



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	けい素鋼板の単結晶作製に関する実験的研究（第3報）：（100）単結晶を主体として
Author(s)	田頭, 孝介; Tagashira, Kōsuke; 榎本, 信能 他
Citation	北海道大學工學部研究報告, 52, 177-184
Issue Date	1969-03-20
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/40925
Type	departmental bulletin paper
File Information	52_177-184.pdf



けい素鋼板の単結晶作製に関する実験的研究 (第3報)

——(100) 単結晶を主体として——

田 頭 孝 介*

榎 本 信 能**

中 江 仁*

(昭和43年11月16日受理)

Experimental Investigation to Produce Single Crystal of Fe-Si Alloy by Strain-Anneal Method (III)

——on the (100) single crystal——

Kōsuke TAGASHIRA

Nobuaki ENOMOTO

Hitoshi NAKAE

(Received November 16, 1968)

Abstract

In preparing single crystals of 3.25% Si-Fe alloys, a new method with a high temperature-gradient (500°C/cm) furnace specially designed for this purpose was adopted. The modifications of the conventional strain-anneal method were as follows: (1) specimens were strained by a slight rolling and not by tension, (2) after which the surface layer resulting from rolling was removed by chemical etching.

By this process, large grained single crystals with various orientations were obtained, in which the most suitable reduction rates for the growth of (110) and (100) single crystals were about 2% and 4%, respectively.

1. 緒 言

Strain-anneal 法によって、珪素鋼板の単結晶を作製する際、適当な不純物量の素材を用いて温度勾配炉で焼鈍すると大きな単結晶を得られることは既に発表した¹⁾。一方素材の純度が高くなると、しだいに単結晶の作製は困難になるが、このとき酸化-還元のプロセスを Strain-anneal 法に加えることによって単結晶が得られたことは前報に述べた通りである²⁾。このようにして得られた単結晶はいずれも (110) [001] 方位に近いものに限られ、それは inhibitor 効

* 精密工学科 物理工学講座

** 東京芝浦電気 KK

果^{4),4),5)}によるものと考えられた。しかし物性の研究には種々の面方位をもつ単結晶が必要で、この場合上述のような inhibitor 効果に期待することは困難なように思われる。

純度の高い素材で単結晶を作製できないのは、一般に低い温度で容易に歪回復が起こってしまうためと考えられている^{6),7),8)}。しかし材料の純度によって、一次再結晶集合組織⁹⁾と、その粒径、結晶成長機構¹⁰⁾及び隣接結晶粒内の方位関係と粒界の易動¹¹⁾度等が全般的に変わるため、その解釈は決して容易なものではない。

この場合もし純度の高い素材を用い、inhibitor 効果に頼らずに結晶成長の重要な因子である歪エネルギーの回復をおさえることができるなら、これを結晶成長のためのエネルギーに直接利用することができ、任意の方位を有する単結晶を作製することが可能となるであろう。その一つの方法としては、温度勾配の非常に高い炉に素材を挿入することにより、単結晶の成長を行うことが考えられる。

ここでは特に試作された高温温度勾配炉をもつ装置を用いて、比較的純度の高い珪素鋼板に Strain-anneal を行ったプロセスの詳細について述べる。

2. 実験方法

高温温度勾配炉の詳細と単結晶作製のプロセスは次のようなものである。

2-1. 単結晶作製装置

装置は Fig. 1 に示すように、本体 A 及び本体上蓋 C に取り付けられた動力部 B からなり、本体の内部には小型の温度勾配炉 D、熱電対 F 及び試料保持台 G などが組込まれている。本体の内部は真空又は水素雰囲気を保つことができ、試料の酸化を防止するようになっている。試料 F は外部の動力により移動し、その移動速度は 6 から 16.5 mm/h の間で変速

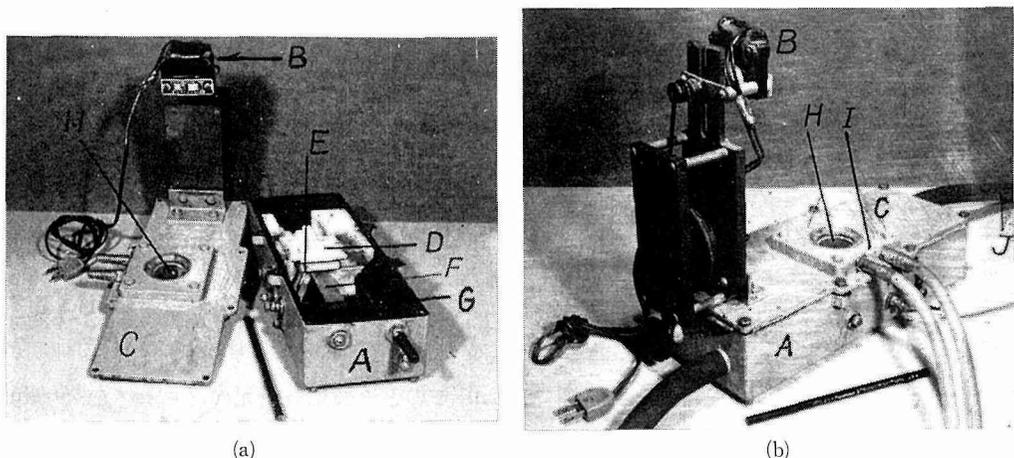


Fig. 1. An apparatus mounted with high temperature-gradient furnace to produce single crystal. A: body, B: electrical motor, C: casing, D: high temperature-gradient furnace, E: thermo-couple, F: specimen, G: specimen holder, H: window, I: cooling jacket, J: inlet gass pipe.

できる。また運転中内部を観察できるように本体上蓋には窓 H があり、その回りを水冷することにより装置の過熱を防ぎ長時間の運転にも十分耐えられるようになっていいる。この装置の最高使用温度は 1050°C、常用運転温度は 900°C であり、珪素鋼試料上の温度勾配は水素雰囲気中の場合には、約 500°C/cm となった。これは、先に報告した装置の 300°C/cm という値が試料上の温度勾配ではないことを考慮すると、非常に高い値である。なお試料の大きさは、種々の物性の研究を考慮して幅 30mm、長さ 150 mm のものまで移動できるように設計した。

この単結晶作製装置は高さ 300 mm、床面積 326×141 mm² で従来の同性能の装置に比べ非常に小型軽量化され、温度勾配も著しく改善された。

2-2. 試料及び実験手順

試料は熱間圧延後 70% の冷間圧延により板厚約 0.35 mm とした比較的純度の高い珪素鋼板で、その化学成分は Table 1 に示すようなものである。これを適当な大きさに切断後、乾燥水素雰囲気中で 950°C 1 時間の前焼鈍を行い、次に圧延により 1~8% の加工歪を加えた。

次に化学研磨により表面層を 20~30 μ 除去した後、水素雰囲気中で最高温度領域 900°C に保たれた温度勾配炉内に 10 mm/h の速度で試料先端の一部を挿入する。この結果 Fig. 2 (a) のような数条の種結晶が成長するので、この中から必要な方位の種結晶を選び、Fig. 2 (b) のように他の不要なものを化学研磨により除去する。次にこの

Table 1. Chemical composition of the specimen (wt%)

Si	C	Mn	P	S
3.26	0.005	< 0.01	0.002	0.002

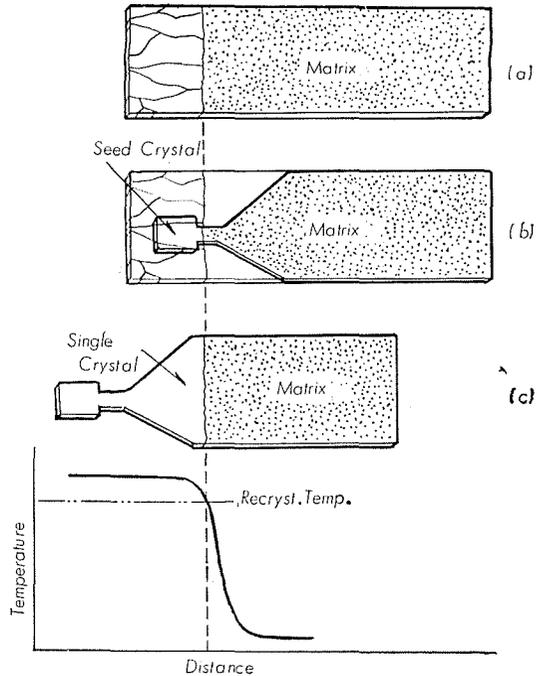


Fig. 2. Scheme of preparation of single crystal. (a) preparation of seed crystals with various orientation. (b) removal of other undesirable seed crystals by chemical etching. (c) growth of single crystal on recrystallization temperature.

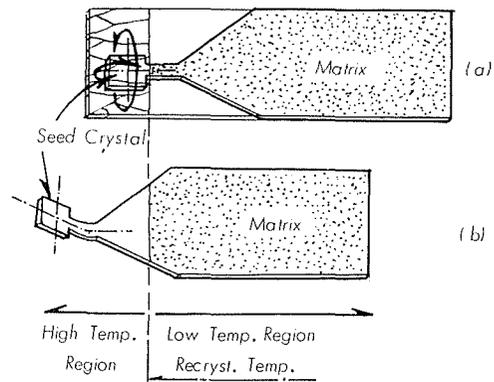


Fig. 3. Scheme of preparation of single crystal. Orientation is corrected carefully by slight bending of seed crystal.

試料を再び同じ条件の温度勾配炉中に 7.5 mm/h で移動させ、Fig. 2 (c) に示すようにこの種結晶のみを成長させる。

また希望する方位の種結晶のないときには、それに最も近いものを選び、Fig. 3 (a) に示すように顕微鏡下で neck の部分をねじって方位を修正した後同様のプロセスを行う。この様にして Fig. 3 (b) に示すように任意の単結晶を得ることができる。なお結晶方位の測定には傾角顕微鏡¹²⁾を用いた。

3. 実験結果とその考察

前焼鈍をしたものの再結晶集合組織は Fig. 4 に示すように、主方位としては (110)[001] 及び (100)[011] 近傍に分布がみられるが、その集積度はいずれも比較的弱い。また平均粒径は約 500 μ の比較的均一な再結晶粒よりなっていた。前焼鈍をしたものすなわち単結晶成長の際 matrix となる部分の主方位組織が主として成長する単結晶の方位を決定することは、よく知られた事実である。この試料では上に述べたようにそれらの成分が弱いこと及び等粒であることから、任意の方位をもつ単結晶を成長させるためには極めて有利に思われる。

特に先の報告における前焼鈍は 900°C、1 時間で、結晶は板厚の数分の一程度と小さかつた。したがって結晶成長のための駆動エネルギーのうちで、結晶粒界エネルギーの占める割合

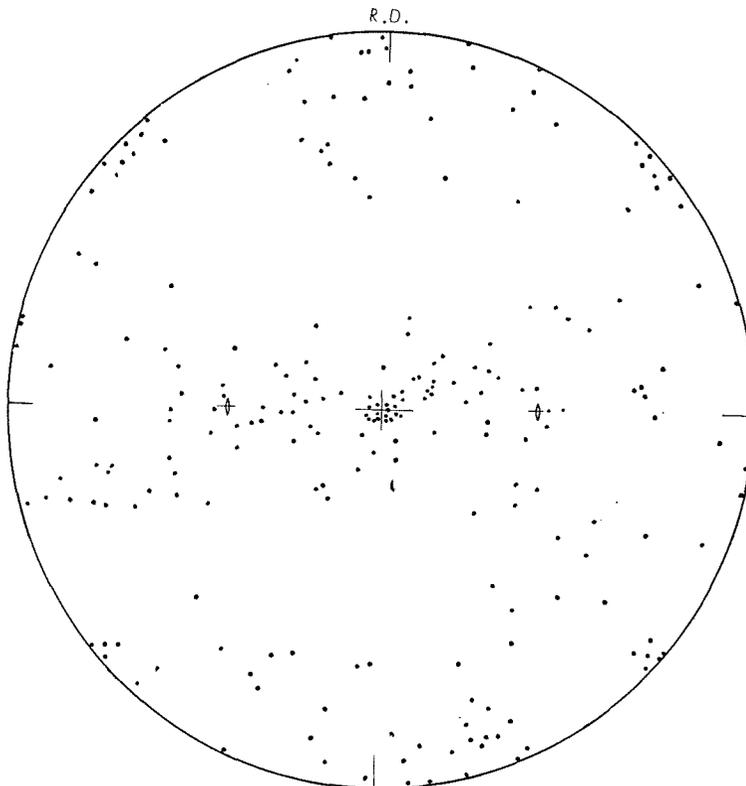


Fig. 4. (100) pole figure of pre-annealed specimen for 1 hr at 950°C

は比較的大きいものと思われる。このような試料を引張りによる Strain-anneal 法を試みた結果はすでに報告したように、結晶が粗大化するのみで単結晶を得ることはできない。また Strain-anneal の過程で前焼鈍を湿り水素雰囲気で行ない試料に軽い酸化処理をした後、引張りによる歪を与え、乾燥水素雰囲気の高 1100°C とした勾配炉中で仕上げ焼鈍を行なうという酸化還元のプロセスによる

と単結晶を得ることができる²⁾。これは不純物の inhibitor 効果に対応するものと考えられるが、この方法では (110) [001] 方位近傍の単結晶を得るに止どまったことはすでに述べた通りである。

本実験では, matrixの平均粒径を板厚に較べ大きなものとし, 後に述べる理由により特に圧延工程を用いて微少な歪を加えるという方法をとった。ここで試作した炉が500°C/cmという高い温度勾配をもつことから, 単結晶に吸収されつつある結晶粒の単結晶側と matrix 側との間の温度差は約 25°Cとなる。これは従来の微細な matrix 結晶粒及び 200°C/cm 程度の温度勾配炉の組合せではせいぜい数 °C 以内に留まることと比較すると歪差を利用して結晶粒界を移動させるという Strain-anneal 法にはより適しているものと考えられる。以上のように matrix の結晶粒径を大きくすることにより, 粒界エネルギーの効果を減少させ、代りに歪

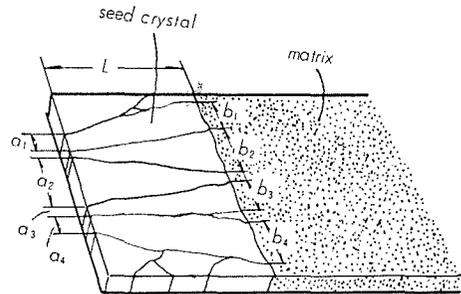


Fig. 5. Sketch of the front of growing grain annealed in the gradient furnace.

エネルギー効果の増大をはかり, さらには表面エネルギーの効果をも期待したものである。

しかしこのような二次元的な粒径からなる試料の場合には, 引張による変形では例え歪が微少な場合でも結晶粒毎に変形は不均一となり, 表面が屈曲するの

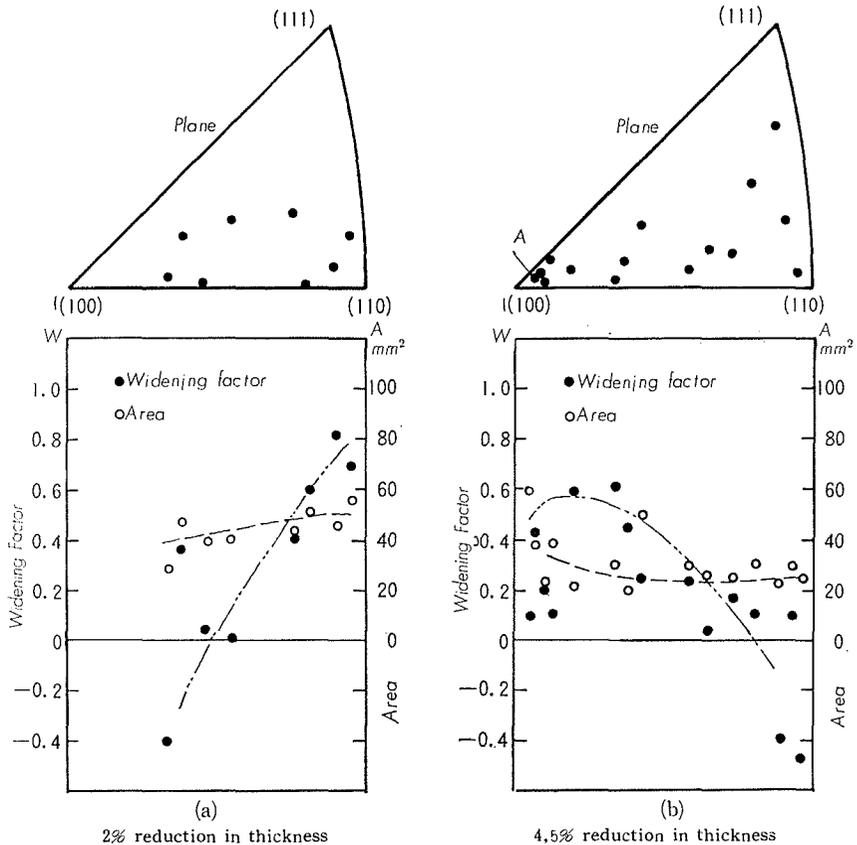


Fig. 6. The plots of area (A) and widening factor (W) v.s. orientation of seed crystals.

で matrix 全体にわたって均一な歪を加えることは困難となる。これをさけるために、今回は圧延により微小歪を加えた。この方法は従来あまり成功を収めていないが、それは圧延によって生じた試料表面層の不均一な歪分布に起因する surface nucleation¹³⁾ によるものと考えられたので、ここではその核発生ひん度を減少させることを意図して試料表面層の除去を行った。

単結晶の成長に適した圧延率は次のような方法によって求めることができた。まづ成長した種結晶についてその面積 A 及び広がり率 P を定義するとそれぞれ

$$A = \frac{L(a+b)}{2}, \quad W = \frac{b-a}{L}$$

で与えられる。ここで a , b 及び L は, Fig. 5 に示すように種結晶の幅及びその長さである。

単結晶を作製するとき重要なのは希望する方位をもつ種結晶の A 値及び W 値が十分かどうかということであるが、特に W 値が大切でこれが十分大きいなら、たとえ A 値が小さくとも最終的には大きな単結晶を得る可能性がある。ここでは W 値及び A 値を目安とし、圧延率を変えながら種結晶の

成長について調べた。Fig. 6 (a) 及び (b) はそれぞれ圧延率 2% 及び 4.5% で発達した種結晶の面方位を反転極点図形で、またそれらに対応した S 値及び W 値をグラフで示している。但し A 及び W 値は $L = 10$ mm

を基準として求めた。それによると、2% の圧延後表面を約 30μ 除去し温度勾配炉に挿入した試料では比較的 (110) 近傍の種結晶が多く、しかもそれらの W 値は大きかった。これは圧延率が 2% の場合には (110) 単結晶が良好に発達することを示唆している。また圧延率が 4.5% のものでは (100) 方位の単結晶が成長する可能性があることを示

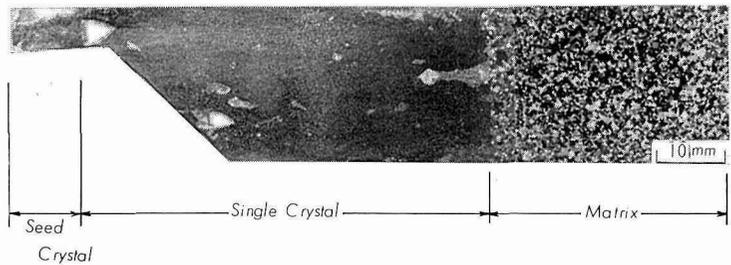


Fig. 7. An example of large grained single crystal with (100) plane orientation.

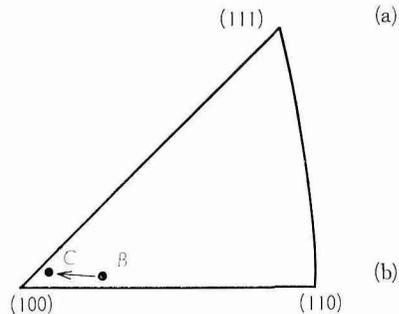


Fig. 8. (a) The single crystal obtained with (100) orientation slightly corrected from seed crystal's. (b) The plane normal of the grown crystal and its seed crystal are indicated by B and C in the inverse pole figure, respectively.

している。さらに種々の圧延率に対して調べた結果、(100) [001] 及び (100) [01 $\bar{1}$] 方位に近い単結晶を得るには、それぞれ 2~2.5% 及び 4~5% の圧延率が適当であることが分かった。これは中江らが Strain-anneal に関して提出している擬二次再結晶 scheme とよく一致する¹⁰⁾。

圧延率 4.5% の試料で得られた単結晶を Fig. 7 に示すが、その面方位は Fig. 6 (b) における反転極点図形上の A 点で (100) 方位に近いものであった。もととなったこの種結晶の P 値及び A 値はそれぞれ 0.1 及び 60 mm² で広がり率は決して大きなものではなかった。それにもかかわらず 4~4.5% の圧延率で (100) 方位のものがよく成長したのは、あらかじめ擬正常結晶成長が起った後に引き続いて表面エネルギー差による cube 型擬二次再結晶が起ったためと思われる^{10), 14)}。

次に、希望する方位の種結晶が存在しないときは、前章で述べたようにそれに最も近い方位のものを選び、求める方位に修正した後再び結晶成長させる方法をとった。それによって成長した (100) 単結晶を Fig. 8 (a) に示す。これは、Fig. 8 (b) に示した面反転極点図形上で B 点の面方位をもつ種結晶を C 点の (100) 面近傍へ修正した後、これを成長させたものである。この方法によるときは修正量が大きすぎると、その部分で局部的に大きな歪が入り微細な再結晶粒が発生するため種結晶の成長が阻止され、この方法は有効ではなかった。

4. 結 論

今回は比較的純度の高い珪素鋼板を素材として、特に設計された高温度勾配炉を用いて圧延過程を含む Strain-anneal 法により単結晶の作製を試みた。その結果、圧延率 2~2.5% 及び 4~4.5% で、それぞれ (110) [001] 及び (100) [01 $\bar{1}$] 方位に近い単結晶を成長させることができた。この場合、前焼鈍において素材を酸化又は浸炭処理する代りに、前焼鈍をやや高温で行ない粒径を板厚より大きなものとした。これに圧延による微少歪を加えたのち、約 30 μ 程度表面層を除去し、温度勾配炉に挿入するという方法をとった。これによって得られる単結晶の方位は圧延率により異なり、従来困難とされてきた (100) [01 $\bar{1}$] 方位に近いものを作製することが可能であるという点に特徴がある。

引 用 文 献

- 1) 中江・田頭：北大工学部研究報告, 46 (1967), 19.
- 2) 中江・田頭・伊達山：北大工学部研究報告, 47 (1968), 33.
- 3) J. D. Fast: Philips Research Report, 11 (1956), 490.
- 4) J. May, D. Turnbull: J. Appl. Phys., 30 (1959), 210.
- 5) M. Markuszewicz, J. Groyecki, J. Lassota, A. Zawada: Trans AIME, 236 (1966), 196.
- 6) T. Taoka, K. Suzuki, A. Yoshikawa, M. Okamoto: Acta Met., 13 (1965), 1311.
- 7) H. Hu, H. H. Podgurski: Trans AIME, 233 (1965), 1113.
- 8) 田岡・武内・竹内：鉄と鋼, 52 (1966), 187.
- 9) 齋藤：日本金属学会誌, 27 (1963), 186.
- 10) 中江・山村：日本金属学会誌, 32 (1968), 130.

- 11) 中江・田頭・松緑：未発表.
- 12) T. Taoka, E. Furubayashi, S. Takeuchi: *Jap. J. Appl. Phys.*, 4 (1965), 120.
- 13) 中江・山村・松浦：日本金属学会 (第 63 回仙台) 講演予稿集, (1968), 347.
- 14) K. Detert: *Acta Met.*, 7 (1959), 589.