

# 亜鉛の粗大結晶による再結晶の研究

和田 次郎, 中村 健吾

## Recrystallization of Zinc Coarse Grains

Jiro WADA and Kengo NAKAMURA

**ABSTRACT:** The origin of nuclei in recrystallization and the growing direction in grain growth were observed by microscopic observation on the surface of zinc coarse grains of high purity (99.99%) prepared by Fujiwara's method. The experimental results are as follows: (1) When the matrix is deformed only by slip, the coarse grain softens by heating, but it has no new grain by rearrangement. (2) The mechanical twin boundaries are so stable that a single straight twin in matrix revealed no change even after the long time heating. (3) The recrystallized grains are observed at the intersection between a mechanical twin and other twins or a grain boundary. (4) The recrystallized grain has the maximum rate of growth at the direction of mechanical twin boundaries.

(Received February 6, 1953)

### 1. 緒 言

金属に塑性変形を加えた後或る温度以上で焼鈍すれば、一般に結晶核の生成、その成長の過程を経て変形前の結晶とは異つた配列の新結晶を生ずる。この再結晶なる現象は変形中に内部に貯えられた転位が外部より与えられる熱エネルギーによつて解放され、安定な状態に移行する過程と言える。

金属の再結晶は上記の如く結晶核生成とその成長とに分けて考えられているが、この場合に新しい結晶核が変形した matrix のどの部分に発生するか、又その新しい結晶核 (実際に観測し得るのは可成りの大きさになつているため、結晶核よりの成長を含むことになる場合が多いが、これをも含めて此処では結晶核と呼ぶことにする。従つて結晶粒と呼ぶ方が判り易いかも知れない。)の方位は変形を受けた matrix の方位と何等かの関連があるのではないかということが先ず考えられる。この非常に興味ある重要な問題は最近アルミニウム等面心立方金属について研究が進められているが<sup>(1)~(4)</sup>、六方格子系の金属については研究が進んでいない。従つて本研究では六方格子金属であ

る亜鉛についてこの問題を解明せんとした。

亜鉛の常温に於ける $\bar{1}11$ 面は六方格子の底面である (0001) のみである。然しその変形は $\bar{1}11$ のみでなく機械的雙晶によつても行われる。従つて亜鉛では立方金属の場合と異り $\bar{1}11$ 面が一つであり、且つ機械的雙晶を生ずるという点に注目して、再結晶核の発生し易い箇所並にその成長方向等について研究を行つた。

### 2. 実験方法

再結晶を取扱うのに最も簡単なのは単結晶であるが、これでは再結晶の進行に重要な役割を果す結晶粒の境界を除外したことになり不充分である。然し微細な多結晶粒よりなる場合では問題が複雑となる。更に不純物を多く含むものではより一層解明が困難となる。従つて此処では高純度の four nine zinc を用い、粗大結晶を対象として実験を行つた。

粗大結晶の作り方は先ず熱間及び冷間圧延 (加工度約 96%) により厚さ 1 mm の板とし、これより引張試験片を作り、更に 120°C で 1 時間の焼鈍を行い平均 0.02 mm の結晶粒を得た。次で

これに 0.5~2% の引張歪を加え藤原の方法により粗大結晶を得たのである。

この粗大結晶は巾 15mm, 長さ 30~75mm よりなり一つの試験片に数個存在する。この数個の粗大結晶を持つ試験片に室温で引張又は圧縮加工を加え, 更に 140~250°C で焼鈍した。この場合の再結晶の過程を主として顕微鏡によつて観察した。

この顕微鏡組織を得るには板表面の機械的研磨は行えないので, 板表面を濃硝酸をしみこませた脱脂綿で数回洗い, 更に稀塩酸で腐蝕した。マクロ組織に対しては 1:1 の塩酸を用いた。吾々の実験ではこの方法の方が正磷酸による電解研磨より良好であつた。尚, 焼鈍は総て塩浴炉を用い,  $\pm 1^\circ\text{C}$  以内で行つた。

### 3. 実験結果

常温で塑性加工を与えた場合に結晶内に生ずる塑性変形の種類は亜鉛では次の四つに大別される。

- (1) 単純な迂りのみよりなる。
- (2) 単純な機械的雙晶のみよりなる。
- (3) 交叉雙晶を生ずる。
- (4) 複雑な雙晶並に迂りが共存する。

次にこれらの個々の場合に於ける再結晶の過程について述べる。

#### (1) 単純な迂りのみよりなる場合

写真 1 に示すような平行な迂り線が一面に発生している場合で, このときには 250°C で長時間焼鈍するも顕微鏡組織の上では殆んど変化は認められないのである。即ち写真 1 は結晶方位の関係より, 引張加工により 25% の歪が加えられ然も迂り変形のみよりなる試料を 250°C で 1 時

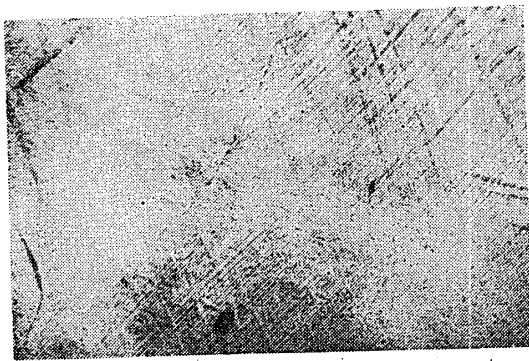


写真 1. 迂り線のみ発生した場合, (25% 引張加工後 250°C, 1 時間焼鈍)  $\times 50$

間焼鈍したときに得られたものである。

この場合には常温に於ける加工歪は既に除去され, 完全に軟化した状態に戻っている。然るに再結晶は行われていない。このことは新しい結晶核の生成を伴わないで恢復する現象と考えられる。即ちこの現象は polygonization による軟化現象と想像される。

#### (2) 単純な機械的雙晶のみよりなる場合

これは写真 2 の如く一個の直線状の雙晶が結

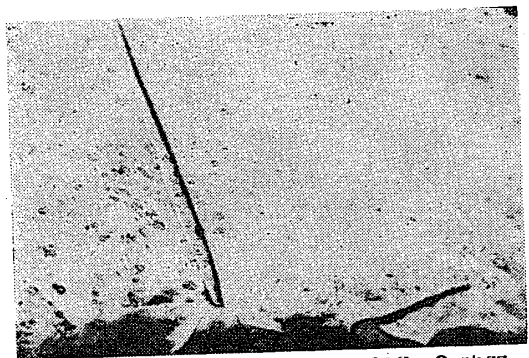


写真 2. 単純な雙晶の例 (250°C, 3 時間焼鈍)  $\times 50$

晶粒内に生じた場合である。このときは高温で長時間加熱するも雙晶の境界部分は殆んど変化しない。然しこの直線状の雙晶が結晶粒界とぶつかる場所では写真 3 の如く新しい結晶粒を生ずる。

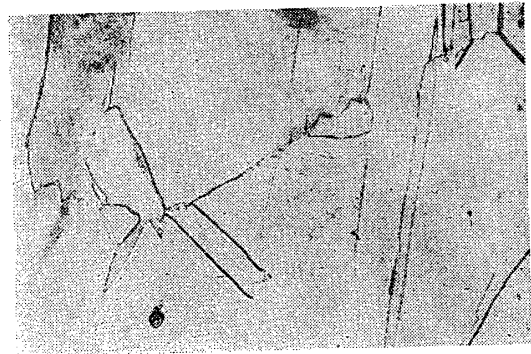


写真 3. 結晶粒界と雙晶との交叉箇所に発生する新結晶粒 (234°C, 1 時間焼鈍),  $\times 50$

この新結晶は後述する如き雙晶と matrix との境界面に沿い成長するような方向性は持たない小さな円形の結晶粒よりなる。

このことは雙晶境界は比較的安定であるに反し雙晶が結晶粒界と交叉する部分では不安定であることを意味する。

#### (3) 交叉雙晶を生ずる場合

粗大結晶粒の方位と引張加工の程度により交叉した雙晶が得られる。この例として写真 4 の如

く或る一定の角度で二つの双晶が交叉している場合とか、或は写真 5a の如く一つの大きな双晶内部に小さな双晶が樹状に発生した場合とかが挙げられる。

このように交叉した双晶を生じた場合には、こ

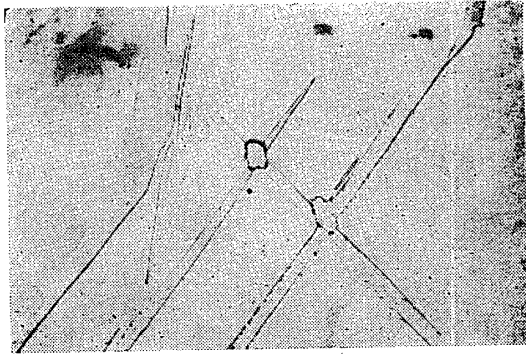


写真 4. 機械的雙晶の交叉部分に発生した新結晶粒 (234°C, 1 時間焼鈍),  $\times 50$

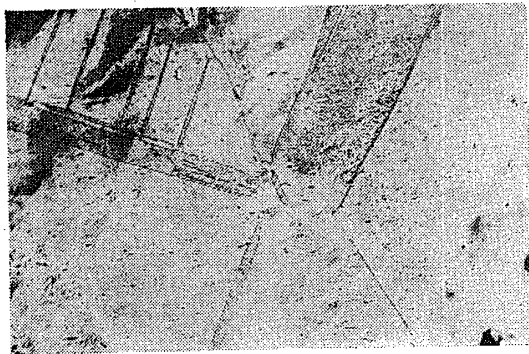


写真 5a. 機械的雙晶の交叉部分に発生した結晶粒の成長 (170°C, 1 分焼鈍),  $\times 50$

の双晶の交叉した部分に新しい結晶粒を生じる。このような現象は写真 4, 5a で示す以外にも多く認められた。

写真 4 は 234°C で 1 時間焼鈍したものであるが、この新しい結晶粒は更に 234°C で 5 時間焼鈍すると、大体写真 4 のまゝで殆んど成長していない。

写真 5a は 170°C で 1 分加熱した場合であるが、これは引張加工の組織と全く同様で変化は認められなかつた。この写真で中央部にある梯形状の小さな結晶も一つの双晶である。これを 170°C で 24 分焼鈍すれば写真 5b の如く写真中央部に

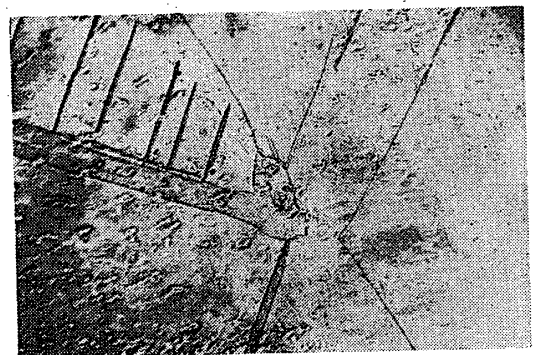


写真 5b. 写真 5a の試料を 170°C, 24 分焼鈍した場合,  $\times 50$

新しい結晶粒が認められる。而してこの新結晶粒は側方に伸びた双晶と合体し且つ双晶境界の方向に向つて成長する。



写真 6. 交叉雙晶部分に発生した新結晶粒 (232°C, 2 時間焼鈍),  $\times 9$

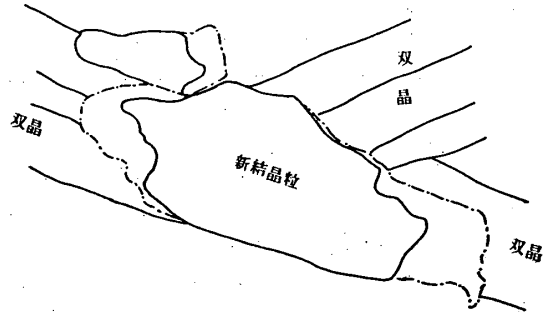
このように双晶の交叉部分に結晶核が生成され、これが双晶境界に沿って成長し細長い結晶粒を生ずる例はこの外にも多く見られた。例えば写真6は一面に交叉双晶の生じた試料を232°Cで2時間焼鈍後、マクロエッチしたもので、双晶の交叉部分に新しい結晶粒の発生が多く認められる。

写真7は写真6の試料の一部をマイクロエッチ



写真7. 写真6の一部

したもので、焼鈍時間による組織の変化を同時に観察するため二重腐蝕したため写真がやや不鮮明となつた。この写真で薄い線は232°Cで2時間焼鈍したときの組織で、濃い線は232°Cで30分焼鈍したときの組織である。この関係を判り易く第1図に示す。図で実線が30分焼鈍後の結晶粒界、鎖線が2時間焼鈍後の結晶粒界である。



第1図 新結晶粒の成長方向  
 — 232°C, 30分焼鈍  
 - - - 232°C, 2時間焼鈍

この二つの結晶粒界を比較すれば粒界が双晶方向に移動することが判る。即ち結晶は双晶方向に成長するものと言える。

(4) 複雑な双晶の存在する場合

粗大結晶粒の方位によつては僅かな引張加工により、交叉双晶を含まず平行な直線状の双晶を多数生成する場合がある。このときには平行な双晶部分の或る場所に発生した結晶粒は双晶境界の方向に成長する。この例を写真8並に9に示す。写真8では平行な双晶にH型に発達した結晶粒が認められ、写真9では平行な双晶にI型に発達した結晶粒が認められる。写真でCとあるは新しく出来た結晶粒を、Tとあるは加工状態のまゝ残つている双晶を、Mはmatrixを示す。こ

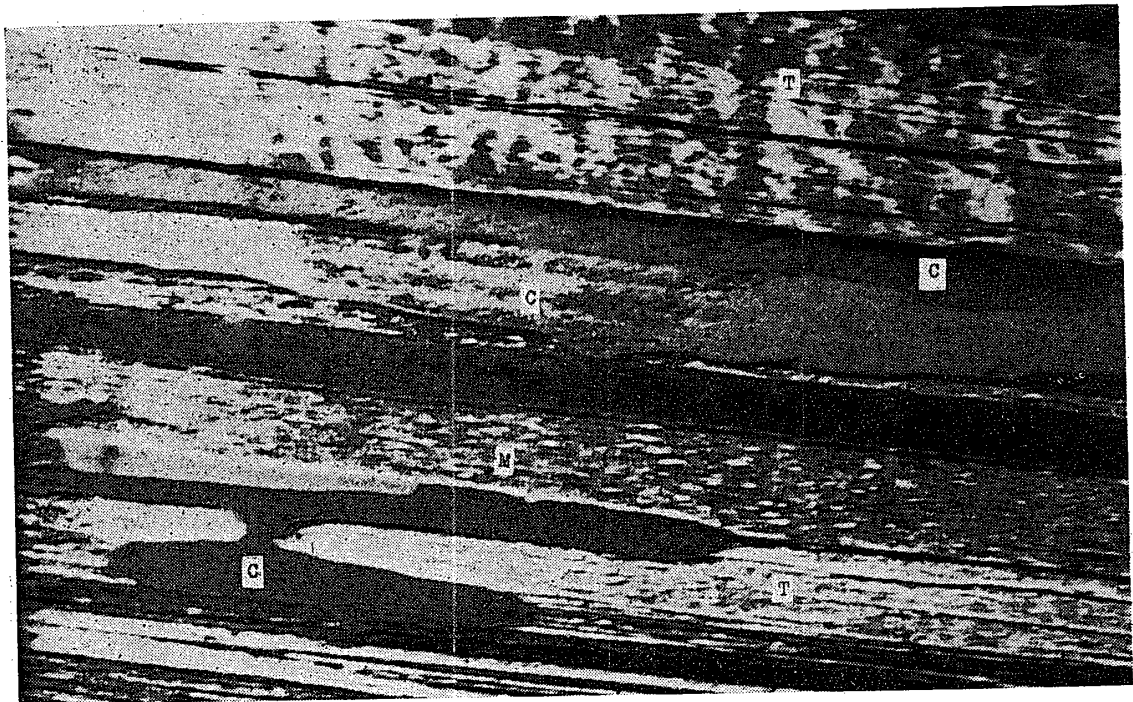


写真8. 平行な密集した双晶部分に発生した結晶粒 (234°C, 5時間焼鈍), ×9

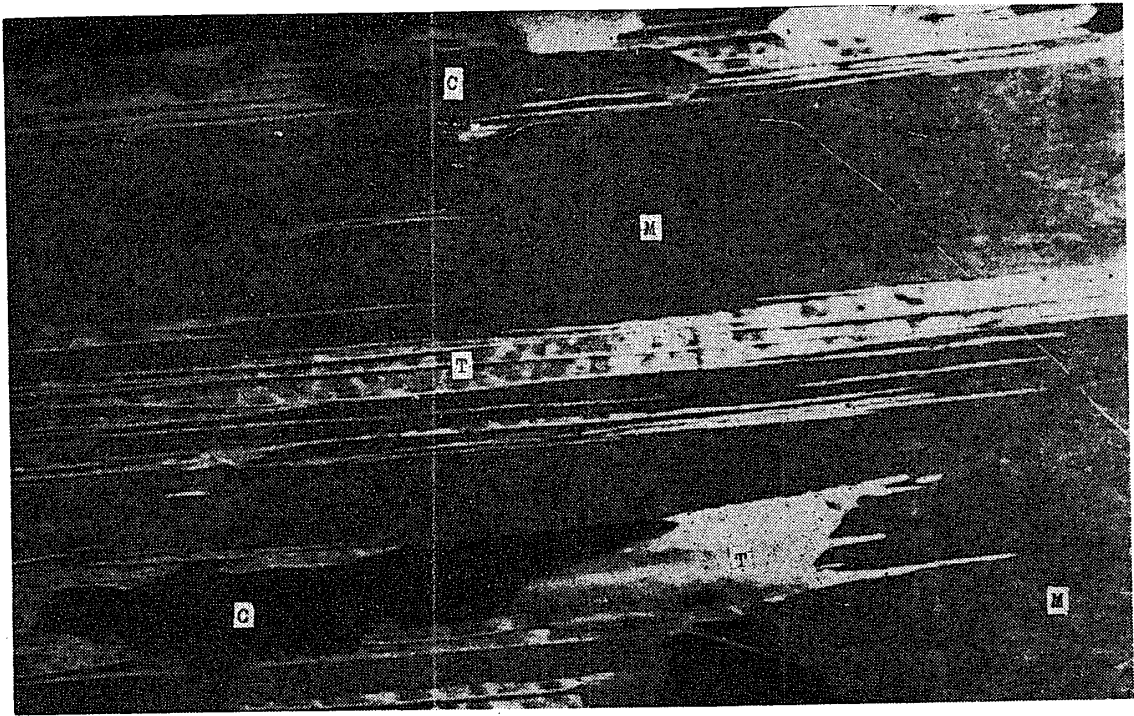


写真 9. 平行な密集した双晶部分に発生した結晶粒 (234°C, 5 時間焼鈍),  $\times 9$

の場合新しい結晶粒は数個の細長い双晶が合体して生ずるように観察される。然し再結晶した粒の境界は双晶の境界とは必ずしも一致するとは限らない (写真 9)。

上述の事実は前記 (3) と同様双晶境界に沿って細長い結晶が生じることを示している。

以上の例は引張加工により matrix 中に双晶を生ぜしめた場合であるが、板厚方向に圧縮加工を加えた場合にも写真 10<sub>a</sub> の如く複雑な双晶を生ずる。この試料を 175°C で 1 分焼鈍すれば写真 10<sub>b</sub> の如く写真下方に新しい結晶粒の生成が認められるようになる。更に 175°C で 6 分焼鈍した場合には写真 10<sub>c</sub> の如く写真 10<sub>b</sub> の下方に発生した新結晶粒が双晶方向に成長して行くようになる。

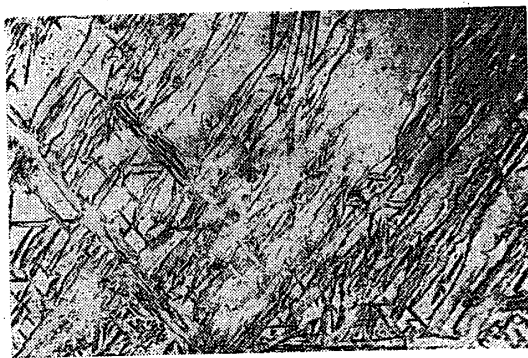


写真 10<sub>a</sub>. 複雑な双晶を生じた場合 (加工のまま),  $\times 50$



写真 10<sub>b</sub>. 写真 10<sub>a</sub> の試料を 175°C, 1 分焼鈍した場合,  $\times 50$



写真 10<sub>c</sub>. 写真 10<sub>a</sub> の試料を 175°C, 6 分焼鈍した場合,  $\times 50$

#### 4. 実験結果の考察

以上の実験結果より次のことが考えられる。粗大結晶粒の方位と塑性加工の程度とにより迂り変形のみよりなる場合と双晶変形を含む場合とがある。迂り変形にても双晶変形を起す一歩手前の場

合もあればそうでないときもある。双晶変形の場合にも迂り変形後双晶変形を起すときと、いきなり双晶変形を起すときとがあり、この双晶の中には更に二次の迂り、双晶というように高次の変形を進行するときもある。此処では粗大結晶粒の方位の異なるものを使用し、迂り変形の場合、迂り変形後双晶を生ずる場合、いきなり双晶変形を行う場合について研究を行った。

第一の迂り変形の場合では高温で加熱しても新しい結晶粒の発生は認められないに拘らず、軟化していることが判つた。このことは粗大結晶粒の方位により迂り変形するも加工硬化にはこの迂り線は余り寄与しないことを暗示すると共に、この場合の回復が転位の再配列による polygonization の過程をとることが想像出来る。

第二の双晶変形をも含む場合はその双晶が matrix 中に一つ単独に存在するとき、結晶粒界と交叉するとき、双晶同志が交叉するとき、大きな双晶中に小さな双晶を含むとき等に分けられる。然し双晶の発生も粗大結晶粒の方位と外部より加えられる塑性加工の程度により異なる訳で、同一方位の結晶粒では加工度の少い程単純な双晶を生ずるに過ぎない。即ち双晶の生成はその結晶内部に貯えられるエネルギーの放散過程とも言える。然し双晶の生成によつて外部より加えられるエネルギーの増大を軽減することは出来るが、この増大するエネルギーの全部を解放する訳には行かず大部分は残ることになる。従つて複雑な双晶を生成する程種々の格子欠陥を持つことになり、この解放のために適当な熱エネルギーさえ与えられれば結晶の再配列を行う方向に進むことになる。而してこの場合の再結晶粒の発生は双晶と結晶粒界との交叉点とか、双晶の交叉する位置であり、これらの箇所における格子の不規則性の増大は当然予想されるものである。而して再結晶粒の成長は双晶方向、matrix 方向共同一速度で進行するものではなく、双晶方向への生長が著しい。このことは matrix の部分の安定さに比較し、双晶内部の不安定さを物語るかも知れない。

第三に粗大結晶粒に於ける (0001) が引張方向と僅かな角度をなしている場合には迂り変形を殆んど行わずに直に双晶を生ずる。このときの双晶は粗大結晶粒内で一定の方向に多数平行して現わ

れ、matrix の部分より面積にして多く占めるようになる。この場合の matrix は殆んど塑性変形を受けない状態と言え。然るにこれを高温で加熱すれば細長い多数の双晶の間に新しい結晶粒を生ずるに到る。このことは双晶内部に貯えられたエネルギーの解放に際し、双晶間に夾まれた細長い matrix にも一部再配列を起させることを意味する。然しその再結晶粒の成長が双晶方向に進むことにより、matrix の再配列は可成り遅いものと言え (写真 8 の H 型の結晶粒の場合等より)。

尙これらの実験に於ては予め粗大結晶粒の方位を正確には測定しなかつたので、方位関係については更めて検討する予定である。

#### 4. 結 論

高純度亜鉛 (>99.99%) を用いて作製せる粗大結晶粒よりなる板について、異つた方位の結晶粒に種々の塑性変形を与え、これを高温で加熱した場合に起る結晶の変化、殊に再結晶粒の発生位置並にその成長方向につき主としてそのマクロ及びミクロ組織に注目して研究を行い、次のことを明にした。

(1) 引張加工により 25% の歪を加えるも、迂りのみによる変形を行う粗大結晶粒では、高温で加熱しても軟化はするが、再結晶粒の発生は認められない。

(2) 粗大結晶粒の面積に比し、小さな双晶が単独で存在する場合には、その双晶は高温で長時間加熱されてもその双晶境界の移動は認められない。

(3) 双晶と粗大結晶粒の境界との交叉位置、或は双晶が互に交叉する場所に於て再結晶粒の発生が認められる。

(4) 特種な方位をもつ粗大結晶粒では迂り変形を殆んど行わず、直に双晶を起し多数の細長い双晶の集団が出来る。これを高温で加熱すれば、その双晶集団の内部に再結晶粒の発生が認められる。

(5) 双晶の存在する場合で再結晶を行い、その再結晶粒が成長するときには、細長く伸びた双晶方向に進行する。

#### 文 献

- 1) W. G. Burgers, J. C. M. Basart: *Z. Physik*, 54

- (1929), 74. 653.
- 2) J. A. Collins, C. H. Mathewson: *Trans. A. I. M. E.*, 137 (1940), 150. 4) N. K. Chen, C. H. Mathewson: *J. Met.*, 4 (1952), 489.
- 3) N. K. Chen, C. H. Mathewson: *J. Met.*, 3 (1951),  
(1953年2月6日受理)