
方向性電磁鋼板の二次再結晶機構に関する一考察

A Mechanism of the Secondary Recrystallization in Grain Oriented Electrical Steel

早川 康之 (Yasuyuki Hayakawa)

要旨：

方向性電磁鋼板の二次再結晶におけるゴス組織発達の機構についての新仮説を高エネルギー粒界の物理的性質に基づいて提示した。一次再結晶集合組織の解析から、ゴス方位粒が高エネルギー粒界を最も多く持つことが示された。高エネルギー粒界は易動度が高く粒界拡散が速い。そのため仕上焼鈍中に、高エネルギー粒界上の析出物は速く粗大化し、先にピンニングがはずれて粒界は可動となる。よって高エネルギー粒界の頻度が最大のゴス粒が二次再結晶する。仮説を検証するために、粒成長シミュレーションと粒成長時における粒界性格分布の変化の調査を行なった。結果はともにモデルで使用した仮定を支持するものであった。

Synopsis：

A mechanism of Goss texture development during the secondary recrystallization in grain oriented electrical steel is proposed based on the physical properties of the high-energy boundaries. From the analysis of the primary recrystallized texture, the frequency of the high-energy boundaries is proved to be the highest around the Goss grain. The high-energy boundary has more structural defects, which are linked to a high mobility and a high grain boundary diffusion rate. Quicker coarsening of precipitates enables high-energy boundaries to move earlier than other boundaries during final annealing. Thus, the Goss grain has a growth advantage of having the highest number of mobile boundaries during the progress of final annealing. In order to verify the proposed model of secondary recrystallization, Monte-Carlo simulation and the investigation of the grain boundary character distribution were performed, and both simulated and experimental results supported the assumption which is used in this model.

(c)JFE Steel Corporation, 2003

本文は次のページから閲覧できます。

A Mechanism of the Secondary Recrystallization in Grain Oriented Electrical Steel



早川 康之
Yasuyuki Hayakawa
技術研究所 電磁鋼板
研究部門 主任研究員
(掛長)

要旨

方向性電磁鋼板の二次再結晶におけるゴス組織発達の機構についての新仮説を高エネルギー粒界の物理的性質に基づいて提示した。一次再結晶集合組織の解析から、ゴス方位粒が高エネルギー粒界を最も多く持つことが示された。高エネルギー粒界は易動度が高く粒界拡散が速い。そのため仕上焼鈍中に、高エネルギー粒界上の析出物は速く粗大化し、先にピンニングがはずれて粒界は可動となる。よって高エネルギー粒界の頻度が最大のゴス粒が二次再結晶する。仮説を検証するために、粒成長シミュレーションと粒成長時における粒界性格分布の変化の調査を行なった。結果はともにモデルで使用した仮定を支持するものであった。

Synopsis:

A mechanism of Goss texture development during the secondary recrystallization in grain oriented electrical steel is proposed based on the physical properties of the high-energy boundaries. From the analysis of the primary recrystallized texture, the frequency of the high-energy boundaries is proved to be the highest around the Goss grain. The high-energy boundary has more structural defects, which are linked to a high mobility and a high grain boundary diffusion rate. Quicker coarsening of precipitates enables high-energy boundaries to move earlier than other boundaries during final annealing. Thus, the Goss grain has a growth advantage of having the highest number of mobile boundaries during the progress of final annealing. In order to verify the proposed model of secondary recrystallization, Monte-Carlo simulation and the investigation of the grain boundary character distribution were performed, and both simulated and experimental results supported the assumption which is used in this model.

1 緒 言

方向性電磁鋼板は、圧延方向に α 鉄の磁化容易軸が $\langle 100 \rangle$ に揃ったゴス方位 ($\{110\}\langle 001 \rangle$) 粒が仕上焼鈍中に二次再結晶する現象を利用することにより生産されている。二次再結晶は、平均粒径が 10 μm 程度の一次再結晶粒の中からゴス方位粒のみが、数 mm から数十 mm の大きさに選択的に異常粒成長する現象であり、1 つの結晶粒が 100 万個程度の粒を食いつつ進行する。

川崎製鉄の高級品の場合、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° 以内に低減されているが、理想方位からのずれが 5° 以内のゴス粒の一次再結晶組織における存在頻度は 1/2000 程度と非常に少ない。そのため二次再結晶過程において、ゴス方位が優先的に選択される機構は驚異的なものである。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原因

については、さまざま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。一般論としてゴス方位粒の二次再結晶においては、一次再結晶組織およびインヒビターと呼ばれる結晶粒の成長を抑制する析出物の分散状態が重要な要素になることは推定されているが、定量的な議論はなされていない。

本論文では、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¹⁾、実験およびシミュレーション^{2,3)}によって仮説を検証する。

2 従来説とその問題点

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⁴⁾。この説は主に汎用方向性電磁鋼板 (CGO) の二次再結晶に対して唱えられてきた説である。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⁵⁾を他

* 平成 9 年 8 月 28 日原稿受付

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^{6,7)}。この説は、主として高磁束密度方向性電磁鋼板 (HGO) の二次再結晶に対して適用されてきた。しかし後述するように両者の説ともに問題点が多く、定説となっているとは言いにくい。

サイズ効果に関してはその条件単独で二次再結晶が起こらないことが、シミュレーション⁸⁾と解析的な手法⁹⁾で証明されてきた。また、HGO の一次再結晶組織においては、ゴス方位粒はサイズの優位性を持たないことが報告されている¹⁰⁾。

また対応粒界説の基礎となった Aust¹¹⁾ らの実験では、ゾーンメルト法で作製した高純度 Pb に、数十 ppm 以下の Sn などの微量固溶元素を添加した場合に、特異粒界に対して高易動度が認められた。高易動度が認められているのは確かではあるが、その現象が対応粒界であるためかどうかは論争の対象となっている。さらにこの実験では不純物濃度が高くなると特異粒界の高易動度は観測されなくなっている。

したがって特異粒界の高易動度が、商用方向性電磁鋼板のような不純物の多い系においても認められるかどうかは疑問である。さらに対応粒界の高易動度となる理由は、偏析元素が一般粒界に比較して、整合性の高い対応粒界に偏析しにくいために粒界移動抑制効果が小さいという説明がなされている。そのため対応粒界の高易動度は、仮にあるとしても固溶元素の偏析効果による現象であり、析出物による強い粒界ピン止め効果が粒界移動抑制作用の主体と考えられている方向性電磁鋼板に適用することもやはり問題がある。

以上に述べたように、従来の二次再結晶機構に関する仮説には問題が多いばかりでなく、一次再結晶集合組織の異なる HGO と CGO の双方のゴス組織の発達を統一的に解釈できてはいない。

3 二次再結晶機構に関する考察

本節では、一次再結晶集合組織の独自の解析結果を提示し、これより導き出された従来説とは異なる二次再結晶機構に関する仮説を提示する。

3.1 一次再結晶集合組織解析

問題解決の鍵は一次再結晶集合組織にあると考え、三次元集合組織の解析を Pawlik¹²⁾ の方法で行なった。この方法では級数展開法を使用していないため方位成分におけるゴーストが発生せず、微小方位であるゴス方位の存在量も比較的信頼することができる。以下、真空溶製したインゴットを素材とし実験室で得られた HGO と CGO の一次再結晶組織を対象として解析を行った。

Fig. 1 に対象材の方位分布関数 (ODF) を示す。HGO 組織 (Fig.

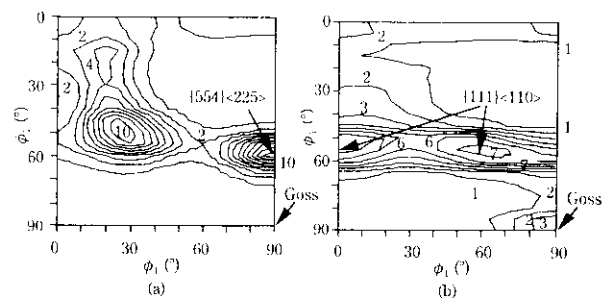


Fig. 1 The ODF ($\phi_2 = 45^\circ$ cross-section) of the primary recrystallized texture: (a) high permeability steel; (b) conventional steel

1 (a) は $\{111\}$ 繊維組織が発達しており、主方位は $\{554\}\langle 225 \rangle$ である。またゴス方位の存在量は少ない。CGO 組織 (Fig. 1 (b)) はやはり $\{111\}$ 繊維組織が発達しているが集積は HGO 組織に比べて弱く、主方位は $\{111\}\langle 011 \rangle$ である。ゴス方位は副方位であり、存在量は HGO 組織に比べて多い。

ODF から得られる各方位粒の存在強度に一致するように、計算機により粒方位を発生させる方法¹³⁾を開発し、各粒間の方位差や対応粒界の存在頻度の解析を行なった。Table 1 に対応粒界の存在頻度の解析結果を示す。ゴス方位に対する対応粒界の存在頻度を全方位空間の粒方位に関する平均値と比較すると、HGO では $\Sigma 9$ 粒界、CGO では $\Sigma 5$ 粒界に対してのみ優位性が認められたが、他の対応粒界については、ゴス方位は決して対応粒界の多い方位でないことが判明した。まったく逆に $\langle 111 \rangle$ 軸を回転軸とする対応粒界は ($\Sigma 3$, $\Sigma 7$ など) ゴス方位が最も低い存在頻度であった。ゴス方位に関しては確かに、 $\Sigma 9$ 粒界の存在頻度は高いレベルにはあるが、そもそも絶対量は 2% 程度である。さらに他の $\{211\}\langle 011 \rangle$ などの幾つかの方位はゴス方位と同等かやや高い存在頻度を持ち、ゴス方位固有の特徴ではない。 $\{211\}\langle 011 \rangle$ 方位はゴス方位よりも存在頻度が高く、対応粒界説に従えば優先的に二次再結晶するはずの方位と言える。

Fig. 2 に HGO と CGO について、ゴス方位粒と主方位粒に対する方位差角分布の計算結果を示す。HGO については、ゴス方位粒と方位差角 $35-40^\circ$ をなす一次再結晶粒の存在頻度が最も高いことが分かる。主方位 $\{554\}\langle 225 \rangle$ 粒に対しては、方位差角 $50-55^\circ$ をなす一次再結晶粒の存在頻度が最も高い。また、方位差角 20° 以下もゴス方位粒に対する値に比較して存在頻度が高い。CGO に対してもやはりゴス方位粒と一次再結晶粒の方位差角の存在頻度のピークは、主方位 $\{111\}\langle 110 \rangle$ 粒とのピーク位置に比べて方位差角の小さい側にある。

Fig. 2 に示された傾向がゴス方位に対して固有なものであるかど

Table 1 The frequency (%) of coincident site lattice (CSL) boundaries around various grain orientations in HGO and CGO: (a) around Goss grain; (b) average value of the whole specimen; (c) maximum value which is observed around grain orientation $\{hkl\}\langle uvw \rangle$

CSL	HGO					CGO				
	(a) (%)	(b) (%)	(c) (%)	{hkl}	$\langle uvw \rangle$	(a) (%)	(b) (%)	(c) (%)	{hkl}	$\langle uvw \rangle$
$1 < \Sigma < 51$	16.3	19.6	26.2	{111}	$\langle 112 \rangle$	19.6	19.0	24.3	{111}	$\langle 011 \rangle$
$5 < \Sigma < 51$	14.6	13.0	17.4	{110}	$\langle 113 \rangle$	14.1	13.6	15.2	{110}	$\langle 113 \rangle$
$\Sigma 3$	0.3	2.2	5.5	{111}	$\langle 112 \rangle$	0.6	1.9	3.8	{111}	$\langle 011 \rangle$
$\Sigma 5$	1.7	0.9	4.0	{110}	$\langle 113 \rangle$	2.7	1.2	2.9	{110}	$\langle 011 \rangle$
$\Sigma 7$	0.8	1.0	2.1	{111}	$\langle 011 \rangle$	0.5	1.1	2.5	{111}	$\langle 011 \rangle$
$\Sigma 9$	2.0	1.0	2.1	{211}	$\langle 011 \rangle$	1.1	1.0	1.9	{110}	$\langle 113 \rangle$

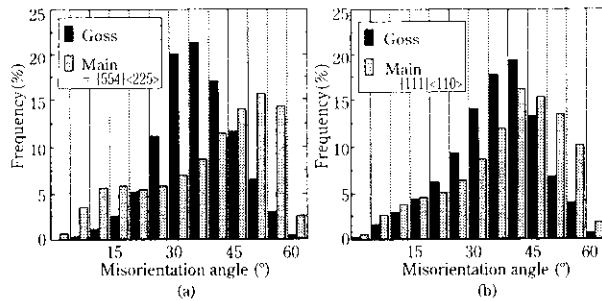


Fig. 2 The misorientation angle distribution around the Goss grain and grain of main texture component: (a) high permeability steel; (b) conventional steel

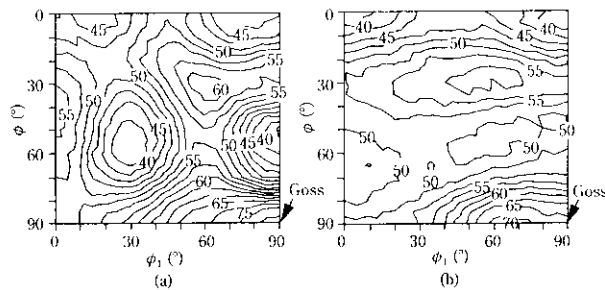


Fig. 3 The frequency (%) of boundaries having misorientation angle from 20° to 45° around grains of various orientations in Euler space ($\phi_2 = 45^\circ$ cross-section): (a) high permeability steel; (b) conventional steel

うかを調査するために、オイラー空間における他の方位に関して、方位差角が 20–45° をなす一次再結晶粒の存在頻度を計算した結果を Fig. 3 に示す。HGO に関しては、ゴス方位が先鋭なピークとなっていることが分かる。さらに重要なことは、方位差角が 20–45° をなす一次再結晶粒の存在頻度の各方位ごとの、最大値と最小値の差は絶対値で 40% になり、対応粒界の存在頻度の差に比べてはるかに大きいという点にある。CGO 組織に関してもゴス方位に対して方位差角が 20–45° をなす一次再結晶粒の存在頻度は高いが、存在頻度の高い領域はゴス方位から ND 軸に関して 40° 程度にまで広がっている。

以上のように、存在頻度が数 % 未満の対応粒界が Goss 方位の優先成長を支配するというよりも、ゴス方位粒と方位差角が 20–45° をなす一次再結晶粒の存在量が全体の 7 割以上を占めるといふ、HGO および CGO 両組織に共通する事実のほうが重要な意味を持つものと考えられる。

3.2 新仮説の提示

3.2.1 粒界性格と粒界性質の関係

C.G. Dunn^{13, 14)} によれば、粒界エネルギーは方位差角 25–30° で最大値をとることが示されている。転位論を用いた Read と Schockley¹⁵⁾ の解析、分子動力学を用いて計算された Wolf¹⁶⁾ の結果を参照しても、粒界エネルギーと方位差角の関係については同様な結果が得られている。ゴス方位に関して、方位差 20–45° の粒界の存在頻度が全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る。この観点からみると集合組織の異なる CGO と HGO とともに、ゴス方位が最も高エネルギー粒界を多く持つという点では共通しているため、統一的な考え方でゴス方位粒の成長が説明でき

Table 2 Physical properties of grain boundaries

Energy	Type	Structure	Diffusion	Mobility
High-energy	General	Disorder	Fast	High
Low-energy	Low angle Twin ($\Sigma 3$) CSL	Order	Slow	Low

うることを示唆している。

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¹⁹⁾ ように、粒界の構造に起因した特質である。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。そのため粒界エネルギーが高いほど本来的な粒界易動度が高いものと考えられる。粒界易動度に関しては、Titorov の 3%Si-Fe の製品板を用いた実験¹⁷⁾ により、方位差角 20–45° をなす粒界の易動度が高いことが示されている。さらに Titorov は方位関係のうち方位差角との依存性は明らかなのに対し、方位差の回転軸に関しては依存性が無いことを指摘しており、高易動度が認められる理由是对応関係に基づくものではないと結論している¹⁸⁾。Titorov の実験¹⁷⁾ は高エネルギー粒界の高易動度を支持する結果である。

高エネルギー粒界では粒界拡散が速いことも一般的に知られている¹⁹⁾。そのため高エネルギー粒界は粒界易動度が高いばかりでなく、粒界上の析出物の成長も速いと考えられる。二次再結晶途中の析出物を観察したところ、二次再結晶粒の内部には粗大化した析出物が多く見い出され、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ている。同様な現象は Balandin²⁰⁾ らによっても報告されている。

粒界を高エネルギー粒界（一般粒界）と低エネルギー粒界（低傾角粒界、双晶粒界、対応粒界）に分類した場合の物理的性質を Table 2 にまとめておく。ここで重要なことは、構造的には対応粒界と低傾角粒界が同様な周期構造を持つことであり、それにより乱雑で周期構造を持たない一般粒界に比べて、粒界エネルギーが低下しているという事実である。

3.2.2 粒成長のモデル化

以上の粒界性質の考察に基づき、仕上焼鈍過程での粒界移動のモデル化を行う。本モデルでは、析出物が中心的役割を果たすものと考えており、析出物がない場合の易動度差は無視した。脱炭焼鈍板においては、すべての粒界は析出物の分布で決定されている粒径に落ち着いているものとする。言い換えればすべての粒界が析出物によってピン止めされているとする。焼鈍の進行につれて析出物の粗大化が進む。析出物の粗大化速度も、エネルギーの高い粒界上ほど粒界拡散が速いので大きい。そのため焼鈍の進行につれ、エネルギーの高い粒界からピン止めがはずれて粒界移動を開始するようになる。以上の高エネルギー粒界上での析出物の粗大化の進行により高エネルギー粒界が動く様子を模式的に Fig. 4 に表わす。

ここで前述の仮定に基づき、動きうる粒界の粒界エネルギー E の臨界値 E_c を下式で定義する。

$$\left. \begin{array}{l} E > E_c : \text{可動粒界} \\ E < E_c : \text{ピン止め粒界} \end{array} \right\} \dots \dots \dots (1)$$

ゴス方位粒およびその他の方位の粒に対して、Fig. 2 に表わされる方位差角分布から、可動粒界の頻度 P を計算した。粒界エネルギーに及ぼす方位差角の依存性は Dunn^{13, 14)} の実験データを用いた。ゴス方位粒に関する可動粒界の頻度 $P(\text{Goss})$ を計算し、試料全体の

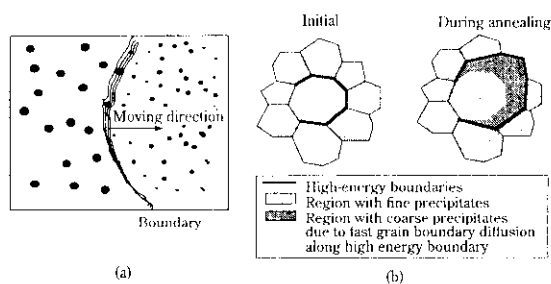


Fig. 4 (a) Schematic drawing of the coarsening of precipitates due to the fast grain boundary diffusion along the high-energy boundary; (b) Schematic drawing of the grain growth by the movement of the high-energy boundaries

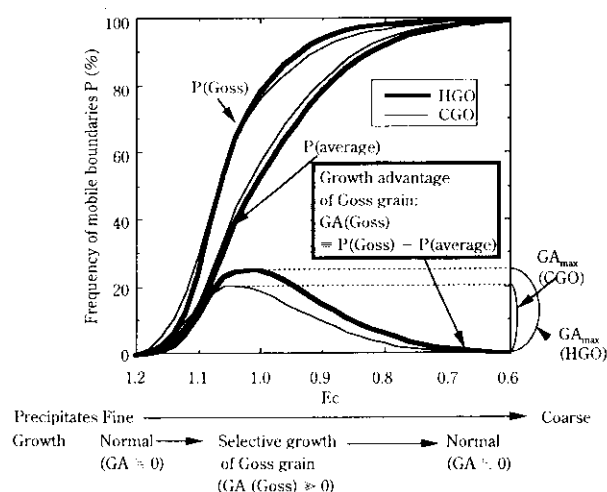


Fig. 5 The relation between critical boundary energy (E_c) and the frequency of mobile boundaries around the Goss grain ($P(\text{Goss})$) and average frequency of the whole specimen ($P(\text{average})$)

平均値 $P(\text{average})$ と比較した結果を Fig. 5 に示す。なお、ここで使用している粒界エネルギーの値は Dunn が実測した相対値であり、最大値が $E_c = 1.2$ である。可動粒界を試料全体の平均より多く持つ方位ほど粒成長速度が大きく、異常粒成長に有利であると考えられる。そこで粒成長におけるある方位 S の粒成長の優位性 $GA(S)$ を、ある方位 S についての可動粒界 $P(S)$ の存在頻度と試料全体の可動粒界の平均値 $P(\text{average})$ との差として下式で定義する。

$$GA(S) = P(S) - P(\text{average}) \quad (2)$$

ゴス方位についての粒成長の優位性 $GA(\text{Goss})$ と E_c の関係の計算値を Fig. 5 に示す。

仕上焼鈍の進行に従って析出物の粗大化が進行するので、 E_c の値は時間とともに減少するものと考えられる。初期状態は完全に析出物によりピン止めされていると考えており、仕上焼鈍開始時には E_c は粒界エネルギーの最大値 ($E = 1.2$) 以上である。焼鈍開始後、析出物の粗大化が進行しても、粒成長駆動力よりもピン止め力が大きく、粒成長が進行しない二次再結晶の潜伏期は $E_c > 1.2$ の状態にある。仕上焼鈍進行に従って、析出物の粗大化が進行するために、ピン止め力は次第に減少する。 E_c の値が最大値 ($E = 1.2$) を切った時点で、最もエネルギーの高い粒界 ($E = 1.2$) が動きだすことで粒成長が開始する。

焼鈍開始直後は、可動粒界の数が少ないこと、粒方位による異方性も小さいことで、Fig. 5 に示されるように $GA(\text{Goss})$ 値は小さく、

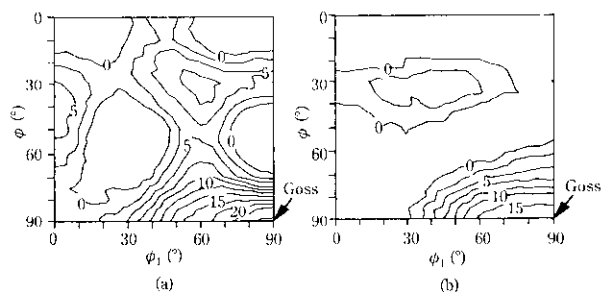


Fig. 6 The value of $GA_{\max}(S)$ for various grain orientations (S) in Euler space ($\phi_2 = 45^\circ$ cross section): (a) high permeability steel; (b) conventional steel

異常粒成長は起こらない。 $GA(\text{Goss})$ 値は、HGO, CGO とともに $E_c = 1.0$ 程度で最大となる。この結果は、ゴス方位の選択的成長が盛んなのは、析出物がある程度粗大化している途中過程であるということが分かる。実際に二次再結晶は析出物の粗大化の過程で起っている。 E_c 値が小さくなり多くの粒界が可動になってくると、 $GA(\text{Goss})$ 値は小さくなり粒成長は正常粒成長的になる。析出物の分散状態が悪く、粗大化速度が大きい場合には、ゴス粒の選択成長が進行しないうちに粒成長速度の優位性を失うことになり、二次再結晶不良になるということが予想される。

ゴス方位が他の方位に比べて選択的粒成長をするかどうかを知るには、他のすべての方位について同様な解析を行い、粒成長速度の優位性を調査する必要がある。この目的のために、オイラー空間内のすべての方位に関して Fig. 5 と同様な計算を行い、 E_c を変化させた時の、任意の方位 S が持つ可動粒界の存在頻度と試料全体の可動粒界の存在頻度の差の最大値: $GA_{\max}(S)$ を下式で定義する。

$$GA_{\max}(S) = \max_{E_c} \{P(S) - P(\text{average})\} \quad (3)$$

オイラー空間内での各方位についての、 $GA_{\max}(S)$ 値の計算結果を Fig. 6 に示す。 $GA_{\max}(S)$ 値は各方位 S の粒成長の優位性を評価する指標になるものと考えられる。HGO, CGO とともに $GA_{\max}$ 値はゴス方位について最大値を持ち、このモデルによってゴス方位が最も粒成長速度の優位性が高いことが示された。HGO の一次再結晶集合組織は $GA_{\max}$ 値のゴス方位への集積が先鋭であり、CGO 組織に比べて、ゴス方位粒の選択成長に非常に有利であることが示された。さらに $GA_{\max}$ 値のピーク形状はゴス方位から TD 方向への傾斜が強く、ND 方向への傾斜は緩く、これらは実際に観察される二次粒の偏倚の傾向²⁾と一致しており、このモデルの傍証となる。

二次再結晶に及ぼす組織の影響を総合的に理解するためには、粒成長性だけでなく、その方位自体の存在量も考慮する必要がある。Fig. 7 に Fig. 1 と 6 を重ねた図を示す。HGO, CGO とともに主方位の {111} 方位粒に関しては $GA_{\max}$ 値が低く、粒成長速度の優位性はなく二次再結晶する方位でないことが理解される。HGO の場合、ゴス方位自体の存在量は低い、ゴス方位の選択性が非常に高い一次再結晶組織を形成しているために二次再結晶が起きるものと理解される。CGO の場合には、ゴス方位は副方位であり、粒の存在量も多くかつ $GA_{\max}$ 値は最大の方角である。そのため HGO に比べて、 $GA_{\max}(\text{Goss})$ 値は 5% 程度低い、方位の存在量で有利なためゴス方位粒が二次再結晶することが理解できる。

以上高エネルギー粒界が析出物の粗大化に伴って可動となるというモデルによって、集合組織の異なる HGO と CGO の組織からゴス方位が優先成長すること、ゴス方位の先鋭度は HGO の方が高いことなどが示された。

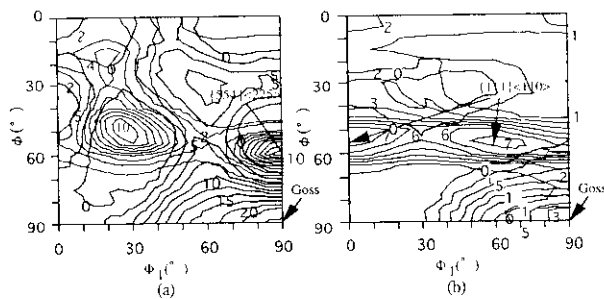


Fig. 7 The superposition of the ODF and the value of $G_{A_{\max}}(S)$ for various orientations (S) in Euler space ($\phi_2 = 45^\circ$ cross-section); (a) high permeability steel; (b) conventional steel

4 仮説の検証

提示した仮説について実験的な方法とシミュレーションで検証を試みた。

4.1 EBSPによる粒界性格分布の変化の測定

4.1.1 粒界方位差角分布の測定

Electron back scattering pattern (EBSP)²²⁾ を用いて仕上焼鈍前後の粒方位測定を行い、仮説の根拠となっている方位差角 $20\sim 45^\circ$ の高エネルギー粒界の高易動度の実験的検証を試みた。

HGO の一次再結晶板を用意し、昇温速度 $12.5^\circ\text{C}/\text{h}$ で 975°C まで上げる焼鈍を行った。板厚の $1/10$ の厚みに相当する表層部分を化学研磨で除去した後に、結晶粒の方位測定を EBSP により約 1000 個行った。焼鈍後鋼板全体の約 60% が二次再結晶していた。焼鈍後にも残存したマトリックス粒は粒径 $7.5\mu\text{m}$ から $29.5\mu\text{m}$ に成長して、粒径分布的には正常粒成長していると考えられた。Fig. 8 に焼鈍前後でのマトリックス粒間の方位差角の存在頻度変化を示す。方位差角 $20\sim 45^\circ$ 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ていることが分かり、等方的な成長でないことが分かる。ある特定の型の粒界のみが移動したと仮定すると、その粒界は動いた後消滅する。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、Fig. 8 に示される粒界の減少は方位差 $20\sim 45^\circ$ の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る。

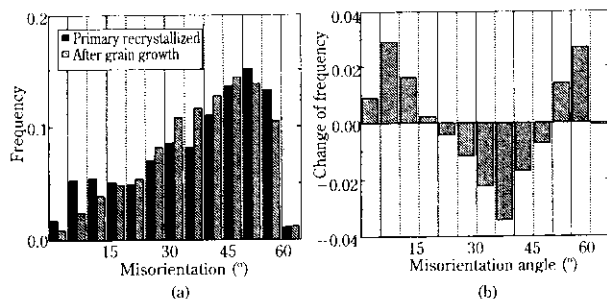


Fig. 8 (a) The misorientation angle distribution of primary recrystallized texture and that of texture after grain growth; (b) The change of the misorientation angle distribution during the grain growth

4.2 二次再結晶粒成長シミュレーション

実験的な方法で方位差 $20\sim 45^\circ$ の高エネルギー粒界の高易動度は検証されたが、これらの粒界の移動でゴス方位粒の二次再結晶が起こるかどうかをシミュレーションで検討した。

4.2.1 シミュレーション方法

Monte-Carlo モデルは、熱力学的に安定な方向へ変化する系の問題を、原子レベルのサイトを用いてモデル化するのに使用されている方法である。各サイトに関して、ある状態からある状態への遷移確率を各サイトのエネルギー変化量から計算して、その確率で状態変化を起こすことが基本である。サイトはランダムに選択されて、そのつど遷移確率を計算して状態変化を起こす。サイトの数と同じ選択回数を 1 Monte-Carlo step (MCS) と呼び、実際の時間に比例するものと考えられている。Monte-Carlo モデルは粒成長に用いられ、正常粒成長の解析を中心に解析的な粒成長理論の検証に使用されている。今回使用したモデル²⁾は McGill 大学のグループで開発したプログラムを発展させたもので、粒ごとの粒界エネルギーと易動度を設定することにより粒成長をシミュレートできる。粒界エネルギーは状態変化の計算に直接使用され、遷移確率を決定する。易動度はエネルギー変化で決定された遷移確率に掛け合わせる形で導入した。

本モデルは、50 万個のサイトからなる、1500 個の結晶粒を用い、様々な粒方位をオイラー角で与えることが可能な三次元成長モデルである。最初のシミュレーション²⁾は、CGO 型の集合組織を用いて、対応粒界に高易動度と低エネルギーという有利な条件を付与させて、対応粒界説を検証しようとするものであったが、ゴス方位粒の優先成長はシミュレートできなかった。さらにゴス方位粒に初期のサイズの優位性までを付加させても、ゴス方位粒の二次再結晶は起こらなかった。これは対応粒界自体の存在頻度の低さと、ゴス方位が必ずしも対応粒界を多くもたない、という事実から帰結される結果だったと思われる。

そこで新仮説を検証すべく Monte-Carlo シミュレーションに取り組んだ。粒界エネルギーは、Dunn の実験データ^{13,14)}を用いた。粒界の易動度 (mobility) は、2.2 節で使用した仮定に基づき、エネルギーが臨界値 (E_c) 以上の粒界のみが可動であるとして以下の式で関連付けた。

$$\left. \begin{array}{l} E > E_c : \text{mobility} = 1 \\ E < E_c : \text{mobility} = 0 \end{array} \right\} \dots \dots \dots (5)$$

E_c の値は焼鈍の進行に伴って減少するとして、析出物粗大化に関連する parameter a を用いて次式で表現した。

$$E_c = 1.2 - 1000 \text{ MCS}/a \dots \dots \dots (6)$$

a が大きいほど粗大化速度が遅くなる。1.2 は粒界エネルギー (相対値) の最大値を示す。本モデルを用いて、シミュレーションを行って仮説の検証を行った。

4.2.2 シミュレーション結果

共通の集合組織 (HGO) を出発点として、 a の値を変えて析出物の粗大化速度の影響を調べてみた。Fig. 9 に MCS と粒成長挙動を最大粒とマトリックス粒の平均体積との比で表わした結果を示す。Parameter a が $3\sim 8$ の範囲で、体積比が 100 以上となり異常粒成長が起きていることが分かる。この範囲のシミュレーションの場合、1 個の粒が他のすべての粒を食い尽くして終了した。異常粒成長した場合のうち a が $2\sim 6$ の範囲ではゴス粒 (方位差角 8° 以内の同じ粒) が成長した。シミュレーションでは、実際の ODF に基づい

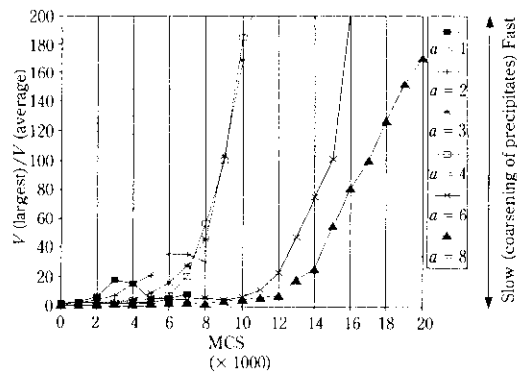


Fig. 9 The volume of the largest grain versus MCS obtained from Monte-Carlo simulation ($V(\text{average})$ and $V(\text{largest})$ represents the volume of the average and that of the largest grain respectively)

て粒方位を発生させているために、1500個の粒のうち、ゴス方位から 8° 以内の粒は3個しかなかった。以上述べたように本モデルにおけるゴス方位選択プロセスは驚くべきものであり、新仮説によりゴス方位粒の二次再結晶がシミュレートできたものと考えられる。

$a=1$ の析出物粗大化が最も速い条件の場合には異常粒成長は起こらなかった。これは析出物の粗大化速度が大きい場合に相当し、粒界移動の粒界性格依存性が速く失われるために、等方的な成長が起こるためである。この結果は析出物の分散が悪い場合に二次再結晶不良となる現象に良く対応するものと言える。粗大化速度が最も遅い場合に対応する $a=8$ の条件の場合、ゴス方位から主にND軸に関して 20° 程度回転させた方位の粒が異常粒成長したが、成長は

やや遅かった。インヒビターの抑制力が過剰な場合にGoss方位から大きくND回転した二次再結晶粒が発生することは実験的に知られており²³⁾、それを裏付ける結果となった。CGOの組織を使用して同様な方法でシミュレーションを行なったが、やはりゴス方位粒の二次再結晶をシミュレートすることに成功した²⁴⁾。

以上述べてきたように、Monte-Carlo粒成長モデルに、高エネルギー粒界が析出物の粗大化に伴って可動となるという新仮説を組み込むことにより、対応粒界説およびサイズ効果説による仮定で実現できなかったゴス方位粒の二次再結晶過程を再現できたことは、新仮説の有用性を証明したものと考える。

5 結 論

- (1) 異なる一次再結晶集合組織をもつHGOとCGOについて粒界性格分布を解析したところ、いずれにおいてもGoss方位が方位差角 $20\sim 45^\circ$ の高エネルギー粒界を持つ頻度が最も高いことが分った。
- (2) 二次再結晶途中のマトリックス粒の粒界性格分布の変化は方位差角 $20\sim 45^\circ$ の粒界が減少し他が増加することが分かり、それらの粒界の高易動度を裏付けた。
- (3) 析出物の粗大化の過程において、エネルギーの高い粒界から可動になるという仮定のもとに、HGO、CGOについてともにGoss方位が優先的に二次再結晶する現象を統一的に解釈することができた。
- (4) 仕上焼鈍中に高エネルギー粒界ほど析出物の粗大化が速く、可動になるというモデルによりゴス方位粒が二次再結晶することをMonte-Carloシミュレーションにより確認できた。

参 考 文 献

- 1) Y. Hayakawa and J. A. Szpunar: *Acta mater.*, **45**(1997), 85
- 2) D. Hinz and J. A. Szpunar: *Phys. Rev.*, **B52**(1995), 9900
- 3) Y. Hayakawa and J. A. Szpunar: *Acta mater.*, (to be published)
- 4) Y. Inokuti and C. Maeda: *Trans. ISIJ*, **24**(1984), 657
- 5) D. G. Brandon: *Acta metall.*, **14**(1966), 1497
- 6) M. Shinozaki, I. Matoba, T. Kan, and T. Gotoh: *Trans. JIM*, **19**(1978), 85
- 7) J. Harase and R. Shimizu: *Trans. ISIJ*, **29**(1988), 85
- 8) D. J. Srolovitz, M. P. Anderson, P. S. Sahni, and G. S. Grest: *Acta metall.*, **33**(1985), 2233
- 9) C. V. Thompson, H. J. Frost, and F. Spaepen: *Acta metall.*, **35**(1987), 887
- 10) N. C. Pease, D. W. Jones, M. H. L. Wose, and W. B. Hutchinson: *Met. Sci.*, **13**(1981), 203
- 11) K. T. Aust and J. W. Rutter: *AIME Trans.*, **215**(1959), 119
- 12) K. Pawlik: *Phys. stat. sol(b)*, **134**(1986), 477
- 13) C. G. Dunn and F. Lionetti: *AIME Trans.*, **185**(1949), 125
- 14) C. G. Dunn, F. W. Daniel, and M. J. Bolton: *AIME Trans.*, **188**(1949), 368
- 15) W. T. Read and W. Shockley: *Phys. Rev.*, **78**(1950), 275
- 16) D. Wolf: *Phil. Mag.*, **B59**(1989), 667
- 17) D. B. Titorov: *Phys. Met. Metall.*, **35**(1973), 165
- 18) D. B. Titorov: *Phys. Met. Metall.*, **37**(1974), 82
- 19) N. L. Peterson: *International Metal Reviews*, **28**(1983), 65
- 20) B. N. Balandin, B. K. Sokolov, and V. V. Gubernatorov: *Phys. Met. Metall.*, **49**(1980), 125
- 21) R. Shimizu, J. Harase, and D. J. Dingley: *Acta metall.*, **38**(1990), 1101
- 22) B. Adams, S. Wright, and K. Kuroki: *Met. Trans.*, **24A**(1993), 819
- 23) J. Harase, K. Takashima, R. Shimizu, and T. Watanabe: *Tetsu-to-Hagane*, **73**(1987), 1746
- 24) Y. Hayakawa, J. A. Szpunar, and D. Hinz: Proc. 11th Int. Conf. on Textures of Materials, International Academic Publishers (Beijing), (1996), 441