特集記事・4

構造用金属材料の新たな挑戦
ヘテロ構造制御に基づく新指導原理構築

塑性加工に伴う鉄中Cu粒子の変形と分解

～軟質分散粒子のヘテロ→ホモ構造変化の可能性～

Deformation and Dissolution of Cu Precipitates in Iron by Plastic Working: The Role of the Soft Dispersion Particles Hetero-to-Homo Structural Transition in.

九州大学 大学院工学研究院 准教授 土山聡宏 Toshihiro Tsuchiyama
横浜国立大学 大学院工学研究院 研究教員 諸岡 聡 Satoshi Morooka
九州大学 大学院総合理工学研究院 准教授 波多 聰 Satoshi Hata
バージニア工科大学 Associate Professor 村山光宏 Mitsuhiro Murayama

1 研究背景と目的

鉄鋼材料をはじめとする構造用金属材料において、強度と延性の両立は永遠の課題であり、合金設計や熱処理を駆使した組織制御によって強度－延性バランスを向上させる研究の重要性は今後も変わることはない。「ヘテロ構造制御」は、とくに金属材料中に存在する組織の不均一性を積極的に利用して材質を向上させようとする考え方であり、強度－延性バランスという観点からは、いかにヘテロ構造を利用して加工硬化挙動を制御し、均一伸びを増大させるかが一つのポイントになる。TRIP鋼やDP鋼などの高強度複相鋼板では、硬質な第二相を利用して材料中に不均一な変形組織あるいは応力分配を生じさせ、鋼の強度－延性バランスを向上させたヘテロ構造のうまい利用例である。しかしながら、自動車用部材として使用される実用の薄鋼板おいては、単に強度と伸びに優れるだけでは不十分であり、プレス成形性に優れていることが不可欠である。ヘテロ構造制御による加工硬化率の増大は、組織中に応力や歪みの集中サイトを導入することに他ならないが、それはボイドの発生・成長を伴う延性破壊の誘発要因となるため、局所的な変形集中部での早期破壊を引き起こす。つまり、ヘテロ構造を利用するだけでは、均一伸びと局部変形能（局部伸び）を両立させることは困難であると考えられる。局部伸びは薄鋼板の穴広げ性（伸びフランジ性）を確保するために重要な因子であり、自動車用鋼板には欠かせない特性の一つである。この特性は固溶強化鋼やベイナイト鋼など、むしろ均一（ホモ）な組織を有する鋼で優れることが一般的に知られている。均一伸びと局部伸びの相反する特性を両立させるにはどうすればよいか？　それは、ヘテロ構造が変形初期の加工硬化性を維持した後、変形後期にはそれが消失・無効化するような都合の良い組織変化、すなわち「ヘテロ→ホモ構造変化」（図1参照）が利用できれば解決できるであろう。そのような構造変化を生じる可能性のある組織因子が「軟質分散粒子」である。例えば、鋼中のCu析出物や硫化物は、鋼材の変形初期には転位と強い引力型相互作用を示して材料強化因子として働くが、やがて基地とともに塑性変形し、最終的には伸長・分断し、強ひずみ加工時には加工軟化や分解を生じる可能性も指摘されている[1)]。本研究の目標は、薄鋼板の塑性加工に伴う軟質分散粒子のヘテロ構造変化をマルチスケールで解析し、上記のような加工性に対する軟質粒子の効果の遷移が実際に発現することを証明すること、そして軟質分散粒子を利用した薄鋼板の強度－加工性バランスの改善に向けた指導原理を構築することである。ただし、実用レベルの高強度を有する鋼への本手法の適用は未だ検討段階である。本稿では、それに繋ぐための基礎研究として、単純なモデル合金を用いて塑性加工に伴う軟質Cu粒子の変化について調査した結果の概略を述べるに留めさせて頂きたい。

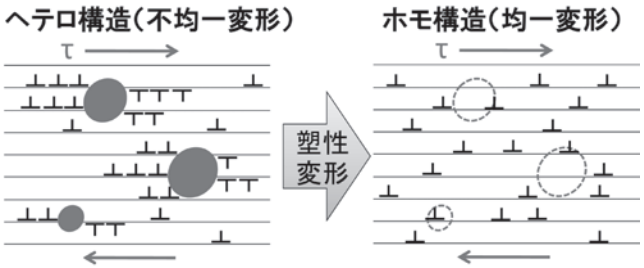

図1　塑性変形に伴うヘテロ→ホモ構造変化を示すイメージ図

2 引張変形挙動（応力ー歪み曲線）に及ぼす軟質Cu粒子の役割

フェライト鋼中に微細粒子を分散させると、たとえそれがCuのような軟質粒子であっても転位と相互作用を示し、鋼の降伏強度は増大する[2,3]。ただし、炭化物のような硬質粒子の場合とは異なり、転位との相互作用は引力型となるため[3]、オロワンループの形成が明瞭に認められることはなく、図2に示すように転位が粒子表面に付着している様子が観察される。このとき転位はCu粒子界面での局所的な原子変位により拡張している、あるいはCu粒子内に侵入していると考えられる。後述のように、高歪み域になるとCu粒子自体が塑性変形を起こして次第に伸長していくこととなる。つまり、材料の塑性変形に伴いCu粒子内への転位の侵入と離脱が繰り返されると考えられる。

このようなCu粒子の振る舞いによって、引張試験によって得られる応力ー歪み曲線は、硬質粒子分散鋼のものとは著しく異なってくる。図3は、Cu粒子分散鋼と硬質VC粒子分散鋼の応力ー歪み曲線を示す。両鋼において分散粒子のサイズと体積率、およびフェライト粒径は全て同じ値に揃えてある。（それぞれ約35nm、約1.4vol%、約25μm）それにも関わらず、降伏応力、加工硬化、局部伸びが明らかに異なっており、粒子の分散状態だけでなく粒子の性質によっても材料の変形挙動は強く影響を受けることがわかる。引張変形に伴う転位密度の変化をX線回折により測定してみると、図4に示すように、Cu粒子分散鋼では純鉄よりも転位蓄積が生じやすいが硬質VC粒子分散鋼ほどは生じていないことがわかる。硬質粒子を分散させることによる転位蓄積の促進は、粒子／母相界面での塑性変形の不連続を解消するために幾何学的に導入されるGN転位（Geometrically Necessary dislocation）の増加によって説明される[4]。その観点から言えば、Cu粒子自身の塑性変形は界面での塑性変形の不連続を一部解消し、その結果として導入されるGN転位の数が減少したと理解される。一方、引張変形に伴いCu粒子の塑性変形が生じると、その粒子が担う「相応力」が低下し、材料の加工硬化挙動にも変化が現れると考えられる。図5は、Cu粒子分散鋼、VC粒子分散鋼の応力ー歪み曲線とその場中性子回折法[5]によって測定したフェライト相の相応力曲線（プロットで示される曲線）を示す。各分散粒子の相応力については、その体積率が小さいことから十分大きな回折ピークが得られず、現時点では残念ながら直接測定には至っていないが、フェライト相の相応力と応力ー歪み曲線における流動応力との差分が分散粒子が担う相応力に対応すると判断できる。この2つの実験データから明らかなことは、Cu粒子分散鋼とVC粒子分散鋼のいずれにおいてもフェライトの相応力が流動応力を下回っていること、すなわちCu粒子とVC粒子はいずれも「硬質相」として変形応力に寄与しているということである。もはやCu粒子は軟質粒子とは言えないとの意見もあるであろうが、ここでは、塑性変形の可否が重要であ

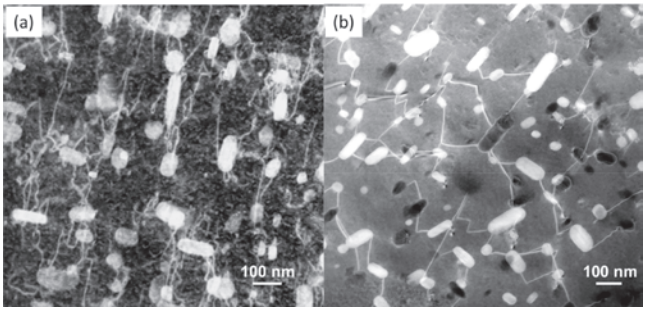

図2　Fe-3Cu合金過時効・引張試験中断材のSTEM暗視野像：（a）FIB加工により薄膜化、（b）電解研磨により薄膜化

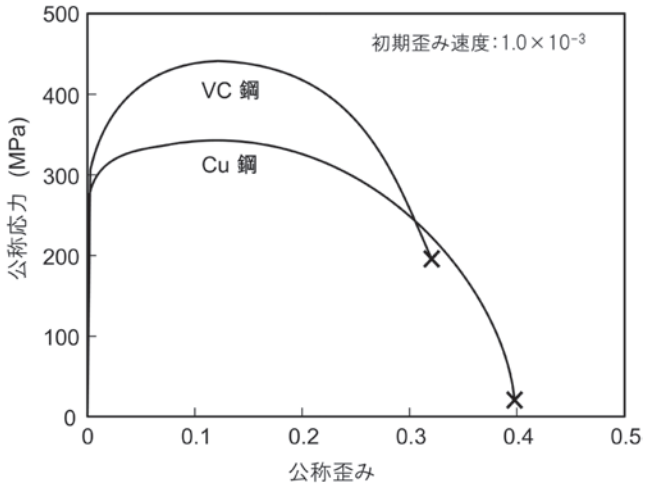

図3　Cu粒子分散鋼（Fe-2Cu合金）およびVC粒子分散鋼（Fe-1V-0.2C合金）の応力ー歪み曲線

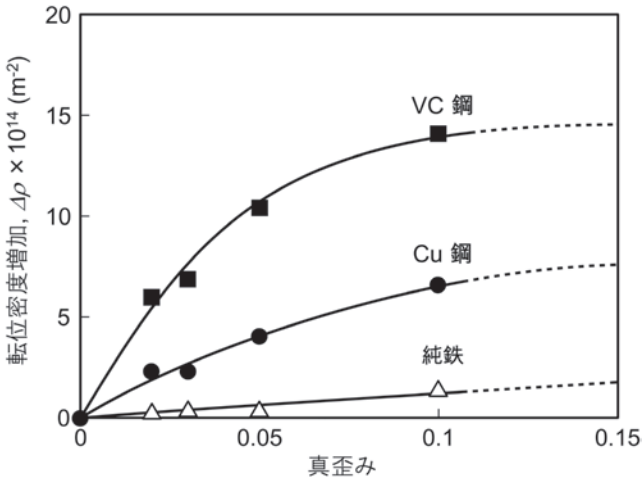

図4　Cu粒子分散鋼（Fe-2Cu合金）、VC粒子分散鋼（Fe-1V-0.2C合金）、純鉄の引張変形に伴う転位密度の変化

るので、相対的な意味で「軟質粒子」という言葉を使用させて頂きたい。結局、Cu粒子分散鋼の加工硬化がVC粒子分散鋼のそれより小さな値を示した理由は、(1) フェライト粒内への転位蓄積量が低減されることによりフェライト相応力の増大が抑えられる効果、ならびに (2) 硬質相として寄与するCu粒子が塑性変形によって相応力低下を生じる効果によって説明される。以上のことから、軟質粒子分散鋼の変形初期における力学特性は、粒子のサイズや体積率だけでなく、その塑性変形能、あるいは母相／粒子間の強度比のような値をパラメータとして評価すべきであると思われる。

3 強加工したFe-Cu合金における Cu粒子の変形と分解

引張試験により付与される歪みは高延性の材料でも高々1程度であるが、実際の塑性加工やプレス成形においては、局所的にはそれより大きな歪みが付与され、そのような箇所で破壊が生じると考えられる。したがって、母相での加工組織の発達やCu粒子の挙動についても、より高歪み域での調査が必要である。そこで最も簡便な高歪み付与法である圧延によって最大90％の加工（相当歪み：2.6）を施した試料を用いて、加工組織やCu粒子の状態変化について調査を行った。図6は、室温で70％冷間圧延したFe-2Cu合金の低倍率TEM像を示す。Cu粒子は加工前にはほぼ球状であったが、圧延によってRD方向に著しく引き延ばされている。ただし粒子内に縞状のコントラストが見られることから、変形は一様ではなく不均一であると考えられる。変形したCu粒子を高分解能TEMによって高倍率で観察を行った一例を図7（80％圧延材）に示す。粒子内外に存在する歪みの影響で母相／Cu粒子界面の正確な位置や形態を見極めることは困難であるが、図7 (a) に太矢印で示すように凹凸の形態を有した界面が存在していることがわかる。粒子内部には局所的な歪みの存在を示すコントラストが見られ、転位が導入されていることも確認された。とくに、図7 (b) のように伸長したCu粒子の先端部（点線で囲まれた領域）では母相／Cu粒子界面は全く不明瞭になっている。しかしCu粒子に侵入した多くの転位が、この近辺からフェライト基地へ離脱していったと考えれば、伸長したCu粒子の先端部では、原子レベルのステップやレッジが形成され、構造的に不安定となっていると推察される。また粒子先端近傍の母相側においても、不均一に歪みが集中して欠陥密度が高くなっていると思われる。したがってCu粒子の分解が生じるとすれば、このような粒子先端部

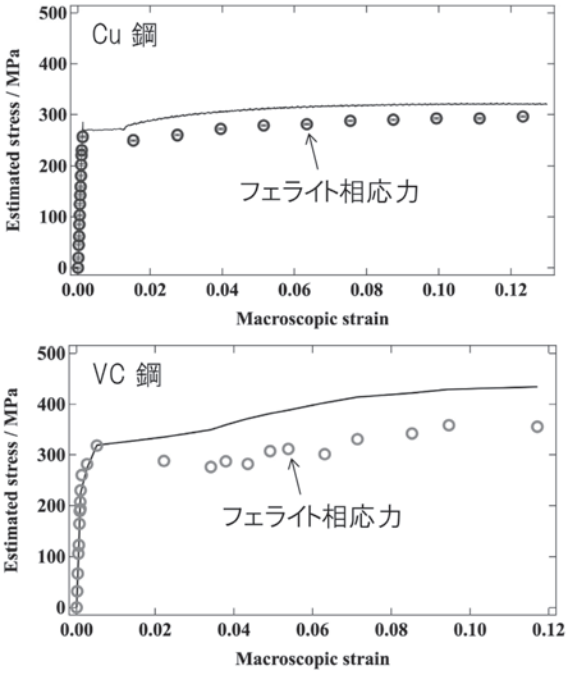

図5　Cu粒子分散鋼（Fe-2Cu合金）およびVC粒子分散鋼（Fe-1V-0.2C合金）の応力ー歪み曲線（実線）とフェライト相の相応力曲線（プロット）

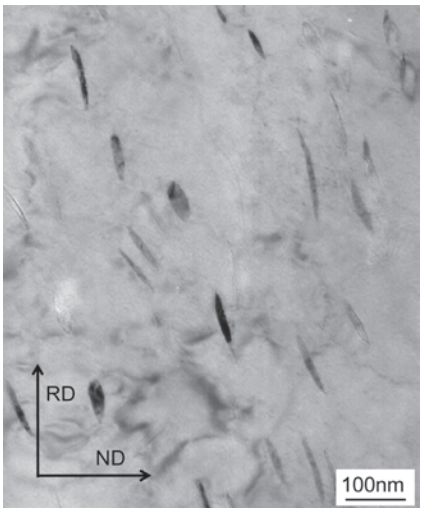

図6　70％冷間圧延したFe-2Cu合金の低倍率TEM像

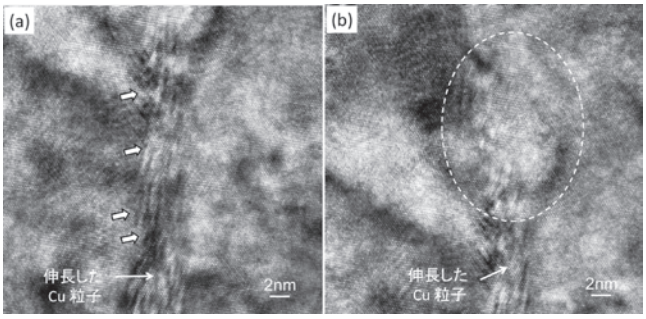

図7　80％冷間圧延したFe-2Cu合金における伸長Cu粒子の高分解能TEM像：(a) 側面部、(b) 先端部

が主な分解の起点になり得ると言えよう。

Cu粒子の分解が生じたことを証明するには様々な方法が考えられるが、ここではDSCの実験結果について述べる。DSCは昇温過程における材料内での析出反応に敏感な分析法であり、実際にFe-Cu合金の析出現象を取り扱ったいくつかの研究例[6,7]がある。今回用いた試料は時効処理を行ったFe-2Cu合金と、それに90％の冷間圧延を施した試料である。もし冷間圧延によるCu粒子の分解が生じていたならば、昇温過程で再析出が生じると考えられ、冷間圧延材には時効処理材には存在しないピークが現れるはずである。図8が両試料のDSC曲線である。fcc-Cu粒子の成長（あるいは残留9R-Cuのfcc-Cuへの変態）に対応すると考えられる高温側のピークは両試料ともに存在しているが、Cuクラスターの生成に対応すると考えられている270℃付近の低温側の発熱ピーク[6,7]は圧延材にのみ生じている。他の解析法を併用して確認を行う必要はあるが、本実験結果は加工に伴うCu粒子の分解を示唆する有力な情報の一つである。

4 今後の研究展開と高強度鋼への応用

本報告では、過時効処理によって40nm程度のサイズにまで粗大化させたfcc-Cu粒子に関する調査結果を中心に述べたが、実用上重要なピーク時効材（最大強度が得られる条件で時効処理した試料）においては、Cu粒子サイズは10nm以下、粒子の結晶構造もbccを含むと考えられ、加工による分解が著しく促進される可能性がある。観察が極めて困難になるという問題はあるが、ピーク時効材の調査は今後の重要課題のひとつである。また、本研究が高強度鋼の機械的性質の改善を目的としている以上は、Cu粒子の変形や分解の挙動と特性発現との因果関係を明らかにしなければならない。Cuを含有したマルテンサイト鋼やフェライト鋼において優れた強度－伸びバランスが得られること、とくに局部伸びが優れることなどは既に実験的に明らかにされているが、その機構を理解し、最適な組織制御指針を示すことが重要であろう。そのためには、機械試験後の破面や破面近傍組織の調査を行い、破壊機構に及ぼす軟質分散粒子の役割を明確にすることも不可欠である。

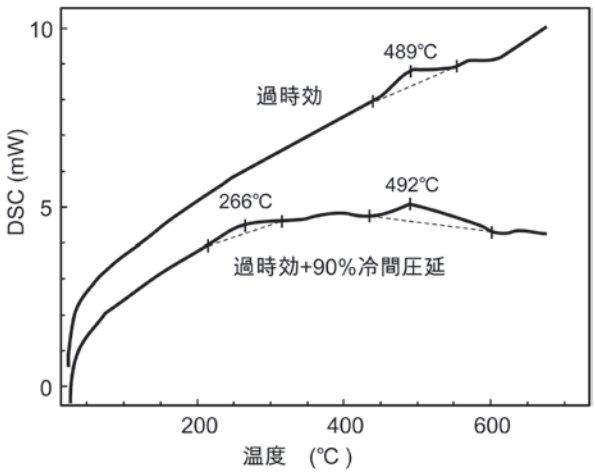

図8　Fe-2Cu合金の過時効材および過時効＋90％冷間圧延材におけるDSC測定結果

上記のような研究を通して目指していく鋼板製品のイメージとしては、例えば高い穴広げ性を損なうことなく伸びまたは強度を現状以上に増大させたベイナイト鋼、強度と均一伸びを低下させることなく第二相体積率を低減させたDP鋼などが挙げられる。また、硫化物などCu以外の軟質粒子を微細分散させる手法の確立、ならびにその有効性評価も課題である。結晶粒の微細化を併用することも効果的と思われる。そして最終的には、これらの知見を集約し、軟質分散粒子を利用した薄鋼板の強度－加工性バランスの改善に向けた指導原理を構築していくことを目標としたい。

参考文献

1）戸高義一，梅本実，橋本元仙：鉄鋼材料の加工硬化特性への新たな要求と基礎研究－加工硬化研究の最前線－，日本鉄鋼協会　加工硬化特性と組織研究会　報告書，日本鉄鋼協会編，（2011），61.
2）K.C.Russell and L.M.Brown：Acta Metall., 20（1972），969.
3）K.Nakashima, Y.Futamura, T.Tsuchiyama and S.Takaki：ISIJ Int., 42（2002），1541.
4）M.F.Ashby：Phil. Mag., 14（1966），1157.
5）S.Harjo, K.Aizawa, T.Ito, H.Arima, J.Abe, A.Moriai, K.Sakasai, T.Nakamura, T.Nakatani, T.Iwahashi and T.Kamiyama：Mater. Sci. Forum, 652（2010），99.
6）N.Maruyama, M.Sugiyama, T.Hara and H.Tamehiro：Mater. Trans. JIM, 40（1999），268.
7）佐野直幸，前原泰裕：日本金属学会誌，60（1996），261.

（2012年8月2日受付）