

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 10 日現在

機関番号：12101

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2009～2011

課題番号：21246106

研究課題名（和文） 大強度中性子ビームによる材料組織制御の新展開

研究課題名（英文） Development of Microstructure Control of Engineering Materials Using Neutron Beam with High Intensity

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（和文）：

工業材料の強さと信頼性はマイクロ組織に強く依存するため、新しい構造用材料を開発するためにはマイクロ組織制御が重要である。中性子散乱は、材料製造中のマイクロ組織形成過程を研究するのに適した量子ビームである。高強度ビームを使うと刻々変化する組織変化をナノからマクロスケールまで定量測定できる。これまで用いられてきた熱膨張測定とその場中性子実験と同時に行えるような測定装置を開発した。ブラック回折と小角散乱を用いて先進鉄鋼材料における相変態や析出挙動を調べ多くの新しい知見を得た。

研究成果の概要（英文）：

Strength and reliability like toughness are strongly influenced by microstructure in engineering materials, so that novel processing for microstructure control is a key issue to develop new structural materials. Neutron scattering is a new tool to make clear microstructure evolution during material processing. A dilatometer which has been usually used for phase transformation was made to install in a new neutron instrument at J-PARC to measure Bragg diffraction as well as small angle scattering. Phase transformation and precipitation behavior in advanced steels were examined and many new findings were obtained.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	19,900,000	5,970,000	25,870,000
2010年度	11,900,000	3,570,000	15,470,000
2011年度	6,300,000	1,890,000	8,190,000
年度			
年度			
総計	38,100,000	11,430,000	49,530,000

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、小角散乱、組織制御、鉄鋼、相変態、その場測定、時分割測定

1. 研究開始当初の背景

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。近年、希少元素の有効利用においてその重要性はますます高まっている。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を用いた組織形成予測の研究が盛んに行われている。そ

ここでは、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。高温で進行する析出・相変態挙動を追うためには、熱膨張・収縮曲線を求め、試料を途中段階で急速冷却し高温組織を凍結して観察することが多い。しかし、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相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試験片の巨視的平均値を、高温プロセス中にその場測定することは困難であった。ところが、中性子散乱・回折を用いると、センチメートルオーダーの大きさを測定対象にして定量的にその場測定することが可能になる。現在、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。我々は、既設の中性子散乱実験施設の装置を用いて、限定された条件下における析出・相変態挙動をその場中性子回折で測定して新しい知見を報告してきた。難点は、①中性子ビームが弱いので速い反応が追えない、②多数の回折ピークを同時に種々な方向から測定することができない、③小角から広角を同時に測定できないことであった。平成21年4月から一般利用が開始されるJ-PARCの材料構造解析装置 iMATERIA を用いれば、これらの難点が大きく改善される。特に、小角から広角までを一度に測定できるのが魅力である。この装置に設置可能な熱膨張測定装置を製作・導入すれば、熱膨張収縮挙動を見ながら析出物の結晶構造、形状・サイズ・量が測定できる。2種類以上の析出の競合やフェライト変態に前後する炭化物の析出など熱膨張データから十分には読み取れない複雑な現象を、大強度中性子ビームでは短時間刻みに追える。一方、工学材料解析装置「匠」では高温塑性加工を与えることが可能なため、温度制御装置を整備して、制御圧延・制御冷却のような加工熱処理中の組織形成を追えるようにする。飛行時間法(原子炉では角度分散法)では多数の回折面ピークを多方向から測定できるので集合組織形成過程も考察できる。このような総合的な組織制御の動的評価解析システムを構築したい。

2. 研究の目的

合金元素にできるだけ頼らないで、材料特性を発揮するためには、一段と高度なマイクロ組織制御技術の発展が必要である。我々は中性子ビーム実験の活用により、従来は測定できなかったマイクロ因子のバルク平均値を材料製造プロセス中あるいは機能発現中にそ

の場測定できることを示してきた。しかし、従来の中性子ビーム強度は弱かった等の理由で限られた条件下の測定に留まっていた。平成20年にJ-PARCにおいて中性子ビームが出始め、21年度以降は本格的な実験が可能となる。最終的には、これまでの国内施設の中性子ビーム強度の約100倍が見込まれるので、材料組織制御の研究に画期的な発展をもたらすと期待される。過去15年間にわたる中性子実験経験を基に製造プロセス中の時分割測定に関するハードとソフトを確立し、新しい組織制御法の開発に貢献する。具体的には、従来法である熱膨張測定を行いながら、中性子広角(ブラッグ)回折と小角散乱測定が同時にできる装置を開発する。平行して基盤となる組織制御中の時分割その場測定を既存の装置で行い、この手法の有効性を示す。

3. 研究の方法

J-PARCのiMATERIAの試料室に縦型熱膨張測定装置を試作して導入する。これを用いてナノベイナイト鋼や高窒素マルテンサイト鋼の組織形成過程を追跡する。

装置の製作・調整と平行して、既存の装置を用いて基盤データを採取する。JRR-3の残留応力解析装置RESAやJ-PARCの匠で使える熱膨張測定装置を作製済みなので、ベイナイト変態挙動等の研究をすでに開始している。一方、小角散乱では、生成するベイナイトラスの形状、サイズ、数密度に関する情報を熱膨張データと同時測定できる見通しが得られつつある。加工熱処理に関しては、英国ラザフォード・アップルトン研究所ISISにおいて予備的実験を進めている。これらの実績を踏まえて、本研究期間中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、焼き戻しに伴う炭窒化物の析出、パーライト鋼の板状セメンタイトの球状化について実験を進める。

4. 研究成果

(1) 熱膨張・中性子散乱回折同時測定装置
試作装置をJ-PARCの材料解析装置iMATERIAに設置した様子を図1に示す。この



図1 試作した中性子実験用熱膨張測定装置を中性子散乱実験装置に取り付ける様子(2011年2月)

後に東日本大震災があり、実験が中断し、2011年度は海外の中性子実験施設で基盤研究を継続実施した。試作した装置は順調に作動し、ナノベイナイト変態の進行および高窒素マルテンサイト鋼の焼戻しに伴う窒化物の析出とオーステナイトへの逆変態挙動を追跡できた。背面バンクの回折プロファイルはこれまでの装置よりも分解能が高く今後の実験に有望である。小角散乱データの取り出しとデータ解析は現在進行中である。これらが整備されると、種々な研究に利用でき、従来の方法では得られなかった組織形成中のその場情報を提供できるようになると思われる。

(2) ナノベイナイト変態挙動のその場測定による変態機構の解析

図1の実験により得られた変態の進行に伴う格子定数の変化を図2に示す。実験は試料を900℃に加熱して高温で安定なオーステナイト単相組織とした後に300℃に冷却保持して、過冷状態のオーステナイトからナノベイナイトの生成する様子を中性子回折プロファイルの変化により追跡した。図2では以前の実験に比べて、保持時間と共に格子面間隔が明瞭に変化し、ベイナイトラス間のフィルム状残留オーステナイトの炭素濃度が高くなり、格子面間隔が大きくなる状況を、明確に捉えている。

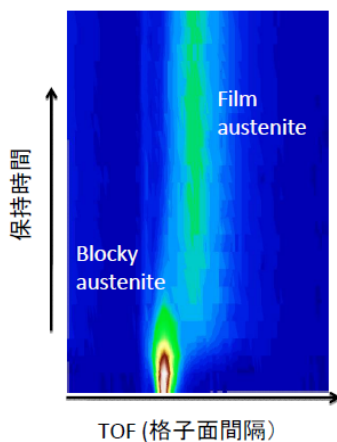


図2 新しい測定システムにより明瞭に検出されたベイナイト変態の進行に伴うオーステナイトの格子定数変化（炭素濃度の分配に起因）

このとき、小角散乱データも得られているが、データの取り出し・解析ソフトの開発がまだで、結果がわからない。別途、他の熱膨張計をJRR-3の小角散乱装置SQNS-JIIに取り付けて実験したところ、時分割の精度は良くないもののベイナイトラスのサイズ分布の変化が求められた。今後は、同時測定とより詳細なデータを得るための小角散乱専用機による結果を相補的に合わせることで、変態のメカニズムや生成組織のサイズ情報が得ら

れ種々な組織制御の指針の確立に繋がると期待される。

一方、加工熱処理を用いる組織制御が注目されるので、ISISにおいてナノベイナイト変態に及ぼすオースフォームの影響を調べた。試料を900℃まで加熱してオーステナイト単相組織とした後に種々な温度で圧縮加工を行った後に恒温変態を生じさせた。図3は黒線がオースフォームなしの恒温変態曲線である（中性子回折プロファイルより変態が5%進んだときの保持時間をプロットした）。高温側ではパーライト変態、低温側ではベイナイト変態が起きている。ベイナイト変態開始には長時間の潜伏時間が必要である。ところが、オースフォームを与えると赤線のように変態が著しく促進されることがわかった。

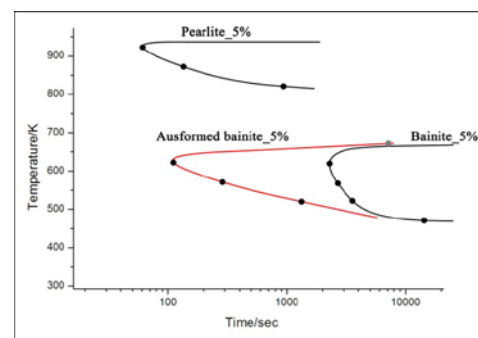


図3 その場中性子回折により求めたベイナイト変態に及ぼすオースフォーム処理の影響（変態促進効果）。

このとき、オースフォーム温度が重要な制御因子であり、高温加工では効果がほとんどない。低温加工により導入される転位組織は直線状で特徴があり、電子顕微鏡観察やEBSD解析によって、変態においてバリエーション規制が強く働き、オースフォームにおいて作動した部分転位と生成するバリエーションに対応関係があることを明らかにした。ベイナイトラスの3次元形状も低温オースフォームによって大きく変化する。これらの新しい知見は、間もなく学術誌論文として公表予定である。

(3) 高窒素マルテンサイト鋼の焼戻しに伴う析出挙動

高窒素マルテンサイト系ステンレス鋼は2次硬化を発現する。強度が高くなり耐食性が劣化しない低温焼戻し状態のマイクロ組織は、高分解能電子顕微鏡でも明らかにされていないが、小角散乱では明瞭な析出前駆体のサイズ分布が求められた。今後、結晶構造を同定できる広角回折とナノ不均質物体のサイズ情報を同時に得ることが期待される。

その他、マイクロ組織形成に関する中性子その場測定としてパーライトの球状化過程の追跡とフェライト変態に及ぼす2段加工の

効果を研究した（投稿予定）。本研究の手法は多くの企業研究者の新材料開発への利用が期待できる。

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3件）

- ① 龔武、友田陽（5番目）、石垣徹（7番目）、S. Harjo（9番目）、鈴木淳市（10番目）：
その場中性子実験によるナノベイナイト鋼の研究，四季（中性子産業利用推進協議会季報，査読なし、12巻（2011），3.
- ② 奥田浩司、友田陽、落合庄治郎：中性子と高エネルギーX線回折による材料組織の評価，軽金属、査読有、61巻、（2011），85.

〔学会発表〕（計34件）

- ① Y. Tomota (Invited): Development of Scale-Bridging 3D In Situ Measurement Methods for Steel Research, International Top Scientists Forum Wuhan 2011; International Symposium on Ferrous Metallurgy and Materials, 2011年11月12日, Wuhan, China
- ② W. Gong, S. Harjo, M.S. Koo, H. Nishijima, K. Aizawa, Y. Tomota: Nano-Bainite Transformation and Tempering Behaviors Studied by In Situ Neutron, CAMP ISIJ, 24(2011), pp.1125-1127, 2011年9月21日, 大阪大学
- ③ W. Gong, Y. Tomota, S. Harjo, J. Kelleher and A.M. Paradowska: Ausforming on nano-bainite steel studied by *in situ* neutron Diffraction, アジアオセアニア中性子散乱国際会議, 2011年11月22日, 筑波国際会議場
- ④ Y.H. Su, Y. Tomota, J. Suzuki, M. Ohnuma, S. Morooka: *In situ* small-angle neutron scattering during cementite spheroidization in carbon steels, 第3回MLFシンポジウム, 2012年1月19日, 茨城県東海村
- ⑤ H. Nishijima, Y. Tomota, J. Suzuki and M. Ohnuma: Bainitic transformation behavior studied by small-angle neutron scattering, MRS-J, 2010年12月21日, 横浜
- ⑥ Y. Tomota (Invited): *In Situ* Neutron Scattering for Microstructural Control of Advanced Steels, The 6th International Symposium on the Characterization of Metals and Nanostructured Materials by Neutron and X-ray Scattering, 2010年11月4日, Changwan, Korea
- ⑦ 西島ひかり、具民書、友田陽、大沼正人、

鈴木淳市：中性子小角・広角散乱と熱膨張測定によるベイナイト変態挙動の考察, CAMP-ISIJ, 23(2010), 766-76, 2010年9月26日, 北海道大学

〔図書〕（計3件）

- ① P.G. Xu, Y. Tomota: Recrystallization Behavior during Warm Compression of Martensite Steels: Recrystallization Chapter 5 (pp.87-108), (ISBN 979-953-307-346-9) Intech, Croatia. www.intechweb.org
- ② Y. Tomota, P.G. Xu, E.C. Oliver, A. Paradowska: *In situ* Neutron Diffraction during Thermo-mechanically Controlled Process for Low Alloy Steels, In situ Studies with Photons, Neutrons and Electron Scattering, edited by T. Kannengiesser, S.S. Babu, Y. Komizo and A.J. Ramirez, Springer (2010), pp.175-190

〔その他〕

研究室ホームページ

<http://may.sakura.ne.jp/~tomoken/>

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

大沼 正人 (Ohnuma Masato)
物質・材料研究機構・主幹管研究員
研究者番号：90354208

(3) 連携研究者

石垣 徹 (Ishigaki Tooru)
茨城大学・フロンティア応用原子科学研究センター・教授
研究者番号：00221755

ステファヌス ハルヨ (Stefanus Harjo)
日本原子力研究開発機構・副主任研究員
研究者番号：40391263

鈴木 淳市 (Suzuki Junichi)
日本原子力研究開発機構・研究主管
研究者番号：40354899