

## 純鉄における Cube 方位結晶粒の二次再結晶機構の解明

研究代表者 兵庫県立大学大学院工学研究科材料・放射光工学専攻 助教 岡井 大祐

共同研究者 京都大学大学院エネルギー科学研究科 教授 土井 俊哉

### 1. 緒言

鉄は結晶磁気異方性があり、 $\langle 100 \rangle$ 軸が容易な磁化方向であることが知られている<sup>1)</sup>。軟磁性材料である珪素鋼板を変圧器の鉄心に用いる場合、容易な磁化方向である $\langle 100 \rangle$ 軸を揃えることによりヒステリシス損を低減できる。 $\{011\}\langle 100 \rangle$ 方位二次再結晶粒の結晶配向制御により $\{011\}\langle 100 \rangle$ 方位配向を有する一方向性珪素鋼板 (Goss 方位配向珪素鋼板) が製造され、Goss 方位配向珪素鋼板は変圧器の鉄心材料として広く用いられている。Goss 方位配向珪素鋼板は圧延方向 (RD) の一方向のみ磁化容易方向を有していることから一方向性珪素鋼板と呼ばれている。一方で $\{001\}\langle 100 \rangle$ 方位配向を有する Cube 方位配向珪素鋼板では圧延方向 (RD) と板幅方向 (TD) の二方向が磁化容易方向となる。磁化容易方向が二方向存在する Cube 方位配向珪素鋼板 (二方向性珪素鋼板) は EI 型変圧器の鉄心材料として魅力的な軟磁性材料である。しかしながら、Cube 方位配向珪素鋼板の作製が難しいことから Cube 方位配向珪素鋼板は実用化されていない。

体心立方格子構造 (BCC) の鋼板の圧延再結晶集合組織は $\{111\}\langle 110 \rangle$ 、 $\{111\}\langle 112 \rangle$ のような  $\{111\}$  集合組織が本質的に形成されるため、結晶粒を Cube 方位配向させることは容易ではない。作製方法を工夫することで Cube 方位配向珪素鋼板の作製が試みられている。圧延技術として、直行する二方向 (RD と TD) に交互圧延を施す  $90^\circ$ 交差冷間圧延法がある<sup>2)</sup>。再結晶技術としては、3%Si-Fe 箔を高温で焼鈍することで箔表面上への Cube 方位粒形成が報告されている<sup>3)</sup>。この時の Cube 方位粒の形成は $\{001\}$ 面の表面自由エネルギーを駆動力とした二次再結晶である。同様に脱炭による珪素鋼板での Cube 方位粒の形成についても報告されている<sup>4)</sup>。真空中での珪酸化物による鋼板の脱炭後に鋼板表面に形成される Cube 方位粒を粒成長させることで、珪素鋼板に Cube 方位配向が形成される。この場合も Cube 方位粒の形成には $\{001\}$ 面の表面自由エネルギーを駆動力としている。これまでに報告されている Cube 方位配向珪素鋼板の結晶配向性に関しては、Cube 方位から  $10^\circ$ 以内の方位分散を有する粒は 90%である。高配向な Cube 方位配向珪素鋼板を作製するためには、精密な Cube 方位結晶粒制御技術の確立が求められる。商業的に成功している Goss 方位配向珪素鋼板での Goss 方位二次再結晶の機構解明が進展しているのに対して、Cube 方位二次再結晶については不明な点が多く、Cube 方位結晶粒の二次再結晶機構について調べることは重要である。

Cube 方位結晶粒の二次再結晶により Cube 方位配向珪素鋼板を作製する技術に注目し、珪素鋼板と同じ BCC 金属である純鉄での Cube 方位結晶粒の二次再結晶機構について調べることの意義は大きい。不純物を含まない純鉄での Cube 方位粒の二次再結晶を調査す

ることは、本質的な二次再結晶機構の解明に役立つことから、本研究では純鉄での Cube 方位二次再結晶の機構について調べた。

## 2. 実験方法

本実験では、Table 1 の化学組成の純度 4N の純鉄原料を用いた。鉄原料のアーク溶解から純鉄インゴットを作製した。純鉄インゴットから  $w8 \times t12 \text{mm}^2$  の圧延試験片を切り出した。試験片に冷間圧延と焼鈍を各 3 回交互に繰り返す 3 回冷延法により純鉄テープの作製を行った。1 回目の 15% 圧延後の焼鈍 1323K $\times$ 10.8ks、2 回目の 75% 圧延後の焼鈍 1473K $\times$ 10.8ks、3 回目の 92% 圧延後の焼鈍 1163K $\times$ 3.6ks を施した。焼鈍工程では真空焼鈍とした。3 回冷延後のテープの厚さは 0.2mm である。EBSD 観察前にテープ表面の処理として、電解研磨を行った。電解研磨溶液として、過塩素酸：エタノール(=1:9)の電解研磨溶液を用いた。テープの結晶配向特性の測定には、SEM-EBSD 装置 (SEM : JEOL JSM6360、EBSD システム : TSL MSC-2200 EBSD カメラ) を用いた。結晶配向特性の解析には TSL orientation imaging microscopy (OIM) 解析ソフトを用いた。

Table 1 Chemical composition of pure iron used for fabrication of specimen (mass%)

	C	P	S	Si	Mn	Cu	O	N	H	Fe
Pure iron	<0.0020	<0.0005	<0.0005	<0.0005	<0.0005	<0.0005	<0.0050	<0.0010	<0.0005	Bal.

## 3. 実験結果と考察

### 3. 1. 純鉄テープの結晶配向特性

3 回冷延法により作製されたテープ表面の IPF マップと  $\{0\ 0\ 1\}$  極点図を示す。Fig.1(a) の再結晶組織は、粒径が数百  $\mu\text{m}$ ~1mm 程度の粒から成る組織である。組織中の粒界は、粒界角  $15^\circ$  未満の粒界を白線、粒界角  $15^\circ$  以上の粒界を黒線で表されている。組織中に形成されている小さい粒は隣接する粒と低角粒界で接している割合が多いのに対して、粗大粒では隣接粒と高角粒界で接している割合が多い。Fig.1(b)の  $\{0\ 0\ 1\}$  極点図から、テープ表面に形成された結晶粒が理想的な  $\{0\ 0\ 1\}$   $\langle 1\ 0\ 0 \rangle$  方位に近い Cube 方位配向していることがわかる。テープ表面の結晶粒は  $\{1\ 3\ 30\}$   $\langle 3\ \bar{2}1\ 2 \rangle$  方位配向しており、Cube 方位からの  $(0\ 0\ 1)$  面の方位差は  $6^\circ$  である。 $(0\ 0\ 1)$  面の Cube 方位からの角度分散の割合を Fig.2 に示す。Cube 方位から  $20^\circ$  以内の角度分散をもつ  $(0\ 0\ 1)$  面の割合は約 81% である。一方、 $20^\circ$  以内の角度分散をもつ  $(1\ 3\ 30)$  面の割合は約 95% である。作製されたテープは比較的強い  $\{1\ 3\ 30\}$   $\langle 3\ \bar{2}1\ 2 \rangle$  方位配向を有していることがわかる。

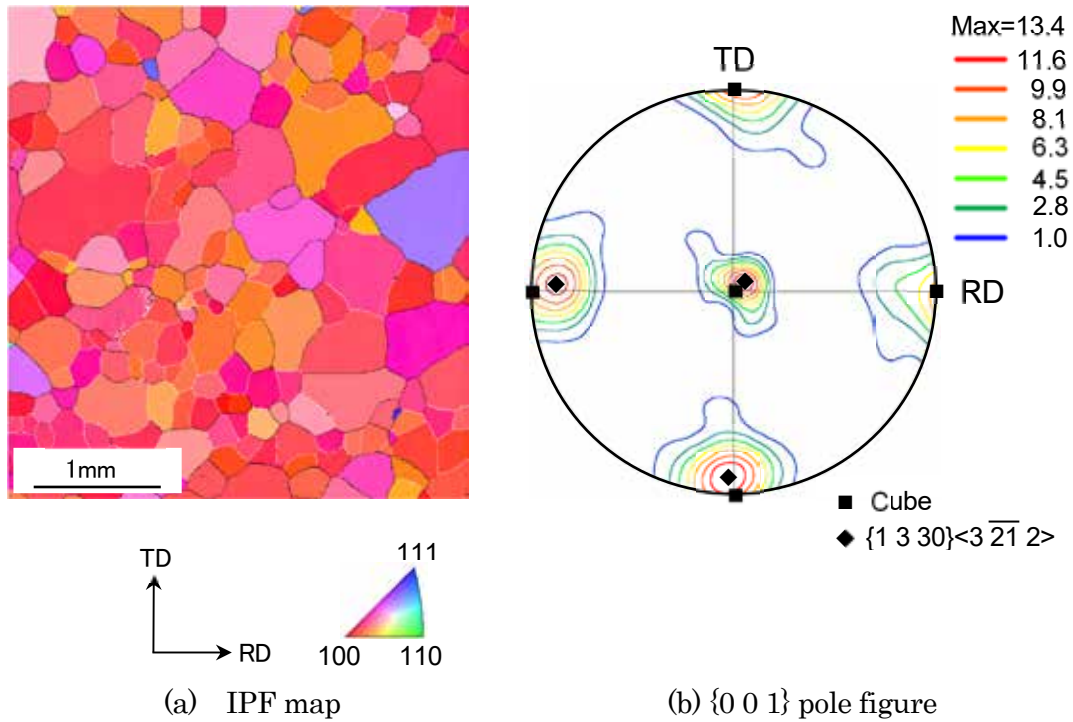


Fig.1 (a) IPF map and (b)  $\{0\ 0\ 1\}$  pole figure for the tape surface of pure iron tape (Sample-1)

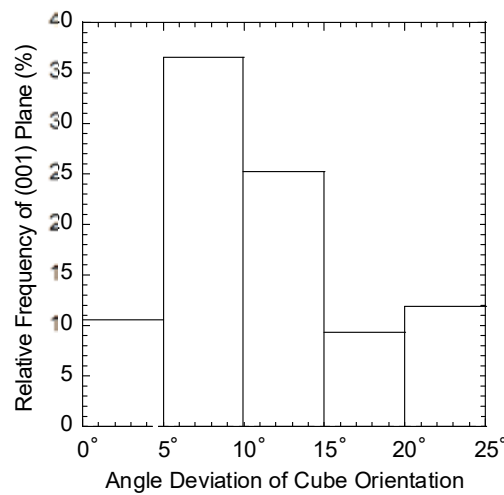


Fig.2 Relationship between relative frequency and the angular deviation from cube orientation for the out-plane (0 0 1) misorientation (Sample-1)

### 3. 2. 純鉄テープの Cube 方位二次再結晶機構

冷間圧延と焼鈍により作製された純鉄テープは Cube 方位配向していた。テープの Cube 方位配向化には Cube 方位粒の二次再結晶が関係している。Fig.3 に Cube 方位配向純鉄テ

テープの断面組織を示す。テープ表面に形成された Cube 方位粒はテープ断面での上面から下面にまで達している。粒径がテープ厚さを超えた粒はテープ厚さ方向（圧延面法線方向）



Fig.3 Optical micrograph of the cross section for pure iron tape (Sample-1)

ND) への粒成長は抑制され、テープ表面 (RD-TD 面) 内での二次元的成長が進行したことを示唆している。真空焼鈍下での低酸素中では{0 0 1}面の表面自由エネルギーは他の{h k l}面の表面自由エネルギーより低くなることから{0 0 1}面・粒がテープ表面に形成されやすくなる。Cube 方位粒の二次再結晶における粒成長速度 ( $G$ )は式 (1) で与えられる<sup>5)</sup>。

$$G = M \left( \frac{\gamma_B}{r} + \frac{2\Delta\gamma_s}{t} + C \right) \quad (1)$$

$M$  は粒界の移動度、 $\gamma_B$ は粒界エネルギー、 $r$  は結晶粒の平均半径、 $\Delta\gamma_s$ は{0 0 1}面と他の{h k l}面との表面エネルギーの平均差、 $t$  はテープ厚さ、 $C$ は粒界移動を抑制するピンニング効果の項である。テープ材は純度が 4N の純鉄であるので、 $C$ 項は無視することができる。したがって、粒成長速度は式 (1) で表される粒界エネルギーと表面エネルギーの項に依存することになる。

Cube 方位粒の初期成長では、式 (1) の第一項の粒界エネルギーと{0 0 1}面の表面自由エネルギーに起因した第二項の表面エネルギーを駆動力として粒成長する。テープ表面上で個々の{0 0 1}面・粒が粒成長し、{0 0 1}面・粒同士が隣接するようになる。さらにテープ表面が{0 0 1}面・粒で覆われるようになると、表面エネルギーの作用が小さくなり、式 (1) の第一項の粒界エネルギーを駆動力とした粒成長となる。Fig.1(a)のテープ表面での粗大粒の多くは隣接粒と高角粒界で接していることから、粒界エネルギーを駆動力として Cube 方位粒の粗大化が進むことを示唆している。

### 3. 3. 純鉄での冷間圧延と再結晶による結晶方位回転

Cube 方位二次再結晶粒の起源について検討する。Fe-Si、珪素鋼板での Cube 方位二次再結晶の発現では、冷間圧延組織中に Cube 方位二次再結晶の起源となる粒が存在し、Cube 方位粒の粒成長に適した条件下で二次再結晶化が生じると考えられる。Cube 方位二次再結晶機構に関するものとして、冷間圧延前の結晶方位と Cube 方位二次再結晶との関係が報告されている。Fe-3%Si 単結晶では{0 1 2}<1 0 0>方位から{0 0 1}<1 0 0>方位への結晶方位回転が報告されている<sup>6)</sup>。また Fe-3%Si-1%Mn では{0 1 4}<1 0 0>方位から{0 0

$1\}\langle 1\ 0\ 0\rangle$ 方位への結晶方位回転の報告がある<sup>4)</sup>。 $\{0\ 1\ 4\}\langle 1\ 0\ 0\rangle$ 方位は、 $\{0\ 1\ 2\}\langle 1\ 0\ 0\rangle$ 方位と $\{0\ 0\ 1\}\langle 1\ 0\ 0\rangle$ 方位の間にある結晶方位である。Fig.4に Cube 方位配向純鉄テープでの最終圧延前試料の $\{0\ 0\ 1\}$ 極点図を示す。最終圧延前試料は $\{\bar{2}\ \bar{1}\ 1\ 26\}\langle 31\ \bar{8}\ 1\rangle$ 方位配向していることがわかる。 $(\bar{2}\ \bar{1}\ 1\ 26)$ 面は $(0\ \bar{1}\ 2)$ 面から $5^\circ$ 離れていることから、 $\{\bar{2}\ \bar{1}\ 1\}$

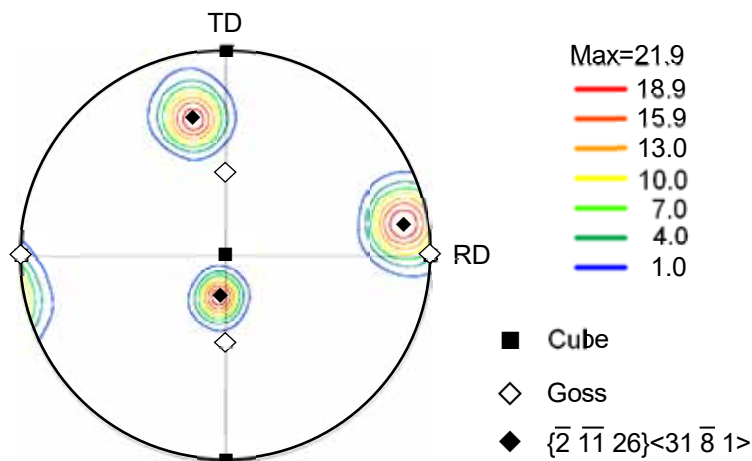


Fig.4  $\{0\ 0\ 1\}$  pole figure of the pure iron tape before final rolling (Sample-1)

$26\}\langle 31\ \bar{8}\ 1\rangle$ 方位は $\{0\ \bar{1}\ 2\}\langle 1\ 0\ 0\rangle$ 方位に近い配向である。本実験では冷間圧延と焼鈍により圧延前組織の $\{\bar{2}\ \bar{1}\ 1\ 26\}\langle 31\ \bar{8}\ 1\rangle$ 方位 ( $\{0\ \bar{1}\ 2\}\langle 1\ 0\ 0\rangle$ 方位) から二次再結晶組織での $\{0\ 0\ 1\}\langle 1\ 0\ 0\rangle$ 方位へ結晶方位回転したことになる。純鉄での冷間圧延と焼鈍による $\{\bar{2}\ \bar{1}\ 1\ 26\}\langle 31\ \bar{8}\ 1\rangle$ 方位から二次再結晶での $\{0\ 0\ 1\}\langle 1\ 0\ 0\rangle$ 方位への結晶方位回転は、これまでに報告されている Fe-3%Si 単結晶での Cube 方位粒の二次再結晶が発現する時と同じ結晶方位回転をしていることになる。

次に、冷間圧延前での結晶方位が $\{0\ \bar{1}\ 2\}\langle 1\ 0\ 0\rangle$ 方位とは異なる純鉄試料に対して、89%冷間圧延と 1073K×3.6ks の真空焼鈍を行った。実験に用いた試料の $\{0\ 0\ 1\}$ 極点図を Fig.5 に示す。圧延前試料は繊維状結晶配向 (ND// $\langle 4\ 5\ 6\rangle$ +ND// $\langle 2\ 1\ 1\rangle$ ) していることがわかる。 $\{0\ 0\ 1\}$ 極点図において、ND// $\langle 4\ 5\ 6\rangle$ 繊維状結晶配向での $\{0\ 0\ 1\}$ 面は ND との角度差( $\theta$ )が ND// $\langle 2\ 1\ 1\rangle$ 繊維状結晶配向に比べて小さく、ND// $\langle 4\ 5\ 6\rangle$ 繊維状結晶配向における $\{0\ 0\ 1\}$ 面の極密度のピークは $\theta$ が $32.3^\circ\sim 47.0^\circ$ の範囲にある。このような結晶方位を有する試料に対して3回冷延法での最終圧延と最終焼鈍条件に近い条件で冷間圧延と焼鈍を行った。

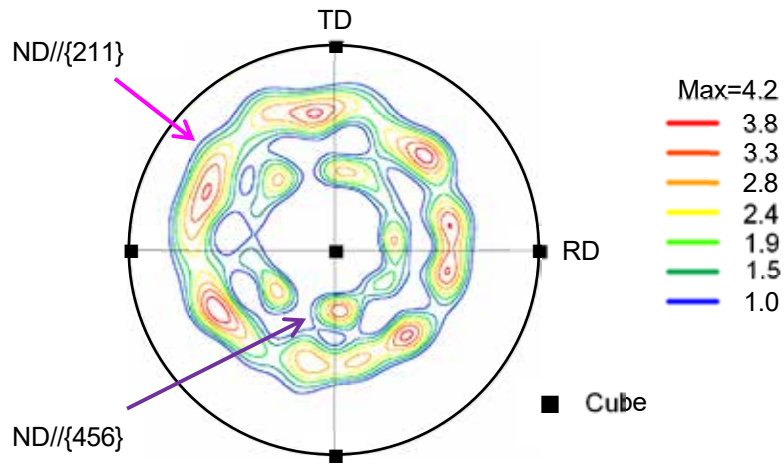


Fig.5 {0 0 1} pole figure of the pure iron before rolling (Sample-2)

Fig.6 に繊維状結晶配向試料を用いた冷間圧延と焼鈍後の IPF マップと{1 1 1}極点図を示す。テープ表面では、Cube 方位配向テープ表面に形成されたような粒径が 1mm におよぶ粗大粒は形成されていない。また{1 1 1}極点図からテープ表面に形成されている粒

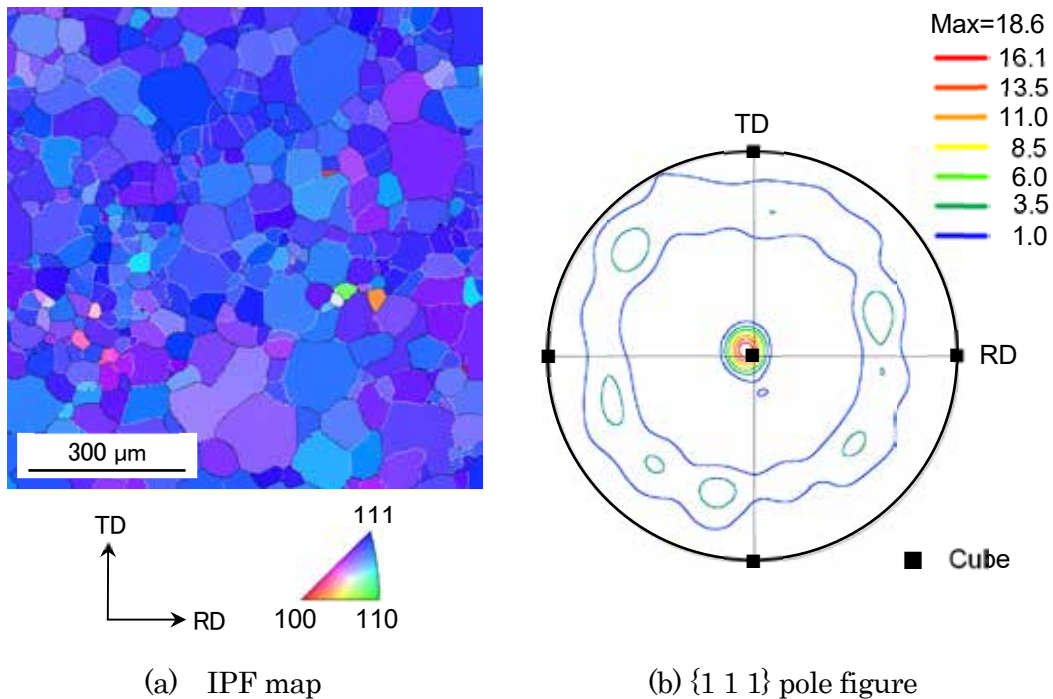


Fig. 6 (a) IPF map and (b) {1 1 1} pole figure for the tape surface of pure iron tape (Sample-2)

は ND//<1 1 1>繊維状結晶配向していることがわかる。Fig.7 のテープ断面組織より、テープ断面の上面から下面まで貫通している粒も存在するが Cube 方位結晶粒のような粗大粒



Fig.7 Optical micrograph of the cross section for pure iron tape (Sample-2)

の形成は見られない。テープ表面 (RD-TD 面) とテープ断面 (ND-RD 面) での粒径に著しい差は観察されず、結晶粒は等方的に粒成長していることがわかる。冷間圧延前の結晶が繊維状結晶配向 (ND//<4 5 6>+ND//<2 1 1>) している場合、冷間圧延と焼鈍を行った後、テープ表面に形成される組織は ND//<1 1 1>繊維状結晶配向した一次再結晶組織となった。この結果は、冷間圧延前の結晶配向が繊維状結晶配向である場合、Cube 方位二次再結晶の起源となる粒が圧延組織中に形成されにくいことを示唆している。このため、冷間圧延後の真空焼鈍では Cube 方位二次再結晶が発現せず、ND//<1 1 1>方位の一次再結晶組織が形成されたと考えられる。

本実験結果から、純鉄テープにおける冷間圧延前の結晶方位が Cube 方位二次再結晶粒の形成に影響を与えることがわかった。純鉄での Cube 方位二次再結晶では、冷間圧延前結晶方位が  $\{0 \bar{1} 2\}<1 0 0>$  方位であるとき、冷間圧延による結晶方位回転により Cube 方位二次再結晶の起源となる粒が圧延組織中に形成され、二次再結晶の起源粒は真空焼鈍下での  $\{0 0 1\}$  面の表面自由エネルギーを主な駆動力として Cube 方位二次再結晶粒へと粒成長すると推察される。純鉄における冷間圧延前の  $\{0 \bar{1} 2\}<1 0 0>$  方位から二次再結晶での  $\{0 0 1\}<1 0 0>$  方位への冷間圧延と焼鈍による結晶方位回転機構は、Fe-Si 単結晶での結晶方位回転機構と同じである。

#### 4. 結言

3 回冷延法により作製された Cube 方位配向純鉄テープでの Cube 方位粒の二次再結晶機構を調べた。最終冷間圧延前の結晶方位が Cube 方位二次再結晶の発現に影響を与えることが明らかとなった。冷間圧延前の  $\{0 \bar{1} 2\}<1 0 0>$  方位から二次再結晶での  $\{0 0 1\}<1 0 0>$  方位への冷間圧延と焼鈍による結晶方位回転が生じた。

#### 謝辞

本研究は、2018 年度の公益財団法人 JFE21 世紀財団の技術研究助成により行われました。ここに感謝の意を表します。

#### 参考文献

- [1] K. Honda and S. Kaya: Sci. Rep. Tohoku Imp. Univ. **15** (1926) 721- 752.

- [2] H.C. Fiedler: IEEE Trans. Magn. **13** (1977) 1433-1436.
- [3] F. Assmus, K. Detert and G. Ibe: Z. Metallk. **48** (1957)344-349
- [4] 富田俊郎, 上野谷繁雄, 佐野直幸:日本金属学会誌, **66** (2002) 950-957
- [5] K. Foster, J.J. Kramer and G.W. Wiener: Trans. Metall. AIME **227** (1963) 185-188.
- [6] J.L. Walter and W.R. Hibbard: Trans. Metall. AIME **212** (1958) 731- 737.