

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 4 月 28 日現在

機関番号：24506

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560890

研究課題名(和文) 単相 F C C 金属の再結晶過程の解明

研究課題名(英文) Investigation on recrystallization mechanism in single phase fcc metals

研究代表者

山本 厚之 (Yamamoto, Atsushi)

兵庫県立大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：70220449

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,200,000 円

研究成果の概要(和文)：アルミニウム合金および銅において、変形組織中の転位セルがそのまま成長して再結晶粒になることをSEM-EBSD同一視野観察法で明らかにした。一方、圧延変形に伴う結晶回転の同一視野観察を行った結果、圧下率が80%程度になると、一つの結晶粒中で方位が二つに分裂することが示された。焼鈍初期において、それぞれの方位を持つ転位セルがそのまま成長して再結晶粒になる結果、低角粒界の多い組織が形成される。この段階ですでに再結晶組織となっているにもかかわらず、圧延後の集合組織とほぼ同じ集合組織となるため、これまで気付かれなかった可能性がある。再結晶組織の形成は焼鈍の極く初期に終了している。

研究成果の概要(英文)：Same area observations by means of SEM-EBSD showed that dislocation cells in deformed matrix directly grew into recrystallized grains with annealing in aluminum alloys and pure copper. It was also observed that with increasing in reduction rate lattice rotation occurred resulting in split into two orientations in each grain when the accumulated reduction rate was larger than about 80%. Small recrystallized grains having one of the split orientations were formed at the early stage of annealing, which lead to form low angle boundaries between similarly oriented recrystallized grains. Low angle boundaries can not observed with optical microscopy. Similar pole figures would be obtained with X-ray diffraction measurements on the deformed specimen and the specimen in the early stage of annealing, because the recrystallized grains have the orientations of the dislocation cells. Change in pole figures occurs after growth of grains having minor orientations.

研究分野：材料組織学

キーワード：再結晶 圧延 回復 微細組織解析

1. 研究開始当初の背景

(1) 「再結晶」という現象は、おそらく金属材料の使用が始まった頃から知られていたと推察される。「焼なます」という言葉があるように、加工を施されて硬くなった金属材料は、加熱されると元の柔らかい状態に戻る。この現象の学術的な解釈は、光学顕微鏡観察で始まり、X線回折測定で解析され、熱力学的な理論化を経て完成されてしまった。それが1950年代である。その後の透過型電子顕微鏡(TEM)観察は、その完成された理論の確証に用いられてきた感がある。

(2) やや古い教科書を読むと、再結晶は、加工によって形成された多数の転位から成る変形組織中に、転位密度の低い「核」が形成され、それが「成長」して「再結晶粒」が形成されることで、進行する、と記述されている¹⁾。この核生成・成長の理論は、かなり古い時期に否定されており²⁾、日本の教科書でもその旨が述べられている³⁾。それら新しい考え方を示す教科書では、変形組織の中に再結晶粒の元となる領域がすでに存在していると述べている。しかし、その証拠となるべき組織変化を示す研究は、変形前の旧結晶粒界が移動して新たな再結晶粒を形成する、というものであった。これはかなり以前から、歪誘起粒界移動(SIBM)として知られていた⁴⁾。

(3) 最近、後方散乱電子回折(EBSD)検出器を備えた走査型電子顕微鏡(SEM)を組織観察に用いることが一般的となり、「方位の情報を含む組織観察」が容易となってきた。しかし、この方位の情報を、従来のX線回折測定の延長と考える研究者が多く、微視的な方位解析、微視的な集合組織解析、の観点で使用されてきた。

本研究者は、これを「組織の指紋」と捉え、焼鈍過程で形状を変えていく微細組織の識別に適用した。さらに、変形前後および焼鈍前後の試料中の同一視野を、SEM-EBSD法で観察するテクニックを完成させた。その結果、Al-Mg-Si系合金において、再結晶粒は転位セルがそのまま成長したものであることを組織変化として示し得た⁵⁾。また、上記SIBMでは、形成された再結晶粒は、母結晶粒に繋がっている。これがいつ離れるかを示した⁶⁾。離れるのではなく、母結晶粒が別の再結晶粒によって浸食され、消滅して再結晶粒として完成されるのである。

最初に述べた従来の再結晶過程の解釈に欠けているのが、このような方位の情報を含む微細組織変化の観察である。

2. 研究の目的

上に述べたように、推測されるだけであった変形組織(転位セル)からの再結晶粒の形成を、本研究者はこれまでに明らかにしてきた。ただし、試料はAl-Mg-Si系合金であり、析出と再結晶が同時に進行するため、これらを区別して考察する必要がある。

本研究の目的は下記2点である。

- (1) 工業用純アルミニウム、無酸素銅、および非熱処理型で析出の考慮が不要なAl-Mn系合金について、再結晶粒形成過程を明らかにする。
- (2) 再結晶粒の方位は、変形組織中の転位セ

ルの方位であることが示されたので、圧延変形に伴う結晶回転が再結晶集合組織形成の重要なポイントとなる。圧延前後の同一試料中の同一視野に注目して、これを明らかにする。

3. 研究の方法

(1) 再結晶機構

試料として、Al-0.7Mg-0.4Si-0.3Cr (mass%)合金、1050合金、3004合金、無酸素銅を用いた。Al-Mg-Si合金については、540℃で1h、1050合金および無酸素銅は550℃で1h、3004合金は600℃で20hの溶体化処理を施して出発材料とした。表面を電解研磨したのち、マイクロピッカー硬度計で、同一視野観察のための圧痕を付した。その後、室温で、30~95%の圧下率での圧延を行った。観察視野を中心にして小試片を切り出し、Arイオンポリッシングを3h施した。焼鈍温度は、Al合金については350~400℃、無酸素銅は、250℃とした。圧延前から間歇的な焼鈍過程について、同一視野をSEM-EBSD法で観察した。間歇的焼鈍後の試料表面は、Arイオンポリッシングで3~6minの研磨を行った。

(2) 圧延変形に伴う結晶回転

厚さ3mmの1050アルミニウムを試料とした。焼鈍条件は530℃で1hとした。1パスの圧下率を約30%として室温で、同一方向に圧延を繰返し行い、5パスで総圧下率84%まで圧延した。圧延を続けるために、イオンポリッシングが可能なサイズに切断することはできず、各パスごとに試料表面に電解研磨を施してSEM-EBSD観察を行った。電解研磨の時間は、10~15sとした。この電解研磨で除去される厚さは、1パスあたり約3μmであった。

結晶回転の軸は、圧延後の試料の圧延方向(RD)、圧延面内で圧延方向に垂直方向(TD)および圧延面の法線(ND)に対してそれぞれ傾斜している。この軸の周りの回転を評価するためには、「傾斜ウルフネット」を使用する必要がある。5°から85°まで傾斜させたウルフネットを作成した。

4. 研究成果

(1) 再結晶機構の解明

30%圧延の後、400℃で焼鈍した際の微細組織変化を図1に示す⁷⁾。これらは、図中に示した標準ステレオ三角形に示される色で方位を表した逆極点図(Inverse Pole Figure: IPF)マップである。図中の白線は、方位差が15°未満の低角粒界であり、黒線は15°以上の高角粒界である。

(a)は圧延直後の組織であり、白矢印で示すように高角粒界が形成されている。この高角粒界は、60s(b)、600s(c)、1.8ks(d)の焼鈍に伴い、それぞれ白矢印で示す位置まで移動した。移動する高角粒界によって掃かれた領域内には、色のグラデーションが見られず、後述のように、転位密度の低い領域となっている。

移動する粒界に掃かれなかった逆側の微細組織は、ほとんど変化せず、取り残された状態であるが、やがて(e)に示すように、別の再結晶粒B、

Cに浸食されて消滅し、掃かれた領域を閉じることによって再結晶粒Aが完成する。

再結晶粒Aの方位を(f)中の青丸で示し、(a)~(d)中のこれに対応する組織の方位を(f)中の青丸で示す。方位はほとんど変化していない。

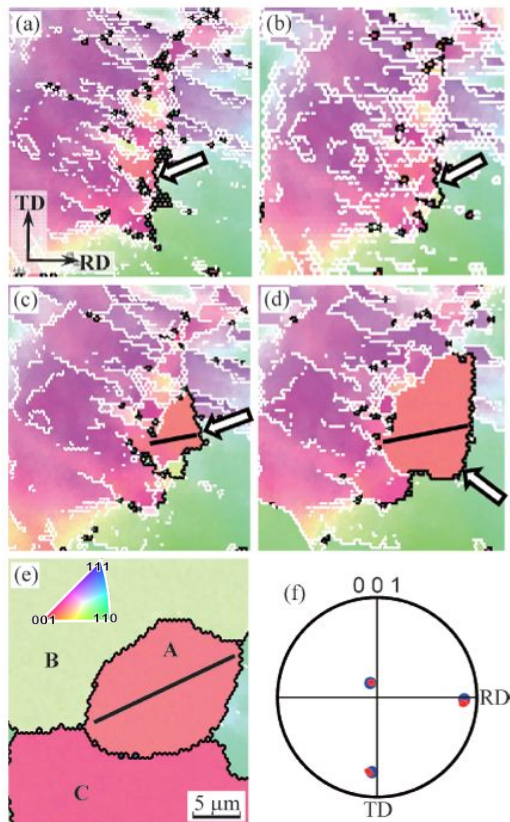


図1 30%圧延を施したAl-Mg-Si合金の400℃焼鈍に伴う組織変化。(a)圧延まま、(b)60s、(c)600s、(d)1.8ks、(e)3.6ks。(f)再結晶粒Aの方位(赤丸)および(a)、(b)、(c)中のこれに対応する位置の方位(青丸)。

図1(c)、(d)、(e)中に示した黒線に沿った方位差を図2(a)、(b)、(c)にそれぞれ示す⁷⁾。傾斜の始点はそれぞれの黒線の左端である。(a)、(b)中に示した白矢印から右方向に高角粒界が移動して方位差が1°以下の領域が形成され、始点近傍に残された方位差のある領域は、やがて(c)に示すように、別の再結晶粒に浸食されて消滅し、方位差が1°以下の領域からなる再結晶粒Aが形成された。

圧下率が50%と高い場合には、圧延変形によって高角粒界に囲まれた転位セルが形成される

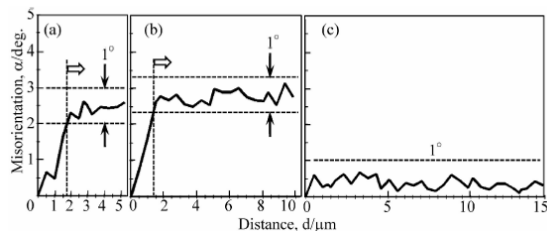


図2 (a)、(b)、(c)は、それぞれ図1(c)、(d)、(e)中に示した黒線に沿った方位傾斜。

ことがあり、その場合にも、高角粒界の一部が移

動して方位差が1°以下の領域を形成するとともに、移動から取り残された方位差が大きい領域は、他の再結晶粒によって浸食され消滅し、再結晶粒が完成された⁷⁾。

転位セルからの再結晶粒形成は、すでに本研究者が明らかにした通りであり、ここにおいて新たに示し得たのは、再結晶粒は、元となる転位セルの位置に留まらず、隣接領域内に移住して再結晶粒となることである。『粒界移動と粒移住』とも呼ぶべき過程をたどる。

上記は、Al-Mg-Si合金についての結果である。図3に、1050アルミニウムについての結果⁸⁾を示す。圧延後の組織(a)中に白矢印で示す転位セルがそのまま再結晶粒No.1に成長しておりその間の方位の変化は、(d)に示すようにほとんど無い。Al-Mg-Si合金(図1)と同様な結果であり、析出の影響は考慮の必要はないと考えられる。

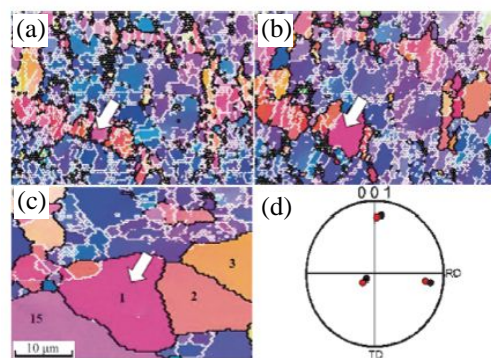


図3 50%圧延後、350℃焼鈍に伴う微細組織変化。(a)圧延後、(b)60s焼鈍後、(c)300s焼鈍後。(d)白矢印で示した転位セルおよび再結晶粒の方位。

圧延前にすでに析出物粒子が形成されており、焼鈍過程では析出が生じない3004アルミニウム合金についての結果⁹⁾を図4に示す。粒子から離れた位置において、転位セルからの再結晶粒形成が観察されたことは上記同様である。従来から、粒子の周辺では、塑性変形の度合いが高いため、優先的に『核生成』が生じて再結晶粒が形成されるとしてきた。粒子誘起核生成(Particle Stimulated Nucleation: PSN)と呼ばれる機構である。

図4(a)は、30%圧延の後の微細組織であり、(c)は400℃で3s焼鈍後の組織である。(b)、(d)は、結晶の完全さの度合いを示すマップ(Image Quality: IQ)であり、それぞれ(a)、(c)に対応するマップである。IQマップにおいては、歪が多い領域は暗いコントラストで表示され、歪が少ない領域は、明るく表示される。(b)、(d)中の黒矢印は粒子を示している。その周囲では、(b)中の白矢印で示されるように、暗いコントラストとなっており、従来からの説の通りに、粒子の周りでは歪が高い状態となっている。焼鈍後、(c)中の赤矢印で示したように、成長したサブグレインが観察される。(d)中の赤矢印も同じ領域を示しており、コントラストが明るくなっている。

(a)中の白矢印で示した転位セルと、(c)中の赤矢印で示したサブグレインの方位を(e)に示す。ほとんど方位は変化していない。上記1-(3)で述

べたように、EBSD のメリットの一つは、画像に方位の情報が含まれていることである。さらに、本研究では、同一視野の観察を行っている。(a)中のセルが成長して(c)中のサブグレインとなったことは、この二つの手法なしでは断定できないことである。

粒子の周囲は歪が多く蓄積されているため、核生成が容易に生じるのではない。『歪が多いため、高角粒界で囲まれた転位セルが生じやすく、それが成長して再結晶粒が形成されやすい』状況下にあるだけである。

再結晶粒形成機構は、粒子の有無にかかわらず、同じであり、変形組織中に形成されている転位セルの成長である。

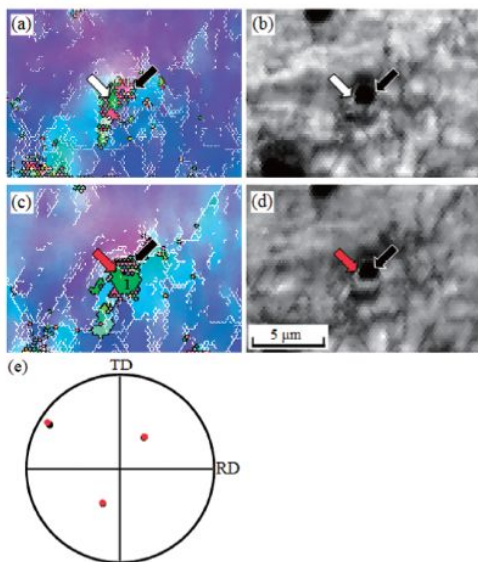


図4 30%圧延後の400℃焼鈍に伴う微細組織変化。(a)圧延後の組織のIPFマップ。(b)(a)の視野のIQマップ。(c),(d)3s焼鈍後のIPFおよびIQマップ。(e)(a)中の白矢印で示す転位セル,および(c)中の赤矢印で示すサブグレインの方位。

無酸素銅についての研究結果¹⁰⁾も、SIBMと転位セルからの再結晶粒形成については、アルミニウム合金の結果と同様であった。ただし、銅の積層欠陥エネルギーはアルミニウムよりも低いため、焼鈍双晶が形成される。図5に、75%圧延後、250℃での焼鈍に伴う組織変化を示す。

図5(a)は、25s焼鈍後の組織であり、白矢印で示す再結晶粒が形成されている(No.4)。(b)では、この再結晶粒に隣接して黒矢印で示すサブグレインが形成され(No.5)。(c)中の黒矢印で示すように成長する。その後、No.5に隣接してNo.4'が形成された。(e)は、No.4、4'、5の111極を示しており、No.4の111極が白抜き黒三角、No.4'が青三角、No.5が赤三角である。No.4とNo.4'は同じ方位である。(f)には、No.4と5について、111極と112極を示す。No.4とNo.5は双晶の関係にある。

アルミニウム合金の再結晶粒形成については、転位セルの成長であることを上に示した。この機構でNo.5が形成されるならば、たまたまNo.4と双晶関係にある転位セルが存在していたことに

なる。さらにその後、No.4と同じ方位のNo.4'が形成されるが、その際にも、たまたま同じ方位の転位セルがあったことにある。このような可能性は極めて低いと考えられる。焼鈍双晶の形成機構は、再結晶粒と変形母相の界面における『核生成』であろう。

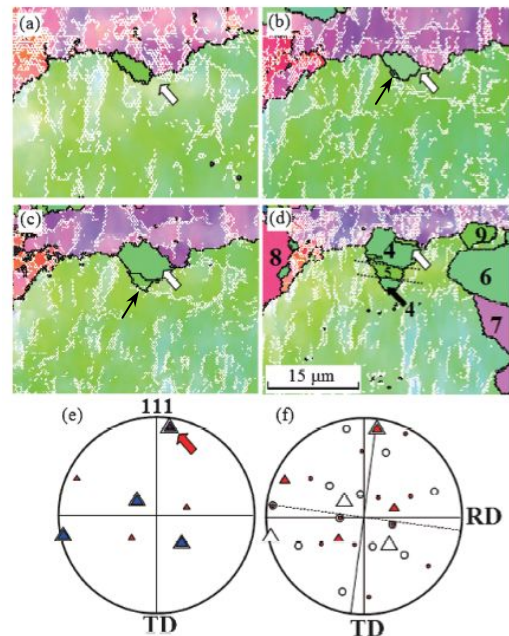


図5 75%圧延後、250℃での焼鈍に伴う組織変化。(a)25s,(b)30s,(c)50s,(d)60s。(e)No.4(黒),4'(青),5(赤)のサブグレインの111極点図。(f)No.4の111極(白三角),112極(白丸),No.5の111極(赤三角),112極(赤丸)。

以上をまとめれば、アルミニウム合金および銅において、再結晶粒形成機構は、「転位セルの成長」であるが、焼鈍双晶については、「核生成」の可能性が否めない、となる。

(2) 圧延変形における結晶回転

上に述べたように、再結晶粒の方位は、転位セルの方位であるから、再結晶組織の集合組織を制御するためには、その前段階の圧延変形組織の制御が必要になる。そのための基礎研究として、圧延変形中の同一視野観察を行った結果を以下まとめる。

図6に、圧延前から1パス約30%で5パス、総圧下率84%の圧延を行った際の同一視野の微細組織を示す¹¹⁾。概観で述べれば、圧延前(a)には数種類の面方位の結晶粒が観察されていたのに対して、84%圧延後(f)では、{001}面近傍の赤色、および{111}面近傍の青色に収斂している。

これらの中の一つの結晶粒について、圧延に伴う結晶方位の変化を図7に示す。(a)は圧延前の方位である。(b)は、33%圧延後の同じ結晶粒の方位である。圧延方向(図の左向き)に回転を生じている。(c)は49%圧延後である。(b)の状態から元の(a)の範囲に極が分布している。(d)では(a)に近い位置に集積し、その後(e)では(b)に近い位置に集積している。このような往復運動は、

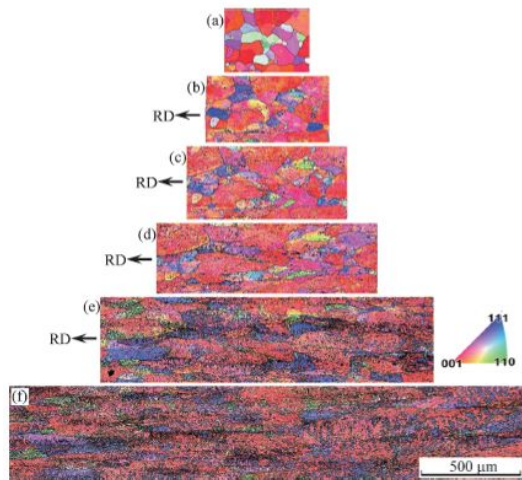


図 6 1050 アルミニウムの圧延による微細組織変化. (a)圧延前, (b) 33 %圧延後, (c) 49 %圧延後, (d) 64 %圧延後, (e) 74 %圧延後, (f) 84 %圧延後.

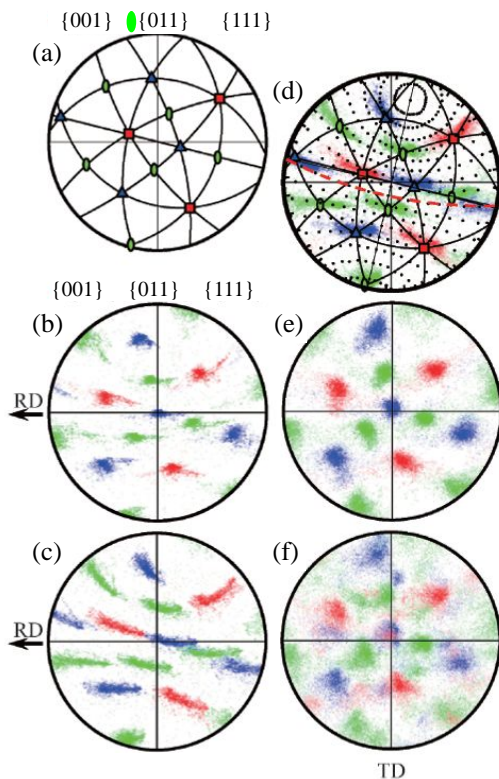


図 7 一つの結晶粒に注目した圧延変形に伴う結晶回転. (a)圧延前, (b) 33 %, (c) 49 %, (d)64 %, (e)74 %, (f) 84 %. (e)には, 圧延前の方位(a)を重ねて示している.

(d)中に重ねた傾斜ウルフネットの緯線上に乗っており、一つの軸の周りの結晶回転と理解される。その後、(f)に示すように、二つの方位に分裂した。分裂後の集積位置は、往復運動の両極に近い方位にある。

図 6 に示したように、84 % 圧延後は、赤い領域 ($\{001\}$ 面方位近傍) と、青い ($\{111\}$ 面方位近傍) が顕著になる。図 7 (f) の方位がこれに対応している。他の結晶粒においても、この傾向が強くなり、上城ら¹²⁾、Truszkowski ら¹³⁾が示した表面集

合組織に近づく。

(3) 圧延集合組織と再結晶集合組織

上記(1)中に述べた焼鈍双晶は別として、変形組織中の転位セルがそのまま再結晶粒になるのならば、圧延後の極点図と再結晶組織の極点図は同じものになるはずである。しかし、従来のいわゆる教科書的な解釈では、これらはそれぞれ別の極点図となることが一般的とされる。

そのような間違った解釈に至ったのは、最初に述べたように、再結晶の理論がかなり古い時代に完成してしまったことによる。図 8 に、1050 合金を 81 % 圧延したのち、500 で 6 s 焼鈍した試料について、結晶粒を 1 コずつ識別し、その領域を抽出して比較した IPF マップおよびそれら領域の 111 極点図を示す¹⁴⁾。

圧延後 ((a), (d), (g)) と焼鈍後 ((b), (e), (h)) の IPF マップを比較すると、かなり方位が変化したように見える。(c), (f), (i) の 111 極点図では、圧延後の極を黒点で示し、焼鈍後の極を赤点で示している。焼鈍前後で極の集積位置は変わっていない。焼鈍時間は 6 s と短いですが、(b), (e), (h) 中に観察される結晶粒内の方位差は 1° 未満であり、これらは再結晶粒として差し支えない。旧結晶粒 1 個ごとに注目すれば、圧延集合組織と再結晶集合組織はほとんど同じである。

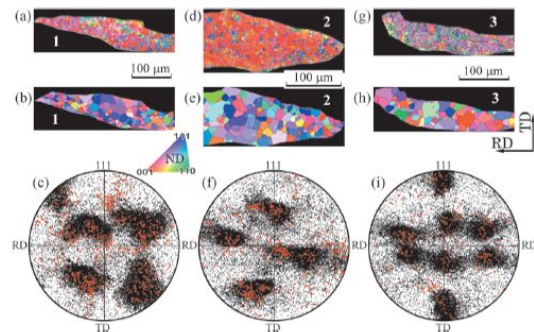


図 8 81 % 圧延後の試料から抽出した結晶粒および、500 で 6 s 焼鈍後の、それぞれに対応した領域の IPF マップと、111 極点図. (a), (d), (g): 圧延後, (b), (e), (h): 焼鈍後, (c), (f), (i): 圧延後(黒点), 焼鈍後(赤点)の 111 極点図.

(4) 従来の再結晶理論の瑕疵

図 8 の再結晶組織については、追加すべきことがある。(b), (e), (h) を詳細にみると、同系統の色 (面方位) の結晶粒が多いことである。図では表示倍率の関係から示し得ないが、これら結晶粒の多くは、低角粒界で囲まれている。1. で述べたように、再結晶の理論のほとんどは、光学顕微鏡観察と X 線回折測定のみで構築されたものである。低角粒界を光学顕微鏡で観察するのは困難であること、および極点図が変化していないことから導かれる結論は、『未再結晶』状態であるということであり、さらに焼鈍を続けることになる。その結果、粒成長が生じて、明らかに極点図が変化した段階で、再結晶が終了したとされたことは容易に推察できる。焼鈍の極く初期で完了する本来の再結晶過程が見逃されていた可

能性がある。

(5) 本研究の成果

理論と解釈が古い時代に構築され、目につく欠点がなかったために、これまで再考されることがなかった『再結晶』について、新しい手法を適用して詳細に調べたのが本研究である。

最も重要な知見の一つは、『圧延集合組織と再結晶集合組織はほとんど同じである』ことであり、圧延の仕方によって再結晶組織を制御できる可能性を示したことである。

二つ目は、『これまで再結晶組織とされてきたのは粒成長後の組織である』ことを示したことである。焼鈍によって再結晶集合組織を制御し得ることを示すものである。

<引用文献>

- 1) 杉本ら: 材料組織学, (朝倉書店, 1991), p. 145.
- 2) F. J. Humphreys and M. Hatherly: *Recrystallization and Related Annealing Phenomena*, (Elsevier, 2004), pp. 250-251.
- 3) 高木, 津崎: 材料組織学, (朝倉書店, 2000), pp. 76-78.
- 4) P. A. Beck and P. R. Sperey: *J. Appl. Phys.*, **21** (1950), 150-152.
- 5) 山本厚之: 軽金属, **60** (2010), 68-74.
- 6) 山本厚之, 塚本雅章, 岡井大祐: 日本金属学会誌, **75** (2011), 575-581.
- 7) 山本厚之, 塚本雅章, 岡井大祐: 日本金属学会誌, **76** (2012) 295-301.
- 8) 梶浦拓也, 塚本雅章, 山本厚之: 日本金属学会誌, **76** (2012) 407-413.
- 9) 梶浦拓也, 山本厚之: 軽金属, **64** (2014) 9-14.
- 10) 梶浦拓也, 山本厚之: 日本金属学会誌, **78** (2014), 126-131.
- 11) 山本厚之, 梶浦拓也, 塚本雅章, 岡井大祐: 日本金属学会誌, **77** (2013) 121-130.
- 12) 上城太一, 関根和喜, 松川靖, 野口延夫: 日本金属学会誌, **36** (1972) 669-673.
- 13) W. Truszkowski, J. Król and B. Major: *Metall. Trans. A*, **11A** (1980) 749-758.
- 14) 山本厚之, 塚本雅章, 岡井大祐: 日本金属学会誌, **65** (2015) 7-14.

5. 主な発表論文等

(雑誌論文) (計 9 件)

山本厚之, 塚本雅章, 岡井大祐: 1050 アルミニウムにおける表面集合組織と再結晶組織, 軽金属, 査読有, 65 (2015), 7-14.

山本厚之, 大森寛之, 梶浦拓也, 塚本雅章, 岡井大祐: 1050 アルミニウムにおける冷間圧延に伴う組織変化 - その(2)84 %圧延まで -, 日本金属学会誌, 査読有, 78 (2014), 23-30.

梶浦拓也, 塚本雅章, 山本厚之: 冷間圧延を

施した無酸素銅における回復・再結晶機構, 日本金属学会誌, 査読有, 78 (2014), 126-131.

梶浦拓也, 山本厚之: 冷間圧延を施した 3004 アルミニウム合金における再結晶挙動, 軽金属, 査読有, 64 (2014), 9-14.

梶浦拓也, 塚本雅章, 山本厚之: 冷間圧延を施した 1050 アルミニウムにおける再結晶挙動, 軽金属, 査読有, 63 (2013) 101-105.

山本厚之, 梶浦拓也, 塚本雅章, 岡井大祐: 1050 アルミニウムにおける冷間圧延に伴う組織変化 - その(1) 33%圧延 -, 日本金属学会誌, 査読有, 77 (2013) 121-130.

梶浦拓也, 塚本雅章, 山本厚之: 冷間圧延された A1050 アルミニウムにおける回復, 再結晶過程初期の同一視野 EBSD 組織観察: 日本金属学会誌, 査読有, 76 (2012) 528-534.

梶浦拓也, 塚本雅章, 山本厚之: 50%冷間圧延した A1050 アルミニウムにおける再結晶の同一視野観察: 日本金属学会誌, 査読有, 76 (2012) 407-413.

山本厚之, 塚本雅章, 岡井大祐: 冷間圧延を施した Al-Mg-Si 合金の再結晶挙動: 日本金属学会誌, 査読有, 76 (2012) 259-301.

(学会発表) (計 21 件)

A. Yamamoto, T. Kajiura, M. Tsukamoto and D. Okai: Effects of intermediate annealing and cold-rolling on recrystallization texture in 1050 aluminum, Proc. 11th Inter. Conf. Technology of Plasticity (ICTP 2014), Procedia Eng. 81, (2014 年 10 月 21 日), pp. 215-220, Nagoya, Japan.

A. Yamamoto, M. Kashiba, T. Kajiura, M. Tsukamoto and D. Okai: Effects of rolling direction on lattice rotation in 1050 aluminum, Proc. 16th Inter. Conf. Advances in Mater. & Processing Technology, (AMPT 2013), (2013 年 9 月 24 日), (ID168), Taipei, Taiwan.

A. Yamamoto, S. Kitagaki, T. Kajiura, M. Tsukamoto and D. Okai: Lattice rotation due to cold-rolling on 1050 aluminum with near rotated cube orientations, Proc. 8th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM-8), (2013 年 8 月 8 日), pp. 1101-1107, Hawaii, USA.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山本厚之(YAMAMOTO, Atsushi)

兵庫県立大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号: 70220449