

(論文)

EBSPによるアルミニウム合金板の再結晶挙動のその場観察

In-Situ EBSP Observations of Recrystallization in Aluminum Alloy Sheets



梶原 桂*

Katsura KAJIHARA

This study presents in-situ observations of recrystallization texture formation in Al-3mass%Mg using SEM-EBSP with hot stage. The emphasis is on the characteristics of the preferred growth grain and the shrinkage oriented grain. The preferential growth is determined by the grain boundary mobility between recrystallized grains or the clusters composed of several similarly oriented grains and neighboring deformed matrix. On the other hand, the isolated oriented grain and the strain-stored grains tend to shrink during recrystallization and grain growth.

まえばき = 軽量で、耐食性やリサイクル性に優れるアルミニウムは、飲料缶、輸送機、建築、家庭用品、電子・電気機器など幅広い産業分野で活用されている。近年、世界的な地球環境、資源の保護が叫ばれているなか、とくに、自動車分野では、排ガス低減 (CO₂ 削減) のための燃費向上を目的とした車体の軽量化が急務となっており、フードやドアなどの板材のアルミ化が本格化している。しかしながら、アルミニウム合金板は、鋼板に比べて成形性が劣ることが大きな課題となっている。

アルミニウム合金板の成形性を向上させるための材料的なアプローチとして、重要な金属学的因子の一つに集合組織がある。ただし、従来から多くの研究がなされているものの、まだ理想の集合組織形態を得た板材は実現できていない。例えば、深絞り加工性の向上のためには、理論的には、鋼板のように板面方位として{111}面の集合組織を発達させることが理想であり¹⁾、アルミニウム合金板においても、実験的に冷間圧延でせん断集合組織を発達させるなどの試みも行われているが^{2)~5)}、再結晶過程で理想方位を十分に発達させることが難しい。一方、アルミニウム圧延板で優先的に発達しやすいCube方位 (板面に{100}面、圧延方向に<001>方向を有する結晶粒) は、冷間加工率や最終焼鈍条件が一定の条件下でも、冷間圧延前の組織形態によって、強く発達する場合とほとんど発達しない場合がある^{6),7)}。このようなことから、再結晶集合組織の制御について新たな指針を得るためには、再結晶過程である結晶方位粒が優先成長しやすい状態、または、消滅しやすい状態を解明することが重要と考えられる。そのためには、再結晶の核生成から成長挙動を空間的・時間的にも連続して捕えることが必要である。

そこで本研究では、再結晶集合組織の形成過程を詳細

に把握するために、加熱ステージを用いた同一視野による電子後方散乱回折像 (Electron Backscatter Diffraction Pattern, 以下 EBSP という) 観察を行った。目的は、優先的に成長する方位粒と収縮・消滅する方位粒の特徴を明らかにすることである。ここでは、成形加工により自動車用構造材料として幅広く利用されている Al-3mass%Mg 合金を対象に研究を行った。

1. 実験方法

供試材の組成を表 1 に示す。材料は、半連続鋳造法により得られた鑄塊を 813K、4h の均質化熱処理した後、熱間圧延された板 (板厚 8mm) を用いた。熱間圧延の最終温度はおよそ 523K であった。その後、冷間圧延前組織を変化させるために、熱間圧延上がりで加工組織とした板 (Sample-A) と、それを 633K、4h の熱処理を施し、再結晶組織とした板 (Sample-B) の 2 種類に調整した。これらから冷延率 50% の冷間圧延板 (板厚 4mm) を作製し、再結晶集合組織の形成過程を調査するための試料を採取した。

再結晶集合組織の形成過程の調査は、SEM-EBSP 測定用の加熱ステージを作製し、同一視野における再結晶挙動を観察した。SEM には、(株)日本電子製 (JEOL JSM 5410)、EBSP は、TSL 社製 Orientation Imaging Microscopy (OIM™) を用いた。測定箇所は、板厚 1/4t 部の圧延面とし、測定面は電解研磨により仕上げた。熱処理は、室温からおよそ 0.8K/s の速度で昇温し、548K から 633K ま

表 1 化学成分
Table 1 Chemical composition of specimen (mass%)

Mg	Si	Fe	Cu	Mn	Al
3.1	0.08	0.18	0.01	0.01	Bal.

*技術開発本部 材料研究所 (現 開発企画部)

で約10Kごとに加熱した。各段階の温度での保持時間は900秒とし、その後、測定中の再結晶の進行と粒成長を止めるために冷却した。冷却速度はおよそ0.5K/sである。EBSP解析は、約750×750μmの領域を、組織状態や再結晶粒径に応じて測定間隔1～5μmの条件で行った。結晶方位解析条件では、理想方位から15°以内を同一方位成分として解析した。

2. 実験結果

2.1 Sample-Aの再結晶集合組織形成過程

図1に、同一視野のEBSP観察によるSample-Aの各温度の段階で熱処理した後の結晶方位分布を示す。ここで、結晶方位の解析ではCube方位、Cu方位、S方位、Brass方位、Goss方位、ND-rotated Cube方位について表示した。また、大傾角粒界(High-Angle Grain Boundary, 以下HAGBという)は、粒界方位差が15°以上として黒線で表示し、小傾角粒界(Low-Angle Grain Boundary,

以下LAGBという)は、粒界方位差5-15°の範囲としてオレンジ色線で表示する。

558Kから568Kの段階(図1(a),(b))では、再結晶粒が圧延方向の加工組織の粒界に沿って局所的に核生成しているのが見られる。その中でCube方位粒は他の方位粒より多く、その粒径は大きい。またCube方位粒は、Cu方位やS方位を持つ加工組織に隣接した箇所から生成しており、数個のCube方位粒が集合した状態を形成している(Cube方位クラスタと呼ぶ)。

つぎの578Kの段階(図1(c))では、それぞれの結晶粒界が大きく移動している。その後、588Kの段階(図1(d))で一次再結晶はほぼ完了している。また、いくつかのCube方位粒については、この段階でも新しく核生成している様子も見られる(A-d-1)。一方、他の方位粒は二つのタイプに分類される。一つは、A-d-2に示すような新しく核生成した粒がある。もう一つは、A-d-3に示すような元の加工組織がその場再結晶した粒がある。

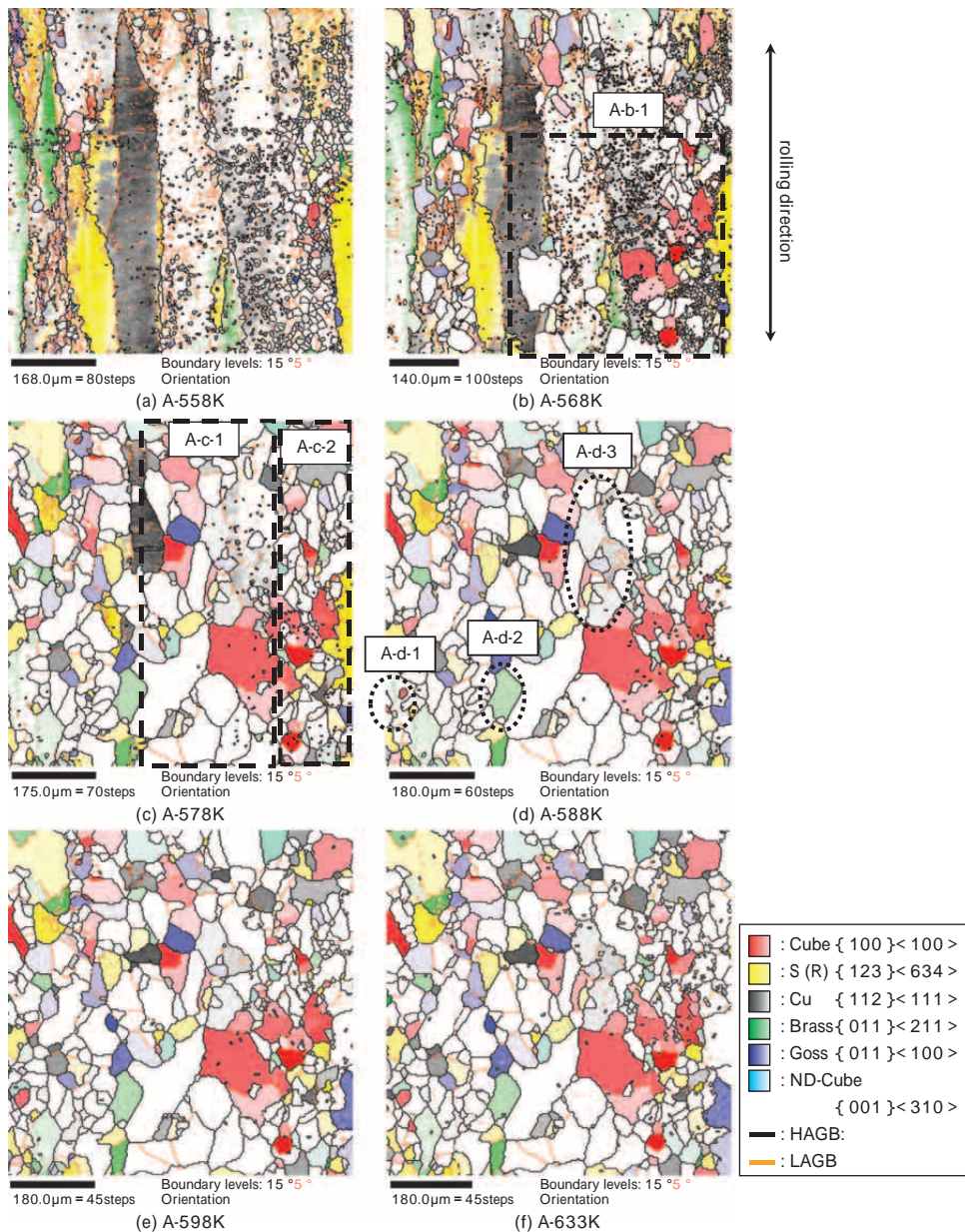


図1 Sample-Aの再結晶過程の結晶方位分布の変化

Fig. 1 Orientation image maps in Sample-A

(a) at 558K, (b) at 568K, (c) at 578K, (d) at 588K, (e) at 598K, (f) at 633K

つぎの段階の 598K から 633K (図 1 (e),(f)) では、局所的に結晶粒界の移動、すなわち、湾曲した不安定な結晶粒界の移動や比較的小さな結晶粒の収縮が見られる。しかしながら、633K 時点 (f) での結晶方位分布は、一次再結晶完了直後の 588K の時点 (d) とほとんど変わらない。すなわち、最終板の結晶方位分布は、一次再結晶の初期段階でほぼ決まっているといえる。

2.2 Sample-B の再結晶集合組織形成過程

図 2 に、Sample-B の各温度の段階での熱処理後の結晶方位分布を示す。548K から 558K の段階 (図 2 (a), (b)) では、いくつか新しく生成したと思われる再結晶粒もあるが、大部分は圧延方向に伸長した組織である。

つぎの 568K の段階 (図 2 (c)) では、ほぼ再結晶粒で占められるが、いくつかのタイプに分けられる。Cube 方位で説明すると、一つは、加工組織の Cube 方位 (B-b-1) が残存した粒 (B-c-1) であり、もう一つは新しく生成した粒 (B-c-2) である。一方、S 方位 (黄色) は、B-

c-3 に示すように 2 ~ 3 個の粒が集合した状態にある (S 方位クラスタと呼ぶ)。

そのつぎの 578K の段階 (図 2 (d)) では一次再結晶がほぼ完了するが、B-c-1 に示すような加工組織から残存した方位粒は消滅する。これは、Cube 方位だけでなく、他の方位でも同様である。

最終段階の 588K から 633K (図 2 (e),(f)) では、残存方位粒は、収縮・消滅する。また、孤立した結晶方位粒も、比較的粒径が小さいものは収縮・消滅する (B-e-1)。その中で、S 方位クラスタは粒成長している。

以上の結果に示すように、再結晶の初期段階では、各方位粒は、局所的には核生成・成長と収縮・消滅が同時に起こっている。

2.3 再結晶過程での結晶方位分布の変化

図 3 に、再結晶過程での各結晶方位の存在率 (面積率で評価) の変化を示す。Sample-A における Cube 方位は、558K から 578K にかけて急速に増加する。Goss 方位や

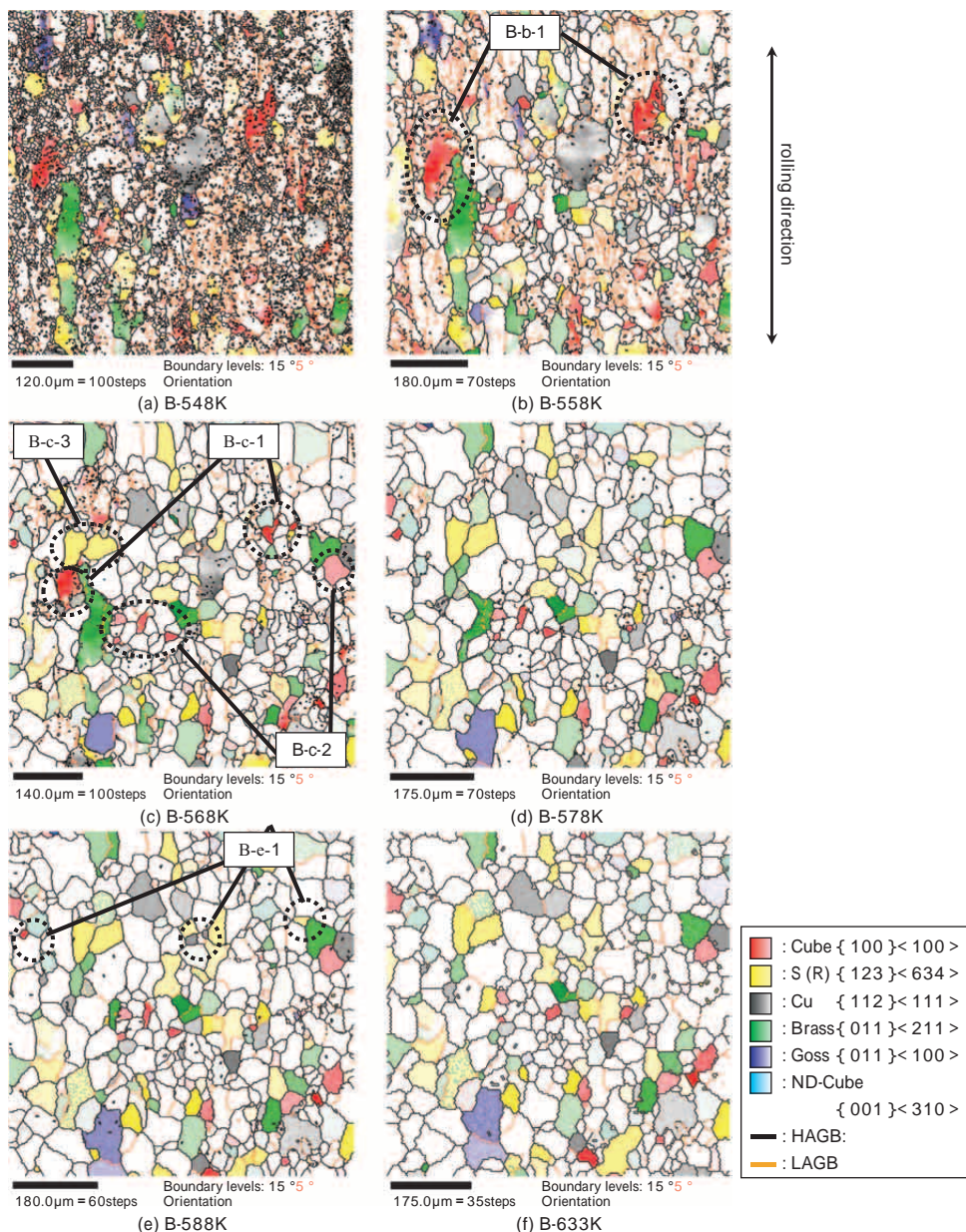


図 2 Sample-B の再結晶過程の結晶方位分布の変化

Fig. 2 Orientation image maps in Sample-B

(a) at 548K, (b) at 558K, (c) at 568K, (d) at 578K, (e) at 588K, (f) at 633K.

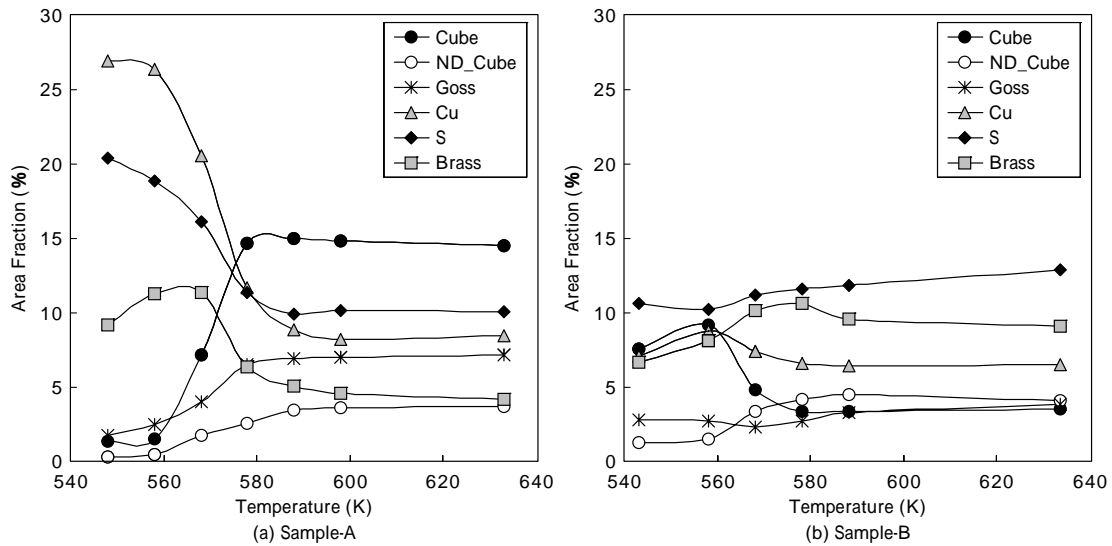


図3 再結晶過程での各結晶方位の存在率の変化：(a) Sample-A, (b) Sample-B
 Fig. 3 Variation in fractions of main components in the in-situ heated specimens for (a):Sample-A and (b):Sample-B
 The orientation are recognized by 15 degrees misorientation.

ND-Cube 方位も若干増加する。一方, Cu, S, Brass 方位は, 焼鈍前が加工組織であるため主方位であるが, 558K から 578K にかけて急速に減少する。しかしながら, いずれの方位の存在率も, 588K から 633K にかけてはほとんど変化しない。

Sample-B では, 再結晶過程を通じて S 方位の存在率が最も高く, 焼鈍温度の上昇とともに増加する。また, Brass 方位や ND-Cube 方位も若干の増加が見られるが, Cube 方位は 558K から 578K にかけて減少する。ただし, いずれの方位の存在率も, 578K から 633K にかけては大きく変化しない。

これらの結果からも, 最後板の結晶方位分布は, 一次再結晶の初期段階でほぼ決まっているといえる。

3. 考察

3.1 再結晶集合組織を支配している現象

Al-3mass %合金の再結晶過程の同一視野におけるEBSP 観察結果から, 各方位には, 成長する結晶粒と収縮・消滅する結晶粒が同時に存在していることがわかった。成長する方位としては, Sample-A では Cube 方位が, Sample-B では S 方位があり, 収縮・消滅する方位としては, Sample-A では S 方位, Sample-B では Cube 方位がある。各結晶方位の存在率は, 再結晶初期段階からの核生成・成長粒と収縮・消滅粒のバランスによって決まる。これら観察結果から, 「成長する結晶粒」と「収縮・消滅する結晶粒」の特徴について, つぎに考察する。

3.2 成長する結晶方位粒の特徴

成長する結晶方位粒の挙動を示す代表的な結果として, 図1(b)のA-b-1の領域における(b)568Kから(c)578Kへの変化を図4に模式的に示す。568Kから578Kの過程で大きく移動している結晶粒の大部分は, 加工組織と隣接している粒界であり, 主としてひずみエネルギー差を駆動力としていると解釈できる。

結晶粒界の特徴は, つぎの三つのタイプに分けられる。ここで, M:568 Kまでに存在する結晶粒の粒界移動

度, N_v : 578K で核生成・成長した結晶粒の粒界移動度を記す。

【Type-G1】: 同一の結晶方位をもつ集合体

【Type-G2】: 低温側で生成した結晶粒の粒界の移動度が大きい領域 ($N_v < M$)

【Type-G3】: 後から生成した結晶粒の粒界の移動度が大きい領域 ($N_v > M$)

Type-G1の特徴は, 同一方位を持つ粒がクラスタを形成しており, 粒界移動量は最も大きい。これには, ひずみエネルギー差を駆動力とするだけでなく, クラスタの形成によるサイズ効果で安定化し, 優先成長しやすいと解釈できる⁸⁾。また, Sample-AにおいてCube方位の生成箇所がある特定の場所に集中しているのは, 冷間圧延板の強く発達した加工集合組織, とくにCu ~ S方位を持つ加工組織領域からの生成頻度が高いことが関係していると考えられる^{9), 10)}。一方, Sample-Bでも, 図2(c)のB-c-3に示すように, S方位粒が再結晶の初期段階から数個の結晶粒の集合体を形成してその後, 周りのひずみが残留している組織を食いながら粒成長して存在率を増大させ, 最終焼鈍温度まで安定に存在している。同一方位をもつクラスタ粒の優先成長は, Cube方位だけでなく他の結晶方位でも当てはまる条件といえる。

Type-G2の観点では, たとえば, 568 Kで存在していた周りの結晶粒の粒界移動とぶつかるまで移動し, その間に周りの加工組織から新たに成長している粒はほとんど見られない。この領域の加工組織の結晶方位を解析すると, Brass方位に近い方位であった。再結晶の核生成頻度は分散粒子や転位組織の影響もあるため, 結晶方位の観点だけで論じることはできないが, Brass方位からの再結晶は遅いとの報告もある¹¹⁾。いずれにしても, 周りの加工組織からの再結晶の核生成速度が低いことも, 成長しやすい結晶粒の特徴の一つと考えられる。

Type-G3の観点では, 加工組織に面している粒界であっても, 568K時点で結晶粒界からほとんど移動していない。これは, 周りの再結晶粒, または加工組織から新

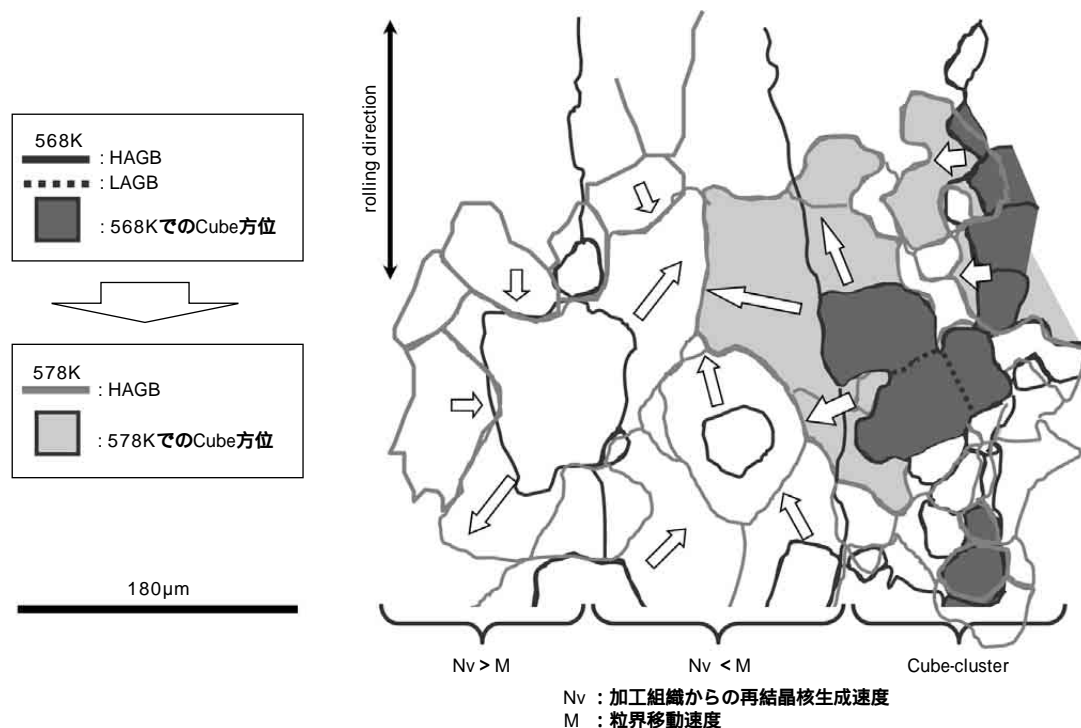


図4 Sample-Aにおける568Kから578Kでの組織変化の模式図
 Fig. 4 Schematic illustration of growth behavior of each orientation between recrystallized grains in surrounding deformed matrix from 568K to 578K in Sample-A.

たに核生成・成長した粒の粒界移動の方が大きいためである。この領域での加工組織の結晶方位は、およそCu方位を有しているが、再結晶の核生成頻度が高く、成長しやすい方位と推察される。以上のように、優先的に成長している結晶方位粒には、同一方位の集合体の形成や周りの再結晶粒の核生成、成長との競合関係で支配される。

3.3 収縮・消滅する結晶方位粒の特徴

収縮・消滅している結晶粒の特徴は2種類に分類される。

【Type-D1】: 孤立した結晶方位粒

【Type-D2】: その場再結晶粒

Type-D1は、記号D-1で示すような孤立した結晶方位粒である。比較的粒径が小さい結晶粒は、周りの粒との粒径効果により収縮しやすい。

Type-D2は、記号D-2で示すようなその場再結晶した結晶粒である。これは、元の加工組織がその場再結晶している粒であり、再結晶の後期まで粒内部にひずみが残留しやすく、周りの再結晶粒とのひずみ差によって収縮しやすい。また、加工集合組織による回復速度の違いも考えられる。Cube方位は、ひずみがたい積しにくいとの報告もあり¹²⁾、Cube方位を持つ加工組織では転位の蓄積度合いが低く、回復が遅れている可能性もある。回復、再結晶を抑制する因子には、不均一加工組織や分散粒子、固溶元素の影響もあるため、結晶方位の観点だけで一概に限定することはできないが、上述のような加工集合組織の影響は考えられる。

ここで、Sample-BでのCube方位では、消滅・収縮だけでなく、記号Xに示すような成長している粒もある。これより、図3に示した再結晶過程での各結晶方位

の存在率の変化は、実際には、核生成・成長と消滅・収縮のバランスによって決まっている。また、Sample-Bでは、Sample-Aより粗大な再結晶粒が少なく、平均結晶粒径は小さい。これは、Sample-Aよりもひずみの蓄積度合いが小さく、再結晶粒が生成する温度も高く、回復が進行したために、再結晶の初期段階での再結晶粒と加工組織のひずみ差が小さくなり、粒界の移動度が小さくなったためと推察される。

3.4 再結晶集合組織制御の今後の課題について

本研究で用いたAl-Mg合金板では、中間焼鈍工程が導入された試料、言換えると、冷間圧延前の組織状態が再結晶組織であるSample-Bでは、Sample-Aよりも最終板の再結晶集合組織でCube方位の成長が抑制されている。また、Sample-Bの特性面では、Sample-Aより塑性異方性が小さく、成形性に優れている。本研究による観察結果は、これらのCube方位の形成過程に関して解釈を与えるものである。さらに、成形性に有利な理想の再結晶集合組織に制御するためには、上述の検討から、再結晶の初期段階の結晶方位分布の制御が重要と考えられる。たとえば、Cube方位の発達を抑制するためには、再結晶初期段階で、Cube方位粒の集合体の生成を抑制することや結晶粒界の移動量を抑制するといった指針が考えられる。結晶粒界の移動におよぼす影響因子には、ひずみ差、粒界方位差、分散粒子、固溶元素などがあり¹³⁾複雑であるが、各結晶方位粒の形成との関係を明らかにすることで、所望の特性に応じた理想の集合組織形態が実現できるものと期待される。今後の研究課題である。

むすび = 冷間圧延前の組織を変化させたAl-3mass% Mg合金板を対象に、加熱ステージを用いた同一視野による

EBSP 観察によって再結晶集合組織の形成過程を調べた。その結果、以下の知見を得た。

- (1) 再結晶過程では、それぞれの結晶方位粒で、核生成・成長する粒と収縮・消滅する粒が局所的には同時に存在する。本実験において、成長する方位としては、加工組織とした Sample-A では Cube 方位が、再結晶組織とした Sample-B では S 方位があり、収縮・消滅する方位としては、Sample-A では S 方位、Sample-B では Cube 方位がある。
- (2) 再結晶過程での各方位の存在率は、核生成・成長と消滅・収縮のバランスにより決まる。
- (3) 再結晶完了後の結晶方位分布は、一次再結晶の初期段階で形成される結晶方位分布の影響が大きい。
- (4) 優先的に成長する結晶方位粒は、結晶粒と加工組織の間のひずみエネルギー差を駆動力とした移動度の高い粒界を持つが、同一の結晶方位をもつ集合体や低温側で生成した結晶粒である。
- (5) 収縮・消滅する結晶方位粒には 2 種類ある。一つは孤立した結晶方位粒であり、周りの粒との粒径効果によって収縮しやすい。もう一つはその場再結晶粒であり、再結晶後期まで粒内部にひずみが

残留しやすく、周りの再結晶粒とのひずみ差により収縮しやすい。

本結果から、成形性に有利な理想の再結晶集合組織に制御するためには、再結晶の初期段階の結晶方位分布を制御することが重要といえる。たとえば、Cube 方位の発達を抑制するためには、再結晶初期段階で、Cube 方位粒の集合体の生成や結晶粒界の移動量を抑制するといった指針が考えられる。

参 考 文 献

- 1) 井上博史ほか：軽金属, 44 (1994) p.97.
- 2) T. Sakai et al. : Proc. ICAA-6, 2 (1998) p.1161.
- 3) K. -H. Kim et al. : Acta Mater., 49 (2001) p.2583.
- 4) 鈴木義和ほか：軽金属学会第 111 回講演概要 (2006) p.291.
- 5) 田中宏樹ほか：軽金属学会第 111 回講演概要 (2006) p.275.
- 6) S. Endou et al. : Mater. Sci. Forum 408-412 (2002) p.1401.
- 7) M. Koizumi et al. : Z. Metallkd 89 (1998) p.424.
- 8) K. Matsumoto et al. : Acta mater. 45 (1997) p.439.
- 9) K. Kajihara et al. : Mater. Sci. Forum 408-412 (2002) p.791.
- 10) J. Hjelen et al. : Acta metall. mater., 39 (1991) p.1377.
- 11) J. Hirsch : Recrystallization'90, TMS (1990) p.759.
- 12) 崔 祺ほか：軽金属, 49 (1999) p.583.
- 13) F. J. Humphreys et al. : Recrystallization and Related Annealing Phenomena, Pergamon (1978) p.85.