Al-0.04%Fe 合金における R-方位の構成成分に 及ぼす焼鈍温度の影響

伊藤 邦夫*・クルト・リュッケ**

The effect of annealing temperatures on the compositions
of R-orientation in Al-0.04%Fe alloy

UDC 669.715'12 : 621.785.3 : 548.23

ITO Kunio* and LUCKE Kurt**

Textures of Al-0.04%Fe alloy sheets cold rolled to 95% were measured before and after annealing at exactly the same positions in the sheets. Amounts of retained rolling orientations and orientations formed by $\langle 111 \rangle 40^\circ$ related growth in the R-orientation of recrystallization textures were estimated by comparing the annealing textures with their corresponding rolling textures. More growth components are found in the sheets annealed at 520°C than retained ones, but vice versa in the sheets annealed at 400°C . Nearly the same quantities of both components are found in the sheets annealed at 320°C . The results are interpreted by (i) selective retardation of cell boundary migration of cube-orientated nuclei by dynamically segregating iron to moving boundaries at higher temperatures, (ii) inhibition of grain boundary migration resulting in recrystallization in situ by stable iron precipitates at intermediate temperatures, and (iii) decrease in solute iron in cold rolled matrix due to increasing precipitation and transition of a precipitating phase from stable to metastable one at lower temperatures, which lower the effects of (i) and (ii), respectively.

(Received December 1, 1977)

1. 緒 言

冷間圧延された純アルミニウムの再結晶集合組織は立方体方位のみから成るのに対し、工業用純アルミニウムのそれは立方体方位の他に、冷間圧延集合組織中の主方位である S-方位に似た R-方位を含んでいる。この R-方位をもたらす最も重要な因子は不純物としての鉄の存在であることが明らかになった¹⁾。

アルミニウムの再結晶集合組織の形成に関しては、再結晶粒の方位と加工マトリックスの方位の間に共通な $\langle 111 \rangle$ 軸に関する 40° の回転関係があること、これはこのような粒界の移動速度が特に大きいことに基づくことが知られている²⁾。アルミニウムの冷間圧延板においては加工マトリックスの方位は Fig. 1 に示すように、(112)面を圧延面に平行とし、 $[11\bar{1}]$ 方向を圧延方向と平行とする (112) $[11\bar{1}]$ 方位から (011) $[21\bar{1}]$ に至る範囲に連続的に分布していて、集積の中心は後述するようにこの 2 方位の中間の S-方位にある。S-方位には、その幾何学的対称性から、4 成分がある。Fig. 1 にはこの 4 成分に対する I, II, III, IV, $\langle 111 \rangle$ 軸に対する A, B, C,

D, 回転のプラス方向が定義されている。

以下冷延方位と $\langle 111 \rangle 40^\circ$ 回転関係にある方位を回転軸、回転方向、冷延方位によって示す。すなわち (C+/S I) は S-方位の成分 I から C 軸に関するプラス 40° 回転によって得られる方位を示す。

立方体方位が (C+/S I), (C+/S II), (C+/S III), (C+/S IV) の 4 方位の中間に位置する³⁾ ということは、立方体方位の核は隣接するマトリックスのほとんどすべての領域を比較的速い速度で食って成長できることを意味している。このことが立方体方位が再結晶集合組織に優先的に形成されている原因の 1 つであると考えられている³⁾。

いわゆる R-方位には、加工マトリックスが再結晶後もそのまま残存した領域 (残存冷延方位) も $\langle 111 \rangle 40^\circ$ 回転関係にある粒が成長することによって形成された領域 ($\langle 111 \rangle$ 成長方位) も含まれていることが組織観察によって知られている⁴⁾。S-方位と R-方位は幾何学的にはほとんど同一の方位であり、(A+/S I) は S IV に (B-/S I) は S II に、(D-/S I) は S III にほぼ一致する。

* 東京大学工学部 (東京都)。Faculty of Engineering, The University of Tokyo (Tokyo).

** アーヘン工科大学 (西ドイツ)。Institut für allgemeine Metalkunde, RW TH Aachen (Germany).

すなわち、S-方位自身も、S-方位と $\langle 111 \rangle 40^\circ$ 回転関係にあるこの3方位も結晶方位としてはR-方位とみなされる。

一方再結晶には不連続再結晶と連続再結晶のあることが知られている⁵⁾。不連続再結晶または真の再結晶では、再結晶粒が大角粒界の移動によつて加工マトリックスを食つてしまう。連続再結晶またはin situ再結晶では、大角粒界の移動は起こらず加工マトリックスの方位が再結晶後も保持される。S-方位との方位関係から、立方体方位は真の再結晶においてのみ形成されるが、R-方位は真の再結晶においてもin situ再結晶においても形成される。

鉄の存在がR-方位をもたらし機構の研究に関連して、著者らは前報^{6),7)}においてAl-Fe 2元合金圧延板の再結晶集合組織に及ぼす鉄の濃度と再結晶焼鈍温度の影響を調べた。その最も重要な結果は、R-方位は圧延前に固溶した鉄の存在したときのみ形成され、その量は焼鈍温度に著しく依存する、すなわち焼鈍温度が中間のときにR-方位の量は最大となり、それよりも低温で焼鈍しても高温で焼鈍しても立方体方位が増加するという点にあった。

この結果と、立方体方位とR-方位の再結晶過程での形成の特徴から、固溶していた鉄が再結晶中に析出して粒界移動を阻止しin situ再結晶を引き起こしたことによつて立方体方位形成が抑制されたのであれば、そのとき形成されるR-方位は残存冷延方位となることが期待される。形成されたR-方位が $\langle 111 \rangle$ 成長方位であるならば、鉄の効果は粒成長過程ではなく、核形成過程で生じたことを示すと考えられるべきである。

そこで本報ではR-方位中の残存冷延方位成分と $\langle 111 \rangle$ 成長方位成分の相対比を、その再結晶焼鈍温度による変化に注目しつつ、試料中の粗大結晶粒を用い、まず圧延集合組織の極点図を測定し、ついでその試片を再結晶焼鈍し再び試片の同一場所で再結晶集合組織の極点図を測定し、両者を比較することによつて、求めることを試みた結果を報告する。

すでに述べたS-方位とR-方位の関係からわかるように、圧延集合組織に4成分が対称的に存在するときには、極点図からは残存冷延方位と $\langle 111 \rangle$ 成長方位は区別できない。試片の粗大粒領域の圧延集合組織の極点図が非対称的であるときには、R-方位中のこの2方位を極点図において一応区別することができる。

2. 実験方法

2.1 試料作製および極点図測定

試料は630°C、5 hrの溶体化処理後室温で95%圧延された1 mmの板であつて、前報⁶⁾で用いたAl-0.04% Fe

Fig. 1 Typical orientations in rolling texture.

▲ (112) [11T] ■ (011) [21T]

合金と同一の組成・処理のものである (Fe = 0.033 wt %, Si, Zn, Ti, Cu, Mn は数 ppm 以下)。板の片面から0.45 mmを除去した後、圧延前に粗大粒であつた部分を切り出し、反射法のみを用い、積分動作は行なわずに中心から85°の範囲について極点図を測定した。所定の再結晶焼鈍を行ない、表面の酸化被膜を除去した後、同一試片の同一場所を同様に測定した。極点図中の等高線の強度1はアルミニウムの粉末を圧縮成型した試料の強度である。

全試片はそれぞれ5, 6, 5個の試片が属するグループI, II, IIIより成る。圧延集合組織測定後グループI, II, IIIにはそれぞれ520°C, 60 sec; 400°C, 80 min; 320°C 96 hrの再結晶焼鈍が行なわれた。

2.2 極点図の解析

2.2.1 基本方位群

圧延集合組織の1つの極点図には、いくつかの極密度の集積があつた。1組の集積の中心点に対応させて、1つの方位を決めた。Fig. 2の例では1つの極点図から2つの方位が決定された。このようにして全試片より得られた60の方位のなかから代表的なもの33を選んで基本方位群とした。これはFig. 1に示されている。このうち(112) [11T]から10°以内のものをCu-方位、(011) [21T]から10°以内のものをBrass-方位、その他のものをS-方位とした。

2.2.2 成分の強度

2.2.2.1 圧延集合組織

極点図における1組の極密度分布領域を1つの成分

値の平均値をとるべきであるが、いくつかの成分が近接してあるときにはそれぞれの分布が重なり合つて見掛け上の極密度強さが作り出される可能性がある。この点では7つの値の最小値が真の値に最も近いことになる。この2点のうち後者を重視しつつ前者も考慮して、前記のように1つの方位の強度を定義した。なお(111)と(200)の2つの極点図を同時に考慮したのは、極密度分布の重なり合いによる見掛けの強さの生じかたはこれらの2つの極点図では異なるから、2つの極点図で測定した7点の極密度のうちの最小値をその方位の強度として採用するならば、1つの極点図についてのみ測定した最小値を採用するよりも、原理的により真の値に近い値が得られるはずであるからである。

1つの成分の領域全体をおおうように選ばれた方位のなかから、特別の理由によるのでなくたんに労力を節約するためにさらに無差別にそのうちの半数を選び出し、それらの強度の和をその成分の強度とした。Fig. 2についていえば、⊕, ⊗, ⊙印の方位についてのみ強度を求め、⊕印6個の強度の和を成分Iの、⊗と⊙印7個の強度の和を成分IIの強度とした。

2.2.2.2 再結晶集合組織中のR-方位

Fig. 3において、⊕印はFig. 2の⊕印と同一の方位を示し、+, ⊕, ⊙印はFig. 2の⊕から得られる(A+), (B-), (D-)方位を示している。以下圧延方位そのままの方位を(Roll.)方位と呼ぶ。

Fig. 3の極点図中で、⊕印の方位のそれぞれについてFig. 2で求めたのと同様にして強度を求め、その和を成分Iの(Roll.)方位の強度とした。同様に+, ⊕, ⊙印の方位のFig. 3における強度の和を、それぞれ成分Iの(A+), (B-), (D-)方位の強度とした。

(112) [111] 方位ではA軸とC軸とは等価であるのでこの方位に近い方位では、わずかな差でA軸とC軸の名前のつけ方が入れ換わる。Fig. 2の成分IIでの⊗印と⊙印の違いは、これらの2つの方位群でA軸とC軸の名付け方が入れ換わっていることに対応している。Fig. 3に⊗印の方位からの回転方位が記入していないのはこれらの方位の強度がゼロであったからである。

2.2.2.3 圧延集合組織中の見掛けの回転方位

Fig. 3中の+, ⊕, ⊙印で表わされた方位の強度をFig. 2で求めてみると、それらは必ずしもゼロにはならない。このような圧延集合組織の極点図中で得られる(A+), (B-), (D-)方位の強度を見掛けの回転方位の強度と呼ぶことにした。もし圧延集合組織中にS-方位の4成分が対称的に存在するならば、見掛けの(A+), (B-), (D-)方位の強度はそれぞれ(Roll.)方位の強度と同程度になるべきであることはすでに述べた。本実験では圧延集合組織が非対称であるような試片

Fig. 4 Composition of R-orientation, its dependence on annealing-temperatures, and comparison between components in R-orientation and apparent components in rolling texture.

を選んだので、後述するように見掛けの回転方位の強度は3方位の和をとつても(Roll.)方位の強度の10~20%程度であった。

3. 実験結果

3.1 圧延集合組織

Fig. 4の左の3つの段が圧延集合組織の成分を示す。上, 中, 下段はそれぞれグループI, II, IIIに属する試片の個々の極点図中に存在した成分I, II……すべてについての強度の総和であつて、その値はグループごとに(Roll.)方位の強度の和を100として規格化してある。ここにおける(D-), (B-)方位成分は見掛けの回転方位であつて、その強度がグループによつて異なっているのは統計的ゆらぎによるものである。(A+)はゼロに等しかつた。

(Roll.)方位の強度を求めるために選ばれた基本方位のうちでCu-方位, S-方位, Brass-方位として分類されたものの強度の全試片にわたる総和をそれぞれCu-方位, S-方位, Brass-方位成分の強度とすると、(Roll.)方位の全強度中に占める割合はCu-方位, S-方位, Brass-方位成分がそれぞれ23%, 70%, 7%であつた。

3.2 再結晶集合組織中のR-方位

Fig. 4の右の3つの段はR-方位の成分を示す。上, 中, 下段はそれぞれグループI, II, IIIに属する試片の焼鈍後の極点図中に存在したR-方位成分すべてについての強度のグループごとの総和であつて、その値は対応する圧延集合組織での(Roll.)方位の強度を100としたときの相対値で示してある。

3.3 再結晶集合組織中のその他の方位

加工マトリックスと<111>40°回転関係にある方位のうち、R-方位に属する(A+), (B-), (D-)の他に、(A-), (B+), (C+), (D+)が再結晶集合組織中に認められ、認められなかつたのは(C-)のみであつた。この他に再結晶集合組織中に存在したのは立方体

方位と (110) [001] Goss 方位であり, 加工マトリックスと, 立方体方位は近似的 (C+) 関係に, Goss 方位は近似的 (B+) 関係にある。

すなわち, 再結晶方位は加工マトリックス方位と $\langle 111 \rangle 40^\circ$ 回転関係にあるという原則は本実験でも成立していた。Fig. 3 の例では R-方位と立方体方位の他には (D+) のみが認められる。R-方位と立方体方位は常に認められるが, それ以外の方位はどの試料にも常に存在するというわけではない。Fig. 3 の (D+) については, 図が複雑になるのを避けるために, 代表的方位 1 つのみ記入してある。

4. 考 察

4.1 R-方位中の $\langle 111 \rangle$ 成長方位と残存冷延方位

以下 Fig. 4 の (Roll.) 方位の強度を圧延方位強度, (A+), (B-), (D-) 方位の 3 つの強度の和を回転方位強度と呼ぶ。

グループ I においては, 圧延状態では圧延方位強度と見掛けの回転方位強度はそれぞれ 100 と 22 であり, 焼鈍状態での圧延方位強度は 30 であるから, もし R-方位が残存冷延方位のみから成るのであれば, 再結晶後の回転方位強度は $22 \times 30 / 100 = 7$ となるはずである。実際の回転方位強度は 49 であるから 42 が焼鈍による増加分となる。同様に焼鈍によって回転方位強度がグループ II, III ではそれぞれ 19, 11 だけ増加した。このことは R-方位のなかには $\langle 111 \rangle$ 成長方位が存在していること, その量は焼鈍温度に依存することを示している。

他方, 圧延方位の各成分は互いに近似的 $\langle 111 \rangle$ 回転関係にあり, また加工マトリックスの方位と再結晶粒の方位の関係においては $\langle 111 \rangle 40^\circ$ 回転のまわりに回転軸の指数についても回転角についてもあるゆらぎが存在する²⁾ から, 同一極点図内の圧延方位のある 1 つの成分に属する加工マトリックスの領域が近似的 $\langle 111 \rangle$ 回転関係にある他の成分に属する領域を粒界移動によって食って成長するということが起こりうる。このようにして生成した成分は, その機構の上からは $\langle 111 \rangle$ 成長方位成分に属すべきなのにもかかわらず, 近似的 $\langle 111 \rangle$ 回転関係が正確な $\langle 111 \rangle 40^\circ$ 回転関係からある程度以上ずれているときには, 極点図上での成分としては圧延方位強度としてのみしか数えられない。実際 Fig. 3 の ⊙ 印の方位と + 印の方位の中間のように, 圧延方位の 1 つの成分と他の成分から生じる $\langle 111 \rangle 40^\circ$ 回転方位との中間に, しばしば極密度の極大の生じることが観察された。

したがって Fig. 4 の R-方位の成分においては, そのうちの圧延方位強度が残存冷延方位成分の量の上限を与えていて, 回転方位強度から対応する見掛けの回転方位強度を差し引いた値が $\langle 111 \rangle$ 成長方位成分の量の下限

を与えていると解釈されるべきである。

4.2 R-方位中の成分の焼鈍温度による変化

この試料では鉄は圧延前にはすべて固溶していて, 520℃ の焼鈍では鉄の析出が生じる前に再結晶が終了してしまうが, 400℃ の焼鈍では固溶していた鉄の約 1/3 が, 320℃ では約 2/3 が, 再結晶終了までに析出する⁶⁾。なお Fig. 4 の R-方位の強度が前報⁶⁾ の再結晶集合組織中に占める R-方位の比と多少ずれているのは両者の推定方法の違いと統計的ゆらぎによるものであろう。

本報および前報^{6), 7)} における再結晶焼鈍温度による再結晶集合組織の違いは, 最終焼鈍中の鉄の析出挙動の温度による違いに基づくと考えられ, 微量の鉄を含むアルミニウムにおける加工マトリックスと再結晶粒との方位関係に関する研究^{2), 8)} によれば加工度の高いときには鉄の存在 (形態の違い) は $\langle 111 \rangle 40^\circ$ 回転関係に影響しないから, この合金系の場合再結晶集合組織の焼鈍温度による違いをもたらす原因には優先的粒界移動速度で成長する粒とマトリックスとの間の方位関係が焼鈍温度によって変化するというようなことにはなりえないと推定される。

回転方位強度/圧延方位強度の比と $\langle 111 \rangle$ 成長方位の量/残存冷延方位の量の比の差は主として $\langle 111 \rangle 40^\circ$ 回転から多少ずれた方位関係の再結晶粒も粒界移動によって生成する可能性に由来するわけであるから, 両者の相対的ずれは焼鈍温度には大きく影響されないと考えられる。すなわち Fig. 4 は高温で焼鈍するときの R-方位中の $\langle 111 \rangle$ 成長方位の相対的量は低温で焼鈍するときよりも多いことを示していると解釈される。

4.3 鉄の立方体方位抑制機構に対する提案

再結晶集合組織中での R-方位と立方体方位の成分の比および R-方位中での $\langle 111 \rangle$ 成長方位と残存冷延方位の比の焼鈍温度依存性を考慮して, アルミニウム中の鉄が立方体方位の形成を抑制し, R-方位の形成を助長する機構として次の 3 点を提案する。

鉄が析出する前に再結晶が終了するような高温では, (i) 立方体方位のセルの境界移動速度が鉄の偏析によって低下せられる。純アルミニウムでは立方体方位のセルは焼鈍の早い時期に急速に成長することが知られ, 立方体方位のセルと S-方位のセルではその周囲のセルとの境界の構造が異なっていることが示唆されている⁹⁾。鉄が移動しつつある立方体方位セルの境界に動的に偏析¹⁰⁾するとこのセルの優先的成長が起こりにくくなり, S-方位のセルにも成長の機会が生じ, セルの量としては S-方位の方が圧倒的に多いから, $\langle 111 \rangle$ 成長の R-方位が優先的に形成されるのであろう。

鉄の析出が再結晶中に生じるような中間の焼鈍温度では, (ii) 析出物の粒界移動阻止効果¹¹⁾により in situ 再結晶

が生じる。実際には中間の温度では(i)と(u)が同時に働き、その結果立方体方位は最も強く抑制され、生じたR-方位には残存冷延方位が比較的多量に存在するのであろう。

さらに低い温度では、(u)析出相が安定相から準安定相に変化する¹²⁾。この温度では加工マトリックスでの析出量が多くなるために固溶鉄による(i)の効果は減少し、析出相が準安定相となるために析出物による(u)の効果も減少¹³⁾、その結果再び立方体方位が優先的に形成されるようになるのであろう。

5. 結 言

R-方位中の残存冷延方位成分と<111>成長方位成分の強度を、溶体化後95%冷間圧延した粗大結晶粒を用い、同一試片の同一場所について圧延後と再結晶後の2回極点図を測定し両者を比較することによって、求めた。520°C, 400°C, 320°Cでの焼鈍結果を比較すると、残存冷延方位成分が最も多いのは400°Cであり、520°C, 320°Cの順で少なくなる。<111>成長方位成分は520°Cで最も多く、400°C, 320°Cの順で少なくなる。

この結果と前報で報告したR-方位全体の再結晶集合組織に占める割合の焼鈍温度依存性から、アルミニウム中の鉄が再結晶過程において立方体方位の形成を抑制し、R-方位の形成を助長する機構として次の3点を提案した。高温において、(i)立方体方位のセルの境界の移動速度が鉄の偏析によって低下させられる。中間の温度では、(u)析出物の粒界移動阻止効果により、in situ 再結

晶が生じる。低温では、(u)析出相が安定相から準安定相に変化するために(i)および(u)の効果が低減する。

終わりに、著者の一人(伊藤)はAlexander von Humboldt 財団の奨学金を受けて本研究を行なったことを記し、同財団に感謝の意を表わすものである。

参 考 文 献

- 1) 伊藤：軽金属, **26** (1976), 44.
- 2) G. Ibe and K. Lücke: "Recrystallization, Growth and Textures," *ASM* (1966), 434.
- 3) R. Rixen, R. Musick, K. Göker and K. Lücke: *Z. Metallkde*, **66** (1975), 16.
- 4) P. A. Beck and H. Hu: *J. of Met.*, (1952), 83.
- 5) P. Furrer and H. Warlimont: 軽金属, **27** (1977), 512.
- 6) K. Ito, K. Lücke and R. Rixen: *Z. Metallkde*, **67** (1976), 338.
- 7) K. Ito and K. Lücke: to be published.
- 8) R. E. Green, Jr.: *Trans. AIME*, **233** (1965), 1954.
- 9) 小久保, 亀野：軽金属, **22** (1972), 723.
- 10) K. Lücke and H. -P. Stüwe: "Recovery and Recrystallization of Metals, *Interscience Publishers*, New York (1963), 171.
- 11) 長浜, 三木：軽金属, **20** (1970), 137.
- 12) C. A. Stickels and R. H. Bush: *Met. Trans.*, **2** (1971), 2031.
- 13) E. Hornbogen and H. Kreye: "Texturen in Forschung und Praxis," *Springer-Verlag* (1969), 274.