Nimonic 75 合金の高温クリープ破壊について*

横 堀 武 夫** 志 村 元***

Takeo Yokobori and Hashime Shimura : On High Temperature Creep Fracture in Nimonic 75 Alloy. High temperature creep behavior of Nimonic 75 alloy was studied under the test condition of the cavitation fracture. At what stage of the creep curve the cavity would nucleate and how it grows was observed continuously on the specimen surface by using a high-temperature microscope. In order to examine the shape of the cavitation fracture surface, electron fractomicrographical observations were made. Mesurement of angular distributions for grain boundary cavities was also carried out.

From the studies the following conclusions are obtained :

(1) The cavities on the surface and the interior of the specimen are initiated during the stage of transient creep and will grow during the stage of steady creep.

(2) The grain boundary sliding appears to contribute to the initiation and the growth of the crack of cavity type.

(3) The most probable value of the direction of the grain boundary at which cavities initiate is in agreement with the direction of the maximum shear stress component of applied stress.

(Received September 10, 1974)

I. 結 言

高温クリープ破壊の特徴はキャビティション破壊である。これは楔型破壊に較べて、より高温、低応力で起こることが確認されている。しかしながら、クリープ変形中における試験片表面の直接観察の例は少なく、クリープ破壊に至るまでの様相は明らかでない所が多い。

そこで、本研究においては、キャビティション破壊を生ずる実験条件において、高温クリープ負荷しながら破壊にいたるまで高温顕微鏡によって試験片表面の連続観察を行い、キャビティがクリープ曲線のどの段階において現われ、どのような様相で生長していくかということを調べた。さらに、試験片内部における粒界キャビティの角度分布の測定、電子顕微鏡による破面および表面観察などにより、粒界キャビティ発生、生長の様相について調べたものである。

II. 実験方法および試験片

試験機としては高温顕微鏡装置付きクリープ試験機⁽¹⁾を用いた。これではクリープテスト中、試験片表面の直接観察が可能である。さらに、試験片の伸びは試験片のチャッ

クに取り付けたダイヤルゲージで測定され、温度は試験片表面に溶接された熱電対によって測定された。実験は 5×10^{-5} mm Hg の真空中で、温度 1000°C、負荷応力は 2.0~4.0 kg/mm² で、キャビティション破壊を生ずる⁽²⁾ 条件でのクリープ実験を行なった。

供試材は Ni 基超耐熱合金で、0.8 mm 厚の Nimonic 75 合金板を用いた。その化学分析値を Table 1 に示す。試験片は Fig. 1 に示すような形状および寸法に機械加工し、ゲージ長さ方向を圧延方向にとってある。なおクリープ変形中の試験片表面の顕微鏡観察を容易にするため、1200°C で 10 hr 真空焼なまし(炉冷)を行い、ASTM 粒度番号で 2.0~3.0 の粒径を得た。その後、エメリー紙 0/6 まで研磨し、最後にバフ研磨仕上げをし実験に供した。高温での連続観

Fig.1 Dimension of the specimen (thickness 0.8 mm).

Table 1 Chemical composition.

C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	Cu	Ti	Fe
0.098	0.40	0.61	0.005	0.005	74.15	19.40	0.15	0.06	0.60	4.10

** 東北大学工学部(Faculty of Engineering, Tohoku University, Sendai)

*** 東北大学工学部、現在：弘前大学教育学部(Faculty of Engineering, Tohoku University, Sendai. Present address : Faculty of Education, Hirosaki University, Hirosaki)

* 1968 年 4 月金属学会東京大会に発表。

察には顕微鏡の倍率 100 を用いた。試験中の温度変動は $\pm 5^{\circ}\text{C}$ 以内におさめた。

III. 実験結果および考察

Photo.1 は負荷応力 4.0 kg/mm^2 で破壊した試験片を研磨、腐食して得られた破面近傍での顕微鏡観察の一例である。明らかに粒界にそってのキャビティ型破壊を起こしたことがわかる。キャビティ型クラックであるという判定には、クラック表面がジグザグした波状を呈しているかどうかで行なった⁽³⁾。

つぎに、最終破断に至るまでの試験片表面の様相を高温

Photo.1 Cavity type crack in the interior of the specimen.

顕微鏡により連続観察を行ない、同時にクリープ曲線を求めた。これによる同一位置の組織的变化をクリープ曲線の各段階での対比でみたものが **Fig.2** と **Photo.2** である。(a) は負荷前の組織であり、粒界は熱腐食によって生じたものである。(b),(c) は遷移クリープ、(d),(e) は定常クリープ、(f),(g) は加速クリープ中の組織変化を示している。これらの連続的な観察結果より、遷移クリープおよび定常クリープ期間中に粒界は引張軸方向への幅が太くなり、粒界クラックと認められる幅と深さになってくる。つづいて起こる加速クリープでは、すでに形成された粒界クラックが互いに結合する期間に相当しており、試片全幅を横切ることによって、急激に破壊が生じている。

つぎに、キャビティの発生時期を調べるために、同一場所の負荷前と負荷後における高温顕微鏡による比較、さらに、研磨および腐食しての観察を行い検討した。これは試

Fig.2 Creep curve.

Photo.2 Corresponding microstructural changes on the specimen surface at the each point of creep curve in Fig.2.
(a) before testing, (b) at creep strain 3.3%, (c) at creep strain 7.3%, (d) at creep strain 11.4%, (e) at creep strain 14.2%, (f) at creep strain 22.8%, (g) at creep strain 28.3%

Photo.3 Cavities on the specimen surface and in the interior of the specimen at the middle stage of primary creep. (a) before testing, (b) at creep strain 5%, (c) after polishing, (d) by etching

試験片表面に熱腐食によって生じる粒界がキャビティ発生時期の観察を困難にしているからであり、その発生時期の判定には内部との比較も必要と考えたからである。そこで、粒界の幅が太くなる前の段階を詳細に観察を行なった。その結果の一例を **Photo.3** に示した。(a)は負荷前の試験片表面であり、(b)は遷移クリープ中期での高温顕微鏡による観察結果である。(a)と(b)の組織的対比により粒界にキャビティと思われるものが認められる。さらに、同一場所での試験片内部との比較を行なうため、遷移クリープ中期、つまりクリープ歪5%でテストを中止し、試験片を炉より取り外し、室温において約6 μ ほど研磨、および腐食を行なったものが(c)と(d)である。明らかに粒界にそってのキャビティが認められた。なお、負荷前の熱腐食によって生じた粒界は引張軸方向に関係なく様な幅を持っているだけであり、その試験片表面より約4 μ ほど研磨、腐食を行なったものが**Photo.4**である。このように階段模様の粒界が観察される場合はあるけれども、そのようなときでもキャビティは観察されない。以上の観察結果より、キャビティは負荷後に生じたものであり、遷移クリープ中期ではすでに生じていることがわかった。

つぎに、粒界キャビティの発生および生長の様相についてみたものが**Photo.5**(a),(b)である。(a)は負荷前、(b)は定常クリープ中期、クリープ歪12.5%での観察結果である。写真中の二つの矢印は組織的特徴的な部分を目安としてマークとして使ったものであり、同一個所の局所的な粒界ずれの変化についてみたものである。このような矢印の

Photo.4 Microstructure in the interior of the specimen before testing.

ずれは粒界のすべりによって生じたことを示していると思われる。あらかじめ、ケガキ線をつけた場合の実験観察結果は後述(**Photo.8**)してあるが、その写真をそれと対比させても、粒界すべりであると考えられる。したがって、キャビティの発生および生長には粒界すべり⁽⁴⁾⁽⁵⁾が寄与しているものと思われる。

さらに、試験片内部における様相をクリープの各段階についてみたものが**Photo.6**(a),(b),(c)である。(a)は遷移クリープ中期でクリープテストを中止し、比較的表面近くを研磨、腐食して観察されるキャビティである。(b)は定常クリープ中期での表面から約30 μ 内部でのキャビティ型クラックである。(c)はクリープ破断した試験片であり、側面から幅方向に研磨、腐食したものである。なお、左側が試験片表面であり、破面近傍での観察である。(c)より、

Photo.5 Appearance of the grain boundary sliding on the specimen surface.

(a) before testing, (b) at creep strain 12.5%

試験片表面では大きなクラックとなっており、内部に行くにしたがいキャビティが観察される。したがって、遷移クリープ中に試験片表面の粒界に生じたキャビティは生長しつつ、試験片内部に発達するとともに結合し、大きなキャビティ型クラックとなり、破断に至ると考えられる。

焼なまし(炉冷)を行なっているため、粒界に $M_{23}C_6$ 炭化物の析出している可能性が考えられ、そうだとするとその影響も考えられる。しかし、たとえそうであったとしても、Photo.3 や後述の Photo.9 からわかるように、キャビティの中心間距離は、写真にみられる階段の間隔よりも一般に大きい。他方、これら炭化物の析出による粒界階段がキャビティの発生箇所となるならば、キャビティ間隔は、その階段の間隔に相当せねばならない。しかるに、上述のようにキャビティの中心間距離の方が、その階段の間隔よりも大きいことが観察される。したがって、このような階段の間隔よりも大きい処での粒界 ledge 部がキャビティ発生箇所であると考えた方がよいのではないかと思われる。もちろん、このような析出物が ledge 部でのキャビティ発生を助けるという協同効果も考えられるわけであるが、その場合の模型については今後考えてみたい。

つぎに、キャビティシジョン破壊によって生じる破面はいかなる形態を示すかを調べるため、2 段階レプリカ法により電子顕微鏡観察を行なった。その例を Photo.7 (a), (b), (c), (d) に示す。これらの観察より、破面の様相は大部分が粒界脆性破壊をおこしたことを示している。(a)は破面

Photo.6 Microstructures in the interior of the specimen at each creep stage.

(a) at the middle stage of primary creep,
(b) at the middle stage of secondary creep,
(c) after creep fracture

の外周部、つまり試験片表面近傍にみられる破面形態である。比較的初期に生じた粒界脆性破面であると思われる。(b)~(c)は破面中央部にみられた破面形態である。(b)は比較的引張軸方向に垂直な粒界脆性破面である。破面には階段状の模様があり、これに直角方向にみられる条痕はおそらく粒界すべりによって生じた摩擦痕であろうと思われる。(c)は粒界に粗大に析出した析出物と考えられる。(d)は引張軸方向に対して約 45° 傾斜した領域での観察結果である。これは延性繊維状破面に観察されるディンプル型破面に類似した形態であり、おそらく急激に生じた破面と考えられる。

Fig. 3 には温度 1000°C 、応力 3.5 kg/mm^2 の実験条件で得られたクリープ曲線を示す。Photo.8 ((a)~(e)) には同時に撮られた同一場所での試験片表面の高倍顕微鏡による連続観察結果を示した。クリープ曲線上の ((a)~(e)) の各

Photo.7 Electron replica microfractographs of specimen fractured at 1000°C and 2.0 kg/mm².

Fig.3 Creep curve.

々の文字は Photo.8((a)~(e))の文字と対応するもので、Photo.8(a)は遷移クリープ、((b)~(c))は定常クリープ、((d)~(e))は加速クリープ段階でのものである。試験片表面には、あらかじめ、ケガキ線をゲージ長さにわたり、150 μ の等間隔で引張軸の方向に平行につけておいた。粒界は熱腐食によって生じたものである。これらの連続観察結果より、粒界と交差しているケガキ線のズレは遷移クリープ中に生じており、定常クリープから加速クリープに至るにしたがい、しだいに大きくなっていくことがわかる。さらに、ケガキ線のズレに比例して、粒界クラックの大き

さが引張軸の方向に増大している。なお、結晶粒内の各ケガキ線の間隔は遷移クリープから加速クリープにいたってほぼ一定であり、ほぼ、引張軸の方向にある。すなわち、このような粒界部でのケガキ線のズレは粒界すべりによって生じていることを示しており、これが粒界クラックの発生および生長に重要な役割をはたしているものと思われる。なお、Photo.8にみられる粒界クラックは一見くさび型クラックのように見えるが、これは表面の光学顕微鏡観察によるものであって、このような場合でも試片内部ではキャビティ型クラックとなっていることが示されている⁽¹⁾。

一方、ケガキ線に対する粒界の角度の変化によって、粒界すべり量が異なり、本実験条件においては、引張軸方向に対して、クリープ前の角度が約45°傾斜している粒界での変位が大きいことが認められた。これはHarper⁽⁶⁾らのアルミニウムでの観察結果と同様な傾向を示している。そこで、本試験片表面における連続観察結果より、これらの粒界変位の変化をクリープ曲線との対比で Fig.4に示した。粒界の変位量は引張軸に直角な方向でのケガキ線のズレの長さをとってある。曲線(a)はクリープ曲線であ

Photo.8 Microstructural changes on the specimen surface observed at the each point of creep curve in Fig.3.

Fig. 4 Creep curve and the displacement of the grain boundary sliding on the specimen surface.

(a) creep curve, (b) grain boundary displacement at 45° to the tensile axis, (c) grain boundary displacement at 75° to the tensile axis.

り、(b)と(c)は引張軸に対して、クリープ前の角度が、それぞれ45°、75°傾斜していた粒界におけるケガキ線のズレの変化である。これは局部的な粒界での変位量ではあるが、それぞれの傾きを持った粒界のズレが連続的に増加しており、さらにクリープ曲線の形と類似した様相を呈している。このことは粒界すべりがクリープの全変形量に密接な関係を与えているものと思われる。

以上が試験片表面におけるクリープ変形中の観察結果である。つぎに試験片の内部における様相を検討するため、キャビティの分布する粒界の方向の角度分布⁽⁷⁾を調べた。その一例を Fig. 5 に示す。これは温度 1000°C、応力 4.0 kg/mm²の実験条件で破断した試験片の研磨、腐食を行い、引張軸に直角な方向を基準にして、5° 間隔に 36 等分した目盛盤を取りつけ、光学顕微鏡(×200)によって測定したものである。測定した粒界キャビティの数は約 1400 である。Fig. 5 より、キャビティの分布する粒界の方向の

Fig. 5 Angular distribution of grain boundaries at which cavities initiate.

角度分布は引張軸方向とのなす角度が45°の粒界でピークをなしている。つまり、キャビティの分布する粒界の方向の頻度分布は最大剪断応力方向で大きく、したがって、試験片内部においてもキャビティ発生、生長には粒界すべりが密接な関係を持っているものと考えられる。

つぎに、試験片表面における粒界キャビティの発生場所を微視的に検討するため、温度 1000°C、応力 4.0 kg/mm²の実験条件にて、遷移クリープの中期に、つまりクリープ歪 5%の時期に、クリープ試験を中止し、試験片を試験機より取り出し、走査型電子顕微鏡で観察を行なった。その一例を Photo. 9 に示す。(b)は(a)の中心部をさらに高倍率にて観察したものである。明らかにキャビティが発生しており、その発生場所としては試験片にすでに存在している粒界の凹凸部(ledge 部)である。さらに、これらのキャビティの大きさが Photo. 8 に示す、あらかじめ試験片表面につけられたケガキ線のズレの様相とよい対応をなしている。このことから、粒界の ledge 部が粒界すべりに⁽⁴⁾⁽⁵⁾⁽⁸⁾よって引きはなされてキャビティが生じたものであると考えられるであろう。このようなキャビティ発生初期における高倍率による表面観察結果では比較的最大剪断応力方向にある粒界にキャビティが観察されるだけであり、引張軸に対して、ほぼ直角あるいは平行な方向にある粒界には初生キャビティはほとんど認められなかった。

Photo. 9 Scanning electron micrographs of the specimen surface showing cavities at the grain boundary ledges. (a) low magnification, (b) high magnification

つぎに、クリープ破面の観察結果を **Photo. 10** に示す。これは温度 1000°C 、応力 2.0 kg/mm^2 の実験条件で破断時間が約 42 hr で得られた破面から二段レプリカ法によって撮られた電子顕微鏡による写真である。クロムシャドーの方向は 45° である破面においても ledge 部(写真中のなめらかな縦方向の帯状の部分)が観察され、これがほぼ平行にのびている。このような ledge 部では脆性的な粒界破壊によって生じたと思われるなめらかな面を呈しており、それ以外では粒界のすべりによって形成されたと思われる条線(斜め左右の方向の平行な細かい線)がみられる。

Photo.10 Electron replica microfractograph showing the grain boundary ledges.

従来、キャビティは丸みをおびたものと考えられてきた。これらは研摩、腐食後の観察によるものであると思われる。他方、高倍率による観察により、キャビティはすどく角ばった形状⁽⁹⁾が認められ、破面においても平面的なキャビティ⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾が報告されている。

したがって、走査型電子顕微鏡によるキャビティ発生時期での試験片表面および破面の観察より、粒界キャビティの形態⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾は平板状をなしているものと考えられる。これが粒界すべりによって、粒界すべりの方向^{(3)~(5)}に大きさを増し、個々のキャビティが結合することによってキャビティ型クラックとなり、これらがつながって破壊に至ると思われる。

IV. 結 論

Nimonic 75 合金の高温クリープ破壊について、高温顕微鏡、電子顕微鏡を用いて調べた結論をえた。

(1) 粒界は遷移クリープ、および定常クリープ期間中に

太くなり、粒界クラックと認められる幅と深さになり、加速クリープの段階にいたって、これらの粒界クラックが結合して最終破壊をおこしている。

(2) 試験片表面に観察されるキャビティは遷移クリープ中期に発生している。

(3) 試験片内部の観察によれば、キャビティは遷移クリープ中期に形成され、定常クリープ期間で大きなキャビティ型クラックに生長している。

(4) キャビティシジョン破壊した破面の様相は大部分粒界脆性破面である。階段状模様およびディンプル型破面に類似した形態が観察された。

(5) 試験片表面にケガキ線をつけての連続観察の結果、粒界すべりが粒界クラックの発生および生長に重要な役割をはたしていることが推論された。

(6) キャビティ型クラックの発生および生長にさいしては粒界すべりが観察され、これが寄与すると考えられる。

(7) クリープ曲線と粒界変位の曲線は類似した様相を呈している。

(8) 試験片内部におけるキャビティの分布する粒界の方向の頻度分布は最頻値の負荷応力の最大剪断応力成分の方向と一致する。

(9) 試験片表面に観察されるキャビティの発生場所は粒界 ledge 部である。

(10) キャビティシジョン破壊した破面にも ledge 部が観察された。

おわりに、本試料に対してご便宜をいただきました、日本冶金工業株式会社川崎製造所研究部 江波戸和男氏に感謝の意を表します。

文 献

- (1) T. Yokobori, H. Ishii and Y. Fujimura : Rep. Res. Inst. Strength and Fracture of Materials, **2** (1966), No. 1, 1.
- (2) D. McLean : J. Inst. Metals, **85** (1957), 468.
- (3) R. C. Gifkins : *Fracture*, MIT Press, (1959), 579.
- (4) R. C. Gifkins : Acta Met., **4** (1956), 98.
- (5) C. W. Chen and E. S. Machlin : Acta Met., **4** (1956), 655.
- (6) J. G. Harper, L. A. Speghard and J. E. Dorn : Acta Met., **6** (1958), 509.
- (7) A. Gittins and H. D. Williams : Phil. Mag., **16** (1967), 849.
- (8) 渡辺忠雄 : 金属学会会報, **12** (1973), 883.
- (9) D. M. R. Taplin and L. J. Barker : Acta Met., **14** (1966), 1527.
- (10) J. O. Stiegler, K. Farrell, B. T. M. Loh and H. E. McCoy : Trans. ASM, **60** (1967), 494.
- (11) D. M. R. Taplin and A. L. Wingrove : Acta Met., **15** (1967), 1231.