

機関番号：12612

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2008～2010 年度

課題番号：20560647

研究課題名(和文) 10 ナノメートル結晶粒バルク材創成とその物性調査

研究課題名(英文) Fabrication of 10 nm grained bulky material and the properties

研究代表者 三浦 博己 (MIURA HIROMI)

電気通信大学・大学院情報理工学研究科・准教授

研究者番号：30219589

研究成果の概要(和文)：

低積層欠陥エネルギー材である SUS304 と SUS316 に対する多軸鍛造 (Multi directional Forging/MDF) を室温と極低温度下で行い、変形双晶をより多量に導入させ、さらなる高強度化と結晶粒の微細化を目指した。MDF 中の累積ひずみの増加に伴い変形双晶が形成され、その交切により結晶粒径 20 nm 程度まで超微細化が進んだ。結晶粒の微細化は低温度の方がより顕著であった。しかし、MDF 中に発生する加工誘起マルテンサイトは結晶粒超微細化を阻害した。そのため、マルテンサイト変態の発生しやすい SUS304-MDF 材では、結晶粒径がやや大きく、引張最大応力も 1.8GPa にとどまる等、SUS316 の特性(最大引張強度 2.1GPa, 平均粒径 20nm) を大きく下回った。両材ともに、高強度であるにもかかわらず、全伸びは 20%以上であり、強度と加工性の優れたバランスを示した。

研究成果の概要(英文)：

SUS304 and SUS316 stainless steels having low stacking fault energy were multi-directionally forged (MDF) at ambient temperature and 77 K, where lower MDF temperature would accelerate occurrence of mechanical twinning to cause grain refinement down to 20 nm. As the increase in cumulative strain of MDF, grain refinement proceeded by intersection of twins. This tendency was more obvious at lower temperature. Occurrence of martensitic transformation, however, hindered the grain refinement. The grain refinement and strength in the SUS304 stainless steel, therefore, were not so notable due to martensitic transformation compared with in the SUS316 one. The MDFed stainless steels possessed superior balance of strength and ductility, i. e., 1.8 GPa and 20 %.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	3,100,000	930,000	4,030,000
2009 年度	500,000	150,000	650,000
2010 年度	200,000	60,000	260,000
年度			
年度			
総計	3,800,000	1,140,000	4,940,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学、構造・機能材料

キーワード：ナノ構造、強ひずみ加工

1. 研究開始当初の背景

金属基機械材料強度の向上は信頼性だけ

ではなく、素材とエネルギー削減に強い影響を持つ。そのため様々な材料強化法が考えら

れてきた。近年、巨大ひずみ加工法による結晶粒超微細化とその材料強化が特に注目されている。その最も一般的な方法として ECAP (Equal Channel Angler Press) 法、ARB (Accumulative Roll Bonding) 法があげられる。しかし、ECAP 法は比較的小さな試料にしか適用できず、また ARB 法はプロセスが煩雑である。さらに、両方法とも微細組織の形成および発達過程の調査等の基礎研究に不向きであった。

申請者のグループは多軸鍛造 (Multi Directional Forging/MDF) 法を考案し、様々な合金に対しこれを適用し、均一なサブミクロン結晶粒径を持つ合金の創製に成功している。この結果は、本手法が種々の合金の結晶粒超微細化に適用可能であり、また結晶粒の微細化が材料強化に極めて有効であることを同時に示している。特に本手法は大型製品の大量生産への拡張が極めて容易で、実用化が期待されている。さらには、加工中の応力ひずみ曲線や変形過程における微細組織の発達過程を容易に調査できるため、基礎研究の手段としても重要な意味を持つ。そして、その結晶粒超微細化機構は低温型連続動的再結晶であることを明らかにした。しかし、MDF 法による結晶粒微細化には 8-10 パス程度 (真ひずみ 4-6 相当) の鍛造が必要で、また得られる結晶粒径の下限は 200nm であり、より容易かつより微細な超微細粒生成プロセスが求められていた。

そこで本研究では、応力緩和機構の一つとして加工中に導入される変形双晶によって組織微細化が促進されることに着目し、低積層欠陥型合金に対し極低温で MDF を施す。そして、1) 均一な超微細粒組織形成に必要なとしていた加工ひずみ量の半減、2) 平均結晶粒径 10nm、を目指した。既に申請者は、低積層欠陥エネルギー材である Cu-Zn 合金に対し MDF 加工を施し、わずか 6 パスの鍛造で平均粒径が 20nm 前後の超々微細粒バルク材を得ている。その透 TEM 観察の結果、変形双晶導入によって初期結晶粒は単一のバリエーションからなるパケット状組織に分割され、その内部はさらに変形双晶によって分断された、均一な超々微細粒組織となっている。パケットサイズ (L x D) と内部の変形双晶の数から求められた平均粒径は約 20nm であった。

2. 研究の目的

変形双晶は低積層欠陥エネルギー材で発生しやすいだけでなく、応力緩和機構の一つであるため、低温・高ひずみ速度下でも生

成しやすいことが知られている。そこで、本研究では、積層欠陥エネルギーがより低い材料に対し MDF を極低温で行い、変形双晶をより多量に導入させ、さらなる高強度化と結晶粒の微細化を目指す。そして、これら超々微細粒バルク材の物性を系統的に調査する。

3. 研究の方法

低積層欠陥エネルギー材である SUS304, SUS316 ステンレス鋼の熱間押出材から軸比 1 : 1.22 : 1.5 のアスペクト比を持つ矩形の試験片を切り出し、これに MDF を加える。これを加工圧縮軸に真ひずみ 0.4 で圧縮すると、加工前と全く同じアスペクト比を持つ試験片形状となる。圧縮軸を変え $x \rightarrow y \rightarrow z \rightarrow x$ と圧縮を繰り返すことで、理論的に無限大の強ひずみ加工を試料に加えることが可能となる。以下、簡単のため、SUS304, SUS316 両ステンレス鋼を単に SUS304 と SUS316 と呼ぶこととする。また、MDF 温度 300K で、累積加工ひずみ $\epsilon = 6.0$ まで MDF 加工したものを、300K- $\epsilon = 6.0$ MDF 材とする。

本研究では 15x12x10mm³ サイズの試験片を用い、MDF を行った。累積ひずみ量 ϵ は 0-6.4 (真ひずみ) で変化させ、MDF 加工温度は液体窒素温度 (77K) と室温とした。極低温域での圧縮加工は、双晶の発生を促進し、結晶粒超微細化を促進すると予想される。

MDF によって得られた微細粒材を透過型電子顕微鏡 (TEM) 試料薄片に切断し、電解研磨後、これを TEM 観察する。そして超微細粒の形成とサイズを確認すると共に、微細粒の結晶方位差を Kikuchi pattern 法により解析する。特に変形双晶については、蓄積ひずみ量と変形双晶の密度および間隔について注目し、その発達過程を低ひずみ域から詳細に調査する。さらには最適加工条件と超々微細結晶粒バルク材の生成過程を明らかにするとともに、その結晶粒径の下限限界を調査する。

機械的性質の調査は、硬さ試験、室温引張試験を中心に行う。

4. 研究成果

SUS304 と SUS316 の MDF では、共に室温、77K の両温度で、低ひずみ域では急激な加工硬化を、高ひずみ域で緩やかな加工硬化を示した。77K ではより顕著な加工硬化を示した

が、パス毎の加工軟化が現れた。高ひずみ域では定常状態変形類似となり、加工硬化と回復による低温型連続動的再結晶と結晶粒微細化が進行していることが示唆された。

77K- $\epsilon=6.0$ MDF 材の TEM 観察結果から、変形双晶が初期粒を分断し、さらに高次双晶がそれらを分割細分化したことが明らかとなった。しかし、SUS304 では変形開始と同時にひずみ誘起マルテンサイト変態が発現し、マルテンサイト組織が変形双晶に比べて大きく、その結果、変形双晶誘起の結晶粒の超微細化は起こりにくかった。また SUS304 で得られた組織は、粒界も明瞭には見えず、変形双晶中心とした微細組織が明瞭に現れた SUS316 とは発達組織に大きく異なった。一方、SUS316 では、77K で変形双晶がより発生しやすくなるため、結晶粒超微細化が著しく促進された。反対に、SUS304 では加工誘起マルテンサイトがさらに発現しやすくなり、結晶粒の微細化は遅れた。SUS316 で達成された最終的な結晶粒径は、Cu-Zn 合金と大きな差はなく、20nm 前後と推計された。これは変形双晶の間隔とほぼ同程度であった。この結果、変形双晶を利用した結晶粒の超微細化は、その粒径の下限は変形双晶の幅によって支配されると判断された。

300K-MDF 材の引張試験の結果、焼鈍材と $\Sigma \Delta \epsilon=0.4$ 材では、両合金に大きな差異は見られなかった。しかし、高累積ひずみ域では、SUS316-MDF 材の方がより高い強度が達成され、その強度は累積ひずみの増加と共に上昇した。強度は、77K の方が高くなった (2.1GPa)。また伸びも 20%程度あり、高強度・高延性が同時に達成される優れた機械的性質を示した。それに対し、SUS304 では、MDF による強度上昇が $\Sigma \Delta \epsilon=1.2$ 以上では見られず、最大で 1.8GPa となった。伸びはほぼ SUS316 と同等であった。両者の引張強度の差は、上述の発達微視組織の違いによって持たされたものと判断された。

以上の結果から、以下の結果が明らかにされた。MDF 中の累積ひずみの増加に伴い変形双晶が形成され、その交切により結晶粒の超微細化が進んだ。その微細化傾向は、低温の方がより顕著であった。そして結晶粒径約 20nm が達成された。しかし、MDF 中に発生する加工誘起マルテンサイトは結晶粒超微細化を阻害した。そのため、マルテンサイト変態が起こりやすい SUS304-MDF 材では、結晶

粒径がやや大きくなり、引張最大応力も 1.8GPa にとどまり、SUS316 のそれ (2.1GPa) を大きく下回った。両材ともに、高強度であるにもかかわらず、全伸びは 20%以上であり、強度と加工性の優れたバランスを示した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 6 件)

1) Y. NaKao, H. Miura, Nano-grain evolution in austenitic stainless steel during multi-directional forging, Materials Science Engineering A 528, (2011) pp. 1310-1317. 査読有り

2) H. Miura, Y. Nakao, Nano-grained structure induced by mechanical twinning during multi-directional forging and the mechanical properties, Materials Science Forum, Vols. 633-634, (2010) pp. 577-593. 査読あり

3) H. Miura, G. Yu, X. Yang, T. Sakai, Microstructure and mechanical properties of AZ61 Mg alloy prepared by multi directional forging, Transactions of nonferrous metals society of china Vol. 20 (2010) pp. 1294-1298. 査読有り

4) 三浦博己, 高橋芳幸, 山口洋, 神林浩一, 1GPa 超級 Cu 合金圧延板の実現のための組織制御, 銅と銅合金, 第 49 巻 1 号, (2010) pp. 51-55. 査読有り

5) 三浦博己, 山崎貴史, 石田雅彦, 三浦聖生, 熊谷淳一, 櫻井健, 強圧延 Cu-Zr 合金の微細組織と機械的特性, 銅と銅合金, 第 49 巻 1 号, (2010) pp. 61-66. 査読有り

6) H. Miura, T. Sakai, T. Ueno, S. Takebayashi, N. Fujita, N. Yoshinaga, Promotion of ultrafine grain evolution by coarse particles during multidirectional Forging of Ni-Fe alloy, Metallurgical and Materials Transactions A, (2009) pp. 2137-2144. 査読有り

[学会発表] (計 29 件)

1) 三浦博己, 岩淵雄太郎, SUS304, 316 の多軸鍛造による組織変化と機械的性質, 日本鉄鋼協会春季大会, (2011. 3. 25).

2) K. Matsumoto, H. Miura, Effect of strain rate on microstructural change during

multi directional forging of AZ61 magnesium alloy, International symposium on giant straining process for advanced materials, GSAM2010, November19-22, 2010, Fkuoka, Japan.

3) H.Miua, X.Yang and T.Sakai, Multi directional forging of AZ91Mgalloy and the specific mechanical properties, International symposium on giant straining process for advanced materials, GSAM2010, November19-22, 2010, Fkuoka, Japan. (基調講演)

4) Y.Iwabuchi and H.Miura, Microstructure and mechanical properties of the ultrafine-grained SUS304 produced by multi directional forging, International symposium on giant straining process for advanced materials, GSAM2010, November19-22, 2010, Fkuoka, Japan.

5) Yupei Jiang, Xuyue Yang, H.Miura, and T.Sakai, Nano-SiO₂ particles reinforced Magnesium alloy produced by friction stir processing, The sixth international conference on physical and numerical simulation of materials processing, ICPNS2010, November16-19, 2010, Guilin, China.

6) Lei Zhang, Xuyue Yang, H.Miura, and T.Sakai, Grain Refinement in the surface layer of AZ31 Mg alloy sheet processed by cyclic bending, The sixth international conference on physical and numerical simulation of materials processing, ICPNS2010, November16-19, 2010, Guilin, China.

7) H.Miua, X.Yang and T.Sakai, Ultrafine grain evolution during multi directional forging of Mg alloy and the specific mechanical properties, The sixth international conference on physical and numerical simulation of materials processing, ICPNS2010, November16-19, 2010, Guilin, China. (基調講演)

8) 三浦博己, 山口洋, 神林浩一, 黄銅の強圧延と低温焼鈍による組織と機械的性質の変化, 第 50 回銅及び銅合金技術研究会講演大会, 第 50 回銅及び銅合金技術研究会講演大会講演概要集, (2010.11.4) p. 83-84.

9) 並木達郎, 茂木勇人, 三浦博己, 神林浩一, 山口洋, 微細粒 Cu-Zn 合金の圧延後の低温焼鈍と加工性の関係, 第 50 回銅及び銅合金技術研究会講演大会, 第 50 回銅及び銅合金技術研究会講演大会講演概要集, (2010.11.4) p. 85-86.

10) 小林敬成, 三浦博己, 神林浩一, 山口洋, 強圧延と変形双晶の導入による Cu-Zn-Si の結晶粒極微細化と高強度化, 第 50 回銅及び

銅合金技術研究会講演大会, 第 50 回銅及び銅合金技術研究会講演大会講演概要集, (2010.11.4) p. 87-88.

11) 岩淵雄太郎, 高良幸司, 三浦博己, 山口洋, 神林浩一, 低ひずみ加工と回復処理の連続サイクルによる超微細粒 Cu 合金の開発, 第 50 回銅及び銅合金技術研究会講演大会, 第 50 回銅及び銅合金技術研究会講演大会講演概要集, (2010.11.4) p. 89-90.

12) H.Miura, H.Liu, Improvement of mechanical properties of AZ91Mg alloy by multi-directional forging and ultra grain refinement, Materials Science and Engineering, MSE2010, Abstracts MSEwebpp, Aug 24-26, 2010. Darmstadt Germany.

13) 三浦博己, 結晶粒超微細化と高強度化技術, 新技術説明会, JST 新技術説明会資料集, (2010.5.11) p.13-17.

14) 三浦博己, 高橋芳幸, 山口洋, 神林浩一, Cu-Zn-Si 合金の強圧延と変形双晶導入による組織制御と強度, 日本金属学会 2010 春期 (第 146 回) 大会, 日本金属学会講演概要集, (2010.3.28) p.311.

15) H.Miura and H.Liu, Ultrafine grain evolution of AZ91Mg alloy during multi directional forging and the mechanical properties, The 18th international symposium on processing and fabrication of advanced materials, PFAM XVIII, Abstracts pp6, December26-29, 2009, Sendai.

16) 三浦博己, 劉恒喆, AZ91 Mg 合金の降温多軸鍛造による結晶粒超微細化と強度, 軽金属学会第 116 回春期大会, 軽金属学会第 116 回春期大会概要集, (2009.11.14) p.45-46.

17) 三浦博己, 齋藤洋明, 多軸鍛造 Cu-Zn 合金の結晶粒径の下限と強度, 第 49 回銅及び銅合金技術研究会講演大会, 第 49 回銅及び銅合金技術研究会講演大会講演概要集, (2009.11.11) p.51-52.

18) 三浦博己, 高橋芳幸, 山口洋, 神林浩一, 組織制御による 1GPa 超級 Cu-Zn 合金圧延板の実現とその設計思想, 第 49 回銅及び銅合金技術研究会講演大会, 第 49 回銅及び銅合金技術研究会講演大会講演概要集, (2009.11.11) p.53-54.

19) 今政晶, 山崎貴史, 三浦博己, 石田雅彦, 三浦聖生, 熊谷淳一, 桜井健, 強圧延 Cu-Zr 合金の微細組織と機械的特性, 第 49 回銅及び銅合金技術研究会講演大会, 第 49 回銅及び銅合金技術研究会講演大会講演概要集, (2009.11.11) p.57-58.

20) H.Miura, G.Yu, X.Yang, and T.Sakai, Microstructure and mechanical properties of AZ61 Mg alloy, The 3rd Asian Symposium on Magnesium Alloys, ASMA-III, Abstracts pp.92, September21-23, 2009, Shenyang,

China.

21) 三浦博己, 酒井拓, 高温型動的再結晶と低温型動的再結晶, 日本鉄鋼協会第158回秋季講演大会, 日本鉄鋼協会第158回秋季講演大会論文集 CAMP-ISIJ, Vol. 22 (2009. 9. 15) p. 1168-1171.

22) H. Miura and T. Sakai, Continuous recrystallization and ultra grain refinement in copper alloys, International Conference on Processing & Manufacturing of Advanced Materials THERMEC '2009, Abstracts, pp. 306, August 25-29, 2009, Berlin Germany

23) H. Miura, Y. Nakao, Enhanced grain refinement by mechanical twinning and martensitic transformation in a 316 austenitic stainless steel during multi-directional forging. The 15th International Conference on the Strength of Materials, ICSMA15 DRESDEN 2009, Abstracts pp. 36, August 16-21, 2009, Dresden Germany.

24) 三国将人, 三浦博己, [011]ねじれ粒界を持つ 4N Cu 双結晶の強ひずみ加工と結晶粒微細化, 2009 年日本金属学会春期 (第 144 回) 大会, 日本金属学会講演概要集, (2009. 3. 28) p. 493.

25) 今政晶, 山崎貴史, 三浦博己, 石田雅彦, 強圧延 Cu-Zr 合金の組織と機械的特性, 2009 年日本金属学会春期 (第 144 回) 大会, 日本金属学会講演概要集, (2009. 3. 28) p. 249.

26) 三浦博己, 酒井拓, 鮎川英幸, 山口洋, 山崎周一, 黄銅の圧延による変形双晶導入とその再結晶挙動に及ぼす影響, 第 48 回銅及び銅合金技術研究会講演大会, 銅及び銅合金技術研究会講演大会講演概要集, (2008. 11. 22) p. 10-11.

27) 三浦博己, 酒井拓, 低ひずみ蓄積加工法による銅合金の結晶粒超微細化 II, 第 48 回銅及び銅合金技術研究会講演大会, 銅及び銅合金技術研究会講演大会講演概要集, (2008. 11. 22) p. 12-13.

28) 三浦博己, 丸岡正治, 酒井拓, 山口洋, 山崎周一, 極低温圧延黄銅の長時間低温焼鈍により生成される超微細再結晶粒, 2008 年秋期 (143 回) 大会, 日本金属学会講演概要, (2008. 9. 23)

29) H. Miura, Y. Yoshida, T. Sakai, Fine grain evolution at grain boundary in copper bicrystals during multi directional forging, The 4th International Conference on Nanomaterials by Severe Plastic Deformation NanoSPD4 Abstracts, August 18-22, 2008, Goslar, Germany.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

三浦 博己 (MIURA HIROMI)

電気通信大学・大学院情報理工学研究科・准教授

研究者番号 : 30219589

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし