

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 29 日現在

機関番号：33919

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2010～2011

課題番号：22656034

研究課題名（和文） 放射光マイクロビームによる一結晶粒内の応力マッピングを基にしたき裂進展性評価

研究課題名（英文） Evaluation of crack propagation behavior based on stress mapping within grains by synchrotron microbeam

研究代表者

田中 啓介 (TANAKA KEISUKE)

名城大学・理工学部・教授

研究者番号：80026244

研究成果の概要（和文）：2次元検出器を利用した単結晶の応力測定法の基礎として単色 X 線を使用した場合の基礎式を導き、測定精度の検定を行った。また、白色 X 線を用いた場合の測定基礎式を導いた。放射光 X 線の 2 次元検出器である PILATUS 検出器は応力測定に適用する十分の精度を有していた。ニッケル基合金中の高温高圧水中の SCC き裂、大気中の疲労き裂近傍の一結晶粒中の残留応力測定が可能であった。各結晶中の残留応力は大きく変動している。

研究成果の概要（英文）：Fundamental equations are derived for the stress measurement in single crystals using monochromatic X-rays and white X-rays. Two-dimension detectors are necessary for measurements with high precision. A two-dimensional detector, PILATUS, was confirmed to be usable for stress measurement using synchrotron X-rays. Stress values measured in each grain around SCC and fatigue cracks in nickel-base alloy have large variation, and was expected to have a big influence on the propagation behavior of grain-size order cracks.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	2,500,000	0	2,500,000
2011 年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	210,000	3,410,000

研究分野：材料強度学、疲労

科研費の分科・細目：機械工学・機械材料・材料力学

キーワード：放射光、ひずみマッピング、2次元検出器、き裂、結晶方位

1. 研究開始当初の背景

近年、原子力機器をはじめ大型設備において経年劣化が進行し、疲労あるいは SCC 損傷に対する保全技術の確立のために、き裂進展挙動の予測が重要な課題となっている。特に寸法が 1 mm 程度以下の微小き裂の進展は寿命の大部分を占め、その進展挙動に対する長いき裂の破壊力学による予測は危険側となるため、新予測手法の開発が必要である。

研究代表者らは大型放射光施設(SPring-8)の単色および白色 X 線を使用し、X 線 CT 手

法により材料内部のき裂の 3 次元形状の測定を行うとともに、き裂近傍のひずみ分布を 0.05 mm の空間分解能で測定することに成功した。しかし、ニッケル基合金などの溶接部の結晶粒径は粗大であり、微小き裂の進展挙動の予測には一結晶内部の応力分布を求める必要性が痛感されるとともに、この応力測定に対しては従来の検出器 (0 次元) では限界があり、2次元検出器を新たに導入することにより、ひずみを決定する手法の開発が望まれていた。

2. 研究の目的

本研究では、高輝度・高平行性を有する放射光 X 線マイクロビームを光源として使用し、二次元検出器で記録した複数の回折斑点の位置と形状の測定を基に、サブミクロン領域の結晶方位および応力の同時測定を可能にする。ついで、マイクロビームのスキヤニングにより、一結晶粒内の方位と応力のマッピング計測するシステムを構築する。さらに、き裂近傍の一結晶粒内の方位および応力のマッピングを行うとともに、マッピングデータを基に疲労および SCC (Stress Corrosion Cracking) におけるき裂の進展挙動の高精度予測を可能にすることを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 二次元検出器を用いた単結晶の応力測定法の基礎を確立する。つまり、単結晶の X 線測定法の基礎理論を固めるとともに、二次元検出器を利用して応力を決定する手法の開発を行う。単色および白色 X 線を用いた場合の測定原理を確立する。

(2) 放射光 (Spring-8) の二次元検出器による応力・ひずみ測定を可能にする。放射光を用いた単結晶の応力測定を行うための、二次元検出器の測定精度の検討を行うとともに、実測を通して精度の検定を行う。

(3) 開発した手法を用いて応力腐食割れき裂および疲労き裂への適用を行い、き裂近傍の一結晶中の応力測定結果を基にき裂進展性の評価を行う。

4. 研究成果

(1) 二次元検出器を用いた単結晶応力測定
単色 X 線を単結晶あるいは多結晶中の一つの結晶に照射して回折プロファイルを計測すると、回折角の変化から回折面の法線方向の垂直ひずみが測定できる。立方晶結晶の応力測定理論を次のようになる。

図 1 に示すように、試料面法線方向を P_3 とする試料座標系 P_i 、結晶座標系 X_i 、ひずみ測定をする回折面法線方向を L_3 とする実験室座標系 L_i を考え、回折面法線の傾斜角 ϕ 、 ψ を定義する。各座標間の変換行列を図 2 に示す。測定ひずみ ϵ_{33}^L と負荷応力 σ_{ij} との関係は次式となる。

$$\epsilon_{33}^L = \gamma_{3i} \gamma_{3j} \pi_{nk} \pi_{nl} S_{ijkl} \sigma_{mn} \quad (1)$$

上式が X 線応力測定の基本式である。一般的には 6 個以上の方向の垂直ひずみを X 線法で測定し、それから応力を決定する。また、平面応力状態では、独立な応力成分は 3 個となるので、3 個以上のひずみの測定が必要である。

立方晶の場合の具体的な基礎式を求める。

X 線応力測定では、複数の方向のひずみを測定するが、これを $\epsilon_{33}^L (n=1,2,3\cdots)$ とし、上式を書き直して

$$\epsilon_{33}^L (n) = A_n \sigma_{11} + B_n \sigma_{12} + C_n \sigma_{22} \quad (2)$$

ここで、各応力成分にかかる係数 A_n 、 B_n 、 C_n は変換マトリックスから決まり応力には依存しない。一方、X 線応力測定では、ひずみは回折角の変化から測定される。

$$\epsilon_{33}^L (n) = -\frac{1}{2} \cot \theta_0 (2\theta_n - 2\theta_0) \quad (3)$$

ただし、 $2\theta_n$ は各回折面の回折角を示し、 $2\theta_0$ は無応力状態の回折角を示す。なお、 $2\theta_n$ 、 $2\theta_0$ はラジアンで示されている。式 (2)、(3) より次式が得られる。

$$\begin{aligned} 2\theta_n &= -\frac{2\sigma_{11}}{\cot \theta_0} A_n - \frac{2\sigma_{12}}{\cot \theta_0} B_n - \frac{2\sigma_{22}}{\cot \theta_0} C_n + 2\theta_0 \\ &= \alpha_{11} A_n + \alpha_{12} B_n + \alpha_{22} C_n + 2\theta_0 \end{aligned} \quad (4)$$

上式が平面応力の単結晶の応力測定の基本式である。3 つ以上の回折についてひずみを測定すれば応力成分が決定される。また、133, $\bar{1}33$, $3\bar{1}3$, $3\bar{1}\bar{3}$, $3\bar{3}1$ などの同一面間隔の面の回折を利用すれば上式の無ひずみ回折角も重回帰分析で決定できる。

ここで、ひずみを決定するための回折角の測定のためには対象とする結晶粒の結晶方位をあらかじめ求めておくことが必要である。結晶粒の方位から図 1 の π と γ の変換マトリックスを決定する。回折が得られる ϕ と ψ を求める。このため、あらかじめ電子線後方散乱 (EBSD) あるいは、白色 X 線を用いたラウエ法で決定しておくことが必要である。

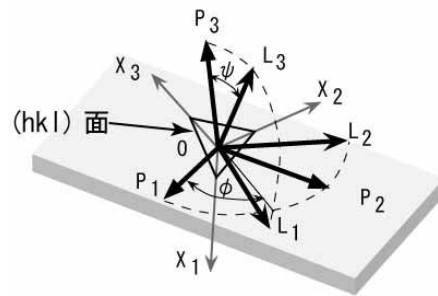


図 1 座標系の関係

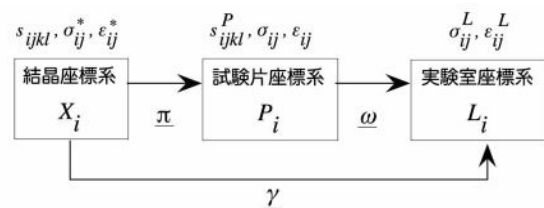
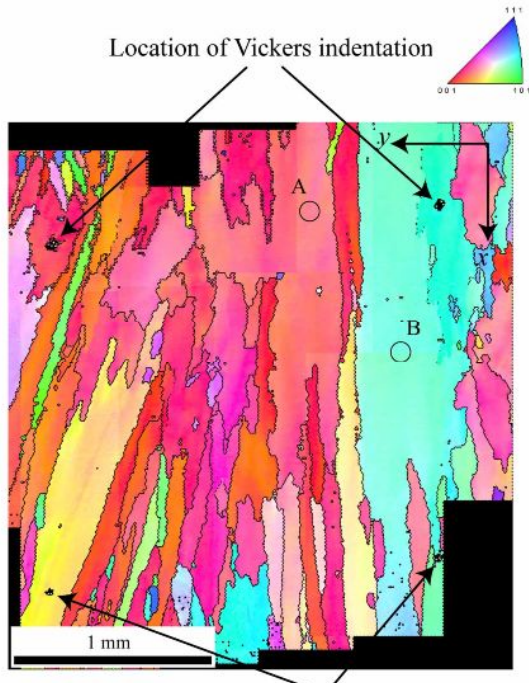


図 2 座標変換マトリックス

結晶方位が決定され、測定面の図1における角度が求められる。ゴニオメータをこの方位に移動して回折角度を測定する。このとき、試験片を揺動させながら回折プロファイルを計測することが必要である。2次元検出器を使用すると、一軸周りの揺動で十分であり、かつ回折斑点が目視できるため測定が簡単となる。

2次元検出器を使用して、ニッケル単結晶に既知の負荷応力を加えたときの、X線応力測定を行い測定精度の検定を行った。負荷応力は一軸応力で図1の P_1 方向に加え、X線で面内応力 $\sigma_{11}, \sigma_{22}, \sigma_{12}$ を測定した。このときの差は5%程度であった。ついで、同様の手法をニッケル基合金(Alloy 182)の多結晶に応用



Location of Vickers indentation for precise positioning.

図3 IPF マップ (Alloy182)

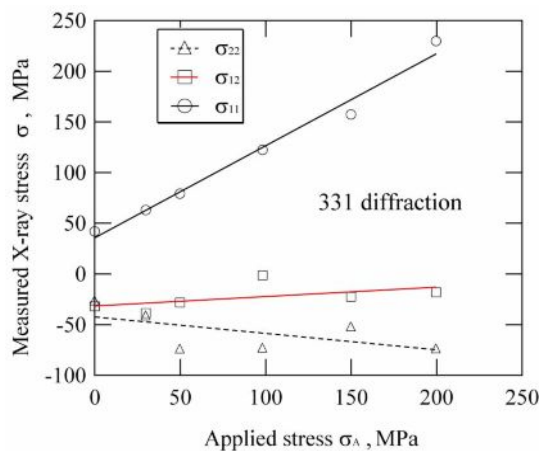


図4 X線測定応力と負荷応力の関係

した。多結晶中の一結晶の方位をEBSDで決定し、結晶粒内での応力測定を行った。図3はEBSDによる逆極点マップである。入手材の結果であるが、圧延方向に結晶粒が伸びている。また、一つの結晶粒はかなり大きい。4つのビッカース圧こんを目印として、331回折を使用して図中の位置Aでの応力測定を行った。負荷応力に対する測定応力の変化を図4に示す。負荷応力方向(図3中のx方向)の応力 σ_{11} (MPa)は比例的に上昇する。

$$\sigma_{11} = 35.7 + 0.908\sigma_A \quad (5)$$

他の応力成分の変化は大きくない。上式で、測定応力の増加率が負荷応力の約90%である理由は、ニッケル基合金の単結晶弾性定数が求まっていないこと、隣接粒の影響などが考えられる。X線測定精度の向上を今後検討する必要である。

以上は単色X線を用いた手法であるが、白色X線を用いたラウエ斑点を2次元検出器で記録する。ラウエ斑点から結晶方位を決定することができる。2次元検出器で記録される斑点から結晶方位を求め、同時に斑点間の相対位置から格子面間の角度を測定し、偏差ひずみ(deviatoric strain)テンソルを決定することが出来るものと考えられる。つまり、無ひずみ状態では立方晶で格子定数は次の通りである。

$$\begin{aligned} a_1 &= a_2 = a_3 = a_0, \\ \alpha_1 &= \alpha_2 = \alpha_3 = \pi/2 \end{aligned} \quad (6)$$

この結晶がそれぞれ結晶の主軸座標系で ε_{ij} のひずみを受けると格子定数は次のように変化する。

$$\begin{aligned} a_1 &= a_0(1 + \varepsilon_{11}) \equiv a, \\ a_2 &= a_0(1 + \varepsilon_{22}) \equiv b, \\ a_3 &= a_0(1 + \varepsilon_{33}) \equiv c \\ \alpha_1 &= \pi/2 - \gamma_{23} \equiv \alpha, \\ \alpha_2 &= \pi/2 - \gamma_{31} \equiv \beta, \\ \alpha_3 &= \pi/2 - \gamma_{12} \equiv \gamma \end{aligned} \quad (7)$$

となり、三斜晶に変形する。この格子定数 $a, b, c, \alpha, \beta, \gamma$ を測定すると、上式からひずみテンソルを決定することができる。

三斜晶の (h, k, l) の面間隔は次式となる。

$$\frac{1}{d^2} = \frac{1}{V^2} (S_{11}h^2 + S_{22}k^2 + S_{33}l^2 + 2S_{12}hk + 2S_{23}kl + 2S_{31}kl)$$

ただし V は単位格子の体積で、

$$V = abc\sqrt{1 - \cos^2\alpha - \cos^2\beta - \cos^2\gamma + 2\cos\alpha\cos\beta\cos\gamma}$$

$$\begin{aligned}
S_{11} &= b^2 c^2 \sin^2 \alpha \\
S_{22} &= a^2 c^2 \sin^2 \beta \\
S_{33} &= a^2 b^2 \sin^2 \gamma \\
S_{12} &= abc^2 (\cos \alpha \cos \beta - \cos \gamma) \\
S_{23} &= a^2 bc (\cos \beta \cos \gamma - \cos \alpha) \\
S_{13} &= ab^2 c (\cos \gamma \cos \alpha - \cos \beta)
\end{aligned}
\tag{9}$$

このときの (h_1, k_1, l_1) 面と (h_2, k_2, l_2) 面の面間の角度は次式となる。

$$\begin{aligned}
\cos \phi &= \frac{d_1 d_2}{V^2} [S_{11} h_1 h_2 + S_{22} k_1 k_2 + S_{33} l_1 l_2 \\
&+ S_{23} (k_1 l_2 + k_2 l_1) + S_{13} (l_1 h_2 + l_2 h_1) + S_{12} (h_1 k_2 + h_2 k_1)]
\end{aligned}
\tag{10}$$

多くの面間の角度 ϕ を測定しそれから重回帰分析で三斜晶の格子定数 $a, b, c, \alpha, \beta, \gamma$ を決定する。さらに、式(7)よりひずみ 6 成分を求める。しかし、体積ひずみは格子面の面間角を変化させないことから、この手法では測定できず、測定されるのはひずみの偏差成分のみである。そのため、少なくとも一つの面の格子面間隔は、単色光を用いた従来の手法で測定し体積ひずみを決定する必要がある。応力は、測定したひずみテンソルに、結晶弾性定数を乗じて決定することができる。

この手法は、単色光を用いた測定とは異なり、いちいち結晶を回転する必要がない斬新な手法である。しかし、実験室 X 線では測定精度の面から不可能であり、放射光の高分解能を利用して始めて可能となることが期待され。しかし、放射光の 2 次元検出器の性能、さらに位置決め精度に大きく依存する。

(2) 放射光での 2 次元検出器を用いた応力測定

放射光の回折図形の記録に使用した PILATUS 検出器を図 5 に示す。検出部面積は約 $84 \times 34 \text{ mm}^2$ で、空間分解能 $172 \mu\text{m}/\text{pixel}$ で、 $487 \times 195 \text{ pixel}$ を持つ 2 次元アレイである。X 線エネルギー 10 から 30 keV に対しては検出効率が 90% 以上であり、波高弁別ができノイズなしで回折光子をカウントできる利点をもつ。読み取り時間は 2.7 ms で、 300 Hz のフレーム速度ある。

まず、単色光(波長 = 1.8456 nm)を用いて SUS316L (結晶粒径 $170 \mu\text{m}$) の回折図形を図 6 に示す。回折図形は斑点状となっており、斑点の検出が可能である。多結晶体に 2 次元検出器を使用してひずみスキャンニングによる材料の内部応力測定を通して 2 次元検出の応用について検討した。高エネルギー X 線を使用すると、板厚 2 mm 程度でも透過 X 線の計測が可能である。このため、多結晶の場合



図 5 2次元検出器 (PILATUS)

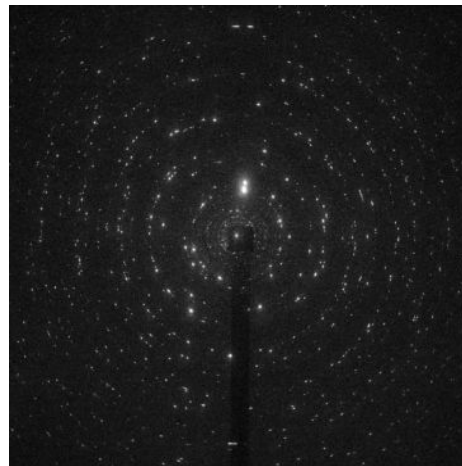


図 6 SUS316L の回折斑点

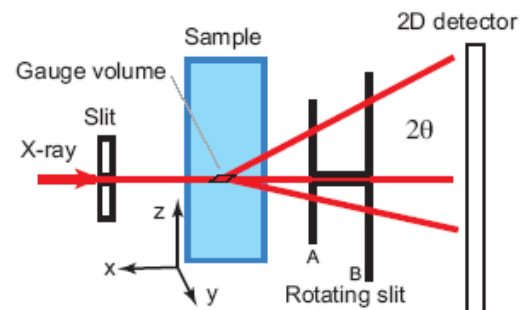


図 7 放射光による 2 次元検出器によるひずみの計測

には、回折している位置を特定する必要がある。このため、図 7 に示すように、検出側の 2 次元検出器の前に、インボリュート曲線を有する 2 枚の相似のスリットを回転させることで回折領域を特定するとともに各回折図形計測した。この手法で、単色光を用いた多結晶の応力測定が可能となり、2 次元検出器も十分な検出精度であることが確認できた。

単結晶に应用するためには単色光では揺動が不可欠となる。また、白色光を用いた手法では、解析ソフトの開発と位置の特定する新たな手法の開発が望まれる。

(3) き裂への適用

ニッケル基合金 Alloy182 の溶接金属部から WOL 引張型試験片を作成し、SCC き裂進展試験を行った。環境条件は 288°C、9MPa の高温高压水中であり、交番型直流電位差法でき裂長さを測定した。応力拡大係数漸減試験でき裂が停留したときのき裂先端部の応力測定を 2 次元検出器を行った。以下代表例を示す。

図 8 は板厚 4 分の 1 を除去したときのき裂の SEM 写真である。き裂は粒界を進展している。図 9 は同じ領域の EBSD で求めた IPF マップである。明確に粒界が認められる。また、き裂が進展する粒界の方位差は 15°以上で大傾角粒界を選択的にき裂は進展していた。

また、き裂は粒界上で停留している。き裂近傍の大きな結晶粒中の A、B、D 点の残留応力を測定結果を図中に示す。き裂先端の B 点では荷重軸方向の応力 σ_{11} および垂直方向の σ_{22} はともに圧縮である。一方、き裂の後方 A 点では σ_{11} は圧縮で、 σ_{22} は引張である。き裂から離れた D 点では σ_{11} が引張となっている。き裂

が入る前においても、各結晶粒において残留応力は各結晶粒で大きく異なっていることが予想され、実際き裂から離れた位置での各結晶粒の残留応力は大きく異なっていた。このばらつきは、結晶の方位に依存した熱膨張係数の異方性あるいは塑性変形の方位依存性に起因するものと考えられる。

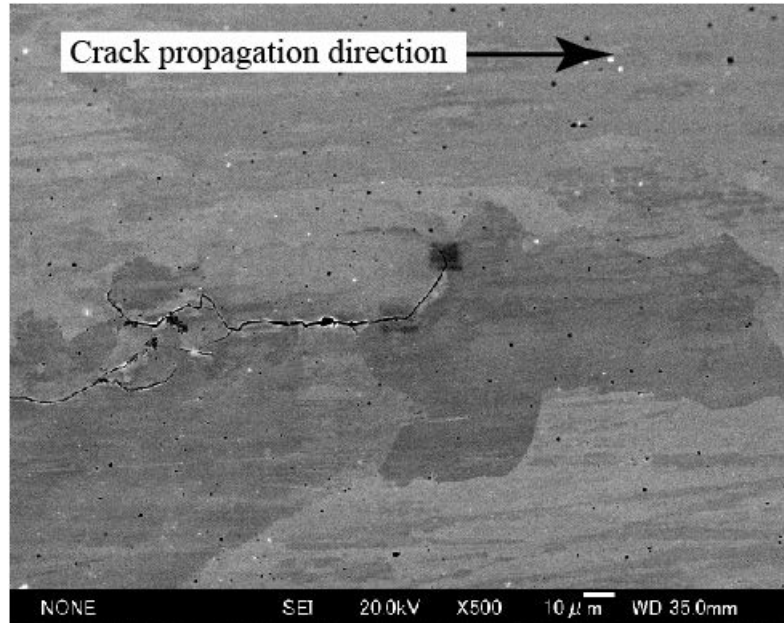


図 8 ニッケル基合金 Alloy182 の高温水中の SCC き裂の SEM 写真

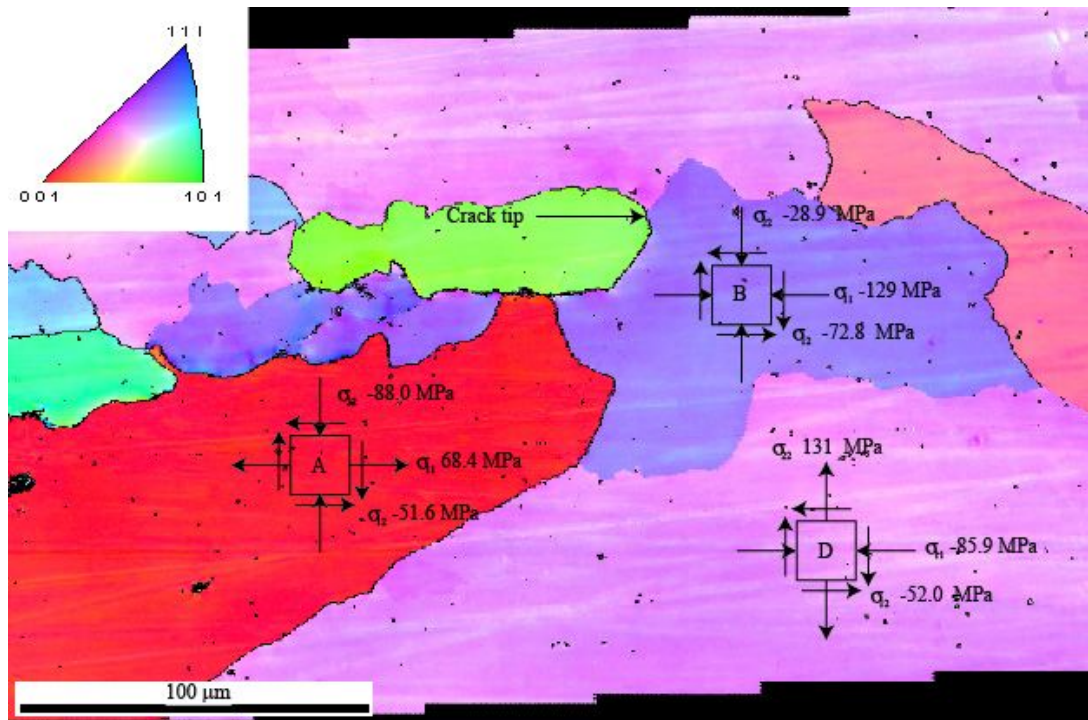


図 9 SCC き裂近傍の IPF マップとき裂近傍の残留応力分布

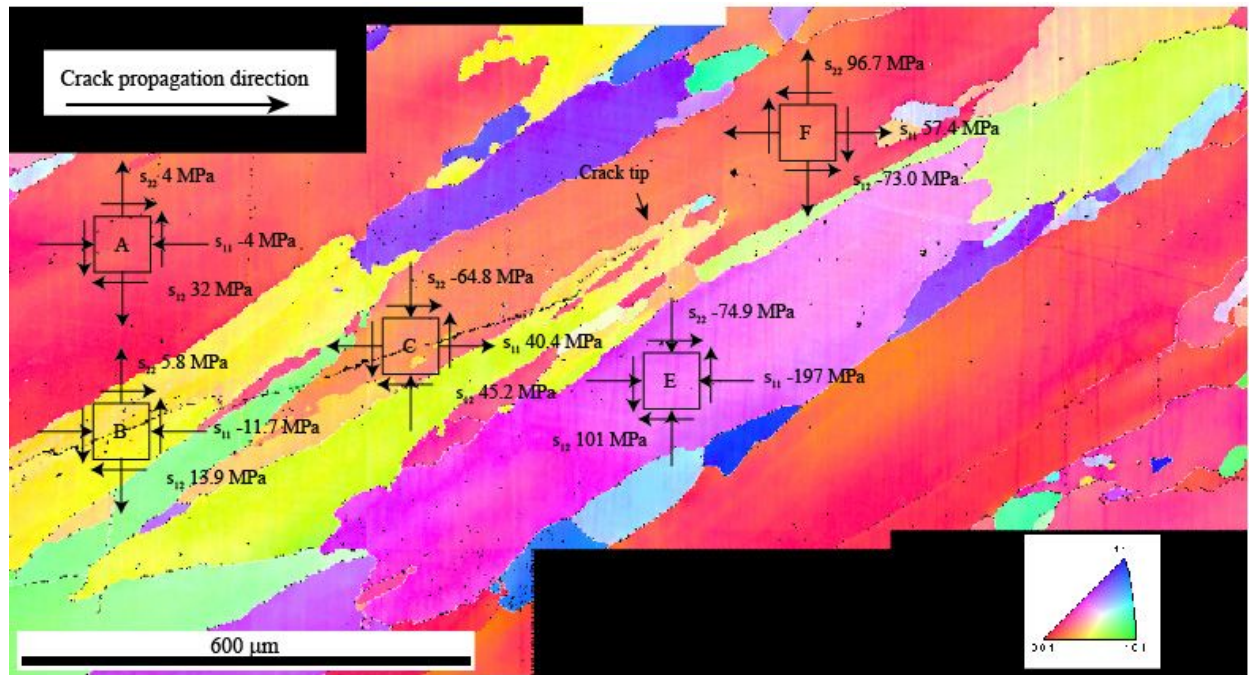


図 10 疲労き裂近傍の IPF マップとき裂近傍の残留応力分布

同一材料の CT 試験片を大気中で疲労き裂進展試験を行った。SCC き裂のほぼ同一の応力拡大形数まで、漸減試験をした。図 10 は疲労き裂近傍の EBSD による IPF マップと、X 線測定した残留応力分布である。

き裂は粒内を直線的に進展している。SCC き裂の場合とは大きく異なる。

応力測定はき裂面上に点 B と C、き裂前方に点 F、その他点 A、点 E を測定した。き裂先端前方では σ_{11} は引張、き裂面には圧縮となっている。き裂近傍の圧縮も SCC の研究き裂よりは小さい。結晶ごとの応力の変動が大きい。微小なき裂の進展にはこのような微視的な応力が大きく影響するものと予想される。

5. まとめ

(1) 2 次元検出器を利用した単結晶の応力測定法の基礎として単色 X 線を使用した場合の基礎式を導き、測定精度の検定を行った。また、白色 X 線を用いた場合の測定基礎式を導いた。

(2) 放射光 X 線の 2 次元検出器である PILATUS 検出器を応力測定に適用した。多結晶体に対しては、回転スリットによる測定位置の同定が可能である。

(3) ニッケル基合金中の高温高圧水中の SCC き裂および、大気中の疲労き裂近傍の一結晶粒中の残留応力測定が可能であった。各結晶中の残留応力は大きく変動しており、これらの変動が、微小なき裂の進展に直接的に影響するものと予想された。データの集積が必要である。

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 4 件)

- (1) K. Tanaka, T. Shobu, H. Kimachi, Hybrid Measurement of CT and Strain Distribution of Internal Crack Using Synchrotron High-Energy Monochromatic X-Rays, Materials Science Forum, Vol. 652, pp. 202-209 (2010). (査読有り)
- (2) T. Fujishiro, T. Shobu, K. Kuriyama, A. Yamamoto, In-situ Observation for Evaluation of Stress Corrosion Cracking and High Pressure Water, Materials Science Forum, Vol. 652, pp. 285-289 (2010). (査読有り)
- (3) Y. Akiniwa, H. Kimura, J. Shibano, K. Kiriya, T. Shobu, Strain Measurement near Fatigue Crack in Ultrafine-Grained Steel by Polychromatic Synchrotron Radiation, Materials Science Forum, Vol. 652, pp. 290-295 (2010). (査読有り)
- (4) K. Kiriya, T. Shobu, J. Shibano, T. Fujishiro, H. Kaneko, S. Miura, Strain Measurement of Aged Duplex Stainless Steel Using SR White X-rays, Materials Science Forum, Vol. 652, pp. 161-166 (2010). (査読有り)

[学会発表] (計 4 件)

- (1) K. Suzuki, T. Shobu, A. Shiro, H. Toyokawa, Evaluation of Internal Stresses Using

2D-detector, International Conference on Mechanical Stress Evaluation by Neutron and Synchrotron Radiation, MECA SENS VI, 2011, Hamburg, Germany, 2011年9月7日

- (2) T. Shobu, S. Tojo, J. Suzuki, Y. Sakaguchi, Residual Stress Distribution of High Pressure Composite Vessel Using High Energy Synchrotron Radiation X-Rays, International Conference on Mechanical Stress Evaluation by Neutron and Synchrotron Radiation, MECA SENS VI, 2011, Hamburg, Germany, 2011年9月7日
- (3) 菫蒲敬久、鈴木賢治、2次元検出器とスパイラルスリットを組み合わせた内部ひずみ評価法に関する研究、日本材料学会、第45回X線材料強度に関するシンポジウム、東京、2011年7月7日
- (4) 町屋修太郎、長村光造、菫蒲敬久、菅野未知央、田中啓介、YBCO薄膜の白色X線を用いたひずみ測定および弾性定数解析、日本材料学会、第45回X線材料強度に関するシンポジウム、東京、2011年7月8日

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田中 啓介 (TANAKA KEISUKE)
名城大学・理工学部・教授
研究者番号：80026244

(2) 研究分担者

來海 博央 (KIMACHI HIROHISA)
名城大学・理工学部・教授
研究者番号：30324453

菫蒲 敬久 (SHOBU TAKAHISA)
日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用
研究部門・研究副主幹
研究者番号：90425562

鈴木 賢治 (SUZUKI KENJI)
新潟大学・人文社会教育科学系・教授
研究者番号：30154537