

# SUS304 ステンレス鋼のクリープ損傷に伴う 超音波減衰と材料微視組織の変化

大谷 俊博\* 萩 博次\*\* 平尾 雅彦\*\*

## Ultrasonic Attenuation and Micro-structural Changes in Crept Stainless Steel

by Toshihiro OHTANI, Hirotsugu OGI, & Masahiko HIRAO

Changes in ultrasonic attenuation were studied by conducting creep tests using austenitic stainless steel specimens (exposed to a temperature of 973 K and put under various stress). The EMAR (Electromagnetic Acoustic Resonance) method, a contact-less resonance method which uses EMAT and by which extra energy loss can be disregarded, was used for the measurement of intrinsic attenuation. Polarized shear waves were applied along the thickness direction of plate specimens to obtain the ultrasonic velocity from the resonance frequency, as well as to obtain the attenuation coefficients from the ringdown curve at resonance. Attenuation was found to exhibit greater sensitivity to damage accumulation than velocity. Approaching rupture, attenuation increased ten-fold the initial value, a phenomenon attributed to microstructural changes, especially to dislocation mobility. This result matches that of TEM micrographic observations on dislocation structure of specimens. This method exhibited a potential to be usable for predicting damage and creeping in metals.

**Keywords:** Creep damage, Electromagnetic acoustic resonance (EMAR), Ultrasonic attenuation, Electromagnetic acoustic transducer (EMAT), Noncontact evaluation, Stainless steel

### 1. 緒言

高温高圧下で使われる火力発電プラント機器の多くは、長期間にわたって運転されており、その重要部材には、30～40年の設計寿命を超えたものもある。過去数年間、新設されたプラントはなく、経年劣化プラントの割合は今後更に多くなると見られる。また多くのプラントは今後更に20～40年使用しようとする意向が強い。このような状況下において、火力発電プラント設備の安全性と信頼性を保ちつつ、機器の長寿命化を図るには、非破壊的に構成材料の健全性・余寿命を評価する技術が必要不可欠である<sup>1～3)</sup>。

火力発電プラントの経年劣化の中でクリープ損傷は重要な問題である。現在、クリープ損傷を評価する方法としてレプリカ法が広く使われている<sup>2)</sup>。この手法は、現場の熟練者の経験的な判断で行われる場合が多く、膨大な時間と労力を要し、限られた範囲の検査にしか適用できないという問題点がある。また、クリープ損傷では運

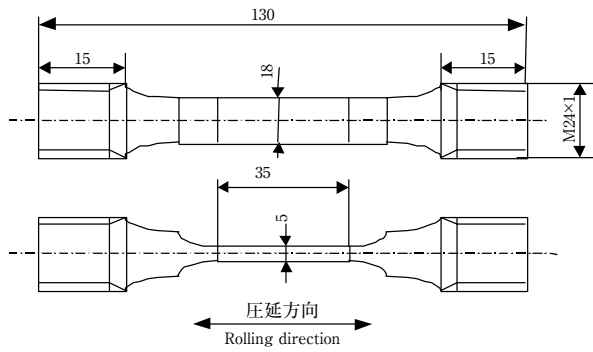
転時間の経過とともに損傷が累積されるが、その損傷は構成材料全体に広がり、必ずしも表面から損傷していくとは限らないという特徴をもつ<sup>4,5)</sup>。そこで、クリープ損傷評価には、材料内部の組織変化が検出可能で、非破壊的に現場で広範囲の計測が容易な検査手法が熱望されている。

本研究では、上述の条件を満足と思われる電磁超音波共鳴法 (EMAR法)<sup>6～7)</sup> を用いて金属材料のクリープ損傷と超音波特性の変化<sup>8)</sup>、特に減衰係数との関係を解明し、EMAR法の実機への適用について議論する。EMAR法は、非接触で超音波を受送信できる電磁超音波探触子 (EMAT)<sup>7)</sup> を共鳴測定に適用した計測手段である。EMAR法による超音波減衰測定では、接触に関わるエネルギー損失がなく、材料の絶対的な超音波減衰係数の測定が可能になった。試験片は、耐熱材料として広く使用されるSUS304ステンレス鋼を用いた。

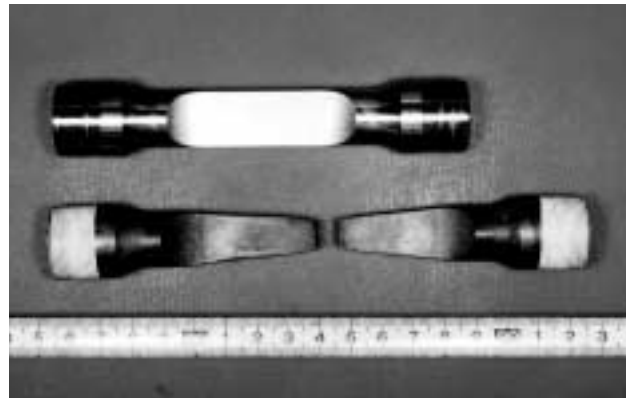
大気中973 Kの温度下で、数種類の単軸荷重を与え、クリープ損傷の進行に伴う超音波特性の変化を調べた。EMATとしては、板材の厚さ方向に横波を送受信する横波用EMATを用いた。また、各応力条件下で2種類のクリープ試験 (中断試験法、連続試験法) を行った。

\* 萩原総合研究所 NDCプロジェクト 工学博士

\*\* 大阪大学大学院 基礎工学研究科 工学博士



(a) 試験片形状  
(a) Shape of specimen



(b) クリープ試験前と破断した試験片  
(b) Specimens before creep and after rupture

図1 試験片形状

Fig. 1 Specimen geometry

これら二つの試験方法を比較するため、クリープ試験中の伸びと時間の関係に基づき、修正 $\theta$ 法<sup>9)</sup>と破断パラメータ $P_a$ <sup>10)</sup>から破断寿命を推定し、試験終了時の寿命消費率を求めた。その結果、寿命消費率と減衰係数の間にはよい相関関係が認められた。更に、光学顕微鏡、走査型及び透過型電子顕微鏡により、内部組織の変化を観察した。その結果、減衰係数は、クリープの進行に伴う転位組織の変化に反応して変化すること、更に、転位振動の弦モデル<sup>11)</sup>により減衰係数と転位組織の関係が対応つけられることが分かった。

## 2. 実験方法

### 2-1 試験片と試験条件

本研究に用いた板材試験片形状を図1に示す。ゲージ部は、板材では幅18 mm、長さ35 mm、厚さ5 mmであり、いずれも圧延方向は長手方向である。素材は市販のオーステナイト系ステンレス鋼SUS304を用いた。室温での機械的性質は、0.2%耐力が249 MPa、引張強さが637 MPa、破断伸びが72.8%であった。

クリープ試験は、縦形単レバー式クリープ試験機と加熱電気炉を用い、大気中973 Kで行った。120 MPaと100 MPaの応力に対して次の二つの負荷方法を用いた。またクリープ試験材と隣接して参照試料を置き、熱だけの影響を調べた。

(1) 中断試験法：1本の試験片に対して、定期的にクリープ試験を中断し、室温で超音波特性を計測した後、試験を再開する。これを破断に至るまで繰り返す。荷重負荷時間は20 h又は100 hとした。

(2) 連続試験法：多数の試験片を用意し、それぞれ

を所定のクリープひずみに至るまでクリープ試験を行い、その後、室温で超音波特性を計測する。

中断試験においては、一本の試験片について超音波特性の変化を観察できるため、実機の定期点検での計測に近い状況である。一方、超音波特性の変化の要因を議論するためには、内部組織の変化を観察する必要があるため、連続試験を行った。

### 2-2 EMARによる超音波特性の測定

トラック状に巻いた平面コイルと一对の永久磁石からなる横波用EMAT<sup>7)</sup>を用いて(図2)、試料表面に垂直に伝ばする横波を送受信した。このEMATを高出力のバースト波信号( $\sim 1000$  V,  $\sim 200$   $\mu$ s)で励起し、測定物に超音波を入射する。入射された超音波は板の両面で反射を繰り返す、入射面に到達する度に、同じ

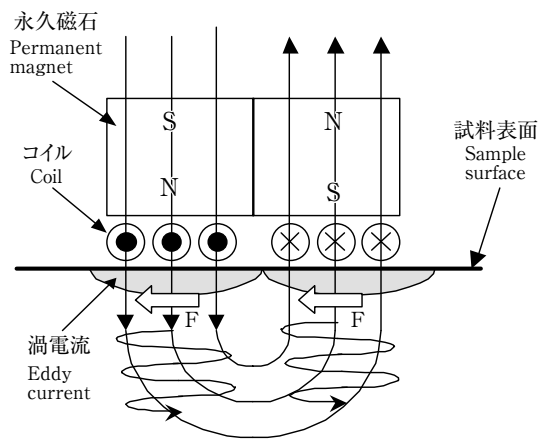


図2 EMATの構造と送受信原理

Fig. 2 Structure and mechanism of EMAT

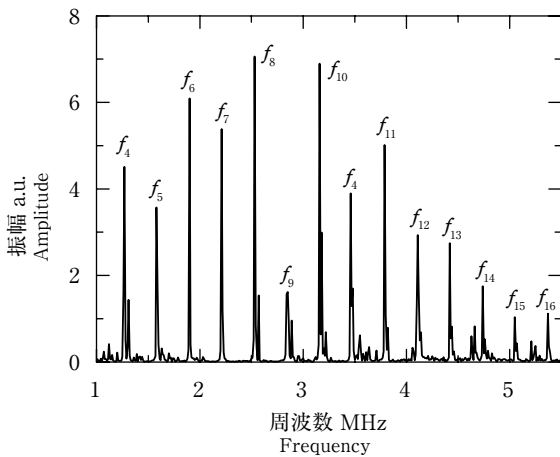


図3 EMATによるSUS304鋼の共鳴スペクトル (板厚5 mm)  
 Fig. 3 Measured resonant spectrum for the stainless steel of 5 mm thick with EMAT

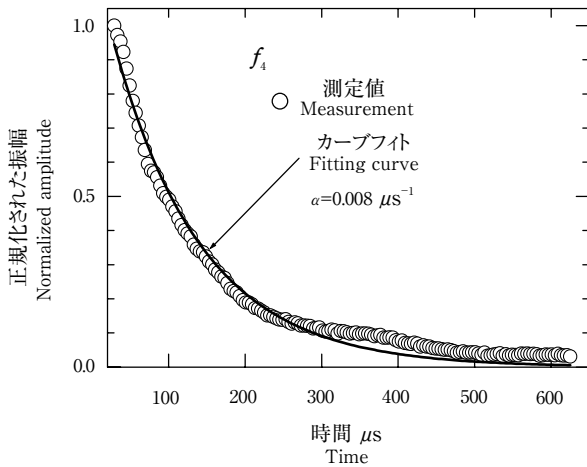


図4 減衰曲線 (図3中の第4次モード $f_4$ )  
 Fig. 4 Measured ringdown curve of the 4th mode in Fig. 3

EMATによって電気信号に変換される。受信信号にはスーパーヘテロダイン処理を行い、入射波と同一周波数成分の振幅を検出している<sup>6)</sup>。

共鳴スペクトルは、送信周波数を掃引しながら、個々の周波数の振幅を検出することによって得られる。板材の場合、 $n$ 次の共鳴周波数 $f_n$ は、

$$f_n = n \cdot c / (2d) \dots \dots \dots (1)$$

で表され、等間隔に現れる。ここで、 $c$ は測定物中での音速、 $d$ は板厚である。図3に測定した共鳴スペクトルの例を示す。減衰係数を求めるには、図3の各ピーク近傍の周波数を掃引し、そのデータをガウス関数で近似しその中心軸から共鳴周波数を求め、その周波数で、共鳴

状態をつくり、図4に示す減衰曲線を得る<sup>7)</sup>。この曲線を指数関数で近似することにより、減衰係数 $\alpha$ を決定する。

### 2-3 組織観察

内部組織変化を考察するため、連続試験法に使った試料について組織観察を行った。試験片をマイクロカッターで切り出した。二つに切り取ったうち、一方は光学顕微鏡(OM)、走査型電子顕微鏡(SEM)観察用で、他方は透過型電子顕微鏡(TEM)観察用に用いた。光学顕微鏡用試験片については400番から2000番までの紙やすりで研磨を行った後、4000番のバフ研磨を行い、表面を鏡面に仕上げた後、化学エッチングを施した。SEM用試験片についても同様の研磨を施した。また、TEM用試験片については機械加工により厚さ200 $\mu$ m程度まで薄くし、電解研磨にて作製した。電解研磨に用いた溶液は10%過塩素酸-エタノールである。観察には日立製H-800透過型電子顕微鏡(加速電圧200 kV)を用いた。これらの組織観察写真をスキャナでコンピュータに取り込み、その後の解析に用いた。

## 3. 測定結果

### 3-1 中断試験法

図5に、クリープ進展に伴う横波の共鳴周波数(1~6 MHz)における減衰係数 $\alpha$ の変化を示す。この結果は、973 K、応力120 MPaに対するものである。破断時間は283 hであった。横波の偏向方向は、荷重と平行である。減衰係数は、周波数依存性を示すとともに、クリープ進

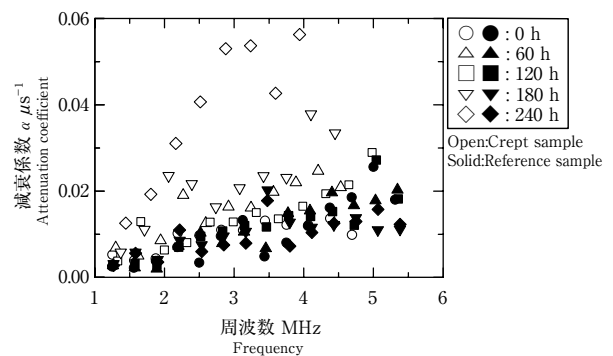


図5 横波の減衰係数の周波数依存性 (偏向方向は応力に平行, 中断試験, 応力120 MPa, 温度973 K)。○印はクリープ試験片, ●は熱履歴だけの試験片の減衰係数

Fig. 5 Frequency dependence of shear-wave attenuation polarized in the stress direction (Interrupted test, 120 MPa, 973 K). Open marks show the attenuations for the crept samples and the solid marks are the plots for the attenuation for the unstressed samples

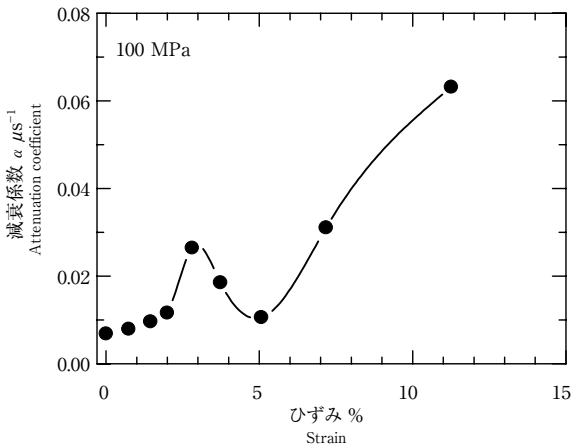


図6 11番目のモードでの減衰係数とクリープひずみの関係（偏向方向は応力方向に平行，中断試験法，応力：100 MPa，温度：973 K）

Fig. 6 Relationship between attenuation coefficients in the 11th mode and creep strain. The polarization is parallel to the stress direction (Interrupted test, 100 MPa, 973 K)

行に伴い、大きく増加している。破断直前では、初期値の10倍以上の値を示すモードもあった。それに比べ、熱処理だけ（図5の●，▲等）では、減衰係数の変化は小さい。

図6に、約3.5 MHz（第11番目のモード）の共鳴周波数での減衰係数とクリープひずみの変化を示す。この結果は、応力100 MPaに対するものである。破断時間は826 hであった。減衰係数は、ひずみが3%までは急激に増加し、その後約5%まで一定又は減少し、その後破断まで増加していく。減衰係数は、クリープひずみに明瞭には依存していない。この変化は他の共鳴周波数でも120 MPaでも同様であった。

図7に、減衰係数 $\alpha$ 、相対音速変化 $\Delta V/V_0$ （ $V_0$ ：初期の音速）、クリープひずみとクリープ時間及び寿命消費率 $t/t_r$ （クリープ時間/破断時間）の関係を示す。共鳴周波数は3.5 MHz近傍で応力は100 MPaである。音速は $t/t_r$ が0.2までは0.5%程度増加し、その後 $\alpha$ が極大を示す $t/t_r=0.5$ まで減少する。その後は破断まで増加し続ける。最大変化量は2%程度である。一方減衰係数は $t/t_r=0.4$ あたりから増加し、 $t/t_r=0.5$ でピークを示し、いったん減少した後、再び $t/t_r=0.7$ あたりから急増した。 $\alpha$ の極大値と音速の最小値が同時期（ $t/t_r=0.5$ ）で起こった。このような $\alpha$ や音速の変化は単調ではないため、クリープ損傷評価には音速と減衰係数を併用することが有効な手段となる。

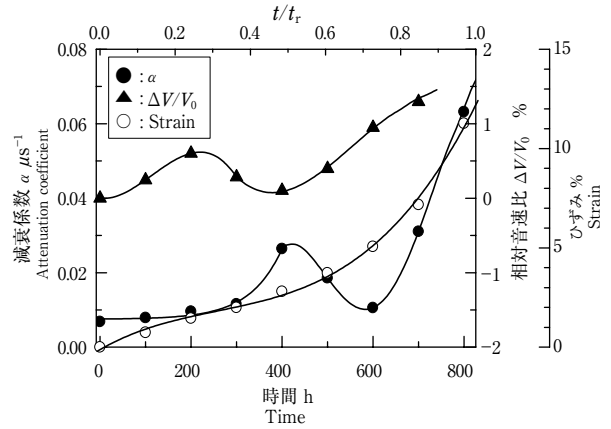


図7 第11番目のモードにおける減衰係数、相対音速比とクリープひずみ変化（偏向方向は応力方向に平行，中断試験法，応力：100 MPa，温度：973 K）

Fig. 7 Attenuation and velocity changes in the 11th resonance mode and creep strain. The polarization is parallel to the stress direction (Interrupted test, 100 MPa, 973 K)

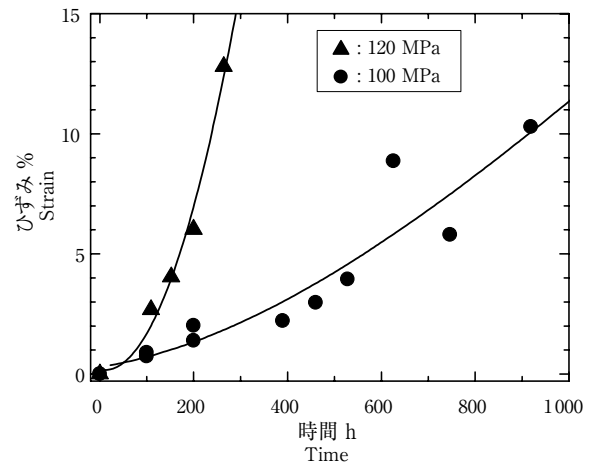


図8 クリープひずみとクリープ時間の関係（連続試験法，応力：100，120 MPa，温度：973 K）

Fig. 8 Creep strain versus time (Continuous test, 120 and 100 MPa, 973 K)

### 3-2 連続試験法

連続試験片法では、4本（120 MPa）、11本（100 MPa）の試験片を用いて、異なるクリープひずみの試験片を作製した。図8に各応力下でのクリープひずみと時間の関係を示す。図8中の個々の点がそれぞれ1本の試験片の値を表わしている。高応力下では、ひずみの累積速度が増加し、早期に破断に近づく。また、中断試験法のクリープ曲線（図7）に比べ、ばらつきが大きいことが分かる。

次に共鳴周波数が3.5 MHz近傍での各減衰係数とクリープひずみの関係を図9に示す。中断試験法の結果と同

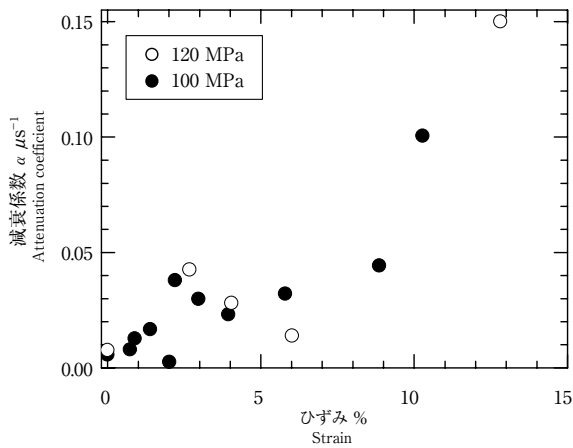


図9 第11番目のモードにおける減衰係数とクリープひずみの関係 (連続試験法, 温度: 923 K 応力: 100, 120 MPa)

Fig. 9 Relationship between the attenuation coefficients in the 11th resonance mode and the creep strain (Continuous test, 120 and 100 MPa, 973 K)

様に、クリープひずみが2%までは、減衰係数はわずかに増加し、その後は減少し、破断に近づくに従って増加する傾向がある。この傾向はほかの周波数でも同様であった。

以上から、両試験法においてクリープひずみと減衰係数に同じ相関関係があることが分かった。個々の試験片の破断時間や破断ひずみが等しいなら、これを寿命評価に役立てることが可能であるが、これらは、個々の試験片や応力で異なる。そこで、それぞれの試験片のクリープ曲線から推定寿命消費率を求め、減衰係数と対比した。推定寿命消費率  $t/t_r$  は、丸山らが提案した改良θ法<sup>9)</sup>と破断パラメータ  $P_\alpha$ <sup>10)</sup>を用いて、推定破断時間  $t_r$  を求め、実際のクリープ時間  $t$  を除して  $t/t_r$  を求めた。

ここでは、改良θ法<sup>9)</sup>と破断パラメータ  $P_\alpha$ <sup>10)</sup>について簡単に説明をする。改良θ法はクリープ曲線を数式で近似することにより寿命を推定する方法である。改良θ法では、式(2)に示すように、クリープ曲線を近似する。

$$\varepsilon = \varepsilon_0 + A \{1 - \exp(-\alpha t)\} + B \{\exp(\alpha t) - 1\} \dots\dots\dots (2)$$

ここで、第一項は初期ひずみ、第二項は一次クリープ、第三項は三次クリープをそれぞれ表す。改良θ法では破断近傍(寿命の90%付近)のデータで十分である。改良θ法を用いるにあたって、初期ひずみの項を取り除くことで、三つのパラメータ ( $A, B, \alpha$ ) で表すことができる。 $A$ は加工硬化のパラメータであり、加工硬化が激しいほど減少する。 $B$ は弱化に関するパラメータであり、 $B$ が低下すると三次クリープの出現が遅れ一次クリープ

域でのひずみ速度低下が顕在化する。組織が安定であるほど  $B$ は低下し、見かけ上の定常状態が現れやすくなる。クリープ曲線から連続試験法の試験片の推定破断時間  $t_r$  を求める手順を以下に示す。

(1) 数本の試験片を用いて異なる応力下で破断するまでクリープ試験を行う。

(2) (1)のデータを式(2)で最小自乗近似することによりパラメータ  $A, B, \alpha$  を決める。

(3) 式(4)で表される破断パラメータ  $P_\alpha$  を求める。ここで  $\varepsilon_r$  は破断ひずみを表す。このパラメータを使うのは最小自乗曲線とデータとの破断前付近に生じているずれを補正するためである。

$$P_\alpha = \frac{1}{\alpha} \ln \frac{\varepsilon_r - \varepsilon_0 - A}{B} \dots\dots\dots (3)$$

(4) 破断パラメータ  $P_\alpha$  と(1)で得た破断時間  $t_r$  を用いて  $C_\alpha$  と  $q$  を決定する。

$$t_r = C_\alpha P_\alpha^q \dots\dots\dots (4)$$

(5) 他の試験片に対しても同様に、式(2)をクリープ曲線にフィティングし、パラメータ  $A, B, \alpha$  及び破断パラメータ  $P_\alpha$  を求める。この破断パラメータを求めるには破断ひずみ  $\varepsilon_r$  を定めることが必要である。今回、破断試験片の破断ひずみが約30%であり、破断近傍ではひずみ速度が急激に大きくなることを考慮し、すべての試験片においてひずみが25%で破断するものと仮定した。破断ひずみ  $\varepsilon_r$  が多少ずれても、これは式(3)で対数項に含まれるため破断パラメータ、つまり推定破断時間に与える影響は小さい。

(6) 求められた破断パラメータと既に破断試験片について(4)で求めておいた  $C_\alpha$  と  $q$  を用いて式(4)から各試験片の推定破断時間  $t_r$  を求める。各試験片のクリープ時間  $t$  を推定破断時間  $t_r$  で割った値が推定寿命消費率  $t/t_r$  である。

図10には、前記手法から求めた  $t/t_r$  とクリープひずみの関係を示す。二つの応力下でのクリープひずみ変化が、1本の曲線で整理され、 $t/t_r$  とクリープひずみは良い相関関係があることが分かる。次に、 $t/t_r$  と  $\alpha$  の関係を図11に示す。 $\alpha$  は初期にはほとんど変化はないが、 $t/t_r$  が0.2付近から0.4付近まで急増した後、0.6付近まで低下する。その後再び増加する。図7と比較するとほぼ同様の傾向を示していることが分かる。

図12には、減衰係数、相対音速変化、クリープひずみと推定寿命消費率の関係を示す。中断試験法に対する

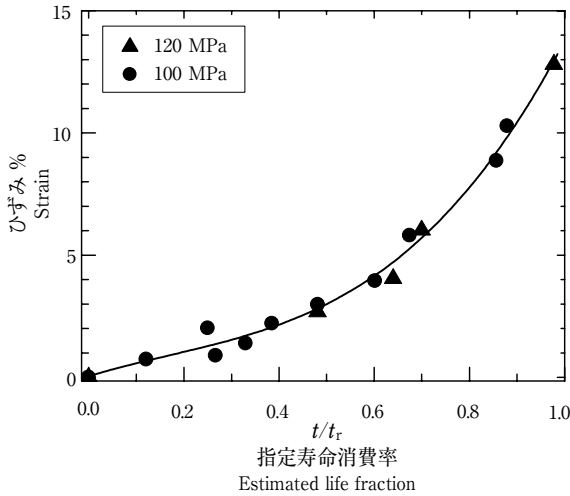


図10 クリープひずみと推定寿命消費率の関係 (連続試験法, 応力: 100, 120 MPa, 温度: 973 K)

Fig. 10 Creep strain versus the estimated life fraction (Continuous test, 120 and 100 MPa, 973 K)

図7と同様に共鳴周波数が3.5 MHz近くで応力が100 MPaの結果である。図7の中断試験法の結果と同じ傾向である。このことは試験法 (中断, 連続) による組織変化の違いが少ないことを示している。したがって, 連続試験法で得た試験片の内部組織を観察することで, クリープ進行に伴う超音波特性変化の要因を知ることができる。

#### 4. 考察

クリープ損傷に伴う様々な金属微視組織の変化の中から, 減衰係数に影響を及ぼす因子として

- 1) 結晶粒界による散乱
- 2) 析出物, ボイドによる散乱
- 3) 転位による吸収

を取り上げ, それぞれについて検討を行った。

##### 4-1 結晶粒界による散乱

結晶粒界からの散乱について考える。 $t/t_r=0.38$ の試料の光学顕微鏡による組織写真を図13に示す。応力方向は写真の長手方向である。粒界に析出物が見られる。これらの組織写真をコンピュータに取り込み, 個々の結晶粒の面積を計算し, 結晶粒が球状であると仮定して, 平均結晶粒径を求めた。その結果クリープ進行とともに結晶粒径は増加していき, 末期には初期値の2倍近くになった。結晶粒径が, 超音波の波長に比べて十分小さい場合, 粒界での散乱による減衰  $\alpha_s$  は式(5)で表される<sup>12)</sup>。

$$\alpha_s = Sd^3f^4 \dots \dots \dots (5)$$

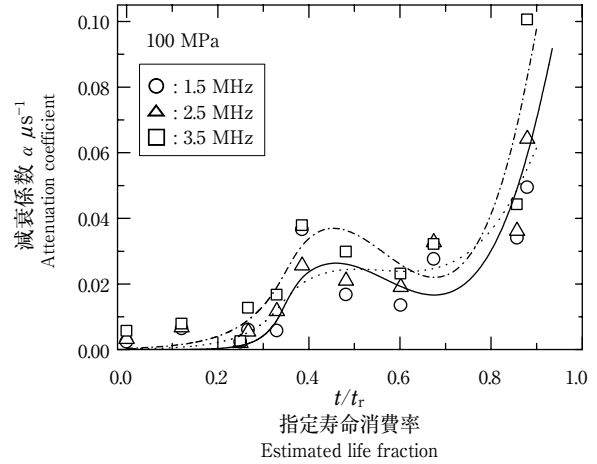


図11 第5, 8, 11次モードの減衰係数と推定寿命消費率の関係 (連続試験法, 応力: 100 MPa, 温度: 973K)

Fig. 11 Relationship between the attenuation coefficients of the 5th, 8th and 11th resonant modes and the estimated life fraction (Continuous test, 100 MPa, 973 K)

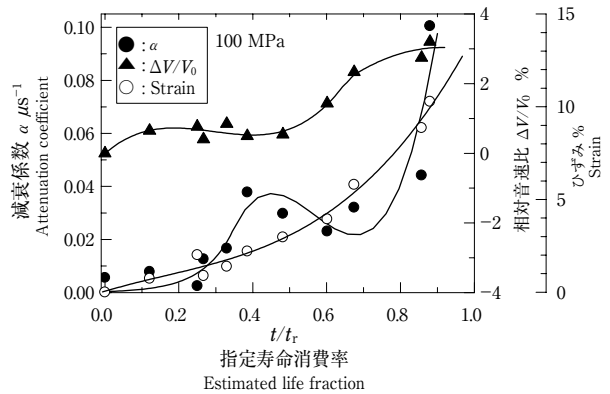


図12 第11次モードの減衰係数, 相対音速比とクリープひずみと推定寿命消費率の関係 (連続試験法, 応力: 100 MPa, 温度: 973 K)

Fig. 12 Attenuation and velocity changes in the 11th resonance mode and creep strain versus estimated life fraction. The polarization of shear-wave is parallel to the stress direction (Continuous test, 100 MPa, 973 K)

ここで,  $S$ は散乱因子と呼ばれる定数,  $d$ は平均結晶粒径,  $f$ は周波数である。ほぼ弾性定数の等しい炭素鋼に対する  $S=2.25 \times 10^{-10} \mu s^3/\mu m^3$ <sup>13)</sup>を用いると, 上記粒径変化による  $\alpha_s$  の変化は  $2.72 \times 10^{-3} \mu s^{-1}$  ( $f=3.5$  MHz)にとどまる。また, 結晶粒径は単調に増加していることから,  $t/t_r=0.6$ 付近での  $\alpha$  の減少は, 粒界散乱では説明できない。

##### 4-2 析出物, ボイドによる散乱

SEM観察の結果, 析出物は  $t/t_r \geq 0.25$ , ボイドは  $t/t_r \geq 0.4$ で粒界に現れ, それぞれの数密度は破断まで,



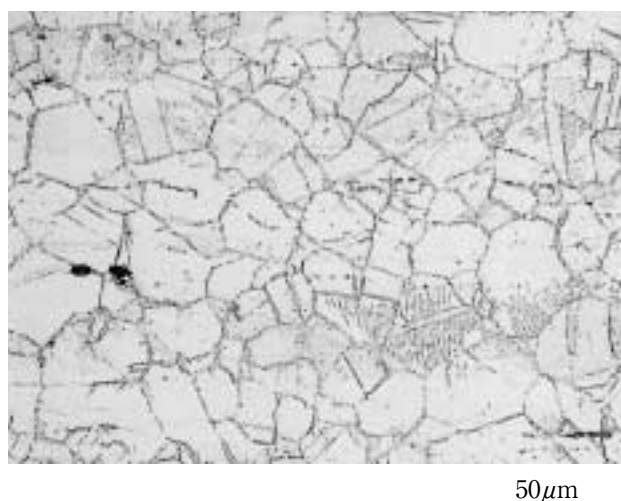


図13  $t/t_r=0.38$ における光学顕微鏡による組織観察（連続試験法、応力：100 MPa、温度：973 K）

Fig. 13 OM micrograph of the crept specimen at  $t/t_r=0.38$  (Continuous test, 100 MPa, 973 K)

わずかに増加していった。析出物及びボイドの大きさはともに平均で2  $\mu\text{m}$ 程度であった。これは観察している超音波の波長 (>0.5 mm) より十分小さく、Rayleigh 散乱領域を考える必要がある。このとき、減衰係数  $\alpha_s$  は式(6)で表わされる<sup>12)</sup>。

$$\alpha_s = n\gamma/2 \sim Ca^2(ka)^4 \quad (ka \ll 1) \dots\dots\dots (6)$$

ここで、 $n$ は散乱体の体積密度、 $\gamma$ は散乱断面積、 $k$ は超音波の波数、 $a$ は散乱体の半径、そして $C$ は散乱体の体積密度と性状（析出物あるいはボイド）から決まる定数である。析出物やボイドによる散乱に起因する減衰係数は、式(6)や組織観察から単調に増加すると考えられるが、これはやはり  $\alpha$  の変化を説明できない。また、SEM観察の結果をもとに式(6)から実際に  $\alpha_s$  を計算したところ、実測値の1%にも達しない。したがって、析出物やボイドによる散乱は本測定 of  $\alpha$  の変化に関与しないと結論できる。以上から、 $\alpha$  は転位による吸収を反映していると考えられる。

#### 4-3 転位による吸収

転位まわりには高い応力場が存在する。超音波に伴う応力によって、転位がすべり面上で移動すると、応力場の急激な移動が起こり、これを妨げようと熱弾性効果により発熱が生じる。これは不可逆過程であり、この過程において超音波のエネルギーの一部が転位の移動に費やされる。GranatoとLückeは、このような転位の振動を、粘弾性体中の弦の振動としてモデル化し<sup>11)</sup>、減衰係数  $\alpha$  と転位密度  $\Lambda$ 、転位長さ  $L$  の関係を以下のように導いた。

$$\alpha = A_1 f^2 \Lambda L^4 \dots\dots\dots (7)$$

ここで、 $A_1$ は正の定数であり、剛性率、ポアソン比、転位運動の比粘弾性係数、バーガースベクトルに依存する。 $f$ は周波数である。このモデルによると、減衰係数は転位密度  $\Lambda$  に比例し、転位の平均長さ  $L$  の4乗に比例する。ただし、注意すべきことは、式(7)がすべての転位を対象としているわけではなく、超音波のような低応力波に対しても振動できる可動転位だけを対象にしていることである。したがって、結晶粒界に拘束されている転位などは、 $\alpha$  に貢献できない。

転位長さと超音波の波長との間には $10^4$ 程度の相違があり、直接一本の転位を超音波によって検出することはできない。しかし、転位は金属内に大量に存在するため、それらの構造変化が超音波の伝ば領域全体にわたって起こった場合、式(7)により可動転位の平均の密度と長さを評価することが可能である。実際、電磁超音波共鳴で測定した減衰係数は、多結晶の純銅<sup>14)</sup> や純アルミニウム<sup>15)</sup> の弾性変形に伴って敏感に変化し、それにより金属内で起こる転位構造の変化を説明できることが明らかとなっている。金属のクリープ変形においても、転位組織に大きな変化が生じることから本研究の減衰係数の変化がこれを反映していることは十分に考えられる。

そこで、TEMにより転位組織の変化を観察した。観察例を図14に示す。図14(a)はクリープ前の状態を、図14(b)~(d)は、それぞれ $t/t_r=0.38, 0.67, 0.98$ 付近の組織を示す。クリープ前の組織では、もつれ合った転位も見られるが、比較的一様に分布した多数の転位が観察された。また双晶も見られた。図14(b)は、図12において  $\alpha$  が極大値を示した試料の組織である。絡み合った転位網が多く観察され、サブグレインの形成がこの段階から見られた。サブグレイン内では、両端が拘束されていない孤立した転位の密度が高かった。図14(c)では、規則的なサブグレインの形成が認められ、それに伴いサブグレイン内の転位密度は減少した。図14(d)の破断直前の組織においては、サブグレインは微細化され、更にサブグレイン内の転位密度は再び増加していた。

図15は、TEM観察で得た多数の組織写真をデジタル化してコンピュータに取り込み、転位密度と転位の平均長さを測定した結果である。対象とした転位は、粒界やサブバウンダリーにたい積した転位ではなく、サブグレイン内に存在した両端が拘束されていない孤立した転位だけである。なぜならば、上述したように孤立した転位こそが減衰変化の主要因となり得るからである。これら

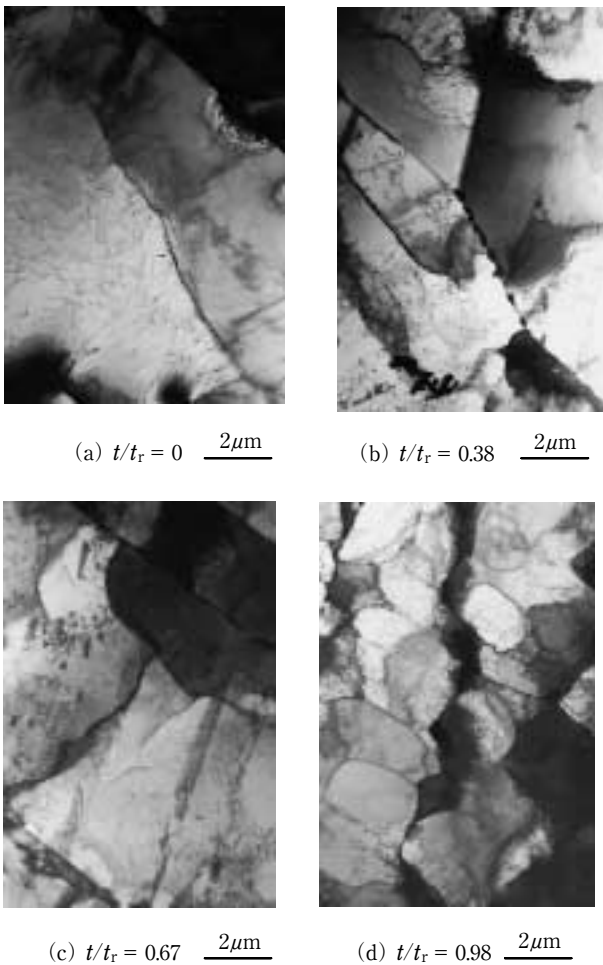


図14  $t/t_r=0, 0.38, 0.67$  と  $0.98$  における TEM による組織観察 (連続試験法, 応力 100 MPa, 973 K)  
 Fig. 14 TEM micrographs of crept specimens at  $t/t_r=0, 0.38, 0.67$  and  $0.98$  (Continuous test, 100 MPa, 973 K)

の転位密度と平均長さを  $\Lambda_1$  と  $L_1$  と書くことにする。クリープの進行に伴って、 $\Lambda_1$  は  $t/t_r=0.35$  までわずかに増加し、 $t/t_r=0.40$  で極大値を示した後、 $t/t_r=0.50$  までは減少し、そして再び破断まで増加していく。 $L_1$  も  $\Lambda_1$  と同様な変化を示した。これら TEM による直接観察から得た  $\Lambda_1$  と  $L_1$  を用いて、式(7)から減衰係数の変化を算出した。結果を測定結果 (●印) とともに図16に示す。ただし、定数  $A_1$  はクリープ前の試料に対して、実験値と計算値が一致するように決定した。図16の計算値を実測値と比較するためには、 $\Lambda_1 \propto \Lambda$ 、 $L_1 \propto L$  という仮定が必要である。つまり、式(7)中の  $\Lambda$  と  $L$  は、超音波の微小振幅においても可動な転位に対するものであり、TEM 観察によって得た  $\Lambda_1$  と  $L_1$  には一致しない。すなわち、TEM で観察された孤立転位が実際に超音波により振動できる転位であるかどうかを知る方法はなく、また孤立転位の転位線上には一般に点欠陥が吸着・釘付けし

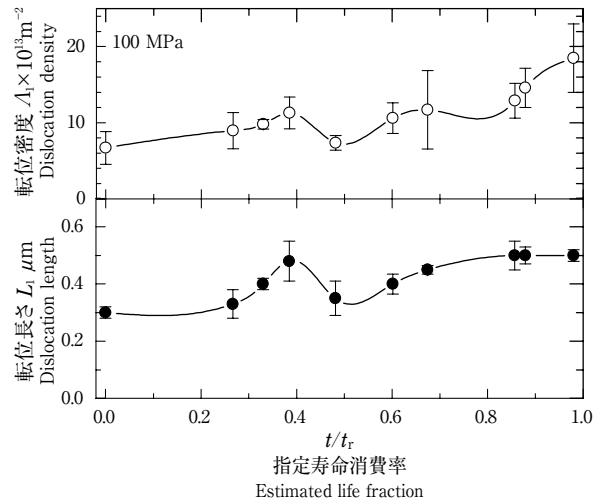


図15 クリープ進行に伴う転位密度と長さの変化 (連続試験法, 100 MPa, 973 K)  
 Fig. 15 Change in the dislocation density and length as creep progresses (Continuous test, 100 MPa, 973 K)

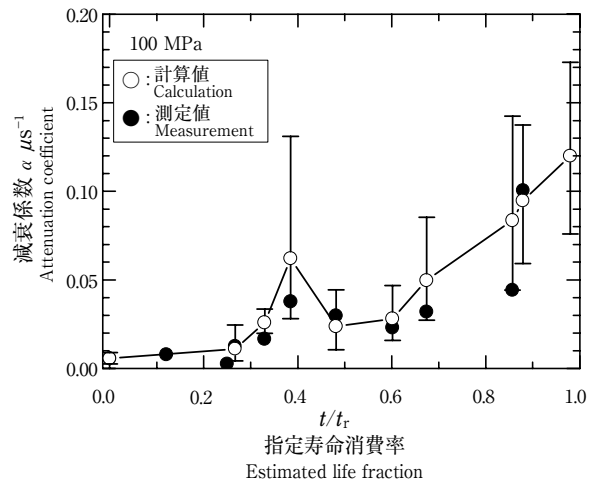


図16 減衰係数の計算値と測定値の比較 (連続試験法, 応力: 100 MPa, 温度: 973 K, 第11番目の共鳴モード)  
 Fig. 16 Comparison between calculated and measured  $\alpha$  (Continuous test, 100 MPa, 973 K)

ている。超音波によって振動できる転位長さ  $L$  は隣り合う点欠陥の距離に相当し、孤立転位の全体の長さ  $L_1$  よりも小さいからである。しかし、たい積していない孤立転位であれば、超音波によって振動しない理由はなく、また、転位を釘点欠陥同士の相互作用を考えると、長い転位線ほど隣り合う点欠陥の距離が広がると考えられる。実際、図16の測定値と計算値は良い一致を示しており、これらの仮定の妥当性を示すとともに、減衰係数変化の主要因が転位の振動によるエネルギー吸収であることを強く裏付ける結果である。式(7)の周波数依存性



に関しても図11で認められ、転位振動が主因であることを支持している。

超音波による転位の運動は、局所的な弾性率の低下をもたらす、音速の減少につながる。GranatoとLückeは減衰係数と同様に音速に対しても検討し、以下の式を導いた。

$$\Delta V/V_0 = -A_2 \Delta L_2 \dots\dots\dots (8)$$

ここで $A_2$ は正の定数である。転位密度と転位線長さの増加は音速の減少をまねく。図12において、減衰係数が極大値を示す点で音速が極小値を示していることは、このモデルから理解できる。ただし、クリープ進行に伴って、母材から不純物が析出物していき、母材内での原子間結合力が強まると考えられ、この効果は弾性率を単調に増加させ、音速の単調増加をもたらす。したがって、図12の音速の変化には、転位組織変化の影響と母材の弾性率変化の影響が含まれている。

以上の考察から、本研究で観測された減衰係数の変化が転位構造の変化に起因することが明らかとなった。図14で示した転位構造の変化や図15の孤立転位の密度変化は、Fe-3% Si合金<sup>16, 17)</sup>やCu-Al合金<sup>18)</sup>においても同様の組織変化が報告されており、以下のように理解されている<sup>19~21)</sup>。クリープ試験開始とともに転位密度は増加し、クリープ変形が進行する。その後、増殖した転位が絡み合い、サブグレインの形成が始まる。その後も変形は継続するため、全体の転位密度は増加してゆくが、生成された転位は主にサブグレインの形成に費やされる。サブグレインの数は増すが、内部の孤立した転位の密度はサブグレイン境界に吸収されて低下する。しかし、変形が次第に加速すると、増殖した転位の量がサブグレインの形成に費やされる量を上回り、孤立転位の数が増加する。最終的には、サブグレインや結晶粒界、析出物に過度にたい積した転位からき裂やボイドが生じて破断に至る。本研究においても同様の組織変化が生じたことが考えられ、 $t/t_c = 0.4$ 付近で現れた減衰係数のピークは、増殖した転位が絡み合いサブグレインの形成が始まった段階に対応すると考えられる。このように、電磁超音波共鳴法はクリープ進行に伴う内部組織変化、特に粒内の転位組織をとらえることができ、損傷評価に有効であると考えられる。

#### 4. 結 言

オーステナイト系ステンレス鋼SUS304のクリープの進行に伴う微視的組織の変化を電磁超音波共鳴法による

減衰係数と音速の変化から評価した。以下のことが明らかになった。

(1) 電磁超音波共鳴法は、クリープ損傷の評価と寿命予測を行える可能性をもっている。

(2) 超音波減衰は、クリープひずみや時間より寿命消費率と良い相関関係をもつ。

(3) 超音波減衰は、クリープ損傷過程に対して敏感であり、その変化は結晶粒界、炭化物やボイドの散乱効果よりも転位による吸収効果に支配される。

(4) 弦モデルにより、超音波減衰と転位組織の変化を対応つけられる。

(5) 減衰係数と音速の両方をモニタリングすることで、より精度の高い寿命評価が可能になる。

#### 参 考 文 献

- 1) 構造材料の信頼性評価技術委員会、構造材料の寿命・余寿命評価のための計測技術に関する調査、日本鉄鋼協会 (1983)
- 2) 日本鉄鋼協会特定基礎研究会、耐熱鋼の高温クリープ及びクリープ疲労損傷材のレプリカ法による非破壊的損傷量/寿命評価、日本鉄鋼協会 (1991)
- 3) 大友暁, 木原重光, 北川正樹, 明石正恒: プラント機器の損傷評価と余寿命予測技術・例, 応用技術出版 (1992)
- 4) 川上敏幸, 押川辰也, 渡邊肇, 福嶋一夫, 仲庭正義, 日本機械学会, 平成4年度材料力学部門講演論文集, (1993-10), 508-509
- 5) 吉川州彦, 福嶋一夫, 機講論, No. 964-1 (1996-3), 94-95
- 6) M. Hirao, H. Ogi, and H. Fukuoka, Rev. Sci. Instrum., 64 (1993), 3198-3205
- 7) M. Hirao, and H. Ogi, Ultrasonics, 35 (1997), 413-421
- 8) 大谷俊博, 荻博次, 平尾雅彦, 日本機械学会論文集 A, 67 (2001), 454-461
- 9) 丸山公一, 原田千里, 及川洪, 材料, 34 (1985), 1289-1295
- 10) K. Maruyama, and H. Oikawa, Trans. ASME, J. Pressure Vessel Technol., 109 (1987) 142-148
- 11) A. Granato, and K. Lücke, J. Appl. Phys., 27 (1956), 583-593
- 12) K. Goebbels, Res. Techn. NDT, Vol. 4, (R.S. Sharpe編), Academic Press, London (1980), 87-157
- 13) H. Ogi, M. Hirao, and T. Honda, J. Acoust. Soc. Am., 98 (1995), 458-463
- 14) H. Ogi, N. Suzuki, and M. Hirao, Metal. and Mater. Trans. A., 29A (1998), 2987-2993
- 15) H. Ogi, A. Tsujimoto, M. Hirao, and H. Ledbetter, Acta Materialia, 47 (1999), 3745-3751
- 16) C.R. Barrett, W.D. Nix, and O.D. Sherby, Trans. ASM., 59, (1966), 3-15
- 17) A. Orlova, and J. Cadec, Phil. Mag., 28, (197), 891-899
- 18) T. Hasegawa, Y. Ikeuchi, and S. Karashima, Metal Sci. J., 6 (1972), 78-82.
- 19) 岡崎正和, 橋本昌光, 佐多隆, 材料, 41 (1992), 1729-1735
- 20) 辛島誠一, 鉄と鋼, 65 (1974), 820-830
- 21) J. Cadec, Creep in Metallic Materials, Elsevier (1988), 95-114