

# 圧延鋼板に対する中性子回折ラインプロファイル解析における 散乱ベクトル方位の影響

埜 健太<sup>a</sup>, 小貫祐介<sup>b</sup>, 轟 秀和<sup>c</sup>, 齋藤洋一<sup>c</sup>, 鈴木 茂<sup>d</sup>, 佐藤成男<sup>e\*</sup>

## Effect of Scattering Vector of Neutron Diffraction for Rolled Steel Sheets on Neutron Diffraction Line-Profile Analysis

Kenta HANAWA<sup>a</sup>, Yusuke ONUKI<sup>b</sup>, Hidekazu TODOROKI<sup>c</sup>, Yoichi SAITO<sup>c</sup>,  
Shigeru SUZUKI<sup>d</sup> and Shigeo SATO<sup>e\*</sup>

<sup>a</sup> College of Engineering, Ibaraki University

4-12-1, Nakanarusawa-cho, Hitachi-shi, Ibaraki 316-8511, Japan

<sup>b</sup> Frontier Research Center for Advanced Atomic Sciences, Ibaraki University

162-1, Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1106, Japan

<sup>c</sup> Nippon Yakin Kogyo Co., Ltd.

4-2, Ojima-cho, Kawasaki-ku, Kawasaki-shi, Kanagawa 210-8558, Japan

<sup>d</sup> Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University

2-1-1, Katahira, Aoba-ku, Sendai-shi, Miyagi 980-8577, Japan

<sup>e</sup> Graduate School of Science and Engineering, Ibaraki University

4-12-1, Nakanarusawa-cho, Hitachi-shi, Ibaraki 316-8511, Japan

(Received 4 December 2016, Revised 23 December 2016, Accepted 24 December 2016)

We investigated the effect of the relationship between the scattering vector of neutron diffraction and the sample direction processed by cold-rolling on line-profile analysis. It was revealed that dislocation parameters became unstable when using a diffraction profile at the scattering vector parallel to the rolling direction. This is probably due to the inhomogeneous elastic strain caused by the distribution of the Poisson's effect depending on the crystallographic orientation. On the other hand, the most ideal direction of the scattering vector for the line profile analysis is the normal direction of the rolled sheets. This is because the inhomogeneous elastic strain and the residual strain was small in this direction. The contribution of austenite and ferrite phases in the duplex stainless steels to the work hardening was also investigated by estimating dislocation density. The dislocation density in the austenite phase was much higher than that in the ferrite phase. Consequently, the austenite phase is mainly responsible for the work hardening with the cold-rolling.

**[Key Words]** Neutron diffraction, Line-profile analysis, Duplex stainless steel, Dislocation

a 茨城大学工学部 茨城県日立市中成沢町 4-12-1 〒316-8511

b 茨城大学フロンティア応用原子科学研究センター 茨城県那賀郡東海村白方 162-1 いばらき量子ビーム研究センター内 〒319-1106

c 日本冶金工業株式会社川崎製造所 神奈川県川崎市川崎区小島町 4-2 〒210-8558

d 東北大学多元物質科学研究所 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1 〒980-8577

e 茨城大学大学院理工学研究科量子線科学専攻 茨城県日立市中成沢町 4-12-1 〒316-8511

\* 連絡著者: shigeo.sato.ar@vc.ibaraki.ac.jp

中性子回折測定における散乱ベクトルと冷間圧延を施された試料の加工方位との関係がラインプロファイル解析に与える影響を調査した。散乱ベクトルが圧延方向に平行の場合、ラインプロファイル解析から求められる転位パラメーターが異常値を示すことが明らかになった。これはポアソン効果の結晶方位依存性により生じた不均一な弾性ひずみに起因すると考えられる。また、板幅方向および圧延方向では残留ひずみが大きいこと、それら方位の回折に対するラインプロファイル解析は望ましくない。一方、ラインプロファイル解析に最も適した散乱ベクトル方位は、圧延板材の板面法線方向であることが示唆された。板面法線方向では不均一な弾性ひずみと残留ひずみの影響が小さいことによると考えられる。また、二相ステンレス鋼のオーステナイト相、フェライト相の加工硬化への寄与について、転位密度から考察した。加工に伴うオーステナイト相の転位増殖はフェライト相のそれより大きいことが確認された。この結果から、冷間圧延に伴う加工硬化は主にオーステナイト相が担うことが明らかになった。

[キーワード] 中性子回折, ラインプロファイル解析, 二相ステンレス鋼, 転位

## 1. はじめに

二相ステンレス鋼は fcc 構造 (面心立方構造) を持つオーステナイト組織と bcc 構造 (体心立方構造) を持つフェライト組織が共存する二相合金である。二相組織形成時に結晶粒が微細化し、その微細粒効果により高強度の特徴を持つ。ステンレス鋼は圧延板材として利用されることが多く、特に冷間圧延加工が施されると高密度の転位が導入され、加工硬化による強化機構が働く。二相ステンレス鋼の場合、オーステナイト相、フェライト相それぞれの結晶構造の違いに由来した異なる転位増殖を示すことが結晶塑性論から予想され、特に冷間圧延では塑性ひずみ量が大きいこと、二相それぞれの転位増殖に顕著な違いが生じると考えられる。一般的に材料強度を特徴付けるのはマクロ強度であるが、二相ステンレス鋼の強化メカニクスの理解においては、それぞれの相の転位増殖様式を明かにする必要がある。

X 線回折で観測されるピークの形状や拡がり (ラインプロファイル) を解析することで、転位によるマイクロひずみや結晶子 (回折に対

しコヒーレントな領域) のサイズを求めることができる。その解析法として、古典的には Williamson-Hall 法<sup>1)</sup> や Warren-Averbach 法<sup>2)</sup> などが提案されていたが、結晶方位による異方的な拡がりの影響やマイクロひずみの転位密度への換算に課題があった。近年、Ungár らが考案した modified Williamson-Hall / Warren-Averbach 法はこれらの問題を解決し、信頼性のある転位キャラクター解析が実現した<sup>3-5)</sup>。この方法はラインプロファイルを結晶子サイズ成分とマイクロひずみ成分に分離する必要があるが、煩雑な計算を要求する。この解析を簡便にするため、転位のマイクロひずみによるラインプロファイルと結晶子サイズによるラインプロファイルのコンボリューションプロファイルを測定プロファイルに最小二乗フィットを行い、転位パラメーターや結晶子サイズを求める Convolutional Multiple Whole Profile (CMWP) 法が提案された<sup>6)</sup>。CMWP 法を単相ステンレス鋼や二相ステンレス鋼に適用し、引張加工を加えた際の転位増殖の評価が行われている<sup>7)</sup>。ただし、一般的な X 線回折法は、X 線の金属に対する侵入深さが数 10  $\mu\text{m}$  と小さいため、情報が表面に限定

される。圧延鋼板の場合、圧延ロールに接する板表面から板厚中心にかけて、塑性ひずみ量に勾配があり、板厚方向で不均一なミクロ組織を形成する。このため構造材全体の平均情報として転位に関する情報を得たい場合、X線回折法は必ずしも適した手段とは言えない。一方、金属材料に対し透過性が高い手法として、中性子回折法が挙げられる。中性子回折では板材表面から内部までの組織を平均情報としてとらえ、転位の密度や配置を構造材平均情報として解析し、マクロ強度と関連した議論を行うことができる。ただし、圧延材に対する適切な中性子回折ラインプロファイル測定条件は確立されていないのが現状である。特に、板面法線方向（以下ND方向）、板幅方向（以下TD方向）、圧延方向（以下RD方向）には集合組織形成による結晶方位の偏りが生じ、また、加工時に結晶粒に加わる応力状態は異なる。これらラインプロファイル解析に対する外乱要因が与える影響を検証する必要がある。

本研究では冷間圧延を施した二相ステンレス鋼板に対し、中性子回折の散乱ベクトルをND、TD、RD方向に揃えた場合のラインプロファイル解析を実施する。試料方位に対する散乱ベクトルの関係が転位密度、転位配置パラメーター、結晶子サイズに与える影響を探り、最適な散乱ベクトル方位条件を見いだす。さらに、冷間圧延の圧下率増加に伴う転位パラメーターの変化を明らかにし、二相それぞれの強化機構について議論する。

## 2. 実験

### 2.1 試料

試料には二相ステンレス鋼NAS64 (SUS329J4L相当、Fe-25.0Cr-6.3Ni-3.3Mo-0.7Mn-

0.56Si-0.1N)を用いた。冷間圧延を施し、圧下率21%および58%を加えた板状試料を準備した。板状試験片は長さ65 mm、幅8 mm、厚さ1.5 mm (圧下率:21%)、0.8 mm (圧下率:58%)とした。鉄鋼に対する中性子の吸収は小さく、回折強度は試料ボリュームにおおよそ比例する。そこで、散乱強度を稼ぐため試料厚6 mm程度になるよう板材を積層した。

### 2.2 TOF型中性子回折測定

飛行時間型 (Time-Of-Flight) 中性子回折測定は大強度陽子加速器施設 (J-PARC) の物質・生命科学実験施設 (MLF) のBL20 茨城県材料構造解析装置 (iMATERIA) にて実施した。白色中性子は波長分布を持ち、波長により中性子の速さが異なる。この特徴を用い、パルス状の白色中性子を試料に入射し、散乱した中性子が検出器に到達するまでの飛行時間 (TOF) をもとに回折パターンを得ることができる。波長は以下のように求められる。

$$2d \sin \frac{2\theta}{2} = \lambda = \frac{h}{mv} = \frac{h \cdot \text{TOF}}{mL}$$

$d$  は面間隔であり、 $2\theta$  は回折角、 $\lambda$  は中性子波長を表す。また、 $h$  はプランク定数、 $m$  は中性子の質量、 $v$  は中性子の飛行速度、 $L$  は光源から検出器までの距離である。TOF型測定では、一般的なX線回折装置で行われる角度分散型の測定に比べ、検出器走査の必要がないため短時間で低次から高次までの回折を得ることができる。積算時間はJ-PARCの陽子ビーム出力に依存するが、測定時は200 kWと低出力であったため積算時間を10分とした。

中性子の入射ビームサイズは20 mm×20 mmとした。最も高い(1/d)分解能が得られる後方散乱となる背面検出器バンクによって検出され

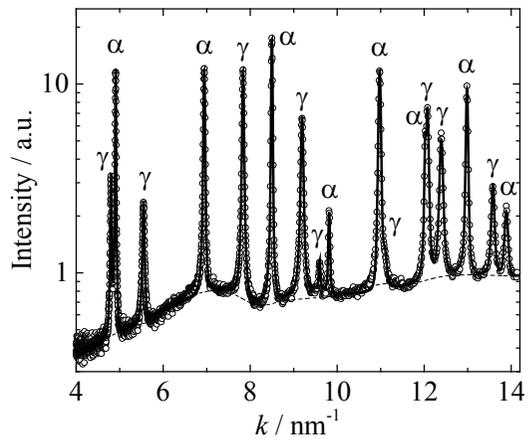
た回折ヒストグラムを用いてラインプロファイル解析を行った。背面検出器バンクに対し、散乱ベクトルをND, TD, RD方向に対し平行にする場合、それぞれの方向を背面検出器バンク方向、つまり入射X線方向に向けることで測定できる。中性子回折測定により得られるラインプロファイルは、装置由来のラインプロファイルと結晶性に由来したラインプロファイルのコンボリューションであるため、装置由来のラインプロファイルを定義する必要がある。そのため、純鉄 (bcc) および 316L ステンレス鋼 (fcc) の焼鈍材の中性子回折プロファイルを測定し、装置由来ラインプロファイルとした。

### 2.3 CMWP 法

CMWP (Convolutional Multiple Whole Profile) 法<sup>6)</sup>は、結晶性由来のラインプロファイルと装置由来のラインプロファイルをコンボリューションした理論プロファイルを、実験プロファイルにフィッティングすることで、パラメータを最適化する方法である。結晶性由来のラインプロファイルは、結晶子サイズ効果と転位由来のマイクロひずみ効果によるラインプロファイルのコンボリューションである。各々の理論プロファイルに対応するフーリエ係数を掛け合わせてフーリエ変換することで結晶性由来のラインプロファイルを導ける。マイクロひずみの二乗平均を $\langle \varepsilon_{g,L}^2 \rangle$ とした場合、マイクロひずみ由来プロファイルのフーリエ係数 $A^D$ は次式で表せる。

$$A^D(L) = \exp\left\{-2\pi^2 k^2 L^2 \langle \varepsilon_{k,L}^2 \rangle\right\}$$

ここで $L$ は実空間長、 $k(=1/d)$ は散乱ベクトルの大きさである。 $\langle \varepsilon_{g,L}^2 \rangle$ はWilkinsのひずみ関数<sup>8)</sup> $f\left(\frac{L}{R_e}\right)$ を用いることで、



**Fig.1** CMWP analysis for the neutron diffraction pattern taken at the ND direction of the NAS64 duplex stainless steel rolled at 21%. Open circle and solid line denote the measured and calculated profiles, respectively.  $\gamma$  and  $\alpha$  represent the austenite and ferrite, respectively.

$$\langle \varepsilon_{k,L}^2 \rangle = \left(\frac{b}{2\pi}\right)^2 \pi \rho \bar{C} f\left(\frac{L}{R_e}\right)$$

と表せる。ここで、 $b$ はバーガースベクトルの大きさ、 $\rho$ は転位密度、 $\bar{C}$ は回折面の転位による結晶ひずみの効果の違いを表すコントラストファクターであり、 $R_e$ は転位のひずみ場の大きさである。結晶子サイズは対数正規分布を仮定することでそのフーリエ係数の実部 $A^S$ は次式のように表せる。

$$A^S(L) = \int_{|L|}^{\infty} \left(M^2 - |L|M\right) \operatorname{erfc}\left[\frac{\log \frac{M}{m}}{\sqrt{2}\sigma}\right] dM$$

これらのフーリエ係数をもとに結晶性由来のラインプロファイルを求め、装置由来のラインプロファイルとコンボリューションすることで理論的プロファイルを求めることができる。

CMWP法による解析例として二相ステンレス鋼の圧下率21%試料について、ND方向の中性子回折データに対してフィッティングを行っ

た結果を Fig.1 に示す。マイクロひずみによるラインプロファイルの特徴は回折ピークテールに現れるため、ピークテールを強調するため強度を対数スケールにし、解析を行うのが特徴である。

### 3. 結果および考察

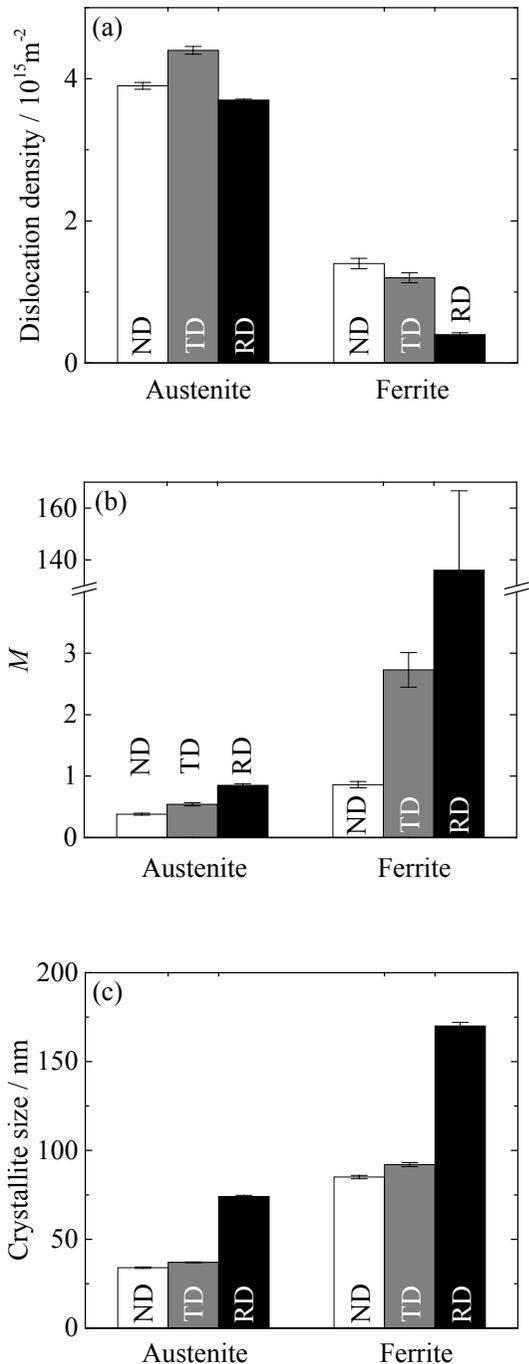
#### 3.1 圧延加工方位と散乱ベクトルとの方位関係に対するラインプロファイル解析への影響

圧下率 21% 試料について、ND, TD, および RD 方向に散乱ベクトルを揃えた場合に観測された中性子回折パターンに対し、ラインプロファイル解析を実施した。求められた転位密度、転位配置パラメーター ( $M$ )、結晶子サイズを Fig.2 に示す。転位配置パラメーターは

$$M = R_e \sqrt{\rho}$$

で表され、転位のひずみ場の大きさを転位間距離で規格化した数値である。 $M > 1$  では転位間の相互作用が弱く、転位がランダムに分布し、ひずみ場が広がった状態に相当する。 $M < 1$  では転位間相互作用が強く、ひずみ場を打ち消し合うように転位が配列化していることを示唆する。

ND 方向と TD 方向の回折条件で求められた転位密度、結晶子サイズにはオーステナイト相、フェライト相何れにおいても明確な差は認められない。一方、RD 方向の回折条件ではフェライト相の転位密度が他の方向から求められた値に比べ小さく、また、配置パラメーターは異常に高い値として求められた。つまり、RD 方向の回折条件で測定されたラインプロファイルには解析に適していないことが示唆される。フェライト相の転位密度は小さく、結晶子サイズは



**Fig.2** (a) Dislocation density, (b)  $M$ , and (c) crystallite size of the austenite and ferrite phases evaluated from diffraction patterns taken at ND, TD, and RD directions of duplex stainless steel rolled at 21%.

大きい傾向にあり、結晶性由来のピークの拡がりは小さい。その結果、フェライト相のラインプロファイルは外乱に対し敏感になり、異常値を導いたと考えられる。この外乱要因として、残留応力、または変形応力が考えられ、それぞれについて考察した結果を次に示す。

残留応力の大きさは結晶のひずみ、つまり残留ひずみとして、その大きさを評価できる。ND, TD, RDそれぞれの方向で測定された回折ピークから格子面間隔 ( $d$ ) を求め、次式から残留ひずみ ( $e$ ) を求めることができる。

$$e = \frac{d - d_0}{d_0}$$

ここで、 $d_0$  は無ひずみ状態の格子面間隔である。オーステナイト相は 111 から 422 回折、フェライト相は 110 から 400 回折に対し格子面間隔を求め、残留ひずみの平均値として算出した。圧下率 21% 試料についての ND, TD, RD 方向の残留ひずみを算出した結果を Fig.3 に示す。オーステナイト相、フェライト相それぞれに引張、圧縮の残留ひずみが確認された。圧延後の除荷に伴い結晶相には弾性的な回復が生じるが、それぞれの相の弾性回復量の違いにより相による残留ひずみが生じたと考えられる。残留ひずみの絶対値は TD>RD>ND である。特に ND 方向においてほぼゼロとなるのは、ND 方向では粒が潰れるため ND 方向の粒径は小さくなり、オーステナイト/フェライト界面での粒間応力が小さくなったと考えられる。一方、TD 方向で最大となるが、仮に残留ひずみがラインプロファイルの主因となるのであれば、TD 方向のラインプロファイルが最も異常な値を示すことになる。実際には RD 方向のラインプロファイル解析値に異常が現れている。つまり、残留ひずみがラインプロファイル解析に与える影響は小さ

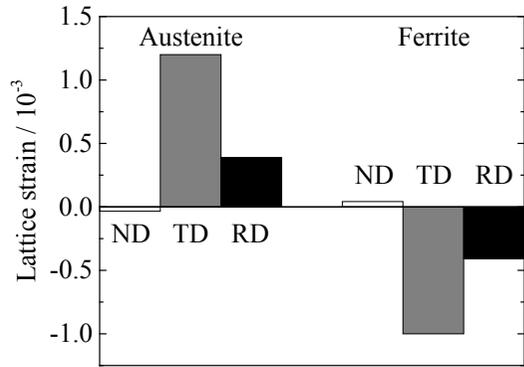


Fig.3 Residual strain of ND, TD, and RD directions for the austenite and ferrite phases of the duplex stainless steel rolled at 21%.

いと考えられる。

圧延加工の際、変形応力は ND 方向に圧縮の荷重がかかり、TD 方向では板幅が増加しないように荷重が加わる。そのため、ND, TD 方向では荷重による均一な格子ひずみが生じる。一方、RD 方向では荷重を受けず、ND, TD 方向の荷重に対するポアソン効果による格子ひずみが生じる。ポアソン効果とは、応力を加えた際に体積を一定に保つため、応力方向だけでなく応力に対して垂直方向に逆ひずみが生じることを指し、そのひずみの比をポアソン比という。ポアソン比は材料に対し定数であるが、結晶方位に対し変数となる。荷重方向に異なる  $\{stu\}$  と  $\{s't'u\}$  面があり、 $\{uvw\}$  面はその両者に垂直な面と仮定する。 $\{stu\}$  と  $\{s't'u\}$  面それぞれのポアソン比は異なるため、それぞれの法線面である  $\{uvw\}$  面には異なるポアソンひずみが生じる。例えば、SUS316L ステンレス鋼において、荷重方向に (011) 面を持つ粒と (001) 面を持つ粒を考えると、それぞれの粒のポアソン比は 0.278 と 0.347 と異なる。それぞれの粒の法線方位は [100] 方位であり、それぞれの粒の [100]

方位の格子ひずみは異なる。このため、転位による格子ひずみ以外のひずみ要素が加わる。このような影響により RD 方向には不均一な格子ひずみ加わり、結晶性に起因しないピーク拡がりが生じたと考えられる。

以上のことから、圧延板材の中性子回折ラインプロファイル解析は、ポアソン効果による格子ひずみを生じない ND または TD 方向の散乱ベクトル条件で行うことが望ましい。ただし、残留ひずみの影響も必ずしも無視できるとは限らないため、その影響が無視できる ND // 散乱ベクトル条件が最適と言える。

### 3.2 圧延圧下率に伴う加工硬化量の相分布

Fig.4 は圧下率 21% および 58% 試料について ND 方向のラインプロファイルをもとに転位密度を求めた結果である。オーステナイト相の転位密度はフェライト相のそれに比べ、圧下率 21%, 58% において、それぞれ約 2, 6 倍の大きさである。つまりオーステナイト相での転位増殖が著しく、圧下率が大きくなるとその傾向は顕著になる。塑性変形によって導入される転位は、交差すべりによってすべり面を変え、異符号の転位と出会うことで対消滅する。交差すべりは積層欠陥エネルギーが高いほど生じやすい。フェライト相はオーステナイト相に比べ積層欠陥エネルギーが高いため交差すべりによる転位の対消滅が生じやすい。このため、転位増殖が抑制されたと考えられる。一方オーステナイト相では積層欠陥エネルギーがフェライト相より十分小さいため、転位が拡張することで交差すべりが抑制される。この結果、オーステナイト相では転位が絡みあい、転位増殖が進んだと考えられる。

転位による加工硬化は、Bailey-Hirsch の式か

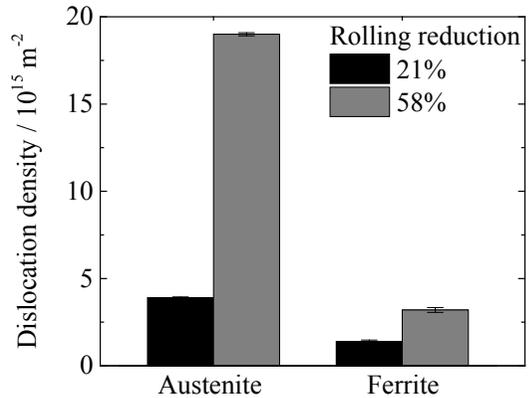


Fig.4 Changes in dislocation density of the austenite and ferrite phases of the duplex stainless steels rolled at 21% and 58%.

ら見積もることができる。この際、二相合金である二相ステンレス鋼では加工硬化量を複合則によって補正する必要がある。Bailey-Hirsch の式を以下に示す。

$$\sigma_{\text{Dislocation}} = \sigma_0 + T\alpha\mu b\sqrt{\rho}$$

ここで、 $T$  はテイラー因子、 $\alpha$  は定数、 $\mu$  は剛性率であり、 $b$  はバーガースベクトルの大きさである。マクロ強化量はそれぞれの相の強化量に相分率を乗じた和として表される。

$$\Delta\sigma = X_\alpha\Delta\sigma_\alpha + X_\gamma\Delta\sigma_\gamma$$

$X_\alpha$ ,  $X_\gamma$  はそれぞれフェライト相、オーステナイト相の相分率を指す。NAS64 のフェライト相：オーステナイト相の比率は約 6 : 4 である。転位密度から求められた加工硬化量を Fig.5 に示す。相分率が 4 割程度であるオーステナイト相は圧下率 21% において全加工硬化量の約 6 割を担う。また、圧下率増加に伴いオーステナイト相が担う加工硬化量の割合は増加する傾向にあることが示唆された。

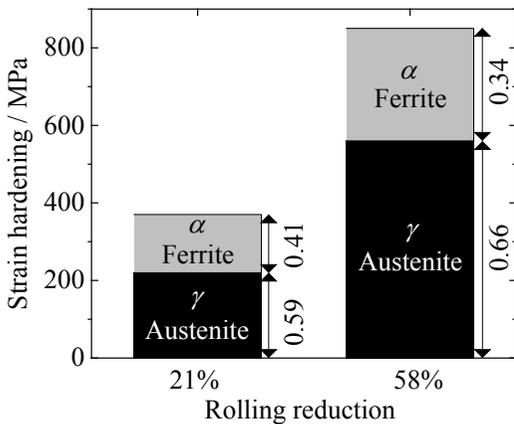


Fig.5 Strain hardening estimated from the dislocation density of the austenite and ferrite phases of the duplex stainless steels rolled at 21% and 58%.

#### 4. 結 論

二相ステンレス鋼の冷間圧延に伴う強化機構を議論するため、中性子回折ラインプロファイル解析の測定条件の検討、およびそれに基づく転位増殖機構を考察し、以下の知見が得られた。

1) 圧延金属材料のND, RD, TD方向に散乱ベクトルを揃えた場合のラインプロファイル解析を行った結果、RD方向の解析結果に異常な値を示す傾向が認められた。圧延材のRD方向はポアソン効果により不均一な弾性ひずみが生じる。この影響により、結晶性以外の要因として回折ピークに拡がりが生じ、ラインプロファイル解析に影響を及ぼす。また、残留応力による残留ひずみを回折ピーク位置から解析した結果、ND方向の残留ひずみはほぼゼロであるが、TD, RD方向で大きい値を持つ。残留応力のラインプロファイル解析への影響は必ずしも無視

できない場合もあるため、その影響が最も小さいND方向の中性子回折をラインプロファイル解析に用いることが望ましい。

2) 二相ステンレス鋼NAS64 (SUS329J4L相当)の圧下率増加に伴う転位増殖は、フェライト相に比べオーステナイト相で顕著に生じる。フェライト相では、交差すべりによる転位の対消滅が生じやすいことに起因すると推定される。また、転位増殖に伴う加工硬化を求めた結果、オーステナイト相は全体の加工硬化量に対して約6割を担うことが示され、またその割合は加工量の増加に伴い増加する。

#### 参考文献

- 1) G. K. Williamson, W. H. Hall: *Acta Metal.*, **1**, 22 (1953).
- 2) B. E. Warren, B. L. Averbach: *J. Appl. Phys.*, **21**, 595 (1950).
- 3) T. Ungár, I. Dragomir, Á. Révész, A. Borbély: *J. Appl. Cryst.*, **32**, 992 (1999).
- 4) T. Ungár, J. Gubicza, G. Ribárik, A. Borbély: *Appl. Cryst.*, **34**, 298 (2001).
- 5) T. Ungár, A. Borbély: *Appl. Phys. Lett.*, **69**, 3173 (1996).
- 6) G. Ribárik, J. Gubicza, T. Ungár: *Mat. Sci. Eng. A*, **387-389**, 343 (2004).
- 7) 加藤倫彬, 佐藤成男, 齋藤洋一, 轟 秀和, 鈴木 茂: X線分析の進歩, **47**, 167 (2016).
- 8) M. Wilkens: "Fundamental Aspects of Dislocation Theory", Vol.2, (1970), (Nat. Bur. Stand. Spec. Publ., USA).