

EBSP を用いた材料評価手法の構築

Development of Microstructural Analysis Method with EBSP

米 山 夏 樹 技術開発本部基盤技術研究所材料研究部
 久布白 圭 司 技術開発本部基盤技術研究所材料研究部
 吉 澤 廣 喜 技術開発本部基盤技術研究所材料研究部 部長 Ph. D

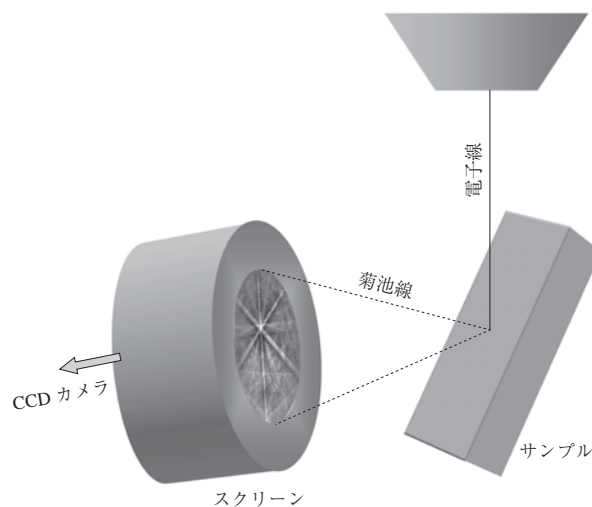
火力発電用ボイラーチューブ材料である Mod.9Cr-1Mo 鋼溶接継手について、クリープ損傷の余寿命評価を行った。クリープ試験による損傷組織を EBSP により解析したところ、寿命消費に伴い 15° 以上の粒界方位差を持つ結晶粒が粗大化していた。また、異なる溶接入熱条件継手についても同様の粗大化挙動を示した。回復・再結晶挙動によりクリープ寿命が消費されていると考えられる。EBSP 解析で得られた細粒域の粒径とクリープ損傷に相関性があり、余寿命評価方法としての可能性を示した。

A new evaluation method for metallic materials was developed using the EBSP analysis. Weldments of Mod.9Cr-1Mo steel used as a boiler tube material for thermal power plant were fractured at the heat-affected zone (HAZ) in creep tests. Creep rupture tests and interrupted tests were performed on weldment samples with two welding conditions. Grain sizes of crept samples were evaluated using the EBSP analysis. In the fine-grained HAZ, correlation was observed between grain sizes and creep damage. In addition, a similar behavior was shown in both samples of two welding condition. EBSP was proved usable for evaluation of the creep lifetime of Mod.9Cr-1Mo steel weldments using grain size.

1. 緒 言

金属材料の微細組織を、結晶構造や結晶方位といった結晶情報と照合しながら観察する場合、これまでは透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いて解析を行ってきた。TEM は、100 nm 以下の薄い限られた範囲を、数千倍以上の高倍で観察することに適している。そのため構造材料へ適用した場合、特定の場所の評価から全体を推定する必要があった。吉澤ら^{(1), (2)}は TEM による Intra-Granular Distortion 法によって耐熱鋼のクリープ損傷を評価し、材料中に蓄積された結晶欠陥とクリープ損傷の関係を明らかにしたが、全体を評価するには一条件あたり 50 か所程度の顕微鏡写真を撮影し解析する統計処理を行わなければならなかった。

近年、TEM と同じ原理に基づき、より広範な領域を容易に評価できる EBSP⁽³⁾ (Electron Back-Scattered diffraction Pattern: 背面反射電子線回折パターン) 法が急速に進歩した。EBSP は、第 1 図のように試料表面上の点に照射された電子線の非弾性散乱によってできたパターンを読み取ることで、結晶の方位などの情報を得ることができる。試料表面上で電子線を走査することによって、2 次元的な試料の方位マップが得られる。最近では、計測の高速化がさらに進み、一回の計測で指定された面内で、



第 1 図 EBSP による試料結晶方位検出の概略
 Fig. 1 Schematic drawing of EBSP tests

10 万点程度の計測を行うことができるようになっている。測定結果はデジタル処理され、解析・視角化されたデータとなるため、定性的にとらえられてきた金属組織を定量的な尺度をもって評価することが可能である。例えば、TEM でその形態観察を行い、一つ一つ界面方位差を解析していたような微細なサブグレイン⁽⁴⁾について、光学式顕微鏡のようなマクロ的な領域について定量評価することができるようになった。

著者らは、このEBSPをMod.9Cr-1Moボイラ配管溶接部のクリープ損傷の評価へ適用した。Mod.9Cr-1Mo鋼溶接部のクリープ強度は母材に比べ低下⁽⁵⁾、⁽⁶⁾しており、実配管の余寿命評価を行う場合は溶接継手部に着目する必要がある。溶接継手部は溶接入熱によるピーク温度によって異なる組織をもち、溶接熱影響部(HAZ)を形成する。HAZは組織サイズ・硬さによって粗粒域と細粒域の大きく二つに分類される。クリープ損傷を受けると微細な組織⁽⁷⁾、⁽⁸⁾をもつHAZ細粒域にクリープボイドが発生し⁽⁹⁾破壊する(Type IV Crack⁽⁵⁾)。長谷川ら⁽¹⁰⁾、⁽¹¹⁾はWを含有しさらに高温強度を高めたASME Gr.92においても、Type IV Crack発生を述べるとともに、TEM観察結果から回復によって生じたサブグレインがType IV Crack発生 of 支配組織因子であることを報告している。このサブグレインを定量的に評価することで、クリープ損傷について評価することが可能と考えられる。

ここでは、EBSPを利用して特に回復によって生じたサブグレインを含むHAZ細粒域の組織変化を評価し、Mod.9Cr-1Mo鋼のクリープ損傷について、これまで得られている知見と整合性を取りながら、余寿命評価方法を検討した。

2. 実験方法

実際の配管製造を模擬するために、サブマージアーク溶接によって、Mod.9Cr-1Mo鋼の溶接継手を作製した。溶接継手は、溶接入熱の影響を見るために、高入熱条件および低入熱条件の2種類の溶接条件とした。溶接後熱処理として1013 Kで2 hの熱処理を行った。継手から試験片中央に溶接金属が位置するように平行部断面が36 × 18 mmで平行部長さ110 mmの大型クリープ試験片を取り出した。クリープ試験は、923 K、58.8 MPaで行った。またクリープの変形過程を観察するように中断試験片を作製した。中断試験片は破断時間との比でそれぞれ40%、60%および80%となる条件を選んだ。作製したクリープ中断試験片の一覧を第1表に示す。

得られた試験片について、EBSPによる方位解析から、結晶粒サイズ・粒界の特徴について調べた。EBSP用の試料はアルミナでバフ研磨後、アルミナ懸濁液で20分程度琢磨し表面加工層を落とした。

また、FE-SEMおよびTEMによる組織観察や、析出物形態についてカーボン抽出レプリカの観察を行い損傷組織の比較、検討を行った。

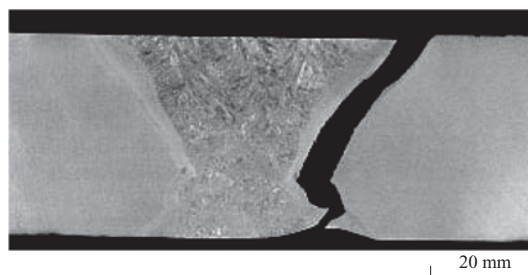
第1表 クリープ試験片、クリープ中断試験片一覧
Table 1 Fractured and interrupted samples in creep tests

項目	40%	60%	80%	破断材
高入熱溶接	○	○	○	○
低入熱溶接	—	○	—	○

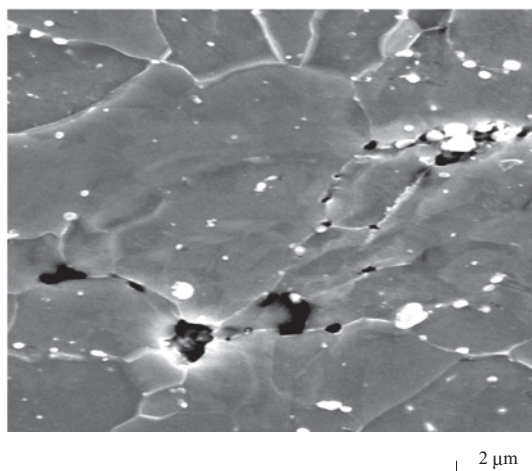
3. 試験結果

破断試験片のマクロ観察結果を第2図に示す。破断はHAZ細粒域で生じており、Type IV Crackと考えられる。また、40%中断材のSEM観察結果を第3図に示す。40%中断材において粒界には、わずかにクリープボイドが発生していた。

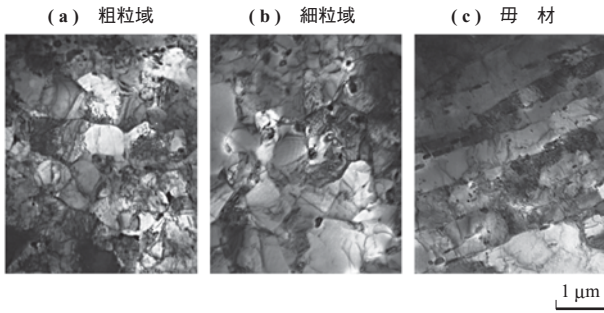
TEMを用いたクリープ初期組織の観察結果を第4図に示す。HAZ粗粒域、HAZ細粒域、母材領域の3か所のうち、HAZ粗粒域と母材ではラスマルテンサイトが観察されるが、HAZ細粒域のラス構造は明確ではなく、約2 μm程度の粒状の組織形態である。これはラスマルテンサイトが熱影響によって、サブグレイン⁽¹⁰⁾、⁽¹¹⁾になったと考えられる。第5図に析出物の形態変化を明確にす



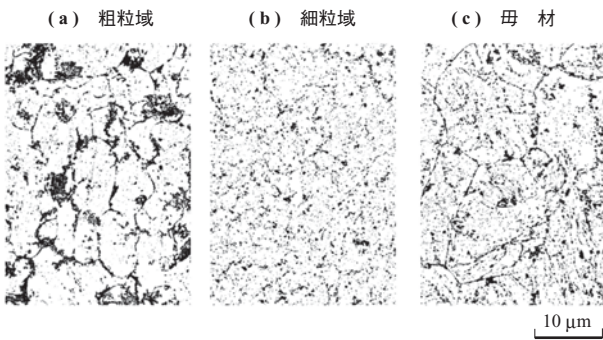
第2図 破断試験片のマクロ観察結果
Fig. 2 Macroscopic observation of fractured specimen after creep tests



第3図 40%中断材で観察されたクリープボイドのSEM観察結果
Fig. 3 Microstructure of creep voids in 40% ruptured crept specimen



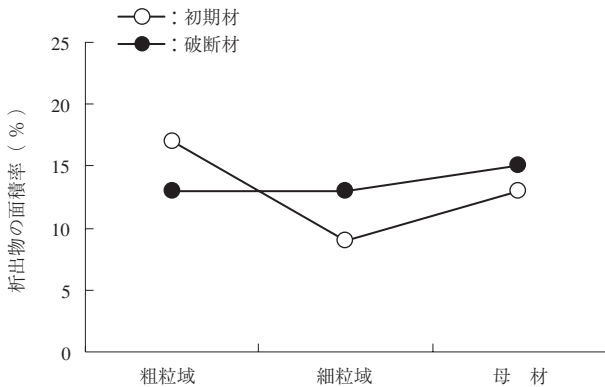
第4図 初期組織のTEM観察結果
Fig. 4 Microstructure of TEM



第5図 カーボン抽出レプリカ膜のTEM観察結果
Fig. 5 TEM observation of carbon extraction replica

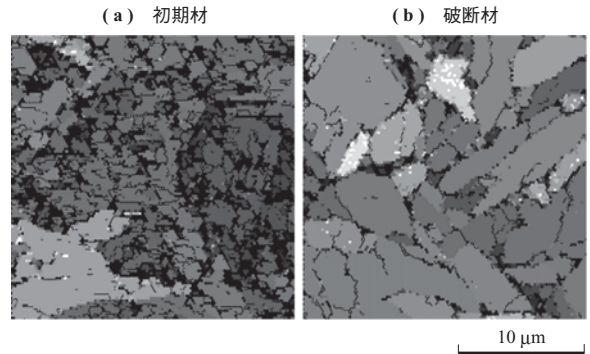
るためにカーボン抽出レプリカ膜のTEM観察を行った結果を示す。HAZ細粒域ではHAZ粗粒域・母材で観察されるような、直線状に連続した析出物が少なく、溶接と溶接後熱処理の熱履歴によって、析出物の消滅・生成が起きている。クリープ試験前後の組織形態をみるために、第6図にレプリカ観察によって得られた析出物の面積率を示す。クリープ試験前後で、粗粒域・母材に比べ細粒域の析出物が最も大きく異なっている。

EBSPによって粗粒域、細粒域および母材領域について



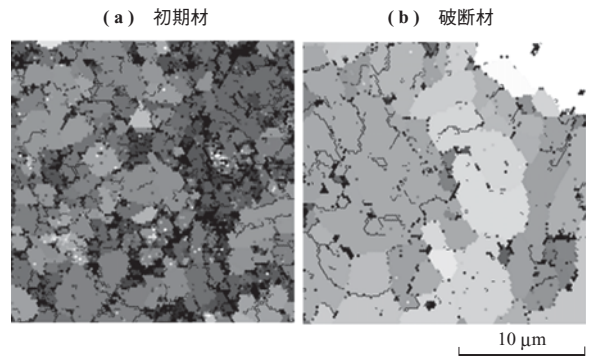
第6図 カーボン抽出レプリカ膜で観察された析出物の面積率の比較
Fig. 6 Volume fraction of precipitates on carbon extraction replica

て結晶方位を測定することで、結晶粒径の変化を調べた。HAZ細粒域の1 μm程度の組織を評価するために通常の金相学的手法に替わりEBSPによる組織数値解析、すなわち微細領域の結晶方位測定、結晶粒径算出を活用した。結晶方位差が10°を超える結晶の境界を粒界（大傾角粒界）として、10°以下の境界をサブバウンダリー（小傾角粒界）と定義してEBSPのデータを整理した。母材領域のクリープ試験前と破断後のEBSPイメージを第7図に示す。試験前と破断したイメージを比較すると、確かにクリープ中に低角度のサブバウンダリー（黒線）が減少している。しかし、破断材でも高方位差角をもつ結晶粒界は元の細長い形状に近いものが残っており、結晶粒界は比較的变化していないことが分かる。同様に細粒域についてクリープ試験前後のEBSP解析結果を第8図に示す。サブグレインに含まれる黒線で示したサブバウンダリーだけではなく、組織全体としてクリープ試験中に動的な回復・再結晶⁽¹²⁾が促進し濃淡で示した結晶粒の形態が粗大化し



(注) 白黒のグラデーションはIQ値を示し、色の違いで結晶粒を色分けした。黒線は亜結晶粒界を示す。

第7図 母材のEBSP解析結果
Fig. 7 Average IQ map of EBSP in base metal

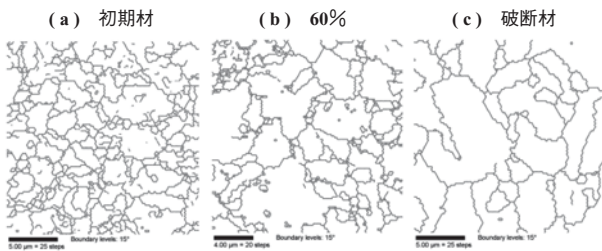


(注) 白黒のグラデーションはIQ値を示す。黒線は亜結晶粒界を示す。

第8図 細粒域のEBSP解析結果
Fig. 8 Average IQ map of EBSP in fine grained HAZ

ていることが分かる。大傾角粒界に着目するため、結晶方位差が 15° 以上の粒界を示したイメージを**第9図**に示す。クリープ試験時間が破断の60%（破断寿命比60%）に達すると、初期に観察された微細な結晶粒が消失し、粗大な回復・再結晶粒が生じていた。

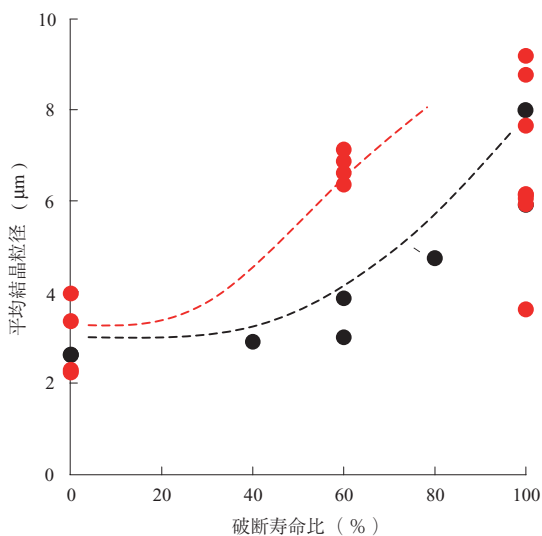
このような回復・再結晶を引き起こす初期組織について異なる溶接条件による熱履歴についても、再結晶・結晶粗大化挙動が認められるか、EBSPによる平均結晶粒径を用いて定量的に調査した。 15° 以上の大傾角粒界で区切られる結晶粒径の平均を、クリープ寿命に対して整理した（**第10図**）。これまで示した入熱条件が黒であり、入熱を抑えた低入熱条件を赤で示した。破断寿命比で60%以上になると、赤の低入熱条件についても、高入熱条件と同様に急激な結晶粒の粗大化が生じていることが明らかになった。また、低入熱条件の試験片では、破断



(注) 15° 以上の方位差をもつ粒界を黒線で示す。

第9図 細粒域の結晶粒界イメージ

Fig. 9 Boundary image of EBSP in fine grained HAZ



(注) 黒が高入熱条件，赤が低入熱条件を示す。

第10図 結晶粒径の破断寿命に対する変化

Fig. 10 Average Grain Size of EBSP in fine grained HAZ in two weld condition

時に平均結晶粒径が小さい結果も存在していた。これは一般にクリープ抵抗の減少を引き起こすような動的再結晶⁽¹³⁾の生成を意味し、変形の集中を引き起こしていたことが予想される。

今回の試験でも実機と同様に Type IV Crack で試験片が破断していることから HAZ 細粒域の組織変化がポイドの生成に影響を与えていると考えられる。EBSP によって明らかとなった結晶粒成長はその一因であると考えられる。母材のクリープ破断した組織においても、回復がクリープ損傷末期近くになって生じることが知られている⁽¹⁴⁾。細粒域で生じた結晶粒の急激な成長、つまり結晶の進展は、その部分の寿命を消費した現れであり、周囲との強度差が大きくなることで、ポイド発生が加速され、Type IV Crack で破断することが推定できる。

実機のクリープ損傷評価を行うためには、温度・応力条件の影響についてさらに詳細な検討が必要である。また、試験片のサイズ効果についても知られている。しかし、EBSP を適用すれば、ある程度広い面積の測定が容易に可能であることから、Mod.9Cr-1Mo 鋼の定量的なクリープ寿命の評価に適用できる可能性があることが分かる。今後、試験条件やサイズ効果を検討しつつ、長時間クリープ評価へ適用する。

4. 結 言

Mod.9Cr-1Mo 鋼溶接継手のクリープ試験片を用い、EBSP による広範囲の金属組織を定量的に評価することで、以下の知見が得られた。

- (1) Mod.9Cr-1Mo 鋼溶接継手ではクリープ損傷の進展に伴い、 10° 以下の方位差をもつサブバウンダリーの回復が生じる。
- (2) HAZ 細粒域では 15° 以上の方位差をもつ結晶粒界で回復・再結晶が起こり、クリープ損傷の進展に伴い組織が粗大化している。
- (3) この HAZ 細粒域の粗大化挙動について、 15° 以上の方位差を持つ平均結晶粒径の変化から定量化すると、溶接継手のクリープ損傷と良い相関がある。また、異なる溶接条件についても同様の結果を得た。

参 考 文 献

- (1) 吉澤廣喜，中代雅士，木原重光，中川幸也：2.25Cr-1Mo 鋼の粒内に観察される方位変化による

- クリープ歪の測定 鉄と鋼 第 81 卷 第 2 号
1995 年 2 月 pp. 141 - 146
- (2) H. Yoshizawa : MICHIGAN TECHNOLOGICAL UNIVERSITY (1997)
- (3) 鈴木清一 : EBSP 法の基本原理と最近のナノビーム化の利点 まてりあ 第 40 卷 第 7 号 2001 年 7 月 pp. 612 - 616
- (4) 久布白圭司, 米山夏樹, 伊藤拓哉, 野中 勇 : 改良 9Cr-1Mo 鋼溶接継手のクリープ変形に伴う組織変化 材料とプロセス 第 18 卷 第 6 号 2005 年 p. 1 552
- (5) 渡部 隆, 山崎政義, 本郷宏通, 田淵正明, 田辺龍彦 : 9Cr-1Mo-V-Nb 鋼溶接継手の長時間クリープにおける Type IV 破壊と微細組織 (力学特性) 鉄と鋼 第 90 卷 第 4 号 2004 年 4 月 pp. 206 - 212
- (6) NIMS. Tsukuba : NIMS Creep Data Sheet No.43 (1996)
- (7) R. Viswanathan : Damage Mechanisms and life Assessment of High-Temperature Components (1989)
- (8) 李 在勝, 丸山公一, 野中 勇, 伊藤拓哉 : Mod.9Cr-1Mo 鋼の溶接熱影響部でのキャビティ発生機構 学振 123 委員会研究報告 第 44 卷 第 3 号 2003 年 4 月 pp. 249 - 254
- (9) Lee Jae-Seung : Thesis, Tohoku University (2005)
- (10) 長谷川泰士, 村木太郎, 大神正浩 : 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 (相変態・材料組織) 鉄と鋼 第 92 卷 第 10 号 2006 年 10 月 pp. 609 - 617
- (11) 長谷川泰士, 村木太郎, 大神正浩 : 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 (相変態・材料組織) 鉄と鋼 第 92 卷 第 10 号 2006 年 10 月 pp. 618 - 626
- (12) 牧 正志, 田村今男 : 動的再結晶の組織的特徴および静的再結晶との比較 (熱間加工と再結晶) (<特集> 再結晶・粒成長) 鉄と鋼 第 70 卷 第 15 号 1984 年 11 月 pp. 2 073 - 2 080
- (13) 松尾 孝 : New Creep Deformation Concept Based on Creep under Lower Stresses 学振 123 委員会研究報告 第 48 卷 第 3 号 2007 年 11 月 pp. 237 - 244
- (14) 鈴木健太, 熊井真次, 九島秀昭, 木村一弘, 阿部富士雄 : 改良 9Cr-1Mo 鋼の長時間クリープ変形に伴う不均一回復と Z 相の析出 鉄と鋼 第 86 卷 第 8 号 2000 年 10 月 pp. 550 - 557