

# 高クロムフェライト系耐熱鋼の溶接部の早期破壊機構の解明

国立研究開発法人物質・材料研究機構 構造材料研究拠点 研究員 松永哲也

## 1. 緒言

ASME Gr.91 鋼に代表されるラスマルテンサイト組織を有する高クロムフェライト系耐熱鋼は、蒸気温度 873 K、蒸気圧力 25 MPa の超臨界圧発電システムの蒸気配管など、主要構造材料として使用されている。同耐熱鋼は析出強化など各種強化機構を利用し高温強度を高めているが、発電所などの大型構造物の建設時に実施する溶接後に熱影響部で発生する早期破断が問題となっている。特に、溶接中に変態温度近辺の温度で熱せられた結晶粒径が数 $\mu\text{m}$  の細粒熱影響部 (FGHAZ) が形成されることで、クリープ寿命が母材と比較して低下することが知られている。本現象は低応力になるにつれ顕著になり、溶接材のクリープ強度の低下が著しく、負荷応力が 100 MPa 以下で、破断寿命は母材と比べて 1/10 程度になるため[1]、早期破断による配管の壊破がみられており、このメカニズムの解明が望まれている。

従来、クリープ機構の解明には以下に示す構成方程式 (Mukherjee-Bird-Dorn の式) [2、3]を用いて特定している。

$$\dot{\varepsilon} = A \left( \frac{Gb}{kT} \right) \left( \frac{\sigma}{E} \right)^n \left( \frac{b}{d} \right)^p \exp \left( - \frac{Q}{RT} \right) \quad (1)$$

ここで、 $\dot{\varepsilon}$  はひずみ速度、 $G$  はせん断係数、 $b$  はバーガースベクトル、 $k$  はボルツマン係数、 $T$  は温度、 $\sigma$  は応力、 $E$  はヤング率、 $n$  は応力指数、 $d$  は結晶粒径、 $p$  は粒径指数、 $Q$  は活性化エネルギー、 $R$  はガス常数である。特に、応力指数はクリープ機構を示す値として用いられ、一般的に純金属では、 $n=1$  で拡散クリープ、 $n=2$  で超塑性 (粒界すべり)、 $n>3$  で転位クリープとされている。合金元素を含んだ高クロムフェライト耐熱鋼の母材では、転位クリープの応力指数は短寿命側ではおよそ 10-20、長寿命側では 2-9 程度になることが分かっている[4、5]。試験温度、寿命の長短により、応力指数の違いはあるものの、変形は転位運動に担われていることが分かる。透過型電子顕微鏡 (TEM) による組織観察の結果からも、ラス内の転位運動が観察されている[6]。一方、FGHAZ は溶接材の微小領域であるため、ひずみの測定や変形機構の調査は限定的であるため、詳細なクリープ機構の解明は行われていない。そこで本研究では、同部に着目したクリープ試験及び電子顕微鏡を使用した組織観察から、FGHAZ の変形機構を解明することを目的に研究を実施した。

## 2. 実験方法

試料は ASME Gr.91 鋼で、表 1 に化学組成を示す。受け入れ時の母材には、1313 K、1

h の焼きならし、1033 K、1 h の焼き戻しを行っている。そして走査型電子顕微鏡を用いて電子後方散乱回折法 (SEM-EBSD) により取得した IPF (Inverse pole figure) マップを図 1 に示す。この時、旧オーステナイト粒径は切片法により算出し、約 15  $\mu\text{m}$  であった。また FGHAZ を再現するために、ピーク温度 1223 K の再現 HAZ (SHAZ) 材を作製し、クリーブ試験を実施した。FGHAZ の組織を図 2 に示した。この時の粒径は 2  $\mu\text{m}$  程度であり、受け入れ材と比べて結晶粒径が細かくなっていることが分かる。また一部試験で、表 1 に示すような Gr. 92 鋼も用いた。

さらに、溶接材としてガスタングステンアーク溶接を行った試料を用いた。本試料はバルク試料内の局所的なひずみを測定するために作製した。試料表面には、電子線リソグラフィを用い、図 3 に示したように格子間隔 10  $\mu\text{m}$  で 1.5 mm 角の格子を描き、モアレ法を用いて局所的なひずみの測定を試みた。モアレによる干渉縞の間隔とひずみ ( $\epsilon$ ) には以下の関係があることが知られている[7]。

$$P_s = P_f / (1 + \epsilon) \quad (2)$$

ここで、 $P_s$  はひずみ量  $\epsilon$  の時の干渉縞の本数、 $P_f$  は未変形時の本数である。さらに、カメラの走査線本数を  $P_c$ 、画素数を  $N$  とした時、モアレ縞の間隔は未変形時  $d_0$  とひずみ量  $\epsilon$  の時の間隔  $d_1$  であれば、以下の式が成り立つ。

$$d_0 = N / (P_c \cdot P_f) \quad (3)$$

$$d_1 = N / (P_c \cdot P_s) \quad (4)$$

よって、ひずみ量  $\epsilon$  は式 (2)、(3)、(4) より以下のように求まる。

$$\epsilon = \{N(1/d_0 - 1/d_1) / P_s\} - 1 \quad (5)$$

表 1 Gr. 91 鋼、Gr. 92 鋼の化学組成

[wt. %]	C	Si	Mn	Cr	W	Mo	Co	Nb	V	N	B
Gr.91鋼	0.11	0.29	0.45	8.44	-	0.99	-	0.09	0.21	0.05	-
Gr.92鋼	0.09	0.16	0.47	8.72	1.87	0.45	-	0.06	0.21	0.05	0.002

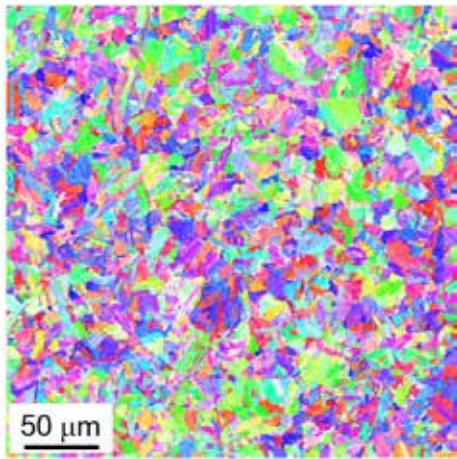


図1 母材 IPF マップ

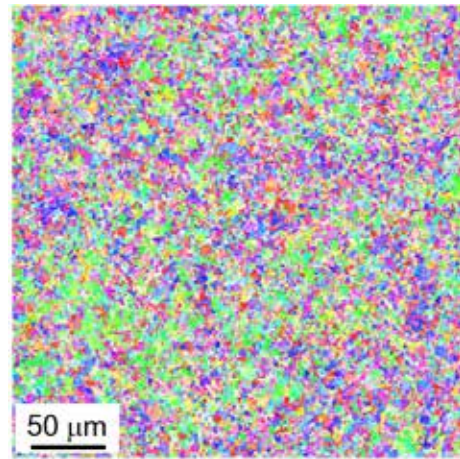


図2 FGHAZ の IPF マップ

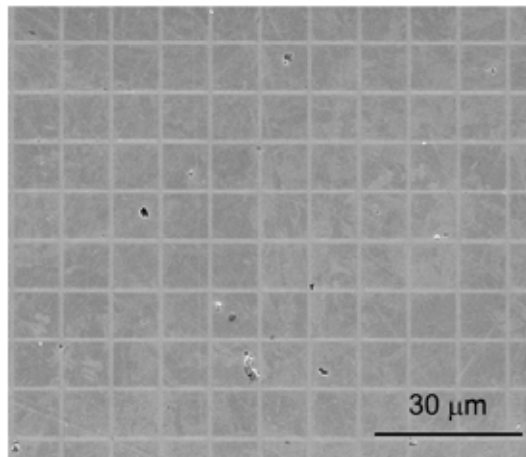


図3 電子線リソグラフィーにより作製した格子

母材と SHAZ を用いたクリープ試験は 873、923 K、大気中で行った。試験片のゲージ部の直径を 6 mm、ゲージ長を 30 mm とした。クリープひずみは、リニアゲージにより測定し、温度は R 熱電対をクリープ試験片に取り付けて測定した。また溶接材のクリープ試験では、表面酸化の影響を少なくするため、アルゴンガス雰囲気内で行った。また試料表面に格子を描くため、本試験ではゲージ部の板厚 5 mm、ゲージ長が 40 mm の平板試験片も作製した。本試料では、溶接金属がゲージ部中央になるように作製することで、FGHAZ と母材のひずみが観察できるよう設計した。

組織観察は電解放出型の電子銃を搭載した SEM を用いて EBSD 法により行った。試料は耐水研磨紙、アルミナ懸濁液、コロイダルシリカを用いて機械研磨したものを使用した。さらに試料の変形組織を観察するため、TEM による組織観察を実施した。試料は機械研磨後、電解研磨で作製した。

### 3. 実験結果と考察

図4に母材、SHAZ材、溶接材のクリープ試験から得られた破断時間と応力の関係を示す。高応力領域では、各試料のクリープ寿命に大きな差異は生じていないが、低応力領域では、母材のクリープ寿命が一番長く、ついで溶接材、SHAZ材となっている。さらに低応力域では、後者2つに大きな差はないことが分かる。これまでに Hongo らは、SHAZ材のクリープ寿命のピーク温度依存性を取得し、変態点近傍 (FGHAZ と同等組織の個所) でクリープ寿命が急激に低下することを示している [8]。本試験で作製した SHAZ 材は FGHAZ の再現を行なっていることから、溶接材と SHAZ 材のクリープ強度が同程度である事実は、FGHAZ においてクリープ変形が局所的に進行し、破断に至ったことを示していると考えられる。

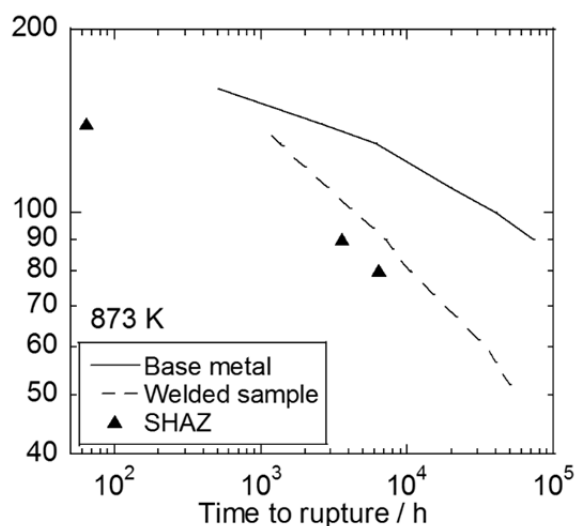


図4 母材、SHAZ材、溶接材の破断時間と負荷応力の関係

そこで次に、図5には母材とSHAZ材のひずみ速度とヤング率で規格化した応力との両対数プロットを示す。先に述べた通り、SHAZ材のひずみ速度は母材と比較して、速いことが分かる。さらに図5より応力指数を求めると、母材では高応力領域で約14、低応力領域で約6となり、従来の報告[4、5]とほぼ同じ値が得られた。変形が急速に進行するSHAZ材においては低応力の未破断材のデータと合わせて示すと、高応力領域で約11となり、低応力領域では4以下と推定されることが分かった。また応力指数より、母材とSHAZ材ではクリープは転位クリープ領域に属することが示された。

しかし、SHAZ材では実際の溶接材においてもクリープが進行しているか不明確であるため、溶接材の表面に図1で示した格子を描いた試料をクリープ試験した。図6は溶接材のクリープ試験後に観察したTHAZ (Tempered HAZ)、FGHAZ各領域のモアレ縞を示す。(THAZとは溶接時、変態点以下の温度で熱せられた領域であり、組織変化は起こらず、焼きなまされた状態の領域である。) 得られたモアレ縞の間隔より、式5を用いて各

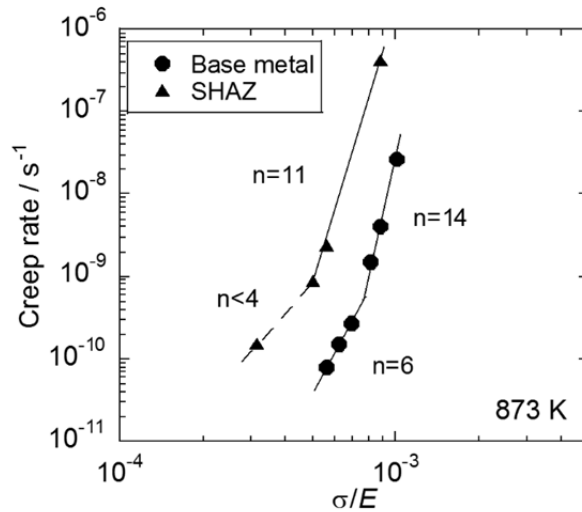


図5 873 Kにおける母材と SHAZ 材のひずみ速度とヤング率で規格化した応力との両対数プロット

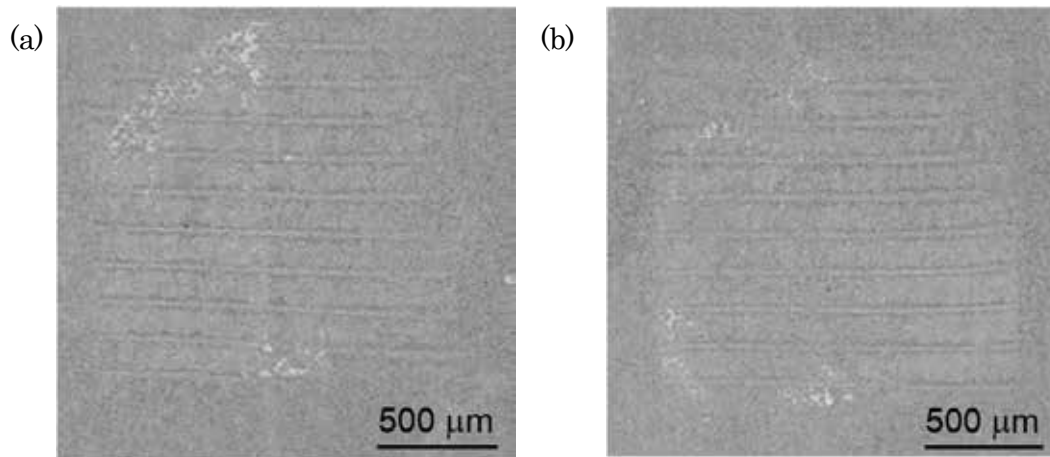


図6 873 K、120 MPa のクリープ試験後の (a) THAZ、(b) FGHAZ のモアレ縞

領域のひずみを測定した結果、FGHAZの方が1.5倍大きいひずみが発生していることを確認した。これは溶接材においてもSHAZ材と同様にFGHAZにおいて局所的にクリープひずみが蓄積していることを示している。

FGHAZのクリープが転位クリープ領域に属すること示すため、溶接材のFGHAZより試料を採取し、TEMによる転位組織の観察を行った。図7に変形前と変形後の明視野像を示す。試験前の粒径は2 μm程度と非常に細粒であること、結晶粒内にも転位が存在することが分かる。そしてクリープ試験後においても、結晶粒径は試験前とほぼ変わらず、結晶粒の顕著な粗大化は生じていないと考えられる。さらに、転位は結晶粒内に存在はしているものの、セル組織を形成せず、転位同士のタングルといった転位間の相互作用も比較的低いことが伺えた。

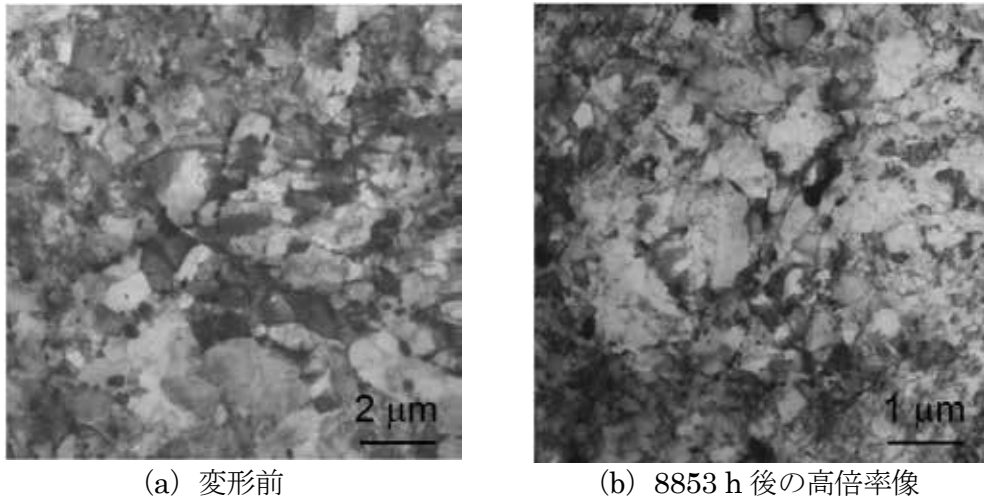


図7 873 K、90 MPa のクリープ試験後にみられる FGHAZ の転位組織

これまでに報告されている転位クリープ領域ではクリープ速度と結晶粒径に関係性はなく、クリープ構成方程式内の粒径指数はゼロとなることが知られているが[2]、図7で示したように、転位間の相互作用が弱い転位運動では、粒界との相互作用の可能性があるため、クリープに対する粒径の影響を調査した。ここでは Gr.92 鋼を使用し、結晶粒径とクリープ速度の関係から粒径指数  $p$  を求めた。結果を図8に示す。結晶粒径は SHAZ 材作製時に、ピーク温度を 1173-2223 K と変化させることで、各種粒径を有する試料を作製した。粒径依存性は従来の報告通り[2]、粗大粒領域では存在せず、細粒領域において  $p=1$  の粒径指数が得られた。しかし、本試験は 1000 時間未満であることから、粒径指数が明確に示されるのは応力指数  $n$  が 11 である高応力領域のみである。従って本研究では、高応力領域における HAZ のクリープ構成方程式として式 (6) が成り立つことが示された。

$$\dot{\epsilon} = A \left( \frac{Gb}{kT} \right) \left( \frac{\sigma}{E} \right)^n \left( \frac{b}{d} \right)^1 \exp \left( - \frac{Q}{RT} \right) \quad (6)$$

Frost らによれば、粒径指数は拡散クリープ時にのみ現れ、その値は 2-3 と報告されており、転位クリープ領域で  $p=1$  となる現象はみられていない[2]。しかしながら、近年、細密六方構造を有する金属やアルミニウムなど超微細粒金属において、転位と粒界の直接作用（粒界における転位の吸収）が生じる転位クリープの場合、粒径指数  $p=1$  が現れることを著者は報告をした[9-13]。本現象は、(a) 結晶粒内において直線的でタングルが少ない転位が先にある粒界に到達すると堆積し、(b) 高まる内部応力を緩和するために、堆積した転位が粒界に吸収され、(c) 粒界すべりを誘発することでクリープを進行させると考えられる (図9)。FGHAZ においては、長期のクリープ試験を実施しても、結晶粒径は数  $\mu\text{m}$  でほとんど変化せず (図7)、クリープ時間が増加後も、転位同士のタングルが生じる可能

性が低く保たれることから、低応力領域においても、高応力領域と同様に、図9のようなクリープが発生し、 $p=1$  が得られると思われる。また Gr.92 鋼の試験温度は Gr.91 鋼とは異なり 923 K であるが、Gr.92 鋼においても 10 程度の応力指数がみられており[4]、Gr.91 鋼のデータと比較できると考えられる。

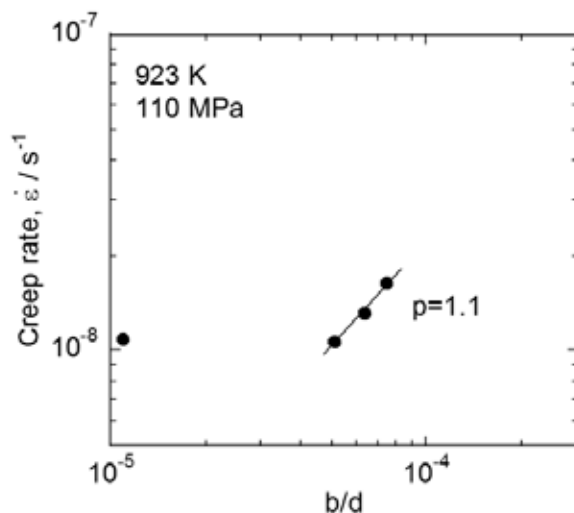


図8 923 Kにおける Gr.92 鋼の結晶粒径とクリープ速度の関係

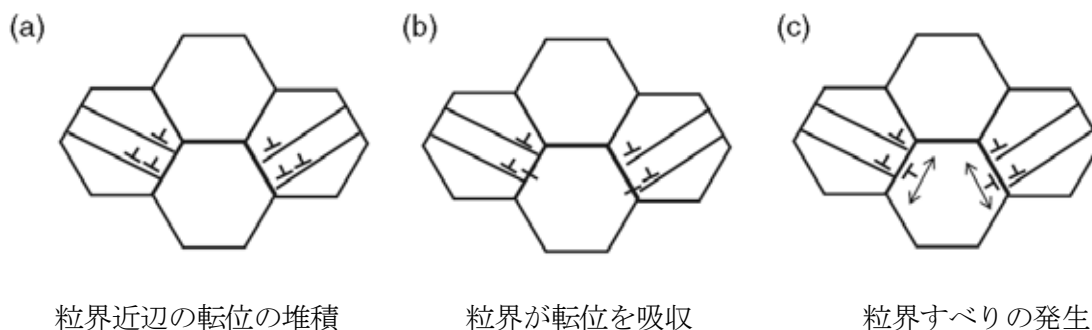


図9 転位と粒界の相互作用の模式図[12]

#### 4. 結言

本研究、溶接後の 9Cr フェライト系耐熱鋼でみられる Type IV 破壊に起因した早期破断機構を解明することを目的に実施してきた。そこで、クリープ構成方程式を構築することにより早期破断機構を推察することとし、Gr .91 鋼、92 鋼を用いた高温クリープ試験及びその後の組織観察を実施してきた。

SHAZ 材を用いたクリープ試験より、高応力領域では、ひずみ速度はヤング率で規格化した応力の 11 乗に比例し、低応力域では 4 乗に比例することが分かった。これより、クリープは転位運動に支配されていることが分かった。本結果は試験後の TEM 観察から結晶粒内に転位を観察している。さらに、結晶粒径を変化させた試料を用いてクリープに対

する粒径の依存性を調査した結果、高応力領域では、粒径指数はおよそ 1 となることが分かった。従って、クリープ構成方程式は式 (5) のように定義できる。また FGHAZ では、長期のクリープ試験後でも結晶粒径は微細であることから、高応力領域でみられた粒径指数がみられると示唆された。通常、転位クリープ領域では粒径指数は観察されないことから、FGHAZ でみられる転位クリープは結晶粒内で転位間のタングルを緩和する従来機構ではなく、転位と粒界の相互作用による緩和機構が働くことにより、クリープが発生する新しいクリープ機構と思われる。

## 謝辞

本研究は、「公益財団法人 JFE21 世紀財団」の研究助成により実施いたしました。ここに謝意を表します。

## 参考文献

- [1] T. Matsunaga, H. Hongo, M. Tabuchi, R. Sahara, *Mater. Sci. Eng. A* 655, 168-174, 2016.
- [2] H. J. Frost, F. M. Ashbey, *Deformation-Mechanism Maps, The Plasticity and Creep of Metals and Ceramics*, Pergamon Press, 1982.
- [3] A. K. Kukherjee, J. E. Bierd, J. E. Dorn, *The Interaction between Dislocations and Point Defects*, ed. by B. L. Eyre, Atomic Energy Authority, Harwell, 422-495, 1968.
- [4] 木村一弘、日本金属学会誌、73、323-333、2009.
- [5] 丸山公一、中村純也、吉見亨祐、鉄と鋼、100、414-420、2014.
- [6] 早川弘之、中島聡、矢ヶ部芳宏、楠元淳一、金谷章宏、中島英治、材料、58、128-135、2009.
- [7] 本郷宏通、升田博之、門馬義男、鉄と鋼、74、504-509、1993.
- [8] H. Hongo, M. Tabuchi, T. Watanabe, *Metall. Mater. Trans. A*, 43, 1163-1173, 2012.
- [9] T. Matsunaga, T. Kameyama, K. Takahashi, E. Sato, *Mater. Trans.*, 50, 2858-2864, 2009.
- [10] T. Matsuanga, T. Kameyama, K. Takahashi, E. Sato, *Mater. Trans.*, 50, 2865-2872, 2009.
- [11] 松永哲也、亀山達也、上田章二、佐藤英一、まてりあ、50、105-111、2011.
- [12] T. Matsunaga, T. Kameyama, S. Ueda, E. Sato, *Philo. Mag.*, 90, 4041-4054, 2010.
- [13] 松永哲也、石渡薫、川合伸明、佐藤英一、軽金属、62、437-441、2012.