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

長谷川 啓史**・中西 英貴**・浅野 峰生**

Journal of The Japan Institute of Light Metals, Vol. 66, No. 11 (2016), 602–608
© 2016 The Japan Institute of Light Metals

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 changed depending on the IA conditions. In the IA-1 h sample, the cube texture ($\{001\}\langle 100 \rangle$) increased with increasing reduction. In contrast, in the non-IA sample and IA-110 h sample, the cube texture decreased at high rolling reduction. 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 coarse precipitates.

(Received April 20, 2016 Accepted June 27, 2016)

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CO₂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、塗装焼付け処理で時効硬化によって強度が向上（バークハード）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、中間焼なまし、冷間圧延、溶体化処理（最終焼なまし）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^{1)~3)}。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（ $\{001\}\langle 100 \rangle$ ）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^{1),2)}。Cube方位の形成には、圧延条件や固溶析出状態、焼なまし条件等が影響すると考えられる。竹田らは、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, PSN）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⁴⁾。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⁵⁾。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⁶⁾。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⁶⁾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8.0mm）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

*軽金属学会第128回春期大会（2015年5月）にて一部発表

**株式会社UACJ 技術開発研究所（〒455–8670 愛知県名古屋港区千早3–1–12）UACJ Corporation, Research & Development Division
（3–1–12 Chitose, Minato-ku, Nagoya-shi, Aichi 455–8670）E-mail: hasegawa-akifumi@uacj.co.jp

気炉にて623Kで1hおよび110hの中間焼なまし（以下、IAと表記）を行い、空冷した。以下、1hのIAを行った試料をIA-1h材、110hのIAを行った試料をIA-110h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-1h材およびIA-110h材を冷間圧延率がそれぞれ87.5%, 93.8%, 97.5%（板厚はそれぞれ1.0mm, 0.5mm, 0.2mm）となる冷間圧延を施した。その後、塩浴炉にて623K-600sの最終焼なまし（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、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、298K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、 $\{111\}$ 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、

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.

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-1h材の冷間圧延率87.5%（板厚1.0mm）の試料は、前報⁶⁾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1.0 μm 以下の粒子（いずれもSEM像では明る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⁷⁾の化合物であると推定される。一方、IA-1h材およびIA-110h材では、IAなし材で見られた粒子に加えて、暗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⁶⁾、これらの析出物は安定相の β 相（ Mg_2Si ）と推定される。結晶粒内に存在する析出物はIA-1h材およびIA-110h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-1h材では最大で直径1.0 μm 弱程度だったのに対して、IA-110h材では直径数 μm の粒子が確認され、IA-1h材に比べて析出物が粗

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

Fig. 2 Distribution of Si obtained by EPMA after IA and solution heat treatment(before cold rolling). (a) non-IA sample (after solution heat treatment), (b) IA-1h sample, (c) IA-110h sample.

Fig. 3 Optical micrographs after cold-rolling.

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-1h材はIA-110h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-1h材とIA-110h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はSi濃度が高いほか、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-1h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、带状に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。そのほかの領域（晶出物を除く）に見られるSi量の多い箇所と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-110h材では、Si希薄領域がIA-1h材に比べて広がっていた。IA-110h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-1h材については、前報⁶⁾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⁸⁾。このため、IAなし材では冷間圧延によって導入されたひずみが局在化し、局所的なせん断帯が形成されたと考えられる。IA-1h材およびIA-110h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つ

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

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 {123} <634>方位の方位密度を示す。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-1h材が最も高く、IA-110h材、IAなし材の順に低い。IA-110h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^{9),10)}。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方位密度が異なると考えられる。

3.3 最終焼なまし後の再結晶組織

Fig. 5 に、FA 後の光学顕微鏡組織を示す（冷間圧延率 87.5% の IA なし材および IA-1h 材については、前報⁶⁾で示し

た図と同様である）。IA なし材は微細な等軸粒、IA-1h 材は圧延方向に長い扁平粒、IA-110h 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

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

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

されなかった。

Fig. 6に、FA後の各試料のODF解析結果 ($\varphi_2=0^\circ$)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-1h材が最も高く、IAなし材が最も低い。また、IA-1h材は冷間圧延率87.5%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-110h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ひずみの蓄積量が小さく、格子回転を起こしにくい¹¹⁾、圧延率の増加によって非Cube方位粒との蓄積ひずみ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⁵⁾。また、Cube方位と $40^\circ \langle 111 \rangle$ 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⁴⁾、S方位密

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

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思われる。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¹²⁾ことが、FA後のCube方位密度が減少した原因と考えられる⁶⁾。一方、IA-1h材およびIA-110h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5s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¹³⁾、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-110h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⁶⁾にて、本報のIA-1h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-110h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¹⁴⁾。IA-110h材のEBSD分析では、直径が約 $2.0\mu\text{m}$ 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

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

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

Fig. 10 Size distributions of β -phase precipitates before cold rolling in IA-1 h sample and IA-110 h sample.

り算出した、IA-1h材およびIA-110h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 (Mg_2Si) とみなし、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 系等) と推定した。IA-1h材では、円相当径が $1.0\mu\text{m}$ を超える析出物は認められなかった。一方、IA-

110h材では円相当径 $1.0\mu\text{m}$ 以上の析出物が多数存在し、円相当径 $2.0\mu\text{m}$ を超える析出物も確認された。したがって、IA-1h材ではIAで形成された析出物はほとんどPSNに寄与しないのに対して、IA-110h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となったと考えられる⁶⁾。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¹²⁾ 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-1h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¹⁵⁾ 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方位粒と非Cube方位粒の蓄積ひずみ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方位密度が増加すると考えられる。

(3) IA-110h材では、長時間のIAによって結晶粒界上では β 相が直径 $2.0\mu\text{m}$ 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-1h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-1h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ため^{4),6)}、IA-1h材に比べてCube方位密度が低くなる。冷間圧延率が増加すると、粗大な β 相まわりのdeformation zone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⁴⁾。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すると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。せん断帯は最終焼なましの過程で再結晶粒の核生成サイトとなる。

(2) 長時間のIA（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deformation zone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.
- 2) 伊川慎吾, 浅野峰生, 黒田充紀, 吉田健吾: 軽金属, **61** (2011), 53-59.
- 3) 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.
- 6) 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.
- 9) A. Duckham, R. D. Knutsen and O. Engler: Acta Mater., **49** (2001), 2739-2749.
- 10) K. Lücke and O. Engler: Mater. Sci. Technol., **6** (1990), 1113-1130.
- 11) 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), 263-264.