

レーザー粉末床溶融結合法を用いたフェライト耐熱鋼のミクロ組織制御によるクリープ寿命向上

畠 山 友 孝*

1. は じ め に

我々の便利な生活を支えるエネルギーの大半は、火力発電等の熱機関から供給されている。熱機関の効率は作動温度の上昇により向上する。高温・高圧環境で金属材料が長時間使用される火力発電プラント等では材料のクリープ変形や損傷が問題となるため、ミクロ組織制御や材料開発によるクリープ寿命向上と、長時間クリープデータに基づくクリープ寿命評価が重要となる。

筆者の所属する物質・材料研究機構(NIMS)では、前身の金属材料技術研究所(NRIM)時代の1966年から、種々の実用耐熱金属材料の長時間クリープデータを取得してきた⁽¹⁾。得られたデータはNRIM/NIMSクリープデータシートとして公開され、国内外の火力発電プラント等の安全に貢献してきた。現在も、10万時間(約11.4年)クリープデータの取得のため、500台のクリープ試験機が稼働している。

近年、三次元積層造形(Additive Manufacturing, AM)が注目を集めている。代表的な金属材料のAM手法にレーザー粉末床溶融結合法(Laser powder bed fusion, LPBF)がある。LPBFでは、平らに敷き詰めた原料粉末(粉末床)がレーザー照射によって溶融・結合した層を積み重ねることで寸法精度良く複雑形状部材を造形できる。高温・高圧環境で使用される耐熱金属材料に対してLPBFを適用する場合、造形条件の最適化や規格化・実用化を進める上で長時間クリープデータが必要である。ところが、LPBF材の長時間クリープデータの蓄積は国内外で十分に進んでいないのが現状である。

そこで筆者らは、NIMSがこれまで培ってきた長時間クリープ試験技術を活用し、LPBF材の長時間クリープデータ

の蓄積を目指す取り組みを開始した。その中で着目した材料の一つが、改良9Cr-1Mo鋼(ASME Grade 91鋼)である。同鋼は、高効率火力発電プラント部材として広く用いられる高強度フェライト耐熱鋼であるが、核融合炉の構造部材として同鋼のLPBF材が検討された実績があり⁽²⁾、長時間クリープデータを取得する意義があると考えた。また、得られたデータについて学術的な検討を行う上で、NIMSがこれまで蓄積してきた同鋼の通常製法材の豊富なクリープデータ⁽³⁾を活用できると考えた。

本稿では、改良9Cr-1Mo鋼のLPBF材の長時間クリープデータの蓄積を目指す過程で明らかとなった、LPBFならではの特異なミクロ組織形成と、その結果得られたLPBF材の優れたクリープ特性について紹介したい。

2. LPBFにより作製した改良9Cr-1Mo鋼のミクロ組織

LPBF材のクリープ特性評価を行うにあたり、空隙のない緻密な造形体を得ることが研究のスタートとなる。造形条件の探索のため、ハッチ幅 h を0.1 mm、積層厚さ d を0.03 mmで固定し、レーザー出力 P を100, 200, 300 Wの3条件、走査速度 v を400, 600, 800 mm/sの3条件、レーザー走査方向を1層毎に67または90°回転させる2条件のスキャンストラテジーを選択し、計18条件でLPBF材を試作した。このとき、 $E=P/vhd$ で与えられるエネルギー密度は、41-250 J/mm³の範囲であった。

エネルギー密度、スキャンストラテジーとLPBF材の相対密度との関係を図1に示す。エネルギー密度が111-125 J/mm³で相対密度が100%となる緻密なLPBF材が得られ

* 国立研究開発法人物質・材料研究機構構造材料研究センタークリープ特性グループ；主任研究員(〒305-0047 つくば市千現 1-2-1) Enhanced Creep Life of Ferritic Heat-resistant Steel Via Microstructure Control by Laser Powder Bed Fusion; Tomotaka Hatakeyama (Creep Property group, Research Center for Structural Materials, National Institute for Materials Science, Tsukuba)
Keywords: creep, laser powder bed fusion, martensite, δ -ferrite, microstructure
2025年6月24日受理[doi:10.2320/materia.64.602]

た. したがって, このエネルギー密度が最適な造形条件と考え, 111または125 J/mm³で, スキャンストラテジーが67または90°の4試料について, 詳細にマイクロ組織を調査した.

上述の4試料の造形まま材について, SEM-EBSDにより得たIPFマップを図2(a)(c)(e)(g)に示す. 組織形成メカニズムは後述するが, 改良9Cr-1Mo鋼の通常製法材が焼戻

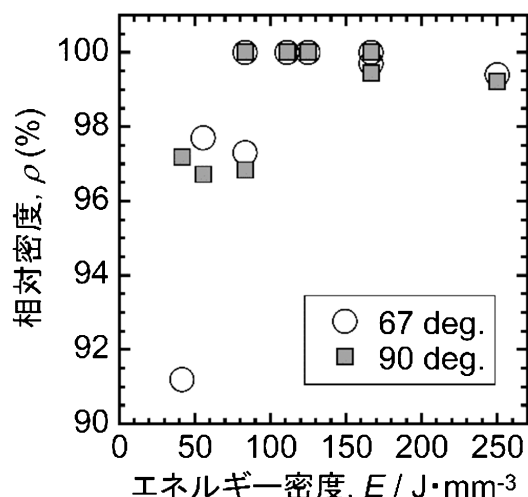


図1 エネルギー密度, スキャンストラテジーと相対密度との関係⁽⁴⁾.

しマルテンサイト単相組織であるのに対し, LPBF 材は δ フェライトとマルテンサイトからなる二相組織を有していた. 各相の分布は造形条件により異なっていた. また, 図2(b)(d)(f)(h)の(001)極点図に示すように, 積層方向に対して(001)が配向する集合組織が形成していた. スキャンストラテジーが90°の場合には, 積層方向に加えてレーザーの走査方向(紙面の水平および法線方向)にも(001)が配向していた.

LPBF の特徴のひとつに, 10⁶ K/sに達する非常に大きな冷却速度が挙げられる. 図2で観察された δ フェライトは, 熔融池で晶出し, 超急冷によって固相変態できずに室温まで凍結されたものである⁽⁵⁾⁽⁶⁾. なお, 改良9Cr-1Mo鋼の通常製法材では, フェライト安定化元素であるCrやMoの偏析により δ フェライトが得られる場合がある. このとき, 偏析による濃度勾配がマイクロ組織変化を促進するため, 通常製法材の δ フェライトはクリープ強度を低下させる⁽⁷⁾. 一方で, LPBF 材の δ フェライトは超急冷によって偏析なしで得られたものであり, 通常製法材の δ フェライトとは形成メカニズムが異なる.

LPBF 材でマルテンサイト(α')は, 図3(a)に示すように主に熔融池の外側に分布していた. これは, 図3(b)-(d)に示すように, 一度晶出した δ フェライトがレーザー照射時の熔融池周辺の熱影響部でオーステナイト(γ)に変態し, 冷却時にマルテンサイト変態($\gamma \rightarrow \alpha'$)したことで得られたもの

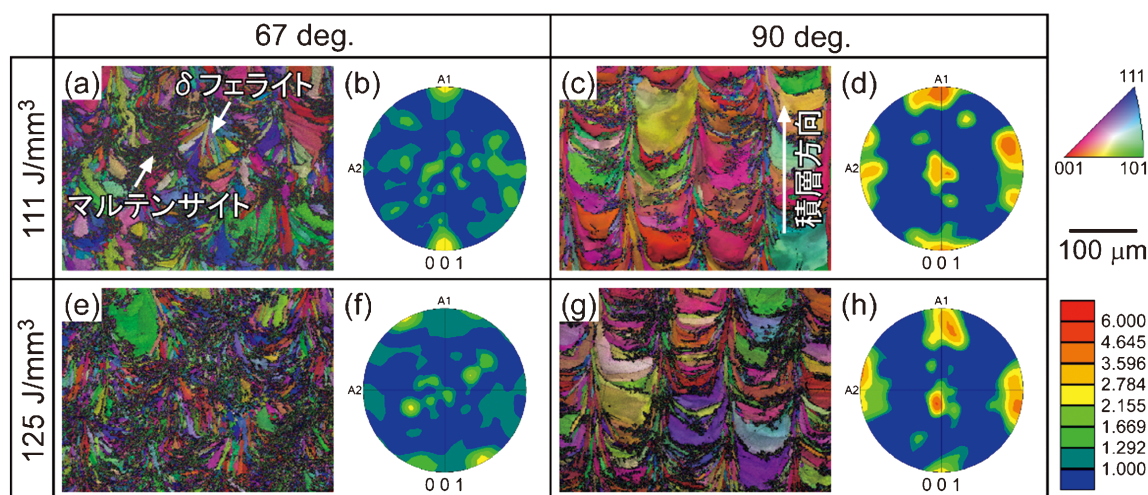


図2 造形まま材の各造形条件でのIQ+IPFマップと(001)極点図⁽⁴⁾.

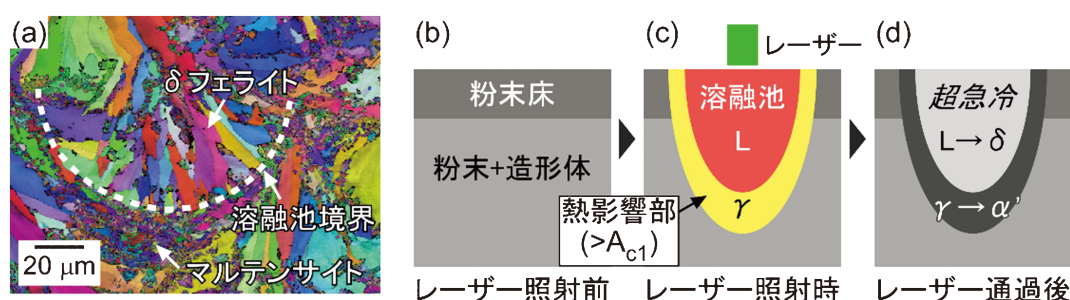


図3 (a) 111 J/mm³-67°材のIQ+IPFマップと(b)-(d) LPBFによる組織形成メカニズムの模式図⁽⁴⁾.

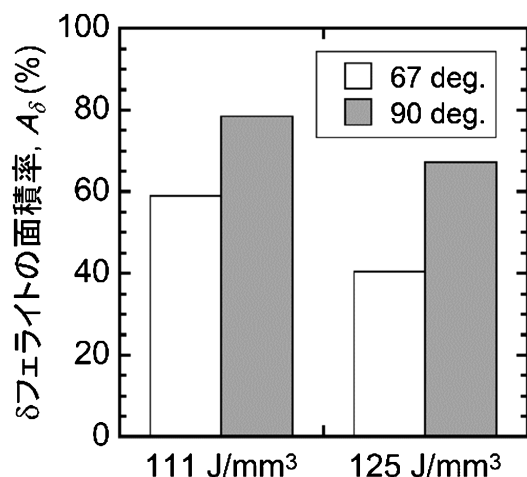


図4 造形条件と δ フェライトの面積率の関係⁽⁴⁾.

と考えられる。

各試料の δ フェライトの面積率を図4に示す。スキャンストラテジーが同じ場合には、エネルギー密度が低い方が熱影響部は小さくなるため、 δ フェライトの面積率が大きくなった。エネルギー密度が同じ場合には、スキャンストラテジーが90°の方が δ フェライトの面積率が大きくなった。これは、熱影響部と上層の熔融池との幾何学的関係に起因する。熔融池の幅はエネルギー密度にも依存するがハッチ幅(0.1 mm)よりわずかに大きい程度であり、マルテンサイトはレーザーの走査経路に沿って形成する。スキャンストラテジーが90°の場合、第n層と第n+2層のレーザーは粉末床上で同一の直線上を通過する。熔融池の深さは0.2 mm程度と積層厚さ(0.03 mm)より大きいので、第n層での熱影響部に整列したマルテンサイトは、第n+2層で再度溶融し δ フェライトに上書きされる。一方で、スキャンストラテジーが67°の場合には、熔融池が到達する範囲でレーザーは粉末床上で同一の直線上を通過しないため、マルテンサイトが再度溶融せずに残る割合が高くなる。以上のメカニズムを考慮することで、エネルギー密度とスキャンストラテジーにより δ フェライトとマルテンサイトの面積率を制御できる。

3. LPBFにより作製した改良9Cr-1Mo鋼のクリープ特性

LPBF材のクリープ特性に及ぼすマイクロ組織の影響を調査するため、 δ フェライトの面積率(A_δ)が最大の111 J/mm³-90°材($A_\delta=78\%$)と最小の125 J/mm³-67°材($A_\delta=41\%$)の造形まま材のクリープ試験を923 Kで行った。得られた応力-破断時間線図を図5に示す⁽⁸⁾⁽⁹⁾。比較のため、NIMSクリープデータシートで報告されている通常製法材(T91)の結果も示す⁽³⁾。923 K-100 MPaの条件における通常製法材の破断時間は1000 h未満であるのに対し、LPBF材は10000 h(約1年2か月)経過時点で試験が継続されている。したが

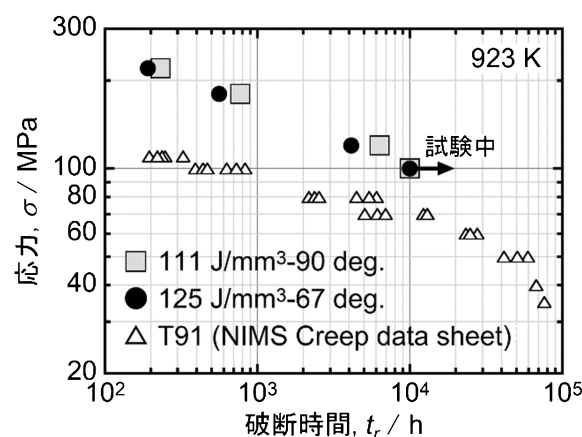


図5 改良9Cr-1Mo鋼のLPBF材(造形まま材)と通常製法材の応力-破断時間線図⁽³⁾⁽⁸⁾⁽⁹⁾.

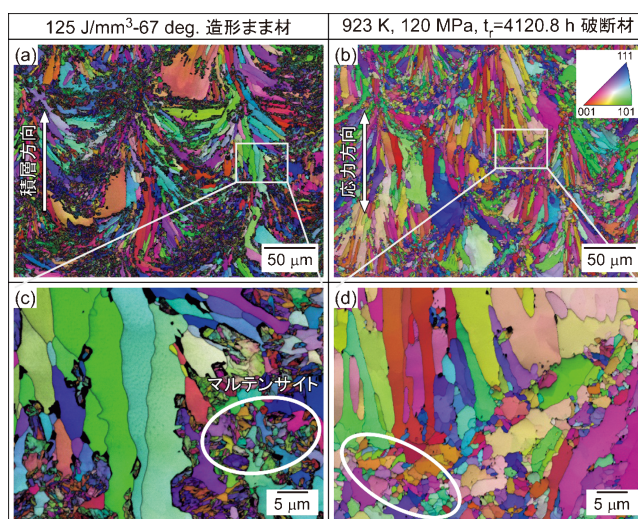


図6 125 J/mm³-67°材の(a)(c)造形まま材と(b)(d)923 K, 120 MPa, 4120.8 h破断材のIQ+IPFマップ⁽⁹⁾.

って、LPBF材は、通常製法材の10倍以上のクリープ寿命を有することが明らかとなった。LPBF材同士を比較すると、 δ フェライトの面積率が大きい111 J/mm³-90°材の破断時間が長いことから、 δ フェライトがクリープ強度に寄与していることが示唆された。

図6に、125 J/mm³-67°材のクリープ前後のIQ+IPFマップを示す。図6(a)(b)から、 δ フェライトの結晶粒の形態はクリープ前後で大きく変化しないことが分かる。一方で、図6(a)と(b)の白枠部分で取得した図6(c)と(d)を比較すると、クリープによりマルテンサイトの粗大化が生じていることが分かる。つまり、 δ フェライトはマルテンサイトと比較してクリープ中のマイクロ組織変化が小さい。

木村らは、熱処理によって初期組織をマルテンサイト、ベイナイト、フェライト+パーライトに制御した0.5Cr-0.5Mo鋼の長時間クリープ特性を評価し、フェライト+パーライトの破断時間が最も長く、マルテンサイトの破断時間が最も短いことを報告した⁽¹⁰⁾。これは、焼なまし組織であ

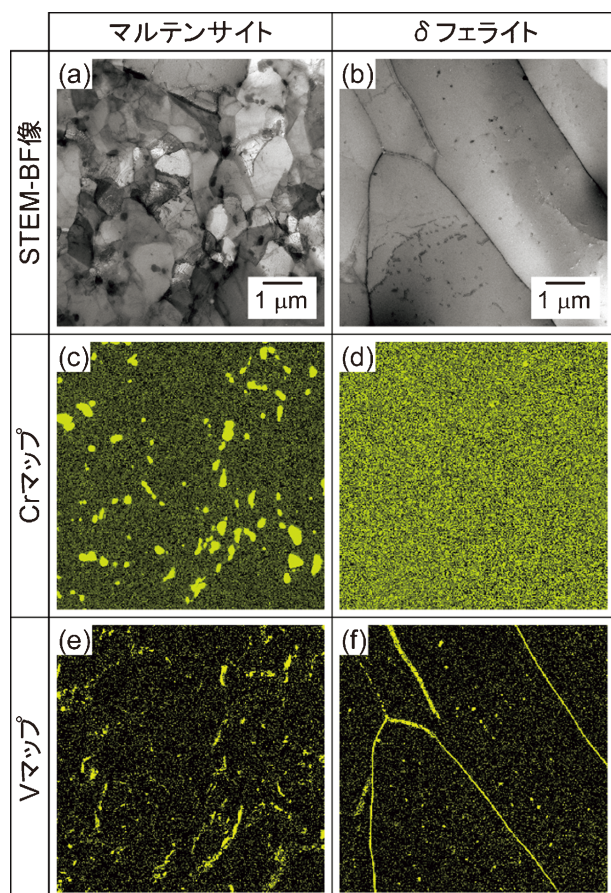


図7 125 J/mm³-67°材の923 K, 120 MPa, 4120.8 h 破断材の (a) (b) STEM 明視野像, (c) (d) Cr マップ, (e) (f) V マップ⁽⁹⁾.

るフェライト中の可動転位密度が低いと考えられており⁽¹⁰⁾, マルテンサイトよりもフェライトの方がクリープ特性に有利なマイクロ組織であることが示唆される。

改良 9Cr-1Mo 鋼は焼入れ性に優れており, 徐冷でもマルテンサイト変態が生じる. このような材料について, LPBF 特有の超急冷により固相変態を抑制することで(δ)フェライトを含むマイクロ組織を得た本研究は, LPBF 特有の超急冷の活用によって, 従来の加工熱処理では困難であったマイクロ組織制御が可能となることを示す重要な知見である。

図7に, 125 J/mm³-67°材の923 K, 120 MPa, 4120.8 h 破断材のマルテンサイトと δ フェライトのSTEM明視野像と, STEM-EDSにより得たCrマップ, Vマップを示す. Crマップは $M_{23}C_6$, VマップはMX炭窒化物の析出に対応する. 造形まま材では $M_{23}C_6$ やMXの析出はほとんど確認されなかったが, 破断材のマルテンサイトでは $M_{23}C_6$ とMXが析出していた. これは, 通常製法材と同様の析出挙動である. 一方で, 破断材の δ フェライトでは $M_{23}C_6$ の析出は確認されず, 粒界に密にMXが析出していた。

LPBF材の炭素量は0.1 mass%程度と通常製法材と同程度であるが, δ フェライトの炭素量は0.04 mass%程度と低く, マルテンサイトに炭素が濃化していた⁽⁹⁾. この炭素の分

配は, LPBF中のマイクロ組織形成に起因すると考えられる。

図3(c)に示すように, LPBF中には造形体の δ フェライトと熱影響部で変態したオーステナイトが共存する瞬間が存在する. このとき, 超急冷によって δ フェライトに過飽和に固溶した炭素が固溶限の大きなオーステナイトに分配するためマルテンサイトの炭素量が高くなったと考えられる。

Taneikeらは, 9Cr鋼の炭素量を低減させることで $M_{23}C_6$ の析出量を減らしMXの析出を増加させることで, 9Cr鋼のクリープ強度を著しく向上させることに成功した⁽¹¹⁾. これは, $M_{23}C_6$ より粗大化の遅いMXによる粒界ピン止め効果に起因すると考えられている⁽¹¹⁾. このことから, LPBFの超急冷によってクリープに有利な δ フェライトが得られたことに加え, δ フェライトの炭素量が低減されたことで図7(f)に示すように粒界に密にMXが析出し, ミクロ組織変化を抑制したことがLPBF材の優れたクリープ強度の要因であると推察された。

4. おわりに

LPBFにより作製した改良9Cr-1Mo鋼は, LPBF特有の超急冷によって晶出後に固相変態せずに凍結された δ フェライトと, 溶融池周辺の熱影響部での固相変態によって得られたマルテンサイトからなる二相組織を有していた. 各相の面積率は造形条件により制御可能であった. 造形まま材について最長10000 hの長時間クリープ試験を実施した結果, 造形まま材は通常製法材の10倍以上のクリープ寿命を有することが分かった. また, δ フェライトの面積率が大きい方が破断時間は長かった. これは, LPBF特有の超急冷を活用したマイクロ組織制御によって δ フェライトが得られたことに加え, δ フェライトの粒界に密に析出したMXがクリープ中のマイクロ組織変化を抑制したためと考えられた. 現在, より低応力・長時間側のクリープ試験が進行中である。

LPBFは, 複雑形状部材を得る手段として注目を集めているプロセスである. 金属材料のマイクロ組織制御は, 平衡論や速度論に基づいた加工熱処理によって行われる. 一方で, 本稿で紹介した成果は, LPBFの超急冷を速度論の制約を打破する特異なマイクロ組織制御の手段として活用し, 優れた特性を得た成功例として位置付けられる. 本研究を開始したきっかけは冒頭で述べた通りであり, このような成果は当初予想していなかった. この「セレンディピティ」を発展させるべく, 今後も研究に励んでいきたい。

本研究は, NIMSの澤田浩太氏, 渡邊誠氏, 草野正太氏と実施したものです. 積層造形はNIMSの鈴木大氏, 笠原健司氏, クリープ試験はNIMSの谷内泰志氏, 関戸薫子氏, 野島健大氏, ミクロ組織解析はNIMSの原徹氏, 諸永拓氏, 原由佳氏, 中村晶子氏の支援により実施しました. 本研究の一部は, 中部電力原子力安全技術研究所の公募研究および日本ボイラ協会のボイラー・圧力容器等研究助成の支援を受けて実施されました. ここに深く謝意を表します。

文 献

- (1) K. Sawada, K. Kimura, F. Abe, Y. Taniuchi, K. Sekido, T. Nojima, T. Ohba, H. Kushima, H. Miyazaki, H. Hongo and T. Watanabe: *Sci. Technol. Adv. Mater.*, **20**(2019), 1131–1149.
- (2) N. Ordás, L. C. Ardila, I. Iturriza, F. Garcíanda, P. Álvarez and C. García-Rosales: *Fusion Eng. Design*, **96–97**(2015), 142–148.
- (3) NIMS Creep Data Sheet, No. 43A, National Institute for Materials Science, (2014).
- (4) T. Hatakeyama, K. Sawada, M. Suzuki and M. Watanabe: *Addit. Manuf.*, **61**(2023), 103350.
- (5) F. Villaret, X. Boulnat, P. Aubry, J. Zollinger, D. Fabrègue and Y. de Carlan: *Materialia*, **18**(2021), 101157.
- (6) Z. Lyu, W. Hoffmann, W. Khan, T. Lienert and L. Li: *J. Mater. Res. Tech.*, **36**(2025), 5128–5143.
- (7) S. Kobayashi, K. Sawada, T. Hara, H. Kushima and K. Kimura: *Mater. Sci. Eng. A*, **592**(2014), 241–248.

- (8) 畠山友孝, 澤田浩太, 草野正大, 渡邊 誠: *ボイラ研究*, **448** (2024), 4–10.
- (9) T. Hatakeyama, K. Sawada, M. Kusano and M. Watanabe: *Addit. Manuf.*, **93**(2024), 104445.
- (10) K. Kimura, H. Kushima, E. Baba, T. Shimizu, Y. Asai, F. Abe and K. Yagi: *Tetsu-to-Hagané*, **86**(2000), 542–549.
- (11) M. Taneike, F. Abe and K. Sawada: *Nature*, **424**(2003), 294–296.



島山友孝

★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★

2020年 3月 東北大学大学院工学研究科博士後期課程
修了・博士(工学)

2020年 4月 物質・材料研究機構若手国際研究センタ-
ICYS 研究員

2022年 4月 物質・材料研究機構構造材料研究センタ-
研究員

2025年 4月 現職

専門分野：クリープ特性，マイクロ組織解析

◎耐熱金属材料のマイクロ組織と長時間クリープ特性に
関する研究に従事。

★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★