

0.3%C–9%Ni鋼の逆変態 γ 粒径に及ぼす 大ひずみ温間加工の影響

横田 智之*・白神 哲夫*・佐藤 馨*²・新倉 正和*

Effect of Large-strain Warm Deformation Prior to Austenitization on γ Grain Size in 0.3%C–9%Ni Steel

Tomoyuki YOKOTA, Tetsuo SHIRAGA, Kaoru SATO and Masakazu NIKURA

Synopsis : γ grain size refinement is one of the most important factors for microstructural control in heat treatment. Cold or warm deformation prior to austenitization is known to have a beneficial effect on γ grain size reduction, and in this paper, the effect of large-strain deformation at a temperature range just below A_{c1} transformation temperature on γ grain size after austenitization was studied using 0.3%C–9%Ni steel. Cylindrical specimens were deformed up to 70% in a single pass by compression using laboratory deformation simulator. Increase in reduction ratio up to 50% continuously refined γ grain size down to 2 μm after subsequent reheating to austenitization temperature: 700°C. Drastic change in $\alpha \rightarrow \gamma$ transformation behavior was found for the reduction above 70%. Spontaneous reverse transformation was induced by such a large strain deformation even without subsequent reheating. It was revealed by TEM observation that γ grain size of the specimen was remarkably refined down to around 0.5 μm . Adiabatic heating due to deformation likely contributes to such a spontaneous transformation. Transformation mechanism for the spontaneous transformation was discussed.

Key words : reverse transformation; Ni steel; martensite; austenite; grain refinement; warm deformation.

1. 緒言

オーステナイト粒（以下 γ 粒）の微細化は最も重要な組織制御の一つである。 γ 粒を微細化する手法としては二つのアプローチが挙げられる。一つは γ の再結晶を利用するもの、もう一つはフェライト（以下 α ）からの逆変態を利用するものである。例えば静的再結晶による γ の微細化に関しては、大ひずみ加工の利用により5 μm 程度まで微細化されることが報告されている¹⁾。一方、逆変態による γ の微細化に関しては、急速加熱・冷却の繰り返しによる変態と逆変態の利用により3 μm 程度まで微細化することが報告されている²⁾。

γ 粒を効果的に微細化できる手法として、冷間あるいは温間加工したマルテンサイトの逆変態を利用することが知られている。R. L. Miller³⁾は低C–高Ni、高Mnの鋼を用いてこれに冷間加工を施し、引き続き二相域に加熱することにより1 μm 未満の超微細な($\alpha + \gamma$)二相組織が得られることを報告している。また、K. Tomimura⁴⁾は準安定 γ 系ステンレスにおいて、M. Tokizane⁵⁾は中低炭素鋼・低合金鋼において精力的な研究を行い、これまでに1 μm 以下の γ 粒径が得られたことを報告している。

この γ 粒微細化手法においては、再加熱逆変態処理の前に大ひずみ加工を施すことが必要であるが、従来ほとんど

の場合、大ひずみを与える加工手段としては冷間での多パス圧延が利用されてきた。しかしながら実用的な観点からは、少しでも変形抵抗が小さくなる温間領域において加工を行うことが望まれる。R. L. Miller³⁾は γ 粒形成に及ぼす温間圧延の効果は冷間圧延の場合と同様であると報告している。一方松岡⁶⁾は逆変態 γ 粒径に及ぼす温間加工の影響を調べ、逆変態 γ 粒径はZener–Hollomon因子に依存することを報告している。しかし、逆変態 γ 粒径に及ぼす温間における加工量、特に大ひずみ加工の影響に関して、詳細に調べられた報告は非常に少ない。

本研究の目的は、0.3%C–9%Ni鋼を用いて、逆変態 γ 粒径に及ぼす1パス大ひずみ温間加工の影響を調べることである。変態点直下での1パス大ひずみ加工となるため、加工発熱が組織変化に及ぼす影響を無視できなくなる。実際本研究では、1パス温間加工量を大きくすると、再加熱逆変態処理をするまでもなく温間加工ままで逆変態が完了するという特異な現象を見いだしたので、その詳細についても合わせて報告する。

2. 実験方法

2.1 供試鋼と加工熱処理試験

Table 1に供試鋼の化学成分を示す。実験室真空溶解炉で

平成12年2月10日受付 平成12年4月12日受理 (Received on Feb. 10, 2000; Accepted on Apr. 12, 2000)

* スーパーメタル（鉄系）研究体 (Ferrous Super Metal Consortium of JRCM); NKK 総合材料技術研究所 (Materials & Processing Research Center, NKK Corp., 1-1 Minamiwatarida-cho Kawasaki-ku Kawasaki 210-0855)

* 2 スーパーメタル（鉄系）研究体 (Ferrous Super Metal Consortium of JRCM); NKK 基盤技術研究所 (Applied Technology Research Center, NKK Corp.)

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

C	Si	Mn	P	S	Sol.Al	N	Ni	Ti	B
0.30	0.25	0.85	0.007	0.008	0.026	0.0027	9.17	0.02	0.0016

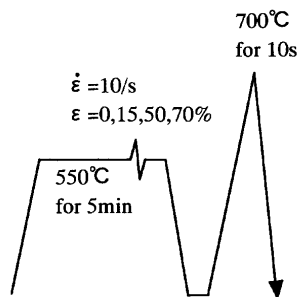


Fig. 1. Thermomechanical treatment pattern (heating rate and cooling rate are all 30°C/s).

溶製した後、鋼塊を1150°Cに加熱して熱間圧延により15 mm厚の鋼板を得た。鋼板から機械加工で8 mmφ×12 mmの円柱状試験片を削り出して加工熱処理試験に供した。供試鋼の変態点は昇温・冷却速度が3°C/sの場合、Ac₁点が630°C、Ac₃点が670°C、Ms点が230°Cであった。本供試鋼(0.3%C-9%Ni鋼)は焼入れ性が非常に高いため、γ化後の冷却過程で容易にマルテンサイト変態を生じ、逆変態の進行を急激な硬さ増加という形で検出可能である。

加工熱処理には富士電波工機製サーメックマスター(最大荷重10t)を用いた。逆変態γ粒径に及ぼす大歪温間加工の影響を調べる目的で、Fig. 1に示すように温間加工量を変化させて加工熱処理を行った。出発材を旧γ粒径22 μm、残留γ量6%のマルテンサイトとしてこれを550°Cで5分間加熱し、0~70%の各加工量で圧縮変形した後直ちに冷却した。550°Cで5分間加熱しても逆変態が生じないことを確認している。圧縮変形の後、逆変態処理のために700°Cで10秒再加熱して直ちに冷却した。

2.2 組織評価と硬さ測定

温間加工ままの試験片、温間加工後再加熱冷却した試験片の断面を3%ナイトールでエッチングして、断面中心部のマイクロ組織を観察した。温間加工後再加熱冷却した試験片については、さらに旧γ粒界を「水100cc+ピクリン酸10g+ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム5g+40%塩化第二鉄数滴」の腐食液により現出して、やはり同じように断面中心部を観察した。公称粒径は切断法により平均粒切片長さを求め、これに1.13を乗ずることにより算出した。また試験片断面中心部のピッカース硬さHV(10)を測定した。硬さは中心部で測定した3点の平均値として求めた。組織の詳細を調べるために、一部の試料についてTEMとインレンズSEM⁷⁾を用いた観察を行った。インレンズSEMは試料を対物レンズの中にセットする新しいタイプのSEMである。これを利用することにより、極めて広範囲の視野にわたって、従来のSEMでは得られなかったナノレベルの分解能で観察を行うことができる。さらに試験片

断面の残留γ量を、X線回折法を用いて測定した⁸⁾。残留γ量は、αの(200)、(211)とγの(200)、(220)、(311)の各組合せにおける積分強度比の平均から算出した。

3. 実験結果

3.1 ミクロ組織と硬さ

Fig. 2上段に温間加工ままの試料から得られたマイクロ組織を示す。50%以下の加工では、初期マルテンサイトが扁平した加工組織になっており、加工量が増えるとともにその扁平度が大きくなる。一方、70%加工を施した場合には扁平な加工組織が認められない。組織は非常に微細であり、TEMなどを用いた詳細な観察が必要である。

温間加工後に再加熱して逆変態を生じさせた試料では、いずれも扁平した組織は認められなかった。Fig. 2下段に、再加熱冷却後のマルテンサイトの旧γ粒界を現出した組織を示す。γ粒径は温間加工量が大きいほど細くなる。Fig. 3は再加熱による逆変態γ粒径に及ぼす1パス温間加工量の影響をまとめたものである。逆変態γ粒径は加工量の増大とともに微細化し、50%加工の場合約2 μmとなる。しかしながら加工量を70%としてもそれ以上の微細化効果はあらわれない。

Fig. 4に温間加工ままの硬さと再加熱冷却後の硬さに及ぼす温間加工量の影響を示す。温間加工ままの硬さは、50%以下の加工量では加工量の増加とともに漸減しており、いずれもHv400に満たない程度である。これに対し、70%の加工では温間加工ままの硬さがHv610まで急激に増加している。一方再加熱冷却後の硬さは、加工量によらず概ねHv560前後である。この鋼の通常焼入れ条件で得られるマルテンサイトの硬度はHv560程度であることから、50%以下の加工の場合、再加熱処理を経てはじめて逆変態によるγ化が生じ、冷却過程でマルテンサイトになったことがわかる。これに対して70%加工の場合には、温間加工ままに既にHv610であり、再加熱処理を行うまでもなく逆変態が完了したことを示唆していると考えられる。70%加工の後に再加熱逆変態させたものは、温間加工ままに既に逆変態したものを再度逆変態させたことになる。

3.2 TEMおよびインレンズSEM観察結果

70%の1パス大ひずみ温間加工を行うと、温間加工ままの状態で焼入れままマルテンサイトの硬さが得られるという特異な現象が見いだされた。そこで大ひずみ温間加工に伴う組織変化を調べるために、特に50%と70%の温間加工まま材の組織について、TEMおよびインレンズSEMを用いて詳細に観察を行った。

50%加工ままの試験片をTEMにより観察すると、ラス形態が破壊されたサブグレイン組織となっており、セメントタイト(以下θ)が明瞭に観察された。さらに組織中には残留γが多く観察された。Fig. 5に観察された残留γの典型

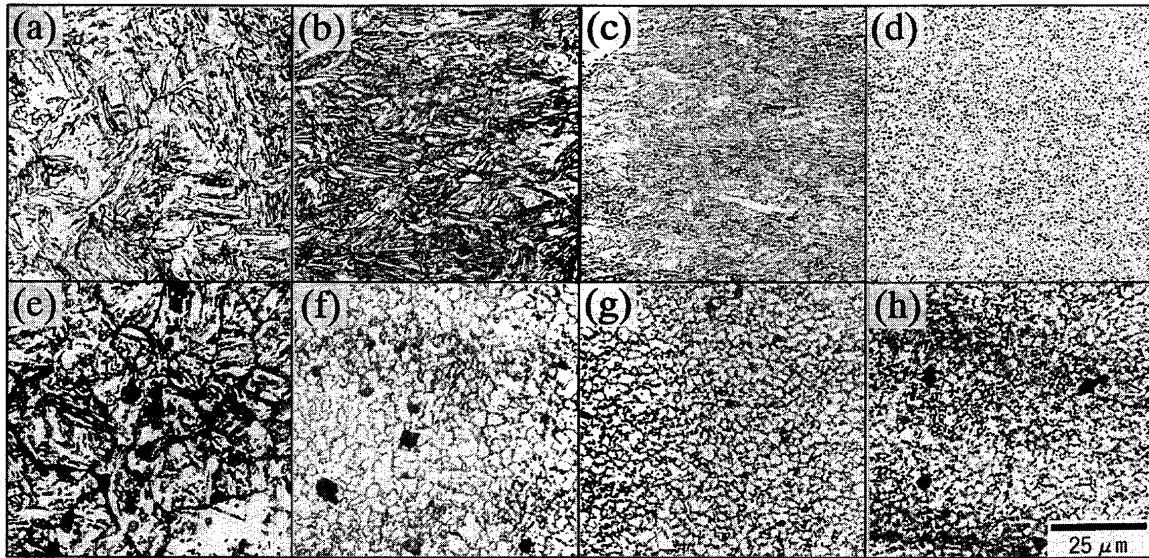


Fig. 2. Microstructure of as deformed (top of the figure) and subsequently reheated specimens (bottom of the figure). (a), (e): 0% (b), (f): 15% (c), (g): 50% (d), (h): 70%

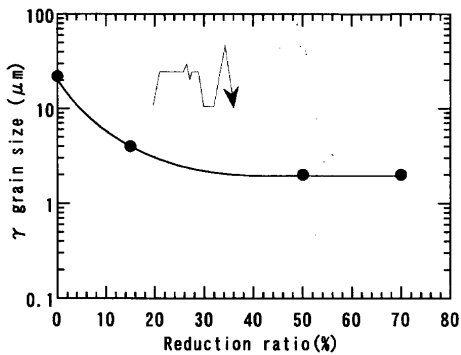


Fig. 3. Effect of reduction ratio on reversed γ grain size after reheat treatment.

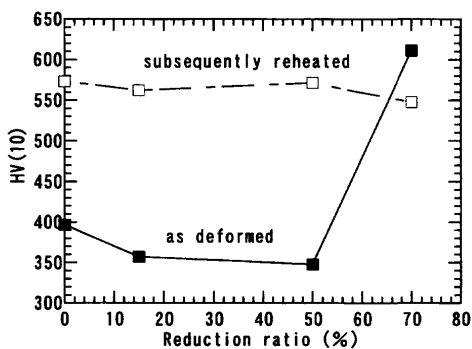


Fig. 4. Effect of reduction ratio on hardness of as deformed and reheated specimens.

例を示す。残留 γ は転位密度が低く、サブバウンダリー上に存在するセメントイトに隣接して $0.2\mu\text{m}$ 程度の粒状形態で存在している。Fig. 6にインレンズSEMによる50%加工まま材の二次電子像を示す。白いコントラストを呈する粒状の θ に加え、矢印に示すようなグレーのコントラストを呈する領域が存在している。TEMで観察された形態から、この領域が残留 γ であると推測される。

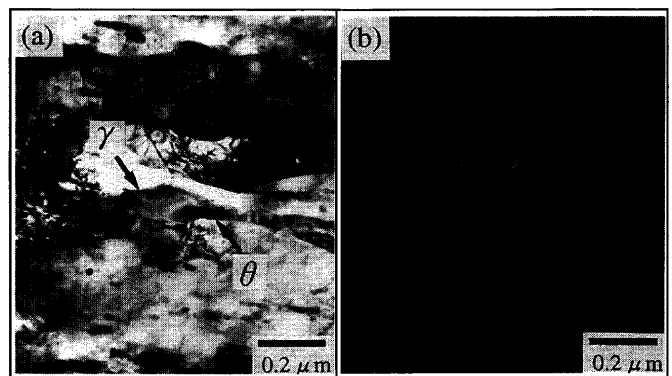


Fig. 5. Thin foil TEM images of as 50% deformed specimen. (a) Bright field image (b) Dark field image

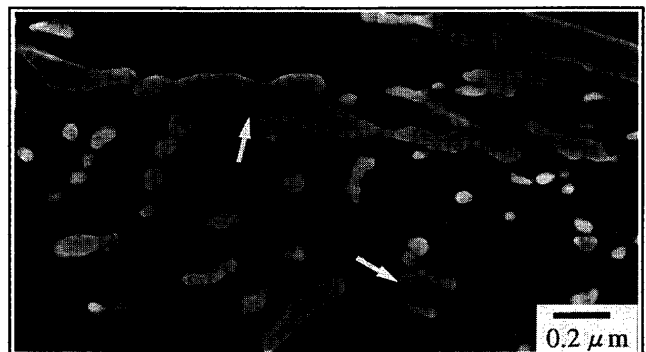


Fig. 6. In-lens SEM image (secondary electron image) of as 50% deformed specimen.

一方Fig. 7に、70%加工ままの試験片から得られたTEM像を示す。温間加工ままであるにも関わらず θ は見あらず、転位密度の高いマルテンサイト組織となっている。明視野像における黒いコントラストの領域Aは周囲と回折パターンが大きく異なることを確認しており、その結晶粒の

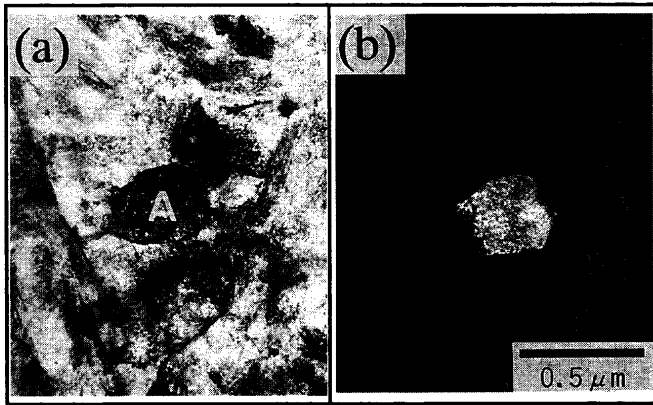


Fig. 7. Thin foil TEM images of as 70% deformed specimen.
(a) Bright field image (b) Dark field image

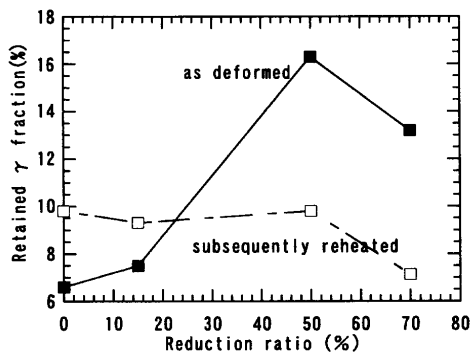


Fig. 8. Effect of reduction ratio on retained γ fraction of as deformed and reheated specimens.

大きさ (旧 γ 粒径あるいはパケット径) は $0.5 \mu\text{m}$ 程度と、再加熱冷却後に得られたマルテンサイトと比較して著しく微細になっている。観察したほとんどの領域でこのような等軸かつ非常に微細な焼入れままマルテンサイト組織となっていることがわかった。この観察結果は、Fig. 4において70%加工では、温間加工ままで焼入れままの硬さを示すことに対応しており、逆変態が温間加工ままで完了したことを裏付けるものである。なお、再加熱冷却後に得られた旧 γ 粒径が約 $2 \mu\text{m}$ のマルテンサイトでは、TEM観察によりラス構造が観察されたのに対し、Fig. 7に示すマルテンサイトでは、ラス構造はほとんど認められなかった。

3.3 残留オーステナイト量

Fig. 8に温間加工ままと再加熱冷却後の残留 γ 量に及ぼす温間加工量の影響を示す。温間加工ままの残留 γ 量は0~50%の加工量では温間加工量の増加とともに急激に増加し、50%加工の場合16%以上に及んでいる。これはTEMによる観察結果を裏付けるものである。すなわち、Fig. 5やFig. 6のような粒状形態の残留 γ は、加工により生じたものと考えられる。この結果から温間加工、特に50%以上の温間加工により γ が生成して逆変態が開始していると考えられる。70%の加工では、硬度の急激な上昇に対応して残留 γ 量はやや減少し、13%となっている。こ

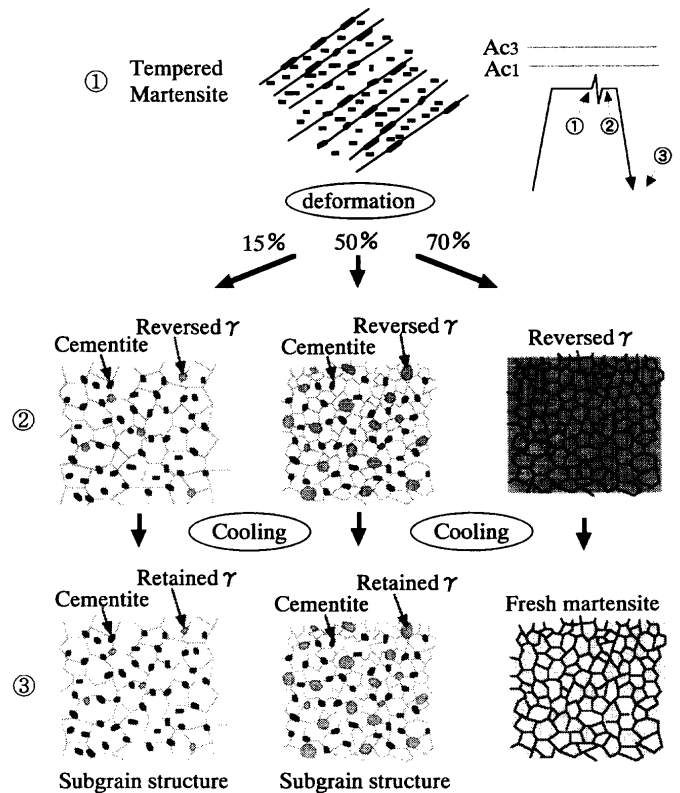


Fig. 9. Schematic illustration of spontaneous reverse transformation in 0.3%C-9%Ni steel.

れは、温間加工ままで逆変態が完了し、その後の冷却過程で大部分がマルテンサイトに変態するためである。再加熱冷却後の残留 γ 量は加工量によらず10%以下となっており、焼入れままのマルテンサイトの残留 γ 量とほぼ一致している。

4. 考察

0.3%C-9%Ni鋼の逆変態 γ 粒径に及ぼす大ひずみ温間加工の影響を調べた結果、再加熱処理による逆変態 γ 粒径は加工量の増大とともに微細化し、50%加工の場合約 $2 \mu\text{m}$ となった。さらに70%加工の場合、再加熱処理を行うまでもなく温間加工ままで逆変態が完了し、冷却後に $1 \mu\text{m}$ 未満の超微細な結晶粒からなるマルテンサイト組織が得られた。

Fig. 9に温間加工量の増加に伴う0.3%C-9%Ni鋼の組織変化を模式的に示す。50%以下の加工の場合には、加工により逆変態が部分的に生ずる。すなわち、加工により一部の θ - α 界面から γ が核生成する。この γ はCが濃化しているために安定であり、冷却後には残留 γ として加工組織の中に残ったと理解できる。この後引き続き70%まで加工を行った場合には温間加工だけで逆変態が完了する。すなわち逆変態が全面で生じて超微細な γ 粒が生成し、冷却後には $1 \mu\text{m}$ 未満の結晶粒からなる焼入れままマルテンサイトとなる。

本章においては、0.3% C-9% Ni鋼の逆変態機構を検討したうえで、再加熱逆変態による γ 粒微細化、また温間加工ままで生ずる逆変態による γ 粒超微細化機構の考察を試みた。

4.1 0.3% C-9% Ni鋼の逆変態機構

実験結果より、温間加工ままで生ずる逆変態は、拡散機構で生じていることが予想される。すなわち、Fig. 8に示した温間加工まま残留 γ 量の加工量増加に伴う変化は、Cの拡散が起こっていることを示唆しているものである。またFig. 5に示した、50%加工まま材で観察された残留 γ の組織形態は、 θ - α 界面から核生成した γ が拡散機構で成長した証拠であると考えられる。再加熱によって生ずる逆変態も、加工ままで生ずる場合と同様、拡散機構で生じていることが予想される。Fe-Ni-C合金の逆変態機構に関しては、C. A. Appleら⁹⁾が詳細な実験を行っている。彼らの実験によると、Cを0.3%含有する場合には、よほど急速に昇温しない限り剪断型の逆変態が生じ得ないことが示されており、このことから、0.3% C-9% Ni鋼の逆変態は拡散機構で生じたことが示唆される。

次に、大ひずみ温間加工を施すことにより、逆変態が再加熱処理をするまでもなく、温間加工ままで完了した原因を考える。これに関しては、加工発熱が最も大きな影響を及ぼしたと推測される。温間加工ままで逆変態が完了した70%加工の場合、加工発熱により試験片表層は50°C程度上昇して、約600°Cとなっていた。圧縮試験の際得られた真応力-真歪曲線から(1)式¹⁰⁾を用いて、試験片全体でマクロ的に発生する加工発熱量 ΔT を計算すると80°Cであり、試験片内部は630°C程度に達していたと考えられる。

$$\Delta T = (\sigma \cdot \epsilon) / (C \cdot \rho) \dots \dots \dots (1)$$

ΔT : Temperature increase (°C), σ : Average flow stress (N/m²), ϵ : True strain, C : Specific heat: 678.6 (J/kg·°C), ρ : Density: 7800 (kg/m³)。実際には、ひずみは試験片中心部に集中していることから、試験片中心部では、加工発熱により A_{c3} 温度を超える領域まで昇温し、容易に逆変態を生ずる状態になっていたと推測される。

4.2 再加熱逆変態 γ 粒径の微細化機構

Fig. 3に示したように、再加熱処理による逆変態 γ 粒径は温間加工量の増大とともに微細化し、50%加工の場合約2 μ mとなった。中炭素鋼における冷間あるいは温間加工後の逆変態を利用した γ 粒径微細化のメカニズムに関しては鉛山ら¹¹⁾が詳細に調べている。彼らは、加工前の焼戻しにより既に存在していた θ が γ の核生成を容易にするとともに、加工中あるいは再加熱時に α の回復で生じたサブグレイン境界をピン留めしてその成長を抑制し、 γ 粒の微細化に対して影響を及ぼしたと報告している。本研究においては、再加熱逆変態による γ 粒径が加工量の増大とともに微細化していることから、基本的にはサブグレインの微細

化が重要な役割を果たしていると考えられる。サブグレインが細くなったことによって θ から核生成した γ の結晶方位がよりランダムになり、結晶粒の合体をまぬがれたと推測される。逆変態温度が低いので γ 粒の粒成長はそれほど大きくないと推測され、上述のような有効核生成サイトの増大が γ 粒微細化の主な原因であると考えられる。

4.3 温間加工ままで生じた逆変態による γ 粒超微細化機構

温間加工ままで逆変態が生ずると、冷却後に得られるマルテンサイトは、再加熱冷却後に得られるマルテンサイトよりも著しく微細になっていることから、変態前の γ 粒径も再加熱で得られる2 μ mより著しく微細になっていると考えられる。このことから、温間加工ままで逆変態が生ずる場合には、再加熱の場合とは異なる γ 粒微細化メカニズムが働いている可能性がある。一つの考え方として、逆変態が動的に生じたことが挙げられる。逆変態が動的に起こっていたとすれば、加工中に核生成した γ は、加工ひずみで結晶学的に回転することによりバリエーション規制¹²⁾を回避できると推測され、 γ 粒が超微細化した主要な原因になりうる。Fig. 4において70%加工により温間加工ままで逆変態を生じた場合、再加熱で逆変態を生じた場合よりも冷却後のマルテンサイトの硬さがビッカース硬さでおよそ50ポイントも大きな値となっている。この硬さ増大の原因として、 γ 粒が2 μ mからさらに超微細化した効果に加え、逆変態が動的に起こって加工を受けた γ が転位をそのままマルテンサイトに引き継ぐことによる強度上昇、いわゆるオースフォーム効果が重畳している可能性がある。

仮に動的に、すなわち70% (真ひずみ: 1.2) の加工中に逆変態が起こったとすると、ひずみ速度10/sなので、逆変態はおよそ0.1sで完了しなければならない。 θ を核とした γ の成長が γ 中のCの拡散で律速され、粒径1 μ m程度の γ 粒が均一に生成したとする。Cの γ 相中での体拡散距離を活性化エネルギー: $Q=32400$ cal/mol, 拡散定数: $D_0=0.15$ cm²/sとして計算すると、600°Cの場合0.1sで0.11 μ m, 650°Cの場合0.1sで0.18 μ mとなる。転位、粒界の短回路拡散があることを考慮すれば、粒径1 μ m程度の γ 粒が0.1秒で生成する可能性は十分ありうると考えられる。

しかしながら、真応力-真歪曲線において動的逆変態が生じた根拠を明確に見いだせておらず、この逆変態が加工直後に加工発熱によって静的に生じた可能性も否定できない。また、Fig. 5に示したように、50%の温間加工で核生成した γ の転位密度が小さいことは、逆変態が動的に起こったこととは矛盾する。このように、温間加工ままで生じた逆変態が動的に起こったか静的に起こったかは、現段階では不明である。加工発熱による超急速加熱の影響も含め、超微細化メカニズムに関しては今後さらなる検討を要する。

5. 結言

本研究では0.3%C-9%Ni鋼を用いて逆変態 γ 粒径に及ぼす1パス大ひずみ温間加工の影響を調べた。その結果以下のことがわかった。

- ① 再加熱後の逆変態 γ 粒径は温間加工量の増大とともに微細化し、50%の加工によって約2 μ mとなった。
- ② 50%の加工を施すと温間加工ままで逆変態が開始する。さらに70%の大ひずみ加工を施すと温間加工ままで逆変態が完了し、冷却後に1 μ m未満の超微細な結晶粒からなるマルテンサイト組織が得られる。
- ③ 0.3%C-9%Ni鋼の逆変態は、再加熱で生じたか温間加工ままで生じたかによらず、 γ が θ - α 界面から核生成し、Cによる拡散機構で成長して生じたと考えられる。
- ④ 温間加工ままで生じた逆変態により、冷却後に1 μ m未満の超微細な結晶粒からなるマルテンサイト組織が得られた原因として、逆変態が動的に起こったことで γ のバリエーション規制が回避され、これにより γ が超微細化した可能性が挙げられる。

本研究は通産省工業技術院、NEDOのご後援のもとに行われたものであり、ここに謝意を表します。また研究の遂行にあたり有益なご助言をいただいたスーパーメタル（鉄系）研究体の皆様に謝意を表します。

文 献

- 1) C.Ouchi and T.Okita: *Trans. Iron Steel Inst. Jpn.*, **24** (1984), 726.
- 2) R.A.Granger: *Trans. Am. Soc. Met.*, **59** (1966), 26.
- 3) R.L.Miller: *Metall. Trans.*, **3** (1972), 905.
- 4) K.Tomimura, M.Oku, S.Takaki, and Y.Tokunaga: *Tetsu-to-Hagané*, **75** (1989), 1186.
- 5) M.Tokizane, K.Ameyama and K.Takao: *Scr. Metall.*, **22** (1988), 697.
- 6) H.Matsuoka, K.Ameyama and M.Tokizane: *Tetsu-to-Hagané*, **73** (1987), S467.
- 7) K.Sato, T.Yokota, T.Shiraga, M.Niikura, K.Maruta: Proc. of 2nd Symp. on Super Metal, RIMCOF & JRCM, Tokyo, (1999), 183.
- 8) カリティ著, 松村源太郎訳: X線回折要論, アグネ, 東京, (1980), 377.
- 9) C.A.Apple and G.Krauss: *Acta Metall.*, **20** (1972), 849.
- 10) M.Niikura, K.Takahashi and C.Ouchi: *Trans. Iron Steel Inst. Jpn.*, **27** (1987), 485.
- 11) K.Ameyama, N.Matsumura and M.Tokizane: *Netsu Shori*, **28** (1988), 233.
- 12) K.Tsuzaki: *Netsu Shori*, **38** (1998), 146.