

論 文

Cu 添加低炭素鋼板の {111} 方位粒形成

恵良 秀則*・清水 峯男*²・蛭田 敏樹*³

On the Development of {111} Grains Through the Annealing in Cold Rolled Cu-bearing Low Carbon Steel Sheet

Hidenori ERA, Mineo SHIMIZU and Toshiki HIRUTA

Synopsis :

A study has been made of the development of {111} grains through the annealing at slow heating in 1% Cu-bearing steels with two carbon levels, 0.04% and 0.002%. At the early stage of recrystallization, Cu precipitates of the 0.002% C steel disperse very finely compared with that of 0.04% C steel. These very fine precipitates of 0.002% C steel strongly inhibit the recrystallization of both {111} and {001} grains, resulting in the development of weak textures in sheet. Comparatively coarse precipitates of 0.04% C steel will allow the {111} grains to recrystallize easily, and recrystallized {111} grains grow into unrecrystallized {001} grains at the later stage of recrystallization, finally the strong {111} texture is developed in sheet. Such a difference in recrystallization behavior in Cu-bearing steel should be attributed to the dispersion size of Cu precipitates due to carbon content.

1. 結 言

Cu 添加鋼は鋼中の C や N と直接的に反応せず, Cu 析出物の単独の効果をとらえうる可能性があることなどから再結晶集合組織形成機構の解明に好都合な試料として多くの研究がなされてきた^{1)~11)}. RICKETT ら¹²⁾は Cu 添加鋼を用い, 冷延後の焼鈍途中に析出する ϵ -Cu が Al キルド鋼にみられるような展伸粒を形成させうることを示した. Al キルド鋼では AlN 析出物あるいは Al-N クラスタが展伸粒形成に重要な役割を果たしていることは数多く報告されており, また適切な昇温速度で焼鈍すると {111}〈110〉再結晶集合組織となる¹³⁾¹⁴⁾. Cu 添加低 C 鋼においても適切な昇温速度で焼鈍すると {111}〈110〉型の集合組織が強く発達し, C 量を著しく低減せしめる (0.005% 程度) と {554}〈225〉型の比較的弱い集合組織が形成されることが明らかにされた¹⁵⁾⁷⁾. 阿部ら⁸⁾は冷延率を高く (80% 程度) すると {111}〈110〉型および {554}〈225〉型の集合組織が適切な昇温速度のとき形成されることを報告した. また, Cu 量が 1.2% 程度 (0.005% C 鋼) では焼鈍後にも {112}〈110〉冷延方位粒が残存している⁹⁾ことや, C 量が著しく低いときには再結晶が遅滞する⁴⁾などが報告された. 本研究

では 1% Cu 鋼を用い, {111} 方位粒形成における Cu 析出物の役割を C 量との関連において検討した.

2. 実 験 方 法

真空溶解法により 0.040% C-1.04% Cu 鋼および 0.002% C-1.07% Cu 鋼を作製した. 電解鉄を用いたので Mn, S, P, Si などの量は 0.005% 以下と思われる. 1250°C で 40 min 均熱後, 1000°C で熱延を行い空冷して厚さ 3.2 mm の板を得た. その後 ϵ -Cu を析出させるため 630°C で 24 h の時効処理を行い空冷した後, 82.5% の冷延を施した. 再結晶焼鈍は 50°C/h の昇温速度で, 750°C に達すると同時に空冷した.

冷延板および焼鈍板の極点図を作製した. 特に冷延板ではベクトル法¹⁶⁾¹⁷⁾により三次元極点図を作製し, これを Roe の表示法¹⁸⁾にしたがつて $\phi=45^\circ$ の断面図に作製しなおした. 昇温時の変化については, ヴィッカース硬度測定, 顕微鏡観察を行い, さらに MoK α 特性 X 線を用い, 透過法によつて 200 反射強度を求め, {111} ($\alpha=35^\circ$) および {001} ($\alpha=0^\circ$) の強度をランダム試料との強度比で表した (Elementary Pole Figure). また 200 kV および 1000 kV の電子顕微鏡 (九大超高圧電顕室: JEM-200B, JEM-1000) を用い内部組織を観察

昭和 59 年 3 月 9 日受付 (Received Mar. 9, 1984)

* 九州大学工学部 (Faculty of Engineering, Kyushu University, 6-10-1 Hakozaki Higashi-ku Fukuoka 812)

*² 九州大学工学部 工博 (Faculty of Engineering, Kyushu University)*³ 九州大学大学院 (現: 川崎製鉄(株)) (Graduate School, Kyushu University, Now Kawasaki Steel Corp.)

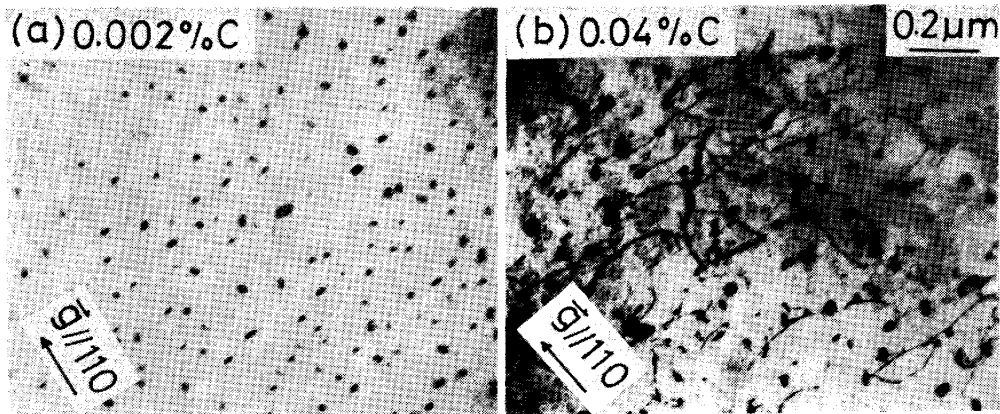


Photo. 1. Transmission electron micrographs of the steels aged at 630°C for 24h prior to cold rolling.

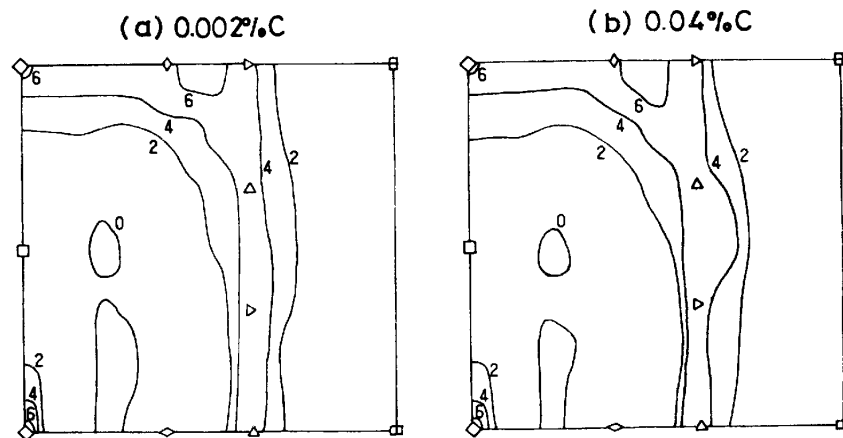


Fig. 1. Three dimensional pole figures of the steels cold rolled 82.5%.

した. なお, X線, 電子顕微鏡およびエッチピットによる観察はすべて板厚中心で行った.

3. 結 果

3.1 時効処理後の組織と冷延 および 焼鈍後の集合組織

熱延後空冷を行ったので 0.04%C 鋼では粒界にパーライトが観察されたが, 0.002%C 鋼では炭化物は観察されなかつた. 630°C, 24 h の時効処理でパーライトは Fe_3C となって粒界に存在した. Photo. 1 は 630°C, 24 h 時効処理後の電顕観察結果で, Cu 析出物の寸法は 0.002%C 鋼の 15 nm 程度に対し, 0.04%C 鋼では約 30 nm と大きくなつていた. Fig. 1 に冷延後の $\phi=45^\circ$ 断面の三次元極点図を示す. 0.04%C 鋼では 0.002%C 鋼に比べ {111} まわりの強度が若干高いが, 0.04%C 鋼, 0.002%C 鋼とも主方位は {001}<110> であり, near {335}<110> および {111}<uvw> もかなり高く, また C 量の多少で冷延集合組織に大きな差はみられなかつた. しかし再結晶焼鈍後では集合組織は大きく異なり, Fig. 2 に示すように, 0.04%C 鋼では {111}<110> および {554}<225> 方位粒の発達著しいが, 0.002%C 鋼

ではわずかに {111} 集合組織が形成されており, 主方位は {554}<225> であつた.

3.2 冷延組織から再結晶組織への変化

Fig. 3 に昇温中の回復再結晶状況を示す. 光顕観察によれば約 600°C から再結晶粒が現れ始め, Fig. 3(b) に示すように 0.002%C 鋼のほうがわずかに再結晶が遅れる. 675°C までは再結晶率が 30% 程度であるにもかかわらず, 0.002%C 鋼では Fig. 3(a) に示すように軟化があまり起こっていないことが注目される. Photo. 2 に 625°C まで昇温した場合の電顕組織観察結果の一例を示す. 0.002%C 鋼では冷延前時効処理時に析出していた Cu 析出物の他に極微細な Cu の析出物と思われる像が得られた. したがつて Fig. 3(a) で硬度の低下が見られないのは析出硬化が現れたものと推定される.

Fig. 4 に昇温中の軸密度変化を示す. 0.04%C 鋼では約 625°C まで, 0.002%C 鋼では約 650°C まで {222} 強度にほとんど変化はなく, 前者では 650°C から 750°C まで上昇し続けるが, 後者では 700°C まで減少し, それ以上ではわずかに上昇が認められる. {200} 強度は 0.04%C 鋼では 650°C 以上で急激に減少

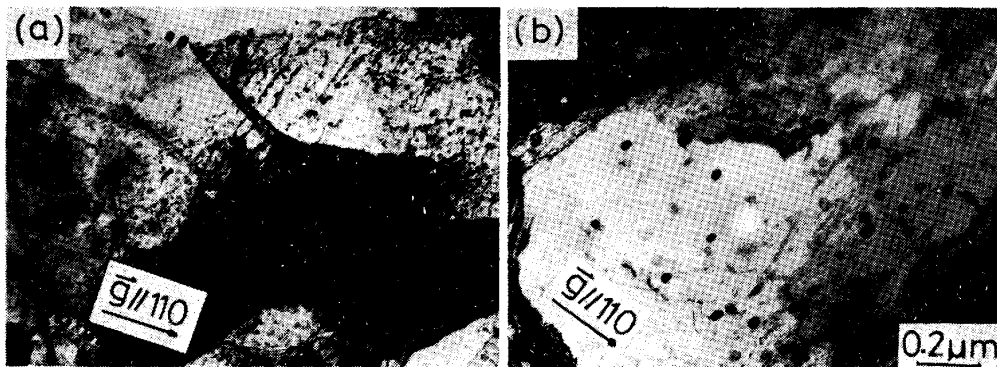


Photo. 2. Transmission electron micrographs of (a) 0.002% C-1% Cu steel and (b) 0.04% C-1% Cu steel aged at 630°C for 24h, cold rolled 82.5%, heated slowly up to 625°C and then quenched.

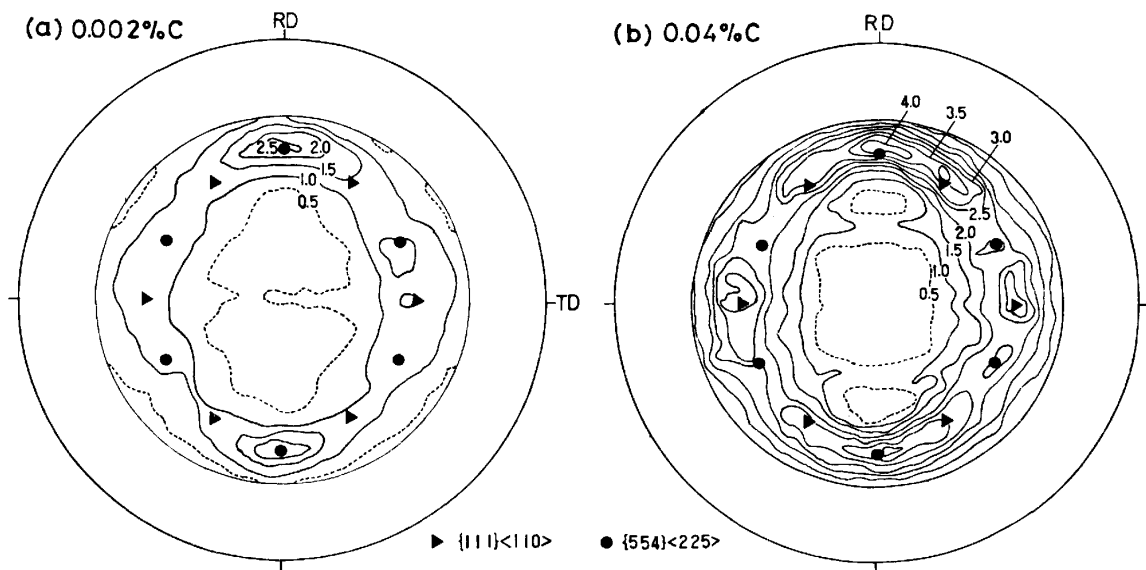


Fig. 2. (200) pole figures of the steels cold rolled 82.5% and heated up to 750°C at a rate of 50°C/h.

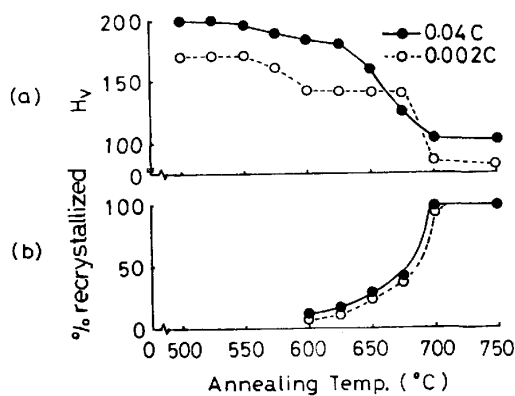


Fig. 3. Change in (a) Vickers hardness and (b) volume fraction of recrystallization during slow heating.

するが、0.002% C 鋼では 675°C から減少する。750°C 焼鈍材において {222} 強度は 0.04% C 鋼のほうが高く、逆に {200} 強度は 0.002% C 鋼のほうが高い。{110} 強度は 650°C までは C 量の多少によらずほぼ一

定で、それ以上の温度で上昇するが、0.002% C 鋼のほうがわずかに高かった。{211} 強度は温度上昇とともにわずかに増加する傾向があるが C 量による差は必ずしも明らかではない。

Fig. 5 に温度上昇による (111) [uvw] の出現のようすを Elementary Pole Figure で示す。冷延時には {111} fiber が形成されていたが、600°C においてもほとんど {111} fiber であり、C 量の多少でほとんど差はない。0.04% C 鋼において 650°C で (111) [2̄11] が強くなっているが (111) [1̄12] の強度が強くないことから、おそらく {554} <225> が形成されていると思われる ((200) 極点図において {111} <112> 表示は $\alpha=35.3^\circ$ の軌跡上に存在するが、{554} <225> 表示は $\beta=0^\circ$ (//RD) のときこの軌跡から 5.8° 離れているのに対し、 $\beta=60^\circ$ ではわずか 2.7° 離れているだけである)。675°C では {554} <225> が高くなり、{111} <110> も出現している。さらに 700°C になると {554} <225> がいつそう強くな

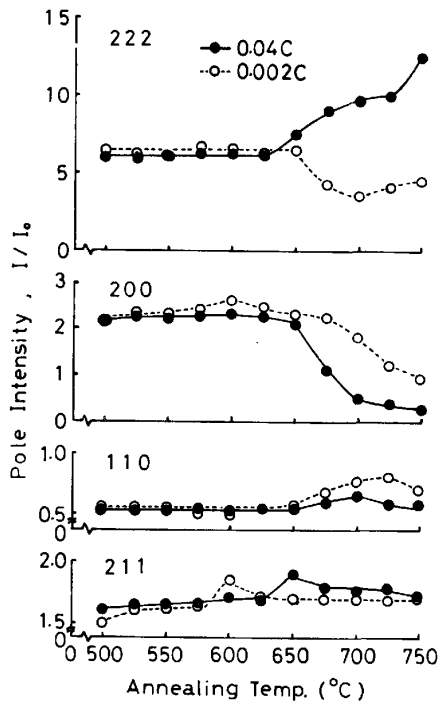


Fig. 4. Change in pole intensities during slow heating.

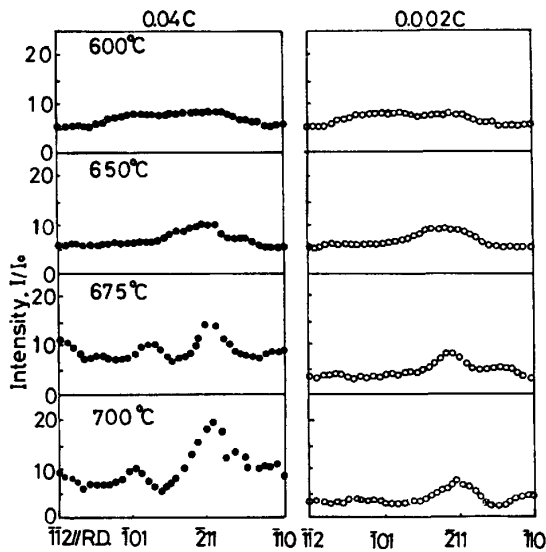


Fig. 5. Change in elementary pole figures of {111} obtained from {200} reflections during slow heating.

り {111}⟨110⟩ も強く形成されてくることがわかる。したがって最終的には Fig. 2 (a) に示したような {554}⟨225⟩ および {111}⟨110⟩ 型の集合組織となる。0.002% C 鋼では 650°C まで 0.04% C 鋼とほとんど差はないが、675°C および 700°C では {554}⟨225⟩ が残っているものの、{111}⟨uvw⟩ は全体的に低下している。

次に (001)[uvw] の出現のようすを Fig. 6 に示す。

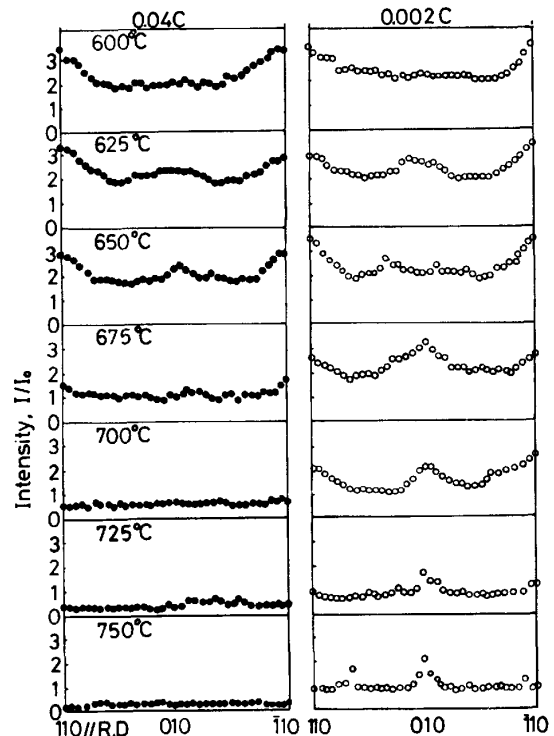


Fig. 6. Change in elementary pole figures of {001} obtained from {200} reflections during slow heating.

600°C では冷延主方位である {001}⟨110⟩ 強度が強いが、C量の多少であまり差は認められない。0.04% C 鋼の場合、625°C および 650°C で {001}⟨010⟩ がわずかに形成されているが、675°C 以上の温度では温度上昇とともに {001}⟨uvw⟩ が減少し、750°C では {001} 粒はきわめて少ない。0.002% C 鋼では 675°C までは {001}⟨010⟩ 粒が形成され続けるが、それ以上の温度では {001}⟨uvw⟩ が減少する。{001}⟨uvw⟩ の強度は 0.04% C 鋼よりも強く、{001}⟨010⟩ 粒が残留していることは注目される。

エッチピット観察の結果、625°C までは冷延主方位 {001}⟨110⟩ が多数観察された。Photo. 3 に示すように 0.04% C 鋼では 650°C になると {554}⟨225⟩ と思われる {111}⟨112⟩ 型の再結晶粒が多数観察されたが、{111}⟨110⟩ 型のピットをもつ再結晶粒は全再結晶粒の 10% 以下であった。675°C では {554}⟨225⟩ および {111}⟨110⟩ の再結晶粒が主体をなしており、{001}⟨110⟩ の未再結晶粒も観察された。700°C では {554}⟨225⟩ 粒と {111}⟨110⟩ 粒が大勢を占め、小さな再結晶粒はほとんど {001} 粒であった。0.002% C 鋼では 675°C になると {554}⟨225⟩ および {111}⟨110⟩ の再結晶粒が観察されることもあった。700°C では {554}⟨225⟩, {111}⟨110⟩ の他におそらく {001}⟨010⟩ と思わ

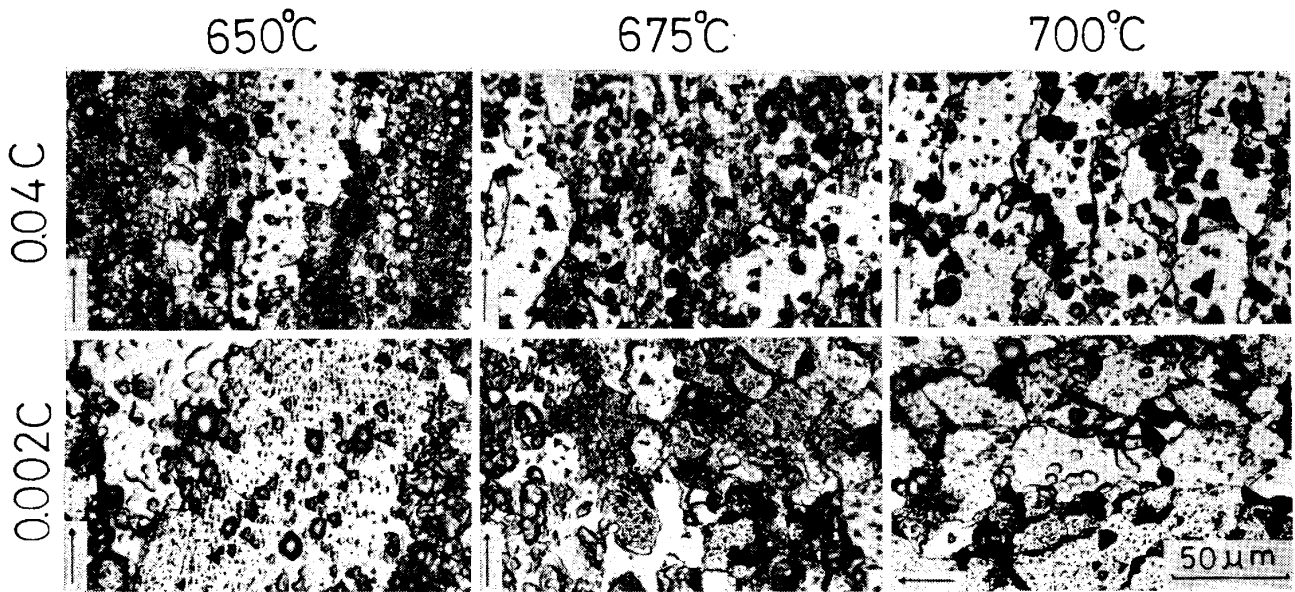


Photo. 3. Optical microstructures revealed facet pit figures of the steels during slow heating. Arrows show a rolling direction.

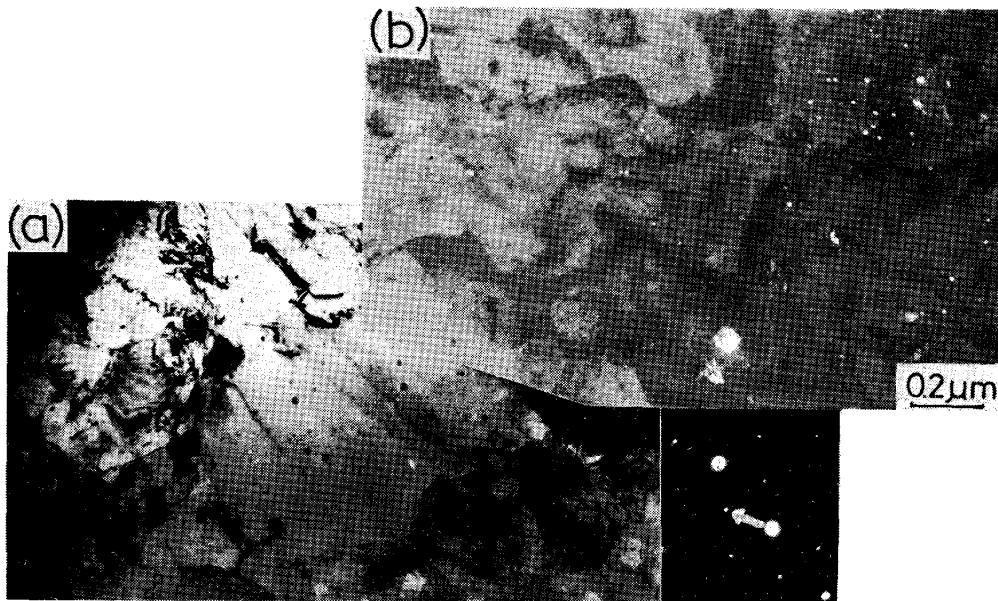


Photo. 4. Transmission electron micrographs of 0.04%C-1%Cu steel heated slowly up to 625°C and then quenched. (a) is bright field image and (b) is dark field image obtained from 110 spot indicated by an arrow in diffraction pattern.

れる再結晶粒も観察されたが、エッチピットによる方位決定は困難で、特に強い集合組織を形成しているとは考えられなかった。

0.002%C 鋼では 50 視野以上の電顕観察を行ったが各方位粒出現に関し特徴的な傾向はえられなかった。しかし 0.04%C 鋼では多数の観察によつてある特徴が認められ、Photo. 4 に一例を示すように 625°C では再結晶粒と未再結晶粒の粒界領域の回折パターンにより {111} 変形粒から {111} 再結晶粒が発生していることがわかった。Photo. 5 に示すように 650°C では {111}

$\langle 110 \rangle$ 型の再結晶粒は小さなサブグレインからなつておりこれらの方位差は数度以内であつた。一方、同図(c), (d)にみるように、{001} $\langle 110 \rangle$ 粒はほとんど再結晶していない。Photo. 6 は 675°C での電顕組織と多数観察されたエッチピットの例で、{111} $\langle 110 \rangle$ 粒と {001} $\langle 110 \rangle$ 粒を示すが、粒界における回折パターンは {111} $\langle 110 \rangle // \{001\} \langle 110 \rangle$ の条件を正確に満足していることを示唆した。しかも {111} は {001} 粒を食つて TD 方向へ移動する途中であることが粒界と Cu 析出物の像から推定される。これは Photo. 6 のエッチピットの像と

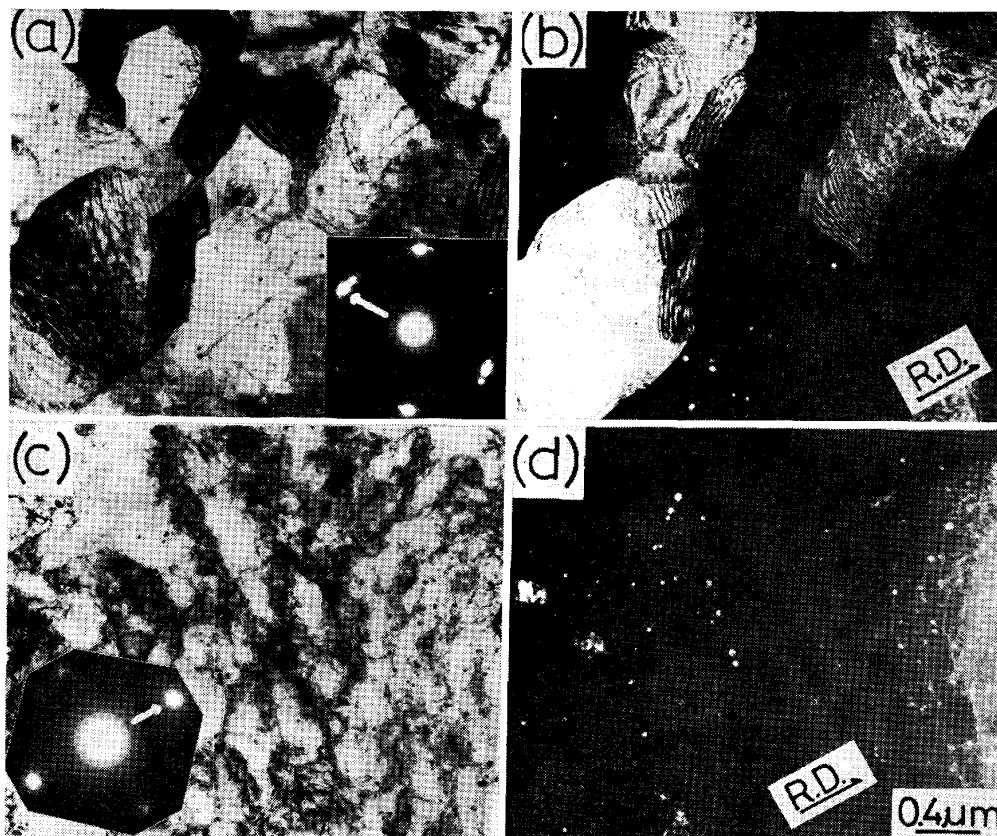


Photo. 5. Transmission electron micrographs of 0.04%C-1%Cu steel heated up to 650°C and then quenched. (a) is bright field image of $\{111\}$ planes, (b) is dark field image of (a) obtained from 110 spots indicated by an arrow in diffraction pattern in (a), (c) is bright field image of $\{001\}$ plane near the region of (a), and (d) is dark field image of (c) obtained from 110 spot indicated by an arrow in diffraction pattern in (c).

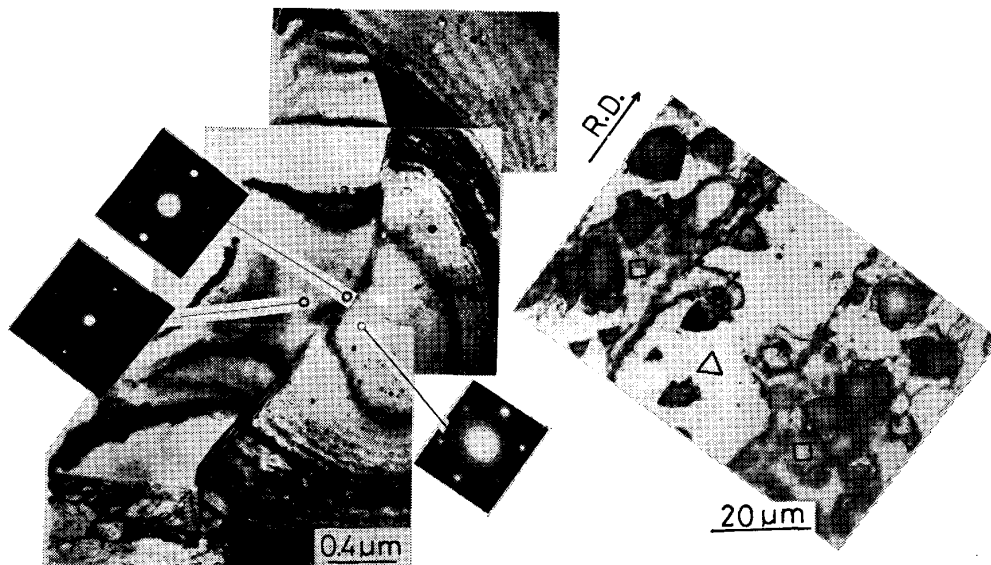


Photo. 6. Transmission electron micrograph and its diffraction patterns, and the facet pit figures in the grains with $\{111\}\langle 110\rangle$ and $\{001\}\langle 110\rangle$ orientation. The specimen of 0.04%C-1%Cu steel was heated up to 675°C and then quenched.

よく対応する。

以上のことから、0.04% C 鋼では {001} の核生成は {111} の核生成よりも遅く、また {111}〈110〉粒は {001}〈110〉粒を食つて成長することが示唆された。

4. 考 察

4.1 鋼中 C 量と Cu の析出について

小西ら⁴⁾は鋼中の Cu は C (Fe_3C) の凝集成長を遅らせ、逆に C は Cu の析出を促進させると述べている。一方、阿部ら⁷⁾は Cu の析出に先んじて Fe_3C が析出し、この Fe_3C が Cu の析出サイトを規定すると推定している。このように Cu 添加鋼において C が 0.04% 程度共存する場合には、 Fe_3C の析出の影響を考える必要があるだろう。 Fe_3C は incoherent に析出するといわれているが¹⁹⁾、しかし Fe_3C の析出はマトリックスに歪みを与えることも報告されている²⁰⁾。また Fe_3C は {110} ハビットをもっている²¹⁾のでマトリックスの〈110〉方向の格子歪みを生じさせる可能性がある。C 量が高い場合にはマトリックスと Cu 析出物の間にはおおよそ $\langle 110 \rangle_{\alpha\text{-Fe}} // \langle 111 \rangle_{\epsilon\text{-Cu}}$ という関係が認められることを報告⁹⁾したが、 Fe_3C の析出によるマトリックスの〈110〉方向の格子歪みの発生がこの平行性を保つ一つの理由と考えられる。マトリックスと析出物の最稠密面どうしがそろえば $\epsilon\text{-Cu}$ は成長しやすくなり、したがってその寸法も大きくなると思われるが、0.002% C 鋼のように C 量が著しく低い場合は $\langle 110 \rangle_{\alpha\text{-Fe}}$ と $\langle 111 \rangle_{\epsilon\text{-Cu}}$ の方位差が大きき⁹⁾ Cu 析出物は成長し難いことが予測される。しかし C 量の多少による Cu 析出状態の変化は Cu の溶解度の変化²²⁾や析出核などの問題もあり今後の検討課題である。

4.2 {111} 方位粒の形成について

本実験において冷延時の主方位は {001}〈110〉であり、near {335}〈110〉および {111}〈uvw〉が副方位であった。冷延によつて貯えられる内部エネルギーの大小の見地から {001} 冷延粒は {111} 冷延粒よりも再結晶し難いと言われており²³⁾²⁴⁾、したがって析出物の再結晶抑制効果がすでにもっている両方位粒の再結晶挙動の差にどのような影響を与えるかが問題であろう。0.002% C 鋼は 0.04% C 鋼よりも再結晶が遅れたが (Fig. 3 (b))、前者では析出物は極微細に析出し、またこれらの微細析出物は成長し難いことが予測された。一方、0.04% C 鋼では Cu 析出物は 0.002% C 鋼よりも大きい、625°C までは再結晶が抑制されている。約 650°C 以上で {111} 再結晶粒は増大するが、析出物がある適当な大きさで分布する限りもともと再結晶しやすい {111} 粒に強い再結

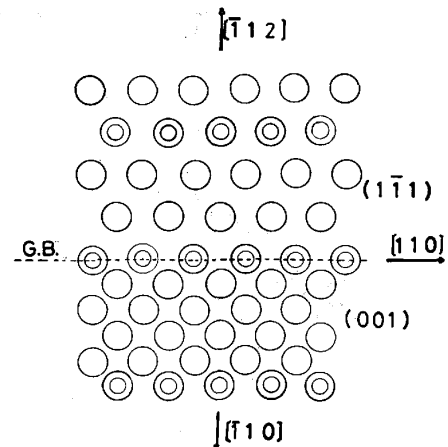


Fig. 7. A schematic illustration of arrangement of atoms in $(\bar{1}\bar{1}1)[110]$ and $(001)[110]$ grains. Double circles show coincident atoms and G. B. a grain boundary.

晶抑制作用を及ぼさず、したがって {111} 粒が未再結晶の {001} 粒を食つて成長するものと考えられる。

{111}〈110〉の再結晶は Oriented Nucleation, {554}〈225〉の再結晶は Oriented Growth により進行するという報告⁹⁾²⁴⁾があるが、本研究では核発生の機構は明らかにできなかつた。しかし少なくとも 0.04% C 鋼では {554}〈225〉再結晶粒は再結晶初期の約 625°C で、{111}〈110〉再結晶粒は 650°C 以上の温度でかなりの量を占める (Fig. 4, Fig. 5, Photo. 3)。650°C では Photo. 5 に示したように {111}〈110〉粒は小さなサブグレインを形成しており、これらは coalescence の過程をたどつて成長するものと推察される。675°C ではこれらの {111}〈110〉粒が {001}〈110〉変形粒あるいは {001}〈110〉回復粒を食つて成長することが支配的になると考えられる。Fig. 7 に $(001)[110]$ および $(\bar{1}\bar{1}1)[110]$ 粒の原子配列を模式的に示す。これらの粒の粒界は対応粒界となつており、 $(\bar{1}\bar{1}1)[110]$ は $(001)[110]$ を容易に食つて TD 方向へ成長し比較的大きなパンケーキ粒の形成をもたらすのではないかと思われる。0.002% C 鋼のように極微細な Cu 析出物による再結晶抑制作用を受け、{111} が再結晶し難いような条件のもとでは {001} 粒が食われにくく、Fig. 4 および Fig. 6 に示したように {001} 粒が残留して再結晶してしまうと推定される。冷延主方位は {001}〈110〉であつたが、Fig. 6 のごとく 650°C で {001}〈010〉方位成分が強くなることは注目される。Hu²⁵⁾は Si-Fe 合金を用いた $(001)[110]$ 単結晶では再結晶粒が現れにくく、 $(001)[010]$ ではマイクロバンドに沿つて再結晶粒が出現することを報告した。本研究においても 0.002% C 鋼で

{001}<010> は {001}<110> よりも低温で再結晶が起こつたとすれば、たとえ {111}<110> 再結晶粒が出現したとしてもこれによつて食われ難いであろう。

5. 結 論

C量の異なる 1%Cu 鋼 (0.04%C および 0.002%C) を用いて冷延後の徐熱焼鈍時における {111} 方位粒出現におよぼす Cu 析出物の影響をC量との関連において検討した結果、次のように結論される。

1. 鋼中のC量によつて Cu の析出状態は大きく変化する。

2. 0.04%C 鋼では、冷延前の時効処理後の Cu 析出物の寸法は 0.002%C 鋼より大きくなる。冷延後の焼鈍に際しても Cu 析出物は成長しやすい傾向にあり、この析出物寸法の差が {001} の出現を抑え、{111} を顕著に発達させる原因と考えられる。また {554}<225> 粒は再結晶の初期に出現し、続いて現れる {111}<110> 粒が {001}<110> 粒を食つて成長することにより {554}<225> および {111}<110> 型の集合組織が強く発達する。

3. 0.002%C 鋼では、冷延前時効処理後の Cu 析出物の寸法は 0.04%C 鋼より小さく、冷延後の再結晶昇温時にさらに極微細な析出物を析出し、それによつて {111} 粒の再結晶が強く抑制され {001} 粒は食われ難く、{554}<225> 型の弱い集合組織となる。

なお、極点図の測定は新日本製鉄(株)第二技研の河野彪氏および太田国照氏のご好意によるものであることを付記する。

文 献

- 1) 清水峯男, 高橋延幸, 末宗賢一郎: 鉄と鋼, 58 (1972), S 267
- 2) 須藤正俊, 橋本俊一: 鉄と鋼, 58 (1972), S 476

- 3) 稲垣裕輔, 須田豊治, 栗原 極: 鉄と鋼, 59 (1973), S 198
- 4) 小西元幸, 大橋延夫, 有馬与志広: 鉄と鋼, 59 (1973), S 200
- 5) 寺崎富久長, 金子輝雄: 鉄と鋼, 59 (1973), S 495
- 6) 小西元幸, 大橋延夫, 有馬与志広: 鉄と鋼, 59 (1973), S 648
- 7) 阿部秀夫, 鈴木竹四, 戸川史江: 鉄と鋼, 60 (1974), p. 217
- 8) 阿部秀夫, 鈴木竹四, 戸川史江, 宮川直樹: 鉄と鋼, 60 (1974), 1496
- 9) 蛭田敏樹, 恵良秀則, 清水峯男: 鉄と鋼, 69 (1983), S 590
- 10) 恵良秀則, 清水峯男, 蛭田敏樹: 鉄と鋼, 69 (1983), S 591
- 11) 恵良秀則, 清水峯男, 蛭田敏樹: 鉄と鋼, 69 (1983), S 592
- 12) R. L. RICKETT and W. C. LESLIE: Trans. ASM, 51 (1959), p. 310
- 13) たとえば R. H. GOODENOW: Trans. ASM, 59 (1966), p. 804
- 14) たとえば W. JOLLEY: JISI, 205 (1967), p. 321
- 15) 日本鉄鋼協会鉄鋼基礎共同研究会: 第5回再結晶部会 (1972年7月) 新日本製鉄(株) (私信)
- 16) D. RUER and R. BARO: Adv. X-ray Anal., 20 (1977), p. 187
- 17) D. RUER, A. VADON and R. BARO: Text. Cryst. Solids, 3 (1979), p. 245
- 18) R. J. ROE: J. Appl. Phys., 36 (1965), p. 2024
- 19) (再引用) P. B. HIRSCH: Electron Microscopy of Thin Crystals, Butterworths, London, (1965), p. 324
- 20) 英 崇夫, 福良二郎, 藤原晴夫: 日本機械学会論文集 (第1部), 35 (1969), p. 237
- 21) W. C. LESLIE: Acta Metall., 9 (1961), p. 1004
- 22) 蛭田敏樹, 恵良秀則, 清水峯男: 日本金属学会講演概要 (1983・10月), p. 317
- 23) H. TAKECHI, H. KATO and S. NAGASHIMA: Trans. Metall. Soc. AIME, 242 (1968), p. 56
- 24) I. L. DILLAMORE, C. J. E. SMITH and T. W. WATSON: Met. Sci. J., 1 (1967), p. 49
- 25) A. HU: Acta Metall., 4 (1956), p. 562