Cr-Mo 鋼配管溶接熱影響部細粒域のクリープ損傷機構

手塚 英志*

Creep Damage at Fine Grained Heat Affected Zone of Seam Welded Cr-Mo Steel Pipes and a Proposed Mechanism of Its Origination and Growth

Hideshi TEZUKA

Synopsis : A seam welded Cr-Mo steel pipe elbow that had been used as main steam piping at a thermal power plant was investigated. Creep damages at fine grained heat affected zone of the seam weld, called as type IV damages, were observed. Hook-shaped microcracks surrounded by many polygonal hollows were observed by optical microscopy and scanning electron microscopy. Those polygonal hollows were seemed to form the same hook-shaped lines as microcracks. Fine bainite grains surrounded by coarse carbides and creep cavities were also lined in the same manner as the hollows. From the appearances of the hook, it was inferred that these damages were originated locally at the former austenite grain boundaries.

Dense precipitations of carbides (DPCs) were found on extraction replicas by transmission electron microscopy. At the beginning of the usage, there might be high-carbon-content fine bainite grains and DPCs were created in these grains by aging. Because of the similarities in shapes, sizes and distributions, DPCs were regarded as root causes of the hollows and the cracks. Many creep cavities would appear at DPCs and fine bainite grains would easily be isolated. As DPCs line on the former austenite grain boundaries, exfoliated fine bainite grain boundaries would link each other to form a microcrack.

In order to suppress type IV damage, it would be effective to avoid the origination of fine bainite with high-carbon-content grains on the former austenite grain boundaries. Adding normalizing twice or more to the heat treatment process for the plate materials before welding is proposed.

Key words : type IV creep damage; Cr-Mo steel pipe; dense precipitation of carbide; heat treatment.

1. 緒言

火力発電所の主蒸気管、高温再熱蒸気管などの大径管には、2.25Cr-1Mo鋼が広く用いられている。これらの配管は、素材として厚肉鋼板を用い、曲げ加工して長手シーム溶接を施すことにより製造されたものが多く、溶接部でのクリープ損傷が主な寿命支配因子となっている。

溶接部のクリープ損傷は、その発生位置により以下のように分類される¹⁾。

タイプI : 溶接金属内の縦方向あるいは横方向の損傷

タイプII : タイプI損傷の内、溶接熱影響部にまで達する損傷

タイプIII : 溶接熱影響部粗粒域の損傷

タイプIV : 溶接熱影響部細粒域の損傷

この内、タイプIV損傷は主として応力の多軸度が高い肉厚内部で発生する²⁾ため、タイプIII損傷の場合に採用されているような、レプリカによる外表面の金属組織評価での寿命診断が困難で、対策が取りにくい状況にあった。この現象については、海外での噴破事例を受けて、国内外で研究が進められており、基本的には溶接熱影響部細粒域のクリープ強度が、周囲の母材部や溶接熱影響部粗粒域より

も低いために発生するものであることが分かっている¹⁾。また、その原因は

① 転位密度の減少と炭化物の粗大化によるクリープ抵抗の減少

② 不純物による粒界でのボイド生成・成長の加速などであることが明らかにされてきた³⁾。ところが、現実には全く同じような部位であっても、損傷が発生する場合としない場合があり、機構が完全に解明されたとは言えない状況にあった。なお、国内プラントの場合の溶接後熱処理は応力除去を目的としたものであるが、海外では溶接後に焼ならし/焼戻し処理や焼なまし処理が慣用されており⁴⁾、現象が異なるため注意が必要である。

また、タイプIV損傷では、結晶粒径とほぼ同等の大きさの微細な孔（以下細孔と呼ぶ）が多数発生するが、これらの細孔は、今まではタイプIII損傷で見られるような粒界のクリープボイドと考えられてきた。ところが、形態が全く異なる上、周囲の結晶粒に大きな変形がみられないので、大きく成長したクリープボイドとの認識には疑問を感じざるを得なかった。

そこで、HAZ細粒損傷部の微細構造について詳細な解析を行ってその特徴と発生・成長の機構を明らかにするこ

と、また、同損傷を抑制する技術を開発することを目的に研究を行った。

2. 実験方法

2.1 供試材

供試材は、長時間運用され廃却となった火力発電所の主蒸気管である。Fig. 1に示すように、曲がりの腹側および背側に長手溶接部を有する90°エルボで、材質等の諸元はTable 1に示すとおりである。また、化学成分をTable 2に示す。製造年代が古いので、不純物濃度が高く、クリープ脆化係数(CEF: Creep Embrittlement factor)も0.21となっている。

2.2 試験方法

HAZ細粒域の損傷が発生しやすい腹側溶接部⁵⁾(Fig. 1に矢印で示す)について、断面マクロ組織観察を行って当該損傷と思われる部分を見出した。続いて、同部位を切り出して、樹脂埋め込み、研磨を行ってミクロ組織観察試料

Fig. 1. Typical structure of seam welded pipe elbow and the position where investigated in this study.

Table 1. Characteristics of the investigated pipe elbow.

Material	ASTM A387-D
Size	φ508×98 (mm)
Structure	Seam weld
Maximum operation pressure	17.4 (MPa)
Maximum operation temperature	848 (K)
Operated hours	188,084
Number of starts	388

Table 2. Chemical composition of the base metal (wt%).

	C	Si	Mn	P	S	As	Pb	Sn	Sb	Cu	Cr	Mo	Ni	V
Sample	0.16	0.31	0.57	0.011	0.012	0.017	<0.002	0.011	0.014	0.16	2.54	1.05	0.14	0.006
Standard*	<0.15	0.15-0.30	0.30-0.60	<0.040	<0.050	-	-	-	-	-	2.00-2.50	0.90-1.10	-	-

*:ASTM A387 grade D

CEF=P+2.4As+3.6Sn+8.2Sb=0.21

とし、光学顕微鏡および走査型電子顕微鏡 (SEM, 島津, SuperScan 440) によりボイドやマイクロき裂等の形態観察を行った。なお、エッチングは2%ナイトールによって行った。また、適宜エネルギー分散X線分光分析 (Oxford, LINK ISIS)を行った。さらに、同部位より抽出レプリカ試料および薄膜試料を採取して、透過型電子顕微鏡 (TEM, 日本電子, JEM-2010F) により析出物の形態観察/分析および転位の観察を実施した。なお、レプリカ試料は、スピード法による電解エッチングにより作製した。また、薄膜試料は、HAZ細粒損傷部断面のマイクロき裂近傍から切り出し、イオン研磨により作製した。観察は加速電圧200 kVで行い、析出物の同定はエネルギー分散X線分光分析 (Oxford, LINK ISIS)および電子線回折写真の解析により行った。

3. 実験結果

3.1 マクロ組織観察結果

Fig. 2に溶接部の断面マクロ観察結果を示す。溶接部は、厚肉配管に一般的な多層盛りのサブマージドアーク溶接で施工されていた。熱影響部では、複数のビードによる加熱・冷却が繰り返されることにより複雑な熱履歴を受けており、細粒域が広く生成していた。その中の内表面から約30 mmの位置に黒変部が認められ、クリープ損傷の発生が疑われた。なお、この位置は過去に実施した解析的な検討結果²⁾とほぼ一致した。

3.2 ミクロ組織観察結果

Fig. 3に、マクロ組織観察で認められた黒変部の光学顕微鏡観察結果を示す。中央にマイクロき裂が存在し、その周辺に細孔が多数存在しており、HAZ細粒損傷の特徴^{6,7)}を備えていた。また、マイクロき裂の形状、周辺の細孔の配列とも、全体的に稲妻型になっていた。

Fig. 4に、HAZ細粒損傷部のSEM観察結果を示す。損傷部では、Fig. 4(a)に示すように、幅の広いマイクロき裂が認められ、その周辺に細孔が多数分布していた。また、マイクロき裂の形状および周辺の細孔の並び方は稲妻型で、結晶粒界の形と酷似していた。この形状が結晶粒界を反映したものであるとすると、粒の直径は100 μm程度と推定されることから、旧オーステナイト粒である可能性が高いと考えられた。

Fig. 4(b)に示すように、細孔は大きさがほぼ細粒ペイナ

Fig. 2. Cross sectional view of the investigated seam weld.

Fig. 3. Optical micrograph of the dark tinted region, which was observed at the fine grained HAZ.

イトと同等で、その周縁部が集中的に損傷しており、中央に取り残された部分が観察されるものがあった。また、Fig. 4(c)に示すように、細孔の結晶粒界のほぼ全周にポイドが発生・連結しているものや、それらが連続的に発生して粒界が剥離しているものが認められた。結晶粒界および

Fig. 4. SEM micrographs of the damaged region, which were observed at the fine grained HAZ. (a) Microcracks, (b) hollows, (c) fine bainite grains surrounded by coarse carbides and creep cavities.

粒内には大きく成長した析出物が認められ、粒界のポイドは析出物に隣接しているものが多かった。析出物が凝集している部分についてエネルギー分散X線分光分析を行ったところ、MoおよびCrが強く検出されたため、析出物はMoリッチおよびCrリッチな炭化物であると推定される。

3・3 析出物形態観察／分析結果

Fig. 5, 6に、HAZ細粒損傷部から採取した抽出レプリカ試料のTEM観察結果を示す。Fig. 5から、大きさが1~2結晶粒程度の大規模な析出物凝集域が直線的に並んでいることが分かる。凝集域の大きさや並び方が、Fig. 3やFig. 4に示した細孔と酷似しており、両者の関連が示唆される。

Fig. 6から、析出物はすべて塊状で、凝集域、非凝集域とも、網目状に配列しているものと、その間に析出しているものがあることが分かる。前者は、網目の大きさや形態が結晶粒相当であることから、結晶粒界に析出したものと

Fig. 5. TEM micrographs of precipitates, which had been extracted from the damaged region of the fine grained HAZ.

Fig. 6. TEM micrographs of dense precipitations of carbides, which were observed at the damaged region of the fine grained HAZ.

Fig. 7. TEM micrographs of the fine grained HAZ.

Fig. 8. TEM micrographs of base metal.

考えられ、後者は結晶粒内に析出したものであると考えられる。凝集域では、個々の析出物の形態および大きさは非凝集域と変わらず、密度のみが異なっていた。また、極端に高密度な部分では、析出物が互いに隣接し、平板状となっていた。なお凝集域は、損傷部のみで認められ、健全部では認められなかった。

凝集域の析出物は、 $(\text{Mo}, \text{Fe})_6\text{C}$ が多く、 $(\text{Cr}, \text{Fe})_7\text{C}_3$ および $(\text{Cr}, \text{Fe})_{23}\text{C}_6$ も認められた。この他に、少量ではあるが微小なCrNおよびAlN、粗大なSiの析出が認められ、凝集域の中に粗大なMnSが認められる場合があった。なお、非凝集域の析出物の種類は、凝集域と同様だった。

Fig. 7に、HAZ細粒域から採取した薄膜試料のTEM観察結果を示す。レプリカ試料で認められた塊状の析出物は、

そのほとんどが結晶粒界に存在していたが、一部では結晶粒内にも認められた。また結晶粒内の転位密度は、非常に低かった。なお、前述した析出物の大規模な凝集域は認められなかったが、これはイオン研磨により薄膜化できた部分が旧オーステナイト粒内であったためであると考えられる。

Fig. 8に、母材部から採取した薄膜試料のTEM観察結果を示す。レプリカ試料で認められた大きな棒状析出物や小さな析出物は、結晶粒内に存在していた。また、結晶粒界には大きな塊状の析出物が認められた。また結晶粒内および粒界の転位密度は、HAZ細粒域と比べて高かった。

4. 考察

HAZ細粒損傷域で、TEM観察により認められた炭化物の凝集域は、SEM観察で認められた細孔と並び方や大きさが酷似していた。また、SEM観察では、粒界でのボイドの発生・連結が著しく、粒界が剥離した粒や、全周に渡って粒界が損傷し、中央部が取り残された粒が直線的に並んでいる様子が観察された。また、TEM観察で認められた結晶粒界の析出物は、 $(\text{Mo}, \text{Fe})_6\text{C}$ が支配的で、粒界析出による網目構造を呈していた。以上より、本損傷はHAZ細粒域に時効により生じた炭化物凝集域において、粒界の炭化物に隣接してボイドが多数発生し、成長・合体して粒界のほぼ全周が剥離することにより発生したものと推定される。細孔の配列やミクロき裂の形状が稲妻型だったことから、損傷は旧オーステナイト粒界に集中的に発生したと考えられ、それ故、細孔が連なってミクロき裂に成長するのが容易だったのだと推定される。なお、ミクロき裂の幅が広がったこと、および1結晶粒程度の細孔が多く認められたことは、粒界剥離が著しい粒が、試料調整時に

脱落したためであると考えられる。

炭化物の凝集域は、母材部ではほとんど認められず、HAZ細粒損傷域のみで認められた。また、HAZ細粒域では粒界の $(\text{Mo}, \text{Fe})_6\text{C}$ が支配的であるが、母材部では粒内の $(\text{Cr}, \text{Fe})_{23}\text{C}_6$ が支配的で、微小な棒状 $(\text{Mo}, \text{Cr})_2\text{C}$ も認められた。HAZ細粒域では、粒界密度が高いために溶接熱影響時および溶接後熱処理時に粒内炭化物の再固溶と粒界への析出が促進され、粒内のピン止め効果が低下して転位密度が下がっていたと考えられる。使用の初期から粒内の強化機構が失われた上、実機使用開始後も引き続き同じ現象が進行したため、粒界炭化物との界面に機械的なクリープ損傷が集中して早期のボイド発生に至ったものと考えられる。

本調査試料は、製鋼メーカーでの焼ならし処理時に加え、製管メーカーでの熱間曲げ加工時にもオーステナイト化域まで加熱されている。オーステナイトへの炭素の固溶限は高いため、再結晶前の旧オーステナイト粒界に、炭化物密度が非常に高い粒が認められたことは特筆に値する。同じ細粒域でも、炭化物の凝集した粒が存在する領域は限られて

Fig. 9. Proposed mechanism of origination and growth of microstructural damages of fine grained HAZ. (a) Solution of carbides on the former austenite grain boundaries and formation of high carbon content fine bainite grains during weld heat affection. (b) Formation of dense precipitation of carbides in high carbon content fine bainite grains by aging under operation. (c) Formation of creep voids, linking of them and exfoliation of grain boundary. (d) Formation of microcracks.

いることと考え合わせると、例えば、凝固時に生成した粗大 $M_{23}C_6$ の影響など、局部的に炭素濃度が高くなる機構の存在が考えられる。溶接の熱影響によって再結晶する前の旧オーステナイト粒界に、焼ならし処理および熱間曲げ加工時には固溶しきれなかった残留 $M_{23}C_6$ があり、これが溶接熱影響に伴うオーステナイトの細粒化時に固溶して極端に炭素濃度が高い粒ができた可能性が考えられる。

以上より推定したHAZ細粒域損傷の発生過程をFig. 9に示す。板材から加工され、所定の熱処理の後、溶接工程に供された素材の旧オーステナイトの一部に、粗大な $M_{23}C_6$ が存在する場合を考える (Fig. 9(a)上図)。溶接工程では、入熱によってオーステナイト化温度域まで加熱され、その後すぐに冷却されるため、微細なベイナイト粒が形成されるが、 $M_{23}C_6$ に隣接した粒ではオーステナイト化した際に炭素を多量に固溶するものと考えられる。一方、 $M_{23}C_6$ に隣接していない粒では、炭素の含有量が異常に上昇することはない (Fig. 9(a)下図)。炭素を大量に固溶したベイナイト粒 (Fig. 9(b)上図) が実機での使用に供されると、時効によって大量の炭化物が析出すると考えられ、周辺の粒と比べて極端に炭化物の析出密度が高い粒が形成される。また、析出密度が極めて高くなった結晶粒界では、析出物が互いに連結して大きな板状となって粒界を覆ってしまう (Fig. 9 (b)下図)。これらの粗大な析出物と基材との境界部では、実機使用に伴ってクリープ損傷が蓄積するものと考えられ、比較的早期にクリープボイドが発生する (Fig. 9 (c)上図)。損傷がさらに蓄積すると、クリープボイドが互いに連結し、基材と析出物との間が剥離する (Fig. 9(c)下図)。このような粒界剥離が、旧オーステナイト粒界に沿って形成された炭素を大量に固溶したベイナイト粒で発生するため (Fig. 9(d)上図)、互いに距離が近く、容易に連結してマイクロき裂の発生に至る (Fig. 9(d)下図)。粒界損傷の発生がこの機構によらずれば、旧オーステナイト粒界に偏析するP、As等の不純物元素の影響により助長されることが考えられ、過去の検討により解明されたこと³⁾と一致する。

この考え方に従うと、焼きならし処理工程を見直すことで、炭化物凝集域の生成が抑えられ、本調査試料で見られたような粒界剥離型のHAZ細粒域損傷の発生を防ぐことができると考えられる⁸⁾。例えば、従来の焼ならし工程に、2~3回の焼ならしを追加することにより、Fig. 9(a)の上図に示したような旧オーステナイト粒界に存在すると考えられる炭化物を完全に固溶させることができると考えられ

る。そうすれば、溶接熱影響によって発生すると考えられる炭素含有量が異常に高い細粒ベイナイトが発生せず、その後の炭化物凝集域の発生~粒界剥離の発生を回避することができ、タイプIV損傷の発生を抑制できると考えられる。現在、見直した新しい工程で部材を試作し、損傷の発生が抑制されるかどうか確認するための研究を実施中であり、確認され次第、実機部材の製造工程に反映することを考えている。

5. 結論

- (1) 長時間使われた実機廃却主蒸気エルボの腹側溶接部において、HAZ細粒域のクリープ損傷が確認された。
- (2) 当該部では、マイクロき裂の形状や細孔の配列が稲妻型になっており、旧オーステナイト粒界との関連が示唆された。
- (3) 抽出レプリカにより、細孔の大きさや配列と一致する炭化物凝集域が確認され、損傷との関連が示唆された。
- (4) 観察結果に基づいて、旧オーステナイト粒界に存在したと思われる製造時の残留粗大炭化物を原因とする、HAZ細粒域クリープ損傷の発現機構が推定された。
- (5) 推定された機構に基づいて、製造プロセスに焼ならし処理を追加する改良案を考案した (特許出願中)。

文 献

- 1) F.V.Ellis and R.Viswanathan: *ASME PVP*, **380** (1998), 59.
- 2) Y.Tanaka, M.Yamauchi and M.Sugesawa: Proc. 33rd Symp. on Strength of Materials at High Temperatures, The Society of Materials Science, Japan, Kyoto, (1995), 70.
- 3) M.Yamauchi, N.Nishimura, F.Masuyama and T.Sakurai: Proc. 33rd Symp. on Strength of Materials at High Temperatures, The Society of Materials Science, Japan, Kyoto, (1995), 61.
- 4) C.D.Lundin and G.Zhou: *Advanced Heat Resistant Steel for Power Generation*, The Institute of Materials, London, (1999), 668.
- 5) S.Kawakami, T.Oshikawa, H.Watanabe, K.Fukushima and M.Nakaniwa: Proc. 1993 Annual Meeting of JSME/Materials and Mechanics Division (No. 930-71), The Japan Society of Mechanical Engineers, Tokyo, (1993), 508.
- 6) M.Sugesawa, T.Sakurai, M.Aoki and K.Fukushima: Proc. 1994 Annual Meeting of JSME/Materials and Mechanics Division, vol. B (No. 940-37), The Japan Society of Mechanical Engineers, Tokyo, (1994), 421.
- 7) M.Sugesawa, T.Sakurai, M.Aoki and K.Fukushima: Proc. of CSPE-JSME-ASME Intl. Conf. on Power Engineering-95 (vol. 2, sec. 6-2), Chinese Society of Power Engineering, Shanghai, (1995), 1060.
- 8) 特願2002-322969, (2002).