

# 電磁超音波共鳴法によるNi基超耐熱合金のクリープ損傷評価

大谷俊博\* 萩博次\*\* 平尾雅彦\*\*

## Assessment of Creep Damage in a Nickel-based Super-alloy by Electromagnetic Acoustic Resonance

by Toshihiro OHTANI, Hirotsugu OGI, & Masahiko HIRAO

The microstructural evolution of Waspaloy, a nickel-based super-alloy, was studied using EMAR (Electromagnetic Acoustic Resonance). The Waspaloy was subjected to tensile creep at 1073 K and shear-wave attenuation and velocity was monitored by EMAR. Taken into account was the observation that contact-less transduction based on the Lorenz force mechanism was the key to establishing the monitoring of microstructural changes in the bulk of highly sensitive metals. A clear relationship was found between attenuation and life fraction. In the interval, 35% to 40% of the creep life, attenuation reached a peak, independent of applying stress. This novel phenomenon was interpreted as being a drastic change in dislocation mobility and the coarsening of  $\gamma'$ -precipitates. This was supported by SEM and TEM observations. During the occurrence of this phenomenon, dense dislocations started to tangle to  $\gamma'$ -precipitates, with the coarsening and condensation of  $\gamma'$ -precipitates becoming saturated. It was thus established that it was possible to use this EMAR assessment method to assess the progress of damage in metals and predict their remaining creep life.

**Keywords:** Creep damage, Ni-base superalloy, EMAT, Ultrasonic attenuation, Non-contact evaluation, Dislocation

## 1. 緒言

火力発電プラントの構成材料の経年劣化においてクリープ損傷は重要な問題である<sup>1~3)</sup>。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>。しかし、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>4~6)</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、前述の条件を満足すると思われる電磁超音波共鳴法 (EMAR法)<sup>7~9)</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、特に減衰係数との関係を解明し、EMAR法の実機への適用性について議論する<sup>10, 11)</sup>。

EMAR法は、非接触で超音波を送受信できる電磁超音波探触子 (EMAT) 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、接触にかか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である。試験片には、ジェットエンジンやガスタービンの部材として良く使われるNi基耐熱合金ワスパロイを用いた。大気中、数種類の単軸応力を負荷し、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受送信する横波EMAT<sup>7~9)</sup>を用いた。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>12)</sup>と破断パラメータ $P_a$ <sup>13)</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。また、減衰係数はクリープ寿命の35~40%の間でピークを示した。これは負荷応力に依存していなかった。光学顕微鏡、走査型及び透過型電子顕微鏡による内部組織観察から、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が分かった。

\* 荏原総合研究所 材料研究室 工学博士

\*\* 大阪大学大学院 基礎工学研究科 工学博士

## 2. 実験方法

### 2-1 試験片と試験条件

本研究に用いた試験片の形状を図1に示す。幅18 mm、長さ35 mm、厚さ5 mmであり、いずれも引抜き方向は、長手方向である。素材は市販のNi基耐熱合金ワスパロイを用いた。熱処理方法は、溶体化：1313 K、1時間保持後水冷、安定化：1118 K、4時間保持後空冷、時効：1033 K、16時間保持後空冷を行った。化学成分を表に、室温及び1073 Kにおける機械的性質は、0.2%耐力が996 MPa、689 MPa、引張強さが1400 MPa、772 MPa、破断伸びが22.3%、22.4%であった。

#### (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、室温にて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。応力は160 MPa、150 MPaと140 MPaを用いた。

#### (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、室温において超音波特性を計測する。応力は140 MPaとした。

中断試験においては、1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

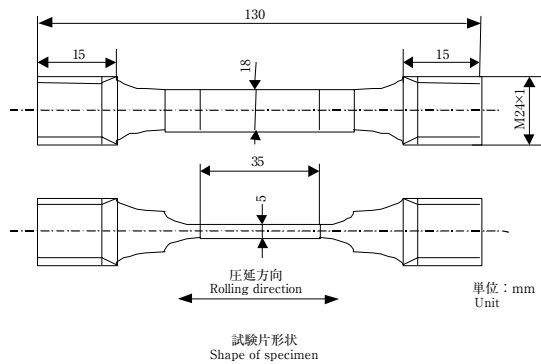


図1 試験片形状  
Fig. 1 Specimen geometry

表 ワスパロイの化学成分  
Table Chemical composition of Waspaloy

単位 Unit : wt%							
C	Si	Mn	P	S	Cu	Ni	Cr
0.07	0.04	0.01	0.004	0.001	0.02	BAL	19.59
Mo	Ti	Al	Fe	Co	Zr	B	
4.14	2.92	1.33	0.58	13.17	0.05	0.004	

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、内部組織の変化を組織観察する必要があるため、連続試験も必要であった。

### 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対の永久磁石からなる横波用EMAT<sup>7~9)</sup>を用いて(図2)、試料表面に垂直に伝搬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(〜1000 V、〜200 μs)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し、入射面に到達する度に、同じ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>14)</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

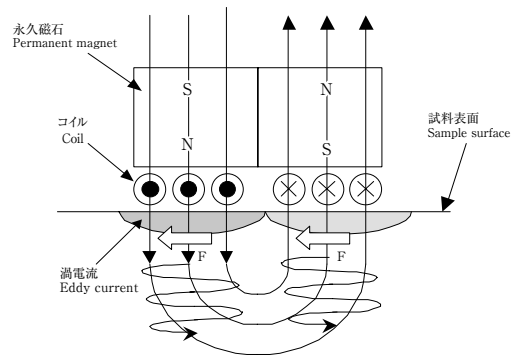


図2 EMATの構造と送受信原理  
Fig. 2 Structure and mechanism of EMAT

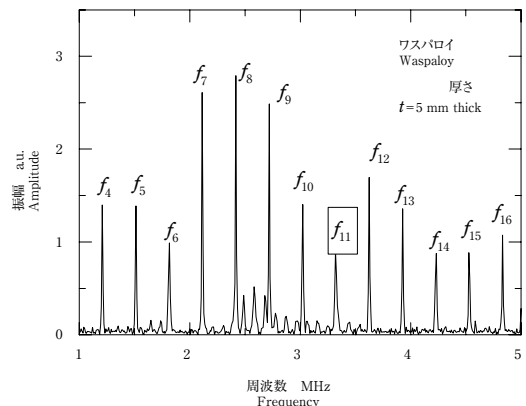


図3 EMARによるワスパロイの共鳴スペクトル(板厚5 mm)  
Fig. 3 Measured resonant spectrum for 5 mm thick Waspaloy with EMAR

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>15)</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

光学顕微鏡 (OM), 走査型電子顕微鏡 (SEM), 透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いて組織観察を行った。TEM用試料はワイヤークットにより厚さ200  $\mu\text{m}$  程度まで薄く切り出した後、電解研磨によって作製した。電解

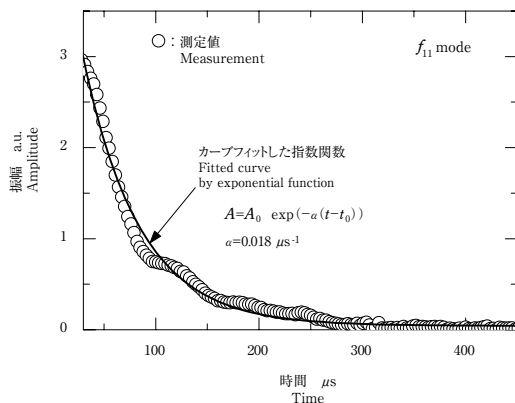


図4 減衰曲線 (図3中の第11次モード  $f_{11}$ )

Fig. 4 Measured ringdown curve of 11th mode shown in Fig. 3

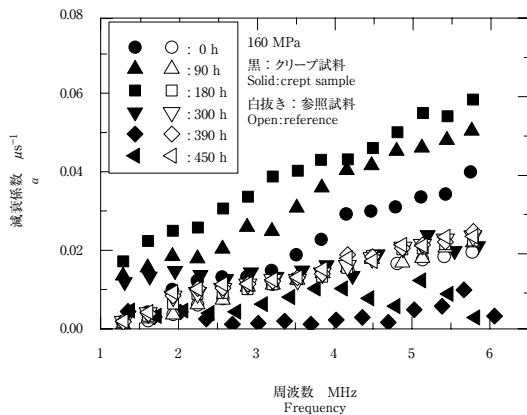


図5 横波の減衰係数の周波数依存性(偏向方向は応力に平行, 中断試験, 応力160 MPa, 温度1073 K) ●印はクリープ試験片, ○は熱履歴だけの試験片の減衰係数, 破断寿命は480.9時間

Fig. 5 Frequency dependence of the shear-wave attenuation polarized in the stress direction (Interrupted sample test, 160 MPa, 1073 K). Solid marks show the attenuations for crept samples and the open marks are the plots for the attenuation for unstressed samples. Rupture time  $t_r=480.9$  hr.

研磨に用いた溶液は10%過塩素酸-エタノールである。観察には日立製作所製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. 結果

### 3-1 中断試験法

クリープ試験片に140 MPa, 150 MPaと160 MPaの応力を負荷した。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、1073 K, 応力160 MPaでクリープ試験をしたものである。破断時間は480.9 hであった。横波の偏向方向は、荷重方向と平行である。また、参照試験片での減衰係数の変化も示している。減衰係数は周波数依存性を示すとともに、クリープ開始から180 hまで増加し、その後減少している。それに対し、参照試験片では減衰係数の変化は小さい。

図6に、約4.5 MHz(第14次共鳴モード)の共鳴周波数での減衰係数とクリープひずみの関係を示す。この結果は、応力140 MPa, 150 MPa, 160 MPaに対するものである。140 MPaに対応する破断時間は1024.5 hであり、150 MPaでは518.9 h, 160 MPaでは480.9 hであった。減衰係数は、クリープ試験開始からひずみが2%~3%までは急激に増加し、ピークを示した後、ひずみが約5~7%になるまで急激に減少する、その後は破断までほぼ一定である。

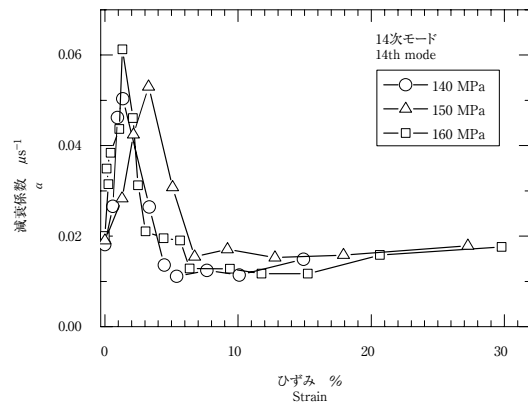


図6 異なる応力下における共鳴周波数での減衰係数とクリープひずみの関係(偏向方向は応力方向に平行, 中断試験法, 共鳴モード: 14次, 応力: 140 MPa, 150 MPaと160 MPa, 温度: 1073 K) 破断時間は140 MPaで1024.5 h, 150 MPaで518.9 h, 160 MPaで480.9 h

Fig. 6 The relationship between the creep strain and the attenuation coefficients for 160, 150 and 140 MPa at the 11th resonant mode in interrupted test. The rupture lives are 480.9 h for 160 MPa, 518.9 h for 150 MPa and 1024.5 h for 140MPa.

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同様であった。

図7には、減衰係数 $\alpha$ 、相対音速比 $\Delta V/V_0$  ( $V_0$ :初期の音速)、クリープひずみと寿命消費率 $t/t_r$  (クリープ時間/破断時間)との関係を示す。共鳴周波数は3.5 MHz近傍(第11共鳴モード)で応力は140 MPaである。減衰係数は、クリープ開始から増加し、 $t/t_r = 0.4$ でピークを示す。その後 $t/t_r = 0.5$ まで減少し、破断まではほぼ一定になる。一方、音速は $t/t_r = 0.2$ までは0.4%程度増加し、その後 $\alpha$ が極大を示す $t/t_r = 0.5$ で減少し、その後はほとんど変化せず、破断直前で減少する。最大変化量は3%程度である。 $\alpha$ の極大値と音速の最大値が同時期( $t/t_r = 0.4$ )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。この変化は他の応力や他の共鳴周波数でも同様であった。

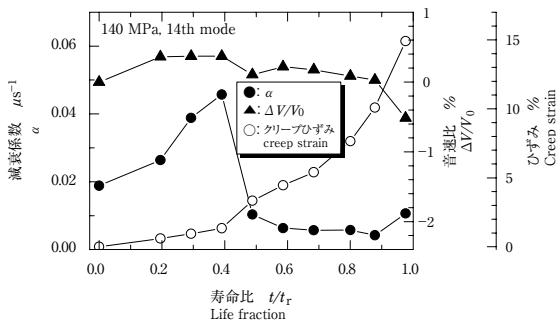


図7 第14次の共鳴モードにおける減衰係数、相対音速比とクリープひずみ変化(偏向方向は応力方向に平行、中断試験法、応力: 140 MPa、温度: 1073 K)

Fig. 7 The relationship between  $\alpha$ ,  $\Delta V/V_0$ , creep strain, and the life fraction,  $t/t_r$ , at the 11th resonant mode under 140 MPa in interrupted test.

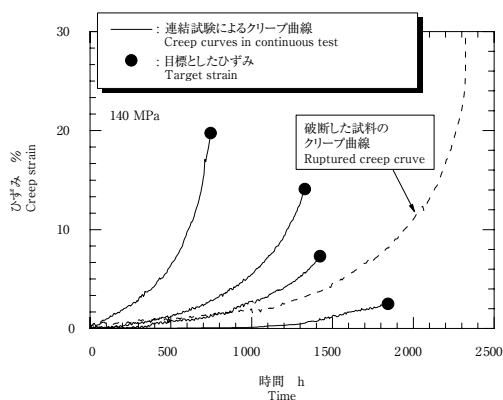


図8 クリープ曲線(連続試験法、応力: 140 MPa、温度: 1073 K)  
Fig. 8 The creep curves in continuous test (140 MPa, 1073 K)

### 3-2 連続試験法

クリープ試験片に140 MPaの応力を負荷した。12本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には140 MPa負荷時の所定のクリープひずみに達するまでのクリープ曲線を示す。参照として破断まで至った試料のクリープ曲線も示した。同一試験条件にもかかわらず、それぞれのクリープ曲線は異なる曲線を示している。図9には、140 MPa負荷時に得られた試験片の所定のクリープひずみと時間の関係を示す。個々の点がそれぞれ一つの試験片を表す。クリープひずみとクリープ時間は良い相関関係を示していない。つまりクリープ時間が長い程、クリープひずみが大きいわけではなく、同一条件のクリープ試験を行ってもクリープ時間とクリープ損傷の間に強い相関関係はない。言い換えると、時間はクリープ損傷の目安とはなり得ない。

次に5次(共鳴周波数1.5 MHz近傍)、8次(2.5 MHz近傍)、そして11次(3.5 MHz近傍)共鳴モードにおける減衰係数とひずみの関係を図10に示す。減衰係数はひずみが約2%まで増加を示し、ピークに達した後4%まで減少しその後ほぼ一定になる。連続試験法でも中断試験法と同様なピーク現象は見られる。ピークが現れるひずみもほぼ等しい。この変化は他のモードでも同様の変化であった。

以上から、クリープひずみと減衰係数に単調ではないが密接な関係の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

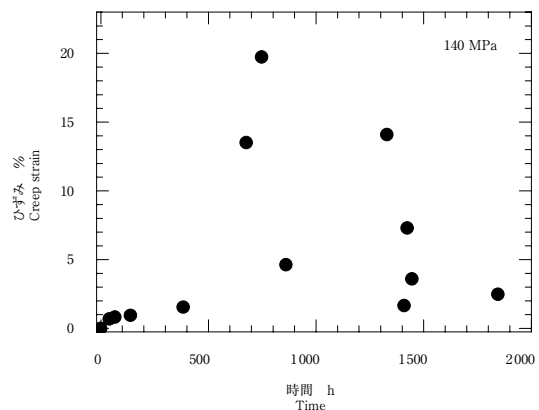


図9 クリープひずみとクリープ時間の関係(連続試験法、応力: 140 MPa、温度: 1073 K)

Fig. 9 The creep strains reached versus elapse of time in continuous test (140 MPa, 1073 K)

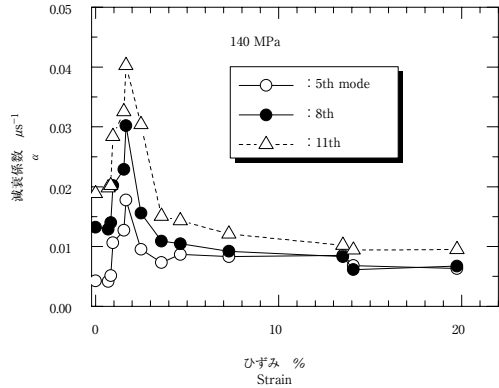


図10 第5, 8, 11次の共鳴モードにおける減衰係数とクリープひずみの関係(連続試験法, 温度: 1073 K, 応力: 140 MPa)

Fig. 10 The relationship between creep strains versus the attenuation coefficients at the 5th, 8th, 11th resonant modes in continuous test. The polarization is parallel to the stress direction.

費率  $t/t_r$  は, 丸山らが提案した改良  $\theta$  法<sup>12)</sup> と破断パラメータ  $P_a$ <sup>13)</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  $\theta$  法と破断パラメータ  $P_a$  について簡単に説明をする。改良  $\theta$  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  $\theta$  法では, 式 (2) に示すように, クリープ曲線を近似する。

$$\epsilon = \epsilon_0 + A \{1 - \exp(-\alpha t)\} + B \{\exp(\alpha t) - 1\} \dots (2)$$

ここで, 第1項は初期ひずみ, 第2項は1次クリープ, 第3項は3次クリープをそれぞれ表す。改良  $\theta$  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  $\theta$  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3次クリープの出現が遅れ1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。クリープ曲線から複数試験片法の丸棒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  $P_a$  を求める。

ここで  $\epsilon_r$  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。

$$P_a = \frac{1}{\alpha} \ln \frac{\epsilon_r - \epsilon_0 - A}{B} \dots (3)$$

(4) 破断パラメータ<sup>10)</sup>  $P_a$  と (1) で得た破断時間  $t_r$  を用いて  $C_a$  と  $q$  を決定する。

$$t_r = C_a P_a^q \dots (4)$$

(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ッティングし, パラメータ  $A, B, \alpha$  及び破断パラメータ  $P_a$  を求める。この破断パラメータを求めるには破断ひずみ  $\epsilon_r$  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  $\epsilon_r$  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  $C_a$  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11には,  $t/t_r$  とクリープひずみの関係を示す。クリープひずみ変化が, 1本の曲線で整理され,  $t/t_r$  とクリープひずみには良い相関関係があることが分かる。

図12に第11次共鳴モードの減衰係数  $\alpha$ , 相対音速比  $\Delta V/V_0$  ( $V_0$ : 初期音速), クリープひずみと推定寿命消費率  $t/t_r$  の関係を示す。図7の中断試験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。

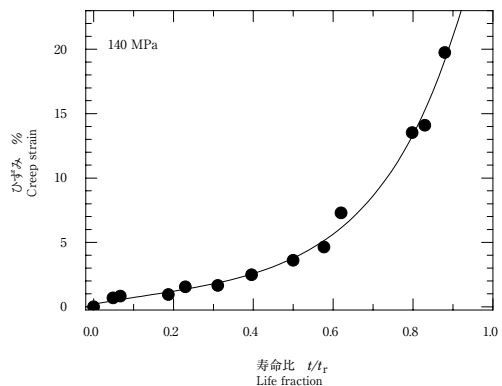


図11 クリープひずみと推定寿命消費率の関係(連続試験法, 応力: 140 MPa, 温度: 1073 K)

Fig. 11 The creep strain reached versus estimated life fraction in continuous test (140 MPa, 1073 K)

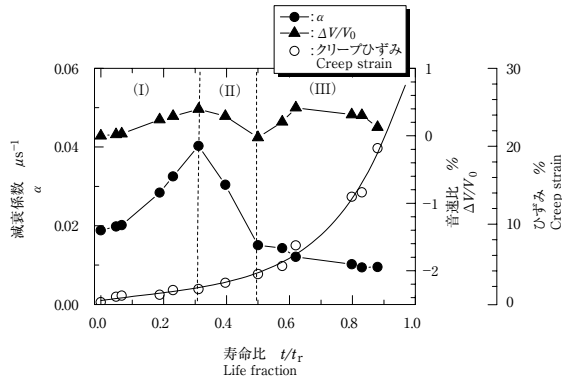


図12 第11次モードの減衰係数，相対音速比とクリープひずみと推定寿命消費率の関係(連続試験法，応力：140 MPa，温度：1073 K)

Fig. 12 The relationship between  $\alpha$ ,  $\Delta V/V_0$ , creep strain, and  $t/t_r$ , at the 11th resonant mode under 140 MPa in continuous test

#### 4. 考察

クリープ損傷に伴う多様な組織変化のなかから，減衰係数に影響を及ぼす因子を取り上げ<sup>16, 17)</sup>，それぞれについて定量的検討をした。ポイドや微小き裂はごく末期以外で発生していなかったで除く。

- 1) 結晶粒界による散乱。
- 2) 析出物による散乱。
- 3) 転位による吸収。

##### 4-1 結晶粒界による散乱

$t/t_r = 0$ と0.6の試料の光学顕微鏡による組織写真を写真1に示す。応力方向は写真の長手方向である。粒内及び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。その結果を図13に示す。クリープによって結晶粒径はほとんど変化していなかった。その増加量は3~5  $\mu\text{m}$ ほどであった。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>16, 17)</sup>。

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

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。減衰係数の変化は，ほぼ一定である粒径変化とは対応していない。よって結晶粒による散乱の減衰係数への寄与は小さく，粒径変化の効果も無視してよい。

##### 4-2 析出物による散乱

写真2に $t/t_r = 0, 0.5$ の試料のSEM観察の結果を示

す。析出物は粒界，粒内に現れている。この析出物(写真2中の矢印)をエネルギー分散型X線分析装置(EDX)で分析したところ，Al-Ti-Niの金属間化合物 $\gamma'$ であることが分かった。クリープ前( $t/t_r = 0$ )の写真2(a)では，粒内に0.05  $\mu\text{m}$ の微細な $\gamma'$ 粒子が緻密かつ均一に分布し，粒界では1  $\mu\text{m}$ 程度の $C_r$ 系炭化物の介在物が点在している。クリープが進行すると(写真2(b)， $t/t_r = 0.5$ )では，粒子が粗大化して，その間隔が広く

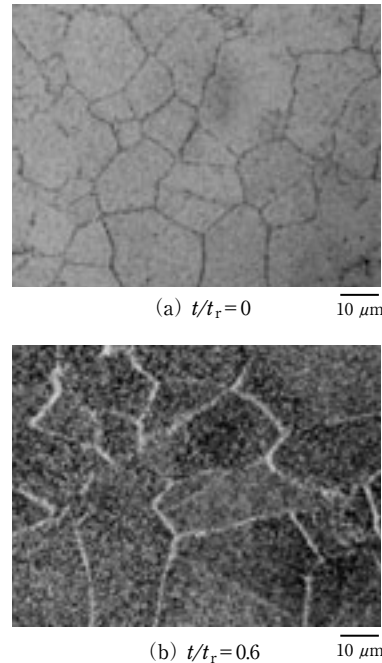


写真1 光学顕微鏡による組織観察 ( $t/t_r = 0$ と0.6, 連続試験法，応力：140 MPa，温度：1073 K)  
Photo 1 Optical micrograph of a crept specimen at  $t/t_r=0, 0.6$  in continuous test (140 MPa, 1073 K)

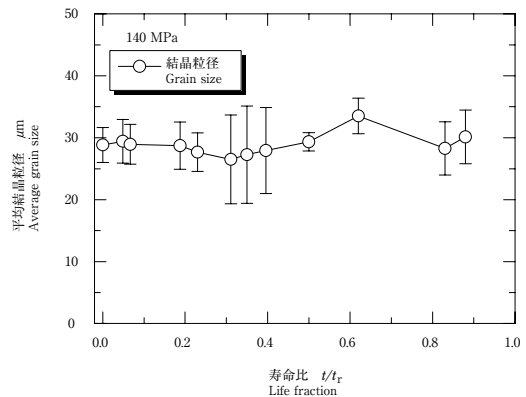


図13 クリープ進行による結晶粒径の変化(連続試験法，応力：140 MPa，温度：1073 K)  
Fig. 13 Change in the average grain size as along creep progress in continuous test (140 MPa, 1073 K)

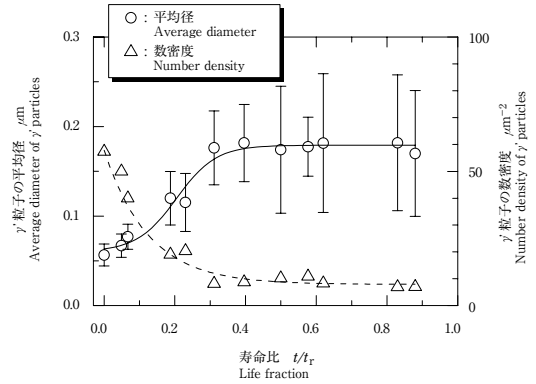
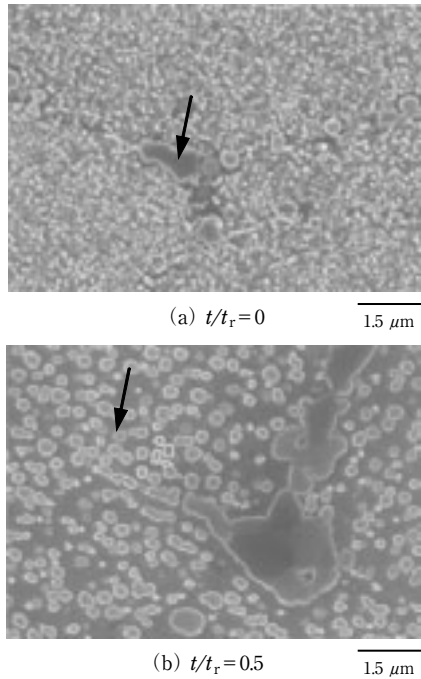


図14 クリープ進行に伴う  $\gamma'$  相の粒径と数密度の変化 (連続試験法, 応力: 140MPa, 温度: 1073 K)

Fig. 14 Change in the average diameter and number density of  $\gamma'$  phase along creep progress in continuous test (140 MPa, 1073 K)

4-3 転位による吸収

超音波による変動応力が加わったとき、転位はこれとともに振動し、超音波エネルギーが吸収されると考えられている。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>18)</sup>、減衰係数  $\alpha$  と転位密度  $\Lambda$ 、平均転位長さ  $L$  と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、バーガースペクトルに依存する。 $f$ 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  $\Lambda$  と転位の平均長さ  $L$  の4乗に比例する。転位を釘付けする因子として転位網、格子間不純物原子や点欠陥がある。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、可動転位すなわち超音波のような低応力波に対しても振動できる転位だけを対象にしていることである。結晶粒界や  $\gamma'$  粒子周辺にたい積している転位は、 $\alpha$  に貢献できない。したがって可動転位は結晶粒界、析出物や  $\gamma'$  粒子にたい積した転位を除いたもので、これらが減衰の原因となる。電磁超音波共鳴で測定した減衰係数は、多結晶純銅や低炭素鋼の疲労損傷<sup>19~22)</sup> やSUS304鋼、SUS316L鋼や2.25Cr-1Mo鋼の高温クリープ変形<sup>23~25)</sup> に伴う転位構造の変化を検出できることが明らかとなっている。それゆえ、本研究の減衰係数の変化も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。観察例を写真3に示す。写真3 (a) はクリープ前の状態を、写真3 (b) ~ (d) は、それぞれ  $t/t_r = 0.31, 0.58, 0.83$

06-01 02/210

写真2 SEMによる組織観察 ( $t/t_r = 0$  と  $0.5$ , 連続試験法, 応力: 140 MPa, 温度: 1073 K)

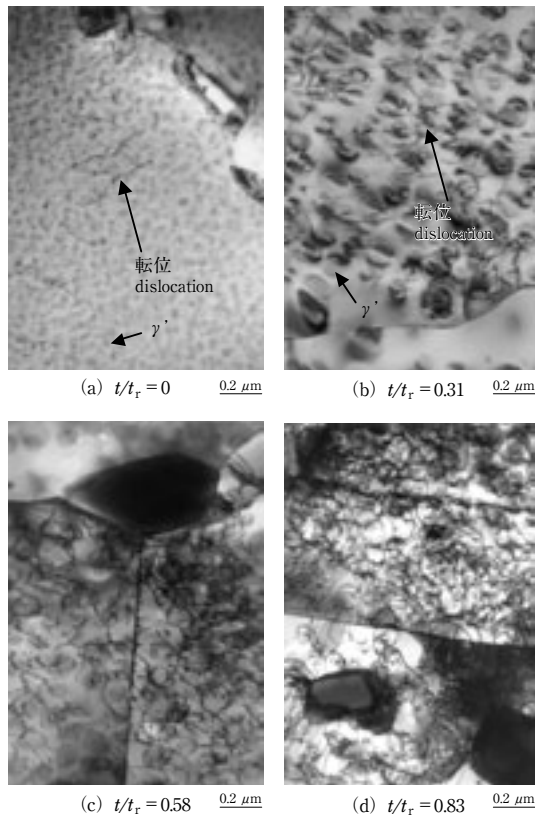
Photo 2 Scanning electron micrographs of crept specimens at  $t/t_r = 0, 0.5$  in continuous test (140 MPa, 1073 K)

なっている。また結晶粒界近傍の  $\gamma'$  がなくなり、写真1で見られるように結晶粒界近傍が白い帯になる。図14はSEM観察写真をコンピュータに取り込み、粒内の  $\gamma'$  粒子の粒径と数密度を測定した結果である。  $\gamma'$  相の粒径はクリープ開始から  $t/t_r = 0.5$  まで増加し、その後一定になる。一方、数密度はクリープ開始から急激に減少し  $t/t_r = 0.5$  程度から一定になる。寿命前半で  $\gamma'$  の凝集・粗大化が終了する。  $\gamma'$  粒子の大きさは平均で  $0.2 \mu\text{m}$  程度であった ( $t/t_r = 0.5$ )。これは観察している超音波の波長 ( $> 0.3 \text{ mm}$ ) より十分小さいので、Rayleigh散乱になる。このとき、減衰係数  $\alpha_s$  は式(6)で表わされる<sup>16, 17)</sup>。

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

ここで、 $n$ は散乱体の数密度、 $\gamma$ 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。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、  $\alpha_s = 3.01 \times 10^{-12} \mu\text{s}^{-1}$  となり、実測値の1%にも達しない。したがって、  $\gamma'$  粒子による散乱は本測定の  $\alpha$  の変化にほとんど関与していないと結論できる。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。

付近の組織を示す。クリープ前の組織では、粒径が0.05  $\mu\text{m}$  以下の微細な  $\gamma'$  粒子が緻密かつ均一に分布している。その間隔は0.05  $\mu\text{m}$  程度である。転位密度は低く、転位は  $\gamma'$  粒子間を連なるように分布している。転位長さは0.5  $\mu\text{m}$  から0.6  $\mu\text{m}$  である。写真3 (b) は図12において  $\alpha$  が極大値を示した組織である。転位密度は高くなり、 $\gamma'$  粒子に絡みついた転位線が見られる。 $\gamma'$  粒子の凝集・粗大化により、数密度が減少し、粒径は増加している。その大きさは0.2  $\mu\text{m}$  程度のものが多い。この結果として  $\gamma'$  粒子の間隔は広がり、0.2  $\mu\text{m}$  以上になっている。写真3 (c) は  $\alpha$  が減少している時点の組織である。 $\gamma'$  粒子の凝集・粗大化はいつそう進み、転位密度は更に増加し、 $\gamma'$  粒子に絡みついた転位線や転位線同士が絡まっているのが多く見られる。クリープ末期の写真3 (d) では、ほとんどの転位が複雑に絡み合い、 $\gamma'$  粒子に幾重にも絡まりたい積している。クリープ損傷中のTEM観察において、転位は粒界に少なく、粒内に転位量が多かった。



06-01 03/210

**写真3** 透過電子顕微鏡による転位組織観察 ( $t/t_r = 0, 0.23, 0.5$  と  $0.88$ , 連続試験法, 応力: 140 MPa, 温度: 1073 K)

**Photo 3** Transmission electron micrographs of crept specimens at  $t/t_r = 0, 0.23, 0.5$  and  $0.88$  in continuous test (140 MPa, 1073 K)

写真2, 3, 図14で示したSEMやTEM観察結果とクリープ損傷中の組織変化の過去の報告<sup>26~32)</sup>から、図12に示すようにクリープ進行に伴う組織変化と減衰係数の関係を3段階に別け説明すると以下ようになる。図12におけるクリープ曲線において、クリープひずみ速度は常に増加していることが分かる。ここで、クリープひずみ速度  $\dot{\epsilon}$  は式 (8) のように記述する<sup>31, 32)</sup>。

$$\dot{\epsilon} \sim A_3 \sigma^m n(\epsilon) v(\epsilon) \dots\dots\dots (8)$$

ここで  $\sigma$  は応力,  $n(\epsilon)$  は転位密度 (クリープひずみ  $\epsilon$  の時, 変形に寄与した転位密度),  $v(\epsilon)$  は転位の運動速度,  $A_3, m$  は定数とする。

(1) 第1段階 ( $0 < t/t_r < 0.3$ )

図12から、 $\epsilon$  は増加していることから、クリープ初期から転位の運動 (すべり, 増殖) が起こっていることが分かる。また、 $\gamma'$  粒子の凝集・粗大化が起きて [図12, 写真3 (b)],  $\gamma'$  粒子同士の間隔が広がっている。転位の固着点長さが大きくなり転位が動きやすくなる。その結果,  $\Lambda$ が増大し,  $L$ が大きくなり  $\alpha$ が増加する。

(2) 第2段階 ( $0.3 \leq t/t_r < 0.5$ )

$t/t_r$  が30%を超えると、クリープ進行とともに全転位密度は更に増加する。 $\gamma'$  粒子の凝集・粗大化の速度は低下し (図14),  $\gamma'$  粒子同士の間隔の広がりも鈍る。その結果,  $\gamma'$  粒子への転位のたい積や転位同士の絡み合いが多くなり [写真3 (c)], 転位間隔も狭くなっていく。また転位間の相互作用が強くなり転位の運動に抗する応力を生じさせる<sup>28)</sup>。それにより可動転位密度  $\Lambda$  が急激に低下し,  $\alpha$  の極大値が現れる。その時点のクリープひずみは2%程度であり, 寿命の30%に相当する (図12)。

(3) 第3段階 ( $0.5 < t/t_r$ )

この段階は,  $\gamma'$  粒子の凝集・粗大化はほぼ終了する。クリープ進行とともに全転位密度は増加し続け,  $\gamma'$  粒子への転位のたい積や転位同士の絡み合いが更に進み [写真3 (d)], 可動転位がなくなり, 減衰係数は一定又はわずかに減少していく。

$t/t_r = 0.3$  付近で現れた  $\alpha$  のピークは, 増殖した転位の絡み合いが始まった段階に対応すると考えられる。その付近では  $\gamma'$  粒子の凝集・粗大の速度が一定になる領域と考えられる。SUS304鋼, SUS316L鋼や2.25Cr-1Mo鋼においても同様にクリープ損傷過程の減衰係数のピーク現象を捕らえている<sup>23~25)</sup>。このことは本測定法の普遍性を示すものである。また, 電磁超音波共鳴法はクリープ進行に伴う材料全体の内部組織変化 (転位組織や  $\gamma'$  粒子の数密度や粒径) をとらえることができ, 損傷評価及び余寿命予測に有効であると考えられる。



## 5. 結論

Ni基耐熱合金ワスパロイのクリープ損傷に伴う微視的組織の変化を電磁超音波共鳴法で測定する減衰係数と音速の変化から評価した。その結果以下のことが明らかになった。

(1) 超音波減衰はクリープ寿命の35～40%の間で極大値を示した。その極大値がみられる時点は、増殖した転位の絡み合いの始まりと $\gamma'$ 粒子の凝集・粗大の速度が一定になる時点と一致した。これは負荷応力に依存していなかった。

(2) 超音波減衰は、クリープ損傷に対して敏感に反応し、それは結晶粒界と $\gamma'$ 粒子による散乱減衰よりも、転位による吸収減衰に支配される。

(3) 弦モデルにより、超音波減衰と転位組織及び $\gamma'$ の凝集・粗大の変化を対応づけられる。

(4) 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。

(5) EMAR法はNi基耐熱合金材料のクリープ損傷評価と寿命予測を行える可能性をもっている。

(6) 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。

(7) 今後は負荷履歴影響やより長寿命なクリープを含んだ損傷評価及び余寿命予測の研究を行っていききたい。

### 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, p.508-509, (1993-10).
- 5) 吉川州彦, 福嶋一夫, 機講論, No.964-1, p.94-95 (1996-3).
- 6) C. E. Jaske, C. E., Simonen, F. A. and Roach, D. B., Hydrocarbon Processing, Vol.62, p.63-68, (1983).
- 7) Hirao, M., Ogi, H., and Fukuoka, H., Rev. Sci. Instrum., 64, p.3198-3205, (1993).
- 8) Hirao, M., and Ogi, H., Ultrasonics, 35, p.413-421, (1997).
- 9) Hirao, M., and H. Ogi., "EMATs for Science and Industry: Nondestructive Ultrasonic Measurements", p.1-102, (2003), Kluwar Academic Publishers, Boston.
- 10) 大谷俊博, 荻博次, 平尾雅彦, 材料, 53, p.692-698, (2004).
- 11) Ohtani, T., Ogi, H., and Hirao, M., International Journal of Solids and Structures, 42, p.2911-2928 (2005).
- 12) 丸山公一, 原田千里, 及川洪, 材料, 53, p.238-245, (2004).
- 13) Maruyama, K., and Oikawa, H., Trans. ASME, J. Pressure Vessel Technol., 109, p.142-148, (1987).
- 14) Fortunko, C.M., Petersen, G.L., Chick, B.B., Renken, M.C., and Peris, A.L., Review of Scientific Instruments, 63, p.3477-3486, (1992).
- 15) Ogi, H., Hirao, M., Honda, T., and Fukuoka, H., in Review of Progress in Quantitative Non-destructive Evaluation, 14, p.1601-1608, (1995).
- 16) Truell, R., C. Elbaum, C., Chick, B. 1969. Ultrasonic methods in Solid State Physics, Academic press, New York, p.159-249, (1969).
- 17) Goebbels, K., Res. Tech in NDT, Vol.4, (Sharpe R. S. edit), Academic Press, London, p.87-157, (1980).
- 18) Granato, A. and Lücke, K., J. Appl. Phys., 27, p.583-593, (1956).
- 19) Hirao, M., Ogi, H., Suzuki, N., and Ohtani, T., Acta Materialia, Vol.48, p.517-524, (2000).
- 20) Ogi, H., Hamaguchi, T., and Hirao, M., Metal. and Mater. Trans. A., Vol.31A, p.1121-1128, (2000).
- 21) Ohtani, T., Ogi, H., Minami, Y., and Hirao, M., Journal of Alloys and Compounds, Vol.310, p.440-444, (2000).
- 22) Ogi, H., Minami, Y., and Hirao, M., Journal of Applied Physics, Vol.91, p.1849-1854, (2002).
- 23) 大谷俊博, 荻博次, 平尾雅彦, 日本機械学会論文集A, 67, p.454-461, (2001).
- 24) 大谷俊博, 武井和生, 材料, 54, p.607-614, (2005).
- 25) 大谷俊博, 荻博次, 平尾雅彦, 材料, 51, p.195-201, (2002).
- 26) Barrett C. R., Nix, W. D. and Sherby, O. D., Trans. ASM., 59, p.3-15, (1966).
- 27) Orlova, A., and Cadek, J., Phil. Mag., 28, p.891-899, (1973).
- 28) Hasegawa, T., Ikeuchi, Y., and Karashima, S., Metal Sci. J., 6, p.78-82, (1972).
- 29) 岡崎正和, 橋本昌光, 佐多隆, 材料, 41, p.1729-1735, (1992).
- 30) 辛島誠一, 鉄と鋼, 65, p.820-830, (1974).
- 31) Cadek, J., Creep in Metallic Materials, Elsevier, p.95-114, (1988).
- 32) Nabarro, F. R. N., de Villier, H. L., The Physics of Creep: Creep and Creep-resistant Alloys, Taylor & Francis Publisher, p.15-46, (1995).