

高温その場X線回折測定による伸線加工パーライト鋼の 転位、相応力の高温緩和過程解析

Characterization of relaxation of dislocations and phase stresses of
cold-drawn pearlitic steels at high temperatures
by using XX-ray diffraction method

佐藤 成男¹⁾, 熊谷 正芳²⁾, 佐藤 こずえ¹⁾, 今福 宗行²⁾, 菖蒲 敬久³⁾

Shigeo SATO, Masayoshi KUMAGAI, Kozue SATOH, Muneyuki IMAFUKU, Takahisa SHOBU

¹⁾ 東北大学 ²⁾ 東京都市大学 ³⁾ 原子力機構

(概要)

伸線加工パーライト鋼の転位キャラクターの分布、さらに温度変化を解析するためX線回折ラインプロファイル解析を行った。ラインプロファイル解析では回折計に起因したラインプロファイル関数を定義する必要があるが、LaB₆粉末標準試料は coarse grain であるためSPRING-8の高平行マイクロビームでは回折パターンを得ることが困難である。そこで、CeO₂粉末を利用した補正法を提案し、それに基づく伸線加工パーライト鋼を解析した。その結果、伸線材半径方向に特徴的な転位配列状態の変化を確認することに成功した。また、高温XRDラインプロファイルに対する解析法を提案し、同材料の転位の温度変化を解析した結果を示した。

キーワード：パーライト鋼，高温X線回折，ラインプロファイル解析，転位

1. 目的

フェライト相とセメンタイト相のラメラ構造からなるパーライト鋼は伸線加工が施されると GPa 級の相応力が発生する。同時に $10^{15} \sim 10^{16} \text{ m}^{-2}$ の高密度の転位がフェライト相に導入される。一方、伸線加工はダイスとの表面摩擦により線材表面側により大きなせん断ひずみに加わる¹⁾。この際生じる加工ひずみの半径方向分布に対する転位密度の分布については未解明な点が多い。さらに、伸線加工後の溶融亜鉛メッキやブルーイング工程では線材が高温にさらされ、材料強度の変化が生じる。その転位再配列挙動を把握することも工程最適化のニーズのもと望まれている。そこで本研究では、高エネルギーマイクロビームX線回折を利用したラインプロファイル解析をもとに転位密度などの転位キャラクターの分布、高温変化を解析することを目的とする。なお、マイクロビームを用いたラインプロファイル解析では、装置由来のプロファイル関数補正に関し課題がある。この課題を克服することも本研究の課題としている。

2. 方法

試料にはFe-C系共析点近傍のFe-0.73 mass% Cを用いた。直径5.50 mmのパテンティング材（未加工材）に対し、真ひずみ1.39および1.99を加え、それぞれの線径を2.74 (r = 1.37 mm) まで減面している。X線の透過性を確保するため、線材を中心から厚さ1 mmの板状に切り出し、測定試料とした。

X線回折測定は高輝度・高エネルギーX線光源であるBL22XUにて実施した。ビームサイズは $200 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$ とし、X線エネルギーは30.036 keVとした。試料面法線方向にX線を入射し、透過回折パターンを測定した。転位密度などのミクロ組織パラメータの線材半径方向の分布を調べるため、線材中心から線材表面近傍までの4点にて測定を行った。回折線の検出には試料から約900 mmに配置したPilatus100Kを利用した。検出器の移動によりフェライトの110反射から310反射を測定した。なお、検出器の移動は線材軸方向、および半径方向の2方向で行い、それぞれの方向のミクロ組織パラメータを解析した。

ラインプロファイル解析では測定されるプロファイル関数について装置由来のプロファイル関数をデコンボリューションし、構造由来のプロファイル関数を導く必要がある。装置由来のプロファイル関数を得るためには、一般に焼鈍試料またはLaB₆粉末の回折パターンが用いられる。ただし、

これら試料の結晶粒子サイズは一般に大きいため、放射光の高平行マイクロビームを用いた場合、デバイリングの二次元像を得ることは極めて困難となる。例えば図1にLaB₆粉末とCeO₂粉末のXRD像を示すが、LaB₆粉末からはドット状の回折を確認することはできるが、回折リングを得ることができない。このため、LaB₆粉末を標準試料とした装置関数補正は行えない。そこで本研究では標準試料としてCeO₂粉末の微細粒子を用い、次の手順に従い装置関数補正を行った。

実験室XRD装置にて測定されたLaB₆粉末とCeO₂粉末のラインプロファイル関数を $f_{Laboratory}^{LaB_6}$ 、 $f_{Laboratory}^{CeO_2}$ とする。LaB₆粉末のラインプロファイル関数は装置関数とみなせるため、CeO₂粉末の構造由来のラインプロファイル関数 $f_{Structural}^{CeO_2}$ について次の関係が成り立つ。

$$f_{Laboratory}^{CeO_2} = f_{Structural}^{CeO_2} \otimes f_{Laboratory}^{LaB_6} \quad (1)$$

SPring-8で測定されるCeO₂粉末のラインプロファイル関数 $f_{SPring-8}^{CeO_2}$ とSPring-8回折計の装置関数 $f_{SPring-8}^{Instrumental}$ は

$$f_{SPring-8}^{CeO_2} = f_{Structural}^{CeO_2} \otimes f_{SPring-8}^{Instrumental} \quad (2)$$

の関係がある。(1)、(2)式を利用し、SPring-8回折計の $f_{SPring-8}^{Instrumental}$ を定義する。さらに、実試料から得られる測定プロファイル関数 $f_{SPring-8}^{Specimen}$ に対し、構造由来プロファイル関数 $f_{Structural}^{Specimen}$ は次式をもとに算出される。

$$f_{SPring-8}^{Specimen} = f_{Structural}^{Specimen} \otimes f_{SPring-8}^{Instrumental} \quad (3)$$

求められた構造由来のプロファイル関数 $f_{Structural}^{Specimen}$ はmodified Williamson-Hall / Warren-Averbach法²⁾により解析した。

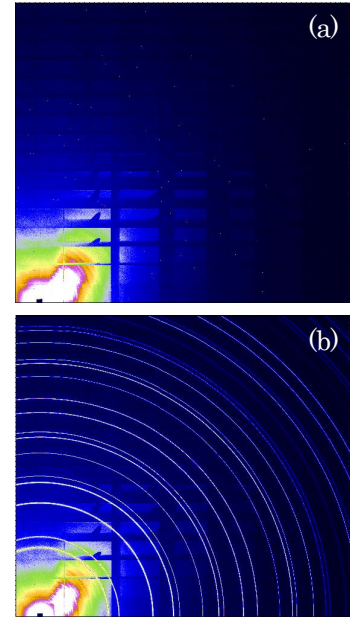


図1 (a)LaB₆, (b)CeO₂粉末のXRD二次元像。

3. 結果及び考察

3. 1 伸線材内部の転位キャラクター分布

図2に試料中心部について、線材横方向で得られたラインプロファイルを示す。測定プロファイル、光学系プロファイル、構造プロファイルを示している。(1)から(3)式をもとに装置プロファイル、構造プロファイルを求め、同図中に示している。低指数の回折では光学系プロファイルの広がりに対する測定プロファイルの差が相対的に大きくなるため、構造プロファイルは測定プロファイルのピーク幅に差が現れている。低次の回折指数のピーク幅は結晶子サイズに対する影響が大きいため、装置関数補正の有効性を示している。

modified Williamson-Hall plot を求めた結果を図3に示す。なお、Fig.2は線材中心部 ($r = 0$ mm) か

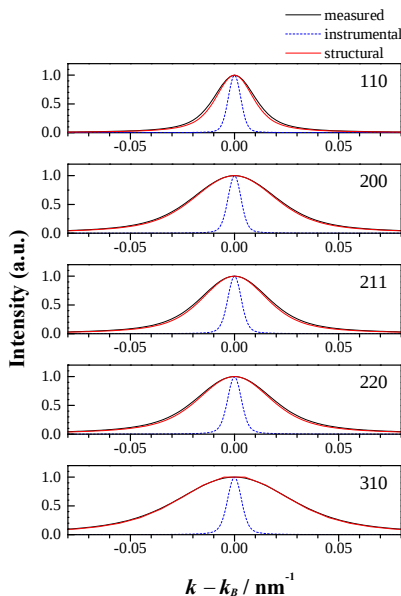


図2 試料中心部における測定プロファイル、装置プロファイル、構造プロファイル。

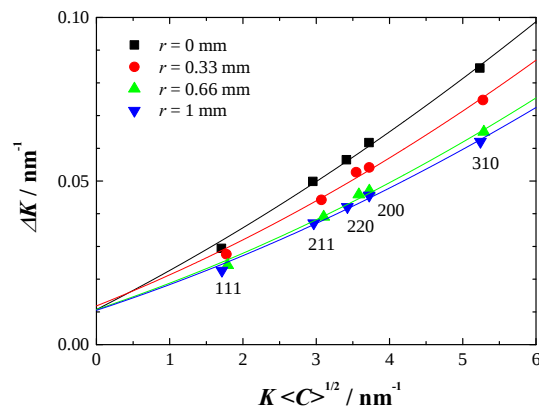


図3 modified Williamson-Hall プロット。試料中心 ($r = 0$ mm) から線材表面近傍 ($r = 1$ mm) における変化。

ら線材表面近傍 ($r = 1 \text{ mm}$) までの 4 点にて測定した結果について示している。線材中心部からの距離が大きくなるにつれ、プロット勾配は小さくなる傾向が認められる。これは転位によるミクロひずみが表面に近いほど小さいことを示唆している。伸線加工はダイスとの表面摩擦に基づくため、塑性変形量は線材中心に比べ表面側で大きい。つまり、転位による結晶ひずみは表面側において、より大きいと予想された。しかし、図 3 の結果は予想と矛盾する結果となる。一般に Williamson-Hall plot の勾配が小さい場合、“ミクロひずみが小さい” = “転位密度が小さい” と解釈されがちだが、これは正しくない。転位がランダムに分布する場合、転位を中心としたひずみ場は大きくなるが、転位が dipole や array 構造を形成するとスクリーン効果によりひずみ場は小さくなる。つまり、同じ転位密度でも転位の配置により結晶ひずみは変化する。したがって、単純な結晶ひずみという視点に基づく考察では不十分であり、転位密度とひずみ場の大きさを導く modified Warren-Averbach 法による解析が必要になる。

modified Warren-Averbach 法から、転位密度、 M 値、結晶子サイズを求めた結果を図 4 に示す。 M 値は転位密度 ($\rho \text{ (nm}^{-2}\text{)})$ の平方根と転位のひずみ場の大きさ ($Re \text{ (nm)}$) を乗じた無次元数 ($= Re\sqrt{\rho}$) である。 M 値が 1 より小さいほど、転位 dipole などが発達していることを示唆する。転位密度は半径方向において顕著な分布はないことが明らかになった。一方、 M 値は線材中心よりも表面側で小さく、表面側での転位 dipole の発達が示唆された。図 3 において中心よりも表面側で結晶ひずみが小さいと示されたが、その要因は転位密度の低下ではなく、転位 dipole 発達に伴うひずみ場の縮小によることが理解された。つまり、表面側ではより加工が大きくなり、転位セル構造発達を伴った動的回復が進行したと推定される。

3. 2 転位キャラクターの高温変化

高温 XRD ラインプロファイルからミクロ組織情報を抽出する場合、温度変化に伴うデバイワラー因子の影響を見積もり、正味の構造由来ラインプロファイルを得る必要がある。そこで、同一組成のパテンティング材 (未加工材) について 773 K の熱処理を行い、XRD 測定における昇温温度範囲では構造緩和が生じない試料を温度変化に対する標準試料として準備した。その試料の XRD パターンの温度変化をもとに、各回折指数のラインプロファイルを Voigt 関数でフィットする。Voigt 関数における Gauss 拡がり項、Lorentz 拡がり項の温度変化を求めた結果を図 5 に示す。昇温に伴い Gauss 項は減少し、Lorentz 項が増加した。つまり、温度上昇に伴いラインプロファイルは Lorentz 形状へ変化が進むことを示唆している。また、その変化は回折指数ごとに異なる。温度変化のラインプロファイルへの影響は (3) 式をもとに

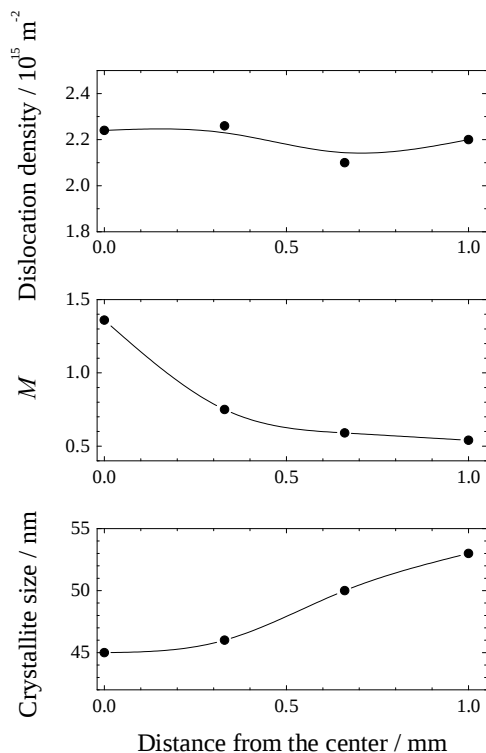


図 4 試料半径方向における転位密度、 M 値、化粧しサイズ分布。

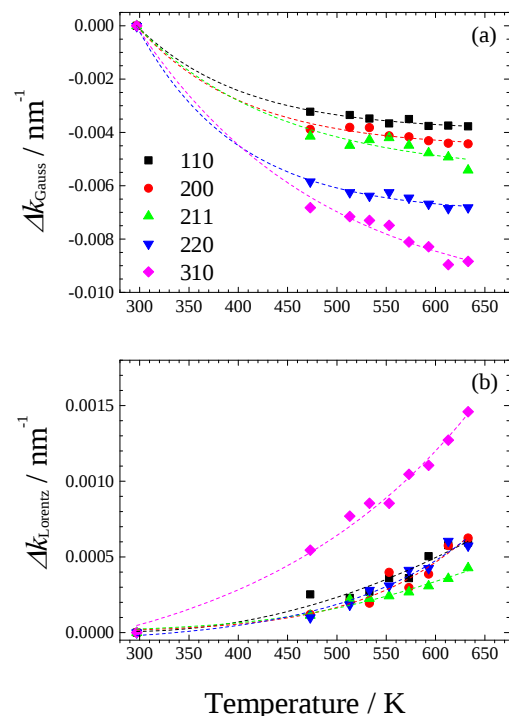


図 5 パーライト鋼フェライト相の回折プロファイルにおける (a) Gauss、(b) Lorentz 項の温度変化。

$$f_{S\text{Pring-8}}^{\text{Specimen}} = f_{\text{Structural}}^{\text{Specimen}} \otimes f_{\text{Temperature}}^{\text{Specimen}} \otimes f_{S\text{Pring-8}}^{\text{Instrumental}} \quad (4)$$

と表すことができるため、図5のパラメーターと(4)式をもとに構造由来ラインプロファイルを求めることができる。図6は試料中心部の軸方向 XRD パターンについて、室温(297 K)と573 Kの modified Williamson-Hall plot である。勾配の変化から温度573 Kにおいて転位による結晶ひずみが緩和されていることが理解できる。

modified Warren-Averbach 解析を行い求められたマイクロ組織パラメーターを表1に示す。結晶子サイズ、転位密度に変化はないが M 値が573 Kでは小さい。つまり、この昇温領域では転位の消滅は起こらず、転位 dipole 形成、または転位の array 構造による小角粒界の発達を示唆している。 M 値のような転位ひずみ場の解析では回折ピークのテール形状が重要なパラメーターとなることを踏まえれば、(4)式に基づく温度の影響の補正が正確なマイクロ組織パラメーターには必須と言える。今後、本稿で示した結果以外に、他の温度点の解析、また、残留応力と集合組織に対する転位キャラクターの関係の結果を議論する予定である。

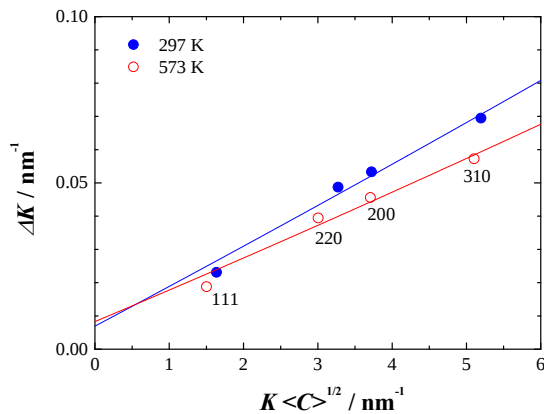


表1 297 Kおよび573 Kにおけるフェライト相のマイクロ組織パラメーター。

Temperature (K)	Dislocation density (m ⁻²)	M	Crystallite size (nm)
297	2.5	0.95	78
573	2.4	0.75	78

図6 試料中心部の軸方向 XRD パターンの 297 K および573 Kにおける modified Williamson-Hall プロット。

4. 引用(参照)文献等

- 1) Lee SK, Kim DW, Jeong MS, Kim BM. Evaluation of axial surface residual stress in 0.82-wt% carbon steel wire during multi-pass drawing process considering heat generation. Mater Design 2012;34:363-71.
- 2) Ungár T, Borbély A. The effect of dislocation contrast on x-ray line broadening: A new approach to line profile analysis. Appl Phys Lett 1996;69:3173-5.