立方体再結晶集合組織の成因に関する 逆 Rowland 機構説の吟味について

上 城 太 一*

Taichi Kamijo : Study on the Inverse Rowland Mechanism for the Nucleation of a Cube Recrystallization Texture. Copper polycrystalline aggregates with (001) [110] and (001) [100] orientations were cold-rolled up to 96.7 pct and annealed for 30 min at 250°C to examine the inverse Rowland mechanism. On annealing a simple {112} <111> rolling texture which is formed after 75 pct rolling of the (001) [110] orientation, no cube texture can be observed. With increasing the amount of the {011} <211> or the {123} <211> component of the rolling texture, the intensity of the cube texture component increases at higher reduction. In case of the (001) [100] orientation, a fairly sharp cube texture is developed from a rolling texture which scarcely contains the {112} <111> component. It is clear that these results are not in good accordance with the expectation derived from the inverse Rowland mechanism.

(Received January 28, 1967)

I. 緒 言

Verbraak⁽¹⁾は(001) [100] 方位の再結晶核が圧延集合組織の {112} <111> 方位の双晶境界からせん断的過程で形成されると考える、逆 Rowland 機構説を提案している。五弓、大久保、および堀内⁽²⁾は電子顕微鏡によつて再結晶の初期の段階を直接観察し、(001) [100] 方位を有する 1 μ 程度の微細な再結晶粒が主として、{112} <111> 方位の incoherent な双晶境界に沿つて発生することを見出した。五弓らはこの実験結果によつて Verbraak の説を支持している。

(001) [110] 方位の多結晶銅板を冷間圧延すると、著者⁽³⁾がさきに本誌に発表したごとく、約 80 % の圧下率で {112} <111> 双晶方位となり、さらに圧下率を高くすると {123} <211> ないし {011} <211> 方位成分が増加する。そこで逆 Rowland 説にしたがえば、圧延集合組織が {112} <111> 双晶方位からなる純銅板を再結晶させたときにも、立方体集合組織が発達することが考えられる。それに対し Beck らに提議された Oriented growth 説⁽⁴⁾⁽⁵⁾によれば、圧延集合組織が {112} <111> 方位のみの場合には立方体集合組織は形成されない。しかしこの説では圧延集合組織中に {123} <211> 方位成分が増加するにしたがつて立方体集合組織が発達することが予想される。

一方、(001) [100] 方位の多結晶銅板を圧延した場合には⁽⁶⁾、圧下率 90 % 程度における圧延集合組織は圧延方向の [100] のまわりに、回転した方位に向う分散の大きな

(001) [100] 方位が主成分となつている。{112} <111> 方位の極点は(111)極点図においては低い集積上にあるが、(200)極点図では、三つの極点がいずれも一番低い集積からはずれているので、{112} <111> 方位は非常にわずかしかな存在しない。そこで正しく incoherent な双晶方位関係にある領域はほとんど存在しないものと考えられる。したがつて、再結晶集合組織に関する前述の 2 説は圧下率 90 % の試料を焼鈍した場合には、立方体集合組織が発達しないであろうと予測する。しかし圧下率が 96.7 % の試料では、圧延集合組織の主成分が {123} <634> 方位となり、また {112} <111> 方位成分も少し共存するので、立方体集合組織がかなり発達するものと考えられる。

本論文の目的はそのような観点から圧延によるすべり回転の研究に用いた、(001) [110] 方位と (001) [100] 方位の多結晶銅板を圧延後焼鈍してその再結晶集合組織を調べ、前述の二つの説を吟味することである。

II. 実 験 方 法

試料は 95 % の冷間圧延後 300°C にて 30 min 焼鈍し立方体再結晶集合組織を形成させた高純度の磷脱酸銅と真空溶解銅である。これに 1 次圧延方向から 45° 方向に 75, 90 および 96.7 % の冷間圧延ならびに 1 次圧延方向と同方向に 76, 90.5 % と 96.7 % の冷間圧延を施した後、スピンドル油中にて 250°C にて 30 min 焼鈍した。圧下率 75 % の試料だけが磷脱酸銅で、この試料は 95 % の 1 次圧延後室温に放置している間に大部分再結晶した非常に立方体方位の発達しやすいものである。(111)ならびに(200)極点図の製作は X-ray diffractometer を用い、Schulz⁽⁷⁾の方法によつて行なつた。X 線の回折強度の測定は極点図の全域について自動記録式 pole figure goniometer にて 5° 間隔にて走査して行ない、回折強度変化の著しい場所は 2° 間隔で調べた。集合組織は常に圧延方向に関しては左右対称的であ

* 横浜国立大学工学部 (Faculty of Engineering, Yokohama National University, Yokohama)

(1) C.A. Verbraak: Acta Met., **6** (1958), 580.

(2) 堀内、大久保、五弓：本誌，**29** (1965), 891.

(3) 上城：本誌，**30** (1966), 415.

(4) H. Hu and P.A. Beck: Trans. AIME, J. Metals, **4** (1952), 83.

(5) A. Merlini and P.A. Beck: Acta Met., **1** (1953), 598.

(6) 上城：本誌，**30** (1966), 207.

(7) L.S. Schulz: J. Appl. Phys., **20** (1949), 1030, 1033.

つたが、横方向に関しては必ずしも対称性が良くなかった。そこで横方向に関しても対称性が良い場合には、平均値に

の冷間圧延後、焼鈍した試料の再結晶集合組織の(111)と(200)極点図である。ここで最も注目すべきことは、この

▲ $n(245)[\bar{1}\bar{2}1]$ ▲ $n(123)[\bar{3}01]$
 ▲ $n(119)[\bar{7}\bar{2}1]$ ▲ $(001)[100]$

Fig. 1 (111) pole figure for the annealing texture of copper strip rolled 75 pct and annealed 30 min at 250°C. Initial orientation: (001) [110]. Rolling texture: {112} <111>.

▲ $(001)[100]$ ▲ $n(245)[\bar{1}\bar{2}1]$
 ■ $(112)[\bar{1}\bar{1}1]$

Fig. 3 (111) pole figure showing a relation between the rolling and the annealing texture components.

■ $n(245)[\bar{1}\bar{2}1]$ ■ $n(123)[\bar{3}01]$
 □ $n(119)[\bar{7}\bar{2}1]$ ■ $(001)[100]$

Fig. 2 (200) pole figure for the annealing texture of same specimen as in Fig. 1.

よつて一つの象限を決定し、それを用いて極点図の全域を画いた。

▲ $(001)[100]$ ▲ $n(015)[\bar{1}\bar{3}\bar{5}1]$
 ▲ $n(133)[\bar{2}\bar{3}4]$ ▲ $n(123)[\bar{6}\bar{7}3]$
 ▲ $n(112)[\bar{2}01]$

Fig. 4 (111) pole figure for the annealing texture of copper strip rolled 90 pct and annealed 30 min at 250°C. Initial orientation: (001) [110]. Rolling texture: main {112} <111> + minor {011} <211>.

III. 実 験 結 果

Fig. 1 と Fig. 2 は、(001) [110] 方位の多結晶銅を 75 %

試料の圧延集合組織は {112} <111> 双晶方位であるが、両極点図には (001) [100] 方位に対応する集積がまったく

認められないことである。再結晶集合組織の主成分は、 $(245) [1\bar{2}1]$ に近い理想方位によつて記述できる。その他に

方向近傍では約 17° 、圧延面法線の近傍では約 15° 離れている。そこで共通の $\langle 111 \rangle$ 軸のまわりの回転関係はつけ

- $(001) [100]$ ■ $n(015) [\bar{1}35]$
 ■ $n(133) [\bar{2}34]$ ■ $n(123) [\bar{6}\bar{7}3]$
 □ $n(112) [\bar{2}01]$

Fig. 5 (200) pole figure for the annealing texture of same specimen as in Fig. 4.

- ▲ $(001) [100]$ ▲ $(122) [\bar{2}\bar{7}2]$
 ▲ $n(023) [\bar{2}43]$

Fig. 7 (111) pole figure for the annealing texture of copper strip rolled 96.7 pct and annealed 30 min at 250°C . Initial orientation: $(001) [110]$. Rolling texture: $\{112\} \langle 111 \rangle$ and $\{011\} \langle 211 \rangle$.

- ▲ $n(015) [\bar{1}35]$ ▲ $n(123) [\bar{6}\bar{7}3]$
 ■ $(112) [\bar{7}\bar{1}1]$

Fig. 6 (111) pole figure showing a relation between the rolling and the annealing texture components.

副成分として $n(123) [\bar{3}01]$ 方位と $n(119) [\bar{7}21]$ 方位が共存している。ここで n は near の略でそれに近いことを意味している。Fig. 3 はこの試料の圧延集合組織 $\{112\} \langle 111 \rangle$ 方位と $n(245) [1\bar{2}1]$ 方位の関係を示す (111) 極点図である。圧延集合組織と再結晶集合組織の $\langle 111 \rangle$ 極点は、圧延

- $(001) [100]$ □ $(122) [\bar{2}\bar{7}2]$
 ■ $n(023) [\bar{2}43]$

Fig. 8 (200) pole figure for the annealing texture of same specimen as in Fig. 7.

にくい。また $(112) [\bar{1}\bar{1}1]$ 方位と $(001) [100]$ 方位の $\langle 111 \rangle$ 極の間は約 20° 離れている。

Fig. 4 と Fig. 5 は $(001) [110]$ 方位の多結晶銅板を 90% の冷間圧延後焼鈍した試料の再結晶集合組織の (111) ならびに (200) 極点図である。両図は横方向に関して対称性が

良くない。再結晶集合組織は非常に複雑で多くの成分を含んでいるが、(001) [100] 方位と $n(015)$ $[\bar{1}351]$ 方位が主成

[100] 方位の焼鈍双晶 (122) $[\bar{2}\bar{1}2]$ 方位ならびに $n(023)$ $[234]$ 方位である。ただしこの試料の圧延集合組織中には

Fig.9 (111) pole figure for the annealing texture of copper strip rolled 90.5 pct and annealed 30 min at 250°C. Initial orientation: (001) [100]. Rolling texture: (001) [100] and $\{123\} \langle 634 \rangle$.

分を形成している。その他に (122) $[\bar{2}\bar{1}2]$, $n(123)$ $[\bar{6}\bar{1}3]$, $n(133)$ $[234]$ ならびに $n(112)$ $[201]$ 方位などが共存している。前の二つの方位は (001) [100] 方位の、また後の二つは $n(015)$ $[\bar{1}351]$ 方位のそれぞれ大略焼鈍双晶とみなすことも出来る。この試料の圧延集合組織中には $\{011\} \langle 211 \rangle$ 方位と $\{011\} \langle 100 \rangle$ 方位も多少共存しているが、 $\{112\} \langle 111 \rangle$ 方位が主成分である。 $\{112\} \langle 111 \rangle$ 方位の一つの成分と、 $n(015)$ $[\bar{1}351]$ 方位の間には Fig.6 に示すように、共通の $\langle 111 \rangle$ 軸のまわりの約 50° の回転関係が存在する。また $\{112\} \langle 111 \rangle$ 方位のその成分と $n(123)$ $[\bar{6}\bar{1}3]$ 方位との間にも、圧延面法線方向に近い共通の $\langle 111 \rangle$ 軸のまわりの約 30° の回転関係が存在している。

一般に $\{hkl\} \langle uvw \rangle$ 方位は等価の四つの成分を有するが、再結晶集合組織が (001) [100] 方位を除き二つの成分しか持たないのは、圧延集合組織の $\{112\} \langle 111 \rangle$ 方位の二つの成分の量が等しくないことに基因するものと考えられる。というのは (001) $[\bar{1}10]$ 方位が圧延によつて、 $\{112\} \langle 111 \rangle$ 方位に向つて横方向のまわりに回転する際二つの等価の回転の向きが存在するが、(112) $[\bar{1}\bar{1}1]$ 方位と $(\bar{1}\bar{1}2)$ $[\bar{1}11]$ 方位という二つの成分の量が必ずしも等しくないからである。

Fig.7 と Fig.8 は (001) $[\bar{1}10]$ 方位の多結晶銅板を 96.7 % の冷間圧延後、焼鈍した試料の再結晶集合組織の (111) と (200) 極点図である。両図は再結晶集合組織が鮮鋭な (001) [100] 方位であることを示している。副成分は (001)

Fig.10 (111) pole figure for the annealing texture of copper strip rolled 96.7 pct and annealed 30 min at 250°C. Initial orientation: (001) [100]. Rolling texture: partial $\langle 100 \rangle$ fiber structure, $\{123\} \langle 634 \rangle$ and $\{112\} \langle 111 \rangle$.

$\{011\} \langle 211 \rangle$ 方位と $\{123\} \langle 211 \rangle$ 方位成分が増加しているが、その主成分はやはり $\{112\} \langle 111 \rangle$ 方位である。

Fig.9 と Fig.10 は (001) [100] 方位を有する多結晶銅板をそれぞれ 90.5 % と 96.7 % の冷間圧延後、焼鈍した試料の再結晶集合組織の (111) 極点図である。両者の再結晶集合組織は非常に類似しているが、圧延率の高い試料の方が (001) [100] 方位成分が発達している。副成分には (122) $[\bar{2}\bar{1}2]$ 方位も共存しているが、 $n(124)$ $[\bar{1}2̄1]$ 方位が多い。後者の四つの $\langle 111 \rangle$ 極点を圧延集合組織の (111) 極点図上にプロットすると、二つは集積からはずれ二つは中程度の強さの集積上に来る。そこで圧延集合組織の分散が大きいため、 $n(124)$ $[\bar{1}2̄1]$ 方位と圧延集合組織の関連性は明白でない。

圧下率 76 % で圧延集合組織が圧延方向の [100] 軸のまわりの分散の大きな (001) [100] 方位のみからなる試料はこの温度の焼鈍では再結晶しなかつた。さらに高温で焼鈍した場合の再結晶集合組織は完全な極点図は決定していないが、大略分散の大きな $n(124)$ $[\bar{1}2̄1]$ 方位と思われる。

IV. 考 察

Verbraak⁽⁴⁾ は (001) $[\bar{1}10]$ 方位を有する銅の単結晶に 99 % の冷間圧延を行なうと、主として $\{112\} \langle 111 \rangle$ 方位と (011) [100] 方位からなる圧延集合組織が形成され、それを焼鈍すると (001) [100] 方位と $\{012\} \langle 100 \rangle$ 方位ならびにそれらの焼鈍双晶を有する再結晶集合組織が発達すると報

告している。この圧延集合組織に最も類似しているのは、(001) [110] 方位の多結晶を 90 % 圧延した試料の圧延集合組織である。圧延率ははるかに低いにもかかわらず類似しているのは、立方体再結晶集合組織を有する銅板を 45° 方向に圧延したため、圧延前から方位の分散が単結晶に比べて大きかったことに基因するものと考えられる。その再結晶集合組織にはすでに前節で詳細に説明したように、(001) [100] 方位はかなり存在しているが、{012} <100> 方位成分はまったく認められない。ここで重要なのは (001) [100] 方位がはたして逆 Rowland 機構による核発生によって形成されたものか否かという問題である。もし (001) [100] 方位の再結晶核が {112} <111> 方位の deformed matrix の incoherent な双晶境界で発生するものと仮定すると、最初は {112} <111> 方位の deformed matrix 中で成長しなければならない。したがって、それが可能であれば、{112} <111> 方位以外に {011} <112> 方位とか、{011} <100> 方位成分がほとんど存在しない。(001) [110] 方位の多結晶を 75 % 圧延した試料を焼鈍した場合にも、(001) [100] 方位の再結晶粒の発生が認められるはずである。ところがその再結晶集合組織中には立方体方位はまったく観察されないで、この結果は逆 Rowland 機構の考え方で説明することは非常に困難であると解される。

Dillamore⁽⁸⁾ は oriented growth 説の立場から、{112} <111> 方位から成長し易い再結晶粒の方位が (001) [940]、(459) [502] および (011) $\bar{1}\bar{1}1$ であろうと予想した。(011) $\bar{1}\bar{1}1$ 方位はそれを圧延方向の [111] 軸のまわりに 30° 回転させることによって、{112} <111> 方位に一致させることが出来るので、(011) $\bar{1}\bar{1}1$ 方位は {112} <111> 双晶方位の deformed matrix に対し最も成長速度の速い方位関係を満している。しかしこの方位の再結晶粒は、いずれの場合にもまったく存在しない。しかし (001) [940] は Fig. 1 と Fig. 2 に示した $n(119) [721]$ に、(459) [502] は、 $n(123) [301]$ に近い方位である。また (001) [940] と (459) [502] はそれぞれ Fig. 4 と Fig. 5 に示した $n(015) [1351]$ と $n(112) [201]$ または $n(123) [6\bar{1}3]$ に近い方位となつている。したがって (001) [110] 方位の多結晶を 75 % または 90 % 圧延した後、焼鈍した場合に形成される再結晶粒の大部分の方位は、圧延集合組織と <111> 軸に関する回転関係が大略見出されるか、あるいは oriented growth 説の立場から予想される方位に近い方位ということが出来る。

再結晶集合組織中に (001) [100] 方位の再結晶粒が出現する場合には、圧延集合組織に {011} <211> 方位または {123} <211> 方位が多くはないが {112} <111> 方位と共に共存している。これは本実験に用いた試料においても、Verbraak の示した極点図においてもあてはまる。そして {112} <111> 方位が減少し {123} <211> 方位成分が増加するにしたがつて、立方体集合組織が発達したという結果は、oriented growth 説により有利な証拠であろう。しかし

{112} <111> 方位を主成分とする圧延集合組織から再結晶後最も成長し易いと予想される (011) $\bar{1}\bar{1}1$ 方位がまったく出現せず、立方体集合組織が形成されたという結果は、oriented growth 説の予想と完全に一致するものではない。その理由は {112} <111> 方位の二つの成分に対し成長速度の最も大きな方位関係にあるのは (011) $\bar{1}\bar{1}1$ 方位であるからである。換言すれば本実験結果は再結晶集合組織の形成に対し、成長速度の方位依存性のほかに核発生の機構が要因として働くことを示唆していると考えられる。

一方 (001) [100] 方位の多結晶を 90.5 % 圧延した場合には、圧延集合組織中に {112} <111> 方位成分が極くわずかしかな存在しないにもかかわらず、立方体集合組織がかなり形成されている。この結果もまた inverse Rowland 機構の予想と一致しない。ところで逆 Rowland 機構説は、

(1) 逆 Rowland 変態を起こした領域は変態に伴う形状変化が著しいため、それを取りまく deformed matrix に大きな塑性変形を生じさせるか、あるいは空隙を形成する。そこで変態の伝播には非常に大きなエネルギーが必要であると考えられること。

(2) Verbraak はその問題を解決するため、逆 Rowland 変態の起こる領域を 100 原子程度の原子集団と考えたが、これは成長可能な再結晶核としてはあまりに小さすぎることに。

(3) Verbraak は逆 Rowland 機構の driving force を双晶境界の消失によるエネルギー放出に求めているが、比較的界面エネルギーの低い双晶境界の消失によつてその高い大角境界が新に形成されるということはエネルギー的に困難であること。

などの理由から不十分な点が多いと考えられる。

V. 総 括

立方体再結晶集合組織の成因に関する逆 Rowland 機構説を吟味するため、(001) [110] 方位ならびに (001) [100] 方位の多結晶銅板を冷間圧延後焼鈍して、圧延集合組織と再結晶集合組織の方位関係を調べた諸結果を得た。

(1) {112} <111> 双晶方位からなる圧延集合組織からは、立方体方位を有する再結晶粒は全く形成されなかつた。

(2) 圧延集合組織中の {112} <111> 方位成分が減少し {011} <211> 方位または、{123} <111> 方位成分が増加するにしたがつて、立方体再結晶集合組織が発達した。しかし (001) [110] 方位を 96.7 % 圧延した場合には、圧延集合組織の主成分は {112} <111> 方位であるが、鮮鋭な立方体再結晶集合組織が観察された。

(3) 立方体方位を除く再結晶集合組織の各成分は、圧延集合組織の {112} <111> 方位と共通の <111> 軸のまわりの回転関係にあり、oriented growth 説の立場から予想さ

(8) I.L.Dillamore: Acta Met., 12(1964), 1005.

れる方位に近いが、最も成長しやすいと考えられる (011) $[1\bar{1}1]$ 方位粒はまったく出現しなかった。

(4) 圧下率が低く圧延集合組織が圧延方向の $[100]$ のまわりに回転した方位に向う、分散の大きな (001) $[100]$ 方位のみから成る時には、再結晶温度が高く、立方体再結晶集合組織は形成されなかった。

(5) 圧下率 90 % 程度の場合には、圧延集合組織の主成分が分散の大きな (001) $[100]$ 方位で、 $\{112\} \langle 111 \rangle$ 双晶方位はほとんど存在しないが、立方体集合組織はかなり発達した。

(6) (1) と (5) に示した結果は逆 Rowland 機構による核の発生が、立方体再結晶集合組織の成因と考える oriented nucleation 説の予想とは明らかに一致しない。

(7) 再結晶集合組織の形成に対し、成長速度の方位依存性が大きな役割を演じていることは明白であるが、再結晶核の発生機構についても考慮する必要がある。

終りに、懇切に指導していただいた横浜国立大学工学部和田良澄教授、ならびに試料を提供して下さった古河電気工業株式会社 堀 芳郎氏、住友金属工業株式会社 近藤 豊、鈴木脩二郎両氏に深甚なる感謝の意を表します。