冷間加工を施した Al の焼鈍過程に現われる諸現象について

(第 2 報) 再結晶ならびにその後の結晶の粗大化***

藤 田 広 志**

Annealing of cold-worked aluminium (2nd report) (UDC621.785.3

On recrystallization and growth of recrystallized grain

FUJITA Hiroshi*

Annealing of cold-worked metals at proper temperatures produces recrystallization followed by recovery and growth of these recrystallized grains. They have the following characteristics:

Recrystallization—(1) Nucleus boundaries appear around the places where recovery has been perfect in a large block. (2) The heavier the working, the easier the recrystallization occurs. The size of nucleus becomes smaller, the number of it increases, and the size ratio of nucleus to sub-grain decreases with an increase in the rate of working. (3) The nucleus size in the lightly worked state is approximately equal to the sub-grain size, and that in the heavily worked state can grow up rapidly to the sub-boundary by the action of numerous polygonization walls. (4) At the beginning of recrystallization, the recrystallization boundaries lack in clearness. (5) The grain size of recrystallization is a unique function of the rate of working. (6) The higher the annealing temperature, the lower the value of micro-hardness immediately after the recrystallization. (7) There are no recrystallization nucleus in the metals cold-tensioned more lightly than 20%, but they are recovered by stress-induced migration of already existing boundaries. (8) At the beginning of recrystallization there is found a large local difference in micro-hardness and in strain-relief at etching pits in the heavily worked metals as well as in the lightly worked ones. (9) The banded structure is not subject to any prominent change from the recovered state, and it remains until the next coarsening stage.

Growth of recrystallized grain, which was conventionally called “secondary recrystallization” or “coarsening,” is customarily considered to occur after a certain incubation period. But, actually, the growth proceeds already in this period. Each recrystallization grain is an ordinary unit in this growth which depend mainly on the capillary tension of polygonization walls in respective grains, and each process is finished in a relatively short time.

In this case, the growth of grain having a crystal plane near (100) on the specimen surface is prominent along the rolling direction, and that of grain having a crystal plane near (111) is prominent in the perpendicular direction. The frequency of a crystal plane near (111) on the specimen surface increases a little owing to this process.

Thus, the duty of polygonization walls is important at the initial stage of this growth, but the analogous effect as seen in the ordinary grain growth become gradually prominent. When the grown-grain size reaches 10 or more times of average recrystallized grain size, the rate of growth increases rapidly by the effect of ordinary grain growth. This is the coarsening which takes place at first preferentially along the rolling direction.

*** 1954年 8 月 結晶塑性同好会に一部投稿

1955年 4 月 日本金属学会東京大会にて発表

** 大阪大学産業科学研究所

* Osaka Univ.

The original boundary in growth process mentioned above needs some time for its perfect disappearance after growth.

To the above two stages of growth the author, for convenience sake, has given names the "short range annexation" and "long range annexation" according to their mechanisms respectively.

Lightly worked metals show quite different appearances because they have no short range annexation and have relatively large nuclei. Metals cold-tensined smaller than 20% go directly to the coarsening. The rate of these growths increases with the decrease of impurities.

The results mentioned above will be discussed theoretically in the 3rd report.

(Received June 8, 1956)

1. 緒 言

加工材を焼鈍する際には、或る加工度以上の試料では第1報で述べた回復につづいて再結晶が起る。この場合に特に問題となるのは再結晶核発生の段階であるが、本研究ではこれ等の問題を第1報につづいて変形の不均一性に集点をしばつて取扱つて見た。

なお、回復と再結晶との限界は測定方法及びその解釈によつて異なり、明確な区別は事実上困難であるが、ここでは便宜上従来一般に用いられて居る方法に従つて、光学顕微鏡によつて新しい結晶粒の粒界が見出される時をもつて再結晶の開始点とし、この新しい結晶粒が相互に相合して成長の一旦停止した時をもつて再結晶の完了とした。勿論、回復段階と再結晶初期とは第3報で述べる如くに明確に区別されるものではなく、或る程度の連続性をもつて起る現象と考えられる。

更に焼鈍をつづける場合には、再結晶につづいてこれ等再結晶粒の粗大化が行われる。この粗大化現象は一名"二次再結晶"とも呼ばれ、再結晶同様に再結晶粒界に新しい二次再結晶の核が発生して、それが成長するものと解釈されて来た。従つて、上述の再結晶はこの二次再結晶に対して"一次再結晶"と呼ばれて来た。しかし、これ等の考えは単なる熱力学的な概念によると思われる点も多い。事実最近に到つて、二次再結晶なるものは再結晶粒の単なる粗大化であり、新しい核の発生によるものでない事が実験¹⁾ならびに理論的²⁾に次第に明らかにされつつある様に思われる。

本研究では再結晶段階とともにこれ等の現象についても実験を行つた結果、二次再結晶は一次再結晶粒の粗大化である事が確められた。これと同時に、従来二次再結晶の潜伏期間と呼ばれて来た段階においても、既に一次再結晶粒の短範囲の併合が行われている事が確められた。従つて、この段階を二次再結晶と呼称するのはその機構上適当でないと思われ、単に再結晶粒の粗大化の段階とみなすべきであると考え。この意味で一次再結晶なる名称も単に"再結晶"と呼ぶ事にする。

次に従来再結晶は低加工度のものと高加工度のものと

はその機構が異なるとされている関係上、両者をそれぞれ区別して述べる事にする。

2. 試料及び実験方法

これ等はすべて第1報のものと全く同様である。

3. 実験結果

便宜上、実験結果を再結晶、再結晶粒の短範囲併合及び長範囲併合(再結晶粒の粗大化)の三段階に分割して順次述べる事とする。

3.1. 再結晶段階

A) 低加工材の再結晶

(1) 硬度の変化

第1報のFig. 1 中 500°C の焼鈍曲線において、試料番号19では既に部分的に再結晶完了後の硬度に担当す

Table 1 Relation between Annealing and Micro-hardness in a 10% Cold-rolled Sample B

Sample No.	Annealing (°C×hrs)	Micro-hardness		
		max.	min.	mean
9	500×0.5	26.2	21.7	24.0
10	500×1	25.5	20.1	22.7
11	500×2	23.4	18.8	20.2
12	500×5	23.5	19.0	21.0
13	600×0.25	22.1	18.9	20.3
14	600×0.5	21.0	18.4	20.0
15	600×1	20.1	19.1	19.7
16	600×2.5	21.0	19.0	19.9
17	600×5	20.2	18.9	19.5

る19にかなり近い21.7の硬度を示す部分がある。(第1報 Table. 3 参照) その後時間の経過に従つてこれ等最小硬度の値も次第に再結晶完了のものに近づく一方、その様な低い硬度を示す部分も次第に多くなる。これと同時に硬度の最高値も次第に減少して、全面的に再結晶が次第に進展している事が判る。試料番号11では硬度の平均の値もほぼ再結晶完了後の硬度に等しく、600°Cの焼鈍

曲線の試料番号15に到つて試料全体が再結晶を完了している事が判る。この場合には第1報 Table. 3 に示す如くに、硬度の部分的なばらつきは殆んどなくなつてゐる。又後述の高加工材の硬度曲線と比較する事によつて、低加工材の方が再結晶温度は高く、同一温度の焼鈍では再結晶に要する焼鈍時間は長い事が確認される。これと同時に、再結晶の進行中に起る硬度の減少も又少い事が判る。

(2) 互視的腐食法及び腐食法Aによる観測

互視的腐食法によつて、再結晶の開始とともに部分的に再結晶粒が見出される。これ等の再結晶粒は、腐食法Aを使用する事によつて明確な粒界を有する再結晶粒である事が判る。この現象を引張加工材を併用して、加工及び回復段階の組織と対応させると次の如くなる。

(i) 再結晶核は Photo. 1, 2 及び 3 に示した如くに、加工の際の粒界及び A-境界の近傍に形成される領域の大きい sub-grain³⁾ の処に出る。

(ii) 粒界の明確な再結晶粒が認められる迄は sub-grain 内で硬度の減少はあるが、これ等 sub-grain の粒界より小さい結晶粒界は見出し難く、多くはあたかも sub-grain が再結晶粒の最小の大きさである如き印象を受ける。例えば Photo. 3 は丁度第1報の Photo. 8 と同一の箇所を再結晶せしめたものであるが、その大きさ及び形が Photo. 8 の sub-boundary のそれとよく対応する。従つて核の最小単位は、多少の差はあるが加工

の際の領域の大きいフラグメンテーションの大きさによつて決定されると考えられる。

(iii) 核生成の後には、直ちに再結晶粒界の成長がある。

(iv) 成長はポリゴニゼーション壁の密度の多い方向に向つて行われる。

(v) 20%の冷間引張材においては、加工前の既存結晶粒界の単なる残留応力による粒界移動が観察されるのみで、再結晶粒の生成は全く見出せなかつた。Photo. 4 は加工前の結晶粒と粒界の移動した後の結晶とが丁度双晶関係に近い特殊なものではあるが、上述の残留応力による粒界移動の一例である。この残留応力による加工前の既存粒界の移動が起るのは、前述の再結晶核の生成される時期より更に遅く、より高温又は長時間焼鈍を要するが、粒界の移動には硬度の減少が明らかに伴う。

(3) 腐食ピットによる観測

再結晶の完了した処では、腐食ピットのひずみはほぼ完全に消滅している。又回復段階では一般に未だ高加工の処ではピットの方位の連続的な変化があり、その境界は明確ではなかつたが、再結晶粒内にはほぼ均一な方位及び型のピットであり、従つて地と再結晶粒とのピットは再結晶粒界で明確に区別される。この他に、回復段階では明確でなかつた高加工材に現われると同様な粒界の不整形腐食ピットが Photo. 1~3 の如くに明確になり、再結晶粒内には回復段階のものよりも地に対してピットが少く腐食され難い。

(4) X線法による観測

第1報の Fig. 1 の硬度曲線において、試料番号10のものは硬度の最小値及び腐食法によつて既に一部再結晶を完了している事が確められたが、X線法によつても Photo. 32 の如くに明確な斑点の存在から再結晶粒の出現を知る事が出来る。しかしこの場合には、他の大部分は未だ回復段階と同様な加工ひずみが残存してアステリズムが認められるが、ポリゴニゼーションによると思われる斑点も多く存在している。焼鈍を更に進めると、再結晶の進行とともに Photo. 33 及び34の如くに再結晶粒に対応する鮮明な斑点の数は次第に増大すると同時に、アステリズムは強度の減少とともにその数及び長さも次第に減少する。試料番号13に至つてアステリズムは完全に消滅して再結晶は完了する。しかしこの時においても個々の斑点は少々ひずんでいるが、これはピットとの対応からポリゴニゼーション壁のあるた

Photo. 1, 2, 3-50% C-T and 450°C×1 hr (A)e. m. B. ×150 (×1/4)

Photo. 4-20% C-T and 450°C×1 hr (A) e. m. B. ×120 (×1/4)

Black part is a position which has sever heterogeneity of deformation.

→ R. D.

Recrystallization in 10% C-R sample B by X-ray fore reflection method.

Photos. 32, 33, 34, 35—500°C × 1 hr, 500°C × 5 hrs 600°C × 15min. and 600°C × 5 hrs Annealed, Respectively

めと思われる。試料番号13以上の焼鈍のものでは、その各々の斑点は次第に鮮明となり、試料番号15に到つて初めて各斑点はほぼ加工前のものと同様の様相を示して再結晶が殆んど完了している事が判る。なお試料番号15以後では大した変化は認められない。

B) 高加工材の再結晶

(1) 硬度の変化

再結晶が開始されると同時に、丁度上述の低加工材の時と同様に次第に硬度の場所によるばらつきが目立つて来る。(低加工材ではこの硬度のばらつきが既に加工状態においてある事が高加工材と異なる。)第1報の Fig. 2 では試料番号5のものがこれに相当するが、この最高硬度は42で加工状態のそれに近く、最低硬度は28.6で再結晶完了のそれに近い。この事から高加工材の再結晶も低加工材の時と同様に部分的に進行している事が判る。この現象は、又 400°C, 500°C 及び 550°C 等の焼鈍においても再結晶の初期においては同様の傾向がある。従つて再結晶の初期においては、低加工材と同様に硬度の平均値を出す事は理論的には大した意味を持たなくなる。しかし、これ等の硬度のばらつきも更に再結晶の進行するにつれて次第に減少して一定値に近づく。この

際、ほぼ一定値になつたと思われる硬度の値は、第1報 Fig. 2 に示した如くに焼鈍温度の高い程低くなる。(この場合に結晶粒度には後述の如く大した差異は認められない。)この焼鈍温度による硬度の相異は焼鈍時間が短い場合に明瞭に認められるが、長時間焼鈍を行う場合には同図に示した如くに各温度の焼鈍とも次第に約20の一定値に到達する。勿論その時間は焼鈍温度の低い程長い。この事は、再結晶はその結晶粒度が同一であつても、焼鈍温度の低い程その残留応力が大きい事を意味するものとする。

(2) 巨視的腐食法及び腐食法Aによる観測

巨視的腐食法を用いる事によつて、再結晶の開始とともに明確な再結晶粒が認められる。これによると第1報 Fig. 2 の試料番号5のものは未だ部分的に、13以下のものは全面的に一次再結晶が完了している事が判る。この時後述の如くに少しく試料表面の変化があるが、その表面は矢張り(111)面に近い結晶面の多い部分と、その少い部分からなる圧延方向に平行な帯状組織を持つてゐる。この場合には帯状組織の各部は完全な再結晶粒の集合体となつてゐるが、帯状組織の各部における(111)面と(100)面との面積比の大小によつて、各部の腐食度

Photo. 5—Recrystallization of 92% C-R Sample B Revealed by Macroscopic Etching ×1 (×1/4)
(a)(b)(c) and (d) : 1hrs 2hrs, 3hrs and 4½hrs annealed at 500°C, respectively

及び光の反射度が異なるためである。この事は逆に、試料表面の結晶面は巨視的には再結晶によつて大した変化がない様な印象を受ける。

この再結晶における巨視的な帯状組織は、Photo. 5 及び13に示す如くに後述の長範囲併合の行われる時期まで残存する。

次にこれ等の試料を腐食法Aによつて観測する事によつて次の事が認められる。(i) まず細かい再結晶核が各所に見出されるが、これは Photo.s 6~8 に示した如くに腐食ピットのひずみのとれた箇所、又はその近辺に出る。その最小の大きさは数μ程度らしいが、10μ以上のものが多い。(ii) これ等再結晶初期の再結晶粒界の鮮明度は悪い。(iii) 焼鈍の進行につれて、僅少な再結晶粒界の移行とともに粒界の鮮明度は次第によくなる。

Table 2 Relation between Annealing and Grain Size in a 92% Cold-rolled Sample B

Annealing ($^{\circ}\text{C} \times \text{hrs}$)		300 $\times$ 10	350 $\times$ 0.25	350 $\times$ 0.5
Grain size (No. /cm)		200	200	200
350 $\times$ 1	350 $\times$ 3	400 $\times$ 0.5	400 $\times$ 1	400 $\times$ 2
200	200	200	200	170
400 $\times$ 3	400 $\times$ 5	500 $\times$ 0.5	500 $\times$ 1	500 $\times$ 2
150	110	200	110	110
500 $\times$ 3	500 $\times$ 4.5	550 $\times$ 0.25	550 $\times$ 0.5	550 $\times$ 1
100	90	200	170	90
550 $\times$ 3	600 $\times$ 0.1	600 $\times$ 0.5	600 $\times$ 1	600 $\times$ 2
(90 $\sim$ 10)	90	(90 $\sim$ 7)	>cm	>cm
600 $\times$ 5	Grain size 170 $\sim$ 90/cm : Due to short range annexation Grain size >90/cm : Due to long range annexation			
>cm				

これと同時にその数も次第に増加する。(iv) 再結晶粒界の成長は、回復段階の時の不整形腐食ピットを連ねる如き位置まで比較的早く行われ、その状態で再結晶はほぼ完了する。従つて、この不整形腐食ピットは再結晶粒界に存在する様になる。なお、この不整形腐食ピットは第1報でも触れた如くに、加工の際の領域の大きいフラグメンテーションの境界に出来るものと考えられる。

(v) 再結晶粒界の出現は回復段階の応力緩和と同様に、部分的に集中される事なく各所にばらばらに出現する。(vi) 以上の如くにして形成された再結晶粒界は、焼鈍の進むにつれて次第に試料表面を被うがこの再結晶完了直後の結晶粒度は美馬⁴⁾等によつても確められた様に、加工度によつてほぼ一義的に決定され、その焼鈍温度には比較的独立である。Table. 2 はこれ等の結果を示したものである。なおこの粒度の測定は、従来多く用いられている巨視的腐食法によると、同一な結晶面が表面に出ておりその試料表面上の方位のみが異なっている場合には、しばしば同一結晶粒として判定される危険性が多い。高加工度の再結晶の場合には特にこの危険性が大きい。従つて、本研究における粒度測定はすべて腐食

法 A を使用した。Photo. 9 $\sim$ 12 は少しく短範囲併合の行われている部分もあるがほぼ再結晶完了直後のものである。(vii) 再結晶完了直後の結晶粒の大きさは、最大と最小との相異が高々数倍程度ではほぼ均一な結晶粒度である。

(3) 腐食ピットによる観測

前述の如くに再結晶粒の見出せる状態では腐食ピットはひずみのとれたものが非常に多くなり、例外なくこのひずみのとれたピットの近辺に再結晶粒界が現われる。そして再結晶完了後の粒界はこれ等ひずみのない不整形腐食ピットをつなぐ様に現われ、その粒内で殆んどピットは見出せない。前述の Photo. 6 $\sim$ 8 はこの過程を示したもので、図の矢印はそれぞれ再結晶粒界の存在する位置を示し

Recrystallization in 92% C-R (B)

Photo. 6, 7, 8—15 min, 30 min and 1 hr Annealed at 350 $^{\circ}\text{C}$, Respectively, e. m. B. $\times 200$ (1/4)

The boundary of recrystallized grain is shown by arrows.

Photo. 9, 10, 11—400 $^{\circ}\text{C} \times 1$ hr, 400 $^{\circ}\text{C} \times 3$ hrs and 400 $^{\circ}\text{C} \times 1$ hr Annealed, Respectively. e. m. A. $\times 150$, $\times 120 \times 250$. ($\times 1/4$)

たものである。なお、この様なひずみのあるピットとひずみのとれたピットとの共存する領域では、硬度の部分的なばらつきが著しい。この場合には硬度の高い部分はひずんだピットのある箇所に相当する。

一方、前述の再結晶圧延組織は試料表面における(100)面及び(111)面に近い結晶面の面積比の大小による事が明らかであるが、その面積比は回復段階と大差はない。

(4) X線法による観測

第1報の硬度曲線 Fig. 2 において、硬度のばらつきの著しい試料番号5、即ち $300^{\circ}\text{C} \times 10\text{hrs}$ 焼鈍のものでは、腐食法でも確められた様に透過法、背面反射法の何れによつても明確に再結晶粒の存在が確められる。第1報の Photo. 24 はこれを示したものである。しかし、この試料では、何れによつても巨視的腐食法によつて確められた様に、圧延組織は大半残存している事が判る。Photo. 40 の $350^{\circ}\text{C} \times 15\text{min}$ の場合も大体 $300^{\circ}\text{C} \times 10\text{hrs}$ のものと同じ状態にある。

更に再結晶が進行して $350^{\circ}\text{C} \times 1\text{hr}$ のものとなると、背面反射法によるものは Photo. 41 の如くにもはや殆んど圧延組織は見出されなくなる。しかしこの際にも透過法によるものでは Photo. 36 の如くに圧延組織が未だ残っている事が確められる。

なお再結晶粒の斑点は、回復段階(近似的には加工状態)における解析線の集積部に早く出る。又指数によつて斑点の出る時期が異なる(本実験では(400)の解析線が早い)。以上のX線背面反射法の結果からは再結晶粒は狭範囲では各方位のものがほぼ均等に形成される事が認められるが、これは加工状態において反射にあずかる体積の少い領域、即ち集積部の尾を引いて薄くなっている部分の方位を持つ領域が再結晶によつて成長したためと思われる。

上述の諸結果から再結晶現象は次の如く要約される。まず回復段階における 10^{-4}cm 以下の微細 sub-grain の成長によつて再結晶粒が形成され、再結晶粒の境界は次第に明確となる。この際領域の大きいフラグメンテーションが再結晶核の発生と重要な関係を持ち、低加工度の場合には核の大きさは殆んどこれによつて決定される。

3. 2 再結晶粒の成長(1)(短範囲併合段階)

再結晶は前述の如くに核発生について各再結晶粒が互に相接するまで成長する事によつて一応完了するが、更に焼鈍をつづける事によつてこれ等再結晶粒は互に併合又は粒界の移動によつて次第に粗大結晶となる。この場合に粗大結晶粒の大きさが再結晶粒の10数倍になると急激な成長が行われる。これが従来二次再結晶と呼ばれて

来たものである。従来はこの再結晶と二次再結晶との間には所謂潜伏期間があるとされて来た。しかし本研究によつて、この期間においても矢張り再結晶粒の成長があり、しかもその成長の機構は再結晶が互に単位となつて併合され、成長の初期においては通常の意味での粒界の成長は極く少い事が確められた。著者はこの現象をその機構から“短範囲併合”と仮称した。なおこの場合の平均の成長速度は後述の長範囲併合のそれに較べて小さい。

A) 低加工材の短範囲併合

前述の如くに、低加工の場合には再結晶の完了直後における再結晶領域は未再結晶の領域に比して少ない。そしてこの度合は加工度の少い程著しい。従つて、再結晶粒はその粒界が鮮明となり、一応結晶粒として独立すると、直ちにポリゴニゼーション壁の多い未再結晶の領域に向つて粒界移動を開始する。なおこの粒界移動はその初期は主として応力によるものであるが、次第に粒界エネルギーの安定化によるものと移行する。又粒界移動の行程の大きい事から、核の残留応力もほぼ完全に移動の期間に消散され、同時に地の応力も緩和される。従つて Photo. 2 の如くに再結晶粒が隣接して存在する特殊な場合を除いては、後述の高加工材の如き短範囲併合は存在しない。なお、粒界の移動した後の領域では、腐食ピットの方位の乱れは殆んど認められない。

一方、或る加工度以下の場合には既述の如くに再結晶が現われないが、この場合には加工前の既存粒界の応力による移動によつて内部応力は除去される。この場合にもこれ等既存粒界の移動は矢張りポリゴニゼーション壁の多い領域に向つて行われる。

以上の性質は純度のよい程顕著であり、その成長速度も又大きい。

B) 高加工材の短範囲併合

(1) 硬度の変化

Table. 1 の粒度から考えると、 $400^{\circ}\text{C} \times 2\text{hrs}$ の焼鈍あたりから既に短範囲併合の段階に入っている事が推測される。又この期間における硬度の値は第1報の Fig. 2 に示した如くに併合の進行するにつれて少しずつ減少して、後述の如き粗大結晶粒の大きさが非常に大きくなった場合の硬度の値に近づく。しかし、その変化量は 400°C の焼鈍の場合でも高々4であり非常に小さい。

(2) 巨視的腐食法及び腐食法Aによる観測

巨視的腐食法では、この期間において後述の急激な粗大化の行われる $600^{\circ}\text{C} \times 15\text{min}$ までは矢張り圧延方向の帯状組織が残っている事が確認される。しかし、各結晶粒は焼鈍の進むについて次第に大きくなつており、その大きくなる方向は圧延方向即ち帯状組織の方向に優先的である。この傾向は、粗大結晶粒の大きさがかなり大きく

→ R. D.

Recrystallization and growth of recrystallized grains in 92% C-R Sample B.

- Photo. 12**—500°C×1 hr. e. m. A. ×120 (×1/4)
 " **14**—400°C×5 hrs. e. m. A. ×250 (×1/4)
 " **15**—500°C×4.5 hrs. e. m. A. ×120 (×1/4)
 " **16**—600°C×1 hr. e. m. A. ×100 (×1/4)
 " **17**—400°C×3 hrs. e. m. B. ×200 (×1/4)
 " **18**—500°C×1 hr. e. m. B. ×100 (×1/4)

↑ **Fig. 1** Short Range Annexation of Recrystallized Grains

→ R. D.

← Growth of recrystallized grains in 92% C-R Sample B. e. m. B.

- Photo. 19**—500°C×3 hrs×400(×1/4)
Photo. 20, 21—500°C×4.5 hrs. ×200 (×1/4)
Photo. 22—600°C×2 hrs×250(×1/4)

なつた時に一層明瞭に認められる。Photo. 13 及び Photo. 23 はこの一例を示したものである。

次に腐食法 A によると、短範囲の併合がこの段階で明確に認められる。Photo. 14~22はその一例である。

この再結晶粒の併合によつて、粗大化した粒の大きさが再結晶粒の10数倍になつた時には、後述の如き急激な粗大化が行われるのであるが、それまでの短範囲併合の期間では次の如き特性がある。(i) 併合の初期は Fig. 1

の如き機構による。即ち図の再結晶粒 1, 2 の粒界 mn が 1 又は 2 の結晶粒内に移動する以外には、結晶粒 1, 2 の粒界の周囲に対する通常の粒界移動は少ない。(ii) この場合に粒界 mn が 1 の粒内に移動するか又は、2 の粒内に移動するかは、1 及び 2 の粒内の残留応力の多少によつて決定され、粒界 mn に入つて来るポリゴニゼーション壁の数の多い粒内へ移動する。従つてこれは一種の粒内の残留応力による結晶粒界の移動であり、その移動速度は比較的早い。(iii) 一つの併合過程が完了して次に更に隣接再結晶粒を併合する場合には、或る程度の潜伏期間がある。(iv) 併合が進むか、又は同一併合数であつても焼鈍温度の高い場合には、上述の応力による粒界移動に対して、粒界エネルギーの減少のための通常の粒界移動が次第に顕著となる。Photo. 17~22 は以上の過程を示したものである。

(3) 腐食ピットによる観測

圧延方向に平行な帯状組織は、既述の如くに各帯における (111) 結晶面の多小によるのであるが、短範囲併合の段階においてもこの性質は未だ残っている。

Photo. 20 及び 21 はこの一例を示すものである。Photo. 20 は試料表面における (111) に近い結晶面の (100) に近い結晶面に対する面積比の少い帯の部分を示すものであり、その面積比は $1/9$ 以下である。これに対してこれ

と隣接する (111) 結晶面の多い部分では、Photo. 21 の如くにその面積比は $1/4$ に近い値をとる。なおこれ等写真の中に印した矢印は、(111) に近い結晶面を試料表面に出している結晶粒の位置を示したものである。これ等の結果を先の再結晶の場合と較べて見ると、帯状組織の各部における上述の面積比は大きい処は、更に大きく、小さい処は更に小さくなつてゐるが、全体として (111) 結晶面の占める面積は増大している様である。次のその併合の方向であるが、(111) に近い結晶面を有する結晶粒の短範囲併合は、Photo. 19~22 から推測して、次の (100) の場合とは対称的に圧延方向に垂直な方向に優先的に行われる様である。これに対して (100) に近い結晶面を持つ再結晶粒間の短範囲併合は、Photo. 17, 18, 20, 21 でも見られる如くに圧延方向に沿つて進行し易い。

これは恐らく加工による結晶構造の整配列が再結晶の時にも残っているためと考えられるが、何れにしても圧延組織が再結晶粒の併合に関係している事は実に興味ある事である。

次に興味ある事は、腐食ピットの形及び分布状態である。再結晶が完了した直後では、前記の Photo. s. 6~8 に示した如くにその粒界に 2 つの結晶粒にまたがる不整形腐食ピットが大部分で、結晶粒内に入る整形腐食ピットの数はいくつか。処が焼鈍が進行して短範囲併合の段

→ R. D.

Recrystallization and growth of recrystallized grains in 92% C-R Sample B by X-ray fore reflection method.

Photo. 36, 37, 38, 39-350°C × 1 hr, 400°C × 5hrs, 600°C × 15 mins, and 600°C × 5hrs Annealed, Respectively.

→ R. D.

Recrystallization and growth of recrystallized grains in 92% C-R sample B by X-ray back reflection method.

Photo. 40, 41, 42, 43, 44, 45-350°C × 15min, 350°C × 1 hr, 400°C × 1 hr, 400°C × 5 hrs, 500°C × 4.5hrs and 600°C × 300mins. Annealed, Respectively.

階に入ると、この粒界の腐食ピットは Photo. 17~22 に示した如くに次第に減少して、一時相対的に粒内の整形腐食ピットの数が増大する。この粒内に現われる整形腐食ピットは、一般に併合粒の一方側又は元の再結晶粒界の存在したと思われる箇所に密度が多い。

次にこの様な再結晶粒の粗大化につれて粒内の腐食ピットの数も次第に減少して、蓄積エネルギーの完全な消散を完了して加工前の状態にかえる事が判る。

なお、この様な粗大化の相当進行進行した場合でも、純度の悪い試料では未だ圧延方向に直線状に配列した腐食ピットが数ケの粗大結晶粒を横切つて存在している事がある。これは高純度のものでは認め難い事及び Photo. 9~16に示した如くに圧延方向に配列した不純物は相当高温で長時間加熱してもその配列の方向性は十分には消え去らない事から、不純物によるものと考えられる。

(4) X線法による観測

まず透過法では再結晶完了直後において出現する斑点の殆んどが境界の不鮮明なものであり、その数も又著しく多い。しかし焼鈍の進行するにつれて、これ等斑点は各々次第に鮮明になるとともに、その数が Photo. 37, 38 に示した如くに減少して来る事が確められる。これと同時に、互視的腐食法で確められた様に、 $600^{\circ}\text{C} \times 30 \text{ mins}$ に至つても圧延組織が未だ少しく残っている事が認められる。

一方、背面反射法によるものでは腐食ピット法によく対応して、 $350^{\circ}\text{C} \times 1 \text{ hr}$ のもので既に圧延組織は殆んど見出せないが、この時にも矢張り斑点は不鮮明なものが多い。これも焼鈍とともに透過法の時と同様な斑点の鮮明化が起り、その数も減少するが、この場合には更に Photo. 43 の如くに個々の斑点が大きくなっている事が確められ、再結晶粒の成長の行われている事が判る。

以上によつて、再結晶につぐ再結晶粒の急激な粗大化までの段階においては、高加工材では明確な再結晶粒相互の短範囲の併合が行われており、その間に蓄積エネルギーの残部が消散され、併合の進展にともなつて殆んど完全に加工前の状態にかえる事が明らかにされた。これに対して、低加工材の場合には特殊な箇所を除いては短範囲併合期に相当する段階は見出せず、直ちに残存エネルギーの多く存在する領域への粒界の移動によつて残存エネルギーが消散される。この両者の差が核の大きさとともに、低加工材と高加工材との再結晶機構が異なるとみなされている主な原因であろう。しかし、両者の間には既述の如くに根本的には何等相異がある訳ではなく、両者における再結晶粒の成長は共に残存する加工の際の蓄積エネルギー、及び粒界の安定化のための粒界移動によるものである。低加工材の場合には隣接結晶粒の少いた

めにその成長は比較的自由で、その残留応力も核発生に連続する粒界の移動によつて急速に消散される。これに対して、高加工材の場合には各々方位の異なる隣接結晶粒が存在するために、個々の粒界の安定化があつた後に短範囲の併合が起り、これによつて残留応力が緩和される。

3. 3 再結晶粒の成長(2) (粗大化又は長範囲併合段階)

この段階は従来二次再結晶又は再結晶粒子の粗大化と呼ばれているものに相当する段階であり、再結晶の後に或る程度の潜伏期を経て起るものとされている。しかし前述の如くに、この潜伏期なる段階にも再結晶粒の粗大化は短範囲ではあるが既に行われている事が明らかにされた。処が、この再結晶粒の短範囲併合によつて成長した粗大結晶粒の大きさが、再結晶粒の10数倍程度となると急激に成長速度が増大する。これが著者が短範囲併合に対応させて“長範囲併合”と仮称した段階である。しかしこの場合には、粒界の安定化のための粒界移動が顕著である事が短範囲の場合と異なる。

A) 低加工材の長範囲併合

低加工材の場合には、短範囲併合の処でも述べた如く、その再結晶核の大きさが相当大きい事、及び隣接結晶粒の少い事から、核の生成に引続いて再結晶粒の粗大化が行われる。しかしこの場合には、後述の高加工材の時の様な再結晶粒の併合過程は殆んど存在しない事から、単に“再結晶粒の粗大化”と呼ぶべきであろうと考える。なお、加工度が著しく少く再結晶核の生成しないものでは、回復の段階から直ちに加工前の結晶粒界の移動による結晶の粗大化が行われるが、この場合には単に“結晶の粗大化”と呼ぶ方がよいであろう。何れにしても、上の2者の成長は高加工材の長範囲併合の段階に相当する過程である。

B) 高加工材の長範囲併合

(1) 硬 度 の 変 化

Photo. 13-Beginning of Long Range Annexation in 92% Cold-rolled Sample B, $550^{\circ}\text{C} \times 3 \text{ hrs}$ Annealed, Macroscopic Etching. ($\times 1$)

→ Rolling Direction

Photo. 23-Long Rang Annexation in 92% Cold-rolled Sample B Revealed by Macroscopic Etching ($\times 1$) (a), (b), (c) and (d): 1/2hrs, 1 hr, 2 hrs and 5 hrs Annealed at 600°C , Respectively.

→ R. D.

Long range annexation in 92% C-R Sample B.

- Photo. 24**- $600^{\circ}\text{C} \times 15\text{mins. e. m. A. } 120 (\times 1/4)$
25- $600^{\circ}\text{C} \times 1\text{ hr. e. m. A. } 100 (\times 1/4)$
26- $600^{\circ}\text{C} \times 2\text{ hrs. e. m. A. } 100 (\times 1/4)$
27- $600^{\circ}\text{C} \times 20\text{mins. e. m. B. } 450 (\times 1/4)$
28- $600^{\circ}\text{C} \times 30\text{mins. e. m. B. } 450 (\times 1/4)$
29- $600^{\circ}\text{C} \times 1\text{ hr. e. m. B. } 250 (\times 1/4)$

$600^{\circ}\text{C} \times 15\text{ mins.}$ で顕微鏡による結果からは長範囲併合の段階に入っているが硬度の方は短範囲併合の段階で既にほぼ加工前の値に到達しており、長範囲併合による変化は殆んど見出せない。これは再結晶粒の短範囲併合の間に加工の際に蓄積された内部エネルギーが殆んど完全に消散されているためと考えられる。勿論この両者の間には粒の大きさの差はあるが、これ等

粒界の影響も短範囲併合の期間で既に硬度に影響する程小さくないためと考えられる。

(2) 巨視的腐食法及び腐食法Aによる観測

巨視的腐食法によつて、長範囲併合はその初期においては、Photo. 13 及び23(a)の如くに圧延方向に優先的である事が認められる。しかし長範囲併合が進行して $600^{\circ}\text{C} \times 30\text{mins.}$ のものになるとPhoto. 23(b)以下に示す如くに最早その成長には方向性はなく、2次元的に各方向にほぼ等しく成長する。

次にこれ等を腐食法Aによつて観測すると、前節の短範囲併合によつて粗大化した粒の大きさが再結晶粒の10数倍程度となつた時にその粗大化速度が急激に増大する事が確められる。これと同時に、粗大化の速度が始め圧延方向に大きい事は、短範囲併合の場合と同様の機構による事が確められる。

又その粗大化の過程には、Photo. 24~26でも判る如くに、その成長先端ではやはり短範囲併合の時と同様に再結晶粒が単位となつて併合されている場合と、短範囲併合によつて粗大化した結晶粒が通常の粒界の移動によつて喰われる場合とがある。しかし何れの場合にも、この段階では粒界の安定化のための粒界移動が非常に顕著である。

この粒界の安定化への粒界移動の作用の顕著となる事が、長範囲併合における成長速度が短範囲の場合に較べて大なる

→ R. D.

**Photo. 30, 31- 1 hr and 2 hrs Annealed at 600°C,
Respectively. (92% C-R. Sample B). × 200, × 350.
(×1/4)**

原因と考えられる。

(3) 腐食ピットによる観測

長範囲併合による粗大結晶粒を腐食ピットによつて調べる時に興味のある事は、成長先端における腐食ピットの分布及びその方位の差である。この成長先端部の腐食ピットの分布及び方位は内部のものとはかなり異なっている場合がある。Photo. 27~31 はこの一例を示したものである。Photo. 27 及び 28 から腐食ピットの方位が明らかに内部のものと異なっている事、及び併合前の再結晶粒界又は時には短範囲併合による粗大結晶粒のそれに対応するかの如きピットの密度の多い部分のある事が判る。又 Photo. 28~31 からは、ピットの形及び方位は内部のものと大差ないが、粒界状のピットの配列、粒界に出るべき不整形ピット、又は極く線の薄い粒界のある事が観測される。しかし何れの場合にも粗大結晶粒の中心部においてはこの様なものは殆んどなく、加工前と同様の様相を示す。

要するに長範囲併合の過程は、短範囲併合の時に粗大化とともに次第に顕著となつた粒界の安定化への粒界移動が顕著となり、その作用が主体となる以外は、短範囲併合の場合と類似した過程による事が結論される。

軽金属研究会入会手続

軽金属研究会は軽金属（アルミニウム、マグネシウム、チタニウム等）事業に閑歴又は関係ある個人は誰でも入会出来ます。会員は「軽金属」に投稿し無償頒布を受け各種会合催し物にも出席出来ます。

御希望の方は、(1)氏名、(2)生年月日、(3)自宅、(4)勤務先の住所名称地位、(5)主な学歴（最終卒業月日）学位称号、(6)主な職歴を記入した入会申込書（様式適宜）に会費 600 円を添えて御送付下さい。会費は小為替又は振替口座（東京118744番）軽金属協会を御利用下さい。

(4) X線法による観測

透過法によるものでは、この段階では各斑点がすべて鮮明となるとともに、Photo. 39 の如くに各々の斑点が大きくなり、その分布も加工前の粗大結晶粒と類似な様相を呈する事が確められる。これ等の事から、各結晶粒は成長して安定な粗大結晶粒になつている事を意味する。一方背面反射法によるものでは、600°C×30mins において既にこの傾向が現われる。Photo. 45 はこれを示したものである。

なおこの長範囲併合段階における成長速度は、不純物の粒界移動への抵抗から純度のよい程大きくなる。

4. 結 語

以上によつて、再結晶の機構及びその加工度による相異点が可成り明らかにされ、又再結晶完了以後の成長の過程も明らかにされたが、これ等に対する考察は第1報と同様に第3報において総括して行う事にする。なお、再結晶核生成の機構ならびに短範囲及び長範囲併合の名称については、未だ種々の検討を要する点もあるが、これ等については目下研究を続行中である。

最後に本研究の一部は大阪大学冶金学教室美馬教授の研究室において行つたものであり、御有益な御忠告を種々賜つた同教授に対して衷心より謝意を表させて載くと共に、試料を御提供下さつた大阪アルミニウム製作所に対して感謝致します。

文 献

- 1) P. A. Beck, *Advance in Physics*, 3 (1954), 1
- 2) J. P. Nielsen, *J. Metals*, 6 (1954), 1084.
- 3) 藤田広志、本誌、No. 18(1956), 15.
- 4) 美馬源次郎、日本金属学会誌、9巻 1, 2号 (1945).

アルミニウムジュラルミンの
パイプなら天野へ!!

古河電気工業

KK 特約販売店

天 野 辰 雄 商 店

東京都台東区上野南大門町一二番地
電話下谷 (83) 五九二一・六二四六