

電磁鋼板の二次再結晶における「Gossのミステリー」

早川康之

川崎製鉄(株) 技術研究所 主任研究員

Yasuyuki Hayakawa

“Mystery by Goss” in The Secondary Recrystallization of Electrical Steel

1 はじめに

昨年末、地球温暖化防止国際会議が京都において開催されたように、環境問題が注目を浴びている。鉄鋼業と言えばエネルギー多消費型産業の最たるものと位置付けられている場合が多い。しかし鉄鋼材料の一品種である電磁鋼板は、電力エネルギーの変換や輸送に必要な不可欠な変圧器やモーターの鉄心用材料であり、電力需要の定常的な増加を背景としてこれらの機器の省エネルギーに貢献している。電磁鋼板の技術開発の主目的は磁気特性の向上にあり、連綿たる技術開発の成果により電力エネルギーの損失は大きく減少し続けている。

電磁鋼板の製品開発の歴史および製造法の全体像は岡見氏の解説¹⁾を参照していただき、本稿では学術的な側面から方向性電磁鋼板の製造に特徴的な技術思想を解説する。

2 方向性電磁鋼板の二次再結晶

言葉の定義上「二次再結晶」と使用頻度の比較的高い通常の「再結晶」を比較した場合、語尾は共通するものの内容的には全く異なる。再結晶は加工組織から歪のない新しい再結晶核が形成され、周囲の歪を多く含む加工組織の側へ成長をする現象であり、再結晶は加工組織に蓄えられた歪エネルギーを解放して進行する。二次再結晶は通常の再結晶が完了した後、さらに高温で長時間焼鈍することにより、ある結晶粒のみが爆発的に成長し、他の多くの結晶粒はほとんど成長していない現象である。再結晶が完了した後で二次的に起こるという意味で二次再結晶と呼ばれている。ある結晶粒の爆発的な成長にともない、単位体積あたりの結晶粒の総数は大きく減少する。結晶粒数が減少することは、粒界面積が減少して粒界エネルギーの総量が減少することを意味する。すなわち、ある結晶粒が爆発的に成

長する際に粒界エネルギーの総量が減少することが二次再結晶の駆動力であり、再結晶ではなく粒成長の一形態である。そのため二次再結晶は異常粒成長とも呼ばれるが、同じ現象を積極的な意味合いで使用する電磁鋼板関係者は前者を、機械強度が低下するために忌み嫌う薄板関係者は後者を使うようである。さらに電磁鋼板関係者は、二次再結晶が何らかの原因で起こらずに、通常の意味での正常粒成長が起きてしまった場合に「異常粒」という言葉を俗に使用しており紛らわしいが、どちらの状態を正常と考えているかの違いが端的に表われている。

方向性電磁鋼板は、0.2~0.3mm程度の板厚で、板厚より大きい数mmから数10mmの結晶粒径を有する鋼板に、絶縁被膜コーティングを施してある製品である。鋼板側において特徴的な点は、結晶粒径が μm 単位であるほとんどの鉄鋼材料に比較して例外的に大きいことだけでなく、結晶方位が $\{110\}<001>$ 方位に高度に配向していることにある。図1に二次再結晶組織の写真と、図2に二次再結晶粒方位の配向度合を示すが、ほぼ $\{110\}<001>$ 方位からのずれ角が5度以内に収まっている。この結晶配向度を面方位強度で比較してみると、結晶方位制御が重要である深絞り用鋼板の $\{111\}$ 組織への集積度の5倍以上である。 $<001>$ 方向は α 鉄の磁化容易軸であり、方向性電磁鋼板は圧延方向に容易に磁化されるために、電磁誘導を利用した電力変換に伴って発生する熱によるエネルギー損失が小さい。

電磁鋼板の製造技術はArmco社のN. P. Gossにより1930年代に発明され²⁾、その功績に因んで、 $\{110\}<001>$ 方位は



図1 二次再結晶粒マクロ組織

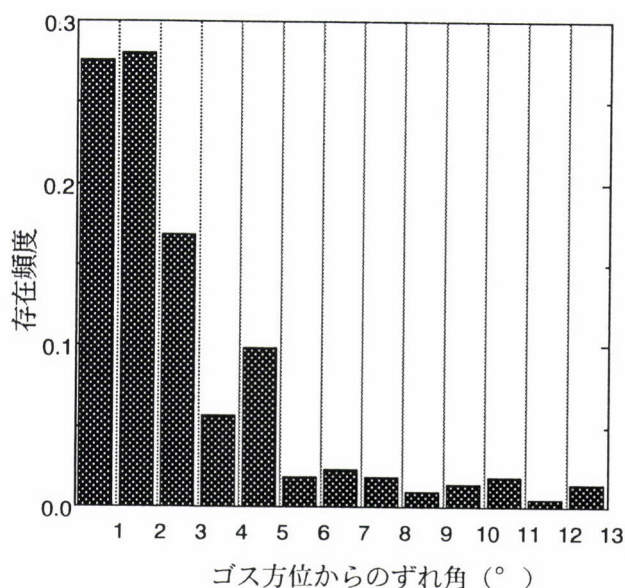


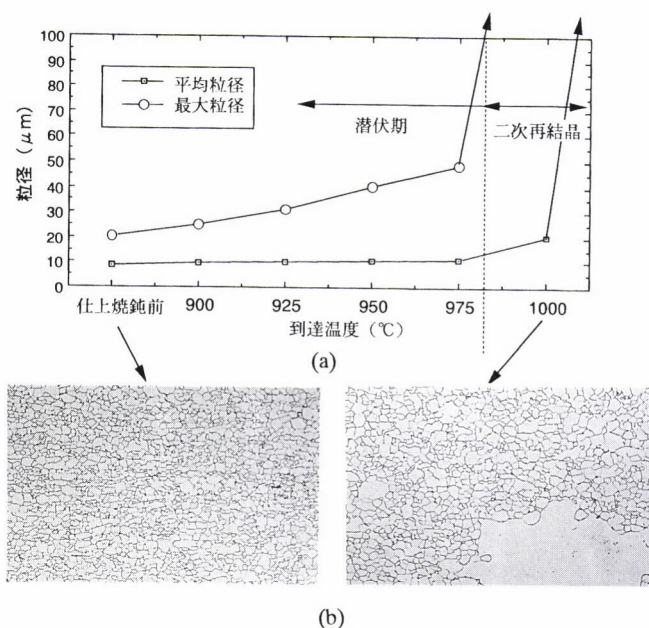
図2 二次再結晶粒の方位分布

ゴス方位と称されている。方向性電磁鋼板の製造工程は、最終板厚まで冷間圧延によって仕上げ、焼鈍によって圧延歪を解放して再結晶させる工程までは通常の冷延鋼板の製造工程との差異はわずかである。方向性電磁鋼板に固有な点は、 $10\mu\text{m}$ 程度である再結晶粒を前述した二次再結晶により数 10mm にまで成長させる仕上焼鈍技術にある。

仕上焼鈍において、再結晶後の鋼板はコイル状に巻取られた状態で、数10時間の時間をかけて最終的には 1200°C 程度にまで昇温される。仕上焼鈍中の温度と結晶粒径の関係の一例を図3 (a)に示す。この場合 975°C 付近で二次再結晶を開始して、 1025°C 到達時には完了した。二次再結晶の開始直前までには、二次再結晶粒の発生は全くなく緩慢な粒成長のみが起こる時期があり潜伏期と呼ばれている。素材の化学成分や処理工程により変動はあるが、二次再結晶を開始して、ゴス方位粒が大きく成長するのはほぼ $850\sim 1050^\circ\text{C}$ 程度の領域であり、最終的な 1200°C 付近までの昇温は不純物元素の除去の目的のために必要である。仕上焼鈍途中でゴス方位粒が他粒を食い進んで成長している断面の状態を図3 (b)に示す。成長中のゴス粒以外の結晶粒はほぼ仕上焼鈍前の粒径を保っている。

3 Gossのミステリー

さて何故二次再結晶が起こり、しかも二次再結晶する方位はゴス方位のみに限るのか？という謎は俗に「Gossのミステリー」として何十年も未解決のまま電磁鋼板研究者の興味を引き付けている。

図3 (a) 仕上焼鈍中での粒成長挙動
(b) 仕上焼鈍中の断面組織の変化

初期に提唱されている説は、大きい粒は小さい粒を食うという「弱肉強食」とも言うべき「サイズ効果」に基づくものが多く、ゴス方位粒は初めから他方位の粒より大きい³⁾、あるいは数個の集合体として存在していて最初にそれらが合体して大きなゴス粒となる⁴⁾と言う説がある。もちろんゴス方位粒がサイズ効果を持てば成長に有利ではあるが、その効果のみで二次再結晶するのか？という点の証明が重要である。サイズ効果説による二次再結晶は、計算機シミュレーション⁵⁾や、解析的な理論⁶⁾でも否定されており旗色は悪い。最近の研究ではゴス方位と食われる側の粒との方位関係を論じる説が主流となっている。

本稿では結晶方位粒測定技術の新兵器とも言えるElectron Back Scattering Pattern (EBSP)⁷⁾を使用して「Gossのミステリー」の解明に迫ってみる。集合組織研究の分野ではX線回折法を応用して得られた、統計的な結晶方位存在量のデータを基に議論することが多い。例えば、ゴス方位の存在量はどのくらいか？マトリックス粒は特定方位への集積を示しているか？などの情報を統計的に得ることは可能である。しかし二次再結晶を理解する上では、粒同士の食い合いがどのように進んでいるかを調査しなくてはならない。従来のX線回折で得られる統計的なデータからは、隣接粒の方位関係等、二次再結晶を理解する上で直接的に必要な情報を得ることはできない。そのため結晶粒一つ一つの方位を測定する技術が必要となる。各種測定法についてのまとめを表1に示す。方位精度及び測定領域の点で粒径数 μm である再結晶粒の方位測定にはEBSPが優れている。

方位測定精度や測定可能な最小結晶粒径も問題ではあつ

表1 結晶粒方位測定法の比較

方法	EBSP法 (Electron Back Scattering Pattern)	CBED法 (Convergent-Beam Electron Diffraction)	ECP法 (Electron Channeling Pattern)	Kossel 法	直視式Laue法
原理	電子線回折 (菊地線)	収束電子回折	電子チャネリング図形 (擬菊地線)	Kossel 図形 (発散X線)	X線回折ラウエ斑点
方位精度	0.2°	3~8°	0.5°	0.5°	0.5°
分解能	0.2μm	1μm	10μm	5μm	200μm
参考文献	7)	8)	9)	10)	11)

たが、方位測定にかかる時間が膨大であった点が最も深刻であり、最近になるまでは、充分な量の測定データが蓄積されていなかった。方位解析をするのに電子線回折パターン等を写真に撮影してから、一枚ずつ手解析を行ったのはそれほど遠い昔ではなく、7、8年前までは筆者の所属する研究室でも良く見られた光景である。現在市販されているEBSPを使用すれば、直径0.2μm程度の微小領域での方位測定を0.2°の精度で1点1秒足らずで行える。これはそれまで1年かかって行った手解析による数百個の方位解析を数時間足らずの自動スキャンで実現できるという画期的な技術である。EBSPの原理自体は比較的古くから知られていたが、コンピューターによる画像処理技術、CCDカメラの発達等のハイテク技術の進歩により飛躍的に装置性能が向上した。自動測定された結晶方位はマッピングされるため、視覚的に結晶方位を理解することも可能である。

まずGoss方位粒は再結晶粒中にどの位存在するのかを、仕上焼鈍前の状態についてEBSPを用いて調査した結果を図4に示す。二次再結晶粒方位として存在するGoss方位からのずれ角が5°以内の粒を示したものである。図4中には約1500個の結晶粒を含んでいるが、Goss方位粒は一つしか存在しない。図4は特にGoss方位粒の少ない部分を取り出した訳ではなく、X線回折により統計的に調べてもずれ角が5°以内のGoss方位粒の存在頻度はわずかに1/2000程度

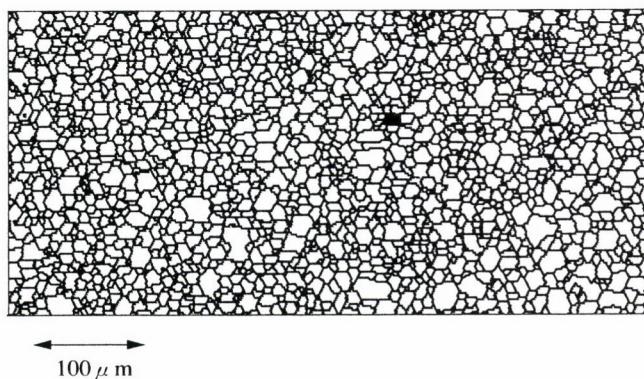


図4 仕上焼鈍前におけるGoss方位粒の存在頻度
(■：Goss方位粒)

でしかない。二次再結晶粒の大きさは約10mm×10mm×0.2mmのオーダーであり、再結晶粒径を10μmとすれば、実に選択確率は $1/1000 \times 1000 \times 20 = 1/2000$ 万である。それ故1/2000の割合でGoss方位粒が存在しても、さらにその中で1万倍の競争率に勝った一つのGoss方位粒のみが二次再結晶するという計算となる。このように熾烈極まる選択が、自然界における自由競争において再現性良く行われ、工業製品として生産されているという事実はまさに驚異的であり「Gossのミステリー」と呼ばれるのにふさわしい。

4 ミステリーの解明に向けて

さてEBSPを用いて二次再結晶途中の状態を解明してみよう。図5は二次再結晶途中の状態をEBSPで方位測定した結果から作成されたマイクロ組織のイメージである。Goss方位粒を■で示すが、マトリックス粒を食って成長中である。

成長中のGoss方位粒と他の結晶粒の間の方位関係と、粒界移動が遅いマトリックス粒間の方位関係には何らかの違いがあるものと考えられる。EBSPの普及に伴って粒界性格分布という言葉がしばしば登場するようになった。粒界は5つの自由度を持つ変数で記述される複雑な系であるが、二つの方位を重ね合わせるのに必要な回転角として定義される回転角と回転軸が最も注目されることが多い。図5

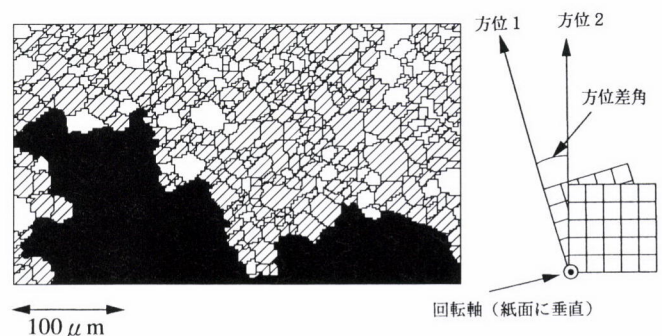


図5 EBSP測定により得られた二次再結晶途中におけるマイクロ組織イメージ
(■：Goss方位二次再結晶粒、斜線部：Goss方位粒と方位差角20-45°をなす結晶粒)

中に方位差関係を模式的に示している。この回転角と回転軸の選び方は立方体格子の場合には24組存在するが、そのうち最小の回転角を方位差角と定義するMackenzieの方法¹²⁾が粒界性格分布の解析で多く用いられている。Mackenzieの方法では方位差角の範囲は $0^{\circ} \sim 63^{\circ}$ である。また小傾角粒界と呼ばれる範囲は方位差角 15° 以下の粒界を指す。

図6にゴス方位二次再結晶粒の周囲の粒界における方位差角分布とマトリックス粒間の方位差角の分布を比較した結果を示すが、両者には明瞭な違いが認められる。ゴス方位粒周囲には方位差角 $20^{\circ} \sim 45^{\circ}$ の粒界が約8割を占め、方位差角が小さい粒界と方位差角が 45° よりも大きい粒界が2割しかない。これに対し、マトリックス粒間の粒界には、方位差角 $20^{\circ} \sim 45^{\circ}$ の粒界は約4割でしかなく、方位差角が小さい粒界と方位差角が 45° よりも大きい粒界が6割もある。このような方位差角 $20^{\circ} \sim 45^{\circ}$ の粒界の存在頻度の特徴がゴス方位に固有であるかどうかを、仕上焼鈍の前の組織について、各方位粒について調査した。その結果を図7に示すが、数ある方位の中で、ゴス方位粒について方位差角 $20^{\circ} \sim 45^{\circ}$ の粒界の存在頻度が最も高い。

このようなゴス方位結晶粒周囲の方位差角分布の違いにより二次再結晶する機構に関しては、方位差角 $20^{\circ} \sim 45^{\circ}$ の粒界の移動速度が大きいと考えることが妥当であり¹³⁾、実験事実として確認されつつある¹⁴⁾。また粒成長の計算機シミュレーション¹⁵⁾でも、定量的に二次再結晶が上記仮定で起こることも示されている。図5中にはゴス方位粒と方位差角 $20^{\circ} \sim 45^{\circ}$ である粒を斜線で示す。全体の8割を超えるマトリックス粒が斜線で塗られており、ゴス方位粒はこれらの

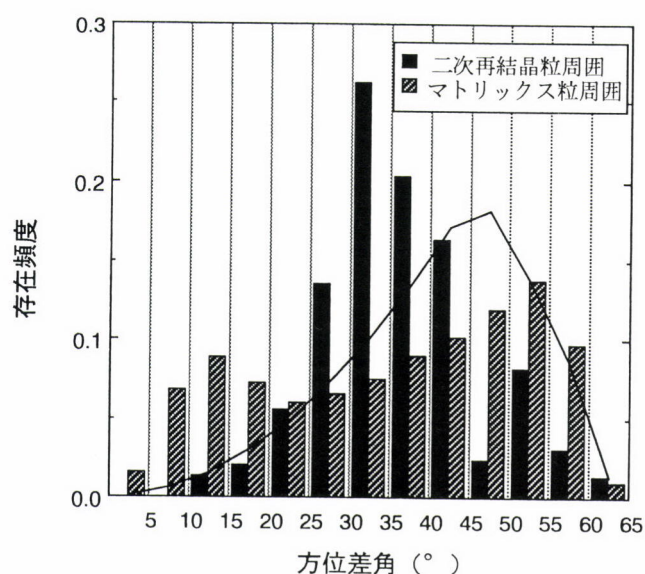


図6 EBSD測定により得られた二次再結晶途中における粒界方位差角分布
(実線はランダム組織における理論値)

粒を優先的に食って成長することが視覚的に理解される。

すなわち「Gossのミステリー」は図6に示されるように、移動速度が大きい方位差角 $20^{\circ} \sim 45^{\circ}$ の粒界をゴス方位結晶粒が最も多く持つという、二次再結晶前での粒界性格の分布の特徴に深く関連しているものと言える。このような粒界性格分布を実現してゴス方位結晶粒を二次再結晶させるために、適正な冷間圧延圧下率と再結晶条件等の製造条件を選択するのである。

ただし方位差角 $20^{\circ} \sim 45^{\circ}$ の粒界の移動速度が大きい理由の解明については、特定の方位差角と $\langle 110 \rangle$, $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ のような低指数の回転軸を持つ「対応粒界」の寄与であるとする立場^{16,17)}と、この方位差角に属する粒界が「高エネルギー粒界」であるという見解¹⁸⁾に分かれている。今後EBSDを用いた定量的な粒界性格分布の解析により精密にミステリー解明が進むものと思われる。

5 おわりに

今回は触れなかったが、二次再結晶にはインヒビターと呼ばれる、微細な析出物の存在が必要不可欠であり、方位差角 $20^{\circ} \sim 45^{\circ}$ の粒界が動きやすいという現象も析出物との相互作用を考慮して理解すべきでありこの観点からのアプローチも重要である。

参考文献

- 1) 岡見雄二：ふえらむ，2 (1997)，53.
- 2) N. Goss：U. S. Patent, 1, 965, 559 (1934)
- 3) H. C. Fiedler：J. Appl. Phys., 29 (1958)，361.
- 4) 井口征夫，前田千寿子，伊藤 庸：鉄と鋼，70 (1984)，

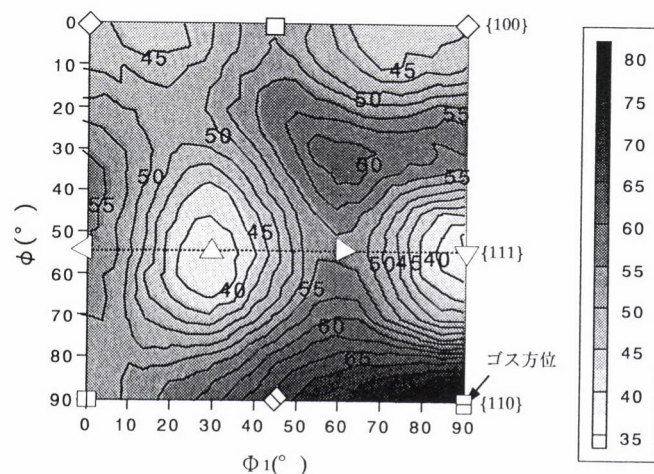


図7 仕上焼鈍前における方位差角 $20^{\circ} \sim 45^{\circ}$ の粒界の各方位の結晶粒に対する存在頻度
(オイラー空間 $\phi_2 = 45^{\circ}$ 断面で表示)

- 2057.
- 5) D. J. Srolovitz, M. Anderson, Sahni, and G. S. Grest : *Acta metall.*, 33 (1985), 2233.
 - 6) C. V. Thompson, H. J. Frost and F. Spaepen, *Acta metall.* 35 (1987), 887.
 - 7) B. Adams, S. Wright and K. Kuroki : *Met. Trans.*, 24A (1993), 819.
 - 8) 田中通義 : 日本結晶学会誌, 21 (1979), 121.
 - 9) D. C. Joy and D. E. Newbury : *J. Mat. Sci.*, 7 (1972), 714.
 - 10) D. L. Vieth and H. Yakowitz : *Rev. Sci. Instr.*, 39 (1968), 1929.
 - 11) 鶴岡一夫, 阿部忠広, 深尾良郎 : 川崎製鉄技報, 1 (1969), 290.
 - 12) J. K. Mackenzie and M. J. Thompson, *Biometrika*, 44 (1957), 205.
 - 13) D. B. Titorov : *Phys. Met. Metall.*, 35 (1973), 165.
 - 14) Y. Hayakawa, M. Muraki and J. A. Szpunar : *Acta mater.*, 46 (1998), 1063.
 - 15) Y. Hayakawa and J. A. Szpunar : *Acta mater.*, 45 (1997), 4713.
 - 16) M. Shinozaki, I. Matoba and T. Kan and T. Gotoh : *Trans., JIM*, 19 (1978), 85.
 - 17) J. Harase, R. Shimizu and D. J. Dingley : *Acta metall.* 39 (1991), 763.
 - 18) Y. Hayakawa and J. A. Szpunar : *Acta mater.*, 45 (1997), 1285.

(1998年5月6日受付)