

白色 X 線マイクロビーム、二次元検出器と半導体検出器を用いた
ステンレス鋼の結晶粒界応力分布測定
—結晶粒毎の応力分布の冷間加工度依存性—
**Grain stress-distribution of stainless steel
using white X-ray micro beam, flat panel sensor and solid-state detector
-Influence of cold-work on grain stress-distribution-**

山田 卓陽^a, 寺地 巧^a, 福村 卓也^a, 有岡 孝司^a,
梶原 堅太郎^b, 佐藤 眞直^b, 橋本 保^b
Takuyo Yamada^a, Takumi Terachi^a, Takuya Fukumura^a, Koji Arioka^a,
Kentaro Kajiwara^b, Masugu Sato^b, Tamotsu Hashimoto^b

^a(株)原子力安全システム研究所, ^b(財)高輝度光科学研究センター,
^aInstitute of Nuclear Safety System, incorporated,
^bJapan Synchrotron Radiation Research Institute

非鋭敏化ステンレス鋼の粒界型応力腐食割れ機構解明のため、冷間加工度の異なる SUS316 の結晶粒毎の応力分布の外力負荷による変化を計測することを試みた。結晶粒毎の応力を測定するため、50 μ m 程度に絞った白色 X 線を透過配置で試料に照射し、2 次元検出器および半導体検出器を組み合わせて応力測定を実施した。得られた結果から、外力負荷による結晶粒毎の挙動に冷間加工度依存性が示唆された。

キーワード： ステンレス鋼、粒界型応力腐食割れ、結晶粒ひずみ分布、応力集中、白色 X 線、2 次元検出器、半導体検出器

背景と研究目的：

高温水中におけるステンレス鋼の粒界型応力腐食割れ(IGSCC)進展速度は、冷間加工度(cold-work, CW)により増大する[1-8]。この原因のひとつとして、粒界近傍でのひずみ集中が冷間加工度に伴い大きくなることが、他の手法で指摘されている[9]。しかし、実際に結晶粒界近傍の応力について実測した例は、我々の知る限り表面での測定結果 1 例のみ[10]であり、十分な検討はない。非鋭敏化冷間加工材の IGSCC メカニズムの解明は、高経年化を迎える軽水炉における重要課題のひとつであり、このメカニズムの一端を、応力あるいはひずみの観点から検討することが全体計画の目的である。

このメカニズム検討の一環として、SPRING-8 で 06B 期から、粒界近傍の局所的な応力が、冷間加工度や応力負荷状態によりどのように変化するかを明らかにするため、白色 X 線マイクロビームを用いた波長分散型 X 線回折測定による局所ひずみ分布測定技術の開発を行った。08B 期で測定技術の基礎開発がほぼ完了し、09B 期まで、冷間加工度の異なる素材中、任意の結晶粒の粒内ひずみ分布の測定に成功した。その結果、粒界近傍でひずみ集中の傾向を示す結晶粒を一部確認したものの、粒全体の平均ひずみがほとんど引張ひずみを示さない粒も存在した。そのため、冷間加工度の違いによる粒界近傍ひずみ分布の差の有無については明確な傾向が得られていない。これは個々の結晶粒内だけでなく、結晶粒毎の応力分配に分布が生じていることを示唆している。この検証のためには、結晶粒毎のひずみ分布の確認が必要であるが、これまで実施してきた結晶粒界近傍のひずみ分布測定では、ひとつの結晶粒の中で多くの測定点を必要とするため、現状使用している微小薄板引張試験片の平行部に存在する 20~30 個程度の測定は、時間の制約上困難であった。

そこで本課題では、この検証のため、冷間加工度 0 および 20% の SUS316 材について結晶粒毎の平均ひずみ分布を試料全体にわたって測定するために、これまでの測定手法を踏襲し、比較的大きなビームサイズで且つ各結晶粒につき 1~3 点程度の測定をすることにより、結晶粒毎の応力

分布傾向を確認し、冷間加工度や応力負荷の影響について検討した。また、この測定を実施するにあたり、これまでに実施してきた回折面間隔(d 値)の変化によるひずみ評価ではなく、応力評価を試みた。

実験：

供試材は、冷間加工度 0(0CW 材)および 20%(20CW 材)の SUS316 で、20CW 材の微小薄板引張試験片は、図 1 で示したように、CT: compact tension 試験片(T-S 方位)の応力負荷方向と引張方向、且つ CT き裂断面と引張試験片観察面が同一となるように設定した。SUS316 は、溶体化熱処理により、結晶粒を粗大化(350 μm 程度)したものを用いた。図 2 に、実験の概念図を示す。図のように、微小薄板引張試験片を小型引張試験機に設置し、図 3 に示した応力-ひずみ線図を元に、外力を負荷した。表 1 に外力負荷なしを含む、外力負荷条件の一覧を示す。

表 1. 外力負荷条件一覧

	外力負荷なし	弾性限内	0.1%耐力 0CW 材	0.1%耐力 20CW 材
0CW 材	0MPa	100MPa	220MPa	—
20CW 材	0MPa	100MPa	300MPa	380MPa

各試料、外力負荷条件ごとに、スリットを用いて 50 μm ×50 μm のマイクロビームに成型した白色 X 線を透過配置で、微小薄板引張試験片の平行部の任意の位置に照射した。得られる回折パターンデータはフラットパネルセンサー(FPS)で 2 次元画像として取得し、この画像データの回折ピークスポット位置に半導体検出器(SSD)を設置して各回折ピークのエネルギーを分析した。これらのデータから得られる各回折ピークの回折角とエネルギーからそれぞれの回折面間隔 $d_{(hkl)_i}$ 値を求め、各回折面に生じている弾性歪($\epsilon_{(hkl)_i}$)を、次式から求めた。

$$\epsilon_{(hkl)_i} = (d_{(hkl)_i} - d_{(hkl)_0}) / d_{(hkl)_0}$$

ここで、 $d_{(hkl)_i}$ は任意の結晶粒の任意の面間隔、 $d_{(hkl)_0}$ は、無ひずみの d_0 として、今回測定した 0CW 材の全ての d 値の平均値とした。さらに各結晶粒につき、複数の回折面の弾性歪の情報から、その結晶粒に発生している応力状態について次のような手順で応力テンソル解析[11]を行った。まず、座標系として外力負荷方向を x 方向、その試料面内垂直方向を y 方向、試料面法線方向を z 方向と定義し、z 方向には応力が開放していると仮定して次のようなテンソルで応力状態を表現できるとする。

$$\begin{pmatrix} \sigma_x & \tau_{xy} & 0 \\ \tau_{xy} & \sigma_y & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

ここで σ_x 、 σ_y はそれぞれ外力負荷方向およびその垂直方向の応力、 τ_{xy} は、せん断応力である。これら 3 個の応力成分と測定した回折格子面に発生している弾性ひずみとの関係は次の式で表すことができる。

$$\epsilon_{(hkl)} = A_{(hkl)}\sigma_x + B_{(hkl)}\tau_{xy} + C_{(hkl)}\sigma_y$$

この式中の、A,B,C は、SUS316 の結晶構造に対する弾性異方性と、回折面座標、結晶座標、試料座標間の座標変換行列から計算される定数である。各結晶粒につき 3 個以上の回折面の弾性ひずみのデータがあれば、この関係式の連立方程式を解くことで σ_x 、 σ_y 、 τ_{xy} を求めることができる。

結果および考察：

図 4 に 20CW 材の EBSD(electron back scattering diffraction)測定結果の代表例を示す。上が結晶方位図、下が KAM(Kernel average misorientation)図である。図 5 は、今回の実験で試料上のビーム照射位置を走査した際の、FPS で測定した回折パターンの変化から結晶粒界の位置を可視化した粒

界の画像（黒く見える部分が結晶粒界に相当する[12]）である。このように各微小薄板引張試験片は測定前に、表裏両面の結晶粒分布をEBSDで測定し、図5に示したFPSによる粒界画像と突き合わせることで、各測定結晶粒を決定した。図5中の丸印と矢印は、測定位置および測定した主応力を示しており、矢印の方向が応力の方向、長さが応力の大きさに対応する。なお、矢印の無いデータは、ピーク強度の高いものに減衰板を合わせたため、結果として強度の低いピークを検出できなかったため、データを取得できなかったものである。したがって、0CW材の応力分布については、十分な数の測定ができなかったが、これについては、今後減衰板の適正化等で、改善可能と考えられる。

図6(a)と(b)に、それぞれ0CW材と20CW材の各結晶粒の垂直応力（引張方向）の外力による変化を示す。図6(a)から、0CW材でも、外力負荷なしにもかかわらず応力分布に若干のバラツキがあり、その最大値(420MPa)と最小値(-70MPa)の差は490MPa程度であった。ここで、応力値の正負符号は、それぞれ引張応力および圧縮応力を示している。このバラツキは、測定計誤差(±100MPa)よりも大きいので、試料に何らかのひずみが存在していた可能性がある。一方、20CW材のバラツキは、最大値(310MPa)と最小値(-310MPa)の差620MPaと、0CW材の値よりも大きい。このことから、20CW材で観測されたバラツキは、誤差成分のみではなく、冷間加工による残留応力が存在していたために観測されたものと考えられる。20CW材では、図6(b)から、外力負荷(380MPa, 0.1%耐力)により、概ね一定の割合で応力が増加する傾向を示す。結晶粒によっては、最大約600MPaを示す粒もあれば、最小約80MPaとその差は680MPa程度バラツキ、結晶粒毎に大きな応力差が存在することが確認された。

まとめ：

外力負荷なしの20CW材の結晶粒毎の応力差は620MPa程度であり、0CW材の同様の結果(490MPa)および測定計誤差(±100MPa)に比べて大きかった。このことから、20CW材で観測されたこの応力のバラツキは、誤差成分のみではなく冷間加工による残留応力によるものと考えられる。各結晶粒は、外力負荷(380MPa, 0.1%耐力)により、概ね一定の割合で応力が増加する傾向を示し、結晶粒毎に大きな応力差が存在することが確認された。このことは、結晶粒毎に、粒内のひずみ分布も変化しうることを示唆している。

今後の課題：

この結果を参考に、結晶粒毎に存在する残留ひずみを考慮して測定結晶粒を選定し、結晶粒内のひずみあるいは応力分布を測定する必要がある。その結果から、粒界近傍の応力集中傾向と結晶粒毎の残留ひずみおよび冷間加工度の関係について今後検討する。

参考文献：

- [1] Y. Kanazawa, M. Tsubota, 'Corrosion 94' Nace, Baltimore, (1994), Paper No. 237.
- [2] M. O. Spidel, Vortrag 5 VGB Konferenz: Korrosion und Korrosionsschutz in der Kraftwerkstechnik, Essen, (1995).
- [3] P. L. Andresen, T. M. Angeliu, W. R. Catlin, L. M. Young and R. M. Hprn, Corrosion/2000, paper No. 203 (2000).
- [4] P. L. Andresen, L. M. Young, W. R. Catlin and R. M. Horn, Corrosion/2002, Paper No. 2511 (2002).
- [5] T. Shoji, G. Li, J. Kwon, S. Matsushima and Z. Lu, Proceedings of the 11th Int. Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems, Stevenson, WA, (2003), pp. 834-844.
- [6] M. L. Castano Marin, M. S. Garcia Redondo, G. de Diego Velasco, D. Gomez Biceno, Proceedings of the 11th Int. Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems, Stevenson, WA, (2003), pp. 845-854.
- [7] 寺地巧, 山田卓陽, 千葉吾郎, 有岡孝司, INSS JOURNAL, Vol. 13, (2006), pp. 179-193.
- [8] K. Arioka, T. Yamada, T. Terachi and G. Chiba, Corrosion 62, 7 (2006), pp. 568-575.
- [9] 例えば、L. M. Yong, P. L. Andresen, T. M. Angeliu, Corrosion/2001, paper No. 01131 (2001).
- [10] T. Yonezawa, T. Iwamura, Fontevraud 6, 3b-A137 (2006).
- [11] 田中啓介, 鈴木賢治, 秋庭義明, 残留応力のX線評価, p263, 養賢堂.
- [12] Kentaro Kajiwara, Masugu Sato, Tamotsu Hashimoto, Ichiro Hirosawa, Takuyo Yamada, Takumi Terachi, Takuya Fukumura and Koji Arioka Phys. Status Solidi A 206, (2009). (pages 1838-1841).

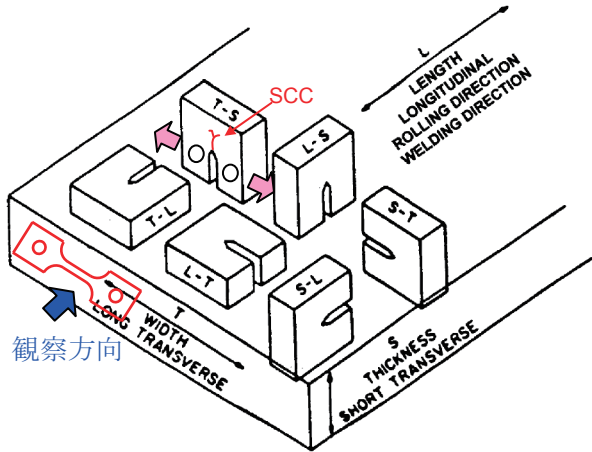


図1. 試験片採取方位(20CW 材)

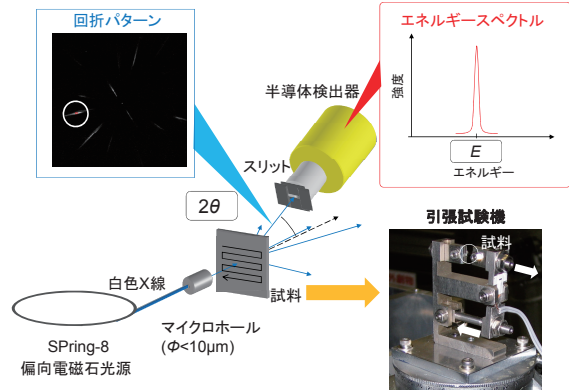


図2. 測定概念図

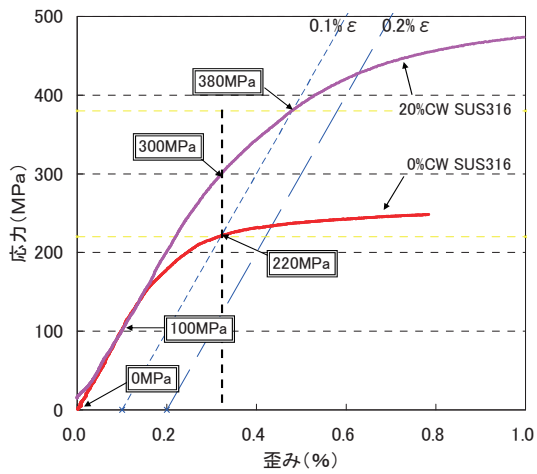


図3. 外力負荷条件

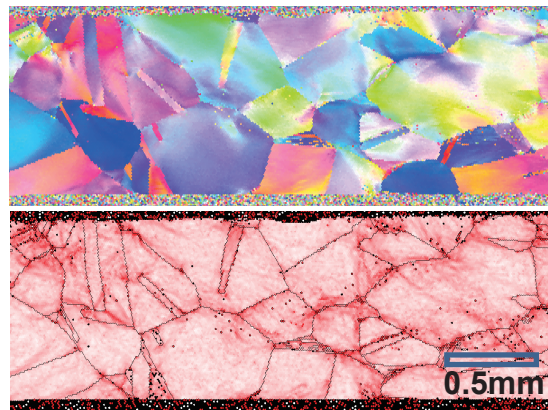


図4. 20CW 材の EBSD 測定結果代表例
上：結晶方位図、下：KAM 図

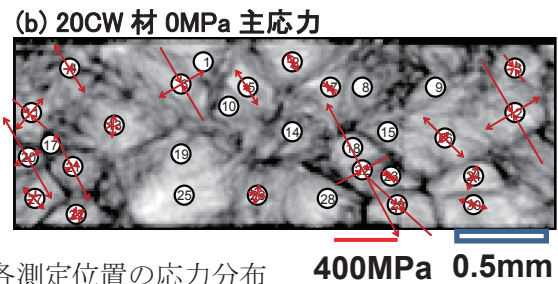
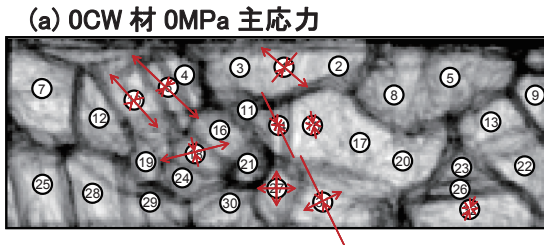


図5. FPS 結晶粒界像と各測定位置の応力分布

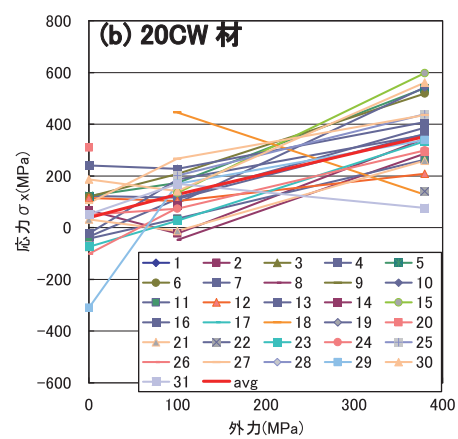
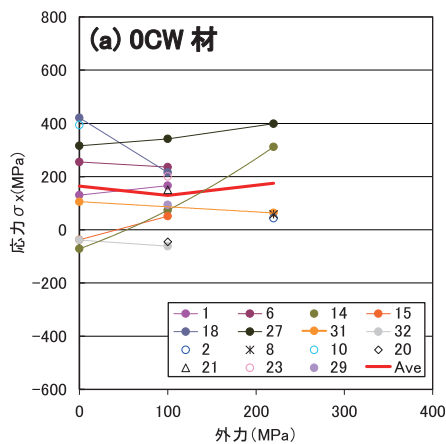


図6. 各結晶粒の垂直応力 (引張方向) の外力による変化