## 論文

# Al-Mg-Si系合金の集合組織形成に及ぼす中間焼きなまし および冷間圧延率の影響\*

長谷川 啓史\*\*, 中西 英貴\*\*\*, 浅野 峰生\*\*\*\*

## Effects of Intermediate Annealing and Cold Rolling Reduction on Texture Evolution in an Al-Mg-Si Alloy\*

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

The effects of precipitation and cold-rolling reduction on recrystallization textures of an Al-Mg-Si alloy were investigated. The sample sheets were prepared by solution heat treatment followed by intermediate annealing (IA) at 623 K for 1 h (IA-1 h) or 110 h (IA-110 h). Other sheets were prepared without IA (non-IA). These samples were rolled at ambient temperature up to 97.5% reduction followed by a final annealing step at 623 K. The recrystallization textures were changed depending on the IA conditions. In the IA-1 h sample, the cube texture ({001}<100>) was increased with increasing reduction. In contrast, in the non-IA sample and IA-110 h sample, the cube textures were decreased at high rolling reduction. The shear bands were formed in the cold-rolled non-IA sample. Shear bands could be the nucleation sites of randomly oriented grains in the recrystallization process. Meanwhile, in the IA-110 h sample, the particle stimulated nucleations (PSN) of recrystallized grains by coarse precipitates were observed. Grains generated by PSN are expected to be randomly oriented. Therefore, the nucleation at shear bands and PSN cause a decrease in the cube texture. In addition, decreasing of the cube texture at high reduction is assumed to be caused by increasing of shear bands and deformation zones around the coarse precipitates.

Keywords: Al-Mg-Si, texture, recrystallization, solid solution, precipitation

### 1. 緒 言

自動車用材料において,車体の軽量化による消費エ ネルギーおよびCO<sub>2</sub>排出量の低減を目的として,アル ミニウム合金の利用が拡大している。更なる利用拡大 のために,加工性をはじめとした各種特性の一層の向 上が求められる。アルミニウム合金のうち,熱処理型 合金である Al-Mg-Si系合金は,塗装焼き付け処理で 時効硬化によって強度が向上(ベークハード)するた め,T4調質でボディシート用材料として用いられる。 Al-Mg-Si系合金のT4調質材は再結晶組織を有するこ とから,特性の向上には再結晶組織の制御が必要であ り,再結晶組織の形成に及ぼす均質化処理,熱間圧延, 中間焼鈍,冷間圧延,溶体化処理(最終焼鈍)の各製 造条件の影響について明らかにすることが求められ る。自動車ボディシート用のAl-Mg-Si系合金板材の 課題として,ヘム曲げ等の曲げ加工時の割れを防止す るため,曲げ加工性の改善が挙げられ,多くの研究例 がある<sup>1)~3)</sup>。曲げ加工性には集合組織が影響を及ぼす ことが報告されており,Cube方位({001}<100>)を集積 させることで,き裂の伝播経路となるせん断帯の形成 を抑制し,曲げ加工性が向上することが報告されてい る<sup>1).2)</sup>。Cube方位の形成には,圧延条件や固溶析出状 態,焼鈍条件等が影響すると考えられる。竹田らは,

本稿の主要部分は軽金属, 66 (2016), 602-608 に掲載。
 The main part of this paper has been published in Journal of The Japan Institute of Light Metals, 66 (2016), 602-608.
 \*\* 東北大学附属図書館, (元(株) UACJ 技術開発研究所 第一研究部)

Tohoku University Library (Formerly, Research Department I, Research & Development Division, UACJ Corporation) \*\*\* (株) UACJ 技術開発研究所 第一研究部

Research Department I, Research & Development Division, UACJ Corporation \*\*\*\* (株) UACJ 技術開発研究所 第六研究部 Research Department VI, Research & Development Division, UACJ Corporation

冷間圧延率が高くなるとCube方位密度が減少すること を報告しており,第二相粒子による粒子促進核生成 (particle stimulated nucleation:以下PSNと表記)に 起因する非Cube方位の再結晶粒の形成が増加すること が原因と推定している<sup>4)</sup>。一方,松本らは圧延前の固溶 析出状態によって,冷間圧延率の増加に伴いCube方位 密度が増加する場合と減少する場合があることを報告 している<sup>5)</sup>。このように,Cube方位の形成には様々な パラメータが影響する。

著者らは、冷間圧延前の固溶析出状態が再結晶組織の形成に影響を及ぼすことを報告した<sup>6)</sup>。本研究では、 冷間圧延前の析出物の分布状態と冷間圧延率の影響に 着目し、Al-Mg-Si系合金の集合組織形成挙動を調査した。

#### 2. 実験方法

供試材として,前報<sup>6)</sup>と同様の**Table 1**に示す化学成 分を有する6016合金の圧延板(板厚8.0 mm)を用い た。圧延板を塩浴炉を用いて823 K-60 sの溶体化処理 を行い,水冷した。水冷後,析出物の分布状態の異な る試料を作製するため,大気炉にて623 Kで1 hおよび 110 hの中間焼鈍(以下, IAと表記)を行い,空冷した。 以下,1 hのIAを行った試料をIA-1 h材,110 hのIA を行った試料をIA-110 h材と表記する。また,溶体化 処理後にIAを行わなかった試料を,IAなし材と表記 する。IAなし材,IA-1 h材およびIA-110 h材を冷間圧 延率がそれぞれ87.5%,93.8%および97.5%(板厚はそれ

 Table 1
 Chemical composition of the alloy used in this study.

 (mass%)

Si	Fe	Mn	Mg	Zn	Al
1.0	0.18	0.08	0.49	0.20	Bal.

ぞれ1.0 mm, 0.5 mm および0.2 mm) となる冷間圧延を 施した。その後、塩浴炉にて623 K-600 sの最終焼鈍(以 下, FAと表記)を行った後水冷し, 再結晶組織を得た。 IA前後およびFA前後の各試料について、導電率の測 定,光学顕微鏡および走査型電子顕微鏡(以下,SEM と表記)による組織観察,元素分布の測定および結晶方 位解析を行った。導電率測定には渦電流方式の測定器 (日本フェルスター製シグマテスト)を用い、298 Kの 室温環境下にて実施した。元素分布は電子プローブマ イクロアナライザ(以下, EPMAと表記)によって測定 した。結晶方位解析は、X線回折(反射法)による [100] 面, {110} 面および {111} 面の不完全極点図の測定結果を 用いて、結晶方位分布関数(以下, ODFと表記)によっ て実施した。また、各結晶粒の結晶方位をSEM付属の 電子線後方散乱回折測定装置(以下,EBSDと表記)に よって解析した。

なお, IAなし材およびIA-1 h材の冷間圧延率87.5% (板厚1.0 mm)の試料は, 前報<sup>6)</sup>にて調査した試料と同 一である。

#### 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、冷間圧延前の各試料のSEM像および導電 率を示す。IAなし材では、直径数µm以上の粒子およ び直径1.0µm以下の粒子(いずれもSEM像では白いコ ントラストで表示)が確認された。これらは、いずれも 溶体化処理前から存在した晶出物等のAl-Fe-Mn-Si系、 Al-Fe-Mn系等<sup>7)</sup>の化合物であると推定される。一方、 IA-1 h材およびIA-110 h材では、IAなし材で見られた 粒子に加えて、黒いコントラストで表示される粒子が確 認された。IAなし材には見られなかったため、これら はIAによって形成された析出物と考えられる。SEM



Fig. 1 SEM images after IA and the solution heat treatment (before cold rolling).(a) non-IA sample (after the solution heat treatment), (b) IA-1 h sample and (c) IA-110 h sample.

付属のEDS (energy dispersive X-ray spectroscopy: エネルギー分散型X線分析装置)分析の結果,Mgおよ びSiが検出されたため,前報のDSC分析結果より<sup>6)</sup>, これらの析出物は安定相の $\beta$ 相 (Mg<sub>2</sub>Si)と推定され る。結晶粒内に存在する析出物はIA-1 h材および IA-110 h材のいずれも直径数百nm以下だった。一 方,結晶粒界上の析出物は,IA-1 h材では最大で直径 1.0  $\mu$ m弱程度だったのに対して,IA-110 h材では直径 数 $\mu$ mの粒子が確認され,IA-1 h材に比べて析出物が 粗大な傾向が認められた。また,導電率を比較すると, IAなし材が最も低く,IA-1 h材はIA-110 h材に比べて わずかに低かった。このため,IAなし材はIAを行っ た試料に比べて固溶元素量が多く,IA-1 h材とIA-110 h材の固溶元素量の差は小さいと考えられる。

Fig. 2は, EPMAによって分析した, 冷間圧延前の 各試料におけるSiの分布状態である。IAなし材では、 直径数µm~数十µmの晶出物と推定される箇所でSi 濃度が高い他は、Siの分布に明瞭な偏析は見られなか った。これに対して、IA-1 h材においては晶出物より も小さいサイズでSi量の多い領域が点在した。これら の領域は、IAで形成された析出物に対応すると考えら れる。また, Fig. 2の図中に矢印で示す箇所において明 瞭に見られるように、帯状にSiの希薄化した領域が確 認された。このSi希薄領域内には、一部Si濃度の高い 箇所が存在する。その他の領域(晶出物を除く)に見ら れるSi量の多い箇所に比べてサイズが大きいことから, これらは結晶粒界上の析出物と考えられる。このため, Si希薄領域は結晶粒界に対応していると推定される。 結晶粒界上でβ相が優先的に析出することで,結晶粒 内に比べて粗大な析出物が形成され、結晶粒界の周囲 で固溶元素量が減少したと考えられる。IA-110 h材で は、Si希薄領域がIA-1 h材に比べて広くなっていた。 IA-110 h材では、長時間のIAによって結晶粒界上のβ

相が粗大化するとともに,固溶元素の希薄化が広範囲 に及んだためと推察される。

## 3.2 冷間圧延後の加工組織

Fig. 3に、冷間圧延後(FA前)の光学顕微鏡組織を 示す(冷間圧延率87.5%のIAなし材およびIA-1 h材に ついては、前報<sup>6)</sup>で示した図と同様である)。IAなし材 は結晶粒界が波打った形状となっており、局所的にせ ん断帯に類似した形態を呈していた(図中矢印)。固溶 元素量が多い場合、冷間圧延の過程で変形の不均一化 が生じやすくなる<sup>8)</sup>。このため、IAなし材では冷間圧 延によって導入された歪が局在化し、局所的なせん断帯 が形成されたと考えられる。IA-1 h材およびIA-110 h 材は結晶粒界がIAなし材に比べて直線的であり、いず れの圧延率においてもせん断帯は確認されなかった。 また、いずれのIA条件でも、冷間圧延率による加工組 織の明瞭な違いは見られなかった。

Fig. 4に, ODF解析から得られた冷間圧延後のS方 位 {123}<634>の方位密度を示す。いずれの試料も,冷 間圧延率の増加に伴いS方位密度が増加している。S方 位は圧延集合組織の成分であることから,冷間圧延に よって圧延集合組織が発達したためと考えられる。ま た,いずれの冷間圧延率でもS方位密度はIA-1 h材が 最も高く,IA-110 h材,IAなし材の順に低い。IA-110 h 材に存在する粗大な析出物や,IAなし材で確認された 冷間圧延によるせん断帯の形成は,圧延集合組織の発 達に影響することが報告されている<sup>9),10)</sup>。このため, IA条件によるミクロ組織の違いが圧延集合組織の発達 に影響を及ぼしたことによって,S方位密度が異なっ たと考えられる。

#### 3.3 最終焼鈍後の再結晶組織

Fig. 5に, FA後の光学顕微鏡組織を示す(冷間圧延







Fig. 3 Optical micrographs after the cold-rolling.



Fig. 4 Orientation density of S texture after the cold-rolling.

率87.5%のIAなし材およびIA-1 h材については,前報<sup>6)</sup> で示した図と同様である)。IAなし材は微細な等軸粒, IA-1 h材は圧延方向に長い扁平粒, IA-110 h材は微細 な等軸粒だった。再結晶粒の形状に,冷間圧延率に対 応する明瞭な違いは確認されなかった。

**Fig. 6**に, FA後の各試料のODF解析結果( $\phi_2=0^\circ$ ) を示す。いずれの試料もCube方位が主方位であるが, Cube方位の方位密度はIA条件および冷間圧延率によ って異なっている。

FA後の各試料について、Cube方位密度と冷間圧延 率との関係をFig.7に示す。いずれの冷間圧延率にお いても、Cube方位密度はIA-1 h材が最も高く、IAな し材が最も低い。また、IA-1 h材は冷間圧延率87.5%



Fig. 5 Optical micrographs after the final annealing at 623 K for 600 s.



Fig. 6 ODFs after the final annealing at 623 K for 600 s (Contour levels : 3, 6, 9...21).

から93.8%において大幅にCube方位密度が増加し,冷 間圧延率97.5%でも高いCube方位密度が維持されてい る。これに対してIA-110 h材では,Cube方位密度冷間 圧延率87.5%から93.8%においてはわずかに増加するに とどまり,97.5%では大きく減少した。また,IAなし 材では冷間圧延率の増加に伴いCube方位密度が減少し ていることが確認できる。

## 3.4 再結晶粒の形成における析出物の分布状態の影響

Cube方位粒は,他の方位に比べて圧延における歪の 蓄積量が小さく,格子回転を起こしにくいため<sup>11)</sup>,圧 延率の増加によって非Cube方位粒との蓄積歪量の差が 大きくなり,Cube方位を持つ再結晶粒の優先成長が促 進されると推察される<sup>5)</sup>。また,Cube方位と40<sup>°</sup> <111>回転関係にあるS方位の存在はCube方位の発達 に重要であり<sup>4)</sup>,S方位密度の増大は再結晶組織におけ るCube方位の発達を促進すると考えられる。Fig.4に 示したように,いずれのIA条件でも,冷間圧延率の増



Fig. 7 Orientation density of Cube texture after the final annealing.

加に伴いFA前のS方位密度は増加した。このため、冷 間圧延後の加工組織は、いずれのIA条件でも冷間圧延 率が高くなるとともにCube方位の発達に好適な状態と なると考えられる。しかしながら、本実験ではIA条件 によって冷間圧延率に対するCube方位密度変化の挙動 が異なることが確認された。

IAなし材については、冷間圧延によって形成された せん断帯がランダムな方位の再結晶粒の核生成サイト となった<sup>12)</sup>ことが、FA後のCube方位密度が減少した 原因と考えられる<sup>6)</sup>。一方、IA-1 h材およびIA-110 h 材では、どちらもせん断帯は形成されなかったが、 Cube方位密度や再結晶粒径が異なっていた。IA条件 による再結晶挙動の違いについて考察するため、冷間 圧延率87.5%の試料を用いて, 623 Kで5 sのFAを行った後に水冷し, EBSD解析により再結晶状態を調査 した。

各試料のCube方位をマッピングした結果をFig.8に 示す。いずれの試料でも、Cube方位を持つ領域が圧延 方向に長く連なったCubeバンドが確認された。FAの 過程でCubeバンドから圧延方向に連なってCube方位 粒が形成されることで<sup>13)</sup>、いずれのIA条件でもCube 方位が主方位となったと考えられる。

また, IA-110 h材のEBSD分析の結果, **Fig. 9**に示 すように, IQ値 (image quality : EBSD解析の像質を 表す指数)の低い領域 (Fig. 9の黒点が密集した箇所, 図中矢印) に隣接して形成された再結晶粒が確認され



Fig. 8 Image quality and Cube orientation maps after the final annealing at 623 K for 5 s (87.5% reduction), (a) non-IA sample, (b) IA-1 h sample and (c) IA-110 h sample.



Fig. 9 Recrystallized grains adjacent to thr second phase particles in IA-110 h sample after the final annealing at 623 K for 5 s (87.5% reduction).

た。EBSD分析範囲と同一視野のSEM観察によって, これらの低IQ値領域は第二相粒子に対応することを確 認した。このため、これらの再結晶粒は第二相粒子に よる PSN で形成されたと考えられる。Fig. 9の Sight 1 で確認された粒子は, EDS分析によってFe, Mn, Si などが検出されたことから、晶出物と推定される。一 方, Fig. 9 Sight 2の粒子についてはMgおよびSiが検 出されたため、IAで形成された析出物(β相)と考えら れる。前報<sup>6)</sup>にて、本報のIA-1 h材およびIAなし材に 相当する試料で晶出物の周辺でPSNによる再結晶粒の 形成が確認されたことを報告したが、IA-110 h材にお いて、晶出物に加えて析出物がPSNに寄与することが 確認された。PSNについては、ある程度サイズが大き い第二相粒子のみが再結晶粒の核生成サイトとして寄 与するとされる<sup>14)</sup>。IA-110 h材のEBSD分析では,直 径が約2.0 µm以上の第二相粒子においてのみ、PSNに 起因すると推定される再結晶粒の形成が確認された。

Fig. 10に、IA後(冷間圧延前)のSEM像の画像解析 により算出した、IA-1 h材およびIA-110 h材の析出物 の粒度分布を示す。画像解析では、SEM像における各 粒子のコントラストの違いを利用し、析出物を抽出し て粒度分布を算出した。すなわち、暗いコントラスト で表示される粒子は原子番号が比較的小さい元素から なると考えられる。このため、暗いコントラストの粒 子を析出物(Mg2Si)と見なし、明るいコントラストの 粒子を原子番号が大きい元素からなる晶出物(Al-Fe-Mn-Si系など)と推定した。IA-1 h材では、円相当径が 1.0 µmを超える析出物は認められなかった。一方、 IA-110 h材では円相当径1.0 µm以上の析出物が多数存 在し、円相当径2.0 µmを超える析出物も確認された。 したがって、IA-1 h材ではIAで形成された析出物はほ



Fig. 10 Size distributions of  $\beta$ -phase precipitates before the cold rolling in IA-1 h sample and IA-110 h sample.

とんどPSNに寄与しないのに対して, IA-110 h材では 多数の析出物が粗大化し, PSNによる再結晶粒の核生 成サイトとなると推察される。

## 3.5 再結晶組織形成に及ぼす固溶析出状態の影響 メカニズム

以上の結果から、再結晶挙動に及ぼすIA条件、すな わち固溶状態および析出物の分布状態の違いによる影 響を考察する。

- (1) IAなし材は、固溶元素量が多い状態で冷間圧延 を施されることでせん断帯が形成される。せん 断帯がFAの過程において再結晶粒の核生成サ イトとなったため、核生成数が多くなり、等軸で 微細な再結晶粒になったと考えられる<sup>6)</sup>。また、 CubeバンドからCube方位粒が形成されること でCube方位が主方位となるが、せん断帯から形 成される再結晶粒はランダムな方位を持つ<sup>12)</sup>こ とから、Cube方位密度が減少する。また、冷間 圧延率が高くなるとともにせん断帯の形成が増 加すると推察されるため、冷間圧延率の増加に 伴い、Cube方位密度が減少すると考えられる。
- (2) IA-1 h材は、IAによってβ相が析出するとともに、結晶粒界上に固溶元素量の少ない領域が形成される。FAの過程では、冷間圧延で圧延方向に伸長した固溶元素量の少ない領域に沿って再結晶粒が優先的に成長するため<sup>15)</sup>扁平な再結晶粒が優先的に成長するため<sup>15)</sup>扁平な再結晶粒が優先的に成長するため<sup>15)</sup>扁平な再結晶粒となる。一方、IAで形成されたβ相はサイズが小さく、IAによって母相の固溶元素量が減少しているため冷間圧延でせん断帯が形成されない。このため、せん断帯に起因するランダムな方位の再結晶粒の形成が少なく、Cube方位密度が最も高くなったと考えられる。冷間圧延率が増加すると、S方位密度が増加し、Cube方位粒の蓄積歪量の差が大きくなることで、Cube方位粒の優先成長が顕著になり、Cube方位を防増加すると考えられる。
- (3) IA-110 h材では、長時間のIAによって結晶粒界 上ではβ相が直径2.0 μmを超えるサイズまで粗 大化する。固溶元素量の少ない領域はIA-1 h材 よりも広い幅で形成されるが、結晶粒界上の粗 大化したβ相の周辺には、冷間圧延によって変形 領域(deformation zone)が形成する。このため、 FAの過程でβ相の周辺はPSNによる再結晶粒 の核生成サイトとなる。これによって核生成数 が多くなるため、IA-1 h材に比べて微細な再結晶 粒となる。また、PSNで形成される再結晶粒は

Cube方位とは異なる方位を持つことから<sup>4),6)</sup>, IA-1 h材に比べてCube方位密度が低くなる。ま た、冷間圧延率が増加すると、粗大なβ相まわ りの変形領域も増加すると推察されることから、 FA前の冷間圧延率の増加に伴い、FA過程にお けるPSNによる非Cube方位粒の形成が増加す ると考えられる<sup>4)</sup>。このため、冷間圧延率の増 加に対してCube方位密度はわずかに増加するに とどまり、さらに圧延率が増加した際には減少 したと考えられる。

### 4. 結 言

Al-Mg-Si系合金の再結晶集合組織について、冷間圧 延前の固溶析出状態および冷間圧延率の影響を調査し た。その結果、以下の点が明らかとなった。

- (1)冷間圧延前の固溶元素量が多い場合、冷間圧延 によりせん断帯が形成される。せん断帯は最終 焼鈍の過程で再結晶粒の核生成サイトとなる。
- (2) 長時間の中間焼鈍(析出処理)によって粗大化した析出物の周辺は、PSNによる再結晶粒の核生成サイトとなる。
- (3) せん断帯およびPSNに起因する再結晶粒はラン ダムな方位を持つと推定されるため、再結晶集 合組織におけるCube方位密度を低下させる。
- (4)冷間圧延率が高くなると、Cube方位密度の発達 に好適な加工組織となると考えられる。同時に、 せん断帯の形成量および粗大な析出物まわりの 変形領域が増加し、FA過程におけるランダムな 方位の再結晶粒の核生成量が増加すると推定さ れるため、冷間圧延率の増加に対する再結晶集 合組織におけるCube方位密度の変化は、冷間圧 延前の固溶析出状態によって異なる。

#### 参考文献

- 1) 竹田博貴, 日比野旭, 高田健: 軽金属, 60 (2010), 231-236.
- 伊川慎吾, 浅野峰生, 黒田充紀, 吉田健吾:軽金属, 61 (2011), 53-59.
- 日比野旭,村松俊樹,佐賀誠,高田健:軽金属,53 (2003), 534-541.
- 4) 竹田博貴, 日比野旭, 高田健: 軽金属, 62 (2012), 60-66.
- 5) 松本克史, 杉崎康昭: 軽金属, 55 (2005), 113-119.
- 長谷川啓史,中西英貴,浅野峰生:軽金属, 66 (2016), 298-305.
- 7) 軽金属学会:アルミニウムの組織と性質,(1991), 279-280.
- 8) 吉田英雄: 軽金属, 41 (1991), 331-337.
- A. Duckham, R. D. Knutsen and O. Engler: Acta Mater., 49 (2001), 2739-2749.
- K. Lucke and O. engler: Mater. Schi. Technol., 6 (1990), 1113-1130.

- 池田賢一,宮田幸昌,吉原隆浩,高田尚紀,中島英治:軽 金属,64 (2014), 353-360.
- 12) A. A. Ridha and W. B. Hutchinson: Acta Metall., 30 (1982), 1929-1939.
- 13) O. Daaland and E. Nes: Acta Metall., 44 (1996), 1389-1411.
- 14) F. J. Humphreys: Acta Metall., 25 (1977), 1323-1344.
- 15) 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), 132.



長谷川 啓史 (Akifumi Hasegawa)
 東北大学附属図書館
 (元(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