

## Die Polygonisation und Rekristallisation von Reineisen und ihre Bedeutung für die Herstellung von $\alpha$ -Eisen-Einkristallen

Von

A. Kochendörfer, W. Kayser und H. Jörgens

Aus dem Max-Planck-Institut für Eisenforschung, Düsseldorf

Mit 3 Abbildungen

(Eingegangen am 11. März 1971)

### *The Polygonization and Recrystallization of Pure Iron and its Significance in the Production of $\alpha$ -Iron Monocrystals*

Pure iron with carbon content less than 0.002% by weight, when quenched from the  $\gamma$ -region and then stretched or rolled at room temperature, shows no microscopically detectable changes in its metallographic structure at annealing temperatures below 500° C. Polygonization is observed at higher annealing temperatures and low degrees of deformation, recrystallization only at higher degrees of deformation. If the same iron in the recrystallized state is subjected to low tensile stress and annealed near  $A_3$ , it recrystallizes with formation of coarse grains or large monocrystalline regions. Taking an iron containing 0.004% C by weight but otherwise of comparable purity, coarse grains or monocrystals are obtained at low tensile stress from both initial textures. These findings are discussed together with related problems in the production of monocrystals from  $\alpha$ -iron.

Aus dem  $\gamma$ -Gebiet abgeschrecktes und dann bei Zimmer-temp. gerecktes oder gewalztes reines Eisen mit einem Kohlenstoffgehalt unter 0,002 Gew% zeigt bei Glühtemperaturen unterhalb 500° C keine mikroskopisch nachweisbaren Gefügeänderungen, bei höheren Glühtemp. und kleinen Verformungsgraden Polygonisation, und erst bei größeren Verformungsgraden Rekristallisation. Wird dasselbe Eisen im rekristallisierten Zustand geringen Reckgraden unterworfen und nahe  $A_3$  geglüht, so rekristallisiert es unter Bildung von groben Körnern oder großen einkristallinen Bereichen. Bei einem Eisen mit sonst vergleichbarer Reinheit, aber mit einem C-Gehalt von 0,004 Gew% werden bei beiden Ausgangsgefügen nach geringen Reckgraden grobe Körner oder Einkristalle erhalten. Diese Befunde und die damit im Zusammenhang stehenden Probleme der Herstellung von Einkristallen aus  $\alpha$ -Eisen werden erörtert.

In einer früheren Mitteilung<sup>1</sup> haben wir das Polygonisations- und Rekristallisationsverhalten von reinem Eisen in Abhängigkeit von der Dehnung unter einer bei Raumtemperatur erfolgten Zugbeanspruchung und von der Glühtemperatur beschrieben. Im folgenden soll über weitere Untersuchungen berichtet werden, bei denen die Zugverformung durch Walzen bei Raumtemperatur ersetzt worden ist, um zu höheren Formänderungen gelangen zu können. Die damit in Zusammenhang stehenden Probleme der Herstellung von Einkristallen aus Reineisen durch Rekristallisation werden kurz besprochen. Bezüglich weiterer Herstellungsverfahren, z. B. durch Zonenschmelzen, sei auf <sup>3</sup> verwiesen.

#### Vorbehandlung der Proben — Reinheitsgrad der Eisensorten

Im Anlieferungszustand enthielten alle drei untersuchten vakuumgeschmolzenen Eisensorten 4/1000 Gew% Kohlenstoff und hatten die in Tab. 1 angegebenen Gehalte an den weiteren Elementen. Die Reinigung der Sorten A und B erfolgte in Magnesia (MgO)-Tiegeln<sup>4</sup>, die der Sorte C in einem Kristallkalk (CaO)-Tiegel<sup>5</sup>. Aus Tab. 1 ist zu entnehmen, daß durch die Verwendung des Kristallkalktiegels besonders der Si-Gehalt bei gleichzeitig niedrigem C-Gehalt stark herabgesetzt werden konnte.

Nach dem Warm Schmieden der Gußblöcke zu Stangen, anschließend Warm- und Kaltwalzen zu Streifen von 3,5 bis 7 mm Dicke, erfolgte Glühen bei 950° C in einer Atomsphäre von gereinigtem Wasserstoff über die in Tab. 1 bezeichneten Zeiten\*. Die unterschiedliche Wirkung der verschiedenen Glühdauern auf den C-Gehalt zeigt Abb. 1. Demnach tritt zwischen 10 und 15 Stdn. eine rasche Erniedrigung dieses Gehalts auf rund 2/1000 Gew% ein. Die Analysen in unserem Institut haben Werte zwischen 1/1000 und 2/1000 Gew% ergeben, wie sie in Tab. 1 angegeben sind. Nur das Eisen C hat den ursprünglichen C-Gehalt von 4/1000 Gew% beibehalten. Die entscheidende Folge dieser Tatsache wird unten besprochen werden.

Tabelle 1. Gehalte in 1/1000 Gew% der Verunreinigungen der Eisensorten A bis C nach den bezeichneten Glühzeiten  $t_{950}$  bei 950° C

Eisen	$t_{950}$	C	Si	Mn	P	S	N	O	Al	Cu
A <sup>1</sup>	24	1—2	22	4	5	10	1	2		
B <sup>2</sup>	16	1—2	9		<1	2	1	2	3	2
C	2	4	<1	0,1	3	2	2	2	1	

\* In <sup>2</sup> ist die Glühdauer vorsehentlich mit 6 Stdn. angegeben.

Am Ende der Glühzeit wurden die Proben entweder im kalten Wasserstoffstrom oder in Wasser abgeschreckt und hatten dann eine mittlere Kornzahl von rund  $20/\text{mm}^2$ .

### Ergebnisse für die Eisensorten A und B

#### *Ausgangsgefüge durch Abschrecken aus dem $\gamma$ -Gebiet erhalten*

Die langfristig bei  $950^\circ\text{C}$  geglühten und abgeschreckten Proben wurden zwischen 10 und 97% kaltgewalzt und dann 20 Stdn. zwischen

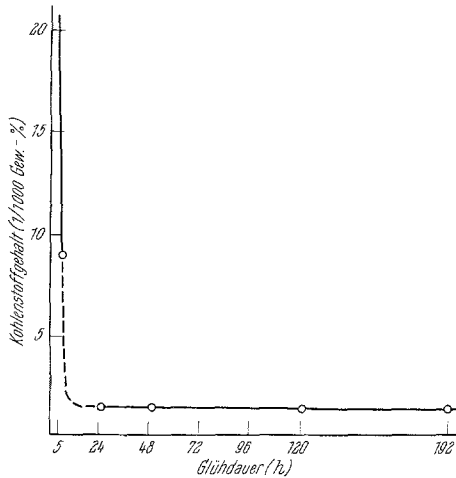


Abb. 1. Kohlenstoffgehalt in Armco-Eisen in Abhängigkeit von der Glühdauer bei  $950^\circ\text{C}$  in Wasserstoffatmosphäre. Nach <sup>7</sup>

$500$  und  $900^\circ\text{C}$  in gereinigtem Wasserstoff geglüht. Die für das Eisen B erhaltenen Ergebnisse sind in Abb. 2 dargestellt.

Unterhalb einer Glüh Temperatur von  $550^\circ\text{C}$  findet keine lichtmikroskopisch nachweisbare Änderung des Gefüges statt, wie groß auch der Walzgrad ist. Bei höheren Glüh Temperaturen tritt unterhalb der durch die gestrichelte Kurve in Abb. 2 bestimmten Walzgrade Polygonisation auf. Sie stellt einen Erholungsvorgang dar, bei dem die ursprünglichen Körner erhalten bleiben, aber innerhalb derselben Unterkörner mit geringen Orientierungsunterschieden entstehen<sup>6</sup>. Aufnahmen von Polygonisationsgefügen sind z. B. in <sup>1</sup> wiedergegeben. Erst oberhalb der durch die gestrichelte Kurve gegebenen Walzgrade findet Rekristallisation durch Kornneubildung statt. Die dabei entstehende Korngröße hängt im wesentlichen von der Glüh temp. ab, mit deren Zunahme sie stark ansteigt, jedoch nur wenig vom Walzgrad. Die Schwankungen der Korngröße innerhalb einer Probe sind um so kleiner, je größer die Korn-

größe ist. Am gleichmäßigsten ist das in der Umgebung von  $900^{\circ}\text{C}$  erhaltene Gefüge mit rund  $1\text{ Korn/mm}^2$ .

Da Eisen A, bei dem die Proben vor der Schlußglühung im Zugversuch gereckt anstatt gewalzt wurden, nur bis zu der Gleichmaß-

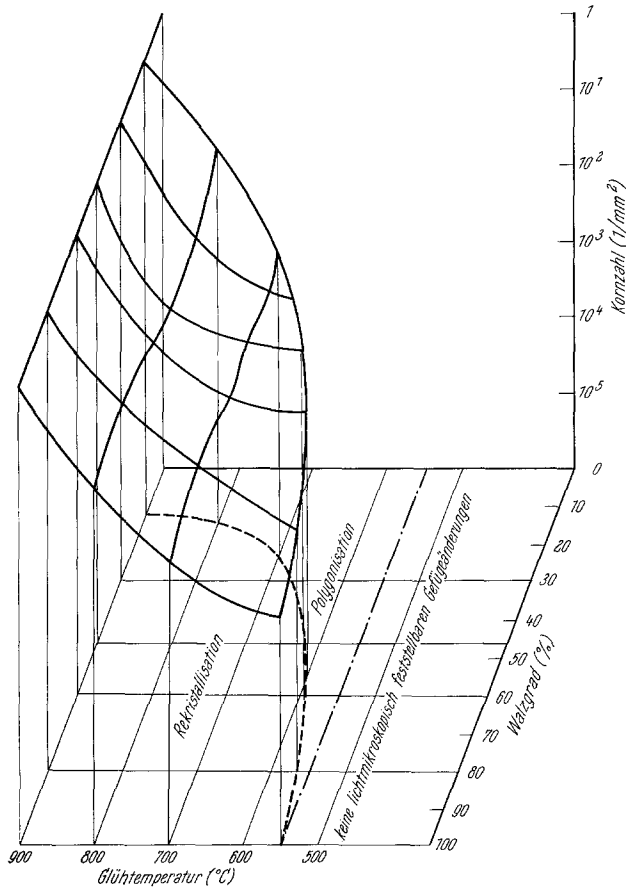


Abb. 2. Polygonisations- und Rekristallisationsdiagramm des Eisens B nach Tab. 1

dehnung von rund 30% gereckt werden konnte, sind die mit diesem Material erhaltenen Ergebnisse im Umfang geringer. Die Grenzkurven zwischen dem unveränderten Gefüge, der Polygonisation und der Rekristallisation fügen sich genau in die von Abb. 2 ein, in Folge der Unterschiede im Reinheitsgrad kann jedoch die durch Rekristallisation erhaltene Kornzahl bis zu dem Faktor 10 größer, die Korngröße also bis zu dem Faktor 3 kleiner sein als Abb. 2 (siehe z. B. Abb. 6 in 1).

*Ausgangsgefüge durch Rekristallisation nach Kaltverformung erhalten*

Wird das Eisen B nach der im vorhergehenden Abschnitt erfolgten Rekristallisation geringen Reckgraden zwischen 1 und 4% unterworfen und dann möglichst dicht unterhalb des Umwandlungspunktes  $A_3$ , z. B. bei  $880^\circ\text{C}$  geglüht, so verhält es sich ganz anders als dasselbe Eisen, wenn die Reckung nach Abkühlung aus dem  $\gamma$ -Gebiet erfolgt. Abb. 3

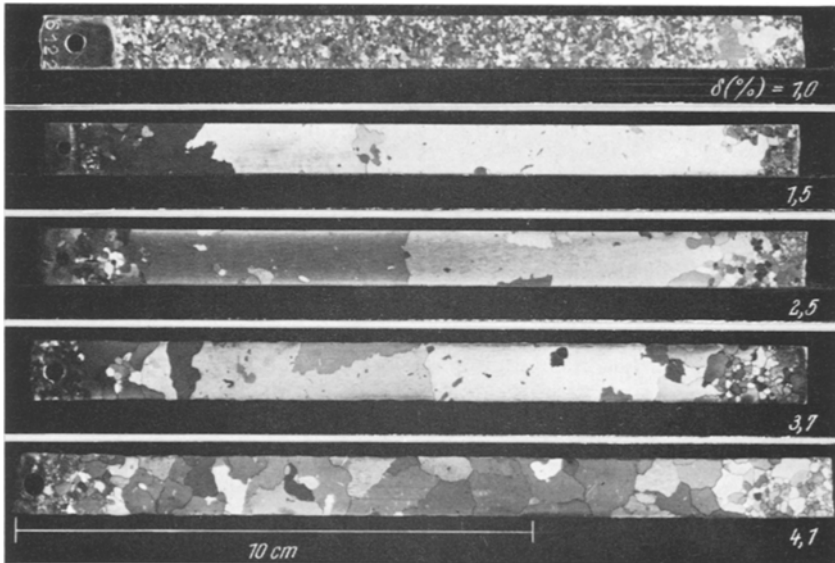


Abb. 3. Gefüge der Proben des Eisens B, die nach den bezeichneten Reckgraden  $\delta$  je 24 Stdn. bei  $890^\circ\text{C}$  in trockenem gereinigtem Wasserstoff geglüht worden waren. Das Ausgangsgefüge war durch Rekristallisation nach Kaltwalzen erzeugt worden und hatte eine Kornzahl von  $1/\text{mm}^2$

zeigt, daß stets Rekristallisation mit grobem Korn auftritt. Bei Reckgraden zwischen 1,5 und 3,5% entstehen große einkristalline Bereiche, und im günstigsten Fall erstreckt sich ein Kristall über die ganze Probenlänge mit Ausnahme der Einspannenden für das Recken. Über der Grundfläche des Diagramms in Abb. 2 erhebt sich also in diesem Fall links hinten ein steil aufragender Bereich der Grobkornbildung.

Das Verhalten des Eisens in diesem Ausgangszustand bei tieferen Glühtemperaturen wurde nicht untersucht, da die Bemühungen nach der Aufstellung des Diagramms in Abb. 2 darauf gerichtet waren, Einkristalle herzustellen und das zur Verfügung stehende Material hierfür benötigt wurde. Es ist aber zu erwarten, daß auch hierbei ein Bereich mit Polygonisation und einer ohne nachweisbare Gefügeänderung besteht.

## Ergebnisse für die Eisensorte C

Dieses Eisen rekristallisiert bei beiden Methoden zur Erzeugung des Ausgangsgefüges im normalen und im grobkornbildenden Bereich. Große Einkristalle können also gewonnen werden, wenn sowohl das durch Rekristallisation nach Kaltverformung als auch durch Abschreckung aus dem  $\gamma$ -Gebiet erhaltene Gefüge einer kritischen Reckung zwischen 1,5 und 3,5% unterworfen und dann dicht unterhalb  $A_3$  geglüht wird. Sonst unterscheidet sich die Korngröße von der nach Abb. 2 bis zu etwa denselben Faktor wie beim Eisen A.

## Erörterung der Ergebnisse

Zur Deutung der erhaltenen Ergebnisse ist die Feststellung von *Chaudron* und Mitarb.<sup>7, 8</sup> von Bedeutung, daß mit abnehmendem Kohlenstoffgehalt die Polygonisation gegenüber der Rekristallisation begünstigt wird. Der Grund hierfür liegt darin, daß das Klettern der Versetzungen, das zur Polygonisation führt<sup>6</sup>, um so leichter erfolgt, je weniger es durch die an den Versetzungen angereicherten Zwischengitteratome behindert wird. Damit werden die Befunde insofern verständlich, als sich bei den Eisensorten A und B mit vermindertem Kohlenstoffgehalt vor den Rekristallisationsbereich ein Polygonisationsbereich einschleibt, und daß bei dem Eisen C mit dem höheren Kohlenstoffgehalt auch bei kleinen Reckgraden Rekristallisation mit Grobkornbildung auftritt. Nicht ohne weiteres verständlich ist dagegen der Befund, daß bei den Eisensorten A und B nach geringen Reckgraden auch Rekristallisation mit Grobkornbildung auftritt, wenn das Gefüge vor dem Recken durch Rekristallisation nach genügend starker Kaltverformung erhalten wird. Es muß daraus geschlossen werden, daß durch die Rekristallisation nach Kaltverformung ein Versetzungsgefüge entsteht, bei dem die für die Polygonisation erforderlichen Versetzungsbewegungen erschwert sind gegenüber denen in dem Versetzungsgefüge, das sich nach dem Abschrecken aus dem  $\gamma$ -Gebiet ausbildet. Diese Folgerung muß noch weiter experimentell untermauert und theoretisch begründet werden.

Zur Herstellung von  $\alpha$ -Eisen-Einkristallen

Die Schwierigkeiten bei der Herstellung von Einkristallen aus  $\alpha$ -Eisen sind bei allen Verfahren durch die  $\gamma, \alpha$ -Umwandlung bedingt. Bei dem Rekristallisationsverfahren verbietet es diese, Glühtemperaturen oberhalb des Umwandlungspunktes  $A_3 = 911^\circ \text{C}$  anzuwenden. Hohe Glühtemperaturen sind aber bei diesem Verfahren günstig. Dieses Problem fällt bei Eisen-Silicium mit Si-Gehalten um 3,5 Gew% weg, da dann das  $\gamma$ -Gebiet auf kleinere Konzentrationen eingeschnürt ist. Solche

Mischkristalle wurden und werden daher vielfach zum Studium der Eigenschaften von Eisenkristallen benutzt. Dabei ist jeweils zu prüfen, inwieweit sie tatsächlich dem reinen Eisen zugeschrieben werden dürfen. Es wurde stets aber auch versucht, Einkristalle aus Eisen ohne solche Siliciumzusätze herzustellen. Die Versuche begannen mit Armco-Eisen und wurden zu immer reinerem Eisen fortgesetzt. Im folgenden sollen einige Gesichtspunkte angeführt werden, die mit den oben beschriebenen Ergebnissen in Zusammenhang stehen.

Nach Untersuchungen an Armco-Eisen<sup>9</sup> ist der kritische Reckgrad um so größer, je kleiner die Kornzahl (je größer die Korngröße) ist. Bei diesem Eisen fällt er von 10% bei einer Kornzahl von 20/mm<sup>2</sup> rasch auf 4% bei 60/mm<sup>2</sup> ab, dann aber langsam auf 2,5% bei 500/mm<sup>2</sup>. Demnach ist der Bereich der Kornzahlen von 20 bis 50/mm<sup>2</sup> für die Herstellung von Einkristallen ungünstig, da schon bei geringen Schwankungen derselben die kleineren Körner unterkritisch, die größeren überkritisch gereckt werden. Es besteht dann die Gefahr, daß laufend vielkristalline Bereiche entstehen und die Herstellung von Einkristallen erfolglos bleibt. Kornzahlen über 150/mm<sup>2</sup> sind aber ebenfalls ungünstig, da schon kleine Ungenauigkeiten im Reckgrad zu über- oder unterkritischen Reckungen führen können. Günstig ist dagegen der Bereich der Kornzahlen um 80/mm<sup>2</sup>, da in ihm der kritische Reckgrad nur mäßig von der Kornzahl abhängt und weder Schwankungen der Korngröße noch Ungenauigkeiten im Reckgrad sich zu stark auswirken.

Diese an Armco-Eisen gewonnenen Ergebnisse lassen sich auf die reineren Eisensorten zahlenmäßig nicht übertragen, wie das Beispiel des Eisens B (Abb. 3) zeigt. Bei diesem besteht bei einer Kornzahl von 1/mm<sup>2</sup> ein Bereich des Reckgrades zwischen 1,5 und 3,5%, in dem große Kristalle entstehen. Sollte bei diesem Eisen der kritische Reckgrad mit abnehmender Kornzahl ebenfalls stark ansteigen, so müßte dies bei Kornzahlen unterhalb 1/mm<sup>2</sup>, also Korngrößen über 1 mm geschehen. Dieses Beispiel zeigt auch, daß bei geringen Verunreinigungen bestimmte Stoffeigenschaften stark vom Gehalt derselben abhängen.

Die früher aufgestellte Forderung, daß für eine erfolgreiche Herstellung großer Kristalle eine möglichst gleichmäßige Kornzahl in den Proben bestehen muß, bleibt allgemein bestehen. Sie ergibt sich aus der Abhängigkeit des kritischen Reckgrads von der Kornzahl. Da, wie erwähnt, die Kornzahl von 1/mm<sup>2</sup> bei den vorliegenden Versuchen die gleichmäßigste war, so hat sie zu den besten Ergebnissen geführt. Wichtig ist aber auch, daß die kritische Reckung möglichst sofort im Anschluß an die Erzeugung des Ausgangsgefüges erfolgt, da sonst auch bei diesen niedrigen Kohlenstoffgehalten eine Alterung einsetzt, die zu Fließbereichen mit der Ausbreitung von *Lüdersbändern* führt und die Vorgabe eines bestimmten Reckgrades nicht mehr erlaubt.

Die Schwierigkeiten, die bei kleinen C-Gehalten dadurch bedingt sind, daß das Stoffverhalten empfindlich von diesem Gehalt abhängt, werden bei der Herstellung von Eisen-Einkristallen vielfach dadurch umgangen, daß dem Eisen mehrere 1/1000 Gew% C belassen werden. Durch Reaktion mit der umgebenden Wasserstoffatmosphäre wird der Kohlenstoffgehalt im Einkristall ebenfalls auf den Wert von 1/1000 bis 2/1000 Gew% reduziert. Allgemein ist ein Ofen mit einem örtlich starken Temperaturgradienten von einigen 100° C/mm, durch den die Probe hindurchgezogen wird, von Vorteil<sup>8, 10, 11</sup>. Dadurch nimmt jede Querschnittsschicht rasch die Endtemperatur an und die Polygonisation, die als thermisch aktivierter Vorgang zeitabhängig ist, wird praktisch unterdrückt, auch wenn sie bei langsamerer Erhitzung stattfinden würde. Außerdem ist die Rekristallisationszone sehr schmal, so daß sich die orientierungsbeeinflussende Wirkung des schon entstandenen Einkristalls an der Wachstumsfront voll entfalten kann und unerwünschte weitere Keimbildung vermieden wird.

Wir danken der Deutschen Forschungsgemeinschaft herzlich für die Unterstützung unserer Arbeit.

### Literatur

- <sup>1</sup> A. Kochendörfer und H. Ewertz, Arch. Eisenhüttenwes. **30**, 441 (1959).
- <sup>2</sup> A. Kochendörfer und W. Kayser, Arch. Eisenhüttenwes. **39**, 233 (1968).
- <sup>3</sup> K.-Th. Wilke, Methoden der Kristallzüchtung. Frankfurt a. M.-Zürich: H. Deutsch. 1963.
- <sup>4</sup> W. A. Fischer und A. Hoffmann, Stahl und Eisen **80**, 1497 (1960).
- <sup>5</sup> W. A. Fischer und A. Hoffmann, Arch. Eisenhüttenwes. **35**, 37 (1964).
- <sup>6</sup> A. Kochendörfer, Physikalische Grundlagen der Formänderungsfestigkeit der Metalle, 2. Aufl. Düsseldorf: Verlag Stahleisen. 1967.
- <sup>7</sup> C. de Beaulieu, Publ. IRSID, Sér. A, Nr. 132 (1956).
- <sup>8</sup> J. Talbot, C. de Beaulieu und G. Chaudron, Rev. Métallurg. **51**, 839 (1954); J. Talbot, Publ. IRSID, Sér. A, Nr. 137 (1956).
- <sup>9</sup> C. Edwards und L. B. Pfeil, J. Iron Steel Inst. **109**, 129 (1924); H. Gries und H. Esser, Arch. Eisenhüttenwes. **2**, 749 (1928/29).
- <sup>10</sup> B. Šesták, Kristall und Technik **2**, 191 (1967).
- <sup>11</sup> H. Yoshida, B. Liebmann und K. Lücke, Acta Met. **7**, 1 (1959); G. Ibe, Dissertation Techn. Hochschule Aachen (1965); F. Strier, Dissertation Techn. Hochschule Aachen (1968).