

極低温における低合金鋼の破壊靱性の 温度依存性に及ぼす窒素およびニッケルの影響†

岡 林 久 喜

石川島播磨重工業株式会社原子力事業部

J. Japan Inst. Metals, Vol. 57, No. 11 (1993), pp. 1275-1280

Influence of N and Ni on Temperature Dependence of Fracture Toughness of Low Alloy Steel at Low Temperatures

Hisaki Okabayashi

Nuclear Power Division, Isikawajima-Harima Heavy Indus. Co. Ltd., Yokohama

The following relation given in the previous report is also in the neighbourhood of 4 K for iron and BCC iron alloys:

$$G_{ic} = G_0 \exp(T/T_0), 1/T_0 = (1/T_{0.1})(d/0.1)^{-1/7}$$

where G_{ic} is the critical strain-energy release rate, T the testing temperature, and d is the grain size (mm)

The results obtained in the present study indicate that (1) G_{ic} extrapolated to 0 K, *i.e.* G_0 , depends upon solute nitrogen and carbon contents as a function of $([C] + 4[N])$ at.%; (2) G_0 values are 1.1 kJ/m² when the nitrogen and carbon contents are zero or under the tempered condition, and (3) the temperature dependence of G_{ic} , *i.e.* $1/T_0$, increases with increasing nickel content, while it decreases with increasing nitrogen content.

(Received May 31, 1993)

Keywords: fracture toughness, iron, steel, nitrogen, nickel, liquid helium

I. 結 言

殆どの構造物は鋼で造られており、使用される多くの鋼材は低温で脆性を示す。そのため古くから鋼の切欠靱性については膨大な研究がなされてきた。材料設計の立場から見た場合、材質に関する現象は複雑で未だ統一的に解釈できる状態に至っていない。

筆者ら⁽¹⁾⁽²⁾は、鉄系合金が擬劈開破壊を示す低温で、切欠靱性の温度依存性を調べた。すなわち、切欠付き引張試験片において、亀裂進展開始時のエネルギー解放率 G_{ic} (破壊靱性と称する) は次式で表すことができる。

$$G_{ic} = G_0 \exp(T/T_0) \quad (1)$$
$$1/T_0 = A d^{-1/7}$$

ここで、 G_0 、 T_0 および A は材料定数、 T と d は試験温度と平均結晶粒径である。

G_0 は、0 K に外挿した G_{ic} 値であり、鉄合金中に固溶する C の影響をうけるが、Si, Mn, P, S, Ni, Cr, Mo および V の影響は認められなかった。

$1/T_0$ 値は G_{ic} 温度依存性を表しており、この結晶粒度依存性を上式に示すように定量的に表すことができるので、 G_{ic} 値に及ぼす合金元素の直接効果を調べることができる。本研究においては、C と同様に侵入型の挙動を示す N と N と同様にオ

ーステナイト相生成傾向の強い置換型の Ni について G_0 および $1/T_0$ に及ぼす影響を調べた。

なお、上の式は液体窒素 (77 K) までのデータに基づくものである。今回、液体ヘリウム (4.2 K) での試験を追加した。また、Ni 添加は延性-脆性の遷移温度を下げるので、低温側における Ni の影響について再検討した。

II. 実 験 方 法

1. 供試材料

供試材料の化学成分を **Table 1** に示す。ここで、No. 1 と 2 は塩酸電解鉄とシュガーカーボンをうい水素 (0.2 MPa) と炭素で脱酸した真空溶解材であり、No. 3~9 は硫酸電解鉄を用いた真空溶解材である。また、No. 10~13 は大型の市販鋼である。

No. 1 と 2 は 5 kg, No. 3~9 は 20 kg 溶解し、金型に铸込み、1373 K で鍛造、圧延し、25 mm 厚の板とした。

全試験材について所定の寸法に加工し、前歴をなくするために、1603 K のアルゴン雰囲気 で 1.8 ks 加熱した後、273 K の飽和食塩水に投入した。その後、結晶粒度および析出物の調整の熱処理を行った。すなわち、

C 処理 : 1603 K で 1.8 ks 加熱、273 K の飽和食塩水中に投入、そして液体窒素中で保管。

M 処理 : C 処理後、1423 K で 1.8 ks 間加熱して 273 K の飽和食塩水中に投入、そして液体窒素中で保管。

† 1991年3月日本金属学会春期大会において発表

Table 1 Chemical compositions (mass%) and heat treatment of materials used.

No.	Material	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	V	Ti	B	Cu	Al	N	O
1	0.034C	0.034	0.004	0.001	0.001	<0.001	<0.005	<0.005	<0.005	—	—	—	0.003	0.024	<0.0005	0.002
2	0.22C	0.22	0.008	0.001	0.001	<0.001	<0.005	<0.005	<0.005	—	—	—	0.003	0.024	<0.0005	0.001
3	0.28C	0.28	0.006	0.002	0.001	<0.001	<0.005	<0.005	<0.005	—	—	—	0.003	0.024	<0.0005	0.001
4	AlN1	0.13	0.38	0.90	0.010	0.024	—	—	—	—	—	—	—	0.025	0.011	0.001
5	AlN2	0.13	0.33	0.82	0.010	0.024	—	—	—	—	—	—	—	0.043	0.017	tr
6	AlN3	0.12	0.48	0.82	0.008	0.021	—	—	—	—	—	—	—	0.070	0.027	tr
7	0.91Ni	0.03	0.05	0.41	0.008	0.005	0.91	—	—	—	—	—	—	—	—	—
8	1.98Ni	0.03	0.06	0.42	0.009	0.006	1.98	—	—	—	—	—	—	—	—	—
9	3.43Ni	0.04	0.07	0.44	0.010	0.007	3.43	—	—	—	—	—	—	—	—	—
10	4.86Ni	0.03	0.04	0.44	0.008	0.007	4.86	—	—	—	—	—	—	—	—	—
11	9Ni	0.05	0.24	0.40	0.010	0.005	9.0	—	—	—	—	—	—	—	—	—
12	HT80U	0.15	0.19	0.78	0.016	0.013	0.73	0.40	0.44	0.04	0.003	0.003	0.27	0.027	0.005	0.0025
13	HT80V	0.15	0.28	0.85	0.011	0.004	1.24	0.26	0.49	0.05	0.002	0.002	0.26	0.063	0.013	0.0024
14	HT80Y	0.17	0.18	0.89	0.010	0.008	0.007	1.10	0.45	0.006	0.001	tr	0.29	0.097	0.018	0.0015

Heat treatment
 C : 1603 K for 1.8 ks...Ice-brine bath ... (Liquid N₂)... (Test)
 F : C+1193 K for 1.8 ks...Ice-brine bath ... (Liquid N₂)... (Test)
 U : C+[1193 K for 1.8 ks...Ice-brine bath]×3 ... (Liquid N₂)... (Test)
 S : C+923 K for 7.2 ks+1093 K for 7.2 ks+1223 K for 1.8 ks...Ice-brine bath ... (Liquid N₂)... (Test)
 -600: Tempering at 873 K for 7.2 ks after above-mentioned quenching ... (Test)
 -650: Tempering at 923 K for 7.2 ks after above-mentioned quenching ... (Test)

F 処理 : C 処理後, 1193 K で 1.8 ks 間加熱して 273 K の飽和食塩水中に投入, そして液体窒素中で保管.

U 処理 : C 処理後, 1193 K で 1.8 ks の熱処理を 3 回行い, そして液体窒素中で保管.

2. 破壊靱性試験

亀裂進展開始時のエネルギー解放率 G_{ic} (破壊靱性) 値の測定に, 既報⁽¹⁾の試験と同じ片側切欠付きの小型の引張試験片を用いた.

試験片の形状寸法を Fig. 1 に示す. 試験片の中央部の片側だけに切欠を入れ, その先端には約 1 mm の疲労割れを付けた. この疲労割れは, 曲げの 50 Hz 変動荷重で, 進展速度が 10^{-5} mm/s 以下になるように振幅を調整して入れた. これは, できるだけ負荷を下げ, Paris の疲労割れ進展則の成立つ下限値を狙ったものである.

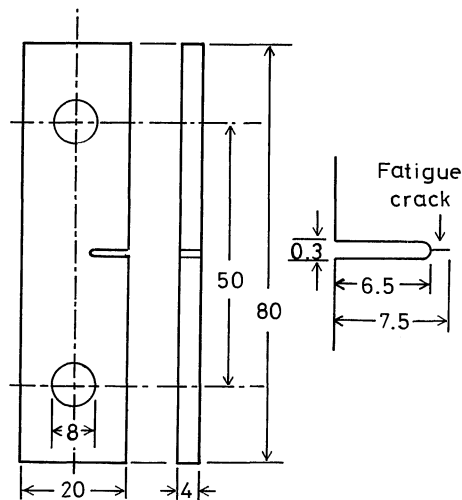


Fig. 1 Test specimen.

破壊に対して Griffith⁽³⁾, Irwin⁽⁴⁾ のエネルギーバランスが成立するものとして次式から G_{ic} 値を求めた.

$$E'G_{ic} = \sigma_m^2 a f(a/w) \quad (2)$$

$$E' = E / (1 - \nu^2)$$

ここで, σ_m は平均破壊応力 (Gross stress), a は切欠長さ, E はヤング率, ν はポアソン率, $f(a/w)$ は試験片の形状で定まる補正係数であり, Gross-Srawley⁽⁵⁾ の提案式を用いた.

すなわち,

$$f(a/w) = \{1 / (1 - \nu^2)\} \{7.59 - 32(a/w) + 117(a/w)^2\} \quad (3)$$

引張試験は, クロスヘッド速度 8.3 μ m/s で実施した.

III. 実験結果および検討

1. 4.2 K における G_{ic} 値

引張試験は, 試験片を直接液体ヘリウム (4.2 K) に入れて行った.

0.22C, 0.28C および HT80-V 鋼の 4.2 K における G_{ic} 値を, 既報⁽¹⁾のデータと合わせて, Fig. 2~4 に示す.

これらのデータから式 (1) は遷移温度から 0 K 近傍まで一般的に成立すると考えてもよいであろう.

2. G_{ic} 値に及ぼす N の影響

N は格子間元素であるので C と同様の作用が考えられる. ここでは, Al と共存させて, 微細析出物 AlN による結晶微細化効果と AlN の分解による N の効果を分離して調べた.

Wiester-Bading-Riedel-Scholz⁽⁶⁾ によれば 1603 K に加熱することによって AlN は分解するので, この熱処理 C を施した AlN-1, 2 および 3 鋼について試験した. 結果を Fig. 5~7 に示す.

N の増加によって 0 K に外挿した G_{ic} , すなわち, G_0 , は増加しているが, 温度 T に対する $\ln G_{ic}$ 値の勾配 $1/T_0$ は減少している.

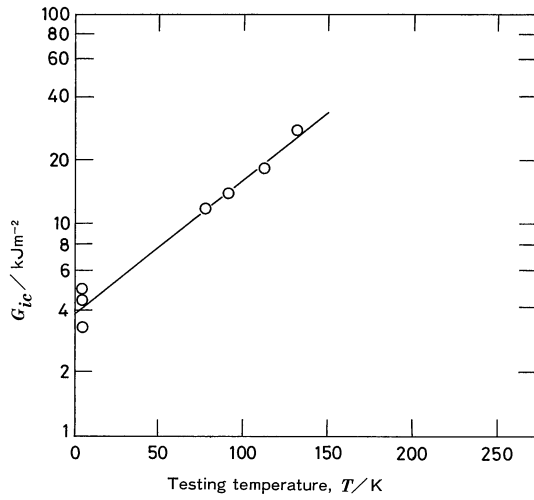


Fig. 2 Fracture toughness G_{IC} values plotted vs. testing temperature for 0.22C-C material containing 0.22 mass% C, sub-zero-quenched.

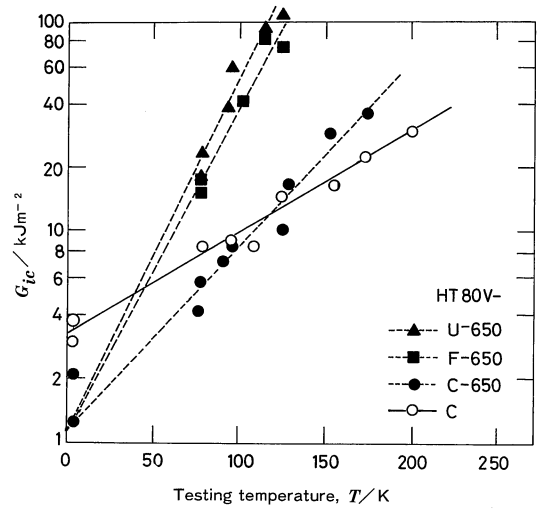


Fig. 4 Fracture toughness G_{IC} values plotted vs. testing temperature for HT80V-C, -C-650, -F-650 or U-650 steels sub-zero-quenched or tempered at 923 K for 7.2 ks.

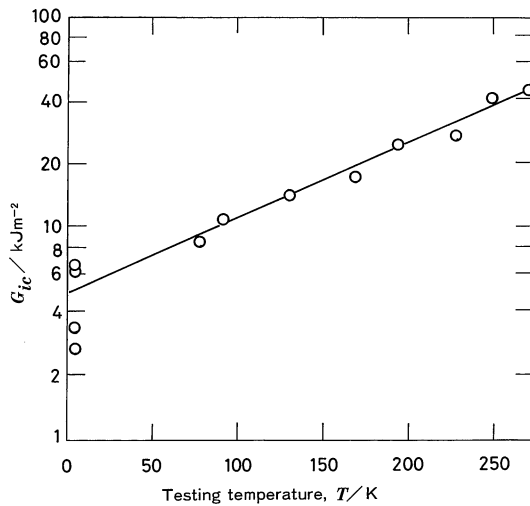


Fig. 3 Fracture toughness G_{IC} values plotted vs. testing temperature for 0.28C-C material containing 0.28 mass% C, sub-zero-quenched.

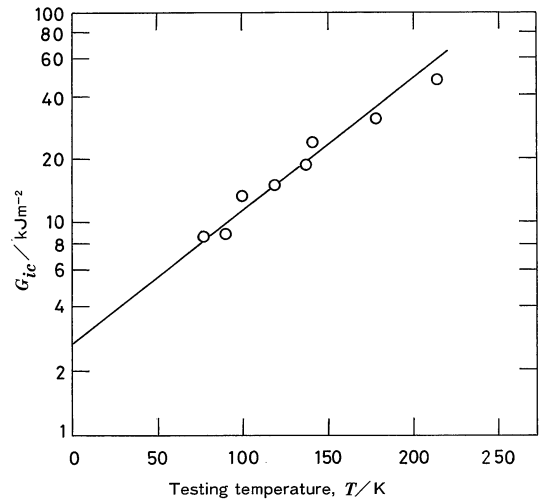


Fig. 5 Fracture toughness G_{IC} values plotted vs. testing temperature for AlN-C steel containing 0.011 mass% N, sub-zero-quenched.

次に、NをAINとして析出させ、Cはマルテンサイトとして固溶させるために、次の熱処理を与えた。すなわち

処理S：C処理によって炭化物と窒化物を分解し、923 Kで7.2 ksの熱処理によって両者を析出させ、1093 Kで7.2 ksの処理で結晶粒の微細化と窒化物の安定化を図り、そして1223 Kで1.8 ks間保持した後273 Kの飽和食塩水中に投入することによって炭化物のみ分解固溶させた。

処理Sを施した後の固溶N量は、NとAl(酸に溶解分のみ)の原子比(Al/N)がAIN-1、-2および3鋼でそれぞれ1.2、1.3および1.4であるので無視できる程度と判断される⁽⁶⁾。処理Sを施した材料の試験結果をFig. 8に示す。3鋼種間の差が認められない。これはN含有量以外は大差無いためと考えられ

る。

Fig. 8より、 G_{IC} 値の0 Kへの外挿値、すなわち、 G_0 値は2.2 kJ/m²であるが、これは既報⁽¹⁾のFe-C系合金における炭素含有量0.13 mass%に相当する(後述のFig. 10参照)。この値はC分析値と一致している。したがって、NをAINとして固定すれば、Nの G_0 に対する寄与は認められなくなる。

ln G_{IC} の試験温度 T に対する勾配、すなわち、 $1/T_0$ は3鋼種間で、AIN析出量が大きく異なるにも拘らず、差が認められない。このことは、相変態に伴う結晶粒の微細化とオーステナイト域における結晶粒の粗大化の阻止に要するAIN量は、この程度(N量で0.011 mass%)で十分であり、AIN自体の効果が現れるには微量過ぎると考えてよいであろう。

次に、多数の合金元素を含有するHT80-Uおよび-Y鋼につ

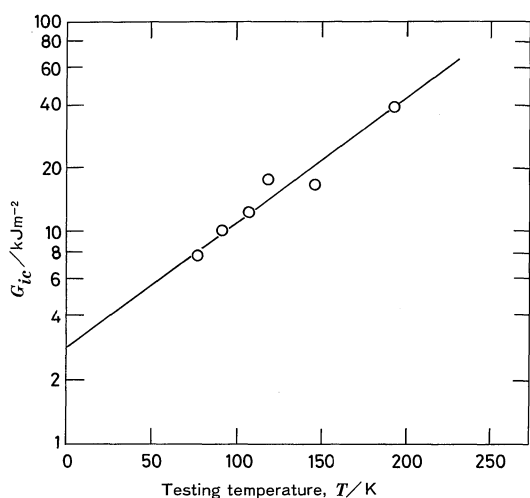


Fig. 6 Fracture toughness G_{ic} values plotted vs. testing temperature for AIN2-C steel containing 0.017 mass%N, sub-zero-quenched.

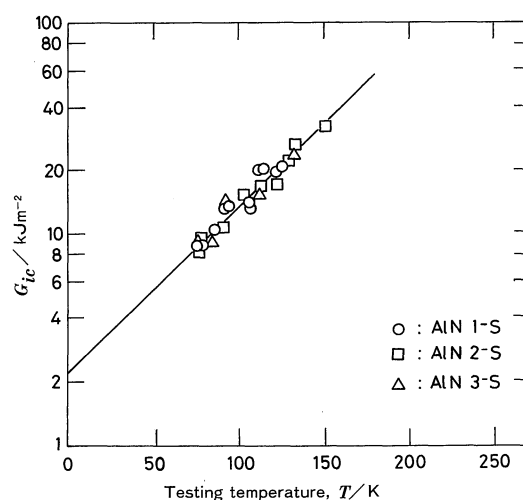


Fig. 8 Fracture toughness G_{ic} values plotted vs. testing temperature for AIN1-S, AIN2-S and AIN3-S steels tempered and quenched from 1223 K.

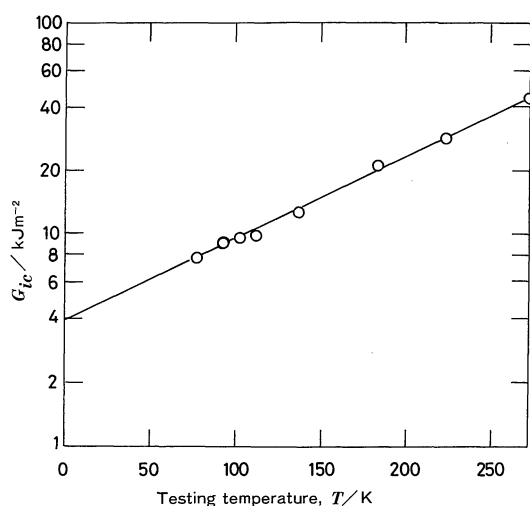


Fig. 7 Fracture toughness G_{ic} values plotted vs. testing temperature for AIN3-C containing 0.027 mass%N, sub-zero-quenched.

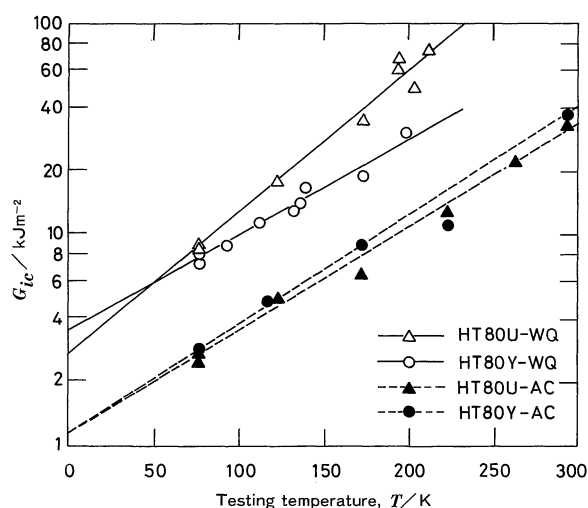


Fig. 9 Fracture toughness G_{ic} values plotted vs. testing temperature for HT80U and HT80Y steels after water-quenching or air-quenching.

いて試験した。結果を Fig. 9 に示す。

これら 2 鋼種に対する熱処理は

処理 WQ : 1623 K で 1.2 ks 加熱後, 水冷 (28 K/s)

処理 AQ : 1623 K で 1.2 ks 加熱後, 空冷 (0.4 K/s)

である。

AQ の熱処理を施したものは, 2 鋼種とも, G_0 値は 1.1 kJ/m² であり, この値は, Fe-C 系において C 含有量を 0 とした時の値に相当する。

WQ の熱処理を施したものは, G_0 値は, HT80-U で, 2.7 kJ/m², HT80-Y で 3.4 kJ/m² であり, これらの値は Fe-C 系において C 含有量をそれぞれ 0.16 mass%, 0.205 mass% とした時の値と一致している。他方, 分析値は, 前者が 0.15 mass%C, 0.005 mass%N であり, 後者が 0.17 mass%C, 0.018 mass%N であり, したがって N の効果を考慮しなければなら

ない。

本実験で得られた G_0 と既報⁽¹⁾ の Fe-C 系のデータとを合わせて Fig. 10 に示す。同図において曲線からの乖離は N の影響と仮定して横軸上の変位 ΔC と N 含有量との関係を Fig. 11 に示す。

バラツキはあるが, G_0 に対して N は atomic% で C の約 4 倍の効果があると判断される。

S の熱処理を施したものは, 前述のように固溶 N がほぼ 0 となるので C のみの曲線上にある。なお, 900 K 近傍で焼戻しすれば, Fig. 10 に示したように, C および N の G_0 に及ぼす影響はなくなる。

3. 鉄合金の G_{ic} 値に及ぼす Ni の影響

0.03 mass%C を含有する鉄に Ni を添加した合金の焼入れ状

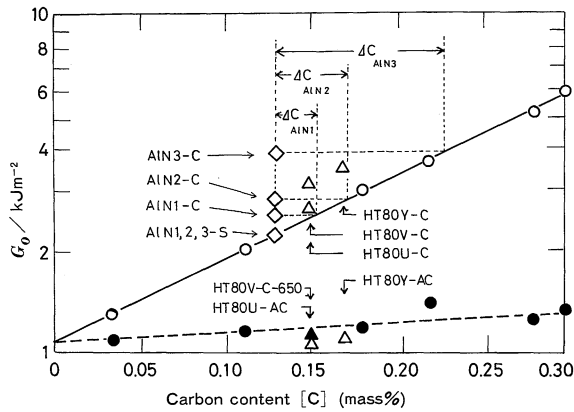


Fig. 10 Fracture toughness extrapolated to 0 K, i.e., G_0 values plotted vs. carbon contents [C].

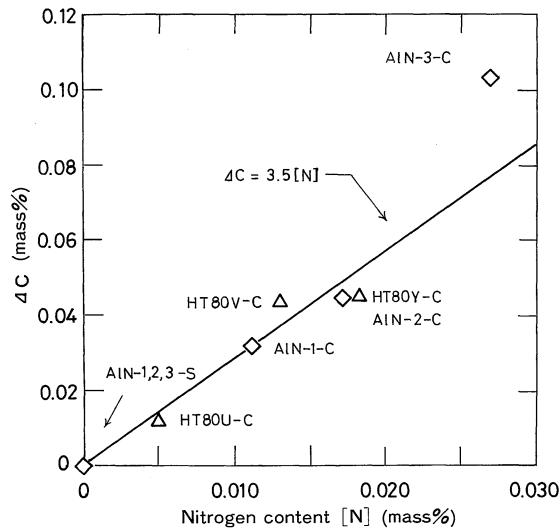


Fig. 11 Carbon equivalent ΔC values as a function of nitrogen content [N].

態における G_{ic} 値を Fig. 12 に示す。

Ni 添加によって G_0 値は変わらないが、 $1/T_0$ 値は向上する。しかし、9Ni 鋼のみが異なる挙動を示している。これは他の合金と異なり無視できない程度の残留オーステナイトが存在するためと考えられる。

上記の焼入れした鉄合金を、更に 872 K で 7.2 ks の焼戻しした時の G_{ic} を Fig. 13 に示す。

焼入れ状態と同様に、焼戻し材においても、Ni 添加によって G_0 値は影響されないが、 $1/T_0$ 値は向上する。しかし、0.91 mass% Ni 添加材は無添加材より低い値を示している。また、焼戻しによって $1/T_0$ 値は低下する。これは炭化物などの析出に起因すると考えられる。なお、焼戻し熱処理する時、焼戻し脆性を避けるために、試験片を 273 K の飽和食塩水中に投入した。

Ni 添加による鋼の靱性改善については多くの研究⁽⁷⁾⁻⁽⁹⁾がなされており、9%Ni 鋼など Ni 含有量の高い場合は残留オーステナイトの効果が大きいとしている。しかし、Fig. 12 および

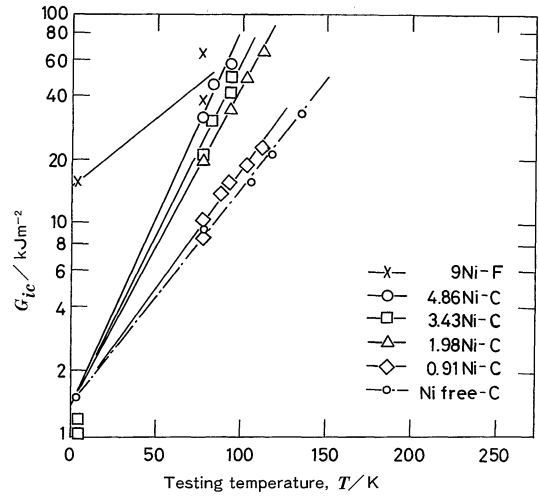


Fig. 12 Fracture toughness G_{ic} values plotted vs. testing temperature for Fe-Ni alloys containing zero to 9 mass% Ni, sub-zero-quenched.

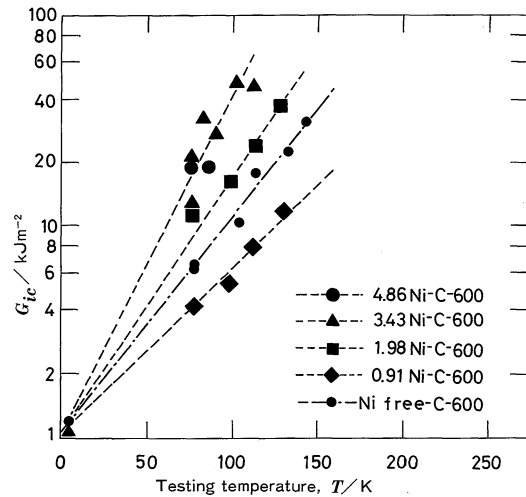


Fig. 13 Fracture toughness G_{ic} values plotted vs. testing temperature for Fe-Ni alloys containing zero to 9 mass% Ni, tempered at 873 K.

13に示したように、残留オーステナイトが無視できる程度の Ni 含有量であっても Ni の効果が認められる。

門間-須藤-菊山⁽¹⁰⁾は、Ni の効果は結晶粒の微細化によるとしている。本研究においては結晶粒度の影響は、式(1)に示したように、別途に扱っているので Ni の固溶効果となる。

石川-Knott⁽¹¹⁾⁽¹²⁾は、3.5および9 mass% Ni 鋼について微視的機構から脆性破壊を調べ、Ni 添加の効果は、脆い微細な第二相の破壊に伴う微視的割れのアレスト性能の向上であることを示した。このような考え方は遷移温度近傍では有効と考えられるが、発生特性が支配的である極低温では原子論まで遡って考究する必要がある。

IV. 結 言

窒素とニッケルの含有量を変えた BCC 系低合金鋼について破壊靱性を調べた。得られた結果は次の通りである。

(1) 亀裂進展開始時のエネルギー解放率 G_{ic} (破壊靱性) と試験温度 T との間に、次式が認められている。すなわち、

$$G_{ic} = G_0 \exp(T/T_0)$$

ここで、 G_0 と T_0 は材料定数、 T は温度である。この関係は、剪断破壊から擬剪開破壊に遷移する温度から 4.2 K まで成立する。

(2) G_{ic} 値を 0 K に外挿した値、すなわち G_0 値は、炭素と同様に、固溶窒素の影響を受け、窒素量の増加とともに高くなる。その時の窒素の寄与は atomic% で炭素の 4 倍である。また、窒素を AlN として固定すれば、窒素の影響はなくなる。

(3) 窒素と炭素の含有量を下げれば G_0 値は、他の元素に関係なく、1.1 kJ/m² に収斂する。

(4) G_{ic} の温度依存性を表す $1/T_0$ は、固溶窒素の増加とともに低下する。窒素を AlN として固定すれば、窒素の影響はなくなる。

(5) ニッケルは、 G_0 に影響しないが、焼入れ、焼戻し、いずれの状態であっても、 $1/T_0$ を高める。

(6) 焼戻し処理あるいは焼準熱処理した材料の G_0 値は、化

学成分および組織に関係なく、窒素と炭素の含有量をゼロに外挿した焼入れ材の値と一致する。

文 献

- (1) 中村 素, 内木虎蔵, 岡林久喜: 日本金属学会誌, **36**(1972), 82.
- (2) H. Nakamura, T. Naiki, H. Okabayashi, M. Kuribayashi and N. Morisige: Engineering Fracture Mech., **7**(1975), No. 3, 541.
- (3) A. A. Griffith: Phil. Trans., Royal Soc., **221**(1920), Ser. A, 163.
- (4) G. R. Irwin: Handbuch der Physik, **6**, Springer-Verlag, Berlin, (1958), 551.
- (5) B. Gross and E. Srawley: NASA Tech. Note No. D-2603, 1, (1965).
- (6) H. J. Wiestner, W. Bading, H. Riedel und W. Scholz: Stahl und Eisen, **77**(1957), 773.
- (7) 瀬川 清, 長島晋一, 関野晶蔵, 島田春夫: 鉄と鋼, **49**(1963), 914.
- (8) 田村 博, 恩澤忠男, 植松清之助: 5.5%Ni 鋼再現溶接熱影響部のオーステナイト量とじん性の関係, 溶接冶金研究委員会資料, (1980, 2).
- (9) A. Dhooze and A. Vinckier: WRC Bulletin, No. 266, (1981).
- (10) 門間改三, 須藤 一, 菊山紀彦: 日本金属学会誌, **31**(1967), 758.
- (11) 石川 忠, J. F. Knott: 鉄と鋼, CAPMP-ISIJ, **1**(1988), 789.
- (12) 石川 忠, J. F. Knott: ibid, **1**(1988), 790.