

# Goss 方位の珪素鋼単結晶の双晶形態

井口 征夫\*・森田 博文\*<sup>2</sup>・友瀨 満広\*<sup>2</sup>

Twin Morphology Formed on Goss Si-steel Single Crystal

Yukio INOKUTI, Hiroshi MORITA and Mitsuhiro TOMOBUCHI

**Synopsis :** The twin morphology of Goss single crystal of silicon steel was investigated using electron back scattering diffraction (EBSD) method of FE-SEM, and was compared with that of W-SEM.

The orientation analysis parallel to ND, RD and TD showed a very narrow band of about 3  $\mu\text{m}$  width perpendicular to the rolling direction. The twin formed between the boundary of the Goss single crystal matrix and the very narrow band. This boundary showed step-like morphologies of about 70–200 nm. The angle between the two  $\langle 110 \rangle$  orientations of the (211) twin was 70.5 deg.

The origin of twin due to the alternate formation of twin boundary was also observed. It is suspected that this permitted to do the formation energy of twin as low as possible.

**Key words:** twin; Goss single crystal of silicon steel; electron back scattering diffraction; FE-SEM; W-SEM.

## 1. 緒言

Goss 方位 2 次再結晶粒中に双晶を導入した場合には、一方向性珪素鋼板の鉄損を顕著に劣化させる。このような一方向性珪素鋼板に双晶を導入させた場合の Goss 方位 2 次再結晶粒中の双晶近傍の結晶方位や双晶発生形態を詳細に把握することは重要である。

最近、orientation imaging microscopy (OIM) を利用した electron back scattering diffraction (EBSD) 法<sup>1)</sup>を用いて、珪素鋼単結晶中の双晶の方位解析結果が報告された。

しかしながら、この報告例<sup>2)</sup>は、電子顕微鏡に W-SEM を搭載した EBSD 法を使用したため、1 ステップあたりの結晶方位の測定領域は、約 1.0  $\mu\text{m}$  であった。

最近の分解能の優れた FE-SEM を用いた場合には、1 ステップあたりの結晶方位の測定領域は、約 70 nm で、既に報告した W-SEM の結果に比較して 10 倍以上の微小の方位情報の解析が可能となった。このため、より詳細な結晶方位情報ならびに双晶形態の解析が可能になると考えられた。

本報では、前回の EBSD 法<sup>2)</sup>に使用した同一試料、すなわち、(011) 面方位から ND < 1° 以内、[100] 軸方位から RD < 1° 以内の理想的な Goss 方位の 2 次再結晶粒を用いた。そして、分解能の優れた FE-SEM による EBSD 法を用いて双晶近傍の結晶方位変化や双晶発生形態を解析した。さらに、前回の W-SEM を用いた場合と比較検討した結果ついて報告する。

## 2. 実験方法

本実験に使用した Goss 方位の珪素鋼単結晶は、0.23 mm 厚の一方向性珪素鋼板を出発素材として用いた。この製品板は 30 mm × 300 mm に切断し、その後 1073K で 7.2 ks の歪取焼鈍を行った後、SST (Single Sheet Tester, 単板試験機) で磁気特性を測定した。この実験においては、磁束密度が最良のエプスタイン試料 ( $B_g$  が 1.93 T 以上のレベル) の絶縁被膜を溶融 NaOH 中で浸漬して除去し、さらに 10% HCl (353K) 中に浸漬してフォルステライト下地被膜を除去した。

次の Goss 方位の大きな珪素鋼単結晶粒の選別に際しては、上記のフォルステライト下地被膜を除去したエプスタイン試料を用いた。このフォルステライト下地被膜除去後においては、2 次再結晶粒の形状の判別が可能であるので、全自動単結晶測定装置<sup>3)</sup>の使用により 25–30 mm  $\phi$  に大きく成長した 2 次再結晶粒の結晶方位を測定した。測定後の 2 次再結晶粒の結晶方位が、(011) 面方位から ND < 1° 以内、[100] 軸方位から RD < 1° 以内の理想的な Goss 方位を有する珪素鋼単結晶粒のエプスタイン試料のみを以後の実験に使用した。

Goss 方位の珪素鋼単結晶粒への双晶の導入は、ドライアイス・アルコール中に浸漬した単結晶を含むエプスタイン試料をレベラー通板<sup>4,5)</sup>させることによって行った。この処理後の試料の表面は、3% HF と 97% H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 混合液中で化学研磨して表面を平滑化した。

平成 14 年 11 月 8 日受付 平成 15 年 1 月 24 日受理 (Received on Nov. 8, 2002; Accepted on Jan. 24, 2003)

\* 川崎製鉄 (株) 技術研究所 (現: JFE スチール (株) スチール研究所) (Technical Research Labs., Kawasaki Steel Corp., now Steel Research Labs., JFE Steel Corp., 1 Kawasaki-cho Chuo-ku Chiba 260-0835)

\*<sup>2</sup> オックスフォード・インストゥルメンツ (株) 装置機器事業本部 (Instrumentation Business Division, Oxford Instruments KK)

Goss方位の珪素鋼単結晶に双晶を導入した後のサンプルの方位測定は、orientation imaging microscopy (英国オックスフォード・インストゥルメンツ (株) 社製/Oxford Crystalを使用) と走査形電子顕微鏡 (JSM-6500F, JEOL (株)) を用いて行った。このサンプルのEBSD測定は、あらかじめ双晶を導入した近傍の領域を走査像を用いて選別した後、70 nmのステップで横約7  $\mu\text{m}$ 、縦約8  $\mu\text{m}$ の範囲のnormal direction (ND), rolling direction (RD)およびtransverse direction (TD)の結晶方位の測定を行った。なお、このサンプルの結晶方位のマッピングに際しては、ステレオ三角形の表示方法 ( $\langle 001 \rangle$ が赤、 $\langle 101 \rangle$ が緑、 $\langle 111 \rangle$ が青で表示し、各頂点からズレた結晶方位は混色で表示) を採用した。

### 3. 実験結果

Fig. 1は、Goss方位の珪素鋼単結晶に双晶を導入した後の走査電子顕微鏡写真を示す。この試料の写真から明らかなように圧延方向(RD)にほぼ直角方向に二本の細い直線(約3  $\mu\text{m}$ ) が観察される。

Fig. 2(a), (b)および(c)は、Fig. 1の走査電子顕微鏡で観察された二本の細い直線の微小領域中をEBSD法を用いてこの微小領域の結晶方位を測定したものである。すなわち、Fig. 2の(a)は、NDの結晶方位のカラーマッピングの写真、(b)は、RDの結晶方位のカラーマッピングの写真および(c)は、TDの結晶方位カラーマッピングの写真を示す。また、Fig. 2(d)は、ND, RDおよびTDの結晶方位の基本三元色(赤 $\langle 001 \rangle$ 、緑 $\langle 101 \rangle$ 、青 $\langle 111 \rangle$ )のカラーのステレオ三角形を示す。Fig. 3(a), (b)および(c)は、Fig. 2(a), (b)および(c)のカラーマッピングのEBSD測定した微小領域の結晶方位をステレオ三角形でプロットして示したものである。

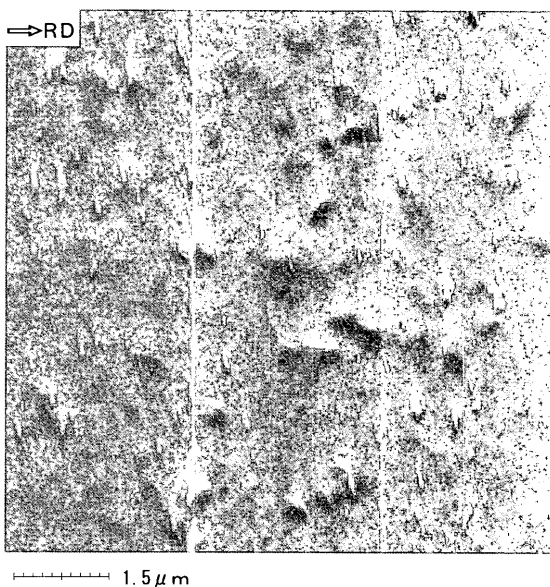


Fig. 1. Scanning electron micrograph (SEM) of twin formed on single crystal of silicon steel.

Fig. 2(a)のNDの結晶方位、Fig. 2(b)のRDの結晶方位およびFig. 2(c)のTDの結晶方位を示すカラーマッピングの写真では、写真の上下方向に珪素鋼マトリックスとは全く異なる約3  $\mu\text{m}$ 程度の幅を有する細い直線状の微小な帯の領域が観察される。この場合の結晶方位は、前報と同じような方位<sup>2)</sup>を示している。

本測定においては、1ステップの結晶方位の測定の領域が前回の1  $\mu\text{m}$ に比較して、70 nmと微小領域の方位の測定結果を示している。このため、Fig. 2(a)の緑色( $\langle 101 \rangle$ )と赤色( $\langle 001 \rangle$ )の界面、(b)の赤色と青色の界面、(c)の緑色が異なる界面を示している。すなわち、Fig. 2の左側の界面は、上下方向の直線方向に、70 nm程度の凹凸の微小のステップ形態が所々に観察される。これに対して右側の界面は上下方向に大きな幅の階段状の凹凸のステップ形態が所々に観察される。また、(c)のTDの結晶方位を示すカラーマッピングでは、前報と同じ方位で同一の緑色のみしか観察されなかったが、本報では、緑色の色が若干異なった方位差の帯の領域が観察される。

Fig. 2(a)のNDの結晶方位を示す写真とFig. 3(a)の結晶方位の解析結果から、緑色の珪素鋼単結晶のマトリックスは $\langle 011 \rangle$ の結晶方位、また、赤色の細い直線状の微小領域(双晶)は、 $\langle 001 \rangle$ から $\langle 111 \rangle$ に約19°ずれた $\langle 114 \rangle$ の結晶方位を示していることがわかる。なお、この結晶方位の解析結果は、前報の結果<sup>2)</sup>と1°以内で一致しているが、前報の結果では、この二つの結晶方位とは別にカラー写真の所々には、約1–2  $\mu\text{m}$ 程度の方位の異なる領域が観察された。しかしながら、本報の結果では、そのような微小領域は観察されていない。さらに、前回の帯の幅は約4  $\mu\text{m}$ であったが、本実験の帯の幅は約3  $\mu\text{m}$ と1  $\mu\text{m}$ 程度小さい。これらの相違は分解能の違いによると考えられる。

次のFig. 2(b)のRDの結晶方位を示す写真とFig. 3(b)の結晶方位の解析結果から、赤色の珪素鋼単結晶のマトリックスは、 $\langle 001 \rangle$ の結晶方位、また、青色の細い直線状の微小領域(双晶)は、 $\langle 011 \rangle$ から $\langle 111 \rangle$ に約19°ずれた $\langle 122 \rangle$ の二つの結晶方位を示していることがわかる。この結晶方位の解析結果は、前報<sup>2)</sup>と同様の結果を示している。また、この場合においても、前報のカラー写真の所々には、約1–2  $\mu\text{m}$ 程度の方位の異なる領域が観察されたが、本報では、そのような微小領域は観察されていない。

さらに、Fig. 2(c)のRDの結晶方位を示す写真とFig. 3(c)の結晶方位の解析結果から、緑色の珪素鋼単結晶のマトリックスは、 $\langle 001 \rangle$ の結晶方位、さらに濃い緑色の帯、すなわち、 $\langle 011 \rangle$ の結晶方位差(0.5–1°程度)が観察される。このような結晶方位差は、前回の測定結果<sup>2)</sup>では全く観察されなかった。

Fig. 4は、Goss方位の珪素鋼単結晶に双晶を導入した後の別の位置の走査電子顕微鏡写真を示す。この試料の写真から明らかなように圧延方向(RD)にほぼ直角方向に二本

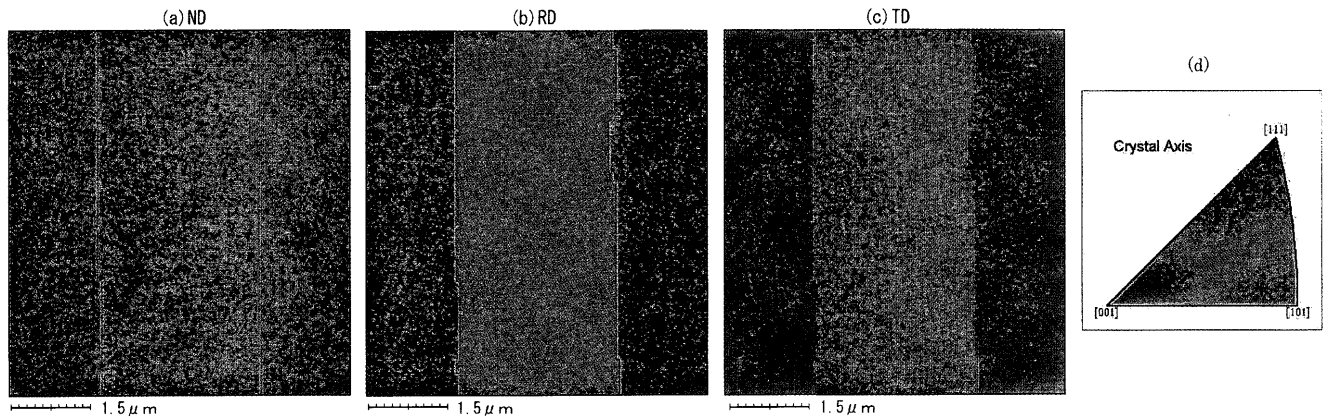


Fig. 2. (a) Color map of orientation of ND of twin formation on single crystal of silicon steel, (b) that of RD, (c) that of TD, and (d) color display of stereographic projection in three basic colors, red (001), green (101) and blue (111).

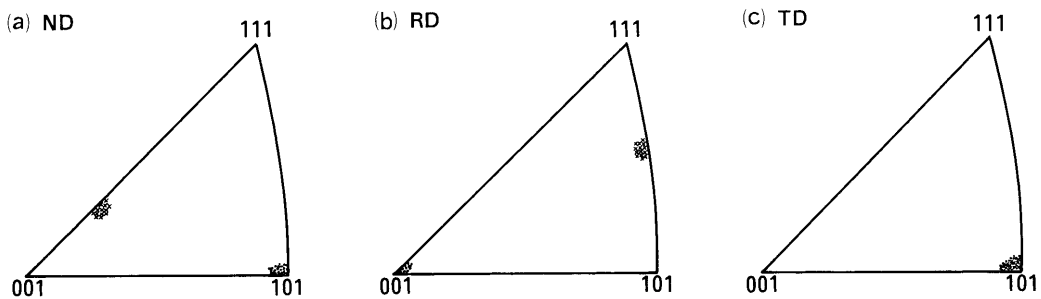


Fig. 3. Stereographic diagrams showing orientations of (a) ND, (b) RD and (c) TD on single crystal of silicon steel, where × and ● show orientations of twin and those of silicon steel matrix, respectively.

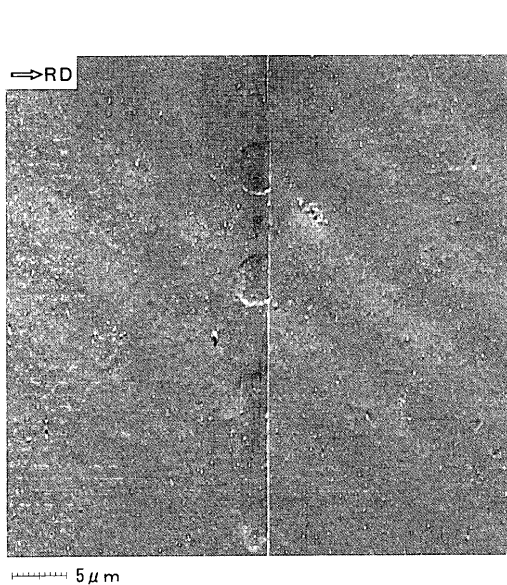


Fig. 4. Scanning electron micrograph (SEM) of twin origin formed on single crystal of silicon steel.

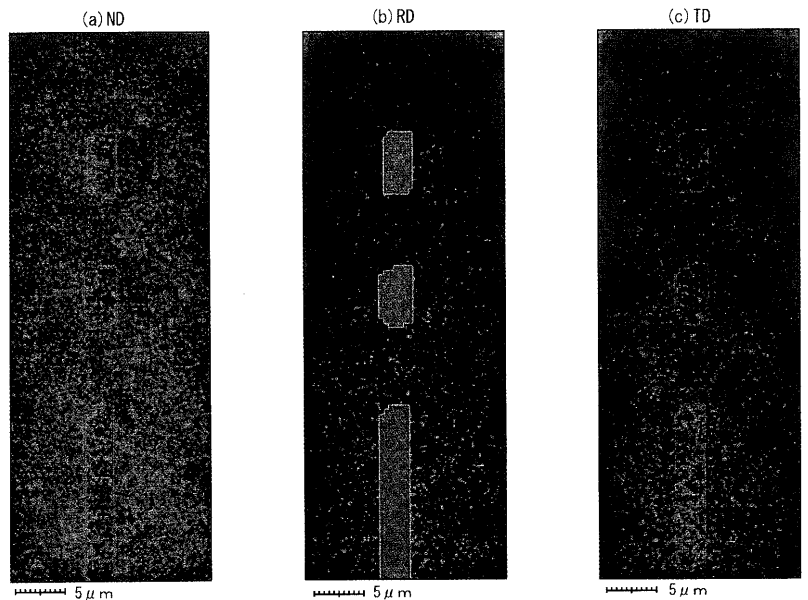


Fig. 5. (a) Color map of orientation of ND of twin formation on single crystal of silicon steel, (b) that of RD, (c) that of TD.

の細い直線 (約  $2.5 \times 3 \mu\text{m}$ ) が約  $4\text{--}5 \mu\text{m}$  の間隔で2箇所が観察される。

Fig. 5(a), (b)および(c)は, Fig. 4の走査電子顕微鏡で観察された二本の細い直線の微小領域中をEBSD法を用いてこの微小領域の結晶方位を測定したものである。

Fig. 5(a)のNDの結晶方位およびFig. 5(b)のRDの結晶方

位を示すカラーマッピングの写真では, 写真の上下方向に珪素鋼マトリックスとは全く異なる約  $2.5 \times 3 \mu\text{m}$  程度の幅を有する細い直線状の微小な帯の領域が約  $4\text{--}5 \mu\text{m}$  の間隔で2箇所観察される。しかし, この場合は間に2箇所約  $4\text{--}5 \mu\text{m}$  程度珪素鋼マトリックスと同じ方位を示していることがわかる。また, この場合の結晶方位は, Fig. 2と同

じ結晶方位を示している。さらに、Fig. 5(c)のTDの結晶方位を示すカラーマッピングでは、Fig. 2と同様緑色の色が若干異なった $\langle 011 \rangle$ の方位を示す帯の領域も観察される。

## 4. 考察

### 4.1 珪素鋼単結晶の双晶

Fig. 6は、本実験のEBSD法を用いた結晶方位測定によるND, RDおよびTDの結晶方向とそれに対応したGoss方位の珪素鋼単結晶を模式的に示したものである。すなわち、前報と同様Fig. 1およびFig. 4の電子顕微鏡写真と同様にGoss方位の珪素鋼単結晶は、圧延方向に直角方向に細い

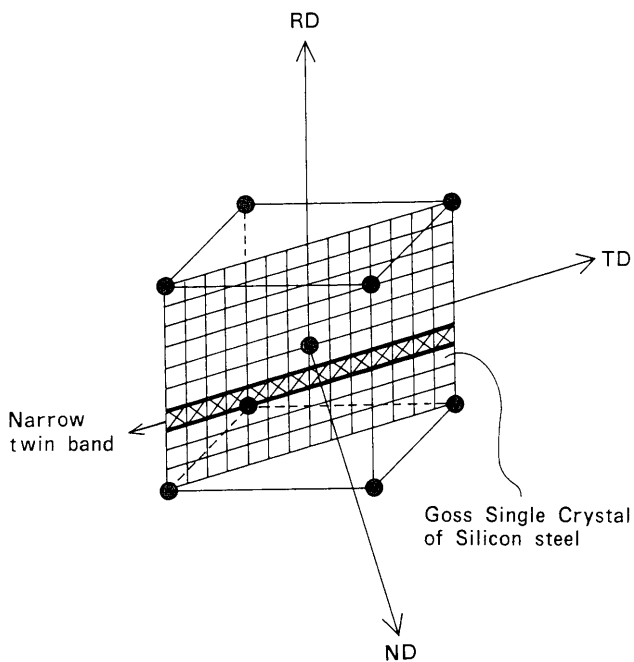


Fig. 6. Schematic diagram showing twin formation on single crystal of silicon steel and relation of ND, RD and TD.

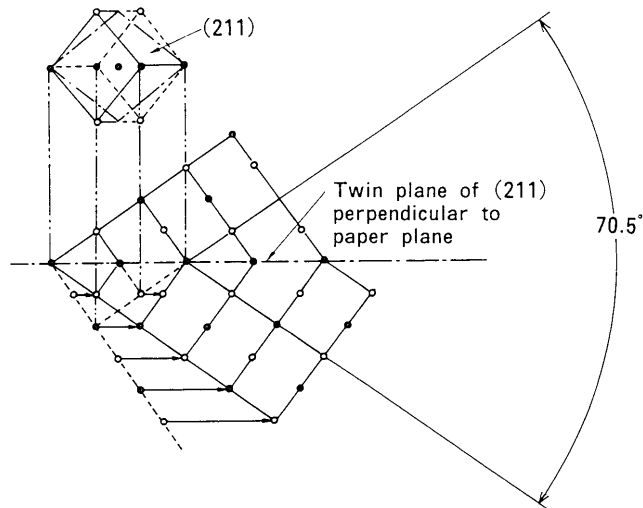


Fig. 7. Schematic diagram showing atomic movement of twin formation as reported by Barrett<sup>6)</sup>.

直線状の微小な帯の領域が導入されている。

Fig. 7は、Barrett<sup>6)</sup>により示されたBCC金属の双晶の形成の際の原子移動を模式的に示したものである。Fig. 6の左上は、BCC構造の双晶を示す $\langle 211 \rangle$ 、またその下には、このBCCの原子構造に対応して双晶 $\langle 211 \rangle$ を形成した際の原子移動の状況を示す。この場合の双晶を示す $\langle 211 \rangle$ は、紙面に垂直で二つの $\langle 110 \rangle$ の間の角度は $70.5^\circ$ である。

Fig. 8は、Fig. 6の双晶を示す $\langle 211 \rangle$ の模式図に従って、 $\langle 001 \rangle$ 極点図中の $\langle 110 \rangle$ 軸を $70.5^\circ$ 反時計回りに回転させた場合の結晶面および軸を示したものである。Fig. 7の $\langle 001 \rangle$ 極点図中の矢印で示すように、 $\{101\}$ について $\langle 110 \rangle$ 軸を $70.5^\circ$ 反時計回りに回転させた場合、斜線で示すステレオ三角形では $\{411\}$ 面（図中では●の印で挿入）を示すことがわかる。また、同様に $\langle 010 \rangle$ について、Fig. 8の中央の反対の斜線で示すステレオ三角形は、 $\langle 122 \rangle$ 軸方向（図中では○の印で挿入）を示す。すなわち、本実験のEBSD法の方位解析から、珪素鋼単結晶に導入した双晶の結晶方位は、Fig. 2(a)およびFig. 5(a)で示す双晶のNDの結晶面 $\{411\}$ とFig. 2(b)およびFig. 5(b)で示すRDの結晶軸 $\langle 122 \rangle$ を示している。

### 4.2 双晶の発生位置の形態

Fig. 5のEBSDの測定結果から、Goss方位の珪素鋼単結晶マトリックスでの双晶 $\langle 211 \rangle$ が形成される位置は、最初から形成されるのではなく、数 $\mu\text{m}$ に渡って数回珪素鋼単結晶マトリックスでの双晶を交互に繰り返した後、長い帯の双晶を形成していると考えられる。この場合の界面は階段状に観察されるのが特徴で、おそらくこの位置から双晶が始まるのではないかと考えられる。すなわち、双晶が形成される場合、Fig. 1およびFig. 2で観察されるような、珪素鋼単結晶マトリックスで圧延方向に直角方向に長い帯の双晶

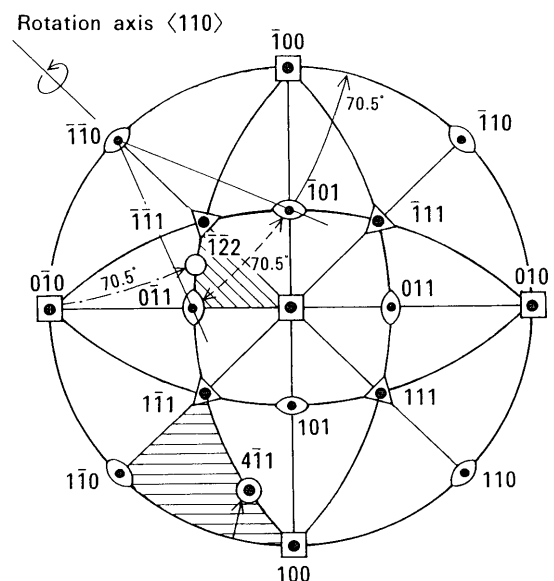


Fig. 8. Schematic diagram showing stereographic projection of twin formation, where ● and ○ denote  $\{411\}$  and  $\langle 122 \rangle$ , respectively.

は突然に発生しないと考えられる。Fig. 5に見られるように数 $\mu\text{m}$ に渡って数回珪素鋼単結晶マトリックスでの双晶を交互に繰り返した後、長い帯の双晶が形成されると考えられる。すなわち、そのような双晶の形成過程の方がエネルギー的に安定にすることが可能であると考えられる。

このような珪素鋼マトリックスと双晶を交互に繰り返した双晶の形成形態は、珪素鋼熱延板の伸長粒中に発見された結晶方位が急激に異なる変形帯<sup>7)</sup>と酷似していると考えられる。この場合も再結晶を形成させないで結晶方位を交互に繰り返した方がエネルギー的に安定にすることが可能であると考えられた。

## 5. 結論

Goss方位の珪素鋼単結晶粒中に双晶を導入した後、高分解能のFE-SEMによるEBSD法を用いて双晶近傍の結晶方位や双晶発生形態を解析した結果、次のことが明らかとなった。

(1) ND, RD, TDの結晶方位を示すカラー写真には、写真の上下方向に珪素鋼マトリックスとは全く異なる約 $3\mu\text{m}$ 程度の幅を有する細い直線状の微小な帯の領域が観察された。

(2) NDのカラーマッピングでは、 $\langle 011 \rangle$ を示す緑色の珪素鋼単結晶のマトリックスと $\langle 001 \rangle$ 近傍を示す薄い赤色の細い直線状の微小な帯の領域 ( $\langle 001 \rangle$ から $\langle 111 \rangle$ に約 $19^\circ$ ずれた $\langle 114 \rangle$ ) が観察された。

(3) RDのカラーマッピングでは、 $\langle 001 \rangle$ を示す赤色の珪素鋼単結晶のマトリックスと薄い青色の細い直線状の微小な帯の領域 ( $\langle 011 \rangle$ から $\langle 111 \rangle$ に約 $19^\circ$ ずれた $\langle 122 \rangle$ ) が観察された。

(4) TDのカラーマッピングでは、 $\langle 011 \rangle$ を示す緑色の珪素鋼単結晶のマトリックスと若干緑色の異なる細い直線状の微小な帯の領域が観察された。

(5) 珪素鋼単結晶マトリックスと細い直線状の微小な帯の領域の界面が双晶で、この場合の双晶を示す $\langle 211 \rangle$ は、Fig. 7の紙面に垂直で二つの $\langle 110 \rangle$ の間の角度は $70.5^\circ$ である。

(6)  $\langle 001 \rangle$ 極点図中で $\langle 110 \rangle$ 軸を反時計回りに $70.5^\circ$ 結晶回転させることにより結晶面 $\{101\} \Rightarrow \{411\}$ と結晶軸 $\langle 010 \rangle \Rightarrow \langle 122 \rangle$ が形成される。

(7) Goss方位の珪素鋼単結晶マトリックスでの双晶は、最初から形成されるのではなく、数 $\mu\text{m}$ に渡って数回珪素鋼単結晶マトリックスでの双晶を交互に繰り返した後、長い帯の双晶を形成していると考えられる。

(8) 珪素鋼単結晶マトリックスでの双晶を交互に繰り返した方がエネルギー的に安定にすることが可能であると考えられる。

(9) 走査形電子顕微鏡にFE-フィラメントを搭載した方が、W-フィラメントよりも正確で詳細な結晶方位情報を得ることが可能となる。

## 文 献

- 1) M. Shimizu: *Electronmicroscopy*, **33** (2000), 269.
- 2) Y. Inokuti and M. Shimizu: *Proc. 130th Meeting of JJIM*, (2002), 337.
- 3) M. Katayama, J. Shimomura, H. Yamashita, T. Kikuchi and Y. Inako: *Materia Jpn.*, **33** (1994), 625.
- 4) Y. Inokuti, C. Maeda and T. Tanaka: Japanese Patent Laid-Open, S61-64818, (1986).
- 5) Y. Inokuti, H. Mitsunori and T. Tanaka: Japanese Patent Laid-Open, S61-69922, (1986).
- 6) S. Kouda: Introduction of Metal Physics, Corona Company, Tokyo, (1964), 139.
- 7) Y. Inokuti, F. Saito and C. Gotoh: *Mater. Trans. JIM*, **37** (1996), 203.