水素チャージした試験片を用いた引張試験による 新しい非金属介在物検査法

藤田 慎治*・松岡 三郎*²・村上 敬宜*²

A New Inclusion Rating Method by the Tensile Test with Hydrogen-precharged Specimens

Shinji FUJITA, Saburo MATSUOKA and Yukitaka MURAKAMI

Synopsis : A new inclusion rating method by the tensile test with the hydrogen-precharged specimens is proposed. The method is essentially based on the statistic extremes method of inclusion rating in which the maximum inclusion is found by the simple tensile test with the hydrogen-precharged specimens. In order to verify the validity of the new inclusion rating method, that is the tensile test method with the hydrogen-precharged specimens, tensile tests and fatigue tests were carried out for bearing steel (JIS-SUJ2, Vickers hardness $HV=682, 611, 559, 447, 346$) and the inclusions appeared on the fracture surface were investigated. It was confirmed that the distribution of extreme values of $Al_2O_3 \cdot (CaO)_x$ inclusions obtained by the tensile test method with the hydrogen-precharged specimens coincided with that obtained by the fatigue test method. On the other hand, the distribution of extreme values of inclusions obtained by the optical microscope method was different from those obtained by the tensile test method with the hydrogen-precharged specimens or fatigue method. The inclusion rating method by the fatigue test can be replaced by the tensile test method with hydrogen-precharged specimens. The proposed method is more convenient and reliable than other existing inclusion rating methods.

Key words: nonmetallic inclusion; bearing steel; inclusion rating; statistics of extremes; hydrogen; fatigue test; tensile test.

1. 緒言

機械や構造物における破壊事故の約80%が疲労破壊によるものと言われており、疲労破壊による事故を未然に防ぐことは極めて重要な課題である。ビッカース硬さ $HV=400$ 以上の高強度鋼で製造された部品・部材では、部品・部材中に含まれる最大寸法の非金属介在物が疲労破壊起点となることが知られている¹⁾。大きい介在物が含まれると、疲労強度が低下し、疲労寿命も短くなる。このため、介在物の量や寸法を減らすための製鋼技術の改善がなされ、最近の鋼の清浄度は著しく改善され、介在物の数も少なくなり、寸法も小さくなってきた。にもかかわらず、確率は低いですが、ごくまれに疲労破損をもたらす大寸法の介在物の存在について、製鋼メーカーや高強度鋼のユーザは依然として高い関心を抱いている。

非金属介在物の測定方法については、各国で様々なものが提案されている^{1,2)}。我が国では、JIS点算法が規格化されている³⁾。1956年に規格化されたJIS点算法では³⁾、介在物の種類を加工によって変形するかしないか、または分布形態によって、A系（硫化物系、個別粒子）、B系（アル

ミナ系、整列粒子群）、C系（シリケート系、個別粒子）、D系（粒状酸化物系、ランダム分布粒子）およびDS系（粒状介在物系、単独粒子）の5種類に分類している。観察した5種類の介在物は、標準図にしたがって指数番号を決定し、観察した視野数で指数番号の算術平均を求める。しかしながら、JIS点算法で求めた平均介在物指数と疲労強度との間には必ずしも明確な関連がないことが指摘されている⁴⁾。これは、JIS点算法が疲労現象の詳細な観察結果に基づいて提案されたものではないからである。村上らの詳細な実験結果⁵⁾によれば、疲労強度に最も有害な介在物は最大寸法の介在物である。

機械部品の疲労強度、疲労寿命を左右する最大寸法の介在物を推定する方法としては、村上らによる極値統計を用いた介在物寸法検査方法がある^{1,6-8)}。極値統計法による介在物寸法検査方法は、アメリカのASTM E 2283-08において規格化されている⁹⁾。検鏡法による極値統計介在物寸法検査では、部品・部材の最大主応力方向に垂直な断面を有する介在物検査用試験片を部品・部材あるいは部品・部材の素材から切り出す。部品部材の主応力方向に垂直な介在物検査用試験片の断面を鏡面に仕上げて顕微鏡観察し、検

平成21年7月14日受付 平成21年8月25日受理 (Received on July 14, 2009; Accepted on Aug. 25, 2009)

* 九州大学大学院工学府，日本精工（株）(Graduate Student, Graduate School of Engineering Kyushu University and NSK Ltd., 744 Moto-oka, Nishi-ku, Fukuoka 819-0395)

* 2 九州大学大学院工学研究院，産業技術総合研究所水素先端材料科学研究センター (Department of Mechanical Engineering, Kyushu University and Reserch Center for Hydrogen Industrial Use and Storage (HYDROGENIUS), National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST))

査基準面積中に存在する最大の介在物寸法 $\sqrt{area}$ を測定する。検査基準面積 S_0 は顕微鏡観察により検査した部分の基準となる面積である。介在物寸法 $\sqrt{area}$ は、介在物を主応力方向に投影した面積の平方根である。検査基準面積 S_0 を有する別の場所を顕微鏡で観察し、 S_0 中に含まれる最大介在物寸法 $\sqrt{area}$ を再度測定する。この一連の検査を複数回繰返し、介在物寸法の極値統計分布を作成する。 S_0 と部品・部材の危険体積 V_0 を用いて、介在物寸法の極値統計分布から部品・部材の危険体積に存在する介在物の最大寸法が予測できる。しかしながら、2次元顕微鏡観察法によって比較的小さい基準面積 S_0 で得られる介在物寸法の極値統計分布から、部品・部材中の疲労破壊起点となる介在物の最大寸法を推定すると、誤差が大きくなることが指摘されている¹⁰⁻¹³⁾。

周と村上らは^{11,12)}、顕微鏡観察による介在物寸法検査に加え、疲労試験による介在物寸法検査を行い、顕微鏡観察による介在物検査方法の問題点を明らかにしている。彼らの報告によれば、顕微鏡観察によって比較的小さい検査面積で得られた介在物の母集団分布は、寸法が小さく、数が多い介在物の分布である。一方、疲労試験による介在物寸法検査で得られた疲労破壊起点の介在物は、寸法が大きく、数が少ない別の種類の介在物の母集団に属している。すなわち、顕微鏡観察による比較的小さい検査面積による介在物検査と疲労試験による大きな検査体積による介在物検査では、別の種類の最大寸法の介在物を検査しており、両検査方法による介在物寸法の極値統計分布は異なる。その結果、周と村上^{11,12)}は、部品・部材中の疲労破壊起点の介在物を検査するためには、疲労試験による介在物寸法検査のほうが、信頼性が高いことを指摘している。同時に、彼らは、顕微鏡観察による介在物寸法検査方法によって部品・部材中の疲労破壊起点の介在物寸法を予測するためには、大きな面積を数多く顕微鏡で観察する必要があることを指摘している。周と村上^{11,12)}は、疲労試験による介在物寸法検査方法も、顕微鏡観察による大きい面積を数多く検査する介在物寸法検査方法も時間と費用がかかるので、疲労試験や顕微鏡観察による介在物寸法検査方法に替わる新しい方法を開発すべきであると結論している。

本研究では、高強度鋼で製造された部品・部材中の疲労破壊起点となる最大寸法の非金属介在物を予測する簡便で信頼性が高い介在物寸法検査方法を提案する。提案する方法は、極値統計法による介在物評価法を基本としているが、試験片に水素をチャージした後に、引張試験を行い、介在物起点の破壊を起こさせる、いわゆる「水素脆化」といわれる現象を逆に積極的に利用して行うものである。本法の有効性を示す対象材料の1つとして、試験片のビッカース硬さを $HV=678, 611, 559, 447, 346$ に変えた高炭素クロム軸受鋼(JIS-SUJ2)を用いた。さらに、疲労試験による介在物寸法検査と金属顕微鏡観察による介在物寸法検査を行

い、水素チャージした試験片を用いた引張試験による介在物寸法検査方法、疲労試験による介在物寸法検査方法、金属顕微鏡観察による介在物寸法検査方法で得られた結果を比較した。

2. 供試材および実験方法

2.1 供試材および試験片

本研究に用いた供試材は、高炭素クロム軸受鋼JIS-SUJ2である。Table 1に供試材の化学成分を示す。Fig. 1(a)に引張試験片、Fig. 1(b)に疲労試験片の形状を示す。引張試験片と疲労試験片の平行部の体積すなわち検査基準体積 V_s はともに 477 mm^3 である。検査基準体積 V_s (477 mm^3)は、試験片1本に対して破壊起点となり得るような高い応力の作用する部分の体積である。両試験片ともに、始めに25 mmの丸棒材から平行部の取り代を直径当たり1.0 mm、残りの部位は取り代を直径当り0.6 mmとなるように機械加工した後、熱処理を行った。その後、再び機械加工、エメリー研磨(#2000)、パフ研磨により平行部を仕上げた。

Table 2に熱処理条件とビッカース硬さを示す。焼入れ温度は1113Kである。焼戻し温度は、513K, 573K, 643K, 743K, 823Kの5条件である。焼戻し温度を5条件で行った理由は、破壊起点が介在物となるかどうか、破壊形態に

Table 1. Chemical composition of the material, mass%.

	C	Si	Mn	Cr	O	Ti
SUJ2	1.00	0.26	0.36	1.44	6ppm	0.002

Fig. 1. Shapes of test specimens (dimension in mm).

Table 2. Heat treatment condition and Vickers hardness.

Quenching	Tempering	Vickers Hardness, HV
1113 K, Oil quenching	513 K, Furnace cooling	678 [*] , 682 ^{**} (20 points, Scatter : Within $\pm 2\%$)
	573 K, Furnace cooling	611 [*] (20 points, Scatter : Within $\pm 2\%$)
	643 K, Water quenching	559 [*] (20 points, Scatter : Within $\pm 3\%$)
	743 K, Water quenching	447 [*] (20 points, Scatter : Within $\pm 2\%$)
	823 K, Oil quenching	346 [*] (20 points, Scatter : Within $\pm 3\%$)

*: Tensile test specimen, **: Fatigue test specimen.

及ばず試験片硬さの影響を調べるためである。焼戻しの保持時間は2hである。焼戻し後の冷却条件は、513K焼戻し材と573K焼戻し材は炉冷、643K焼戻し材と743K焼戻し材は水冷、823K焼戻し材は油冷である。

ビッカース硬さは、測定荷重 $P=2.94\text{ N}$ で、Fig. 1(a)に示す引張試験とFig. 1(b)に示す疲労試験の平行部において、表面から中心に向かって20点測定した。ビッカース硬さは表面と内部で差はなく、ばらつきは $\pm 3\%$ 以内であった。引張試験片の硬さの平均値は、513K焼戻し材は $HV=678$ 、573K焼戻し材は $HV=611$ 、643K焼戻し材は $HV=559$ 、743K焼戻し材は $HV=447$ 、823K焼戻し材は $HV=346$ である。疲労試験片の硬さの平均値は $HV=682$ (513K焼戻し) である。

2・2 水素チャージ方法

引張試験片と疲労試験片への水素チャージは、20 mass% のチオシアン酸アンモニウム水溶液に313Kで48時間浸漬して行った。水素チャージは、エメリー研磨(#2000)をした後に行った。水素チャージ終了後は、水素チャージによる腐食層を取り除くために、再びエメリー研磨(#2000)、バフ研磨により平行部を仕上げた。

水素含有量の測定は、四重極質量分析計を用いた昇温脱離分析装置(TDS)を用いて実施した。測定条件は、昇温速度0.5K/s、最終測定温度573Kである。Fig. 1(c)に水素含有量の測定に用いた直径4.5 mmの丸棒試験片を示す。

2・3 非金属介在物寸法検査方法

2・3・1 水素チャージした試験片を用いた引張試験による介在物検査方法

引張試験は、硬さが $HV=678$, 611, 559, 447, 346の未チャージ試験片と水素チャージ試験片について行った。引張試験片の検査基準体積 V_s は $V_s=(4.5^2 \times \pi/4) \times 30\text{ mm}^3=477\text{ mm}^3$ である。引張試験条件は、室温大気中、クロスヘッドスピード $V=0.05$, 1, 50, 100 mm/minである。引張試験環境が室温大気中であるので、水素チャージ終了後から引張試験を開始するまでの間に、試験片に含まれる水素量は減少すると考えられる。そこで、常温における水素放出特性を調べるため、水素チャージした直径4.5 mmの丸

Fig. 2. Variation in hydrogen content after hydrogen charge obtained by TDS (Thermal Desorption Spectroscopy).

棒試験片(Fig. 1(c))から、所定の時間経過ごとに、試験片の端面から4.5 mm以上離れた位置から、厚さ2.0 mmのチップ状試料を一枚ずつ切り出し、水素量を測定した。Fig. 2に、水素チャージを行った後の鋼中水素量の変化を示す。鋼中の水素量は、水素チャージ後の時間とともに単調に低下している。そこで、水素チャージにより侵入水素量が一定であると仮定すると、水素チャージ終了後から試験を開始するまでの時間を水素チャージ後の再研磨時間を含めて、ほぼ一定(約2h)にすることにより、試験開始時の試験片に含まれる水素量もほぼ一定に保たれると考えられる。さらに、破壊応力と破壊形態に及ぼす鋼中の残留水素量の影響を調べるため、引張試験開始までのまでの時間を大気中で24, 72, 200 h放置することにより水素量を低下させた試験片も準備した。

水素チャージ材の場合、引張試験終了後直ちに試験片平行部から直径4.5 mm、厚さ2.0 mmの試料を切り出し、TDSにより昇温速度0.5K/sで573Kまで昇温して残留水素量 $C_{H,R}$ を測定した。 $C_{H,R}$ は、後に示すTable 3中に併記してある。

X線による残留応力測定は、試験片の平行部中央の円周方向に180°離れた2点において行った。試験片の残留応力の平均は、513K焼戻し材は -287 MPa (測定数: 4点, ばらつき: $\pm 15\%$ 以内), 573K焼戻し材は -98 MPa (測定数: 4点, ばらつき: $\pm 15\%$ 以内), 643K焼戻し材は -101 MPa (測定数: 4点, ばらつき: $\pm 20\%$ 以内), 743K焼戻し材は -84 MPa (測定数: 4点, ばらつき: $\pm 20\%$ 以内), 823K焼戻し材は -45 MPa (測定数: 4点, ばらつき: $\pm 25\%$ 以内)であった。

2・3・2 疲労試験による介在物検査方法

疲労試験片の硬さは $HV=682$ (513K焼戻し) である。疲労試験は引張圧縮であるので、試験片の検査基準体積 V_s は $V_s=(7.02 \times \pi/4) \times 12.4\text{ mm}^3=477\text{ mm}^3$ である。

疲労試験の条件は、未チャージ試験片と水素チャージ試験片ともに、繰返し速度 $f=50\sim 75\text{ Hz}$ 、応力比 $R=-1$ である。疲労試験は室温、大気中で行った。引張圧縮疲労試験

では、試験部に曲げがかかると正しい寿命よりも低めの寿命が得られる。そこで、試験片の取り付けに当たっては、試験片ごとにつかみ部付近の円周を4等分する位置にひずみゲージを貼り、荷重を負荷した際に試験部に曲げがかからないように注意深く調整した。

水素チャージ材の場合、水素チャージ終了後から疲労試験を開始するまでの時間は3hとした。水素チャージ材については、疲労試験終了後直ちに試験片平行部から直径7.0mm、厚さ2.0mmの試料を切り出し、TDSにより昇温速度0.5K/sで573Kまで昇温して残留水素量 $C_{H,R}$ を測定した。 $C_{H,R}$ は、後に示すTable 4中に併記してある。X線による残留応力測定は、試験片の平行部中央の円周方向に180°離れた2点において行った。試験片の残留応力の平均値は-72 MPa（測定数：6点、ばらつき：±15%以内）である。

2.3.3 金属顕微鏡による介在物検査方法

Fig. 1(a)に示す引張試験片の平行部を検査試料とした。観察面は、引張応力方向に対して垂直な面（圧延方向に対して垂直な面）である。観察面を鏡面に仕上げ、40断面について観察した。検査基準面積 S_0 は顕微鏡観察により検査した部分の基準となる面積であり、本研究においては、 $S_0=4.5^2 \times \pi/4=15.9 \text{ mm}^2$ である。

2.4 介在物の寸法測定と化学成分の同定

引張試験と疲労試験の破壊起点となった非金属介在物の寸法 $\sqrt{\text{area}}$ は走査型電子顕微鏡（SEM 日立製作所製、S-2500CX）を用いて測定した。引張試験と疲労試験では破壊起点の介在物寸法 $\sqrt{\text{area}}$ を試験片中の最大介在物寸法 $\sqrt{\text{area}}_{\text{max}}$ とみなした。破壊起点となった介在物の化学成分の同定は、SEMに付属のエネルギー分散型X線分光(EDX)

で行った。SEM観察とEDX分析の加速電圧は20kVである。

金属顕微鏡（ニコン製、ECLIPSE L150）による介在物寸法検査においては、画像処理装置により検査基準面積 S_0 中の最大介在物寸法 $\sqrt{\text{area}}_{\text{max}}$ を測定した。最大介在物寸法 $\sqrt{\text{area}}_{\text{max}}$ とは、検査基準面積 $S_0=15.9 \text{ mm}^2$ 中の最大寸法の介在物を主応力方向に投影した面積の平方根である。最大寸法の介在物については、走査電子顕微鏡(SEM)に付属のEDXで介在物の化学成分の同定を行った。SEM観察とEDX分析の加速電圧は20kVである。

3. 実験結果および考察

3.1 水素チャージした試験片を用いた引張試験による介在物検査方法

Fig. 3に未チャージ材と水素チャージ材の公称応力-ひずみ曲線を示す。水素チャージ材については、水素チャージ後の2hで試験を開始した。引張試験のクロスヘッドスピードは1 mm/minである。硬さが $HV=678, 611, 559, 447$ である試験片では、未チャージ材は降伏したのちに塑性変形を生じ、破断したが、水素チャージ材は降伏前に破断した。このため、水素チャージ材の破断応力は、未チャージ材と比べて低下した。一方、硬さが $HV=346$ の試験片では、未チャージ材、水素チャージ材ともに塑性変形を生じた後に破断した。硬さが $HV=346$ の試験片では、未チャージ材、水素チャージ材の引張強度は同じであったが、水素チャージ材の伸びは、未チャージ材と比べて低下した。

Fig. 3. Nominal stress-strain curves of uncharged and hydrogen-precharged specimens. Cross head speed: 1 mm/min, time from the end of hydrogen-precharge to the start of tensile test: 2 h, $C_{H,R}$: residual hydrogen content.

Fig. 4に未チャージ材と水素チャージ材の引張破面のSEM像を示す。試験片の硬さは、 $HV=678$ (513K焼戻し)と $HV=559$ (643K焼戻し)である。Fig. 4(a)とFig. 4(b)は未チャージ材で介在物から破断した例である。未チャージ材の破壊起点の介在物の化学成分としては、Tiが検出されたこと、ならびに介在物の形状も角ばっていること¹⁾から、TiN系介在物であると考えられる。Fig. 4(a-3)はFig. 4(a-2)に示した反対側の破壊起点であり、Fig. 4(b-3)はFig. 4(b-2)に示した反対側の破壊起点である。すなわち、Fig. 4(a-2)とFig. 4(a-3)、Fig. 4(b-2)とFig. 4(b-3)は破壊起点のマッチング写真を示したものである。Fig. 4(a-3)とFig. 4(b-3)に示すように、未チャージ材の破壊起点となったTiN系介在物は、片方の破面だけでなく、対となる反対側の破面においても観察されている。このことは、試験片の硬さが $HV=447$ 以上の未チャージ材においては、TiN系介在物は破壊、分離し、引張破壊起点となったことを示している。Fig. 3に示す公称応力-ひずみ曲線によると、試験片の硬さが $HV=447$ 以上の場合では、すべての未チャージ材(破線)において、塑性変形が生じている。基地組織が塑性変形すると、基地組織とTiN系介在物の塑性変形能の違いにより、TiN系介在物には大きな引張応力が作用し、この大きな引張応力でTiN系介在物は破壊したと考えることができる。未チャージ材の引張破壊起点としては、TiN系介在物のほかに、 $Al_2O_3 \cdot (CaO)_x$ 系介在物やMnS系介在物も候補となりえる。しかし、介在物と基地組織との接着強さや介在物形状の相違により、これらの介在物を起点とした引張破壊が起こりやすいかの競争の結果、1つのTiN系介在物を起点として、引張破壊が生じたと考えられる。

Fig. 4(c)とFig. 4(d)は、水素チャージ材で介在物から破壊した例である。水素チャージ材の破壊起点の介在物の化学成分としては、主にAl, Caが検出されたところから、 $Al_2O_3 \cdot (CaO)_x$ 系介在物であると考えられる。Fig. 4(c-3)はFig. 4(c-2)に示した反対側の破壊起点であり、Fig. 4(d-3)はFig. 4(d-2)に示した反対側の破壊起点である。すなわち、Fig. 4(c-2)とFig. 4(c-3)、Fig. 4(d-2)とFig. 4(d-3)は、破壊起点のマッチング写真である。Fig. 4(c-3)とFig. 4(d-3)に示すように、水素チャージ材の破壊起点となった $Al_2O_3 \cdot (CaO)_x$ 系介在物は、片方の破面のみに観察された。このことは、ビッカース硬さが $HV=447$ 以上の水素チャージ材においては、 $Al_2O_3 \cdot (CaO)_x$ 系介在物と基地組織の界面がはく離し、はく離した界面を基点として引張破壊したことを示している。Fig. 3に示した公称応力-ひずみ曲線は、ビッカース硬さが $HV=447$ 以上の水素チャージ材は、塑性変形が生じる前(降伏する前)に引張破壊することを示している。松尾ら¹⁴⁾は、配管用炭素鋼鋼管SGPを用いて、引張破壊に及ぼす水素の影響を調べている。彼らは、SGPの水素チャージ材では、①水素によって $Al_2O_3 \cdot (CaO)_x$ 系介在物と基地組織の界面がはく離し、ボイドが形成され、②水素に

Fig. 4. SEM images of tensile fracture surfaces. Cross head speed: 1 mm/min, Time from the end of hydrogen-precharge to the start of tensile test: 2 h, $C_{H,R}$: residual hydrogen content.

よってボイド縁に塑性変形が集中する結果、ボイドは引張応力方向に垂直に成長し、絞りが低下することを報告している。西口ら¹⁵⁾は、圧力配管用炭素鋼鋼管SGP370を用いて、引張試験に及ぼす水素の影響を調べている。SGPとSTPG370の違いは、パーライト体積量である。STPG370のパーライト体積量は、SGPと比べて多い。西口ら¹⁵⁾は、STPG370の水素チャージ材では、①水素によって助長されたパーライト割れの先端の応力集中部に拡散・集積し、②集中した水素によりすべり変形がパーライト割れ先端で局在化し、パーライト割れは引張応力方向に垂直に成長し、絞りが低下することを報告している。したがって、松尾ら¹⁴⁾と西口ら¹⁵⁾の報告を考慮すると、ビッカース硬さが $HV=447$ 以上のSUJ2の水素チャージ材の引張破壊過程は、

次のようになると考えられる。①水素によって、引張試験片が降伏する前に $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot (\text{CaO})_x$ 系介在物と基地組織の界面がはく離し、介在物周りに空洞が形成される。②応力集中が生じる空洞の赤道面上に水素が集中する。③集中した水素は延性き裂を発生させ、進展させる。

したがって、SUJ2の未チャージ材と水素チャージ材の引張破壊起点のまとめとしては、SUJ2に含まれる $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot (\text{CaO})_x$ 系介在物、TiN系介在物、MnS系介在物などが引張破壊起点になりやすいかの競争の結果、未チャージ材では塑性変形で割れたTiN系介在物が起点となり、水素チャージ材では水素によってはく離が助長された $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot (\text{CaO})_x$ 系介在物が起点となったと考えられる。

Table 3に、引張試験結果をまとめて示す。水素チャージ材の結果には、水素チャージ後に2h経過して引張試験をした結果に加えて、水素チャージ後に大気中に24, 72, 200h放置し引張試験をした結果も示す。未チャージ材の硬さが $HV=678, 611, 559, 447$ の試験片では、引張破壊の起点は、表面(1例)、TiN系介在物(5例)であった。未チャージ材の硬さが $HV=346$ の試験片では、カップアンドコーン破壊した(2例)。したがって、未チャージ材においては、TiN形介在物を起点とする引張破壊が起こる試験片硬さの下限値は $HV=346$ と $HV=447$ の間にあると考えられる。水素チャージ材においては、カップアンドコーン破壊した823K焼戻し材($HV=346$)の1例を除いて、すべて

の試験片は試験片内部の $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot (\text{CaO})_x$ 系介在物を起点として破壊した。したがって、水素チャージ材においては、水素によって $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot (\text{CaO})_x$ 系介在物を起点とする引張破壊が起こる試験片硬さの下限値は $HV=346$ と $HV=447$ の間にあると考えられる。介在物寸法に関しては、水素チャージ材の引張破壊起点介在物($\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot (\text{CaO})_x$ 系、平均 $\sqrt{\text{area}}=17.5\mu\text{m}$)のほうが、未チャージ材の引張破壊起点介在物(TiN系、平均 $\sqrt{\text{area}}=10.2\mu\text{m}$)と比べて大きい。

Fig. 5に、水素チャージ材の引張破壊の起点となった $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot (\text{CaO})_x$ 系介在物の極値統計グラフを示す。 y は標準化変数、 F は累積分布関数、 T は再帰期間である。ただし、最大介在物分布直線は、後述する疲労試験による介在物検査、顕微鏡観察による介在物検査も含めて累積分布関数 F の値が10~85%の範囲で最小2乗法により求めている。累積分布関数 F の値が10~85%の範囲は、極値統計グラフの直線性を考慮した村上らの推奨する範囲である¹⁾。水素チャージ材の引張破壊起点の $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot (\text{CaO})_x$ 系介在物は、極値統計グラフはほぼ直線となっており、極値統計に従っていると考えることができる。緒言でも述べたように、 $HV=400$ 以上の高強度鋼で製造された部品・部材においては、部品・部材中に含まれる最大寸法の非金属介在物が疲労破壊起点となることが知られている¹⁾。本研究の引張試験では、 $HV=447$ 以上の試験片に水素チャージすることによって、 $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot (\text{CaO})_x$ 系介在物が引張破壊起点になってい

Table 3. Results of tensile tests.

	HV	σ_f (MPa)	ε_f (%)	$C_{H,R}$ (wppm)	V (mm/min)	t_h (h)	Fracture origin	$\sqrt{\text{area}}$ (μm)
Uncharged specimens	678	2422	2.22	0.01	1	-	Surface	-
	678	2409	2.29	0.03	1	-	Ti	9.9
	678	2523	2.09	0.02	1	-	Ti	10.9
	611	2024	1.14	<0.01	1	-	Ti	11.0
	559	1928	2.68	<0.01	1	-	Ti	9.6
	447	1797	1.38	<0.01	1	-	Ti	9.5
	346	996	10.4	<0.01	1	-	Matrix	-
	346	1000	11.0	<0.01	1	-	Matrix	-
Hydrogen-precharged specimens	678	1179	0.57	2.10	1	2	Al, Ca, S	12.1
	678	1268	0.53	2.72	1	2	Al, Ca	19.1
	678	996	0.51	4.25	1	2	Al, Ca, S	13.2
	678	1266	0.60	2.57	1	24	Al, Ca, S	14.2
	678	1402	0.49	1.80	1	72	Al, Ca, S	11.5
	678	1494	0.74	0.72	1	200	Al, Ca	23.9
	678	1568	0.66	0.64	1	200	Al, Ca, S	12.4
	678	952	0.44	2.09	0.05	2	Al, Ca, S	19.0
	678	1212	0.55	2.54	50	2	Al, Ca	31.9
	678	1148	0.52	4.52	100	2	Al	21.3
	611	1037	0.46	2.50	1	2	Al, Ca, S	23.1
	559	1598	0.77	1.74	1	2	Al, Ca, S	13.0
	447	1421	0.66	2.05	1	2	Al, Ca, S	13.1
	346	1059	7.60	1.07	1	2	Matrix	-

HV : Vickers hardness, σ_f : Nominal fracture strength, ε_f : Nominal fracture strain, $C_{H,R}$: Residual hydrogen content, V : Cross head speed, t_h : Time from the end of hydrogen pre-charge to the start of tensile test, $\sqrt{\text{area}}$: Square root of the area of an inclusion projected onto a plane perpendicular to the maximum principal stress.

Fig. 5. Statistics of extremes distribution of $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot (\text{CaO})_x$ inclusions contained in the hydrogen-precharged tensile specimens.

る。これは、メカニズムはともかく、いわゆる水素脆化といわれる現象の1つの側面である。このことは、硬さが $HV=447$ 以上の試験片に水素チャージをした後に、引張試験を行うと、引張試験片の検査基準体積中の最大寸法の介在物を抽出する簡便で信頼性が高い介在物検査が可能であることを示している。

次節では、未チャージ材と水素チャージ材を用いて疲労試験による介在物検査を行い、水素チャージした試験片を用いた引張試験と疲労試験において、破壊起点となった介在物が同じかどうか、さらに極値統計グラフは一致するかどうかを検証する。

3.2 疲労試験による介在物検査方法

Table 4に試験結果を示す。Fig. 6に $S-N$ 線図を示す。介在物検査の観点からは、応力振幅 σ_a = 一定とした疲労試験も考えられるが、本研究では $S-N$ 特性を把握することも考慮して、 σ_a を変えた通常の疲労試験を行った。未チャージ材を Δ 印、水素チャージ材を $\blacktriangle$ 印でプロットしている。Fig. 6中のデータ A* は、 $N=2 \times 10^7$ までの繰返しで非破断の A の試験片をさらに高い応力を負荷して試験した結果である。水素チャージ材の $\blacktriangle$ に付けた数字は破壊した疲労試験片の残留水素量 ($C_{H,R}$) である。水素チャージ材の破断寿命は未チャージ材と比較して数倍も短くなっている。

Fig. 7に未チャージ材と水素チャージ材の破面と破壊起点を示す。水素チャージの有無に関わらず試験片は内部の介在物を起点として破壊した。疲労破壊起点の介在物の化学成分としては、未チャージ材、水素チャージ材ともに主に、Al, Caが検出された。未チャージ材と水素チャージ材の疲労破壊起点となった介在物は、介在物の形状も球状

Table 4. Results of fatigue test for uncharged and hydrogen-precharged specimens ($f=50 \sim 75 \text{ Hz}$, $R=-1$).

	HV	σ_a (MPa)	N_f	Fracture origin	$\sqrt{\text{area}}$ (μm)	$\sqrt{\text{area}}'$ (μm)	$C_{H,R}$ (wppm)
Uncharge	682	800	4.3×10^7	Al, Ca, Si, S	17.0	30.7	0.11
	682	850	2.0×10^7	not Broken	11.3	22.4	0.12
	950	4.9 $\times 10^6$		Al			
H-precharge	682	900	3.9×10^6	Al, Ca, S	18.8	29.0	0.08
	682	650	8.3×10^5	Al, Ca, S	15.5	15.5	2.03
	682	700	1.4×10^4	Al, Ca, Si, S	25.7	25.7	3.00
	682	550	5.8×10^5	Al, Ca, S	22.8	22.8	2.76
	682	600	7.6×10^5	Al	15.8	15.8	2.97

HV: Vickers hardness, σ_a : Nominal stress, N_f : Cycles to failure, $\sqrt{\text{area}}$: Square root of the area of inclusion, $\sqrt{\text{area}}'$: Square root of the area of inclusion + ODA, $C_{H,R}$: Residual hydrogen content.

Fig. 6. $S-N$ data ($f=50 \sim 75 \text{ Hz}$, $R=-1$). The mark A* indicates the specimen which ran out (A) and was tested at higher stress levels. $C_{H,R}$: residual hydrogen content.

であり、化学成分も同じと考えられるので、同じ種類の介在物 ($\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot (\text{CaO})_x$ 系) であると考えられる。Fig. 7(a-1)と Fig. 7(b-1)に示すように、破壊した試験片の破断面には典型的なフィッシュ・アイが観察され、その中心には介在物が存在した。フィッシュ・アイの形状はほぼ円形である。水素チャージ材は、未チャージ材と比較してフィッシュ・アイの内部および境界は鮮明でない。これは、水素チャージ材には、未チャージ材には形成されないへき開・擬へき開状の破面がフィッシュ・アイ内部に形成され、フィッシュ・アイ内部と外部の破面形態において凹凸から見た相違が小さくなるからである¹⁶⁾。Fig. 7(a-2)に示すように、未チャージ材のすべての試験片において、破壊起点となった介在物周辺には ODA¹⁷⁻²⁰⁾ と呼ばれる領域が存在していた。

Fig. 8に疲労破壊起点となった介在物 ($\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot (\text{CaO})_x$ 系) の極値統計グラフを示す。未チャージ材を Δ 、水素チャージ材を $\blacktriangle$ でプロットしている。未チャージ材の疲労破壊起点と水素チャージ材の疲労破壊起点となった介在物のデータはほぼ重なっており、介在物の形状も球状であり、化学

Fig. 7. Optical micrographs of fatigue fracture surface and inclusions at fracture origin in the uncharged and hydrogen-precharged specimens. σ_a : Stress amplitude, $C_{H,R}$: residual hydrogen content.

Fig. 8. Statistics of extremes distribution of $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot (\text{CaO})_x$ inclusions contained in the hydrogen-precharged tensile specimens and in the fatigue specimens.

成分も同じと考えられるので、1本の極値統計グラフとして表現することができる。Fig. 8にはFig. 5に示した水素チャージ材の引張試験で破壊起点となった介在物の極値統計グラフ（水素チャージ材：●）もあわせて示してある。注目すべき重要なことは、水素チャージ材の引張試験（●）と疲労試験（△、▲）で破壊起点となった介在物の極値統計グラフが一致していることである。このことは、時間と費用のかかる疲労試験を行うことなく水素チャージ材を用いた引張試験で簡便に介在物の極値統計データを得ることができることを示している。

3.3 金属顕微鏡観察による介在物検査方法

Fig. 9にバフ研磨面で得られた最大介在物の一例を示す。介在物寸法 $\sqrt{\text{area}}$ は、Fig. 9に示すように破線で囲まれた介在物自体の寸法である。EDXによる分析において、検査した40個の介在物のうち14個の介在物ではAl, Ca, Sが検出され、1個の介在物ではAl, Sのみが検出された。残りの25個は介在物が脱落していたため、化学成分の分析はできなかった。Fig.10に金属顕微鏡観察における介在物の極値統計グラフを示す。極値統計グラフは直線性を示し、顕微鏡観察で検出された介在物は極値統計に従っていると見なすことができる。

村上ら^{1,11,12)}の詳細な検討によれば、2次元検査の場合、検査基準面積 S_0 に仮定の厚さ h 付与することにより、近似的に検査基準体積 $V_0 = S_0 \times h$ に対する3次元検査と見なすことができる。具体的な方法は、2次元検査によって測定した最大介在物寸法 $\sqrt{\text{area}_{\text{max},j}}$ の平均値を求めて、その値を観察領域の厚さに h とする。本研究では、 h は式(1)より求められる。式(1)中の n は、検査回数である。

$$h = \sum \sqrt{\text{area}_{\text{max},j}} / n = 7.77 \times 10^{-3} \text{ mm} \quad \dots\dots\dots (1)$$

2次元検査に相当する基準体積 V_0 は、式(2)となる。

$$V_0 = S_0 \times h = (15.9 \text{ mm}^2) \times (7.77 \times 10^{-3} \text{ mm}) = 0.124 \text{ mm}^3 \quad \dots\dots\dots (2)$$

この近似的方法の妥当性は、高橋らによる理論解析によって支持されている^{21,22)}。

そこで、2次元検査の金属顕微鏡観察によって得られたデータに最大介在物寸法 $\sqrt{\text{area}_{\text{max},j}}$ の平均値を付与して3次元検査と見なし、引張試験による破壊起点の介在物と疲労試験による破壊起点の介在物と比較した。Fig.11に、水素チャージした試験片を用いた引張試験、疲労試験、金属顕微鏡観察で得られた介在物の極値統計グラフを示す。水素チャージ材の引張破壊起点の介在物と疲労破壊起点となった介在物は、形状も球状であり、化学成分も同じと考えられるので、1本の極値統計グラフとして表現している。引張試験片と疲労試験片の場合、検査基準体積はFig. 1(a)とFig. 1(b)に示す一本の試験片の平行部であるので、検査基準体積はともに $V_S = 477 \text{ mm}^3$ である。一方、金属顕微鏡観察による検査基準体積は、 $V_0 = 0.124 \text{ mm}^3$ である。金属顕

Fig. 9. An example of the maximum inclusion on the polished surface. Dotted contour indicates the area for estimating $\sqrt{\text{area}}$. Inclusion contains Al, Ca and S. Inclusion size: $\sqrt{\text{area}} = 6.1 \mu\text{m}$.

Fig. 10. Statistics of extreme distribution of inclusions obtained by the optical microscopic inspection of SUJ2. Inclusion contains Al, Ca and S.

顕微鏡観察の検査基準体積は、引張試験と疲労試験の検査基準体積とは異なっている。そこで、周と村上^{11,12)}の手順に従い、引張試験による破壊起点の介在物と疲労試験による破壊起点の介在物の極値統計グラフ（検査基準体積 $V_s = 477 \text{ mm}^3$ ）を、金属顕微鏡観察の検査基準体積 $V_0 = 0.124 \text{ mm}^3$ をもとに変換した。Fig.11に示すように、引張試験による破壊起点の介在物と疲労試験による破壊起点の介在物の極値統計グラフを変換させると、 $\ln(V_s/V_0) = 8.26$ だけ平行移動したことになる。水素チャージ材の引張試験において破壊起点となった介在物(●)と疲労試験において破壊起点となった介在物(△)の極値統計グラフは、金属顕微鏡観察で得られた介在物(◇)の極値統計グラフの延長線上にはない。水素チャージ材の引張試験と疲労試験で得られた介在物の極値統計グラフの勾配は、金属顕微鏡観察で得られた介在物の極値統計グラフの勾配より小さい。

緒言でも述べたように、製鋼技術の進歩により、高強度鋼の清浄度は向上した。しかし、高強度鋼で作られた部品・部材の疲労破壊は統計的には数が少ないが大寸法の介在物を起点として起こる。周と村上^{11,12)}、顕微鏡観察による介在物寸法検査と疲労試験による介在物寸法検査を行い、顕微鏡観察による介在物検査方法の問題点を明らかにしている。彼らの報告によれば、顕微鏡観察によって比較的小さい検査面積で得られた介在物は、寸法が小さく、数が圧倒的に多い母集団分布に属する介在物である。一方、疲労破壊起点の介在物は、顕微鏡観察では得られる確率が極めて低い、寸法が大きく、数が少ない別の種類の母集団分布に属する介在物である。すなわち、顕微鏡観察による比較的小さい検査面積による介在物検査と疲労試験による大きな検査体積による介在物検査では、別の種類の最大寸法の介在物を検査しており、両検査方法による介在物寸法の極値分布は異なる。したがって、周と村上^{11,12)}の報告を考

V_0 : Control volume of one optical microscopic inspection
 V_s : Control volume of one tensile specimen

Fig. 11. Different extreme distributions obtained by hydrogen-precharged tensile tests, fatigue tests and optical microscopy.

慮すると、小さい検査体積の金属顕微鏡によって検出された介在物(◇)と大きい検査体積を有する引張試験と疲労試験で検出された介在物(●, △)は別の種類の介在物であると考えられる^{11,12)}。

以上、3・1~3・3節で述べたように、本研究においては、同じ検査体積を有する試験片を用いて、水素チャージ材の引張試験、未チャージ材と水素チャージ材の疲労試験の破壊起点となった介在物を比べた。その結果、水素チャージ材の引張試験と疲労試験の破壊起点となった介在物は同じ種類の介在物 ($\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot (\text{CaO})_x$ 系) であり、両試験の破壊起点の介在物の極値統計グラフは一致した。このことは、水素チャージ材の引張破壊起点の極値統計データを用いることで、部品・部材中の疲労破壊の起点となる最大の介在物寸法を予測できることを示している。したがって、水素チャージした試験片を用いた引張試験による介在物検査方法は、疲労試験による介在物検査方法に替わる簡便で高精度の介在物検査方法といえる。本研究においては、試験片への水素チャージは、チオシアン酸アンモニウム水溶液を用いた浸漬チャージを行った。しかし、水素をチャージする方法としては、これに限定されるものではなく、電解質性水溶液の中で試験片に水素をチャージする陰極チャージ²⁵⁾、試験片を高圧水素ガスに暴露する高圧水素ガス暴露チャージ²⁶⁾などがある。

一方、金属顕微鏡観察による検査では、周と村上^{11,12)}

が指摘しているように、破壊の起点となる介在物を予想するためには、大きな面積を検査する必要がある。あるいは、検査面積が小さい場合には、検査回数を多くする必要がある。しかし、金属顕微鏡観察による検査では、破壊起点となる大きい介在物の寸法を見つけることは必ずしも容易な作業でないし、費用がかかる。一方、疲労試験から得られる介在物の極値統計データは信頼性が高いが、疲労試験機の利用に関する技術的経験の必要、試験時間と経費がかかるといった問題があり、顕微鏡観察による介在物検査ほどは広く利用されていない^{27,28)}。したがって、水素チャージした試験片を用いた引張試験による介在物検査方法は、疲労試験による介在物検査方法、顕微鏡観察による介在物検査方法に替わる簡便で高精度の介在物検査方法として、今後大いに利用が期待できる。

4. 結言

鋼中の介在物は、鋼の品質の程度を表すものとして製鋼技術者だけでなく、鋼を利用する技術者にとっても大きな関心事である。

本研究では、高強度鋼の部品・部材中の疲労破壊の起点となる最大寸法の非金属介在物を予測する簡便で信頼性の高い介在物検査方法を提案した。その方法は極値統計法による介在物評価法を基本としているが、試験片に水素をチャージした後に、引張試験を行い、介在物起点の破壊を起こさせるいわゆる「水素脆化」といわれる現象を逆に積極的に利用して行う方法である。この方法は、従来の疲労試験や金属顕微鏡観察による介在物検査方法より簡便で信頼性が高いことを示すことができた。本法の有効性を示す対象材料の1つとして、試験片のビッカース硬さを $HV=678, 611, 559, 447, 346$ に変えた高炭素クロム軸受鋼(JIS-SUJ2)を用いた。得られた結論は下記の通りである。

(1) 水素チャージした試験片を用いて引張試験を行うことで、高精度の介在物の極値統計データを簡便に得ることができる。この方法で得られた極値統計データは、疲労試験の疲労破壊起点の介在物から得られた極値統計データと完全に一致した。提案した介在物検査方法の適用に当たっては、試験片の硬さを $HV=447$ 以上に熱処理することが必要である。試験片に水素チャージする方法としては、本研究で用いた水溶液中の浸漬チャージのほか、水溶液中での電解チャージ、高圧水素ガス暴露チャージなどが利用できる。

(2) 未チャージ材の引張試験では、試験片内部のTiN系介在物(平均 $\sqrt{\text{area}}=10.2\mu\text{m}$)を起点として破壊した。水素チャージ材の引張試験では、試験片内部の $\text{Al}_2\text{O}_3\cdot(\text{CaO})_x$ 系介在物(平均 $\sqrt{\text{area}}=17.5\mu\text{m}$)を起点として破壊した。疲労試験では、水素チャージの有無にかかわらず、試験片内部の $\text{Al}_2\text{O}_3\cdot(\text{CaO})_x$ 系介在物(平均 $\sqrt{\text{area}}=$

$18.1\mu\text{m}$)を起点として破壊した。このような理由から、未チャージ材の引張試験で疲労破壊起点となる可能性のある介在物の極値統計データを求めるのは適当でない。

(3) 金属顕微鏡観察(検査面積: $S_0=15.9\text{mm}^2$, 検査数: $n=40$)で得られた介在物の極値統計グラフの勾配は、水素チャージ材の引張試験、疲労試験で得られた破壊起点の介在物の極値統計グラフの勾配とは異なっていた。両者の極値統計グラフの勾配が異なる理由は、疲労試験と水素チャージ材の引張試験で検査される介在物は、数が少なく、寸法が大きい介在物を母集団としており、金属顕微鏡観察で検査される介在物は、数が多く、寸法が小さい介在物を母集団としていることによる。

文 献

- 1) Y.Murakami: Metal Fatigue: Effect of Small Defects and Nonmetallic Inclusions, Elsevier Ltd., Oxford, (2002).
- 2) Y.Murakami and T. Toriyama: *Tetsu-to-Hagané*, **79** (1993), 1380.
- 3) JIS G 0555 鋼の非金属介在物の顕微鏡試験方法, 日本工業規格, (2003).
- 4) A.Adachi, H.Shoji, A.Kuwabara and Y.Inoue: *Electr. Furnace Steel*, **46** (1975), 176.
- 5) Y.Murakami, H.Kodama and S.Konuma: *Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng. A*, **54** (1988), 688.
- 6) Y.Kusano, *Report of the ISIJ Meeting*, **10** (1997), 1464.
- 7) S.Beretta and Y.Murakami: *Fatigue Fract. Eng. Mater. Struct.*, **21** (1998) 1049.
- 8) G.Shi, H.V.Atkinson, C.M.Sellars and C.W.Anderson: *Acta Mater.*, **47** (1999), 1455.
- 9) S.Beretta, C.Anderson and Y.Murakami: *Acta Mater.*, **54** (2006), 2277.
- 10) ASTM E2283-08: Standard Practice for Extreme Value Analysis of Nonmetallic Inclusions in Steel and Other Microstructural Features, ASTM Standards.
- 11) Y.Murakami, M.Takada, and T.Toriyama: *J. Soc. Mater. Sci., Jpn.*, **46** (1997), 1149.
- 12) S.Zhou, Y.Murakami, Y.Fukushima and S.Beretta: *Tetsu-to-Hagané*, **87** (2001), 748.
- 13) S.Zhou, Y.Murakami, S.Beretta and Y.Fukushima: *Mater. Sci. Technol.*, **18** (2002), 1535.
- 14) S.Beretta and Y.Murakami: *Metall. Mater. Trans. B*, **32** (2001), 517.
- 15) T.Matsuo, N.Homma, S.Matsuoka and Y.Murakami: *Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng. A*, **74** (2008), 1164.
- 16) H.Nishiguchi, Y.Fukushima, S.Matsuoka and Y.Murakami: *Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng. A*, **74** (2008), 1016.
- 17) Y.Murakami and J.Nagata: *Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng. A*, **70** (2004), 1093.
- 18) Y.Murakami, T.Ueda, T.Nomoto and Y.Murakami: *Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng. A*, **66** (2000), 311.
- 19) Y.Murakami, H.Konishi, K.Takai and Ya.Murakami: *J. Soc. Mater. Sci., Jpn.*, **86** (2000), 777.
- 20) Y.Murakami, N.N.Yokoyama and J.Nagata: *Fatigue Fract. Eng. Mater. Struct.*, **25** (2002), 735.
- 21) T.Shiina, T.Nakamura and T.Noguchi: *Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng. A*, **70** (2004), 1042.
- 22) Y.Furuya, S.Matsuoka, T.Kimura and M.Hayaishi: *Tetsu-to-Hagané*, **91** (2005), 630.
- 23) R.Takahashi and M.Shibuya: *Ann. Inst. Statist. Math.*, **48** (1996), 127.
- 24) R.Takahashi and M.Shibuya: *Ann. Inst. Statist. Math.*, **50** (1998), 361.
- 25) Y.Matsubara and H.Hamada: *J. ASTM Inter.*, **3** (2006), 153.
- 26) T.Matsumoto, S.Fujita, S.Matsuoka and Y.Murakami: *Proc. 29th Symp. Fatigue Jpn.*, (2008), 128.
- 27) Y.Furuya, S.Matsuoka and T.Abe: *Tetsu-to-Hagané*, **88** (2002), 643.
- 28) Y.Furuya, S.Matsuoka and T.Abe: *Metall. Mater. Trans. A*, **34** (2003), 2517.