

X線回折ラインプロファイル解析による ステンレス鋼の加工硬化中の転位挙動解析

加藤倫彬^a, 佐藤成男^{a*}, 齋藤洋一^b, 轟 秀和^b, 鈴木 茂^c

Characterization of dislocation evolution during work hardening of stainless steels by using XRD line-profile analysis

Tomoaki KATO^a, Shigeo SATO^{a*}, Yoichi SAITO^b,
Hidekazu TODOROKI^b and Shigeru SUZUKI^c

^a Graduate School of Science and Engineering, Ibaraki University
4-12-1, Nakanarusawa, Hitachi, Ibaraki 316-8511, Japan

^b Nippon Yakin Kogyo Co., Ltd.

4-2 Ojimatyo, Kawasaki-shi, Kawasaki-ku, Kanagawa 210-8558, Japan

^c Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University
2-1-1 Katahira, Sendai, Miyagi 980-8577, Japan

(Received 14 December 2015, Revised 4 January 2016, Accepted 7 January 2016)

Dislocation evolution of the austenitic stainless steels (NAS316L) and the duplex stainless steels (NAS329J3L) during tensile deformation was investigated by using X-ray diffraction line-profile analysis. In particular, the heterogeneity of dislocation evolution in ferritic and austenitic phases in the duplex stainless steels was focused on for discussing the contribution to the work hardening of each phase. The work hardening of the austenitic stainless steels during tensile deformation was explained by using dislocation density estimated by the line-profile analysis. As for the duplex stainless steels, whereas an increase in dislocation density of the ferritic phase during tensile deformation was rather small, a distinct increase in the dislocation density was confirmed in the austenitic phase. Therefore, the work hardening of the duplex stainless steels can be ascribed to the heterogeneous work hardening in the austenitic phase.

[Key Words] X-ray diffraction, Line-profile analysis, Stainless steel, Dislocation

NAS329J3L 二相ステンレス鋼および NAS316L オーステナイト系ステンレス鋼の引張変形に伴う転位増殖について X 線回折ラインプロファイルを用いて解析した。特に、二相ステンレス鋼のオーステナイトとフェライト相における転位の不均一形成に着目し、組織成分ごとの加工硬化の様式を議論した。オーステナイト系ステンレス鋼の引張変形に伴う加工硬化の変化は、ラインプロファイル解析による転位密度から見積もられた加工硬化量で説明できることが確認された。二相ステンレス鋼の引張変形に伴う転位増殖は、オーステ

a 茨城大学大学院理工学研究科 応用粒子線科学専攻 茨城県日立市中成沢 4-12-1 〒 316-8511

* 連絡著者: shigeo.sato.ar@vc.ibaraki.ac.jp

b 日本冶金工業株式会社 神奈川県川崎市川崎区小島町 4-2 〒 210-8558

c 東北大学 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1 〒 980-8577

ナイト相で著しく生じることが確認された。一方、フェライト相での転位密度増加は非常に小さいことが明らかになった。以上の結果から、引張変形に伴う二相ステンレス鋼の加工硬化は、主にオーステナイト相が担うことが示された。

[キーワード] X線回折, ラインプロファイル解析, ステンレス鋼, 転位

1. はじめに

二相ステンレス鋼はフェライト相とオーステナイト相からなり、高い強度特性により優れた耐応力腐食割れ特性を有する¹⁾。この特性は異なる機械特性を持つフェライト相とオーステナイト相のバランスより導かれる。したがって、塑性変形に伴う各相のミクロ組織の変形様式は興味深いテーマとなっている。

土田らは二相ステンレス鋼についてX線回折および中性子回折実験を行い、塑性域の各相の残留応力から加工硬化を議論した²⁾。ただし、変形に伴う加工硬化は転位の増殖によるにもかかわらず二相ステンレス鋼の各相の転位増殖を直接解析した研究はほとんどないのが現状である。

X線回折で現れるピークの形状・拡がり（ラインプロファイル）は結晶子の微細化や転位による不均一格子ひずみにより生じる。1950年代にその解析法は提案されたが、現象の複雑性により近似的解釈にとどまっていた^{3,4)}。近年、Ungárらにより、回折ピーク拡がりの回折指数異方性の考え方を組み込んだmodified Williamson-Hall/Warren-Averbach法が提案され、ラインプロファイル解析による転位密度などの転位パラメーターの解析精度は飛躍的に向上した⁵⁻⁷⁾。ただし、modified法はサイズ成分プロファイル、ひずみ成分プロファイルをデコンボリューションする方法であるため結晶欠陥密度の低い試料の解析に限界があり、ま

た、ひずみの実空間分布に近似があった。そこで、modified法の回折ピーク拡がりの回折指数異方性の考え方を組み込み、Rietveld解析のようにプロファイルフィットを行うConvolutional Multiple Whole Profile (CMWP)法が考案された⁸⁾。CMWP法により低い結晶欠陥密度の解析も可能となった。

本研究では、X線回折ラインプロファイル解析より導かれる転位密度、転位配置パラメーター、結晶子サイズをもとに、ステンレス鋼の加工硬化を議論する。特に、二相ステンレス鋼におけるフェライト相およびオーステナイト相における転位形成、転位増殖の違いを明らかにする。また、オーステナイト系ステンレス鋼の加工硬化に伴う組織変化の結果を相補的に解析し、二相ステンレス鋼の特徴を明確化する。

2. 実験

2.1 試料

試料にはオーステナイト系ステンレス鋼NAS316Lと二相ステンレス鋼NAS329J3Lを用い、引張試験後の試験片をX線回折測定試料とした。引張試験片のゲージ部は長さ15 mm、幅3 mm、厚さ0.5 mmとした。引張試験はひずみ速度 0.00167 s^{-1} にて実施した。試料の真応力-真ひずみ線図をFig.1に示す。NAS316Lの大きい伸びに対し、NAS329J3Lの伸びは大きくない。ただし、塑性域に入る降伏点はNAS316Lに比べ、NAS329J3Lのそれは約2倍と高い。X線回折測定にはNAS316LおよびNAS329J3Lについ

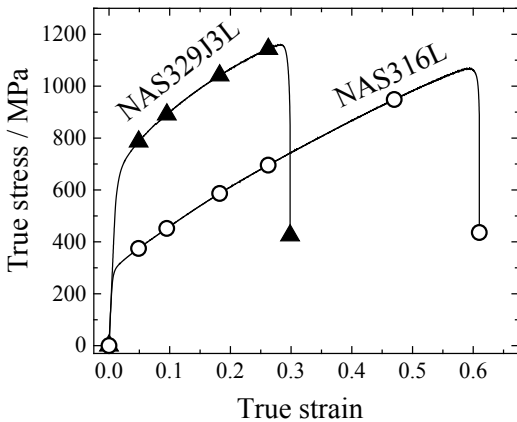


Fig.1 True stress-true strain curves of the NAS316L and NAS329J3L stainless steels.

て、それぞれ丸印、三角印の位置まで変形、除荷した試料を用いた。

2.2 X線回折測定

ラインプロファイル解析では高い角度分解能が必要であり、同時に、低強度の高次回折を良好なS/Nで測定する必要がある。そこで、一次元検出器を備えた Bragg-Brentano 型回折装置を用いた。また、銅の X 線管球から放射される X 線には解析で利用する $\text{Cu K}\alpha_1$ 線以外に $\text{K}\alpha_2$ 線と白色 X 線が含まれる。 $\text{K}\alpha_2$ 線と白色 X 線はラインプロファイルを歪めるため、入射光学系に石英単結晶 ($10\bar{1}1$ 面) の Johansson-type モノクロメーターを搭載することで $\text{Cu K}\alpha_1$ 線に単色化した。

X 線回折装置で測定するラインプロファイルは、装置由来のラインプロファイルと試料の結晶性由来のラインプロファイルのコンボリューションである。したがって、装置由来のラインプロファイルをあらかじめ定義する必要がある。本研究では熱処理により結晶子サイズ効果と転位によるひずみ効果を除去した純銅 (5N) と純鉄 (4N) の回折プロファイルを装置

由来ラインプロファイルとして利用した。

2.3 CMWP 法

結晶性由来のラインプロファイルは、結晶子サイズ効果と転位による格子ひずみ効果のラインプロファイルのコンボリューションである。したがって、各々のフーリエ係数を掛け合わせフーリエ変換することで、結晶性由来のラインプロファイルを導ける。格子ひずみフーリエ係数の実部 A^D は、

$$A^D(L) = \exp\left\{-2\pi^2 g^2 L^2 \langle \varepsilon_{g,L}^2 \rangle\right\}$$

として計算される。ここで、 L は実空間長さ、 g は回折ベクトルの大きさである。 $\langle \varepsilon_{g,L}^2 \rangle$ は Wilkens のひずみ関数 $f\left(\frac{L}{R_e}\right)$ ⁹⁾ を用い、

$$\langle \varepsilon_{g,L}^2 \rangle = \left(\frac{b}{2\pi}\right)^2 \pi \rho C_{hkl} f\left(\frac{L}{R_e}\right)$$

と表せる。ここで、 b はバーガースベクトル、 ρ は転位密度、 C_{hkl} はコントラストファクター、 R_e は転位のひずみ場の大きさである。

また、結晶子サイズは対数正規分布を仮定し、そのフーリエ係数の実部 A^S を次式で表せる。

$$A^S(L) = \int_{|L|}^{\infty} (M^2 - |L|M) \operatorname{erfc}\left[\frac{\log\left(\frac{M}{m}\right)}{\sqrt{2}\sigma}\right] dM$$

CMWP 法では、これらのフーリエ係数をもとにラインプロファイルを求め、装置由来ラインプロファイルをコンボリューションする。

CMWP 解析例として、NAS329J3L 試料の引張試験前と引張破断後の X 線回折パターンに対しフィッティングした結果を Fig.2 に示す。変形に伴い、回折ピークが広がるが、その形状を再現することができる。

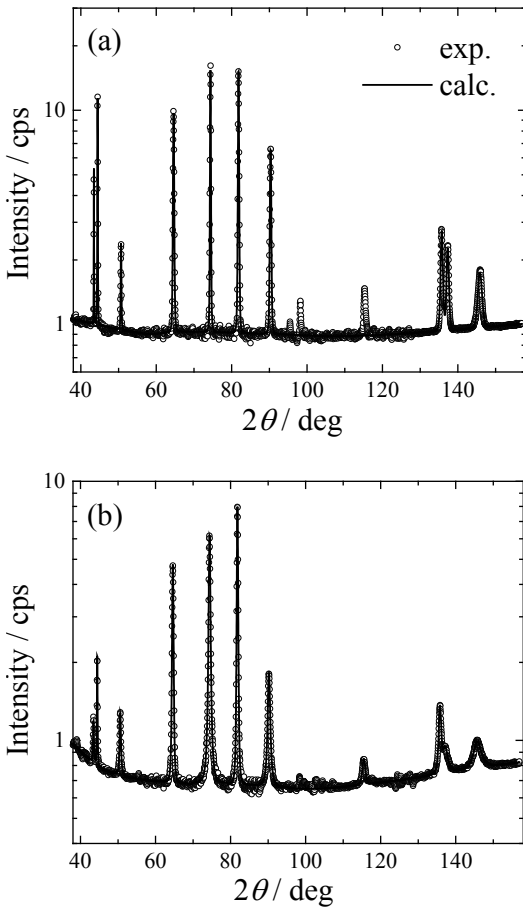


Fig.2 CMWP analysis for XRD patterns of the NAS329J3L duplex stainless steels (a) before tensile test and (b) after fracture.

3. 結果と考察

3.1 NAS316L オーステナイト系ステンレス鋼

Fig.1 に示した真ひずみ点の引張変形を与えた試料について X 線回折パターンを測定し、CMWP 法により解析した。導かれた転位密度 (ρ)、転位配置パラメーター (M)、面積加重平均結晶子サイズ ($\langle X \rangle_{area}$) を Fig.3 に示す。転位配置パラメーターは

$$M = R_e \sqrt{\rho}$$

であり、 $M > 1$ のとき転位がランダムに分布し、 $M < 1$ のとき転位は転位のひずみ場を打ち消すよう配列を持つことを示唆する。

転位密度は真ひずみとともに単調増加し、破断時の転位密度は $4.5 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ に到達する。 M 値は変形初期で増加するが、主にランダムな転位の増殖によると考えられる。真ひずみ 0.1 から M 値は減少し、転位の安定配置への再配列が進み、真ひずみ 0.25 以上では転位増殖と転位再配列がバランスし、変化が緩やかになることがわかる。結晶子は真ひずみの増加に伴い緩やかに微細化が進む。

転位による加工硬化の大きさは Bailey-Hirsch の式で表すことができる。

$$\Delta\sigma = \sigma_0 + T\alpha\mu b\sqrt{\rho}$$

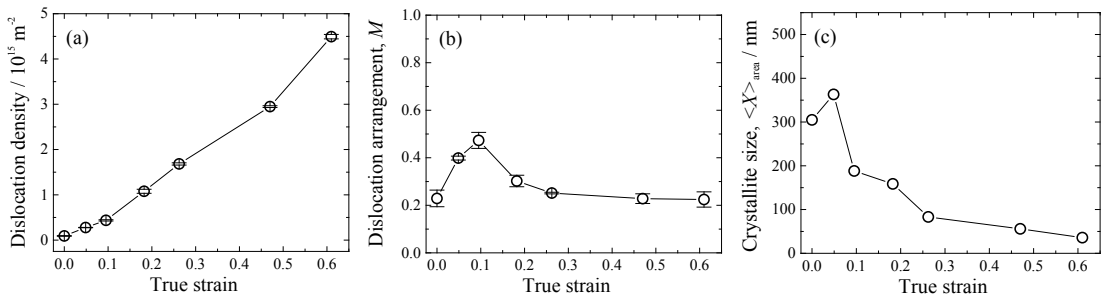


Fig.3 Changes in (a) dislocation density, (b) M , and (c) crystallite size of the NAS316L austenitic stainless steels as a function of true strain.

ここで、 T はTaylor因子(3)、 α は定数(0.25)、 μ は剛性率(70 GPa)である。Fig.3に示した転位密度とBailey-Hirschの式から見積もられる加工硬化量 $\Delta\sigma$ および、Fig.1の真応力-真ひずみ線図から求められる加工硬化量と比較した結果をFig.4に示す。それぞれの加工硬化量の真ひずみに対する推移はほぼ一致する。したがって、NAS316Lオーステナイト系ステンレス鋼は、変形に伴う転位増殖が加工硬化を担うことがわかる。

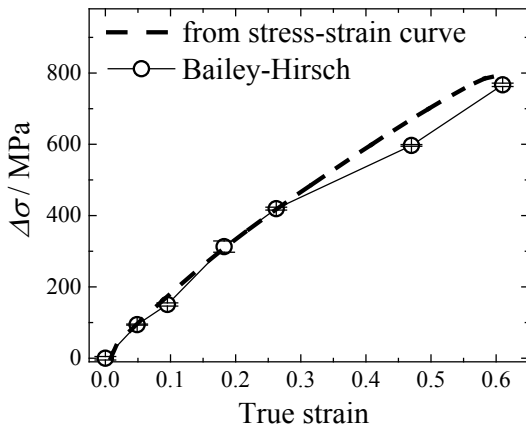


Fig.4 Work hardening of the NAS316L with tensile deformation estimated from dislocation density (open circle). Work hardening estimated from Fig.1 is also shown with broken line.

3.2 NAS329J3L 二相ステンレス鋼

NAS329J3L二相ステンレス鋼のオーステナイト相、フェライト相それぞれに対し、引張変形に伴う転位密度、転位配置パラメーター、面積加重平均結晶子サイズの変化をFig.5に示す。

フェライト相の真ひずみに対する転位密度の増加は緩やかであり、破断時の転位密度は $1.9 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ であった。一方、オーステナイト相の転位密度変化は、真ひずみ0.05以降、急激な増加を示し、破断時の転位密度は $8.0 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ に達する。引張変形に伴う転位増殖はフェライト相よりもオーステナイト相で進むことが明らかになった。したがって、二相ステンレス鋼の変形に伴う加工硬化は主にオーステナイト相が担うことが示唆された。

フェライト相の転位配置パラメーターは破断までほとんど変化しない。これは転位増殖が緩やかであることに起因していると考えられる。一方、オーステナイト相では加工初期に急激に減少する。これは、加工初期に導入される転位が安定配置に進みやすいことを示唆している。オーステナイト相では転位増殖が急激に進むが、 M 値の減少、つまり転位再配列も進む。したがって、オーステナイト相の転位の可動性は高いと推定される。

結晶子サイズはフェライト相、オーステナイ

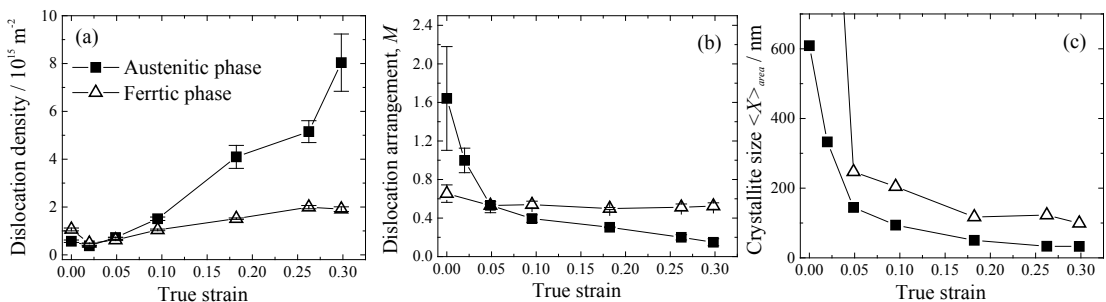


Fig.5 Changes in (a) dislocation density, (b) M , and (c) crystallite size of austenitic and ferritic phases for the NAS329J3L duplex stainless steels as a function of true strain.

ト相のいずれも、真ひずみ 0.05 まで急激に結晶子微細化が進み、その後、緩やかに微細化する。ただし、フェライト相に比べオーステナイト相の結晶子サイズがより微細である。これはオーステナイト相に高密度の転位が導入されることに起因していると推定される。

加工硬化を Bailey-Hirsch の式で議論する際、式中の α を定義する必要がある。 α 値は転位組織に依存するパラメーターである。転位組織の変化は転位配置パラメーター (M 値) から評価できる。NAS316L オーステナイト系ステンレス鋼の M 値 (Fig.3(b)) は顕著な変化がないため、 α 値を定数として取り扱える。一方、NAS329J3L 二相ステンレス鋼のオーステナイト相の M 値 (Fig.5(b)) は引張変形とともに明瞭に減少しており、 α 値を定数としては取り扱えない。このため、NAS329J3L 二相ステンレス鋼の加工硬化を転位密度のみで議論することはできない。今後、 M 値と α 値の関係を系統的に解析することで、加工硬化を組織変化と関連付けて議論する予定である。

4. 結 言

二相ステンレス鋼ならびにオーステナイト系ステンレス鋼の加工硬化中の転位増殖挙動を議論することを目的として、X線回折ラインプロファイルの CMWP 法による解析を行った。その結果、以下の知見が得られた。

(1) NAS316L オーステナイト系ステンレス鋼では、転位密度は破断まで単調増加し、転位配置パラメーターは転位の増殖と転位再配列がバランスをとることで緩やかになる。また、Bailey-Hirsch の式と転位密度から見積もられる加工硬化量で真応力-真ひずみ線図における加工硬化が説明できる。したがって、NAS316L

オーステナイト系ステンレス鋼の加工硬化を担うのは主に転位増殖であることが示された。

(2) NAS329J3L 二相ステンレス鋼の引張変形において、オーステナイト相、フェライト相それぞれの転位密度の増加傾向から、変形に伴う加工硬化はオーステナイト相が担うことが明らかになった。また、フェライト相の転位密度増加はわずかであり、転位配置パラメーターもほとんど変化しない。一方、オーステナイト相の M 値は、転位が著しく増加するにもかかわらず、真ひずみとともに減少する。これはオーステナイト相の転位の可動性が高いことを示唆している。結晶子は両相とも、変形初期で急激に微細化が進み、その後緩やかに微細化する。ただし、オーステナイト相では高密度の転位が導入されるため、フェライト相より結晶子微細化が進む。

参考文献

- 1) 滝沢喜久男, 志水康彦, 米田英作, 庄司戈止, 田村今男: 鉄と鋼, **6**, 35 (1979).
- 2) N. Tsuchida, T. Kawahata, E. Ishimaru, A. Takahashi, H. Suzuki, T. Shobu: *ISIJ Int.*, **53**, 1260 (2013).
- 3) G. K. Williamson, W. H. Hall: *Acta Metal.*, **1**, 22 (1953).
- 4) B. E. Warren, B. L. Averbach: *J. Appl. Phys.*, **21**, 595 (1950).
- 5) T. Ungár, I. Dragomir, Á. Révész, A. Borbély: *J. Appl. Cryst.*, **32**, 992 (1999).
- 6) T. Ungár, J. Gubicza, G. Ribárik, A. Borbély: *Appl. Cryst.*, **34**, 298 (2001).
- 7) T. Ungár, A. Borbély: *Appl. Phys. Lett.*, **69**, 3173 (1996).
- 8) G. Ribárik, J. Gubicza, T. Ungár: *Mat. Sci. Eng. A*, **387-389**, 343 (2004).
- 9) M. Wilkens: "Fundamental Aspects of Dislocation Theory", Vol.2, (1970), (Nat. Bur. Stand. Spec. Publ., USA).