

技術報告

使用中压力容器における $\frac{1}{2}\text{Mo}$ 鋼の
靱性評価

© 1987 ISIJ

岡 田 八 郎*・村 上 賀 國*2

Toughness Evaluation of $\frac{1}{2}\text{Mo}$ Steel Using for Pressure Vessel

Hachiro OKADA and Yoshikuni MURAKAMI

Synopsis:

Experience of Accidents at petroleum-refining plants strongly demand improvements in the safety of facility operations. Brittle fracture at relatively low temperature is the most catastrophic type of accident of pressure vessel that can occur in use. To prevent it, various approaches of reliability evaluation have been taken. The most important factor in reliability evaluation is the toughness of the construction material. There are more than a few cases in which a fracture originated in lower toughness than expected.

Pressure vessels of $\frac{1}{2}\text{Mo}$ steel are the most widely used in such petroleum-refining facilities as naphtha, kerosene, and light oil hydrotreating reactors. The significance of their toughness has become highlighted recently.

22 samples of $\frac{1}{2}\text{Mo}$ steels, which had been in long-term service for pressure vessels, were investigated for the purpose of prediction of the $_{\nu}T_{rs}$ of $\frac{1}{2}\text{Mo}$ steel. It was found that the $_{\nu}T_{rs}$ of $\frac{1}{2}\text{Mo}$ steel can be estimated nondestructively by using the following parameter.

$$_{\nu}T_{rs} (^{\circ}\text{C}) = 22.6 X - 32.59$$

$$X = 100 (P+B)/\text{HV} \cdot \text{N}$$

where $P+B$: Pearlite plus bainite fractions in the microstructure, HV: Vickers hardness, N: ASTM ferrite grain size No.

1. 緒 言

石油精製プラント等における事故経験を通じて、装置運転上の安全施策の強化が強く求められている現状にあつて、使用中検査 (In-service inspection) や、検査結果の評価方法のあり方が模索されている。使用中に発生し得る压力容器の事故の中でも、低温加圧時の脆性破壊は最も catastrophic なものの一つであり、特に運転再開時の低温加圧や水圧、気密等の圧力試験時に脆性破壊事故が発生した事例は少なくない¹⁾。このため、欠陥の有無やその方法のみでなく、材料の靱性レベルを考慮に入れた判断が求められるようになってきているが、既存の压力容器の中には十分に靱性の評価されていないものが多く、重要な問題点の一つである。

こうした背景の中で、 $\frac{1}{2}\text{Mo}$ 鋼は石油精製関連装置の压力容器材料として最も頻度高く使用されている²⁾ 材料であり、前述の破壊容器の調査¹⁾ により指摘された靱性

値のばらつきとそれに伴う低靱性材の存在の問題は、压力容器の安全性確保の観点から緊急の研究課題として取り上げるべきものと考えられる。

本稿では、このような点に留意しつつ、压力容器用 $\frac{1}{2}\text{Mo}$ 鋼の靱性について、使用済容器を対象にシャルピー衝撃試験等を実施し、得られたデータを詳細に解析した。加えて、著者らが先に報告した $\frac{1}{2}\text{Mo}$ 鋼の靱性挙動に関する実験結果³⁾ と照合し、靱性未知の既設容器材の靱性を評価する方法について検討した。

2. 供試材および実験方法

約 46 000~192 000 h の使用を履歴した $\frac{1}{2}\text{Mo}$ 鋼製压力容器の計 22 件 (反応塔 19 件、熱交換器 3 件) を供試材とした。これらの容器はすべて石油精製および石油化学用装置の压力容器として高温高圧水素環境下で使用されていたもので、主な仕様は以下のとおりである。
使用温度: 330°C~410°C, 使用圧力: 34.0~57.0

昭和 61 年 1 月 10 日受付 (Received Jan. 10, 1986)

* 千代田化工建設(株)材料技術部 (Material Technology Dep., Chiyoda Chemical Engineering and Construction Ltd., 3-13 Moriya-cho Kanagawa-ku Yokohama 221)

*2 (株)日本製鋼所鉄鋼重機事業本部 工博 (Steel Product & Fabrication Division, The Japan Steel Works, Ltd.)

kgf/cm²G, 板厚: 25~91 mm

これらの使用済材に対し, 化学成分分析, ミクロ組織観察および各種機械試験等を実施した. 靱性値の評価はシャルピー衝撃試験により行つたが, その実施にあつては, 試験片はすべて JIS 4 号とし, 容器の板厚の中心において軸方向より採取し, 円周方向で負荷した. また, ミクロ組織観察にあつては, 衝撃試験片を供試材とし, 光学顕微鏡により行い, フェライト, パーライトおよび

ベイナイトの面積比を点分析法により求め, 加えてフェライト結晶粒度を JIS G 0552 により判定した. 供試材の化学成分値の分布を Fig. 1 に, 引張試験結果を Fig. 2 に示す. またシャルピー衝撃試験による vT_{rs} (破面遷移温度) および vE_{10} (10°C における吸収エネルギー) の分布を Fig. 3 に示したが, vT_{rs} においては, -20°C ~ 110°C の範囲でのばらつきが認められ鍛造材の方が板材に比べて低い靱性値を示している. さらに Fig. 4 に使用済圧力容器材における母材, 溶接金属および溶接熱影響部 (HAZ) のシャルピー衝撃曲線の一例を示した. HAZ を含む溶接部に比べて母材の吸収エネルギーが低下しているのが認められる. このような傾向は $\frac{1}{2}$ Mo 鋼においては一般的に認められる. これは主としてミクロ組織に起因するものと考えられ³⁾, 以下の検討は靱性値の低い母材を対象として行つた. なお, 本実験にあつては, 検討結果の精度を高めるために, 未使用 $\frac{1}{2}$ Mo 鋼板 (板厚 13~36 mm) に 650°C×5h の焼もどし処理

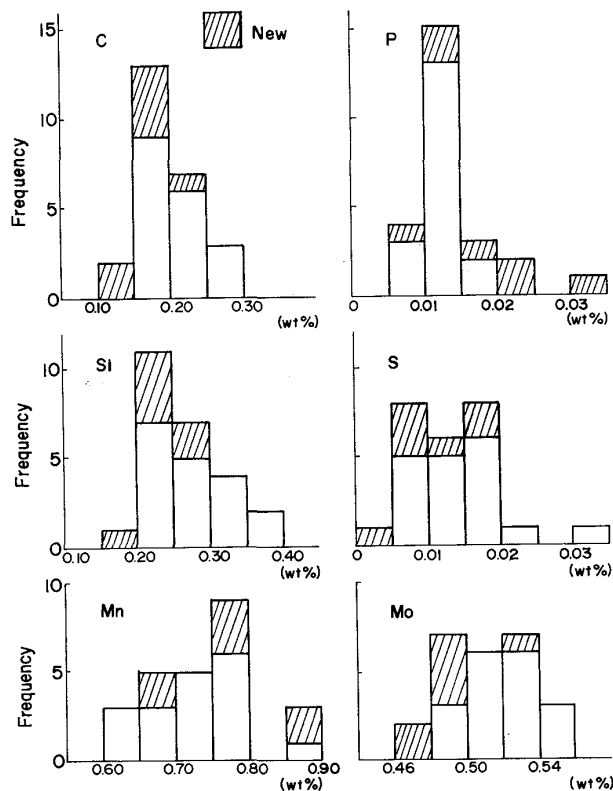


Fig. 1. Histogram showing distribution of chemical compositions on materials investigated.

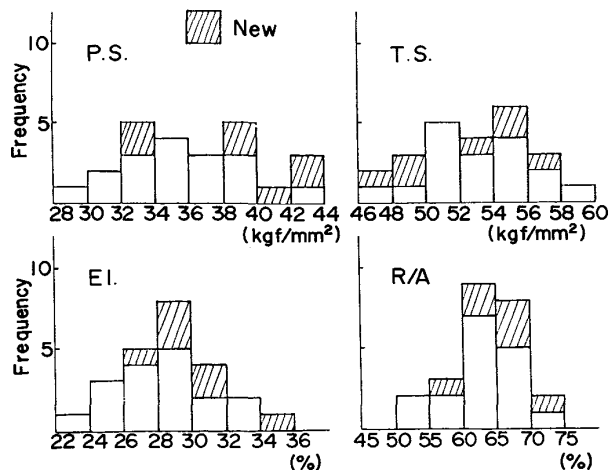


Fig. 2. Histogram showing distribution of tensile properties on materials investigated.

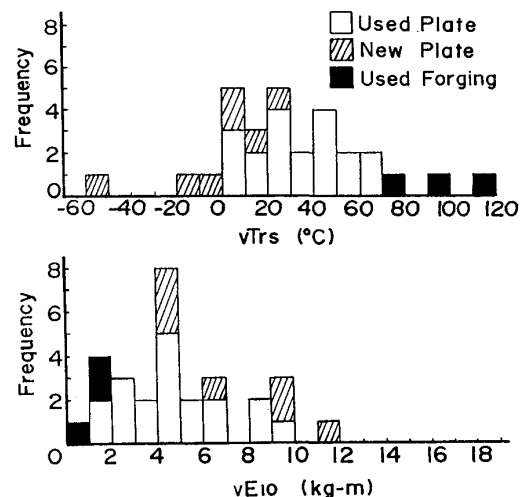


Fig. 3. Histogram showing scatterings of impact properties in Charpy test on materials investigated.

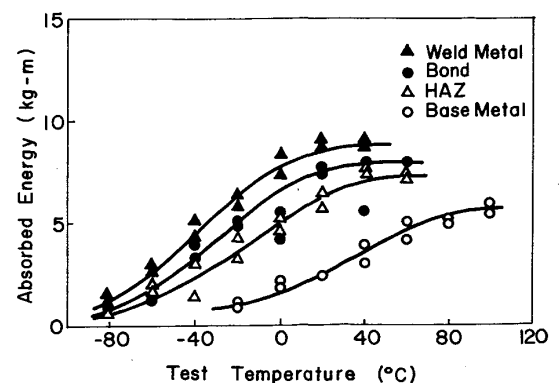


Fig. 4. Comparison of Charpy absorbed energy curve among weld metal, bond, HAZ and base metal of $\frac{1}{2}$ Mo steel.

を施した7試料も対象として加えた。

3. 実験結果

圧力容器用材としての $\frac{1}{2}\text{Mo}$ 鋼の靱性を評価する場合、靱性支配因子は、圧力容器の製作方法、条件などから複雑多岐なものとなり、それらの因子の単独あるいは複合効果を総合的に検討する必要がある。しかし、使用中容器の未知の靱性値を評価する場合には、当然非破壊的な手法により行うことが必要であり、必然的に測定し得るデータは限られる。すなわち、簡便な方法によるミクロ組織観察からの組織構成比および結晶粒度、硬さあるいは参考値としてミルシートによる化学成分などと靱性との関連性を求める必要がある。

前報³⁾での Mo および C 量を変えた供試材により、ミクロ組織および熱処理条件との関連性を含めて $\frac{1}{2}\text{Mo}$ 鋼の靱性挙動を検討した結果、 $\frac{1}{2}\text{Mo}$ 鋼の靱性は、その含有 C 量、ミクロ組織、焼もどし条件などにより強く影響されることが知られた。

本実験では、これらの知見を基に、既設容器材において非破壊的に知り得る因子と靱性との相関を検討することとした。なお、個々の靱性支配因子と靱性との相関性については、対象データを最小自乗法（一次式）により処理し、それぞれの対応性を検討した。

3.1 使用済材の焼ならし条件の推定

実際の圧力容器製作時に履歴する熱処理は、容器の仕様、用途によつてまちまちであり、また製作者によつても異なる。そのため、正確な熱履歴を推定することは不可能に近い。そこで前報³⁾における実験材（以下実験材と呼ぶ）からのデータを基準にして、使用済容器材（以下使用済材と呼ぶ）のミクロ組織から、その焼ならし条件を類推してみた。

Fig. 5 に使用済材の C 量とミクロ組織（以下 F: フェライト, B: ベイナイト, P: パーライトと略す。）の相関を示す。図中には、実験材における C 量とミクロ組織の相関を焼ならし温度（920 °C）からの冷却速度ごとに付記した。使用済材の焼ならし温度が不明であり、微量含有成分量などの影響も不明であるが、実験材と同等の成分系および焼ならし温度とみなして、その冷却速度を推定すると、使用済材の冷却速度は非常に遅く、そのほとんどが 9 °C/min 以下の速度で冷却されたものと見なされる。このように遅い冷却速度の場合にはミクロ組織の冷却速度依存性は比較的小さく、また (P+B) 量は C 量とはほぼ直線的な対応を示す。Fig. 6 は使用済材における (P+B) 量と C 量の相関を示したもので、C 量により (P+B) 量が直線的に増加する。

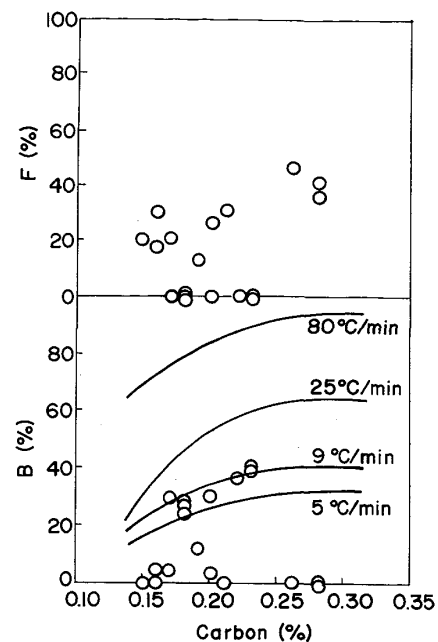


Fig. 5. Relation between carbon contents and volume fraction of ferrite (F) and bainite (B) in $\frac{1}{2}\text{Mo}$ steels used for pressure vessels (Curves in figure shows cooling rate after normalizing at 920 °C obtained from reference (1)).

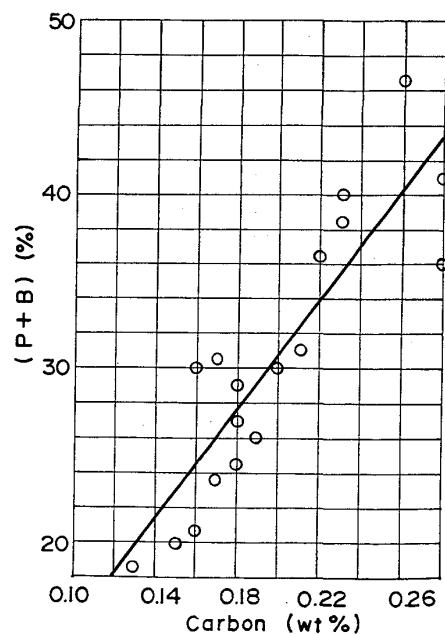


Fig. 6. Relation between carbon contents and sum of pearlite (P) and bainite (B) contents of $\frac{1}{2}\text{Mo}$ steels used for pressure vessels.

3.2 使用済材の材料因子と vT_{rs} の関係

(1) ミクロ組織と vT_{rs} の相関

Fig. 7 は、ミクロ組織中の F, P, B 量と vT_{rs} の相関を示したものである。F の減少、P および B の増加に伴つて vT_{rs} は上昇する傾向をもつことを示している。

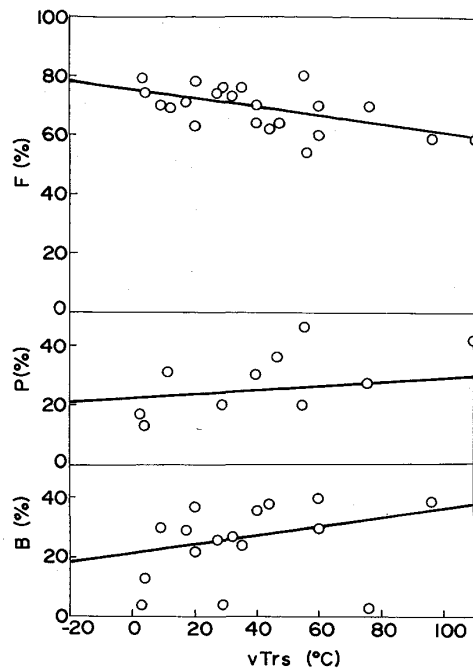


Fig. 7. Effect of volume fraction of ferrite (F), perlite (P) and bainite (B) contents on vT_{rs} of $\frac{1}{2}$ Mo steels used for pressure vessels.

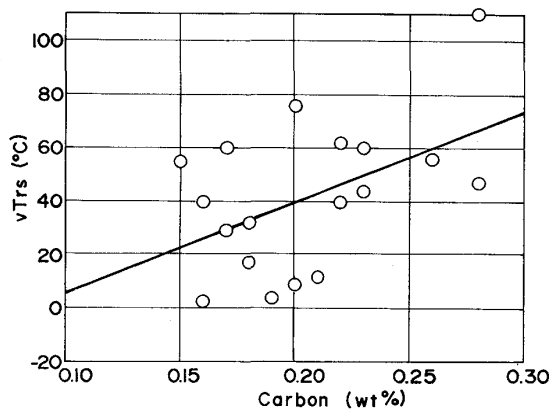


Fig. 8. Relation between vT_{rs} and carbon contents of $\frac{1}{2}$ Mo steels used for pressure vessels.

この結果は、C量の増加が靱性低下をもたらすことを示している。Fig. 6 から、C量と ($P+B$) 量の良い相関が認められるが、($P+B$) 量はすなわちC量を表し、Fig. 8 におけるC量と vT_{rs} の相関性に対応するものと考えられる。

(2) フェライト結晶粒度と vT_{rs} の相関

結晶粒の粗大化、すなわちフェライト粒度番号が小さくなるにつれて vT_{rs} が上昇することが知られているが⁴⁾、使用済材においても同様の傾向が認められ、Fig. 9 に示すように、粒度番号が小さい方が高い vT_{rs} を示す。

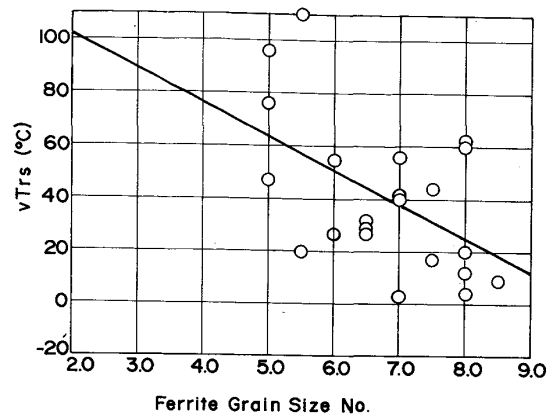


Fig. 9. Relation between vT_{rs} and ferrite grain size of $\frac{1}{2}$ Mo steels used for pressure vessels.

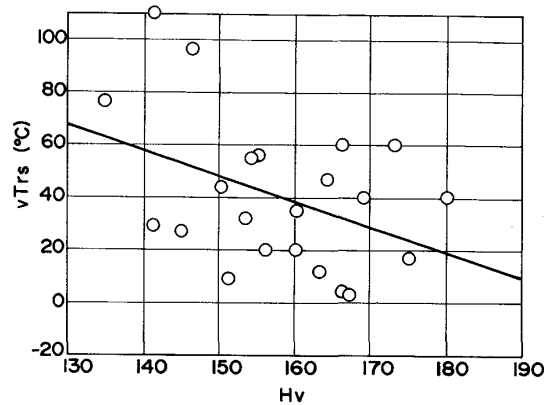


Fig. 10. Relation between vT_{rs} and HV of $\frac{1}{2}$ Mo steels used for pressure vessels.

(3) 硬さと vT_{rs} の相関

Fig. 10 は、硬さ (HV: ピッカース硬さ) と vT_{rs} の相関を示したものである。ばらつきが大きいものの硬さの低下が靱性低下傾向をもつことを示している。

前報³⁾の実験材における vT_{rs} と焼もどし温度の相関から、約 650°C の焼もどし温度が vT_{rs} 最低値を与え、それ以上の焼もどし温度では vT_{rs} の上昇の傾向が見られるが、 vT_{rs} 最低値を与える焼もどし温度は、焼ならし温度からの冷却速度が上昇するにつれて、いく分高温側へ移行する傾向が見られる。したがって、Fig. 5 において使用済材の冷却速度が $9^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 以下と判断された結果から、使用済材における vT_{rs} 最低値を与える焼もどし温度は 650°C より若干低めになるものと考えられる。このことは、一般的な $\frac{1}{2}$ Mo 鋼製圧力容器製作時の PWHT 温度 $= 650^{\circ}\text{C}$ が焼もどし過剰となり得ることを示している。一方、硬さは焼もどし温度上昇に伴い低下することから、使用済材における硬さ値の低下が vT_{rs} 上昇をもたらす傾向につながるものと考えられる。

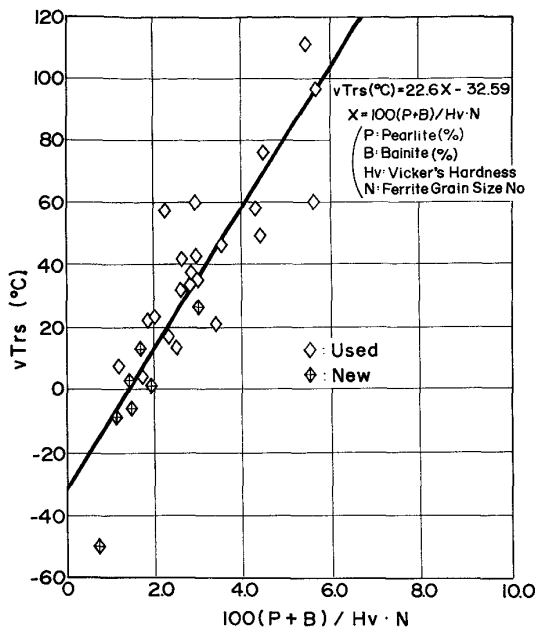


Fig. 11. Relation between actual vT_{rs} and correlation factor, $100(P+B)/HV \cdot N$, to predict vT_{rs} of $1/2Mo$ steel.

3.3 既設容器材における vT_{rs} の推定

使用済材の靱性に関する前項までの検討から、ミクロ組織中の $(P+B)$ 量の増加、フェライト粒径の粗大化および硬さの低下が vT_{rs} の上昇につながることが知られ、実験材における結果との対応性も確認された。

vT_{rs} の実際値は、上記の因子等が相乗的に作用した結果として示されるものと考えられるため、それぞれの因子の靱性変化に対する傾向を加味して $(P+B)/HV \cdot N$ (N : フェライト粒度番号) なるパラメーターと vT_{rs} の相関を求めてみた。その結果を Fig. 11 に示す。図中には未使用 $1/2Mo$ 鋼のデータも併せて示したが、使用済における結果と良い一致を見せている。

また、これらのデータから最小自乗法により靱性推測式を求めると、

$$vT_{rs} (°C) = 22.6X - 32.59$$

$$X = 100 (P+B) / HV \cdot N$$

ここで P : ミクロ組織中のパーライト率 (%), B : ミクロ組織中のベイナイト率 (%), HV : ピッカース硬さ, N : フェライト粒度番号

が得られ、この式により約 $\pm 30°C$ の精度で vT_{rs} が推測し得る。

4. 考 察

これまでに示した圧力容器材として長時間の使用に供されてきた $1/2Mo$ 鋼の靱性データの整理から、使用中容器において非破壊的に計測し得る因子であるミクロ組織

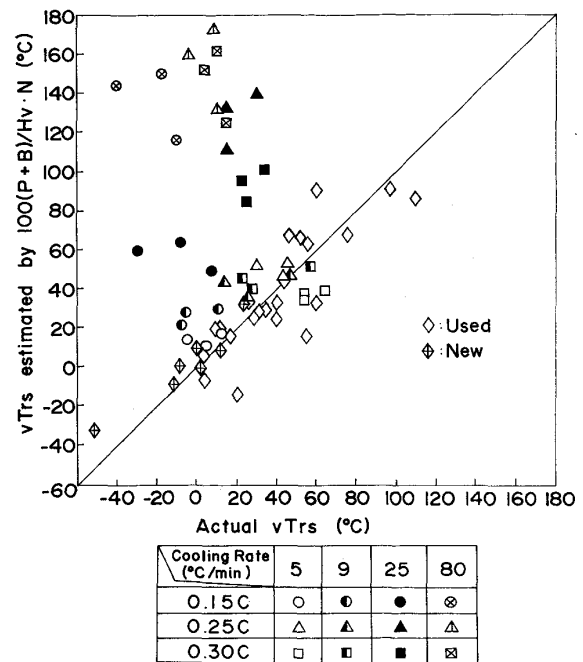
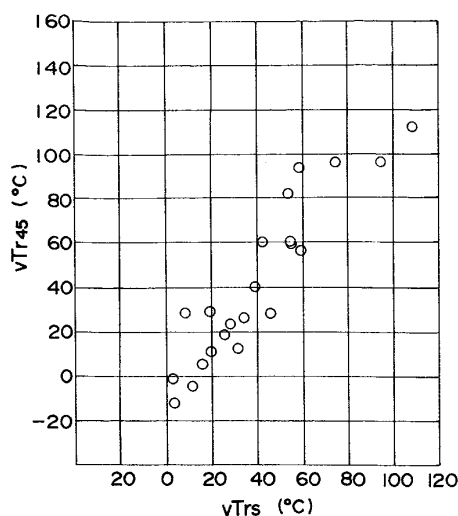


Fig. 12. Comparison between actual vT_{rs} and vT_{rs} estimated by $100(P+B)/HV \cdot N$.

および硬さ値から、靱性レベルを推測する方法が見出し得た。 $1/2Mo$ 鋼については、使用中の焼もどし脆化による靱性低下は生じないことがすでに確認されている^{4)~6)}。したがって Fig. 3 に示したような靱性値のばらつきは、初期靱性値としてのものであり、Fig. 11 の靱性推測図は、経年変化を考慮に入れずに評価し得るものである。このことは、Fig. 11 において、未使用材の靱性データが良い一致を見せていることから確認される。

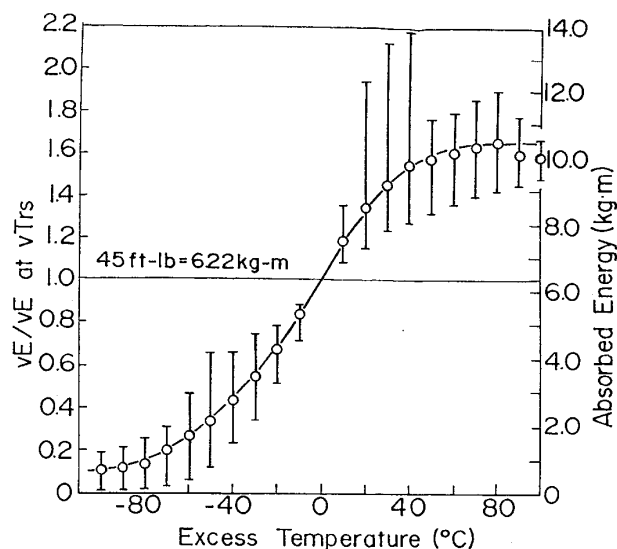
一方、得られた靱性推測図は限られたデータによるものであり、その適用範囲について考察する必要がある。Fig. 5 から使用済材の焼ならし温度からの冷却速度は、実験材における結果との対応により、そのすべてが約 $9°C/min$ 以下相当材であることがわかるが、これより大きい冷却速度のものについては、ミクロ組織中の F, P, B 量構成比が大きく異なるため、靱性推測式との誤差が大きくなる可能性がある。そこで、Fig. 11 に示した使用済材の靱性推測図に、実験材の靱性値を炭素量と焼ならし温度からの冷却速度に関連付けてプロットした。その結果を Fig. 12 に示す。図から明らかなように、実験材のデータは、炭素量にかかわらず焼ならし温度からの冷却速度が $9°C/min$ 以下の場合には、使用済材データと良い対応を示すが、冷却速度が $25°C/min$ 以上の場合には誤差が大きい。これは前報³⁾ で示したように、焼ならし温度からの冷却速度の差が、ミクロ組織に大きな影響をおよぼすためと考えられる。したがって、Fig. 11 に示した靱性推測図の適用範囲は、使用中容器材の炭素量およ

Fig. 13. Relation between vT_{rs} and vT_{r45} .

びミクロ組織の観察により, Fig. 5 の結果に照合して, 焼ならし温度からの冷却速度が $9^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 以下と判定されたものに限定されよう。

上述したように, 本靱性推測図は限られた適用範囲をもつものであり, さらに幅広い範囲での検討が今後の課題として残されたが, 実用的には, かなりの適用性を有するものと考えられる。すなわち, 使用済材のデータのすべてがそうであるように, 現在使用中の $\frac{1}{2}$ Mo 鋼製圧力容器の多くは, 本検討対象材のデータと同様に $9^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 以下の冷却速度と判定される範囲にあるものと考えられること, また, $9^{\circ}\text{C}/\text{min}$ を超える冷却速度のものについては, Fig. 5 からわかるように, 靱性の低下が顕著となる高い C 量の領域で, ミクロ組織中の B 量が 40 % を超え, したがって, 前報³⁾ の結果に示されるように, 靱性が安定かつ改善された領域にあることから, 本靱性推測図は, 靱性が不安定かつ低い領域での適用性をもつものとして, 実用的に有効なものと考えられる。

低靱性材の脆性破壊防止対策を考える際, 材料の破壊靱性値 K_{IC} を基に破壊力学的手法によつて検討することができる。 K_{IC} の実測にかなりの制約と困難が伴うため, 他の強度, 靱性データから K_{IC} 値を推定する式がいくつか提唱されており^{7)~9)}, これらの式から K_{IC} を求めるためには任意の温度でのシャルピー吸収エネルギー値を知る必要がある。 Fig. 13 は, 使用済材における vT_{rs} と vT_{r45} ($45\text{ft}\cdot\text{lb}=6.22\text{kg}\cdot\text{m}$ の吸収エネルギーを示す時の温度) との対応を示したもので, 両者は良い相関性をもつ。 また Fig. 14 は, 使用済材のシャルピー衝撃曲線から, Excess 温度 (試験温度 - vT_{rs})¹⁰⁾ と vE at vT_{rs} (vE : 任意の温度でのシャルピー吸収エネルギー値) の対応によりシャルピー曲線のマスターカーブを求

Fig. 14. CVN transition behavior of $\frac{1}{2}$ Mo steel used for pressure vessel as a function of excess temperature (test temperature minus vT_{rs}).

めたもので, この図において, Excess 温度 $0^{\circ}=vT_{rs}(^{\circ}\text{C})$ を代入し, Fig. 13 による vT_{rs} での $vE=6.22\text{kg}\cdot\text{m}$ を代入すれば, シャルピー吸収エネルギー曲線が推定され, これにより任意の温度での吸収エネルギー値が推定できる。 また, このような手順により推定された吸収エネルギー値を用い, 材料強度の仮定を行えば K_{IC} 値を推定することができ, 圧力容器の安定性評価についての破壊力学的取扱いが可能となる。

5. 結 言

(1) 使用中の $\frac{1}{2}$ Mo 鋼製容器において, 簡便な方法によりミクロ組織を観察し, パーライト (%), ベイナイト (%) およびフェライト結晶粒度を計測し, なんらかの方法により硬さ (HV) を測定すれば, 次式により対象材の vT_{rs} が推測し得ることがわかった。

$$vT_{rs}(^{\circ}\text{C}) = 22.6X - 32.59$$

$$X = 100(P+B)/\text{HV} \cdot N$$

ここで P : パーライト (%), B : ベイナイト (%), HV : ビッカース硬さ, N : フェライト粒度番号

(2) さらには, 使用済シャルピー衝撃曲線を Excess 温度で整理した $\frac{1}{2}$ Mo 鋼衝撃マスターカーブが求められ, (1) の vT_{rs} との対応から, 任意の温度におけるシャルピー吸収エネルギー値が推測し得ることが知られた。

(3) (1) および (2) の結果は, まとめて Fig. 15 に示される。 同図 (a) に示す適用範囲が満足されれば, 使用中の $\frac{1}{2}$ Mo 鋼製圧力容器において, 個々の容器を対象とした靱性レベルを考慮に入れた安全性評価

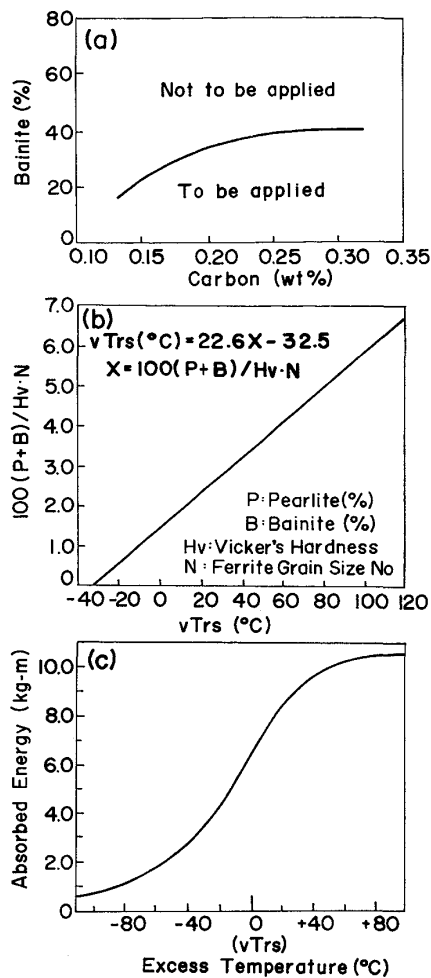


Fig. 15. Procedure for prediction of impact properties of $\frac{1}{2}$ Mo steel.

が可能となり、容器の保全を行う上で、有力な情報の一つとなるものと考えられる。

前報³⁾による $\frac{1}{2}$ Mo 鋼の靱性挙動に関する実験結果を

基に、使用済容器から得た $\frac{1}{2}$ Mo 鋼の靱性データを解析した。その結果、靱性未知の既設容器材の靱性について、容器材板厚方向のばらつきは板厚表面と断面のマイクロ組織の違いなどに適用上の留意点を含むものの、非破壊的に推測する方法に関して、下記に示すいくつかの知見を得た。

(4) 本実験結果による靱性推測法は限られたデータによるものであり、精度を高めるためには今後のデータの補充が必要と思われる。加えて、本靱性推測の適用範囲の拡大と異常組織（ウィドマンステッテン状組織、高温鍛造組織など）の靱性評価が、今後の課題として残された。

おわりに、本実験を通じて有益かつ貴重な御助言をいただいた (株) 日本製鋼所大西敬三博士、坂本紘一氏に深甚なる感謝の意を表する。

文 献

- 1) 出光興産 (株) 徳山製油所第二接触水添脱硫装置反応塔事故調査報告書, 高圧ガス, **17** (1980), p. 662
- 2) 神奈川県高圧ガス設備耐久性予測調査分科会資料 (1984)
- 3) 岡田八郎, 内藤勝之, 山本 寛, 村上賀國: 鉄と鋼, **72** (1986), p. 1913
- 4) 佐藤新吾, 榎並禎一, 松居 進, 朝生一夫, 楠原祐司: 川崎製鉄技術, **12** (1980), p. 91
- 5) 勝亦正昭: 圧力技術, **19** (1981), p. 120
- 6) 村上賀國: 日本製鋼所社内報, R(PV) 81-062 (1981)
- 7) S. T. ROLFE and S. R. NOVAK: ASTM STP436 (1970), p. 124
- 8) J. M. BARSOM and S. T. ROLFE: ASTM STP466 (1970), p. 281
- 9) J. T. CORTEN and R. H. SAILORS: ASTM STP514 (1972), p. 146
- 10) A. J. BROTHERS, D. L. NEWHOUSE and B. M. WUNDT: ASTM Annual Meeting, **68** (1965)