X線回折による純アルミニウムの 焼なまし双晶の同定*

村上 雄**・高橋 恒夫**

Identification of annealing twins in pure aluminum by X-ray diffraction*

Takeshi MURAKAMI** and Tsuneo TAKAHASHI**

Polycrystalline pure aluminum was rolled to low reduction below 50 per cent and annealed at 400 or 500°C. The orientations of grains with straight edge boundaries were determined by micro Laue technique with collimator of 100 μm diameter. Twin orientation, coincidence boundary of $\Sigma 3$, was detected when grain diameters were larger than around 100 μm .

Dependence of formation of straight-edge boundary on rolling reduction and rolling temperature was also investigated. Wedge type specimen was rolled through one draft at room and liquid nitrogen temperature and annealed. Straight edge boundaries were identified as twin interfaces because those traces are parallel to slip traces. Straight-edge boundaries were observed more frequently when rolling temperature was liquid nitrogen temperature than room temperature.

Keywords: annealing twin, coincidence boundary, micro Laue technique, strain-induced boundary migration, 24 sets of rotational relationship

(Received September 13, 1985)

1. 緒 言

一般に、アルミニウムにおける焼なまし双晶の生成は極めてまれであることが知られている¹⁾。生成し難い事実に着目して、その生成機構を研究した結果²⁾によると、純アルミニウムで比較的低加工度の加工後に、高い焼なまし温度で生成しやすいことが報告されている。また、純アルミニウムの単結晶をひずみ焼なまし法によって作成する際など、純アルミニウムの再結晶組織中にはしばしば焼なまし双晶が認められることがある³⁾。しかし、再結晶組織中に直線状トレースが生成したからといって必ずしも双晶界面とは限らないとの見解をもつ研究者⁴⁾もいる。アルミニウムの再結晶組織中に認められる直線状境界 (straight edge boundary⁴⁾) が双晶界面であることを従来はエッチピット法により測定しているが、本研究ではさらに正確な解析をするため、まずこのような粒界のX線による方位決定を試みた。

次に、焼なまし双晶は、双晶境界エネルギー γ_T が一般粒界のエネルギー γ_B より低いため (銅の場合 γ_T/γ_B

は約0.05)、再結晶粒の成長段階で生成するとみなされている¹⁾。したがって、焼なまし双晶の生成は加工条件にはあまり依存しないことになるが、銅における焼なまし双晶が再結晶の初期に生成し⁵⁾、ある程度加工条件に依存することを示唆する実験結果⁶⁾もある。そこで本研究では、くさび型試料を1パスで圧延し、焼なまし双晶の生成に及ぼす圧延率および圧延温度の影響を調べることとした。

2. 実験方法

純度99.99%のアルミニウム地金を溶解して厚さ20 mmの鋳塊とし、面削後熱間圧延によって8 mm厚にした。鋳塊の分析結果は、Fe 0.0003, Si 0.0027, Cu 0.016 wt%であつた。熱間圧延板の一部を冷間圧延によって2 mm厚にし、450°Cで2 hr 焼なまし、50×20×2 mmに切断した。この板を50%までの種々の圧延率に達するまで圧延し、400および500°Cで焼なましして組織観察を行い、直線状境界を伴う再結晶粒をさがして境界をはさむ結晶粒の方位を測定した。一方、厚さ8 mmの熱間圧

* 軽金属学会第68回春期大会で発表した (60-5)。

** 東京工業大学工学部 (東京都)。Faculty of Engineering, Tokyo Institute of Technology (Tokyo)。

Fig. 1 Wedge-type specimen for one-pass rolling (mm).

Fig. 2 Microstructure of specimen rolled to 13% reduction and annealed at 400°C for 10 min, showing five straight edge boundaries.

延板より Fig. 1 に示すくさび型試料を切り出し、500°C で2 h 焼なまし、ロール間隔2 mm で1パスで圧延した。圧延は室温および液体窒素温度で行った。ここで液体窒素温度での圧延とは、液体窒素に浸漬した試料の表面からの泡の発生がとまってからすばやく取り出して圧延したことを意味する。圧延後は、400°C で2 h 焼なまし、圧延方向に平行な断面で組織観察を行った。

方位測定はマイクロラウエカメラを用いて背面 Laue 写真を撮影することによって行った。試料とフィルム間の距離は9 mm とし、銅ターゲットからの連続 X 線（加速電圧 35 kV）を直径 100 μm のコリメータに通して試料にあてた。方位関係の解析は、一部、24個の回転関係⁷⁾を求めることによって行った。

3. 実験結果および考察

3.1 X 線回折による焼なまし双晶の同定

2 mm 厚の板を50%までの種々の圧延率まで加工し焼なまししたところ、直線状境界をもつ再結晶粒がまれに観察された。これらの再結晶粒は、組織中のある個所に局在することが特徴であった。代表的組織として Fig. 2 に13%圧延し、400°C で10 min 焼なまししたときの組織を示す。Fig. 2 には直線状境界が5個認められる。結晶粒 B の中心に X 線ビームをあてて撮影した背面 Laue

Fig. 3 Back-reflection Laue photograph obtained at grain B in Fig. 2. Laue spots from grain A and B are indicated as A number and B number, respectively. Spots A6, B10 and A8, B6 are {012} spots of grain A and B.

Fig. 4 Stereographic projection showing orientations of grain A and B in Fig. 2.

写真を Fig. 3 に示す。Fig. 3 には周囲の結晶粒による斑点もあり、一見したところでは Laue 図形の対応がつきにくい。斑点の形状および他の結晶粒から得られた Laue 写真と比較することにより、結晶粒 A および B からの斑点は Fig. 3 中に示すようであることがわかった。斑点 A8-B6 および A6-B10 は結晶粒 A および B に共通の {012} 斑点である。結晶粒 A および B の方位解析の結果を Fig. 4 に示す。Fig. 4 より、結晶粒 A および B は1つの {111} 極 (X)、3つの {011} 極、2つの {012} 極を共有し、互いに双晶方位関係 ($\Sigma 3$ の対応粒界) にあることが明らかである。また、共通の {111} 面 X のトレース

Fig. 5 Stereographic unit triangle showing 24 sets of rotational relationship between grain C and D in Fig. 2. Solid circles and numbers indicate rotational axes and angles, respectively.

は、Fig. 2の直線状境界のトレースと平行であり、 $\{111\}$ 双晶界面であることを示している。

同様の方法によって、Fig. 2中の結晶粒C、DおよびEの方位関係を解析したところ、結晶粒CおよびEは同一の方位で、結晶粒Dと双晶方位関係にあり、共通の $\{111\}$ 面のトレースの方向は直線状境界のトレースと一致していた。

Fig. 5は結晶粒CおよびEと結晶粒Dに共通の24個の回転軸および回転角度をステレオ単位三角形上に示す。面心立方晶における双晶方位関係を同様の方法で表示すると、 $\langle 111 \rangle$ 軸のまわり60および180°、 $\langle 110 \rangle$ 軸のま

わり70.5および109.5°、 $\langle 210 \rangle$ 軸のまわり131.8°、 $\langle 211 \rangle$ 軸のまわり180°、および $\langle 311 \rangle$ 軸のまわり146.4°の回転関係になる。Fig. 5の方位関係は、このような方位関係から約2°以内ずれているが、このずれは方位測定の際の誤差によると思われる。

なお、Fig. 4において結晶粒Bの方位は、立方体方位が圧延面法線方向のまわりに10数度ずれた方位 (off-cube 方位) であり、結晶粒Aの方位は比較的R方位に近い。結晶粒C～Eについても同様であり、CとEが off-cube 方位であつた。これらの方位はいずれも試料とした板に圧延前に存在したと考えられるので、以上の双晶方位をなす2つの方位の種類に関する情報は、アルミニウムにおける焼なまし双晶の生成機構に関して一つの示唆を与える。すなわち、圧延率が13%と比較的低加工度であるため、圧延中の結晶回転による方位変化は小さいので、圧延前に双晶方位関係に近い結晶粒が隣接して存在した場合、このような個所で焼なまし双晶が生成しやすいと考えられる。Fig. 6は24%圧延後400°Cで1 min 焼なまししたときの組織および方位解析の結果を示す。結晶粒AおよびCは未再結晶部で、結晶粒BはAと同じ方位でひずみ粒界移動⁹⁾によって生成した再結晶粒である。結晶粒CからのLaue図形はアステリズム (asterism) を伴うため方位決定に誤差を生じやすいことを考慮しなければならないが、結晶粒BとCは、回転角最小の回転関係で表示すると $\langle 111 \rangle$ 軸のまわり54.4°の方位関係にあり、ほぼ双晶方位関係にあるといえる。この後焼なましを続けた場合、結晶粒BがCの全体を侵食してしまうと焼なまし双晶は生成しないが、結晶粒

Fig. 6 Microstructure and stereographic unit triangle. (a) Microstructure of specimen rolled to 24% reduction and annealed at 400°C for 1 min. Grains A and C are deformed grains. Grain B is recrystallized grain formed by strain-induced boundary migration. (b) Stereographic unit triangle showing 24 sets of rotational relationship between grains B and C which are approximately twin oriented.

Fig. 7 Microstructure in longitudinal section of wedge-type specimen rolled to about 70% reduction and annealed at 400°C for 2 h. Straight edge boundary and slip traces are parallel.

Cがひずみを解放しつつ、より双晶方位関係に近い方位で残留した場合、一対の焼なまし双晶が生成すると考えられる。

以上述べた焼なまし双晶以外に、Fig. 2には3つの直線状境界(矢印)が認められるが、一方の結晶粒径が小さいため本研究では解析不可能であった。最近、Fionova¹⁰⁾は高純度アルミニウムを圧延し500hの焼なまし後、約440個の再結晶粒中の対応粒界の存在比率を測定し、Σ3の対応粒界(双晶方位)*は9%、直線状のΣ3, 9, 11および17の対応粒界は25%であることを報告している。また、銅およびFe-Ni合金でもΣ3以外の直線状境界が生成することも報告されている¹¹⁾。これらの報告によると粒界トレースの形状からその性格を推定できないことになり、Fig. 2中の未測定直線状境界の方位関係については不明である。粒界の性格と形状に関する詳細な点を解明するには、さらに数多くの方角測定と統計的な解析が必要と思われる。

なお、本研究で観察した焼なまし双晶の形態の特徴は、Fig. 2の結晶粒AおよびBのように、双晶界面によって2つに分割された型の双晶がほとんどであり、結晶粒C~Eのように、一組の双晶のなかで双晶トレースが2本以上認められる場合はまれであった。また、二次以上の双晶、および一つの結晶粒内で等価な4つの{111}面のうち2つ以上の{111}面を界面とする双晶は認められなかった。

3.2 直線状境界の生成に及ぼす加工条件の影響

Fig. 7は、くさび型試料を液体窒素温度で圧延後、400°Cで2h焼なまししたときの組織を示す。組織中には、

* 通常、焼なまし双晶は、Σ値が3の対応方位関係にある場合をさすが、対応方位関係が一種の双晶とみなせるので⁹⁾、Σ3以外の場合も双晶とよぶ場合がある^{10), 11)}。本報告では前者の場合に限定する。

Fig. 8 Relation between rolling reduction and the ratio of straight-edge boundary area to total volume (S_v), and the ratio of number of straight-edge boundary to total volume (N_v). Blank and solid symbols indicate rolling at room temperature and after being submerged in liquid nitrogen, respectively. Specimens were annealed at 400°C for 2 hr after one-pass rolling.

研磨の際表面付近に生じたすべり線が認められるが、そのトレースの方向は直線状境界のトレースと平行である。したがって、くさび型試料についてはX線による方位測定を行わなかったけれども、Fig. 7のような比較的粒径の大きな結晶粒内の直線状境界は焼なまし双晶のトレースと判断してよいと考えられる。

くさび型試料を圧延および焼なまし、縦断面において直線状境界の生成頻度を測定した結果をFig. 8に示す。

Fig. 8において、 S_v は試料単位体積あたりの直線状境界の総面積、 N_v は試料単位体積あたりの直線状境界の数であり、それぞれ

$$S_v = 2 \cdot N_L \quad (1)$$

$$N_v = \frac{8}{\pi^2} \cdot N_A \cdot z \quad (2)$$

と表される¹²⁾。ここで N_L は試験線単位長さあたりの直線状境界と試験線の交点の数、 N_A は観察断面の単位面積あたりの直線状境界の数、 z は観察断面にあらわれた直線状境界の長さ X の逆数の平均値であり、(2)式では直線状境界を円板と近似している。 N_L 、 N_A および z を求めるに際しては、各圧延率とも5.3 mm²の観察断面とし、試験線の全長は42 mmにした。いずれの圧延温度でも、圧延率が高いほど直線状境界の生成頻度は高く、圧延率60%と比較すると、液体窒素温度で圧延したときの N_v は室温の約2倍になっている。

液体窒素温度で圧延した試料の圧延前に厚さ8 mmの平坦部であった箇所では、さらに生成頻度は高かった。また、くさび型試料における直線状境界には、Fig. 7に示したように、界面のステップが多いという特徴があった。

Fig. 9 Microstructure in longitudinal section of wedge-type specimen rolled to about 75% reduction and annealed at 200°C for 2 h.

液体窒素温度での圧延の方が直線状境界が生成しやすい理由の詳細については不明である。Fig. 9 は液体窒素温度で圧延後（圧延率約75%の箇所）200°Cで2 h 焼なましたときの組織を示す。くさび型試料を1パスで圧延した場合は、いずれの圧延温度でも変形帯およびせん断帯の発達が顕著であつたが、液体窒素温度の方がよりその傾向が強かつた。Fig. 9 の一部分のみ再結晶した組織では、10 μm 以下の粒径の再結晶粒が変形帯に沿って生成している。したがつて、液体窒素温度で圧延した場合の方が、変形帯からの再結晶核生成頻度が高く、再結晶粒の成長段階において粒界エネルギーの低い直線状境界の生成頻度も高くなつたと思われる。

4. 結 言

純度99.99%のアルミニウムを圧延後焼なまし、焼なまし双晶の方位関係および圧延率による直線状境界の生成頻度の変化について調べた結果をまとめると次の通り

になる。

(1) 50%以下の比較的低下圧延率の加工後の焼なましで生成する直線状境界を伴う再結晶粒の方位関係を、マイクロ Laue 法によつて調べ、粒径約 100 μm 以上の場合は Σ 値が3の双晶方位関係にあることを確認した。

(2) くさび型試料を室温および液体窒素温度で1パスで圧延後焼なまし、直線状境界を伴う再結晶粒の生成頻度を測定したところ、圧延率が高いほど、また室温圧延より液体窒素温度での圧延の方が生成頻度は高かつた。直線状境界とすべり線のトレースが平行であるため、一部は{111}双晶界面であると判断した。液体窒素温度での圧延の方が変形帯組織が顕著であるため、再結晶粒の核生成頻度が高く、成長段階における直線状境界の生成頻度も高くなつたと思われた。

参 考 文 献

- 1) R. W. Chan: *Physical Metallurgy* (Part II) ed. R. W. Chan and P. Haasen, North-Holland Physics Publishing (1983), 1595.
- 2) 藤田広志: 軽金属, 5 (通巻16号) (1955), 52.
- 3) S. Kohara: *Proceedings of ICOTOM 7*, Netherlands Society for Materials Science (1984), 263.
- 4) W. A. Wong and J. J. Jonas: quoted by J. P. Nielsen, *Recrystallization, Grain Growth and Textures*, ASM (1966), 141.
- 5) G. Gindvaux and W. Form: *J. Inst. Met.*, 101 (1973), 85.
- 6) 小原嗣朗, 松下明行: 鉄と鋼, 70 (1984), 1849.
- 7) Y. C. Liu: *Trans. AIME*, 230 (1964), 1513.
- 8) P. A. Beck and P. R. Sperry: *J. Appl. Phys.*, 21 (1950), 150.
- 9) 石田洋一: 軽金属, 25 (1975), 108.
- 10) L. K. Fionova: *Fizika metall. metalloved.*, 48 (1979), 998.
- 11) Ch. V. Kopecky, V. Yu. Novikov, L. K. Fionova and N. A. bolshakova: *Acta Met.* 33 (1985), 873.
- 12) R. T. DeHoff and F. N. Rhines: *Quantitative Microscopy*, McGraw-Hill (1968).