



私の論文

／ 今振り返ってみて、行間にこめた思い、エピソード

匍匐前進の日々の裏側*

The Back Side of Days of Crawling Along

村上俊夫
Toshio Murakami

(株) 神戸製鋼所
材料研究所 材質制御研究室
主任研究員

1 はじめに

この記事執筆することになったのは、今年 (H27年) の3月、東京大学駒場キャンパスで開催された鉄鋼協会の春季講演大会で豊橋技科大の戸高先生につかまったのがきっかけでした。ふえらむの新企画で論文賞を取った人に論文執筆の裏話を書いてもらうことになったから何か書いてほしいと言われたのですが、何故、私かと問うたところ、なんか面白そうなことを書いてくれそうだから、と良くわからない理由で説得されました。夏ごろの依頼ということで、子供の夏休みの宿題を見ながら一緒にやれば良いかと、気軽に受けてしまいました。

思い返してみると、'12年にふえらむの躍動という企画で「日々は匍匐前進」¹⁾という題目の記事を執筆させていただいたのですが、これも戸高先生につかまったのがきっかけでした。私にとって戸高先生は鬼門なのかもしれません。結局、執筆が11月までずれ込んでしまい、ずいぶん遅い夏休みの宿題になってしまいました。戸高先生のご要望の『なにか面白い』記事になっているかどうか自信がありませんが、本論文の研究のきっかけから、最終的に論文に仕上げるまでの匍匐前進の日々の裏側をご一読いただければと思います。

2 相界面析出との出会い

今回の論文の研究対象はV炭化物の相界面析出になります。恥ずかしながら、相界面析出という現象については、学生時代は全く知らず、神戸製鋼所に入社して研究テーマとして扱って初めて知りました。ここで相界面析出してなんだろう

と感じた方は、大森先生の解説記事²⁾がありますので、一読することをお勧めします。

ただ、企業研究者としては相界面析出と非常に深い縁があります。思い返せば、'01年に入社した直後から相界面析出に関わる研究テーマに取り組んでいました。そのテーマは圧延型非調質鋼の強度・靱性を向上させるというものでした。中炭素鋼にVを添加した、まさに今回の論文に直接関わるような鋼種だったのですが、これまた恥ずかしながら、当時は相界面析出というキーワードを全く認識しておらず、旧 γ 粒径の微細化ばかりに意識がいて、相界面析出については考えも及びませんでした。

相界面析出という現象を認知できたのは、その後に取り組んだ高強度鋳鋼のテーマでした。YSを確保するためにも高強度化にVを添加してフェライト (α) を析出強化していたのですが、もう一つ強度クラスを上げようとして析出強化量を増すと、靱性が低下してしまっていました。その原因を調査するために α 中の析出状態をTEMで観察すると点列状の特徴的な析出物が見えました。正直、その写真を撮った時は、ふーん、こんな析出があるんだとサラッと流していたのですが、部署の大先輩である家口 (現コベルコ科研) に、きれいな相界面析出の写真と褒めていただき、初めて相界面析出という現象を認識できました。ただ、あーそんなことが起こるんだ、という程度でそれ以上深く突っ込むことはありませんでした。その写真については、社内の鉄鋼材料の講義資料に使っていただいたことを覚えています。

積極的に相界面析出を活用することができたのは、自動車用熱延鋼板に関するテーマでした。元々はどんな方法をとっ

* [今回の対象論文]

村上俊夫, 畑野 等, 宮本吾郎, 古原 忠 : 「Effects of Ferrite Growth Rate on Interphase Boundary Precipitation in V Microalloyed Steel」, ISIJ International, Vol.52 (2012), No.4, pp.616-625 (第24回澤村論文賞受賞)

ても良いので熱延鋼板の疲労限度比を高める策を考えるというもので、その当時は思いつく限り、様々なことにトライしました。結局、析出制御が疲労特性向上に使い勝手が良いことで結論づいたのですが、熱延後の冷却中に形成されるTiCサイズを適正サイズに制御すれば疲労特性を最大化できるという結果が得られました²⁾。これも余談ですが、この時に投稿した論文の写真はその時の論文誌の表紙に使っていただきました。相界面析出は幾何学的で見栄えの良い写真になり易いのだと思います。

こうやって振り返ると入社して5年の間に、製法も用途全く異なる3種類の鋼材で相界面析出を扱っており、この現象の有用性を改めて感じます。

3 相界面析出挙動のメカニズム解明への取り組み

ただ、ここまでの取り組みは実験的に析出状態を振って特性に効くや効かないやというレベルで、相界面析出がどうやって形成されるかというメカニズムはほとんど理解できていませんでした。相界面析出の研究にもう一步踏み込むきっかけになったのは、岡山大学 瀬沼先生が主催された計算工学研究会 (H18~H20) に参加したことです。

この研究会は材質予測技術について材料屋と機械屋が協力することで、マイクロ組織の予測技術から、それをメゾ、マクロの機械的特性に繋げていく、マルチスケール予測技術に取り組んで行くことが大きな目標でしたが、材質予測技術に関しては世界最先端の新技术を提示することを目的に、いくつかの題材に取り組むことになっていました。私は、ちょうど新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) の「鉄鋼材料の革新的高強度・高機能化基盤研究開発」というプロジェクトが立ち上がり、そのうち先端的制御鍛造技術の開発という研究テーマに参加して、相界面析出活用技術に取り組むことになっていました。その取り組みを進めるにあたり、その基礎となる析出挙動を理解することを狙い本研究会に参加しました。

著名な先生方と議論することで、狙いとしていた相界面析出に関わる知見を得ることができました。余談になりますが、普段は接することが少ない創形創質工学部会の方々の研究と接する機会を持つことができ、現在、主に取り組んでいる自動車用鋼板の研究開発に役立つ要素技術を幅広く身に着けることができました。

その代わりワークは大変でした。確か、初年度の最後の会合だったと思うのですが、瀬沼先生から相界面析出についてレビューをするように宿題をいただきました。ある程度、自分でも論文を持っていたので、それをまとめれば良いかと思っていたのですが、瀬沼先生から多量に文献が送られてき

ました。その当時、英語の論文を読むのが苦手だったのと、その内容が数値モデルに関わるものが多かったことから、ために時間がかかってしまいました。2月の研究会に向けて11月頃から整理を始めたのですが、その年の年末は家内と一緒に炬燵に入りながら延々と相界面析出モデルを理解するために、数式を解きながら過ごさざるを得ませんでした。

ただ、この作業に取り組むことで相界面析出の形成モデルとその数値モデルについて系統的に学ぶことができました。Solute Drag Nucleation Model³⁾、Ledge Mechanism⁴⁾、Quasi-Ledge Mechanism⁵⁾、Bowling Mechanism⁶⁾ とそれぞれのモデルの考え方と、そのモデルに立脚した相界面析出のシート間隔の変化挙動の予測式について整理できたと思います。この時の整理は後々、非常に役に立ち、論文を構成する実験を発案する元になりました。

結局、論文をまとめた結果だけで、パワーポイントで50ページほどの資料になりました。これを研究会で報告したところ、思った以上に好評だったようで、瀬沼先生からお褒めの言葉を頂いただけでなく、茨城大 榎本先生に報告資料をもらえないかと声をかけていただき、非常にうれしかったのを覚えています。余談になりますが、その研究会の際に、小山先生 (当時 NIMS、現 名古屋大) が私の発表の後に、Phase Field法で異相界面の析出挙動について析出要件にある条件を加えると点列状の析出が形成されるという計算を、即興でプログラムを作成して見せて下さいました。その時の析出要件がどのように設定されたのか、具体的にはわかりませんが、小山先生のすごさを痛感したのも忘れられません。

4 東北大学博士課程入学と相界面析出挙動のモデル化まで

この時、ちょうど私の部署で若手研究者の博士号取得率が低いことが問題視されていました。その対策として社会人博士コースへの入学が奨励されることになりました。元々、私自身、博士号を取得したいとの思いがあることを常々上司に言っていたこともあり、少し準備不足だったのですが、博士課程への入学する許可をもらうことができました。

入学先は、出身大学とは異なるのですが、元々学生時代にお世話になっていて、かつ、NEDOの先端的制御鍛造のプロジェクトに参加していた古原先生の研究室がお世話になるのに最適という判断で東北大学になりました。ただ、入学に際しては、当時上司だった榎井からは1年で学位を取ってこいと言われて送り出されていたため、入学時に期間短縮申請をしていました。しかし、色々仕事を抱えたままの留学となり、2か月に1度程度通って先生とディスカッションさせてもらうのが精一杯という状況だったため、1年目は実験は多少

実施していたものの、解析があまり進まず研究の方向性を定めることも難しい状態でした。その年度末に学位をしようと思ったら11月頃には目途が立っていないといけなかったため、結局、なにもできないまま期間延長のお願いをすることになり、古原先生を始め関係者に非常にご迷惑をかけてしまいました。

ここで博士論文として取り組むことにしたのは、今回の論文の内容である相界面析出の形成挙動に関する研究でした。上記のように計算工学会でまとめた相界面析出の形成モデルに関する過去の知見の整理結果から、各モデルの妥当性を検討するにあたり、 α 変態時のフェライト/オーステナイト(α/γ)界面の移動速度に注目しました。相界面析出は異相界面が移動する中で析出が起こる現象なので、その移動速度は析出挙動に対して強く影響し、既に過去の数値モデルにも界面移動速度の項が含まれていました。しかし、異相界面の移動速度が相界面のシート間隔に及ぼす効果としてはモデルごとに異なる傾向を示すため、実験的に α/γ 界面の移動速度を変化させた時に相界面析出間隔がどのように変化するか明らかにできれば、どのモデルが妥当かという論争に対して一石を投げられるだろうと考え、研究を進めていました。

ただ、移動速度の影響を抽出するためには、温度を変えると界面移動速度とともに析出挙動が根本的に変化し、成分を変化させるのも他の因子が変化するという難しさがありました。そこで、 α が成長する過程で、その成長速度が低下していく時の相界面析出の変化挙動を調べることで、成長速度とシート間隔の関係を明らかにしようとしてみました。ただ、この測定をしようとする、TEMサンプル中で α/γ の界面を立てながら、相界面析出の回折条件に合わせる必要があるため、条件に合うサンプルが得られるまで、かなりの数のサンプルをFIBで作製しては無駄にしてしまいました。また、対象となる相界面析出物は、析出直後で成長していないため、非常に微細で、回折条件があったとしても観察が大変でした。結局、自分自身で撮影できたものはあまり多くなく、古原先生や宮本先生に手伝ってもらいながら、何とか必要な写真をそろえることができました(図1)。

次は、その写真をどのように解析するかが問題でしたが、



図1 0.5%V添加中炭素鋼中の α/γ 界面近傍の相界面析出状態のTEM観察結果

他の業務に追われ、しばらく放置していました。ようやく、手が付けられたのは、その年の年末でした。他の業務が一息ついた定時に居室で画像解析ソフトを使い、相界面析出のシート間隔を界面から内部に向けて変化していく状態を解析していたのですが、結構ばらつきが大きく、最初はどんな結果になるか想像できませんでした。解析が進むにつれて内部から界面に向けてシート間隔が小さくなっていく傾向が見えてきました(図2)。この結果が得られた時は非常に興奮しました。その当時、技術的な議論の相手になってくれていた難波、野村がまだ残っていたので、この現象をどう考えるべきか遅くまで議論させてもらったのを覚えています。

ただ、この結果は私にとって悩ましいものでした。過去の研究で最も妥当と考えられていたのはQuasi-Ledge Mechanismで、私もそのモデルを元に現象が説明できるものと信じていたのに、その想定が崩れてしまったのです。一方で、Bowling MechanismやSolute Drag Nucleation Mechanismでは、技術的な妥当性を欠く部分があるために、その他のメカニズムとしてどう考えるべきかと頭をひねってたり着いたのが、 α/γ 界面が移動する中で、その界面にVが濃化していくことが析出のトリガーになるというモデルでした。

ただ、このモデルのイメージを口頭や文章で記載しても、なかなか理解してもらえませんでした。そこで、そのモデルの妥当性を示すために数値計算による妥当性の確認を試みましたが、Solute Dragモデルでは界面に同速度が一定になっているときの挙動を求めていて、そのまま活用できませんでした。そこで、元の式から連続的に界面移動速度が変化した時の異相界面への偏析状態の発展過程を求めるモデルを作りました。この時、偏析挙動の非定常状態を求める必要があるため、解析的な数式を与えることができず、逐次計算を行う必要がありました。そのために学生時代に実習で使ったFortranの教科書を引っ張りだし、下手くそなプログラムを作成しまし

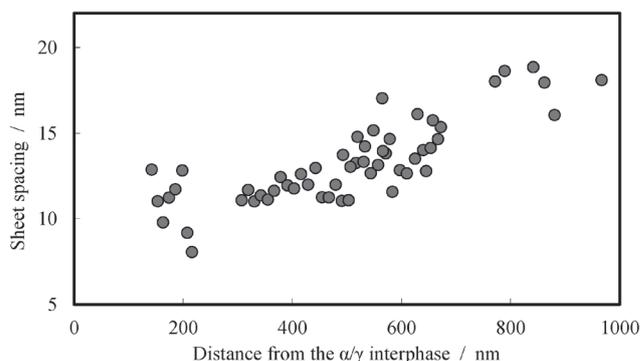


図2 0.5%V添加中炭素鋼中の α/γ 界面近傍の相界面析出のシート間隔測定結果

た。Fortranでのプログラム作成とフィッティングパラメータの最適な設定ができるまでには更に半年以上かかり、結局、満足いく結果が得られたのは2年目の秋口でした。

5 残された課題と今後への期待

上記の結果を博士論文、ならびに、ISIJの投稿論文にまとめるまでにはさらに時間がかかってしまいました。実験的な結果だけで論文にしているだけでも一定の価値があったと思いますが、数値モデルの作成まで取り組んだのは、結果的に論文の価値を高めるのに役立つだけでなく、自分の中での相界面析出のイメージを具体化するのに非常に役立ちました。

ここでは、相界面析出のトリガーとなるのは、 α/γ 界面での偏析の発展と析出の繰り返しと考えており、Segregation - Nucleation Modelとでも呼ぶべきかと思えます。このモデルが妥当かどうかは、更なる議論が必要となるかと思えますが、この考え方を使えば相界面析出に関わる現象を系統だって説明することができると思っています。

例えば、温度が低下していく時の相界面析出挙動については、界面移動速度が高まることで偏析が抑制されることと、析出駆動力が高まることの競合でシート間隔が変化し、一定の温度の範囲では、温度低下に伴い析出駆動力増大の効果が大きく表れてシート間隔が小さくなるが、温度がさらに低下して界面移動速度の効果が大きくなると相界面析出が起らなくなるのが計算で求められます。また、界面移動速度が遅くなると、相界面析出のシート間隔が小さくなり、実質的に析出が界面移動方向に連続的に起こりうる事が示唆されます。このようになると繊維状析出物 (Fibrous) の形成につながると考えることもできます。実際、論文にはまとめられませんが、図3に示すように相界面析出と繊維状析出物が粒界を挟んで混在するような事例も観察されました。これは相界面析出と繊維状析出物の形成は相界面析出の局所的な変態挙動もしくは析出挙動の差異により左右されることを示しています。現在はフェライトの成長速度の差異がこのような違いを生み出したのではないかと考えています。同様の

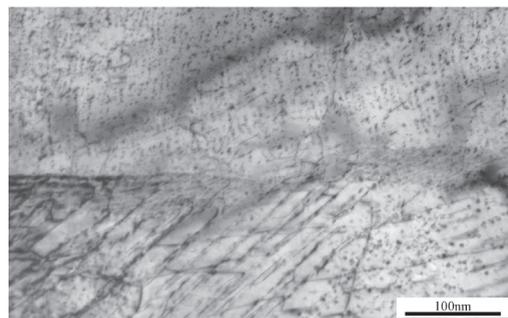


図3 0.5%V添加中炭素鋼中のVC析出状態。フェライト粒界を挟んで Interphase boundary precipitation と Fibrous が同時に存在

議論はChen⁷⁾がSuper Ledge Modelを用いて既に取り組んでいます。まだ最終的に結論を下す域に達していないと思われれます。

まだ取り組むべき課題が残っている中、私自身も相界面析出の研究に関わっていきかけたのですが、企業研究者の宿命で現在は別の研究テーマを遂行する必要があり、本技術については他の研究者にお任せざるを得ない状態です。今後さらに検討が進み、相界面析出に関する現象の理解が深まることを期待しています。

参考文献

- 1) 村上俊夫：ふえらむ, 17 (2012), 368.
- 2) 大森靖也：日本金属学会会報, 15 (1976), 93.
- 3) A.T.Davenport and R.W.K.Honeycombe：Proc.Roy.Soc. London, 322 (1971), 191.
- 4) R.W.K.Honeycombe：Metall.Trans.A, 7A (1976), 915.
- 5) R.A.Ricks and P.R.Howell：Acta Metall., 31 (1983), 853.
- 6) R.A.Ricks and P.R.Howell：Met.Sci., 16 (1982), 317.
- 7) M.Y.Chen：Ph.D Thesis, Precipitation decarburage de vanadium (fibre, interphase) dans des aciers, Universite de Grenoble, (2013)

(2015年11月30日受付)