

Fe-36%Ni合金の集合組織に及ぼすBの影響

津田 正臣*

Effect of B on Textures of Fe-36%Ni Alloy

Masaomi TSUDA

Synopsis : Effect of B addition ($B \leq 0.012\%$) on the cold rolling and recrystallization textures of Fe-36%Ni alloy has been studied. The $\{001\} \langle 110 \rangle$ preferred orientation, which is increased with increasing B contents, develops in the surface layer. The surface rolling texture penetrates from the surface to a depth of less than about $20 \mu\text{m}$. The pure-metal type rolling texture of $\{4411\} \langle 11118 \rangle$ which is found in the inner layer, irrespectively of B contents. The surface recrystallization texture of B containing alloys is almost random. The inner recrystallization texture shows a gradual change with increasing B contents from the $\{100\} \langle 001 \rangle$ orientation to the $\{4411\} \langle 11118 \rangle$ orientation of rolling texture which is retained after completion of recrystallization.

Key words : texture ; recrystallization ; invar alloy ; B ; in situ recrystallization.

1. 緒言

Fe-Ni系合金は、軟磁性材料として工業的に重要であり、多くの研究^{1)~3)}も軟磁気特性を向上させるための集合組織の制御を中心としてなされてきた。

しかし近年の産業の発展に伴う軽薄短小の時代に、特にハイテク産業といわれる分野に、これら合金の利用される新しい用途が開かれつつあるが、これら合金の用途適用に際しては、36%Ni合金(以下36Ni合金)や42%Ni合金のごとく、従来からの熱膨張、磁気特性といった特性のほかに、パンチング加工、エッチング加工、プレス成形加工、ハンダ付または着色処置等が行われることが多く、それら特性に優れることが、きわめて重要となることが多い。

集合組織は、これら特性に対しても大きな影響を及ぼし、集合組織を制御することは、きわめて重要になる。Fe-Ni系オーステナイト合金の集合組織については、約80%Niを含有するパーマロイC合金を中心として、多くの研究^{4)~6)}がなされているが、36Ni合金については磁性材料としての用途が少なかったこともあり、その集合組織の研究は必ずしも多くはなく、冷間圧延率、元素の効果などについて系統的に検討した報告は少ない。BはFe-Ni系合金の熱間加工性を大きく改善する働きのある⁷⁾が、その集合組織に及ぼす効果についてはまったく報告されていない。

そこで本研究では、36Ni合金についてBを添加した場合の、圧延集合組織、再結晶集合組織の変化を系統的に調べることにより、36Ni合金のB量および冷間圧延率と集合組織の関

連性について明らかにすることを目的とした。

2. 実験方法

試料は大気溶解によって調整したB無添加の36Ni合金およびこれにBを0.0017%、0.0044%、0.0120%含有する36Ni合金で、それらの化学組成をTable 1に示す。

供試材は次のような工程で作製した。すなわち大気溶解により10kg銅塊を作製し、熱間鍛造を行い6mmとし、次いで冷間圧延により2.8mmとし、これらを900°C30minソルトバス中で加熱後水冷した。この焼鈍材を4H圧延機により、60、80、87および93%の冷間圧延を行った後、雰囲気加熱炉中で900°C30分H₂中(露点-30°C)で熱処理した。これら冷間圧延材、焼鈍材の集合組織変化について調査した。

集合組織の測定はCu-K α 特性X線を用いシュルツ反射法によって(111)極点図を測定した。試料はいずれも未研磨のままのもの、および化学研磨により片側約20 μm 研削したものをを用いた。

Table 1. Chemical compositions of Fe-36%Ni alloys used (mass%).

No	C	Si	Mn	P	S	Ni	B
1	0.003	0.19	0.30	0.002	0.001	36.02	0.0000
2	0.002	0.13	0.27	0.003	0.001	36.10	0.0017
3	0.002	0.16	0.31	0.004	0.001	36.10	0.0044
4	0.003	0.11	0.30	0.003	0.001	36.05	0.0120

3. 実験結果

3・1 圧延集合組織

Fig. 1 はB無添加材およびB0.0120%含有材で冷間圧延率を60, 80, 87%としたものの未研磨表面の(111)極点図を示した。またFig. 2にはB0.0017%, 0.0044%含有材で冷間圧延率を93%としたものの未研磨表面の(111)極点図を示した。なお以降のすべての極点図中の等高線のレベルは、各結晶粒の方位がランダムに分布した場合の極密度を1としたときの相対極密度で示した。図中の等高線の各レベルの値は、図中のレベル数字の範囲を等分してあるので、各図中の等高線の数で徐することによって求めることができる。

未研磨の表面では、冷間圧延率が高くなるにつれB無添加材 (Fig. 1 (a) (b) (c) および, Fig. 2 (a)) およびB0.0120%含有材 (Fig. 1 (d) (e) (f) および, Fig. 2 (d)) とともに、面心

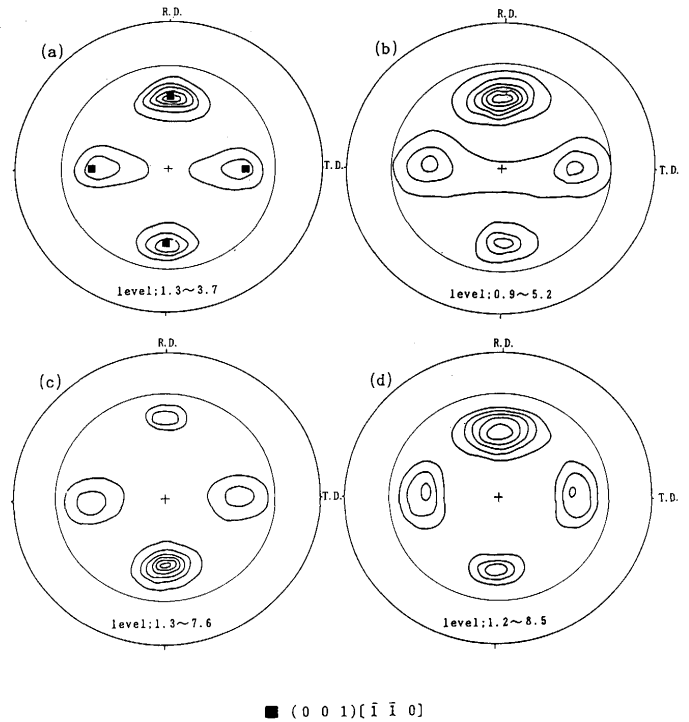


Fig. 2. (111) Pole figure for the surface layer of Fe-36%Ni alloys cold rolled by 93%.

(a) 0.0000%B (b) 0.0017%B
(c) 0.0044%B (d) 0.0120%B

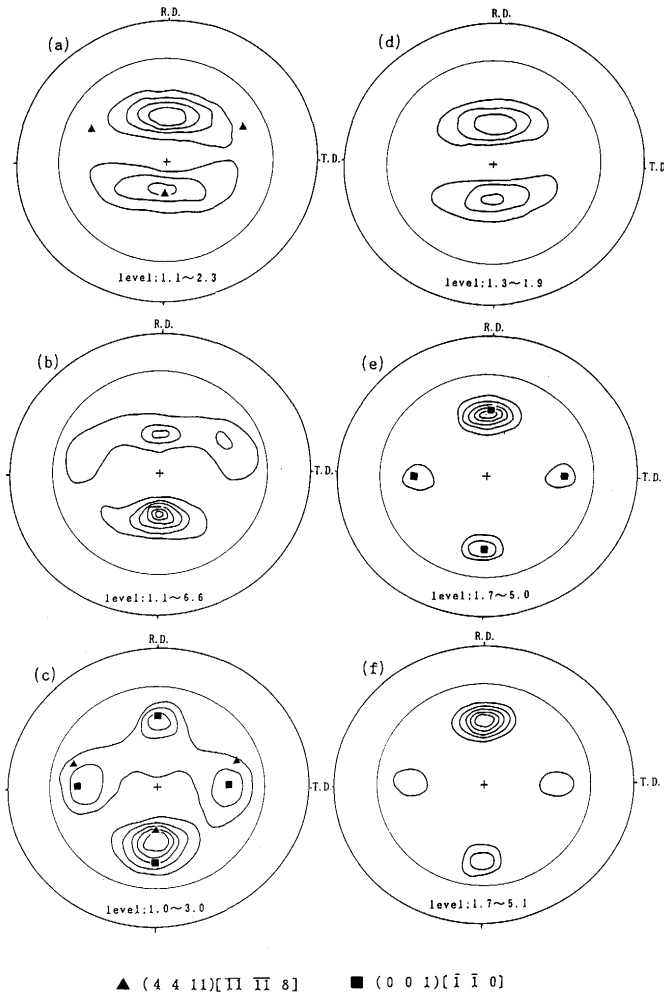


Fig. 1. (111) Pole figure for the surface layer of Fe-36%Ni alloys cold rolled.

(a) 0.0000%B, 60% cold rolled
(b) 0.0000%B, 80% cold rolled
(c) 0.0000%B, 87% cold rolled
(d) 0.0120%B, 60% cold rolled
(e) 0.0120%B, 80% cold rolled
(f) 0.0120%B, 87% cold rolled

立方金属の純金属型の圧延集合組織から{001} <110> 方位へ順次移行していくことがわかる。すなわち冷間圧延率が低い場合には{001} <110> に向かう表面のせん断変形が不十分なため、純金属型の圧延集合組織の最終安定方位である{4 4 11} <11 11 8> となっているが、冷間圧延率が高くなり十分なせん断変形が行われるにつれ、{001} <110> へと移行している。Fig. 2 よりわかるように、B含有量の多少にかかわらず高冷間圧延率の36Ni合金では、未研磨表面には{001} <110> が認められている。この方位は{001} <100> の立方体方位を板面まわりに、45°回転させた方位であり、Fe-Ni系合金において、このようなタイプの圧延集合組織を観察した報告はない。

{001} <110> はAlの表面集合組織として報告⁶⁾されており、この表面集合組織は圧延条件を調整することにより、板厚の30%の深さまで存在し、薄い遷移層を経て、内部集合組織に変化することが示されている。

これに対し、本実験の36Ni合金の場合には、わずかに20~30 μmの研磨により、この表面集合組織は消失し、{001} <110> の存在は、ごく表面に限られていた。また、この表面集合組織の存在は含有されるBの量が多いほど顕著になる傾向にある。

Fig. 3 および Fig. 4 には、Fig. 1 および Fig. 2 の試料をそれぞれ表面を約20 μm研磨した内部の集合組織を示した。B無添加材では、冷間圧延率が60%と低い場合には (Fig. 3 (a)), 軽微な {4 4 11} <11 11 8> と、純金属型圧延集合

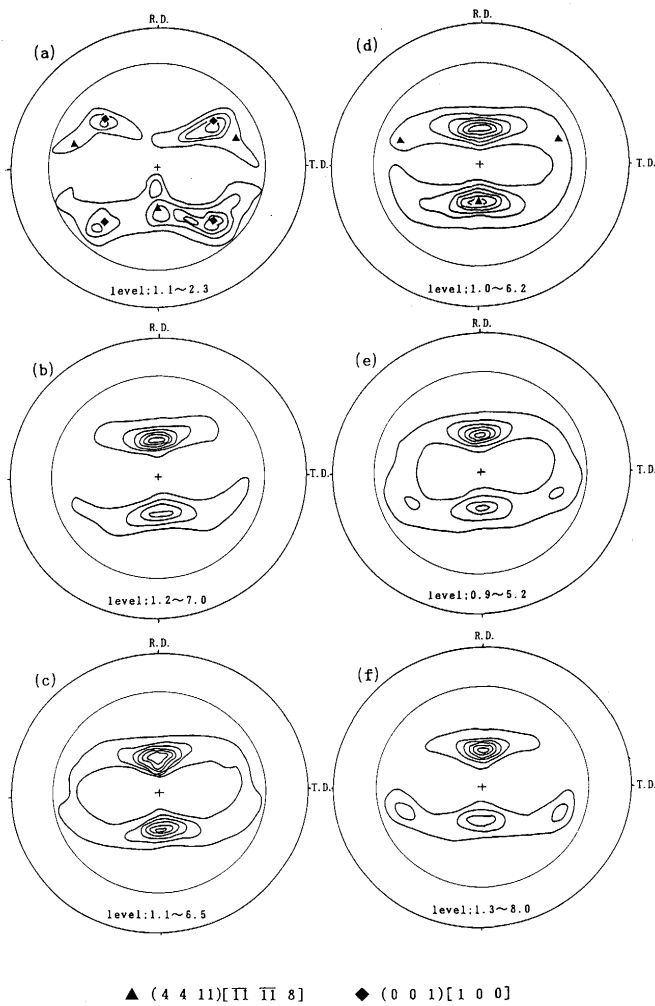


Fig. 3. (111) Pole figure for the layer of 20~30 μ m from the surface in Fe-36%Ni alloys cold rolled.

- (a) 0.0000%B, 60% cold rolled
 (b) 0.0000%B, 80% cold rolled
 (c) 0.0000%B, 87% cold rolled
 (d) 0.0120%B, 60% cold rolled
 (e) 0.0120%B, 80% cold rolled
 (f) 0.0120%B, 87% cold rolled

組織の再結晶集合組織として発達する立方体方位が認められる。圧延率が80, 87, 93%と高くなるにつれ、純金属型圧延集合組織が鮮鋭化し、その主方位の一つである $\{4\ 4\ 11\}$ $\langle 11\ 11\ 8 \rangle$ が発達している。(Fig. 3 (b) (c)および, Fig. 4 (a))。Bを0.0120%含有する36Ni合金では、B無添加材の場合と異なり、冷間圧延率が60%の場合でも、立方体方位は認められず、 $\{4\ 4\ 11\}$ $\langle 11\ 11\ 8 \rangle$ 方位が強く認められている (Fig. 3 (d))。

これらの内部の圧延集合組織は、冷間圧延率93%材と比較すると、Bの含有量に関係なく、 $\{4\ 4\ 11\}$ $\langle 11\ 11\ 8 \rangle$ となっている (Fig. 4)。

圧延集合組織は、微量な合金元素の影響をほとんど受けないようであり、いろいろな純度のAlの圧延集合組織を検討した報告⁹⁾やCuに B_4C を微量分散させた場合の圧延集合組織についての報告¹⁰⁾によれば、圧延集合組織は、微量の合金

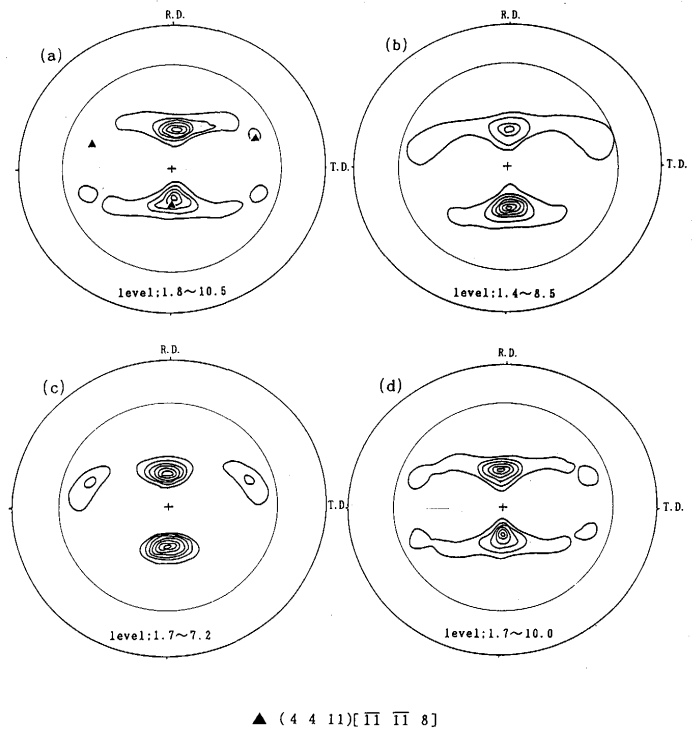


Fig. 4. (111) Pole figure for the layer of 20~30 μ m from the surface in Fe-36%Ni alloys cold rolled by 93%.

- (a) 0.0000%B (b) 0.0017%B
 (c) 0.0044%B (d) 0.0120%B

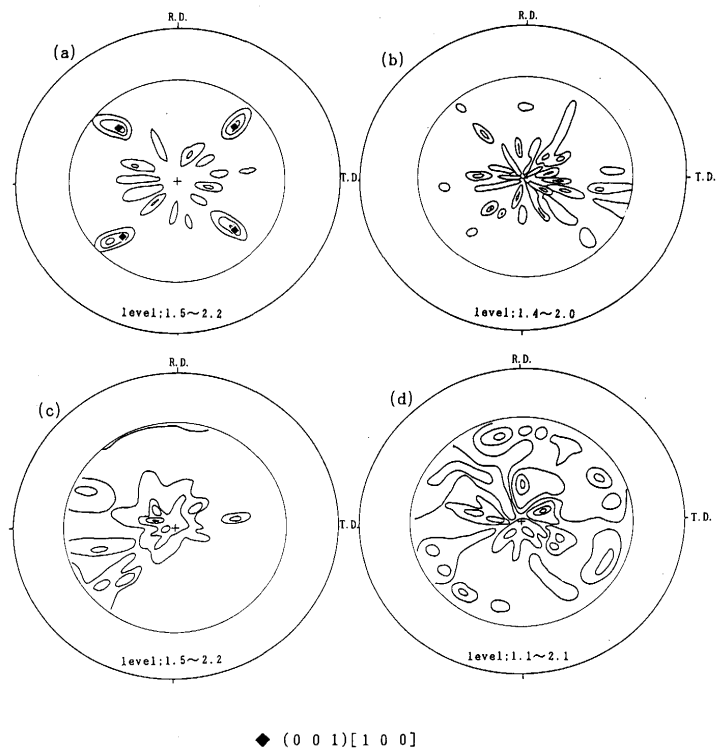


Fig. 5. (111) Pole figure for the surface layer of Fe-36%Ni alloys cold rolled by 93% and annealed for 30min at 900°C.

- (a) 0.0000%B (b) 0.0017%B
 (c) 0.0044%B (d) 0.0120%B

元素や、微量の析出粒子によって、ほとんど影響されていない。本実験結果もB量を0.0120%まで含有しても、無添加

材と同様の圧延集合組織となっており、上記報告と同様の結果となっている。

3・2 再結晶集合組織

B量を変化させた93%冷間圧延材の未研磨表面の再結晶集合組織をFig. 5に示す。B無添加の材料では、弱い立方体方位の他に、方位を特定できない再結晶粒が認められるが、全体的に強い集合組織は認められず、ランダムといえる集合組織となっている。さらにB量が0.0044%、および0.0120%含有材では、立方体方位は認められずまったくのランダムとなっている。冷間圧延表面集合組織として、本36Ni合金と同様な{001}〈110〉表面集合組織を有するAlでは、表面の再結晶集合組織として{123}〈143〉、{123}〈931〉等が認められるが²⁸⁾、本36Ni合金では、B無添加の場合を除き、ランダム組織となっている。

B無添加材では、冷間圧延表面集合組織が{001}〈110〉

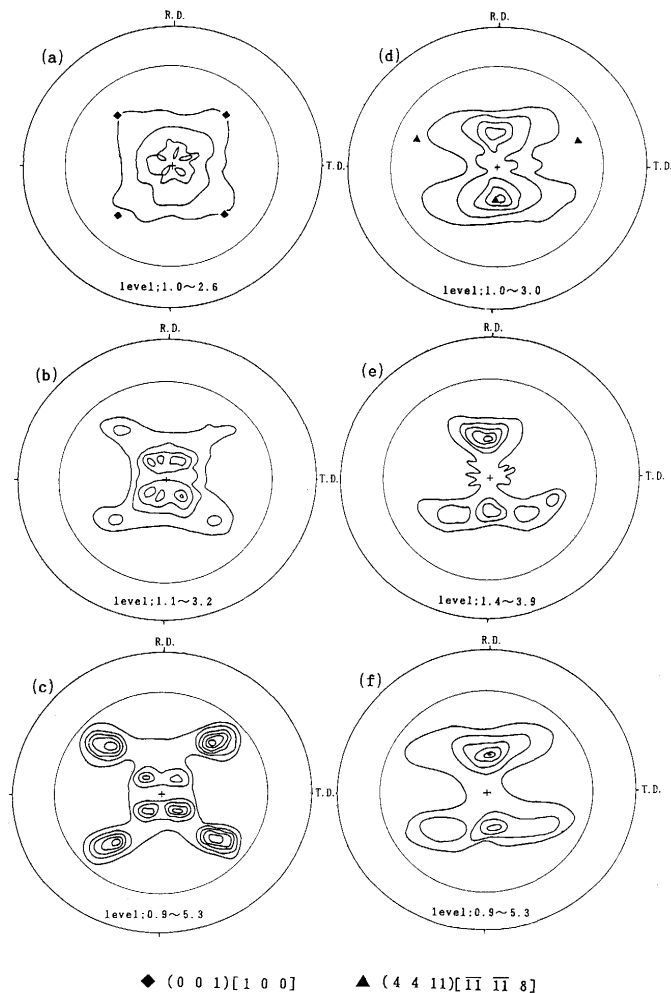


Fig. 6. (111) Pole figure for the layer of 20~30 μ m from the surface in Fe-36%Ni alloys cold rolled and annealed for 30min at 900°C.

- (a) 0.0000%B, 60% cold rolled
 (b) 0.0000%B, 80% cold rolled
 (c) 0.0000%B, 87% cold rolled
 (d) 0.0120%B, 60% cold rolled
 (e) 0.0120%B, 80% cold rolled
 (f) 0.0120%B, 87% cold rolled

となっていたにもかかわらず、再結晶集合組織に弱い{100}〈001〉の立方体方位が認められたのは、B無添加の36Ni合金の集合組織は純金属型のそれと近いことより内部の冷間圧延集合組織の再結晶の優先方位であると考えられる{100}〈001〉が、他のB入り材の場合と異なり、Bによる析出物が無いため、表面層まで成長可能であったためと考えられる。これに対しB含有材では内部集合組織からの優先成長方位の立方体方位や、立方体方位の形成を妨げ連続再結晶したと考えられるR方位の{4 4 11}〈11 11 8〉も十分表面層への成長が可能で、表面で形成された再結晶粒もまた内部まで十分成長できずに、ランダムのまま残ったものと考えられる。

表面層を約20 μ m研磨した内部の再結晶集合組織をFig. 6およびFig. 7に示す。B無添加材では、冷間圧延率が60%から93%へと高くなるにしたがい、{100}〈001〉の立方体方位が発達している (Fig. 6 (a) (b) (c) および Fig. 7 (a))。冷間圧延率が低い場合には立方体方位が発達しないが、これは圧延によって立方体方位の核生成サイトが加工組織中に形成されないことによるものであろう。一方B0.0120%含有材では冷間圧延率が高くなるにしたがい、{4 4 11}〈11 11 8〉が鮮鋭化している (Fig. 6 (d) (e) (f) および Fig. 7 (d))。この{4 4 11}〈11 11 8〉は20 μ m研磨した内部の冷間圧延集合組織に認められた方位であり、Fig. 3, Fig. 4 および Fig. 6, Fig. 7におけるB0.0120%含有材の冷間圧延集合組織と再結晶集合組織を比較するとよくわかるように、鮮鋭化の

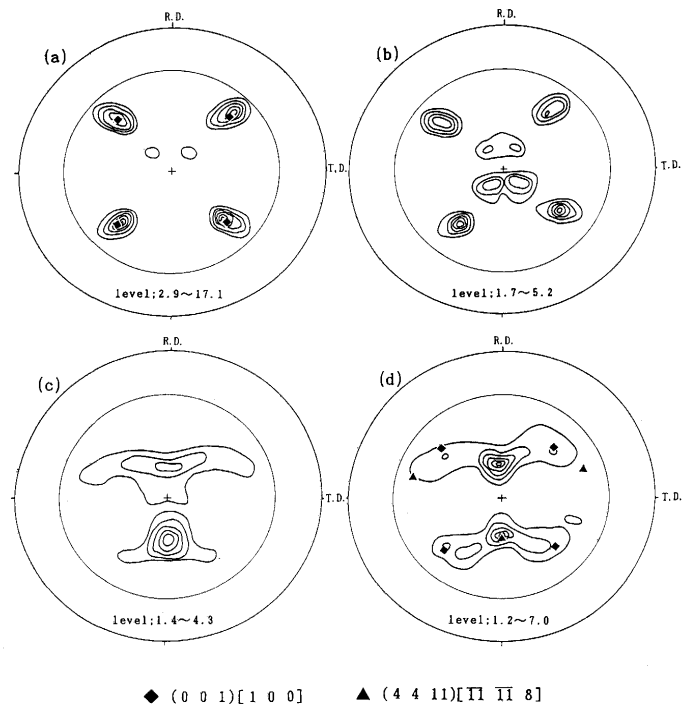


Fig. 7. (111) Pole figure for the layer of 20~30 μ m from the surface in Fe-36%Ni alloys cold rolled by 93% and annealed for 30min at 900°C.

- (a) 0.0000%B (b) 0.0017%B
 (c) 0.0044%B (d) 0.0120%B

程度が異なるだけで、再結晶により、冷間圧延集合組織と同一指数で表されるR方位成分が発達していることがわかる。

Fig. 7より93%冷間圧延材の再結晶集合組織のB量による変化を見ると、B無添加材および0.0017%含有材では{100} <001>の立方体方位を有しているが、B含有量0.0044%以上になると{4 4 11} <11 11 8>となり、再結晶集合組織の主成分は圧延集合組織の主成分と同様となりR方位が形成されている。

4. 考察

4・1 表面および内部の冷間圧延集合組織

本実験36Ni合金では、表面層に{001} <110>方位から成る集合組織が認められた。この方位は表面集合組織としてこれまでAlにおいて認められており、Fe-Ni系合金において、このようなタイプの圧延表面集合組織を観察したという報告はない。

Alにおいて{001} <110>の表面集合組織が形成されやすい条件としては、Alのように積層欠陥エネルギーが高く、冷間圧延時にロールと素材の間に作用する摩擦力が大きいことが重要となっている¹¹⁾。本実験では、B無添加材の冷間圧延率60~93%の材料では、{001} <110>が認められたり、認められなかったりするが、これは圧延時の1パス当たりの冷間圧延率や、ロール表面の汚れの程度の差異等により、ロールと素材の摩擦抵抗に微妙な差異を生じた結果によるものと考えられる。

これに対しB0.0120%含有材では、80~93%冷間圧延材のすべてに顕著に{001} <110>が認められる。さらに93%冷間圧延材で比較すると、B量が増すにつれ{001} <110>が次第に鮮鋭化している。

これらのことより、Bは36Ni合金の{001} <110>の表面集合組織形成に大きく寄与していることは間違いない。

一般にBを含有するFe-Ni系合金では、Bを含有しない合金に比べ、双晶形成が少なくなる傾向にあり、このことはBを含有することにより積層欠陥エネルギーが高くなることを予想させるものである。しかし、本実験の約0.0120%程度の添加では、平均的には数100ユニットセルに1個のBが存在することになり、積層欠陥エネルギーへのBの効果は必ずしも大きいとは考えられない。

一方Bは極めて表面偏析しやすい元素であることが知られている¹²⁾¹³⁾ので、冷間圧延前の熱処理により表面層に偏析し、そのため表面層近くでは積層欠陥エネルギーを高めたり、またB化合物を形成したりして、圧延時の摩擦係数が変わることなどが予想される。これらのことより、B添加材では、B無添加材に比べ、表面層では異なる集合組織を形成し易い要素を備えていると考えられる。

一方内部では、いずれのB量における材料とも、その冷間圧延集合組織は、{4 4 11} <11 11 8>を主方位とする純金

属型の集合組織を呈していた。一般に面心立方構造金属およびその合金の冷間圧延集合組織は、Al, Cu, Au, Niなどに見られる一様な強度をもつ{011} <211>方位から{112} <111>に至る優先方位よりなる「純金属型」と7-3黄銅, Ag等に見られる{011} <100>方位から{011} <211>に至る優先方位を有する「合金型」に大別されるが、本実験の36Ni合金で認められた{4 4 11} <11 11 8>は、{112} <111>方位を横方向まわりに約8°回転した方位で、集合組織形成のTaylorモデルの最終安定方位としてAlの圧延集合組織などで認められる方位である¹⁴⁾。このような純金属型と合金型の集合組織の形成の差異は主としてそれら金属の積層欠陥エネルギーの大小に起因している。本実験のように少ないBの添加量では、36Ni合金の積層欠陥エネルギーを大きく変えるといったことは考えられないこと、および900°Cの熱処理温度では、後述するように、含有されているBの多くはFe₂BのようなB化合物となって析出していると考えられるが、その析出量では冷間圧延時の不均一変形組織形成の難易、すべり系の硬化の難易、交差すべりの難易などを変えるほどの効果はないことなどより、B添加しても冷間圧延集合組織に変化をきたす効果が無かったものと考えられる。

4・2 内部の再結晶集合組織とBの溶解度

純金属型の圧延集合組織を有するAlやCu等の積層欠陥エネルギーの比較的高い面心立方金属を焼鈍すると、鮮鋭な立方体方位を示すことがよく知られている。

本実験のB無添加の36Ni合金においても、鮮鋭な立方体方位が形成されている。本実験での再結晶集合組織は、900°C焼鈍の場合、B無添加材および0.0017%含有材では、冷間圧延集合組織の純金属型集合組織を焼鈍したときに、一般的に見られる立方体方位の{100} <001>が形成されている。しかしB0.0044%および0.0120%含有材では、冷間圧延集合組織の主方位である{4 4 11} <11 11 8>が発達していた。

このように再結晶集合組織として冷間圧延集合組織と同一方位が認められる例は数多く報告されている。例えばAlの純度を変えて、再結晶集合組織の変化を調べた辺見ら⁹⁾およびLückeら¹⁵⁾の報告では、再結晶集合組織は純度によって異なり、純度が上がるにつれ、{100} <001>成分が生成し易くなり、純度が低い場合には、焼鈍温度を高めたり、焼鈍時間を長くしても、{100} <001>は生成せず、圧延集合組織と同一方位が発達している。

またFe-Cu系合金において、冷間圧延集合組織は圧延前にCuが固溶または析出していても変わらないが、再結晶集合組織は焼鈍前にCuが析出していたり、あるいは焼鈍中に析出するCu量が多いほど、冷間圧延集合組織が発達し、通常再結晶集合組織の形成が妨げられることが報告されている¹⁶⁾。このように、再結晶集合組織が圧延方位やこれに近い方位のままで完了するのは、いずれも核成長の際、亜結晶粒界や粒界の移動が不純物元素¹⁷⁾、析出物によって妨げられるdrag効果によることに起因している。

本実験36Ni合金においては、B0.0017%含有材では立方体方位であるが、B0.0044%以上含有する場合には、圧延集合組織と同様の集合組織を呈している。このことは上記のことより、36Ni合金のBの溶解度と深い関わりがあるものと考えてよい。

オーステナイト鉄のBの溶解度に関する研究¹⁸⁾¹⁹⁾によれば、Bの溶解度は900°Cで約0.0015%であり、36Ni合金とオーステナイト鉄でBの溶解度に差が無いとすると、900°C焼鈍の場合には、B0.0044%、0.0120%含有材で、多量のB化合物が存在することになる。光学顕微鏡組織観察によれば、これらB含有材ではB無添加材にくらべ、粒界がやや太くエッチングされ、また通常の粒界にくらべ双晶がやや出現しにくい傾向にあり、Bの析出が起こっているものと考えられた。これらのことを勘案すると、本実験で認められたR方位の成因としては、B化合物粒子の存在によって再結晶界面の移動が妨げられて、いわゆる連続再結晶が起こった可能性が大きい。一方微量固溶Bの存在によって立方体方位の再結晶粒の成長の方がR方位の再結晶粒の成長よりも強く抑制された可能性も考えられる。

5. 結言

36Ni合金の集合組織に及ぼすBの影響 ($B \leq 0.0120\%$) について検討し、以下の結果を得た。

(1) 表面層の冷間圧延集合組織の主方位は $\{001\} \langle 110 \rangle$ であり、B含有量が多くなるにつれ、この表面集合組織は顕著になる。この表面集合組織は表面より約20 μm 以内に限られている。

(2) 内部の冷間圧延集合組織はBの含有量とは無関係に

$\{4\ 4\ 11\} \langle 11\ 11\ 8 \rangle$ を主方位とする純金属型圧延集合組織を示している。

(3) 再結晶集合組織は、表面層においては、B無添加材では、立方体方位を示したが、B含有材では、ランダム組織となっている。内部においては、B含有量が少ない場合には、立方体方位であるが、B含有量が多い場合には、連続再結晶する。このR方位の有無は、Bの溶解度と関係し、析出Bの多いほど、圧延集合組織が残存すると考えられた。

最後に本研究を行うにあたり、貴重な意見をいただいた当社技術研究所藤原晶彦氏に感謝の意を表したい。

文 献

- 1) 田中英八郎, 加藤春男: 日本金属学会誌, **22** (1958), p.30
- 2) 阿部秀夫, 関文男: 日本金属学会誌, **23** (1959), p.343
- 3) 中江仁, 岡田亜紀良: 日本金属学会誌, **32** (1968), p.368
- 4) 森田幹郎, 福井清: 日本金属学会誌, **37** (1973), p.855
- 5) 森田幹郎, 福井清: 日本金属学会誌, **37** (1973), p.866
- 6) 牧田春光, 花田修治, 和泉修: 日本金属学会誌, **51** (1987), p.883
- 7) 津田正臣, 根本力男: 鉄と鋼, **80** (1994), p.729
- 8) 上城太一, 関根和喜, 松川靖, 野口延夫: 日本金属学会誌, **36** (1972), p.669
- 9) 辺見善三, 永井武: 日本金属学会誌, **31** (1967), p.329
- 10) K.Gschwendner and F.Haebner: Z.Metallk., **56** (1965), p.544
- 11) 上城太一, 関根和喜, 久芳征一郎, 竹内敏郎: 日本金属学会誌, **36** (1972), p.33
- 12) 吉原一統, 新居和嘉: 日本金属学会誌, **47** (1983), p.941
- 13) 橋本哲: 鉄と鋼, **77** (1991), p.1992
- 14) 上城太一, 中野内幸雄: 日本金属学会講演概要 (1973年春季), p.58
- 15) K.Lücke and K.Detert: Acta Met., **5** (1957), p.628
- 16) W.C.Leslie: Trans. Met. Soc. AIME, **221** (1961), p.752
- 17) 伊藤邦夫: 鉄と鋼, **70** (1984), p.1878
- 18) A.Brown, J.D.Garnish and R.W.Honeycombe: Metal Science., **8** (1974), p.317
- 19) T.B.Cameron and J.E.Morrall: Metall. Trans., **17A** (1986), p.1481