

特別講演

□第179回春季講演大会学術功績賞受賞記念特別講演

クリープ強度特性に及ぼす組織の不均一性の影響

Impact of Microstructural Inhomogeneity on Creep Strength Properties



*脚注に略歴

木村一弘

Kazuhiro Kimura

国立研究開発法人
物質・材料研究機構
構造材料研究拠点長

1 はじめに

この度は学術功績賞の栄誉にあずかり、大変光栄に存じます。これまでご指導、ご支援頂きました多くの方々に心より感謝申し上げます。学部4年で所属した鉄鋼材料学講座でクリープに出会い、大学院では「耐熱鋼の高温クリープに伴う材質劣化に関する研究」に取り組みました。金属材料技術研究所に入所後はクリープデータシートプロジェクトに参画し、10万時間を超える長時間試験データ（2020年1月時点で781本）を含む膨大な長時間クリープ試験データを用いて、耐熱鋼の材質劣化や寿命予測等に関する研究に取り組んできました。材料の機械的特性を向上させるためには、機械的特性を支配するマイクロ組織を制御することが重要ですが、耐熱鋼の使用環境である高温ではマイクロ組織が時間とともに大きく変化するため、マイクロ組織変化に伴いクリープ強度特性は時々刻々と変化します。そのようなクリープ中の組織変化は必ずしも均一ではなく、クリープ強度特性の多くが不均一な組織変化に支配されます。ここでは、材質劣化、寿命予測及びクリープ破断延性の観点から、耐熱鋼のクリープ強度特性に及ぼす組織の不均一性の影響について述べさせていただきます。

2 材質劣化

学生時代は、ベイナイト組織を有する蒸気タービンロータ材である1Cr-1Mo-0.25V鋼のクリープ変形に伴う材質劣化が

主な研究テーマであった。破断時間が約1万時間という長時間クリープ試験を先輩から引き継ぎ、中途止めたクリープ試験片を用いて組織や機械的特性の変化を調べ、材質劣化挙動の解明に取り組んだ。クリープ変形中には金属組織が変化するため機械的特性が変化する。析出による強度向上等の場合を除き、多くの場合、クリープ変形に伴う組織変化は機械的特性を低下させる。しかし、そのような組織変化による機械的特性の低下が行き着く先はどうなるのであろうか？というのが当時の疑問であり、そこで参考になったのがBoltonらの論文¹⁾であった。1970～1980年代にかけて、内部応力（摩擦応力とも）の概念に基づいたクリープ機構の検討が数多くなされていたが²⁾、Boltonらはクリープ変形に伴う組織変化により内部応力の高い組織から低い組織に遷移するため、応力-破断時間曲線はS字型の形状を示すというモデルを提案した¹⁾。アルミニウム合金（6061-T651）では、このモデルを支持する検討結果がすでに報告されていた³⁾。

そこで、クリープデータシートを用いてフェライト系耐熱鋼の長時間クリープデータを解析したところ、Boltonらのモデルを支持する結果が得られるとともに、長時間のクリープ変形後に到達する完全に焼なまされた組織のクリープ強度は、多くの実用フェライト系耐熱鋼で同程度であることを示し、それをフェライト系耐熱鋼の基底クリープ強度として提唱した⁴⁾。一方、炭素鋼の長時間クリープ強度には大きなヒート間差が認められたが、それは微量Moによる固溶強化に起因するものであり、0.03mass%程度でMoによる固溶強化の効果は飽和して、それがフェライト系耐熱鋼の基底ク

* 1987年3月に東京工業大学大学院博士後期課程金属工学専攻を修了し、工学博士を取得した。同年4月に科学技術庁金属材料技術研究所に入所、2000年からは物質・材料研究機構にてグループリーダー、ステーション長、ユニット長等を歴任した後、現在に至る。

リープ強度に相当する。すなわち、化学組成や熱処理による組織制御によりクリープ強度を高めても、高温長時間域ではフェライト系耐熱鋼のクリープ強度はMoを0.03mass%添加した炭素鋼のクリープ強度と同程度になる⁵⁾。

これらの研究成果に対して、高強度のフェライト系耐熱鋼を開発する可能性を否定するものではないかというお叱りの声を数多く頂いたが、基底クリープ強度の概念は決して高強度耐熱鋼開発の可能性を否定するものではなく、高強度すなわち長寿命の耐熱鋼を開発するための材料設計指針を提示するものである。高温では拡散による組織変化は不可避であることから、組織の高温安定性を向上させることにより組織変化の進行を抑制することが重要である。材料が使用される寿命範囲内においてクリープ強度が基底クリープ強度にまで低下することなく、高いクリープ強度を維持することができるように化学組成及び金属組織を設計することにより、高強度耐熱鋼を開発することが可能となる。したがって、高強度耐熱鋼を開発するための設計指針を取得するためには、クリープ変形に伴い材質劣化を引き起こす組織変化を理解することが最も重要である。

学生時代に研究対象とした1Cr-1Mo-0.25V鋼はベイナイト組織であり、微細に分散析出した炭化物により析出強化された材料である。そのため、クリープ変形に伴う材質劣化は炭化物の凝集粗大化、あるいはボイドの発生及び連結等に起因すると考えられていた。しかし、クリープ試験を中途止めた試験片を用いてミクロ組織や機械的特性の変化を調査するとともに、再熱処理材のクリープ強度等を調べた結果、粒内に比べて旧オーステナイト粒界近傍で優先的に生じるベイナイト組織の回復が、クリープ強度の低下を引き起こす主な要因であることを明らかにした^{6,7)}。溶質原子や転位、析出物粒子や結晶粒径のように大きく異なるサイズスケールの数多くの組織因子がクリープ強度に影響を及ぼすが、クリープ強度に影響を及ぼすそれらの組織因子は必ずしも材料内部で均一ではない。クリープ変形中に生じる組織変化は均一に進行するのではなく、とくに結晶粒界は転位の消滅場所であるとともに、粒界と粒内では第二相の析出、成長、粗大化の挙動が大きく異なることから、粒界近傍と粒内では組織変化の様相が大きく異なる。したがって、クリープ変形中に生じる材質劣化のメカニズムを解明するためには、組織変化の不均一性に着目することが重要である。

3 寿命予測

クリープ試験研究では、如何にして正確かつ迅速に長時間クリープ強度特性を予測評価するかが求められる。これは新材料についてだけでなく、発電プラントや石油化学プラント

等で長期間使用された部材の余寿命評価でも必要とされる。ボイラや圧力容器等の部材は種々の規格で規定された許容応力に基づいて設計される。許容応力は引張強さと耐力、クリープ強度等に基づいて設定されるが、高温ではクリープ強度が支配的となり、非原子力分野では10万時間クリープ破断強度に基づいて設定されることが多い。したがって、新規開発した耐熱鋼を実機プラントに導入するためには10万時間クリープ破断強度の評価が求められるが、10万時間のクリープ試験には約11年5ヶ月という長期間を要する。そのため、新規開発材料を迅速に採用して発電プラント等の高効率化を図るとともに、プラントの安全性、信頼性及び経済性等の観点から、短時間クリープ試験データから10万時間クリープ破断強度を精度良く予測評価することが必要とされており、数多くの手法が提案されている⁸⁾。一般に広く用いられている手法は、Larson-Millerパラメータに代表される時間-温度パラメータ法であり、試験温度の違いを補償することにより高温短時間試験データから低温長時間クリープ強度を予測評価する方法である。Larson-Millerパラメータは焼戻しパラメータに相当する。

「強度2倍、寿命2倍」をスローガンにして1997年度に開始した超鉄鋼プロジェクトでは、耐熱鋼開発のグループに参画し、加速評価のテーマに取り組んだ。試作材の長時間クリープ強度を短期間で評価するためにも必要な研究課題である。1993年には国内初となる蒸気温度600℃級の石炭火力発電所が運転を開始し、超々臨界圧火力発電に代表される先進発電技術向けの高強度耐熱鋼の研究開発が国内外で活発に行われていた。そこで、1980年代前半に米国で開発され、蒸気温度を600℃級に引き上げるために重要な高強度フェライト耐熱鋼の先駆けとなった改良9Cr-1Mo鋼について、長時間クリープ強度特性を評価するための材質劣化機構の解明に取り組んだ。その結果、600℃前後の使用温度域では約1万時間を超えるとクリープ破断強度が大きく低下するため、従来の予測手法では3万時間程度のクリープ強度でさえも過大評価してしまうことが明らかとなった⁹⁾。改良9Cr-1Mo鋼の受入れ材及び600℃クリープ破断試験片のTEM明視野像を図1に示す⁹⁾。受入れ材(a)は転位密度が高く微細な焼戻しマルテンサイト組織であるが、(b) 971h、(c) 12,858hと破断時間の延長に伴い組織の回復が進み、転位密度の減少及びサブグレインの成長が観察される。しかし、クリープ破断強度が大きく低下した(d) 34,141h破断試験片では様相が大きく異なり、旧オーステナイト粒界近傍で著しく組織の回復が進行しているのに対して、粒内組織は破断時間が約1/3の(c) 12,858h破断試験片と同程度であるか、わずかに微細な傾向が認められる。短時間破断材では組織の回復が均一に進行するのに対して、長時間破断材では回復の進行が不均一であり、旧オー

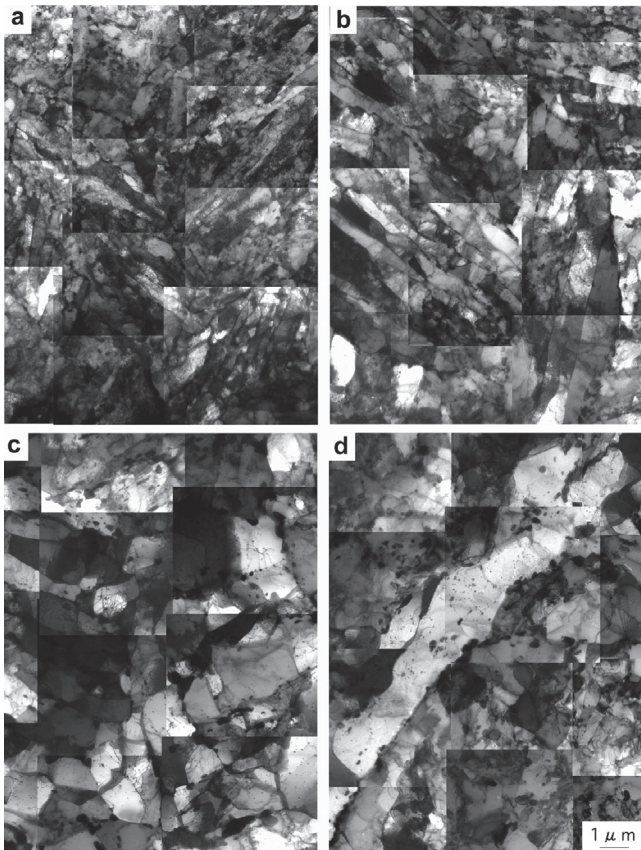


図1 改良9Cr-1Mo鋼の受入れ材及び600℃クリープ破断試験片のTEM明視野像、a) 受入れ材、b) 160MPa, $t_r=971h$ 、c) 120MPa, $t_r=12,858h$ 、d) 100MPa, $t_r=34,141h$ ⁹⁾

ステナイト粒界近傍で著しく優先的に回復が進行する。したがって、短時間クリープ試験条件で進行する組織変化は、長時間クリープ試験条件における組織変化とは異なるため、短時間クリープ試験データから長時間クリープ強度特性を予測評価することは困難である。

このような組織変化の違いは、弾性（比例）限を考慮することにより理解することができる¹⁰⁾。応力が弾性限以下の場合、炭窒化物やラス等の境界は転位の障害物として有効に働くが、弾性限以上の応力が負荷された条件では転位運動に対する有効な障害物とはならないため、ラスの崩壊に伴うサブグレインの成長等の組織変化が試料全面で均一に生じる。一方、旧オーステナイト粒界は粒内に比べて拡散速度や析出物の粗大化速度が大きく、粒界近傍には粒内に比べてマルテンサイト変態等によって導入された内部ひずみが集中するため、弾性限以下の低応力条件では、粒内に比べて旧オーステナイト粒界近傍で優先的に組織の回復が進み、不均一に組織変化が進行する。

短時間試験データから外挿して予測したクリープ強度を長時間クリープ強度が下回ると、長時間域でクリープ強度が大きく低下したと理解しがちである。しかし、弾性限を超え

る試験応力が負荷される短時間試験条件では、焼戻しマルテンサイトの微細なラス組織が容易に破壊されるためクリープ強度が大きく低下すると理解すべきである。したがって、弾性限を境界にして高応力域と低応力域では組織変化に対する応力の影響が異なり、それに対応してクリープ強度の応力依存性も変化するため応力-破断時間曲線には折れ曲がりが生じ、短時間試験データを長時間側に外挿すると長時間クリープ強度を過大評価してしまう。焼戻しマルテンサイトやベイナイト等の組織を有するフェライト系耐熱鋼の場合、応力-破断時間曲線が折れ曲がりを示す応力と0.2%耐力の1/2には良い対応が認められることから¹¹⁾、クリープ破断データを0.2%耐力の1/2で分割し、高応力域と低応力域を独立に解析評価する「領域分割解析法」を提唱した¹⁰⁾。高強度フェライト系耐熱鋼の許容応力の見直しや寿命評価式の策定に「領域分割解析法」による評価結果が反映されるとともに、ASME ボイラ圧力容器規格では9Cr-1Mo-V鋼（改良9Cr-1Mo鋼相当材）の50万時間までの設計基準値（Allowable Stress Intensity Value）の策定にも反映された。

4 クリープ破断延性

発電プラント等の高効率化を実現するためにはクリープ強度の向上が必要であるが、プラントの安全性や信頼性の観点からは、優れたクリープ破断延性も重要である。しかし、超々臨界圧火力発電プラントで管寄せや主蒸気管等の大型厚肉部材に使用される高強度フェライト耐熱鋼では、長時間域でクリープ破断延性が急激に低下するため、クリープ破断延性の低下原因に関して数多くの研究が行われている¹²⁾。アルミニウム、硫黄、リン、ヒ素、アンチモン等々の有害元素や微量不純物の影響、Laves相等の粗大析出物やBN, MnS, Al_2O_3 等の非金属介在物がキャビティの生成を促進すること等がクリープ破断延性を低下させる要因として検討されている。

ところが、前節で述べた応力-破断時間曲線の折れ曲がりと同様、クリープ破断延性の低下と応力条件との間には良い相関が認められ、0.2%耐力の1/2以下の試験応力でクリープ破断延性の大きな低下が認められる¹²⁾。応力の低下（試験時間の増加）に伴いクリープ破断延性は低下するが、さらに応力が低下すると最小値を示した後、破断延性は向上する傾向が多くの高強度フェライト耐熱鋼で認められる¹²⁾。同様の現象は近年開発された高強度フェライト耐熱鋼だけでなく、2.25Cr-1Mo鋼でも認められる¹³⁾。上述したように、有害元素や微量不純物あるいは粗大析出物や非金属介在物がクリープ破断延性低下の要因であるのであれば、一度低下したクリープ破断延性が再び向上することを説明することは難しい。そこで、クリープ変形に伴う組織変化の観点から、クリープ破

断延性が低下する現象を検討した。

初期組織が異なる3種類の2.25Cr-1Mo鋼のクリープ破断強度とクリープ破断試験片の硬さ及びクリープ破断紋りをLarson-Millerパラメータ ($C=20$) で整理して図2に示す¹³⁾。フェライト-パーライト組織の材料 (STBA24) と焼ならし焼戻し熱処理材 (SCMV 4NT) は試験条件によらず高いクリープ破断延性を示し、Larson-Millerパラメータの増加に伴い破断紋りは増大する傾向を示す。一方、焼入れ焼戻し熱処理材 (ASTM A542) は他の2鋼種に比べて高応力域では高いクリープ強度を示し、硬さも大きな値を示す。しかし、パラメータ値が19,000~20,000の領域においてクリープ破断強度及び硬さともに他の2鋼種と同程度のレベルまで大きく低下するとともに、クリープ破断延性は大きく低下し、その後、パラメータ値の増加に伴いクリープ破断延性は向上する。高温長時間域で3鋼種のクリープ破断強度及び硬さが同程度のレベ

ルに収斂するのは、2節で述べた基底クリープ強度に到達したためである。焼入れ焼戻し熱処理材のクリープ強度が大きく低下する試験条件では、焼戻しマルテンサイト組織の回復が不均一に進行しており、回復が試料全面に拡大することにより基底クリープ強度に到達する。したがって、不均一回復により局所的にクリープ強度の低い領域が形成されて破断に至るためクリープ破断延性は低下するが、組織の回復が試料全面に拡大することにより破断延性が向上すると考えられる。このことから、クリープ破断延性に関しても不均一組織の影響を考慮することが重要である。

5 おわりに

本稿では、クリープ変形に伴う材質劣化や寿命予測及びクリープ破断延性に対して、組織の不均一性が重要な影響を及ぼすことを述べた。クリープ変形抵抗はクリープ速度の大きさを表されるが、析出強化等の強化因子の効果を有効に活用することによりクリープ速度を2~3桁程度、すなわち1/100~1/1,000程度に低下させることは十分に可能である。このことは、たとえ体積率で1%程度のわずかな領域でも強化されていない領域があれば、材料全体のクリープ強度に甚大な影響を及ぼすことを意味する。したがって、クリープ強度特性では組織の不均一性が及ぼす影響が特に顕在化しやすいのではないと思われる。最近では、凝固偏析の残存による合金組成の不均一な分布がクリープ強度を低下させている事例も確認されている¹⁴⁾。材料製造時の組織や使用中における組織変化を含めて、不均一性を抑制することは耐熱鋼の強度特性を向上させる重要な指針の一つである。

本稿で述べた内容は、その多くが金属材料技術研究所にて1966年に開始したクリープデータシートプロジェクトの成果に基づくものである。クリープデータシートプロジェクト発足に至る経緯をたどると、1960年に日本鉄鋼協会に設置された「鉄鋼技術開発研究会」クリープ部会がその始まりであり、翌年に設立されたクリープ試験技術研究組合において、クリープ試験の標準化に関する共同研究が推進された。1963年には「クリープセンター設立準備委員会」が設置され、科学技術庁と大蔵省に設置要望書を提出するとともに、1964年に設立された「クリープ委員会」の下部組織であるクリープデータシート分科会にてクリープデータシートプロジェクトの実施内容が企画立案され、1966年にプロジェクトが開始した。プロジェクト発足に至るこれらの取り組みはいずれも日本鉄鋼協会にて実施されたものである。世界的にも類を見ない歴大な長時間クリープ試験データを系統的に取得するという大事業を立ち上げた先人の先見の明と、50年以上もの長期にわたりクリープ試験を継続することを可能にした施設・設

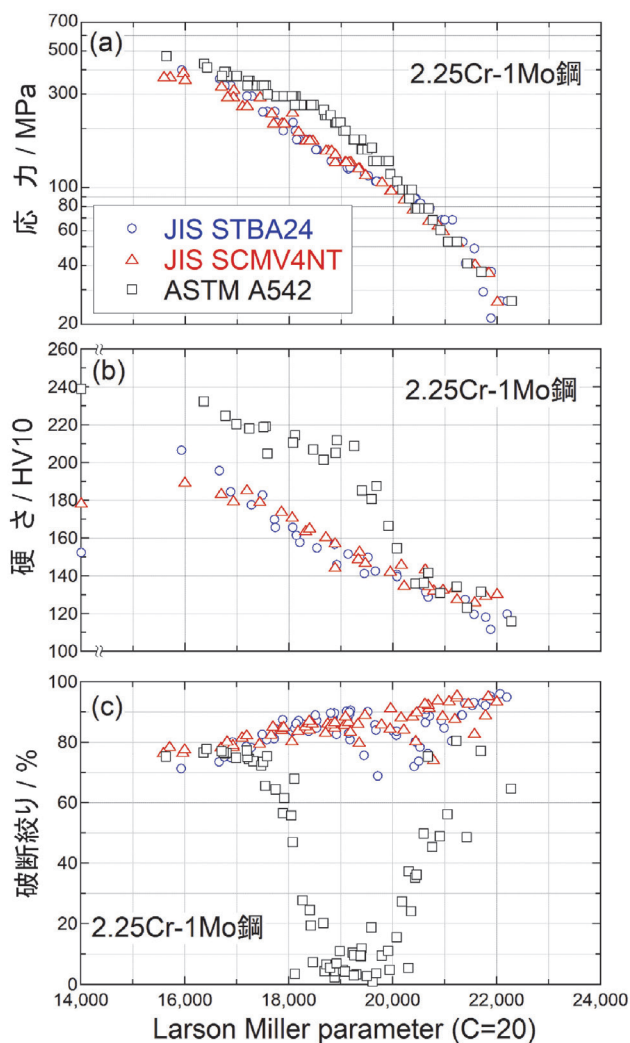


図2 ラーソンミラーパラメータ ($C=20$) で整理した3種類の2.25Cr-1Mo鋼の (a) クリープ破断強度、(b) 破断試験片の硬さ及び (c) 破断紋り¹²⁾

備の維持を含め、クリープ試験業務に携わった数多くの職員の献身的な努力に敬意を表します。このようなプロジェクトを長期間継続することができたのも、行政機関、大学や研究機関、民間企業等の多くの方々のご支援、ご協力の賜物です。この場をお借りして御礼申し上げます。30年以上の長期にわたりクリープデータシートプロジェクトに参画することができたことは私にとって幸運でした。プロジェクトの運営は後進に譲りましたが、クリープ試験研究の重要性は今後も変わることはないと確信しております。今後とも皆様からの益々のご支援、ご協力と叱咤激励をお願いいたします。

参考文献

- 1) C.J.Bolton, B.F.Dyson and K.R.Williams : Mater. Sci. Eng., 46 (1980), 231.
- 2) 例えば, K.R.Williams and B.Wilshire : Met. Sci. J., 7 (1973), 176.
- 3) S.P.Agrawal, L.E.Byrnes, J.A.Yaker and W.C.Leslie : J. Testing and Evaluation, 5 (1977), 161.
- 4) 木村一弘, 九島秀昭, 八木晃一, 田中千秋 : 鉄と鋼, 77 (1991), 667.
- 5) 木村一弘, 九島秀昭, 八木晃一, 田中千秋 : 鉄と鋼, 81 (1995), 757.
- 6) 松尾孝, 木佐貫哲也, 田中良平, 小松周一 : 鉄と鋼, 70 (1984), 565.
- 7) 木村一弘, 木佐貫哲也, 小松周一, 松尾孝, 田中良平 : 鉄と鋼, 71 (1985), 1803.
- 8) 木村一弘 : 日本金属学会誌, 73 (2009), 323.
- 9) 九島秀昭, 木村一弘, 阿部富士雄 : 鉄と鋼, 85 (1999), 841.
- 10) 木村一弘, 九島秀昭, 阿部富士雄 : 材料, 52 (2003), 57.
- 11) K.Kimura : Proc. ASME PVP2013, (2013), PVP2013-97819.
- 12) K.Kimura, K.Sawada and H.Kushima : J. Pressure Vessel Tech., 134 (2012), 031403.
- 13) 長時間クリープ試験材の微細組織写真集, 物質・材料研究機構, (2005) M-4.
- 14) 澤田浩太, 関戸薫子, 木村一弘, 有末紘, 本田雅幹, 駒井伸好, 福澤範英, 上野友典, 下畠伸朗, 中富仁, 高木健二, 木村堯弘, 野村恭兵, 久布白圭司 : 鉄と鋼, 105 (2019), 433.

(2020年4月24日)