

.....  
**論 文**  
 .....

UDC 669.14.018.262 : 669.14-122.2-415 : 669.3 : 620.186.5 : 548.53

## 低炭素鋼板の再結晶集合組織におよぼす Cu 添加の効果\*

阿部 秀夫\*\* · 鈴木 竹四\*\*\* · 戸川 史江\*\*\*

### Effect of Copper Addition on the Recrystallization Texture of Low Carbon Steel Sheet

Hideo ABE, Takeshi SUZUKI, and Fumie TOGAWA

#### Synopsis:

In a low carbon steel containing 0.56% Cu and 0.054% C, a recrystallization texture similar to that of aluminium killed steels is obtained by a process in which the hot strip is austenitized at 950°C for 30 min, quenched into water, cold-rolled to 70% reduction and finally annealed at 700°C for 3 hrs with a heating rate of 100°C/hr. The main preferred orientation in the recrystallization texture is {111} <110>. The intensity of the {111} <110> component after the final annealing strongly depends on the heating rate.

The sharp {111} <110> preferred orientation does not develop in a similar steel containing 0.56% Cu and 0.008% C, showing that the carbon content has a critical effect on the development of the {111} <110> oriented recrystallized grains.

(Received June 19, 1973)

#### 1. 結 論

少量の銅を添加した低炭素鋼または工業用純鉄の冷間圧延板の再結晶および再結晶集合組織に関しては、すでにいくつかの報告がある<sup>1)~11)</sup>。

1959年に RICKETT と LESLIE<sup>1)</sup> は、C=0.029~0.08%, Mn=0.36~0.63%, Cu=0.01~1.14% の組成範囲の低炭素鋼を、704° または 899°C で溶体化処理後空冷し、約 60% の冷間圧延を行なった後、再結晶過程と組織を調べた。その結果、Cu の析出により再結晶が遅滞すること、また Cu=0.4~0.8% を含む試料において、最終焼鈍を 2 段焼鈍とし、第 1 段焼鈍を 482°~566°C とするか、または昇温速度約 93°C/hr の最終焼鈍を行なうと、1 次再結晶後に顕著な展伸粒組織となることを示した。しかし、その研究では再結晶集合組織は測定していない。1961 年の LESLIE<sup>2)</sup> の研究は、C=0.0016 および 0.0024%, Mn=0.001%, Cu=0.001 および 0.80% の組成の試料を 925°C でオーステナイト化・焼入れした後、焼入れのまま、または 700°C で析出処理を行なった後、約 90% の冷間圧延を行ない、最終焼鈍後の再結晶集合組織を調べている。その結果によれば、Cu の析出により、再結晶粒は展伸粒となるがその再結晶集合組織は見かけ上冷間圧延集合組織がかなり残留した結果になっている。

このように、純鉄および低炭素鋼の冷間圧延板の再結晶集合組織に及ぼす Cu 添加の影響については最近まで十分な知識が得られないまま残されていたが、清水、高橋、末宗<sup>3)</sup> は上述の RICKETT と LESLIE<sup>1)</sup> の研究で伸長再結晶粒組織が得られていることに注目して同様な実験を行ない、とくに  $\bar{r}$  値と再結晶集合組織を詳しく調べた。その結果の一例によると、C=0.052%, Mn=0.18%, Cu=0.58% の組成の Cu 添加低炭素鋼を、930°C でオーステナイト化後焼入れ、つぎに 500°~650°C で 80~640 min の析出処理を行ない  $\epsilon$ -Cu を析出させた後、約 70% の冷間圧延を行ない、昇温速度約 10°C/hr、保持温度 700°C の最終焼鈍を行なうと、{111} <110> 優先方位に集積をもつ再結晶集合組織が得られ、高い  $\bar{r}$  値を示すことを報告した。さらに小西、大橋、有馬<sup>4)~11)</sup> は、Cu 添加低炭素鋼の析出、再結晶および再結晶集合組織におよぼす C および Mn 含有量の影響を詳細に研究した。その研究においては、C=0.007~0.064%, Mn=0.001 および 0.11%, Cu=0.01~0.73% の組成範囲の試料について、950°C でオーステナイト化後空冷または水中焼入れ、およびそれに 350°C-1hr または 650°C-10hr の析出処理を行なった後、約 70% の冷間圧延を行

\* 昭和48年4月本会講演大会にて発表

昭和48年6月19日受付

\*\* 東京大学工学部 工博

\*\*\* 東京大学工学部

ない、最終焼鈍は  $20^{\circ}\text{C}/\text{hr}$  の昇温速度で  $700^{\circ}\text{C}-10\text{hr}$  としている。

Cu を添加した純鉄または低炭素鋼についてのいままでの研究結果の要旨は以上のとおりであるが、そのなかでとくに約  $0.05\%$  の C と約  $0.5\%$  の Cu を含む低炭素鋼において、アルミニウムキルド鋼と同様な  $\{111\}\langle 110 \rangle$  型再結晶集合組織が得られることが注目される。したがって、Cu 添加低炭素鋼板の再結晶過程および再結晶集合組織についての研究は、 $\{111\}\langle 110 \rangle$  型再結晶集合組織の成因を明らかにするために重要と考えられるが、まだそれに関する実験事実の集積が不十分である。そこで著者らは、従来の諸研究ではまだ明確なデータが与えられていない条件範囲のうち、とくに再結晶集合組織に及ぼす最終焼鈍の昇温速度の影響について次のような実験を行なった。

## 2. 試料および実験方法

試料は板厚約  $2.8\text{mm}$  の熱間圧延板で Table 1 に試料記号と鋼塊分析値を示す。その熱間圧延板を  $950^{\circ}\text{C}$  で  $30\text{min}$  オーステナイト化焼鈍した後  $0^{\circ}\text{C}$  の水中に焼入れ、圧延率  $70\%$  の冷間圧延を行なった。実験は次の 2 項目について行なった。

### (1) 再結晶集合組織におよぼす最終焼鈍昇温速度の影響

冷間圧延板から切りとった試片を  $25^{\circ}\text{C}/\text{hr}$ ,  $50^{\circ}\text{C}/\text{hr}$ ,  $100^{\circ}\text{C}/\text{hr}$ ,  $500^{\circ}\text{C}/\text{hr}$ , 電気炉投入急熱 ( $400^{\circ}\sim 650^{\circ}\text{C}$

の間の平均昇温速度は約  $6000^{\circ}\text{C}/\text{hr}$ ), および鉛浴中急熱の 6 段階の昇温速度で  $700^{\circ}\text{C}$  まで加熱し、 $3\text{hr}$  保持後空冷した。

### (2) 再結晶進行過程

冷間圧延試片に対し昇温速度  $100^{\circ}\text{C}/\text{hr}$  で  $700^{\circ}\text{C}$  まで加熱する過程における回復・再結晶を調査した。また  $50^{\circ}\text{C}/\text{hr}$  の昇温速度で  $600^{\circ}\text{C}$  まで加熱し  $600^{\circ}\text{C}$  に  $54\text{hr}$  保持して再結晶をほとんど完了した試料も作製した。

実験 (1), (2) において、ビッカース硬さ測定、光学および電子顕微鏡組織観察、X線ディフラクトメーターによる極密度および  $\{200\}$  極点図の測定を行なった。電顕観察用薄膜は研磨紙による減厚および化学研磨 (フッ酸: 過酸化水素: 水 =  $5:85:10$ ) により約  $0.1\text{mm}$  まで薄くしたのち、リン酸・クロム酸飽和溶液を用いた電解研磨により作製した。極密度はリン酸: 過酸化水素 =  $1:1$  の溶液で仕上げた板厚中心面について Mo  $K\alpha$  線により  $\{222\}$ ,  $\{211\}$ ,  $\{200\}$  および  $\{110\}$  積分強度を測定し、不規則標準試料の積分強度に対する比 ( $I/I_0$ ) で表わした。 $\{200\}$  極点図は Co  $K\alpha$  線を用い Schulz 反射法によって投影図中心から  $62^{\circ}$  まで測定し、ついで Decker-Asp-Harker 透過法によつて投影図外周部を測定した。

## 3. 実験結果

Photo. 1 の A および B は、それぞれ CUK 1 および CUK 2 の熱間圧延板を、 $950^{\circ}\text{C}$  から焼入れた状態の光

Table 1. Chemical composition (wt%).

Specimens	C	Si	Mn	P	S	Cu
CUK 1	0.008	0.007	0.001	0.002	0.003	0.56
CUK 2	0.054	0.006	0.001	0.002	0.002	0.56

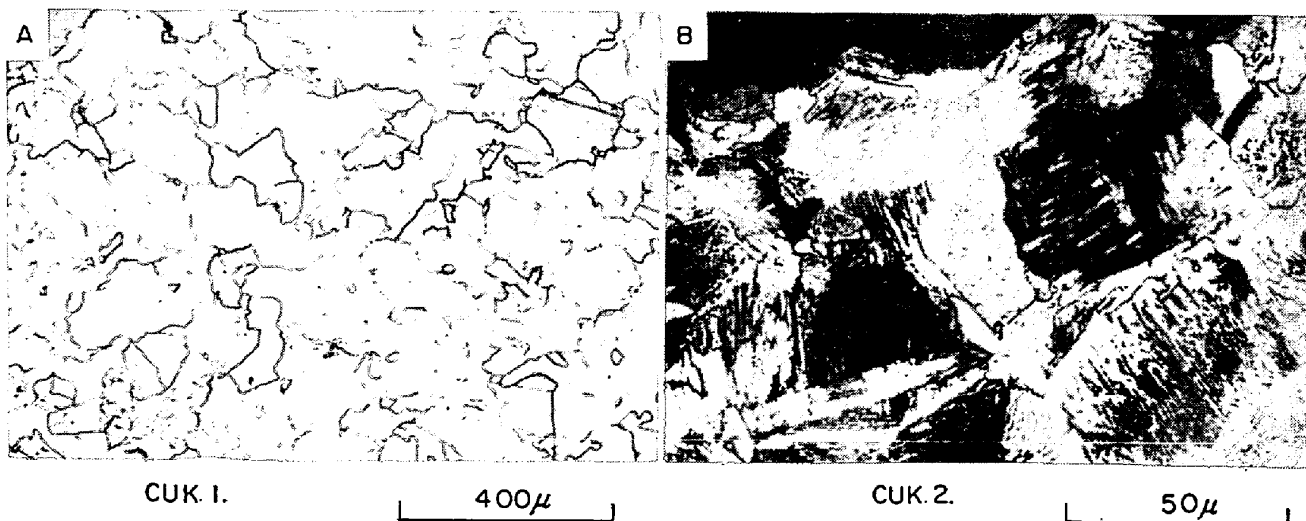


Photo. 1. Microstructures of hot strips after quenching from  $950^{\circ}\text{C}$ .

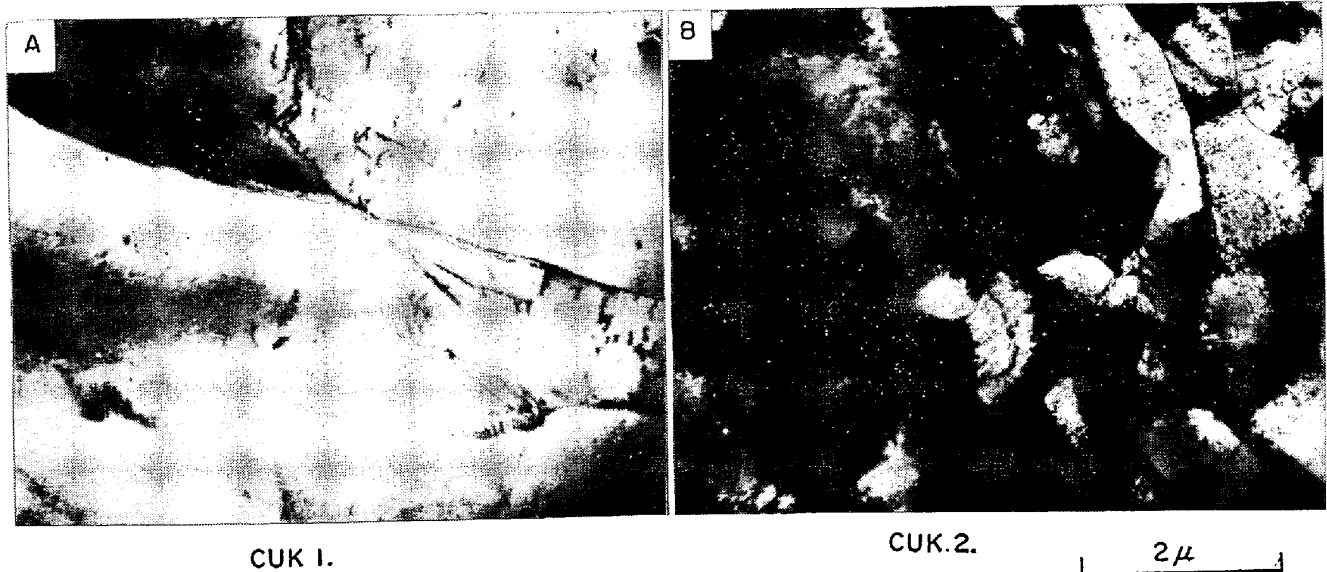


Photo. 2. Transmission electron micrographs of hot strips after quenching from 950°C.

学顕微鏡組織である。Photo. 2 に同じく焼入れ後の透過電顕組織を示す。CUK 1 の焼入れ組織は単一相の等軸粒組織で転位密度は比較的高いが転位の分布状態は比較的均一である。CUK 2 の焼入れ組織は微細な subgrains から成り、massive martensite 状の組織が観察されたが、そのほかにフェライト粒と思われる転位密度の比較的低い大きい粒も少数観察された。焼入れ後のビッカース硬度測定値は CUK 1 が 139, CUK 2 が 187 であった。

950°C から焼入れた熱間圧延板に 70% の冷間圧延を行なった後の冷間圧延集合組織を Fig. 1 に {200} 極点図で示す。図(a)の CUK 1, 図(b)の CUK 2 ともに  $\langle 110 \rangle$  軸を圧延方向に平行にもつ優先方位群と {111} 面が圧延面に平行な方位群を含む。CUK 1 のほうが {112}  $\langle 110 \rangle$  方位成分がわずかに強く、CUK 2 は {100}  $\langle 011 \rangle$  方位成分が強くなっているが、両者の優先方位には大きな違いはない。しかし冷間圧延前の焼入れ組織の差異から判断して両者の冷間圧延後の結晶方位分布は、微視的にはかなり異なっていると考えられる。

### 3.1 再結晶集合組織におよぼす最終焼鈍の昇温速度の影響

冷間圧延試片について昇温速度 25°C/hr ~ 鉛浴中急熱の 6 段階の昇温速度で最終焼鈍を行ない、{222}, {211}, {200} および {110} 各極密度の変化を測定した。Fig. 2 にその結果を示す。まず {222} 極密度の変化に注目すると、CUK 1, CUK 2 ともに約 100°C/hr の昇温速度で {222} 極密度が極大値をとる。CUK 2 のほうが昇温速度依存性がより大きい。他の極密度はいずれも弱く、

昇温速度によつてとくに顕著な変化は示さない。CUK 1, CUK 2 ともに昇温速度が著しく速くなると再結晶集合組織は不規則に近づく。

Photo. 3 および Photo. 4 にそれぞれ CUK 1 および CUK 2 の最終焼鈍後の組織を示す。また Fig. 3 には最終焼鈍の昇温速度による平均再結晶粒径および伸長比の変化を示す。Fig. 2 における {222} 極密度の変化と Fig. 3 の平均再結晶粒径あるいは伸長比の変化とは対応している傾向はあるが完全な対応は得られていない。再結晶粒径の測定は縦断面の約 400 個の粒について行なつたが多数の細かい粒が局所的にコロニーをなして存在することがあり Fig. 3 の測定値にはそのような混粒の影響も入っている。CUK 1 と CUK 2 の電気炉投入急熱試料における再結晶粒の大きさを比較すると、CUK 1 のほうが大きい。CUK 2 の場合電気炉投入急熱では Cu 析出の再結晶抑制効果がほとんどないといえる。

Fig. 2 のいくつかの測定点に対応する {200} 極点図を Fig. 4 に示す。(a), (b) はそれぞれ CUK 1 および CUK 2 を 100°C/hr で最終焼鈍した状態、(c) は CUK 2 を鉛浴中で急熱焼鈍した状態である。(a) は {011}  $\langle 100 \rangle$  方位および板面法線に平行な  $\langle 111 \rangle$  軸を共有する方位群に弱い集積があるがいずれも集積度は弱い。(b) は (a) に比較して {111}  $\langle 110 \rangle$  方位への集積が非常に強くその他の板面法線に平行な  $\langle 111 \rangle$  軸を共有する方位成分も含まれているが、主方位はアルミニウムキルド鋼と同じような {111}  $\langle 110 \rangle$  型再結晶集合組織といえる。(c) の鉛浴急熱は Fig. 2 の極密度の測定結果からも推定されるとおり、方位の分散が大きい。CUK 1 を鉛浴急熱

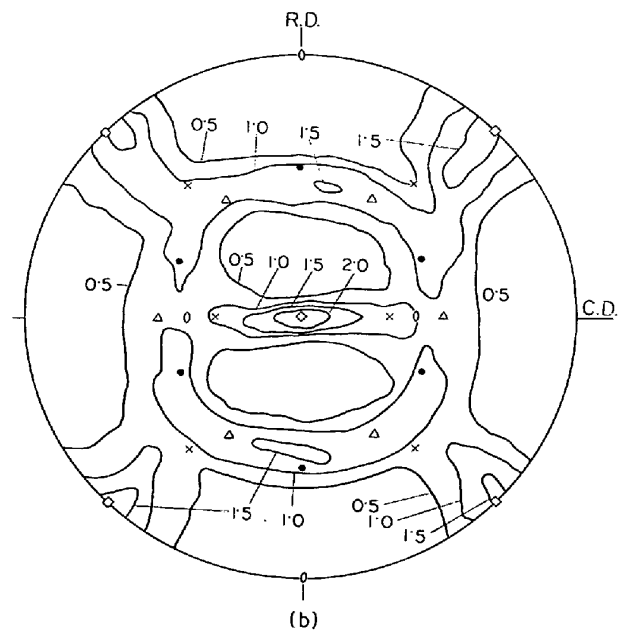
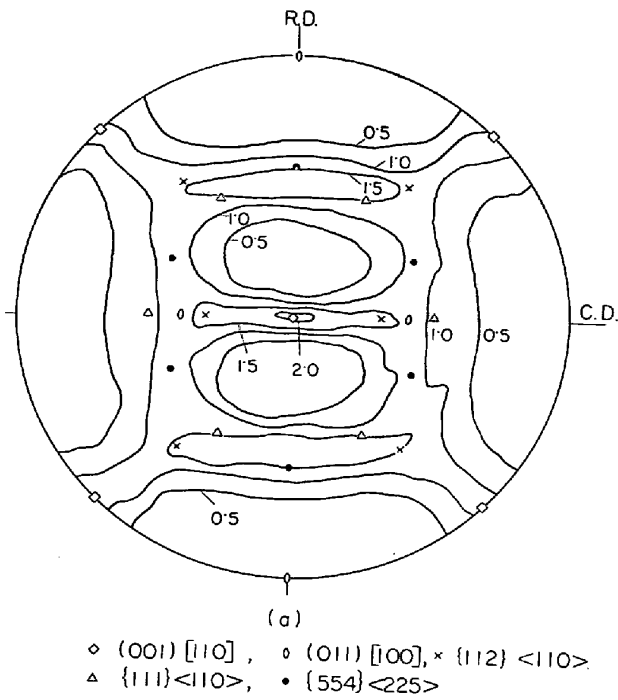


Fig. 1. {200} pole figures for cold-rolling textures of (a) CUK1 and (b) CUK2 specimens cold-rolled to 70% reduction. Both specimens were austenitized at 950°C for 30 min and quenched into 0°C-water before cold-rolling.

した場合も、(c)と同様の極点図を示した。

3.2 再結晶進行過程

適切な昇温速度 (50°~100°C/hr) で最終焼鈍を行なうと、CUK 1とCUK 2の再結晶集合組織に大きな差異が生じることがわかったが、つぎに両者の回復および

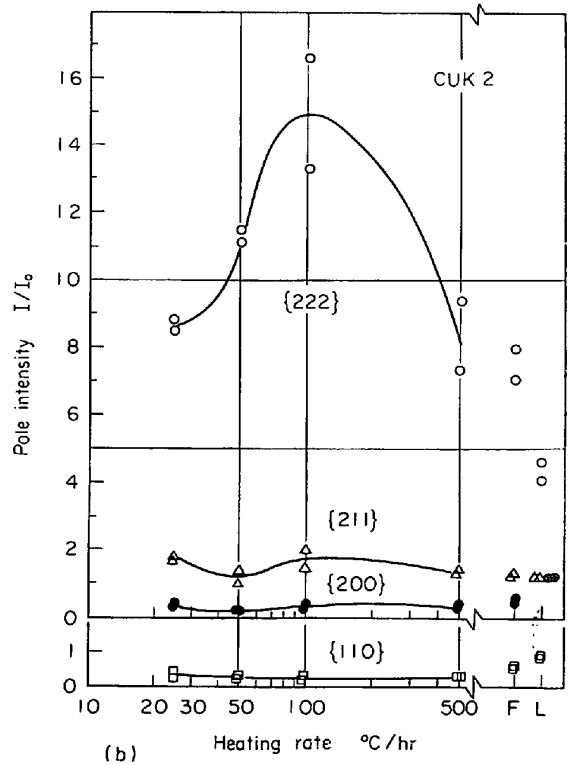
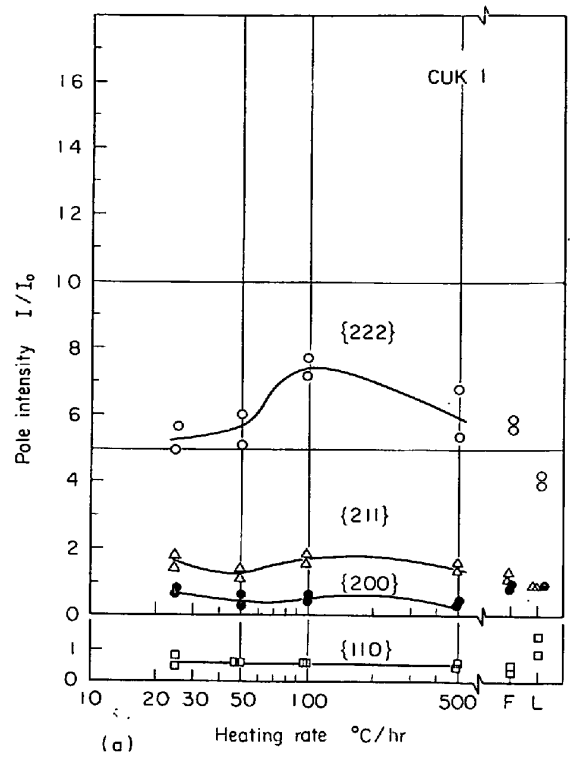


Fig. 2. Pole intensities of {110}, {200}, {211} and {222} after annealing at 700°C for 3 hrs, plotted as a function of heating rate. F denotes "rapid heating by putting a specimen into a tube furnace kept at 700°C" and L denotes "rapid heating by dipping a specimen into a lead bath". Figure (a) is for CUK1 and (b) for CUK2.

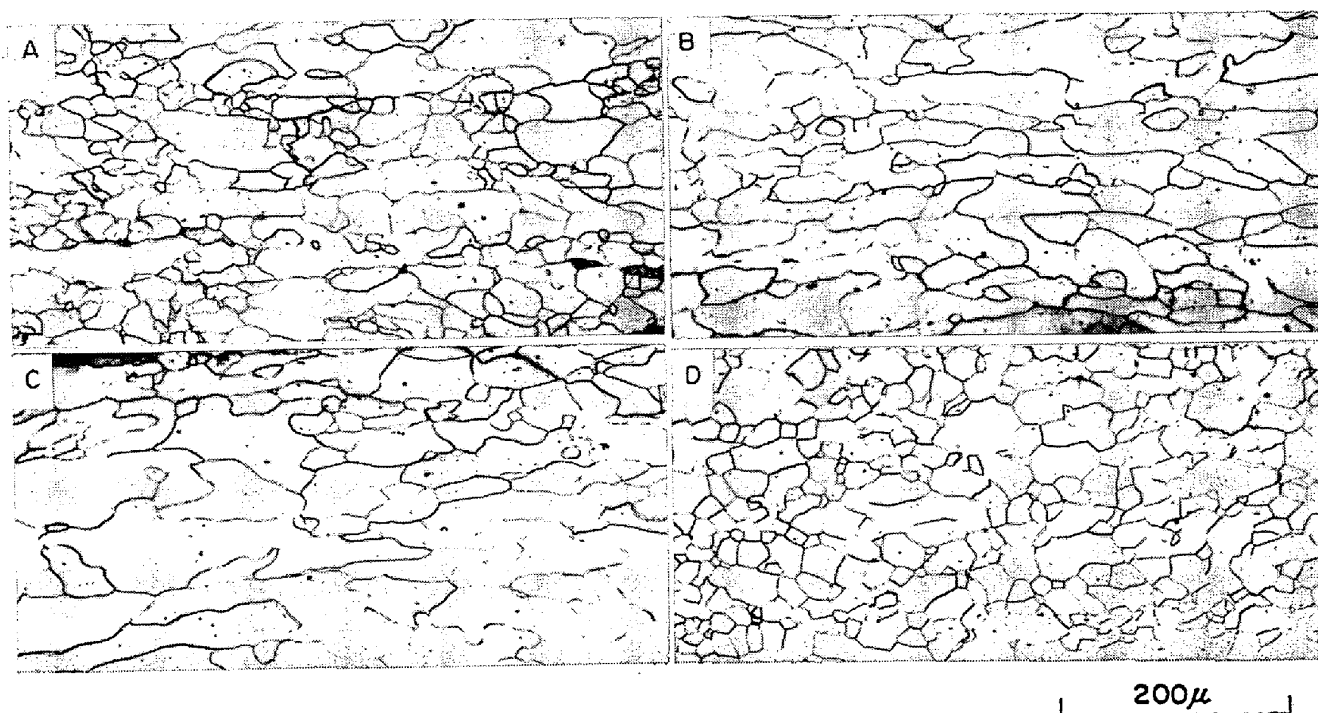


Photo. 3. Microstructures of longitudinal section for CUK1 specimens after final annealing at 700°C for 3 hrs, (A) with a heating rate of 25°C/hr; (B) with a heating-rate of 100°C/hr; (C) rapidly heated by inserting the specimen into a tube furnace kept at 700°C, and (D) rapidly heated by dipping the specimen into a lead bath kept at 700°C.

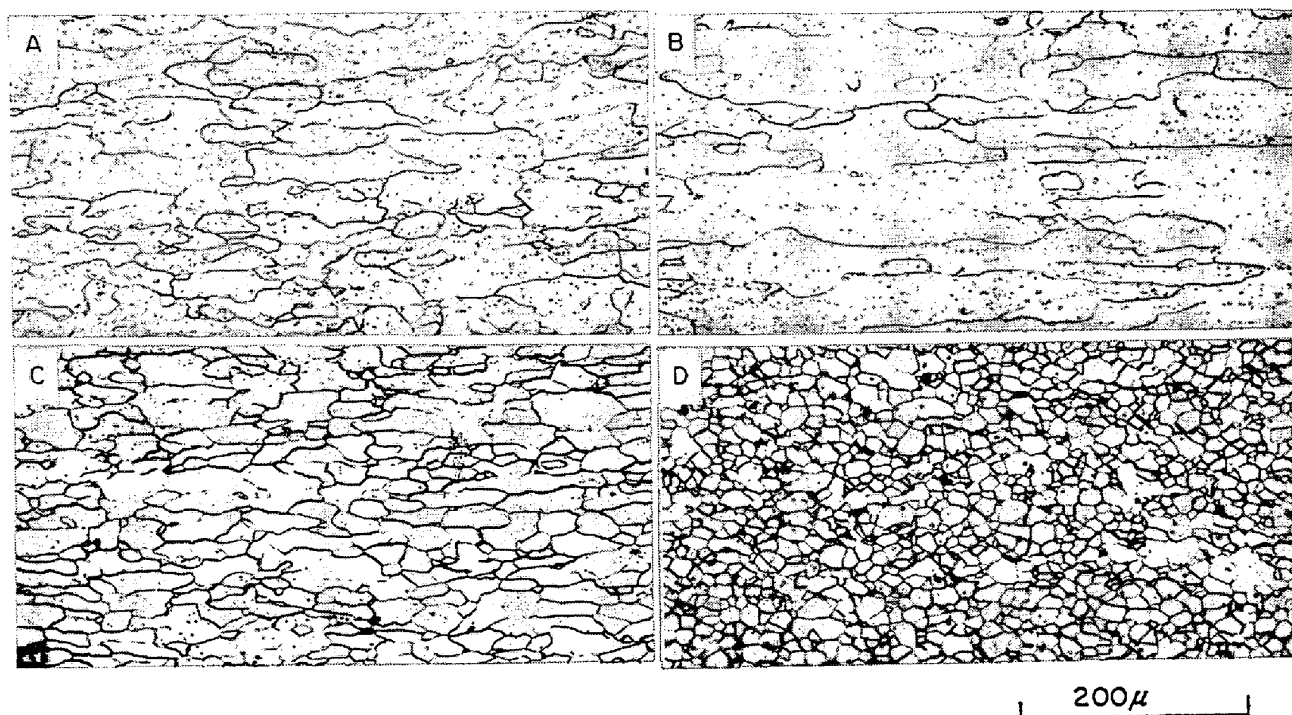


Photo. 4. Microstructures of longitudinal section for CUK2 specimens after final annealing at 700°C for 3 hrs; (A) with a heating rate of 25°C/hr; (B) with a heating-rate of 100°C/hr; (C) rapidly heated by inserting the specimen into a tube furnace kept at 700°C, and (D) rapidly heated by dipping the specimen into a lead bath kept at 700°C.

再結晶進行過程について述べる。

Fig. 5 は冷間圧延試片を昇温速度 100°C/hr で加熱しながら 200°C~700°C の間の温度から空冷し、硬さおよび再結晶率を測定した結果である。光学顕微鏡観察に

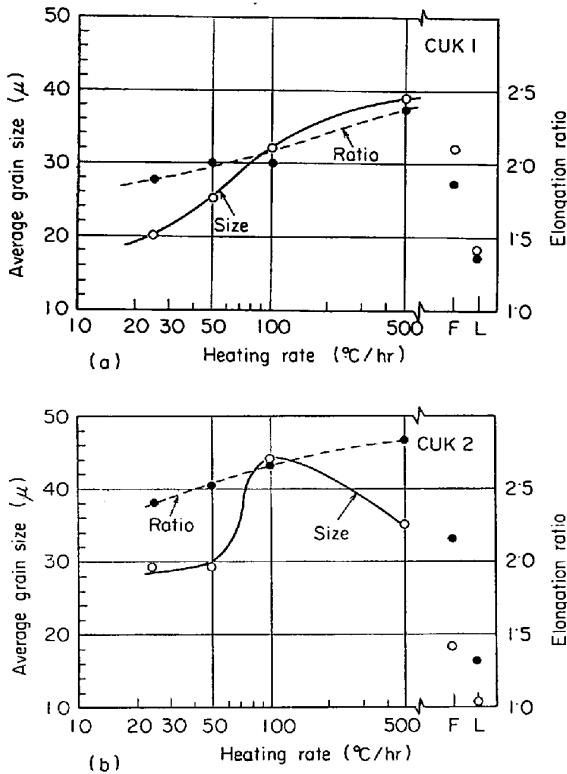
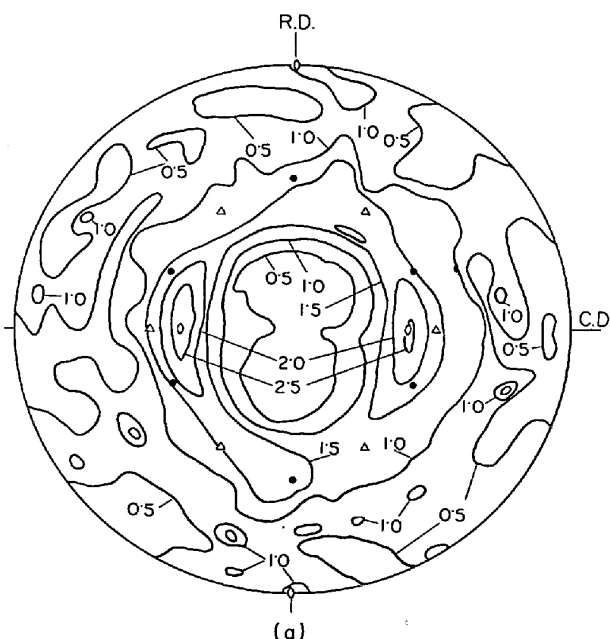


Fig. 3. Average diameter and elongation ratio of recrystallized grains in (a) CUK1 and (b) CUK2.



The symbols  $\circ$ ,  $\Delta$  and  $\bullet$  are the same as in Fig. 1.

よると、CUK 2 は 550°C で CUK 1 は 575°C で再結晶粒がわずかに認められた。CUK 2 は再結晶進行速度も CUK 1 に比較して大きく、より低温で再結晶が完了する。たとえば、625°C では CUK 1 の再結晶率は約 20% であるが、CUK 2 はすでに 90% の領域が再結晶を完了している。Fig. 5 の硬さ変化によると、CUK 1, CUK 2 とともに約 500°C 以下で回復のための

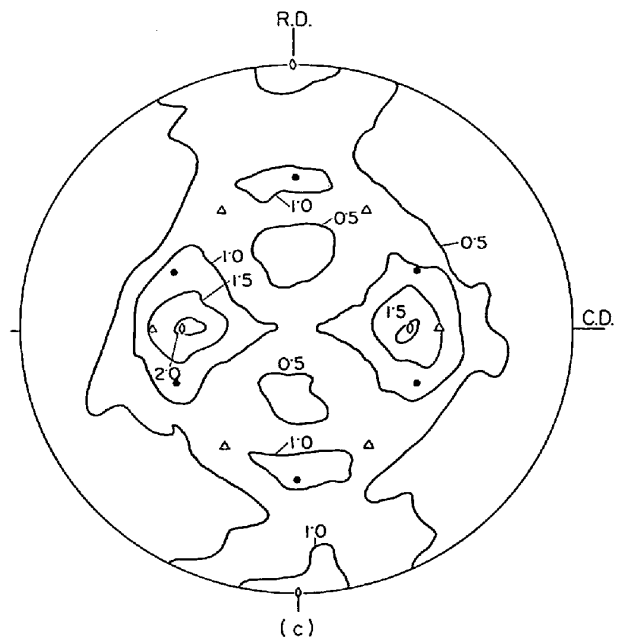
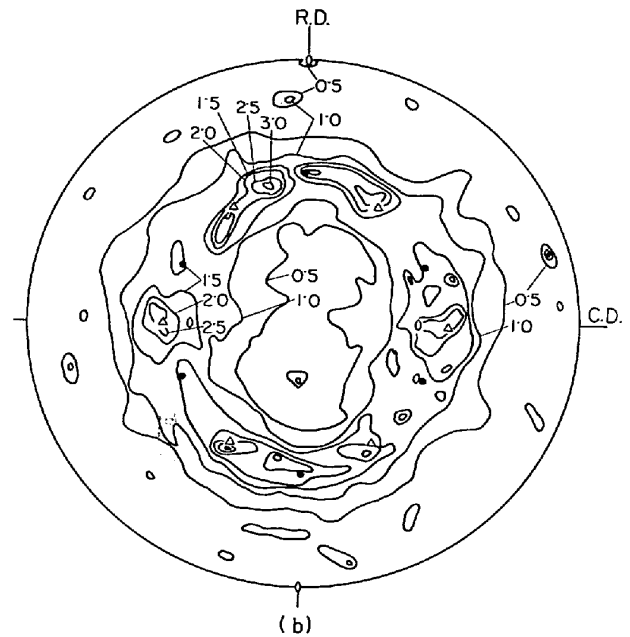


Fig. 4. {200} pole figures for recrystallization textures of (a) CUK1 and (b) CUK2, both annealed at 700°C for 3 hrs with a heating rate of 100°C/hr, and of (c) CUK2 annealed at 700°C for 3 hrs by rapid heating in a lead bath.

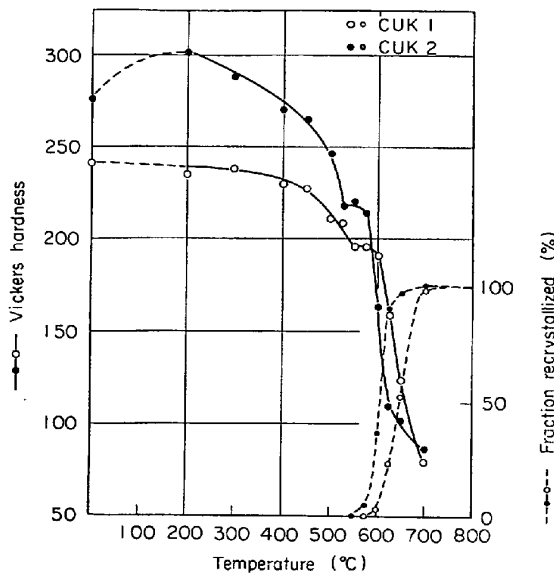


Fig. 5. Variations in hardness and fraction recrystallized during heating with a rate of 100°C/hr.

軟化が起こる。ついで CUK 2 は約 500° から 525°C の間に急激な軟化が起こり 525°C から 575°C の間で一時硬さ変化の停滞が生じる。CUK 1 は 550°C から 600°C の間で同様な停滞が生じる。おそらく 525°C 付近から Cu の析出が著しく進行しそのために回復（あるいは再結晶の初期の過程）が抑制されるのであろうが、硬さ変化の停滞が起こる温度が異なることから、Cu の析出速度にも両者で差があることが示唆される。

つぎに再結晶の途中における透過電顕観察例を示す。

Photo. 5 は CUK 1 を冷間圧延後 100°C/hr で加熱し 605°C に達したとき炉からとり出した試片の観察例である。Subgrain A は約 1 $\mu$  の大きさで A 領域を含む制限視野回折パターンには、菊池線が現われていた。Subgrain A 内には周囲のマトリックスに比較してかなり大きい Cu の析出粒子が観察される。Photo. 6 は CUK 2 を冷間圧延後 100°C/hr で加熱し 580°C でとり出した試料の電顕写真と回折パターンの一例である。Subgrain A は再結晶粒の初期の形態と考えられるが、この領域の制限視野回折パターンによれば、A の方位はほぼ {111} <110> に近い。A の方位とその周囲の C および E 領域の方位間には板面法線 <111> 軸に関する回転関係がある。このような <111> 軸回転関係にある領域に {111} 方位再結晶粒が発達している例が多数観察されたが、この結果は著者らのアルミニウムキルド鋼における研究結果<sup>12)</sup>と一致している。B 領域には直径約 0.7 $\mu$  の大きい不純物粒子があるが、これは制限視野回折パターンによればセ

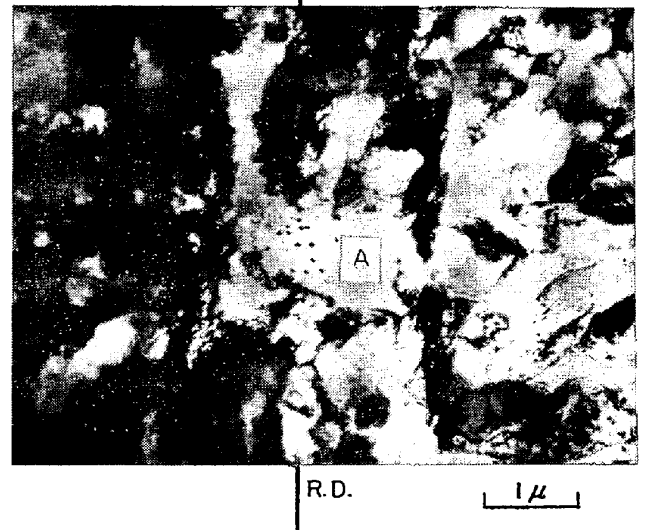


Photo. 5. Transmission electron micrograph showing subgrains and precipitates, observed in 70%-rolled CUK 1 specimen after heating to 605°C with a heating-rate of 100°C/hr.

メントイトである。CUK 2 では大きく成長した再結晶粒内に多数のセメントイトがみられたが、再結晶の初期の段階について多数の観察を行なった結果小さい再結晶粒の内部あるいはそれと接してセメントイト粒が存在する場合はしばしば観察された。

つぎに再結晶粒の成長とともに Cu の析出状態がどのように変化していくかをみるために再結晶がかなり進行した段階の電顕観察を行なった。Photo. 7 は CUK 1 について冷間圧延試片を 50°C/hr で加熱し 600°C で 54 hr 焼鈍した試片の透過電顕写真である。未再結晶部では微細な析出粒子が転位線に沿って存在していることが多い。この場合光学顕微鏡観察によれば、再結晶率は約 90% 以上であつたが再結晶粒内部の析出粒子 ( $\epsilon$ -Cu と推定される) は未再結晶部のそれに比較して大きく凝集している。これはおそらく再結晶粒が成長していくさい再結晶粒界内の粒界拡散により析出物の凝集が起きたためと考えられる。この観察例では再結晶粒内で a および b でマークしたところに、析出粒子が密に並んでいるが、それも粒界移動にさいして凝集した結果とみられる。

#### 4. 考 察

本実験の結果および従来の実験結果<sup>3)4)</sup>により Cu 添加低炭素鋼は {111} <110> 型再結晶集合組織をとることが、明確になつた。{111} <110> 型再結晶集合組織をと

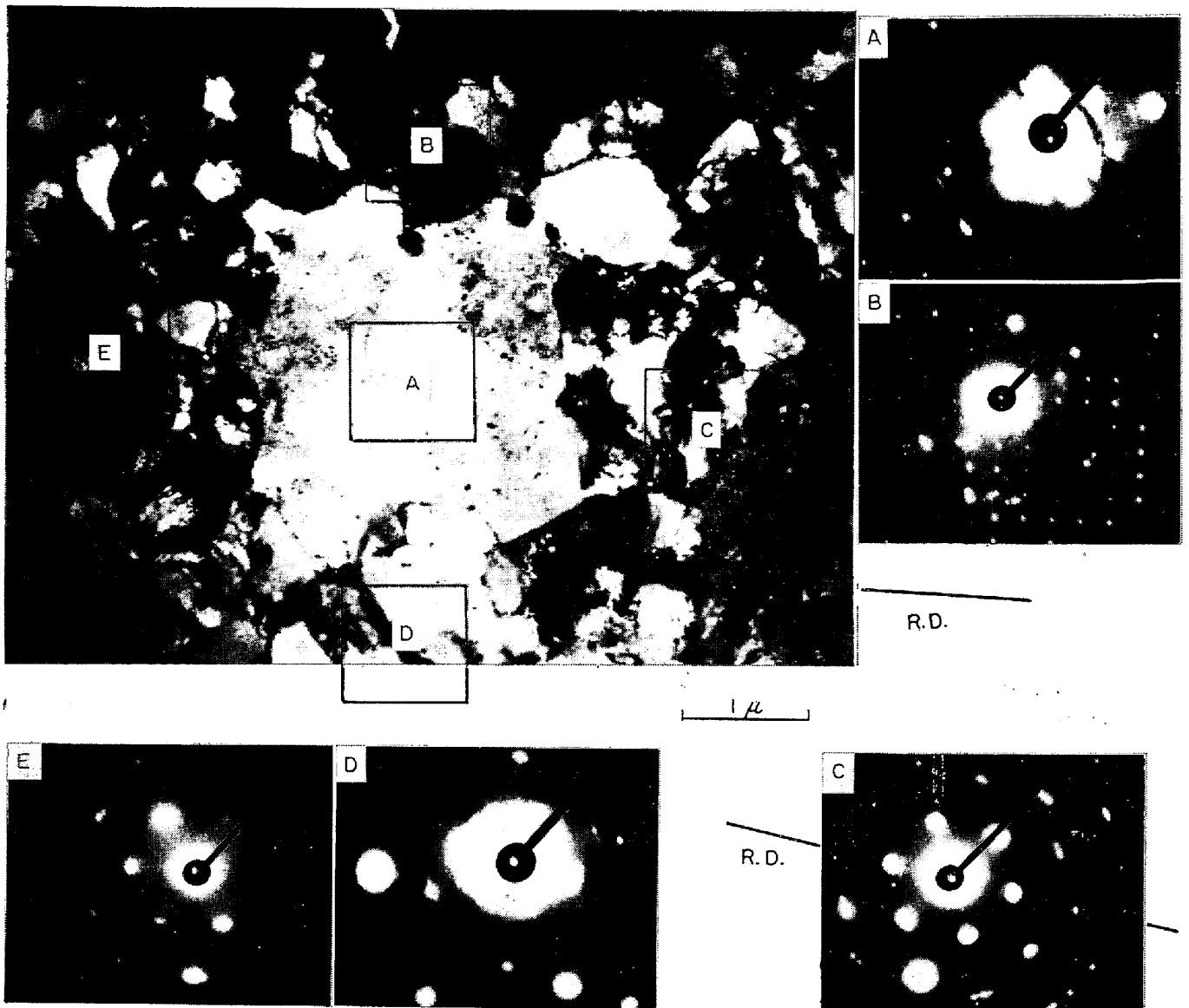


Photo. 6. Transmission electron micrograph and diffraction patterns from selected areas marked in the micrograph, observed in 70%-rolled CUK 2 specimen after heating to 580°C with a heating-rate of 100°C/hr.

る例としてはアルミニウムキルド鋼が知られているが、両者ともその再結晶集合組織形成に関し昇温度速度依存性があること、再結晶温度が普通のリムド鋼より高いという事実および再結晶粒が大きく伸長した形状をとるという点で非常に類似している。

Cu 添加低炭素鋼において  $\{111\}\langle 110 \rangle$  型再結晶集合組織が発達する理由を検討するにはまだ実験事実が不足しているが、Cu の析出が AlN の析出と類似した効果をもつことは疑いない。CUK 1 と CUK 2 の間にはすでに冷間圧延前の焼入れ状態の組織および硬さに大きな差がある。この差は冷間圧延後ももちきたされ、CUK 2 は CUK 1 よりも結晶粒が微細で格子歪も大きい。

このような組織および格子歪の差は CUK 2 が CUK 1 に比較し再結晶温度が低い理由と考えられるが、そのほかに Cu 析出による再結晶抑制効果の差異を考える必要がある。Fig. 5 の回復・再結晶過程の硬さ変化測定において再結晶開始温度付近で約 50°C の範囲にわたり硬さ変化の停滞が起こること、および再結晶初期の電顕観察により微細な Cu の析出粒子と推定されるものが観察されることから Cu の析出が再結晶核形成の段階から影響を与えていることは確実と思われる。その場合 CUK 2 のほうが CUK 1 に比較し Cu の析出・凝集が進行しやすい。大橋らは回復過程における電気抵抗変化を調べ Cu の析出は C の存在によつて促進されるらしいと述べ



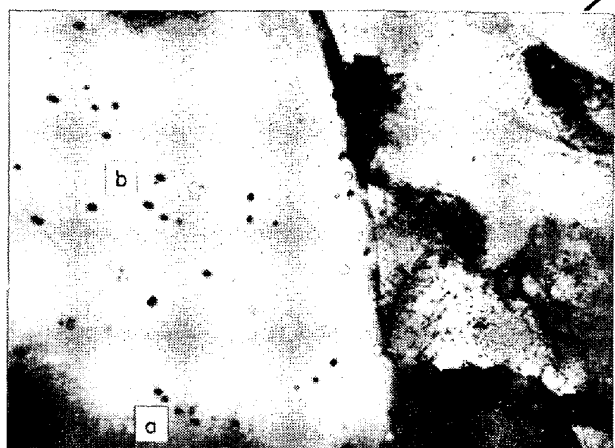


Photo. 7. Transmission electron micrograph showing globular precipitates in a recrystallized grain and fine precipitates in the deformed matrix, observed in 70%-rolled CUK 1 specimen after heating to 600°C with a heating rate of 50°C/hr and keeping at 600°C for 54hrs.

ている<sup>9)11)</sup>。その機構は明らかでないが、CUC 2 では Cu の析出に先立つて炭化物の析出が起こるのでそれによつて Cu の析出 site は規制されるはずである。電顕観察によると Cu の析出粒子が凝集している領域に、転位密度の小さい subgrain が形成されている例がしばしば観察され、Cu 析出粒子の凝集が起こると再結晶核形成が容易になると考えられる。また CUC 2 においては小さい再結晶粒の内部あるいはそれに接してセメント析出粒子が存在する例が多く観察されたが、それが再結晶核形成とどのような関係があるのか現在のところ明らかでない。

## 5. 結 論

約 0.56% の Cu を含み C 含有量が 0.008% および 0.054% の 2 種の低炭素鋼を 950°C でオーステナイト化焼入れ後ただちに約 70% 冷間圧延し、再結晶集合組織におよぼす最終焼鈍の昇温速度の影響を比較調査しつぎの結果を得た。

(1) (0.56%Cu+0.054%C) 鋼の焼入れ組織は微細で massive martensite 組織を示す。これに対し(0.56%Cu+0.008%C) 鋼の焼入れ組織は、単一相の等軸粒組

織を示す。

(2) (0.56%Cu+0.054%C) 鋼の再結晶集合組織は、最終焼鈍における昇温速度に非常に大きく影響される。熱間圧延板を 950°C から焼き入れ、ただちに冷間圧延した材料に対し適当な昇温速度で最終焼鈍を行なうことにより、集積度の高い {111}〈110〉型再結晶集合組織を発達させることができる。(0.56%Cu+0.008%C) 鋼の場合にも弱い昇温速度依存性がある。

(3) 両者の再結晶進行過程を比較すると、(0.56%Cu+0.054%C) 鋼は、(0.56%Cu+0.008%C) 鋼より低温で再結晶が開始し、急速に再結晶が進行する。

(4) 再結晶途中の透過電顕観察によると、Cu は変形マトリクス内では転位線に沿つて非常に微細な粒として析出している。再結晶粒成長の段階で再結晶粒界内での粒界拡散により、その微細析出粒子が凝集し、再結晶粒内には大きい ε-Cu 析出物が残される。

終わりに、本研究に用いた試料を提供され、また研究途上種々の御討論をいただいた川崎製鉄株式会社技術研究所、大橋延夫、小西元幸両氏および研究上協力された高木甲子雄氏に深く謝意を表する次第である。

なお、本研究の研究費の一部は鉄鋼基礎共同研究会「再結晶部会」特別研究費によるものである。

## 文 献

- 1) R. L. RIKETT and W. C. LESLIE: Trans. A. S. M., 51(1959), p. 310
- 2) W. C. LESLIE: Trans. Met. Soc. AIME, 221 (1961), p. 752
- 3) 清水, 高橋, 未宗: 鉄と鋼, 58(1972), S 267
- 4) 清水, 高橋, 未宗, 加藤: 第 5 回再結晶部会資料, 鉄再-31 (1972-7 月)
- 5) 阿部, 鈴木, 宮坂, 福田: 第 5 回再結晶部会資料, 鉄再-30 (1972-7 月)
- 6) 須藤, 橋本: 鉄と鋼, 58(1972), S 476
- 7) 須藤, 橋本: 第 6 回再結晶部会資料, 鉄再-35 (1972-12 月)
- 8) 小西, 大橋, 有馬: 第 6 回再結晶部会資料, 鉄再-36 (1972-12 月)
- 9) 久保寺, 稲垣, 栗原: 第 6 回再結晶部会資料, 鉄再-37 (1972-12 月)
- 10) 稲垣, 須田, 栗原: 鉄と鋼, 59(1973), S 198
- 11) 小西, 大橋, 有馬: 鉄と鋼, 59(1973), S 200
- 12) H. ABE and Ta. SUZUKI: Trans. ISIJ, 11 (1971), p. 201