50%冷間圧延を施した Al-Mg-Si 合金の焼鈍に伴う組織変化の同一視野観察 —その(2)回復により形成される組織—

山本 厚之 塚本 雅章* 岡井 大祐

兵庫県立大学大学院工学研究科物質系工学専攻

J. Japan Inst. Metals, Vol. 75, No. 10 (2011), pp. 582-591
© 2011 The Japan Institute of Metals

Same Area Observation on Changes in Microstructures during Annealing in Al-Mg-Si Alloy after Cold-Rolling at 50% —(2) Microstructures Formed through Recovery—

Atsushi Yamamoto, Masaaki Tsukamoto* and Daisuke Okai

Division of Materials Science and Chemistry, Graduate School of Engineering, University of Hyogo, Himeji 671-2201

Changes in microstructures at recovery stage after cold-rolling at 50% reduction rate were observed in an Al-Mg-Si alloy by means of SEM-EBSD system. The same area in the specimen was observed before and after cold-rolling. Intermittent annealing at 673 K, Ar ion-polishing, and EBSD observation were repeated up to the annealing time of 3.6 ks. Dislocation cells formed by cold-rolling changed into subgrains with annealing. Low and high angle boundaries were formed with surrounding the subgrains depending on misorientations between the neighboring subgrains. The high angle boundaries migrated to form recovered microstructures. Original orientation of the dislocation cell was maintained in the recovered microstructure. Some of the recovered microstructures grew with invading others. Therefore, new discrete poles did not appear in a discrete pole figure during annealing but those in the invaded subgrains disappear, which made the pole figure of the annealed specimen different from that of the cold-rolled specimen. Secondary recovered microstructures were observed to be formed with invading primary formed recovered microstructures. The recovered microstructures were finally invaded by recrystallized grains to disappear. In a region where growth of recrystallized grains was delayed, coarse recovered microstructures composed of large subgrains were formed.

(Received February 28, 2011; Accepted April 25, 2011)

Keywords: aluminum-magnesium-silicon alloy, cold-rolling, recovery, scanning electron microscope-electron backscatter diffraction (SEM-EBSD), same area observation

1. 緒 言

室温で50%圧延を施した Al-Mg-Si 系合金の焼鈍に伴う組織変化を、SEM(Scanning Electron Microscope)-EBSD(Electron BackScatter Diffraction)を用いて調査した結果について前報¹⁾で述べた。試料中の同一視野について、圧延前から観察を行い、間歇的な焼鈍による組織変化を示したものである。前報¹⁾では再結晶粒の起源は転位セルであることを示した。本論文では回復過程における組織変化について述べる。通常、回復・再結晶と称される組織変化であるから、本来なら回復過程の説明が先になされるべきである。しかし、本報で詳述するように、回復過程で生じる組織変化は単純ではない。これに比較すると、再結晶組織は、「大角粒界で囲まれたきわめて歪の少ない結晶粒からなる組織である」と定義される。前報¹⁾の Fig. 1(l), Fig. 3(h)などがその典型例である。このように定義すると、これに従わない組織は、回

復により生じた組織であると区別できる。このため、再結晶組織を先に示した。

回復過程で形成される微細組織は、積層欠陥エネルギーの高い fcc としてのアルミニウム、あるいは bcc の鉄について、Nes²⁾ が示したモデルによって簡潔に示されている。転位を内部に含むサブグレインからなるものである。しかし、主に回復過程での機械的特性の変化を論じるためのモデルであり、組織の変化を直接示してはいない。このモデルは、Hasegawa と Kocks³⁾ によるアルミニウムの回復過程の TEM(Transmission Electron Microscope)観察結果とよく一致する。回復初期に転位セルがサイズを変えずにサブグレインとなり、その後粗大に成長することが示されている。ただし、粗大と言うものの、10 μm 程度のサブグレインである。

サブグレインの成長について、Ferry と Humphreys⁴⁾ および Huang と Humphreys⁵⁾ は、均質に生じるのではなく、特定のサブグレインが優先的に成長することを示した。ただし、試料はアルミニウムの単結晶である。回復・再結晶について最近出版された Humphreys と Hatherly の著書は非常にすぐれているが、そこで種々述べられている回復に関する

* 兵庫県立大学大学院生(Graduate Student, University of Hyogo)

記述⁶⁾は、やはり教科書的であり、転位の消滅、再配列、サブグレイン形成とその成長であるとまとめられている。しかし、回復と再結晶の間に明瞭な区別はない、という重要な示唆を与えている。

多数の研究のごく一部を上引用したが、それらの欠点は、回復過程は動的な組織変化として把握する必要があるにもかかわらず、断片的な組織観察しか行われていないことである。Ray 等⁷⁾のように、超高圧電子顕微鏡 (High Voltage Electron Microscope: HVEM) を用いたその場加熱実験の結果も報告されているが、通常の TEM 試料に比較すると厚いとはいえ、やはり薄膜であり、バルク内の現象とは異なる可能性があるうえに、上述の示唆にあるように、回復と再結晶の区別は難しく、観察されている組織が最終的に再結晶組織になるまでの観察を行う必要があるにもかかわらず、それがなされていない。

本研究で行っている同一視野内の組織変化の間歇的観察は、これまでに知られていた断片的な組織変化の間を結び付けることに有意性がある。ただし、前報¹⁾でも述べたように、同一視野を圧延前から観察するために、試料の表面での組織変化しか観察していないことが欠点として挙げられる。Saimoto 等⁸⁾は、アルミニウムの圧延後の回復過程を、X 線と SEM により詳細に調べ、表面近傍では、回復現象が早く進行することを示している。最初に、ここで示す結果がそのままバルク内部に適用できるわけではないことを注記しておく。

2. 実験手法

詳細は前報¹⁾に述べたので、簡略に記す。試料は厚さ約 2 mm の Al-0.73Mg-0.38Si-0.26Cr(mass%) 合金である。約 10 mm × 50 mm × 2 mm に切り出し、813 K で 3.6 ks の溶体化処理を施した。マイクロピッカース硬度計を用いて、同一視野観察の目印とする圧痕を付した。試料を SEM-EBSD 測定用の傾斜試料台に貼り付け、組織観察を行った。室温で圧下率 50% の圧延を 1 パスで行った後、観察位置を中心として約 6 mm × 6 mm × 1 mm の試片を切り出し、Ar イオンポリッシングを、加速電圧 3 kV の条件で 10.8 ks 施した。以降、SEM-EBSD、673 K の塩浴を用いた焼鈍、180 s のイオンポリッシングを繰り返し行って、同一視野内の組織観察を間歇的に行った。

観察倍率は 500, 1000, 2000 倍とした。それぞれのステップサイズは 0.5, 0.2, 0.1 μm とし、一視野の範囲は 200 × 100, 100 × 50, 40 × 20 μm² とした。ピクセルの Binning は 8 × 8 とした。

3. 結果および考察

3.1 一般的な回復組織

観察視野全体の組織変化については、前報¹⁾の Fig. 1 に示した。その一部についての焼鈍初期の組織変化を本論文 Fig. 1 に示す。IPF (Inverse Pole Figure) マップであり、圧延方向 (RD) は図の水平方向であり、圧延方向に垂直な方向

(TD) が上下方向である。以降すべて同様である。圧延前の旧結晶粒の記号は前報と同様として、a と c の粒界近傍である。旧粒界は圧延によって不鮮明となるので、およその位置であるが、Fig. 1(a) 中に破線で示した。(b) ~ (e) は 673 K で、それぞれ 3, 10, 20, 40 s 焼鈍後の同一視野の組織である。

Fig. 1(a) は圧延後であり、歪の多い転位セル壁と、比較的転位密度の低いセル内部から成る組織である。転位セルの形状を示すために、CI 値が 0.02 以下のピクセルを黒で示した。(b) も同様である。(c) ~ (e) については、CI 値が高いので、下限の設定は行わず、方位差が 15° 以上の大角境界を黒線で示した。小角境界は (a), (b) と同様、白線で示した。「転位セル」、「サブグレイン」などの術語の定義は前報¹⁾に従う。

Fig. 1(a) ~ (e) 中に、白矢印で示した転位セルおよびサブグレインの 001 極を Fig. 2 に重ねて示す。それら 001 極は互いに重なりあっている。Fig. 1(a) は圧延直後であり、ここに示されているのは転位セル組織である。焼鈍初期に、転位密度の減少と転位の再配列が生じる。この初期の変化を狭い意味での回復 (狭義回復) と呼ぶことにする。転位セルは、狭義回復の後、サブグレインになり、Fig. 1 に示したような組織変化が生じる。この間の組織変化は、方位の変化を伴わないことを Fig. 2 は示している。他のサブグレインとの間の方位差に応じて Fig. 1(e) に示されるように大角境界および小角境界で囲まれたサブグレインとなる。転位セルからサブグレインになり、その後成長する、という一般的な回復過程での組織変化である^{2,5)}。ただし、一般的に言われている現象⁵⁾と異なるのは、Fig. 1(d), (e) 中に矢印 α, β で例示したように、サブグレインの成長は大角境界の移動によるものが多く、Fig. 1(c) ~ (e) 中に矢印 γ で例示した小角境界はほとんど移動していないことである。

大角境界の移動は、再結晶粒の形成と結びつけて考えられることが多い⁹⁾。Fig. 1(e) 中、No. 2, No. 7 は、この後に続く焼鈍過程での組織観察により、再結晶粒であることがわかっている (全観察視野でおよそ 300 個の再結晶粒が観察され、それらに付けた番号に従っているため、番号がとんでいる)。一方、黒矢印で示す領域のように、サブグレインか再結晶粒かを見極めが付けにくい領域がある。再結晶粒の内部は歪が少なく、方位傾斜はきわめて少ないが、サブグレイン内では転位が残留しており、方位傾斜があると考えられる。方位傾斜は IPF マップでは色のグラデーションとして現れるが、黒矢印で示した領域では、方位を表す色の関係からグラデーションが認めにくい色彩となっている。そこで、Fig. 1(e) 中の黒矢印で示した領域中の黒線部、および再結晶粒 No. 2 中の黒線部について、方位差を調べた。その結果を Fig. 1(f), (g) にそれぞれ示す。(f) では、方位差が 3° 程度見られるのに対して、(g) は 1° 以下である。黒矢印で示す領域はサブグレインである。

Fig. 1(e) 中 No. 2, 7 以外の領域は、転位セルから成長したサブグレインであり、小角境界で囲まれたサブグレインがいくつか集まってその全体の外周は大角境界で囲まれている。このような、外周は大角境界で囲まれ、内部には小角境界で囲まれたサブグレインをいくつか含む組織を「回復組織 (Recovered microstructure)」と呼ぶことにする。

Fig. 1 Changes in microstructures at the early stage of annealing at 673 K after cold-rolling at 50%. As cold-rolled (a), after annealing for (b) 3 s, (c) 10 s, (d) 20 s and (e) 40 s, respectively. (f) Misorientation along the black lines in the subgrain indicated by the black arrow in (e), and (g) the recrystallized grain “2” in (e), respectively.

Fig. 2 001 poles in dislocation cell and subgrains indicated by the white arrows in Fig. 1. Red, orange, green, purple and blue marks show 001 poles after cold-rolling, annealed at 673 K for 3 s, 10 s, 20 s and 40 s, respectively.

Fig. 1(a)中に黒四角 A で示す領域について、圧延前から回復組織形成に至る過程の方位変化を調べた結果を Fig. 3 に示す. Fig. 3(a)に、圧延前の旧結晶粒 c の 001 極を白丸で示し、圧延後の 001 極を黒点で示した. 圧延により、広い角度範囲にわたって結晶回転が生じている. Fig. 3(b)は、673 K で 3 s 焼鈍後の 001 極である. この状態では狭義回復によりサブグレイン組織となっているが、方位の分布状態は (a) とさほど変わらない. Fig. 2 で、転位セルからサブグレインへの組織の変化は、方位の変化を伴わないことの一例を示したが、他のサブグレインについても同様であり、それぞれ転位セルの方位と同じであると考えられる. 10 s 焼鈍後の 001 極を Fig. 3(c) に示し、40 s 焼鈍後の 001 極の分布を Fig. 3(d) に示す. 3 s 焼鈍後の Fig. 3(b) と比較すると、分布の幅が狭まり、消滅する方位がある一方で、互いに近い方位の領域は残留していることがわかる.

Fig. 1(e) 中に、黒四角 B~E で示した領域の 001 極を Fig. 4 に示す. これらは、(110) 方位に近いサブグレイン (Fig. 4(a), (b), (c)) および (100) 方位に近いサブグレイン (Fig. 4(d)) であり、Fig. 3(d) 中で、001 極が集中している方位は、これらサブグレインによるものとわかる. Fig. 1(e) 中に示した B~E の領域は、それぞれ大角境界 (黒線) で囲まれた回復組織の内部になるように選んでいる. 上でも述べたように、回復組織の形成は、サブグレインを囲む大角境界の移動によるものである. Fig. 3(a)~(d) の 001 極分布の

Fig. 3 001 poles in the area A indicated in Fig. 1(a). (a) As-rolled specimen, and after annealing at 673 K for (b) 10 s, (c) 20 s and (d) 40 s, respectively. Black open circles in (a) show 001 poles of the prior grain c before cold-rolling.

Fig. 4 001 poles in the areas indicated by the rectangles B to E in Fig. 1(e). (a): B, (b): C, (c): D and (d): E.

変化は、転位セルから狭義回復により形成されたサブグレインからなる回復組織の間で、大角境界が形成されると、焼鈍に伴ってそれらが移動する結果、他を浸食して成長する回復組織がある一方で、浸食されて消滅する回復組織もあることを示している。Fig. 4は、成長した方の回復組織の方位であり、繰り返すが、その方位は変形組織の方位(Fig. 3(a))中にすでに存在する。

前出の Ray ら⁷⁾による HVEM その場加熱実験は銅についてのものであるが、転位セルから再結晶粒が形成され、“Nucleation”であると述べている。しかし、論文に示された TEM 写真を見ると、内部に転位が含まれており、本論文で言うところの回復組織ではないかと思われる。回復組織の元は、転位セルであるということで本論文と一致する。

ここまでで示してきた Fig. 2~Fig. 4は、EBSD の解析機能のうちの“Discrete plot”によるものであり、測定点 1 点ずつの 001 極をプロットしたものである。集合組織の解析で用いられる「強度計算を行った極点図」ではない。Fig. 3 (a), (d)に示した圧延後および 673 K, 40 s 焼鈍後の「001 極点図」を Fig. 5(a), (b) に示す。この表示によれば、Fig. 5(a)は Brass 方位であり、(b)は 45°回転した Cube 方位であると認識され、単に集合組織が変化した、と解釈されるだけであろう。Hjelen ら¹⁰⁾は、高純度アルミニウムの圧延後および 723 K, 6 s 焼鈍後の試料について、X 線法による極点図を測定し、圧延後の Copper 方位が、焼鈍により Cube 方位に変わったと述べている。組織変化の初期段階を捉えるためには、“Discrete plot”が適する。以下の議論でも“Discrete plot”を用いる。

3.2 回復組織の成長

Fig. 1 に示した領域は、この後に続く焼鈍過程で、No. 2 の再結晶粒が大きく成長して視野全域を覆ったため、その後の組織変化は、観察できなかった。圧延直後の組織は観察されていないが、比較的長時間にわたって回復組織の変化が観察された領域について、Fig. 6 に示す。Fig. 1 および Fig. 3 に示したように、圧延により形成された転位セル組織および 001 極の分布は、それに続く 10 s 程度の短時間焼鈍によって形成されるサブグレイン組織および 001 極分布と、大きくは変わらないので、回復過程の考察に差支えはないと考えられる。

Fig. 6 は、旧結晶粒 c, d, e の粒界三重点に近い領域の組織変化を示している。旧結晶粒 c 中の組織変化に注目する。10 s (a) および 20 s (b) 焼鈍後の回復組織には、(110) 方位に近いサブグレイン、および (111), (100) 方位など種々の方位のサブグレインが観察されることは Fig. 1 と同様である。Fig. 6 (a) では、(110) 方位 (緑色) が優勢で、A で示した (100) 方位 (赤色) は少ない。焼鈍が進行するにつれて、A の方位の回復組織は拡張していき、240 s 後 (f) では、旧結晶粒 d, e 内は別として、観察視野中の旧結晶粒 c を覆い尽くす。しかし、その後、Fig. 6 (h) に示すように、再結晶粒に浸食されて消滅した。

比較的均質なサイズのサブグレイン組織中に、粗大なサブグレインが形成されるという報告例^{4,5)}はあるが、その現象ではない。Humphreys^{11,12)}は、平均的な方位差からはずれるような方位差を持つサブグレインの安定性について、シミュレーションにより論じているが、モデリングであるために明確な組織変化は示されていない。SEM-EBSD を用いたその場加熱実験の結果として、池田ら¹³⁾が報告している組織変化と、Fig. 6 の組織変化は似ている。彼らは再結晶粒の成長であるとしているが、論文に示されている IPF マップ

Fig. 5 001 pole figures for the area A indicated by the rectangle in Fig. 1 (a) at as-rolled condition (a), and after annealing at 673 K for 40 s (b).

Fig. 6 Changes in microstructures during annealing at 673 K for (a) 10 s, (b) 20 s, (c) 40 s, (d) 60 s, (e) 120 s, (f) 240 s, (g) 600 s and (h) 1200 s, respectively.

を詳細に見ると、粒内に方位傾斜による色のグラデーションが認められるので、回復組織であると考えられる。そこでは、(110)方位に近い回復組織を(112)方位に近い回復組織が浸食して成長している。これまで、回復過程の観察を同一視野内で行った例が少ないため、見落とされていた現象であり、初めて見出されたものではなく、一般的な変化であると考えられる。

Fig. 6 に示した組織変化を詳細に解析するために、Fig. 6 (a)中に示した A を含む黒四角の領域を拡大して Fig. 7 に示す。Fig. 7(a)は 673 K で 10 s, (b)は 20 s, (c)は 40 s 焼鈍後の組織である。(a)から(c)の間に、(100)方位に近い回復組織(赤色部)が(110)方位に近い回復組織(緑色部)を浸食して成長している。Fig. 7(a)中のおよそ 40 個のサブグレインに番号を付けて方位解析を行った。それらのうち、Fig. 7 (c)に見られるサブグレインと対応が付けられるものについて、番号を Fig. 7(c)中に示した。No. 15, 40 のように、Fig. 7(a)では観察されず、Fig. 7(b)で初めて観察されたものも含めている。一方、浸食されて消滅したサブグレインを赤字で Fig. 7(b), (b)中に示した。

これらのうち、No. 10 で示すサブグレインに注目すると、Fig. 7(a)では、No. 6, 8, 9, 11 との間に小角境界を持ち、No. 35 およびその下方のサブグレインとの間には大角境界を持つ。これらの境界のうち、大角境界は移動して No. 35 のサブグレインを浸食した。Fig. 7(b)ではその途中段階として、No. 35 の一部は浸食され、一部が残っている状況が示されている。一方、No. 6, 8, 9, 11 との間の小角境界は移動せず、Fig. 7(c)においてもほぼ同じ形態で残っている。

No. 37 に注目すると、Fig. 7(a)では全周を大角境界で囲まれており、それが移動して周囲の No. 20, 22, 23 などを浸食し、一部は No. 10, 11 と接して小角境界を形成した(Fig. 7(c))。

Fig. 7 は、一見、再結晶後の粒成長あるいは二次再結晶のように見える¹⁴⁾が、繰り返し述べているように内部に色のグラデーションがあり、方位傾斜があるので、No. 10, 37 はいずれもサブグレインである。

Fig. 7(a), (b), (c)から求めたサブグレイン No. 10 および No. 37 の 001 極を Fig. 8(a), (b)にそれぞれ示す。Fig. 8

Fig. 7 Enlarged IPF maps showing changes in recovered microstructures on the area indicated by the black rectangle in Fig. 6(a). The specimen was annealed at 673 K for (a) 10 s, (b) 20 s and (c) 40 s, respectively.

Fig. 8 001 poles for the subgrains No. 10 (a) and No. 37 (b) indicated in Fig. 7. Red, green and blue solid circles show poles after annealing for 10, 20 and 40 s, respectively.

(a), (b)いずれも焼鈍時間 10, 20, 40 s における 001 極をそれぞれ 3 組ずつ重ねて示しているがほとんど重なっており、両サブグレインとも、方位を変えずに成長している。サブグレインの成長は、合体によるものではなく、サブグレインバウンダリーの移動によるとする推察⁹⁾は正しいと考えられる。ただし、小角境界の移動ではなく、大角境界の移動による。

Fig. 3 に示したように、圧延変形によって広い角度範囲にわたる方位を持つ転位セルが形成されるが、それらの中には、位置的にも、また方位の上でも互いに近いセルがある。そのような場合には、それらがサブグレインになる際に、間に小角境界が形成され、その後の焼鈍過程での移動は少ない。一方、隣接するサブグレイン間の方位差が、大きい場合には、Fig. 7 中に示した No. 10 のように、一部に大角境界を持つサブグレインが形成され、その大角境界が移動して成長する。成長して他の方位の近いサブグレインと出会うと、その間に小角境界を形成して移動が止まる。Fig. 7(c)中の No. 10 と No. 37 の間に形成された小角境界はこのような状況であると考えられる。しかし、同じ Fig. 7(c)に示されている No. 6, 8, 9 も、一部に大角境界を持つが、これらは移動しない。

3.3 回復組織形成に続く組織変化

Fig. 7 で示した組織変化は、圧延により形成された転位セルが、焼鈍によりサブグレイン組織となった際に、比較的方位の離れたサブグレインと隣り合う場合には大角境界が形成され、おそらくエネルギーの高いサブグレイン側に移動して回復組織が形成されることを示すものであった。しかし、回復組織はサブグレイン組織であり、まだ内部の歪エネルギーは高い状態にあり、さらに組織変化を生じる可能性がある。

Fig. 9 に、2 度にわたって回復組織が形成された例を示す。Fig. 9(a)~(e)は、それぞれ 6, 10, 20, 40, 120 s 焼鈍後の同一視野の組織である。Fig. 9(f)は、(e)の領域を含む低倍率像であり、白矢印で(e), (f)中の同一のサブグレインを示した。Fig. 9(a)~(d)では、(100)方位(赤色)および(012)方位(黄色)のサブグレインが優勢に成長して回復組織を形成している。しかし、その後(e)に示すように、それらを浸食して(112)方位(紫色)の回復組織が成長した。Fig. 9(a)中に矢印 A, B で示した二つのサブグレインに注目すると、Fig. 9(c)までは残留している。Fig. 9(d)中の矢印は、A, B の元の位置を示しているが、いずれも(012)方位の回復組織に浸食されて消滅した。その後、Fig. 9(e)に示すように、A, B の位置は(112)方位の回復組織に浸食された。すなわち、サブグレイン A, B は、一度(012)方位の回復組織となった後、再度(112)方位の回復組織となった。この(112)方位の回復組織中には、色のグラデーションがあり、再結晶粒ではない。Fig. 9(e)の視野を含む低倍率像を(f)に示したが、左上隅に見られる No. 4 は再結晶粒である。No. 4 は、600 s 焼鈍の後、Fig. 9(a)~(e)に示す全視野を浸食した。A, B で示す部分は、2 度回復組織となった後、再結晶組織となったのである。

サブグレイン A, B の 001 極と、最初に形成された(012)

方位の回復組織内の領域 C (Fig. 9(d)) および 2 度目の回復組織内の領域 D (Fig. 9(e)) の 001 極を Fig. 10 に示す。白抜き丸の黒丸は圧延前の 001 極を示す。焼鈍過程で転位セルの方位が変わらないことは Fig. 2 で示した。また、サブグレインの方位もその後の焼鈍過程で変化しないことは Fig. 8 に示した。したがって、Fig. 10(a)~(d)に示した A, B, C, D などの 001 極は、それぞれの前身である転位セルの方位であり、圧延による結晶回転の結果生じた方位である。30% 圧延の際には、単純な TD 方向に平行な軸のまわりの回転で解釈できることを前に述べた¹⁵⁻¹⁷⁾。しかし、サブグレイン A, B の 001 極と圧延前の極を対応させることはかなり困難であり、一軸の回転ではなく、複雑な回転が生じていると考えられる。一方、回復組織 C, D については、Fig. 10(c), (d)中に矢印で示したように、それぞれおよそ 85° および 30° 程度の回転により、圧延前の極と対応させることができる。複雑な回転を生じた転位セルは歪エネルギーが高いと推測すれば、Fig. 10(d)に示す回復組織 D の元となった転位セルは歪が少なく、Fig. 10(c)の回復組織 C の元となった転位セルは歪が多いと考えられる。そのため、回復組織 C は歪の少ない D に浸食されたのではないかと考えられる。

しかし、ここで注意すべきは、これまでにも述べてきたように、サブグレイン A, B および回復組織 C, D は、いずれも変形組織中にすでに存在していたセルから成長したものであるということである。領域 D の歪エネルギーが少ないのなら、焼鈍初期から優勢に成長してもよいはずである。これについては、Fig. 7 に示したように、大角境界の移動のしやすさは、隣接するサブグレインとの間の方位関係に依存すると考えることで多少理解できるかもしれない。歪の少ないサブグレインであっても、隣接するサブグレインとの方位関係が移動に適さない場合には、それらの間の大角境界は移動せず、隣接するサブグレインが別の(歪の多い)回復組織に浸食されて方位が変わり、方位関係が移動に適するものになった後に移動を開始するのではないかと考えられる。Ferry と Humphreys⁴⁾ は、特殊な方位のアルミニウム単結晶について、サブグレインの不連続な成長を報告している。彼らは小角境界の移動によるとしているが、上で述べたようにサブグレイン間の方位差を重視している。

前報¹⁾では、再結晶粒の元となる Crystallite は転位セルであることを示した。その際に、「Crystallite である転位セル」と、その周囲の「Crystallite ではない転位セル」の方位は離れていることと、「Crystallite ではない転位セル」同士では方位が似通ったものが数個隣接していることを示した。本報 Fig. 1, 7, 9 に示した回復組織は、その後再結晶粒に浸食されて消滅した。それら再結晶粒は、Fig. 6 に示されるように、回復組織と関係なく形成されたものであった。隣接するサブグレインとの方位が近いサブグレイン間の大角境界は、移動しやすいため、サブグレイン内の歪が比較的多い状態であっても移動して歪の多い回復組織を形成するが、やがて、内部の歪が極めて少ない再結晶粒が成長すると、浸食されて消滅するのではないかと考えられる。

Fig. 9 Changes in recovered microstructures during annealing at 673 K for (a) 6 s, (b) 10 s, (c) 20 s, (d) 40 s and (e) 120 s, respectively. Low magnification image for (e) is shown in (f). The white arrows in (e) and (f) indicate the same subgrain.

Fig. 10 001 poles on the subgrains (a) A and (b) B indicated by the arrows in Fig. 9(a). 001 poles in the areas (c) C and (d) D indicated in Fig. 9(d) and (e), respectively.

3.4 粗大な回復組織

上に述べた推察に従えば、再結晶粒の成長が遅い領域では、回復組織が成長を続けることになる。第二相粒子を含む

Fig. 11 Coarse subgrain microstructures observed in the specimen annealed at 673 K for 600 s. View fields are difference each other.

試料について、Extended recovery¹⁸⁾ と呼ばれる現象とやや似ているが、Extended recovery ではそのまま再結晶粒組織になる点異なる。673 K で 600 s 焼鈍後の試料中に観察された粗大なサブグレイン組織を Fig. 11 に示す。番号を付したのは、再結晶粒である。それらの中には Fig. 11(c) 中に示した No. 160, 161 のように回復組織と見分けにくいものもあるが、3.6 ks 焼鈍後にも観察されたので、再結晶粒であるとした。番号を付けていない部分が回復組織である。Fig. 9 (f) に示したように、通常回復組織中のサブグレインのサイズは高々 10 μm 程度であることと比較すると、かなり粗大なサブグレインからなる回復組織である。Fig. 11(c) 中に白矢印で示した大角境界は、(013) 方位に近い回復組織(橙色部)と、(112) 方位に近い回復組織(紫色部)の間に形成されたものであり、これに続く焼鈍過程において(013) 方位の回復組織(橙色)は、(112) 方位の回復組織(紫色)を浸食して成長した。この(013) 方位(橙色)の粗大な回復組織は、Fig. 9 に示したような、2 度目の回復組織である。

最初に「回復組織」は、外周を大角境界で囲まれており、内部は小角境界で囲まれたいくつかのサブグレインからなる組織であると定義した。それら回復組織間の大角境界の移動のしやすさは、相互の方位関係によると推察した。大角境界は再結晶粒と回復組織の間にも形成される(一方がサブグレイン組織であり、結晶粒ではないので、「大角粒界」と呼ぶには難がある)。そのような大角境界の移動のしやすさ、すなわち再結晶粒の成長のしやすさ、もやはり両者の方位関係によると考えられる。再結晶粒が成長しにくいような方位関係の回復組織が隣接して形成された場合には、再結晶粒の成長は遅く、回復組織は浸食されない。しかし、回復組織同士が接していて、どちらかの歪が少ない場合には、少ない方の回復組織に浸食されて 2 度目の回復組織が形成される。2 度目の回復組織と再結晶粒の方位関係は 1 度目の回復組織との方位関係とは異なるため、その方位関係が再結晶粒にとって成長しやすい方位であれば再結晶粒が成長して 2 度目の回復組織を浸食して成長する。Fig. 11 に示した粗大な回復組織は、いずれも、3.6 ks の焼鈍後には再結晶粒に浸食されて消滅した。

3.5 回復組織と再結晶粒

緒言で、回復と再結晶は区別しにくいと示唆されていることを述べた。Fig. 11(c) 中に示した再結晶粒 No. 160, 161 は、内部に小角境界を含んでおり、回復組織である可能性もある。特に No. 161 は、Fig. 11(c) に示した 673 K, 600 s の前の焼鈍状態でも回復組織中に認められる。したがって、再結晶粒が、回復組織から形成される可能性も否定できないが、多くの回復組織は、再結晶粒にならず、再結晶粒に浸食されて消滅した。再結晶粒の起源は転位セルであることを前報¹⁾で示した。回復組織もまた、本報 Fig. 2 に示したように転位セルを起源として成長したものである。両者とも起源は同じであるが、一方は再結晶粒となって成長し、他方は成長後消滅する。この差がサイズの差によるものではないことは、Fig. 11 から明らかである。本論文で示しうる範囲内では、両者の差は内部に方位傾斜があるかどうか、という点によ

る。回復組織は内部に歪を含んだままで成長するが、再結晶粒は内部の歪が減少したのち、成長して形成される。

3.6 EBSD 法による同一視野観察の利点と短所

回復・再結晶に関する研究の歴史は古く、TEM が一般的な手法となる前から行われていた。そのため、回復過程では顕微鏡組織は変化しない、という定義が受け入れられていた時期もあった¹⁹⁾。前述のように、TEM 観察の結果^{3,7)}は、焼鈍初期における組織変化を示している。EBSD により得られる IPF マップは、方位差に敏感であるため、回復組織と再結晶組織を識別することができる。その結果、Fig. 1, 6, 7, 9, 11 のように回復過程で組織変化が生じていることを TEM よりも明らかに示しえた。しかし、観察倍率は高々 2000 倍までであり、多くは 500 倍で観察した組織である。したがって、ここで示した組織変化は、目新しいものではなく、以前からの光学顕微鏡による組織観察の結果としてすでに報告されていたと考えられる。本論文は、回復・再結晶について、新しい機構を提案しているのではない。EBSD の利点を生かして回復過程を見直しているにすぎない。

本研究のもう一つの利点は、同一視野を間歇的に観察していることにある。たとえば、Fig. 9(e) のみを見ると、単に二つの方位の回復組織が観察されるだけであり、回復組織が二度形成されることは推察すらできない。また、Fig. 7 に示したような大角境界の移動による回復組織形成も間歇的観察を行わなければ知ることができない。

ただし、最初に注記したように、圧延前からの同一視野観察であるため、圧延試料の表面付近に注目せざるをえず、公称の圧下率 50% よりも高い状態で変形された後の組織変化を観察している可能性は残る。

最近、SEM-EBSD 用のその場加熱装置が開発され、焼鈍中の組織変化の動的観察が可能となっている^{20,21)}。これに対して、本研究のように、間歇的に焼鈍と EBSD を繰り返す手法では、毎回、試料の着脱を行うため、再結晶過程で生じる結晶方位の変化を詳細に論じることはできないという短所がある。実際に、結晶粒界が隆起するような現象も観察され、組織変化には、微小な方位変化を伴っていると考えられる。

4. ま と め

Al-Mg-Si 系合金について、室温で 50% の圧下率での圧延を 1 パスで行った後、673 K での焼鈍により生じる回復過程での組織変化を試料中の同一視野について観察した。主な結果は以下のとおりである。

(1) 圧延変形によって形成された転位セルが、焼鈍にともなってサブグレインとなる。隣接するサブグレインとの方位関係により、小角境界および大角境界が形成される。これらのうち、大角境界が移動して回復組織が形成される。

(2) 回復組織の元となる転位セルの方位は回復組織に継承され、新たな方位は生じない。成長する回復組織と、それに浸食されて消滅する回復組織があるため、圧延直後の集合組織と、回復組織の集合組織は見かけ上異なる。

(3) 一旦形成された回復組織が、別の方位の回復組織に浸食されて、再度回復組織を形成することがある。最終的に回復組織は再結晶粒に浸食されて消滅するが、再結晶粒の成長が遅れる領域では、数 10 μm の大きさのサブグレインからなる粗大な回復組織が形成される。

文 献

- 1) A. Yamamoto, M. Tsukamoto and D. Okai: J. Japan Inst. Metals **75** (2011) 575–581.
- 2) E. Nes: Acta Metall. Mater. **43** (1995) 2189–2207.
- 3) T. Hasegawa and U. F. Kocks: Acta Metall. **27** (1979) 1705–1716.
- 4) M. Ferry and F. J. Humphreys: Acta Mater. **44** (1996) 1293–1308.
- 5) Y. Huang and F. J. Humphreys: Acta Mater. **48** (2000) 2017–2030.
- 6) F. J. Humphreys and M. Hatherly: *Recrystallization and Related Annealing Phenomena*, 2nd Ed., (Elsevier, 2004) pp. 169–213.
- 7) R. K. Ray, W. B. Hutchinson and B. J. Duggan: Acta Metall. **23** (1975) 831–840.
- 8) S. Saimoto, J. I. Cooley, B. J. Diak, H. Jin and R. K. Mishra: Acta Mater. **57** (2009) 4822–4834.
- 9) F. J. Humphreys and M. Hatherly: *Recrystallization and Related Annealing Phenomena*, 2nd Ed., (Elsevier, 2004) pp. 257–259.
- 10) J. Hjelen, R. Ørsund and E. Nes: Acta Metall. Mater. **39** (1991) 1377–1404.
- 11) F. J. Humphreys: Acta Mater. **45** (1997) 4231–4240.
- 12) F. J. Humphreys: Acta Mater. **45** (1997) 5031–5039.
- 13) K. Ikeda, S. Hata and E. Nakajima: J. JILM **59** (2009) 412–415.
- 14) P. A. Beck: Trans. AIME **194** (1952) 979–980.
- 15) A. Yamamoto and S. Fukumoto: J. JILM **59** (2009) 479–485.
- 16) A. Yamamoto: J. JILM **60** (2010) 68–74.
- 17) A. Yamamoto: J. JILM **60** (2010) 124–128.
- 18) F. J. Humphreys and M. Hatherly: *Recrystallization and Related Annealing Phenomena*, 2nd Ed. (Elsevier, 2004) pp. 211–213.
- 19) S. Obara: *Recovery and Recrystallization*, (Maruzen, 1968) p. 42.
- 20) S. Suzuki and Y. Adachi: Materia Japan **47** (2008) 72–78.
- 21) M. Nishizawa, H. Mori, Y. Ohishi, N. Kawabe and S. Kamado: J. JILM **59** (2009) 333–338.