論 文

アルミニウムおよび銅箔の 2 次再結晶に関する研究*

田 中 英 八 郎** 幡 谷 文 男**

Eihachirô Tanaka and Fumio Hataya: Study on the Secondary Recrystallization of Al and Cu Foils. It was described in the previous report that a secondary recrystallization occurred above a certain limit of reduction but did not occur below a certain limit of thickness when Al and Cu foils were annealed. In this report foils with the same reduction and different thickness were annealed isothermally. The shape, the size and the orientation of the secondary recrystallized grains were observed. The results were as follows: (1) In Al, a secondary recrystallization occurred in the thicker foil (0.142 mm) but did not occur in the thinner foil (0.015 mm). (2) In the thicker Al foil some of the primary recrystallized grains, which were relatively large and had concave grain boundaries and special orientation, coarsened. (3) In the thinner Al foil such primary recrystallized grains were observed but a secondary recrystallization did not occur. (4) In Cu foils the thinner the thickness, the larger the incubation period of the secondary recrystallization and the smaller the secondary recrystallized grains.

(Received March 10, 1958)

I. 緒 言

著者らは先に⁽¹⁾ Al, Cu を箔に冷間圧延し、高温で焼鈍した場合、2 次再結晶の生ずるのは一定圧延率以上の試片であり、一方、圧延率がいくら大でも試片厚みが或る一定値以下になると生じなくなることを認めた。そしてこれは薄箔では 1 個の 1 次再結晶粒が試片上下を貫いて、粒は平面的に並んだ状態となり隣接粒が少く、或る粒が周囲の粒を食って成長する機会が少いため 2 次再結晶が生じなくなると思われる旨を述べた。

今回は圧延率が 2 次再結晶の生ずる圧延率以上で略と等しく、厚みが 2 次再結晶の生ずる厚みのものと生じない厚みのものについて 2 次再結晶粒の核およびその発達状況、方位などを観察し、2 次再結晶におよぼす試片厚みの影響を調べた。

II. 実験試料および方法

試料の化学成分および加工履歴は前報⁽¹⁾と同一のものを用いた。99.6% Al, 99.98% Cu とともに最終冷間圧延前の厚みの異なる各系列の素材から圧延した箔の中、圧延率は 2 次再結晶の生ずる圧延率以上で略と等しく（従ってその圧延および再結晶集合組織は等しいと考えられる）、厚みの異なるような試片を選んだ。Al は前報系列 B の 10 mm より冷間圧延した圧延率 98.58%, 厚み 0.142 mm のもの（以下これを Al-B という）および前報系列 C の 1 mm より冷延した 98.5%, 0.015 mm のもの (Al-C) を用いた。Cu は前報系列 A の 0.76 mm から冷延した圧延率 86%, 厚み 0.11 mm (Cu-A), 系列 B の 0.5 mm から冷延した 88%, 0.06 mm (Cu-B) および系列 C の 0.25 mm から冷延した 86%, 0.035 mm (Cu-C) の箔を用いた。

Al は 600°, Cu は 950°, 1000° および 1020° に真空中で恒温焼鈍を行った。焼鈍後 Al は化学研磨し⁽²⁾, HF + HCl + H₂O (10:15:90) 溶液で粒界を現わし、Lacombe らの溶液⁽³⁾ で 2 次再結晶粒および 1 次再結晶粒の蝕像を出して方位を調べた。Cu は真空焼鈍で熱腐蝕されて粒界が現われ、さらに 2 次再結晶粒の巨視的組織を明らかにするために Bowles らの溶液⁽⁴⁾ で腐蝕した。

III. 実験結果

Al を 600° で恒温焼鈍し、巨視的に調べたら Al-B は

Photo. 1 Photograph of secondary recrystallized Al foils (98.58% reduction, 0.142 mm thickness) annealed at 600°.

** 東北大学金属材料研究所

* 1958 年 4 月本会東京大会に発表

(1) 田中, 幡谷: 本誌, 22 (1958), 109.

(2) 金属, 25 (1955), 254.

(3) P. Lacombe, L. Beaujard: J. Inst. Metals, 74 (1947~48), 1.

(4) J. S. Bowles, W. Boas: ibid. 501.

4 min から 2 次再結晶を生じ、Al-C は 180 min までの焼鈍で 2 次再結晶粒は認められなかった。前者の写真を **Photo. 1** に、また面積 1 cm^2 内に認められた 2 次再結晶粒の個数と時間との関係を **Fig. 1** に示す。これで見ると時

Fig. 1 The number of secondary recrystallized grains in Al foils during isothermal annealing at 600° .

間の増加につれて 2 次再結晶粒の大きさおよびその個数が増すが 30 min 附近からはあまり変化していない。従って焼鈍時間の短い試片には 2 次再結晶粒に成長途上の粒が存在するものと思われるので顕微鏡組織を調べた。**Photo. 2** は

Photo. 2 The grain which seems the nucleus of secondary recrystallization (i~iii) and the secondary recrystallized grain (iv) in Al foil (98.58% reduction, 0.142 mm thickness) annealed 5 minutes at 600° . ($\times 100$) Reduced for reproduction.

5 min 間焼鈍した試片の写真である。粒界腐蝕液でも粒の方向によって粒内の腐蝕の程度が異なるので似た方位の粒は他の方位の粒と区別出来る。(i) の粒は全部 1 次再結晶粒であるが写真の中央の白い粒は比較的大きく、周囲の粒に対してその境界が凹である。(ii), (iii) の中央の粒はさらに大きな粒であり、色、粒界は前者と同様である。(iv) の左側は 2 次再結晶粒である。これらから (i) は 2 次再結晶の核、(ii), (iii) はこれが成長して 2 次再結晶になる途上の粒と考えられる。しかしこれらは (i) の粒が (ii), (iii) さらに (iv) の粒になったという確証はなく、ただ同一試片内にこのような粒が諸所に認められたにすぎない。このことを確かめるためにまず短時間焼鈍後化学研磨、腐蝕して一旦このような粒を認め、これを粒界が消えない程度に軽く再研磨して後、あるいは焼鈍後研磨、軽い腐蝕を行った後（深く腐蝕するとその後の焼鈍の際粒界移動が障害される恐れがある⁽⁵⁾）

(5) P. A. Beck: others, *Metals Tech.*, **14** (1947), T. P. 2280.

再焼鈍後再腐蝕して前の粒がどのように成長しているかを調べた。5 min 焼鈍後 55 min 再焼鈍した場合を **Photo. 3** に示す。細い線は最初の軽い腐蝕で現われた粒界であり、右中の大きな粒が左側の黒く太い線で示される粒界まで成長しており **Photo. 2** に示したような、粒界が凹で比較的大きな粒が 2 次再結晶になると思われる。

Photo. 3 Showing of growth to secondary recrystallized grain in Al foil (98.58% reduction, 0.142 mm thickness) annealed 5 min. at 600° then reannealed 55 min. at 600° , ($\times 100$), Reduced for reproduction.

Photo. 4 The etching figure of secondary recrystallized grain in Al foil (98.58% reduction, 0.142 mm thickness) annealed 60 minutes at 600° . ($\times 315$) Reduced for reproduction.

Fig. 2 (100) pole figure of secondary recrystallized grains in Al foil (98.58% reduction, 0.142 mm thickness) annealed 60 minutes at 600° .

○; A, ×; B, △; C, □; D

Al-B を 600° に 1 hr 焼鈍して生じた 2 次再結晶粒の蝕像を **Photo. 4** に示す。また蝕像から調べた (100) 極点図を **Fig. 2** に示す。すなわち 4 種類の 2 次再結晶粒が認められ、この中 C, D 方位は Bowles & Boas⁽⁴⁾ および Beck & Hu⁽⁶⁾ の結果と一致する。

各方位の 2 次再結晶粒の発生個数を **Table 1** に示す。次に 600° に 5 min 焼鈍した試片に認められた比較的大きな、粒界が周囲に対して凹な 1 次再結晶粒を **Photo. 5** に示す。蝕像をみればこれらの粒の方位は上記 2 次再結晶粒の方位と一致すること

(6) P. A. Beck, H. Hu: *J. Metals*, **1** (1949), 627.

Photo. 5 The grain which seems the nucleus of secondary recrystallization and its etching figure in Al foil (98.58% reduction, 0.142 mm thickness) annealed 5 minutes at 600°. Reduced for reproduction.

Table 1 The number of various orientations of secondary recrystallized grains in Al foil (98.58% reduction, 0.142 mm thickness) annealed 60 minutes at 600°.

Orientation	A	B	C	D
Number	61	4	7	5

が判った。以上のことからこれらの粒は 2 次再結晶の核であると思われる。

一方 Al-C を 600° に 1 hr 焼鈍し、このような箔で 2 次再結晶が生じないのは上記のような 2 次再結晶の核がないのか、あるいは核となるような形、方位をもった粒はあっても成長速度が極めて小さいため粗大化しないのかについて調べた。すなわち Photo. 6 は周囲の粒より比較的大きく、その粒界が凹な 1 次再結晶粒を示す。これらの粒の蝕像は Photo. 4, 5 と同じ形をしており、2 次再結晶粒と同一方位をもっていることが判った。従って 2 次再結晶を生じない箔でも核となるような形、方位をもった粒は存在するが成長速度が極めて小、あるいは潜伏期間が極めて長いために 2 次再結晶が生じないものと思われる。このように薄い Al-C はなぜ 2 次再結晶の成長速度が極めて小さいか調べた。1 次再結晶粒度が温度上昇によってどのように変るか、両方の試片について調べた結果⁽¹⁾を Fig. 3 に示す。焼鈍時間は 1 hr である。

すなわち、厚い Al-B は温度上昇とともに粒度は増大しているが、薄い Al-C は温度が 400° から 640° に上昇しても粒度は変化しない。すなわち前報⁽¹⁾で述べたように箔では 1 次再結晶粒の粒界移動が困難なことを示しており、Photo. 6 に示したような粒も

粒界移動が阻止されるので粗大化が起らないものと思われる。

圧延率が等しい Cu-A, Cu-B, Cu-C を 900°, 1000° および 1020° に真空中で恒温焼鈍し、2 次再結晶粒の有無を調べ Table 2 に示す。表中○印は 2 次再結晶の生じた試片、×印は生じなかった試片である。これから圧延率が等しくても 2 次再結晶の発生状態は異なり、厚みが薄くなるにつれて一定温度における潜伏期間は長くなる。また厚みの厚い試片は 2 次再結晶粒度が大で試片全体が 2 次再結晶粒で覆われるが、厚みが薄くなるにつれて 2 次再結晶粒度

Fig. 3 The primary recrystallized grain size of thicker and thinner Al foils annealed 60 minutes at various temperatures.

Photo. 6 The grain which seems to be the nucleus of secondary recrystallization in Al foil (98.5% reduction, 0.015 mm thickness) annealed 60 minutes at 600°. (×315) Reduced for reproduction.

Table 2 Occurrence of secondary recrystallization in Cu foils (nearly the same reduction, 86~88 %) during isothermal annealing.
○: occurred, ×: did not occur.

Temp. (°C)	Foil thick. (mm)	Annealing time (min)			
		10	30	60	300
950	0.11	×	×	○	○
	0.06	×	×	×	×
	0.035	×	×	×	×
1,000	0.11	×	×	○	○
	0.06	×	×	×	○
	0.035	×	×	×	×
1,020	0.11	○	○	○	○
	0.06	×	×	○	○
	0.035	×	×	○	○

Photo. 7 Photograph of secondary recrystallized Cu foils annealed 60 minutes at 1020°.

Photo. 8 Microscopic appearance of secondary recrystallized grain in Cu foil (86 % reduction, 0.035 mm thickness) annealed 60 min. at 1,020°. (×50). Reduced for reproduction.

は小となり、1次再結晶粒の間に島状に現われる。1020°, 1 hr 焼鈍の場合を Photo. 7 に示す。Cu-C の2次再結晶粒は小さく、その顕微鏡写真を Photo. 8 に示す。前報⁽¹⁾で多種の厚みの試片を用いた場合 Al でも Cu でも一定圧延率以上で、2次再結晶の生じなくなる臨界厚み附近の試片では、2次再結晶粒は1次再結晶粒の数倍の大きさにすぎず、巨視的には見落しがちとなり、2次再結晶粒とするかあるいは1次再結晶粒(2次再結晶の核)と考えるか判定に苦しむものもあった。

IV. 結果の考察

圧延率が等しくて厚みの異なる Al-B および Al-C を 600° にて恒温焼鈍した。厚い Al-B は 4 min で2次再結晶を生じ、薄い Al-C は 180 min までで生じなかった。しかし Al-C の顕微鏡観察によれば Al-B に生じた2次再結晶粒と同じ方位をもち、粒界が周囲の粒に対して凹で、他の多くの粒よりも大きな1次再結晶粒が認められ、これは2次再結晶の核となる1次再結晶粒と思われる。Dunn⁽⁷⁾によれば1次再結晶集合組織の主成分からはなれた弱成分の方位の粒は主成分の粒の2倍以上の大きになれば周囲の粒を食って成長するとしているが、Al-C では数倍以上でも成長していない。これは薄箔では1次再結晶粒が平面的に並んだ状態となり、隣接粒の数が少く粒界移動が起り難いためこのような粒があっても潜伏期間が長く2次再結晶が起らないものと思われる。

Al-B の1次再結晶粒度は 0.05 mm で粒度/厚みの比は 0.35 であり、一方 Al-C のそれらの値はそれぞれ 0.036 mm および 2.4 である⁽¹⁾。いま両者の断面を考えれば Fig. 4

	(i)	(ii)
Red. (%)	98.58	98.5
Thick. (mm)	0.142	0.015
Annealing	600°, 60 min.	600°, 60 min.
Grain Size (mm)	0.05	0.036
Grain Size/Thick	0.35	2.4

Fig. 4 The schematic sectional view of thicker and thinner Al foils.

のようになる。(i) の左側は1次再結晶粒であり、右側は2次再結晶粒である。このように1次再結晶粒が試片厚みにわたり立体的に積み重なっておれば2次再結晶粒の核は周囲の粒を食って大きく成長することが出来る。しかし(ii)のように1次再結晶粒の平均直径が試片厚みの2~3倍にもなれば表面から見れば Photo. 6 のように周囲の粒に対してその境界が凹でも2次元的に接しているため接触粒の数が少く、周囲の粒を食って成長することが困難となる。大河原、中村⁽⁸⁾は Al 箔でやはり厚みが薄くなり、結晶が2次元的に分布するようになれば粗大化が起らなくなることをいっている。前報⁽¹⁾で述べたように試片厚みが薄くなれば普通の再結晶図のように本来圧延率によってきまる粒度よりも小となり、厚みの減少と共に1次再結晶粒度は小となる。そしてこれも粒界移動が阻止されるためであると思われる。このように試片厚みが薄くなって1個の1次再結晶粒が試片の両面に達し、あるいはさらに加工組織を食って厚みよりも大きく2次元的に成長すれば、再結晶粒同士が衝突した場合粒界移動は困難となる。

圧延率が略々等しく厚みの異なる Cu-A, Cu-B および Cu-C を 950~1020° の範囲で恒温焼鈍したら厚みの減少とともに一定温度における2次再結晶の潜伏期間が大となり、また2次再結晶粒の大きさも小となった。いま 1020°, 1 hr 焼鈍の場合について考えれば Cu-A は試片全体が2次再結晶粒で覆われてしまったので1次再結晶粒度は判らないが、Cu-B の1次再結晶粒度および粒度/厚みの比は 0.098 mm および 1.63 であり、Cu-C のそれぞれの値は 0.082 mm および 2.3 である⁽¹⁾。箔の厚みの減少につれて1次再結晶粒度/厚みの比が増大する。そして圧延率が等しくても厚みの減少と共に2次再結晶粒度は減少する。このことは粒度/厚みの比の増大するにつれて一つの粒に接する周囲の粒の数が少くなるので、2次再結晶の核が周囲の粒を食って成長することが困難となる傾向にあるためと思われる。Al-C の比の値は 2.4 で Cu-C では 2.3 で略々等しいが、前者では2次再結晶を生じないが後者では生じている。

以上 Al, Cu 共に圧延率が等しくても箔の厚みが薄くなれば2次再結晶が起り難く、あるいは起らなくなるということは、このような薄箔では核となるような形、方位をもった粒はあっても2次再結晶の成長速度が極めて小さく、潜伏期間が長くなるためと思われる。

(7) C. G. Dunn: Acta Met., 1 (1953), 163.

(8) 大河原、中村: 本誌, 21 (1957), 378.

V. 総 括

Al, Cu で圧延率が 略々等しく厚みの異なる箔を恒温焼鈍し, 2 次再結晶の発生状態を調べて次の結果を得た.

(1) Al の 0.142 mm 厚みのものは 600° で 4 min から 2 次再結晶を生じたが, 0.015 mm 厚みでは 180 min まですでに生じなかった.

(2) Al の 0.142 mm 厚みの 1 次再結晶粒の中, 比較

的大きく, 粒界が凹なある特定方位の粒が粗大化した.

(3) Al の 0.015 mm 厚みでもこのような 2 次再結晶の核になると思われる粒が認められた.

(4) Cu では厚みが減少するにつれ 2 次再結晶の潜伏期間が大となった.

(5) Cu で一定温度, 一定時間で生じた 2 次再結晶粒度は厚みの減少と共に減少した.