

© 1991 ISIJ

論 文

一回冷間圧延法一方向性電磁鋼板の二次再結晶
に及ぼす冷間圧延圧下率の影響

中島正三郎*・高嶋 邦秀*・原勢 二郎*

Effect of Reduction of Cold Rolling on Secondary Recrystallization of
Grain-oriented Electrical Steel Produced by Single-stage Cold Rolling
Process

Shozaburo NAKASHIMA, Kunihide TAKASHIMA and Jiro HARASE

Synopsis:

Previously, authors reported the effect of the reduction in cold rolling which is an important factor for secondary recrystallization of the grain-oriented electrical steel produced by the single-stage cold rolling process by varying final thickness.

Then, the effect of the reduction was overlapped with that of final thickness. This time, a study has been made concerning with the effect of the reduction on secondary recrystallization by varying the thickness of hot-bands, *i. e.*, by keeping final thickness in the same level. The following are conclusions.

(1) With the increase in the reduction, at first, the size of the secondary grains gets larger, then, fine grains begin to appear among large secondary grains, and finally, fine grains occupy all part of the specimen.

This phenomenon is considered to be attributed to the decrease in the nuclei of (110)[001] orientation accompanied by the increase in the reduction.

(2) With the increase in the reduction, the orientations of secondary grains concentrate on the ideal (110)[001] orientation.

This phenomenon is considered to be attributed to the increase in the intensity of the $\Sigma 9$ coincident orientation with the ideal (110)[001] orientation in the primary matrix.

Key words: single-stage cold rolling process; electrical steel; grain-oriented Si steel; cold rolling; reduction; secondary recrystallization; primary recrystallization.

1. 緒 言

一方向性電磁鋼板は、主としてトランスの鉄芯材料として用いられ、磁化特性が優れていること、鉄損が低いことが重要である。一方向性電磁鋼板は、Si 約 3 mass% を含有し¹⁾、二次再結晶により、圧延面に (110) 面を、圧延方向に [001] 軸を揃えた、いわゆる Goss 組織²⁾³⁾ とすることにより製造される。

一方向性電磁鋼板の二次再結晶については、インヒビター⁴⁾ とともに一次再結晶の組織、集合組織⁵⁾ が重要である。一次再結晶の組織、集合組織は、材料成分や製造プロセスによって変化する。MnS および AlN をインヒビターとする一回冷間圧延 (冷延) 法一方向性電磁鋼板⁶⁾ の場合は、特に、冷延圧下率に大きく影響される。筆者ら⁷⁾ は、先に、同一板厚の熱間圧延 (熱延) 板を出発

材とし、冷延圧下率を増加して最終板厚を薄くすると二次再結晶が起こりにくくなることを示した。原勢ら⁸⁾ は、同様な実験を行い、一次再結晶集合組織と二次再結晶の関係について報告している。しかし、これらの場合、二次再結晶に及ぼす冷延圧下率の影響と最終板厚の影響が重複しており、冷延圧下率単独の影響は明確にされていない。

本研究の目的は、同一板厚の一回冷延法一方向性電磁鋼板について、冷延圧下率の二次再結晶に及ぼす影響を明らかにすることである。

2. 実 験 方 法

C: 0.07, Si: 3.1, Mn: 0.08, S: 0.025, sol. Al: 0.028, N: 0.008 mass% を含有する鋼を真空溶解し、Table 1 に示す実験条件で各工程を処理した。すなわち、

平成 2 年 12 月 21 日受付 (Received Dec. 21, 1990)

* 新日本製鉄(株)鉄鋼研究所 (Steel Research Laboratories, Nippon Steel Corp., 20-1 Shintomi Futtsu 299-12)

Table 1. Experimental procedures.

- (1) Melting : 300 kg vacuum furnace $\rightarrow$ 50 kg ingots
- (2) Slab making : 1 250°C $\times$ 60 min $\rightarrow$ 40 mm (*t*)
- (3) Hot rolling : 1 350°C $\times$ 90 min 40 mm (*t*) $\rightarrow$ 1.5, 2.0, 2.5, 3.0, 4.0, 5.0 mm (*t*)
- (4) Hot-band annealing : 1 100°C $\times$ 120 s $\rightarrow$ Air cool to 900°C $\rightarrow$ 100°C water quench
- (5) Cold rolling : 1.5, 2.0, 2.5, 3.0, 4.0, 5.0 mm (*t*) $\rightarrow$ 0.30 mm (*t*)
Aging : 250°C $\times$ 10 min $\times$ 5 times (After reduced equivalently in ratio)
- (6) Decarburizing annealing : 75 vol% H₂ + 25 vol% N₂,
Dew point 63°C, 850°C $\times$ 210 s
- (7) MgO coating : 95 mass% MgO + 5 mass% TiO₂
- (8) Final annealing : <Heating> 85 vol% H₂ + 15 vol% N₂,
15°C/h <Soaking> H₂, 1 200°C $\times$ 20 h
- (9) Sizing for SST : $\rightarrow$ 60 mm (*w*) $\times$ 200 mm (*l*)
- (10) Stress-relief annealing : 850°C $\times$ 4 h

熱延板の板厚を 1.5~5.0 mm とし、冷延圧下率 (圧下率) を 80~94% とし、最終板厚を 0.30 mm とした。

処理後、磁化力 800 A/m における磁束密度 (B_8 ; T) を測定した。磁気測定後、試料を酸洗して表面酸化層を除去し、マクロ組織を観察し、背面反射ラウエ法により二次再結晶粒の方位を測定した。この場合、結晶粒径は短径で 4 mm 以上であった。

熱延板焼鈍後の試料につき、MnS および AlN の含有量および圧延方向と垂直な面におけるピッカース硬度を測定した。

脱炭焼鈍後の試料につき、板面に垂直で圧延方向に平行な面 (L 断面) におけるミクロ組織を観察し、平均結晶粒径を測定した。平均結晶粒径は板面垂直方向に全板厚について線分法により求めた。

熱延後、熱延板焼鈍後、冷延後および脱炭焼鈍後の試料の板厚各部の板面平行面における主要面の極密度を測定した。

冷延後および脱炭焼鈍後の試料につき、表面下 30 μ m から板厚中心部へ向かう 80 μ m 厚の試料および板厚中心部 80 μ m 厚の試料について {200} 極点図を測定した。また、脱炭焼鈍後の試料については、ベクトル法⁹⁾による三次元方位解析を行い、清水ら¹⁰⁾の方法により各方位と $\Sigma 9$ の対応関係にある方位¹¹⁾の強度を計算した。

3. 実験結果

3.1 析出物

Fig. 1 に、熱延板焼鈍後の MnS および AlN の含有量を示す。多少のばらつきは認められるが、試料厚による差異は小さいといえる。また、熱延板焼鈍後の試料の圧延方向と垂直な面におけるピッカース硬度 (5 点の平均値) は、4.0 mm 材で 207, 2.0 mm 材 208 であった。このことから、試料厚の炭化物の析出に及ぼす影響は小さいといえる。

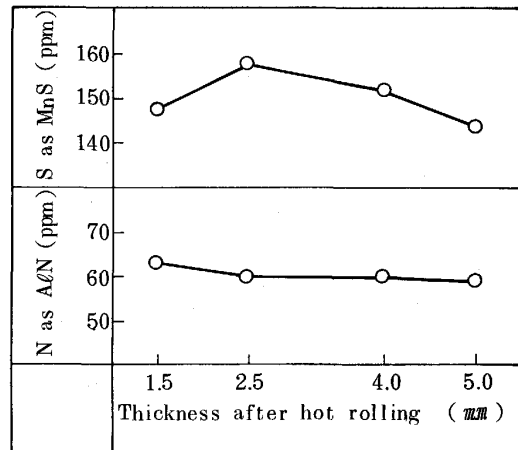


Fig. 1. Concentrations of MnS and AlN after hot-band annealing.

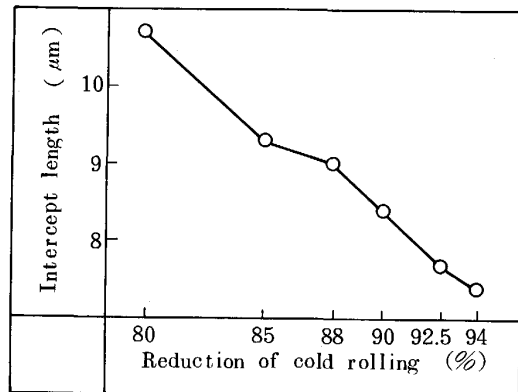


Fig. 2. Average grain sizes of primary grains.

3.2 一次再結晶の結晶粒径

Fig. 2 に、脱炭焼鈍後の平均結晶粒径を示す。圧下率の増加にともない一次再結晶粒の平均粒径は減少する。

3.3 各工程の集合組織

Fig. 3 に、熱延後および熱延板焼鈍後の板厚各部における主要面の極密度を示す。熱延後では、表面層には {110} と {111} が比較的に多く、中心層では {100} が主方位である。細部については、板厚により多少の差異が認められるが、大筋については、各板厚とも類似の集合組織といえる。熱延板焼鈍により、わずかに {110} の増加および {111} の減少の傾向がみられるが、全般的には、熱延板焼鈍前後の差異は小さいといえる。

Fig. 4 に、冷延後の試料の表面下 30 μ m から板厚中心部へ向かう 80 μ m 厚の試料についての {200} 極点図を示す。圧下率の増加にともない、主方位が {211} <011> 近傍から {100} <011> 近傍へ移行している。なお、圧下率 88% の試料につき、板厚中心部 80 μ m 厚の

試料についての $\{200\}$ 極点図を測定した. この場合の方位分布の概要は Fig. 4 の場合に類似しており, $\{100\} \langle 011 \rangle$ 近傍の強度が Fig. 4 の場合より増大していた.

Fig. 5 に, 脱炭焼鈍後の板厚 $\times 1/4$ 部における主要面の極密度を示す. 全般に $\{111\}$ が最も多い. 圧下率 80% では $\{100\}$ が最も少なく, 85% 以上では, $\{110\}$ が最も少ない. 圧下率の増加にともない, $\{110\}$ は減少し $\{100\}$ は増加する傾向が認められる. なお, 圧下率 88% の試料につき, 板厚中心部における主要面の極密度を測定した. この場合の各方位強度の大小関係は Fig. 5 の場合と同じであり, Fig. 5 の場合に比べ $\{111\}$ が減少し, $\{100\}$ および $\{110\}$ が増大していた.

Fig. 6 に, 脱炭焼鈍後の試料の表面下 $30 \mu\text{m}$ から板

厚中心部へ向かう $80 \mu\text{m}$ 厚の試料についての $\{200\}$ 極点図を示す. 圧下率 80% では, $(110)[001]$ (Goss 方位) 近傍および $\{111\} \langle 112 \rangle$ 近傍に主方位が認められる. 圧下率 88% では, $\{111\} \langle 112 \rangle$ 近傍に主方位がある. 圧下率 92.5% では, 主方位が $\{111\} \langle 112 \rangle$ から $\{554\} \langle 225 \rangle$ の方向へ移行し, $\{100\} \langle 012 \rangle$ 近傍の方位が増加している. なお, 圧下率 88% の試料につき, 板厚中心部 $80 \mu\text{m}$ 厚の試料についての $\{200\}$ 極点図を測定した. この場合の方位分布の概要は Fig. 6 の場合に類似しており, Fig. 6 の場合に比べ $\{111\} \langle 112 \rangle$ 近傍方位が減少し, $\{100\} \langle 012 \rangle$ 近傍方位が増加する傾向がみられた.

Fig. 7 に, 圧下率 88% の場合の, 脱炭焼鈍後の各方

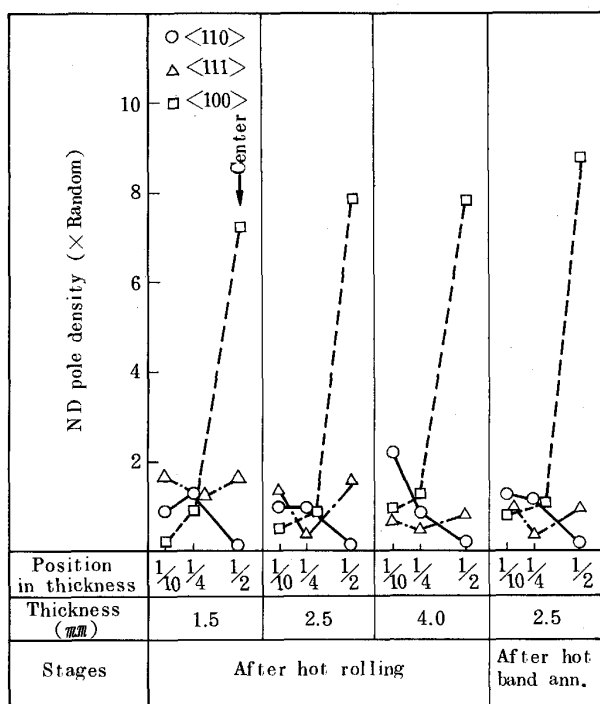


Fig. 3. Pole densities for hot-rolled specimens and for hot-band-annealed specimens.

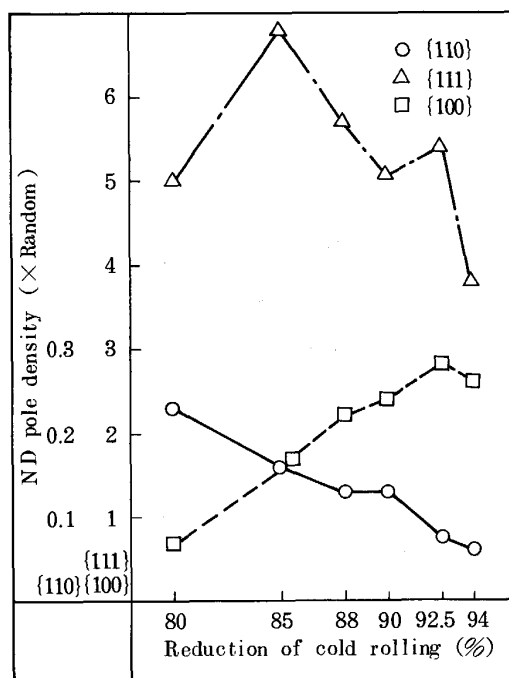


Fig. 5. Pole densities for primary-recrystallized specimens ($1/4 t$).

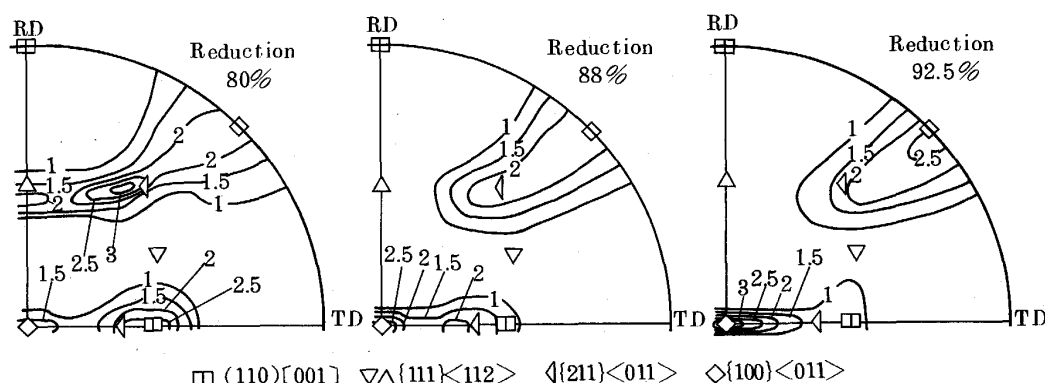


Fig. 4. $\{200\}$ pole figures for cold-rolled specimens ($30-110 \mu\text{m}$ below surface).

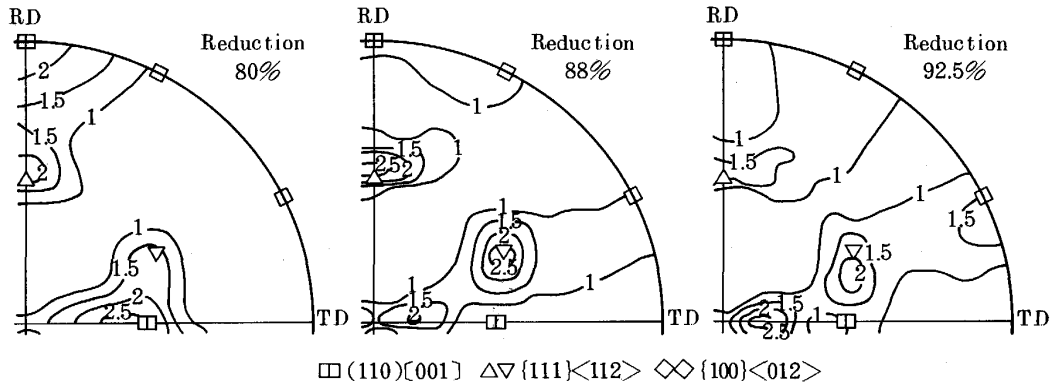


Fig. 6. $\{200\}$ pole figures for primary-recrystallized specimens (30-110 μm below surface).

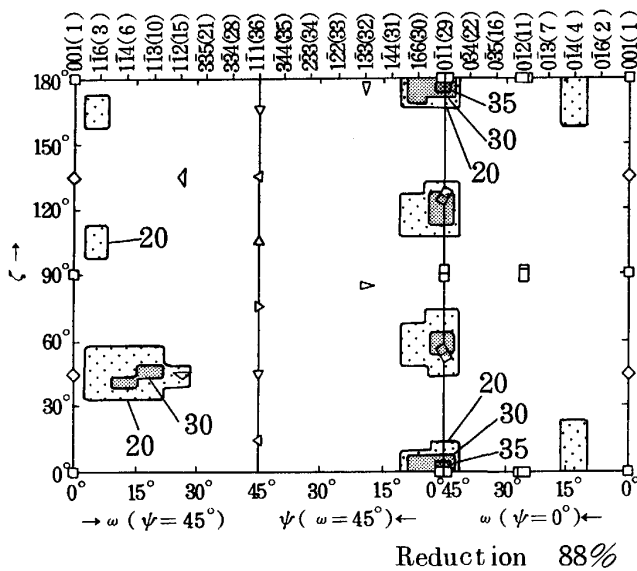


Fig. 7. Intensities of $\Sigma 9$ coincident orientation with each orientation for primary-recrystallized specimen (30-110 μm below surface).

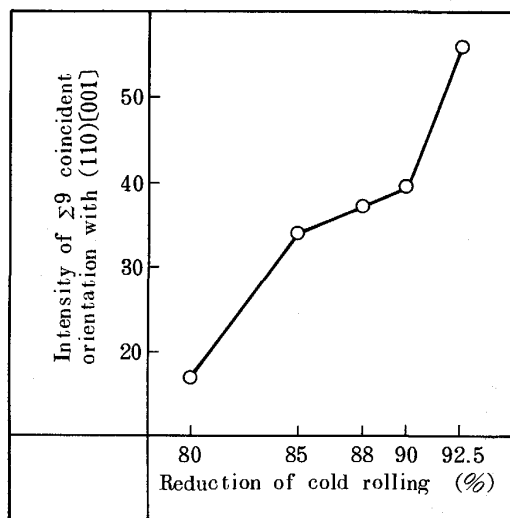


Fig. 8. Intensities of $\Sigma 9$ coincident orientation with (110)[001] for primary-recrystallized specimens (30-110 μm below surface).

位に対する $\Sigma 9$ の対応方位強度 (本論文では $\Sigma 9$ の対応方位強度を I_c と記す) を示す。Goss 方位に対する I_c が最大である。圧下率 80~94% の全般についても、脱炭焼鈍後の各方位に対する I_c を計算したが、Goss 方位に対する I_c がほぼ最大であった。

Fig. 8 に、各圧下率について、脱炭焼鈍後の Goss 方位に対する I_c を示す。圧下率の増加にともない I_c は

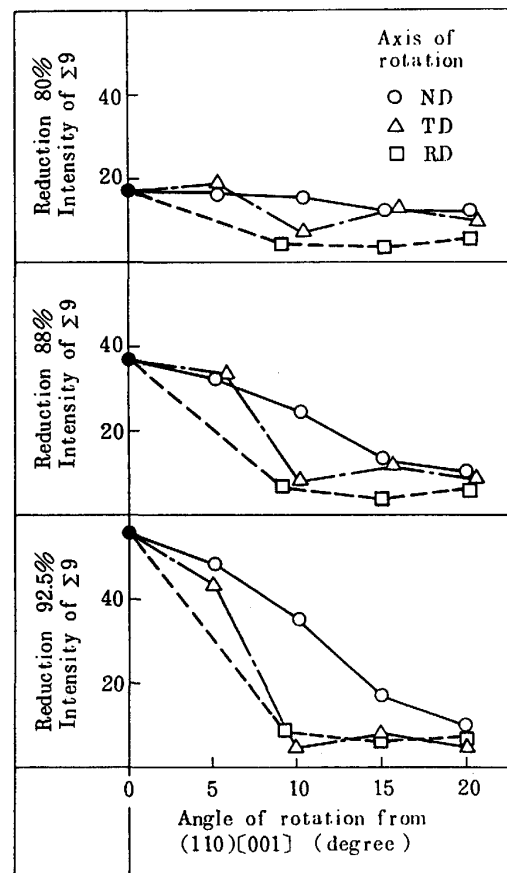
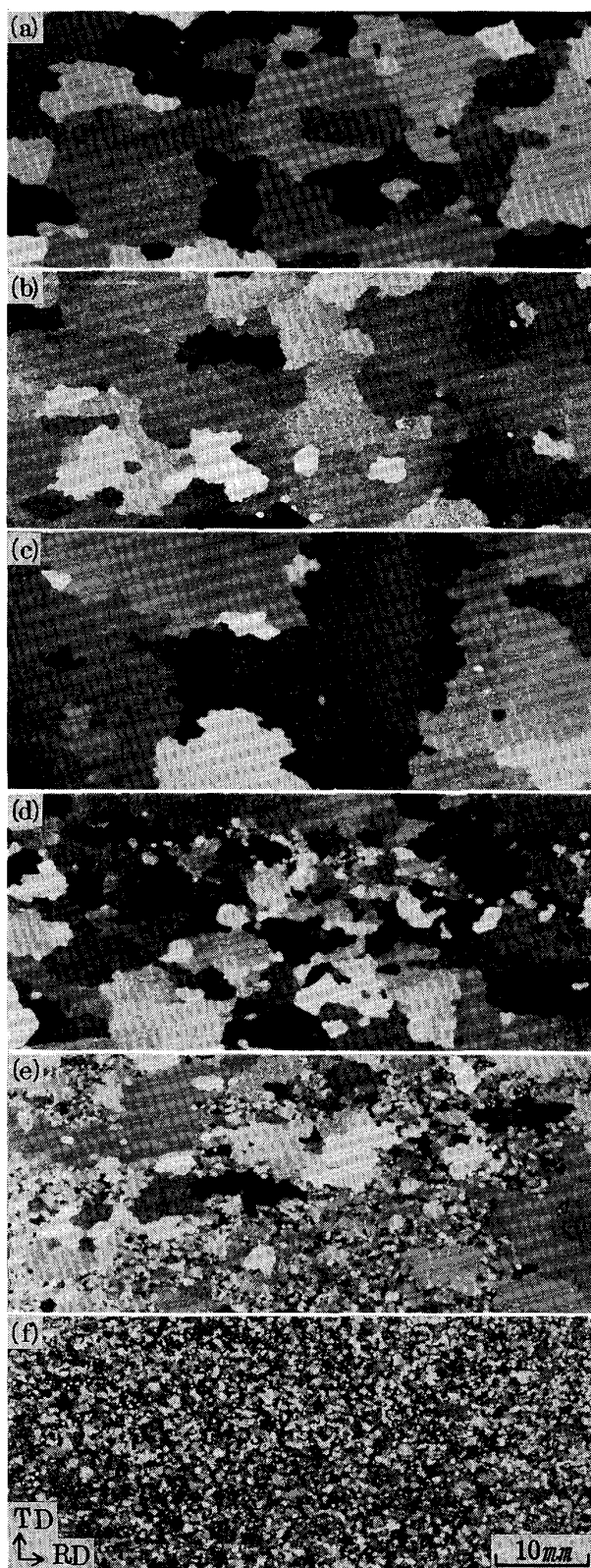


Fig. 9. Intensities of $\Sigma 9$ coincident orientation with orientations near (110)[001] for primary-recrystallized specimens (30-110 μm below surface).



Reduction of cold rolling

(a) 80% (b) 85% (c) 88%
(d) 90% (e) 92.5% (f) 94%

Photo. 1. Macrostructures after final annealing.

増大する。

Fig. 9 に、各圧下率について、Goss 近傍方位に対する I_C を示す。圧下率の増加にともない理想 Goss 方位への集積度が増大している。 I_C の分散は、板面法線軸 (ND 軸) 回りに最も大きく、次いで板幅方向軸 (TD 軸) 回りに大きく、圧延方向軸 (RD 軸) 回りに最も小さい。

3.4 仕上焼鈍後のマクロ組織

Photo. 1 に、仕上焼鈍後のマクロ組織を示す。圧下率の増加にともない二次再結晶粒の粒径は大きくなり、圧下率 88% で最大となり、圧下率 90% で一部に細粒がみられ、圧下率 92.5% で細粒が増加し、圧下率 94% では全面細粒となる。

3.5 二次再結晶粒の方位

Fig. 10 に、二次再結晶粒の理想 Goss 方位からの分散を示す。各軸回りと大部分が 10° 以内である。圧下率の増加にともない ND 軸および TD 軸回りの分散は減少する傾向が認められる。RD 軸回りの分散については、傾向がはっきりしない。

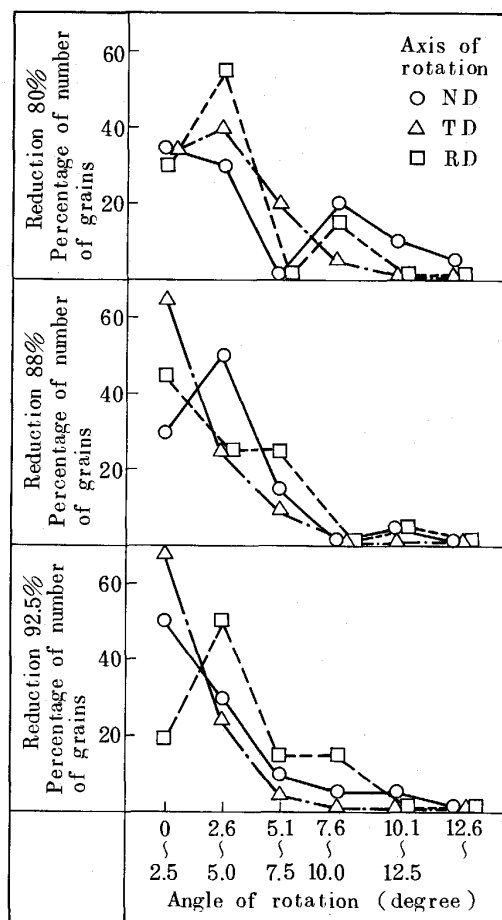


Fig. 10. Deviations of orientation from (110) [001] for secondary grains (20 grains for each specimen).

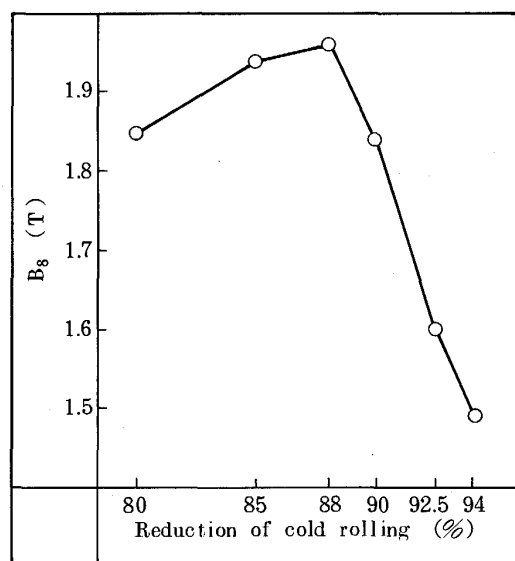


Fig. 11. Magnetic properties for stress-relief-annealed specimens.

3.6 磁気特性

Fig. 11 に、歪み取焼鈍後の磁束密度 B_8 を示す。 B_8 は、圧下率の増加にともない向上し、圧下率 88% で最高となり、その後、急激に低下する。

4. 考 察

4.1 冷延後の集合組織

熱延板焼鈍後の集合組織は板厚によって大差ないので (Fig. 3), 冷延後の集合組織の違いは主として冷延圧下率によるものと考えられる。 $\{200\}$ 極点図 (Fig. 4) において、圧下率の増加にともない $\{211\} \langle 011 \rangle$ 近傍から $\{100\} \langle 011 \rangle$ 近傍への主方位の移行が認められる。BENNEWITZ¹²⁾ は、低炭素鋼について、冷延圧下率 30~90% の範囲において圧下率の増加にともない、初期方位 (110) [011] から $\{554\} \langle 225 \rangle \rightarrow \{211\} \langle 011 \rangle \rightarrow \{100\} \langle 011 \rangle$, $\{111\} \langle 011 \rangle$ へ主方位が移行すると報告している。本実験結果は、上記報告にほぼ類似の傾向を示しているといえる。

4.2 一次再結晶

一次再結晶粒の平均粒径は、圧下率の増加に伴いほぼ直線的に減少する (Fig. 2)¹³⁾。圧下率の増加にともない、転位や空孔などの格子欠陥が増し、再結晶核が増加したためと考えられる。

HEYER¹⁴⁾ は、極低炭リムド鋼について、冷延圧下率の増加 (70→97.5%) にともない一次再結晶集合組織の主方位が $\{111\} \langle 110 \rangle \rightarrow \{111\} \langle 112 \rangle \rightarrow \{100\} \langle 012 \rangle$ の順に変化すると報告している。酒井¹⁵⁾ は、3 mass% Si 鋼について、冷延圧下率の増加 (50→87%)

にともない一次再結晶集合組織の主方位が $\{110\} \langle 001 \rangle \rightarrow \{554\} \langle 225 \rangle$ に変化すると報告している。本実験における冷延圧下率の増加にともなう一次再結晶集合組織の変化 (Fig. 5, Fig. 6) は、これらの報告とほぼ類似の傾向を示しているといえる。

4.3 二次再結晶

一方向性電磁鋼板の二次再結晶には、インヒビター、一次再結晶粒の粒径分布および一次再結晶の集合組織が重要である。

本実験においては、同一チャージから分注した同一成分のインゴットを出発材とし、熱延板の板厚以外は同一工程条件で処理した。熱延板焼鈍後の MnS および AlN 含有量は、試料により多少のばらつきはあるが、ほぼ同等とみなせる (Fig. 1)。従って、本実験においては、インヒビターは各試料についてほぼ同等に作用していると考えられる。

結晶粒の粒成長速度は、HILLERT¹⁶⁾ によれば $dR/dt = aM\sigma(1/Rcr - 1/R \pm gz/a)$ (R : 注目粒の半径, t : 時間, a : 定数, M : 易動度, σ : 粒界エネルギー, Rcr : 成長または消滅の臨界半径, g : 形状因子, z : Zener 因子) で表される。二次再結晶の核を注目粒とする。一次再結晶マトリックス粒の臨界半径は平均半径に近いと考えられる。二次再結晶核の粒径はマトリックス粒の平均粒径の二倍以上といわれている⁵⁾。二次再結晶の進行過程においては二次再結晶粒は一次再結晶マトリックス粒にくらべ格段に大きくなる。従って、上式から、一次再結晶の平均粒径が小さい場合、二次再結晶核の成長速度は大きくなり、二次再結晶粒として成長しやすくなると考えられる。しかるに、本実験においては、圧下率の増加にともない一次再結晶粒の平均粒径が小さくなる (Fig. 2) にもかかわらず圧下率 90% 以上で二次再結晶が起こりにくくなっている (Photo. 1)。これは、圧下率 90% 以上では、一次再結晶粒の平均粒径より集合組織の方が二次再結晶に強い影響を及ぼすことを意味している。

圧下率 80~88% の範囲における、圧下率の増加にともなう二次再結晶粒の粒径の増大 (Photo. 1), および圧下率 90~94% の範囲における、圧下率の増加にともなう細粒の増加は、圧下率の増加にともなう一次再結晶マトリックス中の $\{110\}$ の減少 (Fig. 5) との関連で次のように考えられる。すなわち、 $\{110\}$ 極密度が小さい場合には Goss 核も少ないと仮定すれば、一次再結晶マトリックス中の Goss 核の減少により二次再結晶粒の粒径が増大し、次いで Goss 核の絶対量が不足するにいたり二次再結晶が起こりにくくなるものと考えられる。ただし、二次再結晶粒と細粒とが混在する領域 (Photo.

1(d)(e))における二次再結晶粒の粒径は、細粒のない場合 (Photo. 1(c)) の粒径よりむしろ減少しており、このような臨界領域における二次再結晶挙動については、今後の詳細な検討が必要である。

二次再結晶において Goss 方位が優先的に粒成長するのは、一次再結晶マトリックス中において Goss 方位に対する I_C が最も大きい (Fig. 7) ことによる¹⁷⁾ と理解される。

圧下率の増加にともなう二次再結晶粒の理想 Goss 方位への集積度の増大 (Fig. 10) は、圧下率の増加にともなう一次再結晶マトリックス中における理想 Goss 方位に対する I_C の増大 (Fig. 8) および I_C の Goss 方位への集積度の増大 (Fig. 9) によるものと理解される[†]。 I_C の分散 (Fig. 9) と二次再結晶粒の方位分散 (Fig. 10) を比較すると、ND 軸および TD 軸回りについては、両者はほぼ類似の傾向を示している。RD 軸回りについては、 I_C の分散は比較的小さいにもかかわらず、二次再結晶粒の方位分散は TD 軸回りと同等かむしろ大きい。

二次再結晶粒の粒径と二次再結晶の難易度は主として Goss 核の量に左右され、二次再結晶の方位は主として対応方位の強度に左右されるという今回の実験結果は原勢ら⁸⁾ の報告と一致する。これらに関する定量的解析については、今後の検討を待たなければならない。

なお、本実験においては、一次再結晶集合組織について板厚 $\times 1/4$ 部に着目して調査した。極点図および三次元方位解析用の 80 μm 厚試料は、全試料厚 $\times 1/2$ の 53% に相当し、Goss 核生成域¹⁵⁾ および Goss 核に蚕食されるべきマトリックスをもとに包含し、全試料をほぼ代表できると考えた。より正確な二次再結晶挙動の理解のためには板厚方向各位置ごとの検討が望ましく、これらに関する今後の詳細な検討が期待される。

4.4 磁気特性

圧下率 88% までの圧下率の増加にともなう磁束密度の向上 (Fig. 11) は、圧下率の増加にともなう二次再結晶粒の ND 軸および TD 軸回りに関する理想 Goss 方位への集積度の増大 (Fig. 10) によると考えられる。磁化容易軸である $[001]$ ¹⁸⁾ が磁化方向である圧延方向からずれると磁束密度は低下する。圧下率 90% から 94% にかけての磁束密度の急激な低下は Goss 方位とは異なる方位の細粒⁸⁾ の発生によるものである。

5. 結 言

一回冷延法一方向性電磁鋼板について、最終板厚を一

定にし、80~94% の範囲における冷延圧下率の二次再結晶に及ぼす影響を調査し、次の結論を得た。

(1) 圧下率の増加にともない二次再結晶粒の粒径が大きくなり、次いで Goss 方位とは異なる方位の細粒が発生し始め、最終的には全面細粒となる。これは、圧下率の増加にともなう一次再結晶マトリックス中の Goss 核の減少によるものと考えられる。

(2) 圧下率の増加にともない細粒を除く二次再結晶方位は理想 Goss 方位への集積度を高める。これは、圧下率の増加にともない、一次再結晶マトリックス中に理想 Goss 方位と $\Sigma 9$ の対応方位関係にある方位が増加することによるものと考えられる。

(3) 一次再結晶マトリックス中の $\Sigma 9$ 対応方位強度の分散と二次再結晶方位の分散は、ND 軸および TD 軸回りでは類似の傾向を示し、RD 軸回りでは $\Sigma 9$ 対応方位強度の分散にくらべ二次再結晶方位の分散の方が大きい。

(4) 圧下率の増加にともなう一次再結晶粒の粒径変化よりも集合組織変化の方が二次再結晶に及ぼす影響が大きい。

文 献

- 1) 成田賢仁: 日本金属学会会報, **18** (1979), p. 8
- 2) N. P. GOSS: U. S. Patent No. 1, 965, 559 (1934)
- 3) R. M. BOZORTH: Trans. ASM, **23** (1935), p. 1107
- 4) J. E. MAY and D. TURNBULL: Trans. Metall. Soc. AIME, **212** (1958), p. 769
- 5) C. G. DUNN: Acta. Metall., **1** (1953), p. 163
- 6) 田口 悟, 坂倉 昭, 高島弘教: 特公昭 40-15644
- 7) 中島正三郎, 黒木克郎, 高嶋邦秀, 和田敏哉: 特開昭 58-217830
- 8) 原勢二郎, 清水 亮, 高橋延幸: 日本金属学会誌, **54** (1990), p. 381
- 9) D. RUER, A. VADON and B. BARO: Texture of Crystallite Solids, **3** (1979), p. 245
- 10) 清水 亮, 原勢二郎: 日本金属学会誌, **53** (1989), p. 571
- 11) D. G. BRANDON, B. RALPH, S. RANGANATHAN and M. S. WALD: Acta. Metall., **12** (1964), p. 813
- 12) J. BENNEWITZ: Arch. Eisenhüttenwes., **33** (1962), p. 393
- 13) L. W. EASTWOOD, A. E. BOUSU and C. T. EDDY: Trans. AIME, **117** (1935), p. 246
- 14) R. H. HEYER, D. E. MCCABE and J. A. ELIAS: Flat Rolled Products, III, ed. by E. W. EARHART (1962), p. 29 [Interscience Publishers]
- 15) 酒井知彦: 東京大学工学部学位論文 (1981)
- 16) M. HILLERT: Acta. Metall., **13** (1965), p. 227
- 17) 原勢二郎, 清水 亮, 高嶋邦秀: 日本金属学会誌, **52** (1988), p. 259
- 18) K. HONDA and S. KAYA: Sci. Rept. Tohoku Univ., **15** (1926), p. 721

[†] 核の方位強度 (I_N) および I_C と I_N の積 (P_{CN})¹⁰⁾ についても調査したが、これらと二次再結晶発生率および二次再結晶方位との間には、明瞭な関連は見出せなかった。