## 論文

# Al-Mg-Si系合金の再結晶挙動に及ぼす固溶析出状態の影響\*

長谷川 啓史\*\*, 中西 英貴\*\*, 浅野 峰生\*\*\*

## Effect of Solid Solution and Precipitation States on Recrystallization Behavior of Al-Mg-Si Alloys\*

Akifumi Hasegawa\*\*, Hidetaka Nakanishi\*\* and Mineo Asano\*\*\*

The effect of the solid solution and precipitation states on the recrystallization of Al-Mg-Si alloys was investigated. Hot-rolled sheets were heated at 823 K, and then they were treated with or without the precipitation treatment at 623 K. Both samples were rolled at room temperature up to 87.5% and annealed finally at 623 K. The sheets with the precipitation treatment (sample P) showed recrystallized grains elongated to the rolling direction. The sheets without the precipitation treatment (sample N) consisted of small equiaxial recrystallized grains. Cube(|001| < 100>) texture density of the sample P was higher than that of the sample N. In the sample P,  $\beta$ -phase precipitates and the precipitate free zone (PFZ) were formed by the precipitation zone. Therefore, the recrystallized grains grew along the elongated PFZ and the formation of the long cube orientation grains caused high density of the cube texture. On the other hand, in the sample N, shear bands were formed by rolling. They were speculated to work as recrystallization sites. Because of origination of randomly oriented grains from shear bands, it was assumed that the small equiaxial recrystallized grains were formed and the density of the cube texture was decreased.

Keywords: Al-Mg-Si, texture, recrystallization, solid solution, shear bands

## 1. 緒 言

消費エネルギーの低減およびCO<sub>2</sub>排出量の削減を目 的として,自動車用材料の軽量化が積極的に進められ ており,アルミニウム合金の適用が拡大している。そ の中でも,ボディシート用材料としてAl-Mg-Si系合金 の適用が拡大している。Al-Mg-Si系合金は熱処理型合 金であり,塗装焼き付け処理によって時効硬化(ベーク ハード)させることで強度の向上が可能であるため,一 般的にT4調質でプレス成形に用いられる。Al-Mg-Si系 合金のT4調質材はヘミング時の割れ抑制が主要な課題 の一つであり,曲げ加工性の改善については多くの研 究が行われている<sup>1)~5)</sup>。曲げ加工性には,せん断帯の 形成および2  $\mu$ m以上の第二相粒子の存在が主因子とし て影響を及ぼし<sup>4)</sup>,せん断帯の形成を抑制するには, cube方位({001}<100>)の集積が有効であることが報告 されている<sup>1),2)</sup>。Al-Mg-Si系合金におけるcube方位の 形成に関しては様々な研究報告例があり<sup>6)~8)</sup>,T4調質 材の集合組織の形成過程,すなわち再結晶挙動は,均 質化処理,熱間圧延,中間焼鈍,冷間圧延,溶体化処理 (最終焼鈍)の各製造条件に影響を受ける。再結晶挙動 に影響を及ぼす材料因子として,固溶析出状態や加工 組織の形成状態などが挙げられ,製造条件によってこ れらの因子は複雑に変化する。このため,再結晶挙動 に及ぼす諸因子の影響は解明されていない部分が多い。

本研究では、再結晶挙動に影響する因子のうち、固 溶析出状態の影響を明確化することを目的として、固 溶析出状態の異なる Al-Mg-Si系合金板を冷間圧延した 後の加工組織および最終焼鈍後の再結晶集合組織を調 査した。

<sup>\*</sup> 本稿は軽金属, **66** (2016), 298-305 に掲載されたものを改訂。 Revision of Journal of The Japan Institute of Light Metals, **66** (2006), 298-305.

<sup>\*\* (</sup>株) UACJ 技術開発研究所 第一研究部

No.1 Research Department, Research & Development Division \*\*\*\* (株) UACI 技術開発研究所 第六研究部

No.6 Research Department, Research & Development Division

## 2. 実験方法

板厚8.0 mmの6016合金の熱間圧延板を供試材とし て用いた。Table 1に,供試材の化学成分を示す。供 試材を塩浴炉にて823 Kで60 sの溶体化処理を行った 後,水中に焼入れを行った。焼入れ後,供試材の一つ を大気炉にて623 Kで1 hの析出処理を行った後に空冷 した。以下,溶体化処理後に析出処理を行った試験片 をサンプルP,析出処理を行わなかった試験片をサン プルNと表記する。それぞれの試験片を板厚1.0 mmま で冷間圧延を行った後,塩浴炉にて623 Kで600 sの最 終焼鈍を行い,水冷した。

析出処理前後および最終焼鈍前後の試験片について, 導電率の測定,組織観察,析出相の推定および集合組 織解析を実施した。導電率は渦電流方式の導電率測定 機を用いて,室温環境下(298±1K)にて測定した。組 織観察は,光学顕微鏡および透過型電子顕微鏡(以下, TEMと表記)を用いて行った。析出相の推定は昇温速 度40 K/minにおける示差走査型熱量分析(以下,DSC 分析と表記)により実施した。集合組織解析は,X線回 折測定から得た{100},{110}および{111}面の不完全極点 図から計算した結晶方位分布関数(以下,ODFと表記) および走査型電子顕微鏡の電子線後方散乱回折測定装 置(以下,EBSDと表記)を用いて実施した。

Table 1	Chemical	composition	of the	alloy	used in	ı this
	study.					
					(	maga0/2)

					(111235/0)
Si	Fe	Mn	Mg	Zn	Al
1.00	0.18	0.08	0.49	0.20	Bal.

#### 3. 実験結果および考察

#### 3.1 圧延前の固溶析出状態

Fig. 1に、サンプルPおよびサンプルNの光学顕微 鏡組織および導電率を示す。サンプルPでは晶出物と 推定される直径10 µm程度の粒子に加えて、直径数 µm以下の粒子が多数観察され、析出物の形成が確認さ れた。また、図中に矢印で示すように、結晶粒界の周 囲に幅5 µm程度の析出物の存在しない領域(無析出帯、 以下PFZと表記)が形成された箇所が見られた。一方 サンプルNでは、晶出物と推定される粒子および直径 数µm以下の粒子が極わずかに存在した。また、サン プルNはサンプルPに比べて導電率が低いことから、 サンプルNの方が固溶元素量は多い状態であると推定 された。

サンプルPおよびサンプルNのTEM像をFig. 2に示 す。サンプルPでは、結晶粒内に直径数百nmの粒子、 結晶粒界上(Fig. 2 (a) -2矢印間)には結晶粒内より粗大 な直径0.5~1.0 µmの粒子の析出がそれぞれ確認され、 結晶粒界の周囲に析出物の見られないPFZが存在し た。一方、サンプルNでも直径数百nmの粒子がわず かに見られたが、サイズが小さいことから、溶体化処 理時の溶け残りとは考え難く、溶体化処理前から存在 していた粒子であると推定される。成分としてAl-Fe 系、Al-Fe-Si系、Al-Fe-Mn-Si系等の可能性があるが、 Fig. 2 (b)に示す粒子については、EDS分析の結果Al、 SiおよびMnが検出されたためAl-Mn-Si系粒子と考え られる。

(a) (b)  $20 \,\mu\text{m}$ ST L Electrical conductivity : 54.8%IACS Electrical conductivity : 42.8%IACS

EPMA分析の結果得られたSiの分布状態をFig.3に 示す。サンプルPでは晶出物と推定される箇所の他に、





Fig. 2 TEM images after the precipitation treatment and the solution heat treatment. (a)-1 sample P (inside of a grain), (a)-2 sample P (a grain boundary), (b) sample N.



Fig. 3 The distributions of Si after the precipitation treatment and the solution heat treatment obtained by EPMA. (a) sample P, (b) sample N (after the solution heat treatment).

結晶粒界上と推定される領域でSi濃度が高い箇所が見 られ,粗大化した析出物に対応すると考えられる。こ れに対して,図中に矢印で示すように結晶粒界に沿っ てSi濃度が低い箇所が存在した。このため,Fig.1で見 られた結晶粒界の周囲のPFZでは,粗大な析出物の形 成によって固溶元素量が結晶粒内に比べて低くなって いると推察される。一方,サンプルNでは晶出物と推定 される箇所を除き,Si濃度はほぼ均一に分布していた。

Fig. 4に, サンプルPおよびサンプルNのDSC分析 結果を示す。サンプルNにおいて,低温側から (a) ク ラスターの溶解に相当する吸熱ピーク,(b) β' 相の析 出に相当する発熱ピーク,(c) β'相の析出に相当する発 熱ピーク,(d) β相の析出に相当する発熱ピークが存在 した<sup>9).10)</sup>。これに対してサンプルPでは,いずれのピ ークも確認されなかった。このため、サンプルPの結 晶粒内および結晶粒界上に確認された析出物の大半は, サンプルNで最も高温側に析出ピークの存在した安定 相のβ相であると考えられる。

#### 3.2 冷間圧延後の加工組織

冷間圧延後(最終焼鈍前)の圧延平行断面の光学顕微 鏡組織をFig.5に示す。サンプルPは結晶粒界が圧延 方向に沿った直線的な形状となっているのに対して, サンプルNは結晶粒界が波打っており,図中に矢印で



Fig. 4 DSC curves of samples after the precipitation treatment and the solution heat treatment.

示す箇所において、せん断帯の形成が見られた。

Fig. 6に、冷間圧延後のTEM像を示す。サンプルP では転位セルが形成されているのに対して、サンプルN では転位セルは見られずマイクロバンドが存在した。 サンプルPは析出物が形成されたことで固溶元素量が 少なくなっているため、冷間圧延中に動的回復が進行 しやすく、セル組織が形成されたと考えられる。一方、 サンプルNは固溶元素量が多いため、冷間圧延時に転 位密度が高くなり易いと考えられる。その結果、冷間 圧延率の増加に伴って、転位の局在化が進行し、マイ クロバンドおよびせん断帯が形成されたと考えられる。

#### 3.3 最終焼鈍後の再結晶組織

Fig. 7に、最終焼鈍後の圧延平行断面の光学顕微鏡組 織を示す。サンプルPおよびサンプルNのいずれも、全 域が再結晶組織を呈している。サンプルPは圧延方向 に長い扁平粒(平均結晶粒径43 µm)となっているのに 対して、サンプルNは微細な等軸粒(平均結晶粒径14 µm)であり,再結晶粒の形状および粒径が異なっている。



Fig. 5 Optical micrographs after the cold-rolling. (a) sample P, (b) sample N.



Fig. 6 TEM images after the cold-rolling. (a) sample P, (b) sample N.



Fig. 7 Optical micrographs after the final annealing at 623 K for 600 s. (a) sample P, (b) sample N.

**Fig. 8**に,最終焼鈍後のODF解析結果を示す。サン プルPおよびサンプルNのいずれにおいてもcube方位 が主方位となっており,その他に主要方位は存在しな かった。しかし,cube方位密度を比較すると,サンプ ルPはサンプルNに比べて方位密度が約2分の1程度と 低いことが確認された。

### 3.4 最終焼鈍初期における再結晶粒の生成挙動

再結晶挙動に及ぼす固溶析出状態の影響を明らかに するため、623 Kで5 sの最終焼鈍を行った後、水冷し た各試験片の再結晶状態をEBSD解析により調査した。

結晶方位のマッピング結果をFig.9に示す。サンプ ルPおよびサンプルNのいずれにおいても、cube方位 を持つ結晶粒が圧延方向に連なったバンド状の組織(以 下,cubeバンド)が確認された。



Fig. 8 Orientation density of the final annealed samples  $(\phi_2=0^\circ, \Phi=0^\circ)$ 

Fig. 10に、逆極点図(IPF: inverse pole figure)お よび同一視野のIQ値(image quality: EBSD解析結果 の像質を表す指数)のマッピング結果を示す。Fig. 10 に円で示すように、5 sの最終焼鈍を行った時点で再結 晶粒の形成が確認された。サンプルPでは、再結晶粒 はバンド状組織(圧延により伸長した結晶粒)の粒界近 傍や、IQ値の低い領域(Fig. 10の黒点が密集した箇所) に隣接した箇所に多く見られた。同一視野のSEM観察 の結果、これらの低IQ値領域は、直径約5 µm以上の 第二相粒子(晶出物もしくは析出物)の位置に対応する ことを確認している。このため、サンプルPでは第二 相粒子の周辺で優先的に再結晶核が形成されたと考え られる。これに対してサンプルNでは、粒界近傍の第 二相粒子の周囲に加えて、バンド状組織の内部に多数 の再結晶粒が存在した。また、Fig. 10に示すKAM (kernel average misorientation:局所方位差)の平均値 を比較すると、サンプルNはサンプルPよりも大きい。 KAMは蓄積歪量を評価できるパラメータであるため <sup>11)</sup>、KAM値の高いサンプルNは、冷延後の蓄積歪量が サンプルPに比べて大きく、再結晶の駆動力が高い状 態だったと推定される。

各試験片の再結晶粒の存在位置の違いを明確化する ため、623 Kで5 sの最終焼鈍を行った試験片のEBSD 解析結果から、再結晶粒の存在位置を調査した。その 結果をFig. 11に示す。バンド状組織内(バンド状組織 内の第二相粒子の近傍を含む)の再結晶粒の数を比較す ると、サンプルNはサンプルPに比べて顕著に多いこ とが確認された。これは、サンプルNはバンド状組織 内に再結晶核の生成サイトとなりうる箇所が多く存在 していたためと考えられる。このため、サンプルNで は、第二相粒子に加えて、結晶粒内に存在するせん断 帯(冷間圧延で形成)が再結晶核の生成サイトとなった と推定される。一方、サンプルPは冷間圧延後に転位 セルが形成され、結晶粒内の転位密度の低い加工組織 となったため、結晶粒内において第二相粒子以外の再



Fig. 9 Crystal orientation maps after the final annealing at 623 K for 5 s. (a) sample P, (b) sample N.



Fig. 10 Image quality and inverse pole figure maps after the final annealing at 623 K for 5 s. (a) sample P, (b) sample N.





結晶核の生成サイトが少なかったと考えられる。また, バンド状組織の粒界上(粒界上の第二相粒子の近傍を含 む)に存在する再結晶粒の数については,サンプルNは サンプルPの約1.2~1.5倍程度だった。サンプルPで は粒界上に析出物が存在するが,Fig.2(a)-2に示すよ うに,その直径は約1.0 µm程度である。Fig.10に示す ように,EBSD解析では直径約5.0 µm以上の第二相粒 子の近傍で再結晶粒の形成が確認されたことから,サ ンプルPに存在する粒界析出物は再結晶核の生成サイ トになりにくかったと推察される。これに対してサン プルNでは,粒界に達したせん断帯が核生成サイトと なるため,バンド状組織の粒界においても,サンプル Nの方がサンプルPよりも多くの再結晶粒が形成され たと考えられる。

### 3.5 集合組織の形成挙動

623 Kで5 sの最終焼鈍を行ったサンプルPおよびサ ンプルNのEBSD解析結果より,第二相粒子に隣接し た再結晶粒の結晶方位を極点図上にプロットした結果 をFig. 12に示す。冷間圧延材において高い割合で存在 するCu方位およびS方位にわずかに集積する傾向が見 られるが,ほぼランダムな方位分布となっていた。こ のため,粗大な第二相粒子の周囲から核生成した再結 晶粒が特定の結晶方位に集積する傾向は極小さいと考 えられる。

**Fig. 13**に623 Kで20 sの最終焼鈍を行ったサンプル PのEBSD解析結果を示す。cube方位を持つ複数の再 結晶粒が, 圧延方向に沿って連なって形成されている ことが確認された。これらのcube方位粒は, その形態



Fig. 12 Pole figures of the recrystallized grains around the second-phase particles after the final annealing at 623 K for 5 s. (a) sample P, (b) sample N.



Tolerance angle (  $^{\circ}$  )



Fig. 13 Formation of the recrystallized grains of the cube orientation in sample P after the final aennaling at 623 K for 20 s.

からFig. 9に示した cube バンドから形成されたと推定 される<sup>12)</sup>。このため、cube バンドから圧延方向に沿っ て成長した cube 方位粒(あるいは cube 方位粒が圧延方 向に連なった領域)が形成されることで、他の結晶方位 に比べて cube 方位密度が高くなり、cube 方位が主方位 となると考えられる。また、サンプルNでも最終焼鈍 前に cube バンドが存在したことが、cube 方位が主方位 になった要因と考えられる。しかし、せん断帯が再結 晶核の生成サイトとなることでランダム方位粒が形成 され、cube 方位密度の増加が抑制された<sup>13)</sup>ため、サン プルPに比べて cube 方位密度の低い再結晶集合組織と なったと考えられる。

## 3.6 再結晶挙動に及ぼす固溶析出状態の 影響メカニズム

**Fig. 14**に,加工組織の形成および再結晶挙動に及ぼ す固溶析出状態の影響について推定したメカニズムを, 模式的に示す。

サンプルPは、析出処理によって結晶粒内および結



Fig. 14 Schematic diagrams for microstructural changes in the cold-rolling and the recrystallization process. (a) sample P, (b) sample N.

晶粒界上にβ相が析出する。特に結晶粒界上では、粗 大な析出物の形成によって固溶元素量が減少するとと もに、結晶粒界の周囲にはPFZが形成される。冷間圧 延が施されると、転位セルが形成され、結晶粒内の転 位密度の低い加工組織となるとともに、PFZが圧延方 向に伸長する。最終焼鈍の過程では、直径5.0 μmを超 える粗大な第二相粒子(主に晶出物)が主要な再結晶核 の生成サイトとなり、冷間圧延によって伸長したPFZ に沿って優先的に再結晶粒が成長するため<sup>14)</sup>、圧延方 向に長い扁平な再結晶粒となる。また、cubeバンドか らcube方位粒が形成するため、cube方位密度が高くな る。

サンプルNは、固溶元素量が多い状態で冷間圧延が 施されるため、多数のせん断帯が形成される。せん断 帯は第二相粒子とともに再結晶核の生成サイトとなる ため、核生成数が多くなる。加えて、サンプルPで見 られたようなPFZによる特定の方向への優先成長等は 起こらず、等軸かつ微細な再結晶粒となる。また、せ ん断帯からランダム方位粒が核生成することによって、 再結晶集合組織における cube 方位密度は小さくなる。

## 4. 結 言

Al-Mg-Si系合金を供試材として,冷間圧延前の固溶 析出状態が加工組織形成および最終焼鈍過程における 再結晶挙動に与える影響を調査した。

- (1)析出処理によりβ相が析出するとともに固溶元素量が減少し、結晶粒界の周囲にはPFZが形成される。β相の直径は、それぞれ結晶粒界上で直径0.5~1.0 μm、結晶粒内で数百nm程度である。冷間圧延が施されるとPFZは圧延方向に伸長する。最終焼鈍時には直径5.0 μm以上の第二相粒子が主な再結晶核の生成サイトとなり、PFZに沿って再結晶粒が優先的に成長し扁平な再結晶粒となる。また、cubeバンドからcube方位の再結晶粒が形成され、再結晶完了後にcube方位が主方位となる。
- (2)溶体化処理後,析出処理を行わず固溶元素量の 多い状態で冷間圧延を行うことにより,せん断 帯が形成される。せん断帯が核生成サイトとな るため再結晶粒の核生成数が多く,PFZに沿っ た優先成長が起こらないため,等軸かつ微細な 再結晶粒となる。また,せん断帯からの再結晶 粒の核生成によりランダム方位粒の割合が増加 し,再結晶集合組織におけるcube方位密度を低 下させる。

#### 参考文献

- 伊川慎吾, 浅野峰生, 黒田充紀, 吉田健吾:軽金属, 61 (2011), 53-59.
- 2) 竹田博貴, 日比野旭, 高田 健: 軽金属, 60 (2010), 231-236.
- 日比野旭,村松俊樹,佐賀誠,高田健:軽金属,53 (2003), 534-541.
- (4) 浅野峰生,内田秀俊,吉田英雄:軽金属,52 (2002),448-452.
- 5) 中西英貴, 浅野峰生, 吉田英雄: 軽金属, **64** (2014), 235-240.
- 6) 竹田博貴, 日比野旭, 高田 健: 軽金属, 62 (2012), 60-66.
- 7) 松本克史, 杉崎康昭: 軽金属, 55 (2005), 113-119.
- 8) 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), 9-15.
- A. K. Gupta and D. J. Lloyd : Metall. Mater. Trans., 30A (1999), 879-884.
- 八太秀周,松田眞一,田中宏樹,吉田英雄:軽金属,59 (2009), 248-253.
- Y. Takayama and J. A. Szpunar Mater. Trans., 45 (2004), 2316-2325.
- 12) O. Daaland and E. Nes: Acta Mater., 44 (1996), 1389–1411.
- 13) A. A. Ridha and W. B. Hutchinson: Acta Metall., **30** (1982), 1929-1939.
- 14) 玉田裕子, 浅野峰生, 吉田英雄: 軽金属学会第126回春期大 会講演概要, (2014), 263-264.



長谷川 啓史 (Akifumi Hasegawa) (株) UACJ 技術開発研究所 第一研究部



中西 英貴 (Hidetaka Nakanishi) (株) UACJ 技術開発研究所 第一研究部



浅野 峰生 (Mineo Asano)(株) UACJ 技術開発研究所 第六研究部