

高Crフェライト系先端耐熱鋼の溶接熱影響部に見られるType IV型クリープ損傷を発生する組織の特定と生成機構

長谷川 泰士*・村木 太郎*・大神 正浩*²

Identification and Formation Mechanism of a Deformation Process Determining Microstructure of Type IV Creep Damage of the Advanced High Cr Containing Ferritic Heat Resistant Steel

Yasushi HASEGAWA, Tarou MURAKI and Masahiro OHGAMI

Synopsis : The microstructure of a Type IV damage, a ductile and early creep failure at outer edge of Heat Affected Zone of weld, was precisely researched. The rupture life of a simulated fine grain area of HAZ was the shortest compared with those of the other microstructures, coarse grain HAZ and dual phase HAZ, according to the temperature acceleration creep test at 700°C. The tensile strength at room temperature was the lowest at around A_{c1} transformation point, determined by rapid heating dilatometry. Therefore, the Type IV damage did not coincide with the conventional HAZ softening phenomenon often observed in low carbon steels.

Dislocation substructure of the fine grain zone is composed of the globular sub-grain microstructure and the coarsened carbide through the Transmission Electron Microscope observation of thin foils. They were possibly explained to be formed through the thermal cycle of HAZ and Post Weld Heat Treatment as follows: a base metal with lath martensite microstructure is warmed above A_{c3} point once, and immediately cooled and transformed. Such "weak" lath martensite structure, apparent ambiguous lath martensite, was easily recovered to the globular sub-grain microstructure. Based on the hypothesis above mentioned, globular sub-grain microstructure at fine grain HAZ possibly resulted in the decrease of the creep life.

Key words : creep; weld; Type IV damage; creep life; HAZ; precipitation; sub-grain; lath martensite.

1. 緒言

火力発電プラントの高効率化はエネルギー有効利用、二酸化炭素排出削減における世界規模の至上命題であり、過酷な使用環境に長期間耐久可能な材料の開発が、その効率到達限界条件を向上する上で最も重要な課題である。このため、9%以上のCrを含有する高Crフェライト系耐熱鋼の研究開発が盛んとなり、これまでにASME Gr.92を例として600~620°Cで実用可能なフェライト系耐熱鋼が開発されてきた¹⁾。フェライト系耐熱鋼には低熱膨張率、高熱伝導率、耐水蒸気酸化被膜剥離性、そして経済性などオーステナイト系あるいはNi基合金の耐熱材料にはない特徴がある。しかし、長時間クリープ特性の安定という観点からは、全てのフェライト系耐熱鋼に共通である、変態点を有するが故の課題、すなわち溶接熱影響部に特有の局所的なクリープ強度低下問題が未解決である。この課題は溶接継ぎ手における損傷発生位置による分類²⁾からType IV損傷として知られ、材料科学的見地からの根本的解決策は未だに提案されていない。Type IV損傷は溶接熱影響部 (Heat Affected Zone: 以降HAZとも略記する) の母材部との境界付

近に発生し、クリープボイドを生成して、わずかな絞りしか示さずに破断に至る特徴的な損傷形態を示し、局部的に破断寿命が、鋼種によっては1/5~1/10まで低下する特殊なクリープ損傷である。典型的な破断組織をFig. 1に示した。今後の火力発電プラント運転時間の長期化、および新設プラントの蒸気条件のさらなる過酷化を想定するとき、Type IV損傷を生じない材料の開発および損傷の軽減は必須の課題であり、クリープ破断強度低下を伴う現象であることから、対策技術の実現はフェライト系耐熱鋼の長寿命化に大きく寄与すると考えられる。

ところが、根本的な解決技術を考える上で不可欠の、損傷自体の発生機構についての指導原理を明らかにした研究は未だになく、損傷発生位置の金属組織の特定も厳格にはなされていない。溶接継ぎ手の形状や溶接金属との高温強度差に起因した歪み集中が主因³⁾であるとする考え方と、一方で溶接熱履歴による組織変化が局所的なクリープ変形抵抗の低下を来したとする考え方⁴⁾が併存している。TabuchiらはHAZに類似の熱サイクルを与えた試験片のクリープ特性を調査し、発生位置を A_{c3} 変態点近傍の細粒域付近であると推定し、そのクリープ変形抵抗低下を考慮し

平成18年2月22日受付 平成18年6月6日受理 (Received on Feb. 22, 2006; Accepted on June 6, 2006)

* 新日本製鉄(株) 技術開発本部鉄鋼研究所鋼材第二研究部 (Steel Products Research Lab. II, Steel Research Laboratories, Technical Development Bureau, Nippon Steel Corporation, 20-1 Shintomi Futtsu 293-8511)

* 2 新日本製鉄(株) 八幡製鉄所生産技術部 (Production & Technical Control Division, Yawata Works, Nippon Steel Corporation)

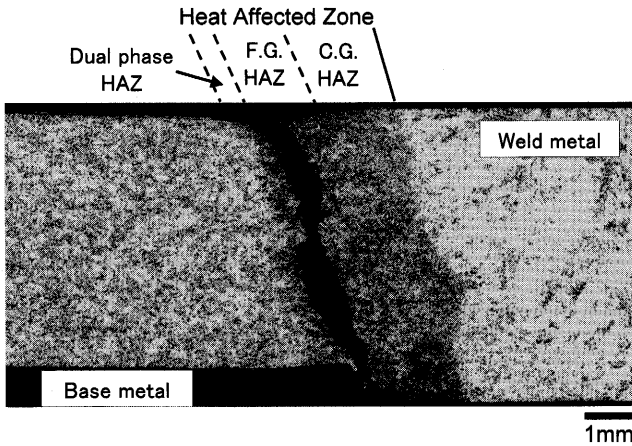


Fig. 1. Macro-view of ruptured welded joint showing the typical Type IV failure.

Table 1. Representative chemical composition of the specimen, simulated ASME Gr.92.

C	Si	Mn	Cr	Mo	W	Nb	V	N	B
0.080	0.25	0.50	9.0	0.50	1.80	0.06	0.20	0.050	0.0010

た詳細なFEM解析によってType IV損傷の発生機構を議論している⁵⁾。しかし、クリープ変形抵抗低下の材料科学的な機構については詳細を明らかにしていない。そこで、本稿ではType IV損傷発生機構の材料科学的な解明に不可欠な、損傷を発生させる組織を、主に熱サイクルシミュレーションによって得たHAZ再現組織の詳細な解析によって特定することを試みた。また、Type IV損傷生成組織を再現した試験片のクリープ特性を調査し、破断寿命の観点から溶接継ぎ手におけるType IV損傷発生部位を特定することを主な目的とした。

なお、Type IV損傷は高Cr系耐熱鋼特有の課題ではなく、変態点を有するフェライト系耐熱鋼全般に共通の課題であって、低合金鋼における報告も多い^{6,7)}。

2. 実験方法

2.1 供試鋼の化学成分と調質工程

供試鋼には実用フェライト系耐熱鋼中で最高強度を有する、Wを1.8%含有する9%Cr鋼、ASME Gr.92を用いた。実験には同鋼を模擬した成分を有する300kgインゴットを実験室の真空誘導加熱炉にて溶解・鋳造した後、1150°Cに1時間再加熱し、続いて厚み30mmの鋼板へと1000°C以上で熱間圧延して放冷し、鋼板試験片とした。鋼板試験片はさらに、1070°Cにて1時間固溶処理し、放冷でマルテンサイト組織を形成（焼準処理）した後、770°Cで1時間焼戻し、放冷して各種試験片へと加工した。供試鋼の代表化学成分をTable 1に示した。焼戻し後の光学顕微鏡組織をFig. 2に示した。供試鋼は高Cr鋼であるため、焼準処理でも厚鋼材においてマルテンサイト組織を形

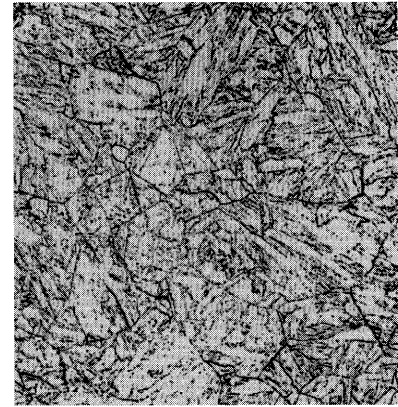


Fig. 2. Optical microstructure of the tempered martensite bearing ferritic creep resistant steel, ASME Gr.92.

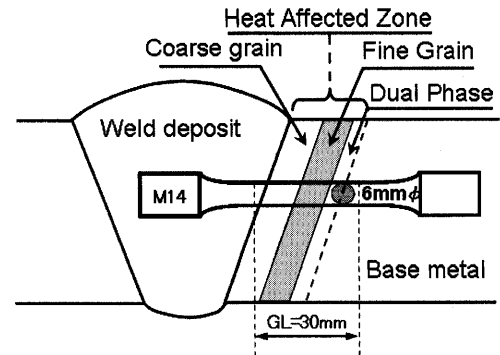


Fig. 3. Sampling geometry of creep specimens from the welded joint.

成する。本稿では以降、焼戻しままの状態の試験片を「母材」と称し、溶接熱影響を受けた場合には同一化学成分の試料であっても熱履歴または組織の異なる試験片として区別する。

2.2 溶接継ぎ手の制作

母材鋼板を用いて、長さ1mm、片幅200mm、45度のV開先突き合せとなる溶接試験片を加工し、入熱1.5kJ/mm、溶接予熱、後熱、パス間温度は全て200°Cとなるように管理して溶接継ぎ手を作成した。溶接終了後は溶接試験片全部を大型の電気抵抗加熱炉にて740°Cで1時間、応力除去焼鈍（Post Weld Heat Treatment: 以降PWHTとも略記する）し、放冷した。溶接継ぎ手からはFig. 3に示す要領で溶接線と垂直に板面平行な方向から平行部直径6mmのクリープ試験片を加工中心軸線が母材の板厚方向位置で1/2となるように、かつ平行部評点間の中心が溶接熱影響部となるように採取した。組織観察用試験片も同じ位置から採取した。

2.3 溶接継ぎ手相当熱サイクル試験

実際の溶接継ぎ手の熱影響部（ここでは光学顕微鏡で識別可能な、Ac₁変態点以上に再加熱された組織を意味する）の組織変化は溶接金属から数mmの狭い範囲の母材に生

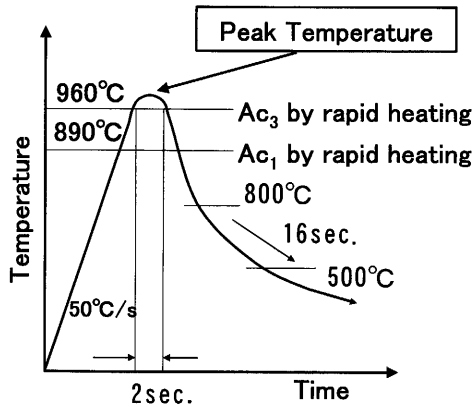


Fig. 4. Thermal cycle simulation pattern of temperature for outer edge of HAZ.

じ、損傷または破断の原因となった特定の組織のみから機械的特性や析出物の変化等を調査する試験片の採取は実質的に形状および大きさの観点から不可能であり、極小試験片であっても隣接する組織が混入する等の誤差を除去しがたい。そこで、HAZ外縁部が受ける熱履歴を再現する熱サイクル試験を別途実施し、各種試験片を採取可能な形状・大きさの試験片（被加熱部が10mmφとなる熱サイクル試験片）を用いて、各種特性評価にあてる方法が現実的であり、特に組織とクリープ特性の対応を詳細に知るために有効である。

Fig. 4にはHAZ外縁が受けた熱履歴を模擬する熱サイクルパターンを示した。熱サイクルパターンは、溶接試験片のHAZ外縁が受ける熱履歴を、溶接継ぎ手のHAZ相当部位を予測して予め埋め込んだ熱電対で測定・記録し、測定位置の組織が各種HAZ組織になっていることを溶接後に断面観察によって確認することでHAZの各部位を確実に模擬できるように決定した。測定結果に基づき、特にHAZ外縁では昇温速度は50°C/sとし、最高加熱温度はType IV損傷発生部位特定の際に800~1300°Cの範囲で種々変更した。冷却速度は800°Cから500°C通過時間を16秒とした。加熱は±10°Cの均熱帯長さが10mm以上となる加熱コイルを備えた高周波誘導加熱装置を用いた。また、PWHTの必要な場合には、炉を用いて試験片全体に別途実施した。

2.4 HAZ変態点測定

HAZの組織変化を考察する上で必要なAc₁変態点とAc₃変態点は線膨張測定法(Dilatometry)により決定した。試験片は3mmφ×10mm長で、熱電対を内包する形状とした。母材の変態点測定時の昇温速度は2.5°C/min、HAZ外縁では前節の結果を参照して50°C/sとした。

2.5 高温クリープ試験

上記のごとく準備した実験室溶解の鋼板試験片、溶接継ぎ手試験片、HAZ相当熱サイクルシミュレーション試験片について、Fig. 5に示すごとく原則6mmφの平行部

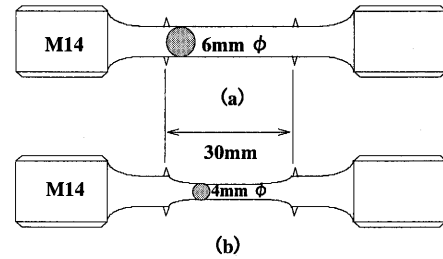


Fig. 5. Creep test specimens for thermal cycle simulations of HAZ. (a) Standard type for the homogeneous microstructure for full gage length, (b) hourglass type for the partially thermal cycle simulated in gage length.

30mmを有する丸棒平滑クリープ試験片を用いて600~700°Cの範囲でクリープ試験を実施した。温度加速試験としては700°Cクリープ試験を主に実施した。クリープ歪み測定の際には平行部両端に歪み検知用のツバを付し、また熱サイクルシミュレーション試験片の場合は、熱サイクル時の均熱帯部位のみの変形を抽出することを目的として、4mmφ、長さ10mmの平行部を6mmφの評点間の中央に追加して設け、連続曲面で6mmφの平行部に滑らかにつないだ形状の試験片とした。同試験片形状もFig. 5に併せて示した。この加工の工夫により、最高加熱温度の絶対値によらず、常にHAZ再現熱サイクル試験片は目的とする最高加熱温度部位が主にクリープ変形し、破断した。

2.6 継ぎ手の金属組織および転位下部組織観察

前記の各種試験片から、クリープ試験の前、途中停止、あるいは破断後に、また組織形成過程を知るために溶接熱サイクルの各段階、すなわちHAZ外縁熱サイクル直後、およびPWHT後の各組織を、光学顕微鏡と微小部分析装置付帯の透過型電子顕微鏡により、薄膜あるいはカーボン抽出レプリカの形態で、主に転位組織、すなわちラス構造とサブグレイン構造等、および析出物の形態と種類を観察した。析出物構造の決定には酸溶解電位電解抽出残渣の定量分析と同残渣の広角X線回折、さらには電子顕微鏡下での電子線回折パターン解析を併用して総合的に判断した。

3. 実験結果

3.1 溶接継ぎ手のクリープ破断試験結果

溶接継ぎ手と母材の応力-クリープ破断時間曲線を600°Cと700°Cの双方について比較して、結果をFig. 6に示した。破断試験片の破断部位は必要に応じて断面組織を観察し、HAZ外縁でクリープポイドを生成し、かつ低延性（評点間破断伸び10%以下の場合を意味する）破壊形態を示している場合にType IV損傷と判別し、□の記号を用いて通常の破断形態と区別した。600°Cでは母材の破断時間が1万時間以上となる場合の条件において、溶接継ぎ

手では Type IV 損傷が発生し、破断寿命比は約 1/3 であった。継ぎ手の破断時間が、より短時間あるいは高応力の試験では Type IV 損傷形態を示さなかった。Type IV 損傷を示さない溶接継ぎ手の破断寿命は母材とほぼ同一であった。一方、700°C では 600°C の場合に比較して、より短時間で Type IV 損傷発生が確認できた。すなわち、Type IV 損傷は比較的低温・高応力のクリープ試験で発生しがたく、高温・低応力の場合ほど発生しやすくなる傾向を示した。この結果から、Type IV 損傷の発生機構を解明するには 700°C の温度促進試験が実験時間短縮に有効であると考えに至った。したがって本稿では以降 700°C での促進試験結果をもって 600°C 長時間での Type IV 損傷を模擬するものとする。なお、700°C の破断曲線を母材と継ぎ手で詳細に比較すると、応力 100 MPa では Type IV に典型的な低延性破壊形態を示さない場合でも、破断寿命が短くなる場合が見られる。この結果では母材に比較して破断絞りの低下が見られた。すなわち Type IV 損傷が支配的ではないものすでに発生し、寿命低下が顕在化している例と考えた。ただし、詳細な機構は今後の検討課題である。

3.2 HAZ 相当熱サイクルを与えた試験片の組織と熱履歴

Fig. 1 に示した溶接継ぎ手の Type IV 損傷は HAZ の細粒組織で生じているように見える。しかし、前組織が焼戻し

マルテンサイトである場合、旧 γ 粒内に幾層もの内部組織、例えばパケット粒やブロック粒等が発達しており、どのような熱履歴に曝されたかを決定することは困難である。そこで、最高加熱温度を種々に変更した HAZ 再現熱サイクルを受けた模擬試験片において、組織とクリープ破断寿命を対比して Type IV 損傷発生位置を特定することとした。HAZ 最高加熱温度と光学顕微鏡組織の関係を Fig. 7 に示した。組織は代表例として最高加熱温度をそれぞれ 800°C, 900°C, 1000°C, 1300°C とした場合の 4 種を選択し、最高加熱温度軸に対して順次並べている。Fig. 7 に示した A_{c1} および A_{c3} 変態点はいずれも HAZ 外縁相当熱サイクルの $\alpha \rightarrow \gamma$ 変態点であり、別途測定した ASME Gr.92 鋼の通常の熱処理時の変態点、それぞれ約 830°C と 900°C から約 60°C の上昇が生じることが本実験で明らかとなった。最高加熱温度が 800°C の組織は、母材の焼き戻しマルテンサイト組織にほぼ類似の組織であって、最高加熱温度は A_{c1} 変態点にまで至っていない。このときの旧 γ 粒径は光学顕微鏡組織写真を 5 視野以上撮影して、写真上にて測定した視直径の平均で約 60 μm であった。最高加熱温度が 900°C の場合は α 相と γ 相の二相共存領域に該当するため、組織が部分的に一度 γ 相へ逆変態し、そこから短時間のうちに再度低温変態して生じたフレッシュマルテンサイトを含んでいる。この再変態組織と未変態組織の差異は、高 Cr フェライト鋼の場合には光学顕微鏡組織ではあまり明瞭ではない。しかし、最高加熱温度が 1000°C に達した場合は全組織が逆変態して一度 γ 相となり、最高加熱温度が比較的低く、かつ短時間のうちに再度冷却されるために細粒 γ のみからなる組織からの焼入れ組織となる。この部位の旧 γ 粒径は前述の方法で測定して、約 15 μm であり、最小となった。最高加熱温度が 1300°C に達すると、短時間とはいえ比較的高温のため、逆変態して安定化した γ 粒はある程度成長して粗大化し、もはや細粒組織ではなくなる。旧 γ 粒径は母材に近く、約 70 μm であった。したがって各部組織写真と変態点の測定結果を対比すると、最も細粒の組織を形成する温度域は A_{c3} 変態点直上の 1000°C 近傍であり、そ

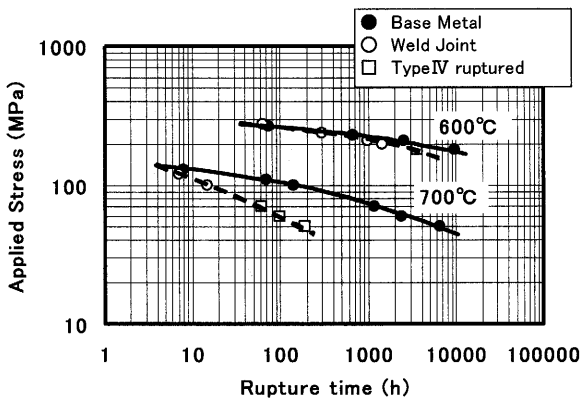


Fig. 6. Comparison of the creep rupture strengths of parent steel and welded joint.

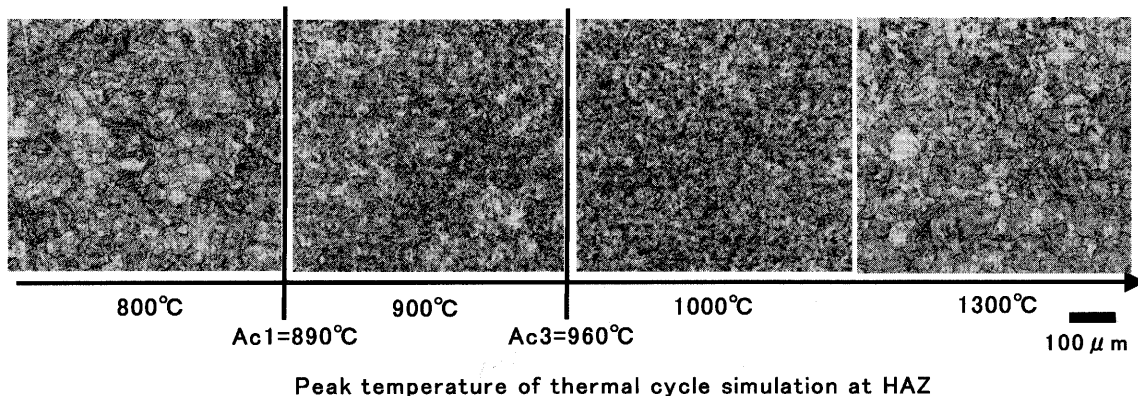


Fig. 7. Optical microstructures of the simulated HAZ by thermal cycle test for various peak temperatures with transformation points measure by rapid dilatometry for outer edge of HAZ.

の熱履歴を受けた組織は一度全組織が逆変態して再度低温変態した熱履歴を有していることは、変態点の測定結果を考え併せれば疑いがない。

3.3 HAZ相当熱サイクルを与えた試験片のクリープ破断寿命と引張り強さ

最高加熱温度を変化させ、PWHTを実施した再現熱サイクル試験片の700°C、初期応力60および70 MPaの場合の温度加速クリープ試験の破断寿命と熱サイクル最高加熱温度との関係をFig. 8に示した。同時に各熱サイクル後の室温引張り強さを右側縦軸を参照して記号▲でプロットし、室温強度との関係も比較した。最もクリープ破断寿命が低下するのは最高加熱温度がAc₃点直上となる1000°CのHAZ再現熱サイクル試験の場合であって、同試験片の組織は上述したように完全再変態細粒γからの焼入れ組織であることが明らかである。したがって700°Cにおいて70 MPaまたは60 MPaの初期応力を負荷した場合、最も破断寿命の短い部位は細粒組織であり、同じクリープ条件において溶接継ぎ手はFig. 6に示したとおりType IV破壊を示したことから、HAZ細粒部がType IV損傷を発生させる部位であることが判る。さらに、Ac₃点直上の細粒域の室温強度は再変態による焼入れ組織となることから、二相域またはAc₁変態点直下の高温に焼戻された未変態母材組織等に比較して高いこともFig. 8から明らかである。Tabuchiらは高Crフェライト系耐熱鋼のクリープ破断寿命と室温強度の相関について、HAZの最小硬度部位と最短クリープ破断寿命部位は異なっていると報告⁴⁾している。本実験の結果はさらに、組織との相関および引張り強さとの相関をこれに付加して支持する結果となり、継ぎ手の室温強度の最下部は最短クリープ破断寿命部位ではないことを示した。すなわち、通常低炭素調質鋼に見られる、HAZの熱履歴によって軟化した部位への歪み集中がType IV損傷

の主因であるとする、「HAZ軟化部への歪み集中」説は支持しない結果となった。なお、HAZ再現熱サイクルを付与した試験片の破断寿命は、Fig. 6の実溶接継ぎ手の同一応力での破断寿命と比較すると若干長い傾向が見られ、一般に再現熱サイクルHAZの破断寿命が実溶接継ぎ手に比較して短くなる傾向⁴⁾とは異なっている。これはFig. 5(b)に示した熱サイクル試験片から作製した、直径4 mmで平行部が10 mmのクリープ試験片の形状に起因する拘束効果によるものと推定されるが、ここでは再現熱サイクル試験間での相対的な比較を議論しており、この形状効果は本質的な影響を与えないと考えられる。

3.4 HAZ相当熱サイクルを与えた試験片の転位組織の観察

細粒HAZ組織がType IV損傷の発生部位であることは前節で述べたが、細粒HAZ組織の生成機構を知るためには、転位組織の構造を比較検討する必要がある。Fig. 9には、Fig. 7と同じ最高加熱温度の熱サイクルを与えた各相当部位の、透過電子顕微鏡による薄膜組織観察結果を、HAZ熱サイクルまま（上段の写真）とPWHT後（下段の写真）について、それぞれ比較して示した。

最高加熱温度が800°Cの場合は、HAZ熱サイクルまま（上段）では母材とほとんど変化のないラスマルテンサイト構造が保たれている。粒界析出物もサブミクロン大であり、粗大化は確認できない。そのPWHT後の写真（下段）では、一部にラス幅が拡大した組織と粒界析出物の若干の粗大化が観察されることから、組織回復がわずかに進行したと考えられる⁸⁾ものの、依然として焼戻しラスマルテンサイト構造が維持されている。ほぼ同様の組織形態は最高加熱温度が1300°Cの場合に見られる。唯一異なっているのはHAZ熱サイクルままの場合に粒界析出物が消失している点であるが、PWHT後には再析出していることが確認できる。析出物の組成等は若干変化している可能性もあるが、最高加熱温度が1300°Cとなる粗粒域では、Fig. 8の結果から破断寿命は母材のそれとほとんど変わっていないと判断でき、ここではその変化を重視しなかった。一方、最高加熱温度1000°Cの細粒域では異なった組織変化が見られる。熱サイクルままでは1 μm以下の幅を有するラスマルテンサイト構造（上段写真中の白矢印はラス境界を示す）がγ粒内に認められるが、同時にラス構造とは無関係に、輪郭の不明瞭な粒子が線上に並んで存在している（上段写真中の黒矢印で示す粒子）ことが判る。これら粒子は詳細に観察すると、周囲に電子線透過率の低い部位（写真上で周囲よりも暗く見える部分）を伴う析出物の列であると判明した。このラス構造に無関係に残留する析出物列の生成機構はType IV損傷発生機構を考える上で極めて重要であり、考察で詳細に検討する。同部位のPWHT後の組織は、全面が等軸粒（多面体）化した回復組織であり、ラスマルテンサイト構造を全く伴わないという特徴を有する。すな

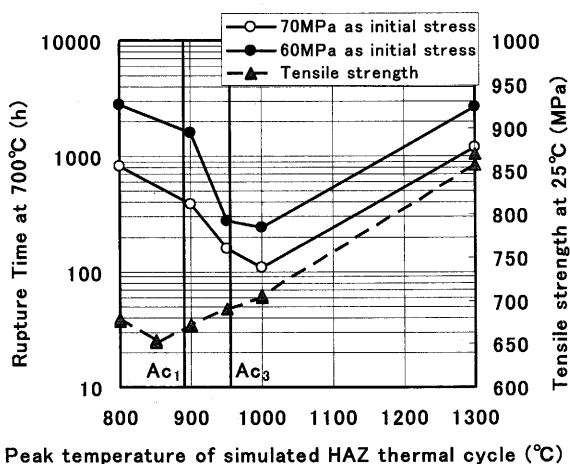


Fig. 8. Creep lives of the simulated HAZ by thermal cycle for various peak temperatures and the room temperature tensile strengths for each peak temperatures.

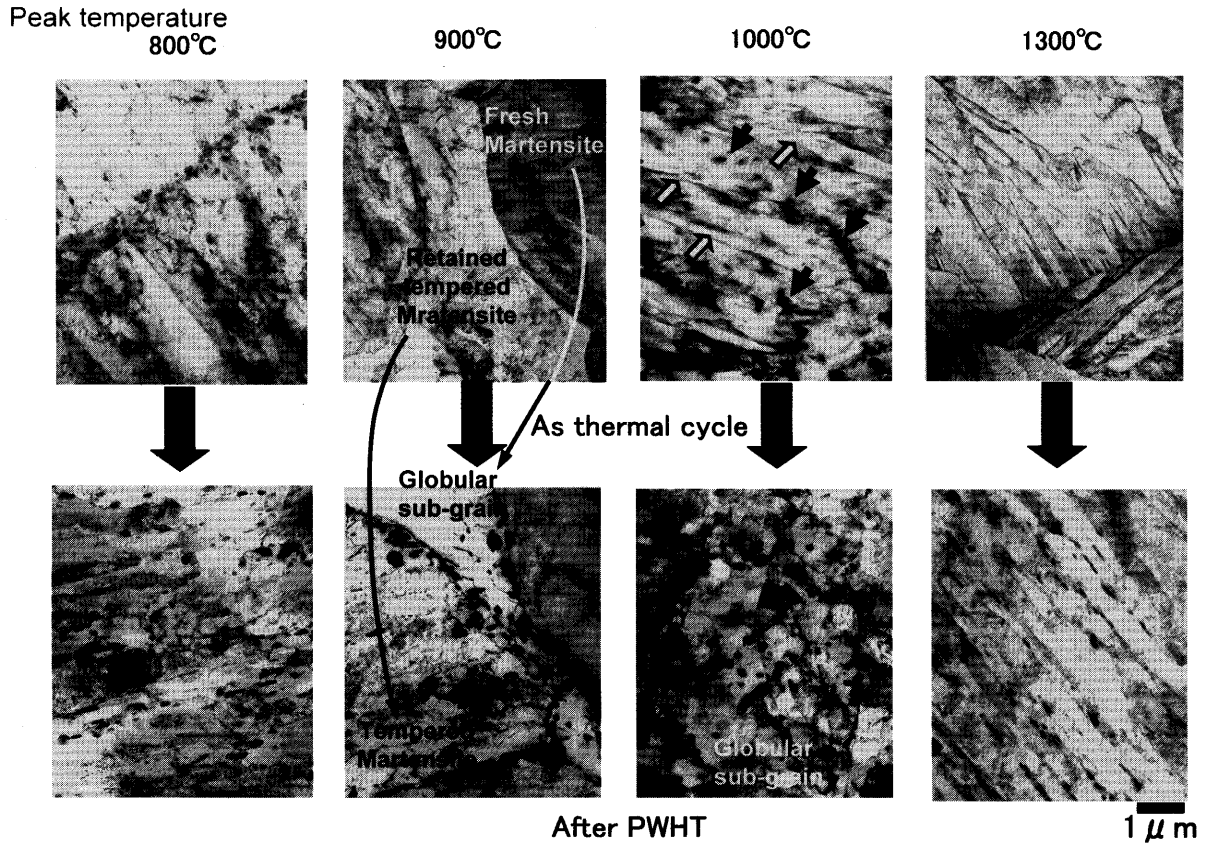


Fig. 9. Dislocation substructure transition through the HAZ thermal cycle simulation and PWHT. "Retained tempered Martensite" stands for the parent microstructure without transformation at the dual phase zone for the peak temperature of thermal cycle.

わち、740°Cの溶接後熱処理によって、高Crフェライト系耐熱鋼のクリープ特性と密接な相関を有する⁸⁾ラス構造が消失してしまっている。同様な観察結果はTabuchiらの報告にもある⁴⁾。前節の結果を参照すると、この組織がクリープ破断寿命の低下、すなわちType IV損傷を生起する転位組織にあたる。このPWHT時の組織変化についても考察で詳細に検討する。最高加熱温度が900°Cの場合では最高加熱温度800°Cの組織と1000°Cの組織の双方が混在していることが、溶接熱サイクルまま、およびPWHT後とも確認できる。最高加熱温度900°CはHAZの変態点 Ac_1 と Ac_3 の中間温度であるため、二相組織となることは必然であり、観察結果から生成過程を理解することは容易である。

4. 考察

上述の実験結果を総括して記述すれば、Type IV損傷の発生位置は細粒域であり、その転位組織はPWHT後にラス構造を持たない多面体フェライト組織である。この転位組織がType IV損傷を生起させる組織であると判断できるため、その生成機構を詳細に検討することはType IV損傷の抑制あるいは防止の観点から重要である。

4.1 HAZ細粒域の炭窒化物の固溶・析出挙動

HAZ組織は転位組織と析出物の2種類の因子からなる。そこで本節では炭化物の熱サイクル時の固溶・析出挙動を、HAZ再現熱サイクル時の主要炭化物形成元素、Cr, Fe, Nb, Vの析出量の定電位電解抽出残渣定量試験結果を参照して検討する。HAZ再現熱サイクル時の最高加熱温度と析出物構成金属元素の析出量の関係をFig.10, 11に示した。

主に粒界に0.1~0.5 μm 程度の粒子径で析出する $(\text{Fe, Cr})_{23}\text{C}_6$ (以降 $M_{23}C_6$ と表記する)の固溶・析出挙動は、Fig.10のCrとFeの析出定量結果が示すように、 Ac_1 変態点近傍の温度から再固溶を開始し、 Ac_3 変態点以上の温度では母材に比較してCrが約80%、Feが約60%再固溶したことが判る。Mの構成比をEDX分析における比強度ピーク比からほぼ同等(Cr:Fe=1:1)と見積もれば $M_{23}C_6$ の約70%が再固溶し、30%が未固溶で残留したことになる。

粒内の転位上には主にNb(C,N)とV(C,N)が複合析出し、それらの結晶構造は一片が約0.445 nmないしは0.415 nm程度の立方晶であり、粒子径が10~50 nmと小さい場合はBCC構造のフェライト基材との整合性が良い⁹⁾と考えられている。Fig.12にはMX型炭窒化物が粒内析出している様子を、TEMによる薄膜像と個々のEDX分析結果とともに示した。PWHT後における溶接継ぎ手の細粒域における観察結果である。これら立方晶の粒内析出炭窒化物 (以降、

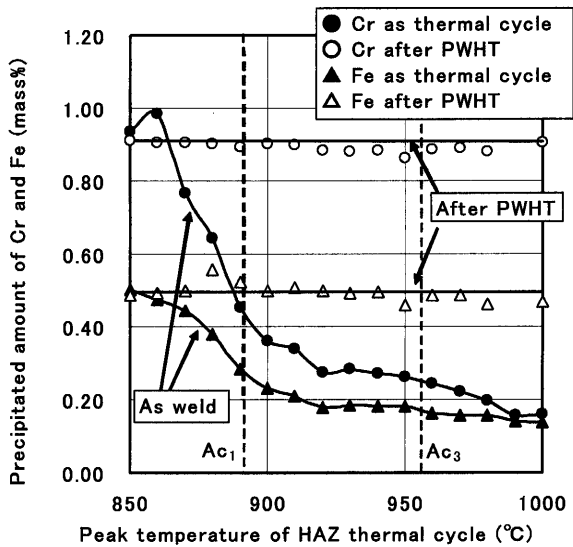


Fig. 10. Precipitated Cr and Fe amounts for each part of HAZ based on the thermal cycle simulation and after PWHT showing the measured transformation points.

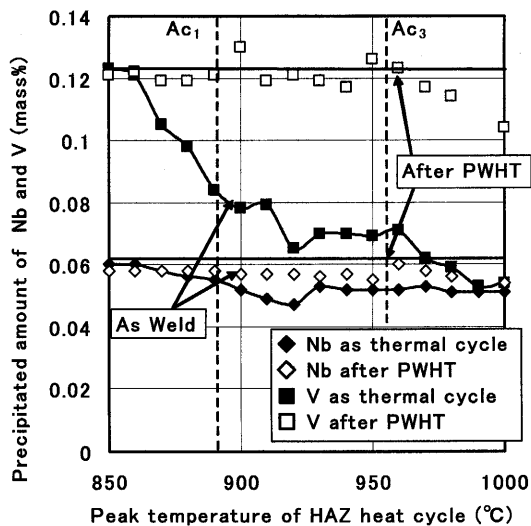


Fig. 11. Precipitated Nb and V amounts for each part of HAZ based on the thermal cycle simulation and after PWHT showing the measured transformation points.

MXという総称を用いる場合がある)の固溶・析出挙動はFig.11に示すとおり、 $V(C,N)$ は $M_{23}C_6$ と同様に $\alpha \rightarrow \gamma$ 変態点近傍から分解を開始し、 Ac_3 変態点以上に加熱された場合は母材鋼板に比較して母材中析出Vの約50%が固溶し、50%が未固溶で残留する。Nbについては変態点以上の温度に再加熱された場合でも90%が未固溶で残留し、ほとんど再固溶しない。これらの炭化物および窒化物のうち、最も分解量が多いのは、Fig.10の結果から判断すれば主に粒界炭化物 $M_{23}C_6$ である。また、未固溶で残留した炭窒化物の量は化学量論比と抽出残渣定量分析結果から $M_{23}C_6$ とVCがほぼ等量と推定される。これらの炭化物ないしは窒化物は、全て溶接後の熱処理で母材同等の析出量を回復することもFig.10およびFig.11は示している。 $M_{23}C_6$ はほとんどが粒界に析出し、大傾角粒界である旧 γ 粒、内部のポケット粒およびブロック粒の粒界に並んで析出している。MXはラス内の転位上に微細分散している。したがって、HAZ熱サイクルによって逆変態後に未固溶ままで列状に並んで残留している炭化物があれば、それはHAZ熱サイクルを受ける前の組織の大傾角粒界上に析出していた $M_{23}C_6$ と考えられ、その配列状態は前組織の粒界構造を示すものと考えることができる。すなわち、Fig. 9の細粒域転位組織に見られた列状に並んだ析出物は、熱サイクル時に未固溶ままで残留した $M_{23}C_6$ であり、ラス構造に無関係な線状配置は、その間隔から推定して前組織のブロック粒界の痕跡を示していると説明することが可能である。これら未固溶析出物の輪郭は不明瞭で、周囲に暗影部位を伴っていた。未固溶炭化物は分解途上にある析出物であって、外周部から分解固溶していくものと推定され、その周囲には分解後に拡散していくCあるいはCrが高濃度に残存していると考えすることは不可能ではない。CrまたはC濃度が不均一であれば、薄膜試験片作成の際に耐食性の違いから厚みが均一とならず、CrまたはC濃度の高い部位は周囲に比較して膜が厚く、観察時には周囲よりも暗く映ることが考えられる。すなわちFig. 9の細粒域および二相域に見られた析出物周囲の暗い部位は、炭化物が分解してCrまた

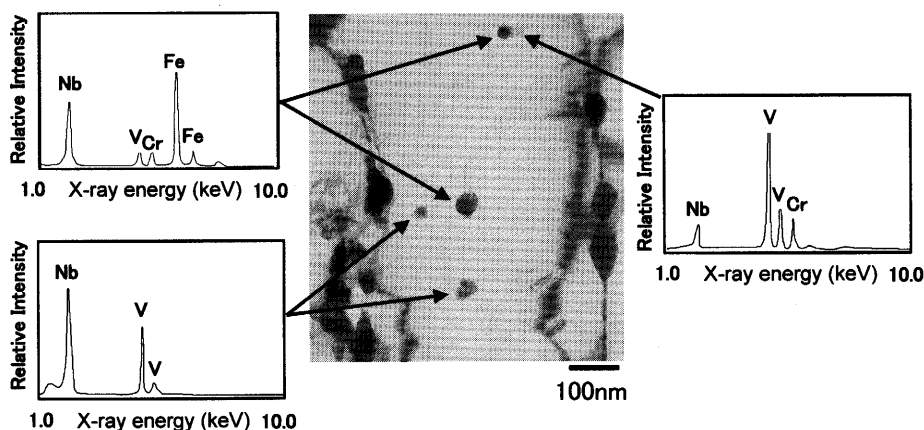


Fig. 12. Transmission Electron micrograph of MX type carbo-nitrides in block grain with EDX analyses.

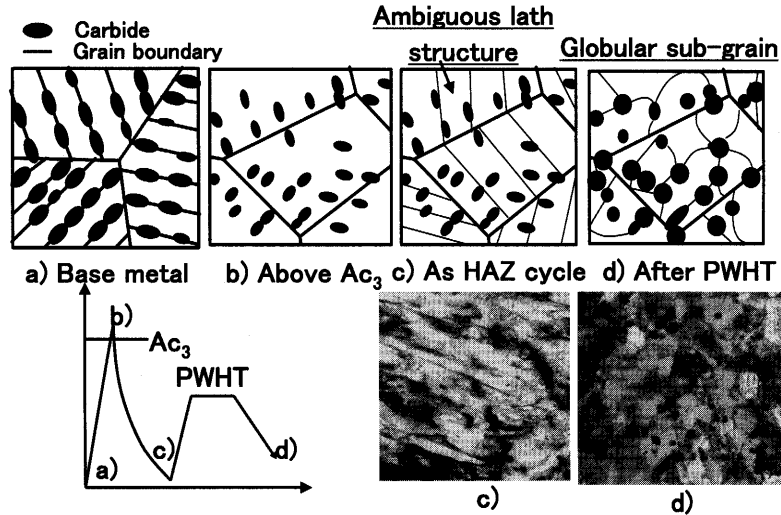


Fig. 13. Schematic drawings of the dislocation substructure development through thermal cycle of fine grain HAZ and PWHT.

はCが拡散途上にあった析出物形成元素濃度の高い領域であると推定できる。この推定は今後、高分解能軽元素分析装置等で確認する必要がある。

一方、NbまたはVの炭窒化物も同様に分解固溶するが、 $M_{23}C_6$ に比較して微細であり分解量も少ないことから同様の組織変化を伴うと推定されるが、Fig. 9の薄膜組織上では画像の拡大率の関係から詳細には組織変化が捉えられていないと思われる。これらMX炭窒化物の析出状態変化はクリープ破断寿命に大きな影響を及ぼすと考えられるため、Type IV損傷の主たる組織因子の一候補と考えられる。

4.2 粒界炭化物の固溶・再析出を考慮したHAZ組織の生成過程

前項の検討結果を総括し、Fig.13に示した模式図と対応写真を用いてHAZ細粒域組織の形成過程を考察する。a)熱サイクル前の母材中には粒界析出物($M_{23}C_6$)を伴う焼戻しラスマルテンサイト組織が発達している。図a)の粒界は全て大傾角粒界である。b)組織がHAZ外縁相当の熱サイクルを受け、最高加熱温度が Ac_3 を超えると、BCC構造はFCC構造に逆変態し、同時に粒界析出物 $M_{23}C_6$ は粒内析出物MX炭窒化物とともに固溶するが、保持時間が十分でないために一部は未固溶ままとなる。また、逆変態 γ も温度が比較的低いために成長できず細粒のままである。c)直後の冷却では未固溶炭化物相当分の炭素が不足した状態で、かつ γ 粒径が小さいままラスマルテンサイトに再度低温変態するが、固溶炭素の減少は実質的に Ms 点を上昇させ、比較的高温で変態するために、内部の転位密度が低下した組織となっており、焼入れ性は母材に比較して低下していると考えられる。以降、本稿ではこのように焼入れ性が低下し、HAZ細粒域でのみ見られるPWHT前のマルテンサイトを特に「弱マルテンサイト組織」と呼称する。d)転位組織観察結果ではPWHT後にはこのラスマルテンサイトが完全に消失し、全て多面体フェライトからなるサブグレ

イン組織へと変化していた。PWHT前のマルテンサイト組織は、細粒化と固溶炭素欠乏によって構造こそラスマルテンサイトを維持はしたものの、母材に比較して焼戻し軟化抵抗が低下しており、その結果740°C、1時間のPWHTで容易にラスマルテンサイトを形成していた小角粒界であるラス境界が、PWHT中に内部応力の低下(ラス組織の回復)によって移動し、再配列して組織エネルギー状態の低いサブグレイン組織に変化したとする説明は可能である。同時にPWHT時には炭窒化物の析出量は回復するが、HAZ熱サイクル前の母材と異なって大傾角粒界以外にも、粒内の未固溶炭化物を生成サイトとして炭化物が析出する¹⁰⁾。Fig. 9で観察された未固溶炭化物は周囲に残留していた高濃度のCrまたはCを集めるのみでなく、ラスマルテンサイト基材に過飽和に固溶している炭素が拡散して、粒内析出物上への析出がさらに生じ、結果として炭化物は数を減じて粗大化する可能性があり、事実d)の対応写真中には粗大な塊状析出物を見いだすことができる。以上が実験結果に基づいたHAZ細粒域転位組織の推定生成機構である。

細粒域以外の組織生成過程は概略以下のごとく説明できる。

最高加熱温度が800°Cと Ac_1 変態点以下の場合のHAZ熱サイクルではFig.10の結果から推定して炭化物はほとんど再固溶せず、単に母材の組織が高温短時間の焼戻しを複数回受けた場合の変化しか生じない。最高加熱温度が1300°Cと Ac_3 点を大きく超える粗粒域では、炭化物がHAZ熱サイクル後にほとんど観察できないことから少なくとも $M_{23}C_6$ が完全に再固溶し、PWHTによって改めて新生粒界に析出したと考えられる。粗粒域は炭化物の完全再固溶により母材と同等の固溶炭素を含有し、 γ 粒径も大きくなるために焼入れ性が低下せず、PWHT後も高密度ラス内転位を有するラスマルテンサイトを獲得できたと考

えられる。最高加熱温度900°Cの組織は二相組織であるから、細粒域の弱ラスマルテンサイト構造から生じた回復組織と母材に準じる焼戻しマルテンサイト組織が混在する部位と見なすことができる。この二相組織においても、細粒域と同じように弱マルテンサイトがPWHTで回復サブグレイン化した組織が部分的に存在し、その存在比率は二相組織の最高加熱温度に応じて変化し、 Ac_3 温度近傍では大半が回復サブグレイン組織からなる組織となっている。この回復サブグレイン組織がType IV損傷を生起する組織であることから、二相組織の細粒域近傍も完全細粒域とほぼ同程度までクリープ変形抵抗が低下しており、溶接継ぎ手の形状次第では主応力の最大となる部位があるとすれば¹¹⁾、二相組織内の細粒域近傍が最終破断位置となる場合は十分に想定可能である。従来の報告では、金属組織を二相域と細粒域で明瞭には区別していない例も見られる¹²⁾が、その発生位置を分類していなかった理由は上述のような機構が関与していた可能性がある。

すなわち、Type IV損傷の発生は組織変化が主因であると考えることによって、HAZの金属組織の部位ごとの名称で発生位置を特定するのではなく、原因となる転位組織の種類で特定する方がより正確な区分が可能となるものとの考えに至った。

なお、Type IV損傷の発生がHAZ熱サイクルによる組織変化に基づくものであると考える場合、低温・高応力の場合に顕在化しないことについては、森本ら¹²⁾がボイド形成の機構を含めて、細粒域の幅が狭いことによる拘束効果であるとの考えを得るに至っており、本実験でも拘束効果が早期に消失する700°Cのクリープ破断試験結果では600°Cの場合に比較して短時間でType IV損傷が発生したことから推定して妥当であると考えられる。

以上、Type IV損傷を生じる転位組織を電子顕微鏡組織観察によってほぼ特定することができた。今後、同組織のクリープ抵抗を低下させる機構についての研究がType IV損傷の機構解明の指導原理獲得に重要であり、同抑制技術の開発に貢献するものと期待される。

5. 結言

フェライト系耐熱鋼溶接熱影響部に特有の課題であるType IV損傷の発生機構解明を目的として、W含有9%Cr鋼(ASME Gr.92相当鋼)を実験室溶解で模擬して対象材料とし、Type IV損傷の発生部位を形成する組織について詳細に検討した結果、以下の結論を得た。

(1) Type IV損傷が生じる組織は、溶接時の熱影響によって一度 Ac_3 変態点直上の1000°C近傍に再加熱されるこ

とで生成した「細粒域」であることを実験的に明らかにした。

(2) 透過電子顕微鏡観察により、溶接後熱処理付与後では細粒域の転位組織は回復サブグレイン組織であって、ラスマルテンサイト構造を有していないことが認められた。

(3) 回復サブグレイン化した組織はHAZ外縁の受ける熱サイクルによって Ac_3 変態点直上に加熱されることで一度完全に γ 組織となり、その後短時間のうちに再度ラスマルテンサイトに焼入れられることに起因する炭化物の不完全固溶、すなわち低温変態時の固溶炭素の減少に起因して焼入れ性が低下した弱マルテンサイト組織が、その後のPWHTにより短時間のうちに回復して変化した組織であると説明することができた。

(4) HAZ細粒域を構成する回復サブグレイン組織は、HAZ外縁熱サイクルを通じた粒界炭化物(主に $M_{23}C_6$ 型炭化物)の粗大化を伴っていた。

(5) PWHT時に生成する回復サブグレインの再現組織のクリープ破断寿命は他の再現部位のクリープ破断寿命に比較して700°C、60 MPaおよび70 MPaの初期応力を与える場合には最も短く、同条件下での溶接継ぎ手のクリープ試験においては明瞭なType IV破壊形態が認められたことから、回復サブグレイン組織がType IV損傷の原因となる転位組織であるとの推定に至った。

(6) 細粒域は溶接熱影響部を形成する組織の中での最軟化部ではなく、したがって室温強度特性はType IV損傷と直接の関係がなく、「継ぎ手の最軟化部への歪み集中が主な原因」である、通常の炭素鋼のHAZ軟化とは全く異なる現象であるとの結論に至った。

文 献

- 1) M.C.Coleman, J.D.Parker and D.J.Wlter: *Int. J. Pressure Vessels Piping*, **18** (1985), 277.
- 2) T.Ogata and T.Yaguchi: *J. Soc. Mater. Sci. Jpn.*, **48** (1999), 137.
- 3) Y.Hasegawa: 耐熱金属材料123委員会研究報告, **44** (2003), 375.
- 4) M.Tabuchi, T.Watanabe, K.Kubo, M.Matsui, J.Kinugawa and F.Abe: *J. Soc. Mater. Sci. Jpn.*, **50** (2001), 116.
- 5) 川上繁幸: 日本機械学会, 材料陸学部門後援会講演論文集, 930-73 (1993), 398.
- 6) F.V.Ellis: *Proc. ASME PVP Conf.* **288** (1994), 165.
- 7) K.Sawada, M.Takeda, K.Maruyama, R.Komine and Y.Nagae: *Tetsu-to-Hagané*, **84** (1998), 580.
- 8) Yano: *Bull. Jpn. Inst. Met.*, **11** (1972), 203.
- 9) T.Ogata, M.Yaguchi: *J. Therm. Nuc. Power*, **51** (2000), 585.
- 10) M.Matsui, M.Tabuchi, T.Watanabe, K.Kubo and F.Abe: *J. Soc. Mater. Sci. Jpn.*, **52** (2003), 122.
- 11) S.Fujibayashi, T.Ohtsuka, T.Endo: *Tetsu-to-Hagané*, **88** (2002), 326.
- 12) H.Morimoto, S.Ohkita and M.Fuji: *CAMP-ISIJ*, **13** (2000), 249.