

電解コンデンサ用アルミニウム薄板における立方体方位粒高頻度出現領域の発見

関 史江

東京大学大学院工学系研究科

J. Japan Inst. Metals, Vol. 64, No. 3 (2000), pp. 218-219
© 2000 The Japan Institute of Metals

Detection of High Density of Cube Oriented Grains in a pure Aluminum Sheet for Capacitor

Fumie Seki

Department of Materials Science, School of Engineering, The University of Tokyo, Tokyo 113-8656

For production of pure aluminum capacitor foils, it is essential to develop a cube texture in the thin foil. This letter presents a detection of layers containing high density of cube oriented grains in an aluminum sheet of 500 μm thickness, annealed at 300°C. The cube oriented grains formed during an intermediate annealing, probably contribute to the highly-developed cube texture through an additional process. Distribution of the crystallographic orientation in inhomogeneous textures of a transverse section were studied by electron back scatter diffraction pattern measurements.

(Received December 3, 1999; In Final Form January 24, 2000)

Keywords: cube texture, recrystallization, texture control, aluminum capacitor foil, crystallographic orientation distribution, electron backscatter diffraction pattern: EBSD

1. はじめに

多結晶材料の集合組織は力学的特性、電気的・化学的特性等に大きな影響を及ぼすことが良く知られており、電解コンデンサ用電極材料のアルミニウムも集合組織を制御して製造されている。アルミニウム箔の最終工程でのエッチングによるトンネル状ピットは $\langle 100 \rangle$ 方向に発達するので、電気容量を増すためには立方体集合組織の発達が求められる。このアルミニウム箔では、厚さが100 μm 以下になると立方体集合組織の発達が抑えられることが知られているが、より薄くなるとなぜ集合組織が発達しなくなるのかは不明である。この解明には、再結晶初期の結晶方位分布状態や焼なましによる粒成長機構の検討が必要となろう。これまでアルミニウム箔の透過X線極点図測定等は行われているが、板厚方向に沿う箔内部の立方体方位粒分布状態を明らかにした論文は見られない。

そこで電解コンデンサ用高純度アルミニウム熱延板を用いて、薄板の一次再結晶完了状態に着目し、空間分解能が0.1 μm 程度、測定深さが0.5 μm 以下、結晶方位の測定精度が約0.5度と高いEBSD (Electron Backscatter Diffraction Pattern)測定を行い、薄板の圧延に平行な断面における結晶方位分布図を作成した。その結果、薄板の圧延平行断面のある深さにおいて立方体方位結晶粒の特に多い領域が出現することが分かったのでここに報告する。

2. 実験方法

電解コンデンサ用高純度アルミニウム(Si7.1, Fe6.8, Cu50.5 mass ppm)熱間圧延板の両表面を面削し、360°C-1 h中間焼きなまし後、試料厚さ500 μm まで99%冷間圧延を行い、大気中で300°C-1 h再結晶焼きなましを行った。再結晶後の500 μm 薄板の圧延平行断面は、測定面積が小さいのでEBSD測定のみを行った。板表面と板厚中央面ではX線極点図測定を行うと共に、同一の試料板面を用いてEBSD測定を行った。

3. 実験結果および考察

3.1 再結晶焼きなまし後の薄板圧延平行断面の集合組織

圧延平行断面における300°C-1 h再結晶焼きなまし後の結晶方位分布図の一例を、理想的な $\{100\}\langle 001 \rangle$ 方位からのずれの程度に基づき、5度以内の結晶粒をピンク、10度以内を青、15度以内を緑、20度以内の粒をベージュと色付けして、Fig. 1に示した。本研究では、理想的な $\{100\}\langle 001 \rangle$ 方位から20度以内の粒を、立方体に近い結晶粒とみなした。すなわち色付の粒は、立方体方位に近い結晶粒であり、白い粒は、立方体方位から離れた結晶方位粒である。圧延平行断面からみると、板表面と板厚中央部との間に立方体方位粒の多い領域が存在する。この領域では、約85%の立方体方位粒と15%の回転立方体方位粒で構成されていた。しかし板厚中央部では、立方体方位粒の存在比率は約20%に減少し

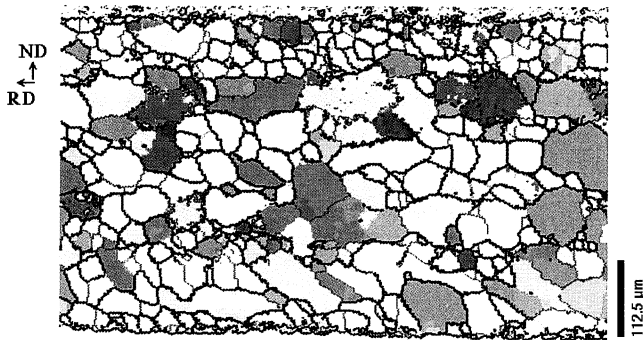


Fig. 1 Orientation image micrograph of a transverse-section of a pure aluminum sheet annealed at 300°C. Colors are used to show crystallographic orientations of the cube grain structures: pink for ≤ 5 degrees, blue ≤ 10 degrees, green ≤ 15 degrees and yellow ≤ 20 degrees from the ideal $\{100\}\langle 001\rangle$. Grain boundary lines show the misorientation: red lines correspond to < 15 degrees and black lines to ≥ 15 degrees.

た。立方体粒の存在場所によらず、立方体方位粒と隣接する結晶粒との粒界には、共通の $\langle 111\rangle$ 軸 $5\sim 15$ 度回転関係が多く観察された。これに対して、従来から立方体方位粒が成長し易い¹⁾と言われている角度関係にある、共通 $\langle 111\rangle$ 軸 ~ 40 度回転関係はほとんど存在しなかった。一次再結晶後の弱加工により、立方体方位粒および隣接する結晶粒がどの程度結晶回転するのか、またそれらの粒界性格がどのように変化するのかについては、後報で詳しく述べる。

箔の場合、立方体集合組織を発達させるために、強圧延加工が必要なことから、強加工による β 繊維集合組織^{2,3)}が立方体方位粒の成長機構に深く関係しているであろう。加えて、1 mm 厚さ以上の圧延板と比べると箔では厚さが減少するので、圧延ロール径と箔厚さとの比 L/d が急激に増加し、いわゆる圧延組織に、ロールと試料との摩擦による剪断変形が付加されて不均質加工組織⁴⁾が形成される。強圧延加工に引き続き行われる中間の焼きなまし時に出現する一次再結晶の立方体方位粒⁵⁾すなわち本報告で述べた立方体方位粒の多い領域は、軽圧延と最終焼きなましにより、大きく粒成長し立方体集合組織を形成すると考えられる。箔厚さ $100\ \mu\text{m}$ 以下になると、不均質一次再結晶組織の分布状態が $500\ \mu\text{m}$ 厚さ試料と比べて、大きく変わる可能性が考えられる。

3.2 再結晶焼きなまし後の板面集合組織

従来行われてきたX線極点図の結果との対比を可能にするために、同一試料面の板表面および板厚中央面を用いて、X線極点図とEBSP測定による $\{111\}$ 極点図を比較した。薄板表面におけるEBSP測定では、圧延軸対称性が無く、立方体方位成分はまったく認められなかった。しかし同一試料を用いたX線測定では、これまでの報告と同様明らかな軸対称性があり、測定方法の違いによる差が認められた。ま

た、EBSP測定による板厚中央面上では、主成分はR1方位(結晶方位表記は文献(6)に従った)であり、副方位成分として立方体方位がわずかに認められるだけであったが、同一試料のX線測定結果では、まったく逆の結果が得られ、主方位は立方体方位であり、わずかに副方位成分としてR1方位が認められた。このような板面測定結果の大きな相違の原因は、照射面積の差か、あるいは照射深さの差に基づくと考えられる。X線照射面積は、 $10\ \text{mm}\times 10\ \text{mm}$ であり、EBSP測定面積は $100\ \mu\text{m}\times 100\ \mu\text{m}$ と差がある。しかし測定場所を移動してEBSP測定を行った結果いずれも同様の極点図が得られたことから、結果の差は面積差ではないと言える。照射深さについて考えると、X線源に銅管球を使用したので、X線結果は試料表面から数十 μm 深さまでに存在する結晶粒からの情報を含むが、一方のEBSP測定では、試料表面から $0.5\ \mu\text{m}$ 深さにある結晶粒からの情報とみなせる。これらのことから両測定法による結果の差は、主に照射深さの差に基づく結論された。これまで多くの集合組織研究がX線極点図測定により行われてきたが、 μm オーダーの不均質集合組織に対しては、照射深さを考慮する必要があり、X線による極点図結果だけでは不十分である。今後の詳細な結晶方位制御に対して、EBSP測定による結晶方位解析が有効なことが明らかになった。

4. おわりに

電解コンデンサ用高純度アルミニウム熱延板を用いて、一次再結晶焼きなまし後の薄板の圧延平行断面における結晶方位分布図を作成した。その結果、薄板の表面と板厚中央部との中間に立方体方位結晶粒の特に多い領域が出現することを見出した。 μm オーダーでの不均質組織が生ずる場合、EBSP測定から得られる結晶方位情報は、集合組織制御において有効かつ強力な研究手段となることが明らかになった。

本研究遂行に当たり、有益なアドバイスをいただいた、日本大学生産工学部の伊藤邦夫教授に感謝致します。

文 献

- 1) S. Kohara, Parthasarathi M. N. and Beck P. A.: Trans. Metall. Soc. A.I.M.E., **211**(1958), 875-877.
- 2) 例えば、F. J. Humphreys and M. Hatherly: *Recrystallization and Related Annealing Phenomena*, Pergamon, (1995), 327-361.
- 3) S. Nakashima: *The Textures*: Mauzen, (1984), 79-116.
- 4) S. Saimoto, R. G. Kamat, P. Clarke and P. Van Houtte: Proceedings of Textures and Microstructures, **21**(1993), 109-120.
- 5) F. Seki and T. Kamijo: Journal of Institute of Light Metals, Vol. **48**(1998), 507-510.
- 6) K. Ito: Journal of Institute of Light Metals, **43**(1993), 285-293.