

冷間加工材のオーステナイト結晶粒度特性に 及ぼす熱処理の影響

富永 剛*・千葉 貴世*²・佐藤 紀男*³

Influence of Heat Treatments on Grain Coarsening of Austenite in Cold Worked Steels
Takeshi Tominaga, Takayo Chiba and Toshio Sato

Synopsis : Case hardening is adapted for power train parts and the others subjected to high rolling contact stress and/or cyclic bending stress. Lower distortion after case hardening of cold forged materials, which are usually used for these applications, is requisite to satisfy the current needs of higher strength and precision. One of the problems involving in meeting such needs is austenite grain coarsening on case hardening of cold forged materials. In this paper, the influence of heat treatment before and after cold work processing was investigated on the characteristic of austenite grain coarsening in cold forged materials. Furthermore, a possible mechanism of grain coarsening and countermeasures for the phenomena were also discussed.

Key words : austenite grain coarsening; cold forging; heat treatment; case hardening.

1. 緒言

自動車の駆動系部品のように、高面圧の転動応力および繰返し曲げ応力を受ける部品には、耐ピッチング性と高い疲労強度を付与するため、浸炭焼入れが多用されている。一方、浸炭用鋼（低炭素合金鋼）は、冷間加工性が良好なので、最近のニヤネットシェイブないしネットシェイブ化の流れの中で、冷間鍛造が適用される場合が多い。浸炭部品は、機能上高強度化および高精密化が要求され、熱処理時にこれに対応する低ひずみ化が要求される。これらの要求を阻害する要因の一つに、浸炭時における冷間鍛造材のオーステナイト結晶粒粗大化の問題がある。

鋼のオーステナイト結晶粒度に関しては古くから数多くの報告^{1)~5)}があるが、冷間加工前のAINの状態やミクロ組織、冷間加工度、さらには冷間加工後（浸炭直前）の熱処理などが複雑に絡む冷間加工—浸炭熱処理材のオーステナイト結晶粒度の挙動を、総合的に説明できるものは少ない。しかしながらその中で、Gladman等¹⁾による、ある特定の成長粒の成長駆動力と析出粒子の粒界移動阻止力（pinning force）から導いた粒成長の臨界条件を規定する(1)式では、急激な粒成長を生ずる温度（粗大化温度）が存在することと、それが析出粒子の径および量、マトリックス結晶粒および（成長粒/マトリックス結晶粒径比）によって決まることが示されており、本問題を考えるのに最も適当な理論と考えられる。

$$r_{crit} = \frac{6R_0 f}{\pi} \left(\frac{3}{2} - \frac{2}{Z} \right) - 1 \quad \dots\dots (1)$$

ここで r_{crit} は臨界析出粒子径、 R_0 はマトリックスの結晶粒

半径、 f は析出物の体積分率、 Z は成長結晶粒径とマトリックス結晶粒径の比である。

冷間鍛造材の浸炭時に問題となるのは、ミクロ組織において肉眼でも識別できる局部的に極めて粗大化した粒が発生する現象であり、これは上記の理論で言う粗大化温度が浸炭温度付近まで低下していることによって起こる現象と見ることができる。冷間加工材を再加熱する場合の結晶粒粗大化温度に関して塩飽等⁶⁾は冷間圧延材で、1) 加工率50%以上では初期粒度（上式の R_0 に相当）が細かいために粗大化温度が低下する、2) 加工率25%付近では最大粒径/平均粒径比（上式の Z に相当）が大となるため粗大化温度が低下する、3) 初期粒度が細かいときに粗大化温度を高くするには、有効AIN量（上式の f に相当）を増すのが有効であること、等の知見を示している。これは(1)式 of 概念によく合致しており、冷間加工材で結晶粒粗大化温度が低下する原因がほぼ明らかにされているとみられるが、本報では、さらに冷間加工の前後に施される熱処理の影響も含めて、冷間加工材のオーステナイト結晶粒成長特性を検討し、結晶粒粗大化温度の低下原因の確認を行うとともに、その対策についても考察した。

2. 供試材および実験方法

2・1 供試材

本実験では供試材として代表的な肌焼鋼SCM420を用いた。その化学成分をTable 1に示す。以後の実験は、結晶粒度特性に及ぼす冷間加工の影響とそれに関わる熱処理の影響を見極めるものであるため、アッセル圧延鋼管を供試材

* 技術研究所特殊鋼研究室（現広島支店技術課兼技術企画部営業技術総括室）

* 2 技術研究所特殊鋼研究室

* 3 技術研究所

とした。すなわちアッセル圧延鋼管は、加熱温度が1503 Kと高いため、供試状態（圧延まま）では、AIN析出量は約14ppm前後とかなり低く、ほぼ完全固溶状態にあることと、鋼管を選定したのは、冷間加工実験において均一な加工率が得られる管の冷間圧伸（コールドピルガー）を適用できることによる。

Table 1 Chemical compositions.

(mass%, N:ppm)								
C	Si	Mn	P	S	Cr	Mo	Al	N
0.20	0.23	0.80	0.016	0.017	0.97	0.15	0.025	135

2・2 実験方法

- 供試圧延材に種々の前熱処理を施した後、1123K×0.5 h 水冷、1198~1373 K×6 h 水冷処理（以下擬似浸炭処理）を行った。昇温速度はすべて300 K/hとした。オーステナイト（以下 γ と略す）結晶粒界の現出には、ピクリン酸飽和水溶液+界面活性剤を用い γ 結晶粒度測定を行った。ここで1123 K×0.5 h 処理の粒度を初期粒度（ $\alpha \rightarrow \gamma$ 変態直後の粒度）とした。また前処理は以下の通りである。[● 圧延まま（以下R）、● 低温焼なまし（以下LA）：923 K×4 h および993 K×4 h、● 焼ならし（以下N）：1143 K×1 h および1173 K×1 h、● 完全焼なまし（以下A）：1143 K×14 h、● サイクルアニーリング（以下CA）：1173 K×1 h → 923 K×2 h、● 球状化焼なまし（以下SA）：1048 K×10 h]
- 上記の中、粗大化温度が最低のSA処理および最高のCA処理とR材について減面率64%の冷間圧伸を施し、上記同様に結晶粒成長特性を調査した。
- さらに、上記冷間加工材に、N、LAおよびCA 処理を施した後、結晶粒成長特性を調査した。
- 前熱処理後および擬似浸炭処理後の一部条件につき、アンモニア蒸留分離インドフェノール青吸光度法によるAIN析出量の分析および抽出レプリカによるAINのTEM観察を行った。

3. 実験結果

3・1 前熱処理材の γ 結晶粒成長特性

各種熱処理材の1123~1373 K再加熱時の γ 結晶粒度をFig. 1に示す。初期粒度（1123 K×0.5 h 保持時の γ 粒度）が細かいほど、粗大化開始温度は低くなる。Fig. 2に初期粒度と粗大化温度との関係を示す。冷間鍛造に通常よく適用されるSAおよびCA処理では、SA材の初期粒度が最も細かく、粗大化温度は最も低く、逆にCA材の初期粒度は粗く、粗大化温度は高い。冷間鍛造性の面から、SAが適用されることが多いのが、冷鍛材の浸炭時に粗粒を生じやすい理由の一つと考えられる。肌焼鋼のSAは $\alpha + \gamma$ 二相域加熱であるため、AINの不均一析出⁷⁾による粒度への影響も

考えられるので、圧延材にあらかじめ低温焼なまし（993 K LA）を施し、フェライト域でAIN析出処理を行った後、SA処理を行ったもの（LA+SA）についても粒度特性を確認したが、SA処理材と同様の粒成長挙動を示した。（Fig. 1）

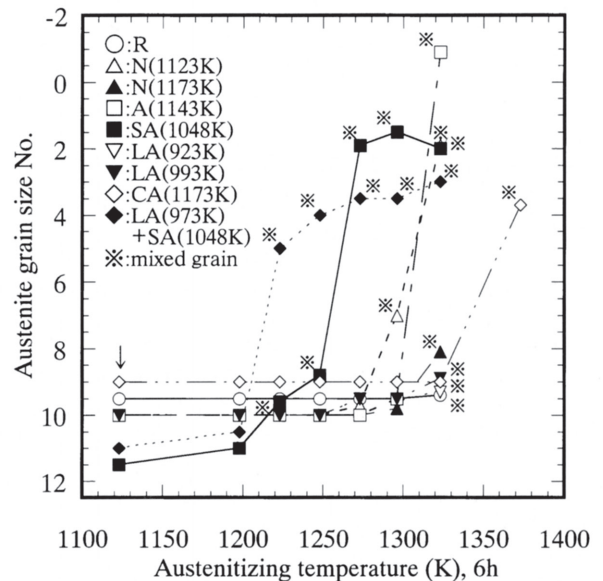


Fig.1 Grain coarsening characteristic after prior heat treatment. (↓:1123 K X 0.5h)

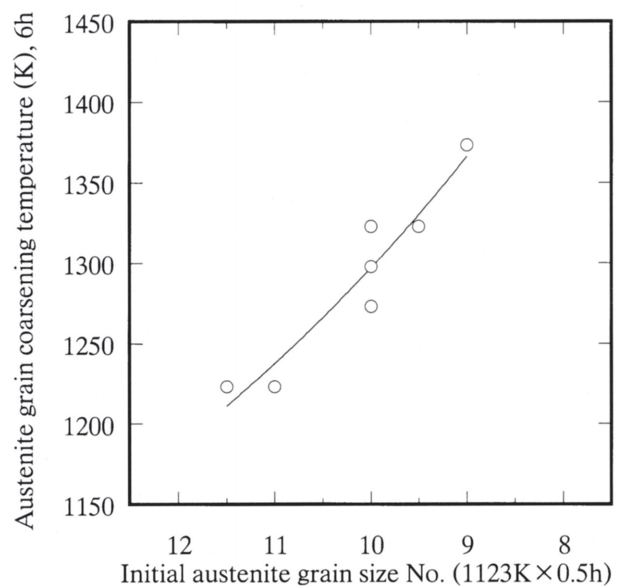


Fig.2 Relationship between initial austenite grain size and grain coarsening temperature.

3・2 冷間加工材の γ 結晶粒成長特性

各種熱処理の中、粗大化温度の最も低いSA処理および粗大化温度の最も高いCA処理とR材につき、減面率64%の冷間圧伸を行った後上記同様の粒成長特性を見た結果をFig. 3に示す。SA→冷間加工材はさらに粗大化温度が低下して、1198 Kにおいても全面に粗粒が発生する。CA→冷間加工材およびR→冷間加工材の初期粒度はSA材と同様に微細であるが、顕著な粒の粗大化は認められない。但し、1198 K以上で肉眼で識別できる粗粒は認められないもの

の、ミクロ組織的には粒度No.で3以上の差のある粒が混在する所謂混粒を呈しており (Fig.4), 初期粒度から見れば結晶粒の成長過程にあると見られる。

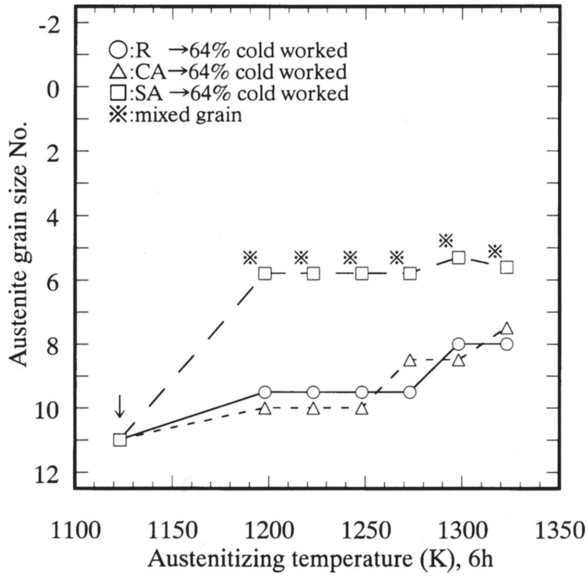


Fig.3 Grain coarsening characteristic of steel cold worked after various prior heat treatments. (↓:1123K X 0.5h)

工材にCA処理を施すと、初期粒度はやや粗くなり、粗大化温度は1273Kまで上昇する。また、LA処理では、特に改善効果は見られない。

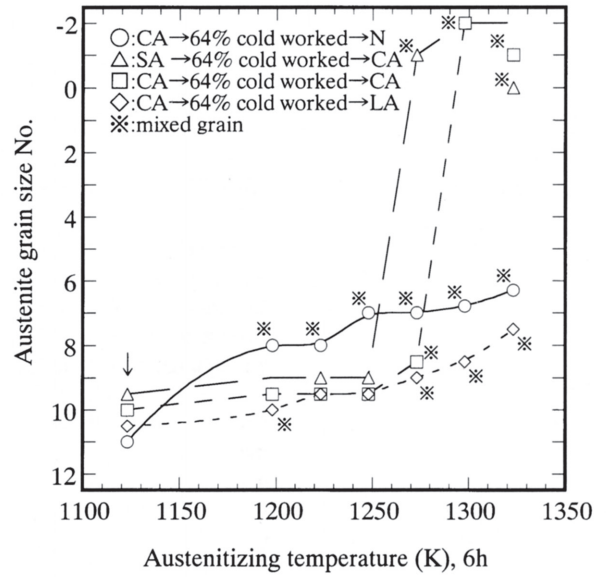


Fig.5 Grain coarsening characteristic of various heat treated materials after cold worked. (↓:1123K X 0.5h)

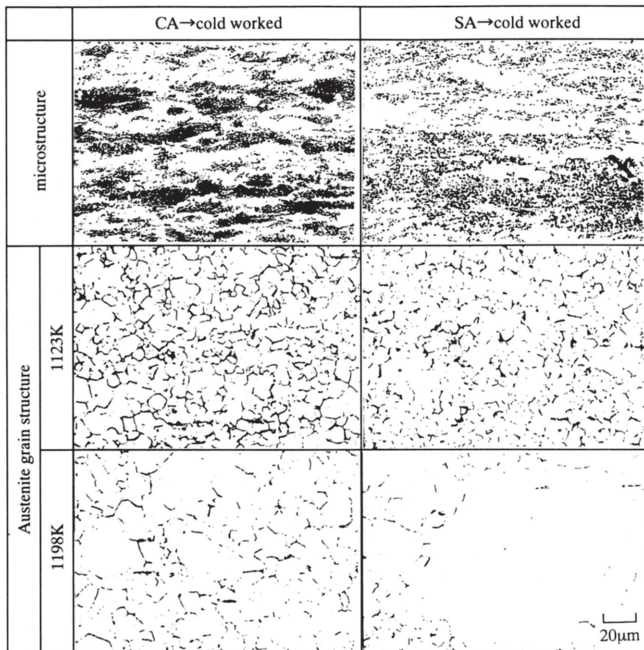


Fig.4 Examples of the austenite grain structure and microstructure.

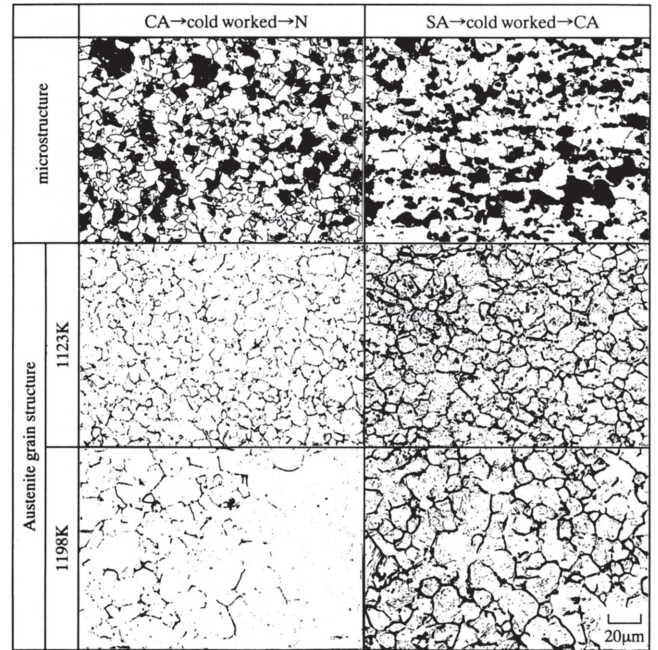


Fig.6 Examples of the austenite grain structure and microstructure.

3・3 結晶粒成長特性に及ぼす冷間加工後の熱処理の影響

SA→冷間加工材およびCA→冷間加工材に対して、さらに組織が微細化すると思われるN、微細化を軽減すると思われるCAおよびひずみ除去の影響を見るLAの各処理を施して結晶粒成長特性を調査した。結果およびミクロ組織をFig.5および6に示す。顕著な粗大化が認められなかったCA→冷間加工材もN処理を施すと、初期粒度が細くなり、粗大化温度は1198K以下に低下する。一方、SA→冷間加

3・4 AINの析出状況

(1) AIN析出量

各種前処理状態およびそれらの擬似浸炭処理時の粗大化温度におけるAIN析出量を分析した。結果を処理温度によりプロットしたのがFig.7である。永田等⁶⁾の平衡式によって算出した平衡析出量と比較すると、 γ 温度域では両者は比較的良好に一致しており、浸炭温度での析出量は前熱処理に拘わらず浸炭温度に依存するとみられる。

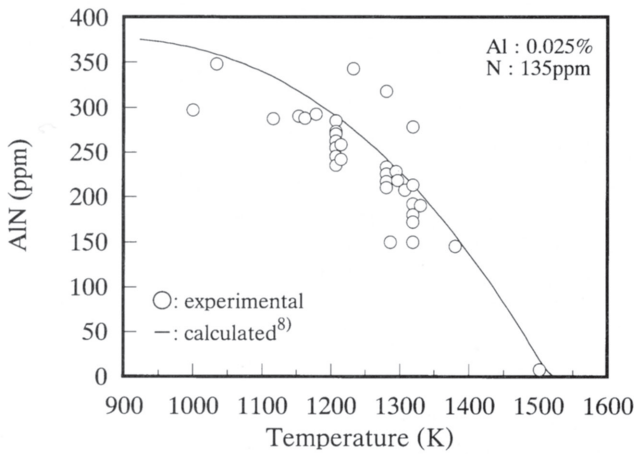


Fig.7 Precipitation of aluminum nitride at various temperature.

(2) AlN析出粒子径

前熱処理材および擬似浸炭処理材について抽出レプリカによるTEM観察を行い、AlN析出状態を確認した。粒子径分布測定結果例をFig. 8 およびFig. 9 に示す。いずれにおいても、平均粒子径は、Gladman等¹⁾の結果に比べるとかなり大きく、Fig.10に示すように、1503 K加熱でも未固溶であった大きな粒子がカウントされていることや、前熱処理あるいは擬似浸炭温度で析出する微細粒子が完全に抽出されているかどうか懸念されることもある。しかし、相対的比較において、前熱処理材ではその処理温度に応じて、粒子径分布に若干の差が認められる(CA材の粒子径がやや大きい)が、1198 K×6 h 処理後にはほとんど差異がなくなるようである。

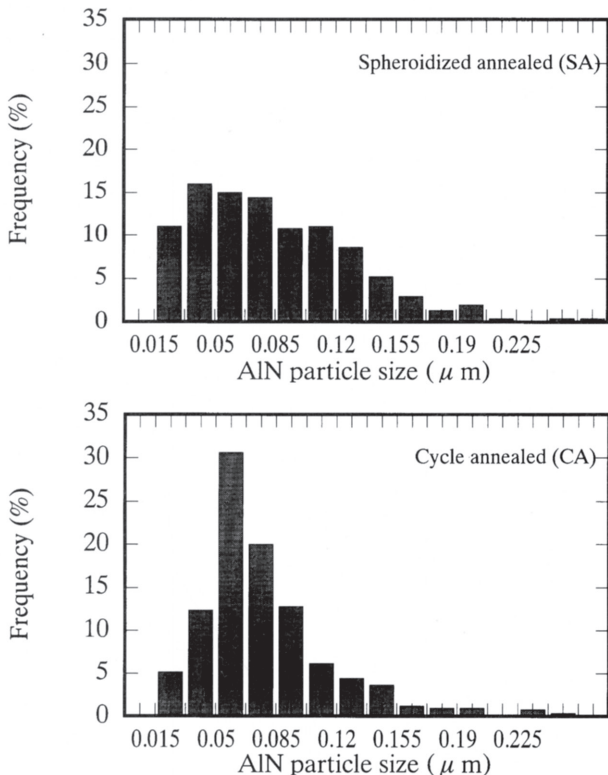


Fig.8 AlN particle size distribution after prior heat treatment.

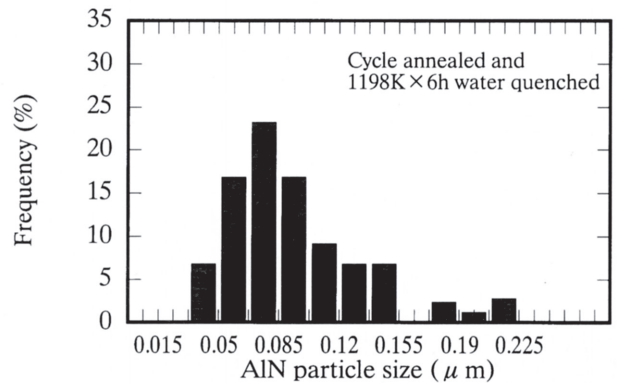
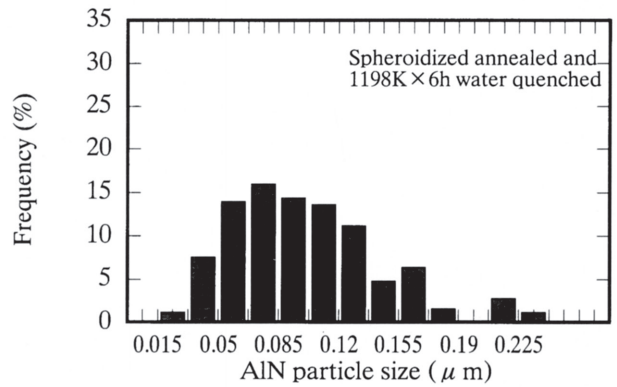


Fig.9 AlN particle size distribution.

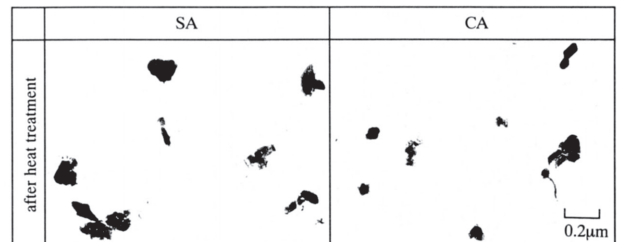


Fig.10 Electron micrograph of the samples.

4. 考察

上述のようにAlNをほぼ完全固溶状態とした供試材を用いた試験では、種々の前熱処理材の γ 結晶粒粗大化温度は、主として初期粒度に依存することが示された。また、冷間加工材の粗大化温度は同様に初期粒度が極めて細くなることにより1198 K以下に低下するが、初期粒度がやや粗くなる後熱処理を施せば、再び、1273 K近くにまで回復することが示された。この過程から、前熱処理および冷間加工は、擬似浸炭時におけるAlNの析出状態に大きく影響していないことも推察される。これら、初期粒度、析出粒子量および粒子径と粗大化温度との定量的関係を考察できるのは、唯一冒頭に挙げたGladman等の理論以外見あたらないので、これにより、二、三考察を加える。

Gladmanは、結晶粒成長の駆動力は、粒径の異なる粒が隣接する場合に大粒が小粒を合併したことによる粒界エネルギーの低下量に相当するとして、それが析出粒子による粒

界移動阻止力に等しいと置いて式(1)を導いている。 r_{crit} は粒成長を阻止しうる臨界の析出粒子径である。

一方、析出粒子径は、オストワルド成長により式(2)に従い、温度と時間の関数である。従って、 r が(1)式によって決まる r_{crit} になる温度で粒成長が起こると考える。これが粗大化温度である。

$$r = k_0 t^{1/3} \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) \dots\dots (2)$$

ここで k_0 は定数、 t は時間、 Q は活性化エネルギー、 R はガス定数、 T は温度である。

4・1 析出粒子量およびマトリックス結晶粒径と粗大化温度との関係

式(1)から R_0 および Z をそれぞれ数水準設定したときの f と r_{crit} の関係を求め、Gladman等による温度とAIN粒子径の関係 (Fig.11)¹⁾ から粗大化温度を算出した〔式(1)、(2)において、 $r_{crit} = r$ と置いて、 T を求める手順に相当する〕。算出手順の一例をFig.12に示す。Y軸の左辺(析出粒子径)と右辺(温度)の関係はFig.11による。但し、析出粒子径は球形の半径に換算してある (D(cube edge) = 1.62 r)。 R_0 および Z を固定して (Fig.12では $R_0 = 8.81 \mu\text{m}$ および $R_0 = 4.41 \mu\text{m}$, $Z = 1.5 \sim 3$)、 f {AIN mass ppm × (鋼/AIN) 密度比} と r_{crit} の関係を求めると、式(1)より直線関係が得られる。ここで f は任意に設定できず、当供試材では Al0.025%, N135ppm に対応した温度と析出量の関係に規制されている。この関係に Fig. 7 の平衡値を適用する〔曲線(A)〕。(A)と各直線の交点が r_{crit} であり、それに対応する温度が粗大化温度である。このような手順で R_0 ; 3 ~ 13, Z ; 1.5 ~ 2 の範囲で粗大化温度を算出した結果を Fig.13 に示す。実測値は Z ; 1.5 ~ 1.75 範囲の計算粗大化温度によく一致している。これは、Gladman等が、Al鋼およびNb鋼において、

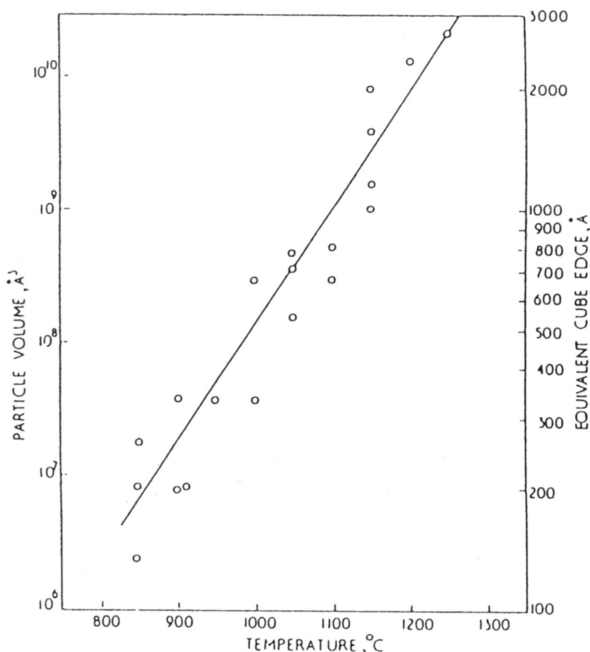


Fig.11 Effect of holding for 1h at temperature on precipitate particle size.¹⁾

$Z = \sqrt{2} \sim 2$ と置いた理論値と実測値が極めて良く一致する結果¹⁾にも合致する。

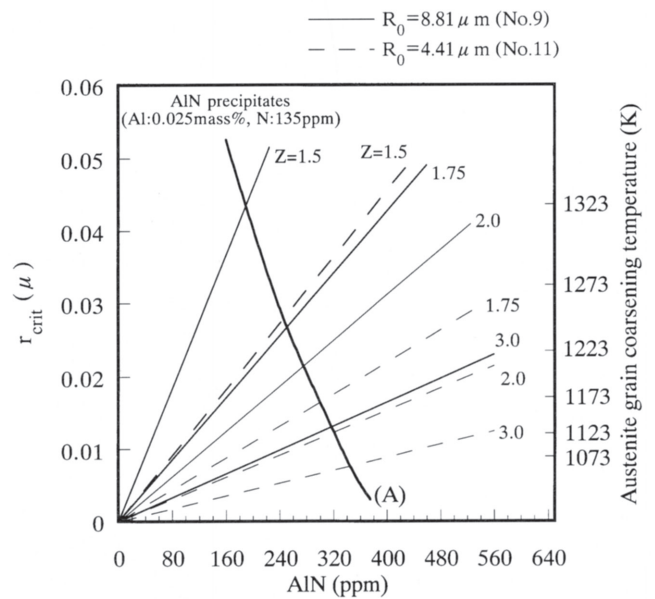


Fig.12 Examples of austenite grain coarsening temperature calculated by equation of Gladman et al.¹⁾

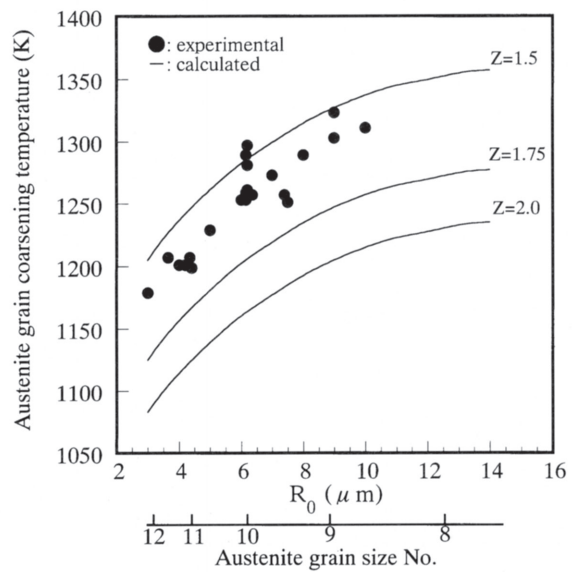


Fig.13 Relationship between R_0 and Z with grain coarsening temperature.

以上より、冷間加工材の結晶粒成長特性も、(1)式の関係に規制されており、浸炭加熱時のAIN析出状態が大きく異なる条件下では、初期粒度により粗大化温度が決定されることが良く説明されている。また、本実験のように加工率が高く、初期粒度がNo.11近い微細粒となる場合には、 r_{crit} は0.02 μm 前後と算出され、現行水準AIN量では、粗大化阻止は困難であることが推察できる。但し、SA→冷間加工材とCA→冷間加工材は共に、初期粒度はNo.11であり、1198 Kで粗大化しているが、前者が通常の急激な粗大化を示すのに対して、後者は1198 Kで平均粒度No.10程度にやや粗大化した後1248 Kまでそれが維持されており、実

用的には粗大化温度は1273Kといっても良いような挙動を示す。この差異については、今回、明確な検証はできなかった。全面に粗大化が生じた時点（例えば1198K）を初期条件と見れば後の成長特性は説明できそうであるが、粒成長機構を知る上で興味深い現象であるのでさらに検討を進めたい。

4・2 冷間加工材の粗大化温度の向上策

(1) 冷間加工後の熱処理の選定

冷間加工材ではどうしても初期粒度は細かく、AINを粗粒化抑止に最も有効な状態にしたとしても、浸炭温度での γ 粒粗大化を完全に阻止するのは困難であり、本実験結果および上記考察によれば、まず後熱処理により、初期粒度をやや粗くすることにより、粗大化温度を上げることが可能である。この処理としては、CA処理が適当であった。

(2) 析出粒子量の増量

1. AIN粒子による増量

上記理論によれば、粗大化温度に対して、 R_0 と f は同等の影響を及ぼす。Fig.14には、SA→冷間加工材は $R_0=4.41\mu\text{m}$ (No.11) で、 $Z=1.64$ にて粗大化温度が1198Kになっていることが示されている（図中a点）。SA→冷間加工→CAの粗大化温度は、 $R_0=7.42\mu\text{m}$ (No.9.5) で1273Kであったが、図上b点にはほぼ合致している。ここで、 $R_0=4.41\mu\text{m}$ でも粗大化温度をb点と同等にするには、AIN (ppm)をa点からc点まで増せばよいことになる。この析出量を可能とする組成はAl ; 0.038%, N ; 190ppmとなる。しかしこの組成では、実用的に可能な圧延加熱温度の上限1473Kにしたとしても、未固溶AIN量は計算上約210ppmになり、この温度で存在するAINの粒径はc点で示される r_{crit} よりはるかに大きいはずである。従って、粗大化温度を1273Kに維持するのに必要なAIN量は、a点以上に増やせない。

2. Nb (C, N) 粒子による増量

冷間鍛造用結晶粒度調整鋼として開発された、高N-Nb

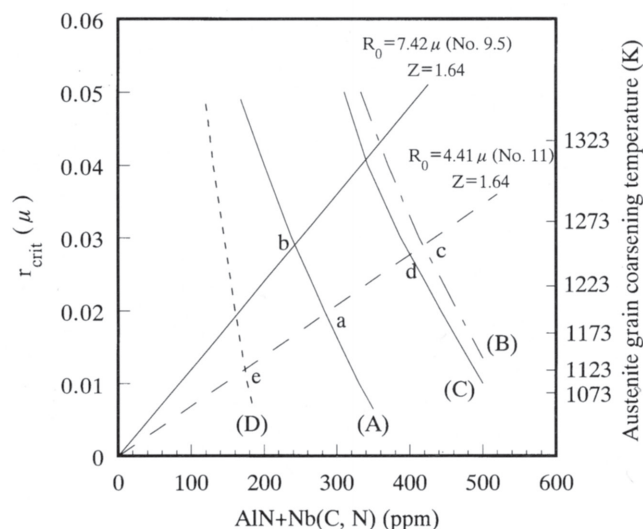


Fig.14 Influence of R_0 , Z and precipitation on austenite grain coarsening temperature.

添加鋼は冷間鍛造後、初期粒度はNo.11程度でかつ、粗大化温度は1248Kである (Fig.15、16)。ここで高N-Nb添加鋼の粗大化温度について、Fig.14において上記と同様の手順で検証してみた。当材料は、Al量とNb量に応じて化学量論比以上のNを添加して、AINおよびNb (C, N) がともに析出するよう調整しているため、析出粒子量として、AIN平衡析出量にGladman等による、Nb (C, N) 析出量を加算して算出した (図、曲線(C))。粒子径はAINもNb (C, N) も同等とすればd点より粗大化温度は約1248Kであり、実測値に極めてよく一致する。Gladman等は、温度とAINおよびNb (C, N) の粒径の関係はほぼ同一としているが、Nb (C, N) の粒子径はAINよりも細かいとする報告もあり⁹⁾、さらにNb (C, N) 粒子径の効果による可能性についても確認する。Nb (C, N) 単独の析出量 (曲線D) で見ると、e点から、 r_{crit} は $0.012\mu\text{m}$ となる。Nb (C, N) が1248Kでこの粒径であればよいことになるが、これは同温度における、AIN粒径の1/2.5に相当する。上述のAl単独添加鋼との析出粒子径分布比較からすれば不可能とはいえない。

以上、本実験結果および冷間加工材の粗大化温度向上対策についてGladmanの結晶粒成長理論に基づき考察した結果、結晶粒粗大化温度に関して、実測値と理論値は定量的にも極めてよく一致することが確認された。

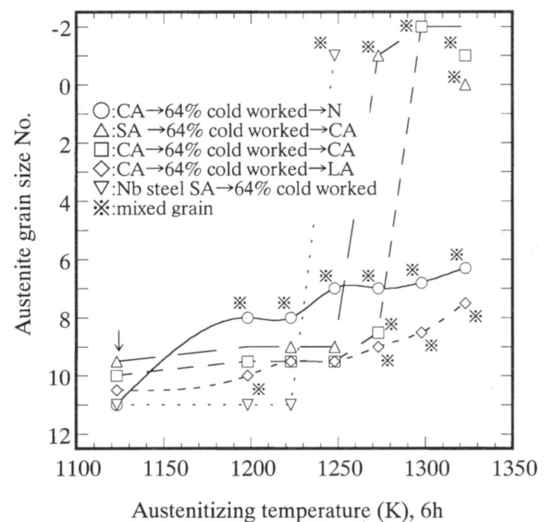


Fig.15 Grain growth characteristic of various heat treated materials after cold worked. (↓:1123K X 0.5h)

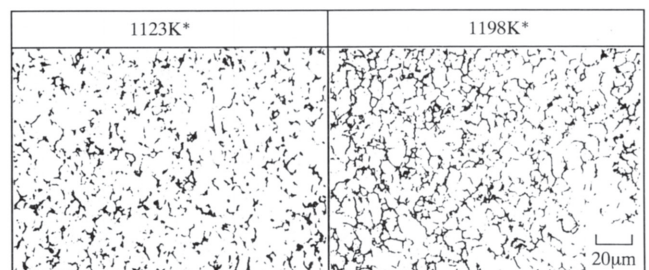


Fig.16 Examples of the austenite grain structure (Nb steel). *austenitizing temperature

5. 結論

冷間加工材が浸炭時に γ 結晶粒粗大化を生じやすい原因を明らかにし、その対策を講ずることを目的として、冷間加工に付随する種々の前処理および結晶粒粗大化温度に及ぼす冷間加工および冷間加工後熱処理の影響を検討した結果、以下の結論を得た。

- 1) 浸炭温度以下で行われる種々の前処理は、浸炭時に存在するAINの析出状態には大きな影響を与えず、主として初期粒度の細粗により γ 結晶粒粗大化温度に影響する。初期粒度が最も細かい球状化焼なまし(SA)材の粗大化温度が最も低く(1223 K)、初期粒度が最も粗いサイクルアニーリング(CA)材の粗大化温度が最も高い(1323 K)
- 2) 冷間加工材の初期粒度はさらに細かく(No.11以下)粗大化温度が低下する。これを助長する前熱処理(SA材)では、通常の浸炭温度(1198 K)でも粗粒が発生する。これを軽減すると思われるCA材でも、顕著な粗大化温度の低下は認められないが、1198 Kにおいてミクロ組織的には混粒を呈する。
- 3) 冷間加工後、初期粒度を粗くするCAを施すと(SA→冷鍛→CA→浸炭)、SA材でも粗大化温度は1273 Kに回復し、初期粒度を細かくするNを施すと(CA→冷鍛→N→浸炭)、CA材でも1198 Kで顕著な粗大化を生ずる。これからも、冷間加工材の粗大化温度低下原因は、初期粒度の細粒化に起因することが確認された。
- 4) 以上の現象はGladmanによる、「粗大化温度は、析出粒子の径、析出粒子の量、マトリックス結晶粒径およびマトリックス結晶粒径の不均一性(成長粒の径/マトリックス平均径の比)の各要因相互の関係によって決定される」とする理論式に定量的にもよく一致することを確認した。

5) 当理論に基づけば、冷間加工材の粗大化温度向上対策には以下が考えられる。

- (1) マトリックス粒径(本報告の初期粒度に相当)を粗くする。冷間加工後にサイクルアニーリング処理を適用するのが有効であることが確認された。
- (2) 析出粒子の量(数、容量比)を増す。
 - イ) 高窒素として、現状AIN量にNb(C, N)粒子を付加した、高N・Nb添加鋼がこれに相当することを検証した。これは、(1)の対策と異なり、極細粒で粗大化温度を高められるのが有用である。
 - ロ) AINのみで、有効な粒子量を増やせるかは、今後の課題と考える。
- (3) 析出粒子径を細かくする。これにはAIN粒子に代わるNb(C, N)粒子等の導入が考えられるが、現行程度のA量は精錬上不可欠であるため、イ)と同じく、AINとの複合増量効果によるのが有効である。

文 献

- 1) T. Gladman and F. B. Pickering: J. of Iron and Steel Inst., 205 (1967), p.653
- 2) 足立 彰, 荻野喜清: 日本金属学会誌, 30 (1966), p.394
- 3) 木下修司, 上田武司, 鈴木 章: 鉄と鋼, 59 (1973), p.446
- 4) 木下修司, 上田武司: 鉄と鋼, 59 (1973), p.1261
- 5) 小林一博, 千葉貴世, 富永 剛, 坪田一一: 材料とプロセス, 6 (1993) p.792
- 6) 塩飽 潔, 小新井治朗, 澤田裕治, 金子晃司: 神戸製鋼技報, 35 (1985), p.49
- 7) 鈴木 章, 木下修司, 伊藤孝道, 上田武司: 鉄と鋼, 53 (1967), p.1299
- 8) 永田重雄, 梶山太郎, 加藤 剛: 鉄と鋼, 46 (1960), p.412
- 9) 紅林 豊, 中村貞行: 電気製鋼, 65 (1994), p.67