銅における立方体集合組織の形成について*

上 城 太 一** 山 本 一 馬**

Taichi Kamiyo and Kazuma Yamamoto: Formation of the Cube Texture in Copper. Hot-rolled tough pitch copper specimens were cross-rolled to 10 through 30 pct at 45° to the primary rolling direction after developing (123) $[1\bar{2}1]$ rolling texture. The effect of cross rolling on the formation of cube texture was investigated by examining the orientation relationship between the rolling texture and the annealing texture. Recrystallization nucleuses appeared in a early stage of recrystallization with large amount of retained deformed matrix, representing sharp cube orientation in the case of a 95 pct. straight-rolled specimen. As the reduction of cross rolling was increased, recrystallization nucleuses occurred at higher temperature and their orientation showed-greater spread from the cube

** 静岡大学工学部

* 1958 年 4 月本会東京大会に発表

orientation. It is difficult to account for these behaviors on the basis of the oriented-growth theory, but they agree precisely with the principle of the oriented-nucleation theory.

(Received November 7, 1930)

I. 緒 言

さきに発表した論文⁽¹⁾において (123) $[\bar{1}21]$ 型の圧延集合組織を形成させた後直角方向に圧延を行い、2 次圧延による圧延並びに再結晶集合組織の変化の挙動を oriented growth⁽²⁾⁽³⁾⁽⁴⁾、並びに oriented nucleation 説⁽⁵⁾⁽⁶⁾の立場から考察した。2 次圧延方向を変えた場合にはそれに伴い、active なり系が変化し deformed matrix の有する内部歪の状態が影響を受けると同時に圧延集合組織の方位変化の挙動も必然的に変ると考えられる。本実験においては 95% の 1 次圧延後、1 次圧延方向に対し 45° 方向に交叉圧延を行い、圧延並びに再結晶集合組織の方位関係を調べ、(001) $[100]$ 再結晶集合組織の形成に及ぼす deformed matrix の影響について検討した。ここで 45° 方向に交叉圧延を行ったのは対称性の高い圧延集合組織を形成させるためである。

他方再結晶核の方位並びにその発生温度に対しては、Burgers-Tiedema により提議された oriented nucleation 説⁽⁵⁾は (001) $[100]$ 方位の deformed matrix が最も

と硬度により観察した。

II. 実 験 方 法

試料は前論文と同一の厚さ 5mm の tough pitch copper 熱間圧延板焼鈍仕上げである。これに厚さ減少率で 95% の 1 次圧延を施した後、正方形の試片を対角線が 1 次圧延方向と一致するように切出し、1 次圧延方向に対し 45° 方向に各々 10, 20 および 30% の交叉圧延を行った。圧延集合組織と再結晶集合組織は X 線写真法並びに counter diffractometer を用いて決定した。再結晶核の方位とその発生温度の関係の研究は 1 次圧延方向と直角方向の 10~85% の 2 次圧延並びに 45° 方向の交叉圧延を行った試片を 120, 130, 140 および 150° の各温度に 30 分間焼鈍し、断面の顕微鏡組織と硬度変化を観察して行った。硬度は micro Vickers 硬度計を用い、荷重 100~500g にて板面の硬度を測定した。

III. 実 験 結 果

1. 圧 延 集 合 組 織

10% の交叉圧延を行った試片の圧延集合組織の (111) 極

Table 1

	Rolling reduction (pct)	Recrystallization temperature	Annealing time	Orientation of annealing texture
Straight rolling Cu ⁽²⁾	96	140~180°	5min	cube orientation
Cross rolling Cu ⁽⁴⁾	96.5	180~240°	5min	(510) $[\bar{4}111]$
Single crystal with a initial ⁽⁷⁾ orientation (358) $[\bar{5}23]$	95	250° 300°	15~30min 1~5min	off-cube
Single crystal with a initial ⁽⁸⁾ orientation (011) $[\bar{2}11]$	99.5	300° 400°	17min 5min	(trace) corresponding to 30° rotation (67.8%) around $[\bar{1}11]$ axis of (011) $[\bar{2}11]$ texture.

急速に polygonization を起し、低温で再結晶核となると主張する。それに対し oriented growth 説⁽³⁾は再結晶核の方位による incubation period の著しい相違はないと仮定している。しかし文献によると Table 1⁽²⁾⁽⁴⁾⁽⁷⁾⁽⁸⁾に示す如く (001) $[100]$ 方位、またはそれに近い方位の再結晶粒を生ずる場合には軟化温度が他の方位の場合に比べ著しく低い。そこで直角方向に 2 次圧延した試片および 45° 方向に交叉圧延した試片を 120~150° の各温度に焼鈍し、再結晶核の方位とその発生温度並びにその成長速度を顕微鏡組織

Fig. 1 (111) pole figure for the rolling texture of tough pitch copper strip, cross-rolled to 10 pct after developing (123) $[\bar{1}21]$ rolling texture. Open, half-filled and filled triangles indicate (011) $[\bar{2}11]$, (112) $[\bar{1}11]$ and (2911) $[\bar{9}45]$ orientations respectively.

点図を Fig. 1 に示す。Fig. 1 は一方圧延を行った銅ストリップの極点図に非常に類似し (011) $[\bar{2}11]$ 並びに (112) $[\bar{1}11]$ 方位から成っている。また (2911) $[\bar{9}45]$ 方位の極点

も intensity maxima と極めてよく一致している。Fig. 2 は交叉圧延率 0, 10, および 30% の試片の圧

延面に垂直な (111) 面からの反射による X 線強度を方位角の函数として示すものである。Fig. 2 においてはこの試片の R.D. すなわち 1 次圧延方向近傍の回折強度は多少減少

- (1) 上城, 山本: 本誌, **25**(1961), 151.
- (2) H. Hu, P. R. Sperry, P. A. Beck: J. Metals, **4** (1952), 76.
- (3) P. A. Beck, P. R. Sperry: J. Appl. Phys., **21** (1950), 150.
- (4) A. Merlini, P. A. Beck: Acta Met., **1** (1953), 598.
- (5) W. G. Burgers, T. J. Tiedema: Acta Met., **1** (1953), 234.
- (6) C. A. Verbraak: Acta Met., **6** (1958), 580.
- (7) Y. C. Liu: J. Metals, **9** (1957), 836.
- (8) Y. C. Liu, W. R. Hibbard: J. Metals, **5** (1953), 672.

し、その intensity maxima が 2.5° T.D. すなわち 1 次圧延の横方向に向つて移行している。また T.D. 近傍の回

Fig. 2 X-ray intensity reflected by (111) plane perpendicular to the rolling plane as a function of azimuthal angle, for the specimens cross-rolled to 0, 10 and 30 pct. Intensities in arbitrary units.

折強度の増加が見られるが、10% の交叉圧延を行った場合の圧延集合組織の変化は極く僅かであるということが出来る。30% の交叉圧延を行った試片では R.D. 近傍の回折強度の減少が大きく、とくに (112) $[\bar{1}\bar{1}1]$ 方位が著しく減少し、intensity maxima はさらに 4.5° T.D. に向かつて移行している。一方 T.D. 近傍においては円周方向の分散が増大し、その小さな intensity maxima は T.D. か

Fig. 3 (111) pole figure for the rolling texture of Cu strip cross-rolled to 30 pct. Open, half-filled and filled triangles indicate (011) $[\bar{2}\bar{1}1]$, (112) $[\bar{1}\bar{1}1]$ and (011) $[522]$ orientations respectively.

ら 6° 離れている。この試片の圧延集合組織の (111) 極点図は Fig. 3 に示すごとく、中央部では Fig. 1 と類似しているが、円周部では前記の変化が明瞭に現われ、(011) $[\bar{2}\bar{1}1]$ 方位を N.D. すなわち圧延面の垂線の廻りに 6° 回転した (011) $[522]$ 方位の極によつて表わすことが出来る。またこの方位は Fig. 2 における R.D. と T.D. 近傍の回折強度が大略等しいという事実をも説明出来る。Fig. 4 は 45° 方向にそれぞれ 0, 10 および 30% 交叉圧延した試片並びに直角方向に 30% 2 次圧延した試片の圧延集合組織の主成分の (111) 極を比較したものである。R.D. 並びに T.D. 近傍の (111) 極点の 2 次圧延による変化が 2 次圧延の方向により異なっていることは同図から明らかである。

2. 再結晶集合組織

Fig. 5 は交叉圧延率 10, 20 および 30% の試片の R.D. 並びに T.D. に平行な (200) 面からの反射による X 線強度を圧延面に対する傾角の函数として示すものである。10% 交叉圧延の試片の再結晶集合組織の主成分は、R.D. に平行な

$\langle 100 \rangle$ 軸の廻りの回転に対応する分散を有する可成り鮮鋭な (001) $[100]$ 方位を示している。写真法によつて決定し

Fig. 4 (111) pole figure showing all four octahedral poles for the main component of the rolling texture. Filled triangles 0, 1 and 2 indicate the specimens cross-rolled to 0, 10 and 30 pct respectively; Open triangle rolled secondarily to 30 pct at right angle to the primary rolling direction.

た極点図においては副成分として (122) $[\bar{2}\bar{1}2]$ 方位を伴っている。交叉圧延率が増すと T.D. 近傍の回折強度は急速に減少し、R.D. の廻りの回転に対応する分散が増加する。同時に R.D. における回折強度も減少する。しかるに R.D. 近傍の集積は N.D. の廻りの分散を多少増すが、T.D. の廻りの回転に対応する分散には変化がない。また交叉圧延率が高くなると不規則方位粒が非常に多くなり、副成分の方位は決定し難くなる。

Fig. 5 X-ray intensity reflected by (200) plane parallel to the rolling direction (open circle) and transverse direction (solid circle) as a function of their and tilting angle with respect to the rolling plane. (1) (2) and (3) are specimens cross-rolled to 10, 20 and 30 pct and annealed 6 hr at 150° respectively. Intensities in arbitrary units.

3. 再結晶核の方位とその発生温度並びに成長速度の関係

再結晶の進行は核の発生温度を 600 倍の顕微鏡にて検出し得る大きさの再結晶粒の出現する温度と定義し、 10° および $120 \sim 150^\circ$ の各温度に 30 分間焼鈍し、各試片の硬度変化並びに断面の顕微鏡組織を観察して調べた。120° で焼鈍した場合には 1 次圧延のみの試片は板厚の中央部に 20 ~ 30% 程度再結晶粒を生ずる。この再結晶粒は X 線写真 Photo. 1 から明らかな如く鮮鋭な (001) $[100]$ 方位およびその双晶方位を有している。一図中 (200) 回折環右辺の強い spot 的な黒化が (001) $[100]$ 方位の再結晶粒からの反射によるも

のである。10% 直角方向に2次圧延した試片では所々に非常に小さな再結晶粒の出現が見られるが、20~55% 圧延した試片には全く再結晶粒の発生が認められない。さらに圧延率が高い75及び85% 圧延の場合には再び結晶粒が認められる。130°にて焼鈍した場合には再結晶が促進され、圧延率20~55%の試片

Photo.1 X-ray diffraction pattern of tough pitch copper rolled to 95 pct and annealed 30 min at 130° taken with $\text{CuK}\alpha$ radiation. The plane of specimen was tilted 25° from a plane normal to the incident beam around an axis parallel to the transverse direction.

においても僅かではあるが再結晶粒の出現が認められる。焼鈍温度を高めると再結晶が進行し、150°にて焼鈍した場合には1次圧延のみの試片は殆んど完全に再結晶する。2次圧延を行った試片は圧延率が高くなるにつれ残留加工組織が増加するが、圧延率75%以上の場合には再結晶粒が成長している。Photo.2は2次圧延率0, 10, および30%の試片を150°にて30分間焼鈍した場合の顕微鏡写真である。

(1)

(2)

方位粒が現われている。このように直角方向に2次圧延を行った場合には、高圧延率の試片を除くと、2次圧延率が高くなるにつれて、再結晶核の発生温度が上昇し、再結晶の

進行が遅れることが判る。この現象を再結晶粒の方位から見ると、2次圧延率には関係なく、鮮鋭な(001)[100]再結晶集合組織が形成される場合には再結晶核の発生温度が低く加工組織がまだ大部分残留している再結晶の初期において現われる再結晶粒が(001)[100]方位を有している。

(3)

Photo.2 Optical micrograph of section annealed 30 min at 150° (1) (2) and (3) are specimens rolled to 0, 10, and 30 pct respectively at right angle to the primary rolling direction. ($\times 400$)

生も見られる場合にはそれが多い程その発生温度が高い。そしてさらに高温で焼鈍した場合に形成される再結晶集合組織も前論文⁽¹⁾に報告したごとく(001)[100]方位からの分散が大きく不規則方位粒を数多く伴うことが明らかとなった。45°方向に交叉圧延した場合にも全く同様に(001)[100]方位粒を生ずる試片は核発生の温度が低く、不規則方位粒も生ずる交叉圧延率の高い試片程核発生の温度が高いという結果が得られた。Fig.6は交叉圧延率0, 10および20%の試片を120~150°にて30分焼鈍した場合の硬度変化である。交叉圧延率が増すにつれて再結晶が遅滞することが判る。

Fig.6 Change of hardness in cross-rolled Cu after developing (123)[121] rolling texture, as a function of annealing temperature. Open, half-filled and filled circles represent the specimens cross-rolled 0, 10 and 20 pct and annealed 30 min respectively.

び20%の試片を120~150°にて30分焼鈍した場合の硬度変化である。交叉圧延率が増すにつれて再結晶が遅滞することが判る。

IV. 考 察

95%の1次圧延後45°方向に交叉圧延を行った場合の圧延並びに再結晶集合組織の変化を直角方向に2次圧延した場合の変化と比較し、oriented growth説の立場から検討しよう。圧延集合組織の極点図は交叉圧延した場合にはその変化が少く、30%圧延した試片においても一方圧延を行った銅ストリップのそれと可成り類似している。し

かし圧延集合組織の主成分は (011) $[\bar{5}22]$ に変化し、その方位に至る経路は Fig. 4 に示すごとく、直角方向の 2 次圧延の場合の方位変化と非常に異なっている。したがって 45° 方向の交叉圧延による再結晶集合組織の変化も直角方向に圧延した場合と異なることが予想される。しかるに再結晶集合組織は (001) $[100]$ 方位から主として R.D. に平行な $\langle 100 \rangle$ 軸の廻りの回転に対応する分散が増加し、直角方向に圧延した場合の再結晶集合組織の変化に極めて類似している。従つてこの結果を oriented growth 説によつて説明することは非常に困難と考えられる。

一方再結晶核の発生する温度は本実験の場合、その方位が (001) $[100]$ 方位に近い核程低くなっている。文献に報告されている多結晶鋼板を 5 分間焼鈍した際の再結晶温度は、Table 1 に示した如く、(001) $[100]$ 再結晶集合組織の形成される一方向圧延の場合には約 140° で再結晶が始まり 180° で大略完了している。(510) $[\bar{4}111]$ 再結晶集合組織の形成される交叉圧延の場合には圧延率は等しいが、再結晶温度は 40~60° 程度高くなっている。単結晶を圧延した場合の再結晶温度は多結晶体の場合よりも相当高い。しかし、この場合にも (001) $[100]$ 方位に近い“off cube”方位の再結晶核が生ずる温度は、圧延率が遙かに低いにもかかわらず (011) $[\bar{2}11]$ 方位を $\langle 111 \rangle$ 軸の廻りに 30° 回転した方位に対応する再結晶集合組織が発生する温度より 100° 以上も低くなっている。このように顕微鏡で再結晶粒の出現が認められる温度または軟化の始まる温度をもつて再結晶核の発生温度とすると、(001) $[100]$ 方位またはそれに近い再結晶集合組織が形成される場合には、それが低いということが出来る。ここで問題となるのは再結晶核が出現するまでに oriented growth の過程を経て来たか否かという点である。それに関しては (1) 加工された結晶の大きさ、deformation band の巾等は、顕微鏡で十分観察し得る大きさである事、(2) 600 倍の顕微鏡で観察した場合、再結晶の初期に核が同時に数多く発生し食合をするという現象は起らず、むしろ数少い核が急速に成長するのが見られること、(3) Beck, Merlini は圧延板を非常に薄くした場合に (001) $[100]$ 再結晶集合組織の形成が阻害される理由、並びに完全に再結晶した後さらに焼鈍温度を高めた際に起る (001) $[100]$ 再結晶集合組織の鮮鋭化を oriented growth によつて説明していることなどの事実を考慮すると、oriented growth の現象は顕微鏡で検出し得る大きさの核が発生する以前に起るのではなく、発生した核の成長する過程、並びに可成り大きく成長し互に境界を接するようになつて再結晶集合組織が鮮鋭化する過程で起ると考えた方が実験事実を良く説明出来る。したがって Photo. 1 に示される再結晶の初期に現われた鮮鋭な (001) $[100]$ 方位の再結晶粒は oriented growth の結果ではなくその方位の核のみが発生し成長したものと考へねばならない。直角方向の 2 次圧延または 45° 方向の 2 次圧延を行つた場合、圧延率の上昇とともに再結晶核の方位が (001) $[100]$ 方位からの分散を増し、それに伴つて核発生温度が上昇し再結晶が遅滞

するということは明らかに再結晶核の方位により incubation period に相違のある証拠である。また鮮鋭な (001) $[100]$ 再結晶集合組織が形成される場合には、(001) $[100]$ 方位の核のみが発生し、再結晶の初期に分散の大きな方位の核が出現した場合には、再結晶集合組織もまた大きな分散を有するという事実は、(001) $[100]$ 再結晶集合組織の形成が at random 方位に発生した核の選択的生長のみによるものではないことを意味している。従つて、この実験結果を oriented growth 説により説明することは不可能であろう。oriented nucleation 説の立場から考えると、これらの挙動は低温で (001) $[100]$ 方位の再結晶核を形成すべき deformed matrix が迂り系を異にする 2 次圧延により影響を受け (001) $[100]$ 方位からの分散を増すようになると同時に核形成に必要な activation energy が高くなつた結果である。したがつて本実験結果は (001) $[100]$ 方位を有する再結晶核の発生が (001) $[100]$ 再結晶集合組織の形成の主要因と考える oriented nucleation 説とは極めてよく一致すると結論出来る。

V. 総 括

(1) tough pitch 銅に (123) $[\bar{1}21]$ 型の圧延集合組織を形成させた後 1 次圧延方向と 45° 方向に交叉圧延を行い、圧延集合組織と再結晶集合組織の方位関係を調べ、(001) $[100]$ 再結晶集合組織の形成に及ぼす交叉圧延の影響について検討した。

(2) 交叉圧延率が 10 % の場合には圧延集合組織の極点図は一方向圧延を行つた銅ストリップの極点図に非常に類似しているが、30% 圧延した場合には圧延集合組織の主成分は (011) $[\bar{5}22]$ 方位に来る。この方位に至る方位変化の経路は直角方向に 2 次圧延した場合のそれと全く異なっている。

(3) 10 % 交叉圧延した後 150° にて 6 時間焼鈍した場合の再結晶集合組織の主成分は圧延方向に平行な $\langle 100 \rangle$ 軸の廻りの回転に対応する分散を有する可成り鮮鋭な (001) $[100]$ である。圧延率が高くなると再結晶集合組織は主として (001) $[100]$ 方位からの上記の分散が増すと同時に不規則方位粒が多くなる。この分散の傾向は直角方向に 2 次圧延した場合の再結晶集合組織の分散と大略一致している。

(4) 加工組織が大部分残留している再結晶の初期に現われる再結晶核は 1 次圧延のみの場合には鮮鋭な (001) $[100]$ 方位を有している。直角方向の 2 次圧延または交叉圧延を行つた場合には圧延率が上昇するとともに再結晶核の方位が (001) $[100]$ 方位からの分散を増すと同時に再結晶核の発生する温度が上昇し再結晶が遅滞する。

(5) これらの挙動は oriented growth 説によつて説明することは困難であるが、oriented nucleation 説の原理とは極めて良く一致すると考えられる。

最後に本研究の際御指導頂いた東京大学五弓勇雄、阿部秀夫両先生、並びに試料を提供下さつた住友金属工業 K K 近藤 豊、鈴木脩二郎両氏に深く感謝致します。