

論文

Ti-B 系大入熱溶接用鋼の HAZ 微視組織の
特徴

大野 恭秀*・岡村 義弘*・松田 昭一*²
山本 広一*³・向井 俊夫*⁴

Characteristics of HAZ Microstructure in Ti-B Treated Steel for Large
Heat Input Welding

Yasuhide OHNO, Yoshihiro OKAMURA, Shoichi MATSUDA,
Koichi YAMAMOTO and Toshio MUKAI

Synopsis:

Recently the needs for 50 kgf/mm² tensile strength steels with good HAZ toughness under the welding condition of large heat input have been increasing. A new type of 50 kgf/mm² tensile strength steel containing small amounts of Ti and B was developed for this purpose.

The steel is characterized by the microstructure in the HAZ which consists mainly of the intragranular ferrite plates(IFP) without the high carbon martensite islands and the small amount of the grain boundary allotriomorphs.

The toughness of IFP is very good due to its fine ferrite grain. Complex precipitates of TiN-MnS-Fe₂₃(CB)₆ act as nuclei of IFP and B addition suppresses the growth of grain boundary allotriomorphs. The authors suppose a mechanism that a carbon depleted zone formed around Fe₂₃(CB)₆ assists ferrite nucleation as the reason why IFP is produced effectively by these complex precipitates.

Key words: high strength low alloy steel; low carbon steel; steel for low temperature service; phase transformation; toughness; weldability.

1. 緒 言

近年におけるエネルギーコストの高騰から、カナダ/ボーフォート海など北極圏での石油ガス開発が活発化し、そのための石油掘削用人工島、砕氷タンカーなどの建造が計画されている。これらの構造物の建造に際し、溶接工数の節減、納期短縮などのため、大入熱溶接可能な鋼板の開発が強く要望されている。一方、LPGタンク、タンカーの溶接においても同様に大入熱化の傾向が強くなり、これらの両用途とも HT 50 で -50~-60°C での溶接部シャルピーの吸収エネルギーの値が要求される。

HAZ 靱性に関する研究は、ここ 20 年近く、特に大入熱溶接部の靱性改善という観点から精力的におこなわれてきている。Si-Mn 系における HAZ 靱性を改善する手法として、Ce_q の低減、Ti の少量添加によるオー

ステナイト粒およびフェライト粒の細粒化¹⁾、REM-B 添加によるフェライト粒の微細化²⁾、固溶 N の低減³⁾などが知られている。従来の HT50 の大入熱溶接部の HAZ 粗粒域の代表的なマイクロ組織は、粒界アロトリオモルフと島状マルテンサイトを含むウイドマンステッテンサイドプレートである。(この組織分類は、AARONSON⁴⁾に従う。)

従来からおこなわれている HAZ 靱性を改善するもつとも有効な方法は Ti の少量添加で、微細な TiN の析出物が HAZ のオーステナイト粒の粗大化を防止し、その結果、細かいフェライト、パーライトに変態する。最近、使用状況の変化からきびしい低温靱性を要求される TiN では、ボンド部近傍で部分的に TiN が溶解し、オーステナイト粒の粗大化をもたらす、さらに固溶 N が増加して靱性が低下するのが大きな問題である。

著者らは、この基本的課題を解決するため、低 N 化を

昭和 60 年 10 月本会講演大会にて発表 昭和 61 年 5 月 16 日受付 (Received May 16, 1986)

* 新日本製鉄(株)八幡技術研究部 (Yawata R & D Lab., Nippon Steel Corp., 1-1-1 Edamitsu Yahatahigashi-ku Kitakyushu 805)

*² 新日本製鉄(株)素材第二研究センター 工博 (Materials Research Lab. - II, Nippon Steel Corp.)

*³ 新日本製鉄(株)厚板・条鋼研究センター (Plate, Bar, Shape & Wire Rod Research Lab., Nippon Steel Corp.)

*⁴ 新日本製鉄(株)特別基礎第一研究センター 工博 (Fundamental Research Lab. - I, Nippon Steel Corp.)

ベースにフェライトの細粒化をはかる方法を検討した。その結果、以下に示すように低N鋼において、微量のTi, Bを添加することにより、固溶Nが低減され、しかも、著しい粒内フェライト変態の促進によりフェライト粒が微細化され、大入熱溶接後のHAZ靱性が大幅に改善されることを見出した。その改善の機構を中心に検討をおこなった結果を報告する。

2. 実験方法

2.1 供試鋼

Table 1に供試鋼の化学成分を示す。鋼Aは低N系、鋼Bは低N-Ti-B系で、170t転炉で出鋼し、造塊後加熱圧延した板厚32mmのHT50である。

2.2 実験方法

(1) 溶接継手部の衝撃試験

Table 1に示す供試材より12×12×80mmの試片を作成し、富士電波製高周波誘導加熱装置を用いて、試片の中央部に最高温度1400°Cの溶接再現熱サイクルを付与し、これから2mmVシャルピー試片を切り出し衝撃試験をおこなった。また、片面1層溶接をおこない、その継手部の靱性を調査した。

(2) 変態挙動および粒内変態核の観察

Table 1に示す供試材について3φmm×10mmの試片を切り出し、全自動変態測定装置Formaster-Fにより、相当入熱量130kJ/cm、最高温度1400°Cの熱サイクルを与え、冷却途中の種々の温度より急冷し、横断面を研磨後、5%ナイトールで腐食し、光学顕微鏡で観察した。また、粒界および粒内フェライトの成長速度を測定した。低N-Ti-B系については、旧γ粒界近傍のB析出物を、B-autoradiography、微小領域分析電子顕微鏡により分析した。

また、粒内変態開始直後に焼入れした試料を用いて、非水溶液を用いたSpeed法⁵⁾で腐食後抽出レプリカを作成し、微小領域分析電子顕微鏡により粒内変態核の観察をおこなった。

3. 実験結果

3.1 溶接部靱性と組織の比較

鋼A,Bについて再現熱サイクルを付与し、これらのシャルピー試験をおこなった結果をFig. 1に示す。入熱量100kJ/cm相当以上の靱性は、破面遷移温度 vT_{rs} が、低N系で-20°C、低N-Ti-B系で-50°C程度であった。この図に示すように低N系に微量のTi, Bを添加することにより大入熱溶接部の靱性が著しく向上した。その原因について以下に調査した。

両鋼種の再現熱サイクル後の光学顕微鏡組織を入熱量130kJ/cm相当材についてPhoto. 1に示す。また、これらのシャルピー試片の破面をSEMで観察し、脆性破壊の破面単位を測定した。破面の写真をPhoto. 2に示

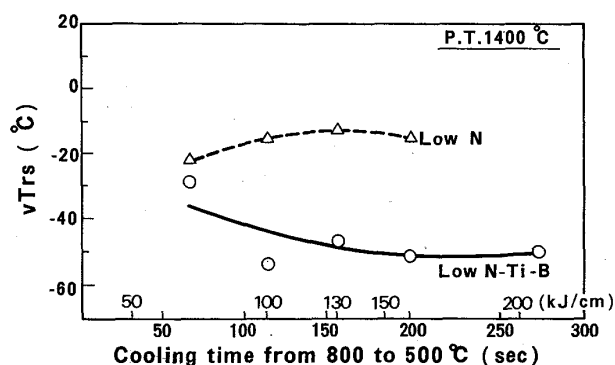
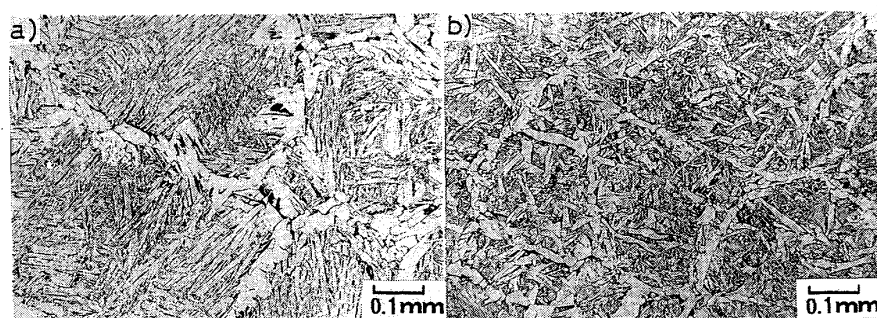


Fig. 1. Relationship between vT_{rs} and cooling rate of simulated thermal HAZ.

Table 1. Chemical compositions of steel (wt%).

Steel	Type	C	Si	Mn	P	S	B	Al	Ti	N	Ceq
A	Low N	0.09	0.27	1.35	0.009	0.002	—	0.031	—	0.0022	0.33
B	Low N-Ti-B	0.08	0.26	1.38	0.007	0.001	0.0011	0.055	0.007	0.0021	0.32



a) Low N b) Low N-Ti-B
Photo. 1. Microstructures of simulated thermal HAZ.

す。破面単位は、鋼Aで 300 μm、鋼Bで 80 μm であつた。このように破面単位が細くなる原因は微視的組織差にあると考えられる。

Photo. 1 に示すように低N系は粗大オーステナイト粒界より粒界アロトリオモルフが生成し、粒内は粗大なウイドマンステッテンサイドプレート組織である。一方、低N-Ti-B系は、低N系よりは細かいオーステナイト粒界に幅の狭い粒界アロトリオモルフが生成し、粒内は、板状の粒内フェライト (Intragranular Ferrite Plate, 以下 IFP) が多数観察される。

このように、低N-Ti-B系の破面単位が細かいのは、オーステナイトからフェライトに変態する際、多数の粒内変態が生じ、オーステナイトが分断されていることによつている。

つぎに、これら2鋼種の実溶接継手部の靱性比較をおこなつた。Fig. 2 に試験結果を示す。Photo. 3 に継手部の光学顕微鏡組織を示すが、再現熱サイクル同様、低N-Ti-B系は、IFPの発達した組織である。

3.2 変態過程の観察

相当入熱 130 kJ/cm、最高温度 1400°C の再現熱サイクルの冷却途中の 730°C~550°C の間の種々の温度より

急冷し、オーステナイトからフェライトに変態する過程を観察した。Photo. 4 に光学顕微鏡で観察した結果の

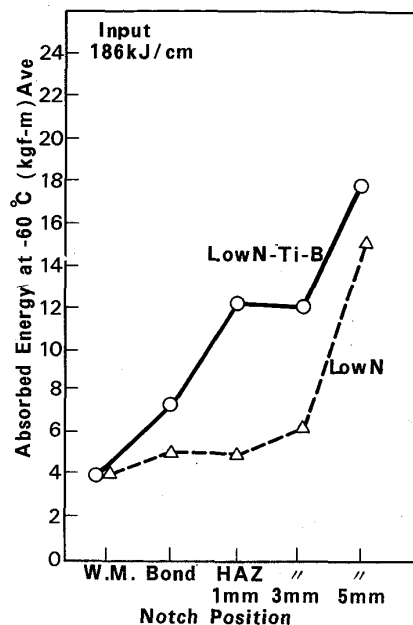
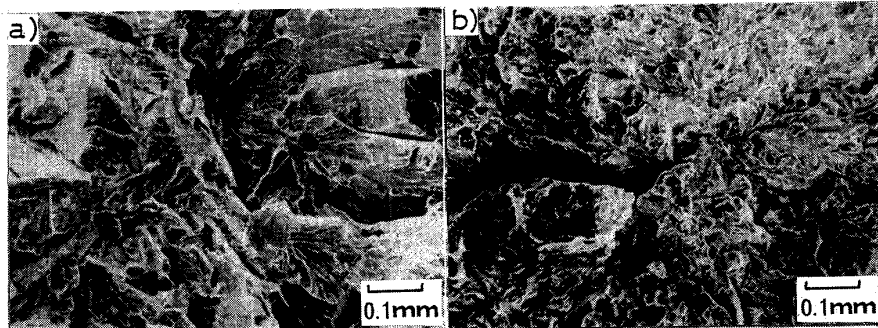


Fig. 2. Charpy test results of one side one-pass submerged welded joint.



a) Low N b) Low N-Ti-B
Photo. 2. Fracture surfaces.

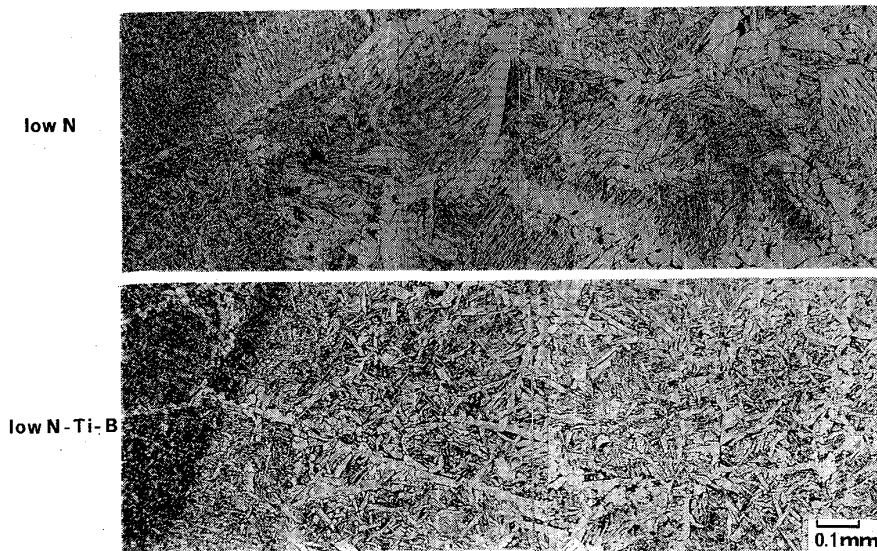


Photo. 3. Microstructures of welded joints.

一例を示す。両鋼種とも 670°C までは、オーステナイト粒界より変態した粒界アロトリオモルフが見られるが、650°C では低N系はウイドマンステッテンサイドプレートが発達し始め、Ti, B を添加した鋼Bは IFP が観察されるようになる。625°C になると、鋼Aではウイドマンステッテンサイドプレートが、鋼Bでは IFP の著しい発達がみられる。この変態過程の組織を、粒界アロトリオモルフ (F_p)、粒界マッシュフェライト (F_M)、ウイドマンステッテンサイドプレート (F_S)、IFP、上部ベーナイト (Bu)、パーライト (P)、高炭素島状マルテンサイト (M*) に分類して、両鋼種の組織割合を Fig. 3 に示す。この図より、鋼Bは IFP の発達が著しいという特徴がある。

3.3 粒内フェライト変態核の観察

鋼Bについて IFP 生成核の同定をおこなった。鋼Bの材料を相当入熱 130 kJ/cm, 最高温度 1400°C の熱サイクルを与え、粒内変態を開始した温度より焼入れ、Speed 法で腐食後、IFP の生成場所を含む抽出レプリカを作成した。

IFP 内部に観察される比較的大きな析出物について、それを変態核と考えて同定をおこなった。同定した析出物のうち、代表的なものを Photo. 5 に示す。IFP 生成核は、サイズが数 μm で TiN+MnS+Fe₂₃(CB)₆, TiN+MnS+Fe₃(CB) などの複合析出物である。TiN, MnS についても、微小領域分析電子顕微鏡により同定している。析出物体積の大きな割合を占める MnS, 最

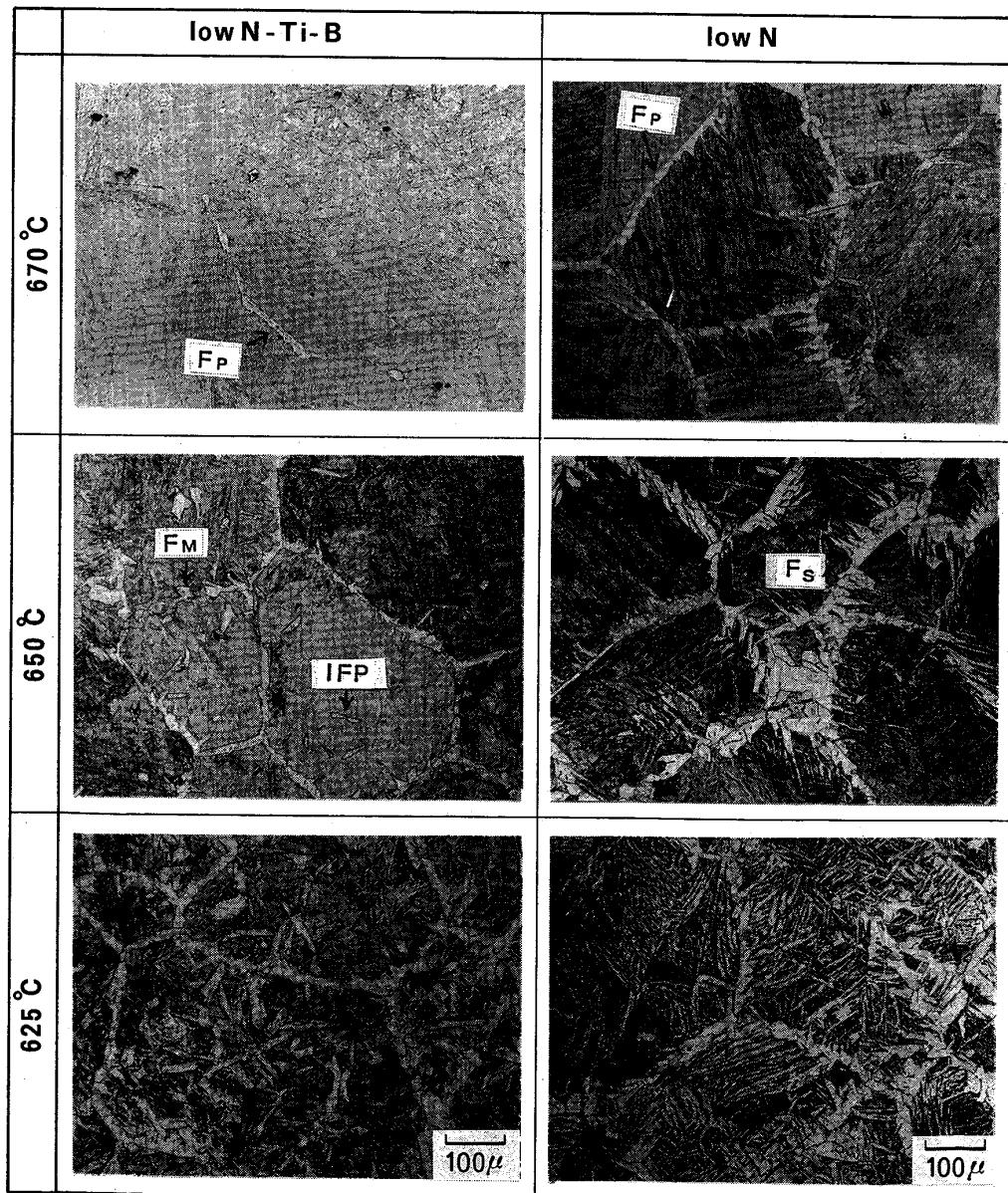


Photo. 4. Microstructure of transformation process.

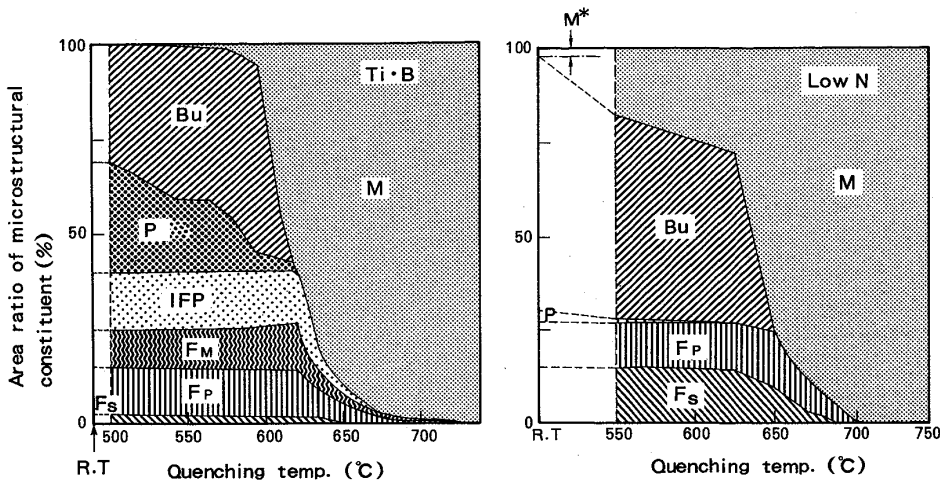


Fig. 3. Diagram showing area ratio of microstructural constituents of Ti-B-low N and low N steels.

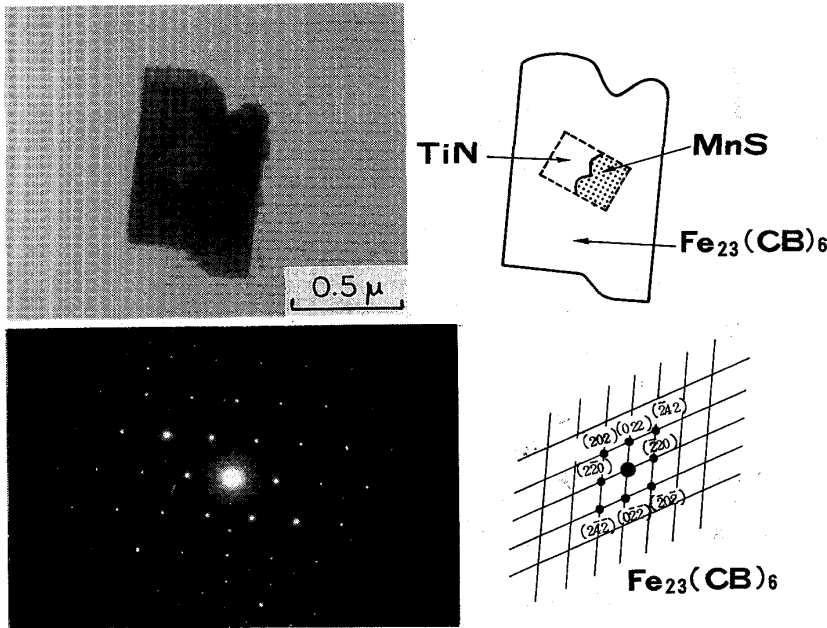


Photo. 5. TiN-MnS-Fe₂₃(CB)₆ complex precipitate.

外殻の鉄の炭ほう化物が、IFP生成に寄与していることが考えられる。溶接熱サイクルでは、核となるTiN-MnSは、大きく変化せず、そのまわりのFe_n(CB)_mの析出過程が大きな変化と考えられる。

3.4 粒界初析フェライトの観察

3.2節で示したように、低N-Ti-B系の一つの大きな特徴として、粒界フェライトの幅が狭く、それがワイドマンステッテンサイドプレートに発達していない。そこで、鋼A,Bについて粒界フェライトの生成、成長過程を観察した。130 kJ/cm相当入熱、最高温度1400°Cの熱サイクルの途中急冷材の粒界フェライトの最大厚さを測定した。Fig. 4にその結果を示す。Photo. 6に650°C急冷材の光顕写真(Photo. 6(a))、同一視野の

B-autoradiography(Photo. 6(b))および電子顕微鏡レプリカ組織(Photo. 6(c))を示す。Fig. 4より外挿して求めたAr₃点は、Ti, B添加材の方が若干高い。また、Photo. 6(a), (b)より旧オーステナイト粒界のB析出物が多いところほど、粒界フェライトが発達している。Photo. 6(c)に示した析出物の種類は、電子顕微鏡で分析した結果であるが、B析出物はBN(点状微細析出物、0.1 μm程度)だけでなく、BNよりもサイズの大きい、Fe₂₃(CB)₆(1 μm程度)も同時に存在していることがわかる。この結果は、オーステナイト粒界に粗大Fe₂₃(CB)₆がγ→α変態に先立つて析出する場合には、粒界フェライトの核生成は促進されることを示唆している。

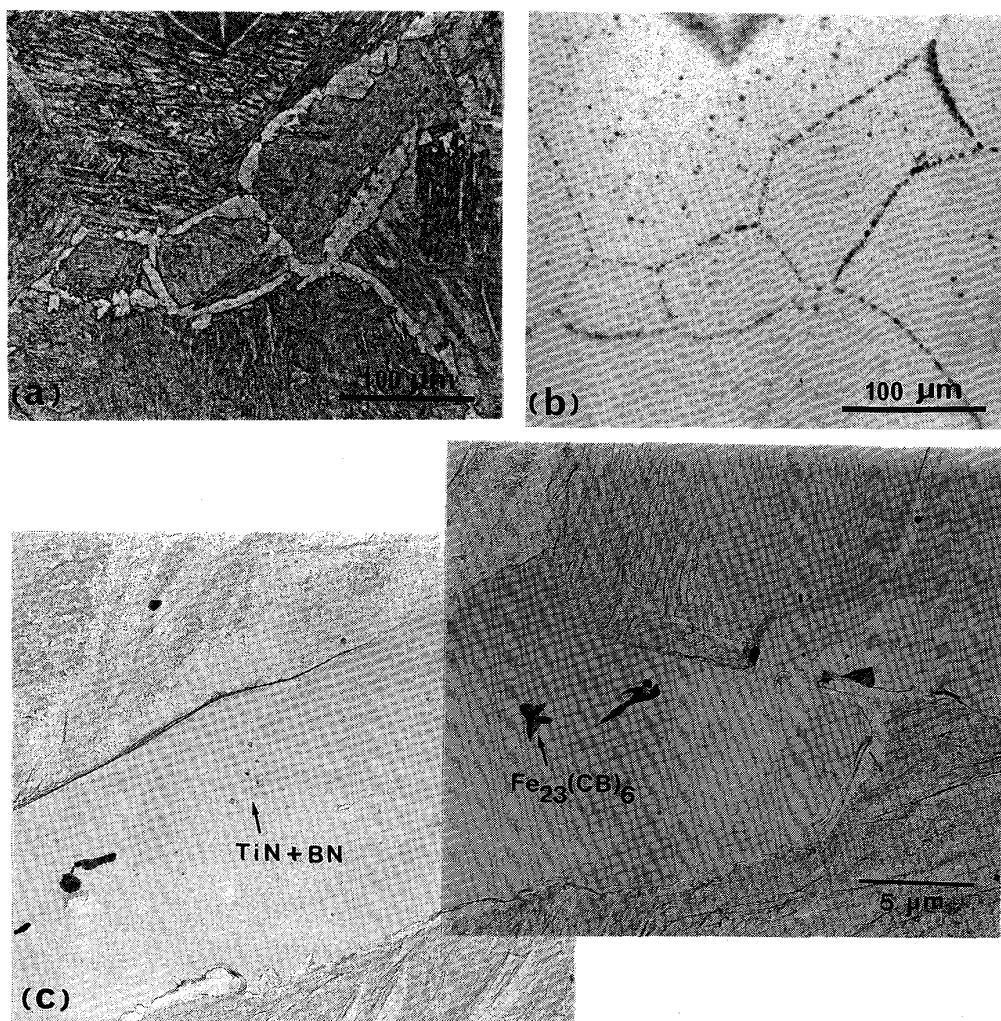


Photo. 6. Distribution of precipitation containing boron at grain boundary.

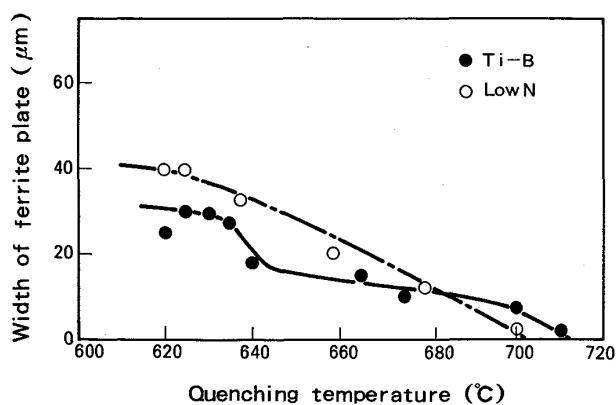


Fig. 4. Growth rate of grain boundary allotriomorphs of Ti-B-low N and low N steels.

また、Fig. 4より粒界フェライトの増加割合は、鋼Bの方が抑制されている。Photo. 7には、粒界フェラ

イト内部の析出物を同定した結果を示すが、 γ/α 界面にはほぼ平行に点列状微細析出したBN、 $\text{Fe}_{23}(\text{CB})_6$ が観察される。この結果は、 γ/α 界面が固溶Bを引き摺りながら移動し、それが γ/α 界面の移動を抑制していることを示唆している。

4. 考 察

4.1 IFPの生成機構

IFPの生成核となる介在物、析出物が溶接熱影響部で発見されたのは比較的新しく、最初は溶接金属において、その存在が確認された。

ABSONら⁷⁾、ついでKIRKWOOD⁷⁾、FARRARら⁸⁾、DEVILLERSら⁹⁾、COCHRANEら¹⁰⁾は、 MnSiO_2 、 $\text{Al}_2(\text{SiO}_2)_3$ 、 MnS 、 TiO_2 などが溶接金属のIFP核となることを見出したが、生成機構についての考え方は明確でなく、実証もなされていない。また、森ら¹¹⁾はTi-B添加溶接金属に

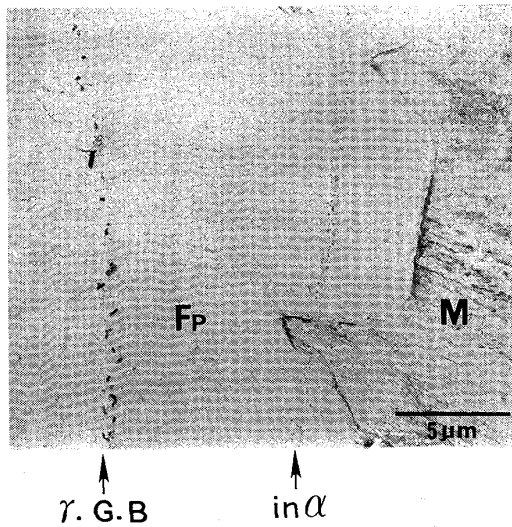


Photo. 7. B precipitates array. Electronmicroscopy by means of extraction replica method.

において、TiO を核にして IFP が生成することを見出し、その機構としてエピタキシャル成長説を提案した。しかし、Ti 酸化物においては、TiO 以外に Ti_2O_3 , Ti_2O_5 なども IFP 核となり得ること、また TiO よりも整合性のよい Ce_2S_2O , La_2S_2O に IFP 核の機能がほとんど存在しないことなどから判断して、エピタキシャル成長説だけで、IFP 生成機構を説明することには、かなり問題が多いと考えられる。

溶接熱影響部に関する報告例は少ないが、船越ら²⁾は、REM-B 添加鋼に IFP の生成が認められ、 Ce_2S_2O +BN 複合析出物が核となっていることを報告している。しかし、この場合にも、IFP の生成機構について詳細な説明はなされていない。

本研究の低 N-Ti-B 鋼においては、Photo. 5 などから明らかのように、IFP の生成核となる析出物は、(i) $TiN+MnS+Fe_{23}(CB)_6$ (ii) $TiN+MnS+Fe_3(CB)$ などの複合析出物であり、複合析出物の最外殻に鉄の炭ほう化物が析出することが、大きな特徴として挙げられる。もし、鉄の炭ほう化物の析出進行過程において IFP 変態が始まるならば、オーステナイト中の C の拡散速度が速くても、複合析出物/オーステナイト界面に C の希薄域が消滅することなく存在し、その広がり十分大きければ、IFP の核生成に対して極めて都合のよいサイトとなることが示唆される。そこで、1 例として $Fe_{23}(CB)_6$ の析出温度と IFP 変態温度との関係を調べてみると、Fig. 5¹²⁾ のようになり、明らかに析出の進行中に IFP 変態が生じることがわかる。この図は、グループ試験機により、溶融後種々の連続冷却で冷却した時

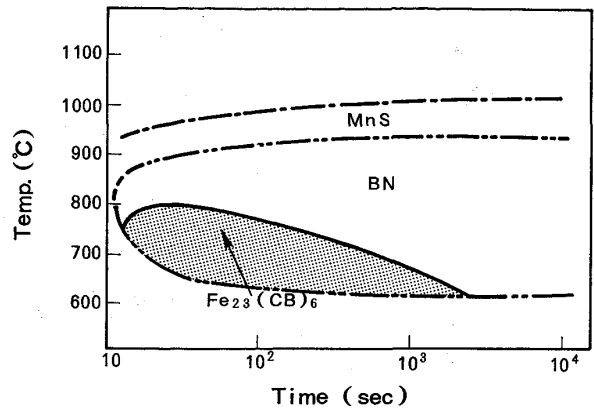


Fig. 5. Precipitation diagram of $Fe_{23}(CB)_6$, BN and MnS.

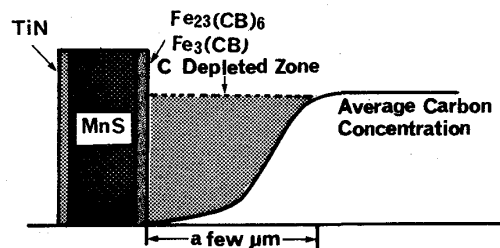


Fig. 6. Model of intragranular ferrite plate nucleation.

のこれら析出物の析出温度域を実験データに基づき模式的に示したもので、横軸は $1300^{\circ}C$ よりの冷却時間である。つぎに、C 希薄域の幅 Δx について考えてみる。いま、Fig. 6 に模式的に示したように、析出物は板状の厚さ d の $Fe_3(CB)$ で、析出物の C は斜線部のオーステナイト中の C (本研究では、 $C=0.08$ wt%) の排出によつて供給されると仮定すると、一次元モデルで、オーステナイト中の C は、 0.37 at%, $Fe_3(CB)$ 中の C は、B を無視して $100/4$ at% とすると

$$0.37/100 \Delta x = 1/4d \dots\dots\dots (1)$$

となり、 $d=0.1 \mu m$ (電顕での観察結果) とすると、 $\Delta x=6.8 \mu m$ となる。この大きさは、IFP の核生成に対して十分な広がりであると考えられる。以上の考察から明らかのように、低 N-Ti-B 鋼の IFP 生成に対して、複合析出物の最外殻に存在する炭ほう化物は極めて重要な作用をし、複合析出物/オーステナイト界面に C の希薄域を形成することにより、IFP 変態を促進するものと考えられる。複合析出物に存在する MnS は、最外殻の核サイトとしての役割と同時に、IFP 核としての表面積を確保する役割を果たしているものと考えられる。

4.2 Bによる粒界フェライトの抑制機構

4.1で述べた粒内変態を促進するためには、オーステナイト粒界でのフェライト生成が抑制されることが必要で、Fig. 4に示すように粒界フェライトの発生は、B無添加鋼より早い、成長速度は抑制されている。Bは一般に冷却速度の速い場合は、粒界に偏析して焼入性を向上させるが、その原因は、フェライトの核生成速度の抑制にあるといわれている。一方、冷速の遅い場合は、粒界への鉄の炭ほう化物の析出により焼入性が低下するといわれている。本実験のように比較的冷却速度の遅い場合は、確かにBの存在により粒界フェライトの核生成はやや促進される傾向にあるが、しかし、核生成後の成長は著しく抑制されているといった極めて大きな特徴を示す。Photo. 7は、粒界フェライトとの関係を示したものであり、粒界フェライトに平行に点列状に微細 $Fe_{23}(CB)_6$ 、BNが観察される事実は、このように冷速が遅い場合でも、オーステナイト中に固溶Bが存在すること、この固溶Bを、 γ/α 界面が掃き寄せながら移動する結果、フェライトの成長に伴って γ/α 界面のB濃度が増大し、溶解度が超えた時点で γ/α 界面に沿って析出することを示唆している。フェライトの成長速度 dx/dt は、古典論によれば、(2)式のように与えられる。

$$dx/dt = D_C^{\gamma} \left(\frac{\partial C}{\partial x} \right) \times (C_{\gamma}^{\alpha} - C_{\alpha}^{\gamma})^{-1} \dots \dots \dots (2)$$

ここで、 D_C^{γ} は γ 中のCの拡散定数、 C_{γ}^{α} 、 C_{α}^{γ} はそれぞれ γ および α での γ/α 界面のC濃度である。もし、B-C interactionがあるとすれば、(i) Bの存在によつて D_C^{γ} が変わる。(ii) Bが優先的に偏析することによつて、Cの粒界濃度が減少する結果 $\left(\frac{\partial C}{\partial x} \right)$ が減少する。などが考えられる。Fig. 7は模式的にこれを示したものであるが上段はB添加材の α/γ 粒界のSoluble Bの時間的変化、下段は、フェライト中の時間的変化を示す。粒界偏析Bの増加とともにフェライトの成長速度は減少し、析出が生じた時点で速度は零になる。この仮説の実証は今後の課題である。

5. 結 論

Si-Mn系大入熱溶接用鋼として、低N系と低N-Ti-B系について比較検討をおこない以下のことがわかった。(1)低N-Ti-B系により $-60^{\circ}C$ 用の大入熱溶接用鋼としての靱性のすぐれたHT50が得られた。(2)靱性のすぐれている理由として、 M^* の消滅、固溶Nの低減および破面単位の細粒化などが考えられる。(3)破

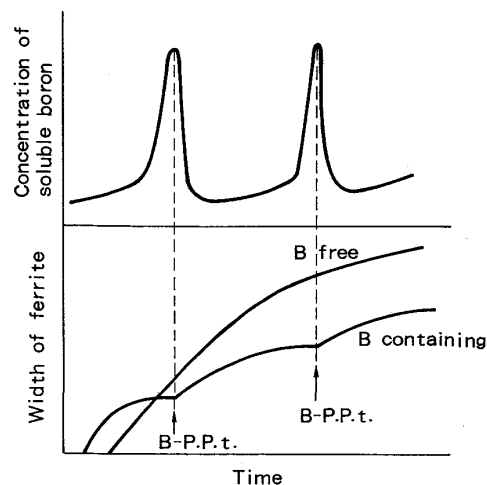


Fig. 7. Growth model of IFP with boron steel.

面単位が細かいのは、Bによる粒界フェライトの成長抑制とIFPの著しい生成によつている。(4)IFPの生成核は、TiN-MnSのまわりに炭ほう化物が析出した複合析出物で、炭ほう化物の析出によるCの希薄域の存在がIFPを生成させたと考えられる。

終わりにあつて本研究のIFP核の電顕分析を担当して下さつた分析センター小松肇氏および種々の助言をいただいた八幡技術研究部矢野清之助氏に対し謝意を表します。

文 献

- 1) 金沢正午, 中島 明, 岡本建太郎, 金谷 研: 鉄と鋼, 61 (1975), p. 2589
- 2) 船越督己, 田中智夫, 上田修三, 石川正明, 腰塚典明, 小林邦彦: 鉄と鋼, 63 (1977), p. 303
- 3) 渡辺 之, 鈴木元昭, 東田幸四郎, 山崎喜崇: 日本鋼管技報 (1983) 97, p. 1
- 4) V. F. ZACKAY and H. I. AARONSON: Decomposition of Austenite by Diffusional Process (1962), p. 390
- 5) 黒澤文夫, 田口 勇, 谷野 満: 日本金属学会会報, 20 (1981), p. 377
- 6) D. J. ABSON and R. E. DOLBY: The Welding Institute Conference, Trends in Steels and Consumables for Welding, London (1978年11月)
- 7) P. R. KIRKWOOD: Metal Constr., 10 (1978), p. 260
- 8) R. J. FARRAR and M. N. WATSON: Metal Constr., 11 (1979), p. 285
- 9) L. DEVILLERS, D. KAPLAN, B. MARANDET, A. RIBES, P. V. RIBOUD: The Welding Institute Conference, The Effects of Residual, Impurity and Micro-Alloying Elements on Weldability and Weld Properties, London (1983年11月)
- 10) R. C. COCHRANE, J. L. WARD and B. R. KEVILLE: 同上
- 11) 森 直道, 本間弘之, 大北 茂, 若林正邦: 溶接学会誌, 50 (1981), p. 174
- 12) 山本広一, 松田昭一, 向井俊夫, 小松 肇, 大野恭秀: 鉄と鋼, 68 (1982), S1513