

# 急冷途中の大ひずみ加工による結晶粒超微細化挙動に及ぼす合金元素の影響

足立 吉隆\*・富田 俊郎\*・日野谷 重晴\*

Effect of Steel Composition on Ultra Grain Refinement by Heavy Deformation during Accelerated Cooling

Yoshitaka ADACHI, Toshiro TOMIDA and Shigeharu HINOTANI

**Synopsis :** Recently challenge of further grain refinement has been made, which aims to refine the ferrite grain size down to  $1\ \mu\text{m}$ . It has been reported independently by two differing research groups<sup>1,2)</sup> that a heavy deformation after accelerated cooling can successfully produce ultra fine grains as small as  $1\ \mu\text{m}$  in diameter for relatively low cost steels. The aim of present study is to reveal how chemical composition of steels affects the grain refinement by such thermomechanical process. Compression experiments are carried out at various temperatures (down to  $530^\circ\text{C}$ ) and at various cooling rates (up to  $50\text{K/s}$ ) before deformation. The interplay between chemical composition of steels and deformation condition on microstructures is discussed with focussing on CCT diagrams. The process window required for ferrite grain refinement down to  $1\ \mu\text{m}$  must satisfy the following conditions; (1) steels with relatively low quench-hardenability, (2) accelerated cooling before deformation, (3) deformation at deeply supercooled austenite region, (4) heavy deformation.

**Key words :** grain size; grain refinement; heavy deformation; supercooling; thermomechanical treatment; phase transformation; ferrite.

## 1. 緒言

低炭素鋼のフェライト( $\alpha$ )結晶粒を超細粒化する研究が最近活発化しており、実験室規模の小試験片を用いた検討では粒径 $1\ \mu\text{m}$ の超細粒フェライト組織が得られている<sup>3,4)</sup>。それらの微細粒化手法を変態と再結晶に大別し、さらにその詳細を分類すると、変態法では(1) 超過冷オーステナイト( $\gamma$ )状態での加工と変態<sup>1,2,5)</sup>、(2) 動的フェライト変態<sup>6,7)</sup>、(3) ( $\gamma+\alpha$ )二相域での加工と変態<sup>8)</sup>が挙げられ、いずれも1パスでの強加工ならびに加工域として低温オーステナイト域の利用を共通の特徴としている。再結晶法では(1) マルテンサイト<sup>9)</sup>、(2) ベイナイト<sup>6)</sup>の強加工後の再結晶により超細粒フェライト組織の創製に成功している。

超細粒組織の新しい指導原理が見いだされつつある中で、直近の研究の方向は複相組織化と試験片の大型化に向いている。前者は細粒化に伴う均一伸びの低下を複相組織化により抑制あるいは向上させることを目的としている<sup>10)</sup>。後者の課題としては、実プロセスを考慮した多パス加工あるいは累積ひずみの利用、板厚方向の組織の均一性を確保するに必要となる緩冷却化が挙げられよう。

ところで、急冷途中の低温オーステナイト域で強加工することにより $530^\circ\text{C}$ 以下の通常ベイナイトが生成する領域で等軸フェライト粒が生成し、粒径が約 $1\ \mu\text{m}$ と超細粒化する<sup>1)</sup>。本報告では、そのプロセス(以下ひずみ誘起低温変態法; Strain Assisted Low Temperature Transformation

(SALT)と称する)のプロセスウィンドウの拡大を主目的に、本手法が適用可能な鋼種の影響について検討した結果を述べる。本結果を圧延による大型試験片作成の基礎知見とする。

## 2. 実験方法

### 2.1 圧縮加工による加工熱処理

用いた供試材の組成をTable 1に示す。基本鋼種は前報<sup>1)</sup>で用いた0.2C-0.83Mn鋼であり、これに連続冷却曲線図(CCT)を長時間側に移動させる効果を狙いSi, Cr, Mnを添加した鋼種ならびに低温側に移動させる効果を狙いMnを添加した鋼種、あわせてオーステナイトの再結晶を抑制しフェライトの細粒化に効果があることがよく知られているNbを添加した鋼種を用いた。なお、本稿では特に断らない限り、基本鋼を用いた場合の結果とする。本供試材を、熱間加工装置(Thermecmaster-Z, 富士電波工機製)を用いて以下の条件で圧縮加工した。 $1000^\circ\text{C}$ -300sのオーステナイト化後、冷却速度 $1\text{K/s}$ から $50\text{K/s}$ の条件で各加工温度

Table 1. Chemical composition of used steels (mass%).

Steel	C	Si	Mn	P	S	Cr	Al	Nb
base steel	0.20	0.01	0.83	<0.001	<0.001		0.002	
Si steel	0.20	1.99	0.85	<0.001	<0.001		<0.001	
Mn steel	0.22	0.01	1.94	<0.001	<0.001		0.002	
Si+Mn steel	0.19	1.87	1.94	<0.001	<0.001		0.003	
Cr steel	0.20	0.02	0.83	0.002	<0.001	2.00	<0.001	
Nb steel	0.21	0.01	0.82	0.001	<0.001		0.002	0.031

まで冷却し、ただちに加工温度 530°C から 900°C までの範囲においてひずみ速度 5/s で最高 70% (減厚率) 加工した。加工後、装置の制約上許される範囲でただちに 400°C まで He ガスにより強制冷却した。

熱間加工実験の基礎データとして、熱膨張測定装置 (Formaster, 富士電波工機製) を用いて熱膨張曲線を測定し、それを元に CCT 曲線を作成した。オーステナイト化は 1000°C-300s とした。試験片形状は直径 3mm, 長さ 10mm の円柱状である。

熱間加工した試験片の組織を、圧縮加工方向と平行な断面において、走査型電子顕微鏡 (SEM), 光学顕微鏡を用いて、観察した。SEM および光学顕微鏡観察にあたっては、鏡面状に機械研磨した試料を 2vol% のナイトールを用いて腐食した。観察部位は加工方向の板厚の中心部とした。結晶粒径は公称粒径であらわし、切断法によりもとめた平均粒切片長さを 1.12 倍した値とした。

## 2・2 圧延による加工熱処理

基本鋼を圧縮加工により細粒化が確認できた以下のプロセスで加工熱処理した。試験片寸法は板厚 12mm, 幅 20mm, 長さ 50mm とした。1000°C-30min 間のオーステナイト化処理の後、予備検討により水冷と空冷を組合わせて 800~500°C 間の平均冷却速度が約 46K/s となることを確認した冷却条件で加工温度まで冷却後、直ちに圧下率 70%/1

パスで熱間圧延し、その後水冷した。圧延開始温度は 530°C (試験片に穴を開け、中央部に熱電対を埋めて予備測定した) とした。圧縮加工試験の結果では、後述するように、冷却速度 50K/s で急速冷却中 530°C で 70% 圧縮加工することにより本来ベイナイトが生成する領域で粒状フェライトが生成する。

## 3. 実験結果

### 3・1 無加工材の CCT 図

本研究で用いた鋼種の CCT 曲線図を Fig. 1 に示す。基本鋼種とする 0.2C-0.83Mn 鋼 (Fig. 1(a)) に比べて、Si 添加鋼 (b) ではフェライト変態の開始が遅れており、基本鋼では数十秒に存在するフェライトノーズが 100s 前後に移動している。Mn 添加量を増した鋼種 (c) ではフェライト変態は測定範囲内では認められず著しく遅延している。また、Si+Mn を複合添加した鋼種 (d) ならびに Cr 添加鋼 (e) でもフェライト変態は基本鋼種と比べて遅延しており、その程度は (b) と (c) の中間である。Nb 添加鋼 (f) では基本鋼と CCT 図に大きな変化は認められない。本稿で評価した添加元素の内、Mn, Cr, Si+Mn が著しく焼入れ性を高めているといえる。

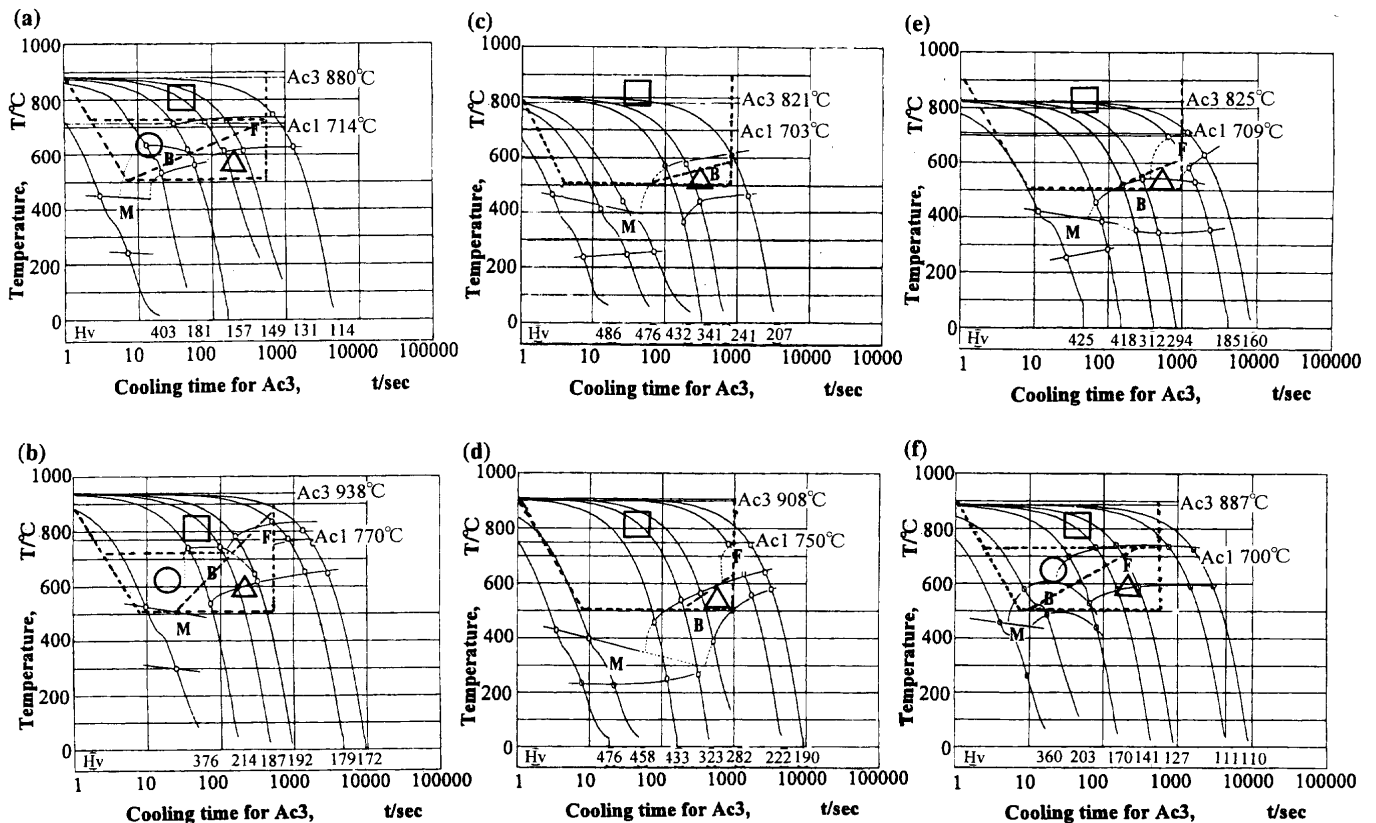


Fig. 1. Relationship between CCT diagram and microstructures formed from deformed austenite.

(a) base steel (0.2C-0.83Mn), (b) Si steel, (c) Mn steel, (d) Si+Mn steel, (e) Cr steel, (d) Nb steel

Major phase formed from 70% deformed austenite, O; equiaxed ferrite, □; bainite or martensite, Δ; elongated microstructure.

### 3・2 急冷途中の大ひずみ加工で生成する組織に及ぼす合金元素の影響

熱間加工材の組織に及ぼす加工前の冷却速度ならびに加工温度の影響を、各鋼種ごとに無加工材のCCT図に上書きしてFig. 1に示す。加工後に本来ベイナイトが生成する領域で生成する相は鋼種により異なり、基本鋼(a), Si添加鋼(b), Nb添加鋼(f)ではフェライト(図中○で示す)が主相として生成するのに対し、高い焼入れ性を示すMn添加鋼(c), Si+Mn添加鋼(d), Cr添加鋼(e)ではベイナイト(□)が主相となる。すなわち、オーステナイトの最も低温域で加工し本来のベイナイト生成域でフェライト変態させるひずみ誘起低温変態法(SALT)<sup>1)</sup>を適用できる鋼種に制限があるといえる。

加工によりベイナイト域でフェライトが生成する鋼種の中で、基本鋼とNb添加鋼の粒径と加工温度の関係をFig. 2に示す。加工温度の低下により粒径が小さくなる傾向は両鋼種に共通であるが、同一加工温度であればNb添加鋼の方が粒径は小さく、例えば加工温度530°Cでは基本鋼、Nb添加鋼のフェライト粒径はそれぞれ1.2 μm, 0.7 μmである。また、同一粒径を得る加工温度はNb添加鋼の方が高く、50~100°C高温で同一粒径が得られる。

### 3・3 圧延による急速冷却時の大ひずみ加工熱処理

上述した圧縮加工による急速冷却時の大ひずみ加工熱処理で得られた結果を圧延により再現することを試みた。本来ベイナイトが生成する領域でフェライトが生成する加工

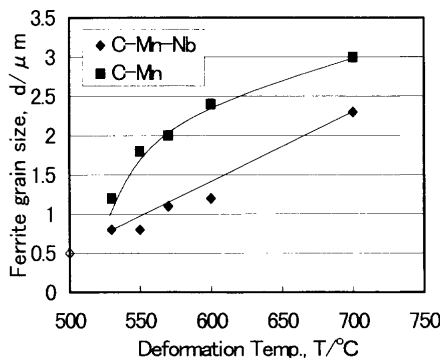


Fig. 2. A change of ferrite grain size as a function of deformation temperature. Ferrite grain size in Nb steel is smaller than in the base steel at any deformation temperatures.

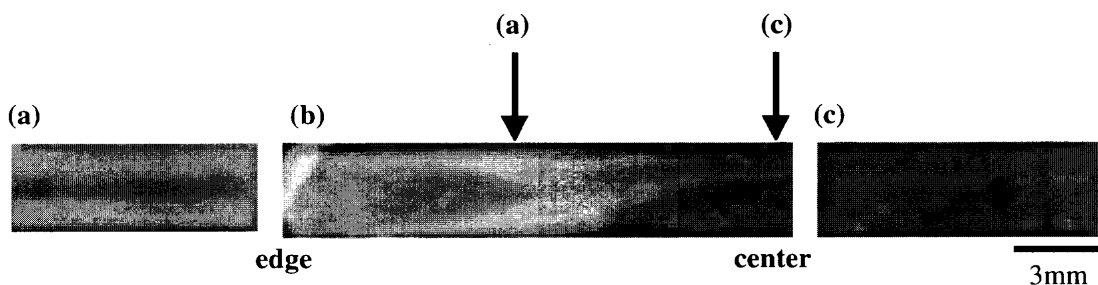


Fig. 3. Macrostructure of prequench-hot rolled base steel. Longitudinal section. (a) longitudinal section corresponding to (a) in (b), (b) transverse section, (c) longitudinal section corresponding to (c) in (b)

熱処理条件は、圧縮加工の結果を参考に、加工前冷却速度46K/s(水冷と空冷により調節)、圧延開始温度530°C(試験片中央部)、圧延後水冷とした。

組織は部位により異なり、板幅方向1/4(以下、1/4wと記す)の部位では、Fig. 3に示すように白くエッチングされる部位が全板厚の1/4~1/3の比率で認められる。白くエッチングされる部位は板厚方向1/4(以下、1/4h)を中心に広がっている。ところが、1/2wでは、白い部位が1/2hに存在していることがわかる。Fig. 4は、1/4wの表層(a), 1/4h(b), 1/2h(c)の領域の拡大像である。表層部は加工されたラス組織が観察されることからマルテンサイトあるいはベイナイトであるものと考えられ、また1/2h部位も同様な理由からマルテンサイト、ベイナイトで構成されているものと考えられる。しかしながら、白い部位の1/4h部は等軸粒で構成されており明らかにフェライト組織である。粒径は1~1.5 μmと微細であり、第二相は粒状析出物あるいは膜状析出物であり、それぞれ粒界三重点、粒界に析出していることがわかる。1/2w(Fig. 4(d)~(f))の部位では、白く観察される1/2hの部位(f)が等軸微細フェライト粒で構成されており、表層(d)および1/4h(e)の部位ではマルテンサイトあるいはベイナイト組織となっている。

### 3・4 組織と硬度

細粒化により強度あるいは硬度が向上することがよく知られている。Fig. 5は基本鋼およびNb添加鋼のフェライト粒径と硬度の関係を示す。一部を除き細粒化により硬度は上昇し、よく知られたホールペッチ則で整理できる。しかしながら、粒径2~1 μmの領域にかけて硬度増加がないことがわかる。1 μmよりさらに微細化すると硬度は再度増加する。このホールペッチ則からの逸脱について、細粒化に伴うフェライト中の第二相の変化<sup>1)</sup>と関連づけて考察で議論する。

## 4. 考察

大ひずみ加工に伴うベイナイト域でのフェライト生成挙動を詳細に検討し、その必要条件が明確となった。その必要条件是、(1)焼入れ性が過度に大きくないこと、(2)大ひずみ加工(60%以上)<sup>1)</sup>、(3)低温オーステナイト域加工

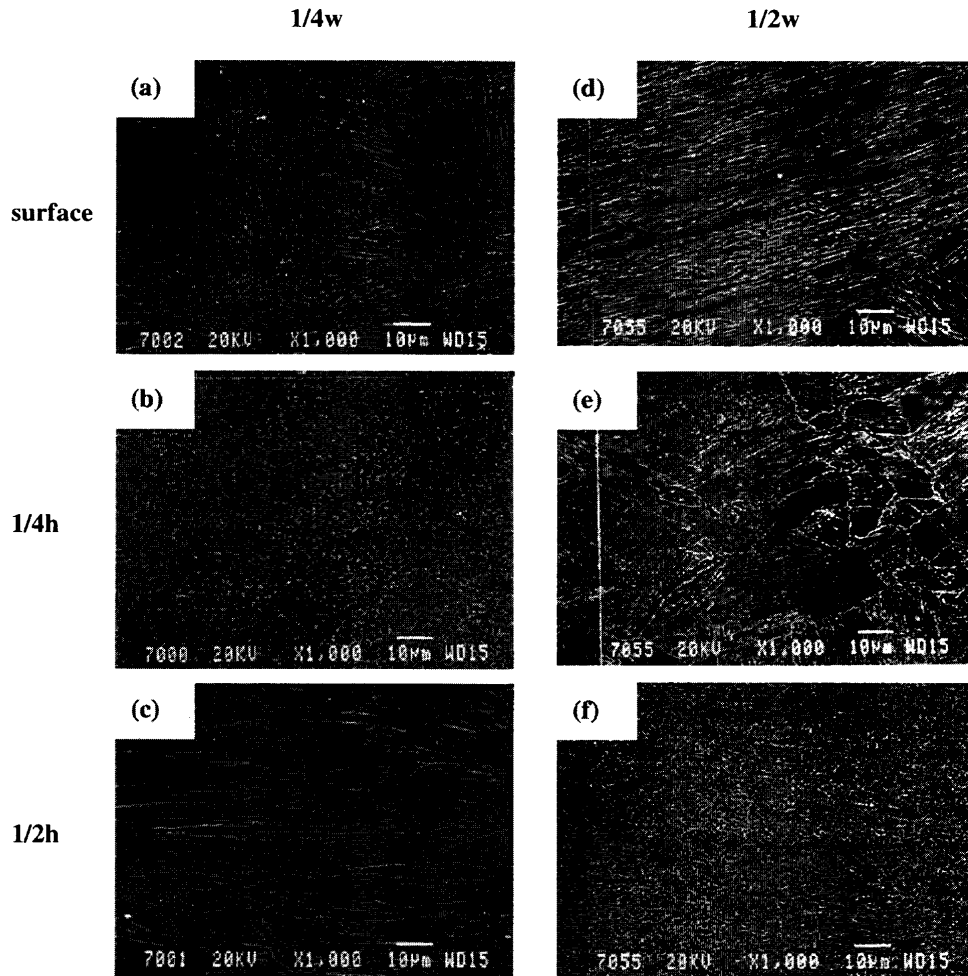


Fig. 4. Close-up views of microstructures in prequench-hot rolled base steel. Longitudinal section. Portion; (a)–(c) 1/4 w, (d)–(f) 1/2 w, (a)(d) surface, (b)(e) 1/4 h, (c)(f) 1/2 h. W and h means width and height, respectively.

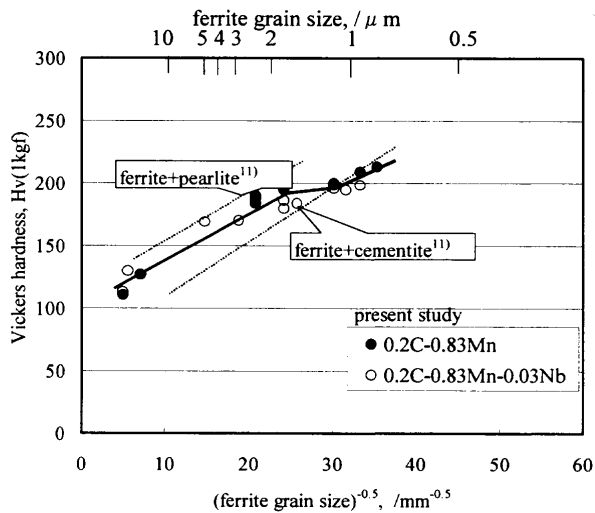


Fig. 5. Relationship between grain size and vickers hardness. Note that the relationship is in good agreement with ferrite+pearlite data at grain size between 2 µm and more, whereas with ferrite+cementite data at the grain size between 1 µm and smaller.

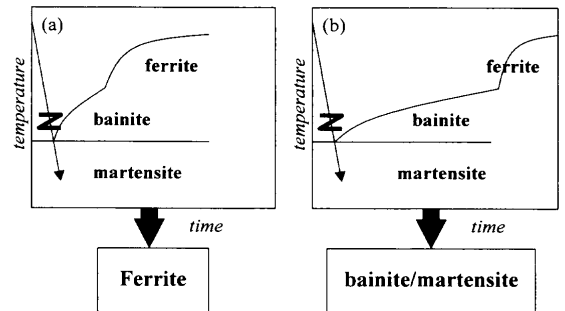


Fig. 6. Process window required for strain assisted low temperature transformation to ferrite.

(700°C以下 Ms点以上)<sup>1)</sup>である。(1), (3)の条件を図示すると Fig. 6 のようになる。すなわち, (a) のようにフェライトノーズが短時間側に存在する (すなわち, 焼入れ性が過度に高くない) 鋼種でのみ本手法は適用可能となり大ひずみ加工によりベイナイト域でフェライトが生成するが, それ以外の鋼種ではオースフォームドベイナイトあるいはオースフォームドマルテンサイトが生成する。また, この条件を満足している鋼種でも, 上述した加工条件が整わな

ければ、オースフォームドベイナイトあるいはオースフォームドマルテンサイトが生成する。

大ひずみ加工や低温オーステナイト域での加工が必須であることは、ベイナイト領域でのフェライトの均一な生成に必要な核生成サイト数（例えば転位セルの粒径）に臨界値が存在することを示唆する。また、低温オーステナイト域での加工により、加工中にフェライト変態が生じ、更なる加工時に $\gamma+\alpha$ 二相領域での加工となり異相界面における不均一変形が生じることが期待される。このように加工条件により、生成相が変化する鋼種もあるが、広い加工条件でもオースフォームドベイナイトのみが生成する鋼種があることも明らかとなった。例えば、CCT曲線上のフェライトノーズが極めて長時間側（例えば1000s）に位置する鋼種の場合、70%程度の加工では短時間側までフェライトノーズが移動せずフェライトが生成する加工条件が狭い。これは、フェライト変態時のオーステナイト中置換型元素の加工による拡散の促進効果に限界があることによるものと推定されるが、転位密度や転位の存在形態（セル構造など）と置換型元素の拡散速度の定量的関係は現在のところ明確ではない。

Nb添加により、フェライト粒の微細化がさらに生じることが判明した。その機構について考察する。Nb添加によりオーステナイトの再結晶が抑制されることがよく知られている。これはNbの粒界への偏析に伴うソリュートドラッグ効果とNbCの析出によるピンニング効果の両観点からの説明がなされている。NbCは加工誘起析出し、ピンニング効果を発揮する。本稿で述べたNbの細粒化効果は、本プロセスが従来以上に過冷状態のオーステナイト域まで冷却していることから、(1)冷却過程で十分にNbCが析出しピンニング効果を発揮したと考えられ、また加工時に、NbC/オーステナイト界面に転位が集積し、周囲とは大きく方位が異なる部位が生じたものと推察される。このような方位差を生じる転位（群）を幾何学的に必要な転位（GN転位）と呼ぶが、フェライトの優先的核発生サイトとなることが指摘されている。したがって、ひずみ誘起低温変態による微細粒化をさらにNbが効果的にするのは、従来以上に過冷されたオーステナイトへのNbCの多量析出に伴うオーステナイト粒界および転位セルのピンニング効果ならびに微視的な不均一変形の促進による核生成サイトの導入に起因するものと推察される。

圧延材で約 $1\mu\text{m}$ 径の細粒組織が、一部ではあるが、得られた。この結果は、圧縮試験で超細粒が得られた急冷途中での大ひずみ加工が、圧延試験でも有効であることを証明している。その部位は、板幅方向の $1/4w$ 部でかつ板厚方向 $1/4h$ 部もしくは $1/2w$   $1/2h$ 部であった。表層部は水冷によりBs点、もしくはMs点以下に冷却されベイナイトあるいはマルテンサイトが生成したものと考えられる。また、 $1/4w$ 部では、中央部におけるせん断変形量が少ないため

に有効ひずみが十分ではなく（圧縮加工ではベイナイト域でフェライトが生成するに必要な加工量は60%以上）ベイナイト/マルテンサイトが生成したものと考えられる。すなわち、 $1/4h$ 部では、加工温度が $700\sim 500^\circ\text{C}$ の間にあり、かつせん断変形により有効ひずみ量が大きく微細フェライトが生成したものと考えられる。一方、 $1/2w$ 部では $1/2h$ 部でのみ微細フェライトが生成した。その理由は不明であるが、今後温度分布、せん断ひずみ分布、圧縮ひずみ分布を考慮した圧延実験を実施することが必要である。

微細粒化に伴う硬化が認められたが、粒径 $2\sim 1\mu\text{m}$ の領域において硬度が変化しない粒径域があることが明らかとなった。この硬度の停滞について考察する。Fig. 5は、近年測定されたフェライト+パーライト二相組織とフェライト+セメンタイト二相組織の粒径と硬度の関係を示す（点線<sup>11)</sup>。同じフェライト粒径でも、フェライト+パーライト組織の方が硬度が高い。本稿のデータを上書きし比較すると、 $2\mu\text{m}$ 以上では、フェライト粒径と硬度の関係はほぼフェライト+パーライトの結果と一致する。また、 $1\mu\text{m}$ 以下のデータは、フェライト+セメンタイトの結果とほぼ一致する。事実、 $2\mu\text{m}$ から $1\mu\text{m}$ にかけて第二相がパーライトからセメンタイトに変化する<sup>11)</sup>。したがって、 $2\mu\text{m}$ から $1\mu\text{m}$ にかけての硬度の停滞は、第二相組織であるパーライトからセメンタイトへの変化に起因すると考えるとうまく説明できる。

## 5. 結論

急冷途中の大ひずみ加工により超細粒化が可能となる。そのプロセスウィンドウの範囲を明確にすることを目的に、適用可能な鋼種について検討した。

(1) 無加工時にベイナイトが生成する領域で強加工時に生成する相は鋼種により異なる。0.2C-0.83Mn鋼、Si添加鋼、Nb添加鋼ではフェライトが、Mn添加鋼、Si+Mn添加鋼、Cr添加鋼ではオースフォームドベイナイト（あるいはオースフォームドマルテンサイト）が生成する。すなわち、過度に焼入れ性が高い鋼種に対しては、ひずみ誘起低温変態法は適用できない。

(2) Nb添加鋼では加工温度によらず基本鋼よりもフェライト粒径が小さい。

(3) 圧延によっても、急冷過程での低温オーステナイト域大ひずみ加工により $1\mu\text{m}$ 程度の微細粒が生成する。ただし、板幅方向、板厚方向に組織は不均一となる。

(4) 硬度は微細粒化により上昇するが、粒径が $2\sim 1\mu\text{m}$ の領域では変化しない。これは第二相の変化（パーライトからセメンタイト）に対応するものと考えられる。

なお、本研究は通産省、NEDOからの研究委託により実施したものであることを記し謝意をあらわします。また、本研究内容について議論していただいたスーパーメタル

(鉄系) 研究体の皆様に感謝します。最後に、実験の進行にご助力いただいた下川修平氏に感謝の意をあらわします。

### 文 献

- 1) Y.Adachi, T.Tomida and S.Hinotani: Proc. of 1st Symp. on Super Metal, R&D Inst. Met. Composites for Future Industries (RIMCOF) and Jpn. Res. Development Center for Met. (JRCM), Tokyo, (1998), 215.
- 2) P.D.Hodgson, M.R.Hickson and R.K.Gibbs: *Mater. Sci. Forum*, **284-286** (1998), 63.
- 3) Proc. of 1st Symp. on Super Metal, R&D Inst. Met. Composites for Future Industries (RIMCOF) and Jpn. Res. Development Center for Met. (JRCM), Tokyo, (1998).
- 4) Proc. of '98 Workshop of Structural Materials for 21st Century, National Research Institute for Metals, Tsukuba, (1998).
- 5) S.Torizuka, O.Umezawa, K.Tsuzaki and K.Nagai: *CAMP-ISIJ*, **11** (1998), 565.
- 6) M.Fujioka, Y.Abe and Y.Hagiwara: Proc. of 1st Symp. on Super Metal, R&D Inst. Met. Composites for Future Industries (RIMCOF) and Jpn. Res. Development Center for Met. (JRCM), Tokyo, (1998), 205.
- 7) 矢田 浩, 瀬沼武秀, 松村義一: 鉄鋼の結晶粒超微細化, 鉄鋼基礎共同研究会鉄鋼の結晶粒超微細化部会編, 日本鉄鋼協会, 東京, (1991), 9.
- 8) N.Matsukura and S.Nanba: Proc. of 1st Symp. on Super Metal, R&D Inst. Met. Composites for Future Industries (RIMCOF) and Jpn. Res. Development Center for Met. (JRCM), Tokyo, (1998), 229.
- 9) T.Hayashi, O.Umezawa, S.Torizuka, K.Tsuzaki and K.Nagai: *CAMP-ISIJ*, **11** (1998), 566.
- 10) N.Tsuchida and Y.Tomota: Proc. of '98 Workshop of Structural Materials for 21st Century, National Research Institute for Metals, Tsukuba, (1998), 60.
- 11) A.Fukuzawa: Proc. of '98 Workshop of Structural Materials for 21st Century, National Research Institute for Metals, Tsukuba, (1998) 20.