

レプリカ-デジタル画像相関法による 9%Ni 鋼の変形・破壊挙動の解明

金沢大学 理工研究域 機械工学系 古賀 紀光

1. 研究背景

カーボンニュートラル社会実現のために核融合発電や水素燃料などのクリーンエネルギーが注目を集めており、今後このようなエネルギーの利用は加速的に増えていくことが予想される。核融合発電では、核融合により発生したプラズマを強磁場により閉じ込めるために、超電導を利用したトロイダル磁場コイルが用いられる。そのために、コイルの構造部材は、超電導が発現可能な極低温(4.2 K)に晒される。他方、水素は、気体のままではエネルギー密度が低いため、液化させることでその密度を増加させている。よって、液体水素タンクも 20 K という極低温に晒される。以上のように、今後のクリーンエネルギー利用において、構造材料は極低温に晒される機会が増加すると考えられ、そのような環境下で優れた機械的特性を有する材料が望まれる。

金属材料の機械的特性の温度依存性はその結晶構造により異なる[1]。体心立方構造(bcc)を有する Fe や W などの金属では、機械的特性の温度依存性が大きく、温度低下に伴い強度は増加するが、延性は低下し、ある温度以下では脆性破壊が生じる。このような延性破壊から脆性破壊に遷移する温度は、延性脆性遷移温度(DBTT)と呼ばれ、構造材料の低温下での利用において重要なパラメータとなる。鋼材によっても DBTT の温度は異なるが、通常の炭素鋼ではその温度は 200 K 以上であり、極低温では脆性破壊が生じる。一方で、9mass%Ni(以降、9Ni)鋼は bcc 構造を有していながらその DBTT は 77 K 以下であり、低温下でも優れた靱性を示すことが知られている。特に、9%Ni 鋼に図 1 に示す Quenching Lamellarize Temper (QLT)処理[2]を施すと DBTT が改善することが知られている。QLT 処理 9Ni 鋼の組織の模式図を図 2 に示す[3]。母相は、Q 処理時に形成したマルテンサイト(α')がその後の処理により焼戻された焼戻し α' である。 α' は、旧オーステナイト粒界、パケ

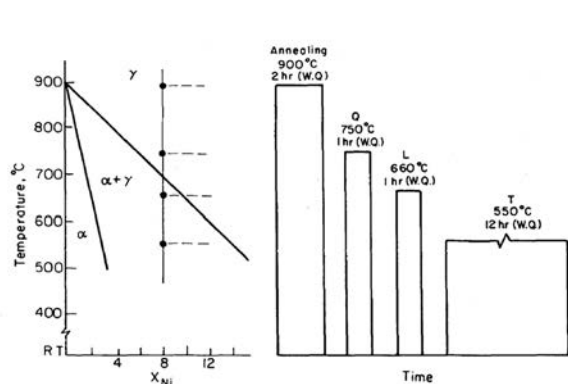


図 1 QLT の熱処理図[2]

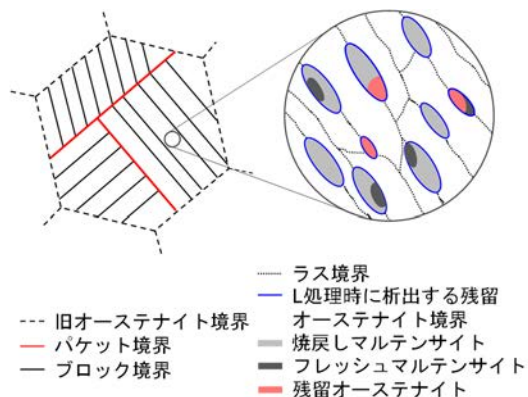


図 2 QLT 処理後の組織の模式図[3]

ット、ブロック、ラスから成る複雑な階層組織を有している。L 処理時にオーステナイトが生成し、その後の水冷で一部は α' へと変態する。最後に T 処理時に、L 処理時に生じたオーステナイト内(図中青枠)で再度オーステナイトが析出し、その一部は水冷後も保持される。最終的に、L 処理時に析出したオーステナイトは、L 処理時に生じた α' が焼戻された焼戻し α' 、T 処理時の水冷時に形成したフレッシュ α' 、そして、残留オーステナイトから成る複雑な組織を有する。本研究では、この領域を特に **Tempered and Fresh Martensite, retained Austenite (TFMA)**領域と呼称する。以上から、QLT 処理 9Ni 鋼は、 α' の階層組織の中に TFMA 領域が分散する複雑な組織形態を有している。しかし、これらの複雑な組織と低温靱性の関係については定かではなく、9Ni 鋼における優れた低温靱性が発現する要因については定かになっていない。9Ni 鋼は、1950 年代に開発され、1980 年代までは精力的な研究がなされていたが、近年では、その報告例が少ない。一方、近年の解析技術の発達は、組織観察レベルでの変形・破壊の解析を可能としている。このような最新の解析手法を用いれば 9Ni 鋼における優れた低温靱性の発現メカニズムを解明できることが期待される。

金属材料の変形挙動の解析は、古くは試料表面のすべり線の観察から始まり、透過型電子顕微鏡を用いた転位の直接観察、電子線後方散乱回折(EBSD)法を用いた局所領域での方位回転量(KAM 値)の評価が行われてきた。そのような中、近年、開発されたデジタル画像相関(DIC)法[4-6]は、変形前後のデジタル画像からひずみを算出する手法である。本手法の利点は、高精度のひずみ解析だけでなく、その分布状態を可視化できる点にある。マクロには、試験片形状や変形モードを変えた際のひずみ分布状態が可視化され、シミュレーション結果と比較検証されており、その解析精度が高いことが実証されている[7]。一方、DIC 解析を走査型電子顕微鏡(SEM)像に適用することで、組織観察レベルでのひずみ分布の可視化も可能である[8-12]。その結果から、金属材料では巨視的には均一な変形に見えても、組織観察スケールでは不均一に変形が進行していることがわかっている。さらに、研究者は、疲労き裂観察などに利用されてきたレプリカ法と DIC 法を併用することで、破壊起点(ボイドやクラック)の変形初期からのひずみ分布状態を連続的に解析するレプリカ-DIC 法を提案した[13]。本手法を用いることで、疲労き裂が高ひずみ域から形成することが観察されている[14,15]。本手法は低温下での変形においても適用可能である。

以上の背景を受け、本研究では、9Ni 鋼の優れた低温靱性発現メカニズムを明らかにすることを最終目的として、DIC 法とレプリカ法を用いて変形・破壊挙動の解明を行った。

2. 研究成果

2.1 9Ni 鋼の変形を支配する因子

2.1.1 初期組織と低温引張試験により形成するひずみ分布

図 3 に QLT 処理後の同領域における(a)SEM 像、(b)バンドコントラストマップ、(c)相マップおよび(d)bcc 相の結晶方位マップをそれぞれ示している[3]。SEM 像から TFMA 領域は白いコントラスト部として表れた。同領域のバンドコントラストマップからこれらの領域ではバンドコントラストが低い(図中では暗部)領域に対応している。バンドコントラストはひずみが存在すると低くなることから、TFMA 領域内のフレッシュ α' によってバンドコントラストが小さくなった可能性が高い。相マップから TFMA 領域内には fcc 相つまりはオーステナイトが存在している。以上から、図 2 の模式図で示した通り、本試料の TFMA 領域も焼入れ α' 、焼戻し α' 、残留オーステナイトから形成されている。ここで、結晶方位マップに着目すると、図中の黒破線内の TFMA 領域の α' の結晶方位と母相焼戻し α' の結晶方位が同一であることがわかる。これは、L 処理時や T 処理時に形成するオーステナイトが母相 α' の元のオーステナイトの結晶方位と同一の結晶方位を有する、所謂オーステナイトメモリー効果[16]の影響である。つまり、L 処理や T 処理時に析出したオーステナイトがその後の水冷時に α' になる際に、母相と界面を形成しないようにバリエーションの規制が働き、結果として、母相 α' と同一の結晶方位の α' が形成すると言える。同様の挙動は TRIP 鋼においても観察されている[17]。

図 4 は、室温および 77 K での公称応力-伸び曲線を示している[3]。温度低下によって強度が著しく向上しているにも関わらず、伸びはほぼ一定か、むしろ低温の方が改善していた。よって、本 QLT 処理 9Ni 鋼も従来報告通り、優れた低温引張特性を有している。このような優れた低温引張特性の発現メカニズムは定かではないが、残留オーステナイトの TRIP 効果がその一因かもしれない。いずれの試験温度で破壊した試料においてもディンプル破面が観察されたため、ボイドあるいはクラックの形成、成長、合体による延性破壊が生じたといえる。

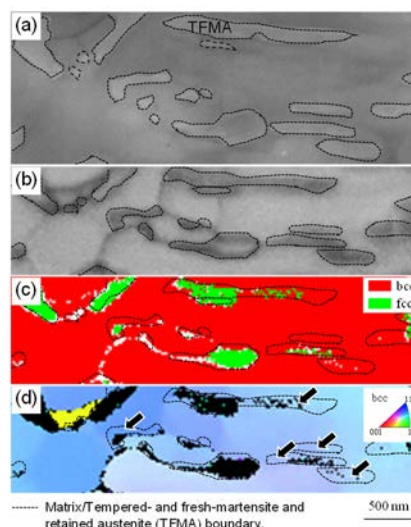


図 3 (a)SEM 像、(b)バンドコントラストマップ、(c)相マップ、および(d)結晶方位マップ[3]

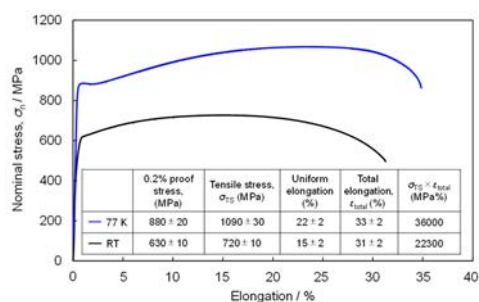


図 4 室温(RT)と 77 K での公称応力-伸び曲線[3]

図 5 は、(a)室温および(b)77 K で引張ひずみを付与した試料の DIC 法を用いて可視化した引張軸方向(ϵ_{xx})のひずみ分布を示している[3]。なお、SEM 像は試料表面から取得しており、一般的な DIC 法での解析結果である。カラーバーに示す色がひずみを意味しており、最大ひずみを平均ひずみの 2 倍、最小ひずみを 0 としている。いずれの試験温度においても、ひずみがほぼ 0 の領域と平均ひずみの 2 倍以上の領域が混在しており、ひずみは不均一に分布している。同様の不均一ひずみ分布は様々な金属材料において観察されており[18,19]、一般的な傾向と考えられる。ここで、ひずみ分布より計算されるひずみのヒストグラムはいずれも正規分布を満たしていた。そこで、その幅を示す標準偏差を用いてひずみの不均一性を定量評価した。図 6 は、各試験温度のひずみヒストグラムから得られた平均ひずみと標準偏差の関係を示している[3]。標準偏差は平均ひずみに比例して増加することが知られている[9]。さらに、ひずみ分布の傾向は変形が進行しても変化しないこともわかっている。つまり、変形の進行に伴い高ひずみ域に更なるひずみの集中が生じることを意味する。77 K と RT の標準偏差と平均ひずみの関係はいずれも線形関係にあり、その直線に差異はない。よって、9Ni 鋼においては温度を低下させてもひずみ分布の不均一性が変化しないことがわかった。

図 7 は、図 5(b)と同領域の結晶方位マップを示しており、黒丸および白丸はそれぞれ $\epsilon_{xx} < 0.01$ の低ひずみ域および $\epsilon_{xx} > 0.08$ の高ひずみ域をそれぞれ示している。いずれの領域も同一結晶方位の領域つまりブロックを単位としてひずみが分布する傾向にある。同様のひずみ分布は α' 鋼において観察されている[20]。よって、9Ni 鋼においても変形はブロック毎に進行しており、ほぼ変形が生じていないブロックや平均ひずみの 2 倍以上のひずみを担っているブロックが混在するために不均一な

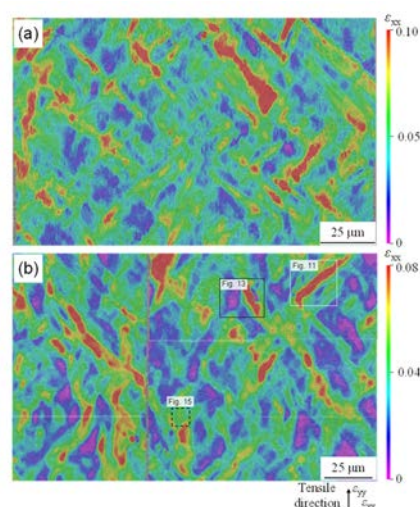


図 5 (a)室温と(b)77 K 引張材の ϵ_{xx} ひずみ分布[3]

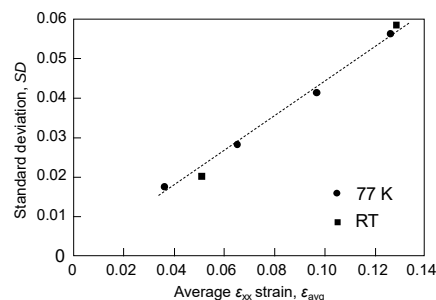


図 6 (a)室温と(b)77 K 引張材の ϵ_{xx} ひずみ分布ヒストグラムの標準偏差と平均ひずみ[3]

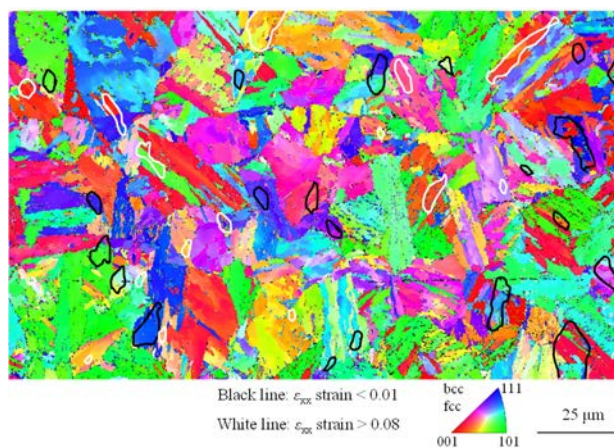


図 7 図 5(b)領域の結晶方位マップ[3]

ひずみ分布を形成する。そこで、2.1.2 ではこのブロックの変形能を支配する因子の解明を行った。

2.1.2 ひずみ分布への影響因子

Ishimoto らは、 α' 鋼の変形においてすべり方向が晶癖面と平行な in-lath plane すべり系のシュミット因子がブロックの変形能と関連することを報告している[20]。また、高炭素 α' 鋼では、すべり面とすべり方向がともに晶癖面に平行な habit plane すべり系のシュミット因子がブロックの変形能を支配することも指摘している[21]。

図 8 は、高ひずみブロックの(a)SEM 像、(b) ϵ_{xx} ひずみ分布、(c)(110)[111]極点図、(d)シュミット因子を示す[3]。9Ni 鋼では、TFMA 領域がラス境界に析出するため晶癖面を図 8(a)中の黒破線の二次元トレースから容易に決定できる。(c)に示すように本ブロックの晶癖面は(110)である。晶癖面の解析結果から in-lath-plane および habit plane のすべり系を同定し、そのシュミット因子を図 8(d)ではそれぞれ青、赤で示す。いずれのシュミット因子も高い傾向にあり、本ブロックの高ひずみの要因が in-lath-plane あるいは habit plane すべり系が駆動したためと理解できる。ここで、habit plane

すべり系は 2 つしかないにも関わらず、シュミット因子が高かった結果は、habit plane すべり系のシュミット因子がより 9Ni 鋼のブロックの変形能に影響を与えている可能性を示唆する。そこで、低ひずみブロック、中ひずみブロック、高ひずみブロックについて habit plane すべり系のシュミット因子 (SF_{habit})とブロック内の平均ひずみ(ϵ_{block})の関係を整理した(図 9[3])。なお、各ひずみにおけるブロックの個数は 10 個である。図 9 の箱ひげ図より中央値に着目すると SF_{habit} が高いほど ϵ_{block} が大きい傾向にある。最小二乗法より得られた相関係数(R)は、0.66 であり、一般的に正の相関関係があると言われる 0.4 よりも大きかった。つまり、 SF_{habit} がブロッ

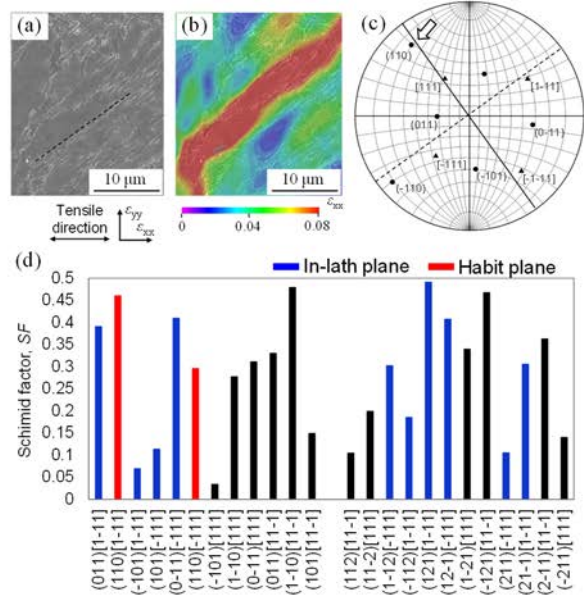


図 8 高ひずみ域の(a)SEM 像、(b) ϵ_{xx} ひずみ分布、(c)(110)[111]極点図、(d)シュミット因子[3]

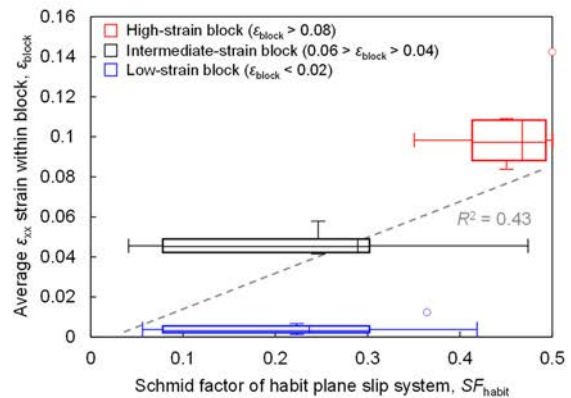


図 9 SF_{habit} とブロック内平均ひずみの関係[3]

クの変形能を支配する因子であるといえる。一方で、同 SF_{habit} において ϵ_{block} のばらつきは大きく、他の影響因子の存在が示唆される。

図 10 は、高ひずみ域と低ひずみ域が隣接する領域の高倍率での(a)SEM 像と(b) ϵ_{xx} ひずみ分布を示す[3]。図中に白矢印と黒矢印で示すように高ひずみブロックと低ひずみブロックが隣接している。そのブロック内に着目すると高ひずみブロックでは、TRMA 領域がほとんど観察されないのに対して、低ひずみブロックではTFMAが多く存在している。TFMA 領域は、母相よりも炭素濃度が高く、フレッシュ α' や加工誘起 α' が存在しているために、母相よりも硬質であると考えられる。よって、TFMA の面積率も変形能に影響する可能性が高い。図 11 は、図 9 と同ブロックについて、TFMA の面積率(A_{TFMA})と ϵ_{block} の関係を示す[3]。 A_{TFMA} の増加に伴い ϵ_{block} は、減少しており、負の相関がある。図 11 から最小二乗法より得られた相関係数は-0.69 であり、統計的にも両者に相関があることは間違いない。よって、 A_{TFMA} もまたブロックの変形能を支配する因子であるといえる。

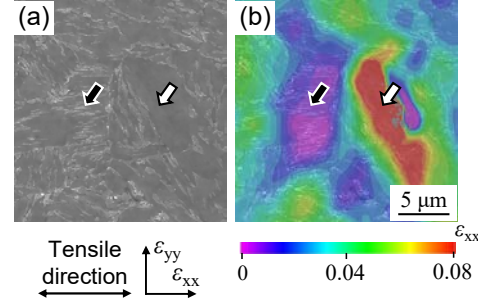


図 10 (a)SEM 像と
(b) ϵ_{xx} ひずみ分布[3]

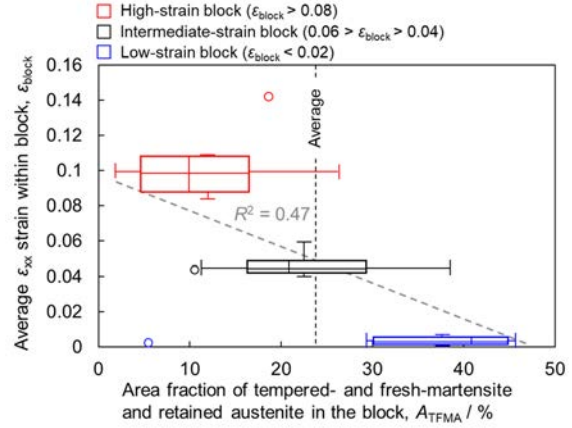


図 11 A_{TFMA} とブロック内平均
ひずみの関係[3]

図 12 は、各ひずみレベルのブロックの SF_{habit} と A_{TFMA} の関係を示す[3]。図中赤丸で示す高ひずみブロックは、 SF_{habit} が 0.35 以上かつ A_{TFMA} が平均以下であることがわかり、両因子がブロックの変形能に影響していることが窺える。ここで、両因子のブロックの変形能への寄与度を Python の機械学習ライブラリーである scikit-learn の least absolute shrinkage and selection operator (LASSO) 回帰を用いて評価した。次式の関係式を LASSO 回帰では仮定した。

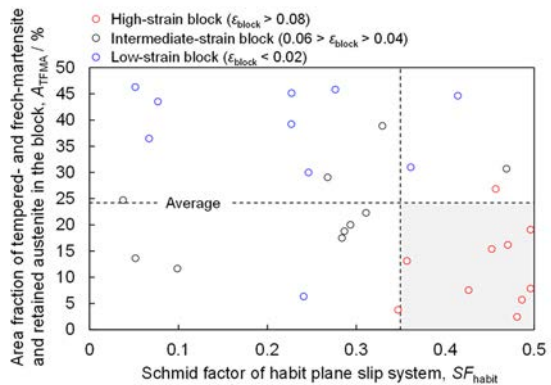


図 12 各ひずみレベルのブロック
の SF_{habit} と A_{TFMA} の関係[3]

$$\epsilon_{block} = w_{SF} SF_{habit} + w_{TFMA} A_{TFMA} + \lambda(|w_{SF}| + |w_{TFMA}|), \quad (1)$$

w_{SF} と w_{TFMA} は、それぞれ SF_{habit} と AT_{TFMA} の重み係数を示している。 λ は、過学習を避けるための罰則項($|w_{SF}| + |w_{TFMA}|$)のチューニングパラメータであり、本解析では 1 を採用した。標準化データを学習に用い、学習データセットとテストデータセットにデータを分けた。テストデータが 5 だけになってしまうため、解析は学習データセットとテストデータセットをランダムに変化させながら繰り返し実施した。繰り返し数は 5000 回である。表 1 は、テストデータと予測データの平均二乗誤差(MSE)と、 R^2 、 R 、 w_{SF} 、 w_{TFMA} の 5000 回の平均値を示す。 MSE が低く、 R^2 が高いことから、データ量は少なかったが比較的学習の精度は高かったといえる。さらに、 R は、0.7 以上であり、 SF_{habit} と AT_{TFMA} が ϵ_{block} と強い相関があることがわかる。このような強い相関があるために、今回の学習の精度が高かったといえる。 w_{SF} と w_{TFMA} の絶対値は、同程度である。よって、 SF_{habit} と AT_{TFMA} の ϵ_{block} への寄与度は、同程度であり、両因子がブロックの変形能を支配する。

表 1 テストデータと予測データの平均二乗誤差(MSE)と、
 R^2 、 R 、 w_{SF} 、 w_{TFMA} の 5000 回の平均値 [3]

Mean square error	Coefficient of determination	Correlation coefficient	w_{SF}	w_{TFMA}
0.18±0.09	0.77±0.09	0.88±0.05	0.46±0.03	-0.48±0.04

2.2 ひずみ分布とボイド形成領域の関係

図 13 は、同領域の(a)試料表面と(b)レプリカフィルムの SEM 像を示す。凹凸は反転しているが、微小な TFMA 領域まで明瞭にレプリカフィルムによって転写することが出来ている。図 14 は、公称ひずみ 35% において取得したレプリカフィルムに DIC 解析を適用し、算出した ϵ_{xx} ひずみ分布を示している。カラーバーに示す色がひずみに対応しており、最大ひずみを平均ひずみの 2 倍、最小ひずみを 0 としている。なお、参照画像は公称ひずみ 30% において取得したレプリカフィルムであるため、その付与ひずみは約 5%

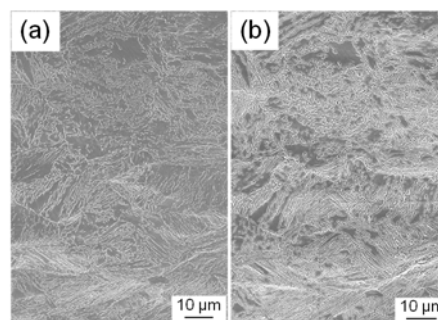


図 13 (a)試料表面と
(b)レプリカフィルムの SEM 像

となる。図 14 から得られた平均ひずみは 4.5% であり、巨視的に付与したひずみとほぼ一致する。平均ひずみの 2 倍以上の領域とひずみがほぼ 0 の領域が混在しており、図 5 と同様にひずみが不均一に分布していることがわかる。ネッキング後の高ひずみを付与した段階においても、直前のひずみの SEM 像を用いることで DIC 解析が可能となっており、本手法を用いれば変形初期から破壊直前までのひずみ分布を連続的に取得可能であることも本解析からわかった。

図 15 は、ボイドが観察された図 14 中黒四角領域の試料表面の(a)SEM 像と同領域の(b) ϵ_{xx} ひずみ分布を示す。なお、DIC 解析の際のステップサイズとサブセットサイズを微細にすることで図 15 ではひずみ分布が高分解能となっている。図中黒矢印に示す領域でボイドが発生した。同領域のひずみ分布に着目すると高ひずみ域に対応する傾向にあった。同様の高ひずみ域からのボイド発生については、研究者らがレプリカ-DIC 法を用いた解析から α' 鋼において報告している[22]。また、図 14 より本領域は巨視的にもひずみが高い領域対応する。よって、本 QLT 処理 9Ni 鋼のボイドは、図 5 や図 15 で示すような巨視的な高ひずみ領域内で、かつその中でもさらに高ひずみ領域から形成する。

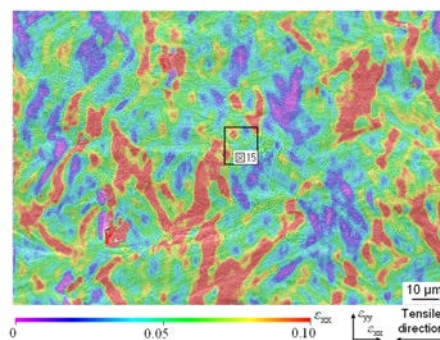


図 14 レプリカフィルムの SEM 像から得られた ϵ_{xx} ひずみ分布

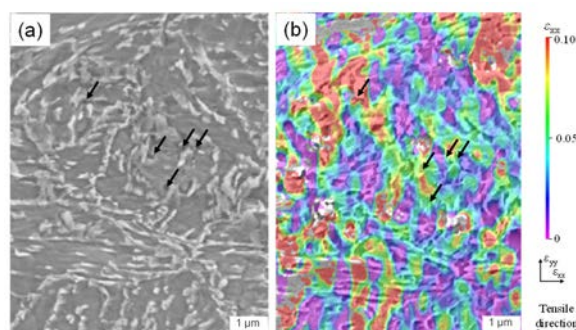


図 15 ボイド形成領域の(a)試料表面 SEM 像と(b)レプリカフィルムの SEM 像から得られた ϵ_{xx} ひずみ分布

3. 総括 ～9Ni 鋼の低温靱性改善への提言～

9Ni 鋼では、 SF_{habit} と A_{TFMA} のブロック毎の差が不均一なひずみ分布を生み出し、このような不均一なひずみ分布がボイド形成を促進していると考えられる。換言すれば、9Ni 鋼は不均一なひずみ分布のために本来の低温靱性を発現できていないとも考えられる。よって、ブロック間で SF_{habit} と A_{TFMA} を同一に出来れば均一な変形となり、延性の改善が期待される。 SF_{habit} をブロック間でそろえるためには、バリエーション規制が有効と考えられる。高温のオーステナイト域で熱間圧延をおこなった後に水冷をすると特定のバリエーションのブロックが優先的に形成することが知られている。つまり、ブロックの種類が限定されることで SF_{habit} のブロック間での差は小さくなる。一方で、 A_{TFMA} の分布状態の制御には高温で長時間保持する均質化処理が有効と思われる。 A_{TFMA} は、製造段階で形成した Ni 偏析帯の高 Ni の領域で大きい傾向にあった。逆に、低 Ni 帯では A_{TFMA} は小さいことから、このような Ni 偏析帯はブロック毎の A_{TFMA} を助長しているといえる。よって、均質化処理によりこのような偏析帯を解消できれば、ブロック毎の A_{TFMA} の差を低減できることが期待される。今後のカーボンニュートラル社会の実現においても種々の極低温構造材料が求められるようになることが予想され、本研究が低温特性を更に改善した新たな 9Ni 鋼の設計指針になることを期待する。

謝辞

本研究は「公益財団法人 JFE21 世紀財団」2022 年度技術研究助成の支援を受け実施されたものです。ここに記して厚く御礼申し上げます。

参考文献

- [1] H. I. Mchenry, in Materials at low temperature, ed by R.P. Reed, A.F.Clark, ASM International, 1983.
- [2] S. Jin, S. K. Hwang, and J. W. Morris, Jr.: Metall. Trans. A, 6(1975) 1569-1575.
- [3] N. Koga, S. Kumon, C. Watanabe: ISIJ Int. 64(2024) *In press*.
- [4] Z.H. He, M.A. Sutton, W.F. Ranson, W.H. Peters: Exp. Mech., 24 (1984) 117.
- [5] T.C. Chu, W.F. Ranson, M.A. Sutton, W.H. Peters: Exp. Mech., 25 (1985) 232.
- [6] M.A. Sutton, M.Q. Cheng, W.H. Peters, Y.J. Chao, S.R. McNeill: Image and Vision Computing, 4 (1986) 143.
- [7] A. Kotousov, Z. He, A. Fanciulli: Theoretical and Applied Fracture Mechanics, 79(2015), 51.
- [8] J. D. Carroll, W. Abuzaid, J. Lambros, H. Sehitoglu: Inter. J. Fat., 57(2013) 140.
- [9] N. Koga, T. Yamashita, O. Umezawa: ISIJ Int., 60(2020) 2083.
- [10] N. Koga, M. Suzuki, O. Umezawa: Mater. Sci. Eng. A., 806(2021) 140599.
- [11] N. Koga, T. Nameki, O. Umezawa, V. Tschann, K.P. Weiss: Mater. Sci. Eng. A., 801(2021) 140442.
- [12] Y. Yajima, N. Koga, C. Watanabe: Mater. Char., 177(2021), 111197.
- [13] S. Hamada, T. Fujisawa, M. Koyama, N. Koga, N. Nakada, T. Tsuchiyama, M. Ueda, H. Noguchi: Mater. Char., 98(2014), 140.
- [14] N. Koga, Y. Sakamaki, A. Kaseya, O. Umezawa, H. Nakata, S. Toyoda: Mater. Char., 185(2022), 111731.
- [15] N. Koga, A. Kaseya, O. Umezawa, H. Nakata, S. Toyoda: ISIJ Int., 62(2022), 2132-2134.
- [16] N. Nakada, T. Tsuchiyama, S. Takaki, S. Hashizume: ISIJ Int., 47(2007) 1527-1532.
- [17] T. Yamashita, N. Koga, O. Umezawa: Mater. Trans., 59(2018) 712-716.
- [18] T. Teshima, M. Kosaka, K. Ushioda, N. Koga, N. Nakada: Mater Sci Eng A., 679(2017) 223-229.
- [19] N. Koga, S. Tomono, O. Umezawa: Mater. Sci. Eng. A, 811(2021) 141066.
- [20] Y. Ishimoto, M. Michiuchi, S. Nambu, K. Asakura, J. Inoue, T. Koseki: J. Jpn. Inst. Metals, 73(2009) 720-727.
- [21] K. H. Ryo, S. Nambu, T. Koseki: Mater. Sci. Eng. A, 777(2020) 139090.
- [22] N. Koga, M. Fujita, K. Shibata, S. Nanba: ISIJ Int., 6(2024) *In press*.

主な研究成果

《査読付き学術論文》

1. Deformation behavior at low temperature in 9mass%Ni steel, N. Koga, S. Kumon, C. Watanabe, ISIJ International, 64(2024) pp.430-438, 査読有.
2. Characterization of strain distribution and microstructure at crack nucleation sites in martensitic steel subjected to tensile deformation, N. Koga, M. Fujita, K. Shibata, S. Nanba, ISIJ Int., 64(2024) pp.491-496, 査読有
3. 焼入れままマルテンサイト鋼のひずみ分布に及ぼす旧オーステナイト粒径の影響, 柴田航佑, 藤田基暉, 難波茂信, 古賀紀光, 鉄と鋼 110 巻(2024) pp.110-117, 査読有.

《学術会議口頭発表》

1. 9mass%Ni 鋼の低温引張変形挙動, 古賀紀光, 藤田基暉, 柴田航佑, 難波茂信, 日本鉄鋼協会第 184 回秋季講演大会, 2023 年 9 月 20 日