

# 鋼材の遅れ破壊特性評価試験法

鈴木 信一\*・石井 伸幸\*<sup>2</sup>・宮川 敏夫\*<sup>3</sup>・原田 宏明\*<sup>3</sup>

Estimation of Delayed Fracture Property of Steels

Nobukazu SUZUKI, Nobuyuki ISHII, Toshio MIYAGAWA and Hiroaki HARADA

**Synopsis :** A new testing method was developed which enables to quantify minute amount of hydrogen in steel and measure resistance of steel to delayed fracture. This method clarified a steel had critical hydrogen level ( $H_T$ ) for delayed fracture under a constant applied load. Based on this testing method, a new approach for estimating delayed fracture of steel in service was proposed. From the value of  $H_T$  obtained by this testing method, together with amount of hydrogen absorbed in the steel in a service environment, which is measured by a hydrogen monitoring device, delayed fracture of steel in service can be estimated.

**Key words :** hydrogen measurement ; delayed fracture estimation; critical hydrogen level.

## 1. はじめに

わが国において遅れ破壊に対する認識が高まったのは、鋼製部材間の鋲接合に代わる摩擦接合の概念が導入され、摩擦接合用の高力ボルトが多く使用されるようになってからである。当初は、高力ボルトの強度は90キロ程度であったが、その強度が高くなるにつれて、遅れ破壊が発生するようになってきた。特に1964年、橋梁に130キロ級ボルトが採用されてから、高力ボルトの遅れ破壊が多発するようになり、それに対する認識が高まってきた。日本鋼構造協会ではボルト強度班を設置して、高力ボルトの遅れ破壊の研究を始めた<sup>1)</sup>。それ以来、多くの研究が行なわれてきた<sup>2)</sup>が、いままって解決されていない問題の一つは、使用鋼材の妥当な遅れ破壊特性促進評価法がないことである。

実施されてきた鋼材の遅れ破壊特性促進評価法は、負荷荷重が引張りであったり、曲げであったり、試験環境も実に多種多様である<sup>3)</sup>。このような実態では、報告されたデータ間の比較もできないので、試験法を統一する必要がある。JIS原案として、「高力ボルト用鋼材の遅れ破壊試験法」<sup>4)</sup>が作られた。このJIS原案は、試験環境にpH2の塩酸溶液を使用する、いわゆる促進試験法であって、鋼材間の遅れ破壊特性を相対的に評価するものである。しかし、塩酸溶液による促進試験では、塩酸溶液に侵され易い鋼材が実力より悪い結果になる可能性があり、またその逆もあり得る。

一方、遅れ破壊は、水素が原因していることがすでに明ら

かであるのに、水素量の影響をみた試験は少ない<sup>5)</sup>。この原因は、遅れ破壊にかかわる水素量が微量であるために、従来の水素分析法では定量することができなかったことにある。

本研究は、鋼中の微量水素を測定する方法を検討し、鋼材の遅れ破壊と鋼中水素量との関連性を試験した結果について述べ、新しい鋼材の遅れ破壊特性促進評価法を提案するものである。

## 2. 鋼中の微量水素測定法

一般に鋼中水素の測定は、対象鋼材から切り出した所定の試験片を用い、行われている。この測定用試験片を採取する操作のために、測定値が乱され、鋼中の微量水素が測定できなかった。そこで、対象鋼材を最小の加工量で測定用試験片とすることに留意した。このような試験片をFig. 1に示す装置を用い、徐々に加熱して、試験片中の水素を追い出しつつ測定する熱分析法<sup>6)</sup>を適用し、0.01ppmの精度で鋼中の水素が把握できるようにした<sup>7)</sup>。さらに、この分析法によると、鋼中の水素の状態分析ができる。その測定例をFig. 2に示す。この図からわかるように、400K近傍に現われる山と650K近傍に見られる比較的小さな山があり、前者の山のピーク値の変化が大きい。これらの山は、それぞれが鋼中水素の存在状態を現わしている。400K近傍に見られる山は、試料の大気中への放置時間が長くなるとともに、

平成4年3月11日受付 平成4年11月6日受理 (Received on Mar. 11, 1992; Accepted on Nov. 6, 1992)

\* 新日本製鉄(株)第二技術研究所 (現:パーカーS・N工業(株)) (R & D Laboratories-II, Nippon Steel Corp., now Parker S・N Kogyo Corp.)

\* 2 新日本製鉄(株)条鋼技術部(Bar, Shape & Wire Rod Technical Div., Nippon Steel Corp., 2-6-3 Otemachi Chiyoda-ku Tokyo 100-71)

\* 3 日鉄ボルテン(株)(Nippon Steel Bolten Co., Ltd.)

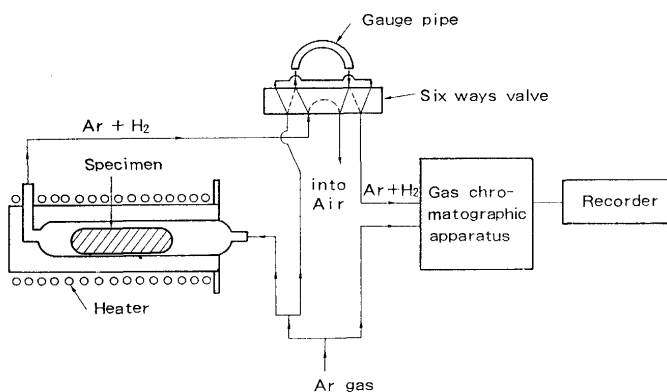


Fig.1. Schematic diagram of hydrogen thermal analysis apparatus.

次第にピーク値は小さくなり、ピーク値を示す温度も若干高温側へ移動する。即ち、これらの山は塩酸浸漬後、試料を室温で放置しておくと、ピーク値が次第に小さくなり、水素量が少なくなること示していることから、この山に対応する水素は室温で拡散することのできるものである。いわゆる“拡散性水素”である。より温度の高い650K近傍で出てくる水素は、安定な存在状態にあることを意味し、MnS等の非金属介在物周辺にトラップされているものと考えられている<sup>8)</sup>。

本来、遅れ破壊は常温で起こる現象であるから、これに関与する水素も拡散性水素と考えられ、以下に述べる水素は断わりのない限り、拡散性水素を意味する。

3. 遅れ破壊試験方法

鋼中の微量水素を測定する分析技術を確立したので、鋼材の遅れ破壊特性を鋼材中の許容水素量で表すことを考えた。具体的には、所定の強度に調質した試験対象鋼材から、切欠付きの引張り、または曲げ試験片を採取し、これを適当な濃度の塩酸溶液に浸漬して、水素をチャージする。この試験片に、大気中で一定の負荷をかけ、遅れ破壊の有無をみる。チャージした水素量は、別途上記した分析法で分

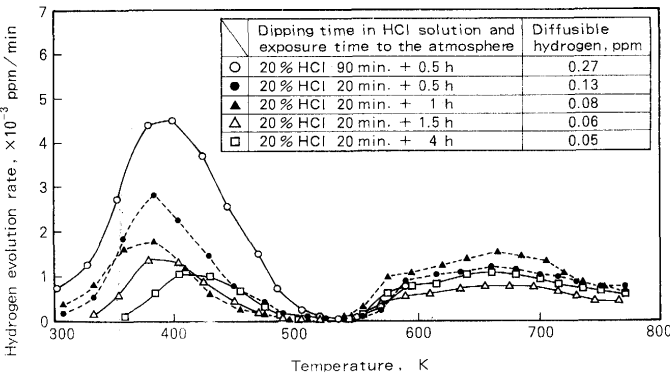


Fig.2. Typical peaks of hydrogen in thermal analysis for SCM435 steel after charging hydrogen in HCl solution. The samples were water quenched and tempered at 693K.

Table 1. Chemical compositions of the steels for the bolts(wt %).

| Steel | C    | Si   | Mn   | P     | S     | Al    | B      |
|-------|------|------|------|-------|-------|-------|--------|
| A     | 0.19 | 0.17 | 0.81 | 0.020 | 0.005 | 0.058 | 0.0026 |
| B     | 0.26 | 0.24 | 0.91 | 0.010 | 0.007 | 0.038 | 0.0016 |

析する。試験片中の水素量は、浸漬する酸濃度、浸漬時間あるいは塩酸溶液から取り出してから負荷をかけるまでの時間を変えることによって、変化させることができる。このようにして遅れ破壊特性を評価した例を次に述べる。

Table 1に示す化学成分の高力ボルト用鋼(A)および機械ボルト用鋼(B)を用い、1173Kから水焼入れし、焼入れたままのものから723Kまでの種々の温度で焼戻して、引張強さを980~1470MPa範囲に調質した棒鋼20mmφ×150mmを素材とした。これらからFig. 3 (a)に示す切欠付き試験片を製作した。これらの試験片をFig. 4 に示す手順で調整し、あるものは試験片中の水素を測定し、あるものはFig. 3 (b)に示す装置を用い、水素を添加しない試験片の破断荷重の70%の荷重で遅れ破壊試験をした。この試験における水素測定の例をFig. 5 に示す。これは、一定条件で水素チャージした試験片の大気中放置時間と水素量との関係を見たものである。このようにして得た、種々水素量の異なる試験片の遅れ破壊試験の結果の例をFig. 6 に示す。この試験法では、試験片に添加した水素が遅れ破壊試験中徐々に放出し、試験片中の水素は漸次少なくなるので、ある時間経過して破断しなければ、それ以後に破断することはない。この遅れ破壊試験の試験時間を決めるために、一応100hとし、この時間での程度水素が低下するかを調べた。同種の試験片を二本同時に、同じ水素添加処理をし、一本はそのままの水素を測定し、残る一本は遅れ破壊しないであろう荷重を100hかけた後に測定し、両者の水素量を比較した。その結果をFig. 7 に示すが、100hで約30%の水素低下がみられた。この結果から、100h以内に破断しなければ、それ以降に破断する

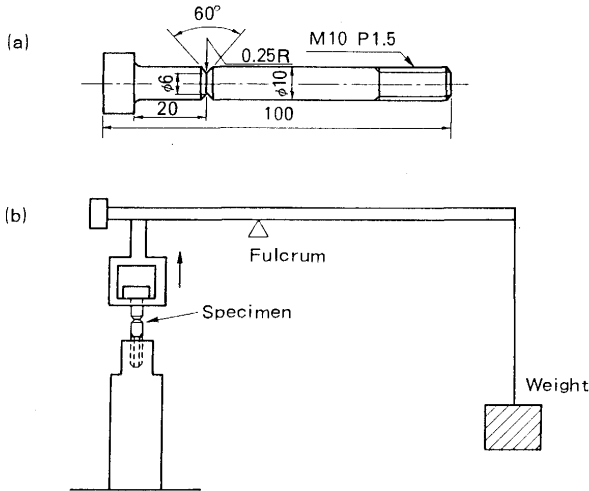


Fig.3. Shape of the specimen, (a) and schematic representation of delayed fracture test machine, (b).

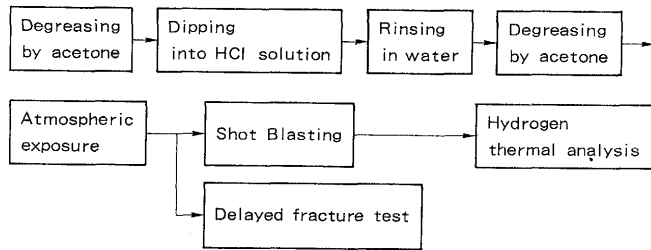


Fig.4. Experimental procedure.

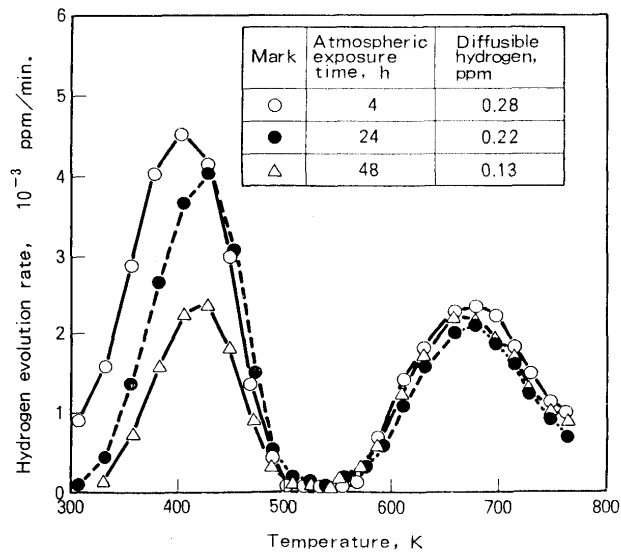


Fig.5. Dependence of rate curves for hydrogen evolution on atmospheric exposure time after charging hydrogen. The samples were water quenched and tempered at 673K.

ことはないと考えられるので、この遅れ破壊試験法の試験時間は100hとした。

この遅れ破壊試験法によるA鋼の結果を示すFig. 6をみると、水素量の多いほど早期に破断すること、また破断しない限界の水素量が存在することおよびその限界水素量は焼戻温度に大きく左右されることがわかる。これらの限界水素量と素材の焼戻温度との関係を見ると、Fig. 8のようになり、A鋼は焼戻温度573K近傍に明瞭な谷がみられる。これは、低温焼戻し脆性領域で焼戻された鋼材は遅れ破壊しやすいと考えられていた<sup>9)</sup>こととよく一致する。これらのデータを限界水素量と引張強さとの関係に再整理してみると、Fig. 9のようになり、概して強度が高くなると、限界水素量は低くなる。これは、一般に鋼材の強度が高くなると、遅れ破壊しやすくなる事実ともよく一致している。引張強さが1250MPa以上で、再び限界水素量が上昇するのは、旧オーステナイト粒界における炭化物の析出状態が改善され、遅れ破壊に対する粒界強度が向上したためと考えられる。

次に、上記遅れ破壊特性試験結果と先に述べたJIS原案法の結果と比較してみる。Fig.10は、JIS原案法による負荷公称曲げ応力と破断までの時間との関係を示したものである。この図から求めた限界破断応力と鋼材の引張強さとの関係

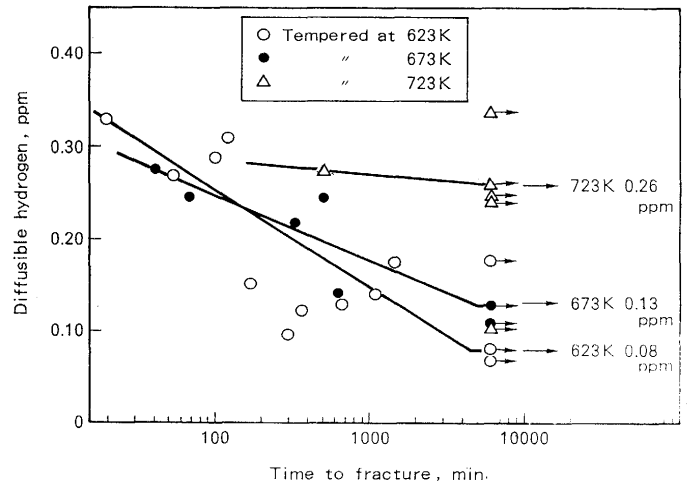


Fig.6. Relationship between amount of diffusible hydrogen and time to fracture on the delayed fracture test for BT110N steel (steel A).

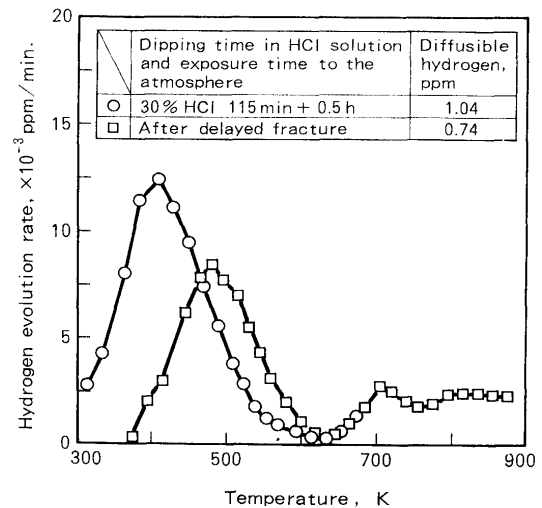


Fig.7. Change of hydrogen evolution rate for steel B between before tested and after delayed fracture tested (100h).

をFig.11に示す。これとFig. 9とを比較してみると、遅れ破壊特性におよぼす鋼材の引張強さの影響は、両者でよく一致している。したがって、類似の鋼種、すなわち、塩酸溶液中において水素の入り易さが同程度の鋼材であれば、両試験法とも同じ傾向の結果が得られると考えられる。一方、鋼種が異なれば、Fig.12に示すように、塩酸溶液中における水素の入り方は異なる。したがって、JIS原案法で異鋼種間の遅れ破壊特性を比較する場合、水素の入り方の差異を考慮しなければならない。これがJIS原案法の欠点である。

ここで提案する遅れ破壊試験法の特徴は、水素添加のために塩酸溶液を使用するけれども、試験片中への水素の入り易さと入った水素の影響の度合いが完全に分離されており、しかも比較的短時間で鋼材の遅れ破壊特性が評価できることにある。

しかし、使用環境において、鋼材中に入る水素の入り易さあるいは入り難さも対象鋼材の遅れ破壊特性の一部とす

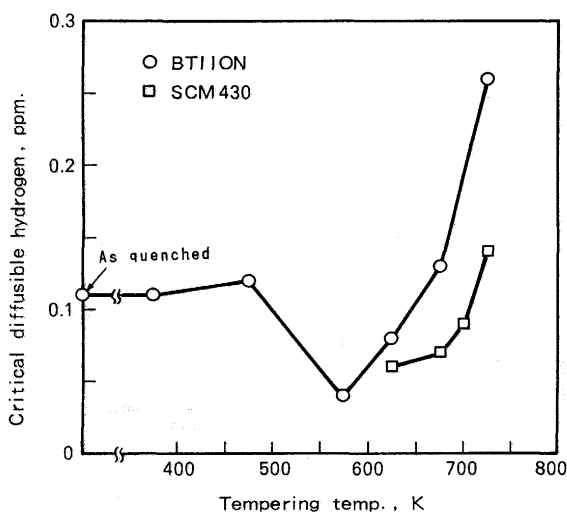


Fig.8. Relationship between critical diffusible hydrogen and tempering temperature for BT110N (steel A) and SCM430 steel.

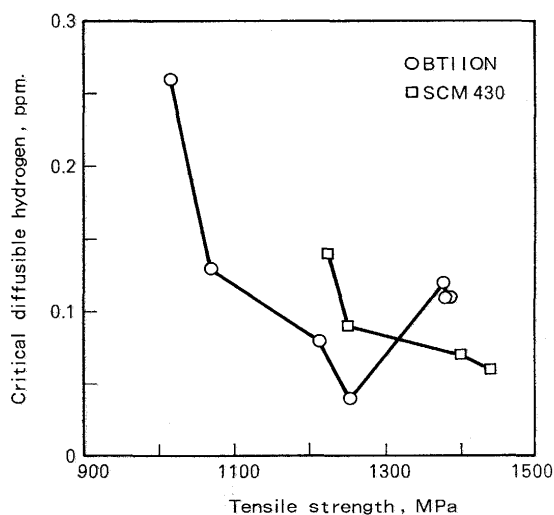


Fig.9. Relationship between critical diffusible hydrogen and tensile strength for BT110N (steel A) and SCM 430 steel.

る方が現実的である。そのために、別途使用環境において鋼材中に侵入する水素量を測定するための水素モニターを考えている<sup>10)</sup>。

#### 4. 考察

高強度鋼材における遅れ破壊の主役が水素であることは、今や疑う余地はない。Fig. 8 に示したように、遅れ破壊しやすい鋼材は、0.03ppm程度の非常に微量な水素で遅れ破壊する。このように希薄な水素が鋼材の性質を極端に変えるとは思われない。そこで、一般に鋼材あるいは鋼製品の歪集中部に水素が集積し、その部位で遅れ破壊の亀裂が発生すると考えられている。この直接的な証拠はないが、これを裏付ける傍証は多く報告されている<sup>11)</sup>。また、以下のよう

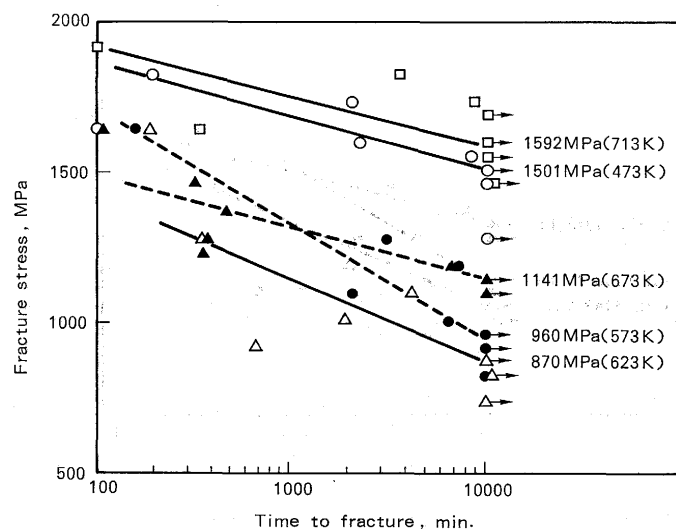


Fig.10. Relationship between fracture stress and time to fracture by JIS original idea's method for BT110N steel (steel A).

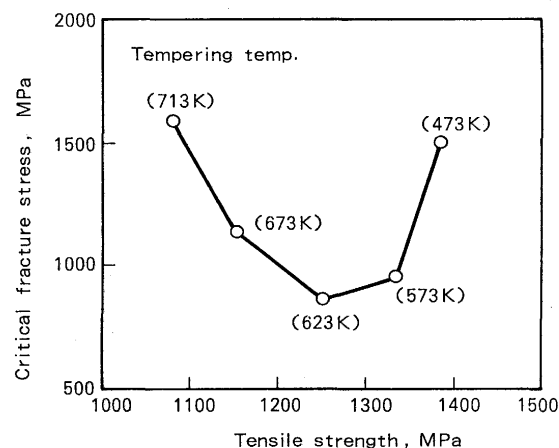


Fig.11. Relationship between critical fracture stress and tensile strength by JIS original idea's method.

に破壊力学的考察からも理解できる。

一様な引張応力 $\sigma_0$ が作用している無限板中に長さ  $2a$  の鋭い切欠きが存在する場合の切欠先端の応力状態を表わすために、(1)式で示される応力拡大係数 $K_I$ が導入された<sup>12)</sup>。

$$K_I = \sigma_0(\pi a)^{1/2} \dots \dots \dots (1)$$

線形破壊力学では、脆性破壊する材料はそれぞれ固有の $K_{Ic}$ が存在すると仮定して、 $K_I = K_{Ic}$ なる条件で脆性破壊するとし、すでに一般化している。

これを高強度鋼材の遅れ破壊に適用すると、この破壊は $\sigma_0$ および $a$ が一定で変化しない。すなわち、遅れ破壊は $K_I$ が不変であるにもかかわらず、いつしか破断する現象である。したがって、この破壊は対象鋼材の $K_{Ic}$ が経時的に小さくなるために起こるものと考えることができる。これは、また鋼材中に存在した水素あるいは使用環境中から侵入した水素が徐々に切欠先端部に集積することによって生じると考えられる。遅れ破壊を論じるときの $K_{Ic}$ は、切欠先端部に集

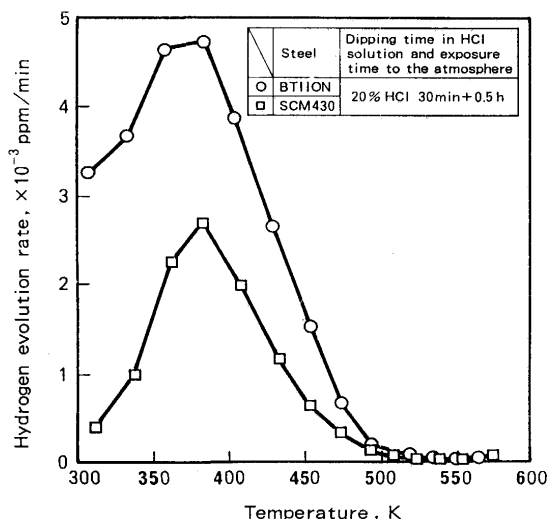


Fig.12. Hydrogen thermal analysis for BT110N (steel A) and SCM430 steel. The samples water quenched and tempered at 723K.

積しつつある水素量 $H_L$ の関数であるとしなければならない。遅れ破壊を解析的に取り扱うためには、 $H_L$ およびその時間変化を定量化する必要がある。

そこで、鋼中における水素の拡散におよぼす応力あるいは歪集中の影響を理論的に考察し、鋼材の応力あるいは歪集中部への水素の集積度を計算で求めることが試みられている<sup>13)14)</sup>。これらの結果によると、歪集中部への水素の集積度は高々数倍である。この程度の集積度では遅れ破壊の亀裂発生に十分とは考えにくい。

したがって、鋼中における水素の拡散挙動におよぼす歪集中の影響だけでは解けないと思われる。そこで例えば、上記の拡散モデルにしたがい集積した水素が何らかの水素化合物あるいはボイドを形成する過程があるとすれば、非常に高い集積度が考えられる。しかし、応力あるいは歪集中部への水素の集積度について、遅れ破壊を説明するに十分なモデルはまだない。

高強度鋼製品の遅れ破壊条件に関する一般解を得るには、鋼製品の応力あるいは歪集中部への水素の集積度を定量化しなければならない。しかし、特定の切欠き試験片において、予め人為的にチャージした水素による遅れ破壊条件は、切欠き部への水素の集積度が定量化できなくても、3項で述べた全水素量(拡散性) $H_T$ で表すことができると考えた。以下、これについて述べる。

応力の集中している切欠先端部に集積しつつある水素量 $H_L$ と試験片中の全水素量 $H_T$ との間には(2)式の関係が考えられる。

$$H_L \leftarrow D(x) \cdot P(\sigma, \varepsilon, \dots) \cdot H_T \cdot t \quad \dots\dots\dots (2)$$

D: 切欠先端近傍各部の拡散係数, P: 切欠先端近傍の応力状態を表す定数,  $H_T$ : 試験開始時の試験片中の全拡散性水素量, t: 試験開始からの時間である。

ここで、対象とする高強度鋼を低合金鋼の焼入焼戻材に限定し、同一試験片において、 $P/P_f = \text{一定}$ となる試験荷重( $P_f$ : 試験片の破断荷重におけるP)のとき、DおよびPは若干の鋼種の違いに関係なく、一定値と見なされよう。 $H_T$ は、時間とともに、次第に減少するが、水素の分散状態は荷重負荷によって、再分散し、 $H_L$ は次第に増加し、ある時間後に最大になる。 $t$ は $H_L$ が最大になるまでの時間を考えればよい。もし、この時試験片が破断しなければ、 $H_L$ は最大値を過ぎて、減少する。

すなわち、

$$H_{Lmax} \rightarrow H_c \{ \text{鋼材} \} \quad \dots\dots\dots (3)$$

なる状態があれば、遅れ破壊する。 $H_c \{ \text{鋼材} \}$ は対象鋼材固有の遅れ破壊に対する耐性を示すもので、筆者らが遅れ破壊特定促進評価試験で求めるものである。

以上の考察を(3)式から(2)式へ逆に展開すれば、 $H_c \{ \text{鋼材} \}$ は $H_L$ が確定できなくても、限界 $H_T$ で表せることがわかる。

この考え方を実際の高力ボルトの遅れ破壊に適用するとき、 $H_T$ が時間変化することを考慮しなければならない。現に高力ボルトの遅れ破壊が問題になっている場所の高力ボルトを取り外し、 $H_T$ を測定した。その1例をFig.13に示す。これを見てわかるように、 $H_T$ 、すなわち拡散性水素は測定されなかった。しかし、非拡散性水素は明らかに増加しており、水素が侵入したことは確かである。この事実は、雨が降ってボルトが濡れている間は水素が侵入し、天気になってボルトが乾いてくると、水素の侵入は止まり、侵入した水素の一部は鋼中のより安定な位置に移動し、トラップされるが、多くはボルトから出て行ってしまうことを意味している。実際はこれが何回も繰り返され、その間に $H_L$ (この水素はかなり安定な状態にあると考えられる)が徐々に増加し、場合によっては高力ボルトは遅れ破壊に至る。このようにを模式的に示すとFig.14のようになる。これを(2)式に当てはめてみると、次のようになる。

$$\Sigma \Delta H_L \leftarrow D \cdot P \cdot \Sigma \Delta H_T \cdot \Delta t \quad \dots\dots\dots (4)$$

しかし、この $\Sigma \Delta H_L$ も、環境が一定であれば、増加し続けることはなく、いつかは飽和し、 $H_{Lmax}$ が存在する。したがって、実環境におけるボルトの遅れ破壊に対しても、破壊条件式は(3)式で表されるが、遅れ破壊を予測するためには、 $\Sigma \Delta H_T \cdot \Delta t$ を求めなければならない。そこで、先に述べた水素モニターが必要になる。このモニターによる検証は今後の課題である。

一方、A鋼を考えると、この鋼は1080MPa級(F11T)ボルト材として多くの使用実績があり、Fig. 9からわかるように、この鋼の引張強さ1180MPaにおける限界 $H_T$ は約0.15ppmであることを考え合わせると、通常の高力ボルトの使用環境では限界 $H_T$ が約0.15ppmを超えることはないと判

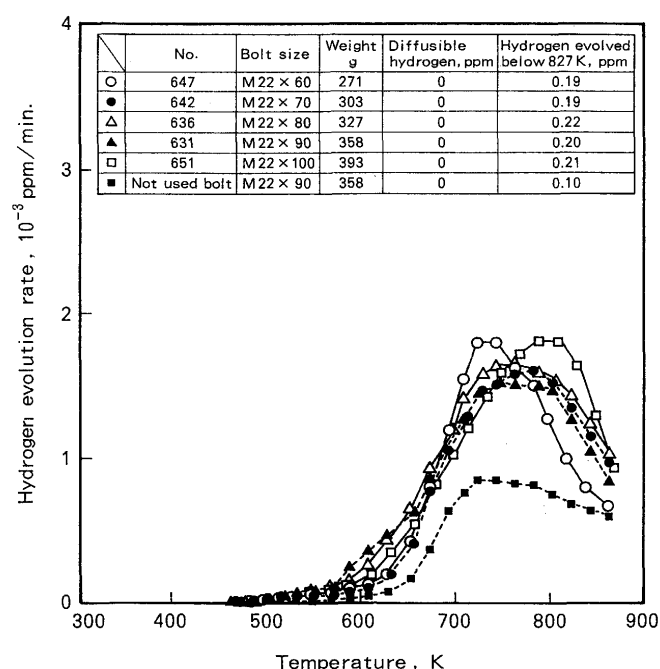


Fig.13. Typical peaks of hydrogen in thermal analysis for the bolts used the bridge for five years in service.They were thermal analyzed just after takken away from the bridge.

断される。したがって、他のボルト用鋼材も使用環境において、A鋼より水素に侵され易い鋼でなく、かつその鋼材の限界 $H_T$ が約0.15ppm以上であれば、十分に実用できると考えられる。そこで、ボルト用鋼材の使用環境における水素侵入量も水素モニターで別途評価することにより、すでに使用実績のあるボルト用鋼材との比較において、新ボルト用鋼の耐遅れ破壊性が評価できると考えられる。

5. まとめ

高力ボルトの高強度化の必要性は大きいのであるが、その遅れ破壊はいまだ理論的な解明がなされておらず、その必要十分な予測ができない現状にある。そのために、実験室的に耐遅れ破壊特性の優れた高強度高力ボルトであっても、容易に実用化できない。本研究は、この課題解決のために行ったもので、得た結論の要点は以下のものである。

鋼中の微量水素の定量化を可能にし、試験片中の水素量とその遅れ破壊との関連を求め、一定の応力状態 ( $P/P_T$  = 一定) では各鋼材固有の限界水素量 $H_T$ が存在することを確かめた。この試験で求められる対象鋼材の限界水素量 $H_T$ は、別途水素モニターによる対象鋼材の使用環境における侵入水素量あるいは侵入の容易さを知ることによって、対象鋼材の実環境における耐遅れ破壊特性が評価できると考えた。この考えを基に、鋼材の新しい遅れ破壊特性促進評価法を提案した。

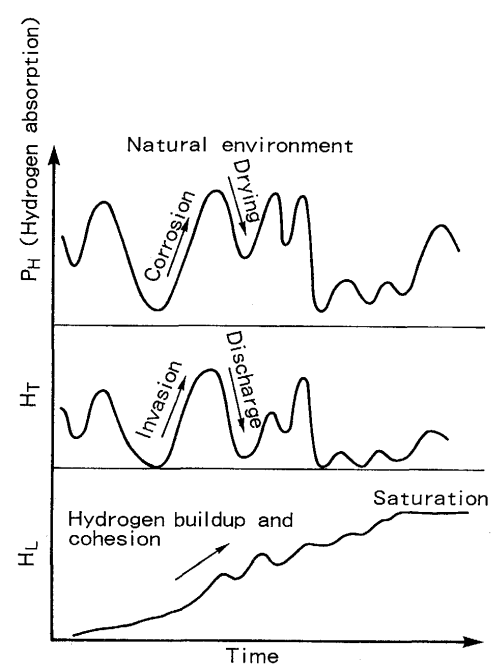


Fig.14. Schematic diagram showing periodical change in hydrogen potential under natural environment ( $P_H$ ), amount of diffusible hydrogen ( $H_T$ ) and amount of hydrogen at the tip of a notch ( $H_L$ ).

本研究を遂行するに当たって、大変多くの方々のご協力を頂きました。特に、日鉄ボルテン(株)殿には高力ボルト試料の提供を頂き、また新日本製鉄(株)解析科学研究センターおよび厚板条鋼研究センターの皆様には水素の分析および有益な助言等で協力を頂きました。末筆ながら、御礼申し上げます。

文 献

- 1) 高力ボルトの遅れ破壊, 6 (日本鋼構造協会ボルト強度班編), (1970), p.4
- 2) 例えば, 水素による遅れ破壊の機構 (鉄鋼基礎共同研究会遅れ破壊部会編), (1975), p.179
- 3) シンポジウム「高強度鋼の遅れ破壊」(学振129委員会編), (1975)
- 4) 松山晋作:遅れ破壊, (1989) [日刊工業新聞社]
- 5) 山川宏二, 南野康幸, 松本桂一, 米沢俊一, 吉沢四郎:材料, **29** (1980), p.1101
- 6) T. Otsubo, S. Gotoh and H. Sato: Proc. of 2nd JIM Inter. Sympo., Hydrogen in Metals, (1979), p.241
- 7) N. Suzuki, T. Miyagawa, S. Gotoh and T. Takahashi: Wire Journal International, (1986) 11, p.36
- 8) J.L. Lee and J.Y. Lee: Metal Science, **17** (1983), p.426
- 9) 福井彰一:鉄と鋼, **55** (1969), p.151
- 10) 小野昭紘, 早川泰弘, 鈴木信一:材料とプロセス, **3** (1990), p.1290
- 11) 例えば, H.H. Johnson, J.G. Morlet and A.R. Troiano: Trans. AIME, **212** (1958), p.528; E.A. Steigerwald, F.W. Schaller and A.R. Troiano: Trans. AIME, **215** (1959), p.1048
- 12) G.R. Irwin: Trans. ASME, J. Appl. Mech., **24** (1957), p.361
- 13) 水素による遅れ破壊の機構 (鉄鋼基礎共同研究会遅れ破壊部会編), (1975), p.125
- 14) N. Yurioka and H. Suzuki: Inter. Materials Reviews, **35** (1990) 4, p.217