

鉄系材料の加工熱処理における再結晶粒径分布の 発生原因とその制御法の検討

東京工業大学 工学院
教授 吉野 雅彦

(2019年度 一般研究開発助成 AF-2019010-B2)

キーワード：静的再結晶，結晶粒微細化，純鉄，圧延加工，切削加工，変形組織

1. 研究の背景と目的

近年の社会的課題であるエネルギー、環境、資源などの問題に対応するために、素材の高強化や高機能化が重要な技術的課題である。これまでも加工熱処理による結晶組織制御が開発され、様々な高機能鉄鋼材料が開発されてきた。そのような組織制御による高機能素材の一つとして超微細粒鋼が注目されている。超微細粒鋼は単純組成の鋼材を用い、加工熱処理により高強度、高靱性を実現できるため、エネルギー、環境、資源等の問題への対処として重要な役割を果たすと期待される。さらに近年注目されている微細塑性加工において安定した加工特性、製品特性を得るためには結晶粒の異方性の影響を抑制することが重要であり、この点で超微細粒鋼は有用である¹⁾。

超微細粒鋼を作成するには素材に大きな塑性ひずみを加え、熱処理により同時に大量の再結晶核を発生させる必要がある。一般には圧延などの塑性加工法で強ひずみを与える手法が用いられるが、多結晶の鉄鋼材料では結晶粒内に結晶方位の違いによるひずみ分布が生じるため、場所により再結晶粒の生成状況が異なる。そのため素材全体の組織を均一に微細粒化するために過剰な塑性変形を要していると考えられる。効率的に均一な微細な組織生成する方法を開発するためには、塑性変形によってどの様に変形組織の分布が生じ、それがどの様に結晶粒径分布に影響するかを明らかにすることが重要である。

本研究では塑性変形が再結晶組織に及ぼす影響を明瞭にすることを目的としている。合金成分を含まない純鉄を素材とし、塑性変形として板圧延と切削加工を比較し、変形の違いが静的再結晶粒分布に及ぼす影響を検討する。

2. 静的再結晶実験²⁾⁻⁴⁾

2.1 実験方法

図1に示すように $\phi 100\text{ mm}$ の純鉄丸棒を素材として、NC旋盤にて外周を二次元切削し帯状の切屑を取得し、それを切屑試験片とした³⁾。また同素材から厚 3 mm ×幅 10 mm ×長 30 mm の板片を切り出し、1パスの平圧延を行い圧延試験片とした。表1にそれぞれの加工条件を示す。なお表中の切屑試験片の剪断ひずみ γ は単純剪断面モデルに基づいたひずみであり、また圧延試験片の圧縮ひずみ ϵ_H は圧下率から求めた公称ひずみである。

これらの試験片をアルゴン雰囲気炉にて急速加熱急速冷却の熱処理を行った。熱処理温度は $500\text{ }^\circ\text{C}$ および $600\text{ }^\circ\text{C}$ で、熱処理時間は5分間とした。加工後および熱処理後の結晶組織をSEM-EBSDにより分析した。

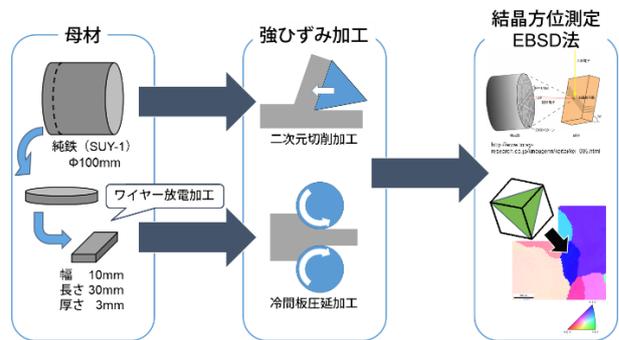


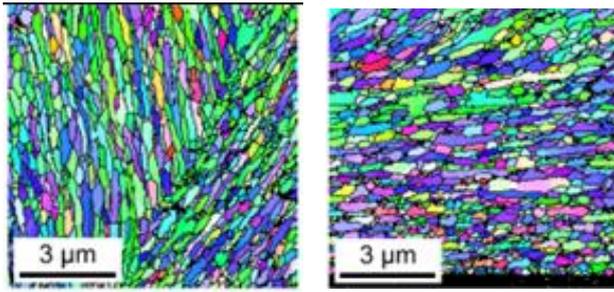
図1 純鉄丸棒を用いた加工熱処理実験

表1 加工条件

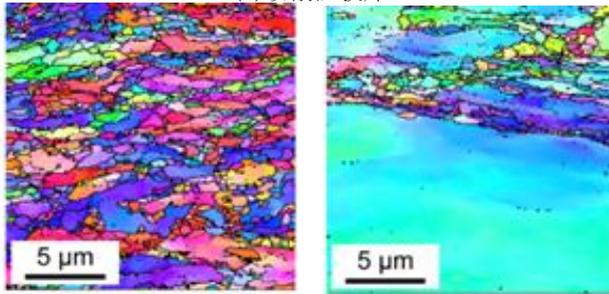
切削加工		圧延加工	
工具材種	WC-Co	ロール径	40 mm
すくい角 α	10°	ロール回転速度	10 rpm
切削速度	25 m/min	圧下率	0.91
切取厚さ t_0	0.04 mm	圧延パス数	1
潤滑条件	Dry	潤滑条件	Dry
切屑厚さ t_c	0.15 mm	圧延前板厚 H_1	2.96 mm
剪断角 ϕ	15.8°	圧延後板厚 H_2	0.27 mm
剪断ひずみ γ	3.6	圧縮ひずみ ϵ_H	-0.91

2.2 変形組織の比較

図2にそれぞれの試験片の断面のTD方向のIPFマップを示す。(a)は切削試験片で、左図は板厚中央部、右図はすくい面近傍であるが、両者ともほぼ均一な細かいサブグレインが生成しているのが見られる。(b)は圧延試験片で、左図は細かい組織が見られた部分、右図は粗い組織が見られた部分である。圧延試験片ではサブグレインの大きさが不均一であり、大きな結晶粒が残り、不均一な変形組織となっている。



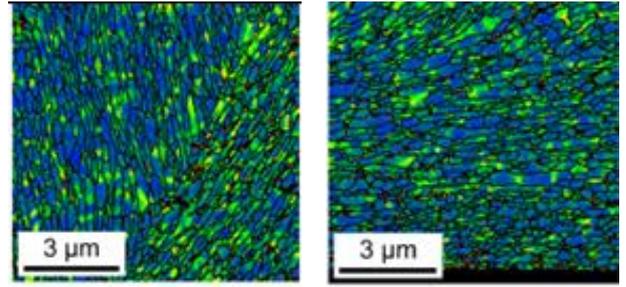
(a) 切削試験片



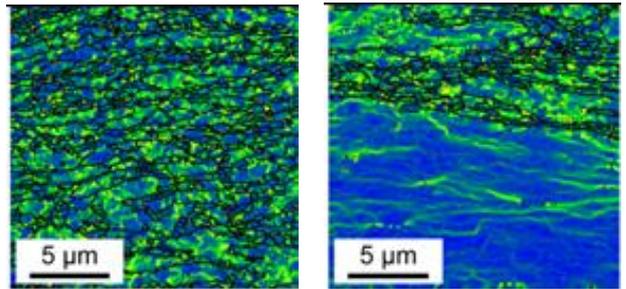
(b) 圧延試験片



図2 加工組織のIPFマップ



(a) 切削試験片



(b) 圧延試験片



図4 加工組織のKAMマップ

図3に両者のサブグレインの平均粒径の分布を示す。切削試験片では殆ど $1\mu\text{m}$ 以下に集中しているのに対し、圧延試験片では $25\mu\text{m}$ まで広く分散している。明らかに切削加工試験片の方が圧延試験片より微細で均一なサブグレインが生成されている。

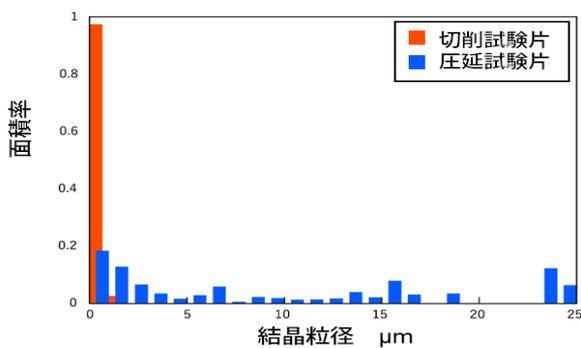


図3 サブグレインの粒径分布

図5にKAMマップより求めた粒界角の割合の分布を示す。切削試験片では大きな粒界角の割合が多いのに対し、圧延試験片では小さな粒界角の割合が多い。

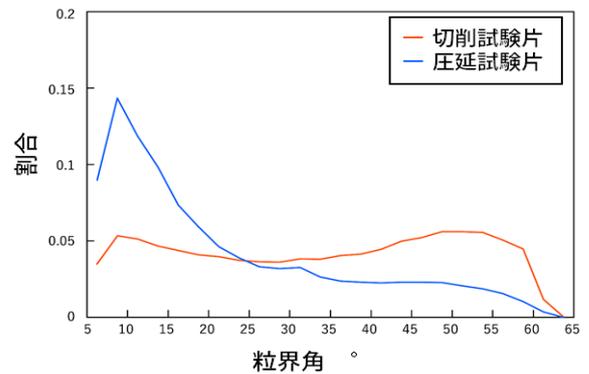
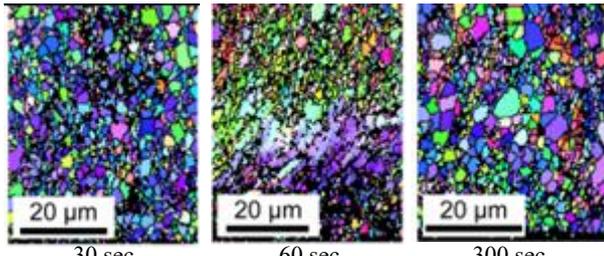


図5 粒界角分布の比較

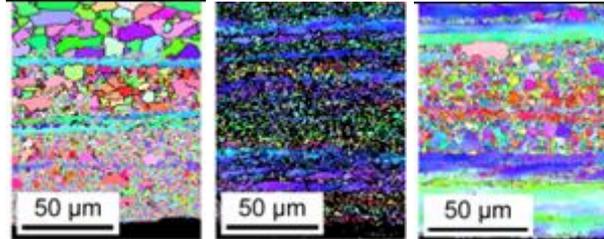
図4に両試験片のKAMマップを示す。圧延試験片では全体的にサブグレイン内でKAM値が比較的高い部分が多く分布しているように見える。KAM値は局所的な結晶方位差を表しており、5度以上の方位差はサブグレイン境界として黒線で示してある。圧延試験片ではサブグレイン境界にならない小さい方位差が結晶粒内に分布している。

2.3 静的再結晶

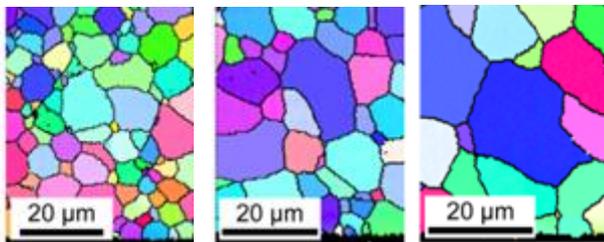
図6に熱処理した試験片組織のIPFマップを示す。(a)は切削試験片、(b)は圧延試験片を $500\text{ }^\circ\text{C}$ で焼鈍した組織であり、焼鈍時間 30 sec 、 60 sec 、 300 sec の順に並べて示す。切削試験片ではほぼ均一に再結晶粒が生じているのに対して、圧延試験片では未再結晶粒の間に再結晶粒が層状に生じている。



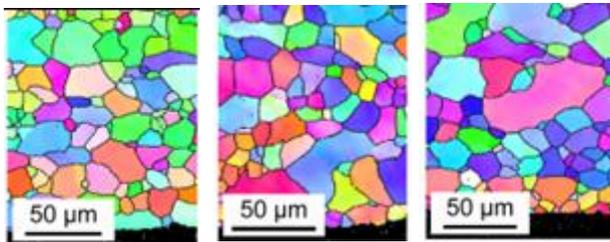
(a) 切屑試験片 熱処理温度 500 °C



(b) 圧延試験片 熱処理温度 500 °C



(c) 切屑試験片 熱処理温度 600 °C



(d) 圧延試験片 熱処理温度 600 °C

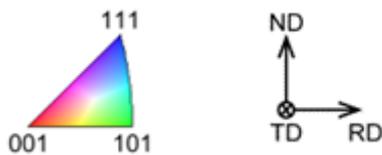


図6 熱処理した試験片の IPF マップ

また(c)(d)は600 °Cで焼鈍した組織である。粒成長が進んだ為、圧延試験片の層状の分布は目立たないが、全体的に圧延試験片の方が結晶粒が大きい。

図7に600 °Cで60 sec間焼鈍した試験片の結晶粒径に対する個数(頻度)分布を示す。切屑試験片では約3 μmに高いピークがあり、殆どの粒径は15 μm以下である。それに対して圧延試験片ではピークが低く粒径は30 μm程度まで広く分布している。

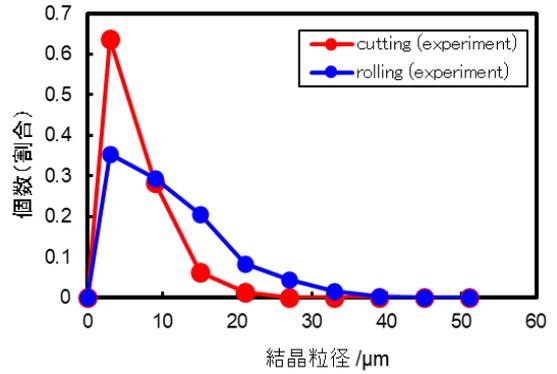


図7 粒径分布の比較

このように切屑試験片と圧延試験片では明らかに再結晶組織が異なる。この違いは変形様式および加えられた塑性ひずみの大きさによるものと考えられる。表1に示した公称ひずみでは切屑試験片に大きなひずみが加わったように見えるが、Hencky ひずみ⁵⁾を用い相当ひずみを計算すると、以下のように圧延試験片には切屑試験片の約1.8倍の相当塑性ひずみが加わっていることが判る。

$$\text{切屑試験片 } \bar{\varepsilon}_{eq} = \frac{1}{\sqrt{3}} \ln \frac{2+\gamma^2+\gamma\sqrt{\gamma^2+4}}{2} = 1.53 \quad (1)$$

$$\text{圧延試験片 } \bar{\varepsilon}_{eq} = \frac{2}{\sqrt{3}} \ln \left(\frac{H_1}{H_2} \right) = 2.76 \quad (2)$$

それにもかかわらず、切屑試験片では均一で微細な再結晶粒径が生成しており、切削加工の方が結晶粒微細化効果が大きかったと言える。これは図2、図4に示されたように切削加工では微細なサブグレインが生成され、そこから多数の再結晶粒が成長したことにより、微細な再結晶組織が生成されたと推察される。

3. 塑性加工の再結晶粒微細化効果の評価⁶⁾

切削加工と圧延加工による塑性ひずみが再結晶粒径に及ぼす効果を定量的に評価する。核発生粒成長モデルに基づき、塑性加工された金属材料から再結晶核が発生し粒成長する過程を考える。再結晶核の半径を r 、粒界エネルギーを γ をとすると、再結晶核の自由エネルギー g は

$$g = 4\pi r^2 \gamma - \frac{4}{3} \pi r^3 \Delta G_v \quad (3)$$

のように表される。ここで ΔG_v は次式で表される。

$$\Delta G_v = \Delta Q - T \Delta S \quad (4)$$

ΔQ は塑性変形によるエネルギーの増加量であり、結晶粒内に蓄積された転位の密度に対応すると考えられる。ここでは ΔQ は相当塑性ひずみ $\bar{\varepsilon}_{eq}$ に比例すると仮定する。

$$\Delta Q = \lambda \bar{\varepsilon}_{eq} \quad (5)$$

λ は塑性変形の寄与割合を表す係数である。

式(4)において ΔS はゼロと見做し、式(4)と式(5)を式(3)に代入することにより、次式が得られる。

$$g = 4\pi r^2 \gamma - \frac{4}{3} \pi r^3 \lambda \bar{\varepsilon}_{eq} \quad (6)$$

式(6)は再結晶核半径 r に関する三次関数であり

$$r = r^* = \frac{2\gamma}{\lambda \bar{\varepsilon}_{eq}} \quad (7)$$

で極大値 g^* をとる. なお g^* は次式で表される.

$$g^* = \frac{16\pi\gamma^3}{3\lambda^2 \bar{\varepsilon}_{eq}^2} \quad (8)$$

再結晶核が g^* より大きい熱エネルギーを受け取ると, 原子の拡散により成長を始め, 再結晶粒となる. 熱エネルギーはボルツマン分布するため g^* を超える再結晶核の数は次式で与えられる.

$$N = N_0 \exp\left(-\frac{g^*}{RT}\right) \quad (9)$$

g^* を超えた再結晶核は粒成長を続ける. 加工条件, 熱処理条件によっては全ての再結晶核が再結晶粒として十分成長できるわけではないが, 理想的な条件で発生した再結晶核が粒成長し, 組織全体が全て再結晶粒に置き換わった場合, 平均結晶粒径 D は次式で表される.

$$D = \left(\frac{6V_0}{\pi N}\right)^{1/3} \quad (10)$$

ここで V_0 は単位体積 ($V_0 = 1 \text{ mm}^3$) である. 式(10)の対数を取り, 式(9)式(8)を代入すると, 次式の相当塑性ひずみと再結晶粒径の関係を表わすモデル式が得られる.

$$\begin{aligned} \ln D &= \ln\left(\frac{6V_0}{\pi N}\right)^{1/3} = \frac{1}{3}\left\{\ln\left(\frac{6V_0}{\pi}\right) - \ln(N)\right\} \\ &= \frac{1}{3}\ln\left(\frac{6V_0}{\pi N_0}\right) + \frac{16\pi\gamma^3}{9RT} \frac{1}{\lambda^2 \bar{\varepsilon}_{eq}^2} \end{aligned} \quad (11)$$

ここで λ は相当塑性ひずみが再結晶粒の微細化に及ぼす影響を表している.

図8に切削実験と圧延実験にて得られた平均再結晶粒径 D と相当塑性ひずみ $\bar{\varepsilon}_{eq}$ の関係を示す. 横軸に $1/\bar{\varepsilon}_{eq}^2$, 縦軸に $\ln D$ をとる. グラフ中の実線は切屑試験片のデータの近似直線であり, また破線は切片を同じにして圧延試験片のデータを近似した直線である. これらの近似直線の傾きは式(11)の第二項の係数に対応する. 試験片素材も熱処理条件も同じなので, 近似直線の傾きの比は λ^2 の比を表している. よって λ の比は次のように計算される.

$$\frac{\lambda_{chip}}{\lambda_{roll}} = \sqrt{\frac{8.97}{5.36}} \cong 1.3 \quad (12)$$

これにより切削加工は圧延加工の約 1.3 倍の再結晶粒微細化効果があることになる.

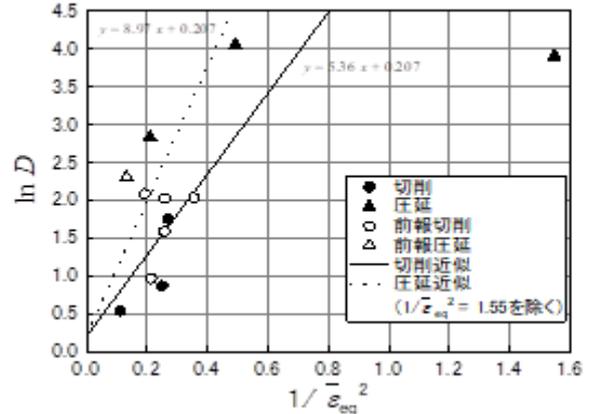


図8 相当塑性ひずみに対する平均再結晶粒径の変化

4. 加工法による変形組織の違いの要因⁶⁾

加工方法により再結晶粒径に違いが生じた原因は変形組織の違いにあり, その原因として①変形域の寸法の違い, ②変形様式の違い, ③変形温度とひずみ速度の違い, が考えられる.

① 変形域の寸法の違い:

図9に示すように, 切削加工では薄い剪断面で集中的な剪断変形が起こる. 一般の切削条件における剪断面の厚さを本実験に当てはめると約 $24 \mu\text{m}$ 程度と推定される. 加工前の試験片の平均結晶粒径は約 $80 \mu\text{m}$ だったので, 結晶粒径より薄い剪断面が結晶粒内を貫き剪断変形が生じたことになる. これにより全ての結晶粒が均一に塑性変形したものと考えられる. それに対し圧延では, 変形域が結晶粒より遥かに大きい. このため結晶粒界でのすべり変形により結晶の回転が生じ, 変形し易い結晶粒が優先的に変形したことにより, 不均一なひずみ分布が生じたと考えられる.

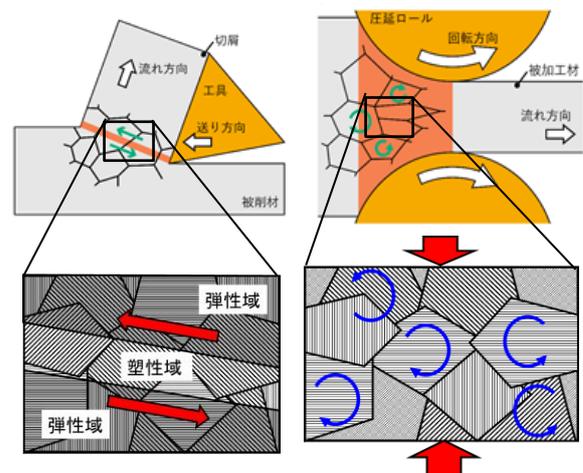


図9 圧延と切削における試験片の結晶方位データ

② 変形様式の違い：

切削では剪断変形が生じるのに対し、圧延では平面ひずみ圧縮変形が生じる。そこで結晶塑性理論に基づき、図10に示す単要素のモデルの剪断変形と平面ひずみ圧縮変形をシミュレートした。構成式にはAsaroの式、加工硬化則にはKocks, Meckingの式を用い、材料パラメータは単結晶純鉄の引張試験と結晶塑性有限要素法解析との比較より定めた。すべり系は $\{110\}\langle 111 \rangle$ および $\{112\}\langle 111 \rangle$ の24系とし、単要素の結晶方位をランダムに3000通り選び、逐次、活動すべり系、結晶方位、加工硬化を更新しながら増分計算を行った。

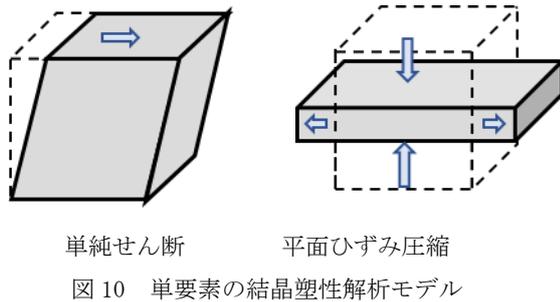


図10 単要素の結晶塑性解析モデル

図11にシミュレーションと実験より求めた極点図を示す。上段の(a)は圧延試験片、(b)はそれに対応する平面ひずみモデルによるシミュレーション、下段の(c)は切屑試験片、(d)はそれに対応する単純剪断のシミュレーションにより求めた(001)極点図である。圧延においては $\{122\}\langle 1\bar{1}1 \rangle$ 方位に強い集中が見られること、切削においては $\{110\}\langle 1\bar{1}1 \rangle$ 方位に強い集中が見られることなど、それぞれの加工組織の特徴がシミュレーションでも表れている。本シミュレーションでは結晶粒界や結晶粒径の影響が考慮されていないため違いも見られるが、圧延試験片は平面ひずみ圧縮で、切屑試験片は単純剪断で、変形の特徴を表現できると考えられる。

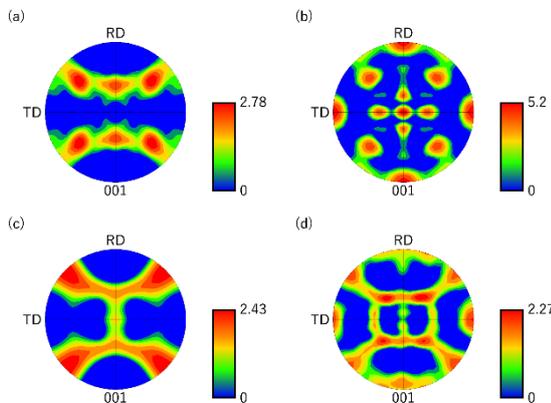


図11 実験とシミュレーションの(001)極点図の比較 (a)圧延試験片、(b)平面ひずみ圧縮変形、(c)切屑試験片、(d)単純せん断変形

図12にシミュレーションで求めた、単純剪断と平面ひずみ圧縮における活動すべり系の比較を示す。縦軸は3000通りの異なる初期方位の結晶のうち横軸に示すすべり系が活動した結晶の割合を表している。このグラフより明らかに単純剪断変形と平面ひずみ圧縮では活動すべり系の数が異なっている。単純剪断変形では12のすべり系が活動した初期結晶方位の結晶が50%ほど存在するのに対し、平面ひずみ圧縮変形では4~10のすべり系が活動している結晶が大多数を占めている。これは剪断変形では結晶内のすべり系の活動が活発であり、結晶内により多くの転位が蓄積することを示唆している。このような活動すべり系の違いが切屑試験片と圧延試験片の変形組織の違いに影響した可能性が考えられる。

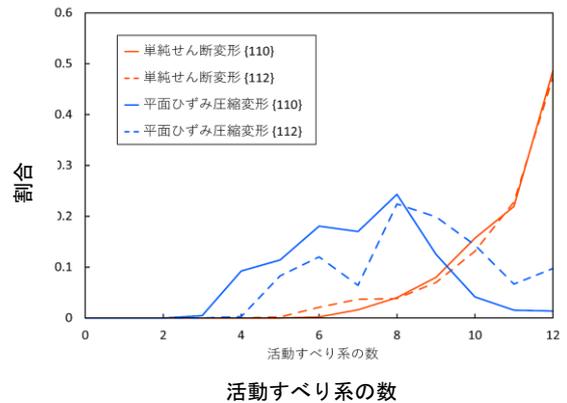


図12 活動すべり系の数の比較

③ 変形温度とひずみ速度の違い：

切削加工では薄い剪断面で瞬間的に塑性変形が起き、その剪断ひずみ速度は $\dot{\gamma}_s = 1000 \sim 10000 \text{ s}^{-1}$ に達する。さらに塑性仕事が剪断面に集中するので、切屑は瞬間的に昇温する。サーモグラフィによる測定および解析によると切屑は温度は約 190°C と推定された。これに対して圧延加工ではロール回転速度からひずみ速度 $\dot{\epsilon}_r = 8.0 \text{ s}^{-1}$ 程度と推定された。切削加工に比べ1/1000程度であり、温度上昇も 10°C 程度と考えられる。この様に切削加工と圧延加工でひずみ速度、変形温度とも大きく異なっており、これが変形組織内のサブグレインの分布や結晶内の転位の蓄積量の差の原因となったことが考えられる。

以上より、切削加工により塑性ひずみを材料に加える方法が、均一で微細な再結晶組織の生成に有効と考えられる。

5. 静的再結晶シミュレーション

核発生・粒成長モデルをもとにシミュレーションモデルを構築した。塑性変形によって材料に転位が蓄積し結晶格子が歪むため生じる方位差 θ を用いて、塑性変形による蓄積エネルギーを式(13)で表した。ここで方位差 θ はEBSDで測定した方位差分布を用いた。

$$\begin{cases} W = \frac{1}{2}\mu \tan^2 \theta & (\theta \leq 15^\circ) \\ W = \frac{1}{2}\rho b^2 & (\theta > 15^\circ) \end{cases} \quad (13)$$

転位密度は塑性ひずみおよび回復による消滅を考慮し求めた。さらに核発生頻度は⁷⁾

$$\dot{N}_\theta = n \frac{k_b T}{h} \exp\left[-\frac{\Delta(G_a)g}{k_b T}\right] \exp\left(-\frac{g_c}{k_b T}\right) \quad (14)$$

粒成長速度は

$$\dot{r}_{rex} = C_g \exp\left(-\frac{\Delta G_{rex}}{RT}\right) \left[1 - \exp\left(-\frac{W}{RT}\right)\right] (1 - R_{rex}) \quad (15)$$

とし、再結晶率は

$$R_{rex} = 1 - \exp\left(-\frac{V_{rex}}{V_0}\right) \quad (16)$$

にて求めた。

図 13 に、600°C1 分間焼鈍した場合の再結晶粒径分布を示す。実線が実験値、破線がシミュレーションを示すが、両者はほぼ一致しており、切屑試験片と圧延試験片の再結晶粒径分布の特徴が表れていることが確認できる。

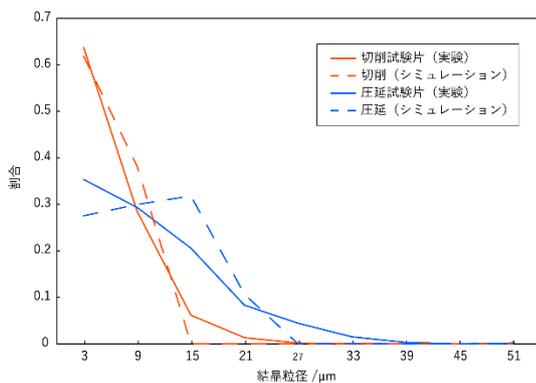


図 13 加工した純鉄試験片の再結晶粒径分布の比較
焼鈍温度 600°C, 焼鈍時間 1 分

6. まとめ

- (1) 純鉄丸棒板を用いて、切削加工により剪断ひずみを加えた切屑試験片と圧延した試験片の変形組織を比較した。切屑試験片では均一で微細なサブグレインが生成したのに対して、圧延試験片では部分的に粗大な結晶粒が残留し不均一な変形組織となった。
- (2) これらの試験片を焼鈍し再結晶させたところ、切屑試験片の方が予ひずみが小さいにも関わらず、圧延試験片より微細で均一な再結晶粒が生成した。
- (3) 加工法の違いによる再結晶粒の微細化効果を定量的に比較するため、塑性ひずみと再結晶粒径とを結びつけるモデルを構築し、評価指数 λ を提案した。これより切削加工は圧延加工の約 1.3 倍の結晶粒微細化効果があることが示された。
- (4) 加工方法の違いによる変形組織の違いの原因として、変形域の寸法、変形様式、変形温度とひずみ速度の影響を検討した。
- (5) 加工方法の違いの影響を反映させた静的再結晶シミュレーションを開発し、再結晶粒径分布が予測できることを示した。

謝 辞

本研究を支援して頂いた公益財団法人天田財団に篤く感謝の意を表します。

参考文献

- 1) Komatsu et al. : Int. J. of Automation Technology, **5-3** (2011), 334
- 2) Fumihisa Nagashima et al.: Metals 2020, **10**, 1320
- 3) Fumihisa Nagashima et al.: the International Journal of Materials Forming, (2022) **15:9**, Published online: 02 February 2022
- 4) 永島史悠 他：第 71 回塑加連講論, (2020), 161
- 5) 尾中 晋：日本金属学会誌, **74**, 3(2010)165
- 6) 吉野雅彦 他：第 72 回塑性加工連合講演会, 23-24
- 7) Byrne, J. G.; 小原, 嗣. 回復および再結晶：丸善, 1968; pp. ix, 197p.