

低炭素・中窒素型316鋼のクリープおよび クリープ疲労特性の結晶粒径依存性と微細組織

中澤 崇徳*・小松 肇*²・高橋 由紀夫*³・伊達 新吾*⁴

Microstructure and Grain Size Dependence of Creep and Creep-fatigue Properties
of Low Carbon Medium Nitrogen Type 316 Steel

Takanori NAKAZAWA, Hajime KOMATSU, Yukio TAKAHASHI and Shingo DATE

Synopsis : The effect of grain size on the creep and creep-fatigue behavior of low carbon medium nitrogen type 316(316FR) steel has been investigated at 550°C, compared with conventional type 316(SUS316) steel. The microstructure of ruptured specimens has been examined with electron microscope. The creep rupture strength of both steels decreased with increasing grain size. The rupture strength of 316FR was higher than that of SUS316 at any grain size. The rupture ductility of 316FR, where very small Laves precipitated on the grain boundary during creep, slightly decreased with increasing grain size, while that of SUS316, where carbide precipitated on the grain boundary, did not change with grain size. The rupture elongation of 316FR at largest grain size, however, was much higher than that of SUS316. This difference in rupture ductility is attributed to the grain boundary carbide developed during creep. The creep-fatigue life of both steels decreased with increasing grain size. Because 316FR showed longer life and smaller dependence on grain size than SUS316, 316FR had much longer life than SUS316 at large grain size. The fracture mode of 316FR changed from transgranular to intergranular with increasing grain size, while that of SUS316 was intergranular at any grain size. Although 316FR showed intergranular fracture at very large grain size, it had much longer life than SUS316. This means that the crack propagation along grain boundary of 316FR is more difficult than SUS316. Such difference in crack propagation behavior may be depends on the grain boundary precipitation, that is, Laves or carbide.

Key words : stainless steel ; grain size ; creep ; creep-fatigue ; grain boundary ; precipitation.

1. 緒言

高速増殖炉(FBR)の1次系構造材料として開発した低C・中N型316鋼(316FR)¹⁾は、工業規模で製造した数ヒートについての調査から、クリープ・クリープ疲労等の高温長時間特性が従来型の材料よりすぐれることが確認されている²⁻⁴⁾。FBRは大型の溶接構造物となるため種々の厚さの鋼板が使用され、また溶接時の入熱量も大きくなると予想される。316FR鋼も従来の材料と同様に、厚肉化にともない結晶粒は粗大化する傾向を示し、また溶接入熱量の増加とともに熱影響による粗粒化の可能性も生じる。結晶粒径がオーステナイト系ステンレス鋼の高温の機械的性質に影響することは広く知られており⁵⁾、とくにクリープ特性は結晶粒径との相関が強いとされている⁶⁻⁸⁾。316FR鋼は、高温使用中の粒界への炭化物の析出を抑制するため低Cとすることで破断延性を改善し、固溶度の大きなNを添加することにより高温・長時間側の強度を確保した材料である¹⁾。このため、Cを主要強化元素とした従来材とは高温強度特性の結晶粒径依存

性が異なることが予想される。本研究は、316FR鋼のクリープおよびクリープ疲労特性の結晶粒径依存性と金属組織の関係を従来型の材料であるSUS316鋼と比較・検討したものである。

2. 供試材および実験方法

供試材は、工業規模で製造した板厚50mmの鋼板を1050°Cから1250°Cの範囲で熱処理することにより、結晶粒径を38μmから391μmまで変化させたものである。なお、急冷にともなうひずみ量等の試料間の変動をさけるため、結晶粒調整・熱処理後に1050°Cで再び溶体化処理した。供試材の316FR鋼と従来型の316鋼(以下SUS316鋼とする)の化学組成をTable 1に、熱処理条件と結晶粒径の測定結果をTable 2に示す。

鋼板の板厚の1/4部から圧延方向に平行にクリープ破断試験片(平行部直径: 6 mm, GL: 30mm)を採取し、定荷重型の試験機を用い550°Cで試験した。同様にクリープ疲労試験

平成9年7月14日受付 平成9年9月11日受理(Received on July 14, 1997; Accepted on Sep. 11, 1997)

- * 新日本製鐵(株)鉄鋼研究所(現:群馬大学)(Steel Research Laboratories, Nippon Steel Corp., now Gunma University, 1-5-1 Tenjin-cho Kiryu 376)
- * 2 (株)日鐵テクノリサーチ(Nippon Steel Technoresearch Corp.)
- * 3 (財)電力中央研究所狛江研究所(Komae Research Labs., Central Research Institute of Electric Power Industry)
- * 4 三菱重工業(株)高砂研究所(Takasago R & D Center, Mitsubishi Heavy Industries Ltd.)

片(平行部直径:10mm, GL:16mm)を採取し, 550°Cで全ひずみ範囲1.0%の軸ひずみ制御により, 高温疲労特性および引張側保持: 3h, 10hの条件でクリープ疲労特性を調査した。これらの破断試験材について, 光学顕微鏡および走査電子顕微鏡による破壊形態, 薄膜と抽出レプリカ試料の透過電子顕微鏡による微細組織観察を行った。

3. 実験結果

3.1 クリープ破断特性

1) クリープ破断試験結果

316FR鋼とSUS316鋼のクリープ破断試験結果をFig. 1に示す。316FR鋼はSUS316鋼に比べ破断強度の破断時間依存性が小さく, 長時間側の破断強度が高い。両鋼種とも結晶粒の粗大化とともに破断強度は低下する。粗粒化にともな

う破断強度の低下量は316FR鋼の方がSUS316鋼より小さく, また破断強度の破断時間依存性に及ぼす結晶粒径の影響にも差が認められる。すなわち, 316FR鋼においては長時間側で粗粒化の影響は小さくなるが, SUS316鋼ではこの傾向はない。破断延性も316FR鋼の方がすぐれ, SUS316鋼の約2倍の破断伸びを示す。316FR鋼の破断伸びは粗粒化にともない低下するが, その程度は小さく最も粗粒な試料においても30%以上の破断伸びが確保されている。一方, SUS316鋼の破断伸びに及ぼす結晶粒径の影響は小さい。

クリープ変形挙動に及ぼす結晶粒径の影響をFig. 2およびFig. 3に示す。初期伸びは, Fig. 2に示すように, 両鋼種ともに粗粒化とともに増加し, 粗粒材は細粒材の約2倍の値となる。初期伸びは316FR鋼の方がSUS316鋼より大きい。

Table 1. Chemical compositions.

	C	Si	Mn	P	Ni	Cr	Mo	Al	N
316FR	0.008	0.54	0.84	0.026	11.1	16.9	2.10	0.020	0.076
SUS316	0.045	0.54	0.95	0.019	12.1	16.7	2.19	0.023	0.040

Table 2. Heat treatment and grain size.

Heat treatment	Grain size (μm)	
	(316FR)	(SUS316)
1050 °C 30 min WQ	38	46
1150 °C 1h WQ + 1050 °C 1h WQ	194	-
1250 °C 1h WQ + 1050 °C 1h WQ	391	284

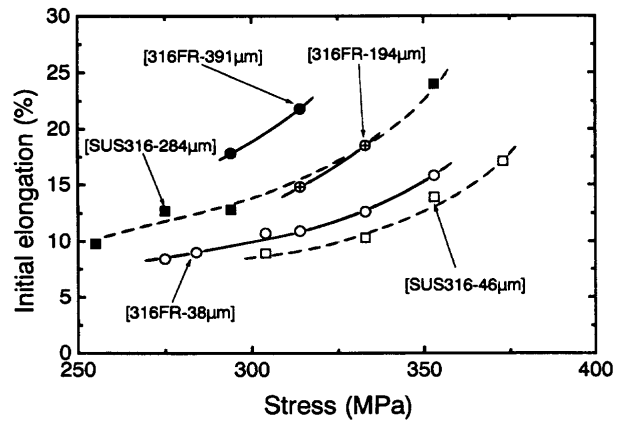


Fig. 2. Effects of grain size and stress on initial elongation at 550°C.

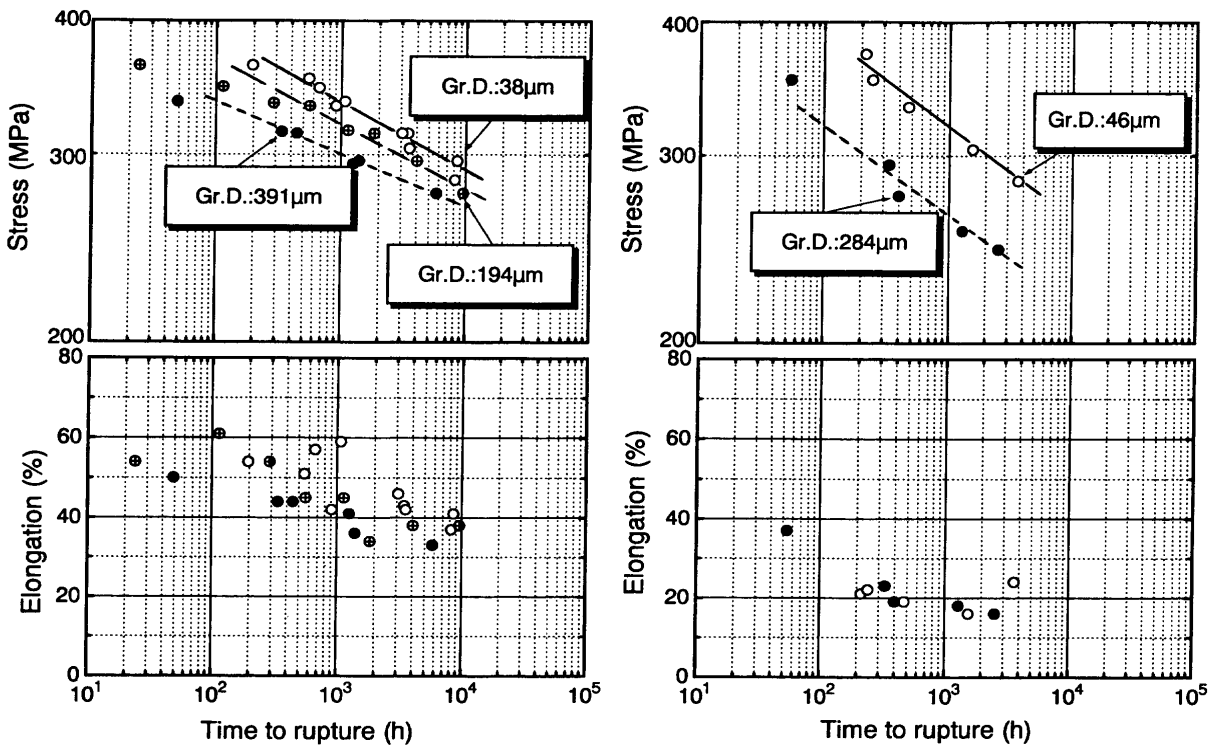


Fig. 1. Effect of grain size on creep rupture properties at 550°C.

最小クリープ速度と応力との関係にはFig. 3に示すような結晶粒径あるいは鋼種の影響が認められる。粗粒材の最小クリープ速度は高く、粗粒化によりクリープ変形抵抗が低下することがうかがえる。両鋼種とも結晶粒の微細化にともない最小クリープ速度が減少するが、316FR鋼ではこの傾向が細粒側で小さくなる。最小クリープ速度の応力依存性は316FR鋼の方がSUS316鋼より大きく、低応力側では316FR鋼の最小クリープ速度が低くなる。

2) 光学顕微鏡および走査電子顕微鏡による破壊様式の観察結果

316FR鋼では、いずれの結晶粒径の試料においてもクリープ試験中に粒界3重点を起点とするサブクラックが生成するが、成長は遅くクラック長さは1結晶粒以内であった。破壊様式は粒内支配型であり、一部に観察される粒界破壊の比率は粗粒材あるいは長時間側でわずかに増加する傾向にあった。SUS316鋼のクリープ破断試験材では粒界サブクラックが細粒材には認められたが、粗粒材では極めて少なかった。また、破面は細粒材および粗粒材ともに粒界支配型であった。

3) 電子顕微鏡による組織観察結果

クリープ破断試験材の薄膜組織をFig. 4に示す。両鋼種とも高密度の転位がほぼ一様に分布し、サブグレインは観察されない。SUS316鋼の方が析出が顕著であり、粒界に粒状の析出物がほぼ連続的に分布し、そのサイズは結晶粒の粗大な試料の方が破断時間が短いにもかかわらず大きい。この析出物は電子線回折およびEDS分析により $Cr_{23}C_6$ と同定された。316FR鋼においては炭化物の観察される粒界は一部に限られ、粒界は非常に微細なLaves相により覆われていることを抽出レプリカにより確認した。316FR鋼の粒界への炭

化物の析出形態を抽出レプリカにより観察した結果をFig. 5に示す。細粒材よりも粗粒材の方が炭化物の析出密度が高く、かつ粗大である。この炭化物の析出は一様ではなく、比較的少ない粒界と集中的に析出する粒界があり、粗粒材

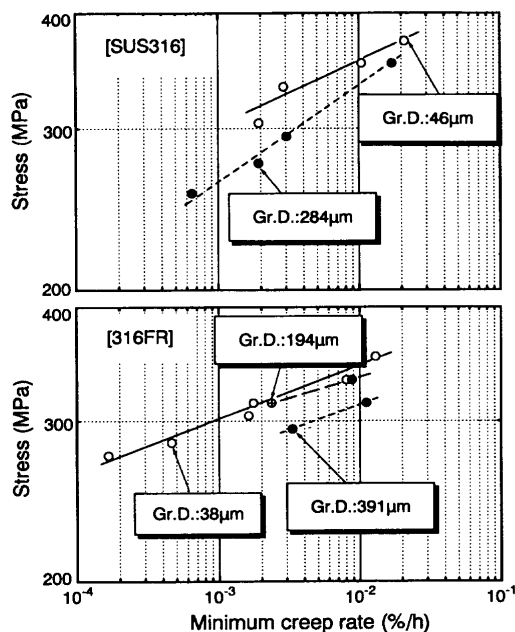
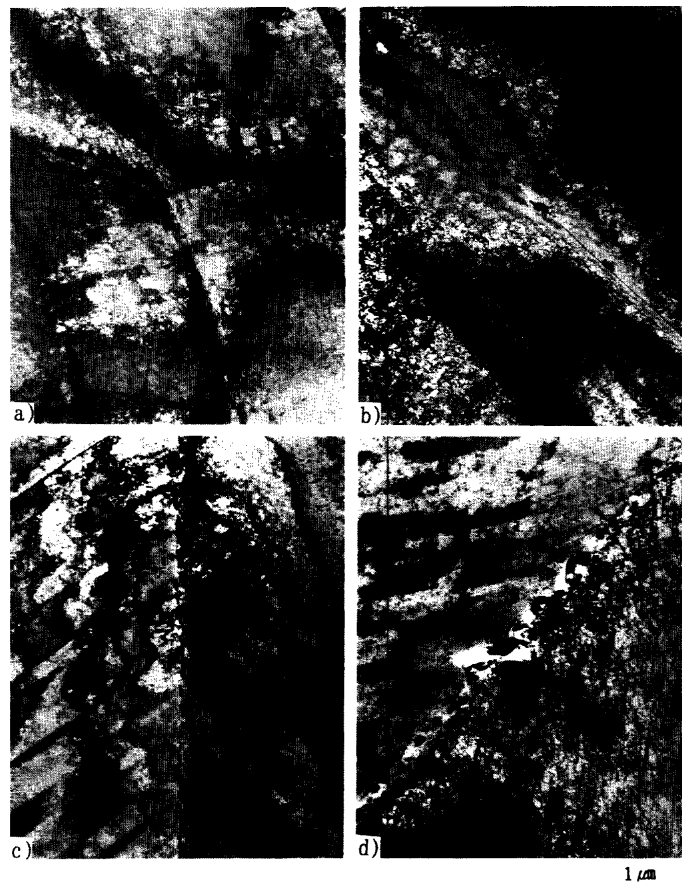
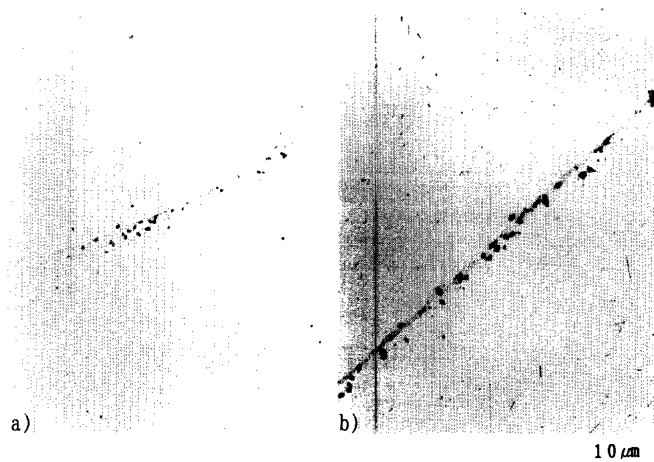


Fig. 3. Effect of grain size on minimum creep rate at 550°C.



a) 316FR (Gr.D. = 38 μm, tr = 1070h, E1 = 59%)
 b) 316FR (Gr.D. = 391 μm, tr = 1394h, E1 = 36%)
 c) SUS316 (Gr.D. = 46 μm, tr = 3649h, E1 = 24%)
 d) SUS316 (Gr.D. = 284 μm, tr = 2562h, E1 = 16%)

Fig. 4. Thin foil electron micrographs of creep ruptured specimens.



a) Gr.D. = 38 μm, tr = 1070h, E1 = 59%
 b) Gr.D. = 391 μm, tr = 1394h, E1 = 36%

Fig. 5. Extraction replica electron micrographs of creep ruptured specimens.

では後者の比率が高かった。

3・2 クリープ疲労特性

1) クリープ疲労試験結果

引張側保持時間 3h, 10hの条件でクリープ疲労試験を行い、連続サイクル試験(高温疲労試験)結果と比較した。Fig. 6に破損繰返し数(N_f とする)と保持時間の関係に及ぼす結晶粒径の影響を示す。両鋼種とも保持時間の増加とともに N_f が低下するが、その低下傾向はSUS316鋼より316FR鋼の方が小さいため、この差は保持時間の増加とともに拡大する。また、両鋼種とも保持による N_f の低下は粗粒化とともに大きくなり、最も粗粒な試験片ではSUS316鋼で94回、316FR鋼で375回にまで低下する。なお、高温疲労試験における N_f には鋼種あるいは結晶粒径の影響は認められない。

2) 走査電子顕微鏡による破壊様式の観察結果

走査電子顕微鏡による粒界破面率の測定結果をTable 3に示す。粒界破面率は保持時間(t_H)の延長とともに増加し、また粗粒化とともに顕著に増大する。316FR鋼は細粒域では粒界破面率が10%台でSUS316鋼の粒界破面率の約1/4と低いですが、粗粒化とともに顕著に増大するため粗粒材では両鋼種の差は減少する。Fig. 7は粒界破面率と N_f の関係を示したもので、両鋼種とも N_f の減少とともに粒界破面率が増加している。しかし、同一破面率における両鋼種の N_f には大きな差があり、SUS316鋼に比べ316FR鋼は長寿命である。この傾向は粒界破面率の増加とともに顕著になる。Fig. 8に粗粒材の破面の走査電子顕微鏡像を示す。いずれも粒界破面であるが、SUS316鋼の平坦な粒界面に対し316FR鋼では粒界面に微細な凹凸模様が観察され、両鋼の亀

裂の伝播過程に差のあることがうかがえる。

3) 電子顕微鏡による組織観察結果

316FR鋼のクリープ疲労試験材においては大部分の粒界は

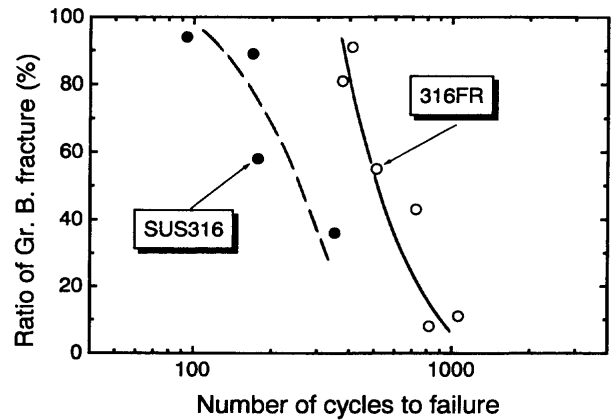
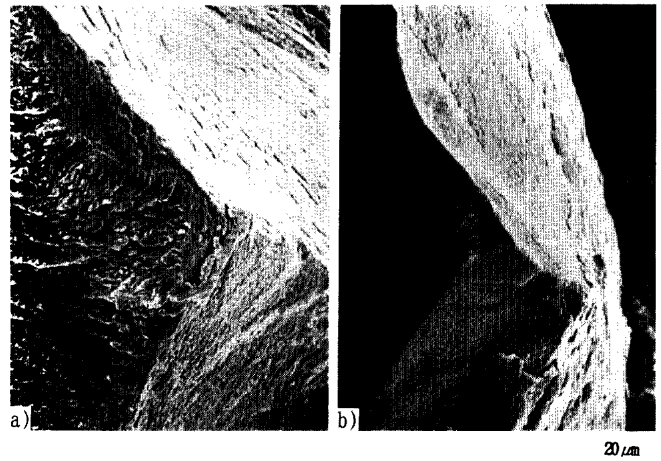


Fig. 7. Relationship between number of cycles to failure and grain boundary fracture.



a) 316FR (Gr.D. = 391 μ m, N_f = 375)
b) SUS316 (Gr.D. = 284 μ m, N_f = 94)

Fig. 8. Scanning electron micrographs of creep fatigue fractured surfaces.

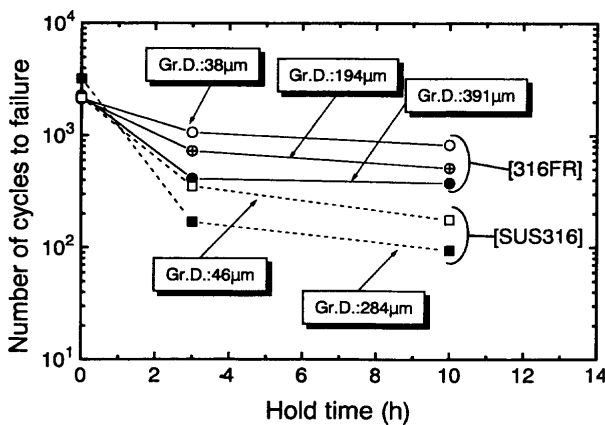
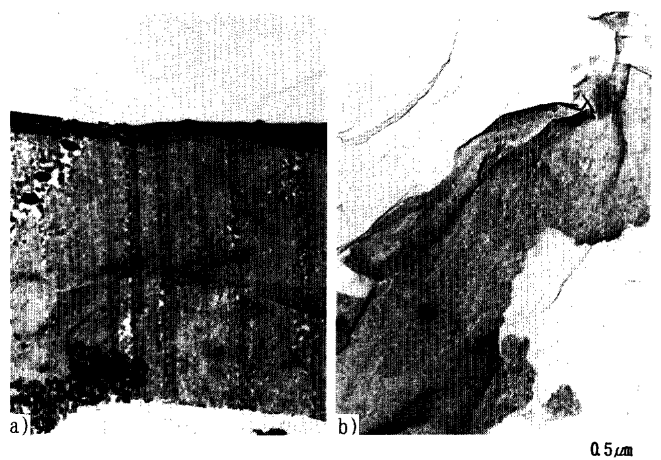


Fig. 6. Effect of grain size on creep fatigue properties at 550°C.

Table 3. Ratio of grain boundary fracture.

	316FR			SUS316	
Gr.S. (μ m)	38	194	391	46	284
$t_H = 3h$	11	43	91	36	89
$t_H = 10h$	16	55	81	58	94

(t_H : Holding time)



a) Gr.D. = 38 μ m, t_H = 10h, N_f = 820
b) Gr.D. = 391 μ m, t_H = 10h, N_f = 375)

Fig. 9. Extraction replica electron micrographs of creep fatigued 316FR specimens.

微細なLaves相で覆われ、一部に粒状の炭化物が観察された。このLaves相について10h保持試験材から採取した抽出レプリカ組織をFig. 9に示す。粒界のフィルム状析出物は非常に微細な粒子から構成されるLaves相であり、両試料間の相違は小さい。一方、炭化物等の粒状析出物は保持時間の増加あるいは結晶粒の粗大化とともに大きくなっていった。また、炭化物の析出は結晶粒径の影響を受け、粗粒化にともない炭化物の析出頻度が増加する傾向が観察された。

SUS316鋼の10h保持・クリープ疲労試験材の抽出レプリカ組織においては粒界に粒状の炭化物が観察された。粗粒材の炭化物は試験時間が短いにもかかわらず細粒材より粗大で、かつ多く、結晶粒の粗大化により粒界析出が促進されていることが確認された。

4. 考察

4.1 クリープ特性

最小クリープ速度は、粗粒域では結晶粒の微細化とともに低下するが、細粒域では316FR鋼の最小クリープ速度は結晶粒径に依存しなくなる傾向が認められる。316系ステンレス鋼の最小クリープ速度は粒界すべりが支配的となる高温側あるいは低応力側では粗粒化とともに低下するが、低温あるいは高応力側では逆に細粒化により低下することが明らかにされている⁶⁻⁸⁾。今回の試験温度および結晶粒径範囲は細粒側で最小クリープ速度が低下する条件^{7,8)}に相当し、粒界が強化因子となると考えられる。

クリープ試験の応力負荷時の初期伸びは粗粒化とともに増加するため(Fig. 2)、この影響を考慮する必要がある。初

期伸びは定荷重試験ではクリープ変形開始時の応力に影響し、結晶粒径が粗大なほどこの応力が高くなる。このような初期伸びの影響を考慮したクリープ開始時の応力で再整理した結果をFig. 10に示す。破断強度の結晶粒径依存性はFig. 1に比べ減少するが、粗粒材の方が低破断強度である傾向に変化はない。もう一つの影響は加工によるクリープ変形抵抗の変化である。加工により316系ステンレス鋼の600°Cにおける最小クリープ速度が低下することが明らかにされている⁹⁾。550°Cでの初期伸びはこのような加工に相当すると考えられるため、粗粒材の方がこの強化作用が強くなる。この影響を定量的に評価するデータはないが、これはFig. 10に示した結晶粒径依存性を拡大する方向に作用することになる。以上のように初期伸びの影響を考慮しても破断強度の結晶粒径依存性の傾向には変化はない。

316FR鋼のクリープ破断強度の結晶粒径依存性がSUS316鋼より小さいことの原因の一つとして、前者はNによる固溶強化により長時間側まで安定した強化が図られCを強化元素とする後者に比べマトリックスの強度が高いため、316FR鋼においては粒界強化の寄与が相対的に小さくなったことが考えられる。

破断延性については、延性の低下が粒界破壊と対応することから、粒界析出との相関が強い。すなわち、316系の550°Cでのクリープにおいては粒界に析出する炭化物は粒界破壊を引き起こすが、Laves相は粒界を脆化させないことが明らかにされている^{11,10)}。316FR鋼は低Cとしているが、550°Cではなお過飽和域にあり、炭化物がクリープ中に粒界の一部に析出する¹⁰⁾。粗粒材は粒界面積が小さいため、炭化物の粒界析出密度が高くなるとともに粗大化しやすい。粗粒化にともなう粒界破壊の増加は、このような粗大炭化物の集中的な析出領域が増大することによると考えられる。しかし、粗粒域においても炭化物の粒界析出は一部にとどまるため、大幅な延性低下には至らない。一方、SUS316鋼の破断延性については、550°Cでは細粒材において既に高密度に炭化物が粒界に析出し、粒界破壊が支配的となるため結晶粒径依存性が現れなかったものと推定される。

クリープ破断強度は最小クリープ速度と破断延性に関係する。今回の結果においては、結晶粒径の影響は破断延性よりも最小クリープ速度に大きく現れることから、粗粒化にともなうクリープ破断強度の低下は主にクリープ変形抵抗の減少によると考えられる。

4.2 クリープ疲労特性

316FR鋼とSUS316鋼のクリープ疲労寿命は粗粒化にともない低下する。一方、高温疲労寿命は両鋼種とも結晶粒径依存性は小さい。このような相違は、クリープ疲労では粗粒化にともない粒界破壊傾向が増大するが、高温疲労では粒内破壊にとどまることによると考えられる。316FR鋼の粒界に析出する炭化物がクリープ中の粒界亀裂生成と関係することが明らかにされている¹⁰⁾。そこで、クリープ疲労試験

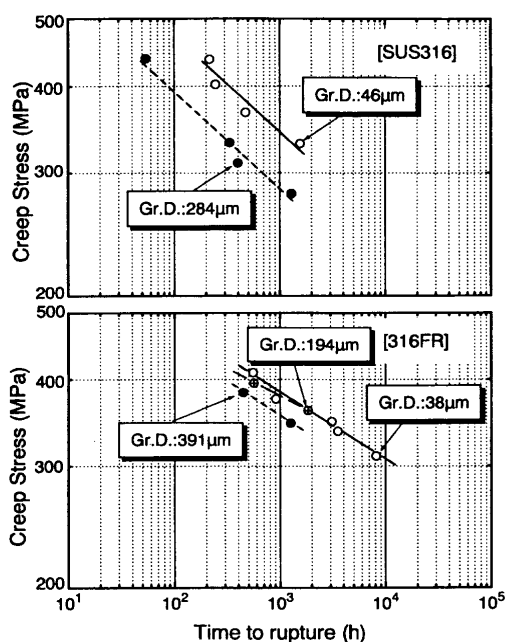


Fig. 10. Relationship between creep stress and time to rupture.

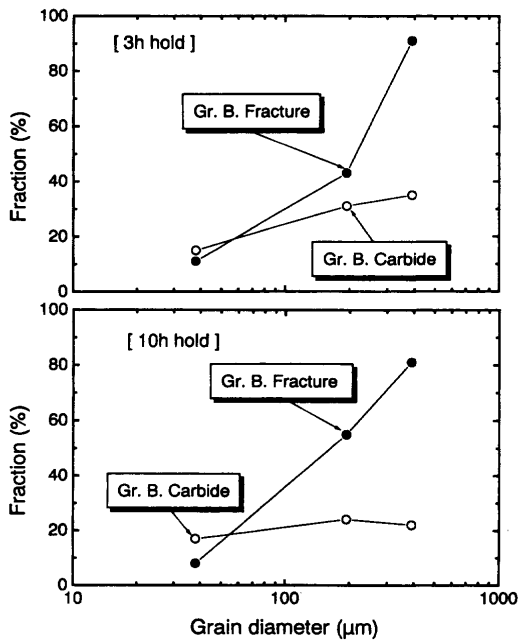


Fig.11. Effect of grain size on grain boundary carbide and grain boundary fracture.

材の抽出レプリカ組織から画像解析により求めた全粒界と炭化物の析出した粒界長さの比を炭化物の析出率とし、クリープ疲労特性との関係性を評価した。この炭化物の析出率および粒界破面率と結晶粒径の関係をFig.11に示す。炭化物の析出率は粗粒化とともに増加するが、10h保持では飽和傾向がうかがえる。一方、粒界破面率はいずれの保持時間においても粗粒化とともに増大する。粒界への炭化物の析出比率と粒界破面率の関係については、3h保持では一応の相関が認められるが、10h保持では必ずしも対応しない。とくに粗粒域では粒界破面率と析出比率の差が大きく、炭化物のみによる粒界脆化は考え難い。

クリープ疲労寿命の大半は亀裂の進展過程であるとされており¹¹⁾、316FR鋼のクリープ疲労寿命の低下が粒界破壊と対応することから、亀裂進展と粒界析出との相関が考えられる。316FR鋼においては、炭化物がクリープ疲労中に一部の粒界に析出する。粗粒材は粒界面積が小さいため、炭化物の粒界析出密度が高くなるとともに粗大化しやすい。粗粒化にともなう粒界破壊の増加および寿命の低下には、クリープ破断試験の場合と同様に、このような粗大炭化物の集中的な析出の寄与が考えられる。しかし、粗粒域では炭化物析出率より著しく高い粒界破面率となることから、Laves相の析出部においても亀裂が進展することになる。しかし、316FR鋼がSUS316鋼とほぼ同じ粒界破壊となる粗粒材において前者の寿命は後者より数倍長いことから、炭化物に比べLaves相析出部の亀裂伝播に対する抵抗力が高いことがうかがえる。これはFig. 7に示した粒界破面において両鋼の粒界面の性状が異なることと関係すると考えられ、今後より詳細な調査により析出物の影響を明らかにする必要がある。

なお、クリープ破断試験材において316FR鋼の粗粒材で粒

界支配型の破壊が現れなかった点については、3次クリープ域での加速変形の影響が考えられる。すなわち、変形速度の増加にともない応力が急速に上昇するため粒界破壊傾向が小さくなったものと推定される。

5. 結言

高速増殖炉・構造用の低C・中N型316鋼(316FR)について、550°Cにおけるクリープおよびクリープ疲労特性に及ぼす結晶粒径の影響を従来型SUS316鋼と比較・評価した。

(1)両鋼のクリープ破断強度は粗粒化にともない低下する。いずれの結晶粒径においても316FR鋼の方がSUS316鋼より破断強度が高く、破断強度の結晶粒径依存性は316FR鋼の方が小さい。316FR鋼のクリープ破壊は粒内支配型であるが、粗粒化とともにわずかに粒界破壊傾向が現れ破断延性が若干低下する。SUS316鋼の破断延性は316FR鋼より低く、その破壊は結晶粒径にかかわらず粒界支配型であり、結晶粒径依存性は小さい。粗粒化にともなうクリープ破断強度の低下は主にクリープ変形抵抗の減少が、また316FR鋼の破断延性の低下は粒界への炭化物析出率の増加が原因と考えられる。

(2)両鋼のクリープ疲労寿命は粗粒化とともに減少する。しかし、316FR鋼のクリープ疲労寿命はSUS316鋼を大幅に上回り、結晶粒径依存性も小さいため316FR鋼は粗粒域においてSUS316鋼の数倍の寿命となる。SUS316鋼はいずれの結晶粒径においても粒界破壊であるが、316FR鋼の破壊は細粒域の粒内支配型から粗粒域の粒界支配型に変化する。316FR鋼のクリープ疲労亀裂は著しく粗粒化するとLaves相の析出粒界をも伝播するようになるが、SUS316鋼の数倍の寿命を有することからLaves相の析出した粒界における伝播速度は炭化物析出粒界より小さいと考えられる。

文 献

- 1) 中澤崇徳, 安保秀雄, 谷野 満, 小松 肇, 田下正宣, 西田 隆: 鉄と鋼, **75** (1989), 1346.
- 2) H.Kaguchi, H.Kaneko, T.Nakazawa, N.Fujita and H.Ueda: SMIRT 11 Transactions, Vol.E, Elsevier Applied Science, London and New York (1991), 131.
- 3) T.Nishida, H.Koto, S.Kawaguchi, K.Okada, T.Nakazawa and H.Abo: Proc. of Fast Reactor and Related Fuel Cycles Vol.4, Atomic Energy Society of Japan, Tokyo (1991), 4; 7.
- 4) T.Nakazawa, N.Fujita, H.Kaguchi, H.Kaneko and H.Ueda: Proc. of Low Cycle Fatigue and Elasto-Plastic Behaviour of Materials-3, Elsevier Applied Science, London and New York (1992), 88.
- 5) C.L.Clark and J.W.Freeman: Trans. Am.Soc.Met., **38** (1947), 148.
- 6) F.Garofalo, W.F.Domis, and F.von Gemmingen: Trans. AIME, **230** (1964), 1460.
- 7) D.G.Morris: Met. Sci., **12** (1978), 19.
- 8) S.L.Mannan and P. Rodriguez: Met. Sci., **17** (1983), 63.
- 9) J.A.Mazza: J.Iron Steel Inst., **204** (1966), 783.
- 10) 中澤崇徳, 藤田展弘, 木村英隆, 小松 肇, 古藤広之, 加口 仁: 鉄と鋼, **83** (1997), 317.
- 11) 桜井茂雄, 宇佐見三郎, 梅沢貞夫, 宮田 寛: 材料, **35** (1986), 170.