3%Si-Fe の2次再結晶に及ぼす冷延率の影響

原 勢 二 郎* 清 水 亮* 高 橋 延 幸*

J. Japan Inst. Metals, Vol. 54, No. 4 (1990), pp. 381-387

Effect of Cold Rolling Reduction on the Secondary Recrystallization in 3%Si-Fe Alloy

Jirou Harase*, Ryo Shimizu* and Nobuyuki Takahashi*

Texture evolution by grain growth in the presence of MnS and AlN precipitates in 3%Si-Fe alloy processed by Taguchi's method, was investigated by X-ray diffraction and back Laue diffraction. Main findings obtained are as follows:

(1) With higher cold reduction, sharpness of Goss secondary texture increases, however, fine grain areas with no Goss orientation are also evolved. The evolution of the sharper Goss texture is considered to be due to an increase in frequency of $\Sigma 9$ type grain boundaries in relation to an ideal Goss orientation in the primary matrix by higher cold reduction, and the occurrence of the fine grain area is due to the decrease in the Goss nucleus grains in the primary matrix.

(2) The texture of the above mentioned fine grain area is mainly {334}, while the major texture before grain growth is {113}.

The mechanism of the texture evolution in the fine grain area is explained by the specific grain boundary migration characteristics in the weaker inhibitor intensity, namely, the texture evolved has closer relationship with the product of the intensity of its own and the frequency of the grains in $\Sigma 9$ orientation relationship in the primary matrix.

(Received August 7, 1989)

Keywords: secondary recrystallization, grain growth, coincidence boundary, inhibitor, texture precipitates, AlN, MnS

I. 緒 言

一方向性珪素鋼板は、2次再結晶により、圧延方向に平行に(110)面を、圧延方向に[001]軸を揃えた、いわゆるGoss方位と呼称される集合組織を有した材料であり、工業化された一方向性珪素鋼板の[001]軸の圧延方向からのずれ角度は、 10° 以内と極めて小さい。

一方向性珪素鋼板の製造法は、大別するとGossによって開発された2回冷延法⁽¹⁾と、田口らによって開発された1回冷延法⁽²⁾がある。田口らによって開発された1回冷延法の場合は、MnSとAlNをインヒビターとして使用している。この場合、2回冷延法と較べると1次再結晶前の冷延圧下率が高いが、特に冷延圧下率を高くすると、細粒と呼ばれる2次再結晶しない部分が発生することが経験的に知られている。

2次再結晶は、選択的な粒界移動によって起きる現象である。したがってこのような細粒部分についても、粒界移動の素過程では、大きく成長してGoss 2次再結晶粒となる場合と同一原理が働いていることが予想される。そこでGoss 2次結晶部分と細粒部分について、その生成メカニ

ズムを対応粒界に着目して検討した。

II. 実 験 方 法

1. 試片の調整と調査項目

厚さ2.3 mmの熱延板(C: 0.04, Si: 2.95, Mn: 0.09, S: 0.026, Al: 0.025, N: 0.008 mass%)を次の条件で処理した。

熱延板焼鈍(1393 K-120 s→373 Kの沸騰水中への焼き入れ)後、厚さ0.285 mm(冷延率87.6%, A2と呼ぶ)まで圧延した。比較のため厚さ0.20 mmまで圧延した試片も試作した(冷延率91.3%, A4と呼ぶ)。これらの冷延板は、1次再結晶焼鈍(1123 K-150 s, 露点333 K, 75% H₂-N₂)を行った後2次再結晶焼鈍(加熱速度 6.64×10^{-2} K/s (239 K/h)で1437 Kまで加熱後、その温度で72 ks保持後冷却、雰囲気は加熱途上は、75% H₂-N₂、均熱中は、100% H₂)を行った。

1次再結晶板の表面と板厚中心層から、厚さ80 μ mの試片を化学研磨法で取り出した。その試片からX線回折法により(100)完全極点図を求め、これを基にベクトル法⁽³⁾⁽⁴⁾による3次元解析を行った。板面法線と圧延方向

* 新日本製鉄(株)第三技術研究所電磁鋼研究センター(Electrical Steel Lab., R & D Laboratories III, Nippon Steel Corporation, Kita-kyushu)

を含む断面の結晶組織から粒界線図を描き、その粒界線図から画像処理装置(TOSPIX2 東芝製)を使い粒径分布を求めた。粒径は、円相当径を使った。

2 次再結晶焼鈍後の試片で大きく成長した結晶粒については、背面反射ウエラ法によりその方位を測定し、大きく成長しなかった試片については X 線回折法により、(100) 極点図を求め、ベクトル法による 3 次元解析を行った。

1 次再結晶集合組織と、2 次再結晶焼鈍で得られた集合組織の相互の関係は、次項で述べる SHG 法⁽⁵⁾により解析した。

2. SHG 法

粒成長過程を考察するとき、直接境を接する結晶粒との粒界性格のみならず、将来境を接する遠方の結晶粒との粒界性格を知る必要がある。この目的のため、著者らは、仮想の結晶粒とマトリックスの個々の結晶方位がどのような対応方位関係にあるかをシミュレーションする方法(SH 法⁽⁶⁾)を考案したが、この方法では、個々の結晶の方位を測定しなければならず、測定に要する時間が長い。そこでベクトル法の解析結果を利用する方法を考案した。この方法を SHG 法と呼ぶ。方位空間をベクトル法に準じて分割し、各々の分割領域の代表方位と対応方位関係にある結晶方位を予め計算で求めた。

この場合の対応関係の成立条件としては、代表方位間の回転マトリックスと、対応方位関係を規定する理論的な回転マトリックスとの間の、回転のずれ角度に、Brandon の条件⁽⁷⁾を適用した。その結果を使い、ベクトル法で求めた集合組織の個々の代表方位(仮想の結晶方位)と対応方位関係にある結晶方位の存在強度(I_C)と、仮想の結晶方位の存在強度(I_N)の積(P_{CN})を求める。この結果を使い、粒成長による集合組織形成メカニズムについて考察する。

III. 実験結果

1. 2 次再結晶焼鈍前の状態

Fig. 1 に 1 次再結晶前(冷延後)の(100)極点図を示す。

Fig. 2 に(110)面を板面に平行とする方位の ND 軸(板面法線)廻りの強度分布を示す。冷延の状態では、何れの材料も、強度のピークは、理想 Goss 方位近傍にある。

Fig. 3 に 1 次再結晶板の(100)極点図を示す。

Fig. 4 に 1 次再結晶板の表面層の(110)面を板面に平行とする方位の ND 軸廻りの強度分布を示す。(110)面の強度のピークは、理想 Goss 方位には無いが、理想 Goss 方位近傍の強度は、冷延率の低い試片 A2 が A4 のそれの 2 から 4 倍程度高い値を示していることが解る。Fig. 5(a), (b) に 1 次再結晶板の板面法線と圧延方向を含む断面のミクロ組織と粒径分布を示す。冷延率の影響は殆どみられない。

Fig. 1 (100) pole figures before primary recrystallization annealing.

A2; 87.6% reduction, A4; 91.3% reduction.

Fig. 2 Intensities of {110} orientations determined by the vector method before primary recrystallization annealing.

A2; 87.6% reduction, A4; 91.3% reduction.

2. 2 次再結晶焼鈍後の状態

Fig. 6 に 2 次再結晶焼鈍後のマクロ組織を示す。冷延率の高い試片 A4 は、大きく成長しなかった部分がある。

Fig. 7 に大きく成長した結晶粒の方位測定結果を示す。A2 は、200 個、A4 は、100 個の結晶粒の測定結果である。図の左側は、測定結果をそのままプロットしたものであり、右側は、各結晶粒の面積を 1 として、ベクトル法の逆極点図で示したものである。

Fig. 3 (100) pole figures in the primary recrystallization stage.

A2; 87.6% reduction, A4; 91.3% reduction.

図から試片 A2 と比べ試片 A4 が Goss 方位の集積度が高いことが解る。

Fig. 8 に試片 A4 の 2 次再結晶焼鈍で大きく成長しなかった領域の板厚中心層の X 線解析から求めた (100) 極点図をベクトル法で解析した 3 次元集合組織を示す。図で横軸は板面方位を示し、括弧内の数字は、これら板面方位を示す番号 (ベクトル法で定義した Box No.) である。縦軸の ϕ は、この板面方位の、RD 軸からの回転角度を示す。図の中に示したエッチピットの形が、その位置の結晶方位を模式的に示している。横軸の左部分の Box No. 1 から 36 は、ステレオ 3 角形の斜辺方位、中央部分の 36 から 29

Fig. 5 (a) Microstructures in the primary recrystallization stage.

A2; 87.6% reduction, A4; 91.3% reduction.

(b) Grain size distributions in the primary recrystallization stage.

A2; 87.6% reduction, A4; 91.3% reduction.

Fig. 4 Intensities of {110} orientations determined by the vector method in the primary recrystallization stage.

A2; 87.6% reduction, A4; 91.3% reduction.

Fig. 6 Macrostructures after secondary recrystallization annealing.

A2; 87.6% reduction, A4; 91.3% reduction.

が高さ方位，右部分の29から1が底辺方位を示している。粒成長前の主方位は， $\{334\}$ であったが(Fig. 10 参照)，主方位は， $\{113\}$ に変化しており，大きく成長しなかった部分においても集合組織は粒成長により大きく変化したことを示している。

IV. 考 察

1. Goss 2 次再結晶方位の集積度と冷延率の関係

著者らは，これまでにインヒビターとして AlN と MnS を含んだ 3%Si-Fe 合金の粒成長においては， $\Sigma 9$ 粒界が他の粒界と較べて動き易く， $\Sigma 9$ 粒界の存在頻度が粒成長による集合組織形成に大きく影響することを示してきた⁽⁸⁾⁻⁽¹⁰⁾。またインヒビターの強さにより粒界移動の粒界

Fig. 8 Three dimensional orientation distribution of the fine grain area of the specimen A4 after secondary recrystallization annealing.

性格依存性が変わることも示した⁽¹⁰⁾。ここで言うインヒビターとは，析出相を指し，その強さは，Zener により提示された f/r の大小⁽¹¹⁾を意味する。

ところで Goss 2 次再結晶成長のためには，核となる Goss 粒の存在，Goss 粒に食べられ易い結晶粒特に $\Sigma 9$ 対応方位関係にある結晶粒の存在，更に粒成長を抑制するインヒビターが存在することが必要なことがよく知られている。

Fig. 9 は，1 次再結晶板における (110) 面を板面に平行とする方位の ND 軸廻りの方位の $I_c \Sigma 9$ の値を示す。図から理想 Goss 方位は，最も大きな値を示しており，試片 A4 は，試片 A2 と比べて，板厚中心，表面いずれも理想 Goss 方位と $\Sigma 9$ 対応方位関係にある結晶粒の数が多いこ

Fig. 7 Orientation of secondary grains measured by back Laue diffraction method after secondary recrystallization annealing.

A2; 87.6% reduction, A4; 91.3% reduction.

Fig. 9 Intensity of $I_C\Sigma 9$ in relation to $\{110\}$ orientations rotated around ND axis in the primary recrystallization stage.

A2; 87.6% reduction, A4; 91.3% reduction.

とが予想される。試片 A2 と較べ試片 A4 で大きく成長した結晶の方位が理想 Goss 方位からのずれが少ないのは、 $\Sigma 9$ 対応関係にある結晶粒の存在が多いためと考えられる。また、試片 A4 で、Goss 方位にならない領域が発生したのは、Fig. 4 に示したごとく Goss 方位粒が、試片 A2 の半分程度と少なく、したがってマトリックスに対し、寸法の優位性をもった 2 次再結晶核となる可能性のある Goss 方位粒が少ないことが主因と言えよう。

ところで著者らはさきに 2 次再結晶焼鈍の昇温過程において板厚方向で AlN の濃度に勾配が形成され、板厚表面層の Goss 核が存在する部分がある濃度レベルに達したとき、2 次再結晶粒成長が起き、その温度は、マトリックスの粒径が小さいほど低いことを示した⁽¹²⁾⁽¹³⁾。板厚が薄い試片 A4 は、A2 と比べ表面層の比率が相対的に多くなるので雰囲気の影響を受けて AlN の濃度が低下する板厚方向の深さが増すので、粒成長する領域が相対的に広がる。その結果、2 次再結晶粒の成長速度が遅れ、2 次再結晶焼鈍温度の上昇に従い、インヒビターの強度が更に弱くなり、マトリックス部分が粒成長し、Goss 2 次再結晶粒に食べられない部分が発生すると考えられる。

したがって、板厚の薄い試片 A4 で 2 次再結晶しない部分が発生した原因は、2 次再結晶核となり得る Goss 核の絶対量が少ないことに加え、板厚が薄いことによるインヒビター強度の相対的低下による、マトリックス粒の粒成長も考慮する必要がある。

冷延率を高めることは、Goss 2 次再結晶の集積度を高めるが、同時に細粒 (2 次再結晶しない部分) が発生しやすくなるという、経験的に知られた現象は、対応粒界の存在強度と、Goss 粒の存在頻度、焼鈍中のインヒビターの板

厚方向の変化にわけてその要因を考えるとほぼ合理的に説明できる。

2. 細粒部分の集合組織形成メカニズム

Fig. 10 に試片 A4 の 1 次再結晶板の板厚中心層の 3 次元集合組織をしめす。主方位は $\{334\}$ であり、粒成長後の板厚中心層の細粒部分 (Goss 2 次再結晶成長しなかった部分) の主方位 ($\{113\}$) とは異なる。Goss 2 次再結晶成長しなかった部分も、粒成長により集合組織が大きく変化したと言える。著者らは先に、析出物 (AlN と MnS) インヒビターが弱い場合の粒成長による集合組織は、 $P_{CN}\Sigma 9$ や $P_{CN}\Sigma \langle 110 \rangle \langle \langle 110 \rangle$ 軸を回転軸とした対応方位の P_{CN} の総

Fig. 10 Three dimensional orientation distribution in the primary recrystallization stage of the specimen A4 (midplane).

和)が高く且つ、 $P_{CN\Sigma 1}$ の値の低い方位から形成されていることを示した⁽¹⁰⁾。本実験で、2次再結晶焼鈍過程で Goss 2 次再結晶粒が発生しなかった部分は昇温途上で、インヒビターの強度が弱まる。したがってこれらの部分の、粒成長集合組織はインヒビターが弱い場合の集合組織形成メカニズムに従うことが予想されるので、 $P_{CN\Sigma 9}$ や $P_{CN\Sigma \langle 110 \rangle}$, $P_{CN\Sigma 1}$ の値を調査した。

試片 A4 の 1 次再結晶板の板厚中心の $P_{CN\Sigma 9}$, $P_{CN\Sigma \langle 110 \rangle}$, $P_{CN\Sigma 1}$ の分布を Fig. 11, 12, 13 に示す。これらの図および、Fig. 8 から、粒成長後の強度が 4 または 5 以上の領域、 $P_{CN\Sigma \langle 110 \rangle}$ の値が 100 以上の領域、 $P_{CN\Sigma 1}$ の値が 400 以上の領域を Fig. 14 にまとめて示した。図から $P_{CN\Sigma \langle 110 \rangle}$ の値が 100 以上の領域で $P_{CN\Sigma 1}$ の値が 400 以下の領域では、粒成長後の強度が 4 以上ある領域にはほぼ一致しており、細粒部分の集合組織形成メカニズムは、著者が先に示したメカニズムで大筋は理解できる。

Fig. 11 Distribution of $P_{CN\Sigma 9}$ value in the primary recrystallized specimen A4 (midplane).

Fig. 12 Distribution of $P_{CN\Sigma \langle 110 \rangle}$ value in the primary recrystallized specimen A4 (midplane).

Fig. 13 Distribution of $P_{CN\Sigma 1}$ value in the primary recrystallized specimen A4 (midplane).

Fig. 14 Relationship between the $P_{CN\Sigma 1}$ value, $P_{CN\Sigma \langle 110 \rangle}$ value and the major orientation distribution after grain growth. The major orientations after grain growth shown here are $I \geq 4$ or $I \geq 5$.

V. 結 論

(1) 冷延率を高めると Goss 2 次再結晶集合組織の集積度が向上したが、Goss 2 次再結晶しない部分が発生した。その理由は、冷延率を高めることで、理想 Goss 方位と $\Sigma 9$ 対応関係にある結晶方位が増加するが、核となる理想 Goss 方位粒が減少することと、板厚が薄くなることによる表面層の相対的なインヒビター強度の低下を考慮するとよく説明できる。

(2) 粒成長により Goss 2 次再結晶しなかった部分の集合組織の主方位は、 $\{113\}$ であり、粒成長前の主方位 $\{334\}$ とは異なっていた。この集合組織形成メカニズムは、インヒビターが弱い場合は、その方位自身の存在強度と、その方位と $\Sigma 9$ または $\langle 110 \rangle$ 軸をもった対応方位関係

にある結晶粒の存在強度の積と関係しているとしている著者らのこれまでの考え方で大筋説明できた。

本研究のご指導をいただきました京都大学名誉教授高村仁一博士に感謝致します。

文 献

- (1) N. P. Goss: Trans. Amer. Soc. Metals, **23**(1935), 511.
- (2) S. Taguchi, A. Sakakura and H. Takashima: U. S. Patent 3287183(1966).
- (3) D. Ruer, A. Vadon and B. Baro: Texture of Crystallite Solids, **3**(1979), 245.
- (4) 長嶋普一編著: 集合組織, 丸善, (1984).
- (5) 清水 亮, 原勢二郎: 1988鉄鋼協会講演大会に発表.
- (6) J. Harase, R. Shimizu, K. Kuroki, T. Nakayama, T. Wada and T. Watanabe: *Proc. 4th JIM Int. Symp. on Grain Boundary Structure and Related Phenomena*, Supplement to Trans. JIM, Vol. **27**(1986), 563.
- (7) D. G. Brandon: Acta Metall., **14**(1966), 1479.
- (8) 原勢二郎, 清水 亮: 日本金属学会誌, **52**(1988), 259.
- (9) R. Shimizu and J. Harase: Acta Metall., **37**(1989), 1241.
- (10) 清水 亮, 原勢二郎: 日本金属学会誌, **53**(1989), 571.
- (11) C. Zener: private communication to C. S. Smith, Trans. AIME, **175**(1949), 15.
- (12) 原勢二郎, 高島邦秀, 清水 亮, 渡辺忠雄: 鉄と鋼, **14**(1987), 1746.
- (13) J. Harase, R. Shimizu, K. Takashima and T. Watanabe: Trans. ISIJ, **37**(1987), 965.