

令和 4 年 6 月 15 日現在

機関番号：13901

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2021

課題番号：20K15055

研究課題名（和文）微細析出物の析出メカニズム解明に基づく炭素鋼の組織制御

研究課題名（英文）Microstructure control of carbon steel based on the investigation of precipitation mechanism of fine precipitates

研究代表者

齊藤 元貴 (Saito, Genki)

名古屋大学・工学研究科・助教

研究者番号：00749278

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、複数の合金元素を微量添加した炭素鋼における微細析出物の析出メカニズム解明に基づく組織制御を目的とし、以下の成果が得られた。

(1)透過型電子顕微鏡による析出物の体積分率・サイズの評価に成功し、さらに析出過程のその場加熱TEM観察に成功した。(2)析出物を高温で固溶させた後の冷却速度が遅いと析出物が粗大に析出し逆変態後の結晶粒組織が粗大化することを明らかにした。(3)高温保持後に速い冷却を行って析出物を過飽和固溶させた後に加熱すると低温から析出物が微細析出し、析出処理温度を低下することで結晶粒組織の微細化が可能であることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

従来の研究ではAlNやNb(C,N)といった析出物の析出過程が個々に議論されてきたが、本研究は、AlNとNb(C,N)が同時に析出する場合の析出過程を詳細に解明し、材料組織との相関を議論した点で学術的意義がある。本手法で用いた電子顕微鏡による観察評価手法やその場観察方法は他の材料への適用も可能である。また、本研究は実用されている機械構造用鋼を対象としており、得られた結果から材料の成分系や熱処理条件を最適化できる点で、社会的意義が大いにある。高い鍛造加熱温度、速い冷却速度や低温の焼ならし条件はいずれも実際の製造プロセスで十分適用可能な条件であり、実用性が高いものである。

研究成果の概要（英文）：This study aimed to control microstructures based on the investigation of precipitation mechanisms of fine precipitates in carbon steels with addition of several alloying elements, and the following results were obtained.

(1) The volume fraction and size of precipitates were successfully evaluated by transmission electron microscopy, and the precipitation process was successfully observed by in-situ TEM. (2) After solid solution of precipitates at high temperature, the slow cooling rate cause the coarse growth of precipitation. (3) The fast cooling after solid solution temperature makes supersaturated solid solution, which is useful for fine precipitation at low temperatures and for grain refinement.

研究分野：材料科学

キーワード：析出物 炭素鋼 組織制御 析出 その場観察 結晶粒 電子顕微鏡

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

炭素鋼は自動車や建設機械の部品等に多く用いられており、これらの結晶粒組織制御のため、鋼中に合金元素を微量添加し、熱処理によりこれらを微細なピン止め粒子として分散析出させる方法が有効である。近年は、複数の合金元素を組み合わせる多成分のマイクロアロイイングが一般的である。この場合、析出した窒化物や炭化物は個別に分布するのではなく、例えば、先に析出した炭化物を核として窒化物が後に析出する等、析出形態はより複雑であり、これらの析出メカニズム解明が、熱処理プロセスや組成の最適化において重要である。

代表的なピン止め粒子として、AlN、NbC、TiN が挙げられる。個々の析出物を単独で添加した場合の影響については従来調査されてきたが、複数種類の析出物が生成する場合については、結晶粒組織に与える影響は調査されているものの、実際の製造プロセスに基づく研究が多く、析出物の複合化を含めた析出メカニズムの基礎的理解は不十分である。析出メカニズムの解明を阻む要因として、分析法の問題がある。従来は、析出物の体積分率は抽出残さ法、サイズは抽出レプリカ法での評価が一般的であり、析出物の種類や析出物同士の複合化を考慮した定量分析が不十分であった。さらに、高温下での析出挙動の動的観察が困難という問題があった。

### 2. 研究の目的

そこで本研究は、炭素鋼における複数種類の微細析出物の析出メカニズムを詳細に解明し、熱処理プロセスおよび材料組成の最適化による炭素鋼の自在な結晶粒組織制御を目的とした。まず、複数の合金元素を微量添加した鋼を作製し、溶体化処理後の冷却速度を変化させた鋼に析出処理を施した後オーステナイト( $\gamma$ )化し、冷却速度が結晶粒組織と析出物に与える影響を調査した。次に、熱処理の各段階における各析出物のサイズと体積分率、析出形態を調査した。そして、加熱 TEM その場観察を用いて微細析出物の析出メカニズムを詳細に解明し、有効なピン止め効果が発揮できる微細析出物の分布の制御を試みた。

### 3. 研究の方法

試料として、JIS SCM420 肌焼鋼に Al、Nb を添加した鋼を用いた。本研究では、図 1 示すヒートパターンで試料を加熱し、溶体化後、析出処理後の微細析出物を調査し、 $\gamma$  化後の結晶粒径を分析した。TEM 試料は、広い領域を分析可能なイオンミリング法を採用し、TEM 観察時の磁性の影響を軽減するため、Mo 板を貼り合わせ、鋼の体積を極力低減した試料を準備する。微細析出物は、STEM-EDS マッピングを用い、サイズおよび複合状態等を析出物の種類ごとに分けて詳細に解析した。各析出物の体積分率を求めるため、観察領域ごとの試料厚みをエネルギー損失分光スペクトル(EELS)の絶対厚みにより評価し、観察領域の体積を導出した。さらに、電子線回折図形や高分解能観察によって方位関係を特定した。

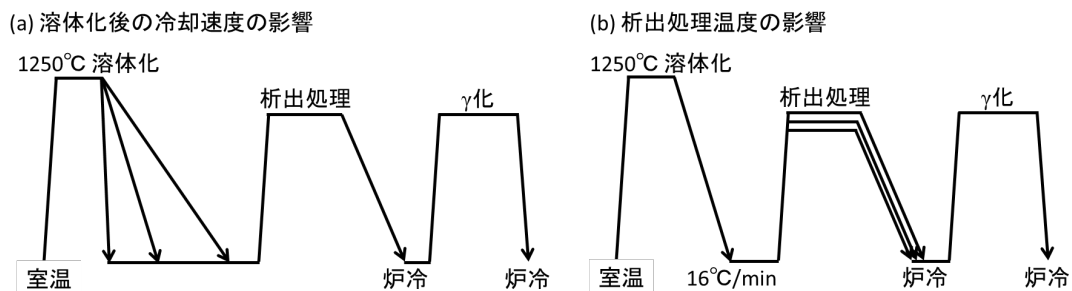


図 1. 本研究で用いたヒートパターン

加熱 TEM その場観察は、MEMS 加熱チップを用いた。鉄鋼材料に対し適用した例は少ないため、メーカー等にも相談し試料作製方法を検討した。具体的な手順としては、FIB により試料をブロック状に切り出し、SiN 膜上に孔を有する MEMS チップ上に固定した後、60~90 度傾斜させた状態で FIB 内において追加工した。

### 4. 研究成果

#### (1) 溶体化後の冷却速度の影響

図 1(a)に示すように、試料を 1250 で 1 時間保持し、その後、冷却速度の影響を調査するため、異なる速度(水冷、16 /min、4 /min、0.7 /min)で室温まで冷却した。水冷した試料を TEM 観察した結果、TiN のみが観察され、AlN や Nb(C,N)は、観察されなかった。16 /min で冷却した場合、冷却過程で微細な Nb(C,N)が析出し、AlN は析出しなかった。冷却速度 4 /min では、単独の Nb(C,N)に加えて、Nb(C,N)と複合化した AlN が少量析出した。冷却速度を 0.7 /min まで遅くすると、AlN-Nb(C,N)複合粒子が粗大に析出した。これら溶体化後の冷却速度が異なる材料に対し 1070 の析出処理を施すと、AlN および AlN-Nb(C,N)複合粒子が多く析出した。図 2 析出処理後の析出物の STEM-EDS 分析結果を示す。このときの複合粒子の平均径は、水冷では 33nm、0.7 /min の炉冷では 207nm であり、溶体化後の冷却

速度が速いほど析出処理後の析出物は微細化した。そして、焼ならし後の試料を 1050 °C/5 時間の  $\gamma$  化後に水冷して  $\gamma$  粒組織を図 3 に示すように観察したところ、溶体化後の冷却速度が速いほど  $\gamma$  粒が微細化することが明らかとなった。この結果は、溶体化後の冷却速度が速いと、析出処理過程で過飽和となった AlN が微細に析出し、ピン止め力が増加したことに起因すると考えられる。析出物の体積分率と粒子径を解析し、粒子のピン止め力を Zener の式を用いて評価した結果、ピン止め力から計算される結晶粒径と実験で観察される粒径が比較的良好に一致することがわかった。以上より、溶体化後の冷却速度が  $\gamma$  化後の結晶粒組織に強く影響し、冷却速度が速いほど結晶粒微細化に有効であることが明らかとなった。

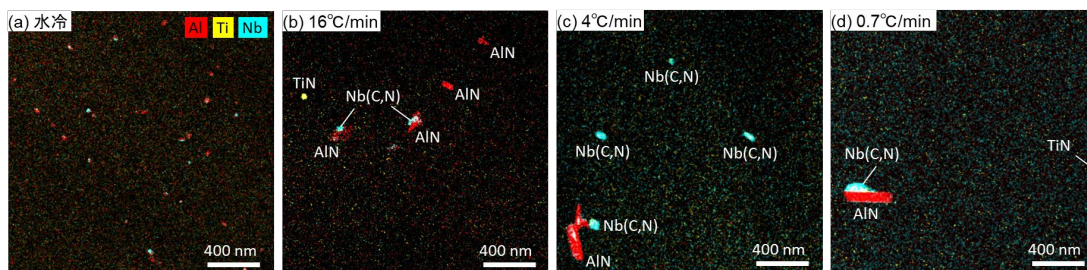


図 2. 析出処理後の析出物の STEM-EDS 分析結果

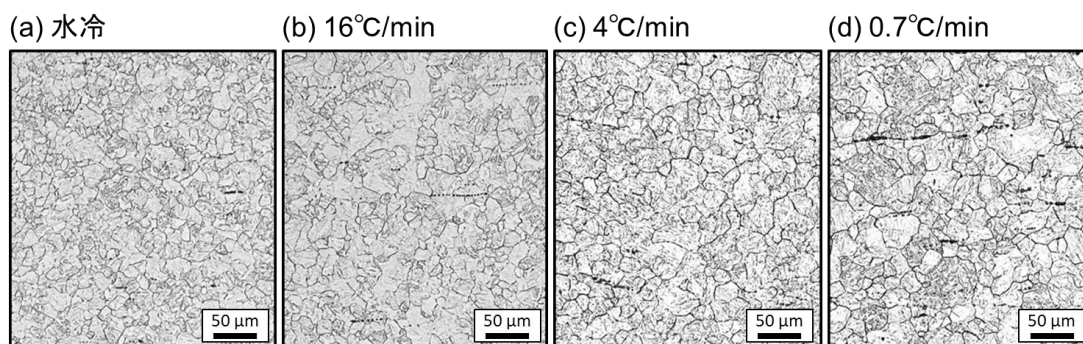


図 3.  $\gamma$  化後の結晶粒組織

## (2) 析出処理温度の影響

前述した溶体化後の冷却速度の影響調査によって、冷却速度が速いと AlN が過飽和固溶することが明らかとなった。そこで次に、図 1(b)に示すように、溶体化後の冷却速度を 16 °C/min に固定して析出処理温度を 900 °C、950 °C、1070 °C と変化させて 4 時間焼ならし、 $\gamma$  化した。その結果、析出処理温度が低いほど  $\gamma$  粒組織が微細化した。900 °C で焼ならした後の析出物を TEM 観察した結果、多数の微細な AlN が析出し、多くは線状に分布したのに対し、1070 °C で保持した後の析出物は粗大化しており、Nb(C,N)と複合化しているものが多く観察された。以上より、析出処理温度が低いほうが  $\gamma$  化後の結晶粒微細化に有効であることが明らかとなった。

## (3) 微細 AlN の析出メカニズム解明

溶体化後に 16 °C/min で冷却した試料を 900 °C で保持した際に AlN が微細かつ線状に析出したため、AlN がいつ、どこに析出したのかを加熱 TEM を用いて調査した。その結果、約 650 °C からフェライトとセメンタイトの界面で析出物の形成が確認され、その後析出物が成長することが明らかとなった。試料を電気炉で 700 °C まで加熱後に水冷した試料を観察した結果、フェライトとセメンタイトの界面で Al や Cr を含む窒化物粒子の形成が確認された。800 °C 以上では AlN はウルツ鉱型の構造に有し、Cr は固溶していなかった。以上より、窒化物の形成はフェライト域で開始することが明らかとなり、セメンタイトなどの界面が核形成サイトとなるため、これらを増加させることで析出物をさらに微細化できる可能性が示唆された。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Saito Genki, Zhang Tianglong, Sakaguchi Norihito, Ohno Mune kazu, Matsuura Kiyotaka, Takeuchi Masayoshi, Sano Taichi, Minoguchi Koki, Yamaoka Takuya	4. 巻 15
2. 論文標題 In-situ observation of abnormal grain growth in a low-alloyed carbon steel using SEM-EBSD	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Materialia	6. 最初と最後の頁 100985 ~ 100985
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.mtla.2020.100985	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Saito Genki, Sakaguchi Norihito, Ohno Mune kazu, Matsuura Kiyotaka, Takeuchi Masayoshi, Sano Taichi, Minoguchi Koki, Yamaoka Takuya	4. 巻 60
2. 論文標題 Effects of Concentrations of Micro-alloying Elements and Hot-forging Temperature on Austenite Grain Structure Formed during Carburization of Case-hardening Steel	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ISIJ International	6. 最初と最後の頁 2549 ~ 2557
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2355/isijinternational.isijint-2020-123	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Saito Genki, Sakaguchi Norihito, Ohno Mune kazu, Matsuura Kiyotaka, Takeuchi Masayoshi, Sano Taichi, Minoguchi Koki, Yamaoka Takuya	4. 巻 61
2. 論文標題 Effects of Cooling Rate after Hot Forging on Precipitation of Fine Particles during Subsequent Normalizing and Austenite Grain Growth during Carburization of Al- and Nb-microalloyed Case-hardening Steel	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ISIJ International	6. 最初と最後の頁 1964 ~ 1970
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2355/isijinternational.ISIJINT-2020-743	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 齊藤 元貴	4. 巻 60
2. 論文標題 炭素鋼中における複合析出物の析出挙動	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 まてりあ	6. 最初と最後の頁 486 ~ 491
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2320/materialia.60.486	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 齊藤 元貴、坂口 紀史、大野 宗一、松浦 清隆、竹内 正芳、佐野 太一、蓑口 光樹、山岡 拓也
2. 発表標題 肌焼鋼中のAIN-Nb(C, N)複合析出物の析出挙動
3. 学会等名 日本顕微鏡学会第76回学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 齊藤元貴、坂口紀史、松浦清隆、蓑口光樹、山岡拓也
2. 発表標題 肌焼鋼の熱間鍛造後の冷却速度および焼ならし温度が析出物および浸炭時の 粒組織に与える影響
3. 学会等名 日本鉄鋼協会第181回春季講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 齊藤 元貴、坂口 紀史、松浦 清隆、佐野 太一、蓑口 光樹、山岡 拓也
2. 発表標題 AlおよびNbを添加した肌焼鋼中の微細粒子の析出挙動
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第77回学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 齊藤 元貴、張 天龍、坂口 紀史、大野 宗一、松浦 清隆、竹内 正芳、佐野 太一、山岡 拓也
2. 発表標題 In-situ SEM-EBSD法による低合金鋼の異常粒成長における粒界方位差の解析
3. 学会等名 日本金属学会2022年春季講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 齊藤元貴, 坂口紀史, 松浦清隆, 佐野太一, 山岡拓也
2. 発表標題 肌焼鋼の熱間鍛造後の焼ならしにおけるAINの析出挙動
3. 学会等名 日本鉄鋼協会第183回春季講演大会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

Research map <a href="https://researchmap.jp/s_genki">https://researchmap.jp/s_genki</a>
---

6. 研究組織		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------