

第4章 冷間圧延による Ni₃Al 箔の作製

第2章及び第3章では、FZ法による一方向凝固技術を基盤として、Ni₃Al単結晶の塑性変形及び双結晶の粒界破壊挙動を明らかにした。本章では、一方向凝固材の高い延性に着目し、冷間圧延による箔の作製について研究した。一方向凝固によって延性が改善されたNi₃Alは99%まで冷間圧延が可能で、厚さ23~351 μmの箔を作製することができた。一方向凝固材はほとんどが単結晶であり、一部に柱状組織が含まれていたが、冷間圧延能には影響がなかった。冷間圧延箔は強い{220}集合組織を形成していた。TEMによる加工組織観察では、双晶変形やセル化などの転位の再配列はみられなかった。以上は、圧延過程において、第2章で議論した{111}<110>すべりによって塑性変形した結果と理解された。

4.1 緒言

第1章序論(10ページ)で述べたように、Ni₃Alは高温強度が高く、耐食性・耐酸化性に優れるなど耐熱金属箔としてふさわしい特性を有している。しかし、粒界脆性のため加工性に乏しく、冷間圧延によってNi₃Al箔を作製できた例はこれまでにない。ボロン微量添加によって延性が改善できることは知られているが[1]、ボロン微量添加材の延性は箔を作製するには不十分で、中間焼鈍を繰り返しても圧延によって厚さ800 μm以下の箔にするのは難しい[2]。他には、双ロール急冷法でNi₃Al箔の作製を試みた例はあるが、成功していない[3]。このような急冷法では、クラックなどの欠陥がない大面積箔を作製するのは難しいと考えられる。箔の作製には、冷間圧延が望ましい。

第1章序論(12ページ)で述べたように、平野[4,5]は、浮遊帯域溶融(FZ)法で一方向凝固すると、ボロンを添加しなくても、Ni₃Alが著しく延性化する現象を見出した。一方向凝固材は60%以上の引張伸びを示し[6]、これはボロン添加材の伸び(53.8% [7])よりも大きい。また、ボロン添加による延性化はNi過剰組成でのみ有効である[7]のに対して、一方向凝固による延性化は化学量論組成やAl過剰組成においても有効である[8]という利点がある。平野らが報告している一方向凝固材は多結晶体で成長方向に伸びた柱状組織を有している[6,9-11]が、引張延性は成長方向だけでなく、これに垂直な方向に対しても高い[5]。一方向凝固材の粒界はΣ1, Σ3, Σ9粒界の頻度が高く、この特殊な粒界性格分布が高い延性発現の理由であると考えられてきた[12,13]が、実際にこれらの粒界はバルクと同程度以上の高い破壊応力を有していることが本研究の第3章において明らかになった。この柱状組織を有する一方向凝固材については、25%まで冷間

表 4.1: Analyzed Al contents and initial orientation (rolling plane and direction) for FZ materials.

Sample No.	Al content (at%)	Initial orientation	
		Rolling plane	Rolling direction
31-2	24.4	{1.0 0.2 0.1}	$\langle \overline{0.2} \ 1.0 \ 0.0 \rangle$
41-1	24.7	{5.2 3.9 1.0}	$\langle \overline{4.8} \ 4.0 \ 9.0 \rangle$
42-2	24.8	{4.3 2.0 1.0}	$\langle \overline{1.0} \ 1.1 \ 2.0 \rangle$
47-1	24.7	{4.9 3.0 0.1}	$\langle 0.0 \ 0.0 \ 1.0 \rangle$

圧延した例がある [14]. 最近では, より精密に凝固を制御することにより, 2 元系化学量論組成単結晶を育成することにも成功している (第 2 章). この単結晶はより高い加工性を有すると期待される.

本章では, これら一方向凝固材の高い延性に着目し, 冷間圧延によって箔を作製することを目的に, 以下の研究を行った. まず, FZ 法で一方向凝固したインゴットから板材を切り出し, 80% 以上の冷間圧延によって箔を作製することを試みた. 次に, より大面積の箔を作製する目的で, 精密鑄造法によって粗大な板材を育成し冷間圧延を試みた. さらに, ワークロール径の小さい 12 段ゼンジミア圧延機を用い, より薄い箔の作製を試みた. 精密鑄造法は, Ni 基鑄造超合金製タービンブレードの作製で使用されている手法で, 鑄型を利用するため粗大な板材を一方向凝固することができる. 以上によって作製できた冷間圧延箔について, その圧延集合組織, 加工微細組織を観察し, 冷間圧延における Ni₃Al の塑性変形挙動を考察した.

4.2 実験方法

4.2.1 FZ 法による圧延供試材の作製

化学量論組成を仕込み組成とする 4 つの丸棒インゴット (No. 31-2, 41-1, 42-2, 47-1 と呼ぶ) を FZ 法によって 25 mm/h の速度で育成した. FZ 法による一方向凝固の詳細は, 第 2 章で述べたとおりである. 丸棒インゴットの平均的サイズは, 直径 12 mm, 長さ 150 mm である. 表 4.1 に, ICP (Inductively Coupled Plasma) 分析法で調べた Al 組成をまとめた. Al 組成は, 化学量論組成の値 (25 at% Al) に近い.

育成した丸棒インゴットから, 放電加工機で成長方向に沿って板を切りだした. 表面を機械研磨し, マーブル化学腐食液 (第 2 章参考) で化学腐食後, 光学顕微鏡で組織観察した. No. 41-1, 42-2, 47-1 は単結晶であった. No. 31-2 はほとんど単結晶であったが, 一部に平野ら [6, 9–11] が報告しているのと同様な柱状組織を含んでいた. この FZ 法で育成した一方向凝固材における柱状組織には, $\Sigma 1$, $\Sigma 3$, $\Sigma 9$ 粒界が高い頻度で含まれることが知られている [12, 13]. X 線ラウエ背面反射法によって同定した初期圧延方向及び圧延面法線方向の結晶方位を表 4.1 にまとめた.

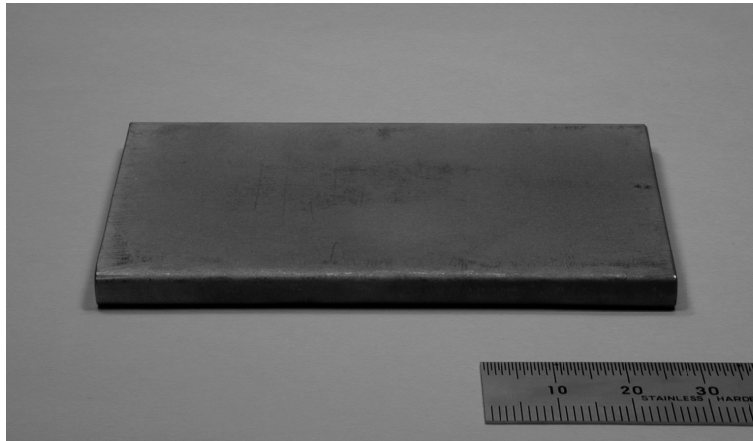


図 4.1: A photograph of initial ingot grown by investment casting method: 5 mm in thickness, 50 mm in width and 80 mm in length.

表 4.2: Analyzed Al contents and initial orientation (rolling plane and direction) for investment-cast materials.

Sample No.	Al content (at%)	Initial orientation	
		Rolling plane	Rolling direction
DS24-42	24.0	{0.27 0.22 0.94}	$\langle 0.35 \ 0.93 \ 0.11 \rangle$
DS24-47	24.0	{0.57 0.07 0.82}	$\langle 0.06 \ 0.99 \ 0.12 \rangle$

4.2.2 精密鑄造法による圧延供試材の作製

精密鑄造法によって、仕込み組成 Ni-24Al の厚さ 5 mm、幅 50 mm、長さ 80 mm という大型単結晶インゴット（サンプル DS24-42 及び DS24-47）を育成した（図 4.1）。育成したインゴットを 1573 K で 20 時間の均質化熱処理を施した後、放電加工機で厚さ 2 mm の板材に切り落とした。表 4.2 に、ICP 分析法によって分析した Al 組成及び X 線ラウエ背面反射法で同定した初期圧延結晶方位をまとめた。なお、化学量論組成（Ni-25Al）についても精密鑄造法による一方向凝固を試みたが、単結晶もしくは良好な柱状組織が得られず塑性加工性が期待できなかったため、本研究では用いなかった。

4.2.3 冷間圧延

まず、上記によって作製した圧延供試材（板厚は表 4.3 及び表 4.4 にあるように 1 mm もしくは 2 mm）を、厚さ約 300 μm まで、ワークロール径 110 mm の 4 段圧延機によって冷間圧延した。次に、ワークロール径 75 mm の超硬合金ロール 2 段圧延機によって、厚さ約 100 μm まで冷間圧延した。この後、さらに薄い箔を作製するため、精密鑄造材から作製された厚さ 89 μm の冷間圧延箔を、ワークロール径 40 mm の 12 段ゼンジミア圧延機によってさらに冷間圧延した。

全ての圧延工程において中間焼鈍を行っておらず、潤滑剤も用いていない。また、シー

ス材によるパッキングも行っていない。

4.2.4 加工組織観察及び集合組織測定

冷間圧延箔の箔表面 (RD-TD), 横断面 (ND-TD), 縦断面 (ND-RD) を機械研磨後, マーブル化学腐食液 (第2章参照) による化学腐食を行い, 加工組織を光学顕微鏡により調べた。圧延集合組織を, X線 Schultz 背面反射法にて測定した。冷間圧延箔の微細組織を透過電子顕微鏡 (TEM) で調べた。TEM サンプルは機械研磨後, 60% 過塩素酸 + n-ブチルアルコール + メタノール (混合比 1:5:10) 溶液を用い, 液温 233 K で電解研磨して作製した。

4.3 結果

4.3.1 冷間圧延

FZ 材

FZ によって一方向凝固した Ni₃Al は非常に塑性加工性に優れ, 中間焼鈍なしで, 厚さ 100 μm 以下の箔にまで冷間圧延することができた。図 4.2 は, 冷間圧延によって作製した箔 (No. 41-1) の一例で, 厚さ 91 μm, 幅 10 mm である。圧下率は 95.5% に達する。表面にはクラックがなく滑らかで, 圧延方向の厚さむらもほとんどない。表面は金属光沢を保っており, 鏡のようである。箔は, 図 4.2 に示すように, コイルのように巻き取ることができる。第5章で詳しく述べるように, 箔はビッカース硬さ 620 HV と著しく加工硬化されているにもかかわらず, 曲げ延性を有している。このような特性の良い箔を作製できたことは, 脆いことで知られる金属間化合物としては異例である。圧延の結果を表 4.3 にまとめた。本研究で試みたサンプルは全て, 良好な圧延性を示している。

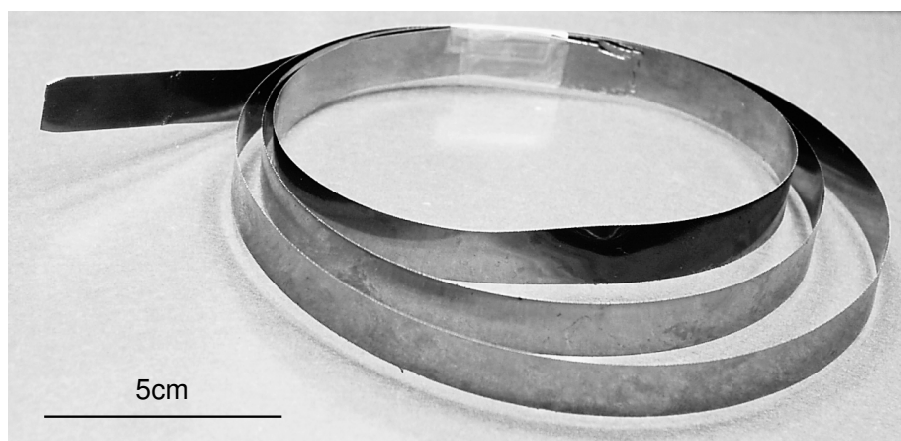


図 4.2: 91 μm-thick, 10 mm-wide and 1 m-long foil of sample No. 41-1 (FZ material) cold-rolled to 95.5% reduction in thickness.

表 4.3: Results of cold rolling for FZ materials: thickness of the sheet before and after cold rolling, reduction in thickness.

Sample No.	Thickness / μm		Reduction (%)
	Before rolling	After rolling (*)	
47-1	1789	302 (7)	83
		95 (1)	95
31-2	959	315 (28)	67
		73 (1)	92
		57 (2)	94
42-2	1917	319 (18)	83
		99 (2)	95
41-1	2043	91 (0)	95.5

* The number in parentheses represents fluctuation in thickness in the rolling direction.

精密鑄造材

精密鑄造材についても冷間圧延を試みた。Ni 過剰組成 (Ni-24Al) の精密鑄造材は圧延性が良好で、FZ 材と同様、95% 冷間圧延によって厚さ 89~102 μm の健全な箔を作製できた (図 4.3)。初期インゴットの幅が 50 mm と大きいため、作製された箔も幅 50 mm と比較的幅が広い。

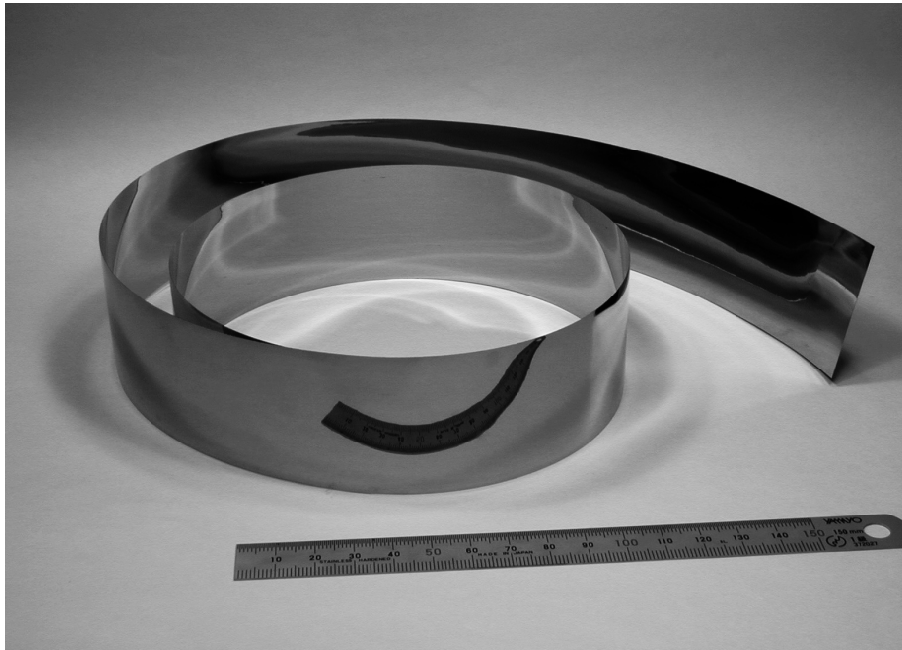


図 4.3: A wide Ni_3Al foil of 50 mm in width and 100 μm in thickness fabricated by 95% cold-rolling of the investment-cast ingot.

表 4.4: Results of cold rolling for the investment-cast materials: thickness of the sheet before and after cold rolling, reduction in thickness.

Sample No.	Thickness / μm		Reduction (%)
	Before rolling	After rolling (*)	
DS24-42	2127	351 (18)	83
		102 (7)	95
DS24-47	1745	89 (4)	95
		23 (1)	95

* The number in parentheses represents fluctuation in thickness in the rolling direction.

この 95% 冷間圧延箔を 12 段ゼンジミア圧延機によってさらに冷間圧延を試みた結果、中間焼鈍なしで厚さ 23 μm という薄い箔を作製することができた。図 4.4 に箔の写真を示す。箔は幅 50 mm、長さ 650 mm と大面積である。圧下率は 99% に達する。厚さは均一で 1 μm 以内の変動しかない。表面は、FZ 材を圧延したものと同様に、クラックがなく滑らかである。箔は薄く、また、かなりの程度の冷間加工を受けているが、図 4.4 にみられるように、巻き取ったり、ねじったりしても壊れることはなく、通常の金属箔と同様に取り扱いすることができる。表 4.4 に、本研究で精密鑄造材の圧延結果をまとめた。本研究で試みたサンプルは全て良好に圧延することができている。



図 4.4: A heavily cold-rolled Ni_3Al foil of sample DS24-47 (Investment-Cast materials) with 99% reduction in thickness. The dimensions of the foil are $23\ \mu\text{m}$ in thickness, 50 mm in width, and 650 mm in length.

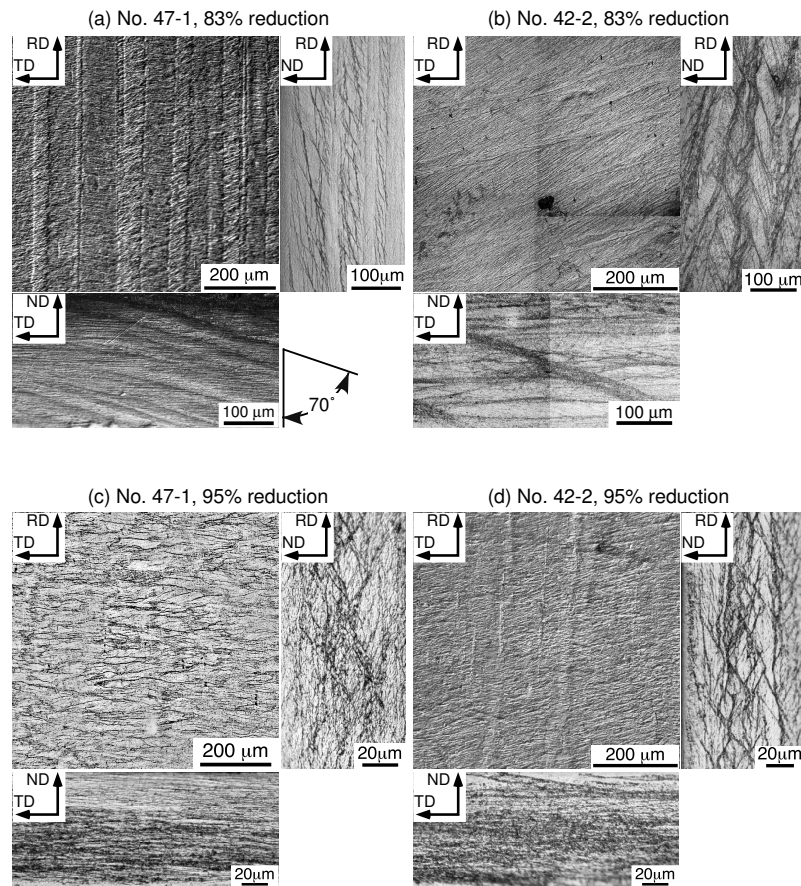


図 4.5: Optical microstructure observed on the surface (RD-TD), longitudinal (ND-RD) and transverse (ND-TD) sections of the cold-rolled foils of (a,c) sample No. 47-1 and (b,d) No. 42-2 at the reduction of (a,b) 83% and (c,d) 95% after etching.

4.3.2 圧延加工組織と圧延集合組織

ここでは、FZ 材を圧延して得られた冷間圧延箔について、光学顕微鏡による加工組織観察、圧延集合組織観察、TEM による微細組織観察の結果を述べる。最後に、精密鋳造材を圧延して得られた箔の加工組織及び圧延集合組織についても述べる。

光学顕微鏡組織

図 4.5 に研磨後に腐食して得られた箔表面 (RD-TD) 及び縦断面 (RD-ND) と横断面 (TD-ND) の光学顕微鏡組織を示す。箔は初期圧延方向の異なる No. 47-1 および No. 41-1 で、それぞれ圧下率 83% および 95% について示してある。化学腐食によって現れるコントラストは、変形によって蓄積した歪みによって生じたものと考えられる。両サンプルとも、箔表面には微細で比較的直線状のコントラストがみられる。これは、すべり変形の痕跡と考えられる。また、RD-ND 断面には強い曲線状のコントラストがまばらにみられる。これは、せん断帯といわれる巨視的な不均一変形の痕跡と考えられる。

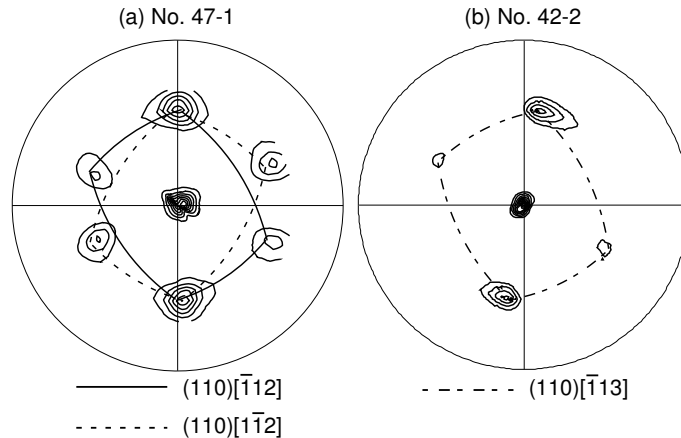


図 4.6: $\{220\}$ pole figures of the 95% cold-rolled foils for (a) sample No. 47-1 and (b) sample No. 42-2.

初期圧延方向の結晶方位に依存して、加工組織は、バンド状構造（バンド組織）をもつものともたないもの（バンドフリー組織）の二つに分かれる。表 4.5 に結果をまとめた。

初期圧延方向が $[100]$ に近い No. 47-1 では、圧下率 83% において、箔表面にバンド状組織がみられる [図 4.5 (a)]. 加工組織は二つのバンドが繰り返す構造を有しており、それぞれのバンドでは直線状の変形コントラストが異なる方向にそろっているように見える。バンドは RD に平行に伸びた形状をしており、その幅は $20\sim 100\ \mu\text{m}$ である。ND-TD 断面の観察から、バンドは ND 方向から約 70 度傾いていることが分かる。同様のバンド組織は Al [15] や Fe-3 wt%Si [16] などを圧延した場合にみられる。圧下率が 95% と高くなると、バンド間を横断するようにせん断帯が発達し、これに伴ってバンド境界は不明瞭になってくる [図 4.5 (c)].

一方、No. 42-2 や No. 41-1 のように、初期圧延方向が $[100]$ からはずれている場合は、バンド状構造を持たない、いわばバンドフリー組織となる。図 4.5 (b) および 4.5 (d) にみられるように、箔表面にみられるすべり変形の痕跡と思われる直線状の微細なコントラストは一樣で、RD から $60\sim 70$ 度の方向にほぼそろっている。バンドフリー組織の場合は、圧下率 83% と 95% に大きな差はない。

圧延集合組織

図 4.6 にバンド組織をもつ No. 47-1 およびバンドフリー組織をもつ No.42-2 について、圧下率 95% における $\{220\}$ 極点図を示す。 $\{220\}$ 極が ND に強く集積しており、箔表面が $\{110\}$ に平行な $\{110\}$ 集合組織を有していることが分かる。表 4.5 にまとめたように、冷間圧延箔は全て強い $\{110\}$ 集合組織をもつことがわかった。より詳細にみていくと、No. 47-1 の集合組織は二つの異なる $\{110\}$ 集合組織で構成され、それぞれが互いに対称な RD 方位を有していることが分かる [図 4.6 (a)]. この 2 重 $\{110\}$ 集合組織は、バンド組織に対応している。No. 31-2 も、同様な 2 重 $\{110\}$ 集合組織を有していた。一方、バンドフリー組織を有していた No. 42-2 および 41-1 の場合は、一つの $\{110\}$ 集合組織で構成される。いずれの場合も、RD は圧下率の増加とともに、 $\langle 211 \rangle$ に向かう (表 4.5)。

表 4.5: Deformation microstructure and rolling texture of Ni_3Al cold-rolled foils (FZ materials).

Sample No.	Initial RD	Reduction (%)	Deformation microstructure	Rolling texture
47-1	$\sim\langle 001 \rangle$	83	Banded	$\{110\}\langle \bar{1}14 \rangle + \{110\}\langle 1\bar{1}4 \rangle$
		95	Banded	$\{110\}\langle \bar{1}12 \rangle + \{110\}\langle 1\bar{1}2 \rangle$
31-2	$\sim\langle 001 \rangle$	92	Banded	$\{110\}\langle \bar{1}13 \rangle + \{110\}\langle 1\bar{1}7 \rangle$
42-2	$\sim\langle \bar{1}12 \rangle$	83	Band-free	$\{110\}\langle \bar{1}14 \rangle$
		95	Band-free	$\{110\}\langle \bar{1}13 \rangle$
41-1	$\sim\langle \bar{1}12 \rangle$	95.5	Band-free	$\{110\}\langle \bar{1}13 \rangle$

透過電子顕微鏡組織

図 4.7 は 80% 冷間圧延箔の TEM 明視野像を示したものである。バンド組織では、2つのバンドでそれぞれ異なる方向にそろった縞状コントラストが観察される [図 4.7 (a)]. 電子線回折パターンから、2つのバンドはともに箔表面が $\{110\}$ に平行であるが、RD が大きく異なっているのが分かる。これは、バンド組織が 2 重 $\{110\}$ 集合組織を持つことと対応する。以上より、バンド組織は RD の異なる 2 つの $\{110\}$ バンドが繰り返す構造を持つといえる。バンド間の遷移領域では縞状コントラストが強く湾曲しており、方位が連続的に変化している。バンドフリー組織では縞状コントラストは一つの方向にそろっている [図 4.7 (b)]. また、RD に対して 5~10 度傾いたマイクロバンドが一部には観察される。

バンドの有無に関わらず、その微細組織には転位のセル化やサブグレイン形成といった転位の再配列はみられなかった。これは、ボロン添加 Ni_3Al 冷間圧延材における報告と一致する [17]。また、変形双晶も観察されなかった。

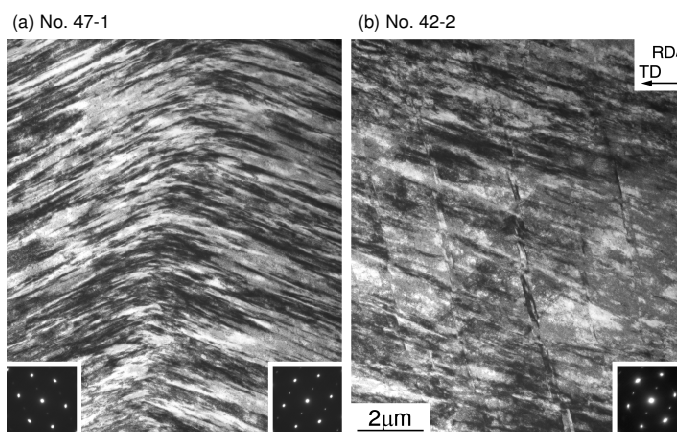


図 4.7: TEM images of the rolling plane section of about 80% cold-rolled foils for (a) sample No. 47-1 (banded structure) and (b) No. 42-2 (band-free structure) [18].

表 4.6: Deformation microstructure and rolling texture of Ni₃Al cold-rolled foils (Investment-cast materials).

Sample No.	Reduction (%)	Deformation microstructure	Rolling texture
DS24-42	83	Banded	{110}⟨114⟩ + {110}⟨117⟩
	95	Banded	{110}⟨113⟩ + {110}⟨114⟩
DS24-47	95	Banded	{110}⟨113⟩ + {110}⟨113⟩
	99	Banded	{110}⟨112⟩ + {110}⟨112⟩

精密鑄造材の加工組織及び圧延集合組織

本研究で冷間圧延した精密鑄造材 (No. DS24-42 及び DS24-47) は初期圧延方向が比較的 ⟨100⟩ に近く, FZ 材の場合と同様, 冷間圧延箔では 2 重 {110} 集合組織を伴うバンド組織が発達していた. 表 4.6 に, 精密鑄造材の加工組織及び圧延集合組織をまとめた.

図 4.8 は, DS24-42 の圧下率 83% および 95% における加工組織及び圧延集合組織を示す. FZ 材と比べるとバンド組織におけるバンド幅が広く, 200~500 μm 程度である. また, 精密鑄造材では圧下率 95% においても明瞭にバンドが観察される. ND-TD 断面の観察においては, 圧下率の増加に伴ってバンドの傾きが大きくなって, 次第に ND に垂直に近づく傾向がみられる. 圧延集合組織は, FZ 材と同様, 2 重 {110} 集合組織を有している.

図 4.9 は, 最も圧下率が大きく最も薄い箔 (圧下率 99%, 厚さ 23 μm) の加工組織及び圧延集合組織を, 同じサンプル (DS24-47) の圧下率 95% の箔と比較したものである. 圧下率 95% では, 圧延方向に延びたバンド状コントラストが明瞭に観察される [図 4.9 (a)]. 99% 冷間圧延した厚さ 23 μm の箔においても, 多少不明瞭になるものの, 同様にバンド状コントラストが観察される [図 4.9 (b)]. 圧下率の増加とともにバンド状コントラストが不明瞭になるのは, 圧延とともにバンドが傾き, 箔表面からみたときに隣接するバンド間の重なりが大きくなったためと考えられる. 圧下率 95% においてもすでにその兆候が見られ, バンド境界が隣接するバンドの重なりによって波打っている [図 4.9 (a)]. 図 4.9 には圧延集合組織も併せて示してある. 99% 冷間圧延箔は, 95% 冷間圧延箔と同様, 明瞭な 2 重 {110} 集合組織を示しており, 箔に結晶方位の異なる 2 つの領域が存在していることが確認できる. 以上より, 初期圧延方向が ⟨100⟩ に近い場合は, 圧下率 99% まで 2 重 {110} 集合組織を有するバンド組織が維持されていると結論される.

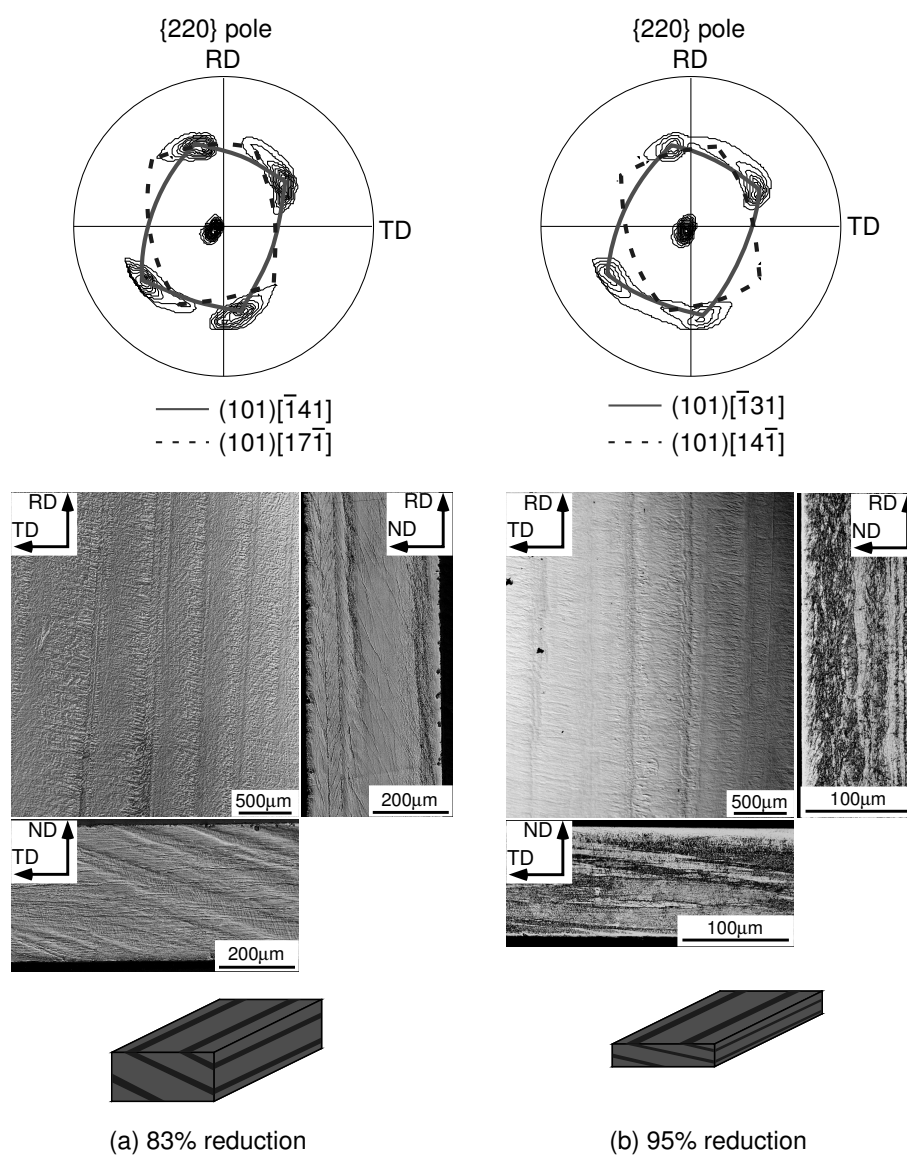


図 4.8: $\{220\}$ pole figures and optical microstructures of the cold-rolled foils (sample DS24-42): (a) 83% reduction and (b) 95% reduction in thickness.

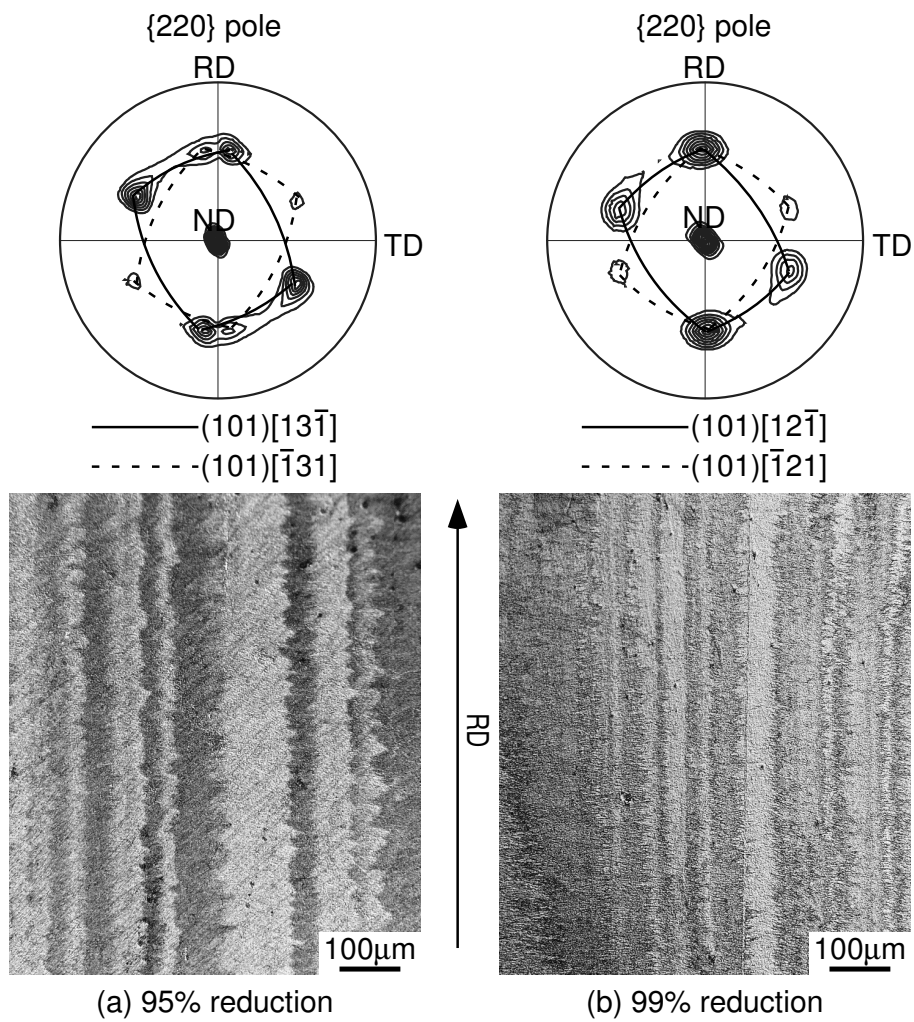


図 4.9: $\{220\}$ pole figures and optical microstructures of the cold-rolled foils (sample DS24-47): (a) 95% reduction and (b) 99% reduction in thickness.

4.4 考察

4.4.1 一方向凝固 Ni₃Al の冷間圧延能

一方向凝固 Ni₃Al は冷間圧延性に優れ、厚さ 23 μm, 圧下率 99% の箔を作製できることが分かった。このような高い冷間圧延能は、一方向凝固によって単結晶もしくは柱状組織を形成したことによる。

今回の試みでは、Ni₃Al 単結晶が圧下率 99% という高い圧延能を持つことが明確となった。この圧下率は相当歪みで 5.3 であり、単軸引張伸びに換算すると 20,000% を超える。このような Ni₃Al 単結晶の高い塑性変形能は、脆いことで知られる金属間化合物としては異例である [19]。これまで単結晶が延性を持つことが知られており [20]、冷間圧延した例もあるが [20-22]、圧下率は最大で 80% であった [22]。

FZ 材には一部に柱状組織が含まれているサンプル (No. 31-2) があったが、圧延能の低下は見られなかった。FZ 法による一方向凝固で育成された柱状組織においては Σ 1, Σ 3, Σ 9 粒界の割合が高いことが知られており、例えば第 3 章の図 3.14 で引用した FZ 材においては、これら粒界の頻度の合計は 69% に達する [13]。本研究第 3 章で明らかとなったように、Σ 1, Σ 3, Σ 9 粒界は単結晶と同程度の高い破壊応力を有し、粒界破壊しない。以上から、No. 31-2 に含まれていた柱状組織は Σ 1, Σ 3, Σ 9 粒界で構成されていたと考えられ、それゆえに単結晶と同様に圧下率 94% まで強冷間圧延が可能であったと考察される。一方、第 3 章において、Σ 5, Σ 7, Σ 13a 粒界やランダム粒界は粒界破壊強度が低く粒界破壊することが明らかとなっており、もしもこれらの弱い粒界が含まれていた場合には、冷間圧延中に粒界割れが発生し、健全な箔を作製することは困難であったと予想される。換言すれば、Σ 5, Σ 7, Σ 13a 粒界やランダム粒界などの弱い粒界が存在せず、Σ 1, Σ 3, Σ 9 粒界といった強い粒界で構成されていれば、多結晶体であっても冷間圧延によって箔が作製できるといえる。

これに対してボロン微量添加によって延性化した多結晶体の場合は、冷間圧延によってしばしば早期にクラックが生じることが報告されている [23]。通常凝固した多結晶体にはランダム粒界が多く存在し、その比率はボロンを微量添加しても大きく変化しない [24]。これらランダム粒界の破壊強度はボロン添加によってある程度改善されるものの単結晶よりは弱く、そのため箔を作製するほどの大きな変形には耐えられないと考えられる。つまり、Ni₃Al の場合は、Σ 値の高い対応粒界やランダム粒界が存在すると、たとえボロンを微量添加したとしても、冷間圧延能が制限されると考えられる。

化学量論組成の FZ 材では、本研究における最大の圧下率は 95.5% であった。ただし、これはまだ限界とはいえない。ワークロール径のより小さい 12 段ゼンジミア圧延機を使用すれば、化学量論組成でも Ni-24Al の精密铸造材と同程度まで圧延できると期待される。

4.4.2 冷間圧延における塑性変形

観察された $\{110\}$ 集合組織は Ni_3Al を強冷間圧延した場合の特徴に見える。表 4.7 にこれまで Ni_3Al で報告された圧延集合組織をまとめた。Gottstein ら [22] は、80% 冷間圧延した Ni 過剰組成単結晶において、我々と同様に $\{110\}\langle 113 \rangle$ 圧延集合組織を観察している。また、90% 冷間圧延したボロン添加多結晶において、2つの $\{110\}$ 集合組織で構成される圧延集合組織の発達を認めている [23]。Chowdhury ら [25] は、ボロン添加多結晶において、圧下率 85% で、 $\{110\}$ 集合組織とともに、弱い $\{112\}$ 及び $\{123\}$ 集合組織成分を観察している。これらの比較から、 $\{110\}$ 集合組織は、圧下率 80% 以上の冷間圧延 Ni_3Al における共通する特徴であり、結晶の形態やボロン添加の有無によらないことが分かる。

表 4.7: Summary of previous results on the rolling texture of single crystal and polycrystalline Ni₃Al.

Alloy	Crystal		Reduction (%)	Texture	Ref.
	form				
Ni-24at%Al with and without B	Single crystal		80	{110}<113>	Escher <i>et al.</i> [22]
	{617}<293>*				
Ni-24at%Al -0.24at%B	Polycrystal		90	Mixture of	Gottstein <i>et al.</i> [23]
				{110}<112> & {110}<100>	
Ni-24at%Al -0.24at%B	Polycrystal		85	Mixture of	Chowdhury <i>et al.</i> [25]
				{110}<112> {112}<111> & {123}<634>	

* The initial rolling plane and direction.

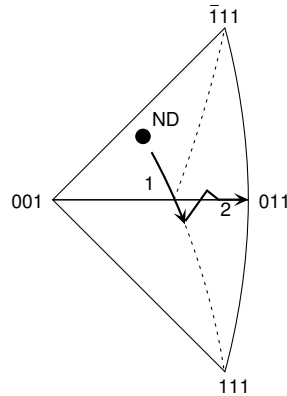


図 4.10: A schematic illustration of the lattice rotation of Ni_3Al single crystal by compressive stress normal to the rolling plane (ND) during cold-rolling. First, the ND rotates along the arrow '1' by operation of (111) primary slip plane and then toward (011) along the arrows '2' by operation of the primary and ($\bar{1}11$) conjugates slip planes.

TEM による加工組織観察によって、 Ni_3Al 単結晶は主にすべり変形によって圧延変形し、双晶変形がほとんどみられないことが分かった (図 4.7)。第 2 章で明らかとなったように、 Ni_3Al 単結晶の塑性変形は (111) 面上のせん断応力で理解でき、 $\{111\}\langle 110 \rangle$ すべりのみを考慮すれば良い。以下では、この $\{111\}\langle 110 \rangle$ すべりによるすべり変形を仮定して、観察された $\{110\}$ 圧延集合組織の形成過程を考察する。

圧延変形は、圧延面法線方向の圧縮変形および圧延方向の引張変形の組み合わせとして単純化できる。このうち圧延面法線方向の圧縮変形によって、 $\{110\}$ 集合組織の形成過程を次のように理解できる。圧縮変形によって、結晶は圧縮面がすべり面に平行になるように結晶方位の回転が起こる。これは、いわゆる格子回転として知られる過程である。図 4.10 に、ND で示される初期方位で単結晶を圧縮変形した場合の格子回転を模式的に表す。圧縮変形初期では、 Ni_3Al に存在する 4 つのすべり面のうち (111) が主すべり面として働き、これに伴って、ND は矢印 '1' のように (111) に向かって格子回転する。ND が (100) 大円に達すると、共役なすべり面 ($\bar{1}11$) が同時に働くようになる。この 2 つのすべり面上で等価にすべり変形が起こることによって ND は矢印 '2' のように格子回転し、最終的に、主すべり面 (111) と共役すべり面 ($\bar{1}11$) の中間である安定面 (011) に到達する。本研究では単結晶であるかもしくは単結晶に近い初期板材を用いており、上記の考え方で $\{110\}$ 集合組織の形成を定性的には理解できる。

表 4.5 にまとめたように、初期圧延方向 (RD) によって、バンドフリー組織を有する単一 $\{110\}$ 集合組織が形成される場合と、バンド組織を有する 2 重 $\{110\}$ 集合組織 RD が形成する場合に分かれる。このような RD に関する違いについては、圧延方向の引張変形を考慮しなければならない。引張変形における格子回転は、引張軸方向がすべり方向に平行になるように起こる。RD が [100] から遠い場合には、上で考察した 2 つのすべり面上で各々 1 個のすべり系、すなわち (111)[$\bar{1}01$] と ($\bar{1}11$)[$\bar{1}\bar{1}0$] が働くことで、(011)[$\bar{2}\bar{1}1$] に向けて格子回転が起こり、単一 $\{110\}$ 集合組織が発達したと考えられる。これに対して RD が [100] に近い場合には、上記の 2 組のすべり系に加え、等価な 2 組のすべり系

(111)[101] 及び $(\bar{1}\bar{1}1)[1\bar{1}0]$ が働き, RD が $[\bar{2}\bar{1}1]$ 及び $[2\bar{1}1]$ という対称な2方向へ格子回転したために, バンド組織を有する2重 {110} 集合組織が形成されたと考えられる.

圧延集合組織及び加工組織は圧下率 99% まで同様であり (図 4.9), 上記の議論から Ni₃Al はかなりの強加工まで双晶変形ではなくすべり変形によって塑性変形すると結論される. fcc 合金においては, 積層欠陥エネルギーが小さい黄銅や Ag では双晶変形が起こりやすく, 積層欠陥エネルギーが比較的大きい Al や Ni では強加工しても双晶変形しないことが知られている (Ref. [26] pp. 19–24). L1₂ 規則構造 (図 1.1) を有する Ni₃Al では, 規則格子部分転位が fcc 不規則合金と同様の Schockley タイプの分解をすると, Ni と Al の規則配列のずれが重層された複雑な積層欠陥 (CSF, complex stacking fault) が形成される [19]. 今のところ Ni₃Al では信頼できる積層欠陥エネルギーの測定例がないものの, Schockley タイプの分解幅が単位格子長さ程度と極めて小さいという報告があり, これは積層欠陥エネルギーが大きいことを示唆する [27]. また, 第2章で明らかとなったように, 規則格子部分転位の芯構造は Ni₃Al の交差すべりを律速しない. これらの事実と, 強加工しても双晶変形が観察されないという結果を合わせて考えると, Ni₃Al は, 積層欠陥エネルギーが比較的大きい Al や Ni に近いといえる. ただし, Al や Ni では交差すべりが起こりやすいために転位が再配列してセル化するのに対して, Ni₃Al では交差すべりが起こりやすいと考えられるにもかかわらずセル化は見られなかった (図 4.7). これは, 交差すべり面の違いによると理解できる. すなわち, Al や Ni では {111} 面交差すべりを繰り返すことで転位が3次的に運動し, これが再配列を引き起こす. これに対して Ni₃Al では, 第2章で議論したように, 規則格子部分転位対の間に存在する逆位相境界のエネルギー差を駆動力として, {111} 面ではなく {010} 面へ交差すべりし, 転位が不動化される (KW 機構, 図 2.17). この KW 機構による不動化によって転位の運動が2次的に制限され, その結果, 転位が再配列しにくいものと考えられる. このように Ni₃Al は, 積層欠陥エネルギーが大きい fcc 金属と同様に双晶変形が起こりにくいものの, KW 不動化機構によって転位のセル化が抑制されるという特徴を持つといえる. この fcc 合金とは異なる特異な特徴は, これまで議論してきたように, Ni₃Al が L1₂ 規則構造を有することに帰因する.

4.5 結言

一方向凝固材を出発材料として冷間圧延による箔の作製についての実験から、次の結果が得られた。

1. FZ 法によって一方向凝固した化学量論組成の（一部、柱状組織を含む）単結晶は、良好な冷間圧延性を示し、圧下率 95.5% まで圧延できた。その結果、厚さ 57～319 μm の健全な箔が作製できた。
2. 精密鑄造法によって一方向凝固した Ni 過剰組成 (Ni-24Al) 単結晶は、FZ 材と同様の良好な圧延性を示し、99% 冷間圧延によって、厚さ 23 μm で幅 50 mm の健全な箔を作製できた。
3. 冷間圧延箔は強い $\{110\}$ 集合組織を有する。これは、圧延面法線方向の圧縮変形を仮定し、2つの $\{111\}$ 面ですべり変形したと考えれば、理解できる。
4. 初期圧延方向の結晶方位によって、加工組織及び圧延集合組織は次の2つの場合に分かれた。

RD が $\langle 100 \rangle$ に近い場合 バンド組織を有する 2重 $\{110\}$ 集合組織。

RD が $\langle 100 \rangle$ から遠い場合 バンドフリー組織を有する単一 $\{110\}$ 集合組織。

5. TEM による微細組織観察では転位の動的回復や双晶変形が観察されず、主にすべり変形によって圧延変形したことが分かった。これは、積層欠陥エネルギーが大きい fcc 合金と同様に双晶変形が起こりにくいにもかかわらず、第 2 章で議論した KW 不動化機構によってセル化が抑制されるためであると理解できる。

第4章の参考文献

- [1] K. Aoki and O. Izumi. *Nihon Kinzoku Gakkai shi*, **43**, pp. 1190–1196, 1979.
- [2] C. T. Liu and V. K. Sikka. *J. Metals*, **38**, pp. 19–21, 1986.
- [3] A. I. Taub, S. C. Huang, and K. M. Chang. *Metall. Trans. A*, **15A**, pp. 399–402, 1984.
- [4] T. Hirano. *Acta metall. mater.*, **38**, pp. 2667–2671, 1990.
- [5] T. Hirano. *Scripta Metall. Mater.*, **25**, pp. 1747–1750, 1991.
- [6] T. Hirano and T. Kainuma. *ISIJ International*, **31**, pp. 1134–1138, 1991.
- [7] C. T. Liu, C. L. White, and J. A. Horton. *Acta metall.*, **33**, pp. 213–229, 1985.
- [8] T. Hirano, T. Mawari, M. Demura, and Y. Isoda. *Mater. Sci. Eng. A*, **239–240**, pp. 324–329, 1997.
- [9] T. Hirano and T. Mawari. *Acta metall. mater.*, **41**, pp. 1783–1789, 1993.
- [10] T. Mawari and T. Hirano. *Intermetallics*, **3**, pp. 23–33, 1995.
- [11] T. Hirano and T. Mawari. In N. S. Stoloff and R. H. Jones, editors, *Processing and Design Issues in High Temperature Materials*, pp. 425–432. The Minerals, Metals & Materials Society, 1997.
- [12] T. Hirano and T. Mawari. In R. Darolia, J. J. Lewandowski, C. T. Liu, P. Martin, D. B. Miracle, and M. V. Nathal, editors, *Structural Intermetallics*, pp. 437–443. The Minerals, Metals & Materials Society, 1993.
- [13] T. Watanabe, T. Hirano, T. Ochiai, and H. Oikawa. *Materials Science Forum*, **157-162**, pp. 1103–1108, 1994.
- [14] T. Hirano and T. Mawari. *Scripta Metall. Mater.*, **26**, pp. 597–600, 1992.
- [15] J. A. Wert, Q. Liu, and N. Hansen. *Acta mater.*, **45**, pp. 2565–2576, 1997.
- [16] T. Taoka, E. Furubayashi, and S. Takeuchi. *Trans. ISIJ*, **6**, pp. 290–316, 1966.
- [17] J. Ball and G. Gottstein. *Intermetallics*, **1**, pp. 171–185, 1993.
- [18] K. Kishida, M. Demura, T. Hirano, and Y. Suga. In *EUROMAT*, Proc. 7th European Conf. on Advanced Materials and Processes (EUROMAT 2001), Rimini, Italy, 2001.
- [19] 山口, 馬越. 金属間化合物. 日本工業新聞社, 東京, 1984.
- [20] K. Aoki and O. Izumi. *Trans. JIM*, **19**, pp. 203–210, 1978.
- [21] S. Hanada, T. Ogura, S. Watanabe, O. Izumi, and T. Masumoto. *Acta metall.*, **34**, pp. 13–21, 1986.
- [22] C. Escher, S. Neves, and G. Gottstein. *Acta mater.*, **46**, pp. 441–450, 1998.
- [23] G. Gottstein, P. Nagpal, and W. Kim. *Mater. Sci. Eng. A*, **108**, pp. 165–179, 1989.
- [24] R. A. D. Mackenzie, M. D. Vaudin, and S. L. Sass. In M. H. Yoo, W. A. T. Clark, and C. L. Briant, editors, *Intergacial Structure, Properties and Design*, **122** of

- MRS Symp. Proc.*, pp. 461–466, Boston, MA, USA, 1988. Materials Research Society.
- [25] S. G. Chowdhury, R. K. Ray, and A. K. Jena. *Scripta Metall. Mater.*, **32**, pp. 213–218, 1995.
- [26] F. J. Humphreys and M. Hartherly. *Recrystallization and related annealing phenomena*. PERGAMON, Oxford, UK, 1st edition, 1995.
- [27] P. Veyssi ere and G. Saada. In F. R. N. Nabarro and M. S. Duesbery, editors, *Dislocations in Solids*, **10**, chapter 53, pp. 254–441. North-Holland, Amsterdam, 1996.

