

中性子回折角度分散法による塑性加工を受けた鋼の 応力・組織因子解析システムの開発

龍福 進*・鈴木 徹也*²・鈴木 裕士*³・友田 陽*⁴

Development of Data Analysis System of Angular Dispersive Neutron Diffraction for Stress and Microstructural Parameters in Deformed Steels

Susumu RYUFUKU, Tetsuya SUZUKI, Hiroshi SUZUKI and Yo TOMOTA

Synopsis : A data analysis system has been developed to determine texture, lattice strain, block (or grain) size and dislocation density from neutron diffraction profiles obtained by an angular dispersive method. The texture is evaluated from the integrated area of the curve-fitted quasi Voigt function for experimental profiles. The block size and dislocation density are obtained by profile analyses based on an integral breadth method as well as a Fourier coefficient method. The obtained results of lattice strain, block size and dislocation density are superposed onto the orientation pole figure as output results. The developed system was applied to a cold-rolled SUS316 steel and drawn carbon steel wires to examine its usefulness.

Key words: neutron diffraction; angular dispersive method; profile analysis; texture; lattice strain; block size; dislocation density.

1. 緒言

中性子線は電子線やX線に比べて透過能が大きく、材料内部の応力測定や材料試験片と同じ程度の大きさを測定対象として相応力や粒応力の巨視的の平均を評価するのに適している¹⁾。最近利用が進みつつある中性子残留応力解析でも、Bragg回折ピークのシフト量から弾性ひずみを求める²⁾が、その際に得られる回折プロファイルの回折強度には集合組織、プロファイル形状にはマイクロ組織の情報が含まれている。従来からX線回折においてはプロファイル解析によって粒子サイズや転位密度を測定することが行われてきた³⁾。X線回折では試料のごく表面層の情報が得られるが、中性子回折を用いると試料全体のバルク平均が得られる特徴があり機械的特性との関係を求めて材料開発や既存材料の信頼性を検討するのに適している。しかし、そのような試みはほとんどなされていないので、測定手法も解析ソフトも確立していない現状である。そこで、本研究では鉄鋼材料のマイクロ組織状態を中性子回折によって総合的に評価するためのデータ解析システムの開発を試みた。原子炉中性子源を対象とし、モノクロメータで単色化された中性子ビームによる角度分散法による測定結果に対しては、既存のX線回折プロファイル解析法をほぼそのまま適用できる

と予想される。回折プロファイルのシフトや強度に対しては、個々の手法がすでに存在し、格子ひずみから応力を推定することや極点図より方位分布関数(ODF)を求めることができる。極点図作成に関しては、プロファイルを適当な関数でカーブフィッティングしてその積分強度を用いた積分強度極点図が試料のバルク平均を表すには信頼性が高いと考えられる⁴⁾ので、本研究でも擬Voigt関数を用いて解析できるようにした。組織因子を導出するためのプロファイル解析に関しては、De Keijserらによる積分幅法⁵⁾と桑野によるGarrod-Auld法を取り入れた手法⁶⁾に基づいて、バックグランドなど中性子回折測定法に対応したデータ解析プログラムを作成し、いわゆる微視ひずみ(一般に転位密度に対応する)とブロックサイズ(粒径)を同定した。これら2つの方法は、解析対象である塑性変形材の回折プロファイルと焼なまし材の回折プロファイルの差異から、変形材の微視ひずみとブロックサイズを算出する方法である。したがって、微視ひずみやブロックサイズの影響が無視できる焼なまし材(基本材)の存在が重要である。解析ソフトはFORTRANでコーディングした。入出力ファイルは、広く利用されているマイクロソフトExcelで利用可能なcsvファイルやテキストファイルで扱い、解析結果は、フリーソフトのGMTを用いて極点図とひずみ、転位密度

平成19年9月6日受付 平成19年12月19日受理 (Received on Sep. 6, 2007; Accepted on Dec. 19, 2007)

* 茨城大学大学院理工学研究科(社会人学生)・(株) ヴィジブルインフォメーションセンター(Graduate Student, Ibaraki University, 4-12-1 Nakanarusawa Hitachi Ibaraki 316-8511)

* 2 茨城大学工学部(Faculty of Engineering, Ibaraki University)

* 3 日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門(Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency)

* 4 茨城大学大学院理工学研究科(Graduate School of Science and Engineering, Ibaraki University)

等の重ね図を出力できるようにした。GMTで生成した画像ファイルはフリーソフトのGSviewなどで見ることができる。

構築した解析システムをオーステナイト系ステンレス鋼の圧延材と高炭素鋼の伸線材に関する測定データに適用し、システムの妥当性とさらに改善すべき事項を検討した。前者では、集合組織と転位密度やブロックサイズの間に相関がみられること、後者では強伸線加工に伴うマイクロ組織形成に関する興味深い結果が得られた。

なお、本論文では3種類の「ひずみ(strain)」が出てきて紛らわしいので、冒頭で整理しておく：応力と対応する弾性ひずみは格子面間隔の変化から測定するので格子ひずみ(lattice strain)と呼び、加工により生じた永久変形は塑性ひずみである。粒子線回折によって得られるブラッグ回折のプロファイル解析では通常ブロックサイズ(coherently diffracting block (mosaic) size)と微視ひずみ(microstrain)の用語が使われる。ブロックは結晶粒や加工材の転位セルに対応し、後者は一般に転位密度と結び付けられる。

2. 解析手法と解析システムの開発

2.1 基本的な流れ

解析手法の流れをFig. 1に示す。機械加工・熱処理が施された材料の中性子回折プロファイルは、微視ひずみやブロックサイズの影響を含んでいる。本論文では、この解析対象材料を「試験材」と呼ぶ。また、微視ひずみやブロックサイズの影響を焼なましで除いた材料を「基本材」と呼ぶ。これら2種類の材料の中性子回折測定によって得られるプロファイルを試験材で h 、基本材で g とする。試験材のプロファイル h は、微視ひずみ、ブロックサイズのほかに測定光学系の影響を受けている。一方で、基本材プロファイル g は、微視ひずみ、ブロックサイズの影響がなく測定光学系の影響のみにより形作られていると考える。ここで、微視ひずみとブロックサイズの影響を反映する仮想のピークプロファイルを真のピークプロファイル f とすると、試験材プロファイルは、基本材プロファイルと真のプロファイルを畳み込んだものといえる。プロファイル解析は、試験材プロファイルと基本材プロファイルから、真のプロファイルを求め、そこから微視ひずみ、ブロックサイズを導出する。このほかに、回折ピークシフトより弾性ひずみ(格子ひずみ)、回折強度より結晶配向性(集合組織)を同定する。集合組織を表す極点図の作成には、個々の回折プロファイルをカーブフィッティングしてその積分強度から求めた。塑性加工を受けた単相多結晶体の場合は、格子ひずみは結晶粒間の不均一塑性変形に起因する残留粒応力(第二種残留応力)による弾性ひずみを格子ひずみとして測定することになる。格子ひずみ、結晶配向性、ブロックサイズ、および転位密度の巨視的平均を一括して同定する

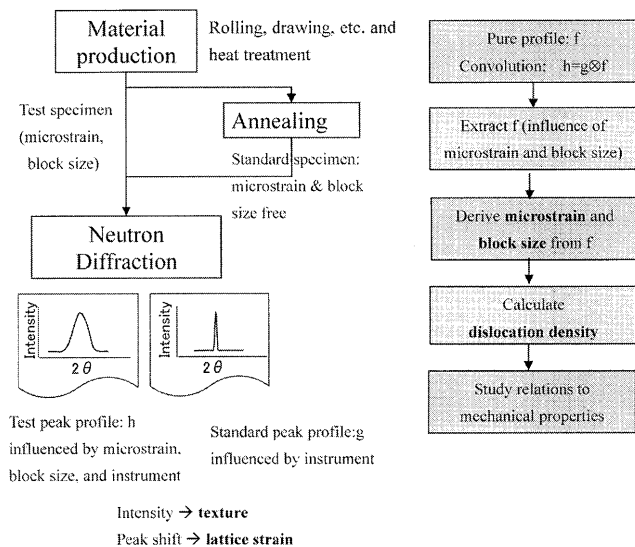


Fig. 1. Computing flow of diffraction profile analysis.

ことに本解析システムの特徴がある。

2.2 プロファイル解析手法

(1) 積分幅法

De Keijserらの方法⁵⁾を基本にして解析ソフトを作成した。ここで、積分幅とはピーク面積をピーク高さで除算して得られる幅をいう。評価対象材料のピークプロファイルはGauss関数とCauchy (Lorentzian)関数を畳み込んだVoigt関数で以下のように表現される。

$$h_c = g_c * f_c \dots \dots \dots (1-1)$$

$$h_g = g_g * f_g \dots \dots \dots (1-2)$$

ここで、 h ：評価対象材料のピークプロファイル、添字CはCauchy関数、GはGauss関数成分を意味する。 g ：基本材料のピークプロファイル； f ：「真の広がり」(評価対象材料のピークプロファイルの広がり量から基本プロファイルの広がり量を除去した量で結晶の微視ひずみとブロックサイズの影響を反映している)；「*」は畳み込みを意味する演算子である。積分幅 β の各成分を用いてこれらは以下のように示される。

$$\beta_c^f = \beta_c^h - \beta_c^g \dots \dots \dots (2-1)$$

$$(\beta_c^f)^2 = (\beta_c^h)^2 - (\beta_c^g)^2 \dots \dots \dots (2-2)$$

評価対象(または基本プロファイル)の積分幅 β と半価幅 $2w$ を以下の実験式に代入してCauchy成分 β_c^h 、 β_c^g 、Gauss成分 β_g^h 、 β_g^g を求める。

$$\beta_c/\beta = a_0 = a_1\varphi + a_2\varphi^2 \dots \dots \dots (3-1)$$

$$\beta_g/\beta = b_0 + b_{1/2}\left(\varphi - \frac{2}{\pi}\right) + b_1\varphi + b_2\varphi^2 \dots \dots \dots (3-2)$$

ここで、 $\varphi = 2w/\beta$ ($2w$ は実測の半価幅)、 $a_0 = 2.0207$,

$a_1 = -0.4803$, $a_2 = -1.7756$, $b_0 = 0.6420$, $b_{1/2} = 1.4187$, $b_1 = -2.2043$, 及び $b_2 = 1.8706$ である。この実験式の最大誤差は1%である。ブロックサイズ D は Cauchy 成分の寄与のみ、微視ひずみ e は Gauss 成分の寄与のみと考え、次式から求める。

$$D = \frac{\lambda}{\beta_C^f \cos \theta} \quad \text{.....(4-1)}$$

$$e = \frac{\beta_G^f}{4 \tan \theta} \quad \text{.....(4-2)}$$

ここで β は 2θ スケールで測定された値、 λ は波長である。上式では θ はラジアンとすると両辺の次元が合う。X線プロファイル解析でよく使われる $\langle \varepsilon^2 \rangle^{1/2}$ とは $\langle \varepsilon^2 \rangle^{1/2} = (2/\pi)^{1/2} e$ の関係となる。積分幅法で求めるブロックサイズは体積加重平均である。

ピーク面積を求めるには、ピークの裾の端を決める必要がある。Gauss関数とCauchy関数を基にするフィッティングカーブの裾はバックグランド線と交わらないため、本解析プログラムでは、フィッティングカーブと測定値の残差自乗平均の大きさだけバックグランド線から上がった高さで裾切りをすることにした。本解析プログラムは面指数、波長、格子定数、フィッティング曲線から縦軸 y 値を抽出する際の横軸 x の間隔が必須の入力パラメータであり、フィッティング関数初期値、ピークの幅（裾切り）の設定は自動またはユーザー設定が可能である。

ここで、注意すべき点は、実際の測定プロファイルデータのピークがバックグランドに落ちる点（裾）をどこで切るかでピークの面積を変化させるため、結果の不確かさの要因となる。

(2) フーリエ係数法

評価対象材料の測定プロファイルを $h(2\theta)$ 、基本材料の測定プロファイルを $g(2\theta)$ とする。逆格子空間位置 $s = 2 \sin \theta / \lambda$ ($= 1/d$; d は格子面間隔) で考え、評価対象材料、基本材料、及び真のプロファイルを $h(s)$, $g(s)$, $f(s)$ で示す。評価対象材料の関数 $h(s)$ は以下のように与えられる。

$$h(s) = \int f(s') g(s - s') ds' \quad \text{.....(5)}$$

$$h(s - s_0) = \sum_n H'(n) \exp[-2\pi i n(s - s_0) / \Delta s] \quad \text{.....(6)}$$

Stokesの方法でフーリエ級数を用いて解くとき、評価対象材料のフーリエ係数 $H'(n)$ は、

$$H'(n) = \frac{1}{\Delta s} \int_{-\Delta s/2}^{\Delta s/2} h(s - s_0) \exp[2\pi i n(s - s_0) / \Delta s] ds \quad \text{.....(7)}$$

ここで $i = \sqrt{-1}$, n は整数である。同様に基本材料の関数 $g(s)$ と真のプロファイルの $f(s)$ のフーリエ係数 $G'(n)$ と

$F'(n)$ も定義され、これらの規格化されたフーリエ係数を $H(n)$, $G(n)$, $F(n)$ とおくと、次式が成り立つ。

$$F(n) = \frac{H(n)}{G(n)} \quad \text{.....(8)}$$

この H から G を割算して分けることを逆畳込み（デコンボリューション）という。

次に桑野の報告⁶⁾を基にシングルピークに関する測定値からの処理について説明する。フーリエ係数の式の指数関数部は $\cos$ （余弦）と $\sin$ （正弦）に分けられる。余弦係数部は実数 real の添字 r をつけて

$$G_r(n) = \sum_{j=-X/2}^{X/2} g(j) \cos \frac{2\pi n j}{X} \quad \text{.....(9-1)}$$

$$H_r(n) = \sum_{j=-X/2}^{X/2} h(j) \cos \frac{2\pi n j}{X} \quad \text{.....(9-2)}$$

と示される。上式は回折線プロファイルを X 等分し $g(j)$, $h(j)$ は j 番目の位置の波高値である。同様に正弦係数部も虚数 imaginary の添字 i をつけて $G_i(n)$, $H_i(n)$ で示されるものの、ひずみがプラス、マイナスに同量と考えると正弦係数はゼロとなるので以後、省略する。回折面に対する垂直方向の長さを $L = nd$ とすると真のプロファイル（真の広がり）のフーリエ係数は下式で示される。

$$F_r(L) = \frac{H_r(L)}{G_r(L)} \quad \text{.....(10)}$$

ピークトップの位置は $j=0$ でその角を θ_0 , $j=X/2$ の角を θ_2 とすると下式から d が得られる。

$$\left(\frac{2d}{\lambda} \right) \cdot (\sin \theta_2 - \sin \theta_0) = \frac{1}{2} \quad \text{.....(11)}$$

L が小さい範囲で

$$-\frac{\ln(F_r)}{L} = \frac{1}{\langle D \rangle} + \left(-\frac{1}{2\langle D \rangle^2} + \frac{2\pi^2 \langle \varepsilon^2 \rangle h_0^2}{a^2} \right) L \quad \text{.....(12)}$$

が成り立つ。ここで $\langle D \rangle$ は平均ブロックサイズ、 $\langle \varepsilon^2 \rangle$ はひずみ率の自乗平均、 a は格子定数、 $h_0^2 = h^2 + k^2 + l^2$ である。 $L (=nd)$ の n を変化させときの F_r が既知であるので $-\ln(F_r)/L$ を y 軸、 L を x 軸としたグラフを描いたときの y 切片が $1/\langle D \rangle$ で、傾きが L に乗じられた項であり、これらから $\langle D \rangle$ と $\langle \varepsilon^2 \rangle$ が求まる。 $\langle \varepsilon^2 \rangle$ は平方根をとって、前出の $\langle \varepsilon^2 \rangle^{1/2}$ で表す。本解析プログラムでは、 $-\ln(F_r)/L$ と L のグラフ上のプロットを $n=1 \sim 3$ の範囲、 $n=1 \sim 4$ の範囲、 $\dots$, $n=1 \sim 12$ の範囲で線形最小二乗法を行い各範囲の決定係数 R^2 値を求め、それが1に最も近い場合を上式の成り立つ L の小さい範囲

として、 $\langle D \rangle$ と $\langle \epsilon^2 \rangle$ を算出する。また、ピークの裾の端(θ_2 の位置)の決定法は前述(1)と同じである。本解析プログラムは面指数、波長、格子定数、フィッティング曲線から y 値を抽出する際の x の間隔が必須の入力パラメータであり、フィッティング関数初期値、ピークの幅(裾切り)の設定は自動またはユーザー設定が可能である。フーリエ係数法で求めるブロックサイズは面積加重平均である。

ここで注意すべき点は、 $j=X/2$ の位置をどこにとるか、すなわちピークの裾の決定が結果の不確かさ要因となる。積分幅法と同様に、ピークの裾の決定(バックグラウンドの決定)は重要であり、その方法は後述する。

(3) 転位密度

本ソフトウェアでは、転位の平均密度 ρ (らせん転位 ρ_s 、刃状転位 ρ_e)と測定されたブロックサイズ D_{eff} 、 $\langle \epsilon^2 \rangle^{1/2}$ の関係式に以下を採用した。

$$\rho = (\rho_e \rho_s)^{1/2} = \frac{2\sqrt{3}\langle \epsilon^2 \rangle^{1/2}}{D_{\text{eff}} \cdot b} \quad \dots\dots\dots(13)$$

ここで、 b はバーガースベクトルの大きさである。算出される転位密度は巨視的な平均値であり、実際の結晶粒中の局所的な転位密度の分布は反映しない。この点を理解して、透過電子顕微鏡(TEM)観察と補完しあう使い方をすべきである。

(4) ノイズ、バックグラウンドの除去

測定されるピークプロファイルには、ノイズとバックグラウンド成分が含まれており、それらを除去する必要がある。ノイズの除去は疑Voigt関数でフィッティングすることで行う。疑Voigt関数は下式で示される。

$$Y = Y_0 \cdot \left[(1-M) \cdot \text{EXP} \left(-4 \cdot \ln 2 \cdot \frac{(X-X_0)^2}{\text{FWHM}^2} \right) + M \cdot \left(1 + 4 \cdot \left(\frac{X-X_0}{\text{FWHM}} \right)^2 \right)^{-1} \right] \quad \dots\dots\dots(14)$$

大括弧のなかの第1項はGauss成分、第2項はCauchy成分でありそれぞれ擬Voigt比 M で配分される。 M の範囲は $0 \leq M \leq 1$ である。フィッティングは非線形最小二乗法(マルカート法)を用いた。この最小二乗法計算ルーチンは、「Fortran 77による数値計算ソフトウェア」⁷⁾を基にした。

本解析では、シングルピークを扱い、角度幅が小さいので、バックグラウンドは直線で近似することで十分である。シングルピーク測定データはピークの両端に平坦部があるとして、ノイズを含むプロファイルのピークの右側(低角側)、左側(高角側)それぞれの最低の強度点より外側のノイズを含む強度点を線形最小自乗法でフィッティングしてバックグラウンド線を近似する。これ以外にバナジウムを

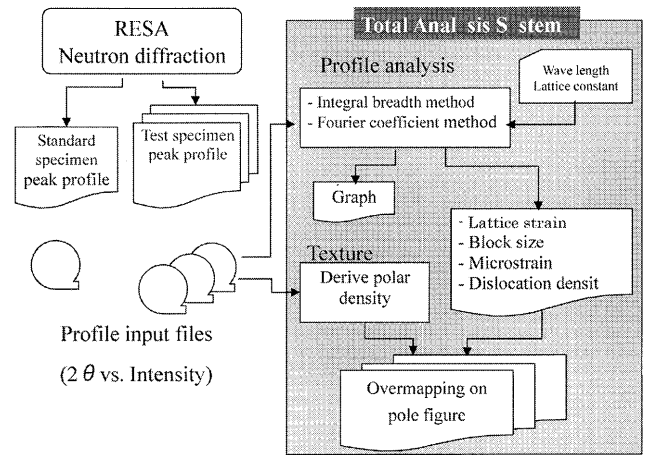


Fig. 2. Flow chart to determine lattice strain, texture, block size and dislocation density.

サンプルにデータを取りこれをバックグラウンドとして、測定データを補正することも可能である。

2・3 解析システムの構築

通常の残留応力測定で使われる(hkl)格子ひずみ(ϵ_{hkl})は次式で与えられる。ここで d_{hkl}^0 は無応力状態の(hkl)面間隔である。

$$\epsilon_{hkl} = (d_{hkl} - d_{hkl}^0) / d_{hkl}^0 \quad \dots\dots\dots(15)$$

一方、集合組織を表す極点図は回折プロファイルを擬Voigt関数でフィッティングして、その積分強度を用いて評価した。

前節で示した手法に基づいて解析システムのプログラミングを行った。測定データの処理、解析、結果表示の流れをFig. 2に示す。この解析システムを種々な実験結果に適用して実績を重ねユーザーフレンドリーな入出力ができるように改良を続けている。以下では、そのうちの2例を紹介し、このシステムの活用が「ミクロ組織と強度の関係」の定量的な検討にきわめて有用と思われることを示す。

3. 構築したシステムの適用と考察

3・1 圧延加工を受けたオーステナイト系ステンレス鋼板への適用

実験方法の詳細は別報⁸⁾で述べたので概略のみ示す。市販SUS316鋼(幅150mm、長さ160mm、厚さ20mm)で化学組成(mass%)は0.06C、0.45Si、0.83Mn、0.029P、0.001S、10.11Ni、16.19Cr、2.07Moの溶体化処理材に圧下率25%の冷間圧延加工を施した。圧延板の板厚中心部から放電加工で厚さ1mm、直径10mmの円盤試験片を切り出し、それらを10枚重ねて接着し、高さ10mm、直径10mmの測定用円柱試料を作製した。中性子回折実験は日本原子力研究開発機構の研究3号炉付設中性子散乱実験施設の残留応力解析用中性子回折装置RESAを用いて行った。

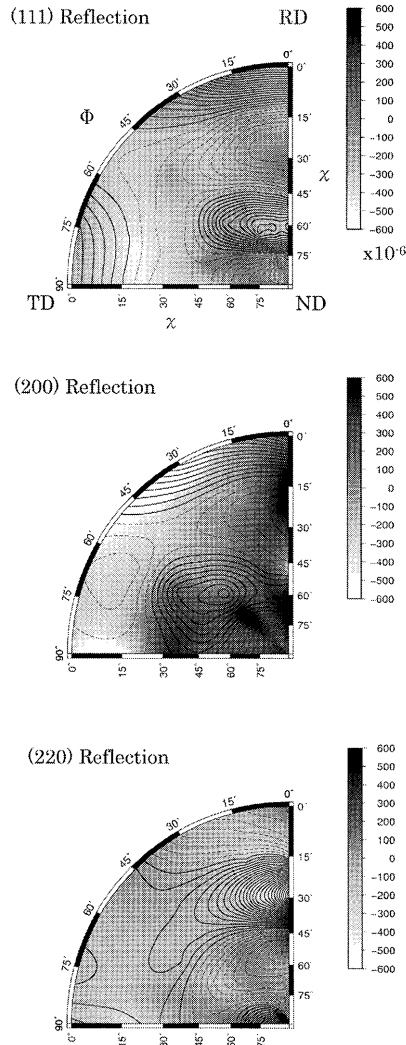


Fig. 3. Overmapping of lattice strain pole figures for the rolled SUS316 steel.

入射ビームに対して4mm×4mm、回折ビームに対して4mm×15mmのスリットを挿入し、オイラークレドールを用いて試料を回転しバルク集合組織を測定した。本システムを用いて回折プロファイルから格子ひずみ、転位密度およびブロックサイズを算出した。一部の測定方向では回折強度が弱くプロファイル解析は困難であった。Fig. 3に(111)、(200)、(220)の極点図を示す。(111)面の極密度分布をみると、 $\phi=0$ 度、 $\chi=60$ 度付近に高い回折強度が現れているなどオーステナイトステンレス鋼の典型的な圧延集合組織である。その上にプロファイル解析で求めた格子ひずみをグラデーションで重ねて示した。この図はひずみ極点図と呼ばれる。ここで、 d_{hkl}^0 には無加工材の方位毎の測定値を採用した。圧延加工における結晶粒単位の不均一塑性ひずみに起因して内部応力(粒応力)が生じるので、これに対応する弾性ひずみが測定されている。塑性変形の容易さが結晶方位 $[hkl]$ に依存するため方位によって引張と圧縮のひずみが観察され応力が平衡していると考えられる。結晶配向(集合組織)と格子ひずみの関係については、

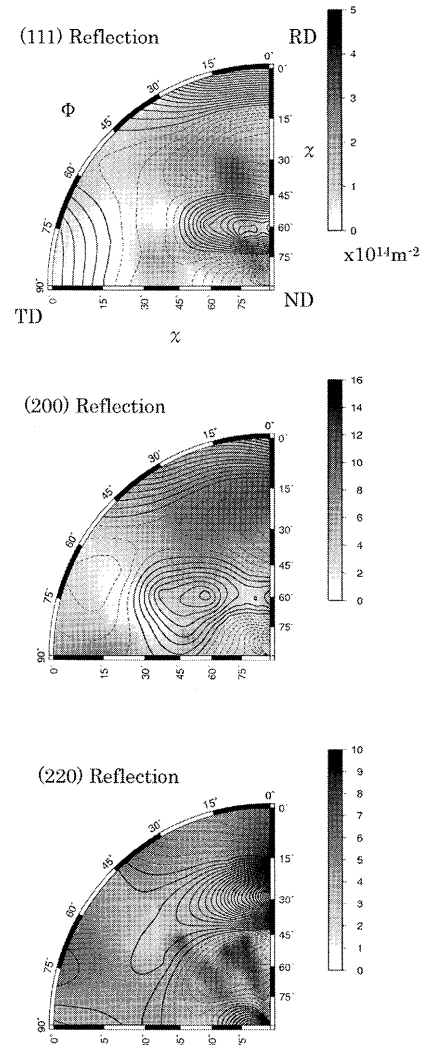


Fig. 4. Overmapping of dislocation density and texture for the rolled SUS316 steel.

塑性不均一性と結晶回転の観点から現在検討中である。

次に、プロファイル解析により得られた転位密度を集合組織極点図の上に重ねた結果をFig. 4に示す。解析計算が成立せずにデータが欠落した点があり周辺の結果からグラデーションで補間した。極密度の大きさと転位密度の間には弱い相関があり、その傾向は回折面によって異なるようである。

プロファイル解析により得られたブロックサイズについて同様にまとめた結果をFig. 5に示す。結晶配向の強い方位の粒径が大きい傾向がみられる。

X線回折では多数の回折面ピークの半価幅を用いてブロックサイズと転位密度を求めるWilliamson–Smallman (W-S)法⁹⁾がよく用いられている³⁾。その際に(200)方向のヤング率(単結晶の弾性係数もしくは多結晶体における回折弾性係数 E_{hkl})が他の方位より著しく小さいこと(E_{111}/E_{100} は約1.4)¹⁰⁾から除くことが推奨されている³⁾。そこで、解析手法による差異の概略を調べる目的で、本手法とW-S法により、(111)と(220)の測定結果から信頼性の低

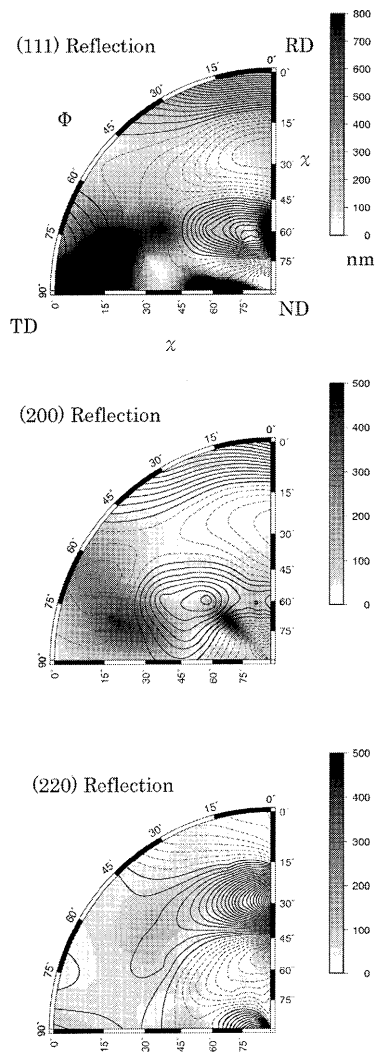


Fig. 5. Overmapping of block size and texture for the rolled SUS316 steel.

いデータを除いて平均値を求めて Table 1 に示した。W-S 法の結果の転位密度はプロファイル解析による (111) と (220) の結果の間にある。ブロックサイズの計算値は、類似の試料の TEM 観察例¹¹⁾から判断して転位セルサイズと対応している。ここで、転位密度やブロックサイズが、多結晶体の個々の結晶粒方位に依存するか否かに興味があるので、引き続き TEM 観察や EBSD 測定による KAM (Kernel average misorientation) 値分布との関連について実験し、物理的考察を進める予定である。

一般に、X 線回折法で求めた転位密度は TEM 観察で求めた値より大きいと考えられている³⁾。その理由として、前者では微視ひずみをすべて転位密度に換算すること、後者では薄い試料の表面近傍の転位が抜けたり再配列して転位密度が低下することが推測されている。中性子では表面層を対象とする X 線よりも拘束の強い試料内部の状態を測定するので、転位密度が他の手法より高く測定されると予想される。

Fig. 3~5 の傾向は、窒素添加 SUS310 鋼の 25% 圧延加工

Table 1. Comparison of dislocation density and block size determined by the present method with those by the Williamson–Smallman (W-S) method.

Method used for analysis and (hkl)*	Dislocation density ($\times 10^{14} / \text{m}^2$)		Block size (nm)	
	Average	SD**	Average	SD**
(111)*	1.1	0.7	176	93
(220)*	4.4	1.9	46	17
W-S	2.5	1.2	192	148

* The present profile analysis

** Standard deviation

材でも確認された¹²⁾。このようなバルク平均情報は、ミクロ組織の定量化とその力学的特性との関連を検討する上で、有用であると思われるが、どのように物理的に解釈され、いかに活用できるかの研究が、今後期待される。

3・2 高炭素鋼伸線材への適用

直径 1.4 mm の過共析鋼 (0.88C–0.16Si–0.51Mn–0.009P–0.005S: mass%) をパテント処理によりパーライト組織にした後、湿式伸線加工により直径 0.2 mm の線材 (真ひずみ 4.2) にした。線材を長さ 5 mm に切断し直径約 5 mm の束にして中性子回折実験を日本原子力研究開発機構およびチェコ共和国核物理研究所で測定した。試料作製や実験方法等は既に報告した¹³⁾。ここではスリット 10 mm×10 mm として線束全体から伸線方向の測定で得られた (211) 回折プロファイルを解析した。(211) 回折プロファイルの測定例 (生データ) を Fig. 6 に示す。図には試験材プロファイルから基本材プロファイルをデコンボリューションし、バックグラウンドを除去した後のガウス成分を実線で示した。ガウス曲線の広がり的大小関係は転位密度に対応する。伸線ひずみが 1.2 から 3.1 に増すと幅広がりが大きくなるが、4.2 になると減少している。伸線ひずみ 4.2 では測定プロファイルとガウス曲線の差が裾野で著しく大きいことが注目される。すなわち、ブロックサイズの寄与が大きいことが直感される。

ブロックサイズおよび転位密度の伸線ひずみに伴う変化を Fig. 7 と Fig. 8 に示す。伸線加工度の増加に伴ってブロックサイズは単調に減少している。一方、転位密度は伸線加工度が増すに伴い最初は増加するが、真ひずみ 4 を超えると減少した。この傾向は積分幅法でもフーリエ係数法でも同じ傾向である。本論文の手法と異なるプロファイル解析手法に、Transformed model fitting を用いた PROFEDGE コードがある¹⁴⁾。この方法により Strunz *et al.* が計算した結果¹⁵⁾も同じ図にプロットした。3つの手法の解析結果は

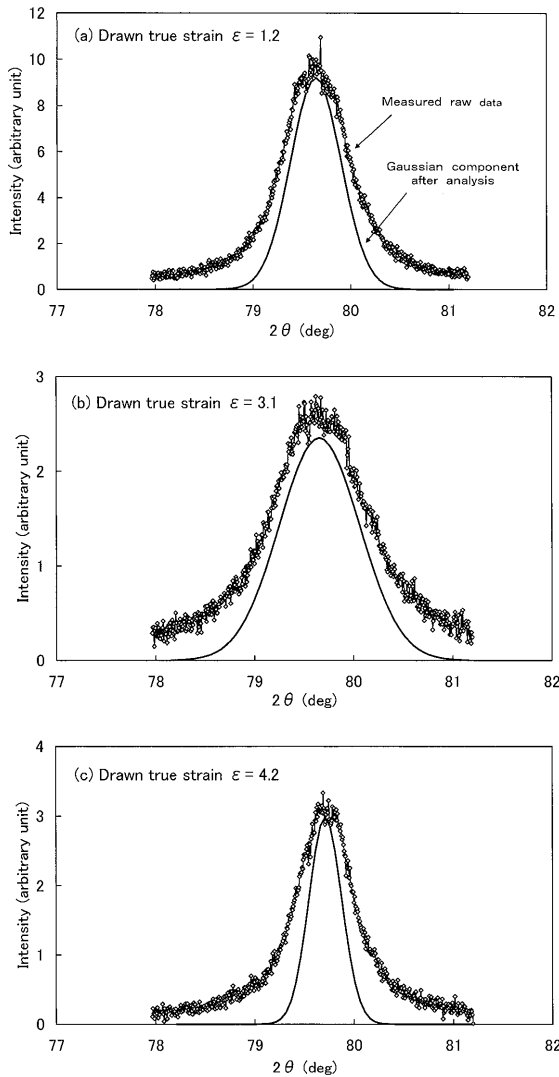


Fig. 6. Effect of drawing strain on diffraction profile, in which pure Gaussian component after the profile analysis was depicted: (a) true strain 1.2, (b) 3.1 and (c) 4.2.

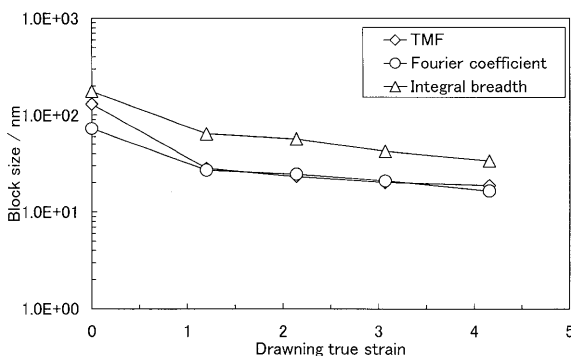


Fig. 7. Block size determined by the profile analysis for the drawn pearlite steel wire as a function of drawing true strain.

Fig. 7とFig. 8にみられるように傾向が同じでデータは平行に変化しているので、絶対値の差はモデルの相違による系統誤差を示していると考えられる。

プロファイル解析で求めたブロックサイズが実際のミク

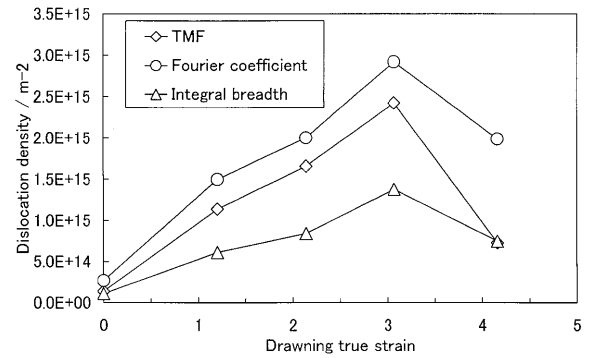


Fig. 8. Dislocation density determined by the profile analysis for the drawn pearlite steel wire as a function of drawing true strain.

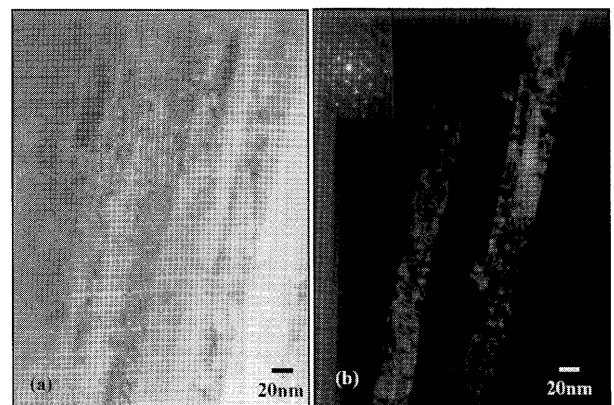


Fig. 9. Transmission electron micrographs of the drawn pearlite steel wire (true strain: 4.2) annealed at 473K for 3.6 ks: (a) bright field image and (b) dark field image.

ロ組織と一致するのか検証する必要があるが、伸線状態の試料には大きな内部応力が存在し明瞭なTEM観察像を得ることが困難であった。Fig. 9には真ひずみ4.2で473 K、3.6 ks焼なまし後の試料のTEM観察例を示したが、伸線状態でも像が不明瞭なだけでラメラ間隔はほぼ同じであった。伸線加工によって一方向に伸びたラメラ状組織になっており、その幅を測定してプロファイル解析から求めた値と比較した結果をFig. 10に示す。TEM観察による測定値には95%信頼区間を分散幅としてプロットした。図には炭素量の異なる鋼に真ひずみ約4の伸線加工を与えた試料の結果¹³⁾も示した。実験誤差(統計誤差)が大きい、本プロファイル解析により同定したブロックサイズとTEM観察の結果はかなりよく一致している。

転位密度に関しても同様な検証が必要であるが、まだ行っていない。Fig. 9に関して言えば、巨大ひずみ加工材では転位線をTEMでは観察しがたく、転位密度の測定は不可能に近い。一般に組織が数10 nm以下に微細化すると結晶粒内で転位はほとんど観察されない。現在、CuやIF鋼のECAPなどによる巨大ひずみ加工材でも、TEM観察やX線回折の結果と本手法による結果の比較を行っている。いずれの場合も、転位密度の桁は一致し、与えるひずみ量が

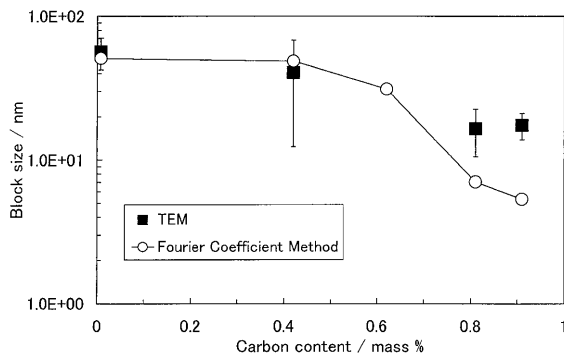


Fig. 10. Comparison of block size observed by TEM observation and that determined by the profile analysis.

著しく大きくなると転位密度が減少することが共通して現れている。

以上のように、プロファイル解析結果の相対的変化はいずれの解析法を用いても把握できると思われるが、絶対値の評価には課題が残る。今後、適用例を増やし、TEM観察などで求めた値と比較検討を重ねる必要がある。

3.3 本システムの適用範囲と今後の改善

Fig. 4および5で観測された配向度と転位密度、結晶子サイズとの相関については、ピーク強度が低い場合に半価幅、積分幅が大きく求められてしまう可能性も考えられ、種々の検討を行っている。また、本プロファイル解析はどのような試料に対しても適用できるわけではなく、基本材の存在が重要である。基本材は、焼なましなどにより転位やブロックサイズの影響を受けていないと仮定するが、実際の材料は必ずしもそうとは言えない。試験材と基本材のプロファイル形状の相違が小さい場合にはデータ解析ができない。前述の2例で解析が可能であった場合と不可能であった場合の回折プロファイルをFig.11に示す。可能であった場合は(a)と(b)に示すように両者のプロファイルの幅広がりには大きな差異がある。一方、(c)に示すように回折強度が低い場合や塑性変形量が小さい、あるいは回復が顕著な場合は、基本材と試験材のプロファイル半価幅の差が小さく解析不能になる。このような問題を解決するひとつの方法として、装置分解能を基本プロファイルとして用いることが考えられる。装置分解能はCagliotiの式を用いてシミュレーションできる¹⁶⁾が、本実験で用いた日本原子力研究開発機構のRESAを対象として検討したところ、ビーム強度を上げるためにモノクロメータとして9枚のシリコン単結晶を湾曲させて用いているため(bent crystal法)、入射ビームに波長分布があることが障害となって有効な基準プロファイルを得ることができなかった。この方法は後述の大強度陽子加速器実験施設(J-PARC)装置が使えるようになるとその適用可能性が高まると思われる。

今後、本解析システムを用いて以下のような検討を行う予定である。中性子回折測定装置に引張試験機を取り付け、

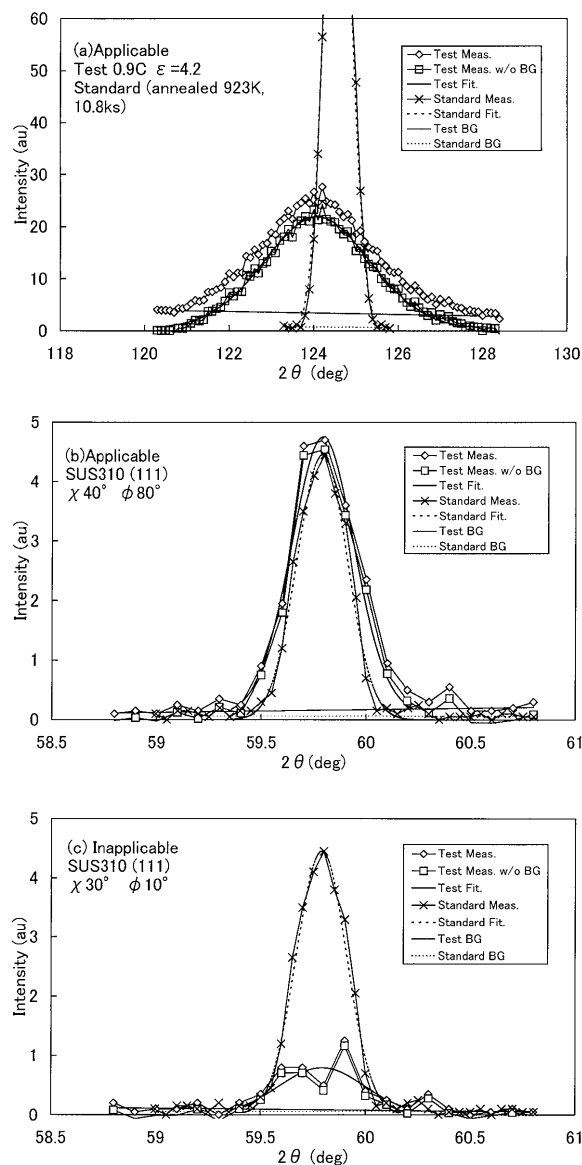


Fig. 11. Applicable and inapplicable diffraction profiles for the present analysis: (a) the drawn pearlite steel wire (true strain of 4.2), (b) a 25% cold rolled SUS316 steel and (c) another profile obtained from a different angle for the SUS316 steel.

試験片を変形しながら同一場所の中性子回折測定を行い、その結果を逐次、*in-situ*解析することができる。この場合は引張前のプロファイルを基準にできるので、変形に伴う組織因子のバルク平均の変化を追うことが容易になると予想される。あるいは、加工された鋼を加熱しながら回復再結晶を追うことも可能である。本論文では、そのためのデータ解析システムの開発状況を報告した。加速器中性子源における飛行時間法による回折プロファイルへ拡張適用することも今後の課題である。J-PARCがまもなく利用開始になり、ビーム強度が高いため時分割測定によるその場測定実験に威力を発揮と考えられるので、ハードの整備と同時に本システムのようなソフト開発が急がれる。

4. 結論

中性子角度分散法によって得られる回折プロファイルから格子（弾性）ひずみ，ブロックサイズ，転位密度（微視ひずみ）を求め，結晶配向性を表す集合組織（極密度分布）と重ねて表示できる解析システムを構築した。実験で求めたオーステナイト系ステンレス鋼の圧延材と炭素鋼の伸線材の回折プロファイルを解析して，開発したシステムの有効性を検討した。主な結果は以下のようである。

（１） 角度分散法により得られる回折プロファイルから弾性ひずみ（応力），集合組織，ブロックサイズおよび転位密度の４つのパラメータを同定できる解析ソフトを作成した。

（２） 極点図上に弾性ひずみ，ブロックサイズおよび転位密度を重ねて表示する出力ソフトを作成して，これらの相関性を検討できるようにした。

（３） プロファイル解析に用いた積分幅法とフーリエ係数法の相違は体積平均と面積平均の性格を反映すると思われる差が見られたが，同定された転位密度の桁数は同じで変化の傾向も同じであった。

（４） 本手法をオーステナイトステンレス鋼の圧延材に適用した結果，粒応力，転位密度，ブロックサイズと加工集合組織の間に相関が見られた。

（５） 本手法を高炭素パーライト鋼の伸線加工材に適用した結果，伸線加工度の増加に伴いブロックサイズ（転位セル径）は単調に減少し，その大きさは透過電子顕微鏡観察結果とほぼ一致することがわかった

（６）（５）における転位密度は，加工度の増加に伴い最初は増加するが，真ひずみが４を超えると減少する傾向が

見られた。

本研究に対して日本鉄鋼協会産発プロジェクト鉄鋼展開研究および茨城県中性子利用促進研究会より援助を受けたことを記し，関係各位に感謝する。実験にあたっては日本原子力研究開発機構の斎藤徹博士，物質材料研究機構の足立吉隆博士，茨城大学大学院の塩田佳徳君，白鳥友子さんほか多くの学生諸君にお世話になった。

文 献

- 1) たとえば，Y.Tomota, T.Suzuki: *Bull. Iron Steel Inst. Jpn.*, **12** (2007), 71.
- 2) たとえば，H.Suzuki and Y.Tomota: *Hamon*, **17** (2007), 228.
- 3) たとえば，高木節雄：日本鉄鋼協会・第191/192回西山記念技術講座「21世紀を拓く高性能厚鋼板」，(2007)，1.
- 4) P.G.Xu, Y.Tomota, T.Suzuki, S.Machiya and H.Suzuki: *CAMP-ISIJ*, **20** (2007), 1253.
- 5) T.H.H.De Keijser, J.I.Langford, E.J.Mittermeijer and B.P.Vogels: *J. Appl. Phys.*, **15** (1982), 308.
- 6) J.Kuwano: *J. Soc. Mater. Sci. Jpn.*, **26** (1977), 735.
- 7) 渡辺 力，名取 亮，小国 力：Fortran 77による数値計算ソフトウェア，丸善，(1993)，237.
- 8) H.Suzuki, T.Holden, B.Clausen, Y.Shiota and Y.Tomota: *Proc. of the 41st Symp. on X-ray Studies on Mechanical Behavior of Materials, Soc. Mater. Sci., Japan*, (2006), 140.
- 9) G.K.Williamson and R.E.Smallman: *Philos. Mag.*, **1** (1956), 34.
- 10) M.T.Hutchings, P.J.Withers, T.M.Holden and T.Lorentzen: *Introduction to the Characterization of Residual Stress by Neutron Diffraction*, Taylor & Francis, (2005), 203.
- 11) S.Kubota, Y.Xia and Y.Tomota: *ISIJ Int.*, **38** (1998), 474.
- 12) H.Suzuki, T.Suzuki, S.Ryufuku and Y.Tomota: unpublished work (H.Suzuki: presented at MECASENS-4, (2007), Vienna).
- 13) T.Shiratori, Y.Shiota, S.Ryufuku, Y.Adachi, H.Suzuki and Y.Tomota: *Proc. of the 3rd Int. Conf. on Advanced Structural Steel*, (2006), 354.
- 14) P.Strunz: *Mater. Struct.*, **4** (1997), 136.
- 15) P.Strunz, P.Lukas and Y.Tomota: unpublished work.
- 16) G.Caglioti, A.Paoletti and F.P.Ricci: *Nucl. Inst.*, **3** (1958), 223.