

EFEITO DA MICROESTRUTURA PRÉVIA NAS PROPRIEDADES DE UM AÇO BIFÁSICO COM REQUISITO DE EXPANSÃO DE FURO*

Marcus Vinícius Pereira Arruda¹
Túlio Magno Fuzessy de Melo²
Fernando de Souza Costa³
Dagoberto Brandão Santos⁴

Resumo

O objetivo deste estudo foi avaliar a influência da microestrutura prévia, do material como laminado a quente, sobre a microestrutura e as propriedades mecânicas finais de um aço bifásico laminado a frio com requisito de expansão cônica de furo (ECF). Para isso, chapas com dois tipos de microestruturas prévias, uma formada por ferrita, bainita e martensita (FBM) e a outra por ferrita e perlita (FP), foram laminadas a frio em escala piloto e submetidas a ciclos de recozimento contínuo com diferentes temperaturas de encharque. Em seguida, realizaram-se caracterizações em termos de microestrutura, testes de tração e ECF. De maneira geral, a microestrutura prévia FBM mostrou maiores valores de limite de resistência e escoamento e menores valores de alongamento quando comparada com as amostras originadas da microestrutura prévia FP. Tal resultado foi atribuído à maior quantidade de 2ª fase na microestrutura originada a partir de FBM, confirmada via análise de imagem, EBSD e curvas de transformação por dilatométrica. A adoção de temperaturas de recozimento intercrítico mais elevadas propiciou melhor homogeneidade da microestrutura e, conseqüentemente, maior capacidade de expansão de furo.

Palavras-chave: Dual Phase; Microestrutura Prévia; Expansão de Furo.

EFFECT OF THE INITIAL MICROSTRUCTURE ON THE PROPERTIES OF DUAL PHASE STEEL WITH HER REQUIREMENT

Abstract

The purpose of this article was to evaluate the effect of the previous hot rolled microstructure on the microstructure and final mechanical properties of a cold rolled Dual Phase steel with hole expansion ratio (HER) requirement. Samples with different initial microstructures, one of them consisting of ferrite, bainite and martensite (FBM) and the other by ferrite and pearlite (FP), were cold rolled on a laboratory mill and submitted to continuous annealing cycles. The treated specimens were submitted to microstructural characterization and tensile and HER tests. In general, the FBM microstructure showed higher values of tensile strength and yield strength and lower total elongation than samples from FP microstructure. This result was attributed to the higher amount of 2nd phase in the microstructure originated from FBM, confirmed by quantifications through image analysis, EBSD and dilatometry transformation curves. On the other hand, higher intercritical annealing temperature resulted in more homogeneous microstructures and higher HER capacity.

Keywords: Dual Phase; Initial Microstructure; Hole Expansion Ratio

¹ Engenheiro de Materiais, Pesquisador Pleno, CP&D Usiminas, Ipatinga, MG, Brasil.

² Engenheiro Mecânico, Dr.-Ing., Pesquisador Especialista Sênior, CP&D Usiminas

³ Físico, M.Sc., D.Sc., Pesquisador Especialista Pleno, CP&D, Usiminas, Ipatinga, MG, Brasil.

⁴ Professor Titular, Dr., Departamento de Engenharia Metalúrgica e de Materiais, UFMG.

1 INTRODUÇÃO

O processamento típico dos aços *Dual Phase* (DP) laminados a frio na etapa de laminação a quente prevê a obtenção de uma microestrutura constituída por ferrita e perlita. Entretanto, levando-se em conta que o aumento de resistência dessa classe de aço passa por intervenções na sua composição química, que visam, principalmente, a elevação da sua temperabilidade, outros constituintes como bainita e martensita podem se formar durante o resfriamento da bobina a quente. Além disso, diferentes taxas de resfriamento ao longo da largura e do comprimento de uma bobina a quente poderão produzir microestruturas distintas. Nos processos seguintes da produção típica dessa classe de aço, essas diferentes microestruturas serão deformadas a frio e recozidas em linhas contínuas. Dessa forma, os mecanismos de nucleação e crescimento da austenita poderão ser influenciados pela microestrutura prévia durante o recozimento intercrítico desse aço, acarretando variações na uniformidade microestrutural e da partição do carbono e de elementos de liga entre as fases ferrita e austenita [1-7]. Como resultado, as propriedades mecânicas e a microestrutura do aço, após o seu resfriamento a partir de temperaturas intercríticas poderão ser influenciadas, resultando em heterogeneidades indesejáveis no produto final [8]. Sendo assim, o objetivo deste estudo foi avaliar a influência da microestrutura prévia, no material como laminado a quente, sobre a microestrutura e as propriedades mecânicas finais de um aço DP laminado a frio da classe de resistência de 980 MPa com requisito de expansão de furo. Para isso, chapas com diferentes microestruturas prévias foram laminadas a frio em escala piloto e submetidas a simulações de ciclos de recozimento na Gleeble® e em um dilatômetro, com caracterizações da microestrutura e propriedades mecânicas em testes de tração e expansão cônica de furo.

2 DESENVOLVIMENTO

2.1 Materiais e Métodos

2.1.1 Material

Neste estudo foi avaliado um aço DP980 com requisito de expansão de furo produzido pela Usiminas cujas faixas visadas de composição química estão mostradas na Tabela 1.

Tabela 1. Faixa de composição química visada para o aço DP980 (% em peso)

	C	Mn	Si	P	S	Al	Ti+B
Mín.	-	-	-	-	-	0,030	0,020
Máx.	0,23	3,30	2,0	0,09	0,040	0,070	0,050

2.1.2 Amostragem e caracterização do material laminado a quente

A partir de uma bobina laminada a quente em escala industrial (BQ), com espessura de 3,3 mm, foram obtidas amostras em regiões com diferentes condições de processamento, distanciadas a 5 m e 35 m a partir da ponta da espira externa da BQ. Tais amostras foram caracterizadas por exames metalográficos, ensaios de tração e expansão cônica de furo, em região a um quarto (1/4) da largura da tira, de

forma a caracterizar as diferentes microestruturas prévias decorrentes do processo de laminação a quente do material.

2.1.3 Laminação a frio piloto e simulação dos ciclos de recozimento

As amostras de 150 mm x 250 mm, obtidas a partir de diferentes regiões da BQ, foram laminadas a frio em escala piloto para a espessura de 1,60 mm, resultando em 52% de redução a frio. A partir das tiras na condição de laminadas a frio foram retiradas amostras de 50 mm x 150 mm, com o maior comprimento orientado paralelamente à direção transversal de laminação. Essas amostras foram submetidas a ciclos de recozimento com temperaturas de encharque de 760°C, 800°C e 820°C (T1), utilizando um simulador termomecânico Gleeble® modelo 3500. O esquema básico dos ciclos, assim como as etapas de um recozimento típico dos aços DP são mostrados na Figura 1. As temperaturas de início de resfriamento rápido (T2) e superenvelhecimento (*overaging*) (T3) foram fixadas em valores tipicamente adotados para o processamento de aços da classe DP. Os tempos de permanência em cada etapa do ciclo foram calculados com base em uma velocidade típica de recozimento. A partir das amostras recozidas foram retirados os corpos de prova para realização de análise metalográfica e de ensaios de tração e expansão cônica de furo.

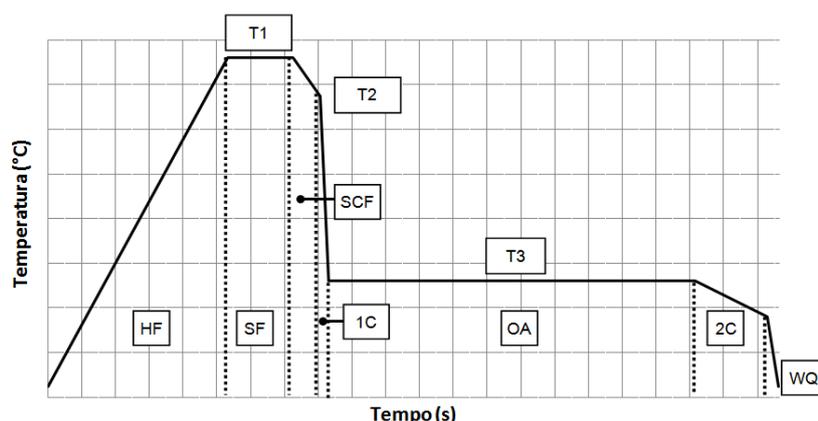


Figura 1. Desenho esquemático do ciclo de recozimento utilizado na Gleeble®. HF: forno de aquecimento; SF: forno de encharque; SCF: forno de resfriamento lento; 1C: forno de resfriamento primário; OA: forno de superenvelhecimento (*overaging*); 2C: forno de resfriamento secundário; WQ: têmpera em água.

2.1.4 Caracterização microestrutural

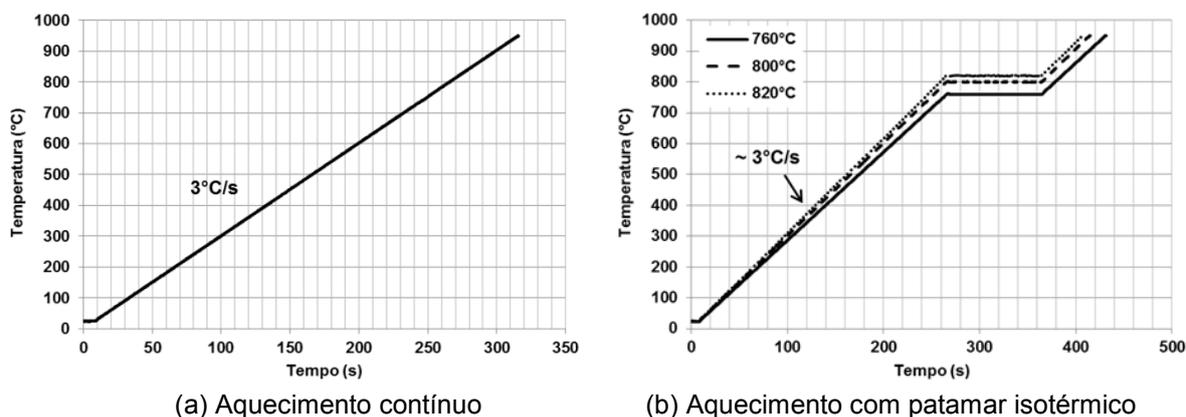
As microestruturas foram caracterizadas por microscopias óptica (MO) e eletrônica de varredura com emissão de campo (MEV-FEG) para o aço nas condições como laminado a quente, laminado a frio (deformado) e após as simulações de recozimento. Para essas análises, as amostras foram preparadas utilizando técnicas metalográficas convencionais, com corte, lixamento e polimento, seguido de ataque com o reativo químico nital 2%. As determinações das frações volumétricas dos constituintes foram feitas utilizando o *software* Axiovision® em imagens adquiridas em microscópio óptico Zeiss®. Para as condições como laminada a frio e recozida, foram realizadas análises por difração de elétrons retroespalhados (EBSD – *Electron Backscatter Diffraction*) acoplado ao MEV-FEG Zeiss-Ultra®.

2.1.5 Propriedades mecânicas

Os ensaios de tração foram realizados em máquina universal eletromecânica, Instron® modelo 5882, com capacidade de 10 t, seguindo as recomendações da norma ASTM A370 [9] para corpos de prova do tipo sub-tamanho. Já os ensaios de ECF foram realizados em prensa de duplo efeito com capacidade de força de 600 kN, adotando uma metodologia elaborada com base na norma ISO 16630 [10] para utilização de amostras recozidas na Gleeble®.

2.1.6 Ensaio dilatométricos

Foram realizadas simulações visando monitorar as transformações de fase que ocorrem durante o aquecimento e o encharque. Os ensaios foram conduzidos em dilatômetro Bähr® modelo DIL805 equipado com o *software* WinTA9.0® para aquisição e tratamento de dados, utilizando corpos de prova de seção retangular medindo 4 mm de largura e 10 mm de comprimento, extraídos das amostras na condição deformada com o maior eixo paralelo à direção de laminação. A Figura 2 apresenta o esquema dos ciclos dessa etapa.



(a) Aquecimento contínuo

(b) Aquecimento com patamar isotérmico

Figura 2. Esquema dos ciclos térmicos simulados em dilatômetro com o objetivo de avaliar a evolução microestrutural ao longo das etapas de aquecimento e encharque.

2.2 Resultados

2.2.1 Microestrutura prévia antes e após deformação a frio

Conforme se verifica na Figura 3, a amostra retirada a 5 m da ponta da BQ mostrou microestrutura acicular com presença de ferrita, bainita, martensita e pequena quantidade de perlita. Esses constituintes se apresentaram distribuídos de maneira aleatória e refinados. Para a posição de 35 m, a microestrutura foi majoritariamente formada por bandas de ferrita e perlita, com distribuição mais heterogênea e menos refinada em relação à microestrutura a 5 m. Por questão de resolução dos constituintes ao maior aumento disponível no microscópio óptico, a quantificação de fases foi realizada somente para a amostra a 35 m, cujos resultados mostraram 74% de ferrita e 26% de perlita. Para facilitar a citação dessas microestruturas prévias ao longo do artigo, as designações FBM e FP foram estabelecidas para as posições de 5 m e 35 m, respectivamente.

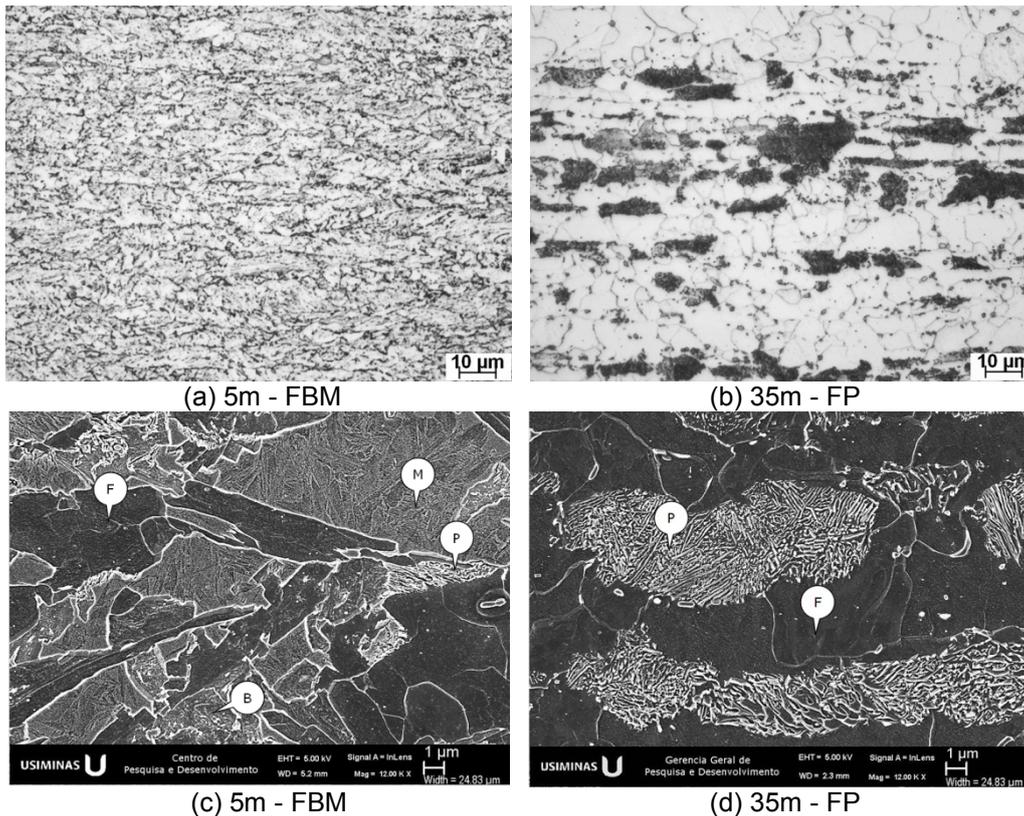


Figura 3. Microestrutura prévia do aço DP980 como laminado a quente em região distanciada de 5 m e 35 m da ponta da bobina, avaliadas por (a, b) MO e (c, d) MEV. F: ferrita; P: perlita; B: bainita e M: martensita.

A Figura 4 mostra o aspecto das microestruturas prévias FBM e FP após a redução a frio de 52% pela laminação piloto, juntamente com os resultados das análises por EBSD. Para a microestrutura prévia FBM (Figura 4a) verifica-se um aspecto de deformação mais intenso, com maior densidade de contornos de grão, quando comparado com o da microestrutura FP (Figura 4b). Tal avaliação foi confirmada pelas análises via EBSD (Figuras 4c e 4d), onde uma considerável distorção da estrutura cristalina do material foi indicada pelo baixo padrão de qualidade de difração de elétrons (EBSP - *Electron Backscatter Pattern*) para FBM em relação à FP. A baixa qualidade do EBSP está relacionada com baixos valores de *band slope* que, por sua vez, indicam a ocorrência de defeitos lineares gerados por deformação plástica, tais como as deslocamentos [11]. Uma maior densidade desses defeitos servirão como pontos de nucleação heterogênea da fase austenítica durante o aquecimento dessas microestruturas [12]. Além disso, o fato de a microestrutura FBM se apresentar mais refinada em relação à FP irá favorecer a nucleação e o crescimento da austenita durante o aquecimento devido à taxa de difusão do carbono em regiões de contorno de grão ser muito maior quando comparada com seu interior [13].

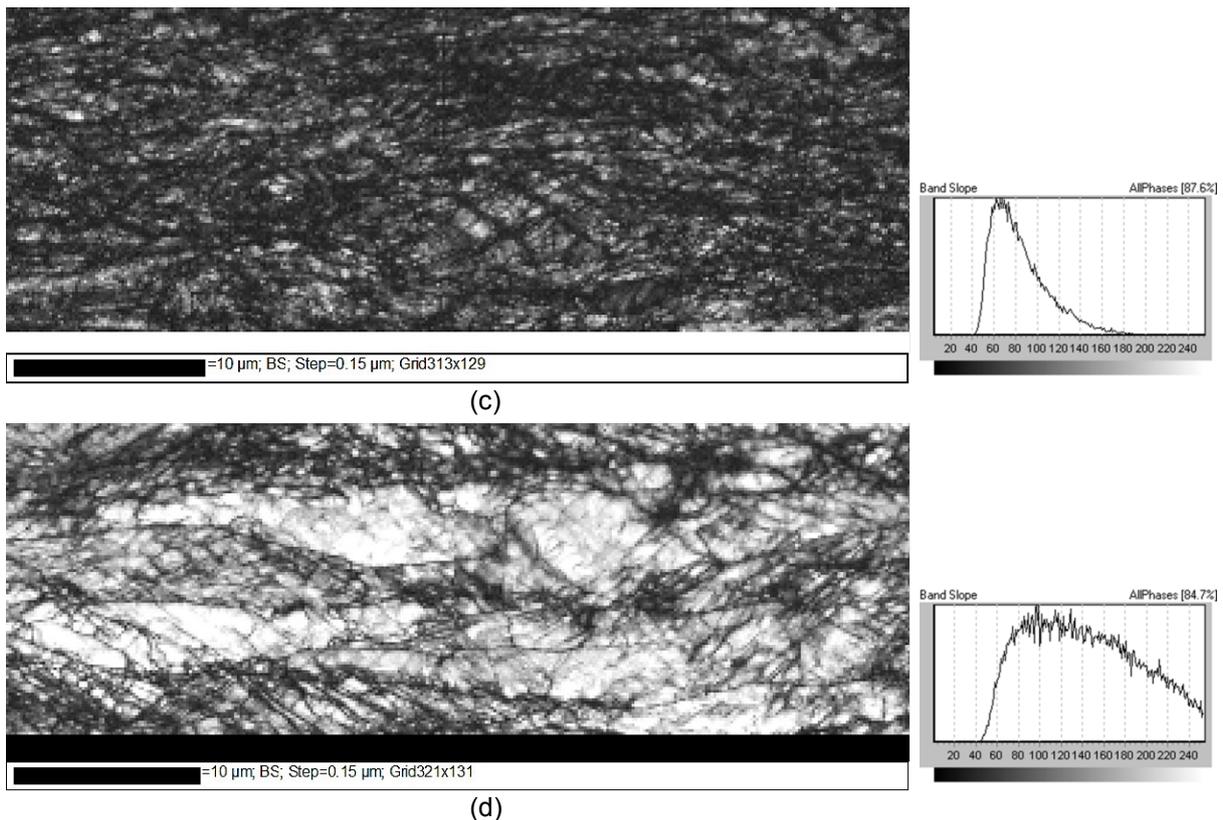
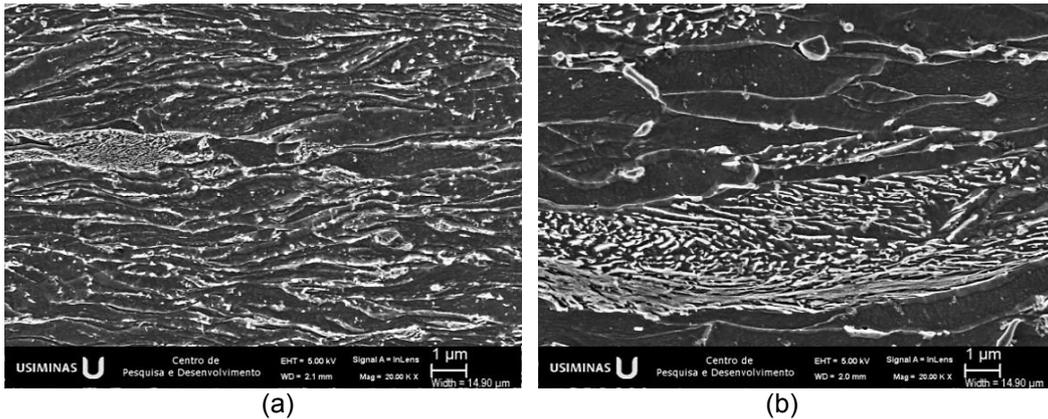


Figura 4. Aspecto ao MEV das microestruturas prévias (a) FBM e (b) FP após a redução a frio (52%) e seus respectivos resultados de análise por EBSD, (c) e (d).

2.2.2 Microestrutura após simulações de recozimento

A Tabela 2 mostra os resultados da quantificação de fases realizada nas microestruturas obtidas após a simulação de recozimento para as diferentes microestruturas prévias. Nessa avaliação, a fração de 2ª fase foi definida como sendo o somatório das frações de bainita e martensita e obtida pela diferença de 100% pela fração de ferrita medida. Verificou-se que a quantidade de ferrita reduziu consideravelmente quando do aumento da temperatura de encharque de 760°C para 800°C, o que é explicado pela maior formação de austenita para as temperaturas intercríticas mais elevadas. Contudo, quando a temperatura passou de 800°C para 820°C não foram percebidas diferenças significativas das frações de ferrita e 2ª fase.

Tabela 2. Resultados da quantificação de fases realizada via microscopia óptica para as microestruturas prévias (MP) FBM e FP após simulação dos ciclos de recozimento em diferentes temperaturas de encharque

MP	Encharque (°C)	Ferrita (%)	2ª fase (%)	Desvio padrão
FBM	760	48	52	2
	800	18	82	2
	820	24	76	3
FP	760	54	46	2
	800	25	75	3
	820	28	72	3

O aspecto típico da microestrutura para cada condição de recozimento simulada é mostrado na Figura 5. De maneira geral, o aumento da temperatura de encharque foi determinante para promover as principais mudanças na microestrutura das amostras simuladas, sendo verificado que a fração de 2ª fase, especialmente de bainita, aumentou em detrimento da ferrita com a elevação da temperatura intercrítica. Dessa forma, para a menor temperatura avaliada, 760°C, a microestrutura se mostrou constituída preferencialmente por ferrita e martensita, enquanto que para as temperaturas de encharque de 800°C e 820°C, a microestrutura apresentou ferrita, bainita e martensita.

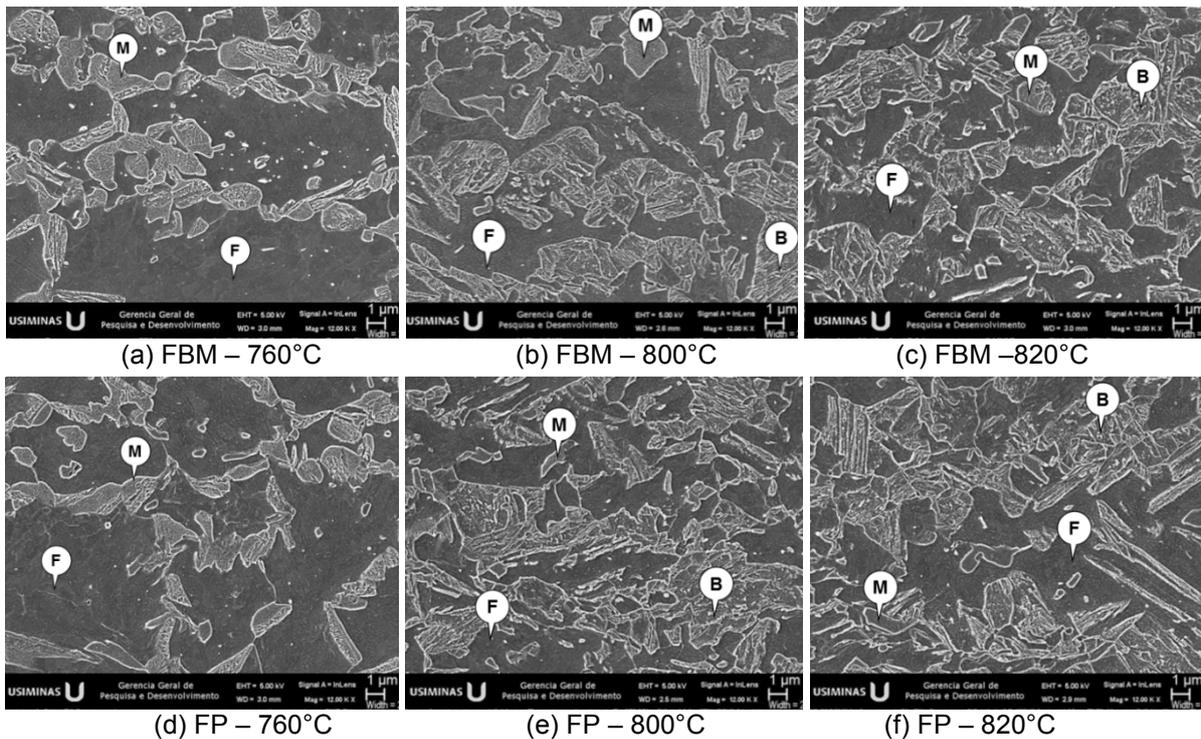


Figura 5. MEV da microestrutura após simulação de recozimento com diferentes temperaturas de encharque para as microestruturas prévias FPM e FP. F: ferrita; P: perlita; B: bainita e M: martensita.

A maior quantidade de 2ª fase medida para as amostras com microestrutura prévia FBM não foi percebida facilmente pelo aspecto da microestrutura ao MEV. Contudo, os resultados obtidos via EBSD mostraram mapas dos valores de *band slope* e *local misorientation* que sugerem maiores volumes de 2ª fase para a microestrutura FBM em relação à FP. Nesses mapeamentos, o grau de desorientação pode ser associado com as fases presentes, sendo, nesse caso, a ferrita o constituinte de melhor qualidade de EBSP, ou altos valores de *band slope*, e a martensita o pior padrão de qualidade (Figura 6) [11].

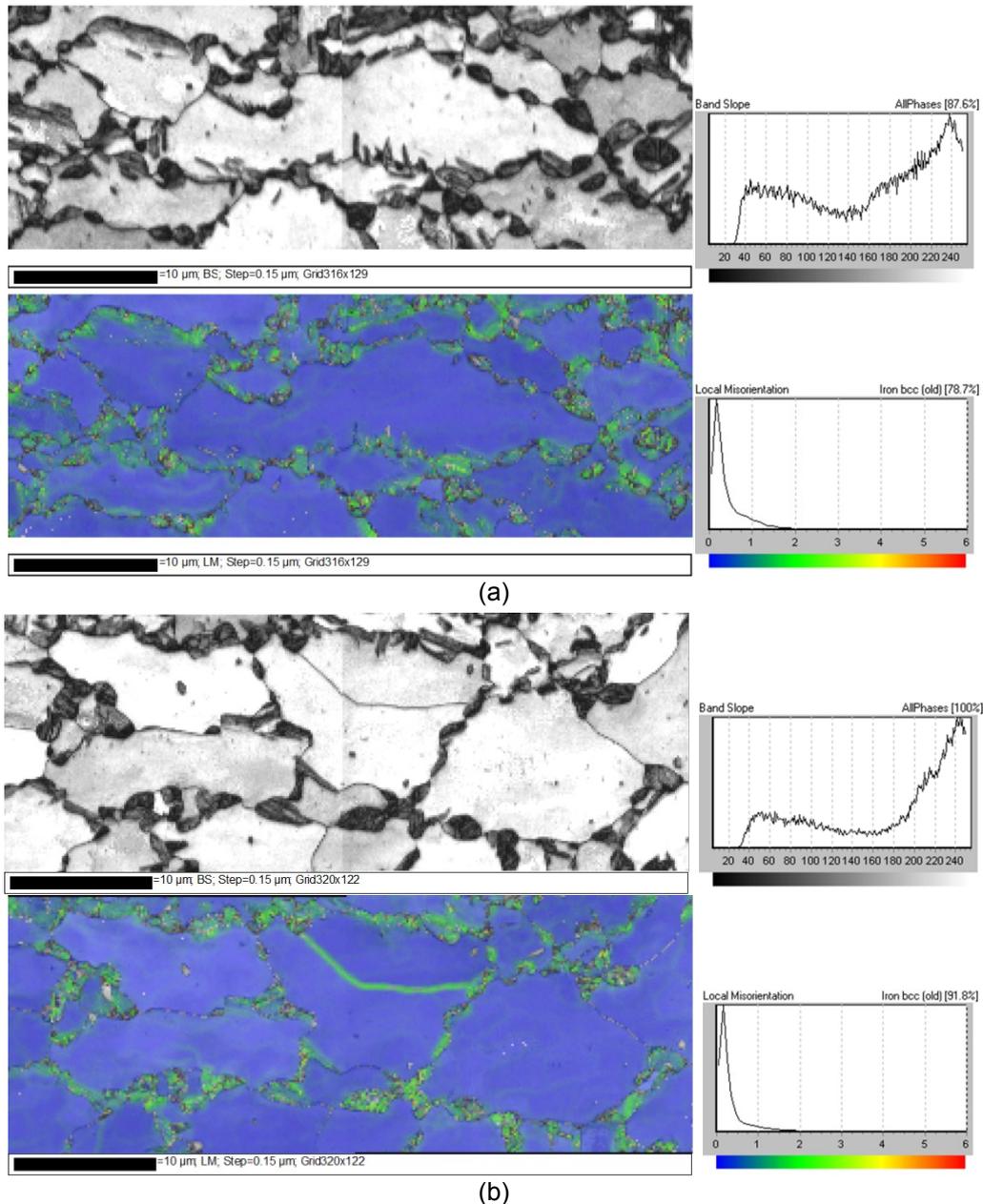


Figura 6. Mapas de *band slope* e *local misorientation* para as microestruturas prévias (a) FBM e (b) FP após simulação de recozimento para a temperatura de 760°C.

2.2.3 Formação da austenita ao final do encharque via dilatometria

A cinética de formação da austenita durante o aquecimento até o final do encharque foi investigada para as diferentes microestruturas prévias FBM e FP, cujas curvas de transformação estão mostradas na Figura 7. No aquecimento contínuo, verifica-se que a transformação da austenita foi antecipada para a microestrutura prévia FBM em relação à FP, com medições das respectivas temperaturas de início de transformação austenítica (Ac_1) de 708°C e 727°C. Da mesma forma, a temperatura final da transformação (Ac_3) aumentou de 847°C para 865°C. Tal resultado é similar ao encontrado por Melo e colaboradores [14], onde foi observado que a bainita propiciou uma diminuição de aproximadamente 10°C na temperatura Ac_1 . Por outro lado, a temperatura Ac_3 não foi alterada. Do ponto de vista de Melo, durante a

evolução microestrutural na etapa de aquecimento, pode ter ocorrido algum ganho na cinética de dissolução da bainita e martensita em virtude da presença de carbonetos mais finos, em comparação com os encontrados em uma estrutura constituída tipicamente por ferrita e perlita, o que favoreceu a formação e o crescimento da austenita.

Para as três temperaturas de encharque avaliadas, observa-se um patamar isotérmico na curva de transformação da austenita, onde o seu final pode ser considerado a fração de austenita formada ao término do encharque. Essas frações foram medidas e, de maneira geral, verificou-se um aumento considerável com a elevação da temperatura de encharque para as duas microestruturas prévias. Comparando-se separadamente as curvas em cada temperatura, a fração de austenita formada ao final do encharque se mostrou maior partindo da microestrutura prévia FBM em relação à FP, corroborando as medições realizadas por análise de imagem. O fato de essa diferença ter sido menor para a temperatura de 820°C indica que a cinética de formação da austenita foi influenciada pela microestrutura prévia, principalmente nos estágios iniciais de nucleação e crescimento.

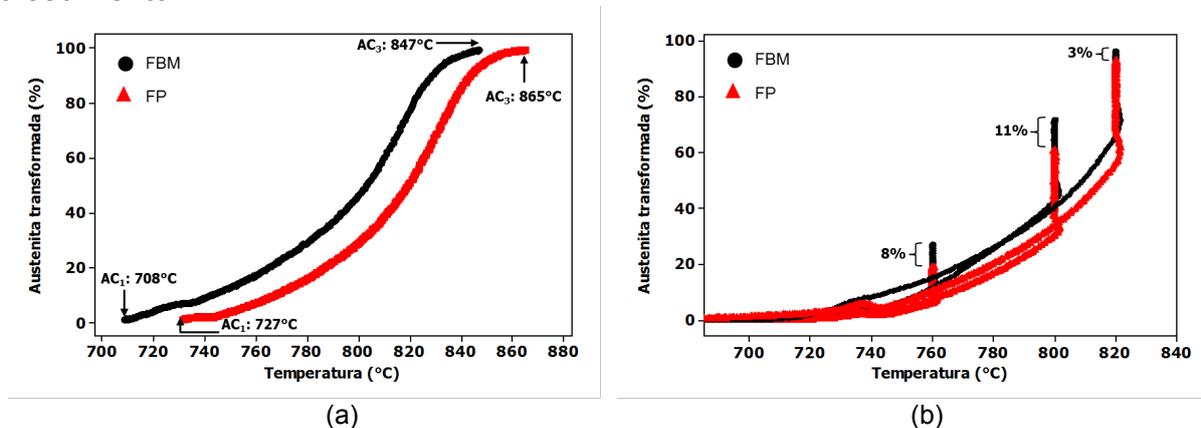


Figura 7. Fração de austenita formada durante (a) aquecimento contínuo e (b) com patamares nas temperaturas de 760°C, 800°C e 820°C.

2.2.4 Propriedades mecânicas

2.2.4.1 Laminado a quente e deformado

Os valores de limite de resistência (LR) e escoamento (LE) obtidos em ensaio de tração em direção transversal à de laminação do material nas condições como laminado a quente (LQ) e após redução a frio em laminação piloto (DF), são mostrados na Figura 8. De maneira geral, os valores de LR e LE foram consideravelmente maiores para a microestrutura prévia FBM em relação à FP para ambas as condições. Tais resultados são coerentes com a microestrutura apresentada no item 2.2.1 para as respectivas condições LQ e DF.

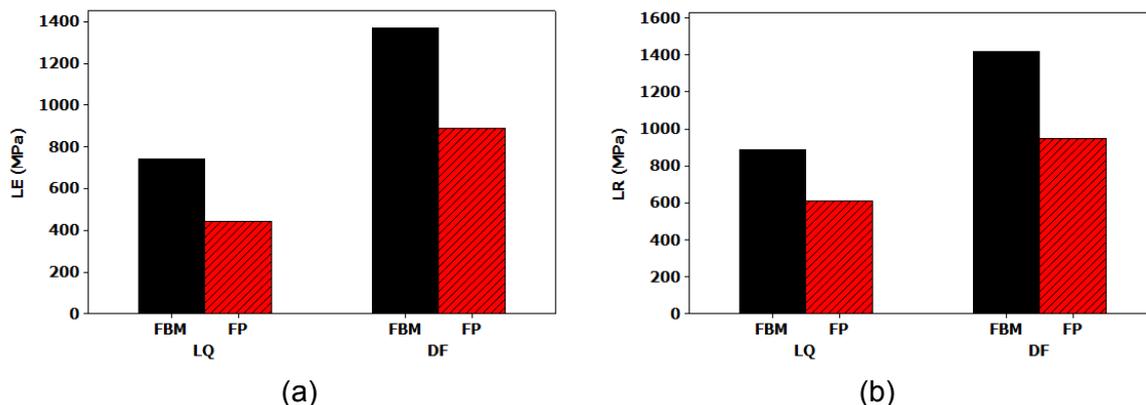


Figura 8. Valores médios de LE (a), LR (b) para as amostras do aço DP980 nas condições de laminado a quente (LQ) e após redução a frio por laminação em escala piloto (DF) para as diferentes microestruturas prévias FBM e FP.

2.2.4.2 Após simulação dos ciclos de recozimento contínuo

As propriedades mecânicas em tração e ECF em função da temperatura de encharque estão mostradas na Figura 9. Nas temperaturas de 760°C e 800°C, a microestrutura prévia FBM mostrou maiores valores de LR e LE e menores valores de alongamento total (AL) quando comparado com os resultados da microestrutura FP. Já para o encharque em 820°C esse comportamento foi invertido, sendo verificado menores LE e LR e maior AL para FBM em relação a FP.

Com o aumento da temperatura de encharque, especialmente de 760°C para 800°C, verificou-se uma tendência de aumento para LE, LR e AL. Este efeito era esperado para as propriedades LE e LR, tendo em vista o aumento da fração de 2ª fase (bainita + martensita) verificado na caracterização microestrutural. Contudo, no caso do alongamento total o efeito deveria ser o inverso, uma vez que essa propriedade tem relação com a quantidade de ferrita, que diminuiu com a temperatura de encharque. Deste modo, sugere-se que a ferrita formada para a menor temperatura de encharque (760°C), possua alguma peculiaridade, tal como, recristalização incompleta, endurecimento por solução sólida ou, até mesmo, uma distribuição diferenciada na microestrutura, que tenha influenciado essa propriedade.

Em termos de ECF verifica-se uma tendência de acréscimo nos valores com o aumento da temperatura de encharque simulada. A capacidade em expansão de furo dos aços DP é fortemente influenciada pela sua microestrutura. Nesse sentido, quanto mais homogênea e refinada a microestrutura, maior será sua conformabilidade sob esse modo de deformação. Além disso, quanto menor a diferença de dureza entre a ferrita e os outros microconstituintes, menor será o nível das tensões residuais geradas pela deformação, o que também irá contribuir com o atraso da fratura [15]. Uma forma de reduzir esse gradiente de dureza consiste em aumentar as quantidades de bainita e/ou martensita revenida na microestrutura desses aços, o que, de certa forma, foi obtido para as simulações de recozimento com temperaturas de encharque mais elevadas no presente estudo. Nesse ensaio, devido à similaridade das médias obtidas para as diferentes microestruturas prévias, seus valores foram submetidos à análise de variância com teste de múltiplos intervalos (*multiple-sample comparison*) via *software Statgraphics 5.1 Plus®*, cujo resultado indicou não haver diferença estatística significativa entre as médias das duas variáveis a um nível de 95% de confiança (Figura 10). Dessa forma, os

resultados de ECF não foram influenciados de maneira significativa pela microestrutura prévia.

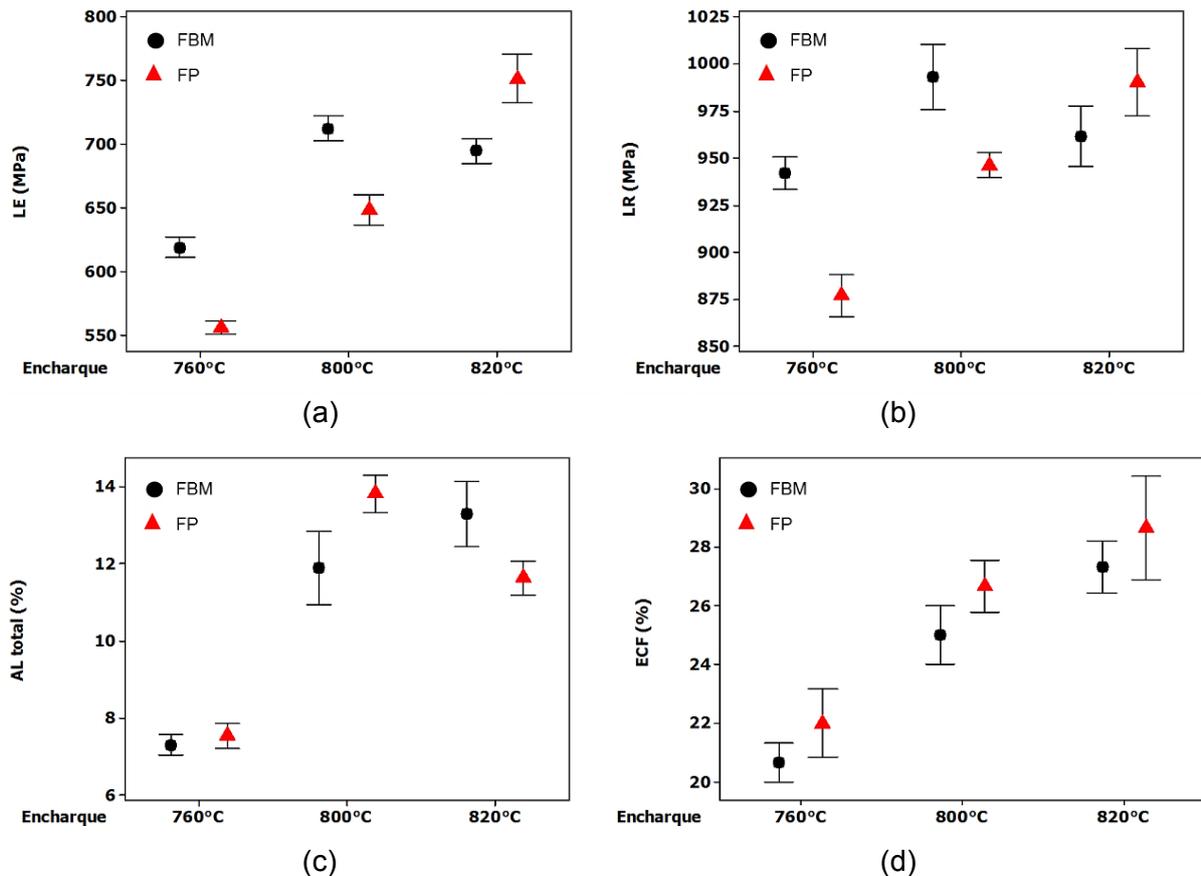


Figura 9. Valores médios de LE (a), LR (b), AL (c) e ECF (d) em função da temperatura de encharque nas simulações de recozimento contínuo para as microestruturas prévias FBM e FP.

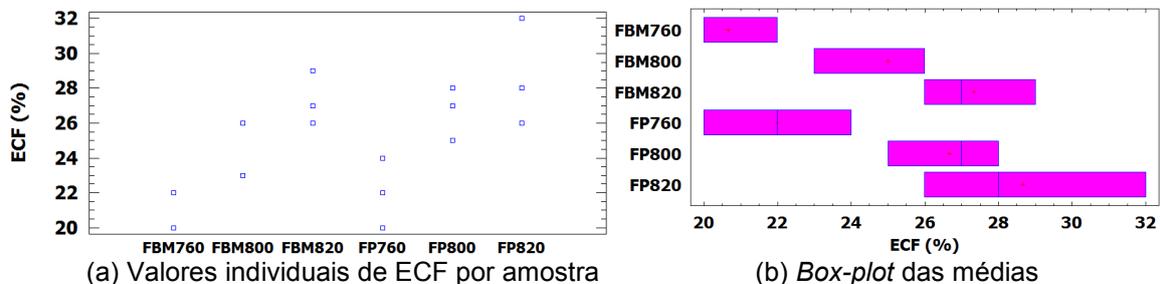


Figura 10. Análise de variância com teste de múltiplos intervalos (*multiple-sample comparison*) via *software Statgraphics 5.1 Plus®*.

3 CONCLUSÕES

Após as simulações de recozimento contínuo verificou-se que, para as baixas temperaturas de encharque avaliadas, 760°C e 800°C, a região com a microestrutura prévia FBM mostrou maiores valores de LR e LE e menores valores de AL quando comparada com as amostras originadas da microestrutura prévia FP. Tal resultado foi atribuído à maior quantidade de 2ª fase (bainita + martensita) na microestrutura originada a partir da microestrutura prévia FBM, confirmada pelas quantificações via análise de imagem, EBSD e levantamento de curvas de

transformação da austenita por dilatometria. Essa maior quantidade de 2ª fase foi justificada pela maior oferta de sítios favoráveis à nucleação e crescimento da austenita presente na microestrutura prévia FBM deformada.

Os resultados de expansão cônica de furo após simulação de recozimento não foram influenciados pela microestrutura prévia. Contudo, com o aumento da temperatura de encharque foi percebida uma melhora nessa propriedade, explicada pela maior homogeneidade microestrutural obtida.

REFERÊNCIAS

- 1 Garcia CI, De Ardo AJ. Formation of Austenite in Low-Alloy Steels. In Conference of Structure and Properties of Dual-Phase Steels. Symposium at the AIME Annual Meeting, New Orleans, LA. 1979. 40–61.
- 2 Speich G, Demarest V, Miller R. Formation of Austenite During Intercritical Annealing of Dual-Phase Steels. Metallurgical and Materials Transactions. 1981; 12(8): 1419–1428.
- 3 Azizi-Alizamini H, Militzer M, Poole WJ. Austenite Formation in Plain Low-Carbon Steels. Metallurgical and Materials Transactions A: Physical Metallurgy and Materials Science. 2011; 42(6): 1544–1557.
- 4 Dyachenko SS. The Austenite Formation in Fe-C Alloys. M. Metallurgia. 1982: 128.
- 5 Toji Y, Yamashita T, Nakajima K, Okuda K, Matsuda H, Hasegawa K, Seto K. Effect of Mn Partitioning during Intercritical Annealing on Following γ - α Transformation and Resultant Mechanical Properties of Cold-Rolled Dual Phase Steels. ISIJ International 2011; 51(5): 818–825.
- 6 Wycliffe P, Purdy GR, Embury JD. Austenite Growth in the Intercritical Annealing of Ternary and Quaternary Dual-Phase Steels. In Conference of Fundamentals of Dual-Phase Steels, Symposium at the 110th AIME Annual Meeting, Chicago, IL, USA. 1981. 59–83.
- 7 Golovanenko SA, Fonstein NM. Dual-Phase Low Alloyed Steels. M, Metallurgia. 1986. 206.
- 8 Girina O, Bhattacharya D, Fonstein NM. Effect of Annealing Parameters on Austenite Decomposition in a Continuously Annealed Dual-Phase Steel. In Proc. of 41st MWSP. 2003. 403–14.
- 9 NORMA ASTM A370 – Standard Test Methods and Definitions for Mechanical Testing of Steel Products, ASTM - American Society for Testing and Materials, 47 p, 2011.
- 10 NORMA ISO TS 16630 – Metallic materials - Method of hole expanding test, ISO - International Organization for Standardization, 12 p, 2003.
- 11 Wilson AW, Spanos G. Application of orientation imaging microscopy to study phase transformations in steels. Materials Characterization. 46. 2001. 407–418.
- 12 Granbom Y, Effects of Process Parameters prior to Annealing on the Formability of Two Cold Rolled Dual Phase Steels. Steel Research International. 2008; 79(4): 297–305.
- 13 Yi J.J, Kim IS, Choi HS. Austenitization during Intercritical Annealing of an Fe-C-Si-Mn Dual-Phase Steel. Metallurgical Transactions A 1985; 16(7): 1237–1245.
- 14 Melo TMF, Costa FS, Castro I. Microstructure Formation at the Initial Steps of the Continuous Annealing of a Dual Phase Steel. International Conference on New Developments in Advanced High-Strength Sheet Steels, 2008; 115-124.
- 15 Terrazas OR, Findley KO, Van Tyne CJ. Influence of Martensite Morphology on Sheared-Edge Formability of Dual-Phase Steels. ISIJ International. 2017; 57(5): 937-944.