

ナノインデンテーションによるオーステナイト系 ステンレス鋼の材料特性評価

Evaluation of Material Property of Austenitic Stainless Steel using Nano-Indentation

須山 健 (Takeshi Suyama)*

要約 供用中の機器から小さな試料を採取し、微小領域の材料特性を測定し、その結果からマクロな材料特性を予測する場合、ナノインデンテーションは有効な方法であると考えられる。しかし、インデンテーション試験結果から導出される硬度の荷重依存性について、10mg ~ 100g の範囲にわたって定式化したものはあまり報告されていない。

本研究では、オーステナイト系ステンレス鋼 SUS304 に対し、3 角錐圧子と 4 角錐圧子を用いたナノインデンテーションの実験を系統的に実施し、10mg ~ 100g の範囲において荷重と硬度の関係式を作成した。また、インデンテーションにより算出した硬度とビッカース硬さの関連付けも行った。この結果、100mg 程度の微小荷重における硬度からビッカース硬さを推定することが可能であることを実証した。

キーワード ナノインデンテーション, オーステナイト系ステンレス鋼, 微小荷重, ビッカース硬さ

Abstract In order to evaluate some material properties of very small area on small specimens which are sampled from components in service and to predict macroscopic material properties from the data of the small specimens, nano-indentation is considered to be quite effective. However, there are few reports formularize the dependence of load on hardness values evaluated from the results of indentation tests with loads from 10mg to 100g.

In this study, systematic tests of indentation were conducted to specimens of austenitic stainless steel SUS304 using a Berkovich indenter and a Vickers indenter with loads varying from 10mg to 100g. From these results numerical formulae which relate the calculated hardness values to the loads were made. In addition, the relation between Vickers hardness and nano-indentation hardness was obtained. As a result, it became possible to predict Vickers hardness from nano-indentation with loads as low as about 100mg.

Keywords nano-indentation, austenitic stainless steel, small load, Vickers hardness

1. はじめに

容器や配管から試料を採取し、その材料の経年劣化などの特性を測定する場合、容器や配管の健全性確保の観点から、試料はできるだけ小さいことが望まれる。このことからいろいろな微小試験片を用いる技術が考案され、検討されている⁽¹⁾。

このうち 1g 程度以下の微小荷重により押込み試験を行うナノインデンテーションは、金属の結晶粒界近傍や結晶粒内の硬度測定⁽²⁾、イオン照射した金属の硬度測定や応力歪み特性の導出⁽³⁾、ナットのネジ

山の硬度測定⁽⁴⁾、薄膜の硬度測定⁽⁵⁾等に使われている。

ナノインデンテーションによる硬度の荷重依存性については銅合金で検討された例⁽⁶⁾等があるが、荷重 10mg ~ 100g の広範囲に渡る試験結果はあまり報告されていない。

本研究では、荷重 10mg ~ 100g の範囲においてオーステナイト系ステンレス鋼に対するインデンテーションを行い、硬度と荷重の関係式を導いた。また、3 角錐圧子と 4 角錐圧子による硬度の違いを比較するとともに、マクロなビッカース硬さとの関係についても検討した。

* (株)原子力安全システム研究所 技術システム研究所

2. 試験方法

2.1 測定装置

使用したナノインデンテーションの装置は、写真1に示す超微小硬度計(エリオニクス製 ENT-1100)である。この硬度計本体はケースに入っており、所定の温度に設定できる。JIS Z 2244(1998)の「ビッカース硬さ試験 - 試験方法」において「試験温度は、温度管理時は 23 ± 5 」と記載されているため、JIS規格に従い本研究の試験温度は 25 とした。試験荷重は $100\text{g} \sim 10\text{mg}$ の間で任意に設定でき、試験結果はコンピュータで解析される。



写真1 試験装置

2.2 測定方法

超微小硬度計による測定方法及び荷重と変位の関係を図1に示す。一定の荷重負荷速度で圧子が試験片表面に押し込まれ、一定時間保持した後に一定の除荷速度で圧子が試料表面から離される。負荷～除荷過程は荷重 - 変位の関係として記録される。本研究では荷重によらず、負荷時間を 5sec 、最大荷重における荷重保持時間を 2sec 、除荷時間を 5sec とした。また負荷過程及び除荷過程におけるステップインターバルは 10msec 、分割数は 500 とした。例えば 1g の荷重を負荷する場合の負荷速度は、 $2\text{mg} (= 1\text{g} / 500) / 10\text{msec} = 200\text{mg} / \text{sec}$ となる。これらの数値はエリオニクス社の推奨する値である。

圧子はダイヤモンド製であり、3角錐(パーコピッチ型)のもの及び4角錐(ビッカース型)のものをを用いた。いずれも東京ダイヤモンド作製である。

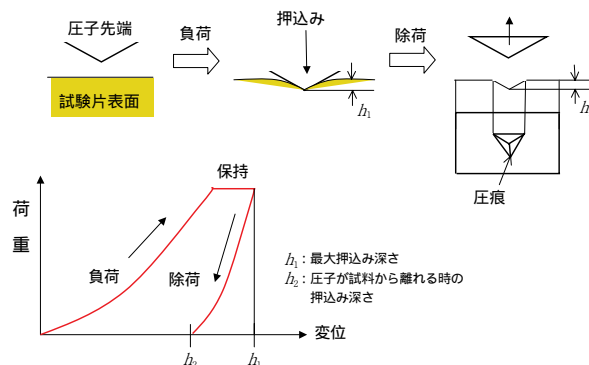


図1 超微小硬度計による測定方法

図2に示すようにビッカース硬さは除荷後の圧痕の対角線寸法から算出されるが、超微小硬度計においては、微小荷重における圧痕観察が困難なことから、用いる圧子形状によらず、硬度は押し込み深さをもとに算出される。

なお、微小荷重における最大押し込み深さが $1\mu\text{m}$ 未満(ナノメートルの領域)になることから、超微小硬度計は「ナノインデーター」、測定方法は「ナノインデンテーション」と呼ばれることが多い。

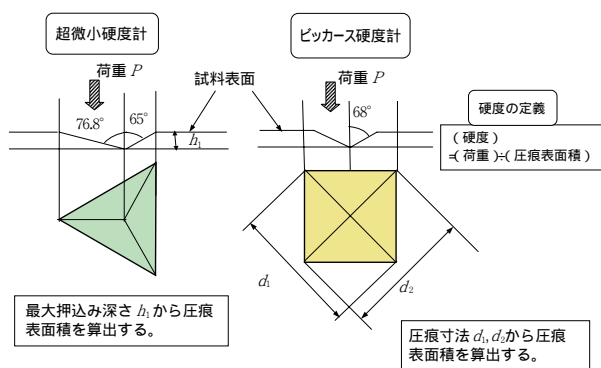


図2 硬度の算出方法

2.3 研究に用いた試験片

本研究に用いた試験片の材料、寸法及び表面仕上げは以下の通りである。

材料: SUS304 鋭敏化処理材

寸法: 約 $12 \times 24 \times 6$

表面仕上げ：鏡面仕上げ(バフ研磨)

3. 結果及び考察

3.1 硬度の荷重依存性

3.1.1 3角錐圧子による硬度の荷重依存性

(1) 最大押し込み深さから導出した硬度

図3に3角錐圧子による最大押し込み深さ h_1 (μm) から算出した硬度 H_1 と荷重 P (g) の関係を示す。打点は各荷重ごとに10点程度行い、圧痕間隔は圧痕寸法の5倍以上とした⁽⁷⁾。硬度 H_1 は荷重 P (g) を圧痕(永久くぼみ)表面積割ったものと定義されるので、以下の式で表される。

$$H_1 = 37.926P / h_1^2 \quad (1)$$

図3から分かるように、荷重が小さくなるほど硬度は上昇しており、硬度のばらつきも大きくなっている。

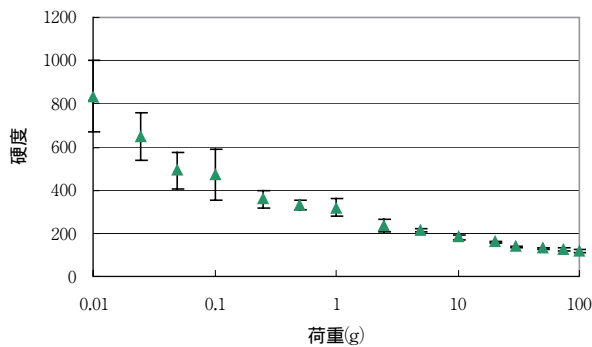


図3 荷重と3角錐による硬度の関係

図4は図3のデータを P と h_1 の関係で表したものであり、両対数でプロットすることにより明確な直線関係を示すことが分かる。すなわち P と h_1 の関係は、

$$h_1 = 0.36 P^{0.60} \quad (2)$$

の実験式で近似できることが分かった。この式を用いて硬度 H_1 を算出した結果、図5に示すように

$$H_1 = 293 P^{-0.20} \quad (3)$$

の関係となった。

図5では荷重10mg及び25mgにおける硬度が実験式よりも大きくなったが、これは圧子先端形状の誤差が一因と推定される。すなわち、圧子先端の曲

率半径はゼロではなく、加工時に生じる丸みを持つはずである。このため、微小荷重になるほど最大押し込み深さが理想的な3角錐で押し込むよりも浅くなり、従って計算上の硬度は上昇する。ここでは図6に示すように、圧子先端形状を平面と仮定して圧子切断長さを h (μm) とし、 $h_1 + h$ (h とする) を最大押し込み深さとして硬度 H_1 の再計算を行った。結果は図7(1)~(3)に示すように、 $h = 1 \sim 1.5\text{nm}$ とした時が実験式と最もよく一致した。この値は Oliver らが圧痕寸法の SEM 観察による算出及び押し込み深さから計算した値 1.5nm ⁽⁸⁾ とよく一致した。

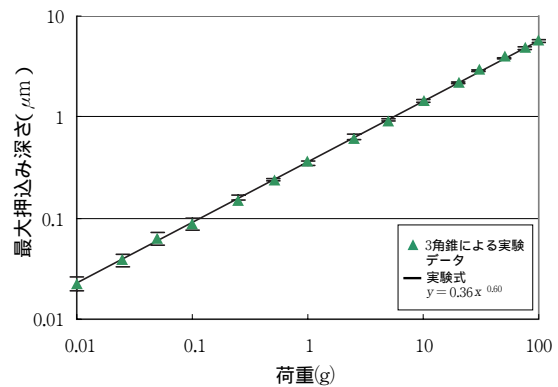


図4 荷重と最大押し込み深さの関係

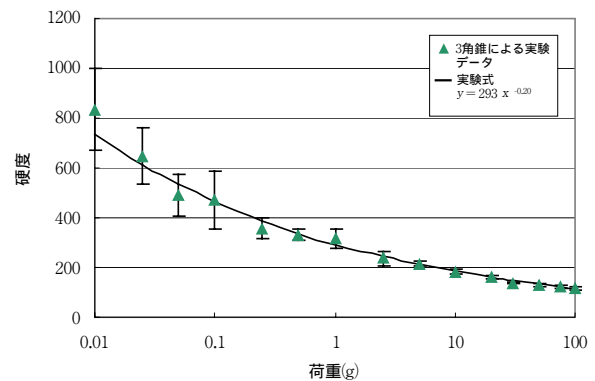


図5 硬度と荷重の関係式

このことから、圧子先端の切断長さ h を考慮した h を用いて算出した硬度 H_1 と(3)式により、100mg程度の微小荷重による硬度から100g程度の荷重における硬度を推定できると考えられる。ただし h は圧子により異なり、また同一圧子であっても使用による摩耗で増加するので、圧子を交換し

た場合及び使用回数が多くなった時は、 h を計算し直す必要がある。

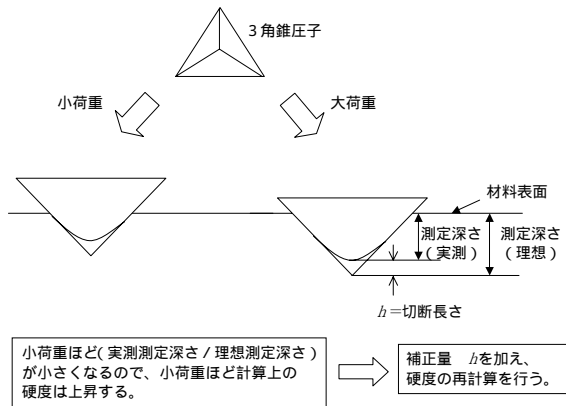


図6 切断長さによる硬度の補正(3角錐)

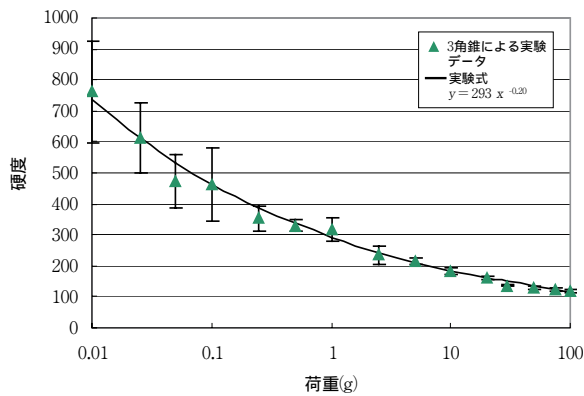


図7(1) 切断長さによる硬度の補正($h = 1.0\text{nm}$)

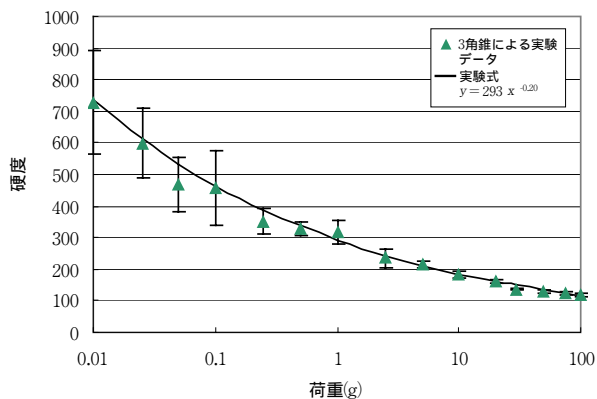


図7(2) 切断長さによる硬度の補正($h = 1.5\text{nm}$)

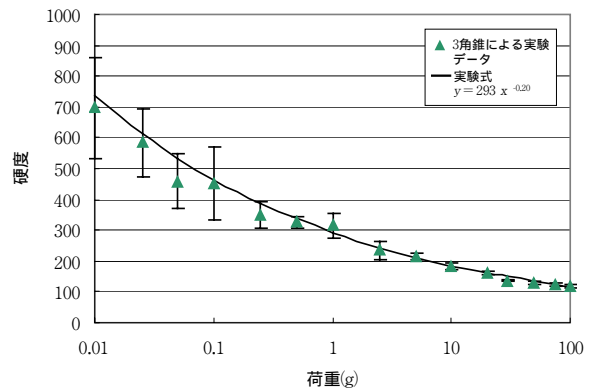


図7(3) 切断長さによる硬度の補正($h = 2.0\text{nm}$)

(2) 塑性変形硬さ

図8に示すように、荷重変位曲線の除荷開始部分に接線を引き、荷重0まで接線を延長した時の変位は「塑性押し込み深さ」と呼ばれ、塑性押し込み深さ h_3 (μm)を用いて(1)式と同一の次の式により算出した硬度 H_3 は塑性変形硬さと呼ばれる。

$$H_3 = 37.926P / h_3^2 \quad (4)$$

図3のデータについて、荷重 P と h_3 の関係を表したものを図9に示す。 P と h_3 を両対数でプロットした結果は P と h_1 の関係と同様に直線となり、以下の実験式となった。

$$h_3 = 0.32P^{0.61} \quad (5)$$

(4)式と(5)式を用いて算出した硬度 H_3 と P の関係は、

$$H_3 = 370 P^{-0.22} \quad (6)$$

となった。

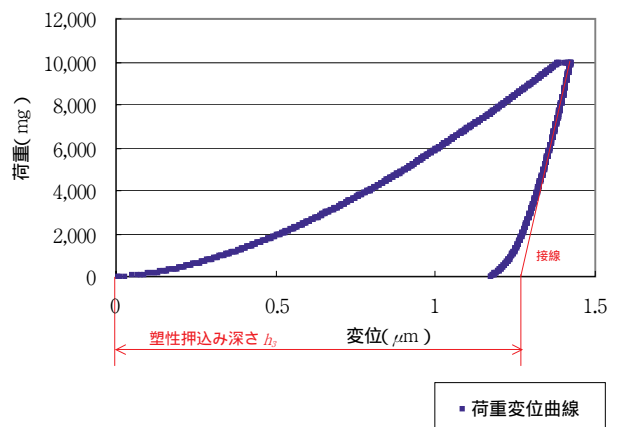


図8 塑性押し込み深さ

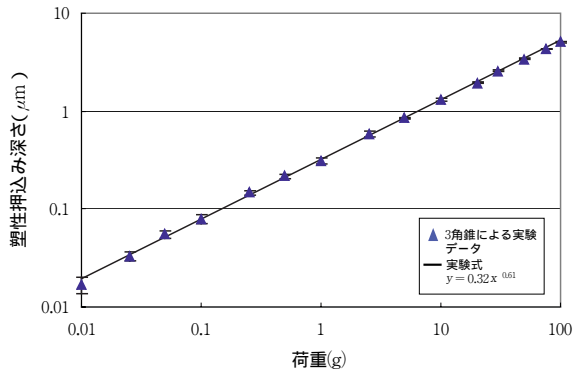


図9 荷重と塑性押し込み深さの関係

3.1.2 4角錐圧子による硬度の荷重依存性

(1) 最大押し込み深さから導出した硬度

4角錐圧子による最大押し込み深さ h_1 から式(1)により算出した硬度 H_1 と荷重 P の関係を図10に示す。打点は各荷重ごとに10点程度行い、圧痕間隔は3角錐圧子を用いたときと同様に圧痕寸法の5倍以上とした。

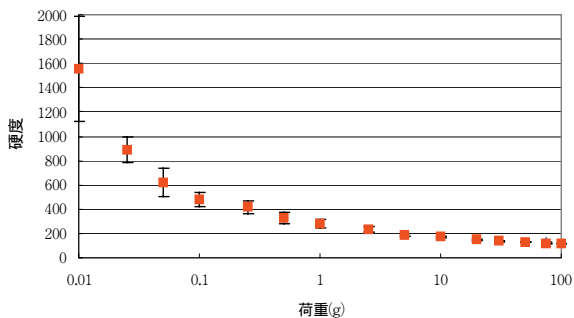


図10 荷重と4角錐による硬度の関係

P と h_1 の関係は図11に示すように、4角錐圧子を用いた場合においても3角錐圧子を用いた場合と同型の実験式

$$h_1 = 0.35P^{0.63} \quad (7)$$

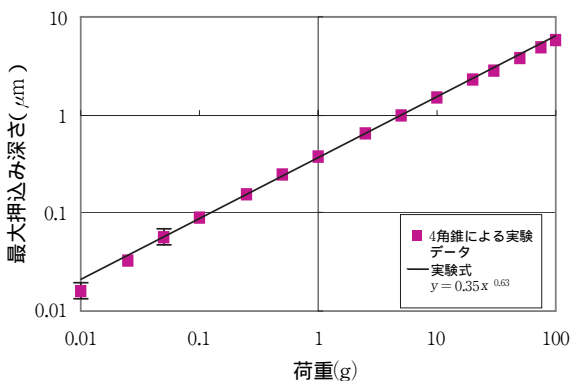


図11 荷重と最大押し込み深さの関係

となったが、荷重 100g 付近と 10mg 付近では実験式との誤差が見られた。これは、4角錐圧子先端には図12に示すように加工時に最大 500nm 程度の稜線が生じると言われており⁽⁵⁾、従って3角錐圧子を用いる場合よりも圧子先端形状の誤差が大きく、計算上の硬度に対する誤差も大きくなったためと考えられる。

(7)式と(1)式から、硬度 H_1 と P の関係は、

$$H_1 = 309P^{-0.26} \quad (8)$$

となった。

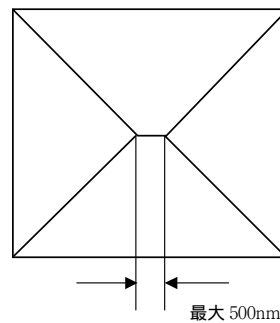


図12 4角錐圧子先端に生じる稜線

(2) 塑性変形硬さ

図13に示すように塑性押し込み深さ h_3 と荷重 P の関係は

$$h_3 = 0.30P^{0.64} \quad (9)$$

となった。(9)式と(4)式から計算した荷重 P と塑性変形硬さ H_3 の関係は、

$$H_3 = 420P^{-0.28} \quad (10)$$

となった。

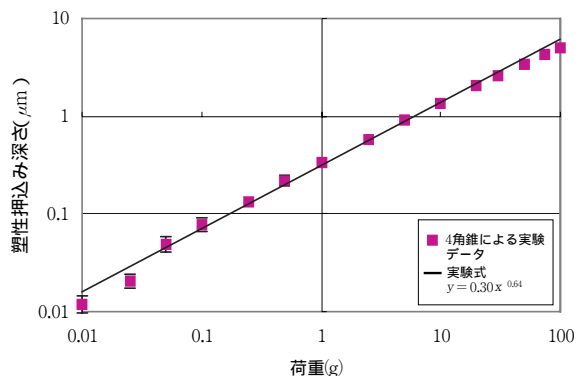


図13 荷重と塑性押し込み深さの関係

3.1.3 硬度推定式に関する考察

3角錐圧子または4角錐圧子を用いて測定した硬

度と荷重が、式(3)及び式(8)のような単純な指数関係になるかどうかは、図8に示した荷重 - 変位曲線の負荷過程から推定できると考えられる。すなわち同じ負荷速度で同じ材料表面に押し込んだ場合、実験誤差を除くと負荷過程は図14に示すように同じ曲線上にあると考えられる。従って、荷重保持時間の影響はあるものの、負荷曲線の両対数プロットが直線関係にあれば、荷重と最大押し込み深さの関係は(2)式と同形の指数関数になり、荷重と硬度の関係も(3)式と同形の指数関数になると考えられる。

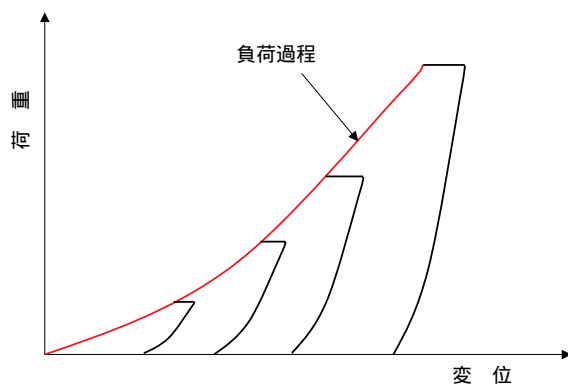


図14 荷重の異なる試験結果を重ね合せた例

この観点から1例として3角錐圧子による荷重10gにおける荷重 - 変位曲線の負荷曲線を両対数プロットした結果、図15に示すように100mg ~ 10gの荷重範囲で荷重と変位は直線関係となった。このことからある荷重において荷重 - 変位曲線の負荷過程の両対数プロットが直線関係となる範囲があれば、荷重と変位はその荷重範囲(図15では100mg ~ 10gの範囲)において(3)式と同形の指数関数式になると考えられる。

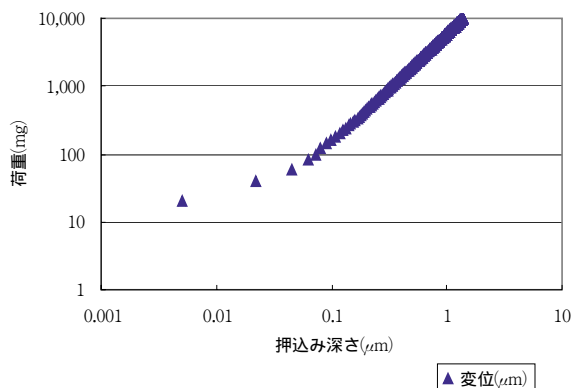


図15 負荷曲線の例(3角錐、10g)

3.2 圧子及び測定方法の違いによる硬度の比較

3.2.1 3角錐圧子と4角錐圧子の比較

図3の3角錐圧子による硬度と図10の4角錐圧子による硬度を比較した結果を図16に示す。100mg以上の荷重では3角錐圧子による硬度と4角錐圧子による硬度はよく一致しているが、100mg未満の荷重では4角錐圧子の方が大きい硬度となっていることがわかる。これは4角錐圧子先端に生じる稜線のために、切断長さ h が3角錐圧子よりも大きくなるのが原因と考えられる。

4角錐圧子で硬度を推定する場合、100mg以上の荷重においては3角錐圧子の式(3)を用いることができるが、100mg未満の荷重においては、稜線を考慮した推定式を検討する必要がある。

また100mg以上の荷重において4角錐圧子による塑性変形硬さの実験式を求めた結果、以下の(11)式となり、3角錐圧子による塑性変形硬さの式(6)とほぼ同じ係数になった。

$$H_3 = 359P^{-0.21} \quad (11)$$

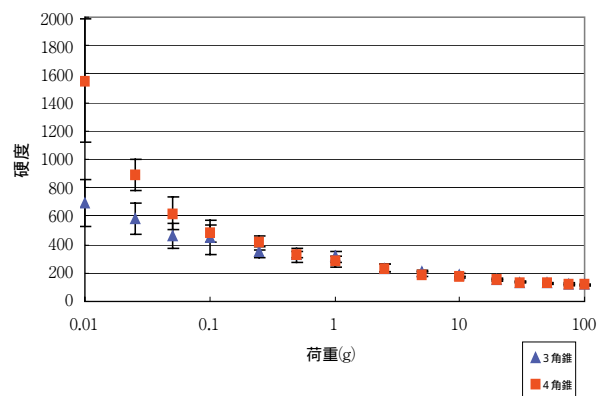


図16 圧子形状の違いにより得られる硬度の比較

3.2.2 ビッカース硬さとの比較

アカシ製マイクロビッカース硬度計 MVK-H2により荷重10g、50g及び100gそれぞれ8点の硬度を測定し、4角錐圧子による硬度及び塑性変形硬さと比較した結果を図17に示す。対角線長さ d_1 (μm)

及び d_2 (μm) は、測定者による読み取り誤差をなくすため、アカシ製自動読み取り装置 (VL = 301) に内蔵されている図 18 に示すような「2次曲線回帰法」により求め、硬度 HV は

$$HV = 1854.4P / d_1 d_2 \quad (12)$$

により算出した。

有為水準を 5% とし、同一荷重における硬度の比較を t - 検定により行った結果、最大押し込み深さから求めた硬度とビッカース硬さは 10g、50g 及び 100g すべての荷重において有為差があったが、塑性変形硬さとビッカース硬さは、いずれの荷重においても有為差がなかった。このことから 10g ~ 100g の荷重範囲においては、4角錐圧子による塑性変形硬さと「2次曲線回帰法」により算出したビッカース硬さを同等とみなすことができると考えられる。

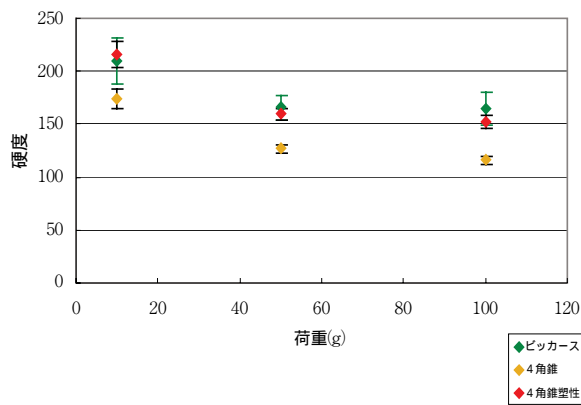


図 17 荷重とビッカース硬さとの比較

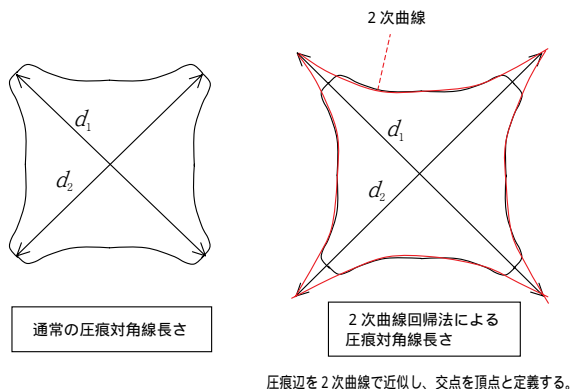


図 18 2次曲線回帰法による圧痕対角線長さの定義

さらにビッカース硬さを式 (11) と同等とみなし、

式 (3) 及び (11) を用いることにより、同一荷重においてはビッカース硬さと 3角錐による硬度は以下の関係となる。

$$HV = 1.23P^{-0.01} H_{I(3角錐)} \quad (13)$$

式 (13) は荷重 10g ~ 100g の範囲において適用可能であるが、100mg 付近の微小荷重において 3角錐圧子により硬度推定式を作成しておき、その推定式を荷重 100g まで外挿することにより、3角錐圧子を用いた超微小荷重における硬度からビッカース硬度を予測することが可能となる。

4. まとめ

3角錐圧子及び 4角錐圧子を用いて 10mg の超微小荷重から 100g の荷重まで SUS304 鋭敏化処理材に対してインデンテーションを行い、以下のような成果及び知見を得た。

- (1) 荷重 10mg ~ 100g の範囲において 3角錐圧子を用いた場合、最大押し込み深さから算出される硬度と荷重、及び塑性変形硬さと荷重は、ともに指数関係式で表すことができる。この実験式により、100mg 程度の微小荷重における硬度から 100g 程度の荷重における硬度を推定できる。また、3角錐圧子先端の切断長さは 1 ~ 1.5nm という推定値を得た。
- (2) 3角錐圧子による硬度と 4角錐圧子による硬度は 100mg 以上の荷重でよく一致した。100mg 未満の荷重では 4角錐圧子による硬度の方が大きくなった。
- (3) 4角錐圧子による塑性変形硬さは、10g ~ 100g の範囲においてビッカース硬さと有為差がなかった。このことから 3角錐圧子による微小荷重の硬度からビッカース硬度を推定できる。

今後は、圧子先端形状の顕微鏡観察、圧痕周辺の盛り上がり (pile-up) 量の評価⁽⁹⁾等の検討を加え、さらに精度の高い硬度推定式の完成を目指す。また、荷重変位特性に影響を与えることが知られている負荷速度⁽¹⁰⁾等についても実験的評価を行うこととする。

文献

- (1) 日本原子力学会「微小試験片材料評価技術」研究専門委員会：「微小試験片材料技術の進歩」1992年3月。
- (2) 川崎弘嗣, 奥達男：日本機械学会論文集(A編) 66巻642号, pp.149-154 (2000-2)。
- (3) K.Yasuda, K.Shinohara, C.Kinoshita, M.Yamada：Journal of Nuclear Materials, 212-215 pp.1703-1707 (1994)。
- (4) 小林光男, 福田勝己, 佐々木武三, 坂口雅昭, 丹羽直毅, 北郷薫：日本機械学会講演論文集 No.978-2, pp.354-355 (1997)。
- (5) 山本靖則, 前田豊一, 西村司：島津評論 Vol.52 No.3・4, pp.239-244 (1996.2)。
- (6) K.Yasuda, K.Shinohara, M.Yamada, M.Kutsuwada, C.Kinoshita：Journal of Nuclear Materials 187 pp.109-116 (1992)。
- (7) 中澤一：“金属材料試験マニュアル”, 日本規格協会, p103 (1992)。
- (8) J. B. Pethica, R. Hutchings and W.C. Oliver: Philosophical Magazine A Vol.48 No.4, pp.593-606 (1983)。
- (9) NRC：The Characterization of Vickers Microhardness Indentations and Pile-Up Profiles as a Strain-Hardening Microprobe, NUREG-1629 (1998)。
- (10) 中村雅勇, 牧清二郎, 西野達也, 安福悠二, 永井直記：塑性と加工(日本塑性加工学会誌) 第26巻第295号, pp.862-868 (1985)。