



Title	結晶粒成長過程の計算機シミュレーション
Author(s)	柴柳, 敏哉; 前田, 将克; 奈賀, 正明
Citation	大阪大学大型計算機センターニュース. 1997, 106, p. 19-30
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/66236
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

結晶粒成長過程の計算機シミュレーション

大阪大学接合科学研究所 柴柳敏哉、前田将克、奈賀正明

1. はじめに

我々が使用する材料の殆どが多結晶組織を有している。多結晶組織とは材料が複数の（それも非常に多くの）結晶粒で構成されている状態をいう。多結晶組織を記述する代表的な因子としては、相の種類、結晶粒の形状や大きさ、結晶粒の結晶学的方位そして結晶粒界・界面の構造・性格がある。これらの組織因子は統計学的諸量により定量的にそれぞれの状態が評価されるが、最近では平均的な描像に加えて、互いの位置関係や分布の不均一性などといった空間的な分布状態すなわち場所の関数という概念の重要性が指摘されている。このように材料組織は非常に多くの情報を含んだ複雑な構造体であり、場所の情報まで含めて考えると、全く同じ組織は無いといって過言ではない。

材料の諸性質の多くはこれら組織因子の影響を強く受けるので、材料特性を改善するということはすなわち組織を制御する問題に帰着する。組織制御の多くは熱処理プロセスを含んでいるが、材料を高温に保持すると結晶粒成長現象が現れる。また、高温環境下で長時間材料を使用する場合にも組織の粗大化が起こるが、この現象は構造材料の信頼性を評価する意味で重要な研究対象となっている。

結晶粒成長現象は結晶粒界・界面の移動を基調として進行する。粒成長の駆動力は、システム全体が持つ界面エネルギーの総量を低下させることであるが、材料組織学的に考えると、表面エネルギーの差、界面エネルギーの三重点における不均衡、転位密度の差などさまざまな要因がある。

ところで、粒成長は結晶粒の消滅過程でもあり、粒の消滅により、局所的ではあるが、それまで存在していた結晶方位および粒界・界面構造が消失し、新たな局所界面構造分布が出現する。こうして現れた組織状態が粒界移動の新たな駆動力となってさらなる組織変化を引き起こすのである。このように、粒成長過程は結晶粒径の増加のみならず、結晶方位や粒界・界面構造の動的なそして再帰的な変化をもたらすので、その結果として組織変化には多様性が現れる。

粒成長過程を制御するには複雑な組織発達過程の系統的な理解が必要不可欠であるが、溶質原子の影響や粒界物性など材料個々の性質により特定の組織変化のみが強調される結果が出やすいので、実験法のみで組織変化の全貌を把握するのは困難な場合が多い。だからこそ、計算機シミュレーションを行う必然性と意味が生じるのである。

結晶粒成長の計算機シミュレーションにおいて先ず解決すべき問題は、材料組織因子を如何にして計算に採り入れ、粒界移動挙動のアルゴリズムをどう記述するかということであり、現在多くの研究者が積極的にこの問題に取り組んでいる。本稿では、粒成長現象を計算機によりシミュレートする手法および計算結果について解説し、本法を用いた組織制御工学について展望する。

2. 計算モデルと計算手法

2-1 2次元多結晶組織モデル

粒成長シミュレーションの手順として、まず計算用多結晶組織を生成する必要がある。これには2次元と3次元のモデルがあるが、2次元モデルから本シミュレーション法が発達してきたのでここでは主として2次元単相多結晶組織モデルについて説明する。

結晶粒組織のモデル化には大きく分けて2種類ある。Potts model⁽¹⁾といわれるような正六角形（これが最小要素となる）のタイル張りにより計算領域を構成する方法と、Vertex model⁽²⁾と呼ばれる、三重点と三重点間を結ぶ線（粒界）により多結晶組織を表現する方法である。

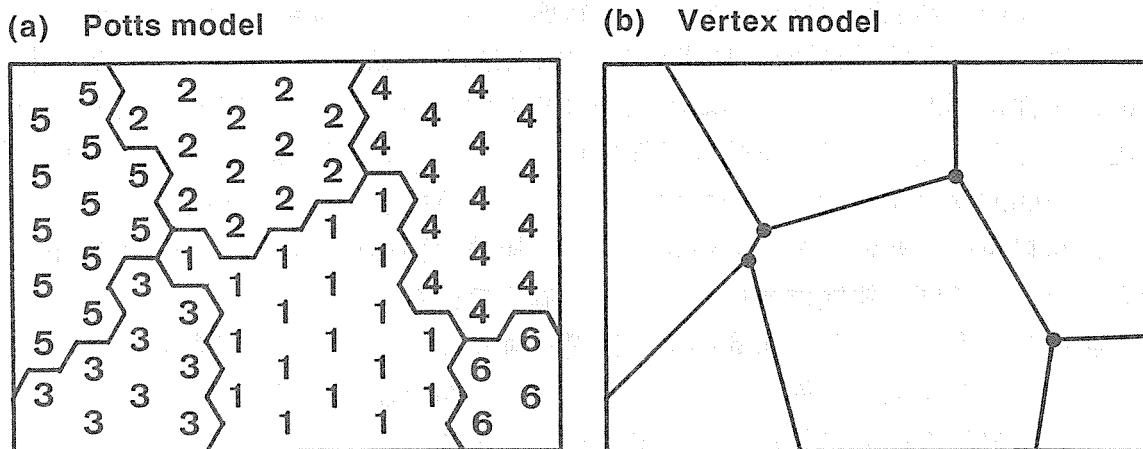


図1 2次元多結晶組織のモデル：(a) Potts model (b) Vertex model

Potts model の場合は図1(a)に示したように、計算領域を同じ大きさの正六角形（サイト）で構成するようにし、各サイトには自然数を割り当てておく。また、各サイトの重心点の配列は正三角形の格子状であるから、このタイル張り方法は二次元三角格子と呼ばれている。なお、三次元組織では、面心立方格子の各格子点に計算単位点を割り当てて空間を構成する方法が採用されている。

結晶粒は概ね複数のサイト（最小サイズは1サイトであるが）で構成され、異なる数字のセルの間に粒界が存在するということになる。この数字は結晶粒方位に対応づけられることが多いが、析出物などの第2相や濃度偏析領域、高転位密度領域のように他の材料組織因子と対応させることもできる。この柔軟性と拡張性の高さが本モデルの特徴であるが、サイトの大きさに対する物理的な意味が曖昧であるという欠点もある。

Vertex model の場合は、図1(b)に示したように、平面を分割する線（粒界）と点（三重点：Vertex）で組織を表現し、計算対象とするのは三重点のみである。すなわち、シャボンの泡のように、粒界で区切られた内部には何もないとする。なお、2次元組織の場合では三重点と粒界により空間が分割されているが、3次元空間では4重点、3重線および粒界面で空間分割を行う。

このモデルは粒界エネルギー、三重点における粒界間の角度（エネルギー均衡関係を表現できる）および粒界長さ（結晶粒の大きさ）などの実際の粒界パラメータが物理的に意味のある量として正確に計算に取り込めるという長所がある反面、Potts model のような他の組織状態を反映することは困難であるという欠点がある。

2-2 モンテカルロ法⁽³⁾

組織変化は試料の全ての場所で同時刻に進行する。計算にもこの“同時刻性”を取り入れる必要がある。モンテカルロ法は無作為に計算要素を選択して組織変化の基礎過程を計算した後に次の要素を無作為に選択するという手順を繰り返すことで“確率的な同時刻性”を保証する方法である。

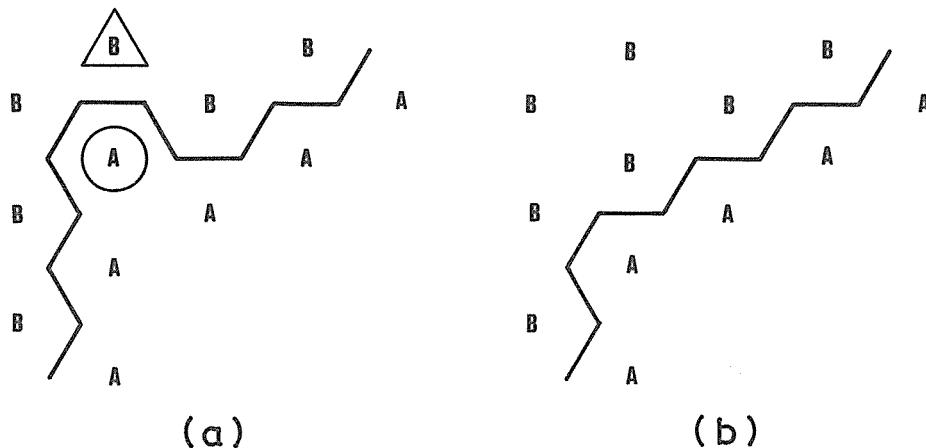


図2 モンテカルロ法における粒界移動の基本過程

具体的な手順を図2に沿って説明する。組織はPotts modelを採用する。第1番目の手順として、計算対象とするサイトを1つ乱数により選択する。図2(a)中では、○で囲んだサイトを選択しており、その方位を現わす数はAである。

次に、そのサイトの持つ数とそのサイトに隣接する6つのサイトが持つ数との差異を次式により評価する。

$$E = \sum_{j=1}^6 (1 - \delta_{ij}) \quad (1)$$

ここで、 $\delta_{ij} = 1 (i = j)$, $\delta_{ij} = 0 (i \neq j)$ である。また、Eは選択サイトのエネルギー状態とみなすが、これはより多くの同一方位数により囲まれているほどそのサイトが安定であるということを表わす指標である。

第2番目の手順として、6つの隣接サイトから1つをランダムに選択し、最初に選択したサイトの数字に仮に置き換える。ここでは、△で囲んだサイトで、その数字はBである。同様の方法でエネルギー状態(E^*)を算出し、先に計算したものと比較し、 $E - E^* \leq 0$ であれば最初に選択したサイトの数字を正式に新しいものに置き換える。すなわち、図2(b)に示したように、数字Aが数字Bに置き換わるのである。エネルギー変化が正であれば何も行わない。この数字の置き換えにより粒界が1サイトだけ移動することになる。手順1および2を繰り返すことにより組織変化を計算することになるが、サイト数だけ繰り返した時に確率的に全ての領域で同じだけ時計が進んだと考え、この時間を1モンテカルロステップと呼ぶ。

粒界移動速度はこの数字の置き換えルーチンに反映させている。すなわち、サイト交換が行われる際に、再度乱数を発生させてその値が所定の値よりも小さい(あるいは大きい)場合にのみ実際の置き換えを許すのである。この所定の値を変化させることで粒界移動の

起こり易さ（移動度）を表現できる。

以上が基本的なアルゴリズムであるが、最近は、エネルギー計算のルーチンで温度項を取り入れるようにしたり⁽⁴⁾、第 n 近接サイトまでの範囲を状態計算領域とする計算法などが提案されている。

また、本計算法ではサイトに組織学的な意味を様々に設定できる。例えば、特定の数字を与えたサイトは析出物であるとし、析出物サイトが関与する場合には粒界移動速度を小さく設定することでピン止め効果を表現することができる。さらに、“副格子”と称して、計算領域と全く同じ範囲のレイヤーを作り、このレイヤー上で溶質原子の移動を計算することも行われている⁽⁵⁾。この方法では粒界移動に対する溶質原子の drug effect をシミュレートできる。また、二相混合組織⁽⁶⁾にも応用できるなど、個々の材料が持っている個性を比較的容易に計算に取り込めるのが本法の特徴である。

2-3 Vertex model 法

この方法は、Vertex model を用いて作成した結晶粒組織の発達過程を実時間で計算する方法である。基本的には互いに連結した質点の運動方程式を解く問題であり、分子動力学法と同じ計算手法を用いる。慣用的に Vertex model 法と呼ばれている。

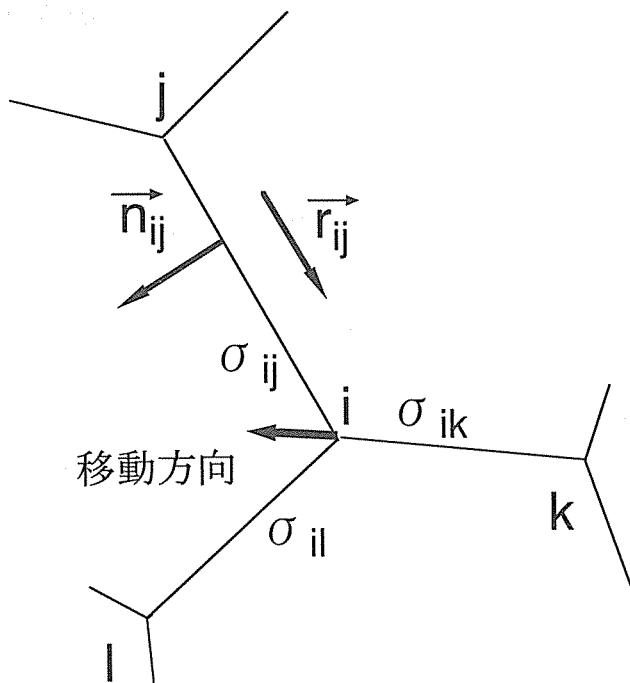


図 3 Vertex model 法における三重点移動の原理

図 3 に示したように、三重点において 3 つの粒界の界面張力の均衡関係から導出される三重点の運動方程式は次式で与えられる⁽⁷⁾。

$$\frac{1}{3} \sum_j^{(i)} M_{ij}^{-1} |r_{ij}| n_{ij} n_{ij} v_{ij} = - \sum_j^{(i)} \sigma_{ij} \frac{r_{ij}}{|r_{ij}|} \quad (2)$$

ここで、 v_i : i 番目の三重点の速度

r_i : i 番目の三重点の位置、 $r_{ij} = r_j - r_i$

n_{ij} : i 番目と j 番目の三重点を結ぶ粒界 ($\langle ij \rangle$ 粒界) の法線ベクトル

M_{ij} : $\langle ij \rangle$ 粒界の易動度

σ_{ij} : $\langle ij \rangle$ 粒界の単位長さ当たりの粒界エネルギー

また、 \sum_j ⁽¹⁾は、i番目の三重点と隣接している3つの三重点についての和を意味する。

この運動方程式は1階連立常微分方程式であり、例えばRunge Kutta Gill法により解が得られ、各三重点の時刻tにおける速度ベクトルが求められる。

次に、時刻t+dtにおける各点の位置を計算し、新たな位置における三重点の運動方程式を解いて新たな速度ベクトルを再計算する。この計算過程を繰り返して組織変化をシミュレートすることになる。

この計算法では三重点の移動により粒界移動が間接的に表現される。材料の個々の特性は粒界エネルギー（界面張力）と粒界易動度の二つのパラメータに反映されることになるが、粒界と析出物の相互作用、溶質原子の偏析挙動や複合組織における異相界面の挙動を記述するにはこれら2つのパラメータだけでは不十分である。粒内あるいは粒界近傍の不均一な組織状態を反映させるための特別な工夫が必要となり、かなり複雑なアルゴリズムが予想されるが現時点ではこの問題は解決されていない。しかし、実際の組織における長さを適用できるのでモンテカルロ法のような「サイトの大きさに対する曖昧性」はない。

ここで紹介した基本的なVertex modelでは粒界は線分で表現されている。実際に観察されるような、粒界が曲率をもって三重点で会合している状態を表現するためには、粒界線上に節点を置いて計算することになる。最近では3次元組織への本モデルの拡張が図られている⁽⁸⁾。

3 粒成長シミュレーション

3-1. 計算例

モンテカルロ法による粒成長シミュレーション結果の一例を図4に示す⁽⁹⁾。この計算では、粒界の移動速度を粒界方位差に応じて2種類設定している。具体的には、各サイトに与える数字は0から360までの実数とし、粒界の両側にあるサイトの数字の差が15以下ならば小角粒界、それ以上を大角粒界とした。また小角粒界と大角粒界の移動速度比は1:100としている。図中太線の粒界が小角粒界であるが、○で囲んだ領域のように、移動速度が小さい粒界が密集している領域は他の領域よりも組織変化が緩慢であることがわかる。即ち、粒成長は粒界構造・性格の空間的な分布状態によってその進行過程が異なっており、移動速度の小さい粒界ほど結果的に長時間存在する確率が高いということになる。

低移動速度粒界の全粒界数に占める割合と平均粒径の関係を図5に示す。この図より、移動速度の比によって存在割合の変化が異なるが、粒成長の初期段階で低速度粒界の存在量が増加すること、そしてこの傾向は移動速度の比が大きい場合ほど顕著になるということがわかる。この結果より、粒成長を利用した組織制御の一つの指針としては、粒界移動速度の粒界性格依存性を制御することが有効であることが明らかになった。

粒界構造・性格の空間分布状態の影響を調べた計算例を図6に示す。この図では各結晶粒をカラー表示している。これらの色は結晶粒の面方位に対応しており、(001),(011)および(111)面方位にそれぞれBlue, Red およびGreenを割り当て、任意の方位をこれら3原色の混色で表現している⁽¹⁰⁾。また、結晶粒方位は実際にECP(Electron Channeling Pattern)

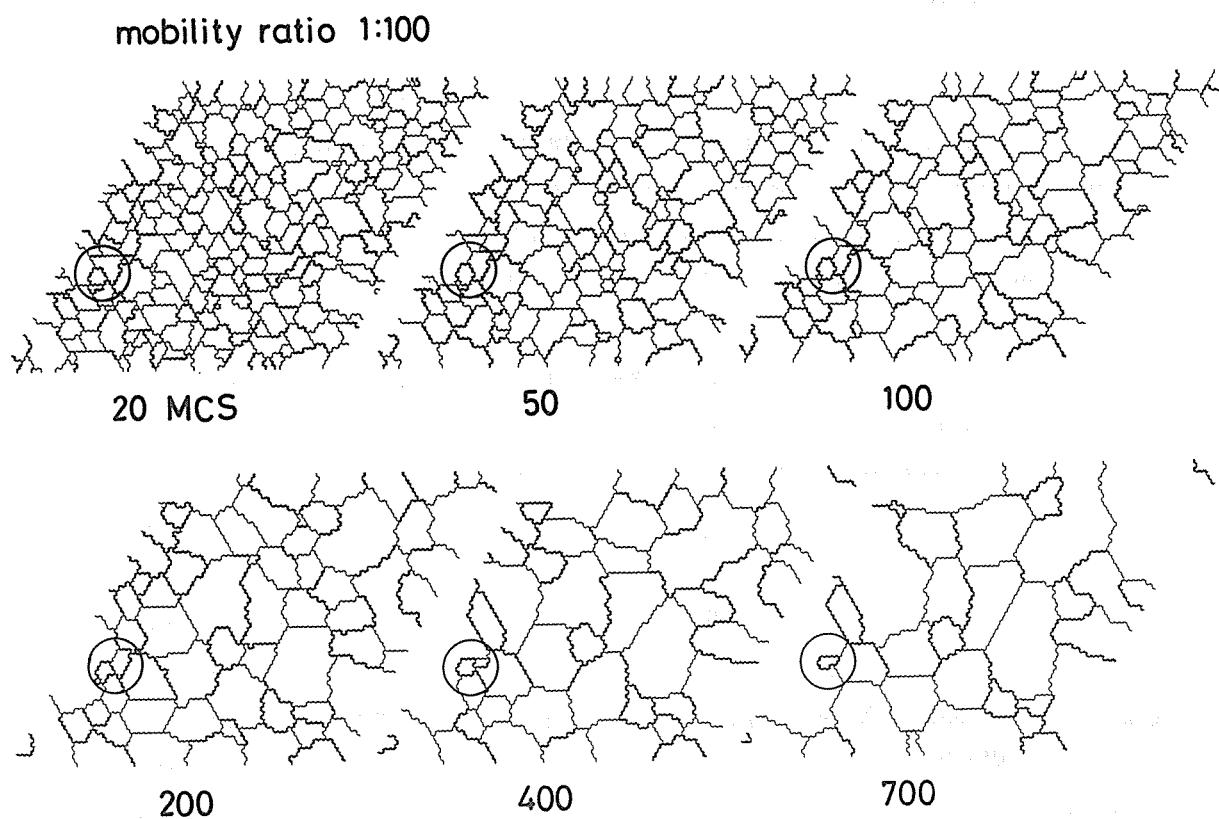


図4 モンテカルロ法による粒成長シミュレーション

○で囲んだ領域には低移動速度粒界が局在しており、この領域の粒成長は緩慢である。

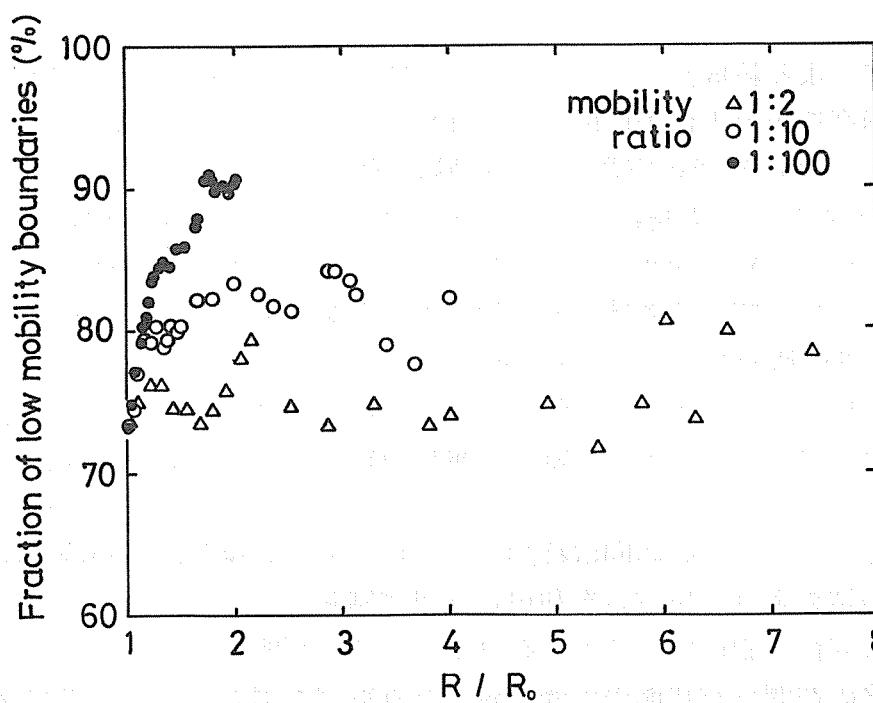


図5 粒成長に伴う低易動度粒界の存在割合の変化

粒成長初期で低易動度粒界が増え、この傾向は移動速度の比が大きくなるほど顕著である。

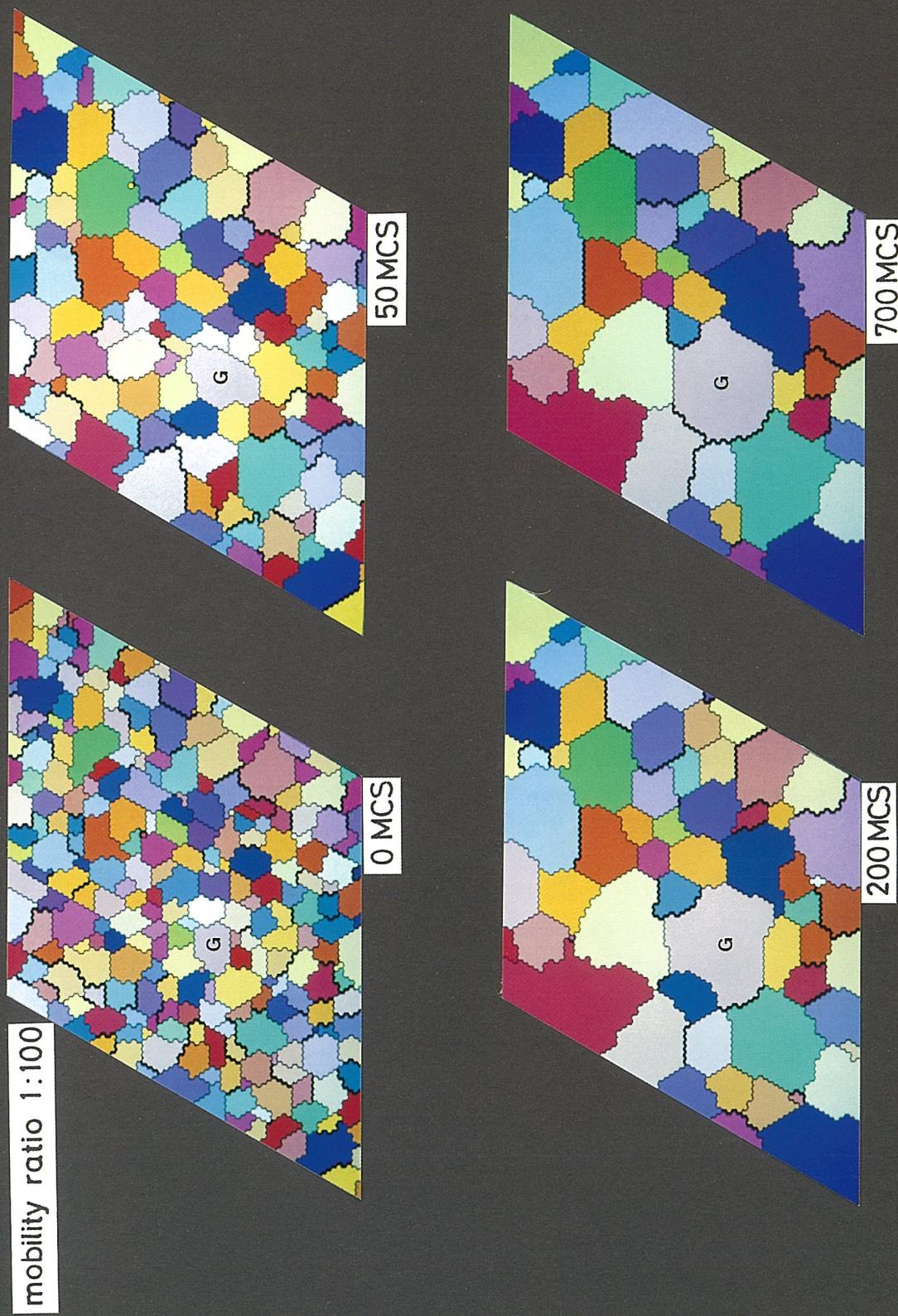


図6 ECPデータを取り入れた粒成長シミュレーション
 “G”と記した結晶粒が第2近接粒までの結晶粒とは必ず高移動速度粒界を
 形成するように周囲の方位分布を設定した。

法⁽¹¹⁾で取得したデータであり、粒界構造を表す指標もこのデータより算出したものを用いている。なお、この方位データは Al-1mass%Mg 合金の圧延再結晶板を ECP 測定・解析した結果である。ただし、結晶粒の形状は計算機内で生成したものを用いている。

また、この計算では、初期組織において “G” と印を付けた結晶粒はその第 2 近接粒までの結晶粒とは必ず高速粒界を形成するように周囲の結晶粒の方位分布を設定している。計算結果は、当たり前のことながら、優先成長しやすい局所組織状態を持つ結晶粒 G が周囲の結晶粒よりも 2 倍以上大きく成長することが示されている。このように、初期組織状態を任意に変化させて、組織因子の不均一状態が粒成長過程へ及ぼす影響を系統的に調べられるのが計算機シミュレーション法の利点である。

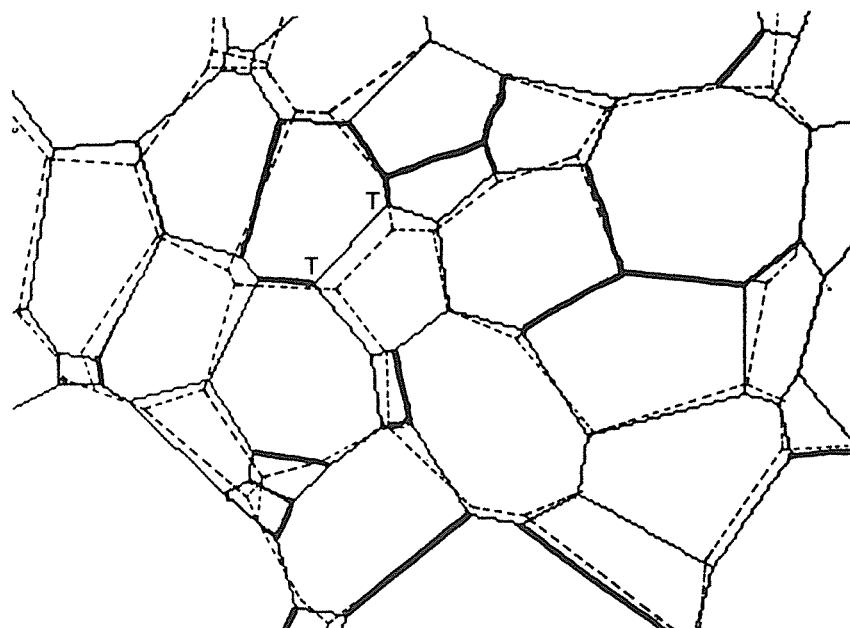


図 7 Vertex model 法による粒成長シミュレーション

実線および破線はそれぞれ初期状態および計算後の結晶粒界である。
太線は低移動速度粒界を意味する。

最後に、Vertex model 法による計算例を示す⁽¹²⁾。図 7 は Fe-Si 合金の組織を計算機に取り込んで三重点を抽出した後に Vertex model 組織として生成したものである。図中の実線および波線はそれぞれ粒成長計算前後の粒界の位置を表している。三重点 T では 1 本の低エネルギー粒界と 2 本の高エネルギー粒界が会合している。この三重点ではエネルギー均衡関係より高エネルギー粒界間がより開いた角度になるように粒界が移動し、その結果として低エネルギー粒界の両側にある結晶粒が成長した。

この結果は三重点の周囲にある 3 つの結晶粒がほぼ同じ大きさである場合に得られ、極端に粒度に差がある場合には粒界エネルギーの取り合わせによらずにより大きい結晶粒が優先成長する結果が得られた。この計算結果は、局所的な粒界性格分布（これはエネルギーバランスに影響する）および粒度分布の 2 者が粒成長の組織学的な条件として考慮されるべきであることを示唆する。実際に、Al-Mg 合金における粒成長過程の観察では、本計算結果を支持する結果が得られている⁽¹³⁾。粒成長現象は極めて局所的な組織状態を反映して進行するので、現象全体の系統的な把握と本質的な影響因子を究明するには実験法と計

算機シミュレーション法の両者を併わせた研究が有効であろう。

以上の計算例は結晶粒方位あるいは粒界構造・性格の不均一分布の粒成長過程における役割を計算機実験により調べた結果であるが、粒成長シミュレーションの研究対象としては圧倒的多数が結晶粒度分布や粒成長指数の変化であり、多くの有益な知見が得られつつある。例えば、粒界偏析による粒界移動挙動の変化を取り入れた計算⁽⁵⁾や、薄膜の粒成長シミュレーション⁽¹⁴⁾、第2相粒子を含んだ組織の粒成長過程⁽¹⁵⁾⁽¹⁶⁾、粒界エネルギーの粒界性格依存性を取り入れた計算⁽¹⁷⁾、さらに三次元組織における粒成長シミュレーション⁽¹⁸⁾などと、より実際の材料組織に近づいた研究が精力的に展開されている。詳細は高山による解説⁽¹⁹⁾を参照されたい。

また、結晶粒成長に関する国際会議が3～4年毎に開催されてきており、そのproceedings⁽²⁰⁾⁽²¹⁾には多くの実験および計算例が収録されているので興味のある方は一読を勧める。

3-2 最近のトピックスと今後の展望

ここでは、粒成長シミュレーションに関する最近の研究として、組織解析結果を基にした計算機シミュレーション法ならびに、それを利用した、組織発達過程のデータベース化について述べる。

多結晶組織の結晶方位を解析する方法の一つに、EBSP(Electron Back-Scatter Pattern)法がある。EBSPとは、走査型電子顕微鏡内で発生する電子線回折図形(一種の菊池線)のことで、このパターンを解析すれば電子線を照射している領域の結晶学的な情報が得られる⁽²²⁾。本装置は1ミクロン径以下の領域の情報を与えるので、微細結晶粒組織に対して、個々の結晶粒の場所と結晶方位の情報を同時に取得できるという特徴を持っている。

さて、定められたステップ間隔で入射電子線の2次元走査を行い、試験片表面の各位置でEBSP解析を行うと、結晶方位が異なるところに粒界の存在を認識できる。さらに、同一方位の領域を同じ色調で表示すると、結晶粒毎に色が異なることになるので、あたかも腐食処理を施した材料組織であるかのように見える。こうして得られた画像は、OIMTM(Orientation Imaging Microscopy)と一般に呼ばれている。(OIMは米国 TexSEM Laboratories, Inc. の商標である。)この組織解析法は我が国でも広く普及しつつあり、EBSP解析とOIM表示が可能な装置は大阪大学接合科学研究所にも設置されている。

OIMの一例を図8に示した。ここで注目すべき点は、この図を構成している最小単位が正六角形のセルであり、このセルの配列が先に述べた2次元3角格子と全く同じであるということである。すなわち、EBSPのデータはそのままPotts modelによるモンテカルロシミュレーションの初期組織データとして移植できることになり⁽²³⁾、実際の材料組織を用いたシミュレーションが行えるのである。

さらに、各種材料で得られた組織データおよびそれらを用いて行った組織発達過程のシミュレーション結果をデータベース化しておくことにより、多種多様に存在する多結晶組織の変化様式を系統的に分類整理してこれまで発見されていなかった組織状態の推定やそれを具現化するために必要な材料創製法の探索が高効率で行えるようになるであろう。

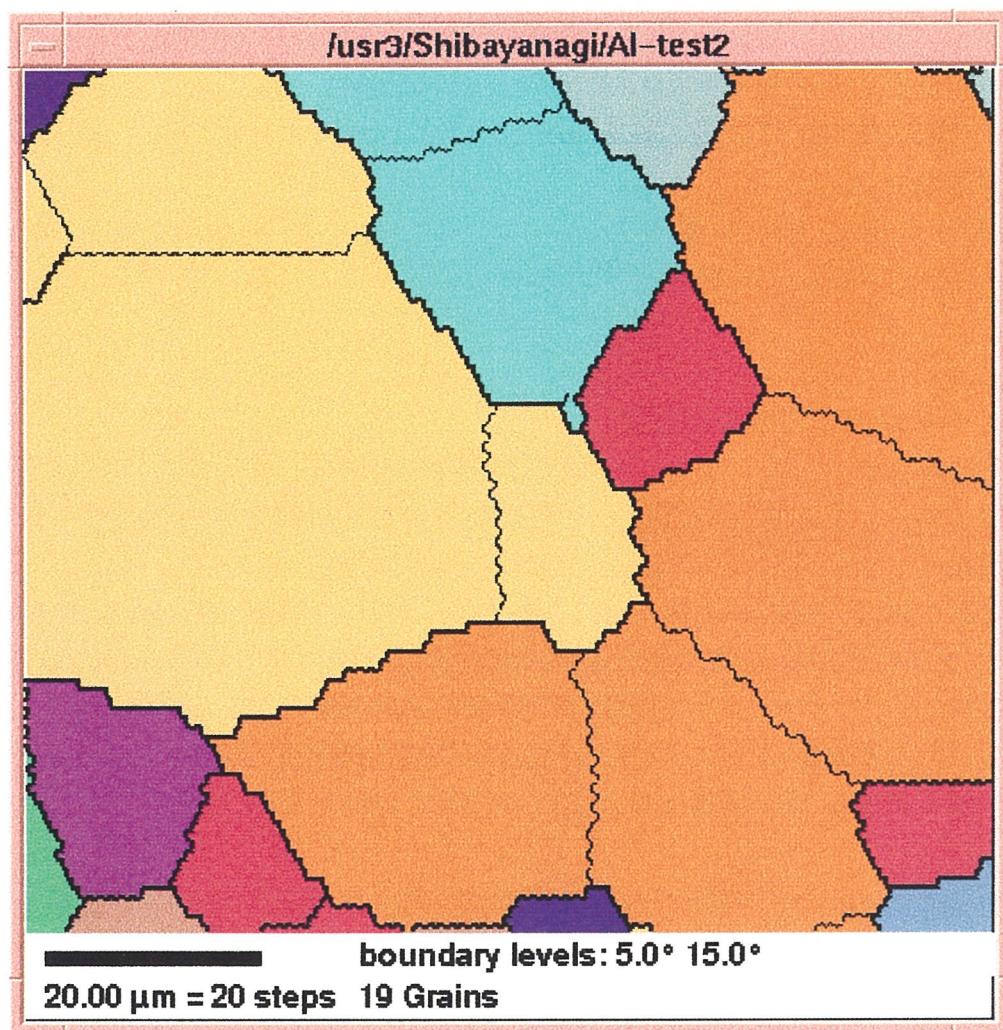


図8 OIMの一例. 試料は Al-1Mg 合金の圧延再結晶材である.

Potts model と全く同じ空間分割法で方位データを取得するので、
OIM データを基にした粒成長計算が可能になる.

また、接合研の装置は ODINS に接続されているので、学内外の研究者がネットワークを通して、各人の研究機関にある計算機で独自のソフトによる取得データの解析やそれを用いた計算機実験などにも即応できる。将来的には、ODINS や Internet を活用し、接合科学研究所および大型計算機センターが核となって、ここで紹介したような材料組織に関する情報を発信するといった研究展開も可能であろう。

最後に粒成長シミュレーションを含めた計算機援用材料組織学の今後の展望について述べる。我々が実際に取り扱う材料の圧倒的多数は複相組織（複合材料も含めて）を有するので、これまでに紹介したような単相組織を対象とした組織発達シミュレーションだけではその充分な制御指針を得ることはできない。新たに考慮すべき基礎過程として、熱および物質移動（拡散）や相変態（自由エネルギー変化）などがある。モンテカルロ法では、例えば副格子の概念を適用するなどして、複数の素過程を比較的容易に従来のアルゴリズムに組み込むことができるので、現時点では本法をベースとして計算手法を発展させるのが得策であろう。

複相組織の粒成長シミュレーションが実現されれば、析出組織を含めた複合材料組織や異種材料の溶接・接合部における組織の変化過程をも解析対象とすることができる、計算材料組織学の範疇が飛躍的に拡大する。さらに、実際に材料が使用される様々な環境下での材料組織の状態変化を精度良く予測できるようになれば、シミュレーション技法は構造材料や機能材料の信頼性評価へと発展的に応用されるであろう。そして、このような段階に到達した時に初めて、実験法では困難な研究領域に踏み込むことができ、計算機シミュレーション本来の役割を果たすことができると考えている。

4. おわりに

計算機を利用した材料現象のシミュレーションは近年の計算機能力の向上にともなって益々盛んになってきている。本稿では、単相組織の結晶粒成長現象に焦点を絞り、計算機シミュレーション手法の原理から今後の展望までを概観してきた。

モンテカルロ法によるシミュレーションは、前節で紹介したように、組織解析実験の結果を計算用基礎データとして直接利用できるので、従来とは異なる計算機の利用形態とそれを活用した計算材料組織学の一層の進展が期待できる。

分子動力学的手法を用いる粒成長シミュレーションは、粒界物性値や局所的な組織状態を反映した粒界移動の計算を高精度で行えることに加えて実時間での組織変化過程も計算できるという利点を持っている。

現時点では、現象の正確な再現を目指した研究が殆どであり、残念ながら、組織制御の指針を積極的に提案する段階には至っていない。

今後は、材料学における基本現象の全てを計算アルゴリズムに採り入れて、複雑多岐にわたる組織発達過程を精度良く再現し、かつ個々の材料に最適の組織制御指針を与えられるような計算システムの構築を目指した研究が必要になる。そのためには、格子欠陥の挙動や熱力学データなど多くの基礎実験データの蓄積と新しい計算技術の開発が必要不可欠である。多くの研究者がそれぞれの研究分野からこの計算機援用材料学へ参画され、粒成長現象を含む材料組織学が益々発展することを期待している。

参考文献

- (1) M.P.Anderson, D.J.Srolovitz, G.S.Grest and P.Sahni : *Acta Metall.*, 32(1984),783.
- (2) T.Nagai, S.Ohta, K.Kawasaki and T.Okuzono : *Phase Transitions*, 28(1990),177.
- (3) 例えば、「計算物理学と計算化学」、田中 實、山本良一編、海文堂
- (4) Y.Saito and M.Enomoto : *ISIJ Intern.*, 32(1992),267.
- (5) Y.Tsuzuki and Y.Suzuki : *Mater. Sci. Forum*, 204-206(1996),233.
- (6) E.A.Holm, D.J.Srolovitz and J.W.Cahn : *Acta Metall Mater.*, 41(1993),1119.
- (7) M.Enomoto, M.Kamiya and T.Nagai : *Materials Science Forum*, 204-206(1996),71.
- (8) K.Fuchizaki, T.Kusaba and K.Kawasaki : *Phil. Mag. B*, 71(1995),333.
- (9) 柴柳敏哉、高谷英明、堀 茂徳：日本金属学会誌、54(1990),650.
- (10) 前田千寿子、井口征夫、伊藤 庸：日本金属学会誌、50(1986),869.
- (11) 柴柳敏哉、堀 茂徳：軽金属、42(1992),306.
- (12) T.Shibayanagi, K.Ichimiya, K.Matsumoto and Y.Umakoshi : *Proc. 8th JIM International symp.* (1996)423.
- (13) K.Matsumoto, T.Shibayanagi and Y.Umakoshi : *Acta Mater.*, 54(1997)439.
- (14) H.J.Frost, C.V.Thompson and D.T.Walton : “*Modelling of Coarsening and Grain Growth*”, S.P.Marsh and C.S.Pande ed., TMS(1993), 271.
- (15) R.D.Doherty, K.Li, K.Kashyup, M.P.Anderson and G.S.Grest : “*Simulation and Theory of Evolving Microstructures*”, M.P.Anderson ed., TMS, (1990),3.
- (16) A.D.Rollet, D.J.Srolovitz, R.D.Doherty, M.P.Anderson, and G.S.Grest : *ibid*, 103.
- (17) 上原 靖、高山善匡、杜澤達美、加藤 一：軽金属学会第 89 回秋期講演大会概要,(1995), 217.
- (18) 高山善匡、杜澤達美、加藤 一、後田祐一：日本金属学会誌、59(1995),1006.
- (19) 高山善匡：軽金属 46(1996),674.
- (20) G.Abruzzese and P.Brozzo ed. : “*Grain Growth in Polycrystalline materials*”, Trans Tech Pub., (1992).
- (21) H.Yoshinaga, T.Watanabe and N.Takahashi : “*Grain Growth in Polycrystalline materials 2*”, Trans Tech Pub., (1992).
- (22) V.Randle : “*Microtexture Determination and its applications*”, The Inst. Mater. (1992)
- (23) T.Baudin, P.Paillard and R.Penelle : *Scripta Mater.* 36(1997), 789.