

X線回折による溶接金属凝固組織の *in-situ* 観察技術の開発

住友金属工業(株)総合技術研究所 米村光治

1.概要

鉄鋼材料は合金元素量の違いにより低合金鋼と高合金鋼に大別される。前者は高強度等の機械特性が要求とされる自動車・建築分野に使用され製造プロセスのみで特性制御可能であり、後者は原子炉プラント等、極厳環境下で使用され耐食性確保の為に製造プロセスに加えて多量の合金元素が添加されている。これらには溶接施工が必須であるが、溶融凝固を伴う接合法のため母材の製造プロセスの履歴がクリアされ、機械特性や耐食性が母材より劣化する。

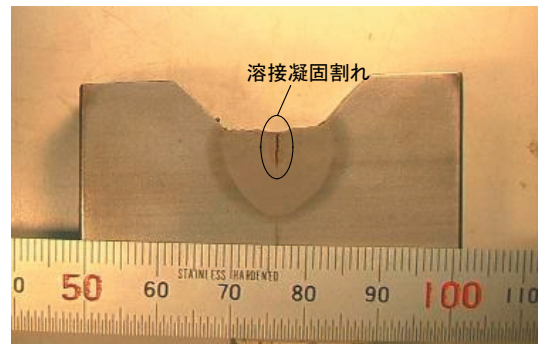


Fig.1 Example for the solidification crack

また母材特性向上に特化した成分設計では溶接時に延性が著しく低下した固液共存温度範囲で熱歪等が付加され割れを生じる(溶接凝固割れ、Fig.1 参照)。この構造材溶接部に発生する凝固時の割れの抑制は鋼溶接部の信頼性向上に重要な課題である。その防止には延性低下温度領域を狭くすること(固相線温度の上昇)が極めて有効なため、固相線温度低下を誘発する合金元素量の低減が効く。しかしながら同時に母材と同等の特性を付与するにはある程度の合金元素添加が必須であるため、実際には合金成分制御による複数相の晶出タイミングの制御や異相晶出により固相線を上げ凝固割れを改善している。したがって割れ防止に最適な合金元素量を提示するモデル構築は極めて重要であり、我々は固液共存温度範囲(溶接凝固過程での残存液相率)の合金元素量依存性の計算モデル構築を目指している。この予測モデル構築には残存液相率のみならず、凝固形態の経時変化の把握が重要である。現在完全オーステナイト凝固系の溶接金属については定性的な予測に成功しているがその他の凝固形態を有する合金についてはまだ適当なモデルが得られていない。いずれの場合にもモデルを定量的に検証することが必要不可欠であり、実験的に晶出タイミングや残存液相率のみならず、上記の凝固形態の経時変化を把握する事が重要であるが、急冷過程($\sim 500\text{K/s}$)のため動的に組織変化を捉えることは従来困難であった。そこで本実験では放射光を利用した高強度の X線回折による溶接金属急冷凝固組織の *in-situ* 観察技術を開発することを目的とした。最終目標としては凝固過程における晶出相とマトリックスの重量分率、すなわち液相率の時系列変化と組織変化を明らかにすることである。

2.実験方法

試料は Fe-36%Ni インバー合金、及びオーステナイト系ステンレス鋼の 2 種類((i)初晶 δ で $\delta+\gamma$ 凝固する FA モードと(ii)初晶 γ で $\delta+\gamma$ 凝固する AF モード)の高合金系溶接金属を用いた。測定は Fig.2 に示すレイアウトで BL46XU の多軸回折計の φ ステージ上に試料を設置して X 線を照射し、イメージプレート(IP)を用いて回折線を検出した。カメラは BL19B2 で開発された IP カメラを用いた。同カメラの仕様としては平板型の IP ホルダーで、照射領域を整形するためのスリット後方の自動ステージ上に IP を固定した。時分割測定時にはスリットに対し IP を平行移動して回折プロファイルの変化を記録した。IP 速度は 100mm/sec までの駆動できる。また、溶接光による IP データ消去が確認されたため IP スリットの前に黒紙を貼り遮光した。

X 線のエネルギーは 12KeV を用いた。*in-situ* 実験では Ar アークを図のように照射して試料を溶融し(溶融池 3~5mm ϕ)、溶接機(トーチ)を固定した自動ステージ(回折計架台部に設置)を用いて溶融スポットを X 線照射位置から X 線入射方向に対して垂直方向に移動させながら、その間の凝固過程の回折プロファイル変化を測定した。通常の溶接条件による凝固速度、試料の温度分布から想定される理想的な実験条件としては~0.1 秒の時間分解能で~100 μ m 程度の空間分解能であるが、凝固速度はアーク出力と溶接機の移動速度で制御される。そこでアーク出力を 10V, 150A と上げ、かつトーチの移動速度を下げ(~1.5mm/s)、早い晶出タイミングを可能な限り遅延させることを試みた。その際の発熱による温度上昇は水冷銅板で防止した。さらに熱電対にて溶接金属部位の測温を実施し回折データとの対応をとった。実験の手順は 第 1 段階として Sn で急冷凝固した試料の X 線回折から、*in-situ* 測定に必要な実験条件を検討し、次に第 2 段階として第 1 段階の結果をもとに IP カメラおよびアーク溶接機を連動させ実際に *in-situ* 測定し技術の検討を行った。

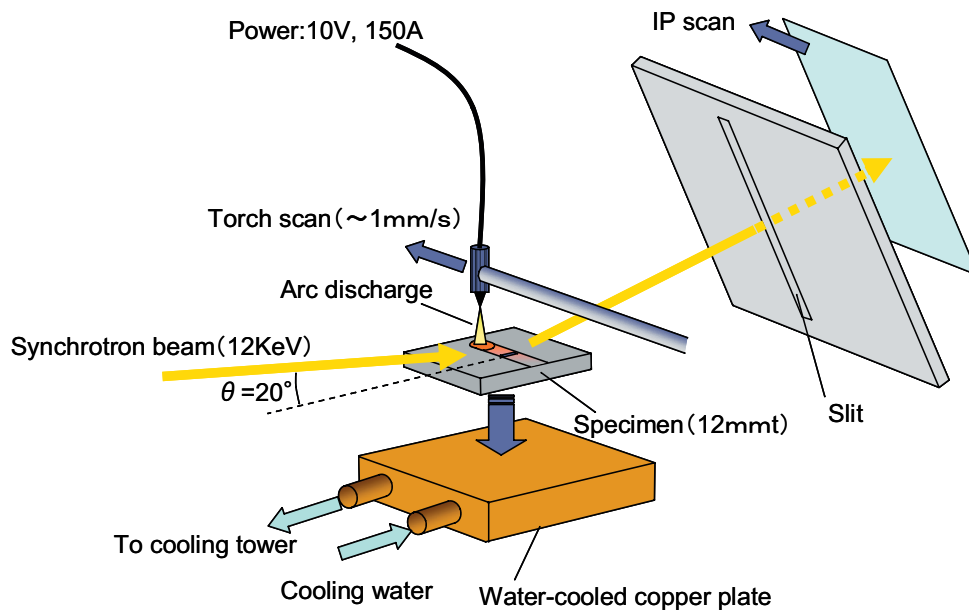


Fig.2 Experimental setup for the *in-situ* measurement.

3.結果

3.1 Sn 急冷材による静的実験

まず、溶接時の温度分布を有する凝固組織を凍結した Sn 急冷材で溶融池(アーク熱源直下の溶融部位)からの距離による回折パターンの変化を捉えた。溶接による凝固組織は、移動熱源に向かってデンドライトが主に<001>成長する一方向凝固である。したがって本測定では χ サークルを揺動させ一方向凝固による配向の影響を極力抑制した。Fig.3 に溶融池からの距離(左縦軸)に伴うプロファイルの変化を示す。FAモード右軸の温度は溶融池を基準にした温度降下である。まず δ_{110} 及び δ_{220} などの成長方向<001>に対して垂直な方位の回折ピークが凝固初期に現れ、当然初晶 δ 相は<001>方向に成長している。また、本測定では初晶 δ 単相領域が観察されず同時に γ 相の回折ピークも現れたものの、凝固初期での γ_{200} と γ_{220} の出現から γ 相は、まず分離共晶にて晶出することが分かった。つまり凝固初期では $\delta<001>/\gamma<001>$ の関係が成立する。さらに、 γ_{111} 、 γ_{222} 、 γ_{311} の回折も凝固初期で現れ、これらは[001]を成長方向とすると[110]や[310]入射による揺動によって現れる回折である。これは回転放物体で近似されるデンドライトの成長方向に対して垂直方向(短軸方向)の方位が<100>,<110>や<310>など個々に異なり、分離共晶の凝固初期の短軸方向ベクトルは成長方向を回転軸として自由な方位を向くと推察される。これらの回折強度は凝固の進行に伴い次第に減少する一方、 δ_{112} 及び γ_{400} の強度が次第に増加する。これらの回折ピークは視点を変えると、とりもなおさず K-S 関係と呼ばれる $\delta_{110}/\gamma_{111}$ の関係に対応することから、(i)初晶 δ 相界面からの γ 相の包晶反応による成長と(ii)分離共晶成長してきたデンドライトの会合による δ 相から γ 相への固相変態に対応すると推察される。つまり凝固の進行に伴いより安定な整合界面の形成が支配的になる。一方、AF モ

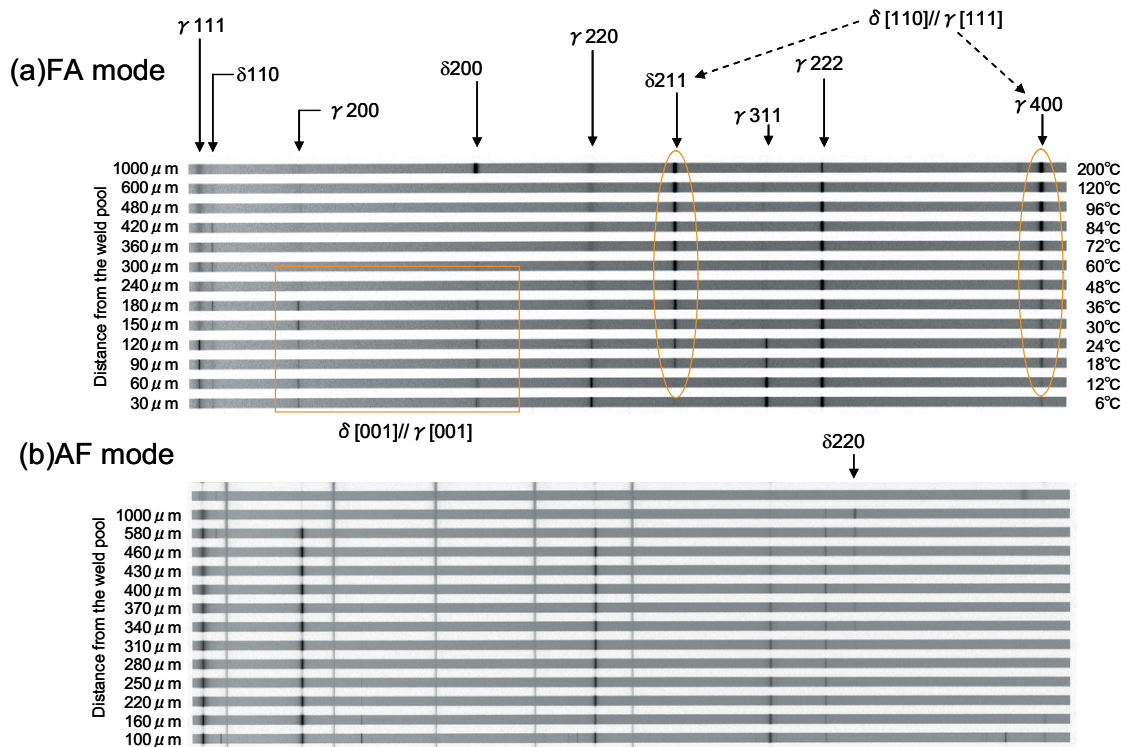


Fig.3 X-ray diffraction pattern of (a)FA mode and (b)AF mode austenite system as a function of distance from the weld pool.

ードでは初晶 γ 相の成長後、 δ 相が晶出するが FA モードと比較すると第 2 相の晶出タイミングが遅延する。これは AF モードが比較的凝固割れしやすいことにも対応する。また、 $\delta 220$ の回折ピークが現れることから、まず δ は分離共晶で晶出し始める。FA モードで観察された包晶反応は観察されなかった。これらの結果は SEM による本測定試料の組織観察結果とも一致する。

3.2 *in-situ* 実験

次に、実際に溶接しながらの回折パターンの動的測定を試みた。IP を高角度に配置したためトーチの影で凝固初期の情報が一部欠落したものの AF モードのオーステナイト合金で凝固過程の回折パターン変化を捉えることができた。Fig.4 に初晶 γ 相の 200, 220 と 311 の回折パターンの変化を示す。横軸は熱電対による測定温度である。 $\gamma 220$ と $\gamma 311$ の写真左側の白い領域はトーチの影である。测温

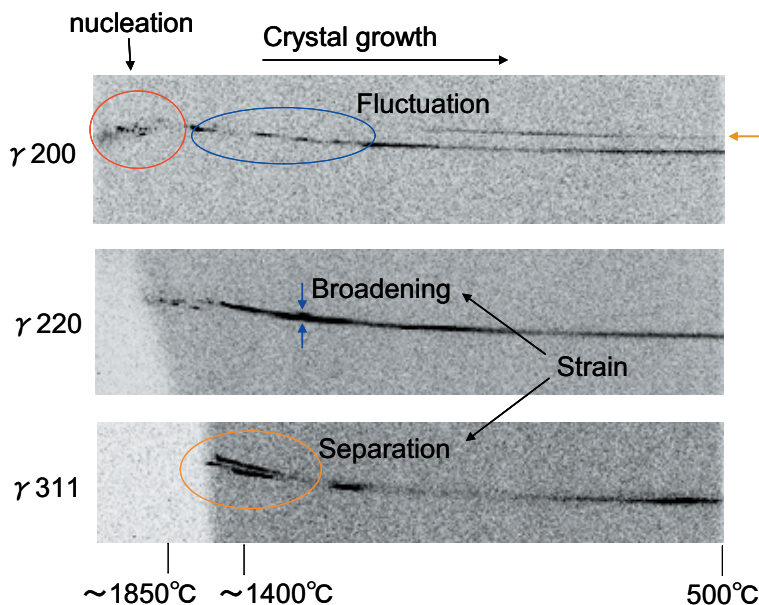


Fig.4 X-ray pattern of the *in-situ* measurement

結果から 1850°C 付近から 500°C までの温度範囲の回折パターンの変化である。まず、1850°C 付近ではランダムな点状の回折パターンが観察されるが、これは核の明滅に対応したコントラストと考えられる。つづく 1400°C 付近からの曲線状の回折パターンの変化から結晶性を向上させながらデンドライトが成長する様子が伺える。これは計算状態図で過冷を考慮すると適当な結果である。さらに回折プロファイルの周期的なコントラスト変化や回折線の幅、分裂からデンドライトの揺らぎや格子振動・格子歪が観察されていると推察され、現在、それらの定量情報から成長時のデンドライトの挙動について検討中である。

4. 今後の展開

1) 測定方法の改善

- ① 一方向凝固による配向の影響を抑止するために二次元検出器の活用を検討。
- ② 装置の影でデータの一部が欠落→エネルギーを上げ低角側にピークを収集。トーチ形状改善。

2) 合金への応用

- ① 固相変態が大きく急冷凝固材では凝固過程が全く推察不可能な低合金へ展開。
- ② 成分の異なる合金での晶出タイミングや熱歪などの相違。
- ③ 一方向凝固だけでなく、金属・半導体材料などの(急冷)凝固全般へ応用・展開。