

1 パス大ひずみ加工熱処理プロセスによる 高強度超微細粒純チタンの創製基礎原理の解明

公立小松大学 生産システム科学部

准教授 朴 亨原

(2019 年度 奨励研究助成 (若手研究者枠) AF-2019034-C2)

キーワード：超微細粒純チタン，加工熱処理，動的冶金現象，曲げ特性

1. 研究の目的と背景

純チタンは、安定した化学的特性と安価で良い成形性を持つため、輸送機器、建材、海水でのエネルギー産業、家電・医療機器など様々なところに適用されている。しかしながら、純チタンは、SUS、高強度アルミ合金、Ti-6Al-4V より低強度で、高強度が求められる構造部材への適用が難しい。純チタンは、Multi-pass ECAP (Equal-Channel Angular Pressing)¹⁾ と Mechanical milling+SPS (Spark Plasma Sintering)²⁾ と呼ばれる多工程のプロセスにより高強度化を図る研究がなされてきた。しかし、いずれのプロセスも長い処理時間・小型試験片であるため、現状少量生産に限定され、量産への適用が困難である。

一方で、1パス加工熱処理により低炭素鋼の相変態 ($\gamma \rightarrow \alpha$) を加速化させ、 $1\mu\text{m}$ 程の結晶粒径を有する高強度・高延性低炭素鋼を創製可能である³⁾。この1パス加工熱処理プロセスは実用化・大量生産に向けた押出・鍛造・圧延プロセスに適用可能である。純チタンも 900°C 付近で相変態 ($\beta \rightarrow \alpha$) が起こり、1パス加工熱処理を施すことで超微細粒になり高強度化される可能性が高いと推測される。純チタンでは平均結晶粒径が $4\mu\text{m}$ 以下となると、降伏応力が 500MPa 以上 (Ti-6Al-4V の6割以上、高強度アルミ合金の同等以上) に達し、従来の純チタン降伏強度 (約 $200\sim 300\text{MPa}$) より2倍以上に増加する⁴⁾。

本研究の最終目的は、1パス大ひずみ加工熱処理法を用いて高強度・超微細粒純チタンを創製するプロセスの構築であり、第1ステップとして純チタンにおいて超微細粒形成の基礎原理の解明や成形性を調査するため、純チタンを用いて加工温度 $700\sim 1000^\circ\text{C}$ 、ひずみ速度 1s^{-1} 、圧縮率70%、圧縮後水冷で1パス大ひずみ加工熱処理を実施し、変形挙動及び内部組織の変化について調査した。さらに、 90°V 曲げ試験を用いて加工熱処理された純チタンの成形性について分析した。

2. 実験方法

2.1 熱膨張試験

純チタンの相変態点を調査するために、高歪速度付与試験設備 (15ton) に水平膨張計 (KEYENCE LS-7000 series) を設置し、窒素ガス雰囲気、加熱速度 $0.05^\circ\text{C}/\text{s}$ で $700\sim 1000^\circ\text{C}$ まで加熱し、温度増加による試験片の直径の変化を測定した。試験片の寸法は圧縮試験片と同じであり、高さ 12mm 、直径 8mm である。また、表1に本研究に用いた純チ

タンの化学組成を示す。

表1 純チタンの化学組成 (mass%)

H	O	N	Fe	C	Ti
0.0012	0.127	0.003	0.056	0.001	Bal.

2.2 熱間圧縮試験及び金属組織の分析

圧縮試験材には、等軸で平均結晶粒径が $14\mu\text{m}$ である純チタンを用いた。高歪速度付与試験設備 (15ton) を用い、 N_2 gas 雰囲気、加工温度 $700, 800, 900, 950, 1000^\circ\text{C}$ 、目標圧下率70%、ひずみ速度 1s^{-1} の条件で試験を行った。加熱中に試料と金型の潤滑と断熱のために MICA (0.2mm) をはさんでいる。圧縮後は内部組織の凍結のために急冷した。圧縮手順の概略を図1に示す。また、流動応力曲線は、式(1)を用いた。圧縮前後の組織変化は、エメリー紙及びコロイダルシリカ懸濁液と過酸化水素水の混合液で機械的研磨を行い、FE-SEM と EBSD を用いて分析した。EBSD の相分析は Titanium (α, β) で測定した。

$$\begin{cases} \sigma = \frac{F}{A} \cdot \frac{L_0 - \Delta L}{L_0} \\ \varepsilon = -\ln\left(\frac{L_0 - \Delta L}{L_0}\right) \end{cases} \quad (1)$$

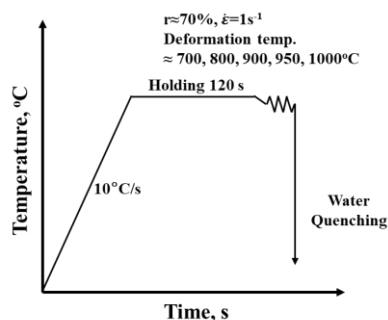


図1 純チタンにおける加工熱処理の手順

2.3 V曲げ試験片、金型及び試験

V曲げ試験材としては、初期材と代表的な金属組織を有する加工熱処理温度 $700, 900, 1000^\circ\text{C}$ の4水準を用いた。曲げ試験材の寸法は、初期材の寸法 ($\Phi 8 \times h 12\text{mm}^2$) に合わせて $l 6 \times w 3 \times t 1\text{mm}^3$ とし、加工材では内部組織が

均一である試験片の中心部から、2枚をワイヤカットで取り出し、各条件で4枚を製作した。

曲げ試験片が小さいため、試験片のサイズに合わせて金型を設計・制作した。純チタンの曲げ性については曲げ半径 (R/t) が1まで曲げが可能であることから⁵⁾、上部パンチ先端半径 (R) を1とし、ハンチ先端・ダイ角度は90°として試験片寸法を考慮して制作した。曲げ金型の寸法を図2に示す。

曲げ試験は、万能試験機 (島津製作所 AGX-100kN) に金型を取り付け、常温、大気中で上部パンチをクロスヘッド速度 1mm/s で曲げ試験を行い、試験片が幾何学下死点に到達した後、3秒間保持してから戻した。曲げ試験のセットアップの様子を図3に示す。

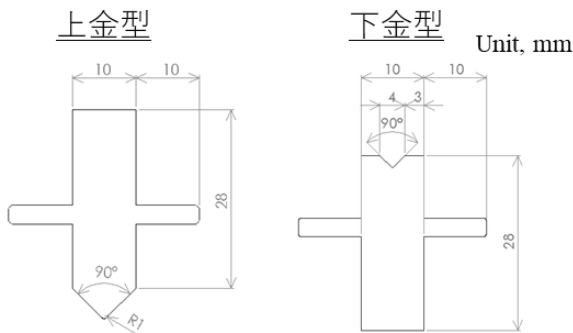


図2 V曲げ金型の設計図

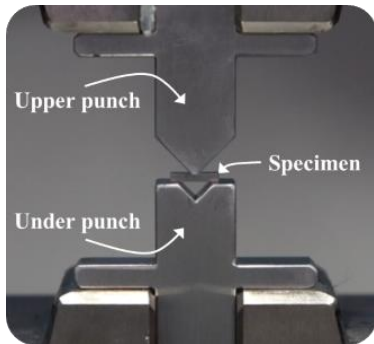


図3 V曲げ試験のセットアップの様子

2・4 スプリングバック・外観・内部組織観察

スプリングバック、外観、内部組織の分析には、光学顕微鏡 (HIROX RX-100) を用いた。曲げ試験片の内部組織の分析のため、V曲げ部をエメリー紙及びコロイダルシリカ懸濁液で機械的研磨を行った。その後、Kroll 溶液に10秒間エッチングを行い、観察した。

3. 実験結果及び考察

3・1 熱膨張、流動応力及び圧縮試験片の外観

図4に、加熱温度による純チタンの幅変化を示す。882°Cまではα相、882~905°Cまではα+βの二相、905°C以上で

はβ相になっており、Grade 1級の純チタンでも900°C付近で二相の領域が存在することが確認できる。

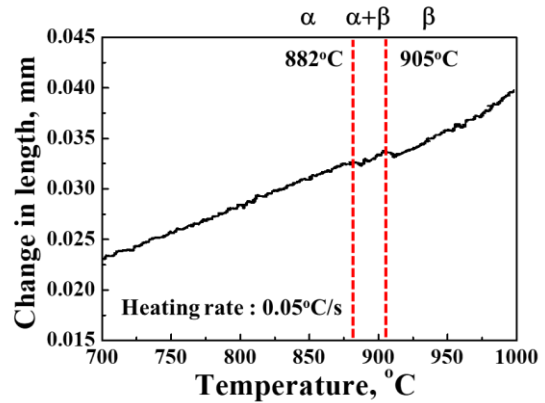


図4 加熱温度による純チタンの幅変化

図5に、ひずみ速度 $1s^{-1}$ 、圧下率70%で加工温度の変化により熱間圧縮試験から得られた流動応力曲線を示す。加工温度700°Cと800°Cでは、応力がひずみの増加に沿って増加する加工硬化挙動を示した。加工温度900°Cでは、応力が最大値に到達してから硬化状態に入り、ひずみ0.3の以後から応力が増加する動的回復・動的再結晶や加工硬化挙動の混合挙動を示した。加工温度950°Cと1000°Cでは、応力が最大値に到達してから定常状態に入る動的回復や動的再結晶パターンである。加工温度800°Cと900°Cの0.2%ひずみ時の流動応力 ($\epsilon_{0.2}$) は、96MPaから25MPaまで急激に減少した。

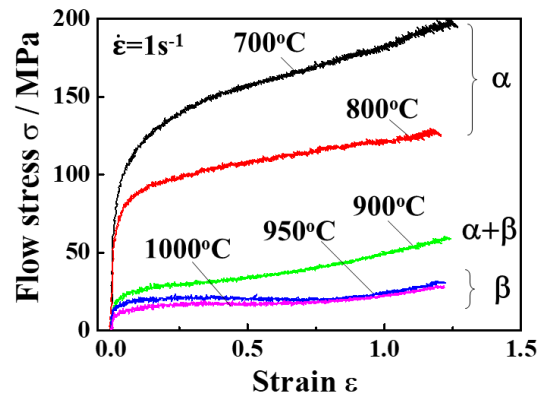


図5 加工温度の変化による流動応力曲線

図6に、ひずみ速度 $1s^{-1}$ 、圧下率70%で加工温度の変化による熱間圧縮試験後の試験片の外観を示す。加工温度700°Cと800°Cの外観は平行四辺形、加工温度900°Cの外観は平行四辺形と丸形の混合形、加工温度950°Cと1000°Cの外観では、丸形が確認できる。加工温度900°C以下では、α相 (HCP) の領域であるため、チタンの錐面すべりの影響により、平行四辺形が、一方で900°C以上では、β相

(BCC) の領域であるため、丸形の外観になったと考えられる。

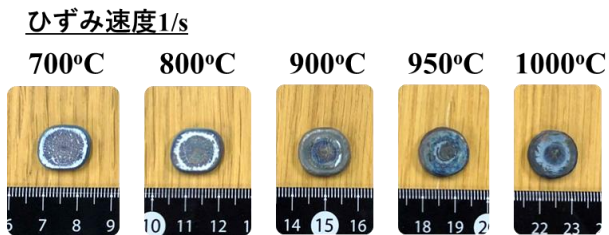


図 6 加工温度の変化による熱間圧縮試験後の試験片の外観

3・2 圧縮試験片の内部組織の変化

図 7 に、ひずみ速度 $1s^{-1}$ 、圧下率 70% で加工温度の変化により熱間圧縮試験後の試験片の EBSD マップを示す。加工温度 700°C から 900°C までは、未再結晶粒 (延伸組織) と等軸細粒組織 (平均結晶粒径 2-4 μm) になっている。一方、950°C 以上では、針状やデンドライトタイプの粗い組織になっていることが確認できる。また、IPF マップ (ND 方向) は、加工温度 700°C から 800°C までは、 $\langle 0001 \rangle$ 系の集合組織で、加工温度 900°C では、 $\langle 0001 \rangle$ 系と $\langle 0112 \rangle$ 系の混合集合組織、加工温度 950°C 以上では、 $\langle 0112 \rangle$ 系の集合組織になっていることが確認できる。これは、加

工温度 700~800°C までは、 α 単相の領域で加工により発達することと 900°C では $\alpha + \beta$ の二相からなることと加工温度 950°C 以上では β に完全変態できているため、 β から形成する集合組織と考えられる。

3・3 曲げ強度

図 8 に、V 曲げ試験から得られた 4 種類の純チタンの降伏強度を示す。降伏強度は、ロード-ストローク線図から、加工初期の弾性の傾きからストローク 0.02mm を移動し、その時点の弾性の傾きから荷重を測定した。また、900°C 加工材では、2 パターンの降伏強度が見られ、700°C 加工材に近い特性を 900°C A、1000°C 加工材に近い特性を 900°C B とした。初期材と 700°C、900°C A・B、1000°C 加工材の降伏強度は、夫々 575、640、575、525、475N であり、初期材から 700°C 加工材までは増加、加工温度 700°C 以上になると、減少する傾向が見られた。

3・4 スプリングバック

図 9 に、V 曲げされた 5 種類の純チタンの試験材におけるスプリングバックの結果を示す。初期材と 700°C、900°C A・B、1000°C 加工材のスプリングバックは、夫々 4.9、4.4、5.4、6.5、9.1° であり、初期材、700・900°C 加工材までは同等水準、900°C B 以上では、急激に増加した。

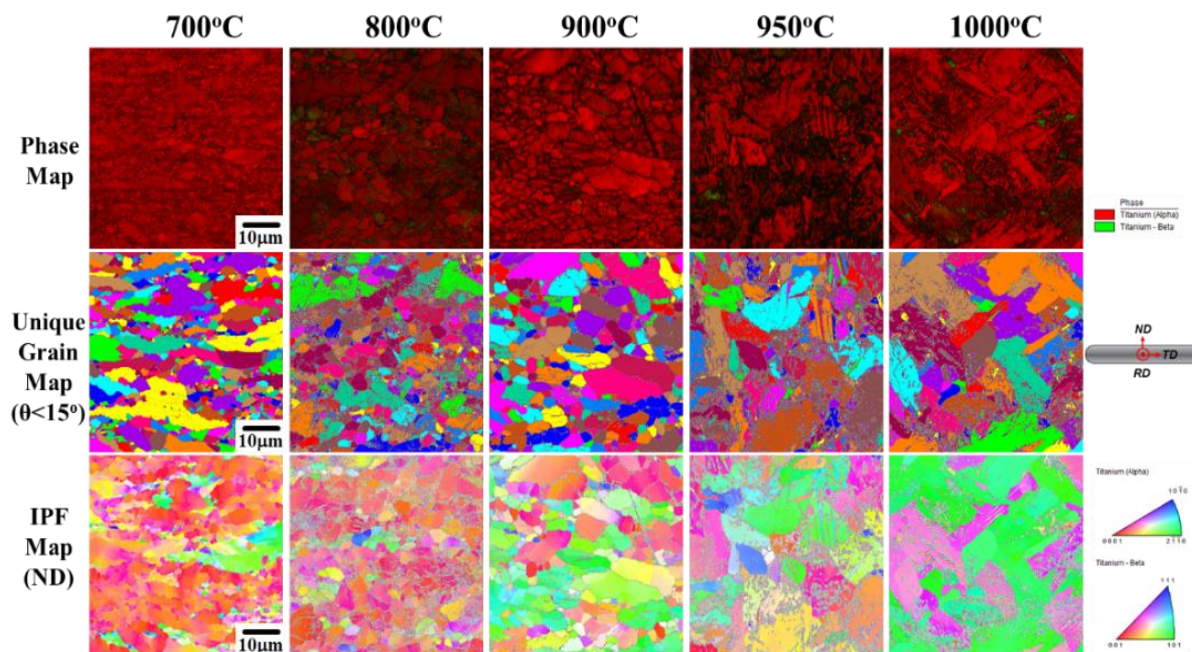


図 7 加工温度の変化により熱間圧縮試験後の試験片の EBSD マップ

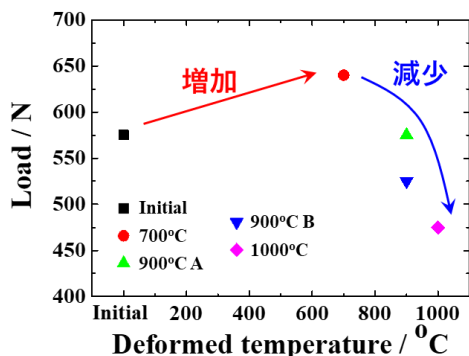


図 8 V 曲げ試験から得られた 5 種類の純チタンの降伏強度

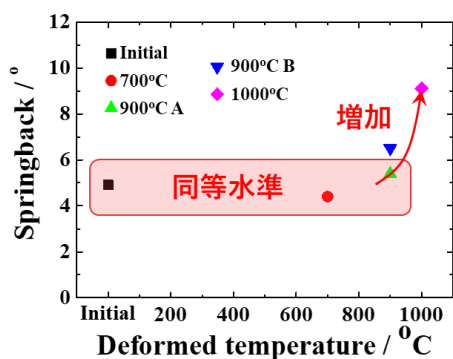


図 9 V 曲げされた 5 種類の純チタンの試験材におけるスプリングバック

3・5 背面の表面特性（曲げ部の最大引張領域）

図 10 に、V 曲げされた 5 種類の純チタンの試験材における背面の表面部の外観を示す。外観の観察部は、曲げ部の最大引張領域であるため、試験片では一番大きな変形を受ける場所である。初期材・700°C・900°C A 加工材の外観では、滑らかな表面が観察された。一方で 900°C B・1000°C 加工材では 50~100 μm 程の凹凸面（オレンジビル）が見られる。一般的にオレンジビルは粗大粒により発生する。

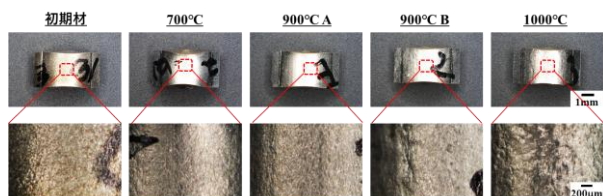


図 10 V 曲げされた 5 種類の純チタンの試験材における背面の表面部の外観

3・6 V 曲げ部の金属組織

図 11 に、5 種類の純チタンにおける曲げ部の金属組織を示す。初期材・700°C 加工材では、2~20 μm 程の粒径を有する細粒組織が観察され、700°C 加工材の粒径が細かい

ことが確認できる。900°C まで加工温度が上昇すると粗大粒が混合しており、900°C A 加工材では、曲げ試験片の圧縮・引張部では細粒が、中心部では粗大粒が観察されており、粗大粒の割合は約 40% である。900°C B 加工材では中心部から引張部にかけて粗大粒になっており、粗大粒の割合は約 85% である。一方で圧縮部には細粒が観察される。1000°C 加工材では、全体的に粗大粒であり、残留 β 相（黒い領域）と推定される部分が観察される。加工温度 900°C では、α+β 相の 2 相領域であり、β トランザス (=910°C) 付近であるため、粗大粒の組織が形成しやすい臨界領域と考えられる。

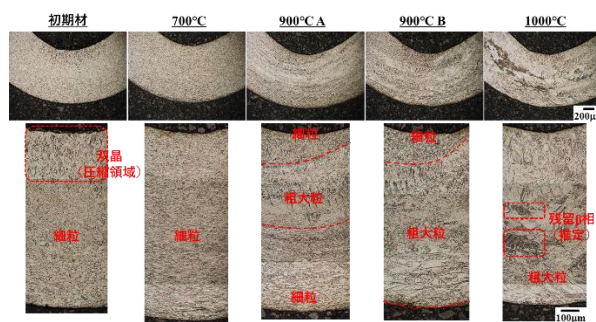


図 11 5 種類の純チタンにおける曲げ部の金属組織

以上の結果から、初期材・700°C 加工材では、細粒を有するため、高い曲げ強度・約 5° のスプリングバック・滑らかな表面となった。一方で加工温度 900°C 以上となると、β 相から粗大 α 相を形成し、粗大粒の割合の増加や部分的に残留 β 相が混合することから、低い曲げ強度・高いスプリングバック・粗い表面となったと考えられる。また、目的とした 1 μm の超微細粒純チタンを製造するためには、再結晶ルートを活用し、加工温度 800~900°C の間で圧下率とひずみ速度を変化しながら研究する必要があると考えられる。

4. 結言

純チタンを用いて加工温度 700~1000°C・ひずみ速度 $1s^{-1}$ ・圧縮率 70%・圧縮後水冷で 1 パス大ひずみ加工熱処理を実施し、変形挙動及び内部組織の変化について調査した。また、5 種類の純チタンを用いて 90° V 曲げ試験を行い、曲げ強度・スプリングバック・背面の外観・V 曲げ部の金属組織を分析し、以下の結果を得た。

(1) 流動応力は、加工温度 800~900°C で 96MPa から 25MPa まで急激に減少した。また、この範囲で金属組織は平均結晶粒径 2~4 μm の等軸晶を形成した。

(2) V 曲げの降伏強度は、初期材より 700°C 加工材が 11.3% 高く、900°C A とは同等で、900°C B・1000°C 加工材では、8~15% 低くなった。

(3) 初期材・700°C 加工材のスプリングバックは約 4.7°

であり、一方で 900°C A・B, 1000°C加工材では 5 から 9°まで急激に増加した。

(4) V 曲げ部の外観は、初期材・700・900°C A では滑らかな表面であり、一方で 900°C B・1000°C加工材では 50～100 μ m 程の凹凸(Orange peel)が観察された。

(5) V 曲げ部の金属組織は、初期材・700°C加工材では細粒, 900°C A・B では細粒と粗大粒の混合, 1000°C材では粗大粒と残留 β 相が観察された。

謝 辞

本研究は公益財団法人天田財団の奨励研究助成(若手研究者枠)(AF-2019034-C2)と公立大学法人公立小松大学研究発展向上費によって行われたものである。ここに記して深甚なる謝意を表す。

参考文献

- 1) Y.G. Ko, D.H. Shin, K.T. Park, C.S. Lee, Scripta Materialia 54 (2006) 1785–1789.
- 2) 大野 卓哉, 久保田 正広: 軽金属 60-12 (2010) 647–653.
- 3) 朴 亨原, 柳本 潤: 塑性と加工 58 (2017) 361–365.
- 4) D.H. Kang, T.W. Kim, Materials and Design 31 (2010) S54–S60.
- 5) <https://www.kobelco.co.jp/products/titan/files/details.pdf> (access 2022.03.08)