高 Mn オーステナイト鋼における溶接熱影響部の極低温靱性支配因子*

植田 圭治**, 泉 大地***, 高田 充志**, 石田 倫教***, 伊木 聡**,
山下正太郎****, 小椋 智****, 才田 一幸*****

Dominant Factors of Cryogenic Toughness of Heat Affected Zone of Welding in High Mn Austenitic Steel*

by UEDA Keiji**, IZUMI Daichi***, TAKADA Atsushi**, ISHIDA Toshinori***, IGI Satoshi**,
YAMASHITA Shotaro****, OGURA Tomo**** and SAIDA Kazuyoshi*****

High Mn austenitic steel is expected to be a next-generation structural material for cryogenic use by maintaining a stable fcc crystal structure even at cryogenic temperatures by adding a large amount of Mn which are γ -stabilizing elements. In order to clarify the factors governing the cryogenic toughness of heat affected zone (HAZ) of welds, investigation of relationship between microstructure and Charpy impact toughness of multi-pass weld joint and a simulated thermal cycle test was conducted for high Mn steel containing 0.5%C-25%Mn-5%Cr.

In the MAG welding, HAZ near fusion line showed high absorbed energy, whereas it was minimized at HAZ 5 mm reheated up to around 1073 K. Furthermore, in a simulated thermal cycle test of continuous cooling, the absorbed energy was also minimized at 1073 K. On the other hand, in the simulated thermal cycle test of quenching, the inverse dependence of the grain size on a conventional steel was shown, and the toughness increased as the grain size became coarse. Grain growth occurs according to the maximum temperature of HAZ, and $M_{23}C_6$ is formed on the grain boundary in the subsequent continuous cooling process. It was clarified that $M_{23}C_6$ became only initiation site of fracture under Charpy impact loading, and its existence density was the main factor of initiation energy. On the other hand, propagation process is a ductile fracture phenomenon in which γ stability is maintained regardless of the presence of $M_{23}C_6$.

Key Words: welding, manganese, austenite, Charpy impact toughness, grain size, carbide, ductile fracture, stacking fault energy,

1. 緒 言

高 Mn オーステナイト鋼（以降、高 Mn 鋼）は、オーステナイト(γ)安定化元素である Mn を多量に添加した鋼である。高 Mn 鋼は 1800 年代に開発された 1mass%C-13mass%Mn を含有する Hadfield 鋼の発明に起源し、開発の歴史は古い。1970~80 年代には、非磁性鋼として大型加速器やリニアモーターカーなど超伝導応用機器への実用化研究開発が精力的に行われた^{1,2)}。Mn 添加量を 20 mass% 程度以上まで十分高めると、極低温においても fcc 相の安定性が確保され劈へき開破壊を生じないことから、近年、LNG や液体水素など次世代エネルギー貯槽用極低温構造材料として期待され³⁾、母材のミクロ組織や合金設計が極低温靱性や強度など機械的特性に及ぼす影響について調査が進んでいる^{4,6)}。近年、Kim et al. は γ 安定度の低い 18mass%Mn 鋼に対して、また Luo et al. は 25 mass%Mn 鋼に対してシャルピー衝撃試験温度を変化させて、溶体化処理を実施した γ 単相組織の高 Mn 鋼に対して計装化シャルピー衝撃試験結果と積層欠陥エネルギー (Stacking Fault Energy, SFE) およびミクロ組織の相関を示しており、SFE すなわち γ 安定性の低下に伴い極低温での衝撃

荷重時に ε マルテンサイトが部分的に形成した場合には、破壊の発生エネルギーではなく伝播エネルギーが低下することを説明している^{5,6)}。

一方、構造用鋼として必要な強度確保に関しては、一般の低合金構造用鋼と異なり変態強化を活用できないことから、固溶強化能が高い C に加え Cr を適量添加することで、 γ 系ステンレス鋼やアルミニウム合金と比較して高強度化できる^{8,9)}。ただし、高 Mn 鋼を含む γ 鋼において、C と Cr 等炭化物形成元素を同時添加した場合、熱履歴に応じて母相中に高濃度の Cr を含有する炭化物を形成し機械的特性に影響を及ぼすことがあるため、鋼板製造過程においては、炭化物形成温度以上への再加熱および熱間加工工程に引き続き、水冷など加速冷却を実施して炭化物の析出を防止する場合が多い¹⁰⁻¹³⁾。

極低温用構造材料として高 Mn 鋼を実用化するためには母材のみならず、溶接熱影響部 (Heat Affected Zone, HAZ) を含む継手靱性の確保が不可欠である。しかしながら、高 Mn 鋼は Mn を多量に添加するため、加工性が低いことに加え、溶接時には高温割れ感受性が高いなど加工性に課題があるために、過去に実用化されたのは鍛鋼品が中心であり、溶接構造用鋼としての実績は少ない。したがって、極低温用高 Mn 鋼の溶接部、とりわけ HAZ の極低温靱性に関する研究事例は、母材の研究事例に比べて僅かである¹⁴⁻¹⁸⁾。

*受付日 2020年6月30日 受理日 2020年9月17日

**正 員 JFE スチール株式会社 Member, JFE Steel Corporation

***非会員 JFE スチール株式会社 JFE Steel Corporation.

****正 員 大阪大学工学研究科 Member Graduate School of Engineering, Osaka University

Hadfield 鋼の HAZ 靱性に関して、Ando らは被覆アーク溶接および MAG 溶接での 1 パス溶接 HAZ の熱履歴を模擬した再現熱サイクルに対して、293 K でのシャルピー吸収エネルギーに及ぼす最高加熱温度の影響を調査し、融点近傍の 1623 K だけでなく、比較的低温の 873 K においても靱性が大きく低下することを示している¹⁴⁾。1623 K における靱性の低下は、ミクロ組織的な脆化というよりも液化割れもしくは部分的な溶融、凝固による空隙の生成が主因であり、873 K における靱性低下は炭化物生成によるものと推察している。このため、Hadfield 鋼の溶接においては、高温割れとともに靱性劣化にも十分な注意が必要である。

一方、Mn 添加量が 20 mass% を超える高 Mn 非磁性鋼においては、大型核融合炉への適用を想定した継手靱性の検討が行われている。極めて高い工作精度が要求されることから、主に電子ビーム溶接などの高エネルギー密度溶接継手の機械的特性が調査されており、溶接金属部 (Weld Metal, W.M.) や母材の靱性に比べ HAZ 靱性の検討は極端に少ない。Kasamatsu らは電子ビーム溶接継手において 120 K 程度の極低温での限界 CTOD 値を調査し、母材や W.M. よりも溶融境界線 (Fusion Line, F.L.) の限界 CTOD 値が最も優れる結果を示している¹⁵⁾。これに対し、Ouchi らによると、25 Mn 鋼の被覆アーク溶接および MIG 溶接継手において、F.L. および F.L. から HAZ 側に 2 mm (以降、HAZ2 mm と表記) までの領域において、母材よりも靱性が低下する領域があり、光学顕微鏡組織との相関より γ 結晶粒が粗大化した粗粒熱影響部 (Coarse Grain HAZ, CGHAZ) の劣化現象と述べている¹⁶⁾。Masumoto らは、25 mass%Mn 鋼に比較的溶接熱入量の高い 40 kJ/cm の多層溶接継手靱性を評価し、F.L. の靱性は母材よりも優れる一方で HAZ4 mm において吸収エネルギーの極小値を示している¹⁷⁾。他方、Ohtani らは、25 kJ/cm の MAG 溶接および 35 kJ/cm の SAW 多層溶接継手において、F.L. において靱性は極小値を示し、HAZ1 mm においても母材よりも靱性が低いことを示している¹⁸⁾。すなわち、Mn 添加量が 20 mass% を超える極低温用高 Mn 鋼の HAZ 靱性については、各研究の溶接手法ごとに様々異なる靱性分布を示す結果が得られており、未だ統一的な見解は得られていない。これは、複雑な溶接熱履歴の過程で生じる γ 結晶粒径などマトリックス組織の変化や、炭化物析出などの現象が同時に発現し、それら冶金因子の影響を分離できていないためであると思われる。

そこで、本研究では、0.5 mass%C-25 mass%Mn-5 mass%Cr を含有する高 Mn 鋼を対象に MAG 溶接継手および HAZ を模擬した再現熱サイクル試験を実施し、熱履歴ごとの詳細なミクロ組織観察と硬度、低温靱性などの機械的特性の評価、およびシャルピー衝撃試験による破壊過程の詳細観察を行い、高 Mn 鋼 HAZ 靱性の冶金学的支配因子を解明することを目的とした。

2. 供試鋼と実験方法

2.1 供試鋼

供試鋼の化学組成を Table 1 に示す。0.49 mass%C-0.53 mass%Si-25.5 mass%Mn-4.9 mass%Cr (以下、単純に % で表記) 添加した高 Mn 鋼である。Thermo-calc を用いて計算した Fe-0.5%C-0.5%Si-25%Mn-Cr の平衡状態図を Fig. 1 に示す。Cr 量によらず fcc が主たる相であり、Cr 量の増加に伴い、 $M_{23}C_6$ を形成する温度域が上昇する。供試材組成の 5%Cr の場合、1173 K 未満で $M_{23}C_6$ が存在する。また、固相線温度は、およそ 1573 K 程度である。

素材を 1523 K に再加熱後、圧延仕上げ温度 1323 K にて多段の熱間圧延を実施し、板厚 12 mm もしくは板厚 20 mm の鋼板とした後、室温までの水冷による加速冷却を実施した。板厚 12 mm の鋼板は実継手作製、また、板厚 20 mm の鋼板は、再現熱サイクル試験片採取に供した。板厚 12 mm の供試鋼板の常温引張特性と 77 K でのシャルピー衝撃特性を Table 2 に示す。引張強度は 947 MPa、77 K での吸収エネルギーは 84 J を有する。なお、いずれの試験片も鋼板幅方向の特性を評価している。

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

C	Si	Mn	P	S	Cr
0.49	0.53	25.5	0.01	0.001	4.9

Fig. 1 Equilibrium Fe-0.5%C-0.5%Si-25%Mn-Cr phase diagram predicted by Thermo-calc. using TCFE7 database.

Table 2 Mechanical properties of the steel plate with 12mm in thickness.

YS (MPa)	TS (MPa)	El (%)	vE _{77 K} (J)
600	947	46	84

2.2 MAG 溶接継手の作製方法

供試鋼板に対してMAG溶接継手を作製した。供試鋼板の圧延方向が溶接線となるように、ギャップ5mm、45°レ形開先を取り、平均溶接入熱量2.0kJ/mm、パス間温度 ≤ 423 Kにて、3パスの多層溶接継手を作製した。溶接材料として共金系溶接材料を使用した。F.L.の位置は、溶接断面の板厚方向において、W.M.とHAZの割合が50%ずつの位置とした。板厚中心位置でストレート開先側F.L.からそれぞれ1~7mm離れたHAZ側にノッチを導入しシャルピー衝撃試験片を採取した。HAZにおける組織やHVの観測位置、シャルピー衝撃試験片採取位置は、F.L.からの距離が2mmの場合はHAZ2mmのように表記することにする。

本研究では、さらに、上記MAG溶接(板厚12mm、平均溶接入熱量2.0kJ/mm)での測温実績を基準とし、HAZ位置の影響について最高加熱温度を変化させ、また溶接入熱量の影響について再加熱ピーク温度からの冷却速度を変化させた時の、各HAZ位置の1パス溶接相当の熱履歴を模擬した再現熱サイクル試験を実施した。供試鋼板の板厚中心部より熱サイクル試験片を採取し、富士電波工機㈱製の再現熱サイクル試験装置を用いた熱処理を実施した。HAZの最高加熱温度および最高加熱温度からの冷却速度の影響を調査することを目的に、30K/sで試験片を再加熱後、ピーク温度を673~1573Kまで変化させて1s保持した後、冷却速度30K/sおよび0.5K/sにて室温まで連続冷却した。なお、板厚12mmのアーカ溶接を想定した場合、Inagakiらの推定式¹⁹⁾によると、冷却速度30K/sの条件は1.5kJ/mm、0.5K/sの条件は10.0kJ/mm相当である。次に、冷却速度の影響を調査するために、ピーク温度を873K、1073Kおよび1573Kの3条件で変化させた後、冷却速度を0.5K/sから30K/sまで変化させた。再現熱サイクル後の試験片より2mm-Vノッチシャルピー衝撃試験片およびマイクロ組織観察用サンプルを採取した。

MAG溶接継手および再現熱サイクル後の試験片に対して、液体窒素温度である77Kで計装化シャルピー衝撃試験を実施し、衝撃時の荷重-変位曲線の測定、および破面観察を実施した。

マイクロ組織観察は、断面を鏡面研磨の後、3%ナイトールに浸漬腐食し光学顕微鏡および走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope: SEM)により観察した。SEM観察は、電界放出型(Field Emission: FE)SEM(Zeiss社製Sigma)にて行った。結晶粒、析出物などの観察時は電解研磨装置(TenuPol 5)を用いた。組織観察では、加速電圧(Acceleration voltage: AC): 5kV、作動距離(Working Distance: WD): 4mmの条件で反射電子像を取得し、EDS分析は、AC: 15kV、WD: 8.5mmの条件で実施した。破面観察時には、AC: 15kV、WD: 8.5mmの条件で二次電子像を取得した。破面断面の観察時にはコロイダルシリカによる機械研磨法を用いて観察を行った。観察は、AC: 5kV、WD: 4mmの条件で反射電子

像を取得した。透過型電子顕微鏡(Transmission Electron Microscope: TEM)観察はFE TEM(日本電子製JEM 2100F)を用いて、薄膜試料の観察を行った。加速電圧は200kVで、明視野像、電子回折像および暗視野像の観察を行い、シリコンドリフト検出器(Silicon Drift Detector)を用いたEDS分析を実施した。平均結晶粒径の測定は100個以上の結晶粒の円相当径を画像解析ソフトImage Jを使用して算出した。SEM-EBSD法(日本電子製JSM-7001F)では、サンプルを鏡面研磨後、コロイダルシリカで再研磨した。サンプルに対して、電圧20kV、WD20mm、測定ステップ0.08 μ mで測定した。測定データはOIM-Analysisで解析し、IQ(Image Quality)マップ、IPF(Inverse Pole Figure)マップ、Phaseマップを求めた。また、多層溶接継手後のサンプルは荷重98N、1mmピッチのビッカース硬さ試験により硬度分布を測定し、再現熱サイクル試験後のサンプルは荷重98Nで5点の硬度を測定し平均値を求めた。

3. 実験結果

3.1 MAG 溶接継手特性の評価結果

多層溶接継手の断面マクロ写真をFig.2に示す。なお、白色の破線は溶接前の開先形状、黒色の破線はF.L.を示す。融合不良などの溶接欠陥は認められない。HAZではマイクロ組織変化の影響を受けたと思われるエッチングの濃淡が認められる。なお、継手作製時に熱電対による測温を実施し、HAZ2mmの最高到達温度は約1273K、HAZ5mmの最高到達温度は約1073Kであった。また、1073Kから773Kへの冷却速度は約10K/sであった。これは、Inagakiらの推定式で導出される15K/sより若干遅い。

母材およびHAZのマイクロ組織をFig.3に示す。いずれの位置においても等軸の γ 単相組織である。HAZ1mm~2mmでは比較的粗大な γ 粒であるが、F.L.から離れるにしたがって γ 粒は細くなり、HAZ5mm~HAZ7mmでは母材との γ 組織の違いは認められない。

MAG溶接継手におけるHAZ全域に渡る77Kでのシャルピー衝撃試験結果をFig.4に示す。各HAZ位置における γ 粒径の測定結果およびビッカース硬さの分布も併せて示している。F.L.近傍のHAZ1mm~2mm、およびHAZ7mmでのシャルピー吸収エネルギーは母材とほぼ同等であるが、

Fig.2 Macrostructure of cross section in MAG multi-pass weld joint

Fig.3 Microstructures of HAZ ranging from 1 mm to 7 mm from fusion line of MAG weld joint.
(a) HAZ 1 mm, (b) HAZ 2 mm, (c) HAZ 5 mm, (d) HAZ 7 mm and (e) base metal.

Fig.4 Distribution of Charpy absorbed energy at 77 K, average grain size and Vickers hardness through HAZ from 1mm to 7mm of MAG weld joint.

HAZ 3mm~6mm では吸収エネルギーが低下し、HAZ 5mm で極小値を示す。γ 粒径は、HAZ 1mm で 83μm と最も粗粒化が進んでいるが、F.L. からの距離に応じてその程度は小さくなり、HAZ 5mm~HAZ 7mm の領域では母材と同程度であり、HAZ 7mm では 20μm である。継手 HAZ 靱性では、γ 粒径と靱性の相関は不明である。一方、硬度分布に関しては、F.L. から HAZ 5mm に至る領域で 220HV から 280HV に上昇しているものの、HAZ 6mm から母材に至る領域ではほぼ一

Fig.5 Load-displacement curve of instrumentation Charpy impact test at 77 K for the samples of HAZ 2mm, 5 mm and 7 mm of MAG weld joint.

Fig.6 Fractography after Charpy impact test at 77 K for the samples at (a) (c) HAZ 2mm and (b) (d) 5 mm from fusion line. Percentages of ductile fracture of both samples are 100%.

定となっている。

Fig.5 に HAZ 2mm, HAZ 5mm および HAZ 7mm から採取した試験片に対して実施した計装化シャルピー衝撃試験の

Fig. 7 TEM microstructures adjacent grain boundary of HAZ 5 mm. (a) bright field image of precipitates, (b) corresponding selected area electron diffraction (SAED) pattern from both of the matrix and of the precipitate. (c) nano-beam diffraction pattern. (d) magnified SAED pattern, showing the cube-cube orientation relationship $[100] \gamma // [100] M_{23}C_6$.

荷重 - 変位曲線を示す。母材と同等の靱性のHAZ7mmでは、最大荷重の絶対値および最大荷重を示す変位量ともに、HAZ2mmおよびHAZ5mmより大きい。HAZ2mmでは最大荷重がHAZ7mmに比べてやや低い。一方、HAZ5mmは最大荷重を示す変位量が最も小さい。き裂発生段階に相当する最大荷重に到達するまで荷重 - 変位挙動はHAZ位置によって大きく異なるが、き裂伝播過程に相当する最大荷重以降の変位量変化に対する荷重低下はHAZ位置に寄らず類似の挙動を示す。

シャルピー衝撃試験後の破面の一例として、HAZ2mmおよびHAZ5mmのSEM観察結果をFig.6に示す。なお、いずれの条件においても100%延性破面であったことから、典型的な観察視野として試験片厚み中央部でノッチ底直下を観察した。いずれの観察位置においても、ディンプル底が浅くすべり線の痕跡が認められる延性破面である。ディンプルの単位は、吸収エネルギーの高いHAZ2mmよりも吸収エネルギーの低いHAZ5mmの方が微細である。

HAZ5mmの粒界近傍についてTEMにて観察した結果をFig.7に示す。析出物のサイズは幅が100nm以下程度であり、粒界に沿ってやや伸張している。この電子回折と残渣XRDの測定結果から、析出物はfcc構造をもつ $M_{23}C_6$ であった。Fig.7(b)および(c)は、試料の傾きを変えず、析出物と隣り合う母相を同一の試料傾斜 $([100])$ の同一晶帯軸入射)で撮影したものである。この結果、 $M_{23}C_6$ 析出物は、母相に対してcube-cubeの関係で形成されていることを確認した。また、 $M_{23}C_6$ は、この整合界面側でなく、非整合界面を有する母相結晶粒側へと成長している。TEM-EDS分析による析出物の組成は、Cを除外した元素比でFe:Mn:Cr=40~50:30:20~30であった。なお、HAZ2mmの粒界近傍のTEM観察も実施しており、析出物の形態および組成が、HAZ5mmと明確な差は認められず、ほぼ同等であることを確認している。

以上、高Mn鋼のHAZでは、通常の低炭素鋼で見られるF.L.近傍CGHAZの靱性低下は認められない。一方、高Mn鋼特有の挙動として、1073K程度の中間温度域に再加熱される位置で吸収エネルギーが低下するものの、破面はいずれも延性破面を呈することが確認された。

Fig. 8 TEM bright field image of the $M_{23}C_6$ precipitates and line profiles of Cr amount across the grain boundaries comparing the shape and width of Cr depleted zones at HAZ2mm and HAZ5mm from FL on HAZ. (a), (b) HAZ2mm and (c), (d) HAZ5mm.

Fig.8にHAZに存在する析出物のTEM明視野像とTEM-EDSによって得られた析出物近傍における粒界直交方向のCr分布形態を示す。析出物サイズは、HAZ5mmで長さが100nm程度に対して、HAZ2mmでは200nm程度と若干大きい。HAZ2mmとHAZ5mmのランダムに抽出した複数の粒界での測定結果を、粒界位置を原点として重ね書きした。それぞれの粒界にはCr欠乏層が認められる。Cr欠乏層の形状は、 $M_{23}C_6$ の非整合界面(成長方向)側の結晶粒側へのみ欠乏が存在する形となっており、SUS304など γ 系ステンレス鋼等で観察されるものと同様の形状であった²⁰⁾。また、その欠乏の幅については、母材組成に戻るまでの幅で比較すると、HAZ2mmでは60nm以上、HAZ5mmでは30nm程度でありHAZ2mmの方が広い。欠乏部のCr絶対量については、ばらつきがあるもののHAZ2mmでは2.3wt%であるのに対して、HAZ5mmでは2%以下とやや深い欠乏層が形成されている。

3.2 加熱温度および冷却速度を変化させた再現熱サイクル試験結果

MAG 溶接による実継手では、各 HAZ 位置において特徴的なマイクロ組織変化と靱性分布を示すことが確認されたが、複雑な多層熱履歴を受けていることから、結晶粒径や炭化

Fig. 9 Effect of peak temperature of simulated HAZ on Charpy impact toughness at 77 K and hardness.

Fig. 10 Effect of cooling rate of simulated HAZ on Charpy impact toughness at 77 K and hardness. Peak temperature, T_p is ranging from 873 K to 1573 K.

物析出などのマイクロ組織変化と特性変化が発現する熱履歴が不明確である。そこで、本節では、加熱温度および冷却速度を変化させて、種々の溶接条件で想定される1パス溶接HAZを模擬した再熱条件と、マイクロ組織、特性変化の相関を解明することを目的とした。

再現熱サイクル試験により最高加熱温度を変化した時の77Kでのシャルピー吸収エネルギーおよびビッカース硬度との関係をFig.9に示す。冷却速度が30K/sの場合、最高加熱温度が873K以下までは母材の吸収エネルギーとほぼ同程度であるが1073~1173Kで母材の吸収エネルギーより低い極小値を示した後、再び1273Kで母材程度にまで回復し、それ以上の温度域では母材以上に吸収エネルギーが上昇する。硬度に関しては、最高加熱温度変化とともに緩やかに硬度が変化する。一方、冷却速度が0.5K/sの場合の吸収エネルギーは、冷却速度が30K/sの場合と比較すると、873~1573Kのいずれの温度域でも吸収エネルギーが低く、特に1273K以上での差が大きい。冷却速度が0.5K/sの場合の硬度に関しては、1073Kで硬度の極大値を示す。なお、MAG溶接継手では各HAZ位置で多層の複雑な熱履歴を受けていると想定されるが、最高加熱温度がおおよそ1073KとなるHAZ5mmでの吸収エネルギー低下や、最高加熱温度がおおよそ1273KとなるHAZ2mmでの靱性回復の挙動と一致している。

次に、最高加熱温度からの冷却速度と77Kでのシャルピー吸収エネルギーおよびビッカース硬度との関係をFig.10に、マイクロ組織の一例をFig.11に示す。最高加熱温度が1573Kの場合は、いずれの冷却速度においても、母材、1073Kおよび873Kよりも高い吸収エネルギーを示す。しかしながら冷却速度の低下に伴い吸収エネルギーは低下し、0.5K/sでは母材の吸収エネルギーとほぼ同等である。最高加熱温度が1573Kの γ 組織は1073Kおよび873Kと比較して結晶粒径が粗大である。一方、最高加熱温度が1573Kで冷却速度が遅くなるにしたがって結晶粒径は粗大化している。すなわち、本条件範囲内では、結晶粒径と靱性の相関が不明確である。なお、最高加熱温度が1573Kの硬度に関しては、母材、1073Kおよび873Kと比べて低く、冷却速度の最も遅い0.5K/sでは硬化する。1073Kの場合、いずれの冷却速度においても吸収エネルギーは最も低位であり、冷却速度の低下に伴い吸収エネルギーが低下する。一方、873Kではいずれの冷却速度においても母材より僅かに吸収エネルギーが低い。1073Kおよび873Kの γ 組織はいずれも約20 μ m程度の等軸粒組織であり、光顕写真での違いは認められない。硬度に関しては、1073Kおよび873Kで、冷却速度30~1K/sで差は見られないが、冷却速度0.5K/sでは1073Kの場合のみ硬化が認められる。

以上の結果、単層の熱履歴を模擬した再現HAZ熱サイクル試験により、MAG溶接継手特有の1073~1173K近傍での吸収エネルギー低下挙動を再現できる。しかしながら、HAZを想定した連続加熱-連続冷却の本実験では、 γ 組織変

Fig. 11 Typical optical microstructures of simulated HAZ of the steel. Peak temperature, T_p is 1573, 1073 or 873 K and cooling rate is 30, 1 or 0.5 K/s.

化と靱性に明確な相関は認められず、 γ 結晶粒径、炭化物析出等、複数の冶金因子が吸収エネルギーに影響している可能性が示唆される。

4. 考 察

4.1 MAG 溶接継手の HAZ 靱性に及ぼす炭化物の影響

高 Mn 鋼 MAG 溶接継手においては最高加熱温度がおおよそ 1073 K の HAZ 5 mm において、また、最高加熱温度を変化させた再現熱サイクル試験においても 1073 K において、77 K での吸収エネルギーが極小化した。Fig. 7 に示した実継手 HAZ 5 mm における組織観察より粒界にのみ炭化物が形成し、それに伴い粒界近傍の母相には Cr などの合金欠乏層が観察された。 γ 系ステンレス鋼や 1 mass% C-13 mass% Mn を含有する Hadfield 鋼においては、Cr 炭化物形成に伴う靱性低下現象に関する報告例^{21, 22)}がある。これらでは、Cr 炭化物の粒界占有率と靱性に相関があることが確認されており²¹⁾、特に γ 系ステンレス鋼では炭化物形成に伴う α' マルテンサイトの形成や、析出物自体が亀裂の起点となることで、脆性的な粒界破壊を生じることがある。 γ 系ステンレス鋼における Cr 炭化物形成は粒界上に急峻な Cr 欠乏層を形成し、低温での衝撃荷重時に $\gamma \rightarrow \epsilon$ を経て α' マルテンサイト変態し、脆性破壊を起こすと説明されている²²⁾。この際、Cr 欠乏層の

形成によって粒界部の SFE が低下し、 α' が生じると考えられている。

一方、本研究における実多層継手 HAZ のシャルピー衝撃試験時の破壊発生・伝播挙動の観察のため、Fig. 6(b), (d) に示した HAZ 5 mm のシャルピー衝撃試験後の破面近傍断面を、SEM-EBSD 法を用いて測定した。典型的な視野として、試験片厚み中央位置でノッチ底直下の破面断面を観察している。その結果を Fig. 12 に示す。(a) IPF マップより、77 K で衝撃荷重を受けた破面極表層近傍では、結晶粒内に多数の変形双晶が確認できる。また、結晶粒内において変形双晶が形成していない部分においても方位差が大きく、結晶回転が生じている。Fig. 12(a) 内の矢印で示すように、浅いディンプル底は、結晶方位の異なる隣接する 2 つ以上の結晶粒の会合部である場合が多く粒界三重点に対応する場合が多いと考えられる。(b) Phase マップより、77 K で衝撃荷重を受けても fcc 単相であることから加工誘起マルテンサイトは生じておらず、十分に γ 安定性が維持されていることが確認された。これは、Mn や Cr の添加量が多くこれらの粒界上での合金欠乏量が比較的緩やかであることに加え、C 量も 0.5% と γ 系ステンレス鋼と比べて遥かに多い。このことから、1073 K 程度への再加熱および連続冷却の過程において、粒界上での炭化物形成および成長過程において拡散速度の速い C が粒界から離れた粒内より十分に供給される

Fig. 12 SEM-EBSD analysis of cross section near fractured surface after Charpy impact test at 77 K in Fig. 6 (b) HAZ 5 mm. (a) IPF map and (b) Phase map by SEM-EBSD.

Fig. 13 SEM microstructure observation of cross section near fractured surface after Charpy impact test at 77 K in Fig. 9 (a) and (b). (a), (c) HAZ 5 mm and (b), (d) HAZ 2 mm.

ヒーリング現象が発現し粒界上での急峻なC欠乏を抑制しているためと考えられる。

Fig. 13 (a), (c) に、HAZ 5 mm のシャルピー衝撃試験後の破面近傍断面の詳細な SEM 観察結果を示す。破面近傍の母相では、粒界上にサブミクロンサイズの微小な炭化物が形成しており、さらに炭化物上にサブミクロンサイズの非常

に微細なクラックが発生している。これら炭化物上のサブミクロンサイズのクラックが僅かに進展し母相との界面にあたると、粒界上にマイクロボイドを形成していることが分かる。さらに炭化物近傍の母相は、粒内組織と同様に変形双晶が非常に発達しており、77 K の衝撃荷重においても延性的な破壊現象であることが確認できる。これら知見か

Fig. 14 Effect of gamma grain size on Charpy impact toughness at 77 K and hardness after simulated thermal cycle test that samples were quenched from various temperature.

Fig. 15 Fractography after Charpy impact test at 77 K for the samples with different gamma grain size. Average grain size of (a) 22 μm and that of (b) 94 μm .

ら、粒界析出物が存在する場合、母相よりも先に析出物上にサブミクロンサイズのクラックが形成されるものの、成長と連結過程は変形双晶を伴う延性的なき裂伝播であることが明らかとなった。

一方、Fig. 13 (b), (d) には、吸収エネルギーの高い HAZ2 mm の詳細な SEM 観察結果も併記している。HAZ2mm では、最高加熱温度が 1273 K 程度であることから、連続冷却中に炭化物が形成したものと考えられる。これらの炭化物形態は、靱性の極小化した HAZ5mm と同様に粒界上にものみ M_{23}C_6 が形成しており、母相より先に炭化物内でマイクロクラックが形成している。HAZ2mm においては高い吸収エネルギーを確保できる要因に関しては、結晶粒径の違いが影響していると考えられる。

4.2 高 Mn 鋼 HAZ 靱性に及ぼす γ 結晶粒径と炭化物の影響

高 Mn 鋼の実多層継手においては、 γ 結晶粒径、炭化物析出等、複数の冶金因子が変化するため、ここでは炭化物析出の影響を排除し、高 Mn 鋼の γ 結晶粒径とシャルピー吸収エネルギーおよびビッカース硬度の相関を解明することを目的とする。再現熱サイクル試験により 30 K/s で急速加熱し、最高加熱温度が 873~1073 K で 1s 保持してガス急冷、もし

Fig. 16 Relationship between Charpy impact toughness at 77 K and grain size of simulated thermal cycle test that samples were quenched from various temperature in Fig. 14 and actual MAG multi-pass welding in Fig. 4.

くは 1573 K で保持時間を 1~1200s に変化させた後、ガス急冷を実施したときの、 γ 結晶粒径と 77 K でのシャルピー吸収エネルギーおよびビッカース硬度との相関を Fig. 14 に示す。なお、いずれの条件においても M_{23}C_6 の析出が無いこと

を組織観察により確認している。シャルピー吸収エネルギーに関しては、 γ 結晶粒径 $d^{1/2}$ が増大するほど吸収エネルギーが直線的に向上する。一方、硬度に関しては、結晶粒径 $d^{1/2}$ に対して、微細になるほど直線的に硬度が上昇する一般的な Hall-Petch 則に従う。結晶粒径の異なるシャルピー衝撃試験後の破面の一例を Fig. 15 に示す。いずれの供試鋼も延性破壊しており、破壊起点の特定が困難であったため、ノッチ底下 1mm、幅中央付近を観察した。結晶粒径および吸収エネルギーによらず、高 Mn 鋼に特徴的な底が浅いディンプルが認められた。これらの隣り合うディンプル同士の境界が多角的な流曲線状であり、その内部にはすべり線の痕跡が確認でき、結晶粒径に応じて底の浅いディンプルの破面単位の大きさも変化していることから、粒界延性破面が主体であることが示唆される²¹⁻²³⁾。なお、いずれの鋼も粒界延性破面に加え、MnS など非金属介在物を内包するディンプル底の深い典型的な粒内延性破面も点在する。

Fig. 16 は、Fig. 14 に示した種々の加熱条件から急冷した再現熱サイクル試験と、Fig. 4 に示した MAG 多層継手におけるシャルピー吸収エネルギーと結晶粒径の相関を再整理した結果である。再現熱サイクル試験において $M_{23}C_6$ は形成しておらず結晶粒径のみの吸収エネルギーへの影響を表している。実継手の靱性は絶対値こそ、再現熱サイクル試験より低いものの、HAZ 1mm から 5mm では再現熱サイクル試験結果と同様の吸収エネルギーと結晶粒径 $d^{1/2}$ の傾きを有しており、結晶粒径と靱性の相関を維持している。

一方、種々の加熱条件から急冷した再現熱サイクル試験での吸収エネルギーを示す実線に比べて、実継手の HAZ 1mm から 5mm での吸収エネルギーを示す破線は、 γ 結晶粒径の絶対値によらず約 70J 低い。これは、実継手 HAZ 1mm から 5mm の破壊発生段階で γ 粒界上の $M_{23}C_6$ の内部から微細クラックが発生した後、 $M_{23}C_6$ に隣接した粒界および母相において微細クラックがボイドに成長、連結したのに対して、急冷した再現熱サイクル試験材では、 $M_{23}C_6$ の形成していない γ 粒界から粒界延性破壊が発生したことの違いに起因する。すなわち、 $M_{23}C_6$ 形成による延性き裂の発生エネルギーは約 70J 低下することが明らかになった。

5. 結 論

高 Mn 鋼 HAZ 靱性に及ぼすミクロ組織の影響について調査した。MAG 溶接による実継手特性の評価に加えて、再現熱サイクル試験を実施し、シャルピー吸収エネルギーの変化と詳細なミクロ組織観察を実施した。得られた結論を以下に述べる。

(1) 高 Mn 鋼 MAG 溶接継手の靱性分布を調査した結果、およそ 1073K に再加熱される HAZ 5mm 位置で吸収エネルギーが低下した。一方、F.L. 近傍では母材同等に高い吸収エネルギーを示した。

(2) 高 Mn 鋼 MAG 溶接継手シャルピー衝撃試験後の破面

は、吸収エネルギーによらずへき開破面は存在せず、ディンプル底が浅くすべり線の痕跡が認められる高 Mn 鋼に特徴的な粒界延性破面である。

(3) HAZ 2mm および 5mm とともに、 $M_{23}C_6$ が γ 粒界上に析出し、その周囲に合金欠乏域が形成した。

(4) HAZ の熱履歴を想定した単サイクルの再現 HAZ 熱サイクル試験の結果、最高加熱温度がおよそ 1073K で吸収エネルギーが低下し、それ以上の温度域では靱性が回復した。この挙動は複数パスの熱履歴を受けた実継手 HAZ の挙動とよく一致している。

(5) 結晶粒径のみを変化させた急冷熱処理試験の結果、高 Mn 鋼では結晶粒径 $d^{1/2}$ が大きくなるほど直線的に吸収エネルギーが向上した。一方、結晶粒径 $d^{1/2}$ と硬度の関係は、従来の Hall-Petch 則に従う。

(6) 多層継手 HAZ 2mm および 5mm の 77K でのシャルピー衝撃試験後 V ノッチ底近傍の破面断面の詳細な組織観察をした結果、いずれにおいても同様に、破壊発生段階で γ 粒界上の $M_{23}C_6$ の内部から微細クラックが発生した後、安定な γ を維持し、 $M_{23}C_6$ に隣接した粒界および母相においてボイドが成長、連結することにより粒界延性破面を呈することを確認した。

(7) 高 Mn 鋼実継手 HAZ 1mm から 5mm においては、 $M_{23}C_6$ 形成により延性き裂の発生エネルギーが約 70J 低下することが明らかになった。

参 考 文 献

- 1) T. Sasaki, K. Watanabe, K. Nohara, Y. Ono, N. Kondo and S. Sato: Physical and Mechanical Properties of High Manganese Non-magnetic Steel and Its Application to Various Products for Commercial Use", Transactions of the Iron and Steel Institute of Japan, 22 (1982), 1010-1020. (in Japanese)
- 2) Y. Tomota: Phase Transformation, Microstructure, and Mechanical behavior in Fe-Mn Alloys, Tetsu-to-Hagane, 77 (1991), 315-325. (in Japanese)
- 3) K. Ueda, D. Izumi, K. Nakashima and S. Igi: Technical Review on the Welding Technology and Properties of High Manganese Steels, Proceedings of the 29th International Ocean and Polar Engineering Conference (ISOPE), (2019), 528-532.
- 4) X. J. Wang, X. J. Sun, C. Song, H. Chen, S. Tong, W. Han and F. Pan: Grain Size-Dependent Mechanical Properties of a High-Manganese Austenitic Steel, Acta Metallurgica Sinica, 32(2019), 746-754.
- 5) H. Kim, J. Park, J. E. Jung, S. S. Sohn and S. Lee: Interpretation of cryogenic-temperature Charpy fracture initiation and propagation energies by microstructural evolution occurring during dynamic compressive test of austenitic Fe-(0.4,1.0)C-18Mn steels, Materials Science & Engineering, A 641(2015), 340-347.
- 6) Q. Luo, H.H. Wang, G.Q. Li, C. Sun, D.H. Li and X.L. Wan: On mechanical properties of novel high-Mn cryogenic steel in terms of SFE and microstructural evolution, Materials Science & Engineering A 753 (2019), 91-98.
- 7) J. Park, K. Lee, H. Sung, Y. J. Kim, S. K. Kim and S. Kim: J-integral Fracture Toughness of High-Mn Steels at Room and Cryogenic Temperatures, Metallurgical and Materials Transactions A 50(2019), 2678-2689.

- 8) S. Sawa: Recent Non Magnetic High Manganese Steels, Bulletin of Japan Institute of Metals, 18 (1979), 573-581. (in Japanese)
- 9) M. Koyama, T. Sawaguchi and K. Tsuzaki: Deformation Twinning Behavior of Twinning-Induced Plasticity Steels with Different Carbon Concentrations, Tetsu-to-Hagane, 100 (2014), 1246-1252. (in Japanese)
- 10) K. Nohara and Y. Habu: Cryogenic Non-magnetic High Mn Steel for Accelerator Superconducting Magnet, Kawasaki Steel Giho, 21 (1989), 245-249. (in Japanese)
- 11) C. Ouchi, T. Sampei, T. Osuka, Y. Kohsaka, T. Kitada and Y. Kunisada: Workability of Non Magnetic Low Carbon High Manganese Steels, Nippon Kokan Giho, 88 (1981), 15-26. (in Japanese)
- 12) H. Ohtani, M. Miura, Y. Okada, T. Matsuoka, H. Egashira, S. Nagata, Y. Watanabe, and K. Sato: Various Properties and Products of High Manganese Non-magnetic Steels, Sumitomo Metal Technical Report, 33(1981), 1, 1-14. (in Japanese)
- 13) H. Masumoto, K. Suemune, H. Yoshimura, T. Inoue, T. Akasaka, T. Ogawa, Ohba, S. Hida, Y. and Harada, T: Development of a High-Manganese Steels, Seitetsu Kenkyu, 309 (1982), 47-59. (in Japanese)
- 14) S. Ando, A. Uchida, N. Kimata and T. Takimoto: Gas Shielded Arc Welding of Austenitic Manganese Steel, Journal of the Japan Welding Society, 38(1969), 1215-1223. (in Japanese)
- 15) H. Kasamatsu, M. Yamaga, and S. Tone: High Manganese Non-Magnetic Steel Plate, FAPIG, 97(1981), 52-58. (in Japanese)
- 16) C. Ouchi, T. Sampei, T. Osuka, Y. Kohsaka, T. Kitada, and Y. Kunisada: Workability of Non Magnetic Low Carbon High Manganese Steels, Nippon Kokan Giho, 88 (1981), 15-26. (in Japanese)
- 17) H. Masumoto, K. Suemune, H. Yoshimura, T. Inoue, T. Akasaka, T. Ogawa, S. Ohba, Y. Hida and T. Harada: Development of a High-Manganese Steels, Seitetsu Kenkyu, 309(1982), 47-59. (in Japanese)
- 18) H. Ohtani, M. Miura, Y. Okada, T. Matsuoka, H. Egashira, S. Nagata, Y. Watanabe, and K. Sato: Various Properties and Products of High Manganese Non-magnetic Steels, Sumitomo Metal Technical Report, 33(1981), 1-14. (in Japanese)
- 19) M. Inagaki, H. Nakamura and A. Okada: Studies of Cooling Processes in the Cases of Welding with Coated Electrode and Submerged Arc Welding, Journal of the Japan Welding Society, 34(1965), 1064-1075. (in Japanese)
- 20) K. Kaneko, T. Fukunaga, K. Yamada, N. Nakada, M. Kikuchi, Z. Saghi, J. S. Barnard, P. A. Midgley: Formation of $M_{23}C_6$ -type precipitates and chromium-depleted zones in austenite stainless steel, Scripta Mater 65 (2011), 509-512.
- 21) K. Shinoda and T. Yamada: The Effect of Grain Boundary Carbide on the Impact Property of Austenitic High Manganese Steels, Nisshin Steel Technical Report. 38(1978), 9-18. (in Japanese)
- 22) M. Shimada, R. Ogawa and T. Horiuchi: Effects of Aging on Cryogenic Mechanical Properties of Austenitic Stainless Steels, Cryogenic engineering, 23(1988), 183-191. (in Japanese)
- 21) R. Koderazawa: Fractography, Tetsu to Hagane, 70(1984), 803-814. (in Japanese)
- 22) 非磁性鋼における最近の進歩, 日本鉄鋼協会, (1990), 196.
- 23) S. Takaki, T. Furuya and Y. Tokunaga: Effect of Fracture Si and Al Additions on the Low Temperature Toughness and Mode of Fe-27Mn Alloys, ISIJ International, 30(1990), 632-638.