

金沢大学大学院
金沢大学工学部

○柴井誠一
北川和夫

1. 緒言

わが国における金属箔製造の歴史は奈良時代にまでさかのぼることができ、日本古来の伝統技術である。現在では金箔を主として、銀箔、アルミニウム箔、真ちゅう箔などが製造されている。金属箔は、素材の金属シートを特殊な加工を施した和紙またはそれ相当の強靱な紙の間にはさみ、これを重ねたバックを繰り返し槌打することによって、 $0.1\mu\text{m}\sim 0.5\mu\text{m}$ 程度の任意の厚さに薄く延ばしたものである。したがって本法は紙を媒体とした塑性加工法の一つである。このように、塑性加工法としては極限とも言える厚さに加工された箔において、(001)集合組織の形成が報告されている。これまで各種金属の繊維集合組織や圧延集合組織についての報告は多いが、金属箔については加工法の特異性のために、詳細に検討されたことはなかった。本研究では、金属箔の集合組織も変形集合組織の一つの様式と考え、ここでは金箔の集合組織の形成について考察した。

2. 実験方法

金箔には組成の異なる多くの種類があるが、ここでは純金四号色とよばれる組成の金箔について調べることとした。これは、銀4.9%、銅0.7%程含む合金である。まずこの合金を溶解鑄造後厚さ $40\mu\text{m}$ まで圧延した。圧延の終わりに近い段階で 400°C 、1時間の焼鈍を数回行った。 $55\times 55\text{mm}^2$ に切断したシート（これを“延金”と称する）を特殊な加工を施した紙の間にはさみ、これを数百枚重ねたバック（図1参照）を製箔

機により槌打した。大きく延びた箔は工程の途中で切断し、特殊な加工を施した和紙に移しかえて槌打した。こうして最終的に厚さが $0.1\mu\text{m}$ 程度の金箔を製造した。また槌打による過度の温度上昇（ 100°C 以上）を避けるため、途中何度か槌打を中断してバックを開き冷却した。厚さ40、10、8、6、1、0.7、0.25、0.16、0.11 μm の各段階において試料を採取した。なお試料の厚さはマイクロメータまたはX線吸収を利用した測定法によった。集合組織は金箔の面法線相対強度を表す逆極点図を簡便法によって表示した。面法線相対強度は $\text{MoK}\alpha$ 線を用い、できるだけ多くの回折線について積分強度を測定し、これを粉末標準試料の積分強度と比較することによって評価した。X線回折強度の厚さに対する補正は次式によった。

$$I_t = \frac{1}{G_t} \times I_0$$

ここで、

$$G_t = 1 - \exp[-2\mu t / \sin\theta]$$

である。ただし、 I_0 は補正前の強度で I_t は補正後の強度である。また θ は各回折線のBragg角、 t は箔の厚さ、 μ は $\text{MoK}\alpha$ 線による金箔の線吸収係数で $2146/\text{cm}$ とした。

3. 実験結果

図2(a)、(b)にそれぞれ延金（ $40\mu\text{m}$ ）と箔（ $0.11\mu\text{m}$ ）の(200)正極点図を示す。まず延べの状態では特徴的な集合組織はほとんど認められないが、これは圧延の最終段階で、数回焼鈍を行っているためと

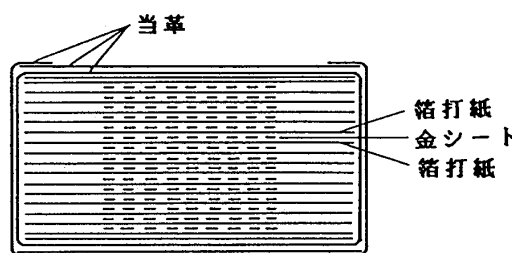
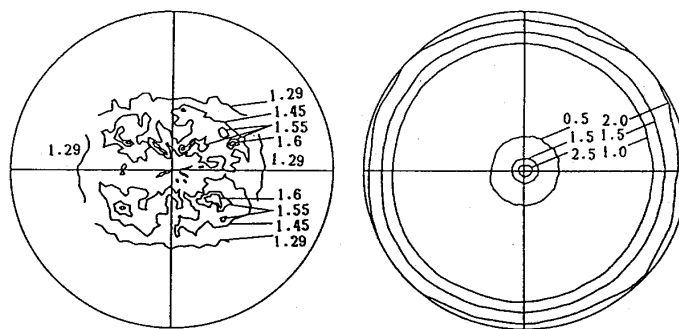


図1 箔打バックの模式図



(a) 延金

(b) 箔

図2 (200)正極点図

思われる。これが槌打されて箔になると、極点図の中央部と外周部に等高線の集積がみられる。これは箔の面法線方位が $[001]$ に近いことを意味している。面内においては特定の方向に集積が見られないが、これは加工法を考えれば当然の結果であろう。

図3に箔の厚さの減少率と主要な面の相対強度との関係を示す。ここで相対強度は延金 ($40\mu\text{m}$) を基準にしたときの各回折線の比で表してある。これによれば、 (011) 成分は80%程度の加工率で極大となるが、それ以上の加工率で減少しており、箔の状態ではほとんど消滅している。一方、 (001) 成分はおよそ90%以上の高加工率に到るまでほとんど変化せず、それ以降で急増し、箔においては17倍もの高い強度になっている。これら二つの面以外では、顕著な変化はみられない。

図4に延金から箔にいたるまでの中間段階を含めた逆極点図を示す。延金の段階では特徴はほとんど見られない。これが槌打によって $8\mu\text{m}$ 程度の厚さになると (b) にしめすように (011) を中心として (001) - (011) 線上に強い集積がみられる。さらに槌打されて厚さが $1\mu\text{m}$ 程度になると (001) - (011) 線上の集積は弱くなっている。さらに薄く加工されて厚さが $0.11\mu\text{m}$ の箔になると (001) における強い集合組織を形成している。これらの集合組織の形成過程を見ると、 (001) 集合組織が加工の初期段階から形成するのではなく、はじめに (011) 集合組織が発達し、それが加工とともに消失し

た後、厚さが $1\mu\text{m}$ 以下になってから急激に (001) 集合組織が発達することが明らかになった。

4. 考察

金箔は最終的に (001) 集合組織を示すことがわかったが、その理由については明らかではない。Taylorは多結晶金属の結晶回転の理論解析を行った。これは全ての結晶は全体の形状変化と同一の均一な歪を生ずるように、数個のすべり系が同時に働き、またすべり系の選択は最小仕事の原理によるとしたものである。この解析によれば、fcc金属の圧縮変形では (011) 集合組織が形成されることになる。本実験では厚さが $40\mu\text{m}$ の圧延シートから槌打による加工が開始されたが、厚さが約 $10\mu\text{m}$ 程度に加工された時点で (011) 集合組織の形成が認められた。したがって、この加工段階における集合組織はTaylorの解析結果と一致していることになる。しかし、加工度が大きくなるとこの (011) 集合組織が消失し、それに代わって (001) 集合組織が発達した。したがって、これを説明するには何か別の要因を考慮しなければならない。

ところで、強圧延した積層欠陥エネルギー (S.F.E.) の高いfcc金属を再結晶させると $(100)[001]$ で表される立方体集合組織が形成される。金箔の (001) 集合組織はこの立方体集合組織に似ている。しかし、箔打ちバックの温度上昇はせいぜい 100°C 程度であるから、

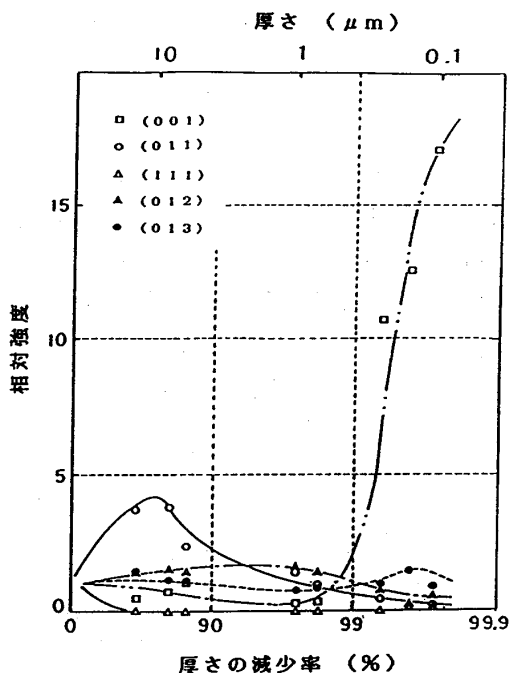


図3 箔の厚さの減少率と各回折面の相対強度の関係

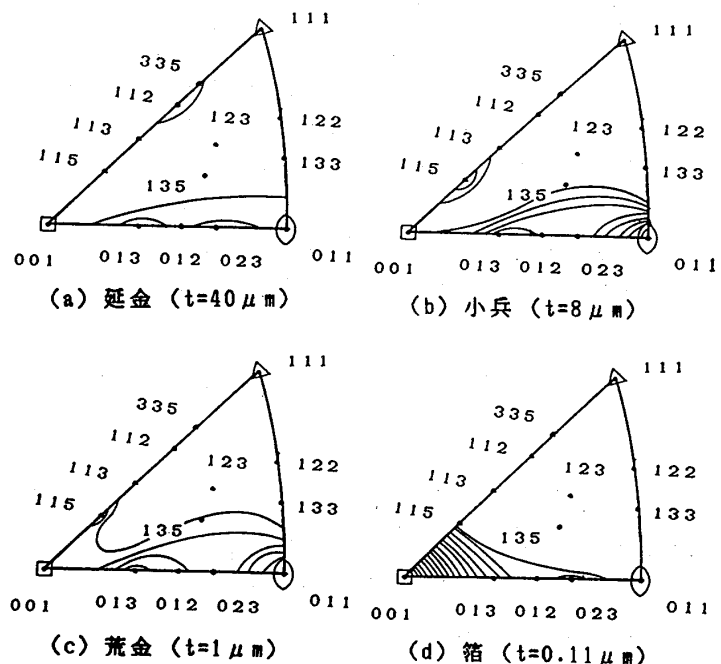


図4 逆極点図

再結晶温度に達しているとは考えられない。また、図5に示す箔のTEM写真では、転位がもつてcell組織を呈していることから、再結晶によってできた集合組織ではないことが明らかである。そこで以下のように箔の(001)集合組織の形成機構について説明を試みた。

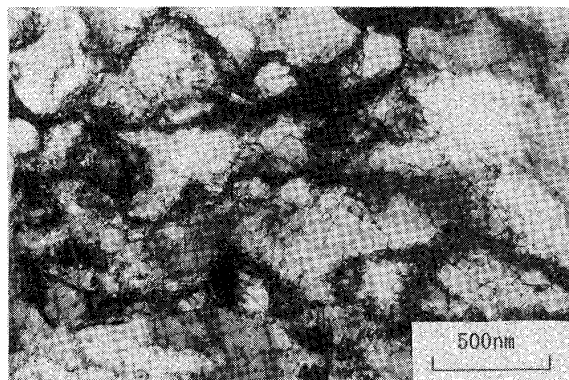


図5 金箔の電顕像

図6にThompsonによる記号を付したステレオ投影図を示す。まず槌打されることによって箔に圧縮荷重がかかり、主すべり系である β -ACの活動によって単位ステレオ三角形[001]-[011]-[111]内にある箔の面法線方位は $[\bar{1}11]$ に向かって回転する。箔の面法線方位が[001]-[011]線上にあれば、共役なすべり系である α -DBのSchmid factor(S.F.)が β -ACのそれと同一になる。潜在硬化があるからover shootするであろうが、いずれ α -DBが活動することになる。これらのすべり系の活動によって、面法線方位は[011]に近づき、それが[011]に一致すれば α -CBや β -ADのS.F.がすでに活動しているすべり系のS.F.と等価になる。しかし、これらのすべり系の転位はLomer-Cottrell型の不動転位を作るので大規模な活動は困難であろう。

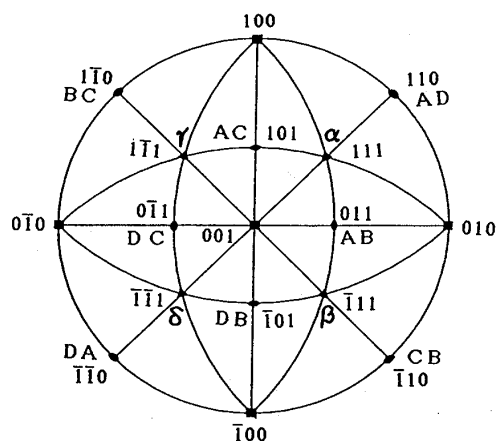


図6 標準ステレオ投影図

ところで、単結晶、多結晶にかかわらず、変形が大きくなると交差すべりを生じる。交差すべりは金属固有のS.F.E.とふかくかかわっており、この値が大きい金属ほど交差すべりが生じやすい。箔が(011)集合組織を形成した段階ではすでにかんりの変形量に達しているの、交差すべり系の活発な活動が予想される。 β -ACと α -DBの交差すべり系はそれぞれ δ -ACと γ -DBであるが、これらの交差すべり系が活発に活動すれば、[011]方位をとっていた面法線方位は[001]-[011]線上を[001]に向かって回転するので、[011]成分の密度は低下することになる。こうして交差すべり系の活発な活動をともなえば、箔の厚さは減少すると同時に、箔の面法線方位も[001]に近づくことが理解されよう。もしこれが事実とすれば、交差すべり系の活動の難易を支配するS.F.E.の異なる金属箔についての考察が必要である。そこで金と比べてS.F.E.の大きいAl箔と、小さいCu-13%Zn箔、および同程度のAg箔において(011)と(001)の回折強度の比 $I_{(011)}/I_{(001)}$ を求めたのが表1である。この結果から、S.F.E.の大きいAl箔では完全度の高い(001)集合組織であるのに対して、S.F.E.の小さいCu-13%Zn箔では(011)成分が大きく、(001)集合組織の完全度は低いことがわかる。この結果は交差すべり系の活動が金箔の(001)集合組織を形成する主要な原因であったことを示唆していよう。

表1 積層欠陥エネルギーの異なる箔における(001)と(011)の回折強度比

箔の材料	積層欠陥エネルギー (erg/cm ²)	相対強度比 $I_{(011)}/I_{(001)}$
Al	200>	0
Au	24~47	0.011
Ag	26~58	0.020
Cu-13%Zn	4~6	1.321

5. 結論

金箔の集合組織形成について以下のような結論を得た。

- 1) 箔打工程において途中(011)集合組織を形成するが、加工の進行とともにそれは消失し、最終的に(001)集合組織を形成する。
- 2) (001)集合組織は交差すべり系の活発な活動によるものと理解された。