

原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブ
若手原子力研究プログラム 事後評価総合所見

研究開発課題名：ステンレス鋼亀裂先端部における応力印加下その場欠陥解析					
研究代表者（研究機関名）：前川雅樹（独立行政法人日本原子力研究開発機構）					
研究期間及び予算額：平成21年度～平成22年度（2年計画） 18百万円					
項目	要 約				
1. 研究開発の概要	ステンレス鋼の応力腐食割れ現象を解析するため、高感度に空孔型欠陥を検出できる陽電子マイクロビームを用いて亀裂近傍に存在する格子欠陥を評価する。亀裂の進展と空孔型欠陥の関連を明確に測定するため、応力印加下その場による亀裂進展連続観察法を開発し、通常ステンレス鋼および低炭素ステンレス鋼における応力腐食割れの観察、およびそれらの照射影響の観察を通じて、空孔型欠陥と亀裂進展の関連を明らかにし、空孔型欠陥の観点よりステンレスの割れ現象を理解することを目的とする。				
2. 総合評価	<table border="1" style="width: 100%;"> <tr> <td style="text-align: center; width: 50px;">A</td> <td> <ul style="list-style-type: none"> ・低炭素ステンレス鋼の応力腐食割れ現象を解明するため、応力印加その場測定法として、陽電子マイクロビームを用いた空孔分布測定が行われ、塑性変形により亀裂の最先端部に空孔型欠陥が発生すること等、応力腐食割れに関する新しい知見を見出しており、優れた成果が挙げられている。 </td> </tr> <tr> <td></td> <td> <ul style="list-style-type: none"> S) 極めて優れた成果が挙げられている A) 優れた成果が挙げられている B) 一部を除き、相応の成果が挙げられている C) 部分的な成果に留まっている D) 成果がほとんど挙げられていない </td> </tr> </table>	A	<ul style="list-style-type: none"> ・低炭素ステンレス鋼の応力腐食割れ現象を解明するため、応力印加その場測定法として、陽電子マイクロビームを用いた空孔分布測定が行われ、塑性変形により亀裂の最先端部に空孔型欠陥が発生すること等、応力腐食割れに関する新しい知見を見出しており、優れた成果が挙げられている。 		<ul style="list-style-type: none"> S) 極めて優れた成果が挙げられている A) 優れた成果が挙げられている B) 一部を除き、相応の成果が挙げられている C) 部分的な成果に留まっている D) 成果がほとんど挙げられていない
A	<ul style="list-style-type: none"> ・低炭素ステンレス鋼の応力腐食割れ現象を解明するため、応力印加その場測定法として、陽電子マイクロビームを用いた空孔分布測定が行われ、塑性変形により亀裂の最先端部に空孔型欠陥が発生すること等、応力腐食割れに関する新しい知見を見出しており、優れた成果が挙げられている。 				
	<ul style="list-style-type: none"> S) 極めて優れた成果が挙げられている A) 優れた成果が挙げられている B) 一部を除き、相応の成果が挙げられている C) 部分的な成果に留まっている D) 成果がほとんど挙げられていない 				
3. その他	・論文の公表が適切に行われており、2ヵ年の成果としては、情報発信は十分と考えられる。				

1. 目的・目標	<p>ステンレス鋼の応力腐食割れ現象を解析するため、高感度に空孔型欠陥を検出できる陽電子マイクロビームを用いて亀裂近傍に存在する格子欠陥を評価する。亀裂の進展と空孔型欠陥の関連を明確に測定するため、応力印加下その場による亀裂進展連続観察法を開発し、通常ステンレス鋼および低炭素ステンレス鋼における応力腐食割れの観察、およびそれらの照射影響の観察を通じて、空孔型欠陥と亀裂進展の関連を明らかにし、空孔型欠陥の観点よりステンレスの割れ現象を理解することを目的とする。</p>
2. 研究成果	<p>【研究開発項目(1) 高性能陽電子マイクロビーム技術および高度測定手法の開発】 [得られた成果]</p> <p>①応力印加その場測定法の開発</p> <p>先行核としての空孔型欠陥のき裂進展に対する役割を解明し、空孔発生が亀裂に対して与える影響をより明確にするためには、亀裂を進展させながらそのまわりの空孔の分布を測定するしかない。応力印加その場測定を行う装置を開発し、応力を印加したステンレス薄膜に対し、光学顕微鏡と陽電子マイクロビーム測定を腐食と交互に行ったところ、亀裂近傍において空孔型欠陥の発生と蓄積が起ることを確認した。同一試料・同一部位の腐食による亀裂進展と空孔型欠陥の分布を連続観察は、本事業での結果が世界で初めてである。ここで、亀裂は空孔型欠陥の濃度が高い部位に優先的に進展していく様子が観察された。</p> <p>②高精度運動量分布計測回路の開発</p> <p>2台の高効率ゲルマニウム半導体検出器を用い、既存の検出器と同時計数的測定を行うことで高精度に電子運動量分布を計測する手法は、コインシデンスドップラー広がり(CDB)測定として知られている。本事業では、この計測システムを陽電子マイクロビームに組み合わせた。現在のところ、マイクロメートルの分解能でCDB測定が可能であるのは、世界でもこの装置だけである。計測システムの構築に際しては、従来から良く用いられているアナログ計測システムに代わり、新たに高速デジタルオシロを使用した同時計測プログラムを作成した。これは当初システムのコストダウンを意識したものであったが、デジタル信号処理ならではの柔軟性を生かせば、プログラム次第で次々と高度な信号処理を施すことが可能であることが実証され、陽電子計測をはじめとする放射線計測高度化への応用が期待できる。</p> <p>【研究開発項目(2) 低炭素ステンレス鋼の劣化最先端部に関する研究】</p>

[得られた成果]

①ステンレス鋼の応力腐食割れに関する基礎試験

亀裂先端にある空孔が亀裂進展にどのように影響するかを同一試料・同一亀裂について連続的に追跡した。ここでの空孔は、電顕で観察されるようないわゆるマイクロボイドなどではなく、さらに微細な単空孔程度のサイズのものを対象としている。これが亀裂周囲において直接的に検出・評価されたことはこれまでに無い。まず応力印加下での SCC 腐食進展および空孔分布観察では、亀裂の進展に伴い、亀裂先端部に原子空孔濃度が上昇する領域が検出された。この領域に対し優先的に亀裂が進展する様子が観察されたことから、空孔濃度が亀裂進展に影響することが SCC における微細な欠陥にも適用できることが確認された。電子運動量分布の詳細測定および第一原理計算による欠陥構造モデル計算との比較により欠陥構造の解析を行ったところ、導入されている空孔は単空孔サイズの微細な欠陥であることが判った。これは、SCC の進展に空孔型欠陥が寄与しているということを示唆した理論（タイトクラック理論）を直接的に裏付ける重要な結果である。さらに空孔濃度は応力印加から開放されたあとでも上昇したままであることが見出された。これは亀裂進展に伴う塑性変形による組織変質によるものと考えられたため、塑性変形を起こした参照試料との比較を実施し、亀裂進展に伴う空孔発生源としては塑性変形誘起空孔が重要な要因であることを明らかにした。これはタイトクラック理論において不明である、空孔の導入要因に言及できる結果である。亀裂先端周辺に蓄積している空孔濃度を推定したところ、3ppm という多量の空孔が生成していることが明らかになった。これは亀裂を進展させるのに十分であることから、空孔型欠陥が SCC 亀裂進展に寄与していることを裏付けるものである。

②水環境の影響

空孔の生成消滅挙動に対して腐食環境の違いが与える化学的な影響を調べるため、高温水環境下腐食進展装置を利用した原子炉水環境模擬での亀裂進展試験を実施した。高温高压水を用いた腐食でも亀裂周囲の欠陥分布が観察され、欠陥構造も同様に単空孔であることが分かった。しかしその分布は局所的であった。これは応力集中による塑性変形により空孔が発生するところは同一メカニズムであるが、原子炉実機温度では転位への転位捕獲確率が低下し、また拡散集積が促進されるため、空孔濃度の増大領域が集中して観察されていると解釈できる。一方で、応力を印加せずに腐食だけを行った場合、ごく表面に空孔の発生が認められただけであり、亀裂進展には直接的には影響しないと考えられる。

③照射の影響

原子力材料特有の要因として重要視される照射影響を調べるため、中性

子照射模擬プロトン照射を行った試料の測定を行った。イオン照射による照射欠陥の発生が明確に観測されたが、硬化のため亀裂の進展が少なく、また、照射欠陥の増加が激しく、亀裂進展に伴う空孔分布は明瞭に観察できなかった。照射により強制的に導入される空孔型欠陥の影響は相対的に小さいと考えられる。また、電子線照射により導入された単原子空孔の回復挙動について調べたところ、塑性変形誘起空孔とほぼ同じ温度域で回復することが見出され、これは原子炉運転温度とほぼ一致することから、②で見られたような空孔の集積・消失挙動を裏付ける結果を得ることができた。

④まとめ

上記①～③の試験によって得られた結果をまとめた。亀裂先端への原子空孔導入の要因については、応力印加および亀裂進展に伴う塑性変形誘起空孔が発生要因の主たるものと考えられる。亀裂が進展した瞬間に亀裂の最先端に応力が集中し、粒内に塑性変形誘起空孔が高濃度で発生する。次に、粒内を拡散した空孔は、粒界に到達して捕獲吸収されるが、一部は応力勾配方向に従って、亀裂の先端部に向かって移動していく。さらに亀裂先端へ集まった空孔は蓄積し、粗大化を引き起こす。その結果、粒界結合力の低下を招き、粒界すべりが発生する。最後に新生面から金属イオンが溶出し、亀裂が進展すると考えられる。

タイトクラック理論では、空孔の導入要因として塑性変形、転位の運動による残留、冷間加工時に導入された残留物、表面酸化による金属イオンの拡散、特定金属の優先的溶出(アニオン引き抜き反応)、照射による導入などが提示されている。我々の実験では、腐食作用単体では亀裂進展に影響するほどの空孔は導入されないこと、照射により強制的に導入された空孔は亀裂の進展に大きく影響しないことが観測されている。したがって材料要因が主原因であり、特に亀裂導入による降伏応力以上のひずみ蓄積がもたらす塑性変形誘起空孔が支配的であると考えられる。特に応力印加下での空孔の挙動が亀裂の進展に強く影響している。これらは陽電子マイクロビームを用いることにより原子空孔の観点から亀裂進展を観察したという、従来の測定手法にはない知見である。

【論文、特許等】

[論文発表]

- 1) "Evaluation of stainless steel under tensile stress using positron microbeam", M. Maekawa, A. Yabuuchi and A. Kawasuso, J. Phys. Conf. Ser., 225 (2010) 012033.
- 2) "Positron microbeam study on vacancy generation caused by stress corrosion crack propagation in austenitic stainless steels", A.

Yabuuchi, M. Maekawa and A. Kawasuso, J. Phys. Conf. Ser., 262 (2011) 012067.

3) "Vacancy defects in a stress-corrosion-cracked Type 304 stainless steel investigated by positron annihilation spectroscopy", A. Yabuuchi, M. Maekawa, A. Kawasuso, J. Nucl. Mater, 419 (2011) 9-14.

[口頭発表]

1) 「陽電子マイクロビームの極限環境物性への応用」、前川雅樹、藪内敦、河裾厚男、第46回アイソトープ・放射線研究発表会

2) 「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」、藪内敦、前川雅樹、河裾厚男、平出哲也、西村昭彦、三輪幸夫、日本原子力学会 2009 年秋の大会

3) 「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」、前川雅樹、藪内敦、河裾厚男、日本物理学会 2009 年秋季大会

4) 「Application of the positron microbeam for the materials under the extreme conditions」、M. Maekawa, Y. Yabuuchi and A. Kawasuso, Advanced Science Research symposium 2009

5) 「Observation of vacancy-type defects close to SCC crack tips in austenitic stainless steels probed by positron microbeam」、A. Yabuuchi, M. Maekawa, A. Kawasuso, Advanced Science Research symposium 2009

6) 「陽電子マイクロビームの極限環境物性への応用」、前川雅樹、藪内敦、河裾厚男、平成 21 年京都大学原子炉実験所専門研究会

7) 「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」、藪内敦、前川雅樹、河裾厚男、平成 21 年京都大学原子炉実験所専門研究会

8) 「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」、藪内敦、前川雅樹、河裾厚男、日本金属学会 2010 年春季大会

9) 「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」、藪内敦、前川雅樹、河裾厚男、第 47 回アイソトープ・放射線研究発表会

10) 「SUS304 鋼 SCC 亀裂周辺の格子欠陥分布測定」、藪内敦、前川雅樹、河裾厚男、日本原子力学会 2010 年秋の大会

11) 「陽電子顕微鏡による原子空孔型欠陥の評価—原子カステンレス鋼の応力腐食割れ評価の事例から」、河裾厚男、藪内敦、前川雅樹、日本金属学会 2010 年秋季大会

12) 「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」、藪内敦、前川雅樹、河裾厚男、第 5 回高崎量子応用研究シンポジウム

	<p>13) 「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」、藪内 敦、前川雅樹、河裾厚男、平成 22 年京都大学原子炉実験所専門研究会</p> <p>14) 「Positron microbeam study on vacancy generation caused by stress corrosion crack propagation in austenitic stainless steels」、A Yabuuchi, M Maekawa and A Kawasuso、12th International Workshop on Slow Positron Beam Techniques</p>
--	---