



EBSDと中性子回折によるマルテンサイト鋼の階層的不均一変形挙動の解析

諸岡 聡*・友田 陽*²・足立 吉隆*³・森戸 茂一*⁴・神山 崇*⁵

Hierarchical Characterization by EBSD and Neutron Diffraction on Heterogeneous Deformation Behavior of a Martensitic Steel

Satoshi MOROOKA, Yo TOMOTA, Yoshitaka ADACHI, Shigekazu MORITO and Takashi KAMIYAMA

Synopsis : A novel combined technique of neutron diffraction and electron back scattering diffraction was applied to examine hierarchical deformation behavior of 18 mass% Ni martensitic steel. *In-situ* neutron diffraction experiment during tensile deformation demonstrated that intergranular stress was generated. EBSD analysis suggested that slip bands terminated not only at block boundaries, but also sub-block boundaries at a relatively small strain. In many cases, slip bands crossing sub-block boundaries were zigzagged. With increasing strain, sub-block became unclear and then block boundaries worked as a main barrier for dislocation gliding. Such kind of heterogeneous plastic flow in differently oriented *hkl* blocks seems to be a possible reason for the intergranular stresses.

Key words : martensitic steel; EBSD; neutron diffraction; sub-block; crystal rotation; dislocation density; KAM.

1. 緒言

マルテンサイト鋼のミクロ組織と強度に関しては過去に多くの研究がなされているが、未だに定量的に明らかにされていない事項が多い。最近の研究によると焼入れ状態のラスマルテンサイト組織はラス、サブブロック、ブロック、パケット、および旧オーステナイト粒からなる階層的組織で構成されている¹⁾。変形を担う組織単位は変形の進行とともに変化することが予想される。変形初期には、マルテンサイト変態時に導入された転位の密度が減少し、更なる変形により転位密度が増加するとともに転位セルが形成されることが報告されている²⁾。一方、圧延により大きなひずみを与えた場合には、強化機構を担う組織単位がブロック組織であると考えられている³⁾。近年見出された約10°の小角境界であるサブブロック境界がラスマルテンサイトの強化因子として寄与しているかについて興味を持たれるが、詳細な検討はこれまでなされていない。近年 Electron back-scattered diffraction (EBSD) 法により変形に伴うミクロ組織の変化を、局所的な結晶方位回転や転位密度分布に注目して評価することが可能になってきた⁴⁾。一方、変形に伴うミクロ組織変化や結晶粒単位での不均一変形に伴って生じる内部応力（粒応力）をバルク平均として評価することが透過力に優れた中性子回折測定によって可能になって

いる^{5,6)}。両者を相補的に利用すれば、塑性変形に伴うラスマルテンサイトにおける組織変化と引張特性の関係をより定量的に議論することが可能となると思われる。

そこで本研究では、鉄鋼の高強度化に重要な組織であるマルテンサイトの引張挙動を、中性子回折法とEBSD法を相補的に用いて、究明することを目的とした。具体的には、ある組織単位での塑性変形挙動の相違に伴って生じる粒応力ならびに転位密度の変化をその場中性子回折法により求めるとともに、変形前後でのすべり線の連続性を同一視野でのEBSD測定により調査した。なお、マルテンサイトの複雑な組織と不均一変形をより明確に示すために、フェライト単相鋼（IF鋼）についても同様な検討を行い比較検討した。

2. 実験方法

本研究で使用した試料の化学組成はTable 1に示す。マルテンサイト鋼は1373K、1.8ksにてオーステナイト化した後に水冷し試料を作製した。比較材としてフェライト単相材の冷延焼鈍材を用いた。

同一視野における引張変形前後のEBSD測定を行った。用いた引張試験片のゲージ長さは20mmで、ひずみ速度は $1.39 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ である。EBSD測定にあたり機械研磨（エメ

平成20年2月18日受付 平成20年4月8日受理 (Received on Feb. 18, 2008; Accepted on Apr. 8, 2008)

* 茨城大学大学院 (Graduate Student of Ibaraki University, 4-12-1 Nakanarusawa-cho Hitachi 316-0033)

* 2 茨城大学大学院理工学研究科 (Graduate School of Science and Engineering, Ibaraki University)

* 3 物質材料研究機構新構造材料センター (National Institute for Materials Science)

* 4 島根大学総合理工学部 (Graduate School of Interdisciplinary Faculty of Science and Engineering, Shimane University)

* 5 高エネルギー加速器研究機構 (High Energy Accelerator Research Organization)

Table 1. Chemical composition of martensitic and ferritic steel used (mass%).

	C	Si	Mn	P	S	Ti	Ni	Nb
Martensitic steel	0.003	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	-	17.96	0.002
Ferritic steel	0.0018	0.01	0.17	0.0013	0.006	0.03	-	0.0026

リー紙 #320, #600, #1000, #2000 を使用), その後 $9\mu\text{m}$, $3\mu\text{m}$ 粒子のダイヤモンド研磨剤, $0.05\mu\text{m}$ 粒子のアルミナ研磨剤, コロイダルシリカを用いたバフ研磨をそれぞれ 0.05 ks, 0.06 ks, 0.03 ks, 1.8 ks 行い, 試料表面を鏡面にした。測定には, フィールドエミッション銃を搭載する走査型電子顕微鏡 (FESEM) に付設した TSL 製の EBSD 測定装置を用いた。測定時のステップサイズは $0.2\mu\text{m}$ とした。

中性子回折測定は高エネルギー加速器研究機構の高分解粉末解析装置 (Sirius) を使用し飛行時間 (TOF) 法で行った。TOF 法とは核粉碎中性子源からのパルス状多色中性子を試料に入射させ, 回折された中性子の検出器への到着時間を測定する方法である。これは回折角 θ を固定し, λ の変化 (すなわち飛行時間) を測定する方法で多くの面の回折を同時に測定できる利点がある。中性子回折測定装置内に, 片方のクロスヘッドが動いた量の 1/2 が試験機全体として戻る機構にした引張試験装置をセットした。すなわち, 試験片が変形しても中性子回折のゲージ体積場所は移動しないようにしてある⁷⁾。入射ビームに対して 45° 方向を引張軸とすることで, 引張方向に垂直な面 (Axial) による回折の測定, および引張方向に平行な面 (Transverse) の回折測定を同時に行った。引張試験片の寸法は平行部 3 mm, ゲージ長さ 25 mm の円柱状である。ビームの直径は $50\text{mm} \times 25\text{mm}$ なので, 試料平行部が完浴状態となり, バルク平均情報を得ることができる。目標の荷重に達した状態で荷重を一定に保持しながら中性子回折測定を繰り返した。

3. 実験結果および考察

3・1 ミクロ組織と引張特性

マルテンサイト鋼の焼入れ組織を Fig. 1 に示す。旧オーステナイト (γ) 粒はパケットで分割されている^{8,9)}。さらに, パケットはブロックで分割されている。このブロックはエッチングによるコントラストで識別できることから, ほぼ同一方位のラスで構成されていると考えられていた⁸⁾。しかし, Fig. 1(b) に示す EBSD 測定結果によると, ブロック内部の結晶方位は完全に同一ではなく数度のずれ (Misorientation) があることが確認される。森戸らは, ブロック内部にはおよそ 10° の境界を持つラスの集合体であるサブブロックが存在することを見出している¹⁾。本研究で観察された小角粒界で囲まれる領域はこのサブブロックに対応しているものと考えられる。サブブロック境界が転位運動の障壁となり強化因子として働くかについては, 次節で検

討する。ラスの内部には 10^{15}m^{-2} 程度の転位が存在するとされている^{10,11)}。変形前の状態で変態により生成した高密度な転位組織を有することはフェライト単相鋼との相違点である。

マルテンサイト鋼とフェライト鋼の応力-ひずみ曲線を Fig. 2 に示す。0.2% 耐力, 引張強さおよび均一伸びはマルテンサイト鋼では 302 MPa, 767 MPa, 4.0% であり, フェライト鋼ではそれぞれ 80 MPa, 220 MPa, 28.3% であった。中島らの報告のように, 焼入れ状態のマルテンサイトの弾性限はきわめて低いのが特徴である²⁾。

3・2 EBSD を用いた引張変形挙動の解析

(1) すべり線の観察結果

引張変形に伴うすべり線の発生および伝播挙動を, EBSD を用いて, 同一視野観察した。マルテンサイト鋼における測定結果を Fig. 3(a) と (b) に示す。ここでは, サブブロック・ブロック粒界とすべり発生に関連を調べる目的で IQ (Image Quality) map と粒界情報を重ねて示した。(a) は変形前の組織, (b) はブロック・サブブロック境界近傍でのすべり線を示した図である。ここで, サブブロック境界近傍ではサブブロック境界で止まったすべり線 (矢印 A) とサブブロック境界を横断したすべり線が混在している。本研究での変形量ではすべり線がしばしばサブブロック境界で止まっていることが見出された。ブロック境界で止まっているすべり線 (矢印 C) を詳細に見ると, ところどころ湾曲 (矢印 B) もしくは不連続な場所が観察される。その湾曲の周期はサブブロックに対応している。これは, ブロック内部をすべり線が進行する際, サブブロック境界が障壁になっていることを示唆している。すなわち, すべり線は変形が進行するにしたがってサブブロック境界を横断し, ブロック境界で停止する, つまりブロック内部ですべりの不連続性が生じると考えられる。優先的にすべりの生じた結晶粒には周囲の結晶粒の拘束によりすべりを抑制する方向の内部応力が生まれ, 隣接粒にはすべりを促進する方向の内部応力, すなわち結晶粒間のミスフィット塑性ひずみによって粒応力が発生する (粒界へ堆積した転位列が生み出す応力場を考えるとわかり易い)。自由表面における観察ではあるが, 図からみられるようにひとつの結晶粒内でもすべりの量に分布があり, 結晶粒内の不均一塑性変形によって粒応力を緩和している様子がうかがわれる。

(2) 塑性変形に伴う結晶方位回転分布

マルテンサイト鋼における引張試験前後の逆極点図方位マップおよび逆極点図強度マップを Fig. 4 に示す。変形が進行してもほとんど変化がみられない点が Fig. 5 に示すフェライト鋼の場合との大きな相違点である。フェライト鋼では, すべりの顕著な結晶粒で大きな方位回転が明瞭に見られる。強度マップの変化では引張変形に伴って $\langle 101 \rangle$ に向かって結晶粒が回転する様子がよくわかる。これは, フェライト鋼などの体心立方構造を有する材料における

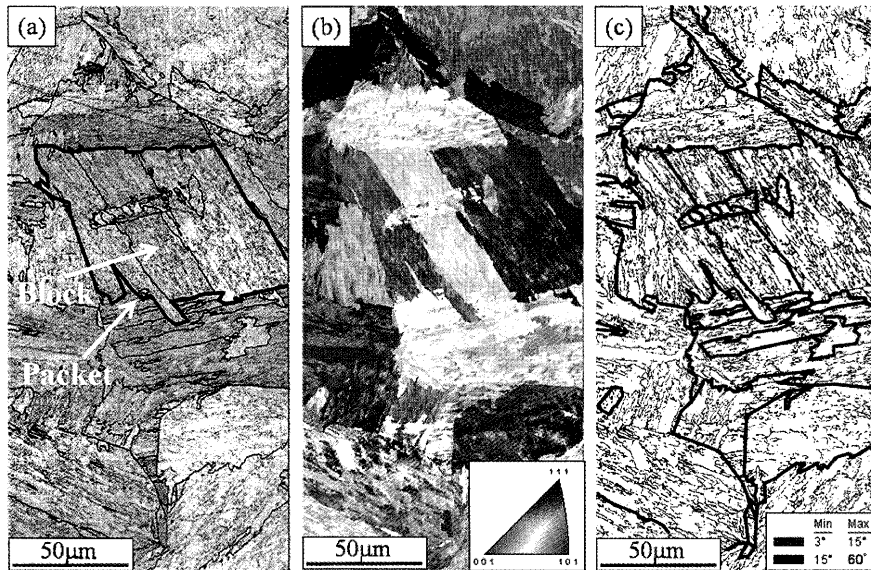


Fig. 1. EBSD images of the martensitic steel; (a) IQ (image quality), (b) IPF (inverse pole figure) and (c) grain boundary map.

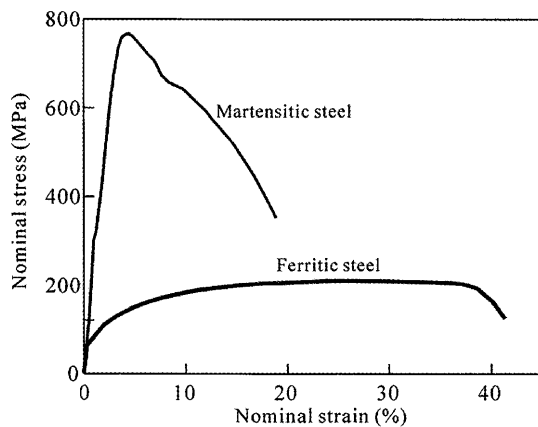


Fig. 2. Nominal stress-strain curves obtained at RT for the martensitic steel and the IF (ferritic) steel.

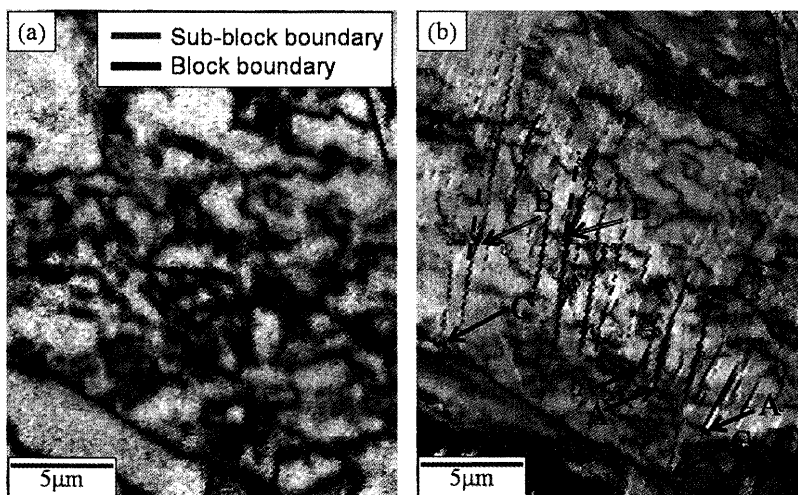


Fig. 3. Slip lines appeared by tensile deformation: (a) strain $\varepsilon=0\%$ for the martensitic steel, (b) 6%. Slip lines are observed to be stopped at sub-block boundaries in (A) and (B) while stopped at block boundaries in (C).

(110) 変形集合組織の発達挙動を示している。マルテンサイトの場合は、図中に示すサブブロック境界の方位差により、比較的小さな変形量でもサブブロック間の方位差が増加する場所と減少する場所が混在しサブブロック単位で変形が進行していることが示唆されるが、変形が進むとサブブロックが不明瞭になることから変形組織の単位組織がブ

ロックに変わっていくものと思われる。強度マップの変化は塑性ひずみの増加に伴い、フェライト鋼とは異なり、ほとんど変化が見られなかった。これは、微細組織であると、変形時に周囲の粒からの拘束により多軸応力状態となり、複数のすべり系が稼働することが集合組織の発達挙動の差異と関係していることが想像されるが、現時点では詳細は

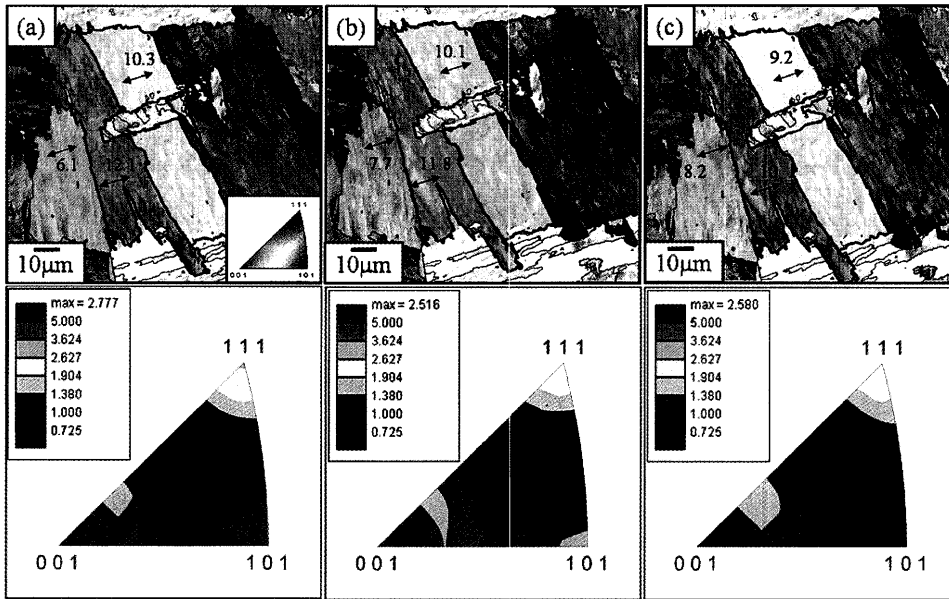


Fig. 4. Change in IPF image and intensity map of the martensitic steel by tensile deformation: (a) before deformation, (b) after deformation (tensile strain: 6%) and (c) after deformation (14%).

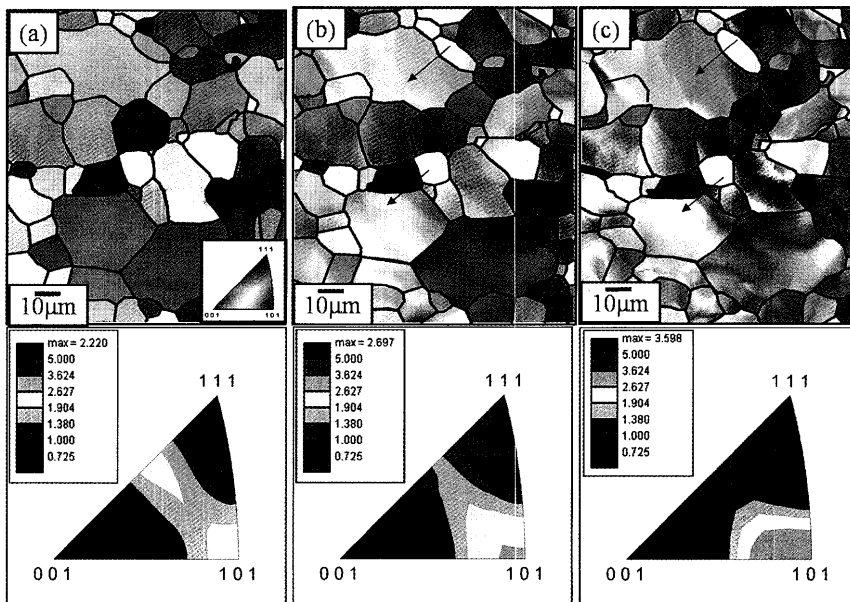


Fig. 5. Change in IPF images and intensity map of the ferritic steel by tensile deformation; (a) before deformation, (b) after deformation (tensile strain: 8%) and (c) after deformation (17%).

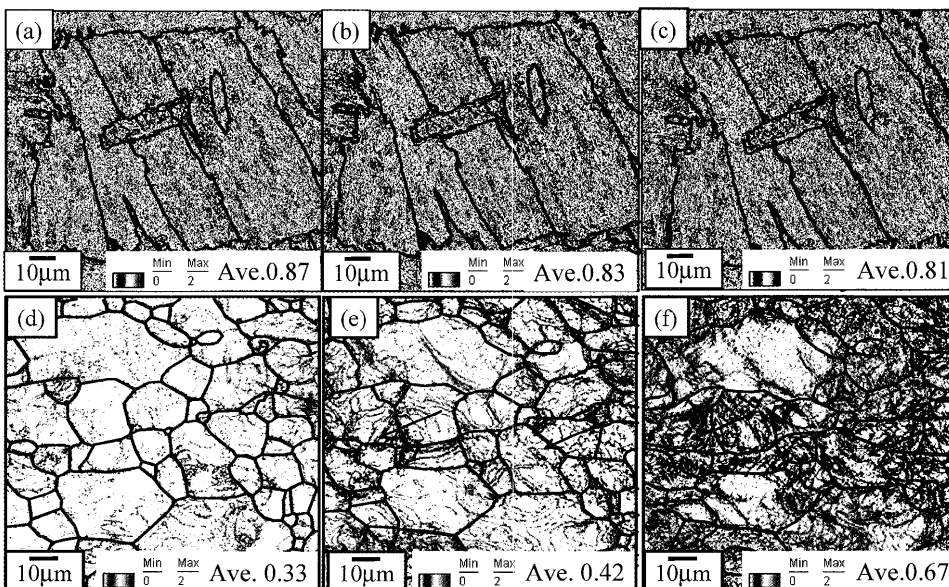


Fig. 6. Changes in KAM value with tensile deformation; (a) strain $\epsilon=0\%$ for the martensitic steel, (b) 6% and (c) 14%, (d) strain $\epsilon=0\%$ for the ferritic steel, (e) 8% and (f) 17%.

わからない。

(3) 変形に伴う Kernel Average Misorientation (KAM) 値の変化

結晶粒内のひずみ分布を評価するのにEBSD測定で用いられるKAM (Kernel Average Misorientation) 値が有効である。KAM値とは注目する1ピクセルと隣接する360°のピクセルの、ある閾値(本解析では2°)以下の方位差の平均を求めたものであり、微小領域の塑性ひずみ勾配(Geometrically necessary (GN) 転位密度に対応)を表す¹²⁾。マルテンサイト鋼とフェライト鋼の引張変形に伴うKAMの変化をFig. 6に示す。Fig. 6(d)~(f)のフェライト鋼では、明瞭に結晶粒毎にKAMの増加挙動が異なる。これより、結晶粒毎に塑性変形量が異なり、結晶粒間および粒内の不均一変形の様子が推定できる。視野全体のKAM平均値は約0.35から17%変形後は0.67へ増加しており、転位密度の増加に対応していると考えられる。これに対して、Fig. 6(a), (b)と(c)のマルテンサイト鋼では、変形前のKAM平均値は0.87とフェライト鋼より高いばかりでなく、引張変形に伴って14%変形後にもほぼ一定な値を示している。この結果から、転位密度は少なくとも増加していないことがわかり、変形に伴って新たな転位組織が生成するまでの潜伏期があることが特徴である。

3・3 引張変形中その場中性子回折

(1) 粒応力の発生

前節では組織観察により、マルテンサイトの局所的な塑性変形の特徴(変形初期の転位密度の減少、サブブロック単位での方位回転、サブブロックおよびブロック境界でのすべり線の不連続性)を明らかにした。本節では、試験片全体の平均挙動との関連について検討する。Fig. 7に中性子回折TOF法により得られたAxial方向のマルテンサイト鋼(a)とフェライト鋼(b)の中性子回折プロファイルを示

す。低指数の(110)から高指数側は(321)まで明瞭な回折プロファイルが得られている。(c)と(d)には、引張外力の増加に伴うマルテンサイト鋼とフェライト鋼(110)回折プロファイルの変化を示す。マルテンサイト鋼とフェライト鋼の変形前の回折プロファイルを比較するとマルテンサイト鋼の方がブロードである。これは変態転位が導入されているためと考えられる。両鋼ともに外力の増加に伴い面間隔が広がる方向へ移動し、除荷すると元の方向に戻るが、塑性変形で残留粒応力が発生しているため、元の位置からは偏倚している。

格子面間隔の変化から格子ひずみを算出した⁷⁾。マルテンサイト鋼とフェライト鋼の外力に伴うAxial方向の格子ひずみ変化をFig. 8に示す。マルテンサイト鋼とフェライト鋼では変形強度が異なるため、格子ひずみのスケールは一桁異なる。Fig. 8(a)において、格子ひずみは外力の増加とともに300 MPa程度まではほぼ直線的に増加し、弾性変形であることがわかる。結晶の弾性異方性のために直線の傾きは(hkl)面によってそれぞれ異なる。フェライト鋼の結果を(b)に示した。これを見ると、0.2%耐力(YS)付近で直線からの偏倚がうかがえ、文献で報告されているような(110), (200)と(211)でそれぞれ粒応力が分配している様子がみられる⁷⁾。格子ひずみは(110)と(211)では降伏直後、ほぼ一定となりその後再び増加している。一方、(200)は降伏後に著しく増加している。このような応力(弾性ひずみ)分配挙動は、引張方向が[110]の結晶粒群で優先的にすべりが開始し、塑性ミスフィットひずみに起因する内部応力が生じ、まだすべりが生じていない[200]結晶粒群に応力が集中する([110]粒の応力は低い状態)ためであると解釈できる。このような一般的な単相多結晶体の塑性変形における粒応力発生挙動に比べると、マルテンサイト鋼の粒応力の発生挙動は不明瞭である。そこでマルテンサイ

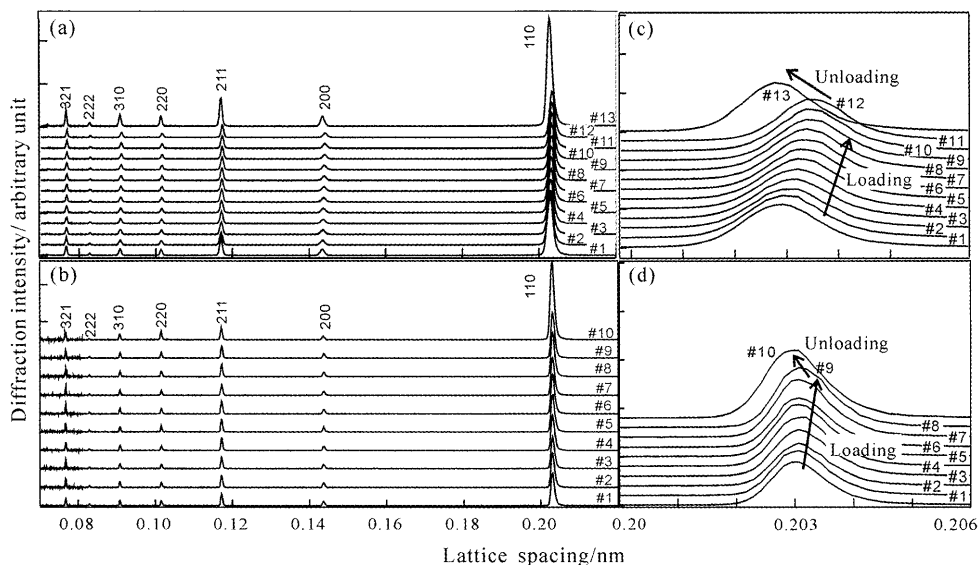


Fig. 7. Diffraction profiles obtained during tensile test in the martensitic steel (a), (c) and the ferritic steel (b), (d). The detailed changes in the (110) diffraction with loading and unloading are shown in (c) and (d).

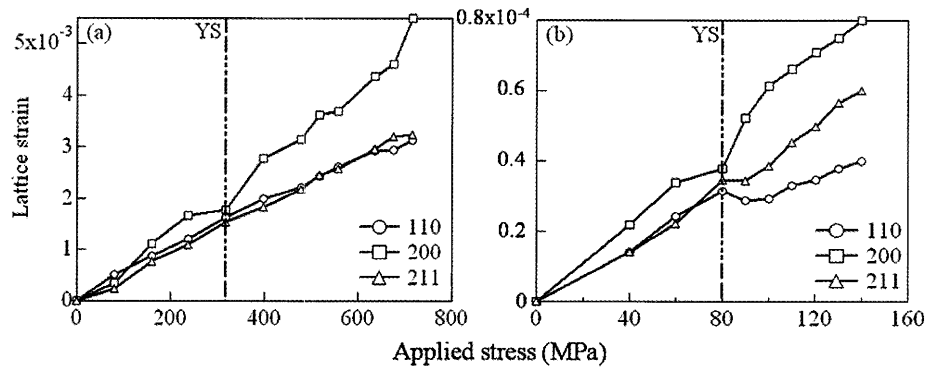


Fig. 8. (110), (200) and (211) lattice strains as a function of the applied stress in the axial direction: (a) the martensitic steel and (b) the ferritic steel.

Table 2. Residual lattice strains measured by neutron diffraction.

	110	200	211
Martensitic steel			
Plastic strain 1.5%	-2.68E-04	2.05E-04	-1.82E-04
Ferritic steel			
Plastic strain 5.0%	-2.11E-04	1.61E-04	-1.62E-04

ト鋼における平均的な不均一変形挙動をさらに検討するために、引張変形除荷後の残留粒ひずみを測定した。結果をTable 2に示す。マルテンサイト鋼とフェライト鋼ともに(110)と(211)は圧縮、(200)は引張の残留ひずみが存在する。マルテンサイト鋼の粒単位の塑性変形にもフェライト鋼の場合に似た結晶方位依存性が存在するようである。このような $[hkl]$ 結晶粒間の不均一変形に伴う粒応力の発生は前節のすべり線の分布に対応すると考えられる。中性子回折プロファイルの分解能に起因して、サブブロック単位での不均一変形挙動およびブロック単位での不均一変形挙動の分離検出は困難と思われるので、ここで求めた粒応力および残留粒ひずみはサブブロック単位およびブロック単位の合算した値と考えられる。

(2) 塑性ひずみに伴う(110)回折強度の変化

塑性ひずみに伴うマルテンサイト鋼とフェライト鋼の(110)回折積分強度の変化をFig. 9に示す。 (hkl) 回折強度の変化はすべりによる結晶回転に対応する。フェライト鋼では(110)回折積分強度は塑性ひずみの増加とともに増加した。これは引張変形させることで(110)粒が板面と平行になるように回転し、変形集合組織を発達させるからである。前節のEBSD測定による逆極点図強度マップの変化とよく対応する。一方、マルテンサイト鋼では塑性ひずみの増加とともに(110)回折積分強度はフェライト鋼のような大きな変化が認められなかった。この傾向はEBSD測定による逆極点図強度マップの変化が小さかったこととよく対応している。

(3) 変形に伴う半価幅の変化

一般に半価幅は粒径と転位密度を反映すると考えられる。本引張試験はひずみの小さい範囲に限っているので、

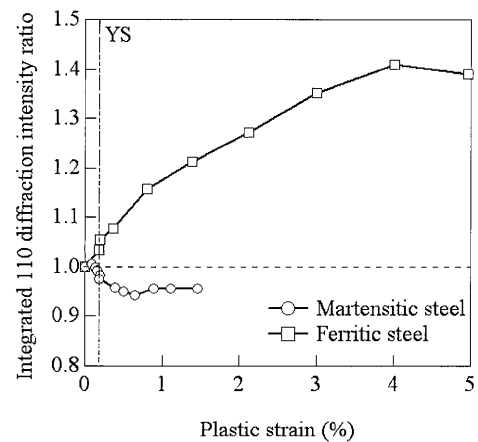


Fig. 9. Integrated (110) diffraction intensity as a function of tensile plastic strain for the martensitic and the ferritic steels.

半価幅の変化へ及ぼす粒径(転位セル)の影響は小さく、主として転位密度に依存すると予想される。マルテンサイト鋼とフェライト鋼の外力(引張応力)に伴う半価幅の変化をFig.10に示す。ここで注目すべき点は、3種類の回折面に共通して、マルテンサイト鋼では(a)のように変形の進行(降伏強度以降)に伴い半価幅が減少することである。(b)のフェライト鋼では、逆に変形の進行に伴って半価幅は増加している。変形に伴って転位密度は増加するのが一般的であるから、マルテンサイト鋼の結果は特異な挙動である。マルテンサイト鋼の変形に伴うこのような転位密度の減少は、すでに中島らによって報告されている^{2,13)}。本実験で用いたマルテンサイト鋼を圧延加工し、中性子角度分散法によって半価幅の変化を測定した結果¹⁴⁾をFig.11に示す。変形様式は異なるが、やはり変形初期に半価幅は減少し、75%の圧延を施すと増加に転じるようである。ここで、複数の回折ピークを用いてWilliamson and Smallman法¹⁵⁾によって転位密度を推算した結果をFig.12に示す。値の信頼性については今後の検討を要する点が多いが、転位密度 10^{15} m^{-2} のオーダーで変化する傾向は中島らのX線回折による結果とよく一致している²⁾。これらの結果は変態

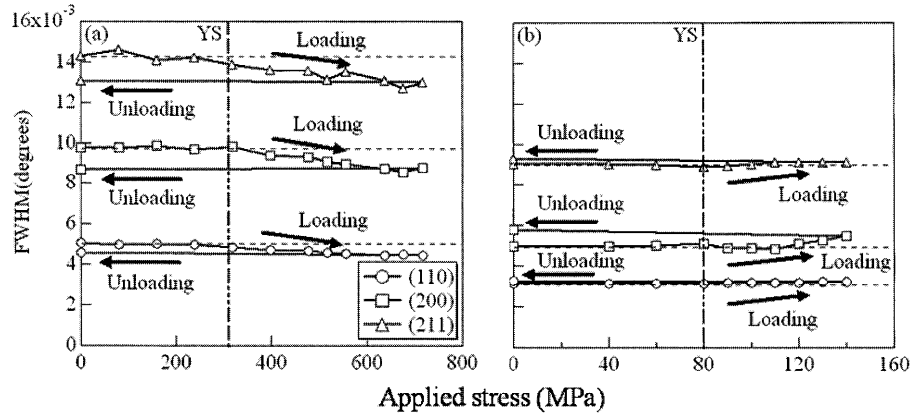


Fig. 10. Changes in FWHM with tensile deformation in the axial direction: (a) the martensitic steel and (b) the ferritic steel.

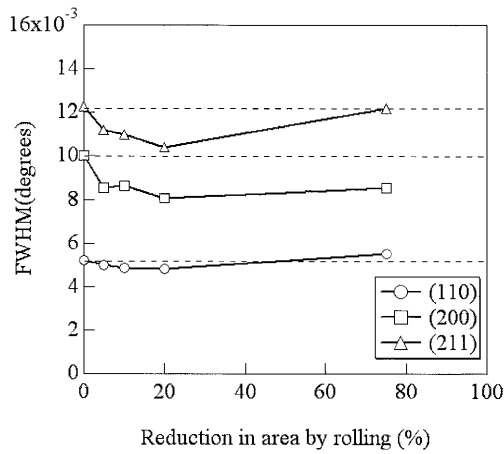


Fig. 11. Change in FWHM with cold-rolling for the martensitic steel.¹⁴⁾

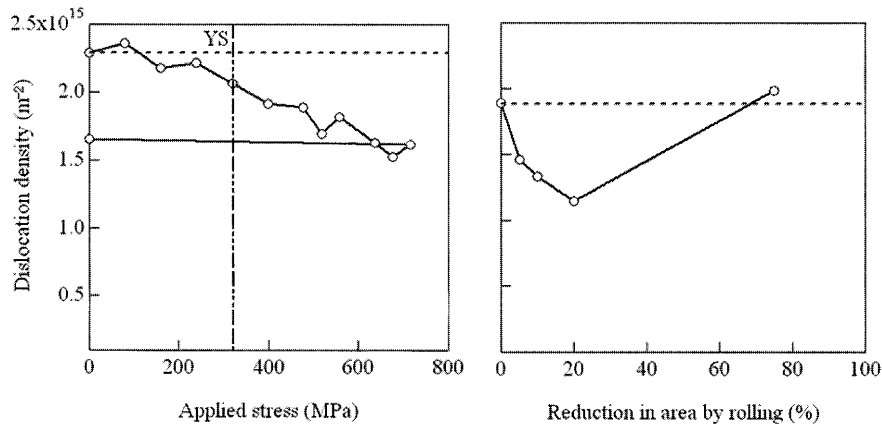


Fig. 12. Change in dislocation density for the martensitic steel; (a) tensile deformation and (b) cold-rolling.

転位の一部分が変形初期には消滅し、方位差を生じるGN転位にはならないため、Fig. 6で示したようにKAM値は増加しないものと思われる。

4. 結言

引張変形前後の同一視野EBSD測定法および引張変形中その場中性子回折法によりマルテンサイト鋼の変形挙動を階層的に解析し以下の知見を得た。

(1) マルテンサイト鋼で変形初期に現れるすべり線

は、サブブロック境界で止まっている場合が多く、すべりの組織単位は変形初期段階ではサブブロックである。しかし、変形が進行するとサブブロック境界を横断しブロック境界で停止するようになる。このようなサブブロックおよびブロック単位の塑性ひずみ差が生む内部応力を中性子回折では粒応力として測定していると考えられる。さらに、変形が進行するとブロック内部で局所的に結晶方位が回転しサブブロックが不明瞭になってゆく。ここでは主にブロック単位の塑性ひずみ差が生む内部応力を中性子回折では粒応力として測定していると考えられる。

(2) マルテンサイト鋼では(110)回折積分強度の変化と逆極点図強度マップの変化は良い対応を示しており、フェライト単相鋼の変形集合組織の発達挙動とは対照的な結果が得られた。

(3) マルテンサイト鋼のKAM値は、変形前から高く、引張変形に伴ってほぼ一定な値を示した。これは、変態転位の一部が変形初期には消滅し、方位差を生じるGN転位にはならないために起こると考えられる。これは、中性子回折から得られた引張変形に伴う半価幅の減少傾向とよい対応を示している。この傾向はKAM値も半価幅も引張変形に伴って増加するフェライト鋼とは異なっている。

本研究に対して科研費基盤研究(A) (16201015)および日本鉄鋼協会産発プロジェクト展開鉄鋼研究による支援を受けた。

文 献

- 1) S.Morito, H.Tanaka, R.Konishi, T.Furuhara and T.Maki: *Acta Mater.*, **51** (2003), 1789.
- 2) K.Nakashima, Y.Fujimura, H.Matubayashi, T.Tsuchiyama and S.Takaki: *Tetsu-to-Hagané*, **93** (2007), 459.
- 3) S.Morito, S.Iwamoto and T.Maki: Int. Forum for the Properties and Application of IF Steels 2003, (2003), 365.
- 4) S.Suzuki and Y.Adachi: *Bull. Jpn. Inst. Met.*, **47** (2008), 72.
- 5) Y.Tomota and T.Suzuki: *Bull. Iron Steel Inst. Jpn.*, **12** (2007), No. 2, 71.
- 6) S.Morooka, Y.Tomota and T.Kamiyama: *ISIJ Int.*, **48** (2008), No. 4.
- 7) S.Torii, Y.Tomota, T.Suzuki, J.H.Park, K.Oikawa and T.Kamiyama: *Bull. Jpn. Soc. Mech. Eng.*, **68** (2002), 1540.
- 8) A.R.Marder and G.Krauss: *Trans. ASM*, **60** (1967), 651.
- 9) J.M.Marder and A.R.Marder: *Trans. ASM*, **62** (1969), 1.
- 10) M.Kehoe and P.M.Kelly: *Scr. Metall.*, **4** (1970), 473.
- 11) L.-Å.Norstrom: *Scand. J. Metall.*, **5** (1976), 159.
- 12) M.Egashira and M.Wakita: Report of Research (II) "Yield Strength and Microstructure in Steels" Results of Experiment and Simulation, (2007).
- 13) K.Nakashima, Y.Fujimura, T.Tsuchiyama and S.Takaki: *Mater. Sci. Forum*, **539-543** (2007), 4783.
- 14) P.G.Xu, Y.Tomota, T.Suzuki, T.Saito and Y.Suzuki: Unpublished work at JAEA, (2006).
- 15) G.K.Williamson and R.E.Smallman: *Philos. Mag.*, **1** (1959), 34.