

# ハステロイXのクリープにともなう結晶方位分布変化とそれに及ぼす結晶粒径の影響

高久 歴\*・齊藤 大蔵\*・吉岡 洋明\*

Change of Grain Orientation and Effect of Grain Size on It in Creep Deformed *Hastelloy X*

Reki TAKAKU, Daizo SAITO and Yomei YOSHIOKA

**Synopsis :** In this study, EBSP (electron backscatter diffraction pattern) method was applied to evaluate changes in crystal orientation during creep deformation. The tested material was a solid solution strengthened Ni base superalloy, *Hastelloy X*, and creep tests were conducted at 1123K under the stress of 49 MPa. It was confirmed that a distribution of crystal orientation changed with increasing a creep deformation. In the ruptured specimen, grains having the crystal orientation of  $\langle 101 \rangle$  in the direction of the stress axis had decreased, while grains having the crystal orientation of  $\langle 001 \rangle$  or  $\langle 111 \rangle$  in the direction of the stress axis had increased. A new parameter that indicates the distribution of the crystal orientation was proposed. The change of crystal orientation distribution with creep damage and the effect of grain size on it were described clearly and quantitatively by this parameter. This parameter was thought to be an effective parameter for the evaluation of local damages on high temperature components such as turbine blades and pressure tubes.

**Key words :** orientation; EBSP; creep damage evaluation; life assessment.

## 1. 緒言

火力発電プラントの多くの部材においては、高温・高圧下での運転により、時間の経過とともにクリープ損傷が蓄積されていく。プラントの安全かつ経済的な運用のためにはこれらの部材のクリープ損傷度を評価し、適切な時期に部材の補修や交換を行っていくことが要求される<sup>1)</sup>。最近の発電用ガスタービンにおいては、高効率化を目的とした燃焼温度の高温化に伴い、動・静翼や燃焼器といった高温部品において冷却強化のための構造の複雑化や材料の高級化が進んできている。冷却の強化と構造の複雑化により、部品内の温度・応力分布は増大する傾向にあり、その結果、高温に曝されることによる材料の強度低下（組織劣化）やクリープ変形、疲労損傷の蓄積などは、部品の局所的で微小な領域において優先的に進行し、最終的にこれらの微小領域の劣化・損傷が部品の寿命を支配するケースが増えてきている。

筆者らはクリープに伴う結晶方位の変化を詳細に調査し、定量化することで微小領域のクリープ損傷評価が可能と考えて研究を進めてきた<sup>2,3)</sup>。Yugeら<sup>4)</sup>やMitsutakeら<sup>5)</sup>はNi-20Cr単結晶を用いてクリープに伴う結晶の回転についてEBSP (Electron Backscatter Diffraction Pattern: 後方散乱電子回折像) 法によって定性的に評価している。また、横幕ら<sup>6)</sup>はSUS316の結晶粒内に生じる微小な方位差の計測

によるクリープ損傷度の評価法について報告している。しかし、実用Ni基合金のクリープに伴う結晶方位の変化挙動について、粒径依存性や結晶方位依存性までを含めて定量的に調査し、クリープ余寿命評価手法として検討した報告は見当たらない。

そこで本報告では、固溶強化型Ni基超合金 *Hastelloy X* のクリープ破断材および中断材を作成し、それらをEBSP法により詳細に評価することで、クリープに伴う結晶方位分布の変化挙動を明らかとし、さらにそれらの定量化を行った上でクリープ損傷評価手法の観点から考察を加えた。

## 2. 実験方法

### 2.1 供試材

供試材はガスタービンの燃焼器ライナなどに用いられている固溶強化型Ni基超合金 *Hastelloy X* の板厚20 mmの圧延材である。Table 1にその化学組成を示す。本板材に溶体化熱処理 (1150°C×50 min→ガスファン冷却) を施した後、クリープ試験および結晶方位計測に供した。

### 2.2 クリープ試験

クリープ試験片の採取位置と試験片形状をFig. 1に模式的に示す。試験片は平行部直径6 mm、標点間距離27.4 mmの丸棒で、応力軸が板材の圧延方向と一致するように切り

Table 1. Chemical composition of the tested material (mass%).

Cr	Mo	Fe	Co	W	Mn	Si	C	S	P	Ni
22.3	8.9	17.4	1.0	0.6	0.7	0.4	0.06	<0.1	0.01	Bal.

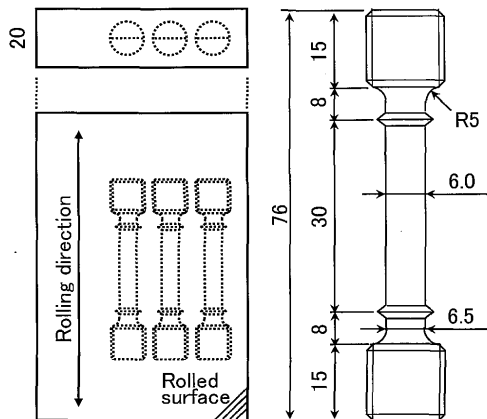


Fig. 1. Schematic of machining location and shape of the creep test specimen.

Table 2. Creep test conditions.

Specimen	Temp. (K)	Stress (MPa)	Interruption time (ks)	Creep damage (Time fraction, %)
C0	1123	49	0(Virgin)	0(Virgin)
C1	1123	49	181	4
C2	1123	49	365	8
C3	1123	49	720	17
C4	1123	49	1080	25
C5	1123	49	1441	34
C6	1123	49	3204	75
C7	1123	49	4143	96
C8	1123	49	4294(Ruptured)	100(Ruptured)

出した。このとき、板材との方向関係を識別できるように、ネジ部の端面に圧延面と平行な方向に溝を加工した。クリープ試験の条件はTable 2の通りで、1123K, 49 MPaにおいてクリープ破断試験と7条件の中断試験を実施した。

Fig. 2に破断材C8のクリープひずみ-時間曲線およびひずみ速度-ひずみ曲線を示す。図には中断材のデータも合わせてプロットした。なお中断材におけるクリープひずみは冷却・除荷後の永久伸びとした。C8の破断伸びは78%と比較的大きく、その大半は加速域で形成されていた。C1からC3は遷移域、C4とC5が最小クリープ速度近傍、C6とC7は加速域に位置している。

### 2.3 結晶方位分布計測

本試験においては、FE-SEM (FEI Company製 XL30S-FEG) に取り付けられたEBSPシステム (Tex SEM Laboratories, Inc. 製OIM ver. 3.10) を用い結晶方位分布の計測および解析を行った。

クリープ破断試験片および中断試験片の平行部の中心部を、圧延面と垂直な縦断面で切り出して樹脂埋込し、SiCペーパー、ダイヤモンドペーストによる研磨の後、コロイダルシリカにて表面のひずみを除去してEBSP計測に供し

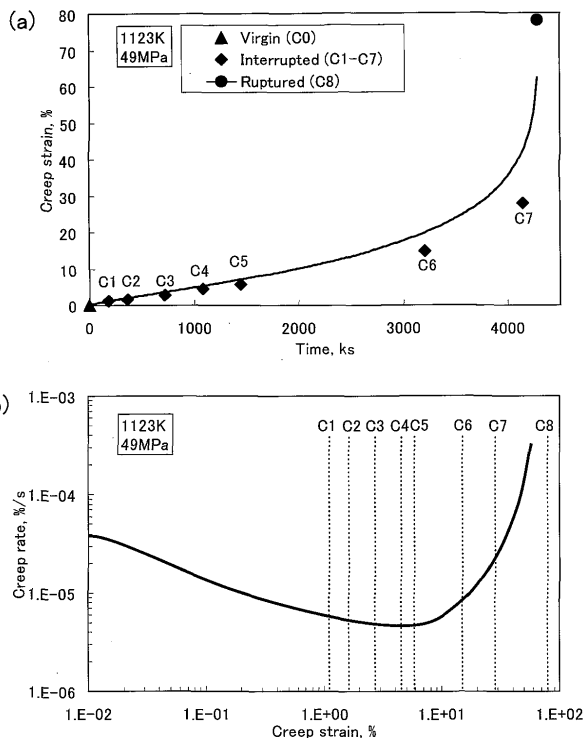


Fig. 2. Creep test results. (a) Strain-time curve of ruptured specimen C8 together with interruption test data (C1-C7), (b) creep rate-strain curve of C8.

た。EBSPの計測領域は1 mm×1 mmであり、ステップサイズ (隣接測定点間の距離) は2.5 μm (六角格子) とした。解析においては、隣接2点間の方位差が5°以上の場合を粒界と定義した。結晶方位分布は逆極点図, 極点図などによって評価した。

## 3. 実験結果

### 3.1 クリープに伴う結晶方位分布の変化

Fig. 3に各試験片の逆極点図マップおよび逆極点図を示す。ここで、全ての結晶方位は応力軸方向から評価している。新材C0の結晶方位分布はほぼランダムであるが、クリープの進行とともに徐々に応力軸に対して<101>近傍の方位を持つ粒が減少していることが判る。一方で<111>近傍の方位を持つ粒は徐々に増加し、またクリープ寿命の末期では<001>近傍の方位を持つ粒も増加している。最終的に破断材C8の組織は、応力軸方向に伸ばされた比較的大きな結晶粒と再結晶粒と見られる微細な結晶粒とからなり、それらはほぼ全て応力軸に対して<111>または<001>の方位を示していた。

一般に、面心立方構造の単結晶におけるクリープでは、Fig. 4のような標準ステレオ三角形を考えると、主すべり系は(111)[011]であり、このすべり系によって変形が生じると、結晶方位は[011]へ向かって回転していく。

多結晶においても個々の結晶粒は単結晶と見なせること

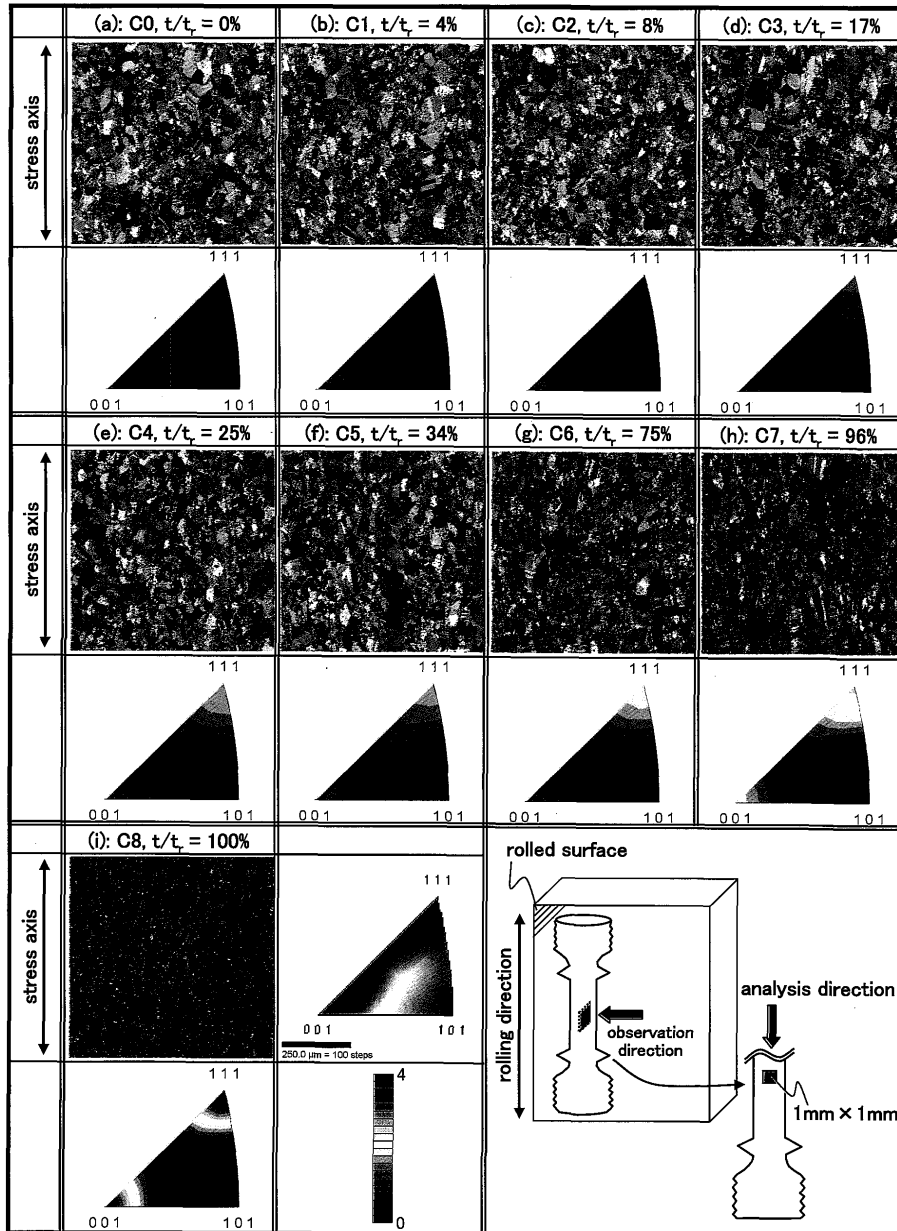


Fig. 3. Inverse pole figure maps and inverse pole figures of specimen C0–C8. The maps and figures indicate crystal orientations to the stress axis. (The scale and color bar are common to every map and every figure.)

から、個々の粒において同様の結晶回転が生じていると考えられる。ここで、 $\{111\}\langle 011 \rangle$ すべり系におけるシュミット因子の分布を見ると、 $[101]$ 近傍の粒のシュミット因子は比較的大きな値であり、しかも $[011]$ へ回転していくに連れてシュミット因子はさらに大きくなっていくことが分かる。このため、 $[101]$ 近傍の粒はシュミット因子の稜線(図中の破線)に到達するまでは初期から優先的に変形していくと考えられる。一方、 $[001]$ および $[111]$ 近傍ではシュミット因子の分布からみて特定のすべり系のみが優先的に活動するのではなく、それぞれ8つおよび6つの等価なすべり系全てが活動可能と考えられる。これらの8つおよび6つのすべり系のすべり方向を足し合わせた方向はそれぞれ $[001]$ および $[111]$ であることから、 $[001]$ および

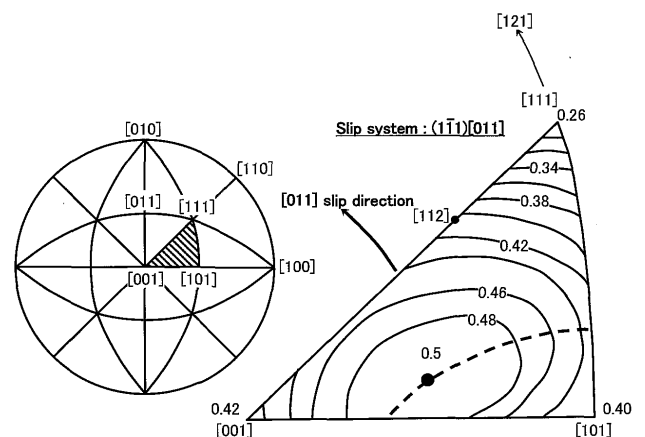


Fig. 4. Schmid factor contour for the most highly stressed  $\{111\}\langle 011 \rangle$  slip system.

[111]近傍の領域では変形が進んでも応力軸に対する方位は[001]および[111]近傍に留まるものと考えられる。また、[001], [101]および[111]の極点を結ぶライン上ではそれぞれ2つの等価なすべり系のすべり方向の和は[001], また[101]-[111]ライン上におけるそれは[121]であり, [111]は[101]と[121]を結ぶ大円の途中に位置している。したがって, これらの2つのライン近傍の領域では変形が進むにつれてそれぞれ[001]および[111]へ向かって方位が変化していくものと考えられる。ステレオ三角形内部の領域では主に単一のすべり系が活動し, 結晶方位は[011]へ向かって回転していき, [001]-[111]ラインへ到達すると2つの等価なすべり系の活動の結果[112]へ向かって方位が変化していくものと考えられる<sup>7)</sup>。ただし, 本実験結果では[112]への集積は認められなかった。Ni合金単結晶のクリープに関する幾つかの実験においても本実験と同様の方位変化が確認されている<sup>4,8-10)</sup>。MacKAY<sup>8)</sup>らはNi基単結晶超合金MAR-M247を774°C-724 MPaでクリープした結果, [001]-[111]ライン近傍の試料が[112]へ向かわずに, [001]に近いものは[001]へ, [111]に近いものは[111]へ向かって回転していくことを確認し, {111}<112>すべり系の活動によ

ると説明している。本実験の結果からも{111}<011>だけでなくそれ以外のすべり系が活動している可能性が示唆されている。

### 3.2 結晶方位分布の定量化

結晶方位の分布を定量化し, その変化をクリープ損傷と相関付けることができれば, クリープ損傷評価の有効な手段になると考えられる。そこで, 特定の方位を持つ結晶粒の増減に着目した定量化を試みた。Fig. 5には応力軸と<101>とのなす角の範囲と面積率の関係を示す。特定のなす角範囲で, 面積率がクリープに伴って減少する様子が明確に示されている。そこで, 結晶方位分布をパラメータ $P_{\langle uvw \rangle, \theta}$ で定量化することとした。すなわち,  $P_{\langle uvw \rangle, \theta}$ は応力軸と<uvw>とのなす角が0から $\theta^\circ$ の間にある領域の面積率と定義する。例としてFig. 6にクリープに伴う $P_{\langle 101 \rangle, \theta}$ の変化を示す。 $\theta$ は15~20°程度で $P_{\langle 101 \rangle, \theta}$ とクリープ損傷との相関が比較的良く, 変化率も大きい。また $\theta$ は15°付近がFig. 4に示したシュミット因子の稜線に近い範囲を表している。そこで, 本報告では以後 $\theta$ として15°を採用して議論を進めることとした。

Fig. 7には, <011>, <111>および<001>について, クリープ時間とパラメータ $P$ の関係を示す。 $P_{\langle 101 \rangle, 15}$ はクリープの進行とともに徐々に減少し,  $P_{\langle 111 \rangle, 15}$ はクリープにともない徐々に増加していた。 $P_{\langle 001 \rangle, 15}$ はクリープの末期で急激に増

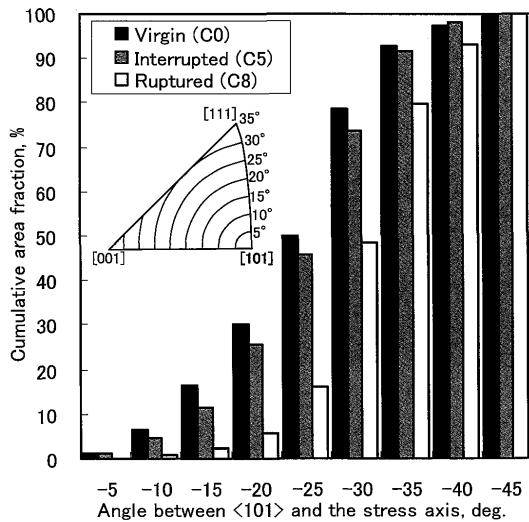


Fig. 5. Distribution of the angle between <101> and the stress axis of virgin, creep interrupted and ruptured specimens.

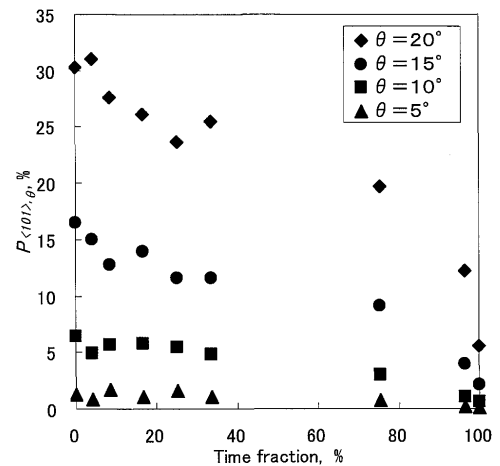


Fig. 6. Correlation between  $P_{\langle 101 \rangle, \theta}$  and creep time fraction.

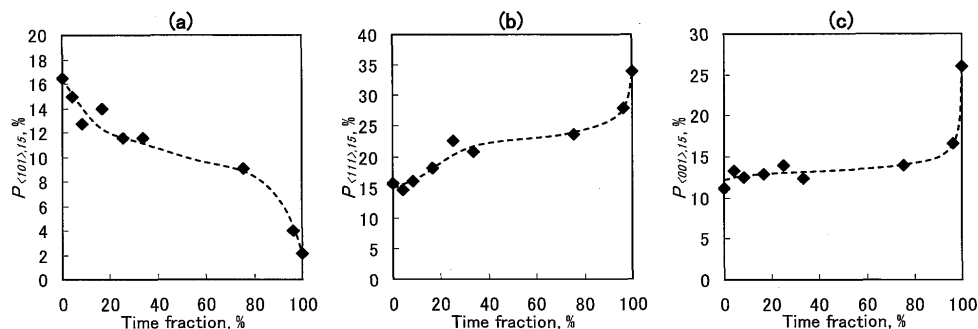


Fig. 7. Correlation between parameter  $P$  and creep time on (a) <101>, (b) <111> and (c) <001>.

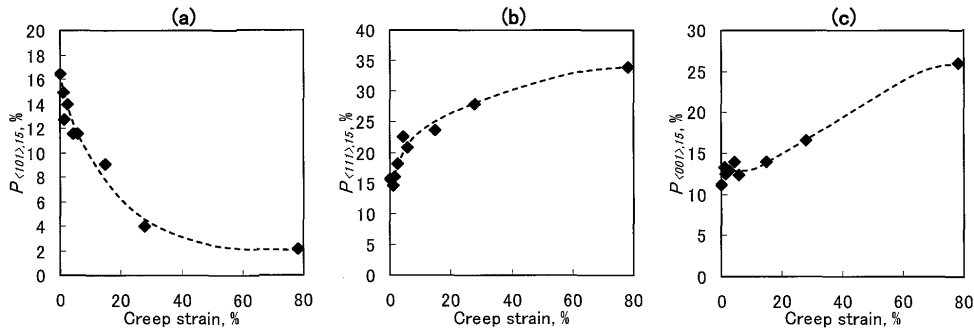


Fig. 8. Correlation between parameter  $P$  and creep strain on (a)  $\langle 101 \rangle$ , (b)  $\langle 111 \rangle$  and (c)  $\langle 001 \rangle$ .

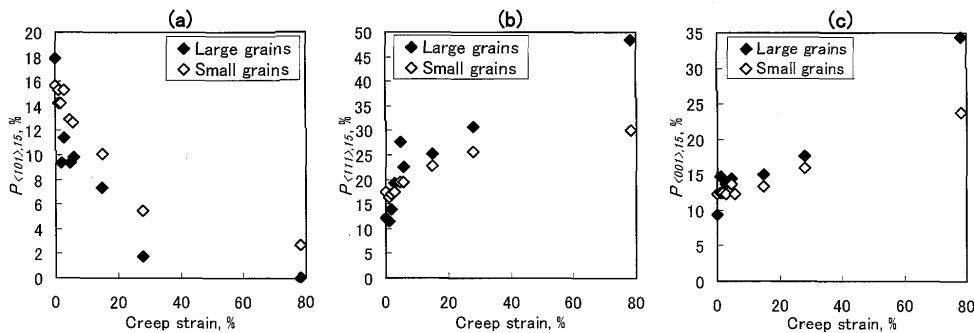


Fig. 9. Grain size dependence of change of parameter  $P$  with creep strain on (a)  $\langle 101 \rangle$ , (b)  $\langle 111 \rangle$  and (c)  $\langle 001 \rangle$ .

加していた。またFig. 8にはクリープひずみとパラメータ  $P$  の関係を示す。 $P_{\langle 101 \rangle, 15}$  および  $P_{\langle 111 \rangle, 15}$  は数%の小さいひずみ量においてもクリープひずみと良い相関を示していたが、 $P_{\langle 001 \rangle, 15}$  は10%程度以下のひずみではほとんど変化が見られなかった。

### 3.3 $P_{\langle uvw \rangle, \theta}$ の結晶粒径依存性

Fig. 3に示したとおり、供試材は比較的大きな結晶粒と小さな結晶粒がそれぞれ圧延方向に帯状に連なった組織を呈している。そこで、方位分布変化の結晶粒径依存性を調査するため、粒径30  $\mu\text{m}$ を境界値として小さい結晶粒と大きい結晶粒に区別して  $P_{\langle uvw \rangle, \theta}$  を評価した結果をFig. 9に示す。このとき、新材C0の測定領域においては細粒部と粗粒部の平均粒径はそれぞれ9.6  $\mu\text{m}$ と39.0  $\mu\text{m}$ であった。なお、粒径は観察視野内での粒面積と等面積の円の直径としている。図のとおり、粒径が小さい方が全体的に  $P$  のクリープに伴う変化率が小さくなっている。また寿命末期では特に  $P_{\langle 111 \rangle, 15}$  および  $P_{\langle 001 \rangle, 15}$  で結晶粒径による違いが顕著に認められた。

### 3.4 ひずみ評価の妥当性

本試験におけるひずみはクリープ試験片の標点距離約27.4mmに対する伸びから求めている。一方EBSP法にて評価しているのは試験片平行部の中央1mm $\times$ 1mmの領域である。試験片平行部の変形が完全に均一であれば、中央の微小領域におけるひずみは標点間全体でのひずみと一致するが、実際には試験片平行部の変形は不均一性を持つ可能性があり、確認を要する。

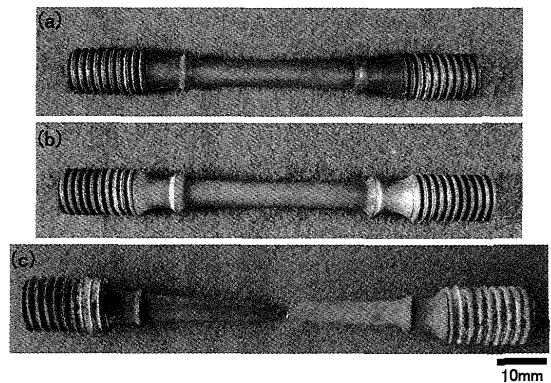


Fig. 10. Photographs of crept specimens: (a) C6, interrupted,  $t=3204$  ks,  $\epsilon=14.8\%$ , (b) C7, interrupted,  $t=4143$  ks,  $\epsilon=28.0\%$ , (c) C8, ruptured,  $t=4294$  ks,  $\epsilon=78.1\%$ .

Fig.10に各試験片の外観を示す。破断材C8は破断部近傍で大きく絞れている。破断部近傍ではクリープき裂が確認されておりこれらの伸びへの寄与もあるため当該微小領域のひずみを推測することは困難ではあるが、破断絞りが85%であることから、破断部近傍の微小領域におけるひずみは標点間全体に対して求めたひずみよりも大きいことは容易に推察される。C6およびC7については表面酸化層の微小き裂を除いて内部にはき裂は見られず、また平行部の扁平もほとんどなかったことから、各部位の平行部直径を計測して体積一定条件に基づき幾何学的に各部位の伸びを算出した。その結果をFig.11に示す。C6, C7とも断面形状はほぼ円形で均一な変形をしていたが、A部およびE部に

比べて中央部付近が絞られていた。すなわち、断面形状から算出した平行部中央のクリープひずみは、標点間全体から求めたひずみに対してC6では16%、C7では30%大きくなっていった。従って、微小領域のひずみについてはFig. 8に示した曲線の正確な形態は、特に高ひずみ側でより右側へシフトしているものと考えられる。

## 4. 考察

### 4.1 結晶方位分布変化によるクリープ損傷評価

上記のとおり、結晶方位分布はクリープ損傷の増加とともに変化する。すなわち、面心立方構造を持つ固溶強化型

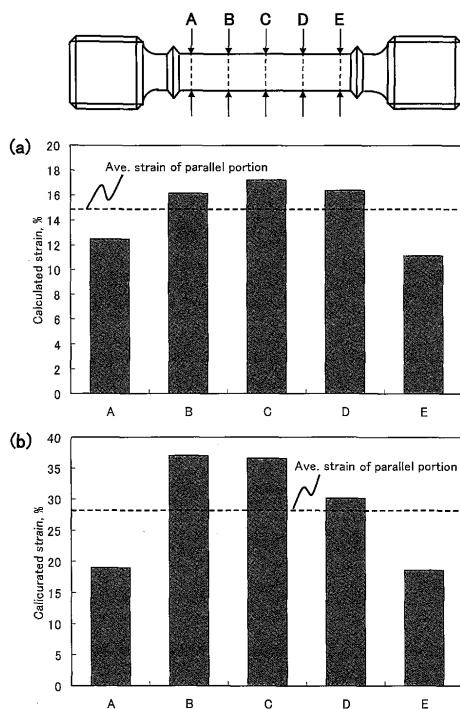


Fig. 11. Strain calculated by diameter change on each section of (a) C6, interrupted,  $t=3204$  ks,  $\epsilon=14.8\%$ , (b) C7, interrupted,  $t=4143$  ks,  $\epsilon=28.0\%$ .

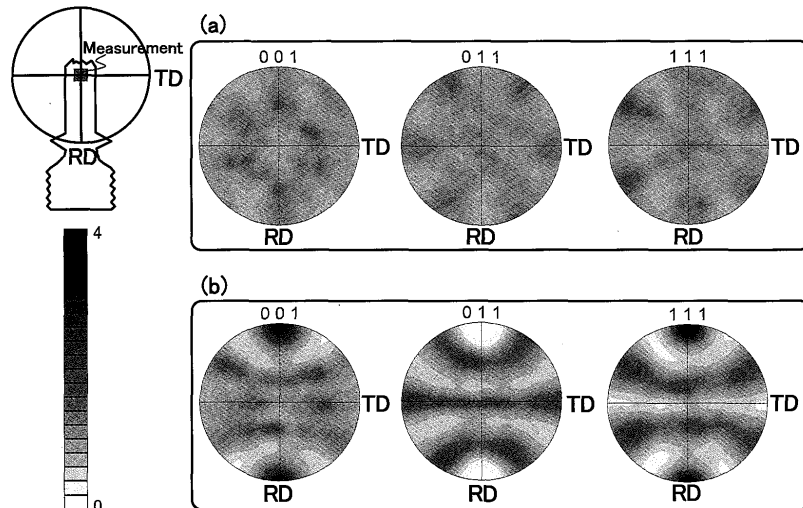


Fig. 12.  $\langle 001 \rangle$ ,  $\langle 011 \rangle$  and  $\langle 111 \rangle$  pole figures of (a) C0, virgin, (b) C8, ruptured.

Ni基超合金 *Hastelloy X* においては、クリープ損傷の増加にともなって、応力軸に対して  $\langle 101 \rangle$  を持つ粒が減少し、 $\langle 111 \rangle$  または  $\langle 001 \rangle$  を持つ粒が増加する。このような結晶方位分布の変化は著者らの提案するパラメータ  $P_{(uvw),\theta}$  によって定量的に表現されることが確認された。すなわち、Fig. 7 および Fig. 8 に示すマスターカーブが予め得られているならば、実プラントで運転された部材の微小領域における  $P_{\langle 101 \rangle, 15}$ ,  $P_{\langle 111 \rangle, 15}$  および  $P_{\langle 001 \rangle, 15}$  を計測することでクリープ余寿命およびひずみ量の推定が可能と考えられる。ただし、ひずみ量の評価においては、クリープ試験片の標点間でのひずみ量と微小領域でのひずみ量との違いに注意が必要であろう。

結晶方位分布の変化によって、クリープ余寿命およびひずみ量の評価だけでなく、クリープ変形方向の推定も可能と考えられる。すなわち本供試材においては  $\langle 101 \rangle$  を持つ粒が減少し、 $\langle 111 \rangle$  および  $\langle 001 \rangle$  を持つ粒が増加している様な方向を探し出せば、それがその微小領域における主な変形方向を表していることになる。その方向は  $\langle 001 \rangle$ ,  $\langle 011 \rangle$  および  $\langle 111 \rangle$  極点図を評価すればすぐに見出すことができる。例として Fig. 12 に新材 C0 および破断材 C8 における  $\langle 001 \rangle$ ,  $\langle 011 \rangle$  および  $\langle 111 \rangle$  極点図を示す。C8 において RD で  $\langle 101 \rangle$  の減少と  $\langle 111 \rangle$  および  $\langle 001 \rangle$  の増加が見られることから、RD が変形方向と推定できる。この手法は微小領域における変形方向の推定に有効と考えられる。なお、本研究においては結晶方位分布の計測に EBSD 法を用いたが、X線回折法を用いれば非破壊での損傷評価も可能と期待される。

### 4.2 結晶方位分布変化の結晶粒径依存性

Fig. 9 に示したとおり、粒径が小さい方が全体的に P のクリープに伴う変化率が小さくなっていった。前述のとおり結晶の回転は、シュミット因子に基づいて決定された特定のすべり系の活動により起こっていると考えられる。しかし、各結晶粒は互いに周囲の結晶粒から形状的に拘束を受

けており、単純に応力軸を基準としたシュミット因子が最大となるすべり系だけでなく、形状的拘束に起因した他のすべり系による結晶の変形・回転も起こっていると考えられる。本結果は、小さい粒の方が形状的拘束の影響を受けやすいことを示唆しているものと考えられる。従って、クリープ損傷評価の観点からは、小さい粒に比べて理想的なすべり系での結晶回転が進んでいきやすい大きい粒だけを選択して方位分布の変化を評価することで、クリープ損傷評価の精度向上が期待できる。

なお、寿命末期では特に $P_{(111),15}$ および $P_{(001),15}$ で結晶粒径による違いが顕著に認められた。Fig. 3に示すとおり破断材C8は明らかに動的再結晶を生じており、微細な再結晶粒が多数認められている。純Niの動的再結晶挙動に関する報告によれば、生成する動的再結晶粒の結晶方位はランダムであることが確認されている<sup>11,12)</sup>。すなわち寿命末期においては動的再結晶によってランダムな方位を持った微細な再結晶粒が多数生成するため、小さい結晶粒においては特定の方位への集中が緩和され、大きい粒との間に結晶方位分布の差異が生じていると考えられる。ちなみに、プラント機器部材のクリープ損傷評価の観点からは、動的再結晶が生じるような条件の考慮が必要なケースは一般には無いと考えられるが、粒径の小さいものを除外してデータを整理することで、動的再結晶の影響を排除することは可能であろう。

## 5. 結言

Hastelloy Xのクリープに伴う結晶方位分布の変化をEBSP法により詳細に評価し、それらの結果についてクリープ損傷評価手法の観点から考察を加えた。得られた主な結果を以下に要約する。

(1) クリープの進行とともに応力軸に対して〈101〉近傍の方位を持つ粒は減少し、一方で〈111〉近傍の方位を持

つ粒は徐々に増加し、またクリープ寿命の末期では〈001〉近傍の方位を持つ粒も増加する。

(2) パラメータ $P_{(uvw),\theta}$ を応力軸と〈uvw〉とのなす角が $0^\circ$ から $\theta^\circ$ の間にある領域の面積率と定義すると、 $P_{(101),15}$ および $P_{(111),15}$ はクリープの初期から末期までの全ての範囲でクリープ時間およびひずみ量と良い相関を示した。本パラメータによって微小領域のクリープ損傷評価が可能と考えられる。

(3) 〈001〉, 〈011〉および〈111〉極点図から〈101〉の減少と〈111〉, 〈001〉の増加を評価すれば、微小領域の変形方向が推定できる。

(4) 粒径が小さい方が全体的に $P$ のクリープに伴う変化率が小さくなっており、これは小さい粒の方が周囲の粒からの形状的な拘束の影響を受けやすいことを示唆していると考えられる。

※本論文に掲載の商品の名称は、それぞれ各社が商標として使用している場合があります。

## 文 献

- 1) Y.Yoshioka, D.Saito, K.Fujiyama, H.Kashiwaya, T.Kondo, J.Ishii and T.Homma: Proc. of Int. Council on Combustion Engines, (2001), 249.
- 2) R.Takaku, D.Saito and Y.Yoshioka: *CAMP-ISIJ*, **20** (2007), 1228.
- 3) R.Takaku, D.Saito and Y.Yoshioka: Proc. of Int. Gas Turbine Cong. 2007 Tokyo (IGTC '07 Tokyo), (2007), TS-089, CD-ROM.
- 4) K.Yuge, Y.Terada and T.Matsuo: *Adv. Mater. Res.*, **15-17** (2007), 864.
- 5) M.Mitsutake, Y. Terada and T.Matsuo: *Adv. Mater. Res.*, **15-17** (2007), 870.
- 6) 横幕俊典, 与田利花: 日本材料学会第55期学術講演会前刷集, (2006), 217.
- 7) 幸田成康: 改定金属物理学序論, コロナ社, 東京, (1973), 169.
- 8) D.W.MacLachlan, L.W.Wright, S.S.K.Gunturi and D.M.Knowles: *Superalloys 2000*, (2000), 357.
- 9) R.A.MacKay and R.D.Maier: *Metall. Trans. A*, **13A** (1982), 1747.
- 10) Y.Nakajima, Y.Terada and T.Matsuo: *CAMP-ISIJ*, **18** (2005), 1465.
- 11) T.Endo, H.Fukutomi and T.Kishi: *Tetsu-to-Hagané*, **70** (1984), 307.
- 12) M.Hasegawa and H.Fukutomi: *J. Jpn. Inst. Met.*, **65** (2001), 1014.