



H. Miyamoto

強せん断変形によるニオブ管の 金属組織改善と高成形性化

宮本 博之*

1. まえがき

高エネルギー加速研究機構 (KEK) が主体となる次世代型直線衝突加速器「国際リニアコライダー (ILC)」計画では数万個が連結された高純度ニオブ製の超伝導加速空洞が使用される¹⁾。この超伝導ニオブ空洞はこれまで板からプレス加工により碗状の半セルに成形して、向かい合わせた1組の半セルを電子ビーム溶接 (ERW) により単一セルを作製して連結させていく製造が検討されている。しかし、この方法では生産性の低さと莫大な製造コストが課題となっている。そこで、長尺のニオブ管から液圧成形によりセル連結体を一機に製造する方法が検討されている¹⁾。

ニオブは変態点をもたない BCC 金属であり、不均一組織が残留しやすく、これが原因と考えられる成形性不足が問題となる。特にリジングと呼ばれる成形時に生じる圧延方向のしわ状の欠陥が問題となる場合が多い²⁾。組織の不均一性はコロニーと呼ばれる類似の結晶方位を有する結晶粒群が存在し、その不均一変形により発生するものと考えられている³⁾。コロニーが形成される原因としては、変態点を持たないこと、BCC 構造であるので、回復が早く、再結晶の駆動力である転位エネルギーを減少させて再結晶を起りにくくするためである⁴⁾。さらにニオブは高融点でありながらヤング率が鉄の半分であり、加工硬化性が低いため成形性が低い⁵⁾。

近年、強ひずみ加工 (SPD) によりせん断帯を導入することで再結晶を促進してリジングを低減させた例が報告されている⁶⁾。具体的には熱延板を SPD の 1 種である ECAP を 1 パスのみ加工して、加工組織に再結晶の駆動力となるせん断帯を高密度に導入して、再結晶を促進して、板の成形性の指標である r 値とリジング性を改善している^{6,7)}。一方、金属管についても SPD の 1 種である Tube channel pressing (TCP) の加工をフェライト系ステンレス鋼管に対して 1 パスのみ加えて、その後の熱処理によりリジングと成形性が改善された⁸⁾。TCP 法は高い加工力が必要なことが課題であり、加工力の低減を目的に Parallel tubular channel angular pressing (RTCAP) 法と呼ばれる ECAP 法を管材用に適用した手法が考案され、金属管に対する結晶粒超微細化の効果が報告されている⁹⁾。

そこで、本研究ではニオブの管材に RTCAP 法を適用して集合組織を制御することでリジングを軽減させ、成形性を

向上させることを目的とした。

2. 実験方法

供試材として高純度ニオブインゴットを鍛造したものを使用した。鍛造後、ワイヤーカットによってシームレスの高純度ニオブ管を切り出した。高純度ニオブ管は切り出し後、1373 K で焼きなまし処理した。

PTCAP 法には供試材から外径 50.8 mm、肉厚 1 mm、長さ 70 mm を切り出した。PTCAP 加工前の試験片を As 材とし、試験片の方向を図 1 のように定義した。PTCAP 加工後の試験片を PTCAP 材とする。液圧バルジ試験には As 材として供試材から外径 43 mm、肉厚 1 mm、長さ 63 mm を切り出した。試験片の方向は PTCAP 法の管材と同様とする。



図 1 PTCAP 加工のニオブ管の座標定義

本研究の工程の概略図を図 2 に示す。PTCAP 加工を施した試験片に熱処理を行い、引張試験、ビッカース硬さ試験、XRD 解析、EBSD 測定を行った。PTCAP 加工された高純度ニオブ管とされていない管材について液圧バルジ試験を行った。

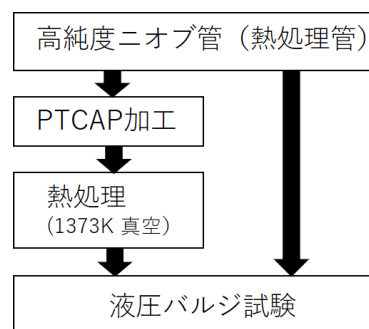


図 2 実験方法の全体流れ

*同志社大学 理工学部機械システム工学科 教授

2.1 PTCAP 法について

PTCAP 法における金型のチャンネル形状を図 3 に示す。PTCAP 法とは、ECAP 法を管に適用した加工法とみることができる。PTCAP 法ではマンドレルとダイの屈曲部の隙間に管を押込む。1 度の加工で、同一面で正と逆方向のせん断変形を加えることが出来る。チャンネル角 ϕ 、屈曲部の曲率角 ψ とすると、相当塑性ひずみは以下の式を用いることができる⁹⁾。

$$\bar{\varepsilon} = \frac{1}{\sqrt{3}} \left[2 \cot \left(\frac{\phi}{2} + \frac{\psi}{2} \right) + \psi \operatorname{cosec} \left(\frac{\phi}{2} + \frac{\psi}{2} \right) \right] \quad (1)$$

チャンネル角と屈曲部の曲率角は 2 回のせん断において同一である。また PTCAP における半径方向および円周方向のひずみの存在を考慮すると、相当ひずみ ε_T の値は、次のように計算することができる。

$$\bar{\varepsilon}_T = \sum_{i=1}^2 \frac{1}{\sqrt{3}} \left[2 \cot \left(\frac{\phi_i}{2} + \frac{\psi_i}{2} \right) + \psi_i \operatorname{cosec} \left(\frac{\phi_i}{2} + \frac{\psi_i}{2} \right) \right] + \bar{\varepsilon}_\theta \quad (2)$$

$$\bar{\varepsilon}_\theta = \frac{2}{\sqrt{3}} \varepsilon_\theta \quad (3)$$

$$\varepsilon_\theta = \ln \frac{R_2}{R_1} \quad (4)$$

ここで、 ε_θ は円周方向ひずみ、 R_1 と R_2 は図 3 に示す加工前後のパイプ内径である。

押し込み速度は -z 方向に 1 mm/min で行った。摩擦の低減として金型、マンドレル及びニオブ管表面に潤滑剤としてフルトライボを使用した。実際の試験機を使った加工の外観図を図 4 に示す。加工後の試験片は外径 43 mm、厚さ 1 mm となり、バルジ試験の As 材と同様の形状とした。

加工後の再結晶温度を評価するために、赤外線電気炉（アドバンス理工(株)：MILA3000UHV）を用いた。ニオブは大気中では 500 K で酸化するため、熱処理は真空で行う必要があり、圧力は 1.0 Pa で行った。熱処理温度は 1173 K から 1373 K の範囲で 100 K 刻みの各温度で 180 s 保持したのちに炉冷する焼鈍熱処理を行った。

機械研磨後、フッ化水素酸と硝酸を用いてエッチングを施し、TD 面を光学顕微鏡（(株)ニコン：OPTIPHOTO-100）を用いて 400 倍で観察した。

As 材と PTCAP 加工及び加工後に熱処理した試験片についてそれぞれ ND 方向の集合組織として主要な結晶方位の割合を求めるために X 線回折を用いた。縦方向に長さ 10 mm、幅 10 mm で切り出した試験片を塑性変形により板状にした後、試料表面を機械研磨で厚さの半分まで削ることで板厚中央部にて測定を行った。測定条件として X 線ターゲットは CuK- α 、印加電圧 45 kV、印加電流 200 mA、スキャン範囲を 20~140 $^\circ$ 、スキャンスピード 2 deg/min で行った。測定した値からそれぞれの方位の積分強度を算出した。

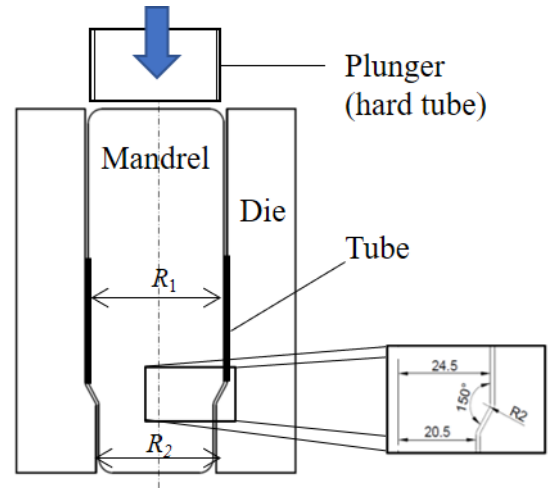


図 3 PTCAP 加工のチャンネル形状

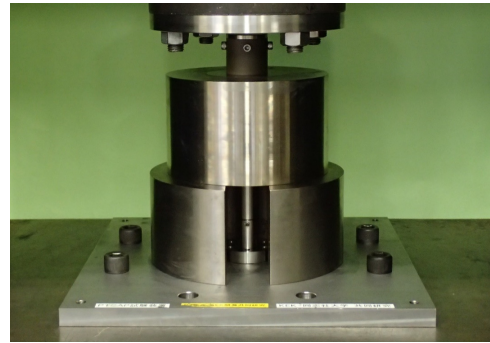


図 4 PTCAP 加工の外観写真

PTCAP 加工後の液圧成形性を評価するため、液圧バルジ試験を行った。両端を自由にする自由端で行った。ニオブ管を試験装置に設置し、管内を油で満たした後、破裂するまで 0.1 MPa/sec で油圧を上昇させた。1 MPa ごとに 2 点の最大外径を測定し、破裂後には 16 点の最大外径と厚みを測定した。また破裂後を成形限界とし、その時の拡張率を限界拡張率とする。限界拡張率を LER、変形前の外径を D_0 、成形限界での外径を D とする際の算出方法を以下に示す。

3. 結果および考察

3.1 PTCAP 加工後の結晶組織と硬さ

As 材は鍛造後焼鈍しされているが、焼きなましを完了していることを確認するために As 材および加工と熱処理温度後の硬さの変化を図 5 に示す。1273 K で軟化が見られ、再結晶が始まっていることが確認できた。次に加工前後と熱処理後の TD 面について、光学顕微鏡を用いて加工組織と再結晶組織を確認した（図 6）。加工後は結晶粒に斜めのバンド状の組織が随所に観察されて、せん断帯であると考えられる。ニオブは加工硬化しにくい一様な変形が起こりにくく、塑性不安定現象であるせん断帯が形成

しやすいことが示唆されている¹⁰⁾。再結晶後の組織では加工前よりも等軸で均一な組織が確認できた。

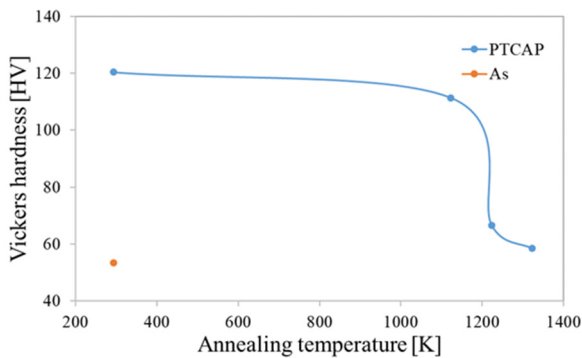


図5 熱処理後の温度と硬さの関係

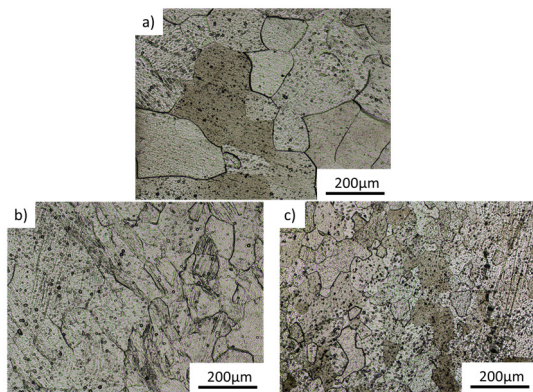


図6 光学顕微鏡による断面組織 (a)As 材, (b)PTCAP 加工後, (c)熱処理後

3.2 PTCAP 加工が結晶方位に及ぼす影響

PTCAP 加工の影響及び再結晶が及ぼす結晶方位の変化を確認するために、As 及び熱処理前後に XRD 解析を行った。測定した値を粉末試料から標準化することで、加工と再結晶における優先方位を特定した。その結果を図7に示す。結晶方位は主に{100}//ND, {110}//ND, {111}//NDが確認されたが、それ以外の方位が確認できる。As 材では粉末試料と比較して{110}, {111}が弱く、{310}が強い。これに対して、PTCAP 加工によって{321}が強くなったことが分かる。この変化は組織観察よりせん断帯の影響が示唆される。加工時にせん断帯形成の要因となる局所的な方位回転が起こり、せん断帯が{321}として形成されたと考えられる。再結晶後では{321}が残留し、{111}も強くなっていた。ニオブは圧延を施すと、圧延率の増加に伴い加工後とその後の熱処理において{111}//ND が強くなる。PTCAP 加工では加工後と熱処理後では{321}が強くなっているため、この変化は PTCAP 加工特有である。そこで同じ BCC 構造を有する鋼板で成形性の指標である r 値との

相関があるとされる{111}と{100}のX線回折の強度比を、加工前、加工後、熱処理された試料について図8に示す。図8より熱処理によって割合が大きく上昇していることから成形性が向上していることが考えられる。

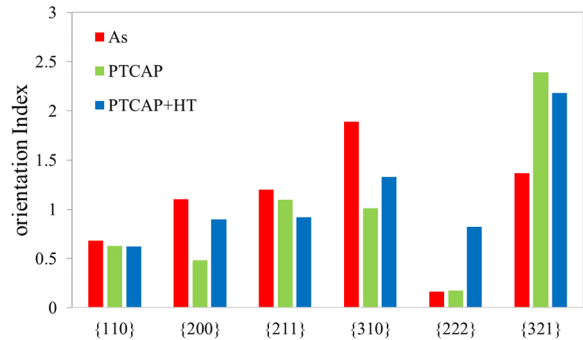


図7 X線回折による主要方位のピーク高さ

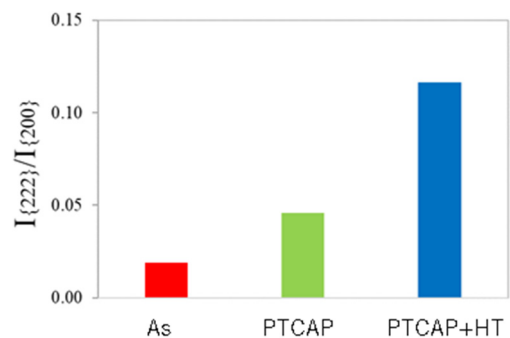


図8 各工程後の{222}/{200}X線強度比

3.3 PTCAP 加工による材料的特性の変化

PTCAP 加工前後で熱処理した試験片の加工性を調査するため引張試験を行った。加工において材料の面内での異方性は成形限界に影響するため、引張試験は管材の長手方向である軸方向、円周方向及びそれらの間となる45°方向で行った。そのうち軸方向と円周方向について応力-ひずみ線図を図9に示す。PTCAP 加工によって軸方向、円周方向ともに破断伸びが大幅に改善されたことが分かる。さらに均一伸びも大幅に改善された。改善された理由として PTCAP 加工と熱処理によって等軸で均一な再結晶粒が得られたことが原因である。3方向の応力ひずみ線図から得られた加工硬化指数(n 値)の平均値を図10に示す。伸びと同様に加工硬化指数も PTCAP 加工によって20%ほど向上した。加工硬化指数と液圧成形性との理論的關係が示されている¹¹⁾。また、引張試験で得られたr値を図11に示す。円周方向ではr値に大きな変化はないが、軸方向および45°方向では向上していた。

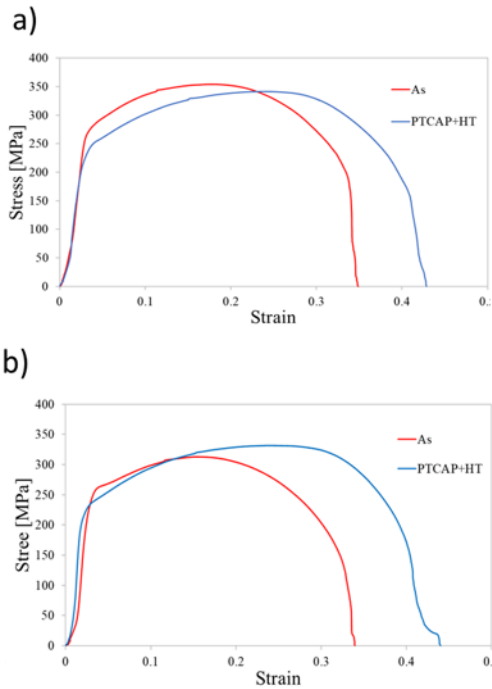


図9 通常管および RTCAP 加工管の応力ひずみ線図 (a)長軸方向, (b)円周方向

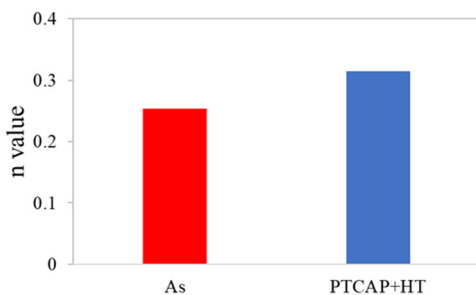


図10 通常管および RTCAP 加工管の n 値の比較

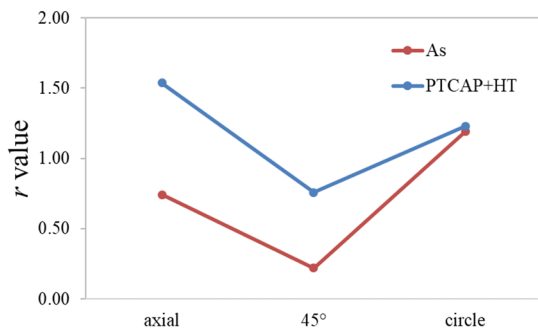


図11 通常管および PTCAP 加工した管の r 値の比較

3.4 PTCAP 加工による液圧成形性への影響

液圧成形性の変化を調査するため、液圧バルジ試験を行った。液圧バルジ試験は管材の両端を固定しない両端自由を採用し、破断まで内圧を上昇させた。As 材と PTCAP 加工後に 1373 K で 3 時間熱処理したニオブ管で試験を行った。両者の拡管率はそれぞれ 9.9 %, 21.1 % となった。PTCAP 加工によって拡管率は 2 倍近くまで上昇し、液圧成形性の向上が得られた。

試験後の破断部および外観写真を図 12 に示す。両管ともにリジングと呼ばれる軸方向に平行なしわが観察されて、破断はリジングのしわに沿って発生している。しかし、破断までの拡管率は明らかに PTCAP 材の方が高く、液圧成形性への効果が確認された。

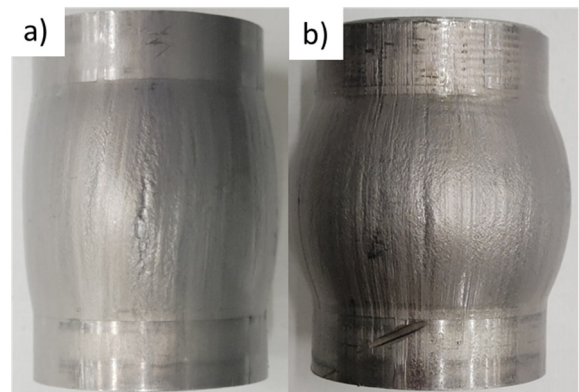


図12 (a)通常管および(b)PTCAP 加工した管の液圧バルジ試験後の外観写真

4. 結言

本研究では高純度ニオブ管について PTCAP 加工による液圧成形性の向上について調査を行った。その結果、以下の結論が得られた。

- (1) PTCAP 加工によって組織に加工と同一方向に不均一な変形であるせん断帯が発生し、硬さが向上した。このせん断帯はニオブの加工硬化特性の低さに起因しており、ニオブでは起こりにくい再結晶の核となる。その後の熱処理によって 1373 K で再結晶が確認され、等軸で均一な再結晶粒が得られた。
- (2) 結晶方位測定によって優先方位が確認できた。加工前では強くなかった $\{321\}/ND$, $\{111\}/ND$ 方位が加工後、熱処理後に強くなった。結晶方位の変化として加工後に発生したせん断帯の影響が示唆された。
- (3) 加工後に再結晶させた試料の機械的性質を調査したところ、液圧成形に起因する n 値, r 値がともに向上していた。 n 値は均一な再結晶粒により、 r 値は方位制御による改善であった。特に r 値は平均値

だけでなく、面内異方性も改善されたため液圧成形性の大幅な向上が示唆された。

- (4) 加工の有無による液圧成形性を調査するため、液圧バルジ試験を行った。その結果、液圧成形性の大幅な改善が見られた。その要因として n 値と r 値の向上とリジングの改善による。

謝 辞

本研究は、公益財団法人天田財団からの一般研究助成により実施した研究に基づいていることを付記するとともに、同財団に感謝いたします。

参考文献

- 1) 井上均, 田島健, 山中将, 上野健治, シームレス空洞の製作, 第13回高エネルギー研メカ・ワークショップ報告集 (2012) 77-78.
- 2) 大橋延夫, 17%Crステンレス熱延鋼帯のリジング発生原因, 日本金属学会誌 31 (1967) 519-525.
- 3) 武智弘, 加藤弘, 角南達也, 中山正, 17%Crステンレス鋼のリジング現象の発生機構, 日本金属学会誌 31 (1967) 717-723.
- 4) 松尾宗次, ステンレス鋼のリジングとその対策, 日本金属学会会報 19 (1980) 192.
- 5) 山口裕太, 泉拓水, 湯浅元仁, 宮本博之, 山中将, 超伝導加速空洞用高純度ニオブの再結晶挙動と集合組織, 日本金属学会誌 82 (2018) 262-268.
- 6) 足立光明, 湯浅元仁, 宮本博之, 藤原弘, 秦野正治, ECAP・冷間圧延の二段プロセスにより作製したフェライト系ステンレス鋼板のリジングと成形性におよぼす熱延板の初期結晶粒径の影響, 日本金属学会誌 82(2) (2018) 52-57.
- 7) H. Miyamoto, T. Xiao, T. Uenoya, M. Hatano, Effect of simple shear deformation prior to cold rolling on texture and ridging of 16% Cr ferritic stainless steel sheets, ISIJ International 50(11) (2010) 1653-1659.
- 8) 北野祐輝, 湯浅元仁, 宮本博之, M.H. Farshidi, E. Bagherpour, Tube channel pressing (TCP)法によるフェライト系ステンレス鋼管の成形性向上, 第18回高エネルギー研メカ・ワークショップ報告集 (2017) 41-44.
- 9) G. Faraji, A. Babaei, M.M. Mashhadi, K. Abrinia, Parallel tubular channel angular pressing (PTCAP) as a new severe plastic deformation method for cylindrical tubes, Materials Letters 77 (2012) 82-85.
- 10) H.R.Z. Sandim, H.H. Bernardi, B. Verlinden, D. Raabe, Equal channel angular extrusion of niobium single crystals, Materials Science and Engineering A 467(1-2) (2007) 44-52.
- 11) S. Fuchizawa, Influence of plastic anisotropy on deformation of thin-walled tubes in bulge forming, in: K. Lange (Ed.) Second international conference on technology of plasticity, Springer-verlag, Stuttgart, 1987, pp. 727-732.