



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

オーステナイト安定度に及す結晶粒径の影響*

－ 10年間の議論と今後の課題－

Effect of Grain Size on Austenite Stability

－A Decade of Discussion and Future Challenges－

土山聡宏

Toshihiro Tsuchiyama

九州大学
大学院工学研究院
教授

1 はじめに

この度、我々の研究成果をまとめた論文”Effect of Grain Size on Thermal and Mechanical Stability of Austenite in Metastable Austenitic Stainless Steel”¹⁾が、日本鉄鋼協会より「卓越論文賞」を授賞されることとなった。この論文賞は、「鉄と鋼」または「ISIJ International」に掲載された論文のうち、原則として前10±1カ年にわたって学術上、技術上最も有益で影響力のある論文の著者に授与される賞として2019年に新設されたものである。その名の通り卓越した評価と実績があった論文に与えられる賞であり、研究者にとってそのような価値ある賞を頂くことはこの上ない名誉である。まずは受賞した著者一同を代表して、本記事の筆者である土山から関係者の方々に感謝と御礼を申し上げたい。10年も前にISIJ Int.に掲載された論文が、今このように評価されたということは、その議論の内容が今でも最新の研究の中で参照され、活かされている点が認められたと解釈しており、本成果を残せたことをたいへん嬉しく思う次第である。しかし一方で、10年の間に現象の解釈や理解が変化してきたことも事実であり、本論文の内容が必ずしも現在も適切と見なして良いか疑わしい点があることは否めない。この度、本記事により本論文を振り返る機会を頂いたので、当時の背景や考え方、その後改めて内容を見返したときの著者の考えなどについて、この場をお借りして少し紹介させて頂きたいと思う。

2 当時の研究背景と本論文の位置づけ

加工用薄鋼板、とくに自動車用の高強度鋼板の分野においては、現在その強度と延性の両立を目指した組織制御に関する研究が多数行われているが²⁻¹⁰⁾、その動向はこの論文が掲載された10年前も同様に、あるいは現在以上に盛んであったと思われる。当時は、SEMの性能向上に伴ってそれまでのEBSDの解析精度が著しく向上し¹¹⁾、その場中性子回折などのマクロな組織解析法^{9,12,13)}も普及、さらにMDやCPFEMなどの計算工学的な手法¹³⁻¹⁶⁾も大きく発展したことによって、従来は定性的な理解であった複合組織鋼の不均一変形の挙動が定量的に明確化されつつあった。なかでも鉄鋼会社が最も注目した材料のひとつがTRIP型複合組織鋼（低合金TRIP鋼）であり、その塑性変形時における各組織の振るまい、とくに分散した微細な残留オーステナイトの挙動が次々と明らかにされていった。その中で重要となった評価対象が「残留オーステナイトの安定度」である。低合金TRIP鋼の優れた強度-伸びバランスは、変形時に残留オーステナイトが硬質なマルテンサイトに加工誘起変態することで得られる材料の高い加工硬化率に起因するとされており、残留オーステナイトの加工誘起変態のタイミングが特性制御の上で重要となる。安定度が低いと変形初期に変態するが、安定度が高いと後期に変態する。特性を制御するにはその安定度の最適化が必要であることは言うまでもない。一般的に残留オーステナイトの安定度にはその化学組成、とくに炭素濃度が最も重要

* [今回の対象論文]

松岡禎和, 岩崎竜也, 中田伸生, 土山聡宏, 高木節雄: 「Effect of Grain Size on Thermal and Mechanical Stability of Austenite in Metastable Austenitic Stainless Steel」, ISIJ International, Vol. 53 (2013), No.7, pp.1224-1230, (第4回卓越論文賞受賞)

であることは周知の事実であり、炭素濃度の評価や制御¹⁷⁻¹⁹⁾がキーテクノロジーとして発展していた。同時に、残留オーステナイトの安定度に及ぼす形態やサイズの影響^{20,21)}も注目されていたが、残留オーステナイトの形態やサイズとその化学組成を独立に変化させることが困難であることから、その効果を分離せずに議論が進められることが多かったように思う。多くの研究者は、なんとか残留オーステナイトの形態やサイズを独立して変化させ、それがオーステナイト安定度に及ぼす影響を定量評価したいとの考えを持っていたに違いない。

その頃著者らは、そのような低合金TRIP鋼の研究の流れとは少し離れたところで特殊な鋼種を用いて加工誘起マルテンサイト変態の研究を行っていた。当研究室では以前より準安定オーステナイト系ステンレス鋼の加工誘起マルテンサイト変態およびその逆変態を利用した超微細粒オーステナイト系ステンレス鋼の創製に関する研究²²⁻²⁴⁾に携わっていた。その一連の研究の中でオーステナイトの安定度は、結晶粒微細化のための加工熱処理条件に関係し、また発現する降伏・加工硬化挙動にも大きく影響するため最も重視する制御因子のひとつだったのである。ちょうどその頃、欧米やアジア諸国ではオーステナイト単相組織を有するTWIP (twinning-induced plasticity) 鋼と呼ばれる高Mnオーステナイト鋼がブームとなっており、オーステナイト組織の安定度に及ぼす結晶粒径の影響²⁵⁻²⁸⁾について様々な議論がなされていた。しかしそこでの主張は、結晶粒径微細化によって安定度が上がるとする考え^{25,26)}や、下がるまたは変わらないとする考え^{27,28)}など様々であり、統一見解が得られていない状況であった。うまく整理されない一つの理由として、調査のために変化させた粒径が数十 μm 以上と大きく、その変化の範囲も狭いため、明確な傾向が掴めていないのではと思われた。

以上のような研究背景の中、我々の超微細粒準安定オーステナイト系ステンレス鋼を用いてオーステナイトの安定度に及ぼす粒径の影響を調査すれば、

- ・ 化学成分が一定の条件下で加工誘起変態挙動や双晶変形挙動に及ぼすオーステナイト粒径の影響を明らかにできる
- ・ 低合金TRIP鋼中の残留オーステナイトと同様な $1\mu\text{m}$ 以下の超微細粒オーステナイトから、高Mnオーステナイト鋼に存在する数十 μm 以上の粗大粒オーステナイトまでの安定度を系統的に調査できる

といった特徴を活かすことが可能であり、低合金TRIP鋼の分野と高Mnオーステナイト鋼の分野の両方に貢献する成果が得られると考え、本論文研究の着手に至ったのである。

3 本研究成果の概要と特徴¹⁾

本研究の最大の特徴は、これまでに当研究室で培ってきた準安定オーステナイト鋼 (Fe-16%Cr-10%Ni合金) の組織制御技術を活かして試料作製を行い、オーステナイト粒径を最小 $1\mu\text{m}$ から、最大 $80\mu\text{m}$ まで幅広く変化させた単相鋼を用いた点であろう。それらの試料をまずは液体窒素温度でサブゼロ処理し、マルテンサイト変態量を測定することで「熱的安定度」の粒径依存性を評価すること、そして次に室温で引張変形を行い、加工誘起マルテンサイト変態挙動の変化、すなわち「機械的安定度」の粒径依存性を評価することが本研究の目的である。前節にて述べた加工誘起変態に対するオーステナイト粒径の影響に直接関係する因子は後者の「機械的安定度」であるが、それを理解するためには前者の熱的安定度の説明の際に導入される「空間拘束効果」の考え方が必要となることから、ここでは両安定度についてそれぞれ概説し、それらの実験によって得られた結論について述べたい。

熱的安定度とは、冷却時のマルテンサイト変態に対してその生じやすさを表現する用語であって、熱的安定度が高いということは、冷却してもマルテンサイト変態し難いということ、すなわちMs点が低いということと同義である。Fig.1¹⁾は、粒径を変化させた16Cr-10Ni鋼におけるマルテンサイト (bcc相) の量を、サブゼロ処理 (液体窒素) 前後でそれぞれ測定し、粒径に対して整理した結果を示す。粒径が $20\mu\text{m}$ 以上の場合、サブゼロ処理によってマルテンサイトが約30%生成しているが、それより微細粒側に移行するとマルテンサイト量は急激に減少し、粒径 $1\mu\text{m}$ の超微細粒材ではほとんどマルテンサイト変態が生じておらず、オーステナイトの熱的安定度が著しく高まっていることがわかる。換言すれば、結晶粒超微細化によってMs点が液体窒素温度付近まで低下し

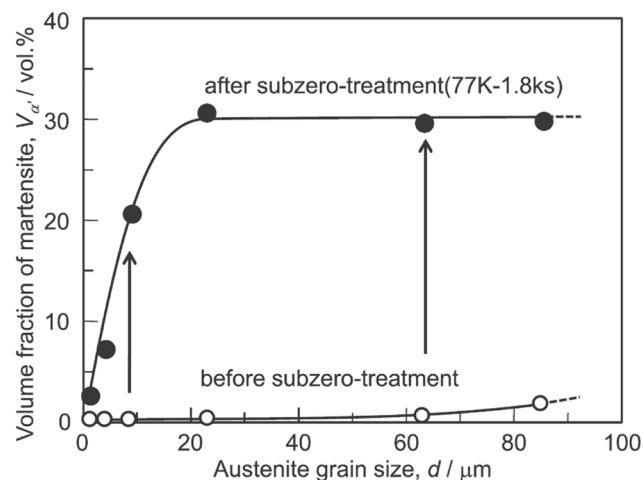


Fig.1 Effect of austenite grain size on volume fraction of athermally-formed martensite¹⁾.

ているということである。60 μm 材と1 μm 材のサブゼロ処理後の組織を比較すると、Fig.2¹⁾に示すように、60 μm 材では一つのオーステナイト粒の中に複数のバリエーションのマルテンサイトが分布しているのに対し（マルチバリエーション変態）、1 μm 材では一つのオーステナイト粒が一つのマルテンサイト粒に変態している（シングルバリエーション変態）。粒径の微細化に伴うMs点の低下については過去にも多くの報告^{24,29-31)}があり、様々な機構が提唱されているが、本論文では、2004年に高木によって報告された「空間拘束効果」²⁴⁾により超微細粒材でのマルテンサイト変態抑制を説明している。詳細は当論文をご参照頂きたいが、簡潔に述べると、マルチバリエーション変態が可能な粗大粒材では互いに弾性ひずみを低減するような組み合わせのバリエーションが同時に生成することで粒内のひずみエネルギー上昇を最小限に抑えることが可能であるが、シングルバリエーション変態の場合はそれができず、オーステナイト粒内で大きなひずみエネルギー上昇を伴ってしまう。それが変態の抑止力として働くとの考え方である。

一方、機械的安定度については引張試験に伴うマルテンサイト量を粒径に対して整理したFig.3¹⁾によって論じることができる。この結果によると、試料の粒径を1 μm の超微細粒

から約60 μm まで大きく変化させているにも関わらず、5%および30%の引張りひずみを与えても生成するマルテンサイト量に粒径依存性が全く見られていない。つまりオーステナイトの機械的安定度に粒径は影響しないことが示されて

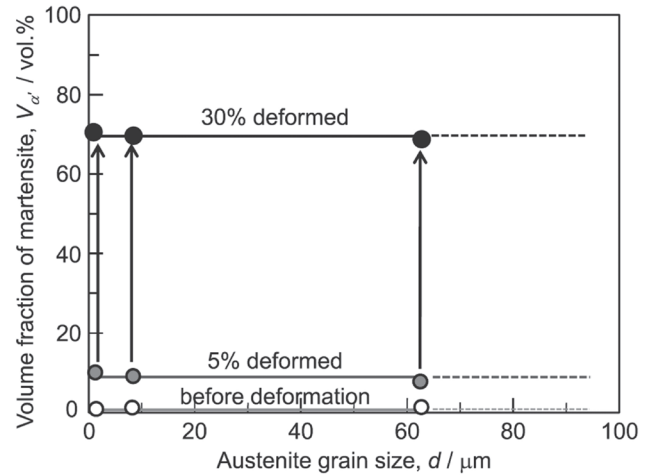


Fig.3 Effect of austenite grain size on the change in volume fraction of deformation induced martensite in austenitic Fe-16%Cr-10%Ni alloy¹⁾.

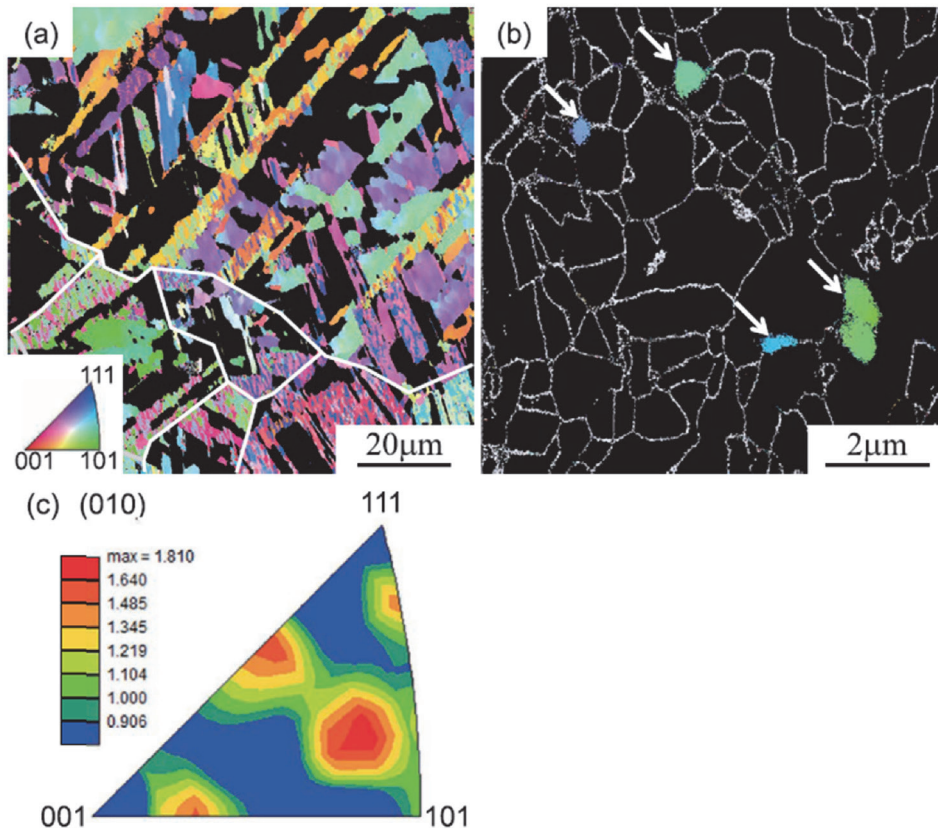


Fig.2 Crystallographic orientation maps (a) and (b), and the inverse pole figure of (010) α' (c) in Fe-16%Cr-10%Ni alloy with subzero-treatment of 77 K-1.8 ks. The figures of (a) and (c) were obtained on a specimen with the austenite grain size 60 μm and the figure (b) was on a specimen with 1 μm grain size¹⁾. (Online version in color.)

いる。実験事実はそうであるが、熱的安定度を著しく高めていた結晶粒超微細化がなぜ引張り変形時に効かなかったかが大きな論点となる。それを理解するには、熱的安定度の議論で用いた空間拘束効果の有無を考えればよい。Fig.4¹⁾は、約30%引張り変形を与えた60 μm 材と1 μm 材に生成した加工誘起マルテンサイトの結晶方位像を示している。60 μm 材における加工誘起マルテンサイトに着目すると、サブゼロ材 (Fig.2 (a)¹⁾) のようにマルチバリエーション変態とはならず、一つのオーステナイト粒に同一方位のマルテンサイトが多数生成している。実際に上記のサブゼロ材と引張り変形材の一つの γ 粒内のマルテンサイトに対してバリエーション解析を行い、円グラフにまとめてみると (Fig.5¹⁾)、サブゼロ材では24種のバリエーションがほぼ均等に生成しているのに対し、引張り変形材ではお互いに方位に近いV5とV6のバリエーションがかなりの割合を占めている。これらはいずれも、オーステナイトの主すべり面を共通最密面とするバリエーションに対応する。つまり一方向に変形を与えたときに生成する加工誘起マルテンサイト変態は、ある特定のバリエーションが優先して生成することがエネルギー上昇を最小に抑えるために有効であることを示唆している。

以上の結果より加工誘起マルテンサイト変態における粒径依存性の消失の要因として本論文では以下のように説明している。Fig.6¹⁾に模式的に示すように、無加工でマルテンサイト変態が生じる場合は、複数のバリエーションを同時に生成させるマルチバリエーション変態によって弾性ひずみの上昇を抑えながら変態が進行するが、逆にそれが不可能な超微細粒材では変態が著しく抑制されることとなる。しかし1方向に変形を与えながらマルテンサイト変態を進行させる場合には、マルチバリエーション変態の必要性は消失し、むしろ変形に応じた特定のバリエーション選択がなされることになる。その結果、無加工の場合に微細粒材の変態を抑制していた空間拘束効果が無効となり、結果的にマルテンサイト変態における結晶粒径の依存性が縮小する。すなわち、結晶粒微細化はオーステナイトの機械的安定度の向上には寄与しないというのが結論である。

4 残された疑問点と課題

上記のようにまとめると、一見現象はほぼ解明されたかのようと思われるが、実は本研究において、未調査の課題や考

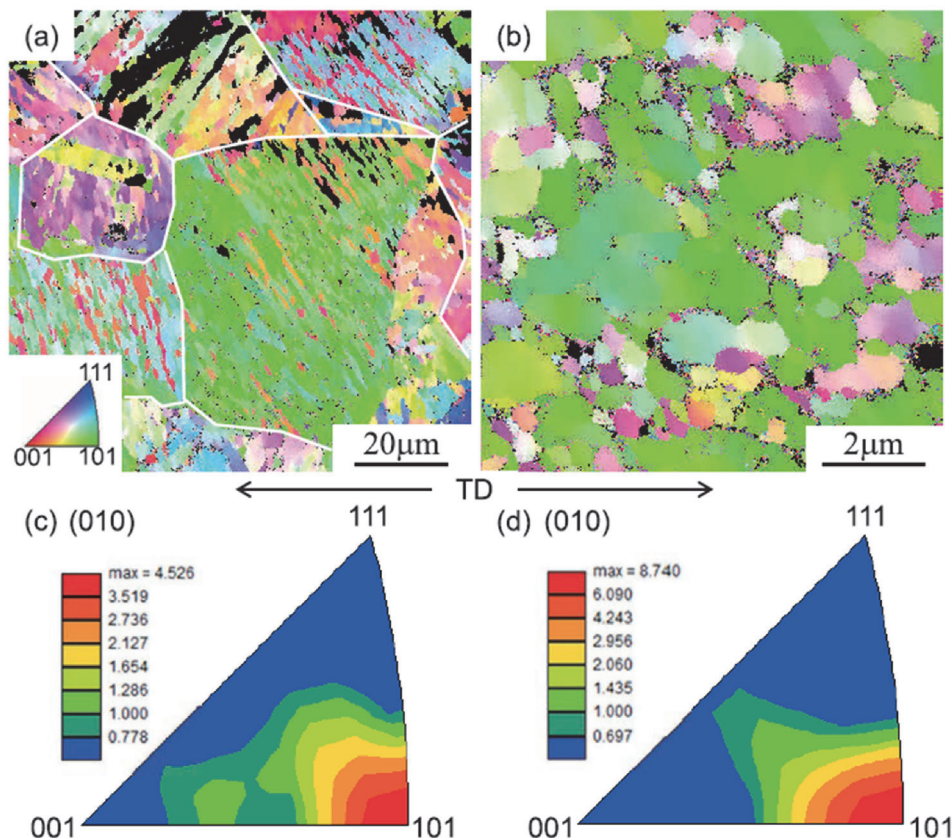


Fig.4 Crystallographic orientation maps (a) and (b), and inverse pole figure of (010) α' (c) and (d) in Fe-16%Cr-10%Ni alloy with 30% tensile deformation. The figures of (a) and (c) were obtained on a specimen with the austenite grain size 60 μm and the figure (b) and (d) were on a specimen with 1 μm grain size¹⁾. (Online version in color.)

慮すべき問題点は多く残されている。結論を導くに当たって筆者自身が最も問題だと感じているのは、本研究において流動応力の影響が考慮されていない点である。前掲Fig.3では同一の引張りひずみを与えた試料のマルテンサイト量が比較されているが、そのひずみを与えるために与えた応力が異なり、結晶粒が微細なほど高くなっている。具体的に

は、60 μm 材に30%の引張りひずみを与えたときの流動応力は約600 MPaであったが、1 μm 材では約800 MPaまで加工硬化していた。応力がマルテンサイト変態に機械的駆動力を与えるのなら、同一ひずみでも微細粒の方がマルテンサイト変態を促進しても良さそうに思える。にもかかわらず実験結果では同一の変態量であったということは、結晶粒微細化が

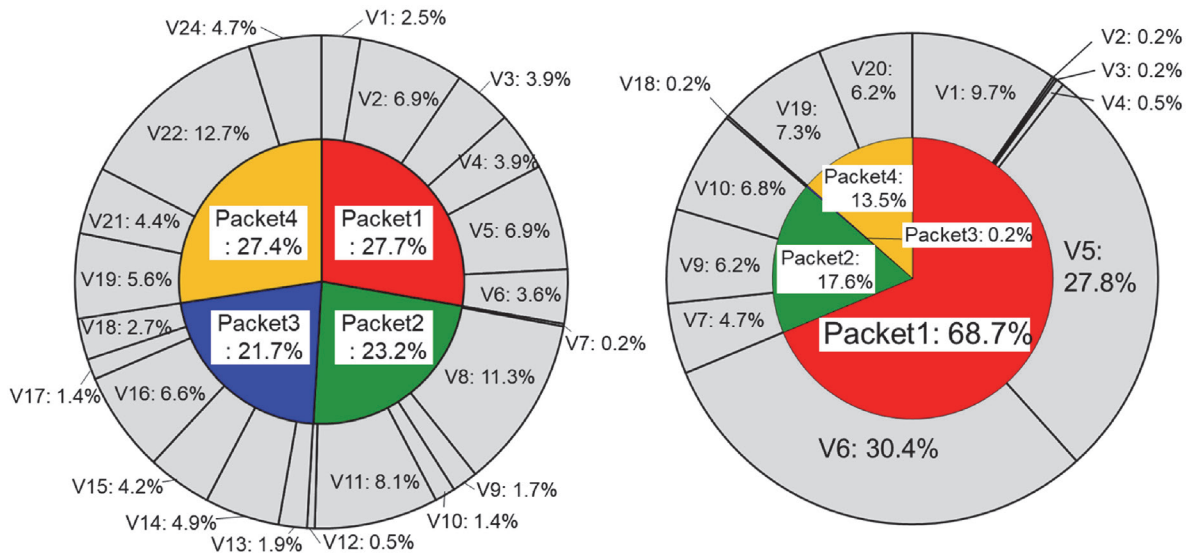


Fig.5 Volume fraction of martensite as to the kinds of variant and packet in a specimen with the grain size 60 μm ; subzero-treated at 77 K for 1.8 ks (a) and 30% tensile deformed at room temperature (b)¹⁾. (Online version in color.)

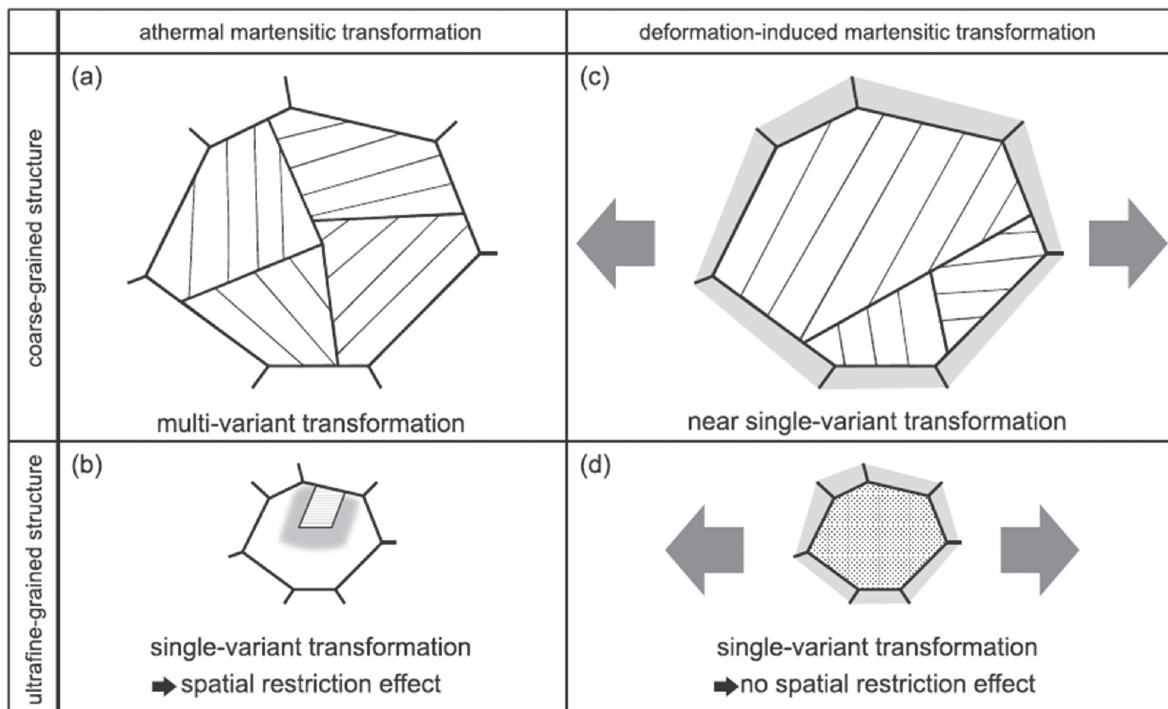


Fig. 6 Schematic illustration showing the morphology of athermal martensite (a) and (b), and deformation induced martensite (c) and (d). Coarse grained material: (a) and (c), while ultrafine grained material: (b) and (d)¹⁾.

変態を抑制し、偶然体積率が一致したと解釈できるかもしれない。純粋にオーステナイトの安定度に及ぼす粒径の影響を評価するには微細粒材と粗大粒材で同一の応力、同一のひずみを付与した場合の測定を行うことが理想であるが、現実的にはそれはほとんど不可能な上に、さらには外部から負荷するマクロな応力が一定でも、相応力・粒応力分配、結晶粒微細化による応力集中の軽減の効果なども考えれば、各オーステナイト粒に付与される応力を実験的に評価・制御することは容易ではない。

また別の課題として、加工誘起マルテンサイトのバリエーション選択の評価についても未だ不完全である。Fig.5の結果から、60 μm 材の引張り変形によって優先的に生成したマルテンサイトのバリエーションは、主すべり面を共通最密面とするバリエーションに対応していると述べた。つまりこれは、引張り変形に伴ってまずオーステナイトの塑性変形が生じ、その後、その活動したすべり面を晶癖面とするマルテンサイトが優先的に生成する「ひずみ誘起変態」である。すべり面を晶癖面とすることで界面エネルギーの観点からは有利と思われるが、この場合は変態による形状ひずみ方向が引張り方向とは一致しない。もし活動したすべり面が存在しない「応力誘起変態」の場合、同じバリエーション選択は起こらないのではないか？その場合の変態傾向やその粒径依存性はどのように変化するのであろうか？

以上のような問題点に対しては、EBSDと静的なマルテンサイトの体積率測定だけでは真実にたどり着くことは困難と思われる。中性子回折やSEM内引張りなどによるその場解析を用いた研究やMD、CPFEMなどの計算工学的手法のさらなる発展を待たねばならないと感じる。

5 おわりに (得られた知見の今後の展開)

本論文で取り扱ったオーステナイトの安定度ならびに加工誘起マルテンサイト変態挙動やそれに及ぼす結晶粒径の影響については、現在でも高強度鋼板の分野において現象を支配する鍵となる重要な研究対象である。本文でも述べた残された基礎的課題をはじめとして、様々な基本現象に関する諸問題、ならびにTRIP効果の応用展開を考えると、本稿で紹介した鋼種以外の様々な鋼種においても同様の問題が生じうる。例えば最近の研究例として、超微細 ($\alpha + \gamma$) 二相組織を有するMn鋼のリュウダース変形に微細粒オーステナイトの加工誘起変態が関与する話題³²⁾や、耐水素脆化特性を有する高強度の微細粒オーステナイト系ステンレス鋼における加工誘起マルテンサイト変態の話題³³⁾など、今までとは異なる様々な場面でオーステナイトの安定度に及ぼす結晶粒径の影

響が注目され始めている。また本研究は一軸の引張変形に伴う加工誘起マルテンサイト変態に限った調査結果であったが、工業的な観点からは圧延加工や多軸加工における加工誘起変態挙動の理解も重要であろう。その場合は前述のバリエーション選択の規則制は当然変化するであろうし、結晶粒微細化の影響がどのように現れるかは不明である。我々に残された課題は多いが、近年材料分野への応用が進む最新の実験・計算手法を駆使することで、10年前とは異なる新たな知見が今後ますます見出されていくことを期待したい。

参考文献

- 1) Y.Matsuoka, T.Iwasaki, N.Nakada, T.Tsuchiyama and S.Takaki : ISIJ Int., 53 (2013), 1224, <https://doi.org/10.2355/isijinternational.53.1224>
- 2) 藤田展弘, 楠見和久, 松村賢一郎, 野中俊樹, 友清寿雅 : 新日鉄技報, 393 (2012), 99.
- 3) 岩間隆史, 川崎由康, 二塚貴之, 佐藤健太郎, 田路勇樹, 平本治郎 : 自動車技術会論文集, 49 (2018), 504.
- 4) 村上俊夫 : 神戸製鋼技報, 69 (2019), 29.
- 5) M.Takahashi : J. Jpn. Soc. Colour Mater., 92 (2019), 87.
- 6) 杉本公一, 小林純也, 北條智彦 : 鉄と鋼, 103 (2017), 1. <http://doi.org/10.2355/tetsutohagane.TETSU-2016-064>
- 7) N.Tsuchida, T.Tanaka and Y.Toji : ISIJ Int., 61 (2021), 564, <https://doi.org/10.2355/isijinternational.ISIJINT-2020-378>
- 8) H.Kawata, T.Yasutomi, S.Shirakami, K.Nakamura and E.Sakurada : ISIJ Int., 61 (2021), 527, <https://doi.org/10.2355/isijinternational.ISIJINT-2020-382>
- 9) S.Harjo, T.Kawasaki, N.Tsuchida, S.Morooka and W.Gong : ISIJ Int., 61 (2021), 648, <https://doi.org/10.2355/isijinternational.ISIJINT-2020-503>
- 10) T.Tsuchiyama, Y.Amano, S.Uranaka and T.Masumura : ISIJ Int., 61 (2021), 537, <https://doi.org/10.2355/isijinternational.ISIJINT-2020-543>
- 11) M.Sugiyama and A.Taniyama : J. Surf. Sci. Soc. Jpn., 36 (2015), 158, <https://doi.org/10.1380/jsssj.36.158>
- 12) K.Asoo, Y.Tomota, S.Harjo and Y.Okitsu : ISIJ Int., 51 (2011), 145, <https://doi.org/10.2355/isijinternational.51.145>
- 13) W.Woo, V.T.Em, E.-Y.Kim, S.H.Han, Y.S.Han and S.-H.Choi : Acta Mater., 60 (2012), 6972, <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2012.08.054>
- 14) M.Tanaka, Y.Yoshimi, K.Higashida, T.Shimokawa and T.Ohashi : Mater. Sci. Eng. A, 590 (2014), 37, <https://doi.org/10.1016/j.mse.2014.04.054>

- doi.org/10.1016/j.msea.2013.09.072
- 15) 大畑充, 庄司博人, 南二三吉 : 鉄と鋼, 99 (2013), 573, <https://doi.org/10.2355/tetsutohagane.99.573>
 - 16) B.Hutchinson, D.Lindell and M.Barnett : ISIJ Int., 55 (2015), 1114, <https://doi.org/10.2355/isijinternational.55.1114>
 - 17) 高橋淳, 川上和人, 小林由紀子, 山田淳一 : 新日鉄技報, 390 (2010), 20.
 - 18) 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, <https://doi.org/10.2355/tetsutohagane.TETSU-2017-025>
 - 19) G.Miyamoto, J.C.Oh, K.Hono, T.Furuhara and T.Maki : Acta Mater., 55 (2007), 5027, <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2007.05.023>
 - 20) F.G.Caballero, C.G.-Mateo, J.Chao, M.J.Santofimia, C.Capdevila and C.G.Andrés : ISIJ Int., 48 (2008), 1256, <https://doi.org/10.2355/isijinternational.48.1256>
 - 21) X.C.Xiong, B.Chen, M.X.Huang, J.F.Wang and L.Wang : Scr. Mater., 68 (2013), 321, <https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2012.11.003>
 - 22) 富村宏紀, 永守浩樹, 高木節雄, 徳永洋一 : 日本金属学会誌, 55 (1991), 376, https://doi.org/10.2320/jinstmet1952.55.4_376
 - 23) K.Tomimura, S.Takaki and Y.Tokunaga : ISIJ Int., 31 (1991), 1431, <https://doi.org/10.2355/isijinternational.31.1431>
 - 24) S.Takaki, K.Fukunaga, J.Syarif and T.Tsuchiyama : Mater. Trans., 45 (2004), 2245, <https://doi.org/10.2320/matertrans.45.2245>
 - 25) G.Dini, A.Najafizadeh, S.M.Monir-Vaghefi and R.Uejii : J. Mater. Sci. Technol., 26 (2010), 181, [https://doi.org/10.1016/S1005-0302\(10\)60030-8](https://doi.org/10.1016/S1005-0302(10)60030-8)
 - 26) A.S.Hamada, P.Sahu, S.G.Chowdhury, L.P.Karjalainen, J.Levoska and T.Oittinen : Metall. Mater. Trans. A, 39 (2008), 462, <https://doi.org/10.1007/s11661-007-9424-y>
 - 27) O.Bouaziz, S.Allain and C.Scott : Scr. Mater., 58 (2008), 484, <https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2007.10.050>
 - 28) V.Shrinivas, S.K.Varma and L.E.Murr : Metall. Mater. Trans. A, 26 (1995) 661.
 - 29) J.C.Fisher, J.H.Hollomon and D.Turnbull : Metal. Trans., 185 (1949), 691.
 - 30) P.J.Brofman and G.S.Ancell : Metall. Trans. A, 14 (1983), 1929.
 - 31) H.-S.Yang and H.K.D.H.Bhadeshia : Scr. Mater., 60 (2009), 493, <https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2008.11.043>
 - 32) 小山元道, 山下享介, 諸岡 聡, 澤口孝宏, 楊志鵬, 北條智彦, 川崎卓郎, ステファヌス ハルヨ : 鉄と鋼, accepted (2023), <https://doi.org/10.2355/tetsutohagane.TETSU-2023-038>
 - 33) A.Macadre, T.Tsuchiyama and S.Takaki : Materialia, 8 (2019), 100514, <https://doi.org/10.1016/j.mtla.2019.100514>

(2023年10月2日受付)