板厚が1.0 mmとなるように調整を行った。具体的には、板厚3.0 mm材では苛性エッチングにより後述する観察部位を含む1.0 mmまで減厚させ、板厚が1.0 mmに満たない0.5, 0.25 mm材では冷間圧延材の両面に同組成同厚のダミー材を当てて総板厚を1.0 mmにそろえた。このように板厚を一律1.0 mmに調整した後、各種圧延材の板厚中央部に端面から熱電対を埋め込み、試験片を大気炉にて加熱した際の昇温速度を測定した。図1に、上述のように板厚を調整した後、843 Kに保持した大気炉中で加熱したときの各種圧延材の温度変化を示す。各種圧延材の昇温曲線は非常に良い一致を示し、約210秒で833 Kに到達した。

各種圧延材および再結晶材の集合組織調査は、それぞれ再結晶熱処理前後にて、各種圧延材の全板厚の1/4部にある面をX線回折法で測定した。このとき、傾斜角が15~90°の範囲でSchulzの反射法により(111)面、(220)面および(200)面の不完全極点図を測定した後、「偶数項」および「奇数項」の展開次数がそれぞれ「22」および

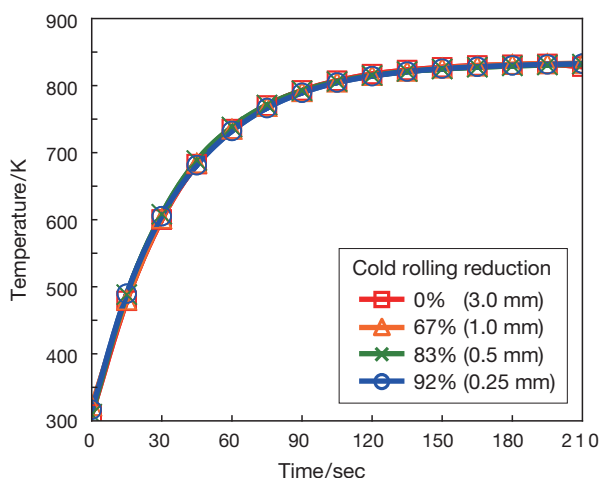


図1 各種冷間圧延材の熱処理中の昇温曲線
Fig. 1 Heating curves of cold-rolled specimens during the annealing.

「19」の条件で級数展開を行い結晶方位分布関数(ODF)を求めた。また、これにより得られた各方位の方位密度は、アルミニウム粉末を焼結したランダムな集合組織を有する標準試料の方位密度に対する比として算出した。また、再結晶熱処理後の板材に対し走査型電子顕微鏡付属の後方散乱電子回折測定装置(SEM-EBSD)を用いて組織観察を行った。ここで、EBSD測定は板幅方向と直交する断面に対して機械研磨に続いてケラー氏液(HF: 1.0%, HNO₃: 2.5%, HCl: 1.5%, H₂O: 95%)で15秒エッチングした後、熱処理した全板厚×400 μmの領域をステップサイズ3 μmで測定した。

完全再結晶に至る前の、部分再結晶組織での集合組織測定は、前述した再結晶熱処理を途中で中断した板材を用いて実施した。具体的には、材温が533 K,あるいは563 Kに到達した時点で水冷を行い、再結晶率が異なる2種の部分再結晶組織を得た。なお、この熱処理についても再結晶熱処理と同様にダミー板を用いて総板厚を1.0 mmに調整することで昇温速度を制御した。図1に示すように、533 Kおよび563 Kの材温到達には、それぞれ、21秒と24秒の保持時間が必要であった。得られた部分再結晶組織はSEM-EBSDを用いて各結晶粒の結晶方位測定を行った。サンプル作製条件は前述したとおりであるが、観察箇所を冷間圧延後の全板厚の1/4部、ステップサイズを0.2 μm, 測定領域を38 μm×60 μmとして、各種板材につき7視野測定した。また、部分再結晶組織のEBSD測定データより結晶方位分布関数を計算する際には、球面調和関数を用い、その展開次数を「16」、半値幅を「5°」とした。なお、結晶粒径の違いによる特定方位への集積を防止するために、各結晶粒は1つの方位情報で代表し計算を実施した。また、鏡面对称の関係にある等価な方位については等しい確率で存在するものとして対称性を強制して計算を行った。

3. 実験結果

3.1 集合組織形成に及ぼす冷間圧延率の影響

各種圧延率で冷間圧延後の供試材の集合組織を図2に示す。圧延集合組織の構成要素であるS方位($\{123\} \langle 634 \rangle$), Cu方位($\{112\} \langle 111 \rangle$), Brass方位($\{011\} \langle 211 \rangle$)が特に顕著に発達していることが分かる。冷間圧延率の増大に伴うS方位の方位密度の増加はCu方位のそれに比べて小さい。また、Cu方位密度は冷間圧延率が67%を超えると増加する傾向が見られる。Cu, S方位と比較してBrass方位の方位密度は低く、冷間圧延率の増大に従い低下する傾向を示した。一方、再結晶集合組織の主方位であるCube方位は、冷間圧延組織中においてX線回折法による測定では検出されなかった。

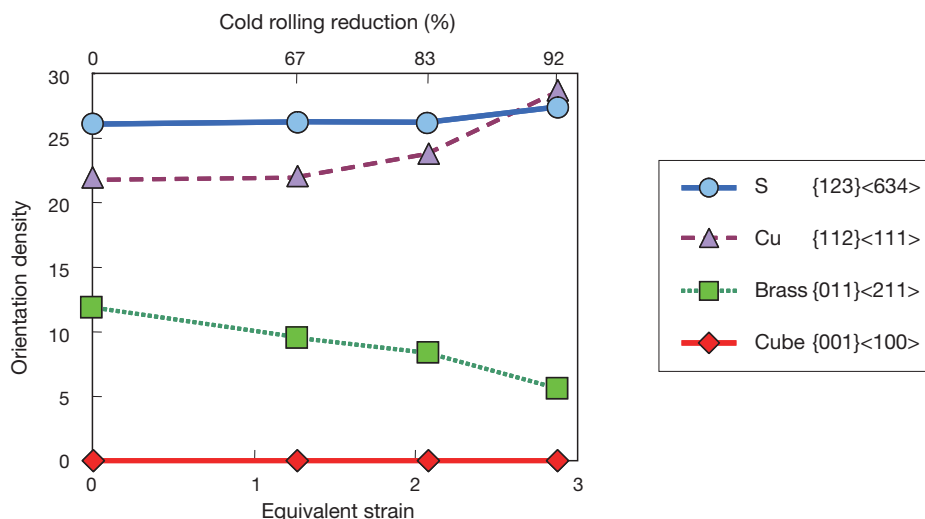


図2 冷間圧延による圧延集合組織の変化

※相当歪 (ε) は次の式に基づき算出；

$$\varepsilon = (2/\sqrt{3}) \ln(t_0/t), \quad t_0: \text{冷間圧延前の板厚}, \quad t: \text{冷間圧延後の板厚}$$

Fig. 2 Orientation densities of cold-rolled specimens.

Equivalent strain (ε) was calculated by the following formula ;

$$\varepsilon = (2/\sqrt{3}) \ln(t_0/t), \quad t_0: \text{thickness before cold rolling}, \quad t: \text{thickness after cold rolling.}$$

833 Kの熱処理で得られた再結晶組織のIQ (Image Quality) マップを図3に示す。いずれの冷間圧延率においてもこの熱処理で完全再結晶組織となったことがわかる。これら再結晶集合組織と冷間圧延率の関係を図4に示す。観察された種々の結晶方位の中でCube方位が最も強い方位密度を示していた。Cube方位は冷間圧延率が67%以下の領域では標準試料に比べおよそ150倍もの非常に高い方位密度を示し、67%を超えた領域では冷間圧延率の増大に従いその方位密度が急激に減少し、冷間圧延率92%ではおよそ30倍程度となっている。以降、本論文中では冷間圧延率が67%以下の領域を高Cube領域、67%を超える領域をCube減少領域と呼んで区別する。Cu方位は冷間圧延率の増大に従い方位密度が減少する傾向が見られるが、その変化量は他の方位のそれに比べて小さい。一方で、R ($\{123\}\langle 634 \rangle$), P ($\{011\}\langle 111 \rangle$), およびCube方位がND軸まわりに回転したCube_{ND}方位 ($\{001\}\langle 520 \rangle$) の方位密度はCube減少領域において冷間圧延率の増大に伴い増加が見られた。Brass, Goss方位 ($\{011\}\langle 100 \rangle$) も検出はされたが、それらの方位密度は標準試料と同程度であった。

3.2 部分再結晶時の集合組織

図5および図6は、それぞれ、高Cube領域である67%冷間圧延材とCube減少領域である83%冷間圧延材における完全再結晶組織に至る途中の部分再結晶組織のIQマップを示す。両図中の(a), (b)は、それぞれ533 Kと563 Kまでの加熱により得られた部分再結晶組織の3視

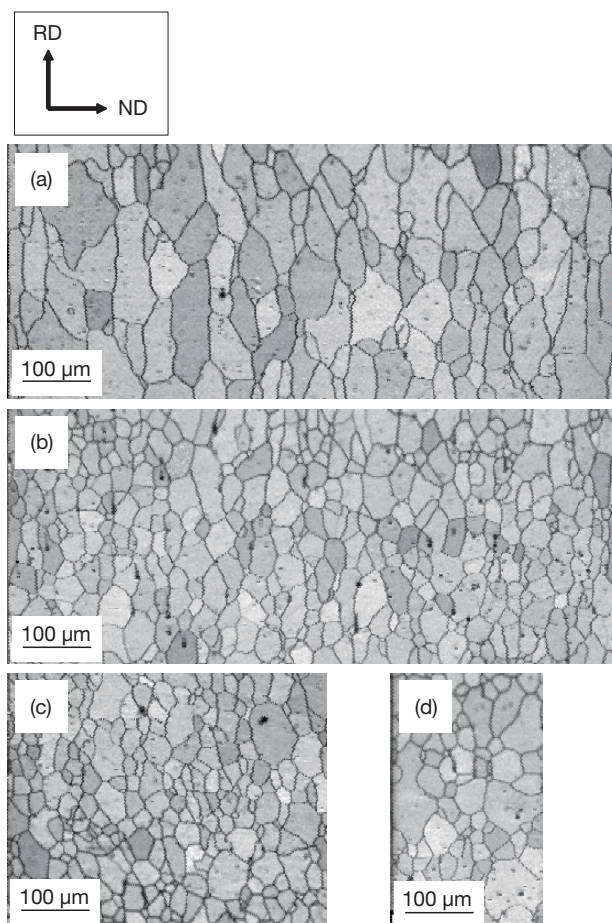


図3 833 Kで熱処理した各種冷間圧延材のIQマップ (a) 0%冷間圧延, (b) 67%冷間圧延, (c) 83%冷間圧延, (d) 92%冷間圧延

Fig. 3 Image quality maps of recrystallized specimens after annealing at 833 K. (a) 0% reduction, (b) 67% reduction, (c) 83% reduction, (d) 92% reduction.

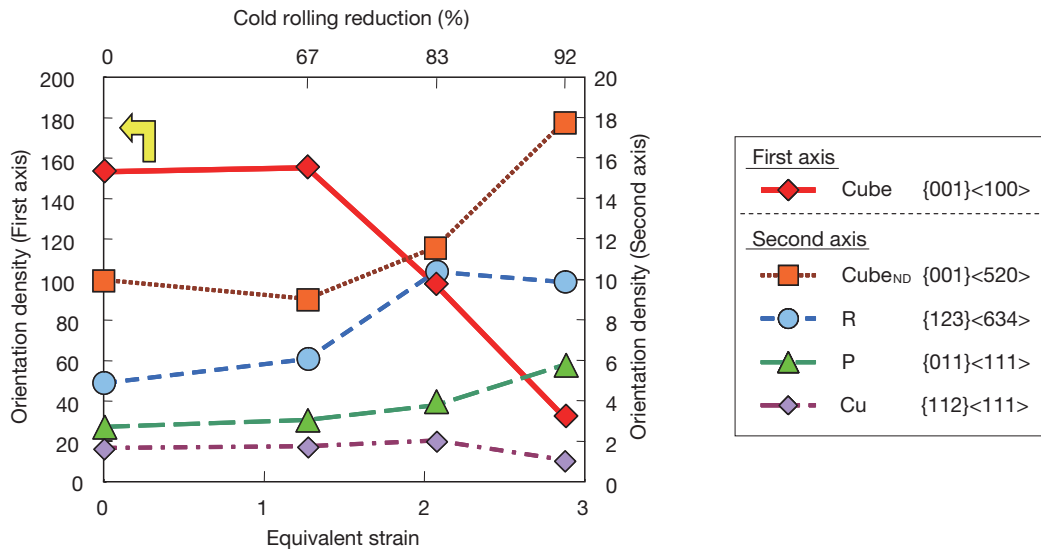


図4 冷間圧延による再結晶集合組織の変化

Fig. 4 Orientation densities of recrystallized specimens after annealing at 833 K.

野のIQマップである。(c)は比較として、図3で示した完全再結晶組織を(a)、(b)と同倍率まで拡大したIQマップである。なお、各IQマップ中では測定された方位情報に基づき、Cube方位の理想方位から $\pm 15^\circ$ 以内の粒を赤色で示している。また、IQマップ中において周囲の母相より結晶粒サイズが大きな粒を再結晶粒と判断している。

図5および図6のそれぞれの(a)、(b)に着目すると、完全再結晶組織である(c)に比べ明らかに微細な組織を有しており、完全再結晶組織への途中段階にあることが分かる。高Cube領域である図5(a)では、大部分が未再結晶組織である再結晶初期の段階で、楕円で示すようにCube方位が優先的に再結晶している様子が観察される。再結晶がより進行した図5(b)においても、同様にCube方位が再結晶領域の大部分を占めており、また、他方位の再結晶粒に比べ結晶粒径もはるかに大きい。一方で、Cube減少領域材の観察結果である図6(a)では、楕円で示すように数~十数 μm のAl-Fe系およびAl-Fe-Si系晶出物と思われる粗大な第2相粒子の周辺で非Cube方位の優先的な再結晶が観察された。再結晶がさらに進行した段階(図6(b))においても同様に、比較的大きな非Cube方位の結晶粒が粗大な第2相粒子周辺で観察された。Cube減少領域においても、Cube方位粒は観察されているが、高Cube領域におけるそれに比べその量は少ない。なお、本研究ではIQマップから粗大な第2相粒子の位置を判断しているが、念のためSEMでの観察を行い相違ないことを確認している。

4. 考察

再結晶集合組織に影響を及ぼす因子には、冷間圧延材の熱処理時の昇温速度や熱処理温度、圧延や押出などの加工方法とその加工率、第2相粒子の分布状態、初期(熱間圧延板)の集合組織、溶質原子の固溶などが挙げられる⁵⁾。本試験では試料として使用した供試材の熱間圧延までの諸条件、および冷間圧延材の熱処理条件は同じであるため、各種板材間の集合組織の差異は冷間圧延の影響によるものと考えてよい。

3.1節で述べたように、圧延集合組織は冷間圧延率の増加に伴い変化した。稲垣はAl-Mg-Si系合金の熱間圧延板を供試材とする調査で、冷間圧延率の増大とともにBrass方位は減少しS、Cu方位は増加することを報告している³⁾。本研究では、S方位の方位密度に大きな増加は見られないものの、傾向はこの稲垣の報告と一致する。熱間圧延板の段階ですでにS方位が顕著に発達しているため、冷間圧延後にS方位の明瞭な増加が見られなかったと考えている。

再結晶集合組織中ではCube方位が主方位であり、その方位密度は最大で標準試料のおよそ150倍であった。再結晶集合組織におけるCube方位の発達には、圧延後の組織に残存するCube band⁶⁾、および隣接するマトリックスとの方位関係が $30 \sim 40^\circ \langle 111 \rangle$ 回転関係^{7), 8)}にあることが重要であると言われている。図2に示すように本研究で用いた圧延板材のX線回折ではCube方位は検出されていない。しかし、図5(a)に示すEBSD測定では帯状に連なるCube方位粒(楕円部)が確認されており、その形状から、これらは残存Cube bandを起源とする再結晶粒と推察される。すなわち、X線回折法の検出限界

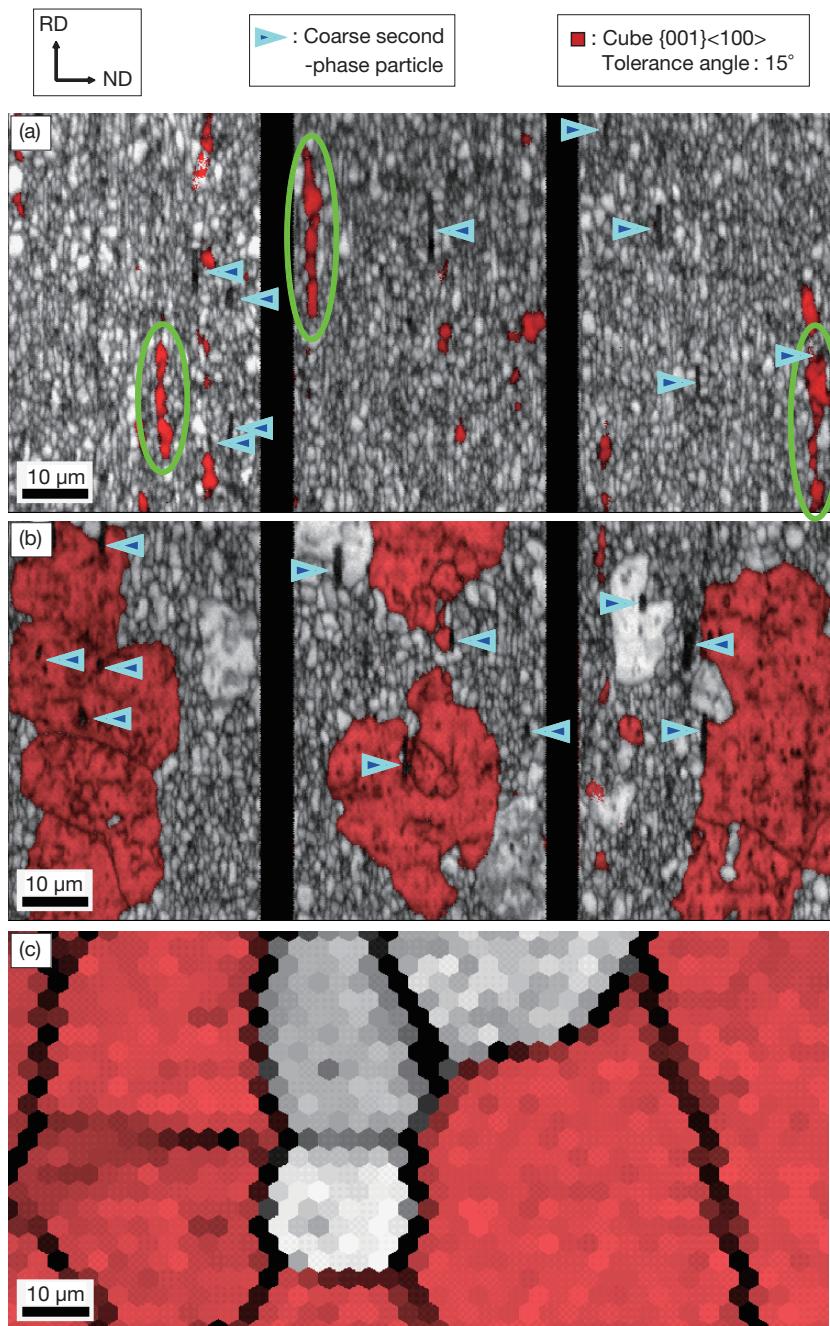


図5 67%冷間圧延後に各温度で熱処理した部分再結晶材および完全再結晶材のIQマップ, (a) 533 K, (b) 563 K, (c) 833 K

Fig. 5 Image quality maps of partially and completely recrystallized specimens after cold rolling to 67% reduction and then annealing. (a) at 533 K, (b) at 563 K, (c) at 833 K.

以下の体積率でCube方位領域が残存している可能性が示唆される。またマトリックス中には、Cube方位と40°〈111〉回転関係にあるS方位が熱間圧延板の段階ですでに顕著に発達しており、Cube方位の核生成・成長にとって好環境が整っているものと考えられる。

一方で、図4に示すように冷間圧延率が67%を超える領域ではCube方位密度の急激な減少が確認されている。前述したようにマトリックス中のS方位の方位密度は高Cube領域からCube減少領域にかけてほとんど変化しておらず、これが減少の主要因であるとは考え難い。

Cube bandに関する詳細な検討は本研究では行っておらず、冷間圧延に伴うその存在状態の変化がCube方位密度減少の一因である可能性も考えられるが、図6で示す粗大な第2相粒子周辺での非Cube方位の核生成・成長がCube方位のそれを大きく上回っていることから、これがCube方位密度減少の主要因である可能性が示唆される。粗大な第2相粒子周辺での優先核生成は過去にも報告されており^{9)~12)}、今回観察された現象もいわゆるPSN (particle stimulated nucleation) であると考えられる。このPSNがCube方位の急激な減少の主要因であるならば、

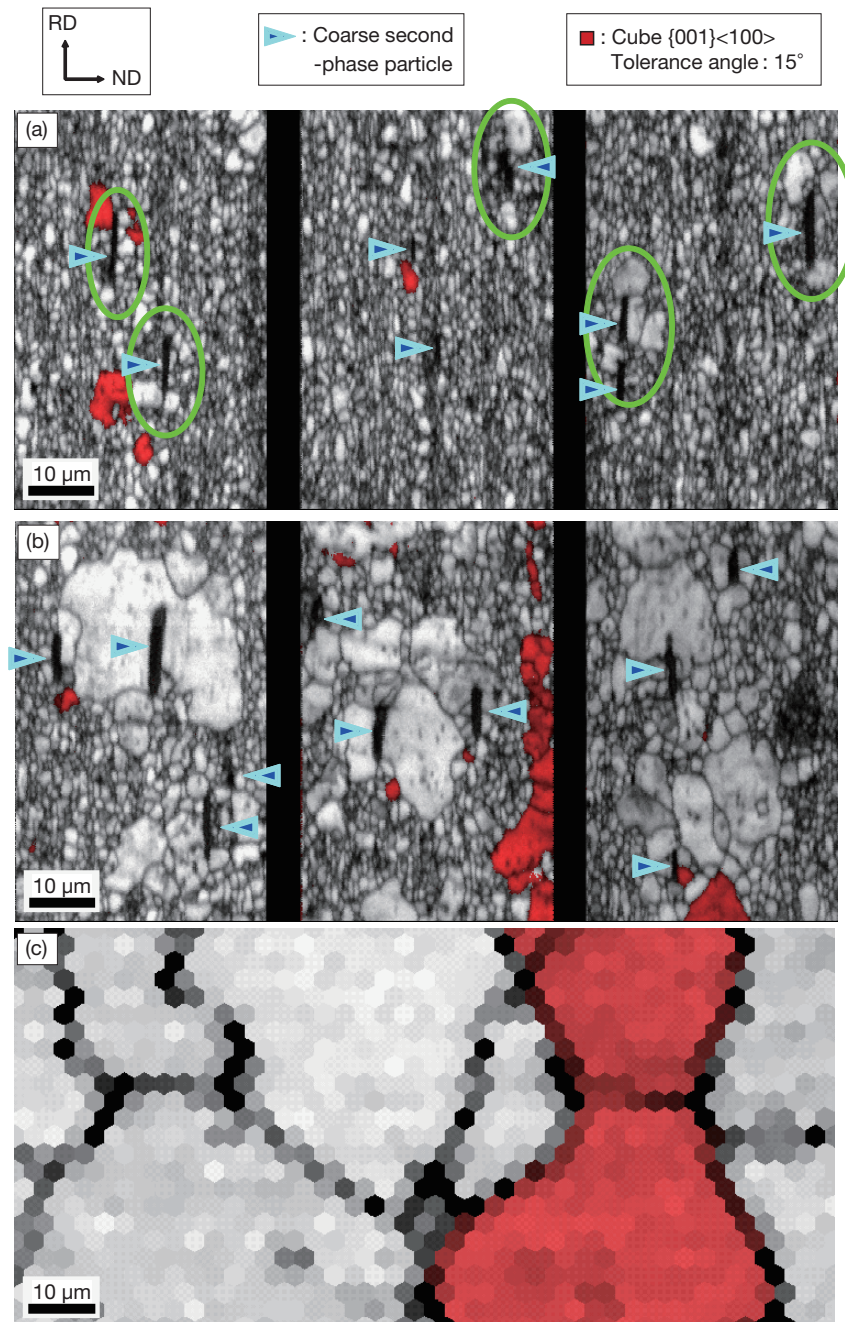


図6 83%冷間圧延後に各温度で熱処理した部分再結晶材および完全再結晶材のIQマップ, (a) 533 K, (b) 563 K, (c) 833 K

Fig. 6 Image quality maps of partially and completely recrystallized specimens after cold rolling to 83% reduction and then annealing. (a) at 533 K, (b) at 563 K, (c) at 833 K.

再結晶集合組織中の高Cube領域からCube減少領域にかけて方位密度が増加するCube_{ND}, R, P方位のうち少なくとも一種以上が粗大な第2相粒子の周辺で形成していると推察される。

そこで、83%冷間圧延材の部分再結晶組織(533 Kおよび563 K)のEBSD測定データから、粗大な第2相粒子に隣接する再結晶粒のみを選択し、前述した方法により結晶方位分布関数を計算することでPSNにより生じる結晶方位を調査した。これまで、{001} <210> (本研究のCube_{ND}に相当)と{011} <122>¹⁰⁾、またはランダム集合組

織¹¹⁾、さらには弱い圧延集合組織¹²⁾などがPSNにより形成することが報告されている。しかし、図7に示す本研究の解析は過去の報告とは一致せず、Cu方位{112} <111>の方位密度が最も高く、次いでR方位{123} <634>、P方位{011} <111>が続く、さらにCube_{ND}{001} <520>にも集積が見られた。なお、図7中ではCube方位{001} <100>の存在も確認されるが、これはPSNを起源とするものではなくCube bandから核生成した再結晶粒が粗大な第2相粒子周辺の観察断面に現れた結果ではないかと推察される。詳細な解析は今後の課題である。図7中でCu方位

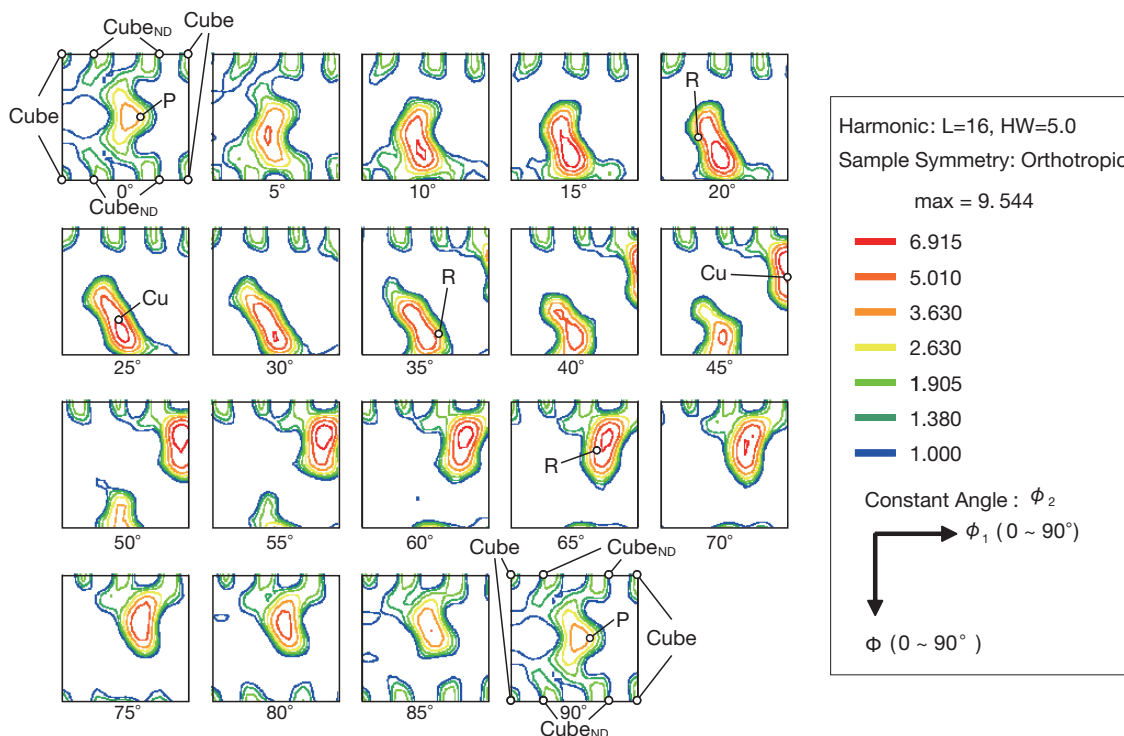


図7 83%冷間圧延後に533 Kおよび563 Kで熱処理した部分再結晶材における粗大な第二相粒子に隣接する再結晶粒の結晶方位分布関数

Fig.7 ODF of recrystallized grains adjacent to coarse second-phase particles for partially-recrystallized specimens after cold rolling to 83% reduction and then annealing at 533 K and 563 K.

とR方位に強い集積が見られることは、再結晶が起きる前の段階、すなわち図2に示す圧延集合組織中でCuおよびS方位密度が高いことに起因するものと推測され、よってPSNにより形成する方位は圧延集合組織の影響を受ける可能性が示唆される。さらに、再結晶集合組織中の高Cube領域からCube減少領域にかけて方位密度が増加する3種の方位(Cube_{ND}, R, P方位)すべてに集積が見られることから、これらの方位はPSNを起源としていると推察される。したがって、Cube方位の急減はPSNが主要因である可能性が高いと考えられる。

図7よりCu, R, P, およびCube_{ND}方位が粗大な第2相粒子の周辺で核生成していると考えられる。しかし、この4種の方位のうちCu方位だけは、再結晶集合組織中の高Cube領域からCube減少領域にかけて方位密度の増加が見られない。この挙動の差異については、マトリックスとの回転関係が影響しているものと考えられる。前記の4種の方位のうちCu方位を除く3種はマトリックスと前述の30°~40°〈111〉回転関係にある。具体的には、Cube_{ND}, P方位は圧延集合組織の構成要素であるCu方位と、そしてR方位は同じくS方位とそれぞれ30°~40°〈111〉回転関係にあるため、優先的に成長すると思われる。一方、マトリックスと前述した特定の回転関係がないCu方位は、核生成はするものの成長段階で他方位に蚕食され消滅する確率が高いと考えられ、これが再結

晶集合組織中のCu方位の方位密度が増加しない一因ではないかと推察された。

5. おわりに

再結晶熱処理後にCube方位が強く発達するAl-Mg-Si系合金板材を供試材として、再結晶集合組織の形成に及ぼす冷間圧延率の影響を同一の昇温速度条件の下に調査し、次の結果が得られた。

- (1) 再結晶熱処理後のCube方位密度は冷間圧延率に応じて劇的に変化し67%を超える高冷間圧延率側ではCube(〈001〉〈100〉)方位密度の急激な低下が見られ、一方でCube_{ND}方位(〈001〉〈520〉), R方位(〈123〉〈634〉), P方位(〈011〉〈111〉)の方位密度の増加が見られた。
- (2) 高冷間圧延率側においてはPSNが明確に認められ、粗大な第2相粒子の周辺ではCu(〈112〉〈111〉), Cube_{ND}, R, P方位が優先的に核生成していた。このPSN起因の非Cube方位の結晶粒が優先的に成長することで、Cube方位密度の低下がもたらされた。

なお、本論文は一般社団法人 軽金属学会発行の軽金

属, 62 (2012), 60. に掲載されたものを転載しています。

参考文献

- 1) H. Takeda, A. Hibino and K. Takata: Mater. Trans., **51** (2010), 614.
- 2) 日比野旭, 村松俊樹, 小松原俊雄, 佐賀誠, 高田健: 軽金属学会第106回春期大会講演概要, (2004), 89.
- 3) 稲垣裕輔: 中強度アルミニウム合金の材料物性, 研究部会報告書No. 51, 軽金属学会, (2008), 9.
- 4) 松本克史, 杉崎康昭: 軽金属, **55** (2005), 113.
- 5) 伊藤邦夫: 軽金属, **26** (1976), 44.
- 6) O. Daaland and E. Nes: Acta Mater., **44** (1996), 1389.
- 7) G. Ibe and K. Lücke: Recrystallization, Grain Growth and Textures, ed. by H. Margolin, ASM, (1966), 434.
- 8) J. Hjelen, R. Orsund and E. Nes: Acta Mater., **39** (1991), 1377.
- 9) F. J. Humphreys: Acta Metall., **25** (1977), 1323.
- 10) O. Engler, A. Chavooshi, J. Hirsch and G. Gottstein: Mater. Sci. Forum, 157-162 (1994), 939.
- 11) A. Oscarsson, W. B. Hutchinson and H. E. Ekström: Mater. Sci. Technol., **7** (1991), 554.
- 12) F. Habiby and F. J. Humphreys: Text. Microstruct., **20** (1993), 125.



竹田 博貴 (Hiroki Takeda)
古河スカイ(株) 技術研究所



日比野 旭 (Akira Hibino)
古河スカイ(株) 技術研究所



高田 健 (Ken Takata)
新日鐵住金(株) 鉄鋼研究所