

DOI: 10.7652/xjtuxb201311015

低温普通取向硅钢高温退火过程中高斯晶粒的演变

樊立峰^{1,2}, 凌晨^{1,2}, 付兵^{1,2}, 项利^{1,2}, 唐广波³, 仇圣桃^{1,2}

(1. 钢铁研究总院先进钢铁流程及材料国家重点实验室, 100081, 北京; 2. 钢铁研究总院连铸技术
国家工程研究中心, 100081, 北京; 3. 钢铁研究总院特殊钢研究所, 100081, 北京)

摘要: 对低温加热工艺生产的普通取向(common grain-oriented, CGO)硅钢的高温退火过程进行了中断实验,材料为含3.0% Si、0.5% Cu、0.009 8% S(均为质量分数)的以Cu₂S为主抑制剂的普通取向CGO钢。原始板坯厚度为230 mm,于1 200℃均热后经4道次粗轧、7道次精轧至2.3 mm;热轧板采用两次冷轧法轧至0.3 mm,中间完全脱碳退火,最后于1 200℃高温退火。最后样品的磁性能:铁损 $P_{17/50}$ 为1.182 W/kg,磁感应强度 B_8 为1.897 T。借助配有EDAX OIM电子背散射衍射(EBSD)系统的ZEISS SUPRA 55VP扫描电子显微镜,对高温退火过程中高斯晶粒的演变进行了研究,结果表明:升温过程中晶粒尺寸增长缓慢,650℃时取向分布函数(ODF)图出现高斯织构组分,但强度很弱,高斯晶粒偏离角小于9°;950℃时高斯晶粒平均生长速度超过其他晶粒;950~1 000℃时高斯晶粒异常长大,偏离角降至约3°;在950℃之前高斯取向晶粒相比于其他晶粒没有尺寸优势。

关键词: 取向硅钢;高斯织构;二次再结晶;晶粒尺寸

中图分类号: TG142.77 **文献标志码:** A **文章编号:** 0253-987X(2013)11-0081-06

Evolution of Goss Texture in Annealing Process at High Temperature of CGO Silicon Steel with Slab Reheating at Low Temperature

FAN Lifeng^{1,2}, LING Chen^{1,2}, FU Bing^{1,2}, XIANG Li^{1,2}, TANG Guangbo³, QIU Shengtao^{1,2}

(1. State Key Laboratory of Advanced Steel Processing and Products, Central Iron and Steel Research Institute, Beijing 100081, China; 2. National Engineering Research Center of Continuous Casting Technology, Central Iron and Steel Research Institute, Beijing 100081, China; 3. Research Institute of Special Steel, Central Iron and Steel Research Institute, Beijing 100081, China)

Abstract: The high-temperature annealing process of common grain-oriented (CGO) silicon steel was investigated by interrupting test. The samples were rolled from CGO silicon steel slab under low reheating temperature. The CGO silicon steel, taking Cu₂S as the main inhibitor, contains 3.0%Si, 0.5%Cu, and 0.0098%S. The original casting slab is 230 mm in thickness. After 1 200℃ reheating, four-pass rough rolling and seven-pass finish rolling were conducted to make the thickness of the slab get to 2.3 mm. Then the hot rolled plate was cold-rolled twice to 0.3 mm with intermediate decarburizing annealing and final 1 200℃ annealing. The final iron loss $P_{17/50}$ is 1.182 W/kg, and magnetic remanence B_8 reaches 1.897 T. The evolution of Goss texture in the high-temperature annealing process was analyzed by ZEISS SUPRA 55VP SEM with EBSD system. The results show that: Grains grow up slowly with the increase in temperature; Goss texture appears in ODF of the sample annealed at 650℃, its intensity is very weak and the

收稿日期: 2013-03-20。 作者简介: 樊立峰(1980—),男,博士生;仇圣桃(通信作者),男,教授,博士生导师。 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(50934009)。

网络出版时间: 2013-09-06

网络出版地址: <http://www.cnki.net/kcms/detail/61.1069.T.20130906.1703.001.html>

deviation angles of Goss grains are smaller than 9° ; The average growth rate of Goss grains is higher than that of other grains at 950°C ; Goss grains grow abnormally within $950\sim 1\,000^\circ\text{C}$, and the deviation angles decrease to about 3° ; Goss grains have no size advantage before abnormal growth.

Keywords: grain-oriented silicon steel; Goss texture; second recrystallization; grain size

冷轧取向硅钢片是具有 $\{110\}\langle 001\rangle$ 织构(即高斯织构)的3%Si-Fe软磁材料,其生产工艺和设备复杂,制造技术严格,被誉为钢铁材料中的“艺术品”^[1]。二次再结晶过程是整个生产工艺中的重中之重,取向硅钢就是通过高温退火升温阶段发生二次再结晶形成单一的 $\{110\}\langle 001\rangle$ 织构。人们对取向硅钢二次再结晶的机理进行了大量的研究,主要提出了4种理论:表面能理论^[2-4];尺寸优势理论^[5-6];重点点阵晶界理论^[7];高能晶界理论^[8-9]。但是,至今对二次再结晶过程尚没有统一的观点。

传统取向硅钢均采用高温加热工艺生产,耗能高,成材率低,因此越来越多的学者研究低温加热工艺生产取向硅钢的新技术。本文采用低温板坯加热工艺制备CGO钢,对高温退火升温阶段高斯晶粒的长大过程及织构的演变情况进行细致的研究,讨论低温工艺生产的取向硅钢在高温退火过程中高斯取向晶粒的演变特点。

1 实验材料与实验方法

实验材料为含3.0%Si、0.5%Cu、0.009 8%S(均为质量分数)的以 Cu_2S 为主抑制剂的普通取向CGO钢。热轧板取自某钢厂的批量产品,原始板坯厚度为230 mm,1 200 $^\circ\text{C}$ 均热后经4道次粗轧(1+3模式)、7道次精轧至2.3 mm。后续工序在实验室进行,热轧板采用两次冷轧法轧至0.3 mm,中间进

行完全脱碳退火,最后经1 200 $^\circ\text{C}$ 高温退火。最终成品的磁性能:铁损 $P_{17/50}$ 为1.182 W/kg,磁感应强度 B_8 为1.897 T,达到30Q120水平。整个生产工序如下:

冶炼→热装热送→均热→粗轧→精轧→卷取→酸洗→一次冷轧→中间完全脱碳退火→二次冷轧→回复退火→涂层→高温退火→磁性能测量

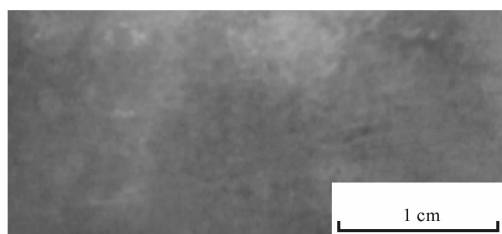
为了模拟批量生产条件,本实验的高温退火过程尽量降低升温速率,实际升温速率为 $15^\circ\text{C}/\text{h}$ 。实验采用“中断法”研究取向硅钢在此过程中高斯晶粒的异常长大行为,即从600 $^\circ\text{C}$ 开始每隔50 $^\circ\text{C}$ 从炉内取样观察二次再结晶情况,当发现有异常长大的二次晶粒时便每隔10 $^\circ\text{C}$ 从炉内取样一次,以确定二次再结晶完成的时间。

借助配有EDAX OIM电子背散射衍射(EBSD)系统的ZEISS SUPRA 55VP扫描电子显微镜进行织构检测。

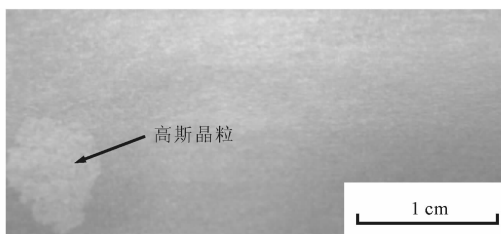
2 实验结果与分析

2.1 二次再结晶温度的确定

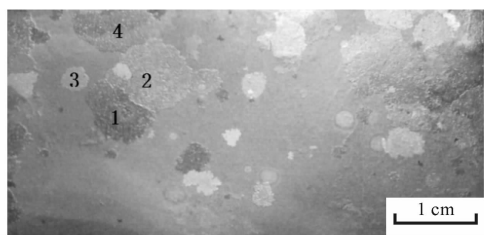
为了确定二次再结晶的起始温度,对不同温度下的样品用热盐酸酸洗后进行宏观组织观察。结果表明:在950 $^\circ\text{C}$ 时没有发现异常长大的晶粒(见图1a);1 000 $^\circ\text{C}$ 时有晶粒异常长大,可达到厘米级(如图1b所示),经测定其与标准高斯织构的偏离角为



(a) 950 $^\circ\text{C}$



(b) 1 000 $^\circ\text{C}$



(c) 1 010 $^\circ\text{C}$



(d) 1 020 $^\circ\text{C}$

图1 高斯晶粒异常长大过程的低倍组织

3.1°,属于位向准确的高斯取向晶粒;1 010 ℃时二次晶粒明显增多(如图 1c 所示);1 020 ℃时二次再结晶完成(如图 1d 所示)。说明在本文的实验条件下,CGO 钢在 950~1 000 ℃高斯晶粒发生异常长大,1 020 ℃时二次再结晶完成。

2.2 升温过程中显微组织的演变及分析

对升温过程中 800~1 000 ℃的样品进行显微组织观察,分析二次再结晶升温过程中晶粒长大的情况。图 2 为不同温度下样品中心的显微组织,利用扫描电镜的电子背散射衍射(EBSD)分析系统 OIM 采集,深色晶粒为高斯晶粒(图 2e 为 1 000 ℃时没有高斯晶粒异常长大区域的显微组织)。从图中可以看出,从 800 ℃升温到 950 ℃组织变化不大,晶粒细小均匀,说明 950 ℃时抑制剂没有粗化,仍保持很强的抑制能力;到 1 000 ℃时,晶粒明显长大。

图 3 为不同温度下试样的平均晶粒尺寸及高斯晶粒平均尺寸变化图,可见从 800 ℃到 950 ℃,平均晶粒尺寸由 17.32 μm 增加到 25.03 μm,高斯晶粒平均尺寸由 11.4 μm 增加到 16.64 μm,增幅分别为 44.52%和 45.96%,相差不大,说明此温度段无论是初次晶粒还是高斯晶粒都属于正常长大过程,而且高斯取向晶粒的尺寸小于平均晶粒尺寸,与文献[10]统计的规律类似,只是尺寸有差别。1 000 ℃时晶粒尺寸明显长大,从 950 ℃到 1 000 ℃,平均晶粒尺寸增长了 41.7%,而高斯晶粒平均尺寸增长了 68.51%,说明 950 ℃以后高斯晶粒的生长速度超过平均晶粒,但是 1 000 ℃时除了异常长大的高斯晶粒外,其他高斯晶粒的平均尺寸仍然小于平均晶粒尺寸。

由显微组织分析可以得出结论:在 950 ℃之前,

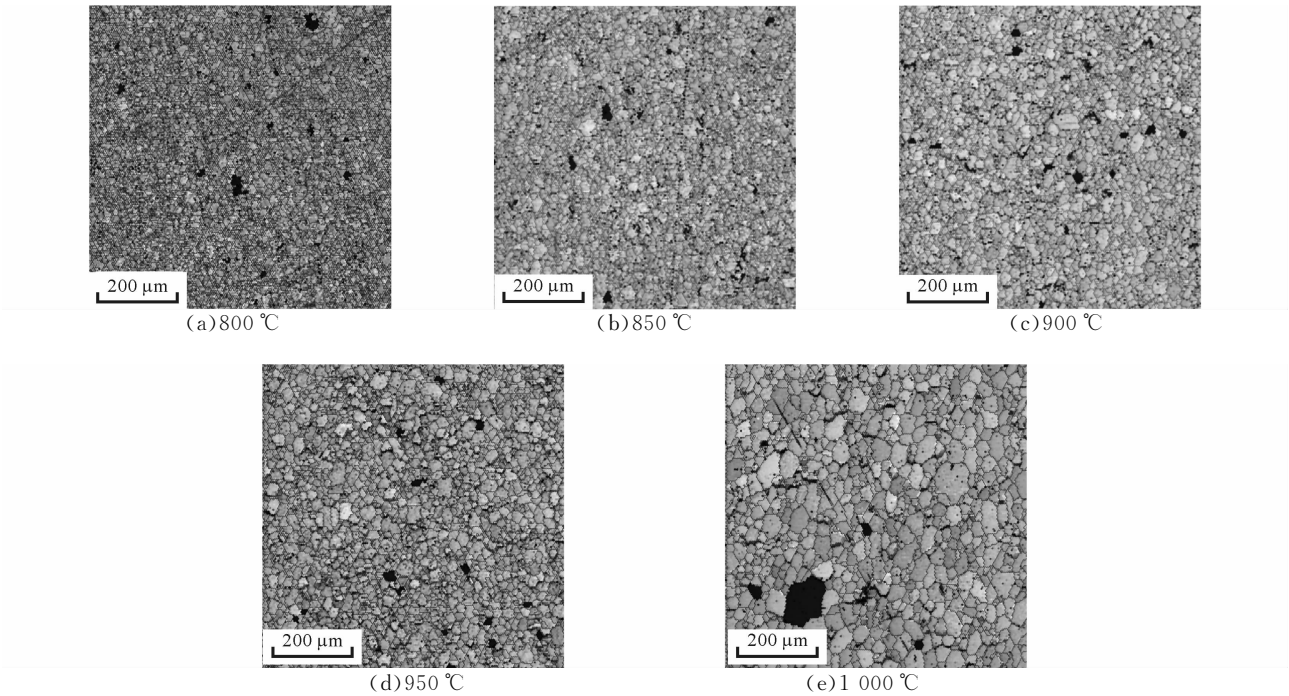


图 2 不同温度下的显微组织

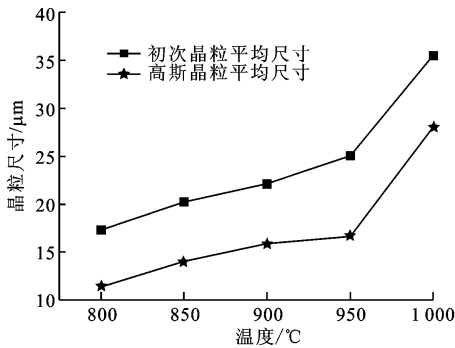


图 3 不同温度下的晶粒尺寸

随温度的升高高斯晶粒的平均生长速度与初次晶粒的平均生长速度相差不大;从 950 ℃开始,高斯晶粒的生长速度明显大于初次晶粒的平均生长速度;在 950~1 000 ℃,高斯晶粒异常长大,但在异常长大前高斯晶粒没有尺寸优势;到 1 020 ℃时二次再结晶结束。

2.3 升温过程中的织构演变及分析

二次再结晶发生前高斯晶粒的数量及尺寸对形成尖锐的高斯织构至关重要。为了更全面地解释高斯织构的演变,在高温退火过程中从 600 ℃开始取样进行研究。不同温度下的取向分布函数(ODF)

图如图 4 所示,可发现 600 ℃时试样继承了初次再结晶的织构特点,即 γ 纤维织构占主导地位,在 600 ℃的 ODF 图中未体现出高斯织构;在 650 ℃的 ODF 图中体现出了高斯织构,但强度很弱,相对于 600 ℃时的织构,整体织构沿着 $\langle 110 \rangle$ 轴绕顺时针方向转动,即: $\{111\} \langle 112 \rangle \rightarrow \{554\} \langle 225 \rangle \rightarrow \{110\} \langle 001 \rangle$ 。在 650~950 ℃区间,取向密度都不高,在 1.3 以下,1 000 ℃时达到 1.8。图 5 给出了不同温度下的高斯织构含量,在 650~950 ℃区间内高斯织构含量较低,其面积约占 0.6%。温度超过950 ℃后高斯织构增加明显,与此阶段高斯晶粒明显长大有关。950 ℃以前高斯织构取向密度不高,高斯织

构含量也不占优势,这也说明在 0.3 mm 厚的普通取向硅钢中,晶粒异常长大出现在中等织构强度的组织中,而不会在太强或太弱的织构组织中出现。但是,此观点并不适用于超薄取向硅钢带,因为对超薄取向硅钢带的分析是利用表面能驱动晶粒生长的理论,厚度限于 0.1 mm 以下,当平均晶粒尺寸远比钢板厚度小时,自由表面能对晶粒长大的影响很小。

下面对图 2 中的所有高斯晶粒(深色晶粒)进行位向分析。首先,利用 OIM Analysis 软件确定每个高斯晶粒的欧拉角。标准高斯织构 $\{110\} \langle 001 \rangle$ 的欧拉角为 $(90^\circ \ 90^\circ \ 45^\circ)$,可通过欧拉角计算每个高斯

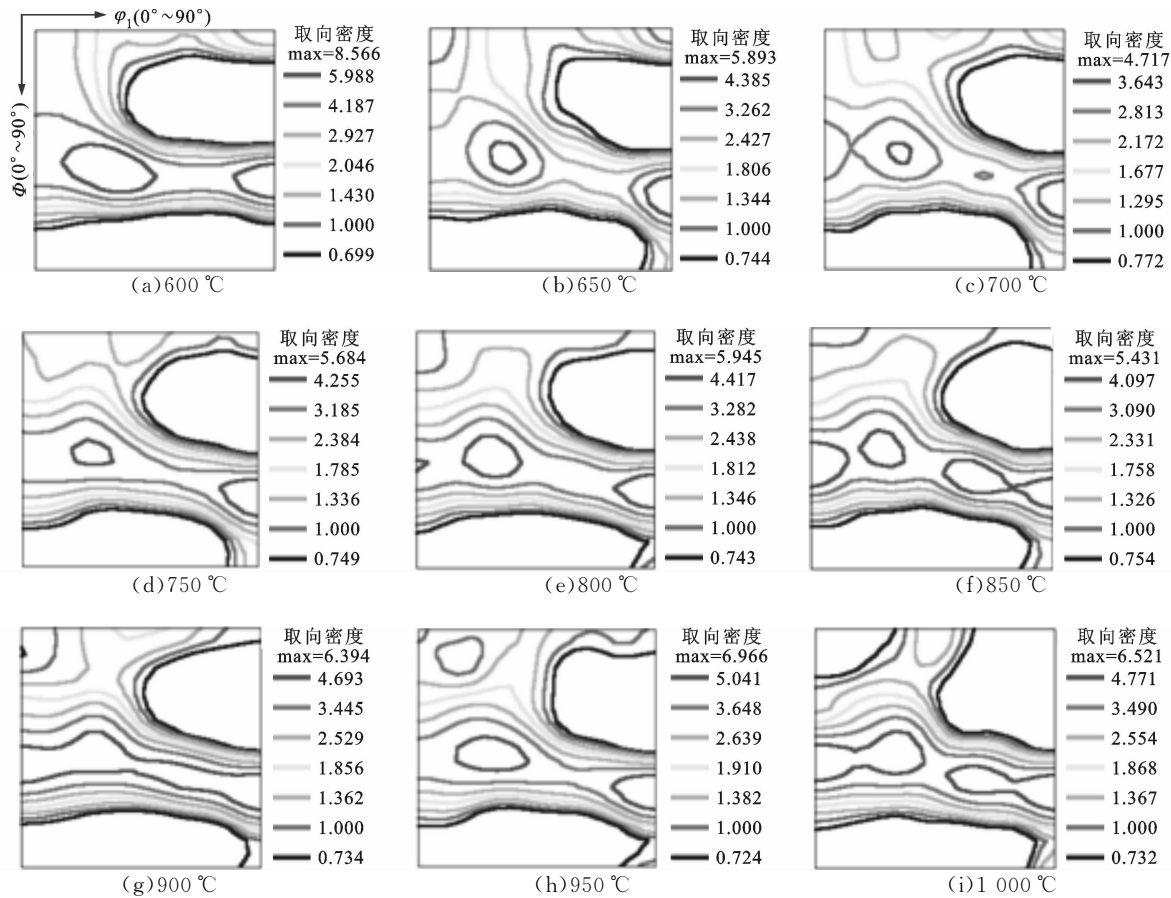


图 4 不同温度下的 ODF 图($\varphi_2=45^\circ$)

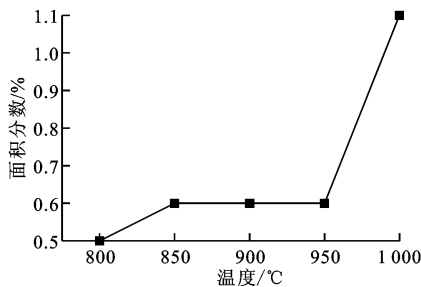


图 5 不同温度下的高斯织构含量

晶粒相对于标准高斯织构的偏离角。经过计算,所有高斯晶粒与标准高斯织构的偏离角在 $3.455^\circ \sim 8.932^\circ$ 之间,均小于 9° 。图 6a 为 1 000 ℃时异常长大的高斯晶粒区域的显微组织图;图 6b 为其对应的 ODF 图,可以看出高斯织构占主导地位。进一步对图 1 中的高斯晶粒 1、2 进行位向分析,可知其与标准高斯织构的偏离角分别为 4.7° 、 3.2° 。图 7 给出了图 1d 中局部高斯晶粒的 EBSD 取向成像图,经计算 3 个晶粒的偏离角分别为 3.2° 、 2.8° 、 3.1° ,说明

以 Cu_2S 为主抑制剂的低温法生产的取向硅钢在二次再结晶过程中高斯晶粒始终是位向准确的,这与文献[11]的发现有所不同,该文认为高斯晶粒的偏离角均在 10° 以上,只是随着温度的升高偏离角逐渐减小。

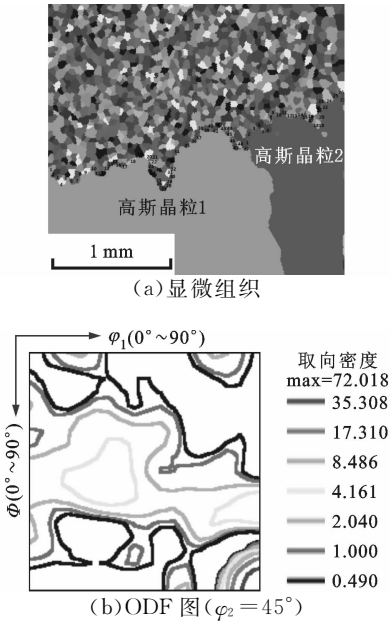


图 6 1 000 °C 时异常长大高斯晶粒的显微组织及 ODF 图

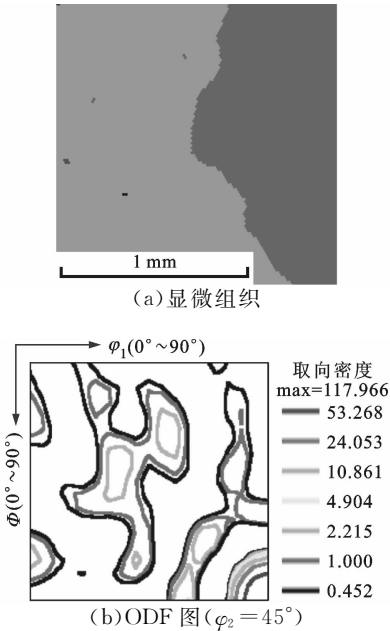


图 7 1 020 °C 时高斯晶粒的显微组织及 ODF 图

从图 2d 可以看出,950 °C 时高斯晶粒没有尺寸优势。1 000 °C 时在没有高斯晶粒异常长大的区域,已经有单个晶粒成为区域内的最大晶粒了(见图 2e),而且高斯晶粒异常长大前都是单个存在,晶界比较平直,异常长大后晶界凹凸不平,部分未被吞并的初次晶粒深入高斯晶粒内部。文献[11]亦对此进

行了报道,有研究者称之为固态湿润型晶界^[12-13],这种特殊的晶界更有利于高斯晶粒快速越过难以吞并的晶粒。此外,对图 6 中的高斯晶粒前沿的小晶粒也进行了位向分析,发现主要为 $\{111\}\langle 112\rangle$ 组分,而 1 020 °C 二次再结晶完成时已全部是大晶粒,说明这些小晶粒在升温过程中都被吞并掉了。

2.4 高斯晶粒异常长大的条件

从上面的分析可以得出结论:二次再结晶的温度范围很窄,在 1 000~1 020 °C 之间。在高斯晶粒异常长大之前的几十小时内,高斯晶粒尺寸及含量变化不大,可称之为二次再结晶的孕育期,要得到完善的二次再结晶,孕育期需满足以下几个条件:①随着温度的升高晶粒尺寸变化不大,组织稳定,保证 γ 纤维织构占主导地位,即必须保持易于被高斯晶粒吞并的 $\{111\}\langle 112\rangle$ 取向晶粒是主要组分;②升温过程中必须有一定数量的高斯取向晶粒作为二次再结晶的晶核,这部分高斯晶粒取向准确,与标准高斯织构的偏离角在 10° 以内;③升温过程中高斯取向晶粒的尺寸不占优势,但必须在抑制剂粗化前某一温度下使高斯晶粒的生长速度明显高于其他晶粒。另外,高斯晶粒在异常长大过程中晶界凹凸不平,这种特殊的晶界更有利于其快速越过难以吞并的晶粒。

二次再结晶过程是多种机制联合作用的结果,只有具备了各方面的条件才可能形成锋锐、单一的高斯织构。本文分析了高温退火过程中组织及织构的演变,但是尚未对抑制剂及退火气氛进行研究,而这些因素都会影响抑制能力,从而导致关键温度点发生变化,因此这将是作者下一步研究的课题。

3 结 论

(1)本文研究的以 Cu_2S 为主抑制剂的 CGO 钢在 600 °C 时已经完全再结晶,但 ODF 图中体现不出高斯织构,在 650 °C 的 ODF 图中才体现出高斯织构组分。在 950~1 000 °C 高斯晶粒发生异常长大,1 020 °C 时二次再结晶完成。

(2)在 950 °C 之前,高斯晶粒的生长速度与其他初次晶粒相差不大,高斯晶粒的尺寸不占优势;950 °C 以后高斯晶粒的平均生长速度超过其他晶粒。

(3)在高斯晶粒异常长大前织构类型保持不变, γ 纤维织构占主导地位,且高斯晶粒都是单个、孤立存在的。

(4)整个升温过程中高斯取向晶粒位向准确,与标准高斯织构的偏离角均在 9° 以内;单个晶粒异常

长大到厘米级时, 偏离角在 5° 以内; 成品晶粒的平均尺寸为 15.2 mm, 偏离角减小到 3° 左右。

参考文献:

- [1] 何忠治, 赵宇, 罗海文. 电工钢 [M]. 北京: 冶金工业出版社, 2012.
- [2] WALTER J L, DUNN C G. An effect of impurity atoms on the energy relationship of (100) and (110) surfaces in high purity silicon steel [J]. *Acta Metallurgica*, 1960, 8(8): 497-503.
- [3] WALTER J L, DUNN C G. Growth of (110)[001]-oriented grains in high-purity silicon iron: a unique form of secondary recrystallization [J]. *Trans AIME*, 1960, 218: 1033-1038.
- [4] WALTER J L, DUNN C G. Tertiary recrystallization in silicon iron [J]. *Trans AIME*, 1959, 215: 465-471.
- [5] DUNN C G, LIONETTI F. The effect of orientation difference on grain boundary energies [J]. *Trans AIME*, 1949, 185: 125-132.
- [6] DUNN C G, DANIELS F W, BOLTON M J. Measurement of relative interface energies in twin related crystals [J]. *Trans AIME*, 1950, 188: 368-377.
- [7] SHIMIZU R, HARASE J. Coincidence grain boundary and texture evolution in Fe-3%Si [J]. *Acta Metallurgica*, 1989, 37(4): 1241-1249.
- [8] HAYAKAWA Y, SZPUNAR J A, PALUMBO G. The role of grain boundary character distribution in Goss texture development in electrical steels [J]. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 1996, 160: 143-144.
- [9] HAYAKAWA Y, SZPUNAR J A. A new model of Goss texture development during secondary recrystallization of electrical steel [J]. *Acta Materials*, 1997, 45(11): 4713-4720.
- [10] 李志超, 杨平, 崔凤娥, 等. 取向硅钢二次再结晶行为分析 [J]. *电子显微学报*, 2010, 29(1): 48-54.
LI Zhi-chao, YANG Ping, CUI Feng-e, et al. Analysis on the secondary recrystallization in grain oriented silicon steel [J]. *Journal of Chinese Electron Microscopy Society*, 2010, 29(1): 48-54.
- [11] 崔凤娥, 杨平, 毛卫民. 取向硅钢中高斯晶粒异常长大选择性行为 [J]. *北京科技大学学报*, 2010, 32(9): 1157-1162.
CUI Feng-e, YANG Ping, MAO Wei-min. Selective abnormal growth behavior of Goss grains in a grain-oriented silicon steel [J]. *J Univ Sci Technol Beijing*, 2010, 32(9): 1157-1162.

[12] HWANG N M. Simulation of the effect of an isotropic grain boundary mobility and energy on abnormal grain growth [J]. *Journal of Materials Science*, 1998, 33(23): 5625-5629.

[13] HWANG N M, LEE S B, KIM D Y. Abnormal grain growth by solid-state wetting along grain boundary or triple junction [J]. *Materials Science Forum*, 2004, 467/468/469/470: 745-750.

[本刊相关文献链接]

韩龙飞, 钱军民, 崔宁. ZnO 纳米线的控制生长及在染料敏化太阳能电池中的应用. 2013, 47(1): 90-95. [doi: 10.7652/xjtuxb201301018]

侯书增, 鲍崇高, 付青然, 等. 硬质合金/高铬铸铁基复合材料的界面特性及磨损性能研究. 2012, 46(5): 73-78. [doi: 10.7652/xjtuxb201205013]

刘毅, 金志浩. Ti_2AlN 可加工陶瓷的快速制备及压痕行为研究. 2011, 45(10): 104-108. [doi: 10.7652/xjtuxb201110019]

燕子鹏, 蔡舒, 武卫兵. 电化学法制备 p 型 Cu_2O 半导体薄膜及其性能的特征. 2011, 45(3): 121-124. [doi: 10.7652/xjtuxb201103023]

黄若轩, 孙鹏, 朱芳萍, 等. 氮气流量对磁控溅射 ZrN 纳米涂层结构及硬度的影响. 2011, 45(1): 137-140. [doi: 10.7652/xjtuxb201101027]

张建军, 高义民, 邢建东, 等. 锻造加热处理对高硼铸造铁基合金组织与性能的影响. 2010, 44(8): 112-116. [doi: 10.7652/xjtuxb201008022]

唐明, 王璐璐, 马建忠, 等. 石油膨胀套管的力学性能及膨胀后的残余应力. 2010, 44(7): 90-94. [doi: 10.7652/xjtuxb201007020]

张雯, 张庆腾, 贺永宁. ZnO 纳米线膜的可控生长及其量子限域效应研究. 2010, 44(4): 82-86. [doi: 10.7652/xjtuxb201004018]

高敏, 李长久, 李成新, 等. 喷涂条件与热处理对 $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{CoO}_{3-\delta}$ 涂层含氧量的影响. 2010, 44(3): 115-119. [doi: 10.7652/xjtuxb201003024]

李烨飞, 高义民, 史芳杰, 等. 硬质合金颗粒增强铁基复合材料的三体磨料磨损性能. 2009, 43(5): 56-60. [doi: 10.7652/xjtuxb200905012]

陈威, 高义民, 邢建东, 等. 一种低合金低温铸钢及其组织与性能. 2008, 42(7): 875-879. [doi: 10.7652/xjtuxb200807020]
苏进展, 李明涛, 郭烈锦. 超声喷雾热分解 WO_3 薄膜的光电化学制氢研究. 2008, 42(5): 617-621. [doi: 10.7652/xjtuxb200805023]

张贵锋, 苗慧霞, 张建勋, 等. 焊后多次正火对超细晶粒钢热影响区组织与硬度的影响. 2008, 42(1): 65-69. [doi: 10.7652/xjtuxb200801015]

(编辑 葛赵青)