9%Cr 系耐熱鋼の HAZ 組織とクリープ特性に及ぼす熱処理の影響†

松井 正数* 田淵 正明** 渡部 隆**
久保 清** 阿部 富士雄***

Effect of Heat Treatment on Creep Properties and Microstructures of HAZ for 9%Cr Ferritic Steel

by

Masakazu MATSUI*, Masaaki TABUCHI**, Takashi WATANABE**, Kiyoshi KUBO** and Fujio ABE***

Type IV creep cracking in the heat affected zone (HAZ) of welded joint has been one of the serious problems in 9 to 12%Cr ferritic steels during long time service. We have already shown that the specimens heated to peak temperature close to A_{c3} do not have clear lath martensitic microstructure and that the coarsening of precipitates, $M_{23}C_6$, in these specimens is observed after post weld heat treatment (PWHT). In this study, a coarse grained steel is produced by the higher temperature normalizing heat treatment. The average grain size of coarse grained steel was $250\mu\text{m}$ and that of the A_{c3} simulated HAZ specimens was $8\mu\text{m}$, compared to $30\mu\text{m}$ and $6\mu\text{m}$ respectively for a normal grain size steel. The creep life, microstructural changes and distribution of precipitates of simulated HAZ specimens for coarse grained steel are investigated and compared with those for the normal grain size steel. The creep rupture time of the simulated HAZ specimens for coarse grained steel is found to be longer than that for the normal grain size steel, because the regions of large precipitates in the coarse grained steel, which are considered to have low creep resistance, are relatively smaller than those for normal grain size steel.

Key words: 9%Cr ferritic steel, Simulated HAZ specimen, Type IV creep cracking, Welded joint, Creep properties, $M_{23}C_6$ carbides

1 緒 言

CO_2 削減や省エネルギーの観点から、火力発電のボイラ蒸気条件を向上させる目的で高 Cr フェライト系耐熱鋼の開発が行われている。近年、W 添加により強化された 9Cr 系 (9Cr-0.5Mo-1.8W-VNb) および 11Cr 系 (11Cr-0.4Mo-2W-CuVNb) の材料が開発され、898K での実用化が行われている。物質・材料研究機構においては 923K 超々臨界圧発電プラント用耐熱鋼の開発プロジェクトを進めている。¹⁾ これらの高 Cr フェライト系耐熱鋼の場合、溶接継手の溶接熱影響部 (HAZ) においては、Type IV クラック²⁾ と呼ばれる使用中のクリープ割れが問題となっている。^{3)~5)} 著者らは 9 ~ 12%Cr 鋼について、溶接入熱によりその一部が A_{c3} 変態点近傍に加熱されることにより、ラス組織がくずれて細粒化がおき、また析出物 ($M_{23}C_6$) の凝集・粗大化が起こるためにクリープ寿命が最小となることを報告した。^{6), 7)}

そこで本研究では、HAZ のクリープ強度向上を図るこ

とを目的に、焼きならし温度を上げて母材の結晶粒径を粗大化させた試料を作成し、その試料の HAZ 再現材の組織とクリープ特性について検討を行った。

2 実験方法

2・1 供試材

本研究で用いた供試材は 9Cr-0.5Mo-1.8W-VNb 鋼 (NF616 鋼) の厚さ 31mm の板材である。その化学成分を Table I に示す。この供試材は 1323K で 2 時間の焼きならし後 1053K で 2 時間の焼もどし処理を施してある。これを基本材と称する。母材の結晶粒を粗大化させるため、基本材よりも 150K 高い 1473K で 2 時間の焼きならし処理を加え、1053K で 2 時間の焼もどしを行った試料を作成した。

2・2 HAZ 再現材の熱処理

HAZ の加熱温度における組織とクリープ特性の関係を調査するため、HAZ 組織の再現熱処理を行った。これらの熱処理の模式図を Fig. 1 に示す。加熱炉で各温度に加

Table I. Chemical composition of test materials (wt %).

C	Si	Mn	P	S	Cr	W	Mo	V	Nb	B	N
0.09	0.16	0.47	0.010	0.001	8.72	1.87	0.45	0.21	0.06	0.002	0.050

† 原稿受理 平成 14 年 5 月 13 日 Received May. 13, 2002

* 正会員 (物質・材料研究機構 (現在 三菱重工業(株)) 〒305-0047 つくば市千現, National Inst. for Materials Sci., Sengen, Tsukuba, 305-0047

** 正会員 (物質・材料研究機構 〒305-0047 つくば市千現, National Inst. for Materials Sci., Sengen, Tsukuba, 305-0047

*** (物質・材料研究機構 〒305-0047 つくば市千現, National Inst. for Materials Sci., Sengen, Tsukuba, 305-0047

Fig. 1. Conditions of heat treatment of simulated HAZ.

熱後、空冷し、その後いずれの試料も 1013K、280 分の溶接後熱処理 (PWHT) を行った。熱処理後、直径 6mm、標点間距離 30mm の標準クリープ試験片を採取し、923K でクリープ試験を行った。

3 実験結果および考察

3・1 熱処理による粒径の変化

Fig. 2 は焼きならし条件を変化させた際の熱処理条件と平均結晶粒径を示す。基本材の平均粒径は $27\mu\text{m}$ である。基本材と同一の焼きならし温度で保持時間を 10h および 70h と変化させた予備材では、平均粒径はともに $60\mu\text{m}$ 程度に粗粒化した。また、1473K で 2 時間の高温焼きならしを行った試料では基本材と比べ平均粒径は 10 倍程度大きくなり、 $250\mu\text{m}$ となった。以下これを粗粒材と称する。しかし、これらの試料を Ac_3 近傍に加熱した HAZ 再現材においては、マルテンサイト変態による細粒化が生じ、粒径は母材の粒径にはあまり依存せず、 $6 \sim 9\mu\text{m}$ 程度とほぼ同じ値となった。

3・2 クリープ破断特性

HAZ 再現熱処理時の加熱ピーク温度とクリープ破断時間の関係を Fig. 3 に示す。粗粒材はいずれのピーク温度においても基本材よりも破断寿命が長くなった。また、基本材および粗粒材ともに Ac_3 近傍に加熱された場合にクリープ破断時間が最小となった。特に Fig. 2 で示したように、粗粒材と基本材の Ac_3 近傍に加熱した HAZ 再

Fig. 2. Changes on average grain size as a function of Larson-Miller parameter.

Fig. 3. Change of creep rupture time as a function of peak temperature.

現材の結晶粒径はほぼ同じ ($6 \sim 9\mu\text{m}$ 程度) であったが、粗粒材の HAZ 再現材の方が基本材の HAZ 再現材よりもクリープ破断時間が長くなった。なお、 Ac_3 付近でクリープ破断寿命が最小になること⁶⁾が確認できたので、以下では特に断らない限り Ac_3 近傍に加熱した試料を HAZ 再現材と称する。

Fig. 4 に母材および Ac_3 に加熱した HAZ 再現材の応力と破断時間の関係を示す。母材において、粗粒材 (●) は通常の焼きならし温度の基本材 (○) に比べて破断時間が長いことがわかる。さらに HAZ 再現材においても、基本材 (△) に比べて粗粒材 (▲) はいずれの応力においても破断時間が長いことがわかる。次に 923K、130 MPa における基本材と粗粒材のクリープ曲線を Fig. 5 に示す。母材においては粗粒材 (●) は基本材 (○) よりもクリープ速度の傾きが大きく、より長時間側で加速域に移行することがわかる。また HAZ 再現材においても同様に、基本材 (△) と比較して粗粒材 (▲) の方がより長時間側で加速域に移行することがわかった。

Fig. 6 に平均結晶粒径と最小クリープ速度との関係を示す。母材において、粒径が $250\mu\text{m}$ の粗粒材 (●) は基本材 (○) に比べて最小クリープ速度が 1 桁程度小さくなっている。一方、HAZ 再現材においては、粒径がほぼ同等であるにも関わらず、粗粒材 (▲) は基本材 (△)

Fig. 4. Creep rupture time of base metal and simulated HAZ specimens.

Fig. 5. Comparison of creep curves between simulated HAZ and base metal.

Fig. 6. Relationship between grain size and minimum creep rate.

に比べて最小クリープ速度の値が一桁程度小さくなった。さらに母材と HAZ 再現材のプロット点を結んだ直線の勾配、即ちクリープ速度の結晶粒径依存性は粗粒材の方が小さいことがわかる。このことは粗粒材の Ac_3 加熱による影響が変態に伴う細粒化だけではなく何か他の因子の影響によるものと推察できる。

3・3 HAZ 再現材のミクロ組織

Fig. 7 に粗粒材のクリープ試験前のミクロ組織を示す。母材は Fig. 7 (a)において旧 γ 粒界を点線で示すように、平均粒径 $250\mu\text{m}$ のラスマルテンサイト組織である。それに対し、HAZ 再現材では Fig. 7 (b)の実線で示すように、 Ac_3 付近に短時間加熱されることで新たに生じた γ 粒界が細粒化し、明瞭なラス組織が見られない。Fig. 7 (b) の点線は母材の旧 γ 粒界の痕跡と考えられるものである。母材の旧 γ 粒界上に存在した析出物の一部が、 Ac_3 加熱においても未固溶のまま残存し、その後の PWHT で析出・成長するため、このように粒界状に見えるものと考えられる。

3・4 HAZ 再現材の析出物分布

Fig. 8 に抽出レプリカ法による粗粒材の析出物の分布状態を示す。粗粒材では粒内のラス境界にそって比較的均一な析出物の分布が見られた (Fig. 8 (a))。一方、

Fig. 7. SEM microstructures of base metal and simulated HAZ specimens of coarse grain steel.

Fig. 8. Transmission electron micrographs of extraction replicas of coarse grain steel.

HAZ 再現材では、Fig. 8 (b)の中央左から右にかけて、局所的な析出物の凝集・粗大化が観察された。これが上述した母材の旧 γ 粒界の痕跡であると考えられる。しかし、そこから離れた領域では比較的均一な析出物の分布が見られた。なお、円弧状に微細な析出物が連なっているのが見られるが、円弧の直径が $6 \sim 9\mu\text{m}$ 程度なので、これが Ac_3 近傍に加熱されることによって新たに生じた γ 粒界であると思われる。

粗粒材の析出物の一部をさらに拡大した写真を Fig. 9 に示す。母材の旧 γ 粒界付近の析出物を調べると、 $M_{23}C_6$ の他に微細な MX が粒界に沿って析出しているのがわかる (Fig. 9 (a2))。一方 HAZ 再現材では、Fig. 9 (b2)に示すように、 $500\text{nm} \sim 1\mu\text{m}$ 程度の粗大な $M_{23}C_6$ と、PWHT によって新たに析出したと考えられる 200nm 程度の $M_{23}C_6$ が見られた。また母材と同様に微細な MX も多く見られた。

抽出残渣による析出物の分析結果を Fig. 10 に示す。基本材の母材 (a) は、 Ac_3 付近に加熱されることにより、析出物はマトリックス中へ固溶して母材の $1/4$ 程度に減少する (b) が、その後の PWHT によって、HAZ 再現材は母材とほぼ同等の残渣量となる (c)。一方、粗粒材においても、基本材と同様に、母材 (d) は Ac_3 加熱によって残渣量は $1/4$ 程度に減少し (e)、その後の PWHT において母材とほぼ同等の残渣量となる (f)。粗粒材と基本材の残渣量を比較すると、粗粒材の方が一様に 20% 程度減少しており、主に $M_{23}C_6$ の残渣量が減少している。一方、

Fig. 9. Transmission electron micrographs of extraction replicas of coarse grain steel.

V, Nb, N で構成される MX の量は基本材, 粗粒材およびそれらの HAZ 再現材の間で差は小さい。

以上の結果を Fig. 11 に模式的に示す。Fig. 11 (a1) の粒径約 $30\mu\text{m}$ のラスマルテンサイト組織の基本材は、溶接入熱により Ac_3 付近に短時間加熱されることで変態がおこり、細粒化する (a2)。同時に小さな析出物は固溶し、旧 γ 粒界上にあった比較的大きな析出物は未固溶のまま残存する。このときの析出物量は母材の $1/4$ 程度に減少する。続いて溶接後熱処理 PWHT により、細粒化した粒界上に微細な析出物が析出する。また、旧 γ 粒界近傍にあった未固溶析出物は凝集・粗大化する (a3)。

一方、Fig. 11 (b1) に示すように、粒径 $250\mu\text{m}$ の粗粒材でも同様に Ac_3 付近に短時間加熱されることで析出物の一部が固溶し (b2)、その後の PWHT により細粒化した粒界上には微細な析出物が析出し、また旧 γ 粒界上で

Fig. 10. Extracted residue amount of simulated HAZ specimens for normal steel and coarse grain steel.

は未固溶の析出物の凝集・粗大化が生じる (b3)。これが Fig. 7 (b) の点線で示した旧 γ 粒界の痕跡と考えられるものである。析出物が凝集・粗大化した領域では析出物の均一微細分散による析出強化の効果が弱められ、クリープ変形抵抗が小さいと考えられる。ある単位面積でマクロ的にみると、析出物の凝集・粗大化した領域、即ちクリープ変形抵抗の小さな領域 (Fig. 11 (a3) および (b3) の白色の領域) の面積率が粗粒材の方が低くなる。このことが粗粒材の HAZ 再現材において、クリープ破断時間が長くなった要因の一つであると考えられる。このように炭化物の分布状態を最適化することで HAZ のクリープ強度の改善を図ることができるものと考えられる。以上のことから、母材の焼きならし温度を上げて旧 γ 粒径を比較的大く化させ、HAZ 再現熱処理後の炭化物の凝集・粗大化領域を比較的小くすることでクリープ強度の向上が図れるものと考えられる。

Fig. 11. The models for the distribution of precipitates on each heat treatment.

3・5 HAZ 再現材のクリープ破断後の析出物分布

Fig. 12 にクリープ破断後の HAZ 再現材の析出物分布を示す。破断時間が異なるために析出物の大きさは基本材および粗粒材でやや異なっているが、基本材および粗粒材はともにクリープ中に析出物の凝集・粗大化が生じている。基本材は旧 γ 粒径が小さいため、析出物の凝集・粗大化した領域の面積は大きい。一方、粗粒鋼はクリープ前の析出物分布状態を示した Fig. 8 (b) と比較すると、旧 γ 粒界上に見られた比較的大きな析出物がクリープ中にさらに粗大化している。また、基本材と比較して粗粒材は析出物の凝集・粗大化した領域の面積は小さい。基本材と粗粒材の HAZ 再現材の析出物の分布の違いはクリープ前の析出物分布が異なっているからであり、クリープにより析出物の凝集・粗大化が加速されるためさらに顕著になると考えられる。

4 結 言

HAZ のクリープ強度の向上を図ることを目的に、焼きならし温度を上げて母材の結晶粒径を粗大化させた試料

(粗粒材) を作成し、その試料の HAZ 再現材の組織とクリープ特性について比較検討を行った。その結果、以下の知見を得た。

(1) 高温焼きならし処理によって母材の結晶粒は $250\mu\text{m}$ と粗大化し、通常焼きならし温度の基本材と比べてクリープ破断寿命が長くなった。また HAZ 再現材の結晶粒径は基本材とほぼ同じ値であったが、粗粒材の方が HAZ 再現材のクリープ破断寿命は長くなった。

(2) HAZ 再現材においては、母材の旧 γ 粒界上の析出物は Ac_3 加熱によって、完全には固溶せず、一部は未固溶のまま残り、その後 PWHT 中にさらに凝集・粗大化した。このように凝集・粗大化した領域では析出物の均一微細分散による析出強化の効果が弱められ、クリープ変形抵抗が小さくなると考えられる。

(3) 析出物の凝集・粗大化した領域、即ちクリープ変形抵抗の小さな部分の面積率は粗粒材の方が低くなる。このことが HAZ 再現材において、粗粒材のクリープ破断時間が基本材より長くなった要因の一つであると考えた。

参 考 文 献

- 1) F. Abe, M. Igarashi, N. Fujitsuna, K. Kimura and S. Muneki, "Advanced Heat Resistant Steels for Power Generation", ed. by R. Viswanathan and J. Nutting, The University Press, Cambridge, p.84 (1999).
- 2) K. Bell, TWI Report, 597 (1997).
- 3) 伊勢田敦朗, 榎木義淳, 吉川州彦, 鉄と鋼, **77**, 112 (1991).
- 4) H. Cerjak, E. Letokfsky and M. Staubli, Proc. of 6th Liege Conference on Materials for Advanced Power Engineering Energy Technology, 105 (1998).
- 5) Y. Hasegawa, M. Ohgami and Y. Okamoto, Proc. of Advanced Heat resisting Steels for Power Generation, 655 (1998).
- 6) M. Matsui, M. Tabuchi, T. Watanabe, K. Kubo, J. Kinugawa and F. Abe, ISIJ Inter. Supplement, **41**, 126 (2001).
- 7) 田淵正明, 渡部 隆, 久保 清, 松井正数, 衣川純一, 阿部富士雄, 材料, **50**, 116 (2001).

Fig. 12. Transmission electron micrographs of extraction replicas of the Ac_3 simulated HAZ specimen crept at 923K, 110MPa.