

平成21年6月10日現在

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2007～2008

課題番号：19360325

研究課題名（和文） 中性子散乱・熱膨張同時測定による相変態解析手法の開発

研究課題名（英文） Phase transformation analysis by simultaneous measurements of neutron diffraction and dilatometry

研究代表者

友田 陽 (TOMOTA YO)

茨城大学・理工学研究科・教授

研究者番号：90007782

研究成果の概要：

熱膨張測定と同時に、その場中性子小角・広角散乱回折を用いて結晶構造・マイクロ因子を連続的に定量評価する方法を開発した。原子炉中性子源を用いて、鉄鋼材料における過冷オーステナイトからのベイナイト変態に関して、前駆現象、変態進行の速度論と結晶学的考察を行った。また、加速器中性子源を用いて、上記ベイナイト変態に加えて高温圧縮変形がフェライト変態に及ぼす影響と温間加工中の再結晶・析出の競合現象を明らかにした。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	11,900,000	3,570,000	15,470,000
2008年度	4,100,000	1,230,000	5,330,000
総計	16,000,000	4,800,000	20,800,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・材料加工・処理

キーワード：中性子回折、熱膨張測定、組織制御、相変態、小角散乱

### 1. 研究開始当初の背景

金属材料の機械的特性はマイクロ組織に敏感であり組織制御が重要な技術課題である。そのため、種々な顕微鏡観察やX線回折等による高度な組織解析技術が発展してきた。そして、材料製造プロセス中の組織形成過程を実験で調べると同時に、計算工学シミュレーションで組織形成を予測する研究が盛んに行われている。そこでは、マイクロ組織因子の平均値や分布をその場測定することが望ま

れている。高温で進行する相変態挙動を追うためには、試料を急速冷却し高温組織を凍結して室温で顕微鏡観察されることが多い。しかし、たとえば通常の鋼では高温のオーステナイトは急速冷却によってマルテンサイトになるため、高温のオーステナイトの状態は推定するしかない。加工熱処理プロセス(TMCP)中や溶接中に何が起きているのか、直接に観察・測定したいという要望はきわめて強い。しかし、従来の実験方法ではセンチ

メートルオーダーの巨視的平均値を、高温プロセス中にその場測定することは困難である。ところが、中性子散乱・回折を用いると、 $10 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$ 程度の大きさを対象にして定量的にその場測定することが可能になる。溶接などに関して放射光を用いたその場測定が試みられ興味深い結果が得られつつあるが、バルク試料内部への透過能という点で中性子ビームが格段に優れている。また、中性子の磁気散乱を利用して、キューリー点の異なるフェライトとセメンタイトや常磁性のオーステナイトを識別して相変態の核生成・成長を追える可能性もある。これまでに、申請者らは既設の中性子散乱実験施設の装置を用いて相変態挙動をその場中性子回折で測定し興味深い結果を得つつあるが周辺装置に難点があった。また、中性子ビーム強度が低いので、時分割測定を行うための時間ステップを短時間にできず限界があった。ところがJ-PARCの新中性子源はこれまでのビーム強度の100倍程度に到達する予定なので、実験上の制約が大きく改善されようとしている。

## 2. 研究の目的

組織制御のプロセッシング中にその場中性子小角・広角散乱・回折を行い、ミクロ因子の定量測定ができるようにしたい。上述のように既存の装置を用いて先行実験を試み興味深い結果を得つつあるが、専用装置ではないので有効な利用には限界がある（利用のボトルネック）。通常、相変態の進行は熱膨張測定によって行われることが多い。そこで、従来からの熱膨張測定と中性子散乱実験を同時に行うことができれば、変態機構の理解が大きく進展すると思われる。特に、鉄鋼材料における過冷オーステナイトからのフェライト、パーライト、ベイナイト変態を対象に、変態の前駆現象、変態

開始・進行に関する速度論と結晶学的考察が同時にできるような新しい周辺装置を開発することを本研究の目的とする。これにより、内部応力情報および集合組織などの組織・結晶学的情報を試料バルク平均として材料プロセッシング中にその場測定できるようになる。実験対象は鉄鋼に限らず汎用であるが、本研究の期間内では鉄鋼におけるフェライト、パーライト、ベイナイト変態に絞り、その有効性を検討する。中性子散乱・回折実験は日本原子力研究機構の研究3号炉の装置で行うが、建設中のJ-PARCの次世代装置でも使えるように設計製作し、ビーム利用が開始される2年後にはJ-PARCでも使う計画である。

## 3. 研究の方法

(1) 日本原子力研究開発機構JRR-3の残留応力解析（粉末回折）装置RESAを用いて、熱膨張とブラッグ回折同時測定が可能な装置を設計製作し、調整・実験を行う。

(2) 現状の加速器中性子源で中性子ビーム強度が最大である英国ラザフォード研究所ISISのENGIN-Xに課題申請を行い、先行実験を実施する。

(3) 集合組織のその場測定に適した米国ロスアラモス研究所LANSCÉのHIPPOに課題申請を行い、相変態に伴う集合組織変化の測定（同一試料の高温測定）を行う。

(4) J-PARCの装置「匠」に課題申請を行い、採択されたら（1）の試作熱膨張測定装置を用いて、飛行時間法による加熱中その場中性子回折実験と熱膨張測定の同時測定を実施する。

(5) 同様な実験を小角散乱に対しても行うべく、測定装置と方法を考案する。

課題申請の結果は、いずれも採択になり実験を実施した。特に、（4）は平成20年12月より一般使用が始まったばかりできわめて競

争倍率が高く記念すべき実験となった。また、(5)は他の予算措置により装置を試作することができ、予備実験を実施することができた。ただし、小角散乱で強磁性物質を測定する場合には、磁場を印加して核散乱と磁気散乱を分離することが望ましいが、磁場印加下で熱膨張測定に支障がないように試料を保持する方法が難しく、現状では磁場なしで中性子散乱と熱膨張の同時測定が可能になった段階である。

#### 4. 研究成果

##### (1) 中性子回折用熱膨張測定装置の試作と RESA におけるベイナイト変態の実験結果

まず、温度制御と熱膨張測定が問題なく実験できることを確認し、表 1 に示す化学組成の鋼の恒温変態線図を作成した。次に、一次元位置敏感型検出器 (PSD) を用いて、高温安定相オーステナイトの (111) 回折と低温相フェライトの (110) 回折を同時に時分割測定することによりベイナイト変態の進行を中性子回折強度より追跡することができた。

実験結果の例を図 2 に示す。上段は温度履歴と試料の長さ変化を示す。これらの回折強度から、変態量を算出し熱膨張測定結果と比較すると良い一致がみられた。続いて、PSD の設置角度を変化させてオーステナイトとフェライトの他の回折面ピークの変化を測定した。その結果、900°C に加熱してオーステナイト単相組織にした後に 300°C まで冷却し過冷オーステナイト状態を得ることができ、保持時間に伴ってベイナイト変態の進展が試料長さの変化から推定された。これは従来から行われてきたことであるが、本実験では中段に示すようにオーステナイト (111) とフェライト (110) の回折ピークが連続的に測定されているので、この膨張現象がフェライ

表 1 実験に用いた鋼の化学組成 (wt%)

C	Si	Mn	Cr	Al	Co	Mo
0.79	1.51	1.98	0.98	1.06	1.58	0.24



図 1 試作した中性子熱膨張測定装置

較すると良い一致がみられた。続いて、PSD の設置角度を変化させてオーステナイトとフェライトの他の回折面ピークの変化を測定した。その結果、900°C に加熱してオーステナイト単相組織にした後に 300°C まで冷却し過冷オーステナイト状態を得ることができ、保持時間に伴ってベイナイト変態の進展が試料長さの変化から推定された。これは従来から行われてきたことであるが、本実験では中段に示すようにオーステナイト (111) とフェライト (110) の回折ピークが連続的に測定されているので、この膨張現象がフェライ

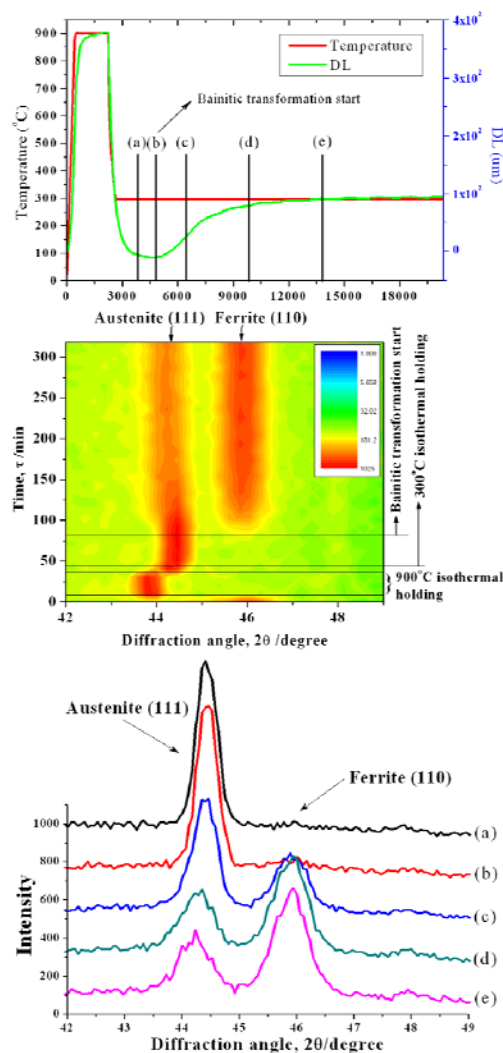


図 2 温度制御と熱膨張測定例：上段は温度と試料長さ変化、中段は回折ピーク変化、下段がその詳細な回折プロファイル

トの生成に起因するものであることが実証された。他の析出との競合が生じる場合などには、この同時測定がきわめて有用であることがわかる。図の下段には変態前および進行途中の中性子回折プロファイル例を示した。最近、放射光を用いたその場実験によって、変態開始前にオーステナイトのピークが分離して炭素の分配が生じるのではないかという提唱がなされたが、中性子回折を用いたバルク平均として測定すると、変態前にはオーステナイト回折ピークの幅広がり認められないので、炭素分配は生じていないと結論される（従来からの熱力学的理解で良い）。変態が進行すると幅広がり顕著に現れ、フェライト（ベイナイト）ラス間の残留オーステナイトには炭素が濃縮して、未変態オーステナイトとの間に炭素濃度分配が生じていることが推定される。しかし、プロファイルをダブルピーク解析するには分解能が足りない。一方、図3は回折強度から変態率（構成相の体積率）を推算した結果であり、熱膨張測定結果とよく一致している。このように、析出・相変態現象を熱膨張と構造解析の同時測定で実験することが可能になった。

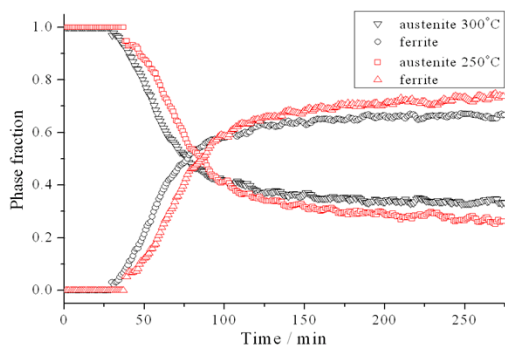


図3 回折強度から計算した変態速度

## (2) 既存の加速器中性子源 ISIS を用いた その場中性子回折実験

J-PARC 加速器中性子源の利用開始に備えて、世界で最もビーム強度の大きい ISIS の

ENGIN-X に課題申請を行い3種類の実験を行った。上記と同じベイナイト変態実験では、熱膨張の同時測定は周辺装置の都合でできなかったが、2方向から多数の回折プロファイルを飛行時間法によって測定することができた。図4に実験の様子を示す。試料に平行方向と垂直方向で図5のような回折プロファイルが得られるので、集合組織に関する情報もわかり、総合的な考察が可能となった。

この装置では、高温圧縮加工が可能である。そこで、18Ni-0.2C 鋼を用いて温間圧縮変形中のその場中性子回折実験を行った。マルテンサイト組織にした試料を加熱加工するとフェライト再結晶とオーステナイト析出が競合現象として生じ、サブミクロンの超微細組織が創製できる。この組織はきわめて大きな強度と延性を示す。この組織形成過程を集合組織の情報とともに検討することができた（論文①で公表）。また、低合金鋼の加工

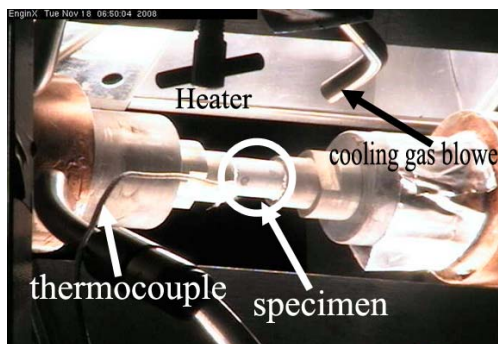
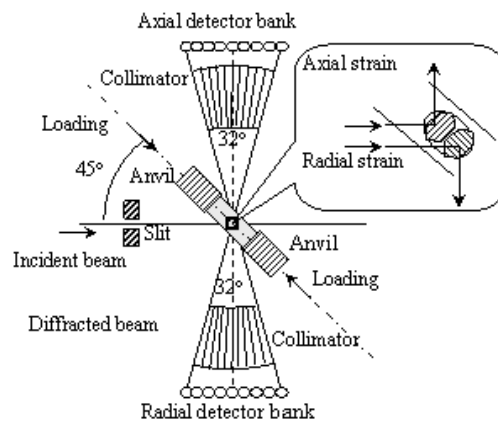


図4 ISIS/ENGIN-X における高温加工中の中性子回折

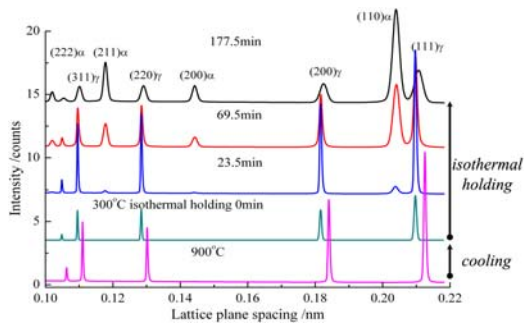


図5 ISIS/ENGIN-X で測定したベイナイト変態進行に伴う回折プロファイル変化

熱処理シミュレーションとして、オーステナイトの圧縮変形後のフェライト変態や圧縮中の動的フェライト変態を追うこともできた(論文②で公表)。このとき、熱膨張が同時測定できるとさらに効果的であったので、この結果を参照しながら J-PARC における今後の周辺装置整備と実験準備を進めた。

### (3) J-PARC「匠」を用いた実験

上述の RESA と ENGIN-X を用いた実験結果から加速器中性子源を用いた熱膨張と中性子回折同時測定への期待が高まった。平成 20 年 12 月から一般利用が始まった J-PARC の工学回折装置「匠」に課題申請し、立ち上げ時の課題として採択された。平成 21 年 2 月下旬に RESA で用いた試作熱膨張測定装置を匠に移設して、図 6 のように当初目標の実験を実現することができた。RESA と同様な測定が飛行時間法で実現した。



図6 J-PARC 匠に設置した試作熱膨張測定装置

### (4) LANSCE の HIPPO による相変態に伴う集合組織変化の測定

初期集合組織が均一になるように、熱間圧延板の板厚中心部を化学研磨で取り出し立方体状に重ねてマイクロビード溶接した試料を作製した。この試料を 875°C に加熱して高温集合組織を測定した後に冷却して集合組織を測定し、加熱前後の状態を比較した。この結果、集合組織メモリーがみられ、フェライト⇄オーステナイト変態において強いバリエーション選択規制が働いていることがわかった。このような測定を J-PARC で短時間で測定できるようにしたい。

### (5) JRR-3 SANS-J を用いた小角散乱実験

中性子回折によって構成相の結晶構造がわかり炭素含有量なども推定できる。このときに、新しく生成する相のサイズ分布や形状がわかると、組織制御への応用が広がる。これには小角散乱が有効なので、新たに類似の熱膨張測定装置を製作して、磁場下で温度制御しながら小角散乱プロファイルの時分割測定することを試みた。その結果、図 7 に示すように、ベイナイトとオーステナイト(高温安定相)の 2 つの散乱プロファイルは大きく異なり、変態の進行に伴って前者から後者へ変化してゆくことが明瞭に測定されることがわかった。この実験では磁場を印加する

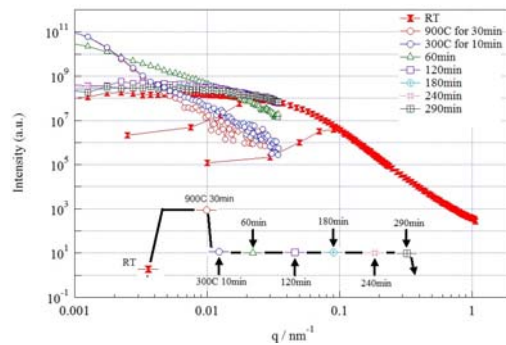


図7 中性子小角散乱によるベイナイト変態の実験結果



ことができなかつたので、次の実験では磁場下で温度調整しながら小角散乱プロファイルと熱膨張挙動を同時測定できるように装置を改善する予定である。

また、J-PARC の材料解析装置 iMATERIA では背面回折と小角散乱が同時に測定できるので、図5と図7を同時測定できる可能性があり、近い将来に試みる予定である。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計2件)

① P.G. Xu, Y. Tomota, T. Suzuki, M. Yonemura, E.C. Oliver:

*In situ* TOF Neutron Diffraction for Isothermal Ferrite Transformation during Thermomechanical Controlled Process of Low Alloy Steels

Journal of Japan Soc. Heat Treatment

掲載決定 (2009) 査読有

② P.G. Xu, Y. Tomota and E.C. Oliver:  
Dynamic Recrystallization and Dynamic Precipitation Behavior of a Fe-17Ni-0.2C Martensite Steel Studied by In Situ Neutron Diffraction

ISIJ Int. 48(2008), pp.1623-1630 査読有

[学会発表] (計4件)

① 具民書, 徐平光, 友田陽, 鈴木裕士  
中性子回折と熱膨張同時測定によるベイナイト変態挙動の検討

日本鉄鋼協会平成21年度春季講演大会  
平成21年3月28日, 東京 (東工大)

② P.G. Xu, Y. Tomota, T. Suzuki, M. Yonemura and E.C. Oliver:

Effect of Austenite Deformation on Isothermal Ferrite Transformation in a Low-Alloy Steel Studied by In Situ Neutron Diffraction

日本鉄鋼協会平成21年度春季講演大会  
平成21年3月28日, 東京 (東工大)

③ Y. Tomota:

In situ neutron diffraction during processing and mechanical response of steels, Asian Science Seminar (2008), China Institute of Advanced Science and Engineering, (Invited lecture), 平成20年10月20日, Beijing, China

④ P.G. Xu, Y. Tomota and E.C. Oliver:  
Role of Austenite in Dynamic Recrystallization during Warm Compression for a 17Ni-0.2C Martensite Steel Studied by In Situ Neutron Diffraction

日本鉄鋼協会平成20年度春季講演大会  
平成20年3月27日, 東京 (武蔵工大)

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

友田 陽 (TOMOTA YO)

茨城大学・理工学研究科・教授

研究者番号 90007782

(2) 研究分担者

なし (大学院生の実験補助あり)

(3) 連携研究者

なし