銅における立方体集合組織の成因について*

上 城 太 一** 山 本 一 馬**

Taichi Kamiyo and Kazuma Yamamoto: The Origin of Cube Texture in Copper.

In order to test the oriented growth and the oriented nucleation theories of the origin of the cube texture, the orientation relationship between the rolling texture and the annealing texture of a tough-pitch copper strip was examined after secondary rolling at right angle to the primary rolling direction. At low secondary reduction, while shifting of the main component of the rolling texture was hardly observed, the pole figure for the annealing texture showed that the (200) maxima in the secondary rolling direction were much decreased in intensity and the cube texture might be accounted for by spread from the (001) [100] orientation corresponding to the rotation around the [100] axis parallel to the primary rolling direction. At high secondary reduction, though the main component of the rolling texture was deviated considerably from the (2911) [945] orientation, the pole figure for the annealing texture was composed mainly of the fairly sharp cube orientation. Such behavior will be difficult to explain in the terms of the oriented growth theory at least.

(Received October 19, 1960)

I. 緒 言

強冷間圧延を行った面心立方金属を焼鈍した際、形成される顕著な (001) [100] 再結晶集合組織については古くから多くの研究⁽¹⁾が行われて来たが、その成因はいまだ完全には解明されていない。Beck⁽²⁾⁽³⁾⁽⁴⁾らの研究結果に基づく oriented growth 説は (001) [100] 再結晶集合組織の形成が再結晶粒の成長速度の方位依存性によると主張する。それに対し、(001) [100] 方位を有する再結晶核が発生すると考える oriented nucleation 説が、Burgers-Tiedema⁽⁵⁾, Verbraak⁽⁶⁾, 並びに Liu⁽⁷⁾のたちにより提議されている。

oriented growth⁽²⁾⁽³⁾⁽⁴⁾説によれば、何らかの要因により圧延集合組織が変化した場合、再結晶集合組織も同時に変化することが予想される。そこでこの説を吟味するには (001) [100] 集合組織が成長するとされている (123) [121]

type の deformed matrix を有しながら (001) [100] 集合組織が形成されない場合、または (123) [121] 方位とは全く異つた圧延集合組織からそれが形成される場合の有無を確かめればよい。このような目的をもつた実験には、銅に亜鉛、錫、燐その他の合金元素を添加し、その圧延集合組織並びに再結晶集合組織に及ぼす効果を調べる方法⁽⁸⁾、特定方位の単結晶を圧延再結晶させる方法などが用いられ、注目すべき結果が報告されている。しかし前者の場合には、添加元素が圧延時における辺りの機構、焼鈍時における grain boundary mobility に影響するため、再結晶集合組織の変化が圧延集合組織の方位の相違のみに基因すると簡単に結論することは出来ないと考えられる。また後者では penultimate grain size が大きい場合には (001) [100] 集合組織が発達し難いという難点を有する。そこで著者は (001) [100] 集合組織が形成され易い多結晶純銅を用い、まず鮮鋭な (001) [100] 集合組織が発生するよう 95% の 1 次圧延により (123) [121] 型の圧延集合組織を形成させた後、それと直角方向に 10~85% の 2 次圧延を行った。本実験は 2 次圧延による圧延集合組織と再結晶集合組織の方位変化の挙動を X 線写真法並びに counter diffractometer を用いて追跡し、(001) [100] 集合組織の成因に対する前述二つの説について検討したものである。

** 静岡大学工学部

* 1958 年 4 月本会東京大会に発表

- (1) W.H. Baldwin: Trans. AIME, **166**(1946), 591.
- (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) A. Merlini, P.A. Beck: J. Metals, **7**(1955), 385.

II. 実験方法

試料は純度 99.99% 厚さ 5mm の tough pitch 銅熱間圧延板焼鈍仕上りに、厚さ減少率で 95% の 1 次圧延を施し、さらにそれと直角方向に各々 10, 20, 30, 40, 55, 75 および 85% の 2 次圧延を行ったものである。これら圧延板を空气中にて 150° に 6 時間焼鈍した。圧延並びに再結晶集合組織の決定に用いた試片は 0.025~0.035 mm まで稀硝酸中で腐食した。X 線回折写真の撮影は Cu K α X 線に対し試片面を圧延方向ならびに横方向に平行な軸の廻りに 0° から 5° または 10° おきに回転し、管電圧 35 kV, 管電流 5 mA にて 5 分間露出して行った。同時に (111) 並びに (200) 極点図の主要箇所の X 線強度分布の変化は counter diffractometer を用い Decker, Asp, Harker 法⁽¹⁰⁾により観測した。

III. 実験結果

1. 圧延集合組織

Fig. 1, 2 および 3 は 2 次圧延率 10, 30 および 85% の試片の (111) 極点図である。Fig. 4 は 2 次圧延率 0, 10, 30 および 85% 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。2 次圧延率 10% の試片の圧延集合組織は、一方向圧延せる銅ストリップの極点図に非常に類似し、(011) $[2\bar{1}1]$ 並びに (112) $[\bar{1}\bar{1}1]$ 方位と大略記述することが出来る。黒三角印は (2911) $[945]$ 方位⁽²⁾の極点を圧延面に垂直な軸の廻りに 3° 回転させた修正 (2911) $[945]$ 方位であるが、強い集積位置と非常によく一致している。従つて直角方向に 10% 圧延

Fig. 1 (111) pole figure for the rolling texture of the tough pitch copper strip rolled secondarily to 10 pct reduction in thickness at right angle to the primary rolling direction. Open, half-filled and filled triangle indicate (011) $[2\bar{1}1]$, (112) $[\bar{1}\bar{1}1]$ and modified (2911) $[945]$ orientations respectively.

ことが出来る。30% 圧延の試片の (111) 極点図 Fig. 2 では (112) $[\bar{1}\bar{1}1]$ 方位の極点は強い集積からはずれ、Fig. 4 もこの方位が非常に減少し、S.R.D. すなわち 2 次圧延方向近傍の X 線強度が増したことを示している。この圧延集合組織の変化は P. R.D. 近傍の intensity maxima の移動がわずかで

P. R.D. 近傍の (111) 極の廻りの回転と考えられる。そこでこの圧延集合組織は (011) $[322]$ 方位に近い黒三角印に

Fig. 2 (111) pole figure for the rolling texture of the tough pitch copper strip rolled to 30 pct. Open, half-filled and filled triangle indicate (011) $[2\bar{1}1]$, (112) $[\bar{1}\bar{1}1]$ and near (011) $[322]$ orientations respectively.

Fig. 3 (111) pole figure for the rolling texture of the tough pitch copper strip rolled to 85 pct. Open, half-filled and filled triangle indicate (011) $[2\bar{1}1]$, (112) $[\bar{1}\bar{1}1]$ and modified (2911) $[945]$ orientations respectively.

より表わすことが出来る。40% 圧延した試片の極点図は Merlini, Beck⁽⁴⁾によつて報告されている交叉圧延銅板の圧延集合組織の極点図に類似し、更に圧延率が高くなると、極点図は一方向圧延せる銅ストリップの極点図を圧延面に垂直な軸の廻りに 90° 回転した方位に近づく。85% 圧延した試片の 2 次圧延方向すなわち S. R. D. を上にとつた (111) 極点図 Fig. 3 では (011) $[2\bar{1}1]$, (112) $[\bar{1}\bar{1}1]$ 並びに修正 (2911) $[945]$ 方位の極点はいずれも可成り強い集積上にあるが、最も強い集積とは一致していない。Fig. 4 では P. R. D. すなわち 2 次圧延の横方向の回折強度が低く、

Fig. 4 X-ray intensity reflected by (111) plane perpendicular to the rolling plane, as a function of a azimuthal angle, for the specimens rolled to 0, 10, 30 and 85 pct. Intensities in arbitrary units.

しかもその (111) intensity maxima が P. R. D. より 7° だけ離れている。一方 2 次圧延方向近傍の (111) intensity

- (9) Y. C. Liu, W. R. Hibbard: J. Metals, 5(1953), 672.
(10) B. F. Decker, E. T. Asp, D. Harker: J. Appl. Phys., 19(1948), 388.

maxima は S.R.D. から 11° しか離れていない。従つて、85% 圧延の試片の圧延集合組織は 10% 圧延の試片のそれに比べ一方向圧延せる銅ストリップの圧延集合組織と著しく相違していると見ることが出来る。75% 圧延の試片の極点図は Fig. 3 に非常に類似している。(111) 極点図と同様に、(200) 極点図についても調べ、前述の変化を確認した。しかし(200)極点図においては圧延集合組織の main component と cube component が明瞭に区別されるので、(001)[100] 方位の deformed matrix の 2 次圧延による変化を次に述べる。Fig. 5 は 2 次圧延率 0, 10, 30 および 85% の試片の圧延面に垂直な(200)面によつて反射した X

Fig. 5 X-ray intensity reflected by (200) plane perpendicular to the rolling plane as a function of a azimuthal angle, for the specimens rolled to 0, 10, 30 and 85 pct. Intensities in arbitrary units.

線強度を方位角の函数として示すものである。Fig. 6 は 2 次圧延率 0, 20 および 85% の試片の(200)極点図の P.R.D. 並びに S.R.D. 近傍の X 線強度分布を示すものである。図中の数字は X 線強度の等高線の高さを示し、B.G. とそ

Fig. 6 (200) pole figure near the primary and secondary rolling directions for the rolling texture of the specimens rolled to 0, 20 and 85 pct respectively. Intensities in arbitrary units.

の数字は back ground およびその高さを表わしている。1 次圧延のみの試片の(001)[100]方位の deformed matrix は圧延方向近傍では回折強度が高く、傾角が小さくな

ると急激に減少する。横方向すなわち S.R.D. 近傍の回折強度は低い。圧延方向の [100] 軸の廻りの回転に対応する分散が大きい。しかし円周方向の分散は比較的小さい。2 次圧延を行うと P.R.D. の回折強度は圧延率 30% までは減少するが、その分布が傾角の小さな領域に広がる。一方 S.R.D. の回折強度は増加し、40% 圧延では S.R.D. の X 線強度分布が P.R.D. のそれと大略一致する。75% 以上圧延した試片では (001)[100] 方位の deformed matrix が著しく増加し、その分散も大きくなっている。

2. 再結晶集合組織

再結晶集合組織については、主として X-ray diffracto-

Fig. 7 X-ray intensity reflected by (200) plane parallel to the primary (filled circle) and secondary (open circle) rolling directions, as a function of their tilting angle with respect to the rolling plane, for the specimens rolled to 10, 20, 30 and 85 pct and annealed 6 hr at 150° respectively. Intensities in arbitrary units.

meter により観測した結果を報告する。Fig. 7 は圧延率 10, 20, 30 および 85% の各試片の S.R.D. 並びに P.R.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

Fig. 8 (200) pole figure near the primary and secondary rolling directions for the annealing texture of the specimens rolled to 10 and 20 pct and annealed 6 hr at 150° respectively. Intensities in arbitrary units.

する傾角の函数として示したものである。従つて白丸は極点図の 1 次圧延方向近傍の(200)面の分布を P.R.D. から

極点図の中心に向かつて plot したものであり、黒丸は 2 次圧延方向近傍の (200) 面の分布である。Fig. 8 は圧延率 10、および 20% の試片の (200) 極点図 P.R.D. 並びに S.R.D. 近傍の回折強度の分布を示すものである。図中の符合および数字は等強度線の高さを表わしている。1 次圧延のみの試片は、極めて鮮鋭な (001) [100] 再結晶集合組織である。10% 圧延の試片は相当鮮鋭な立方集合組織で副成分として立方体方位の双晶 (122) $\bar{2}\bar{1}2$ 方位を含んでいる。(200) 極点図の X 線強度を詳細に調べると、P.R.D. の回折強度は非常に高く、かつ極めて鮮鋭であるが、S.R.D. の回折強度は P.R.D. の約 40% と低く、傾角の小さな領域まで分布していることが判る。20% 圧延した試片の S.R.D. の回折強度分布はさらに上記の傾向が著しく現われている。このように 2 次圧延を行つた場合、再結晶集合組織の (200) 極点図の P.R.D. 近傍の X 線強度分布は殆んど変化しないが、S.R.D. 近傍の X 線強度は著しく減少するとともに P.R.D. すなわち 1 次圧延方向の [100] 軸の廻りの回転に対応する分散を増すことが判る。30% 圧延した試片では X 線写真には不規則方位粒が多く存在しているが、(200) 極点図の P.R.D. の集積はなお強く鮮鋭である。しかし S.R.D. の回折強度は極端に減少する一方、その分散が非常に増して (001) [100] 方位から 1 次圧延方向を fiber axis とする $\langle 100 \rangle$ 繊維組織に変化している。40% 圧延した試片では (200) 極点図 P.R.D. 近傍には可成り強い集積が残存しているが、不規則方位粒が非常に増加し、Merlini, Beck⁽⁴⁾ により報告されている交叉圧延再結晶集合組織はほとんど認められない。また 55% 圧延した試片の再結晶粒は不規則方位を有している。75% 圧延した試片では不規則方位粒も多いが、再び立方体方位の集積が強まる。85% 圧延した試片では 1 次圧延のみの試片の再結晶集合組織に近い鮮鋭な (001) [100] 再結晶集合組織が発達している。

IV. 考 察

まず、本実験結果と、oriented growth 説の関係を検討しよう。2 次圧延率が低い場合には圧延集合組織の主方位は殆んど変化しない。それに対し、再結晶集合組織の (200) 極点図においては、1 次圧延方向の intensity maxima は高くかつ sharp であるが、2 次圧延方向の intensity maxima は減少し、1 次圧延方向の廻りの回転に対応する分散が増加する。これは (2911) $\bar{9}45$ 方位からは sharp な cube texture が出現するとする oriented growth 説の予想と一致しない。圧延率が増すと圧延集合組織は主として P.R.D. に近い (111) 極の廻りに回転し徐々に交叉圧延銅板の圧延集合組織である (011) $\bar{3}22$ 方位に近づく。この (111) 極の変化は Cu に Zn を少量添加した場合の方位変化⁽⁶⁾に非常に類似しているため、oriented growth 説に従えば再結晶集合組織は、少量の Zn を含んだ Brass の再結晶集合組織⁽⁶⁾と一致するか、或いは (001) [100] 方位か

ら分散を増して交叉圧延再結晶集合組織に変化すると予想される。しかるに、再結晶集合組織は 1 次圧延方向を繊維軸とする $\langle 100 \rangle$ 繊維組織を形成する。このように極端な異方性をもつた分散が (011) $\bar{3}22$ 方位に近い圧延集合組織から生ずるということは、成長速度の方位依存性からは考えられないことである。圧延率がさらに増すと明瞭な圧延集合組織が存在しているにもかかわらず、この圧延集合組織を消費して成長するのに適した方位の再結晶粒の成長は全く見られない。圧延率が非常に高まり 85% に達すると再び非常に鮮鋭な (001) [100] 再結晶集合組織が形成される。しかるに圧延集合組織は (2911) $\bar{9}45$ 方位から相当偏倚している。また圧延率が 75% の場合には圧延集合組織は前者と殆んど変わらないが、再結晶集合組織は不規則方位粒が多く (001) [100] 方位の集積は非常に弱くなっている。このような事実は明らかに oriented growth 説によつて説明することは困難と考えられる。

次に、(001) [100] 方位の deformed matrix は local curvature が大きく、焼鈍の際最も急速に polygonization を起し、再結晶核となると考える Burgers-Tiedema⁽⁶⁾によつて提議された oriented nucleation 説について考察しよう。そこで (001) [100] 方位の再結晶集合組織と deformed matrix の分散状態を比較して見る。一方向圧延のみの場合には再結晶集合組織は極めて鮮鋭で、(200) 極点図において回折強度が 1/10 に減少する角度より測定すると、その分散は 5~6° 程度である。一方、deformed matrix は 1 次圧延方向ではその分散が少し大きいだけであるが、S.R.D. では直径方向の分散が著しく大きい。2 次圧延を行つた場合には P.R.D. における deformed matrix は S.R.D. の [100] 軸の廻りの分散が増し、local curvature の増加を示している。したがつてこの説によれば、再結晶集合組織も同様の分散を示すことが予想される。しかし再結晶集合組織の P.R.D. における集積は非常に sharp で 2 次圧延率が増しても殆んど変化が見られない。また 2 次圧延率が非常に高い場合には再結晶集合組織は再び鮮鋭になるが、deformed matrix の分散はそれに比べ遙かに大きい。従つてこの結果では (001) [100] 方位の再結晶集合組織と deformed matrix の分散を一義的に関係づけることは困難で、さらに詳細な研究を行う必要があると思われる。

次に、(001) [100] 方位の再結晶核が圧延集合組織の主として (112) $\bar{1}\bar{1}1$ 方位の双晶境界から剪断的過程で形成されると考える Verbraak⁽⁶⁾の inverse Rowland mechanism 説について考えて見る。(112) $\bar{1}\bar{1}1$ 方位の結晶は 2 次圧延を行うと格子回転を起し急速に減少する。この格子回転には Fig. 3 から明らかな如く S.R.D. の [100] 軸の廻りの回転の成分を含んでおり inverse Rowland mechanism によつて核が形成されたと考えると、(001) [100] 再結晶集合組織も同様の分散を増すはずであるが、実際にはそのような分散は殆んど認められない。

V. 総 括

(1) 立方体集合組織の成因に対する, oriented growth 説と oriented nucleation 説について検討するため, tough pitch 銅熱間圧延板に (123)[$\bar{1}\bar{2}1$] type の圧延集合組織を形成させた後, それと直角方向に 10~85 % の 2 次圧延を行い, 圧延集合組織と再結晶集合組織の方位関係に及ぼす 2 次圧延の影響について X 線写真法, 並びに counter diffractometer を用いて研究した。

(2) 圧延率が低い場合には, 副成分の (112) [$\bar{1}\bar{1}1$] 方位は比較的速く減少するが, 圧延集合組織の主成分は殆んど変化が認められない。しかし再結晶集合組織の (200) 極点図は 2 次圧延方向の intensity maxima が減少し, (001) [100] 集合組織が立方体方位から 1 次圧延方向の廻りの回転に対応する分散を増すことを示している。

(3) 圧延率が増すと圧延集合組織の主成分は銅の特有の方位から交叉圧延銅の圧延集合組織に近い近似 (011) [$\bar{3}22$] 方位に変化する。一方再結晶集合組織は 1 次圧延方向を繊維軸とする $\langle 100 \rangle$ 繊維組織となる。この場合の立方体方位からの分散は (001) [100] 方位の deformed matrix の分散の傾向とは殆んど一致しない。

(4) 圧延率の高い場合には, 圧延集合組織の主成分は (2911) [$\bar{9}45$] 方位から相当偏倚しているが, 再結晶集合組織の極点図は主は可成り鮮鋭な (001) [100] 方位から成っている。

(5) このような挙動は, 少くとも oriented growth 説で説明することは困難と考えられる。

最後に, 本実験に際し御指導戴いた東京大学工学部, 五弓勇雄, 阿部秀夫両先生, 実験に協力して戴いた関文男氏並びに実験試料を提供下さった住友金属工業 K. K. 近藤豊鈴木脩二郎両氏に対して深く感謝の意を表する。