

# ASME Gr.122 鋼溶接継手のクリープ損傷中の非線形超音波特性の変化

大谷 俊博\*, 田淵 正明\*\*, 本郷 宏通\*\*, 平尾 雅彦\*\*\*

Creep-induced nonlinear ultrasonic change in ASME Gr. 122 steel welded joint

Toshihiro OHTANI, Masaaki TABUCHI, Hiromichi HONGO, and Masahiko HIRAO

## Abstract:

We investigated the evolutions of two nonlinear acoustic characterizations: resonant frequency shift and three-wave mixing, with electromagnetic acoustic resonance (EMAR) throughout the creep life in the welded joints of ASME Grade 122, one of high Cr ferritic heat resisting steels. EMAR is a combination of the resonant acoustic technique with a non-contact electromagnetic acoustic transducer (EMAT). We used bulk-shear-wave EMAT, which transmits and receives shear wave propagating in thickness direction of a plate specimen. Creep tests of thick welded joints specimens were carried out at 873 K, and 100 MPa and interrupted at several time steps. The two nonlinear acoustic parameters and ultrasonic attenuation decreased from the start to 50% of creep life. After that they rapidly increased from 80% of creep life to rupture. We interpreted these phenomena in terms of dislocation recovery, recrystallization, and restructuring and the initiation and growth of creep void, with support from the SEM and TEM observation.

**KEY WORDS :** ASME Gr. 122 steel, Welded joint, Type IV damage, Nonlinear acoustics, Electromagnetic acoustic resonance, Non-destructive evaluation

## 要旨:

ASME Grade 122鋼は、蒸気温度が600℃の超々臨界圧火力発電用ボイラの主要構造材として使われている。この材料の溶接継手のクリープ寿命の低下は、高温長時間使用中に溶接熱影響部に生じるType-IV損傷に起因する。本研究では、電磁超音波共鳴法(EMAR)を用いてASME Gr. 122鋼の溶接継手部のクリープ損傷中の2つの非線形音響特性: 非線形超音波スペクトロスコーピー(NRUS)法による共鳴周波数の移動と非線形3波相互作用法により発生した第3の波の振幅から評価し、その2つの非線形音響特性の相関関係とクリープ損傷中の微細組織の変化との関係を明らかにした。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法である。使用したEMATは、板厚方向に偏向しながら横波を送受信する体積波横波EMATを用いた。大型平板溶接継手試験片を製作し、600℃、100MPaの条件で、所定の時間までクリープ試験を行い、中断材を作製した。2つの非線形音響量は、クリープ開始から寿命の約50%まで減少し、その後微増し、寿命の80%過ぎから破断まで急増した。これは細粒HAZ部のクリープボイドの発生・成長に関係する転位の回復、再結晶、再構築による組織変化に起因する。それはSEMやTEM観察による結果から裏付けられた。EMAR法を用いた非線形超音波法は、細粒HAZでのType-IV損傷の捕らえることができる可能性を持っている。

**キーワード :** ASME Gr.122鋼, 溶接継手, タイプIV損傷, 非線形音響, 電磁超音波共鳴法, 非破壊評価

## 1. はじめに

火力発電プラントでは、エネルギー効率改善のため、機器の高温・高圧化が進められている。蒸気温度が約600℃の超々臨界圧発電プラント(USC)では、主要構造材料に高Crフェライト系耐熱鋼が用いられている。フェライト系耐熱鋼の初期組織

\*湘南工科大学 工学部 機械工学科 教授

\*\* (独) 物質・材料研究機構

\*\*\* 大阪大学大学院 基礎工学研究科

はラスマルテンサイトであるが、溶接継手では、溶接時の熱履歴による相変態と溶接後熱処理(post weld heat treatment: PWHT)により、溶接熱影響部 (heat affected zone: HAZ) に母材よりクリープ強度の低い細粒組織が形成される。細粒 HAZ での Type-IV 損傷により、溶接部の寿命は母材より短くなる<sup>(1)-(3)</sup>。また、高 Cr フェライト系耐熱鋼の溶接継手部の Type-IV 損傷は、内部から進行するため、従来からのレプリカ法や非破壊検査手法が適用できない。また、超音波法の 1 つであるフェーズドアレイ法を適用した研究もされている<sup>(4)</sup>、この手法は Type-IV 損傷により発生したボイドがある程度密集し、き裂になり始めない限り損傷を検出できない問題がある。このため、溶接部の損傷・余寿命評価には、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要望されている。

本研究では、線形特性 (音速や減衰など) よりも材料の微細組織の変化に敏感である非線形超音波法<sup>(5),(6)</sup>と電磁超音波共鳴法 (Electromagnetic Acoustic Resonance: EMAR 法)<sup>(7)</sup> 組み合わせた評価方法を高 Cr フェライト系耐熱鋼の溶接継手部の Type-IV 損傷へ適用しようとした。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 (Electromagnetic Acoustic transducer: EMAT)<sup>(7)</sup> を共鳴測定に適用した計測法である。これまで、著者らは EMAR 法を用いてバルク材 (種々の金属材料) のクリープ損傷評価を行ってきた<sup>(8)-(13)</sup>。EMAR 法は、高精度の超音波減衰測定だけでなく、センサと被測定物との接触による非線形音響性効果がないという特徴を有している。非線形超音波法では、一般に次のような非線形音響特性 ①高調波の発生、②分調波の発生、③共鳴周波数の移動、④非線形 3 波相互作用の観察から評価をしている<sup>(6)</sup>。これまでの非線形超音波法を用いたクリープ損傷の評価に関する研究においては、バルク材に対して接触式の圧電超音波センサを用いて①高調波の成分の振幅の計測が多く行われていた<sup>(14)-(18)</sup>。この手法では、接触による非線形性と計測システムによる非線形性から損傷に伴う非線形性を抽出する難しさがある。また、これまで非線形音響特性による損傷評価の研究では、また、これまで非線形音響特性による損傷評価の研究では、①~④の個々の非線形音響特性の変化について調べているが、相関関係を調べた研究はない。また EMAR 法を用いたクリープ損傷中の非線形音響特性を調べた研究は少ない<sup>(19)</sup>、<sup>(20)</sup>。

そこで、本研究では、EMAR 法を用いて高 Cr

フェライト系耐熱鋼の代表的な ASME Gr. 122 鋼の溶接継手部のクリープ損傷中の非線形超音波量: ③非線形超音波スペクトロスコーピー (Nonlinear Resonant Ultrasound Spectroscopy: NRUS) 法<sup>(21)</sup> による共鳴周波数の移動から評価と④非線形 3 波相互作用法<sup>(22)</sup>により発生した第 3 の波の振幅から評価し、その 2 つの非線形音響特性の相関関係とクリープ損傷中の微細組織の変化との関係を明らかにすることを目的とした<sup>(23)</sup>。使用した EMAT は、2 つの非線形音響特性が比較的計測しやすい体積波横波 EMAT<sup>(7)</sup>は、板厚方向に偏向しながら横波を伝ばする波である。

## 2. 理論的背景

上述の高調波の発生と共鳴周波数の移動についての理論的背景については、文献<sup>(20)</sup>で述べている。3 波相互作用について理論的背景について述べる。固体内で 2 つの弾性波が交差するとき、両者の伝搬速度、交差角、および周波数比が決まるある条件を満たすと、媒質の非線形性から第 3 の波が発生する、この非線形音響現象を 3 波相互作用という<sup>(24)</sup>、<sup>(25)</sup>。媒質の応力-ひずみ関係が線形関係、すなわちフックの法則成り立っている場合、2 つの弾性波について、それぞれの波にともなう応力とひずみを、 $\sigma_1$  および  $\varepsilon_1$ 、 $\sigma_2$ 、 $\varepsilon_2$  とするならば、フックの法則は各波について、 $\sigma_1 = C\varepsilon_1$ 、 $\sigma_2 = C\varepsilon_2$  のように表せる。ここで C は弾性定数。媒質中ある点で 2 つの波が出会うと、そこで 2 つの波の重ね合わせにより、

$$(\sigma_1 + \sigma_2) = C(\varepsilon_1 + \varepsilon_2) \quad (1)$$

式(1)が成り立つ。このような場合は 2 つの波は素通りして、相互作用をしない。実際の固体の場合、フックの法則は、厳密には成立せず応力-ひずみ関係は非線形になる。これは原子間ポテンシャルの非調和性に起因する<sup>(26)</sup>。その応力-ひずみの関係は、非線型 (弾性的非調和性) になり、式(2)のように  $\varepsilon$  の高次の項を含む ( $D$ : 高次の弾性定数)。

$$\sigma = C\varepsilon + D\varepsilon^2 + \dots \quad (2)$$

この時、2 つの弾性波が出会うと ( $\varepsilon$  の二次項まで考えると)、

$$(\sigma_1 + \sigma_2) = C(\varepsilon_1 + \varepsilon_2) + D(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)^2$$

$$= (C\varepsilon_1 + D\varepsilon_1^2) + (C\varepsilon_2 + D\varepsilon_2^2) + 2D\varepsilon_1\varepsilon_2 \quad (3)$$

となる。この右辺の最後の項のために重ね合わせが成り立たなくなり、2つの波が相互作用して第3の波を発生する。

### 3. 実験方法

#### 3.1 供試材

板厚 30mm の Gr.122 鋼 (11Cr-0.4Mo-2W-CuVNB 鋼) の板材を供試材とした。化学成分を Table 1 に示す。その供試材を母材とした H 開先(Double U groove)の溶接継手をガス・タングステンアーク溶接(Gas Tungsten Arc Welding: GTAW)により作成した。PWHTは、750°C, 75 min.で行った。開先のほぼ全積層を含む幅 24.5mm, 厚さ 24.5mm, 平行部長さ 120mm の大型平板溶接継手試験片(L-welded joint)を製作し、600°C, 100MPa の条件で、所定の時間までクリープ試験を行い、中断材を製作した。破断時間の約 0.46 (7,540 h), 0.82 (13,400 h), 0.92 (15,080 h), 0.96 (15,710 h), 0.98(16,080 h) で中断した。破断時間  $t_r$  は、16,340h だった。大型平板溶接継手試験片の寸法、溶接条件は参考文献<sup>(3)</sup>に詳細を示す。

Fig. 1 のように、大型平板溶接継手試験片から厚さ約 3.5mm の試験片を切り出し、室温にて HAZ 近傍で板厚方向の超音波特性の測定を行った。溶接継手の全積層が観察できる面の積層方向を幅 (Width), 溶接線方向を厚さ(Thickness)とした。

#### 3.2 非線形超音波特性の計測

使用した体積波横波 EMAT は、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り、磁わい効果を利用して、試料表面に垂直に伝播する横波を送受信する (Fig.2 参照)<sup>(7)</sup>。ここで用いた横波 EMAT の送受信の有効面積は 10 x 10 mm<sup>2</sup> である。本実験では HAZ 近傍だけの超音波特性を計測するため、銅箔で非測定領域を覆い計測領域 (幅方向 10 mm, 長手方向 2 mm の領域) を狭めた。EMAT

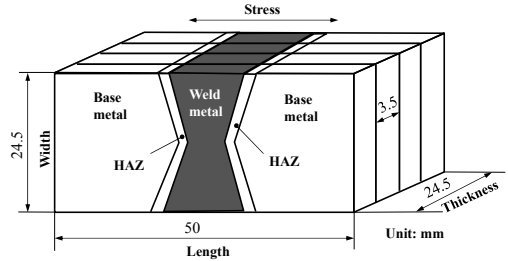


Fig. 1 Shape of welded joint specimen.

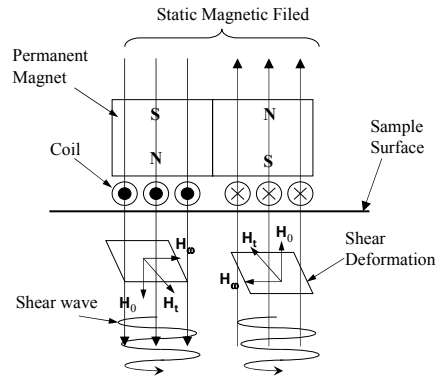


Fig. 2 Generation mechanism of the polarized shear wave by magnetostrictive effect.  $H_0$ ,  $H_0$  and  $H_1$  denote the bias field, the dynamic field and the total field being composed of the vector summation, respectively.

Table 1 Chemical composition of ASME Gr. 122 steel (mass%).

C	Si	Mn	P	S	Cu	Ni	Cr	W	Mo	V	Nb	Al	N	B
0.11	0.28	0.62	0.015	0.002	0.98	0.39	10.54	1.82	0.32	0.19	0.05	0.001	0.063	0.003

とで、材料内部の微細組織の変化の計測が可能になる。NRUS 法においては、加振力の変化に伴う試料の共鳴周波数の移動を計測することである。加振力の増加につれて、弾性非線形性が、共鳴周波数の移動を引き起こしている。本研究では、NRUS 法に EMAR 法を適用し、測定する際の駆動電圧を 10% から 100% ( $156V_{p-p} \sim 1560V_{p-p}$ ) の間で測定し、共鳴周波数シフト  $\Delta f$  を振幅に依存しない共鳴周波数  $f_0$  で除した  $\Delta f/f_0$  を NRUS 法における非線形超音波量として定義している<sup>(21)</sup>。④非線形 3 波相互作用の測定においては、試料内に二つの探触子から異なる周波数を発生させる。この時 2 つの超音波の相互作用により第 3 の超音波が生じる。相互作用によって生じた超音波の振幅を非線形超音波量とする方法である。Fig. 3(a) に今回の計測方法を示す。2 つの EMAT を厚さ方向に対向させ、双方から異なる  $n, m$  次 ( $n > m$ ) の共鳴周波数  $f_n, f_m$  ( $n$  次の共鳴周波数は次式で表される  $f_n = nC/2d$ ,  $C$ : 横波音速,  $d$ : 板厚) の超音波を厚さ方向に送信し (それぞれの最大振幅  $A_1, A_2$ )、一方の EMAT でその和また差の成分  $f_n \pm f_m$  の振幅  $A_3$  を測定する。今回は差の成分のみ計測した。ここでは、二つの送信の共鳴周波数のモード次数  $n, m$  が素数か、または約数、倍数とならない様なモード次数  $n, m$  を使い、各モードの倍数の成分による測定への影響を避けた。ここでの非線形超音波量を  $A_3/(A_1 A_2)$  と定義する。また Fig. 3(b) に、これまでの研究で用いられた計測例も示す<sup>(26), (27)</sup>。三つの圧電式探触子を用いて測定をしていた。今回の共鳴法を用いた 3 波相互作用法の計測方法は、探触子の数を減らすことに成功した。計測にはスーパーヘテロダイン位相検出器を搭載した RITEC RAM5000-SNAP を使用した。非線形超音波量の計測と併せて、減衰係数 (単位時間当たりの減衰) も計測した。計測方法は参考文献<sup>(7)</sup> 参照。

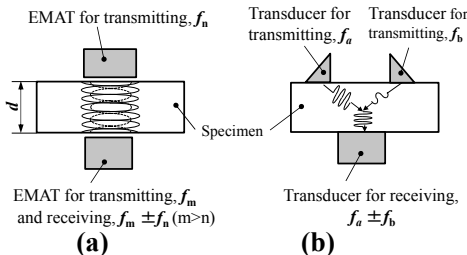


Fig.3 Experimental arrangements for three wave mixing techniques in (a) this study and (b) other study<sup>(26)</sup>.

### 3.3 組織観察

組織観察は、溶融境界から荷重方向に約 1.5mm 離れた細粒 HAZ について、電子後方散乱解析 (Electron Back Scatter Diffraction: EBSD), 走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope: SEM) および透過電子顕微鏡 (Transmission Electron Microscope: TEM) を用いておこなった<sup>(3), (28)</sup>。EBSD ではマルテンサイトの回復や再結晶による微小領域の転位組織の変化を観察するため、方位差  $2^\circ$  以上点は除外して KAM (Kernel Average Misorientation) 値を測定した。方位差  $5 \sim 65^\circ$  を粒界として粒界長さを求めた。中断材の細粒 HAZ から薄膜、抽出レプリカ試料を採取して、TEM による転位組織、析出物の観察および同定をおこなった<sup>(28)</sup>。破断材は、未破断側の HAZ でおこなった。SEM では、ポイドおよびき裂の観察をおこなった。長さ方向に 2mm 間隔で 13 箇所の HAZ の測定領域 (縦 0.2mm x 横 2.0mm) について、ポイド数と面積率を計測した。溶接継手部硬さ測定も実施した。マイクロビッカース硬度計を用いて、荷重 4.903N, 保持時間 15sec の条件でおこなった。溶融境界を基準にして荷重軸方向に 250 $\mu$ m 間隔で測定した<sup>(3), (28)</sup>。

## 4. 実験結果および考察

### 4.1 非線形超音波特性の変化

体積型横波 EMAT で測定した Gr.122 鋼溶接継手のクリープ中断材における共鳴スペクトルを Fig. 4 に示す。本研究では、5 次モード  $f_5$  と 8 次モード  $f_8$  を用いて、NRUS による  $\Delta f/f_0$ 、3 波相互作用法ならびに超音波特性; 減衰係数,  $\alpha$ , 相対音速,  $\Delta V/V_0$  ( $\Delta V = V - V_0$ ,  $V$ : 音速,  $V_0$ : 初期音速) の測定を行った。3 波相互作用法は、 $f_8$  と  $f_5$  の共鳴周波数を用いて相互作用させ、差分のモード次数 ( $f_3 = f_8 - f_5$ ) を測定し、その時の振幅を用いて、 $A_3/(A_1 A_2)$  の非線形超音波量を求めた ( $A_1$ :  $f_8$  の最大振幅,  $A_2$ :  $f_5$  の最大振幅,  $A_3$ : 相互作用で発生した波  $f_3$  の最大振幅)。破断時間  $t_r = 16,340$  h だった。

Fig. 5 に、クリープ進行にともなう 3 波相互作用法における非線形超音波量  $A_3/(A_1 A_2)$  とそれに対応する  $A_1, A_2$  および  $A_3$  の変化を示す。横軸は寿命比  $t/t_r$  ( $t$ : クリープ中断時間) である。計測場所は HAZ 部である。 $A_3/(A_1 A_2)$  は、初期から減少し、 $t/t_r = 0.50$  付近から  $t/t_r = 0.80$  まで緩やかに増加後、破断に向けて急増していった [Fig. 5(a)]。第 3 の波の振幅  $A_3$  は、基本波の振幅  $A_1, A_2$  の 100 分の 1 程度

である。クリープ寿命の後半に  $A_1, A_2$  が減少し、第3の波  $f_3$  の振幅  $A_3$  が増加している [Fig. 5(b)].

Fig.6に前述の  $A_3/(A_1A_2)$ , NRUS による  $\Delta f/f_0$ , 減衰係数  $\alpha$ , 相対音速  $\Delta V/V_0$  と寿命比の関係を示す。計測場所は HAZ 部である。  $\Delta f/f_0$  は、クリープ開始から  $t/tr=0.45$  付近まで減少、その後  $t/tr=0.80$  まで僅かに増加後、破断に向けて増加した [Fig. 6(b)]. 減衰係数も同様な傾向であった [Fig. 6(c)].  $\Delta V/V_0$  は、初期から  $t/tr=0.80$  付近まで増加後、破断に向けて減少していった。その変化量は最大でも 2.0% 程度であった [Fig. 6(d)].

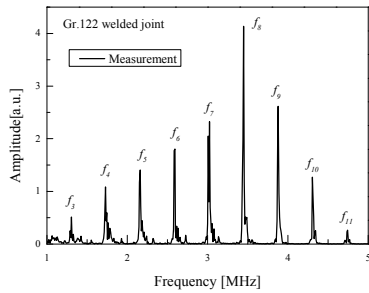


Fig. 4 Measured resonant spectrum for ASME Gr. 122 steel welded joint specimen of 3.5-mm thickness by EMAR.

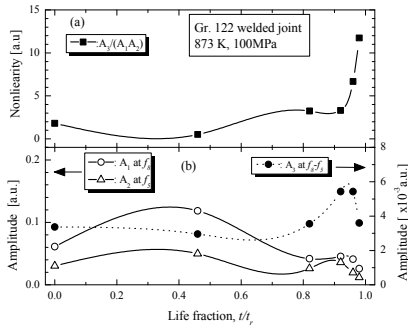


Fig. 5 Evolutions of (a) the nonlinearity with three wave mixing, and (b) the fundamentals and interaction wave amplitudes at HAZ in ASME Gr. 122 steel welded joint during creep (873 K, 100 MPa).

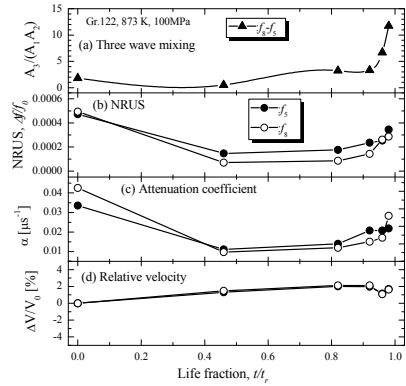


Fig. 6 Evolutions of (a) the nonlinearity with three wave mixing, (b) the nonlinearity with NRUS, (c) attenuation coefficient and (d) relative velocity at HAZ in ASME Gr. 122 steel welded joint during creep (873 K, 100 MPa).

## 4.2 組織観察

クリープ中断材および未使用材の HAZ 近傍での硬さ分布を Fig.7 に示す。採取場所は、試験片の板幅の下表面から 1/3 の所である。この部分周辺に破断材で、き裂が観察されていた<sup>(3), (28)</sup>。  $t/tr=0.46$  では、溶接金属では未使用材と比べると、溶接金属は低下してくるが、他部分はほとんど変わらない。  $t/tr=0.92$  以降では、溶融境界から 1.5mm 付近まで硬さが 20Hv 程度低下している。母材部分は未使用材と大きな差はない。HAZ および溶接金属部で  $t/tr=0.92$  以降に大きな損傷または組織変化が起きていることを示している。

EBSD および TEM による細粒 HAZ 部のクリープ中の組織観察を示す<sup>(28)</sup>。観察場所は上表面から板幅の約 1/3、溶融線から荷重方向に約 1.5mm 離れた細粒 HAZ 部である。 Fig.8 に EBSD 測定による細粒 HAZ 部の結果を示す。未使用材 ( $t/tr=0$ ) と  $t/tr=0.92$  である。  $t/tr=0$  では、結晶粒径が母材よりも小さく、10~20 $\mu\text{m}$  であった。  $t/tr=0.92$  は、未使用材よりも結晶粒径は小さくなった。ポイドが観察された (図中の矢印)。これからの EBSD 観察結果から KAM 値および粒界長さを計測した。

つぎに、未使用材 ( $t/tr=0$ ) とクリープ中断材 ( $t/tr=0.46, 0.82, 0.92, 1$ ) の細粒 HAZ 部の TEM 観察の結果を示す。  $t/tr=0$  では、ラス組織が消失した等軸のサブグレイン組織を大半で、一部ラス組織が

見られた(Fig.9(a)). 大きさ  $0.5\mu\text{m}$  以下の  $\text{M}_{23}\text{C}_6$ , MX および  $\text{Cr}_2\text{N}$  が観察された. Fig.9(b)の  $t/t_r=0.46$  の転位密度は,  $t/t_r=0$  とほぼ同じか僅かに減少しているように見える. しかし, 未使用材では見られなかった  $\sigma$ 相や Laves 相が観察された.  $t/t_r=0.82$  では,  $t/t_r=0.46$  よりも転位密度の低い回復が進んだ組織が見られた.  $t/t_r=0.92$  や  $t/t_r=1$  では, いっそう回復が進んだ転位密度の低い組織になっていた.

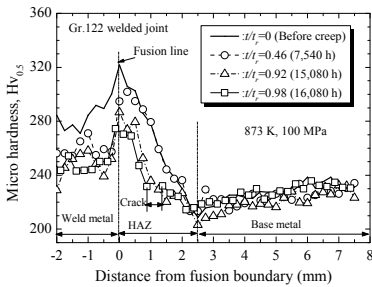


Fig. 7 Hardness distribution in the welded joint of ASME Gr. 122 steel before creep and  $t/t_r=0.46, 0.92$  and  $0.98$  (873 K, 100 MPa).<sup>3)</sup>

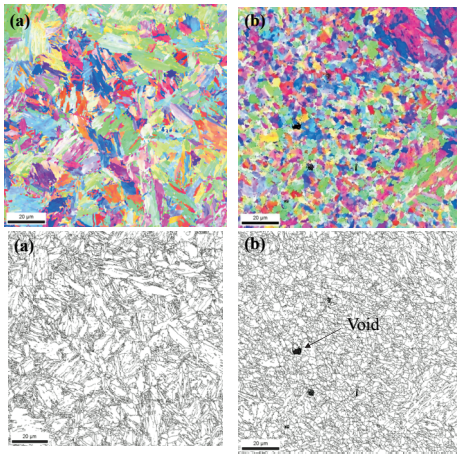


Fig. 8 EBSD images (upper) and grain boundary (lower) of fine-grained HAZ in ASME Gr.122 welded joint at (a)  $t/t_r=0$  (before creep) and (b)  $t/t_r=0.92$  (873 K, 100MPa).<sup>3)</sup>

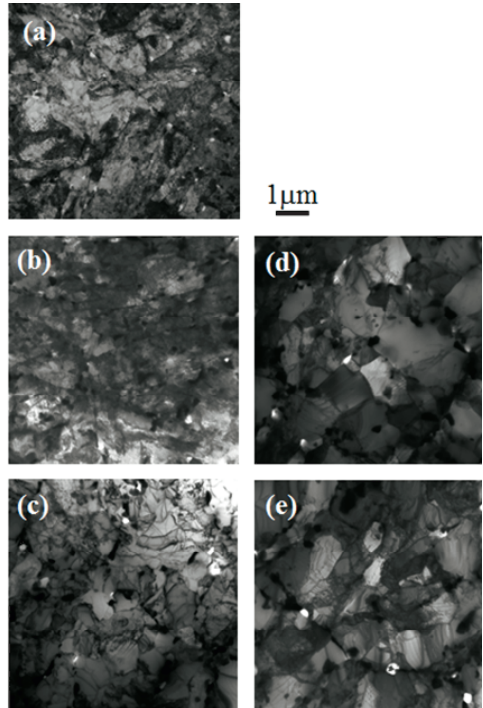


Fig. 9 TEM images of fine-grained HAZ at (a)  $t/t_r=0$  (before creep), (b)  $t/t_r=0.46$ , (c)  $t/t_r=0.82$ , (d)  $t/t_r=0.92$  and (e)  $t/t_r=1$  (ASME Gr.122, 873 K, 100MPa).<sup>3)</sup>

Fig.10 に未使用材とクリープ中断材の硬さ, ボイド面積率, KAM 値, 粒界長さの変化を示す. 横軸は寿命比である. ボイド面積率は HAZ 全体(粗粒 HAZ からインタークリティカル HAZ を含む領域; 縦  $0.2\text{mm}$  x 横  $0.2\text{mm}$ ) で測定した値を, 硬さは Fig.7 に示すような試験片の下表面から板幅  $1/3$ , 熔融境界から  $1.5\text{mm}$  離れた位置の値である. 硬さは,  $t/t_r=0.46$  までわずかに減少し, その後急激に低下していく (Fig.10(a)). クリープボイドは  $t/t_r=0.46$  から発生が見られるが, その発生は抑制され寿命末期 ( $t/t_r=0.92$  以降) に急成長していく (Fig.10(a)). KAM 値は,  $t/t_r=0.5$  まではあまり変化が見られず, その後破断まで急激に低下していく (Fig.10(b)). この変化は硬さと類似している. また, ボイド面積率は小さく, き裂の成長が寿命末期に急激に進んでいることが分かる. この事から従来の線形特性からの超音波法では, 余寿命予測を評価することが困難である. 粒界の長さは,  $t/t_r=0.46$  ま

で増加後、 $t/tr=0.80$ 位まで減少後、ほぼ一定になっている(Fig.10(b)). この減少は回復によるサブグレインの減少によると考えられる. 転位の量を定量的に示すパラメータである KAM 値<sup>(29)-(31)</sup>は、Fig.9 に示すクリープに伴う転位組織の回復、転位の減少と対応している.

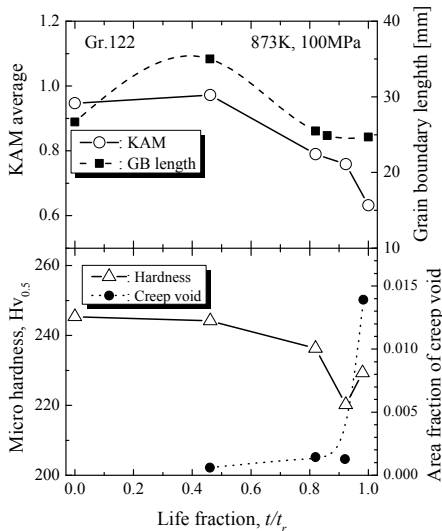


Fig. 10 Change of (a) the hardness, (b) area fraction of creep voids (c) KAM average and (d) grain boundary length of the fine-grained HAZ in ASME Gr. 122 steel welded joint during creep (873 K, 100 MPa).

固体が示す非線形音響現象の原因はさまざまであるが、下記のような3つの要因が知られている<sup>(23)-(32)-(35)</sup>.

- i) 固体を構成する結晶格子が有する非対称性<sup>(32),(33)</sup>
- ii) 転位の運動の非線形性<sup>(34)</sup>
- iii) 固体に内在する欠陥やき裂により生じる非線形性<sup>(35)</sup>

今回は、クリープ末期にき裂は観察されていたことから、観察された非線形性は i)-iii) によると考えられる.

NRUS 法を用いた共鳴周波数の移動による非線形超音波量は減衰係数の変化と同じ傾向を示している(Fig.6 参照). これまでの我々研究では、クリープ損傷中の減衰係数および音速の変化は、転位組

織の変化に関係することを示した<sup>(9)-(13)</sup>. その関係は、Granato と Lücke の弦モデル<sup>(36)</sup>を用いて説明ができた. 弦モデルでは、転位の振動を、粘弾性体中の弦の振動としてモデル化し、減衰係数 $\alpha$ 、相対音速 $\Delta V/V_0$ 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.

$$\alpha = C_1 \Lambda L^4 f^2 \quad (4)$$

$$\Delta V/V_0 = -C_2 \Lambda L^2 \quad (5)$$

ここで、 $C_1, C_2$ は正の定数であり、剛性率、転位運動の比粘性係数、転位の有効線張力、バーガースベクトルに依存する. このモデルによると、減衰係数は転位密度 $\Lambda$ 、転位の平均長さ $L$ の4乗と振動数 $f$ の2乗に比例する. 音速は、 $\Lambda, L$ の2乗に比例して減少する. また超音波減衰は超音波により生じる応力とひずみのヒステリシスに起因し、その不可逆的な動的過程は、転位振動により引き起こされる. そしてヒステリシスループの面積が超音波1サイクル中に吸収されるエネルギーである. これが超音波減衰として観察される. この非線形なヒステリシスは、超音波により引き起こされるひずみ振幅 $\Delta \epsilon$ に比例する(ただし、大きなひずみ振幅において). そして共鳴周波数の移動量 $\Delta f$ は、 $\Delta \epsilon$ に比例する<sup>(26)</sup>.

$$\Delta f / f_0 \propto C_3 \Delta \epsilon \quad (6)$$

ここで $C_3$ は、非線形ヒステリシスパラメータである<sup>(26)</sup>. これらの関係からクリープ損傷中のNRUS法を用いた共鳴周波数の移動による非線形音響量は、転位の振動による超音波減衰に起因していることが分かった.

クリープ進行にともなう細粒HAZ部の組織変化(Fig.7-10)と2つ非線形超音波量の相関関係(Fig.6)を次のような3段階に別けて分け考える.

- 1)  $0 < t/tr \leq 0.5$ ; この段階では、2つの非線形音響量、 $\Delta f/f_0, A_3/(A_1 A_2)$ と減衰係数 $\alpha$ は減少し、音速 $\Delta V/V_0$ は微増している. 細粒HAZ部の動的再結晶が生じ<sup>(3)</sup>、その結果、粒界長さは増加したと考えられる. KAM値、硬さは僅かに減少した. 2つの非線形音響量、減衰係数と音速は、転位組織(転位密度の低下)に起因していると考えられる.
- 2)  $0.5 < t/tr \leq 0.8$ ;  $\alpha$ と $\Delta f/f_0$ はほぼ一定、 $A_3/(A_1 A_2)$ は増加し $\Delta V/V_0$ は、僅かに増加している段階である. 組織は回復が進んで転位密度が急激に低下して

いる。その結果硬さ、KAM 値、粒界長さも減少している。またこの段階からクリーブボイドの発生が見られるが、成長は抑制されている。クリーブボイドの発生周辺では、クリーブ変形が集中しサブグレインが発達し<sup>(37)</sup>、その過程で転位の再配列が起き可動転位が増え、非線形超音波量は減少せず、一定または微増したと考えられる。

- 3)  $t/tr > 0.8$ ;  $\alpha$ ,  $\Delta f/f_0$  は増加し、特に  $A_3/(A_1A_2)$  は急増し  $\Delta V/V_0$  は減少した。回復はさらに進行し転位密度は低下し、硬さ、KAM 値は低下し、粒界長さわずかに減少している。クリーブボイドの成長が進行し、微視き裂に成長し破断に至っている。ボイド周辺の転位組織の変化<sup>(37)</sup>と微視き裂による非線形性<sup>(35)</sup>の増加により非線形超音波量が増加したと考えられる。また 3 波相互作用法の方が、NRUS 法より組織変化に敏感に変化すると思われる。

EMAR 法を用いた高 Cr フェライト系耐熱鋼 ASME Gr. 122 鋼の溶接継手部のクリーブ損傷中の非線形超音波量は、初めてクリーブボイドが発生・成長し、き裂になる挙動を捕らえることができた。これはこれまでの非破壊評価、特に超音波法では計測されていない結果である。今回の手法を即、実機に適用することはできないが、EMAR 法を用いた非線形超音波法は、細粒 HAZ での Type-IV 損傷を早期に検出し、その発生・成長過程を評価し余寿命予測が出来る可能性を示している。

## 5 結 言

EMAR 法を用いて高 Cr フェライト系耐熱鋼 ASME Gr. 122 鋼の溶接継手部のクリーブ損傷中の 2 つ非線形超音波量と微細組織の変化との関係を調べた。以下の事が明らかになった。

- 1) 細粒 HAZ 部の共鳴周波数の移動と 3 波相互作用法による 2 つの非線形音響量は、クリーブ寿命の約 50% まで減少し、その後微増し、寿命の 80% 過ぎから急増した。これは細粒 HAZ 部の転位の運動と再構築とによる組織変化に起因する。寿命 50% 以降の変化はクリーブボイドの発生・成長と同じであった。それは SEM や TEM 観察による結果から裏付けられる。
- 2) 細粒 HAZ 部の 3 波相互作用法による非線形音響量の変化は、共鳴周波数の移動より非線形音響量よりも組織変化に敏感であった。
- 3) 細粒 HAZ 部の共鳴周波数の移動と 3 波相互作用法による 2 つの非線形音響量は減衰係数の変

化と同じであった。

- 4) EMAR 法を用いた非線形超音波法は、細粒 HAZ での Type-IV 損傷の捕らえることができる可能性を持っている。

## 謝辞

本研究の一部は、科研費 (25282106) の助成により実施したものである。

## 参 考 文 献

- (1) Y. Takahashi and M. Tabuchi, Proceeding of ASME PVP 2006 Conference, CD-ROM, PVP2006-93488 (2006) ASME.
- (2) N. Komai and F. Masuyama, ISIJ international, Vol. 42, No.12,(2002), 1364.
- (3) 本郷宏通, 田淵正明, 渡辺隆, 材料, Vol.60, No.2, (2011), 116.
- (4) 福富広幸, 西ノ入聡, 緒方隆志, 電力中央研究所報告, Q07003 (2008).
- (5) K. Y. Jhang, Inter. J. of Precision Eng. & Manufacturing, Vol.11, No.1, (2009), 123.
- (6) K. Y. Jhang, IEEE Trans. on Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control, Vol. 47, No.3, (2000), 540.
- (7) M. Hirao, and H. Ogi, EMATs for Science and Industry: Nondestructive Ultrasonic Measurements, (2003), 1, Kluwar Academic Publishers, Boston.
- (8) 大谷俊博, 荻博次, 平尾雅彦, 日本機械学会論文集 A 編, Vol.67, (2000), 454.
- (9) 大谷俊博, 荻博次, 平尾雅彦, 材料, Vol.51, (2002) 195.
- (10) 大谷俊博, 荻博次, 平尾雅彦, 材料, Vol.53, (2004), 692.
- (11) 大谷俊博, 武井和生, 材料 Vol.54, (2005), 607.
- (12) 大谷俊博, 荻博次, 平尾雅彦, 材料, Vol.54, (2006), 416.
- (13) 大谷俊博, 材料, Vol. 56, No.2, (2007), 114.
- (14) S. Baby, B. Nagaraja Kowmudi, C. M. Omprakash, D. V. V. Satyanarayana, and K. Balasubramaniam, and V. Kumar, Scripta Materialia, Vol. 59, (2008), 818.
- (15) J. Szelazek, S. Mackiewicz, Z. L. Kowalewski, NDT&E International, Vol. 42, (2009), 150.
- (16) J. S. Valluri, K. Balasubramaniam, and R.V. Prakash, Acta Materialia, Vol.58, (2010), 2079.
- (17) K. Balasubramaniam, J. S. Valluri, and R. V. Prakash, Materials Characterization, Vol. 62, (2011), 275.
- (18) Y. Xiang, M. Deng, and F. Xuan, J. Appl. Phys., 115, (2014), 044914.
- (19) T. Ohtani, H. Ogi, and M. Hirao, Japanese J. Appl. Phys., Vol. 48 No. 7, (2009), 07GD02-1.
- (20) 大谷俊博, 草薙祐紀, 石井優, 材料, Vol. 62, No.2, (2013), 60.
- (21) K. E-A. Van Den Abeele and J. Carmeliet, Research Nondestructive Evaluation, Vol.12, No.1 (2000), 31..



- (22) G. L. Jones and D. R. Kobelt, JASA, Vol. 35, No.1, (1963), 5.
- (23) 大谷俊博, 本間 匠, 石井優, 田淵正明, 本郷宏通, 平尾雅彦, 材料, Vol.64, No.2,(2015), 80.
- (24) 平尾雅彦, 非破壊検査, Vol.56, No.6, (2007), 292.
- (25) 木暮嘉明, フォノンとは何か, (1988), 107, 丸善.
- (26) A. J. Croxford, P. D. Wilcox, B. W. Drinkwater, and P. B. Nagy, JASA, Vol.126, No.5, (2009), EL117.
- (27) H. Hirao, A. Tamazawa and H. Fukuoka, J.Appl. Phys., Vol. 56, (1984), 253.
- (28) 本郷宏通, 田淵正明, 劉源, 塚本進, 材料, Vol.62, No.2, (2013), 75.
- (29) F. Fujiyama, K. Mori, D. Kaneko, H. Kimachi, T. Saito, R. Ishii and T. Hino, Inter. J.Pressure Vessel and Piping, Vol.86, Issue 9, (2009), 570.
- (30) 諸岡聡, 友田陽, 足立吉隆, 森戸茂一, 神山崇, 鉄と鋼, Vol.94, No.8, (2008), 313.
- (31) 長井健介, 篠原康浩, 津留英司, 石野まゆ子, 鈴木徹也, 鉄と鋼, Vol.98, No.6, (2012), 267.
- (32) D. C. Wallace, “Thermodynamics of Crystals”, Dover Publisher, pp.14-18 (1972).
- (33) K. Y. Kim, Physical Review B, 54, (1996), 6245.
- (34) R. A. Guyer, K. R. McCall, and G. N. Boitnott, , Physical Review Letter, 74, (1995), 3491.
- (35) O. Buck, W. L. Morris and J. M. Richardson, Appl. Phys. Letter, Vol. 33 (5), (1978), 371.
- (36) A. Granato, and K. Lücke, J. Appl. Phys., Vol.27, (1956), pp.583-593 (1956).
- (37) 久布白圭司, 高橋 聡, 森島 敬子, 材料, Vol. 59, No.11, (2010), 840.