

## 冷間圧延鋼のシャルピー衝撃特性と磁化特性の相関

Correlation between Charpy Impact Properties  
and the Magnetization Process of Cold-Rolled Steels鎌田康寛・中野朋和・高橋正氣・荒克之・菊池弘昭・越後谷淳一・八重樫光  
岩手大学工学部附属金属材料保全工学研究センター, 岩手県盛岡市上田 4-3-5 (〒020-8551)

Y. Kamada, T. Nakano, S. Takahashi, K. Ara, H. Kikuchi, J. Echigoya, and K. Yaegashi

NDE and Science Research Center, Faculty of Engineering, Iwate University., 4-3-5 Ueda, Morioka-shi, Iwate 020-8551

A Charpy impact test and magnetic hysteresis measurement were performed on Fe-0.15wt%C steels with different cold-rolling ratios. As the cold-rolling ratio was increased, the ductile-brittle transition temperature (DBTT) and coercive field increased simultaneously. This correlation originated from an increase in the dislocation density induced by plastic deformation. This study shows the possibility of applying magnetic methods to pressure vessel surveillance at nuclear power plants.

**Key words:** magnetization process, nondestructive evaluation, dislocation, DBTT, pressure vessel

## 1. はじめに

近年, プラントや高速道路などの大型構造物の高経年化が大きな社会問題となっており, 現有の社会資本をいかに安全に維持し保つかという, いわゆる“保全”への取り組みがますます重要視されている. 原子炉圧力容器の経年劣化問題もその一つである. 原子力プラントの稼働年数は, 建設当初には 30 から 40 年と想定されていたが, 現在その年数に達するプラントが生じはじめており, さらに想定年数を超えた長期利用も計画されている. これまで圧力容器鋼の健全性評価は, 運転開始時に炉内に設置した炉壁と同じ材質のシャルピー試験片を定期的に取り出し, 衝撃試験により試験片を破壊して評価を行ってきた (Fig.1)<sup>1)</sup>. しかし監視試験片数が限られていることから, 現在の評価法をそのまま継続することはできない. この問題に対して, 衝撃試験後の試験片の未変形部を切り出し溶接して試験片を再生する方法や, 従来の試験片を分割したミニシャルピー試験片を利用する方法が検討されている. これらはすべて破壊評価法であるが, 非破壊評価法が確立できれば監視試験片数の不足問題が解決されるだけでなく, 圧力容器鋼自体の検査も可能になりうる. このような背景のもと, 欧州では, 監視試験片の材料内部組織の変質に着目した非破壊検査法に関する大型プロジェクト (GRETE 計画: 10 ヶ国 15 研究機関が参加) が現在進行中である<sup>2)</sup>.

我々はこれまで, 磁性と格子欠陥の密接な相関を明らかにしており<sup>3)</sup>, それらに着目した磁気的非破壊評価法を提案してきた. 磁気的评价法は GRETE 計画の中でも注目されており検討がなされている. 本論文では, 圧力容器鋼の監視試験片の不足問題への応用を念頭に置き, 冷間圧延鋼の

シャルピー試験特性と磁気特性の相関について転位密度変化の観点から検討したのでその結果を報告する.

## 2. 実験方法

本実験では試料として, 冷間圧延が比較的容易で, 塑性変形により延性-脆性遷移温度 (DBTT) が室温付近に上昇すると予想される S15C 鋼を用いた<sup>4)</sup>. 最初に 1173K で 1 時間焼き鈍し, そのままの板材および, 圧延率 10%, 20%, 40%で冷間圧延した板材から, ワイヤ放電加工機を用いて試験片を切り出した. Fig.2 に試験片の形状を示す. シャルピー試験用には JIS4 号 5mmV ノッチ試験片を, 磁気特性

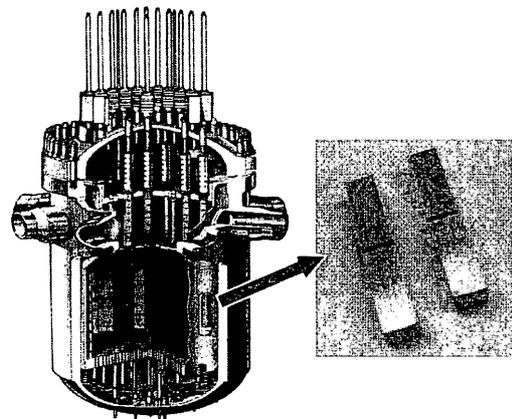


Fig. 1 Nuclear reactor<sup>1)</sup> and Charpy test pieces for surveillance of a pressure vessel.

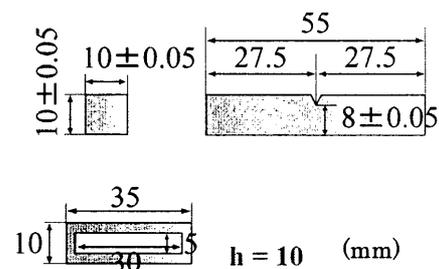


Fig. 2 Schematic drawings of specimens for the Charpy impact test and magnetic measurement.

評価には額縁型試験片を用い、いずれも長手方向を圧延方向とした。シャルピー衝撃特性については、200K~360Kの間で試料温度を変えて試験を行った。各試験温度において5つの試験片について衝撃特性を調べ、それらの平均値を求めてその温度での試験結果とした。磁気特性は1次コイルを180回、2次コイルを20回巻き、室温でB-Hカーブトレーサー（理研電子製）を用いて評価した。また、内部組織について透過電子顕微鏡(Philips Tecnai30, 加速電圧300keV)を用いて観察を行い、硬度評価としてピッカース硬度測定を行った。

### 3. 実験結果と考察

#### 3.1 TEM 観察

Fig.3に圧延率0%, 20%, 40%の試料のTEM写真を示す。圧延方向は写真の左右方向である。圧延率0%の試料では、十分に焼き鈍しているため転位密度が少ない (Fig.3(a))。Kehの方法<sup>9)</sup>により転位密度を評価したところ、 $5 \times 10^{-8} \text{ cm}^{-2}$ と見積もられた。圧延率10%では、転位密度が増加して写真の黒いコントラストが強くなると同時に、一部の領域では転位が密に絡まったセル壁が形成し、セル構造が確認できた。そのときのセルの大きさは約 $0.8 \mu\text{m}$ であった。さらに圧延率が20%, 40%になると、試料全体でセル構造が確認できた (Fig.3 (b)および(c))。また、その形状は圧延方向に長く伸びたものになり、圧延方向に伸びた隣り合うセル壁の平均間隔は圧延率に反比例して減少した。TEM写真より、圧延率10%以上の試料では圧延率の増加に伴い転位密度が増える傾向が確認できた。しかしながら、転位が密集した領域が増えるため個々の転位を分解することが難しくなり、転位密度の変化を定量的に評価することはできなかった。

#### 3.2 衝撃特性と硬度評価

一般に、鋼はある温度で十分に延性を示しても温度を下げると脆くなる。破壊までに材料が吸収したエネルギーを温度の関数として整理したとき、高温では延性破壊を起こすため吸収エネルギーが大きくなり脆くないのに対し、ある温度を境として、低温で脆性破壊を起こすため吸収エネルギーが小さくなり脆くなる。この臨界温度を延性-脆性遷移温度 (DBTT: Ductile-Brittle Transition Temperature) と呼ぶ。Fig.4にシャルピー衝撃試験により得られた、圧延率を変えた試料の吸収エネルギー曲線を示す。本実験では、圧延率の増加とともに曲線が高温側に移動するとともに、エネルギー吸収量の最大値 (上部棚エネルギー値) が低下した (Fig.4)。これは冷間圧延により延性-脆性遷移温度が上昇するとともに、高温側でも靱性が低下したことを示している。これらの現象は中性子照射を受けた压力容器鋼で典型的に見られる現象であり<sup>9)</sup>、原子力プラントでは正に試験片のこの現象を監視している。本研究ではFig.4の吸収エネルギー曲線より、高温側および低温側の吸収エネルギーの平均値に対応する温度を延性-脆性遷移温度として算出した。Fig.5に硬度の測定結果と合わせて、遷移温度の圧延率依存性をまとめた。圧延率の増加とともに硬度お

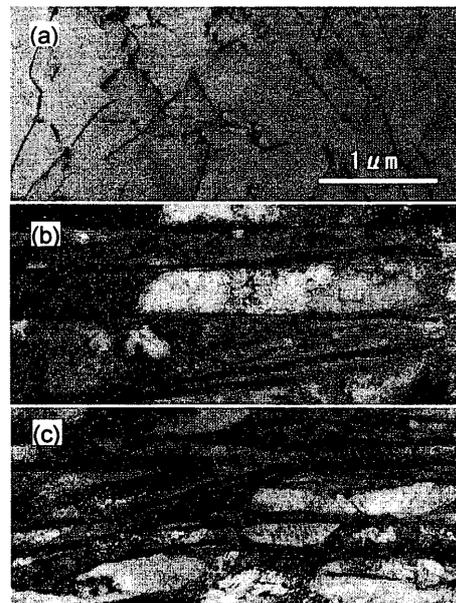


Fig. 3 TEM images of specimens with various rolling reductions: (a) 0%, (b) 20%, and (c) 40%.

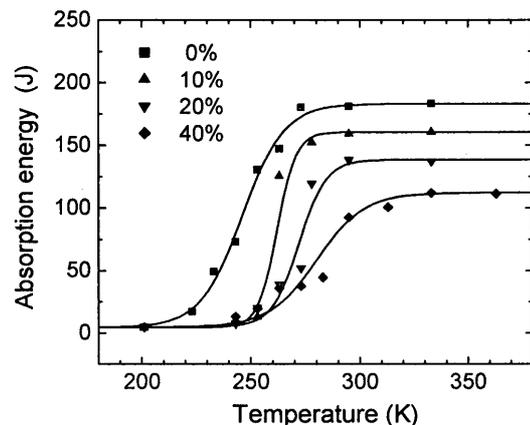


Fig. 4 Temperature dependence of the absorption energy.

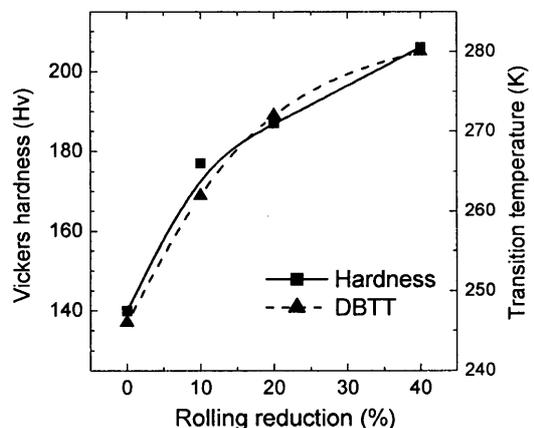


Fig. 5 Hardness and DBTT as functions of the rolling reduction.

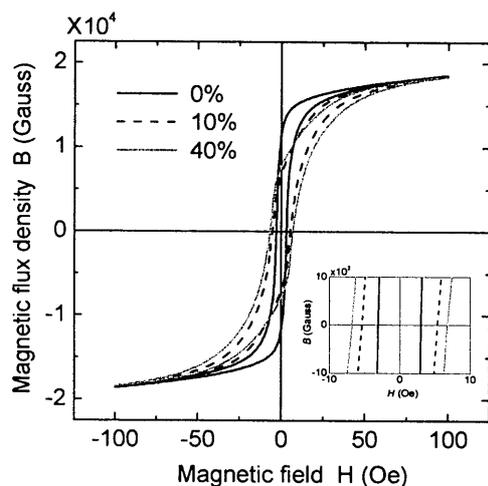


Fig. 6 B-H curves of specimens with various rolling reductions.

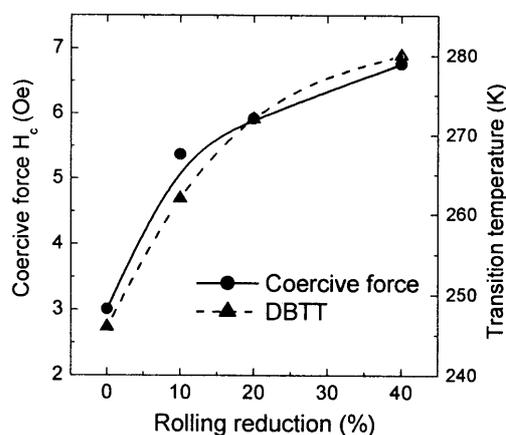


Fig. 7 Coercive force and DBTT as functions of the rolling reduction.

よび遷移温度が上昇しており、両者の間に良い相関があることがわかる。様々な金属のピッカース硬度は、その金属の降伏応力に比例すると言われている<sup>7)</sup>。従って硬度および遷移温度の良い相関は、冷間圧延による延性-脆性遷移温度の上昇の原因として降伏応力の上昇が関係していることを示唆している。

### 3.3 磁気特性評価

Fig. 6に、圧延率0% 10%、40%のB-H曲線をまとめた。圧延率の増加とともにB-H曲線が傾き、磁化しにくくなっている。Fig. 6の挿入図として、低磁場付近のB-H曲線を示す。圧延率の増加とともに保磁力が増加していることがわかる。後ほど考察するが、これは転位密度の増加により磁壁の運動が妨害されることによる。

### 3.4 関連のメカニズム

Fig. 7に、保磁力の圧延率依存性について、延性-脆性遷移温度の測定結果とともにまとめた。圧延率の増加とともに保磁力、

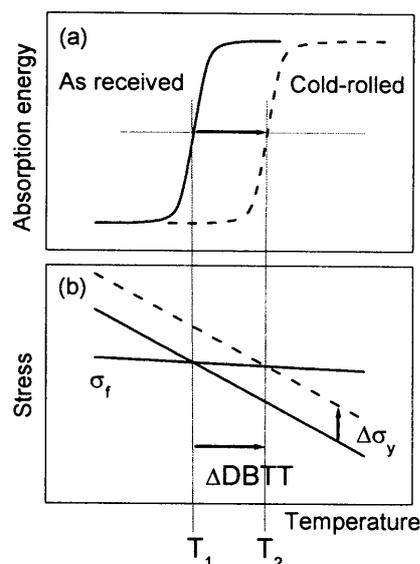


Fig. 8 Schematic drawing of the effect of cold-rolling on the DBTT. (a) Charpy test results and (b) Davidenkov Diagram.

遷移温度とともに増加しており、両者に良い相関があることがわかる。次に、この原因について転位密度の変化の観点から考察する。

最初に冷間圧延によるシャルピー衝撃特性の変化のメカニズムについて考える。ここでは簡単のため、冷間圧延による遷移温度の上昇にのみ着目し、上部棚エネルギーの低下については議論しない。後者については降伏応力以上における塑性変形プロセスの変化と関係しており、降伏応力の大きさを議論する以下の考察の結果に影響を与えない。

材料の破壊特性を考えると重要な応力として、破壊応力 $\delta_f$ 、すなわち脆性破壊を起こすために必要な応力と、降伏応力 $\delta_y$ 、すなわち塑性変形が始まる応力の2つがある。破壊応力は温度依存性がほとんどないのに対し、降伏応力は温度依存性が大きく低温で増大する。従って、低温では破壊応力が降伏応力より小さいため脆性破壊が生じ、反対に高温では降伏応力が小さいため延性破壊が生じる(Fig.8(b))。両者の交点が延性-脆性遷移温度となる。このモデル(Davidenkovダイアグラム<sup>1,8)</sup>)を用いると、冷間圧延による遷移温度の上昇は次のように考えられる。

冷間圧延により塑性変形を起こし、転位密度が増加する。新たな転位の形成は、転位自身の運動を妨げることになるので、降伏応力が増加する。脆性破壊に関する破壊応力は圧延によりほとんど変化しないのに対し、このときの降伏応力の増加分を $\Delta\sigma_y$ とすると、降伏応力の温度曲線全体が上昇する。その結果、破壊応力と降伏応力の曲線の交点で決まる遷移温度が、 $T_1$ から $T_2$ へ高温側に移動する(Fig.8(b))。幾何学的に考えると、遷移温度の増加分 $\Delta DBTT$ は、降伏応力の増加分 $\Delta\sigma_y$ と比例関係にあると近似できる。

$$\Delta DBTT \propto \Delta\sigma_y \quad (1)$$

降伏応力  $\sigma_y$  は、摩擦応力を  $\sigma_0$ 、剛性率を  $G$ 、バーガースペクトルを  $b$  で表すと、転位密度  $\rho$  により以下の関係式で表すことができる<sup>9)</sup>。

$$\sigma_y = \sigma_0 + \alpha G b \sqrt{\rho} \quad (2)$$

ここで  $\alpha$  は一般に 0.3~0.6 の値の定数である。(2)式より降伏応力は転位密度の平方根に比例するので、(1)式の関係と合わせて考えると、遷移温度の増分は転位密度の増分の平方根に比例することになる。

次に、保磁力と内部組織変化、特に転位密度の関係について考える。塑性変形に伴う磁気特性変化については、これまで様々な報告がなされており、転位密度と密接な関係があることが指摘されている<sup>3, 10-13)</sup>。ここでは、Kronmüllerらの報告をもとにして考察を進める。いま磁壁の運動が、転位のまわりでの応力場によって妨げられることにより、保磁力が増加すると考える。180度磁壁が転位の応力場から受ける合力  $\Sigma$  の平均値を用いると、自発磁化を  $M_s$ 、磁壁の面積を  $F$ 、磁化と磁場の角度を  $\phi$  としたとき、保磁力は次式で表現できる<sup>10, 11)</sup>。

$$H_c = \frac{1}{2M_s F \cos \phi} \left\langle \left| \Sigma_{\max} \right| \right\rangle_{av} \quad (3)$$

$$\left\langle \left| \Sigma_{\max} \right| \right\rangle_{av} \propto \sqrt{\rho}$$

転位の応力場から受ける合力  $\Sigma$  の平均値は、転位密度の平方根に比例すると考えられる<sup>10, 11)</sup>。従って、転位密度の影響のみを考えた場合、保磁力は転位密度の平方根に比例する。

(1)から(3)式までをまとめると、延性-脆性遷移温度と保磁力はともに転位密度の平方根に比例することから、結局、遷移温度と保磁力が比例関係になる。従って両者に相関が生じる。本研究の実験結果はこれを支持している。逆にこの関係を用いることで、遷移温度の上昇量を磁気的に評価できる可能性があるとして結論できる。

以上のように、冷間圧延により塑性変形した材料に対して磁気的非破壊評価の有用性を示すことができた。しかしながら、原子炉圧力容器鋼の健全性評価への適用を考えた場合、塑性変形と中性子照射では材料劣化のメカニズムが異なるため<sup>14)</sup>、照射材料を用いた実験が不可欠となる。照射により磁気特性が変化することは以前より報告されているが<sup>15, 16)</sup>、内部組織と磁気特性の関係の詳細は明らかにされていない。照射による転位ループの形成など、本研究で行った転位密度に基づく磁気特性変化の考察を適用可能な部分もある。その一方で、空孔・格子間原子の形成、それらの拡散によるボイドの形成、析出物の形成など、塑性変形と異なる組織変化については新たな検討が必要であり、それらが磁気特性に与える影響を整理することが必要となる。これらのことから、日本原子力研究所の材料試験炉

(JMTR) を用いた照射実験を計画している。

#### 4. まとめ

圧延率を変えた冷間圧延鋼の内部組織・衝撃特性・磁気特性評価を行った結果、圧延率の増加とともに、転位密度・遷移温度・保磁力が増加した。転位密度変化の観点から遷移温度と保磁力の相関を説明することができ、塑性変形による内部組織変化と磁気特性変化の間に密接な関係があることが示された。実際の中性子照射劣化の問題に適用するためにはさらなる検討が必要であるが、監視試験片の不足問題に対する解決方法の一つとして、磁気的評価法の有用性を示すことができた。

#### 謝 辞

本研究の一部は、文部科学省科学研究費補助金基盤研究(S)14102034により行われている。

#### 文 献

- 1) E. van Walle: OECD-HRP International Summer School on Light Water Reactor Structural Materials, Ch.10 (OECD-HRP, Halden, 2002).
- 2) Y. Kamada, H. Kikuchi, K. Ara and S. Takahashi: *Kensa-Gijutsu*, **8**, 15 (2003) (in Japanese).
- 3) S. Takahashi, J. Echigoya, and Z. Motoki: *J. Appl. Phys.*, **87**, 805 (2000).
- 4) T. Narita and S. Koyama: Handbook of Iron and Steel Materials 2nd edition, edited by JIM and ISIJ, p.547 (Maruzen, Tokyo, 1974) (in Japanese).
- 5) A. S. Keh and S. Weissmann: Electron Microscopy and Strength of Crystals, edited by G. Thomas and J. Washburn, p.231 (Interscience Publisher, New York 1963).
- 6) M. M. Ghoneim and F. H. Hammad: *Int. J. Pres. Ves. & Piping*, **74**, 189 (1997).
- 7) D. Tabor: *Brit. J. Appl. Phys.*, **7**, 159 (1956).
- 8) H. Kimura: *Zairyou Kyoudo no Kangae-kata*, p.276 (AGNE Gijutsu Center, Tokyo, 1998) (in Japanese).
- 9) G. E. Dieter: *Mechanical Metallurgy*, p.191 (McGraw-Hill, Boston, 1986).
- 10) H. Trauble: *Magnetism and Metallurgy*, edited by A. E. Berkowitz and E. Kneller, Ch.8 (Academic Press, New York, 1969).
- 11) H. Mugrabi, R. Kütterer, K. Lubitz, and H. Kronmüller: *Phys. Stat. Sol.*, (a) **38**, 261 (1976).
- 12) L. J. Swartzendruber, G. E. Hicho, H. D. Chopra, S. D. Leigh, G. Adam and E. Tsory: *J. Appl. Phys.*, **81**, 4263 (1997).
- 13) K. Yamazaki, T. Ogawa, A. Kushibe, S. Sugano, K. Fujiwara and A. Chiba: *J. Struct. Constr. Eng.*, **530**, 7 (2000).
- 14) K. Fukuya, K. Ohno and H. Nakata: *Microstructural Evolution in Reactor Vessel Steels under Neutron Irradiation*, Ch.1 (Institute of Nuclear Safety System, Mihama, 2001) (in Japanese).
- 15) C. W. Chen: *Magnetism and Metallurgy of Soft Magnetic Materials*, Ch.7 (Noth-Holland, Amsterdam, 1977).
- 16) J. F. Stubbins, W. J. Shong, M. Giacobbe, A. M. Ougouag, and J. G. Williams, *ASTM STP 1204*, 5 (1993).

2003年10月23日受理, 2004年1月15日採録