



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	冷間圧延した3.25% Si-Fe合金の再結晶および集合組織の発達 : 主としてMnS, AlNによる影響
Author(s)	中江, 仁; 成田, 満; 浜田, 弘一
Citation	北海道大学工学部研究報告, 90, 53-60
Issue Date	1978-11-29
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41508
Type	departmental bulletin paper
File Information	90_53-60.pdf



冷間圧延した 3.25% Si-Fe 合金の再結晶 および集合組織の発達

—主として MnS, AlN による影響—

中 江 仁* 成 田 満** 浜 田 弘 一*

(昭和 53 年 6 月 30 日受理)

Quantitative Analysis of Recrystallization and Texture Development in 3.25% Si-Fe Alloys

—Mainly on the Effect of AlN, MnS—

Hitoshi NAKAE, Mitsuru NARITA and Koichi HAMADA

(Received June 30, 1978)

Abstract

Magnetic torque measurement revealing a texture formed in ferromagnetic materials in a quantitative fashion were applied to the study of the recrystallization and texture development by grain growth in some Si-Fe alloys.

From the results, the very starting temperature of recrystallization was identified for each alloy and the modes of nucleation, normal and abnormal growth were characterized for the sorts of small additions in the alloys. Further, some suggestions for a method of obtaining highly textured alloys were proposed.

1. 緒 言

鉄基合金, 特に 3% 珪素鉄の冷間圧延, 再結晶および結晶粒成長の過程については多くの研究が行われ, 明らかとなって来た。その中で微量元素または化合物が結晶粒成長過程において大きな影響を持ち, 集合組織形成の研究において重要である。しかし最近これらの物質が回復および再結晶過程においても重要な意味を持つことが注目されてきた。微量元素が拡散過程で粒界移動を著しく遅らせることは, Lücke, Detert および Stübe 等によって導かれている。しかし微量添加元素が著しく結晶粒成長を enhance することも実験的に認められている。例えば鉄または珪素鉄中の P, Al 等である。一方, $\text{MnS}^{1-3)}$ あるいは $\text{AlN}^{4,5)}$ が分散第 2 相として粒界またはマトリックス中に存在し, 粒界移動を妨げ正常結晶粒成長を抑制して, 二次再結晶過程で特定の方位結晶を発達させることで珪素鋼板の集合組織形成に応用されている。これらの化合物が一次再結晶に効果を及ぼすのは, 二次相としての粒子形状, サイズおよび分散濃度と考えられている⁵⁻⁷⁾。微量元素および化合物が, どのような温度または温度範囲で作用するかを求めることが出来れば現象の解明は更に進むものと考えられる。

* 精密工学科 物理工学講座

** 精密工学科 大学院

この様な目的に対して、磁気トルクの測定がその定量性の利点から有効と思われる。この方法の要点は、鉄および鉄基合金の冷間圧延と再結晶集合組織が、夫々強い単一の方位成分と他の弱い2、3の成分によって代表されるということを利用することにある。磁気トルク曲線も略々その特長を現している。例えば50%以上冷間圧延した3% Si-Fe合金の磁気トルク曲線は、冷間圧延集合組織が(100) [011] 結晶で、再結晶集合組織は(110) [001] 結晶で代表される。そして現象の推移は、これら磁気トルク曲線の特定の位相の値、例えば、第一極大値を焼鈍温度についてプロットすることによって得られる。

本論文は主として、磁気トルクの焼鈍温度による変化を追跡しながら、その変化の顕著に現れる点について、他の解析方法を用いて現象を解明しようとしたものである。

対象として用いた合金は、鉄基合金として Al, Si, Ge, Zn 等を添加した二元合金と約3% Siの鉄二元合金に上の元素ならびに MnS, AlN を微量添加したものを用いた。

2. 試 料

試料合金の製作は2つに大別される。珪素鉄ならびにこれらに MnS を添加したものは、大型真空炉(50 kg)で、その地のものは小型真空炉(300 g)で溶解した。後者はインゴットで縦に厚さ約4 mmに切断し、900~1,000°Cで鍛造し厚さ2~2.5 mmとした。次に乾燥水素雰囲気中で1,200°C、24時間の拡散焼鈍を行った。圧延率は70~75%で最終厚さ0.35 mmに仕上げた。また3% Si-Fe合金の微量 Zn 添加の影響を調べるため、種々の再結晶温度で焼鈍した3% Si-Fe合金板に Zn を電気メッキした後、拡散焼鈍を行った。

3. 結果および考察

一般に、磁気トルク曲線は、圧延状態と再結晶状態は夫々に固有の型を示すが、例えば、高度に冷間圧延した3.25% Si-Fe合金では、先に述べた様に夫々(100) [011] および(110) [001] 単結晶のそれと相似の型を示す。それらの関係を Fig. 1 に示したが、夫々の曲線の変遷によって、圧延集合組織から再結晶集合組織への移行を与え、またピーク値を単結晶の値と比較するこ

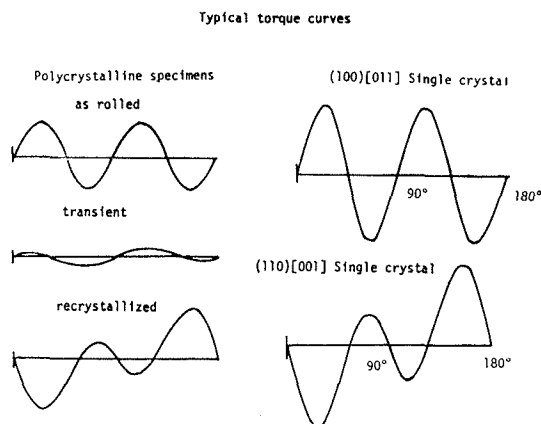


Fig. 1 Typical torque curves, and torque maximum vs. temperature and torque ratio vs. temperature curves of cold rolled Fe

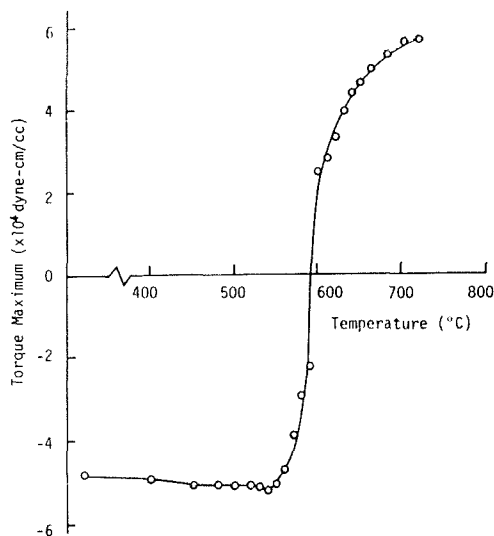


Fig. 2 Torque maxima and torque ratio vs. temperature of cold rolled 70% in 3.25% Si-Fe alloys

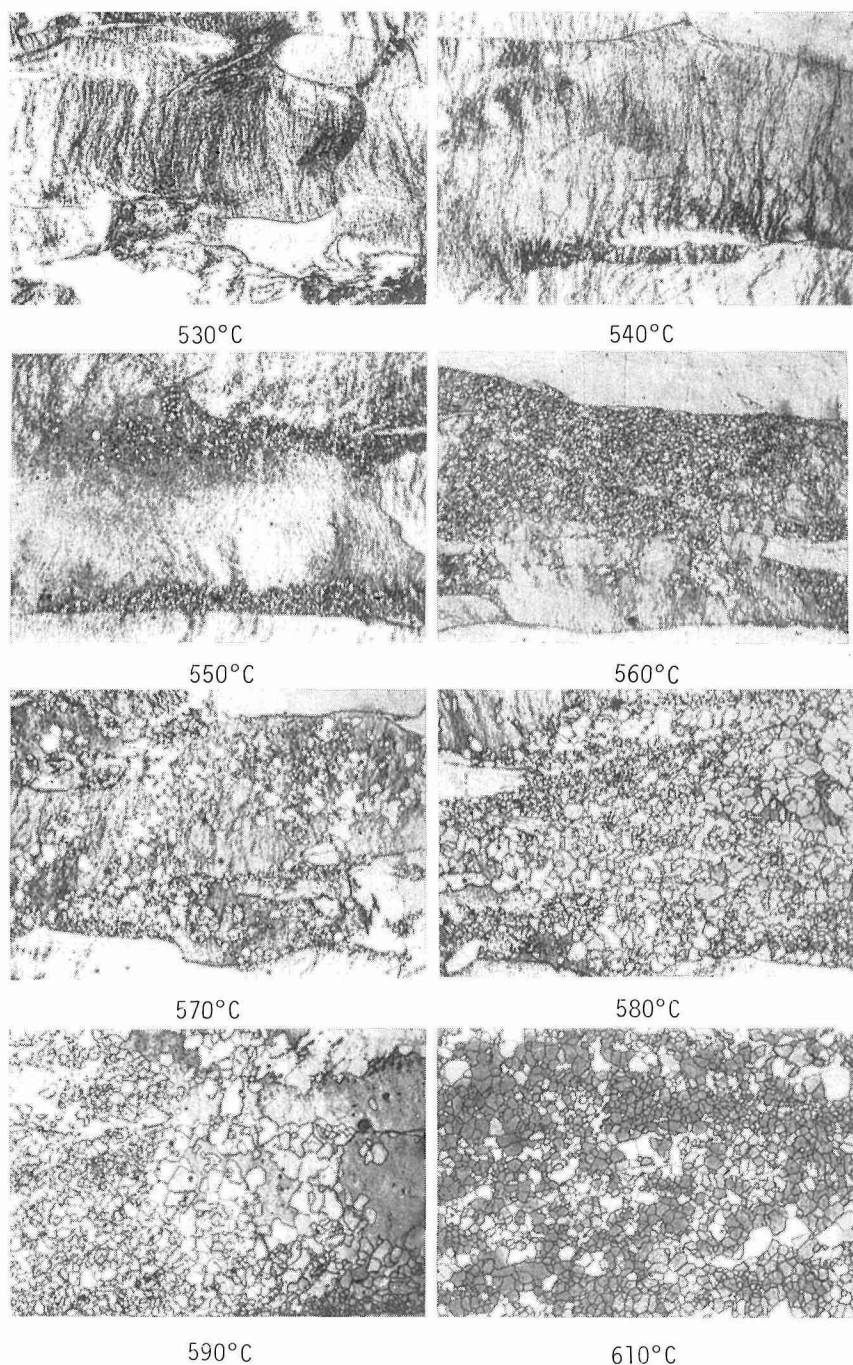


Fig. 3 Micrographs of 3.25% Si-Fe cold rolled by 70% annealed at various temperatures ($\times 100$)

とにより集合組織の各方位結晶の集積度を求めることが出来る。またトルク曲線の2つのピーク値の比を求めることから、集合組織構成成分の詳細を知ることが出来る⁸⁾。

現在 3% Si-Fe 合金の冷間圧延ならびに再結晶過程の集合組織構成成分は既に多くの研究により明らかにされているので、それを磁気トルク曲線のピーク値と焼鈍温度による変化を求める。

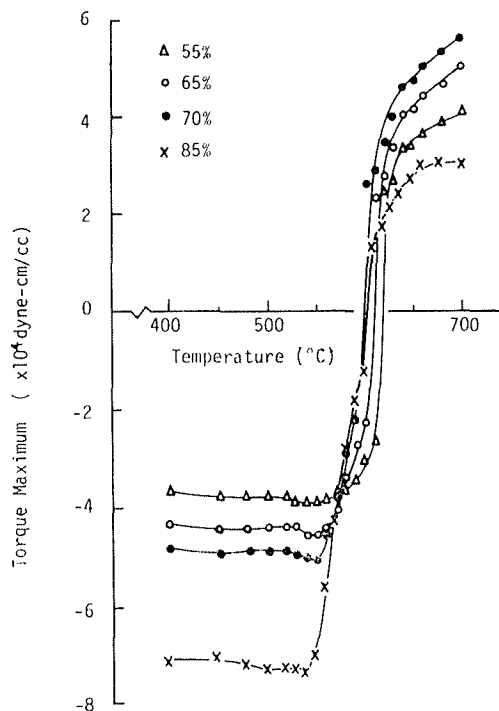


Fig. 4 Torque maxima vs. temperature plots of cold rolled 3.25% Si-Fe alloys with various reduction rates

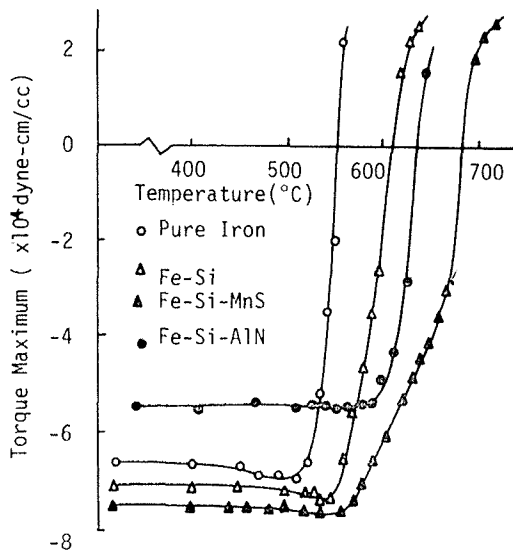


Fig. 5 Torque maxima vs. temperatures in some 3.25% Si-Fe alloys

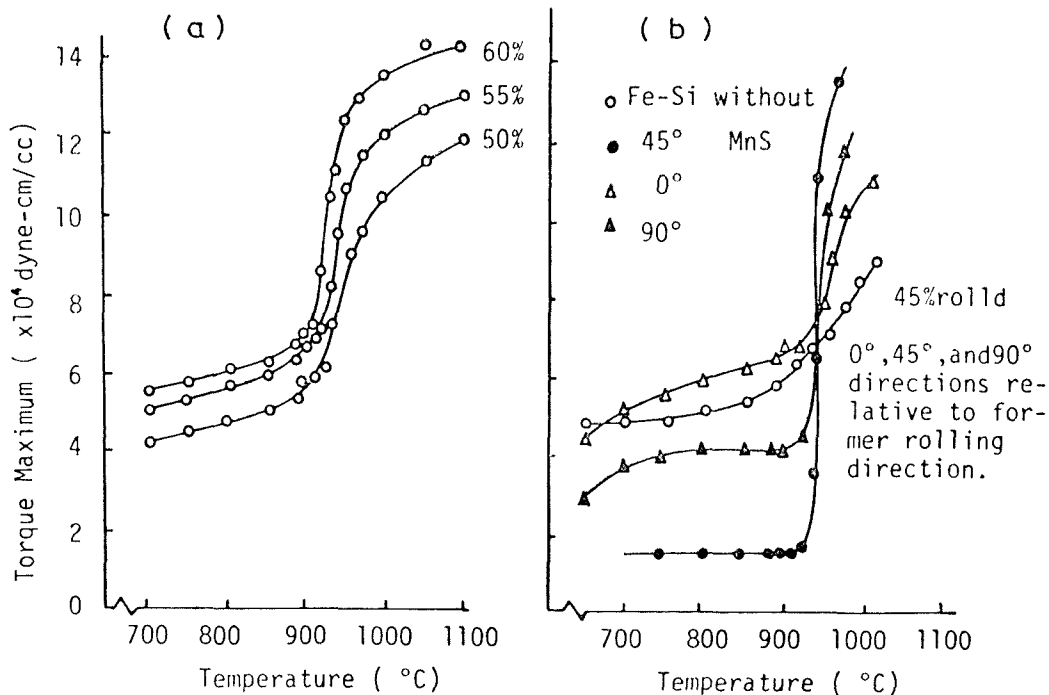


Fig. 6 Torque maxima vs. temperatures in 3.25% Si-Fe containing MnS with various reduction (a), and various secondary rolling directions relative to former direction (b)

それは Fig. 2 に示す様に、冷間圧延型トルク曲線側において最大トルク値は焼鈍温度 530°C よりやや減少（絶対値の増加）を示し、次に急激に増加して再結晶型のトルク曲線となり、冷間圧延型から再結晶型の明確な変換点を示す。これらの焼鈍領域における光学顕微鏡写真を Fig. 3 に示したが、それらに見られる様に 3.25% Si-Fe 合金を約 70% 冷間圧延したものは 530°C まで回復の進行過程を示し、540°C で再結晶核の発生が観察される。核発生の領域は結晶粒界と遷移帯領域および結晶粒内の 3 つに分けられ、焼鈍温度の上昇によって粒界と遷移帯の領域では更に核発生が行われるのに対し、粒内では発生した核の成長が顕著となる。これらのことから磁気トルク最大値対温度曲線上的変換点は (110) [001] 方位結晶の最初の核発生が始まる点と考えられ、再結晶開始点として重要な意味を持つものである。

磁気トルクの最大値の絶対値が回復過程で増加する傾向を示すのは、考えられる転位の消失とポリゴンゼーション進行のうち特に後者の効果によるものと思われる。即ち冷間圧延前に隣り合った結晶方位を異にする結晶粒が冷間圧延によって夫々の圧延方位に移行する際、それらの粒界近傍は 2 つの結晶粒の方位差を補う様に、ややランダムな方位の領域となることが考えられる。この様な領域は回復過程におけるポリゴンゼーションによって夫々隣り合う結晶粒に吸収され消滅する。このことによって圧延主方位成分が強化され、微小ではあるが磁気トルクの増加に寄与しているものと予想される。Fig. 4 に 3.25% Si-Fe 合金を 55% から 85% まで圧延したものの磁気トルク最大値対焼鈍温度曲線を示す。それによると圧延率が上昇すると共に、回復過程から再結晶過程へ変換する曲線の様相は圧延率によって変化している。

回復過程における最大値の絶対値は圧延率と共に増加するが、これは圧延集合組織の主方位結晶、特に (100) [011] 方位成分の増加を意味している。しかし増加が始まり、変換点に致るま

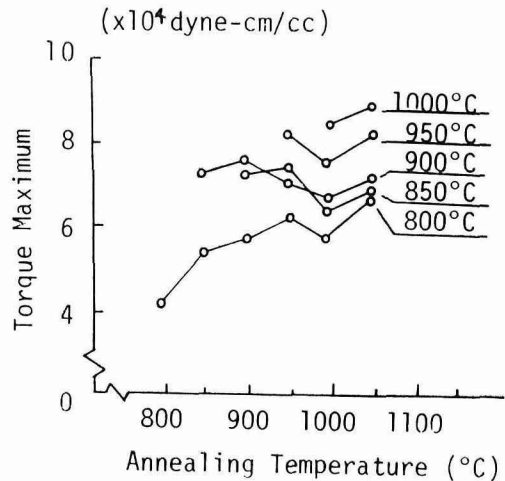


Fig. 7 Torque maxima vs. temperatures in 3.25 % Si-Fe alloy in-diffused with Zn for pre-annealed at various temperatures

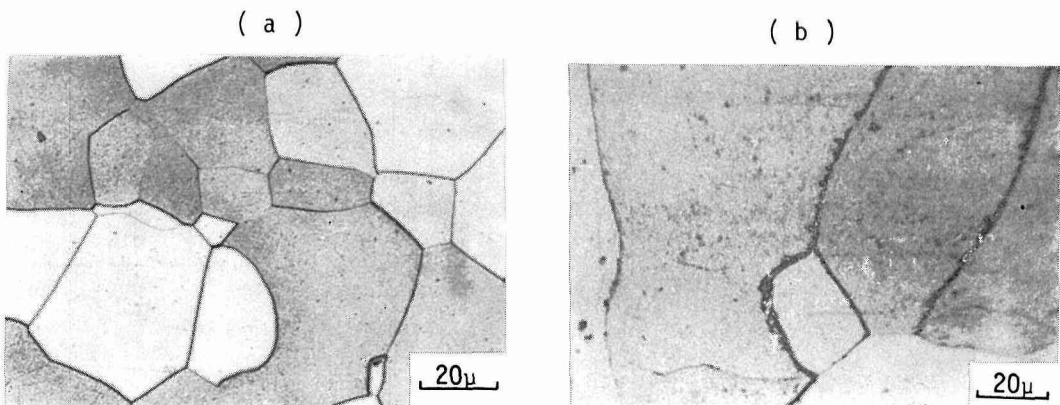


Fig. 8 Micrographs of grains in 3.25% Si-Fe non-in-diffused (a) and in-diffused with Zn (b) annealed both at 800°C

での温度範囲に変化は見られない。また変換点から再結晶初期の曲線の傾向は70%圧延のものが最も急激でその地はややなだらかな傾向を示している。この過程においては、先にも述べた様に核発生とその成長が行われていると考えられるが、極く初期においては前者の影響が大きいであろう。圧延率によるこれらの曲線の変化は一般に圧延率が高くなるに従って核発生頻度は高くなるが、圧延率70%までは(110) [001] 方位成分が主体であるのに対し、それ以上の圧延率では他の方位成分、例えば(113) [301] 等の核発生頻度が高まり、これらは再結晶型磁気トルク曲線の最大値への寄与が小さいと考えられるからである。

しかしこの様な曲線の圧延率による変化にも拘らず変換点、即ち核発生によって定義される再結晶の開始温度に変化はない。従ってこの温度は圧延率によらない、その物質固有の点と考えられる。

次に純鉄、3.25% Si-Fe、3.25% Si-Fe に微量の MnS または AlN を添加したものの磁気トルク最大値対焼鈍温度曲線を Fig. 5 に示した。これらの曲線は再結晶開始温度が Fe の最も低い温度から始まり、単一の 3.25% Si-Fe 合金、Si-Fe 合金に MnS を含むもの、そして Si-Fe 合金に AlN を含むものの順で高温側に移行しているのが注目される。これは、従来冷間圧延し、再結晶した鉄および珪素鉄で(110) [001] 主方位成分の集積度の高い順序になっていることが興味深い。この様な再結晶開始温度の高温側への移行は合金または不純物、あるいは化合物に基づくものと考えられよう。これが如何にして(110) [001] 成分結晶の核発生に影響するかは興味深い。

歪焼鈍法による鉄または珪素鉄の単結晶生成法において、ある程度の不純物の含有が単結晶の成長を容易にする従来の経験を考慮すると、先の MnS または AlN の含有が結晶粒成長の段階のみならず、核生成の段階においてもランダムな方位の核生成を抑制する効果があることも予想されよう。磁気トルク曲線の最大値は焼鈍温度と共に増加して行くが、核発生段階で急速な上昇を示したものは最終的に致達する最大値は高い。これは(110) [001] 成分結晶の核発生頻度によるものである。しかし核の成長段階での増加が大きいものは必ずしもそうでない。これは MnS または AlN などのインヒビターを添加して、初期の結晶粒成長、即ち正常結晶粒成長を抑制す

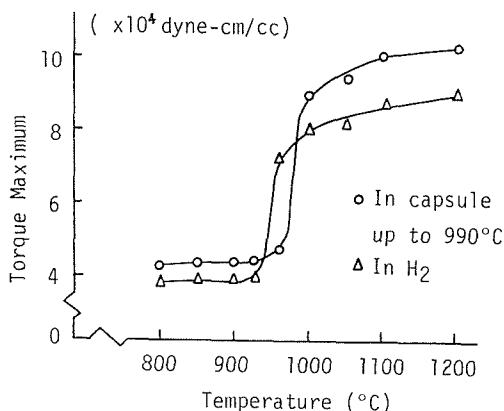


Fig. 9 Torque maxima vs. temperatures in Fe-Si-MnS annealed in capsule (up to 990°C) and H_2

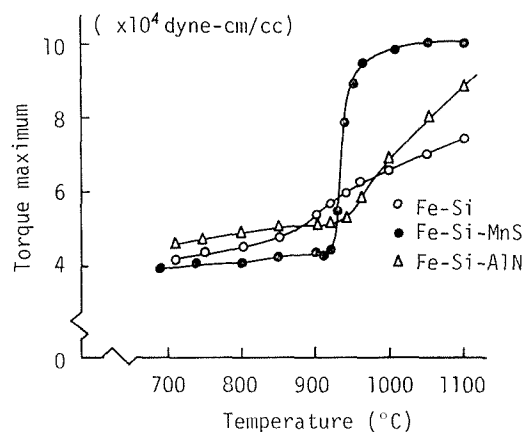


Fig. 10 Torque maxima vs. temperatures in Si-Fe, Si-Fe with MnS and Si-Fe with AlN at the region of higher annealing temperatures

る効果の反対の効果として理解することができる。

MnS または S および AlN を微量添加した Si-Fe 合金では、中間焼鈍温度で結晶粒成長を促す効果が知られている。Fig. 6 (a), (b) は 3.25% Si-Fe に MnS を添加したもので、圧延率を変えたときの磁気トルク最大値対焼鈍温度曲線 (a) および中間焼鈍を含む二次圧延を行い、その際、二次圧延の方向を 0° , 45° , 90° と行ったもののそれを (b) に示した。圧延率および二次圧延の方向の違いにも拘らず、それらが急激な集合組織の発達を行う焼鈍温度は約 900°C 近傍である。

MnS を含む珪素鋼における二次再結晶は、従来の MnS の解離説に対し最近 Fidler^{10,11)} 等により蒸発による脱硫とされ、単独硫黄の含有量が 0.003% となったとき起るとされている。従って約 960°C は合金中の硫黄の気化温度を与えるものと考えられる。今この様な単独硫黄の含有量と集合組織の発達⁹⁾を調べる目的をもって、珪素鉄に亜鉛を浸透させた。亜鉛は硫黄と ZnS を作り、単独硫黄の濃度を下げると考えられる。

亜鉛を鉄等に合金として添加することは、その高い蒸気圧のため極めて困難である。ここでは微量の硫黄を含む 3.25% Si-Fe 合金に拡散浸入添加を行った。種々の再結晶温度で前焼鈍した試料表面に Zn を電気メッキし、次に試料を再び高温で焼鈍した。電気メッキの条件は次の様なものである。

ZnSO ₄	180 g
NH ₄ Cl	15 g
NaCH ₃ COO	7.5 g
H ₂ O	500 cc
電流密度	125 mA/cm ²
時間	1 min

Fig. 7 の最大トルク値対焼鈍温度曲線に見られる様に、その前焼鈍温度の高いもの程より高い集合組織の集積度に致達することが知られる。また Fig. 8 の光学顕微鏡写真によると、Zn を電気メッキし焼鈍したものは、それを行わないものに比べ、著しい結晶粒成長を示している。その暗く、やや広く見える粒界は ZnS の偏析を示しているが、その様な障害物の粒界における存在にも拘らず、単独 S の濃度の減少によって結晶粒成長が行われたことは興味深い。

前焼鈍温度は、その温度まで S による inhibition が行われた温度と考えることが出来るので、inhibition 解放温度対致達ピーク値を求めると Fig. 9 の様になる。ここで注目されるのは、特に高温領域に限らずより高い温度まで inhibition が有効である程、より高い集合組織の集積度に致達することである。従ってこれが inhibitor として添加物質の有効性を判定する条件となるかも知れない。

次に珪素鉄に AlN を添加したものの磁気トルク最大値対焼鈍温度曲線を Fig. 10 に示した。それによれば中間領域における inhibition 効果は MnS のそれに比較して劣る。しかし二次再結晶温度は、MnS のその様に急激でなく、ややなだらかに広い温度範囲にわたっているが、平均的には二次再結晶温度が MnS のそれより高い。この様な両者の inhibition 効果の性格の違いが集合組織の集積度に影響を及ぼすのではないかと思われる。従って Fiedler 等の 2 種以上^{10,12)}の inhibitor を用いることにより、より高い集積度の集合組織の珪素鉄を得ることが出来るという結論はこれまでの実験結果からも推測することができよう。

4. 結 論

鉄基合金の冷間圧延，再結晶現象またそれに伴って起る集合組織の発達過程を研究するに当り，ここでは 3% Si-Fe 合金を対象に定量性の点で優位な磁気トルク計を用いて実験を行った。その結果，回復から再結晶への変換において回復開始温度とその終了および核発生の開始温度を求めることが出来た。それは合金組成によって決まり，圧延等の加工条件によらないことが判った。また再結晶初期の様相が最終的集合組織の集積度に大きな影響を持つことが知られた。

Inhibitor 効果を持つ，MnS および AlN を添加した珪素鉄についての実験を行い，それらが異った温度範囲で作用することが判り，今後の研究上の指針が与えられた。

参 考 文 献

- 1) May, J. and D. Turnbull: J. Appl. Phys., **30** (1959), 210.
- 2) Ainslie, N. and U. Seybolt: J. Iron and Steel Inst., **194** (1960), 341.
- 3) Fiedler, H.: Trans. Met. AIME, **221** (1961), 1201.
- 4) Taguchi, S. and A. Sakakura: Acta Met., **14** (1966), 405.
- 5) Sakakura, A.: J. Appl. Phys., **40** (1969), 1534.
- 6) 花井 論，竹本長靖，他：鉄と鋼，**57** (1971)，188.
- 7) 松村 治，鶴岡一夫：日本金属学会誌，**38** (1974)，708.
- 8) 中江，成田，浜田：北海道大学工学部研究報告，**90** (1978).
- 9) Nakae, H. and K. Tagashira: Trans. Japan Inst. Met., **14** (1973), 15.
- 10) Fiedler, H.: Met. Trans. A, **8A** (1977), 1307.
- 11) Grenoble, H. E.: IEEE Trans. Mag., **13**[5] (1977), 1424.
- 12) Salsgiver, J. A. and D. J. McMahon: IEEE Trans. Mag., **12**[6] (1976), 864.