

# Fe-Si 二元系合金の繰り返し変形に伴う 転位組織の形成と発達

首藤 洋志\*

## 1. はじめに

疲労とは、材料に応力が繰り返し負荷された際に、その材料の破壊強度が低下する現象である。破壊事故の原因の約60%が疲労と報告されていることから<sup>(1)</sup>、その現象を理解し、疲労強度の高い材料を開発することは重要な課題といえる。金属において、疲労は繰り返し負荷による転位の不可逆的な運動によって引き起こされる。運動した転位は金属内部でエネルギー的に安定な配置をとるが、このとき転位密度が高い領域と低い領域が規則的に配列し、電子顕微鏡で観察すると模様のように見える。この転位が配列した組織を転位組織と呼び、その形態の特徴に応じて Ladder (はしご)、Vein (葉脈)、Wall (壁)、Labyrinth (迷路)、Cell (細胞) といった名前が付いている。転位組織は破断繰り返し回数の2~3%という疲労初期の段階で形成され<sup>(2)</sup>、材料表面の疲労き裂の発生に影響することが報告されている。鉄鋼材料について例えば、Cu や Si、Al といった第二元素を添加し、Cell 組織の発達を抑制することで疲労強度が上昇すると報告されている<sup>(3)-(5)</sup>。これは転位組織を制御することで疲労特性の高い鉄鋼材料を開発できることを示している。

繰り返し変形に伴って形成される転位組織を制御するためには、その形成過程を明らかにすることが重要である。fcc 金属においては、すべり系が{111}<110>に限定されるため、活動すべり系と転位組織との関係が議論しやすく、未だ不明確な点はあるものの、Vein 組織、Wall 組織、Labyrinth 組織、Cell 組織などの形成過程が提案されている<sup>(6)-(10)</sup>。一方で、鉄鋼材料を含む bcc 金属ではその理解は

不十分で、例えば Labyrinth 組織を構成する転位 Wall の方位の解釈は一致していない<sup>(11)-(16)</sup>。

筆者らはこれまで Fe 基二元系合金を対象に、繰り返し変形によって形成される転位組織を詳細に観察し、その形成過程を明らかにしてきた。本稿では、Fe-Si 二元系合金において、Labyrinth 組織を構成する転位 Wall を超高圧走査透過電子顕微鏡 (High-Voltage Scanning Transmission Electron Microscopy: HV-STEM) により観察した結果を紹介し、転位 Wall の形成方位とその形成過程について議論する。

## 2. 転位 Wall の形成過程の観察<sup>(17)</sup>

本章では、繰り返し変形を30回までで中断した Fe-3 mass%Si 合金を HV-STEM で観察することで、転位 Wall の形成過程を解析し、その形成に寄与するすべり系を明らかにした結果を述べる。

転位 Wall が形成することが過去に報告されている Fe-3 mass%Si を供試材の化学成分とした<sup>(11)</sup>。真空溶解炉を用いて電解鉄と合金からインゴットを溶製した後、1473 K で2 h 焼鈍して室温まで空冷し、さらに熱間鍛造で铸造欠陥を潰した。平均結晶粒径は5 mm であった。供試材からドッグボーン形状の疲労試験片を切り出し、室温大気圧下で全ひずみ振幅  $\epsilon_t = 1 \times 10^{-2}$  を一定とした引張-圧縮疲労試験を行った。ゲージ長さ8 mm、周波数0.05 Hz、応力比  $R = -1$  とした。転位 Wall の形成過程を捉えるため、繰り返し回数30回で疲労試験を中断し、試験片の平行部から転位組織観察用の薄膜を採取した。薄膜は板面方位が(00 $\bar{1}$ )および(1 $\bar{1}$ 1)となるように切り出し、機械研磨と電解研磨を行った。作製した

\* 日本製鉄株式会社 技術開発本部鉄鋼研究所材料ソリューション研究部；主任研究員(〒293-8511 富津市新富20-1)  
Dislocation Structures during Cyclic Deformation in an Fe-Si Based Binary Alloy; Hiroshi Shuto (Integrated Steel-Solution Research Laboratory, Steel Research Laboratories, Nippon Steel Corporation, Futtsu)  
Keywords: fatigue, cyclic deformation, dislocation structure, wall structure, labyrinth structure, iron, steel, high-voltage scanning transmission electron microscopy  
2020年2月27日受理[doi:10.2320/materia.59.321]



投影図を示す。ステレオペア像を平行法により観察すると、この視野を立体視することができ、薄膜試料の奥行き方向に対して転位の伸長方向が判別できる。2組の画像の立体視により、バーガースベクトルが  $\mathbf{b}_1$  の転位の伸長方向は左奥方向であり、バーガースベクトルが  $\mathbf{b}_2$  の転位の伸長方向は右奥方向であった。このことから、すべり系は  $(2\bar{1}\bar{1})[111]$  および  $(112)[\bar{1}\bar{1}1]$  であると特定できた。これは、すべり面が観察面に対して edge-on でないことと合致する。

Labyrinth 組織形成機構の既存モデルとして、Double Pseudo-Polygonization (DPP) モデル<sup>(7)(13)</sup>と Li モデル<sup>(10)</sup>が提唱されている。本研究における活動すべり系と転位 Wall の関係をこれらのモデルに当てはめ、両モデルの妥当性を検証する。

まず DPP モデルについて考える。DPP モデルでは、活動する2種類のすべり系において、まず刃状転位の双極子ループを考え、その2種類の双極子ループの幾何学的配列から転位 Wall の形成方位を3通りに絞り込む。更に、その3通りの転位 Wall と、2種類のすべり系のバーガースベクトルのなす角度が  $90^\circ$  に近いほど双極子ループが転位 Wall に積層しやすく、安定な構造になるとするモデルである<sup>(7)(13)</sup>。活動すべり系が STEM 観察により特定された  $(2\bar{1}\bar{1})[111]$  および  $(112)[\bar{1}\bar{1}1]$  とした場合、DPP モデルからは、転位 Wall の面方位として  $(10\bar{1})$  と  $(111)$  が予想される。図5に  $(10\bar{1})$  および  $(111)$  の観察面  $(1\bar{1}1)$  とのトレースを示す。2つのトレースは図5中に白丸で囲んだ形成初期段階にある転位 Wall の方位と一致しない。よって、DPP モデルは転位 Wall の形成方位を適切に予測できているとは言い難い。次に Li モデルについて考える。Li モデルは主すべり系と臨界すべり系の2つの転位のバーガースベクトルを合成し、その合成ベクトルに対して垂直な面に沿って転位 Wall が形成されたと解釈するモデルである<sup>(10)</sup>。Li モデルに合致して転

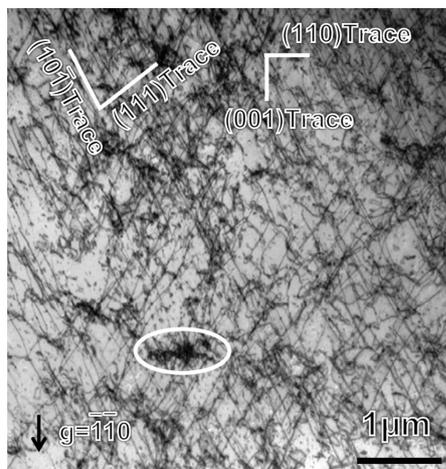


図5 DPP モデル<sup>(7)(13)</sup>と Li モデル<sup>(10)</sup>から形成が予想される転位 Wall の観察面  $(1\bar{1}1)$  におけるトレースと、形成過程の転位 Wall のトレースの比較。Li モデルで予想される  $(110)$  Wall が白い○で囲んだ転位 Wall の形成方位とよく合う。

位 Wall が形成される場合、Petrenec ら<sup>(16)</sup>が指摘したように、転位 Wall は2種類の活動する転位のバーガースベクトルの二等分面上に形成される。活動すべり系の転位のバーガースベクトルの方向は、 $[111]$  および  $[\bar{1}\bar{1}1]$  と同定されたことから、Li モデルから予測される転位 Wall の面方位は、次式、

$$\frac{1}{2}a[111] + \frac{1}{2}a[\bar{1}\bar{1}1] = a[001] \quad (1)$$

$$\frac{1}{2}a[111] - \frac{1}{2}a[\bar{1}\bar{1}1] = a[110] \quad (2)$$

により  $(001)$  および  $(110)$  となる。図5に  $(001)$  および  $(110)$  と観察面とのトレースを示す。 $(110)$ トレースが今回形成された転位 Wall のトレースと合うため、DPP モデルよりも Li モデルの方が、実際の転位 Wall の形成方位をうまく予測できるといえる。

### 3. 発達した転位 Wall の観察<sup>(18)</sup>

本章では、Si 添加量を減らし、より自動車用鋼板の実用材に近い成分とした Fe-1 mass% Si 合金について十分発達した転位 Wall を観察し、その形成に寄与するすべり系を明らかにした結果を述べる。

真空溶解炉を用いて電解鉄と合金からインゴットを溶製した後、粗圧延、仕上圧延により板厚 5 mm とし、 $700^\circ\text{C}$ 、60 min の熱処理を2回行い、疲労特性に影響を及ぼさず固溶 C、固溶 N を TiC、TiN として析出させた。得られた供試材はフェライト組織であり、平均結晶粒径は  $33 \mu\text{m}$  であった。この供試材に対し、表裏を  $0.5 \text{ mm}$  ずつ機械研磨して板厚 4 mm とした。さらに電解研磨を行い、表層の加工層を除去した後、圧延方向に垂直な方向を長手方向として、ドッグボーン形状の疲労試験片を切り出した。疲労試験片に対し、室温大気圧下で全ひずみ振幅  $\epsilon_t = 5 \times 10^{-3}$  を一定とした引張-圧縮疲労試験を行った。ゲージ長さ 8 mm、周波数 0.02 Hz、応力比  $R = -1$  とした。発達した転位 Wall を観察するため、繰り返し回数 1000 回で疲労試験を中断し、試験片の平行部から転位組織観察用の薄膜を採取した。前章と同様の手法で薄膜を作製し、転位組織の観察を行った。

ある結晶粒内に形成された転位組織を図6に示す。供試材の転位組織は同一結晶粒内でも均一ではなく、領域ごとに Vein, Wall, Cell と異なる組織が形成されていた。前章で明らかにした転位 Wall の形成方位とその機構が、Fe-1 mass% 合金にも適用できるか明らかにするため、転位 Wall に着目して詳細に観察を行った。図7に、転位 Wall が形成された同一視野を、 $[001]$  方向から3種の異なる回折条件で観察した STEM 明視野像、およびこの視野に対応するステレオ投影図を示す。図7(a)の回折条件では、全てのバーガースベクトルに対して  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \neq 0$  となり、観察視野内に存在する全ての転位が観察可能である。図7(a)より、転位組織は転位 Wall と転位密度が小さい Channel で構成されており、転位 Wall 間の距離は  $0.7 \mu\text{m}$  程度であった。これは潮田らが

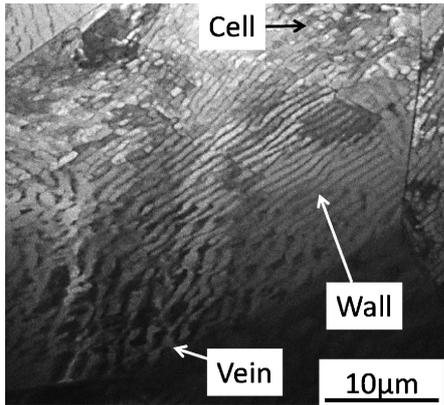


図6 Fe-1 mass%Si 合金多結晶を全ひずみ振幅  $5 \times 10^{-3}$  で1000 cycle 繰り返し変形させた後の転位組織. 同一結晶粒内で, Vein, Wall, Cell が混在していた.

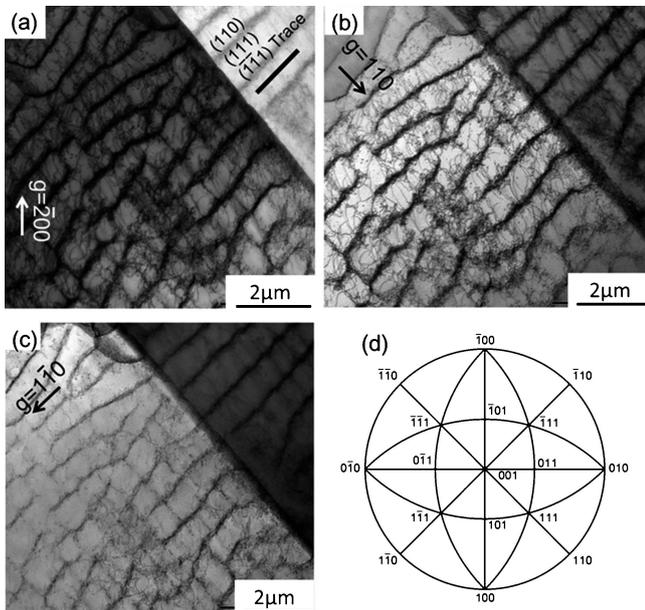


図7 板面方位(001)薄膜のHV-STEMによる転位組織観察結果. ビーム入射方位は[001]. (a)  $g=200$ , (b)  $g=110$ , (c)  $g=1\bar{1}0$ , (d) (001)板面でのステレオ投影図. (a)は全ての転位が観察可能. (b)は転位のコントラストが弱まり, (c)では弱まっていないことから, 転位組織に含まれる転位のバーガースベクトルは  $\mathbf{b}=\frac{a}{2}[111]$  および  $\mathbf{b}=\frac{a}{2}[\bar{1}\bar{1}1]$  の片方または両方といえる.

Fe-1 mass%Si 合金において応力振幅381 MPa の疲労試験で報告した値とほぼ一致する<sup>(4)</sup>. また, 転位 Wall は図7(a)の右上から左下に向かって平行に配列しており, これは図7(d)のステレオ投影図より, (110), (111), ( $\bar{1}\bar{1}1$ ) と観察面のトレースと一致した. 図7(b)に  $g=110$  の条件で観察した結果を, 図7(c)に  $g=1\bar{1}0$  の条件で観察した結果を示す.  $g=110$  の観察条件で転位のコントラストが弱くなっていることから, ここで観察された転位 Wall は,  $\mathbf{b}=\frac{1}{2}a[111]$  および  $\mathbf{b}=\frac{1}{2}a[\bar{1}\bar{1}1]$  の転位のうちの片方, もしくは両方が活動して形成されていることが分かった.

次に, 転位 Wall の形成方位を明らかにするため, 転位 Wall を構成する転位のバーガースベクトルが何種類あるかを考える. 単一すべりの活動によって形成される Ladder 組織に見られる転位 Wall は, 主すべり系の刃状転位双極子で構成されている<sup>(10)</sup>. よって, 転位 Wall の法線の方向は, 主すべり転位のバーガースベクトルの方向と一致する. この考えに従えば, 転位 Wall を構成する転位のバーガースベクトルが  $\mathbf{b}=\frac{1}{2}a[111]$  のみと仮定した場合, 転位 Wall は [111] に垂直な (111) Wall となる. 実際に図7(a)から, 転位 Wall のトレースは, (111)面と観察面とのトレースと一致している. しかし, 図7(d)のステレオ投影図から分かるように, 観察した転位 Wall が (111) Wall ならば, 転位 Wall は観察面に対し edge-on の条件にはならず,  $35^\circ$  傾斜して観察されることになる. 電子エネルギー損失分光法による薄膜測定の結果, 観察領域の試料厚さは約500 nm であったことから, 転位 Wall が  $35^\circ$  傾斜している場合には, 少なくとも300 nm 程度の厚さを持つ転位 Wall として観察されるはずである. しかし, 転位 Wall の厚さは薄い部分で100 nm 程度であり,  $35^\circ$  傾斜した転位 Wall とは考えにくい. よって, ここで観察された転位 Wall は  $\mathbf{b}=\frac{1}{2}a[111]$  の転位のみで構成される (111) Wall ではないことが分かる. 転位 Wall 中の転位のバーガースベクトルが  $\mathbf{b}=\frac{1}{2}a[\bar{1}\bar{1}1]$  のみと仮定した場合にも, 同様の考察によって ( $\bar{1}\bar{1}1$ ) Wall と解釈すると矛盾が生じる. 以上の考察から, 転位 Wall を構成する転位は,  $\mathbf{b}=\frac{1}{2}a[111]$  および  $\mathbf{b}=\frac{1}{2}a[\bar{1}\bar{1}1]$  の2種類のバーガースベクトルを持つと解釈の方が合理的である.

次に, 前章でその妥当性を検討した Li モデルについて本章でも考察する. 活動すべり系の転位のバーガースベクトルの方向は, 前章と同様 [111] および  $[\bar{1}\bar{1}1]$  と同定されたことから, Li モデルから予測される転位 Wall の面方位は, 前章の式(1)と式(2)から (001) および (110) となる. このうち (110) と観察面のトレースが今回観察された転位 Wall のトレースと一致する. 詳細は割愛するが, 本章の結果を DPP モデルに当てはめると観察された転位 Wall の形成方位と矛盾する. これは, Fe-1 mass%Si 合金の十分に発達した転位 Wall も, 前章で観察した Fe-3 mass%Si 合金と同様に2種類の活動する転位のバーガースベクトルの二等分面上に形成されることを示している.

4. おわりに

本稿では, HV-STEM を用いた Fe-Si 二元系合金の繰り返し変形に伴う転位 Wall の観察結果について, これまでに得られた知見を紹介した. bcc 金属の転位 Wall の形成方位については統一見解が得られていなかったが, (110)面および(001)面に沿って転位 Wall ができることを明らかにした. また, その転位 Wall は活動する転位のバーガースベクトルの2等分面に沿って形成されていることを示した. こ

