X線ラインプロファイル解析と透過電子顕微鏡観察による 強圧下冷間圧延された純鉄, Fe-0.3 mass%Si 合金, Fe-0.3 mass%Al 合金の再結晶に伴う転位組織変化の評価

富田 美穂^{1,4)*}・米村 光治²⁾・稲熊 徹²⁾・坂本 広明²⁾・潮田 浩作^{3,4)}

Estimation of Change in Dislocation Structure in Severely Cold-rolled Pure Iron,
Fe-0.3 mass%Al Alloy and Fe-0.3 mass%Si Alloy by X-ray Line Profile Analysis and Transmission Electron Microscopy

Miho TOMITA, Mitsuharu YONEMURA, Tooru INAGUMA, Hiroaki SAKAMOTO and Kohsaku USHIODA

Synopsis : The change in dislocation structure with recovery and recrystallization of 99.8% cold-rolled pure iron, Fe-0.3 mass%Al and Fe-0.3 mass%Si alloys was investigated by means of X-ray line profile analysis (XLP) and TEM observation. In as-rolled samples of Fe-Al and Fe-Si alloys, the fraction of edge dislocation density increased in comparison with that in pure iron. In the early stage of recovery, dislocation densities with both edge and screw components remarkably decreased in pure iron, whereas in the Fe-Al and Fe-Si alloys, only the edge dislocation density distinctively decreased. This suggests that edge dislocations with relatively high density in as-rolled Fe-Si and Fe-Al alloys are easily annihilated by the climbing up motion of edge dislocations. In the late stage of recovery, the dislocation density of Fe-Si alloy did not decrease. No structural changes were observed by TEM which suggests that the recovery of Fe-Si alloy is strongly retarded, since Si hinders dislocation movement. In the early stage of recrystallization of pure iron, the formation of large subgrains was clearly confirmed in the lamellar structure. The subgrains show a similar orientation to the neighboring unrecrystallized grains, which represents similar behavior regarded as continuous recrystallization. Fe-Al alloy is similar to pure iron. Whereas, Fe-Si alloy exhibits discontinuous recrystallization in the sense that grains with low dislocation density were confirmed in the unrecovered lamellar structure with high driving force for recrystallization. This is because the Si strongly hinders dislocation movement. This effect agrees with the behavior of dislocation in Fe-Si alloy confirmed by XLP.

Key words : cold-rolling; recovery; recrystallization; pure iron; Si; Al; dislocation; X-ray diffraction; TEM.

1. 緒言

鉄鋼材料の再結晶集合組織の形成メカニズムは添加元素や冷間圧延の圧下率、焼鈍条件により異なることが知られている。Verbekenらは圧下率95%まで冷間圧延された極低炭素鋼の再結晶過程を調べ、{554}〈225〉および{113}〈471〉方位を有する再結晶粒が、{112}〈110〉方位を有する未再結晶粒を蚕食して成長する、配向選択成長説を報告している¹⁾。一方、Gobernadoらは圧下率95%まで冷間圧延されたFe-3.2 mass%Si合金の再結晶において、{113}〈361〉方位を有する再結晶粒が{100}〈011〉粒から優先的に核生成し、その核が成長して再結晶が完了する配向核生成説による再結晶集合組織の形成を報告している²⁾。このように、同じ冷間圧延圧下率でも、添加元素により再結晶集合組織およ

び、その形成メカニズムは異なり、統一的に理解はされていない。

これまでに筆者らは圧下率99.8%まで強圧下冷間圧延された純鉄や0.3 mass%のSiやAlを添加した鋼について、形成される加工組織や、再結晶挙動を調べ、添加元素により形成される再結晶集合組織やその形成メカニズムの相違を明らかにした^{3,4)}。純鉄では強圧下冷間圧延により非常に高ひずみ状態の α 繊維集合組織が形成され、通常は再結晶の後期に γ 繊維集合組織に蚕食される α 繊維集合組織成分の{100}〈011〉や{211}〈011〉が、再結晶完了後も維持される。すなわち、核生成と成長型の再結晶挙動ではあるが、その場再結晶のように冷間圧延まの集合組織が維持され、その後の粒成長時に{100}〈012〉集合組織の発達を明らかにした³⁾。一方、Fe-0.3 mass%Si合金では、回復が抑制され、

平成28年9月12日受付 平成28年11月7日受理 平成28年12月8日J-STAGE 早期公開 (Received on Sep. 12, 2016 ; Accepted on Nov. 7, 2016 ; J-STAGE Advance published on Dec. 8, 2016)

1) 新日鐵住金(株)技術開発本部鉄鋼研究所 (Steel Research Labs., Technical Research & Development Bureau, Nippon Steel & Sumitomo Metal Corporation, 20-1 Shintomi Futtsu Chiba 293-8511)

2) 新日鐵住金(株)技術開発本部先端技術研究所 (Advanced Technology Research Labs., Technical Research & Development Bureau, Nippon Steel & Sumitomo Metal Corporation)

3) 新日鐵住金(株)技術開発本部 (Technical Research & Development Bureau, Nippon Steel & Sumitomo Metal Corporation)

4) 金沢大学大学院自然科学研究科 (Graduate School of Natural Science and Technology, Kanazawa University)

* Corresponding author : E-mail : tomita.96x.miho@jp.nssmc.com

DOI : <http://dx.doi.org/10.2355/tetsutohagane.TETSU-2016-091>

再結晶初期に $\{411\} \langle 148 \rangle \sim \{411\} \langle 011 \rangle$ 方位を有する再結晶粒が多くみられる配向核生成説により再結晶集合組織が形成され、その後の粒成長により $\{411\} \langle 148 \rangle$ 集合組織がさらに発達した⁴⁾。Fe-0.3 mass%Al 合金では、再結晶核は多様な方位を有し、配向核生成の傾向が弱く、再結晶の進行に伴い、 $\{100\} \langle 012 \rangle$ と $\{111\} \langle 011 \rangle \sim \{111\} \langle 112 \rangle$ へ集積し、その後の粒成長による $\{100\} \langle 012 \rangle$ 方位の選択的な増加を明らかにした⁴⁾。

SiはFeに固溶するとFeの積層欠陥エネルギーを低下させ、転位の交差すべりが抑制されることが報告されている^{5,6)}。Alの影響については必ずしも明確ではないが、Takeuchiらは、Alが降伏強度へ及ぼす影響はSiと比較すると半分程度であるが、Siと同様に交差すべりを抑制する傾向があることを報告した⁷⁾。さらに、繰返し変形時に発達する転位組織の観察結果から、AlはSiと同様の影響を有し、その程度はSiよりも小さいと推察されている⁸⁾。交差すべりが抑制されると、らせん転位の運動が阻害されるため、純鉄とFe-0.3 mass%Si合金およびFe-0.3 mass%Al合金では、冷間圧延時の転位挙動のみならず、回復や再結晶挙動にも違いが生じると考えられ、再結晶集合組織の違いに繋がることが予想される。

従来から、転位密度や転位構造の解析には、透過型電子顕微鏡 (Transmission Electron Microscope: TEM) 観察に加え、X線ラインプロファイル解析 (X-ray Line Profile Analysis: XLPA) 法が用いられてきた。塑性変形により金属に導入された転位の周りには格子ひずみが生じ、また転位の配列により小傾角粒界やセル構造などの転位構造が発達する。転位密度や転位構造の変化により、X線回折では、Miller指数に応じて回折ピークに特徴的な広がりや形状などのプロファイルの変化が現れる。1950年代には、X線回折ピークのラインプロファイル解析により、転位密度や積層欠陥に関する情報を定量化するWilliamson-Hall法⁹⁾やWarren-Averbach法¹⁰⁾が提案された。さらに1980～1990年代に、Ungár and Borbelyが弾性異方性を考慮したラインプロファイル解析を提案し¹¹⁾、転位密度とラインプロファイルの関係が対応づけられた。Ungárらの理論に基づいたmodified Williamson-Hall法とmodified Warren-Averbach法を併用することにより、転位密度や転位によるひずみ場の大きさ、刃状転位とらせん転位の割合などを定量的に評価できるようになった¹²⁾。

そこで本研究では強圧下冷間圧延された純鉄、Fe-0.3 mass%SiおよびFe-0.3 mass%Al合金の回復、再結晶に伴う

転位組織の変化を、X線ラインプロファイル解析とTEM観察から詳細に調査し、合金元素の影響を明らかにすることを目的とした。

2. 実験方法

真空溶解炉を用いて純鉄、Fe-0.3 mass%Si合金およびFe-0.3 mass%Al合金のインゴットを作製した。それらの化学成分をTable 1に示した。作製したインゴットを圧延できる形状に整えるためにArガス雰囲気中で1473 Kに2時間保持した後、鍛造によって高さ250 mm、幅250 mm、長さ300 mmの形状に成形した。この鍛造材を再びArガス雰囲気中において1473 Kで2時間保持した後、板厚250 mmから50 mmまで15パスで熱間圧延を行った。ここで仕上げ温度は、純鉄は1290 K、Fe-0.3 mass%Si合金は1277 K、Fe-0.3 mass%Al合金は1294 Kといずれもオーステナイト域であり、常温まで空冷した。熱延板の平均結晶粒径は、純鉄は200～500 μm 、Fe-0.3 mass%Si合金およびFe-0.3 mass%Al合金ともに約500～1000 μm であった。この熱間圧延板から冷間圧延用の板厚50 mmの試験片を切り出し、この切り出し材を板厚0.1 mmまで冷延することによって、圧下率99.8%の冷間圧延板を作製した。

得られた冷間圧延板を真空雰囲気中 ($\sim 10^{-2}$ Pa) において昇温速度10 K/minで373 Kから1073 Kの様々な温度に加熱後、保持せず直ちに炉内でArガスを試料に吹き付けて急冷した。冷間圧延板試料および熱処理後の試料の転位組織観察には、試料のTD (Transverse Direction) 方向に垂直な断面から、200 kV・電解放射型透過電子顕微鏡 (HF-2000: 日立製作所製) を用いた。板厚断面の観察試料は以下のように作製した。まず、圧延方向に対して平行に厚さ約70 μm の薄片試料を切り出した。試料の切り出しには、加工中の試料温度の上昇を抑制するために試料台を液体窒素で冷却したイオンミリング装置を用いた。この薄片試料をツイングジェット法によって電解研磨し、TEM観察用試料を作製した。

冷間圧延板および熱処理後の試料について、X線回折のラインプロファイル解析を実施した。Rigaku製X線回折装置ULTIMA-IIIを用いて、出力40 kV、40 mAとし、Cuターゲットを用いた。さらに、集中法光学系で高速一次検出器Dtex/ULTRAにより、蛍光X線低減モードで回折プロファイルを観測した。このとき、発散スリット2/3、散乱スリットと受光スリットは開放とした。冷間圧延圧下率99.8%の

Table 1. Chemical compositions of materials used [mass%].

	C	Si	Mn	P	S	Al	O	N
Pure iron	<0.001	0.007	<0.002	<0.002	<0.0003	<0.002	0.0215	0.0006
Fe-0.3%Si	<0.001	0.297	<0.002	<0.002	<0.0003	<0.002	0.0052	0.0005
Fe-0.3%Al	<0.001	0.007	<0.002	<0.002	<0.0003	0.291	0.0025	0.0005

試料は結晶方位の配向性が著しく、低角側の (110) の回折ピークが微弱なため、 α -Fe の 200, 211, 310, 222 の 4 本の回折プロファイルで主に解析した。

ここでは、本研究で用いた Ungár らの理論による X 線ラインプロファイル解析手法を簡潔に次に示す¹²⁻¹⁵⁾。

Modified Williamson-Hall の式はひずみの項 ΔK^D として式 (1) で示される。

$$\Delta K = \frac{0.9}{D} + \left(\frac{\pi M^2 b^2}{2} \right)^{\frac{1}{2}} \cdot \rho^{\frac{1}{2}} K \bar{C}^{\frac{1}{2}} + O(K^2 \bar{C}) \quad (1)$$

ここで M は転位のひずみ場の大きさを変数とした定数、 O は $K^2 \bar{C}$ に対する高次関数、 b は Burger's vector, ρ は転位密度、 $\bar{C}$ は平均コントラスト因子である。また、modified Warren-Averbach の式は、 R_e を転位の有効半径として式 (2) で示される。

$$\ln A(L) = \ln A^S(L) - \rho \cdot \frac{\pi b^2}{2} \cdot L^2 \cdot \ln \left(\frac{R_e}{L} \right) \cdot (K^2 \bar{C}) + Q(K^4 \bar{C}^2) \quad (2)$$

ここで式 (1) と (2) に組み込まれた平均コントラスト因子 $\bar{C}_i$ は各面指数毎に、次式 (3) で与えられる。

$$\bar{C}_i = \bar{C}_{h00} (1 - q H_i^2) \quad (3)$$

q は転位の性質に関するパラメータ、 H は次式 (4) に示す面指数 (h, k, l) に関するパラメータである。

$$H_i^2 = (h_i^2 k_i^2 + h_i^2 l_i^2 + k_i^2 l_i^2) / (h_i^2 + k_i^2 + l_i^2) \quad (4)$$

(h00) の平均コントラスト因子 $\bar{C}_{h00}$ は、弾性コンプライアンスに基づいて決定される。 $\bar{C}_{h00}$ は、純鉄の場合は、0.285 になることが知られている^{12,14,15)}。また、 q 値は純鉄の場合では、全てが刃状転位の場合に 1.2、らせん転位の場合に 2.8 であることが知られている¹⁴⁾。刃状転位およびらせん転位成分の密度は、その割合に全転位密度を乗して算出した。

なお、Yonemura and Inoue は、Ni-20 mass%Cr 合金の冷間圧延板の転位密度、転位性格や転位構造の解析に本手法を適用しており、硬さ、陽電子消滅寿命法と TEM 観察を併用して総合的に検証し、本手法の有用性を確認している¹⁶⁾。

3. 実験結果

3・1 X線プロファイル解析による冷間圧延まおよび焼鈍中の転位密度変化

圧下率 99.8% まで冷間圧延された純鉄, Fe-0.3 mass%Al 合金および Fe-0.3 mass%Si 合金の冷間圧延まの転位密度および再結晶に伴う転位密度の変化を X 線ラインプロファイル解析により求めた。その結果を Fig.1 に示す。

図から明らかなように、本研究で用いた 3 種の材料では冷間圧延まの転位密度に大きな差はなかった。しかし

ながら、Fig.2 に示すビッカース硬さは、Fe-0.3 mass%Si 合金が最も高く、次いで Fe-0.3 mass%Al 合金、純鉄の順であり、Si や Al の固溶強化が転位強化に加算されていると考えられる。また、室温から 373 K にかけて、純鉄や Fe-0.3 mass%Al 合金では転位密度が増加しているが、熱処理により転位密度が増加することは考えにくく、測定誤差だと考えられる。

焼鈍に伴う転位密度と硬さの変化には、次のような特徴が認められる。純鉄は Fig.1 に示すように 573 K まで大きく転位密度が低下し、573~673 K で低下が一旦緩やかになった。その後、再結晶開始温度 (R_s) を超えると、再び転位密度は大きく低下し、 $3 \times 10^{13}/\text{m}^2$ で概ね一定となった。ここで R_s は SEM-EBSD により決定した温度である。この挙動は Fig.2 に示したビッカース硬さの変化と非常に良く一致する。すなわち硬さは 473 K 超から低下し始め、573~673 K で一旦低下が緩やかになった後、急激に低下した。

Fe-0.3 mass%Al 合金も 573 K まで大きく転位密度が低下

Fig. 1. Change in dislocation density as a function of annealing temperature for cold-rolled pure iron, Fe-0.3 mass%Si alloy and Fe-0.3 mass%Al alloy with 99.8% reduction.

Fig. 2. Change in Vickers hardness as a function of annealing temperature for cold-rolled pure iron, Fe-0.3 mass%Si alloy and Fe-0.3 mass%Al alloy with 99.8% reduction⁴⁾.

し、573～773 Kで低下が緩やかになった。転位密度の低下が緩やかになった温度域は、純鉄は573～673 Kであり、純鉄の場合よりもFe-0.3 mass%Al合金の方が高温側に広がった。転位密度は R_s を超えると再び大きく低下し、純鉄と同様に $3 \times 10^{13}/\text{m}^2$ で概ね一定となった。Fig.2に示した硬さ変化も573 Kあたりまで硬さが低下し、その後573～673 Kで硬さの低下が緩やかになり、続いて著しく低下しており、硬さと転位密度の変化は両者で良く一致する。

Fe-0.3 mass%Si合金の場合には473 Kまで大きく転位密度は低下し、473～823 Kで低下が緩やかとなった。転位密度の低下が緩やかになった温度域はFe-0.3 mass%Si合金が最も広がった。一方、Fig.2に示した硬さ変化は673 K程度までほぼ一定であり、その後緩やかに低下し、再結晶が開始する773 K付近で急激に低下し、XPLAから求めた転位密度の変化挙動とは異なる傾向であった。

転位の配置間の相互作用を表すパラメータ M 値は、回復に伴って200℃で大きく低下し、各試料の二段目の回復により転位が配列する場合の目安となる $M < 1$ となった。すなわち、熱処理による転位の回復に従って転位が配列する傾向を示した。また、結晶子サイズ D は、熱処理温度の増大に伴って、大きくなる傾向が見られたが、試料間で有意な差は見られなかった。

3・2 回復、再結晶にともなう純鉄の転位密度と転位組織の変化挙動

X線回折のラインプロファイル解析によって観測される回復、再結晶にともなう平均的な転位密度の変化については3・1で述べた。ここでは、転位の性格(刃状転位成分とらせん転位成分)を考慮した各成分の変化、およびTEMを用いて観察した転位組織の変化について検討する。

純鉄の転位密度は、Fig.3に示すように、冷間圧延ままではらせん成分が刃状成分より数倍以上高い。また、473～623 Kの低温での焼鈍により、刃状転位もらせん転位もそ

の密度は大きく低下した。623～673 Kではらせん成分の転位密度の低下は緩やかになり、刃状成分の転位密度はらせん成分より一桁低いが、一旦増加した。熱処理により転位が増加することは考えにくい、測定結果には再現性が見られた。 R_s を超えると再びらせん転位も刃状転位もその密度は低下し、刃状成分の転位密度は再結晶終了温度(R_f)に達する前に測定限界レベルまで低下した。一方、らせん転位は $3 \times 10^{13}/\text{m}^2$ 程度で一定となった。ここで R_f は、 R_s と同様にSEM-EBSD観察の結果から決定した温度である。

冷間圧延まま、回復および再結晶初期の転位組織をTEMによりTD方向から観察した結果をFig.4に示す。ここで、電子線回折を用いて局所領域の結晶方位を決定した。その際、 $\pm 15^\circ$ 以内の低指数を用いて結晶方位を表現した。冷間圧延まま材(a)は非常に細かいラメラ状組織からなり、ラメラ内部には転位が観察された。623 Kまで加熱し回復させると(b)に示すように、ラメラ状組織の幅が大きくなり、サブグレインの形成が観察された。また、サブグレインは周囲のラメラ状組織と同じ方位を有する。723 Kまで加熱した再結晶初期段階の試料では、その転位組織は(c)に示すように、(b)よりもさらにラメラ状組織の幅が大きくサブグレインの成長が観察された。また、図(c)中のスポットbやcのように1 μm を超す再結晶の核と思われる結晶粒も観察された。その観察視野での方位は $\{111\} \langle 112 \rangle$ であり、周囲とは異なる方位であった。

3・3 回復、再結晶にともなうFe-0.3 mass%Al合金の転位密度と転位組織の変化挙動

Fe-0.3 mass%Al合金における焼鈍時の転位密度の変化挙動をFig.5に示す。まず、冷間圧延まま材では、刃状転位密度に対するらせん転位密度の割合は概ね同程度から2倍程度であり、純鉄の場合より刃状転位の割合が大きいのが特徴である。また、刃状転位は373 Kになると密度が低下し始め、らせん転位はそれより高温の473 K程度から低下を開始した。低下した後の転位密度はらせん転位の方が一桁大きかった。その後、らせん転位密度は R_s まで一定であったが、再結晶の進行にともなって著しく低下した。一方、刃状転位は573～673 Kまで概ね一定であったが、 R_s に達する直前に増加した後、大きく低下し、 R_f の直前に転位密度が再び増加する挙動を示した。熱処理により転位が増加することは考えにくい、純鉄と同様に測定結果には再現性が見られた。再結晶完了後にはいずれの成分も $10^{13}/\text{m}^2$ 程度で一定となった。

Fig.6には転位組織をTEMで観察した結果を示した。(a)に示すように、冷間圧延まま材は非常に細かいラメラ状の転位組織からなり、純鉄の結果(Fig.4(a))と比較するとセル内には転位が多く残存していた。623 Kまで加熱して回復させると、(b)に示すようにラメラ状組織の幅が大きくなり、等軸的なサブグレイン(スポットa～c)が形成された。サブグレインは周囲のラメラ状組織と同じ $\{100\} \langle 011 \rangle$

Fig. 3. Change in dislocation densities of edge and screw components as a function of annealing temperature for cold-rolled pure iron with 99.8% reduction.

方位であった。723 Kまで加熱した再結晶初期の転位組織は、(c) に示したように (b) よりもさらにラメラ状組織の幅が大きくなり、サブグレイン化が進行した。また、図 (c) 中のスポット h~s のように厚さが $1\ \mu\text{m}$ を超す伸長した再結晶粒と思われる領域も確認され、その方位は周囲と同じ $\{111\}\langle 011\rangle$ であった。

3・4 回復, 再結晶にともなう Fe-0.3 mass%Si 合金の転位密度と転位組織の変化挙動

Fe-0.3 mass%Si 合金における焼鈍時の転位密度の変化を Fig.7 に示す。冷間圧延まゝの状態では、らせん転位の方が刃状転位より若干転位密度が大きかった。Fig.3 に示した純鉄と比較すると、刃状成分の割合が大きい。また、Fig.5 に示した Fe-0.3 mass%Al 合金の場合と比較するとデータのばらつきはあるが、若干刃状成分の割合が大きい傾向にある。473 K 程度の低温から刃状転位もらせん転位もその密度が低下したが、らせん成分の低下が一桁程度であったのに対し、刃状成分の低下は二桁程度と著しく大きかった。しかし、その後の 473~673 K では刃状成分もらせん成分も低下せず、概ね一定となった。引き続き再結晶の進行にともない、 R_f 直前にらせん成分が大きく低下し、刃状転位もらせん転位も $10^{13}/\text{m}^2$ 程度の転位密度で一定となった。

Fig.8 には TEM で観察した転位組織の結果を示した。(a) に示すように、冷間圧延まゝ材は非常に細かいラメラ状組織であり、純鉄の結果 (Fig.4 (a)) と比較すると、ラメラ状組織の内部には多くの転位が残存していた。623 K まで加熱して回復させても、(b) に示すようにラメラ状組織の幅

は冷間圧延まゝ材とほとんど変化しなかったが、ラメラ状組織の内部の転位は整理され、サブグレインの形成の準備が進行しているのが確認される。723 K まで加熱すると、(c) に示したようにラメラ状組織の幅が大きくなっていたが、その程度は純鉄や Fe-0.3 mass%Al 合金と比較するとわずかであった。また図 (c) 中のスポット f~m は伸長した同じ方位からなるサブグレインであるが、その左上の領域 (Fig.8 (c) 中の点線部) には周囲とは明瞭な界面を有して核生成した再結晶粒と見られる結晶粒が観察された。

Fig. 5. Change in dislocation densities of edge and screw components as a function of annealing temperature for cold-rolled Fe-0.3 mass%Al alloy with 99.8% reduction.

Fig. 4. TEM micrographs observed from TD of pure iron after (a) 99.8% cold-rolling, (b) annealing at 350 °C and (c) annealing at 450 °C.

4. 考察

4・1 冷間圧延ままの転位組織

Fig.3に示すように、純鉄の冷間圧延まま材の転位密度は刃状成分よりもらせん成分のほうが数倍大きかった。一方、Fe-0.3 mass%Al合金やFe-0.3 mass%Si合金ではFig.5, 7に示すように、刃状転位とらせん転位の密度は同程度であった。また、TEMによる転位組織の観察結果 (Fig.4, 6, 8) から、冷間圧延ままでは材料に依らず、圧延方向に伸長したラメラ状の転位組織であった。しかしながら、純鉄の場合にはラメラ状組織の内部における転位は整理されているのに対し、AlやSiを添加した材料ではラメラ状組織の内部に転位が存在している様子が確認された。SiはFeに固溶するとFeの積層欠陥エネルギーを低下させ、転位の交差すべりが抑制されることが報告されている^{5,6)}。また、AlもSiと同様の影響を持つ傾向が報告されているが、その程度はSiよりも小さいと推察されている^{7,8)}。従って、Fe-0.3 mass%Al合金やFe-0.3 mass%Si合金においても、AlやSiの添加により圧延中の交差すべりが抑制されたと考えられる。その結果、冷間圧延により導入される転位は刃状成分の割合が増加し、またラメラ状組織の内部においてももらせん転位の交差すべりによる転位の整理が困難となった結果、転位が残存したと考えられる。

4・2 回復にともなう転位挙動

前報4)で述べたように、冷間圧延された材料を加熱するとまず転位の消滅や再配列が生じる。同一すべり面上に

ある転位はすべり運動により合体消滅できるが、異なるすべり面上にある場合には、らせん転位の交差すべりや刃状転位の上昇運動により合体消滅が生じる¹⁷⁾。従って、Fig.1に示した純鉄やFe-0.3 mass%Al合金の転位密度が室温から373 Kにかけて増加しているように見えるが、試料間の不均一さによる誤差だと考えられる。

純鉄においては、Fig.3に示すように低温の473 Kにおいて転位密度は刃状転位もらせん転位も大きく低下した。冷間圧延まま材で見られた圧延方向に伸長したラメラ状の転位組織は、623 Kに加熱すると幅が大きくなり、サブグレイン

Fig. 7. Change in dislocation densities of edge and screw components as a function of annealing temperature for cold-rolled Fe-0.3 mass%Si alloy with 99.8% reduction.

Fig. 6. TEM micrographs observed from TD of Fe-0.3 mass%Al alloy after (a) 99.8% cold-rolling, (b) annealing at 350 °C and (c) annealing at 450 °C.

ンが形成され、回復がかなり進行している様子が見られた (Fig.4 (b))。一方、573 Kから R_s 直前で回復が進行しても、らせん転位の低下は緩やかであった。また、らせん転位より一桁以上低い密度の刃状成分は増加した。これは回復に伴う転位ループの縮小変形によりらせん転位成分が減少し、相対的に刃状転位成分の割合が高くなったためと推察した。これについては、今後のさらなる詳細な検討が必要であると考えられる。

Fe-0.3 mass%Al 合金やFe-0.3 mass%Si 合金はFig.5, 7に示すように、473~573 Kの回復の初期に刃状転位が大きく低下し、らせん転位の低下は緩やかであった。この傾向は、Si添加鋼で著しい。刃状転位は空孔を利用して473~573 Kのような低温でも上昇運動できるため、刃状転位密度がらせん転位密度より早く低下したと推察できる。また、らせん転位の運動には交差すべりが必要であり、SiやAlは鉄に固溶すると、交差すべりを抑制させるとの報告⁶⁻⁸⁾があることから、Fe-0.3 mass%Si 合金やFe-0.3 mass%Al 合金でも、SiやAlにより交差すべりが抑制された結果、らせん転位密度の低下は R_s 直前まで起こらなかったものと考えられる。この傾向は特にSi添加鋼の方が顕著であった。Fig.8 (b)に示すようにFe-0.3 mass%Si 合金においては、623 K程度の加熱によってもラメラ状の転位組織の幅は冷間圧延まゝの状態とほぼ同程度であり、回復はほとんど進んでいない。Fig.1と2に示したFe-0.3 mass%Si 合金の転位密度とビッカース硬さで評価した回復挙動が一致しなかったのは、回復過程において転位組織が微細なままであり、ビッカ-

ス硬さが低下しなかったためと考えられる。純鉄やFe-0.3 mass%Al 合金は、623 Kの加熱によってラメラ状組織の幅は2倍以上に太くなり、サブグレイン化が進行していることから、Siによりらせん転位の運動が抑制され、回復が遅れたと考えられる。さらに温度を高めても、Fe-0.3 mass%Si 合金では刃状転位もらせん転位も低下しないことから、Siはらせん転位だけでなく刃状転位の消滅にも影響を及ぼしていると考えられる。一方、AlはFig.6 (b)に示すように、623 K加熱により回復が進んでおり、Alの交差すべりの抑制効果はSiよりも小さいことが示唆される。また、Fe-0.3 mass%Al 合金は回復が進行すると、純鉄と同様に刃状転位密度が増加していることから、回復の後期段階で転位ループの縮小変形が起きていると推察されるが、詳細については、純鉄と同様に今後の検討が必要である。

4・3 再結晶に伴う転位挙動

Fig.3に示すように、純鉄においては再結晶初期の R_s を超えると刃状転位密度が大きく低下し、測定限界レベルまで低下し続けた。一方、らせん転位密度は再結晶初期に大きく低下した後は緩やかに低下し、 $10^{13}/\text{m}^2$ 程度で飽和した。またFig.4 (c)に示すように、723 Kにおいて、ラメラ状転位組織の幅が太くなり転位密度が低下したと考えられる領域から、再結晶粒と見られる $2\text{ }\mu\text{m}$ 以上の粗大なサブグレインが見られた。前節4・2の回復にともなう転位挙動の結果と併せて考えると、純鉄では十分に回復が進んだ低転位密度領域から再結晶粒が連続的に形成されている傾向があり、その場再結晶的な再結晶挙動を呈すると考えられる。

Fig. 8. TEM micrographs observed from TD of Fe-0.3 mass%Si alloy after (a) 99.8% cold-rolling, (b) annealing at 350 °C and (c) annealing at 450 °C.

Fe-0.3 mass%Al 合金は Fig.5 に示すように、純鉄と同様に再結晶初期から刃状転位が大きく低下した。らせん転位は再結晶後期に大きく低下した。一方、再結晶初期には Fig.6 (c) に示すように、太いラメラ状組織の中に多数のサブグレインが形成されており、純鉄と同様に回復の進行にともない再結晶粒が連続的に形成される、その場再結晶的な再結晶挙動を呈すると考えられる。

これに対して Fe-0.3 mass%Si 合金は Fig.7 に示すように R_p を超えても、刃状転位密度およびらせん転位密度ともに低下せず、 R_p 直前にらせん転位が大きく低下し再結晶が進行した。Fig.8 (c) に示すように、Fe-0.3 mass%Si 合金では冷間圧延まま材とほぼ同じ幅のラメラ状転位組織の中に、未再結晶領域と明瞭な界面を有する局所的に極めて低転位密度な再結晶粒が形成し、いわゆる核生成と成長 (Nucleation and Growth) 型の再結晶挙動を示すと考えられる。これは Si の存在により、刃状転位やらせん転位のすべり運動やらせん転位の交差すべり運動が抑制されるために回復が均一に進まず、高転位密度な状態、すなわち再結晶の駆動力の高い状態が維持された結果、局所的に再結晶の核形成が生じ、それに続いて成長が進行する、いわゆる核生成と成長型の不連続再結晶が生じたと推察した。

5. 結言

圧下率 99.8% の強冷間圧延された純鉄、Fe-0.3 mass%Si 合金および Fe-0.3 mass%Al 合金の回復、再結晶にともなう転位組織の変化を、X 線ラインプロファイル解析と TEM 観察により調査した結果、以下のことが明らかとなった。

- (1) 冷間圧延まま材においては、Fe-0.3 mass%Al 合金や Fe-0.3 mass%Si 合金は純鉄と比較して、刃状転位の割合が高くなった。これは Al や Si の添加により圧延中の交差すべりが抑制され、刃状転位の方が容易に運動できたためと考えられる。
- (2) 回復の初期段階において、純鉄では刃状転位密度もらせん転位密度も大きく低下した。一方、Al や Si を添加した材料では、らせん転位密度の低下は純鉄よりも小さかった。これは Al や Si を添加した合金では交差すべりが抑制され、らせん転位の運動が阻害されたためと考えられる。
- (3) 回復の後期段階で、Si 添加鋼は刃状転位もらせん転位も密度が低下せず、転位組織は冷間圧延まま材とほぼ同じであった。これは Si により転位のすべり運動が抑

制され、回復が抑制されたためだと考えられる。一方、純鉄では、回復の後期にサブグレイン化が著しく進行し、また刃状転位密度が増加した。これは回復にともなう転位ループの縮小変形によるものと考えられるが、今後詳細な検討が必要である。

- (4) 再結晶の初期段階において、純鉄ではラメラ状の転位組織の中に周囲と同じ方位を有するサブグレインが形成され、その場再結晶的な再結晶挙動を示した。Al 添加鋼も純鉄と類似した挙動を示した。
- (5) Si 添加鋼ではラメラ状の転位組織の中に、局所的に周囲の未再結晶粒と明確な界面を有する再結晶粒が核生成し、それが成長する挙動を示した。Si により回復が抑制され、再結晶の駆動力が維持されたため、一気に不連続再結晶が生じたと考えられる。

謝辞

東京工業大学名誉教授加藤雅治博士 (現、新日鐵住金 (株) 顧問) には、本論文をまとめるにあたり、大変貴重なご意見を頂きました。心より感謝申し上げます。

文 献

- 1) K.Verbeek, L.A.I.Kestens and J.Jonas: *Scr. Mater.*, **48**(2003), 1457.
- 2) P.Gobernado, R.Petrov, D.Ruiz, E.Leunis and L.A.I.Kestens: *Adv. Eng. Mater.*, **12**(2010), 1077.
- 3) M.Tomita, T.Inaguma, H.Sakamoto and K.Ushioda: *Tetsu-to-Hagane*, **101**(2015), 204.
- 4) M.Tomita, T.Inaguma, H.Sakamoto and K.Ushioda: *Tetsu-to-Hagane*, **101**(2015), 611.
- 5) D.Griffiths and J.N.Riley: *Acta Metall.*, **14**(1966), 755.
- 6) K.Ushioda, S.Goto, Y.Komatsu, A.Hoshino and S.Takebayashi: *ISIJ Int.*, **49**(2009), 312.
- 7) S.Takeuchi, H.Yoshida and T.Taoka: *Trans. Jpn. Inst. Met.*, **9**(1968), Suppl., 715.
- 8) H.Shuto and T.Yokoi: *CAMP-ISIJ*, **26**(2013), 411, CD-ROM.
- 9) G.K.Williamson and W.H.Hall: *Acta Metall.*, **1**(1953), 22.
- 10) B.E.Warren and B.L.Averbach: *J. Appl. Phys.*, **21**(1950), 595.
- 11) T.Ungár and A.Borbély: *Appl. Phys. Lett.*, **69**(1996), 3173.
- 12) T.Ungár, I.Dragomir, A.Revez and A.Borbély: *J. Appl. Crystallogr.*, **32**(1999), 992.
- 13) M.Yonemura and T.Nishiura: *Nippon Steel & Sumitomo Metal Giho*, **404**(2016), 44.
- 14) F.Yin, T.Hanamura, O.Umezawa and K.Nagai: *Mater. Sci. Eng. A*, **354**(2003), 31.
- 15) T.Ungár and G.Tichy: *Phys. Status Solidi a*, **171**(1999), 425.
- 16) M.Yonemura and K.Inoue: *Metall. Mater. Trans. A*, (2016), doi:10.1007/s11661-016-3717-y.
- 17) 松原英一郎, 田中功, 大谷博司, 安田秀幸, 沼倉宏, 古原忠, 辻伸泰: 金属材料組織学, 朝倉書店, 東京, (2011), 160.