Fe-0.4C 合金の強磁場中等温フェライト変態における組織配向*

Xin Jiang Hao¹ 大塚 秀 幸¹ 和 田 仁²

¹物質・材料研究機構強磁場研究センター

²東京大学大学院新領域創成科学研究科

J. Japan Inst. Metals, Vol. 69, No. 4 (2005), pp. 368–372

© 2005 The Japan Institute of Metals

Structural Elongation and Alignment in an Fe-0.4C Alloy by Isothermal Ferrite Transformation in High Magnetic Fields

Xin Jiang Hao¹, Hideyuki Ohtsuka¹ and Hitoshi Wada²

¹Tsukuba Magnet Laboratory, National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0003

²Graduate School of Frontier Sciences, The University of Tokyo, Kashiwa 277-8561

Structural elongation and alignment in an Fe-0.4C alloy isothermally transformed in high magnetic fields has been studied by quantitative microscopy analysis. It has been already reported by the authors that an elongated and aligned structure is obtained during continuous cooling as far as some conditions are satisfied. It is shown in this paper that an elongated and aligned two-phase structure is formed in high magnetic fields by isothermal ferrite transformation both below and above Curie temperature. To clarify if the elongated structure is formed in the nucleation stage or growth stage, transformation behavior in magnetic fields has been investigated and it was found that equiaxed ferrite grains nucleate randomly at austenite grain boundaries and they become elongated by preferred growth along the direction of applied magnetic field. Effects of isothermal transformation temperature on the degree of elongation has been studied. Below Curie temperature, the degree of elongation increases with increasing transformation temperature, whereas it decreases above Curie temperature. Small chemical driving force for ferrite precipitation and large magnetization of ferrite in high magnetic fields favor the formation of elongated structure.

(Received December 17, 2004; Accepted February 16, 2005)

Keywords: structural elongation and alignment, ferrite transformation, high magnetic field, quantitative microscopy, isothermal transformation

1. 緒 言

近年、強磁場を発生する超伝導マグネットの急速な発達に伴い、鉄系合金におけるマルテンサイト¹⁾・フェライト^{2–11)}・パーライト¹²⁾変態や再結晶^{13–17)}などの固相/固相変態に対して強磁場の影響があることが明らかになってきた。磁場効果の中でも組織の伸長・配向は磁場中で変態した組織に特有のものである。大塚ら⁴⁾は初めて強磁場中での徐冷によりオーステナイトからフェライトへの変態において伸長・配向した組織が形成されることを報告した。さらに組織的な伸長の度合いを定量的に表す方法について示した⁶⁾。徐冷により形成される組織の伸長の度合いは印加磁場の強度とともに上昇する。フェライトの配向については丸太ら¹⁰⁾、および下斗米ら¹¹⁾によっても報告されているが、彼らは伸長した二相組織を形成するためには前加工と磁場中での変態の両方が必要であると述べているが、本研究および我々のこれまでの研究^{4,6,7)}からも加工しなくても伸長組織は得られる。

本研究においては、(1)徐冷によりフェライトが伸長・配向することをすでに明らかにしたが、等温保持でも伸長・配向するか、(2)フェライトのキュリー温度以上でもフェライトは伸長・配向するか、(3)伸長組織は核生成と成長のいずれの段階で形成されるのか、(4)伸長の度合いは変態温度によりどのように変化するか、を明らかにすることを目的とする。

2. 実 験 方 法

本研究で用いた合金は Fe-0.4C 合金で、真空溶解により作製した。その化学組成は Fe-0.41C-0.08Si-0.003Al (mass%) で、サーモカルクにより計算した A_{c3} 温度は 785°C である。熱間圧延後、5 mm×5 mm×1 mm の試料を切り出して口径 100 mm の室温空間を持つヘリウムフリー型の超伝導マグネットに挿入した真空加熱炉中にセットした。磁場は 5 mm×5 mm の面に垂直に印加され、27 分間で 10 T に励磁した後オーステナイト化、等温保持、室温への冷却、などの熱処理をすべて終了してから 0 T に降磁した。試料は磁場中心に固定されるため試料への磁化力は無視できる。熱処理としては 1000°C で 15 分間オーステナイト

* Mater. Trans. 44(2003) 2532–2536 に掲載

化後 50°C/min で 740~785°C の間の種々の温度へ冷却して等温保持し、フェライト変態させた後ヘリウムガスにより室温まで冷却した。ヘリウムガスにより、試料は 1000°C から 400°C まで約 40 秒で冷却できる。熱処理した試料は研磨、3%ナイトールによる腐食のあと光学顕微鏡により組織観察した。観察面は磁場印加方向に平行な面で、各組織写真に磁場印加方向を矢印で示した。

3. 実験結果

3.1 等温フェライト変態に及ぼす磁場の影響

Fig. 1 は 740°C で 1 時間の等温保持により変態した試料の組織を示す。この温度はフェライトのキュリー温度 (770°C) より低い温度で、(a) は無磁場、(b) は 10 T の磁場中で熱処理した。白い部分は等温保持中にオーステナイトから生成したフェライトである。黒い部分は最後のヘリウムガスによる冷却中にオーステナイトがパーライトに変態した部分である。無磁場ではほとんどのフェライト粒は等軸であるが、磁場を印加すると組織は異なるものになる。まず、フェライトの量が増える。次に、多くのフェライト粒は伸長した形状になり、その長軸方向と磁場印加方向が平行なものが多い。Fig. 2 はフェライトのキュリー温度以上の 785°C で 240 分

間等温保持した場合の組織である。785°C はこの合金の A_{e3} 温度であるため変態の駆動力はゼロであり、無磁場の場合 (a) はフェライト粒は観察されない。旧オーステナイト粒界は最後の室温への急冷中に薄いフィルム状にフェライトが析出したため明瞭に観察できる。(b) では等温保持中にオーステナイト粒界から生成した大きなフェライト粒が観察されるが、磁場印加方向に平行に伸長している。粒界に生成した薄いフィルム状のフェライトについては無磁場と磁場印加で差が見られない。Fig. 1 および 2 からフェライトのキュリー温度より高温でも低温でもフェライト変態挙動や組織は 10 T の強磁場により大きく影響される事が分かる。すなわち、変態は促進され、変態率も増加する^{2,3,5,8,9)}。これは、熱力学的な計算により示されるように^{5,8,9)} A_{e3} 温度が磁場印加により上昇するため同じ温度であれば磁場印加のため、より大きなフェライト変態の駆動力が与えられるからである。比較的遅い冷却速度の場合にフェライト粒が伸長・配向して生成することはすでに著者ら^{4,6,7)}によって報告されているが、本研究では等温保持においても、しかもフェライトのキュリー温度以上でも以下でも同じような伸長・配向組織が得られることが明らかになった。このような伸長・配向組織は磁場印加により得られる独特の組織である。その生成メカニズムは明らかではないが、次節においてフェライト粒の核生成・成長と

Fig. 1 Microstructures of Fe-0.4C alloy heat treated below Curie temperature of ferrite. Specimens were austenitized at 1000°C for 15 min and transformed at 740°C for 1 hour without (a) or with a magnetic field of 10 T (b), followed by helium gas quenching.

Fig. 2 Microstructures of Fe-0.4C alloy heat treated above Curie temperature of ferrite. Specimens were austenitized at 1000°C for 15 min and transformed at 785°C for 240 min without (a) or with a magnetic field of 10 T (b), followed by helium gas quenching.

関係づけて考察する.

3.2 磁場中におけるフェライト粒の核生成・成長

Fig. 3 は, 10 T の磁場中で 785°C でそれぞれ(a)10, (b)20, (c)30, (d)240 分間等温保持した場合の組織を光学顕微鏡で観察したものである. ほとんどのフェライト粒はオーステナイト粒界, 特に粒界三重点に生成する. 変態初期(a)においてはフェライト粒は等軸で試料全体としてはランダムに分布している. 保持時間が 20 分(b), 30 分(c)と増加するにつれてフェライトの量は増加し, いくつかのフェライト粒は磁場印加方向に伸長し始める. 240 分(d)の等温保持ではほとんどのフェライト粒が伸長し, いくつかの粒は磁場印加方向に連結して生成し, 組織配向する.

組織的な伸長の度合い, ω は直線とフェライト/オーステナイト界面の交点の数を数えることにより求められ⁶⁾, 次式で表せる¹⁸⁾.

$$\omega = (N_{\perp} - N_{\parallel}) / (N_{\perp} + 0.571N_{\parallel})$$

ここで, $N_{\perp}$ と $N_{\parallel}$ はそれぞれ直線と磁場印加方向が垂直, 平行な場合の交点の数である. Fig. 4 は測定した組織的な伸長の度合いと等温変態時間の関係を示し, 伸長の度合いは変態時間とともに強くなる. 変態初期においては伸長の度合いは弱い, その後変態時間とともに急激に増加し, やがて飽和していくことが分かり, すでに Fig. 3 について述べた実験事実とも一致する. 以上のように, 伸長・配向した組織は核生成の段階ではなく, 成長段階で形成されていくことが分

かる.

3.3 組織伸長の度合いに及ぼす変態温度の影響

Fig. 5 は(a)キュリー温度の 770°C, (b)750°C で, いずれも 30 分間, 10 T の磁場中で等温保持したときの組織を光学顕微鏡で観察したものである. (a)に示すように, キュリー温度ではフェライト粒は伸長し, その多くは磁場印加方向と平行に連結して配向している. 一方, (b)に示すように変態温度が 750°C に下がると変態量は増加し, フェライト粒径は小さくなる. 核生成の駆動力が増加するためオーステナイ

Fig. 4 Degree of elongation as a function of transformation time.

Fig. 3 Microstructures of Fe-0.4C alloy heat treated in a magnetic field of 10 T. Specimens were austenitized at 1000°C for 15 min and transformed at 785°C for (a) 10 min, (b) 20 min, (c) 30 min and (d) 240 min.

Fig. 5 Microstructures of Fe-0.4C alloy heat treated in a magnetic field of 10 T. Specimens were austenitized at 1000°C for 15 min and transformed at (a) 770°C and (b) 750°C for 30 min.

ト粒界のみならず、粒内もフェライトの核生成場所となっている。棒状、或いは針状のフェライトも生成するが、磁場印加方向と平行ではないものもある。等温保持時間が 30 分の場合、組織伸長の度合と変態温度の関係は Fig. 6 のようになる。組織伸長の度合いは変態温度が低くなるほど強くなり、キュリー温度付近で最も大きくなり、その後変態温度の低下とともに弱くなっていく。

フェライト粒の伸長・配向の原因はまだ明らかではないが、フェライト粒が磁場印加方向に伸長することによりフェライト粒の反磁場が小さくなり、系の自由エネルギーが低下することが予想される⁴⁾。すでに示したように、磁場印加方向への優先成長によりフェライト粒は伸長する。しかしながら、成長速度はフェライト/オーステナイト界面エネルギー、フェライト変態の駆動力、反磁場効果や炭素の拡散など、色々な因子に左右されるためフェライト粒伸長の微視的なメカニズムを説明することは難しい。これまでフェライト/オーステナイト界面エネルギーに及ぼす磁場の影響については報告がない。炭素の拡散に及ぼす磁場効果については連川ら¹⁹⁾の論文があり、オーステナイト中で炭素の拡散速度は磁場印加により遅くなることを報告しているが、磁場印加方向とは無関係である²⁰⁾。従って本研究における磁場印加方向への優先的な成長は炭素の拡散に及ぼす磁場印加の効果では説明できない。そこで反磁場効果と変態駆動力について考察する。

フェライト粒中の反磁場 H_d は次式で表せる。

$$H_d = (N_d \cdot M) / \mu_0$$

ここで、 N_d は反磁場係数でフェライト粒の形状に依存する。 M はフェライトの磁化、 μ_0 は真空の透磁率である。フェライトの磁化、 M が大きいほど、 N_d が小さくなることにより反磁場エネルギーが下がるのでフェライト粒は伸長する。10 T の磁場中における純鉄の磁化はワイスの分子場理論を用いて計算した⁵⁾。その結果、キュリー温度以上においても磁化は存在し^{5,8,9)} 785°C における磁化は約 0.245Mo (Mo = 1.74×10^6 A/m で 0 K における純鉄の飽和磁化)、キュリー温度では約 0.287Mo へと増加する。キュリー温度以下では磁化は自発磁化と磁場誘起による磁化から成り、760°C では磁化は 0.313Mo、740°C では 0.367Mo へと増加する。従っ

Fig. 6 Degree of elongation as a function of transformation temperature.

て組織伸長の度合いは温度が低くなるほど強くなる。一方駆動力については、冷却速度が小さくなるほど組織伸長の度合いは強くなるという実験結果^{4,7)}から、変態駆動力が小さくなるほど組織伸長の度合いは強くなると考えられる。すなわち変態温度が低くなるほど変態駆動力は大きくなり、組織伸長の度合いは弱くなる。以上のことから、反磁場効果を考えると温度が低くなるほど伸長の度合いが強くなり、変態駆動力の効果を考えると温度が低くなるほど伸長の度合いは弱くなる、という二つの効果の兼ね合いでフェライト粒の伸長の度合いは決まると考えられる。

4. ま と め

(1) Fe-0.4%C 合金において、強磁場中では等温保持によっても、またフェライトのキュリー温度より高温でも低温でも組織伸長・配向が観察された。

(2) 変態初期においては等軸フェライトがランダムにオーステナイト粒界に生成するが、その後成長段階において磁場印加方向に伸長していく。

(3) 組織伸長の度合いは変態温度に依存し、キュリー温度以下では変態温度の上昇とともに強くなるが、キュリー温度以上では弱くなる。

(4) 変態駆動力が小さいほど、またフェライトの磁化が大

きいほど組織伸長・配向の度合いは強くなり、その温度依存性は反磁場効果と変態駆動力の兼ね合いで決まる。

文 献

- 1) T. Kakeshita, K. Kuroiwa, K. Shimizu, T. Ikeda, A. Yamagishi and M. Date: Mater. Trans., JIM **34**(1993) 423-428.
- 2) Y. Xu, H. Ohtsuka and H. Wada: Journal of the Magnetism Society of Japan **24**(2000) 655-658.
- 3) Y. Xu, H. Ohtsuka and H. Wada: Trans. Mater. Res. Soc. Japan **25**(2000) 505-508.
- 4) H. Ohtsuka, Y. Xu and H. Wada: Mater. Trans., JIM **41**(2000) 907-910.
- 5) J.-K. Choi, H. Ohtsuka, Y. Xu and W.-Y. Choo: Scr. Mater. **43**(2000) 221-226.
- 6) X. J. Hao, H. Ohtsuka, P. DE Rango and H. Wada: Mater. Trans. **44**(2003) 211-213.
- 7) P. DE Rango, X. J. Hao, H. Ohtsuka and H. Wada: Trans. Mater. Res. Soc. Japan **28**(2003) 225-226.
- 8) H. Guo and M. Enomoto: Mater. Trans., JIM **41**(2000) 911-916.
- 9) M. Enomoto, H. Guo, Y. Tazuke, Y. R. Abe and M. Shimotomai: Metall. Mater. Trans. **32A**(2001) 445-453.
- 10) K. Maruta and M. Shimotomai: J. Cryst. Growth **237-239**(2002) 1802-1805.
- 11) M. Shimotomai, K. Maruta, K. Mine and M. Matsui: Acta Mater. **51**(2003) 2921-2932.
- 12) Y. Xu, H. Ohtsuka and H. Wada: Trans. Mater. Res. Soc. Japan **25**(2000) 509-512.
- 13) T. Watanabe, Y. Suzuki, S. Tanii and H. Oikawa: Philos. Mag. Lett. **62**(1990) 9-17.
- 14) N. Masahashi, M. Matsuo and K. Watanabe: J. Mater. Res. **13**(1998) 457-461.
- 15) Y. Xu, H. Ohtsuka, S. Umezawa, K. Anak, S. Miyazaki and H. Wada: Proc. of the Fourth Int. Conf. on Recrystallization and Related Phenomena (ReX'99), Tsukuba, 13-16 July (1999) 571-576.
- 16) Y. Xu, H. Ohtsuka, K. Itoh and H. Wada: Journal of the Magnetism Society of Japan **24**(2000) 651-654.
- 17) Y. Xu, H. Ohtsuka and H. Wada: Trans. Mater. Res. Soc. Japan **25**(2000) 501-504.
- 18) E. E. Underwood: *Quantitative Microscopy*, ed. by R. T. Dehoff and F. N. Rhines, (McGraw-Hill, New York, 1968) pp. 104-115.
- 19) S. Tsurekawa and T. Watanabe: CAMP-ISIJ **17**(2004) 1210-1213.
- 20) S. Tsurekawa: personal communication.