帯域焼鈍法による所望方位を有する Mo 単結晶の作製

上平 一茂, 本多 均一, 藤井 忠行

金属材料技術研究所, 〒305 つくば市千現1-2-1.

Preparation of Molybdenum Single Crystal with a Desired Orientation
by Means of Zone Annealing

Kazushige Kamihira, Kinichi Honda and Tadayuki Fujii

National Research Institute for Metals, 1-2-1 Sengen, Tsukuba 305.

Received March 31, 1997

SYNOPSIS

A new technique for preparation of molybdenum single crystal with a desired orientation has been proposed. The technique was performed as follows; first, a specimen with a comb shape was mechanically fabricated from hot-rolled sheet with various rolling procedures and reductions. Then the edge of specimen with a comb shape was locally heated by the optical-beam image furnace in order to make some secondary recrystallized grains with various orientations. After the secondary recrystallized grains were mechanically eliminated except for a secondary grain having a desired orientation, the specimen was zone-annealed at 2000-2200°C at the zone-speed of 5 mm/hr to grow the secondary grain. Consequently, molybdenum single crystal with a desired crystallographic orientation can easily be produced.

KEY WORDS

molybdenum, zone annealing, single crystal with a desired orientation, secondary recrystallized grain

1 緒 言

著者らはこれまでに2次再結晶粒成長（異常結晶粒成長）現象を基本的に支配する金属学的諸因子（ドーブ元素および量，加工および1次再結晶集合組織，1次再結晶粒径および形状）について検討し¹⁻⁷，これら上記諸因子を制御することにより複雑形状を有する高融点金属 Mo，W およびこれらの合金の大型単結晶材料の製造に成功している⁸⁻¹⁰。近年，太陽熱ロケットのノズル材料，熱電子発電用のエミッター，コレクター材料やレーザー反射鏡材料等の様々な機能材料分野へ Mo，W 単結晶が利用されつつある。また，単結晶材料に特有な結晶方位の異方性から生じる材料の物理的，化学的および機械的な特性を十分に発揮させるために，特定方位（結晶面，方向）を有する単結晶材料が求められてきている。しかし，特定方位を有する金属単結

晶材料の製造技法^{11,12}については今までにいくつかの研究や検がなされているが，固相法（再結晶法）により方位制御を目的とした高融点金属単結晶作製技法は皆無である。

本研究では，上述の特定方位を有する単結晶を得るための手段として，帯域焼鈍技法による2次再結晶粒方位を制御した Mo 単結晶の作製が可能か否かについて検討した。

2 実験方法

出発素材は Ca および Mg を総量で 0.005mass% 添加した Mo 粉体を一般的な粉末冶金法によって厚さ 20mm の焼結インゴットを作製後，1次再結晶集合組織を制御することを目的としてストレート圧延（一向向圧延），クロス圧延（交差圧延）の2種類の圧延方法

ならびに圧延率を70%と90%とした圧延板である。実験に供した試料はこれらの圧延板から圧延方向を長さ方向として Fig.1 のように一方に櫛状に切り込みを入れた。次にこれらの試料に対して2次再結晶核粒を試料端部に作成するために光ビーム帯域精製装置を用いて均熱加熱を目的に1分間に7回転の速度で回転させながらArガス雰囲気中にて2000℃、1時間の集光加熱を局部的に施した。

Fig.1 Schematic drawing of the zone annealing process by the optical beam image heating. Laue patterns of a', b', c' and d' correspond to the secondary recrystallized grains of a to d shown in the drawing.

その結果, Fig.1に見られるように切り込みにより分割された試料端部, a~dに2次再結晶核粒を得た。以後, この粒をここでは2次再結晶核粒と定義する。また, Fig.1下部にX線ラウエ背面反射写真を示してあるが, 写真a'~d'は核粒のa~dに対応しておりこれらの核粒が異なる方位を示すことを確認した。また, 1次再結晶集合組織については各種圧延板を1500℃, 1時間焼鈍した後, 極点図形を作成することにより解析した。さらに, 本実験目的である所望方位を有する単結晶材料を得るために以下のような操作を行った。まず各種

圧延方法, 圧延率の異なる試料を上述べた局部加熱により試料端部に複数の2次再結晶核粒を作製後, 所望方位を選択し, 他の核粒方位を機械的に除去した。次に試料を2000~2200℃の温度に保ちながら5mm/hrの引き下げ速度で帯域焼鈍を施し, 選択した所望核粒と同一方位を有する単結晶の作製を試みた。

3 実験結果および考察

本実験においては, 圧延方法ならびに圧延率を変えて作製したドープMo圧延板を用い, Fig.1に示した形状をもつ試料に集中的な高温焼鈍を施すことによって, どのような2次再結晶核粒(ここでは, 結晶方位の異なる複数の2次再結晶核粒)方位が出現するか調べた。次に, 得られた核粒から所望方位粒を選択して帯域焼鈍法による単結晶の作製を試みた。

Fig.2, 3にそれぞれストレートおよびクロス圧延試料の1次再結晶集合組織と試料端部を集光加熱により得られた2次再結晶核粒方位を{200}極点図で示す。また, Table 1ならびにTable 2には得られた集合組織の方位関係の結果について整理して示す。1次再結晶集合組織は圧延方法および圧延率の違いにもかかわらずBCC金属で典型的に出現する3成分のうち{100} <011>, {111} <112>方位の主要な2成分によって構成されている¹³⁻¹⁵。圧延率70%のストレート圧延の場合は1次再結晶集合組織は主成分として{100} <011>方位で構成されているもののFig.2およびTable 1の結果が示すように他の成分を含み, 一般的に集積度が低い方位分布をとっている。圧延率90%の場合には1次再結晶集合組織は主成分として{111} <112>方位, 副成分として{100} <011>方位の2成分からなる集積度の高い方位成分によって構成されている。

ストレート圧延における特徴的なことは圧延率の違いにより出現する2次再結晶核粒の結晶方位が異なることで, 圧延率70%では{100} <001>および{310} <001>近傍方位を中心として分散した方位が発達し, 圧延率90%の場合は{112} <111>, {123} <111>近傍方位を中心として分散し, 発達した方位粒として整理することができる。この結果, 得られた2次再結晶核粒方位成分は1次再結晶集合組織の主成分から隔てた弱成分より出現しており, これらの方位成分が2次再結晶核粒として発達したことを示している^{10, 16}。一方, クロス圧延ではFig.3に示したように, 1次再結晶集合組織は圧延率70%および90%のどちらの場合も主成分として{100} <011>方位, 副成分として{111} <112>方

Fig.2 {200} pole figures for primary (—) and secondary (●) recrystallization textures developed from the straight-rolled specimens with rolling reductions of 70% (a) and 90% (b).

Fig.3 {200} pole figures for primary (—) and secondary (●) recrystallization textures developed from the cross-rolled specimens with rolling reductions of 70% (a) and 90% (b).

位をあわせもつ集積度の高い方位成分によって構成されており、圧延率が増すことによりさらに両方位成分の集積度も高まる傾向を示す。クロス圧延によって得られた2次再結晶核粒方位はTable 2の結果が示すように、圧延率70%、90%のどちらの場合においても{100}<011>近傍方位が出現し、その分散度は圧延率によって大きな相違は認められず±20度の範囲内に集積し、発達した方位粒として表すことができる。また、2次再結晶粒方位は1次再結晶集合組織の主成分{100}<011>方位に対しておよそ20度前後隔てた位置に分布している。従って、ストレート圧延で述べたようにクロス圧延の場合においても2次再結晶粒は1次再結晶集合組織の主成分から隔てた弱成分が2次再結

晶核粒として発達したものと考えられる。Fig.4は得られた2次再結晶核粒の優先結晶方位を圧延面に垂直な方向(N.D)および圧延方向(R.D)にすべてまとめて反転極点図に示したものである。この図から明らかにように2次再結晶核粒方位はストレート圧延の場合、圧延率70%と90%ではその方位分布が異なり、圧延面方向へは両圧延率とも分散しているが、圧延方向へはある程度集積している。クロス圧延では圧延率70%、90%のどちらの場合も圧延面および圧延方向へは同一方位が発達し、集積した方位粒をとる。しかしながら、圧延方法および圧延率の相違にもかかわらず圧延面方位に{110}近傍方位が得難い。今後この{110}面方位を得ることが急務な課題であろう。Photo.1にこのよ

Table 1 Orientation relationship between primary and secondary recrystallized grains developed from the straight-rolled specimens with rolling reductions of 70% and 90%.

	Primary Recrystallization (Polycrystalline)	Secondary Recrystallization (Single Crystal)
70% rolled	Weak {100} <011> + Other Components (Random Texture)	Near ({100} + {310}) <001>
90% rolled	Strong {111} <112> + Weak {100} <011> (Sharp Texture)	Near ({112} + {123}) <111>

Table 2 Orientation relationship between primary and secondary recrystallized grains developed from the cross-rolled specimens with rolling reductions of 70% and 90%.

	Primary Recrystallization (Polycrystalline)	Secondary Recrystallization (Single Crystal)
70% rolled	Strong {100} <011> {111} <112> (Sharp Texture)	Strong {100} <011> $\pm 20^\circ$
90% rolled	Strong {100} <011> {111} <112> (Sharper Texture)	Strong {100} <011> $\pm 20^\circ$

Fig.4 Orientations of secondary grains shown in a unit stereographic triangle.

うな分布で分散した2次再結晶核粒の中から所望方位粒を選択して、この核粒のみを2000~2200℃の温度範囲にて帯域焼鈍を施すことによって成長させた一例を示す。

Photo.1 Typical macrostructure of single crystal with a desired orientation prepared by means of zone annealing. Laue patterns (a') and (b') were taken from the (a) and (b) shown in the macrostructure.

この結果、試料全体が核粒方位と同一の方位を有する単結晶を得ることができた。(a)が選択した核粒、(b)が帯域焼鈍によって成長することにより得られた単結晶であり、これらの結晶粒が下部に示したX線ラウエ写真(a'), (b')から同一方位であることが明らかである。

4 結 言

本実験では、所望方位を有するMo単結晶を作製することを目的に、圧延方法と圧延率を変えたドープMo材を用いて帯域焼鈍を行い、以下の結果を得た。

- (1) 試料端部を切り込みによって櫛状に分割し、局部加熱することにより結晶方位の異なる2次再結晶核粒を容易に得ることができた。
- (2) 2次再結晶核粒方位は、圧延率70%のストレート圧延の場合には($\{100\} + \{310\}$) $\langle 001 \rangle$ 近傍方位、90%の場合では($\{112\} + \{123\}$) $\langle 111 \rangle$ 近傍方位を中心として分散した方位粒をとり、クロス圧延においては圧延率70%、90%のどちらの場合も

$\{100\} \langle 011 \rangle$ 方位20度前後の範囲に集積した方位粒が得られることが明らかとなった。

- (3) 2次再結晶核粒の方位は圧延方法および圧延率によってもたらされる1次再結晶集合組織により大きく影響を受け、結晶学的方位関係から見れば1次再結晶集合組織の弱成分に相当していた。
- (4) 試料端部を切り込みによって櫛状に分割し、局部加熱することにより得られた2次再結晶核粒の中から所望方位粒を選択して帯域焼鈍を施すことによって、所望方位を有する単結晶材料の作製が可能となった。

文 献

- 1) T.Fujii, R.Watanabe, Y.Hiraoka and M.Okada : J.Less-Common Met., 96 (1984) 297.
- 2) T.Fujii, R.Watanabe, Y.Hiraoka and M.Okada : J.Less-Common Met., 97 (1984) 163.
- 3) T.Fujii, R.Watanabe, Y.Hiraoka and M.Okada : J.Less-Common Met., 99 (1984) 77.
- 4) P.I.Welch and G.J.Davies : Texture and Microstructure, 6 (1983) 21.
- 5) 藤井忠行, 岡本謙一: 粉体および粉末冶金, 36 (1989) 819.
- 6) 中島正三郎, 高橋邦秀, 原勢二郎: 鉄と鋼, 80 (1994) 49.
- 7) 上平一茂, 本多均一, 藤井忠行: 粉体および粉末冶金, 42 (1995) 1190.
- 8) T.Fujii, Y.Hiraoka and R.Watanabe : U.S.Patent No.449, 1560.
- 9) 藤井忠行, 平岡裕, 渡辺亮治, 岡本謙一: 特許第1688235号.
- 10) T.Fujii, R.Watanabe, Y.Hiraoka and M.Okada : Met, Sci and Eng., 68 (1984) 45.
- 11) Y.Ohba, Y.Tamura and T.Fujii : Trans.JIM, 12 (1971) 348.
- 12) 長崎誠三編: 金属物理実験室, アグネ出版, (1964) 2.
- 13) M.Semchysen and G.A.Timmons : Trans. AIME, 194 (1952) 279.
- 14) J.W.Pugh : Trans. Metall. Soc. AIME, 212 (1958) 637.
- 15) T.Fujii and Y.Ohba : Proc. 6th ICOTOM, Tokyo, ISIJ, 1 (1981) 628.
- 16) 武部克嗣, 藤井忠行: 粉体および粉末冶金, 36 (1989) 284.