極低温小形パンチ試験によるオーステナイト系ステンレス鋼 JN 1, JJ 1 および JK 2 の熱時効脆化評価*

劉 世 程^{*1}, 駒 崎 慎 一^{*2}, 権 一 賢^{*3}
橋 田 俊 之^{*4}, 高 橋 秀 明^{*5}, 中 嶋 秀 夫^{*6}

Evaluation of Thermal Aging Embrittlement of Austenitic Stainless Steels JN 1, JJ 1 and JK 2 by Cryogenic Small Punch Tests

Shi Cheng LIU, Shin-ichi KOMAZAKI^{*7}, Il-Hyun KWON,
Toshiyuki HASHIDA, Hideaki TAKAHASHI and Hideo NAKAJIMA

^{*7} Muroran Institute of Technology, Department of Materials Science and Engineering,
27-1 Mizumoto-cho, Muroran-shi, Hokkaido, 050-8585 Japan

The small punch (SP) tests were conducted at 77 K and 4 K using austenitic stainless steels JN 1, JJ 1 and JK 2, which have been recently developed for use as a cryogenic structural material. The tests were applied to the steels aged at 923-1 073 K to investigate changes in their toughness at cryogenic temperature due to thermal aging. The area under the load-deflection curve up to the macro-crack initiation was defined as SP energy to evaluate the fracture toughness of the steels. The experimental results showed that the SP energy of JN 1 decreased monotonously with an increase in aging temperature. On the other hand, the SP energy of JK 2 showed no significant change even after the thermal aging at 923 K and 973 K and decreased after the thermal aging at 1 023 K. Metallographic examination revealed that this difference in decrease of SP energy due to thermal aging was caused by the variation in amount and distribution of grain boundary $M_{23}C_6$ carbides. As a consequence, JN 1 was more susceptible to thermal aging embrittlement than the other steels, and high resistance of JK 2 to embrittlement was attributable to the depression of precipitation and coarsening of grain boundary precipitates.

Key Words: Structural Reliability, Fracture Toughness, Brittle Fracture, Cryogenic Small Punch Test, Thermal Aging Embrittlement, Cryogenic Structural Material, Austenitic Stainless Steel, Grain Boundary Precipitates

1. 緒 言

核融合炉超電導マグネット構造物は大型溶接構造物であり、極低温・強磁場下で強大な電磁力の作用を受ける。そのため、大電磁力を支持するための新しい高強度・高靱性な構造材料の開発が必要不可欠であるとともに、極低温下での溶接構造部材の健全性評価が重要な課題となる⁽¹⁾。最近、核融合炉超電導マグネット構造材料の有力な候補材として、JSC(Japanese Cryogenic Steels)と呼ばれる高Cr-Ni系(JN 1⁽²⁾, JJ 1⁽⁴⁾)および高Mn系(JK 2⁽⁵⁾)の新しい高窒素オーステナイト系ステンレス鋼が開発され、その極低温下での変形・破壊特性の評価が進められている。

大型超電導マグネット構造物の製造には、厚さ 200

mm 以上の極厚板の溶接加工が必要不可欠となる⁽¹⁾。鋼板を極厚化すると、溶体化熱処理後の板厚中央付近での冷却速度が表面に比べ遅くなるため、溶接のみならず、溶体化処理に起因した靱性低下が懸念される⁽⁶⁾。そのため、超伝導マグネット構造材料の健全性を確保するには、新材料の時効に伴う微視組織変化や靱性低下に関するデータをあらかじめ蓄積しておく必要がある。

前報⁽⁷⁾では、JN 1 の時効に伴う極低温下での弾塑性破壊靱性 J_{IC} の変化を調べ、時効により靱性が劣化し、その劣化は時効温度の上昇とともに顕著になることを報告した。さらに、極低温小形パンチ(Small Punch, SP)試験により得られる相当破壊ひずみ $\bar{\epsilon}_{qf}$ あるいは SP エネルギーと J_{IC} の間には直線的な関係があり、SP 試験により J_{IC} を精度よく推定できることを示した。

本報では、JN 1 に JJ 1 および JK 2 を加えた 3 鋼種を対象に、超伝導マグネット構造物の板厚中央部あるいは溶接熱影響部での熱履歴を模擬するために 923~1 073 K の種々の温度で時効処理した後、時効による極低温破壊靱性の変化を、 J_{IC} 試験に比べより簡便である SP 試験により評価し、3 鋼種の時効脆化感

* 原稿受付 2003 年 4 月 30 日。

^{*1} 東北大学大学院工学研究科(☎ 980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 01) [現: 中国大連鉄道学院]。

^{*2} 正員, 室蘭工業大学工学部(☎ 050-8585 室蘭市水元町 27-1)。

^{*3} 東北大学大学院工学研究科[現: 韓国全北大学]。

^{*4} 正員, 東北大学大学院工学研究科。

^{*5} 正員, 東北大学大学院工学研究科[故]。

^{*6} 日本原子力研究所(☎ 311-0193 茨城県那珂郡那珂町向山 801-1)。

E-mail: komazaki@mmm.muroran-it.ac.jp

Table 1 Chemical compositions (wt%) and solution treatments of JN 1, JJ 1 and JK 2 forged plates

	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Al	N	Mo	Fe
JN1	0.040	0.97	3.88	0.022	0.001	15.07	24.32	0.023	0.32	-	Bal.
JJ1	0.025	0.48	10.13	0.021	0.002	11.79	12.01	-	0.236	4.94	Bal.
JK2	0.05	0.39	21.27	0.005	0.001	9.15	12.97	-	0.247	0.97	Bal.
JN1: 1348 K - 0.2 h / WQ, JJ1: 1333 K - 5.5 h / WQ, JK2: 1253 K - 5 h / WQ											

Table 2 Mechanical properties of solution treated JN 1, JJ 1 and JK 2 steels at 4 K

	$\sigma_{0.2}$ (MPa)	σ_{UTS} (MPa)	Elongation (%)	Reduction of area (%)
JN1	1363	1752	31	42
JJ1	1169	1591	39	44
JK2	1216	1576	44	50

受性を比較・検討した。

2. 供試材および実験方法

本研究で用いた材料は、厚さ 200 mm のオーステナイト系ステンレス鋼 JN 1, JJ 1 および JK 2 の鍛造材であり、それらの化学組成および溶体化処理条件を表 1 に示す。また、3 鋼種の 4 K における機械的特性を表 2 に示す。時効材は、3 鋼種の溶体化材 (solution treated) を 923, 973, 1 023 K および 1 073 K の温度でそれぞれ 5 h 加熱時効して作製した。

SP 試験片は、き裂進展方向が鍛造材の L 方向となるよう採取した $10 \times 10 \times 0.5$ mm の板状試験片である。試験片表面を $1 \mu\text{m}$ ダイヤモンドペーストまで鏡面研磨した後、試験に供した。SP 試験は、室温から液体ヘリウム温度までの試験が可能な試験装置⁽⁸⁾を用い、液体窒素温度 (77 K) および液体ヘリウム温度 (4 K) にて 0.1 mm/min のクロスヘッド速度で行った。なお、比較のため、室温 (293 K) におけるデータも同様に取得した。本実験に使用した試験治具を図 1 に示す。試験片は上部ダイスと下部ダイスの間にセットし、4 本の締付けねじをトルクレンチを用いて均一に締め付けた。負荷は、パンチャと直径 2.4 mm の鋼球を介して試験片の中心に加えた。上部および下部ダイスにより SP 試験片を拘束することにより、一軸応力状態よりも高い塑性拘束条件における変形・破壊特性に関するデータを取得することができる。試験片中央部の変位はクロスヘッドに装着した差動トランス (LVDT) により測定した。また、荷重-変位曲線は X - Y プロッタおよびコンピュータを用いて記録した。材料の破壊特性は、巨視き裂発生点までの荷重-変位曲線下の面積を SP エネルギーと定義し、これを用いて評価した。

Fig. 1 Loading and specimen support configuration for SP test

SP 試験後の破面と微視組織の観察は、走査形電子顕微鏡 (SEM) を用いて行った。組織観察の際のエッチングには、15% 硝酸-60% 塩酸エタノール溶液を用いた。また、定電位電解法 (10% 塩酸メタノール溶液、4 V) により抽出した残き析出物を X 線回折分析することにより、鋼中の析出物を同定した。

3. 結果および考察

3.1 極低温下での SP 試験特性 77 K の SP 試験により計測された 3 鋼種の溶体化材と時効材の荷重-変位曲線の例を、図 2 に示す。矢印 (↓) で示した最大荷重到達直後に、大きな荷重降下あるいは荷重-変位曲線の急激なこう配変化が見られる。いずれの鋼種においても、最大荷重と最大荷重までの変位は時効温度の増加とともに減少していく傾向が認められるが、その傾向は鋼種によりいくぶん異なっている。この 77 K と室温 (293 K) においては、上述した最大荷重直後の大きな荷重降下あるいは曲線のこう配変化の後、巨視き裂が試験片表面に発生しているのを中断試

(a) JN 1

(b) JJ 1

(c) JK 2

Fig. 2 Load-deflection curves obtained from SP tests at 77 K

験にて観察した。

同様に、4 K で測定された各鋼種の荷重-変位曲線の例を示したものが図 3 である。時効による最大荷重および最大荷重までの変位の減少傾向は、3 鋼種とも 77 K のそれとほぼ同じである。しかし、4 K では、77 K あるいは 293 K で見られなかった極低温特有のこの歯状のセレーションやポップインが観察されるよう

(a) JN 1

(b) JJ 1

(c) JK 2

Fig. 3 Load-deflection curves obtained from SP tests at 4 K

になる。例えば、JN 1 鋼の溶体化材と 923 K 時効材においては、荷重がおよそ 1.5 kN に達してからセレーションが連続的に観察され、その後最大荷重に到達する直前にセレーションよりも大きな荷重降下いわゆるポップインが現れる。それに対して、973, 1023 K および 1073 K 時効材においては、荷重-変位曲線のこう配変化あるいはポップインが小さな荷重段階から

(a) interrupted at point A in Fig. 3(a)

(b) interrupted at point B in Fig. 3(a)

(c) interrupted at point C in Fig. 3(a)

Fig. 4 SEM micrographs of SP specimens of JN 1 tested at 4 K

現れ、最大荷重到達直後の急激な荷重降下は観察されない。

4 K でのセレーション、ポップインおよびこう配変化の出現と SP 試験片の変形・破壊過程との対応を検討するために、JN 1 鋼の溶体化材と 1 073 K 時効材を用いて、試験途中で荷重を除荷し SEM により試験片表面の観察を行った。溶体化材において、セレーションが現れはじめた直後[図 3(a)中点 A]で除荷した際には、塑性変形域が認められたものの表面き裂は観察されなかった[図 4(a)]。一方、最大荷重直前のポップインが現れた直後[図 3(a)中点 B]で除荷した試験片には、塑性変形域に加え、試験片と鋼球が接する円周上で最もひずみが集中する位置で長さ 0.5 mm 程度の表面き裂が観察された[図 4(b)]。また、1 073 K 時効材において、荷重-変位曲線の明りょうなこう配変化が現れた直後[図 3(a)中点 C]で除荷した際には、

巨視き裂が試験片中心から放射状に発生しているのが観察された[図 4(c)]。このようなことから、セレーションの発生は主として塑性変形に対応した現象であり、ポップインあるいは荷重-変位曲線のこう配変化は巨視き裂発生に起因した現象であるといえる。以上の検討より特定した 4 K における各鋼種の巨視き裂発生点を、図 3 中に矢印(↓)で示した。

3・2 時効に伴う SP エネルギーの変化 前報⁽⁷⁾

では、同一試験温度では J_{IC} 試験と SP 試験における破壊形態がほぼ同じになるということに加え、破壊靱性 J_{IC} と SP エネルギー(あるいは SP 試験での相当破壊ひずみ)の間には試験温度によらず直線的な相関があり、SP 試験により J_{IC} の推定が可能であることを報告した。そこで、3・1 節で特定した巨視き裂発生までの荷重-変位曲線下の面積を SP エネルギーと定義し、各鋼種の時効脆化感受性の評価に用いることにした。

各鋼種の溶体化材および時効材の 4, 77 K および 293 K での試験より得られた SP エネルギーを、試験温度に対してプロットしたものを図 5 に示す。溶体化材の SP エネルギーは、3 鋼種いずれも、77 K の試験温度で最大値を示し、4 K および 293 K ではそれよりも小さな値となっている。しかし、3 鋼種とも、時効特に 1 023 K あるいは 1 073 K といった高温時効により、4 K および 77 K での SP エネルギーが 293 K でのそれに比べ相対的に大きく減少するため、高温時効後には 293 K での SP エネルギーが最大となっている。これは、溶体化材や 923 K 時効材における試験温度 4~77 K が延性-脆性遷移温度域に対応している⁽⁷⁾のに対して、1 023 K および 1 073 K 時効材の遷移域がより高温側にシフトしていることを示唆している。

図 6 は、各試料の SP エネルギーを試験温度ごとに時効温度で整理した結果である。図 6 より、3 鋼種の各試験温度での時効に伴う SP エネルギーの変化がはっきり明りょうに理解できる。上述したように、時効により 3 鋼種とも 77 K での SP エネルギーが顕著に低下するのに対して、293 K でのその低下はわずかである。77 K での結果を見てみると、時効温度の増加に伴い JN 1 鋼の SP エネルギーが単調に低下していくのに対して、JK 2 鋼のそれは 973 K まではほとんど変化せず、1 023 K の時効によって初めて大きく低下している。JJ 1 鋼は、JN 1 鋼と JK 2 鋼の中間的な挙動を示している。すなわち、923 K での時効ではほとんど変化しないが、973 K 以上の時効では時効温度の増加とともに単調に低下していく。もっとも、JJ 1 鋼の SP エネルギーは、973 K 時効により JK 2 鋼のそ

Fig. 5 Temperature dependence of SP energy

れよりもいくぶん小さくはなるものの、JN 1 鋼のそれよりは大きく、溶体化状態および 923 K 時効後では JK 2 鋼よりもわずかに大きな値となっている。4 K では、溶体化状態での SP エネルギーが 3 鋼種の間でわずかに異なるものの、時効温度の増加に伴う SP エネルギーの減少挙動は 77 K でのそれと定性的によく似ている。また、すべての試験温度において、他の 2 鋼種とは異なり、JK 2 鋼では 1073 K 時効後の SP エネルギーが 1023 K でのそれよりも大きくなっている。

このように、3 鋼種の時効に伴う極低温下での靱性の変化を SP 試験により調査した結果、JN 1 鋼の時効脆化感受性が最も大きかったのに対して、JK 2 鋼のそれは最も小さく、923 K および 973 K の時効後でも

Fig. 6 SP energy plotted as a function of aging temperature

溶体化材と同様高い靱性を有していた。

3.3 SP 試験での破壊形態 4 K での SP 試験後の破壊形態と破面のようなすを SEM により観察した結果を、図 7 に示す。JN 1 鋼溶体化材においては、破壊は試験片と鋼球が接する円周上で最もひずみが集中する位置で発生しており[図 7(a)], 破面は典型的な延性破面であった[図 7(b)]. 同様に、JJ 1 鋼と JK 2 鋼の溶体化処理材の破面も延性ディンプル破面であった。JN 1 鋼時効材については、時効温度の増加に伴い破壊の発生位置が試験片と鋼球が接する円周上から試験片中心へと変化し、脆性破面の割合が大きくなっていくのが観察された。例えば、923 K 時効材においては、主として延性ディンプル破面ではあったが、溶体化材には認められない粒界破面が一部観察された。

Table 3 Fractographies and fracture appearances of JN 1, JJ 1 and JK 2 steels

	293 K		77 K		4 K	
	Fractography	Fracture appearance	Fractography	Fracture appearance	Fractography	Fracture appearance
JN1						
Solution treated	D	C	D	C	D	C
923 K - 5 h	D	C	D+I	C	D+I	C
973 K - 5 h	D+I	C	I	C+R	I	R
1023 K - 5 h	D+I	C	I	C+R	I	R
1073 K - 5 h	D+I	C+R	I	C+R	I	R
JJ1						
Solution treated	D	C	D	C	D	C
923 K - 5 h	D	C	D	C	D+I	C
973 K - 5 h	D+I	C	D+I	C+R	I	C+R
1023 K - 5 h	D+I	C	I	C+R	I	R
1073 K - 5 h	D+I	C+R	I	C+R	I	R
JK2						
Solution treated	D	C	D	C	D	C
923 K - 5 h	D	C	D	C	D+QC	C
973 K - 5 h	D	C	D+I	C+R	I+QC	C+R
1023 K - 5 h	D+I	C	I+QC	C+R	I+QC	R
1073 K - 5 h	D+I	C	I+QC	C+R	I+QC	R

D: dimple, I: intergranular, QC: quasi-cleavage

C: circumferential, R: radial

Fig. 7 Fracture appearances and fractographs of SP specimens tested at 4 K

また、973 K 以上の時効材においては、巨視き裂が試験片中心部で放射状に発生しており、破面はすべて粒界破面を呈していた[図 7(c), (d)]。JJ 1 鋼の時効に伴う破壊形態の変化は、JN 1 鋼のそれとほぼ同じであった。JK 2 鋼の時効材においても粒界破面が観察されたが、その割合は他の 2 鋼種と比べ少なかった。JN 1 鋼および JJ 1 鋼の 973 K 時効材の巨視き裂が放射状に発生していたのに対して、JK 2 のそれは円周状に発生しており[図 7(e)]、一部に粒界破面も観察されたが、破面は粒内延性破面と粒内脆性破面の混合破面となっていた[図 7(f)]。オーステナイト鋼の粒内脆性破面は、18 Mn-5 Cr 鋼⁽⁸⁾や Fe-27 Mn-2 Si 合金⁽⁹⁾においても観察されており、bcc 金属で見ら

れる擬へき開破面に似た特徴を有することが報告されている。JK 2 鋼の時効材の中で最も SP エネルギーが低下していた 1023 K 時効材には、このような粒内脆性破面が多数観察された。

3 鋼種の SP 試験後の破壊形態と破面の SEM 観察結果をまとめたものが、表 3 である。この SEM 観察結果と図 6 の結果から、時効による SP エネルギーの低下すなわち熱時効脆化が粒界割れに起因した現象であり、JK 2 鋼が他の 2 鋼種に比べ脆化感受性が小さいのは、時効に伴う粒界強度の低下が抑制されるからであるということがわかる。3・4 節では、この粒界強度低下の原因を明らかにするために、時効に伴う粒界近傍の微視組織変化を SEM を用いて調べるととも

Fig. 8 SEM micrographs showing intergranular precipitates

に、X 線回折分析により鋼中析出物の同定を行った。

3・4 時効に伴う微視組織変化 973 K および 1073 K で 5 h 時効した後の JN 1 鋼と JK 2 鋼の粒界近傍の微視組織のようすを、図 8 に示す。JN 1 鋼の 973 K 時効材の結晶粒界上には 1 μm 以下の微細な析出物が連続的に析出しており、粒界がこの微細析出物によって完全に覆われている。これに対して、JK 2 鋼では、微細な析出物に加え比較的大きなものがところどころに析出しているが、析出物が存在する粒界はわずかである。また、JJ 1 鋼においても、粒界上の微細析出物が観察されたが、その析出数は JN 1 鋼に比べ少なく分布も疎であった。

時効温度が 1073 K になると、JN 1 鋼では結晶粒界のみならず双晶界面にも 973 K のものに比べ大きな棒状あるいは板状の析出物が連続的に析出しており、大きいものでは長さ 10 μm 程度にまで粗大化している。JK 2 鋼においても、粗大化した棒状あるいは板状の析出物が粒界上に認められるようになるが、それが粒界を占める割合は JN 1 鋼に比べ小さい。JJ 1 鋼においても析出物の粗大化が認められたが、析出数は JN 1 鋼に比べ少なく、双晶界面への析出もわずかであった。また、JK 2 鋼の時効材の中で最も SP エネルギーが小さかった 1023 K 時効材での析出物が粒界を占める割合は、時効温度が低いにもかかわらず 1073 K 時効材のそれに比べ大きかった。

3 鋼種の 973 K および 1073 K 時効材の抽出残さ析出物から得られた X 線回折パターンをまとめて示したものが、図 9 である。JJ 1 鋼の 973 K 時効材以外の試料で $M_{23}C_6$ が認められ、JJ 1 鋼においては、 Cr_2N 、

Fig. 9 X-ray diffraction patterns of electrolytic residues

Cr_7C_3 および M_6C が検出された。これまで、種々の高窒素オーステナイト系ステンレス鋼において、 $M_{23}C_6$ や Cr_2N の粒界析出に起因した破壊靱性の低下が報告されている。佐藤ら⁽⁶⁾は、JN 1 鋼においても $Cr_{23}C_6$ と Cr_2N が析出するが、 Cr_2N は $Cr_{23}C_6$ に比べ微細であり、鋼中の大半の析出物が $Cr_{23}C_6$ であったことを報告している。今回用いた JN 1 鋼の時効材においても Cr_2N が析出していたものと推測されるが、微細であると同時に析出量が極めて少なかったため X 線回折によって検出されなかったものとする。

なお, JJ 1 鋼においては Cr_7C_3 と M_6C が検出されたが, それらの時効脆化への寄与は現時点では明らかではなく, 今後さらに詳細な検討を行っていく必要がある。

以上のことから, JN 1 鋼, JJ 1 鋼および JK 2 鋼の 923~1 073 K の時効に伴う靱性の低下は, 主として, M_{23}C_6 の粒界での析出・粗大化に起因した現象であり, JK 2 鋼が他の 2 鋼種に比べ時効脆化感受性が小さいのは, M_{23}C_6 の粒界での析出・粗大化が抑制されるためであると考ええる。

4. 結 言

核融合炉超伝導マグネット構造材料の有力な候補材であるオーステナイト系ステンレス鋼 JN 1, JJ 1 および JK 2 を対象に, 超伝導マグネット構造材の板厚中央部あるいは溶接熱影響部での熱履歴を模擬するために 923~1 073 K の種々の温度で時効処理した後, 時効による極低温破壊靱性の変化を SP 試験により評価し, 3 鋼種の時効脆化感受性を比較・検討した。得られた知見をまとめて以下に示す。

(1) 3 鋼種とも, 4 K および 77 K での SP 試験における最大荷重と最大荷重までの変位は時効により減少し, 靱性が劣化する。しかし, 時効温度に対するその劣化挙動は鋼種によりいくぶん異なる。

(2) 3 鋼種の中では, JN 1 鋼の時効脆化感受性が

最も大きい。それに対して, JK 2 鋼の時効脆化感受性は最も小さく, 923 K および 973 K の時効後でも溶体化材と同様比較的高い破壊靱性を有している。

(3) 3 鋼種の時効に伴う破壊靱性の低下は, 粒界での M_{23}C_6 の析出・粗大化に起因した現象である。JK 2 鋼が他の 2 鋼種に比べ時効脆化感受性が小さいのは, M_{23}C_6 の粒界での析出・粗大化が抑制されるためである。

本研究の一部は, 通商産業省工業技術院から(財)大阪科学技術センター附属ニューマテリアルセンターへの委託による「石油代替電源新素材の試験・評価方法の標準化に関する調査研究」極低温材料分科会において実施されたものである。

文 献

- (1) 中嶋秀夫, 溶接学会誌, **64** (1995), 168-171.
- (2) Sakamoto, T., ほか 5 名, *Adv. Cryog. Eng. Mater.*, **30** (1984), 137-144.
- (3) Suemune, K., ほか 6 名, *Adv. Cryog. Eng. Mater.*, **34** (1988), 123-129.
- (4) 石坂淳二・ほか 3 名, 鉄と鋼, **76** (1990), 791-798.
- (5) Tone, S., ほか 5 名, *Adv. Cryog. Eng. Mater.*, **30** (1984), 145-152.
- (6) 佐藤雄一・ほか 2 名, 日本機械学会材料力学部門講演会講演論文集, B (1995), 193-194.
- (7) 駒崎慎一・ほか 5 名, 機論, **70**-690, A (2004), 273-280.
- (8) Misawa, T., ほか 4 名, *J. Nucl. Mater.*, **169** (1989), 225-232.
- (9) Takaki, S., ほか 2 名, *ISIJ Int.*, **30** (1990), 632-638.