

Al-Mn 合金熱間圧延材の等温熱処理による微細組織形成

鳥越 翔真¹・中嶋 洋介¹・都築 佑翔¹
高田 健^{2*}・池田 賢一³・井 誠一郎⁴Journal of The Japan Institute of Light Metals, Vol. 75, No. 3 (2025), 137-143
© 2025 The Japan Institute of Light MetalsEvolution of microstructures during isothermal
annealing in hot-rolled Al-Mn alloysShoma TORIGOE¹, Yosuke NAKASHIMA¹, Yusho TSUZUKI¹
Ken TAKATA^{2*}, Ken-ichi IKEDA³ and Seiichiro II⁴

Effect of annealing in hot-rolled Al-Mn alloys on evolution of microstructures was investigated using hardness measurement, electrical-resistivity measurement, backscattered electron images, and its image analysis. Electrical resistivity with annealing time exhibited that residual content of solute Mn and Fe atoms remained in hot-rolled alloys, and that their number was decreased during annealing. Analysis of backscattering electron image of scanning electron microscopy provided that a lot of precipitates grew by consumption of such solute atoms. We considered that the growth of precipitates during isothermal annealing affect recovery and recrystallization and then hardness behavior.

(Received August 22, 2024 Accepted January 28, 2025)

Keywords: Al-Mn alloy; hot rolling; second-phase particle; electrical resistivity; image analysis

1. 緒 言

飲料缶などに使用される Al-Mn 合金において、合金中の Al-Mn-Fe-Si 系の分散粒子は降伏強度や引張強度の向上に大きな影響を及ぼすことが報告されている¹⁾。これまで、同合金中の析出物や晶出物に関しては、その分布状態や微細組織への影響調査が多く行われてきた。

鋳造、均質化熱処理、冷間圧延、焼きなましの順に施した同合金の調査では Huang らの研究が挙げられる。彼らは Al-0.390 mass%Mn-0.530 mass%Fe-0.152 mass%Si にて、均質化熱処理と冷間圧延後に 400°C までの熱処理を施したとき、高い昇温速度では再結晶と析出は同時に発現し、低い昇温速度では再結晶前に析出が起ることを報告している。また、微細な析出物は圧延方向に平行な亜粒界および結晶粒界上に析出することを報告している²⁾。Li らは AA3003 合金の α -Al (Mn, Fe) Si 粒子はアルミニウム母相と部分的に整合していることを報告している¹⁾。

鋳造、熱処理の順に施した同合金の調査では直江らの研究が挙げられる。彼らは 3003 アルミニウム合金の連続鋳造材、

およびその 350, 400, 500°C の熱処理材の X 線マイクロアナライザーによる調査を実施し、鋳造材中の固溶 Mn と固溶 Si は 400°C 近傍での熱処理により微細析出物を形成する可能性を報告している。すなわち、鋳造材には固溶 Mn と固溶 Si が残存しており、これらは続く熱処理にて析出物を形成することが示唆されている³⁾。また、渡辺らは、3004 アルミニウム合金の DC 鋳塊の再溶解材とその熱処理材のマイクロ組織観察を実施し、Al₆(Fe, Mn) 晶出物が熱処理により α -Al₁₂(Fe, Mn)₃Si 相へと相変態することを報告している。ここでは、熱処理により、晶出物と析出物の数密度が変化することが示されている⁴⁾。一般に、実用 Al-Mn 合金では Mn はほとんど固溶されず、鋳塊加熱、熱間加工等の過程で析出した金属間化合物の形で微細に分散していると考えられている⁵⁾。しかし、上記知見より鋳造材中の固溶 Mn や固溶 Si の残存が報告されている。これら固溶原子が鋳造後の熱処理にて析出物を形成することが示されている。更に、この熱処理により晶出物の形態が変化することも示されている。

これら知見に基づけば、鋳造後に熱間圧延を実施すれば、残存する固溶 Mn や固溶 Si が晶出物と析出物の数密度に変化

¹ 大同大学工学部機械工学科 大学院生 (〒457-8530 愛知県名古屋市長春町10-3) Department of Mechanical Engineering, Daido University (10-3, Takiharacho, Minami-ku, Nagoya-shi, Aichi 457-8530)

² 大同大学工学部機械工学科 (名古屋市) Department of Mechanical Engineering, Daido University (Nagoya-shi, Aichi)

³ 北海道大学大学院 工学研究院 材料科学部門 (札幌市) Division of Materials Science and Engineering, Faculty of Engineering, Hokkaido University (Sapporo-shi, Hokkaido)

⁴ 国立研究開発法人物質・材料研究機構 構造材料研究センター (つくば市) Research Center of Structural Materials, National Institute for Materials Science (NIMS) (Tsukuba-shi, Ibaraki)

* 責任著者 E-mail: k-takata@daido-it.ac.jp

をもたらす、この変化は再結晶組織に影響を及ぼすことが考えられる。

土公らは、3003アルミニウム合金にて、鑄造、均質化熱処理、熱間圧延、熱処理を順に実施し、各工程での組織観察を光学顕微鏡と透過型電子顕微鏡 (Transmission Electron Microscope : TEM) を用いて実施した。均質化熱処理の温度により、鑄造材中の固溶元素による析出物の形態 (大きさと密度) 変化を報告している。また、熱間圧延中にも析出が発生したと判断して、この析出は再結晶に影響を及ぼしたと考察している⁶⁾。この報告では、熱間圧延前に実施した均質化熱処理後にも残存固溶元素が存在し、これが熱間圧延での析出に寄与する可能性を示している。この知見をふまえると、均質化熱処理を省略した場合、熱間圧延での析出が再結晶により大きな影響を及ぼすことが予測される。

田中らは均質化熱処理を実施しない場合の析出物挙動に着目した。彼らは、1050アルミニウム合金にMnを添加した合金を鑄造し、その後熱間加工を施し、微細な析出物や化合物が形成されることを報告している⁷⁾。これらは転位の移動障害となり、再結晶組織形成に影響を及ぼすことが予想される。Bladeは、Al-1.2%Mn合金にFeとSiが添加された合金では、これら添加元素は鑄造後の熱間圧延時の再結晶を遅延させることを報告している⁸⁾。

同合金の再結晶組織は熱間圧延後の焼きなましにより得られる。山瀬らはこの焼きなまし中の析出物と晶出物の分布形態を調査した。Al-Mn合金の鑄造後、300°Cの熱間圧延、400°Cにて86.4 ksの焼きなましの順に実施し、STEM-EDSにより、 1.42×10^{-6} mの晶出物と 0.14×10^{-6} mの析出物を観察している⁹⁾。焼きなまし中のこれら析出物と晶出物の分布形態や形成は再結晶組織形成に影響を及ぼす可能性がある。なお、山瀬らは田中らが報告した微細析出物と化合物を観察していない。

本研究では、山瀬らの研究と同様に、鑄造、熱間圧延後の焼きなまし時での析出物と晶出物の分布状態の変化を調査した。これまでの解析手法では、結晶粒内の析出物の分布状態はTEM画像解析により評価されてきた。また、固溶原子の減少量は電気抵抗率の変化量から算出でき、析出物の総体積はこれら固溶原子の減少量に対応していることが報告されている^{10), 11)}。このように、TEMと電気抵抗率測定の活用は析出物の分布状態を把握するための有効な手段であることが示されている。しかし、TEM画像を用いた分布状態の算出では、3次元状態の2次元投影を解析するため、試料厚さ方向の分布状況を解析する必要がある。この解析は困難である。本研究では走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope : SEM) の反射電子像による解析を適用し、得られた画像に数値解析を施し、分布状態の数値評価を実施した。

2. 実験方法

2.1 試料作製

本研究では1050アルミニウム合金相当の純アルミニウムに1 mass%のMnを添加した合金を使用した。その成分をTable 1に示す。株式会社UACJにて、本合金のDC鑄造、圧下率80%の熱間圧延を順に施した。熱間圧延は300, 400, 500°Cの開始温度にて、板厚10 mmから8, 6, 4, 2 mmの順に4回のパス回数にて実施した。上記温度を開始温度として設定

し、2パス後と4パス後に接触温度計を用いてそれぞれのパス後の終了温度を測定した。300°Cの開始温度の場合、2パス後と4パス後の終了温度はいずれも290°Cであった。400°Cの開始温度の場合、2パス後と4パス後の終了温度はそれぞれ380°Cと370°Cであり、500°Cの開始温度の場合、2パス後と4パス後の終了温度は、それぞれ490°Cと440°Cであった。熱間圧延終了後、空冷を施し、続く焼きなましまで、熱間圧延材を室温にて保持した。以降、それら材料をそれぞれHR300, HR400, HR500と記載する。熱間圧延材に大気炉中400°Cにて0.12, 0.9, 9, 86.4, 864 ks保持の焼きなましを施し、硬さ測定、電気抵抗率測定、およびSEM観察を実施した。大気炉投入後、試料温度は約0.3 ksにて目標である400°Cに到達した。電気抵抗率測定では圧延方向長さが15 mm、幅5 mm、板厚3 mmの試験片を使用した。試料板厚の1/2面、すなわちRD×TD面にてSEM観察を実施した。SEM観察試料作製では、#400, #800, #1200, #1500, #2000の順の機械研磨、およびそれにつづくアルミナ1.0 μm、アルミナ0.3 μm、ダイヤモンド研磨液0.25 μmの順の鏡面研磨を実施した。

2.2 測定

2.2.1 硬さ試験

マイクロビッカース試験機 (株式会社フューチュアテック, FV-310e) を用いて、SEM観察面にビッカース硬さ試験を実施した。試験荷重は4.9 Nとし、5回測定での平均値を求めた。

2.2.2 電気抵抗率測定

電気抵抗率測定は直流定電流下での四端子法により計測した電圧値から求めた。Fig. 1に測定概略図を示す。試料と市販のA1100アルミニウムの比較試料を直列接続し、それぞれの電圧を測定し、電気抵抗率を算出した。比較試料は幅4 mm、長さ30 mm、板厚1 mmである。直径1 mmの銅線を埋め込んだ、幅18 mm、長さ40 mm、板厚3 mmのポリカーボネート製板材、および銅線を埋め込まない同板材でそれぞれの試料を挟み、銅線間の電圧を測定した。銅線間隔は、試料では6 mm、比較試料では11 mmとした。電圧は3706A System Switch Multimeter (Keithley Instruments社) により測定し、大きさ100 mA、1/4 Hzのパルス直流電流を6242 (株式会社エーディーシー) を用いて両試料に印加した。パルス電流を使用した理由は回路上のバックグラウンド電圧を除去するためである。印加電流によるジュール熱の電圧測定への影響を抑制するため、測定時間は60 sとした。両試料はビニール袋内に封入し、氷水中に投入して測定を実施した。測定中の水温は $0 \pm 1^\circ\text{C}$ の温度範囲になるよう温度を制御した。

2.2.3 SEM反射電子像解析

SEMの反射電子像 (以降SEM像と記載) はJSM-7800F (日本電子株式会社) を用いて加速電圧15.0 kVにて、ワークディスタンス (WD) 11 mmで取得した。画像取得に際しては、試料ごとにコントラスト調整を行なったが、同一試料内の観察視野ごとのコントラスト調整は行わなかった。試料ごとのコントラスト調整は目視判断にて白黒判定が変化しない範囲で実施した。コントラスト調整により、照射電流は変化せず、視野内に組成の異なる構造物の比率が異なるときに変わることにはあるが、得られた反射電子像の白黒判定精度は続く画像処理上の白黒の2値化へ反映できる。そのため、コントラスト調整による変化は取得した反射電子像の白黒判定精度には

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

Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Al
0.16	0.34	<0.01	0.99	<0.01	<0.01	<0.01	0.01	Bal.

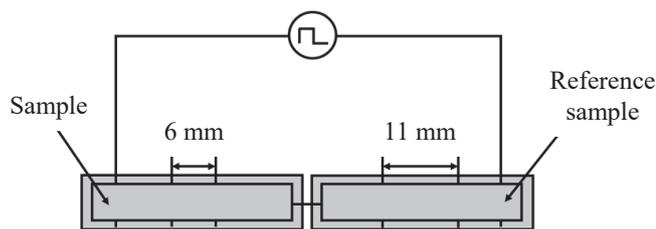


Fig. 1 Schematic illustration of electrical resistivity measurement.

大きな影響を及ぼさない。上記範囲内では白黒判定精度が大きく変化しないことは機器製造元より保証されている。以上より、全試料にて得られた反射電子像の白黒判定精度は等価な判断に供するものと言える。したがって、続く画像解析結果は、全試料の等価な評価が可能であると判断される。なお、画像解析は機器製造元とは別の会社にて販売されている画像解析ソフトウェアを用いて実施した。

本研究では機械学習型材料情報統合システム Materials Genome Integration System for Phase and Property Analysis (株式会社新興精機, MIPHA) を用いて, SEM 像中の析出物と晶出物の抽出とそれらの個数分布を算出した。

MIPHA では、まず任意の1枚の画像にて析出物・晶出物を判断する機械学習を実施する。対象画像中の析出物と晶出物、および背景を決める2つの輝度値を人為的に入力し、この入力値を基準としてSEM像内を2つの領域に分類する2値化表示を行う。解析により表示された析出物と晶出物の領域が、もとのSEM像の析出物と晶出物を反映していないと目視判断された場合、輝度値の修正入力を実施する。目視にて2つの領域を正確に分類表示されたと判断されるまで、この操作を繰り返す(機械学習)。それら領域と背景とが分類表示されたと目視判断されれば、最後の入力輝度値を基準値とする。以降、この基準値を用いてほかのすべての画像にて2つの領域への分類を実施する。最後に、分類された画像ごとに、画像中の個々の析出物と晶出物の領域とその面積を集計出力する。

3. 実験結果および考察

3.1 熱処理による硬さ変化と電気抵抗率変化による固溶量の評価

Fig. 2 に焼きなまし時間に対する硬さ変化を記す。全材料の回復・再結晶は 864 ks で完了する¹²⁾。HR500 材の軟化速度は HR400 材と HR300 材のそれらよりも小さく、HR300 材と HR400 材の軟化挙動と HR500 材のそれとは異なった。これら差異の原因は、析出物・晶出物の形態(大きさ、数密度)、および固溶原子数の影響も考えられるが、Al-Mn 合金は基本的に析出強化合金ではないことをふまえると、回復・再結晶挙動の差異によるものと考えられる。土公らは、TEM 観察により、亜結晶粒は、亜粒界上の析出相によりピン止めされて成長しないことを報告している⁶⁾。また、直江らは、 casting 材では熱処理温度 400°C 近傍を境に、微細析出物から共晶への変

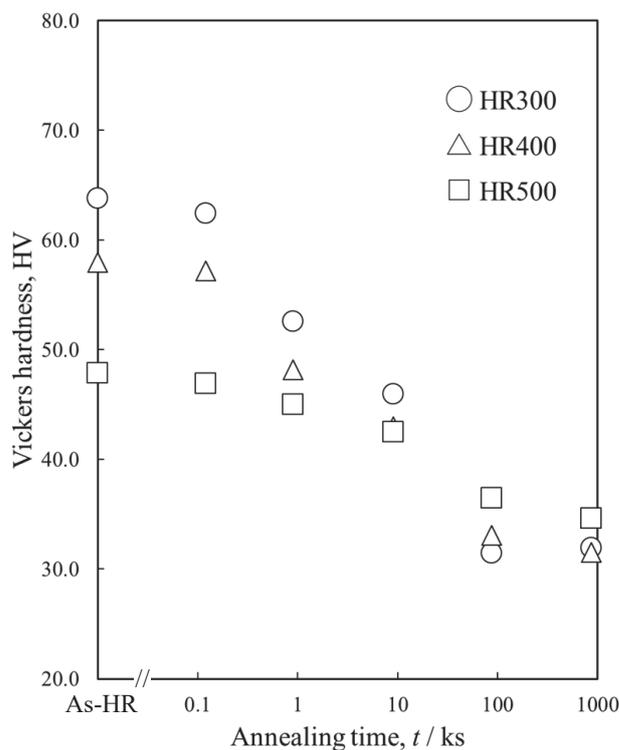


Fig. 2 Hardness behavior with annealing time at 400°C in specimens hot-rolled at 300, 400, and 500°C¹²⁾.

化を報告している³⁾。熱間圧延材の焼きなましにおいても、300°C と 400°C の析出物・晶出物形態と 500°C でのそれらとは異なっている可能性がある。軟化挙動の差異の原因はこのような析出物や晶出物の形態の差異による下部組織の違いによる可能性がある。Fig. 2 の詳細な考察は以降に示す析出物分布解析をふまえて後述する。

各電気抵抗率測定での比較試料の電気抵抗率値は $2.8 \pm 0.05 \times 10^{-8} \Omega \cdot m$ であった。20°C での AA1100 合金の文献は $2.9 \times 10^{-8} \Omega \cdot m$ ¹³⁾ であった。材料内部の組織変化による電気抵抗率変化を正確に測定するためには、試料温度を一定に調整する必要がある。しかし、一般に測定ごとに試料温度は異なる。そのため、本研究では、測定ごとに純アルミニウムの比較試料の電気抵抗率値を測定し、本試料の値との差を求め、この値より組織変化の考察を試みた。しかし、本測定では、測定ごとの比較試料の電気抵抗率変動が極めて小さく、かつ文献値にほぼ等しかった。そのため、差を求めて評価する必要はなく、以降の評価では本試料にて計測された電気抵抗率のみの比較を行った。**Fig. 3** は焼きなまし時間に対する試料の電気抵抗率変化を示す。Al-Mn 合金中の電気抵抗率と固溶原子濃度との間には下記の式が提示されている¹⁰⁾。

$$\rho [10^{-6} \Omega \cdot m] = 0.0267 + 0.032 \text{wt}\% \text{Fe} + 0.033 \text{wt}\% \text{Mn} + 0.0068 \text{wt}\% \text{Si} + 0.0032 \text{wt}\% \text{Cu} \quad (1)$$

ここで、 ρ は電気抵抗率である。一般に、アルミニウム母相中の転位は電気抵抗率を増大(電気伝導度を低減)させる。

本材料のベースであるAA1100合金の焼きなまし材 (O材) と冷間圧延材 (H18材) の電気抵抗率 (20°C) は、それぞれ $2.9 \times 10^{-8} \Omega \text{m}$ と $3.0 \times 10^{-8} \Omega \text{m}$ であり、冷間圧延により電気抵抗率は3.4%増大する¹³⁾。亜粒界も転位の集合として考えられる。Fig. 3では、回復・再結晶は864 ksの焼きなましにて完了しており¹²⁾、このときの電気抵抗率は $2.8 \times 10^{-8} \Omega \text{m}$ である。これを基準にすれば、冷間圧延にて導入される転位による電気抵抗率の増大量は $0.10 \times 10^{-8} \Omega \text{m}$ 以下と見積もられる。それゆえ、Fig. 3中での転位や亜粒界の電気抵抗率への影響は極めて小さく、同図で示される電気抵抗率変化量の大部分は固溶原子の変化によるものと判断した。式 (1) に基づき、添加したSi原子がすべて固溶状態にあるとすれば、その電気抵抗率増加への寄与量は最大で $1.08 \times 10^{-9} \Omega \text{m}$ となる。Fig. 3中の電気抵抗率における母相アルミニウムとの差異のほとんどは固溶Mn量と固溶Fe量の変化によるものと考えられる。Fig. 4は式 (1) を用いて算出された、焼きなまし時間に対する固溶Mn量と固溶Fe量の総和の関係である。HR300材とHR400材の固溶量はHR500材のそれよりも熱間圧延材では大きい、いずれも焼きなまし時間に従って低下し、864 ksではすべてほぼ0の値に収束する。この結果より、熱間圧延時ではHR500材中の晶出物と析出物の形成に消費された固溶量はHR400材とHR300材のそれらに比べて多いことがわかる。それら固溶量は熱処理中に晶出物や析出物の形成に消費されたと考えられる。

3.2 析出物と晶出物の変化挙動

Fig. 5は各材料のRD×TD面のSEM像である。図中横方向

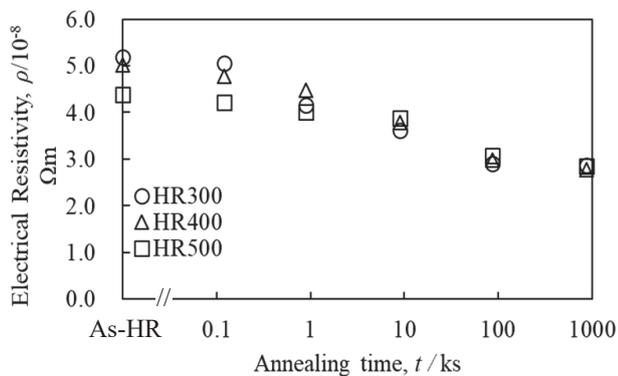


Fig. 3 Electrical resistivity with annealing time in hot-rolled samples. "As-HR" means "as-hot rolled" samples of which data were obtained after hot-rolling.

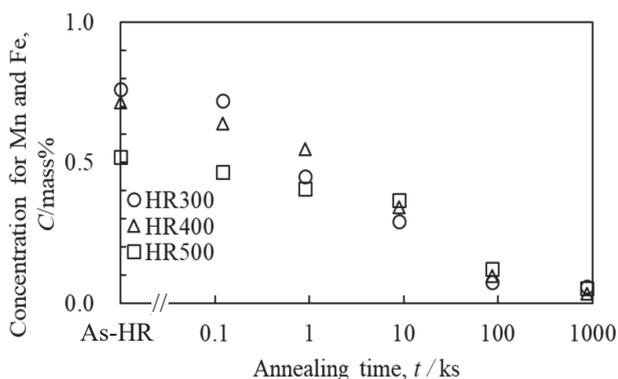


Fig. 4 Dependence of solute Mn and Fe content in solute state on annealing time.

は圧延方向であり、横方向に扁平な粒子は casting stage での晶出物が熱間圧延にて変形したものと考えられる。

Fig. 6はFig. 5より求めた同一熱間圧延温度における、各焼きなまし温度にて観察された粒子の個数分布である。これらは析出物と晶出物であると考えられる。本測定でのSEM画像での1ピクセルは $0.0005 \times 10^{-12} \text{m}^2$ であった。少なくとも 2×2 の4ピクセル以上がすべて同じ白色となれば、この領域は析出物や晶出物であると判断し、 $0.002 \times 10^{-12} \text{m}^2$ 以上の白色面積の数と大きさを計測した。田中らは casting 材の熱間加工部にて10 nm以下の微細析出物と50~100 nmの化合物を観察している⁷⁾。本測定では、前者の微細析出物の計測は不可能であるが、後者の化合物の検出は可能である。Fig. 6中の $0.002 \times 10^{-12} \text{m}^2$ の近傍のピークは田中らが観察した化合物と考えられる。

Fig. 7は各粒子の画像上の面積に対する粒子面積と個数の積の分布を示したものである。縦軸は特定の面積の粒子に消費された固溶Mn, Fe, Si量の総数に対応する。ここで、 $0.02 \times 10^{-12} \text{m}^2$ と $1.0 \times 10^{-12} \text{m}^2$ の近傍に2つのピークがみられた。山瀬らは、Al-Mn合金の casting、300°Cの熱間圧延、400°Cにて86.4 ksの焼きなましの順に実施し、STEM-EDSにより析出物 $\alpha\text{-Al}_{12}(\text{Mn}, \text{Fe})_3\text{Si}$ と晶出物 $\text{Al}_6(\text{Mn}, \text{Fe})$ を観察した。それぞれの大きさは、 $0.14 \times 10^{-6} \text{m}$ と $1.42 \times 10^{-6} \text{m}$ と報告している⁹⁾。したがって、Fig. 7中のピークを示した $0.02 \times 10^{-12} \text{m}^2$ と $1.0 \times 10^{-12} \text{m}^2$ サイズの粒子は、それぞれ析出物と晶出物である。山瀬らは本研究で使用した供試材と同じ供試材を使用し、同じ熱間圧延、同じ温度と時間の焼きなましを施した試料にて観察を実施している。彼らが観察した析出物と晶出物は焼きなまし材にて主に観察される粒子であると言える。Fig. 7により、SEM像中の析出物と晶出物の状態の数値化ができた。

同図の各材料において、析出物に該当する面積 $0.02 \times 10^{-12} \text{m}^2$ の近傍の縦軸値は焼きなまし時間に従って増大がみられた。一方、晶出物に該当する面積 $1.0 \times 10^{-12} \text{m}^2$ の近傍の縦軸値は焼きなまし時間に従って顕著な変化は見出せなかった。少なくとも、熱間圧延後の焼きなましにより、面積 $0.02 \times 10^{-12} \text{m}^2$ の析出物の数は増大していると言える。先述したように、本測定でのSEMでは $0.002 \times 10^{-12} \text{m}^2$ 未満の面積の粒子は検出できない。それゆえ、田中らがTEMにて観察した微細析出物は検出できていない。本研究で観察された析出物の増大は、田中らが観察した微細な析出物の成長によるものか、あるいは熱間圧延中に核形成・成長によるものかはFig. 7の結果からは明示できなかった。

以上の結果をふまえて、Fig. 2の軟化挙動を再度考察する。焼きなまし時間に従って軟化は回復によるものである。熱間圧延後の焼きなましによる回復は、焼きなまし温度の上昇に従って、結晶粒内や亜結晶粒内の転位密度の減少、および亜結晶粒界内の転位密度の減少やそれに続く亜結晶粒界の結晶粒界化によるものと理解できる。このうち、結晶粒内や亜結晶粒内の転位密度の減少は析出物、晶出物、固溶原子の転位移動障害により抑制される。Fig. 7の結果に基づけば、焼きなまし時間に従って、少なくとも面積 $0.02 \times 10^{-12} \text{m}^2$ の析出物の数は増大している。それゆえ、このような析出物数の増大により結晶粒内や亜結晶粒内の転位密度の減少が抑制されることで軟化抑制は起こりうる。一方、析出物数の増大に従って固溶原子

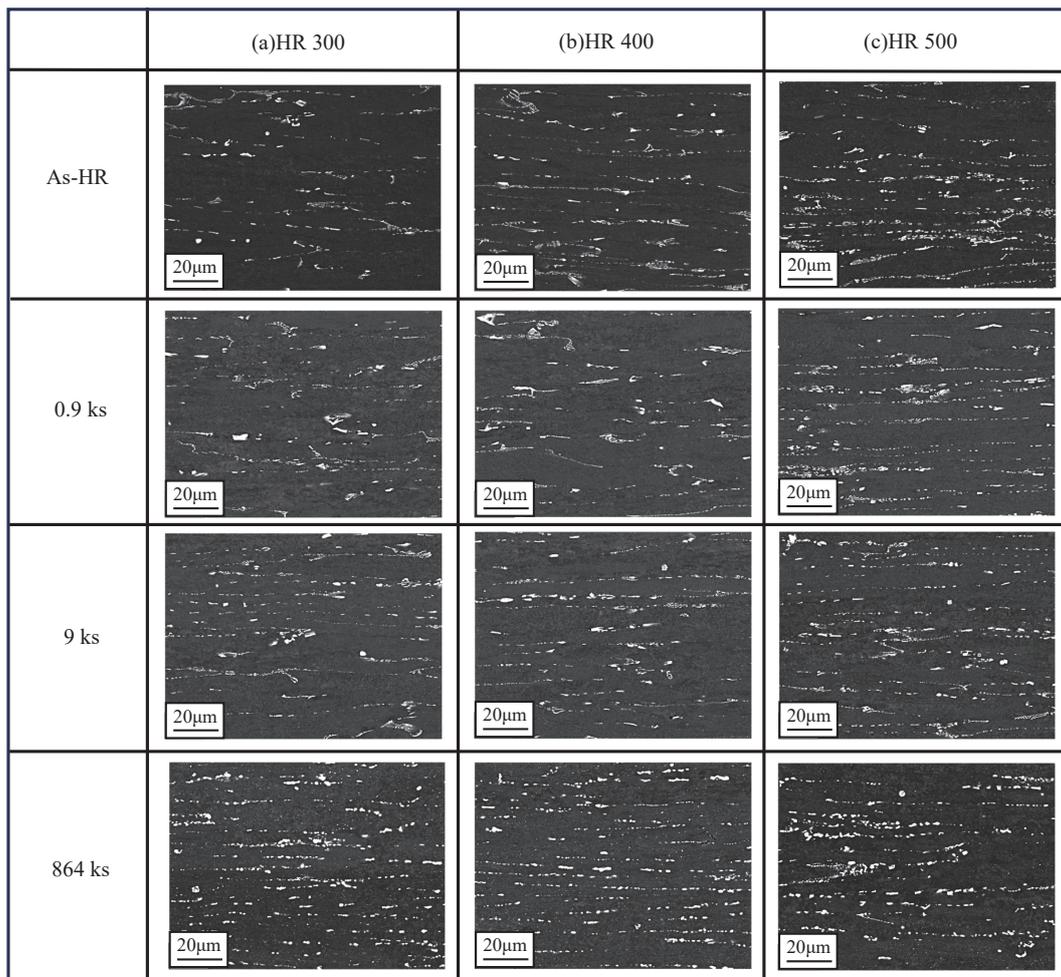


Fig. 5 SEM-BSE images in samples annealed at 400°C for 0, 0.9, 9, and 864 ks after hot-rolling. (a) HR300, (b) HR400, and (c) HR500.

数は減少する。固溶原子は転位をピン止めする効果を有するため、固溶原子数量の減少により軟化は促進される。これら現象に加えて、移動を抑制されていない結晶粒内や亜結晶粒内の転位密度の減少、亜結晶粒界内の転位密度の減少やそれに続く亜結晶粒界の結晶粒界化が軟化を促進していると考えられる。HR400材の熱間圧延終了時の硬さがHR300材のそれよりも小さい理由には、熱間圧延温度の上昇に従う、固溶原子数の減少、結晶粒内や亜結晶粒内の転位密度の減少、亜結晶粒界内の転位密度の減少やそれに続く亜結晶粒界の結晶粒界化の促進によるものと考えられる。864 ksでは両材料ともに再結晶は完了しており¹²⁾、また固溶原子量はほぼゼロに近い。再結晶時の組織の強度は結晶方位の影響を受ける。単結晶の引張変形において加工硬化挙動は結晶方位に依存し、面心立方方位の結晶でのその依存性は知られている¹⁴⁾。多結晶金属では主たる結晶方位の結晶粒の変形強度が金属全体の強度に大きな影響をおよぼす。すなわち、再結晶時の強度の差は再結晶集合組織の差に依存すると理解できる。この再結晶集合組織形成は熱間圧延後の集合組織に大きく依存していると考えられる。そのため、864 ksでの両材料の硬さの差異は再結晶組織の差（粒径、結晶粒の方位差など）によるものと考えられる。HR500材の熱間圧延終了時の硬さはHR400材のそれよりも小さい。この理由もHR400材の熱間圧延終了時の硬さがHR300材のそれよりも小さい理由と同じと考えられる。しかし、HR400材とHR500材との軟化挙動の差異は、固溶原

子と析出物数の差異、結晶粒内や亜結晶粒内の転位密度の減少、さらには亜結晶粒界内の転位密度の減少やそれに続く亜結晶粒界の結晶粒界化、それらでは理解できない。このような差異は熱間圧延後の集合組織の差によるものと考えられる。結晶方位ごとに加工硬化挙動が異なることは、結晶方位ごとに軟化挙動も異なる可能性を意味している。HR500材の熱間圧延後の集合組織はHR300材とHR400材のそれらと大きく異なっていることが考えられる。このような集合組織差は熱間圧延時の析出物形態の差異により発現したと考えられる。直江らは、400°C近傍で20 µm程度の微細な析出物の形成を報告している³⁾。しかし、彼らが使用した合金成分は1.15 mass%Mn-0.57 mass%Fe-0.29mass%Si-0.13mass%Cuであり、本研究にて使用した合金よりも多くの量の元素が添加されている。一方、田中らは、本研究と同一成分の合金にて、直江よりも微細な10 nm以下の微細化合物を見出し、その量は鋳造後の熱間加工温度の上昇に従い増大することを報告している⁷⁾。HR500材では、田中らが報告した微細化合物量は、その量が増大することで熱間圧延にて導入された転位の挙動に影響を及ぼし、熱間圧延集合組織をHR300材とHR400材のそれらと大きく異なる組織にした可能性がある。ただし、この微細化合物は結晶粒内や亜結晶粒内、および亜結晶粒界上では見出されていない。このような微細化合物の集合組織形成への影響解明にはナノレベルでの解析が必要となる。前述したように、本研究では10 nm以下の析出物の解析

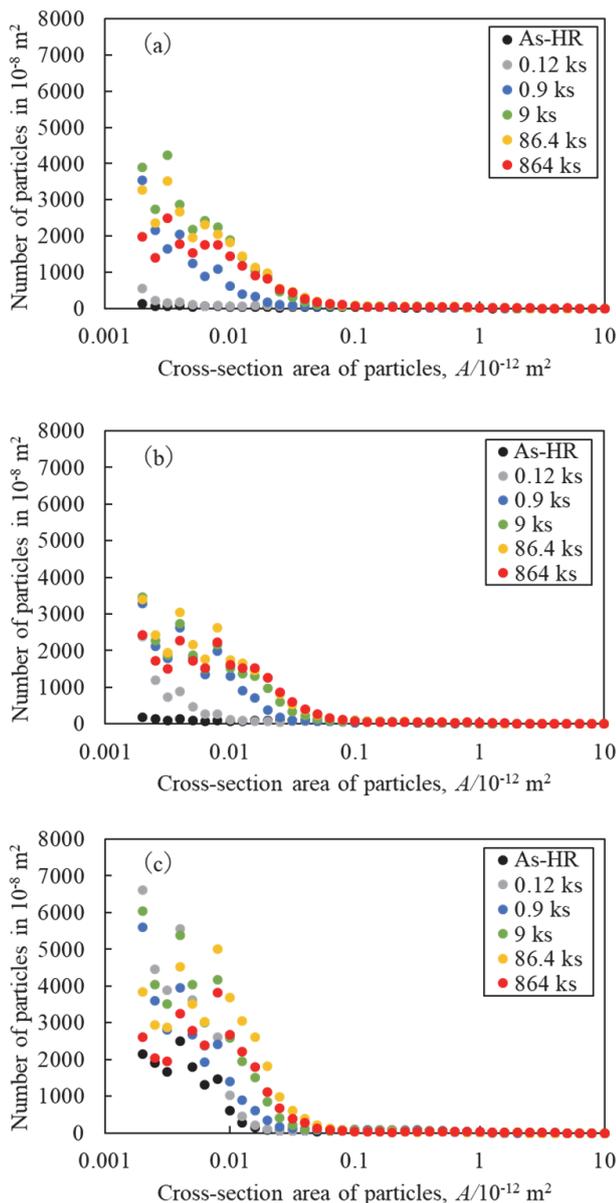


Fig. 6 Distribution relationship between cross-section area of particle more than $0.002 \times 10^{-12} \text{ m}^2$ and their number. (a), (b), and (c) are results of HR300, HR400, and HR500 samples, respectively.

はできなかった。したがって、本合金の熱間圧延後の焼きなましによる軟化挙動の解明には、本研究結果に加えて、ナノレベル解析と集合組織の追加調査が必要と言える。

以上より、Fig. 2は熱間圧延材と焼きなまし材での析出物形態が回復・再結晶挙動に影響を与えることを示した結果と考えられる。Fig. 7は焼きなまし時間に従い面積 $0.02 \times 10^{-12} \text{ m}^2$ の析出物の数が増大することを示している。本研究では見出せなかった田中らが報告した微細な析出物と化合物も焼きなまし中に新規に形成し、その数は増大している可能性がある。析出物の数と焼きなまし温度やその保持時間との関係も今後の析出挙動の解明には必要である。

4. 結 言

本研究ではAl-1 mass%Mn合金の保持温度の異なる熱間圧延材にて、続く 400°C での焼きなましにて析出物・晶出物の発達挙動へ熱間圧延温度が及ぼす影響を調査した。

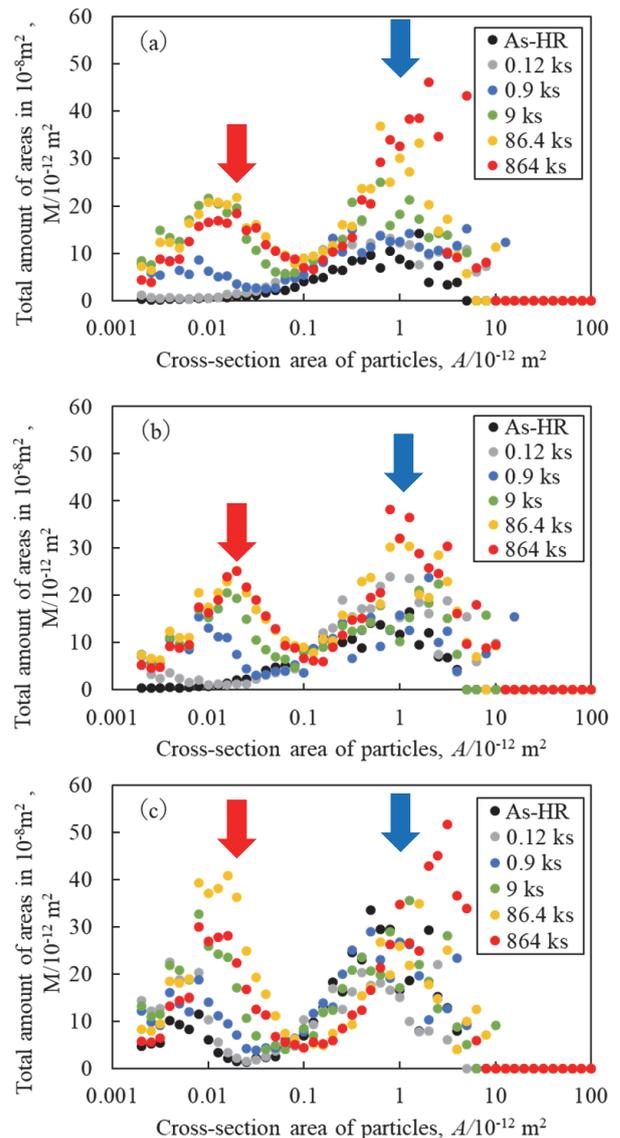


Fig. 7 Distribution relationship between cross-section area of particle and total amount of their areas (sum of product of the number and the area for each particle). Red and blue arrows indicate peaks corresponding to precipitate and dispersoid distributions, respectively. (a), (b), and (c) are results of HR300, HR400, and HR500 samples, respectively.

鋳造後の熱間圧延では、 $\text{Al}_6(\text{Mn}, \text{Fe})$ が主である晶出物と $\alpha\text{-Al}_{12}(\text{Mn}, \text{Fe})_3\text{Si}$ が主である析出物が形成し、さらに固溶Mn原子と固溶Fe原子が残存していることが判明した。焼きなましでは、少なくともこれら固溶原子の消費によると考えられる析出物量の増大が確認された。

焼きなましによる軟化の主たる要因は回復と理解でき、以下の現象が考えられる。焼きなまし時間に従い、固溶原子数や転位密度は減少し、回復は促進される。熱間圧延温度の上昇は、熱間圧延時の析出物数を増大させ、固溶原子数を減少させる。加えて、結晶粒内や亜結晶粒内の転位密度の減少や亜結晶粒界内の転位密度の減少やそれに続く亜結晶粒界の結晶粒界化も回復を促進させる。一方、本研究では観察されない 10 nm レベルの微細な析出物や晶出物が軟化挙動に影響を及ぼす可能性が示され、この影響調査は今後の微細組織調査の課題として位置づけられる。

謝 辞

本研究は、一般社団法人軽金属学会「加工熱処理工程における動的／静的組織形成予測部会」の共通試料を用いて実施しました。また、本研究で得られたSEM像観察は大同大学田所英二氏の技術により得られたものであり、論文執筆に際しては日本電子株式会社よりご指導いただきました。両者に深く謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) Y. J. Li, A. M. F. Muggerud, A. Olsen and T. Furu: *Acta Mater.*, **60** (2012), 1004-1014.
- 2) K. Huang and K. Marthinsen: *Mater. Charact.*, **110** (2015), 215-221.
- 3) M. Naoe and E. Hirose: *J. Japan Inst. Light Metals*, **20** (1970), 283-289.
- 4) H. Watanabe, K. Ohori and Y. Takeuchi: *J. Japan Inst. Light Metals*, **33** (1983), 149-156.
- 5) T. Kajiyama and K. Fukada: *J. Japan Inst. Light Metals*, **38** (1988), 362-373.
- 6) T. Doko, S. Asami and K. Yagi: *J. Japan Inst. Light Metals*, **38** (1988), 386-393.
- 7) H. Tanaka, K. Sasaki and S. Tateyama: *J. Japan Inst. Light Metals*, **71** (2021), 549-554.
- 8) J. C. Blade: *Met. Sci.*, **13** (1979), 206-210.
- 9) K. Yamase, K. Ikeda and S. Miura: *Proc.146 Conf. Japan Inst. Light Metals*, (2021), 15-16.
- 10) Y. J. Li and L. Arnberg: *Acta Mater.*, **51** (2003), 3415-3428.
- 11) A. M. F. Muggerud, E. A. Mortzell, Y. Li and R. Holmestad: *Mater. Sci. Eng. A*, **567** (2013), 21-28.
- 12) K. Ikeda, H. Osafune, S. Miura, H. Imoto, K. Sato and M. Nagoshi: *Proc. 136 Conf. Japan Inst. Light Metals*, (2019), 179-180.
- 13) *Structure and Property of Aluminum Alloys*, *J. Japan Inst. Light Metals*, (1991), 417.
- 14) T. Takeuchi: *Trans. JIM*, **16** (1975), 629-640.