

特別講演

□第177回春季講演大会学術功績賞受賞記念特別講演
(2019年3月22日)

結晶粒超微細化の基礎研究と実用化

Fundamental Research and Development of Ultrafine Grained Steels and Its Practical Application

鳥塚史郎 兵庫県立大学
大学院工学研究科 材料・放射光工学専攻
教授
Shiro Torizuka



*脚注に略歴

1 緒言

この度は、栄えある学術功績賞をいただきましたことを心より感謝申し上げますとともに、「結晶粒超微細化の基礎研究と実用化」と題して講演させていただいた内容について簡単に報告させていただきます。

1990年後半以来、鉄鋼をはじめとする金属材料の結晶粒径をサブミクロンレベルにまで超微細化する研究が盛んに行われ、1 μ m以下の超微細粒組織を得るための様々な新しい加工熱処理法が提案され、多くの研究が行われてきた^{1,4)}。しかし、超微細粒金属が実用化された例はなかった。その原因は、第一に結晶粒微細化によって強度は著しく上がるものの延性が低下してしまうこと、第二に、サブミクロンレベル超微細粒組織をもった材料を量産する技術がなかったことがあげられる。金属全般にいえることであるが、強度が上がると伸びが低下するという宿命があり、これをトレードオフの関係というが、結晶粒微細化法でも例外ではなかった。

この2つの課題の解決が、わたくしの課題であり、その解決によって超微細粒組織を持つ高強度精密ねじとしての実用化が達成できた。本稿では、加工熱処理技術にもとづく結晶粒超微細化方法の基礎研究^{5,6)}とその小ねじとしての実用化について説明する⁷⁾。さらには、現在の研究である中Mnハイテンの研究についても説明したい。

2 結晶粒微細化の基礎研究

(1) 温間1パス圧縮加工による結晶粒微細化の基礎検討

結晶粒微細化の基礎研究の着眼点は1パス圧縮加工のような単純な加工熱処理実験によって超微細組織を生成するこ

とにあった。加工温度、ひずみ、ひずみ速度といった加工の基礎的条件と組織の特徴、粒径が代表であるが、加工条件と組織が直接結びつけられねばならない。相変態あるいは再結晶を利用したいずれの方法においても、超微細粒組織形成のためにはひずみで1ないし2を超える大ひずみ加工が必要であった^{5,6)}。このような大ひずみが1回の加工で材料に導入できねばならない。2回以上の加工では、加工の間に組織変化する可能性があり、正確な実験ができなくなってしまう。多パス加工や圧延では、微細粒組織ができて、加工条件と組織を結びつけることができない。

従来加工熱処理シミュレータという円柱のサンプル(8 ϕ × 12H)を圧縮する円柱圧縮が主に用いられていたが、わたくしは、平面ひずみ圧縮型の加工熱処理シミュレータに注目した。厚さ12×幅15×長さ18mmの小サンプルを用いて、2個のアンビル間でサンプルを圧縮するものである。アンビル幅を5mmとすることで、厚さを12mmから3mmまで75%平面ひずみ圧縮することで、最大4(減面率で98%に相当)の塑性ひずみをサンプル中央に導入できることを見出した^{9,10)}。大ひずみが導入された様子を図1に示す。サンプルの加熱方法は通電加熱である。この手法によって、フェライト-パーライト鋼(化学組成0.14C-0.41Si-1.43Mn-0.014P-0.004S mass%)を対象に、加工を行った際の動的な復旧挙動および組織変化を詳細に調べた^{5,6,8-16)}。

図2^{9,10)}に、加工温度650°C、ひずみ速度10s⁻¹で圧縮加工を行った場合の組織変化のSEM像を示す。また、図3^{9,10)}にはひずみの増加にともなう粒界性格の変化を表すEBSDのGrain boundary mapを示す。赤線が方位差角15°以上の大角粒界、青線は5°以上15°未満の粒界、薄い青線は1.5°以上5°未満の小角粒界を表す。これらの図からも明らかなよう

* 1985年3月に東京大学大学院修士課程修了、日本鋼管(株)に入社した。1994年3月に同大学院先端学際工学を修了し、博士(工学)を得た。1996年に金属材料技術研究所、現物質・材料研究機構に転じ、2014年1月より兵庫県立大学教授となり、現在に至る。

に、扁平した加工硬化粒から等軸微細粒に変化してゆくことがわかる。同時に大角粒界密度も増加してゆく。新しいフェライト粒が生成し始めるひずみは1.2とかなり大きく、また、新粒の大きさはひずみによらず一定であった。従来の加工シミュレータでは、1パスで導入できるひずみは1.5程度が最大であったが、本方法により、ひずみ4まで導入可能となった

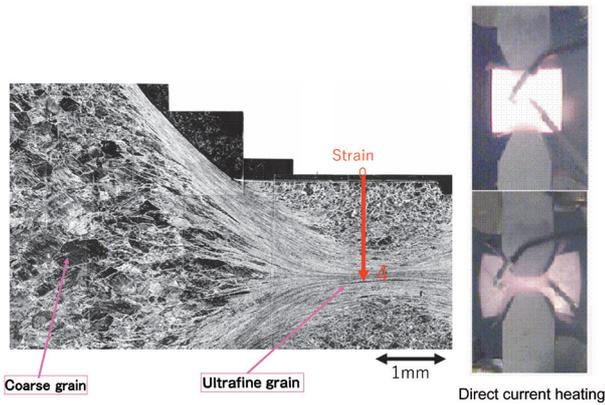


図1 平面ひずみ型圧縮試験と試験片の断面図

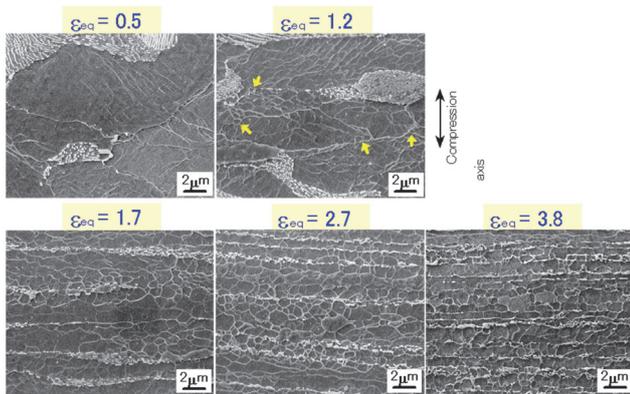


図2 変形組織のひずみによる変化のSEM像
ひずみ速度 10s⁻¹、加工温度 650℃、log Z = 14.5

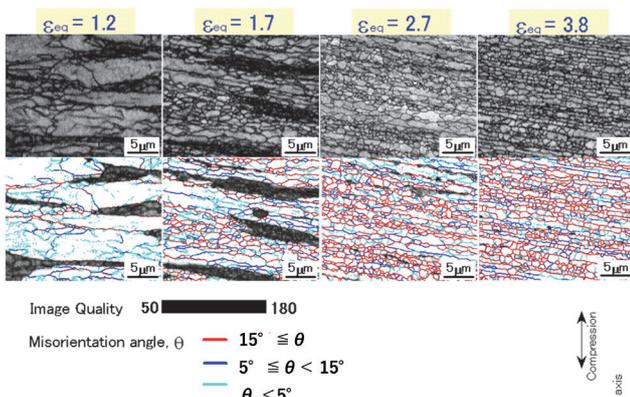


図3 変形組織のEBSD IQ 像と粒界マップのひずみによる変化
ひずみ速度 10s⁻¹、加工温度 650℃、log Z = 14.5

ので、このような現象を明らかにできた。以上、単純な圧縮加工でも、大ひずみを与えることによって、加工中に、すなわち、動的に超微細フェライト粒組織が得られることを明確に示した結果となった。

温度範囲 400-850℃ の広範な大ひずみ加工熱処理実験を行い、図4に示す結晶粒微細化マップを作成した⁷⁻¹⁴。その結果、フェライト粒の大きさは加工で与えられるひずみには影響されずに、加工温度およびひずみ速度に影響されることがわかった。5°以上の方位差角を持つ粒界で囲まれ内部にサブグレインを含まない新しく生成したフェライト粒の平均粒径に対するZ因子依存性を図4 (a) に示す。本研究のデータはほぼ1本の直線上に乗り、粒径dとZ因子の間には式 (1) の関係があった。ここで、ZはZener-Hollomon 因子で、ひずみ速度 $\dot{\epsilon}$ と加工温度Tを変数に持つパラメータである。

$$d(\mu\text{m}) = 10^{2.07} Z^{-0.16} \dots\dots\dots (1)$$

$$Z = \dot{\epsilon} \exp\left(\frac{Q}{RT}\right) \dots\dots\dots (2)$$

ここで、Qにはキュリー点 (T_c = 1053K) 以下のフェライト鉄の自己拡散の活性化エネルギー254kJ/molを、ひずみ速度 $\dot{\epsilon}$ には見かけの圧縮ひずみ速度を用いた。

平均粒径はZ因子で決定される。また、図4 (b) に示すように、全面等軸粒が生じる動的再結晶に必要なひずみ ϵ_c は

$$\epsilon_c = 0.15 Z^{0.1} \dots\dots\dots (3)$$

と表すことができた。例えば、全面等軸微細粒0.5 μmを得

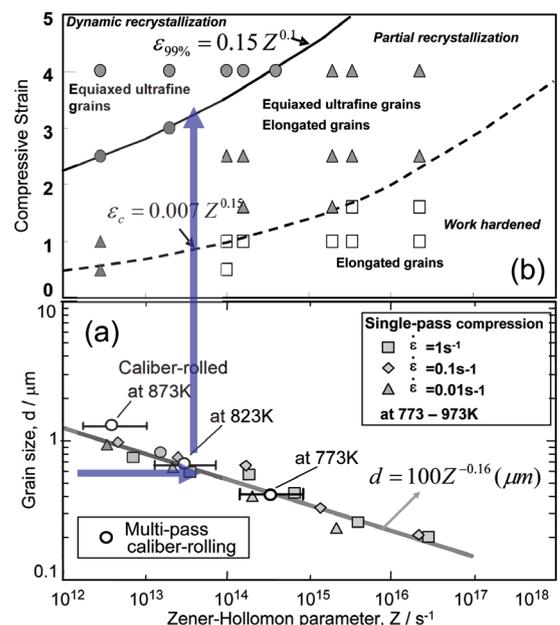


図4 結晶粒微細化プロセスマップ、(a) Z値と粒径の関係、(b) Z値と動的再結晶に必要なひずみの関係

ようとした場合は、矢印に示すように、 $\text{Log}Z = 13.5$ で、ひずみ $\epsilon > 3.2$ を導入すれば良いことが示される。図4は組織制御に必要な加工条件を表す工業的に有用な微細化プロセスマップともいえる。結晶粒超微細化の指導原理は高Z一大ひずみ加工であり、超微細素材大型化のためのプロセスパラメータを定式化できた¹¹⁻¹⁵⁾。

(2) 温間溝ロール圧延による微細粒組織棒鋼の製造

加工シミュレータでは小さなサンプルしか作ることができない。引張試験もできない。これでは実用化には結びつかない。加工シミュレータの基礎研究結果である高Z-大ひずみ加工のコンセプトを適用することによって、バルク材が製造可能を試みた。その際のポイントは以下の3点である。

- 1) 素材全域への大ひずみの導入。
- 2) 多パス化が可能かどうか。
- 3) 1パスあたりの圧下率には、必要な最低限度があるか。

大ひずみを、板または棒のようなバルク材に導入するためには、一般的には大減面をとまなう加工を行う必要がある。たとえば、ひずみ3の加工は減面率95%に相当する強加工である。棒鋼圧延が平ロール圧延に比べて有利な点は、図5^{17,18)}に示すように、2次元的に減面されるため、板材に比べ大きな減面率を取りやすく、大ひずみ導入に有利である。また、溝ロール圧延は、大ひずみ導入の基本原理解である多方向加工¹⁶⁾でもあるため、大ひずみ導入に有利である。そこで、ラボレベル溝ロール圧延機、さらに民間の実機溝ロール圧延機を利用して、温間温度域で総減面率95%、ひずみ3~4を与える圧延を行い、18mm角で長さ20mの棒鋼を試作するとともに、超微細粒組織が形成できるか、また、粒径はZ因子の式に従うのかを検証した^{17,18)}。

図5に示すように、80角から18角まで圧延を、500℃で等温21パス圧延を行った。図6¹⁷⁾にひずみの増加にともなう組織変化を示す。累積圧下率が87%まで増加した(c)では等軸粒の生成は明らかであり、中心部(d)においても等軸状の超微細フェライト粒が一部に生成し始めていた。累積

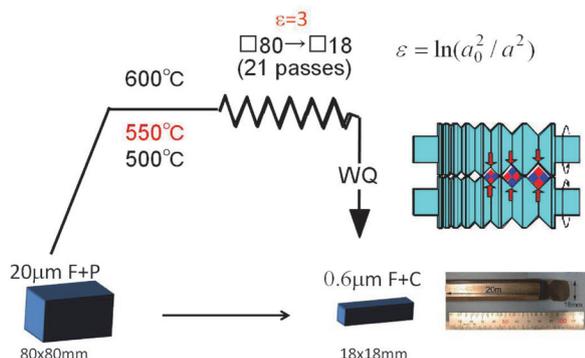


図5 温間多パス溝ロール圧延

圧下率95%の18mm角材では、(g), (h)に示すようなほぼ全面が超微細フェライト粒からなる平均粒径0.70 µmの組織が得られた。図4¹⁷⁾には、1パス圧縮および多パス圧延で得られた粒径とZ因子の関係を同時に示すが、両者は良い一致を示している。したがって、圧延温度が低い場合は、ここで試みたひずみ速度の計算法¹⁷⁾で現象をよく説明できることがわかった。結晶粒微細化には、温間温度域での大ひずみの導入が必要であるが、1パスで導入する必要はなく、多パス化が可能であることを明らかにし、ひずみの足し算が可能であることを示したことは、実用化を考えるうえで重要な知見となった。

(3) 超微細粒鋼の魅力的力学的性質

18mm角の超微細粒が製造できるようになったため、丸棒引張試験、フルサイズシャルピー試験、疲労試験が可能となった。炭素量を0.02%から0.75%までのさまざまな炭素量組成のSi-Mn鋼を用意し、温間溝ロール圧延で組織をサブミクロンまで微細化し、その力学的性質を調べた結果を図7に示す。各組成において、結晶粒径を5 µmから0.5 µmまで微細化することによって、降伏強さは約2倍となる¹⁸⁾。また、炭素量が増加するにつれて、強度と全伸びが同時に向上していることがわかる。また、強度が上昇すれば、伸びが減少するのが一般的であるが、超微細粒鋼の場合は、炭素濃度の増加が、強度と伸びを同時に向上させる。超微細粒鋼の問題点の一つは、一様のびの低下であることが知られている。ここに示したように、炭素量の増加、ずなわち、セメントイト分散によって加工硬化率が大きくなること、そのため一様のびが大きくなることを見いだした¹⁹⁾。

超微細粒鋼は、絞りにも優れている。この場合の絞りとは、

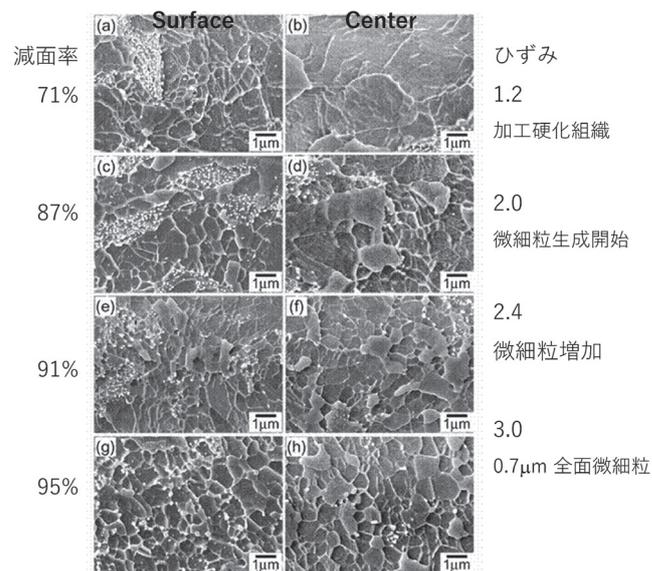


図6 温間溝ロール圧延材のひずみ増加にともなう組織変化

引張試験片が破断するまでの面積減少率である。図8に示すように、超微細粒鋼の強度－絞りバランスは、フェライト－パーライト、ベイナイト、マルテンサイトと比べ、最も優れていることを明らかにした²⁰⁾。これは超微細粒鋼の成形性を検討してゆく上での重要な基礎データとなった。

3 強度と成形性の両立と超微細粒組織線材の量産化

結晶粒微細化に伴う延性（伸び）の低下を、第2相との複合化によって解決しようとした研究報告は多いが、必ずしも成形性向上という観点からは、成功していない。超微細粒鋼は、上述のように、強度－絞りバランスが優れている。我々は、むしろ第2相の全くない純鉄に近い組成を追求し、延性の一種である絞り特性を高めることによって、成形性を良好な状

態を実現できた。例えば、図9 (a) に示すフェライト＋パーライト組織を冷間加工すれば、1GPaの強度は出せるが、ねじに成形したら割れてしまう。図9 (b) に示す純鉄に近い組成の極低炭素フェライト単相組織をサブミクロンレベルまで超微細化した。その結果、冷間加工後1GPa以上の高強度と延性の指標である絞り値75%以上の高延性が得られ、ねじ成形しても割れない高成形性を実現できた^{7,21,22)}。

超微細粒組織鋼が線材として供給できるようになれば、この線材を新しい高強度非調質冷間圧造用鋼として提供できることになる。超微細粒組織を持った線材を製造するためには、連続大ひずみ圧延が必要である。大ひずみの導入方法は多方向加工がある^{16,17,24,25)}。多方向加工は鍛造型の圧縮加工であるが、それを圧延で連続的に実現するための連続圧延プロセスの開発を行った。オーバル・スクエア孔型を用いた温間多方向連続圧延を可能にする圧延機を試作した^{5,23-25)}。

0.01C-0.2Mn-0.3Siの組成の鋼を素材とし、本温間連続圧

超微細粒鋼の応力－ひずみ曲線におよぼす炭素濃の影響

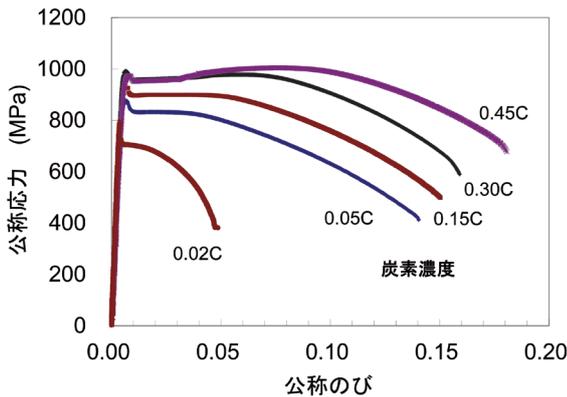


図7 温間溝ロール圧延材の応力－ひずみ曲線

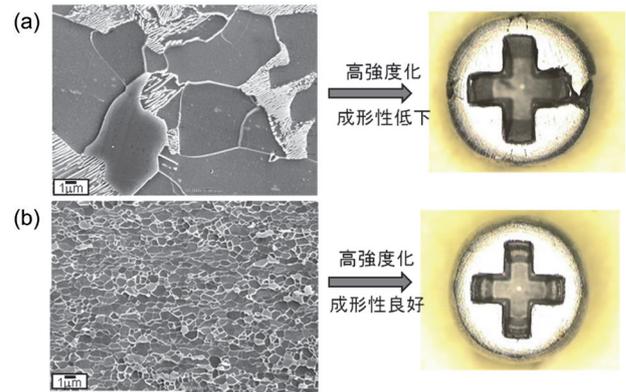


図9 組織と成形性の関係

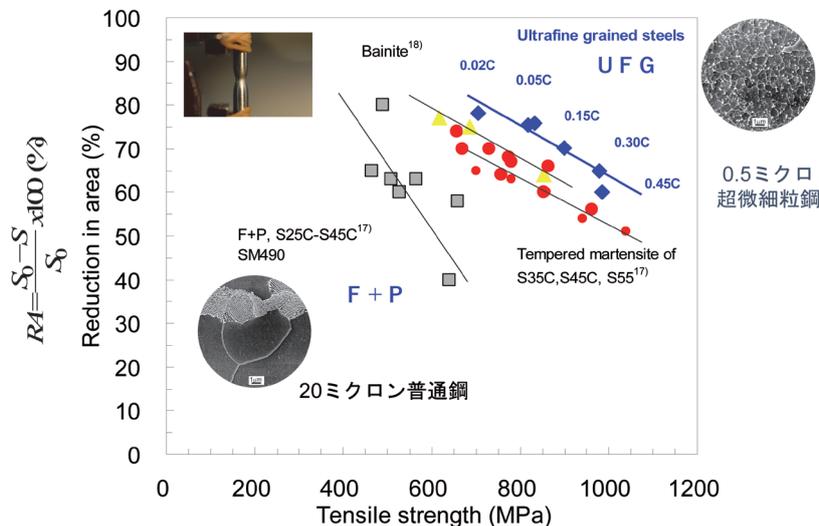


図8 超微細粒鋼のもつ優れた強度－絞りバランス

延によって、サブミクロンの微細粒鋼を作製した。直径6mmの線材をスタート材とし、3mmまで、圧延温度500℃の温間圧延を行うことによって、図10に示す数10kgの線材が製造できた^{7,25)}。さらに、本連続温間圧延で製造した線材を直径1.3mmまで冷間伸線した。この線材を素線として、図10に示すM1.6マイクロねじの成形（(株) 降矢技研）を行った。

本超微細粒組織高強度ねじは、図11のパナソニック初のスマートフォンP-07C（2011年8月発売）に採用され、後継機のP-03E ELUGAに至るまで採用され続け、ねじの累計製造個数は約1000万個を超えている。サブミクロン超微細粒組織金属の量産・実用化を達成した世界初の成果となった⁷⁾。量産化にあたっては、ねじ製造に関しては（株）降矢技研、線材製造に関しては大阪精工株式会社と物質・材料研究機構との5年以上にわたる共同研究があって、実現できたものである。さらに、近畿経済産業局サポインなど、競争的研究資金の援助もあった。



図10 超微細粒組織線材とその線材から製造されたM1.7マイクロねじ

4 中Mnハイテンへの展開

単純なFe-C鋼で研究を行ってきたのが、第一世代超鉄鋼研究といえる。金属組織としては、超微細フェライトとセメンタイトの組織である。我々はこの超鉄鋼研究を、5% Mn鋼に適用することによって、第2世代の超鉄鋼の研究を行ってきた^{26,27)}。残留オーステナイトが室温まで安定に存在できる。材料の変形中に、残留オーステナイトがマルテンサイトに変態する加工誘起変態（Transformation Induced Plasticity）TRIP現象が、材料に著しい延性を与える。第一世代超鉄鋼の弱点であった一様延性の不足が解決できる。

図12に0.1C-2Si-5% Mn組成の超微細フェライト+オース



図11 パナソニックスマートフォンと採用された超微細組織マイクロねじ

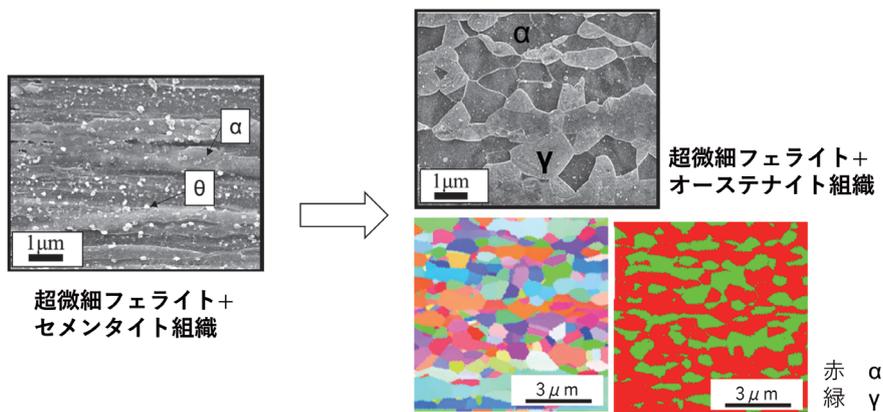


図12 0.1C-2Si-5% Mn組成の超微細フェライト+セメンタイト組織と2相域焼鈍後の超微細フェライト+オーステナイト組織鋼のSEM像およびEBSD像（IPF像、Phase map）

テナイト組織鋼のEBSD像を示す。0.1C-2Si-5% Mn フェライト+セメンタイト組織を2相域温度 (675°C) に昇温し、熱処理を行うと、組織はフェライトと微細な残留オーステナイト (体積率20%以上) に変化する。一般のTRIP鋼製造するプロセスであるオーステンパー処理は不要である^{28,29)}。また、課題であった短時間でのオーステナイト組織の形成も可能となった²⁹⁾。この組織の引張特性も図13に示すが^{28,29)}、1200MPaレベルの高強度を維持したまま、全伸びは30%を超え、TSxTE=32000MPa%という高特性が得られた。多量で安定性の高いオーステナイトの加工誘起変態の効果である。図14からも明らかなように、既存のTRIP鋼に比べ、格

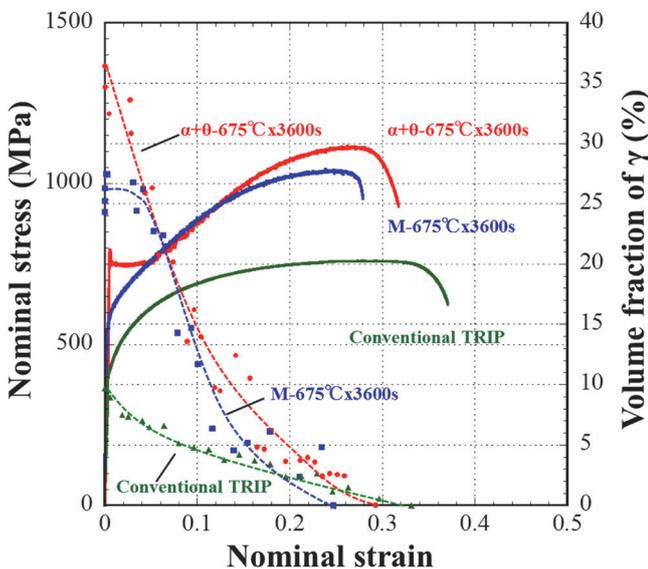


図13 0.1C-2Si-5% Mn組成の超微細フェライト+オーステナイト組織鋼の応力-ひずみ曲線とオーステナイトの加工誘起変態挙動の関係、従来TRIP鋼との比較²⁹⁾。

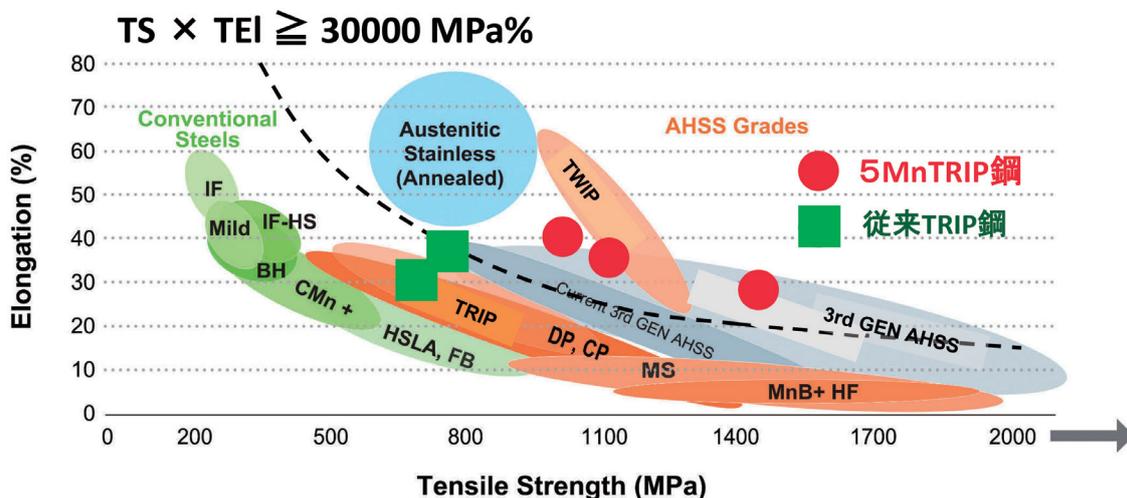
段に優れた特性を持っている²⁹⁾。第2世代の超鉄鋼であり、優れたバランスを持っていることは明かである。今後の自動車用ハイテンとしての発展が期待される^{29,31)}。

5 まとめ

超鉄鋼研究の開始から20年以上経つが、企業との長年の協力のもと、大きな課題の解決によって、鋼の超微細粒組織化を用いた高強度精密ねじの量産化を世界で初めて実現でき、CO₂排出量50%削減につながった。ねじの累計製造個数は1000万個を超えた。今後の環境重視、低エネルギー化の中で、大きなメリットであり、幅広い発展が期待できる。ねじは、それ自体は小さいが、本技術は環境・エネルギー問題の解決に寄与するものである。今後も、本技術をさらに発展させ、より広範囲な応用につなげたい。また中Mn鋼を第3世代超鉄鋼として発展させてゆきたい。

謝辞

本研究の遂行に当たり、物質・材料研究機構 岸輝雄先生、岡田雅年博士、齋藤鐵哉博士、佐藤彰博士、長井寿博士、花村年裕博士、村松榮次郎氏、塚本雅敏博士、細田義郎氏、櫻井昇氏、野澤智子氏、土谷悦子氏、高鍋あい子氏、エレナ ブルガレビッチ氏、永嶋泰代氏、奥田正美氏、材料創製・加工ステーションの方々、他本研究を支援くださったNIMSの方々、Dr. Narayana Murty、JFEスチール(株)大森章夫博士、東京理科大学、芝浦工業大学の学生の皆様、大阪精工(株)森川勉氏、(株)降矢技研鈴木由幸氏、(株)小松精機工作所小松隆史氏、(株)松一松澤正明氏、東京工業大学加藤雅治先生、兵庫県立大学の教員、学生の皆様、他関係の皆様にご多大なご指導、ご協力をい



Source: WorldAutoSteel

図14 種々の薄鋼板の強度・延性バランスと5MnTRIP鋼の位置づけ^{29,31)}

ただきましたこと心から感謝申し上げます。

また、本研究の推進にあたって、超鉄鋼プロジェクト、JST産学共創基礎基盤研究プログラム革新的構造用金属材料創製を目指したヘテロ構造制御に基づく新指導原理の構築、革新的構造材料等研究 (ISMA)、日本鉄鋼協会第25回鉄鋼研究振興助成、天田財団研究開発助成、池谷科学技術振興財団研究助成、近畿経済産業局サポイン、関東経済産業局サポインなどの多くのご支援をいただきました。

参考文献

- 1) 牧正志：第177・178回西山記念技術講座，日本鉄鋼協会，(2002)，3.
- 2) V. Segel, V. Renznikov, A. Drobyshevsky and V. Kopylov : Russ Metall, 1 (1981), 115.
- 3) N. Tsuji, Y. Saito, H. Utsunomiya and S. Tanigawa : Scr. Mater., 40 (1999), 795.
- 4) I. Saundars and J. Nutting : Met. Sci., 18 (1984), 571.
- 5) 鳥塚史郎，長井寿，佐藤彰：塑性と加工，42 (2001)，287.
- 6) 鳥塚史郎：ふえらむ，10 (2005)，188.
- 7) 鳥塚史郎，村松榮次郎：ふえらむ，20 (2015)，408.
- 8) 鳥塚史郎，梅澤修，津崎兼彰，長井寿：鉄と鋼，86 (2000)，807.
- 9) 大森章夫，鳥塚史郎，長井寿，山田賢嗣 向後保雄：鉄と鋼，88 (2002)，857.
- 10) A. Ohmori, S. Torizuka, K. Nagai, N. Koseki and Y. Kogo : Mater. Trans., 45 (2004)，2224.
- 11) N. Murty, S. Torizuka and K. Nagai : Scr. Mater., 53 (2005)，763.
- 12) N. Murty, S. Torizuka, K. Nagai, N. Koseki and Y. Kogo : Scr. Mater., 52 (2005)，713.
- 13) N. Murty, S. Torizuka and K. Nagai : ISIJ Int., 45 (2005)，1651.
- 14) N. Murty, S. Torizuka and K. Nagai : Mater. Trans., 46 (2005)，2454.
- 15) N. Murty, S. Torizuka and K. Nagai : Mater. Sci. Eng. A, 410-411 (2005)，319.
- 16) 鳥塚史郎，井上忠信，長井寿：鉄と鋼，86 (2000)，801.
- 17) 大森章夫，鳥塚史郎，長井寿，小関尚史，向後保雄：鉄と鋼，89 (2003)，781.
- 18) S. Torizuka, A. Ohmori, N. Murty and K. Nagai : Scr. Mater., 54 (2006)，563.
- 19) A. Ohmori, S. Torizuka and K. Nagai : ISIJ Int., 44 (2004)，1063.
- 20) S. Torizuka, E. Muramatsu, N. Murty and K. Nagai : Scr. Mater., 55 (2006)，751.
- 21) S. Torizuka and E. Muramatsu : Steel Res. Int., 81 (2010)，258.
- 22) 鳥塚史郎：まてりあ，45 (2006)，438.
- 23) 鳥塚史郎，村松榮次郎，井上忠信，長井寿：日本金属学会誌，72 (2008)，571.
- 24) 鳥塚史郎，村松榮次郎，鈴木由幸，森川勉：第63回度塑加工連合講演会講演論文集，(2012)，19.
- 25) S. Torizuka, E. Muramatsu, T. Komatsu and S. Nagayama : Nanostructured metals and alloys 1, Woodhead Publishing, Cambridge UK, 6 (2011)，715.
- 26) 鳥塚史郎，花村年裕：ふえらむ，17 (2012)，852.
- 27) T. Hanamura, S. Torizuka, A. Sunahara, M. Imagumbai and H. Takechi : ISIJ Int., 51 (2011)，685.
- 28) 熊倉美亜，鳥塚史郎，足立大樹，花村年裕：材料とプロセス，29 (2016)，345, CD-ROM.
- 29) 安達節展，鳥塚史郎，足立大樹，伊東篤志：鉄と鋼，105 (2019)，197.
- 30) 前田晃宏，鳥塚史郎，足立大樹：自動車技術会誌，49 (2018)，856.
- 31) 蓑田和樹，鳥塚史郎，足立大樹：材料とプロセス，32 (2019) 1, PS44, CD-ROM.

(2019年5月8日受付)