

## 二次再結晶理論計算

Theoretical Analysis and Computer Simulation of Secondary Recrystallization  
in Grain-oriented Silicon Steel牛 神 義 行\*  
Yoshiyuki USHIGAMI

## 抄 録

析出物と集合組織の影響を考慮した統計的粒成長モデルを基に、方向性電磁鋼板の二次再結晶機構の検討を行った。理論的解析を行い、Goss方位粒が他の約1億個ものマトリックス粒を蚕食して千倍以上の粗大粒に成長することが、本モデルから説明できることが判明した。また、計算機シミュレーションにより、二次再結晶粒の成長挙動、二次再結晶粒径、及び、二次再結晶方位分布等の二次再結晶の重要な特徴を再現することができることを示した。

## Abstract

The mechanism of secondary recrystallization in grain-oriented silicon steel has been studied on the basis of the statistical model of grain growth in which the inhibitor and texture are taken into account. The theoretical analysis reveals that this model explains the evolution of Goss-oriented grain to a coarse grain more than thousand times larger in diameter than the matrix grains by consuming a hundred million other grains. The computer simulation shows that this model successfully depicts the important features of secondary recrystallization; grain growth behavior of secondary grains, secondary grain size and sharpness of Goss texture.

## 1. 緒 言

二次再結晶とは、一次再結晶が完了した後に更に高温で焼鈍すると、一次再結晶組織中の特定の粒が他の粒を蚕食して粗大粒に成長する現象である。この二次再結晶を利用して結晶方位制御を行った工業製品として、変圧器の鉄心等に用いられる方向性電磁鋼板がある。

方向性電磁鋼板は1934年に米国のGoss<sup>1)</sup>によって発明されて以来、多くの研究開発がなされ<sup>2-5)</sup>、日本の鉄鋼製品を代表する高機能材料となっている。鉄の磁化容易軸は〈001〉方向であることから<sup>6)</sup>、結晶方位を制御することによって磁気特性を向上させることができる。現状の最高グレード製品の結晶配向度は約3°にまで高められている。

二次再結晶を安定して行わせるためには、インヒビターとよばれる微細析出物が重要な役割を果たす<sup>7-10)</sup>。一次再結晶した鋼板を焼鈍すると、全ての結晶方位粒が成長する。一方、インヒビターが存在すると、図1に示すように、低温域ではピン止め効果によって粒成長が抑制されるが、インヒビターが弱体化し始める温度から{110}〈001〉方位

粒、いわゆるGoss方位粒のみが成長を開始して粗大粒に成長するようになる。

方向性電磁鋼板の二次再結晶では、平均粒径が約10 $\mu$ m

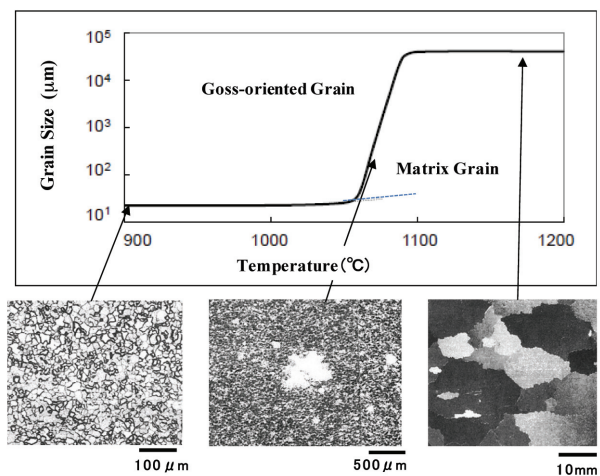


図1 二次再結晶挙動の一例(粒径と粒組織の変化)  
Secondary recrystallization behavior in grain-oriented silicon steel (grain size and structure)

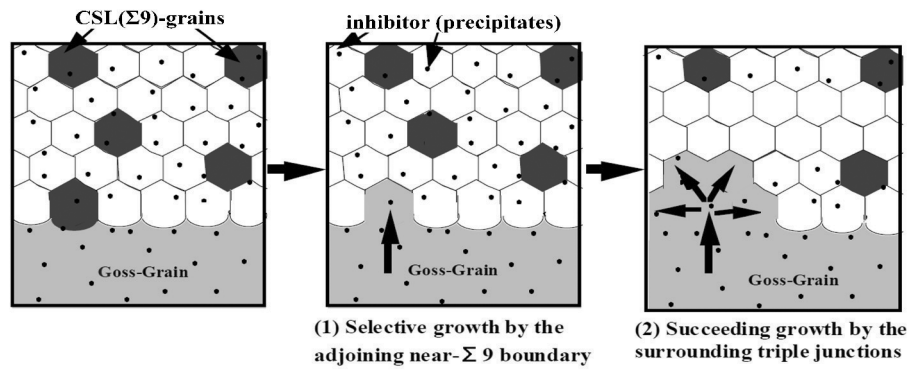


図2 二次再結晶の対応方位(CSL)モデル(Goss方位粒の優先成長の素過程)<sup>21, 22, 27)</sup>  
 CSL model of secondary recrystallization (elementary process of selective growth of Goss-oriented grain)

の一次再結晶粒の中から、Goss方位粒のみが千倍以上の数～数十mmの巨大粒に成長しており、Goss方位粒は他の約1億個ものマトリックス粒を蚕食して成長する。Goss方位粒は一次再結晶組織中に一万個に一個程度しか存在していないので、更にもその中の一万個に一個の粒が選ばれて二次再結晶粒として成長していることになる。

このように存在量の少ないGoss方位粒のみが優先的に成長する機構については、これまで多くの研究がなされてきている<sup>11-16)</sup>。

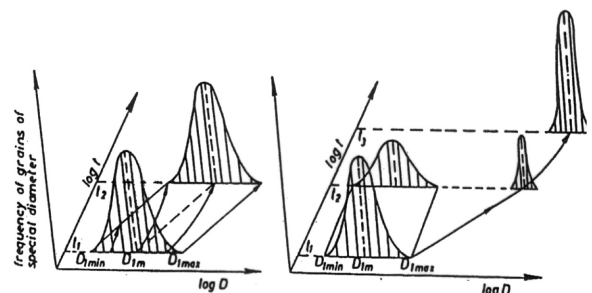
我々は、この二次再結晶機構を解明するために、強力なX線源であるシンクロトロン放射光を用いて二次再結晶の動的観察を行い、対応方位(CSL:Coincidence Site Lattice)モデルを提案している(図2)<sup>17-22)</sup>。Goss方位粒は、周囲のマトリックス粒に対して、格子整合性の良い対応粒界の存在頻度が高いことが判明している。対応粒界は、一般の高角粒界に比べて粒界エネルギーが低く、インヒビターから受けるピン止め力が小さいので、優先的に移動するものと考えられる。このインヒビター存在下における対応粒界の選択的な移動がトリガーとなって、マクロ的なGoss方位粒の二次再結晶が発現するものと推定される。

本稿では、統計的粒成長理論を基に、(1)理論的解析により、Goss方位粒が千倍以上の巨大粒に成長するメカニズムについて検証を行い、次いで、(2)計算機シミュレーションにより、実際の二次再結晶挙動との比較検討を行った。

## 2. 二次再結晶の理論的考察

### 2.1 統計的粒成長モデルによる理論的解析<sup>23-27)</sup>

粒成長は、一般に“正常粒成長(continuous grain growth)”と“異常粒成長(discontinuous grain growth)”に分類される。図3はこれらの粒径分布の変化挙動を模式的に示したものである<sup>28)</sup>。正常粒成長では、粒径の小さな粒が消滅することによって、全体の平均粒径が大きくなるが、規格化した粒径分布自体は変わらない(図3(a))。一方、異常粒



(a) Continuous grain growth (b) Discontinuous grain growth

図3 正常粒成長と異常粒成長の粒成長挙動の模式図<sup>28)</sup>  
 Schematics of continuous and discontinuous grain growth (t: annealing time, D: grain diameter)

成長は図3(b)に示すように、インヒビター等によってマトリックス粒の粒成長が抑制された場合に、特定の粒のみが成長して粒径分布に分岐が生じる現象である。

“二次再結晶”は、上記の“異常粒成長”と同様の用語として用いられることもあるが、方向性電磁鋼板の二次再結晶に関しては、(1)特定の結晶方位粒(Goss方位粒)のみが、(2)千倍以上の巨大粒に成長する、という二つの大きな特徴を有する。

本節では、統計的粒成長モデルを基に、この二つの特徴に関する理論的解析を行った。図4に模式図を示す。マトリックス粒からの駆動力を同一粒径からの平均場( $E/R_c$ )としてとらえる統計モデル<sup>29)</sup>を基に、インヒビターと集合組織(粒界エネルギー)の影響を組み込んだ。このモデルを基に、Goss方位粒の粒成長速度とマトリックス粒の粒成長を比較することによって異常粒成長の判別を行い、数千倍に粗大化する可能性を検証した。

Goss方位粒の粒成長速度は(1)式で表わされる。

$$\frac{dR_G}{dt} = AM \left( \frac{E}{R_c} - \frac{E_G}{R_G} - \frac{E_G I_Z}{A} \right) \quad (1)$$

$R_G$ : Goss方位粒の半径,  $R_c$ : マトリックス粒の臨界半径,  $E_G$ : Goss方位粒とマトリックス粒間の粒界エネルギー,  $E$ : マトリックス粒間の粒界エネルギー,  $t$ : 時間,  $A$ : 形状因子,  $M$ : 粒界易動度,  $I_Z$ : インヒビター強度

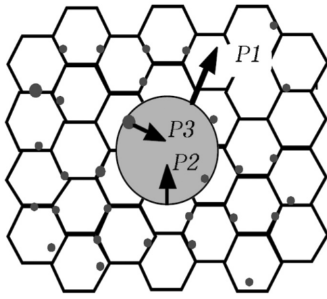


図4 統計的粒成長モデルの模式図<sup>11, 27)</sup>

Schematic illustration of microstructure and three forces that affect Goss-oriented grain

図4および(1)式に示すように、Goss方位粒には三つの力が働く。(1)式の第1項(P1)はマトリックス粒の粒界の張力による駆動力、第2項(P2)はGoss方位粒の自己収縮力である。第3項(P3)は粒界移動に対するインヒビターからのピン止め力であり、図2に示す対応方位モデルでは、この第3項( $E_G I_z$ )が重要な役割を果たす。

方向性電磁鋼板の製造プロセスにおいては、一次再結晶した鋼板をコイル状に巻取り、数十時間かけて1200℃程度の温度までゆっくりと昇温する過程で二次再結晶が発現する。この昇温過程において、インヒビターが弱体化するにつれてマトリックス粒も粒成長していくので、二次再結晶は擬定常状態( $R_c I_z = \text{一定}$ )で発現すると考えられる。この擬定常状態におけるマトリックス粒の粒成長は(2)式で与えられる<sup>29)</sup>。

$$\frac{dR_c}{dt} = \frac{AME}{4R_c} \left( 1 - \frac{R_c I_z}{A} \right)^2 \quad (2)$$

異常粒成長の判定は、(1)式で表わされるGoss方位粒の成長速度と(2)式で表わされるマトリックス粒の成長速度の相対速度の比率(C)を評価する(3)式で判別することができる。

$$C = \left( \frac{dR}{R} \right) \bigg/ \left( \frac{dR_c}{R_c} \right) \quad (3)$$

異常粒成長は、Goss方位粒の相対成長速度がマトリックス粒の相対成長速度よりも大きくなる $C > 1$ という条件で発現する。(1)式と(2)式を(3)式に代入し、粒径、インヒビター、粒界エネルギーを以下の規格化したパラメータ、( $u, z, k_e$ )で表示すると、異常粒成長は下記の(4)式で判定される。

$$u = \frac{R}{R_c}, \quad z = \frac{R_c I_z}{A}, \quad k_e = \frac{E_G}{E}$$

$$C - 1 = - \frac{(1-z)^2 u^2 - 4(1-k_e z)u + 4k_e}{(1-z)^2 u^2} \quad (4)$$

図5はこれらのパラメータの影響を評価した例である。図5から、Goss粒はインヒビターを導入しただけ( $z=0.5$ ,

$\Delta k_e = 1 - k_e = 0$ )では異常粒成長はしない( $C \leq 1$ )が、インヒビターとともに粒界エネルギーの特異性を導入する( $z=0.5, \Delta k_e = 0.2$ )と異常粒成長をするようになる( $C > 1$ )。異常粒成長した粒の相対粒径は大きくなっていくが、その相対成長速度比率(C)は極大値をとった後に次第に減少していくので、一定の最大粒径( $u_{max}$ )に到達するとそれ以上は大きくなることできないことが分かる。

図6に、この到達最大粒径( $u_{max}$ )に及ぼすインヒビターと粒界エネルギーの影響を示す。異常粒成長を発現させるためには、粒界エネルギーに特異性が存在する( $\Delta k_e > 0$ )ことが必要であるが、数千倍の巨大粒に成長させるためには、それとともにインヒビター強度を高めることが必須の条件であることが分かる。これは(1)式の第3項( $k_e I_z$ )に起因するものであり、対応粒界とインヒビターが二次再結晶に重要な役割を果たすことを示すものである。

以上の解析により、統計的粒成長モデルにインヒビターと粒界エネルギーの特異性を導入することによって、方向性電磁鋼板の特徴である、“Goss方位粒が千倍以上の巨大粒に成長すること”が説明できることが判明した。

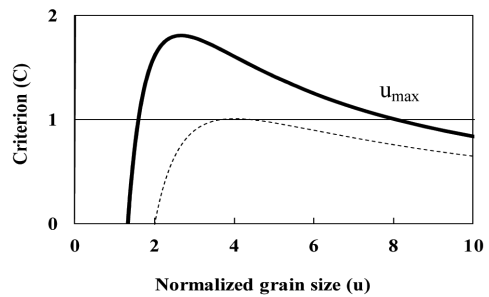


図5 異常粒成長判定パラメータ(C)に及ぼす粒界エネルギーとインヒビターの影響<sup>27)</sup>  
(破線:  $z = 0.5, \Delta k_e = 0$ , 実線:  $z = 0.5, \Delta k_e = 0.2$ )  
Effect of grain boundary energy and inhibitor on criterion parameter of discontinuous grain growth (C)  
(dotted line:  $z = 0.5, \Delta k_e = 0$ , solid line:  $z = 0.5, \Delta k_e = 0.2$ )

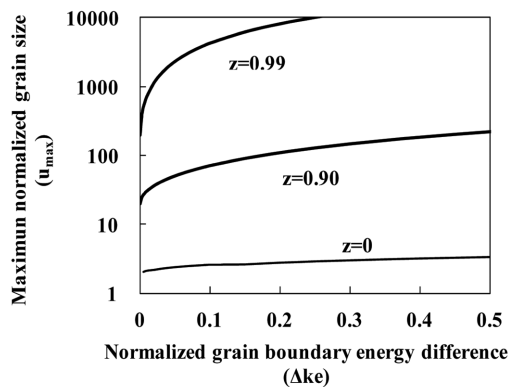


図6 到達最大粒径に及ぼす粒界エネルギーとインヒビターの影響<sup>24, 27)</sup>  
Effect of grain boundary energy and inhibitor on maximum normalized grain size

2.2 二次再結晶の計算機シミュレーション<sup>30-32)</sup>

本節では、計算機シミュレーションを行って、二次再結晶挙動を再現することができるかの検討を行った。

2.2.1 シミュレーション・モデル

図7に計算機シミュレーション用粒成長モデルの模式図を示す。統計的粒成長一般式は(5)式で表わされる。

$$\frac{dR_i^H}{dt} = \sum_K \sum_j \frac{S_j^K}{S} AM^{HK} \left( \frac{E^K}{R_j^K} - \frac{E^H}{R_i^H} - \frac{E^{HK} I_Z}{A} \right) \quad (5)$$

R: 粒径, E: 粒界エネルギー, M: 粒界易動度, t: 時間, S: 粒界面積, A: 形状因子, I<sub>Z</sub>: インヒビター強度, (H, K): 結晶方位クラス, (i, j): 結晶粒径クラス

図8に一次再結晶組織の初期状態を示す。結晶方位は4クラスに分類し, G1~G3はGoss方位として割り付け(それぞれの分散角は, 5, 10, 15度), それ以外の結晶方位はマトリックス方位(M)とした。各結晶方位粒の存在量は, 一回強冷間圧延法により製造した試料のX線による結晶方位分布解析結果を用いた。Goss方位粒の存在量はマトリックスに比べて格段に少ない。また, 初期粒径分布は93クラスとし, 結晶方位によって差はないものとしてHillertの定常粒径分布<sup>29)</sup>を用いた。

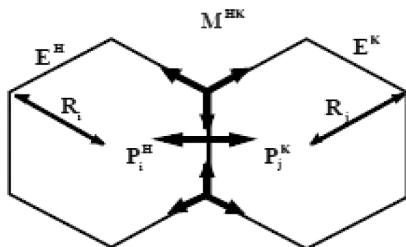


図7 計算シミュレーション用粒成長モデルの模式図<sup>32)</sup>  
Schematic illustration of the statistical model of grain growth for computer simulation

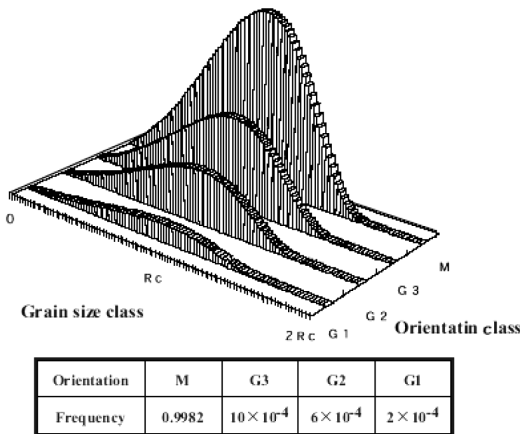


図8 初期粒組織(結晶方位と粒径分布)と存在量<sup>32)</sup>  
Initial conditions of grain structure (orientation and grain size distribution) and frequencies

表1 粒界のタイプと粒界エネルギーと易動度の関係<sup>32)</sup>  
Characteristics of grain boundaries

Type grain boundary	Energy	Mobility
Small angle boundary	Low	Low
High angle boundary	High	High
CSL boundary	Medium	Higher

表2 結晶方位クラス間の粒界エネルギー比率と易動度比<sup>32)</sup>  
Relative grain boundary energy (e<sup>HK</sup>) and relative grain boundary mobility (m<sup>HK</sup>) between the orientation classes

e <sup>K</sup>	M	G3	G2	G1
M	1	0.98	0.97	0.96
G3	0.98	0.5	0.5	0.5
G2	0.97	0.5	0.5	0.5
G1	0.96	0.5	0.5	0.5

m <sup>HK</sup>	M	G3	G2	G1
M	1	1	1	1
G3	1	0	0	0
G2	1	0	0	0
G1	1	0	0	0

結晶粒界は, 表1に示すように三種類のタイプに分類し, 表2に示す粒界エネルギー比率, 易動度比率を用いた。前節で考察したように, 粒界エネルギーの違いが支配因子であると考えられるので, 本シミュレーションにおいては易動度の特異性については考慮しないこととして, マトリックス粒間の易動度, およびGoss方位粒とマトリックス粒の易動度は同等とした。また, Goss方位粒とマトリックス粒の粒界エネルギーについては, 鋭なGoss方位粒ほど対応粒界頻度が多くなることを勘案して, マトリックス粒間の粒界エネルギーに比べて, 数%(2~4%)低いものとした。

2.2.2 比較実験<sup>10)</sup>

計算機シミュレーションの検証を行う比較実験として, 二次再結晶挙動に及ぼすインヒビタードロップの影響について行った実験を用いた。本実験では, 二次再結晶焼鈍を等温焼鈍で行い, 雰囲気窒素分圧を変更することによって(AI, Si)Nインヒビターの分解挙動を変化させ, 二次再結晶挙動への影響を調査した。

図9に示すように, 二次再結晶の結晶粒組織, 及び, 結晶方位分布は脱インヒビター速度に大きな影響を受けており, インヒビターが重要な支配因子であることが確認できる。試料(a)のように, 窒素分圧を高めて脱インヒビター速度を抑制すると, 鋭なGoss方位粒のみが優先成長して二次再結晶粒径が大きくなる。逆に, 脱インヒビター速度が速くなると, 分散Goss方位粒が成長するようになるとともに二次再結晶粒径が小さくなり, 最終的には, 試料(c)のように, マトリックス粒も成長するようになる。

2.2.3 計算機シミュレーション結果<sup>32)</sup>

比較実験において, 脱インヒビター速度を変更した試料

のインヒビターの量と平均サイズを測定し、インヒビター強度を算出した。その結果を用いて二次再結晶焼鈍中の粒組織変化挙動のシミュレーションを行った。シミュレーションにおいて、マトリックス粒の20倍以上の粒径を二次再結晶粒と定義して、その体積分率が1%，および99%となる時点二次再結晶の開始、完了と定義した。

図10にGoss方位粒の粒成長挙動の実験結果（二次再結晶粒径とマトリックス粒径）と計算結果を示す。シミュレーション結果では、雰囲気ガスの窒素分圧を高めて脱インヒビター速度を抑制すると、二次再結晶開始/完了時間

は、それぞれ3.5h/4.3h, 5.0h/5.9h, および13.3h/16.6hと遅くなるとともに、最終の二次再結晶平均粒径も、3.4mm, 7.8mm, および26.8mmと大きくなった。これらの計算結果は、実験値をほぼ定量的に再現している。また、脱インヒビター速度に応じて、二次再結晶粒径がマトリックス粒径の100～1000倍の範囲で変化していることも再現されている。

図11に実際の二次再結晶方位分布の測定結果、およびシミュレーション結果を示す。実験結果では、脱インヒビター速度が速くなると、次第にGoss方位の分散が大きく

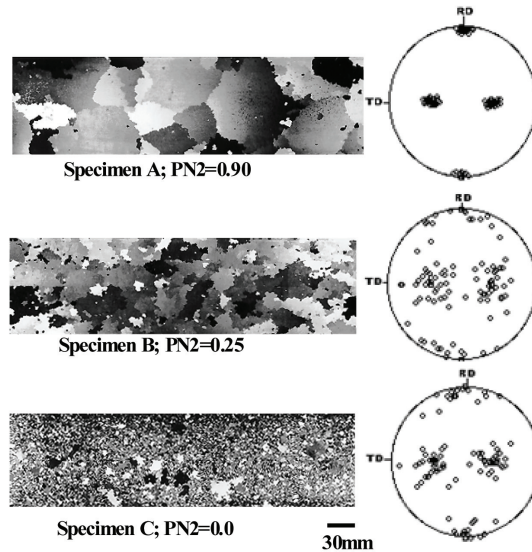
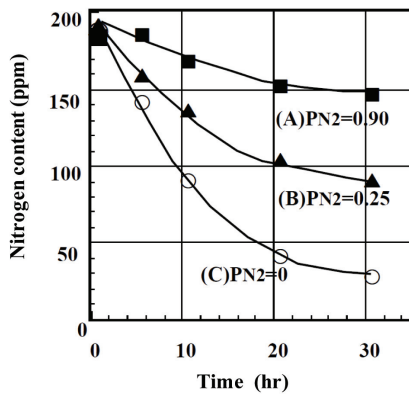


図9 二次再結晶焼鈍(1075°C恒温焼鈍)中の鋼中窒素量の変化と焼鈍後の結晶粒組織と結晶方位({100}ポールフィギュア)<sup>10,32)</sup> Changes of nitrogen content during secondary recrystallization annealing (isothermal annealing at 1075°C) and grain structures and orientation distributions ({100} pole figures) after annealing

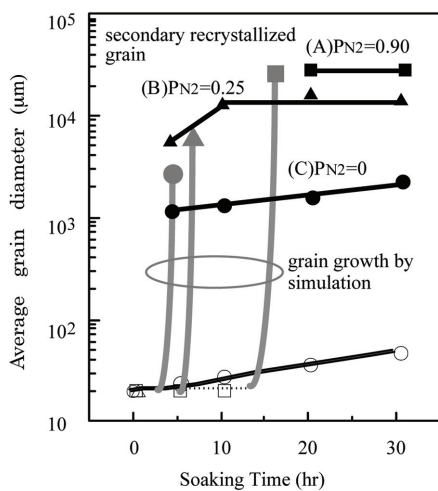


図10 焼鈍中の二次再結晶粒、及びマトリックス粒の粒径変化挙動(実験値とシミュレーション結果)<sup>32)</sup> Evolution of the average grain size of secondary grains and matrix grains during isothermal annealing (experimental and calculated values)

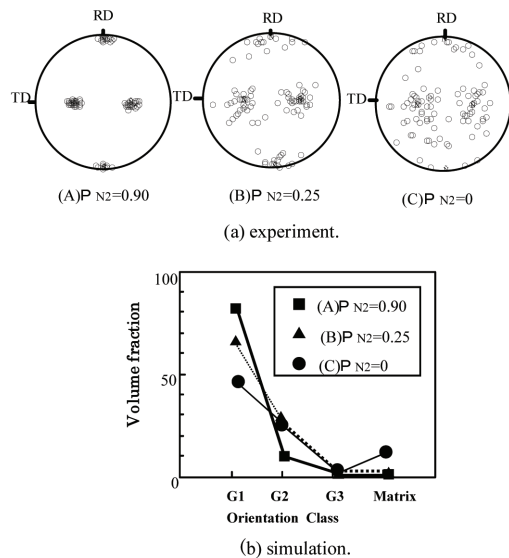


図11 二次再結晶方位分布:(a)実験結果({100}ポールフィギュア), (b)シミュレーション結果(各結晶クラスの体積分率)<sup>32)</sup> Orientation distribution of secondary grains: (a) experiment ({100} pole figures), (b) simulation (volume fractions of four orientation classes)

なり、脱インヒビター速度の最も速い試料(c)では、Goss方位以外の方位粒も粗大粒に成長している。シミュレーション結果においても、脱インヒビター速度が速くなるにつれて、尖鋭なGoss方位クラスであるG1の体積分率が次第に減少していき、分散Goss方位クラスであるG2とG3の体積分率が増加している。また、脱インヒビター速度が最も速い試料(c)では、Goss方位(G1~G3)以外のマトリックス方位(M)も粗大化して二次再結晶組織に混在しており、実験結果に対応していることが分かる。

統計的粒成長モデルに基づく計算機シミュレーションによって、Goss方位粒が約千倍もの巨大粒に成長していく成長挙動、および結晶粒径や結晶方位分布が定量的に再現できることが分かる。

### 3. 結 言<sup>33, 34)</sup>

統計的な粒成長理論を基に、二次再結晶機構の検討を行った。“格子整合性の良い対応粒界は一般的な高角粒界に比べてインヒビターによるピン止め力が小さいので優先的に移動する”とする対応方位(CSL)モデルを基に、Goss方位粒の二次再結晶現象の定式化を行った。この粒成長式を用いて理論的解析を行い、“Goss方位粒が他の1億個ものマトリックス粒を蚕食して千倍以上の巨大粒に成長する”ことが説明できることが判明した。また、計算機シミュレーションにより、Goss方位粒の二次再結晶開始/完了時間等の成長挙動や、二次再結晶粒径、二次再結晶方位分布等の特徴が定量的に再現できることを示した。

このような二次再結晶機構に関する理論と計算機シミュレーション技術を利用することにより、更に、電磁鋼板の特性を向上させることができるものと考えられる。

#### 参考文献

- 1) Goss, N. P.: U.S.P. 1965559. 1934
- 2) Littmann, M. F., Heck, J. E.: U.S.P. 2599340. 1952
- 3) 田口悟, 坂倉昭: 日本特許 昭33-4710. 1958
- 4) Goto, I., Matoba, I., Imanaka, T., Gotoh, T., Kan, T.: Proc. Soft Mag. Mat. 2, 262 (1975)
- 5) Takahashi, N., Suga, Y., Kobayashi, H.: J. Mag. Mag. Mat. 160, 143 (1996)
- 6) Honda, K., Kaya, S.: Sci. Repts. Tokoku Univ. 15, 721 (1926)
- 7) May, J. E., Turnbull, D.: Trans. Met. Soc. AIME. 212, 769 (1958)
- 8) 松岡孝: 鉄と鋼. 53, 1007 (1967)
- 9) Ushigami, Y., Nakayama, T., Suga, Y., Takahashi, N.: Materials Science Forum. 204-206, 599 (1996)
- 10) Ushigami, Y., Murakami, K., Kubota, T.: Proc. 4th Int. Conf. on Recrystallization and Related Phenomena. 1999, p. 559
- 11) Matsuo, M., Sakai, T., Tanino, M., Shindo, T., Hayami, S.: Proc. 6th Int. Conf. on Textures of Materials. 1982, p. 918
- 12) Inokuti, Y., Maeda, C., Ito, Y., Shimanaka, H.: Proc. 6th Int. Conf.

- on Textures of Materials. 1982, p. 948
- 13) Harase, J., Shimizu, R., Dingley, D. J.: Acta Metall. 39, 763 (1991)
- 14) Hutchinson, B., Homma, H.: Proc. 3rd Int. Conf. of Grain Growth. 1998, p. 387
- 15) Hayakawa, Y., Szpunar, J. A.: Acta Mater. 45, 1285 (1997)
- 16) Park, H., Kim, D., Hwang, N., Joo, Y., Han, C. H., Kim, J.: J. Appl. Phys. 95, 5515 (2004)
- 17) Ushigami, Y., Suga, Y., Takahashi, N., Kawasaki, K., Chikaura, Y., Kii, H.: J. Mater. Eng. 13, 113 (1991)
- 18) Ushigami, Y., Kawasaki, K., Nakayama, T., Suga, Y., Harase, J., Takahashi, N.: Materials Science Forum. 157-162, 1081 (1994)
- 19) Ushigami, Y., Murakami, K., Kubota, T.: Proc. 3rd Int. Conf. of Grain Growth. 1998, p. 491
- 20) Ushigami, Y., Kubota, T., Takahashi, N.: Textures and Microstructures. 32, 137 (1999)
- 21) Ushigami, Y., Kumano, T., Haratani, T., Nakamura, S., Takebayashi, S., Kubota, T.: Mater. Sci. Forum. 467-470, 853 (2004)
- 22) 牛神義行, 中村修一, 竹林重人: 熱処理. 50, 179 (2010)
- 23) Nakayama, T., Ushigami, Y.: Proc. 7th RISO Int. Symp. Met. Mat. Sci. 1986, p. 463
- 24) 牛神義行: CAMP-ISIJ. 21, 548 (2008)
- 25) 牛神義行: CAMP-ISIJ. 22, 1438 (2008)
- 26) 牛神義行, 中村修一, 藤倉昌浩: CAMP-ISIJ. 26, 1231 (2010)
- 27) Ushigami, Y., Nakamura, S.: to be published in Proc. 4th Int. Conf. of Recrystallization and Grain Growth
- 28) Detert, K.: Recrystallization of Metallic Materials. ed. Haessner, F., 1978, p. 99
- 29) Hillert, M.: Acta Metall. 13, 227 (1965)
- 30) Nakayama, T., Ushigami, Y.: Materials Science Forum. 94-96, 413 (1992)
- 31) Nakayama, T., Ushigami, Y., Nagashima, T., Suga, Y., Takahashi, N.: Materials Science Forum. 204-206, 611 (1996)
- 32) Ushigami, Y., Nakayama, T., Arai, S., Kubota, T.: Proc. Soft Mag. Mater. 16, 487 (2003)
- 33) 牛神義行: 再結晶・集合組織とその組織制御への応用. 日本鉄鋼協会, 1999, p. 245
- 34) 牛神義行: 金属学会セミナー“集合組織の謎にせまる”. 2001, p. 63



牛神義行 Yoshiyuki USHIGAMI  
八幡技術研究部 主幹研究員 工博  
福岡県北九州市戸畑区飛幡町1-1 〒804-8501