

改良9Cr-1Mo鋼のクリープ変形中の組織変化と寿命評価

澤田 浩太*・丸山 公一*²・小峰 龍司*³・永江 勇二*³

Microstructural Changes during Creep and Life Assessment of Mod.9Cr-1Mo Steel

Kota SAWADA, Kouichi MARUYAMA, Ryuji KOMINE and Yuji NAGAE

Synopsis : Several microstructural changes take place in a material during the course of creep. These changes can be a measure of creep life. In this paper, microstructural changes in Mod.9Cr-1Mo steel were studied and it was examined which is a good measure of creep life.

Microscopic structural changes, such as void growth, lath structure uniformly oriented to the tensile axis and elongation of grains, are evident only in the necked portion of ruptured specimens. These macroscopic structural changes are not useful for creep life assessment.

Lath width increases and dislocation density within lath decreases with increasing creep duration. These changes in dislocation substructure start in the early stage of creep life, and cause the increase of strain rate in the tertiary creep stage. The lath width and the dislocation density reach a saturated value before rupture. The saturated values are independent of temperature, and uniquely related to creep stress normalized by shear modulus. The extent of these microstructural changes are greater at lower stresses under which the material is practically used. These facts suggest that the lath width and the dislocation density within lath can be a useful measure of creep life.

Hardness of crept specimens is closely related to the lath width and the dislocation density within lath. The changes of these microstructural features can be evaluated by the measurement of hardness.

Key words : heat resisting steel ; creep life assessment ; metallography ; lath structure ; hardness.

1. 緒言

改良9Cr-1Mo鋼は、高速増殖炉の蒸気発生器材料として開発されたものである。この鋼は、オーステナイト系耐熱鋼と同等なクリープ破断強度を持ち、しかも温度差により生じる熱応力が小さい。そのため、超々臨界圧火力発電のボイラー用材料としても、広く使用されている。本材料で作った火力発電プラント部材のこれまでの使用期間は、設計寿命に近づきつつあり、本材料の余寿命評価手法の確立が望まれている。

プラント機器材料の寿命を評価する方法は、破壊的方法と非破壊的方法に大別され、種々の具体的手法が提案されている¹⁾。非破壊的手法の多くは、高温使用中の組織変化に着目する。例えば、CrMo鋼溶接熱影響部の粗粒域では、 M_6C の析出率および球状化率とボイド面密度を組み合わせ、寿命比を求める²⁾。低延性の粒界破壊を示すSUS304では、ボイドの密度変化と、粒界 σ 相の析出量を組み合わせ、寿命比を評価する³⁾。これらの寿命評価で注目する組織因子は、それがクリープ寿命を直接支配するものであるべきことは、言うまでもない。寿命評価精度の観点から、使用中

にできるだけ大きく変化するのが望ましい。また、寿命評価の検量線を、温度あるいは応力加速試験で決めることを考えると、その組織変化が、温度あるいは応力に依存しないことが望まれる。

本材料は、従来までの9Cr-1Mo鋼に少量のVとNbを添加した材料である。マルテンサイト組織に加えて熱的に安定なV、Nbの炭化物あるいは窒化物も、高いクリープ強度に寄与している。本材料のこれらのクリープ強化因子のうち、熱的に安定なV、Nbの炭窒化物の大きさや量はクリープ変形中にあまり変化しない^{4,5)}。また、9Cr-1Mo鋼にVを添加すると、クリープ変形中の $M_{23}C_6$ の成長も遅いと報告されている⁶⁾。そこでここでは、変化が小さいこれらの組織因子を検討から除外した。

本研究は、改良9Cr-1Mo鋼のクリープ中の組織変化を観察し、どの組織因子が損傷評価に適切かを検討することを目的とする。なお、検討する組織因子として、次のものを選んだ。

1. ボイドの発生・成長
2. 動的再結晶
3. 結晶粒の形状変化(結晶粒の伸び)

平成9年1月24日受付 平成9年4月11日受理 (Received on Jan. 24, 1997; Accepted on Apr. 11, 1997)

* 東北大学大学院生 (Graduate Student, Tohoku University, Aramaki-za Aoba, Aoba-ku Sendai 980-77)

* 2 東北大学工学部 (Faculty of Engineering, Tohoku University)

* 3 動力炉・核燃料開発事業団大洗工学センター (Oarai Engineering Center, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corp.)

Table 1. Chemical compositions and heat treatments of the Mod.9Cr-1Mo steels studied. (mass%)

	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	V	Nb-Ta	Al	N	Normalizing	Tempering
#1	0.10	0.40	0.43	0.014	0.001	0.07	8.73	0.96	0.22	0.090	0.013	0.0510	1323K, 3.0ks	1053K, 3.6ks
#2	0.10	0.39	0.42	0.014	0.001	0.06	8.75	0.97	0.21	0.089	0.012	0.0505	1323K, 3.9ks	1053K, 5.1ks

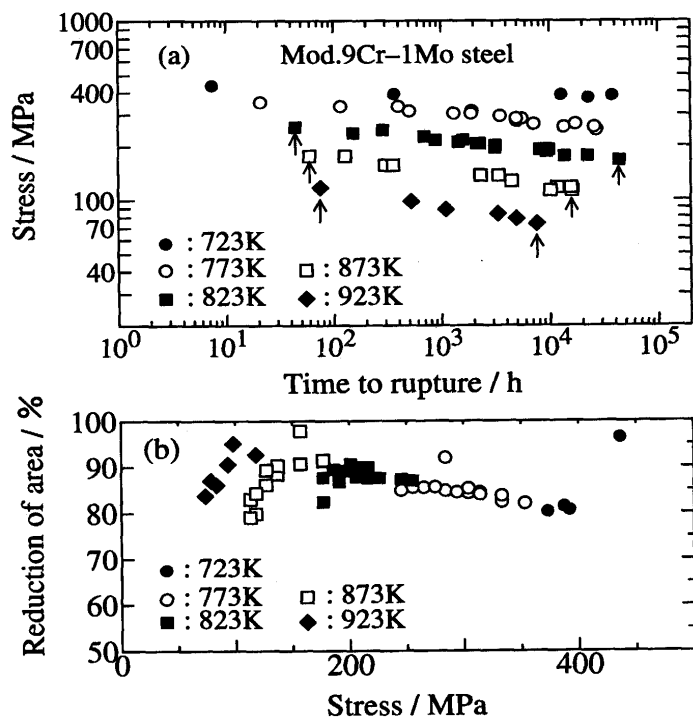


Fig. 1. Relationship between stress and (a) time to rupture, and (b) reduction of area.

4. ラスマルテンサイトのラス幅および転位密度の変化 (硬さ変化)

これらは、破壊に直接結びつく、あるいは、破壊に導く三次クリープの原因となるものである。

2. 実験方法

本実験に用いた改良9Cr-1Mo鋼は、熱間圧延板材であり、その化学成分と熱処理条件をTable 1に示す。2種類(#1, #2)の材料を用いたが、その化学成分と熱処理条件はあまり変わらない。焼き戻しマルテンサイト単相組織であり、旧 γ 粒径は約20 μm であった。両者のクリープ破断強度には大きな差がないので、ここでは両者を同一材料として扱う。

クリープ試験片は、その応力軸方向が圧延方向と平行となるように切り出した。ゲージ平行部直径10mm、標点間距離50mmの丸棒試験片である。単レバー型クリープ試験機により、大気中でクリープ破断試験をした。また中断試験を873K・177MPaで行った。

組織観察には、光学顕微鏡および電子顕微鏡を用いた。破断材と中断材ともに、応力軸方向と平行な断面の組織を

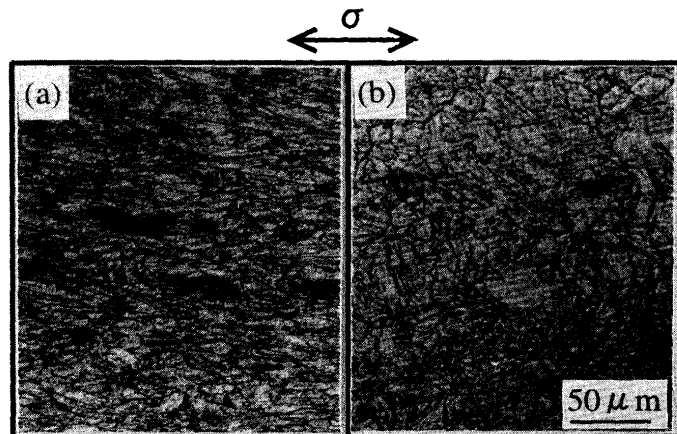


Fig. 2. Optical microstructure of rupture specimen. (a) Necked region, (b) gauge section.

観察した。Fig. 1 (a)に応力と破断時間の関係を示す。図中の矢印で示す条件の組織を中心に観察した。また、種々の組織因子の影響を総合した硬さも測定した。硬さ測定は、試験片平行部およびねじ部で行い、ピッカース硬度計(荷重1kg)を用いた。

3. 実験結果および考察

3・1 巨視的組織の変化

Fig. 2に、873K・118MPa、11770hで破断した材料の、破断部付近および平行部の組織を示す。破断部付近には応力軸方向に伸びたボイドが認められる。また、ランダムな配向をしていたマルテンサイトラス組織が応力軸方向に揃い、結晶粒は応力軸方向に伸びた形状になっている。しかし、破断部から離れた所では結晶粒形状は等軸のままで、ラス組織の配向もランダムである。粒界ボイドが成長・合体して粒界破壊するオーステナイト系ステンレス鋼では、ボイドを破壊に導く主要な損傷と考えて、寿命を評価する³⁾。しかし本材料では、ボイドはその数が少ない。また、Fig. 1 (b)に示すように、十分な破断延性を示し、くびれを作って延性破壊する。

以上から明らかなように、ボイドや結晶粒形状の変化(結晶粒の伸び)は、寿命評価に利用する組織因子として適当でない。また、三次クリープの原因となりうる動的再結晶は、観察されなかった。

3・2 破断材の転位組織変化

Fig. 3 (a)に焼き戻し材の電顕組織を示す。マルテンサイトのラス組織が認められ、平均ラス幅は0.53 μm である。な

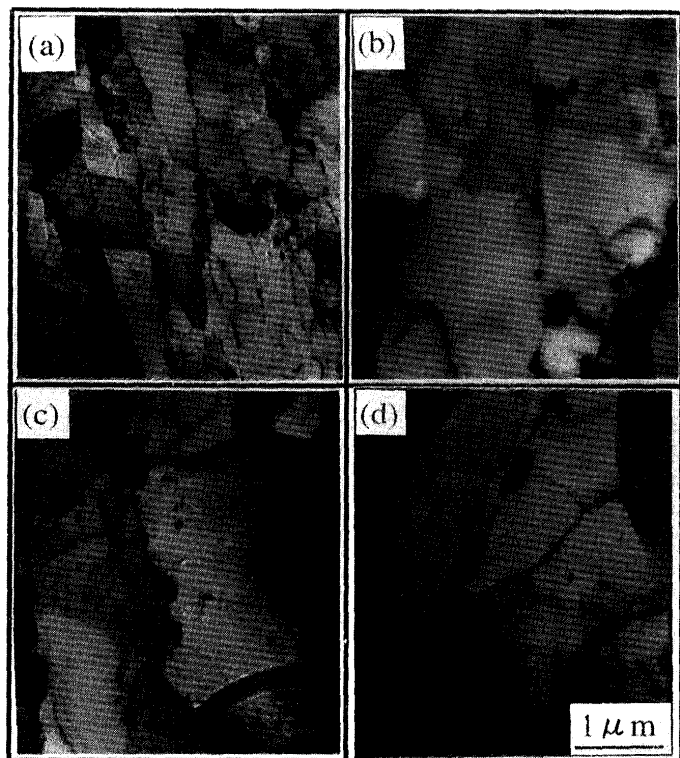


Fig. 3. Changes in lath structure. (a) Before creep, (b) 873K 118MPa $t_r=11770$ h, (c) 923K 118MPa $t_r=75.6$ h, (d) 923K 73.5MPa $t_r=7614$ h.

お、923K・73.5MPa、7614hで破断した材料の、ねじ部の平均ラス幅は $0.55\mu\text{m}$ である。この結果は、本材料のラス組織が熱的に安定で、無応力下では全く変化しないことを示す。

Fig. 3 (b)～(d)に、種々の条件で破断した材料のラス組織を示す。Fig. 3 (a)の焼戻し材と比較すると、破断材のラス幅は大きくなっている。同一応力で温度が異なる(b)と(c)を比較した場合、温度の違いによるラス幅の違いはあまり大きくない。なお、高温・長時間側(Fig. 3 (d))ではラス組織が等軸化しつつある。(d)のラス内に、析出物が並んで存在する。これらは、ラス境界が移動する前に、境界上に存在していたものと考えられる。

Fig. 4に破断材のラス幅の平均値と応力の関係を示す。1試料につき140～150のラス幅を測定し、平均した。破断材平行部の断面積から、真の破断ひずみを見積もり、破断時の真応力を計算した。Fig. 4の横軸は、この真応力である。ラス幅 d と応力 σ の間には広く知られた次の関係がある。

$$\frac{d}{b} = a \left(\frac{G}{\sigma} \right) \quad (1)$$

ここで、 b はバーガース・ベクトルの大きさ、 G は剛性率で、Fig. 4では各温度における剛性率の値を用いた。 a は定数で、Fig. 4では $a=11.4$ となる。(1)式は単相材料をクリープ変形させた時に形成されるサブグレイン径と応力の関係として提案されたものである⁷⁾。これらの材料では、

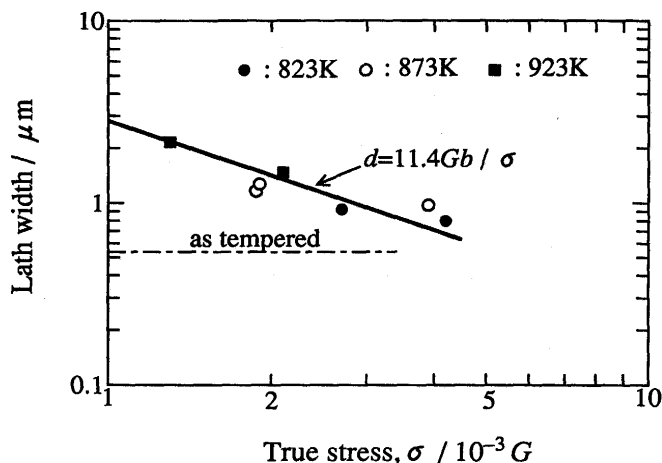


Fig. 4. Relationship between lath width and true stress normalized by the shear modulus.

(1)式の係数 a は約10と報告されている⁷⁾。Fig. 4では、サブグレイン径の代わりにラスの短径を用いた。 a は少し大きいですが、単相材と同様の関係が成立している。同様な結果は、改良9Cr-1Mo鋼(873K)⁸⁾、12Cr系鋼⁹⁾、9Cr-1Mo鋼⁹⁾でも報告されている。図から明らかなように、この関係は試験温度の影響を受けない。この関係を使えば、応力が未知な既使用材の、応力を推定することもできる。

改良9Cr-1Mo鋼では、応力下で変形が起きた時のみ、ラス幅の変化が起きる。また、Fig. 4および(1)式から明らかなように最終的に飽和するラス幅は、応力のみで決まり、試験温度に依らない。本材料を実際に使う低応力の条件¹⁰⁾では大幅なラス幅の変化が予想される。例えば、73.5MPaでは、ラス幅は変形前に比べて4倍に増加する。以上のようにラス幅は、寿命評価に使う組織因子が具備すべきすべての利点を有している。

Fig. 5に焼戻し材および破断材のラス内転位組織を示す。マルテンサイト変態時に導入された多量の転位は、焼戻し後にもかなり残っている。破断材の転位密度は焼戻し材に比べて低い。破断材ねじ部の転位密度は $3.2 \times 10^{14} \text{m}^{-2}$ で、焼戻し材($1.6 \times 10^{14} \text{m}^{-2}$)と変わらない。このことは、ラス内の転位組織も熱的に安定で、変形した時のみ、転位密度が減少することを示す。Fig. 6に、転位密度 ρ と真応力 σ の関係を示す。実験結果は、広く知られている次の経験式¹¹⁾で表現することができる。

$$\sigma = A \sqrt{\rho} \quad (2)$$

ここで、 A は定数である。転位密度も、クリープ変形によって大幅に変化し、材料を実際に使う低応力ほど、変化量が多い。また、(2)式の関係は、試験温度に依らない。したがって、転位密度も、寿命評価に使用しうる組織因子である。ただし、ラス幅に比べて、転位密度には測定値のばらつきが大きいという問題がある。

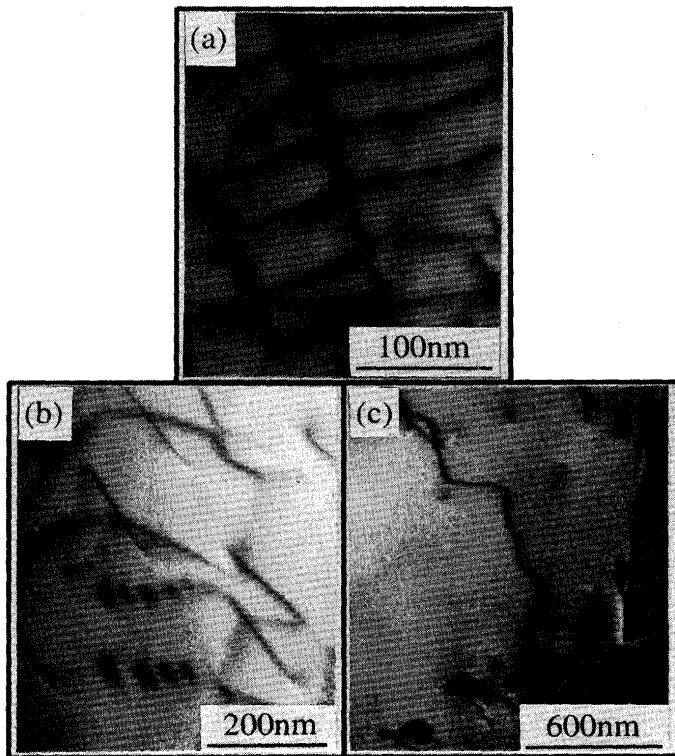


Fig. 5. Dislocation structure within lath of as tempered and crept specimens. (a) As tempered, (b) 873K 118MPa $t_r=11770$ h, (c) 923K 73.5MPa $t_r=7614$ h. (a), (c) $g = 011$, (b) $g = 002$.

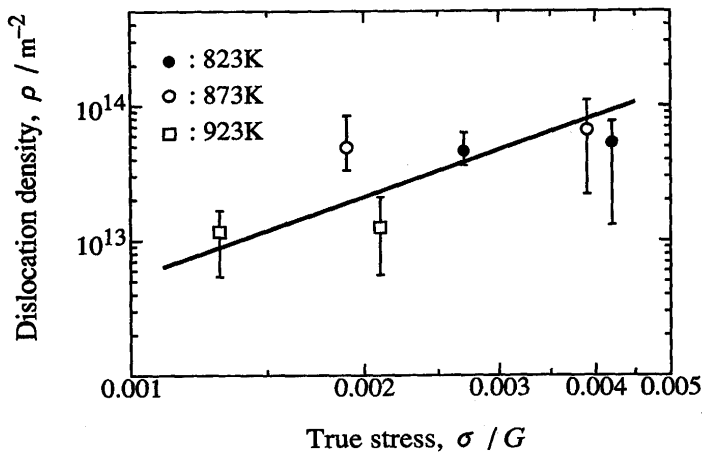


Fig. 6. Relationship between dislocation density and true stress normalized by the shear modulus.

3・3 中断材の転位組織変化

破断材の組織観察から、クリープ変形によって、ラス幅は増加し、ラス内の転位密度は低下することがわかった。そこで、損傷評価対象としての可能性を調べるため、ラス幅およびラス内の転位密度の、クリープ変形にともなう変化の過程を中断試験により調べた。

Fig. 7に#1材の873K・177MPaにおけるクリープ曲線を示す。中断試験は、図中に示す定常域と加速域で行った。Fig. 8に、焼戻し材、定常域および加速域の組織を示す。ラ

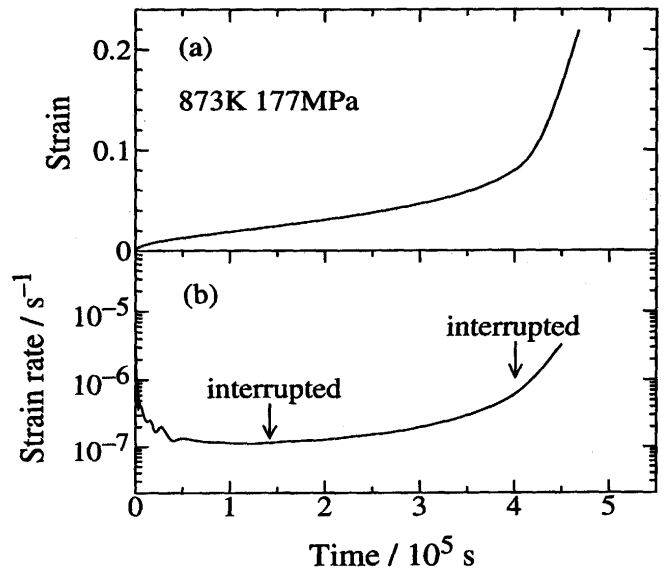


Fig. 7. (a) Creep curve and (b) strain rate as a function of time.

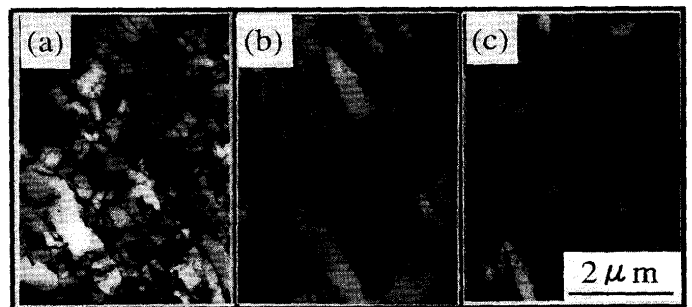


Fig. 8. Change of lath width as a function of time at 873K and 177MPa. (a) Before creep, (b) steady state (40h), (c) tertiary stage (110h).

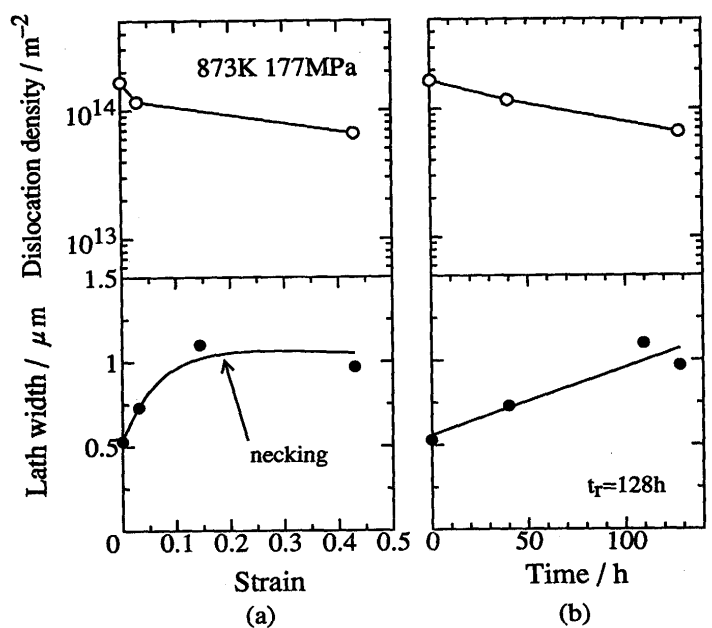


Fig. 9. Average lath width and dislocation density as a function of (a) strain and (b) time.

ラス幅は変形の進行とともに増加し、定常域において既にラス幅の増加が認められる。Fig. 9にラス幅の平均値およびラス内の転位密度と時間およびひずみの関係を示す。ラス幅はひずみ約0.2付近で、応力により決まる飽和値に達する。それ以降のひずみは、主にくびれによるものである。時間との関係を見ると、ラス幅と転位密度はともに破断付近まで連続的に変化している。ただし、転位密度は、ばらつきが大きく、ラス幅に比べて測定が困難であることから、寿命評価の精度という観点からの問題が残る。したがって、本材料の場合、ラス幅が損傷評価の指標として望ましい。

3・4 クリープ速度を増加させる弱化学子

ラス幅と同等と考えられるサブグレイン径とクリープ速度 $\dot{\epsilon}$ の間には、次の経験的な関係が知られている¹²⁾。

$$\dot{\epsilon} \propto \left(\frac{d}{b}\right)^3 \dots\dots\dots (3)$$

ここで、 d はサブグレイン径、 b はバーガース・ベクトルの大きさである。(3)式からラス幅(=サブグレイン径)が増加すると、クリープ速度が増加することがわかる。したがって、3・3で観察されたラス幅の増加は、三次クリープでのクリープ速度増加の原因の一つと考えられる。改良9Cr-1Mo鋼において初期のラス幅を変化させた実験で、ラス幅が大きいほどクリープ速度が速いことが確認されている^{13,14)}。ラス境界(サブバウンダリー)をhard regionと考えれば、変形中にラス幅が増加し、hard regionが減少することが、三次クリープでの変形加速を導くと考えられる¹³⁾。

一般に単相材料では、定常域において(1)式より決まる

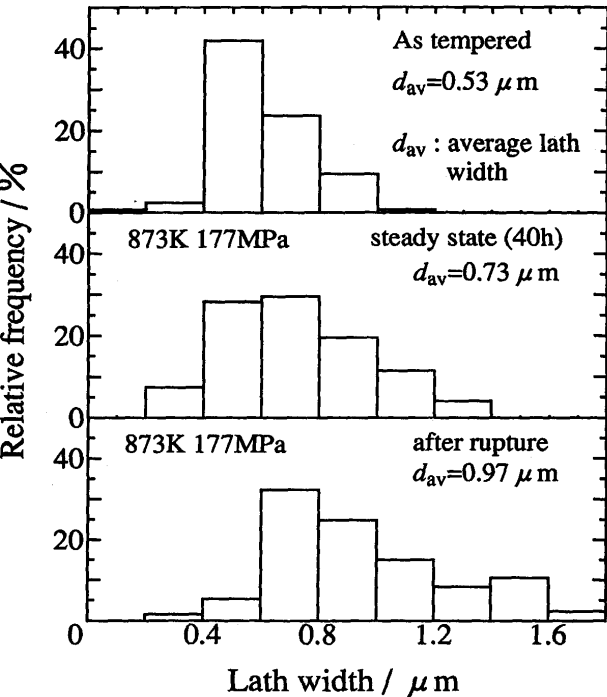


Fig. 10. Change of distribution of lath width after creep.

サブグレイン径に飽和する。しかし、本材料の場合、破断付近までラス幅は連続的に増加する。これは、ラス境界上に存在する析出物が境界の移動を遅延しているためである。Fig.10にラス幅の分布が変形とともに変化していく様子を示す。ラス幅の分布は、変形とともに、全体的にラス幅の大きい側に移動する。

本材料の初期組織はマルテンサイト変態時に導入された多量の転位を含む。これらの転位は内部応力を発生させ、クリープ速度と内部応力 σ_i の間には以下の関係が理論的に提案されている¹¹⁾。

$$\dot{\epsilon} \propto (\sigma - \sigma_i)^m, \sigma_i = M\phi_D Gb\sqrt{\rho} \dots\dots\dots (4)$$

ここで、 σ は付加応力、 m は有効応力指数、 M はテーラー因子、 ϕ_D は係数、 G は剛性率、 ρ は転位密度である。変形とともに転位密度が減少すると、内部応力が減少し、クリープ速度は増加する。したがって、転位密度の減少も三次クリープでの変形加速の原因の一つである。

3・5 硬さと組織の相関

改良9Cr-1Mo鋼では、ラス幅や転位密度が、寿命評価に利用しうる組織因子である。これらの組織因子は常温での硬さと密接な関係があり、硬さ測定からこれらの組織因子の変化を推定できる可能性がある。本材料の焼戻し材の硬さは $H_v=215$ であった。破断材ねじ部の硬さは、873K・118MPa($t_c=15716h$)で $H_v=212$ 、923K・73.5MPa($t_c=7614h$)で $H_v=209$ であった。すなわち、変形しないと硬さは変化しなかったことと対応している。

破断材平行部の硬さと、破断時の真応力の関係をFig.11に示す。ねじ部とは違って、応力下で変形する平行部では、硬さの低下が起きる。硬さの低下は、低応力ほど大きく、それは低応力ほどラス幅の増加が大きく、転位密度の低下が大きいことと対応している。したがって、ラス幅や転位密度が硬さと何らかの関係にあることが示唆される。Fig.12

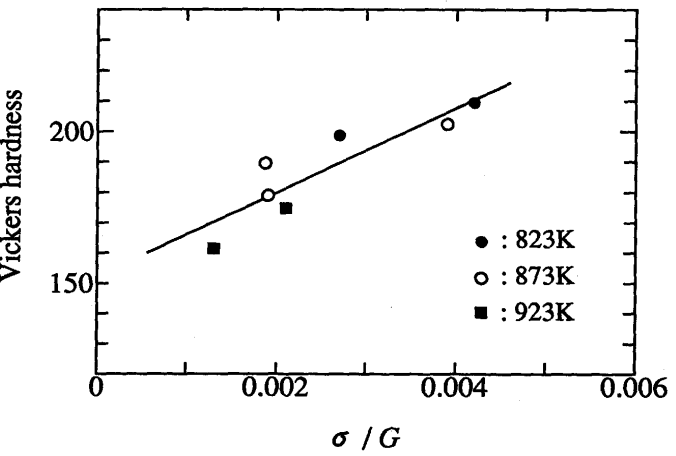


Fig. 11. Relationship between hardness of crept specimens and true creep stress.

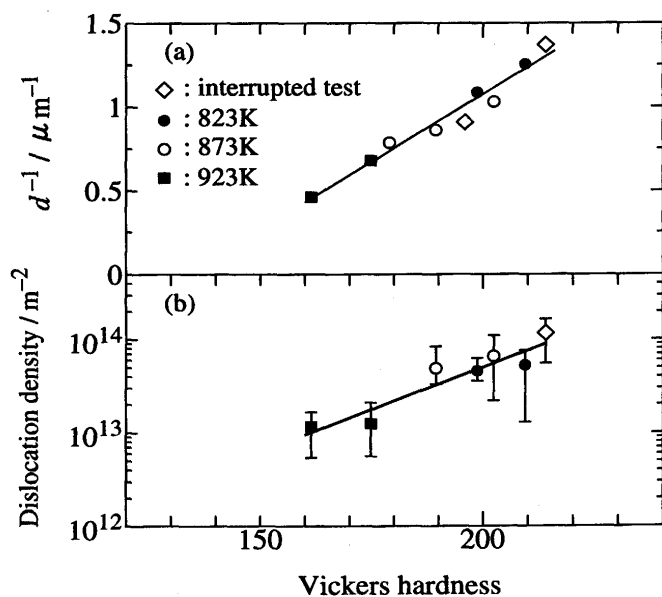


Fig. 12. Correlation of lath width (d) and dislocation density to hardness.

に硬さとラス幅および転位密度の関係を示す。ラス幅と硬さの関係は実験的に次式で表現される。

$$H_v = H_{v0} + k/d \quad \dots\dots\dots (5)$$

ここで、 H_{v0} と k は定数で、実験結果では $k = 6.21 \times 10^{-5}$ MPa・mとなる。この式は、室温での硬さ変化と降伏応力の変化が比例関係にあり、降伏応力とラス幅の間に(1)式の関係が成立することを考えれば、容易に導くことができる。(5)式の関係は試験温度に依らない。また、中断材のデータも(5)式の関係に従う。したがって、本材料ではこの実験式を使ってラス幅の変化を硬さで推定することができる。

Fig.12(b)に転位密度と硬さの関係を示す。転位密度と硬さの間にも温度に依存しない密接な関係がある。

4. 結言

改良9Cr-1Mo鋼の種々の条件におけるクリープ破断材および中断材の組織観察、硬さ測定から、本材料の寿命評価に関して、以下の結果が得られた。

(1)ボイド成長、結晶粒形状の変化、マルテンサイトラス組織の応力軸方向への配向は、くびれ部のみで観察され、寿命評価には利用できない。

(2)クリープ変形すると、マルテンサイトラス組織のラス幅が増加し、ラス内の転位密度が減少する。この転位組織変化が、破壊に導く三次域でのクリープ加速の原因と考えられる。

(3)ラス幅および転位密度の飽和値は温度に依存せず、応力のみにより決定される。そして、材料を実際に使う低応力では、大幅な変化が予想される。

(4)ラス幅や転位密度は変形に伴い連続的に変化する。ラス幅や転位密度と寿命比の関係を明らかにすれば、寿命評価の手段として利用できる。

(5)硬さは、ラス幅およびラス内の転位密度との間に、一定の関係がある。この関係を使えば、硬さ測定から、ラス幅や転位密度の変化を推定できる。

本研究が(社)日本鉄鋼協会鉄鋼研究振興助成金、日本学術振興会(No.JSPS-RFTF 96 R 12301)、および文部省科学研究費(No.07555653)による援助の下に行われたことを付記し、感謝の意を表する。

文 献

- 1) 丸山公一：溶接学会誌, **63** (1994), 576.
- 2) 増山不二光：日本金属学会会報, **35** (1996), 753.
- 3) 金属材料技術研究所研究報告集, **11** (1990), 29.
- 4) K.Tokuno, K.Hamada, R.Uemori, T.Takeda and K.Itoh : Scripta Metall. Mater., **25** (1991), 871.
- 5) K.Tokuno, K.Hamada and T.Takeda : JOM, April (1992), 25.
- 6) V.Foldyna, A.Jakobová, A.Gemperle and R.Riman : Creep and Fracture of Engineering Materials and Structure, ed. by B.Wilshire and R.W.Evans, The Inst. Metals, London, (1990), 507.
- 7) S.Takeuchi and A.S.Argon : J. Mater. Sci., **11** (1976), 1542.
- 8) S.Straub, P.Polcik, W.Besigk, W.Blum, H.König and K.H. Mayer : steel res., **66** (1995), 402.
- 9) W.Blum and S.Straub : steel res., **62** (1991), 72.
- 10) 増山不二光：鉄と鋼, **80** (1994), 587.
- 11) J.Cadek : Creep in Metallic Materials, Elsevier, Amsterdam, (1988).
- 12) O.D.Sherby, R.H.Kluntd and A.K.Miller : Metall. Trans.A, **8A** (1977), 843.
- 13) G.Eggeler, J.Hald, M.Cans and J.Phillips : Creep and Fracture of Engineering Materials and Structures, ed. by B.Wilshire and R.W.Evans, The Inst. Materials, London, (1993), 527.
- 14) F.Masuyama and N.Nishimura : Proc. 10th Int. Conf. on the Strength of Materials (ICSMA 10), ed. by H.Oikawa *et al.*, JIM, (1994), 657.