SUS304 への繰返し熱衝撃による損傷特性†

高 雄 善 裕* 汪 文 学* 松 原 監 壮**
福 田 重 久** 呉 勤 勤** 古 賀 洋 治**

Characteristic Damage of SUS304 Stainless Steel Subjected to Repeated Laser Heating Shocks

by

Yoshihiro TAKAO*, Wen-Xue WANG*, Terutake MATSUBARA**

Shigehisa FUKUDA**, Qinqin WU**

and Yoji KOGA**

Thermal shock tests of SUS304 stainless steel subjected to local, instantaneous and repeated laser heating shocks were carried out to investigate the thermal resistivity and damage of the material. A Nd:YAG pulse laser with the maximum power of 50 J/1 pps was employed as a heating source. The heating damages and microstructures of the heated surface and interior were analyzed with scanning electron micrographs. The experimental results showed the appearance of various damage patterns, depending upon the incident heating energy strength and repeated number. High strength heating shocks induced large-sized internal damages, while low strength and repeated heating shocks induced an interface region between the phase transformation area the base SUS304 stainless steel. This region consists of many microcracks or low strength slender microstructures. These results suggest that the internal damages deserve more attention from the view point of material strength.

Key words : Repeated thermal shock, Thermal resistivity, Heating damage, Microcrack, Interface

1 緒 論

近年、宇宙輸送機、次世代航空機、核融合炉等の開発に伴い、苛酷な高温環境に耐える耐熱材料への要求が強くなり、新しい耐熱材料、例えば、セラミックス、カーボン/カーボン複合材料、金属基複合材料、傾斜機能材料などの研究が積極的に進められている。耐熱材料は過渡的な高温環境下で構造あるいは機械部品としての役割を果たさなければならないので、材料強度の立場から、これらの材料の熱衝撃による損傷の一般的理解、繰返し熱衝撃による損傷の進展、熱衝撃後の強度劣化などの熱衝撃特性を的確に評価する必要がある。上記耐熱材料のうち、金属基複合材料、金属の表面にセラミックスをコーティングした被覆材、高熔点金属あるいはセラミックスをミクロ的に積層した傾斜機能材料などでは、耐熱性金属材料が大きな役割を果たし、その熱衝撃特性の評価が重要な研究課題となる。

材料の種類と熱衝撃エネルギーの強度にもよるが、局部かつ瞬間的な高エネルギー熱衝撃を受けた材料には、材料表面の局所溶融、き裂の発生、溶け込み、表面層の相変態など多様な損傷が認められ、その損傷メ

カニズムは極めて複雑である。また、これまでの熱衝撃試験は、急冷型熱衝撃試験（例えば、参考文献1）～3）が多く、材料の融点に比べ低い温度領域での研究が主で、局部的に急激な熱を加える試験、繰返し熱衝撃試験あるいは材料内部の熱衝撃損傷の詳細な検討^{4)~6)}などは少ない。

そこで、本研究では、耐熱性金属材料の熱衝撃特性、特に、材料内部の熱衝撃損傷と繰返し照射による損傷進展機構および照射後の強度の劣化を究明するため、その基礎研究として、パルスレーザ照射法を用いて、SUS304 ステンレス板の金属板の繰返し熱衝撃試験を実施した。なお、ステンレス鋼にはその改良型に核融合炉構造材として開発された JPCA 材があり、ステンレス鋼自体はトカマク型核融合実験炉 JT-60 の第一壁タイルのボルトとして使用され、その高じん性と耐熱性から傾斜機能構造材の一部を構成する可能性も考えられる。

試験では、照射エネルギー密度ならびに繰返し回数をパラメータに取り、試料の表面損傷、内部損傷、ミクロ組織の変化、繰返し熱衝撃による損傷の進展との

† 原稿受理 平成5年8月30日 Received Aug. 30, 1993

* 正 会 員 九州大学応用力学研究所 〒816 春日市春日公園, Res. Inst. for Applied Mech., Kyushu Univ., Kasugakoen, Kasuga, 816

** 九州大学応用力学研究所 〒816 春日市春日公園, Res. Inst. for Applied Mech., Kyushu Univ., Kasugakoen, Kasuga, 816

関係を調べた。

2 実験方法

試験片材料として、融点が約 1673K であるオーステナイト系のステンレス鋼 SUS304 圧延材を採用した。これには緒論に述べた理由の他に、材料の入手の容易さをも考慮した。圧延板の厚さは 2 mm である。熱吸収率を上げるため、#600 のサンドペーパーで表面粗さ約 $3\text{ }\mu\text{m}$ に粗面化処理を施した。加熱装置として、NEC (株)製のパルス Nd:YAG レーザを用いた。その発振波長は $1.06\text{ }\mu\text{m}$ 、最大出力は $50\text{ J}/1\text{ pps}$ 、パルス幅は $1\sim 10\text{ msec}$ である。レーザの出力はパワーメータを使って測定した。今回の試験では、パルス幅を 10 msec に取り、入力電圧と試料位置を変えることにより照射エネルギー密度を制御し、 $55\text{ J}/\text{cm}^2$ と $200\text{ J}/\text{cm}^2$ の 2 通りの照射試験を実施した。Fig. 1 に示すように、直径 10 mm の入射レーザビームをレンズで 3.4 mm に絞って、最高 $200\text{ J}/\text{cm}^2$ の照射エネルギー密度を得た。照射エネルギー密度が小さい場合、すなわち $55\text{ J}/\text{cm}^2$ の場合では、単発および 10, 20, 30, 40, 50 回の繰返し照射試験を行い、照射エネルギー密度が大きい ($200\text{ J}/\text{cm}^2$) 場合では、単発および 10 回の繰返し照射試験を行った。繰返し試験の熱衝撃間隔は十分な冷却が期待できる 30 秒に取った。

照射後、実体顕微鏡による照射表面観察、また、SEM による照射表面の形状と損傷の検討を行った。つぎに、試料の縦断面を切り出して研磨し、酸による

Fig. 1. Schematic diagram of thermal shock test set-up.

エッチングを行い、カーボン蒸着を施したのち SEM による内部組織変化および損傷を解析した。

3 実験結果および考察

3・1 表面損傷

3・1・1 高い照射エネルギー密度の場合 Fig. 2 に照射エネルギー密度 ($200\text{ J}/\text{cm}^2$) の場合の単発 (a-1, 2) と 10 回 (b-1, 2) 繰返し照射後の表面写真を示す。Fig. 2 の (a-2) と (b-2) は照射中心近傍の局部損傷を示すための高倍率写真である。(a-1) と (b-1) のミリメートル単位の大きなスケールで比較すると、単発照射後の表面は繰返し (10 回) 照射後の表面よりマクロな起伏が大きく、肉眼では繰返しの方が損傷が少なく見える。これは後にも触れるが、照射領域での材料膨張等による形状上の回復と考えられる。(a-2) と (b-2) のマイクロメートル単位の小さなスケールで比較すると、繰返し照射面では、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 程度に分けられたセル境界に沿って至るところにき裂の発生が認められるが、単発照射では照射の周辺部にしか認められない。

Fig. 2. SEM images of surface damage due to laser shots ($200\text{ J}/\text{cm}^2$ per shot): (a, b-1) full images; (a, b-2) local damages.

Fig. 3. SEM images of surface damage due to laser shots (55 J/cm^2 per shot): (a, b, c-1) full images; (a, b, c-2) local damages.

3・1・2 低い照射エネルギー密度の場合 照射エネルギー密度が小さい (55 J/cm^2) 場合照射回数を増すにしたがい、表面形態に繰返しの効果が明瞭に現れる。Fig. 3 の (a-2), (b-2), (c-2) はそれぞれ (a-1), (b-1), (c-1) の中心部分の拡大写真である。単発照射後、肉眼の観察では照射表面に焼けたような色のわずかな変化だけが見られる程度であるが、高倍率の観察では一部に溶融が起き Shear-Lip 状の表面が形成されている (Fig. 3-a)。20 回の照射を行うと、低倍率観察では溶融層の液滴状の盛り上がりが見られ、平坦な部分には縦横にき裂が走る (Fig. 3-b)。液滴部分では表面が細かく砕かれたような傾向を示し始める。50 回の照射を行うと、細かくかなり脆く砕かれたような表面形状 (Fig. 3-c 参照) を全面に示す。粒子状に見えるものの平均大きさは約 $2 \mu\text{m}$ である。この時、20 回照射時の Fig. 3-b-2 のような明瞭なき裂は認められない。また、照射エネルギー密度が大きい場合に比べ、表面損傷領域の形状がだ円状になっているのは、入射ビームのエネルギー分布がだ円状であることに対応していると考えられる。

3・2 縦断面の内部損傷

材料内部の熱衝撃損傷を Fig. 4 から Fig. 12 に示す。照射表面形態の観察結果と同様、照射エネルギー密度および繰返し照射回数の影響が示されている。

3・2・1 高い照射エネルギー密度の場合 この時、単発照射と繰返しでは、両者とも特に中央部で損傷が進んでいるものの、Fig. 4 に示す熱損傷領域の断面形状に明瞭な違いが認められる。この断面写真は、試料を内部組織観察対象部分で切断し、照射面側にエポキシ系接着材を介して SUS304 当て板を貼り付け、これを研磨して鏡面に仕上げ、エッチングおよびカーボン蒸着した観察試料から得たものである。つまり、図の最上部は SUS304、その下の黒く細長い層はエポキシ、その下の白い部分はレーザによる熱衝撃を受けて組織変化を示した層、その下に最上部の当て板と同じ色合いを示す SUS304 基材部分がくる。エポキシと当て板の境界線のやや下が照射前の試料表面で、Sample 引出し線によりその位置を示している。図中の A, B, C, D, E, F は次の Fig. 5 と Fig. 6 の局部拡大写真の箇所を指している。Fig. 4-a の単発の場合、

Fig. 4. SEM images of cross sections
(200 J/cm² per shot).

照射中心の組織変化部が周囲よりも薄くなる程度まで、溶融した金属が周辺部に押し出されていることがわかる。簡単な計算から、周囲に盛り上がった金属の量と照射中心の凹部の体積がほぼ対応し、吹き飛ばされ飛散した金属の量は少なかったことがわかる。照射を繰返すと、このくぼみが埋まる (Fig. 4-b)。また、組織変化部右下に数本の筋が表れるが、これは何回目かの繰返しに対応していると考えられる。組織変化が下部境界面に垂直に成長した様子も見られる。マクロな凹部の消滅は単発の照射でいったん周囲に押しやられ

た金属が再び凹部に戻ってきたとも考えられるが、組織変化部分の膨張もその一因と考えられる。Fig. 4-b における照射前試料表面位置からの最終的な盛り上がりは 30 μm 程度であり、照射中心部を基準にすると組織変化深さの 1 割、周辺部を基準に取ると 2~3 割の盛り上がりとなる。等方性体積膨張とすると 3% あるいは 6%~10% の線膨張になる。これは単純には基材 SUS304 に引張り残留応力を残すことになり、照射後の試料残留強度にとって興味深いポイントである。しかしながら、冷却時収縮の方が強く、損傷部に引張り残留応力の発生も考えられる。この場合損傷領域の再結晶組織が柱状組織であることから残留応力の方向によってはかなり危険である。これらのことは今後の残留強度解析において、留意すべきであろう。また、繰返し照射の中央部分の熱損傷領域の厚さは、単発照射の 65 μm 程度に比べ、約 350 μm と大きくなっていることがわかる。凝固収縮時の残留応力が基となって、後の負荷過程で発生するき裂のサイズには、この熱損傷領域の厚さとの関連が考えられる。

Fig. 5 と Fig. 6 に単発および繰返し時の内部組織の詳細を示す。(a) は照射中心部、(b) は下部境界、(c) は柱状組織を示すための高倍率写真である。特に (b) および先の Fig. 4 よりレーザ照射で金属が溶融し、急速冷却過程で再結晶が最大温度こう配方向に発生していることがわかる。Fig. 5 と Fig. 6 を比較すると、繰返し照射を受けた Fig. 6 の組織の方が一様で細かな柱状組織になっていることがわかる。Fig. 6-b の波状の模様は Fig. 4-b について述べた繰返しに対応した部分

Fig. 5. Local microstructures of cross sections due to single shot (200 J/cm² per shot).

Fig. 6. Local microstructures of cross sections due to 10 shots (200 J/cm² per shot).

(a) Single shot

(b) 10 shots

Fig. 7. SEM images of cross sections without etching : black points show voids (200 J/cm^2 per shot).

の拡大写真である。また、Fig. 5 と Fig. 6 のエッチングは同一条件で行っていたが、Fig. 6 の繰返し条件下のエッチングが深く進み繰返し照射により多くのボイドが形成され、材質が脆くなったことを思わせる。

単発と繰返しでのボイド量（観察面におけるボイド専有面積）の差を明確にするために、エッチングを行わない縦断面の SEM 像を比較した (Fig. 7)。単発の場合 (a) ではボイドがほとんど見られないが、10 回の繰返しの (b) では $0.5 \mu\text{m}$ 程度のボイド（黒い斑点）でも同一領域に 30 以上認められ、ボイド面積は 2～3% に達した。ボイドの存在は凝固組織領域の膨張と強度変化に関連する。

(a) 10 shots

(b) 20 shots

(c) 50 shots

Fig. 8. SEM images of cross sections (55 J/cm^2 per shot).

3・2・2 低い照射エネルギー密度の場合 この時、単発照射では、内部組織の変化がほとんど認められな

(a) Central region

(b) High magnification

Fig. 9. Local microstructures of cross sections due to 10 shots (55 J/cm^2 per shot).

Fig. 10. Local microstructures of cross sections due to 20 shots (55 J/cm^2 per shot).

かったので, 10 回, 20 回, 50 回の繰返し数での熱衝撃損傷模様を Fig. 8 から Fig. 11 に示す. だ円状の表面損傷の短軸に沿って切断した試料断面を観察面とした. Fig. 8 は 3 ケースの内部損傷領域の形状および大きさを示す低倍率写真である. 黒い層はエポキシ, 上の部分は当て板, 下の部分は熱照射を受けた SUS304 試料である. 中央上部の円弧状曲線部分とエポキシ層に囲まれた部分が熱衝撃を受けて組織変化した領域で

ある. 3 ケースの損傷領域の形状は類似し, 繰返しによる損傷領域の膨張が見られる. Fig. 4 の高い照射エネルギー密度の場合と違い全域でほぼ一様に損傷が進んでいることがわかる.

損傷領域の組織構造を Fig. 9~Fig. 11 に示す. 繰返し数が 10 回の時 (Fig. 9) には, 損傷領域に凝固樹枝状組織が見られ, 20 回 (Fig. 10) の時には, 組織変化層と下部のベース材の間に小さな割れの集まりのよ

Fig. 11. Local microstructures of cross sections due to 50 shots (55 J/cm^2 per shot).

Fig. 12. Effects of heating cycles on the cross sectional damage depth and the short axis length of elliptic surface damage (55 J/cm² per shot).

うな境界層 (Fig. 9 と Fig. 10 における (a) の中の矢印 A で示す) が形成される。一種のインタフェースき裂とも考えられる。この境界層が実際にマイクロクラックであるか、あるいは化学的に脆弱で強度も小さいと予想される領域であるかは、エッチング強度が関係し、明確にはできない。しかし、上下の組織構造と大きく違っているため、熱衝撃による一種の内部損傷と考えられる。ここでは、マイクロクラック群と呼ぶことにする。境界層上部の損傷領域に網状の組織が見られる。組織変化は大略境界層に垂直に進んでいるものの、エネルギー密度の大きい Fig. 5, Fig. 6 と比較すると方向性が弱く、組織変化層の境界層に沿う方向の強度 (写真の左右方向に作用する力に対する強度) の劣化は Fig. 5 と Fig. 6 の場合より小さいとも考えられる。さらに、40 回以上 (Fig. 11 は 50 回の場合) では、組織変化部が 2 つに分かれる。上部 (Fig. 11 (a) の白い部分) は樹枝状組織である。下部はき裂 (Fig. 11 (b)) を除けば境界層下の損傷のない SUS304 基材に似ている。なお、この段階の境界層では、多様な方向の小さな割れが一層発達している (Fig. 11 (c))。

Fig. 11 (d) は上部の樹枝状組織の高倍率写真で、Fig. 3 (c-1) の細かく砕かれた表面損傷写真と似た様相を呈している。なお、Fig. 11 (b), (c), (d) はそれぞれ Fig. 11 (a) の A, B, C 部の拡大写真である。

Fig. 12 に繰返し回数による熱損傷領域の大きさの変化を示す。20 回までは、損傷領域が深さ方向 (黒丸) と水平 (半径) 方向 (黒四角) 共に進展していたが、それ以降では、損傷域の大きさの変化がほとんど認められない。これは、前述のマイクロクラック群からなる境界層が成長し、熱が下部に伝わり難くなったためと考えられる。材料強度の立場からは、このよう

な境界層内のマイクロクラックはき裂源として注目される。しかし、残存強度と直接関連するものか否かは、速断できない。熱衝撃を受けた材料の強度とここで議論した各種損傷との直接的関連は、次の研究課題と考えている。

4 結 言

パルスレーザ照射法を用いて、空気中での SUS304 ステンレス板の単発および繰返し熱衝撃試験を行い、照射エネルギー密度と繰返し回数をパラメータに取り、試料の表面および内部の損傷ないしは組織変化を調べ、以下の結果を得た。

(1) パルスレーザ照射法により、繰返し熱衝撃材料損傷評価試験を行うことができ、照射エネルギー密度および繰返し数が材料表面および内部損傷度に与える影響を求めた。

(2) 高い照射エネルギー密度の場合では、損傷組織である再結晶柱状組織が最大温度こう配方向に形成される。損傷は中央部分で特に進む。照射繰返しによって表面上のマクロな凹凸の形状上の回復が見られる他、今回の実験の範囲では以下のような繰返し照射効果が認められる。(a) 照射周辺部のみのき裂が全面での微小柱状セル境界に沿うき裂に変わる。(b) 飛散はないものの、押し出されて薄くなった中央部組織変化層が 6 倍に膨れ、ポイドに対応する部分の面積割合が 2~3 % に上昇する。(c) 内部の柱状組織がより細かいものになる。

(3) 低い照射エネルギー密度の場合では、全域で内部に向け一様に樹枝状組織やマイクロクラック群などが成長する。単発での照射損傷の確認は難しいが、繰返しにより以下の損傷が認められた。10 回の照射では、表面に shear-lip 状溶融、内部に樹枝状組織が形成され、20 回の照射では、表面に液滴状盛り上がり平坦部き裂発生、内部にマイクロクラック群を含む境界層形成が起こり、50 回の照射では、表面は砕かれた様相を呈し明瞭なき裂は見られず、内部の組織変化部が 2 分化された。2 分化組織の上部は砕かれたような樹枝状組織、下部は境界層下の損傷のない基材に似ている。なお、20 回の繰返し以降、境界層の発生と成長が関連していると思われるが、組織変化層のサイズはほぼ一定となった。

(平成 5 年 5 月 12 日 日本材料学会第 4 回材料の衝撃問題シンポジウムにて講演)

参 考 文 献

- 1) 前川一朗, 柴田博司, 小林 朗, 和田 努, 材料, **38**, 658 (1989).
- 2) 秋山史朗, 木村雄二, 関谷道雄, 材料, **38**, 1415 (1989).
- 3) 石原外美, 五嶋 孝, 宮尾嘉寿, 吉本隆志, 竹花紳一, 日本機械学会論文集, **A-57**, 824 (1991).
- 4) 橋田俊之, 若菜健司, 高橋秀明, 日本機械学会論文集, **A-56**, 1952 (1990).
- 5) 福田重久, 松原監壮, 溶射, **29**, 1 (1992).
- 6) 汪 文学, 松原監壮, 福田重久, 肥山 央, 古賀洋治, 高雄善裕, 日本航空宇宙学会西部支部講演会講演集, **85** (1992).
- 7) 安東俊郎, 高津英幸, 中村博雄, 山本正弘, 児玉幸三, 新井 貴, 神永敦嗣, 笹島唯之, 堀池 寛, 清水正亜, 大久保 実, 衛藤基邦, 深谷 清, 奥 達雄, 核融合研究, 第 6 巻別冊, 27 (1991).