0.4%以下の Mn および Cr をふくむ 6%および 8% Mg-Al

合金の焼鈍過程における異常粗粒化現象

—アルミニウム合金の 2 次再結晶(第 5 報*)—

佐藤益弘**・坂根 潔**・中谷 義三**・清水 恭治**

Abnormal grain growth in Al-Mg (6~8%) alloys containing under 0.4% of Mn and Cr.

—Secondary recrystallization of aluminum alloys (5th report*)—

UDC 669.715'721-12 : 548.53

SATO Masuhiro**, SAKANE Kiyoshi**, NAKATANI Yoshizo**

and SHIMIZU Kyoji**

Al-Mg(6~8%) alloy ingots containing small amounts of Mn and/or Cr were prepared in a melting-casting apparatus protected by argon atmosphere.

Macrostructure, grain size, hardness and density of dispersed fine particles were examined on the plate specimens of the ingot.

X-ray pole figure was also examined on the sheets containing 5%Mg and small amounts of Mn and Cr.

The results obtained were as follows:

- (1) There were upper and lower limits of Mg content in abnormal grain growth of Al-Mg alloys.
- (2) The limits were explained from the relation between the initial grain growth and the density of dispersed fine particles, according to M. Hillbert's Theory on abnormal grain growth.
- (3) The aggregate structure of secondary recrystallization of 5056 alloy sheets were found to be composed of (110) $[\bar{1}11]$, (001) $[\bar{1}10]$, (113) $[\bar{1}10]$ and (hkl) $[\bar{1}10]$ planes.

(Received June 22, 1970)

1. 緒 言

0~5%Mg をふくむ Al-Mg 合金の異常粗粒化現象については既報^{1)~4)}したが、その中でこの現象は、Mg 含有量によつて現われやすさに違いがあり、Mg 含有量に下限とともに上限も存在することが予想された。

そこで、今回は 6~10%Mg をふくむ合金について調査を計画したが、圧延過程で 10%Mg 材は破壊したので、おもに 6%, 8%Mg 材について検討した。

また、既報²⁾の試料をさらに冷間圧延してえた 0.3mm 板について、1 次再結晶組織と 2 次再結晶組織との関係について集合組織を調査し検討を加えた。

2. 実験試料と実験方法

2.1 6%および 8% Mg-Al 合金

99.99%Al, 99.9%Mg および前報と同じ Al-5.3%Mn, Al-10%Cr 中間合金を使用し、Fig. 1 の密閉型 雰囲気溶解・鋳造装置にて、99.99% Ar ガスによる保護雰囲気中で、Table 1 の合金を調製した。このうち 3~5%

Mg-Al 合金は、前報までの大気中溶解 (Al-Be 使用、脱ガス剤使用) による実験結果の再現性をみるためのもので、10%Mg-Al 合金は圧延に成功しなかつたので分析値はおおむね省略した。

鋳塊は、1 溶解について、熱間圧延經由冷間圧延用: 15×30×80 mm, 冷間圧延用: 9×30×80mm を各 1 個ずつえた。熱間圧延經由冷間圧延用材 (以下熱・冷延材とよぶ) は 500°C, 24 hr → 炉冷の均熱処理後両面を 1 mm ずつ面削し、4 mm まで熱間圧延 (69%), さらに 1 mm まで冷間圧延 (75%) した。冷延材は、均熱処理なしに 1 mm ずつ両面を面削ののち 1.5 mm に冷延 (79%) した。

板状試料 (7×10 mm) を 300°C から 520°C (1 部は 550°C) にて各 1 hr 空浴炉焼鈍ののち、前報⁴⁾に準じてマクロ組織、結晶粒径、かたさ、析出物密度の各調査を行なつた。ただ、析出物密度と結晶粒度の測定は、圧延過程で破壊した試料のなかつた熱・冷延材について行なつたが、析出物密度は従来²⁾とは異なり 40sec エッチングを採用した。

* 軽金属学会第38回春期大会 (1970—5) にて発表した。

** 大阪府立大学工学部 (堺市) Faculty of engineering, Univ. of Osaka (Sakai)

2.2 0.3 mm 厚 5%Mg-Al 合金

既報²⁾ で用いた試料から粒成長の型別に選定した試料を再圧延により 0.3 mm 厚にし、あらかじめ小試片について既報²⁾ とおなじように 420~460°C・1 hr の焼鈍にて異常粗粒化現象の起こることを確かめたのち、おのおの粒成長の型に合う焼鈍温度を選定した熱処理を行なった。正極点図の測定は島津製ポール・フィギュア試料台によった。試料の化学成分と調整にいたる履歴は、Table 2 に示すとおりで、これらの試料を最終冷間圧延後 27

Fig. 1 Argon gas-protected melting and casting apparatus.

mm 角にせん断し、変形防止用の 1 mm 厚の板で両面から挟み大気炉中で焼鈍・水冷ののち、そのまま X 線回析に供した。

集合組織の測定は、とくに P.F. 用コンピューターと前置電源安定装置とを増設した、島津製 GX-III B 型 X 線発生装置を用い、(111) 極点図と (100) 極点図とを測定した。透過法は Decker-Asp-Harker 法で CuK α 特性 X 線 (管電圧 35 kV, 管電流 20 mA, Ni フィルター使用) により極点図の円周から 50~60° の範囲までを、反射法も同一の試料台と試料セッティングのまま、Decker-Asp-Harker 法で Co 特性 X 線 (管電圧 30 kV, 管電流 15 mA, Fe フィルター使用) により極点図の中心から 40~50° の範囲までを、いずれも試料の 10×20 mm の面積を往復運動により走査させながら、 α 回転角 10° おき、 β 回転角 5° おきに 10 sec 間ずつ開けつ的に停止して強度を積算した。スリット幅は透過法では D.S. 0.5 mm, R.S. 1.0mm, 反射法では D.S. 1.0mm, R.S. 2.3 mm で、吸収補正はランダム試料を用いず、計算によった。

3. 実験結果および考察

Table 1 Chemical composition

Alloy No.	Mg%	Mn %	Cr%	Alloy No.	Mg%	Mn %	Cr%
321	2.89	0.20	0.10	644	5.99	0.37	0.36
421	4.28	0.19	0.10	800	8.37	—	—
521	5.16	0.20	0.10	802	8.15	—	0.20
				804	7.59	—	0.36
600	6.09	—	—	820	8.14	0.19	—
602	5.89	—	0.17	840	7.81	0.37	—
604	6.20	—	0.36	822	7.90	0.21	0.12
620	5.90	0.17	—	824	8.02	0.25	0.37
640	5.95	0.36	—	842	4.97	0.40	0.19
622	5.77	0.19	0.18	844	8.03	0.43	0.35
624	6.17	0.20	0.34				
642	6.02	0.36	0.19	1000	8.38	—	—

Table 2 Chemical Composition and Procedure of preparation of samples used in X-ray Pole-figure test.

Alloy No.	Mg	Mn	Cr	Types of Grain Growth	Cast	Homogenizing	Hot rolling(*)	Cold(**) rolling (1)	Natural Ageing	Cold(**) rolling (2)
500	5.19	—	—	Normal	t = 30mm	450°C・24hr	400°C27→3	(77%) 3→0.7	70days	mm 0.7→0.3
501	5.05	—	0.05	Normal	t = 9 mm	No.	No.	7→1.5mm (79%)	500 days	mm 1.5→0.3 (80%) (7→0.3) (tot.96%)
503	5.39	—	0.25	Abnormal						
506	5.29	—	0.60	Non						
511	5.13	0.09	0.12	Abnormal						

[Note] rolling direction (*) (27→14mm) —transversal direction, (14→3 mm) —longitudinal direction, (**) longitudinal direction only.

3.1 3～5% Mg-Al 合金の再結晶

Table 1 の 3～5%Mg-Al 合金については、冷延材だけについて再現性を確かめたが、**Photo. 1** のように、前報と同じく 460～500℃ の温度範囲において異常粗粒化現象が再現された。したがって、雰囲気溶解・鋳造の過程を経ても、大気溶解・鋳造方式の場合に比較して、この現象に大きく影響する要因は含まれていないと考えられる。また逆に、大気溶解・鋳造に伴う溶湯酸化や、Al-Be および脱ガス用 AlCl_3 の使用も、この現象に直接の影響はなかつたことがわかった。

3.2 6% および 8% Mg-Al 合金の再結晶

Fig. 2～**5** は 6%Mg および 8%Mg の熱・冷延材の

Fig. 2 Recrystallization softening and grain growth of Al-6～8%Mg alloys, containing small amounts of Cr. Samples were prepared by hot rolling and cold rolling.

焼鈍軟化曲線と、1次再結晶以後の結晶粒の成長を示したもので、6%Mg では約 300℃、8%Mg では約 350℃ で再結晶は完了し、**Fig. 6** にも示すように異常粗粒化現象は 6%Mg-0.2%Cr の一試料のみでしか起こっていない。その生起温度も、5%Mg-Al 合金での 420～480℃ よりも高温側で 480～500℃ になっている。

Photo. 2 は、冷延材のマクロ組織を示すもので、既報²⁾と同様、同一組成の熱・冷延材よりも異常粗粒化現

Fig. 3 Recrystallization softening curves of Al-6～8%Mg alloys, containing small amounts of Mn. Samples were prepared by hot rolling and cold rolling.

Alloy No.	Annealing temperature (°C)							
	350	400	420	440	460	480	500	550
321								
421								
521								

Photo. 1 Macro-structures of 3～5%Mg-Al alloys, melted and cast in argon atmosphere. ($\times 1\frac{1}{2}$)

象が生じやすく、生起温度はより低温に、最大粒度は大きくなっていることがわかる。

Fig. 6 は、熱・冷延材および冷延材の両方について、Mn-Cr 成分図上に占める異常粗粒化現象の生ずる領域を、5%Mg-Al 合金の従来の領域²⁾とともに示したもので、両材ともに Mg 含有量が 6%，8%と増すにつれて、異常粗粒化現象は現われにくくなっており、熱・冷延材では 8%Mg で現われなくなっている。

試料数のそろった熱・冷延材について、析出物密度を測定した結果を、前報⁴⁾の Mg5% 以下の場合とあわせて **Fig. 7** に示した。微細析出物を適確に観察できるエッチング時間に差があるので、Mg5% 以下と 6% 以上とを同一視するのは少し問題はあるが、大局的にみて 0～8%Mg の範囲内で、1 次再結晶終了以後の非成長、異常成長の出現には、各 Mg 値ごとにそれぞれ一定の析出物密度が必要であり、逆に言えば、析出物密度は、粒成長の型ごとによく対応しているといえる。すなわち、A 線以上の析出物密度では非成長、A B 両線の間では異常成長、B 線以下ではおおむね正常成長となつている。

したがって、前回の結果⁴⁾とも合わせ、2 次再結晶による異常粗粒化現象を生ずる Mg 範囲を、この析出物密度の逆数と初期粒度との関係から模式的に示すと **Fig. 8** のようになり、M. Hillert⁵⁾ による異常粒成長説でよく説明できることがわかる。

Fig. 4 Recrystallization softening and grain growth of Al-6%Mg alloys, containing small amounts of Mn and Cr. Samples were prepared by hot rolling and cold rolling.

3.3 0.3 mm 厚 5%Mg-Al 合金の極点図

結果を **Photo. 3** および **Fig. 9～11** に例示した。

合金 No. 500 の Al-Mg 2 元系では、**Fig. 9** のように、(001) [100] の Cube Texture と (001) [380] との再結晶集合組織に (123) [412] の圧延集合組織が残留した組織を示している。Cr をふくんだ合金系では (001) [100] は弱まり、かわつて (001) [110] と (113) [332] および (115) [552] が共通して強くなっている。このことは Cr と Mn とを微量ふくんだ **Fig. 10** の 1 次再結晶集合組織にもよく現われている。

ところが、**Fig. 11** に示すように、2 次再結晶を起こした 420°C 焼鈍の試料では、様相が一変し、345°C 焼鈍にみられたような比較的なだらかな集積点はなくなり、Al の 2 次再結晶方位として周知^{6),7)} の (110) [111], (001) [110], のほかに (113) [110] に代表されるような [110] 軸を圧延方向にしたときに対称性のある方位 (hk) [110] に、するどいピークを示した。2 次再結晶粒の粒度があらひことと、この試料でも、マクロ組織ではなお 1 次再結晶粒が混在していることとの影響から、**Fig. 11** が 2 次再結晶集合組織を完全に表わしているかどうかは確言はできないが、少なくともするどいピ

Fig. 5 Recrystallization softening curves of Al-8%Mg alloys, containing small amounts of Mn and Cr. Samples were prepared by hot rolling and cold rolling.

○ Normal grain growth, ● Abnormal grain growth, × No grain growth

Fig. 6 Abnormal grain growth at various Mn and Cr contents. Note; Dashed lines for 5% Mg-Al alloys are quoted from Fig. 3 in the 2nd report²⁾.

Fig. 7 Relation between Mg content and density of dispersed fine particles.

ークの各点は 2 次再結晶粒によるものと解釈される。

Photo. 3 に示すマクロ組織上にも 3 者の相異はよく表われていて、Mg だけをふくみ、熱間圧延過程で交差圧延を受けた No. 500 は、方向性のない、ややあらい 1 次再結晶組織を示しており、Mn, Cr を少量ふくむ No. 511 の 345°C 焼鈍材は、圧延方向にスジの入った微細な 1 次再結晶組織を示している。これに反し、同材を 420°C で焼鈍し 2 次再結晶を生じたものでは、かなりあらい粒組織を示すが、2 次再結晶粒としては方向性のな

Fig. 8 Schematic diagram illustrating the upper (a) and lower (b) limits of Mg contents in which the abnormal grain growth occurred.

Alloy No.	Annealing teimperature (°C), 1hr.								
	300	350	400	420	440	460	480	500	550
600									
620									
640									
602									
622									
642									
604									
624									
644									
800									
820									
802									
822									
1000									

Photo. 2 Macro-structures of 6~8 %Mg-Al alloy plates, prepared by cold rolling only. (×2.)

い、比較的細かい粒組織を示している。

4. 総括

Al-Mg 合金の焼鈍過程における異常粗粒化現象について、Mg 6% および 8% をふくむ合金の調査から、つ

ぎの各点が明らかとなった。

(1) 同現象を起こす Mg 含有量の上限値は約 8% で、約 2% の下限値とともに、1 次再結晶以後の粒成長過程における初期粒度と、微細分散析出物密度との関係から、合理的に説明される。

Fig. 9 Recrystallization structures of Al-5%Mg alloy sheet. (0.3mm sheet).

Fig. 10 Recrystallization structures of Al-5%Mg alloy containing small amounts of Mn and Cr. (0.3mm sheet).

Fig. 11 Primary and secondary recrystallization structures of Al-5%Mg alloy containing small amounts of Mn and Cr. (0.3mm sheet).

Photo. 3 Macro-structure test pole-figures of specimens. ($\times 1.3$)

20mm

(a) Alloy No. 500, $345^{\circ}\text{C} \times 1$ hr. annealed.

(b) Alloy No. 511, $345^{\circ}\text{C} \times 1$ hr. annealed.

(c) Alloy No. 511, $420^{\circ}\text{C} \times 1$ hr. annealed.

(2) 同現象は、鋳塊製作が大気中で行なわれても、Ar 雰囲気中に行なわれても、同様に現われ鋳塊を均熱処理し熱間圧延經由で冷間圧延した場合よりも、鋳塊を直接、冷間圧延した場合の方が現われやすい。

さらに、5%Mg-Al 合金について行なつた、X線による集合組織の調査から、

(3) 2次再結晶粒の方位は、 (110) $[\text{T}11]$ 、 (001) $[\text{T}10]$ のほかに (113) $[\text{T}10]$ のような $[\text{T}10]$ 軸を圧延方向にしたときに対称性のある方位であつた。

本報は、その費用の一部を（財）軽金属奨学会の研究資金によつた。付記して深甚な謝意を表する。

参 考 文 献

- 1) 清水，中谷，佐藤，坂本，原田，日野田；軽金属 **19** (1969), 233~240
- 2) 佐藤，坂本，中谷，清水；軽金属 **19** (1969), 492~498
- 3) 佐藤，中谷，清水；軽金属 **20** (1970), 63~68
- 4) 佐藤，藤本，中谷，清水；軽金属 **20** (1970) 278~282
- 5) M. Hillert; Acta. Metallurgica, **13** (1965), 227~238
- 6) R. G. Treuting and W. C. Ellis; J. of Metals, **4** (1952), 150
- 7) J. S. Bowles and W. Boas; J. Inst. Metals, **74** (1948), 501