

# 放射光X線トポグラフィーによる Fe-3wt%Si合金双結晶の粒界移動その場観察

市川 活之\*・上田 利行\*<sup>2</sup>・連川 貞弘\*<sup>3</sup>・吉富 康成\*<sup>4</sup>・松尾 征夫\*<sup>5</sup>・  
川崎 宏一\*<sup>6</sup>・中島 英治\*<sup>7</sup>・吉永 日出男\*<sup>7</sup>

In-Situ Observation of Grain-Boundary Migration in Fe-3wt%Si Bicrystals  
by Synchrotron X-Radiation Topography

Katsushi ICHIKAWA, Toshiyuki UEDA, Sadahiro TSUREKAWA, Yasunari YOSHITOMI, Yukio MATSUO,  
Koichi KAWASAKI, Hideharu NAKASHIMA and Hideo YOSHINAGA

**Synopsis :** In order to examine the grain-boundary migration mechanism, two high purity Fe-3wt%Si bicrystals were produced. One has a  $(1\bar{1}4)\Sigma 9$  coincidence boundary, and the other has a random boundary. In-situ observation of grain-boundary migration was conducted by synchrotron X-radiation dynamic topography.

It was found that macroscopic grain-boundary migration was recognised at the temperature above 1170K. From the results of isothermal annealing(1270~1320K), it was clarified that the mobility of  $\Sigma 9$  coincidence boundary was higher than that of the random boundary.

**Key words :** Fe-3wt%Si bicrystal; texture; secondary recrystallization; grain boundary migration;  $\Sigma 9$  coincidence boundary; random boundary; synchrotron X-radiation topography.

## 1. 緒言

Fe-3wt%Si合金は電磁鋼板の材料として、発電機や変圧器、モーターなどの鉄心として広く利用されている。その中でも方向性電磁鋼板は $\{110\}\langle 001\rangle$ 集合組織(Goss方位)を有するが<sup>1</sup>,これは二次再結晶によりGoss方位の結晶粒が鋼板全体を占めることにより得られる。この際、Goss方位粒の $[001]$ 方向への集積度が増加するほど鉄損値(電磁鋼板を磁化した時に生ずる電気エネルギーの損失)が小さくなり、エネルギー効率が高くなる傾向にある。このように実用的に重要であるFe-3wt%Si合金の二次再結晶についてはこれまで多くの研究が行われてきた<sup>1)</sup>。その結果、 $\Sigma 9$ や $\Sigma 5$ の対応粒界の優先的な移動がGoss方位形成に大きく関与している可能性が高いことが経験的に知られるようになってきた<sup>2)</sup>。しかしながら、Fe-3wt%Si合金では粒界の性格を制御した双結晶を用いて粒界移動を直接観察した例はない。

そこで本研究では、対応粒界とランダム粒界を有する2

種類の高純度Fe-3wt%Si合金双結晶を作製し、透過法で粒界の移動を動的に観察することができるシンクロトロン強力X線を用いてその場観察を行い、巨視的な粒界移動の開始温度と粒界移動速度の粒界性格依存性を検討した。

## 2. 実験方法

### 2.1 試料

新日本製鐵(株)より供与された粗大粒を有する高純度Fe-3wt%Si合金より種結晶を採取し、溶融回転法<sup>3)</sup>により、 $[110]$ 方向を回転軸とする高純度Fe-3wt%Si合金双結晶を作製した。作製した双結晶は $(1\bar{1}4)\Sigma 9$ 対応粒界( $\phi=39^\circ$ )と $[110]$ 軸でのランダム粒界( $\phi=156^\circ$ )の2種類である。ここで傾角 $\phi$ は粒界を挟む両結晶の $(001)$ 面のなす角である。双結晶作製方法の詳細は既報<sup>4,5)</sup>と同様である。Table 1に得られた双結晶の化学分析値を示す。

粒界移動は、SunとBauerの方法<sup>6)</sup>に基づいて行った。以

平成7年12月11日受付 平成8年3月4日受理 (Received on Dec. 11, 1995; Accepted on Mar. 4, 1996)

- \* 九州大学大学院生 (Graduate Student, Kyushu University, 6-1 Kasugakoen Kasuga 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新日本製鐵(株)八幡技術研究部 (現:宮崎大学) (Yawata R&D Lab., Nippon Steel Corp., now Miyazaki University)
- \* 5新日本製鐵(株)八幡技術研究部 (Yawata R&D Lab., Nippon Steel Corp.)
- \* 6新日本製鐵(株)先端技術研究所 (Advanced Materials&Technology Research Laboratories,Nippon Steel Corp.)
- \* 7九州大学大学院総合理工学研究科 (Graduate School of Engineering Sciences, Kyushu University)

Table 1. Chemical analysis of specimen composition.

													(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	

下にその場観察用試料の作製方法を示す。上述の双結晶より、板面が(110)となるような厚さ400~600 $\mu\text{m}$ の板状試料を、低速ダイヤモンドカッターを用いて切り出した。粒界が移動する際には、試料端面の切断キズが粒界移動を拘束する可能性があるため化学研磨によってこれを除去した。さらに板面を#240~#2000のSiC耐水ペーパーで研磨、0.3 $\mu\text{m}$ の $\text{Al}_2\text{O}_3$ 粒子でバフ研磨し両面鏡面仕上げした。最終的な試料の厚さは、X線が透過できるようにするため150 $\mu\text{m}$ とした。また、この際の加工により導入された加工ひずみを除去するために、約 $8 \times 10^{-4}$ Paの真空下、1070K-21.6ksの焼鈍を行った。その後、九州大学大学院総合理工学研究科材料開発工学専攻の背面反射ラウエ装置を用いて回折スポットを観察した結果、スポットは加工ひずみに起因するストリークを生じないことを確認した。

## 2.2 粒界移動のその場観察

粒界移動のその場観察は、高エネルギー物理学研究所放射光実験施設の2.5GeVリングのビームラインBL-15Bを用いて行った。Fig. 1はその場観察用加熱炉の説明図である<sup>7)</sup>。観察用試料を高純度 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 製の試料ホルダーに入れ、それを2つ折りのC/Cコンジット製のヒーター<sup>7)</sup>ではさみつけて試料の加熱を行った。炉内は1気圧のAr雰囲気とし、加熱前に3.0 l/minで1200秒間Arガスを流してガス置換した後昇温を開始した。加熱中は1.0 l/minの流量で流出した。さらに試料の酸化を防止するためにZr箔をヒーター近傍と $\text{Al}_2\text{O}_3$ ホルダーに巻き付けた。

試料の温度測定にはPR熱電対を用い、P.I.D.制御によって保持中の温度変動を $\pm 1\text{K}$ に抑えた。このときの昇温と降温速度はそれぞれ1K/sと0.5K/sである。観察温度と時間は1270K-2.4ks、1300K-1.8ksおよび1320K-1.2ksであり、1つの試料を用いて連続的に観察を行った。なお、予備実験で、粒界が約1170Kから動き出すことが確認されたので、今回、それ以上の温度で観察を行った。

観察はまず約5mm $\times$ 5mmの白色X線を試料に照射し、X線の出射側においたTVカメラで蛍光板上のすべてのラウエスポットを観察した。その中でその場観察に最も適したラウエスポットを選択し、5軸ゴニオメーターに取り付けられた加熱炉を移動させながら、そのラウエスポットをX線TVカメラに導入した。導入した像を画像処理してVTRに録画し、さらにビデオプリンターで像を出力した後、その像をさらに画像処理し、粒界移動の解析を行った。

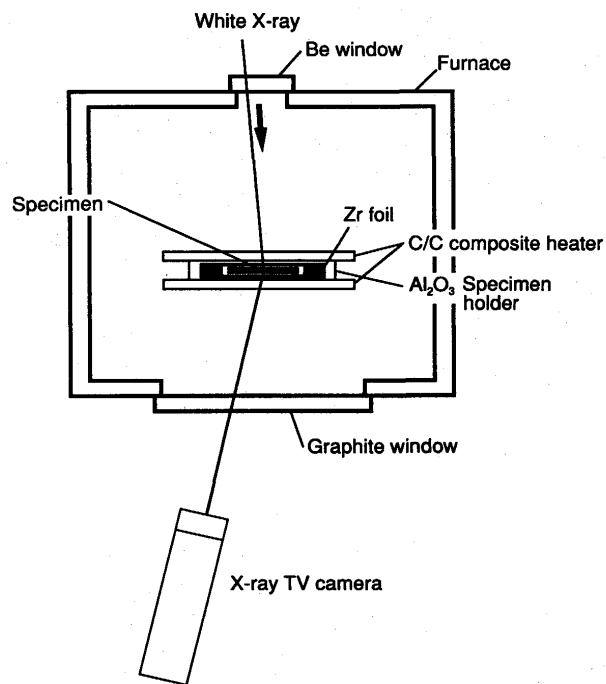


Fig. 1. Schematic explanation of the heating furnace.

## 3. 結果及び考察

SunとBauerの理論<sup>6)</sup>によれば、試料端面における粒界移動距離 $a$ は $a^2 = 2f(\alpha)M\gamma_b t$ で与えられる。ここで、 $f(\alpha)$ は粒界面と試料端面とのなす角度 $\alpha$ に強く依存する関数で、 $\alpha$ の違いによる駆動力の比を表している<sup>6)</sup>。また $\gamma_b$ は粒界エネルギー、 $M$ は粒界の易動度、 $t$ は時間、その他のパラメーターは通常の意味である。

本研究を行うにあたり、当初、角度 $\alpha$ を約30°として実験を行った。しかしこの場合、駆動力が小さいために粒界の移動速度が小さく、トポグラフィ観察の分解能の制限のために十分な解析を行うことが困難であった。ここでトポグラフィ観察の空間分解能は約10 $\mu\text{m}$ である。そこで角度 $\alpha$ を約10°とし、駆動力を大きくして実験を行った。Fig. 2 (a)と(b)は、それぞれ(114) $\Sigma$ 9対応粒界とランダム粒界を1270Kでその場観察した例である。なお、各写真において多数の白色のスポットが見られるが、これはX線TVカメラの撮像膜の保護窓の欠陥である。(a)は粒界の移動により結晶の面積が減少していく側からのラウエスポットを観察したものである。粒界の移動にともない、矢印で示した結晶粒の先

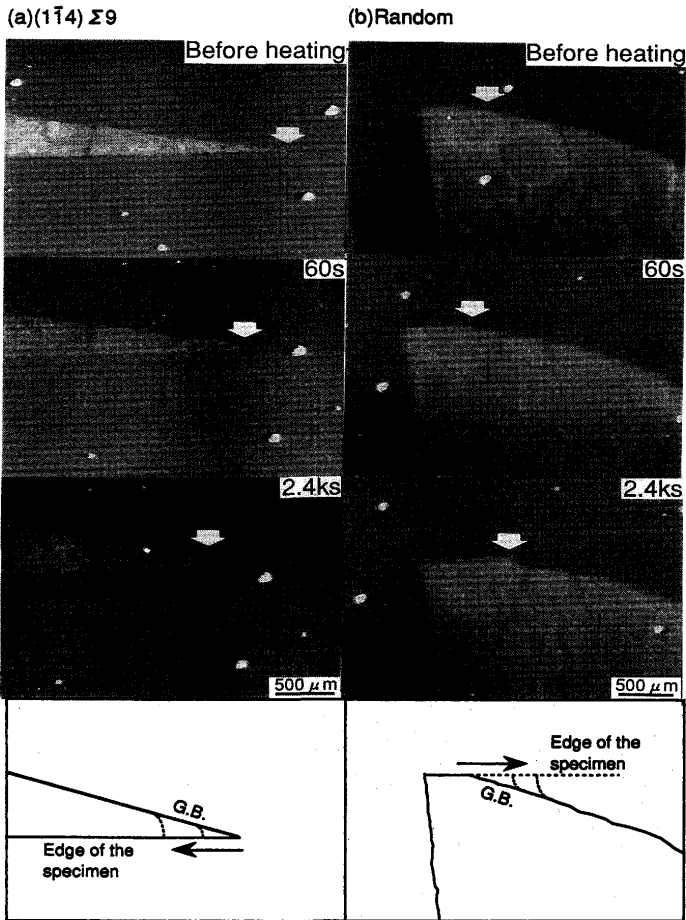


Fig. 2. In-situ observation of grain-boundary migration at 1270K by X-ray topography, (a)  $(1\bar{1}4)\Sigma 9$  coincidence boundary and (b) random boundary.

端が徐々に丸くなり、曲率が小さくなっていることがわかる。一方(b)はランダム粒界の例で、この場合は(a)とは逆に面積が増加していく側の結晶粒からのスポットを観察したものである。(a)と同様、矢印で示した粒界の先端が丸くなりながら移動していく様子がわかる。いずれの観察でも、粒界の移動は非常になめらかで、停止と移動を繰り返すようなことはなかった。

Fig. 3は上述の観察結果より、試料端面における粒界の移動距離と時間との関係をプロットしたもので、(a)は $(1\bar{1}4)\Sigma 9$ 対応粒界、(b)はランダム粒界についてである。これらのグラフから、SunとBauerの理論から予測されるように、粒界移動距離の2乗が時間と比例する関係にあることがわかる。なお、一定温度保持中の直線の傾きが変化しているが、その原因は駆動力の相違による粒界移動機構の違いに起因するものと考えられる。詳細は別報<sup>4)</sup>に述べるが、それはSunとBauerの方法で本質的に生ずる粒界の移動にともなう駆動力の低下に起因するものである。また、保持温度が変わると直線の傾きが変化することが観察される。

さらに、Fig. 3のグラフの直線の傾きから、粒界の易動度

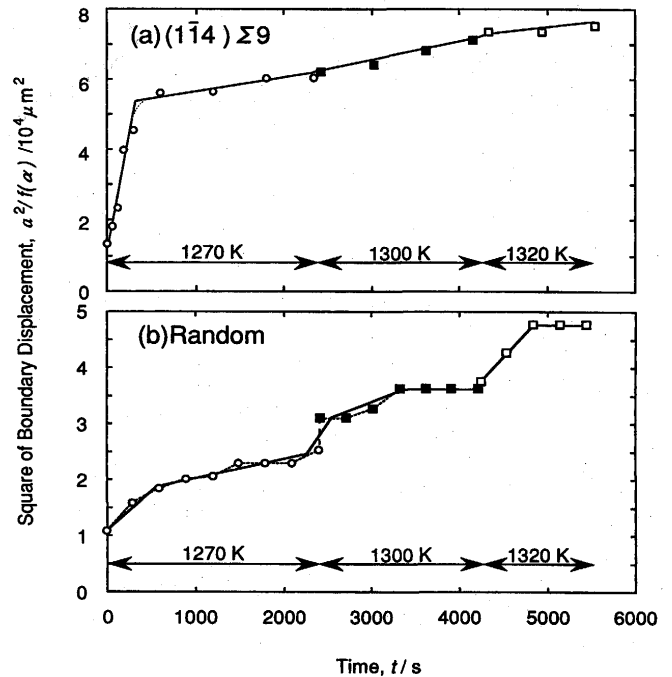


Fig. 3. The relation between square of grain-boundary displacement,  $a^2$ , and time,  $t$ , (a)  $(1\bar{1}4)\Sigma 9$  coincidence boundary and (b) random boundary.

と粒界エネルギーの積 $2M\gamma_b$ が得られ、 $(1\bar{1}4)\Sigma 9$ 対応粒界とランダム粒界では $(1\bar{1}4)\Sigma 9$ 対応粒界の方が大きいことがわかる。また、 $(1\bar{1}4)\Sigma 9$ 対応粒界とランダム粒界の粒界エネルギーの差はほとんどない<sup>8,9)</sup>ことが知られているので、 $(1\bar{1}4)\Sigma 9$ 対応粒界の易動度はランダム粒界のそれよりも大きいことになる。なお、1320Kの初期ではランダム粒界の $2M\gamma_b$ が逆に大きい、これはランダム粒界と $(1\bar{1}4)\Sigma 9$ 対応粒界の角度 $\alpha$ がそれぞれ約 $8^\circ$ と $11^\circ$ でランダム粒界の移動の駆動力が約1.5倍大きいことに起因する粒界移動機構の違いによるものと考えられる。さらに、Fig. 3においてプロット点を直線近似したが、(b)では点線で示したようにjerkey motionのような傾向が見られる。しかし、前述のように連続的な観察ではjerkey motionは見られておらず、またX線トポグラフィーの分解能が約 $10\mu\text{m}$ であることを考えると、Fig. 3(b)の測定値のバラツキは実験誤差と考えるのが妥当であろう。

#### 4. 結論

高純度Fe-3wt%Si合金双結晶で作製した $(1\bar{1}4)\Sigma 9$ 対応粒界( $\phi=39^\circ$ )と $[110]$ 軸でのランダム粒界( $\phi=156^\circ$ )の2種類を用いて、X線トポグラフィーによる粒界移動のその場観察を行い、その粒界移動について検討を行った。その結果、以下のことが明らかとなった。

(1) 巨視的な粒界移動は約1170Kより確認された。

(2) 粒界移動距離の2乗は時間に比例した。

(3) 移動初期と後期では移動距離の2乗と時間の関係を示す直線の勾配が異なる。

(4) 今回実験を行った温度域では、 $(11\bar{4})\Sigma 9$  対応粒界の易動度はランダム粒界のそれよりも大きい。

本研究は高エネルギー物理学研究所共同利用実験課題(No.94G143)として行われた。本研究を行うにあたり、実験施設を使用させて頂いた高エネルギー物理学研究所放射光実験施設河田洋博士に深く感謝する。なお、本研究は平成6年度科学研究費助成一般(B)によって行われたものである。ここに特記して感謝の意を表する次第である。

## 文 献

- 1) 例えば, Y.Ushigami, Y.Suga, N.Takahashi, Y.Chikura and H.Kii: *J.Mater. Eng.*, **13** (1991), 113.
- 2) Y.Yoshitomi, Y.Ushigami, J.Harase, T.Nakayama, H.Masui and N.Takahashi: *Acta Met.*, **42** (1994), 2593.
- 3) H.Kurishita, A.Oishi, H.Kubo and H.Yoshinaga: *J.Jpn. Inst. Met.*, **47** (1983), 546.
- 4) 中島英治, 上田利行, 連川貞弘, 市川活之, 吉永日出男: *鉄と鋼*, **82** (1996), 238.
- 5) S.Tsurekawa, T.Ueda, K.Ichikawa, H.Nakashima, Y.Yoshitomi and H.Yoshinaga: *ICGG-II*, in press.
- 6) R.C.Sun and C.L.Bauer: *Acta Met.*, **18** (1970), 635.
- 7) 川崎宏一, 松尾宗次, 牛神義行, 河田 洋: *鉄と鋼*, **11** (1991), 2044.
- 8) D.Wolf: *Phil. Mag.*, **62** (1990), 447.
- 9) E.D.Hondors: *Technique of Metals Research*, ed. by R.Bunshah, Vol.6 (A), Chapter 8A, John Wiley&Sons, New York, (1970).