



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

複合組織型冷延高強度鋼板の 変態メカニズムの理解に向けて*

Understanding of Transformation Mechanism of Cold-rolled High Strength Steel Sheet with Composite Microstructure

中垣内達也 JFEスチール(株)
スチール研究所
主任研究員
Tatsuya Nakagaito

1 はじめに

ISI International, 60 (2020), pp.1784-1795に掲載された「Partitioning of Solute Elements and Microstructural Changes during Heat-treatment of Cold-rolled High Strength Steel with Composite Microstructure¹⁾」が大変光栄なことに2021年澤村論文賞を受賞した。これは共著者をはじめとする関係者のご助力の賜物であり、感謝申し上げたい。著者は旧川崎製鉄株式会社(現 JFE スチール株式会社)に入社して以来、主に研究所で自動車用鋼板の開発に従事してきた。JFE スチールの研究所では、基礎研究だけでなく製鉄所での開発、生産技術まで製鉄所の技術者と共に担当し、さらに製品をご使用頂くお客様とも会話をしながら開発を行う。このような業務の中で得られた知見の学術的な部分を学会や論文などで発表するとともに、その知見を工業的に活用して製品開発に繋がられるということで、非常に魅力のある仕事と感じている。今回、ふえらむの誌間を借り、この研究に至った経緯、研究の概要および今後の展開等を紹介し、それを通して鉄鋼の研究開発の魅力についても伝えることができれば幸いである。

2 本研究の背景と研究に至った経緯

本論文では、冷間圧延とそれに続く連続焼鈍で製造される複合組織型冷延高強度鋼板、特にフェライトとマルテンサイトの複合組織を有する冷延DP (Dual Phase) 鋼板を対象とした。冷延DP鋼板は、1970年代中旬に世界に先駆けて日本で実

用化された連続焼鈍プロセスを活用して開発された。その後、DP組織による強化手法は熱延鋼板の高強度化にも応用され、熱間圧延後の多段冷却制御と低温巻取り温度制御によって熱延DP鋼板が開発された。DP鋼板は高強度で高い延性を有することから、現在自動車用鋼板として多く用いられている。DP鋼板の歴史は長く、その組織制御や機械的特性に関してはほぼ明らかになっていると思われる方もおられると思うが、実際にはまだ理解が不十分な点も多く、特に冷延DP鋼板において検討の余地は多いと筆者は感じている。この大きな要因として、冷延DP鋼板の組織形成や機械的特性に非常に重要となるCの組織内の分布の実験的な定量評価が困難だったことが挙げられる。冷延DP鋼板は、冷間圧延後の連続焼鈍プロセスにおいてフェライトとオーステナイトの二相域で焼鈍した後、制御冷却により焼入れを行うことで製造される。連続焼鈍プロセスにおいては、フェライトの回復、再結晶、逆変態によるオーステナイトの生成、フェライトとオーステナイトへの溶質元素の分配などの種々の冶金現象が生じ、さらにそれらの現象に対して焼鈍前の熱延鋼板の組織や冷間圧下率なども影響を及ぼす。また、工業的な連続焼鈍プロセスでは、焼鈍炉のライン長や通板速度の制約などから上記の現象は平衡に到達する前の非平衡での挙動となることから、連続焼鈍プロセスにおける冷延DP鋼板の組織制御は非常に複雑なものとなる。

Fe-C-X系合金(Xは置換型溶質元素)の拡散変態挙動に対して、パラ平衡理論や局所平衡理論などが提唱されているが^{2,6)}、二相域焼鈍時の溶質元素の分配を考慮した解析はこれまでほとんど行われていない。これは、上述したように侵入

* [今回の対象論文]

中垣内達也, 山下孝子, 船川義正, 梶原正憲: 「Partitioning of Solute Elements and Microstructural Changes during Heat-treatment of Cold-rolled High Strength Steel with Composite Microstructure」, ISI International, Vol.60 (2020), No. 8, pp. 1784-1795 (第32回澤村論文賞受賞)

型溶質元素であるCの組織内の分布の実験的な定量評価が困難だったためであるが、それをブレイクスルーしたことが本論文の重要なポイントと考えている。Fe-C-X系合金のCの定量分析については、FE-EPMA (Field Emission Electron Probe Micro Analyzer) を用いた1次元ライン分析⁷⁻¹⁰⁾や3Dアトムプローブ¹¹⁾、走査透過電子顕微鏡 (STEM)¹²⁾を用いた方法が試みられているが、いずれも局所的な分析となる。変態挙動に関する基礎的な実験において、高温で長時間保持する均質化処理などにより焼鈍前の初期の組織や溶質元素の分布を均一にすることが多く行われており、このような場合は局所的な分析で評価が可能になる。しかし、工業的な製品の製造を想定した場合、焼鈍前のプロセスである連続鋳造や熱間圧延の影響により、組織内で界面状態が異なり、分布を持った中での変態挙動を把握する必要がある、局所的な分析だけでなく、広い視野での二次元的な分析が必要となる。このような分析手法としてFE-EPMAでの定量面分析が用いられることが多いが、通常のFE-EPMAでは測定時に試料表面の分析箇所に着積する炭化水素による汚染 (カーボンコンタミネーション) の影響を受け、微量Cの定量測定が困難であった。そのような課題に対して、共著者の山下孝子博士を中心に高精度FE-EPMA技術の開発を行った^{13,14)}。これは、測定時のカーボンコンタミネーションの大幅な低減を可能とした新しい分析技術で、この技術を活用することで従来困難であった二相域焼鈍後のフェライト変態の実験的な解析に取り組み、局所平衡理論に基づいた検討を行った。さらに、二相域焼鈍時に再結晶により生成するフェライト (以後、焼鈍フェライトとする) と冷却時に生成するフェライト (以後、変態フェライトとする) の分布の二次元的な可視化にも成功した。このような可視化手法により、DP鋼板や低合金TRIP鋼板などに代表される複合組織型冷延高強度鋼板の組織形成や機械的特性の解析の幅が大きく広がることが期待される。その検討の一つとして、冷延DP鋼板の延性に及ぼす焼

鈍フェライトと変態フェライトの寄与を明らかにすることに取り組み、本論文の続報の位置付けで論文化している¹⁵⁾。本稿ではその内容についても、本研究からの発展的な検討事例として簡単に紹介する。

3 本研究の概要

Fe-0.17mass%C-1.5mass%Si-1.7mass%Mnの組成の冷延鋼板を用いて、二相域での溶質元素の分配状態が異なる2種類の条件 ($T_a = 800^\circ\text{C}$, $t_a = 1.8\text{ks}$; $T_a = 740^\circ\text{C}$, $t_a = 14.4\text{ks}$) で焼鈍した後、 $10^\circ\text{C}/\text{s}$ の冷却速度で緩冷却し、各温度 (T_q) から水焼入れを行い、冷却時の変態フェライトの生成挙動、Cおよび置換型溶質元素であるMnとSiの分配挙動を調査した。Fig.1に T_q による各相の体積率の変化を示す。この結果は、 $T_a = 800^\circ\text{C}$, $t_a = 1.8\text{ks}$ の焼鈍条件では緩冷却時に変態フェライトが生成するのに対して、 $T_a = 740^\circ\text{C}$, $t_a = 14.4\text{ks}$ の焼鈍条件では変態フェライトが生成しないことを示す。水焼入れ後の試料について複数のマルテンサイト (水焼入れ前はオーステナイト) 粒内を $0.09\mu\text{m}$ の間隔で高精度FE-EPMA分析を行い、得られたCおよびMn濃度を、Fe-1.5mass%Si-Mn-C四元系の各温度における等温断面図と合わせてFig.2に示す。ここで、フェライト/オーステナイト二相領域をフェライト変態の不分配局所平衡 (NPLE: Neg-ligible Partitioning Local Equilibrium) 領域と分配局所平衡 (PLE: Partitioning Local Equilibrium) 領域に分けて示しており、温度の低下に伴いNPLE領域が高C高Mn領域に拡大することが分かる。 $T_q = 700^\circ\text{C}$ の条件において、 $T_a = 740^\circ\text{C}$, $t_a = 14.4\text{ks}$ の焼鈍条件ではオーステナイトの全てがPLE領域の組成になっているのに対して、 $T_a = 800^\circ\text{C}$, $t_a = 1.8\text{ks}$ の焼鈍条件ではオーステナイトの一部がNPLE領域の組成となる。PLEモードでは拡散速度の遅い置換型溶質元素の分配に律速されフェライト変態が進行することから変態が顕著に遅延し、 $10^\circ\text{C}/\text{s}$ 程度の冷却速

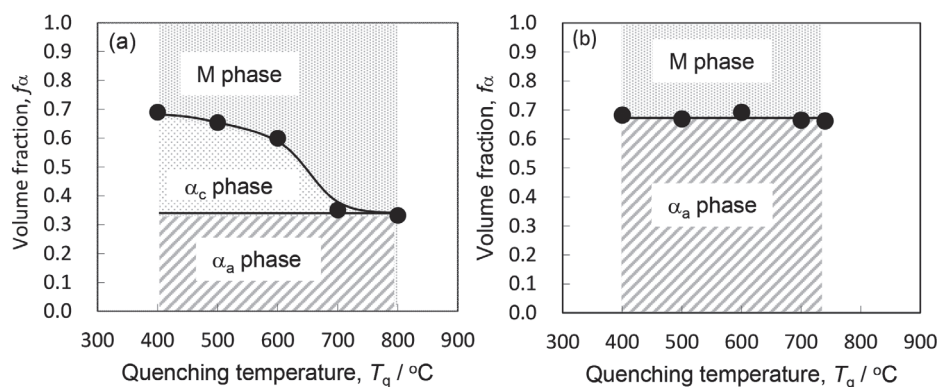


Fig.1 The volume fraction f_a of the α phase versus the quenching temperature T_q under the intercritical annealing conditions of (a) $T_a = 800^\circ\text{C}$ (1073 K) and $t_a = 0.5\text{h}$ (1.8 ks) and (b) $T_a = 740^\circ\text{C}$ (1013 K) and $t_a = 4\text{h}$ (14.4 ks).

度ではほとんど変態は進行しない。これが、 $T_a=740^\circ\text{C}$ 、 $t_a=14.4\text{ks}$ の焼鈍条件では変態フェライトが生成しないのに対して、 $T_a=800^\circ\text{C}$ 、 $t_a=1.8\text{ks}$ の焼鈍条件では変態フェライトが生成する要因であり、オーステナイトの組成がNPLE領域に入った箇所からフェライト変態が進行することを、高精度FE-EPMA分析により実験的に明らかにすることができた。さらに、Fig.1に示すように、 $T_a=800^\circ\text{C}$ 、 $t_a=1.8\text{ks}$ の条件では、最終組織のフェライトとして、焼鈍フェライトと変態フェライトが混在する。Fig.3に $T_a=800^\circ\text{C}$ 、 $t_a=1.8\text{ks}$ 、 $T_q=400^\circ\text{C}$ の試料のSEM像とCおよびMn濃度の二次元マッピングを示す。ここで、C濃度の低い領域はフェライトとなるが、変態フェライトはNPLEモードで生成することから焼鈍フェライトに対してMn濃度が高くなる。このような考え方をもとに、高精度FE-EPMA分析を活用することで、Fig.3 (d)に示すように焼鈍フェライトと変態フェライトの分布状態を二次元的に可視化することが可能となった。このような可視化手法は、複合組織型冷延高強度鋼板の組織形成や機械的特性のさらなる理解につながることを期待される。

4 本研究からの発展的な検討

本論文で提案した解析技術を用いた発展的な検討として、焼鈍フェライトと変態フェライトが冷延DP鋼板の機械的

性に及ぼす影響について調査を行った。Fig.1 (a) および (b) の $T_q=400^\circ\text{C}$ の試料について引張試験を行った結果をTable1に示す。これより両試料で引張強度はほぼ等しいのに対して、前者の方が伸びが高くなることが分かる。この結果は冷延DP鋼板の延性向上に対して変態フェライトの導入が有効に働く可能性を示唆している。同様に冷却時にフェライトを生成させることにより冷延DP鋼板の延性が向上することが報告されているが^{16,17)}、そのメカニズムの詳細については明らかとなっていない。Fig.1 (a) の $T_q=400^\circ\text{C}$ の試料に公称ひずみ0.1の引張りひずみを付与した時のSEM像と、高精度FE-EPMA分析より求めたC、MnおよびSi濃度の二次元マッピングをFig.4 (a) - (d) に示し、同一視野におけるIQおよびKAMマッピングをFig.4 (e) および (f) に示す。また、Fig.4 (b) - (d) に示す高精度FE-EPMA分析の結果をもとに、焼鈍フェライト、変態フェライトおよびマルテンサイトの各相を分離した二次元マッピングをFig.4 (g) に示し、さらにFig.4 (f) におけるKAM値が高い領域をFig.4 (g) に緑で重ねて示す。これより、KAM値が高い緑の領域は焼鈍フェライトと変態フェライトの境界付近に存在する傾向が認められる。この境界はフェライトの結晶粒界となっているものだけでなく、焼鈍フェライトと変態フェライトが共存する一つの結晶粒内における境界となっているものも多く存在する。KAM値は組織内のひずみ量と相関があり¹⁸⁾、KAM値が高い領域は転

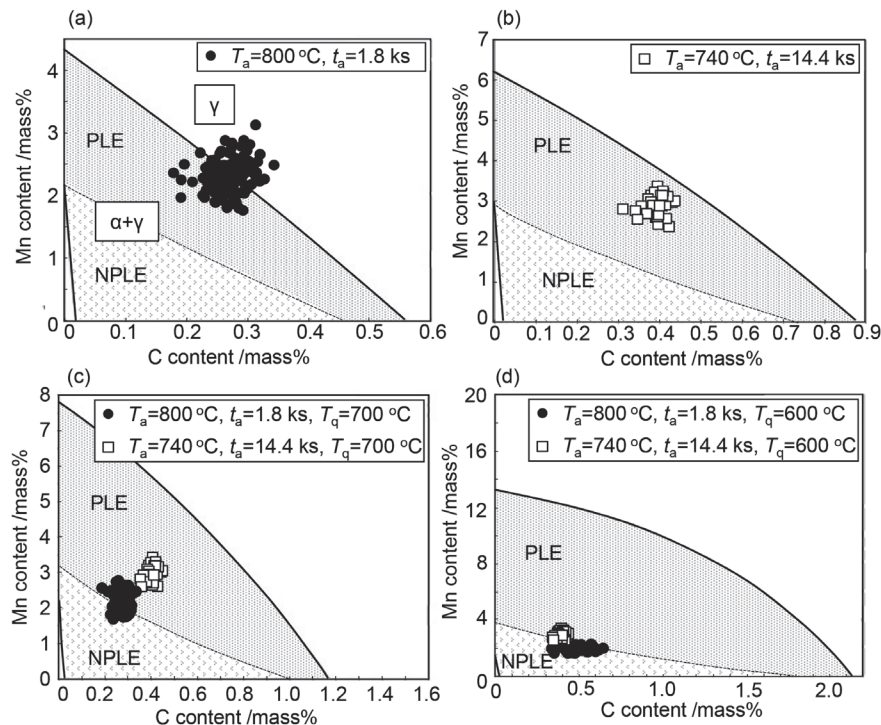


Fig.2 Isothermal sections at various temperatures of phase diagram in quasi-ternary Fe-1.5Si-C-Mn system: (a) 800°C (1073 K), (b) 740°C (1013 K), (c) 700°C (973 K) and (d) 600°C (873 K). Chemical compositions of γ phase measured by FE-EPMA for different annealing and quenching temperatures are shown as solid circles and open squares for $T_a=800$ and 740°C (1073 and 1013 K), respectively. The $\alpha + \gamma$ two-phase region is divided into the PLE and NPLE regions for the ferrite transformation.

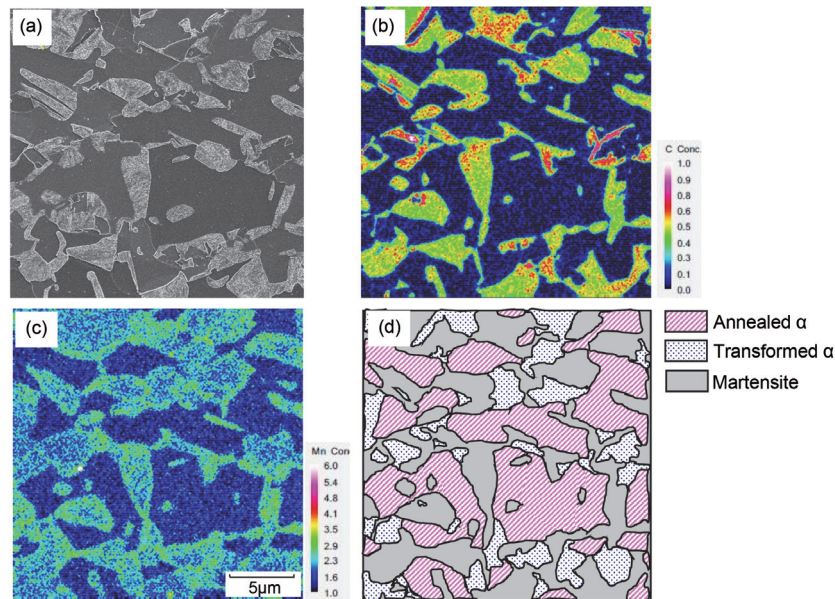


Fig.3 (a)SEM image, (b, c) elemental mappings of C and Mn and (d) distribution of each phase of the specimen for $T_a=800\text{ }^{\circ}\text{C}$ (1073 K), $t_a=1.8\text{ ks}$ and $T_q=400\text{ }^{\circ}\text{C}$ (673 K). (Online version in color.)

Table 1 Volume fraction of each phase and tensile properties of specimens heat-treated with each condition.

Heat-treatment condition	Volume fraction				Tensile properties				
	Annealed α	Transformed α	Martensite	Retained γ	YS / MPa	TS / MPa	Total El / %	Uniform El / %	Local El / %
$T_a=800\text{ }^{\circ}\text{C}$, $t_a=1.8\text{ ks}$, $T_q=400\text{ }^{\circ}\text{C}$	0.33	0.36	0.29	0.02	460	969	21.7	13.9	7.8
$T_a=740\text{ }^{\circ}\text{C}$, $t_a=14.4\text{ ks}$, $T_q=400\text{ }^{\circ}\text{C}$	0.68	0	0.30	0.02	488	975	15.8	10.5	5.3

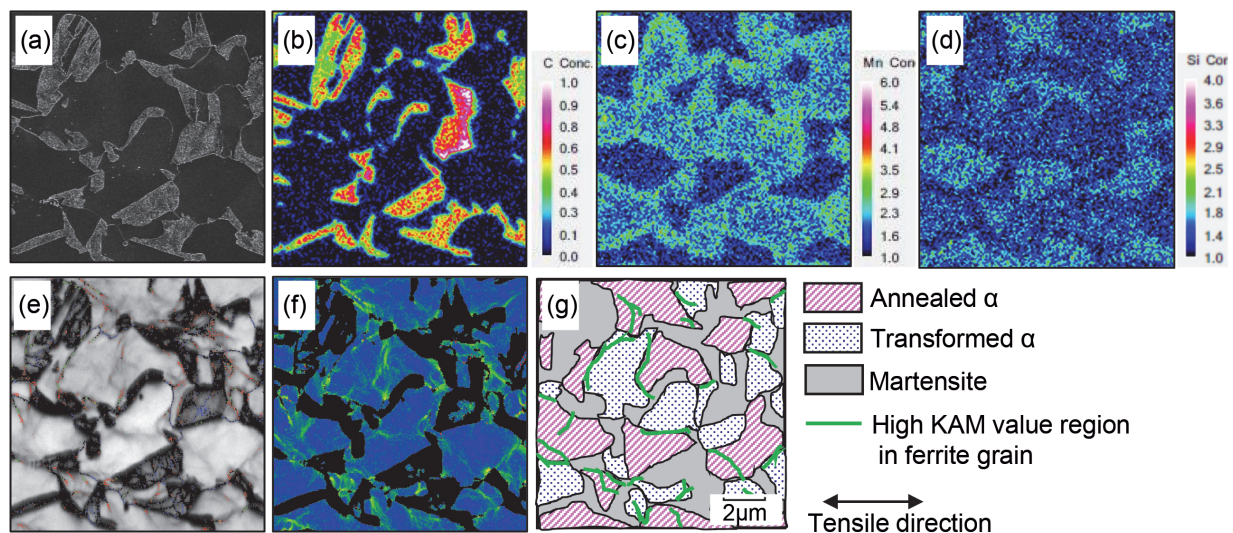


Fig.4 (a) SEM image, 2D mapping of (b) C, (c) Mn and (d) Si, (e) IQ mapping and (f) KAM mapping of the specimen for $T_a=800\text{ }^{\circ}\text{C}$ (1073 K), $t_a=1.8\text{ ks}$ and $T_q=400\text{ }^{\circ}\text{C}$ (673 K) with nominal strain of 0.10. Each phase is depicted in (g). (Online version in color.)

位密度が高いと考えられる。以上のような結果を元に、変態フェライトの導入による延性向上のメカニズムについて以下

のように考えた。焼鈍フェライトと変態フェライトを混在させることで、その界面において変形に伴う転位の導入量が増

加し、鋼の加工硬化率が上昇する。引張変形時の高ひずみ域における加工硬化率の上昇により、塑性不安定の発現、すなわちネッキングの発生が抑制され、その結果延性が向上する。

5 課題と今後の展開

本論文では、高精度FE-EPMA技術を活用することで、二相域焼鈍時の溶質元素の分配を考慮した冷却時のフェライト変態挙動の定量的な解析を行い、複合組織型冷延高強度鋼板の高延性化のための組織制御について理解を深めることができた。論文内において、冷却時に生成する変態フェライトは、焼鈍フェライトからのエピタキシャル成長により生成するものと、オーステナイト中において核生成、成長により生成するものがあることを述べている。また、本研究からの発展的な検討として紹介した変態フェライトの生成による冷延DP鋼板の延性向上において、均一伸びだけでなく局部伸びの向上効果も認められた。このような現象について化学組成の観点での考察を行っているが、さらに理解を深めるためには結晶方位的な解析が必要になると考えられ、今後継続して検討を行っていききたい。また今回、主に冷延DP鋼板を対象に研究を行ったが、得られた知見は冷延低合金TRIP鋼板などの他の複合組織型冷延高強度鋼板にも展開が可能と考えられる。冷延低合金TRIP鋼板の残留オーステナイトの生成挙動に対しても高精度FE-EPMA解析技術の活用が試みられており¹⁹⁾、今後、複合組織型冷延高強度鋼板の変態挙動に関する更なる理解の深化が期待される。

6 おわりに

局所平衡理論は、変態界面がその前後で局所的に成分元素の化学平衡を保ちながら移動するという考え方で、非平衡で生じる変態現象を説明するためにHilleartにより提案されたものである。この局所平衡理論は、バルク全体で計算されるエネルギーが局所でも成り立つことを示しており、統計力学から導かれる相変態理論の醍醐味である。本論文では、二相域焼鈍により溶質元素の分布が生じた後のオーステナイトからのフェライト変態においても局所平衡理論通りに変態が進行することを実験的に明らかにしたが、その研究を通して、現在のような高度な分析装置が無い中でこのような理論を構築された先人たちに改めて敬意の念を覚えた。さらに、一見単一の結晶粒に見えるフェライトでも、結晶粒内における組成の変化により特性の異なるフェライトが混在することが分かった。このような組織形成を目の当たりにしたとき、その自然美に感動すると共に、これは一種の芸術作品であると感じた。鉄鋼会社では、このようなミクロな芸術作品を大規模設備で

作り上げお客様に提供している。今後も新たな作品を作り上げることで、さらなる鉄鋼業界の発展に貢献していきたい。

参考文献

- 1) T.Nakagaito, T.Yamashita, Y.Funakawa and M.Kajihara : ISIJ Int., 60 (2020), 1784.
- 2) M.Hillert : Metall. Trans. A, 6 (1975), 5.
- 3) J.B.Gilmour, G.R.Purdy and J.S.Kirkaldy : Metall. Trans., 3 (1972), 3213.
- 4) H.I.Aaronson and H.A.Domian : Trans. Metall. Soc. AIME, 236 (1966), 781.
- 5) C.Atkinson, T.Akbay and R.C.Reed : Acta Metall. Mater., 43 (1995), 2013.
- 6) H.Guo, G.R.Purdy, M.Enomoto and H.I.Aaronson : Metall. Mater. Trans. A, 37 (2006), 1721.
- 7) 大沼郁雄, 山崎真吾, 山下孝子, 榎本正人 : 日本鉄鋼協会「鋼の拡散組織形成に及ぼす合金元素の効果」フォーラム報告書, (2010), 7.
- 8) Z.-Q.Liu, G.Miyamoto, Z.G.Yang and T.Furuhara : Acta Mater., 61 (2013), 3120.
- 9) Y.Xia, G.Miyamoto, Z.G.Yang, C.Zhang and T.Furuhara : Acta Mater., 91 (2015), 10.
- 10) H.-D.Wu, G.Miyamoto, Z.G.Yang, C.Zhang, H.Chen and T.Furuhara : Acta Mater., 133 (2017), 1.
- 11) X.Zhang, G.Miyamoto, T.Kaneshita, Y.Yoshida, T.Toji and T.Furuhara : Acta Mater., 154 (2018), 1085.
- 12) 荒井重勇, 高橋可昌, 網野岳文, 吉田要, 山本悠太, 樋口公孝, 山本剛久, 武藤俊介 : 金属, 86 (2016), 1085.
- 13) 山下孝子, 榎本正人, 田中裕二, 松田広志, 名越正泰 : 鉄と鋼, 103 (2017), 622.
- 14) T.Yamashita, Y.Tanaka, M.Nagoshi and K.Ishida : Sci. Rep., 6 (2016), Article No.29825.
- 15) T.Nakagaito, T.Yamashita, T.Yokota, Y.Terada and M.Kajihara : ISIJ Int., 61 (2021), 452.
- 16) G.S.Huppi, D.K.Matlock and G.Krauss : Scr. Metall., 14 (1980), 1239.
- 17) M.Erdogan and R.Priestner : Mater. Sci. Technol., 15 (1999), 1273.
- 18) 中田伸生, 池田賢一, 首藤洋志, 横井龍雄, 土山聡宏, 波多聰, 中島英治, 高木節雄 : 鉄と鋼, 102 (2016), 253.
- 19) 田中裕二, 田中孝明, 田路勇樹, 山下孝子 : CAMP-ISIJ, 32 (2019), 680, CD-ROM.

(2022年3月1日受付)