

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歪み分布の加工方位および加工度による影響

Effect of cold-work on strain-mapping at grain boundary of stainless steel using white X-ray micro beam, flat panel sensor and solid-state detector

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,

^a Institute of Nuclear Safety System, incorporated,

^b Japan 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 の応力負荷時の粒界近傍でのひずみ集中を観察することを試みた。結晶粒ごとのひずみ分布を測定するため、7 μm 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測定を実施し、得られた面間隔 (d 値) からひずみを算出した。得られたひずみを、測定位置ごとに再構成し、任意の結晶粒のひずみ分布が得られた。

キーワード： 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) き裂進展速度は、冷間加工度により増大する[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のが、他の手法で指摘されている。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ため、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、白色 X 線マイクロビーム走査および半導体検出器 (SSD) と画像検出器 (FPS) を用いて測定する試みを、主に測定手法開発の観点で 06B 期から継続的に実施してきた。08B 期ではそれらの結果を踏襲し、いくつかの技術的課題は残るものの、測定手法としては概ね妥当な結果が得られることを確認した。09A 期と本研究において、その残された技術課題の解決を図りつつ、主目的としては次のステップとして、この開発した測定手法を用いた結果を実際の材料挙動として評価すべく、加工度の異なるステンレス鋼の結晶粒内のひずみ測定を実施した。

実験：

IGSCC においてき裂の進展箇所となる結晶粒界部に注目し、その局所的な歪みが、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、白色 X 線マイクロビーム走査および半導体検出器 (SSD) と画像検出器 (FPS) を用いて測定する試みを実施した。測定試料としては、厚さ 0.3mm 程度の微小引張試験片 (SUS316) で、冷間加工度 2 条件 (0%CW, 20%CW) について、応力負荷なし、ありの計 4 条件について、各々結晶粒 2~4 個の d 値分布を計測した。

測定手法は、08B 期までに開発した以下の手順で実施した。ただし、前回までの技術課題として、X 線マイクロビームの照射位置によって回折スポットの位置が微小に変化するため、SSD の角度位置を固定して測定した場合、SSD が回折スポット位置からはずれデータの欠落が発生する問題があった。そこで本測定では、照射位置ごとに半導体検出器の位置を自動的に微調整できるように改善を実施した。詳細は後述する。

測定の大まかな流れを以下に、測定装置構成図を図 1 に示す。

- ・測定準備（回折計の光軸調整、マイクロビームの形成、SSD のエネルギー較正など）
- ・試料交換および外力負荷ごとに以下の測定を繰り返す。
 - (1)結晶粒界の画像化（歪測定位置決定。フラットパネルセンサを使用。）
 - (2)局所的な歪測定（半導体検出器を使用。）

(1)の結晶粒界画像化の測定手順を以下に示す。

試料に白色 X 線マイクロビームを照射し、試料を 2 次元走査することで、各照射位置からの回折パターンを画像検出器 FPS で測定する。回折パターンの変化の大小の指標は、隣り合う照射領域からの回折パターン画像の差の二乗を求め、その画像積分値とする。結晶粒界ではこの値が大きくなると考えられる。スキャンは 15 μm ステップでおよそ 1x1mm の範囲を測定した。

(2)の局所的なひずみ測定の手順を以下に示す。

(1)の結晶粒界像とそれの対応する FPS の回折パターン像を見ながら、外力負荷方向および回折ベクトル方向を検討し、どの回折スポットを測定するか決定する。決定した回折スポット位置にスリットおよび半導体検出器（SSD）を移動し、回折 X 線のエネルギーを測定する。ただし、冷間加工材や外力負荷後の回折スポットは、図 2 で得られるようにブロードで、且つ X 線照射位置ごとに回折角度も微小に変化するため、以下の改善を実施した。まず FPS のデータから全測定位置の回折スポットを包含できる範囲を設定し（例えば、図 2 の赤点線枠内）、その範囲内で回折強度が最大になる角度位置で、実際の測定を実施するように SSD 角度調整機構を自動設定して測定を実施した。これにより、1 回の設定でデータの欠落なしに測定を実施することができると考えられる。この手順で、各 2~4 個の結晶粒の d 値分布を測定した。

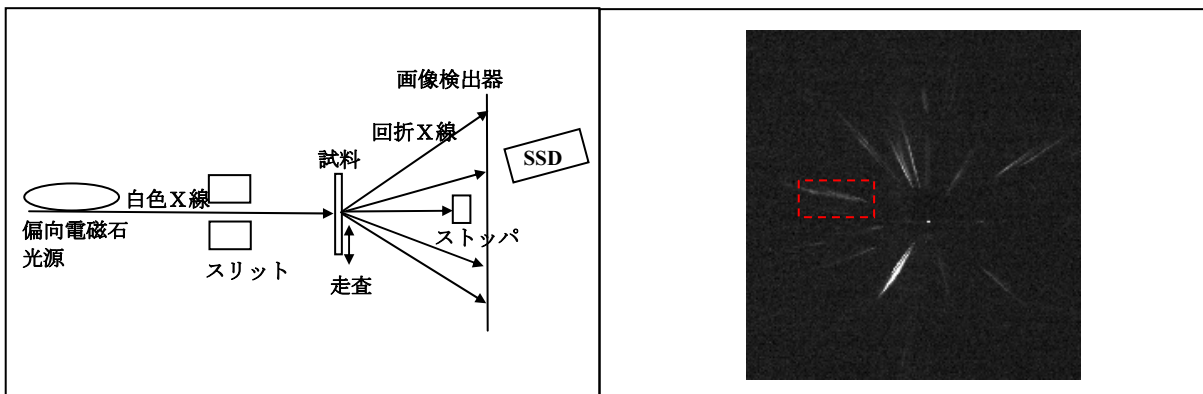


図 1. 測定計構成図

図 2. 20%CWSUS316 材の回折パターンの例

結果および考察：

測定した d 値分布の 1 例を図 3 に示す。図は格子面間隔が広いほど白く表示されるように、面間隔 0.054~0.055nm の範囲を 256 階調のグレースケールで分割し調整した。従って、白く見えるほど引張のひずみが存在することを示す。ただし、完全な黒はデータのない部分、完全な白は、別の面間隔 (0.064nm 程度) を持つ結晶粒で、ここでは表示範囲外である。この図から、本課題で目的とする、結晶粒界近傍の d 値が、データ欠落なしに採取できたことが分かる。

次に、得られた d 値から、各結晶粒の平均ひずみをまとめたものを表 2 に、参考のため 08B 期で測定した同様の結果を表 1 に示す。結晶粒の平均ひずみ ε (%) は、同一結晶粒に対して、応力負荷前の格子面間隔 d_0 、応力負荷後の格子面間隔 d_i を用い、式(1)で算出した。

$$\varepsilon(\%) = \frac{d_i - d_0}{d_0} \times 100 \text{ --- (1)}$$

その結果、0%CW 材の応力負荷後のひずみは、結晶粒によって多少ばらつきはあるが、前回のデータを含めて結晶粒 5 個全てがプラス即ち引張の値を示した。一方で、20%CW 材の応力負荷後のひずみは、引張の 0.303%の値を示す結晶粒があるものの、マイナス即ち圧縮の傾向を示す結

晶粒があった。対象とした面間隔や設定した負荷応力が異なるため一概にはいえないが、このことは冷間加工材の場合、結晶粒間の異方性等により、粒間のひずみが比較的大きく異なる可能性が示唆された。今回の応力負荷条件は、0%CW と 20%CW で負荷ひずみが同等となるように設定したので、マクロな負荷ひずみが 0%CW 材と 20%CW 材とで同じでも個々の結晶粒のひずみは異なる傾向が得られた。ただし、マクロな負荷応力は引張なので、結晶粒間のひずみが異なるとしても、全ての結晶粒を測定すればマクロな負荷応力で想定されるひずみ量と概ねバランスするものと考えられるので、今後この点については更なる検討が必要である。

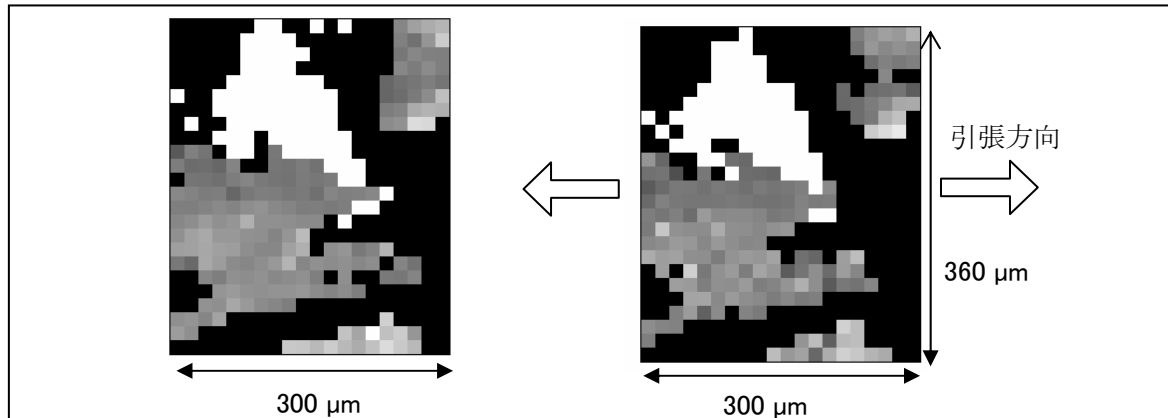


図 3. 20%CWSUS316 材の結晶粒ひずみ分布図の例（表 2 の結晶粒 L に対応）

ピクセル間隔：15 μm 、白色ほど相対的に格子面間隔が広いことを示す。
ただし、黒はデータなし、白はデータ表示範囲外（別の結晶粒）。

図には示さないが、各測定位置の d 値を用い、各測定点でのひずみ分布も評価した。今回の結果では、結晶粒界近傍に顕著な応力集中は観察されなかった。この原因のひとつとして、対象とした結晶粒の平均ひずみが引張傾向ではなかったことが考えられる。08B 期の測定では、平均ひずみがプラスの結晶粒で、粒界に応力集中する傾向も見られているので、結晶粒（あるいは対象面間隔）によってその傾向が変化する可能性がある。ただし、20%CW 材の今回の負荷応力は、08B 期の負荷応力に比べて、低めに設定したことも無視できないので、この点を含めて今後更なる検討が必要である。

以上の結果を以下にまとめる。

(1) SSD 測定手順を、常に最大ピーク強度位置で測定できるように改善し、データの欠落なしに結晶粒内の d 値分布を測定できるようになった。これにより、本課題で目標とする粒界近傍のひずみ分布を評価可能となった。

(2) 0%CW 材は、08B 期のデータを含めて結晶粒 5 個全てがプラス即ち引張の傾向を示し、マクロな負荷応力から想定されるひずみの傾向と概ね一致した。一方、20%CW 材は、マイナス即ち圧縮の傾向を示す結晶粒も存在し、0%CW 材と異なる傾向が得られた。このことから、20%CW 材の方が結晶粒間の異方性が大きいことにより、粒間のひずみが大きく異なっている可能性が示唆された。

(3) 結晶粒界のひずみ分布が、冷間加工度や負荷応力によりどのように変化するかを評価するにあたり、マクロな負荷応力を個々の結晶粒がどのように分担するのか、結晶粒ごと（粒内の分布でなく）のひずみを測定することが必要であることなどの新たな技術課題が明らかになった。

今後の課題：

本検討結果から、0%CW に比べて 20%CW 材の方が結晶粒間の異方性が大きいことにより、粒間のひずみが大きく異なっている可能性が示唆された。しかし、本検討では 08B 期の実験と負荷応力が異なること、 n 数が少ないため、全体のひずみ量と整合しないこと等の問題がある。今後この 2 点について、検証が必要である。

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.

表 1. 各試料条件の結晶粒の平均ひずみ ϵ (08B の結果)

加工度	結晶粒	応力負荷条件	回折面	ひずみ ϵ (%)
0%CW	A	0.1%耐力相当	(3 1 1)	0.128
	B		(4 2 2)	0.067
	C		(4 2 0)	0.033
20%CW	D	0.1%耐力相当	(3 1 1)	0.303
	E		(2 2 0)	-0.084
	F		(1 1 1) (2 0 0)	-0.057 ^{*1}

※1：応力負荷前後で、対象とする面間隔が変わってしまったため参考値。

表 2. 各試料条件の結晶粒の平均ひずみ ϵ (今回の結果)

加工度	結晶粒	応力負荷条件	回折面	ひずみ ϵ (%)
0%CW	G	0.1%耐力相当	(4 0 0)	0.204
	H		(4 0 0)	0.220
20%CW	I	0%CW 材の負荷 ひずみと同等の 負荷ひずみ	(4 4 0)	-0.163
	J		(4 4 0)	-0.071
	K		(4 4 0)	-0.046
	L		(6 2 2)	-0.032 ^{*2}

※2：結晶粒 3 個の複合値のため、参考値。