



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

研究のセレンディピティ、百の思案と一つの文章

Serendipity in Research, 100 Times Considerations, Just One Sentence

光原昌寿

Masatoshi Mitsuvara

九州大学

大学院総合理工学研究院

准教授

1 はじめに

この度、「私の論文」に記事を投稿する機会を頂戴した。本企画は、執筆した論文の行間にこめた思いを述べるというユニークな内容であり、私も毎回の記事を楽しく拝読している。実際に記事を書く段になって、まるで漫才師がネタのオチの意味を改めて説明するような気恥ずかしさを感じつつ、筆を進めている。

本「私の論文」記事の対象論文¹⁾は、第81回俵論文賞を受賞させていただいたもので、新たに合金・組織設計した多結晶Ni基合金についての微細組織とクリーブ特性を論じている。対象論文は日本語で執筆した。英語での論文投稿の場合とは異なり、いくらか自在に扱うことのできる母国語で論文を書いた場合には、やはりそこかしこの行間に、読者に気付かれない程度に“著者の思い”を潜ませておくものである。(英語で執筆する場合には、物事を正確に伝えるのに精一杯で、行間に何かを込めるような余裕がないのは私だけであろうか。) そんな思いの裏には、研究の過程で偶然に出会った想定外の結果に対して思考錯誤を繰り返した“百の思案”がある。そして多くの場合には、そこからひねり出された“一つの文章”が論文中に存在するのである。今回の論文における“一つの文章”がどれに相当するかは本記事の最後に述べることにするので、もしも興味を持たれた読者の方は本記事の先を読み進める前に対象論文を一読いただくと幸いである。一方で、お忙しい読者の皆様のために、まずは論文の内容を以下に起承転結風にまとめる。

(起) 結晶粒界近傍の組織デザインを考慮した新たな多結

晶Ni基耐熱合金の創製を目的に研究をスタート。

↓

(承) W、Cr、Co添加量を調整して、析出物による高い粒界被覆率を持つ組織を実現。

↓

(転) 高温強度(クリープ強度)の著しい向上を確認。ただし、クリープ変形に特異な挙動(クリープ変形の加速現象の遅滞)が現れる。

↓

(結) 特異な挙動を動的な組織変化(特に析出物の状態変化)で説明可能であると結論。

ここから、論文本文には記載しなかった(できなかった)素の思い、エピソードを述べよう。(起)の部分について、本研究は紛れもなく、東京工業大学の竹山先生らが精力的に研究・開発を進めておられる「粒界析出強化型オーステナイト系耐熱鋼」²⁾の成功に感化されたものである。本研究では、オーステナイト系耐熱鋼の成功例をそのままNi基合金へ適用してみるとどうなるかについて、実験的な検証を行った。もちろん実際の合金設計には、熱力学に基づく緻密な計算と、添加元素量を調整した多数の材料作製、その特性を評価するための様々な実験を必要としたが、それらの結果として析出物による高い粒界被覆率が達成された(承)の時点で、(転)における強度向上は正に“想定範囲内”であった。一般に、Ni基耐熱合金の耐熱性は結晶粒内の整合析出物(Ni₃Al、 γ' 相)の量で整理されることが多く、 γ' 相が多いほど高強度で低延性である³⁾。本合金では、粒内析出と粒界析出の2つをそれぞれバランス良く強化に活かすことで、

* [今回の対象論文]

伊藤孝矩, 山崎重人, 光原昌寿, 中島英治, 西田 稔, 米村光治: 「金属間化合物により粒界被覆した多結晶Ni基耐熱合金の微細組織とクリープ特性」, 鉄と鋼, Vol.103 (2017), No.7, pp.434-442 (第81回俵論文賞受賞)

高強度かつ高延性な優れた高温力学特性を実現している。しかし、この優れた特性も、粒界析出強化の利点としてすでにオーステナイト系耐熱鋼にて報告されているものであり、もちろん実際にその特性が我々のNi基合金においても発現されたことは純粋な喜びとある種の達成感を与えたが、実のところでは“想定範囲内”であった。この時点での唯一、我々の事前の予想を覆したのは、粒界析出物の種類と高温強度との関係である。本合金では、試験前の熱処理により、粒界にはLaves相（主に Co_2W ）と σ 相（CrCo）が析出する。クリープ試験前の段階では、粒界上析出物の約9割がLaves相、残り1割程度が σ 相であった。つまり、粒界被覆の主役はLaves相である。一方、クリープ変形が進行すると粒界上の σ 相（CrCo）の割合が徐々に増加し、それに伴ってLaves相の粒界析出量が減少していく（対象論文のFig.11を参照いただきたい）。すなわち、クリープ変形とともに粒界被覆の主役が変わる。なお、被覆率には大きな変化はなく、本実験条件では、クリープ破断時点でも粒界被覆率は十分に高い割合（全粒界面積の8割程度が被覆されている状態）を保っていた。被覆率は保持されようとも、その主役たる析出物が変化するのであれば変形挙動に何らかの影響があって然るべきだろうと考えていたが、そのような挙動はクリープカーブには現れなかった。しかしこれは材料設計的には良い裏切れ方であり、もちろんまだまだ追加検証を必要とするが、大雑把に言ってしまうと、高い被覆率さえ保つことができれば粒界析出強化の効果は失われないということを示している。

さて、ここまで述べた内容のみであれば、本研究の方針と考察は実にシンプルなものであった。しかし、そうは問屋が卸さず、思いも寄らない想定外の結果が我々の前に立ちわだかった。すなわち研究のセレンディピティである。それが、(転)の後半に記載した“特異なクリープ変形挙動”であり、この現象に対する考察が対象論文の中核をなすこととなった。

どこが特異であったかを説明すべく、図1に、クリープ変

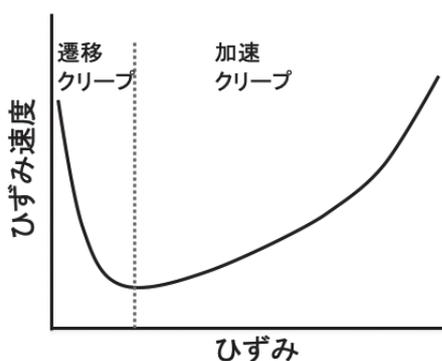


図1 クリープ変形中のひずみ速度とひずみの関係 (非定常クリープの場合)

形における一般的な曲線（ひずみ速度-ひずみ）の模式図を示し、図2¹⁾に、本合金で得られた実際の曲線を示す。クリープ変形では、変形開始直後にひずみ速度が減少する遷移クリープが発現する。これは、変形とともに材料が加工硬化していくと捉えることができる。遷移クリープを経て最小のひずみ速度に到達したのち、次にひずみ速度は徐々に増加し始める。ここでクリープ変形は遷移クリープから加速クリープへと移り変わった（非定常クリープを仮定）わけである。変形速度が加速する理由は、様々な格子欠陥や損傷の発生・蓄積・伝播、不均一変形の助長、試験片外形の変化による実効応力の増加など多岐に渡る。また、加速クリープ領域におけるひずみ速度がひずみに対して指数関数的か対数関数的かは材料に依存するところが大きい。いずれにせよ一旦加速し始めた変形速度はひずみ（または時間）の増加に伴って増大するのみである。一方で、図2で示した曲線は明らかな異常性を示す。本合金は、図中の白矢印において最小ひずみ速度に達する。つまり、この段階で遷移クリープから加速クリープへ転じている。しかし、一旦加速した速度は黒矢印の部分へ向かって再度減少（または加速度が減少）し、2度目の極小点（または変曲点）を迎える。つまり有り体にいえば、本合金では加速クリープの遅滞が起これ、それによって優れた強度と延性が発現しているのである。したがって、この加速の遅滞要因を理解せぬうちは、本合金の力学特性の本質を捉えたことにはならない。ここから“百の思案”が始まるのである。このような加速の遅滞が生じる原因は往々にして組織、特に析出物の動的変化が関与している。本合金の強化は粒内 γ' 相と粒界Laves相（または σ 相）によって担われる。したがって、それらの析出量・サイズ・分布について詳細に調査し、加速の遅滞との関連について考察を試みた。しかし、それら析出

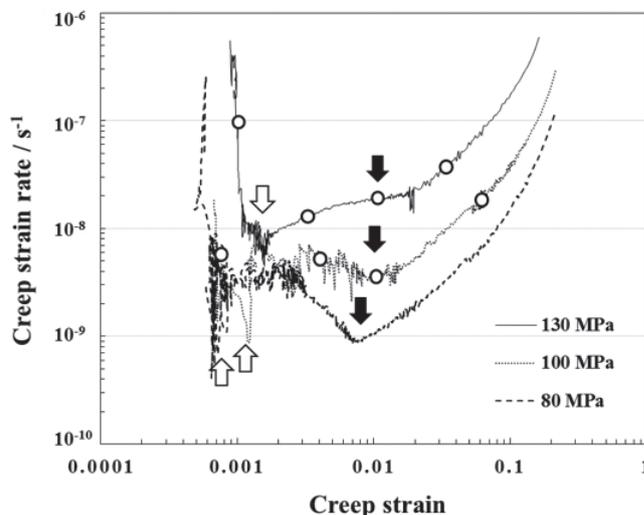


図2 本研究で開発したNi基耐熱合金におけるひずみ速度とひずみの関係¹⁾ (対象論文のFig.4に相当する)

物の変化は図2中の黒矢印の時点における変形挙動を説明しうるものではなかった。途方に暮れていた私のもとに、当時、本研究の実験を担当していた伊藤氏（対象論文の第一著者）が一組の絵を持ってきた。それが図3である。その絵は、クリーブ破断した材料から取得したSEM/EBSD像で、(a)が結晶方位分布図、(b)がKAMマップと呼ばれる結晶粒内の微小方位差を可視化するための図である。破断するほどに変形したクリーブ材では、材料に局所的なひずみの集中が生じることが多く、KAMマップでは例えば粒界近傍に強く色付けされるのが一般的である。一方で、図3 (b) のKAMマップでは、結晶粒内に10 μm 程度の線状の模様が無数にみられる。私は初め反射的に、それら線状模様が研磨傷に沿ったものかと思ひ、伊藤氏に試料の研磨不足を指摘しようとした。しかし、我々が行なっている機械研磨は、研磨紙の上に置いた試料を自らの手で往復させる昔ながらの方式である。そのような機械研磨で付いた傷がこのように無数の方向を向くことがあるだろうか。そこで伊藤氏に試料の表面状態を確認したところ、研磨傷のひとつもなく見事に仕上げられていることがわかった。つまり、このKAMマップにみられた線状模様は、材料組織に起因した内在的な原因によるものである。

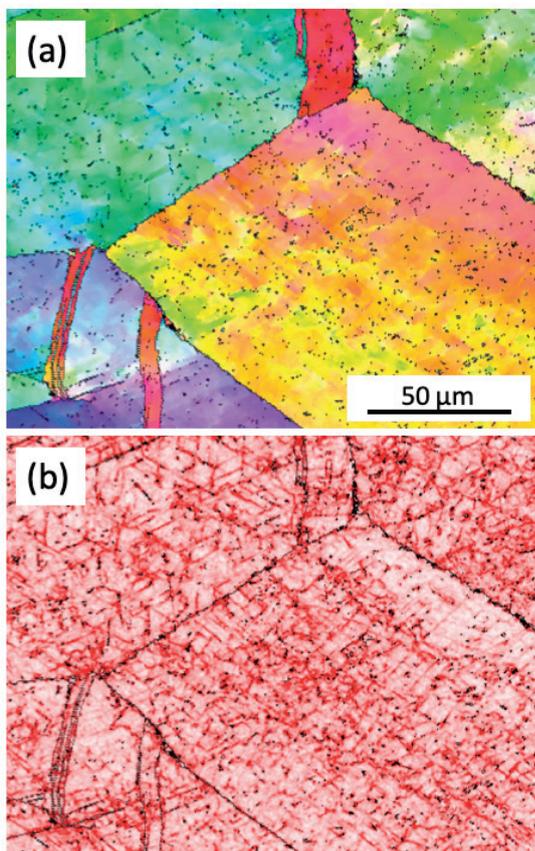


図3 クリーブ破断材で取得された (a) 結晶方位分布図と (b) KAM マップ

さらに重要なことは、この局所的結晶方位変化は、その部分に発達した転位下部組織が存在することを意味しており、この材料を加工硬化せしめた要因が正に可視化されているということである。結晶方位変化領域は線状で不均一であるが、いくらかマクロな視点に立てば、結晶粒内・粒界近傍の区別なく均一に分布しているといえる。つまり、この材料は比較的均一に変形し、均一に加工硬化しているのである。このKAMマップこそが本合金の変形の本質を捉えていると直感した我々は、線状の結晶方位変化領域の発生要因を探った。その結果、図4に示すところの粒内に板状に析出したLaves相こそがその要因であることを突き止めた。つまり、本合金の強化の有り様は以下である。

1. 初期の熱処理により生成した粒内析出と粒界析出による加工硬化の促進が遷移クリーブにおけるひずみ速度の減少を制御。
2. 結晶粒内・粒界析出物の成長によって加速クリーブに移行。
3. 粒界上に σ 相が生成することによって粒界上のLaves相が減少。それに伴って結晶粒内に析出するLaves相が増加する。
4. 粒内Laves相による加工硬化の促進によって加速の遅滞が生じる。

実のところ、結晶粒内のLaves相が変形中に徐々に増加することには、研究開始当初から気付いていた。しかし、図5をみていただきたい。板状のLaves相よりもはるかに狭い間隔で、粒内には微細な γ' 相が存在する。粒内強化の常識に捉われていた私は、粗大な板状Laves相などいくら増えても強化に寄与しないと瞬間的に判断してしまい、一度は本合金の強化の本質を見誤ったのである。浅慮に過ぎた私を正してくれたのは、クリーブカーブと、伊藤氏の撮影した力強い電子顕微鏡像であった。

本研究は、結晶粒内微細分散析出物と粒界高被覆析出物を

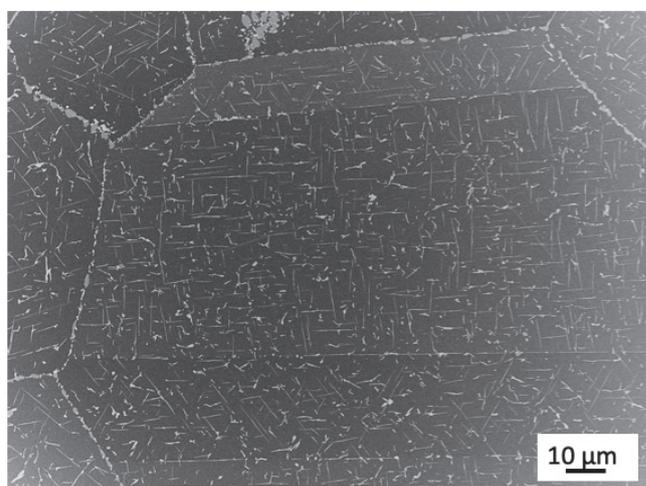


図4 結晶粒内に析出した板状Laves相の反射電子SEM像

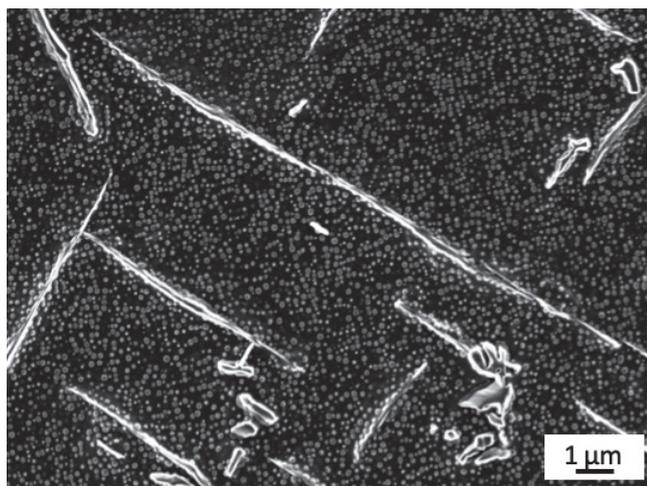


図5 結晶粒内に析出した γ' 相とLaves相の低エネルギー二次電子SEM像

利用した新たなNi基耐熱合金を開発することを目的としたもので、それぞれの析出物はともに優れた力学特性の発現に寄与することを証明した。それに加えて、結晶粒内の巨大な板状析出物がすべり変形を分断することによっても、優れた加工硬化能が得られることを示すことができた。結晶粒内の析出物分散デザインに新たな指針を与えられたものと自負している。ということで、対象論文の中で私が最も印象深く感じている“一つの文章”は、考察の最後の部分に勇気を振り絞りつつそっと記載した「すなわち、十分に厚い板状Laves相は、すべり面の活動を分断させる効果を持つことがわか

る。このような塑性ひずみ伝播の阻害は加工硬化を強烈に促進するため、クリープひずみ速度の減少をもたらす。」である(実際には二文)。

本記事では、対象論文の研究を実施していた当時に立ち返り、研究と考察の時系列と当時の思いを包み隠すことなく述べた。論文の行間に込めた感情をわかりやすくお伝えしたいとの思いから、口語表現で読みにくい文章となってしまったことはご容赦いただきたい。

最後になりましたが、対象論文の内容を共に議論いただいた伊藤氏を初めとする共著者の皆様、対象論文の研究を実施する上で支援いただいた新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)「戦略的省エネルギー技術革新プログラム/実用化研究開発/750℃級極限高効率石炭火力発電用耐熱材の開発」の関係者の皆様、本記事を執筆する機会を与えていただいた日本鉄鋼協会関係者の皆様および本記事を最後までお読みくださった読者の皆様に心から感謝申し上げます。

参考文献

- 1) 伊藤孝矩, 山崎重人, 光原昌寿, 中島英治, 西田稔, 米村光治: 鉄と鋼, 103 (2017), 434.
- 2) 竹山雅夫: ふえらむ, 24 (2019), 505.
- 3) T.B.Gibbons and B.E.Hopkins: Met. Sci., 18 (1984), 273.

(2019年10月7日受付)