

中性子を用いた鉄鋼材料中の析出物および応力の解析技術

Micro Structural Evaluation Technique of Steel Using Neutron Beam

仲道 治郎 HARUO Nakamichi JFE スチール スチール研究所 分析・物性研究部 主任研究員(副部長)・博士(工学)
佐藤 馨 KAORU Sato JFE スチール スチール研究所 主席研究員・Ph. D.
末吉 仁 HITOSHI Sueyoshi JFE スチール 知的財産部 主任部員(副課長)

要旨

中性子は材料の透過能が高いために、鉄鋼材料の内部組織や、材料の全体情報などの測定に有効である。また、中性子による測定は、小角散乱による形態解析や回折を用いた応力測定など、非常に広い範囲に適用可能である。このような中性子を用いた組織評価の特徴に注目して、JFE スチールは一般社団法人日本鉄鋼協会の研究会などに参画して、多くの解析を実施している。本報告では、研究会参画で実施した検討内容のうち、(1) 小角散乱による析出物評価、(2) 溶接部残留応力評価、および、(3) 変形による変態過程のその場観察結果について紹介する。

Abstract:

Structural analysis using Neutrons is a very unique technique for its strong penetration ability through steels. Numerous evaluation techniques are available at present, and JFE Steel has been adapting the technique through participating in research activities such as in the Iron and Steel Institute of Japan. This paper introduces some results including precipitation evaluation using a small angle scattering, residual strain estimation through diffractions, and *in-situ* transformation observation by time-of-flight methods of neutron beams diffraction.

1. はじめに

中性子は、高い物質透過力を有しているため材料の内部および全体の組織解析に非常に有望視され、多くの検討が行なわれている。鉄鋼材料分野への応用も進められており、一般社団法人鉄鋼協会の産発プロジェクト展開鉄鋼研究「中性子利用鉄鋼評価技術の基礎検討に係る研究」(2006~2008年度)¹⁾、C型研究会「新世代中性子源を利用した鉄鋼元素機能研究会」(2009~2012年度)²⁾、1型研究会(2013年度~)が実施されている。現在、世界最大強度の中性子線を誇るJ-PARC(大強度陽子加速器施設, Japan Proton Accelerator Research Complex)の稼動がすすむに伴い、鉄鋼製造プロセスや鉄鋼材料開発で重要な熱処理や変形過程での動的測定も可能になってきている。また、小型中性子線源を用いた組織評価技術も発展してきており、中性子解析技術を活用した鉄鋼研究への期待がますます高まっている。JFE スチールでは、これらの中性子利用技術に関する研究会などに当初から積極的に参画し、新しい測定方法の利用・検討を行なっている。本報告では、これら研究会で実施した成果のうち、小角散乱を用いた鋼中微細析出物の形態評価例、厚鋼板溶接部残留応力の測定、および、TRIP(Transformation induced plasticity)鋼の引張変形挙動中のその場観察について紹介する。

2. 小角散乱による鋼中析出物評価³⁾

2.1 背景

鉄鋼材料中の微細析出物は、材料の強度に大きく影響を与えるため、その形態評価は重要である。そのため、透過電子顕微鏡(TEM)をはじめ、さまざまな評価が行なわれている⁴⁾。TEMの場合、観察領域が限定されるために析出物の平均情報を得ることが困難である。一方、中性子を用いた小角散乱測定では、散乱スペクトルの比較から、析出物のサイズや形状などの情報を得ることが可能である。また、中性子は透過能が高いために、材料の照射領域の大きな体積の平均の情報が得られる。これらの特徴に注目して、熱処理による析出形態変化を、TEMおよび中性子小角散乱を用いて評価し、熱処理による析出形態挙動について解析を行なった。

2.2 実験方法

サンプルとしては、Ti添加炭素鋼を用いた。材料を実験室で真空溶製し、 γ 相で溶体化処理をしたのちに圧延を行なった。圧延後の冷却過程の熱処理条件を450℃から650℃に変化させることで炭化物形態を変化させた。サンプル処理および特性については文献3)を参照されたい。

中性子実験は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構(茨城県那珂郡東海村)の3号炉に設置されている中性子小角散乱装置(SANS-J-II)を用いて行なった。表裏面の

2015年7月29日受付

研削から試料厚さ 2 mm のサンプルを作製し、中性子実験に供した。中性子の照射領域は $\Phi 10$ mm で、小角散乱測定を行なった。鉄鋼材料の小角散乱測定では、鉄鋼材料が磁性を持つために、1 T の磁場を印加した状態で測定を行ない、核散乱成分と磁気散乱成分に分離して、核散乱プロファイルを用いて解析を行なった。

2.3 実験結果および考察

図 1 に、熱処理条件の異なるサンプルの小角散乱プロファイルを示す。散乱ベクトル q 値が $0.1 \sim 1 \text{ nm}^{-1}$ の範囲で散乱スペクトルが変化しており、温度処理条件により析出物の形態が変化していることがわかる。これらの散乱スペクトルの形状から、析出物のサイズおよび形状について評価が可能である。今回の解析では、TEM 観察から析出物形態についてはディスク状となっていることが観察されたため³⁾、この形状(長径: Diameter, ディスク厚さ: Thickness)を仮定して小角散乱プロファイルを用いて粒子サイズ、密度およ

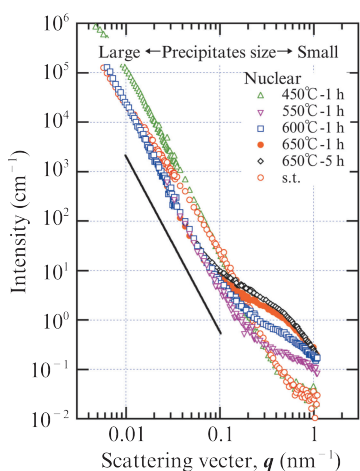


図 1 熱処理による中性子小角散乱プロファイル変化³⁾

Fig. 1 Small angle scattering profiles

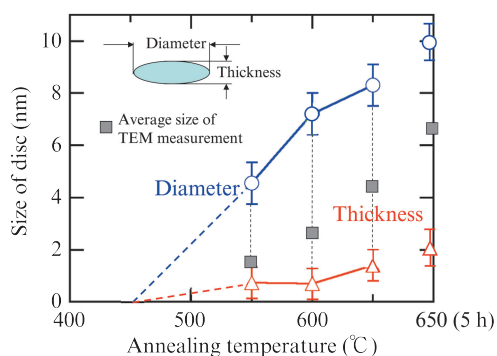


図 2 中性子小角散乱により解析した析出物のサイズ変化の熱処理条件依存性 (TEM 結果も示す。)³⁾

Fig. 2 Size changes of precipitates measured by small angle scattering (Values of transmission electron microscope (TEM) experiments are shown in together.)

びアスペクト比の計算を行なった。粒子サイズの熱処理依存性の結果を図 2 に示す。図から、熱処理温度の増加に従って、析出物の長径および厚さは増加していることがわかる。TEM で測定した析出物の平均サイズについても図中に同様に示す。サイズの増加傾向は小角散乱による結果とよい一致を示している。このとき、長径とディスク厚さの中間に TEM の結果が得られており、サイズ測定結果はよい一致を示していることがわかる。

TEM は局所的な観察であり、一方、中性子による解析は、照射面積 ($\Phi 10$ mm) × 板厚 (2 mm) の平均情報であり、微細情報とマクロ情報で相補的に解析を行なうことで、微細な析出情報について系統的な評価を行なうことができ、多くの情報を得ることが可能であることがわかった。

3. 溶接部残留応力測定^{5,6)}

3.1 背景

鉄鋼材料の高強度化に伴い、一般的に水素吸収による遅れ破壊の感受性が高くなり、溶接部においては、溶接による残留応力の発生と水素の吸収により溶接割れの可能性が高くなる。したがって、溶接部の残留応力の情報は溶接部の遅れ破壊を防ぎ、健全性を評価するために重要となる。中性子による残留応力測定では、透過能が高く照射領域を

広い領域を内部数センチメートルまで詳細に測定できる特徴を持っており、利用が広がっている⁵⁻⁸⁾。3.2 節以下では、高強度鋼の溶接継ぎ手内部の残留応力の分布形態の測定について紹介する。

3.2 実験方法

板厚 25 mm の 980 MPa 級鋼板を用いて、溶接試験片を作製した。溶接材は中央の Y 型のスリット部に 1 パスの MIG (Metal inert gas) 溶接を行ない、市販の溶接金属を用いて溶接入熱は 16~17 kJ/cm で作製した⁵⁾。

残留応力測定は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の残留応力解析用装置 RESA⁹⁾を用いた。波長 0.1590 nm の中性子線を用いて溶接継ぎ手の板幅方向 (T)、溶接線方向 (L)、板厚方向 (N) の 3 方向についてそれぞれ回折実験を行なった。T 方向と L 方向が (211) 透過、N 方向が (211) 反射の回折線を用い、また、スリットは、T 方向と N 方向は幅 2 mm × 高さ 15 mm、L 方向は幅 2 mm × 高さ 4 mm とした。また、同一溶接サンプルについて、溶接部を切り出しワイヤーカットでスリットを入れて応力を開放したものを無ひずみの比較材 (D0) として用いた。

3.3 実験結果および考察

図 3 に溶接金属表面近傍と溶接金属の下端部 (Root 部) 近傍での T 方向の回折強度曲線を無ひずみ状態の比較サン

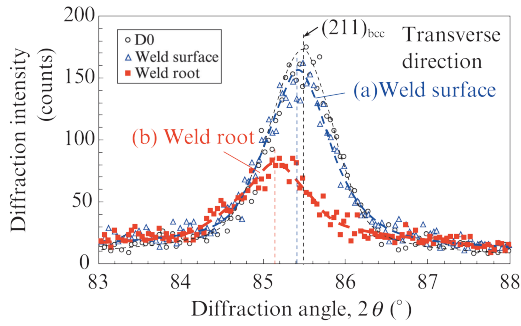


図3 溶接下端部, 表層, 比較材の中性子回折プロファイル^{5,6)}
 Fig. 3 Neutron diffraction patterns for root and surface of welding together with no strain sample (D0)

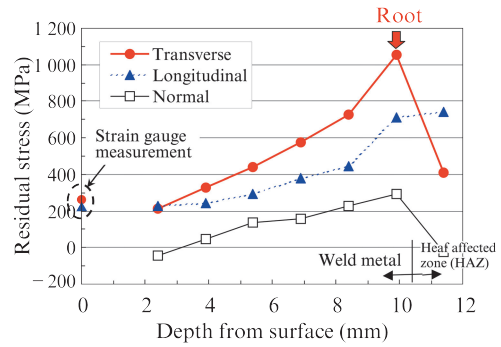


図5 溶接部の残留応力分布 (表層部のひずみゲージによる測定も同時に示す。)^{5,6)}

Fig. 5 Distribution of residual stress along weld center line

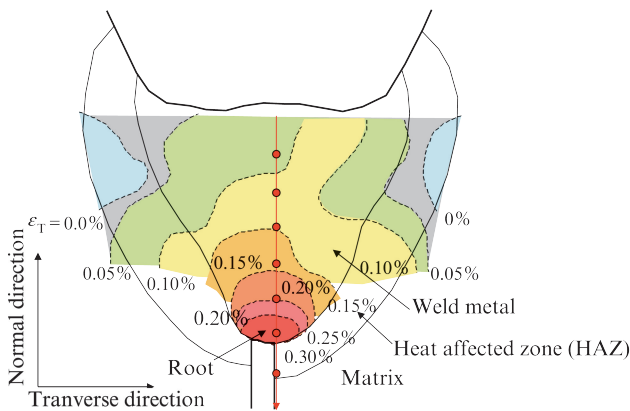


図4 溶接部の板厚方向 (T) ひずみ分布コンター図^{5,6)}
 Fig. 4 Contour plot of strain in the transverse-direction

ブルの結果とともに示す。表層近傍のピーク位置はわずかに低角度側に位置しているが、Root部近傍のピークは低角度側へ大きくシフトしており、格子間隔が広がっていることがわかる。このような無ひずみ材からの格子定数のずれを用いて残留ひずみ (ϵ) を求め、溶接部の各部位による T 方向ひずみ分布マップを図4示す。

直行する3方向の格子ひずみから残留応力を求めることができる。溶接金属中心線での残留応力分布を図5に示す。表層部近傍からRoot部へ近づくに伴い引張残留応力が増大していることがわかる。また、T方向の残留応力が最も高く、Root部では最大1000 MPa以上の高い引張応力が残留している。このとき、Root部近傍ではL方向およびN方向でも引張応力であり、高い三軸応力状態となっていることが確認された。また、溶接金属表層部についてひずみゲージにより測定した残留応力も図中に示す。この値が中性子回折により測定した表層部残留応力値とほぼ等しいことから、中性子回折により残留応力測定が精度よく評価されたと言える。

中性子の高い透過能を利用することで、厚い試料の残留応力の分布について、溶接部内部まで評価することが可能

となり、溶接時の残留応力分布の場所による特徴について有効な知見が得られた。また、溶接時に含まれる水素と割れとの関係を調査する⁵⁾ことで、溶接割れの制御について多くのことが明らかとなることが期待される。

4. TRIP 鋼板の加工変形時の γ 相変態挙動その場観察⁶⁾

4.1 背景

自動車用薄板として高強度・高延性を有する TRIP 鋼板が開発されている。この鋼板は、加工変形時に残留オーステナイト (γ) からのマルテンサイト変態を利用して、高強度・高延性を実現しており、その変態挙動についての知見は非常に重要である。相変態挙動の解析は走査電子顕微鏡や X 線回折でも行なわれているが、これら手法では、表面の影響が大きいため、バルク全体の評価として中性子による測定が有効である¹⁰⁾。そこで、中性子を用いて、変形中の $\gamma \rightarrow$ マルテンサイト変態挙動の解析を実施した。

4.2 実験方法

板厚 1.5 mm の TRIP 鋼板を用いて、引張中の変態挙動について測定を行なった。引張変形中のその場中性子回折実験は、J-PARC の工学材料回折装置「匠」¹¹⁾を用いた。引張変形中の中性子回折実験は、広い入射波長域を持つパルス中性子を用いた飛行時間法 (TOF 法, Time of flight) で測定することで、同時に複数の回折ピークを得ることが可能である。図6に TOF 法により得られた回折強度を示す。図からわかるように、広い領域にて α および γ 相からのピークが同時に観察されている。引張その場観察は、平行部の長さ 50 mm、幅 5 mm、厚さ 1.2 mm の平板引張試験片に対して、引張軸方向が入射中性子線に対して 45° 傾斜する方向に設置した。2つの検出器を入射線に対してそれぞれ 90° 方向に設置し、引張軸方向に対して平行と垂直な格子面の回折強度を測定した。

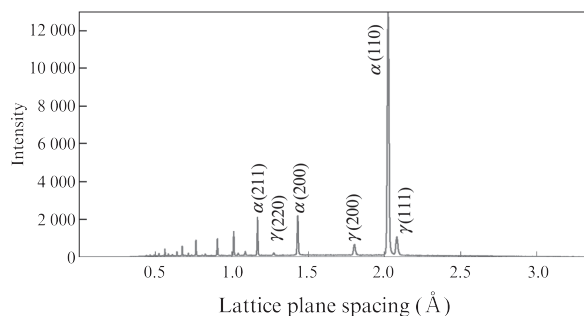


図6 飛行時間 (TOF) 法による TRIP 鋼からの回折強度⁶⁾

Fig. 6 Time-of-flight neutron diffraction profile of transformation induced plasticity (TRIP) steel

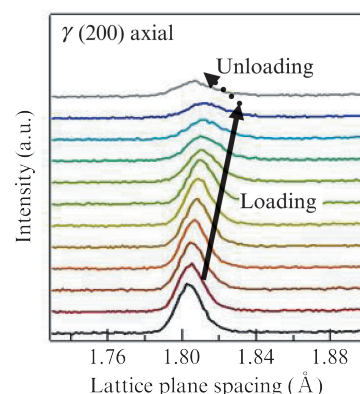


図7 引張試験中の $\gamma(200)$ 回折ピークの変化⁶⁾

Fig. 7 Changing of Neutron diffraction peaks during tensile test

4.3 実験結果および考察

引張変形中の $\gamma(200)$ の回折ピークの変化を図7に示す。引張変形により回折ピーク強度の減少と回折ピーク位置が変化し、格子間隔が増加していることが観察される。また、荷重を除いたときは、ピーク高さが初期と比較して小さくなっており、変形過程での残留 γ の動的挙動を捉えていることが分かる。リードベルト解析を用いて引張変形中の残留 γ の変態挙動中の格子ひずみの変化および残留 γ 量を解析した。また、このとき α 相のピークでも、ピークフィッティングを行ない、フェライト (bcc) とマルテンサイト (bct) のピークに分離して解析した。このように計算した引張変形中のフェライト、マルテンサイトおよび残留 γ の各相の格子ひずみ変化を図8に示す。図から、フェライトが降伏する段階では残留 γ の格子ひずみは増大して応力を担っており、残留 γ が降伏するとともにマルテンサイトの格子ひずみが増大して応力を担っていることがわかる。また、残留 γ 量の測定からも、降伏とともに残留 γ 量が減少し、塑性変形による加工硬化の増大に伴いさらに残留 γ 量が減少していることが観察された。以上の解析から、残留 γ の変態挙動としては、フェライトの降伏とともに残留 γ への応力が増大し応力誘起変態が起り、その後の加工硬化段階で残留 γ の塑性変形に伴いひずみ誘起変態が進行していることがわかった。

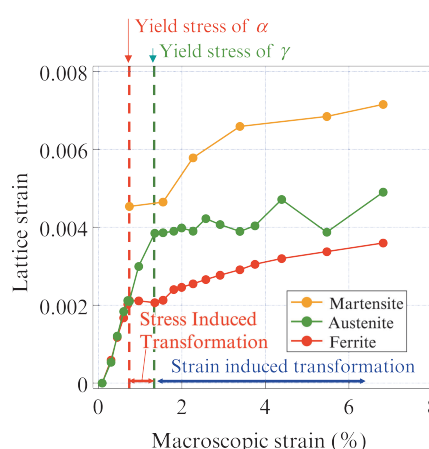


図8 引張試験中の各相の格子ひずみ変化⁶⁾

Fig. 8 Lattice strain changes of each phases during tensile test

5. おわりに

中性子を用いた解析では、高い透過能力があるため、鉄鋼材料の組織解析には非常に有望である。近年、J-PARC などの大型施設に加えて、小型中性子線を用いた解析技術も進歩している。今後も多くの進展が見込まれるため、JFE スチールは研究会などを通じて積極的に中性子を用いた組織解析を実施する方針である。

本研究は、一般社団法人鉄鋼協会の産発プロジェクト、公募型 (C 型) 研究会、国立研究開発法人新エネルギー・

産業技術総合開発機構の「革新的高強度・高機能化基盤研究開発プロジェクト」および文部科学省の中性子利用技術移転推進プログラムなどの研究会を通じて実施したものであり、本研究における中性子実験の実施に際して、国立大学法人茨城大学 友田陽教授 (現国立研究開発法人 物質・材料研究機構)、国立大学法人北海道大学 大沼正人教授、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 鈴木裕士博士、秋田貢一博士、ステファヌス ハルヨ博士、一般財団法人総合科学研究機構 鈴木淳市博士には多大なる技術支援を頂きました。また、その他中性子を用いた実験の計画・遂行においても各研究会のメンバーを始め多くの方のご協力を頂きました。ここに関係各位に感謝申し上げます。

参考文献

- 1) 友田陽ほか. 産発プロジェクト展開鉄鋼研究成果報告概要集「中性子利用鉄鋼評価技術の基礎検討に係る研究」. 日本鉄鋼協会編. 2009.
- 2) 大沼正人ほか. 中性子を利用した鉄鋼材料研究の新展開. CAMP-ISIJ. 2010, vol. 23, p. 735-776.
- 3) 安原久雄, 佐藤馨, 田路勇樹, 大沼正人, 鈴木淳市, 友田陽. 鉄と鋼. 2010, vol. 96, no. 9, p. 545.

- 4) たとえば, 佐藤馨, 仲道治郎, 山田克美. 顕微鏡. 2005, vol. 40, no. 3, p. 183.
- 5) 石川信行, 末吉仁, 鈴木裕士, 秋田貢一. 溶接学会論文集. 2011, vol. 29, no. 3, p. 218.
- 6) 末吉仁, 石川信行, 山田克美, 佐藤馨, 中垣内達也, 松田広志, 新垣優, 友田陽. 波紋 (日本中性子科学会誌). 2014, vol. 23, p. 34.
- 7) Tanaka, K.; Akiniwa, Y.; Hayashi, M. Mater. Sci. Res. Int. 2002, vol. 8, no. 4, p. 165.
- 8) Kim, S-H.; Kim, J-B.; Lee, W-J. J. Mat. Process Tech. 2009, vol. 209, no. 8, p. 3905.
- 9) 鈴木裕士, 盛合敦, 下条豊, 徐平光, 塩田佳徳, 秋田貢一. M&M 材料力学カンファレンス. 2010, p. 333.
- 10) たとえば, 友田陽. ふえらむ. 2010, vol. 15, no. 1, p. 17.
- 11) ステファヌス ハルヨ. 日本結晶学会誌. 2008, vol. 50, p. 40.



仲道 治郎



佐藤 馨



末吉 仁