

# LNG パイプラインのステンレス鋼接合技術と低温シャルピー衝撃特性評価

広島大学 先進理工系科学研究科 助教 崔 正原

大阪大学 接合科学研究所 教授 藤井 英俊

## 1. 緒言

天然ガスの貯蔵と輸送時の安全性を向上しつつ二酸化炭素の排出を削減するためには、液化天然ガス (LNG) パイプラインに使用される材料の極低温破壊靱性を向上することが重要である。これは、天然ガスの貯蔵および輸送を容易にするために、 $-163^{\circ}\text{C}$ 未満の極めて低い温度で天然ガスを液体に変換しなければならないためである[1]。したがって、LNG パイプラインに使用される材料の極低温での機械的特性を調査することは重要である。特にこのような極低温での安全性を確保するためには、接合構造体における継手の破壊靱性を確保することが大切となる。

パイプラインを使用した LNG サプライチェーンは、世界のエネルギー需要の増加に対応するため最近大きな注目を集めている。LNG サプライチェーンは、ガス生産、液化、出荷、再ガス化、消費から成る。この中で液化段階では、天然ガスはガスパイプラインを通して配給される。LNG ラインパイプは、LNG の出荷前後に広く使用されているが、その構造体を組み立てるには LNG ラインパイプを接続するための接合プロセスが必要である[2]。現在適用されている溶融接合法は、溶融および凝固過程で気孔が形成したり凝固偏析が発生したりするだけでなく、溶接部の結晶粒の粗大化により機械的性質と破壊靱性が大幅に低下する課題がある。

過去数十年の研究においては、燃料輸送に使用される溶融溶接した接合継手の低温破壊靱性と衝撃特性について報告されている。GMAW 接合された高靱性 API X65、API X70、API X80 および API X90 パイプライン鋼に対して $-196^{\circ}\text{C}$ ～ $20^{\circ}\text{C}$ の温度範囲における Charpy V-notch (CVN) 衝撃特性が報告されている[3-7]。また、TIG 接合されたステンレス鋼継手における $-196^{\circ}\text{C}$ の極低温での破壊靱性を評価した研究結果が報告されている[8]。しかしながら、従来の溶融溶接に替わる将来有望な固相接合法により作製された鉄鋼材料の接合継手における $-196^{\circ}\text{C}$ ～ $20^{\circ}\text{C}$ の温度範囲での低温破壊靱性と接合部の微細組織との関係についてはまだよく知られていない。健全な固相接合継手に対する極低温での破壊靱性についての研究は報告例がなく、固相接合特有の超微細結晶組織を有する接合継手の極低温衝撃特性に関する情報が不足している。

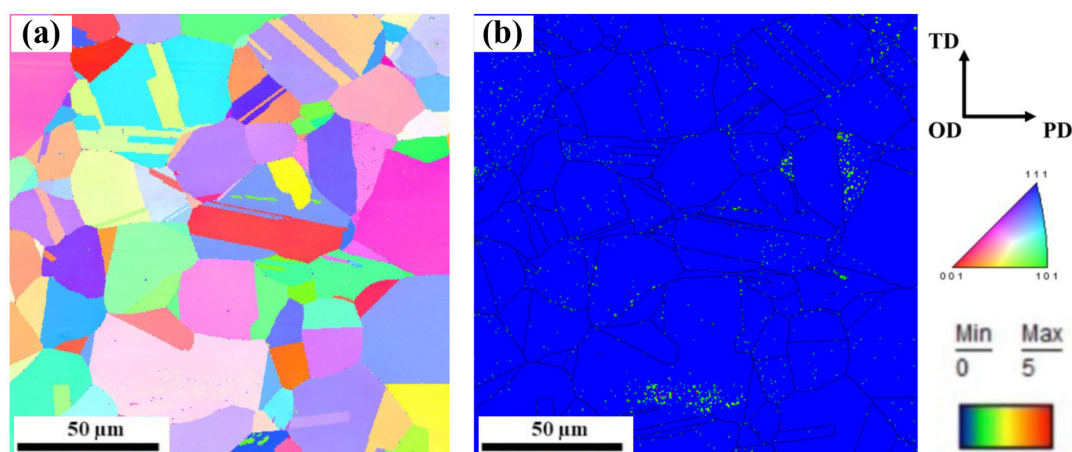
本研究では極低温でも信頼性の高い接合構造体に資する線形摩擦接合 (Linear Friction Welding : LFW) に着目した。LFW においては、主に印加圧力、振動周波数、振幅の 3 つのパラメータが継手の性質に影響を与える[9]。特に、印加圧力を高めることで接合温度が低下することが報告されている[10]。本接合法を用いることにより、従来の LFW よりさらに低温での接合でも欠陥のない健全な接合継手を得る可能性がある。接合部の気孔形成

と粒界偏析を抑制して接合部の破壊靱性の向上が期待できる。本研究では、LNG 輸送に使用される SUS304 の極低温 LFW 技術を検討した。LFW された SUS304 の微細組織、硬さ分布、および継手の引張特性を評価し、さらに破壊靱性を評価するために、試験温度を変化させた CVN 衝撃特性を評価した。

## 2. 実験方法

### 2.1. 供試材および接合条件

供試材として、SUS304 鋼を使用した。供試材の寸法は全て 5 mmT×20 mmW×65 mmL であり、接合面は 5 mm×20 mm である。母材は 1120℃で 3 分間溶体化熱処理され、その後水冷された。Fig. 1 に SUS304 母材の微細組織を示す。FCC (face centered cubic) 相の平均結晶粒径は約 30  $\mu\text{m}$  であり、焼鈍双晶が形成されている。また、粒内には低角粒界 (low angle grain boundary: LAGB) は存在せず、また転位密度が極めて低いことが確認される。



**Fig. 1** Microstructure of SUS304 base material  
(a) Inverse pole figure (IPF) map and (b) phase map showing FCC structure

線形摩擦接合の条件は、印加圧力を 100 MPa、250 MPa とし、周波数を 25 Hz、振幅を 2 mm で一定とした。また、本接合では寄り代制御を利用し、設定した寄り代は 3 mm である。接合中に両試験片が変形して軸方向に 3 mm 短くなった時点で振動を停止し、自動で接合を完了した。

### 2.2. 機械的性質評価

継手の機械的性質として、ビッカース硬さ試験、静的引張試験および接合中心部でのシャルピー衝撃試験を行った。なお、衝撃試験時の温度条件は室温 (25℃)、液化天然ガスの温度である -163℃、およびその中間の温度である -75℃である。また、引張試験は室温にお

いて、クロスヘッド速度 1 mm/min で実施した。

また、両試験片については、接合部のバリをフライス加工し、手研磨によって除去した後、ワイヤ放電加工機を用いて作製した。衝撃試験片寸法は 4.5 mmT×4.5 mmW×20 mmL で接合部中心に 1 mm の V ノッチを付し、作製した。引張試験片は JIS13B に従って作製した。

### 2.3. 継手微細組織観察

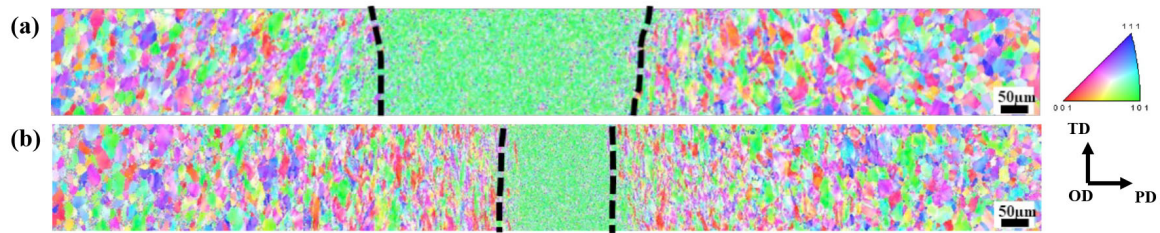
各条件の LFW で得られた継手接合部分をワイヤ放電加工機にてサンプリングを行った。その後、継手断面をエメリー紙#80 から#4000 まで湿式研磨後、70%過塩素酸溶液と酢酸を 1:9 で混合させた混合液を用いた上、電圧 20V を負荷し、15 秒間の電解研磨を実施した。

得られた試料から接合部の組織を評価するために電子後方散乱回析法 (Electron Back Scatter Diffraction: EBSD) および透過型電子顕微鏡 (Transmission Electron Microscope: TEM) を用いて結晶粒径、低角粒界および結晶方位差分布を含む接合界面組織の詳細な調査を実施した。また、衝撃試験後の詳細な破断面観察を目的として、破断試験片の走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope: SEM) による詳細な観察を実施した。

## 3. 実験結果と考察

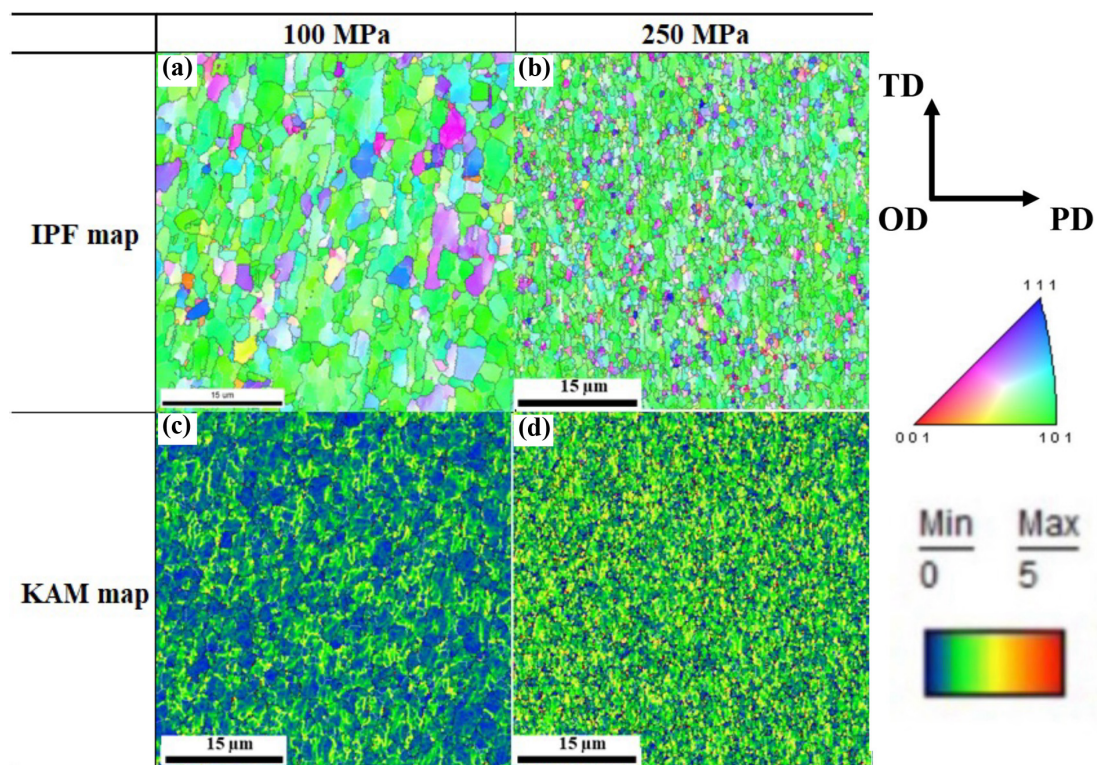
### 3.1. 継手の微細組織

得られた継手について SEM-EBSD を用いて微細組織観察を行った。接合部のマクロ断面組織を Fig. 2 に示す。LFW された継手の接合部は、大きく接合中心部 (Weld center : WC) と熱・機械影響部 (Thermo-mechanically affected zone :TMAZ) に分けられる。WC では、温度とひずみ量が最も高い領域であり、この領域では動的再結晶が発生し、極めて微細な組織が形成される。一方で、TMAZ では接合中に WC 領域に比べて温度とひずみ量が低下し動的再結晶が発生するしきい値に達成しないため動的再結晶は発生しない。しかし、塑性変形が付与される領域である。TMAZ での微細組織の形成は、温度とひずみ量の大きさに依存する。例えば、温度が比較的高い WC 近傍部では焼鈍効果が大きくなり軟化が発生するが、同時にひずみ量も大きく加工硬化が増加して硬化することも予想される。



**Fig. 2** Microstructure of weld region observed by low magnification

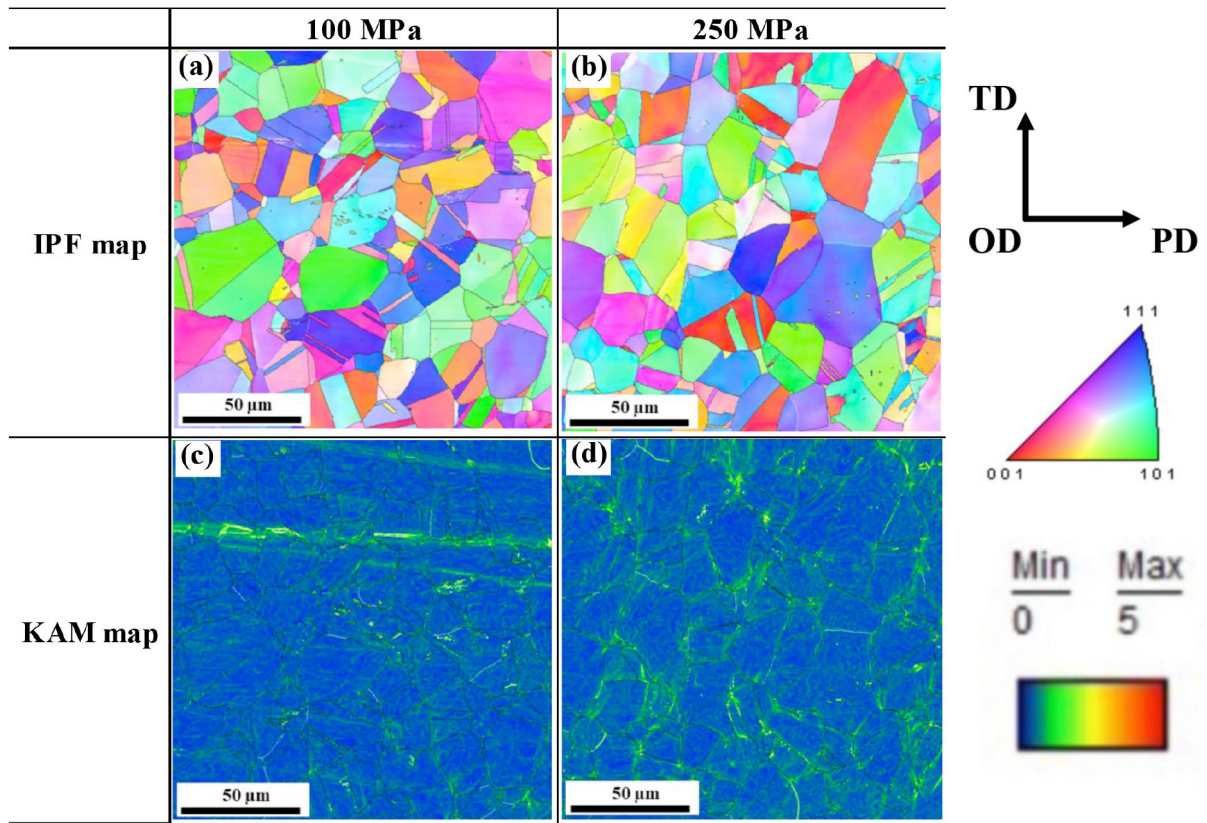
Fig. 2 の IPF (Inverse pole figure) マップの黄緑色の領域は WC において動的再結晶した領域である。LFW された SUS304 継手の WC の幅は他の接合プロセスで得られた継手に比べ極めて狭く 0.2 mm~0.4 mm 程度であることがわかる。Fig. 3 に高倍率で観察した WC 組織の結果を示す。印加圧力が高くなると、結晶粒径が著しく小さくなることは特筆に値する。また、振動方向 (oscillation direction: OD) の結晶方位は主に  $\langle 011 \rangle // OD$  であることがわかる。この方位は FCC 金属のすべり方向に相当し、LFW では OD 方向に結晶がせん断変形したことを示唆する。本研究で得られた IPF の結果は、LFW された Al 合金の組織と非常に類似している[11]。印加圧力が上昇するにつれて動的再結晶領域が狭くなっていることが見て取れる。印加圧力が上昇するにつれて接合温度が低下し、ひずみ速



**Fig. 3** Microstructures of weld center  
(IPF maps of (a) 100 MPa, (b) 250 MPa and KAM maps of (c) 100 MPa and (d) 250 MPa)

度が増すことが知られている[12]。動的再結晶領域の幅は主に温度とひずみ速度が影響すると考えられるが、印加圧力の増加に伴って幅が減少した結果から、温度の影響が支配的であると考えられる。さらに、印加圧力が増加するほど接合温度は低下するが、単位時間当たりの入熱量が増加するため摩擦時の昇温速度が増加する。したがって、印加圧力によって接合時間が減少するため、熱的に影響を受ける時間が少なくなることも幅が狭くなった原因と考えられる。また、Fig. 3 に示した KAM マップをみると、印加圧力の上昇に伴って、KAM 値が上昇していることが読み取れる。KAM 値とは隣接する結晶粒との方位差を表しており、転位密度（幾何学的に必要な転位の密度）との相関が報告されている。つまり KAM 値が大きいということは観察された材料内で転位密度が高まっていることを示す。動的再結晶粒は、Fig. 3 から明らかなように比較的転位密度が高く、静的再結晶粒と異なる。また、Fig. 3(a)(b)の比較から低角粒界の長さが印加圧力の上昇に伴って増大していることから、継手 WC での転位密度が増大したと考えられる。印加圧力の上昇に伴った結晶粒の微細化は、接合温度の低下とひずみ速度の上昇による Z (Zener-Hollomon) パラメータの増大が原因であることは良く知られており[11]、SUS304 においても同様の現象が生じたと考える。転位密度の増加も同様に考えることができる。すなわち、接合温度の低下とひずみ速度の上昇により動的再結晶時の変形抵抗が増し高転位密度となること、また LFW 完了後の冷却速度が速くなり冷却中の転位の消滅が抑制されたことも原因と推察する。

Fig. 4 に TMAZ 領域 (WC から 4 mm) の微細組織を示す。この領域は、再結晶が発生していないため、結晶粒が WC に比べて粗大化されている。KAM マップより、TMAZ の KAM 値が母材より増加しており、低角粒界の密度が高くなっていることがわかる。これらの影響は、印加圧力が 100 から 250 MPa に高くなると、さらに増加することが見られる。TMAZ 領域は、LFW 中に温度とひずみの影響を同時に受けることが知られているが[12]、摩擦熱によって転位が消滅することよりひずみの導入によって転位密度が高くなる方がより支配的であることが予測できる。また、IPF マップより、TMAZ では母材と同様に双晶がみられる。しかし、その密度は若干増加しており、その結果、母材と比較して結晶粒径が小さくなったと推察する。また、TMAZ では変形に伴う変形双晶が導入されたと考える。



**Fig. 4** Microstructures of the TMAZ region (IPF maps of LFWed joints under an applied pressure of (a) 100 MPa, (b) 250 MPa and KAM maps of (c) 100 MPa and (d) 250 MPa)

### 3.2. 継手の機械的性質

線形摩擦接合された継手の機械的特性を調べるために硬さ試験を行った。その結果を Fig. 5 に示す。すべての条件で接合中心部のビッカース硬さが最も高い。また、印加圧力の増加により、接合部の硬さが増加する。この結果は、印加圧力によって接合温度が低下したためと推察する。また、TMAZ 部の硬さも上昇する。これは、LFW 時の加工硬化が増したことによると推察する。また、接合条件に関係なく、母材よりも TMAZ における単位体積あたりの LAGB 比が高いことも確認される (Fig. 4)。これは TMAZ では塑性変形と同時に熱も加わり、転位の再配列が生じたことを示唆する。100 MPa で得られた継手の TMAZ ビッカース硬さは、本研究で調べた接合条件の中で最も母材に近い値であり、印加圧力がさらに増加すると硬さが一層増加した。母材から接合中心部に近づくほど硬さの値が徐々に増加する。したがって、TMAZ 領域の硬さの増加は、加工硬化に起因するものであると考えられる。

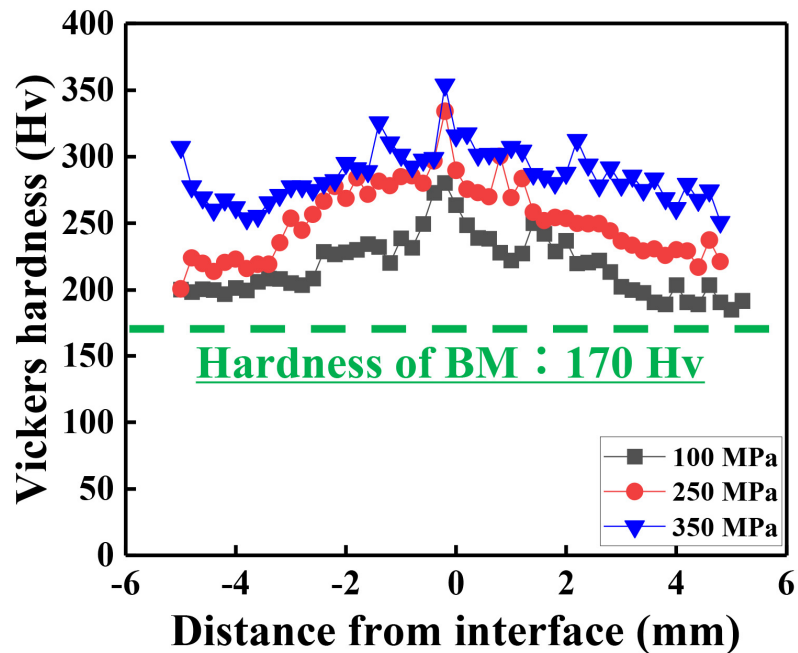


Fig. 5 Hardness distributions of LFWed SUS304 joints

室温での母材および継手の引張試験を実施した。結果を Fig. 6 に示す。印加圧力 100 MPa 継手の引張強度は 770 MPa、降伏強度は 391 MPa であり、250 MPa 継手の引張強度は 803 MPa、降伏強度は 413 MPa、350 MPa 継手の引張強度は 812 MPa、降伏強度は 451 MPa である。印加圧力の増大に伴って降伏強さおよび引張強度が上昇し、またすべての条件で母材の引張強度 707 MPa を大きく上回っていることは特筆される。Fig. 6 に示すように、破断位置は接合界面から離れた母材部であり、健全な継手を作製できたと考える。また、引張試験片の平行部長は 30 mm であることを考慮すると、破断箇所は加工硬化の影響を受け

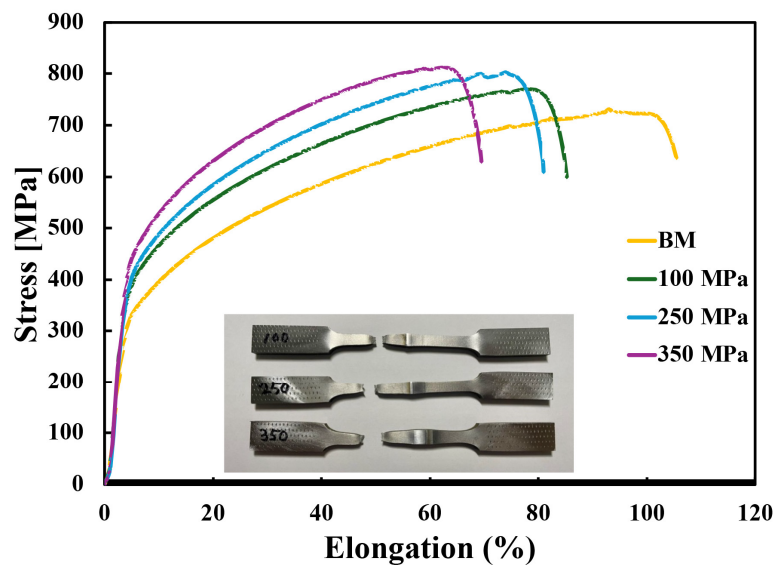


Fig. 6 Stress-Strain curves of SUS304 LFWed joints and BM

た TMAZ 部の可能性が有り、その結果継手の強度が母材のそれより高くなったと考える。実際、Fig. 4 に示すように、TMAZ では母材より KAM 値が高く高転位密度となっており、さらに変形双晶の導入により結晶粒が微細化し硬さおよび強度がさらに増加したと考える。また、これらの影響は、印加圧力の増加とともに増加すると考える。

### 3.3. 継手の低温衝撃特性

Fig. 7 に各継手と母材のシャルピー衝撃試験により得た衝撃吸収エネルギーを示す。V-notch を入れた領域は微細な動的再結晶粒から成る接合中心部 (Fig. 7(a))、および接合中心部から 2 mm 離れた TMAZ 部 (Fig. 7(b)) の両方である。印加圧力が 100 から 250 MPa まで高くなると、接合中心部と TMAZ 部の両方において、細粒化したにもかかわらず予想に反して衝撃吸収エネルギーが低温において母材より低下することがわかった。この結果は、印加圧力の増加に伴って結晶粒は微細化したが、微細粒内における低角粒界密度や転位密度が高くなることが原因であると推察する。

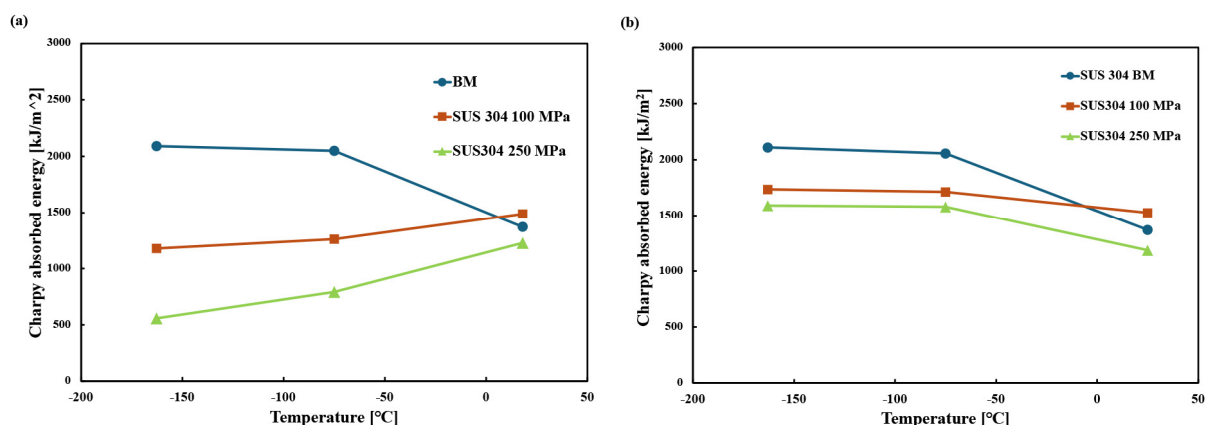
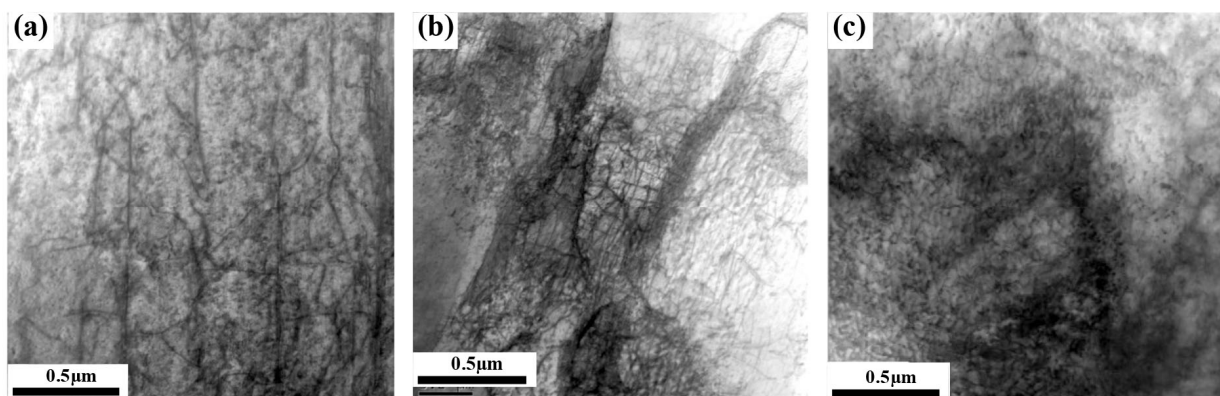


Fig. 7 Charpy absorbed energy of the SUS304 base metal and LFWed joints, (a) weld center and (b) TMAZ

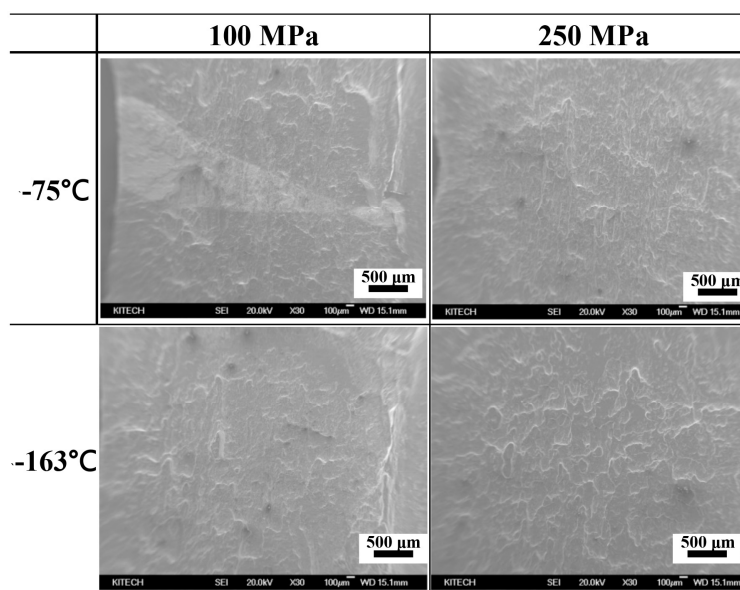
Fig. 8 に TEM 観察した WC の微細組織を示す。TEM 写真より、印加圧力が 100 から 250 MPa に増加すると転位密度が高くなっていることがわかる。この結果は、Fig. 3 と Fig. 4 の低角粒界の結果と一致している。また、WC では-75 と-163°Cの吸収エネルギーが室温の吸収エネルギーより低くなるが、母材と TMAZ では高くなっていることは特筆される。オーステナイト系 SUS 鋼は低温での塑性変形時に加工誘起マルテンサイト変態を発生する[13]。しかし、室温では比較的高温のため加工誘起変態せず、一方-75 と-163°C 条件では極低温変形であるため加工誘起変態が発生し体積膨張に伴いクラック先端で圧縮の応力が導入されクラックの伝播を抑制する結果、衝撃吸収エネルギーが向上したと推察される。一方、WC の場合には、結晶粒径が約 1 $\mu$ m 以下と極微細であり、結晶粒が微細化した組織ではオーステナイト相が安定化し加工誘起マルテンサイト変態が抑制されること

が予想され、その結果 WC では吸収エネルギーが低温で低下したと推測する。また、WC で吸収エネルギーが母材と比較して低いのは上記に加え、転位密度が高いことも理由と考える。その結果、WC の破面は母材と比較して極めて浅い延性破面であったことを確認している。



**Fig. 8** TEM images of (a) base material and weld center in the SUS304 joints of (b) 100 MPa and (c) 250 MPa

破面観察結果を Fig. 9 に示す。100 MPa/-75℃、100 MPa/-163℃、250 MPa/-75℃、250 MPa/-163℃の破面は破面全体にわたりディンプルが観察され明確に延性破壊が発生していることが確認された。これらの結果から、LFW 時の印加圧力の増加に伴って接合部における転位密度が高くなり、吸収エネルギーが低下することを示唆している。すなわち、結晶粒内部の転位密度が高く加工硬化が顕著に生じている場合にはより割れやすくなると考える。



**Fig. 9** Fracture surface of weld center in the SUS304 joints

破断モードの結果は Fig. 10 に示すように、衝撃試験時に得られる荷重変位曲線からも確認することができる。母材と接合部ともに最大荷重の達成直後、荷重が急激に減少せず、5～10mm 程度の荷重を維持し、その後荷重が減少していることが見られる。これらの結

果は、延性破断が起こったことを示唆し、脆性破断の場合、最大荷重後すぐに荷重が急激に減少する。しかしながら、印加圧力が 100 から 250 MPa に増加することにより、結晶粒内部に形成される転位密度が高くなり、延性破壊が減少したことを予測することができる。つまり、材料の脆性性質がより増加した。

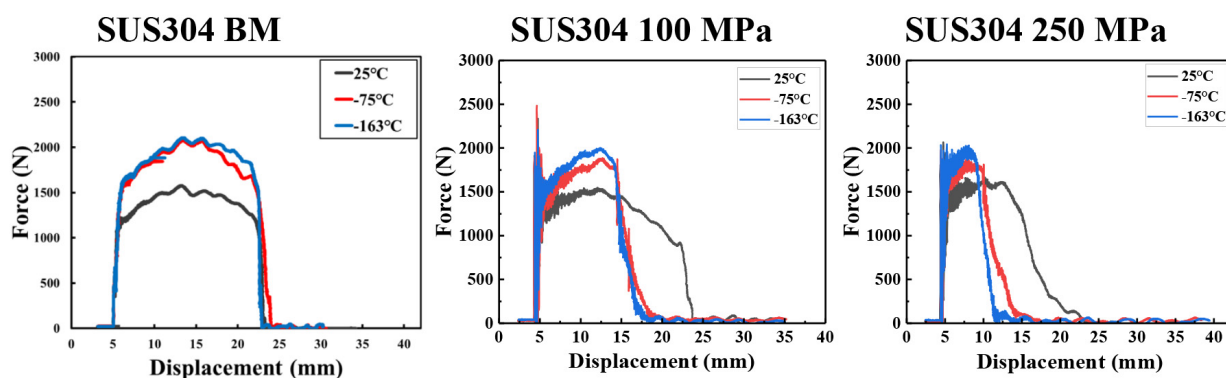


Fig. 10 Load-displacement curve during impact test

#### 4. 結論

LFW によって得られた健全な SUS304 継手の微細組織並びに硬さ分布、引張特性、低温での衝撃特性を調査した。

- (1) 接合時の印加圧力が増加することで、継手の接合部で結晶粒が小さくなると共に低角粒界長さと転位密度が増加した。
- (2) 本接合法を適用することにより、継手の軟化が抑制され、印加圧力の増加に伴って降伏応力および引張強度が増加した。
- (3) 印加圧力の増加に伴い継手中心部の低温での衝撃吸収エネルギーが低下した。転位密度の上昇と加工誘起マルテンサイト変態の抑制が主な原因と推察する。

#### 謝辞

This study was supported by JFE 21st Century Foundation. We would like to express our deep gratitude here.

#### 参考文献

- 1) S. Kumar, H.T. Kwon, K.H. Choi, J.H. Cho, W. Lim, I. Moon, Current status and future projections of LNG demand and supplies: a global prospective, Energy Policy 39 (2011) 4097–104.
- 2) J.H. Kim, S.W. Choi, D.H. Park, J.M. Lee, Charpy impact properties of stainless

- steel weldment in liquefied natural gas pipelines: Effect of low temperatures  
Materials and Design 65 (2015) 914–922.
- 3) Z. Sami, S. Tahar, H. Mohamed, Microstructure and Charpy impact properties of ferrite–martensite dual phase API X70 linepipe steel, Materials Science and Engineering: A 598 (2014) 338–342.
  - 4) S.H. Hashemi, Correction factors for safe performance of API X65 pipeline steel, International Journal of Pressure Vessels and Piping 86 (2009) 533–540.
  - 5) S.Y. Shin, B.C Hwang, S.H. Lee, N.J. Kim, S.S. Ahn, Correlation of microstructure and charpy impact properties in API X70 and X80 line-pipe steels, Materials Science and Engineering: A 458 (2007) 281–289.
  - 6) S. Wang, K. Yang, Y. Shan, L. Li, Plastic deformation and fracture behaviors of nitrogen-alloyed austenitic stainless steels, Materials Science and Engineering: A 490 (2008) 95–104.
  - 7) W. Zhao, W. Wang, S. Chen, J. Qu, Effect of simulated welding thermal cycle on microstructure and mechanical properties of X90 pipeline steel, Materials Science and Engineering: A 528 (2011) 7417–7422.
  - 8) S. Cui, Y. Shi, Y. Cui, T. Zhu, The impact toughness of novel keyhole TIG welded duplex stainless steel joints, Engineering Failure Analysis 94 (2018) 226–231.
  - 9) R. Kuroiwa, H. Liu, Y. Aoki, S. Yoon, H. Fujii, G. Maruyama, M. Yasuyama, Microstructure control of medium carbon steel joints by low-temperature linear friction welding, Science and Technology of Welding and Joining 25 (1) (2020) 1–9.
  - 10) J.W. Choi, Y. Aoki, K. Ushioda, H. Fujii, Linear friction welding of Ti–6Al–4V alloy fabricated below  $\beta$ -phase transformation temperature, Scripta Materialia 191 (2021) 12–16.
  - 11) J.W. Choi, W. Li, K. Ushioda, M. Yamamoto, H. Fujii, Influence of solute Mg and Zener–Hollomon parameter on microstructural evolution of linear-friction-welded Al joints, Journal of Materials Research and Technology 23 (2023) 4334–4345.
  - 12) R. Turner, J.C. Gebelin, R.M. Ward, R.C. Reed, Linear friction welding of Ti–6Al–4V: Modelling and validation, Acta Materialia 59 (2011) 3792–3803.
  - 13) 古金 駿、鳥塚 史郎、オーステナイト系ステンレス鋼における加工誘起変態挙動に及ぼす結晶粒径および転位密度の影響、鉄と鋼 Tetsu-to-Hagane Vol. 105 (2019) No. 8.