

© 1984 ISIJ

初期方位 (123) $[4\bar{1}2]$ Al-0.03%Fe 単結晶 の圧延および再結晶集合組織

論 文

村上 雄*・高橋 恒夫*・高木 功*²

Rolling and Recrystallization Textures in Single Crystal of Al-0.03%Fe Alloy Rolled to (123) $[4\bar{1}2]$ Orientation

Takeshi MURAKAMI, Tsuneo TAKAHASHI and Isao TAKAGI

Synopsis :

Formation of recrystallization nuclei was investigated by means of X-ray diffraction and electron microscopy, using aluminum single crystal whose orientation is one of the stable orientation during rolling. Rolling texture is almost the same as the initial orientation but accompanied with orientation spread around $[1\bar{1}1]$ axis normal of cross slip plane of active slip system. On annealing, growth of subgrains with the same orientation as that of the tail of orientation spread were observed by electron microscopy. Recrystallization textures at 623 and 723 K have an orientation relationship which is described by 48° rotation around $[1\bar{1}1]$ axis. Since the other components derived by orientation relationship of preferential growth were not observed, it was suggested that the elongated cells with the same orientation as that of recrystallization texture were effective as the site of recrystallization nuclei.

Recrystallization texture at 673 K was ascribed to continuous recrystallization resulting from competition of precipitation and recrystallization.

1. 結 言

これまでに、(123) $[4\bar{1}2]$ あるいはこれに近い初期方位の純アルミニウム単結晶を用いた実験によつて、金属の再結晶集合組織の成因に関するいくつかの知見が得られている。KOHARA ら¹⁾および PARTHASARATHI ら²⁾は変形母相と共通の $\langle 111 \rangle$ 軸のまわりに 40° の回転関係にある再結晶粒が優先成長すること、および $\langle 111 \rangle$ 軸まわりの方位差の傾き粒界 (tilt boundary) は、ねじり粒界 (twist boundary) より易動度が大きいことを明確に示した³⁾。これらの研究においては、再結晶を圧延した試料の表面層を除去し、変形母相からの自発的再結晶を抑制した実験が行われた。比較的最近、LÜCKE ら⁴⁾は (123) $[4\bar{1}2]$ 方位の純アルミニウム単結晶を圧延後焼なますと、変形母相と共通の $\langle 111 \rangle$ 軸のまわり 40° の回転関係にある単一方位の再結晶集合組織が生成し、この再結晶方位は圧延集合組織中に存在する微弱な方位分散の先端に一致することを報告している。このような、主すべり系の活動による方位変化とは異なる方向の結晶回転によつて再結晶核となる領域が作られたと考えられ

る⁵⁾現象は、すでに古林⁶⁾による3%珪素鋼の初期方位 (111) $[2\bar{1}\bar{1}]$ の実験においても認められており、再結晶粒の成長の優先性の以前に核生成の配向性が存在するとされている⁷⁾。したがつて、アルミニウムにおける再結晶集合組織の生成機構を検討するためには (123) $[4\bar{1}2]$ 方位は初期方位として適していると考えられる。

一方、工業用アルミニウム板の再結晶集合組織については以前より数多くの研究がなされている⁸⁾。最近の研究によつて、圧延前に過飽和に固溶する Fe あるいは Si などの不純物元素あるいは合金元素が、焼なましの際に析出する際再結晶と競合すると、再結晶集合組織の焼なまし温度依存性が認められることが明らかにされている^{9)~11)}。そこで本研究では、Al-0.03%Fe 合金の (123) $[4\bar{1}2]$ 方位の単結晶を用いて、方位分散の先端方位の再結晶核としての有効性、および再結晶集合組織の焼なまし温度依存性について検討した。なお、著者ら¹²⁾は、同様の実験をすでに行つたが、再結晶初期の観察は十分ではなかつた。一般に、強圧延した金属の組織は圧延面に扁平なセル組織となるため、明瞭な圧延組織を捉えるためには断面での観察が必要とされている¹³⁾。そこで本研

昭和 56 年 11 月 軽金属学会にて発表、昭和 57 年 4 月 日本金属学会にて発表 昭和 59 年 4 月 13 日受付 (Received Apr. 13, 1984)

* 東京工業大学工学部 工博 (Faculty of Engineering, Tokyo Institute of Technology, 2-12-1 Ookayama Meguro-ku 152)

*² 東京工業大学大学院 (現: (株)神戸製鋼所) (Graduate School, Tokyo Institute of Technology, Now Kobe Steel, Ltd.)

究では、圧延試料の縦断面での電顕観察を可能にするため、初期厚を比較的大きくし、圧延率を低くした試料を用いた。

2. 実験方法

単結晶は凝固法によつて作成した。あらかじめ純度 99.99% のアルミニウム地金と Al-1.67 wt%Fe 母合金を用いて Al-0.03 wt%Fe 鋳塊を溶製した。この鋳塊を電極用黒鉛棒から作成した内径 40 mm、長さ 250 mm のるつぼ中で再溶解し、真空中で純アルミニウム単結晶を種子結晶とし一方向凝固させて単結晶を得た。この円柱状単結晶を (123) [41 $\bar{2}$] 方位にグラインダーカッターで切断し、化学腐食後、長さ 30~35 mm、幅 25 mm、厚さ 16 mm とした。この後、大気中で 640°C、72 h の溶体化処理を施し水中に焼入れた。

圧延は、1パス 0.2 mm ずつ往復圧延によつて板厚減少率 80% まで行つた。ロール径は 150 mm で、圧延速度は 10 m/min である。80% 圧延後の 3.2 mm 厚の試料を、圧延方向に平行な断面 (縦断面) に平行に厚さ 0.5 mm に切り出し、化学腐食後焼なましを行い、光顕観察、硬さ測定、X線振動写真の撮影および電子顕微鏡観察を行つた。光顕観察用には、圧延方向に垂直な断面 (横断面) に平行な試料も作成した。また焼なましは硝酸塩浴中で行つた。

X線振動写真は、圧延方向に平行な軸のまわりに $\pm 40^\circ$ 振動させ、モノクロメータによつて単色化した MoK α 線を用いて撮影した。カメラ半径は 26.5 mm で、コリメータは 1 mm ϕ のものを使用した。展開したフィルム上での回折強度は、振動軸に垂直な方向にマイクロフォトメータで測定した。

透過電顕観察は、JEOL 200 CX を用い、加速電圧 200

kV で行つた。化学腐食によつて 0.2 mm 厚にした試料から、液温 248 K の硝酸とメチルアルコールの容積比 1/4 の電解研磨液にて、電圧 10 V でジェットポリッシングにより電顕試料を作成した。セルおよびサブグレイン間の方位差は、各々の (111) 回折図形が得られるときの電顕内傾斜装置の角度を記録し、ステレオ投影上にプロットしなおして方位差を読み取つた。

極点図は、断面中心を通る圧延面に平行な面において測定した。極点図中の強度はホットプレスによつて作成したランダム試料の回折強度の倍数で表示した。

3. 実験結果

Fig. 1 は、80% 圧延後の {111} および {110} 極点図を示す。主方位は初期方位に非常に近い (247) [83 $\bar{4}$] であるが、方位分散が非常に顕著である。この方位分散は、圧延横方向に最も近い {111} 極すなわち (1 $\bar{1}1$) 極のまわりに反時計方向に生じている。ランダム強度の 1/2 の回折強度に相当する方位分散は、(1 $\bar{1}1$) 極のまわり約 50° の範囲にわたつている。{110} 極点図では、1 $\bar{1}1$ 大円上で {110} 極の方位分散が連結している。

Fig. 2 は、各温度で一次再結晶を完了したときの {110} 極点図を示す。各温度における再結晶集合組織は、純アルミニウム⁴⁾ に比べて非常に鋭いことが特徴である。また圧延集合組織と同様に (1 $\bar{1}1$) 極のまわりの方位分散を伴っている。623 および 723 K では (537) [1 $\bar{3}2$] 単一方位である。(537) [1 $\bar{3}2$] 方位は圧延主方位と [1 $\bar{1}1$] 軸のまわり 48° の回転関係にあり、以下ではこの方位を D 方位と呼ぶことにする。623 K と 723 K の中間の温度 673 K では、D 方位は弱成分になり、(678) [40 $\bar{3}$] が主方位である。(678) [40 $\bar{3}$] 方位は、圧延主方位と [1 $\bar{1}1$] 軸のまわり約 20° の回転関係にあ

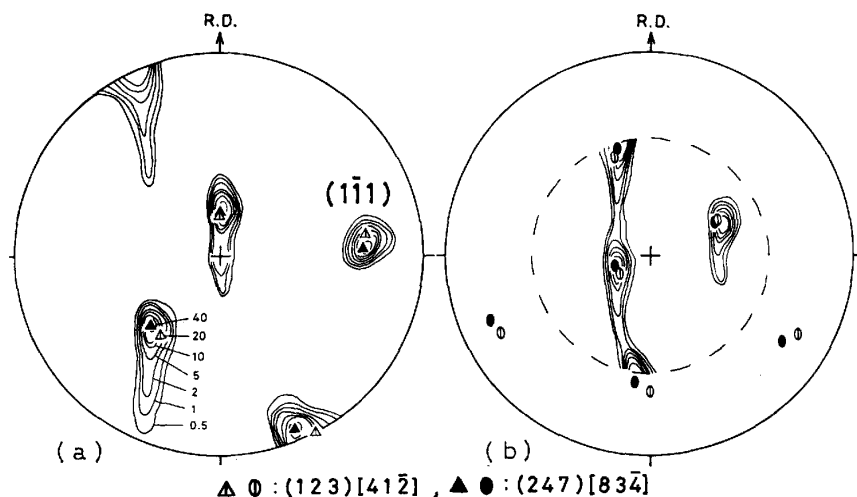


Fig. 1. Pole figures for specimen rolled to 80% reduction.
(a) {111} pole (b) {110} pole

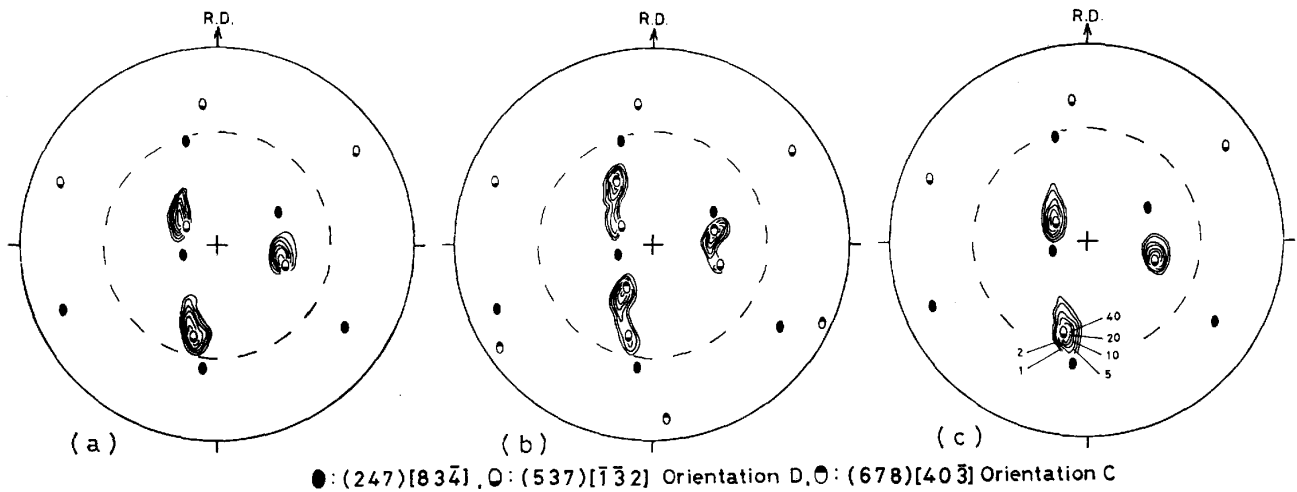


Fig. 2. $\{110\}$ pole figures showing recrystallization textures observed after annealing (a) at 623 K for 16.7 h, (b) at 623 K for 1 h and (c) at 723 K for 2 min.

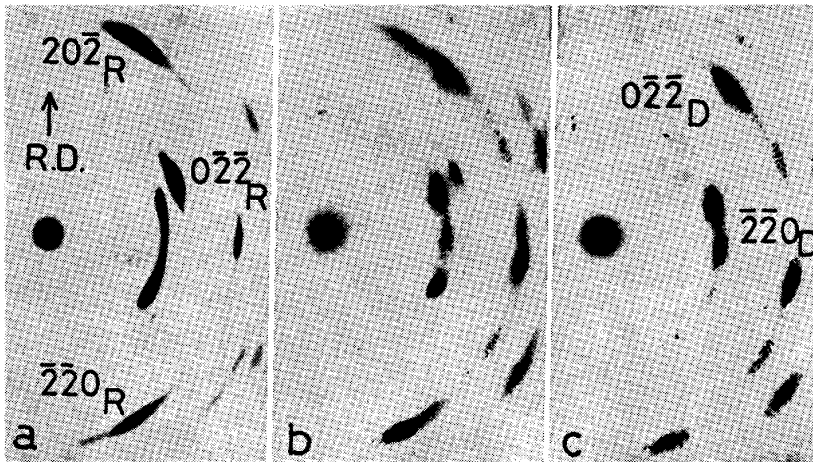


Photo. 1. X-ray oscillating crystal photographs. (a) as rolled, (b) annealed at 623 K for 15 s and (c) annealed at 623 K for 30 s. Suffixes R and D indicate rolling texture and orientation D, respectively.

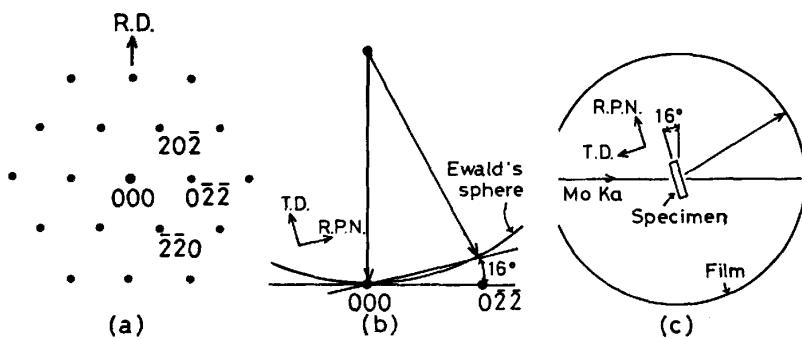


Fig. 3. Diagrams showing the way $0\bar{2}\bar{2}$ spot of rolling texture is diffracted when $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$ and incident beam are parallel. (a) reciprocal lattice plane of $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})^*$, (b) reciprocal lattice construction of diffracted beam and (c) optical system of oscillating crystal method.

り、以下ではこれを C 方位と呼ぶ。以上のように、本実験においては、再結晶集合組織の焼なまし温度依存性が明瞭に観察された。なお、他の焼なまし温度での再結晶集合組織を D 方位と C 方位の $\{111\}$ 回折強度比で示すと、653 K では約 1, 693 K では約 9 であり、773 K では D 方位単一で、強度は 723 K より大であった。

Photo. 1 は、圧延後および 623 K で焼なましたとき

の X 線振動写真を示す。また、圧延方位の $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$ 軸と X 線の入射方向が一致して $0\bar{2}\bar{2}$ 斑点がフィルムに記録されるようすを Fig. 3 に示す。D および C 方位は、圧延方位と $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$ 軸を共有するため、それぞれの $0\bar{2}\bar{2}$ 斑点は $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$ 軸のまわりに 48° および 20° ずれた位置に記録される。Photo. 1 において、15 s では圧延方位は残っているが、30 s では再結晶が完了していることがわ

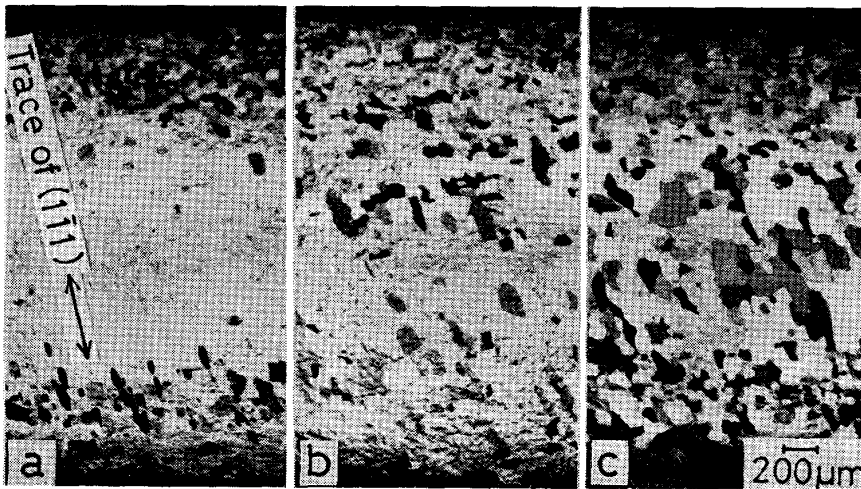


Photo. 2. Optical micrographs at transverse section of specimens annealed at 723 K for (a) 15 s (b) 30 s, and (c) 1 min.

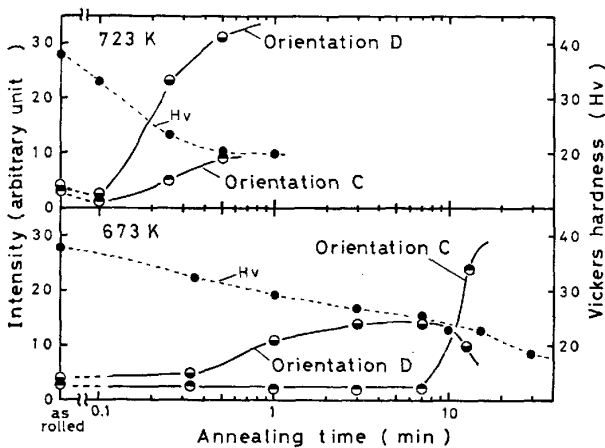


Fig. 4. Changes of intensity in X-ray oscillating crystal photographs and hardness during annealing.

かる。

Fig. 4 は、焼なましに伴う X 線振動写真上での各方位の強度および硬さの変化を示す。また、Photo. 2 は 723 K での焼なましに伴う横断面での顕微鏡組織の変化を示す。723 K においては、D 方位のサブグレインないしは再結晶粒の成長と、C 方位のサブグレインの成長が起こる。D 方位の再結晶粒は、Photo. 2 より明らかなように、粒界易動度に異方向性が認められ、横断面では (111) 面のトレースに一致する方向に優先的に成長する。すなわち、ねじり粒界より傾き粒界の方が移動しやすいことが明らかである。一方、673 K においては、硬さのゆるやかな低下に伴い、まず D 方位のサブグレインが成長する。C 方位のサブグレインには潜伏期が認められ、軟化完了直前になつて D 方位を侵食して急速に成長する。

Photo. 3 は、80% 圧延後の縦断面に近い (111) 面における顕微鏡組織および直径 6 μm の範囲の制限視野回折図形を示す。電子回折図形では、(111) 図形が電子ビー

ムのまわりに回転してリング状になつており、極点図で認められた [111] のまわりの方位分散が生じていることが明らかである。個々のセルと圧延主方位との方位差、およびセル間の方位差をキーマイアグラムに示す (θ は共有する [111] 軸のまわりの回転角を示す)。大部分のセルは圧延主方位に近いが、極点図上での方位分散内の方位のうち、再結晶方位の D 方位 (セル B, C, G, I) および C 方位 (セル F, H, K) と同じ方位のセルの存在も認められる。D 方位のセルは、圧延方向に平行に点在する傾向が認められた。

Photo. 4 は、623 K で 1 h 焼なまししたときの顕微鏡組織を示す。圧延のままの組織 (Photo. 3) と比べると、セル間の境界が明瞭になり、球状に近くなつており以下ではサブグレインと呼ぶ。623 K では、D 方位のサブグレイン (A~C) の粗大化およびサブグレイン内での析出が認められる。

Photo. 5 は、673 K で 7 min 焼なまししたときの顕微鏡組織を示す。この温度における再結晶集合組織の主方位となる C 方位に近い 10~30° の方位差のサブグレインが群生している。したがつて、673 K では、サブグレインの回転および合体によつて C 方位の再結晶核が生成すると思われる。

Photo. 6 は、723 K で 9 s 焼なまししたときの顕微鏡組織を示す。723 K では、焼なましの極く初期において、再結晶集合組織の主方位すなわち D 方位のサブグレインが粗大化している。Photo. 6 では、サブグレイン A, B, C および E が D 方位とみなし得る。D 方位のサブグレインは、圧延組織中の D 方位のセルと同様に、圧延方向に平行に並んで生成する傾向が認められた。さらに焼なましを続けたとき、サブグレイン A, B, C および E は合体して、大角粒界をへだてた周囲のサブグレイン組織を侵食して成長すると思われる。

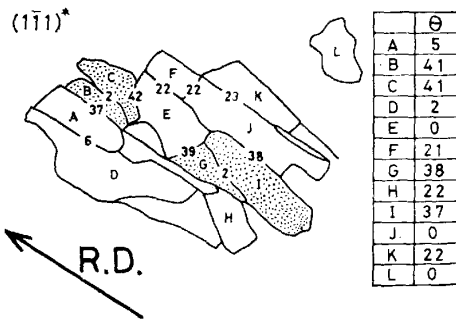
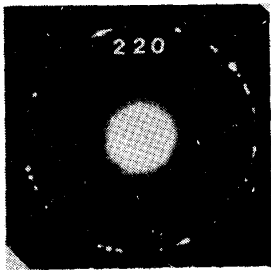
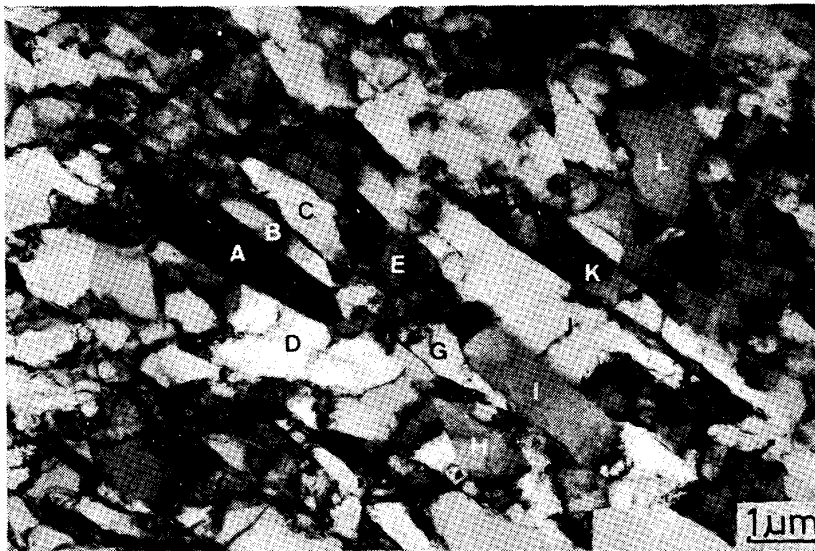


Photo. 3. Transmission electron micrograph and diffraction pattern of rolled specimen. Schematic diagrams show misorientation from main component of rolling texture and misorientation between flat cells. θ indicates rotation angle around $[1\bar{1}1]$ axis.

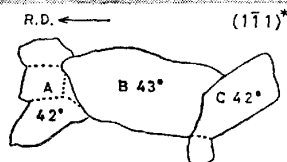
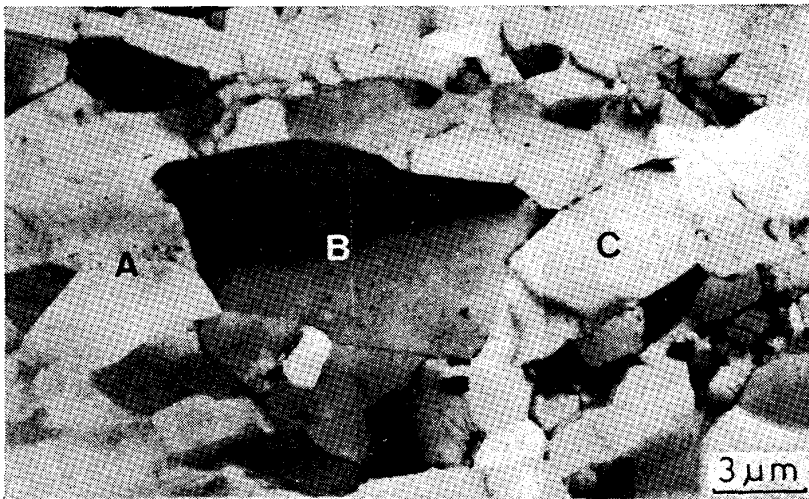


Photo. 4. Transmission electron micrograph of specimen annealed at 623 K for 1 h. Schematic diagram shows misorientation around $[1\bar{1}1]$ axis.

Fig. 5 は、各焼なまし条件でのサブグレインの大きさと圧延主方位との方位差の関係を示す。サブグレインの大きさは、圧延方向およびその垂直方向で測定し、平均値を用いてプロットした。623 K, 1 h では、すべての方

位のサブグレインが粗大化しているが、D 方位に比較的優先性が認められる。673 K では、7 min で C 方位に近い平均 6 μm のサブグレインの生成頻度が高い。少数の D 方位のサブグレインは粗大に成長しているが、再

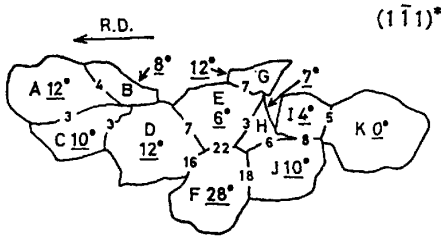
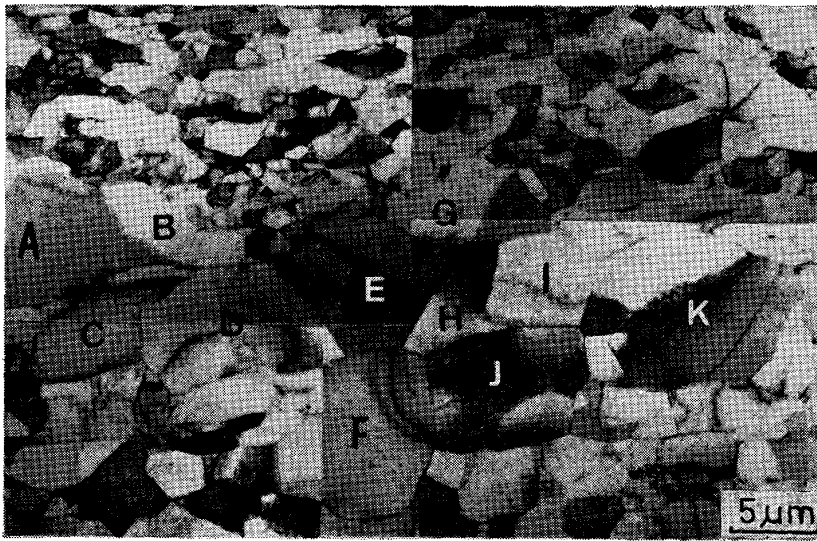


Photo. 5. Transmission electron micrograph of specimen annealed at 673 K for 7 min. Schematic diagram shows misorientations around $[1\bar{1}1]$ axis of deformed matrix and misorientations between subgrains.

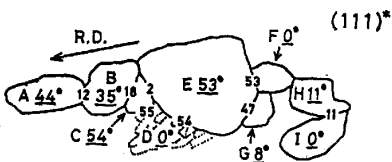
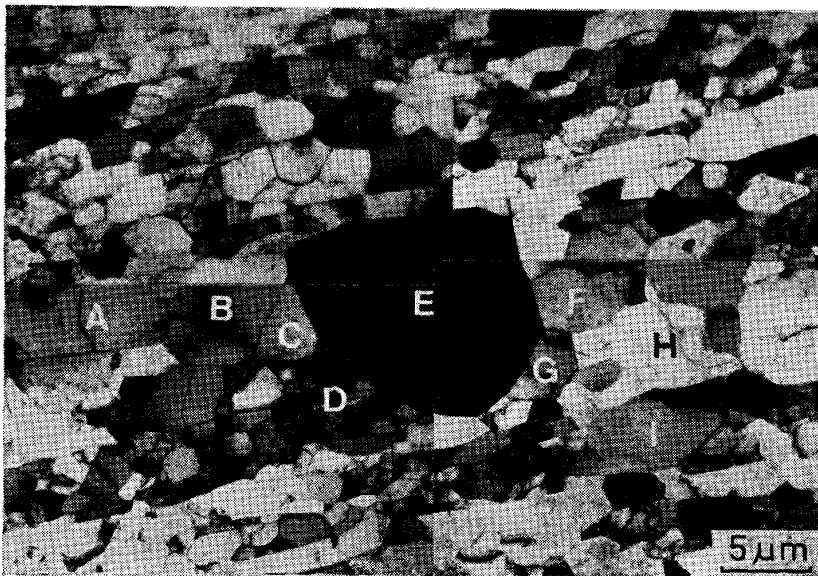


Photo. 6. Transmission electron micrograph of specimen annealed at 723 K for 9 s. Schematic diagram show misorientations around $[1\bar{1}1]$ axis of deformed matrix and misorientations between subgrains.

結晶集合組織中に弱成分として現れることと対応している。723 K, 6 s では方位分散内のサブグレインが、ほぼ一様に平均 5 μm まで成長するが、9 s では D 方位のサブグレインの成長が支配的になる。

以上のように、縦断面における電顕観察によつて、極点図の方位分散をまかなつていないセルの存在、特に再結晶集合組織の主方位と同じ方位のセルの存在を認めることができた。また、焼なましに伴つて、D 方位のサブグ

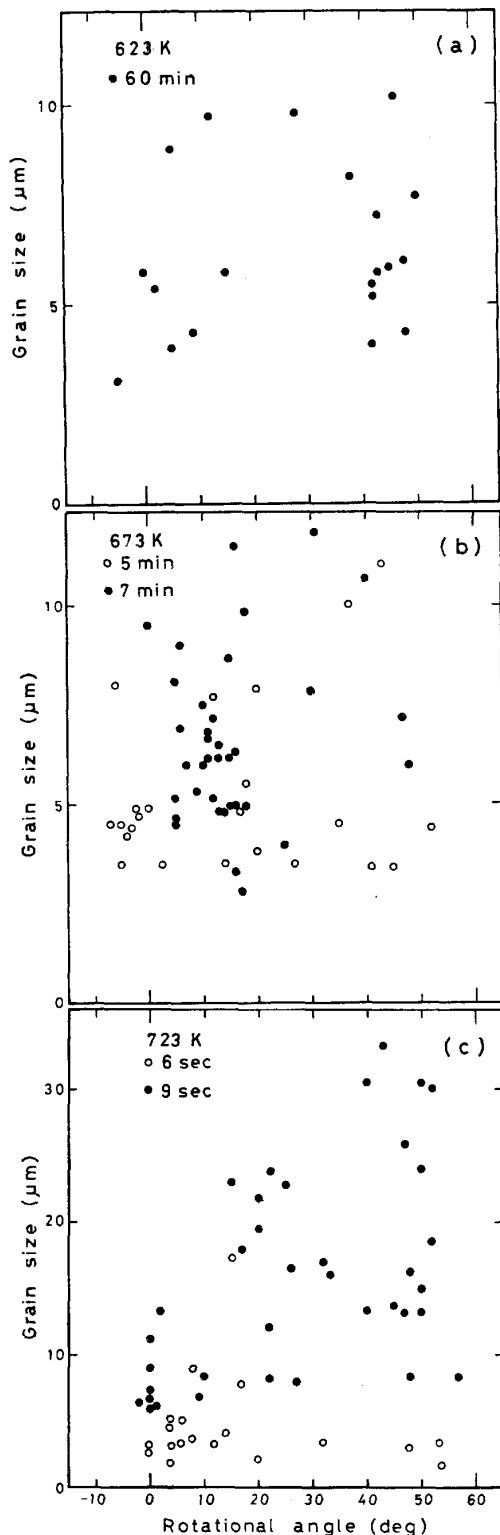


Fig. 5. Relation between subgrain size and misorientation between subgrain and deformed matrix. Misorientations are indicated by rotation angle around $[1\bar{1}1]$ axis. Annealed at (a) 623 K, (b) 673 K and (c) 723 K.

レインが優先的に成長すること、および C 方位のサブグレインは集合体をなして成長することが認められた。

4. 考 察

再結晶集合組織の主方位と同じ方位のセルあるいはサブグレインが、加工組織中に存在することは、すでに電顕観察によつて各種の金属において認められているが、多結晶の加工組織では、その量は一般的に少ない⁽¹³⁾⁽¹⁴⁾。単結晶を圧延した場合のように、圧延集合組織が非常に鋭く、かつ単純な場合は、X線回折によつても弱方位の方位分散として観察できる。また、単結晶の圧延に際しての外形変化から、活動するすべり系および結晶回転が推測できる場合は⁽¹⁵⁾⁽¹⁶⁾、方位分散の生ずる方向の意味を解析できる。本研究で初期方位として選んだ (123) $[41\bar{2}]$ 方位の場合の外形変化は、圧延横方向に垂直な面での圧延方向へのせん断変形が主であるが、他のせん断ひずみに加えて、圧延ロールと試料の摩擦によるひずみも加わるため、非常に複雑である。また、LÜCKE⁽⁴⁾ らが示しているように、ロールとの接触長さや圧延前の板厚の比によつても方位分散が異なる。Photo. 2 によると、D 方位の再結晶粒の生成は、表面層付近の方が中心層より焼なましの初期に起こることが明らかである。PARTHASARATHI ら⁽²⁾ による極点図でも、表面層から板厚の 1/4 を除去した層の方が中心層より方位分散が顕著である。

以上のように、本初期方位における方位分散の原因については、主な活動すべり系の交さすべり面 $(1\bar{1}1)$ の法線方向のまわりに生ずること⁽¹²⁾、すなわち圧延変形と密接な関係があること以外は不詳である。たまたま、方位分散の先端の方位は、本実験における圧延方位での再結晶粒の優先成長方位であるため、623 および 723 K においては D 方位が優先的に発達すると思われる。先端の方位のセルが D 方位の再結晶粒の潜在的再結晶核 (pre-formed nuclei) となる直接的な証拠はないが、方位分散の顕著な表層部から D 方位粒の成長が開始すること、D 方位以外に第二、第三方位成分が全く生成しないこと、および再結晶後の D 方位粒間に、圧延の方位分散の回転方向と同一方向の方位分散を伴うことなどは、その有効性を判断する根拠となると思われる。三番目の再結晶集合組織の方位分散の生成は、圧延方向のまわりの方位分散をもつ 18-8 ステンレス鋼の立方体集合組織から、同様の方位分散をもつ二次再結晶集合組織が生成する現象⁽¹⁷⁾と類似しているが、圧延主方位からわずかにずれた方位分散のセルと優先成長方位関係にあるサブグレインの発達によると考えられる。

次に、673 K における $\langle 111 \rangle$ 軸のまわり 20° の回転関係にある C 方位の再結晶集合組織の生成について考察する。多結晶過飽和固溶体の再結晶集合組織の研究に

よつて、析出と再結晶が競合する場合、圧延集合組織の主方位は変化せず、いわゆる連続再結晶 (continuous recrystallization) によつて *in situ* 再結晶が起こることが知られている¹⁰⁾。すなわち、サブバウンダリーへの溶質原子の偏析、サブバウンダリー上の析出物によるピン留めによつて、粒界移動が阻止され、圧延組織を構成するサブグレインが徐々に粗大化し、方位を大きく変えることなく再結晶粒に発達するという機構である。本研究においても、673 K 付近では、未再結晶領域のサブグレイン内あるいはサブバウンダリー上で Al_3Fe および Al_6Fe が頻繁に観察された。したがつて、673 K 付近での再結晶は連続再結晶と考えられるが、 $\langle 111 \rangle$ 軸のまわり 20° という方位差が比較的大きいことは多結晶の場合と異なる点である。著者らによる同一初期方位のアルミニウム合金単結晶についての実験では、Al-Fe では¹²⁾ $\langle 110 \rangle$ 軸のまわり 15° の回転関係が、Al-Mn では¹⁸⁾ $\langle 111 \rangle$ 軸のまわり 30° の回転関係が観測された。これらの結果は、同一初期方位でも圧延前の晶出相の量、圧延方法が異なるため、圧延組織に差異を生じ、連続再結晶時のサブグレインの合体に影響を及ぼしたと考えられる。

最後に、やはり析出物が観察された 623 K における D 方位の再結晶集合組織の生成は、673 K よりも低くても、また高くても不連続再結晶が起こるといふ Ito⁹⁾ による Al-Fe の結果と、焼なまし温度依存性が類似している。本研究においては、析出 C 曲線を測定していないので詳細については不明であるが、623 K では析出が再結晶より先に起こり、母相の濃度が低下してしまうため、大角粒界の移動にはあまり影響を及ぼさないと考えられる。

5. 結 言

本研究では、単結晶を圧延したときの圧延集合組織の方位分散中に、再結晶集合組織の主方位となる方位が含まれる現象に着目して、Al-0.03Fe の (123)[41 $\bar{2}$] 単結晶を用いて、再結晶核となる領域の生成について検討した。方位分散は、活動すべり系の交さすべり面法線になる [1 $\bar{1}1$] 軸のまわりに、板表面に近いほど顕著に生じ、断面方向からの電顕観察により、再結晶集合組織の主方位と同じ方位のセルの存在が確かめられた。

再結晶挙動は、温度によつて異なり、623 および 723 K では、[1 $\bar{1}1$] 軸のまわりに 48° の回転関係のある単

一方位の鋭い再結晶集合組織が生じた。他の $\langle 111 \rangle$ 軸のまわりの回転関係で表される優先成長方位は、全く生成しないことより、圧延のままですでに存在したセルが再結晶核の生成場所となつたと結論された。

上記の焼なまし温度の中間 673 K 付近では [1 $\bar{1}1$] 軸のまわり 20° の回転関係にある再結晶集合組織も生成した。電顕観察より、サブ粒界上に析出物が見出されたので、この方位の再結晶集合組織の生成は連続再結晶によると推定された。多結晶における連続再結晶と異なり、単結晶を圧延した場合はサブグレインの回転が大きく、大角粒界も生成することが示唆された。

なお、本研究の一部は、文部省科学研究費補助金によつて行われたことを付記し、謝意を表します。

文 献

- 1) S. KOHARA, M. N. PARTHASARATHI and P. A. BECK: Trans. Metall. Soc. AIME, 212 (1958), p. 875
- 2) M. N. PARTHASARATHI and P. A. BECK: Trans. Metall. Soc. AIME, 221 (1961), p. 831
- 3) P. A. BECK and H. HU: Recrystallization, Grain Growth and Textures (1965), p. 393 [ASM]
- 4) K. LÜCKE, R. RIXEN and M. SENNA: Acta Metall., 24 (1976), p. 103
- 5) 上城太一: 第7回西山記念技術講座 (日本鉄鋼協会編)
- 6) 古林英一: 鉄と鋼, 56 (1970), p. 734
- 7) 古林英一: 日本金属学会会報, 16 (1977), p. 751
- 8) 伊藤邦夫: 軽金属, 26 (1976), p. 44
- 9) K. ITO, K. LÜCKE and R. RIXEN: Z. Metallkd., 67 (1976), p. 338
- 10) P. FURRER and H. WARLIMONT: Aluminium, 54 (1978), p. 135
- 11) グエン・コン・ダン, 村上 雄, 高橋恒夫: 軽金属, 30 (1980), p. 324
- 12) T. TAKAHASHI, T. MURAKAMI and N. C. DANH: Proc. the 6th ICOTOM, 1 (1981), p. 499
- 13) H. HU: Textures in Research and Practice, ed. by J. Grewen and G. WASSERMANN (1969), p. 200 [Springer-Verlag]
- 14) 小久保一郎, 亀野克己: 軽金属, 22 (1972), p. 723
- 15) J. HANSEN, H. MECKING and K. LÜCKE: Acta Metall., 24 (1976), p. 633
- 16) I. DILLAMORE: Proc. the 6th ICOTOM, 1 (1981), p. 80
- 17) S. R. GOODMAN and H. HU: Trans. Metall. Soc. AIME, 236 (1966), p. 711
- 18) N. C. DANH, T. MURAKAMI and T. TAKAHASHI: Trans. JIM., 21 (1980), p. 401