

## 強圧下鉄の再結晶過程観察 Observation of Recrystallization of Heavy-rolled Iron Sheet

木村 正雄<sup>a,b</sup>, 富田 美穂<sup>c</sup>, 稲熊 徹<sup>c</sup>, 佐藤 眞直<sup>d</sup>  
Masao Kimura<sup>a,b</sup>, Miho Tomita<sup>c</sup>, Toru Inaguma<sup>c</sup>, Masugu Sato<sup>d</sup>

<sup>a</sup> 高エネルギー加速器研究機構, <sup>b</sup> 総合研究大学院大学, <sup>c</sup> 日本製鉄株式会社,  
<sup>d</sup> 高輝度光科学研究センター

<sup>a</sup> High Energy Accelerator Research Organization, <sup>b</sup> Graduate University for Advanced Studies,  
<sup>c</sup> Nippon Steel Corporation, <sup>d</sup> Japan Synchrotron Radiation Research Institute

強圧下した純鉄を加熱した際に生じる再結晶過程を迅速・簡便に観察するために、白色 X 線ビームによる薄板試料中の結晶粒 2 次元マッピングについて検討した。しかし、想定より粗大粒のサイズ・比率が小さく、二次元内のどの位置においても多くの結晶粒からのラウエパターンが観察され、単純にその差分評価では、結晶粒マッピングを行うことができなかった。今後は、(a)粗大粒だけからなるモデル試料での検証、(b)多数結晶粒からのラウエパターンの高速解析、が必要である。

**キーワード：** 白色、X 線回折、金属、結晶粒マッピング

### 背景と研究目的：

金属（特に鉄鋼）を圧延等で強加工すると、結晶粒が変形すると共に特定の結晶方向に配列した組織（加工集合組織）が形成される。加工集合組織は部品としての機械的 特性に大きく影響するため実用特性の制御に非常に重要である（例えば意匠性の高い 自動車駆体）。また、加工集合組織を利用して特性を大きく改善する（例えば、プレス加工性の優れた鋼板）ことも可能になる。そのため、従来から集合組織の形成に関する研究が広く行われており、例えば、鋼板の加工性を向上させる{111}集合組織の形成は、不均一な加工組織から{111}再結晶粒が発生することが分かっている。一方、さらに強圧下した純鉄は再結晶後に{100}配向する。鉄の結晶(bcc)は磁気異方性を有し、<100>配向が最も磁化されやすい方向である。この性質を利用して、結晶方位が{100}配向した鋼板を作成することにより、磁気的特性に優れた機能性材料としての鉄鋼材料を作製可能となる。1900 年に Hadfield(英国)により、変圧器用材料として優れた性能を示す事が示されて以来、現在に至るまで多くの研究と開発がなされてきた [1]。

このように、鋼材中の鉄の結晶方位を工業的プロセスで制御することは、工業的にも社会的にも非常に重要であり、強圧下した純鉄は再結晶後に{100}配向すると従来から言われているものの、その加工集合組織の形成メカニズムの詳細は不明点が多い。そのため、より高効率に目的とする{100}配向性材料を得るためのプロセス設計の障害にひとつとなっている。従来、結晶粒方位の観察は電子顕微鏡（Transmission Electron Microscopy, Electron Backscatter Diffraction）で行われている [2]が、観察対象が薄膜試料もしくは表面に限定されていた。また、二次再結晶の過程はトポグラフィ法で観察されている [3]が、実際的には再結晶粒が cm 程度に大きく成長したケースに限られている。そこで、本実験では、白色 X 線回折法を用いて、試料内部の結晶粒マッピングを簡易・迅速に行う手法について、標準的な圧延薄膜試料を用いて検討することとした。

### 実験：

本実験は BL28B2 で行った。技術検討には BL28B2 で開発された白色 X 線マイクロビームを用いた透過ラウエ法による薄片多結晶金属試料からの回折パターンを用いて試料中の結晶粒界を画像化する技術（Grain boundary Imaging by Laue Pattern: GILP）を応用した [4]。その概念図を図 1 に示す。GILP 法は結晶粒サイズ程度に薄片化した金属多結晶試料に対し、結晶粒よりも小さいサイズに成型した白色 X 線を透過配置で照射し、その照射位置を試料面内で走査しながら X 線回折パターンを 2 次元検出器を用いて取得する。その際、図 1 のように X 線照射位置が結晶粒界

を横切ると結晶方位が変わるため回折パターンが大きく変化する。この変化した回折パターン画像の差分の絶対値の積分値を回折パターンの変化率とし、この変化率を照射位置でマッピングすることによって結晶粒界の分布を可視化する。しかし、今回の試料のように照射領域の厚さ方向にいくつもの結晶粒が存在することが想定される場合にこの手法が適用可能化を検証することが今回の実験の主目的である。今回、実験条件を何種類か変化させて結果を比較し、技術検討を行った。検討する実験条件としてはビームサイズ（4象限スリットで成形）と試料位置走査ステップをビームサイズ=2~10  $\mu\text{m}$  角、走査ステップ=2~10  $\mu\text{m}$  の範囲で変えながら検討した。試料は、強加工した純鉄を熱処理した母材から切り出した。各母材は純鉄を99.2%まで圧延加工（最終厚さ=50  $\mu\text{m}$ ）した後、300°C、400°C、450°C、550°Cの各温度まで10°C/min.の昇温速度で加熱し、所定の温度でArガス吹きつけにより急冷した。加工まま試料の結晶粒径は数  $\mu\text{m}$  で、加熱温度に応じて再結晶粒の比率が、300°C=0%、400°C=数%、450°C以上=50%超、であることが、試料表面の顕微鏡観察からわかっている。小さく加工する前の板材の断面部分の観察から、再結晶粒の大きさは20~100  $\mu\text{m}$  程度であることが確認された。用いた2次元検出器はフラットパネルセンサー（浜松ホトニクス：ピクセルサイズ=100  $\mu\text{m}$ ×100  $\mu\text{m}$ ）、試料から検出器までのカメラ長は181.5 mm、回折パターンを測定する際の露光時間は各位置あたり0.5~2 秒、試料上の走査範囲を400  $\mu\text{m}$ ×400  $\mu\text{m}$  にした時の測定時間は約30分である。

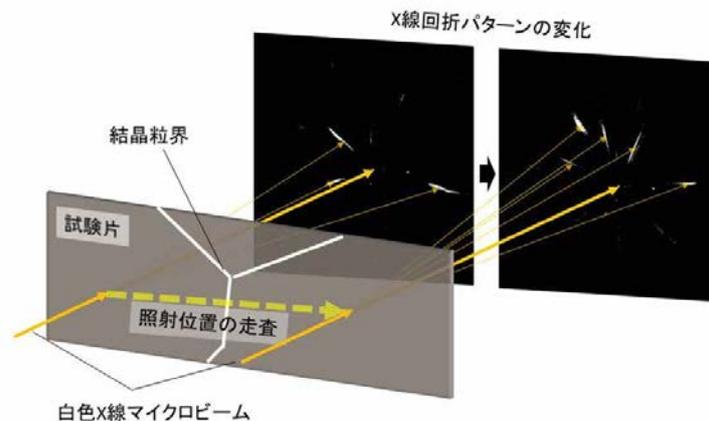


図1 白色 X 線回折法による結晶マッピングの概念図

#### 結果および考察：

処理温度が、300°C、400°Cの試料では、視野によって圧延方向に長いストリークを引くスポットが1~2点が観察される程度で、系統的に明瞭な回折スポットは観察されなかった。これは、強圧下試料は非常に多くの転位が導入された状態のため、明瞭な回折スポットを与えるのに十分な長範囲の結晶周期性が無かったために明瞭な回折スポットが観察できなかったと考えている。

再結晶が進行していると考えられる550°C処理材内の、代表的な二つの試料位置（A(x = 132  $\mu\text{m}$ , y = 0  $\mu\text{m}$ ), B(x = 134  $\mu\text{m}$ , y = 0  $\mu\text{m}$ )）で測定されたラウエパターンを図2に示す。位置A, Bの距離はビームサイズ=2  $\mu\text{m}$ に相当している。ビームサイズ×試料厚さの領域に、明らかに多くの結晶粒が含まれていることがわかる。更に、両者を較べると、回折位置が同じ位置であるスポットの強度が同強度で測定されるものの他に、その強度が異なるものも存在することが確認された（図2中赤、青矢印で例示）。前者は、少なくともステップスキャン幅（2  $\mu\text{m}$ ）以上の大きさの結晶粒からの回折に対応することを示しており、後者はステップスキャンの前後の測定位置が結晶粒の粒界付近であることを示唆している。この様にステップスキャンにより回折強度が変化するスポットは試料内の多くの測定視野で確認されていることから、結晶粒がステップスキャンのオーダー（数  $\mu\text{m}$ ）程度の小さい粒子がかなりの比率で存在すると考えられる。

事前の試料の端部の観察から再結晶粒の大きさは20~100  $\mu\text{m}$ 程度であると予想していたが、実際に放射光測定用に採取したのは板材の中央部であり、端部との結晶粒系の分布に差があり、結晶粒が想定より小さかったと推察している。つまり、今回の試料では、板厚方向に複数の結晶粒が

存在するため、透過ラウエパターンにはそれらの結晶粒からの回折図形が重なりあい、ステップスキャンした近接する領域のラウエパターンの単純な差分だけから結晶粒マッピングを行うことができなかったと考えている。

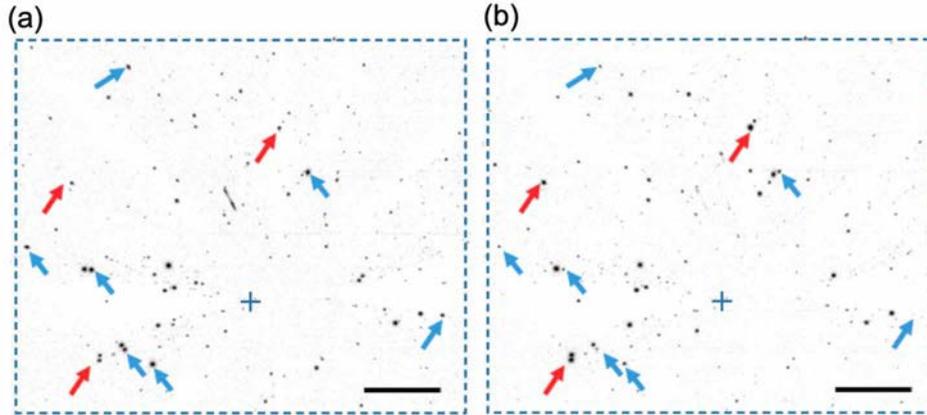


図2 550°C処理材の試料位置 A ( $x = 132 \mu\text{m}$ ,  $y = 0 \mu\text{m}$ ) および B ( $x = 134 \mu\text{m}$ ,  $y = 0 \mu\text{m}$ ) でのラウエパターン。赤矢印は (a)より(b)で特に強度が高いスポットの例、青矢印はその逆の例、を示す。図中、青十字はダイレクトビームの位置、スケールバーは回折角度差=2deg.をそれぞれ示す。

参考までに、450°C、550°C処理材について、ビームサイズ=2  $\mu\text{m}$ 、試料内の  $x$ ,  $y$  軸のステップ幅=2  $\mu\text{m}$  で、ラウエパターンを計測し、当初想定していた差分マップ (図1) を求めた結果を図3に示す。450°C、550°C処理材のどちらの結果も、結晶粒に相当する画像は得られておらず、今回の試料では、板厚方向に複数の結晶粒が存在するため、差分マップだけで結晶マッピングを行うことができなかったと考えている。

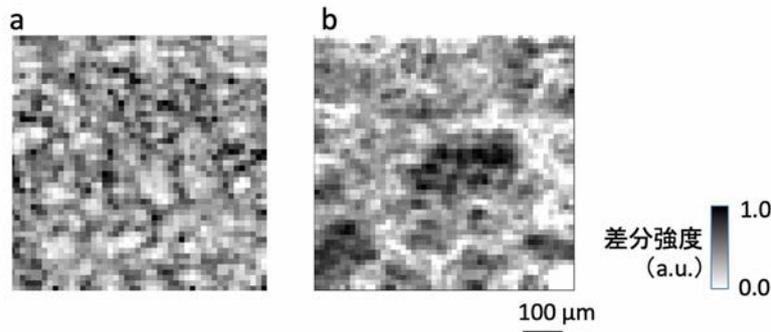


図3 処理材の結晶マッピングの結果 a 450°C、b 550°C。

また、処理温度の違いによりラウエスポットの形状が異なることが観察できた (図4)。450°C処理材では強圧下で導入された歪みや転位が残存している粒が存在するため、ラウエスポットの形状がブロードである。550°C処理材では転位密度が下がる、もしくは再結晶のために、ラウエスポットの形状が小さくなったと考えられる。このラウエスポットの形状の違いの割合変化から再結晶化の度合いを推察することを試みたが、熱処理温度との明瞭な関係はなかった。これは、再結晶に伴い結晶サイズが増加するが、それに伴うラウエスポット強度の増加は、結晶方位により異なるため、単純に、ラウエスポットの形状の違いから試料全体の再結晶化の度合いを推定するのは困難であったと考える。



図4 (a)450°C、(b)550°C処理材で観察されたラウエスポットの例。スケールバーは1deg.を示す。

#### 今後の課題：

- (1) 今回の試料では、板厚方向に複数の結晶粒が存在するため、差分マップだけで結晶マッピングを行うことはできなかった。本アプローチ法による迅速・簡便な結晶粒マッピングの可能性を検証するためには、(特に板厚方向に)粗大粒だけからなるモデル試料、での検証が必要になる。
- (2) また、試料を回転させながら多数結晶粒からのラウエパターンを測定し三次元で結晶粒のマッピングを行う手法は、放射光や実験室 X 線源で報告されている[5]。但しこれらの測定法では、結晶粒のサイズの上限が数 1000 個であり、かつ、三次元で結晶粒のマッピング像を計算するのに場合によっては 10 時間以上の時間を要する。そのため、様々な条件で処理した多数の試料、大きな試料を迅速・簡便に結晶粒マッピングすることは現状困難である。さらに試料を回転させて測定するため計測時間そのものも長時間になる。そのため、迅速・簡便に結晶粒マッピングするためには、結晶粒サイズが限られている試料等に限定するなどの制約条件をつけて、多数結晶粒からのラウエパターンの高速解析を行うことが必要と考える。

上述したように、本研究の目的は、試料内部の結晶粒マッピングを簡易・迅速に行う手法の検討であった。これは、実際のプロセス開発を迅速に進めるためには、短時間で多くの N 数の試料についてスクリーニングを行い方向性を決めることが重要であるからである。上述した(2)のアプローチについては既に多くの研究がなされておりその手法についてほぼ確立されている。そこで、X 線回折を用いた計測法については、今後も(1)のアプローチについて適切な方法の検討を進めていきたい。

さらに、上記(1)、(2)は X 線回折測定の結果だけから、迅速・簡便に結晶粒マッピングすることを想定しているが、実試料の解析の観点からは、他の相補的な測定法で得られた結果(例えば、試料断面の EBSD 観察 [2]) を取り込んだ複合的な解析も合わせて検討していく。

#### 参考文献：

- [1] 例えば、*集合組織*、長嶋晋一 編著、丸善、(1984)。
- [2] 富田美穂、稲熊徹、坂本広明、潮田浩作、*鉄と鋼* **101**, 204 (2015)。
- [3] Y. Ushigami *et al.*, *J. Mater. Eng.*, **13**, 113 (1991)。
- [4] K. Kajiwara *et al.*, *Phys. Status Solidi A*, **206** 1838 (2009)。
- [5] 例えば、放射光では W. Ludwig *et al.*, *Rev. Sci. Instr.*, **80**, 033905 (2009)、実験室 X 線源では C. Holzner *et al.*, *Microscopy Today*, **24**, 34 (2016)、を参照。