



躍動

若手研究者・技術者の取り組みと将来の夢

正しい転位密度って何ですか？

What is Correct Dislocation Density?

増村拓朗

九州大学 大学院工学研究院
材料工学部門

Takuro Masumura

准教授

1 はじめに

著者は2017年に学術研究員として九州大学に着任してから数年、高木節雄先生（現：九州大学名誉教授）と鉄鋼材料の転位密度解析（ラインプロファイル解析）に関わる研究に熱中した。当時、転位密度解析に関しては全くの素人であったが、幸運にも茨城大学の佐藤成男先生の「鉄鋼のマイクロ組織要素と特性の量子線解析」研究会に参加させていただき、勉強することができた。その研究会の第1回会合で、忘れられない一言を委員の方にいただいた。

解析を専門としていなかった我々は、より簡便な手法として direct-fitting (DF) 法¹⁾などを提案してきた。佐藤先生の研究会でも九大グループとして、より簡便で正確な転位密度が測定できる手法の確立を目指します、と意気揚々と宣言したわけであるが、「正しい転位密度って何ですか？ どうやって正しいと判断するんですか？」とご指摘を受けた。確かにその通りであると思った。ラインプロファイル解析では何かしらの値は出てきてしまい、それを正しいと疑わずに利用しているケースが多いのではないかと思う。そのようにして始まった転位密度解析の研究について、いくつか紹介させていただきたい。

2 マルテンサイト鋼の転位密度解析に及ぼす正方晶性の影響²⁾

著者らが主に利用している転位密度解析法は、ラインプロファイル解析である modified Williamson-Hall/Warren-Averbach (mWH/WA) 法^{3,4)}である。mWH/WA法に限らず、ラインプロファイル解析では回折ピークのブロードニングを装置因子、結晶子サイズ、転位などの影響として解析し、それらの因子を定量評価していく。したがって、解析で前提にさ

れていない影響因子があると、正しい転位密度は得られない。

マルテンサイト鋼は完全な bcc 構造ではなく bct 構造であり、炭素量が多くなるほど正方晶性が高まることが知られている⁵⁾。正方晶性があると c 軸起因のピークが現れて a 軸起因のピークと重なり、見かけ上、ピークがブロードニングし、転位密度を過剰評価してしまう。試料全体で均一な bct 構造のマルテンサイト組織であればピーク分離が可能であろうが、ほとんどの場合には自己焼戻しが起こり、不均一な組織になっていると予想される。この正方晶性による転位密度の過剰評価を無くすために、回復が生じにくい低温で焼戻しを行った。Fig.1は0.55C鋼と炭素を含まない18Ni鋼の見かけの転位密度と焼戻しパラメータの関係を示す²⁾。0.55C鋼の焼入材では 10^{16} m^{-2} 以上の転位密度が mWH/WA法で算出されたが、TEM法により直接観察した結果 (Fig.2)、その値は $2.8 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ となった²⁾。したがって、mWH/WA法では10倍程度に過剰評価されていることになる。一方で、正方晶性が小さい18Ni鋼では両者でほぼ同等の値が得られた。

0.55C鋼を焼戻すと見かけの転位密度は急激に減少し、573～623 K付近で一定値を示した。この温度域では回復があまり起きていないことをTEM法による測定および18Ni鋼のラインプロファイル解析から確認している。すなわち、その一定値 ($4.5 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$) が焼入れマルテンサイトの真の転位密度と予想される。

しかしながら、マルテンサイト組織に必ず存在する内部応力⁶⁾や、炭化物に起因したピークのブロードニングについては考慮できていない。見かけの転位密度にプラトー領域があるということ、低温焼戻材の転位密度が mWH/WA法とTEM法で近い値であることから、低温焼戻材では両者の影響はそこまで大きくないと予想されるが、マルテンサイトの「正しい転位密度」がラインプロファイル解析で求めることができているかどうかは更に詳細な検討が必要であろう。

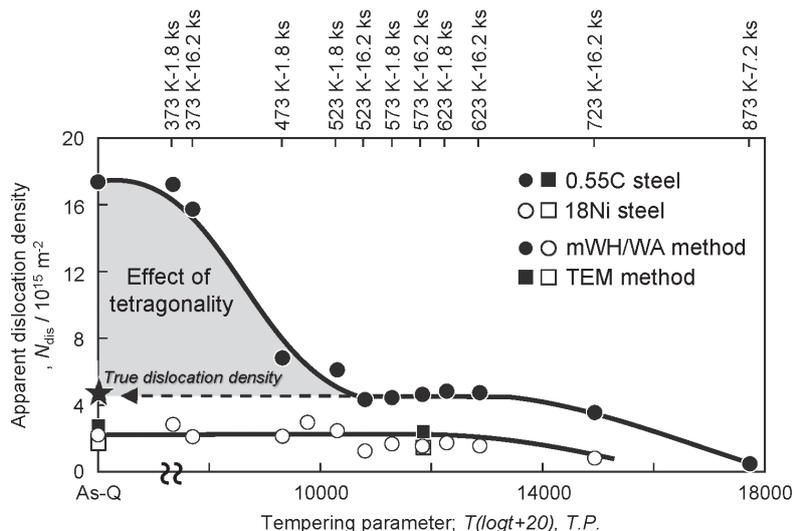


Fig.1 Changes in the apparent dislocation density as a function of the tempering parameter in 0.55C and 18Ni steels. Dislocation density estimated by TEM method also plotted as square marks. Star mark and gray region indicate the true dislocation density of as-quenched 0.55C steel and overestimated value due to tetragonality, respectively²⁾.

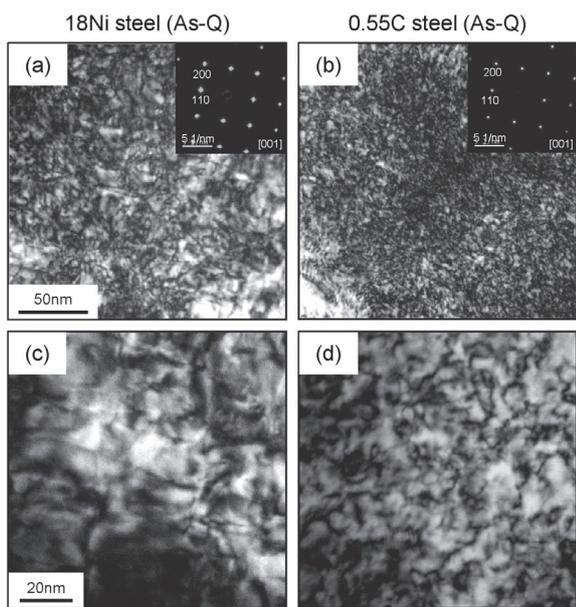


Fig.2 BF-TEM images of as-quenched 18Ni steel (a), (c) and 0.55C steel (b), (d)²⁾.

3 Direct-fitting法

古くから用いられていた簡便な転位密度解析法に、式 (1) で示される Williamson-Hall (WH) 法⁷⁾がある。

$$\Delta K = \alpha + \epsilon K \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 $\Delta K = \beta \cos \theta / \lambda$, $K = 2 \sin \theta / \lambda$, β は半価幅、 θ は回折角、 λ はX線の波長、 α は結晶子サイズに依存したパラメータ、 ϵ は転位密度や転位分布、転位の性質に依存したマイクロひずみと呼ばれるパラメータである。たとえば、加工し

たbcc鉄においては式 (2) のようなマイクロひずみと転位密度の換算式が提案されており、半価幅さえ測定すれば簡単に転位密度を予測できる⁸⁾。ただし、式 (2) は転位密度がTEM法によって求めた値になるようにフィッティングしたものであり、物理的な根拠に乏しい。また、マルテンサイト鋼のように転位分布が大きく異なる場合に式 (2) が適用できない可能性があることも注意が必要である。

$$\rho = 1.5 \times 10^{20} \epsilon^2 \dots\dots\dots (2)$$

多くの金属材料には弾性異方性があるため、式 (1) において直線関係が得られない場合も多い。たとえばfcc構造であるオーステナイト系ステンレス鋼ではWH法を適用することができない。弾性異方性を補正する方法として著者らが提案した手法がDF法である¹⁾。本手法では弾性異方性を補正するためのパラメータ ω を定義し、式 (1) を修正することでいずれの鋼種においても直線関係が得られることを確認している。これをDF/WH法と呼ぶ。

$$\Delta K = \alpha + \epsilon (K / \omega) \dots\dots\dots (3)$$

Fig.3は積層欠陥エネルギー (SFE) の異なるオーステナイト鋼であるSUS316 (SFE: 約14 mJ/m²) と30Ni鋼 (SFE: 約70 mJ/m²) のDF/WHプロットを示す。両者で良好な直線関係が得られており、同じ20%圧延を施した場合、積層欠陥エネルギーが低いSUS316Lで高いマイクロひずみを示している。Fig.4はDF/WH法で求めたマイクロひずみとmWH/WA法で求めた転位密度の関係を示す。鋼種によらず式 (4) で表すことができているが、mWH/WA法で求めた完全転位の密度が正しいという前提の式である。また、オーステナイト鋼

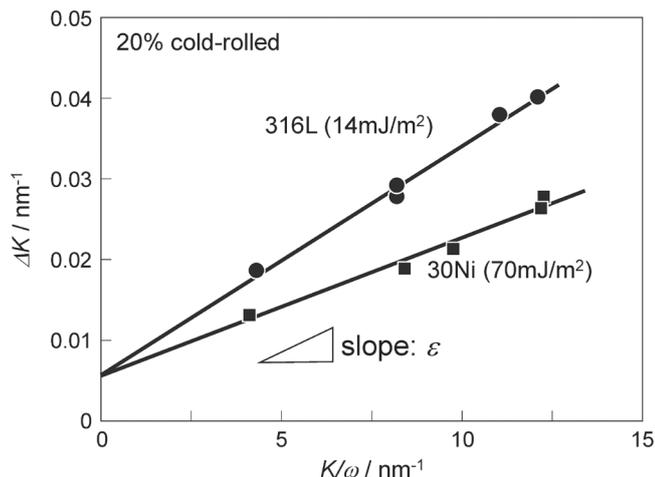
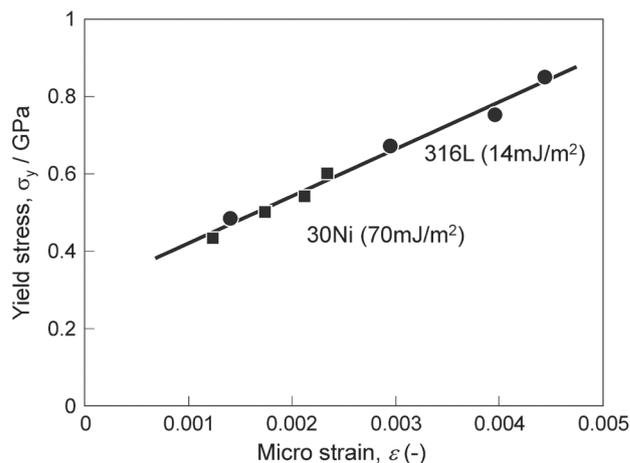
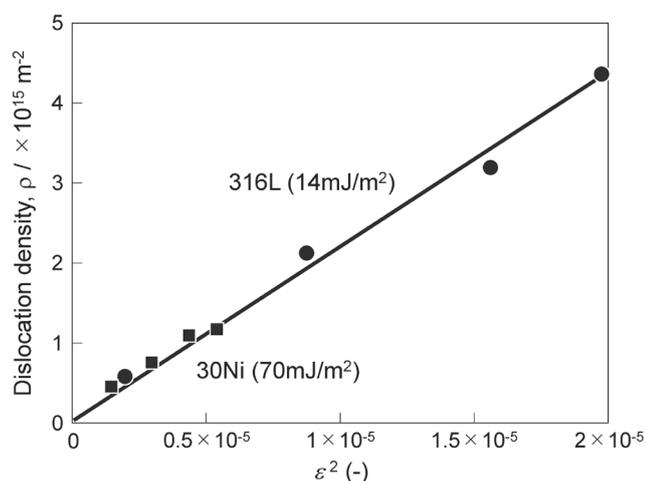


Fig.3 DF/WH plots of 20% cold-rolled SUS316L and 30Ni steels.

Fig.5 Relationship between yield stress and ϵ (DF/WH method) in cold-rolled SUS316L and 30Ni steels.Fig.4 Relationship between dislocation density (mWH/WA method) and ϵ^2 (DF/WH method) in cold-rolled SUS316L and 30Ni steels.

に含まれる部分転位や積層欠陥、変形双晶の影響は分離できておらず、mWH/WA法で算出された値の信頼性にも議論の余地がある。

$$\rho = 2.2 \times 10^{20} \epsilon^2 \dots\dots\dots (4)$$

多くの場合、材料に含まれる種々の組織因子をラインプロファイル解析で正確に分離し、「正しい転位密度」までたどり着くことは容易ではない。一方で、マイクロひずみはすべての組織因子の影響を含む大雑把なパラメータではあるが、Fig.5に示すように、鋼種によらずオーステナイト鋼の圧延材の降伏応力と良い相関がある。強度予測という観点からは、無理に転位密度へ換算するよりは、DF/WH法で求めた信頼性のあるマイクロひずみを評価指標とすることも一つの選択肢ではないだろうか。

4 おわりに

現状ではすべての鋼種に対して正しい転位密度を出すまでには至っていないと言わざるを得ない。そのため、実際の組織を理解することで、解析結果をどこまで信じて良いかを判断する力が求められていると感じる。そのような理想とのギャップを受け止めつつ、ラインプロファイル解析を組織制御や強化機構の研究に活かしていきたい。

最後に、佐藤成男先生をはじめ、研究会等で解析のノウハウを一からご指導いただいた皆様へ心より感謝申し上げます。

参考文献

- 1) S.Takaki, F.Jiang, T.Masumura and T.Tsuchiyama : ISIJ Int., 58 (2018), 769.
- 2) T.Masumura, K.Inami, K.Matsuda, T.Tsuchiyama, S.Nanba and A.Kitahara : Acta Mater., 234 (2022), 118052.
- 3) T.Ungár, S.Ott, P.G.Sanders, A.Borbély and J.R.Weertman : Acta Mater., 46 (1998), 3693.
- 4) T.Ungár and A.Borbély : Appl. Phys. Lett., 69 (1996), 3173.
- 5) N.Maruyama, S.Tabata and H.Kawata : Metall. Mater. Trans. A, 51 (2020), 1085.
- 6) B.Hutchinson, P.Bate, D.Lindell, A.Malik, M.Barnett and P.Lynch : Acta Mater., 152 (2018), 239.
- 7) G.K.Williamson and W.H.Hall : Acta Metall., 1 (1953), 22.
- 8) 赤間大地, 土山聡宏, 高木節雄 : 材料, 66 (2017), 522.

(2023年11月13日受付)

先輩研究者・技術者からのエール

茨城大学 大学院理工学研究科 教授

佐藤 成男

増村先生をはじめにお会いしたのは、増村先生が博士課程学生のときでした。当時、鉄鋼の転位密度に関するX線回折ラインプロファイル解析の相談に来学され、熱心に解析方法について学ばれていきました。その後、従来の解析法を活用しつつも、さらに本稿で示されたDirect法を考案し、ラインプロファイル解析を産学に広めた功績は特筆すべきところです。継続的に様々な鉄鋼材料の転位解析に関する研究をされ、今では鉄鋼の転位解析の第一人者になりました。

本稿で示されたDirect法は増村先生をはじめとする九州大学の先生方が開発したラインプロファイル解析法です。当時、信頼性の高い転位解析法としてmodified Williamson-Hall / Warren-Averbach法が利用されていましたが、その計算の煩雑さ故、ラインプロファイル解析は敷居の高い解析法でした。そこで、“誰もが容易に転位密度解析をできる”ことを念頭に開発されたのがDirect法です。Direct法は回折ピークの半価幅のみを解析パラメーターとし、容易に転位密度を導くことが最大の特徴です。さらに、解析者に依存しにくく、多少S/Nが劣る回折パターンに対しても安定した転位密度を導くことが特徴です。また、Direct法から求められるパラメーターをもとにmodified Williamson-Hallを解析すると、転位解析の精度を向上できることも提案されています。私自身、ケースバイケースで様々なラインプロファイル解析法を利用しますが、苦しいデータや癖のあるデータに対しDirect法に頼ることが多いです。

ところで、私が特に面白いと思った増村先生の論文は「Quantitative evaluation of dislocation density in as-quenched martensite with tetragonality by X-ray line profile analysis in a medium-carbon steel」(Acta Mater., 234, 2022, 118052.)です。マルテンサイト鋼の結晶構造が正方晶になるとa軸とc軸の格子定数の違いにより回折ピークのスプリットが生じます。ピークスプリットは回折ピークを広げてしまうため、何も考えずラインプロファイル解析を行うと転位密度を過大に算出してしまいます。この問題に対し、適切な熱処理を施すことで、転位が抜けることなく立方晶に変態させ、ラインプロファイル解析を行う方法を提案しています。熱処理による転位への影響を多面的に検証し、慎重に解析を進めています。本稿の“おわりに”で述べられているように「解析結果をどこまで信じて良いかを判断する力が求められていると感じる」という増村先生の研究姿勢が現れた優れた論文です。皆様には是非ご一読頂きたい論文です。

さて、増村先生といえば師匠にあたる先生方が個性的です。常にエネルギー高木先生、土山先生です。鉄鋼の組織が形成する過程、それにつながる強度特性を最も詳しく知る先生方です。そんな素晴らしい先生方に指導されたことが、鉄鋼研究を楽しむ増村先生を形作っていると思います。増村先生におかれましても、研究者としてのご活躍はもちろん教育者として、鉄鋼研究者の育成にご尽力頂ければと思います。

(株) 神戸製鋼所 材料研究所 材質制御研究室 シニアプロフェッショナル

難波 茂信

鉄鋼材料分野において注目の若手研究者の一人としてめきめきと頭角を現してきた増村先生へのエールとして、産業界から今後の益々の活躍への期待を込めて、この小文をお送りしたい。

金属材料を勉強したことがある方なら、透過電子顕微鏡で撮影された材料中の転位が含まれる組織写真をみたことがあるだろう。そして、その転位が写っている組織写真を使えば、比較的簡便な方法によって転位密度の測定が可能なのも知っていることだろう。しかし、一度でも冷間加工で高い歪を与えた材料の組織、あるいは焼き入れままのマルテンサイトの組織を透過電子顕微鏡で観察したことがある方は、かなり倍率をあげても真っ黒としか見えなくて、途方に暮れた経験があるかもしれない。その高い転位密度を「測定」できる手法として、1950年代に提案されたWilliamson-Hall法であり、近年Ungarらによって修正法が提案され、よく使われるようになっている。しかし、焼き入れままマルテンサイトの転位密度を「正しく」測定しようと思うと、これまでは考慮されていなかった正方晶性などの影響を取り入れる必要性があることを増村先生が見出してくれた。低コストでより高強度な材料が求められる鉄鋼材料にあっては、マルテンサイト組織の活用が必須であり、その転位密度が正

しく評価できる方法として重要な知見だったと思う。また、強度がわかるならからずしも転位密度ではなく、ミクロ歪がわかれば材料設計には十分に使えるわけで、このDF法も応用として非常に有益な情報だったと思っている。

もちろん、転位密度解析の他の業績も多く残し、増村先生は鉄鋼材料分野にとっては、大事な人材の一人となった。そのお人柄を一言で言えば、穏やかな癒し系。科学的な議論な場では、厳しい言葉が飛び交うことも少なくない。でも、ラインプロファイル解析などの議論で増村先生が加わると、議論そのものもきちんと進むとともに、なぜか和む様子を何度か見てきて、ある種の天賦の才を感じるし、難しいことをその感じを漂わせずに解決している印象を受ける。

材料の高性能化には、その性能を発揮するメカニズムの解明や組織解析の技術が不可欠であるが、増村先生が書かれているようにラインプロファイル解析による転位密度測定でも他の解析技術同様に課題はまだ残されている。これまでも産業界と共に研究を進めてこられた。鉄鋼材料というまだまだ重要な研究開発の領域を、その穏やかなお人柄でリードしてくれる研究者になることを期待している。