

## 放射光による結晶粒方位分布変化の動的観察

川崎宏一, 岩崎 博\*

新日本製鐵(株) 先端技術研究所

\* 高エネルギー物理学研究所 放射光実験施設

**Dynamic observation of the changes in the orientation distribution of  
crystal grains using synchrotron radiation**

**Koichi Kawasaki and Hiroshi Iwasaki\***

Advanced Materials & Technology Research Laboratories, Nippon Steel Corporation

\* Photon Factory, National Laboratory for High Energy Physics

Taking advantage of the high brightness of synchrotron radiation, a method for the rapid measurement of the changes in the orientation distribution of crystal grains was developed. A polycrystalline sample in the high temperature furnace is rotated, while a two-dimensional x-ray detector, Imaging Plate, is doing a translational motion and receives Bragg reflection from a specific crystallographic plane. It takes 40 sec to record a pole distribution over an angle range of  $10^\circ$  on the surface of the sphere of poles. The method was applied to observe changes in the microstructure of silicon steel sheets in the secondary recrystallization process at 1233 K, and it was shown that  $\{110\}\langle 001 \rangle$  oriented grains grew, after a certain incubation period, at a burst and occupied most of the sample volume preferentially. When tensile strain was applied to the sample, growth of the grains was remarkably suppressed.

### 1. 序

現代の工業技術社会においては種々な「材料」が用いられているが、それらの大部分は金属及び合金である。これらの材料は板状の形をしていることもあるし、線状のこともある。また複雑な形状に加工されることもある。いずれの場合も材料

は多結晶状態であるが、結晶粒の方位がどのような分布をしているかは製造工程によって様々である。板状材料の場合、鑄塊 (Ingot) の状態から出発して、圧延、加熱が繰り返され実用に適する厚さに到るが、これらの工程を経るごとに結晶粒の方位分布は圧延集合組織といわれる状態になった

り、再結晶集合組織と呼ばれる状態になったりする。一方、材料の加工特性、磁気特性、電気特性などは結晶粒方位分布によって大きな影響を受けるので、望ましい方位分布が実現するように製造工程において工夫がなされている。

ところで、材料の結晶粒方位分布を表示する方法に極点図(pole figure)法がある。その原理については文献<sup>1)</sup>に詳しく記述されているのでそれに譲るとして、簡略に表現すれば、結晶粒の特定の原子面、例えば面心立方格子の{111}面、の法線の極の位置を極点球の表面上に表わしたものである。図1はアルミニウムの圧延板の{111}極点図である<sup>2)</sup>。図においてRDは板の圧延方向(Rolling Direction)、TDは板幅方向(Traverse Direction)である。円の中心が板面の法線方向である。このような極点図を実験的に決定する一般的な方法はX線回折法である<sup>1)</sup>。試料を回折計の中心に置き、X線計数管を特定の原子面からのブラッグ反射が観測される角度位置に固定し、回折計の試料回転機構を用いて試料の方位角、極角を変化させつつブラッグ反射の強度を測定する。そして強度を極点球の表面上に記録し、等高線で強度の

分布を表示する。このような測定法はpoint-by-point法といわれ、通常のX線源を用いて行うとすれば約1時間を要する。特に方位角、極角の細かい変化に対応する分布を見ようとすれば日単位の仕事となる。

材料研究においては結晶粒方位分布が加熱などによって急速に変化する様子を追跡し、材料特性変化のメカニズムを解明する必要が生ずる。ところが実験室X線源を用いたpoint-by-point法ではこのような追跡は不可能である。われわれは放射光の高輝度性を活用したX線回折研究を行っているが、高感度の二次元検出器を採用することにより材料の結晶粒方位分布変化の動的観察を可能にする方法を開発し、それを電磁鋼板の高温における二次再結晶過程の観察に応用することに成功した<sup>3)</sup>。本報においてはまず測定法について説明し、次に応用の結果を述べる。最後にこの測定法のさらに広範な応用の可能性についてふれる。

## 2. 測定法の原理

われわれが開発した測定法の説明図を図2に示す<sup>3)</sup>。図の左側の円は極点球(sphere of poles)であ

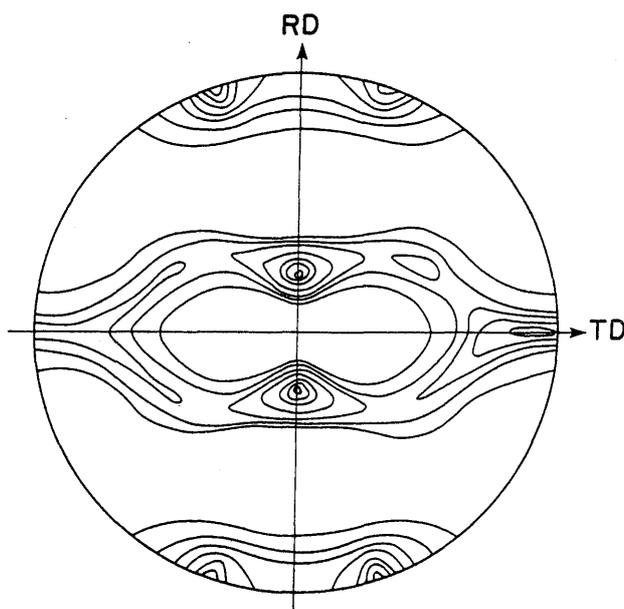


Fig.1 {111} pole figure of cold rolled aluminum sheet. RD: rolling direction and TD: traverse direction<sup>2)</sup>.

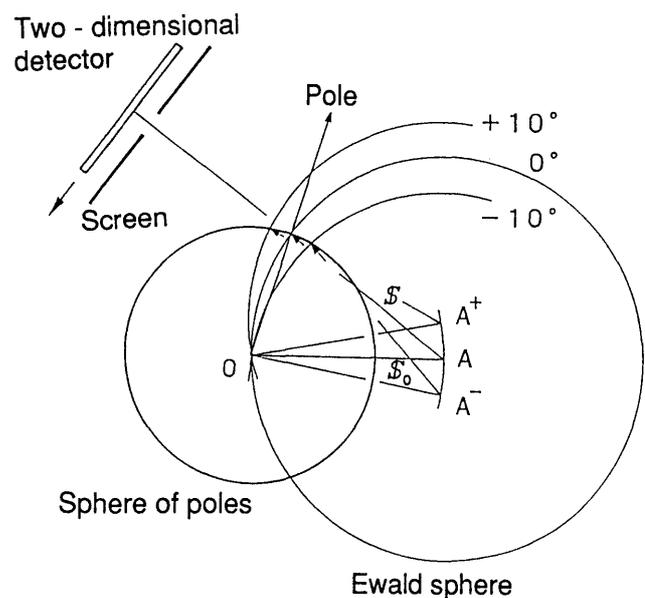


Fig.2 Schematic layout showing the principle of the two-dimensional recording of the pole figure.

り、それに交わる大きな円は Ewald 球 (Ewald sphere) を示す。極点球と Ewald 球との交線上にある法線の極に対応する原子面がブラッグ反射を起こすが、それは円弧の形となって図の左上方に置いてある二次元検出器に記録される。このとき測定しようとする原子面以外の原子面からも同時にブラッグ反射が生ずるので、それらを除外するために検出器の前に円弧型の開口部を持つスクリーンを置く。この配置において Ewald 球を回転させて (実際には試料を回転させて) 極点球との交線を移動させ、この回転運動に同期して二次元検出器を図に示す方向に平行移動させると、極点球面上の強度分布が検出器の面上に記録される。つま

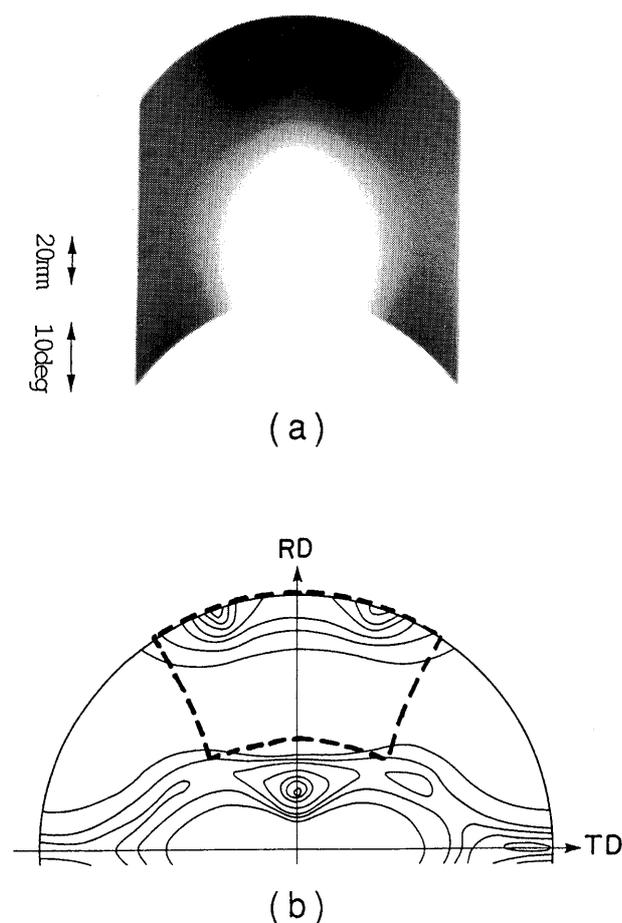


Fig.3 (a) Two-dimensional pattern of the orientation distribution, {111} poles, of crystal grains of cold rolled aluminum sheet, obtained using synchrotron radiation and Imaging Plate. (b) Part of the pole figure corresponding to the scanned area in (a).

り、Ewald 球が走査した範囲の極点図が二次元検出器上に転写される。当然のことではあるが、球面上の分布を非球面上に転写するのであるから極点図の形にひずみが導入されるし、回転速度の大小によって走査方向における極点図の尺度に大小が現れる。しかしこれらは測定結果の解釈に本質的な困難を導入するものではなく、必要があれば幾何学的補正を施してひずみのない極点図に変換することは可能である。

図3(a)は単色化された放射光 (波長 0.06nm) を入射線とし、二次元検出器として高い検出感度を持つイメージングプレート<sup>4)</sup>を用いて透過法により記録したアルミニウム冷間圧延板 (厚さ 1mm) の極点図 (部分) である。Ewald 球の回転角度範囲は 40° である。この測定において走査した極点図の領域を図3(b)に示す。北極近傍の2つの方位集積のピークとそのすぐ下方にある空白地帯が明瞭に捕らえられている。Ewald 球の回転角度範囲を大きくすれば図3(b)の扇形の幅が厚くなるし、スリット開口部の長さを大きくすれば扇形の広がりが大きくなる。図3(a)のパターンを得るのに要した時間は2分という短さであり、放射光の高輝度性がいかんなく発揮されている。もう一つの例として図4にアルミニウムの再結晶板について測定した極点図 (部分) を示す。走査した領

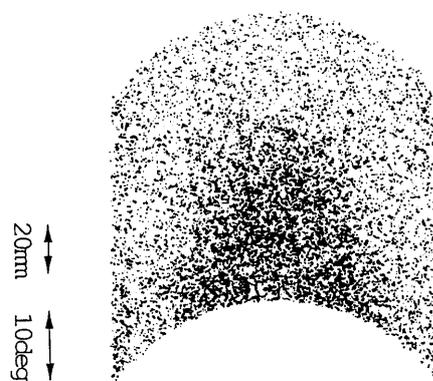


Fig.4 Two-dimensional pattern of the orientation distribution, {111} poles, of crystal grains of recrystallized aluminum sheet. The scanned area is the same as that in Fig.3 (a).

域は図3の場合と同じである。約800Kでの再結晶により集合組織が一変し、図3(a)において空白であった領域に集積のピークが移動していることがみとれる。ここで注目すべきは図3(a)では個々の結晶粒からの反射が分解されずに記録されているのに対して、図4では再結晶による粒成長の様子が明瞭に写し出されていることである。もしこの2つの試料を point-by-point 法で測定し、等高線で結晶粒方位分布を表示したならば2つの試料の相違は方位の集積のピークが移動したことしか表さないであろう。しかし、イメージングプレートによる二次元記録は、圧延直後は結晶粒が小さくしかも圧延歪が導入されていて極点図は連続的な濃淡模様となっているのに対し、再結晶すると粒が成長し歪も解放されて極点図は斑点の集合に変わっていることまでも示している。これはイメージングプレートの空間分解能の高さによるもので、材料の状態をより精確に伝えている。

なお、文献を調査してみると図2に示した極点図の二次元的記録のアイデアは Guinier<sup>9</sup> などによって1950年前後に提案されている。しかし、通常のX線源とX線用フィルムを用いたのでは一枚のパターンを得るのに長時間を要し、実用化されるに到らず、これらは埋没されたまま経過していた。

さて放射光を用いることにより極点図(部分)が分単位の時間で記録できるとなると材料の結晶粒方位分布の変化を実時間で追跡することが可能となる。すなわち図2においてEwald球の回転運動(実際は試料の回転運動)を繰り返させ、一方長尺の二次元検出器を一方向に連続的に移動させることにより、極点球面上の同一角度範囲の極の分布が時間を追って記録されるのである。これがわれわれの開発した結晶粒方位分布の動的観察法である。次章においてその具体的な実験配置について説明する。

### 3. 電磁鋼板の高温における二次再結晶過程の観察への応用

#### 3.1 電磁鋼板の二次再結晶

変圧器、モーターなど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;重量%)は鉄損と呼ばれるエネルギー損失が最小になるような性質が要求される。電磁鋼板は日本で一年間に約100万t消費されていて、鉄損を電力代に換算すると一年間に約1兆円の巨額にのぼる。鉄損の低減は省エネルギーのための緊急かつ重要な課題である。素材を溶解したのち凝固させ、2回の圧延(高温圧延+常温圧延)、2回の加熱(短時間加熱及び高温加熱)を経て実用の段階に到達する。圧延材を短時間(1分程度)加熱すると一次再結晶が生じ<sup>6)</sup>、微細な結晶粒組織(一次再結晶組織)が得られる。図5(a)にこの組織の常温での光学顕微鏡写真を示すが、直径約20 $\mu$ mの均一な微細結晶粒の集合となっている。この段階では鉄損はまだ大きい値を示す。高温加熱(1233K, 10分)を行うと二次再結晶とよばれる重要なマイクロ変化が起き、結晶粒の巨大化が生ずる。そして鉄損が低減することが知られている。図5(b)に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あるが、直径2~5mmに達する巨大な結晶粒が生成していることがわかる。

図5(a), (b)に示す組織に対応する結晶粒方位分布図(極点図)を図6(a), (b)に示す。(a)は point-by-point 法により、(b)はラウエ法による測定データ<sup>7)</sup>に基づき作成したものである。Fe-3%Si合金の結晶構造は体心立方格子構造であり、図6はその{100}面の法線の極の分布である。(a)は高温加熱前の状態で北極および南極付近にゆるやかな方位集積のピークがある。ところが、二次再結晶が起こった後は(b)に示すように北極、南極に加えて赤道線上の二つの位置に鋭い方位集積のピークが生じている。図6(b)の方位分布は結晶の{110}面が板の圧延面に平行に、<001>方向が圧延方向に平行になっていることを示してい

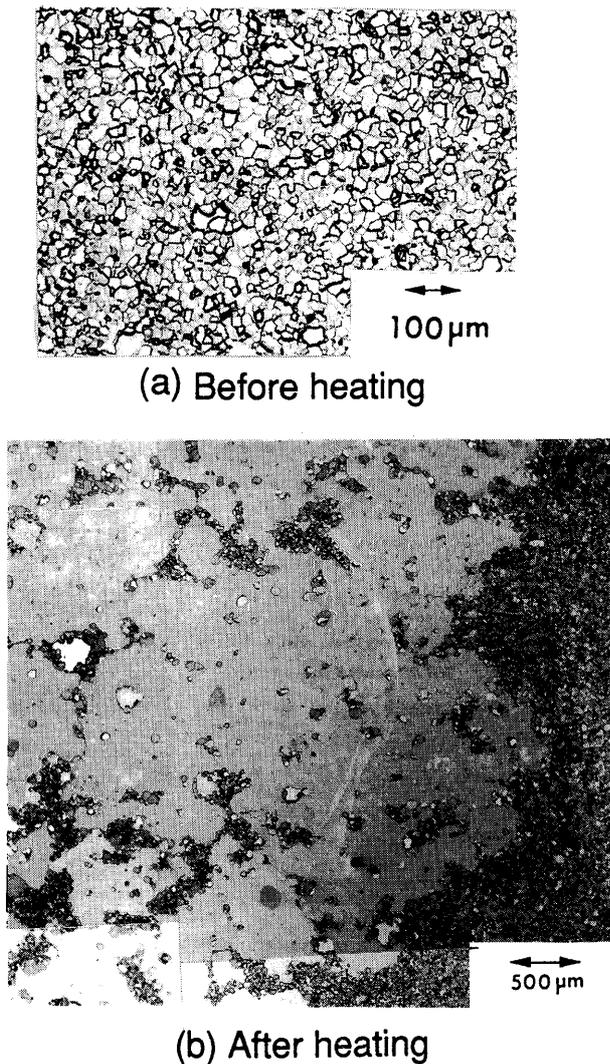


Fig.5 Optical micrographs of silicon steel sheet, (a) before heating and (b) after heating, showing an appreciable growth of crystal grains by secondary recrystallization.

るが、合金の容易磁化軸は $\langle 001 \rangle$ 方向であるので圧延方向の鉄損を下げる結果となっている。このような結晶粒方位は製造法の発明者の名にちなんでゴス方位と呼ばれ<sup>9)</sup>、 $\{110\} \langle 001 \rangle$ 方位と表記される。電磁鋼板の製造工程のポイントはいかに多くの大きなゴス方位結晶粒を作り出すかにあるといえる。実際の材料では $\{110\}$ 面および $\langle 001 \rangle$ 方向がそれぞれ板面および圧延方向に完全に平行となることは少ないが、理想的方位から $7^\circ$ 以内の範囲に収まっていればそれらをゴス方位と定義している。

ところで、二次再結晶のための高温加熱中にど

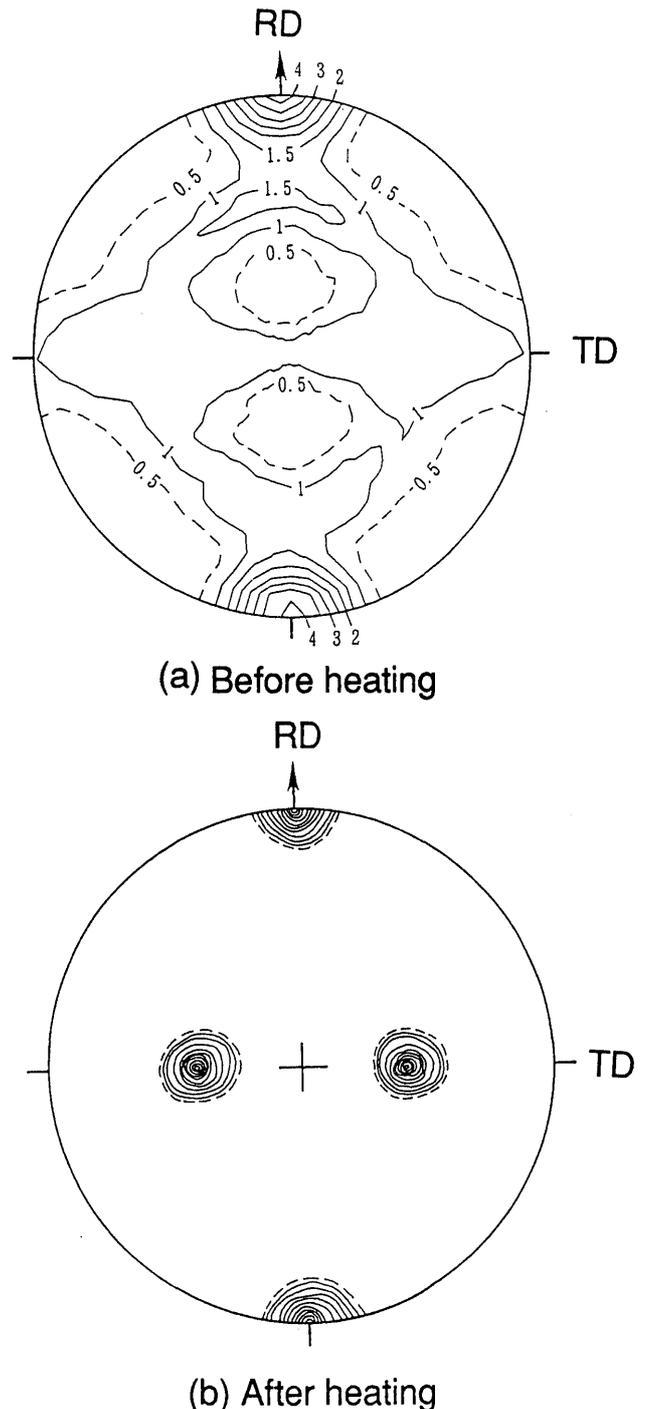


Fig.6  $\{100\}$  pole figures of silicon steel sheet, (a) before heating and (b) after heating, showing the formation of sharp peaks due to secondary recrystallization.

のような機構で結晶粒の方位変化が起こり、粒成長が進むのかを実環境、実時間の条件下で観察する試みは未だなされたことがない。ただし Tanner<sup>9)</sup>らによる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あるが、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到っていない。その他高温再結晶過程に関する観察があるにはあるが断片的または平均的な情報が得られただけで、動的過程については全く知見が得られていない<sup>6, 10-13)</sup>。従って電磁鋼板の高温における二次再結晶過程はブラックボックスのまま残されていたのである。

### 3.2 動的観察用高温加熱炉

電磁鋼板を実際の製造工程と同じ環境下に置いて観察するために動的観察用高温加熱炉を製作した。図7にその模式図(正面図)を示す。図中右下に斜線で示した試料は厚さ0.1~0.2mm, 長さ70mm, 幅10mmの板状で、長さ25mm, 幅8mmの平行部を有している。ヒーターは高温保持時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高靱性のC/Cコンポジット(C/C composite)板を用い、セラミックス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とした。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、靱性ととも強度においても優れている。ヒーター板のスリットの形状を工夫し、抵抗発熱の効率を上げるようにした。この方式で均熱性は1233Kにおいて5mm×5mmの面積で±2K以内、温度変化に対する追従性は2K/秒が得られた。炉体の窓は入射側はベリリウム箔、出射側はカーボン板を用いた、加熱中、炉内を中性雰囲気を保つ必要があるのでアルゴンガスを流すようにした。試料温度の測定には熱電対を使用し、PID制御方式により目標温度に対する変動を1233Kにおいて±1K以内とした。この加熱炉において回折X線の検出角度範囲(2θ)は垂直方向で-30~+60°, 水平方向で±40°である。二次再結晶に対する引張歪の影響を調べるために、加熱炉に引張り歪を加える機構を附加した。図7の左側に示すのがそれで、パルスモーターと減速歯車により試料に連結してある片側のチャックを精密に一定速度で移動させる機構となっている。

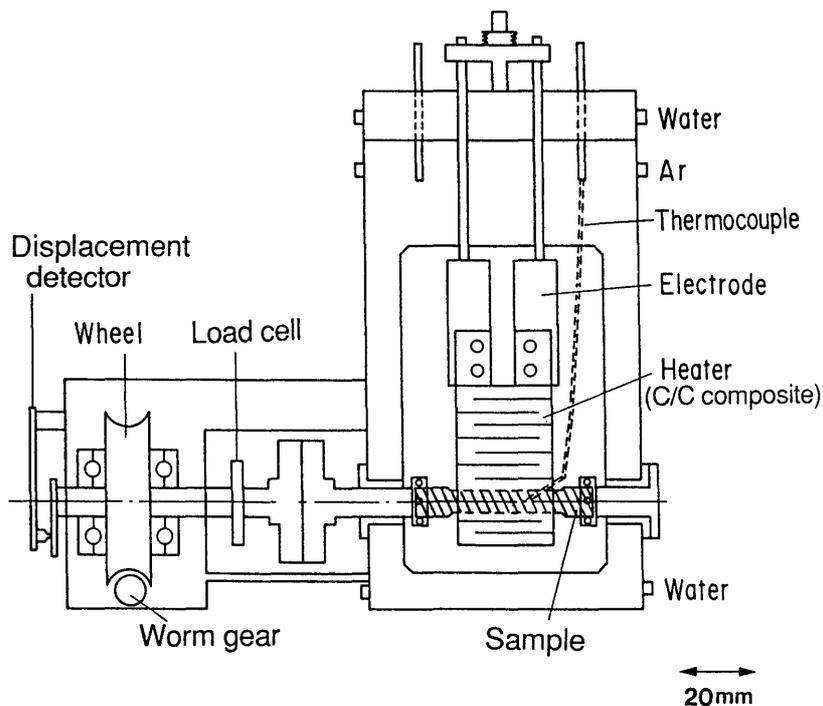


Fig.7 The structure of the high temperature furnace equipped with a tensile device employed for the dynamic measurement. The windows are removed.

### 3.3 放射光を用いた結晶粒方位分布変化の測定装置

結晶粒方位分布変化の測定装置の概念図を図8に示す。高エネルギー物理学研究所放射光実験施設の2.5GeVリングのビームラインBL-3A<sup>14)</sup>に設置してあるX線四軸回折計<sup>15)</sup>の試料部に高温加熱炉を装着した。試料を入れた加熱炉を回折計の $\phi$ 軸の機構を用いて回転させる。それと同時に二次元検出器の移動を回折計の $2\theta$ 軸の回転機構を用いて行う。

図9は測定装置全体の写真である。中央に見えるのが回折計の $\chi$ 円の中心にある加熱炉である。また円弧型の開口部を有するスクリーン、そして

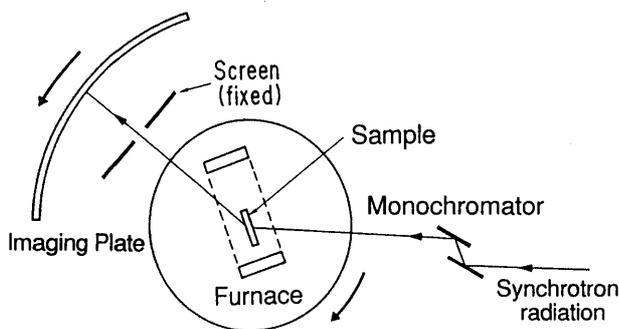


Fig.8 Schematic layout of the experimental setup for the measurement of the time change in the pole figure.

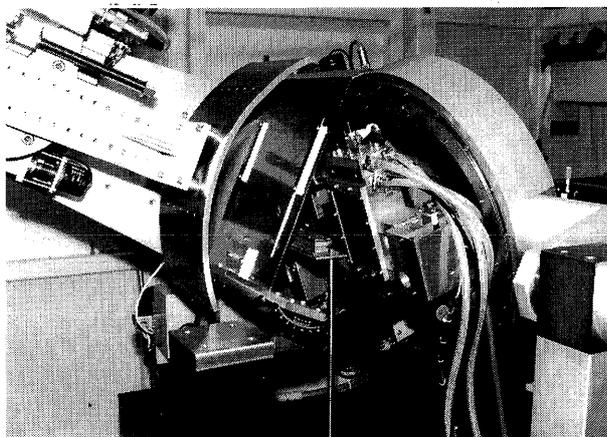


Fig.9 A photograph of the experimental setup for the measurement of the time change in the pole figure. At the beamline BL-3A at the Photon Factory.

イメージングプレートを貼付した湾曲ホルダーが見える。試料からスクリーンまでの距離は200mm, 検出器までの距離は300mmである。ここで検出器として用いたイメージングプレートは幅200mm, 長さ400mmの大きさである。

BL-3Aは偏向電磁石からの放射光を利用するビームラインで, 一対のシリコン単結晶((111)面が反射面)がモノクロメータを構成している<sup>14)</sup>。前述したように加熱炉内の試料に入射し, 回折するX線は炉の窓材, ヒーター板, セラミックス板を通過する。これらによる吸収効果を小さくするためには使用する放射光の波長が短ければ短いほど良いが, 放射光のスペクトルは短波長側に行くと強度が弱くなるという事情がある。また回折計に広面積の二次元検出器を設置する角度位置にも制限がある。これらの諸因子を考慮して最適波長として0.06nmを選択した。放射光の大きな特徴はこのように波長選択の自由度があることで, 実験条件の設定がきわめて容易になる。この波長での試料, 窓材, ヒーター板などによる全吸収を $\mu t$ 値で表現すれば4.0である。

測定実験時における光源リングの平均電流値は300mAであった。BL-3Aにおける試料位置は光源から28mの距離にある。モノクロメータの第二結晶を湾曲し, 単色化された入射光を水平面内で集光させた。試料に入射するビーム寸法は縦4mm, 横4mmとした。

### 3.4 二次再結晶過程の動的観察

電磁鋼板の二次再結晶に伴う結晶粒方位分布の変化の追跡を行うにあたって, 全過程が10分程度の時間で終わることを考慮して極点図の中の重要な部分を選定し, そこに焦点を当てて測定するという方法を取った。図10は高温加熱をする前(一次再結晶後)の電磁鋼板の極点図において測定を行った領域を斜線を施して示したものである。第一シリーズの測定では(a)に示すように北極近傍の変化が, 第二シリーズの測定では(b)に示すよ

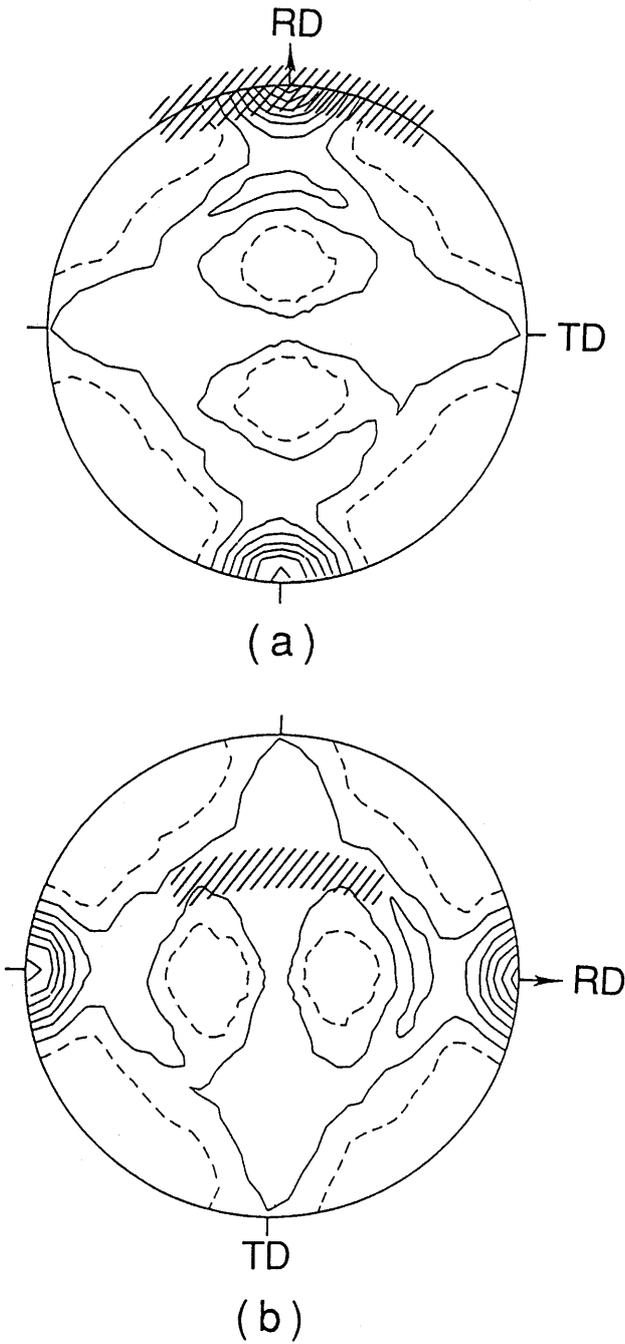


Fig.10 Scanned area shown hatched in the {100} pole figure of the silicon steel sheet, (a) around the North Pole, (b) near the Equator.

うに赤道周辺の変化が追跡された。(a)の測定では試料片はTD方向(圧延方向と直角方向)に長く、(b)の測定ではRD方向(圧延方向)に長く切り出されている。斜線領域を走査するに要するEwald球の回転角度範囲は10°であった。試料片を加熱炉内にセットし1秒に1Kの速さで温度上昇さ

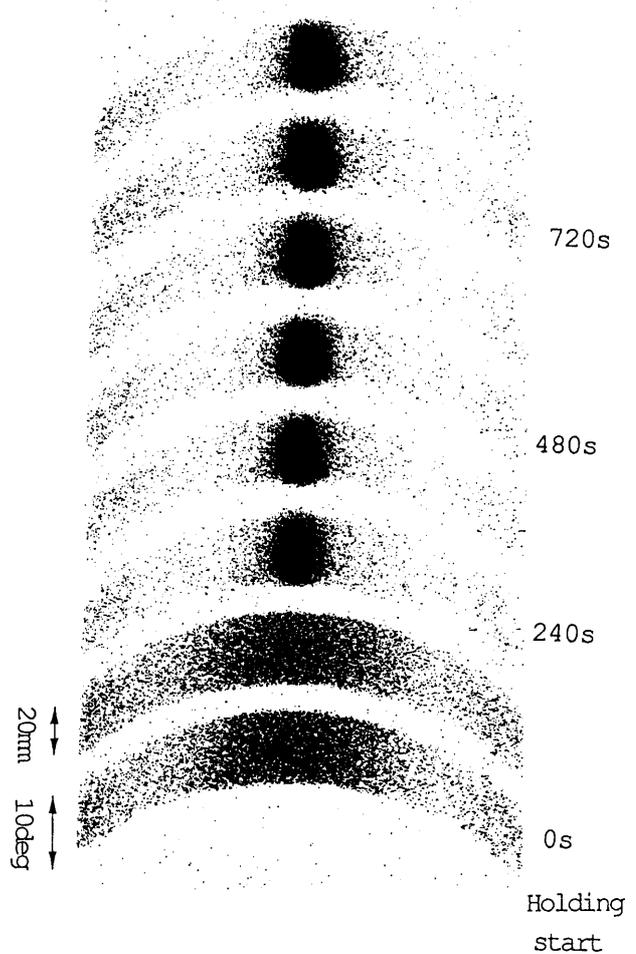


Fig.11 Time change in the distribution of the {100} poles of the silicon steel sheet during the secondary recrystallization at 1233 K. Each arc shaped pattern shows the distribution over an angle range of 10° around the North Pole of the sphere of poles. Time required to record one pattern was 40 s while the time interval between the pattern was 80 s.

せ、1233Kに達したところで等温保持し、測定を開始した。その結果を図11に示す。これは北極近傍の極点図の変化である。温度の上昇によりブラッグ反射の強度が著しく減少するが、それでも10°の角度範囲のパターンを記録するのに要する時間は40秒であった。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ある。1回の走査を終えると試料の角度位置を元に戻し、次の走査を始めるがそれまでに80秒を要するので2回目の走査は加熱開始後120秒経ってからになる。加熱直後(最下部)のパターンは加熱前の極点図

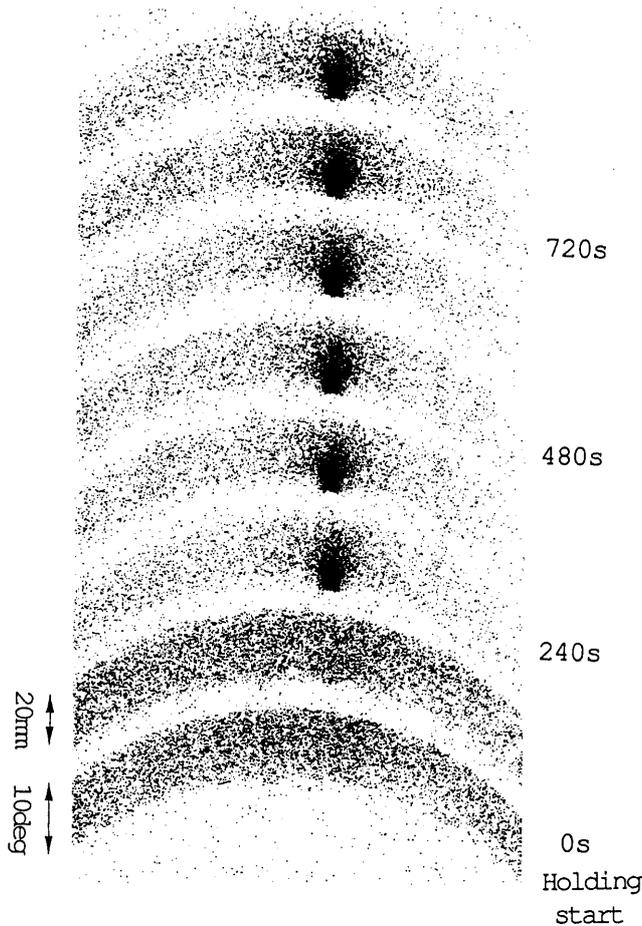


Fig.12 Time change in the distribution of the {100} poles of the silicon steel sheet during the secondary recrystallization at 1233 K. Each arc shaped pattern shows the distribution over an angle range of  $10^\circ$  near the equator of the sphere of poles. Time required to record one pattern was 40 s while the time interval between the pattern was 80 s.

(図10(a))に対応した結晶方位分布の集積を示している。加熱によってすぐには変化が生じないことを示している。次の120秒経過後のパターンでも同様である。しかし、240秒後には突然激しい結晶粒方位分布の集中が生じ、鋭いピークが形成されていることが見られる。このピークは時間の経過とともにその高さを増していく(図では写真濃度の飽和のためにこのことがハッキリとは表されていない)。次に赤道近傍の極点図の変化の連続測定結果を図12に示す。最初のパターンは高温加熱前の極点図(図10(b))と対応して方位集積の

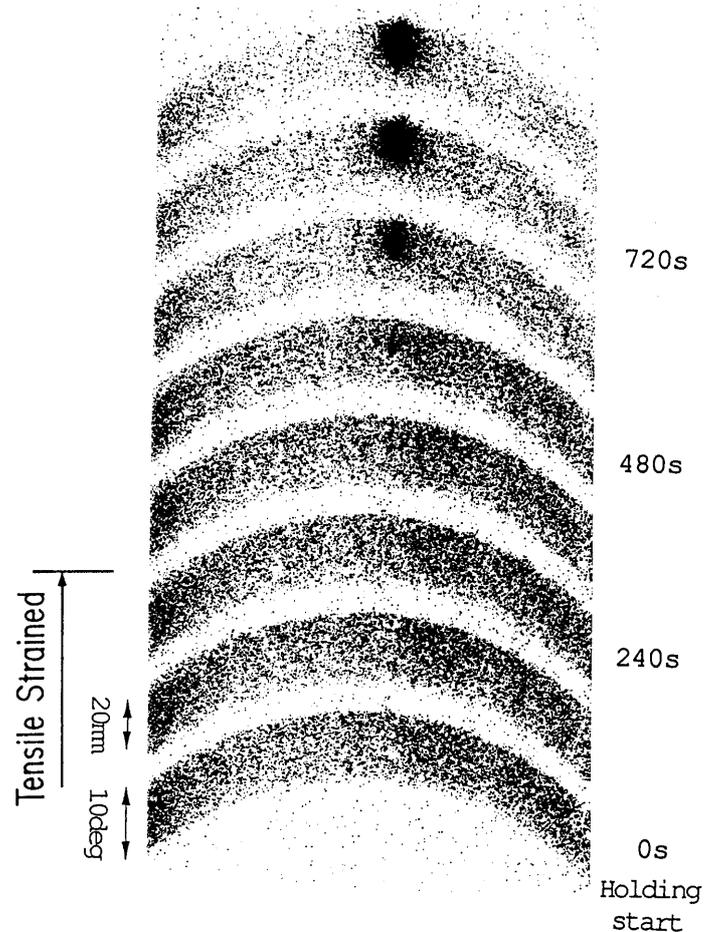


Fig.13 Same as Fig.12, except that tensile strain was applied for the first 300 s of the holding.

見られない分布を呈している。ここでも加熱後240秒経過してから爆発的な鋭いピーク出現がみられる。図11および図12で出現したピークは図6(b)に示したピークに対応するもので、ゴス方位の結晶粒からのものである。以上に示したように電磁鋼板の二次再結晶過程の初期には何の変化も起きていないように見える期間があるが、これを潜伏期間と呼ぶことにする。潜伏期間の存在とそれに続く爆発的な粒成長は動的観察によってはじめて確認されたものである。

次に二次再結晶過程に及ぼす歪の影響を調べた。歪附加は加熱途中の973Kの温度で開始し1233Kに到達後300秒までの間で行った。試料片のチャック移動速度は $1 \mu\text{m}/\text{秒}$ とした。これは歪速度にすると $10^{-6}/\text{s}$ オーダーである。引張方向

はRD, TDおよびRDとTDの中間の3方向を選択したが結果に差異は見られなかった。

図13に引張歪附加時の結晶粒方位分布の連続測定結果を示す。これは極点図の赤道近傍の領域である。ここで注目すべきは引張歪が附加されている間は結晶粒方位の集積のピークの爆発的出現が抑制されていることである。引張歪の附加の中止とともに方位集積のピークが出現する。北極近傍においても同様の現象が観測された。これらの結果はゴス方位粒の成長の駆動力が引張歪の存在によって減殺されることを示している。

二次再結晶過程に潜伏期間が見いだされたが、この期間はマイクロにみたとき何を意味しているだ

ろうか？ それをしらべるために詳細な観察を行った。S/N比を改善するために中心付近を厚さ0.10~0.12mmとなるように片面から化学研磨した試料片を用いた。この試料片でも厚さ0.20mmの試料片で観測したのと同様な二次再結晶が生じることを確認した。図14に極点図の北極近傍のパターンを8倍に拡大したものを示す。イメージングプレートに記録されている多くの回折斑点が明瞭に識別できる。斑点が水平方向に伸びてい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。図において0秒, 120秒という時期は潜伏期間に相当する。0秒, 120秒の二つのパターンには一見変わりがないようであるが、対応する

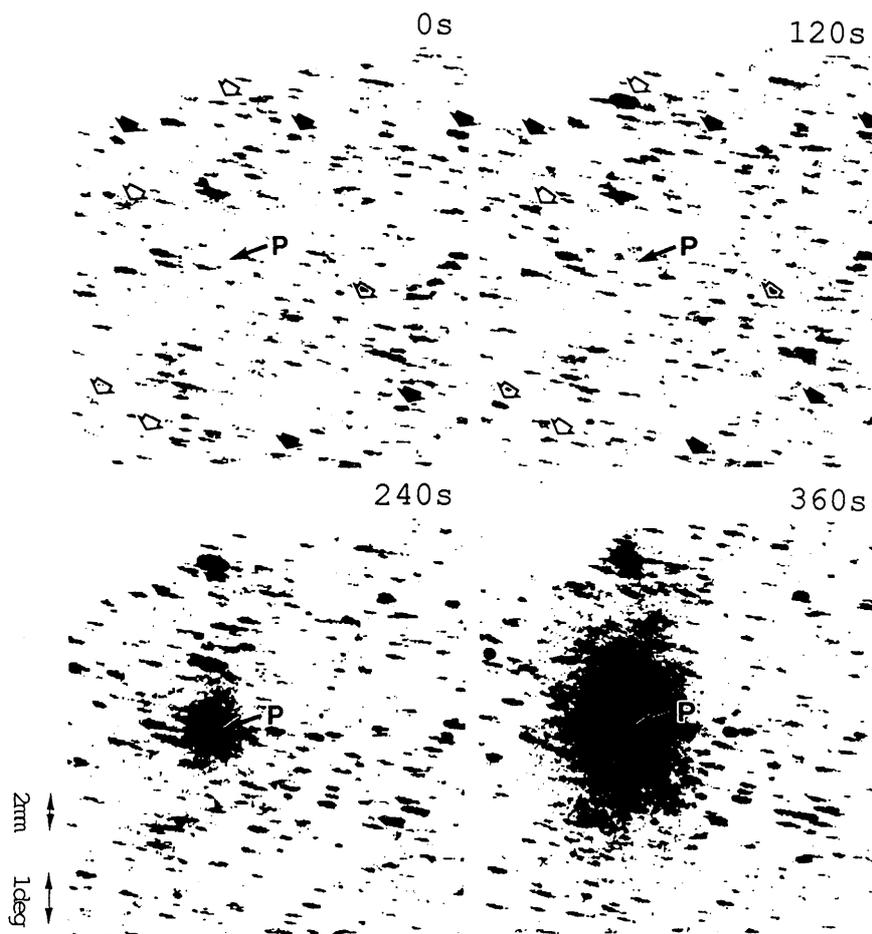


Fig.14 A series of magnified image of the arc shaped pattern showing the change in the distribution of the Bragg spots. White arrows indicate the spots which increased in size and/or blackening during the incubation period and black arrows indicate the spots which decreased in size and/or blackening.

斑点を詳しくしらべてみると、斑点が大きくかつ黒化度が強くなっているもの（白矢印で示した）と、その反対に斑点が小さくかつ黒化度が弱くなっているもの（黒矢印で示した）のあることがわかる。これは個々の結晶粒の大きさが変化していることによると解釈できる。つまり、潜伏期間においては材料全体にわたる変化は生じないが、それを構成する結晶粒（平均の大きさ  $20\ \mu\text{m}$ ）の大きさに「ゆらぎ」が生じていることを示している。図14で240秒経過したパターンには中央部にPで示した方位集積のピークが現れ、360秒ではそれが急激に成長していることが見られる。ところがP点の位置を120秒、0秒というように時間をさかのぼってしらべてみるとそこには明瞭な斑点は認められない。このことは重要な意味をもっている。すなわち、二次再結晶でゴス方位の粒が急成長するとき、その核となる結晶粒は潜伏期間では存在しない（あるいは存在しないように見える）。これはゴス方位粒の成長のメカニズム解明のためのヒントを与えている。

上述した結晶粒方位分布変化の観察を補うために、放射光による動的顕微トポグラフィ観察を行った。その詳細は文献(16), (17)に譲るとして、その結果を図15に示す。この場合加熱温度は1273Kである。図に記載してある時間は試料がこの温度になってからのもので、二次再結晶過程の後期に相当する。各画面において白く明度の高い領域が二次再結晶によってできた巨大粒である。その上方の暗い領域との境界が結晶粒の成長に伴って移動する界面である。図15からわかることは

- (1) 二次再結晶の界面は不規則な形状をしている。
- (2) 界面の突出部は優先的に前進し、凹部は移動が遅れる。
- (3) 界面の移動は一定の速度で進むのではなく、速く進み、ついで遅く進む、というように不均一である。

### 3.5 電磁鋼板の二次再結晶に関する学説

図16に電磁鋼板の二次再結晶の機構に関して提

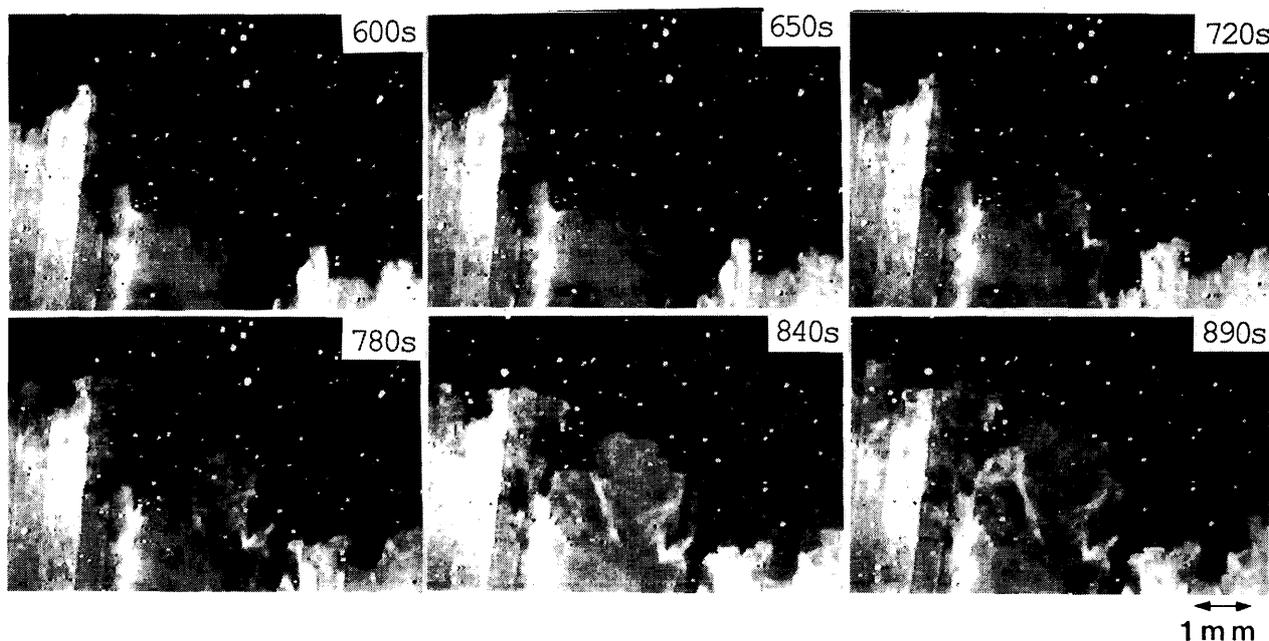


Fig.15 A series of topographic images of silicon steel sheet obtained by catching one of the Laue spots from the Goss grains using the SATICON TV camera, showing inhomogeneous and discontinuous migration of the recrystallization front.

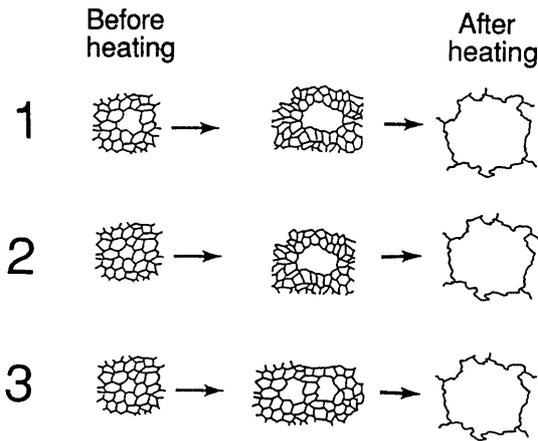


Fig.16 Three different models for the secondary recrystallization process of silicon steel sheet. 1: oriented nucleation (Goss grains exist before heating), 2: oriented nucleation (Goss grains are formed during the incubation period), 3: preferential growth (Goss grains have higher growth rate).

案されてい学説を図示する。これらは高温加熱の前と後での観察や加熱中から急冷しての組織観察に基づいて提案されているもので次の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

第1の説は高温加熱する前、つまり一次再結晶の後、に相当の大きさのゴス方位をもつ結晶粒が核として存在していて、その後の高温加熱ではこの核が順調に成長する、という考えであって、旧くから広く唱えられてきた。

第2の説は高温に加熱されている間に、ゴス方位をもつ微細粒がなんらかのきっかけで優先的に核化し、巨大化するという説である<sup>11, 13, 18)</sup>。ゴス方位粒の成長開始時期が早いと他の粒との競合成長において有利となるという考えである。

第3の説はゴス方位粒の成長速度が他の方位の粒より大きいと、ゴス方位粒の優位性が決定されるという立場である<sup>19, 20)</sup>。この説では核化時にゴス方位粒の優位性は何等存在しない。

上述した結晶粒方位分布変化の観察および放射

光を用いた動的ラウエポグラフィによる結晶粒の形状と大きさの変化の観察<sup>3)</sup>の結果を総合すると、上記3つの学説の中、第2の「潜伏期ゴス粒形成説」がもっとも妥当であると判断できる。しかし、潜伏期間でのゴス方位粒の挙動についての情報が得られていないので、核化の時期あるいは成長速度のいずれが重要であるかまでは決定できなかった。今後一層の研究が必要である。

#### 4. 動的観察法としての本測定法の発展の可能性

本稿で紹介した動的観察法は結晶の逆格子空間に広がる強度分布を二次元的に迅速に記録する方法であり、Ewald球の回転と二次元検出器の(平行)移動という二つの運動の組合せより成っている。使用するX線源の輝度がさらに上がれば動的観察の時間間隔を短縮することができるが、装置の機械的構造から考えて秒単位以下にすることは難しいと思われる。しかしこのような分単位の記録でも材料の組織変化について多くの知見が得られることが期待される。板状材料の場合、加熱だけではなく、引張り、ねじりなどの応力附加、強磁場の附加などによる変化の追跡などを材料の種類を金属、合金に限定せず、無機物、高分子などに広げれば面白いテーマが数多く見つかるであろう。

板状材料による透過型回折だけでなく、反射型回折も可能であるのでかなりの厚さの材料に対しても適用できる。また線状材料でも測定可能であるので、例えばワイヤーの結晶組織の変化も追跡できる。

一方、Ewald球が走査する領域が極点球の表面ではなく、逆格子空間の特定の平面となるような運動をさせ、それに応じてスクリーンの開口部の位置を連動させる(回折角度位置を変える)と、例えばせんい状構造の材料の層線面上の強度分布が記録でき、その時間変化が追跡できるし、単結晶材料にみられる平板状散漫散乱強度分布の変化

も追跡できる。

## 謝辞

本稿を終わるにあたり、研究に協力いただいた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、新日本製鐵株式会社の能勢幸一氏に深く感謝いたします。イメージングプレートの利用について助言いただいた高エネルギー物理学研究所放射光実験施設の雨宮慶幸博士、二次再結晶機構に関して討論していただいた元横浜国立大学教授長嶋晋一博士、株式会社日鐵技術情報センターの松尾宗次博士に深く感謝いたします。また東京工業大学工業材料研究所佐々木聡博士にはビームラインBL-3Aの光学系について助言いただきました。ここに深く感謝いたします。

## 文献

- 1) 松尾宗次：集合組織（長嶋晋一編著）（丸善，1984），第1章.
- 2) H. Hu, P. R. Sperry and P. A. Beck: *Trans. AIME*, **194**, 76(1952).
- 3) K. Kawasaki, H. Iwasaki, H. Kawata and K. Nose: *Rev. Sci. Instrum.*, **63**, 1110(1992).  
川崎宏一：博士論文，総合研究大学院大学(1992).
- 4) J. Miyahara, K. Takahashi, Y. Amemiya, N. Kamiya and Y. Satow: *Nucl. Instr. Meth.*, **A 246**, 572(1986).
- 5) A. Guinier: *Theorie et Technique de la Radiocristallographie*, 2nd ed. (Dumond, 1956), Chap. 7.
- 6) 武智 弘, 川崎宏一：集合組織（長嶋晋一編著）（丸善，1984），第3章.
- 7) S. Taguchi: *Trans. ISIJ*, **17**, 604(1977).
- 8) N. P. Goss: U. S. Patent 1 965 559, (1934).
- 9) I. B. MacCormack and B. K. Tanner: *J. Appl. Cryst.*, **11**, 40(1978).
- 10) 松尾宗次：鉄と鋼，**70**, 2090(1984).
- 11) M. Matsuo: *ISIJ Int.*, **29**, 809(1989).
- 12) T. V. Philip and R. E. Lenhart: *Trans. Met. Sci. AIME*, **221**, 439(1961).
- 13) T. Sakai, M. Matsuo, M. Tanino, T. Shindo and M. Shiozaki: *Proc. 6th Intern. Conf. on Texture of Materials, Tokyo, 1981, (ISIJ, 1981)* 938.
- 14) S. Sasaki, T. Mori, A. Mikuni, H. Iwasaki, K. Kawasaki, Y. Takagi and K. Nose: *Rev. Sci. Instrum.*, **63**, 1047(1992).
- 15) K. Kawasaki, Y. Takagi, K. Nose, H. Morikawa, S. Yamazaki, T. Kikuchi and S. Sasaki: *Rev. Sci. Instrum.*, **63**, 1023(1992).
- 16) K. Kawasaki, M. Matsuo and Y. Ushigami: *Photon Factory Activity Report #4*, 323(1986).
- 17) 川崎宏一, 松尾宗次, 牛神義行, 河田洋：鉄と鋼，**77**, 2044(1991).
- 18) Y. Inokuti, C. Maeda and Y. Ito: *Metall. Trans. A*, **16A**, 1613(1985).
- 19) 中山正, 牛神義行：製鉄研究，**337**, 7(1990).
- 20) J. Harase and R. Shimizu: *Acta. Matall. Mater.*, **38**, 1395(1990).

## キーワード

### 極点図 (pole figure)

多結晶材料においては原子面の法線の極は球面上に広く分布しており、この球を極点球と呼ぶ。板状試料の場合ND(圧延面法線方向)を頂点とした半球上の極の分布を平面に投影したのが極点図である。{100}面の極についての極点図を{100}極点図という。極点図の測定法には反射法と透過法とがある。{100}極点図を測定する場合は検出器(シンチレーションカウンター)を100反射(または200反射)の回折角度位置に固定し、試料の方位をステップ角度走査で変化させる(point-by-point法)。角度走査には $\alpha$ 回転と $\beta$ 回転があるが、透過法では $\alpha$ 回転は回折面に垂直な試料回転軸( $\omega$ 軸)まわりの回転、 $\beta$ 回転はND軸まわりの回転である。ステップ角度は $\alpha$ 、 $\beta$ ともに $5^\circ$ に選ぶのが一般的である。極点図上に方位の集積が強く見られる状態を集合組織(texture)という。

### 二次再結晶 (secondary recrystallization)

均一な大きさ(例えば $10\sim 30\mu\text{m}$ )の結晶粒組織が加熱により巨大な粒となる現象で、異常な粒成長の一種である。本来再結晶(recrystallization)とは結晶組織が別の結晶組織に置き代わることをいうが、一次再結晶(primary recrystallization)とは加工により生じた変形結晶組織が、加熱により加工歪が解放され別の結晶組織に置き代わる現象である。これに対し、二次再結晶は一次再結晶組織が粒界エネルギーを駆動力として(すなわち粒界の面積を減らすように)巨大粒となる過程である。電磁鋼板では巨大粒化に伴い、結晶粒方位がそろおうようにして低鉄損化に結び付けている。