

## 新規ねじり押出し法による金属材料の結晶粒微細化

研究代表者 同志社大学 理工学部機械系学科 宮本 博之  
共同研究者 同志社大学 理工学部機械系学科 湯浅 元仁

### 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。我々は SPD 法により結晶粒径が 100nm の Fe-Cr 鋼の作製に成功している[1]。材料強化法の中でも SPD 法による結晶粒微細化は靱性の低下が少ないこと、さらに組成に対する制約がなく純金属に対しても適用できるという特徴がある。したがって国際的に価格上昇が著しい合金元素の節約が可能で、環境負荷が小さくリサイクル性が優れているため次世代の構造材料の製造法として期待できる。例えば自動車材料の高強度化は軽量化およびこれに直結した走行燃費の低減を可能にし、環境保全に寄与できる。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。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を考案した[2]。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 $\theta$ 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 段階ではねじり率が非線形的に増加し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、新しいタイプのねじり押出し (以後、非線形ねじり押出し (NTE) 法という) 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. 非線形ねじり押し出し法 (NTE) の概略説明

NTE の概略図を Fig.1(a)に示す。NTE は 3 つの経路により構成される。経路①は試験片にねじりを加える前段階として、試験片断面を円形状から楕円形状に変換する。その後に経路②においてねじり率を後述するように非線形的に増加させながら、ねじり変形を加える。回転角を非線形的に増加させることにより、剛体変形を回避して効果的に塑性ひずみを加えることを想定している。経路③において、試験片は経路②の末端におけるねじり率で一定に保持された状態で回転させながら、楕円形状から円形状に変換される。ここで、材料の回転を維持しながら、金型から送り出すことが NTE 法の最大の特徴である。これにより、従来加工法のねじり部と直線部の境界で発生するひずみの往復を抑制することが可能である。Fig.1(b)、(c)に従来の線形ねじり型 TE、非線形ねじり型 TE の金型形状と回転角とせん断ひずみの変化を比較している。前者ではひずみはねじり部の入り口および出口でせん断ひずみが発生するが、ねじり部では剛体変形を示している。一方、後者ではねじり部でせん断ひずみが付与されているが、出口部で逆せん断ひずみが付与されて、最終的には0で送り出されていることを示している。一方、NTE では(d)に示すように、出入口での急激なせん断ひずみと逆せん断を回避して、ねじり部においてもせん断ひずみが付与されていることを示している。

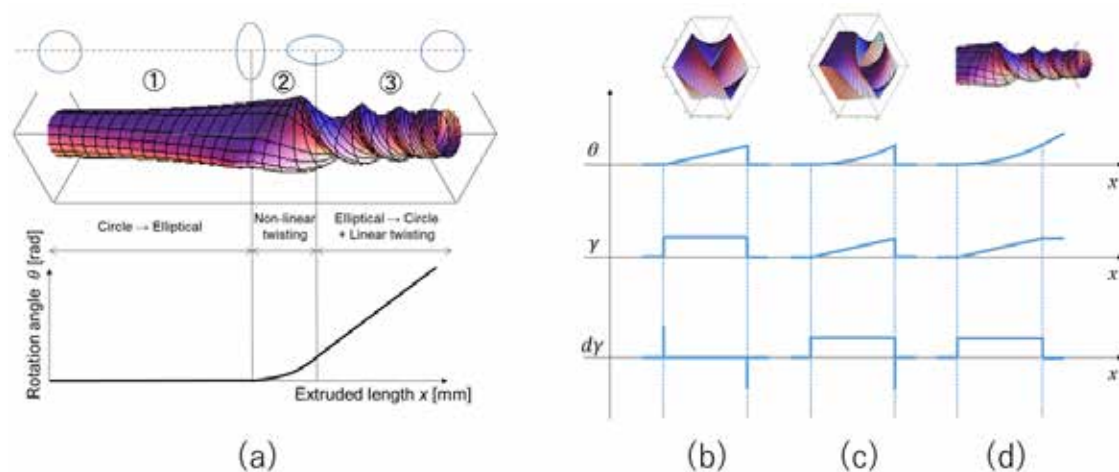


Fig. 1 (a) Schematic diagram of NTE, and variation of rotation angle with translation, rotation angle, shear strain and rate of shear strain of (b) TE, (c) NTE and (d) NTE of whole channel

NTE の経路②におけるせん断ひずみの増分  $d\gamma$  と回転角  $\theta$  および送り量  $x$  の増分  $dx$ 、さらに送り量  $x$  と回転角  $\theta$  の関係を Fig.2 に示す。ねじり部の経路②においてねじり角  $\theta$  と送り量  $x$  の関係は以下の式で定義する。

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

$C, n (>1)$  は定数である。  $C$  は経路②の末端  $x=L$  における回転角  $\theta_{\max}$  とすると以下で表される。

$$C = \frac{\theta_{\max}}{L^n} \quad (2)$$

経路②において、ねじり変形で付与されるせん断ひずみ  $\gamma$  は以下の手順で得られる。

$$\begin{aligned} d\theta &= \theta(x+dx) - \theta(x) - \frac{d\theta}{dx} dx \\ &= C(x+dx)^n - Cx^n - Cnx^{n-1} dx \end{aligned}$$

$n=2$  のとき

$$d\gamma = \frac{rd\theta}{dx} = \frac{rC\{(x+dx)^2 - x^2 - 2xdx\}}{dx} = rCdx$$

$$\gamma = \int_0^L d\gamma = rC \int_0^L dx = rCL = r \frac{\theta_{\max}}{L^2} L = r \frac{\theta_{\max}}{L}$$

$n>3$  のとき

$$\begin{aligned} d\gamma &= \frac{rd\theta}{dx} = \frac{rC\{(x+dx)^n - x^n - nx^{n-1} dx\}}{dx} \\ &= \frac{rC\{x^n + nx^{n-1} dx + {}_n C_{n-2} dx^2 + {}_n C_{n-3} dx^3 + \dots dx^n - x^n - nx^{n-1} dx\}}{dx} \\ &= \frac{rC\{{}_n C_{n-2} dx^2 + {}_n C_{n-3} dx^3 + \dots dx^n\}}{dx}, \quad \text{ただし、} dx^2 = dx^3 \dots dx^n = 0 \end{aligned}$$

$$d\gamma = rC \cdot {}_n C_{n-2} dx$$

$n=1$  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。本報で用いる NTE 金型のパラメータを Table 1 に示す。ここでは  $n=2$  として、解析および金型の作製と実験を行った。Table 1 におけるパラメータは解析ソフト DEFORM-2D/3D を用いて算出した押出しの最大荷重において、プランジャおよび固定用のねじの破壊が発生しない値を設定している。ただし、Fig.2 における経路①終端の楕円長辺および短辺をそれぞれ  $a_1$  および  $b_1$  とする。

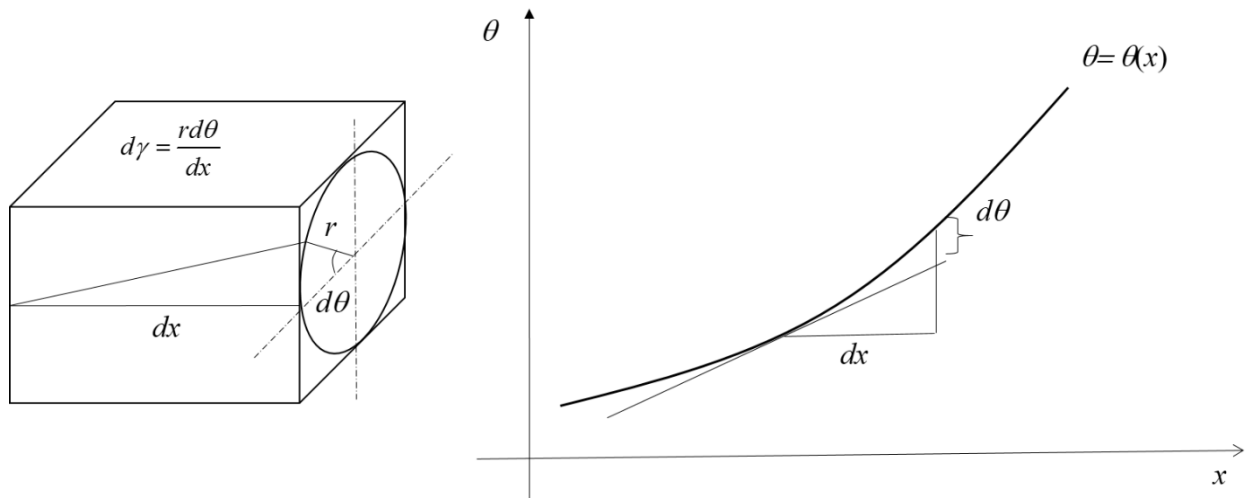


Fig. 2 Definition of shear strain of non-linear rotation angle as a function of translation

Table 1 Parameters of the NTE die.

The channel [mm]	①,②,③, parts	50, 40, 20,
Twist rate	$n$	2
Last rotation angle of ③ [rad]	$\theta_{\max}$	1.05
Radius [mm]	$r$	5.00
The major axis of ellipse [mm]	$a$	7.50
The minor axis of ellipse [mm]	$b$	3.33

## 2・1 NTE 法における相当塑性ひずみ

前項より、NTE により導入されるせん断ひずみは 0.79 である。また、NTE を他の SPD 法と比較するため、相当塑性ひずみを算出する。NTE の 3 つの経路を相当塑性ひずみの式を用いて求める。まず、半径  $r$  の円形状から長辺  $a$ 、短辺  $b$  の楕円形状に変換する経路①の相当塑性ひずみは

$$d\varepsilon_I^p = \sqrt{\frac{2}{3} \left[ (d\varepsilon_x^p)^2 + (d\varepsilon_y^p)^2 + (d\varepsilon_z^p)^2 + \frac{1}{2} \{ (d\gamma_{xy}^p)^2 + (d\gamma_{yz}^p)^2 + (d\gamma_{zx}^p)^2 \} \right]}$$

ここで、 $d\varepsilon_z^p = d\gamma_{xy}^p = d\gamma_{yz}^p = d\gamma_{zx}^p = 0$ ,  $d\varepsilon_x^p = \frac{dx}{r}$ ,  $d\varepsilon_y^p = \frac{dy}{r}$  より

$$d\varepsilon_I^p = \sqrt{\frac{2}{3} \left[ \left( \frac{dx}{r} \right)^2 + \left( \frac{dy}{r} \right)^2 \right]} = \sqrt{\frac{2}{3} \left[ \left( \frac{dx}{r} \right)^2 + \left( \frac{-dx}{r} \right)^2 \right]} = \frac{2}{\sqrt{3}} \frac{dx}{r}$$

$$\varepsilon_I^p = \int_r^a d\varepsilon_I^p = \frac{2}{\sqrt{3}} \ln \frac{a}{r}$$

経路②の相当塑性ひずみは

$$d\varepsilon_{II}^p = \sqrt{\frac{2}{3} \left[ (d\varepsilon_r^p)^2 + (d\varepsilon_\theta^p)^2 + (d\varepsilon_x^p)^2 + \frac{1}{2} \{ (d\gamma_{r\theta}^p)^2 + (d\gamma_{\theta x}^p)^2 + (d\gamma_{xr}^p)^2 \} \right]}$$

ここで、 $d\varepsilon_r^p = d\varepsilon_\theta^p = d\varepsilon_x^p = d\gamma_{\theta x}^p = d\gamma_{xr}^p = 0$ ,  $d\gamma_{r\theta}^p = rCdx$  より

$$\varepsilon_{II}^p = \int d\varepsilon_{II}^p = \sqrt{\frac{1}{3}} \int d\gamma_{r\theta}^p = \sqrt{\frac{1}{3}} \int \frac{r\theta_{max}}{L}$$

断面形状を円から楕円に戻す経路③は経路①と同様である。したがって、NTE の経路全体で導入される相当塑性ひずみは

$$\varepsilon^p = 2\varepsilon_I^p + \varepsilon_{II}^p$$

$$\varepsilon^p = 2 \left( \frac{2}{\sqrt{3}} \ln \frac{a}{r} \right) + \sqrt{\frac{1}{3}} \frac{r\theta_{max}}{L}$$

したがって、NTE の 1 パスあたりの相当塑性ひずみは 0.82 となる。

### 3. 実験方法

#### 3・1 有限要素解析

実験に先立って、DEFORM を用いて数値シミュレーションを行なった。試験片は要素数 20000 で分割した剛塑性体とし、材料の応力ひずみ線図関係は Fig.3 に示すデータを用いた。簡略化のため金型とプランジヤは剛体とした。

Fig.4 に NTE および TE における解析モデルを示す。プランジヤを赤色、金型を緑色、試験片を青色で表している。プランジヤと金型は非接触であり、試験片のみと接触するように設定した。NTE の試験片は直径 10 mm 長さ 50 mm である。また、TE の試験片において、断面は一辺 20 mm の正方形であり、長さは 40 mm である。

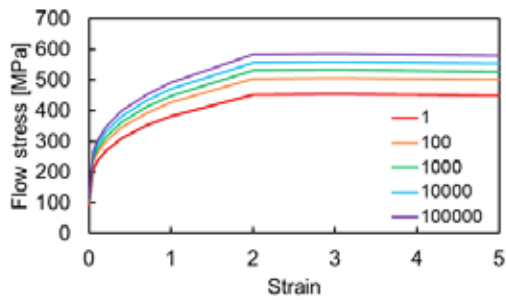
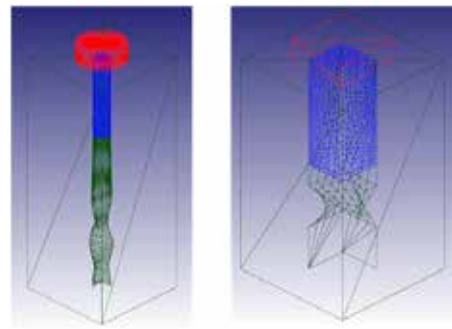


Fig. 3 Deformation resistance of pure copper (C10100 machining)

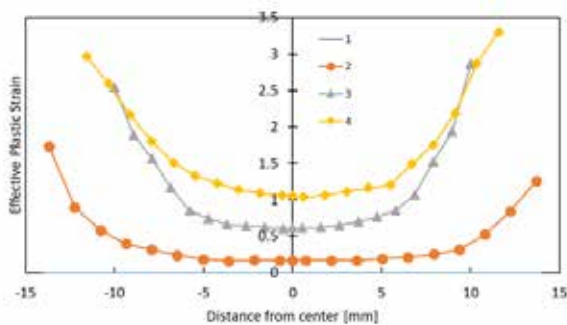


(a) NTE

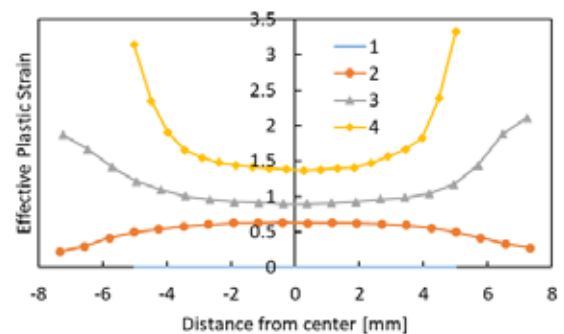
(b) TE

Fig. 4 Analysis model

Fig. 5 に TE および NTE における 1～4 パス時の相当塑性ひずみの断面分布の変化を示す。TE はねじり変形により主に試験片外側において相当塑性ひずみが導入されている。NTE はねじり変形による試験片外側に対する相当塑性ひずみの導入に加えて、試験片中心部分にも相当塑性ひずみが導入されている。経路①の円から楕円への形状変換が試験片中心部分への相当塑性ひずみ導入の効果と考えられる。パス数の増加に伴い導入される相当塑性ひずみは大きくなる。さらに、4 パス後において、相当塑性ひずみはおおよそ試験片全体に 5 以上導入されている。Marat らの研究では相当塑性ひずみ 5 程度でナノレベルの微細化が確認されたと報告されている。したがって、NTE は 4 パス後に UFG を形成できると期待できる。また相当塑性ひずみの導入が小さい試験片下部は、押し出し時に背圧を加えなかったため、試験片が経路に沿わず、十分に变形させることができなかつたことが原因であると考えられる。



(a) TE



(b) NTE

Fig. 5 有限要素解析による断面ひずみ分布の計算結果 (a) TE、(b) NTE

### 3・2 NTE 法による押し出し実験方法

Fig. 6 に NTE 金型の分解時の外観写真および組み立て時の外観を示す。経路②および経路③の合わせ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。押し出し試験に先立って、直径 9.5 mm および長さ 30 mm の純銅試験片を組織の均一化のため 923 K および 60 min により熱処理を行った。押し出し装置は万能試験機 AG500KNI (島津製作所製)を使用した。押し出し速度は 1 mm/min であり、実験温度は 100°C とした。

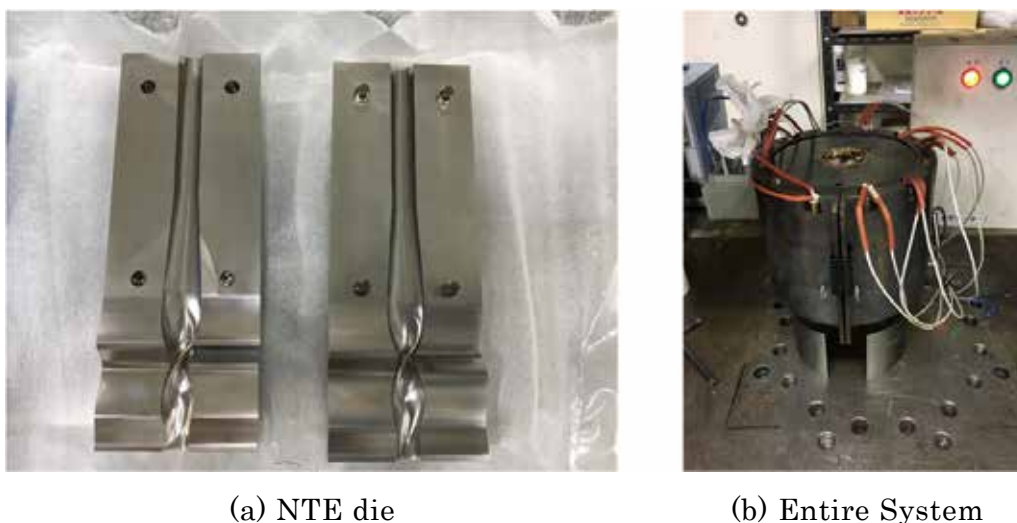


Fig. 6 Extrusion experiment of (a) NTE die and (b) entire system

### 3・3 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、鏡面になるまで機械研磨および電解研磨を行った後、EBSD 測定を行った。EBSD 測定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 NTE 後の試験片における 1、2、3 および 4 パスについて行った。試験片の観察面は中心および周辺の 2 箇所を観察した。

## 4. 実験結果および考察

Fig.7 に NTE 0、1、2、3 および 4 パス後の試験片を示す。すべてのパス後の試験片で同程度の傾きのねじり跡を確認できる。これは解析結果に見られたねじり跡と一致する。また、各パスで約 5mm ずつ試験片長さが減少している。NTE の試験片の入口と出口の直径は同じ 10mm であるが、加工後に弾性回復したと考えられるため試験片直径が 10mm 以上となった。そのため、各パスで試験片を削ったことが原因で試験片体積が減少し、長さも減少している。

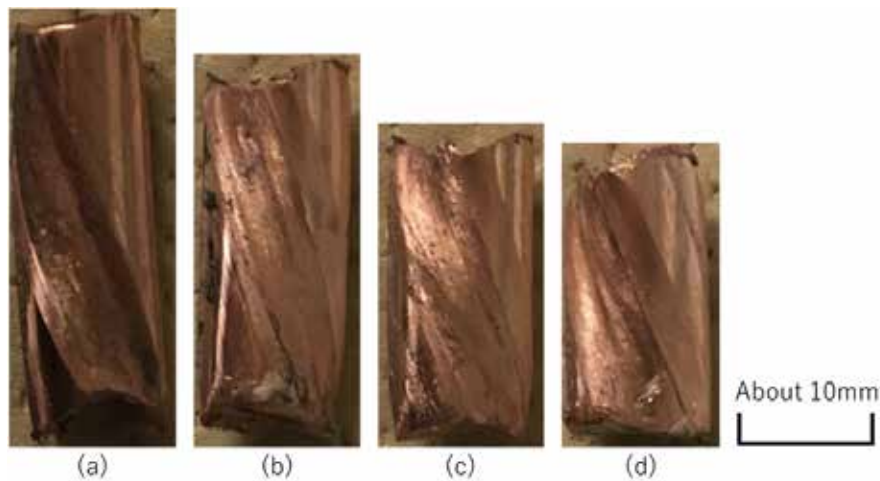
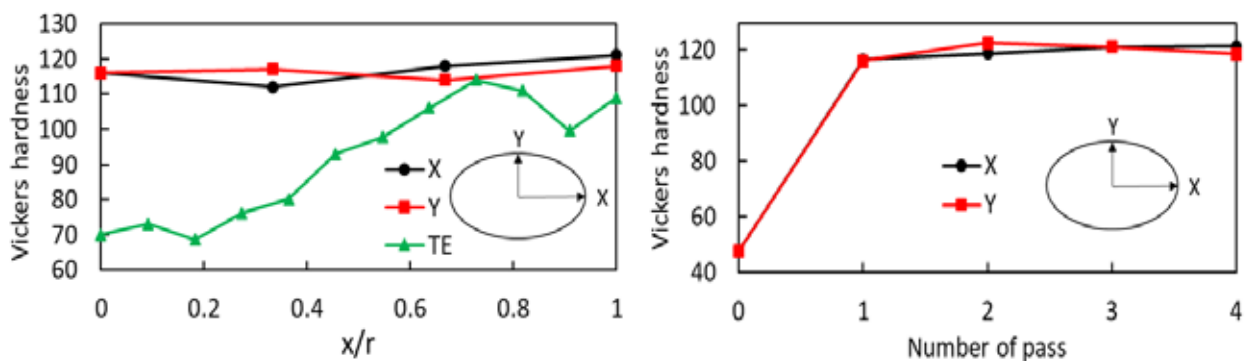


Fig. 7 押出試験後の純銅試験片の外観写真 (a)1、(b)2、(c)3、(d)4 パス後

Fig.8 に NTE および TE の 1 パス後における試験片断面のビッカース硬度分布と各パス後の硬度の変化を示す。また、NTE と TE は試験片寸法が違うため、横軸の中心からの距離は割合で示している。NTE の 1 パス後の平均値は 116HV であり、試験片中心と外側で大きな差はないことがわかる。一方で、TE の 1 パスの平均値は 92HV であるが、試験片外側のビッカース硬度は NTE と同程度であるのに対して、中心付近のビッカース硬度は大きく低下している。これらの結果は、有限要素法の解析結果と同様の傾向を示している。Fig.8 (b)に NTE の 0、1、2、3 および 4 パス後のビッカース硬度の平均値を示す。1 パス後に硬度は著しく増加したが、それ以降においてパス数の増加に伴うビッカース硬度の変化は非常に小さく、たとえば ECAP 法などの他の SPD 法と比較しても増加率は低い。有限要素法における解析結果および、加工後の素材の形状から推察すると、材料は金型内部のチャンネルに沿ったねじり変形が付与されていないことが推察される。今後は背圧を高めるなど対策を考える必要がある。



(a) 1 パス後の断面硬度分布

(b) 各パス後の硬度変化

Fig. 8 NTE の 1 パス加工後の断面硬度分布と各パス後の硬度変化



#### 4・1 NTE 後の組織・結晶粒

Fig.9に NTE の 1、2、3 および 4 パス後の EBSD による結晶方位マップの測定結果を示す。試験片中心と外側で各パスにおいてそれぞれ組織が変化していることが確認できる。試験片外側は明らかに結晶粒が細かく変化していることがわかる。NTE 加工により結晶粒が微細化されていることが確認できる。一方で、試験片中心の結晶粒はパス数の増加に伴い細長い形状に変化している。解析結果においても、TE のねじり変形は試験片中心部分への影響は少ないことがわかる。したがって、ねじり変形ではなく、解析結果においてみられる NTE 経路①の円形状から楕円形状への変換によって、試験片中心が圧縮されたことにより、結晶粒が細長く伸びたと考えられる。

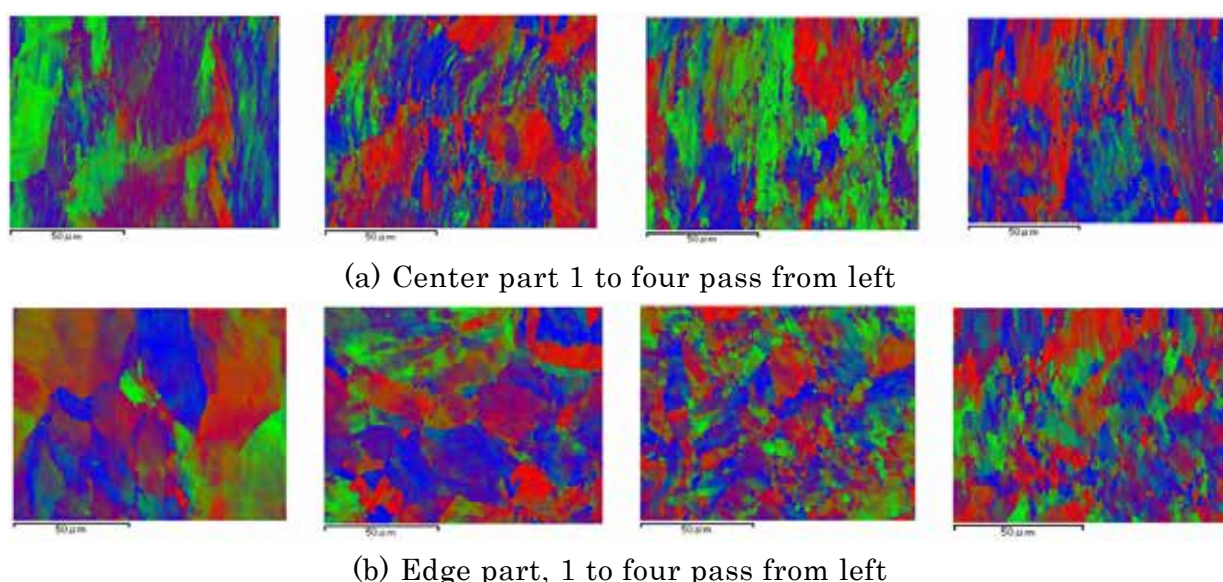


Fig. 9 Orientation image map after NTE for 1~4pass of center part (upper) and edge part (lower)

Fig.10に NTE 0、1、2 および 4 パス後の平均結晶粒径を示す。試験片中心および外側において平均結晶粒径はパス数の増加に伴い減少していることがわかる。また、NTE4 パス後において平均結晶粒径が試験片中心および外側の両方で  $1\mu\text{m}$  以下となっており、その他の SPD 法と比較しても同等のレベルまで結晶粒が微細化できたと考えられる。

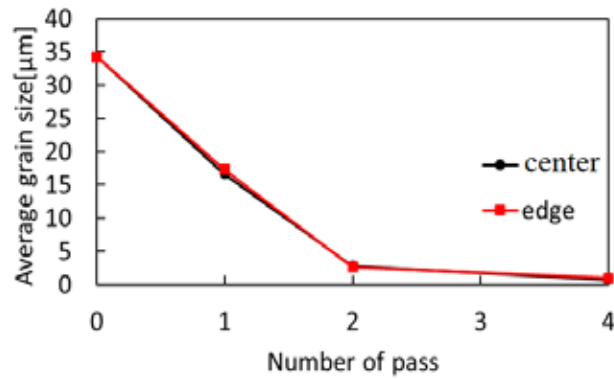
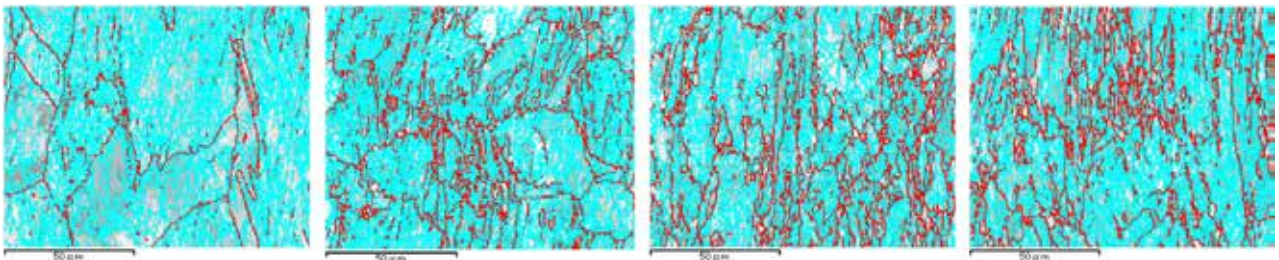
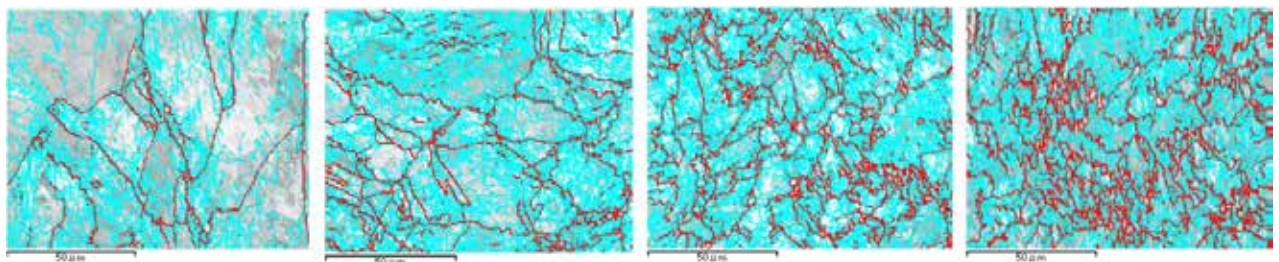


Fig. 10 Variation of grain size with number of pass of NTE

Fig.11 に EBSD 測定により得た方位差マップを示す。小傾角粒界(LAGB :  $2^\circ \leq \theta < 15^\circ$ )を青線で示し、大傾角粒界(HAGB :  $15^\circ \leq \theta$ )を赤線で示す。パス数の増加に伴い、小角粒界および大角粒界の両方が増加して微細化していることがわかる。1 および 2 パスにおいては試験片外側に比べて中心に多くの小角粒界および大角粒界が存在している。しかし、3 および 4 パスにおいては試験片中心および外側の小角粒界および大角粒界に大きな差はないとみられる。



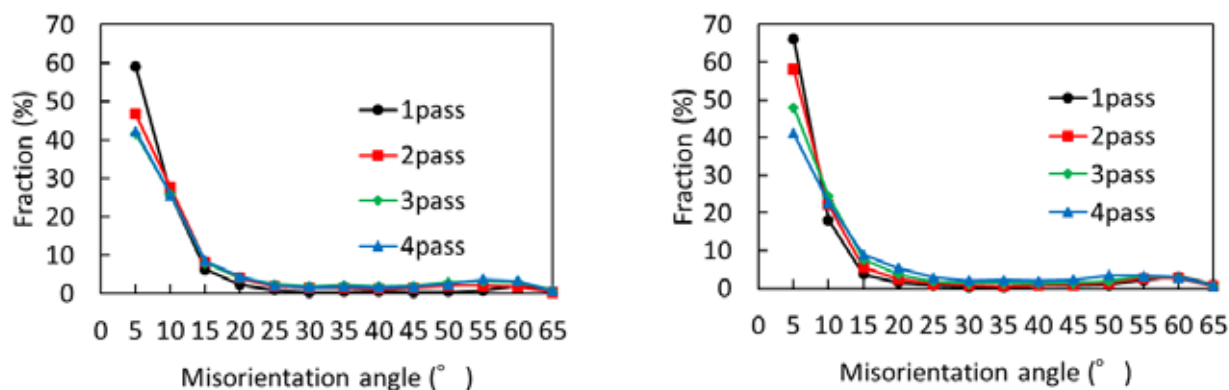
(a) Center part of a billet, 1 to 4 pass from left



(b) Edge part of a billet, 1 to 4 pass from left

Fig.11 Misorientation maps by EBSD after NTE for 1 to four passes, (upper) center part, (lower) edge part

Fig.12 に試験片中心および外側における各パス後の方位差分布を示す。パス数の増加により方位差分布に大きな変化は見られないものの、わずかに小角粒界の割合が減少していることがわかる。Fig.13 に 1、2、3 および 4 パスにおける試験片中心および外側について、方位差が 15 度以上の大角粒界の割合を示す。1 パス後の HAGB は約 10% であるが、4 パス後には約 25% に増加していることが確認できた。



(a) Center part

(b) Edge part

Fig.12 Misorientation distribution after NTE for 1 to 4 passes,

(a) center, (b) edge parts

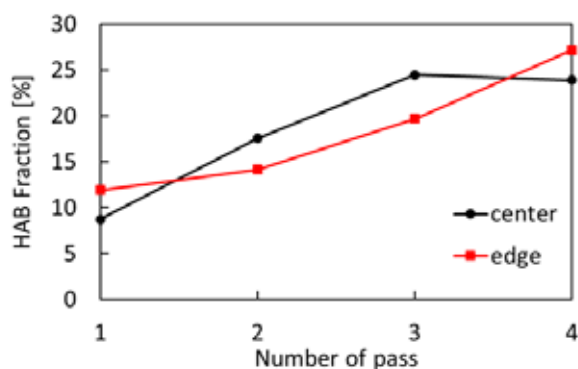


Fig.13 Fraction of high angle grain boundary after NTE for 1 to four passes

## 5. 結言

新たに開発した非線形ねじり押出法の金型を製作して、当初はステンレス鋼の微細化を目的としていたが、強度が高いことと金型の設計上の問題から加工を断念した。しかし、純銅については、加工は室温で4パスまで行うことができた。そこで、純銅について結晶粒微細化に対する効果を従来型の TE と比較しながら、その効果を調査した。断面硬さはパス数の増加とともに平均的に増加したが、2パス以降の

増加率が ECAP 法に比べて低い。試験片形状からも推定して、ねじり変形が効果的に加えられていない可能性がある。断面硬さ分布はねじり加工に特徴的な中央が軟質な分布を示した。しかし、TE 法に比較して、中央部の硬さは高くなることが確認できた。ねじり前後における真円から楕円断面への圧縮加工の効果と考えられる。結晶粒径は約 1 ミクロン程度まで微細化したが、方位差については小角粒界の割合が高く、ひずみ量が不十分であると推察される。加工後の材料が完全に円柱形ではなく、ねじれた形状であることから、金型内部ですき間があることが推察されて、数値計算との乖離があると考えられる。今後は背圧を付加するなどの対策が必要と考えられる。

## 謝辞

本研究は 2016 年度の公益財団法人 JFE21 世紀財団の技術研究助成により行われました。ここに感謝の意を表します。

## 参考文献

- [1] M. Rifai, M. Yuasa, H. Miyamoto, Effect of Deformation Structure and Annealing Temperature on Corrosion of Ultrafine-Grain Fe-Cr Alloy Prepared by Equal Channel Angular Pressing, International Journal of Corrosion 2018 (2018) 15.
- [2] M.L. Maulidi, M. Hiroyuki, M. Yuasa, Grain refinement of pure magnesium using nonlinear twist extrusion, Materials Science Forum 939 (2018) 54-62.