3D-EBSD 法と電子顕微鏡画像を併用したクリープボイドと
結晶粒界の三次元幾何形状の計測*山 際 謙 太^{*1}, 片 岡 哲 志^{*2}
泉 聡 志^{*3}, 酒 井 信 介^{*4}Measurement of Three Dimensional Geometry of Creep Void
and Grain Boundary with Combining 3D-EBSD Method and SEM ImagesKenta YAMAGIWA^{*5}, Satoshi KATAOKA,
Satoshi IZUMI and Shinsuke SAKAI^{*5} National Institute for Occupational Safety and Health, Japan,
1-4-6 Umezono, Kiyose-shi, Tokyo, 204-0024 Japan

With combining 3D-EBSD method and SEM images, authors have firstly observed three-dimensional shape of creep voids and geometrical relationship with grain boundaries. The method is applied to a 1Cr-1Mo-0.25 V turbine rotor steel after creep rupture test (580°C, 180 MPa). Also, interrupted creep specimens are prepared to observe the progress of void growth. Forty sections with 0.5 μm interval and 100 $\mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ area are measured by mechanical polishing in order to reconstruct three-dimensional shapes. In the result, four types of creep void are observed. One is sphere type whose radius is about 1 μm . It is observed in the specimen whose creep life fraction is 25%. In the specimens with 50% and 75% creep damage, prolate and oblate spheroids whose radius is around 2.5 μm are observed. Finally, connected voids are occupied in ruptured specimen. As the creep damage is progressed, not only void growth but also void nucleation is observed. Especially, on prior austenite grain boundary which is three-dimensionally perpendicular to stress, creep voids are nucleated and grown in concentrated manner. However, such nucleated small voids do not affect the volume fraction of creep void.

Key Words: Creep, Void Fraction, 3D-EBSD, Grain Boundary, SEM, Life Prediction

1. 緒 言

火力発電プラントなどでは累積運転時間が 20 万時間を超える高経年プラントが年々増加している。こうした高温機器が抱える損傷モードの一つがクリープである。クリープの余寿命評価法には A パラメータ法やボイド面積率法など様々な方法^{(1)~(4)}があるが、いずれにせよ鋼材中に発生するクリープボイド（以下、ボイド）と呼ばれる微小な空洞の統計的な性質を評価する方法である。

しかし、ボイドは三次元の空洞であるものの、現在の余寿命評価法はボイドの断面形状や面積など 2 次元の評価にとどまっており、深さ方向の三次元情報は利用されていない。

ミクロ組織の三次元形状を計測する手法に、電子線

後方散乱法 (EBSD) とシリアルセクションング法を組み合わせた 3D-EBSD 法がある⁽⁵⁾。計測対象に対し、EBSD と研磨を繰り返すことで、三次元形状の断面画像群を作成する。そして画像群を連結して三次元形状を再構築する手法である。Lewis らはオーステナイト系ステンレス鋼 (AL6XN) について結晶粒の三次元形状を計測している⁽⁶⁾。また、より微視的な三次元組織計測では Adachi らがセメンタイトのラメラ構造について三次元形状の計測を行っている⁽⁷⁾。これらの研究は EBSD で得られる結晶方位像から結晶粒界を求め、結晶粒の三次元形状を構築している。本研究では、タービンロータ材である 1Cr-1Mo-0.25V 鍛鋼に対して 3D-EBSD 法を適用し、ボイドの三次元形状の計測を行った。しかし、ボイドは空洞であり結晶構造では無いことから、結晶方位像のみでは断面形状を求めることはできない。そこで、本研究では 3D-EBSD 法をクリープ損傷材に適用する際に、結晶方位像と走査型電子顕微鏡 (SEM) 像を併用することで、ボイドの三次元形状の計測を行った。クリープ損傷材は破断材と中断材を用意し、寿命消費率と三次元形状の関係につ

* 原稿受付 2010 年 7 月 1 日。

^{*1} 正員, (独)労働安全衛生総合研究所 (〒204-0024 清瀬市梅園 1-4-6)。^{*2} 正員, 東京大学大学院工学系研究科[現: パナソニック(株)]。^{*3} 正員, 東京大学大学院工学系研究科。^{*4} 正員, フェロー, 東京大学大学院工学系研究科。

E-mail: yamagiwa@s.jniosh.go.jp

いて求めた。

2. クリープボイドの三次元幾何形状計測

2.1 計測方法 計測に使用した EBSD は OIM(Orientation Image Microscopy) 検出器 (EDAX-DigiViewIII) とデータ収集用ソフトウェア OIM Data Collection 5.1 を使用した。EBSD は FE-SEM(エリオニクス製 ERA-8800FE) に取り付けられている。本装置は 4 本の検出器がチャンバーについているため、70° 傾いた EBSD 用ステージであっても明瞭な SEM 画像を得ることができ、そのため、結晶方位像と同じ視野の SEM 画像を EBSD 測定時に取得することができ、両者にずれは無い。

ボイドを OIM 検出器で測定した場合、空洞であることから方位は存在せず菊地パターンの無い画像が得られる。しかし、OIM Data Collection ではこの画像を処理して CI(Confidence Index) 値⁽⁸⁾はほぼゼロであるが、方位を決定してしまう。したがって EBSD で得る逆極点図 (IPF マップ) ではボイドは表現できない。また、Image Quality(IQ 値) マップではボイドと粒界の区別が困難である。

また、SEM 画面上で観察されるボイドは、特に微小の場合コンタミネーションや介在物との区別が難しい。そこで、ボイドは粒界上に存在する空洞という条件から、結晶方位像から得られる粒界と SEM 画像を重ね合わせることでボイドの判別を行った。そして、ボイドの三次元形状計測には SEM 画像を使用し、結晶粒界の三次元形状計測には結晶方位像を使用した。

断面画像の作成には機械研磨を用いた。研磨は丸本ストルアス製 (テグラフォース) の自動研磨機を用い、最終研磨には同社製コロイダルシリカ (OP-U, 0.04 μm) を使用した。断面画像の間隔は研磨速度により異なる。研磨速度は研磨機の加圧、回転数、計測試料の機械的性質や埋込樹脂内における研磨面の樹脂と計測試料の面積比などに依存する。したがって、ここでは予めビッカース圧痕を用いて研磨速度の見積を行い、研磨時間を設定する必要がある。

ボイドの三次元形状を計測するための手順を図 1 に示す。手順はデータ収集 (Data Collection) と、データ解析 (Data Analysis) に分けられる。

データ収集では、はじめに計測する試験片を導電性のある樹脂に埋め込んだ後、最終研磨まで行う。次に、研磨面にマイクロビッカース (FISCHERScope HM2000) で圧痕を計測視野周辺に 2 箇所作成する。これは研磨した深さの計測と、三次元像を再構築する時に断面画像の位置合わせに使用する。機械研磨を用いる場合、

研磨のたびに EBSD 用試料台から試験片を取り外さなければならないため、断面画像ごとにずれが生じてしまう。そこで、圧痕を基準として使用した。次に、OP-U を用いて研磨を行った後、圧痕の大きさを計測し EBSD 測定を行う。EBSD 測定では、結晶方位像と SEM 濃淡像 (256 階調) を同時に得る。圧痕の大きさは断面画像の間隔である研磨量を計測するために必要である。計測はキーエンス製レーザー顕微鏡 (VK-9500) を使用した。測定の後、圧痕深さが 10 μm 以下である場合は、再度圧痕を作成する。必要な数 (N) の断面画像が計測できたのであれば、データ解析に移る。

データ解析は、1) 結晶方位像から粒界の抽出、2) SEM 画像からクリープボイドの抽出、3) 断面画像間のずれ量の計算、4) 断面画像間の間隔の計算を行ったのち、三次元再構築を行い終了する。

はじめに 1) ~ 3) の処理のため方位像と SEM 画像のノイズ消去を行う。次に、1) については方位差が 15° 以上ある場所を粒界として抜き出した画像を作成した。2) については圧痕を除いた SEM 画像の濃淡値の平均値 (μ) と標準偏差 (σ) を求め、 $\mu - 3\sigma$ を閾値として画像を 2 値化した。3) については、まず SEM 画像を 2 値化して全ての断面画像で圧痕の形状のみの画像を作成する。断面画像間のずれ量は、 i 番目の画像の平行移動と回転を行った画像と $i+1$ 番目の画像について相関係数を計算し、最も大きくなる移動量と回転角を求めた。これを $i=1 \sim N$ まで適用し、各断面画像間のずれを求める。SEM 画像と結晶方位像は同一の断面画像であれば、ずれはないとしているため、SEM 画像のずれ量のデータはそのまま結晶方位像のずれ量とした。最後に断面画像間の間隔の計算は i 番目と $i+1$ 番目で計測された圧痕の対角線の長さの差と圧子の形状から求めた。ただし、三次元可視化や体積計算では断面画像の間隔は一樣とし、値は間隔の平均値を用いた。また、研磨面が水平に研磨されない場合は、ある断面を観察した際に圧痕の形状が正方形では無くなることが考えられる。しかし、目視で観察するかぎり圧痕の形状は正方形であったため、本論文では水平に研磨されていると仮定して解析を行っている。

以上のデータをそろえた後、三次元形状を作成し結晶粒界とクリープボイドの可視化を行った。

2.2 供試材 1Cr-1Mo-0.25V 鍛鋼のクリープ試験⁽⁹⁾の破断材と中断材が計測に用いられた。クリープ試験条件は、単軸クリープ試験 (中実丸棒試験片、直径 10mm, 平行部長さ 50mm), 温度 580°C, 応力 180MPa, 破断時間 4200 時間である。中断材は破断時間に対して、25%, 50%, 75%の時間で作成された。タービン

Fig. 1 Measurement method of 3-dimensional geometry of creep voids.

ロータの実際の使用条件は、 530°C 、 100MPa 程度であり、このときの破壊機構は粒界ボイドによる破壊である⁽⁹⁾。クリープ試験条件は、同じ損傷メカニズムを再現できる条件で、かつ破断時間が短くなるような条件に設定してある⁽⁴⁾⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾。クリープ試験の結果については、中村らの報告⁽¹⁰⁾に示されている。

供試材の金属顕微鏡写真を図2に示す。供試材はペイナイト組織である。ボイド (VOID) は旧オーステナイト粒界 (GB) 上に多く観察される。なお、図中の円弧状の線はスケールをいれるためのガラス製の器具の縁である。

Fig. 2 Microstructure of 1Cr-1Mo-0.25V steel. GB indicates prior austenite grain boundary.

計測用試験片は破断材と中断材からそれぞれ1箇所を切り出して作成した。計測面は丸棒試験片の長手方向に平行となる面とした。研磨はコロイダルシリカを用いて行い、断面画像の間隔が $0.5\mu\text{m}$ となるように、研磨時間3分30秒、加圧力10N、回転数150rpmとした。本研究では埋め込み用樹脂(丸本ストルアス製ポリファスト)と計測試料の研磨面における面積比がほぼ均一になるように試験片から切り出したため、研磨時間は試験片に関わらず同じ時間を用いている。

2.3 EBSDの測定条件 EBSDの測定条件は、SEM倍率を600倍、計測領域を $100\mu\text{m}$ 四方、分解能を $0.5\mu\text{m}$ 、相をフェライトとした。断面画像数は40とした。したがって、幅もしくは長さが $0.5\mu\text{m}$ 以下のボイドについては計測対象から除外している。なお、1断面画像の計測に必要な時間は約25分である。試験片ごとに1視野を計測した。

3. 計測結果

3.1 ボイドの三次元幾何形状計測結果 図3にボイドの三次元形状を計測した結果を示す。三次元再構築と表示には三次元モデリングソフトウェアのIMOD⁽¹¹⁾を用いた。

直方体は計測領域の境界を示す。灰色は旧オーステナイト粒界、オレンジ色はクリープボイド、矢印は粒界三重点を示す。応力はすべてy方向である。

ボイドは主に旧オーステナイト粒界上に発生しており、試験時間が進むにつれボイドの個数も増えていることがわかる。これはクリープ損傷の進行と対応している。

ここで注意しなければならないのは、本研究はボイドの三次元形状を計測することを目的としているため、

ボイドが観察される典型的な箇所を計測領域として選定している点である。したがって、損傷を評価するために十分な面積または体積は計測していないため、図3から得られるボイド面積率または体積率は、実際の損傷状態とは異なっている。

3.2 ボイドの三次元形状と発生箇所 図3から、4種類のボイド形状に分類した。分類結果を図4に示す。(a)は球状のボイド、(b)は楕円の長軸を回転軸に回転した形状(長球)、(c)は楕円の短軸を回転軸に回転した形状(扁球)、(d)は扁球状のボイドが繋がった形状である。分類は目視で行った。

25%損傷材では球形が支配的であるが、損傷が進行するにつれ長球と扁球が増えている。さらに100%では扁球が結合したボイドが多く計測されている。扁球の形状はボイドが旧オーステナイト粒界に沿って成長している結果と考えられる。一方で、球形のボイドは損傷度に関係なく存在していることから、仮に主き裂が存在していたとしても、損傷の過程で発生と成長が起きていると考えられる。

ボイドは、図3より2個の結晶粒が接している面に主に発生している。一方で、図3内矢印で示している3個以上の結晶粒が交わってできる粒界の線の箇所にはボイドはほとんど発生していない。

図5は100%損傷材をz方向から見た状態である。Aにはボイドが多く存在している。一方で、Bはボイドが相対的に少ない。すなわちボイドは応力方向(y)に垂直な面に多く発生し、応力と平行である粒界には発生しにくいことがわかる。

4. 考察

ボイドの空間分布を調べるために、図6にボイドの動径分布、図7にボイドのサイズの分布を示す。なお、動径によっては観察視野を超えてしまう。ここではボイドは視野外には存在しないと仮定し、動径分布を求める際の球殻の体積は観察視野範囲内にある球殻の体積を使用している。また、ボイドのサイズはボイドの体積を球に置き換えた時の直径で表している。試験時間が長くなるほど、矢印に示すように個数密度は距離に関わらず増加している。また、サイズも同様に試験時間の増加と共に増加している。これは、損傷が進むにつれボイドが次々と発生することを示している。また、100%損傷材においてもサイズが $2\mu\text{m}$ 以下のボイドが破面から1mm程度離れたところに大量に存在していることから、クリープ寿命後期であってもボイドは発生していることがわかる。

図8はボイドのサイズとボイドの体積がボイドの全

Fig. 3 Relationship between 3-dimensional geometry of creep voids and creep life fraction. Gray-colored marks mean prior austenite grain boundary. Orange-colored marks mean creep void. Arrows mean triple junctions of grain boundary.

Fig. 4 Classification of 3-dimensional geometry of creep void

Fig. 5 Relationship between grain boundaries and creep voids. Creep life fraction is 100%.

体積に占める累積割合を示している。100%損傷材においては、図7では $1.5\mu\text{m}$ 以下のボイドが多くあるものの、体積の割合はボイド全体積の9.5%である。したがって、 $1.5\mu\text{m}$ 以下のボイドは100%損傷材において支配的な損傷では無い。一方、 $2.5\mu\text{m}$ 以上のボイドの体積は全体の65.9%であり、こちらが支配的であることがわかる。損傷が進むにつれ、ボイドサイズが大きい方が体積も支配的であることがわかる。また、25%損傷材では $2.5\mu\text{m}$ 以下のボイドが総体積の65%を占めており、他の損傷材と比べて相対的に小さいボイドが支配的であることがわかる。50%と75%の損傷材については、25%と100%の中間の分布である。

これらの結果から、クリープ損傷が進行するとボイドは大きくなるが、常に発生もしている。寿命初期であれば小さいボイドが支配的で、特定のボイドが大きいということはなかった。続いて寿命後半では、体積の割合でみると成長したボイドが支配的であり、発生するボイドは数が多いが影響は少ないと考えられる。

5. 結 言

本研究は3D-EBSDの技術を応用し、クリープボイドの三次元幾何形状を計測した。材料は1Cr-1Mo-0.25V鋼のクリープ破断材と中断材を用いた。

クリープボイドの三次元形状を4種類の形状に分類した。初期の頃は球形が支配的であるが、寿命後半では扁球状もしくは長球状であり、破断材ではそれらが結合した形状が多く計測された。これらのボイドは応力方向に垂直な粒界の面に多く存在している。これはボイド発生に粒界の三次元形状が影響しているためと考えられる。

また、ボイドの動径とサイズ分布を求めた結果、ボイドは試験時間にかかわらず常に発生していることが明らかとなった。しかし、寿命後期に発生するボイドはボイド全体の体積からみればわずかである。そして、支配的である形状のボイドの体積は面積と同様に損傷が進行するにつれ大きくなることが明らかとなった。

謝 辞

本研究は科学研究費補助金 基盤研究 (B) (21360048) の助成を受けたものである。また、財団法人電力中央研究所の緒方隆志氏、中村馨氏から計測用試験片の提供と助言、株式会社IHIの高梨正裕氏から助言をいただいた。ここに感謝の意を表します。

Fig. 6 Radial distribution of creep voids

Fig. 7 Size distribution of creep voids

Fig. 8 Relationship between void size and cumulative volume ratio

文 献

- (1) B.J. CANE and M. SHAMAS, A Method for Remaining Life Estimation by Quantitative Assessment of Creep Cavitation on Plant, Report TPRD/L2645/N84 (1984),

Central Electricity Generating Board.

- (2) R. Viswanathan, R.B. Dooley and A. Saxena, A Methodology for Evaluating the Integrity of Longitudinally Seam-Welded Steam Pipes in Fossil Plants, *Transaction of the ASME. Journal of Pressure Vessel Technology*, Vol. 110, Issue 3 (1988), pp. 283-291.
- (3) Yasuhide Sakaguchi *et al.*, Development of Non-Destructive Residual Life Evaluation Techniques for Boiler Materials, *The Thermal and Nuclear Power*, Vol. 39, No. 6 (1988), pp. 653-664.
- (4) Norio Shinya *et al.*, An Assessment of Creep Damage by Density Change Measurements for Cr-Mo-V Steel, *Tetsu-to-Hagane*, Vol. 70, No. 6 (1984), pp. 573-579.
- (5) Yoshitaka Adachi, 3D EBSD Tomography, *Bulletin of the Iron and Steel Institute of Japan*, Vol. 13, No. 10 (2008), pp. 28-32.
- (6) A.C. Lewis, J.F. Bingert, D.J. Rowenhorst, A. Gupta, A.B. Geltmacher and G. Spanos, Two- and Three-Dimensional Microstructural Characterization of a Super-Austenitic Stainless Steel, *Materials Science and Engineering: A*, Vol.418, No.1-2 (2006), pp.11-18.
- (7) Yoshitaka Adachi, Satoshi Morooka, Kiyomi Nakajima and Yoshimasa Sugimoto, Computer-Aided Three-Dimensional Visualization of Twisted Cementite Lamellae in Eutectoid Steel, *Acta Materialia*, Vol.56, Issue 20 (2008), pp.5995-6002.
- (8) Seiichi Suzuki, *EBSO Tokuhon (in Japanese)*, (2006), p.53, TSL Solutions.
- (9) Takashi Ogata, Creep Void Growth Simulation of Local Area in a Steam Turbine Rotor, *Journal of the Society of Materials Science, Japan*, Vol. 56, No. 2 (2007), pp.100-105.
- (10) Kaoru Nakamura, Takashi Ogawa, Development of Void Nucleation Model by Observation of Creep Void Nucleation Behavior, *CRIEPI REPORT*, Q08008 (2009), Central Research Institute of Electric Power Industry.
- (11) James R. Kremer, David N. Mastronarde, J. Richard McIntosh, Computer Visualization of Three-Dimensional Image Data Using IMOD, *Journal of Structural Biology*, Vol. 116 (1996), pp.71-76.