

外98-58

早稲田大学大学院理工学研究科

# 博士論文概要

## 論文題目

方向性電磁鋼板における  
グス方位粒の二次再結晶に関する研究

申請者

早川 康之

YASUYUKI HAYAKAWA

1999年 / 月

本研究は方向性電磁鋼板の製造工程の中で最も特徴的である、ゴス方位粒の二次再結晶機構に関して、従来説についての疑問点を議論し、一次再結晶集合組織の解析結果から導き出した新しい仮説を提示し、実験およびシミュレーションによって仮説を検証するものである。そして最後に、本研究で得られた結果を実際の製品開発に応用した例について述べている。

方向性電磁鋼板は、電力エネルギーの変換や輸送に必要な変圧器やモーターの鉄心用材料である。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 $\mu\text{m}$ 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(=ゴス方位)に高度に配向していることにある。 $<001>$ 方向は $\alpha$ 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。

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二次再結晶によりゴス方位を持つ結晶粒を数10mmにまで成長させる仕上焼鈍技術にある。二次再結晶は、通常の再結晶の後、さらに高温で仕上焼鈍することにより、ある結晶粒のみが爆発的に成長し、他の多くの粒はほとんど成長していない現象である。

二次再結晶組織の集積度は製品の平均値で理想ゴス方位から $5^\circ$ 以内に低減されているが、理想方位からのずれが $5^\circ$ 以内のゴス粒が二次再結晶過程において選択される確率は約1/100万であり、自然現象としては驚異的な選択過程である。何故二次再結晶において、多くの方位の中からゴス方位のみが選択されるのかについては、様々な説が提示されているが未だに決定的な支持を受けて定説となっているものはない。二次再結晶機構に関する従来説は大きく二種類に大別される。一つは古典的な説で、ゴス方位粒が一次再結晶中で、他方位粒に対してサイズの優位性を持ち、サイズ効果で他の方位粒に対して優先的に成長するという説である。もう一つは近年盛んに主張されてきた説で、ゴス方位粒は、対応粒界を他の方位に比べて多く持ち、対応粒界は一般粒界に比べて粒界易動度が大きいという仮定のもとに、ゴス方位粒が、対応粒界の移動により優先成長するという説である。

本論文は七章から構成されている。第一章では従来までのゴス方位粒の二次再結晶機構に関する研究を概観し、従来説に対する問題点を提起した。第二章では、二次再結晶の直前の状態である、一次再結晶後の結晶粒方位の分布、および粒界性格分布について、統計的な手法と個々の結晶方位を測定する直接的な手法とを使用して従来説の検証を行った。統計的な解析手法として、X線回折法から作成

される方位分布関数を使用して、各方位結晶粒の存在量や粒界性格分布を定量的に求める計算方法を確立し、この手法の妥当性については、EBSP(Electron Channeling Scattering Pattern)による直接測定結果と比較して確認した。一次再結晶組織の解析結果は、従来説に対して否定的であった。本解析で得られた新規知見として、ゴス方位粒と方位差角 $20-45^\circ$ をなす一次再結晶粒の存在頻度が全結晶方位粒の中で最大であることが明らかとなった。またこの結果は、製造方法が異なる二種類の方向性電磁鋼板に共通しており、従来は別機構によると考えられていた、これらの電磁鋼板の二次再結晶機構を統一的に解釈できる可能性が示唆された。

第三章では以下に述べる考察に基づく二次再結晶機構に関する新しいモデルを提案した。方向性電磁鋼板の成分である3%Si-Feにおける実験データによれば、方位差 $20-45^\circ$ の粒界はエネルギーの高い粒界である。ゴス方位粒に関して、方位差 $20-45^\circ$ の粒界の存在頻度が全結晶粒方位中で最大値をとることは、粒界エネルギーの観点からすると、ゴス方位粒は高エネルギー粒界を最も多く持つという重要な結論を得た。粒界エネルギーは、粒界のもつ自由空間の大きさに比例することから示されるように、粒界の構造に起因した特質であり、粒界の自由空間は、粒界移動や粒界拡散などの輸送現象を促進する。

二次再結晶が発現するためには、インヒビターと呼ばれるMnSあるいはAlNといった析出物が必要であり、仕上焼鈍中にインヒビターが粗大化するのに伴って、二次再結晶が開始することが定説となっている。高エネルギー粒界は粒界易動度が高いばかりでなく、粒界拡散も速いために、粒界上のインヒビターの成長も速いと考えられる。二次再結晶途中のインヒビターを観察したところ、二次再結晶粒の内部には粗大化したインヒビターが多く見い出され、小さいマトリックス粒の内部には微細な析出物が多く見い出された。この現象は粒界での析出物の成長が速いという可能性を示唆した。

以上の高エネルギー粒界の性質に関する考察に基づき、仕上焼鈍過程での粒界移動のモデル化を行った。本モデルでは、二次再結晶の発現において、インヒビターが中心的役割を果たすものと考えて、インヒビターが無い場合の易動度差は無視し、一次再結晶後においては、すべての粒界がインヒビターによって粒界移動が抑制されているものと考えた。そして、仕上焼鈍の進行につれてインヒビターの粗大化が進むが、インヒビターの粗大化速度は、エネルギーの高い粒界上ほど大きく、焼鈍の進行につれ、エネルギーの高い粒界から粒界移動を開始するものとした。この粒界移動を開始する臨界の粒界エネルギーの値を $E_c$ として、ゴス方位粒およびその他の方位の粒に対して、可動粒界の頻度 $P(E_c)$ を計算した。その結果、ゴス方位粒が最も可動粒界を多くもつために、粒成長の競合過程における優位性が高く、二次再結晶するべき方位であることが示された。

第四章では、二次再結晶機構に関する新しいモデルの根拠となっている方位差

角が 20-45° である高エネルギー粒界の高易動度の実験的検証を試みた。方向性電磁鋼板の一次再結晶板を用意し、二次再結晶が約 60% 進行している状態の結晶方位を EBSD により測定して粒界性格分布の変化を調査した。二次再結晶の進行につれて、方位差角 20-45 度の粒界が減少し、方位差角 15° 以下あるいは 50° 以上の粒界が増加した。ある特定の型の粒界のみが移動したと仮定すると、その粒界は動いたあと消滅する。消滅と同時に別な粒界が形成されるが、その粒界は元の粒界と同じであるとは限らないので、動いた型の粒界は移動の結果減少する。したがってこの実験結果は、方位差 20-45 度の高エネルギー粒界の高易動度を反映し、仮説の検証になっているものと判断された。

第五章では、実在する量の高エネルギー粒界の寄与で二次再結晶が起こるかどうかを、定量的に確かめるために、粒成長の三次元モンテカルロシミュレーションを行いモデルの検証を試みた。本シミュレーションの最大の特徴は、各結晶粒ごとに結晶方位を設定して、粒界エネルギーと粒界易動度を設定できることにあり、実在の結晶組織に即した状態を取り扱うことが可能である。高エネルギー粒界が、焼鈍の進行につれて優先的に可動粒界になるという、本研究で提示したモデルに基づく仮定を導入したところ、ゴス方位粒が二次再結晶することがシミュレートされた。その他、インヒビターの粗大化速度と二次再結晶挙動の関係、二次再結晶粒方位のゴス方位からのずれ角度と二次再結晶粒の成長速度の関係、二次再結晶に伴う、マトリックス粒の集合組織の変化など多岐にわたる実験的に知られている現象がシミュレートされた。またゴス方位粒は、粒成長過程ではむしろ成長に不利であり消滅する可能性が高いため、消滅しないようなゴス方位粒周囲の特異的な結晶粒の局所配置、すなわち初期サイズが臨界半径以上であること、隣接粒の粒径が小さくかつ高エネルギー粒界で接していることが二次再結晶核生成の条件であることが推定された。二次再結晶核生成に関しての考察は、実験的には時間を遡ることが不可能であるので困難であり、シミュレーションによってのみ可能となった。

第六章では、本研究の結果に基づいて、一次再結晶組織における、ゴス方位粒とその近傍の方位粒についての高エネルギー粒界の存在頻度を比較することにより、定量的に集合組織を評価して製造条件の規定に役立てる、製品開発に実用的な新手法を提案した。本手法に基づき、冷延圧下率と二次再結晶挙動および磁束密度との関係に対して、合理的な解釈を行い、製造条件の最適化に本手法を適用することが有効であることを示した。第七章では、本論文の各章で得られた成果を総括して述べた。

本研究の結果、方向性電磁鋼板の製造プロセスで最も特徴的である、ゴス方位粒の二次再結晶機構について統一的な解釈がなされ、その結果を製造条件規定のための技術思想として応用することが可能となった。