Al-3% Cu 合金の二方位インゴットの圧延および 焼鈍集合組織

阿部秀夫* 戸叶一正** 菅原洋一***

Hideo Abe, Kazumasa Togano and Hirokazu Sugawara : Cold Rolling and Annealing Textures of Aluminum-3% Copper Alloy Processed from the Double-Oriented Ingots. Cold rolling and annealing textures have been observed in double-oriented ingots of Al-3% Cu alloy cold rolled by 90% in the (100) [001] orientation, (A) after solution-treatment at 520°C for 48 hr and quenching into water, (B) after ageing at 190°C for 48 hr, or (C) after ageing at 250°C for 15.5 hr.

The cold rolling texture of specimen A rolled immediately after the quenching contains a preferred orientation of near (112) $\{11\bar{1}\}$, that of specimen B contains (210) [001] and (320) [001] orientations, and that of specimen C contains an orientation near $\{7, 12, 22\} \langle 845 \rangle$.

The intensity of cube texture component retained after cold rolling is in the order $A < B < C$, whereas the intensity of the same component contained after primary recrystallization is in the order $A > B > C$.

The orientation changes during rolling and the orientation relationship between the rolling and recrystallization textures are discussed on the basis of the geometrical analysis of slip-rotation, the oriented growth theory and the oriented nucleation theory.

(Received September 7, 1972)

I. 緒 言

アルミニウム多結晶体の圧延および焼鈍集合組織についてはすでに多くの研究^{(1)~(8)}が行なわれ、その冷間圧延集合組織は $\{110\} \langle \bar{1}12 \rangle$, $\{7, 12, 22\} \langle 845 \rangle$, $\{112\} \langle 11\bar{1} \rangle$ の3方位を結ぶ優先方位分布を示すこと、再結晶集合組織には (100) [001] すなわち、立方体方位と $\{7, 12, 22\} \langle 845 \rangle$ ⁽⁹⁾ に近い方位成分が含まれることが知られている。

また1~5%のCuを含むAl-Cu合金では、その冷間圧延集合組織は純アルミニウムの場合と大差ない⁽⁹⁾。しかしその再結晶集合組織にはCu濃度および溶体化・焼入れ処理の影響が大きく、Cu濃度が高いほど(100) [001] 方位成分の量は減少すること⁽⁹⁾、圧延前に溶体化・焼入れするときは(100) [001] 方位のほかに(110) $\{1\bar{1}0\}$ 方位、圧延前にはほとんど平衡析出状態とするときは(100) [001] 方位のほかに

$\{632\} \langle 557 \rangle$ または $\{113\} \langle 33\bar{2} \rangle$ の各方位が含まれることが報告⁽⁹⁾されている。

著者ら⁽¹⁰⁾は最近アルミニウムおよびAl-3% Cu合金で、(100) [001] 優先方位をもつ二方位インゴット (double-oriented ingot) の作製を試みた。そのさい純アルミニウムでは、(100) [001] 方位からの分散がかなり大きく、集合組織研究用試料として適当なインゴットが得られなかったが、Al-3% Cu合金では高い集積度の(100) [001] 優先方位をもつインゴットが得られた。

前述のように、アルミニウムおよびAl-Cu合金の多結晶体の圧延および焼鈍集合組織については、すでに詳細な実験結果が示されており、また一方ではアルミニウム単結晶の塑性加工と再結晶の研究⁽¹¹⁾⁽¹²⁾により、加工集合組織の優先方位と再結晶集合組織の優先方位との間には多くの

- * 東京大学工学部冶金学科 (Department of Metallurgy and Materials Science, Faculty of Engineering, The University of Tokyo, Tokyo)
- ** 東京大学大学院、現在：金属材料技術研究所 (Graduate School, The University of Tokyo, Tokyo. Present address: National Research Institute of Metals, Tokyo)
- *** 東京大学工学部冶金学科、現在：住友電気工業株式会社横浜工場 (Department of Metallurgy and Materials Science, Faculty of Engineering, The University of Tokyo, Tokyo. Present address: Yokohama Works, Sumitomo Electric Industries, Ltd., Yokohama)
- (1) E.A.Owen and G.D. Preston : Proc. Phys. Soc., **38** (1925), 132.
 - (2) G.V.Vargha and G. Wassermann : Metalwirtschaft, **12** (1933), 511.

- (3) E.Schmid and G.Wassermann : Metalwirtschaft, **10** (1931), 409.
- (4) H.Hu and P.A. Beck : Trans.AIME, **188** (1950), 1214, 1217.
- (5) H.Hu, P.R.Sperry and P.A.Beck : Trans.AIME, **194** (1952), 76, 83.
- (6) K.Lücke : Z.Metallk., **45** (1954), 86.
- (7) W.Bunk, K.Lücke and G.Masing : Z.Metallk., **45** (1954), 584.
- (8) J.Grewen and G. Wassermann : Acta Met., **3** (1955), 354.
- (9) 五弓勇雄, 阿部秀夫, 上山紀彦 : 金属学会誌, **29** (1965), 515.
- (10) 阿部秀夫, 戸叶一正 : 金属学会誌, **34** (1970), 149.
- (11) B.Liebmann, K.Lücke and G.Masing : Z.Metallk., **47** (1956), 57.
- (12) S.Kohara, M.N.Parthasarathi and P.A.Beck : Trans. Met. Soc. AIME, **212** (1958), 875.

場合 $\langle 111 \rangle$ 軸に関する約 40° の回転関係があることが知られている。また (100) [001] 方位をもつ多結晶銅板の冷間圧延による集合組織変化については Baldwin⁽¹³⁾, 上城⁽¹⁴⁾の研究があるが、アルミニウムの場合にも銅と類似した集合組織変化を示すことが予想される。したがってアルミニウムおよび Al-Cu 合金の二方位インゴットの圧延および焼鈍集合組織がどのようになるかは、従来の諸研究による知識からある程度推定することができる。しかしその推定には幅があり、とくに再結晶集合組織については oriented growth 説⁽⁵⁾⁽¹²⁾と oriented nucleation 説⁽¹⁵⁾の二つの考え方による違いもあるので、ここで Al-3% Cu 合金の (100) [001] 優先方位をもつ二方位インゴットの圧延および焼鈍集合組織についての実験を試みた。そのさい圧延前の溶体化・焼入れおよび時効処理の影響についても注目した。次にその結果について報告する。

II. 試料および実験方法

純度 99.99% のアルミニウムを黒鉛るつぼ中で溶解した後、溶湯組成が 3% Cu となるまで Al-49% Cu 母合金を添加した。二方位インゴット作製のための鑄型は、前報⁽¹⁰⁾に示したように、イソライトと水冷銅板を用いた逆 L 型鑄型である。注湯温度は 750°C で、鑄込み直前のイソライト鑄型の予熱温度も 750°C とした。得られたインゴットの外観を Photo. 1 に示す。

このインゴットの水平部の側壁に近い縦断面を研磨し、2% フッ酸-10% 硝酸混合水溶液で腐食すると、Photo. 2 に示すような樹枝状偏析組織が見られる。デンドライトの軸は $\langle 100 \rangle$ 軸に平行であるから、この樹枝状偏析組織に

Photo. 1 Double-oriented ingot of Al-3% Cu alloy

より (100) [001] 方位への集積度を知ることができる。合計 5 個の二方位インゴットを作り、それらの水平部から (100) [001] 方位への集積度が十分に高い 3 個の試料 (厚さ約 10 mm, 長さ約 40 mm) を切り出した。一部試料では後方反射ラウエ法による各結晶粒の方位の検査もあわせて行なった。これらの 3 個の試料を A, B, C とする。各試料の柱状晶の横断面上での結晶粒度は $5\sim 8\text{ grains/cm}^2$ でかなり粗大である。

次にこれらの試料をいずれもまず 500°C で約 24 hr 均質化焼鈍・炉冷した後、さらに Table 1 に示すように溶体化、焼入れおよび時効の各熱処理を施した。これらの熱処理は Hardy⁽¹⁶⁾⁽¹⁷⁾らの報告に従って行なったもので、ビッカース硬さの測定結果から判断して、試料 A は過飽和固溶状態、試料 B は準安定中間相 θ' の析出により硬さが極大に達した状態、試料 C は中間相 θ が析出した過時効状態といえる。Table 1 の各熱処理をそれぞれ行なった直後に各試料に対し (100) [001] 優先方位にそって圧延率約

Photo. 2 Dendritic structure observed on longitudinal section of horizontal portion of double-oriented ingot shown in Photo. 1 ($\times 2$)

(13) W.H. Baldwin : Trans. AIME, **166** (1946), 591 ; Metals Technology T.P. 1455.

(14) 上城太一 : 金属学会誌, **25** (1961), 207.

(15) 上城太一, 山本一馬 : 金属学会誌, **25** (1961), 151, 220, 376, 453.

(16) H.K. Hardy : J.Inst. Metals, **79** (1951), 321 ; **82** (1953-4), 236.

(17) J.M. Silcock, T.J. Heal and H.K. Hardy : J.Inst. Metals, **82** (1953-4), 239.

Table 1 Heat-treatments applied to Al-3% Cu alloy double-oriented ingots A, B and C

Specimen	Heat-treatments
A	Solution-treated at 520°C for 48 hr and quenched into water
B	Solution-treated at 520°C for 48 hr, quenched into water, and aged at 190°C for 48 hr (Vickers hardness number=84~86)
C	Solution-treated at 520°C for 48 hr, quenched into water, and aged at 250°C for 15.5 hr (Vickers hardness number=58~61)

90%の冷間(常温)圧延[†]を行なった。圧延後の板厚は約1 mmである。

冷間圧延した各試料の一部をフッ酸 15 cc, 硝酸 2 cc, 塩酸 6 cc, 水 40 cc の液中で試料両面から化学研磨し, 厚さ約 0.15 mm の X 線回折用試片を作り, (200) 極点図を CuK α 線を用い角度半径約 60° までの範囲は Schulz 反射法で, 外周部は Decker-Asp-Harker 透過法で測定した。測定強度はアルミニウム粉末ランダム試料からの回折強度に対する比で表わした。

次に各冷間圧延試料を等時焼鈍(時間 1.5 hr) したときの硬さの変化を Fig. 1 に示す。この硬さ測定結果を参考として, 各試料において 1 次再結晶は完了しているが結晶粒成長または 2 次再結晶はほとんど進行していない状態となるように, 試料 A と C は 350°C で 1.5 hr, 試料 B は 400°C で 1.5 hr 焼鈍し, それらの再結晶集合組織の (200) 極点図を前述と同様にして測定した。

Fig. 1 Variation in hardness by isochronal annealing (time=90 min) in specimens A, B and C, cold rolled by 90%. (a) for specimen A, (b) for specimen B, and (c) for specimen C

III. 実験結果と考察

圧延率約 90% の冷間圧延を行なった試料 A, B, C の冷間圧延集合組織の (200) 極点図を Figs. 2, 3, 4 に示す。これらの極点図はいずれも非対称な集合組織を示しているが, それは試料の結晶粒が粗大で, 初期方位分布が非対称であったためである。

Fig. 2 の試料 A では高指数方位 X の近くに最も強い集積

[†] reversal rolling.

を示している。この方位は $\{7, 12, 22\} \langle 845 \rangle$ 方位(その一つの等価方位の $\{200\}$ 極点は Fig. 4 中に示してある)よりも図中+印極点で示した $(112) [11\bar{1}]$ 方位のほうに近い。また Y および Z の各高指数方位にも弱い集積があるが, これらの方位は $\{7, 12, 22\} \langle 845 \rangle$ 方位に向かってすべり回転していく途中の方位とみられる。初期方位 $(100) [001]$ は非常に弱くなっている。このように試料 A では, 初期方位 $(100) [001]$ から大きく方位変化して X, Y, Z 各方位まで到達している。

それに対して, Fig. 3 の試料 B では初期方位 $(100) [001]$ が試料 A よりも多く残っており, W 1 および W 2 の記号で示した各方位に集積がある。W 1, W 2 は近似的にそれぞれ $(210) [001]$, $(320) [001]$ で表現できる方位で, 初期方位 $(100) [001]$ が圧延方向 (R.D.) に平行な $[001]$ 軸に関して回転して生じたと考えられる方位である。Fig. 3 では, そのほかに初期方位 $(100) [001]$ から W 1 または W 2 を経ずに直接 $(112) [11\bar{1}]$ 方位に向かう弱い方位分散を示していることが注目される。試料 A における X 方位も同様に初期方位から直接 $(112) [11\bar{1}]$ 方位に向かう途中の方位とみることができる。

Fig. 4 の試料 C では初期方位 $(100) [001]$ が試料 B よりもさらに強く残っている。ただし極点図中心の強度は弱く, $(100) [001]$ 方位が全体として幅方向 (T.D.) のまわりに一方の向き (図の上方) に回転している。そのほかに $\{7, 12, 22\} \langle 845 \rangle$ 方位に近い V の方位に比較的強い集積を示している。

上城⁽¹⁴⁾ の立方体方位多結晶銅板の圧延集合組織の研究

では冷間圧延後の優先方位を near $(123) [634]$ で表現しているが, それは Hu, Beck⁽¹⁴⁾ による $\{7, 12, 22\} \langle 845 \rangle$ あるいは $\{123\} \langle 412 \rangle + \{146\} \langle 21\bar{1} \rangle$ などの表現と本質的には同じとみなされる。その論文⁽¹⁴⁾ の Fig. 6 に初期方位 $(100) [001]$ から near $(123) [634]$ へ方位変化する経路が示されている。前述の Fig. 2 (試料 A) の Y, Z, Fig. 3 (試料 B) の W 1, W 2, Fig. 4 (試料 C) の V の各方位は近似的にその方位変経路の上に載っている。しかし試料 A の X, 試料 B の方位分散は $(112) [11\bar{1}]$ 方位へ近づいており, 上城の示

した経路とは一致していない。また(100)[001]から[001]軸回転を経ずに直接(112)[11 $\bar{1}$]に向かって方位変化する

Fig. 2 (200) pole figure of specimen A cold rolled by 90%

Fig. 3 (200) pole figure of specimen B cold rolled by 90%

Fig. 4 (200) pole figure of specimen C cold rolled by 90%

ことは上城の結晶幾何学解析の結果⁽¹⁸⁾とも合わない。この場合(112)[11 $\bar{1}$]への方位変化が試料AとBで起こり、試料Cでは起こらないことが注目される。試料Aでは常温圧延中に時効が進み、試料Bでは θ' の分散析出がある。そのような分散析出粒子の大きさや間隔が十分に小さいとき、すべり変形に乱れが与えられ(112)[11 $\bar{1}$]への方位変化が促されたのではないかと考えられるが、今後検討を要する問題である。

前述のように90%圧延後の(100)[001]方位の残留量は、試料Cで最も多く試料Aで最も少ない。一般に面心立方格子のCu型金属とその固溶体合金を比べると、後者のほうがすべり回転のovershootingを起こしやすく、そのことは見かけ上「潜在すべり系の硬化現象」として知られている。そのことから、試料Aの過飽和固溶状態からの圧延では、いったんある一つのすべり系上でのすべりがわずかに優先して起こると、その他のすべり系上でのすべりが起こりにくくなるので、初期方位(100)[001]からのすべり回転が急速に進行すると考えられる。それに対して過時効によりマトリクスが純アルミニウムに近い試料Cでは多重すべりにより(100)[001]方位がかなり安定に保たれると考えられる。

次に、90%の冷間圧延を行なった試料A, B, Cをそれぞれ350, 400, 350°Cで1.5 hr焼鈍した後の再結晶集合組織の(200)極点図をFigs. 5, 6, 7に示す。

3試料を比較すると、Fig. 5の試料Aで最も高い集積度の(100)[001]方位が発達しており、Fig. 7の試料Cでは(100)[001]方位成分は最も弱い。前述の冷間圧延集合組織と対比すると、冷間圧延後に(100)[001]方位が最も多く残存していた試料Cでは再結晶後の(100)[001]は最も弱く、一方冷間圧延後に(100)[001]方位の量が最も少なかった試料Aでは再結晶後の(100)[001]方位集積度は最も高くなっている。この結果については、再結晶後の優先方位は冷間

Fig. 5 (200) pole figure of specimen A annealed at 350°C for 1.5 hr after 90% cold rolling

(18) 上城太一：金属学会誌，32(1968)，22。

Fig. 6 (200) pole figure of specimen B annealed at 400°C for 1.5 hr after 90% cold rolling

Fig. 7 (200) pole figure of specimen C annealed at 350°C for 1.5 hr after 90% cold rolling

圧延マトリクスの主要方位と方位差が大きい方位であるという oriented growth 説の立場からの説明ができる。しかし試料 A と B において、(100) [001] 再結晶方位と冷間圧延集合組織の X, Y, Z, W1, W2 各方位との間には $\langle 111 \rangle$ 軸に関する 40° の回転関係は成り立っていない†(そのうち Y のみは近似的に $\langle 111 \rangle$ 軸回転関係にあるといってもよい)。さらに試料 C では $\{7, 12, 22\} \langle 845 \rangle$ に近い V 方位が存在するのにそれと $\langle 111 \rangle$ 軸 40° 回転関係にある (100) [001] 再結晶方位は発達していない。したがってこの場合の (100) [001] 再結晶集合組織の発達には、oriented growth factor が必要条件となっているが、(100) [001] 再結晶方位を規定したのは $\langle 111 \rangle$ 軸 40° 回転関係ではなく、冷間圧延後に微量残留していた (100) [001] 方位領域からの oriented nucleation であるように思われる。

Fig. 5 の試料 A の極点図は、五弓、阿部、上山の論文⁽⁹⁾

† (100) [001] 方位と W1, W2 各方位との間には [001] 軸に関する回転関係がある。しかしそれらが oriented growth のための最適方位関係であるとはいえない。

において多結晶 Al-3% Cu 合金を溶体化・焼入れ後 95% の冷間圧延を行ない 300°C で 30 min 焼鈍したときの再結晶集合組織の極点図(その論文の Fig. 10)と非常によく合っている。そのことは、本研究のように二方位インゴットを作製しても、90% 近くの冷間圧延をすればランダム多結晶の場合とほとんど同じになることを示す。二方位インゴットの利用はもっと低い圧延率の範囲で考えなければならない。

上記論文⁽⁹⁾ の Fig. 10 でも、本論文の Figs. 5, 6 でも (100) [001] 方位からの分散は幅方向を軸とする回転で (110) [110] 方位まで達している。(110) [110] 方位は圧延に対して変形しにくい方位であり、それが再結晶集合組織の分散方位として含まれることは oriented nucleation の立場からは注目される。

Fig. 7 の試料 C の再結晶集合組織には高指数方位 R が含まれている。このような高指数方位 R の成因には oriented growth factor が大きいと考えることもできるが、この方位と Fig. 4 の冷間圧延集合組織の各優先方位との間にも単純な方位関係(たとえば $\langle 111 \rangle$ 軸に関する約 40° の回転のような低指数軸に関する回転関係)はない。むしろ R の方位は、初期方位 (100) [001] が圧延によってすべり回転していった先端の方位の一つであるという oriented nucleation 説の立場からの説明も可能である。

本実験の試料のように、分散析出粒子を含む合金を圧延するときは、変形結晶内の転位の配列状態が複雑になっていると考えられること、また再結晶過程では分散析出粒子による粒界移動の抑制作用が関与していると考えられることなどから、この場合に単純な方位回転で律せられた oriented growth が起こらなかった理由は説明できる。

IV. 総 括

Al-3% Cu 合金の二方位インゴットを、(A) 520°C で 48 hr の溶体化処理後水中に焼入れ、(B) 溶体化・焼入れ後 190°C で 48 hr 時効、(C) 溶体化・焼入れ後 250°C で 15.5 hr 時効、の各処理を行なった後、(100) [001] 方位に圧延率約 90% まで冷間圧延した。これらの A, B, C 3 試料の冷間圧延集合組織と再結晶集合組織を (200) 極点図の測定により調べた。

(1) 溶体化・焼入れ直後に圧延した試料 A の冷間圧延集合組織には (112) [111] 方位に近い優先方位を含む。

(2) 試料 B の冷間圧延集合組織には (210) [001] および (320) [001] の各方位の近くに集積がある。また (100) [001] から (112) [111] 方位へ向かう方位分散がある。

(3) 試料 C の冷間圧延集合組織には $\{7, 12, 22\} \langle 845 \rangle$ 方位の近くに集積がある。

(4) 冷間圧延後の (100) [001] 方位の残留量は試料 C で最も多く試料 A で最も少ない。

(5) 再結晶集合組織における (100) [001] 方位の強度は

試料 A で最も強く試料 C で最も弱い。

(6) 試料 A と B の再結晶集合組織には $\langle 110 \rangle [1\bar{1}0]$ への方位分散、試料 C には高指数再結晶方位が存在する。

圧延による方位変化は、結晶のすべり回転の幾何学的解析結果では $\langle 100 \rangle [001] \rightarrow \text{near } \langle 210 \rangle [001] \rightarrow \{7, 12, 22\} \langle 84\bar{5} \rangle$ の方位経路が示されており、試料 A および B における

$\langle 100 \rangle [001] \rightarrow \langle 112 \rangle [11\bar{1}]$ の方位変化は説明できない。

再結晶集合組織と圧延集合組織の各優先方位の間には、 $\langle 111 \rangle$ 軸 40° 回転関係は存在せず、この実験における再結晶集合組織の成因には oriented nucleation factor が大きいと考えられる。それは分散析出粒子の効果によるものと思われる。