

# 特別講演

□ 学術功績賞受賞記念

## 鉄鋼材料の加工熱処理による結晶粒微細化

Grain Refinement of Steels by Thermomechanical Treatments



\* 脚注に略歴

梅本 実 豊橋技術科学大学 工学部 教授  
Minoru Umemoto

### 1 はじめに

加工熱処理とは加工と熱処理を併用して強靱な鋼を得ようとする処理法であり、オースフォーム、TRIP、制御圧延などがよく知られている。1950年代後半ごろ欧米において研究され始め、1963年に田村が加工熱処理と名付けて日本に紹介した<sup>1)</sup>。それ以来、加工熱処理はわが国においても一貫して鉄鋼材料研究の中心テーマの1つであり続けている。加工熱処理の大きな目的は組織を微細にして強度と靱性を高めることにある。特に近年、地球環境保全や省資源、易リサイクル性の観点から、低合金で高強度な材料が要求され、加工熱処理を活用した強靱化が期待されている。

### 2 制御圧延・加速冷却と形状不変加工

図1はフェライト( $\alpha$ )の結晶粒径を横軸にとり、それぞれの大きさの結晶粒を実現する方法または実現したプロジェクト名と背景となる金属学的原理を示したものである。制御圧延・加速冷却技術<sup>2)</sup>(TMCP: Thermomechanical Controlled Processing)は現在すでに工業的に普及しており、この技術で最小で5  $\mu\text{m}$ の結晶粒の鋼板が製造されている。TMCPにおいては加工硬化したオーステナイト( $\gamma$ )から急速冷却中に $\alpha$ へ拡散変態させることで結晶粒を微細化している<sup>3)</sup>。母相 $\gamma$ を加工硬化組織とすることで $\alpha$ の核生成場所の密度を増加させ、さらに加速冷却によって $\alpha$ の変態温度域を下げることで、 $\alpha$ の核生成速度(厳密には核生成速度と成長速度の比)を大きくし、 $\alpha$ 粒の微細化を実現している。西暦2000年前後に実施されたスーパーメタルのプロジェクト<sup>4)</sup>

や物質・材料研究機構(NIMS)で行われた超鉄鋼プロジェクト(STX-21)<sup>5)</sup>では $\alpha$ 粒径1  $\mu\text{m}$ の目標を掲げそれを達成した。これらのプロジェクトにおける結晶粒微細化の共通の原理は、従来の制御圧延・加速冷却の原理を極限にまで進めたこと、つまり、加工度を増やし、より低温で変態させていることである。また、TMCPの極限追求のみならず、微細化の新たな原理として、加工中での $\gamma$ から $\alpha$ への動的変態や $\alpha$ 相での強加工による動的再結晶を見出し、これらの方法によって粒径1  $\mu\text{m}$ が達成された<sup>4,5)</sup>。

粒径を1  $\mu\text{m}$ 以下にする方法として1990年代頃から室温での大歪加工が精力的に研究されている。圧延や伸線加工では加工度の増大とともに、試験片の厚さや断面積が減少するため、加えうる加工度に上限がある。大きなひずみを加えるためには加工によって試験片の形状が変化しないことが必要である。そこでECAP(Equal Channel Angular Pressing)<sup>6)</sup>

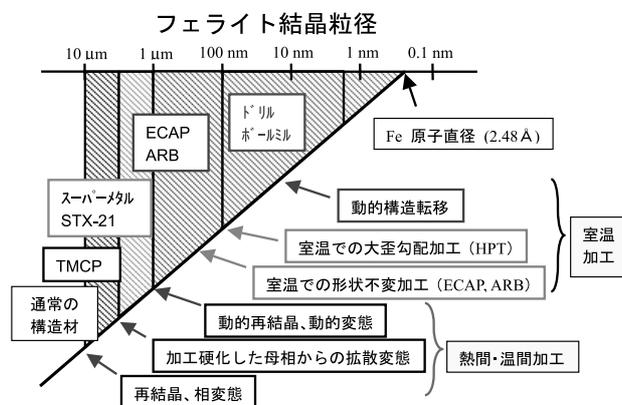


図1 フェライト結晶粒の大きさと、それらを造り込む方法と微細化達成の金属学的原理

\* 昭和47年3月京大工学部金属加工学科を卒業、47年8月ノースウエスタン大学修士課程修了、51年12月イリノイ大学博士課程修了。昭和52年1月京都大学工学部助手、62年4月豊橋技術科学大学工学部助教授、平成7年4月教授、現在に至る。

やARB (Accumulative Roll Bonding)<sup>7)</sup>などの形状不変加工法が開発された。これらの方法により真歪5以上の加工が達成できるようになった。このような大歪加工により鉄鋼材料では粒径 $0.2\ \mu\text{m}$ の超微細組織が得られている<sup>8)</sup>。形状不変加工法を使った大歪加工における結晶粒微細化の原理は連続再結晶と呼ばれている。回復速度の遅い低温で大きな歪みを与えることで、方位差の大きな高角粒界が元の粒内に造り込まれる (grain subdivision) ことを利用している。図2に加工度と加工温度のグラフに、従来のTMCP、スーパーメタル・超鉄鋼プロジェクト、形状不変加工を示す。研究の対象は時代とともにより低温、より強加工に向かっている。しかし、ECAPやARBのような形状不変加工でも鉄鋼材料の場合粒径 $0.2\ \mu\text{m}$ が下限である。結晶粒をこれより小さくする方法としては次に述べるボールミルやドリル加工などの方法がある。

### 3 ボールミル加工で得られる組織とその特性

ボールミルとは粉末の試料と硬いボールを入れた容器を長時間回転させることによって、粉末に大きな加工を与える操作である。図3 (a)<sup>9)</sup>はマルテンサイト組織のFe-0.10% C鋼粉末をボールミルした後の試料の断面写真である。数十ミクロンの厚さの表面層は内部と特性が異なり、腐食しても組織が現れず、光学顕微鏡では白く見える。この白く見える表面層と内部のマルテンサイトが加工された組織の間には明瞭な境界があり、この境界を挟んで硬さが8.8 GPaから3.9 GPaへ大きく変化している (図3 (b))。 (このような明瞭な境界が現れる原因は未だによくわかっていない。) 図3 (c)はボールミル粉末の表面層のTEM写真である。粒径が20 nm程度の超微細粒組織となっている。結晶粒の超微細化が高強度の原因と考えられるが、ボールミルによる強加工に

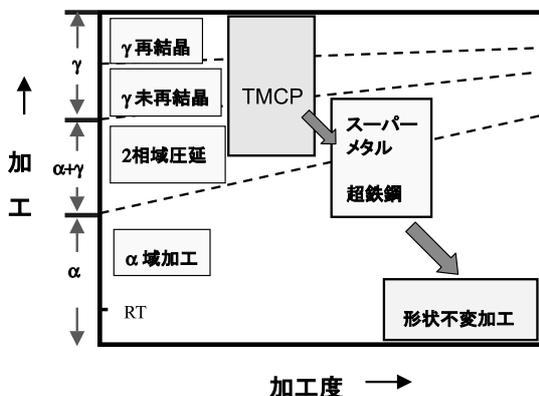


図2 加工温度と加工度のグラフ上に表示した従来のTMCP、スーパーメタル・超鉄鋼プロジェクト、形状不変加工の温度・加工度の領域

よって数十ナノメートルの結晶粒が作られるメカニズムは未だによくわかっていない。図3 (d)はこの粉末を $600\ ^\circ\text{C}$ で1時間焼鈍した後の組織である。焼鈍前に加工マルテンサイト組織であった領域では通常の再結晶が起こり、粒径約 $3\ \mu\text{m}$ の等軸粒組織となっている。一方、焼鈍前にナノ結晶粒組織だった領域では粒径は微細に保たれておりSEMでは粒界は判別できない。この原因は、結晶粒が $0.2\ \mu\text{m}$ 以下になると、再結晶の核生成が起こらず、粒成長のみとなることと、ボールミルした状態で炭素原子がナノサイズの結晶粒の粒界に偏析しており<sup>10)</sup>、粒界の移動を妨げ、粒成長が極めて遅いためと考えられている。このように、ボールミルした粉末では通常の加工とは異なる現象が現れる。ボールミルによる加工は最も過酷であり、強加工の究極の姿が簡単な装置で実現できる点が非常に興味深い。

### 4 機械加工による鉄鋼材料表面層での組織変化

ボールミルで得られる試料は粉末に限られる。ボールミル粉末をバルク材とするには焼結などの固化成形が必要で、焼結の際の加熱中に強加工で得られた有益な組織は大きく損なわれる。そこで、ボールミルで得られるのと同程度の組織を加工によりバルク材で得る方法が強く望まれる。筆者らで種々の加工方法を試した結果、ショットピーニング<sup>11)</sup>やドリル加工<sup>12)</sup>などではバルク材の表面層で、ボールミルとよく似た組織が得られることを見出した。図4はマルテンサイト組織の共析鋼を高速 (周速 $80\ \text{m/min}$ ) でドリル加工したものである。ドリル穴表面付近では加工発熱で高温になり、種々の加工熱処理現象が起こる。試料内部から穴表面に向かって、組織は、マルテンサイトの加工組織、フェライトの動的再結

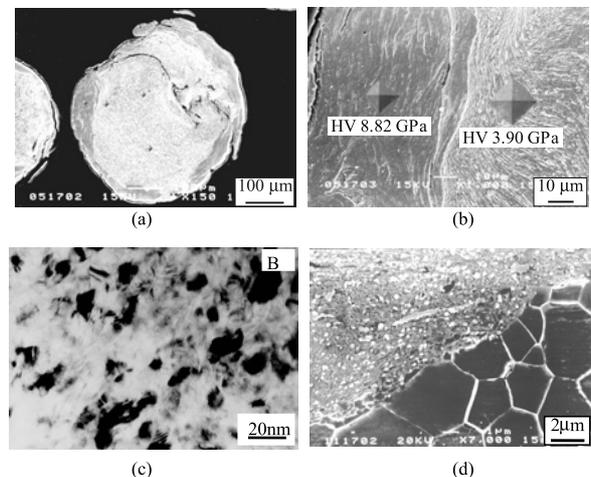


図3 高速ドリル加工した穴表面の組織 (マルテンサイト組織としたFe-0.56% C鋼を直径5mmのドリルで周速度80m/minで加工)

晶組織、フェライトの動的再結晶と $\alpha$ から $\gamma$ への動的逆変態で生成した $\gamma$ が冷却中にマルテンサイトに変態したものが混合した組織の順に変化し、最表面ではナノ結晶組織となっている。ナノ結晶が出現している最表面層では加工発熱で一旦全体が $\alpha$ 相から $\gamma$ 相に変態している。従って、ナノ結晶組織の形成に対して強加工中の $\alpha$ から $\gamma$ への動的変態が関与している可能性があるが、ナノ結晶となるメカニズムはよくわかっていない。ドリル穴の表面にナノ結晶組織層を形成させると、ドリル穴からの疲労クラックの発生が抑えられ、部品の疲労特性が著しく向上する。疲労特性の向上は圧縮の残留応力を除いても認められることから、ドリル穴表面層に生成した高強度なナノ結晶組織そのものが疲労強度を向上させていると考えられる。

以上のように、ドリル加工では多くの加工熱処理組織が現れる。ドリル加工では穴周辺に通常の加工では見られない大歪(剪断歪み20以上)が加えられていると同時に、加工発熱により高温変形の状態となっている<sup>12)</sup>。このような加工状況はドリルに限らず、切削や摩擦においても同様である。二次加工における機械加工でも鋼材表面層では種々の加工熱処理が起こっており、それを有効に利用して、部材や部品の特性を向上させることが期待される。

## 5 鉄鋼材料を強加工することによってナノ結晶組織を得るための条件

鉄鋼材料を強加工することによって100 nm以下の超細粒組織とするには以下に示す条件が同時に満足されている必要

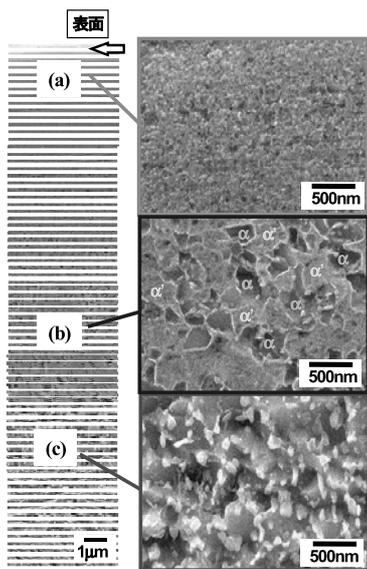


図4 ボールミルしたFe-0.10% Cマルテンサイト鋼の組織と硬さ a) 粉末の断面組織 (SEM)、b) 粉末表面部と内部の硬さ、c) 粉末表面部のTEM写真、d) ボールミル後600℃で1時間焼鈍後の組織

があると考えられる。

- 1) 大きな歪勾配を伴う強加工
- 2) 固溶炭素
- 3) 動的変態

加工による結晶粒微細化においては大きなひずみを加えることは必要であるが、均一なひずみの場合は、歪量をいくら大きくしても加工硬化や組織の微細化は飽和してしまう<sup>13,14)</sup>。これは加工によって導入される転位の種類に原因があると考えられる。つまり、均一加工で導入される「統計的に蓄積される転位 (SS転位)」では、正負の符号の転位の数が同じであるため、歪量の増加とともに異符号の転位の合体による動的回復が起こりやすく、材料の内部組織は定常状態に達する。この定常状態を打破し、より高強度で微細な組織を得るには同じ符号の転位、つまり「幾何学的に必要な転位 (GN転位)」を大量に導入する必要がある<sup>15)</sup>。GN転位の密度は歪勾配の大きさに比例するので、大きな歪勾配を伴う加工が重要である。歪勾配を導入する最も一般的な加工方法はねじりである。圧延とねじり加工で得られる最高到達硬さをFe-0.03% C鋼を使って比較した。その結果、圧延の最高到達硬さ2.4 GPaに対して、高圧下のねじり加工 (HPT: High Pressure Torsion, 50回転、対数真歪9.1、歪勾配1.8/mm) では5.1 GPaであった<sup>16)</sup>。このように、大きな歪勾配を伴う加工を施すことによって、最高到達強度は大きく増加する。

鉄鋼材料で強加工による結晶粒の微細化にとって次に重要な因子は固溶炭素量である。図5にHPT加工した電解鉄(99.99%)とFe-0.03% C鋼の試料(直径10 mm、厚さ0.8 mm)の半径方向の硬さ分布を示す。試料周辺部で得られる最高硬さは電解鉄で3.0 GPa、Fe-0.03% C鋼では5.1 GPaである。このことから固溶炭素量は強加工による高強度化や結晶粒の微細化に対して重要な因子であることがわ

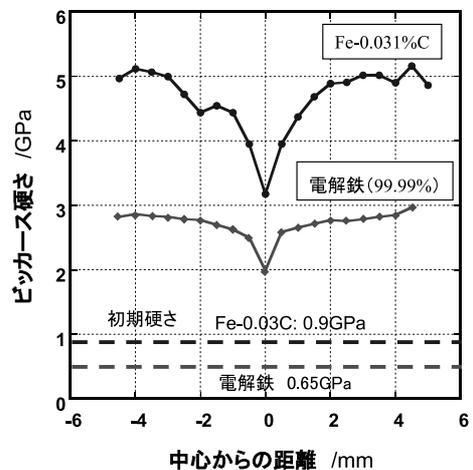


図5 HPT加工(圧力5 GPa、回転回数50回、試料周辺部の対数真歪9.1、歪勾配1.8/mm)した電解鉄とFe-0.031% C鋼の試料半径方向の硬さ分布

かる。

最後に動的変態が挙げられる。上述のドリル加工で示したように、表層のナノ結晶組織は加工発熱で $\gamma$ 化が生じた部分でのみ見られる。ドリル加工以外でも、衝撃変形の剪断帯<sup>17)</sup>やSUS316のボールミル粉末表面<sup>18)</sup>、HPT加工したパーライト組織の共析鋼<sup>19)</sup>などのように、ナノ結晶組織の生成には動的変態が関与している場合が多い。

以上のように、強加工で結晶粒を100 nm以下に微細化し材料を強化する場合、歪量が大きいこと以外に大きな歪勾配を伴うこと、固溶炭素が存在すること、動的変態が存在することなどが重要な因子として考えられる。

## 6 おわりに

オースフォームが開発された当初の加工熱処理法では、加工は組織調整のために行うものであって、成形工程を利用するという意識は薄かった。一方、機械の専門家は成形の研究、つまり形の造り込みからさらに進んで、形と特性の同時造り込みの研究に移ってきた。材料の特性制御に加工を適用するという流れと、成形加工プロセスで形だけでなく材質をも造り込むという流れは、熱間圧延で見事に合体し、制御圧延となって実現した。今後も圧延などの一次加工のみならず鍛造、切削、ドリル加工などの二次加工も含めて加工による成形が行われる多くの場面で、形と材質の同時造り込みが、より広く展開されるであろう。その基礎となるのが、加工熱処理である。現在、材料に対してはリサイクル性や地球環境保全の観点から合金元素の使用を極力抑え、単純組成で高強度な材料の開発と普及が望まれている。この要求に対して加工熱処理の果たす役割、期待は益々大きくなるであろう。加工熱処理による材料の高性能化には機械系と材料系の技術者の連携が必須である。互いに協力して、成形と材質の作りこみの一体化を進めることが期待される。

### 参考文献

- 1) 田村今男：日本金属学会報，2 (1963)，426.
- 2) I. Tamura, H. Sekine, T. Tanaka and C. Ouchi : Thermomechanical Processing of High-strength Low-alloy Steels, (1988) [Butterworths]
- 3) M. Umemoto and I. Tamura : Proc. of Int. Conf. on

HSLA Steels : Metallurgy and Applications, Beijing China, (1985), 373.

- 4) スーパーメタルシンポジウム講演集, JRCM・RIM-COF, 第1回 (1999), 第2回 (2000), 第3回 (2001), 第4回 (2001)
- 5) 佐藤彰：ふえらむ, 3 (1998), 88.
- 6) R.Z. Valiev, N.A. Krasilnikov and N.K. Tsenev : Mater. Sci. Eng., A137 (1991), 35.
- 7) Y. Saito, N. Tsuji, H. Utsunomiya, T. Sakai and R. G. Hong : Scripta Mater., 39 (1998), 1221.
- 8) 辻伸泰：鉄と鋼, 88 (2002), 359.
- 9) 梅本実, 土谷浩一, Zhi-Guang Liu : 粉体および粉末冶金, 50 (2003) 3, 189.
- 10) 大崎智, 宝野和博, 飛鷹秀幸, 高木節雄：まてりあ, 44 (2005) 12, 960.
- 11) M. Umemoto, Y. Todaka and K. Tsuchiya : Mater. Trans., 44 (2003) 7, 1488.
- 12) Y. Todaka, M. Umemoto, S. Tanaka and K. Tsuchiya : Mater. Trans., 45 (2004) 7, 2209.
- 13) H. Lin, C. Xu, B.Q. Han, E.J. Lavernia and T.G. Langdon : Proceeding of Ultrafine Grained Materials III TMS, (2004), 523.
- 14) N. Kamikawa, N. Tsuji, T. Sakai and Y. Minamino : Proc. of the 25th RISO Int. Symp. on Mater. Sci., (2004), 369.
- 15) J. Gil Sevillano : Proc. of 25th Riso International Symposium on Materials Science, (2004), 1.
- 16) M. Umemoto, Y. Todaka, J. Li and K. Tsuchiya : Materials Science Forum, 503-504 (2006), 11.
- 17) D.R. Lesuer, C.K. Syn and O.D. Sherby : Materials Science and Engineering, A 410-411 (2005), 222.
- 18) H. Fujiwara, H. Inomoto, R. Sanada and K. Ameyama : Scripta Materialia, 44 (2001), 2039.
- 19) Y. Ivanisenko, L. Maclaren, R.Z. Valiev and H.J. Fecht : Advanced Engineering Materials, 11 (2005), 1011.

(2006年5月8日受付)