

Fe-3%Si合金の二次再結晶挙動におよぼす 冷延率の影響

島津 高英*・新井 聡*²・酒井 知彦*³・椿野 晴繁*⁴

Effects of Cold Rolling Reduction on Secondary Recrystallization of Fe-3%Si Alloy

Takahide SHIMAZU, Satoshi ARAI, Tomohiko SAKAI and Harushige TSUBAKINO

Synopsis : The principal subjects discussed in this paper are the effects of cold rolling reduction on secondary recrystallization and magnetic properties of Fe-3%Si alloy. One-stage cold rolling process, which is known as a production method of high permeability grain-oriented silicon steel containing AlN precipitates, induced very unstable secondary recrystallization with too high cold reduction above 87%. Sharp deterioration of magnetic properties because of high reduction is related to the presence of fine grains, which mean poorly oriented grains deviating widely from the {110}<001> grains. This incomplete secondary recrystallization is supposed to be caused by the steps as follows: The higher cold rolling reduction causes the weaker {110}<001> orientation in primary recrystallized texture, and the secondary recrystallization temperature increases. The surface grains coarsen prior to secondary recrystallization. The larger surface grains, which are poorly oriented, consume the subsurface grains of the {110}<001> nuclei. Therefore the more fine grains were observed in the finally annealed structure with the higher reduction.

The two-stage cold rolling process was studied to clarify the effects of the first and second cold rolling reduction on secondary recrystallization. The second cold rolling affected magnetic properties rather than the first cold rolling in the two-stage cold rolling process.

Key words: Fe-3%Si; grain-oriented silicon steel; crystal structure; cold rolling; secondary recrystallization; texture; MnS; AlN.

1. 緒言

電気エネルギーは、発電所で発電され変圧器を介して送配電される。方向性電磁鋼板は主に、この変圧器に利用されている。方向性電磁鋼板の結晶は、圧延面に平行に{110}面、圧延方向に<001>軸をそろえた、{110}<001>方位粒(Goss方位粒)からなっている。現在、工業化されている方向性電磁鋼板の<001>軸の圧延方向からのずれ角度は、10°以内と極めて小さい。この結晶方位への特異な選択的成長は、二次再結晶と称され、今まで数多く研究されている¹⁻¹³⁾。二次再結晶によるGoss方位形成に必要な条件としては、一次再結晶の粒成長を抑制する析出分散相¹⁻⁶⁾や粒界偏析元素⁷⁾以外に、一次再結晶集合組織⁸⁻¹³⁾も重要であることが知られている。また、冷間圧延(以後、冷延と記す)での圧下率は、一次再結晶集合組織形成に寄与して、その結果、二次再結晶に影響する。例えば、方向性電磁鋼板を発見したGoss¹⁴⁾の特許では、冷延率を約60%とする2回の冷延を一次再結晶焼鈍をはさんで行い、次いで二次再結晶焼鈍する製造プロセスであることが強調されている。

析出分散相MnSとAlNを一次再結晶での結晶粒成長抑制に利用し、一回冷延法で製造される高透磁率方向性電磁鋼板は、80~90%の強冷延を行うのが特徴である¹⁵⁾。しかし、とくに高い冷延率で、細粒と呼ばれる二次再結晶しない部分が発生する問題がある。中島ら¹⁶⁾は、冷延率が高すぎる場合の細粒発生の原因は、一次再結晶集合組織において{110}<001>方位核が少なくなるためとしている。しかしながら、その詳細は明らかになっていない。

本研究の目的は、析出分散相MnSとAlNを含む高透磁率方向性電磁鋼板における冷延率と二次再結晶挙動との関係を明らかにすることである。初めに、この成分系の従来の基本プロセスである一回冷延法で実験し、冷延率83~91%の範囲での二次再結晶挙動を調べる。次いで、二回冷延法を採用し、一次と二次の冷延圧下率を幅広く変更した場合の冷延率の二次再結晶挙動への効果を調べた。

2. 実験方法

Mn, S, Al およびNを含有するFe-3.0mass%Siの鋼塊を1623Kで30minの溶体化処理後、熱間圧延を行った熱延板

平成13年10月11日受付 平成13年11月26日受理 (Received on Oct. 11, 2001; Accepted on Nov. 26, 2001)

* 新日本製鐵(株) 広畑技術研究部(現:(株)ニッテクリサーチ)(Hirohata R & D Lab., Nippon Steel Corp., now Nittech Research Corp., 1 Fuji-cho Hirohata-ku Himeji 671-1188)

*2 新日本製鐵(株) 広畑技術研究部(Hirohata R & D Lab., Nippon Steel Corp.)

*3 新日本製鐵(株) 広畑技術研究部(現:(財)労働科学研究所)(Hirohata R & D Lab., Nippon Steel Corp., now Institute for Science of Labour)

*4 姫路工業大学(Himeji Institute of Technology)

を用いて、冷延率を変化させた。熱延板の化学成分を Table 1 に示す。

2.20 mm 厚さの熱延板を、Fig. 1 に示す一回冷延工程を施した。すなわち、微細なAINを析出させる高温焼鈍(1373K×180s, N₂ 雰囲気)、常温での冷間圧延、フェライト単相で二次再結晶させるための湿潤水素雰囲気中の脱炭焼鈍(1113K×240s)、次いで水素と窒素混合雰囲気中の二次再結晶焼鈍(1473K×20h)で二次再結晶を行わせた。冷延率は、83~91%の範囲で変えた。なお、冷延は4段圧延機を用い、ワークロール径100mmφであり、圧延方向を各パスごとに逆にするレバース圧延とした。パス回数は、例えば2.20mm厚さの熱延板から0.30mm仕上げ厚まで約20パスであった。脱炭焼鈍後の鋼板中のC量は、0.002 mass%以下であった。各工程段階での光顕組織、集合組織および二次再結晶後の磁気特性などを調べた。また、同じ成分の熱延板を二回冷延法で実験した。すなわち、上記の一回冷延法の前頭に冷延を付け加える。一次冷延、高温焼鈍、二次冷延、脱炭焼鈍、二次再結晶焼鈍のプロセスであり、各焼鈍条件は一回冷延法と同じである。一回冷延法と同様に、一次と二次の冷延率を変更し、また各工程段階での試片を採取して組織や磁気特性を調べた。

各厚さ位置における集合組織の極密度は、最表面から順次、HFを含むH₂O₂溶液中で化学研磨を行ったND面(圧延面に平行)をX線回折で調べた。また、極点図は、板表面から約1/6深さ部分の厚さ70μm試料を表裏からHFを含むH₂O₂溶液中で化学研磨して採取し、X線回折で求めた。これらの集合組織は、MoKα管球のX線回折によって得られた。また、二次再結晶後の組織は、357Kに煮沸した

35% HClで腐食し観察した。

析出分散相の分散状態については、脱炭焼鈍板表面から10μmと40μm深さのND面をSPEED法¹⁷⁾で電解し、電解面に露出した析出物をアセチルセルローズフィルムを貼ってはぎ取り抽出レプリカを作成し、透過電子顕微鏡で観察した。

二次再結晶途中での試料は、75% H₂と25% N₂雰囲気中での速度50K/hの昇温過程に、1253~1373K間のさまざまな温度で炉から順次試料(70mm角)を引き出し、大気放冷してから組織観察を行った。

磁気特性は絶縁皮膜を片面あたり4g/m²塗布し773Kで15s焼き付けしてから、60mm幅×300mm長の試片について単板磁気測定で評価した。

3. 実験結果

3.1 一回冷延法の二次再結晶

二次再結晶後の磁気特性を冷延率に対して示すと Fig. 2 のようになる。縦軸には、最大磁束密度1.7T、周波数50Hzで励磁した鉄損 $W_{17/50}$ および800 A/m 磁界での磁束密度 B_8 を示した。鉄損は、冷延率83%から87%にかけて改善されるが、87%を超えると劣化し始めて、89%以上になると非常に悪くなる。冷延率が83%から87%にかけての鉄損改善の理由は、磁束密度がこの冷延率で1.93Tとほぼ一定であることから、結晶方位によるものではなく、単純に厚さが薄くなることによる電流損の減少のためと考えられる。また、87%を超える強冷延で鉄損が著しく劣化

Table 1. Chemical composition of the steel (mass%).

C	Si	Mn	S	Al	N
0.1	3.0	0.1	0.03	0.03	0.01

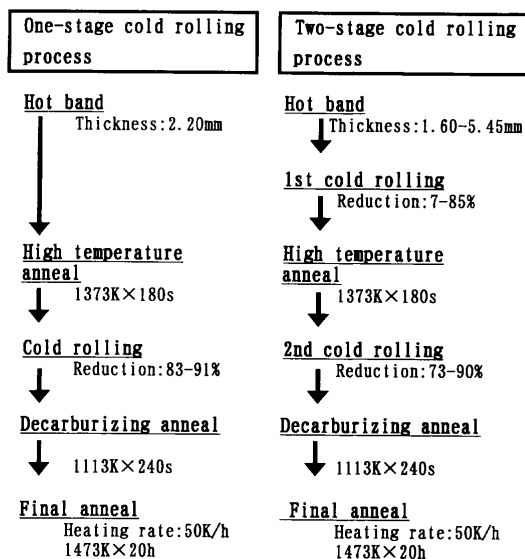


Fig. 1. Processing conditions of laboratory test.

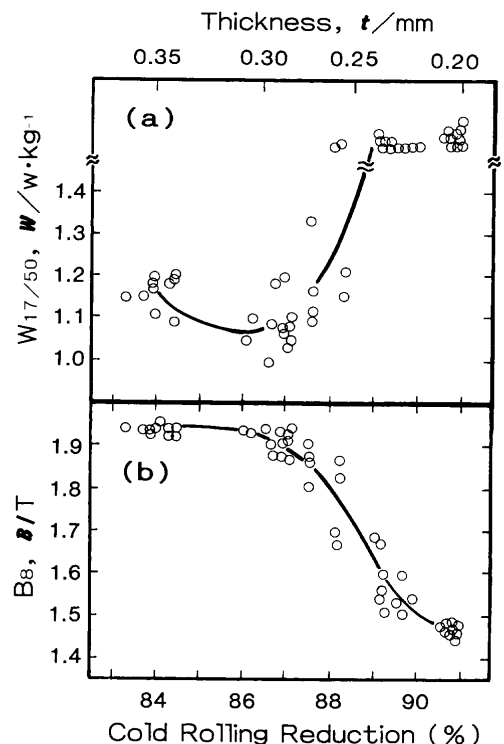


Fig. 2. Effect of cold rolling reduction on core loss $W_{17/50}$ (a) and magnetic flux density B_8 (b).

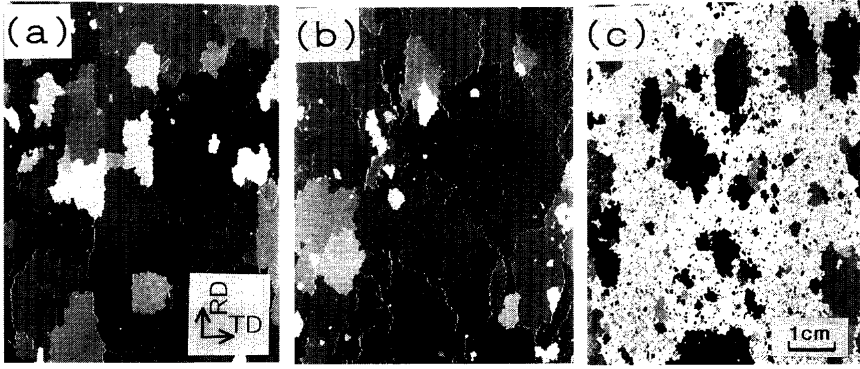


Fig. 3. Macrostructures of finally annealed specimens. Cold rolling reduction: (a) 84.1%; (b) 87.3%; (c) 90.0%.

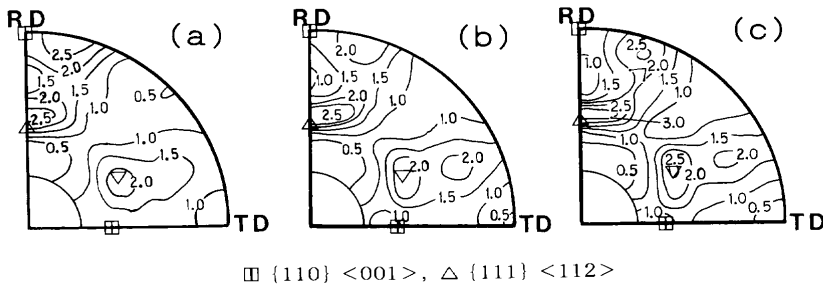


Fig. 4. {100} pole figures at a depth of 17% thickness in decarburizing annealed specimens. Cold rolling reduction: (a) 84.1%; (b) 87.3%; (c) 90.0%.

するのは、(b)より磁束密度が劣化するためである。

Fig. 2に示した磁性測定を完了した鋼板の一部について、鋼板の表面組織を観察した結果をFig. 3に示す。84.1%冷延率(板厚0.35 mm)および87.3%冷延率(板厚0.28 mm)の二次再結晶焼鈍後の組織((a)と(b))は、直径が1 cm以上の粗大な二次再結晶粒が鋼板全体に成長していた。しかし、90.0%冷延率(板厚0.22 mm)の二次再結晶焼鈍後の組織(c)は、粒径1 mm程度の細粒が約80%も占める結果であった。この細粒とは、板厚を貫通するまで正常粒成長した一次再結晶組織のことである。すなわち、{110}<001>方位から著しくずれた二次再結晶しなかった組織でもある。冷延率が88%以上で細粒が発生し始め、冷延率の増加とともに細粒が増加し、91%になると鋼板全面が細粒で覆われることが観察された。Fig. 2の冷延率88%以上での磁性の劣化原因は、この細粒の形成によると考えられる。

田口¹⁸⁾は、二次再結晶が完了したのちの0.30 mm厚の方向性電磁鋼板を化学研磨により、すなわちマトリックスの結晶方位を変えずに減厚すると、0.10 mm厚まで鉄損改善を認めている。しかし、この化学研磨による減厚処理は歩留劣化が大きい工業的ではない。このため、冷延で薄くする必要があるが、上記の強冷延での細粒発生を抑制することが課題となる。

この細粒発生メカニズムを調査する目的で、二次再結晶が始まる前の脱炭焼鈍板集合組織(Fig. 4)と二次再結晶進行途中での鋼板断面組織(Fig. 5)を観察した。脱炭焼鈍板の板厚の約1/6深さでの{100}極点図を、Fig. 4に示す。84.1%から87.3%、90.0%へと強冷延になるに伴って、{110}<001>方位が減少し、{111}<112>方位が増加する傾向

にある。

二次再結晶途中での結晶粒成長の様子を観察するため、昇温途中に試料を炉から順次引き出した鋼板断面の光顕観察を行った(Fig. 5)。Fig. 5の各再結晶組織は、ND方向に板厚全体を示している。また、配列としては、冷延率を縦方向に、炉から引き出した温度を横方向とした。それぞれの冷延率での高温側の断面組織は、すべて二次再結晶部分から採取された。鋼板厚さを貫通するまで急速に成長した粗大な結晶粒は、すべて二次再結晶粒である。

Fig. 5では、二つの特徴的な組織変化が見られた。一つは、板厚中心付近の組織である。例えば85.5%冷延率の鋼板((a-1)~(a-6))では、低温側の1253K(a-1)から1303K(a-2)までの昇温過程で中心層フェライト結晶粒サイズは、約10 μm径のままほとんど粒成長しない。しかし、1323K(a-3)になると突然、板厚を貫通するような巨大な結晶粒径が現れ、異常粒成長したことがわかる。この二次再結晶粒が爆発的に粒成長する温度は、冷延率に依存する。つまり、強冷延になると、二次再結晶する温度が上昇することが観察された。Fig. 5におけるもう一つの特徴は、巨大な結晶粒が出現する前の段階で、最表面層の組織に見られた。例えば、88.9%冷延率鋼板の再結晶組織((c-1)~(c-6))において、温度1253K(c-1)では表層も中心層も同じ約11 μmの結晶粒径である。温度が上昇しても中心層の結晶粒は、ほとんど粒成長しないが、最表面層の結晶粒のみ、1253Kから1343Kにかけて単調に、約11 μm(c-1)から36 μm(c-4)にまで粒成長することが観察された。

3.2 二回冷延法の二次再結晶

一回冷延法では、冷延での仕上げ厚さが薄くなることによる冷延率の増大は必然である。これに対して、熱延板に

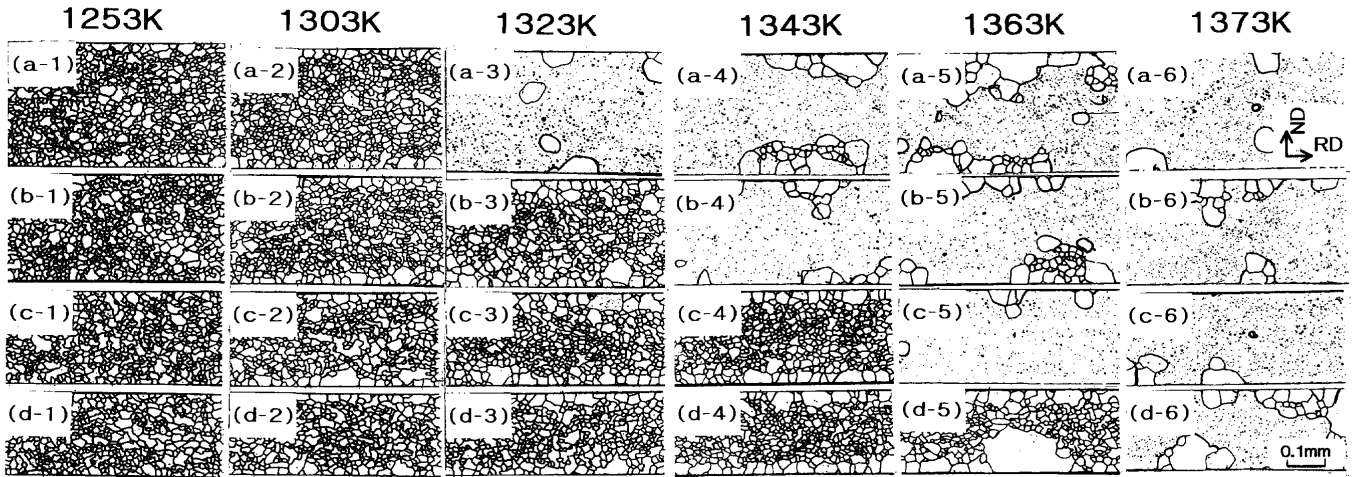


Fig. 5. Microstructures showing grain growth during secondary recrystallization at the heating stage of final anneal. Cold rolling reduction: (a-1)~(a-6) 85.5%; (b-1)~(b-6) 87.3%; (c-1)~(c-6) 88.9%; (d-1)~(d-6) 90.0%.

予備的に冷延（一次冷延）を行ってから、あとは一回冷延法と同じプロセスで処理すれば、二回目の冷延（二次冷延）は、一回冷延法の冷延よりも軽圧下となる。また、熱延板の板厚を変更すれば、一次と二次との冷延率を広い範囲で組み合わせることが可能となって、冷延率が二次再結晶に与える効果をより広範囲に把握することができる。

Fig. 1 に示す一回と二回冷延法とで、冷延率を広く変更した、最終仕上げ厚さ0.225 mmの磁気特性を Fig. 6 に示す。各冷延率条件で、ほぼ3枚の単板磁気特性試験片を採取して測定した。一次冷延率0%は、一回冷延法の意味である。鉄損 $W_{17/50}$ が1.0 W/kg未滿の安定して優れた特性（○印）を示す領域は、限られており、一次冷延率が15~35%、二次冷延率が85~87%の範囲であることがわかる (Fig. 6(a))。また同様に、優れた磁束密度 $B_{50} \geq 1.92$ Tを示す領域は、一次冷延率が0~35%、二次冷延率が85~88%の範囲にあった(Fig. 6(b))。

磁気特性測定を終了した試料の表層をHClで腐食して組織観察をした一部、熱延板厚さ2.15 mmの結果を Fig. 7 に示す。Fig. 7(a) の二次再結晶組織は、一回冷延法の冷延率89.5%で、細粒が全体組織の約30%含まれている。(b)と(c)は、二回冷延法で処理したもので、二次冷延率がそれぞれ86.5%と83.9%であるが、細粒は一切発生してない。Fig. 6(b) に示す $B_{50} < 1.89$ T (▲印) で、二次冷延率が88%以上の試料についてはすべて、細粒が観察された。二次冷延率が増加すると、細粒面積が増加する傾向であった。また、二次冷延率が85%以下では、すべての試料で細粒発生が認められなかった。一次と二次冷延の圧下率配分が二次再結晶に及ぼす効果について、さらに組織および結晶学的に調べる目的で、二次冷延前の光顕組織と集合組織、脱炭焼鈍板の集合組織について観察を行った。

Fig. 8 に、高温焼鈍板の全板厚断面の光顕組織を示した。Fig. 8 に示す (a)~(c) 条件は、それぞれFig. 7の二次再結晶組織での条件 (a)~(c) に等しい。熱延板を高温焼鈍した組

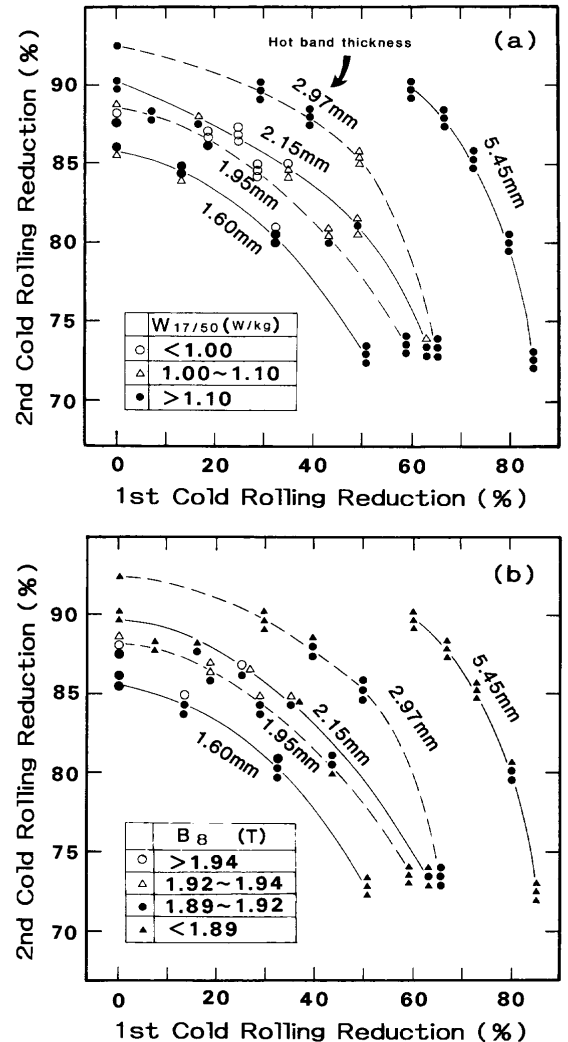


Fig. 6. Effects of the 1st cold rolling reduction and the 2nd cold rolling reduction on core loss (a) and magnetic flux density (b).

織である Fig. 8(a) は、表層近傍がフェライト再結晶粒で構成されており、中心層は網目状カーバイトと延伸フェライトの未再結晶粒の層状組織となっている。また、熱延板を

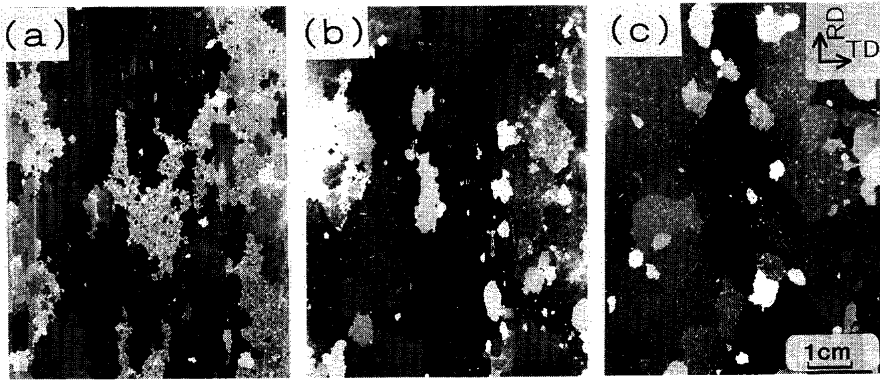


Fig. 7. Macrostructures of finally annealed specimens of 0.23 mm thickness. The 1st→2nd cold rolling reduction: (a) 0%→89.5%; (b) 22.3%→86.5%; (c) 34.9%→83.9%.

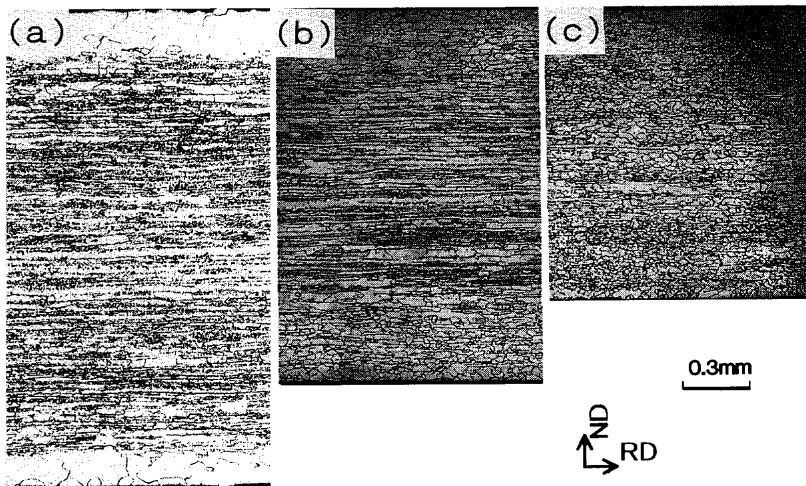


Fig. 8. Microstructures of specimens annealed at 1373K. The 1st cold rolling reduction: (a) 0%; (b) 22.3%; (c) 34.9%.

一次冷延 (22.3%) し、次いで高温焼鈍した (b) の組織は、(a) の組織に比較して表層のフェライト粒が冷延と再結晶により細粒化しているが、中心層の延伸フェライト圧延組織はほとんど再結晶していない。また、一次冷延率を 34.9% まで増加した (c) の中心層組織では、(b) に比較してより再結晶していた。

この高温焼鈍板の結晶配向を厚み方向に調べ、Fig. 9 に示した。 $\{100\}$ 、 $\{110\}$ および $\{111\}$ 方位について、圧延面に平行 (ND 面) に化学研磨した面を X 線回折で測定した。一次冷延を実施しない場合 (a) は、厚さ方向における結晶方位の変化が大きいが、中心層では、0.03 にまで低下する。また、中心層では圧延安定方位の $\{100\}$ や $\{111\}$ 極密度が大きい。一方、(a) と同じ熱延板に一次冷延を 34.9% 圧下で実施した後、高温焼鈍した鋼板 (b) の集合組織は、厚さ方向に極密度変化が少ない結果となった。これは、Fig. 7 の光顕組織で見られた中心層付近の再結晶組織形成に対応している。すなわち、熱延板中心層のフェライト延伸粒は、 $\{100\}\langle 011 \rangle$ から $\{111\}\langle 110 \rangle$ への RD// $\langle 110 \rangle$ を回転軸とする $\langle 110 \rangle$ 繊維組織であるが、冷延と再結晶とにより、 $\{110\}$ 方位が増加したためであろう。

高温焼鈍板および脱炭焼鈍板について、それぞれの板厚の約 1/6 深さでの $\{100\}$ 極点図を測定し、Fig. 10 に示した。高温焼鈍後の組織では、高温焼鈍前に冷延を施さなかった

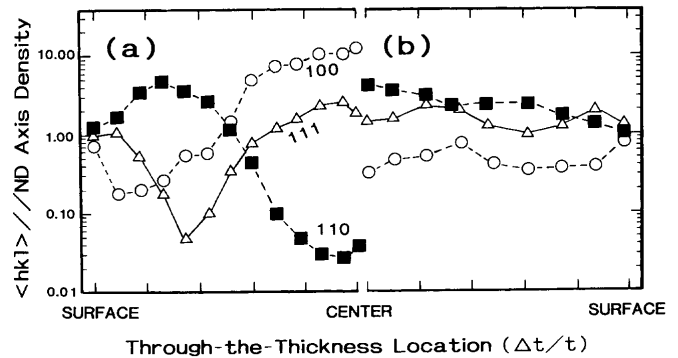


Fig. 9. Texture gradient in specimens annealed at 1373K. The 1st cold rolling reduction: (a) 0%; (b) 34.9%.

試料 (a-1) の主方位は、 $\{110\}\langle 001 \rangle$ 方位を TD// $\langle 011 \rangle$ を軸として約 10° 回転させた方位である。また、34.9% 圧下の冷延をしてから高温焼鈍した試料 (a-2) では、 $\{110\}\langle 001 \rangle$ 方位や圧延安定方位の $\langle 110 \rangle$ 繊維組織などが混在している。

脱炭焼鈍板では、 $\{110\}\langle 001 \rangle$ 方位に対応する位置の極点の対ランダム強度比が一回冷延法試料 (b-1) の 0.5 に対して、二回冷延法試料 (b-2) は、1.0 へと 2 倍増加している。また、 $\{100\}\langle 011 \rangle$ 方位に対応する位置の極点の対ランダム強度比については、二回冷延法試料の方が少し減少している。

一回冷延法での冷延率が、二次再結晶が進行中の鋼板断面組織にどう影響するかを、Fig. 5 に示す異常粒成長挙動

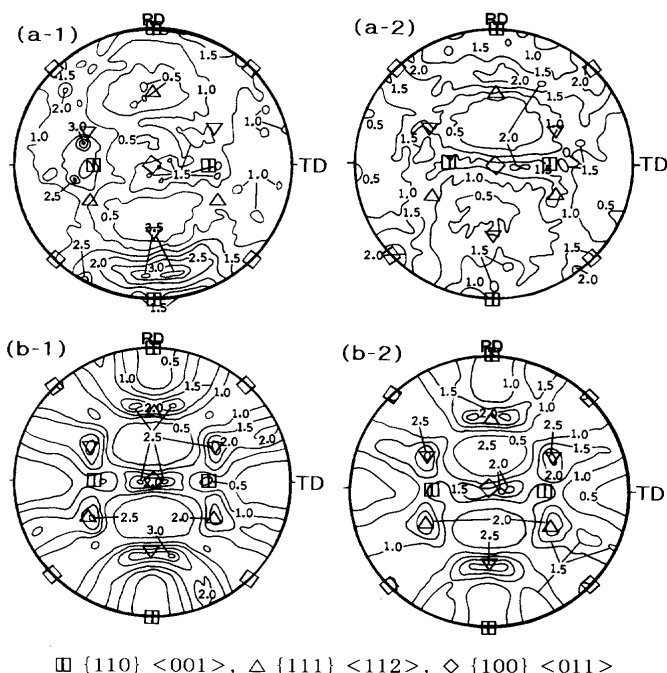


Fig. 10. {100} pole figures at a depth of 17% thickness in specimens annealed at 1373K (a-1, a-2) and decarburizing annealed specimens (b-1, b-2). The 1st cold rolling reduction: (a-1) 0%; (a-2) 34.9%. The 1st→2nd cold rolling reduction: (b-1) 0%→89.5%; (b-2) 34.9%→83.9%.

で見たが、二回冷延法でも同様な調査を行った。熱延板には、2.15mm厚さのものを用いた。二次再結晶後の磁気特性に対して、一次冷延率よりも敏感に影響した二次冷延率を固定(85.0%)し、一次冷延率を7~38%に調整することで、二次冷延後の仕上げ厚を0.30~0.20mmにした。この試料をFig.5と同じ方法で、50K/h昇温中、温度範囲1233~1333Kを20K上昇するごとに炉から引き出した。HClで腐食し板厚1/6深さの面において、巨大な二次再結晶粒の面積比を画像解析装置で求めた。その結果をFig.11に示す。どの板厚試料も1293Kで二次再結晶粒が観察され始め、1333Kではほとんど二次再結晶が完了していた。また、二次再結晶粒の粒成長過程での1293~1333K範囲内では、0.30や0.27mm試料に比べて、薄い0.23や0.20mm試料の方が粒成長が遅れる傾向であった。

4. 考察

4.1 高冷延率での細粒の発生機構

中島ら¹⁶⁾は、析出分散相MnSとAINを二次再結晶に利用するFe-3%Si合金系において、一回冷延法で冷延率を80~94%の範囲で変え、二次再結晶挙動を調査する実験を行った。その結果、冷延率88%までは細粒が発生しないが、90%で一部に細粒が見られ、92.5%で細粒が増加し、94%では全面細粒となることを確認している。強冷延での細粒発生機構としては、二次再結晶前の一次再結晶集合組織において、二次再結晶核となるGoss方位の絶対量が、

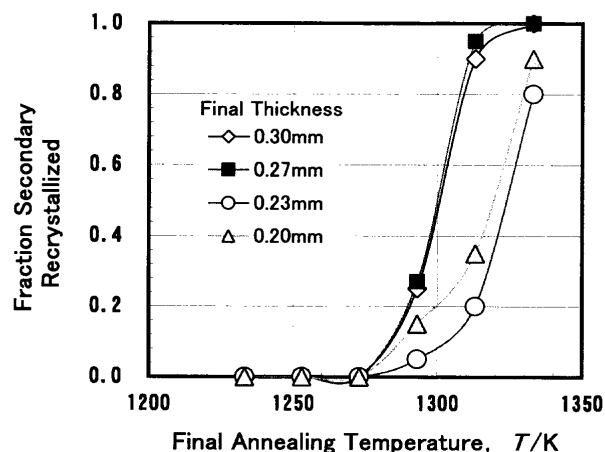


Fig. 11. Fraction secondary recrystallized as a function of temperature of specimens withdrawn from the furnace at the heating stage of a final anneal.

強冷延になると不足するためであるとしている。今回の脱炭焼鈍後の一次再結晶集合組織でも、高冷延率でのGoss方位粒は減少した(Fig.4)。しかしながら、Goss方位粒が不足するために、二次再結晶が起きないと結論することができるであろうか。脱炭焼鈍板の一次再結晶粒径は約10μmで、二次再結晶粒径は数cmにも達する。このため、二次再結晶の成長過程で、Goss方位粒は計算上、約1億個もの他の方位粒を蚕食して粒成長する。つまり、二次再結晶核の存在頻度は極めて少なくても、二次再結晶は起こりうると判断されるので、Goss方位核が強冷延で減少することが、二次再結晶しないことを直接説明できるとは考えにくい。

細粒は、二次再結晶しなかった組織である。このため、細粒の原因を求めるには、二次再結晶するかどうかの岐路にあたる二次再結晶直前の組織に着目するのは自然である。昇温中の二次再結晶挙動を鋼板断面組織で見たFig.5では、以下の2点の組織的特徴が観察された。①冷延率が增大すると、二次再結晶粒が爆発的に成長を始める温度が上昇する(二次再結晶の潜伏期間が長くなる)。②二次再結晶粒が爆発的に成長を始める直前の一次再結晶組織においては、とくに高温で、最表面の結晶粒が内面の結晶粒よりも粗大に粒成長している。

二次再結晶直前の一次再結晶組織に観察された最表面粗粒は、二次再結晶の核ではなく、二次再結晶核は、板厚の約1/6深さに存在することが知られている。酒井ら^{19,20)}と松尾ら^{11,21)}は、本報告と同じMnSとAINを含むFe-3%Si合金で、二次再結晶初期段階において、厚さ方向に結晶方位分布をエッチピット法で調査した。その結果、Goss方位粒は表面から40~60μmの深さ位置でところどころにコロニー状に分布しており、二次再結晶粒が爆発的に成長する直前、Nielsen²²⁾が示した幾何学的合体(Geometrical coalescence)が起きる。そして、ND方向20μm以下、ND面に数百μm径の円盤状二次再結晶粒にまで成長し、二次再結

晶核となることを観察した。試料厚みが285 μm なので、この位置は約1/6深さに相当する。井口ら^{10,23,24)}も、MnSe, Sbを含むFe-3%Si合金の局所的結晶方位をKossel法で同定し、二次再結晶前の脱炭焼鈍板表面から30~50 μm 深さの位置(試料厚300 μm)で正確なGoss方位粒がコロニー状に数多く存在しており、この正確なGoss方位粒同士は、幾何学的合体によって二次再結晶核になることを示した。

二次再結晶進行過程の断面組織を示すFig. 5で、最表面と板厚の1/6深さの結晶粒径を求め、その結果をTable 2に示した。なお、最表面粒は厚み方向のサイズを求めて示した。冷延率が高くなると、二次再結晶する温度が上昇し、一次再結晶マトリックス中での最表面粒がより粒成長して粗粒となることがわかる。例えば、90.0%の強冷延では、二次再結晶直前の1363Kで最表面粒の結晶粒界は、平均で36.3 μm 深さにまで到達している。1/6深さが36.7 μm であるので、二次再結晶核が存在する位置近傍が表面粒に侵食されている。本実験の一回冷延法では、冷延率が87%までは細粒の発生がなく、88%以上で細粒が生じ、90%ではほとんど全面が細粒となった(Fig. 3)。冷延率の増加で細粒が増える理由としては、Table 2に示すように、強冷延で二次再結晶する温度が高温側にシフトすることによって、二次再結晶直前の組織において、最表面粒が板厚の1/6深さにまで侵食しやすくなることに関連していると考えられる。なぜならば、板厚の1/6深さ地点のGoss方位粒コロニーが合体し選択的に異常粒成長する前の段階で、最表面の結晶粒が粗大に正常粒成長し1/6深さ以上にまで侵入してしまえば、Goss方位粒がサイズ効果で蚕食され、Goss方位核の選択的二次再結晶による成長は困難となるからである。なお、表面粒の主方位は、Fig. 4とFig. 10の脱炭焼鈍板表面層の極点図から判断して、 $\{111\}\{112\}$ 方位と考えられる。

二次再結晶の直前で、最表面の結晶粒径が粗大化する原因を調べる目的で、析出分散相のサイズおよび分布状態を透過電子顕微鏡で調査した。試料は一回冷延法での冷延率87%、二次再結晶前の脱炭焼鈍板0.28 mm厚を用い、表面から10 μm と40 μm 深さのND面を観察した。この結果を、Fig. 12に示す。20~150 nmサイズの粒状析出物が、表面から40 μm 深さ(b)で多数観察されたが、表面から10 μm 深さ(a)では粒状析出物が非常に少なかった。このため、表面での析出分散相が少ないので、二次再結晶直前の高温において最表面の結晶粒界がピン止めされず、正常粒成長したと解釈される。

一般的に述べると、二次再結晶核が選択的に発達する必要条件^{25,26)}は、二次再結晶直前の段階において、析出分散相により一次再結晶マトリックスが粒成長抑制されている前提で、二次再結晶核が他の方位の一次再結晶核よりも大きいことである。この二次再結晶核が他の方位粒よりも粗粒となる理由としては、上述の① Goss方位粒の幾何学的

Table 2. Dependency of cold rolling reduction and heating temperature during a final anneal on grain growth of the surface grains toward ND.

Cold reduction	Surface grain size at heating temp., $d/\mu\text{m}$						1/6 of thickness $t/\mu\text{m}$
	1253K	1303K	1323K	1343K	1363K	1373K	
85.5%	13.2	19.7	*	*	*	*	53.3
87.3%	10.6	16.9	19.5	*	*	*	46.7
88.9%	16.4	21.8	26.8	30.8	*	*	40.0
90.0%	10.9	19.2	21.9	26.7	36.3	*	36.7

* : Secondary recrystallized grain

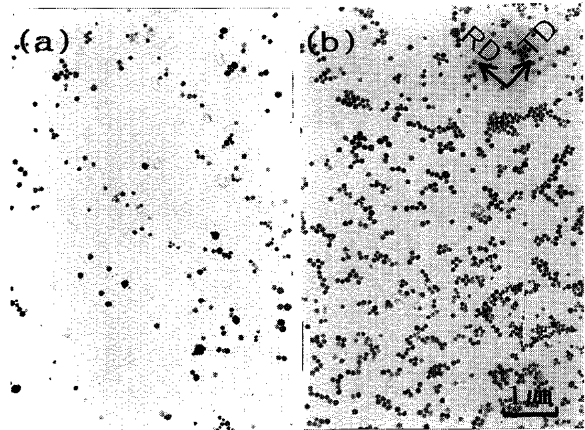


Fig. 12. Dispersions of precipitates in decarburizing annealed specimens in the surface beneath 10 μm (a) and 40 μm (b).

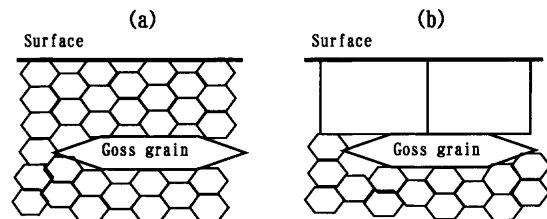


Fig. 13. Schematic illustration at the stage just before onset of secondary recrystallization showing the potential abnormal grain growth (a) and the potential normal grain growth (b).

合体^{10,11,19~24)}以外に、② Goss方位粒と接する他の方位粒との粒界が $\Sigma 9$ などの対応方位の関係²⁷⁻²⁹⁾、または③ 20~45度の高傾角粒界を形成している^{13,30)}などの考えが最近、提案されている。

本研究では、二次再結晶核が①~③のどの機構で、他の方位粒よりも大きくなるのか明らかでない。しかし、強冷延での細粒発生機構に関して、冷延率の大小で二次再結晶直前の組織が大きく異なることが明らかになった。これを、模式的にFig. 13に示す。Fig. 13(a)は、Goss方位粒が爆発的に成長を始める直前の段階での断面組織であり、内層にコロニー状に存在するGoss方位粒同士が幾何学的に合体して、粗大な二次再結晶核にまで成長した状態を示している^{10,11,19-24)}。この状態からあとは、二次再結晶核である粗大なGoss方位粒は、周りの他の方位粒を蚕食しながら選択的に異常粒成長して、最終的には数cmサイズのGoss方位粒からなる組織が形成される。一方、Fig. 13(b)も内層のGoss方位粒同士が幾何学的に合体を完了した段階

での断面組織であるが、この合体したGoss方位粒よりも最表面の結晶粒径が粗大に粒成長しており、二次再結晶核であるGoss方位粒が粗大な最表面粒に蚕食されようとしている。このため、Goss方位粒の選択的な異常粒成長は生ぜず、最表面粒の正常粒成長が起きて、最終的に約1mmサイズの細粒となって著しく磁気特性が劣化する。最表面の結晶粒が粗大化する原因は、強冷延になると、二次再結晶粒が爆発的に成長を開始する温度が上昇し、析出物の少ない最表面粒が粒成長しやすいことによると推定される。

4.2 一回冷延法と二回冷延法の二次再結晶

一次冷延と二次冷延との圧下率配分と磁気特性の関係を示すFig. 6には、一回冷延法と二回冷延法との両者の結果が含まれている。このため、Fig. 6で、一回冷延法と二回冷延法との二次再結晶を比較することができる。一回冷延法（一次冷延率0%）の場合、優れた鉄損 $W_{17/50} < 1.0$ W/kgは、2.15mm厚さの熱延板を用いた88%冷延の試料3枚の内1枚で得られた。二回冷延法では、同じ $W_{17/50} < 1.0$ W/kgが、二次冷延率85~87%の範囲で比較的安定に得られている。また、Fig. 2の一回冷延法では、87%冷延で最も優れた鉄損が得られている。これらのことから、一回冷延法、二回冷延法いずれの場合でも、脱炭焼鈍前の冷延率は85~87%が最適である。また、両冷延法とも脱炭焼鈍前の冷延率は、87%を超えると二次再結晶不良である細粒が発生し、85%未満の冷延率では、細粒は発生しないが磁束密度が低下した。

一次冷延率については、0~35%の比較的広い範囲で磁束密度の良好範囲がある。また、一次冷延を実施した場合、一次冷延率が30%以上で高温焼鈍板の中心層は、再結晶組織となった(Fig. 8(c))が、この組織変化がもたらす二次再結晶後の磁気特性への積極的な効果は明らかでなかった。以上のことから、一次冷延は、二次冷延ほどには二次再結晶に影響していないと考えられる。

従来、析出分散相AINを含む成分系では、一回だけの強冷延（80%以上）が、正確なGoss方位への選択的二次再結晶を起こすための基本的原理とみなされてきた¹⁵⁾。しかし、二回冷延法でも、二次冷延を強冷延に調整（85~87%）さえすれば、正確なGoss方位への選択的二次再結晶が得られることがわかった。さらに言うならば、二次再結晶前の最終の冷延率が重要であって、一回とか二回の冷延の回数そのものには、さほど意味がないと考えられる。

5. 結言

Mn, S, Al と N を含むFe-3%Si熱延板を用いて、一回冷延

法と二回冷延法で処理し、二次再結晶に及ぼす冷延率の効果を検討した。その結果、以下のことが判明した。

(1) 二次再結晶前の冷延率は、85~87%の範囲で優れた磁気特性が得られたが、87%を超えると、細粒が発生した。二次再結晶での昇温過程の組織観察から判断して、細粒が発生する原因は、強冷延すると二次再結晶が始まる温度が高くなり、二次再結晶粒が周りの他の方位粒よりも粗大になる前に、最表面の結晶粒が粗大に正常粒成長し、内層にある二次再結晶核が蚕食されるためである。

(2) 従来の強圧下一回冷延法以外に、本研究の二回冷延法でも正確なGoss方位への選択的二次再結晶が得られた。二回冷延法においては、一次冷延率よりも二次冷延率の方が、二次再結晶に対して支配的な効果を及ぼす。

文 献

- 1) J.D.Fast: *Philips Res. Rep.*, **11** (1956), 490.
- 2) J.E.May and D.Turnbull: *Trans. AIME*, **212** (1958), 769.
- 3) S.Taguchi, A.Sakakura and H.Takashima: U.S. Patent, 3, 287, 183, (1966).
- 4) T.Matsuoka: *Tetsu-to-Hagané*, **53** (1967), 1007.
- 5) H.C.Fiedler: *IEEE Trans. Magn.*, **13** (1977), 1433.
- 6) T.Sakai, T.Shimazu, K.Chikuma, M.Tanino and M.Matsuo: *Tetsu-to-Hagané*, **70** (1984), 2049.
- 7) T.Saito: *J. Jpn. Inst. Met.*, **27** (1963), 186.
- 8) I.Gokyu, H.Abe and H.Takahashi: *J. Jpn. Inst. Met.*, **13** (1949), 9.
- 9) C.G.Dunn and P.K.Koh: *Trans. Metall. Soc. AIME*, **212** (1958), 80.
- 10) Y.Inokuti, C.Goto, M.Yanagisawa and F.Saito: *J. Jpn. Inst. Met.*, **57** (1993), 621.
- 11) M.Matsuo: *ISIJ Int.*, **29** (1989), 809.
- 12) J.Harase and R.Shimizu: *J. Jpn. Inst. Met.*, **54** (1990), 1.
- 13) N.Rajmohan, J.A.Szpunar and Y.Hayakawa: *Acta Metall.*, **47** (1999), 2999.
- 14) N.P.Goss: U.S. Patent, 1, 965, 559, (1934).
- 15) S.Taguchi: *Trans. Iron Steel Inst. Jpn.*, **17** (1977), 32.
- 16) S.Nakashima, K.Takashima and J.Harase: *Tetsu-to-Hagané*, **77** (1991), 1710.
- 17) F.Kurosawa, I.Taguchi and R.Matsumoto: *J. Jpn. Inst. Met.*, **43** (1979), 1068.
- 18) S. Taguchi: *J. Jpn. Inst. Met.*, **49** (1985), 238.
- 19) T.Sakai, M.Shiozaki and K.Takashima: *Tetsu-to-Hagané*, **66** (1980), S427.
- 20) T.Sakai, M.Matsuo, M.Tanino, T.Shindo and M.Shiozaki: Proc. 6th Int. Conf. on Textures of Materials, Vol. 2, ISIJ, Tokyo, (1981), 938.
- 21) M.Matsuo, T.Sakai, M.Tanino, T.Shindo and S.Hayami: Proc. 6th Int. Conf. on Textures of Materials, Vol. 2, ISIJ, Tokyo, (1981), 918.
- 22) J.P.Nielsen: Recrystallization, Growth and Textures, ASM, Metals Park, Ohio, (1966), 141.
- 23) Y.Inokuti, C.Maeda, Y.Ito and H.Shimanaka: *Trans. Iron Steel Inst. Jpn.*, **23** (1983), 440.
- 24) Y.Inokuti: *Tetsu-to-Hagané*, **70** (1984), 2033.
- 25) 阿部秀夫: 再結晶, 材料科学シリーズ2, 共立出版, 東京, (1969), 137.
- 26) R.W.Cahn and P.Hassen: Physical Metallurgy, 3rd ed., Elsevier Science Publishers BV, Amsterdam, (1983), 1658.
- 27) A.Datta: *IEEE Trans. Magn.*, **12** (1976), 867.
- 28) M.Shiozaki, I.Matoba, T.Kan and T.Gotoh: *Trans. Jpn. Inst. Met.*, **19** (1978), 85.
- 29) J.Harase, R.Shimizu and D.J.Dinbley: *Acta Metall.*, **39** (1991), 763.
- 30) Y.Hayakawa and J.A.Szpunar: *Acta Metall.*, **46** (1997), 1285.