Al-1%Mn 合金の再結晶粒度に及ぼす Si の影響

山田 始*・田中他喜男*

Effect of Si on recrystallized grain size of Al-1%Mn alloy

UDC: 669. 715 '74 '782-12: 548. 53: 548. 23

Hajime YAMADA* and Takio TANAKA*

The precipitation and the recrystallized grain size in a high purity Al-1%Mn alloy containing 0.5%Si were investigated. Si in the unhomogenized Al-Mn alloy accelerates generation of a number of nuclei after in situ recrystallization depending on the annealing time. This type of nucleation occurs even at slow heating to an annealing temperature. Slow heating preferably leads to a fine grain structure in the unhomogenized Al-Mn alloy containing Si. If heated rapidly, prolonged annealing results in a fine grain structure. While, Si remarkably intensifies the effect of heating rate on the grain size of the homogenized Al-Mn alloy. A small amount of precipitation still occurs during annealing in the cold deformed material. The precipitation at about 300°C in the Al-Mn alloy containing Si prevents the nucleation. The grain size is considerably governed by the heating rate at such a temperature.

(Received September 11, 1981)

1. 緒 言

Si は Al-Mn 合金の予備加熱による再結晶粒の微細化効果を打消し、予備加熱によって、かえって再結晶粒が粗粒になることが報告されている^{1),2)}。このことは既報³⁾においても認められ、予備加熱を行わない場合は、Si は Al-Mn 合金の再結晶粒度に対する加熱速度の影響を著しく減少し、加熱速度が遅くなっても再結晶粒の粗粒化を起りにくくする。しかしその反面、予備加熱を行った場合には、加熱速度の影響をひじょうに著しくする。このため、加熱速度によつては、予備加熱を行わないほうが再結晶粒は細くなることが明らかとなった。

このような Si の影響は、Al-Mn 合金の再結晶粒の微細化として予備加熱を行うことが工業的には一般とされ、しかも Si は不可避に含まれる不純物であるので重要である。このため本報は、さらにその原因および詳細について明らかにするため、高純度アルミニウムを用いた Al-1%Mn 合金により、Al-Mn 合金における析出と再結晶、とくに再結晶粒度に及ぼす Si の影響について検討した。

2. 試料および実験方法

試料は高純度アルミニウムを用いた Al-1%Mn および Al-1%Mn-0.5%Si 合金で、試料の作製は 8×50×

Table 1 Analyses of specimens (wt%).

	Mn	Si	Fe	Cu	Mg
Al-1%Mn	1.04	0.02	0.031	0.001	<0.001
Al-1%Mn-0.5%Si	1.03	0.52	0.042	0.002	<0.001

80 mm 鋳塊寸法の常温の銅製鋳型に鋳造した。Table 1 は試料の分析結果を示す。

得られた鋳塊は面削りをしたのち、予備加熱を行わないもの、および予備加熱として、570°C で 6 hr の予備加熱 (Homogenization 1) さらに、じゅうぶんな予備加熱として 570°C, 6 hr 続いて 450°C, 42 hr の予備加熱 (Homogenization 2) を行った 3 種類とし、いずれも冷間圧延だけで 0.5 mm の厚さ (圧延率 93%) まで圧延して試料とした。

再結晶粒度に及ぼす加熱速度の影響は 5~1,300°C/min の範囲の加熱速度について調べた。このうち最も速い加熱速度は塩浴によるもので、電磁オシログラフによつて測定した焼なまし温度到達までの平均加熱速度である。その他の加熱速度の場合は、電気炉により所定の加熱速度で常温から焼なまし温度まで昇温したものであるが、Al-1%Mn-0.5%Si 合金における 160°C/min および 250°C/min の加熱速度は、予熱した炉に試料を装入した、焼なまし温度到達までの平均加熱速度である。

* 滋賀県立短期大学 (彦根市)。Shiga Prefectural Junior College (Hikone).

また、析出および再結晶挙動を調べるための焼なましは、すべて塩浴による急速加熱によった。

再結晶の開始は軟化曲線により判定した。また再結晶の終了は軟化曲線、および光顕で全面に再結晶粒が観察される時点とした。しかし、予備加熱を行わない Al-1%Mn-0.5%Si 合金においては、軟化終了時点およびその後においても in situ 再結晶と思われる粗大粒組織が現れ、その後さらに焼なまし時間が経過すると多数の再結晶核が形成され、再結晶粒が著しく増加する現象が起こるので、このような場合は再結晶粒の増加が一応終わったと見られる時点とした。

電気抵抗は、圧延した試料をプレスによつて 5×120 mm 寸法に打抜き、 20°C の恒温室で電位差計により測定した。

再結晶粒度は光顕による約3カ所の写真により、求積法によつて求めた平均粒度である。この場合の再結晶粒の現出法は、Hone-pearson の電解腐食法⁴⁾、偏光を用いる Barker の陽極酸化法⁵⁾ が Al-Mn 合金に対しては適しているが、Si を含む場合は後者のほうが良好であるので、Barker 法によつた。

3. 実験結果

Fig. 1 は Al-1%Mn 合金に対して、鋳塊の予備加熱を行わない場合、および2種類の異なつた予備加熱を行つた場合の再結晶粒度に及ぼす加熱速度の影響について示す。予備加熱を行わない場合の Mn の固溶量は約1%であつたが、Homogenization 1 の予備加熱で約0.9%、Homogenization 2 では約0.8%となり、冷間加工前に

Fig. 1 Effect of heating rate on recrystallized grain size of unhomogenized and homogenized Al-1%Mn alloys.

Note Homogenization 1: 570°C for 6 hrs, Homogenization 2: 570°C for 6 hrs followed by 450°C for 42 hrs, Annealing: 550°C for 30 sec.

Mn を析出させ、固溶量を減少した場合には、再結晶粒度に対する加熱速度の影響は少なくなり、加熱速度が少々遅くなくても再結晶粒の粗粒化は起こりにくくなる。

しかし、Si を含む場合に予備加熱を行うと、Fig. 2 に示すように、加熱速度の影響が非常に著しくなる。なお Al-1%Mn-0.5%Si 合金では、予備加熱を行わない場合の Mn, Si の総固溶量は約1.2%であつたが、Homogenization 1 の予備加熱によつて固溶量は約0.7%となり、さらに Homogenization 2 の予備加熱では約0.2%に減少し、Si によつて Al-Mn 合金の析出は著しく助長される。したがつて、予備加熱による固溶量の減少も著しいが、それにもかかわらず予備加熱を行つた場合には、再結晶粒度に対する加熱速度の影響は著しくなる。

しかし、予備加熱を行わない場合には、Si によつて再結晶粒度に対する加熱速度の影響は著しく減少し、加熱速度が遅いほうが、かえつて再結晶粒は微細となる。

Photo 1 は、さらにその状況を示す。

このように Si は、Al-Mn 合金の再結晶粒度に対して著しく異なつた影響を及ぼすので、次に予備加熱のない

Fig. 2 Effect of heating rate on recrystallized grain size of unhomogenized and homogenized Al-1%Mn-0.5%Si alloys.

Note Homogenization 1: 570°C for 6 hrs, Homogenization 2: 570°C for 6 hrs followed by 450°C for 42 hrs, Annealing: 550°C for 30 sec.

rapid heat
(1.3×10^3 °C/min.)

slow heat
($5^\circ\text{C}/\text{min.}$)

Photo 1 Grain structures of Al-1%Mn-0.5%Si alloy heated to 550°C at heating rates 1.3×10^3 and $5^\circ\text{C}/\text{min.}$

場合の Si の影響より、さらに検討することにする。

なお、予備加熱のない場合、Si を含む Al-Mn 合金の加熱速度の速い場合の再結晶粒度に既報⁹⁾と Fig. 2 で相違が見られ、Fig. 2 のほうが大きい。このため Si を含む Al-Mn 合金の再結晶粒度に及ぼす加熱速度の影響にも相違が見られるが、この相違は焼なまし時間の相違によるものである。既報は焼なまし時間が 30 min であったのに対し、Fig. 2 は 30 sec の短時間の焼なましであり、このような焼なまし時間の影響についても次において明らかにする。

Fig. 3 および **Fig. 4** は予備加熱を行わない Al-1%Mn 合金および Al-1%Mn-0.5%Si 合金の焼なましに伴う硬さの変化を示す。また、この軟化曲線において再結晶軟化のはじまりと見られる Rs 点を再結晶の開始とし、析出と再結晶との関係の TTT 線図を **Fig. 5** および **Fig. 6** に示す。

冷間加工によって Al-Mn 合金の析出は著しく促進され、さらに Si が加わるとその析出速度が速くなることは、長浜ら⁹⁾によって明らかにされているが、Fig. 6 の TTT 線図においても見られるように、Al-1%Mn-0.5%Si 合金では、短時間の加熱で析出が起こる。また、Si によって析出粒子 (α -Al Mn Si) も非常に微細になるの

Fig. 3 Isothermal annealing curves for unhomogenized Al-1%Mn alloy.

Fig. 4 Isothermal annealing curves for unhomogenized Al-1%Mn-0.5%Si alloy.

で^{6),7)}, Fig. 4 の軟化曲線でも明らかなように、Al-Mn 合金の再結晶の抑制効果は、Si によつてきわめて著しくなる。このため、Al-1%Mn 合金では約 420°C 以上の温度となると再結晶終了後に析出が起こり、析出粒子の再結晶に対する影響はなくなるが、Al-1%Mn-0.5%Si 合金においては、この温度は 550°C 以上のきわめて高い温度となる。

Fig. 7 は塩浴による急速加熱によつて、Al-1%Mn 合

Fig. 5 TTT diagram on precipitation and recrystallization in unhomogenized Al-1%Mn alloy.
Note Rs: Start of recrystallization, Re: End of recrystallization, Numbers in this figure are percentages (wt.-%) of Mn precipitated.

Fig. 6 TTT diagram on precipitation and recrystallization in unhomogenized Al-1%Mn-0.5%Si alloy.

Fig. 7 Number of grains and precipitation of Mn vs. annealing time at 400°C in unhomogenized Al-1%Mn alloy.

金を400℃, **Fig. 8** は Al-1%Mn-0.5%Si 合金を500℃でそれぞれ焼なましを行った場合の再結晶粒の生成について示す。また、この場合の析出についても示したが、いずれも、これらの温度では再結晶過程で析出が起こり、sub-boundary 上に析出する微細な析出粒子によって、subgrain の移動合体が妨げられるので、再結晶核の形成が阻止され、きわめて粗粒の組織となる。しかし Al-1%Mn-0.5%Si 合金においては、**Photo 2** および **Fig. 8** に示すように、最初の間は、析出粒子によって subgrain がピン止めされたと思われる in situ 再結晶の粗大粒と^{8),9)}、少数の不連続再結晶粒からなる粗大組織であるが、その後さらに焼なまし時間が経過すると多数の再結晶粒が形成され、微細な再結晶粒組織となる。このため、Si を含む Al-Mn 合金では、加熱速度が速い場合は、焼なまし時間が長いほうが再結晶粒は微細になる。

したがって、先に述べた **Fig. 2** と既報⁹⁾ との Si を含む Al-Mn 合金の加熱時間による再結晶粒度の相違についても理解できるが、この原因については次のことが明らかにされている。

Al-Mn合金の析出と再結晶挙動については前記以外にも多数の研究があり^{10)~16)}、析出粒子による再結晶の抑制機構について明らかにされている。また Nes¹³⁾ は、 casting時の粗大粒子と微細な析出粒子とを含む Al-Mn 合金の再結晶粒度と析出粒子の分散度(析出粒子の体積分率/析出粒子半径)との関係について明らかにしている。一方、Morris ら^{15),16)}は、Mn 濃度の高い普通純度の Al-1.8%Mn 合金、さらには Al-1.4%Mn 合金においても前述のような焼なまし時間によって、再結晶粒が増加する現象の起こることを見出し、この原因は、 casting時の粗大粒子周辺の sub-boundary 上の析出粒子が、焼なまし時間の経過によって粗大粒子の近傍 (Mn の溶質濃度が低い) に溶け込むようになり、このため粗大粒子周辺の subgrain の移動合体が可能となるので、再結晶核の増加が起こることを電顕によって明らかにしている。また、このような現象が起こるためには、析出粒子の分散度も大きいことが必要であるという結果を得ている。

Photo 3 は Al-1%Mn 合金および Al-1%Mn-0.5%Si 合金の鋳塊の組織を示すが、高純度アルミニウムを用いた Al-1%Mn 合金では晶出物はほとんど認められない。しかし、Si の添加によって Al-Mn 合金における晶出は著しくなる。したがって、粗大粒子が増加すると共に、析出粒子の分散度も Si によって大きくなるので、Al-Mn 合金に Si が加わると、前述のような in situ 再結晶後、さらに焼なまし時間の増加によって、再結晶粒が著しく増加する現象が起こりやすくなるものと考えられる。

Fig. 8 Number of grains and precipitation of Mn and Si vs. annealing time at 500°C in unhomogenized Al-1%Mn-0.5%Si alloy.

Photo 2 Grain structures of unhomogenized Al-1%Mn-0.5%Si alloy annealed at 500°C for 30 and 100 min.

Photo 3 Cast structures of Al-1%Mn and Al-1%Mn-0.5%Si alloys.

また、このような現象は加熱速度が遅い場合にも起こるのではないかと考えられる。このため**Fig. 9** は、焼なましの前に Al-1%Mn 合金に対しては370℃、Al-1%Mn-0.5%Si 合金は 400℃で種々の時間の予熱を行い**、そののち急速加熱によって、550℃で30 secの短時間の焼なましを行った場合の再結晶粒度に及ぼす予熱時間の影響について示す。Al-1%Mn 合金では、予熱時間が長

** **Fig. 3, 4** の軟化曲線からも明らかなように、この温度では両合金とも連続再結晶が支配的で、10³ minの予熱を行っても不連続再結晶はごくわずかしら認められない。

Fig. 9 Effect of preheating time on grain size of unhomogenized Al-1%Mn and Al-1%Mn-0.5%Si alloys.

Note: Preheating: 370°C for Al-1%Mn alloy, 400°C for Al-1%Mn-0.5%Si alloy, Final annealing: 550°C for 30 sec.

Fig. 10 Effect of preheating temperature on grain size of two-step homogenized Al-1%Mn and Al-1%Mn-0.5%Si alloys.

Note: Annealing was carried out at each preheating temperature for 5 min and then at 550°C for 30 sec.

Fig. 11 Grain size, hardness, and precipitation of Mn and Si vs. annealing time at 300°C for two-step homogenized Al-1%Mn-0.5%Si alloy.

くなると再結晶粒は著しく粗粒になる。このことは、予熱によつて析出する粒子の核形成の抑制によるものと思われる。しかし Al-1%Mn-0.5%Si 合金においては、短時間 (30 sec) の予熱では、前述のような in situ 再結晶粒と見られる粗大組織であるが、予熱時間が長くなる

と微細な再結晶組織となる。この原因についても、予熱時間が長くなると前述のような析出粒子の溶解が起こるか、あるいは析出粒子の成長による分散度の減少によるためと考えられるが、このような予熱による効果は、加熱速度が遅い場合にも得られるので、Si を含む場合は、加熱速度が遅いほうが再結晶粒は細くなる。

次に、予備加熱を行った場合には、Si によつて Al-Mn 合金の再結晶粒度に対する加熱速度の影響が著しくなることについて検討する。

Fig. 10 は Homogenization 2 のような、じゅうぶんな予備加熱を行った Al-1%Mn 合金および Al-1%Mn-0.5%Si 合金を焼なましの直前に、200°C 以上の種々の温度で 5 min の予熱を行い、そののち急速加熱によつて 550°C、30 sec の短時間の焼なましを行った場合の再結晶粒度に及ぼす予熱温度の影響について示す。Al-1%Mn 合金においては、このような予熱による著しい影響は見られないが、Al-1%Mn-0.5%Si 合金では、300°C の予熱によつて再結晶粒が粗粒になることが認められる。

Fig. 11 は予備加熱を行った Al-1%Mn-0.5%Si 合金を 300°C で焼なましを行った場合の析出と再結晶との関係、および硬さの変化について示す。冷間加工によつて析出が助長されるので、鋳塊の予備加熱をじゅうぶんに行つても、なお少量の残存固溶の溶質原子が焼なましの際に析出し、Al-1%Mn-0.5%Si 合金では、300°C で析出と再結晶が競合して起こる。その析出量は多くはないが、Si を含む場合は析出粒子が細かいので、再結晶核の形成が阻止され粗粒の再結晶粒が生じる。また、鋳塊の予備加熱を行った場合には、焼なまし時間が長くなつても再結晶粒の増加現象はほとんど起こらない。

したがつて、微細な再結晶粒が生じるためには、このような温度を速い加熱速度で通過することが必要となる。このため、Si は鋳塊の予備加熱を行った場合には、Al-Mn 合金の再結晶粒度に及ぼす加熱速度の影響を著しくするものとみられる。

4. 総 括

以上の結果について総括すると、

1) 鋳塊の予備加熱を行わない場合、Al-Mn 合金に Si が加わると、in situ 再結晶後さらに焼なまし時間が長くなると多数の核が形成され、再結晶粒が著しく増加する現象が起こりやすくなる。

2) この現象は加熱速度が遅い場合においても起こる。このため、鋳塊の予備加熱のない場合には、Al-Mn 合金に Si が加わると、加熱速度が遅いほうが再結晶粒は微細になる。また加熱速度が速い場合は、焼なまし時間が長いほうが再結晶粒は細くなる。

3) 鋳塊の予備加熱を行つた場合は、反対に Si は Al-Mn 合金の再結晶粒度に及ぼす加熱速度の影響を著しくする。この原因は、冷間加工によつて析出が助長されるので、じゅうぶんな鋳塊の予備加熱を行つても焼なましの際には、なお少量の残存固溶の溶質原子が析出し、Si を含む場合には、300℃付近で析出と再結晶が競合して起こり、粗粒の再結晶粒が生じる。したがつて、このような温度を通過する加熱速度によつて再結晶粒度が著しく影響されるためである。

参 考 文 献

- 1) 清水, 中谷: 軽金属, No. 16 (1955), 76.
- 2) 畑: 日本金属学会昭和28年春期大会講演概要, p. 39.
- 3) 山田, 伊藤: 軽金属, **22** (1972), 128.
- 4) Hone, A. and Pearson, E. C.: *Metal Progress*, **58** (1950), 713.
- 5) L. J. Barker: *Trans. of A.S.M.*, **42** (1950), 347.
- 6) 長浜, 高橋, 三木: 軽金属, **21** (1971), 444.
- 7) 清水, 中谷, 吉崎: 軽金属, No. 23 (1957), 23.
- 8) グェン, 村上, 高橋: 軽金属, **30** (1980), 324.
- 9) 馬場, 金子: 軽金属, **31** (1981), 解説, 553.
- 10) 尾堂, 松崎, 新居: 軽金属, **22** (1972), 252.
- 11) E. Nes, J.D. Embury: *Z. Metallkde*, **66** (1975), 589.
- 12) E. Nes: *Aluminium*, **52** (1976) 560.
- 13) E. Nes: *Acta Met.*, **24** (1976) 391.
- 14) グェン, 村上, 高橋: 軽金属, **28** (1978), 514.
- 15) P. L. Morris, B. J. Duggan: *Metal Science*, **11** (1978), 1.
- 16) P. L. Morris: 軽金属学会第60回春期大会講演概要, (1981), 35.