低炭素鋼板における $\alpha+\gamma$ 二相域焼鈍中の γ 生成挙動に及ぼす初期組織の影響†

「Materials Transactions」 Vol. 60, No. 1, pp. 165-168 (2019) 掲載論文の和訳論文

段野下 宙志* 小川 登志男** 丸岡 邦明*** 潮田 浩作****

Effect of Initial Microstructures on Austenite Formation Behavior during Intercritical Annealing in Low-Carbon Steel

Japanese version of the paper published in "Materials Transactions, 60 (1): 165-168 (2019)"

by

Hiroyuki DANNOSHITA*, Toshio OGAWA**, Kuniaki MARUOKA*** and Kohsaku USHIODA****

The effect of initial microstructures of low-carbon steel on austenite formation behavior during intercritical annealing was investigated. Three types of hot-rolled sheet specimens with different microstructures were used; specimen P consisting of ferrite and pearlite, specimen B consisting of bainitic structures, and specimen M consisting of fully martensitic structures. After the hot rolling, these specimens were cold-rolled, and subsequently heated to target temperature, and then water-quenched to room temperature. The martensite and/or bainite fraction corresponds to the fraction of austenite during intercritical annealing since the austenite transforms into martensite and/or bainite during the cooling process. The austenite fraction in specimen M was larger than that in specimens P and B below 730 °C, whereas the order of specimens changed to P > B > M above 740 °C. Below 730 °C, austenite connected along the rolling direction was observed in specimens P and B, while the distribution of austenite in specimen M was uniform. In contrast, austenite was connected and elongated along the rolling direction in all the specimens above 740 °C. The nucleation and growth of austenite can proceed under local equilibrium in specimens P and B, whereas that can proceed under paraequilibrium in specimen M below 730 °C. Moreover, the austenite growth can progress under local equilibrium in all specimens above 740 °C.

Key words:

Low-carbon steel, Austenite formation, Initial microstructure, Intercritical annealing

1 緒 言

低炭素鋼板は、自動車車体の構造用部材に用いられている。低炭素鋼板の機械的性質や成形性が、鋼板のミクロ組織に強く依存することはよく知られている。しかしながら、焼なまし中にはいくつかの冶金現象が同時に起こるため、低炭素鋼板のミクロ組織は極めて複雑になることが報告されている^{1)~4)}。したがって、低炭素鋼板の機械的性質や成形性を正確に制御するためには、複雑なミクロ組織の解析が重要である。

低炭素鋼板における焼なまし中のミクロ組織形成挙動におよぼす初期組織の影響について、従来いくつかの報告がなされている^{5)~7)}。たとえば、Karmakarら⁷⁾は、焼なまし中のミクロ組織形成挙動に及ぼす初期組織の影響は、昇温速度が速いときに、より顕在化することを報告し

ている。さらに著者らは、焼なまし中の回復および α 再結晶の進行は焼なまし前の初期組織に次のように依存することを報告している⁸⁾。まず、初期組織がマルテンサイト組織の場合、回復および α 再結晶の進行速度は速くなり、それに伴って $\alpha+\gamma$ 二相域焼なまし初期段階において、 γ の生成が促進される。また、焼なまし前の母相におけるセメントタイトの分布に関わらず、 γ 分布は再結晶 α 粒の形状に強く依存する。これらの知見から、焼なまし中のミクロ組織形成挙動を制御するためには、初期組織が重要な因子であることは明白である。しかしながら、 $\alpha+\gamma$ 二相域焼なましの後期段階における γ 生成挙動に及ぼす初期組織の影響は明らかになっていない。

そこで本研究では、低炭素鋼板の $\alpha+\gamma$ 二相域焼なましの後期段階における γ 生成挙動に及ぼす初期組織の影響を明

† 原稿受理 平成30年12月26日 Received Dec. 26, 2018 ©2019 The Society of Materials Science, Japan

* 木更津工業高等専門学校 専攻科 機械・電子システム工学専攻 〒292-0041 木更津市清見台東
Advanced Mechanical and Electrical Engineering Course, National Institute of Technology, Kisarazu College, Kiyomidai-higashi, Kisarazu 292-0041.

** 正 会 員 名古屋大学大学院 工学研究科 材料デザイン工学専攻 〒464-8603 名古屋市千種区不老町
Department of Materials Design Innovation Engineering, Graduate School of Engineering, Nagoya University, Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya 464-8603.

*** 木更津工業高等専門学校 機械工学科 〒292-0041 木更津市清見台東
Department of Mechanical Engineering, National Institute of Technology, Kisarazu College, Kiyomidai-higashi, Kisarazu 292-0041.

**** 日鉄住金総研株式会社 〒100-0005 東京都千代田区丸の内
Nippon Steel & Sumikin Research Institute Corporation, Kokusai Bldg., Marunouchi, Chiyoda-ku, Tokyo 100-0005.

らかにすることを目的とする。

2 実験方法

供試鋼の化学成分は0.1C-2.0Mn (mass%)とし、先行研究⁸⁾と同じ供試鋼を用いた。真空溶解炉を用いて溶製したのち、鋼塊(約100×100×500 mm)に casting し、さらに板厚が30 mmになるように粗圧延を施した。その後、圧延終了温度を900 °C (γ 域)とし板厚が3.0 mmとなるように熱間圧延を施した。熱間圧延後、冷却パターンを変えることにより3つの試料を作製した。650 °Cまで水冷した試料、500 °Cまで水冷し1 h等温保持した試料および100 °C以下まで水冷した試料を、それぞれP, BおよびM材と称する。なお、いずれの試料も水冷後は室温まで空冷した。P材の熱延板組織は α +パーライト組織、B材はベイナイト組織、M材はマルテンサイト組織であった。熱間圧延後、圧下率を67%として、板厚が1.0 mmとなるように冷間圧延を施した。それぞれの試料における熱延板および冷延板組織は先行研究⁸⁾で報告している。

冷間圧延後、昇温速度0.5 °C/sで、760 °C以下の種々の温度まで加熱した後、室温まで水冷した。さらに、一部の試験においては、0.5 °C/sで750 °Cまで昇温した後、1000 s間の等温焼なましも行った。遅い昇温速度(=0.5 °C/s)で昇温したのは、 α 単相域で α 再結晶を完了させるためである。なお、供試鋼の A_{c1} および A_{c3} 変態点はそれぞれ約670および820 °Cであり、730 °Cまでの $\alpha + \gamma$ 二相域焼なましにおける研究成果は先行研究において報告している⁸⁾。水冷過程において、 $\alpha + \gamma$ 二相域焼なまし中に形成された γ をマルテンサイトに変態させている。初期組織がマルテンサイト単一であるM材においても、先行研究⁸⁾で明らかにしたように $\alpha + \gamma$ 二相域加熱前(610 °C)に α 再結晶が完了し、初期組織中のマルテンサイト組織を含んでいないので、水冷後のマルテンサイト分率は $\alpha + \gamma$ 二相域焼なまし中に形成された γ 分率に相当する。

試料のマイクロ組織観察には光学顕微鏡を用いた。腐食液にはレペラー溶液(エタノールに1%Na₂S₂O₅と4%ピクリン酸を混合した溶液)を用いた⁹⁾。レペラー溶液はマルテンサイト組織の存在を明確にするエッチング液として知られている。また、ASTM E 562に準拠したポイントカウント法を用いて、試料の γ 分率を算出した。なお、ポイント数は1つの試料につき2475とした。また、硬質相($\alpha + \gamma$ 二相域焼なまし後のマルテンサイト)の形態および分布の定量的な評価のために、ASTM E112の粒度解析における切断法を参考に、島状マルテンサイト($\alpha + \gamma$ 二相域焼なまし中の γ 粒)のアスペクト比(RD長さ/ND長さ)を算出した。さらに、 α/γ 境界におけるCおよびMnの分配状態については、FE-SEM/EDS(Field Emission-Scanning Electron Microscope/ Energy Dispersive X-ray Spectroscopy)を用いた線分析により調査した(加速電圧: 15 kV)。

3 実験結果

レペラー溶液でエッチングした試料のマイクロ組織をFig. 1に示す。Fig. 1のマイクロ組織における白い領域はマルテンサイトであり、位置、形状、サイズとも、 $\alpha + \gamma$ 二相域焼なまし中の γ に対応する。また、先行研究⁸⁾において、 $\alpha + \gamma$ 二相域焼なまし前に α 再結晶が完了していることを確認している。焼なまし温度の上昇に伴って、 γ 分率が増加していることが分かる。さらに、700 °Cで焼なましした場合、初期組織に関わらずセメントイトが観察された(Fig. 1(a-c))。730 °Cで焼なましした試料の場合、PおよびB材の γ は圧延方向に連なっていたのに対し、M材の γ は均一に分布していた(Fig. 1(d-f))。しかしながら、750 °Cで焼なましした試料においては、初期組織に関わらず、 γ が圧延方向に連なっていた(Fig. 1(g-i))。

Fig. 1 Typical microstructures of LePera-etched specimens (a) P, (b) B and (c) M heated to 700 °C, specimens (d) P, (e) B and (f) M heated to 730 °C, and specimens (g) P, (h) B and (i) M heated to 750 °C (α' : martensite and/or bainite, θ : cementite particle).

$\alpha + \gamma$ 二相域焼なまし中における γ 分率の変化をFig. 2 (a)に示す。700 °Cで焼なましした場合、初期組織に関わらず γ 分率にほとんど差異は見られなかった。710~730 °Cにおいては、PおよびB材に比べてM材の γ 分率が高いことを先行研究でも報告している⁸⁾。しかしながら、今回注目すべきは、740 °C以上で焼なましした場合、 γ 分率が $P > B > M$ の順に高くなった点である。730および750 °Cで焼なましした試料における γ のアスペクト比をFig. 2 (b)に示す。730 °Cで焼なまししたPおよびB材における γ のアスペクト比は1.0より高かった。この結果は、 γ が圧延方向に伸長していることを示している。一方で、730 °Cで焼なまししたM材における γ のアスペクト比はほぼ1.0であった。この結果は、 γ が均一に分布していることを示している。750 °Cで焼なましした試料の場合、いずれの試料においてもアスペクト比が1.0を上回り、圧延方向に γ が伸長していることが定量的に示された。

750 °Cまで昇温後、すぐ水冷した試料における線分析結果をFig. 3 (a-c)に示す。いずれの試料においても、 $\alpha - \gamma$ 間におけるCの分配は見られたものの、Mnは相によらずほ

Fig. 2 (a) Changes in the austenite fraction of specimens P, B and M as a function of annealing temperature (Data from 700 to 730 °C was taken from a previous report⁸⁾), (b) aspect ratio of austenite in specimens P, B and M heated to 730 to 750 °C.

ば均一に分配していた。750 °Cで1000 s等温保持した試料における線分析結果をFig. 3 (d-f) に示す。PおよびB材では、 α - γ 間におけるMnの分配が確認されたのに対し、M材ではMnの分配がほとんど見られなかった。

4 考 察

本研究において興味深い点は、それぞれの試料における γ 生成挙動が、 α - γ 二相域の低温側 (730 °C以下) と高温側 (740 °C以上) とで著しく異なったことである。先行研究において、730 °C以下で焼なましした試料における γ 分率は、PおよびB材に比べてM材のそのほうが高いことを明らかにしており、これはPおよびB材に比べてM材における γ 核生成サイトが多いことに起因している⁸⁾。また、TEM (Transmission Electron Microscopy) および EBSD (Electron Back Scattering Diffraction) を用いて、 γ 核生成サイトの大部分は、再結晶 α 粒界のような大角粒界であることが知られている^{1),2)}。Fig. 1に示したように、 γ のほとんどは再結晶 α 粒界に形成されており、これは先行研究の結果と一致する。一方、Fig. 2 (a) に示したように、740 °C以上における γ 分率はP>B>Mの順に高かった。ここで注目すべきは、730~740 °CにかけてM材の γ 分率がほとんど変化しなかった点である。

Fig. 3 Line analysis for C and Mn in specimens (a) P, (b) B and (c) M heated to 750 °C, and in specimens (d) P, (e) B and (f) M annealed at 750 °C for 1000 s (α_R : recrystallized ferrite, α' : martensite and/or bainite).

C-Mn鋼における γ の核生成および成長はいくつかのプロセスに分けられ、はじめにセメンタイトおよびパーライトの溶解が起こることが報告されている¹⁰⁾。セメンタイトおよびパーライトの溶解が起きた後、 γ 中のCの拡散を伴う γ の成長が起き (パラ平衡)、その後 α 中のMnの拡散を伴う γ の成長が起こる (局所平衡)。750 °Cに加熱した場合、いずれの試料においても α - γ 間でCの分配が見られたのに対し、Mnは二相間で均一に分配していた (Fig. 3 (a-c))。750 °Cで1000 s等温保持した場合、PおよびB材においては α - γ 間でMnの分配が僅かに見られたのに対し、M材では確認されなかった (Fig. 3 (d-f))。これらの結果は、M材における γ の成長の律速因子がPおよびB材とは異なることを示唆している。昇温速度が速いとき、焼なまし中の γ の成長はパラ平衡下で進行するのに対し、昇温速度が遅いときの γ の成長は局所平衡下で進行することが知られている¹¹⁾。また先行研究において、昇温速度が遅い場合は α 再結晶が完了するが、昇温速度が早い場合は未再結晶 α 粒が確認されている⁴⁾。さらに、Ogawaら⁴⁾は、焼なまし温度が A_{c1} 変態点に達したときの未再結晶 α 分率が高いほど、 γ 核生成サイトが増加することを報告している。

したがって、 γ 核生成サイトが少ないときの γ の成長は局所平衡下で進行するのに対し、 γ 核生成サイトが多いとき

の γ の成長はパラ平衡下で進行することが推察される。すなわち、730 °C以下において、PおよびB材では γ の核生成および成長は局所平衡下で進行していたのに対し、M材ではパラ平衡下で進行していたと考えられる。さらに740 °C以上では、いずれの試料においても局所平衡下で γ の成長が進行していたと推察される。 $\alpha + \gamma$ 二相域焼なまし中の γ 分率が低い場合、Mnは α/γ 界面においてのみ拡散することが報告されている^{1), 2)}。また、Mnが α/γ 界面においてのみ拡散していることを示す従来報告¹²⁾におけるEDS元素分析のプロファイルは本研究における結果 (Fig. 3) に類似している。さらに、 $\alpha + \gamma$ 二相域の高温側における γ の成長は、 $\alpha - \gamma$ 間におけるMnなどの置換型固溶原子の体拡散によって律速されることが報告されている^{1), 2)}。730~740 °Cにおいて、M材の γ 分率にほとんど変化が見られなかったのは、 γ の生成の律速過程がパラ平衡から局所平衡に遷移したためと考えられる。

P材とB材とを比較したとき、740 °C以上においてP材の γ 分率がB材より高かった (Fig. 2 (a))。初析 α 中に比べて、パーライト中の γ の成長速度は早いことが知られている¹³⁾。これは、C-richな箇所 (たとえば、パーライトコロニー) が増えるほど、 γ の成長速度が増大することを示唆している。したがって、B材に比べてP材の γ 分率が高かったのは、P材は焼なまし前の初期組織にパーライトコロニーのようなC-richな箇所を含んでいたためと推察される。

γ 分布に着目すると、730 °Cで焼なましした場合、PおよびB材では圧延方向に連なった γ が観察されたのに対し、M材では試料全面に均一に γ が分布していた。この結果は、先行研究⁸⁾と一致する。一方で、750 °Cで焼なましした場合、いずれの試料においても γ が圧延方向に連なっていた。0.1C-2.0Mn鋼における $\alpha + \gamma$ 二相域焼なまし中の γ の成長の律速因子は、 γ 中のMnの体拡散であることが知られている²⁾。したがって、 γ 核生成サイトは再結晶 α 粒界のような大角粒界であるが、必ずしも再結晶 α 粒界に沿って γ が成長するとは限らないと考えられる。 $\alpha + \gamma$ 二相域低温側 (730 °C) において、M材では γ が均一に分布していたが、 $\alpha + \gamma$ 二相域高温側 (750 °C) においては γ が圧延方向に連なっていたのは、再結晶 α 粒界に沿って γ が成長しただけでなく、再結晶 α 粒を蚕食するように成長したためと考えられる。

Fig. 4に各試料における730~750 °Cにおける焼なまし中のマイクロ組織形成挙動の模式図を示す。マイクロ組織形成とCおよびMnの分配との関係を示している。

5 結 言

低炭素鋼板における $\alpha + \gamma$ 二相域焼なまし中の γ 生成挙動におよぼす初期組織の影響を調査した。730 °C以下では、PおよびB材に比べて、M材における γ 分率が高かったのに対し、740 °C以上ではP > B > Mの順に γ 分率が高かった。730 °C以下において、PおよびB材では圧延方向に連結した γ が観察されたのに対し、M材では γ が均一に分布していた。一方で、740 °C以上では、いずれの試料においても圧

延方向に連結した γ が確認された。730 °C以下において、PおよびB材の γ の核生成および成長は局所平衡下で進行していたのに対し、M材のそれらはパラ平衡下で進行していたと考えられる。さらに740 °C以上においては、いずれの試料においても γ の成長は局所平衡下で進行していたと考えられる。

本研究の一部は、公益財団法人日立金属・材料科学財団の研究助成による。ここに感謝の意を表す。

Fig. 4 Schematics showing microstructural evolution and distribution of C and Mn during heating from 730 to 750 °C for each specimen (α_R : recrystallized ferrite, γ : austenite).

参 考 文 献

- 1) N. Maruyama, T. Ogawa and M. Takahashi, "Recrystallization at intercritical annealing in low carbon steel" Materials Science Forum, Vol. 558-559, pp. 247-252 (2007).
- 2) T. Ogawa, N. Maruyama, N. Sugiura and N. Yoshinaga, "Incomplete recrystallization and subsequent microstructural evolution during intercritical annealing in cold-rolled low carbon steels" ISIJ International, Vol. 50, No. 3, pp. 469-475 (2010).
- 3) T. Ogawa, N. Sugiura, N. Maruyama and N. Yoshinaga, "Influence of state of Nb on recrystallization temperature during annealing in cold-rolled low-carbon steels" Materials Science and Engineering A, Vol. 564, pp. 42-45 (2013).
- 4) T. Ogawa, K. Sato, H. Dannoshita, K. Maruoka and K. Ushioda, "Role of Nb on microstructural evolution during intercritical annealing in low-carbon steels" ISIJ International, Vol. 56, No. 12, pp. 2290-2297 (2016).
- 5) S. Uchida, I. Sawa and E. Kamisaka, "Influence of hot rolled microstructure on the recrystallization at surface

- layer of cold rolled low carbon steel sheets” *Tetsu-to-Hagané*, Vol. 70, No. 15, pp. 2144-2151 (1984).
- 6) H. C. Chen, K. Tomokiyo, H. Era and M. Shimizu, “Effect of microstructure in hot rolled steel on the formation of retained austenite and mechanical properties in cold rolled and annealed steel sheet” *Tetsu-to-Hagané*, Vol. 75, No. 4, pp. 626-633 (1989).
 - 7) A. Karmakar, M. Ghosh and D. Chakrabarti, “Cold-rolling and intercritical annealing of low-carbon steel: effect of initial microstructure and heating-rate” *Materials Science and Engineering A*, Vol. 564, pp. 389-399 (2013).
 - 8) T. Ogawa, H. Dannoshita, K. Maruoka and K. Ushioda, “Microstructural evolution during cold rolling and subsequent annealing in low-carbon steel with different initial microstructures”, *Journal of Materials Engineering and Performance*, Vol. 26, pp. 3821-3830 (2017).
 - 9) F. S. Lepera, “Improved etching technique for the determination of percent martensite in high-strength dual-phase steels” *Metallography*, Vol. 12, pp. 263-268 (1979).
 - 10) G. Speich, V. Demarest and R. Miller, “Formation of austenite during intercritical annealing of dual phase steels” *Metallurgical and Materials Transactions A*, Vol. 12, No. 8, pp. 1419-1428 (1981).
 - 11) V. A. Carozzo and P. J. Jacques, “Interactions between recrystallization and phase transformations during annealing of cold-rolled Nb-added TRIP-aided steels” *Material Science Forum*, Vol. 539-543, pp. 4649-4654 (2007).
 - 12) T. Yamashita, Y. Toji and H. Noro “Analysis of $\alpha \rightarrow \gamma$ and $\gamma \rightarrow \alpha$ phase transformation of Si, Mn added steel sheet using diffusion simulation” *Journal of the Japan Institute of Metals*, Vol. 75, pp. 398-405 (2011).
 - 13) F. M. Castro Cerda, I. Sabirov, C. Goulas, J. Sietsma, A. Monsalve and R. H. Petrov, “Austenite formation in 0.2% C and 0.45% C steels under conventional and ultrafast heating” *Materials & Design*, Vol. 116, pp. 448-460 (2017).