

機関番号：82110

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2008 ～ 2010

課題番号：20760598

研究課題名 (和文) 陽電子マイクロビームを用いた応力腐食割れの超微視的解析

研究課題名 (英文) Microscopic analysis of stress-corrosion cracking of stainless steel by a positron microprobe

研究代表者

前川 雅樹 (MAEKAWA MASAKI)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・研究員

研究者番号：10354945

研究成果の概要 (和文)：

ステンレス鋼応力腐食割れ亀裂の先端部の劣化評価に、陽電子マイクロビームを適用した。亀裂進展前には単空孔程度の大きさの空孔型欠陥が亀裂先端に導入され、優先的に亀裂が進展することが分かった。空孔は亀裂導入によるひずみがもたらす塑性変形により誘起されると考えられる。

研究成果の概要 (英文)：

The evaluation of a crack tip of stress-corrosion cracking on the stainless steel was carried out by a positron microprobe. The vacancy-type defects are introduced before crack grows. Vacancy type defects may be generated as crack precursor. Vacancy defects were identified as monovacancies. It was found that plastic deformation near the crack tip is one the candidate for the source of such vacancy defects.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	500,000	150,000	650,000
2009 年度	500,000	150,000	650,000
2010 年度	1,200,000	360,000	1,560,000
総計	2,200,000	660,000	2,860,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：陽電子マイクロビーム、陽電子消滅法、空孔型欠陥、応力腐食割れ、ステンレス鋼、亀裂進展、耐食性、熱鋭敏化

1. 研究開始当初の背景

ステンレス鋼の応力腐食割れ(SCC)は、腐食性の環境にある材料に引張応力が作用することで、予想されているよりもはるかに速く亀裂が生ずる割れ現象である。これはステンレス表面の Cr の不働態皮膜の破損が大きな要因として注目され、実際に不働態膜が劣化しにくい低炭素ステンレス鋼が開発されたことで SCC 抑制に一応の成果を見た。しかし、近年この低炭素ステンレス鋼においても SCC が発生することが発見された。現在、破壊メカニズムの解明に向けて、精力的に研究が進

められている。近年、SCC 機構解明には亀裂際先端部での原子レベルでの微細構造研究が注目され、分析透過電顕による超高倍率観測から従来の破壊理論では説明できない非常に幅の狭い亀裂 (Tight crack) が発見された。Tight crack 理論では、亀裂先端近傍の空孔が影響していると考えられているが、その存在を直接観測する手法は無く、Ni 原子の異常拡散など間接的な方法でのみ研究がなされただけであった。

陽電子消滅法は空孔型欠陥の検出に好適な測定手法であり、SCC 亀裂進展のメカニズ

ム解明に非常に有効な情報を与えると考えられる。しかしながら、これまで亀裂先端部といった局所的な部位に陽電子を注入する手法が存在しなかった。最近、私は陽電子ビームを数 μm へと収束する陽電子マイクロビーム技術の開発に成功した。数 μm への収束技術を持つのは国内では当グループのみであり、世界的に見ても常時稼働している装置は無く、現時点でトップクラスの性能である。そこで、私は陽電子マイクロビームをSCC亀裂先端付近に適用し、空孔型欠陥の検出とその挙動を解明することで、SCCメカニズムの解明に寄与を目指す。陽電子消滅法がSCC亀裂近傍の微小領域に対して適用された例はほとんど無く、空孔欠陥とSCCの関連についてはほとんど研究がなされていない。ここで、我々が陽電子マイクロビームを用いて空孔型欠陥という超微視的視点から材料の劣化解析をすることは、原子力材料という実用材料の開発の上でも、また金属材料の劣化という基礎的な見地からも大きな意義を持つと考えられる。

2. 研究の目的

耐食性や応力が異なるさまざまな条件下でSCC亀裂を導入したステンレス材に対し、陽電子マイクロビームを用いて亀裂近傍で陽電子消滅法を適用し、構造欠陥が亀裂の進展に与える影響を調べる。空孔型欠陥と亀裂進展度合いに関係があるかどうかを調べるとともに、空孔型欠陥の発生が亀裂進展の前駆状態になるかどうかの評価を行うことで、Tight crack理論で存在が予測されている空孔型欠陥の存在を明らかとし、いまだ不明となっている空孔の発生要因を突き止めることにより、SCC亀裂進展モデル構築に資する。

3. 研究の方法

SCC亀裂周辺の空孔分布測定には、我々が開発した陽電子マイクロビーム装置を用いた。マイクロメートルオーダーへ収束させた陽電子ビームを亀裂周辺に打ち込み、二次元走査により空孔の空間分布を取得した。陽電子消滅ガンマ線のエネルギー分布を詳細に計測し、消滅相手の電子運動量分布を求め、ここから空孔を検出した。試料にはSCC発生に影響する要因(材料、環境、応力)を変化させてSCC亀裂を進展させたステンレス試料を用いた。材料要因としてはステンレス材の鋭敏化度を変化させ耐食性に变化を持たせた。環境要因としては高温高压水や塩化マグネシウムなど腐食環境を変化させた。応力要因としては、応力印加下でその場測定を行える手法を新たに開発した。SCCの各要因を個別に詳細に検討することにより、Tight crack理論における空孔の存在を検証し、およびその導入原因を考察した。

また、これらステンレス試料測定と平行して、装置の改良も継続的に行った。ガンマ線計測方法の改良、陽電子ビーム強度増強などの装置上の改良だけではなく、応力分布測定など測定上の改善も行った。

4. 研究成果

最初に装置の改良について記す。我々のマイクロビーム装置では小型の陽電子線源の開発の成功が大きな成功要因であり、その改良はビーム性能向上に直結している。陽電子線源はこの陽電子ビーム装置のために我々が独自開発したものであり、市販はなされていない。線源は水溶液の $^{22}\text{NaCl}$ を滴下し、蒸発乾固して密閉して製作するが、被ばく対策や作業環境の制限のため、線源強度に制限があった。そこで従来の10倍の線源量を持つ新線源を製作した。遠隔自動滴下装置の開発、ビーム発生部形状の改良により、従来の10倍以上の陽電子ビーム強度を達成することに成功した。これにより効率的な測定が可能となった。

陽電子マイクロビーム装置を用いて、沸騰水型原子炉の炉内環境を模擬した高温水中でSCCを起こしたステンレス鋼の亀裂断面を整形して用いた試料の亀裂近傍における空孔型欠陥の発生状況を調べたところ、光学顕微鏡で確認される亀裂最先端部よりも離れた部位においてSパラメータ上昇が見られた。この部位での詳細な電子運動量分布を測定し、第一原理計算による欠陥モデル計算と比較したところ、単空孔程度の大きさの微細な欠陥であることが分かった。これより、ステンレス鋼SCCにおいて、亀裂の先端部において光学顕微鏡や電子顕微鏡など従来の測定法では判別できない原子空孔が存在することが明らかとなった。亀裂の進展は材料の耐食性(熱鋭敏化度)が低下することによって促進され、さらに空孔型欠陥の分布については、亀裂の進展が容易である試料ほど明瞭であることが判った。これらの結果より、亀裂の進展には空孔型欠陥が関与していることが明らかとなった。

さらに空孔の存在がどのように亀裂進展に影響するのかを明確に調べるためには、上記のようにあらかじめ亀裂を発生させた試料を破壊的に整形して断面観察をするのでは不十分である。そのため、亀裂の進展過程を保持したまま、亀裂の進展中における空孔分布観察を行う必要がある。そこで、応力印加下に試料を固定し、腐食を進展させながら断続的に亀裂進展の様子を観察できる測定法を新たに開発した。薄膜ステンレス試料に引っ張り応力を印加し、腐食環境下でSCCを誘発させ、発生した亀裂先端付近の領域に対し陽電子マイクロビームを適用し、ドップラ幅広がり測定から空孔分布観察を行い、亀

裂進展に伴う空孔型欠陥の発生状況を調べた。その結果、腐食前の応力印加状態と比べて、腐食後に発生した亀裂先端近傍では空孔濃度が上昇すること観測された。これは SCC によってはじめて空孔型欠陥が導入されたことを示している。さらに腐食環境に暴露し亀裂を進展させていくと、空孔濃度の上昇部位に沿って亀裂が進展するという結果が得られた(図 1)。これは亀裂の進展に空孔型欠陥の存在が強く影響していることを示している。応力を印加せず、腐食環境に暴露しただけの試料では、亀裂も進展せず、空孔も導入されないことがわかった。応力が印加されている領域にのみ空孔型欠陥が導入し、また亀裂も進展していくことが明らかとなった。さらに、亀裂導入に伴って発生した空孔は試料に印加されている応力を除去しても残存

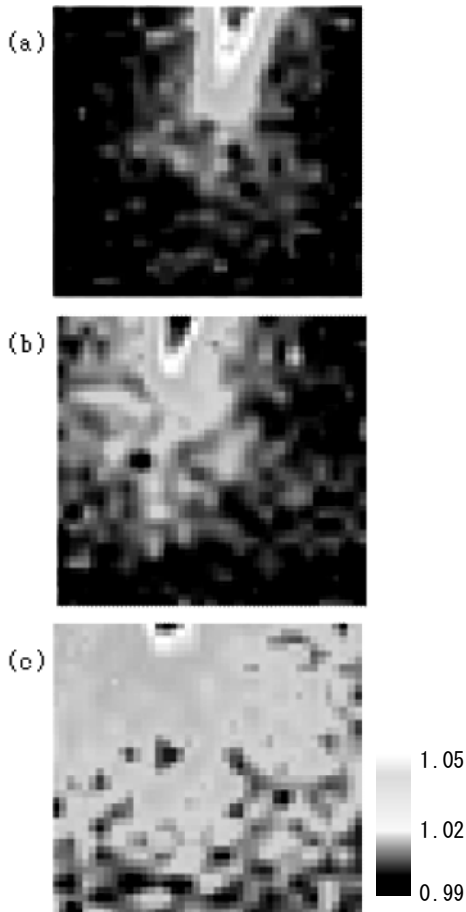


図 1 試料に溶体化 SUS316L を用いた場合の亀裂周辺の陽電子消滅パラメータ分布測定結果。色の白い部分は空孔濃度が高いことを示す。上部中央にある逆三角形の領域は予亀裂。(a) 応力印加状態では予き裂周辺にのみ空孔が分布している。(b) 腐食環境 172 時間曝露後では空孔分布領域が広がっている。(c) 244 時間暴露では更に広がり、亀裂が進展した。

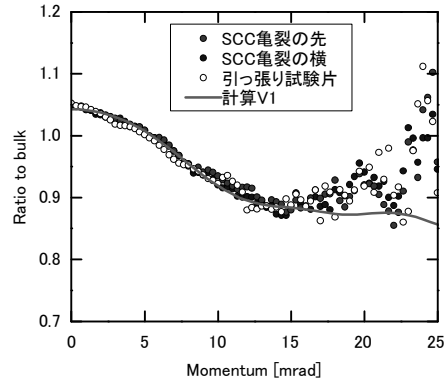


図 2 応力腐食割れ亀裂先端部のガンマ線エネルギー分布より求めた電子運動量分布を詳細に測定したもの。塑性変形を起こした引っ張り試験片の測定結果、および単空孔の計算結果についてもプロットした。

しているという興味深い結果が得られた。これは単なる応力印加が空孔の発生要因ではないことを示している。消滅ガンマ線の詳細測定から、残留している欠陥は塑性変形によって導入される欠陥のものとも一致することが明らかとなった(図 2)。さらに、第一原理計算による欠陥モデル計算結果と比較したところ、単空孔サイズ(V1)の欠陥であることがわかった。以上の結果は、SCC 亀裂進展に伴い、先端部付近に蓄積したひずみから生じた塑性変形による応力誘起孔型欠陥が亀裂先端に蓄積していることを示唆している。これらの結果は、亀裂の発生に伴って塑性変形誘起空孔が発生し、それが粒界に沿って移動・蓄積することで亀裂先端に蓄積することで割れが進行していくというタイトクラック理論による SCC 進展モデルを支持するものである。空孔の発生要因としては化学的な腐食作用によるものが支配的なのではなく、塑性変形という機械的な作用が重要であることが明らかとなった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 6 件)

①前川雅樹、河裾厚男、藪内敦、"小型線源を用いた陽電子マイクロビーム発生と応用"、日本陽電子科学会誌、査読無、第 3 巻 1 号、2011、10-11

②A. Yabuuchi, M. Maekawa and A. Kawasuso, "Positron microbeam study on vacancy generation caused by stress corrosion crack propagation in austenitic stainless steels" Journal of Physics: Conference

Series、査読有、vol.262、2011、01267(1-4)
③前川雅樹、河裾厚男、藪内敦、“原子力機構における陽電子マイクロビームの生成・利用、放射線、査読有、36巻、2010、13-20
④M. Maekawa, A. Yabuuchi and A. Kawasuso、“Evaluation of stainless steel under tensile stress using positron microbeam” Journal of Physics: Conference Series、査読有、vol.225、2010、012033(1-6)
⑤前川雅樹、“原子レベルの劣化診断に新ツール—JAEA 開発の小型陽電子顕微鏡”、原子力 eye、査読無、54巻、2008、50-53
⑥M. Maekawa, Y Yabuuchi and A Kawasuso、“Application of positron microprobe for nuclear materials ”、Material Science Forum、査読有、vol.607、2009、226-268

〔学会発表〕(計 21 件)

①藪内 敦、前川雅樹、河裾厚男、「原子炉用ステンレス鋼の応力腐食割れ現象に関する陽電子消滅法による研究」、京都大学原子炉実験所専門研究会、2010年11月26日、京大原子炉実験所(熊取)
②藪内 敦、前川雅樹、河裾厚男、「ステンレス鋼応力腐食割れ亀裂近傍に形成された空孔型欠陥の陽電子マイクロビームによる観察」、第5回高崎量子応用研究シンポジウム、2010年10月15日、シティギャラリー(高崎)
③藪内 敦、前川雅樹、河裾厚男、「陽電子顕微鏡による原子空孔型欠陥の評価—原子力ステンレス鋼の応力腐食割れ評価の事例から」、日本金属学会 2010 年秋季大会、2010年9月25日、北海道大学(札幌)
④藪内 敦、前川雅樹、河裾厚男、「SUS304 鋼 SCC 亀裂周辺の格子欠陥分布測定」、日本原子力学会 2010 年秋の大会、2010年9月16日、北海道大学(札幌)
⑤ A. Yabuuchi, M. Maekawa, A. Kawasuso, 「Positron microbeam study on vacancy generation caused by stress corrosion crack propagation in austenitic stainless steels」、12th International Workshop on Slow Positron Beam Techniques、2010年8月4日、マグネティック島(オーストラリア)
⑥藪内 敦、前川雅樹、河裾厚男、「ステンレス鋼応力腐食割れ亀裂の陽電子マイクロビームによる評価」、第47回アイソトープ・放射線研究発表会、2010年7月8日、日本科学未来館(東京)
⑦藪内敦、前川雅樹、河裾厚男、「オーステナイトステンレス鋼 SCC 亀裂の陽電子マイクロビームによる評価」、日本金属学会 2010 年春季大会、2010年3月2日、筑波大学(つくば)
⑧藪内敦、前川雅樹、河裾厚男、「ステンレス鋼応力腐食割れ亀裂先端近傍の陽電子マイクロビームによる評価」、京都大学原子炉

実験所専門研究会、2009年11月20日、京都大学原子炉実験所(大阪)
⑨前川雅樹、藪内敦、河裾厚男、「陽電子マイクロビームの極限環境物性への応用」、京都大学原子炉実験所専門研究会、2009年11月20日、京都大学原子炉実験所(大阪)
⑩A. Yabuuchi, M. Maekawa, A. Kawasuso, 「Observation of vacancy-type defects close to SCC crack tips in austenitic stainless steels probed by positron microbeam」、Advanced Science Research symposium 2009、2009年11月11日、リコッティ(東海村)
⑪M. Maekawa, Y Yabuuchi and A Kawasuso, 「Application of the positron microbeam for the materials under the extreme conditions」、Advanced Science Research symposium 2009、2009年11月11日、リコッティ(東海村)
⑫前川雅樹、藪内敦、河裾厚男、「陽電子マイクロビームによる応力印加下ステンレス鋼の亀裂評価」、日本物理学会 2009 年秋季大会、2009年9月28日、熊本大学(熊本)
⑬藪内敦、前川雅樹、河裾厚男、平出哲也、西村昭彦、三輪幸夫、「ステンレス鋼 SCC 亀裂先端近傍の原子空孔の陽電子顕微鏡による評価」、日本原子力学会 2009 年秋の大会、2009年9月18日、東北大学(仙台)
⑭前川雅樹、藪内敦、河裾厚男、「陽電子マイクロビームの極限環境物性への応用」、第46回アイソトープ・放射線研究発表会、2009年7月2日、日本青年館(東京)
⑮前川雅樹、藪内敦、河裾厚男、「高機能型陽電子マイクロビーム装置の開発」、日本物理学会第64回年次大会、2009年3月27日、立教大学(東京)
⑯前川雅樹、藪内敦、河裾厚男、「陽電子マイクロビーム装置の高性能化」、京都大学原子炉実験所専門研究会、2008年12月5日、京都大学原子炉実験所(大阪)
⑰前川雅樹、藪内敦、河裾厚男、「陽電子顕微鏡を用いた構造材料中の欠陥評価」、第3回高崎量子応用研究シンポジウム、2008年10月10日、高崎シティギャラリー(群馬)
⑱前川雅樹、藪内敦、河裾厚男、「陽電子マイクロビームを用いたステンレス応力腐食割れ劣化の観察」、日本物理学会 2008 年秋季大会(物性)、2008年9月20日、岩手大学(岩手)
⑲前川雅樹、藪内敦、河裾厚男、「陽電子マイクロビームを用いた原子力材料の評価」、第45回アイソトープ・放射線研究発表、2008年7月4日、日本青年館(東京)
⑳前川雅樹、藪内敦、河裾厚男、「走査型陽電子顕微鏡の開発と原子力材料評価への応用」、日本顕微鏡学会第64回学術講演会、

2008年5月22日、国立京都国際会館(京都)
① M. Maekawa、「Application of positron
microprobe for nuclear materials」、9th
International Workshop on Positron and
Positronium Chemistry、2008年5月11日、
武漢大学(中国)

[その他]

ホームページ等

[http://www.taka.jaea.go.jp/asrc/positron
/index_j.html](http://www.taka.jaea.go.jp/asrc/positron/index_j.html)

[http://jglobal.jst.go.jp/search.php?q=%E
5%89%8D%E5%B7%9D%E9%9B%85%E6%A8%B9&t=0](http://jglobal.jst.go.jp/search.php?q=%E5%89%8D%E5%B7%9D%E9%9B%85%E6%A8%B9&t=0)

[http://www.jaea.go.jp/02/press2007/p071
20601/index.html](http://www.jaea.go.jp/02/press2007/p07120601/index.html)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

前川 雅樹 (MAEKAWA MASAKI)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・先
端基礎研究センター・研究員

研究者番号：10354945

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし