

# 高Crフェライト系先端耐熱鋼のType IV型 クリープ損傷の組織支配因子の考察

長谷川 泰士\*・村木 太郎\*・大神 正浩\*<sup>2</sup>

Creep Deformation Process Determining Microstructure of Type IV Creep Damage of  
the Advanced Ferritic Heat Resistant Steel with High Cr Content

Yasushi HASEGAWA, Tarou MURAKI and Masahiro OHGAMI

**Synopsis** : Type IV damage deteriorates the creep rupture strength at higher temperature than advanced Ultra Super Critical fossil power plant operation temperature, 600°C. Its metallurgical investigation is expected to avoid the creep damage at the outer edge of HAZ of welded joint.

Metallographic analyses were carried out to clarify the micro-mechanism of Type IV failure for advanced ferritic creep resistant 9% Cr steel, ASME Gr.92. Assuming the Type IV failure arises at fine grain HAZ through the welding thermal cycle, the comparison of three candidate mechanisms, grain size refinement, dislocation sub-structure evolution and precipitation morphology development through the thermal cycle at HAZ, decided that the creep deformation process determining microstructure at HAZ is the globular sub-grain microstructure generated by thermal cycle of welding and PWHT. The creep test at 700°C of simulated globular sub-grain microstructure characterized the typical type IV phenomena on creep rupture curve. Precipitation morphology change by thermal cycle did not explain the creep time dependence of rupture strength difference between base metal and HAZ.

Further works on the stress and temperature dependence of the creep life of Type IV phenomena is expected to subdue the creep life deterioration.

**Key words**: creep; heat affected zone; creep resistance; dislocation; Type IV failure.

## 1. 緒言

高効率発電プラントの蒸気条件の向上に不可欠の部材を構成する高Crフェライト系耐熱鋼には、環境負荷低減の観点から高いクリープ強度が必要であり<sup>1)</sup>、これまでに9~11% Cr鋼のクリープ特性向上研究が精力的に進められ<sup>2)</sup>、一部には600°C、10万時間のクリープ破断強度が100 MPaを凌駕する材料が実用化されている<sup>3)</sup>。しかし、ほぼ全てのフェライト系耐熱鋼には溶接熱影響部（Heat Affected Zone, 以降HAZと略記する）外縁の細粒域に発生する、Type IV損傷と称される低延性破壊型のクリープ寿命低下現象が見られ、設計による応力負荷の軽減対策などで、ある程度の緩和が可能ではあるが、発生機構が明確でないことから根本的な解決策は提案されていない。著者らは機構解明のために必要な、Type IV損傷が発生する溶接継手の部位とマイクロ組織を特定し、同転位組織の生成機構についての仮説を提案している<sup>4)</sup>。すなわち、以下の事実を実験的に再現し、明らかにした。

①HAZ外縁に相当する部位は母材の焼戻しラスマルテンサイト構造が急熱・急冷される場合に一度A<sub>c3</sub>点直上に

再加熱され、フェライト相( $\alpha$ )がオーステナイト相( $\gamma$ )へ逆変態するが、最高加熱温度はたかだか1000°C近傍であって、 $\gamma$ 粒は短時間の内に冷却され、成長することなく細粒域と呼ばれる組織を形成する。

②細粒域ではクリープ破断寿命が他の溶接継手部位に比較して短く、クリープ変形抵抗が低下していると考えられる。

③細粒域の転位組織は、短時間HAZ熱サイクルで生じる炭化物の不完全固溶に起因する基材の固溶炭素低下と $\gamma$ 粒径の微細化により、冷却時に生成するラスマルテンサイト構造の焼入れ性が低下して、続く溶接後熱処理（Post Weld Heat Treatment, 以降PWHTと表記する）によって回復サブグレイン組織化する。

④不完全固溶炭化物上には炭化物が再析出して、HAZ熱サイクルとPWHTに起因する析出物、主に(Fe,Cr)<sub>23</sub>C<sub>6</sub>（以降M<sub>23</sub>C<sub>6</sub>と呼称する）と(Nb,V)(C,N)（以降MXと呼称する）の粗大化が生じる。

以上のType IV損傷発生組織の特定と組織生成機構の推定により、Type IV損傷を生成する組織が有する特徴はほぼ金属組織学的に説明することが可能となる。しかし、根

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)

本的な解決技術を考える上で不可欠の、同組織におけるクリープ破断寿命の低下を支配する組織因子を明らかにした研究は未だにない。そこで、本稿ではType IV損傷を生じる組織のクリープ変形抵抗の低下機構を、前記生成機構から推定できる主な候補と考えられる3つの組織因子、すなわち①結晶粒径の細粒化、②細粒域に生成する回復サブグレイン組織のクリープ変形抵抗、または③粒内析出物の溶接熱影響部における粗大化に分類し、それぞれについて実験的検証と推定計算を加えて、主たる支配因子を材料科学的に解明することを試みた。これら3つの候補因子以外では、例えば通常の低炭素鋼に生じるHAZ軟化部への歪み集中説があるが、既に著者らが明らかにしたように<sup>4)</sup>、Type IV損傷を生じる組織（部位）と室温での軟化部の組織とが異なっており、しかもHAZ細粒域の室温強度は溶接継手の最軟化域と異なって比較的高いことが明らかであるため、検討の対象から除外した。

## 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・铸造した後に、1150°Cで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した後に770°Cで1時間焼戻す「焼準し-焼戻し」処理を施し、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、また焼戻し後の光学顕微鏡組織をFig. 1に示した。供試鋼は高Cr鋼であるため、焼準処理でも比較的厚鋼板においてマルテンサイト組織を得ることができる。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 溶接継手の製作

母材鋼板を用いて、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の条件で溶接継手を製作した<sup>4)</sup>。溶接終了後は溶接試験片全部を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。溶接継手からは平行部直径6mmのクリープ試験片を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一位置から採取した。

### 2.3 溶接継手相当熱サイクル試験

HAZ外縁部が受ける熱履歴のうち、主にType IV損傷を生じる組織のみで構成される部位長が10mmとなる再現熱

Table 1. Representative chemical compositions of ASME Gr.92 steel.

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



20 μm

Fig. 1. Optical micrograph of specimen, ASME Gr.92 steel.

サイクル試験片を高周波誘導加熱装置を用いて作成した。熱サイクルの条件には昇温速度50°C/s、最高加熱温度1000°C、保持時間2秒、冷却速度は800°Cから500°C通過時間を16秒とした<sup>4)</sup>。PWHTは大型電気抵抗炉で、試験片全体に別途実施した。

### 2.4 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、溶接継手試験片、相当熱サイクルシミュレーション試験片について、原則6mmφの平行部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。試験時間短縮のため700°Cの温度加速試験を主に実施した。クリープ歪み測定には平行部両端に歪み検知用環状突起を付した試験片を用いた。

### 2.5 金属組織および転位組織の観察と炭化物および窒化物の定量と析出強化量の推定

前記の各種試験片から、クリープ試験前後および途中で光学顕微鏡と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、主に転位組織と析出物の形態を観察した。析出物構造は電解抽出残渣の定量分析と同残渣の広角X線回折、および電子線回折パターン解析を併用して総合的に判断した。また、粒内析出物についてはさらに薄膜観察結果を、画像解析装置を用いて析出密度、平均粒子直径、粒子間隔を計測した。

## 3. 実験結果

### 3.1 溶接継手のクリープ破断試験結果

実溶接継手のクリープ破断試験結果は、すでに報告した<sup>4)</sup>ように600°Cでは母材の破断時間が1万時間以上とな

る場合の条件でType IV損傷が発生し、それよりも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。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。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。Type IV損傷発生の温度あるいは応力依存性については機構の推定における考察で検討する。

### 3.2 溶接継手のクリープ歪み曲線

溶接熱影響部のクリープ歪-時間曲線を700°C, 70 MPaの条件において、Fig. 2に母材と比較して示した。溶接熱影響部がType IV損傷が発生する条件において、HAZと母材のクリープ歪み曲線には極短時間においては明確な差異が認められず、HAZの場合は早期に加速クリープ域へと

移行し、小さな伸びで破断していることがわかる。母材は継手が破断する時間帯でも定常状態と思われる変形を継続している。クリープ歪み速度-時間曲線をFig. 3に、母材と比較して示した。時間軸は対数をとってクリープ遷移領域を拡大してある。溶接熱影響部と母材の遷移クリープ曲線はほぼ同じ傾きを有しており、最小クリープ歪み速度はクリープ破断時間が長いほど低下したが、Fig. 3の例では数倍程度の低下となった。一般にクリープ最小歪み速度と破断時間の関係は鋼種ごとに異なるものの、破断時間に依存して低下することが知られている。しかし、Fig. 4では溶接継手の歪み曲線が、最小クリープ歪み速度に達した後に急激に立ち上がっており、明らかに母材の歪み曲線とは異なる。すなわち、両者の差異は主に加速クリープ

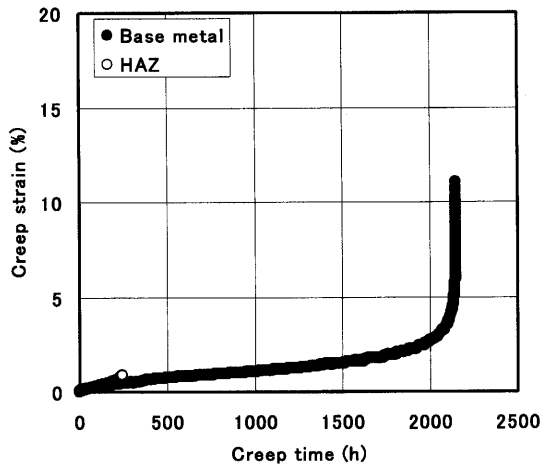


Fig. 2. Creep strain curves of HAZ of weld and that of base metal at 700°C and 70 MPa.

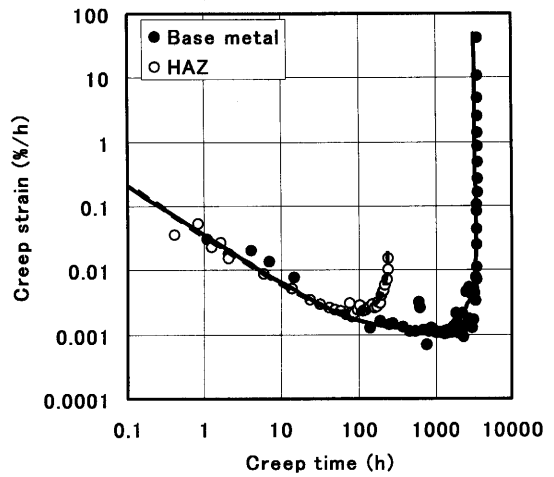


Fig. 3. Creep rate curves of HAZ of weld and that of base metal at 700°C and 70 MPa.

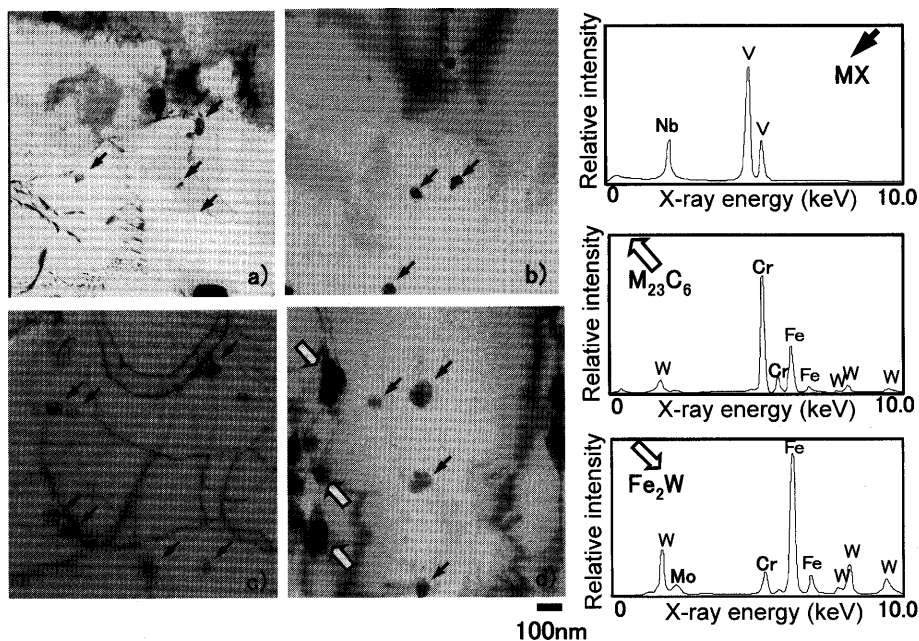


Fig. 4. Image and EDX analyses of creep interrupted specimens' microstructures through TEM observation. Base metal microstructure of interrupted specimen at 700°C of both a) at 24 h creep and b) at 500 h creep. HAZ microstructure of interrupted specimens at 700°C of both c) interrupted at 24 h creep and d) ruptured at 409 h creep.

の開始時間が異なっていること、破断伸びが異なっていること、さらには加速クリープ域における変形挙動が異なっていることがわかった。

### 3.3 HAZおよび母材の700°Cクリープ試験における、析出物粒子径および析出密度測定結果

700°Cの温度加速試験において、母材とHAZのType IV損傷発生位置、すなわち細粒域における粒内析出物の析出密度を透過型電子顕微鏡により薄膜上で測定した結果を、初期応力60MPa一定の条件下にて、クリープ試験後24, 100, 500, 1000の各時間、すなわち母材では順に遷移領域初期、遷移領域後期、クリープ最小歪み速度域、加速クリープ域であり、再現HAZでは同様に遷移領域、クリープ最小歪み領域、加速クリープ域、で停止した場合と破断時点についてそれぞれTable 2に示した。また、析出物の平均粒子径の抽出レプリカ上における測定結果も同時に示した。クリープ開始直後24時間途中停止の時点では母材とHAZの析出物サイズ、析出密度には大きな差があるものの、時間の経過とともに母材では析出密度が急激に減少し、粒子径も同様に粗大化する。HAZでは最初から低密度、かつ粗大析出となっているが変化は小さく、長時間側では両者の差異は減少する傾向が見られる。基本的にHAZと母材の析出物種類には変化がなく、MX型炭窒化物であり、NbあるいはVでの析出強化を意図した耐熱鋼に見られるNbCとVNの複合析出形態であるV-Wing<sup>5)</sup>型MX炭窒化物も、母材とHAZで形態的な差異は認められるものの、両方に確認できた。HAZでは粒内析出物がクリープ開始前から粗大化していて、塊状のものが多く認められ、母材は立方体形状のNbCが多く認められた。析出状態を観察した代表的なTEM像をクリープ試験直後24時間で停止した場合と500時間経過後に母材では途中停止、HAZでは409時間で破断後の試験片平行部から採取した薄膜について、それぞれFig. 4に比較して示した。粒界析出物であるM<sub>23</sub>C<sub>6</sub>型炭化物とMX型炭窒化物のEDX分析結果を同時に示してある。Fig. 5にはV-Wing型MX析出物の像をHAZと母材、双方についてEDX分析結果とともに示した。

## 4. 考察

HAZ細粒域は<sup>4)</sup>、Type IV損傷の原因組織として3つの特徴(①結晶粒の微細化、②回復サブグレイン構造と炭化物相からなる転位組織、③炭化物の粗大化)、を有するが、本章ではそれぞれをクリープ破断曲線形態と破断寿命の観点から比較し、支配因子として特定する。

### 4.1 結晶粒の微細化の影響

高Crフェライト系耐熱鋼はクリープ試験の出発組織が低温変態組織であるため、旧 $\gamma$ 粒内部に微細かつ複雑な亜粒界構造を有する。著者らは固溶化熱処理前の鋼板製造時における熱間加工量を変え、調質時の熱処理を揃えた、結

Table 2. Creep time dependence of a particle size and precipitation density of MX type carbo-nitride in laths or sub-grains.

Morphologies of MX type precipitates		Creep time (h)				
		24	100	500	1000	2400
Number density (1/ $\mu\text{m}^2$ )	Base metal	30.43	7.82	4.94	3.74	2.83*
	HAZ	7.61	7.64	4.64*		
Averaged size ( $\mu\text{m}$ )	Base metal	0.05	0.08	0.090	0.100	0.12*
	HAZ	0.07	0.06	0.083*		

\* data of ruptured specimen at 409 hours for simulated HAZ and at 2400 hours for base metal.

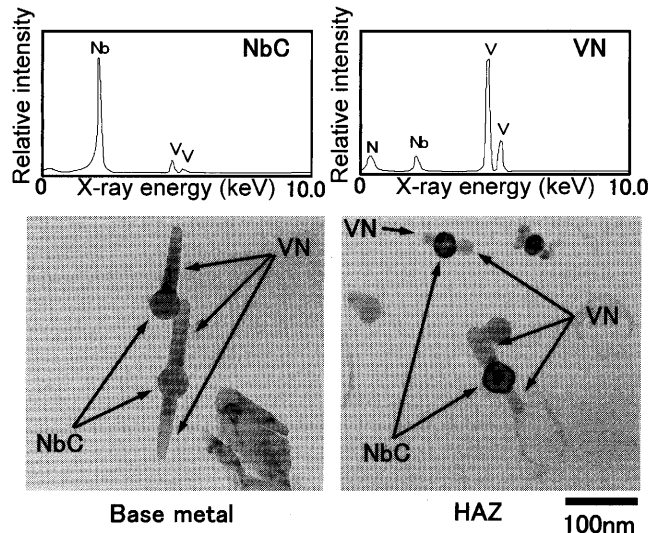


Fig. 5. V-Wing type MX precipitates identified both in a) base metal and b) in HAZ.

晶粒径が異なる同一化学成分の鋼材についてのクリープ破断強度を比較検討し、結晶粒径のクリープ破断特性に与える影響を明らかにした。高Crフェライト系耐熱鋼は700°Cにおいて光学顕微鏡組織の最小単位であるブロック粒径(長径)と破断寿命に相関を有し、粒径が大きいほど長寿命であって、結晶粒径と破断寿命の関係が次式で表せることを提案している<sup>6)</sup>。

$$\frac{t_{rHAZ}}{t_{rBASE}} = \left( \frac{d_{HAZ}}{d_{BASE}} \right)^{\gamma p} \dots \dots \dots (1)$$

ここで $t_r$ はクリープ破断寿命、 $d$ はブロック粒長径、 $\gamma$ はMonkman-Grantの歪み定数<sup>7)</sup>であり、すなわち最小クリープ歪み速度と破断寿命が直線則を満たすとの仮定が必要である。 $p$ は1.3程度の定数であり、クリープ最小歪み速度の結晶粒径指数である。BASEとHAZは相対比較する材料の対応略記号であり、(1)式は相対比較式であることに留意が必要である。そこで、母材にBASE、HAZ細粒域にHAZの記号をあてて(1)式を適用する。今回は細粒部のブロック粒長径は光学顕微鏡組織上の旧 $\gamma$ 粒の平均粒径である約 $9\mu\text{m}$ を適用し、(1)式提案時の適用ブロック粒径下限 $10\mu\text{m}$ をやや下回るものの、そのまま細粒組織へ応用している。同様に母材部の平均ブロック長径は実測値で $16\mu\text{m}$ であった。一方でクリープ歪み速度と破断寿命の関

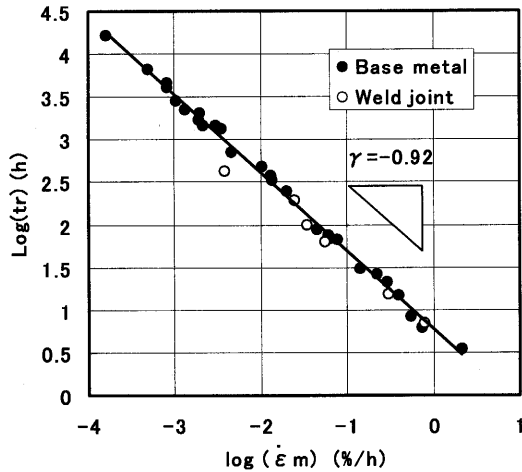


Fig. 6. Monkman-Grant plot of Gr.92 steel for minimum creep rate and rupture time including the data of weld joint.

係は、母材・HAZともにFig. 6に示すごとく、破断寿命と最小クリープ歪み速度を同一線上にプロットでき、700°CのHAZ測定結果と母材双方のデータを用いて $\gamma=0.92$ と求めることができた。これらの値と700°C 70 MPaのクリープ初期応力の場合の破断寿命を適用すると、同一初期応力の場合のHAZ破断寿命は

$$t_{rHAZ} = 0.5 \cdot t_{rBASE} \dots \dots \dots (2)$$

と表すことができ、測定誤差を考慮すれば概略50%の寿命低下、すなわち母材の1/2と予測される。ところが、実際の寿命低下はFig. 4では母材が約1000時間に対してHAZは70時間程度と、1/10以上であることから、推定絶対値としては1/5程度を説明できるにすぎない。また、上記の考え方が正しい場合、温度と応力に依存せず常にHAZ破断寿命は母材に対して一定の寿命比率を示すはずであるから、Fig. 2の破断曲線が示すような高温低応力長時間ほど破断寿命差が拡大する傾向を組織変化のみからは説明できていない。寿命比の絶対値と破断寿命比の時間依存性を双方ともに説明できていないことから、結晶粒径の微細化効果は、単独ではType IV損傷を支配する機構ではないとの考えに至った。

#### 4.2 HAZ細粒域相当熱サイクルに起因する転位組織の変化再現実験と考察

HAZ細粒域は回復サブグレイン組織からなり、この組織はPWHT時に細粒HAZ熱サイクルで生じた弱マルテンサイト構造が変化したものである。その変化は組織の焼戻し軟化抵抗の減少に起因していて、主に基材中の固溶炭素が熱サイクル時に減少することと結晶粒径の減少に起因すると考えられる<sup>4)</sup>。結晶粒径の影響については前節で検討していることから除外し、固溶炭素の低減が焼入れ性を低減する再現実験を別途考案し、抽出・評価することとした。Fig. 7に再現実験の熱履歴を模式的に示した。すなわち、

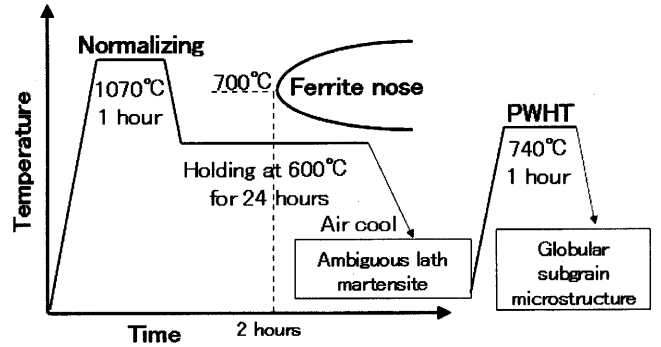


Fig. 7. Schematic drawing of a simulated thermal cycle of solved carbon shortage at HAZ.

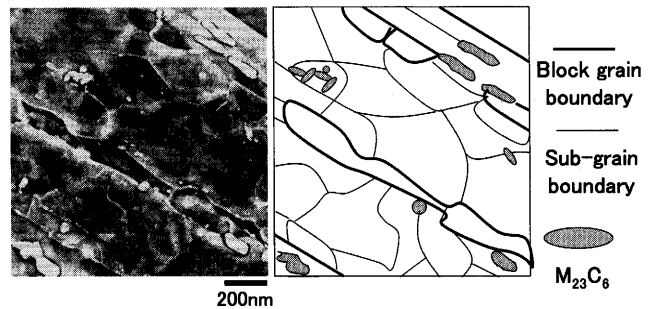


Fig. 8. Scanning Electron Micrograph of the simulated HAZ by carbon shortage thermal cycle with PWHT. The microstructure is composed of globular sub-grains in block grain structures of martensite and coarsened carbides.

母材を製造する際と同様に鋼板試験片を固溶化熱処理して結晶粒径を母材に一致させ、続いて冷却し、600°Cで冷却を停止して24時間保持する。その際に600°Cの $\gamma$ 相中での溶解度積で決定する量の炭化物が一部析出する。24時間では平衡には至らないが、HAZに近い炭化物析出状態を近似できることを別途実験的に事前検討し、保持時間を決定した。本模擬実験によって大傾角結晶粒径や粒界構造を母材と同等に揃えたまま、同時に固溶炭素量のみを減少させた試験片を得ることが可能であると考えた。固溶化熱処理後の途中停止保持温度を600°Cとした理由は、Gr.92鋼が700°C付近にフェライト相の変態ノーズを有することが、連続冷却変態線図<sup>9)</sup>より予想されたため、保持中にフェライト相の生成を回避するためである。クリープ特性は前記の「固溶炭素低減熱処理」を実施した後に、さらにPWHT相当の熱処理を与えた鋼板試験片から加工した平行部直径6mmφの丸棒引張り試験片で評価した。Fig. 8に固溶炭素低減熱処理とPWHT相当熱処理を与えた鋼板試験片の走査型電子顕微鏡組織(Scanning Electron Microscope: SEM像)とその解釈の図を示した。内部にラス構造を持たないブロック粒を認めることができる。すなわち、一度ラスマルテンサイト組織を形成し、PWHTでラス構造がサブグレイン化した細粒域組織を模擬していると考えられる組織が得られている。この固溶炭素低減熱処理とPWHT

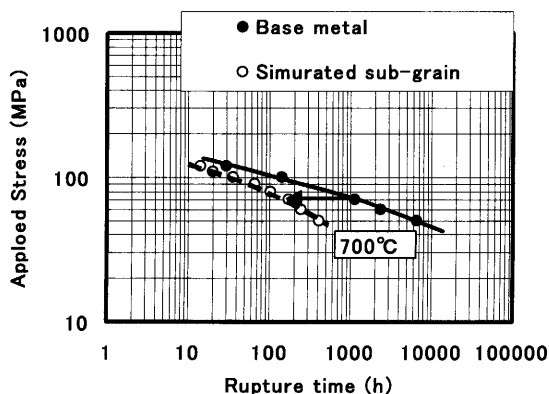


Fig. 9. Comparison of the creep rupture curves of simulated HAZ by carbon shortage thermal cycle and that of base metal.

を付与した試験片のクリープ破断強度を700°Cで測定した結果を、母材のものに対比してFig. 9に示した。溶接継手においてType IV破壊を呈した、700°C、70 MPaの条件ではクリープ破断寿命が約1/7に低下し、さらに、高応力(約120 MPa)の場合に比較して低応力(70 MPa以下)の場合では寿命比低減率が拡大する、Fig. 2に見られるType IV特有の傾向が再現できている。炭素の欠乏量を定量化するために、固溶炭素低減熱処理直後の状態で、鋼板の析出Cr量を定電位電解抽出残渣分析で定量した結果、0.27%であることがわかった。600°Cの $\gamma$ 相中で析出する $M_{23}C_6$ を構成するM中に60%のCrが含有されていることが熱力学計算<sup>9)</sup>により推定できる。このことから、Nbの全量、Vの半分が炭窒化物として析出していると仮定する場合、全てを加算すれば概略0.03%の炭素が未固溶炭化物中にトラップされていることになる。HAZ外縁の熱サイクル時の固溶炭素欠乏量は、その析出物の再現熱サイクル試験片の抽出残渣定量分析結果からほぼ0.03%であると分析できている。値は良く一致していることから、固溶炭素量が減少した状態のHAZに近い状況を擬似的に再現できていると考えた。固溶炭素減少による焼入れ性低下がクリープ変形抵抗に与える影響を確認するために、700°C、60 MPaの試験条件におけるクリープ歪み-時間曲線を、母材の結果と対比してFig. 10に、またクリープ歪み速度-時間曲線について同様にFig. 11にそれぞれ示した。母材のクリープ歪み曲線と比較すると固溶炭素低減熱処理を施した試験片の歪み曲線は、初期には曲線形状が母材と大差なく、途中から急激に加速域へ移行して破断に至ることがわかる。また、クリープ歪み速度-時間曲線では、遷移領域における曲線の傾きがほぼ同一で、加速クリープ開始時間の短縮と、最小クリープ歪み速度の破断時間変化に対応する増加が認められる。これらの傾向はFig. 2とFig. 3の比較で確認した、溶接継手とHAZの挙動の比較と全く同様であり、固溶炭素低減熱処理鋼板は母材との比較において、溶接継手のHAZの歪み曲線に類似した挙動を示すことがわかる。破

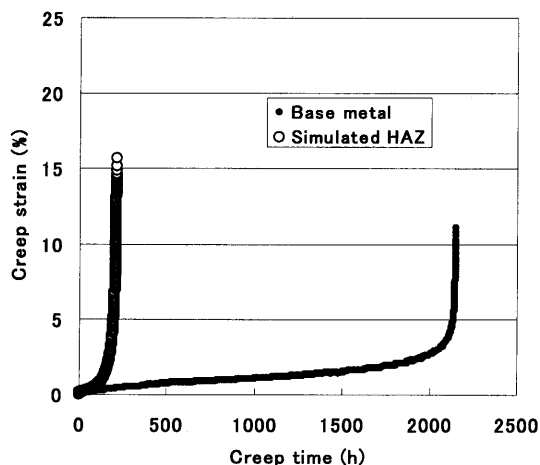


Fig. 10. Creep strain curves of simulated HAZ by carbon shortage thermal cycle and base metal.

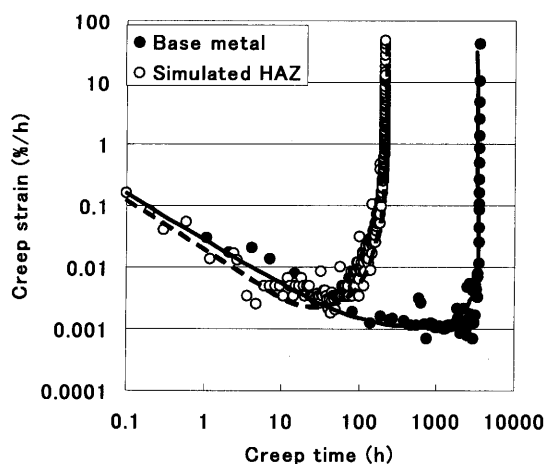


Fig. 11. Creep rate curves of simulated HAZ by carbon shortage thermal cycle and base metal.

断直前の加速領域における破断伸びについては溶接継手と固溶炭素低減熱処理鋼板では異なっていて、後者が大きい。この差は、溶接継手では細粒域の幅がクリープ試験片の評点間距離30 mmに対してたかだか2 mmと小さく、周囲の組織のクリープ変形抵抗が比較的大きい場合は加速クリープ時に変形できるのは2 mmの幅の細粒域だけとなり、評点間距離全体では小さな伸びしか観測できないためと考えられる。クリープ破断時間が短い場合には同時に周囲のクリープ変形抵抗が高い組織による拘束効果も考えられる。一方固溶炭素低減熱処理を施した鋼板から採取した試験片は、評点間距離の組織全てが回復サブグレイン組織、すなわちHAZの細粒域に相当する組織となっていて、変形が局所的ではなく均一で、しかも評点間全体が変形するために、絶対値として大きな伸びが観察できたと説明することが可能である。従来の研究でもType IV損傷は破断延性の小さな損傷と認識されてきたが、試験片の評点間距離と損傷組織の幅について言及したものはなく、新知見として本稿では留意すべき結果として提案する。すなわち、Fig. 10

と Fig.11 の結果は評点間距離と損傷組織幅の関係を考慮すれば、ほぼ同一の現象を示唆している可能性が考えられる。

Fig. 9 のクリープ破断寿命減少量は母材に対して 1/7 であり、溶接継手で観測した 1/10 以上の低下量と比較すると若干少ない。この理由は次のように推測できる。固溶炭素低減熱処理は大傾角粒界構造を母材と変化させずにラスマルテンサイト組織の回復を促したことにより、大傾角粒の粒径減少効果は実験的に除外されている。すなわち旧  $\gamma$  粒径の減少による焼入れ性の低下は再現していないため、実際の HAZ 細粒部では模擬熱処理に比較してさらに焼戻し軟化抵抗が低下していて、PWHT による組織回復度合いが高い。換言すれば、寄与は小さいものの旧  $\gamma$  粒径減少による焼入れ性低下の効果を検討すれば、固溶炭素欠乏による組織の焼入れ性低下は Type IV 損傷の破断寿命低下の大部分を説明している可能性が考えられる。Fig.12 と Fig.13 に、固溶炭素低減熱処理直後の電子顕微鏡写真とクリープ試験

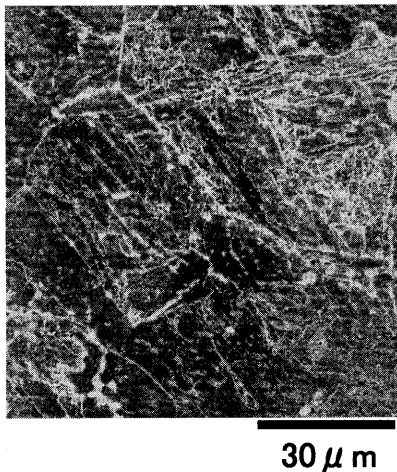


Fig. 12. SEM image of a globular sub-grain microstructure by carbon shortage thermal cycle with PWHT.

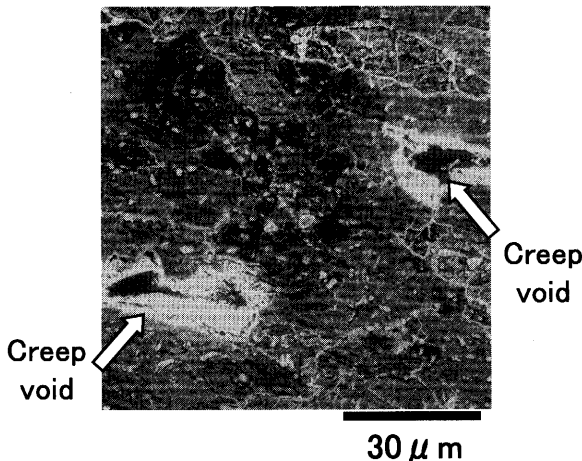


Fig. 13. SEM image of a degraded globular sub-grain microstructure by creep rupture at 700°C for 4000 h.

後の同組織の観察結果を示した。固溶炭素低減熱処理はラスマルテンサイト構造が PWHT でサブグレイン化したと推定できる組織を示すこと、およびクリープ延性に影響するほどではないものの、わずかながらポイドの形成を認めたとことから、溶接継手の細粒域組織の形態的な特徴を完全ではないが模擬しているものと考えた。ポイドはサブグレイン化した転位組織において、転位の易動度が増し、粒界への歪み集積の結果生じたものと推定されるが、今後細粒 HAZ における生成機構とともに実験的に確認すべき課題である。

しかし、Fig. 8 では粗大化した炭化物も見られることから、Fig. 9 の結果は析出強化因子の変化の効果を含んでいる可能性が残る。そこで次項では析出炭化物の粗大化によるクリープ破断寿命低下の効果を実験的に抽出・評価することとした。

#### 4.3 HAZ 細粒域相当熱サイクルに起因する粒内析出物の形態変化による強化応力の変化

Table 2 では HAZ と母材のクリープ時間変化に伴う粒内析出物の分布状態と形態の変化を示した。同表から、結晶の滑り面上での粒内析出強化応力、すなわちクリープ変形開始のしきい応力を推定することが可能となる。ここでは高温における組織回復と析出物の粗大化が生じていることを前提とし、粒内析出物と転位（主に刃状転位）の相互作用は、いわゆる室温以下で一般に想定される Orowan 応力<sup>10)</sup>ではなく、転位線が析出物と基材界面に垂直となるように吸収され、転位が析出物間を通り抜ける際に新たに転位線を形成しなければならない場合に必要の応力を評価する、Slorovits の吸収相互作用<sup>11)</sup>を仮定した。両者の違いは計算上、転位が析出粒子の間を脱出する際の脱出角度に最も大きく影響する。

$$\sigma_{sl} = A_v \frac{MbE}{4\pi(1+\nu)\lambda} \left[ \ln \left( \frac{L}{r_0} \right) - 0.7 \right],$$

$$A_v = \left( 1 - \frac{\nu}{1-\nu} \sin^2 \theta \right) \cos \theta \dots \dots \dots (3)$$

Table 3 に吸収相互作用を仮定した、クリープ変形のしきい応力の計算値  $\sigma_{sl}$  を示した。ここで、 $M$  はテーラー因子で 2.3、 $b$  はバーガースベクトル長 0.248 nm、 $E$  はヤング率で Gr.92 鋼では 700°C で約 155 GPa、 $\nu$  はポアソン比で 0.32、 $L$  は平均粒子表面間距離の調和平均、 $r_0$  は転位芯の cut-off 半径であり、約  $5b$  とおいた。なお、(3) 式は基本的には

Table 3. Calculated creep threshold stresses by MX type precipitates for each creep time.

Estimated precipitation strengthening effect	Creep time (h)					
	24	100	500	1000	2400	
Inter particle space (μm)	Base metal	0.133	0.285	0.382	0.450	0.500*
	HAZ	0.362	0.385	0.464*		
Creep threshold stress (MPa)	Base metal	123	65	50	44	41*
	HAZ	59	49	46*		

\* data of ruptured specimen at 409 hours for simulated HAZ and at 2400 hours for base metal.

Orowanの強化応力の理論式に転位が粒子間を通過するのに必要なエネルギーに関係する幾何学的係数 $A_1$ を乗じてボイド強化応力を算出する式である。 $\theta$ は転位が脱出する際の角度で、ここでは $19^\circ$ を用いた。Table 3は、析出粒子を球と仮定し、かつ粒子は全て正方形分布をしていると仮定した場合の計算結果である。実際には粒子は球ではなく、また正方形分布もしていない。すなわち、粒内析出強化応力を精度高く見積もることは難しい。したがってボイド強化応力の計算結果を重視するのではなく、あくまで粒子強化の相対的な時間変化を評価するにとどめることとした。計算精度の向上には、各定数の時間変化や粒子の3次元的な形状と実表面間距離を統計的手法で正確に求める必要がある。粒内析出物の強化量の評価は(3)式以外にも種々の推定式が考えられるが、相対評価にとどまるのであれば式の吟味はそれほど重要ではない。母材とHAZの析出強化応力の比が重要な評価因子である。ボイド強化応力計算結果は、母材においてクリープ初期に高く、500時間までで急激に低下すること、およびHAZにおいて初期から破断時間に至るまで変化が少ないことを示している。また、両者の比は初期に大きく、HAZの破断時と母材の同等時間経過後で比較した場合は1に近づくことがわかる。

この相対計算結果は、初期ではボイド強化応力の差が大きいものの時間経過とともに差が減少、換言すれば両者の強化量はほとんど差がなくなることを示している。ボイド強化応力がクリープ変形のしきい値を与えると考える場合、 $700^\circ\text{C}$ のような高温ではしきい値以上の応力が負荷された場合には直ちに材料が塑性変形すると考えれば、変形開始のしきい応力がクリープ破断応力の大半を占めることが予想される。したがって、計算結果はクリープ破断応力と同様な時間依存性を持つと考えることは可能であり、Table 3の計算結果はクリープ破断曲線に対比することができる。Table 3の強化応力を時間と、応力の対数で表した結果をFig.14に示した。Fig.14はTable 3の傾向を両対数軸上で曲線として表現している。粒内析出強化因子のHAZ熱サイクルによる変化が溶接継手のクリープ破断強度を主に支配していると仮定するのであれば、Fig.14の曲線の相対的な時間依存性は、Fig. 2に示した破断曲線に倣う必要がある。しかし、Fig.14は逆の傾向を示している。すなわち、Fig. 2では時間を一定としてみた場合に、クリープ初期、例えば10時間程度の短時間では母材とHAZでの破断強度の差が小さく、時間経過とともに破断強度の差が拡大するという傾向を持つが、Fig.14では推定応力の相対差が逆の関係の有していることは明瞭である。また、曲線形態を比較すればFig. 2が上に凸、Fig.14は下に凸と逆の形態をとっていることも明らかに異なっている。

したがって、母材とHAZの強化応力の相対比の時間変化の傾向を根拠として、粒内析出強化因子のHAZ熱サイクルによる変化は、Type IV損傷の応力-破断時間曲線を

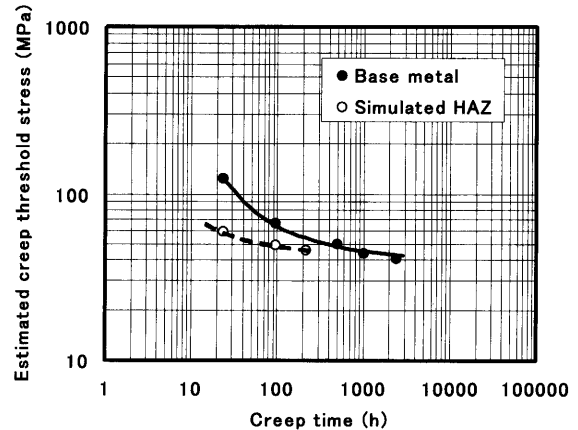


Fig. 14. Theoretically estimated creep threshold stresses correspond to the MX type precipitates in laths or in sub-grains according to the TEM analyses of creep interrupted and ruptured specimens for both base metal and HAZ.

再現しない、すなわちType IV損傷の主要支配因子として析出物形態変化を通じたボイド強化機構の変化はType IV損傷の支配機構ではないとの推定に至った。

#### 4.4 Type IV損傷におけるHAZクリープ破断強度低下機構支配因子の推定

前節までに、HAZに生じる主要な組織因子の変化、すなわち粒径変化、転位組織の変化、あるいは析出強化因子の変化についてそれぞれ詳細に検討した。

4.1節では結晶粒径の減少によるクリープ変形抵抗の変化を検討したが、母材に対してHAZの破断寿命比は $700^\circ\text{C}$ 、 $70\text{MPa}$ で $1/2$ に減少することを説明できたが、 $700^\circ\text{C}$ の温度促進クリープ破断曲線において、母材とHAZの破断寿命比が低応力側で拡大していく傾向を説明しなかった。4.2節ではHAZ細粒域の転位組織が、クリープ開始時より特徴的な回復サブグレイン組織であることによるクリープ変形抵抗の減少効果を、結晶粒径の影響を除外した固溶炭素減少熱処理により実験的に再現し、そのクリープ破断強度を測定することで評価した。その結果、HAZの母材に対するクリープ寿命は $700^\circ\text{C}$ 、 $70\text{MPa}$ で $1/7$ に減少することを説明し、また母材とHAZの破断寿命比が低応力側で拡大していく傾向を破断曲線の比較で実験的に説明できた。しかし、組織観察により析出物粗大化の影響が排除できていない可能性を残した。そこで4.3節では粒内のMX型析出粒子のHAZ細粒域熱サイクルによる粗大化がもたらすクリープ変形抵抗減少効果を検証した。HAZと母材の析出物密度と粒子径を透過電子顕微鏡で測定し、推定析出強化応力を算出したが、強化応力の相対比がクリープ時間とともに拡大する傾向は説明できなかった。

すなわち、①結晶粒径の微細化、②転位組織の回復サブグレイン化、③粒内析出物の粗大化をそれぞれ実験結果を通じて評価した結果、細粒HAZの転位組織が熱サイクルとPWHTによって生じた固溶炭素の欠乏と結晶粒径の微



細化によって回復サブグレイン化することにより失われるクリープ変形抵抗の減少、すなわち転位強化の早期消失が、破断寿命の減少の絶対量とクリープ破断寿命比の時間・応力依存性の観点から最も良く説明していると考えられる。回復サブグレイン組織再現模擬実験は結晶粒径の微細化効果を排除しており、また析出物の粗大化の影響を排除できていないことから、実際の継手における寿命低下量の絶対値を正確には再現できなかったが、破断寿命の時間依存性を母材との相対比較において、良く再現していると考えられる。

ところで、Fig. 2に現れるType IV損傷の応力-破断時間曲線に特徴的な、母材とHAZのクリープ破断寿命比が高温低応力ほど拡大する実験結果（この挙動は実溶接継手だけでなく、HAZ相当熱サイクルシミュレーションでもほぼ同様である）については、現在までに金属組織学的な議論は十分になされていない。

溶接継手の場合には周囲の組織による拘束効果が高応力短時間側で影響していると説明すること<sup>12)</sup>はできるが、Fig. 9の場合のように、試験片全体を同一組織にしたシミュレーション実験でも同様に破断寿命比が低応力側で拡大することを説明できない。すなわち、組織や形状による拘束ではない、組織因子のみから言及できる仮説が必要である。

しかし、代表的な組織因子、例えば析出物の形態や転位組織などは時間の経過に伴って一定の飽和値に漸近するために、長時間ほどパラメータ間の差が減少するのが一般的と考えられる。木村らの基底クリープ強度の概念<sup>13)</sup>はこの考え方に則っており、高温低応力ではクリープ寿命比はむしろ縮小すると考えられる。すなわちType IV損傷のように高温長時間側で寿命比が拡大する現象は、クリープ変形機構の支配因子そのものが変化している場合に説明が可能と考えられるが、その仮定に立脚すれば、HAZにおける変形抵抗は低応力高温ほど母材のラスマルテンサイト組織構造の回復に比較して迅速に消失していく因子でなければならず、現時点で特定は容易ではない。HAZ、母材ともに転位クリープで変形するという前提は変化しないと仮定する場合でも、ラスマルテンサイト構造と回復サブグレイン組織のクリープ変形抵抗の時間変化は詳細には解明できておらず、因子分離実験により鋼種ごとに正確に抽出する必要があり、今後の重要な研究課題である。細粒HAZの回復サブグレイン組織が有するクリープ変形抵抗の低下機構が明確となれば、その抑制あるいは制御がHAZのType IV損傷を防止する有効な手段たり得るものと考えられる。

## 5. 結論

高Crフェライト系耐熱鋼のType IV型損傷を支配する組

織因子を①結晶粒径の微細化、②転位組織の回復サブグレイン化、③粒内析出物の粗大化に分類し、それぞれを損傷支配候補因子として仮定した場合のHAZクリープ破断寿命または破断応力を母材と比較した。

(1) 結晶粒微細化の効果を結晶粒径と破断時間の関係<sup>9)</sup>を参照してHAZと母材に適用し、結晶粒径測定結果から推定した結果、明らかにType IV損傷が発生する条件である700°C 70 MPaのクリープ試験条件では相対寿命の減少量を1/2程度と見積もるにとどまった。また、寿命比が低応力長時間ほど拡大する傾向は説明できなかった。

(2) HAZ細粒熱サイクルに固有の転位組織、すなわち回復サブグレイン組織のクリープ変形抵抗を母材のラスマルテンサイト構造の抵抗と比較し、実験的に破断曲線と歪み曲線を検討した結果、700°C、70 MPaのクリープ破断寿命比の減少量は1/7程度であるとの推定に至った。また、破断寿命比が低応力長時間側で拡大する傾向を良く再現することが明らかとなった。

(3) 粒内MX炭窒化物の粗大化を主要析出強化因子として仮定し、電子顕微鏡観察によって粒子径と析出密度の時間変化を測定し、ポイド強化応力を見積もったところ、HAZと母材の強化応力比の時間依存性はクリープ破断強度の時間依存性と逆の傾向を示し、Type IV損傷を支配する機構ではないと考えられた。

(4) 以上を総括し、HAZ細粒域における溶接熱サイクルとPWHTで生じる回復サブグレイン組織のクリープ変形抵抗の低下こそ、Type IV損傷の支配組織因子であるとの推定に至った。

## 文 献

- 1) 火力原子力発電, **50** (1999), No. 4, 88.
- 2) R. Viswanathan and W. Bakker: *J. Mater. Eng. Perform.*, **10** (2001), No. 1, 81.
- 3) M. Ohgami, T. Araki, H. Naoi, T. Ogawa, H. Yasuda, H. Masumoto and T. Fujita: *Tetsu-to-Hagané*, **76** (1990), 1124.
- 4) Y. Hasegawa, T. Muraki and M. Ohgami: *Tetsu-to-Hagané*, to be published.
- 5) K. Tokuno, K. Hamada, R. Uemori, T. Takeda and K. Itoh: *Scr. Metall. Mater.*, **25** (1991), 1763.
- 6) Y. Hasegawa, T. Muraki and M. Ohgami: *J. Soc. Mater. Sci. Jpn.*, **52** (2003), 124.
- 7) F. C. Monkman and N. J. Grant: *Proc. ASTM*, **56** (1956), 595.
- 8) M. Ohgami, H. Mimura, H. Naoi, T. Ikemoto, S. Kinbara and R. Fujita: *Nippon Steel Tech. Rep.*, **72** (1997), 59.
- 9) B. Sundman, B. Jansson and J. O. Anderson: *Calphad*, **9** (1985), 153.
- 10) E. Orowan: Discussion in The Symposium on Internal Stresses in Metals and Alloys, Inst. Metals, London, (1948), 451.
- 11) D. J. Slorovitz, R. Petkovic-Luton and M. J. Luton: *Philos. Mag.*, **A48** (1983), 795.
- 12) T. Ogata and M. Yaguchi: *J. Therm. Nucl. Power*, **51** (2000), 585.
- 13) K. Kimura, H. Kushima, K. Yagi and C. Tanaka: *Tetsu-to-Hagané*, **77** (1991), 667.