構造用金属棒材の非線形ねじり押出しによる結晶粒超微細化・高強度化

同志社大学理工学部　機械システム工学科
教授　宮本　博之
（2023 年度　一般研究開発助成 AF-2023005-B2）

キーワード：Nonlinear twist extrusion (NTE), Severe plastic deformation (SPD), Twist extrusion (TE), Ultrafine grained, ANOVA, Taguchi metho

１．緒　言

強ひずみ加工(SPD)法は強度の塑性変形により結晶組織を微細化し，バルク状のナノクリスタル(NC)や超微細結晶材料(UFG)を作製できる比較的新しい手法である．産業界で一般的に利用される加工熱処理法を超えた結晶粒微細化が可能である [1]．しかし，SPD 法の代表的加工である HPT 法，ECAP 法，ARB 法などはサイズが限定された素材に対して加工を繰り返すいわゆるバッチ処理であり，航空機や自動車，建築等の構造用高強度材料の量産には不向きである．そのため現状では生体材料や装飾品などの付加価値の高いニッチな分野に限定されている．一方，量産技術を目指して，SPD 法の連続化研究も世界の多くの研究者が行っており，ねじり押出し(TE)や剪断押出し(SSE)，連続 ECAP(C-ECAP)などが報告されている [2]．このような連続プロセスは正負のひずみを順次受けるひずみの往復や，剛体回転を含むなどそれぞれの短所があり，結晶粒の微細化の効率という面では改善の余地がある．ひずみの往復は転位の蓄積および結晶粒の微細化に対しては非効率的である．そこで我々はこの問題を解決する新しい連続加工法として非線形連続ねじり押出し(NTE)法を考案した [3]．この加工法は従来の TE 法を改良したもので，後述するように断面が真円から楕円に変化する第 1 段階，楕円断面の回転量が非線形的に増加する第 2 段階，回転率が一定で，楕円から円断面に連続的にもどる第 3 段階から構成されている．第 2 段階ではねじり率を非線形的に増加させて無駄な剛体回転を解消し，第 3 段階ではビレットの回転を止めずに送り出すため，逆方向のせん断ひずみ（ひずみの往復）を回避している．本研究では NTE 法による銅やステンレス鋼を始めとする構造用金属材料への適用を目指し，結晶粒微細化の効果を明らかにすることを目的とする．

２．理　論

2・1　NTE の概略説明

NTE の概略図を図 1(a)に示す．さらに，図 1(b)，(c)および(d)に従来の線形ねじり型 TE，非線形ねじり型 TE および NTE を比較した際における回転角，せん断ひずみおよび微小ひずみの想定図を示す．図 1(a)に示すように，NTE は 3 つの経路により構成される．経路①は試験片をねじり可能とするため，試験片断面を円形状から楕円形状に変換する．経路②において，試験片は非線形（ねじり率 n>1）に回転角度 60° ねじられる．経路③において，試験片は経路②の末端における傾きを一定に保持された状態で回転され，楕円形状から円形状に変換される．図 1(b)および(c)より，ねじり率を n=1 から n>1 に変更することは剛体変形を抑制し，経路②全体においてひずみを導入することを目的としている．さらに図 1(c)および(d)より，経路②末端から経路③における傾きを一定に保つことは，ひずみの往復を抑制することを目的としている．

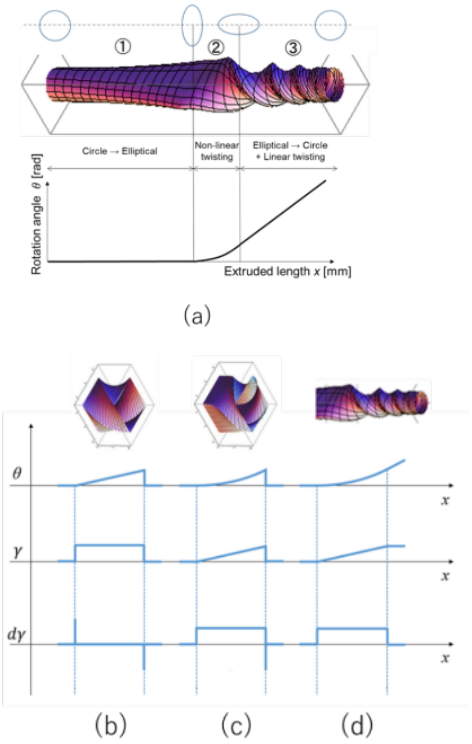


図 1　(a) NTE 法の経路の全体概略図，(b) 線形型ねじり経路，(c) 非線形ねじり経路 (d) 非線形ねじり(NTE)，それぞれにおけるねじり角，せん断ひずみ，せん断ひずみ増分の変化．

2・2　NTE のせん断ひずみ

NTE のねじりにより導入されるせん断ひずみを算出する．ただし，計算の簡略化のためねじり経路出口の回転角が保持されると仮定し，その回転角からせん断ひずみを求

める．送り方向の微小長さ L がねじり角 θ だけねじりを受けた時のせん断ひずみは図 2 のように定義される．もし, ねじり角 θ の増加率が一定ならば棒材はせん断ひずみを受けずに剛体回転するだけである．例えば，ボルトとナットの関係を想像していただきたい．一方，ねじり角 θ が送り量 x に対して非線形的に増加すると, 棒材は送りとともにせん断ひずみを受ける．図 3 より，経路②のねじり角度θは，ねじり率が n であるとき，

$$\theta = Cx^n \qquad (1)$$

ただし，C は定数である．n=2 のとき，試験片中心からの距離 r におけるせん断ひずみ増分$d\gamma$は図 2 より

$$d\gamma = r\frac{d\theta}{dx} \qquad (2)$$

$$d\gamma = r\frac{C\{(x+dx)^2 - x^2 - 2xdx\}}{dx} = rCdx \qquad (3)$$

ねじり経路全体で得られるせん断ひずみは

$$\gamma = \int_0^L d\gamma = rC\int_0^L dx = rCL \qquad (4)$$

最大回転角をθ_{max}，ねじり経路の長さを L としたとき，定数 C は

$$C = {\theta_{max}}/{L^n} \qquad (5)$$

したがって，式 (4) および式 (5) より，n=2 の場合におけるせん断ひずみは

$$\gamma = r\theta_{max}L^{-1} \qquad (6)$$

さらに，$n \geq 3$では,

$$d\gamma = r\frac{d\theta}{dx} = r\frac{\theta_{max}}{L^n}\frac{\{(x+dx)^n - x^n - nx^{n-1}dx\}}{dx}$$

$$=$$

$$\frac{r\theta_{max}}{L^n}\frac{\{x^n + nx^{n-1}dx + {}_nC_{n-2}x^{n-2}dx^2 + {}_nC_{n-3}x^{n-3}dx^3 + \cdots dx^n - x^n - nx^{n-1}dx\}}{dx}$$

$$= \frac{r\theta_{max}}{L^n}\frac{\{{}_nC_{n-2}x^{n-2}dx^2 + {}_nC_{n-3}x^{n-3}dx^3 + \cdots dx^n\}}{dx} \qquad (7)$$

ここで$dx^2 = dx^3 \ldots\ldots dx^n = 0$となるから

$$d\gamma = \frac{r\theta_{max}}{L^n}\ {}_nC_{n-2}dx \qquad (8)$$

$$\gamma = \frac{r\theta_{max}}{L^n}\ {}_nC_{n-2}\int_0^L x^{n-2}dx = \frac{{}_nC_{n-2}}{n-1}\frac{r\theta_{max}}{L} \qquad (9)$$

と表すことができる．

n=1 のときは従来の線形ねじりであり，n>1 のときは非線形ねじりである．そのため，非線形ねじりのせん断ひずみは従来の線形ねじりと比較し，n 倍大きくなる．

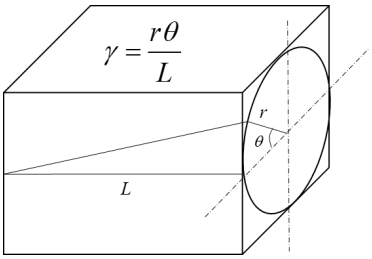


図 2　ねじり角 (θ) とせん断ひずみ (γ)の関係

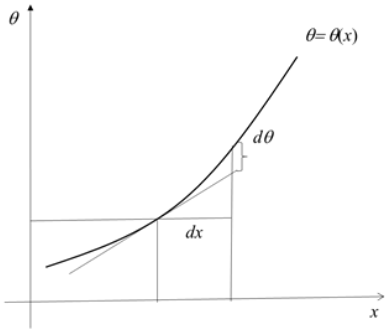


図 3　ねじり角 (θ) と送り量 (x) の関係

３．　実験方法

3.1　供試材

本研究では供試材として，工業用の純銅(99.96 wt.%)を使用した. 試料を直径 9.8mm, 長さ 25mm の円柱状にし，組織の均一化のため 923K および 120min により熱処理を行ったものを NTE 加工で用いる試験片とした.

3.2　NTE 法による加工

図 4 に純銅を押出すための NTE 金型および実験状況を示す．NTE 金型（HILLTOP 製）の材質は SKD11 である. 区間②および③の対面は切削加工する際, アンダーカットをなくすために波形状となっている．押出し装置 AUTOGRAPH AG500KNI（島津製作所製）を使用した．供試材漏れを抑制するため, 金型をブロックで囲むことに加えて押出し速度を 1mm/min であり, 室温で加工を行った. また試験片とダイスの摩擦を低減させるために潤滑剤を使用した．潤滑剤はフッ素グリースのフルトライボ MG（協同油脂株式会社）を用いた.

3.3　ビッカース硬さ測定

NTE において 0，1 パス後の純銅試験片における機械的性質を調べるため，ビッカース硬さ試験により調べた．1 パス後試験片は先頭から 5mm, 15mm, 30mm の位置において切断し，それぞれの断面を機械研磨後，電解研磨を鏡面になるまで行った. ビッカース硬さ試験は断面の長軸方向に中心から 0.5 mm 間隔で行った．ビッカース硬さ試験機はデジタルビッカース硬度計 VMT-7（株式会社マツザワ製）を使用した．試験条件は負荷荷重 9.807 N および保持時間 10s とした.

3.4　X 線回折(X-Ray Diffraction：XRD)法による半値幅測定

NTE において 0，1 パス後の純銅試験片における転位量を調べるため X 線回析により調べた．X 線回析(X-ray direction：XRD)測定には，㈱リガク社製 SMARTLAB を用いた．回析条件は，印可電圧 40kV，電流 200mA，サンプリング幅 0.02，スキャンスピード 2°/min とし，回折角度(2θ)20~120°間を分析した．

3.5　組織観察

NTE 後の純銅試験片における微細組織を観察するために，加工後の試料に対して，加工方向に垂直な面を観察断面として，エメリー紙#80～#2000 で機械研磨を行い，ダイヤモンド研磨剤と OPS を用いたバフ研磨，リン酸：140ml，エタノール：60ml の割合の電解液を用いて電解研磨を行い，鏡面になるまで行った．その後，蒸留水：20ml，アンモニア(28%)：20ml，過酸化水素水：10ml の割合の腐食液を用いて，約 10 秒間室温にて腐食を行った．その後直ちに，光学顕微鏡（(株）ニコン：OPTIPHOT-100）による組織を観察した．なお平均結晶粒径は，切片法を用いて行いその測定値に補正値 1.74 を掛けることで算出した．(A.W.Thomson，1972)

また結晶方位分布を測定するために，EBSD 測定を行った．EBSD 測定には走査型電子顕微鏡 JSM-7001FD（日本電子製）および解析ソフト INCA Crystal（Oxford Instruments 製）を用いた．EBSD 測定は各変形区間で行い，観察面は押出し方向に垂直な面を観察した．

4．実験結果および考察

4.1　ビッカース硬さ試験

測定位置は，入り口から，0mm，100mm，125mm，150mm の各区間を通過した後の試験片断面である．図 5 に各区間における銅多結晶試験片のビッカース硬さの平均値を示す．横軸は金型の挿入口からの変位を x としている．ここでは，試験片断面の形状が位置により異なるため，横軸は試験片断面の中心からの距離を中心から最端までの距離で除して基準化している．つまり，割合が 0 に近いほど試験片の中心部で，1 に近いほど試験片の端部を示している．加工前の Hv≈55 の値と比較して，Hv≈100 を超える明らかに高い高度値を示している．また，変位xが大きくなるにつれて，微小ではあるが高度値が高くなる傾向が見られる．これは区間③，②，①の順で多くの相当塑性ひずみが入っていることが示唆される．

図 6 より，試験片中心では区間③で硬度が最高値であるのに対し，端では区間②で最高値を示している．また，試験片の高度の最高値と最高値の差が区間①では約 35，区間③では約 40 であるのに対し，区間②では約 16 であり，図 20 からも分かるように，エラーバーの大きさも区間②は区間①，③に比べて明らかに小さい．これは区間②つまり非線形区間で最も硬度が均一化するということを示している．

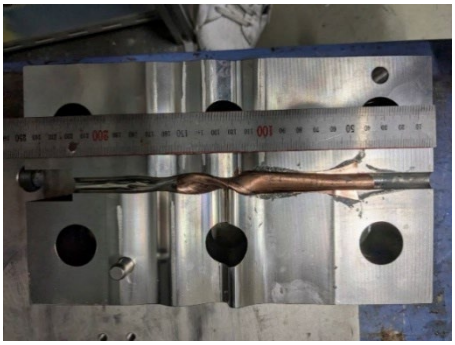


図 4　加工後の NTE 金型と銅棒材の外観写真.

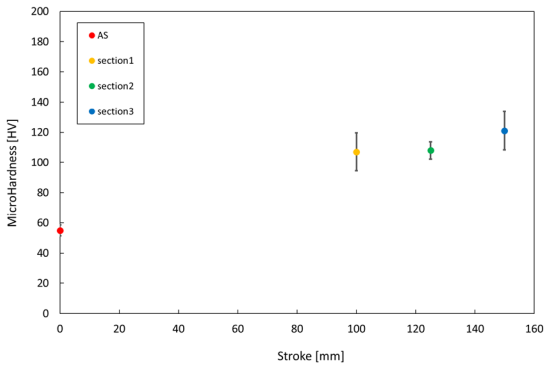


図 5　送り量と硬さの関係.

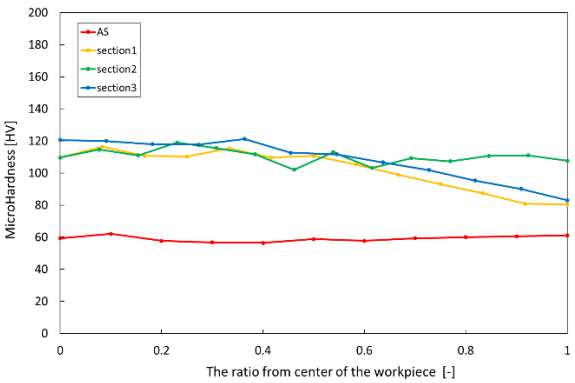


図 6　各セクションでの断面硬度分布

4.2　XRD 測定

NTE 加工前後の変形による転位量を定性的に測定するために，金型の区間ごとに加工方向に対して垂直な試験片の断面を測定した．図 7 に AS 材と各区間の XRD のデータを示し，図 8 に図 7 のデータからウィリアムソンホール法を用いて算出したウィリアムソンホールプロットを示す．また，図 8 にウィリアムソンホールから得られた転位密度の値と図 6 から得られた硬さの平均値の関係を示す．

図 9 より，AS 材は転位密度が小さいため硬度が低いが，NTE 後は転位密度の上昇とともに硬度も上昇しているといえる．

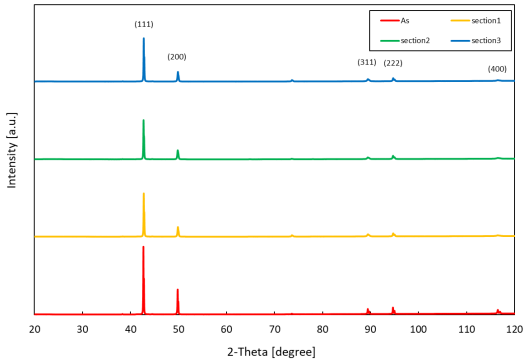


図 7　各セクションでの X 線回折プロフィル

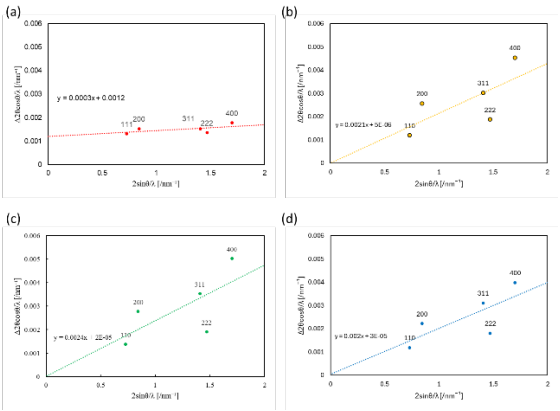


図 8　Williamson-Hall プロット(a)加工前 (b)セクション 1，(c)セクション 2，(d)セクション 3.

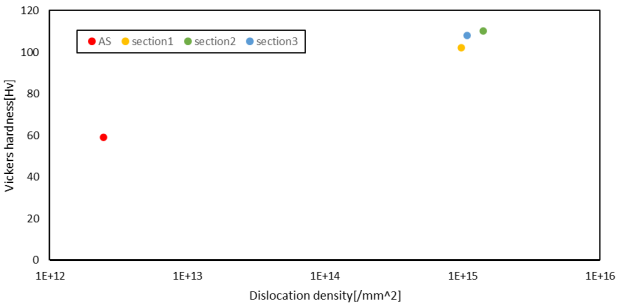


図 9　各セクションでの硬さと転位密度.

4.3　光学顕微鏡写真

図 10 に光学顕微鏡を用いた組織写真を示す．切片法を用いて測定したそれぞれの粒径の値を表 1 に示す．AS 材の粒径は約 30μm なのに対し，NTE 後は約 10μm となり AS 材に比べて NTE 後は粒径が 3 分の 1 程度になった．しかし，今回の加工において微細化はしたものの，UFG の形成には至らなかった．その原因として，ひずみの導入量が少なかったことがあげられる．

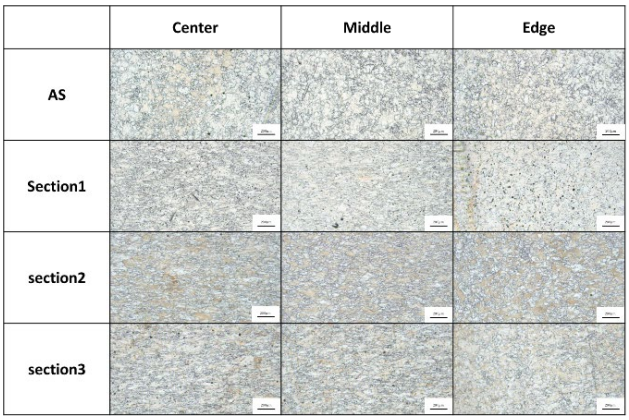


図 10　各セクションでの光学顕微鏡断面組織

表 1　各セクションでの結晶粒径

	Center [μm]	Middle [μm]	Edge [μm]
Anneal	28.0	30.3	27.7
Section1	9.80	10.1	8.65
Section2	8.80	8.00	7.94
Section3	8.77	7.94	7.97

4.4　EBSD

図 11(a)から(d)にそれぞれ，焼鈍し材，区間①，区間②，区間③の方位角の変化を示す．AS 材は高角粒界(HAB)が支配的であるが，NTE 加工後はすべてにおいてその割合が大幅に減少している．代わりに NTE 加工後は低角粒界(LAB)の割合が多くなる．例えば，LAB の割合は，中心で見ると，AS 材は 16%なのに対し，区間①では 82%，区間②では 76%，区間③では 69%と増加している．端の場合だと，AS 材は 15%なのに対し，区間①では 38%，区間②では 60%，区間③では 62%と中心に比べては増加幅が少なくなったが，LAB の割合は増加している．

表 1 で示したように，NTE 加工で UFG の形成には至らなかった．AS 材に比べて NTE 後に硬度が上昇した原因として，粒径の縮小に加え，LAB の大幅な増加により，転位密度が増加したことがあげられる．通常，HAB が増加すると，硬度は上昇するが，区間③の方が区間②よりも HAB の割合が増加しているのにもかかわらず，硬度は減少している．また，HAB は結晶粒の微細化により増加するが粒径はほとんど変化していない．粒径の変化が小さいのにもかかわらず，HAB の割合が上昇した原因は，NTE のねじり変形により多方向に複雑な変形が入り，結晶方位の不均一性が生じたためだと考えられる．その結果，同じ結晶粒内で方位差が増大し，HAB が増加した．

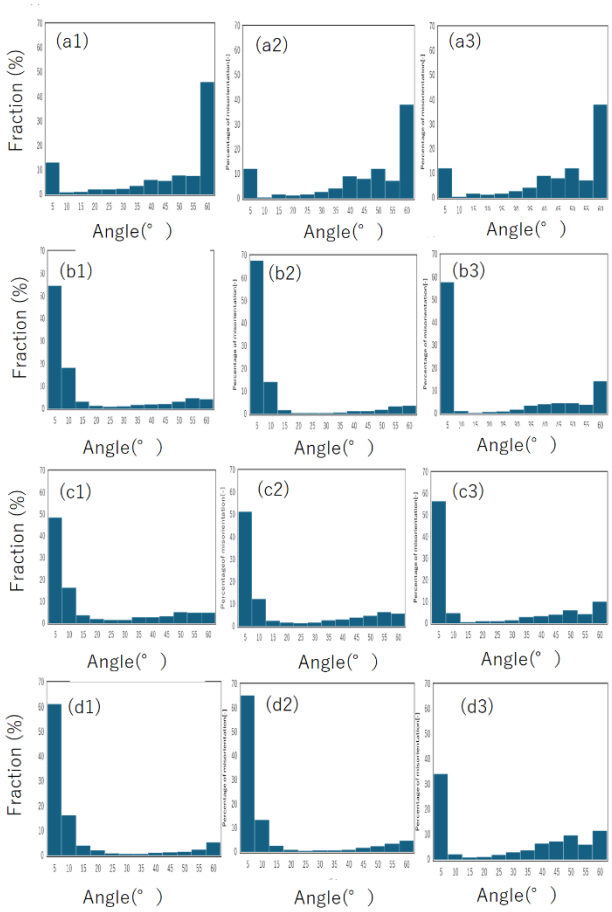


図 11　(a)加工前，(b)加工後のセクション 1，(c)セクション 2，(d)セクション 3 における結晶粒界の方位差の分布，(a1～d1) 中心部 (a2-d2) 中間部, (a3-d3) 端部.

５．結　言

純銅に対して 1 パスの加工を行った結果, 硬度が加工前のビッカース硬度 55 から 100 以上の硬度が得られた．一方，結晶粒は加工前の 30μm から 10μm 程度の減少に留まった．この硬度上昇は主に転位強化によるものであった．

参考文献

1) 例えば，堀田善治，超強加工によるバルク材の超微細組織化と力学特性向上，鉄と鋼，94(2008)p.599
2) Y.Estrin and A.Vinogradov, Extreme grain refinement by severe plastic deformation: A wealth of challenging science, Acta Materialia, 61 (2013) p.782.
3) M.L.Malulidi, H.Miyamoto and M.Yuasa, Grain refinement of pure magnesium using nonlinear twist extrusion, Materials Science Forum, 939 (2018) p.54