

# Fe-3wt%Si固溶体双結晶の粒界移動とその機構

中島 英治\*・上田 利行\*<sup>2</sup>・連川 貞弘\*<sup>3</sup>・市川 活之\*<sup>4</sup>・吉永 日出男\*<sup>5</sup>

Grain Boundary Migration and its Mechanism of Fe-3wt%Si Solid Solution Bicrystals  
Hideharu NAKASHIMA, Toshiyuki UEDA, Sadahiro TSUREKAWA, Katsushi ICHIKAWA and Hideo YOSHINAGA

**Synopsis :** The migration kinetics of the (221) $\Sigma$ 9 coincidence and random grain boundaries in Fe-3wt%Si solid solution bicrystals was experimentally studied at temperatures between 1200 and 1625K by a capillarity technique. The driving force and the mobility for the grain boundary migration was calculated from the experimental results. On the basis of the calculations, the mechanism of grain boundary migration was discussed.

There are two different mechanisms of the grain boundary migration for both the grain boundaries depending on the annealing temperature and the driving force. At lower temperatures, the migrating rate is small and the mobility is about 4 times larger for the (221) $\Sigma$ 9 grain boundary than the random grain boundary. At these temperatures, the activation energies of the grain boundary migration for both the grain boundaries are almost the same and coincide with that of the intrinsic diffusion of Si in  $\alpha$ Fe. Thus, the rate controlling process of the grain boundary migration seems to be the dragging of solute atmosphere formed along the migrating grain boundary. On the other hand, at higher temperatures, the migrating velocity is large and the mobility is greater for the random grain boundary than for the (221) $\Sigma$ 9 grain boundary. The activation energies of the grain boundary migration for both the grain boundaries are about 3/4 of those of the self diffusion in  $\alpha$ Fe. Therefore, the grain boundary migration at these temperatures is considered to be controlled by the grain boundary diffusion. The transition temperature between the two different mechanisms decreases with increasing driving force. This may be due to breaking away from the solute atmosphere for the migrating grain boundary.

**Key words :** Fe-3wt%Si alloy ; oriented electrical steel sheet ; texture ; secondary recrystallization ; grain boundary migration ;  $\Sigma$ 9 coincidence boundary ; random boundary ; capillarity technique.

## 1. 緒言

Fe-3wt%Si合金を材料とする一方向性電磁鋼板の組織は{110}<001>方位(Goss方位)を有する集合組織である。この集合組織の形成は二次再結晶中にGoss方位の結晶粒が巨大に生長することによるものである。原勢と清水<sup>1)</sup>は二次再結晶後の隣接する結晶粒の方位関係を調べ、二次再結晶後の結晶粒界には $\Sigma$ 9や $\Sigma$ 5などの特殊な対応粒界が多いことを報告している。この結果は、二次再結晶中に $\Sigma$ 9や $\Sigma$ 5の対応粒界が他の粒界よりも速く移動することを意味している。このように、粒界の移動速度は粒界の種類に強く依存するものと考えられているが<sup>2)</sup>、真に対応粒界の移動が容易であることを実証した研究例は少ない。著者らの知る限りでは、Lejckeら<sup>3)</sup>によって $\Sigma$ 5粒界の移動速度を調べた例があるが、彼らが行った実験温度範囲は1223~1373Kと狭く、ある特定

の条件における結果であり、一般的ではない。

一方、これまでの粒界移動に関する研究によれば、粒界の易動度の粒界性格依存性は粒界拡散速度の性格依存性に起因するものと考えられている。これが正しければ、対応粒界はランダム粒界に比べて粒界拡散速度が小さいことが知られているので、対応粒界の易動度はランダム粒界の易動度よりも小さいことになる。この場合、対応粒界の移動は遅いことになる。このように、Fe-3wt%Si合金をはじめとする金属材料の粒界移動に関しては未だに矛盾する点が多く、統一の見解は得られていないのが現状である。

そこで、本研究では粒界の性格を制御した対称傾角粒界を有するFe-3wt%Si固溶体双結晶を用いて、広い温度範囲で粒界の易動度を測定し、対応粒界とランダム粒界の易動度を比較検討した。さらに、Fe-3wt%Si固溶体の粒界移動機構を検討した。

平成7年10月11日受付 平成7年11月29日受理 (Received on Oct. 11, 1995; Accepted on Nov. 29, 1995)

\* 九州大学大学院総合理工学研究科 (Graduate School of Engineering Sciences, Kyushu University, 6-1 Kasugakoen Fukuoka 816)

\* 2 九州大学大学院生(現:東洋鋼板(株)) (Graduate Student, Kyushu University, now Toyo Kohan Co., Ltd.)

\* 3 九州大学大学院総合理工学研究科(現:新技術事業団) (Graduate School of Engineering Sciences, Kyushu University, now Research Development Corporation of Japan.)

\* 4 九州大学大学院生 (Graduate Student, Kyushu University.)

\* 5 九州大学大学院総合理工学研究科(現:三菱重工業(株)) (Graduate School of Engineering Sciences, Kyushu University, now Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.)

## 2. 実験方法

### 2.1 原理

粒界の移動速度 $v$ は粒界の易動度 $M$ と駆動力 $P$ の積として、

$$v = MP \quad \dots\dots\dots (1)$$

で与えられる。二次再結晶のように結晶粒内にほとんど転位を含まない柱状の結晶粒の生長の駆動力は、移動する粒界の曲率 $k$ と粒界エネルギー $\gamma_{gb}$ の積によって

$$P = \gamma_{gb}k \quad \dots\dots\dots (2)$$

で与えられる。したがって、移動速度 $v$ は式(1)と(2)より、

$$v = M\gamma_{gb}k \quad \dots\dots\dots (3)$$

である。

Fig. 1 に示したように、移動開始時に試料端面に対して角度 $\alpha$ で接した粒界について考えると、移動しつつある粒界上の任意の点 $P$ の $r$ 方向への移動速度 $\partial r/\partial t$ は、Fig. 1 に示した極座標を用いると、

$$\frac{\partial r}{\partial t} = M\gamma_{gb}k \sin \eta \quad \dots\dots\dots (4)$$

である。曲率 $k$ は

$$k = \frac{1}{r} \frac{\partial \beta}{\partial \theta} \sin \eta \quad \dots\dots\dots (5)$$

なので、結局、 $r$ 方向の移動速度 $v_r$ は

$$v_r = M\gamma_{gb} \frac{1}{r} \frac{\partial \beta}{\partial \theta} \sin^2 \eta \quad \dots\dots\dots (6)$$

となる。ここで、 $\eta$ は時間 $t$ の関数で $\eta = \pi - \beta - \theta$ である。移動中の粒界は試料端面に垂直に接するので、試料端面においては $\eta = \pi/2$  ( $\theta = 0, \beta = \pi/2$ ) となり、常に $\sin \eta = 1$ となる。したがって、試料端面における粒界の移動距離 $a$ は式(6)を積分することによって

$$a^2 - a_0^2 = 2M\gamma_{gb}f(\alpha)t \quad \dots\dots\dots (7)$$

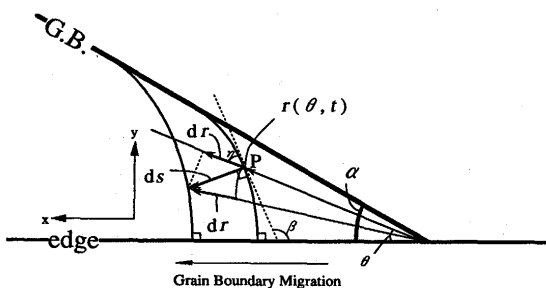


Fig. 1. Illustration of capillarity technique.

となる。ここで、 $a_0$ は測定開始時( $t=0$ )の粒界移動距離である。また、 $\theta=0$ では $\partial \beta/\partial \theta = ka$ であり、 $\partial \beta/\partial \theta$ は角度 $\alpha$ のみに依存し、移動距離 $a$ には依存しないので、 $\partial \beta/\partial \theta = f(\alpha)$ とした。したがって、曲率 $k$ は移動距離に逆比例して減少する。この方法はSunとBauer<sup>3)</sup>によって提案されたもので、原著の命名にちなんでcapillarity法と呼ぶことにする。

capillarity法では粒界移動の駆動力を $f(\alpha)$ によって制御することができる。したがって、 $f(\alpha)$ と $\alpha$ の関係を予め知る必要がある。 $f(\alpha)$ は曲がった粒界の形状を何らかの関数形で表せない限り解析的に求めることはできないので、本研究では次のような数値計算によって求めた。

Fig. 1 のように粒界の移動方向を $x$ とした $x$ - $y$ の直角座標で、各部の粒界の位置を $(x,y)$ で表すと、粒界の曲率 $k$ は

$$k = \frac{\frac{d^2y}{dx^2}}{\left\{1 + \left(\frac{dy}{dx}\right)^2\right\}^{3/2}} \quad \dots\dots\dots (8)$$

となる。式(8)と(3)より、 $x$ と $y$ 方向への移動速度 $v_x$ と $v_y$ はそれぞれ

$$\left. \begin{aligned} v_x &= M\gamma_{gb} \frac{\frac{d^2y}{dx^2}}{\left\{1 + \left(\frac{dy}{dx}\right)^2\right\}^{3/2}} \\ v_y &= M\gamma_{gb} \frac{\frac{dy}{dx} \frac{d^2y}{dx^2}}{\left\{1 + \left(\frac{dy}{dx}\right)^2\right\}^{3/2}} \end{aligned} \right\} \quad \dots\dots\dots (9)$$

となる。式(9)を用いることによって、微小時間 $\Delta t$ 経過後の粒界の位置 $(x', y')$ は

$$\left. \begin{aligned} x' &= x + v_x \Delta t \\ y' &= y + v_y \Delta t \end{aligned} \right\} \quad \dots\dots\dots (10)$$

によって求めることができる。初期条件として試料端面に対して角度 $\alpha$ で接した粒界の位置を与え、式(10)によって微小時間後の粒界の位置を計算し、これを繰り返して計算することにより連続した粒界の形状の変化を求めることができる。ここで、粒界は試料端面に対して垂直に接するとしている。このような、連続した粒界形状の計算をいろいろな角度 $\alpha$ について行い、試料端面での粒界の移動距離 $a$ と時間 $t$ の関係より、 $f(\alpha)$ を求めた。Fig. 2 は $f(\alpha)$ と $\alpha$ の関係を示したもので、この結果はSunとBauer<sup>3)</sup>が示した結果と一致している。 $f(\alpha)$ は $\alpha$ の増加とともに単調に減少する。これは $\alpha$ の増加とともに曲率が減少するためである。この曲率の減少にもなると、駆動力は低下する。したがって、capillarity法では粒界の移動とともに駆動力が低下し、移動速度も低下する。また、capillarity法では曲がった粒界の曲率が最も大きな場所は試料端面と接するところである。したがって、粒界全体の動きは試料端面上での動きによって支配されることになる。

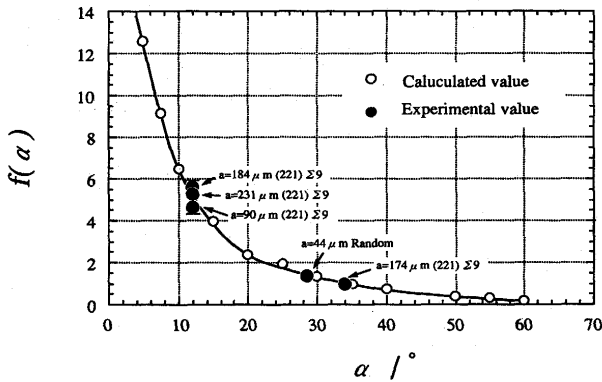


Fig. 2. The relation between  $f(\alpha)$  and  $\alpha$ .

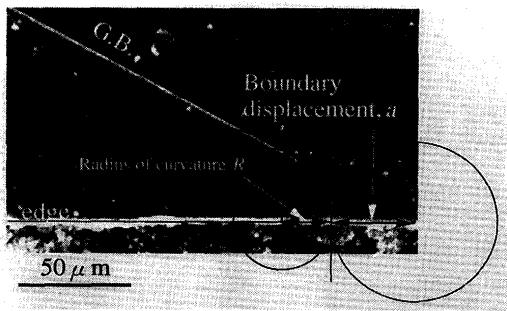


Fig. 3. Photomicrograph of a typical migrating grain boundary.

Fig. 3は後述する粒界移動処理を行った後の光学顕微鏡像の一例である。白く見える曲線が粒界である。試料端面近傍での粒界の曲率 $k$ を測定し、式(7)に示したように $f(\alpha)$ は $ka$ であるので、 $f(\alpha)$ を実験的に求めることができる。得られた結果をFig. 2に測定点(黒丸)として示した。ここで、計算値と実験値は良く一致していることがわかる。

このように、capillarity法では試料表面と粒界とのなす角 $\alpha$ を制御した試料を用いて、粒界移動距離 $a$ と時間 $t$ の関係を測定することにより、式(7)より粒界移動度 $M$ と粒界エネルギー $\gamma_{gb}$ の積を知ることができる。

2.2 試験片

本研究では新日本製鐵株式会社より供与された粗大結晶粒を有するFe-3wt%Si合金より種結晶を切り出し、熔融回転法<sup>4)</sup>によって対称傾角粒界を有する双結晶を作製した。作製した粒界は $\langle 110 \rangle$ 方向を回転軸とする対称傾角粒界で、本研究では傾角の異なる2種類(141°と156°)の双結晶を作製した。ここで、傾角は粒界を挟む両側の結晶の(001)面のなす角度で定義した。傾角が141°の粒界は(221)Σ9傾角粒界で、Σ値の前に示した指数は粒界面の指数である。一方、傾角が156°の粒界はこの傾角近傍には対応粒界はなく、 $\langle 110 \rangle$ 回転軸ではランダム粒界と呼ぶことができる。このようにして作製した双結晶の化学分析値をTable 1に示す。

本研究で行った熔融回転法では粒界が両結晶の最終凝固部となるために、粒界に不純物が凝固偏析する可能性があ

Table 1. Chemical composition of Fe-3wt%Si bi-crystals.

(wt%)													
C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Cu	Mo	Al	Ti	Sn	N	B
0.0019	3.28	0.005	0.002	0.0001	0.002	0.001	0.004	0.004	0.001	0.002	0.001	0.0003	0.0001

る。しかし、吉富らはこの方法で作製したFe-3wt%Si双結晶の粒界破面をオージェ分光分析し、(221)Σ9粒界ではSiとCが、ランダム粒界でCとBの偏析が認められるものの、それらは非常に微量で、その量は結晶粒内部と大差がないことを明らかにしている<sup>5)</sup>。したがって、Σ9粒界とランダム粒界の移動に及ぼすCとBの効果は非常に小さいものと考えて良いであろう。

熔融回転法によって作製した双結晶より(110)面に平行に低速ダイヤモンドカッターで厚さ800~1200μmの板状試料を切り出した。これをさらに角度 $\alpha$ を制御した試験片形状に加工した。この試験片の表面を研磨液(HF:H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>=1:10)を用いて化学研磨し、さらに試料の両面はバフ研磨(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:粒径0.3μm)して鏡面に仕上げた。この試料を背面反射ラウエ観察すると回折スポットがストリーク状であったので、試料作製工程で導入された加工ひずみを約0.7mPaの真空雰囲気下、1070K-21.6ksの条件で焼鈍してひずみ除去を行った。そのひずみ除去処理によって回折スポットのストリークは観察されなくなった。この時、粒界がほとんど移動しないことも確認した。

2.3 粒界移動処理

著者らはFe-3wt%Si固溶体双結晶の粒界移動のその場観察<sup>6)</sup>によって、1123K以上の温度で観察可能な粒界移動が起こることを明らかにした。そこで、粒界移動処理は1200~1625Kの温度範囲で行った。この温度範囲は融点 $T_m$ の0.68~0.92 $T_m$ である。加熱装置には1325K以下の温度範囲では電気炉を、1325K以上では赤外線イメージ炉を用いた。雰囲気はいずれの装置でも約2.0mPa以下の真空中であり、炉内に残存する酸素による試料の酸化を防止するために試料近傍に厚さ50μmのZr箔を置き酸化を防いだ。

粒界移動は試料の昇温と降温中にも起こる可能性があり、これは移動距離の測定値に誤差をもたらす。そこで、本研究では次のような方法でこの誤差を最小限に止めた。電気炉を用いた場合には、予め粒界移動が実質的に起こらない1070Kに試験片を余熱し、炉の最高温度(約1500K)の位置に試験片を移動させ、試験片を急熱した。この時の昇温速度は3~8K/sである。さらに、目的の熱処理温度は炉の位置をコントロールし、±2Kで保持した。降温は炉を移動させると同時に真空保持用の石英管外部に送風し、冷却した。この時の、冷却速度は約16K/sであった。赤外線イメージ炉を用いた場合には、昇温速度は約30K/s、冷却速度は約35K/sであった。粒界移動処理中の温度変動は±5Kであった。

この真空焼鈍では蒸気圧の大きな $\alpha$ Feの蒸発により、合金

濃度の変化が予想される。そこで、焼鈍終了後の試験片をEDX分析により、合金濃度を求めた。その結果、Siの濃度は約3wt%であり、焼鈍前の化学分析結果の濃度(Table 1)とほとんど変わらないことを確認した。

電気炉と赤外線イメージ炉による粒界移動処理を施した試験片は、その側面を保護し、板面だけを腐食した。これらを走査電子顕微鏡あるいは光学顕微鏡で観察し、その観察像から粒界の移動距離を測定した。観察後の試験片は腐食による粒界溝を取り除くために両板面をバフ研磨した。その加工ひずみを1070K-21.6ksの熱処理によって除去し、再度、粒界移動処理を施した。これら一連の操作を3~8回繰り返し行い、移動距離 $a$ と時間 $t$ の関係を断続的に測定した。

### 3. 実験結果および考察

#### 3.1 移動距離と時間の関係

Fig. 4 (a) と (b) は同一の(221) $\Sigma$ 9粒界( $\alpha=29^\circ$ )を1300Kで異なる時間粒界移動処理を施して得られた光学顕微鏡像である。また、白い実線は同条件における粒界の形状を前述の数値計算で求めた結果である。数値計算では実測された $M\gamma_{gb}$ を用いて粒界の形状を計算している。実測した粒界と数値計算によって求めた粒界の形状を比較すると、実測した粒界の形状はなめらかではない。これは曲がった部分の粒界では粒界の面指数が変化するために、粒界エネルギー

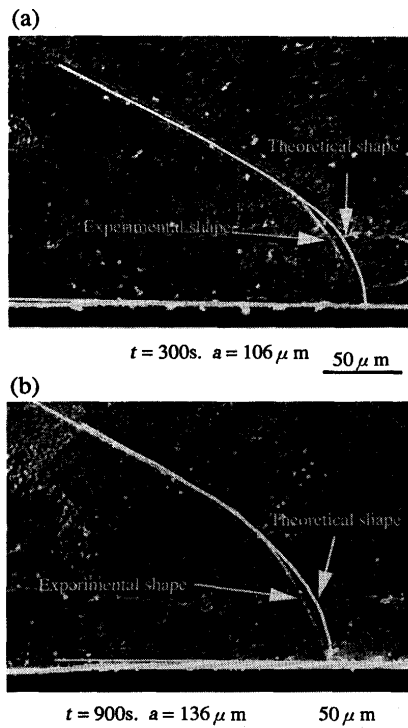


Fig. 4. Comparison between the observed and calculated shapes of the migrating (221) $\Sigma$ 9 grain boundary. The annealing temperature is 1300K and the angle  $\alpha$  is  $29^\circ$ .

ーが変化し、粒界がファセット化したことに起因するものと考えられる。一方、数値計算では粒界面指数の変化にともなう粒界エネルギーの変化は考慮されていない。ところが、粒界が試料表面と垂直に接する位置ではほぼ実測値と計算値は一致している。したがって、粒界移動距離 $a$ の測定においては粒界面のファセット化の影響はさほどないものと考えられる。

Fig. 5 は(221) $\Sigma$ 9粒界を1320Kで粒界移動して得られた移動距離の2乗 $a^2$ と時間 $t$ の関係を示したものである。ここで、 $a^2$ は試験片間の角度 $\alpha$ の相違による $f(\alpha)$ の相違を補正するために $f(\alpha)$ で割っている。また、図中の白丸( $\alpha=35.0^\circ$ )は同一の試料を何度も粒界移動処理して得られた結果で、黒丸( $\alpha=27.5^\circ$ )は一回の粒界移動処理で得られた結果である。両者はほぼ一致しており、繰り返し粒界移動処理を行うことによる移動距離の誤差は小さく抑えることができた

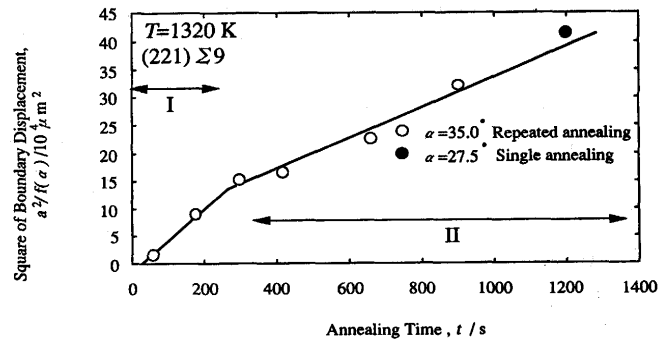


Fig. 5. Relation between the annealing time  $t$  and the square of displacement  $a^2$  of the (221) $\Sigma$ 9 grain boundary at 1320K.

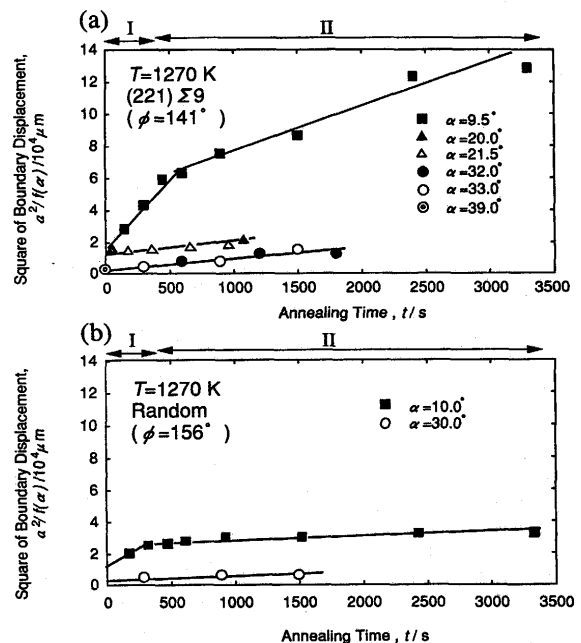


Fig. 6. Comparison between the migration kinetics of (a) the (221) $\Sigma$ 9 and (b) random grain boundaries.

ことが分かる。さらに、測定点の全てが同一の直線上に乗っている訳ではなく、勾配の異なる二つの領域(IとII)に分けることができる。式(7)より明らかなように、直線の勾配は  $2M\gamma_{gb}$  である。同一温度では  $\gamma_{gb}$  は変わらないので、勾配の変化は易動度  $M$  の変化を意味している。capillarity法では本質的に移動距離が大きくなるにつれて駆動力が低下する。したがって、駆動力が大きな領域Iと駆動力が小さな領域IIでは粒界移動の機構が異なるために、易動度が変化したものと考えられる。

Fig. 6 は 1270K で (221)Σ9 粒界とランダム粒界の  $a^2$  と  $t$  の関係を示したものである。この図でも勾配の異なる領域が二つ存在していることがわかる。しかし、図(a)では移動初期の駆動力の大きな  $\alpha=9.5^\circ$  では勾配の変化が見られるが、駆動力の小さな  $\alpha=20\sim39^\circ$  では  $\alpha=9.5^\circ$  の領域IIの勾配とほぼ同じである。同様のことが、図(b)のランダム粒界でも起こっている。これは  $\alpha=20\sim39^\circ$  のような移動初期の駆動力の小さな試料では初期の駆動力の大きな試料で見られた領域Iが消失することを意味している。

以上のように、等温度における粒界移動処理によっても駆動力の相違によって粒界の移動機構が変化することが明らかになった。そこで、この変化をより直接的に明らかにするために、移動速度と駆動力の関係を次に示す。

3.2 粒界移動速度と駆動力の関係

Fig. 7 は (221)Σ9 について 1270K と 1320K で得られた移動速度  $v$  と駆動力  $P$  の関係を示したものである。ここで、駆動力  $P$  は Fig. 3 に示したように試料端面に接する粒界の形状を円近似し、その半径より曲率  $k$  を求めて、粒界エネルギーの報告値<sup>7)</sup>

$$\left. \begin{aligned} \gamma_{gb} &= 1.335 - 7 \times 10^{-5} T \text{ (J/m}^2\text{)} ; \text{ (221) } \Sigma 9 \\ \gamma_{gb} &= 1.295 - 7 \times 10^{-5} T \text{ (J/m}^2\text{)} ; \text{ random} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (11)$$

によって評価した。図より各温度で勾配の異なる、すなわ

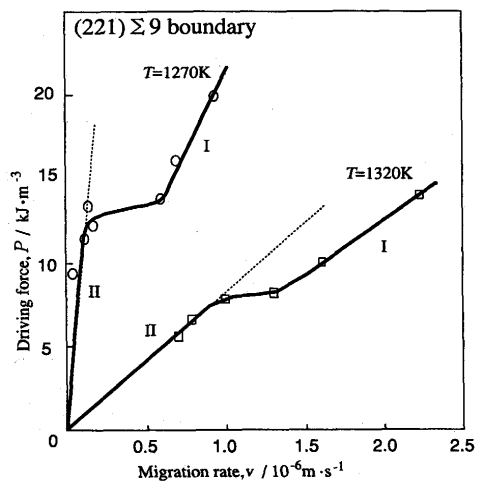


Fig. 7. Relation between the migration rate  $v$  and the driving force  $P$  for the (221)Σ9 grain boundary.

ち移動機構の異なる二つの領域が存在することがわかる。capillarity法では原理的に粒界移動の進行とともに試料端面と接する粒界の曲率が小さくなり、駆動力が低下していく。Fig. 7 中に記したIとIIはFig. 5 と 6 の領域の記号に対応するもので、粒界の移動とともに移動機構はIの領域からIIの領域に変化する。図の勾配の逆数が易動度であるので、移動機構は駆動力の低下とともに易動度が大きな過程から小さな過程に遷移することになる。遷移が起こる駆動力は 1270 K では約  $13 \text{ kJm}^{-3}$  であり、1320K では約  $7 \text{ kJm}^{-3}$  である。このように、温度の上昇とともに移動機構が変化する境界の駆動力は低下する。さらに、広い温度範囲で易動度を測定した結果を次に示す。

3.3 粒界易動度の温度依存性

Fig. 5 や 6 の勾配からは  $2M\gamma_{gb}$  が得られる。そこで、式(11)に示した粒界エネルギー  $\gamma_{gb}$  の報告値を用いて易動度  $M$  を求めた。得られた  $2M$  をアレニウスプロットで Fig. 8 に示す。図中の測定点の横に付けたIやIIはFig. 5 ~ 7 中の同記号の領域で得られた結果の意味である。図より明らかなように易動度の温度依存性は勾配の異なる二つの領域に分類することができ、プロット点にIを付けた点は高温域または遷移域に、IIを付けた点は低温域または遷移域に分布していることがわかる。すなわち、駆動力が低下するにつれて、高温域から低温域に遷移する傾向がある。すでに述べたように、粒界が移動する間に駆動力が低下する。したがって、粒界移動にともない駆動力が減少すると、高温側の移動機構から低温側の移動機構へと機構が遷移することがわかる。

さらに、(221)Σ9 粒界とランダム粒界の易動度は低温域と高温域で大小関係が逆転している。すなわち、低温域では(221)Σ9 粒界の易動度はランダム粒界のそれよりも約4倍大きい。ところが、高温域ではランダム粒界の方が(221)Σ9 粒界よりも大きい。低温域における粒界の易動度の活性化エネルギーはいずれの粒界でも  $220 \pm 20 \text{ kJ/mol}$  である。こ

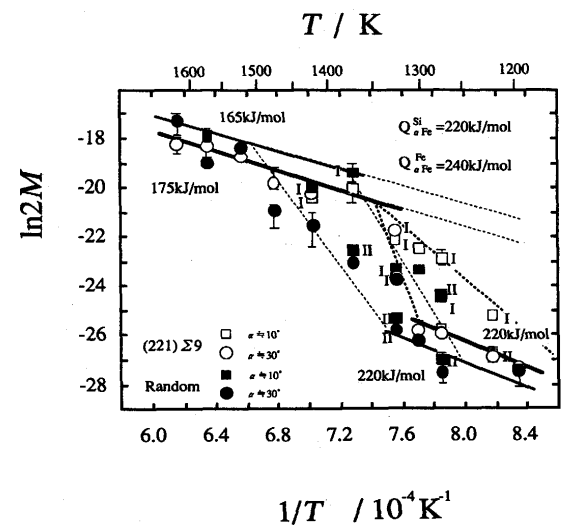


Fig. 8. Arrhenius plots of the mobility  $M$ .

の値は $\alpha$ Fe中のSiの固有拡散の活性化エネルギー $220\text{kJ/mol}$ <sup>9)</sup>にほぼ一致している。この結果は、粒界と溶質原子であるSi原子が相互作用し、粒界移動がSi原子の拡散によって律速されていることを示唆している。(221) $\Sigma$ 9粒界とランダム粒界の易動度の活性化エネルギーは一致しており、(221) $\Sigma$ 9粒界の易動度の方がランダム粒界よりも大きかったことは、(221) $\Sigma$ 9粒界とランダム粒界で溶質原子との相互作用の種類は同じであるが、相互作用の大きさが異なることを意味している。すなわち、Si原子は(221) $\Sigma$ 9粒界よりもランダム粒界と大きな相互作用をしていることになる。それゆえ、ランダム粒界の低温領域は(221) $\Sigma$ 9粒界よりも、より高温まで広がっている。また、低温域と高温域の中間の遷移は駆動力の大きさによって変わる。すなわち、駆動力の大きな $\alpha \approx 10^\circ$ は駆動力の小さな $\alpha \approx 30^\circ$ よりもより低温で遷移が起こり始めている。これは駆動力が大きければ粒界と溶質原子の相互作用を振り切って粒界が移動するため、温度が同じでも駆動力の大きさによって粒界の移動機構が異なることを示している。

一方、高温側での粒界の易動度の活性化エネルギーは(221) $\Sigma$ 9粒界では $175 \pm 10\text{kJ/mol}$ でランダム粒界では $165 \pm 20\text{kJ/mol}$ である。これらの値は $\alpha$ Fe中のSiの固有拡散の活性化エネルギー( $220\text{kJ/mol}$ )や $\alpha$ Feの自己格子拡散の活性化エネルギー( $240\text{kJ/mol}$ )<sup>9)</sup>よりも小さい。一般に、粒界拡散のような高速拡散の活性化エネルギーは自己格子拡散の活性化エネルギーの約2/3であることが知られている。これを考慮すると高温域における易動度の活性化エネルギーは自己格子拡散の活性化エネルギーの約2/3( $160\text{kJ/mol}$ )に近いと見ることができると。したがって、高温域ではいずれの粒界移動も粒界拡散に支配されているものと考えられる。ランダム粒界は(221) $\Sigma$ 9粒界よりも粒界での原子の対応度は良くないであろう。したがって、粒界拡散係数もランダム粒界の方が(221) $\Sigma$ 9粒界よりも大きいものと考えられる。これが高温域でランダム粒界の易動度が(221) $\Sigma$ 9粒界の易動度よりも大きくなった理由と考えられる。

ところで、現在の一方向性電磁鋼板の二次再結晶温度はその種類にもよるが約 $1270\text{K}$ であり、Fig. 8の低温側の領域に相当する。これまで、集合組織の形成には $\Sigma$ 9粒界のような対応粒界の優先的な移動が関与しているものと推論されてきたが、この推論は本研究の結果と一致している。すなわち、Fig. 8の低温域では(221) $\Sigma$ 9粒界の易動度の方がランダム粒界よりも大きい。また、二次再結晶温度が約 $1370\text{K}$ 以上では集合組織は形成されることが経験的に知られているが、これも本研究の結果によると対応粒界とランダム粒界の易動度の逆転と非常に良く対応している。ただ、粒界の移動機構は温度だけではなく駆動力によっても変化する。したがって、一次再結晶での結晶粒径を考慮する必要があるのであろう。

Fig. 7の移動機構が遷移する駆動力( $1270\text{K}$ では約 $13\text{kJm}^{-3}$ 、 $1320\text{K}$ では約 $7\text{kJm}^{-3}$ )から逆に一次再結晶での結晶粒径を見積もると $1270\text{K}$ では約 $190\mu\text{m}$ 、 $1320\text{K}$ では約 $360\mu\text{m}$ となる。したがって、たとえ $1270\text{K}$ で二次再結晶を行っても約 $190\mu\text{m}$ 以下の一次再結晶粒では駆動力が大きすぎてFig. 8の高温域の移動機構で再結晶が起こることになり、Goss方位の集合組織は形成できないことになる。

## 4. 結論

電磁鋼板材料であるFe-3wt%Si固溶体双結晶の(221) $\Sigma$ 9粒界とランダム粒界を用いて、capillarity法によって粒界の易動度を測定して以下の結果を得た。

- (1) 粒界移動機構は駆動力の違いによって遷移する。
- (2) 低温側( $1323\text{K}$ 以下)では(221) $\Sigma$ 9粒界の易動度が大きく、高温側( $1373\text{K}$ 以上)では逆にランダム粒界の易動度が大きい。
- (3) 移動速度が小さい低温側では粒界移動の活性化エネルギーはいずれの粒界も約 $220\text{kJ/mol}$ である。これは $\alpha$ Fe中のSiの固有拡散の活性化エネルギーと等しい。このことから低温側では粒界とSi原子が相互作用し、粒界の移動はSiの拡散によって律速されているものと考えられる。
- (4) また、移動速度が大きい高温側の粒界移動の活性化エネルギーはいずれの粒界も約 $170\text{kJ/mol}$ である。これは $\alpha$ Feの自己格子拡散の活性化エネルギー約 $240\text{kJ/mol}$ の約2/3である。このことから粒界移動は粒界拡散によって律速されているものと考えられる。

終わりに、本研究を遂行するに当たり、Fe-3wt%Si合金を提供していただいた、新日本製鐵株式会社吉富康成氏(現、宮崎大学工学部)に心から感謝申し上げる。なお、本研究は平成6年度文部省科学研究助成一般(B)によって行ったものである。ここに特記して感謝の意を表する次第である。

## 文 献

- 1) 原勢二郎, 清水 亮: 日本金属学会誌, **54** (1990), 1.
- 2) P. Lejcke, V. Paidar, J. Adamek and S. Kadeckova: Interface Science, **1** (1993), 187.
- 3) R. C. Sun and C. L. Bauer: Acta Met., **18** (1970), 635.
- 4) H. Kurishita, A. Oishi, H. Kubo and H. Yoshinaga: J. Jpn. Inst. Met., **47** (1983), 546.
- 5) Y. Yoshitomi, S. Suzuki, T. Ueda, S. Tsurekawa, H. Nakashima and H. Yoshinaga: Scripta Met., **32** (1995), 1067.
- 6) 市川活之, 上田利行, 連川貞弘, 吉富康成, 松尾征夫, 川崎宏一, 中島英治, 吉永日出男: 鉄と鋼に投稿中
- 7) E. D. Hondors: Techniques of Metals Research, ed. by R. Bunshah, Vol. IV(A), Chapter 8A, John Wiley & Sons, New York, (1970)
- 8) H. Oikawa: Technology Reports, Tohoku Univ., **47** (1982) 2, 215.
- 9) H. Oikawa: Technology Reports, Tohoku Univ., **47** (1982) 1, 67.