

## 金属研究の歴史と再結晶

長 嶋 晋 一\*

再結晶に関する研究は、鋼の焼入硬化およびジュラルミンの時効硬化に関する研究と並んで金属学における最も重要なテーマの一つであつた。他の多くの学問分野においてそうであつたように、金属学におけるこれらのテーマもきびしい論争を経ながら金属学全般の研究水準の向上に寄与してきた。まず、第一の鋼の焼入硬化に関する最初の論争は有名な“β鉄論争”である。これについては中沢護人氏の麗筆による「鉄のメルヘン」があるのでその一読をお奨めするが、19世紀末にフランスの OSMOND が、焼入れした鉄が硬化するのは高温で安定なγ鉄が急冷されると常温で安定なα鉄に変態し切れずに中間の温度で安定なβ鉄になるため、このβ鉄が硬いので焼入硬化が生ずるのだ、という同素変態説を発表した。これに対して ARNOLD らイギリスの学者達は焼入硬化は鋼の中に形成された硬い鉄の炭化物ハーデナイト (hardenite) によるものであると主張した。この論争に触発されて鉄・炭素系状態図の研究が進められ、イギリスの AUSTEN, オランダの ROOZEBOOM, 日本の本多らの手によつて、今日我々が知つている状態図の輪郭が明らかにされた。鉄の同素変態であるα鉄、β鉄およびγ鉄の結晶構造がX線回折法によつて確かめられたのは1922年、マルテンサイトと名付けられた焼入れによつて生じる硬い針状の組織の結晶構造が解明されたのは1926年で、“β鉄論争”が始まつてから30年もの歳月を経た後のことであつた。

焼入れによつて生ずるマルテンサイトに関する研究はさらに進展して、KURDJUMOV-SACHS は1930年に1.4%炭素鋼に生ずるマルテンサイト(α')と母相のオーステナイト(γ)の間には次の方位関係が存在することを明らかにした。

$$(111)\gamma // (011)\alpha', [\bar{1}01]\gamma // [\bar{1}\bar{1}1]\alpha'$$

この方位関係は KURDJUMOV-SACHS の関係 (K-S 関係) として知られている。その4年後に西山は Fe-30%Ni 合金を用いて次のような新しい方位関係があることを発表した。

$$(111)\gamma // (011)\alpha', [\bar{2}11]\gamma // [01\bar{1}]\alpha'$$

この方位は K-S 関係に極めて近いもので、γとα'の平行な面は全く同じで、γとα'の平行な方向がわずか5°16'ずれているだけであるので、新しい方位関係なのかあるいは実験の誤差なのかが問題になつた。ヨーロッパの研究者達にとつて東洋の無名の研究者としかうつらなかつた西山先生の研究結果はにわかに信じがたい気持があつたに違いない。幸いなことに、それから間もなくドイツの WASSERMANN が全く同じ合金を用いて同じ方位関係が存在することを発表したので、大きな論争とはならずすんなりと認められ、K-S 関係と並んで西山の関係 (N関係) として広く知られるに至つた。このようないきさつからドイツ国内では今もN関係を NISHIYAMA-WASSERMANN の関係と呼んでいる。

集合組織の研究とその著書 *Texturen metallischer Werkstoffe* で有名な WASSERMANN 教授がマルテンサイトの研究でもこのような大きな貢献をしたことは、西山先生が戦後間もなく炭素鋼の圧延および再結晶の集合組織に関する研究を進められたことと同様に意外に知られていない事実である。またこのような因縁からか、WASSERMANN 教授の弟子であるドイツの Clausthal 工科大学の研究者達は現在も Fe-Ni 合金の変態集合組織に関する研究を続けている。

第二の論争であるジュラルミンの時効硬化の機構解明に関する研究はドイツの WILM が1906年にこの合金を発明したときから始まつた。3~4.5%のCuと微量の不純物を含むこのAl合金は高温から急冷したままでは軟らかいが、常温に放置すると数時間を経てゆつくり硬化する。この硬化は急冷によ

\* 横浜国立大学工学部教授 工博

つてマトリックス中に強制的に固溶された Cu 原子の析出に基因する現象であろうことは状態図から推測されたが、当時の光学顕微鏡の倍率では何の変化も認められないにもかかわらず著しい硬化が生ずることから議論が分かれた。

すなわち、光学顕微鏡では認められない極微小な析出物の生成に基づく硬化と考える析出硬化説と、析出物の生成前に固溶体内に生じた溶質原子の凝集によるひずみが原因と考えるひずみ硬化説との論争である。時効過程の熱分析や電気抵抗変化の測定による速度論的研究、時効析出前後の母相の格子定数測定による固溶体内部の変化の検討など時効析出初期の現象の解明が進められ、1938年フランスの GUINIER とイギリスの PRESTON によつて、GUINIER-PRESTON の凝集帯 (G-P ゾーン) の存在が X 線回折法によつて確認され、時効硬化は Al 固溶体中の {100} 面上に溶質の Cu 原子が凝集することによつて生じることが明らかにされた。これにより論争は落ち着いたかに思われたが、アメリカの GEISLER は Al-Ag 合金の時効析出の X 線的研究結果を基に、GUINIER や PRESTON が観察した X 線回折斑点に付随して生じる散漫散乱像は、G-P ゾーンのような溶質原子の凝集帯を考えなくても説明できること、すなわち極めて微小な線状、板状、粒状の析出物の生成によつても同様な散漫散乱像は現れることを指摘した<sup>2)3)</sup>。この新しい論争は固溶体内の周期性の欠如や極微小粒を含む広い意味の結晶欠陥が X 線散乱像に及ぼす影響に関する一般的理解を深めるために有意義であつたが、GEISLER 博士の急逝によつて中断した<sup>4)</sup>。

第三の再結晶に関する論争は集合組織形成の起源に関するもので、BURGERS らの核配向説 (oriented nucleation theory) と、BECK らの配向成長説 (oriented growth theory) の両説が提唱されて、1930年代から議論が続けられてきたことはよく知られているとおりである<sup>5)~7)</sup>。これらの論争はそれぞれの立場を支持する実験結果に基づいて展開されたものであるが、単結晶の実験や多結晶試料による統計的研究、局所的再結晶形成過程の検討や再結晶前後の集合組織の比較検討、比熱や X 線回折線プロファイルの解析によるひずみエネルギー解放過程の解明、など広範な研究結果が相次いで発表された。これらの論争は次第に入り組んできて、たとえば核配向説の支持者である KROMBERG-WILSON が発表した再結晶方位の結晶方位回転モデルは配向成長説の実験結果を解釈する有力な根拠を与えることになるなど、この論争の経過は読み返すほどに興味が深まる。

一方、我が国においては、金属の再結晶に関する研究は Mo 線の再結晶集合組織に関する研究 (藤原)<sup>8)</sup> が BARRETT 著 Structure of Metals に引用されているほか、1937 年以来 Al 線の再結晶<sup>10)</sup>、Cu 合金の焼鈍<sup>11)12)</sup>、純 Al 線の再結晶<sup>13)</sup>、珪素鋼板の再結晶集合組織と磁性<sup>14)</sup> などが発表されその後研究が続けられている。戦後は再結晶の速度論的研究<sup>15)</sup>、鉄の圧延・再結晶集合組織<sup>16)17)</sup>、珪素鋼板<sup>18)19)</sup>、Zn<sup>20)</sup>、再結晶機構<sup>21)</sup> などの研究がはじめられ、五弓、阿部両先生を中心に我が国におけるこの分野の研究が活発になつてきたことはよく知られているとおりである。珪素鋼板の磁気特性や極低炭素鋼板の深絞り性など、集合組織制御による特性改善という工業的応用の可能性が強まるにしたがつて、この分野に対する関心が高まつて研究者の数もますます増えた。1969 年仙台で行われた秋季講演会では鉄鋼協会と金属学会が「再結晶・集合組織」に関するテーマをまとめて、合同でプログラムを組んだが、発表申込件数が多く 2 日半にわたつてようやく終了するという盛況を見るに至つた。

珪素鋼板および深絞り用鋼板の製造技術の確立という大きな工業的成果を得た後、再結晶に関する研究は鎮静期に入つたが、再結晶機構あるいは再結晶集合組織に基づく異方性に関する基礎研究はその後も着実に進められている。1981 年東京で開催された第 6 回集合組織国際会議 (ICOTOM 6) には海外 17 か国から 56 名の参加があり、国内からも 108 名が参加したが、我が国からの発表は内容も立派なものが多かつたと好評であつた。この国際会議は 1968 年にドイツの Clausthal で第一回の会議が持たれ、以後 2~3 年に一度ヨーロッパで開催されてきたものであるが、第 6 回目ははじめてヨーロッパを

離れて東京で開かれたもので、我が国におけるこの分野の研究の水準の高さと研究者の層の厚さを認められたためであった。本年9月末にはオランダで第7回の集合組織国際会議 (ICOTOM 7) が開催されることになっているが、今回もまた我が国の研究者の活躍が期待される。我が国における再結晶の研究は体心立方金属、特に鉄鋼材料を中心に工業的応用に重点をおいている点に特色があり、これが面心立方金属の再結晶機構に関する理論的研究が中心である欧米諸国から注目される理由の一つであろう。

上に述べたように、同一現象に関しても観点が異なればその解釈をめぐって学問的論争が生じ、建設的な議論を通じてその分野の研究が進展し、多くの成果が生まれるものであるから、今後とも新しい観念に立つて従来の研究成果を見直し、より包括的な理論の提案とそれに対する反論が活発に行われることが望ましい。その意味でも、今回の「再結晶・粒成長」に関する特集号に掲載された解説や資料が、この分野の研究者だけでなく広く他の分野の研究者にも読まれて、それぞれの専門分野における新しい問題の提起として波及し、あるいは再結晶研究の上にフィードバックされることを願うものである。

## 文

## 献

- 1) 中澤護人: 鉄のメルヘン (1975) [アグネ]
- 2) A. H. GEISLER: Phase Transformation in Solids (1951), p. 387~544 [John Wiley and Sons, New York]
- 3) H. K. HARDY, T. J. HEAL: Phase Transformation in Metals Inst. Metals Mono. Rep. Series 18 (1955), p. 1~46
- 4) 1952年頃の J. Metals に GEISLER 博士の急逝を惜しむ GUINIER 教授の追悼の文が載っていたと記憶しているが確認できていない。
- 5) 長嶋晋一: 集合組織, 日本金属学会 金属学新書 (1966), p. 124 [日本金属学会]
- 6) 古林英一: 日本金属学会会報, 16 (1977), p. 751
- 7) 長嶋晋一: 集合組織 (1984) [丸善]
- 8) T. FUJIWARA: Proc. World Eng. Congr., Tokyo, pt. 4, Vol. 36 (1929), p. 171 (1931).
- 9) C. S. BARRETT: Structure of Metals, 2nd Edd. (1952) [McGraw Hill, New York]
- 10) 藤原武夫: 日本金属学会第1回春期講演会 (1937)
- 11) 篠田軍治: 日本金属学会第2回秋期講演会 (1937)
- 12) 幸田成康: 日本金属学会第4回秋期講演会 (1938)
- 13) 小崎正秀: 日本金属学会第4回秋期講演会 (1938)
- 14) 中村 素, 江上一郎: 日本金属学会第4回秋期講演会 (1938)
- 15) 橋口隆吉: 日本金属学会秋期講演大会 (1946), 春期講演大会 (1947)
- 16) 西山善次, 山本政一: 日本金属学会春期講演大会 (1947), 秋期講演大会 (1947)
- 17) 西山善次, 山本政一: 日本金属学会誌, 12 (1948), p. 5
- 18) 五弓勇雄, 阿部秀夫, 高橋 久: 日本金属学会誌, 13 (1949), p. 9
- 19) 五弓勇雄, 阿部秀夫: 日本金属学会誌, 14B (1950), p. 68
- 20) 五弓勇雄, 鈴木 壽: 日本金属学会誌, 18 (1954), p. 301
- 21) 五弓勇雄, 阿部秀夫: 日本金属学会誌, 16 (1952), p. 534