その場中性子回折による 鉄鋼材料の弾塑性変形挙動の解析

Study on Elasto-plastic Deformation Behavior of Steels Using In Situ Neutron Diffraction

友田 陽	茨城大学 理工学研究科 応用粒子線科学専攻
Yo Tomota	教授

し はじめに

中性子は高い透過能などの特長を持つ特異な探索子として 材料のナノ解析に有用で、他の実験手法では不可能な測定が 開拓されてきたが、ビーム強度が弱く実験対象が限られてい た¹⁾。最近、日本 (J-PARC) および米国 (SNS) において大強 度陽子加速器が稼動を始め、核破砕型大強度パルス中性子 源を用いた新しい展開が始まろうとしている。特に、鉄鋼材 料の製造や使用において問題となる凝固、加工熱処理、変 形・破壊に関して、時分割測定によりナノ・ミクロスケール の現象をセンチメートルオーダーのバルク平均として追跡す る研究が注目される²⁾。レーザー顕微鏡や電子顕微鏡その場 観察では表面の特殊現象を捉えている懸念があり、X線では 表面層もしくは薄い試料の測定に限られるという難点があ る。中性子散乱回折を使うと材料試験片に相当するサイズを 代表するバルク平均情報が得られる。したがって、材料試験 結果と中性子実験結果の対応がきわめて良い。ただし、得ら れる散乱回折プロファイルは、顕微鏡観察などのミクロな実 験結果と組み合わせることによって解析し解釈することが可 能になり、有用な結果が得られる点に留意すべきである。こ こでは、高温と常温における弾塑性変形中の実験例を紹介す る。

連 携 記 事

高温における塑性変形と ミクロ組織変化の その場中性子回折による検討

耐熱材料のクリープ変形挙動や鉄鋼材料製造プロセスにお ける熱間加工・温間加工においては、不均一塑性変形と内部 応力分布、転位組織の形成(転位増殖と回復)、集合組織形 成、析出・変態・再結晶などが起こる。試料を急冷して高温 状態を凍結し常温で解析する従来の方法に、高温その場測定 を加えることで、理解が深まり真相究明の助けになることが 期待される。Fig.1は英国ラザフォード・アップルトン研究所 ISISにおけるFe-2Mn-0.2C合金を用いた実験の概要³⁾であ る。(a)は加工熱処理スケジュール、(b)はENGIN-Xを用い た実験風景を示す。直径12mmの円柱あるいは最小直径 8mmの砂時計型試料を用いて、高温圧縮変形後の等温保持 あるいは高温低速度圧縮変形中に圧縮軸方向とその垂直方向 から得られる中性子回折プロファイルを飛行時間(TOF)法 によって測定した。入射ビームと回折ビームをスリットとコリ メータで調整し、試料の全断面からの回折を検出している。 ビーム強度が約10倍になるJ-PARCの工学材料解析装置「匠」



Fig.1 Schematic illustration of thermo-mechanical heat treatment schedule (a) and experimental view at ENGIN-X in 2008 (b)

17

やSANSの装置「VULCAN」でも間もなく同様な実験が可能 になる見込みで、測定時間間隔の大幅な短縮が期待される。 さらに、これら新しい装置のデータ採取システムにはイベン ト方式が採用され、1パルスごと(J-PARCでは25Hz)に各 検出器の結果が記録され、実験後に分割時間や検出器の数 (測定角度範囲)を回折プロファイルの統計精度を考慮して 種々に変えながら解析することができるようになる。この方 式は時分割測定にとってきわめて便利である。Fig.2に、 1173K (オーステナイト(γ) 化処理) から 993K に冷却し 25% の圧縮変形(ひずみ速度:2.5×10⁻²/s)を与えた前後の回折 プロファイルを示す。加工前は集合組織が弱く軸方向(a)と 垂直方向 (b) のプロファイルはほぼ同じであったが、加工後 はアの(hkl) 回折強度の傾向に変化が現れ、圧縮変形によっ て加工集合組織が形成されたことがわかる。さらに、回折 ピークの中心位置およびプロファイル形状から、応力(弾性 ひずみ)や転位密度を同定できる。フェライト(α)変態が始 まるとα相の回折ピークが現れるようになる。このとき、集 合組織の影響を考慮して多くの回折ピークに対して一括カー ブフィティングを行うリートベルト解析法を用いると、軸方 向のデータからも垂直方向のデータからもほぼ同じ α 体積率 が得られた。個々の相の平均情報(たとえば相応力)に加え て、単一ピークフィティングにより個々の[hkl] 配向結晶粒 群の平均情報(たとえば粒応力)を同定することができる。 Fig.3に圧縮変形中における a 変態の進行状況を表す。993K では、加工なしの場合に比べて加工中にα変態が促進されて いる (動的 α 変態)。試験温度とひずみ速度を変化させて実験 した結果、α変態は加工温度が低いほど、ひずみ速度が大き

いほど、促進されることが定量的に示された。図中の913K 保持の例では、913Kに到達する冷却中にすでに変態が生 じ、2相状態の組織を加工することによってα変態が大きく 加速されている。このときのα相の(hkl)回折積分強度の変 化をFig.4に示す。変形(あるいは保持時間)の進行に伴い (hkl)回折積分強度に変化がみられ、α相の圧縮変形集合組 織の形成がみられる。2相組織状態の圧縮では、両構成相が ともに塑性変形するが、高温では7相、低温になるとα相が 硬質相になるようである。また、回折プロファイルから格子 面間隔が得られ、7中の炭素濃度や変態ひずみに起因する相 応力(7相に引張、α相に圧縮静水圧応力場が発生)が同定 され、αおよび7相における集合組織形成や転位密度などが 推定される⁴。



Fig.3 Dynamic ferrite transformation during hot-compression at elevated temperatures



Fig.2 Changes in neutron diffraction profiles obtained before and after hot-compression at 993K: (a) the axial direction and (b) the transverse direction

これまでに、著者らは単純加熱冷却に伴うマルテンサイト (α ')の焼戻し挙動⁵⁾や α '→ γ → α 変態⁶⁾、加工 γ からの α 変 態⁴⁾、 α '鋼の温間変形に伴う γ 析出と動的 α 再結晶の競合⁷⁾ など、結晶構造・組織変化のその場中性子回折実験を行って きた。現実の製造プロセス条件と比べると、加熱冷却速度や ひずみ速度の調整範囲が限定され基礎研究の域を出ない面が あったが、大強度中性子ビームが利用できるようになると実 用的条件にかなり近づけられると期待される。また、熱膨張 測定と小角散乱の同時測定では、析出物などのサイズ分布、 形状などをその場測定することができる⁸⁾。J-PARCでは、 広角と小角散乱の同時測定によって、結晶構造変化と析出物 の形状・サイズ分布の連続測定、さらに熱膨張測定やレー ザー顕微鏡観察などを組み合わせた多眼的な測定技術の発 展が期待される。

3 常温単軸変形における 不均一変形挙動の その場中性子回折による検討

鉄鋼の塑性変形はほとんどの場合に転位運動によるので本 質的に不均一に生じる。単相単結晶において塑性変形が進む と転位組織が形成され内部応力が発生する⁹⁰(第三種(残留) 応力)。たとえば、転位セル内とセル壁の間に発生する応力 分配がX線回折によって測定されている⁹⁰。単相多結晶体で は、外力方向に対する結晶粒の方位(Schmid 因子)や大き さに依存して変形の初期に塑性ミスフィットひずみに起因す る粒応力(第二種応力)が発生する。変形初期の結晶粒間の 不均一塑性変形(Grain-to-grain yielding)により発生する 粒応力は塑性変形が進んでも消滅しない。多相材料では、硬 質相と軟質相の間の塑性ミスフィットひずみに起因して相応 力(第二種応力)が発生する。個々の転位線は、これらの内 部応力が重畳した長範囲応力場(非熱的応力成分)下で、林 転位群と短範囲相互作用を起こしながら(熱的応力成分)運



Fig.4 Changes in ferrite diffraction intensity during hotcompression at 913 K

動する。したがって、複雑なミクロ組織を有する鉄鋼材料の 加工硬化は、種々な内部応力と林転位相互作用の2種類の抵 抗から構成される。中性子回折では、長範囲内部応力は回折 ピークの移動、林転位密度は回折プロファイルの形状変化に 現れるので、変形中の試験片平行部全体を代表する平均情 報を逐次測定することが可能である。著者らは α ^{10,11}、 α ^{12,13}、 γ ^{14,15}の単相鋼、焼戻し α ¹²、パーライト¹⁶⁻¹⁸、 α — γ 2相ステンレス鋼^{19,20} やTRIP-DP鋼^{21,22}の変形挙動を その場中性子回折を用いて検討してきた。ここでは、パーラ イト鋼、TRIP-DP鋼および2相ステンレス鋼に関する結果を 紹介する。

パーライトは、板状セメンタイト(θ)とαが層状になった ラメラコロニーが集まってブロックを形成する組織構成であ る。最近の研究によって、従来は同一結晶方向を示すと考え られていたブロック内やコロニー内で結晶方位が変化し、θ 板は曲がり内部に穴が存在するなど詳細な3次元組織状態が 明らかになりつつある²³⁾が、降伏強さは転位の移動距離を支 配するラメラ間隔、加工硬化量は応力分配を担うθ体積率が 主要因子であることには変わりない。単軸変形中その場中性 子回折では、Fig.1と同様にFig.5のような光学系で試験片 の軸方向とその垂直方向の回折プロファイルを測定する。 Fig.6(a)にラメラ間隔を変化させた試料の応力ーひずみ曲 線を示す。ラメラ間隔が狭くなるにつれて、降伏強さが増加 し加工硬化も若干増加気味である。多数のαとθの回折プロ



Fig.5 View of an engineering diffractometer, Takumi at J-PARC and schematic illustration of in situ neutron diffraction during tension-compression deformation

ファイルを対象に一括してリートベルト解析することによ り、両構成相の変形状態を知ることができる。格子ひずみを 求めた結果が Fig.6 (b) である。試料が降伏すると、α相の 格子ひずみ (すなわち負担している応力)の増加が止まり、 同時に θ 相の格子ひずみが大きく増加する。挿入図のよう に、α相ですべりが発生すると転位は界面に集積し後続の運 動転位に逆応力を与える。引張方向からみるとα相には圧 縮、*θ*相には引張の相応力が発生したことになる。すなわ ち、α相とθ相の間で応力分配が起こり加工硬化をもたら す。Fig.6からわかるように、ラメラ間隔が小さくなるほど、 降伏強さが大きくなり、α相の負担する応力(格子ひずみ)が 大きくなっている。降伏強度にラメラ間隔の強い影響がみら れるのは、単相α鋼の結晶粒微細化強化に似ている。その後 の変形に伴う加工硬化は*θ*相が応力を負担する(応力分配) からであり、長範囲内部応力が加工硬化の主因である。変形 が進み外力が増してもα相の格子ひずみはほとんど変化しな いので、林転位による短範囲相互作用による硬化はきわめて 小さいと思われる。Fig.6の横軸を試料の巨視的塑性ひずみ に変換すると、

θの格子ひずみの増加はラメラ間隔が小さい 方が若干大きくなり、効果的に応力伝達(分配)が起こると 推定された(図は割愛)。

θ板が球状化すると、塑性緩和が著 しくなり、θの格子ひずみ増加が鈍り、その反面、αの格子 ひずみが増加する (α相内の加工硬化)¹⁶⁾。個々の {hkl} 回 折プロファイルを解析すると、〈hkl〉ブロック(粒)群ごとの 平均状態を知ることができる。単一ピークフィッティングに より同定された格子ひずみを外力に対してプロットした結果 を Fig.7 に示す。降伏以前にみられる相違は、単結晶の弾性 異方性に起因して多結晶体内であっても [hkl] ブロック (粒)群ごとに弾性ひずみが異なり(回折)弾性係数が結晶の 方向によって異なるからである。降伏後も各々のブロックひ ずみの挙動が異なる。すなわち、相応力に加えてブロック間

の塑性ひずみ差に起因する粒応力が発生していることがわか る。さらに、ラメラコロニー間でも塑性ミスフィットひずみが 発生することが EBSD 実験などで示唆されているので、高分 解能装置を用いて回折プロファイルの形状を解析すれば第三 種応力 (コロニー応力) が検出されるに違いない。このよう に、複雑な組織を反映しスケールの異なる不均一塑性変形が 内部応力を生み出し、鉄鋼材料の加工硬化の主因のひとつに なっていることが理解される。

強度と延性(均一伸び)の優れた組み合わせを得るには、 変形後期の加工硬化を増大させる必要がある。塑性変形に 伴って、α'変態が生じたり、変形双晶が導入されたり、ひず み時効やローマーコットレル不動転位反応により転位密度の 増加が変形後期まで継続されると、加工硬化が大きくなり ネッキングの発生が抑制される。一般に変形中のα'変態によ るTRIP現象を利用するには高合金化が必要であるが、Siを 添加してθの形成を抑制し高炭素濃度のγを残留させた



Fig.7 Lattice strains corresponding to block (grain) stress as a function of the applied stress in pearlitic steels



Fig.6 Effect of lamellar spacing on flow stress and lattice strains of ferrite and cementite in pearlitic steels

TRIP-DP 鋼では低合金化が可能であり活発な研究開発が進 められている。市販 TRIP-DP 鋼 490T、結晶粒径を1 µm 以 下に微細化した低合金鋼 (SCM490:FC) およびナノ TRIP-DP 鋼の応力--ひずみ曲線^{24,25)}を Fig.8 に示す。一般に結晶 粒を微細化してゆくと、降伏強度が増加するが、加工硬化能 を失い均一伸びが消滅する。しかし、前述のパーライトでは 層間隔は1µm以下であるが、高い加工硬化と良好な均一伸 びを示した。したがって、超微細粒鋼に硬質相を導入すると 塑性ひずみ差による相応力が発生し加工硬化を発現でき る²⁵⁾。図中のナノTRIP-DP 鋼の初期組織はα-γ2相組織 であり、変形に伴い $\gamma \rightarrow \alpha$ 、変態が誘起される。現在、炭素 添加量を低下させ製造プロセスを工夫して同様な特性を示す 鋼の研究を進めている。微細粒鋼では、リューダース変形が 生じる傾向があるが、通常のスキンパス圧延や焼入れ状態の α'を混在させると連続降伏を示すようになる²⁶⁾。このような 組織制御と変形機構の解明にその場中性子回折がきわめて有 効である。市販 TRIP-DP 鋼 490T の引張変形中その場中性 子回折によって得られた軸方向のα相とγ相の格子ひずみ変 化 (リートベルト解析結果) を Fig.9 (a) に示す。弾性変形域 では、外力の増加に伴って両構成相ともに格子ひずみが線形 に増加するが、巨視的降伏強さの直前 (P1) からα相の増加 が鈍り、γ相における増加割合が大きくなる。これは、α相 内ですべり変形が開始し応力分配(相応力の発生)が始まっ たことを意味する。外力に加えて相応力の加勢で硬質 γ相で も塑性変形が始まり、格子ひずみの増加割合が鈍ってくる。 一方、回折プロファイルからγ体積率の変化がわかる。α'の 生成 (P2 以降) がさらなる応力分配 (α' が高い応力を負担す る)をもたらし高い加工硬化を生み出している。1mass%前 後の炭素が濃縮したγ相はα相より変形抵抗が大きいこと



Fig.8 Stress-strain curves obtained in commercially available TRIP-DP steel (490T), ultrafine grained SM490 steel (FC) and nanoTRIP-DP steels ((1) 18Ni-0.2C and (2) 1.5Mn-1.4Si-0.39C)

(P3が7相の塑性変形開始を表す)は、このような実験によっ て明らかになった。変形中に生成する a'相は最も変形抵抗 が高いと予想されるが、その変形挙動を追うには a 相と a'相 の回折ピークを分離して評価する必要がある。また、変態は 低炭素領域から優先的に発生すると予想されるので、7相の 回折プロファイル変化を詳細に解析すると知見が得られると 思われる。このような精緻な解析を行うには高分解能実験が 必要で J-PARC 装置 HRPD (世界最高の分解能 0.03%が見込 まれる)ではそれらの実現が期待される。

ナノTRIP-DP鋼における同様な実験結果をシングルピー クフィッティングで求めた結果をFig.10に示す。(a)の[hkl] 格子ひずみ変化から明らかなように、α相とγ相間の相応力 分配よりも粒応力分配が顕著である。すなわち、結晶粒微細 化によりα相の強度が炭素の濃縮したγ相と同程度になっ て、相応力はほとんどなくなり、粒応力が目立つ結果になっ ている。さらに、(b)においてγ相の[200]粒群で優先的に α'変態が生じているが、これは(a)において大きな引張粒応 力が発生しているのが[200]粒群であることと関係している と思われる。この鋼ではリューダース変形中に誘起されるα' 相が大きな応力を負担して微細粒鋼の加工硬化を増大させ ネッキングを抑制していると推定される。



Fig.9 Lattice strains (a) and diffraction intensities (b) as a function of the applied stress in 490T TRIP-DP steel, where P1:onset of plastic flow in a, P3:that in Y and P2:start of stress-induced martensitic transformation

最後に、α-γ2相Fe-Cr-Ni合金における引張圧縮変形 中のその場中性子回折結果をFig.11に示す。この実験は原 子炉中性子源による角度分散法で行ったので、α(110)とγ (111)の回折のみを追っている。図から弾性変形領域(Stage 1(引張),1'(圧縮))、オーステナイト相のみが塑性変形する 領域(Stage 2, 2)、そして両構成相がともに塑性変形する 領域(Stage 3, 3)の存在が推定できる。引張外力を除荷す ると、軟質相であるγには圧縮、硬質相であるαには引張応 力(ひずみ)が残る。さらに圧縮変形に転ずると、γ相は外 力と引張変形で生成した圧縮粒応力の重ね合わせによって、 早い時期に塑性変形が開始している。相応力がバウシンガー 効果を大きくさせていることがわかる。J-PARCの装置を用 いれば、25Hzの中性子パルスに同期させて繰り返し変形中 の挙動をTOF法で追跡することが可能になると思われる。

4 おわりに

中性子散乱回折を利用する時分割測定は、大強度中性子 ビームの登場によって大きく発展しようとしていることを紹 介した。中性子実験は、試料全体のバルク平均情報を得るに は適しているが、他の実験方法を相補的に組み合わせてデー タ解析を行うことが肝要である。平成21年度から日本鉄鋼協 会「新世代中性子源を利用した鉄鋼元素機能の研究会(主 査:大沼正人博士(物材機構))」がスタートし、幅広く中性 子利用の可能性が議論されている。その中で、時分割測定は 主要な話題のひとつである。

謝辞

ここで紹介した一連の研究を進めるにあたっては、参考論 文でリストアップした著者らの文献の共著者の力によるとこ ろが大きい。また、日本鉄鋼協会産発プロジェクト、科研費 補助金(#19360325, #21246106)、文部科学省連携融合事業、 茨城県受託研究等による資金支援を受けた。関係各位に感謝 する。

参考文献

- たとえば、産発プロジェクト展開鉄鋼研究成果報告概要 集「中性子利用鉄鋼評価技術の基礎検討に係わる研究」、 2009年3月、日本鉄鋼協会
- 2) 友田陽:金属, 17 (2008) 1041; 17 (2008) 1128.



Fig.10 Lattice strains (a) and diffraction intensities (b) as a function of the applied stress in nano TRIP-DP steel, where LYS means the lower yield stress



Fig.11 Changes in lattice strains determined from (111) austenite and (110) ferrite with tension-compression loading in a dual phase steel

- 3) S.Y.Zhang, E.Godfrey, W.Kockelmann, A.Paradowska, M.J.Bull, A.M.Korsunsky, B.Abbey, P.Xu, Y.Tomota, D. Liljedahl, O.Zanellato, M.Fitzpatrick, M.R.Daymond, R.M.Toda, R.A.Holt, J.Kelleher, S.Siano and J.Santisteban : Materials Today, Special issue on Neutron Scattering, (2009), 78, (ISSN: 13697021)
- 4) P.G.Xu, Y.Tomota, P.Lukas, O.Muransky and Y.Adachi : Mater.Sci.Eng.A, 434-435 (2006), 46.
- 5) Y.Tomota, H.Tokuda, S.Torii and T.Kamiyama : Maters. Sci. Engng. A, 434 (2006) , 83.
- Y.Tomota, P.G.Xu, T.Kamiyama and E.C.Oliver : Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 600 (2009), 313.
- 7) P.G.Xu, Y.Tomota, and E.C.Oliver : ISIJ Int., 48 (2008), 1618.
- 8) J.Suzuki, Y.Kinjo, H.Nishijima, Y.Oba, M.Ohnuma, H.Kira, T.Shinohara, T.Oku and Y.Tomota, XVI International Conference on Small-Angle Scattering, (2009), Oxford.
- 9) H.Mughrabi : Phil. Mag., 86 (2006) , 4037 ; Acta mater., 54 (2006) , 3417.
- 10) 鳥居周輝, 友田陽, 鈴木徹也, 朴鍾皓, 及川健一, 神山 崇:日本機械学会論文集 A, 68-675 (2002), 1540.
- 11) Y.Tomota, P.Lukas, S.Harjo, J.H.Park, N.Tsuchida and D.Neov : Acta mater., 51 (2003) , 819.
- 12) S.Morooka, Y.Tomota and T.Kamiyama i ISIJ Int., 48 (2008), 525.
- 13)諸岡聡, 友田陽, 足立吉隆, 森戸茂一, 神山崇: 鉄と 鋼, 94 (2008), 313.

- 14)池田圭太,友田陽,鈴木淳市,盛合敦,神山崇:鉄と 鋼,91 (2005),822.
- 15) M.Ojima, Y.Adachi, Y.Tomota, K.Ikeda, T.Kamiyama and Y.Katada : Mater. Sci. Engng., (2009) in print.
- 16) Y.Tomota, P.Lukas, D.Neov, S.Harjo and Y.R.Abe : Acta mater., 51 (2003), 805.
- 17) A.Kanie, Y.Tomota, S.Torii and T.Kamiyama : ISIJ Int. 44 (2004) 1952.
- 18)諸岡聡,鈴木徹也,友田陽,塩田佳徳,神山崇:鉄と 鋼,91 (2005),816.
- 19) S.Harjo, Y.Tomota, P.Lukas, M.Vrana, D.Neov, P.Mikula and M.Ono : Acta mater., 49 (2001) , 2471.
- 20) S.Harjo, Y.Tomota, D.Neov, P.Lukas, M.Vrana and P.Mikula: ISIJ Int., 42 (2002), 551.
- 21) Y.Tomota, H.Tokuda, Y.Adachi, M.Wakita, N.Minakawa, A.Moriai and Y.Morii : Acta mater., 52 (2004) , 5737.
- 22)成井章記,陳世昌,友田陽,神山崇:日本機械学会論文 集A,75-752 (2009),501.
- 23) たとえば, Y.Adachi, S.Morooka, K.Nakajima and Y.Sugimoto: Acta mater., 56 (2008), 5995.
- 24) 成井章記, 友田陽, 興津貴隆: CAMP ISIJ, 21 (2008), 707.
- 25) Y.Tomota, A.Narui and N.Tsuchida : ISIJ Int. 48 (2008) , 1107.
- 26) 李建宏, 友田陽:日本機械学会論文集A, 75-754 (2009), 761.

(2009年10月5日受付)