アルミニウムの再結晶に及ぼすけい素 および 鉄, けい素共存の影響

山田 始*・田中他喜男*

Effects of silicon and of coexistence of iron and silicon
on recrystallization of aluminum

UDC: 669.715'782'1: 621.785.3

Hajime YAMADA* and Takio TANAKA*

Precipitation of silicon during annealing also retards the recrystallization of aluminum, but its effect is smaller than that of precipitation of iron compound in Al-Fe alloy. Precipitated silicon particles due to precipitation treatment prior to annealing have a marked effect for particle stimulated nucleation same as primary inclusions of Al_3Fe . The recrystallization of Al-Fe alloys is accelerated by the coexisting silicon, and generation of grain is also intensified. The grain growth at high temperature is prevented remarkably by the primary inclusions in Al-Fe alloys. Its grain growth, however, is rather intensified by the coexisting silicon.

(Received July 16, 1984)

1. 緒 言

アルミニウムの再結晶に及ぼす主要不純物, 鉄の影響については数多くの研究があり^{1)~4)}, 焼なまし時に再結晶と競合して析出する Al_3Fe 粒子はサブグレインの形成, 成長を妨げ, アルミニウムの再結晶を著しく遅らせることが明らかにされている。

しかし, 一般にアルミニウムには, けい素もまた主要不純物として不可避に含まれるので, けい素が共存した場合の鉄の影響も実際には重要である。したがって, 次にアルミニウムの再結晶に及ぼすけい素および鉄, けい素共存の影響をそれぞれ鉄単独の場合の影響と比較して調べた。

2. 試料および実験方法

試料の作製は高純度アルミニウムを用い鉄, けい素をそれぞれ母合金によつて添加したのち $8 \times 50 \times 80$ mm 寸法の常温の金型に鋳造した。Table 1 に試料の分析結果を示す。このうち, Al-Si 系の試料はけい素の影響を調べるためのもので, その鋳塊は面削りをしたのち 500°C , 5 hr の溶体化処理を行い, けい素固溶体の単一相とした。また, 0.33%Si 合金の鋳塊の一部を 350°C ,

50 hr の析出処理により, 固溶体と析出けい素の 2 相とした。

Al-Fe, Al-Fe-Si 系の試料は, 鉄および鉄, けい素共存の影響を調べるためのもので, これらの鋳塊に対しては 635°C , 6 hr の溶体化処理を行った。この結果, 0.03%Fe 合金は鉄固溶体の単一相であるが, 他はいずれも晶出物と固溶体の 2 相をなすものである。

以上の試料の鋳塊は, すべて冷間圧延だけで, 92%の圧延率に圧延して試料とした。

固溶量は電気抵抗より求め, 析出量あるいは晶出量は

Table 1 Chemical composition of specimens (wt%)

	Si	Fe	Cu	Mg	Mn	Al
Al-Si	0.13	0.01	0.003	0.002	<0.001	bal.
	0.33	0.01	0.003	0.002	<0.001	bal.
Al-Fe	0.01	0.03	0.002	0.003	<0.001	bal.
	0.01	0.10	0.002	0.003	<0.001	bal.
	0.01	0.29	0.002	0.002	0.001	bal.
Al-Fe-Si	0.16	0.10	0.002	0.003	<0.001	bal.
	0.36	0.11	0.003	0.003	<0.001	bal.
	0.22	0.29	0.002	0.002	0.001	bal.

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

固溶量と分析値をもとにして算出した。この場合、Al-Fe 合金においては鉄の固溶による電気抵抗の増加値は $2.62 \mu\Omega\text{cm}/\text{wt}\%$ ^(4),5) の値を用い、また固溶体と晶出物の 2 相からなる Al-Fe 合金の晶出物による電気抵抗の増加に対しては $0.058 \mu\Omega\text{cm}/\text{wt}\%$ ⁽⁶⁾ の値を用いた。Al-Si 合金においては、固溶けい素による電気抵抗の増加は $1.02 \mu\Omega\text{cm}/\text{wt}\%$ ⁽⁶⁾ の値があるが、本実験に用いた試料では $0.84 \mu\Omega\text{cm}/\text{wt}\%$ になったので、この値を用いた。

Al-Fe-Si 合金では、このようにして析出量を求めることができないので、析出度によつて析出の状況を表すことにしたが、析出度は原点における電気抵抗の値と平衡値との差を100%とし、それぞれの時間の電気抵抗の減少量を百分率で表したものである。

また、これらの試料の加工硬化による電気抵抗の増加値は $0.02 \sim 0.03 \mu\Omega\text{cm}$ であったが、再結晶過程における加工硬化の残留による増加値は、この値に未再結晶率を乗じたものとし、それぞれこれらの値を差引いた。なお、加工硬化による電気抵抗の増加値は、圧延した試料の電気抵抗と、さらにこの試料を鋳塊の溶体化処理温度で短時間の焼なましを行つたときの抵抗値との差によるものである。電気抵抗は電位差計により 20°C で測定した。

単位面積当りの晶出粒子数については、一般に晶出粒子の分散は析出粒子のように均一でないので、光顕による倍率200倍のときの一視野（約 $0.4 \times 0.3 \text{ mm}$ ）内の粒子（粒径約 $1 \mu\text{m}$ 以上）の数をすべて測定して求めた（粒子数の測定には、さらに2.5倍の引伸しをした）。なお、晶出粒子あるいは析出粒子の現出は 0.5% HF 腐食液によつた。

焼なましは塩浴による急速加熱によつたが、加熱速度の遅い場合の影響についても調べるため、一部は $120^\circ\text{C}/\text{hr}$ の加熱速度の焼なましも行つた。

3. 実験結果

3.1 けい素の影響

Fig. 1 は固溶体単一相の Al-0.13, 0.33%Si 合金、および析出処理を行つた Al-0.33%Si 合金の 350°C における再結晶の進行、ならびに再結晶粒の発生状況について示したものである。

一般に、再結晶に及ぼす元素の影響については、再結晶前に存在する晶出物あるいは析出物による影響と再結晶過程における析出物、および固溶体による影響とに分けて調べる必要がある。このため図にはさらに、これらによる影響もわかるように示したが、この温度で再結晶時に析出が起こるのは、固溶体単一相の 0.33%Si 合金だけである。その析出は、焼なまし時間 4 ~ 5 min で、大部分のけい素が析出し、固溶体のけい素濃度も

Fig. 1 Effects of precipitation of silicon during annealing and precipitates due to precipitation-treatment prior to annealing on progress of recrystallization, generation of grain in Al-Si alloys. Annealing temperature, 350°C .

0.13%Si 合金の固溶体に近いものとなる。したがつて両者の再結晶状況を比較すると、焼なまし過程において再結晶と競合して起こるけい素の析出もまた再結晶を遅らせ、再結晶粒の発生数を減少することが明らかである。

しかし、けい素の析出による再結晶の抑制効果は Fig. 2 に示す鉄の析出の場合にくらべると非常に小さい。例えば、けい素の析出の場合には、再結晶は 350°C , 5 min で完了するが、鉄の析出の場合には、けい素にくらべ析出量は少ないが 400°C , 20 min でも再結晶は完了するに至らない。

Fig. 2 Effects of precipitation of iron compound during annealing and primary inclusion on progress of recrystallization, generation of grain in Al-Fe alloys. Annealing temperature, 400°C .

この理由として、けい素の析出の場合には **Photo 1** に示すように、光顕でも見られるような大きな粒子が多数存在する。これらの大きな粒子の平均粒径は約 $1.3\ \mu\text{m}$ で、その粒間隔も平均で約 $2.5\ \mu\text{m}$ であった。

一般に、粒径 $\leq 0.1\ \mu\text{m}$ の微細な分散粒子はサブグレインの形成、成長を妨げ、粒径 $\geq 1\ \mu\text{m}$ の粗大な分散粒子は再結晶核の生成位置となり、再結晶を促進するといわれている^{7),8)}。あるいはまた、粒径 $0.3\ \mu\text{m}$ 以下、粒子間隔約 $1\ \mu\text{m}$ 以下の場合には再結晶を抑制、以上ならば促進するともいわれている⁹⁾。したがって、けい素の析出に見られる粗大粒子は微細粒子による再結晶の抑制作用を阻害し、再結晶を促進する働きがある。このためけい素の析出による再結晶の抑制効果は、鉄のように著しくないものとみられる。

次に、鋳塊の析出処理を行った Al-0.33%Si 合金の固溶体のけい素濃度も 0.13%Si 合金の固溶体のけい素濃度に近いものであり、両者の再結晶状況を比較すると、析出処理により再結晶前に析出させたけい素粒子は、再結晶粒の発生数を著しく増加し、また再結晶も著しく促進

Photo 1 Precipitation of silicon during anneal at 350°C for 30 min in Al-0.33%Si alloy.

Photo 2 Precipitated silicon in specimen of Al-0.33%Si alloy precipitation-treated.

することが認められる。**Photo 2** は、この析出粒子の状況を示したものであるが、平均粒径は約 $6\ \mu\text{m}$ 、粒間隔は約 $50\ \mu\text{m}$ であった。

Fig. 3 は Al-0.13%, 0.33%Si 合金の再結晶粒度と焼なまし温度との関係について示したものである。けい素を含む場合は **Fig. 4** に示した鉄の場合に比し、高温における再結晶粒の粗粒化が著しいことが見られる。この原因について考察するため、それぞれの図には、この

Fig. 3 Recrystallized grain size vs. annealing temperature for Al-0.1, 0.3%Si alloys. Annealing was carried out for 90 sec at each temperature except for 5 min at 350°C .

Fig. 4 Recrystallized grain size vs. annealing temperature for Al-0.03, 0.29%Fe alloys. Annealing was carried out for 90 sec at each temperature except for 25 min at 400°C .

場合の各温度における析出物および晶出物の量についても示したが、Fig. 4より、晶出粒子が高温における再結晶粒の粗粒化の抑制に対して著しい効果を有することが認められる。晶出物の効果については、さらに後述するが、このような晶出粒子の有無が高温における再結晶粒の粗粒化に対する鉄、けい素の相違の最も大きな要因をなすものとみられる。このほか、晶出粒子ほどではないが、焼なまし時の析出粒子もまた、再結晶粒の粗粒化の抑制に対し効果のあることが両図を比較すると見られる。

3.2 鉄、けい素共存の影響

Fig. 5はAl-Fe合金にけい素が共存した場合の再結晶粒度に対する影響について示したものである。けい素が共存すると鉄単独の場合よりも再結晶粒は細くなることが見られる。なお、鋳塊の析出処理を行った場合についても示したが、析出処理は450°Cで30 hr行つたものである。

さらに、けい素が共存した場合の再結晶の進行、および再結晶粒の発生状況をFig. 6に示す。また、再結晶過程における析出状況についても析出度によって示した。比較のためAl-0.29%Fe合金の析出度についても示したが、いずれも再結晶と競合して析出の起こっていることが明らかである。しかし、Fig. 2の鉄単独の場合と比較すると、けい素の共存によって再結晶は促進され、再結晶粒の発生数も増加することが明らかである。

この原因について考察するため、Fig. 7はけい素共存による晶出粒子数の相違について示したものである。晶出粒子の大きさは、いずれも約1~6 μm のものであるが、けい素の共存によって晶出粒子の数が増加することが認められる。

Fig. 5 Effect of silicon on recrystallized grain size of Al-0.1%Fe and 0.29%Fe alloys. Annealing was carried out at 400°C for 90 sec.

Fig. 6 Progress of recrystallization and generation of grain vs. annealing time for Al-0.10%Fe-0.16%Si, Al-0.29%Fe-0.22%Si alloys. Annealing temperature, 400°C.

Fig. 7 Increase of primary inclusions in Al-Fe alloys by the coexisting silicon.

また前掲 Fig. 2 において、このような晶出粒子は再結晶粒の発生および再結晶粒の促進に対して著しい効果を有することが見られたので、次にこの晶出粒子数と再結晶粒度との関係をAl-Fe合金およびAl-Fe-Si合金について求めてみるとFig. 8に示すような結果となつた。図より晶出粒子数が増加すると再結晶粒は細くなることが認められ、とくに加熱速度の遅い場合には、このような晶出粒子による効果は著しい。

このように、けい素の共存によってAl-Fe合金の晶出粒子数が増加し、これが再結晶を細かくする要因をなすことが明らかとなつたが、しかし、この晶出粒子数と再結晶粒度との関係において、Al-Fe合金は直線関係に近い関係を示したのに対しAl-Fe-Si合金では、このような関係は示さなかつた。このことは、Al-Fe-Si合金

においては、晶出粒子による影響以外に、けい素と鉄の比率による析出物の相違、例えば、けい素粒子の析出¹⁰⁾、あるいはその割合の増加などによる影響もあるものと思われる。

さらに、 Al_3Fe 晶出粒子は高温における再結晶粒の粗粒化に対しても著しい効果のあることが見られたので、Fig. 9 はこれについて示したものである。このような晶出粒子の効果は Fig. 10 に示すように、Al-Fe 合金にけい素が共存した場合においても見られる。しかし、共存するけい素の量が多くなると高温における再結晶粒の粗粒化は著しくなる傾向が見られる。

Fig. 8 Recrystallized grain size vs. number of primary inclusions for Al-Fe and Al-Fe-Si alloys. Annealing temperature, 450°C.

Fig. 9 Grain size vs. number of primary inclusions for Al-Fe alloys at 600°C.

Fig. 10 Effect of silicon on grain growth in Al-Fe alloys at 600°C.

4. 総括

以上の結果について総括すると、

- 1) 再結晶と競合して起こるけい素の析出も再結晶を遅らせ、再結晶粒の発生数を減少する。しかし、けい素の析出による再結晶の抑制効果は鉄の析出の場合にくらべると非常に小さい。
- 2) 析出処理により再結晶前に析出したけい素粒子は再結晶を促進し、再結晶粒の発生数も著しく増加する。
- 3) 鉄にけい素が共存すると、鉄単独の場合よりも再結晶粒の発生数は増加し、再結晶も促進される。
- 4) 晶出粒子は再結晶粒の発生数を増加し、再結晶を促進するが、高温における再結晶粒の粗粒化を抑制する効果も有する。このような晶出粒子による粗粒化の抑制効果は、Al-Fe 合金にけい素が共存した場合においても見られる。しかし、共存するけい素量が多くなると高温における再結晶粒の粗粒化は著しくなる。

終わりに、本研究は軽金属奨学会の助成金によることを付記し、深甚なる感謝の意を表する。

参考文献

- 1) R. P. Mould and P. Cotterill: *J. Mater. Sci.*, **2** (1967), 241.
- 2) I. Miki and H. Warlimont: *Z. Metallkde*, **59** (1968), 408.
- 3) K. Holm and E. Hornbogen: *J. Mater. Sci.*, **5** (1970), 655.

- 4) K. Ito, K. Lücke and R. Rixen: *Z. Metallkde*, **67** (1976), 338.
- 5) J. K. Edgar: AIME Technical Publication No. 2389 (1948).
- 6) K. R. Van Horn: Aluminum (1967) American Society for Metals.
- 7) F. J. Humphreys: *Acta Met.*, **25** (1977), 1323.
- 8) 伊藤：軽金属, **30** (1980), 337.
- 9) P. W. K. Honeycombe: 日本金属学会会報, **22** (1983), 377.
- 10) 新井, 大塚, 鈴木, 田口, 豊田：軽金属, **32** (1982), 169.