

放射光 X 線回折法による電磁鋼板の
高温再結晶過程の動的観察

川崎 宏 一

博士（学術）

総合研究大学院大学
数物科学研究科
放射光科学専攻

平成 3 年度

目 次	頁
第 1 章 序 論	1
1. 1 緒 言	1
1. 2 電磁鋼板の製造工程	2
1. 3 電磁鋼板の高温再結晶過程に関する従来の研究	4
1. 3. 1 金属組織および結晶方位分布の変化	4
1. 3. 2 高温加熱中の急冷による観察	8
1. 4 放射光による高温粒成長過程に関する従来の研究	12
1. 5 本研究の目的	12
 第 2 章 動的観察用高温加熱炉の開発	 15
2. 1 緒 言	15
2. 2 要求される機能	15
2. 3 動的観察用高温加熱炉の開発	16
2. 3. 1 特 徴	17
2. 3. 2 炉体部	19
2. 3. 3 引張加熱炉	22
2. 4 精密試料走査ステージ	24
2. 5 結 言	28

第3章 放射光極点図動的測定法	29
3.1 緒言	29
3.2 放射光極点図動的測定法の開発	29
3.2.1 従来の極点図測定法	29
3.2.2 放射光極点図動的測定法の開発	32
3.2.2.1 測定原理	32
3.2.2.2 装置	32
3.2.2.3 放射光の波長と集光	35
3.3 高温再結晶過程の動的観察	41
3.3.1 実験方法	41
3.3.1.1 試料	43
3.3.1.2 加熱・引張	43
3.3.1.3 極点図の常温での記録	43
3.3.1.4 極点図動的測定	45
3.3.2 実験結果	45
3.3.2.1 極点図の常温での記録	48
3.3.2.2 極点図動的測定	48
3.3.2.3 ゆらぎとピーク出現過程	53
3.3.2.4 引張歪の附加	61
3.3.2.5 ピークの強度の変化	61
3.4 結言	65

第4章 放射光動的ラウエトポグラフィ	66
4.1 緒言	66
4.2 放射光動的ラウエトポグラフィ	66
4.2.1 放射光トポグラフィ	66
4.2.2 放射光動的ラウエトポグラフィ	67
4.3 高温再結晶過程の動的観察	71
4.3.1 実験方法	71
4.3.2 実験結果	71
4.4 結言	78
第5章 放射光動的顕微トポグラフィ	83
5.1 緒言	83
5.2 実験方法	83
5.3 高温再結晶過程の動的観察	85
5.4 結言	90
第6章 考察	94
6.1 高温加熱での二次再結晶のモデル	94
6.2 引張り歪の効果	97
6.3 二次再結晶理論	98
第7章 結論	102
参考文献	106
謝辞	108

第1章 序 論

1. 1 緒 言

現代の工業においては様々な「材料」が利用されているが、材料の性質は製品の機能に重要な影響を及ぼすことは良く知られている。材料はそれが素材の状態から出発して、材料製造工程において圧延、成形、加熱などの過程を経て実用の段階に到達する。この製造工程において材料の性質を実用の目的に合うように改善するため様々な工夫がなされている。鉄鋼材料の板材としては電磁鋼板、自動車用の冷延鋼板、耐食用のステンレス鋼板などがある。冷延鋼板では深絞り成形性、張り出し成形性、スポット溶接性が、ステンレス鋼板では成形後の外観の美麗性、耐食性、表面処理性などが製品に必要な性質である。

本研究では変圧器、モーター、発電機など電力機器、電気機器の鉄心に大量に用いられている電磁鋼板（Fe-3%Si合金板、%は重量%、以下同じ）を取り上げる。電磁鋼板においては、鉄心として用いられたときのエネルギー損失いわゆる鉄損が最小になるような性質が要求される。他に必要な性質としては積み鉄心の場合は打ち抜き加工性、巻鉄心の場合は巻成形性が、また加工時に導入される歪を除去するための歪取り焼鈍での歪消滅の容易さ、長期にわたる使用で性質の劣化のない耐時効劣化性も要求される。しかし電磁鋼板の主要性質は鉄損であり、これが低いことが第一に要求される。

鉄損はヒステリシス損と渦電流損から成り、その比率はほぼ1:1である。渦電流損は板厚の減少とシリコンの添加により達成され、ほぼ最適化されている。ヒステリシス損は磁場-磁化曲線での面積に相当する損失で結晶方位に依存する。鉄損を減少させるに当たっては磁化の強さを減じないようにしなければならない。

電磁鋼板は鉄心として日本で一年間に100万t消費されているが、鉄損を電力代に換算すると一年間に1兆円にのぼる。即ち1%の鉄損の低減を実現するだけで100億円の節減になる。従って省エネルギーのために鉄損の低減は日本の経済にとっても必須の課題である。

この鉄損のうちヒステリシス損の低減は電磁鋼板を圧延した後加熱し、高温（約1273K）で再結晶を生じさせる過程での二次再結晶粒の方位を制御することにより達成できることが知られている。このような高温加熱中にどのような機構で再結晶が起こり、再結晶の方位がどのような要因によって決定されるのかを実環境、実時間の条件下で研究する試みは未だなされたことがない。ただし高温加熱中の変化の直接観察に関してはTannerらにより放射光トポグラフィによる一次再結晶過程の高温での観察が行なわれているが、X線フィルムによる検出法を採用したため、満足すべき結果を得るに至らなかった¹⁾。他の高温再結晶過程に関する観察では断片的または平均的な情報を得るだけで、動的過程については全く情報が得られていない²⁻⁵⁾。

従って依然として電磁鋼板の高温再結晶の過程はブラックボックスのまま残されており、諸学説が提案されているが混沌とした状況である。本研究は放射光の高輝度性を生かし高温再結晶過程の連続観察を行うための装置・方法を開発し、ミクロなスケールで現象の機構を明らかにすることを目的とする。


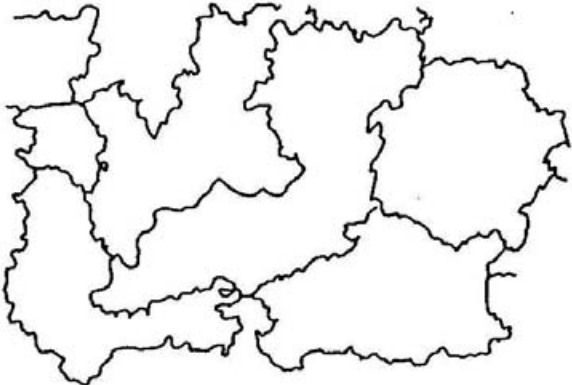
1. 2 電磁鋼板の製造工程

前述した鉄損の低減を目的とした二次再結晶粒の方位制御のために電磁鋼板は複雑な工程を経て製造される。図1-1に電磁鋼板の製造工程を簡条書きで示す。電磁鋼板の素材はFe基Si合金で、溶解したのち凝固させ、2回の圧延、2回の加熱過程（短時間加熱及び高温加熱）を経て実用の段階に到達する。

2回目の圧延である常温圧延はさらに2回に分かれることがあり²⁾、常温1回圧延材（以下単に1回圧延材と称する）は高磁束密度グレード、常温2回圧延材（以下単に2回圧延材と称する）は商用グレードと呼ばれている。本研究では2回圧延材を主として用いた。

短時間加熱で圧延組織を1min程度加熱すると一次再結晶が生じ³⁾、微細（平均粒径0.02mm）結晶粒組織が得られる。高温加熱において二次再結晶という重要なミクロ変化が起き、結晶粒の巨大化に伴いこの過程で鉄

電磁鋼板の製造工程

		鉄損	
1. 凝固	200mm厚	×	
2. 高温圧延	2mm厚	×	
3. 常温圧延	0.2mm厚	×	
4. 短時間加熱 (一次再結晶)	微細粒	×	
5. 高温加熱 (二次再結晶, 高温再結晶)	巨大粒	◎	

観察対象

図 1 - 1 電磁鋼板の製造工程

損が低減することが知られているが、動的観察はなされていない。

1. 3 電磁鋼板の高温再結晶過程に関する従来の研究

1. 3. 1 金属組織および結晶方位分布の変化

1) 金属組織の変化

図1-2に短時間加熱で得られた2回圧延材の一次再結晶組織を常温での光学顕微鏡写真によって示すが、これは高温加熱前の状態に対応している。板表面に平行に板厚1/4まで研磨で除去し、鏡面に仕上げた後、ナイトールエッチングにより金属組織を現出したものである。撮影倍率は100倍である。直径約0.02mmの均一な微細結晶粒となっていることが認められる。この段階では鉄損はまだ大きい。

図1-3に高温加熱後の二次再結晶組織を示す。これも常温で撮影した光学顕微鏡写真で、図1-2と同様の金属組織試験法を用いた。ただし顕微鏡の拡大倍率は25倍である。図1-2と比較しての著しい相違は直径2~5mm程度の巨大な二次再結晶粒が生成していることである。粒の直径は図1-2で見られる微細粒の100~1000倍に達している。巨大粒の中には0.2~0.6mm程度の小さな粒が散在して見られる。その他に残存している微細粒の集団も認められる。図1-3の右側には進行中で停止した二次再結晶界面も観察される。

2) 結晶方位分布の変化

高温加熱前と加熱後の結晶方位分布の差異について述べる。図1-4に板材に関する方向の定義とゴス方位の定義を示す⁶⁾。図においてRDとは圧延方向(Rolling Direction)、NDとは圧延面法線方向(Normal Direction)、TDとは板幅方向(Traverse Direction)である。電磁鋼板はFe-3%Si合金で体心立方構造(BCC構造)であるが、合金にMn、Sなどを添加元素として加え高温加熱時の温度を1233K程度に選べば、結晶の(110)面が板の圧延面に平行に、[001]方向が圧延方向に平行に結晶方位の集

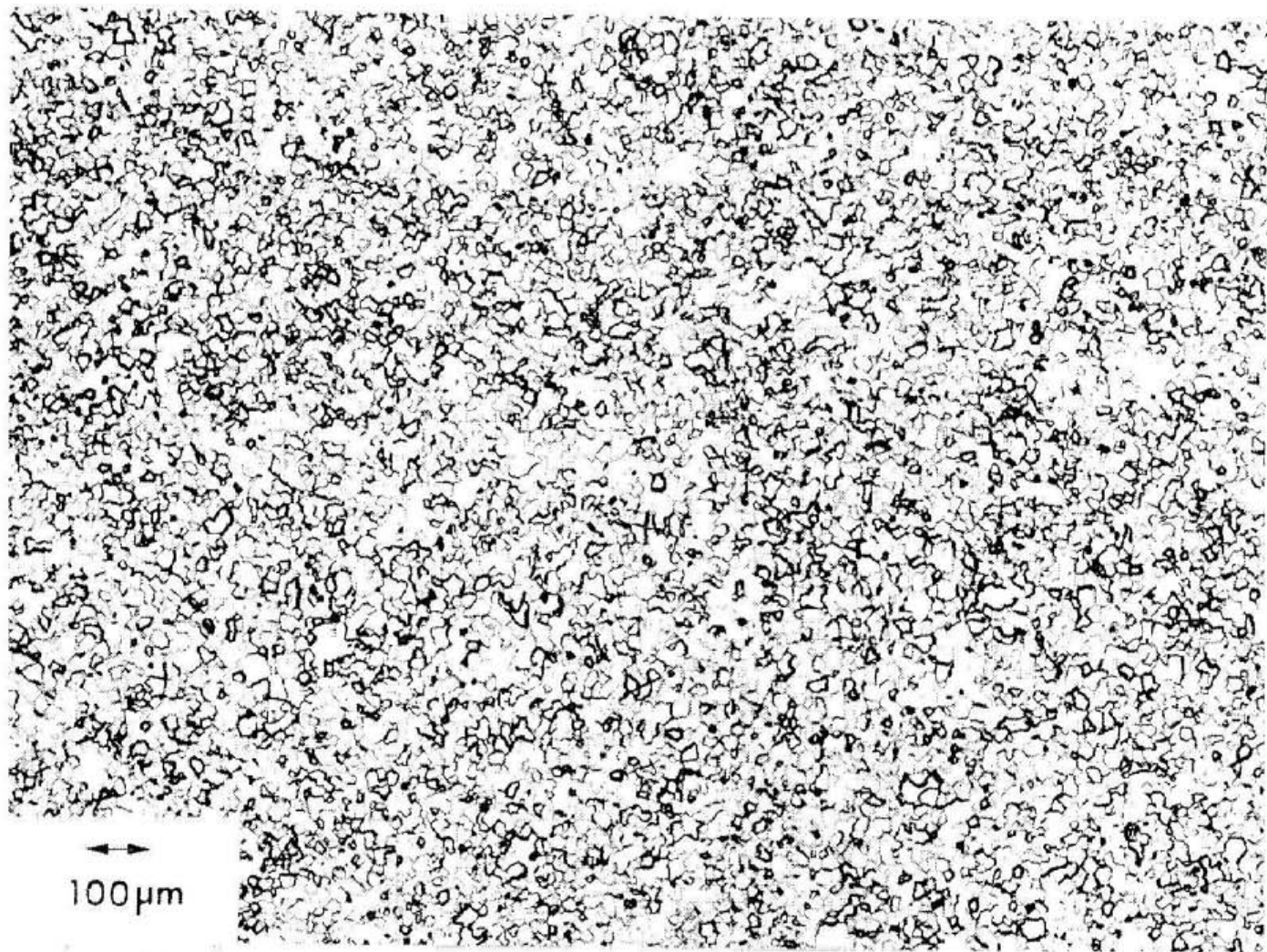


図1-2 電磁鋼板の高温加熱前の金属組織

常温での光学顕微鏡写真でナイトールエッチング後の板表面に平行な板厚

1/4面を示す。直径約0.02mmの均一な微細結晶粒組織である。

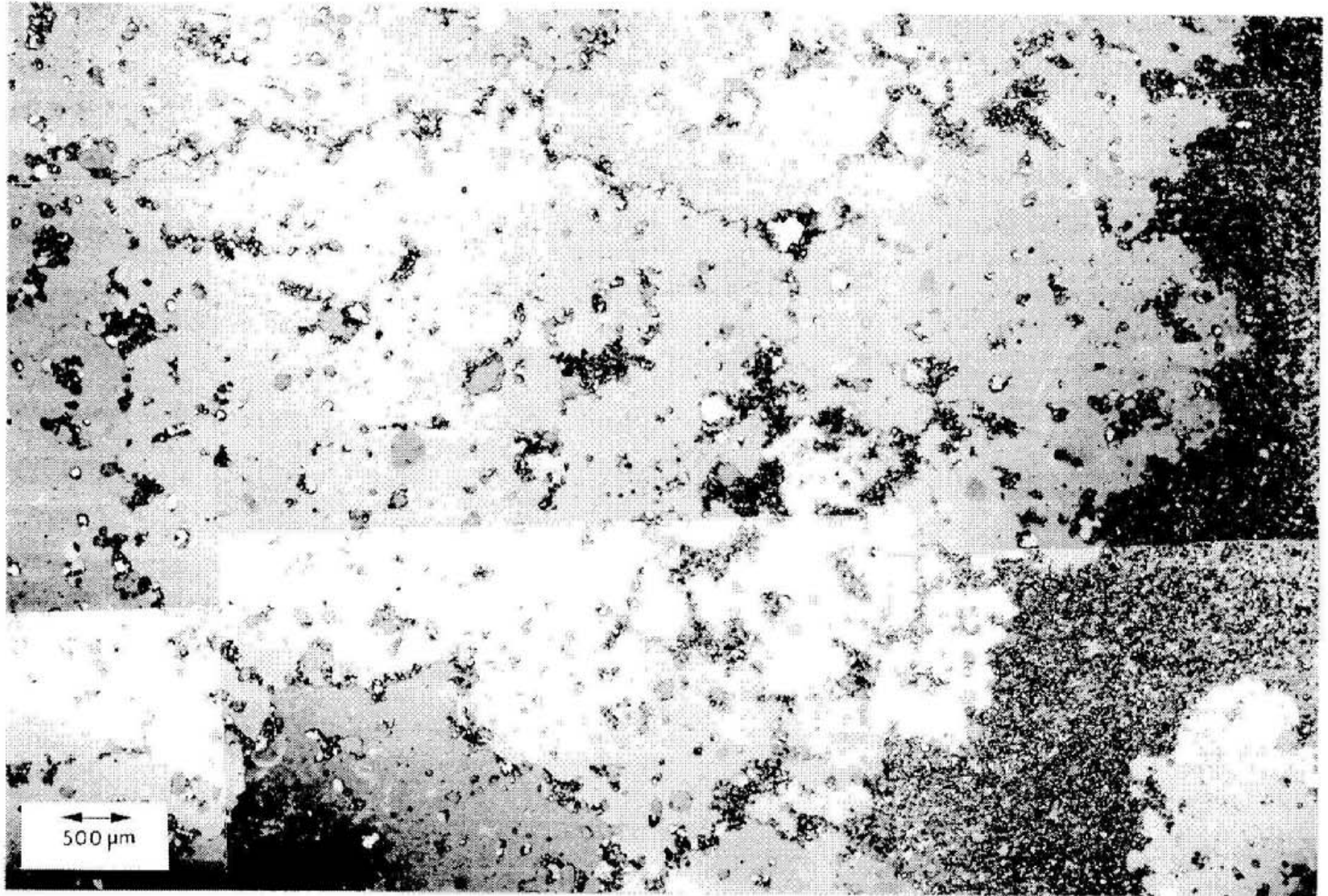


図1-3 電磁鋼板の高温加熱後の金属組織
常温での光学顕微鏡写真でナイトールエッチング後の板表面に平行な板厚
1/4面を示す。直径約2~5mmの巨大粒からなる二次再結晶組織である。

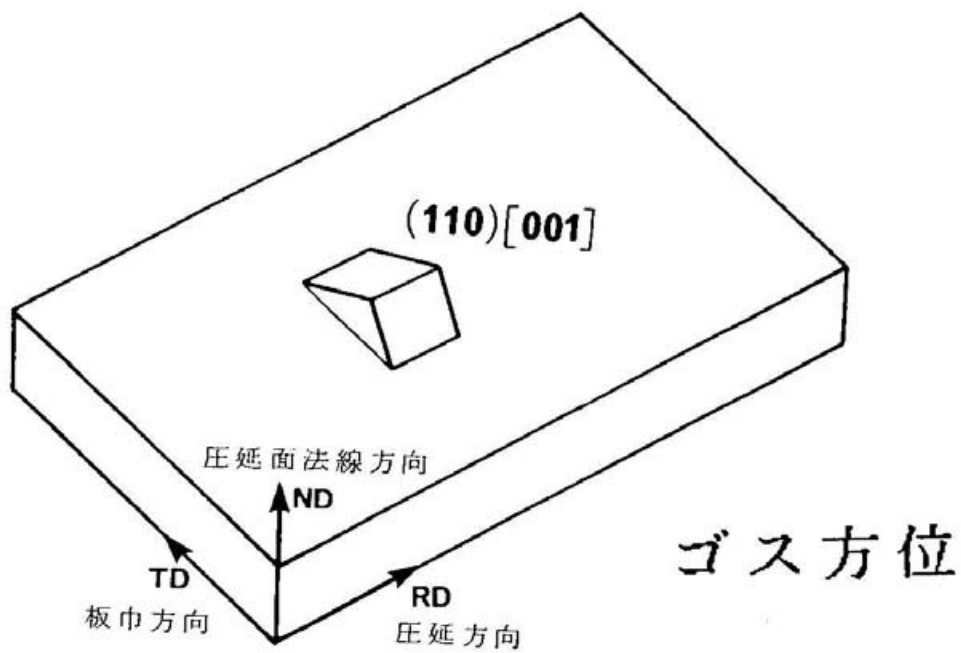


図 1-4 板材に関する方向の定義とゴス方位の定義⁶⁾
 ゴス方位：(110)[001] 方位。

積を起こさせる製造法が工業的に確立されている。この場合合金の容易磁化軸は $[001]$ 方向であるので圧延方向の鉄損を下げるができる。この結晶方位は製造法の発明者の名にちなんでゴス方位(Goss orientation)と呼ばれている⁷⁾。このゴス方位は $(110)[001]$ 方位と表記する。実際の材料では (110) 面および $[001]$ 方向がそれぞれ板面と圧延方向に完全に平行となることは少ない。本研究では理想的方位から 7° 以内の範囲をゴス方位と定義する。

次に極点図(正極点図ともよばれる)の表示法について述べる。図1-5に極点図の定義の一例を示す⁸⁾。多結晶材料においては逆格子点は球面上に分布しており、この球面を極点球と呼ぶ。NDを頂点とした半球上の逆格子点の分布を平面に投影したものが極点図である。200逆格子点についての極点図は200極点図または100極点図という。

極点図の測定法を模式的に図1-6に示す⁹⁾。測定には反射法と透過法とがある。200極点図を測定する場合検出器(シンチレーションカウンター)を200反射の回折角に固定し、試料の方位をステップ角度走査で変化させる。角度走査は α 回転と β 回転があるが、透過法では α 回転は回折面に垂直な試料回転軸(ω 軸)まわりの回転、 β 回転はND軸まわりの回転である。添え字のRは反射法を、添え字がない場合は透過法を示す。ステップ角度は α 、 β ともに 5° に選ぶのが一般的である。

図1-7に電磁鋼板の高温加熱前と加熱後の極点図を示す。加熱前の極点図は全体的に起伏が少ないがRD方向に集積が見られる。加熱後の極点図は、二次再結晶粒の結晶方位をラウエ法により求め、極点図上に表示した結晶方位プロット図⁹⁾より作成した模式図である。加熱により鋭い方位集積が生じることが示されている。

1. 3. 2 高温加熱中の急冷による観察

高温加熱中の急冷による金属組織の観察については数例の報告がみられる²⁾。しかし結晶方位分布の観察に関しては報告がない。ここでは金属組織の観察について例をあげる。加熱中の試料を水中に焼き入れることにより高温

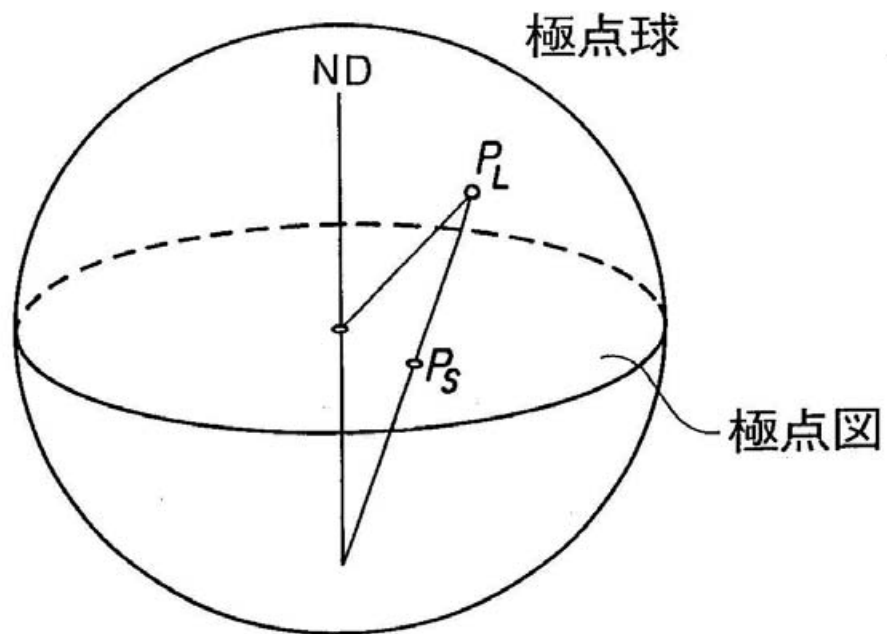


図 1 - 5 極点図の定義⁸⁾

P_L : 極点, P_S : 極点の極点図上への投影点.

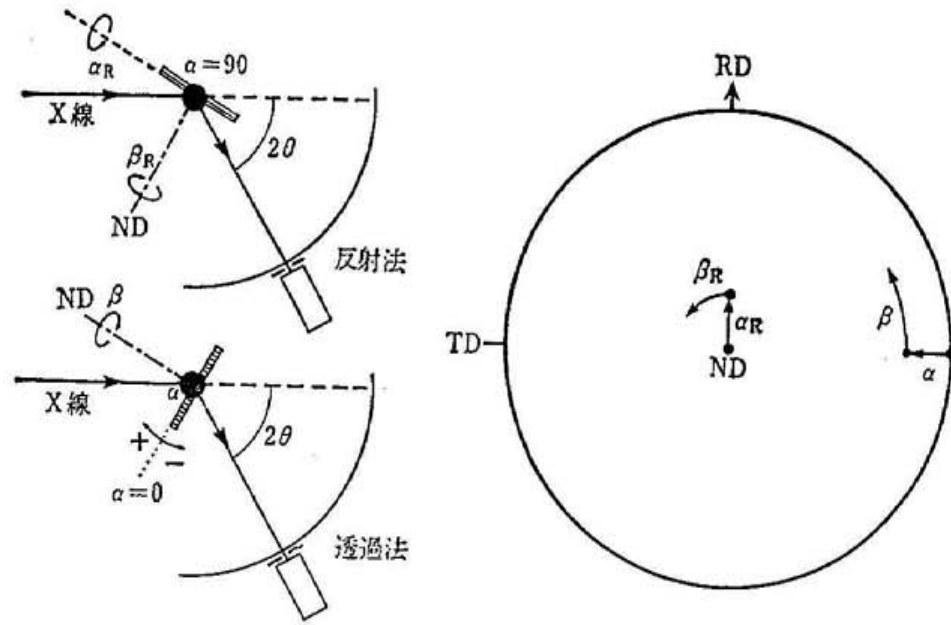


図 1 - 6 極点図測定法の模式図⁶⁾

α 回転: ω 軸まわりの回転, β 回転: ND 軸まわりの回転
添え字の R は反射法を, 添え字がない場合は透過法を示す.

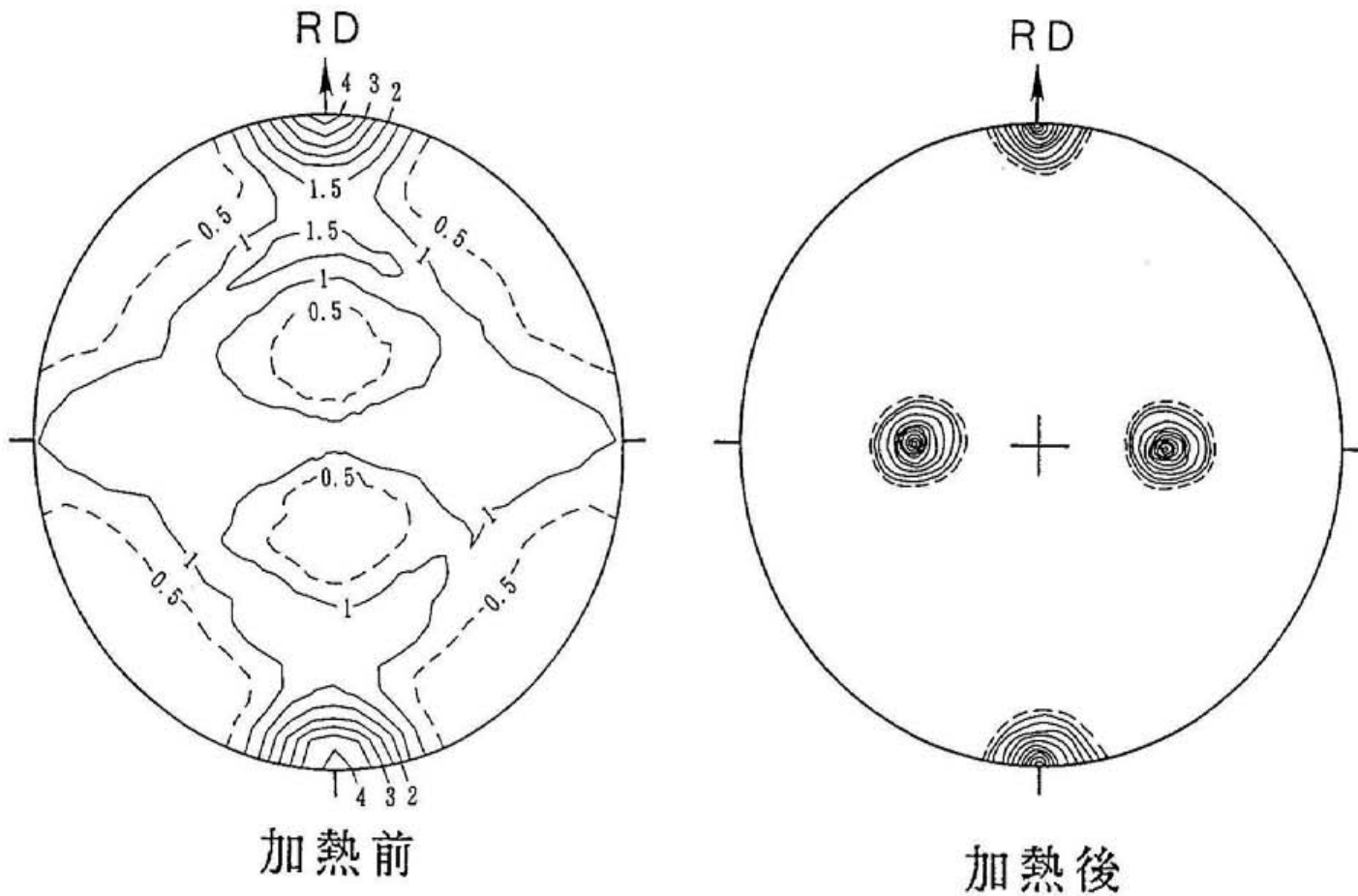


図 1-7 電磁鋼板の高温加熱前後の200極点図

加熱前：実験室で反射法と透過法の双方で測定後両者の結果を合成。

試料をステップ角度走査：ステップ角度は α 、 β ともに 5° 。モリブデンX線管球の特性X線を利用。

シンチレーションカウンターを200反射の回折角に固定。

標準試料に対する計数比を0.5毎に等高線で表示。実線は1.0以上、破線は0.5。

加熱後：二次再結晶粒の結晶方位プロット図⁹⁾より作成。

加熱中の変化に対応する試料を得て組織観察が行われたが、断片的な組織情報または最大粒径や平均的な粒径の情報を得るだけで、巨大粒の出現時期など動的過程については全く情報が得られていない^{2-5), 10)}。

図1-8に1回圧延材を高温加熱途中で水中に焼き入れた場合の金属組織を示す。図1-3と同様の金属組織試験法を用いた。顕微鏡の拡大倍率は25倍である。0.1~0.6mmの結晶粒が生成していることが認められる。

このような観察により二次再結晶粒が核生成し成長することにより巨大粒となることが推定されるが、情報は断片的でかつ連続性がない。図1-8に見られる比較的大きな粒も最終的に巨大粒となるかどうかは不可知であり、同一視野での連続観察の必要性が理解できる。

1. 4 放射光による高温粒成長過程に関する従来の研究

放射光は高輝度性という特徴を備えており、1枚のパターンを撮影するのに必要な時間は通常のX線源を用いた場合に比較し極めて短く、動的観察が可能となる。電磁鋼板(Fe-Si合金)については放射光を利用した観察は先に述べたTannerらの研究が一つあるだけである。

電磁鋼板の他にアルミニウムでも高温加熱において巨大粒成長が起こることが知られている。Kuriyamaらは加熱に伴う組織変化の放射光トポグラフィによる観察を試みている¹¹⁾。圧縮加工したアルミニウム単結晶の753Kでの一次再結晶及び粒成長過程がX線テレビにより追跡され、先行して成長した結晶粒が食われる現象や遅れて出現した結晶粒が急激に成長する様子などが示されている。

1. 5 本研究の目的

本研究の目的を本節にまとめて示す。電磁鋼板の高温再結晶過程においては巨大粒化、結晶方位集中化が同時に生じることが知られているが、これまでの研究では高温加熱前後などの間接的、断片的情報に限定され、依然とし

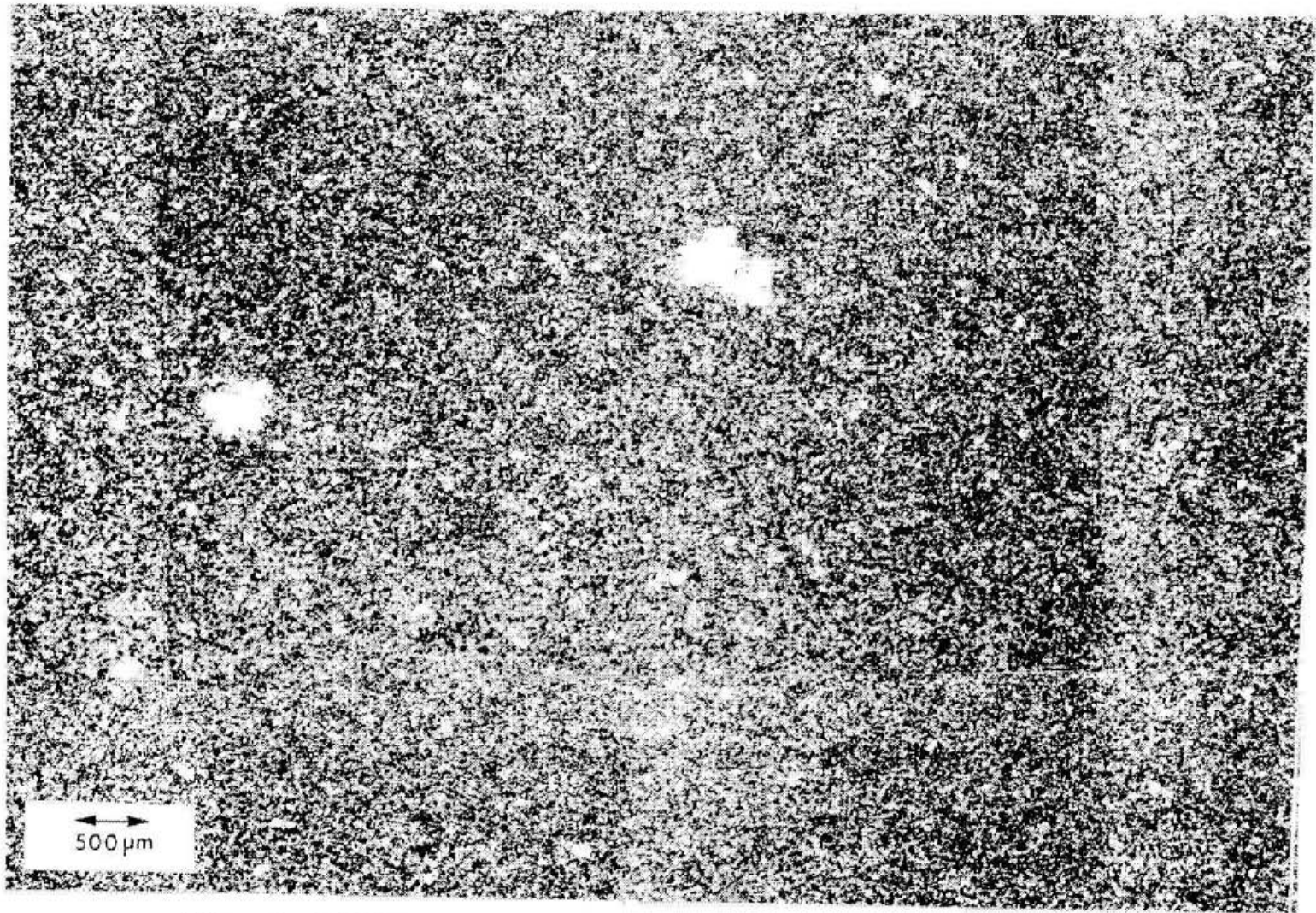


図1-8 電磁鋼板の高温加熱途中での水中焼き入れ後の金属組織
常温での光学顕微鏡写真でナイトールエッチング後の板表面に平行な板厚
1/4面を示す。0.1~0.8mmの結晶粒が生成している。

て電磁鋼板の高温再結晶過程はブラックボックスのまま残されている。巨大粒化および結晶方位集中化という特異な現象に対し、少ない情報をもとに諸学説が提案されているが混沌とした状況である。

高温加熱中にどのような機構で再結晶が起こり、再結晶の方位に影響を与える因子は何かを実時間、実環境の条件下で研究する試みは未だなされたことがない。高温再結晶過程の動的観察による再結晶のミクロなメカニズムの解明のために、本研究は放射光の高輝度性を生かし巨大粒化・結晶方位集中化過程の把握を行うとともに、巨大粒化・結晶方位集中化に影響を与える因子の探索を行うことを目的とする。

研究の方法としては実時間、実環境での動的観察が可能な装置・方法を開発し、高温再結晶過程の観察を行う。具体的には（１）高温加熱炉の開発、（２）極点図動的測定法の開発による結晶方位分布変化の動的観察、（３）動的トポグラフィによる結晶粒の大きさと形の動的観察を行う。同時に巨大粒化・結晶方位集中化に影響を与える因子として歪の影響を調べるため引張歪を附加させ再結晶現象の変化の観察を行う。

また本研究は実材料・実環境を対象としシミュレート性が高く、かつ時間軸情報により潜伏期間、成長速度という動的特性が直接測定可能であるなどの特徴も有している。

このような観察により電磁鋼板の巨大粒化・結晶方位集中化過程の把握を行い、工程制御による材料特性改善の可能性が開けて来る。また金属材料の製造工程の組織変化の研究を展開させうる新しい手法を導入することも本研究の狙いの一つである。

第2章 動的観察用高温加熱炉の開発

2. 1 緒 言

本章では電磁鋼板を、実際の製造工程と同じ環境下に置くための〔動的観察用高温加熱炉〕の開発について述べる。X線トポグラフィによる動的観察のための加熱炉は数例製作されているが¹²⁻¹⁴⁾、高温再結晶のような高速の過程に応用でき、高温で引張り歪の附加が可能な加熱炉は前例がない。開発上要求されるポイントは次の2. 2で述べるが、満たすべき機能要件は多岐にわたる。また温度の均一性、安定性及び再現性、温度変化に対する追従性の諸点において優れた加熱を行うための方法についても考案した。

2. 2 要求される機能

項目別に箇条書きで示す。

1) 加 熱

高温加熱が可能なること。

1 5 7 3 K m a x.

等温保持における温度の均一性（均熱性ともいう）に優れていること。

均熱領域 1 2 3 3 Kにおいて、試料中心部の領域が

5 m m × 5 m mで± 2 K以内、

1 0 m m × 1 0 m mで± 5 K以内。

安定性が高くかつ再現性の優れた加熱が行えること。

1 2 3 3 K等温保持において± 1 K以内。

温度変化に対する追従性に優れていること。

2 K / s m a x.

不活性ガス雰囲気を保持できること。

2) X線吸収およびX線回折角度範囲

X線の吸収が小さいこと。

窓，ヒーター，絶縁材料（ヒーターと試料の間）のX線の吸収が小さいこと。（波長 $\lambda = 0.06\text{ nm}$ で $\mu t < 1.0$ ）

回折角度範囲が広いこと。

2θ で垂直方向 $0 \sim +60^\circ$ ，水平方向 $\pm 40^\circ$ 。

試料と出側窓の距離が短いこと。

40 mmとし試料と検出器間の距離（カメラ長ともいう）を50 mm以下を可能とする。

3) 引張り歪の附加

精密な引張り歪の附加が可能なこと。

チャックの移動は一定速度で，歪速度 $10^{-2} \sim 10^{-6} 1/s$ が可能なこと。歪量および荷重は塑性歪の附加が可能なレベルとする。

歪量10% max，荷重40 kg max。

4) その他

試料交換の作業性が高いこと。

試料交換を炉体の外で迅速に行えること。

小型かつ軽量であること。

BL-3Aの回折計の4軸ゴニオメーターに搭載する精密試料走査ステージに搭載可能なこと。

BL-15Bのゴニオヘッドに搭載可能なこと。

安全なること。

電気，熱の面での安全。

2. 3 動的観察用高温加熱炉の開発

本加熱炉は加熱とともに引張り歪の機能が要求されるが，まず炉体部を製作しテストした後引張機構を附加した加熱炉を製作した。

まずサンドイッチ方式などの特徴をまとめ，次いで炉体部，引張加熱炉について記す。

2. 3. 1 特 徴

・ C/Cコンポジットヒーターによるサンドイッチ方式

高温保持時の試料温度の均一性（均熱性ともいう）および温度変化に対する追従性の確保のためにヒーターに高靱性のC/Cコンポジット板を用い、セラミックス薄板を介して前後から試料をはさみつける〔サンドイッチ方式〕を考案したことに大きな特徴がある。C/Cコンポジットはカーボンファイバーで強化した先端的炭素材料で靱性ととともに強度においても優れており航空機の翼材料として期待されている。ヒーターにスリットを付けて抵抗発熱させた。全抵抗は約 $2\ \Omega$ である。被加熱部分の熱容量を小さくしかつヒーターと試料を近接させることにより温度変化に対する追従性を改善することができる。ヒーターおよび電極は一体で昇降する構造となっており放射光ビームとヒーターの相対位置の調整が行える。

・セラミックス薄板

セラミックス薄板は試料～ヒーター間の熱的および電氣的絶縁をはかるとともに、ヒーターによる浸炭防止のために必要である。同時にヒーターのスリット部の温度低下を減少させる均熱性向上の効果がある。特に放射光動的顕微トポグラフィにおいては試料のわずかな反りによる像のドリフトの防止に役立つ。セラミックス薄板としては窒化ボロン（BN）を主に、一部の実験ではアルミナを用いた。BNとアルミナを比較検討したが、BNの方がX線の吸収が少ない他に、放射光極点図動的測定法においては妨害回折線が少ない点で優れている。アルミナは雰囲気に対する安定性の点で優れている。BNの使用に際しては酸化雰囲気にならないように細心の注意が必要である。

・ X線の吸収

窓、ヒーター、セラミックス薄板のX線の吸収を減少させるため、 $\lambda = 0.06\ \text{nm}$ において垂直入射時に $\mu t < 1.0$ とした。窓は入射側はベリウム箔、出射側はカーボン板とした。

不活性の雰囲気は均熱性改善のためアルゴンとした。ヘリウム雰囲気では

試料中心部の温度分布の偏差は2倍となる。試料，C/Cコンポジットヒーター，BN，ベリリウム箔，カーボン板の酸化を防止するため炉内を中性雰囲気を保つ必要がある。そのためアルゴン雰囲気をガスフロー方式とし炉内を正圧とした。

・引張り歪の附加

引張り歪の附加はパルスモーターと減速歯車により片側のチャックを精密に一定速度で移動させる機構とし，そのための制御系を製作した。

・薄型・水冷の炉体

回折角度範囲を広くし，また試料～検出器間距離を小さくするために薄型の炉体とした。高温加熱を可能とするために炉体を水冷した。

・加熱制御

安定性および再現性の優れた加熱のために熱電対により検出した試料温度のプログラム制御方式を採用した。目標温度に対する変動はPID制御により安定化される。熱電対（PR型）は試料中心より5mmの位置にスポット溶接で取り付けるが，この位置の温度は試料中心より4K低い。本研究での加熱温度はこの熱電対の温度である。

・炉遠隔移動機構

加熱炉を精密試料走査ステージ（2.4参照）に搭載し，迅速な観察位置の選択，走査及び追跡を可能とした。当走査ステージはX-Z方向移動型でBL-3AおよびBL-15Bの双方で利用できる。なお移動方向はYを放射光ビーム方向とし，Zは鉛直方向，XはY&Zに直交する方向である。

・試料交換方式

試料交換を炉体の外で行うように，試料とセラミックス薄板をはさみこんだヒーターを炉の蓋に取り付ける構造とした。試料の迅速な交換が可能となった。

2. 3. 2 炉体部

図2-1に加熱炉の炉体部の模式図(平面図)を示す。図2-2に参考として1233Kに等温保持中のヒーター表面の温度のシリコン窓を介して撮影したサーモグラフィを示す。シリコン窓を介しているため表示温度は実際の温度よりも200K程度低くなっているが、中心付近では温度差が小さく均一な加熱状況を示している。

以下箇条書きで仕様を示す。

・加熱方式

C/Cコンポジットヒーター(幅40mm)による抵抗加熱方式。

高温加熱可 加熱温度は1573Kmax。

高精度、広面積の恒温保定。

均熱領域 1233Kにおいて

5mm×5mmで±2K以内、

10mm×10mmで±5K以内。

安定性が高くかつ再現性に優れた加熱。

1233K等温保持において±1K以内。

高加熱速度 2K/s max。

加熱制御

ヒートサイクル9プログラム制御可。

各プログラムで最大44ステップ可能。

雰囲気

アルゴン、ヘリウムなど、ガスフロー可能。

炉体冷却

水冷。

・検出角度

検出器面を試料に最小45mmまで近づけられ、広い検出角度範囲での測定が可能。

広い検出角度範囲(2θ)

垂直方向0~+60°、水平方向±40°。

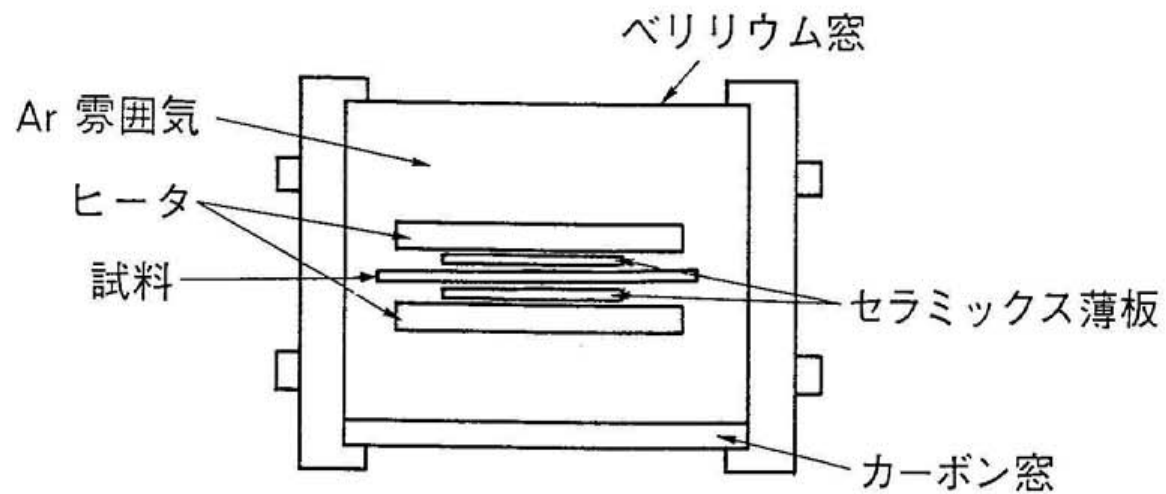


図 2 - 1 加熱炉の炉体部の模式図 (平面図)

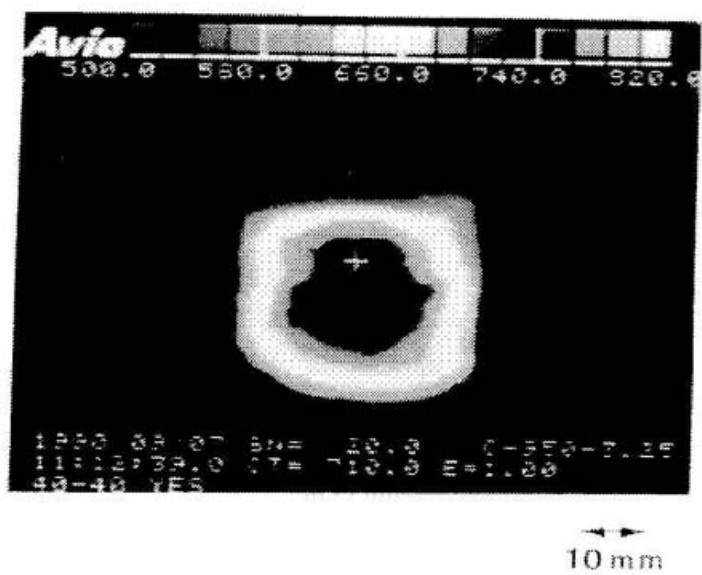


図 2 - 2 加熱中のヒーター表面のサーモグラフ。
 試料を 1233 K に等温保持中。
 シリコン窓を介して撮影した。

2. 3. 3 引張加熱炉

炉体部に試料引張機能を付加した炉である。常温での引張のみの使用も可能であり、挫屈しない材料では圧縮も可能である。引張側チャック、固定側チャックともに炉体から熱絶縁を行っている。プログラマブルコントローラを備えた引張制御系を有しており精密な歪附加が可能である。図2-3に引張加熱炉の写真を示す。窓は炉内部が観察可能なように入射側、出射側ともに除去してある。ヒータの幅は40mmである。図2-4に引張加熱炉の模式図(正面図)を示す。ヒーターは電極に取り付けてある。図2-5に引張加熱炉の引張制御装置の模式図を示す。以下附加された仕様を記す。

引張速度、引張量の設定

チャック移動量 5 mm max.

プリセット方式で手動による停止可能。

チャック移動速度 0.1 ~ 100 $\mu\text{m}/\text{s}$.

歪速度 $10^{-2} \sim 10^{-6} \text{ 1}/\text{s}$.

プリセット方式で移動中に手動による設定値変更および停止可能。

荷重、移動量の検出

荷重: ロードセル方式 最大荷重は100 l b s = 43 k g.

移動量: 変位計 カンチレバー方式。

試料

試料長さ 70 mm, チャック間距離 60 mm.

チャック幅 20 mm.

試料幅 20 mm max.

2. 4 精密試料走査ステージ

精密試料走査ステージは加熱炉を搭載し、実験観察位置の調整・選択、走査及び追跡などのために試料位置を遠隔操作するための重要な装置である。X-Z方向移動型でBL-3AおよびBL-15Bの双方で利用できる。

Micro Controle社(仏)製の高精度一方向ステージユニット2台を接続金

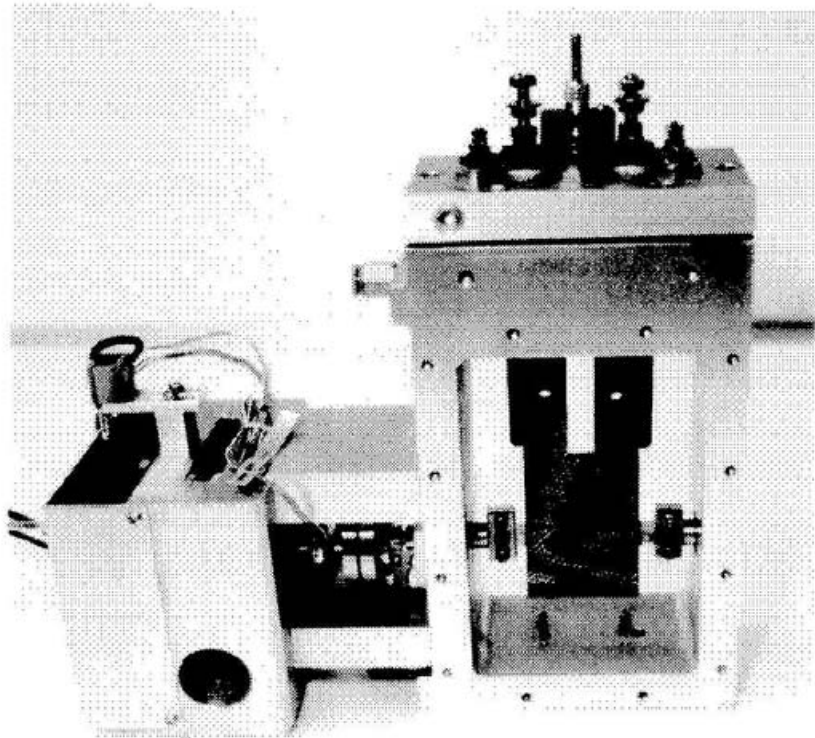


図 2-3 引張加熱炉の写真

窓は炉内部が観察可能なように入射側、出射側ともに除去。
ヒータの幅は40mmである。

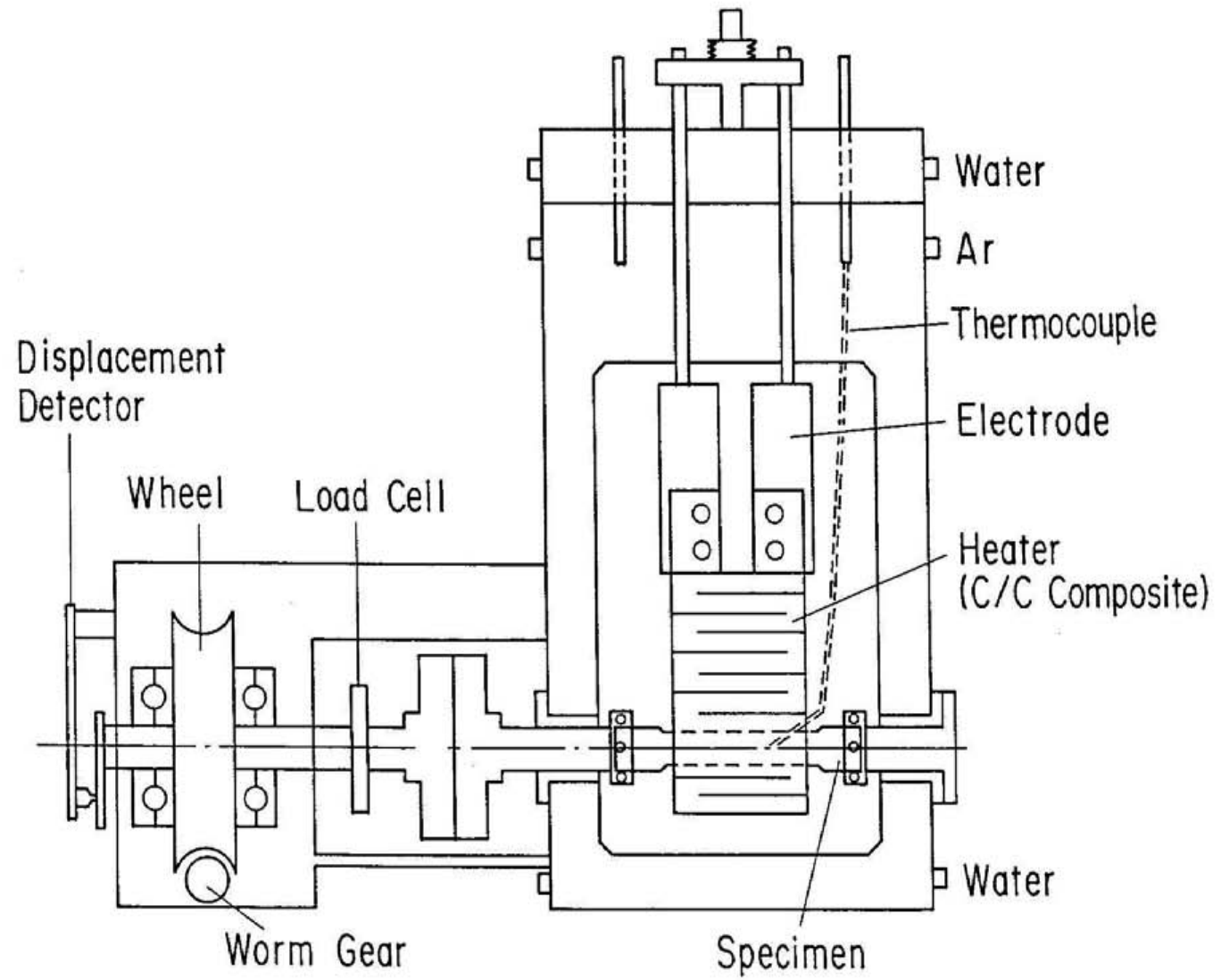


図 2 - 4 引張加熱炉の模式図 (正面図)

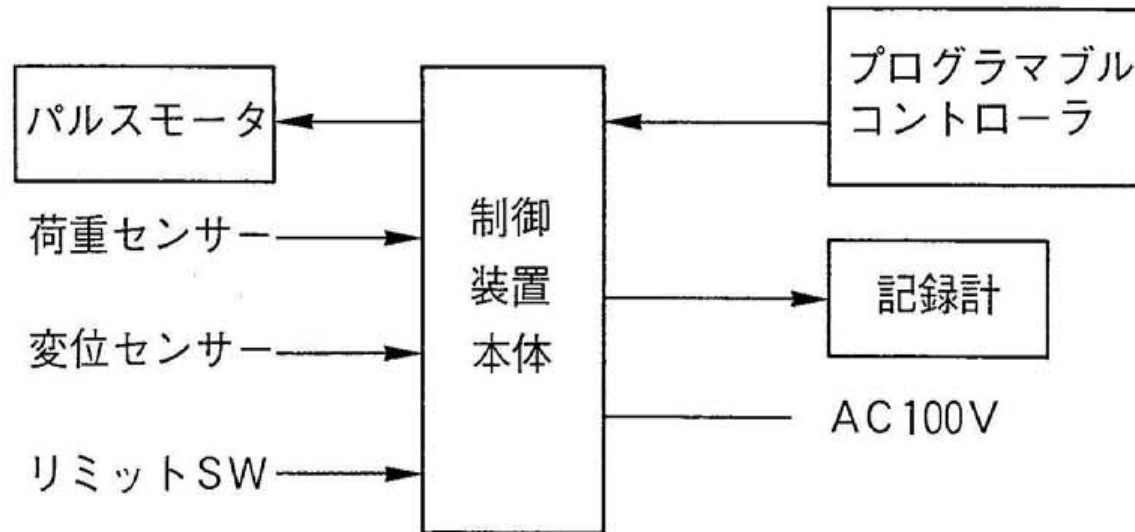


図 2 - 5 引張加熱炉用の引張制御装置の模式図

具（ブラケット）により結合し，制御装置を介して遠隔走査する．各ステージユニットはエンコーダーを有し位置の再現性，移動精度の点で優れているほか，ステージユニットの方向と組合せが任意であり，また走査の制御方式が3方式可能であるなど，走査方向および制御方式の選択の自由度が大きい点に特徴がある．図2-6にBL-3Aの4軸ゴニオメーター¹⁵⁾に搭載された精密試料走査ステージの写真を示す．この写真では簡易試料ホルダーが取り付けられている．以下に箇条書きで仕様・特徴を記す．

・ステージユニット

ストローク ±12.5 mm.

精度 1 μm / ステップ，エンコーダ付き．

原点復帰機構有り，復帰精度1 μm.

移動方向

ステージユニットの付け替えにより二方向選択可．

例：X-Z，Y-Z，X-Y．

Y：放射光ビーム方向，Z：鉛直方向，X：Y & Z に直交する方向．

・制御方式

以下の3方式が可能である．

ワークステーション（日立2050）方式

BL-3Aの回折計の標準ソフトウェア¹⁵⁾により制御する．

同ソフトウェアの標準である移動，走査が可能である．

パソコン（NEC，PC9801）方式

移動量のプリセット，ステップ移動などユーザ製作によるプログラム制御が可能である．

手動方式

手動操作盤による方式で，位置表示，移動速度可変の機能がある．

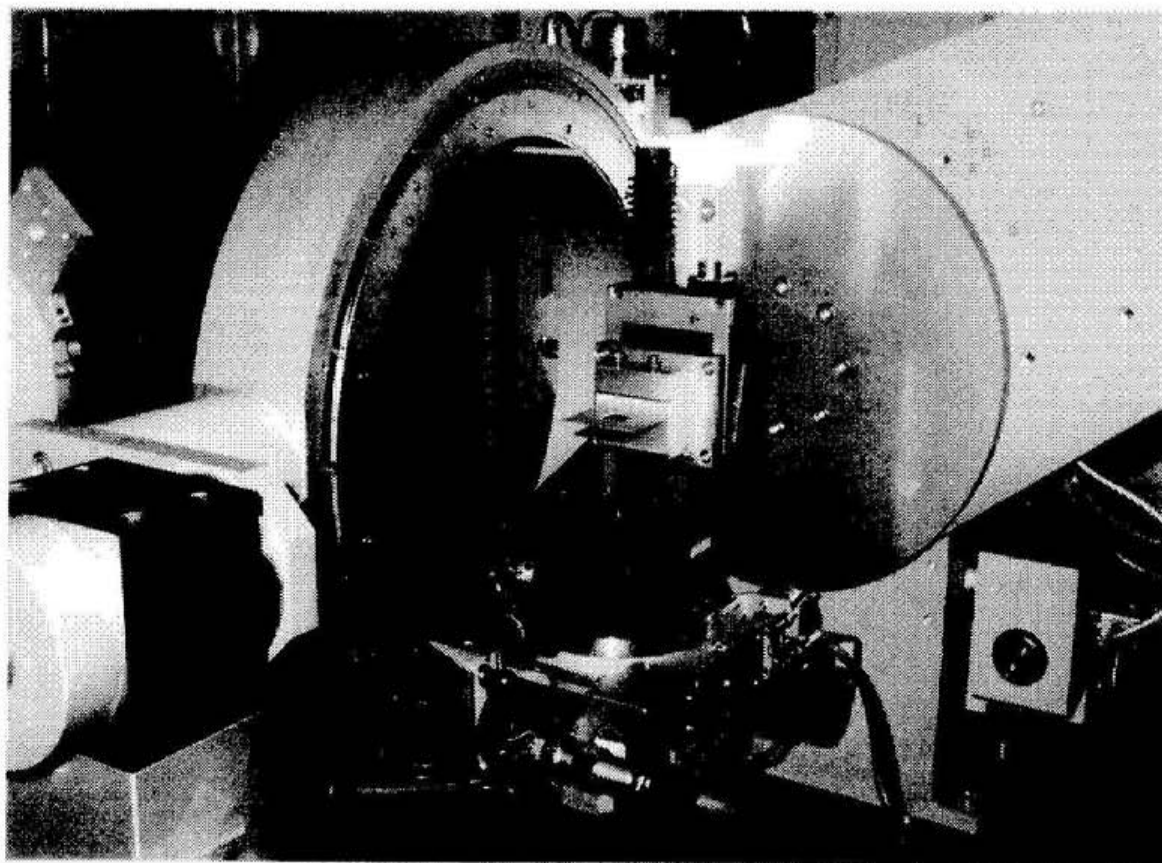


図 2-6 精密試料走査ステージの写真

X-Y 方向移動型、BL-3A の四軸ゴニオメーターに搭載。

簡易試料ホルダーが取り付けられている。

z サークルの外径は 494 mm。

2. 5 結 言

電磁鋼板を実際の製造工程と同じ環境下に置くための〔動的観察用高温加熱炉〕として、加熱しながら引張り歪の附加が可能な引張加熱炉を製作した。本炉では高温加熱（最高1573K）が可能である。また高温保持での試料温度の均一性および温度変化に対する追従性の確保のために加熱方式として〔サンドイッチ方式〕を確立した。高温加熱における温度の安定性、再現性などを確認し、要求された機能要件を満たした炉を開発することができた。

第3章 放射光極点図動的測定法

3. 1 緒 言

放射光ビームの高輝度性を利用し、高温における金属材料の再結晶過程に伴う結晶方位分布の変化を測定するための方法を新たに開発し、実際の製造工程と同じ環境下で電磁鋼板の高温再結晶過程を動的観察し、新しい知見を得た¹⁶⁾。

多結晶材料の結晶方位分布の二次元検出器への記録については1956年頃にA. Guinierが検出器としてフィルムを用いて試みているが¹⁷⁾、長時間を要し実用には至らなかった。その後計数法による極点図測定法（正極点図測定法とも呼ばれる）が開発され長期に利用され現在に至っている。しかし計数法による極点図測定法は定量性には優れているものの、やはり測定に長時間を要し動的観察には適さない。この限界を打ち破るために筆者は2章で述べた動的観察用高温加熱炉を四軸回折計に搭載し、高感度二次元検出器を用いて「放射光極点図動的測定法」を開発し結晶方位分布の高速変化のその場測定を可能とした。高感度二次元検出器としてはイメージングプレートを用い、帯状のイメージングプレート上に結晶方位分布の時間変化を記録する方式とした。高エネルギー物理学研究所放射光実験施設BL-3Aにおいて装置の組立を行い、実験を行った。

3. 2 放射光極点図動的測定法の開発

3. 2. 1 従来の極点図測定法

従来行われてきた計数法による極点図測定法について簡潔に説明しその問題を述べる。計数法による極点図測定法が長く利用され現在に至っているが、図3-1にその原理図を示す。同図において優先方位を持つ金属材料の特定反射の極点は、極点球の表面上に特有の分布をしている。Ewald球と極点球が交われば、その交線（円弧）から極点の一次元分布が得られる。

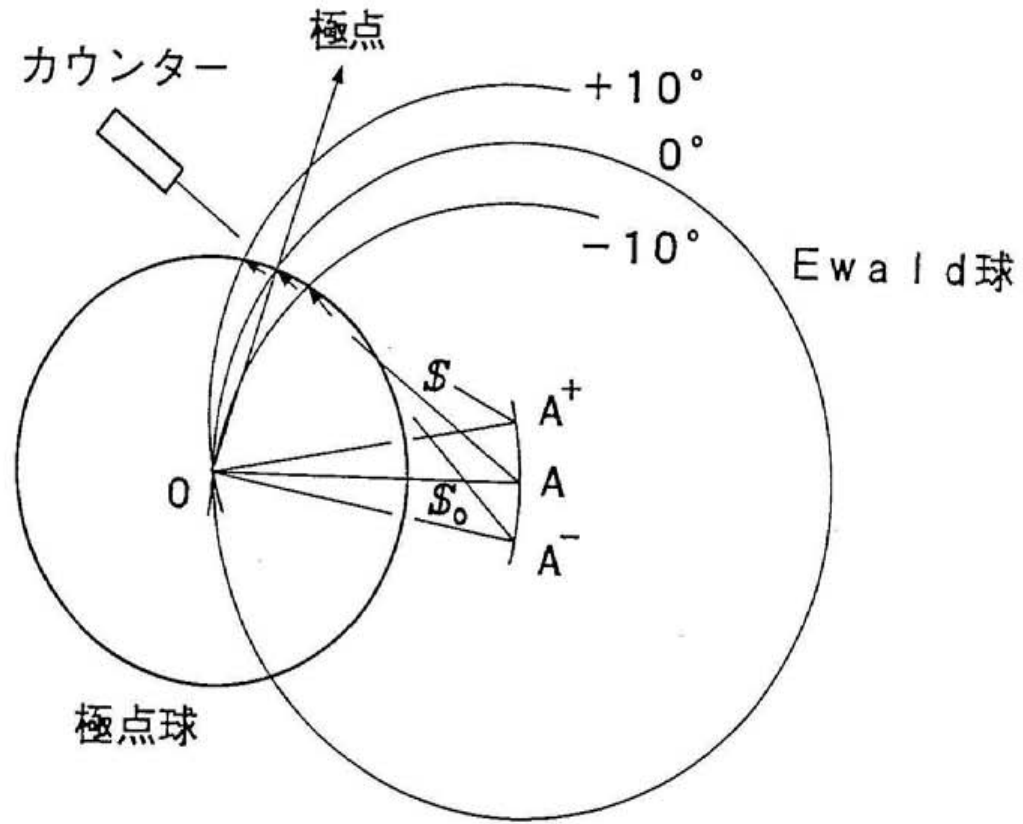


図3-1 従来の極点図測定法の原理

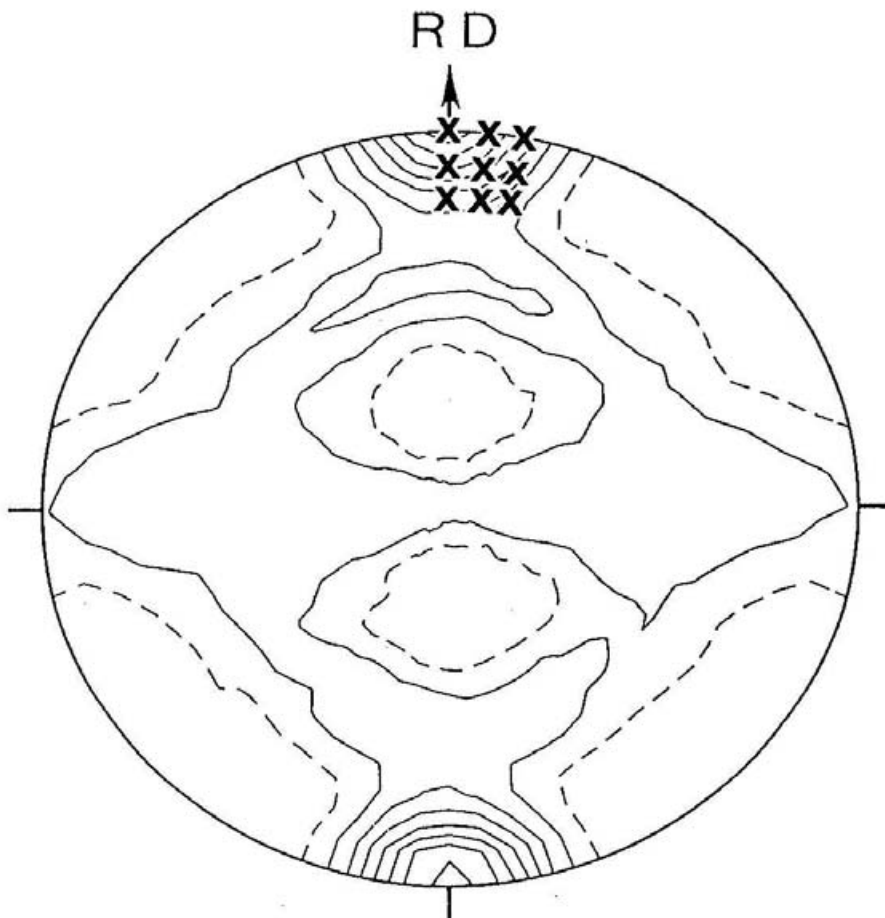


図 3-2 従来の極点図測定法により得られた 200 極点図
 試料：電磁鋼板の高温加熱前，図 1-7 の左の極点図と同一．
 実際の計測点の一部を×印によって示した（5° ステップ）．

この交線の一点のカウンターでの計数を Ewald 球のステップ走査ごとに行う。図 3-2 に従来法により得られた極点図表示を示す。0.5 毎の等高線で表示してあるが、実際の計測点は×印によって例示したような離散位置のみである。計数法による極点図測定法は計数点での定量性には優れているが、このような一点毎の計測では長時間を要し動的観察には適さない。高温再結晶など巨大粒化の観察には適さない。

3. 2. 2 放射光極点図動的測定法の開発

3. 2. 2. 1 測定原理

新たに開発した結晶方位分布の高速変化を測定するための方法の原理図を図 3-3 に示す。Ewald 球と極点球の交線から得られた極点の一次元分布を二次元検出器に記録するに際し、Ewald 球の回転により、極点球との交線を移動させれば、極点球上の二次元強度分布を二次元検出器に短時間で記録することが可能である。結晶方位分布の高温での時間変化の動的観察のためには Ewald 球のこの 1 単位の運動を繰り返させ、その度ごとに得られる面情報を検出・記録すればよい。このような迅速測定は得られるフォトン数が減少するため放射光とイメージングプレートの結合によって初めて実現しうる。

3. 2. 2. 2 装置

高エネルギー物理学研究所放射光実験施設の BL-3A において、開発した X 線四軸回折計¹⁵⁾ と高感度二次元検出器イメージングプレートを組み合わせた装置を製作した。図 3-4 に模式図により方法を示す。Ewald 球の回転の代わりに実際には試料を回折計の ϕ 軸の機構を使って加熱炉とともに回転させる。二次元検出器の平行移動を回折計の 2θ 軸の機構による回転で行う。結晶方位分布の時間変化を記録するための、二次元検出器の未露光領域への移動にも回折計の 2θ 軸の機構を用いた。

図 3-4 に示すように放射光をモノクロメータで波長 0.06 nm に単色化し試料に入射させる¹⁶⁾。試料を透過した回折 X 線をイメージングプレート

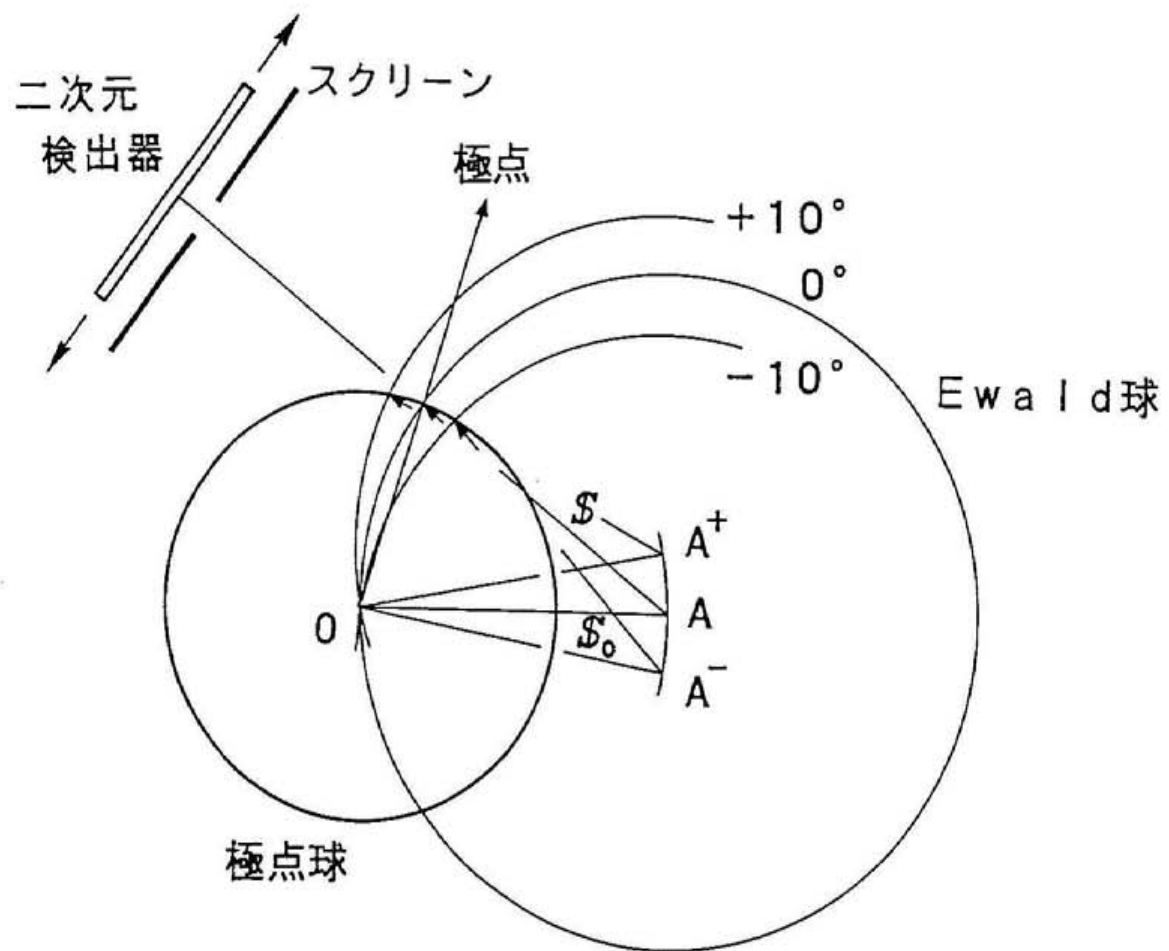


図3-3 放射光極点図動的測定法の原理図

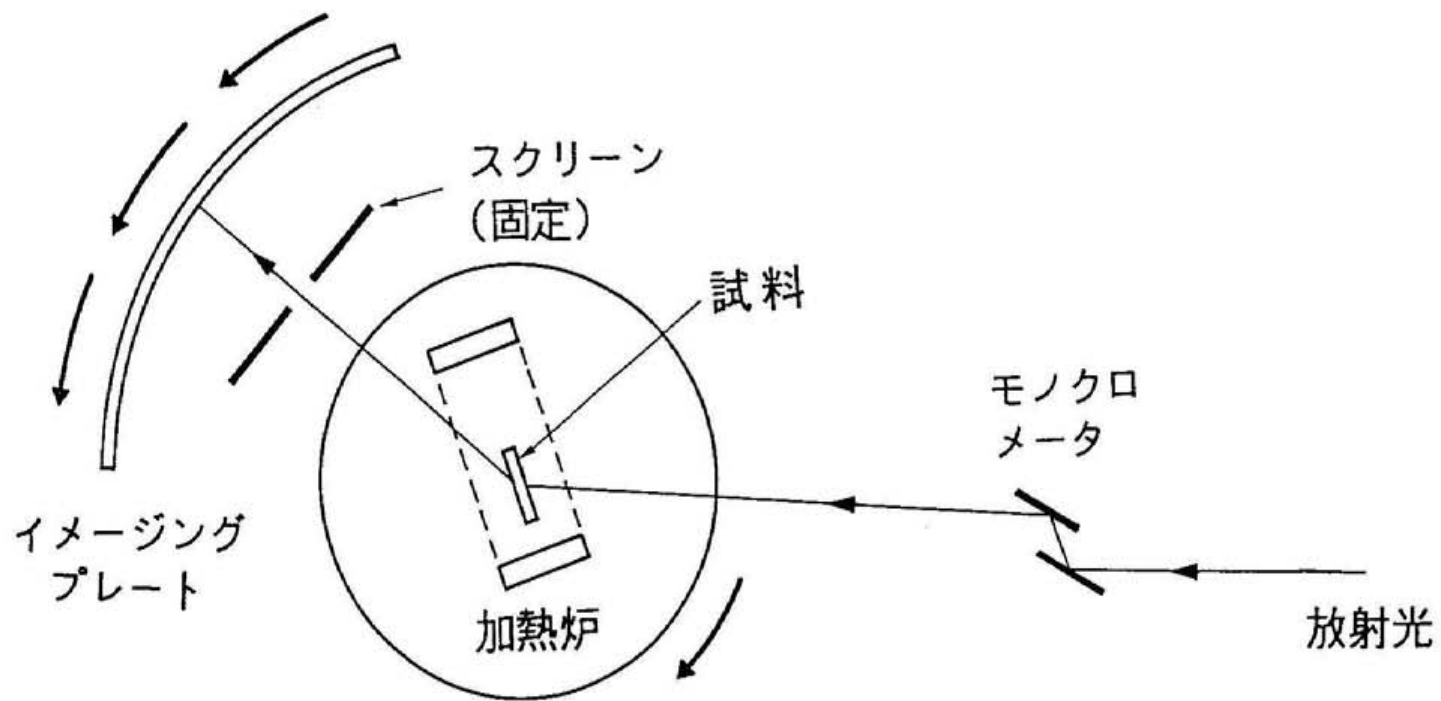


図 3-4 放射光極点図動的測定法の模式図

試料と加熱炉の一体となった回転と同期して
イメージングプレートを移動させる。

に記録させる。体心立方晶構造（BCC構造）の200反射のみを記録するためにスクリーンを検出器直前に固定した。図3-5に装置の写真を示す。X線四軸回折計の χ サークルに付属した ϕ ステージに精密試料走査ステージ（X-Zステージ）を取り付け、加熱炉はこのX-Zステージに搭載した。スクリーンは円弧型の開口部を有し、200反射の回折アークのみを選択する。イメージングプレートは専用ホルダーに張り付けた。イメージングプレートホルダーは曲率半径が250~360mmのものを数種類製作した。イメージングプレートホルダーは 2θ 軸上の一軸（四軸回折計の半径方向）移動ステージに取り付けられており、試料~イメージングプレート間の距離を正確に設定できる。

X線四軸回折計全体の写真を図3-6に、正面図を図3-7に示す。本回折計は大型・高精度の四軸ゴニオメーターを有し、動的観察と高精度解析の両機能を有する装置である¹⁵⁾。

3. 2. 2. 3 放射光の波長と集光

放射光の波長選択性を利用し、最適波長を決定した。また、モノクロメーターの第二結晶を湾曲させて放射光を水平方向に集光させた¹⁸⁾。極点図の測定法としては透過法と反射法があるが、ゴス方位の極点近傍の測定のためには透過法が必要である。

最適波長の決定に当たっては、短波長化にともなう吸収の減少による透過回折強度増大および短波長化にともなう光源でのフォトン数減少を考慮した。また希望回折アークが炉の出側窓を通過することも考慮した。

・ μt

吸収によるX線強度の減少を μt の値で評価する。鉄、炭素の μt を表1に示した。試料としての鉄0.2mm厚の μt が支配的である。セラミックス薄板としてBN薄板を0.5mm厚×2枚=1mm厚使用した場合波長 $\lambda=0.05\sim0.07$ nmで μt は0.05~0.2でアルミナ0.5mm厚の20%程度となり影響は小さい。加熱炉の入射側のベリリウム窓

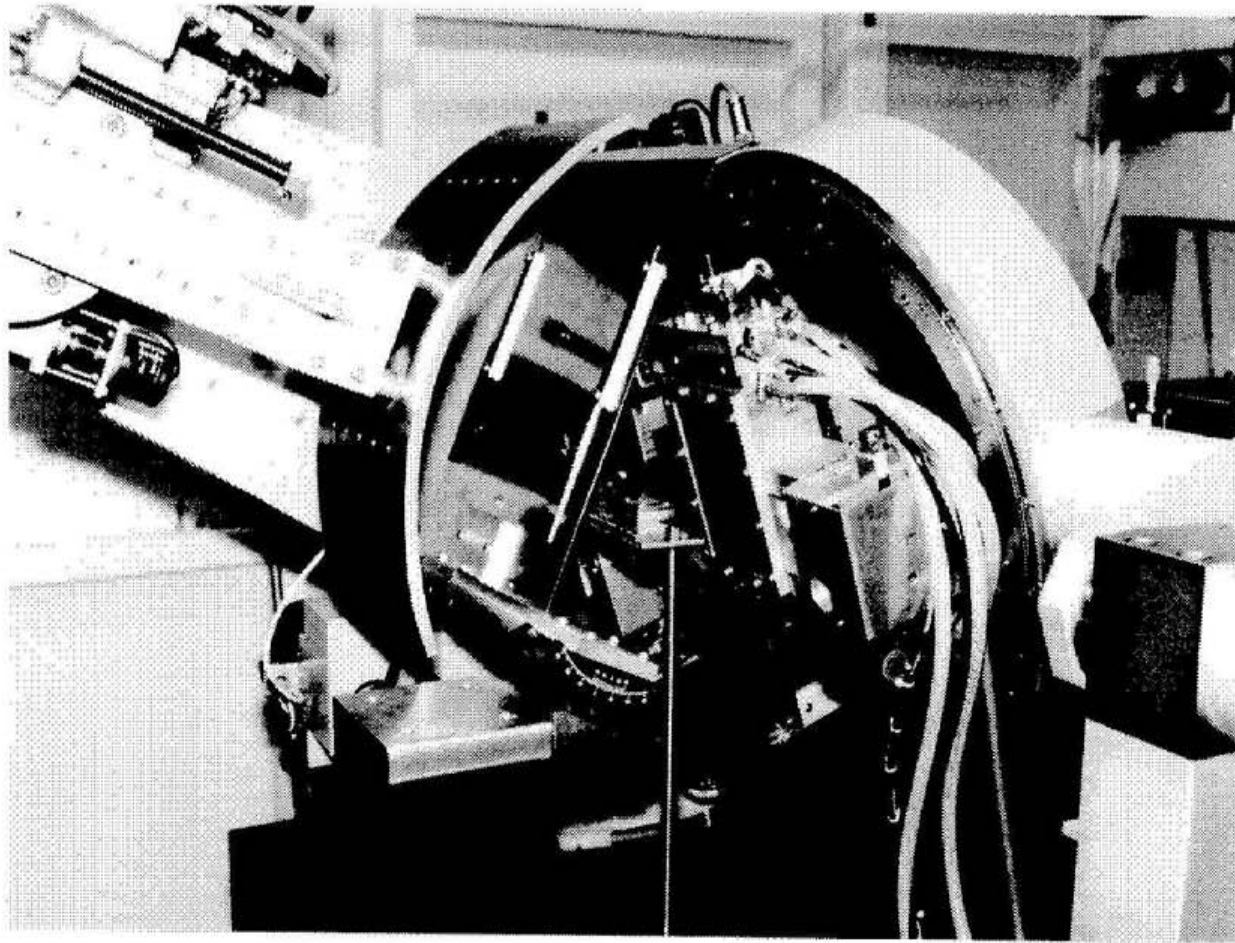


図3-5 放射光極点図動的測定法の装置の写真

四軸回折計上に加熱炉を搭載。

スクリーンは円弧型の開口部を有する。

イメージングプレートはホルダーに貼付。

λ サークルの外径は494mm。

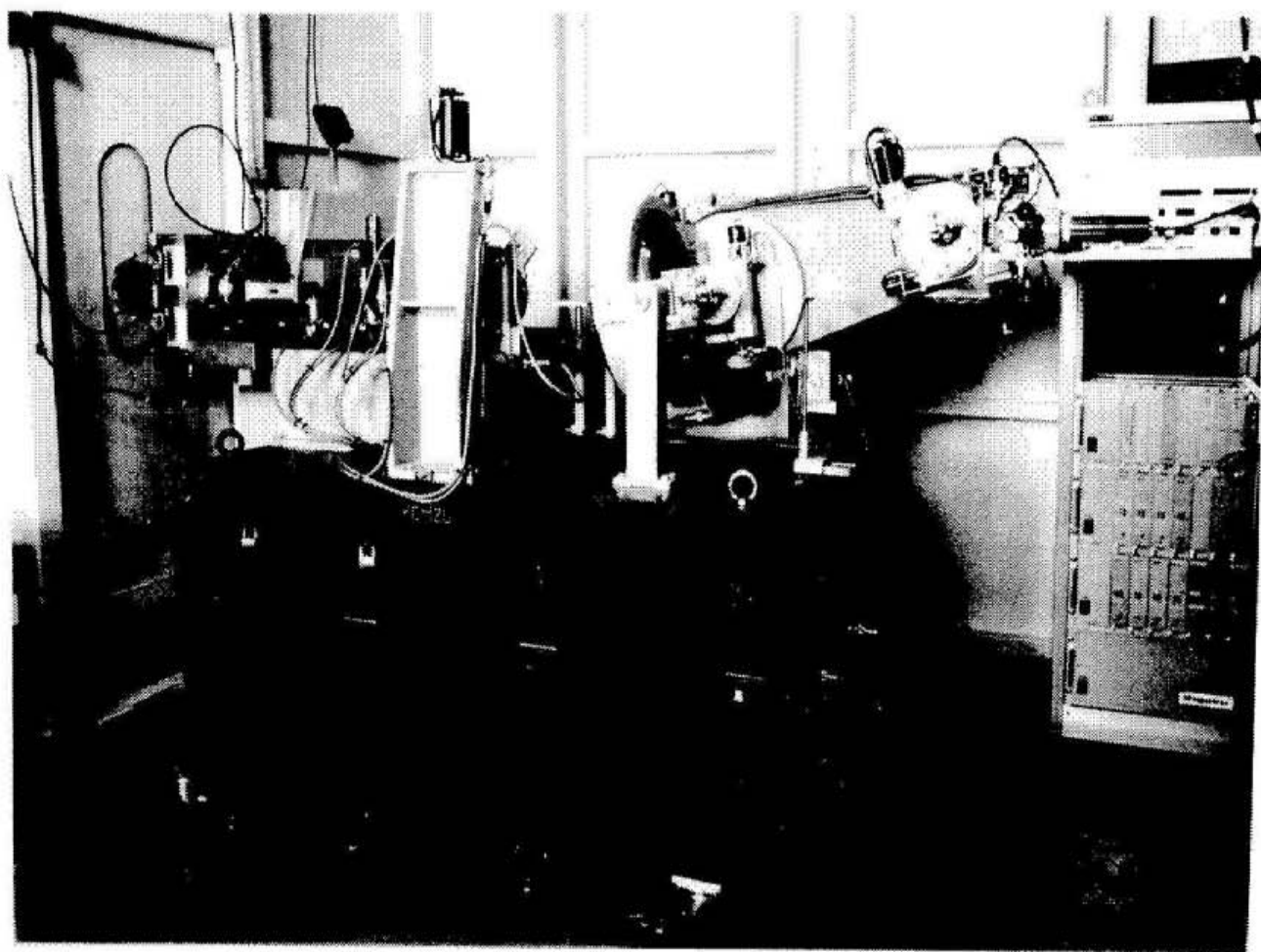


図 3 - 6 X線四軸回折計の写真

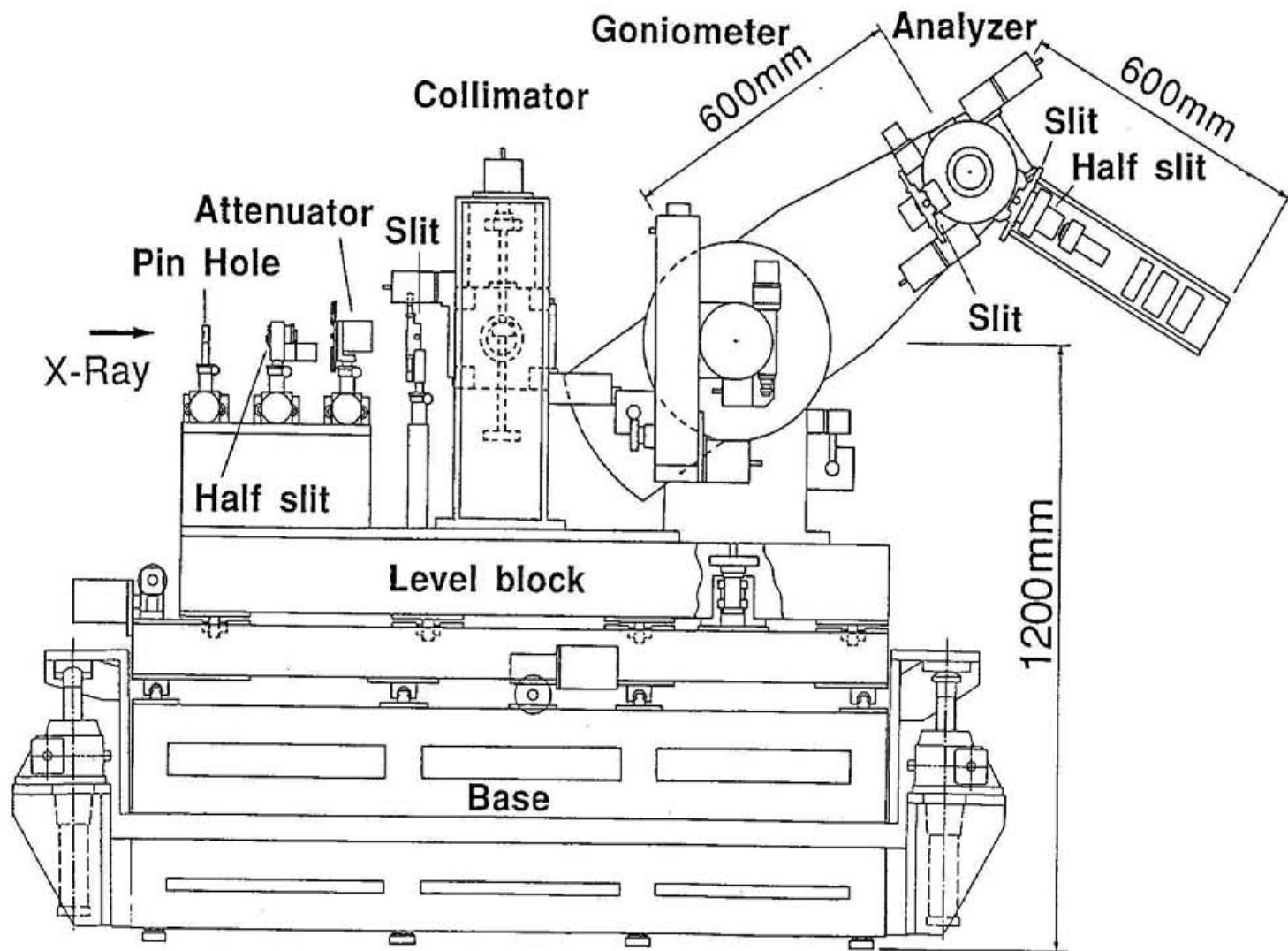


図 3 - 7 X線四軸回折計の正面図

0.3 mm厚の μt は0.02以下で小さい。アルゴンガス80 mm厚の μt は0.07~0.17で炭素5 mm厚の1/3程度である。全 μt を鉄0.2 mm厚+炭素5 mm厚で評価すれば波長 $\lambda = 0.06$ nmで全 μt はほぼ4.0で実験可能と考えられる。試料を片側のみの半分の厚みにすれば全 μt は2.2で十分な強度が得られると推定される。

表1 鉄, 炭素の μt

λ (nm)	鉄0.2 mm	炭素5 mm
0.05	2.19	0.25
0.06	3.68	0.36
0.07	5.68	0.49

鉄0.2 mmは試料, 炭素5 mmはヒーター4 mm+出側窓1 mmの厚みである。垂直に放射光ビームが入射したときの μt の計算値を示す。

ベリリウム窓を通過した後の放射光のエネルギースペクトルの計算例によれば¹⁹⁾, $\lambda = 0.05 \sim 0.07$ nmの領域ではフォトン数は短波長化とともに減少し, ベリリウム窓厚みにはほとんど影響されない。このように短波長化とともに試料への入射フォトン数は減少するが, μt も減少する。実際に加熱炉中の試料を通過した単色光の強度をイオンチャンバーで測定した。波長の減少とともに0.06 nmまでは計数値が増加するが, 0.055 nmでは減少に転じ, 0.06 nmが実用の下限界と考えられる。

・ 炉の窓などによるビームの妨害

また試料は加熱炉中に固定してあるため測定されるべき回折アークが炉の入射側および出射側窓などの開放部を通過するようにしなければならない。図3-8に放射光のビームパスを示す。加熱炉の窓と χ サークルにより死角

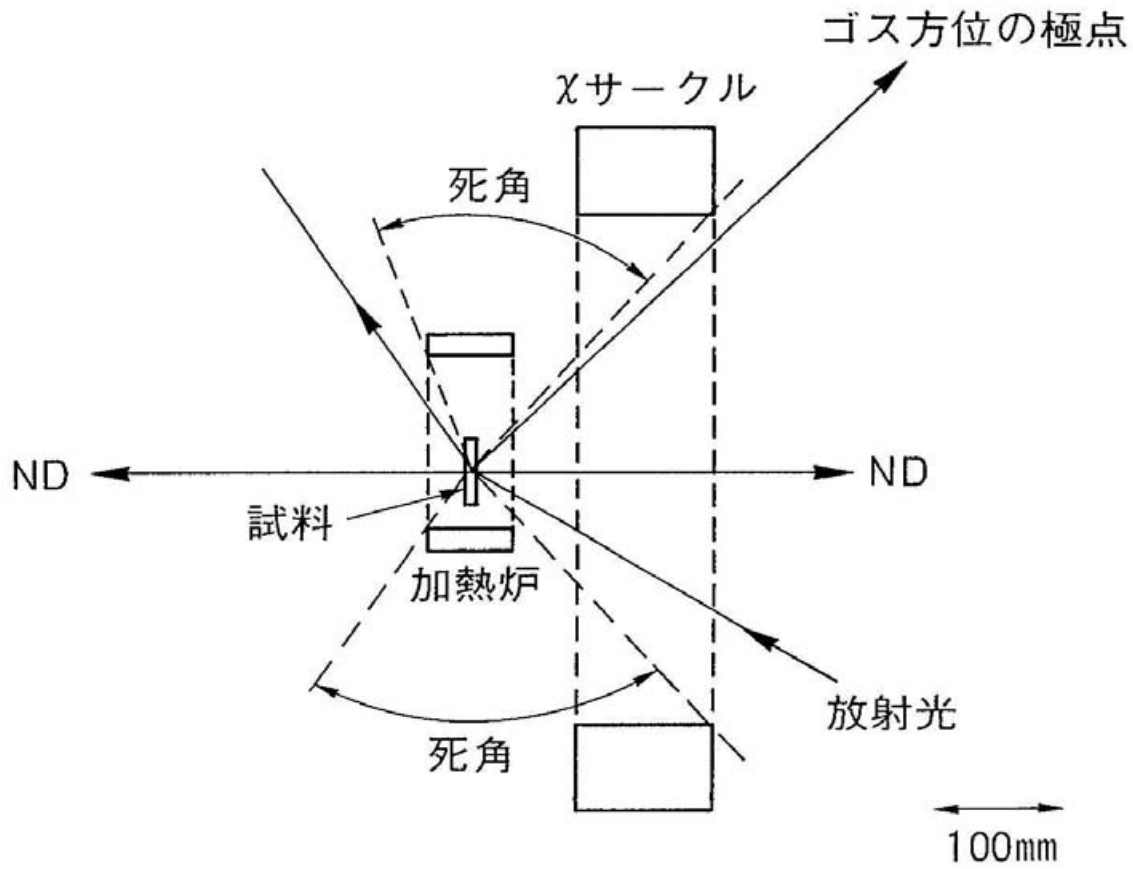


図 3 - 8 放射光極点図動的測定法の装置でのビームパス

が生じておりゴス方位の極点の近傍領域を測定するためには回折角 2θ を小さくする必要がある。 $\lambda = 0.06 \text{ nm}$ であればこの条件をクリアーしているため問題がないが、 $\lambda = 0.07 \text{ nm}$ では測定が困難となる。従って $\lambda = 0.06 \text{ nm}$ を採用した。

・集光

モノクロメーターの第二結晶を湾曲させて放射光を水平方向に集光させた。BL-3Aは垂直方向および水平方向の集光により高輝度を実現しうるビームラインである¹⁸⁾。図3-9にBL-3Aの平面配置の模式図を示す。モノクロメーターは発光点からほぼ20mに位置し、試料はほぼ28mに位置する。本研究ではミラーによる垂直方向の集光は行わず、モノクロメーターによる水平方向の集光のみを行った。文献19)によればモノクロメーターの集光により水平方向のビーム幅は1.5mm、収束角度は12.0mradまで集光可能である。本研究ではビーム幅を4mmとした、収束角度は約5mradである。

以上放射光極点図動的測定法の開発について述べたが、本方法によれば板厚0.2mmの電磁鋼板において1回の方角分布記録に要する時間は40s、時間変化の検出間隔は80s、測定周期は120sという短時間での測定が可能である。この所要時間は同様の測定を従来の極点図測定法で行った場合に比べ約1万分の1で極めて短い。

3.3 高温再結晶過程の動的観察

放射光極点図動的測定法を、電磁鋼板の高温再結晶過程に伴う結晶方位分布の動的観察へ応用した。

3.3.1 実験方法

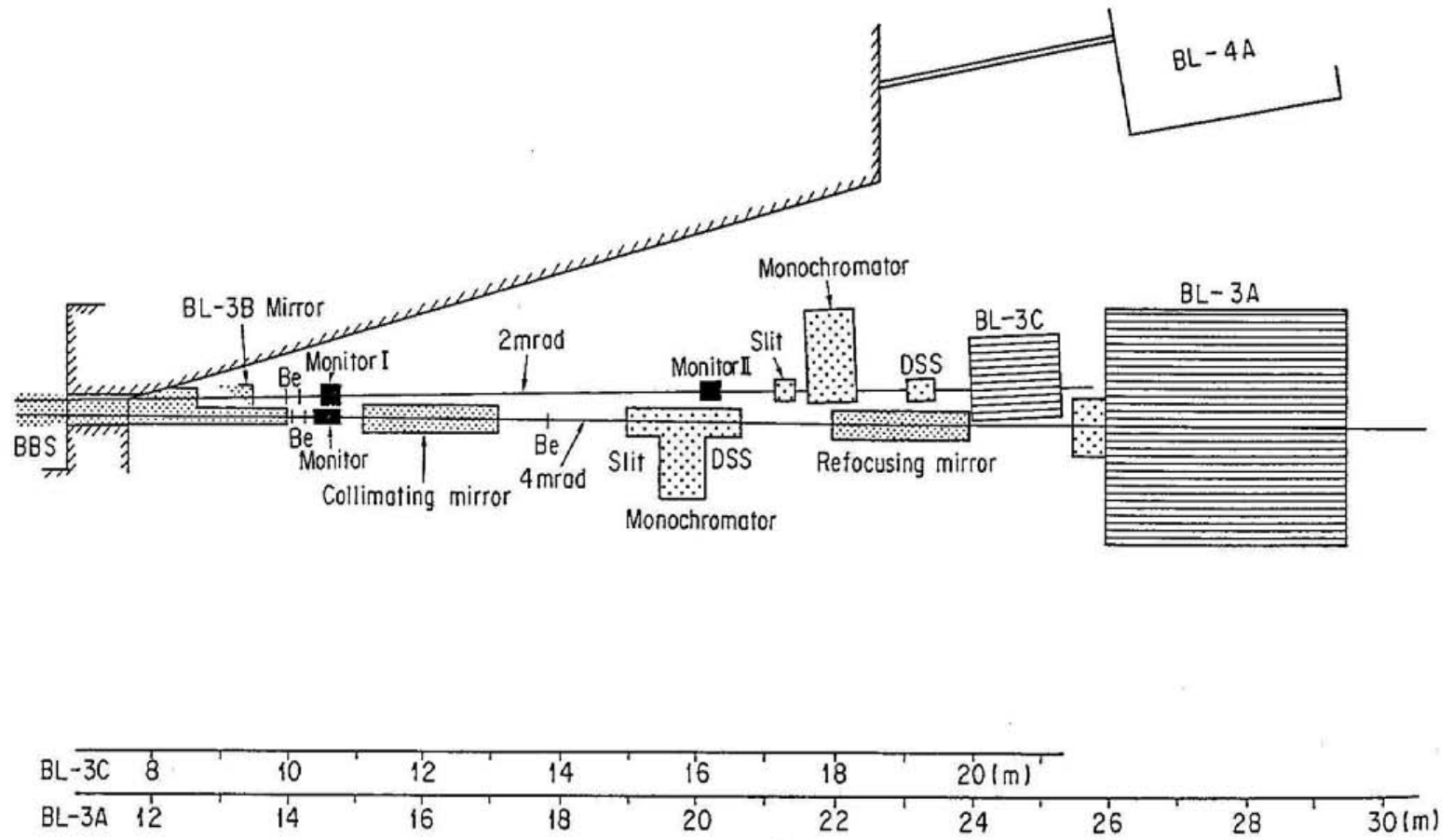


図 3 - 9 BL - 3 A の平面配置の模式図

3. 3. 1. 1 試料

試料は電磁鋼板の短時間加熱後の一次再結晶材（厚みは0.20mm）で、合金組成はSi: 3.2, Mn: 0.06, S: 0.03重量%で残りは鉄である。金属組織、極点図は1章に示した。引張り加熱炉用に図3-10に示す試験片を、試験片の長手方向をRD, TD, RDとTDの中間方向として製作した。JIS規格での試験片の規定を参考に試験片の寸法を定め、チャック間距離を60mm, 幅を10mmとし、平行部は長さ25mm, 幅8mmとした。また中心付近を板厚0.10~0.12mmとなるように片面から化学研磨した試験片も製作した。この試験片はS/N比およびX線像のコントラストを改善するために一部の実験で使用したが、板厚0.20mmの試験片と同様に高温加熱で二次再結晶を生じることを確認した。

3. 3. 1. 2 加熱・引張

電磁鋼板の短時間加熱後の試験片を高温加熱炉にセットし、1233Kに加熱した。図3-11に加熱パターンを示す。昇温、降温ともに1K/sとし、等温保持時間は1000sを標準とした。放射光ビーム中心と試料中心はあらかじめ一致させておき、熱電対（PR型）は試料中心から5mmの位置にスポット溶接で取り付けた（図2-4参照）。温度はプログラム制御により±1Kに保たれている。

また高温再結晶過程に及ぼす歪の影響を調べた。粒界エネルギーのみと考えられている二次再結晶の駆動力に引張歪による駆動力を附加させ、核生成～成長型である二次再結晶現象の変化の観察を試みた。歪附加は加熱途中の973Kに開始し1233Kに到達後300sまでの歪附加を標準とした。1233Kに到達後600, 1000sの歪附加も行った。チャック移動速度は0.1, 0.3（歪速度 10^{-6} 1/sオーダー）および $1\mu\text{m/s}$ （歪速度 10^{-5} 1/sオーダー）で実験した。

3. 3. 1. 3 極点図の常温での記録

極点図動的測定に先行し、常温での記録を行い、手法の有効性の確認を行った。放射光は2.5GeV, 350~240mAである。放射光ビーム寸

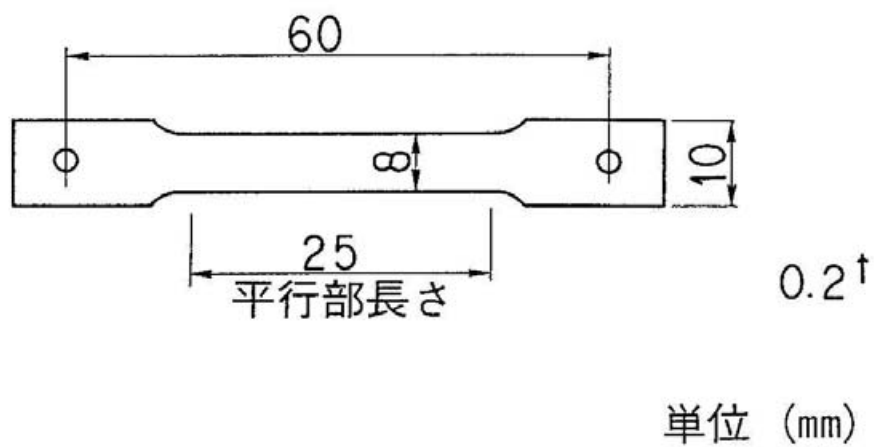


図 3 - 1 0 引張加熱炉用試験片

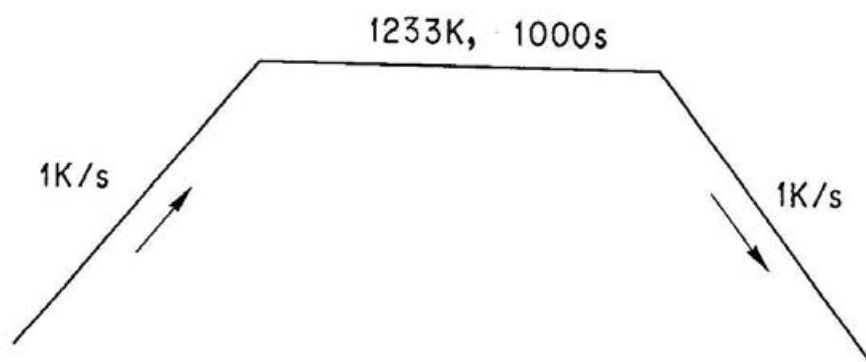


図 3 - 1 1 加熱実験での加熱パターン

法を4 mm x 4 mmとし試料中心に入射させた。水平方向は上述した集光により4 mmとし、垂直方向はスリットで制限した。ノイズを減少させるためビームパスを除き遮蔽を行った。カメラ長は300 mmを標準とした。

図3-12に極点図上の測定領域を表すチャートを示す。図中には試料の傾角 α （図1-6での α であるが、本研究では符号は正負逆とした。）に対応する回折アークの位置を極点図上に表示した。

鉄の200反射のみを記録するためにスクリーンの位置、開口部の開口幅を調整した。高温加熱前の極点球上の集積位置付近をイメージングプレートに記録するため、試料のRDを上方向に向け回転角度範囲は傾角 $\alpha = 0^\circ \sim 40^\circ$ とした。1回の方位分布記録に要する時間は160 sであった。イメージングプレートは幅200 mm、長さ400 mmの富士写真フィルム製品を使用した²⁸⁾。イメージングプレートの読み取りは富士写真フィルムの読み取り装置BAS-2000を用い最高感度で行った。読み取り単位の寸法は一辺0.1 mmの正方形のピクセルである。

3. 3. 1. 4 極点図動的測定

実験条件は加熱を除き上述した極点図の常温での記録とほぼ同一である。図3-13の極点図上にゴス方位の極点を中心としたバンド状の測定領域を斜線で表示した。試料の回転角度範囲は 10° とした。(a)は北極近傍でRDを上方向に向け傾角 $\alpha = -5 \sim 5^\circ$ 、(b)は赤道近傍においてRDを水平方向に向け傾角 $\alpha = 40 \sim 50^\circ$ である。1回の方位分布記録に要する時間は40 s、時間変化の検出間隔は80 s、測定周期は120 sとした。板厚0.20 mmの試料であってもイメージングプレートに記録されたS/N比（信号/バックグラウンドの比）は上記測定時間で良好である。特にイメージングプレートを拡大観察する場合は、外部ノイズを低減しS/N比を改善するために板厚0.10~0.12 mmとなるように片面から化学研磨した試験片を用い、かつカメラ長360 mmで赤道近傍を測定した。

3. 3. 2 実験結果

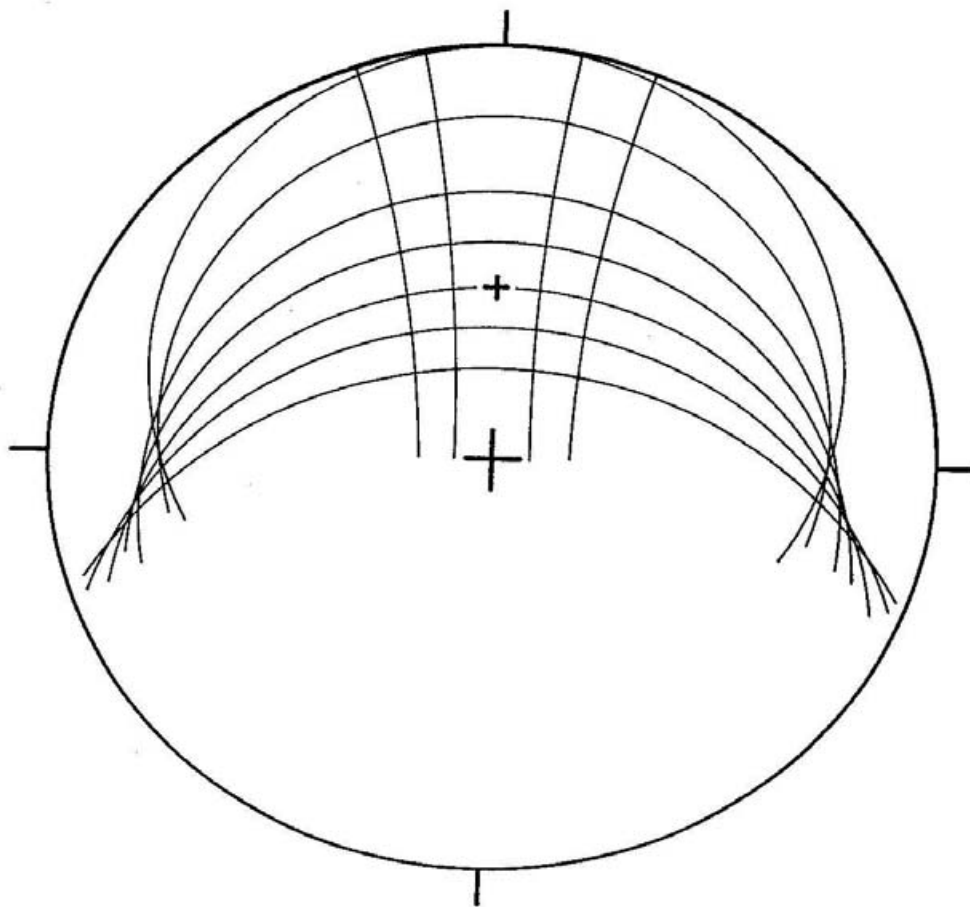


図 3-12 極点図上の測定領域を示すチャート

試料の傾き角度 α が 0° , 10° , 25° , 35° , 45° ,
 55° , 65° の 200 回折アーキの位置を 200 極点図上に表示。
 ブラッグ角 $\theta = 12.1^\circ$.

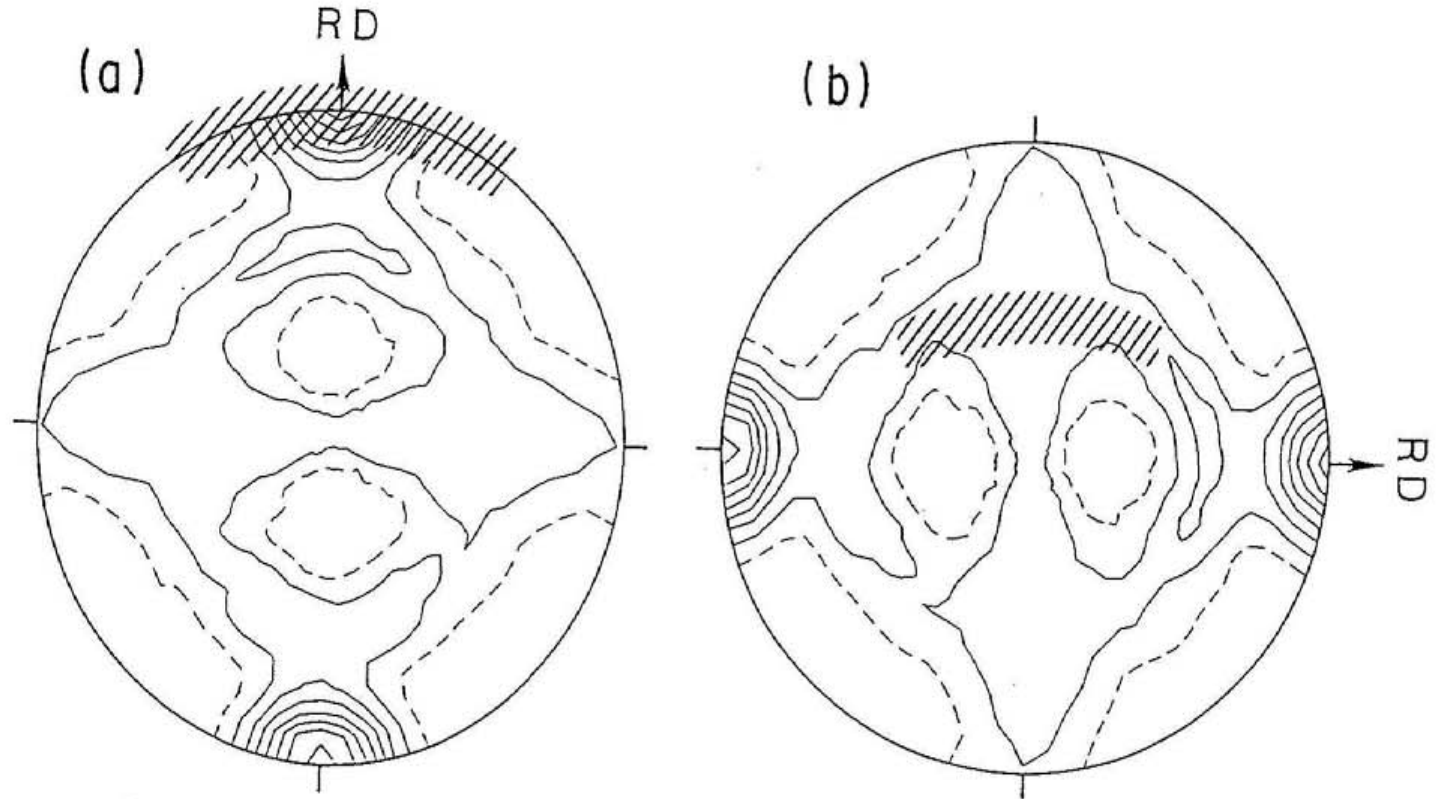


図3-13 極点図動的測定法による電磁鋼板の高温再結晶過程での結晶方位分布の連続測定における測定領域
試料の 10° の回転による測定領域を高温加熱前の200極点図上に斜線で表示。(a)北極近傍, (b)赤道近傍.

3. 3. 2. 1 極点図の常温での記録

高温加熱（二次再結晶）前の極点球上の集積位置付近の200回折アークを傾角 $\alpha = 0^\circ$ で試料およびイメージングプレートを静止させてイメージングプレートに記録した結果を図3-14に示す。露光時間は20sである。図中のスケール（20mm）はイメージングプレート上での長さを示す。次に傾角 $\alpha = 0 \sim 40^\circ$ の間で試料を回転させイメージングプレートに自動記録した結果を図3-15に示す。パターンの上端が傾角 $\alpha = 0^\circ$ で下端が 40° であり、図3-14の回折アークが走査されて得られた結果である。傾角 α が 10° の範囲を図中にスケールで示すがこれは試料の回転角度を示す。本図（図3-15）を図3-2に示した従来法による極点図と比較してみる。本図では極点球の球面を平面に展開しており傾角 α が 10° の範囲は傾角 α の値によらず一定であるが、従来法による極点図では傾角 α が 10° の範囲は傾角 α の値によって異なる。従って両者の間で厳密に位置を対応させるためには図3-12のチャートを用いて座標を変換する必要がある。しかし図3-12のチャートを考慮しながら本図と図3-2を比較することは可能である。図3-2における極点図の集積位置では、本図においてはスポットの分布が密となっていることが認められる。逆に図3-2で強度が標準試料に対し低く、等高線が破線で表示された領域は本図ではスポットがまばらになっている。このように本図と図3-2ではよい対応関係がある。また図3-14は図3-15の上端に対応しているが、やはり中央部でスポットが密になっている。

3. 3. 2. 2 極点図動的測定

極点図動的測定法による電磁鋼板の高温再結晶過程での結晶方位分布の連続測定結果を図3-16に示す。これは北極近傍の例である。図中の0sなどの時間の表示は高温保持を開始してからの経過時間で極点図の動的測定を開始した時間と同じである。最初のパターンは高温加熱前の極点図（図3-13（a））でみられた集積に対応した結晶方位分布の集積を示している。次のパターンも変化が見られない。しかし、240sのパターンにおいて突然激しい結晶方位分布の集中化が生じる。この爆発的な結晶方位分布の集中



図 3 - 1 4 電磁鋼板の高温加熱前の回折アーチ

試料の角度：図 1 3 の (a) において $\alpha = 0^\circ$.

常温でのイメージングプレートへの 2 0 0 回折アーチの記録.

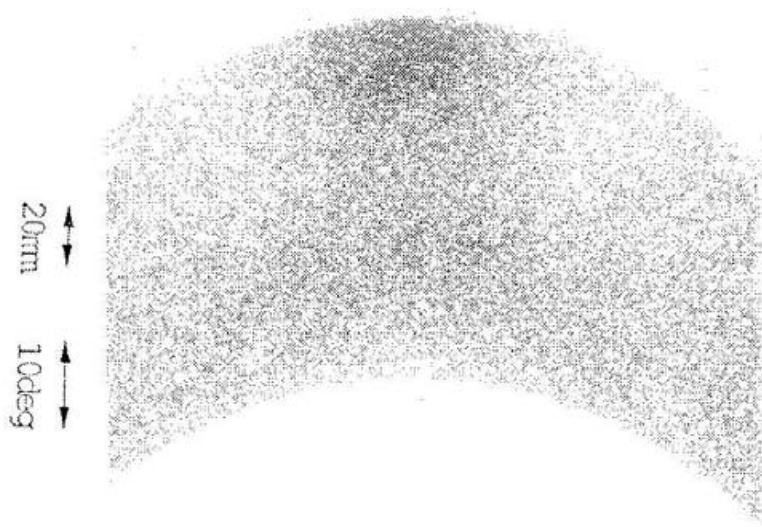


図 3-15 電磁鋼板の高温加熱前の結晶方位分布記録

試料の回転角度範囲：図 13 の (a) において $\alpha = 0^\circ \sim 40^\circ$.

常温でのイメージングプレートへの記録結果.

200 極点の分布を示す.

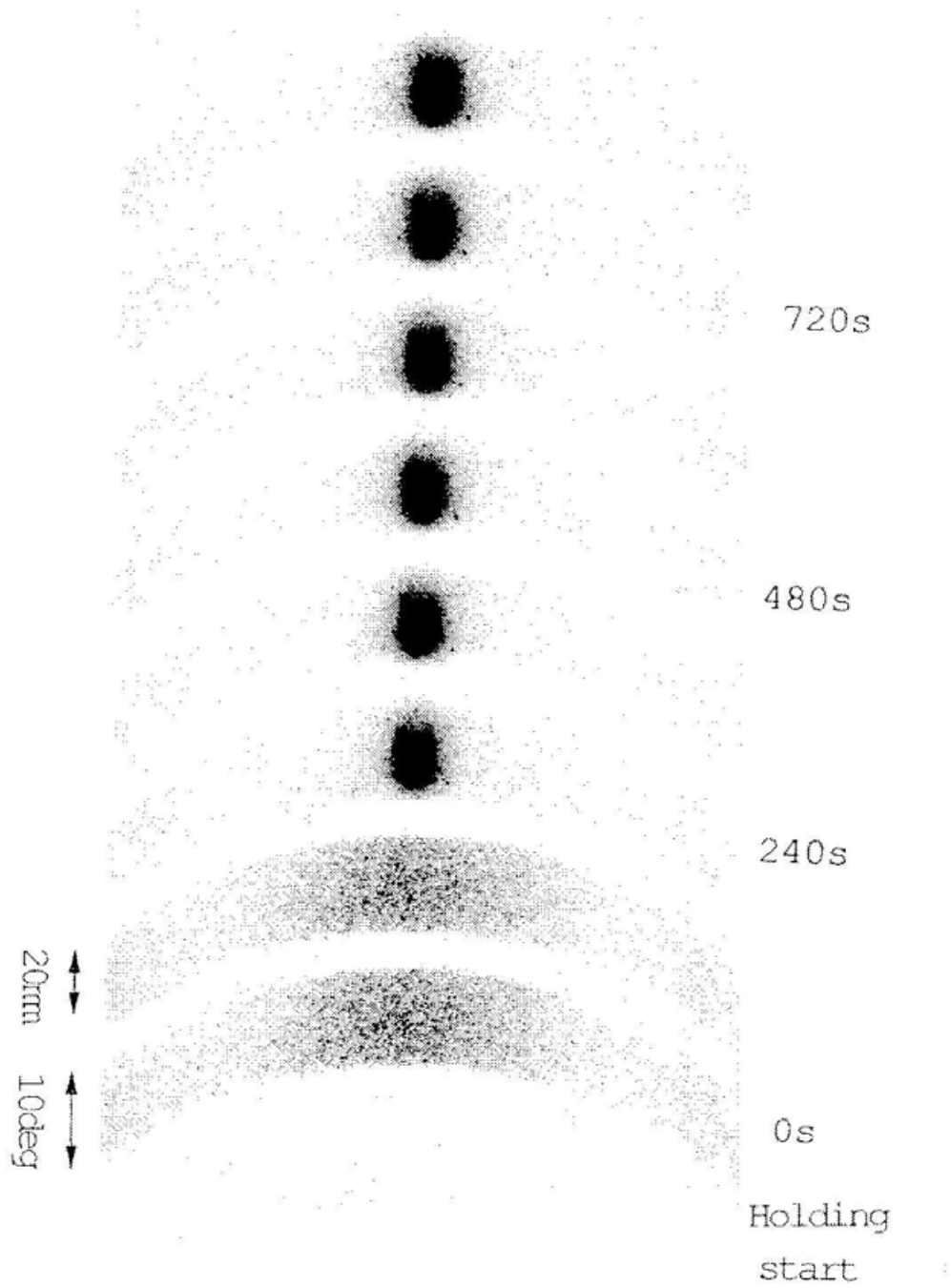


図3-16 極点図動的測定法による電磁鋼板の高温再結晶過程での結晶方位分布の連続測定（北極近傍の例1）
 200極点の分布の時間変化を示す、1個のパターンの記録に40sを要す、測定周期は120s。

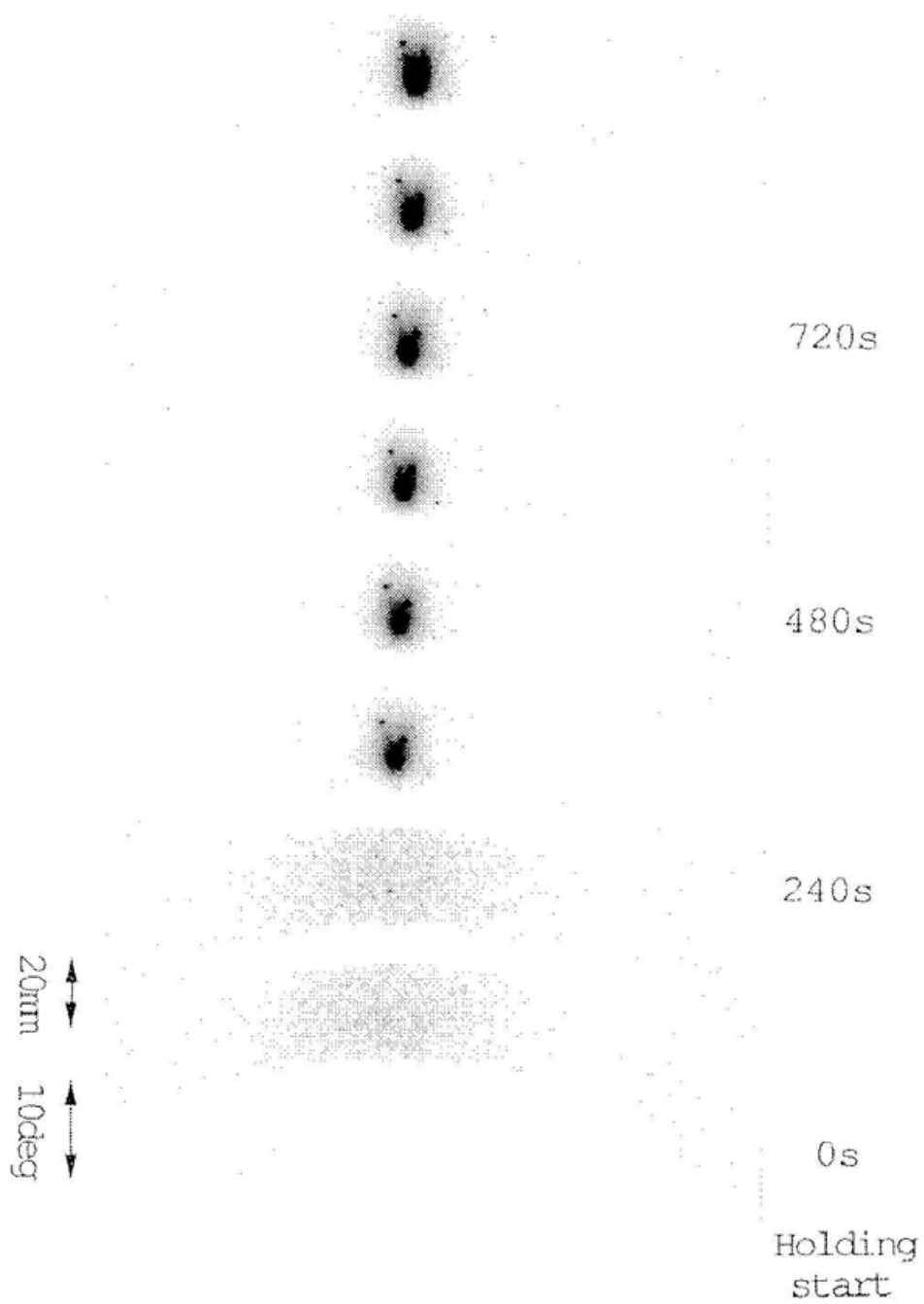


図 3 - 1 7 極点図動的測定法による電磁鋼板の高温再結晶過程での結晶方位分布の連続測定（北極近傍の例 1）

図 3 - 1 6 の明度段階を明るく変えて再表示.

は鋭いピークとなる。図3-17には図3-16の明度段階を明るく変えて再表示したが結晶方位分布の集中が鋭いピークとなっていることが確認できる。図3-18に同様な測定例を示す。この例では3個のピークが認められるが、パターンを中心に近いピークが鋭く出現している。

赤道近傍の結晶方位分布の連続測定例を図3-19および図3-20に示す。最初のパターンは集積の見られない結晶方位分布を呈しているが、これは高温加熱前の極点図（図3-13（b））上の結晶方位分布と対応している。図3-19ではやはり240sで爆発的な鋭いピークが出現している。図3-20では120sのパターンでピークの成長が開始しているがやはり240sでピークが急激に増大する。

このように極点図動的測定法による電磁鋼板の高温再結晶過程での結晶方位分布の連続測定結果では最初の2個のパターンでは加熱前の極点図と同じ結晶方位分布を示し何の変化も起きていないように見える例が多い。この期間は潜伏期間と呼ぶことができるが、このような潜伏期間を経て爆発的な鋭いピークの出現が観察された。

3. 3. 2. 3 ゆらぎとピーク出現過程

上記した結晶方位分布の連続測定結果では潜伏期間が観察されたが、この期間での現象を詳細に調べるために拡大観察を行った。この実験では外部ノイズを低減しS/N比を改善するために板厚0.10~0.12mmとなるように片面から化学研磨した試験片を用いた。また等温保持時間を360sで打ち切り観察直後の組織の保存を行った。図3-21に極点図動的測定法による高温加熱時の電磁鋼板の結晶方位分布の北極近傍の連続記録を8倍に拡大して示す。この方法によれば外部ノイズをほとんど除去し微少なスポットの変化が追跡可能である。

・ゆらぎ

図3-21において0s, 120sは潜伏期間に相当する。結晶粒を表すスポットは水平方向に伸びて見えるがこれは回折ビームが水平方向に発散しているためである。これらスポットを0s, 120s相互に比較して、スポットが大きかつ黒化度が強くなっているもの数点を120sのパターンで

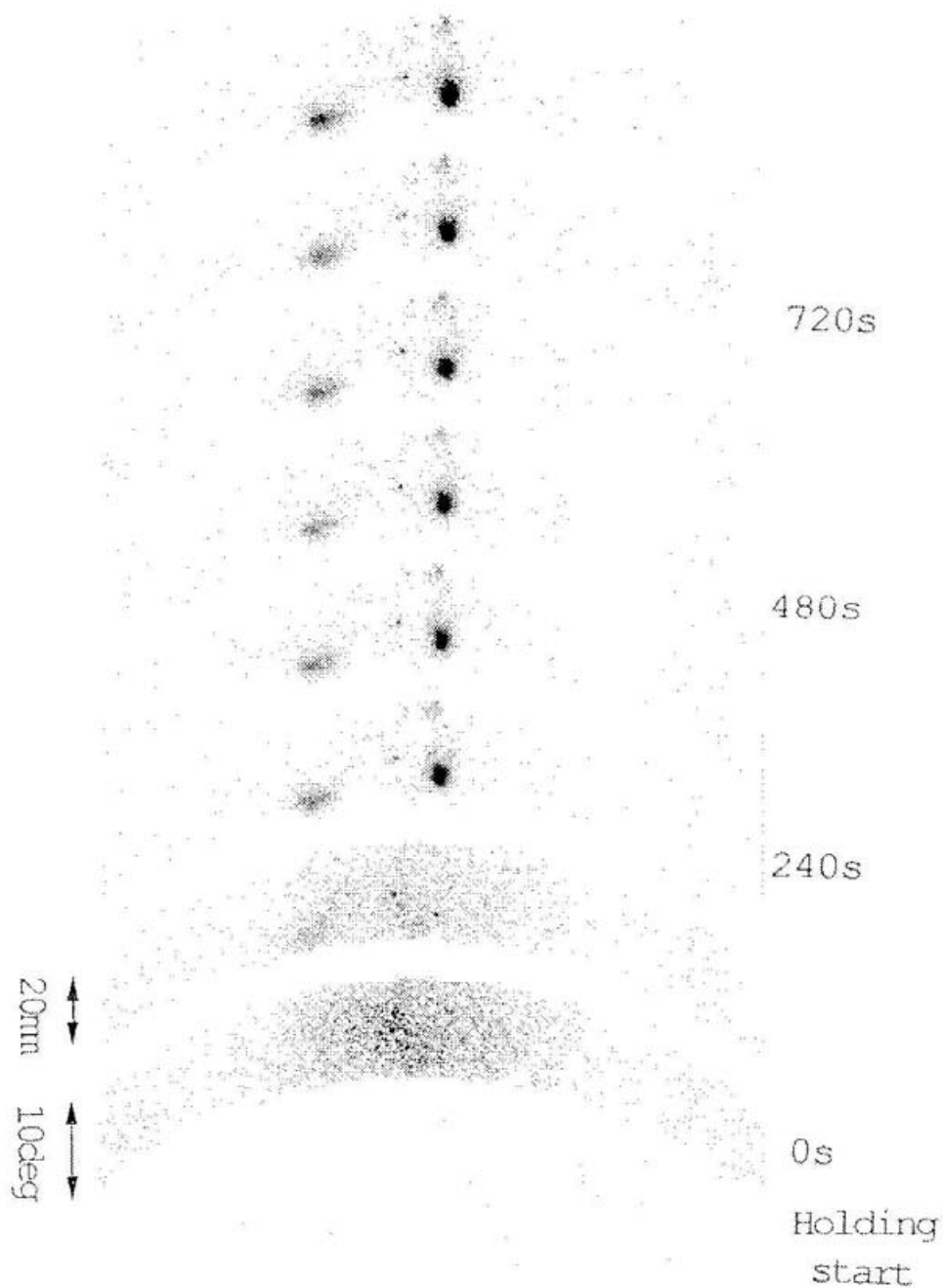


図 3-18 極点図動的測定法による電磁鋼板の高温再結晶過程での結晶方位分布の連続測定（北極近傍の例 2）
 200 極点の分布の時間変化を示す。1 個のパターンの記録に 40 s を要す。測定周期は 120 s。

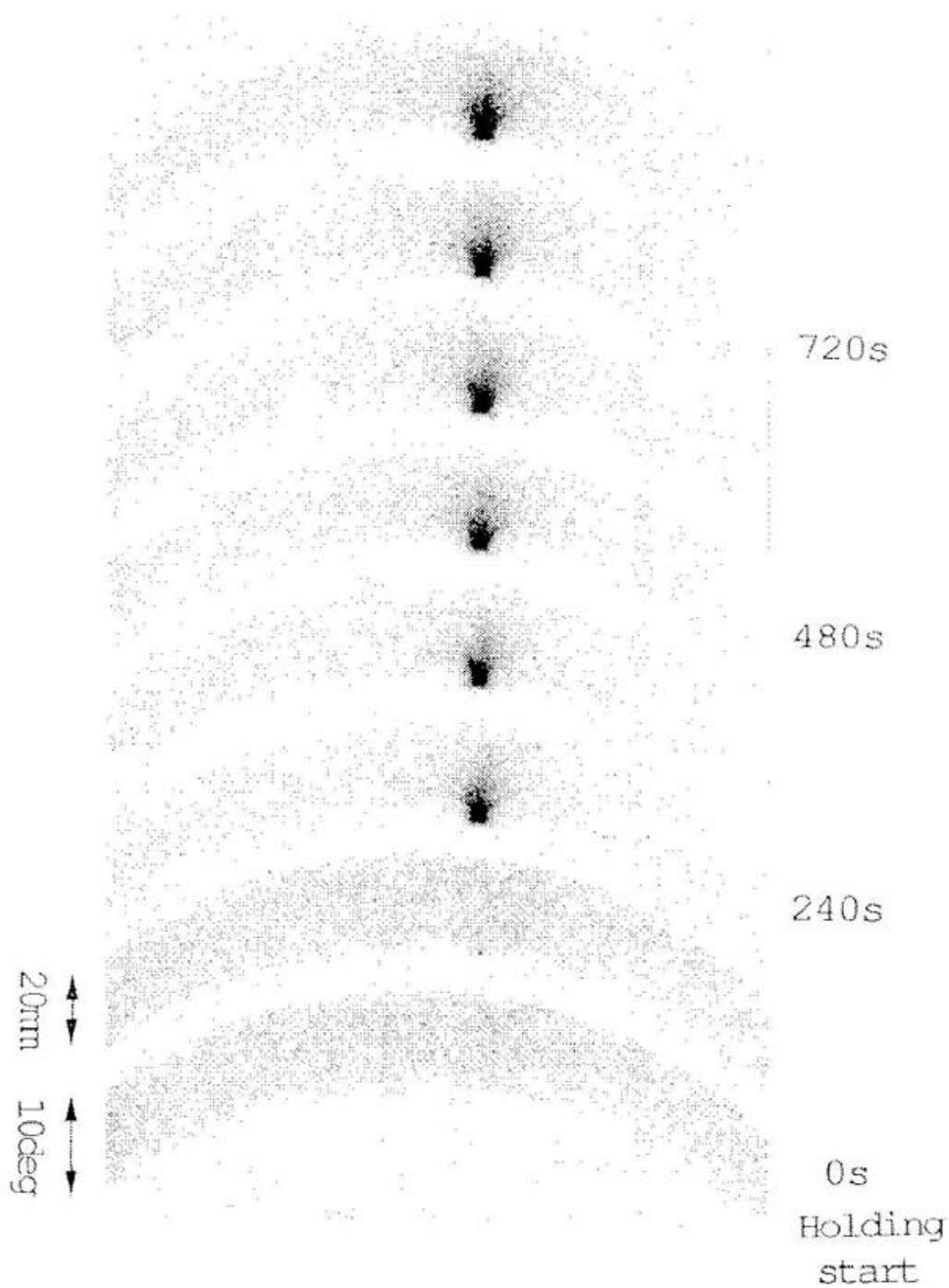


図3-19 極点図動的測定法による電磁鋼板の高温再結晶過程での結晶方位分布の連続測定（赤道近傍の例1）
 200極点の分布の時間変化を示す。1個のパターンの記録に40sを要す。測定周期は120s。

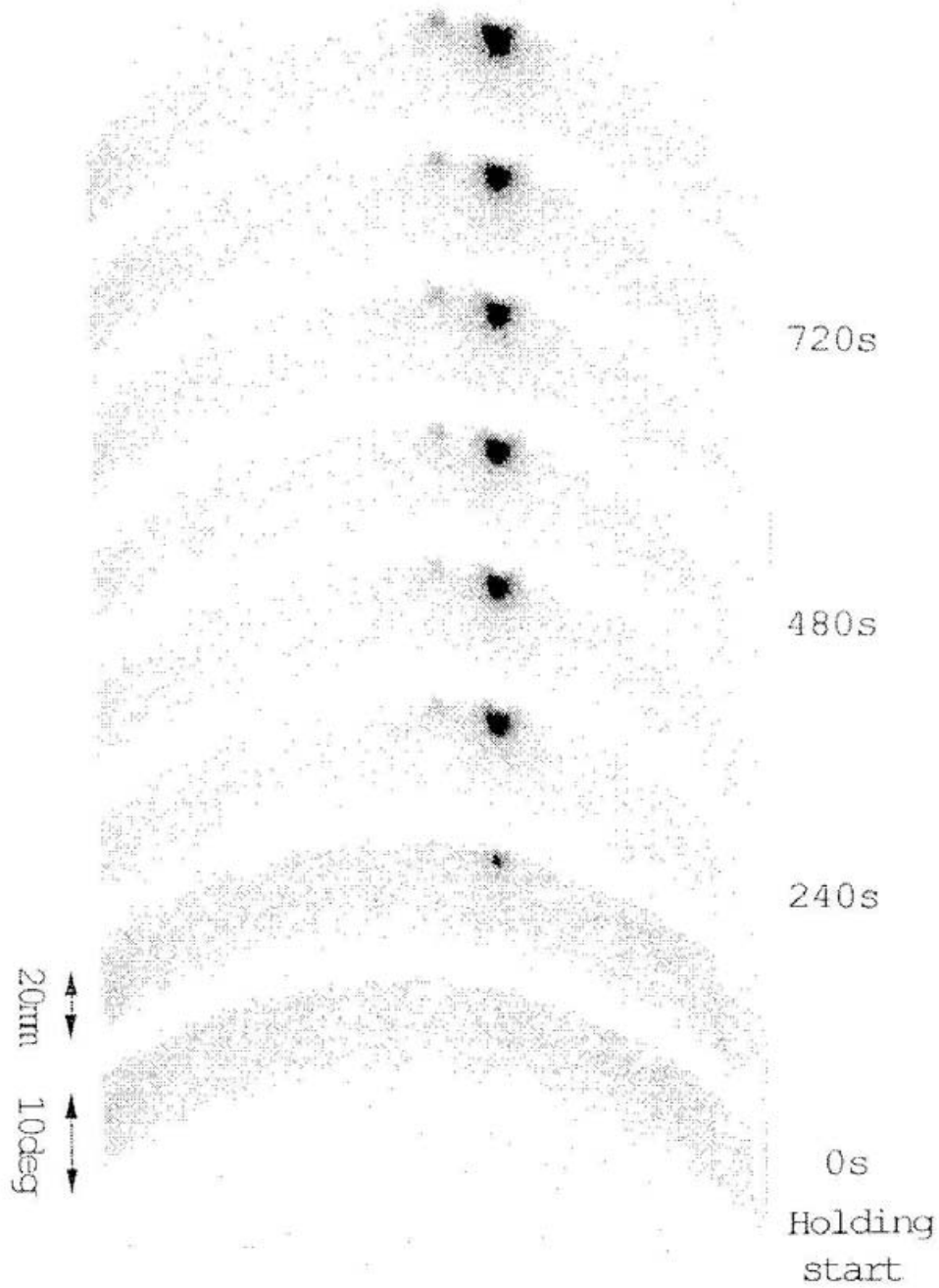


図 3-20 極点図動的測定法による電磁鋼板の高温再結晶過程での結晶方位分布の連続測定（赤道近傍の例 2）
 200 極点の分布の時間変化を示す。1 個のパターンの記録に 40 s を要す。測定周期は 120 s。

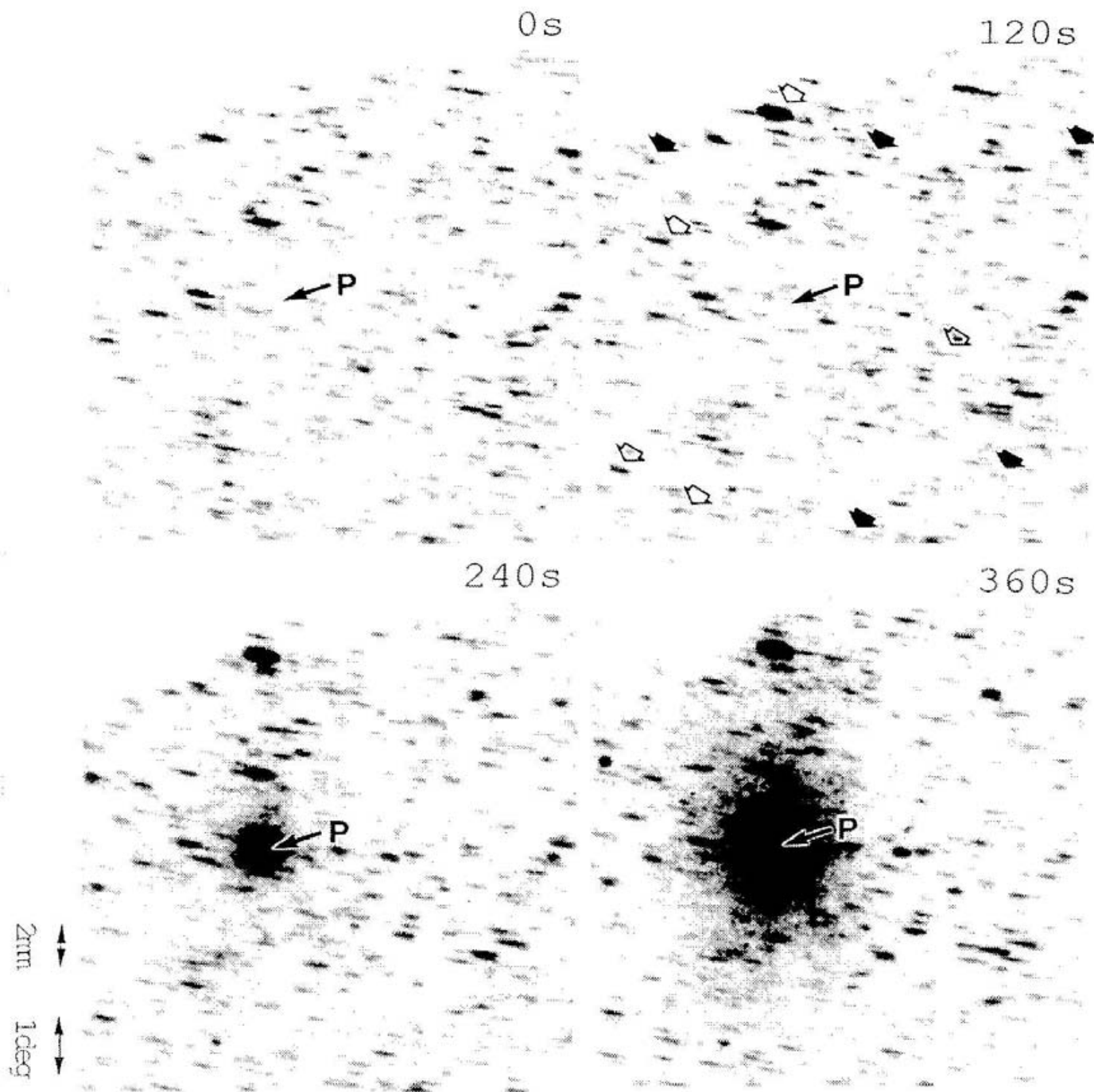


図3-21 極点図動的測定法による電磁鋼板の高温再結晶過程での結晶方位分布の連続測定（拡大観察の例1）

200極点の分布を8倍に拡大して示す。

open矢印：大きくかつ黒化度が強くなっているスポット。

黒矢印：小さくかつ黒化度が弱くなっているスポット。

“P”マーク：ピークの結晶方位位置。

open矢印（線のみで中はopen）で示した。なかには全く新たに出現したように観察されるスポットもある。反対にスポットが小さくかつ黒化度が弱くなっているもの数点を黒矢印で示した。このようにスポットのゆらぎが観察された。

黒化度はフォトン数と対応しており、スポットの寸法の増大と黒化度の増加はスポットの積分強度の増大を意味している。スポットの積分強度は結晶粒の総回折強度即ち結晶粒の総体積と対応している。スポットの積分強度のゆらぎは結晶粒の総体積のゆらぎを意味している。このようなスポットのゆらぎは全ての観察例において認められる。図3-22に同様な拡大観察の例を示す。120sのパターンにおいて左上の黒矢印は0sで観察されたスポットが消滅した例を示す。

ゆらぎが外乱に起因するものでないことを確認するため高温加熱前の試料の結晶方位分布の常温での記録を繰り返しゆらぎの有無を調べた。図3-23に北極近傍の方位集積位置付近の2回の記録を8倍に拡大して示す。両者は全く一致しておりイメージングプレートの撮影、読み取りなどの外乱に起因するゆらぎは存在しないことを確認した。

・ピーク出現過程

図3-21において0sから360sへと見ていくと、結晶方位分布の集中化即ちピーク出現過程が認められるが、これは新たな粒の出現と対応している。逆に360sから0sへと時間を遡れば、新たな粒の生成過程を究明することができる。図3-21において240s、360sで認められるピークの結晶方位位置を“P”とマークしたが、0s、120sの図で観察すると、明確なスポットはみとめられない。平均粒径以下の微細粒に対応したスポットが存在する可能性は捨てきれないがゴス方位粒の核としての大きな粒に対応するようなスポットは確認できない。図3-22にも同様な観察結果が示されている。120sでは既に平均寸法以上のスポットに成長しているが、0sでは微細なスポットが存在しているだけでゴス方位粒の核としての大きな粒に対応するようなスポットは確認できない。多数の観察例でこの事実は確認した。

観察視野の外に粒が発生し、成長に伴いスポットが視野内に現れることも

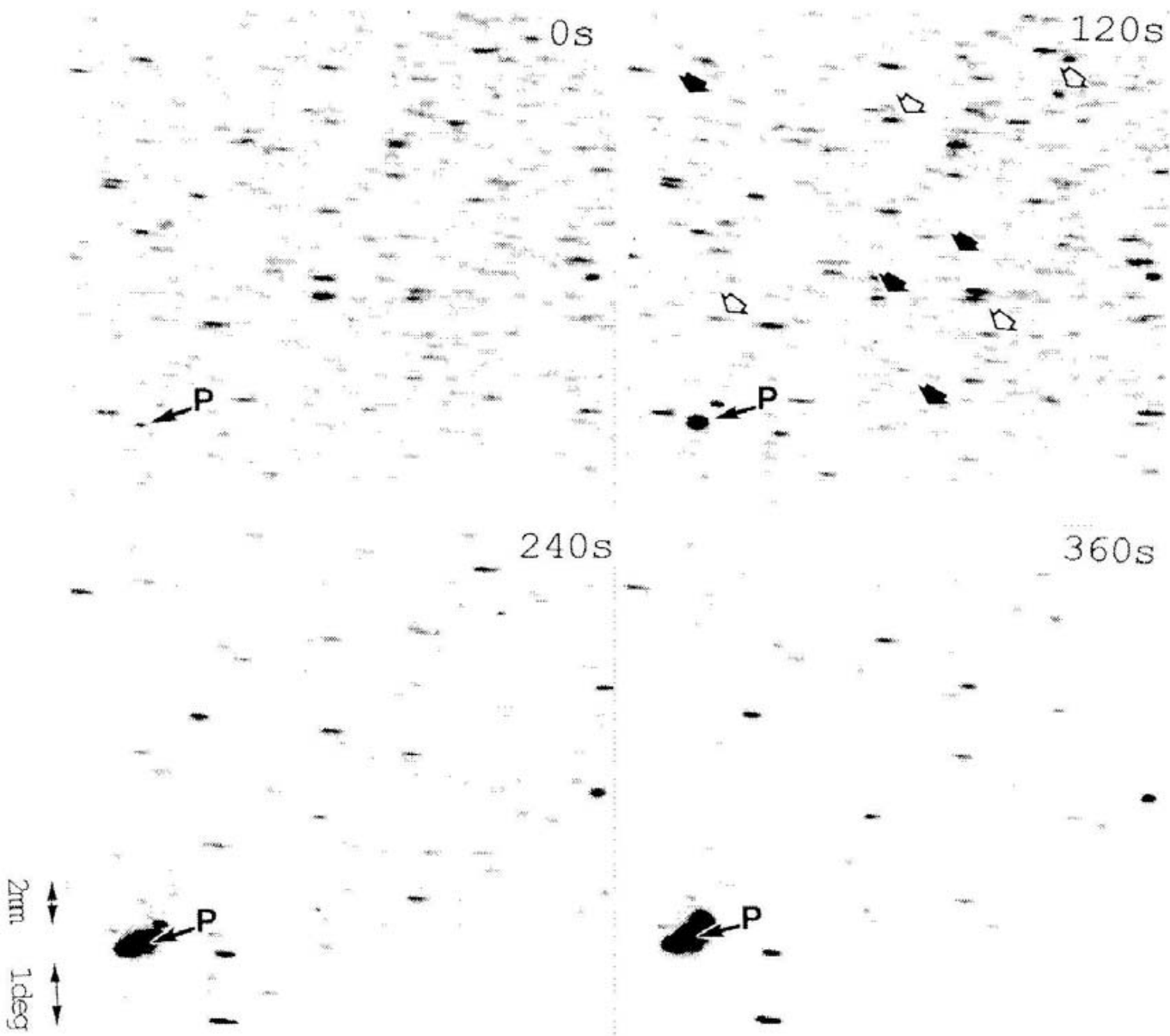


図3-22 極点図動的測定法による電磁鋼板の高温再結晶過程での結晶方位分布の連続測定（拡大観察の例2）

200極点の分布を8倍に拡大して示す。

open矢印：大きくかつ黒化度が強くなっているスポット。

黒矢印：小さくかつ黒化度が弱くなっているスポット。

“P”マーク：ピークの結晶方位位置。

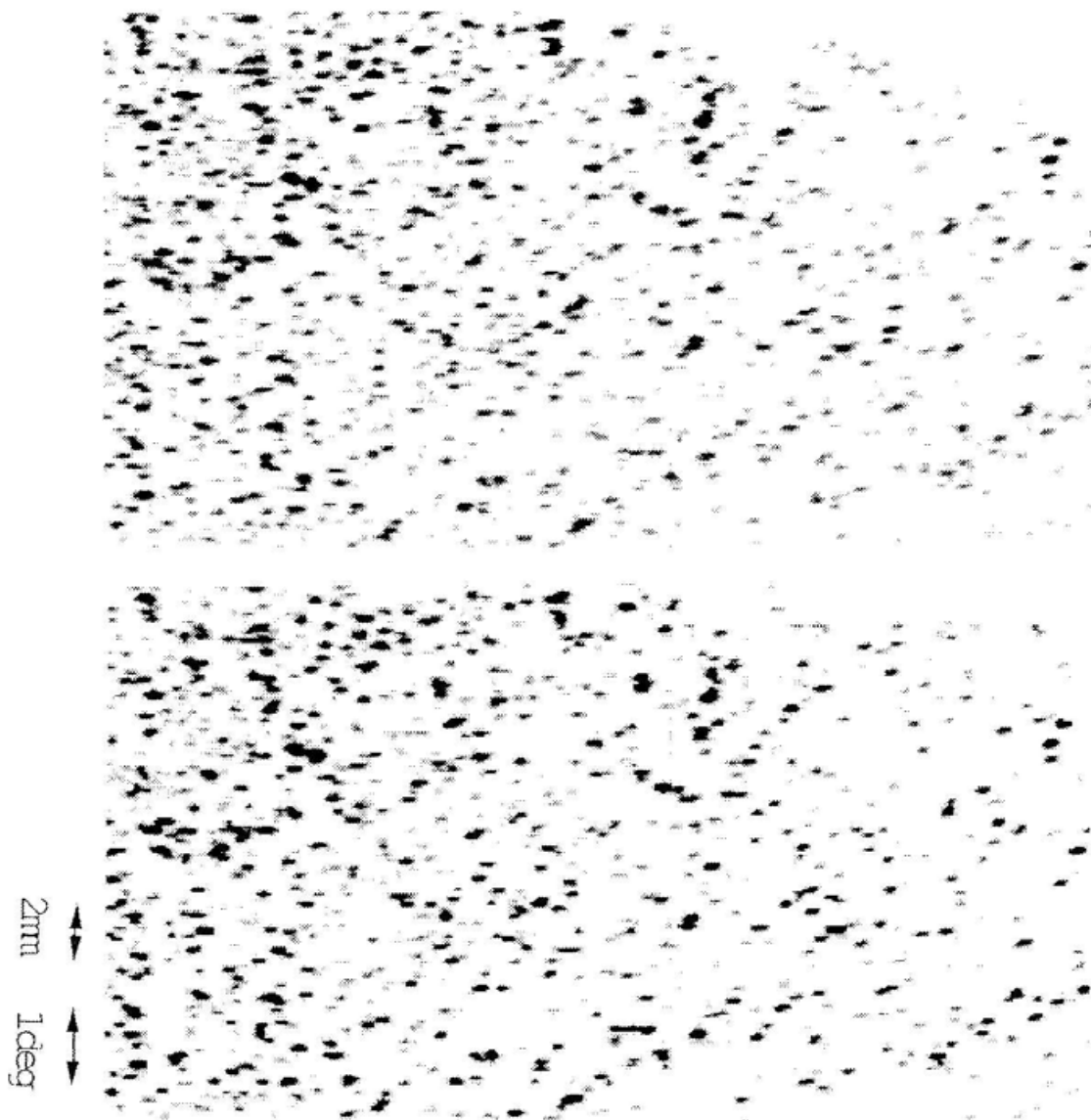


図 3 - 2 3 電磁鋼板の高温加熱前の結晶方位分布の記録
 200極点の分布を常温で2回記録し，8倍に拡大して示す。

考えられる。この点を検討するため加熱冷却後に金属組織の観察を行ったが、観察視野内で粒が発生したことがほとんどの場合で確認され、新たなスポットの出現した結晶方位位置には明確なスポットはみとめられない事実は確実である。なお図3-21, 図3-22は観察視野内で粒が発生したことが確実なケースである。

3. 3. 2. 4 引張歪の附加

チャック移動速度は0.1, 0.3および $1\mu\text{m}/\text{s}$ としたが、0.1および $0.3\mu\text{m}/\text{s}$ (歪速度 $10^{-6}\text{1}/\text{s}$ オーダー)では引張歪の無附加と全く同一の結果であった。 $1\mu\text{m}/\text{s}$ (歪速度 $10^{-5}\text{1}/\text{s}$ オーダー)では明瞭な効果が現れたので実験はこの $1\mu\text{m}/\text{s}$ で行った。試験片の長手方向に関してはRD, TD, RDとTDの中間方向を実験したが結果に差異は見られなかった。

図3-24に引張歪附加時の電磁鋼板の高温再結晶過程での結晶方位分布の連続測定を示す。これは赤道近傍の例である。図3-25に北極近傍の例を示す。両者ともに引張歪が附加されている間は結晶方位分布のピークの爆発的出現が抑制されていることが認められる。引張歪の附加の中止とともに結晶方位分布のピークが出現する。

1233Kに到達後600sおよび1000sまでの歪附加も行ったが、やはり引張歪が附加されている間は結晶方位分布のピークの爆発的出現が抑制された。

3. 3. 2. 5 ピークの強度の変化

高温再結晶過程での結晶方位分布の連続測定において出現した鋭いピークの積分強度の時間に伴う変化を求め図3-26に示す。引張歪附加の有無で区別し示す。破線で表示した部分は結晶粒が観察視野を越えて成長した領域で4章で述べる結果を参考にして示した。ピーク積分強度は結晶方位分布領域での結晶粒の総体積に相当する。4章で述べるトポグラフィによる観察結果を合わせて検討すると、このピークはゴス方位粒((110)[001]方位粒)1個に対応していることが理解される。従って本図を含め本章においてゴス方

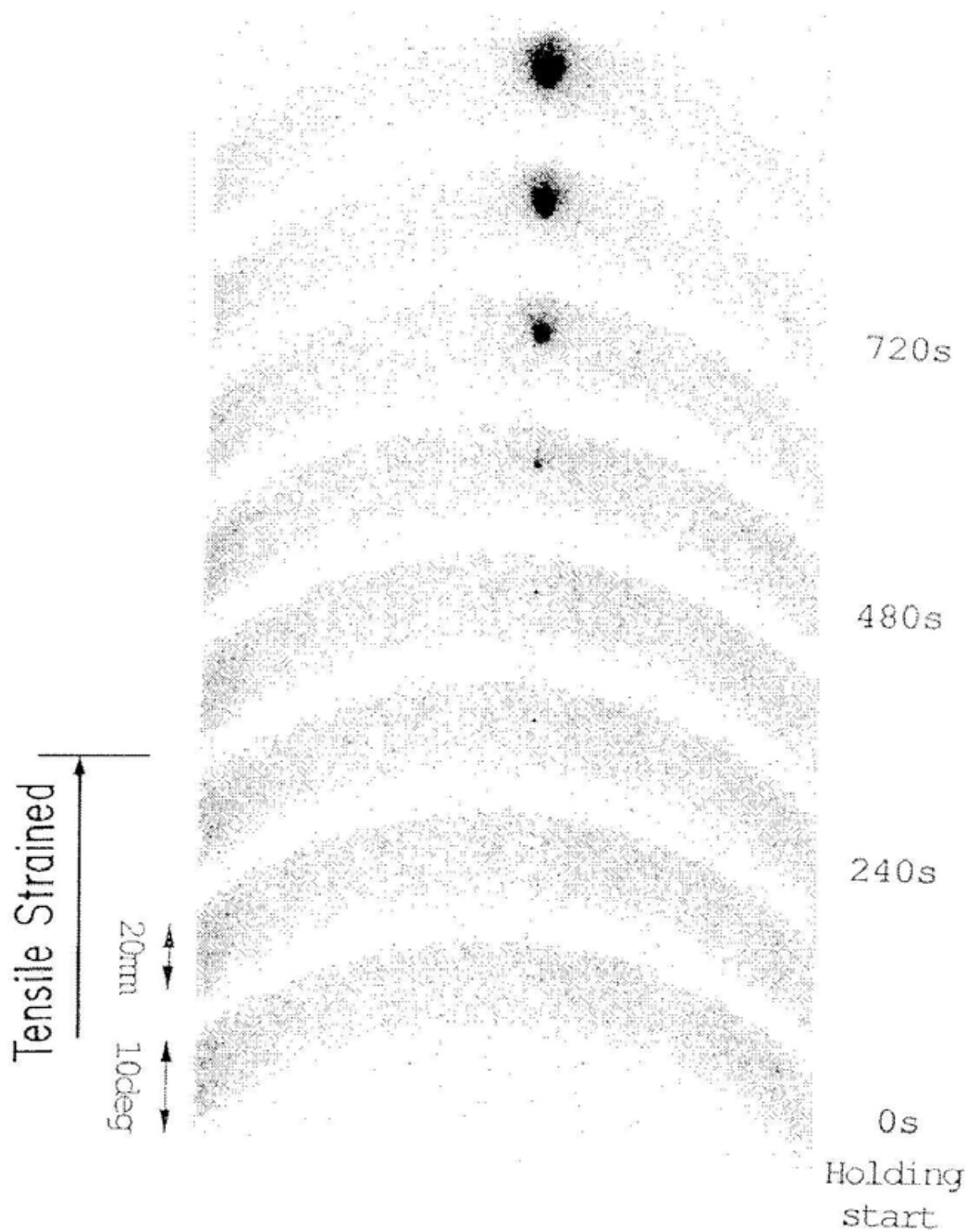


図 3 - 2 4 引張歪追加時の電磁鋼板の高温再結晶過程での
 結晶方位分布の連続測定（赤道近傍の例）
 200 極点の分布の時間変化を示す。1 個のパターンの記録
 に 40 s を要す。測定周期は 120 s。

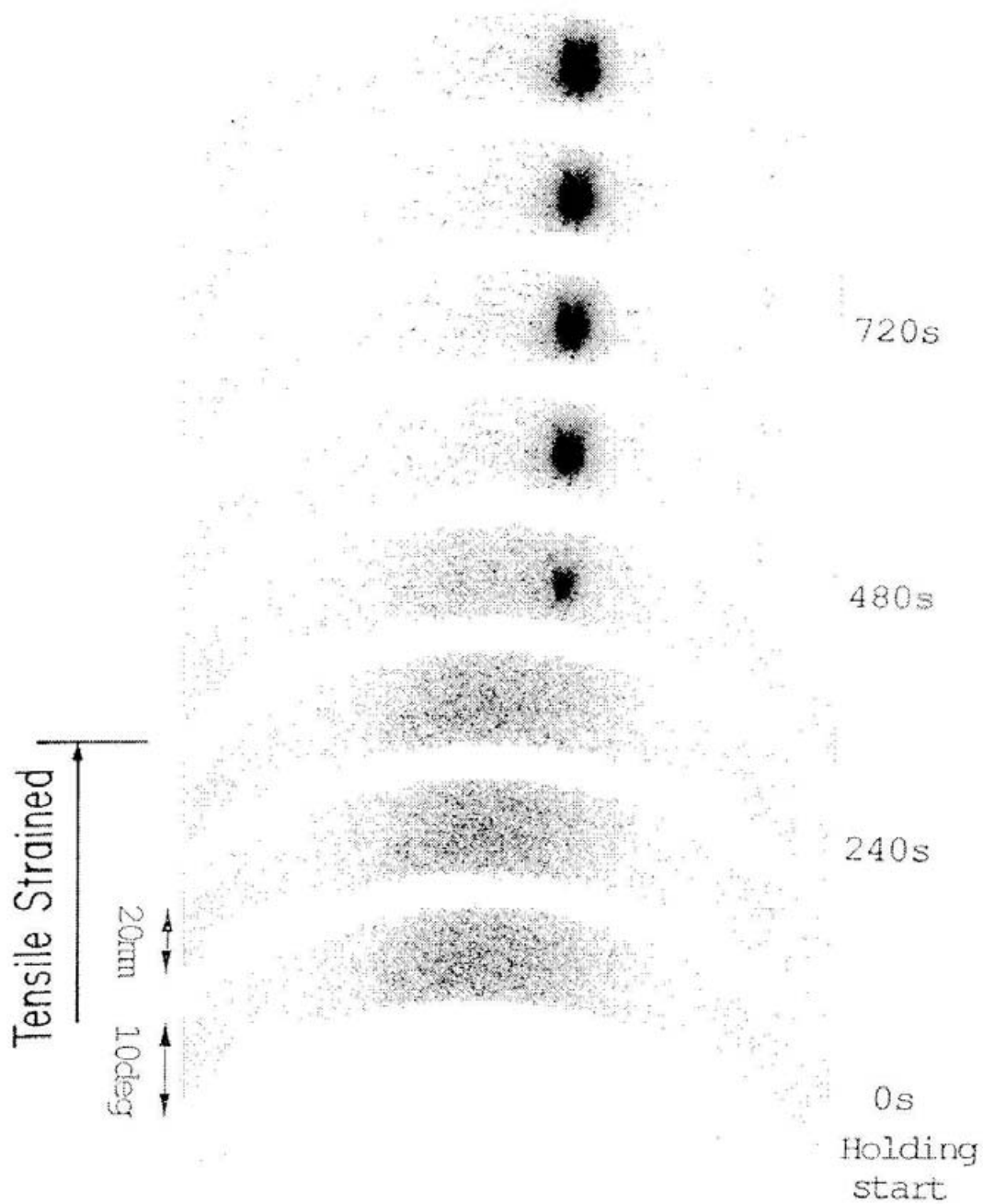


図 3-25 引張歪附加時の電磁鋼板の高温再結晶過程での結晶方位分布の連続測定（北極近傍の例）
 200 極点の分布の時間変化を示す。1 個のパターンの記録に 40 s を要す。測定周期は 120 s。

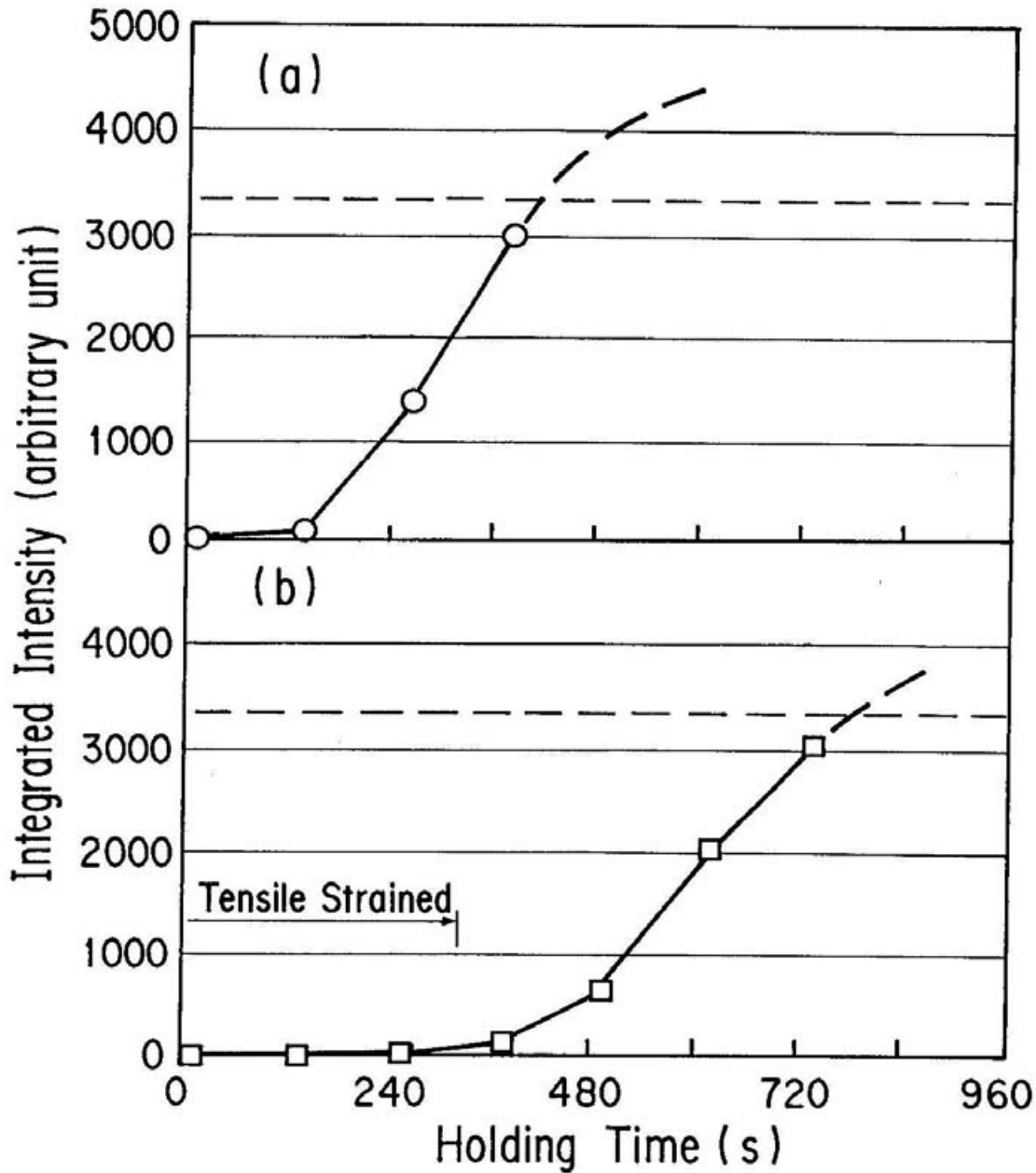


図 3-26 高温再結晶過程での結晶方位分布の連続測定におけるピークの積分強度の時間変化

(a) 引張歪附加無, (b) 引張歪附加有.

破線は結晶粒が観察視野を越えて成長した領域で4章で述べる結果を参考にして示した.

水平の破線は観察視野の上限に対応する積分強度を示す.

位粒の潜伏期間の存在，爆発的成長および引張歪による抑制効果が明確に示されたと言える。

3. 4 結 言

放射光ビームの高輝度性を利用し，新たに開発したX線四軸回折計と高感度二次元検出器イメージングプレートを組み合わせることにより高温における金属材料の再結晶過程に伴う結晶方位分布の高速変化を測定するための方法〔極点図動的測定法〕を新たに開発した．実用材料である電磁鋼板の実際の製造工程と同じ条件下での高温再結晶過程の動的観察を可能にした．

従来観察されなかった電磁鋼板の結晶方位分布の連続変化を観察し以下のような知見を得た．

(1) 1233 Kに加熱直後から著しい再結晶が観察されるまでの潜伏期間の存在を確認した．

(2) 潜伏期間では結晶粒が生滅する“ゆらぎ現象”が存在することを確認した．

(3) 潜伏期間を経て結晶方位分布のピークの爆発的出現を観察したが，これはゴス方位粒（(110)[001]方位粒）が爆発的に成長していく様子と対応している．

(4) 試料に引張歪を加えるとゴス方位粒の成長が抑制される．ゴス方位粒の成長は歪敏感な過程であることが判明した．

第4章 放射光動的ラウエトポグラフィ

4. 1 緒 言

前章ではX線回折法を二次元に拡張した〔極点図動的測定法〕の開発と、電磁鋼板の高温再結晶過程への応用について述べ、従来知られていなかった結晶方位分布の連続変化を捉え、高温再結晶過程が緩漫に進行する現象ではなく、潜伏期間を経て爆発的に起きる様子を明らかにした。

これに対しX線トポグラフィによれば粒の大きさ、形などの変化を把握し、豊富な空間情報を得ることができる。本章では高温加熱炉と間接型X線TVカメラを組み合わせ、ラウエパターン全体を低倍率で観察するX線TV動的観察方法としての〔放射光動的ラウエトポグラフィ〕について述べ、高温再結晶過程の観察結果を示す。

4. 2 放射光動的ラウエトポグラフィ

4. 2. 1 放射光動的トポグラフィ

放射光は白色光のままでも相当程度の平行性を有しており、X線トポグラフィが可能である。板状の薄い試料においてはX線回折ビームの結晶上の位置とフィルム上の位置の対応は良好で、結晶粒の形状そのものがフィルムに投影される。すなわち結晶の境界すなわち粒界はフィルム上に地形学的に投影され、フィルム上で粒の大きさ、形を検出する。

放射光はまた高輝度性という特徴も備えておりフィルム撮影での露光時間は短く、X線TVによる動的観察が可能となる。放射光を用いた白色X線トポグラフィによる粒成長過程の動的観察については1. 4で述べたように数例の報告が見られるが、正常粒成長などの緩漫な過程の観察が対象となっており、高温再結晶のような10min程度の速い過程についてはまだ研究されていない。特に電磁鋼板においては製造工程の中でも高温再結晶過程は極めて重要な過程であるが、高温加熱下で速く進行するためその動的観察は困

難とみなされていた。

4. 2. 2 放射光動的ラウエトポグラフィ

動的観察用高温加熱炉と間接型X線TVを用いた方法について述べる。高エネルギー物理学研究所放射光実験施設の実験ステーションBL-15Bにおいて方法の検討を行った。

1) 装置

BL-15Bに設置されている高速X線トポグラフィ装置²¹⁾および間接型X線TVカメラ(蛍光膜方式)²²⁾に、新たに開発した高温加熱炉を組合せ低倍率(1~2倍)でラウエパターン全体とスポット形状を観察した。図4-1に実験装置の写真を示す。パイプの中を放射光が通り、加熱炉中の試料に入射される。試料をセットした加熱炉を精密試料走査ステージに搭載し、さらに高速X線トポグラフィ装置のゴニオメーターヘッドに載せる。ラウエパターンは加熱炉の後方の蛍光膜に生じ、X線TVでとらえられる。X線TVは高速X線トポグラフィ装置の巨大なアークに取り付ける。

図4-2に放射光動的ラウエトポグラフィの実験系の模式図を示す。発光点から38mの当実験ステーションでは垂直方向6mm、水平方向50mm以上の矩形の平行ビームが得られるが、4象限スリットおよび回転式の円形スリットにより正方形4mm x 4mmに制限し試料に垂直に入射させる。

間接型X線TVカメラは蛍光膜と可視光用超高感度TVカメラとから成る。回折X線を蛍光膜により可視光に変換し、可視光用超高感度TVカメラで検出した画像信号をイメージプロセッサによりオンラインで画像平均化処理および画像強調処理を行い、CRTで監視しながらU-maticビデオテープに録画する。

2) 検討した事項

・空間分解能、感度の改善

空間分解能、感度の改善のためには蛍光膜がポイントとなるため、下記の

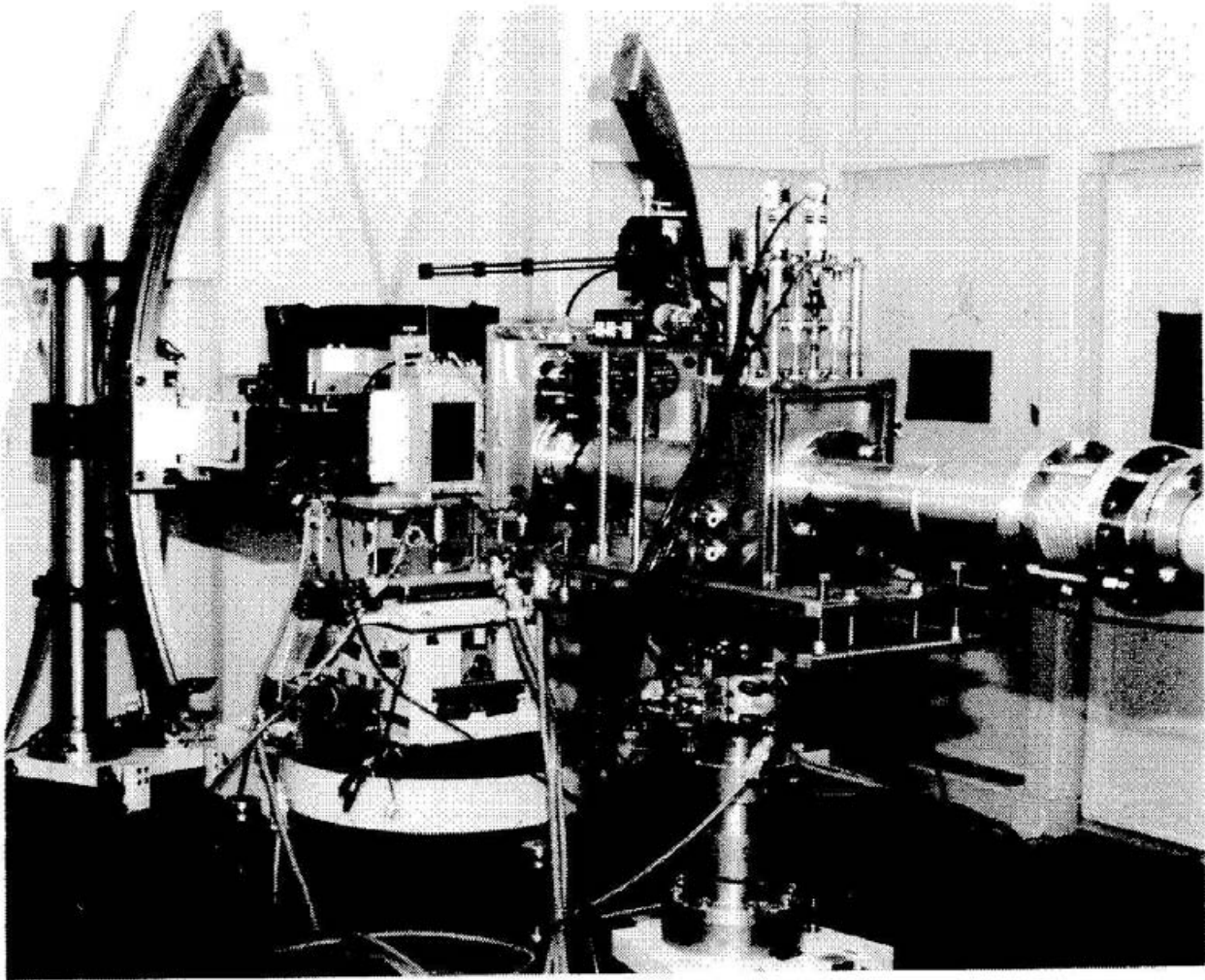


図4-1 放射光動的ラウエトポグラフィの装置の写真

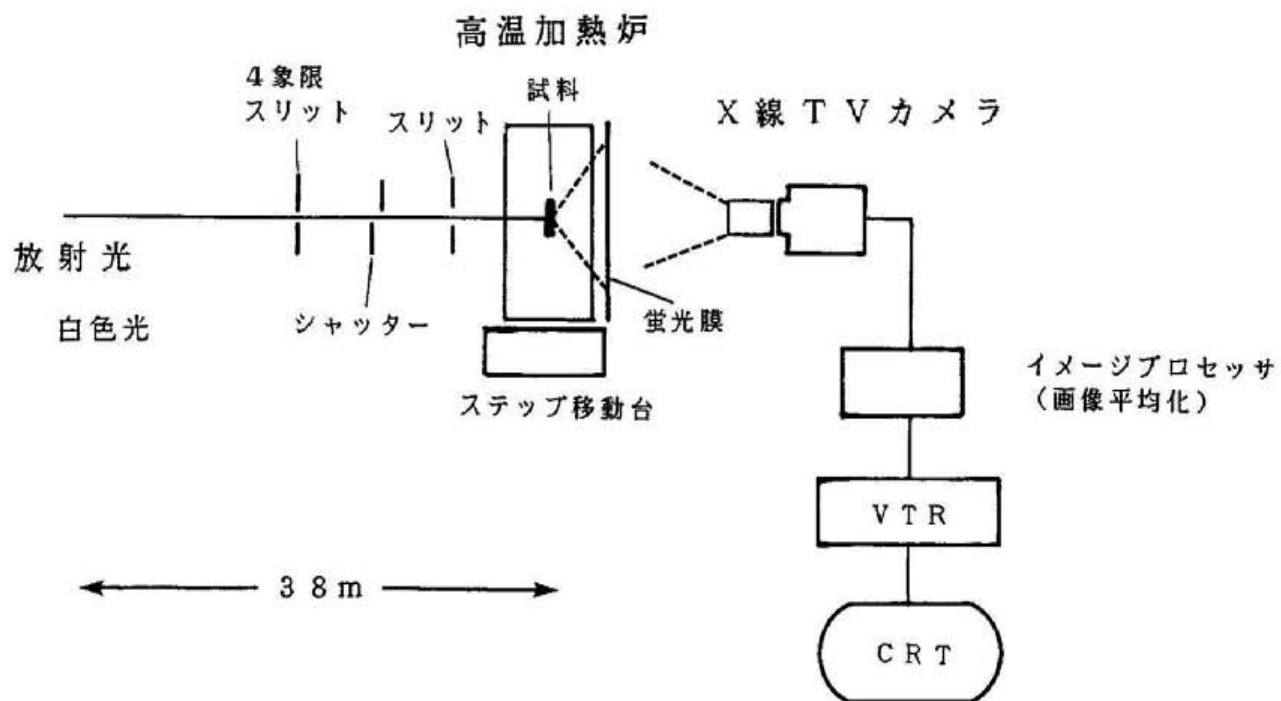


図4-2 放射光動的ラウエトポグラフィの模式図

ように蛍光膜の比較テストを行いG d系の感光剤を使用しかつ感光膜厚が薄いF u j i製品を採用した。

<空間分解能の比較テスト>二次再結晶が完了した試料を加熱炉にセットし高温加熱実験と同様に1 2 3 3 Kに等温保持し、一辺が0. 1 ~ 0. 5 m mの正方形ビームを入射させて間接型X線TVによる検出可能最小寸法を調査した。形状の変形の小さい中心近傍のスポットで調べたが、採用品では0. 1 5 m mが検出下限で最も小さかった。従って粒径が0. 1 5 m m程度に大きくなれば確認できるが、このことは二次再結晶核化直後の粒が確認しうると考えられる。

<輝度の比較テスト> X線TVのCRT上での輝度を目視で比較した結果採用品が最も輝度が高かった。

・ X線TV画像上のスポットサイズによる試料上の回折ビームサイズの算定
上記空間分解能の比較テストと同一の方法により一辺が0. 1 ~ 4 m mの正方形ビームを用いて試料上のビームサイズとCRT上のスポットサイズとの比較を行った。CRT上では蛍光膜上のスポットを2倍に拡大して観察しているが、両者の対応は良好であり、CRT上のスポットの寸法から試料上のビームサイズを算定することにした。算定の誤差は試料上で±0. 1 m mである。

・ 蛍光膜の観察視野の拡大

蛍光膜の観察視野を従来の2 m m × 1. 5 m mを2 0 0 m m × 1 5 0 m mへと拡大した。観察倍率は1 0 0倍から2倍へ減少させた。蛍光膜の位置を近づけ、試料から5 0 m mの加熱炉直後に固定保持した。

・ バックグラウンド低減

バックグラウンド低減のため加熱炉前において照射筒および小さな4象限スリットを設置した。また加熱炉内部の入射窓と試料の間にステンレス鋼板(1 m m厚)からなる遮蔽板を設置した。

・二次再結晶粒の粒方位解析

二次再結晶粒の正確な方位解析のためラウエパターン計算表示法²³⁾を利用したフィッティング法を作成した。試料冷却後にポラロイドフィルムでラウエ写真を撮影し方位解析を行った。

4. 3 高温再結晶過程の動的観察

4. 3. 1 実験方法

図4-3に加熱炉とX線TVカメラを含む模式図を示す。白色ビームを高温加熱炉中の試料に正方形4 x 4 mmに制限し垂直に入射させた。加熱炉直後の試料から50 mmの位置に入射ビームに垂直に蛍光膜を保持した。蛍光膜の感光面をX線TV側とし、蛍光膜面に生じたラウエパターンをX線TVでとらえた。試料をはさむセラミックス薄板としてはアルミナ板を使用した。

試料の製作方法については3. 3. 1. 1で述べたが、板厚0. 2 mmの試験片を使用した。加熱方法も3. 3. 1. 2に示した方法と同一である。光源は白色X線で2. 5 GeV, 350~170 mAである。ビームラインでのベリリウム窓計0. 9 mm厚を透過した連続スペクトル放射光を線源として用いた。透過ラウエスポットの観察波長は $\lambda = 0. 03 \sim 0. 07$ nmで、試料の μt は板厚0. 2 mmでほぼ0. 6~5. 6である。

結晶粒の成長にともない粒が観察視野から超える場合は精密試料走査ステージにより試料を移動し追跡を行った。イメージプロセッサにより10画面を平均化処理した。時間分解能は0. 33 sである。引張歪の附加は3章に述べた方法と同一である。

4. 3. 2 実験結果

図4-4に電磁鋼板の高温再結晶過程での透過ラウエパターンのX線TVによる連続観察を示す。表示時間は1233 K等温保持開始後の経過時間で

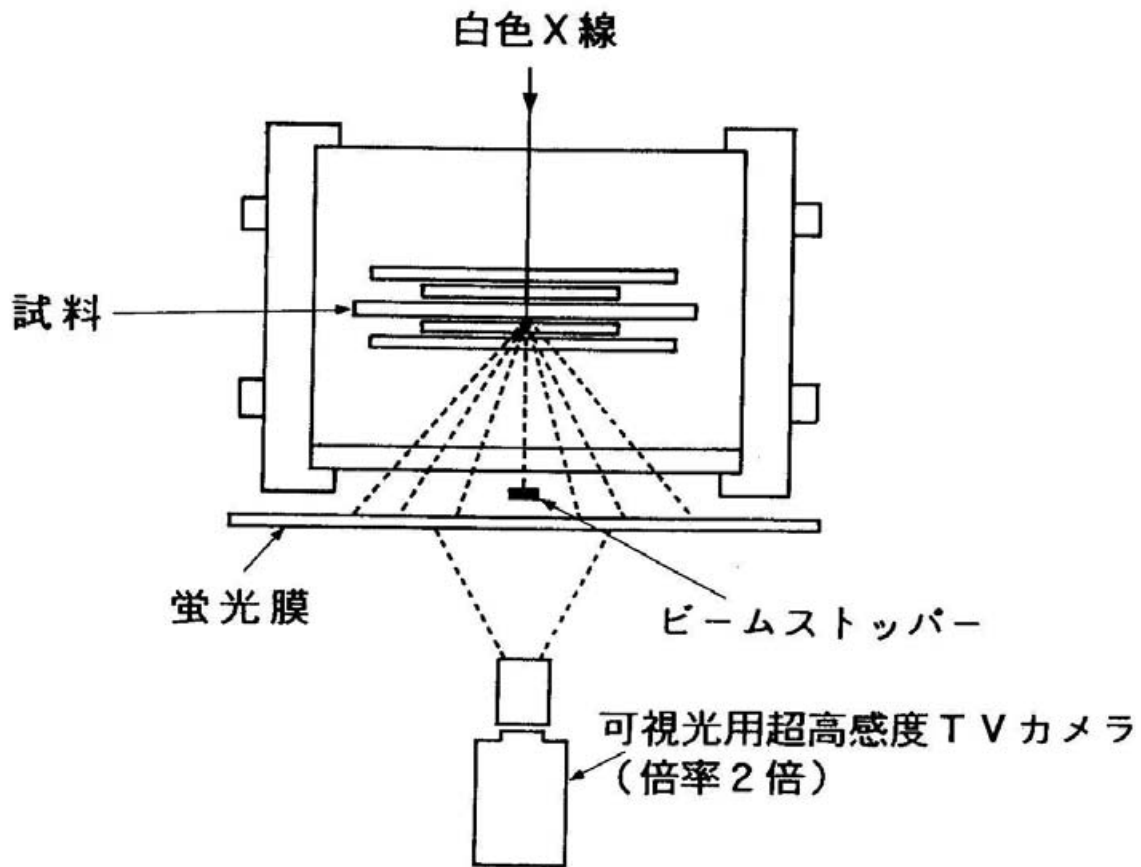


図4-3 放射光動的ラウエトポグラフィの実験装置の模式図
 加熱炉とX線TVカメラの平面模式図。

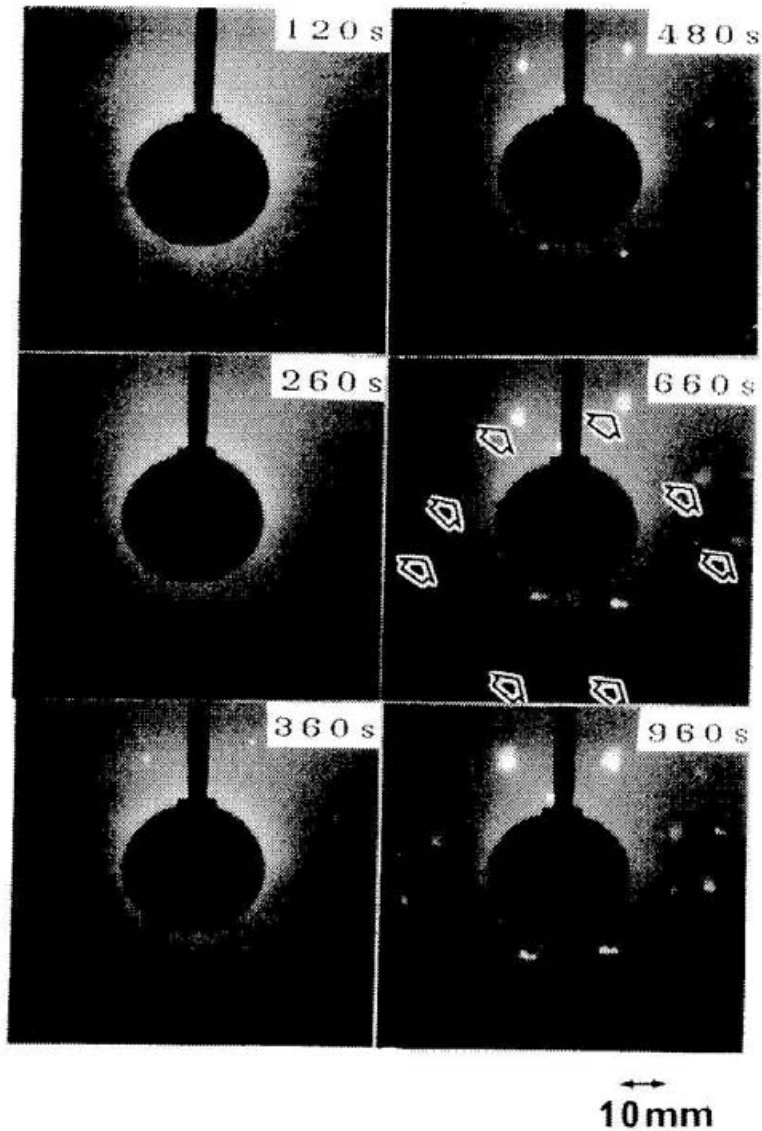


図4-4 放射光動的ラウエトポグラフィによる電磁鋼板の高温再結晶過程での透過ラウエパターンの連続観察(例1)
表示時間は1233K等温保持開始後の経過時間。

ある。図4-4において等温保持当初(120s経過)のピデオ画面には回折スポットは認められない。これは結晶粒が小さく蛍光膜の空間分解能の下限である $150\mu\text{m}$ に達しないためと考えられるが、また潜伏期間内であると推定される。等温保持後260sで初めてラウエスポットが出現する。これらのスポットは順調に増大を続ける。図中に矢印でマークしたようにこれらのスポットは2回対称のパターンを示し、(110)[001]方位(=ゴス方位)の結晶粒からの回折によって生じたものであることが認められる。480sの画面では新しいスポットが出現し、両者は競合して増大していくが、960sの画面ではゴス方位の結晶粒からのスポットが優位を占める。図4-5に他の観察例を示す。

観察画像のスポットの寸法と試料上の寸法との対応関係に基づき結晶粒の形を求めて一定時間毎の表示を作成し、図4-6に示す。これは電磁鋼板の高温再結晶過程での結晶粒の競合成長過程を表している。図中の数字は出現順位を示す。ステレオ三角形は各粒の結晶方位を示す。また結晶粒の形から等価円直径を算定し、その等温保持時間に伴う変化を図4-7に示した。電磁鋼板の高温再結晶過程における粒寸法の増大過程が示されている。No. 1の粒はゴス方位粒であるが、最初の観察視野を越えて大きく成長した。このゴス方位粒の成長速度は直径に換算し約 0.01mm/s と他の方位の粒のおよそ2倍である。

以上の結果をまとめる。高温状態における結晶粒の大きさや形の変化、異なる結晶粒の競合成長過程を観察し、最初に出現するのはゴス方位粒であるが、それに遅れて他の方位の結晶粒が現れる。結晶粒の形は不規則である。ゴス方位粒の成長速度は直径に換算し約 0.01mm/s と他の方位の粒のおよそ2倍である。3章で観察された結晶方位分布の集中化はこのようなゴス方位粒の出現と成長過程に対応する。

図4-8に引張歪附加時の電磁鋼板の高温再結晶過程でのラウエパターンのX線TVによる連続観察結果を示す。図4-9に別の観察例を示す。引張歪を附加した場合はゴス方位粒は他の方位の粒より遅れて出現することが認められるが最終的には最も大きくなる。

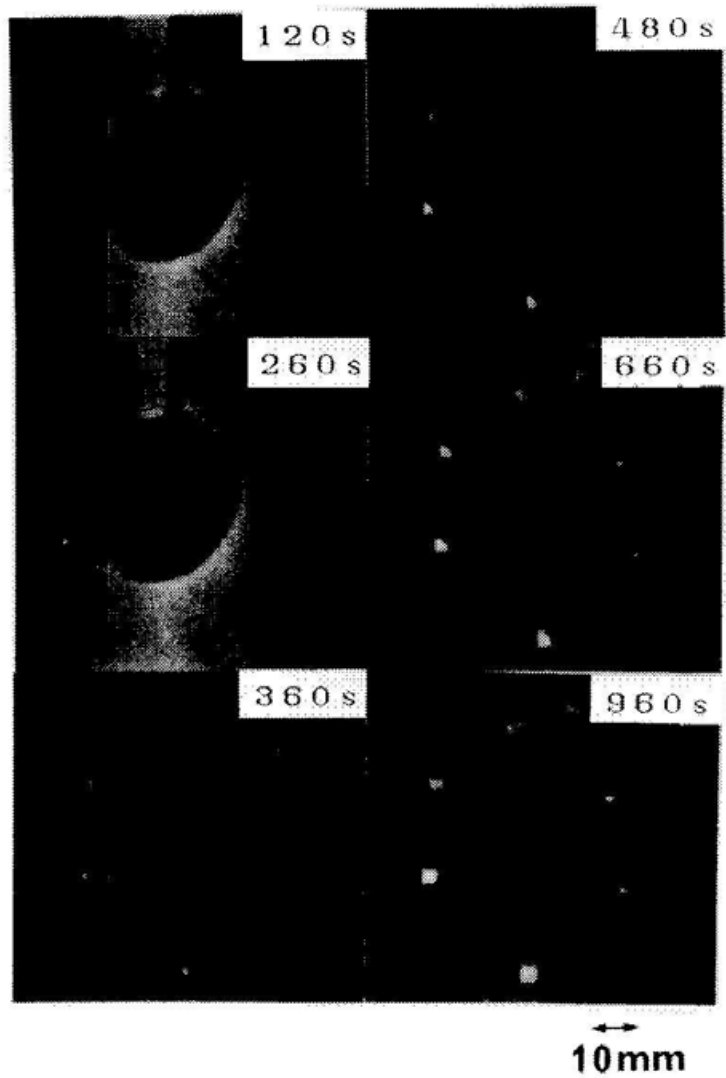


図 4-5 放射光動的ラウエトポグラフィによる電磁鋼板の高温再結晶過程での透過ラウエパターンの連続観察（例 2）
表示時間は 1233 K 等温保持開始後の経過時間。

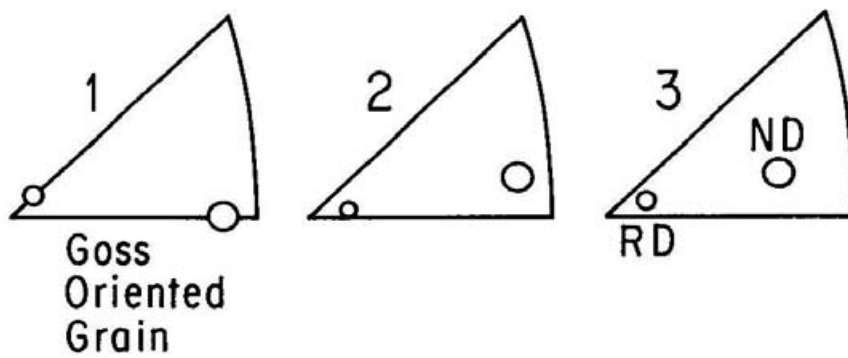
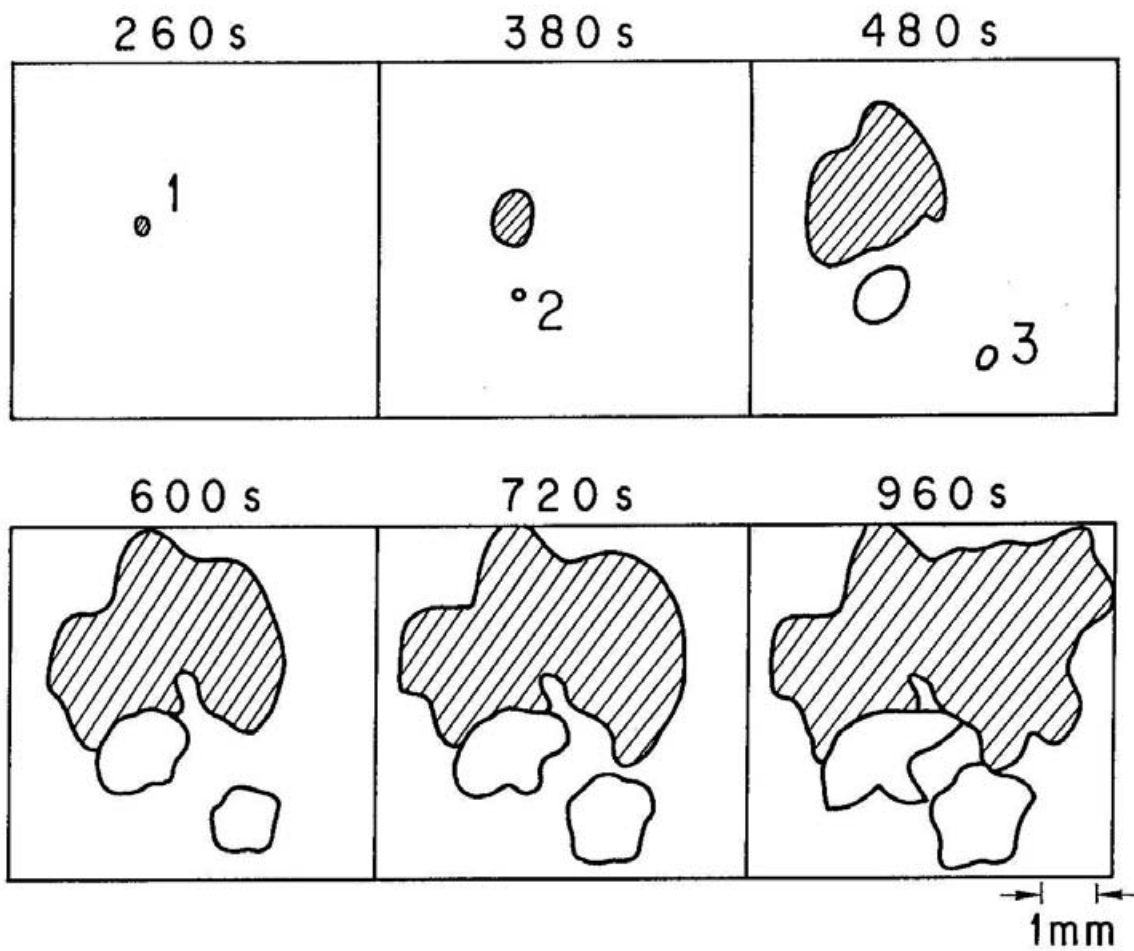


図 4-6 電磁鋼板の高温再結晶過程での結晶粒の競合成長
 数字は結晶粒の出現順位を示す。
 ステレオ三角形は各粒の結晶方位を示す。

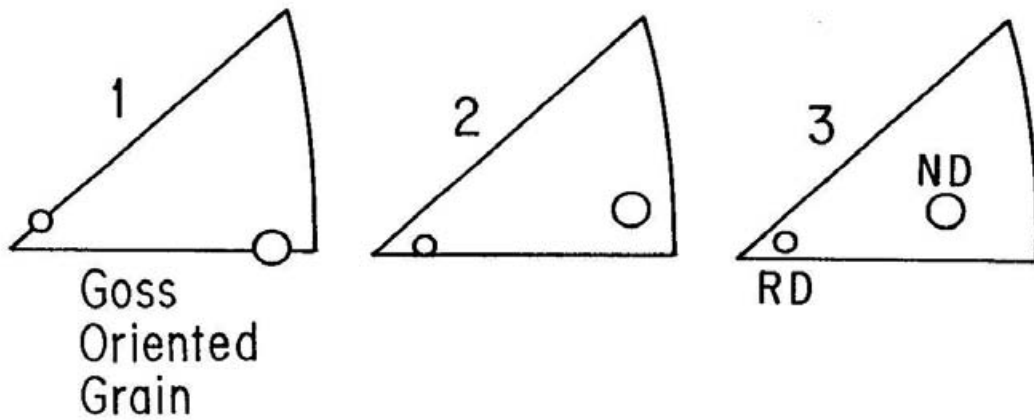
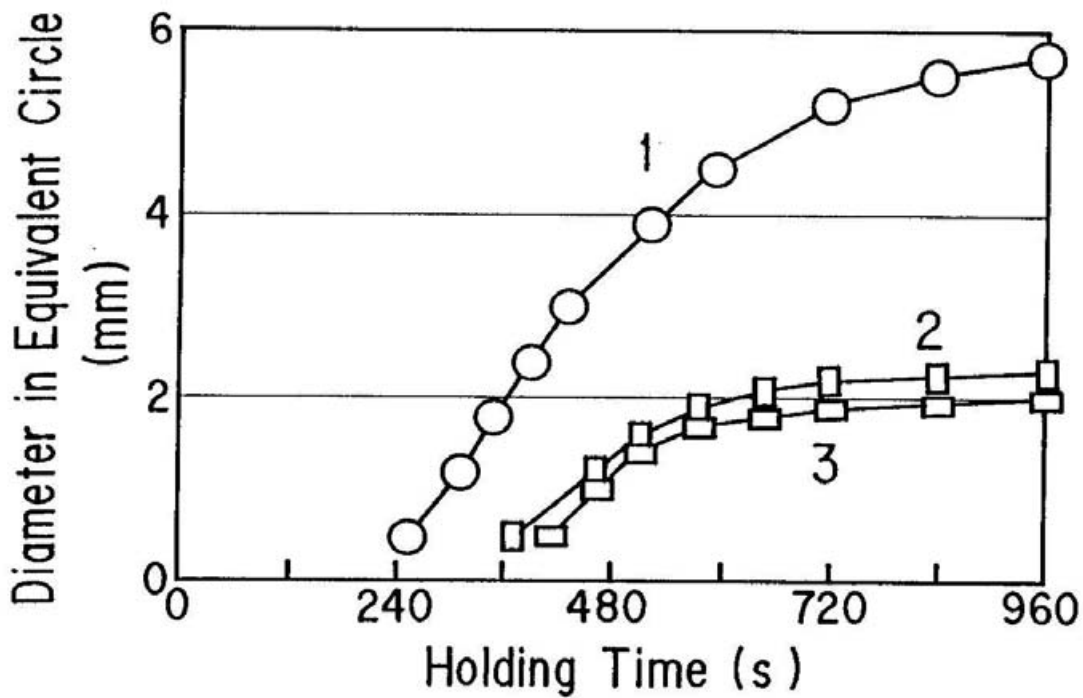


図4-7 電磁鋼板の高温再結晶過程での粒寸法の増大過程
結晶粒の等価円直径の等温保持時間に伴う変化を示す。
数字は結晶粒の出現順位を示す。
ステレオ三角形は各粒の結晶方位を示す。

引張歪無附加の場合と同様に結晶粒の形の一定時間毎の表示を、図4-10に示す。ゴス方位粒は他の方位の粒より遅れて出現するが途中で追い抜く過程が認められる。等価円直径の等温保持時間に伴う変化を図4-11に示したが、電磁鋼板の高温再結晶過程において結晶粒が競合しながら成長する過程が示されている。

4. 4 結 言

トポグラフィ装置と間接型TVカメラを組み合わせた放射光動的ラウエトポグラフィにより、高温状態における結晶粒の大きさや形の変化、異なる結晶粒の競合成長過程を観察した。

(1) 最初に出現するのはゴス方位粒（(110)[001]方位粒）であるが、それに遅れて他の方位の結晶粒が現れる。

(2) 結晶粒の形は不規則である。

(3) ゴス方位粒の成長速度は直径に換算し約0.01mm/sと他の方位の粒のおよそ2倍である。

(4) 引張歪を附加した場合はゴス方位粒は他の方位の粒より遅れて出現する。

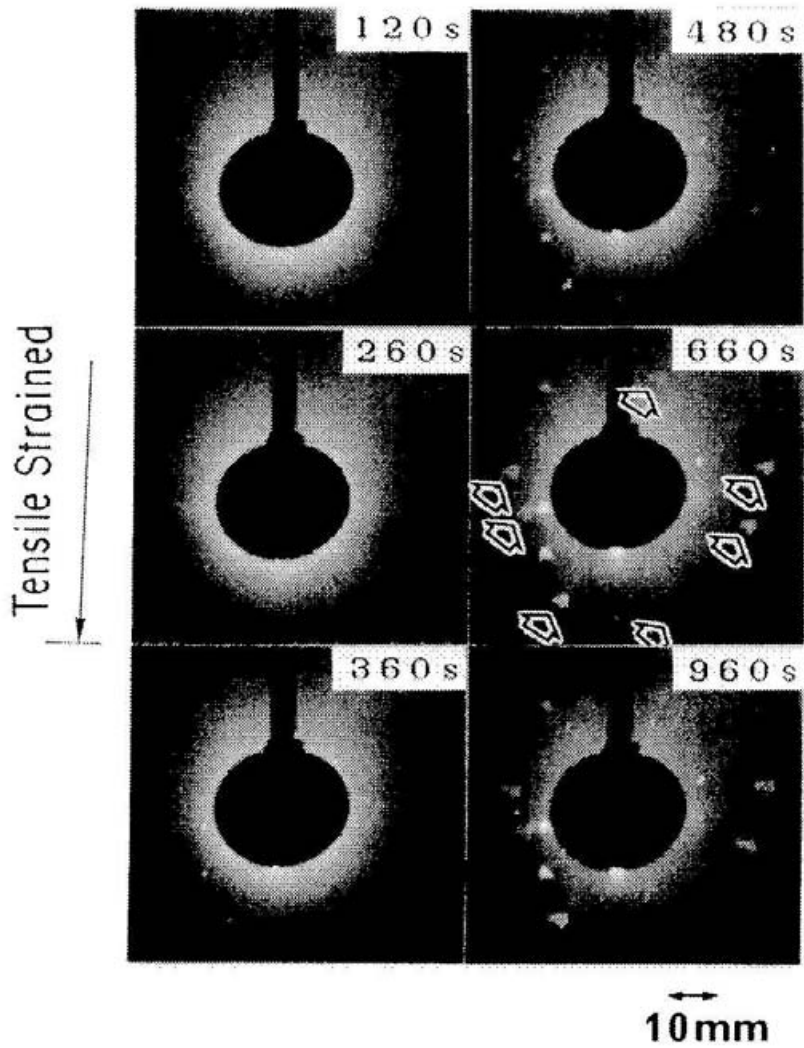


図 4-8 引張歪附加時の電磁鋼板の高温再結晶過程での透過ラウエパターンの連続観察(例1)
表示時間は1233K等温保持開始後の経過時間.

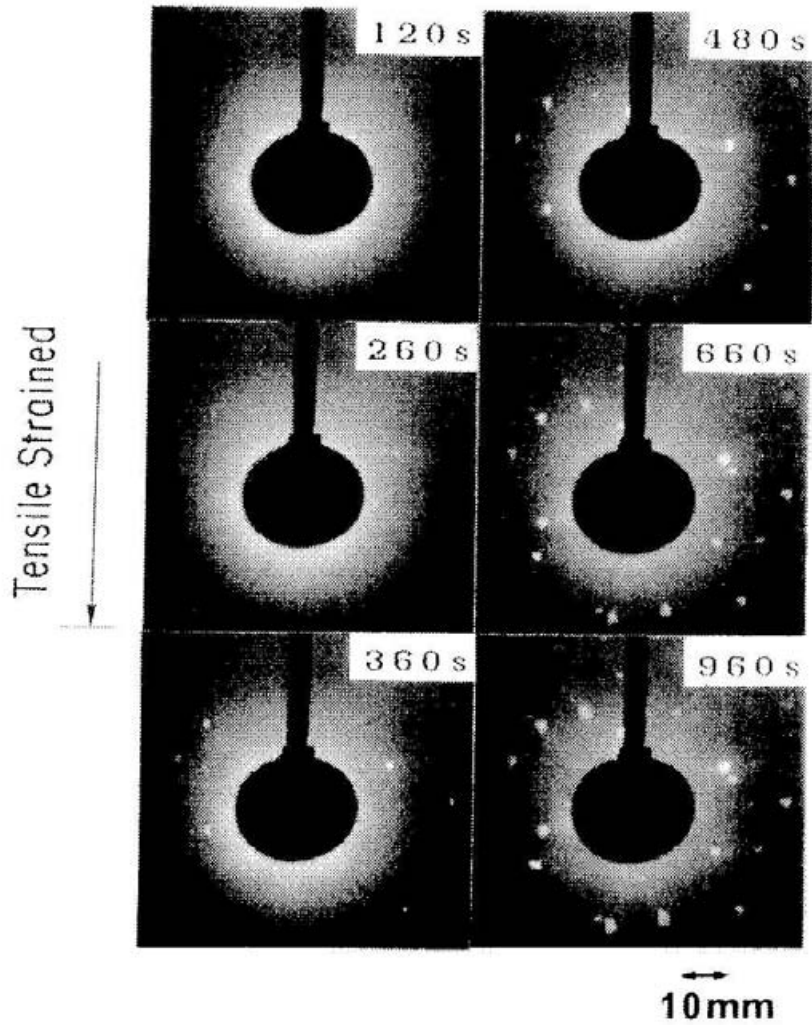


図 4 - 9 引張歪附加時の電磁鋼板の高温再結晶過程での透過ラウエパターンの連続観察（例 2）
表示時間は 1 2 3 3 K 等温保持開始後の経過時間。

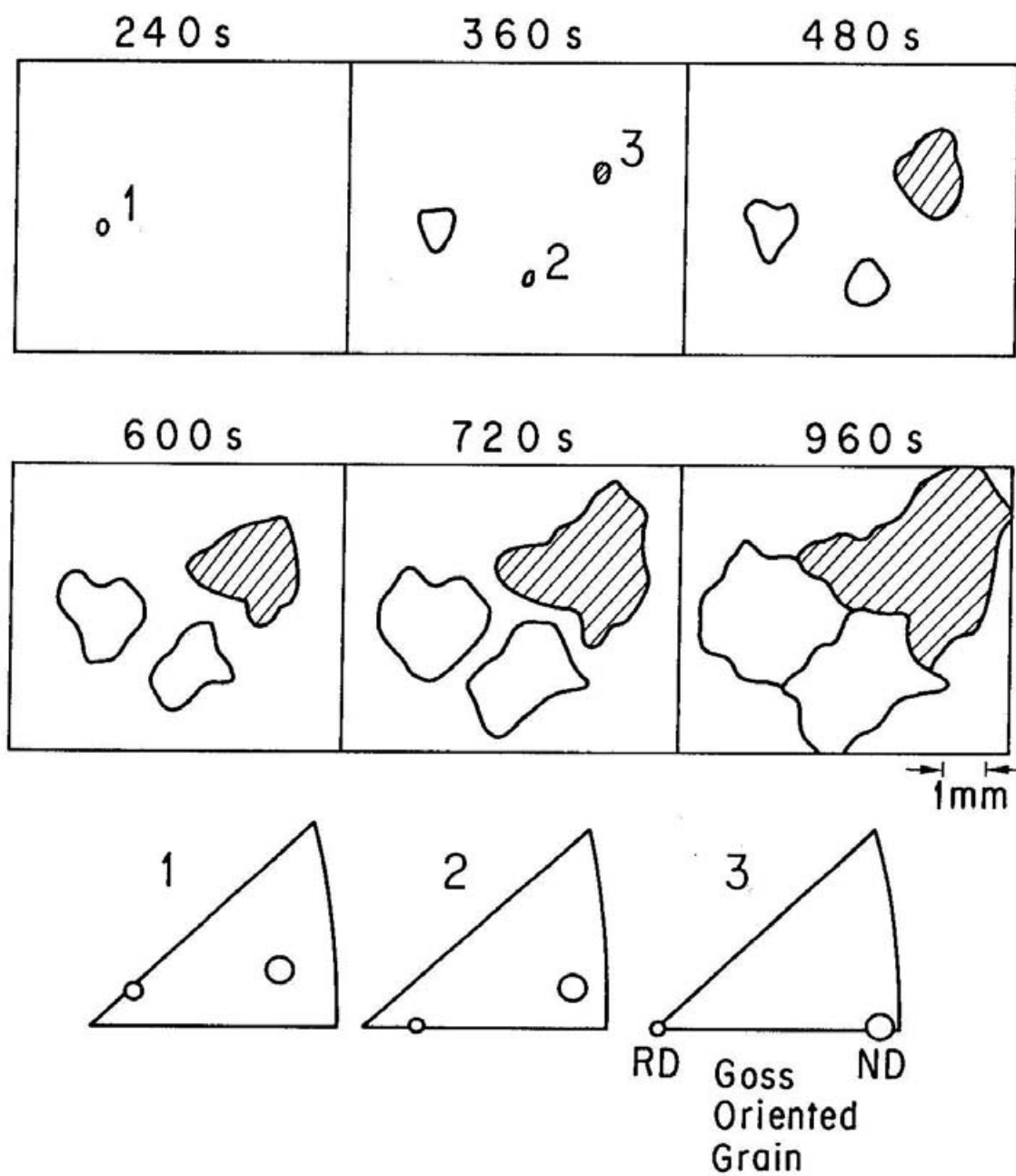


図 4 - 1 0 引張歪附加時の電磁鋼板の高温再結晶過程での結晶粒の競合成長
 数字は結晶粒の出現順位を示す。
 ステレオ三角形は各粒の結晶方位を示す。

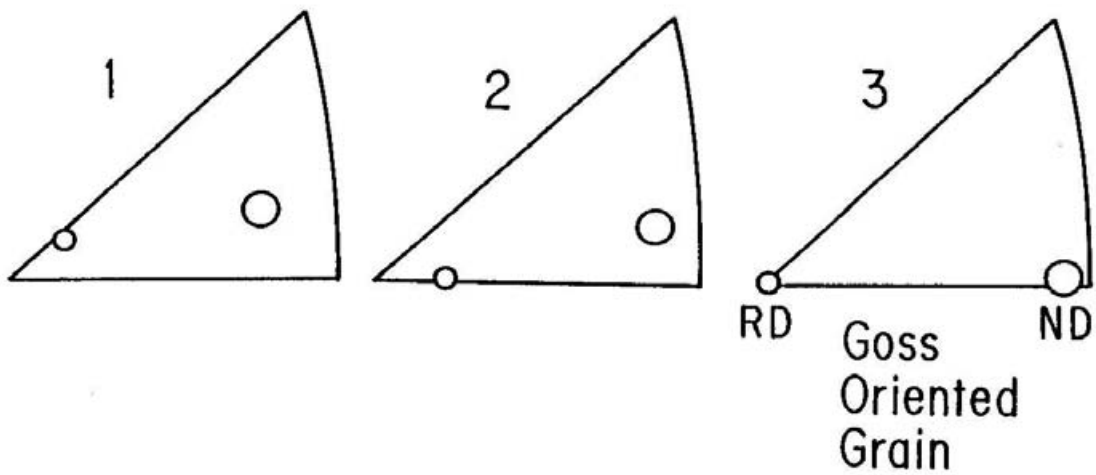
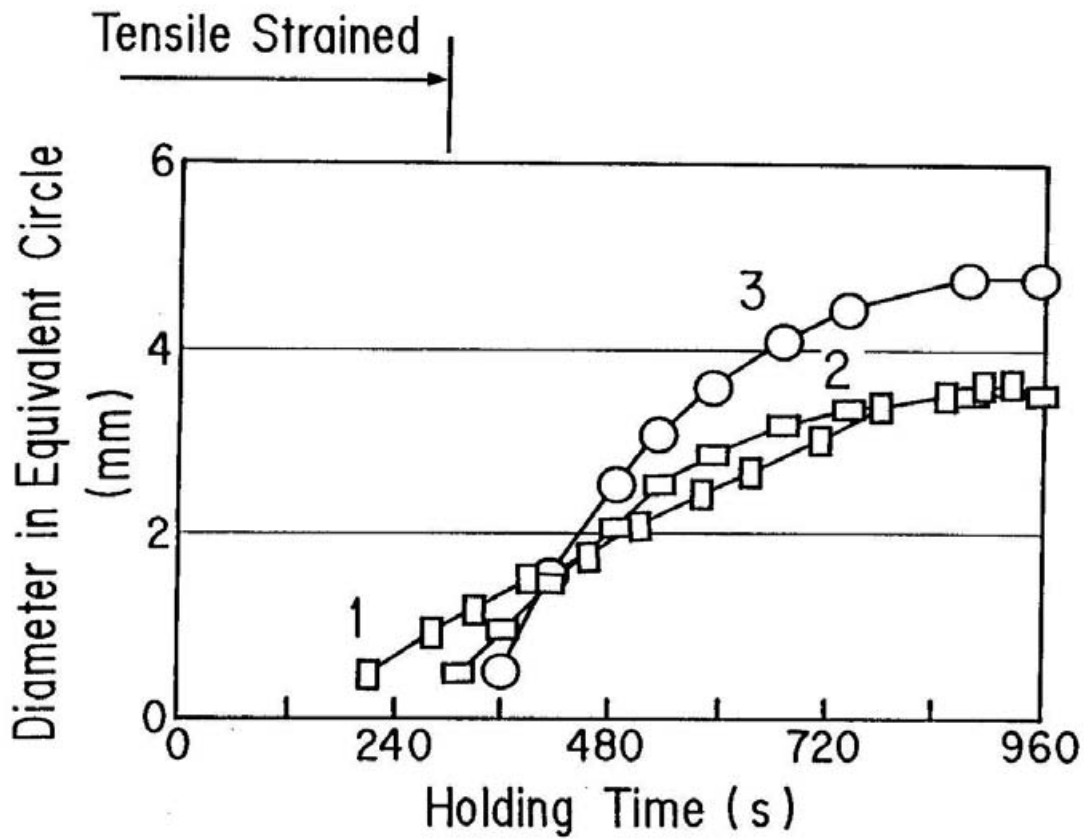


図 4 - 1 1 引張歪附加時の電磁鋼板の高温再結晶過程での粒寸法の増大過程
結晶粒の等価円直径の等温保持時間に伴う変化を示す。
数字は結晶粒の出現順位を示す。
ステレオ三角形は各粒の結晶方位を示す。

第5章 放射光動的顕微トポグラフィ

5. 1 緒言

4章ではトポグラフィ装置と間接型TVカメラを組み合わせた放射光動的ラウエトポグラフィにより、高温状態における結晶粒の大きさと形の変化、異なる結晶粒の競合成長過程を観察した。本章ではトポグラフィ装置²¹⁾と直接型TVカメラ²⁴⁾を組み合わせた放射光動的顕微トポグラフィにより、二次再結晶界面の移動挙動を動的観察した^{25, 26)}。放射光極点図動的測定法、放射光動的ラウエトポグラフィとあわせ電磁鋼板の二次再結晶過程のミクロな実態が総合的に捉えられることになる。

5. 2 実験方法

実験方法は4章と同様であるので相違点のみを記す。図5-1に放射光動的顕微トポグラフィの実験装置の模式図を示す。板厚0.2mmの高磁束密度グレードの一次再結晶板を600s高温加熱し急冷し、板厚0.10~0.12mmとなるまで片面を化学研磨により除去した試料を用いた。結晶粒の結晶方位はゴス方位である。加熱による試料の反りなど微妙な変形に伴う回折スポットのドリフトが高倍率での観察を妨げる。この問題の解決のため試料をセラミックス薄板で特に強くはさんだ。

試料を前述した加熱炉中の試料台にセットしアルゴン雰囲気中で1K/sで加熱し1273~1373Kで定温保持し、二次再結晶界面が移動を再開後継続して移動する過程をCRTで観察しながらビデオに録画した。CRT上での観察倍率は30倍である。結晶粒の成長にともない二次再結晶界面が観察視野を超える場合は精密試料走査ステージにより試料を移動し追跡を行った。放射光は白色X線で2.5GeV, 150~80mAである。円形のスリットにより直径6mmに制限し試料に入射させた。入射X線と試料面法線のなす角度 θ (ブラッグ角)は4~10°, TVカメラの角度は 2θ とし110透過スポットを30倍に拡大して観察した。 θ , 2θ は回折スポッ

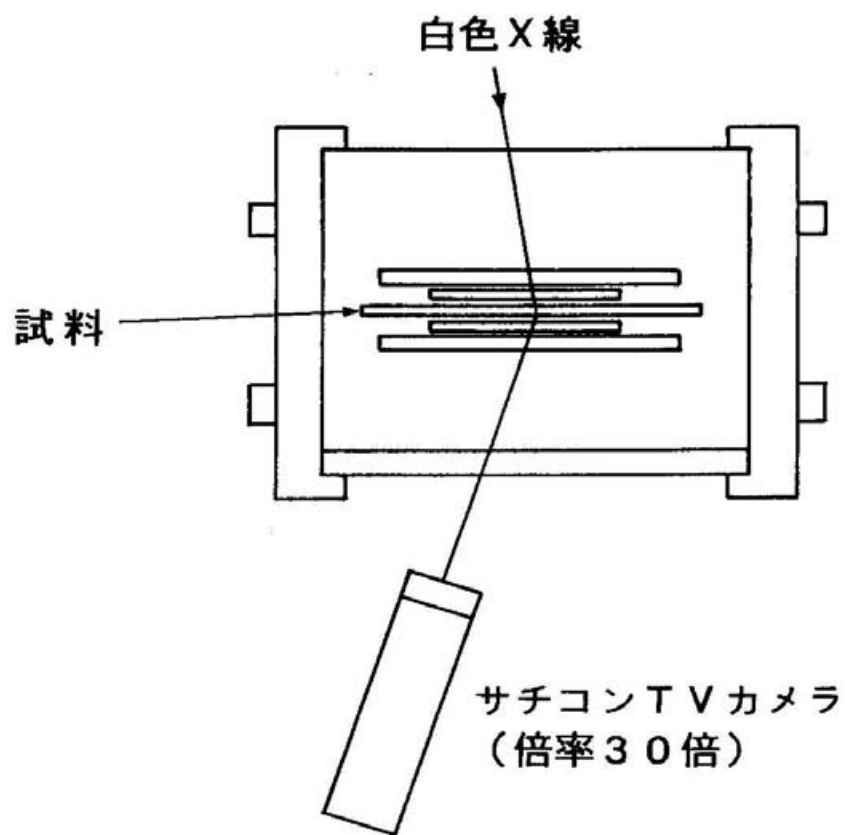


図5-1 放射光動的顕微トポグラフ法の実験装置の模式図

トの輝度が最大になるように調整した。α鉄110透過スポットの観察波長は $\lambda = 0.03 \sim 0.07 \text{ nm}$ で、試料の μt は板厚 0.1 mm でほぼ $0.3 \sim 2.8$ である。引張歪の附加は行っていない。

5.3 高温再結晶過程の動的観察

図5-2に電磁鋼板の高温再結晶過程の連続観察を示す。表示時間は 1273 K 等温保持開始後の経過時間である。 600 s の画面で白く明度の高い領域が二次再結晶粒の領域である。なお黒く明度の低い領域の中に薄いスポットが多数認められるが、これらは一次再結晶粒から生じた回折スポットである。黒く明度の低い領域との境界が二次再結晶粒が成長に伴って移動する界面である。界面のうち突出した位置から優先的に移動を再開する。逆に凹部は移動再開が遅れる様子が観察された。

外乱像について説明する。多数の白色のスポットが見られるがこれはX線TVカメラの撮像膜の保護窓の欠陥である。またほぼ上下方向に走る直線が数本見られるがこれはヒーターのスリットの影である。また水平な線状の模様は加熱用電源の交流磁場による像の乱れである。

図5-3に図5-2のトポグラフィ像などから作成した電磁鋼板の高温再結晶過程での再結晶界面位置の等時間線表示を示す。等時間線は 1273 K 等温保持開始 600 s 経過後から 30 s または 60 s 毎に表示した。図5-4に電磁鋼板の高温再結晶過程での再結晶界面位置の移動を示す。図5-3でのA~Dの線上での再結晶界面位置を示す。勾配は成長速度を表す。A、Bでは時間的に停滞、 0.01 mm/s の定常的移動の時期があるが、Cではほとんど停滞しており、Dでは完全に停滞している。このように再結晶界面の不均一かつ不連続な移動挙動が示されている。

図5-5は $820 \sim 1120 \text{ s}$ の観察で再結晶界面の移動に伴う副結晶粒界の形成挙動を示す。二次再結晶界面の移動に伴い副結晶粒界の生成する過程が動的に示されている。 1000 s の画面で副結晶粒界を三角印でマークした。局部的に突出して成長する界面が互いに接して未侵食領域を取り囲み、侵食を完成しながら、新たな副結晶境界を形成していく。

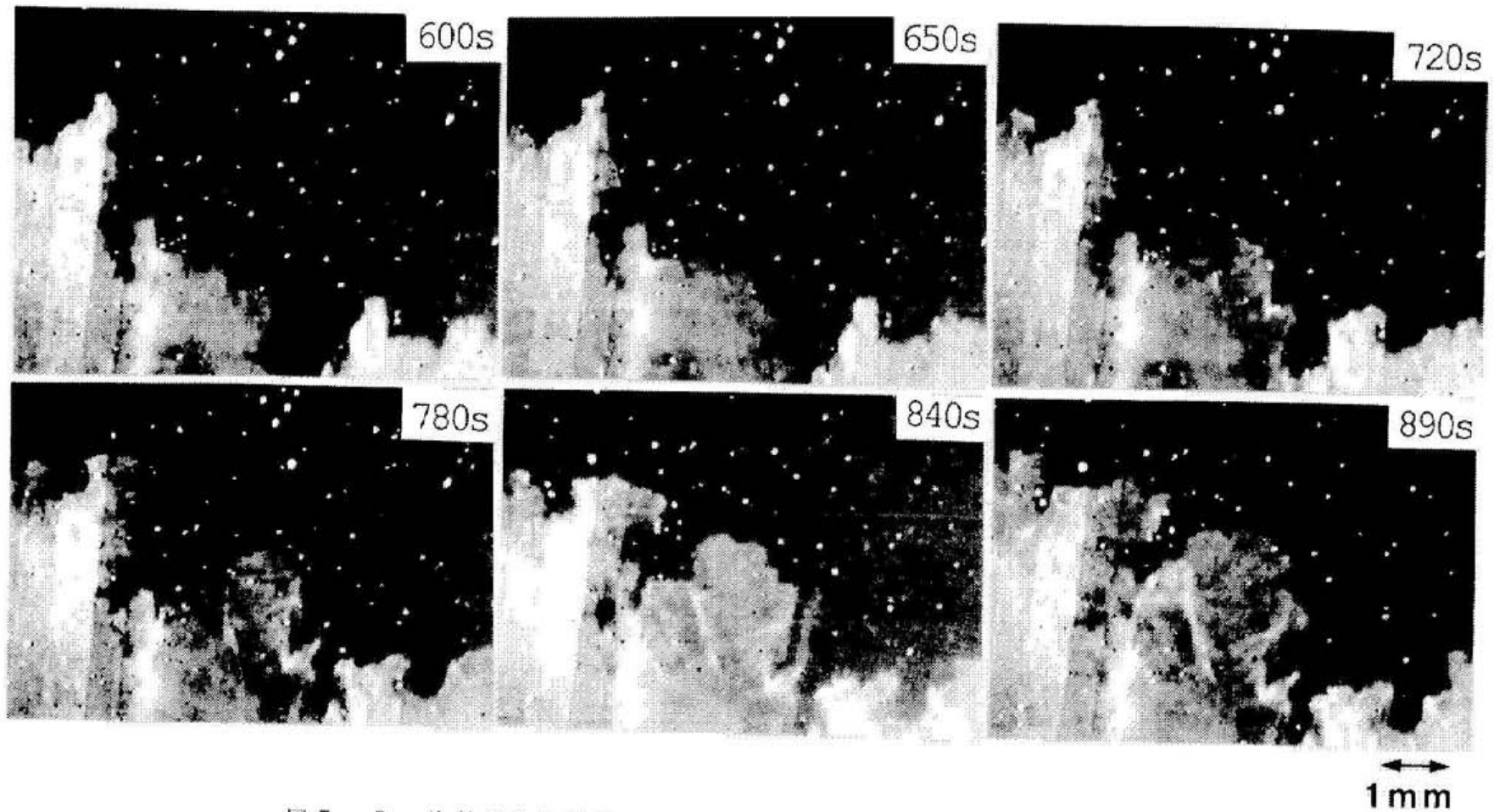


図5-2 放射光動的顕微トポグラフィ法による電磁鋼板の高温再結晶過程でのトポグラフィ像の連続観察
再結晶界面の不均一かつ不連続な移動挙動を示す。
表示時間は1273K等温保持開始後の経過時間。

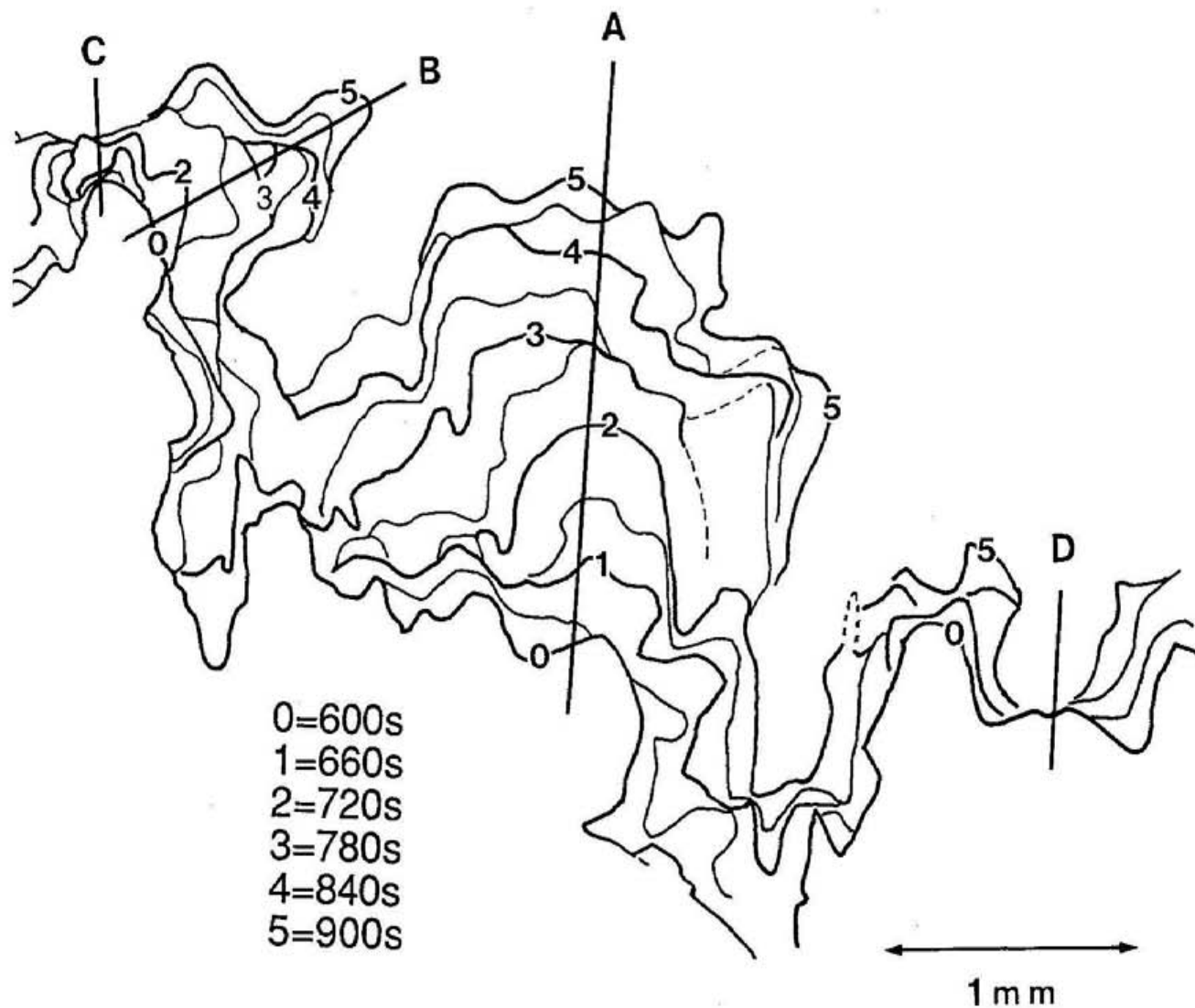


図 5 - 3 電磁鋼板の高温再結晶過程での再結晶界面位置の等時間線表示
図 5 - 2 のトポグラフィ像より作成。
表示時間は 1 2 7 3 K 等温保持開始後の経過時間。

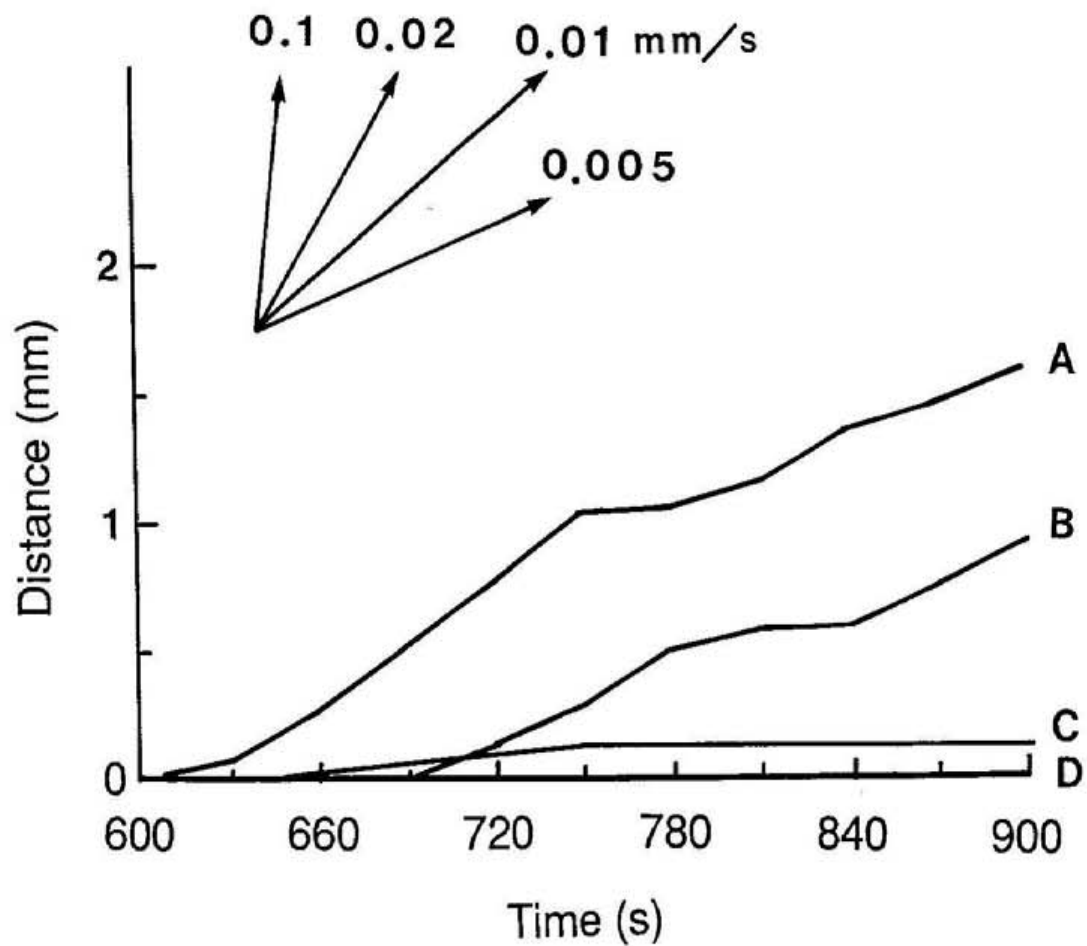


図5-4 電磁鋼板の高温再結晶過程での再結晶界面位置の移動
図5-3でのA~Dの線上での再結晶界面位置を示す。
表示時間は1273K等温保持開始後の経過時間。

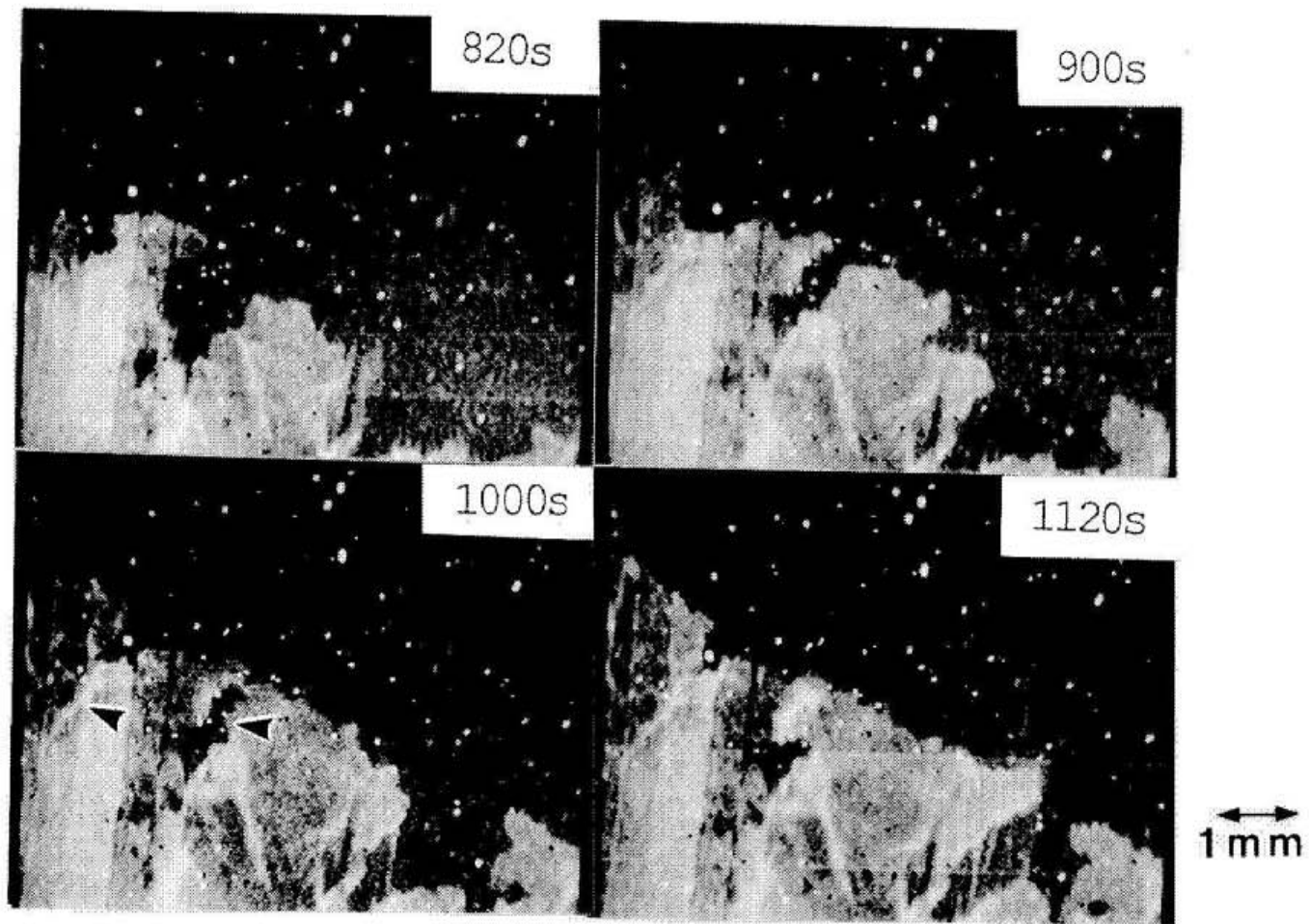


図 5 - 5 放射光動的顕微トポグラフィ法による電磁鋼板の高温再結晶過程
 でのトポグラフィ像の連続観察
 再結晶界面の移動に伴う副結晶粒界の形成挙動を示す。
 表示時間は 1273 K 等温保持開始後の経過時間。

図5-6は1373Kに加熱温度を上昇させた後の観察である。二次再結晶界面の爆発的移動が観察された。

1410sと1430sでは前画面より像が下方にシフトしているが、これは移動する界面を追尾するためにTVカメラを上方に移動させたためである。1220sおよび1410sの画面において三角印でマークした位置で高速の爆発的移動が観察されている。図5-7、図5-8はそれぞれ再結晶界面位置の等時間線表示及び再結晶界面位置の移動を示す。図5-8では停滞、定常的移動、ほぼ0.1mm/sの爆発的移動の3種類の典型的移動挙動が全て認められた。界面の爆発的移動が示されているが、このような界面の爆発的移動によって侵食される領域の大きさは一定で、0.2~1.0mmである。

5.4 結 言

放射光動的顕微トポグラフィを電磁鋼板の二次再結晶界面移動過程の直接観察に応用し、以下の結果を得た。

(1) 移動中の界面は凹凸が多い。移動は不均一かつ不連続で、界面の突出部から優先的に移動する。

(2) 次の3種類の典型的移動挙動が認められる。

- 1) 移動速度0.05~0.2mm/sの爆発的移動
- 2) 移動速度0.01~0.02mm/sの定常的移動
- 3) 停滞

(3) 界面移動によって侵食される領域の大きさは一定で、0.2~1.0mmである。

(4) 成長速度の遅い場所が連結され副結晶境界を形成しながら界面が移動する。

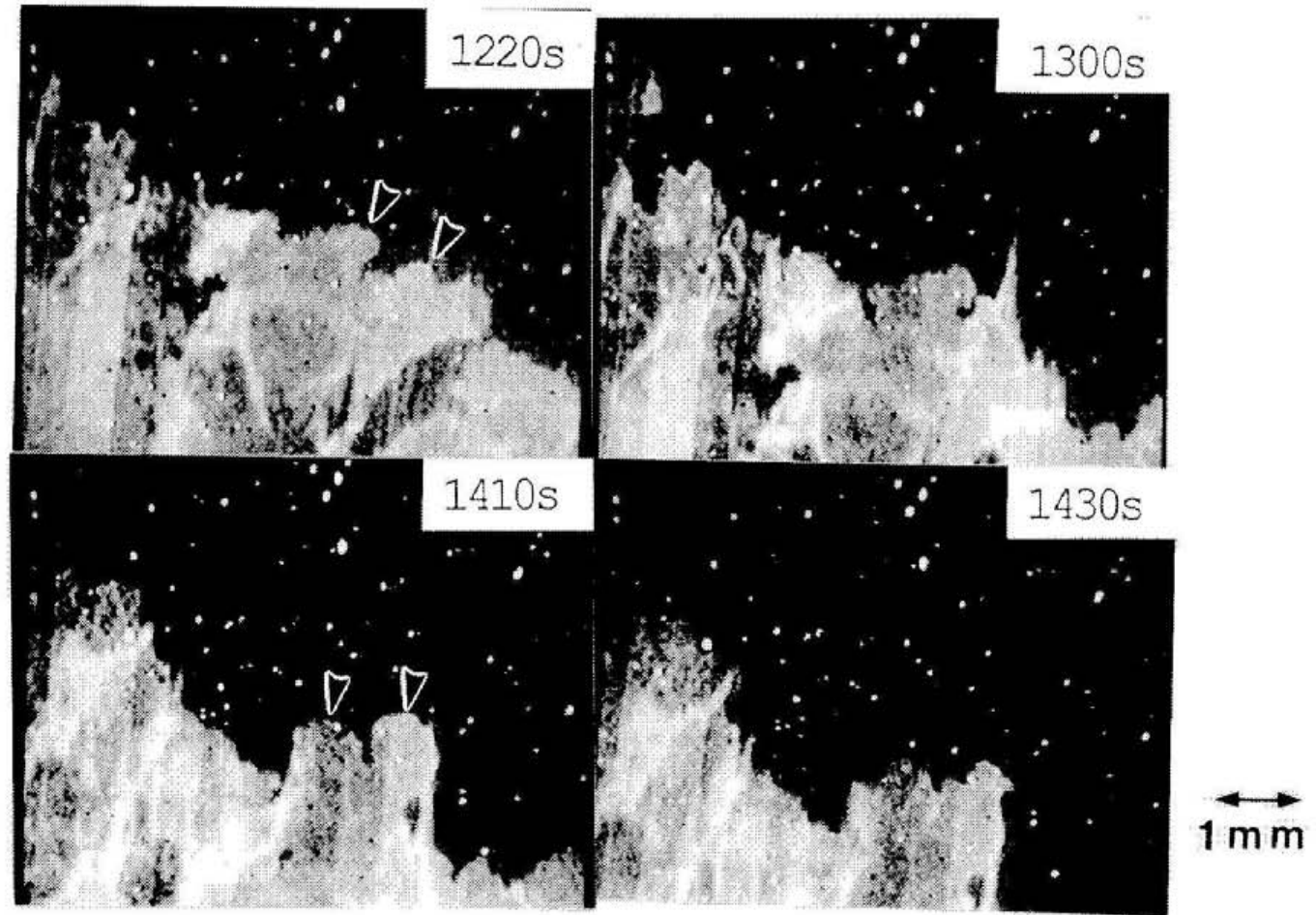


図5-6 放射光動的顕微トポグラフィ法による電磁鋼板の高温再結晶過程でのトポグラフィ像の連続観察
爆発的な再結晶界面の移動挙動を示す。
表示時間は1273K等温保持開始後の経過時間。
昇温して1200sより1373Kで等温保持。

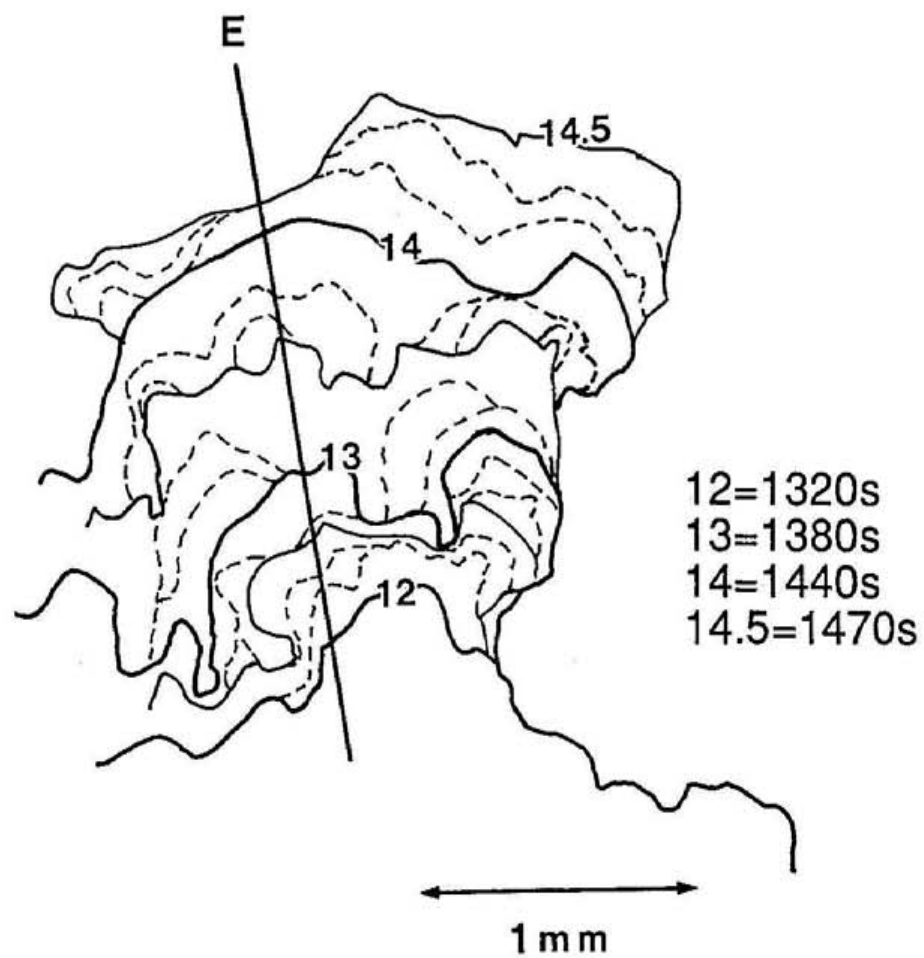


図5-7 電磁鋼板の高温再結晶過程での再結晶界面位置の等時間線表示
図5-6のトポグラフィ像より作成。
表示時間は1273K等温保持開始後の経過時間。
昇温して1200sより1373Kで等温保持。

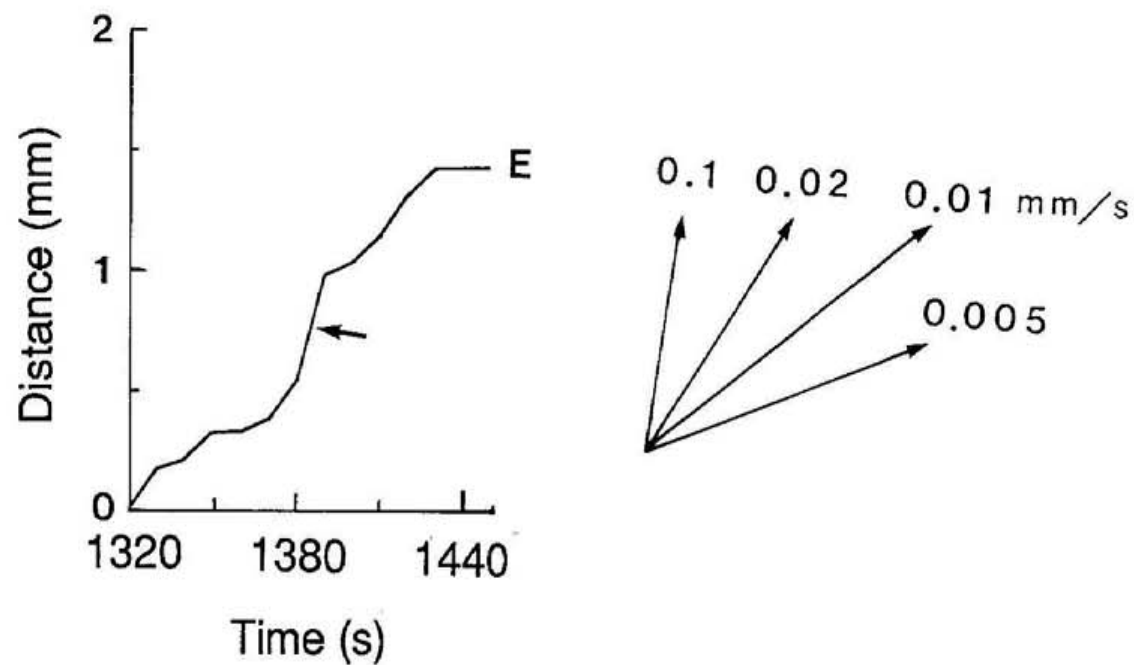


図 5 - 8 電磁鋼板の高温再結晶過程での再結晶界面位置の移動
図 5 - 7 での E 線上での再結晶界面位置を示す。
表示時間は 1273 K 等温保持開始後の経過時間。
昇温して 1200 s より 1373 K で等温保持。

第6章 考 察

6. 1 高温加熱での二次再結晶のモデル

図6-1に本研究で得られた知見にもとづく二次再結晶過程のモデルを示す。(a)～(c)は高温加熱前の微細な結晶粒が観察できる倍率で示す。

(d)～(f)はその10倍の大きさを二次再結晶粒が巨大粒に成長する過程が観察できる低倍率で示す。(a)と(b)は潜伏期間に該当する。潜伏期間でのスポットのゆらぎは結晶粒の総体積の増減を意味しているが、このマイクロ過程は(a)→(b)のような結晶粒界の移動による個々の結晶粒の体積の増減によるものと考えられる。界面エネルギーの高い粒界は界面エネルギーの低い粒界に変化しようとするが、これは即ち粒界に存在する格子欠陥(転位など)の減少および消滅であり、これに伴い粒界が移動すると考えられる。

このようなゆらぎつつある潜伏期間においてなんらかの引金によって(c)に示すように二次再結晶核が出現する。この引金の実体については現在では未知であるが、例えばある結晶粒がゆらぎのなかで相性の良い粒と接触しその粒を急激にのみこむことなどが考えられる。この二次再結晶核は例えば図3-22の120sの左下に見られるスポット(Pとマーク)、または図3-26の(a)での120s、(b)での360sの様な状態であると考えられる。これらのスポットを1個の結晶粒と考えると、その大きさは積分強度から見積ると100 μ m程度であると推定される。

(c)から(d)へ至る過程は爆発的成長である。ゴス方位粒は約0.01mm/sのような高速で一気に成長して行く。この成長速度は4章、5章の放射光動的トポグラフィの観察結果で得られている。二次再結晶界面移動の不均一性および不連続性が放射光動的顕微トポグラフィの観察により明らかになっている。これは(e)に示すように一次再結晶組織に不均一性があり、特別に二次再結晶界面の移動を促がす、または抑える領域が存在するとすれば説明がつく。(e)で二次再結晶界面が凹になり進行が阻止されている所には移動を抑える領域が、二次再結晶界面が凸になる所には移動を

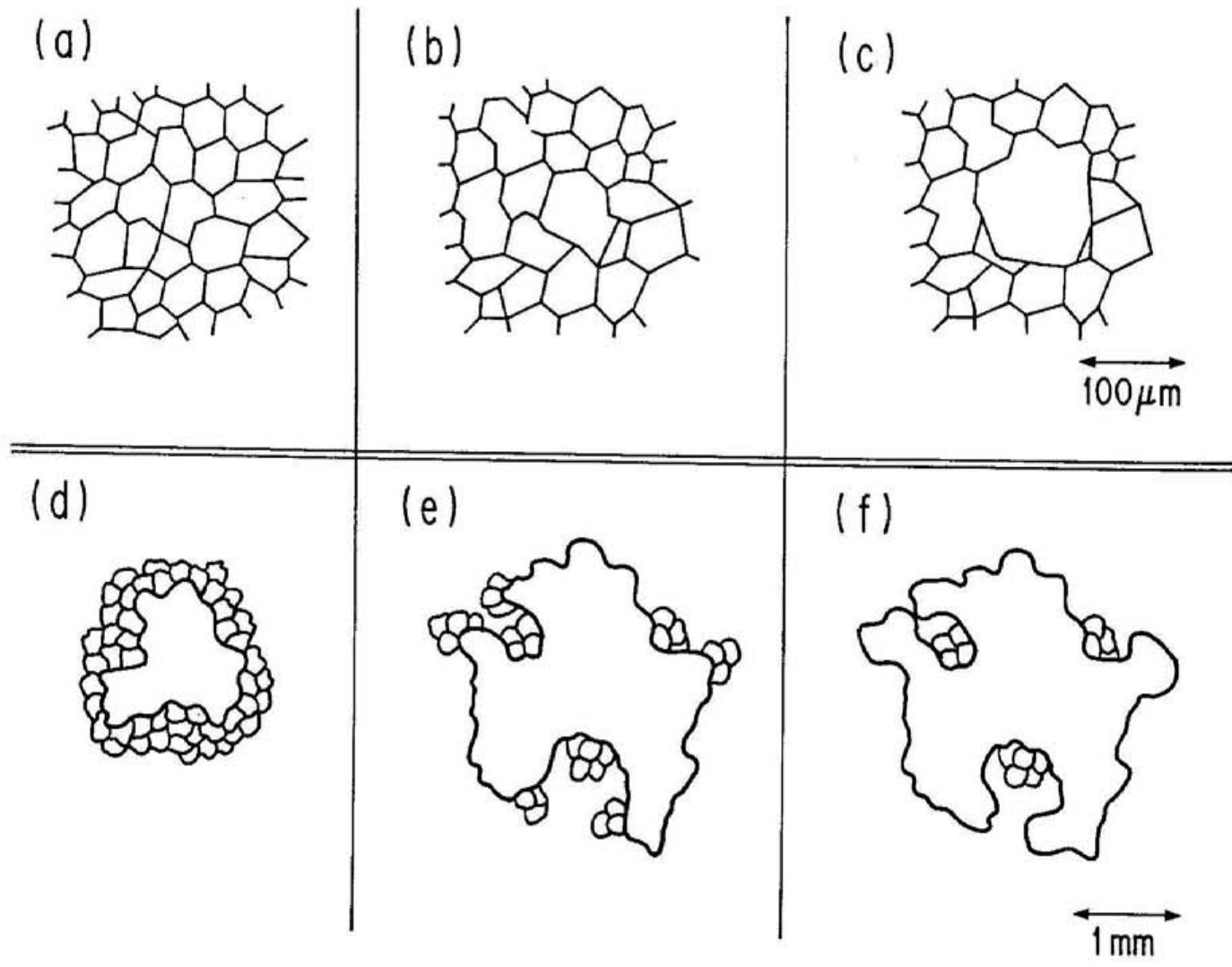


図 6-1 本研究で得られた知見にもとづく二次再結晶過程のモデル
(a) ~ (c) に対し (d) ~ (f) は粒の大きさが
10倍となる低倍率で示す.

促がす領域が存在するものと考えられる。

移動が時間的に不連続な事実も説明可能である。界面が移動を抑制される領域に衝突し、迂回して進行するために停滞が生じると考えるとよい。このような二次再結晶界面移動の不均一性および不連続性は何によって生じるのか以下に考察する。

粒界移動速度 V は以下の式で表される²⁷⁾。

$$V = M \cdot P \quad (1)$$

$$M = M_0 \cdot \exp(-Q/RT) \quad (2)$$

$$P = DRV - DRG \quad (3)$$

V : 移動速度

M : 移動度

M_0 : 移動度係数

Q : 活性化エネルギー

R : ガス定数

T : 絶対温度

P : 有効駆動力

DRV : 駆動力

DRG : 阻止力

有効駆動力 P は駆動力と阻止力の差である。駆動力は粒界エネルギーであり結晶粒径が小さいと大きくなる。阻止力は通常析出物による粒界のピン留め力である。移動度係数 M_0 は大きく変動するため重要である。その支配要因としては溶質原子、結晶粒相互の角度差（結晶方位）が挙げられる。活性化エネルギー Q は高温加熱途中で水焼き入れを行い最大粒直径の増大過程の観察から求めた例がある²⁸⁾。

従って粒界移動速度 V は4個の因子に支配されている。即ち、結晶粒径、

析出物，溶質原子，結晶方位である。筆者の観察では結晶粒径，析出物には分布に大きな不均一性がない。溶質原子は存在量が極めて少なく，結晶方位が主たる因子であると考えられる。

このような界面移動を抑制する領域は図6-1(f)のように島状に巨大粒内部に取り残されていく。この状態は図1-3の光学顕微鏡写真に見られる通りである。

このように本研究の成果をもとに高温再結晶過程の一貫したモデルを立てることができた。

6. 2 引張り歪の効果

粒界エネルギーと考えられている駆動力への歪エネルギーの附加による二次再結晶現象の変化，特に二次再結晶過程の促進を考え，引張り歪の附加を行ったが，ゴス方位粒の潜伏期間が長くなり，核化の遅延が観察された。附加した引張り歪は歪速度 $10^{-5} 1/s$ オーダーで塑性歪である。歪速度 $10^{-6} 1/s$ オーダーでは上記の変化が観察されなかった。引張り歪の除荷とともにゴス方位粒の成長が観察された。この機構について考察する。図6-2に引張り歪の効果の模式図を示す。高温において引張り歪を加えると，転位が導入されるが転位は粒内を移動して粒界にからむ。(a)においては成長しようとする二次再結晶粒の界面に転位がからんで移動を阻止する。(a)→(b)へ時間が経過しても，引張り歪の連続的附加により転位は次々と導入される一方，高温のため交差すべりを行うなど転位の移動が容易で相互の反応などにより消滅し定常状態が保たれ，二次再結晶界面は依然として動けない。歪の附加を停止すると，新たな転位の導入はなくなり高温下で転位の消滅が進行する。転位の消滅後に二次再結晶粒は成長を開始して粒の巨大化が起こる。

以上定性的ではあるが二次再結晶界面と転位の相互作用が本研究で得られた知見を説明するものと考えられる。この考えに立てば転位の二次再結晶界面への作用の制御によりゴス方位粒の核生成の促進など新たな現象を導き出すことも考えられる。

引張歪の効果

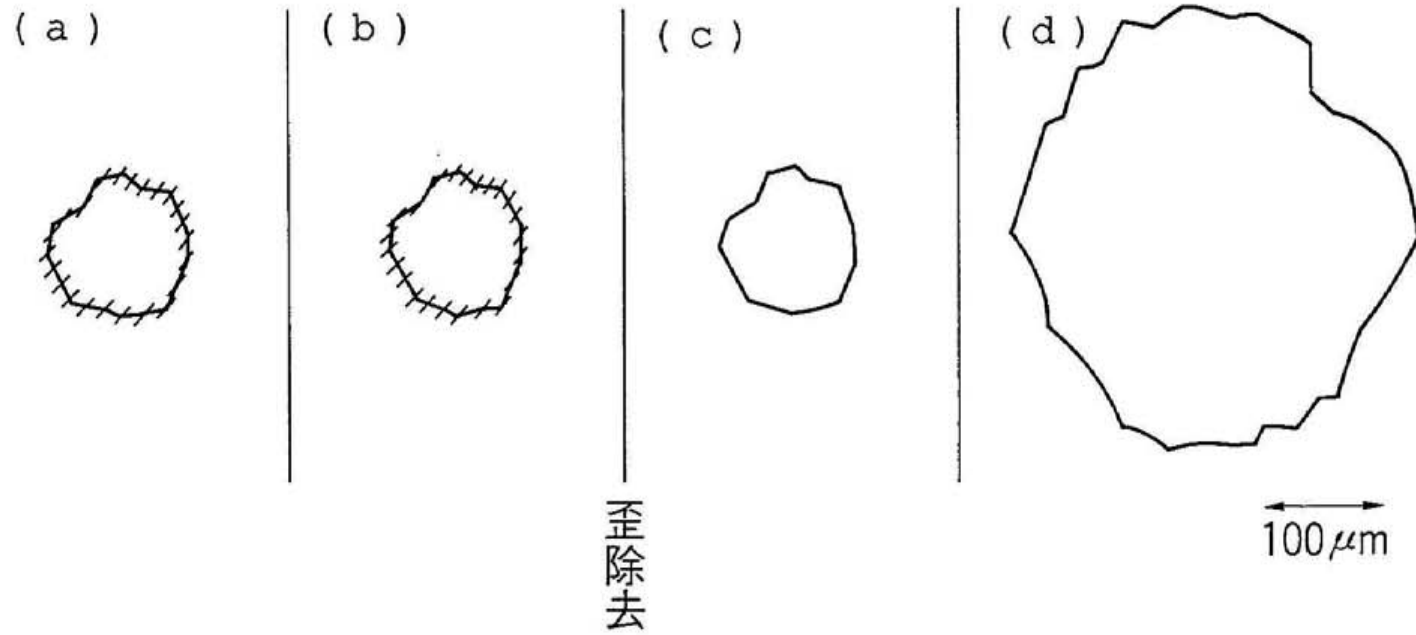


図6-2 引張り歪の効果の模式図

斜線：二次再結晶粒の界面にからみ界面の移動を抑制している転位。

6. 3 二次再結晶理論

図6-3に二次再結晶の機構に関する学説と本研究で得られた知見にもとづく説を図示する。二次再結晶の学説の多くは一次再結晶過程に関する学説のアナロジーで立てられているので一次再結晶の学説に関する集録³⁾が参考となる。これまで加熱前後の観察や加熱中の急冷による組織観察による推定に基づき学説が提案されているが次の3つに大別される。

1. 加熱前ゴス粒存在説
2. 潜伏期ゴス粒形成説
3. 成長時ゴス粒優先説

以下各説について説明する。

1. 加熱前ゴス粒存在説：高温加熱の前から相当の大きさを有するゴス方位の二次再結晶核が先行して存在する、とする立場でその後の高温加熱ではその核が順調に成長する、という考えである。旧くからの考えであるが、成長時ゴス粒優先説を支持する場合もこの説をとり大きなゴス方位粒や非ゴス方位粒が双方加熱前に存在すると考えることがある²⁹⁾。

2. 潜伏期ゴス粒形成説は高温に加熱された後に、ゴス方位の微細粒がなんらかのきっかけで優先的に核化し、巨大化するとする説である^{2, 5, 30)}。この説は微細粒が合体し核形成を行うと仮定している。ゴス方位粒のみの核化またはゴス方位粒の優先的な早期核化を主張する。ゴス方位粒のスタートが早いため競合成長において有利となるという考えである。

3. 成長時ゴス粒優先説はゴス粒の成長速度の大きさがゴス方位粒の優位を決定するという立場である^{29, 31)}。この立場では核化時にゴス方位粒の優位性は何等存在しない。

次に本研究で得られた知見に基づき各説について検討を加える。

1. 加熱前ゴス粒存在説は放射光極点図動的測定法において加熱当初には大きなゴス方位粒が見られないこと、および放射光動的ラウエトポグラフィによる観察でも加熱当初には大きなゴス方位粒が見られないことから妥当な説ではないと考えられる。

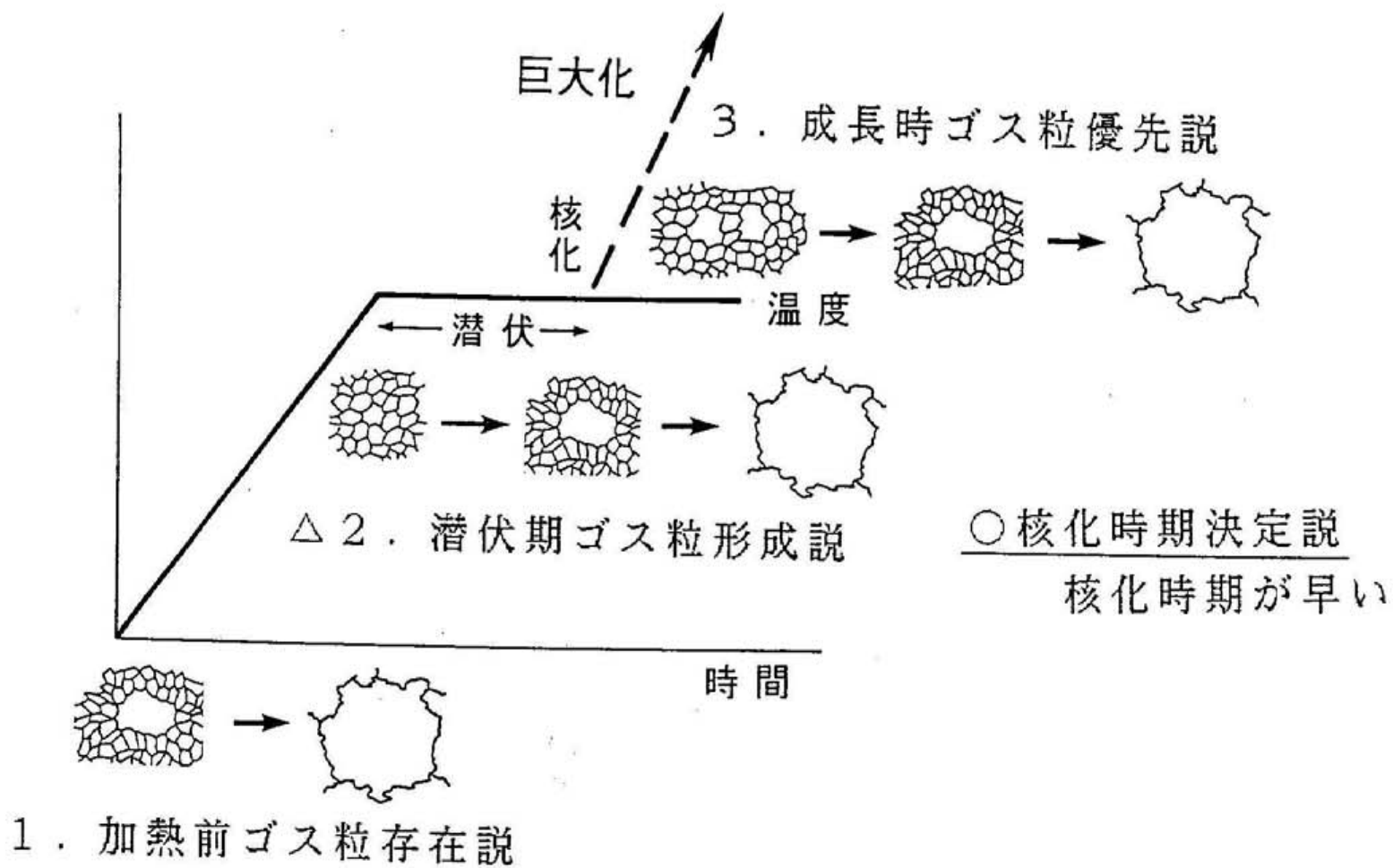


図 6-3 二次再結晶に関する学説と本研究で得られた知見にもとづく説

2. 潜伏期ゴス粒形成説は放射光極点図動的測定法および放射光動的ラウエトポグラフィで得られた上述の知見およびゴス方位粒は単独で他方位の結晶粒より先に出現し、他方位の結晶粒と競合しながら成長する、という観察結果と符合する。しかし潜伏期ゴス粒形成説では潜伏期間でのゴス方位粒の挙動についての情報はなく、核化の時期および成長速度のいずれが重要か決定できなかった。本研究ではゴス方位粒の成長速度は直径に換算し約 0.01 mm/s と他方位の粒の2倍程度であるという事実も明かにし、核化の時期が決定的に重要であるという知見を得た。

3. 成長時ゴス粒優先説は上述の知見およびゴス方位粒の成長速度は大きいものの直径に換算し約 0.01 mm/s と他方位の粒の2倍程度に留まるという事実に照らし妥当性が低いものと考えられる。

以上まとめると、本研究で得られた知見は潜伏期ゴス粒形成説を支持する。さらに本研究で得られた知見に基づき潜伏期ゴス粒形成説を発展させた〔核化時期決定説〕が主張可能である。

第7章 結 論

本章ではまず本研究全体の結論について記し、次に成果を項目別にまとめ、最後に今後の課題を示す。

電磁鋼板の高温再結晶後では巨大粒化、結晶方位集中化が同時に生じることが知られているが、過程についての情報は極めて少なくブラックボックスのまま残されている。また少ない情報をもとに諸学説が提案されているが混沌とした状況である。

高温加熱中にどのような機構で再結晶が起こり、再結晶の方位に影響を与える因子は何かを実環境、実時間の条件下で研究する試みは未だなされたことがない。動的観察による高温再結晶過程のミクロなメカニズムの解明のために、放射光の高輝度性を生かし巨大粒化・結晶方位集中化過程の把握を行うとともに、巨大粒化・結晶方位集中化に影響を与える因子の探索を行うことを目的に研究に取り組んだ。

実時間、実環境での動的観察が可能な装置・手法を開発し、高温再結晶過程の観察を行った。具体的には1)高温加熱炉の開発、2)極点図動的測定法の開発による結晶方位分布変化の動的観察、3)動的トポグラフィによる結晶粒の大きさや形の動的観察を行い新たな知見を得た。同時に巨大粒化・結晶方位集中化に影響を与える因子としての歪の影響を明らかにした。また本研究では、時間軸情報による潜伏期間、成長速度という動的特性の知見を得た。

このような動的観察により電磁鋼板の結晶方位集中化過程を把握したが、本研究は実材料・実環境を対象としシミュレート性が高い。また極点図動的測定法を開発したが、当方法は極点図のみならず相変態、析出過程の動的測定にも応用可能であり、金属材料の製造工程の組織変化の研究を展開させる、新しい手法を導入するという本研究の狙いが達成された。

以下本研究の成果を項目別に述べる。

○手法開発

[1] 高温加熱炉

高温加熱が可能（最高1573 K）かつ高温での温度の均一性・安定性，加熱時の温度追従性に優れ，X線の吸収が小さい加熱炉を開発した。高温での温度の均一性，加熱時の温度追従性を改善するためヒーターには高靱性のC/Cコンポジット板を用い，セラミックス薄板を介して試料をはさむ「サンドイッチ方式」を考案した。温度の均一性は5 mm × 5 mmの領域で1233 Kにおいて±2 K以内，温度の安定性は1233 K等温保持において±1 K以内である。窓材は入射側はベリリウム箔，出射側はカーボン板とした。また高温再結晶過程に及ぼす歪の影響を調べるために引張り歪の附加機構を加えた。パルスモーターと減速歯車によりチャックを一定速度で移動させる機構とした。

[2] 極点図動的測定法

結晶方位分布の高速変化を測定するために四軸回折計の機構を用いてEwald球を迅速に回転させ試料の特定の反射の逆格子点に乗っている極点球との交線を移動させ，極点球上の二次元的分布を高感度二次元検出器イメージングプレートに得る方式を採用した。結晶方位分布の時間変化はこのEwald球の運動を繰り返し，その度ごとに得られる面情報を二次元検出器の連続移動により検出・記録すればよい。実験は高エネルギー物理学研究所放射光実験施設のBL-3Aにおいて行った。放射光をモノクロメータで0.06 nmの波長に単色化し，第二結晶を湾曲させて試料上に集光させた。鉄の200反射のみを記録するために円弧型の開口部を有するスクリーンを検出器の直前に固定した。極点球上の10°の範囲の1回の方角分布記録に要する時間は40 sであった。

○電磁鋼板の二次再結晶過程

[1] 放射光極点図動的測定法

結晶方位分布の連続変化を観察し以下のような知見を得た。

(1) 1233 K に加熱直後から著しい再結晶が観察されるまでの潜伏期間の存在を確認した。

(2) 潜伏期間では結晶粒が生滅する“ゆらぎ現象”が存在することを確認した。

(3) 潜伏期間を経てゴス方位粒が爆発的に成長していく様子をとらえた。

(4) 試料に引張歪を加えるとゴス方位粒の成長が抑制される。

ゴス方位粒の成長は歪敏感な過程であることが判明した。

[2] 放射光動的ラウエトポグラフィ

(1) 最初に出現するのはゴス方位粒であるが、それに遅れて他の方位の結晶粒が現れる。

(2) 結晶粒の形は不規則である。

(3) ゴス方位粒の成長速度は直径に換算し約 0.01 mm/s と他の方位の粒のおよそ2倍である。

(4) 引張歪を附加した場合はゴス方位粒は他の方位の粒より遅れて出現する。

[3] 動的顕微トポグラフィ

当手法を電磁鋼板の二次再結晶界面移動過程の直接観察に応用し、以下の結果を得た。

(1) 移動中の界面は凹凸が多い。移動は不均一かつ不連続で、界面の突出部から優先的に移動する。

(2) 次の3種類の典型的移動挙動が認められる。

1) 移動速度 $0.05 \sim 0.2 \text{ mm/s}$ の爆発的移動

2) 移動速度 $0.01 \sim 0.02 \text{ mm/s}$ の定常的移動

3) 停滞

(3) 界面移動によって侵食される領域の大きさは一定で、0.2～1.0 mmである。

(4) 成長速度の遅い場所が連結され副結晶境界を形成しながら界面が移動する。

ゴス方位粒をゴス粒と略称し、電磁鋼板の高温再結晶過程に関しては加熱前ゴス粒存在説、潜伏期ゴス粒形成説、成長時ゴス粒優先説の3つの学説が提案されていた。本研究では潜伏期ゴス粒形成説を支持する結果となった。さらに潜伏期ゴス粒形成説を発展させた核化時期決定説が主張可能である。

本研究で開発した放射光極点図動的測定法は、金属材料の線材、棒材、板材の加工および高温における組織変化に対しても応用できる見通しがついた。さらに相変態、析出過程の動的測定にも応用可能である。

最後に今後の課題を列記する。

[1] 放射光極点図動的測定法の時間分解能を小さくすることが今後の課題である。これにより、潜伏期間において時間刻みを細かくした観察を行い、ゴス方位粒の核形成過程を明らかにすることが可能となる。

[2] 引張歪はゴス方位粒の成長を抑制したが、これに対しゴス方位粒の成長を優先させる因子を抽出することが今後の課題となる。変形様式を他のモードに変更し附加される応力の種類を変えることや、転位の消滅を促進するための外場の附加を行うことが考えられる。

参考文献

- 1) I. B. MacCormack and B. K. Tanner: *J. Appl. Cryst.*, 11 (1978), P. 40.
- 2) M. Matsuo: *ISIJ Int.*, 29 (1989), p. 809.
- 3) 武智 弘, 川崎宏一: 集合組織 (長嶋晋一編著) (丸善, 東京, 1984), 第3章.
- 4) T. V. Philip and R. E. Lenhart: *Trans. Met. Sci. AIME*, 221 (1961), P. 439.
- 5) T. Sakai, M. Matsuo, M. Tanino, T. Shindo and M. Shiozaki: *Proceedings of the 6th International Conference on Texture of Materials, Tokyo, 1981, (ISIJ, Tokyo, 1981) p. 938.*
- 6) 松尾宗次: 集合組織 (長嶋晋一編著) (丸善, 東京, 1984), 第1章.
- 7) N. P. Goss: U. S. Patent 1 965 559, (1934).
- 8) G. Wassermann and J. Grewen: *Texturen metallischer Werkstoffe, (Springer-Verlag, Berlin, 1962), Chap. 1.*
- 9) S. Taguchi: *Trans. ISIJ*, 17(1977), p. 604.
- 10) 松尾宗次: 鉄と鋼, 70 (1984), p. 2090.
- 11) W. J. Boettinger, H. E. Burdette and M. Kuriyama: *Applications of X-Ray Topographic Methods to Materials Science, (Plenum, New York, 1984), p. 283.*
- 12) H. Baumgart, G. Markewitz and W. Hartmann: *J. Appl. Cryst.*, 1 (1982), p. 412.
- 13) A. George and G. Michot: *J. Appl. Cryst.*, 15 (1982), p. 412.
- 14) Y. Nishino, M. Suzuki, T. Tono, H. Saka and T. Imura: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 20(1981), p. 1533.
- 15) K. Kawasaki, Y. Takagi, K. Nose, H. Morikawa, S. Yamazaki, T. Kikuchi and S. Sasaki: *Rev. Sci. Instrum.*, 63 (1992), p. 1023.

- 16) K. Kawasaki, H. Iwasaki, H. Kawata and K. Nose: Rev. Sci. Instrum., 63 (1992), p. 1110.
- 17) A. Guinier: Theorie et Technique de la Radiocristallographie, 2nd ed. (Dumond, Paris, 1956), Chap. 7.
- 18) S. Sasaki, T. Mori, A. Mikuni, H. Iwasaki, K. Kawasaki, Y. Takagi and K. Nose: Rev. Sci. Instrum., 63 (1992), p. 1047.
- 19) I. Nagakura: KEK 81-17 (1982).
- 20) J. Miyahara, K. Takahashi, Y. Amemiya, N. Kamiya and Y. Satow: Nucl. Instr. and Meth., A 246 (1986), p. 572.
- 21) S. Suzuki, M. Ando, K. Hayakawa, O. Nittono, H. Hashizume, S. Kishino and K. Kohra: Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res., 227 (1984), p. 584.
- 22) 鈴木茂雄, 河田 洋: 日本結晶学会誌, 24 (1982), P. 299.
- 23) 鈴木茂雄, 河田 洋: 日本結晶学会誌, 27 (1985), P. 128.
- 24) 千川純一, 佐藤史郎, 河村達郎, 山下 孝, 後藤直宏: 日本結晶学会誌, 24 (1982), P. 295.
- 25) K. Kawasaki, M. Matsuo and Y. Ushigami : Photon Factory Activity Report #4 (1986), P. 323.
- 26) 川崎宏一, 松尾宗次, 牛神義行, 河田洋: 鉄と鋼, 77 (1991), p. 2044.
- 27) F. Haessner and S. Hofmann: Recrystallization of Metallic Materials, edited by F. Haessner (Dr. Riederer-Verlag GMBH, Stuttgart, 1978), Chap. 4.
- 28) T. V. Philip and R. E. Lenhart, Trans. Met. Sci. AIME, 221 (1961), P. 439.
- 29) 中山正, 牛神義行: 製鉄研究, 337 (1990), p. 7.
- 30) Y. Inokuti, C. Maeda and Y. Ito: Metall. Trans. A, 16A (1985), p. 1613.
- 31) J. Harase and R. Shimizu: Acta. Metall. Mater., 38 (1990), p. 1395.

謝 辞

本研究の指導教官である高エネルギー物理学研究所放射光実験施設施設長，総合研究大学院大学数物科学研究科放射光科学専攻長岩崎博教授からは，研究全般に関して，御指導，御助言をいただきました。ここに深く感謝いたします。

高エネルギー物理学研究所放射光実験施設の河田洋博士にはX線トポグラフィの実験方法について御指導いただきました。雨宮慶幸助教授にはイメージングプレートの特性および実験方法について御指導いただきました。安藤正海教授，大隅一政教授および東京工業大学工学部の入野修教授には御助言，適切な御指摘をいただきました。ここに深く感謝いたします。

東京工業大学工業材料研究所佐々木聡助教授にはBL-3Aの光学系の利用法について御指導いただきました。ここに深く感謝いたします。

高エネルギー物理学研究所放射光実験施設の森丈晴氏にはBL-3Aの利用について御協力いただきました。杉山弘博士には御助言，御協力いただきました。ここに深く感謝いたします。

総合研究大学院大学数物科学研究科放射光科学専攻及び高エネルギー物理学研究所放射光実験施設の諸先生方には折りにふれ御助言，適切な御指摘をいただきました。また放射光実験施設および大学院学生の皆様方にはなにと御協力いただきました。ここに深く感謝いたします。

株式会社日鐵技術情報センターの松尾宗次博士に御指導をいただきました。ここに深く感謝いたします。

新日本製鐵株式会社先端技術研究所の長嶋晋一博士には二次再結晶機構に関する検討における協力を深く感謝いたします。

新日本製鐵株式会社先端技術研究所の所長村田朋美博士，前所長井上泰博士，佐伯正夫参与，小林尚部長には総合研究大学院大学への派遣の許可，励ましを受け深く感謝いたします。森川博文博士，高木康夫博士には励ましを受けまた協力していただき深く感謝いたします。日本鉄鋼連盟の大坪孝至博

士には励ましを受け深く感謝いたします。

本研究は新日本製鐵株式会社の電磁鋼板技術部，電磁材料研究部，広畑技術研究部の御理解，御協力のもとに可能となりました。高橋延幸参与，電磁鋼板技術部の平世和雄部長，酒井知彦部長代理，本城修部長代理，電磁材料研究部の植野清部長，中山正主幹研究員，牛神義行主任研究員，広畑技術研究部の塩崎守雄主幹研究員，島津高英主任研究員の諸氏に深く感謝いたします。

新日本製鐵株式会社鉄鋼研究所の能勢幸一研究員には実験方法の開発，実験の実行についての協力を深く感謝いたします。また日夜にわたる実験のサポートについて先端技術研究所の岩間亘氏，千葉實氏の多大な御協力に深く感謝いたします。先端的な装置開発のサポートについて菊池利治氏に深く感謝いたします。解析科学研究部をはじめ先端技術研究所の皆様方には私の高エネルギー物理学研究所への派遣に伴いなにかと御協力いただきました。深く感謝いたします。