

# SUS304の再結晶と高温変形挙動に及ぼす冷間加工と温間加工の影響

加藤 正仁\*・鳥阪 泰憲\*

Effect of Cold Working and Warm Working on Recrystallization and High Temperature Deformation Behaviors in SUS304

Masahito KATO and Yasunori TORISAKA

**Synopsis :** The effect of strain-induced martensite and introduced strain was examined in thermo-mechanical treatment for grain refinement on the SUS304 metastable-austenitic stainless steel. By combining the cold working with warm working, the following were independently estimated : Effect of the strain and effect of the martensite.

In spite of whether it added to before and after anyway of the martensite generation, the strain has the equivalent effect for grain refinement. Resembled microstructure and mechanical property in high temperature was shown.

**Key words:** thermo-mechanical treatment; stainless steel; grain refinement; super plasticity

## 1. 緒言

オーステナイト系ステンレス鋼 SUS304 に  $M_s$  点以上  $M_d$  点以下で 90% の冷間強加工を加えて加工誘起マルテンサイト (以下  $\alpha'$ ) を生成せしめ、 $A_s$  点以上で焼きなますと、 $\alpha'$  相のオーステナイト (以下  $\gamma$ ) 相への逆変態を伴う再結晶挙動により結晶粒径が  $1\ \mu\text{m}$  あるいはそれ以下へと微細化する。このような微細組織に調整された SUS304 は適当な温度ひずみ速度条件で微細結晶粒超塑性と思われる 200% 以上の巨大伸びを呈する<sup>1)</sup>。上記の「冷間加工による  $\alpha'$  導入  $\rightarrow$  焼なまし」という一連の加工熱処理を同一素材に複数回加えると、結晶粒は数百 nm 以下に微細化し、4 回加えた場合には 973K における微細結晶粒超塑性挙動発現のひずみ速度の上限が  $1 \times 10^{-2}/\text{s}$  以上に向上する<sup>2,3)</sup>。

このように、SUS304 への冷間強加工による  $\alpha'$  生成-焼なましという加工熱処理は超塑性挙動を発現させるための SUS304 の結晶粒微細化処理に有効な方法である。

しかしながら、この方法によって SUS304 の超塑性加工の実用化を試みようとする以下 3 つの問題が存在する。

(1) 結晶粒微細化工程の中に冷間強加工を用いるが、一連の加工熱処理を繰り返して加えることによる結晶粒の微細化に伴って、加工荷重が過大になるために、大型化が困難である。

(2) 一連の加工熱処理を繰り返し加えていくと、素材がぜい化して多数の割れを発生し、幅が十数 mm、長さが数十 mm 以上の寸法の超塑性板材を得るのが不可能

である。

(3) 加工誘起マルテンサイト生成を阻害する加工熱の影響回避のため、1 パスあたりの加工量が小さく、工数が多くなる。

このうちの加工荷重の問題については、加工装置の圧下能力を向上させることなどの装置側の対策で解決できる可能性があると期待することもできる。しかし、割れ発生の問題は、荷重が過大になる問題とは異なって致命的であり、結晶粒微細化処理工程における対策、すなわち、素材の割れが発生しにくい結晶粒微細化処理工程への代替が必須である。また、工数の問題については冷間加工を必要最小限の利用にとどめるといふ対策が考えられる。

本研究では、加工熱処理のための加工工程に冷間加工だけではなく、温間加工も組み合わせたときの、焼なまし時の  $\alpha' \rightarrow \gamma$  逆変態を伴う再結晶挙動を観察し、また、高温引張試験で超塑性挙動の発現を確認した。さらにこれによって、SUS304 超塑性材製造のための結晶粒微細化処理の代替可能性について検討した。

## 2. 実験方法

### 2.1 加工熱処理実験

使用した母材は厚さ 12 mm の SUS304 市販板材である。化学成分を Table 1 に示す。この母材には 1373K  $\times$  5 min の溶体化処理が施してある。この母材より 15 mm  $\times$  10 mm の断面で長さ 50 mm の圧延用小片を切り出し、試料とした。

使用した圧延機はロール直径 120 mm、ロール周速

Table 1. Chemical composition (mass%).

C	Si	Mn	P	S	N	Cr	Ni
0.05	0.44	1.18	0.033	0.001	0.0526	18.23	8.22

Table 2. Variation of thermo-mechanical treatment.

first working (rolling)	heat treatment	second working (rolling)	name
cold	973K × 2h	cold	C
		573K	W
	-	cold	S99
		573K	CW
573K	-	cold	WC
		573K	W99
-	-	cold	S

78 mm/sの二段圧延機であり、ロール内部に設置したヒーターにより、ロールを所定温度に加熱保持できる構造になっている。

加工熱処理は「第1段加工→中間熱処理→第2段加工→最終熱処理」という流れで行い、第1段と第2段の加工および中間熱処理の組み合わせをTable 2のように変えて行った。以下に詳細を述べる。

第1段加工は273Kの冷間圧延と573Kの温間圧延の2種類とした。この圧延では一方向に圧下するのではなく、最初に試料断面の幅広の方から圧下し、圧下方向に対する幅方向が厚さ方向の約1.5倍となったら厚さ方向と幅方向を入れ替えるという操作を繰り返して、幅および厚さ方向のいずれからも圧下した。この操作により、所定のひずみを加えても試料が薄くなり過ぎないように、すなわち、元の試料寸法が過大にならないようにした。この目的は先の報告<sup>3)</sup>の向きを変えながらの繰り返し据込みと同様である。

このときの最終圧下量は圧下方向についての真ひずみを加算したものが90%圧下と同等になるまで行った。すなわち、 $n$ パス目の圧下前の厚さを $B_n$ 、圧下後の厚さを $A_n$ としたときに、(1)式で求められる積算圧下率、 $R$ が0.9となるようにした。

$$R=1-(A_1 \times A_2 \times \dots \times A_n)/(B_1 \times B_2 \times \dots \times B_n) \dots \dots \dots (1)$$

次に中間熱処理についてであるが、第1段加工を273Kで行ったもの、すなわち $\alpha'$ 単相となったものについては、中間熱処理を加えて $\gamma$ 単相にしたものと中間熱処理を加えないものの2種類とした。中間熱処理は、予備実験より973K焼なましで $\gamma$ 単相になる最短時間の973K×2h焼なまし→水冷とした。一方、第1段加工を573Kで行い、 $\alpha'$ を生成しないものについては、中間熱処理は施さなかった。

これらの試料より、4 mm (W)×5 mm (T)×50 mm (L)の圧延用小片を切り出し第2段加工を行った。

第2段加工は、全圧下率90%の圧延であり、第1段と同

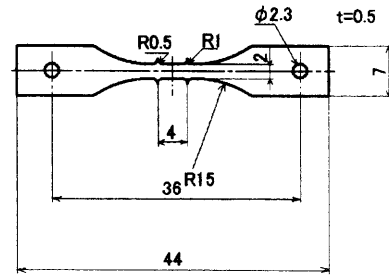


Fig. 1. Dimension of the tensile test specimen.

様に573Kでの温間加工と273Kでの冷間加工の2種類とした。

なお、冷間加工においては、加工熱が $\alpha'$ の生成を阻害しないように1パス毎に試料を氷水で冷却し、1パス当たりの圧下率は5%以下とし、常温のロールで圧延した。また、温間圧延では試料を1パス毎に電気炉で573Kに5 min加熱し、さらに、加工中にロールで試料が冷やされて加工誘起 $\alpha'$ が生成しないように、ロール温度も試料と同じ573Kに加熱保持して圧延を行った。これらについては第1段加工と第2段加工に共通した処理である。

実験に使用した加工熱処理は以上を組み合わせ、Table 2に示すようなC、W、S99、CW、WCおよびW99処理の6種類と、さらに、母材から4 mm (W)×5 mm (T)×50 mm (L)の圧延用小片を切り出し、90%冷間圧延のみを加えた比較材のS処理を加えた計7種類の試料で実験を行った。

以上の圧延済み試料の外観を観察し、その後にそれらより約8 mm長に切り出した小片に最終熱処理として、鉛浴によって、973Kで種々の時間の焼なましを施し、TEM組織観察と残留 $\alpha'$ 量測定を行った。

焼なまし後の残留 $\alpha'$ 量はFischer社製のフェライトスコープを使用して測定した。

## 2.2 高温引張試験

Table 2の各プロセスで処理したSUS304板材の超塑性挙動を確認するために高温引張試験を行った。

Fig. 1は試験に使用した試験片形状である。これは厚さ0.5 mm、平行部幅2 mm、評点間距離4 mmのJIS7号試験片に評点の突起を設けたものである。試験装置は真空チャンバ中で高周波加熱するようになっている油圧サーボ試験機(荷重容量5 t)である。

試験は973Kに加熱し10 min保持後、ピストン移動速度一定により $3.2 \times 10^{-4} \sim 1.0 \times 10^{-3}$ /sのひずみ速度範囲で行った。

また、理由の詳細は後述するが、CW処理はS99処理と同一とみなし、CW処理材の引張試験は省略した。そのため引張試験を行った試料はC、W、WC、S99およびW99材の5種類である。引張試験に使用した試料はいずれの処理においても最終焼なまし条件を973K×1800 sとした。

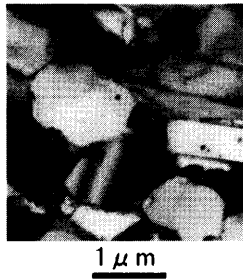
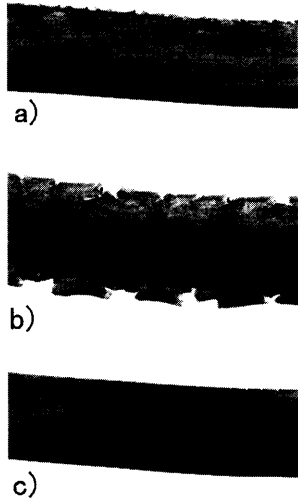


Fig. 2. TEM micrographs after first cold working and heat treatment in C and W treatment.



a) C treatment  
b) S99 treatment  
c) WC treatment

Fig. 3. The appearance of the second worked specimens.

### 3. 実験結果と考察

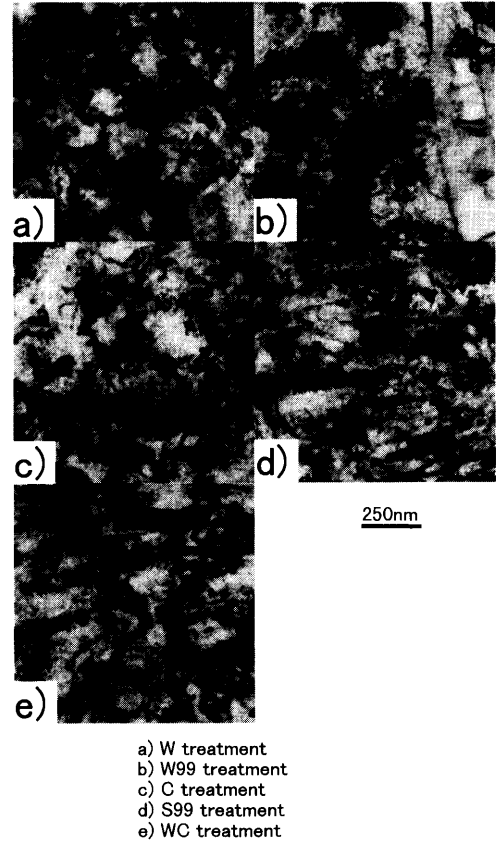
#### 3.1 加工熱処理実験

C材とW材の第2段加工前、すなわちS材のTEM組織をFig. 2に示す。一部に、より微細な結晶粒が認められるものの、大部分は結晶粒径約1μmの結晶粒で構成されている。

Fig. 3は第2段加工後のC材、S99材およびWC材の試料外観である。C材では、微細な耳割れを多く示し、S99材はさらに著しい割れを示している。CW材もS99材と同様であった。一方、WC材は第2段圧延後も、肉眼ではほとんど割れを認めなかった。

Fig. 4はC、W、S99、WCおよびW99材の第2段加工後、すなわち、最終熱処理前のTEM組織である。W材は転位セルの形成されている一般的な強加工組織であるが、C材、S99材およびWC材については、強変形されたマルテンサイト組織である。W99材で微細組織の大部分はW材と同様の組織であるが、部分的に写真b)中の右側に上下方向の層状構造として現れているような変形帯が認められる。

Fig. 5は、C材、S99材、WC材およびCW材についての、



a) W treatment  
b) W99 treatment  
c) C treatment  
d) S99 treatment  
e) WC treatment

Fig. 4. TEM micrographs after second worked specimens.

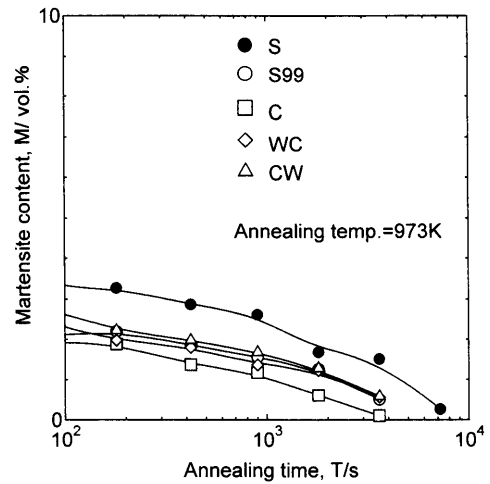


Fig. 5. Variation of remained martensite contents with annealing time at 973K in the final heat treatment.

焼なまし後のα'量を焼なまし時間に対して示したものである。図中には比較のために、S材に焼なましをしたときの結果も併せて示してある。S99材、WC材およびCW材のα'量変化はほとんど同一であり、また、α'減少速度はS材より大きい。これらと比較するとC材は僅かにα'減少が速い結果が得られているが、その違いは大きなものではない。

ところでS99材では、第1段加工終了時にほぼα'単相となっており、第2段加工では加工誘起マルテンサイト変態

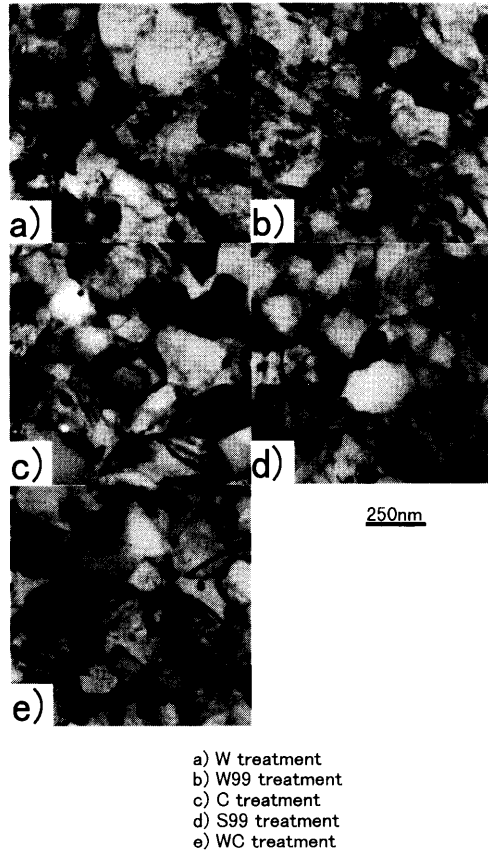


Fig. 6. TEM micrographs in final heat treatment at 973K×7s.

を伴わないためCW処理とS99処理は同等とみなせる。事実Fig. 5に示すように、S99材とCW材の $\alpha'$ 減少挙動はほとんど同一である。よって、以後この2つの処理は同一として取り扱うこととし、焼なまし中の挙動および次項の高温変形挙動についての実験S99処理のみとし、CW処理については省略した。

Fig. 6はC材、W材、S99材、WC材およびW99材の973K×7s焼なまし後の、また、Fig. 7は1800s焼なまし後のTEM組織である。焼なましの初期である7s処理材を見ると、C材、S99材およびWC材には粒径数百nmあるいはそれ以下の、明瞭な結晶粒が新生しているのが認められるが、W材やW99材では、焼なまし前と比較して、転位セルから亜結晶に変化しているような構造は認められるが、明確な再結晶粒は認められない。Fig. 7に示す973K×1800s焼なまし後ではC材、S99材およびWC材ともに、ほぼ全体が転位をほとんど含まない結晶粒で占められ、全体が再結晶終了していると考えられるが、W材およびW99材では、粒内に転位が大量に残留する未再結晶領域が多く見られる。

過去の多くの研究<sup>5-7)</sup>でよく知られるように、準安定オーステナイト系ステンレス鋼では、同じひずみを加えた場合に $\alpha'$ を含むものでは $\alpha'$ を含まないものより再結晶終了時の $\gamma$ 相結晶粒は微細化する。

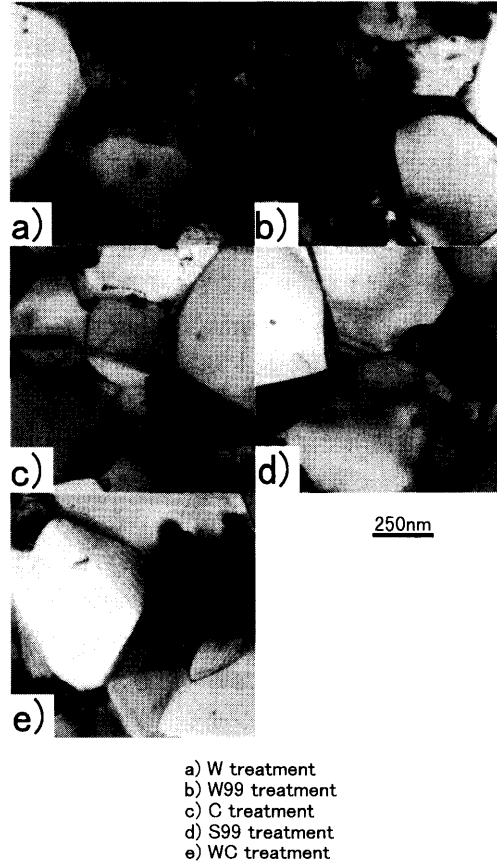


Fig. 7. TEM micrographs in final heat treatment at 973K×1800s.

W材やW99材のように、 $\alpha'$ が存在しない場合の再結晶核生成は、転位セルから亜結晶を生成し再結晶核の生成へとつながるという典型的な再結晶核生成過程となっているのであろうが、C、WCおよびS99材のように $\alpha'$ が存在した場合は、 $\alpha' \rightarrow \gamma$ の相変態の核として生じた微細な新生結晶粒が再結晶の核となるのであろうと考えられる。その結果としてFig. 6のように短時間で多数の再結晶核が発生し、最終的に得られる結晶粒が微細化するのであろう。

Fig. 7に見られるように、973K×1800s焼なまし後の組織では、認められる再結晶粒の大きさは $\alpha'$ の有無にかかわらずほぼ等しいが、焼なまし前に全量が $\alpha'$ であったと思われるC、WCおよびS99材と、 $\alpha'$ の存在しないW材およびW99材とでは再結晶した領域の量に大きな相違が認められる。後者に多く存在する、明確な結晶粒界が存在しない部分は超塑性変形に必要な粒界すべりにいっさい寄与しない。そこでさらなる焼なましによって、再結晶を進行させようとする、すでに生成している結晶粒が粗大化してしまうのであろう。そのため、超塑性を得ることを目的とした加工熱処理としてはW処理とW99処理は不適と考えられる。

次に加工の影響について考えてみたい。

加工されていない低炭素低合金鋼においては、マルテンサイトラス境界<sup>4)</sup>などの $\gamma$ 核生成優先サイトが存在すると

されるが、富村ら<sup>7)</sup>が述べているように強加工された準安定オーステナイト系ステンレス鋼の場合は、 $\gamma$ 相核生成サイトとして優先的な場所はなく、マルテンサイトラス中に均一に核生成が起きる。Fig. 3で明らかなように、S材とS99材の比較で、 $\alpha'$ 減少速度に差が出ることから考えて、加工の影響が、核生成優先サイトの有無という定性的影響だけでなく、核生成速度への量的な影響も持つのであろうと考えられる。恐らく、 $\alpha'$ 中でも転位セル等の格子欠陥が密集した部分が $\gamma$ 相再結晶核の生成サイトになるのではないかと想像されるが、本実験の範囲内では明らかではない。

さらに本実験結果で注目すべきことは、 $\alpha'$ 生成終了後に半分以上の真ひずみが増えられたCW材と、 $\alpha'$ 生成開始前に少なくとも真ひずみの半分が増えられているWC材の間に $\alpha'$ 減少挙動に有意差がなく、さらにFig. 6および7に見られる焼なまし中のTEM組織も大きな相異が認められないことである。このことは、加工の影響が、マルテンサイト変態以前であっても以後であっても、同様に現れるということの意味する。マルテンサイト変態は、非拡散変態であるから、変態前の転位等の格子欠陥の配列は変態後にも引き継がれると考えられ、その結果として加工誘起マルテンサイト変態前に加えられた加工も変態後に加えられた加工も最終熱処理において同様の効果をもたらしたのであろう。

厳密には変態による結晶構造の相違により、加えられた加工のマクロ的量和内部に導入する格子欠陥量の対応は、加える時期によって必ずしも同一であるとは考えられないが本実験の結果には、次項で述べる高温引張試験結果も含めて、それが有意差としては現れていない。

さらに第1段の加工で $\alpha'$ 導入した場合の中間熱処理の必要性についてであるが、C処理材とS99処理材の関係を見ても、C処理材の方が若干 $\alpha'$ 減少が速いものの、その相違は大きくない。また、Fig. 6やFig. 7に見られるようにC材とS99材の焼なまし途中のTEM組織はほとんど同一である。

このことから、再結晶挙動というミクロ的観点のみから考えた場合は、中間熱処理は必要ないとも言える。但し、中間熱処理が無いと著しい割れを発生してしまう素材の健全性の観点から、中間熱処理の必要性が認められる。

### 3.2 高温引張試験

Fig. 8は、各試料を高温引張試験した際の変形応力と破断伸びをひずみ速度に対して示したものである。

Fig. 7に示すような同様の微細組織を呈したC、S99およびWC材ではひずみ速度が $1 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ のひずみ速度でも300%近い大きな伸びが得られているが、W材やW99材では、これらに比較して伸びが小さくなる。さらに変形応力のひずみ速度に対する勾配から求めたひずみ速度感受性指数、 $m$ 値はC、S99、WC材では0.4を越える大きな値を示

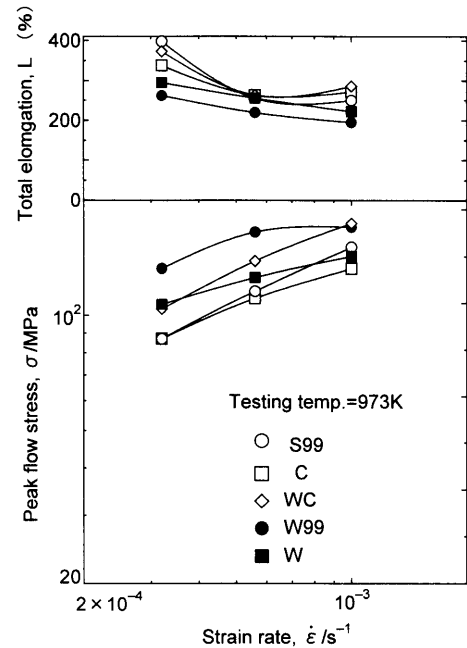


Fig. 8. Variation of tensile properties with initial strain rate at 973K.

しており、超塑性を呈していると言える。一方、最終焼なまし前が $\gamma$ 単相であったW99材およびW材では $m$ 値が0.3を下回り、超塑性を示していないと思われる。

前項でも述べたように、加えられたひずみがマルテンサイト変態の前であっても後であっても、その後の焼なましによりほぼ同様の組織となり、似かよった高温変形特性を示すと考えられる。但し、WC材とS99材については、伸びや変形応力のひずみ速度に対する勾配、すなわち $m$ 値については同様の値を示すものの、変形応力の絶対値についてはWC材が明らかに高くなっている。これは、加工の多くが $\gamma$ 相の状態に加えられたか $\alpha'$ の状態に加えられたかによる相違ではないかと推測されるが、最終焼なまし後のTEM組織にはほとんど違いは認められず、直接的には何が変形応力に影響したのかは本実験の範囲では明らかではない。これは今後の検討課題としたい。

### 3.3 結晶粒微細化処理工程の検討

以上の結果より超塑性加工用素材を製造するためのSUS304の結晶粒微細化処理工程について検討したい。なお、前項の結果より、超塑性を示さないW材およびW99材は検討から除外する。

工数を少なくするという観点からは、従来法であるC処理よりはS99処理の方が中間熱処理が省略できるだけ有利と考えられる。さらに、最終の加工荷重が低くなるという観点からは第2段加工が温間で行うCW処理が適しているようにも思われる。しかしS99材はFig. 3のように著しい割れを発生し、CW材についてもS99材同様である。よってこれらは、従来法のC処理より優れているとは必ずしも言えない。

一方WC材はC材と比較しても割れが少ない。Fig. 9はC

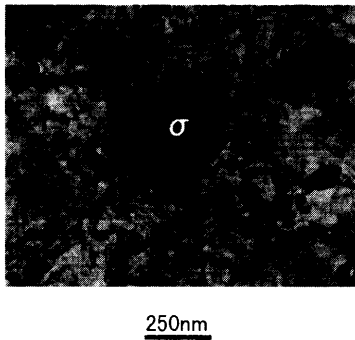


Fig. 9. TEM micrograph after second work in “C” treatment. The precipitate is the  $\sigma$  phase.

材の最終焼なまし前の、Fig. 4に示した物とは別視野のTEM像である。中央に認められる析出物は $\sigma$ 相であった。これは2段目の加工前、すなわち中間熱処理終了時にも $\sigma$ 相があったことを意味する。おそらくこの $\sigma$ 相は、中間熱処理で $\alpha'$ 相から $\gamma$ 相に逆変態が進行する過程において、 $\alpha'$ 相と $\gamma$ 相共存状態が長時間続いたために生成されたのであろう。この $\sigma$ 相析出物は粒径が300nm程度であるが、Fig. 2に示すように中間熱処理終了時の母相の $\gamma$ 相の結晶粒径が $1\mu\text{m}$ 程度であることを考慮すると、決して小さいものではない。C材とWC材の差異は本実験の結果では他に認められないので、この $\sigma$ 相析出物がC材での微細な割れにかかわっていたと考えられる。なお、 $\sigma$ 相の生成は本実験のC材のみならず、先の報告<sup>3)</sup>の「冷間加工-焼なまし」を3~4度繰り返し加えて行ったときの著しい割れについても、割れを促進した可能性が考えられる。 $\sigma$ 相が割れを促進した機構についてであるが、 $\sigma$ 相と母相の界面が試料の加工に伴って分離し、マクロ割れの起点になった、あるいは、母相が加工硬化して $\sigma$ 相析出より強くなり $\sigma$ 相析出が割れたなどの可能性が考えられるが、本実験の範囲では明らかではなく、今後の課題としたい。

一方のWC材については中間熱処理が無いために $\sigma$ 相が発生せずに健全に加工できたのだと思われる。但し、WC処理では第1段加工において素材を加熱しなければならない欠点があるものの、温間加工をする工程においては、加工熱の影響は無視できるので、1パス当りの加工量を大きくすることができ、加工回数は過大にならないという利点で相殺できるのであろう。

以上のことから加工熱処理プロセスとしては、「冷間強加工による $\alpha'$ 導入→焼なまし」という加工熱処理単位を繰り返し同一素材に加えるよりは、WC処理、すなわち「温間強加工による大量のひずみ導入→全量 $\alpha'$ となる必要最小限の冷間加工→焼なまし」というプロセスの方が適

しているであろう。

ただし、WC処理では最終の加工が冷間加工になるので、そのままでは最終工程の加工荷重が大きくなるという欠点はある。このため組織制御処理の後に必要素材形状を得るために温間加工や切削加工などの何らかの2次加工が必要になると思われる。

#### 4. 結言

SUS304に冷間加工、温間加工および焼なましの組み合わせを種々に変えて結晶粒微細化加工熱処理実験を行い、さらに高温引張試験を行った結果、以下の知見を得た。

(1) 最終焼なまし直前が強加工された $\alpha'$ 相であると、焼なましのときに $\alpha'\rightarrow\gamma$ 逆変態の核生成を伴うため、同程度に強加工された $\gamma$ 単相の焼なましによる再結晶の覚醒性より再結晶核の生成が速く、結果として再血腫尾終了時の結晶粒は微細化する。

(2) 加える加工度が大きくなると、焼なましによる $\alpha'$ 相から $\gamma$ 相への逆変態を伴う再結晶の再結晶核生成を促進する効果を持つ。

(3) 焼なまし直前に $\alpha'$ 単相になっていて、加える加工の総量が等しくなれば、冷間加工でも温間加工でもその効果は等しく、また、加えられる加工がマルテンサイト変態以前か以後かは逆変態過程に影響せず、同様の微細組織が得られ、同様の高温変形挙動を示す。

(4) この際、加える加工がマルテンサイト変態以後であるよりは、マルテンサイト変態以前である方が、割れ発生は少ない。

(5) 「温間強加工による大量のひずみ導入→全量 $\alpha'$ となる必要最小限の冷間加工→焼なまし」によれば、「冷間強加工による $\alpha'$ 導入→焼なまし」という加工熱処理単位を繰り返し同一素材に加える方法で生じる $\sigma$ 相の発生を回避でき、割れを少なくできる。

なお本研究は、(財)天田金属加工機械技術振興財団の平成13年度研究開発助成を受けて行った。

#### 文 献

- 1) M.Katoh and Y.Torisaka: *Tetsu-to-Hagané*, **80** (1994), 249.
- 2) M.Katoh and Y.Torisaka: *Tetsu-to-Hagané*, **84** (1998), 127.
- 3) M.Katoh and Y.Torisaka: *Tetsu-to-Hagané*, **89** (2003), 1038.
- 4) S.Matsuda and Y.Okamura: *Tetsu-to-Hagané*, **60** (1974), 226.
- 5) W.C.Leslie and R.L.Miller: *Trans. Am. Soc. Met.*, **57** (1964), 972.
- 6) S.Takaki, S.Tanimoto, K.Tomimura and Y.Tokunaga: *Tetsu-to-Hagané*, **74** (1988), 112.
- 7) H.Tomimura, S.Takaki and Y.Tokunaga: *Tetsu-to-Hagané*, **74** (1988), 1649.