(110)[001]と(001)[110]純タングステン単結晶の 室温～200°Cでの圧延加工性について

大庭 幸夫* 田村 良雄* 藤井 忠行*

Yukio Ohba, Yoshio Tamura and Tadayuki Fujii : On Rolling Workability of Pure Tungsten Single Crystals with (110)[001] and (001)[110] Orientations at Room Temperature ~200°C.

Pure Tungsten single crystals with (110)[001] and (001)[110] orientations were grown by electron-beam zone-melting technique. And rolling deformation on their orientations was studied in the temperature range of room temperature to 200°C. The main experimental results obtained were as follows :

(1) The (001)[110] specimen showed a considerable ductility on rolling above 100°C, but the (110)[001] specimen was fractured in a brittle manner even at 200°C.

(2) An abnormal widening which was not observed in pure iron and 3% Si-Fe on rolling at room temperature was found in the (001)[110] specimen at 200°C.

(3) In the (110)[001] specimen a crystal is rotated about the $\bar{1}10$ axis normal to the rolling direction on rolling. The degree of the crystal rotation to the rolling reduction was found to be small at least up to 50% rolling reduction as compared with the result of 3% Si-Fe.

The above phenomena are discussed in relation to the multiplication mechanism of dislocations at a relatively low temperature in tungsten crystals.

(Received June 25, 1970)

I. 緒 言

タングステン単結晶の圧延加工については、これまでも Raymond と Neuman⁽¹⁾ によって、アーク・ベルヌイ法で製造された単結晶を用い、{112} <111> すべり系のみが働く高温(1000°C)での挙動について報告されている。また Witzke⁽²⁾ は電子ビーム・ゾーン精製された単結晶について室温付近の圧延挙動を調べているが、特に結晶方位を考慮したものではなく、加工性について十分検討がなされていない。

ここ数十年來、電子ビーム・ゾーン精製の技術が確立され、高純度タングステン単結晶が比較的容易に得られるにつれて、タングステンの室温以下の低温での引張り塑性は顕著な異方性を示すことが知られて來た。Roseら⁽³⁾、Argonら⁽⁴⁾によると、室温付近で[001]試料は引張り初期において著しい加工硬化現象を示し、比例限は約 30 kg/mm²に過ぎないが、[110]試料は[001]試料にみられるような加工硬化を示さず、上部および下部降伏点をとめない、比例限も 50 kg/mm²と高く Schmid law に従わない。このような異方性が圧延加工性におよぼす影響を調べることは、タングステンの塑性の特異性を解明する上に役立つと思われるが、そのような研究は誠に少ない。

本報では電子ビーム・ゾーン精製法によって(110)[001]および(001)[110]方位の2種類のタングステン単結晶を作製し、室温～200°Cで圧延を行ない、得られた結果を純鉄および珪素鉄の圧延挙動と比較検討し、タングステンの室温付近における圧延挙動について若干の考察を行なった。

II. 実験方法

1. 試料の製作

実験に用いたタングステン素材は東京タングステン社製の直径 5 mm の焼結丸棒で、この素材を電子ビーム・ゾーン精製炉⁽⁵⁾中で 10⁻⁶～10⁻⁵ mmHg の真空中でゾーン精製を行なった。1回のゾーン精製によって単結晶が得られるが、単結晶の軸方位は Fig. 1 の標準ステレオ三角形内に示したように[001]-[011]側に偏在する傾向をもっている。そこで所望の軸方位をもつ試料を得るために Fig. 2 に示したような治具を特に製作した。すなわち図のように所望の方位になるべく近い方位をもった試料を選び、その試料を適当な角度(θ)だけ傾けて垂直軸と直角をなす所定の面を出し、上部からけん垂された試料と“種つけ”溶解を行なう。このようにして得られた所望の方位をもつ単結晶は、さらにこれを種にして通常の“種つけ”溶解を繰返せばよい。傾角 θ はできるだけ小さい方が望ましいが、15°程度であれば“種つけ”溶解にならぬの困難はない。“種つけ”される試料はあらかじめ2回ゾーン精製されているので、“種つけ”溶解を含めて圧延に用いられる試料は3回ゾ

(4) A.S.Argon and S.R.Maloof : Acta Met., **14**(1966), 1449.
(5) 増本, 田村 : 金属学会誌, **32**(1968), 1121.

* 金属材料技術研究所 (National Research Institute for Metals, Tokyo)

(1) L. Raymond and J. P. Neuman : Trans. Met. Soc. AIME, **233**(1965), 1265.
(2) W. R. Witzke : Trans. Vacuum Met. Conf., (1959), 140.
(3) R. M. Rose, D. P. Terries and J. Wulf : Trans. Met. Soc. AIME, **224**(1962), 981.

Fig.1 Crystal orientations after zone refining

Fig.2 Schematic diagram of apparatus for obtaining desired orientation of crystal

ーン精製を受けることになる。これら3回ゾーン精製された試料は純度判定の目安として残留抵抗比($\rho_{R.T.}/\rho_{4.2^\circ K}$)を測定したところ約20000を示した。

以上のようにして得られた軸方向の定まった試料をゴニオメータ上に固定してから、X線ラウエ背面反射法によって試料軸に垂直方向の方位を決定した後、(001) [110]と(110) [001]方位をもった2種類の短冊型試料(3~4×1×30 mm)に切削した。“種つけ”溶解と切削によって生じた方位の誤差は5°以内であった。切削した試料については2% NaOH液を用いて表面を電解研磨⁽¹⁾した後、Wolfの液⁽⁶⁾を用いて{001}面についてエッチピットを出現させて転位と亜粒界の分布を調べた。その結果試料によって多少のばらつきはあるが、転位密度は約 10^6 lines/cm²であった。また亜粒界の存在はRoseら⁽³⁾の報告より少ないように思えた。

2. 圧 延

圧延にはロール直径が125 mmφで、圧延速度が17 m/minの2段圧延機を用いた。この圧延機のロールは内部に

ヒーターを内蔵していて、ロール表面を180°Cまで昇温できる。圧延に用いられる試料は表面を電解研磨した後、室温~200°Cの間で圧延したが、1パス当りの圧下率はその時の厚さの2%を基準とした。また試料の加熱はシリコン油浴を用いた。

3. 顕微鏡組織と集合組織

圧延中に活動したすべり系を決定するため、圧延の各段階ですべり帯を光学顕微鏡を用いて圧延面、側面、前面について調べたが、すべり帯は不明瞭であってすべり系を決定することはできなかった。また圧延集合組織を調べるため、1本の圧延試料では幅が小さいので試料を数本平行に並べ貼り合せて、20×20 mmの極点図用試料を製作した。そしてG.E.社製X線デフレクトメーターに積分式極点図試料台を用い、FeK α 線の(220)反射極点図を画かせた。別にタングステン粉末試料を用いてランダム強度を測定し、極点図作成において等高線の基準にした。

III. 実験結果

最初にタングステン単結晶のおおよその圧延加工性を調べるため、(001) [110]試料を厚さ0.2 mmのステンレス板に包んで、ロール温度を室温とし試料温度を室温~200°Cの間で圧下率30%まで圧延した。その結果室温ではPhoto. 1に示すように試料先端部において(100)と(010)面において劈開割れを生じた。しかもこの圧延の際圧下率30%で、14%に達する幅拡がり認められた。珪素鉄の室温圧延⁽⁷⁾やタングステンの高温圧延の実験⁽¹⁾によると、元来この方位の試料には幅拡がりを生じないのである。そこでこの幅拡がりの現象がステンレスに原因するものか、試料寸法によるものか、あるいはタングステン結晶の本質にもとづくものかを確認するために、試料をステンレスに包んでロール温度150°C、試料温度200°Cで50%の圧下率を与えてみた。同時にタングステン試料と同じ寸法の純鉄の(001) [110]単結晶試料を用意して、ロール温度を

T.D. ↑

Photo.1 Cleavage cracks arised in (001) [110] specimen rolled at room temperature. Photograph shows rolling plane

(7) T.Taoka, E.Furubayashi and S.Takeuchi: Trans. I.S.I.J., 6(1966), 290.

(6) U.E.Wolf: Acta Met., 6(1958), 559.

室温とし、試料を室温と -77°C に保って圧延を行なった。

この実験における試料寸法の変化を **Table 1** に示した。

この表で特徴的なことは、タングステン試料は圧下率が増加するにつれて幅拡がりが増し、圧下率 51% で 12% の幅拡がりを生じているのに対して、純鉄試料は室温あるいは -77°C では圧下率に関係なくほとんど幅拡がりを生じていないことである。また Table 1 には同時に、ロール温度 150°C 、試料温度 200°C で圧延した場合の、(110)[001]試料の寸法変化も示してあるが、圧下率が 52% までは幅拡がりを生じていない。このことは岡田らの珪素鉄の結果⁽⁷⁾、Raymond らのタングステンの結果⁽¹⁾とも一致している。

Table 1 Dimensional change of rolled specimens

Nominal strain					
W (001) [110] rolling at 200°C					
ϵ_t pct	5	12	20	34	51
ϵ_w pct	2	3	5	9	12
ϵ_l pct	5	11	17	38	85
Fe (001) [110] rolling at R.T (rolling at -77°C)					
ϵ_t pct	5 (4)	12 (13)	23 (25)	34 (54)	
ϵ_w pct	0 (0)	0 (0)	1 (0)	1 (2)	
ϵ_l pct	5 (4)	14 (15)	28 (23)	52 (107)	
W (110) [001] rolling at 200°C					
ϵ_t pct	5	16	37	47	52
ϵ_w pct	0	0	0	0	0
ϵ_l pct	5	19	59	76	108

さらに (110)[001] 試料で注目すべきことは、(001)[110] 試料では時折試料の先端部に亀裂が生じることがあっても容易に伝播しないのに反して、この試料は極めて脆く、圧下率が 10% に達する前に (001) 面において劈開割れを生じて試料が分断され、その後の加工が困難であったことである。

Fig. 3 は (001)[110] と (110)[001] 試料の圧下率とビッカース硬度の関係を示したもので、(110)[001] 試料では加工が進むと圧延方向と圧延直角方向で硬度の異方性がみられた。**Fig. 4** は両試料の圧下率に対応する転位密度の変化を Wolf の液を用いて、エッチピットを出現させて示した図である。圧下率が十数 % までは (001)[110] 試料の転位密度は圧下率とともに漸次増加して行くが、(110)[001] 試料では圧下率 50% 程度までは転位密度はほとんど増加せず、圧下率が 50~60% に達するところから局部的に転位密度の急激に増加する部分がみられるようになる (**Photo. 2** 参照)。本実験を通して観察されたエッチピット群は通常なら方向性を示さなかったが、(110)[001] 試料の (001) 面において圧下率が 60% に達した後観察されたエッチピットは、圧延面に平行に列状をなしているようにみられた。この写真のように、後述するようにエッチピットによって黒くみえる部分は、圧延直角方向を軸 ($\bar{1}\bar{1}0$ 軸) として結

Fig. 3 Relation between Vickers hardness and rolling reduction. Hardness was measured on rolling plane

Fig. 4 Relation between dislocation density and rolling reduction (tensile elongation). Relation between dislocation density and tensile elongation was obtained from data of Argon and Maloof⁽⁴⁾

晶回転を起こして生じた (111)[112]あるいは (11 $\bar{1}$)[112] 方位の部分であると思われる。

次に上記の両試料について (110) 極点図を画かせてみた。**Fig. 5** は (001)[110] 試料の圧下率 50% における (110) 極点図であり、この試料が珪素鉄とまったく同様に圧延安定方位をもつ結晶であることを示している。一方 (110)[001] 試料は圧延安定方位ではなく、圧延直角方向を軸 ($\bar{1}\bar{1}0$ 軸) として回転する方位であることが知られている。タングステ

ンの場合、この試料は上述したように非常に脆いため、圧下率が大きい場合の極点図を画かせることができなかった。しかし圧下率 30% の試料について (110) 極点図を画かせてみると、圧延直角方向を軸として結晶回転を起こすが、圧下率に対する結晶回転の程度は珪素鉄の場合に比較してかなり小さいことがわかった。Fig. 6 は上述の圧下率 30% の試料の (110) 極点図の中央の (110) 極点の分布の縦

Photo. 2 Etch pit aggregation pattern in (001) plane for (110) [001] specimen rolled 60%. Photograph shows transverse plane

Fig. 5 (110) pole figure of (001) [110] specimen rolled 50%

Fig. 6 Longitudinal profiles of central (110) pole intensity in (110) [001] specimens rolled 30%. Specimens a and b were obtained from different billets

方向のプロフィールを示している。さらに圧下率 50% の試料については、圧延面と側面とでとった X 線ラウエスポットの特定方向への伸びから結晶回転角を測定した (Photo. 3 参照)。Fig. 7 にはタングステンの圧下率と結晶回転角の関係を珪素鉄⁽⁷⁾の場合と比較してある。この図から明らかにようにタングステンの圧下率に対応する結晶回転角は珪素

Photo. 3 Back-reflection Laue photographs on rolling plane of (110) [001] specimens rolled 30 and 50%

Fig. 7 Rotation angle of rolling texture around transverse direction as a function of rolling reduction in (110) [001] specimen, together with calculated curve by a geometrical relation⁽⁷⁾

鉄のそれに比較して、少なくとも圧下率 50% まではかなり小さいことがわかる。

IV. 考 察

1. 圧延中に生じる亀裂

この実験において観察された割れの様相は両試料とも劈開で、(001) [110] 試料では圧延方向と 45° をなす (100) と (010) 面、(110) [001] 試料では圧延方向に直角な (001) 面であった。観察した試料の数は多くないが、両試料とも双晶の発生はみられず、また (001) [110] 試料には珪素鉄の低溫

引張りの際観察されたような[110]方向に平行な微視的割れも⁽⁸⁾みられなかった。この実験の場合は、割れはまず複雑な変形を受ける試料側面もしくは前面の端部において発生し[†]、試料が脆性を示すか否かは発生した亀裂が伝播するかどうかにかかっているように思われる。(001)[110]と(110)[001]試料の間の延性の大きな差は、単に後者の劈開面に対して直角をなす引張り応力成分が前者のそれより幾何学的に大きいということだけでは説明できず、試料の端部における割れの発生および内部組織による割れの伝播の難易によって決定されているようである。例えば Fig. 4 によると(110)[001]試料内での転位密度は圧下率の増加につれてほとんど変化していないので、割れの伝播に好都合な条件を提供しているように思われる。なおこの実験と同様な結果がモリブデン単結晶の室温圧延でも Zedler ら⁽⁹⁾によって報告されている。

2. (001)[110] 試料の幅拡がりについて

一般に試料の厚さに対してロール径が十分に大きい時は、試料に加わる応力は2軸応力すなわち圧延方向の引張り応力と圧延面法線にそった圧縮応力に単純化して考えられている。そして冷間圧延では試料とロールの間の摩擦力が小さいので圧縮力が引張り応力に優越していると考えられる。以下この仮定を基礎として議論を進めて行く。

この実験ではすべり帯の観察から活動したすべり面を確かめることができなかった。田岡らは同じ方位をもつ珪素鉄単結晶の室温での圧延の場合、{110}と{112}面の両すべり系が働くとして報告している⁽⁷⁾。武内らによると純鉄単結晶を[110]と[001]方向に引張った場合、-196°C付近まで主として{112}系すべり面のみが働く⁽¹⁰⁾。また Argon と Maloof⁽⁴⁾はゾーン精製したタングステンを-196°C～175°Cの範囲で引張った場合、引張り軸が[001]方向の場合は{110}と{112}面すべり系が働くが、引張り軸が[110]方向の場合は Schmid factor が最高の(112)面よりその半分の($\bar{1}12$)面が活動すべり面として認められたと報告している。以上の諸報告からは著者の200°Cで圧延した試料のすべり系を推測することはできない。しかし珪素鉄、純鉄にみられないタングステンの幅拡がり現象を説明するため、簡単のため{112}<111>すべり系のうち、最大の分解剪断応力を受ける面のみが働いたと考えてみよう({110}<111>すべり系を考えても事情は変わらない)。

Fig. 8 は(001)[110]と(110)[001]試料について{112}<111>すべり系を図示したものである。(001)[110]試料については図(a)からわかるように圧縮応力に対しては最

Fig. 8 Crystal orientation and {112} <111> slip systems

高の Schmid factor をもつ四つの面(112), ($\bar{1}12$), ($\bar{1}\bar{1}2$)と($\bar{1}\bar{1}2$)面が同等に剪断応力を受ける。他の面は Schmid factor が小さい。ところが圧延の場合、圧縮応力のほかに圧延方向に引張り応力が重複して作用するため、(112)[$\bar{1}11$]と($\bar{1}12$)[111]すべり系の分解剪断応力は($\bar{1}12$)[$\bar{1}11$]と($\bar{1}12$)[111]すべり系の分解剪断応力より大きくなる。したがって圧延方向と圧延面法線を含む面内にバーガース・ベクトルをもつ(112)[$\bar{1}11$]と($\bar{1}12$)[111]すべり系のみ働くことになり幅拡がりは生じない⁽¹¹⁾。室温で圧延した純鉄あるいは高温で圧延したタングステンの場合はこのようにして説明される。この実験の場合は(112)[$\bar{1}11$]と($\bar{1}12$)[111]すべり系と同時に($\bar{1}12$)[$\bar{1}11$]と($\bar{1}12$)[111]すべり系も多少働いていると考えねばならない。

武内が最近行なった一連の純鉄の低温変形の実験と、そ

(8) R. Honda : J. Phys. Soc. Japan, **16** (1961), 1309.

(9) E. Zedler, D. Müller, K. Schlaubity and E. Rexer : Z. Metallk., **55** (1964), 484.

(10) T. Takeuchi, R. Honda, K. Iwayama and T. Taoka : Japan. J. Appl. Phys., **6** (1967), 156.

(11) W. R. Hibbard and M. K. Yen : Trans. AIME, **175** (1948), 126.

† 試料の前面、側面での異常変形の詳細については後報にゆずりたい。しかしながら両試料の寸法変化、エッチ・ピット分布、X線ラウエパタンの検討から、異常変形は試料端部のみに限定されているといえる。

れに基づいた理論⁽¹²⁾⁽¹³⁾によると、純鉄においては室温よりかなり低温での転位の増殖は斥力型のらせん転位の切り合いによってなされ、一方試験温度が高くなって室温付近になると古林によって透過電顕により観察されたように、らせん転位上の巨大ジョグによる増殖⁽¹⁴⁾のような、低温の場合とは異なった機構によって転位の増殖がなされると述べ、タングステン、モリブデンは BCC 金属の中でも特に“低温型転位の増殖”が容易に行なわれる金属であろうと報告している。事実この実験においても、圧延初期の段階では、典型的な共役二重すべりによって変形すると思われる (110) [001] 試料は、圧下率の増加につれてほとんど転位密度の増加がみられていない。このことは 200°C でもタングステンがなお主として“低温型転位の増殖”機構によって変形している証拠であろう。したがって上述の (001) [110] 試料の場合、圧延方向に垂直な面内にバーガース・ベクトルをもつすべり面が働いた原因は、(112) と ($\bar{1}\bar{1}2$) 面の二重すべりでは新しい転位の増殖が起こり難く、そのために変形応力が増大し、ついに圧縮応力のみによって ($\bar{1}\bar{1}2$) [$\bar{1}\bar{1}1$] と ($\bar{1}\bar{1}2$) [$\bar{1}\bar{1}1$] すべり系が働くようになったと考えられる。Table 1 に示されているように、(001) [110] 純鉄単結晶を -77°C で圧延した際、幅拡がりが生じなかった理由は、第一にロール温度を室温として圧延を行なったため、試料の温度が圧延の際上昇したこと、第二に池田の行なった [110] 方位の純鉄の引張り実験⁽¹⁵⁾で認められたように、歪に対する転位増加率は -78°C でもかなり大きいことから推定すると、純鉄は -78°C でもいわゆる“低温型転位の増殖”機構とは異なった増殖機構もある程度働いているためと考えれば説明はつく。

3. (110) [001] 試料の結晶回復について

前節に述べたようにタングステンは室温付近では多重すべりを起こし易い金属である。そこで圧延初期においてこ

の傾向は (110) [001] 試料の結晶回転に影響をおよぼすことが考えられる。つまり Fig. 8 において最大の分解剪断応力を受ける (112) と ($\bar{1}\bar{1}2$) 面上のバーガース・ベクトルは圧延面と 55° の角度をなしているため、圧延当初において試料方位の誤差等なんらかの理由によって、一方の面、例えば (112) 面が優先してすべり始めわずかに結晶回転を起こすと、その面の分解剪断応力が増してますますすべり易くなり、さらに結晶回転が進む。しかし 200°C においてはタングステンでは単一すべりによって転位は増殖し難い故に、前述したような理由によって (112) 面におけるすべり活動が困難となり、(112) 面も働き始め、丁度両すべり面が互いにけん制し合って結晶回転を一時的に遅らせるような状況になることが考えられる。このような考えによると Fig. 7 において珪素鉄に比較してタングステンでは圧下率に対する結晶回転角が小さくなっていることがうなずける。しかしながら結局は圧下率の増大につれて、どちらか一方の面がより一層すべり結晶回転が進み、最終的には多重すべりを起こすようになり、転位の著しい増殖を起こすようになる (Photo. 2 参照)。

V. 結 言

電子ビーム・ゾーン精製した純タングステン (001) [110] および (110) [001] 単結晶試料を室温 ~ 200°C で圧延し、次の結果を得た。

(1) (001) [110] 試料は室温では割れを生じたが、100°C 以上の温度では圧延延性は大きく改善された。しかし (110) [001] 試料は 200°C においても極めて脆く、(001) 面において劈開割れを生じた。

(2) (001) [110] 試料は 200°C で圧延すると、純鉄、珪素鉄の室温圧延ではみられない幅拡がり現象を示す。この現象はタングステンが低温変形する場合の転位の増殖機構にもとづく多重すべりの生じ易さによって説明される。

(3) (110) [001] 試料は圧延直角方向を軸 ($\bar{1}\bar{1}10$ 軸) として結晶回転を起こすが、圧下率約 50% までは圧下率に対する結晶回転の度合は珪素鉄の場合より小さい。この現象も上記の幅拡がり現象と関連して説明される。

終りに本研究に対して有益な討論をいただいた当研究所高融点金属研究グループの諸氏に厚く謝意を表します。

(12) T. Takeuchi : Japan J. Appl. Phys., **8** (1969), 320.

(13) T. Takeuchi : J. Phys. Soc. Japan, **27** (1969), 436.

(14) E. Furubayashi : J. Phys. Soc. Japan, **27** (1969), 130.

(15) S. Ikeda : J. Phys. Soc. Japan, **27** (1969), 1564.

† 田岡らの解析によると、この方位の試料は 35° 結晶回転すると他のすべり系が働き始め釣合いを保って (111) [$\bar{1}\bar{1}2$] あるいは (111) [$\bar{1}\bar{1}2$] 安定方位を占める⁽⁷⁾。