Regular Article

Analysis of Three-dimensional Structure and Formation Mechanism of Degenerate Pearlite in Eutectoid Steel

Yuta NAKAMURA¹⁾, Zhi-Lei WANG¹⁾, Toshio OGAWA¹⁾ and Yoshitaka ADACHI^{1)*}

1) Department of Materials Design Innovation Engineering, Graduate School of Engineering, Nagoya University

Abstract: We investigated the three-dimensional morphology and crystallographic characteristics of cementite in degenerate pearlite in eutectoid steel using FIB-SEM. The three-dimensional morphology of cementite in degenerate pearlite was rod-like and/or incomplete plate-like structures. Combining the three-dimensional image with EBSD measurement data revealed that cementite grows in the low index direction. In addition, we also investigated the relationship between the pearlite morphology and the deviation angle from K-S orientation relationship (K-S OR) between austenite and pearlite during phase transformation. The deviation angle from the K-S OR with austenite in the pearlite growth direction side affected the microstructural evolution. Coarse degenerate pearlite was formed when the deviation angle from K-S OR is small, and fine degenerate pearlite and lamella pearlite tended to be formed as the deviation angle increases. From these results, we concluded that the pearlite morphology including degenerate pearlite can be classified by the deviation from K-S OR with austenite.

Keywords: degenerate pearlite; eutectoid steel; three-dimensional analysis; orientation relationship.

Received on Feb. 21, 2020 ; Accepted on Apr. 20, 2020

* Corresponding author. E-mail : adachi.yoshitaka@material.nagoya-u.ac.jp, Address : Nagoya University, Furo-cho Chikusa-ku Nagoya Aichi 464-8603

© 2020 The Iron and Steel Institute of Japan. This is an open access article under the terms of the Creative Commons Attribution-NonCommercial-NoDerivatives license (<https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>).

共析鋼における擬似パーライト組織の三次元構造および生成機構の解析

中村 祐太¹⁾・Zhi-Lei Wang¹⁾・小川 登志男¹⁾・足立 吉隆^{1)*}

Analysis of Three-dimensional Structure and Formation Mechanism of Degenerate Pearlite in Eutectoid Steel

Yuta NAKAMURA, Zhi-Lei WANG, Toshio OGAWA and Yoshitaka ADACHI

1. 緒言

鉄鋼材料におけるパーライト組織は、一般的にフェライト (α) とセメンタイト (θ) の層状 (ラメラ) 組織であり、特別な熱処理を必要とせずに容易に形成され、 α と比較して高強度を有するために機械構造用部材における主要組織の一つとして広く用いられている。

パーライト組織は、 α の結晶方位がほぼ同じであるブロック、さらにその中で θ の配向が同じであるコロニーといった下部組織から構成されていることが良く知られている¹⁾。近年の電子線後方散乱回折法 (Electron BackScattered Diffraction pattern; EBSD) を用いた研究により、ブロック内における α の結晶方位は連続的に変化していることが報告されている²⁾。また、パーライト組織中の α/θ 間の結晶方位関係は、Isachev, Pitsch-Petch および Bagaryatsky の関係のうちのいずれかを満たしていることが知られている³⁻⁵⁾。さらに、パーライト組織中の θ の三次元形態に関する報告がいくつかなされている⁶⁻⁸⁾。たとえば De Graef ら⁶⁾ は、パーライト組織中の θ の分岐構造を三次元的に可視化することで確認している。また、焼鈍によるパーライト組織中の θ の球状化現象^{9,10)} が知られているが、Wang ら^{7,8)} は θ の球状化過程を三次元的に観察することに成功している。

一方パーライト組織には、上述したラメラパーライト組織だけではなく、ラメラパーライト組織が生成する温度域で θ が列状に分断された擬似パーライト組織が生成することが知られている。この擬似パーライト組織は、ラメラパーライト組織と同様にブロックやコロニーといった下部組織を形成し、 α/θ 間ではラメラパーライト組織と同様の結晶方位関係を持つことが報告されている¹¹⁾。また、Miyamoto ら¹²⁾ は共析鋼や過共析鋼において、擬似パーライト組織生成時のオーステナイト (γ) との結晶方位関係が、生成する組織と関連していることを示唆している。しかし

ながら、擬似パーライト組織についての研究例は依然として少なく、擬似パーライト組織中の θ の形態や特徴については必ずしも明らかになっていないのが現状である。

そこで本研究では、擬似パーライト組織中の θ の三次元形態を明らかにするとともに、擬似パーライト組織生成時の γ との結晶方位関係に着目し、その生成機構について検討した。

2. 実験方法

供試材には、Fe-0.77 mass% C の共析鋼を用いた。Table 1 に供試材の化学成分を示す。Fig.1 に示すように、供試材を γ 化 (1273 K $\times$ 120 s) した後、913 K で一定時間等温保持を行い、パーライト変態途中で急冷した。なお、本研究で

Table 1. Chemical composition of the tested steel (mass%).

C	Si	Mn	P	S	Al
0.77	0.21	0.78	0.005	0.003	0.017

Fig. 1. Schematic illustration of the heat treatment condition.

2020年2月21日受付 2020年4月20日受理 (Received on Feb. 21, 2020; Accepted on Apr. 20, 2020)

1) 名古屋大学大学院工学研究科材料デザイン工学専攻 (Department of Materials Design Innovation Engineering, Graduate School of Engineering, Nagoya University)

* Corresponding author. E-mail: adachi.yoshitaka@material.nagoya-u.ac.jp, Address: Nagoya University, Furo-cho Chikusa-ku Nagoya Aichi 464-8603

© 2020 The Iron and Steel Institute of Japan. This is an open access article under the terms of the Creative Commons Attribution-NonCommercial-NoDerivatives license (https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/deed.ja).

は球状化が可能な限り進行していない組織を観察するため、急冷後のマルテンサイト付近の擬似パーライト組織を選択し (Fig.2), 以下の実験を行った。

擬似パーライト組織中の θ を三次元化するために、FIB-SEM (Focused Ion Beam-Scanning Electron Microscope, Hitachi, MI4000L) を用いたシリアルセクションングを行った (研削間隔 20 nm)。また、セクションング開始面についてはEBSD測定も合わせて行った。撮影したセクションング画像をもとに、三次元再構築ソフト Amira (Maxnet) を用いて θ の三次元像を作成した。

擬似パーライト組織生成時の γ との結晶方位関係を調査するために、SEM-EBSD (JEOL, JSM-7001FA) 観察を行った。変態途中のパーライト組織および急冷により得られたマルテンサイトのEBSD測定を行い、その後マルテンサイト部分を γ に逆解析することで、擬似パーライト組織生成時のパーライト中の α と γ がK-S関係を満たしているとしたときのK-S関係からのずれの大きさを算出した。なお、旧 γ 粒再構築ソフトであるROPA^{13,14)} (TSL solutions) を用いて、マルテンサイトから γ への逆解析を行った。また、 α の結晶方位については界面近傍の測定値数点を使用し、その平均値を用いた。

3. 実験結果および考察

3・1 擬似パーライト組織における θ の三次元形態および結晶学的特徴

FIB-SEMを用いて撮影した擬似パーライト組織のSEM像をFig.3に示す。破線で囲われている領域が擬似パーライト組織に対応しており、 θ が列状に分断されている様子が確認できた。また、破線部以外の領域は主にラメラパーライト組織であった。なお、本研究で三次元観察を行ったのは比較的 θ が密に存在する擬似パーライト組織である。Fig.3の破線部における θ を三次元化したものをFig.4に示す。なお、各 θ の色は個々を識別するために変えており、結

晶方位等を表すものではない。擬似パーライト組織中の θ は棒状のものが多く、一部は板が裂けたような形態をしている様子が確認できた。また、複数回行った実験でも同様の結果が得られたことから、擬似パーライト組織中の θ は棒状および板がさけた形態のものが混在していることを明らかにした。従来、ラメラパーライト組織やパーライト組織中における θ の球状化過程については、その三次元形態が報告されている^{6,7)}。また、擬似パーライト組織については、その二次元形態は報告例¹²⁾があり、 α 中に θ が列状に分断された組織である。それに加え、本研究ではFig.4に示すように擬似パーライト組織の三次元形態が α 中に棒状あるいは板が裂けたような θ が集合したものであることを初めて明らかにした。

ここで、 θ の伸長方向に着目すると、同一ブロック内における棒状 θ はいずれも同じ方向に伸長していたことから、棒状 θ はある結晶方位に沿って伸長していると考えられる。そこで、 θ の伸長方向についてEBSD測定による結晶方位解析を試みた。シリアルセクションング前に行ったEBSD測定では、 θ の結晶方位については測定できなかったため、 θ と隣接している α の結晶方位を測定した。また、EBSD測定はシリアルセクションング前のみ行ったため、ブロック内における α の結晶方位が一定であることを前提として解析した。

まず、棒状 θ に隣接する比較的板に近い θ が接している α の面について結晶方位解析を行った。その結果、隣接する α の結晶方位をマッピングした θ (Fig.5 (a)) とその結晶方位のヒストグラム (Fig.5 (b)) から、およそ (215)_α面にピークが存在していることがわかる。ピークに広がりがあるようにも見えるのは、 θ の晶癖面以外の側面をデータに含んでいることや三次元像の表面の凹凸の影響のためと考えられる。したがって、本研究における擬似パーライト組織

Fig. 2. An example of observation area of degenerate pearlite.

Fig. 3. Typical serial sectioning image (after contrast adjustment).

中の α の晶癖面は $(215)_\alpha$ 面であると推察される。従来、 α/θ 間の結晶方位関係において、 α と θ が接している晶癖面で面並行関係を持つことが多いことが報告されている³⁾。このことから、 α/θ 間の考えられる3つの結晶方位関係³⁻⁵⁾のうち、本研究ではPitsch-Petch ($(001)_\theta \parallel (5\bar{2}1)_\alpha$, $[100]_\theta$ 2.6° from $[13\bar{1}]_\alpha$, $[010]_\theta$ 2.6° from $[113]_\alpha$) の関係が成り立っていると考えられる。Samuelら⁴⁾は、 γ 粒界からパーライト組織が生成する場合、 α/θ 間ではPitsch-Petchの関係が成り立つことを報告している。つまり、Fig.3に示したSEM像においては必ずしも明瞭ではないが、本研究における擬似パーライト組織は γ 粒界から生成していると考えられる。

また、三次元像の最大フェレ径と α の結晶方位を用いて、棒状 θ の長軸方向の結晶方位を解析した結果をFig.6に示す。Fig.6は、棒状 θ が α のどの結晶方位に沿って伸長しているかを表している。ここでフェレ径とは、ある図形に外

接するように2本の平行線を引き、その平行線間の長さのことである。三次元再構築ソフトAmiraでは、平行線間の長さが最大になるときのフェレ径を最大フェレ径とし、この最大フェレ径が棒状 θ の伸長方向と対応する。さらに、最大フェレ径 (棒状 θ の伸長方向) の角度情報を取得できるため、その角度を棒状 θ の傾きの指標として用いた。Fig.6に示すように、若干のばらつきはあるものの、おおよそ $[113]_\alpha$ 方向に沿って棒状 θ が伸長していると考えられる。ここで、面方位解析で推定したPitsch-Petchの関係が α/θ 間で成り立っているとすると、 α の $[113]_\alpha$ 方向に沿って棒状 θ が伸長しているということは、 θ は $[100]_\theta$ あるいは $[010]_\theta$ という比較的低指数方位に伸長していると推察される。

Fig. 4. Three-dimensional image of degenerate pearlite.

Fig. 6. Orientation in the elongated direction of rod-like cementite (ferrite orientation).

Fig. 5. (a) Orientation of cementite adjacent to ferrite and (b) orientation histogram of ferrite adjacent to cementite of (a).

これらのことから、擬似パーライト組織は α 中に一方位に伸長した棒状 θ および板が裂けたような θ が集合した組織であることを明らかにした。

3・2 擬似パーライト組織生成時の γ との結晶方位関係の影響

従来、擬似パーライト組織の生成機構には、組織生成時の γ との結晶方位関係が重要であることが指摘されている¹²⁾。また上述したように、本研究で観察された擬似パーライト組織は γ 粒界から生成していると考えられる。そこで本研究においても、擬似パーライト組織の生成機構を考察するにあたり、擬似パーライト組織生成時の γ との結晶方位関係に着目した。なお、擬似パーライト組織生成時の γ との結晶方位関係を解析するにあたり、パーライト組織の形態を3つに分類した。具体的には、一般的なラメラパーライト (Lamella) 組織 (Fig.7 (a)), θ が密な擬似パーライト (Fine Degenerate Pearlite: Fine DP) 組織 (Fig.7 (b)) および θ が粗な擬似パーライト (Coarse Degenerate Pearlite: Coarse DP) 組織 (Fig.7 (c)) に分類した。なお、Fig.4に示した三次元観察は密な擬似パーライト (Fine DP) 組織での結果である。

γ 粒界からパーライト組織が生成する際のパーライト組織中の α と γ とのK-S関係からのずれの大きさと組織形態の関係をFig.8に示す。成長方向と反対側の γ とのK-S関係からのずれ角 (Fig.8 (a)) は、パーライト組織形態によらず比較的K-S関係を保っている ($<15^\circ$) のことが多い。この傾向はいくつかの研究で報告されており^{15,16)}、それらの結果とよく一致する。また、ずれ角の分布についても、パーライト組織形態による差異はほとんど見られないことから、成長方向と反対側の γ との結晶方位関係がパーライト変態における組織形態に及ぼす影響は極めて小さいと考えられる。

一方注目すべきは、成長方向の γ とのK-S関係からのずれ角の分布 (Fig.8 (b)) がパーライト組織形態により異なっている点である。この結果は、K-S関係からのずれ角がおおよそ 15° を境に、ずれが大きいつきにはラメラパーライト組織、小さいときにはラメラパーライト組織以外 (粒界フェライト、粒界セメンタイト、擬似パーライト) が生成することを報告したMiyamotoらの研究結果¹²⁾とよく一致している。ここで、パーライト組織の成長における炭素の拡散を考えたとき、拡散経路としては γ 中の体拡散とパー

Fig. 7. SEM images of (a) lamella pearlite (Lamella), (b) fine degenerate pearlite (Fine DP), and (c) coarse degenerate pearlite (Coarse DP).

Fig. 8. Deviation angle from K-S OR with (a) opposite side to growth side austenite and (b) growth side austenite.

Fig. 9. Deviation angle from K-S OR with austenite on both sides.

ライト γ の界面拡散とが考えられる¹⁷⁾。Mouriらのフェーズフィールド法を用いた研究¹⁸⁾では、高温域におけるパーライト変態は炭素の体拡散律速であるが、873 K–923 Kを境にして低温域では界面拡散律速に変化する可能性があることを報告している。本研究におけるパーライト変態温度は913 Kであることから、パーライト組織の成長は炭素の界面拡散律速である可能性が高いと考えられる。 α/γ 界面においてK-S関係を保つということは、 α/γ 界面の整合性が良いということである。つまり、K-S関係からのずれ角が小さいほど α/γ 界面の整合性がよく、整合性が良い界面では炭素などの溶質原子の拡散（界面拡散）が遅くなると考えられる^{12,19)}。したがって、パーライト組織が成長する側の γ とK-S関係を保つほど律速過程である界面拡散が遅くなり、 θ が成長しにくくなると推察される。その結果、K-S関係を保っている場合ほど θ が十分に板状に成長できず、棒状 θ が並んだ擬似パーライト組織が生成すると考えられる。

また、一つひとつのパーライト組織に対し、パーライト組織の成長方向および成長方向と反対側の γ とのK-S関係からのずれ角の関係をプロットしたものをFig.9に示す。Fig.8に示した結果と同様に、比較的K-S関係を保つ（ $<15^\circ$ ）ときは θ が粗な擬似パーライト組織が生成し、ずれ角が大きくなるにつれて θ が密な擬似パーライトおよびラメラパーライト組織が生成することがわかった。このことから、擬似パーライト組織を含めたパーライト組織の生成機構には、パーライト生成時の γ との結晶方位関係が大きく影響していることを明らかにした。

4. 結言

本研究では、共析鋼における擬似パーライト組織中の θ の三次元形態および特徴について、FIB-SEMを用いて調査

した。また、擬似パーライト組織生成時の γ との結晶方位関係に着目し、その結晶方位関係が組織形態に及ぼす影響を調査した。その結果、以下のことを明らかにした。

- (1) 共析鋼における擬似パーライト組織中の θ の三次元形態は棒状あるいは板が裂けたような形状であった。
- (2) 擬似パーライト組織中の棒状 θ は一方方向かつ低指数方向に伸長していた。
- (3) 擬似パーライト組織を含むパーライトの組織形態には、成長方向の γ との結晶方位関係が影響しており、結晶方位関係の保つ程度で組織形態を分類することができた。

謝辞

本研究における供試材をご提供いただいた日本製鉄株式会社の太田善弘氏に感謝の意を表する。

文 献

- 1) T.Takahashi, M.Nagumo and Y.Asano: *J. Jpn. Inst. Met.*, **42**(1978), 716 (in Japanese). https://doi.org/10.2320/jinstmet1952.42.7_716
- 2) N.Nakada, N.Koga, T.Tsuchiyama and S.Takaki: *Scr. Mater.*, **61**(2009), 133. <https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2009.03.028>
- 3) D.S.Zhou and G.J.Shiflet: *Metall. Trans. A*, **23**(1992), 1259. <https://doi.org/10.1007/BF02665057>
- 4) F.H.Samuel: *Trans. Iron Steel Inst. Jpn.*, **23**(1983), 403. <https://doi.org/10.2355/isijinternational1966.23.403>
- 5) Y.Ohori: *Tetsu-to-Hagane*, **69**(1983), 1095 (in Japanese). https://doi.org/10.2355/tetsutohagane1955.69.9_1095
- 6) M.De Graef, M.V.Kral and M.Hillert: *JOM*, **58**(2006), 25. <https://doi.org/10.1007/BF02748491>
- 7) Y.-T.Wang, Y.Adachi, K.Nakajima and Y.Sugimoto: *Acta. Mater.*, **58**(2010), 4849. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2010.05.023>
- 8) Y.-T.Wang, Y.Adachi, K.Nakajima and Y.Sugimoto: *ISIJ Int.*, **52**(2012), 697. <https://doi.org/10.2355/isijinternational.52.697>
- 9) Y.L.Tian and R.W.Kraft: *Metall. Trans. A*, **18**(1987), 1403. <https://doi.org/10.1007/BF02646654>
- 10) Y.L.Tian and R.W.Kraft: *Metall. Trans. A*, **18**(1987), 1359. <https://doi.org/10.1007/BF02646650>
- 11) T.Furuhashi, T.Moritani, K.Sakamoto and T.Maki: *Mater. Sci. Forum*, **539-543**(2007), 4832. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/MSF.539-543.4832>
- 12) G.Miyamoto, Y.Karube and T.Furuhashi: *Acta. Mater.*, **103**(2016), 370. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2015.10.032>
- 13) G.Miyamoto, N.Takayama and T.Furuhashi: *Scr. Mater.*, **60**(2009), 1113. <https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2009.02.053>
- 14) G.Miyamoto, N.Iwata, N.Takayama and T.Furuhashi: *Acta. Mater.*, **58**(2010), 6393. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2010.08.001>
- 15) Y.Ohori: *Tetsu-to-Hagane*, **57**(1971), 1562 (in Japanese). https://doi.org/10.2355/tetsutohagane1955.57.9_1562
- 16) F.H.Samuel and A.A.Hussein: *Trans. Iron Steel Inst. Jpn.*, **23**(1983), 65. <https://doi.org/10.2355/isijinternational1966.23.65>
- 17) A.S.Pandit and H.K.D.H.Bhadeshia: *Proc. R. Soc. A*, **467**(2011), 2948. <https://doi.org/10.1098/rspa.2011.0165>
- 18) Y.Mouri, Y.Tsukada and T.Koyama: *Tetsu-to-Hagane*, **105**(2019), 305 (in Japanese). <https://doi.org/10.2355/tetsutohagane.TETSU-2018-081>
- 19) Y.J.Zhang, G.Miyamoto, K.Shinbo and T.Furuhashi: *Scr. Mater.*, **69**(2013), 17. <https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2013.03.020>