加工せる高純アルミニウムの軟化について*

五十嵐 勇** 五十嵐 全***

On the annealing of cold rolled high-purity aluminium poly-crystal*

(UDC 539. 216. 219 : 621. 944. 124 : 667. 71)

IGARASHI Isamu** IGARASHI Tamotu***

This is a report on the annealing of cold-rolled high-purity aluminium. The softening, recovery and recrystallization of the metal have been studied by measuring the diffracted X-ray intensity count number of the all Debye-scherrer rings by use of G.M counter.

(Received Dec. 28, 1960)

1. ま え が き

A. H. Lutts & P. A. Beck¹⁾は高純アルミニウム（不純物：Si 0.009%, Fe 0.0018%, Mg 0.004%, Ca < 0.0002%, Na < 0.0005 Wt%）の単結晶を室温で圧延してX線（220）面について測定し、Fig. 1 に示す結果を得た。

われわれは高純アルミニウム（住友化学工業㈱製不純物：Si 0.001%, Fe 0.002%, Cu 0.002%）の多結晶について同じような実験を試みた。Fig. 2はその結果である。X線による歪の測定は Beck の結果とよく合値するが硬度は異なる結果となつた。これは加工前が多結晶体と単結

晶との違いによるものと思われる。Beck は 80% 圧延し（220）面だけでX線で測定したがここでは色々と加工度を変え、X線での測定も（220）面以外についても行なつた。次に90%圧延した試料でX線で回復、再結晶の進行状態を見た。

Fig. 1 Isothermal softening and recovery of line broadening at 350°C of pure aluminium single crystal rolled in the (110)[112] orientation at room temperature to 80 pct reduction. The microhardness (DPHN) values are averages of five readings with 200 gram load. The line broadening index (B) is defined as the ratio in percent of the intensity minimum measured between the two line of the CuK α doublet and of the intensity maximum of the CuK α_1 peak, both corrected for background intensity. The line broadening measured reflection from (220) plane.

Fig. 2 Isothermal softening and recovery of line broadening at 160°C of pure aluminium poly-crystal rolled at room temperature to 77.7 pct and 89 pct reduction. The micro-hardness (DPHN) values are averages of ten readings with 100 gram load. The line broadening index (B₁) is defined as the ratio between the integrated reflection intensity, and the intensity maximum peak, both corrected for background intensity. The line broadening measured reflection from (220) plane.

* 本報告は軽金属研究会第19回秋期大会 (35-11-15) で講演

** 岩手大学工学部教授工博 Prof. Faculty of Engineering, Iwate University Dr. Eng.

*** 秋田大学鉱山学部 A member of the faculty of mining, Akita University

2. 試料および実験方法

前記純度の原料アルミニウムを十分鍛造し結晶粒を微細化して2.1, 2.2の実験試料とする。

2.1 前記試料を圧延, 270°Cに15hr 焼なましを行ない炉冷して表面を化学研磨した。9個の試料は厚さ10, 4.95, 3.26, 2.39, 2.00, 1.58, 1.44, 1.25および1.20 mmとした。

次に10mm厚さのものは10—8—6.5—5—3.5—2—1.1 mmと6 pass で同一方向に89%, 4.95mm厚さのものは4.95—3.5—2—1.1mmと3 pass で同一方向に77.7%, 他は1 pass で67.78, 60.25, 49.0, 36.7, 32.6, 21.6および16.6%室温で圧延, 1 pass ごとにロールより出た所を水で冷した。上記のように作成した試作をX線で積分幅および硬度を測定, 1ヵ月後に積分巾を測定した。

上記試料を切り160°Cの油で焼なましを行い, 焼なまし後X線で積分巾および硬度を測定した。

2.2 鍛造後フライス盤で表面を削り270°Cに15hr 焼なましを行ない, 炉冷して厚さ10.3mmより同一方向に8—6.5—5—3.5—2—1.05mmに圧延, 1 pass ごとにロールより出た所を水冷6 pass で89.8%圧延, 前後を切り落し一枚の板より長さ4cmの試料を11枚取り圧延方向より1, 2, 3, ..., 11と試料に番号をつけ, 160°Cの油のなかで焼なましを行なった。1は15秒, 2は30秒, 3は1分, 4は2分, 5は5分, 6は10分, 7は30分, 8は1時間, 9は2時間, 10は4時間, 11は8時間焼なましを行ない, 焼なまし後水冷, 表面の油を取りX線で測定を行なった。

2.3 X線での測定は島津自記X線分析装置 Gx-2B型にユニバーサル試料台を取り付け, 試料を廻転させ見掛けの結晶粒数を多くするとともに結晶の方向性の影響をなくして測定した。

測定条件はX線管の対陰極はCu, 電圧は35kV, 電流は17mA, Ni フィルターを使用, 検出管はG. M. 計数管, 電圧は1,500V, 計数管走査速度は $\frac{1}{2}^\circ/\text{min}$, 時定数2.5sec, ゴニオメーター半径170mm, ソーラスリット開き角 2.2° , 検出スリット0.3mm, 試料および検出スリット間のスリット8mm, 分散スリット(111), (200)面測定の場合は1mm, 他の面を測定の場合は2mmで行った。

積分巾 B_I は

$$B_I = \left\{ \int_{\theta_1}^{\theta_2} I d\theta - \int_{\theta_1}^{\theta_2} I_b d\theta \right\} / 1.5 \{ I_{max} - I_b \}$$

を計算し, その値より(111)面では23, (200)面では24, (220)面では23, (222)面では25, (400)面では22.5, (331)面では26, (420)面では27.5, (422)面では33を減じて示した。これらの数は測定に際して幾何学的条件

や, CuK α 線自身のスペクトル巾や, 原子の熱運動による変動など種々の影響により出てくる巾で測定値の変化を比較するため仮りに定めた数で測定条件を変えれば当然変えねばならぬ数値である。ここで $\int_{\theta_1}^{\theta_2} I d\theta$ は Debye-

Scherrer 環を含み 300sec, すなわち $\theta_2 - \theta_1 = 2.5^\circ$ の角度内を計数した値, ただし(422)面では500sec間, すなわち $\theta_2 - \theta_1 = 4^\circ$ の角度内を計数した count 数, $\int_{\theta_1}^{\theta_2} I_b d\theta$ は Debye-Scherrer 環近く K β 環による環もよけて100sec, すなわち約 1° を計数した count 数を3倍し(422)面では5倍した値, I_b は前記100sec計数値の1/100, すなわち1secの平均 count 数, I_{max} は自記させた記録紙上での最高値の読み, すなわち時定数25secの場合の1secの最高計数値でこの値を使用した。1.5は $I_{K\alpha_2}/I_{K\alpha_1} = 0.46$ なる関係と $K\alpha_1$ と $K\alpha_2$ による反射線の強度の profile はそれぞれ相似であると見なし近似的に1.5という数を出した。

積分反射値は $\left\{ \int_{\theta_1}^{\theta_2} I d\theta - \int_{\theta_1}^{\theta_2} I_b d\theta \right\}$ を用いた。

以上 G.M. 管の測定で dead time による counting loss の補正は行なわなかった。

2.4 硬度は明石製作所マイクロ・ピツカース硬度計を使用, 荷重は100g 荷重で測定, Beck は5回測定の平均を取つている所からここでは10回測定の平均値を取つた。

3. Debye-Scherrer 環の巾および反射能

3.1 結晶粒度による D-S. 環の巾

Debye-Scherrer 環は単色示性X線により現れるが単波長といつてもスペクトル線の波長にはわずかの巾があり, 波長と巾の比 $\Delta\lambda/\lambda$ は1/2000程度である²⁾。標準回折線の巾の最小値は Bragg 角の函数で $\Delta(2\theta) = 2 \tan \theta \frac{\Delta\lambda}{\lambda} \approx 10^{-3} \tan \theta$ である。またX線も光と同様反射格子の数と間隔の積に逆比例してボケルのでこれと同じ巾を与える結晶の見かけの大きさは

$$\lambda/L \cos \theta = 10^{-3} \tan \theta$$

$$\therefore L = 1000\lambda/\sin \theta$$

ゆえに Cu の $K\alpha_1$ を用いると $1,000 \sim 2,000 \text{\AA}$ より大きい結晶粒では環の巾には影響しない。

3.2 格子歪による Debye-Scherrer 環の巾

Bragg の条件 $n\lambda = 2d \sin \theta$ を微分することにより

$$\Delta(2\theta) = 2 \tan \theta \frac{\Delta d}{d}$$

となり原子が格子位置よりずれると面間隔の変動により Debye-Scherrer 環は広がる。

3.3 Debye-Scherrer 環の巾測定法

3.1, 3.2 の関係より Debye-Scherrer 環の巾を測定し試料の状態を観察するのであるが、巾の測定方法には Becke が用いた broadening index³⁾ $B = (I_{min} - I_b) / (I_{max} - I_b)$ (I_{min} は $\text{CuK}\alpha_1$ と $\text{CuK}\alpha_2$ による反射線間の最小 Intensity の値, I_{max} は $\text{CuK}\alpha_1$ による反射線の Peak の Intensity, I_b は back ground の Intensity) を求める方法と、半減巾、すなわち $(I_{max} - I_b) / 2 + I_b$ だけの Intensity の値を示す所の角度差を測定する方法と、積分巾 ($\int I d\theta - \int I_b d\theta$) / $(I_{max} - I_b)$ を測定する方法などがある。いずれも巾を測定するのに変りないが、著者らの実験では理論的計算によく用いられる積分巾を測定した。

3.4 X線反射能

無限結晶の面による反射能は

$$P_e = Q / 2\mu\rho$$

であるが、1 次消衰効果だけを考えたと

$$P_a = Q' / 2\mu\rho$$

ただし

$$Q' = Q \tanh 2t \sqrt{\frac{Q \cot \theta}{\lambda(1 + \cos^2 2\theta)}} / 2t \sqrt{\frac{Q \cot \theta}{\lambda(1 + \cos^2 2\theta)}}$$

となる。

ここで

Q : 単位体積当りの反射能

μ : 吸収係数

ρ : 密度

t : 微小結晶, すなわちモザイクの厚さ

g : モザイク・ブロックの方位の乱れを表わすパラメーターで方位乱れが小さいほど大きくなる係数

また 2 次消衰効果だけを考えたと

Fig. 3 (a)

$$P_b = Q / 2(\mu\rho + gQ)$$

となる¹⁴⁾。ここで $Q' = xQ$ と置いて

$$P = xQ / 2(\mu\rho + gxQ)$$

と表わし P_e との比を求めると

$$P_e / P = (\mu\rho + gxQ) / \mu\rho$$

この式の g および x についてこの微係数を求めると

$$\frac{\partial P_e / P}{\partial g} = \frac{Q}{\mu\rho} > 0$$

$$\frac{\partial P_e / P}{\partial x} = \frac{gQx^{-1} - (\mu\rho + gxQ)x^{-2}}{\mu\rho} = \frac{-1}{x^2} < 0$$

となる。 x は小さい t に対して 1 であり, t が増加するにつれて Q が大きい程急速に減少する。そこで P_e / P は g および t に関して増加函数であることがわかる。

4. 実験結果および考察

Fig. 3 より純アルミニウムを圧延すれば各格子面の積分巾を増し格子は歪む。その歪による積分巾の増減はどの格子面の測定値もほぼ平行に変化するのである。また約 20% 圧延と約 60% 圧延の所に積分巾の山ができる。これは Al 結晶の変形され方が加工度によりそれぞれ違うためと考えられる。このことは 20% 以下の圧延, 20~60

Fig. 3 (b)

Fig. 3 Recovery of line broadening for one month at room temperature of high-purity aluminium polycrystal rolled at room temperature. The microhardness (DPHN) values are averages of ten readings with 100 gram load. The line broadening index (B_1) is defined as the ratio between the integrated reflection intensity and the reflection intensity maximum peak, both corrected for back ground intensity.

Fig. 4 The ratio of the diffracted X-ray intensity for cold-rolled strip, as rolled and after one month.

Fig. 5 Isothermal recovery of line broadening at 160 °C of high-purity aluminium poly-crystal rolled at room temperature to 90 pct. reduction. The line broadening is defined as the ratio between the integrated intensity, and the intensity maximum peak, both corrected for back ground intensity.

％の圧延，60％以上の圧延と3通りの変形機構があるように思われる。

T.L.I. Richards, S.F.Pugh³⁾は50％以下の圧延では<110>{111}のすべりが起り{110}<112>の繊維組織ができ50％以上では第2のshearが現われ，それは<110>{100}でその変形は第2の繊維組織{112}<111>を造り出すと述べている。

Fig. 3と**Fig. 4**から高純度アルミニウムは常温またはそれ以下で電気抵抗が回復し再結晶がはじまるといわれているが常温では1カ月で格子の歪は回復するがモザイクの変動による反射能の変化は見られない。ただし加工していない試料では(111)面に反射能の変化が現れている。これは熱歪の回復現象と思われ，焼なまし状態では加工材に比べ転位が動きやすく，すべり面の転位が常温で動きモザイクの変動をともなう回復を起したものと思われる。

Fig. 5では積分巾が焼なまし時間とともに減少し一定の値に止ることがわかる。このことは格子歪は焼なまし時間とともに減少し一定の値になることで160°Cでは1～2minで回復することがわかる。しかし(220)面では回復が非常に早く15secも必要としない。これは**Fig. 7**より反射能に変化がないことからわかり，反射能の

Fig. 6 Isothermal movement of the diffracted X-ray intensity count number °C at 160 °C of high-purity aluminium polycrystal rolled at room temperature to 90 pct. reduction.

Fig. 7 The ratio of the integrated reflection intensity for cold-rolled strip, as rolled and after annealed.

変化はモザイクブロックまたは結晶の変動によることから(220)面の回復はモザイクブロックの変動をともしない回復であり、モザイクの変動をともしない回復は格子歪だけの回復で、回復は非常に早いことがわかる。また(220)面はpolygonizeする前に回復し他面の回復再結晶という変動に関して何の変化も示さないものように見られる。

回復および再結晶という現象は t あるいは g が増加する現象である。ただし新結晶核が非常に小さくて多くできた場合のみは t あるいは g が減少することがある。すなわち3.4よりFig.7は変化しないかあるいは増加するかである。しかし(200)面では焼なまし2min後より減少が起る。このことは反射量の比は反射能だけの比ではなく反射面の比でもあり、Fig.6より反射量が増加していることがわかり、反射能が減少して反射量が増加するということは焼なまし2min後には(100)面が圧延面に平行に並び増加し始め、立方体繊維組織の形成がどん

どんと進行しているものと見られる。しかしこの現象はこれだけの実験ではOriented nucleationであるかOriented growthであるかいずれともいえない。

5. 結論

(1) A. H. Lutts, P. A. Beck は高純度アルミニウム単結晶を80%圧延した場合歪の回復は早く、軟化は相当おくれることを示したが、われわれの多結晶における実験の結果では歪の回復に対して軟化のおくれは見られなかった。

(2) 回復には

(a) 積分巾で測定される元子の格子点よりのずれの回復。

(b) 反射能で測定されるモザイク・ブロックの変動による回復。

(c) 積分反射で測定される新方向の結晶生長による変化。

がある。

(b)をともしない(a)だけによる回復は(220)面で非常に速い。(a)と(b)による回復は90%圧延、160°Cでは1~2minを必要とする。(a)と(b)の回復後(c)の変化が進行する。

(3) (a)だけで回復する面と、(a)と(b)で回復する面がある。

(4) 加工後室温で回復させた場合1カ月で(a)の回復は見られるが(b)の回復はほとんど見られなかった。

熱歪の回復は(111)面においてのみ(a)と(b)による回復が見られた。

(5) 積分巾と硬度はほとんど平行に変動する。

本報告は財団法人軽金属奨学会の補助を受けて行なったものでここに有難く謝意を表する。

参考文献

- 1) A.H.Lutts & P.A.Beck: J. Met. **6** (1954) 257.
- 2) 高良和武, 細谷資明, 土井健治, 新関暢: 共訳, A・ギニエ, X線結晶学の理論と実際.
- 3) A.E.Van Arkel & W.G.Bruggers: Ztsck. Physik (1928), 690.
- 4) 2) のp.118.
- 5) T. Ll. Richards & S. F. Pugh: J. Inst. Met., **88** (1960), 399.