

高クロム鋼溶接部のサブグレインサイズ測定による 非破壊的クリープ損傷評価法

(Non-destructive Creep Damage Evaluation Method by Subgrain Size Measurement of High Chromium Steel Welded Joint)

難波 一夫*
(K. Namba)

高クロム鋼のクリープ損傷と強い相関を示す溶接熱影響部細粒域の微細組織を観察するためのエッチング試薬を開発した。当該試薬を使用することにより、実機配管溶接部の微細組織を直接観察できるだけでなく、レプリカに転写して間接的に観察することも可能である。本報では、当該試薬を使用した高クロム鋼溶接部の非破壊的評価法について述べる。

Etching reagents for observing microstructure of fine grained Heat Affected Zone, its grain size corresponding to the creep damage of high chromium steels, have been developed. By using these reagents, we can observe not only microstructure of the actual piping welds directly, also microstructure on the replica film transferred from actual pipes indirectly. In this paper, non-destructive evaluation for high chromium steel welds using the reagents will be described.

1. はじめに

超々臨界圧 (USC) 火力発電プラントでは、従来の低合金鋼に代わり、クリープ強度を著しく向上させた高Crフェライト系耐熱鋼 (以下、「高クロム鋼」と略す) を配管等の主要耐圧部に採用する⁽¹⁾。高クロム鋼配管は溶接により接合されるが、溶接部の溶接熱影響部細粒域 (以下、「HAZ細粒域」と略す) では、高温での使用により、いわゆるタイプIV損傷が生じ、設計寿命と比較して早期に蒸気漏えい事故が発生するなど不適合事象の発生も認められる⁽²⁾。この高クロム鋼のタイプIV損傷は、配管の肉厚深さ方向で均一に進行せず、局所を起点として進行する傾向がある。すなわち、クリープ損傷に伴い発生するポイド等の欠陥が、肉厚内部の開先幅 (面間) が狭まった会合部において顕著な場合や、配管外表面近傍に集中して発生する場合もあり、配管の仕様、使用条件、配管に作用する外力および溶接継手の形態 (周継手・長手継手、開先形状等) により、必ずしも一定位置を起点として損傷が進展するとは限らない。そのため、肉厚内部の局所を起点としてクリープ損傷が進行するケースでは、ポイドを指標としてクリープ損傷を評価しても、配管外表面には全くポイドが発生しない可能性もあり、プラント停止時に実施する配管外表面からの検査では、

クリープ損傷を過小評価してしまうことが懸念される⁽³⁾。

一方、肉厚内部の内在欠陥を検出する非破壊検査法として超音波フェーズドアレイ検査 (以下、「UPA」と略す) が、高クロム鋼溶接部の検査法として採用されている。UPAは、内在欠陥の検出能力が高い探傷法であるが、UPA指示 (欠陥に対応するシグナル) とクリープ損傷との相関が明確ではないため、定量的にクリープ損傷を評価することが難しい。また、UPA探触子の接触する配管外表面から配管内部の深さ10ミリ程度の領域は不感帯であり、当該領域に発生する欠陥の探傷が容易ではない。厚肉配管の検査では、超音波の減衰による検出感度の低下が避けられない⁽⁴⁾など、タイプIV損傷の発生形態により、探傷が困難となるおそれもある。

これらの状況から、高クロム鋼については、プラント停止時に実施する実機配管の各種検査よりも、配管系統全体を対象とした計算機による応力解析がクリープ損傷評価の主流となっている。応力解析は、個々の溶接継手ごとにクリープ寿命が数値として算出され、プラント停止時の検査対象継手の選定や取替え時期の判断など予防保全ツールとして好適である。一方で、応力解析による評価が必ずしも実機の損傷状況と一致しない場合もあり、精度向上の余地が残されている。

*電源開発株式会社

(Electric Power Development Co., Ltd.)

原稿受付 平成27年4月24日

上記を鑑み、本稿では、タイプIV損傷に対応した高クロム鋼配管溶接部の非破壊検査によるクリープ損傷評価法の実用化を目指し、クリープ損傷と強い相関を示す溶接部の微細組織の変化から、実機配管のクリープ損傷を評価する手法の開発を試みたので、その内容について報告する。

2. 実機使用材を用いた予備検討

高クロム鋼の溶接部では、クリープ損傷の進行に伴い、HAZ細粒域にポイド等の欠陥が形成されるが、同時にその微細組織であるサブグレイン(亜結晶粒)も成長・粗大化するなど、サブグレインとクリープ損傷が強い相関を示すことが報告されている^(5~7)。これらの報告は、いずれも比較的小さな試験片を用いた単軸のクリープ破断試験による実験室評価である。実機プラントの大径配管では、高温使用中において、配管周方向に作用するフープ応力だけでなく、配管軸方向に作用する応力や配管伸び等による曲げモーメントなどが加わった多軸応力が作用する。そこで、実機大径配管が実験室評価と同様の相関を示すかを確認するためのフィージビリティ・スタディを実施した。

供試材として、①長手継手を有する高温再熱蒸気管工

ルボ廃却材(累積運転時間:62,353時間、運転温度:610℃、配管仕様:φ1016×t66mm[火SCMV28:9Cr鋼]。以下、「エルボ廃却材」と略す)および、②未使用段階(新材)における微細組織評価のために、エルボ廃却材を模擬して別途製作した溶接継手試験材を使用した。エルボ廃却材からは可能な限り原肉厚を維持した大型クリープ試験片(平行部肉厚50mm×幅30mm)を切り出し、これをクリープ破断試験(試験応力:55MPa、試験温度:650℃)により破断させ(破断時間:1439.1時間)、未使用時、実機使用材受入時、クリープ破断時におけるHAZ細粒域のサブグレインサイズを電子線後方散乱回折(EBSP:Electron Back-Scattered diffraction Pattern)により調査した。ここで、エルボ廃却材の実機使用によるクリープ寿命消費率は、実機使用によるクリープ寿命消費率とその後に実施したクリープ破断試験によるクリープ寿命消費率の総和が100%に達した際に破壊が生ずると仮定した寿命比則⁽⁸⁾(Life fraction rule)により求めたものである。

図1に各クリープ損傷段階におけるEBSP解析結果を示す。EBSP解析では、電子線散乱パターンから結晶の方位を2次元表示することができ、個々のサブグレインは、色分けされ表示される。平均サブグレインサイズを

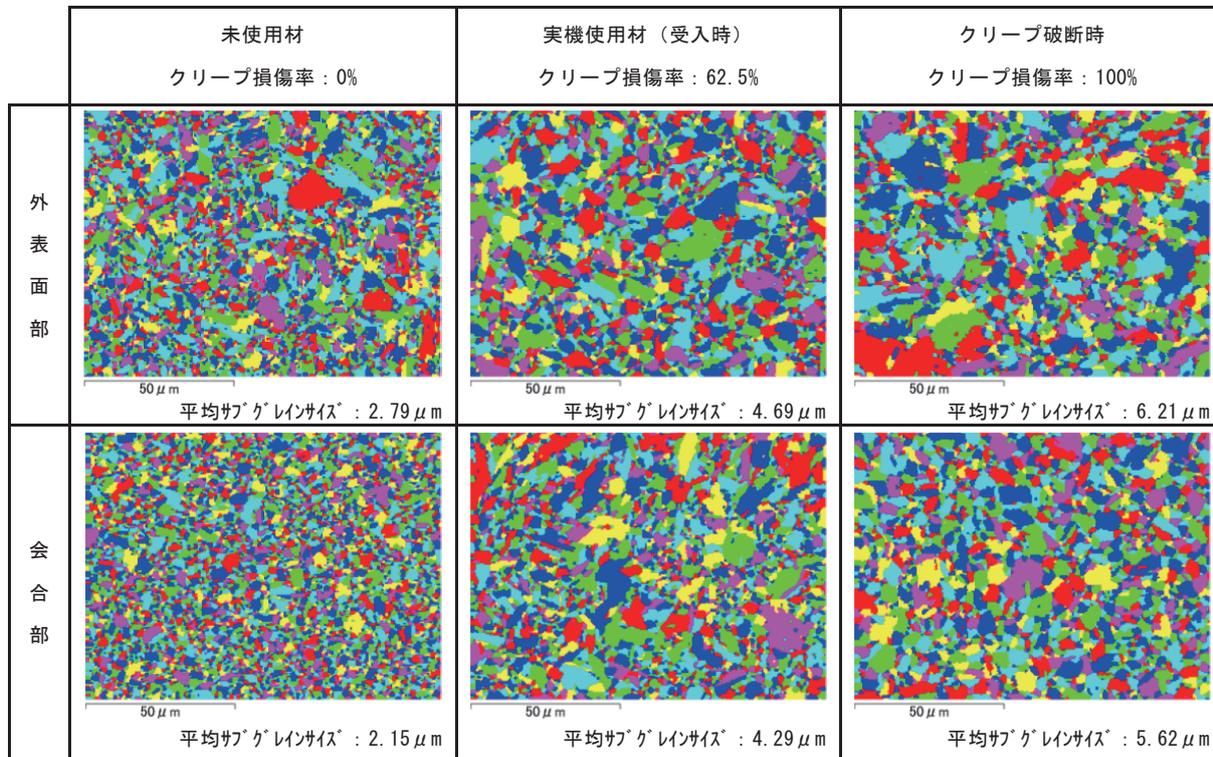


図1 実機使用材HAZ細粒域のEBSP解析結果

リニア・インターセプト法（写真上に一定長さの直線を引き、当該直線の長さを交差した結晶粒界の数で除して平均結晶粒径を求める方法）により求めると、クリープ損傷に伴い、サブグレインが成長・粗大化していることがわかった。また、図2は、図1のEBSP解析から求めた平均サブグレインサイズをクリープ損傷率との関係として整理したものである。外表面部、肉厚内部に位置する会合部（タイプIV損傷の起点）ともクリープ損傷に伴って平均サブグレインサイズが線形に増加している。これらの結果から、多軸応力が作用する実機配管についても既報と同様の挙動でクリープ損傷が進行していることを確認できた。

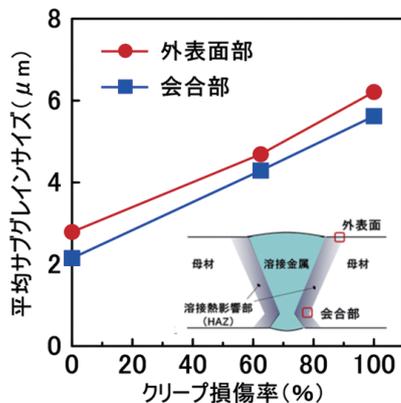


図2 クリープ損傷にともなう平均サブグレインサイズの変化

3. 実機配管溶接部の微細組織観察に関する検討

3.1 エッチング試薬の開発

上述の通り、実機配管溶接部のサブグレイン観察によりクリープ損傷評価の可能性を見い出せたが、当該検査を実施する場合、発電所現地において実機配管から組織観察用試料をサンプリングして、EBSP解析を行うなどの、いわゆる破壊検査が必須となる。しかしながら、既設の高クロム鋼配管は、許容応力の下方修正により、余肉が極めて少なくなっているうえ、サンプリングにより生じた窪み部に対し、形状復元処置として実施する肉盛溶接補修が、配管溶接部の更なる強度低下を引き起こすことも懸念されるため、サンプリングによるEBSP解析は現実的ではない。すなわち、実機プラントにおける高クロム鋼溶接部の検査は、非破壊検査が望ましい。そこで、エッチングによりHAZ細粒域のサブグレインを現出させ、これを直接的あるいは間接的に観察することに

よりクリープ損傷を評価する非破壊検査法を検討することとした。

ここで、高クロム鋼の光学顕微鏡等による組織観察において一般的に使用されているエッチング試薬は、ピレラ試薬（塩酸 1～5 ml、ピクリン酸 1～5 gを添加したアルコール溶液）である。この試薬は、ポイド観察を目的としたレプリカ採取時のエッチング試薬としても採用されるが、異なる相の境界や同一相内で結晶方位の異なる種々の境界をほぼ均一に腐食するため、腐食された境界の種類に関する情報を得ることが難しい。具体的には、腐食された境界が、母材のマルテンサイト変態前の原組織である旧オーステナイト粒界なのか、その下部組織であるポケット、ブロック等の境界なのかの識別が困難であり、溶接部のサブグレインについても同様である。そこで、極低炭素鋼で実績のある着色エッチング試薬（以下、「実績試薬」という）⁽⁹⁾を参考とし、鋼種の異なる高クロム鋼でも適用可能なエッチング条件（試薬成分、エッチング時間等）の検討を行った。

まず、実績試薬による高クロム鋼の着色エッチングを試みた。しかしながら、実績試薬では、極低炭素鋼と比較して、クロムやモリブデンなど耐食性向上に寄与する元素をパーセント・オーダー含有する高クロム鋼の組織を現出することはできなかった。そこで、実績試薬の主成分であるチオ硫酸ナトリウム ($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$)、ピロ亜硫酸カリウム ($\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_5$)、ピロ亜硫酸ナトリウム ($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_5$) の含有量を調整し、新たにクエン酸、塩酸、硝酸、エタノール等の各種成分を添加・調整することにより、高クロム鋼の顕微鏡組織が現出可能なエッチング試薬の開発を進めた。その結果、表1に示す成分系で、所望の観察が可能となる一連の高クロム鋼用エッチング試薬 (Namba's solution) を調製することができた⁽¹⁰⁾。これらの試薬は、いずれも各成分を水に溶解することで容易に作成することができる。また、一般的なエッチング方法と同様に、試薬の温度を10～40℃に保持し、組織観察用試料を所定時間浸漬後、水洗、乾燥することで、高クロム鋼の組織観察が可能となる。ただし、組織観察用試料の処理について、①エッチング前にコロイダルシリカ懸濁液（丸本ストルアス製OP-U）によるパフ研磨を実施し、研磨面の活性を高めた状態で速やかに試薬中に浸漬すること、また、②試薬への浸漬について、組織観察用試料を手で保持することなく、組織観察用試料の研磨面を上面してピーカー底面に静置するなど、振動を

表1 開発したエッチング試薬の成分 (単位: g)

試薬名	実績試薬	NMB-9 (9Cr用)	NMB-12 (12Cr用)	NMB-9R (9Crレプリカ用)	NMB-12R (12Crレプリカ用)
H ₂ O	108.0	108.0	108.0	108.0	108.0
Na ₂ S ₂ O ₃	1.37~2.75	6.00	6.00	12.0	6.00
K ₂ S ₂ O ₅	0.46~1.51※	1.50	1.50	1.50	1.50
Na ₂ S ₂ O ₅		1.35	1.35	1.35	1.35
クエン酸	—	0.05	0.2	—	0.4
エタノール	—	10ml	5ml	—	—
塩酸	—	—	—	0.5ml	0.5ml
硝酸	—	—	0.25ml	—	—
エッチング時間(秒)	30~150	200~400	150~600	100~400	60~240

※: K₂S₂O₅, Na₂S₂O₅のどちらか一方または、両方の合計。

与えないよう留意しなければ、均一かつ美麗にエッチングできないので注意を要する。

試薬NMB-9およびピレラ試薬でエッチングした火 SCM V28 (9Cr鋼) の金属組織を図3に示す。ピレラ試薬で現出した組織は、単色で、各境界の識別は容易ではない。一方、試薬NMB-9では、母材部および溶接熱影響部粗粒域(以下、「HAZ粗粒域」と略す)の旧オーステナイト粒界、ポケット、ブロックのみならず、HAZ細粒域の微細なサブグレインも青色、茶色に着色され、各境界を明瞭に識別できる。

このように、試薬NMB-9を使用することで、母材および溶接部のHAZ粗粒域、HAZ細粒域の組織を明瞭にエッチングできた。しかしながら、共金系溶接材料によ

り溶接した溶接金属部が、全く腐食されないことから、開発試薬は、被エッチング材(鋼材)の組成・組織等の影響を受けやすいと考えられる。

3.2 光学顕微鏡組織とEBSP解析の対比

試薬NMB-9による着色と結晶方位との関係を確認するため、火 SCM V28 (9Cr鋼) 母材の同一箇所について、光学顕微鏡観察とEBSP解析を行った。その結果を図4に示す。本試薬による着色は、結晶方位と概ね対応しており、青色、茶色に着色する部分は、(001)面に、薄い茶色または白色の部分は、(111)面、(101)面に対応することがわかる。よって、本試薬を使用することで、EBSPなどの解析型電子顕微鏡を使用することなく、比較的簡便な光学顕微鏡またはレーザー顕微鏡観察によ

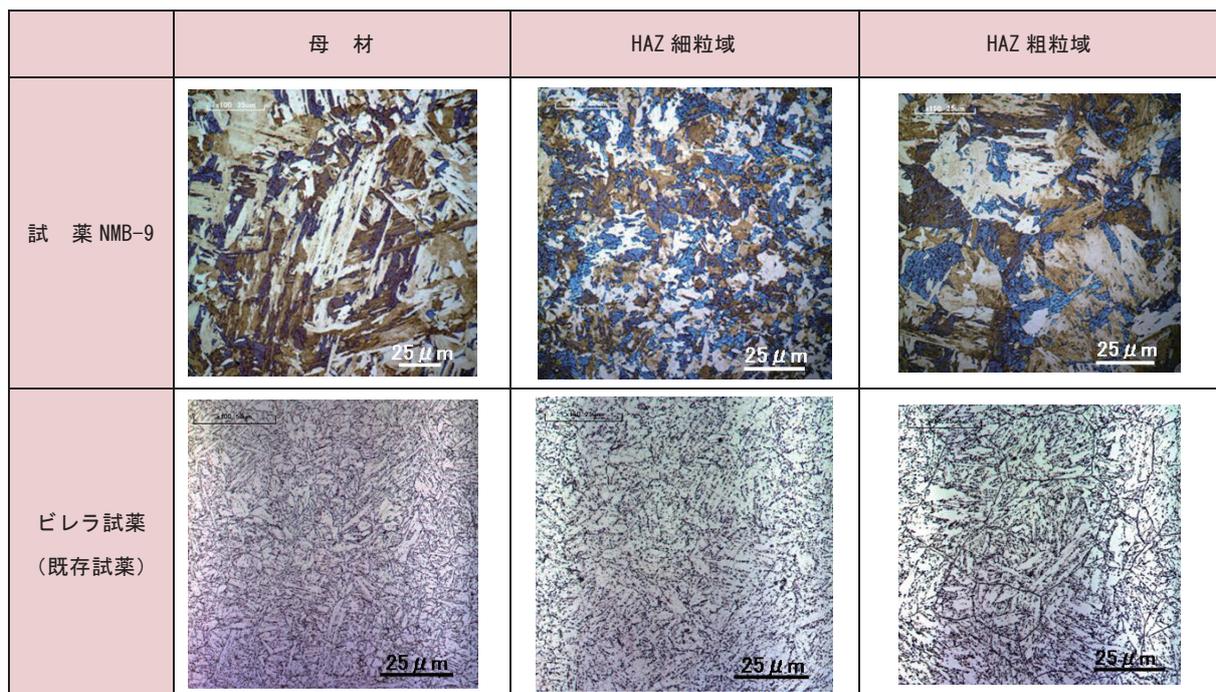


図3 エッチングした改良9Cr-1Mo鋼のマイクロ組織

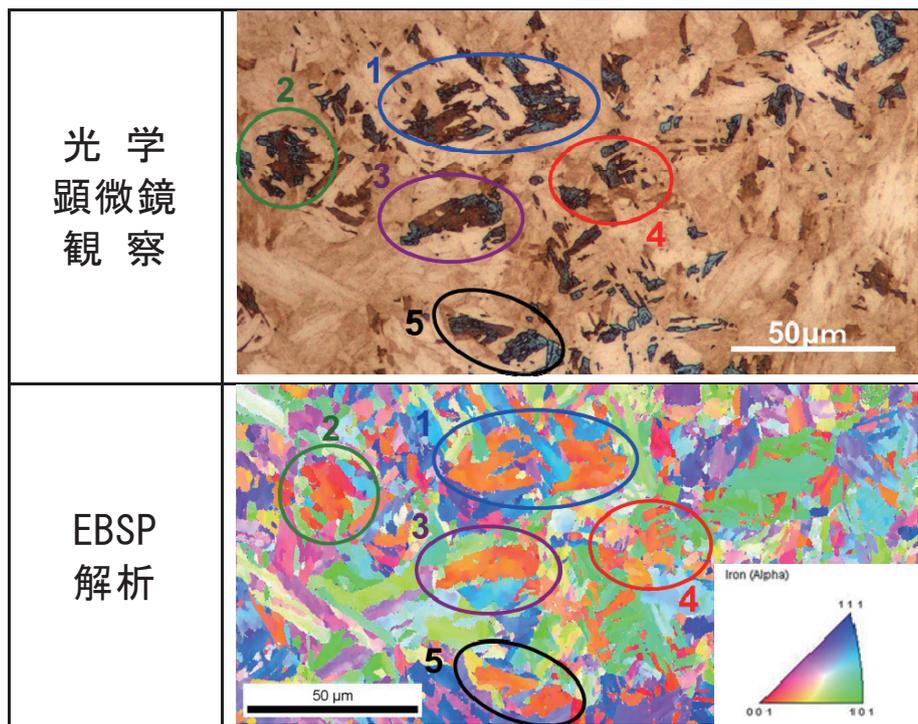


図4 光学顕微鏡組織とEBSP解析との対比

り、結晶方位を簡易的にカラー識別することが可能である。なお、この対比は、HAZ粗粒域およびHAZ細粒域でも、母材と同様の対応関係があることを確認している。

3.3 レプリカによるHAZ細粒域組織の転写

9Cr鋼、12Cr鋼について、それぞれ、試薬NMB-9、NMB-12を用いてエッチングすることで、HAZ細粒域のサブグレインを現出できるが、倍率が高々1000倍の光学顕微鏡で、数ミクロンサイズのサブグレインを観察することは難しい。そのため、当該部の組織を発電所現地で直接観察する場合には、より分解能の高いレーザー顕微鏡による観察が不可欠となる。しかしながら、現場で配管溶接部の微細組織を直接観察する場合には、狹隘部位でも観察できるようレーザー顕微鏡本体の小型化のみならず、配管の振動、粉塵等の環境対策や固定治具など付帯機器の開発も必要となる。そこで、これら機器の新規開発を回避するため、ポイド観察と同様に、エッチングにより配管溶接部の微細組織をレプリカに転写し、実験室に設置したレーザー顕微鏡を用いて、当該組織を間接的に観察することとした。

まず、配管溶接部の微細組織をレプリカに転写すべく、試薬NMB-9を用いてエッチングを施し、レプリカ採取を試みた。ところが、試薬NMB-9では、組織境界に対

応する凹凸をレプリカ上に形成・転写するには不十分であった。試薬NMB-9によるエッチングでは、組織表面に溶出する鉄イオンとエッチング試薬中の硫黄成分との化合により有色皮膜を形成する、いわば反応生成物を金属表面に付着させるメカニズムで腐食が進行する。そのため、組織境界に凹凸が形成されるよう、試薬NMB-9、NMB-12に対し、組織境界を優先腐食させるエッチング成分の添加が必要と考えられた。

試薬NMB-9Rは、レプリカへの微細組織の転写が可能となるよう、少量の塩酸を添加するなど、試薬NMB-9の成分系に改良を加えたものである。図5に試薬NMB-9Rによりエッチングした火SCMV28(9Cr鋼)溶接部のHAZ細粒域におけるレプリカ観察結果を示す。レプリカ上にサブグレイン境界を忠実に転写できていることがわかる。また、12Cr鋼については、当該鋼種向けに成分を見直した試薬NMB-12Rを使用することで、同様の観察が可能である。なお、レプリカ転写により間接的にポイドを観察する場合でも、試薬NMB-9R、NMB-12Rを用いたエッチングにより、レプリカにHAZ細粒域のサブグレインのみならず、ポイドの転写も可能である。すなわち、レプリカへのポイド転写については、既存のピレラ試薬に代替してこれらの試薬を使

用することもできる。

以上から、これらレプリカ専用試薬の開発により、高クロム鋼配管溶接部の微細組織を非破壊的に観察できる技術を整えることができた。

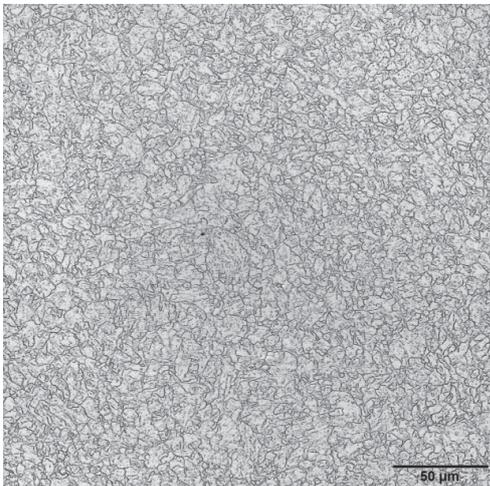


図5 NMB-9RによるHAZ細粒域のレプリカ観察結果

4. クリープ損傷評価法としての適用

4.1 サブグレインサイズとクリープ損傷率の関係

火SCMV28 (9Cr鋼)製の大型溶接継手試験片(平行部肉厚50mm×幅25mm)を用いて、途中止めによりクリープ損傷率を変化させ、クリープ損傷に伴うサブグレインサイズの変化を測定した。クリープ破断試験は、条件Ⅰ；応力：50MPa、試験温度657℃、破断時間4284.5h(寿命消費率X=20.0, 42.6, 55.0, 70.0, 86.4%で途中止め)、条件Ⅱ；応力：80MPa、試験温度634℃、破断時間2848.3h(寿命消費率X=21.1, 40.5, 60.0, 80.0%で途中止め)の2条件で行った。エッ

チング試薬には、試薬NMB-9を使用し、レーザー顕微鏡により、各試験片のHAZ細粒域におけるサブグレインを直接観察してそのサイズを測定した。なお、条件Ⅰ、条件Ⅱの試験片は、いずれもタイプⅣ損傷を生じ、HAZ細粒域で最終破断した。

図6に条件Ⅰにおけるクリープ損傷率と平均サブグレインサイズの関係を示す。損傷の最も顕著な部位(以下、「最大損傷部」という)は、外表面から深さ7mmのHAZ細粒域であり、比較的クリープ損傷が進行した試験片では当該部位においてポイドの密集が確認できた。サブグレインサイズの測定は、外表面部および最大損傷部の2箇所を実施したが、いずれの観察箇所においてもクリープ損傷率の増加に伴い、平均サブグレインサイズが増加することがわかる。

一方、図1で示した実機使用材の溶接継手試験片では、図6で示した条件Ⅰの溶接継手試験片とは開先形状が異なり、その最大損傷部位は、外表面から深さ45mmのHAZ細粒域(会合部)であった。当該試験片の肉厚は50mmであり、外表面部よりもむしろ配管内面に近い部位であるにもかかわらず、外表面においてもサブグレインの成長が認められている。これらの事例から、タイプⅣ損傷の最大損傷部位の位置にかかわらず、外表面のサブグレインを測定することで、非破壊的にクリープ損傷を評価できる可能性が示唆された。

4.2 応力の影響

図7に条件Ⅰ、Ⅱの最大損傷部(外表面から深さ7mmのHAZ細粒域)におけるクリープ損傷に伴う平均サブグレインサイズの変化を示す。応力条件が異なってもクリープ損傷率で整理すると、ほぼ一本の曲線で近似できる。したがって、少なくとも当該応力範囲において

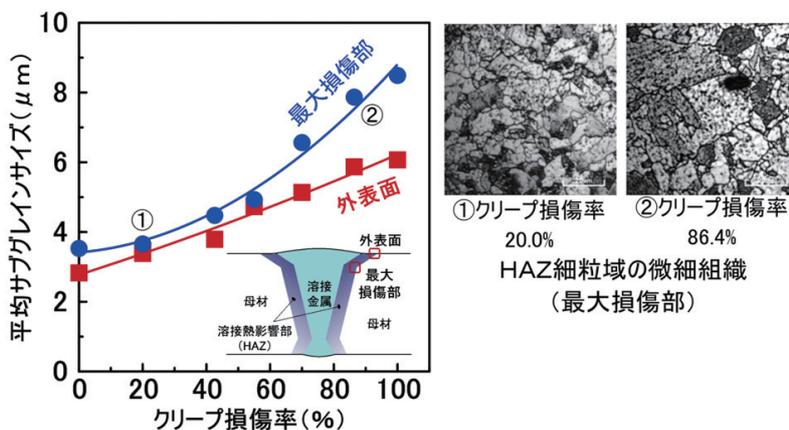


図6 クリープ損傷率と平均サブグレインサイズの関係

は、平均サブグレインサイズをもとにクリープ損傷率の評価が可能であると考えられる。

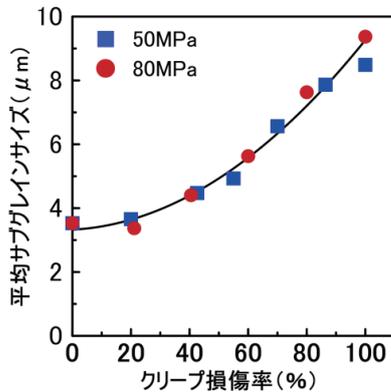


図7 応力の影響

4.3 ポイド評価法との比較

条件 I によりクリープ破断試験を実施した火 SCM28 (9Cr 鋼) 製溶接継手サンプルについて、試験片外表面におけるポイド面積率および平均サブグレインサイズをクリープ損傷率で整理した結果を図 8 に示す。平均サブグレインサイズもポイド面積率もクリープ損傷に伴って増加する傾向は共通する。これらの増加傾向に着目すると、平均サブグレインサイズは、クリープ損傷に伴って、ほぼ直線的（線形）に増加するのに対し、ポイド面積率は、クリープ損傷率 40% までポイドの発生は認められず、40% 以上では、非線形の増加傾向を示した。以上より、サブグレインサイズを指標とすると、クリープ損傷率全域にわたり評価が可能であり、ポイド面積率による評価と比較して、より広範囲な損傷評価も期待できる。

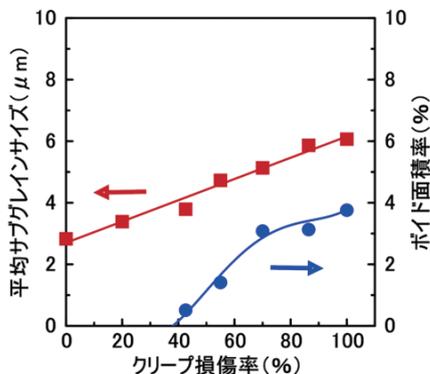


図8 本法とポイド評価との比較

4.4 発電所現地でのレプリカ採取

実機大径配管（高温再熱蒸気管、火 SCM28 [9Cr 鋼] 製）の長手溶接部に対し、開発試薬（NMB-9R）を使用したレプリカ採取作業の状況を図 9 に示す。開発試薬を用いたレプリカ採取作業は、ピレラ試薬を用いたレプリカ採取作業とエッチング試薬が異なるだけであり、研磨等の前処理、レプリカ採取等その他の工程において差異がなく、通常のレプリカ作業と同様に作業を行うことができる。



図9 開発試薬を用いたレプリカ採取作業

4.5 検定曲線の整備と検証

前述のとおり、タイプ IV 損傷の形態は、配管の仕様、使用条件、溶接継手の開先形状等に応じて異なってくる。したがって、特定の溶接継手についてサブグレインとクリープ損傷の関係を整理した検定曲線を作成し、これをマスターカーブとして、あらゆる溶接部のクリープ損傷評価に適用するのは適切ではない。検定曲線は、各プラントの配管種別（9Cr 鋼、12Cr 鋼等の材質、配管肉厚等の仕様）、継手タイプ（周継手・長手継手、開先形状等）に応じて作成すべきであり、さらに、外表面のサブグレインサイズの変化がクリープ損傷と相関性があることを検証したうえで採用すべきと考える。換言すると、クリープ損傷に伴い配管外表面部のサブグレインに変化が認められない溶接継手では、本手法の採用は困難である。

5. まとめ

高クロム鋼溶接部のサブグレインサイズを指標として、当該部のクリープ損傷を配管の外表面から非破壊的に評価しうる可能性を示した。当社では、既設 USC プラントの保守管理を目的として、各ユニットの配管種別ごとに当該関係を整理・検証し、本非破壊検査法を保守管理ツールとして活用していく所存である。

- (1) 単軸のクリープ破断試験結果と同様に、多軸応力が作用する実機配管においても、高クロム鋼溶接部 HAZ 細粒域のサブグレインがクリープ損傷に伴い、成長・粗大化することを確認した。
- (2) 着色により高クロム鋼の組織境界の識別が容易となるエッチング試薬を開発した。本試薬により着色された組織は、結晶方位と対応があり、光学顕微鏡等により、簡易な結晶方位解析を実施することも可能である。
- (3) 試薬 NMB-9, NMB-12 を使用したエッチングにより、高クロム鋼の母材や溶接部の HAZ 粗粒域の組織だけでなく、HAZ 細粒域のサブグレインを直接観察することができる。また、組織境界を優先腐食する試薬 NMB-9R, NMB-12R を使用すれば、溶接部 HAZ 細粒域の微細組織をレプリカに転写することができ、これを実験室において間接的に観察することもできる。
- (4) タイプⅣ損傷の起点や最大損傷位置にかかわらず、クリープ損傷の進行に伴い、溶接部 HAZ 細粒域のサブグレインサイズが増加する傾向があることから、これを指標として配管外表面から非破壊的にクリープ損傷の評価が可能なる見通しが得られた。
- (5) 本クリープ損傷評価法は、従来のポイドによる評価法と比較し、クリープ損傷の初期段階から破断に至るまでの広範囲なクリープ損傷評価が可能である。

謝辞

エッチングおよびレプリカ採取にあたり、ご指導・ご協力いただいた神鋼溶接サービス株式会社の嶋田氏（現リンカーンエレクトリックジャパン株式会社）、高橋氏、隈倉氏に心より感謝の意を表します。

参考文献

- (1) 難波一夫：IPEJ Journal Vol.26 No.6 pp.4-7 (2014-6)
- (2) 橋本正徳ら：最新データに基づく寿命評価式，許容引張応力および長手継手の溶接継手強度低減係数 火力原子力発電 Vol.63 No.12 pp.1027-1031 (2012)
- (3) 緒方隆志ら：高クロム鋼製ボイラ配管溶接部のクリープ損傷評価法の開発 平成21年度火力原子力発電大会論文集 pp.66-72 (2010)
- (4) 福富広幸ら：高クロム合金鋼溶接継手におけるタイプⅣ損傷への超音波フェーズドアレイ法の適用性評価 電力中央研究所報告 Q07003 (2008)
- (5) 米山夏樹ら：EBSPを用いた材料評価手法の構築 IHI技報 Vol.47 No.4 pp.157-161 (2007-12)
- (6) Masakazu MATSUI et.al：Degradation of Creep Strength in Welded Joint of 9%Cr steel, ISIJ International, Vol.41 (2001), Supplement, pp.S126-S130
- (7) V.GAFFARD et.al. (Centre des Materiaux, France)：High Temperature Creep Flow and Damage Properties of the Weakest Area of 9Cr1Mo-NbV Martensitic Steel Weldments ISIJ International, Vol.45 pp.1915-1924 (2005), No.12
- (8) Viswanathan 著，増山不二光ら訳：高温機器部品の損傷メカニズムと寿命評価（1993）日刊工業新聞社
- (9) 大森章夫ら：公開特許公報 特開2007-204772
- (10) 難波一夫：公開特許公報 特開2011-179083