論文

# 6000系アルミニウム合金の熱間加工中の下部組織形成に及ぼす MnおよびZr添加の影響\*

田中 宏樹\*\*, 長井 康礼\*\*\*

# Effects of Mn and Zr Addition in 6000 Series Aluminum Alloys on Substructure Formation during Hot Deformation\*

Hiroki Tanaka\*\* and Yasunori Nagai\*\*\*

Thermal stability of substructures in 6000 series aluminum alloys containing Mn and Zr elements was investigated by a plain strain compression test. In order to form thermal stabilized substructures, it was found that the deformation conditions should be arranged to correlate with a kinetic precipitation during the deformation. The substructures of the alloys containing Mn and Zr elements, the substructures were stable in the heat treatment at 540°C when the alloys were deformed at over  $350^{\circ}$ C. The sheets rolled at over  $350^{\circ}$ C in the strain rate of under 3/s per pass showed the fibrous structure after the heat treatment at  $580^{\circ}$ C. The sheets with the fibrous structure had the average Lankford value over 1.

*Keywords:* 6000 series aluminum alloys, plain strain compression, substructure, thermal stability, fibrous structure

# 1. 緒 言

熱間加工時に形成されるミクロ組織は材料特性に大 きな影響を及ぼす。熱間圧延は再結晶温度以上で実施 されることが多いが,条件によっては結晶粒が圧延方 向にパンケーキ状に伸びた繊維状組織として残ること がある<sup>1)</sup>。また,同じ熱間加工温度でも押出材の方が 繊維状組織として残存しやすいことが知られている<sup>2)</sup>。 HoritaらはECAP (equal-channel angular pressing) 法 を用い,各種実用アルミニウム合金の熱的安定性につ いて調査している<sup>3)</sup>。この研究では,5083合金や3004 合金は200℃程度まで,2024合金や7075合金は300℃程 度まで微細粒組織が維持されることを報告している。 このように組成の違いで下部組織の熱的安定性が変化 し,再結晶温度の変化となって現れる。これらの現象 を総合的に考えると,組成と熱間加工条件(温度および

ひずみ速度)が下部組織形成に影響すると推察される。 素材の熱間変形挙動を調査する方法として平面ひずみ 圧縮試験が利用される<sup>4),5)</sup>。試験機に誘導加熱方式や 油圧サーボ機能を組み込むことで、試験片の温度や加 工時のひずみ速度を精度良く制御できる。ただし加工 によって試験片に導入されるひずみは、工具(アンビル) 形状と試験片形状の幾何学的関係や工具と試験片の摩 擦特性などの影響を受け、不均一なひずみ分布となる<sup>6)</sup>。 平面ひずみ圧縮試験片の組織調査を行う場合には, 上 述のひずみ量などの加工履歴を正確に把握した上で解 析する必要がある。本研究では、まず同一素材のネジ を埋め込んだ試験片を埋め込み方向に圧縮し、ネジ山 の距離変化から試験片内部のひずみ分布を定量化し た。次に自動車用パネル材などに利用される熱処理型 合金のAl-1%Si-0.6%Mg合金で、下部組織形成に及ぼす MnおよびZr添加と熱間加工条件の影響を調査した。 これは、材料特性(塑性異方性およびランクフォード値)

\* 本稿の主要部分は,軽金属,66 (2016),2-8 に掲載。

The main part of this paper was published in Journal of The Japan Institute of Light Metals, 66 (2016), 2-8. (株) UACJ 技術開発研究所 第一研究部,博士(工学)

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

No. 6 Research Department, Research & Development Division, UACJ Corporation

に及ぼす溶体化処理の再結晶挙動への影響を調べる目 的で行った。

#### 2. 実験方法

#### 2.1 平面ひずみ圧縮試験片内部のひずみ解析

平面ひずみ圧縮試験は所定のブロック形状のサンプ ルを, 上下のアンビルで圧縮して変形を施す試験方法 である。この際. アンビルと接する試験片表層部はひ ずみが小さく、試験片の中心部に向かってひずみが増 大する傾向がある。つまり、試験片の深さ方向でひず み量が変化する。試験片の深さ方向のひずみを測定す るため、試験片と同材質のネジを予め埋め込み、圧縮 後のネジ山ピッチ変化から深さ方向のひずみ量を測定 した。試験片として量産規模で製造された5083合金熱 間圧延板から厚さ10 mm, 幅20 mm, 長さ50 mmサ イズのブロックを作製した。また, φ4 mmでピッチ が0.5 mmのネジも作製し、ブロック片にネジを埋め込 んだ (Fig. 1)。アンビルはタングステンカーバイト製 で試験片との接触面は幅30 mm,長さ10 mmの平坦部 を有し、試験片を上下に挟んで圧縮する。熱間圧縮試 験機は富士電波工機製サーメックマスターZを使用し た。圧縮温度を300,400および500℃とし、試験片を 厚さ方向に50%圧縮した。アンビルは0.1/sの初期ひず み速度で、一定速度で試験片を圧縮した。試験片の加 熱は高周波誘導加熱方式で、試験片側面に熱電対を取 り付けて温度を測定した。熱電対は長手および厚さ方 向のほぼ中央部に取り付けた。アンビルと試験片の界 面は無潤滑剤状態とした。



Fig. 1 Shape of an anvil (a) and a specimen with a screw embedded in the center (b).

### 2.2 再結晶挙動調査

Table 1に示す組成の鋳塊を半連続鋳造法で作製し た。鋳塊の断面は一辺が175 mmの正方形形状で造塊 した。この鋳塊に480℃で6hの均質化処理を行った 後、試料を炉内で室温まで冷却した。均質化処理後に 鋳肌部を約20 mm削除し、上述したサイズのブロック を作製した。圧縮試験温度は200℃から500℃の範囲を 50℃ピッチで設定した。各温度とも昇温時間は約 1 min,保持時間は1 minとして圧縮を開始した。アン ビルは一定速度とし、初期ひずみ速度を0.1,1,5および 10/sに変化させた。試験片はt10 mmからt5 mmまで 圧縮(加工度50%)した。圧縮加工完了時点から10 s後 にN2ガスを噴射し室温まで冷却した。冷却速度は約10 °C /sであった。その後540℃で2 minの溶体化処理を ソルトバスで行い、冷却方法は水冷とした(以下、540 ℃処理)。溶体化処理前後の加工部断面を偏光顕微鏡で 調査した(以下, 偏光組織)。一部, 下部組織の状態を 調査するためSEM-EBSP測定も行った。

#### 3. 実験結果

#### 3.1 平面ひずみ圧縮試験片内部のひずみ解析結果

設定温度に対し,試験片の温度は±1℃の精度で制御 できた。Fig. 2 に500℃で50%圧縮した試験片の,ネ ジ山ピッチ変化から読み取ったひずみ分布を示す。横 軸は試験片の深さ位置を示し,0が中心部で両端が試験 片表面の位置を示す。縦軸は真ひずみで表記してい る。Fig.1で示した左側のネジ山変化をLefthand strain,右側をRighthand strainとして示す。アンビル と接する試験片表層部はほとんど変形せず,中心部に 近づくにつれて急激にひずみ量が増える。中心部の圧 縮加工率は全体を50%加工することで約75%(真ひずみ 約-1.4)に達している。他の温度でもひずみ分布に大き な違いは認められなかった。本文では,試験片の組織 形態を中心部付近の状態で判断する。

#### 3.2 再結晶挙動調査結果

Fig. 3に各温度でひずみ速度が5/sの条件で圧縮後,

 Table 1
 Chemical compositions of 6000 series aluminum alloys.

 (mass%)

alloy	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Zn	Zr	Al
S	1.01	0.22	< 0.01	< 0.01	0.59	< 0.01	< 0.01	bal.
М	1.04	0.20	< 0.01	0.62	0.59	< 0.01	< 0.01	bal.
MZ	0.95	0.20	< 0.01	0.62	0.59	< 0.01	0.14	bal.



Fig. 2 True strain in the y-direction obtained from experimental measurement after 50% compression at 500°C and strain rate 0.1/s.

室温まで冷却した時点での試験片中心部付近の偏光組 織を示す。M合金およびMZ合金はいずれの温度でも 繊維状組織が維持されている。S合金は350℃までは繊 維状組織が維持されるが、それより高温では再結晶粒 形成が認められ,500℃では全域が再結晶粒組織を呈する。

Table 2に540℃処理した圧縮試験片の組織状態を示 す。S合金はいずれの加工条件でも再結晶粒組織(表中 のマークR)となる。M合金およびMZ合金では、540 ℃処理後も繊維状組織(表中のマークF)が維持される 加工条件がある。高温・低ひずみ速度側で繊維状組織 が維持され、低温・高ひずみ速度ほど再結晶粒組織と なる傾向が認められる。M合金では400℃以上で、MZ 合金は350℃以上で加工すると、本実験のひずみ速度範 囲内では繊維状組織が維持される。

M合金では粗大粒(表中のマークGG)の形成される加 工条件が,再結晶粒と繊維状組織が形成される条件の 間に存在する。Fig.4にM合金を350℃で1/sおよび5/s のひずみ速度で圧縮した場合の,540℃処理後の偏光組 織を示す。5/s加工材は粗大粒の形成が確認できる。

これらをSEM-EBSDで調査した結果を**Fig.5**に示 す。イメージクォリティ (IQ) 像は, 菊池パターンの 鮮明度を表す。結晶粒 (grain color) 像は方位差2度以



Fig. 3 Optical microstructures of the samples after 50% compression: strain rate = 5/s.

strain rate	0.5/s			1/s			5/s			10/s		
alloy	S alloy	M alloy	MZ alloy	S alloy	M alloy	MZ alloy	S alloy	M alloy	MZ alloy	S alloy	M alloy	MZ alloy
500°C	R	F	F	-	-	-	R	F	F	-	-	-
450°C	R	F	F	R	F	F	R	F	F	R	F	F
400°C	R	F	F	R	F	F	R	F	F	R	F	F
350°C	R	F	F	R	F	F	R	GG	F	R	GG	F
300°C	R	GG	F	R	GG	F	R	GG	F+R	R	GG	R
250°C	R	GG	R	-	-	-	R	GG	R	-	-	-
200°C	R	R	R	-	-	-	R	R	R	-	-	-

Table 2 Microstructure of compression test pieces on S, M and MZ alloys after 540°C treatment.

Symbol / R : recrystallization, F : fibrous structure, GG : grain growth



(a) Strain rate 1/s

(b) Strain rate 5/s

Fig. 4 Optical microstructures of M alloy compressed at  $350^\circ$ C after 540°C treatment.

上を粒界として識別して異なる配色を施した。偏光組 織で粗大粒と確認された5/s加工材は、EBSD解析でも 単一の粗粒であることが分かる。一方,1/s加工材は微 細な組織形態を呈している。1/s加工材の方位差分布を Fig.6に示す。1/s加工材の繊維状組織域は15度以下の 小角粒界の比率が高く,サブグレイン組織を呈してい ることが分かる。他の加工条件で繊維状組織が維持さ れている場合も、15度以下の小角粒界の比率が高かっ た。

以上のことから, MnやZr添加と適切な加工条件(温 度およびひずみ速度)を組み合わせることで, 540℃処 理後も微細なサブグレイン組織が維持される下部組織 の形成することが判明した。次章では, この熱的安定



(b) Strain rate 5/s

Fig. 5 SEM-EBSD analyses of M alloy compressed at  $350^{\circ}$ C in strain rate (a) 1/s and (b) 5/s after 540°C treatment.



Fig. 6 Misorientation angle histograms of M alloy deformed at 350°C in strain rate 1/s after 540°C treatment.

な下部組織形成要因を考察し、これを基に板材の試作 を行った結果を示す。

### 4. 考察

平面ひずみ圧縮試験片内部のひずみ量変化を5083合 金熱間圧延板で調査し,300~500℃の温度範囲では同 様なひずみ状態になることが分かった。SM490鋼を 750℃で平面ひずみ圧縮した研究を参考にすると,本実 験結果と同様な結果が得られている<sup>6)</sup>。加工硬化係数 (n値)がアルミニウムと大きく異なる素材では試験片 内部のひずみ状態は変化すると思われ,別途ひずみ解 析が必要と考えられる。

Mn添加により,均質化処理後の第二相粒子の分布状 態が変化する。Fig. 7にS合金とM合金の均質化処理 後のTEM組織を示す。S合金では1 μm程度の化合物 が確認でき,EDX分析ではMgとSi濃度が高かったた めMg2Si相と考えられる。また,その分散は疎な状態 であった。一方,M合金には0.1 μm程度の微細な化合 物が密に存在し,1 μm程度の化合物も確認できる。 EDX分析の結果,微細化合物はAl-Mn-Si系化合物で, 1 μm サイズの化合物はMg2Si相と考えられる。S合金 は1 μm程度のMg2Si相が疎に分散した状態であるた



Fig. 7 TEM microstructures of (a) S alloy and (b) M alloy after the homogenization at 480°C for 6 h.

め、400℃以上で圧縮した後、室温に温度を下げる途中 で再結晶したと考えられる。また、350℃以下で圧縮加 工しても540℃処理で繊維状組織を維持する下部組織 が形成されず、再結晶粒組織を呈した。M合金は0.1 µm程度の微細化合物が密に分散し、540℃処理で再結 晶を抑制する作用があると思われる。しかし, 圧縮条 件によってM合金の熱的安定性は変化する。これは, 圧縮条件によって固溶した溶質元素の析出状態が変化 し. 熱的安定な下部組織形成に影響を与えたものと推 察できる。Fig. 8はAl-0.62%Mn合金とAl-0.31%Zr合金 を各温度で所定時間の熱処理を行い、電気抵抗変化の 等しい条件をプロットして得られたC曲線である<sup>7)</sup>。こ れは固溶したMnやZrの析出挙動を示している。いず れも450~500℃付近に析出ノーズがあり、350℃以下 では析出しにくいことも推定できる。析出ノーズで電 気抵抗が5%変化するために104~105sの時間を要する ので、MnとZrの析出速度はさほど速くないことが理 解できる。このような析出挙動を考慮して、Table 2に 示した変化を考える。M合金を400℃以上で圧縮加工 すると、540℃処理後も繊維状組織が維持され、熱的安 定性が向上する。これは圧縮加工中のMnの析出が影 響しているためと考えられる。さらにZrを添加した MZ合金は350℃圧縮でも熱的安定な下部組織が形成す る。これは圧縮加工中にZrの析出も付加されるためと 考えられる。また, M合金とMZ合金はそれぞれ350℃ および300℃圧縮において、ひずみ速度の遅い領域で熱 的安定な下部組織が形成する。これは、この温度域で MnとZrの析出速度が遅いことと相関があると思われ る。このように、MnやZrなどの遷移元素の析出速度 と関連させて加工条件(温度およびひずみ速度)を選択 すると,熱的安定な下部組織が形成することが分かっ



Fig. 8 C-curves for decomposition of the solid solution in castings of alloys Al-0.62% Mn (▲) and Al-0.31% Zr (■).<sup>7)</sup>

た。熱的安定な下部組織形成メカニズムについての仮 説を述べる。圧縮加工中に動的析出が生じて転位の移 動を抑制し,異なるすべり面から移動してきた転位と 反応することで不動転位化する可能性がある<sup>8)</sup>。析出 ノーズで加工することはこの反応を増加させ,結果的 に熱的安定な下部組織形成につながるものと考える。 本仮説に関しては,さらに理論および実証的な検討が 必要である。

一般的に圧延材よりも押出材の方が熱的安定な下部 組織が形成しやすく、繊維状組織が維持されやすい。 逆に、圧延材を500℃付近で熱処理すると、ほとんどの 場合に再結晶粒組織を呈する。このような圧延材と押 出材の下部組織の違いは、加工中のひずみ速度が異な ることも一因と思われる。量産規模の製造では、熱間 圧延でのひずみ速度は熱間押出より一桁高い状態とな る<sup>9)</sup>。本実験の知見から、MnやZrの遷移元素を添加 して圧延条件(温度,ひずみ速度)を制御すれば熱的安 定な下部組織が形成するものと考えられる。そこで, ロールを加熱して等温で圧延が可能な圧延機<sup>10)</sup>を用い, MZ合金の制御圧延 (control rolling; CR) を試みた。ロ ール温度を370℃±15℃に制御し、ロール周速を5m/ minとした。圧延時の平均ひずみ速度は(1)式を用いて 算出<sup>11)</sup>し、各パスのひずみ速度が3/s以下となるよう 圧下率を調整した。480℃, 6 h (炉冷) の均質化処理を 行い,450℃に加熱して圧延を開始して、ロール出側で 350℃以上となるように適宜再加熱を行いながら30 mm厚さから1.2 mm厚さまで圧延した。

$$\dot{\varepsilon} = \frac{U_{\rm R}}{\sqrt{{\rm R'}\,{\rm h}_0}} \cdot \frac{2\sqrt{r}}{2-r} \qquad \dots (1)$$

U<sub>R</sub>:ロール周速(m/s), R':ロール半径(m), h<sub>0</sub>: 圧延前板厚(m), r: 圧下率

Fig. 9に各パスのひずみ速度と圧延サンプルの温度 実績を示す。すべてのパスにおいて,狙い通りの条件 で圧延試作が実施できた。この試作材をソルトバスに より540℃で90 sと580℃で90 sの溶体化処理を行っ た。冷却方法は水冷とした。溶体化処理後のL-ST面偏 光組織をFig. 10に示す。580℃処理においても繊維状 組織が維持されることから,熱的安定な下部組織が形 成したことが分かる。比較のためS合金とMZ合金を 用い,均質化処理後に標準工程(STD:熱間圧延-冷間 圧延-中間熱処理-冷間圧延)で1.2 mmに仕上げたサン プルを作製した。標準工程材の溶体化処理後の組織は いずれも等軸再結晶粒組織で,平均粒径はS合金で約 30 μm, MZ合金で約15 μmであった。Fig. 11に溶体 化処理後の方位差分布を示す。MZ合金制御圧延材は



Fig. 9 The results of sample temperature and strain rate on the controlled rolling.



(a) After 540°C treatment (b) After 580°C treatment

Fig. 10 Optical microstructures of the worm rolled sheets on MZ alloy after the solution heat treatment.

15度以下の小角粒界比率が高く、サブグレイン組織を 呈していることが分かる。標準工程材は15度以上の大 角粒界比率が高い。540℃で90 sの溶体化処理後(T4) と、室温で7日経過後にオイルバスにて170℃で30 min の時効処理(BH)を行ったサンプルの引張り特性を **Table 3**に示す。MZ合金制御圧延材のT4強度は異方 性が強いが標準工程材より高くなる。また、ランクフ ォード(r)値の異方性も強いが、45°方向のr値が非常 に高く、平均r値が1を超える特異な特性を示す。T4

Alloy process	Direction	T4 (540°C-90 s)							BH (170°C-30 min)		
		YS (MPa)	TS (MPa)	EI (%)	<i>r</i> value	Ave. r	$\Delta r$	YS (MPa)	TS (MPa)	EI (%)	
MZ alloy control rolling	$0^{\circ}$	167	273	21	0.47	1.32	-1.25	184	279	22	
	$45^{\circ}$	150	253	20	1.94			162	240	17	
	90°	164	257	21	0.92			185	268	20	
MZ alloy conventional process	$0^{\circ}$	127	244	26	0.60	0.73	-0.34	155	262	21	
	$45^{\circ}$	123	239	24	0.91			151	258	19	
	90°	128	244	25	0.52			149	255	20	
S alloy conventional process	$0^{\circ}$	99	214	30	0.77	0.68	0.12	186	275	22	
	$45^{\circ}$	98	210	31	0.62			181	267	23	
	90°	96	208	28	0.70			180	268	23	

 Table 3
 Mechanical properties of the sheets by control rolling and conventional process.

処理後の板面の極点図から作成した結晶方位分布関数 (Crystallite Orientation Distribution Function; ODF)



Fig. 11 Misorientation angle histograms of the sheets after the solution heat treatment at  $540^\circ$ C .

をFig. 12に示す。MZ合金制御圧延材は, 圧延集合組 織({011}<211>,{123}<634>,{112}<111>)が主方位で, その方位密度は高いレベルであった。圧延集合組織は 45°方向のr値を向上させることが知られている<sup>12)</sup>の で, MZ合金制御圧延材のr値の特徴はその集合組織に 起因するものと考えられる。ただし, BH後のMZ合金 制御圧延材の強度は標準工程のS合金と同程度で,標 準工程のMZ合金は低い。つまり, MZ合金はベークハ ードしにくい特性を示す。これは,均質化処理で Al-Mn-Si系化合物が形成してSiの固溶量が減少し,時 効処理時にMg<sub>2</sub>Si相の形成が少なくなるためと考えら れる。制御圧延中にもAl-Mn-Si系化合物の形成が生じ ると考えられ, MZ合金制御圧延材のベークハード性 が低くなったものと思われる。

今回, 遷移元素が析出しやすい条件で加工すること で, 熱的安定な下部組織が形成されることを示した。 加工中の析出物の同定やこの動的析出と加工で導入さ れる転位との相互作用および下部組織形成メカニズム に関しては今後の課題である。

## 5. 結 言

平面ひずみ圧縮試験片の内部ひずみ状態を把握した 上で、Al-1%Si-0.6%Mg合金の下部組織形成に及ぼす MnおよびZr添加の影響を調査し、以下の結果を得た。

- (1) MnおよびZrを添加した合金の下部組織形成は、 加工温度およびひずみ速度の影響を受ける。固 溶MnおよびZrの析出ノーズに対応する加工条 件であれば、熱的安定な下部組織が形成する。
- (2) Mn添加した場合は400℃以上の加工温度で熱的 安定な下部組織形成が認められる。さらにZrも 添加することで,熱的安定性を付与する加工温 度は50℃程度下げることができる。また,ひず み速度の低い方が,熱的安定な下部組織を形成 する傾向が見られる。これらは加工中のMnお



Fig. 12 ODFs of control rolling sheet (CR) and conventional process sheet (STD) after the solution heat treatment at 540°C.

よびZrの析出と相関する条件であることがC曲 線から推定できる。

(3) MnとZrを添加した6000系合金に対し圧延温度 を350℃以上、1パスあたりのひずみ速度が3/s となるように制御して仕上げた板材は、580℃に 加熱しても再結晶組織とはならず繊維状組織が 維持される。その引張り特性は異方性が強いも のの、45°方向のランクフォード(r)値が極め て高く、平均r値は1を超える特異な特性を有す る。

本研究は新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO)の「高成形性自動車用板材料の開発」の一環と して行ったものである。

#### 参考文献

- T. H. Courtney : Mechanical Behavior of Materials, McGraw-Hill, (1990), 309.
- 2) 箕田 正, 吉田英雄: 軽金属, 47 (1997), 691-695.
- Z. Horita, T. Fujinami, M. Nemoto and T. G.Langdon : Metall. Mater. Trans., 31A (2000), 691-701.

- ASM Handbook, Metalworking Bulk Forming, ASM, 14A (2003), 587.
- K. F. Karhausen, J.Savoie, C.M.Allen, D. Piot and R. Luce: Materials Science Forum 396-402 (2002), 371-378.
- 6) 井上忠信, 鳥塚史郎, 永井寿:鉄と鋼, 86 (2000), 793-800.
- H. D. Merchant, J. Crane and E. H. Chia : Homogenization and Annealing of Aluminum and Copper Alloys, The Metallurgical Society, Inc., (1988), 15.
- 8) 中村正久:基礎転位論, 丸善, (1968), 86.
- 日本航空宇宙工業会:航空機部品・素材産業振興に関する 研究調査成果報告書No. 105, (1987), 17.
- 10) 田中宏樹, 吉田英雄:金属, 73 (2003), 220-223.
- 11) 堀内良: 軽金属, 31 (1981), 431-444.
- 12) 井上博史, 稲数直次: 軽金属, 44 (1994), 97-103.



田中 宏樹 (Hiroki Tanaka)
 (株) UACJ 技術開発研究所 第一研究部
 博士(工学)



長井康礼 (Yasunori Nagai) (株) UACJ 技術開発研究所 第六研究部