

修士論文

3D-EBSD を用いた

SCC き裂分岐部の 3 次元観察

平成 26 年 2 月 6 日提出

指導教員 酒井 信介 教授

機械工学専攻 37-126168

池田 和寛

目次

目次

第1章 序論	10
1.1 研究の背景	10
1.2 先行研究	13
1.3 研究の目的	14
1.4 本論文の構成	15
第2章 3D-EBSD 法	17
2.1 EBSD (Electron Backscatter Diffraction)法 ^{[3][11][12]}	17
2.2 シリアルセクション法	20
2.3 3D-EBSD 法	20
2.4 3D-EBSD 法の位置づけ ^[12]	21
第3章 3次元像作成手順	23
3.1 試料の準備 ^{[3][12][13]}	23
3.1.1 試験片の樹脂埋め込み	24
3.1.2 鏡面仕上げ	26
3.1.3 圧痕作成	27
3.2 連続断面観察 ^{[3][12][13]}	28
3.2.1 研磨・OP	29
3.2.2 圧痕作成	30
3.2.3 研磨量測定	31
3.2.4 SEM・EBSD 観察	32
3.3 3次元構築 ^{[3][12][13]}	33
3.3.1 SEM と EBSD 画像の一致	34
3.3.2 圧痕抽出	35
3.3.3 画像の整列	36
3.3.4 対象抽出	37
3.3.5 3次元構築	38
第4章 試料の観察条件	40
4.1 試験片 ^[3]	40
4.1.1 材質	40
4.1.2 試験片生成条件	41
4.2 実験条件	42
4.2.1 観察範囲	42
4.2.2 研磨・圧痕作成条件	44
4.2.3 治具	45

4.2.4 Cleanup 処理.....	46
第 5 章 SUS304 の SCC き裂観察.....	48
5.1 観察枚数・範囲.....	48
5.2 双晶粒界及び対応粒界の影響.....	50
5.3 3 次元像.....	53
5.4 粒界線及び粒界面角度と結晶方位差.....	56
5.4.1 進展粒界.....	58
5.4.2 非進展粒界.....	60
5.4.3 進展粒界と非進展粒界における比較.....	62
第 6 章 き裂分岐部の 3 次元観察及び評価.....	65
6.1 因子考察.....	66
6.1.1 粒界面角度.....	66
6.1.2 結晶方位差.....	68
6.1.3 シュミット因子差.....	70
6.1.4 応力伝達係数.....	75
6.1.5 進展面角度.....	77
6.2 Fisher の線形判別.....	79
6.3 因子の寄与率.....	83
第 7 章 結論.....	86
7.1 本研究における結論.....	86
7.2 今後の課題.....	87
7.3 今後の展望.....	87
参考文献.....	89
付録 A : OIM 解析 ^[12]	92
付録 B : IMOD コマンド ^[12]	95
付録 C : 分岐部の 2 次元観察.....	96
謝辞.....	101

目次

Fig.1-1	SCC 発生条件	10
Fig.1-2	粒界型 SCC(右, 1422×1067 μm) と粒内型 SCC(左, 284×213 μm).....	12
Fig.1-3	分岐の有無.....	12
Fig.1-4	3次元結晶組織.....	12
Fig.1-5	マクロモデルによるき裂の3次元的つながり.....	13
Fig.2-1	SEM 装置断面図.....	18
Fig.2-2	EBSD 装置概略.....	18
Fig.2-3	菊池パターン一例.....	18
Fig.2-4	3D-EBSD 法概要.....	20
Fig.2-5	3次元ミクロ観察手法の比較.....	21
Fig.3-1	観察試料の準備.....	23
Fig.3-2	熱間埋込装置.....	25
Fig.3-3	SEM 装置治具.....	25
Fig.3-4	治具で固定した試料.....	25
Fig.3-5	マイクロビッカース硬さ試験機.....	27
Fig.3-6	連続断面観察フローチャート.....	28
Fig.3-7	機械研磨装置.....	29
Fig.3-8	圧痕形状.....	30
Fig.3-9	圧痕形状モデル.....	31
Fig.3-10	レーザー顕微鏡.....	31
Fig.3-11	SEM-EBSD 装置.....	32
Fig.3-12	3次元化フローチャート.....	33
Fig.3-13	SEM 画像.....	34
Fig.3-14	EBSD 画像.....	34
Fig.3-15	重ね合わせ画像(90°回転).....	34
Fig.3-16	圧痕抽出例.....	35
Fig.3-17	圧痕による z 方向整列の手順.....	36
Fig.3-18	整列画像例.....	37
Fig.3-19	抽出画像例.....	37
Fig.4-1	レーザー顕微鏡・SEM・EBSD 観察範囲例.....	43
Fig.4-2	試料観察面の傾斜誤差.....	45
Fig.4-3	治具ねじ止め位置.....	45
Fig.4-4	Cleanup 処理.....	46
Fig.5-1	観察範囲 A.....	48

Fig.5-2	観察範囲 B	48
Fig.5-3	観察範囲 C	49
Fig.5-4	観察範囲 D	49
Fig.5-5	範囲 A き裂 3次元像	49
Fig.5-6	オーステナイト双晶及び対応粒界(赤破線)	51
Fig.5-7	分岐部一方が双晶粒界であった時の進展例	52
Fig.5-8	分岐部一方が双晶粒界・一方が対応粒界であった時の進展例	52
Fig.5-9	範囲 A 3次元像	53
Fig.5-10	範囲 B 3次元像	53
Fig.5-11	範囲 C 3次元像	54
Fig.5-12	範囲 D 3次元像	54
Fig.5-13	範囲 A・SEM 画像	55
Fig.5-14	範囲 A3 次元像拡大図	55
Fig.5-15	粒界面(線)角度	56
Fig.5-16	進展・非進展粒界模式図	57
Fig.5-17	進展粒界における結晶方位差と粒界線/粒界面角度の関係	58
Fig.5-18	進展粒界における結晶方位差と粒界線/粒界面角度の関係(先行研究)	58
Fig.5-19	クロム及び双晶粒界を除いた粒界の方位差分布	59
Fig.5-20	非進展粒界における結晶方位差と粒界線/粒界面角度の関係	60
Fig.5-21	非進展粒界における結晶方位差と粒界線/粒界面角度の関係(先行研究)	60
Fig.5-22	双晶及び対応粒界を加えた非進展粒界における結晶方位差と粒界線/粒界面角度の関係	61
Fig.5-23	結晶方位差と粒界線角度の関係	62
Fig.5-24	結晶方位差と粒界面角度の関係	62
Fig.6-1	非分岐部モデル	65
Fig.6-2	分岐部モデル	65
Fig.6-3	非分岐部における粒界面角度	66
Fig.6-4	分岐部における粒界面角度	67
Fig.6-5	非分岐部における結晶方位差	68
Fig.6-6	分岐部における結晶方位差	68
Fig.6-7	fcc のすべり面とすべり方向	70
Fig.6-8	引張荷重を受ける部材 ^[22]	72
Fig.6-9	非分岐部におけるシュミット因子差	73
Fig.6-10	分岐部におけるシュミット因子差	73
Fig.6-11	非分岐部における応力伝達係数	75
Fig.6-12	分岐部における応力伝達係数	76
Fig.6-13	進展面角度模式図	77

Fig.6-14	非分岐部における進展面角度	77
Fig.6-15	分岐部における進展面角度	78
Fig.6-16	Fisher 線形判別モデル(2次元例) ^[28]	79
Fig.6-17	Fisher の線形判別結果(判別面が直線になる方向から見た図)	82
Fig.6-18	Fisher の線形判別結果	82
Fig.6-19	粒界面角度(x 軸)に射影した図	83
Fig.6-20	結晶方位差(y 軸)に射影した図	84
Fig.6-21	シュミット因子差(z 軸)に射影した図	84
付録 Fig.1	OIM 試料座標系	92
付録 Fig.2	EBSD と IMOD におけるピクセル形状および座標系の違い	94
付録 Fig.3	非分岐部における粒界線角度	96
付録 Fig.4	分岐部における粒界線角度	96
付録 Fig.5	非分岐部における進展線角度	97
付録 Fig.6	分岐部における進展線角度	98
付録 Fig.7	2次元観察による Fisher の線形判別(判別面が直線になる方向から見た図)	99
付録 Fig.8	2次元観察による Fisher の線形判別	99

表目次

Table 3-1	試験片埋込条件	24
Table 3-2	試料断面作製の手順	26
Table 3-3	IMOD コマンド一覧	38
Table 4-1	SUS304 の SCC 発生環境	40
Table 4-2	試験片化学組成(質量%)	41
Table 4-3	試料 SCC 形成条件	41
Table 4-4	レーザー顕微鏡撮影条件	42
Table 4-5	SEM, EBSD 観察条件	43
Table 4-6	研磨条件	44
Table 4-7	圧痕作成条件	44
Table 5-1	進展・非進展粒界における粒界線・面角度平均値	63
Table 6-1	非分岐部・分岐部における粒界面角度平均	67
Table 6-2	非分岐部・分岐部における結晶方位差平均	69
Table 6-3	fcc のすべり面の法線ベクトルとすべり方向ベクトル	71
Table 6-4	非分岐部・分岐部におけるシュミット因子差平均	74
Table 6-5	非分岐部・分岐部における応力伝達係数平均	76
Table 6-6	非分岐部・分岐部における進展面角度平均	78
Table 6-7	射影軸毎の判別面式及び判別率	83
付録 Table 1	非分岐部・分岐部における粒界線角度平均	97
付録 Table 2	非分岐部・分岐部における進展線角度平均	98

第 1 章 序論

第1章 序論

1.1 研究の背景

近年、プラントにおける構造物の経年劣化が大きな問題となってきた。そのため、ガイドライン等の改訂により、安全性を高める取り組みを行っている。しかし、より安全で効率の高い設備維持や保全を進めるためには、経年劣化事象の正確な把握とその発生メカニズムなどの解明が必要となる。

プラントでは水冷却が一般的であり、水環境での金属の腐食の問題は避けて通れない。腐食に関わる経年劣化事象の中でも、応力腐食割れ(SCC:Stress Corrosion Cracking)が大きな課題になっている^{[1][2]}。

応力腐食割れとは、Fig.1-1 で示すように応力因子・材料因子・環境因子の3因子が全て満たされた際にき裂が発生する現象である。ここで応力因子とは、引張応力である。そして、応力腐食割れが発生する材料と環境条件には特定の組み合わせがあり、この条件を満たす因子を材料因子・環境因子と言う。

応力腐食割れは、プラントに限らず様々な構造物の破損を引き起こす。1983年5月14日に千葉県市原市で本田航空株式会社所属のヘリコプター(ベル 206B 型 JA9143)の墜落事故が発生したが、この事故はフリー・ホィーリング・アセンブリ・シャフトと呼ばれる部品が応力腐食割れにより破断、推進力を失い操縦不能となったため起こった^[2]。この事故は応力腐食割れが重大事故を引き起こす可能性がある事を示している。

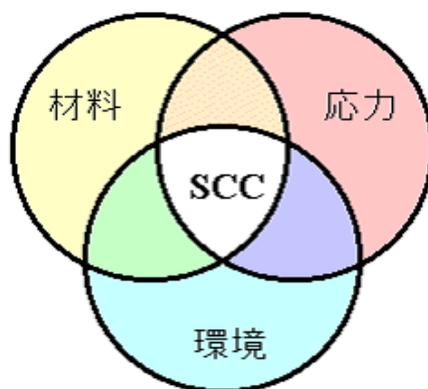


Fig.1-1 SCC 発生条件

応力腐食割れが発生する材料の一つに、オーステナイト系ステンレス鋼がある。オーステナイト系ステンレス鋼は、耐食性、加工性、耐熱性、溶接性等広く優れた性質を持っており、プラント配管に限らず幅広い用途に用いられている。様々な構造物に使用されているため、損傷の際の影響も大きいことから、応力腐食割れについての研究が進められてきたが^[3]、発生・進展メカニズムについては様々な仮説が立てられているものの、未だに解明されていない。本研究では、このオーステナイト系ステンレス鋼を研究対象にする。

応力腐食割れのき裂の形態には、結晶粒内を進展する粒内型と、粒界に沿ってき裂が進展する粒界型 (Fig.1-2^[3])がある。オーステナイト系ステンレス鋼で発生するき裂は、主に粒界型応力腐食割れである^[3]。そして、オーステナイト双晶間及び対応粒界では発生しにくい^{[6][19][23][24]}という特徴がある(対応粒界については5.2で述べる)。粒界型応力腐食割れの観察をするにあたり、粒界型応力腐食割れではき裂が粒界に沿って進展するため、き裂と結晶粒界の両者の関係を追うことが重要であると考えられる。そのため、結晶粒界レベルの、マイクロメートルオーダーの観察が重要となる^[3]。

さらに、応力腐食割れによるき裂は、き裂の枝分かれが多数存在するという特徴がある。しかし、複雑な進展挙動を行う原因は未だ解明されていない。応力要素と腐食要素が関わりあい、複雑な挙動をしていると考えられている^[3]。粒界型応力腐食割れにおいては、Fig.1-3で示すように2方向に分岐するき裂と、分岐せず一方にのみ進展するき裂が存在する。分岐の有無がどのように決定されるかは分かっていない。

き裂は3次元的な粒界を進展するため、き裂の全長や損傷度合いをどのように評価するのかといった問題に対応するためには、3次元的な観察が望ましい。しかし、従来の損傷評価法は2次元観察に基づいて構築されたものであり、材料内部の3次元観察は反映されていない。これは、Fig.1-4^[7]で示すように粒界を”面”ではなく、粒界”線”や三重”点”でしかとらえていない事を意味する。よって、2次元観察では粒界と分岐の関係が分かりにくい。き裂形状を3次元的に測定すること^{[4][5]}や、き裂と結晶を合わせた2次元観察^[6]は行われているものの、結晶粒とき裂の両者を合わせた3次元観察はあまり行われていない。

3次元観察手法の一つに、EBSD法^[8]とシリアルセクションニング法^{[9][26]}を合わせた、3D-EBSD法^[10]がある。シリアルセクションニング法とは、2次元連続断面画像から、3次元構築を行う事で3次元モデルを作成する手法である。3D-EBSD法は、結晶粒界を同定できること、及び3次元的な形状を観察できることが特徴である。当研究室の磯崎は3D-EBSD法を用いて、応力腐食割れき裂の3次元的形状及びき裂と結晶粒界の関係に関し、観察を行った^[3]。今回、この3D-EBSD法を用いて3次元観察を行う。

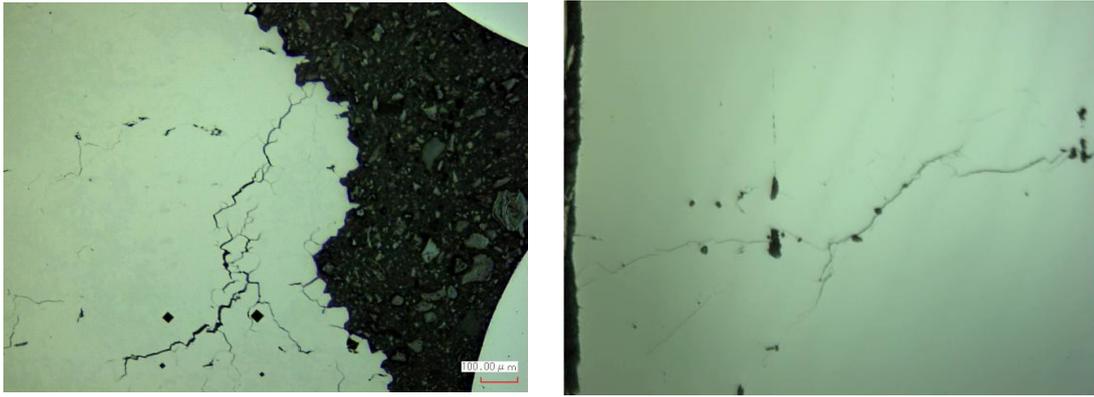


Fig.1-2 粒界型 SCC(右, 1422×1067μm) と粒内型 SCC(左, 284×213μm)

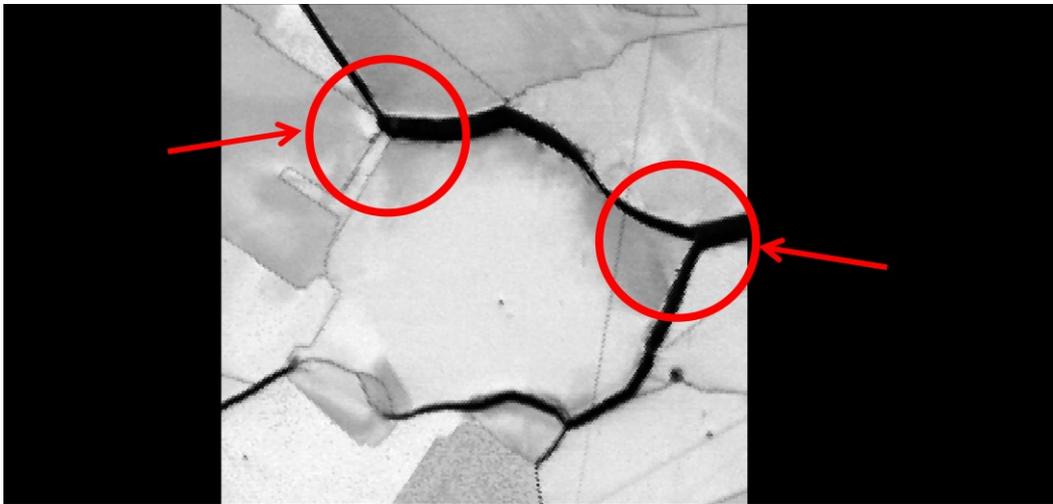


Fig.1-3 分岐の有無

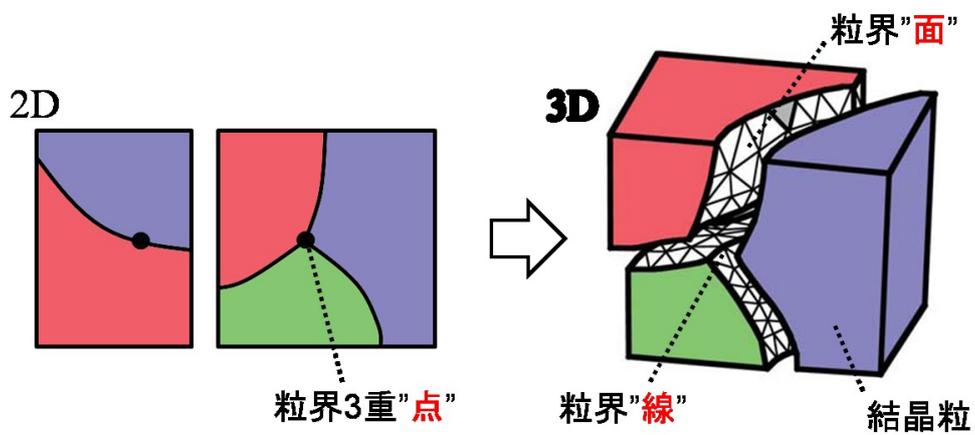


Fig.1-4 3次元結晶組織

1.2 先行研究

2012年度における磯崎の先行研究^[3]では、オーステナイト系ステンレス鋼のき裂3次元可視化及び観察を行った。以下にその研究内容を示す。

- ・3D-EBSD法を用いて、マイクロ領域(観察領域 $100\mu\text{m} \times 100\mu\text{m}$)のき裂3次元モデルを作成した。(以下、マイクロモデルと呼ぶ)
- ・シリアルセクションング法を用いて、マクロ領域(観察領域 $1422\mu\text{m} \times 1067\mu\text{m}$)のき裂3次元モデルを作成した。(以下、マクロモデルと呼ぶ)
- ・マクロモデルより、き裂の3次元的つながりを確認した(Fig.1-5)。
- ・マイクロモデルより、粒界をき裂が進展している事が分かった。
- ・マイクロモデルより、応力方向と粒界のなす角が小さい時、き裂が進展しにくい傾向がある事が分かった。

しかし、課題として以下が挙げられた。

- ・データ点数の不足により、定量的な分析が行われていない。
- ・観察により測定された要素が、粒界と応力のなす角と結晶方位差の二つだけであった。

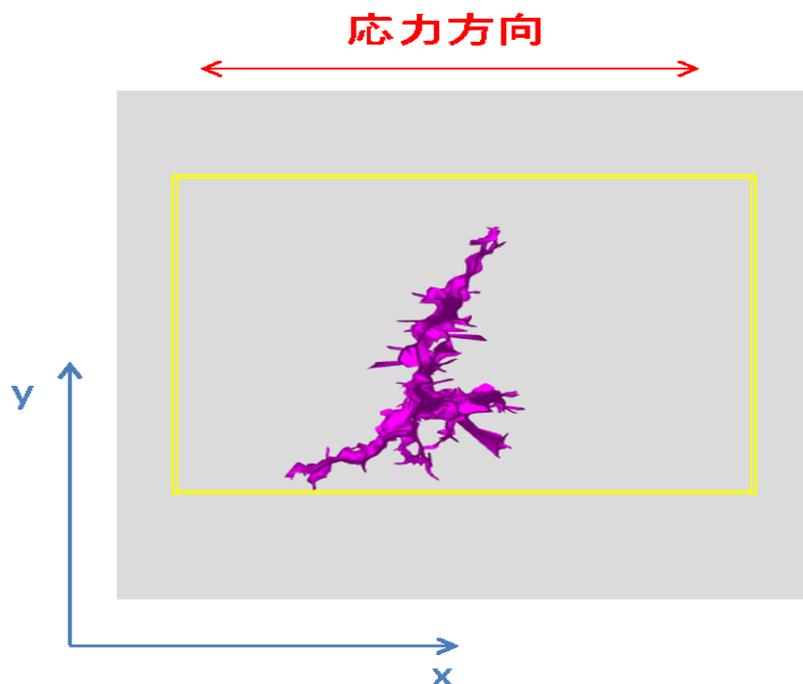


Fig.1-5 マクロモデルによるき裂の3次元的つながり

1.3 研究の目的

き裂の進展しやすさが、き裂分岐の有無に関わっていると考えられる。よって、本研究ではき裂の分岐部に着目し、分岐の有無を決定する因子を特定する事で、き裂の進展現象の解明を目指す。き裂進展現象は3次元的な挙動であるため、3次元的な応力腐食割れの観察は大きな意義があると言える。

なお先行研究として、昨年度当研究室の磯崎が行った研究がある^[3]。本研究では、データ点数を加えた上で、先行研究の信頼性について調査し、さらに SCC 分岐部に着目した観察を行う。

マクロモデルでは観察が困難であるため、マイクロモデルで観察領域を $200\mu\text{m} \times 200\mu\text{m}$ と先行研究より広げ、測定を行う。

本研究では、以下に示す4つのステップにより、分岐方向決定因子（分岐の有無及び非分岐部で進展方向を決定する因子と定義する）の特定を目指す。

- (1) 先行研究と同条件の試験片を用意する。
- (2) 試験片に対し、研磨→撮影のプロセスを繰り返す事で、2次元データを集める。
- (3) 2次元データを重ね合わせ、3次元像を作る。
- (4) 3次元像を観察する事で、分岐方向決定因子を特定する。

1.4 本論文の構成

第1章 序論

本論文の背景および目的を述べる。

第2章 3D-EBSD 法

3次元マイクロモデル作成手法である，3D-EBSD 法について説明する。

第3章 3次元像作成手順

どのようにして3次元像を作成するかについて具体的に述べる

第4章 試料の観察条件

SUS304 試験片の仕様・観察条件について説明する。

第5章 SUS304 の SCC き裂観察

観察範囲を示した後，全体的なき裂の挙動傾向を観察する。

第6章 SUS304 の SCC き裂分岐部観察及び評価

3次元マイクロモデルを用いて，SCC き裂分岐部に特化した観察及び評価を行い，分岐方向決定因子の考察を行う。

第7章

本論文の成果を述べる。

付録 A：OIM 解析について説明する。

付録 B：IMOD コマンドについて説明する。

付録 C：分岐部の2次元観察の結果を示す。

第 2 章 3D-EBSD 法

第2章 3D-EBSD 法

本章では、3次元像作成に用いる3D-EBSD法と呼ばれる観察手法について説明し、さらに観察の具体的な手順を述べる。3D-EBSD法はEBSD法とシリアルセクショニング法を合わせた手法であるので、それぞれについて説明を行う。先行研究において、同じ手法が用いられた。

2.1 EBSD (Electron Backscatter Diffraction)法^{[3][11][12]}

EBSD法 (electron backscatter diffraction, 電子後方散乱回折像法) は結晶方位を測定する方法である。装置は Fig.2-1 で示すように SEM と一体になっており、SEM 試料室内で 70° 前後と大きく傾斜した試料に電子線を照射する。そして、Fig.2-2 で示すように、電子線後方散乱回折により発生する回折像を蛍光スクリーンに投影し、高感度 CCD カメラで取り込む。さらに回折像のバンド角度関係を測定する事によって、その照射点の結晶方位の測定を行う。

EBSD は回折像から結晶方位を求めるが、その回折像は菊池パターンと言われる。試料に入射した電子線は試料の原子により、弾性散乱、非弾性散乱を起こし試料内を進んでいく。つまり各原子が新たな光源として振舞う。菊池パターンは非弾性散乱電子が主となって形成される。非弾性散乱にはプラズマ振動の励起、内殻電子の励起、フォノンの励起、二次電子の発生等いろいろな現象があるが、このうちフォノンの励起等エネルギー損失の極めて小さい場合 (波長の変化が無視できるくらい) の非弾性散乱電子の強度はその進行方向に依存する。入射電子線の進行方向に最大の強度をもち、散乱角が大きくなるに従い非弾性散乱電子の強度は弱くなる。試料内部で非弾性散乱した電子は、ブラッグの式に従い回折される。この回折像が菊池パターンである。この菊池パターンは実格子をそのまま反映したものであり、画像解析によって結晶方位の決定に用いることができる。Fig.2-3 にオーステナイトの菊池パターンの一例を示す。

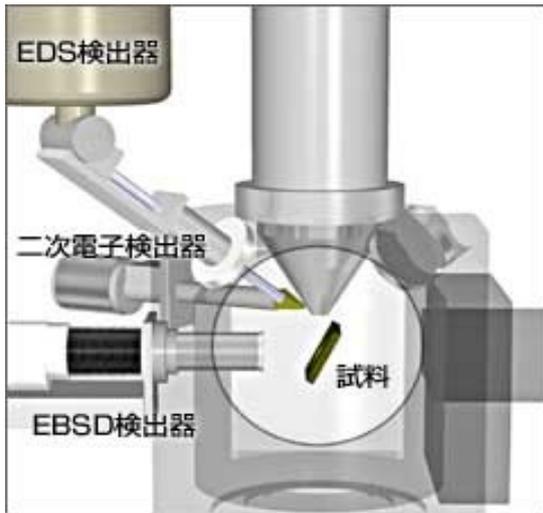


Fig.2-1 SEM 装置断面図

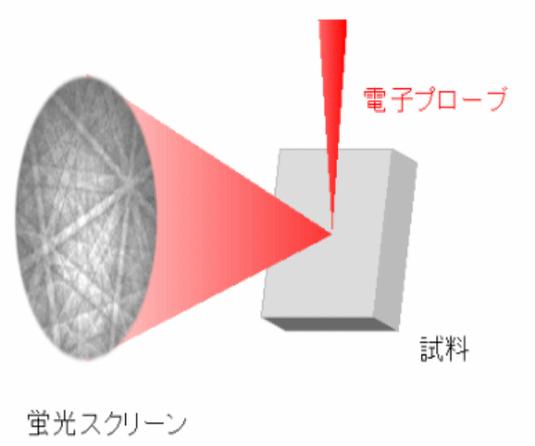


Fig.2-2 EBSD 装置概略

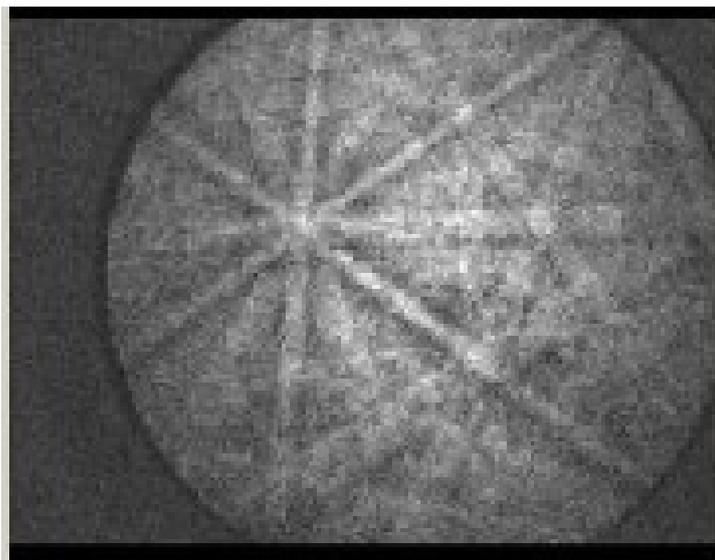


Fig.2-3 菊池パターン一例

EBSD 法は電子線回折法の一技法であるが、結晶構造を解析することで試料のミクロな組織等を調べる手法であり、結晶構造が全く不明の試料には適応できない。すなわち測定時には試料についての情報を予め入力しておかなければならない。また、EBSD 法では試料を大きく傾斜させる必要があるが、電子線の角度操作等の必要はなく、高立体角でパターンを取り込むことができるため、ミクロな領域の結晶方位を精度良く、しかも従来の技術と比較し格段に高速で測定できるメリットがある。さらに電子線を連続的に移動させながら結晶方位を測定することにより、結晶方位によるマッピングデータ、すなわち定量的・統計的なデータとして試料の組織解析に使用する事ができる。

EBSD パターンの発生領域は試料の表面から 30~50nm 程度の深さであり、極表面の情報得られる。そのため表面は研磨して平滑とし、出来る限り表面加工の影響を取り除くことが望ましい。また、空間分解能は SEM の電子線プローブ径に依存している。FE-SEM を用いた場合 5~15nm 程度の分解能となる。さらに、方位差の誤差は 0.5° 程度である。本研究では 200 μ m \times 200 μ m の範囲を観察対象とするため、十分な分解能を有していると言える。

一度の電子線照射で測定点の結晶方位が得られるので、照射点を x, y 方向に走査していくことにより、2 次元的な結晶方位マップが得られる。また、SEM と一体であるため同時に EBSD 測定領域を含む SEM 画像も得ることができ、き裂やビッカース圧痕等の位置を確認することができる。

EBSD 測定が不可能な試料として、

- ①試料の結晶構造が不明
- ②試料が非晶質
- ③試料が反応体積内で均一な結晶性を維持していない、
- ④試料の結晶粒が反応体積と同等程度かそれよりも小さい場合

が挙げられる。今回使用する試験片では、この何れも満たしておらず、測定に適している。

また、EBSD 測定の妨げとなる原因としては、

- ①切断や不十分な研磨による加工ひずみ層
- ②異物付着 (真空ポンプの油、試料に存在する有機物)
- ③酸化皮膜などの生成による表面層の変化

などが考えられる。そのため、本研究においてはこの点に十分留意して測定を行う。

2.2 シリアルセクショニング法

シリアルセクショニング法^{[9][26]}とは、試料の表面研磨と試料表面の撮影を繰り返しにより得られた連続2次元断面画像について、連続2次元断面画像の間を補間することで、3次元構築を行う手法である。ただし、3次元化を行う際、各断面画像をアライメントし、撮影領域のずれを補正する必要がある。本研究においては、表面研磨の後に圧痕を打ち、その圧痕を目印にして撮影領域のずれを補正する。

研磨方法は、集積イオンビームを試料表面にぶつけることで研磨を行う、FIB(Focused Ion Beam)研磨と、エメリー紙やラッピングシートを用いる機械研磨との二種類がある。FIB研磨は、機械研磨と比較すると高分解能ではあるものの、研磨に多大な時間がかかってしまうため、本研究では機械研磨を採用する。

2.3 3D-EBSD 法

3D-EBSD 法^[26]は、2.1 で説明した EBSD 法と、2.2 で説明したシリアルセクショニング法を合わせた手法である。本研究の場合は、EBSD による各連続断面画像について、き裂抽出画像を作成し、これらの画像を元に、3次元構築を行う。

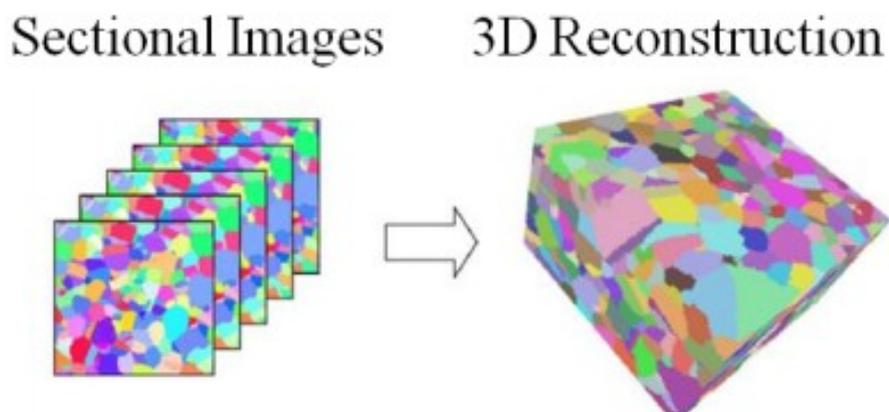


Fig.2-4 3D-EBSD 法概要

2.4 3D-EBSD 法の位置づけ^[12]

マイクロ領域を 3 次元的に観察する手法は、3D-EBSD 法以外にもいくつかある。主に TEM(Transmission Electron Microscope), FIB 研磨による 3D-EBSD 法, 機械研磨による 3D-EBSD 法, 高強度 X 線(Synchrotron Radiation)^[14] の 4 つである。その中で、3D-EBSD 法の位置づけを説明する。

Fig.2-5 に、3 次元マイクロ観察手法の比較を示す。横軸は観察範囲、縦軸は観察分解能となっている。観察範囲と分解能にはトレードオフの関係があり、4 つの手法は以下のような位置づけとなっている^[15]。高強度 X 線は、非破壊観察なので時間も含めた 4 次元観察が可能なのが魅力である。しかし、まだ分解能が小さいのが現状である。TEM は、薄膜試料を作製する必要があり、厚さ方向にせいぜい数 μm の観察範囲しか取れない。これらに比べて 3D-EBSD 法は、分解能・観察範囲ともに幅広くカバーしている。

よって本研究では、

- ①観察範囲が $200\mu\text{m} \times 200\mu\text{m}$ 程度である
- ②先行研究より、分解能は $1\mu\text{m}$ 程度で支障が無い事が分かっている
- ③FIB 研磨は多大な時間がかかってしまう

以上 3 つの理由より、き裂の 3 次元観察に機械研磨による 3D-EBSD 法を採用した。

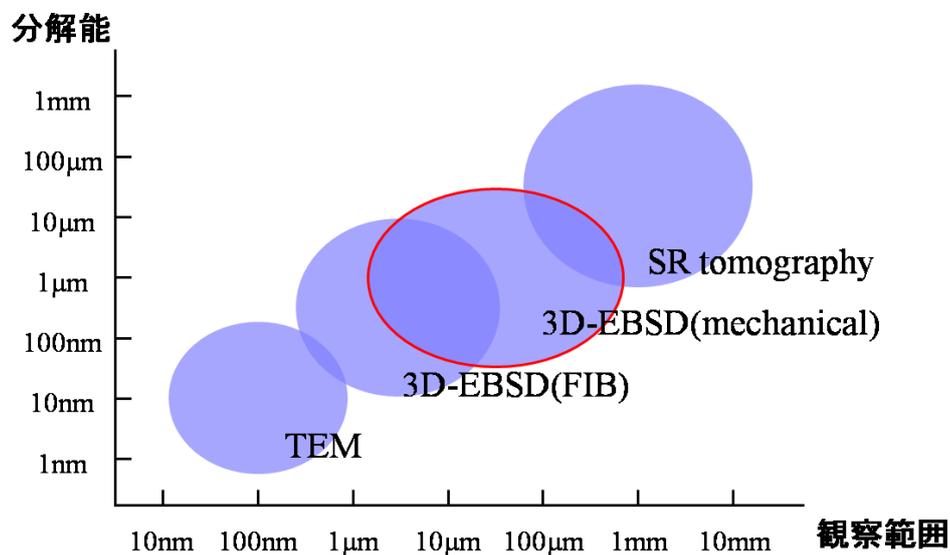


Fig.2-5 3次元マイクロ観察手法の比較

第 3 章 3 次元像作成手順

第3章 3次元像作成手順

以下では、3D-EBSD法に基づき3次元像を作成するまでの手順について説明する。本研究で行った作成手順は、磯崎による先行研究^[3]における手順を踏襲している。

3.1 試料の準備^{[3][12][13]}

観察を行う前に、SUS304試験片を観察試料にするための準備を行う。試験片を樹脂に埋め込んだ後、機械研磨によって鏡面仕上げを行い、手順となる。Fig.3-1に手順と実際に使用した器具の写真を示す。

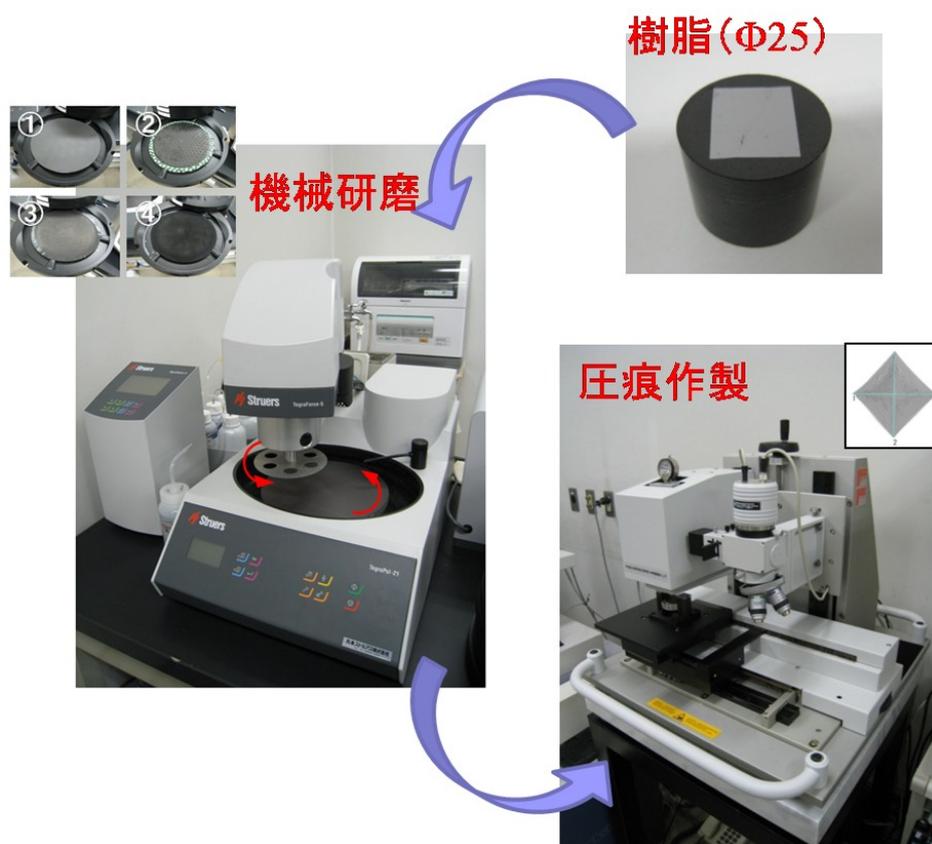


Fig.3-1 観察試料の準備

3.1.1 試験片の樹脂埋め込み

SEM 装置の治具に試料を設置するため、SUS304 試験片を円柱形の樹脂の中に埋め込む。樹脂は熱硬化性樹脂(カーボン系充填剤含有導電性フェノール樹脂)である。試験片埋め込みには、熱間埋込装置 CitoPress-1 (Struers 製)(Fig.3-2)を用い、樹脂直径は治具に合わせて $\phi 25$ とした。Table3-1 に試験片の埋め込み条件を示す。また、Fig.3-3 に治具を、Fig.3-4 に試験片を樹脂に埋め込んだ物(以下、試料と呼ぶ)を治具に設置した状態を示す。試料の黒い部分が樹脂、銀色の部分が試験片である。

Table 3-1 試験片埋込条件

加熱温度	180°C
加熱時間	3 分
圧力	250BAR
冷却モード	High
冷却時間	2 分



Fig.3-2 熱間埋込装置



Fig.3-3 SEM 装置治具

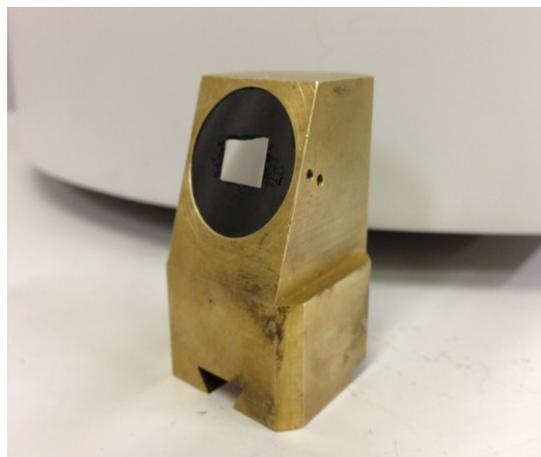


Fig.3-4 治具で固定した試料

3.1.2 鏡面仕上げ

観察にふさわしいと考えられるき裂が現れるまで、樹脂に埋め込んだ試験片を試料ごとに研磨する。この際用いる研磨板は、粗めの Si-C である(面出し研磨)。これは、試験片を切り出した際の加工ひずみ層を取り除く意味もある。現れるまでは、研磨→顕微鏡観察でき裂があるか観察を繰り返す。

き裂が現れると、次に砥粒の粒径 3-15 μm の精研磨、砥粒の粒径 1-9 μm のダイヤモンド琢磨,そして最後に粒径 0.04 μm のコロイダルシリカを用いた OP(Oxide Polishing:酸化物琢磨)を行い、鏡面に仕上げる。コロイダルシリカが試料表面に付着したままであると観察の妨げになるため、OP 終了間際に中性洗剤を投入し、試料上のコロイダルシリカを洗い流す。Table 3-2 に各研磨/琢磨で用いた研磨盤、砥粒、懸濁液、潤滑剤を示す。

Table 3-2 試料断面作製の手順

面出し研磨 (PG:Plane Grinding)	Si-C 研磨紙(粒度:#320) 潤滑剤(水)
精研磨 (FG:Fine Grinding)	MD Largo(砥粒:なし, 粒径:15-3 μm) ダイヤモンド懸濁液(DP-Suspension, 9 μm) 潤滑剤(DP-Lubricant, Green)
ダイヤモンド琢磨 (DP:Diamond Polishing)	MD Dac(人絹, 砥粒:ダイヤモンド, 粒径:9-1 μm) ダイヤモンド懸濁液(DP-Suspension, 3 μm) 潤滑剤(DP-Lubricant, Green)
酸化物琢磨 (OP:Oxide Polishing)	MD Chem コロイダルシリカ(OP-U, 0.04 μm)

3.1.3 圧痕作成

圧痕には

①Z方向整列

②研磨量の測定

の2つの意味がある。

本研究では、一枚ずつ断面画像を撮る必要がある。そのため、SEM・EBSD画像を一枚撮る度に、試料を治具から外し、再度セットし直さなければならない。よってSEM・EBSDの観察領域は、治具の固定位置や、試料の表面傾き等の影響で、毎回一致させる事は難しい。そのため、圧痕の位置を目印に、得られた二次元画像を後で整列させる必要がある。

また、機械研磨の性質上、同じ時間研磨しても必ずしも同じ研磨量になるとは限らない。そのため、圧痕の二次元形状の変化から研磨量を測定しなければならない。

圧痕作成には、Fig.3-5 に示すマイクロビッカース硬さ試験（FISCHERSCOPE HM2000）を用いた。圧痕作成の注意点としては、EBSD 観察領域の外側かつ SEM 観察領域の内側に打つということである。

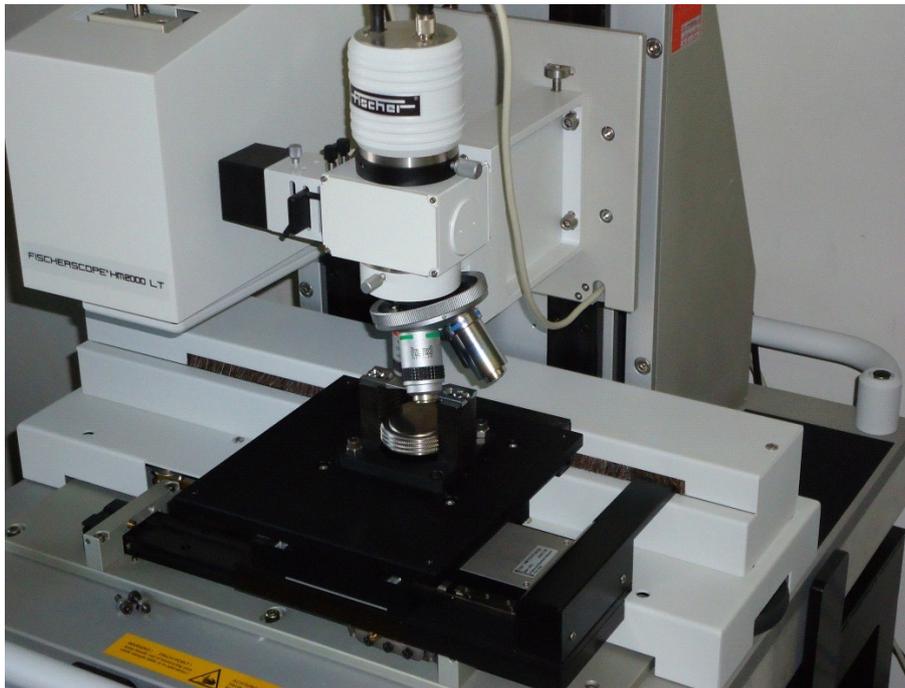


Fig.3-5 マイクロビッカース硬さ試験機

3.2 連続断面観察^{[3][12][13]}

以下では連続断面観察の具体的手法を説明する．連続断面の観察は，機械研磨→OP→(圧痕作成)→研磨量測定→SEM・EBSD 観察というサイクルの繰り返しによって行う．ただし，本研究では，圧痕作成は3サイクルに1回行った．



Fig.3-6 連続断面観察フローチャート

3.2.1 研磨・OP

連続断面観察時の微小研磨では、3.1.2の鏡面加工の際に使用した、Fig.3-7と同様の装置を使う。砥粒の粒径 $1\text{-}9\mu\text{m}$ のダイヤモンド琢磨を行い、次にコロイダルシリカ(粒径 $0.04\mu\text{m}$)によるOPを行うことにより表面を鏡面に仕上げる。研磨時間は、圧痕の深さや観察領域との兼ね合いから、 $1.5\mu\text{m}$ 程度になるように調節する。OPの時間が短すぎると、表面が鏡面にならなくなりEBSD撮影画像の質が悪くなってしまう。そのため、OPを行う時間は、十分確保する。また、3.1.2における研磨と同じく、試料表面にコロイダルシリカが残っていると、観察の妨げとなるので、OP終了間際に中性洗剤による洗浄を行い、コロイダルシリカを洗い流す。



Fig.3-7 機械研磨装置

3.2.2 圧痕作成

圧痕作成には、3.1.3 で用いた Fig.3-5 のマイクロビッカース硬さ試験機を用いる。圧痕作成の目的は、3.1.3 で示した通りである。研磨によって圧痕が消滅してしまうので、本研究では3 サイクルに1回のペースで圧痕の打ち直しを行った。また、圧痕が1個だけだと重ね合わせを行う際に回転角が分からなくなってしまう。そのため、圧痕は常に2個以上ある状態にする。圧痕を打つのは、EBSD の観察領域の外側かつ SEM 観察領域の内側である。Fig.3-8 に圧痕の形状を示す。

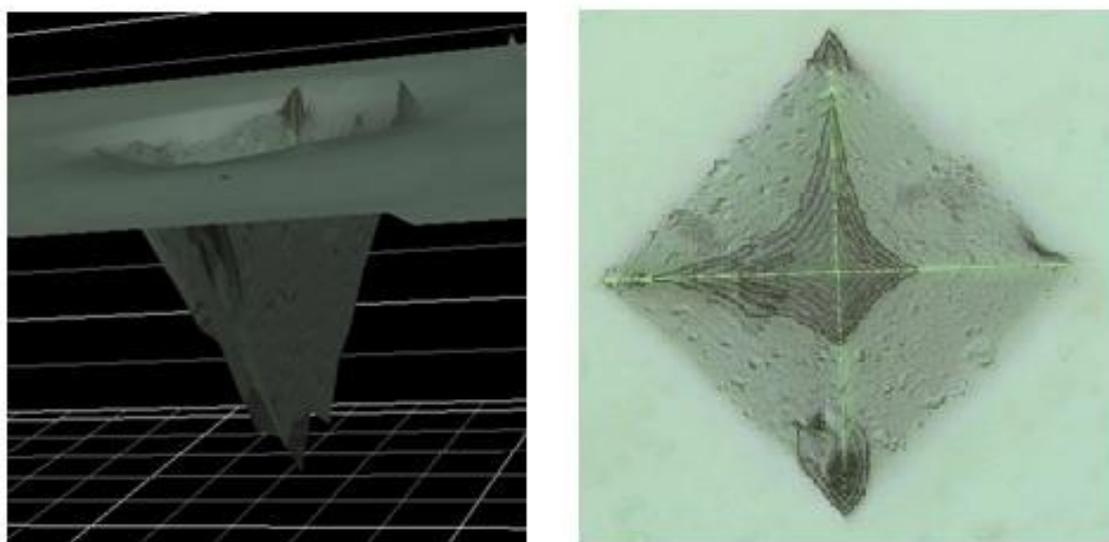


Fig.3-8 圧痕形状

3.2.3 研磨量測定

圧痕は 3 次的に Fig.3-9 の形をしている。圧痕の研磨前と研磨後の平均対角線長さ d_1 , d_2 を Fig.3-10 に示すレーザー顕微鏡(Keyence VK-9500)によって毎回測定し, (1)式より, 研磨量 Δh を算出する。圧痕観察の倍率は 2000 倍で行う。

$$\Delta h = \frac{d_1 - d_2}{2\sqrt{2} \tan(180^\circ - 136^\circ)} \quad (1)$$

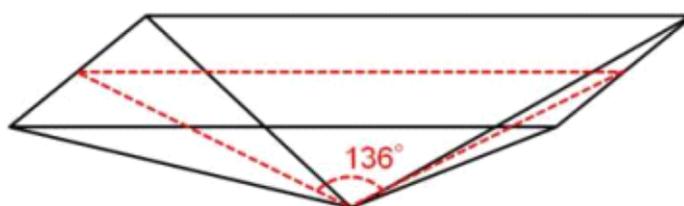


Fig.3-9 圧痕形状モデル



Fig.3-10 レーザー顕微鏡

3.2.4 SEM・EBSD 観察

EBSD 観察により，各断面の結晶方位情報を取得する．測定データの収集には，SEM(Elionix ERA-8800FE)，OIM 検出器(EDAX-DigiViewIII)を用いた(Fig.3-11)．データ解析には OIM Data Analysis 6.1 を用いた．EBSD 観察領域は $200\mu\text{m} \times 200\mu\text{m}$ ，EBSD 測定 step は観察対象の結晶粒径や計測時間などを考慮して $1\mu\text{m}$ とする．ただし，観察領域が y 方向に大きすぎると，試料面が 70° 傾斜していることが原因で，観察領域全体に焦点が合わないの
で注意する．

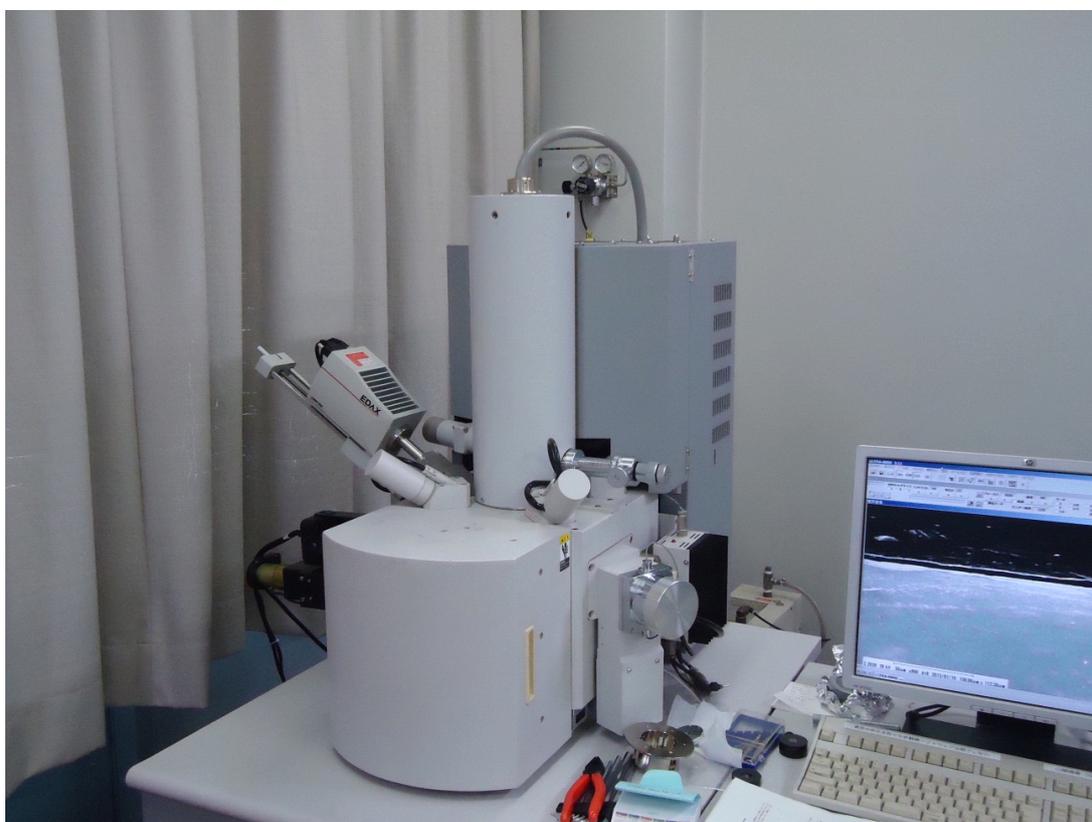


Fig.3-11 SEM-EBSD 装置

3.3 3次元構築^{[3][12][13]}

以下では、3次元構築の具体的作業について説明する。3次元構築の作業は、SEM・EBSD画像の一致→圧痕抽出→画像の整列→対象抽出→3次元構築の順に行う。



Fig.3-12 3次元化フローチャート

3.3.1 SEM と EBSD 画像の一致

Fig.3-13 に SEM 画像, Fig.3-14 に EBSD 画像の例を示す. SEM 画像は 70°傾いた状態なので, 縦方向に引き延ばす必要がある. また, EBSD 画像には圧痕が映っていないため, SEM 画像と重ね合わせて圧痕が映った状態にする必要がある. そのため, OIM Data Analysis 6.1 を用いて Fig.3-15 のように重ね合わせた画像を作成する.

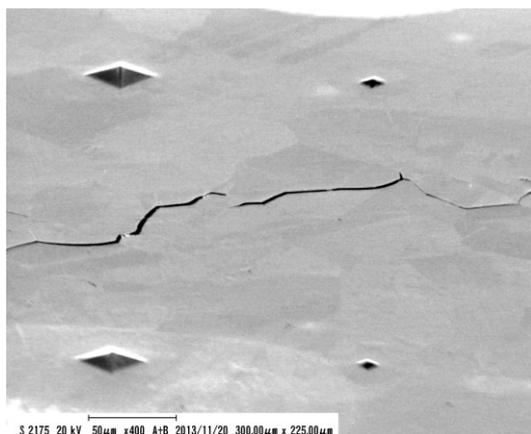


Fig.3-13 SEM 画像

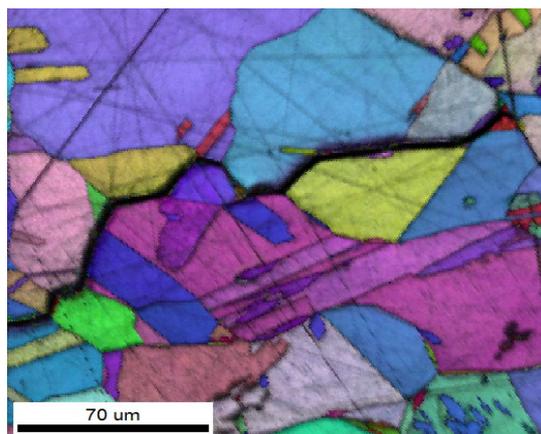


Fig.3-14 EBSD 画像

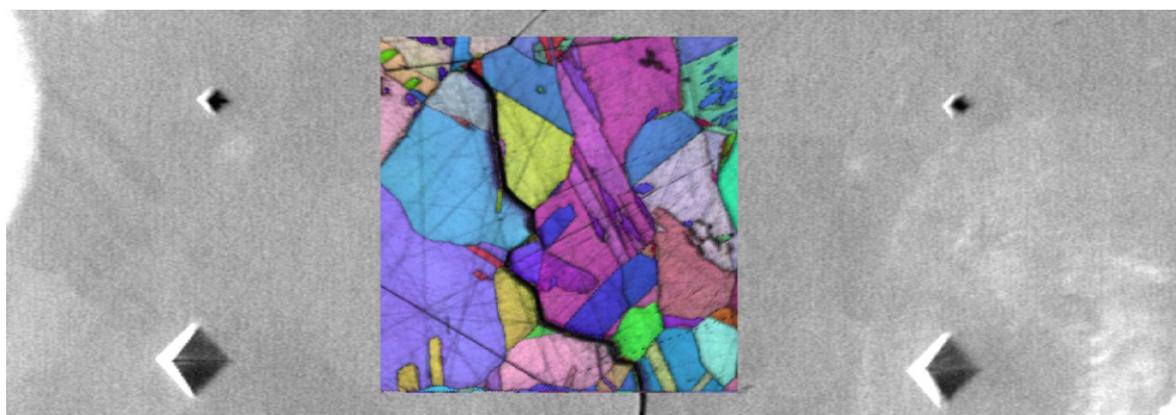


Fig.3-15 重ね合わせ画像(90°回転)

3.3.2 圧痕抽出

3.3.1 で得られた重ね合わせ画像を元に、圧痕を抽出する。抽出方法は、フリーソフト GIMP(GNU Image Manipulation)を使用する。圧痕中心を手動で選択し、色づけし、背景を白にする。3.3.3 で行う画像の整列作業との兼ね合いで、同一プロセスにおいて打たれた圧痕は、同じ色付けをする。この圧痕画像はあくまで3.3.3 で行う画像の整列作業のために使用するためであり、3次元化には使用しない。

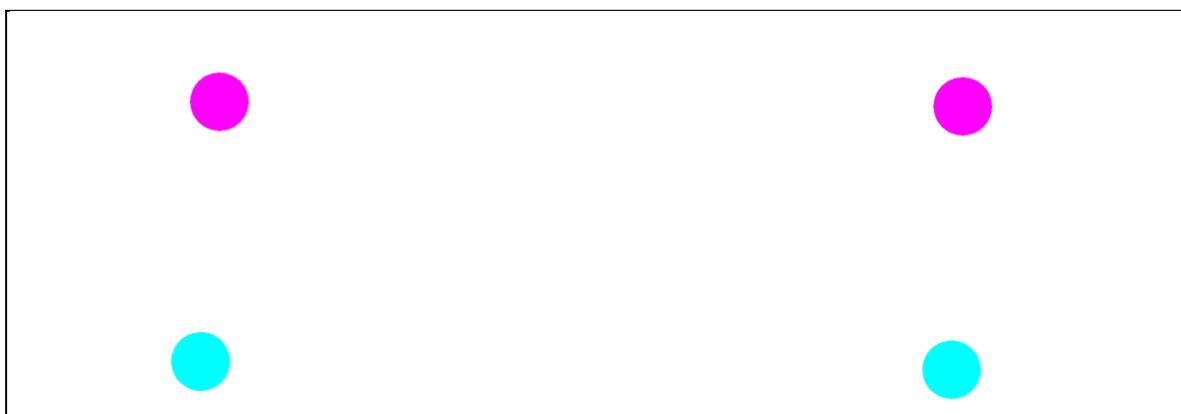
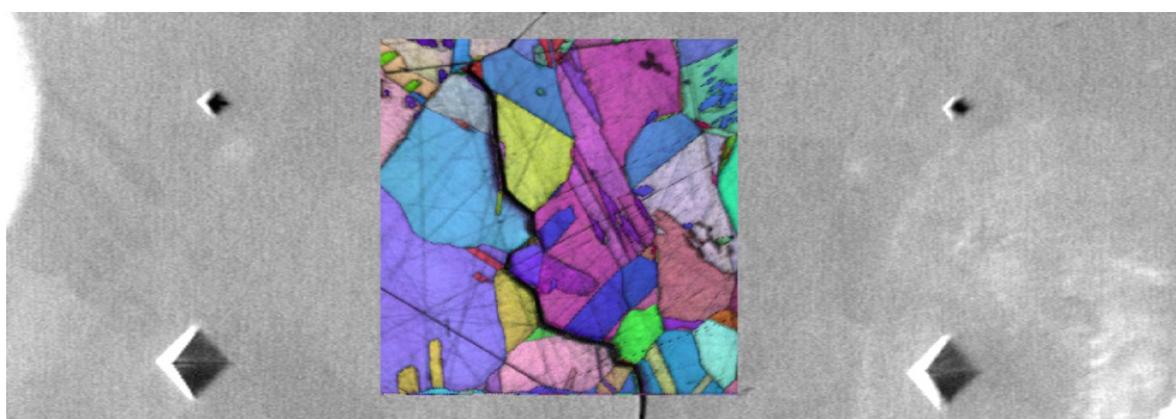


Fig.3-16 圧痕抽出例

3.3.3 画像の整列

3.3.2 で作成した SEM 観察領域に写った圧痕画像を利用する。この画像を利用して、各画像で圧痕の位置合わせを行う。

- ① 2枚の圧痕画像($n=k, k+1$)について、2つの圧痕の中心を求め、2点の中心 $\text{center}(k)$, $\text{center}(k+1)$ を求める。
- ② $\text{center}(k)$ と $\text{center}(k+1)$ を一致させるように、圧痕画像($n=k+1$) を平行移動。
- ③ $\text{center}(k)$ を中心として、圧痕画像($n=k+1$) を 0.5° step で $\pm 5^\circ$ 回転し、式(2)で表される相関係数が最大となるときの θ を求める。
ただし、 $n=\text{width}*\text{height}$, x_i, y_i : 圧痕画像($n=k, k+1$) の pixel データである。
- ④ ①~③を $k=1\sim N-1$ について行うことで、全断面間について式(3)のような回転行列と平行移動ベクトルを求める。
- ⑤ ①~④で得られた移動量・角度を元に、1枚目を基準に重ね合わせ画像を移動する。

$$r_{xy} = \frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y})}{\sqrt{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \sqrt{\sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2}} \quad (2)$$

$$\begin{pmatrix} \cos \theta & -\sin \theta \\ \sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} dx \\ dy \end{pmatrix} \quad (3)$$

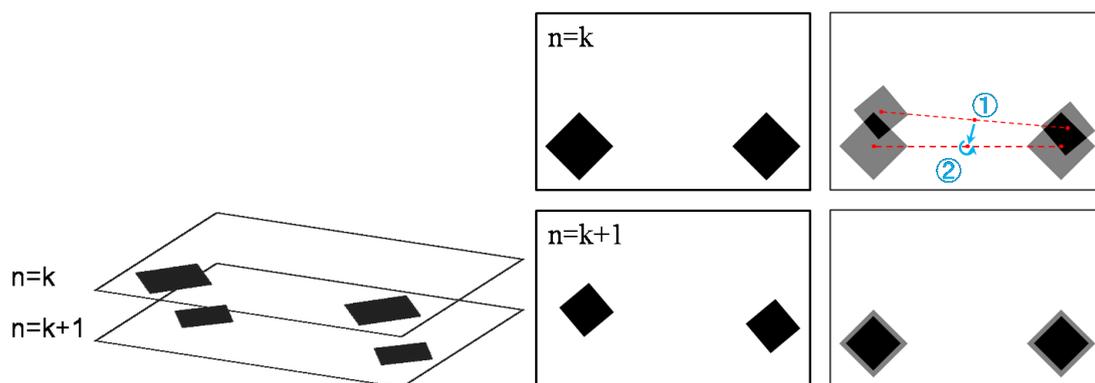


Fig.3-17 圧痕による z 方向整列の手順

3.3.4 対象抽出

3次元構築対象を抽出する。3.3.2と同様GIMPを用いて、3.3.3で移動回転して整列させた重ね合わせ画像(以下整列画像)から、対象を手動で色付けする。この際、SEM画像やレーザー顕微鏡で撮影された画像も参考にする。Fig.3-18に整列画像を、Fig.3-19に対象をき裂とした場合の抽出画像を示す。

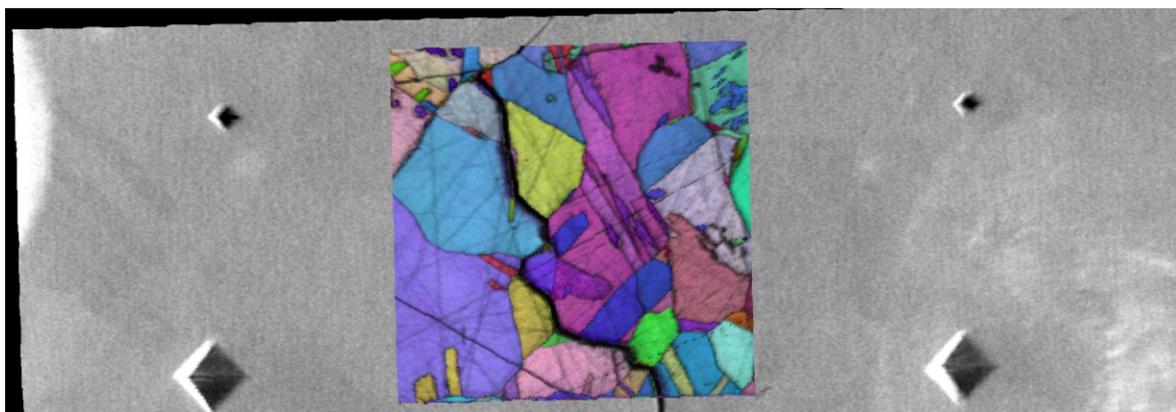


Fig.3-18 整列画像例

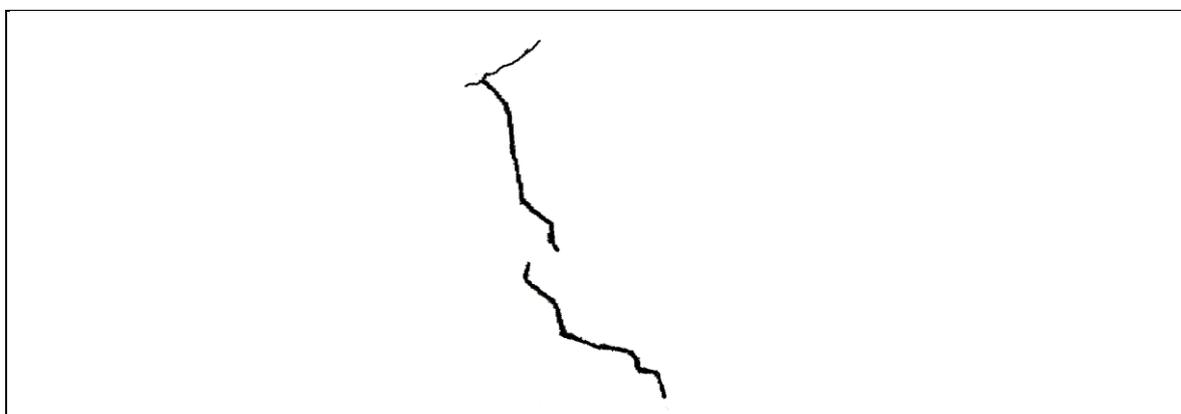


Fig.3-19 抽出画像例

3.3.5 3 次元構築

次に，断面間を補間して表面を生成することで 3 次元構築する．3 次元構築には IMOD(Image processing, Modeling and Display programs)^[16]を用いた．IMOD では，以下のコマンド(Table 3-3)を使用した．IMOD コマンドの詳細については，付録 B に掲載する．

Table 3-3 IMOD コマンド一覧

tif2mrc	TIFF から MRC へ変換
imodauto	自動で輪郭作成
smoothsurf	スムージング
imodmesh	表面メッシュ作成
imodjoin	複数の IMOD モデルの結合
3dmodv, 3dmodv	IMOD モデルの表示
imodinfo	モデル情報の出力

第 4 章 試料の観察条件

第4章 試料の観察条件

本章では、本研究で使用する試験片及び、観察時に使用した機器の実験条件について述べる。なお、主き裂で破断した試験片を用いるため、主き裂から分岐して伸びているき裂を観察する。

4.1 試験片^[3]

4.1.1 材質

本研究では、SUS304 試験片を使用する。SCC が起こりやすいオーステナイト系ステンレス鋼の中で、最も一般的に用いられ、最も標準的なものが SUS304 であるため、採用した。SUS304 は、オーステナイトを主成分とし、18%程のクロムと、8%の程のニッケルを含有している。オーステナイト系ステンレス鋼は、他のステンレス鋼と比較して、耐食性、靱性、溶接性、高温強度で優れている。クロムと空気中の酸素の反応により、表面に厚さ数 nm の不動態膜を形成され、この不動態膜によって、酸化性の酸に対して高い耐食性を持つ。また、ニッケルの寄与によって、非酸化性の酸についても、高い耐食性を持っている。しかし、鋭敏化等の何らかの要因によって不動態膜を保持できなくなると、その部位では腐食が生じてしまう。特にオーステナイト系ステンレス鋼では、フェライト系ステンレス鋼、マルテンサイト系ステンレス鋼と比べて SCC がはるかに発生しやすい。

SCC の発生する腐食環境例を Table 4-1 に示す。本研究では粒界割れについて調べるため、テトラチオン酸を用いて SCC を発生させる。

Table 4-1 SUS304 の SCC 発生環境

割れの種類	腐食環境
粒界割れ	塩化物 高温水 テトラチオン酸
粒内割れ	ポリチオン酸 So ₂ -メタノール

4.1.2 試験片生成条件

本研究で用いた試験片は、IHI より提供を受けた。試料作製の手順を以下で説明する。

①SUS304 のブロックに対し、鋭敏化度が 40.3%になるよう、750℃・2 時間、500℃・24 時間の二段階鋭敏化処理を施す。

②熱処理後に長さ 110mm、高さ 10mm、幅 5mm の試験片を切り出し、中心部に疲労予き裂を 0.5mm 程入れる。

③背面ひずみが 0.46%となるまで 4 点曲げ(内スパン 40mm, 外スパン 100mm)により荷重を付加する。

④変位を固定し、約 70 時間 1%テトラチオン酸に浸漬し、SCC を発生、進展させる。

⑤疲労荷重を加え試験片を分離破断させる。

このようにして試験片が 2 つ作成されたが、一方は先行研究で使用され、本研究ではもう一方を使用する。

試験片の化学組成式を Table 4-2、SCC 作成条件を Table 4-3 に示す。

Table 4-2 試験片化学組成(質量%)

C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr
0.05	0.46	0.83	0.03	0.004	8.09	18.28

Table 4-3 試料 SCC 形成条件

鋭敏化条件	750℃で 2 時間 500℃で 24 時間
応力付加方法	4 点曲げ
背面ひずみ	0.46%
環境	1%テトラチオン酸, PH=3.0
試験時間	約 70 時間

4.2 実験条件

4.2.1 観察範囲

本研究では、3.3.4の作業において対象を手動指定する際の参考として、レーザー顕微鏡で研磨量を測定する時、同時に断面の撮影を行う。Fig.4-1のように、レーザー顕微鏡の観察範囲の中にSEM・EBSD観察範囲が含まれるようにする。レーザー顕微鏡での観察条件をTable 4-4に示す。

また、き裂のごく近傍に圧痕を打つと、圧痕の形がくずれてしまうので、き裂からある程度離れた箇所に圧痕を打てるようにしつつ、かつ圧痕がSEM観察領域内に入らないといけない。そのようにSEM倍率を調整した結果、SEM倍率は400倍とした。

EBSD については、細かいき裂をきちんと撮影できるか否か、作業時間などの兼ね合いから、Scan Stepを1 μ mとした。観察範囲は、SEMが400倍の時、最も広範囲を撮影できる範囲として、200 \times 200 μ mとした。また、SUS304には、Crが化学成分として約18%入っているので、Scan Phaseはオーステナイトのみではなく、クロムを追加することとした。SEM・EBSDでの観察条件をTable 4-5に示す。

なお、本研究の試験片は主き裂で分断されたものである。よって、主き裂から分岐し、進展したき裂を観察対象とする。本研究ではEBSD像において、応力方向をy軸、主き裂の方向をyの正方向、予き裂を入れた場所をxが正領域とし、座標を設定した。研磨方向をzの正方向とする。Fig.4-1におけるxの正領域に予き裂を入れたため、き裂のおおまかな進行方向はxが負の向きとなる。

Table 4-4 レーザー顕微鏡撮影条件

撮影倍率	200倍
画像モード	生画
撮影領域	1422 \times 1067 μ m

Table 4-5 SEM, EBSD 観察条件

SEM 倍率	400 倍
加速電圧	20kV
WD(SEM)	20or25mm
WD(EBSD)	17or20mm
Camera Binning	8×8
Scan Type	Hexagonal Grid
SEM 観察範囲	230×660μm
EBSD 観察範囲	200×200μm
Scan Step	1μm
Scan Phase	Austenite Chromium



Fig.4-1 レーザ顕微鏡・SEM・EBSD 観察範囲例

4.2.2 研磨・圧痕作成条件

連続断面撮影時の研磨では、まず 1-9 μ m ダイヤモンド琢磨を行い、その後 OP を行う。なるべく同じ研磨量になるよう、まず一定時間(45 秒)研磨した後、研磨量を測定して、明らかに研磨量が小さい場合は、追加で研磨を行った。Table 4-6 に連続断面撮影時の研磨機使用条件および基準研磨時間を示す。

Table 4-6 研磨条件

研磨方法	1-9 μ m ダイヤモンド琢磨	OP
基準研磨時間	45 秒	4 分
加圧力	20N	10N
回転数	150rpm	150rpm

次に圧痕作成条件であるが、押し込み荷重が小さいと、1 回の研磨で圧痕が消えてしまう恐れがある。そこで、押し込み深さが深くなるよう、ビッカース硬さ試験機の最大荷重である 2000mN に押し込み荷重を設定した。Table 4-7 に圧痕作成条件を示す。

Table 4-7 圧痕作成条件

最大荷重	2000mN
接触から最大荷重に至るまでの時間	10 秒
クリープ時間	5 秒

4.2.3 冶具

SEM・EBSD 画像は常に同じ条件で撮影できるとは限らない。特に，試料を冶具に設置する際のずれは，撮影に影響すると考えられる。前者は Fig.4-2 に示すように，試料台の傾斜角度が 70° であっても，セットした試料の角度が 70° とは限らないが，OIM Collection では，試料観察面の傾きを 70° として認識している事から発生する。

そのため本研究においては，試料を冶具に設置する際，樹脂表面を奥まで押し込み，加えて上下方向と左右方向を冶具にねじ穴をあけてねじ止めする事で，同じ位置で試料が冶具に収まるようにする。

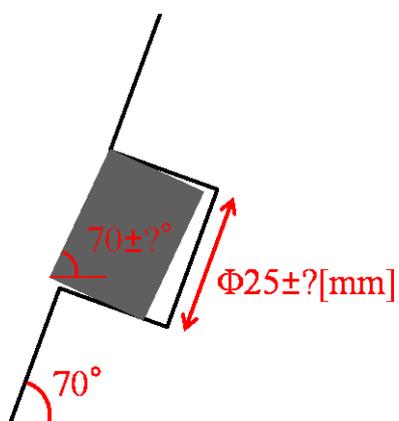


Fig.4-2 試料観察面の傾斜誤差

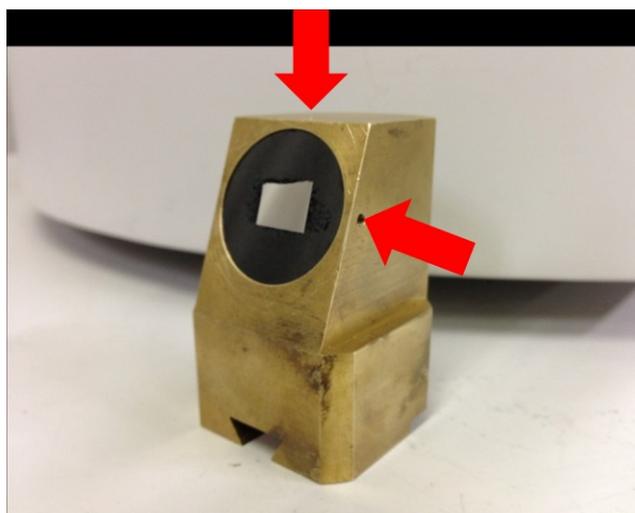


Fig.4-3 冶具ねじ止め位置

4.2.4 Cleanup 処理

観測された EBSD 画像は，試料表面の傷や試料研磨が不完全など様々な理由によりうまく測定できなかったピクセルがある．よって，その周囲の正常な測定がなされたピクセルのデータで補完する Cleanup 処理を行う必要がある．

Fig.4-4^[12]に，Section No.1 の SEM 画像(上)と EBSD 画像(中:Cleanup 前，下:Cleanup 後)を示す．実験のため，圧痕を SEM 観察範囲の内側かつ EBSD 観察範囲の内側に作製している．Cleanup 前は結晶状態にない圧痕部分にも適当な結晶方位データが割り当てられている．また，結晶粒内にも方位差が見られる．Cleanup 後は，圧痕の部分の結晶方位データは削除され黒くなっている．Cleanup 処理の詳細を，付録 A に示す．

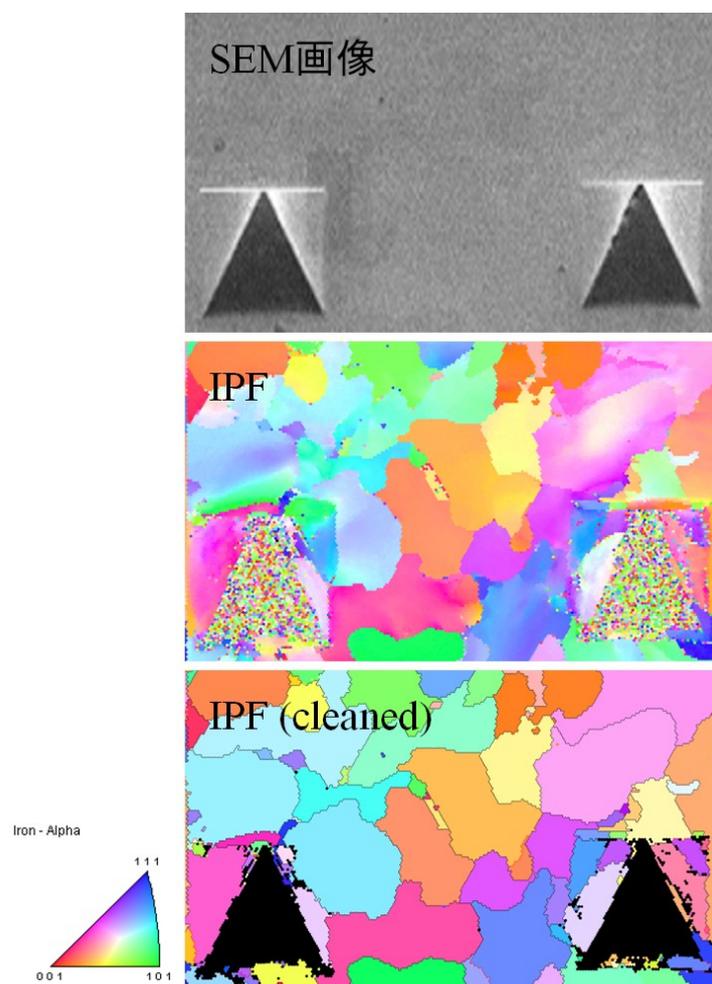


Fig.4-4 Cleanup 処理

第 5 章 SUS304 の SCC き裂

第5章 SUS304 の SCC き裂観察

本章までに示した手法により、3次元像を作成した。本章で、観察された3次元像及び観察範囲を示す。

また、SUS316L及びSUS316NGについて、き裂進展部では、粒界を形成する2結晶間の方位差及び応力方向と結晶粒界のなす角(粒界面(線)角度)が大きいということが報告されている^[18]。先行研究^[3]のデータを加え、き裂が進展した粒界(進展粒界)と進展しなかった粒界(非進展粒界)それぞれについて、方位差と粒界面(線)角度との関係を調べ、定量的な分析を行う。

5.1 観察枚数・範囲

Fig.5-1～Fig.5-4に示す範囲A～Dにて、SEM画像及び200 μm ×200 μm EBSD画像の撮影を行った。

範囲B・C・Dではそれぞれ10枚の撮影を行い、範囲Aではき裂3次元形状について議論するために31枚撮影を行った。範囲Aで得られたき裂の3次元像をFig.5-5に示す。き裂が3次元的に変化している様子が分かる。範囲A～Dは、それぞれが近い場所にあり、主き裂から分離し、ほぼ主き裂と平行に進展している部分から選択した。結果、31枚+10枚×3範囲=61枚のSEM・EBSD画像を撮影した。

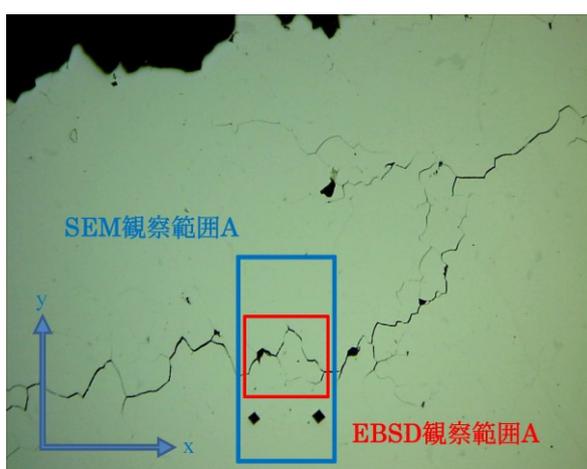


Fig.5-1 観察範囲 A



Fig.5-2 観察範囲 B

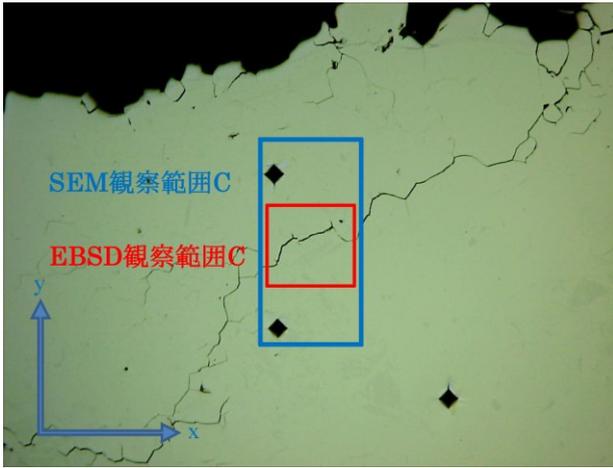


Fig.5-3 観察範囲 C

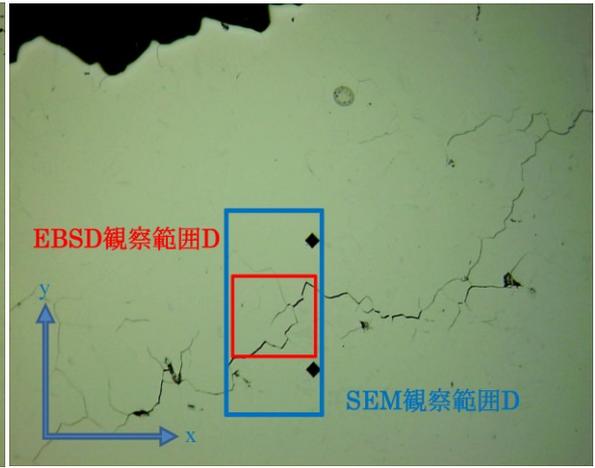


Fig.5-4 観察範囲 D

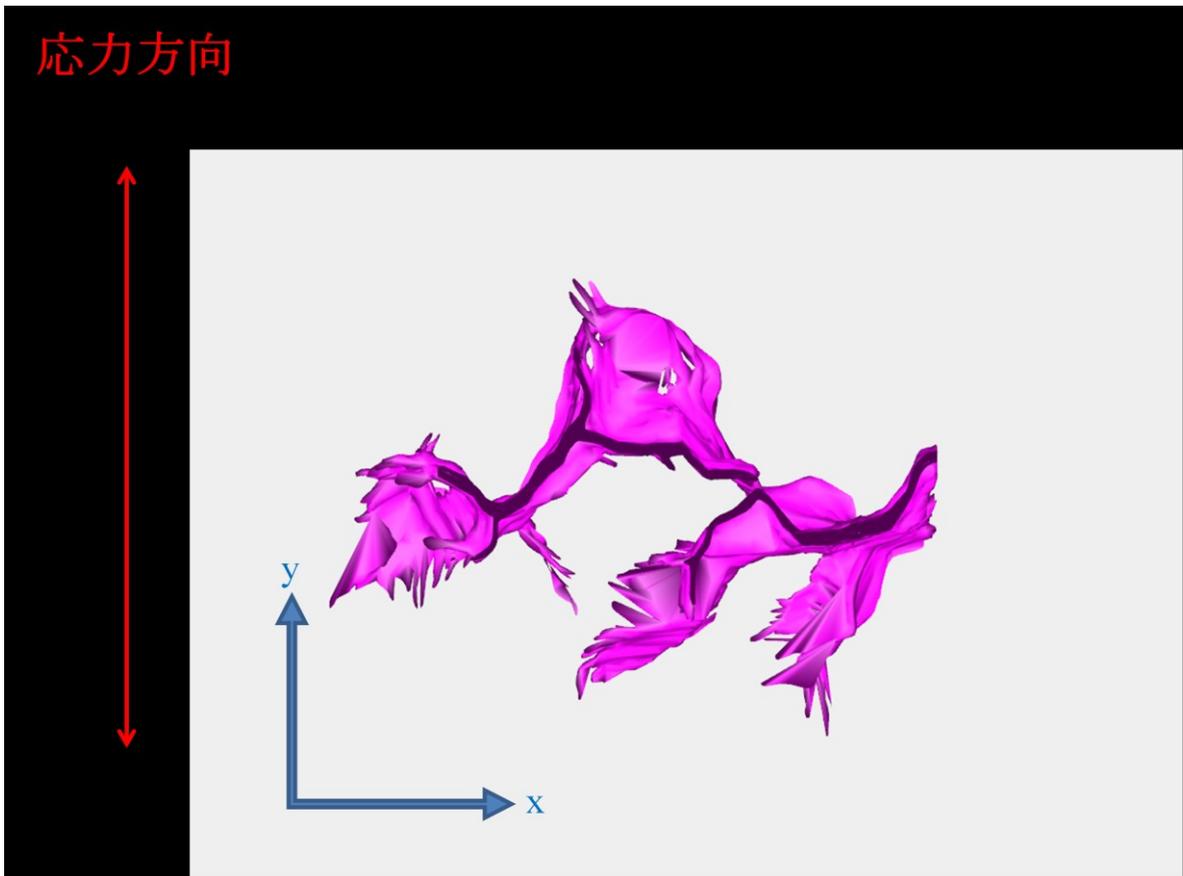


Fig.5-5 範囲 A き裂 3次元像

5.2 双晶粒界及び対応粒界の影響

SUS304 において、SCC き裂はオーステナイトの結晶粒同士の間を進展していくとされ、クロム結晶やオーステナイト双晶間、対応粒界では発生しにくいとされる^{[6] [13] [19] [23] [24]}。これは、ランダム粒界に比べて粒界エネルギーが低く、鋭敏化し難く粒界腐食し難いためであると考えられる。事実 OIM Analysis で確認したところ、Fig.5-6 に示すように、これらの粒界においてき裂進展は確認できなかった。また 3 次元像においても、Fig.5-7 のように分岐の一方が双晶粒界であった場合は、進行方向逆向きであってももう一方の分岐を進み、Fig.5-8 のように分岐両方が双晶もしくは対応粒界であった場合は、分岐部において停留する現象が見られた。このことから、双晶粒界及び対応粒界はランダム粒界と比べて進展性が大幅に低いと考えられる。そのため、以降ではランダム粒界についてのみ論ずる。作成する 3 次元像も、ランダム粒界のみ対象としている。

以下に本研究における双晶、対応粒界、ランダム粒界の説明^[23]を示す。

- ・双晶→特定の面や軸に関して対称となる原子配列を持つ結晶。
- ・対応粒界→結晶構造と格子定数が等しい 2 つの結晶を仮想的に重ね合わせる（このとき格子点の一对を一致させる）と、特定の方位関係にあるとき、周期的な格子点の重なりが生じる。この一致した格子点を対応格子点とよび、方位関係に応じて 3 次元周期構造を形成する。特に、粒界面がこの対応格子点を含むような方位にある場合、これを対応粒界と呼ぶ。対応格子の理論では両結晶の対応度（対応格子点密度）を表す指標として、「結晶の単位胞に対する対応格子の単位胞の体積の割合の逆数」で定義される Σ 値を用いる。比例はしないものの、 Σ 値が低いと低エネルギー粒界となる。本研究においては $\Sigma=3,5,7,9$ の低 Σ 対応粒界のみを対応粒界として取り扱う。これは、OIM Analysis において、 Σ の値を大きくすると cleanup の方法によっては誤差が生じやすくなってしまいう事が観測から確認できたからである。対応粒界の判定はブランドンの基準^[30]に従った。
- ・ランダム粒界→対応粒界・双晶粒界を除いた粒界。

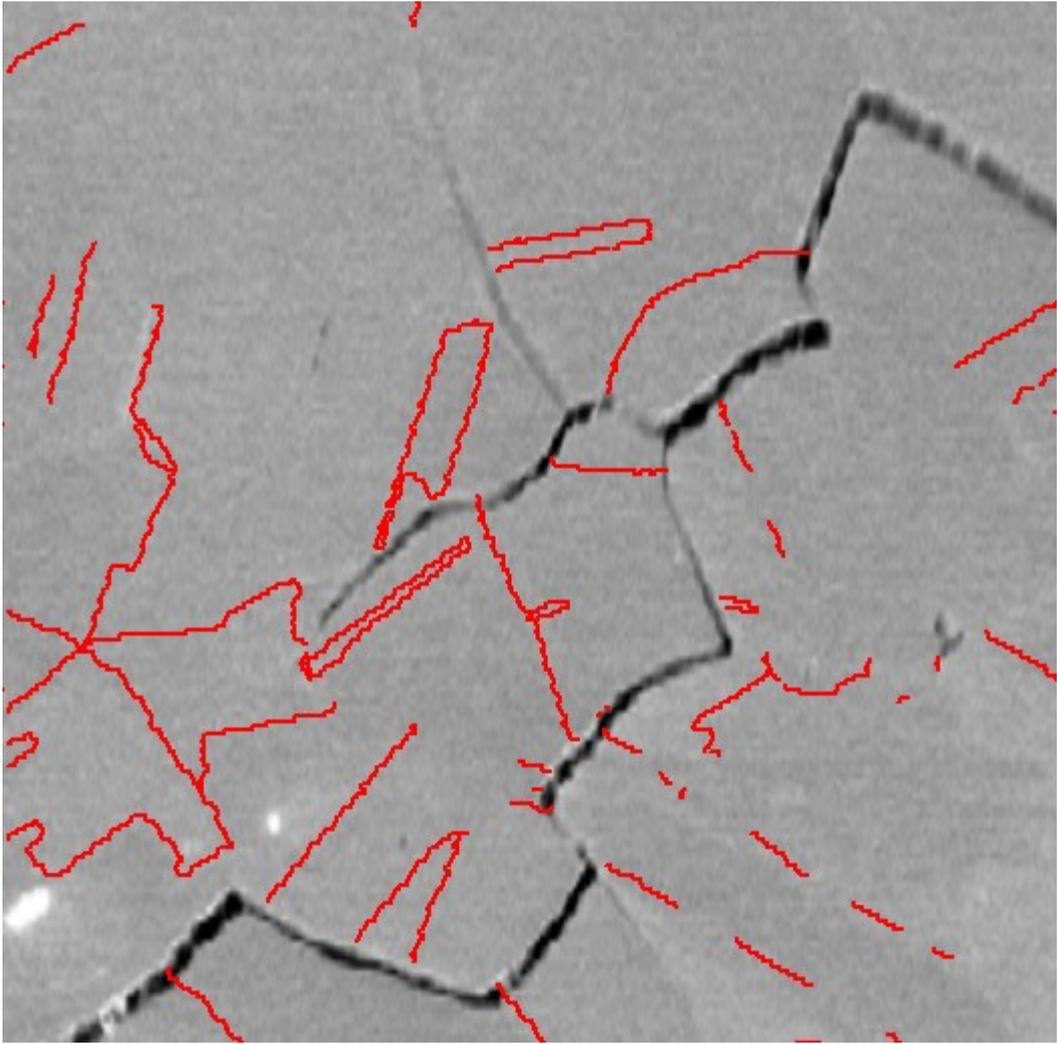


Fig.5-6 オーステナイト双晶及び対応粒界(赤破線)

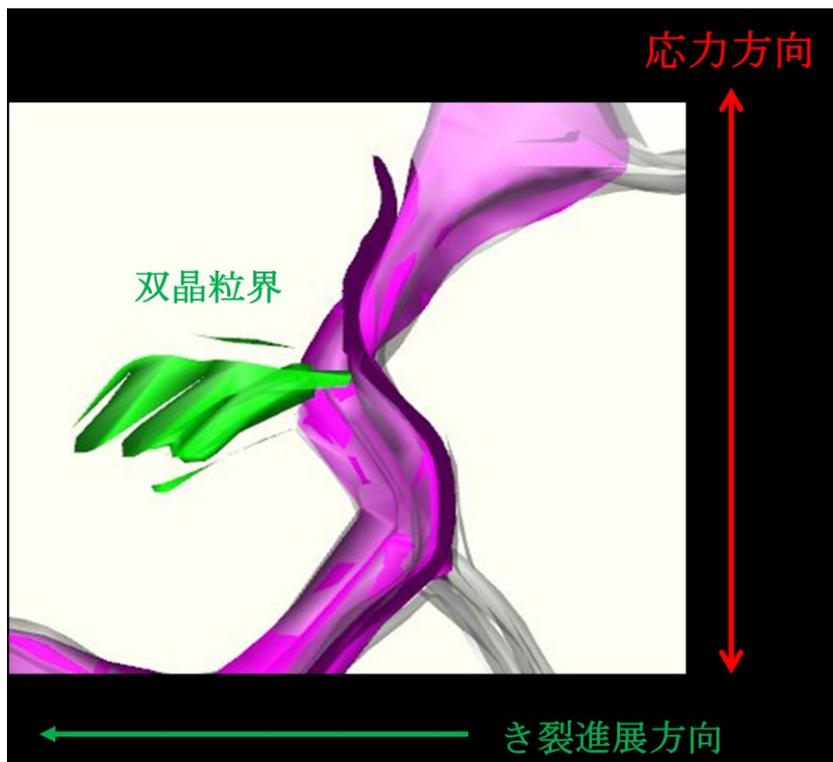


Fig.5-7 分岐部一方が双晶粒界であった時の進展例

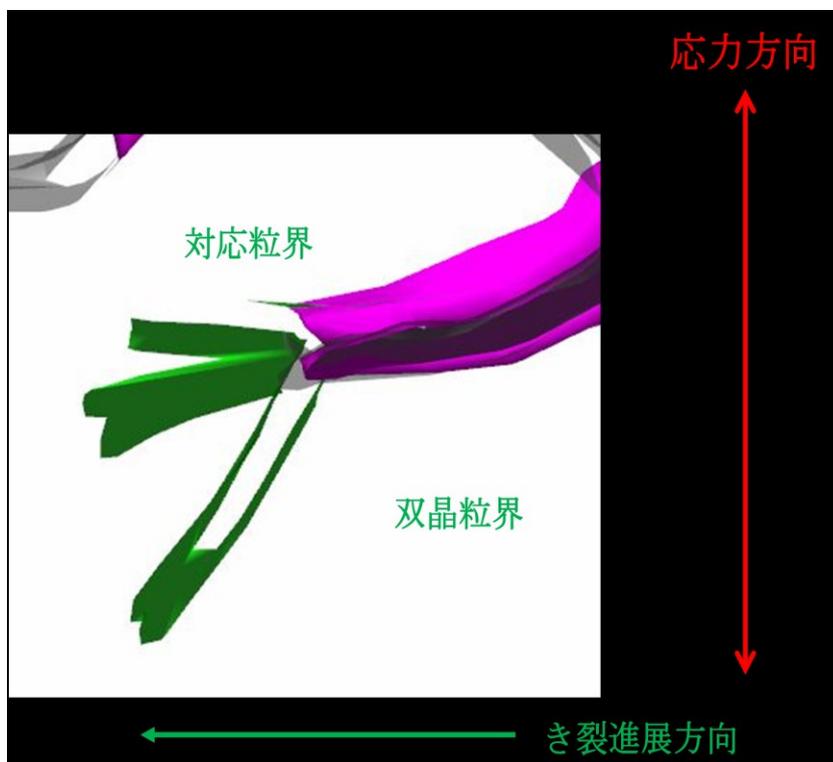


Fig.5-8 分岐部一方が双晶粒界・一方が対応粒界であった時の進展例

5.3 3次元像

以下に、実際に得られた3次元像を示す。ピンクの部分がき裂で、灰色の部分がランダム粒界である。粒界の間をき裂が進展していく様子が観察できる。

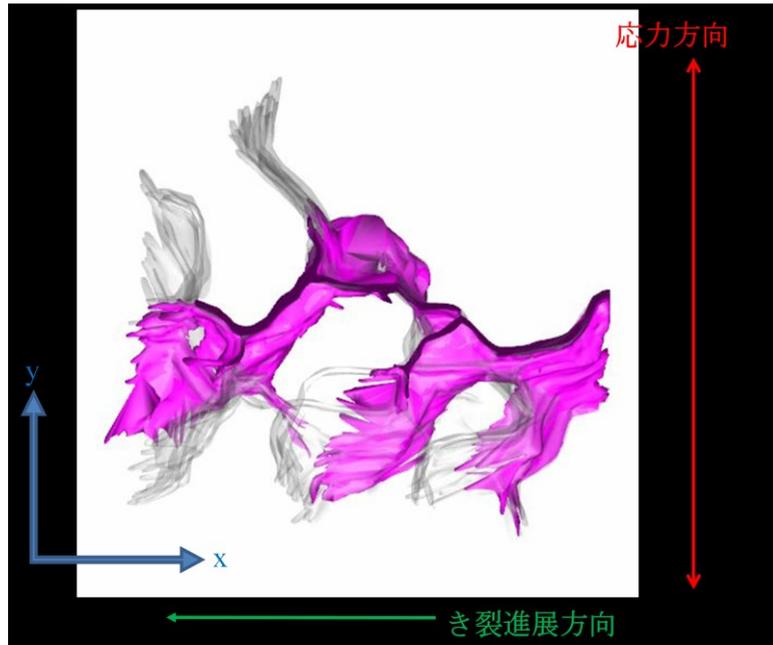


Fig.5-9 範囲 A 3次元像

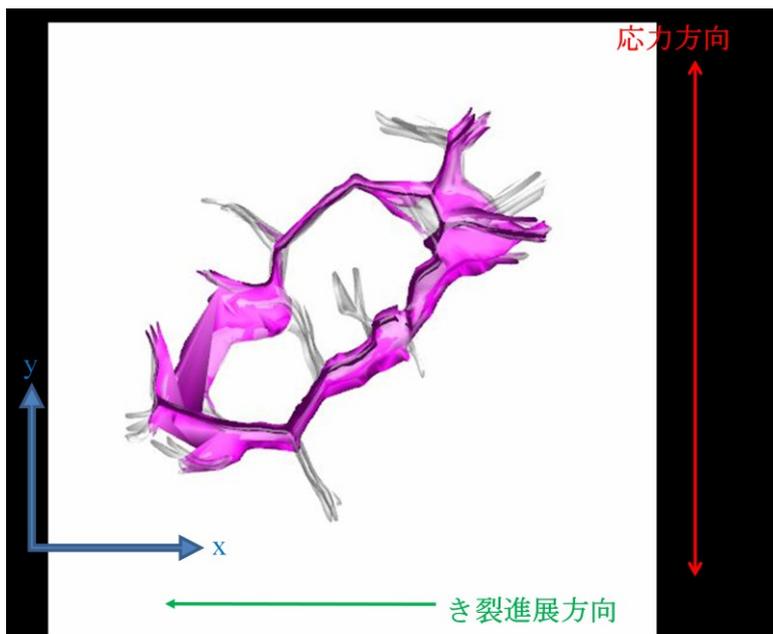


Fig.5-10 範囲 B 3次元像

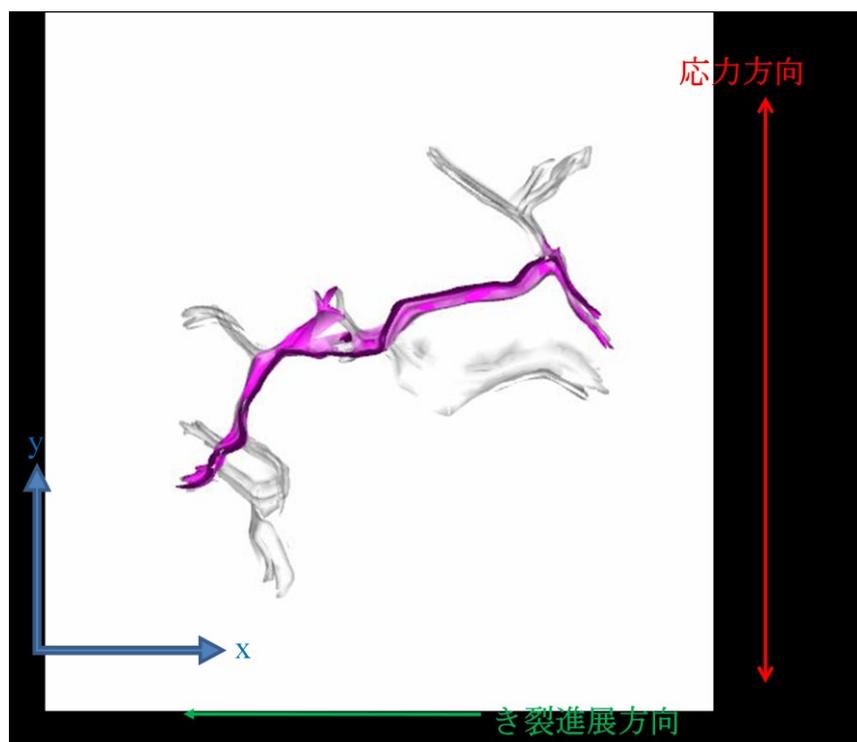


Fig.5-11 範囲 C 3 次元像

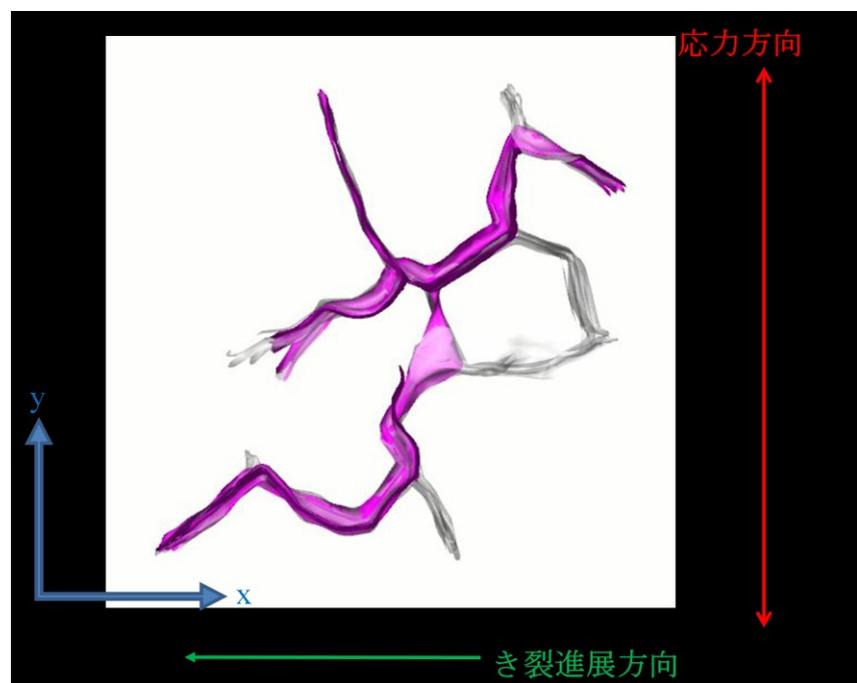


Fig.5-12 範囲 D 3 次元像

Fig.5-13 に範囲 A で撮影された SEM 画像, Fig.5-14 に 3 次元像拡大図を示す. 赤丸及び緑丸で囲った部分がそれぞれ対応している. この事より, き裂が 3 次元的に変化している事が分かる. よって, 3 次元的の評価を行う事が妥当であると言える.

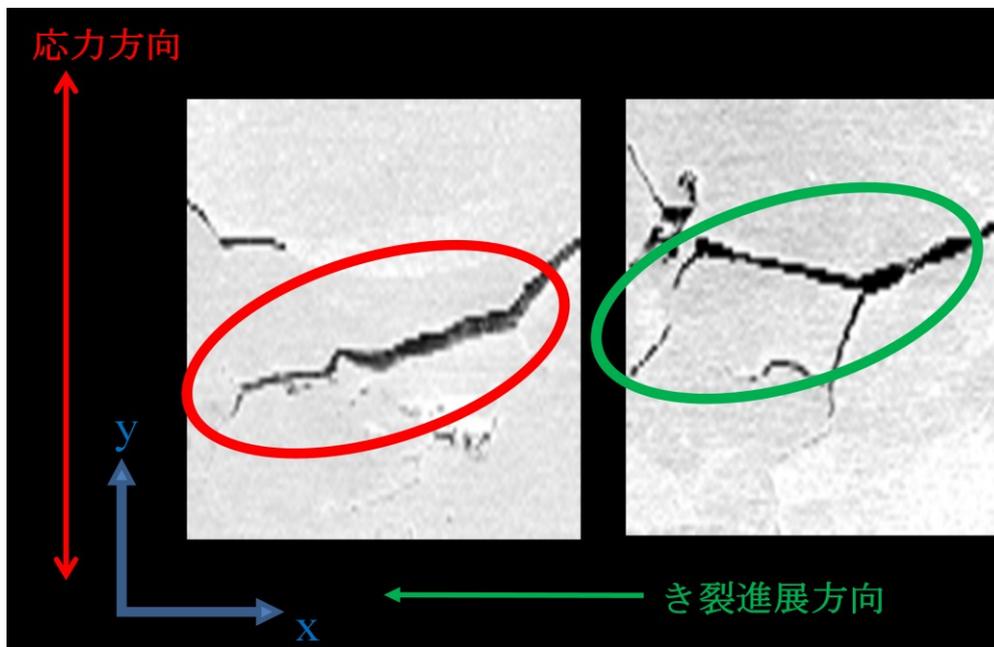


Fig.5-13 範囲 A ・ SEM 画像



Fig.5-14 範囲 A3 次元像拡大図

5.4 粒界線及び粒界面角度と結晶方位差

結晶方位差とは、隣接した結晶粒の結晶方位の差の事である。結晶方位差(Misorientation)と SCC き裂進展のしやすさは深く関係しているとされる^{[16][17]}。特に、SUS316L 及び SUS316NG について、き裂進展部では、粒界を形成する 2 結晶間の方位差及び応力方向と結晶粒界のなす角が大きいということが報告されている^[18]。

き裂の進展した粒界(以下、進展粒界)及び、き裂が進展しなかった粒界(以下、非進展粒界)それぞれについて、結晶方位差と粒界線/粒界面角度との関係を述べる。Fig.5-15 のように、応力と粒界のなす角を粒界面(線)角度とする。3 次元観測の際には粒界面角度、2 次元観測の際には粒界線角度となる。

粒界線/粒界面の角度は先行研究と同様、3.3.3 で得られた整列 2 次元画像を GIMP に取り込み、き裂部のピクセルの座標から計算を行った。また、粒界線はなるべく曲線となっていないものから抽出を行った。標本数は、き裂進展部が 52(先行研究分を除く。先行研究では 20)、非進展部が 9(先行研究分を除く。先行研究では 10)である。

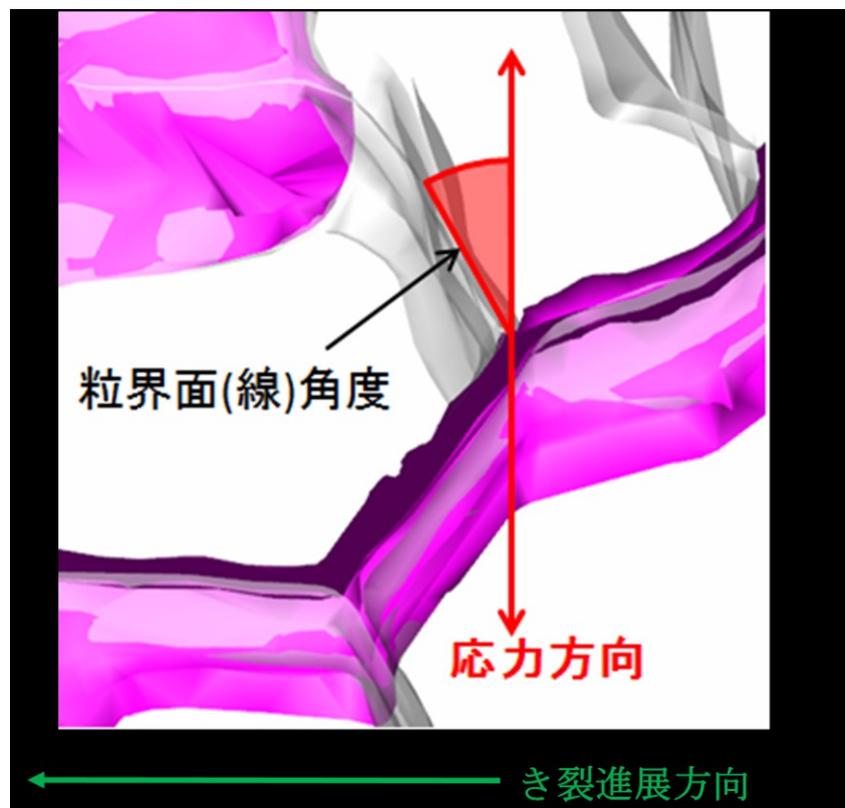


Fig.5-15 粒界面(線)角度

Fig.5-16 に、進展粒界と非進展粒界の模式図を示す。き裂は通常、主き裂の進展方向と同じ向きに進展していく。よって、今回はき裂進行方向に伸びている粒界のみを選択し、結晶方位等の計算を行う。

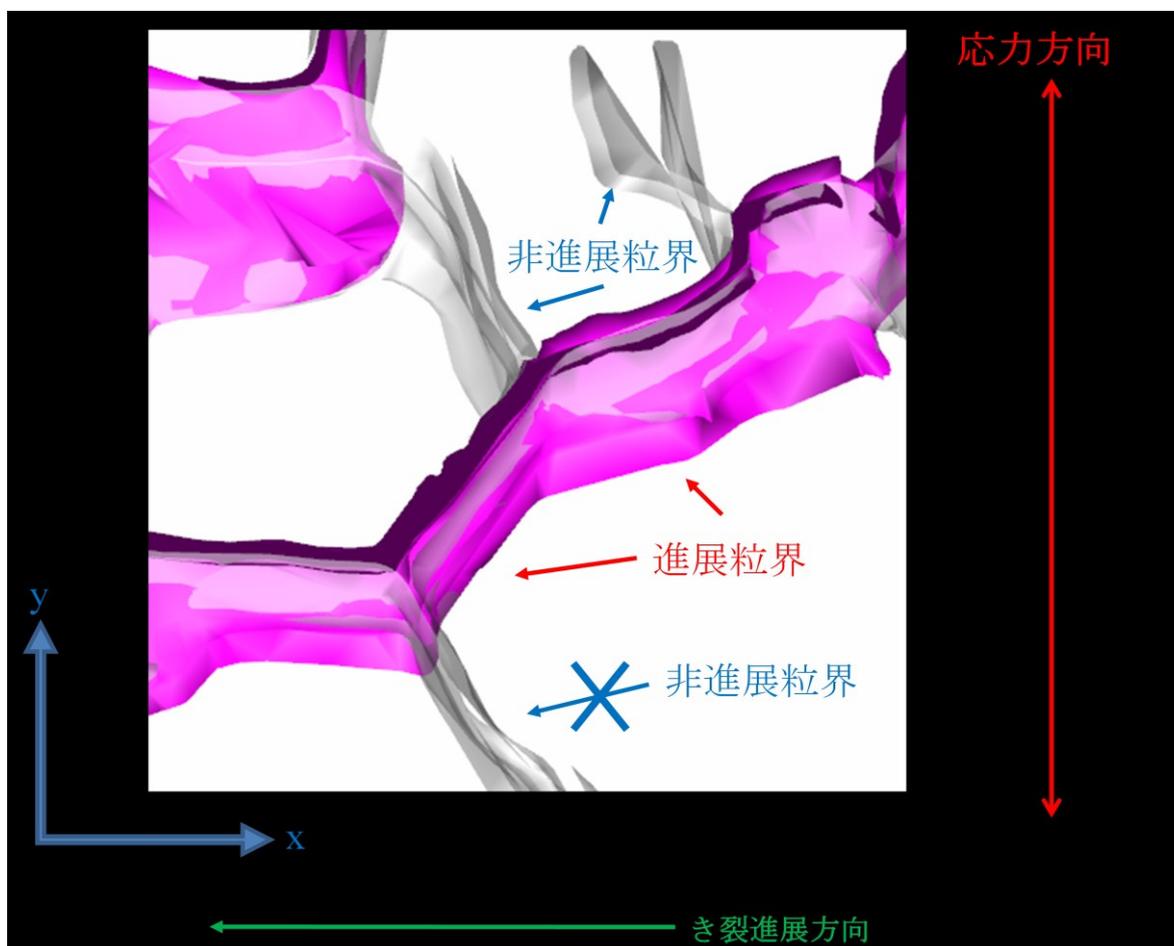


Fig.5-16 進展・非進展粒界模式図

5.4.1 進展粒界

観測によって得られた，進展粒界における結晶方位差と粒界線/粒界面角度との関係を Fig.5-17 に，先行研究の結果を Fig.5-18^[3]に示す．

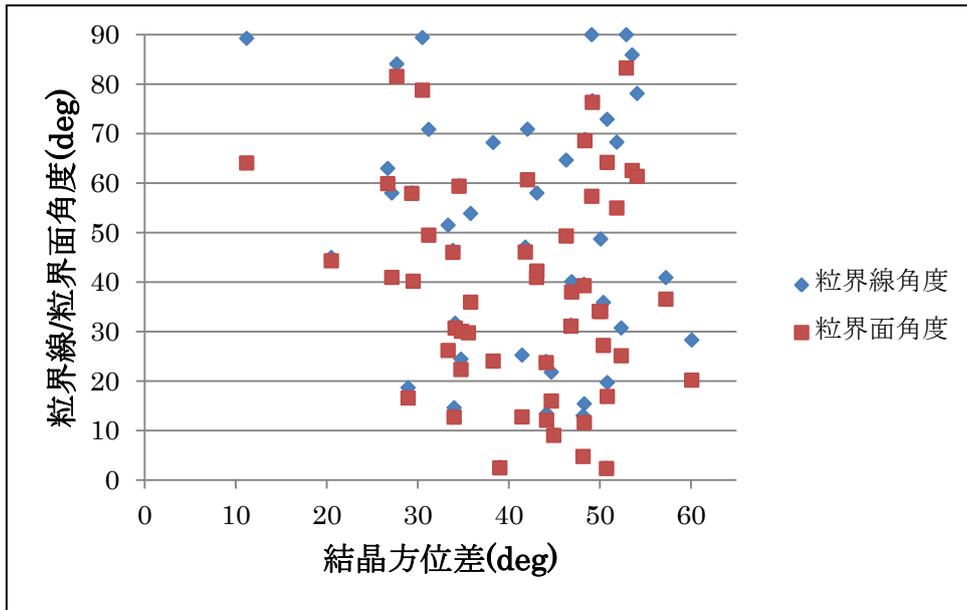


Fig.5-17 進展粒界における結晶方位差と粒界線/粒界面角度の関係

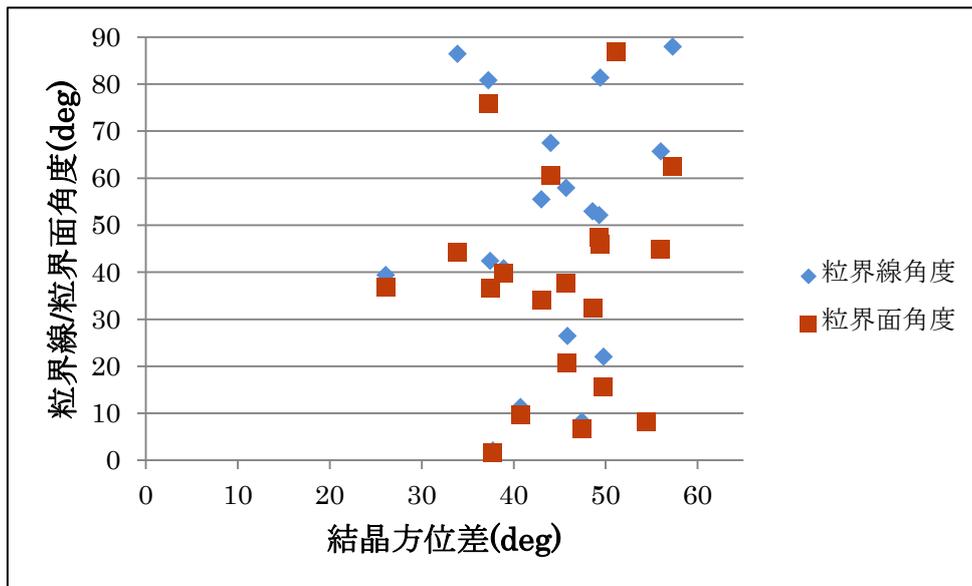


Fig.5-18 進展粒界における結晶方位差と粒界線/粒界面角度の関係(先行研究)

全般的に、粒界線角度が粒界面角度に比べて大きくなっているが、これは平面と直線のなす角よりも、平面上の直線とのなす角の方が大きくなりやすいためである。

先行研究では、進展粒界において粒界面角度・粒界線角度が偏りなく分布していた。本研究においても、同様の傾向が確認された。また、本研究・先行研究共に進展粒界における結晶方位差は 45° 付近に集まる傾向が確認された。これは、そもそも双晶間を除いたオーステナイト結晶粒(き裂の有無問わず)の結晶方位差が 45° 付近に集まるためだと考えられる。

OIM Analysis で双晶間を除いたオーステナイト結晶粒(き裂の有無問わず)の結晶方位差分布を Fig.5-19^[3]に示す。

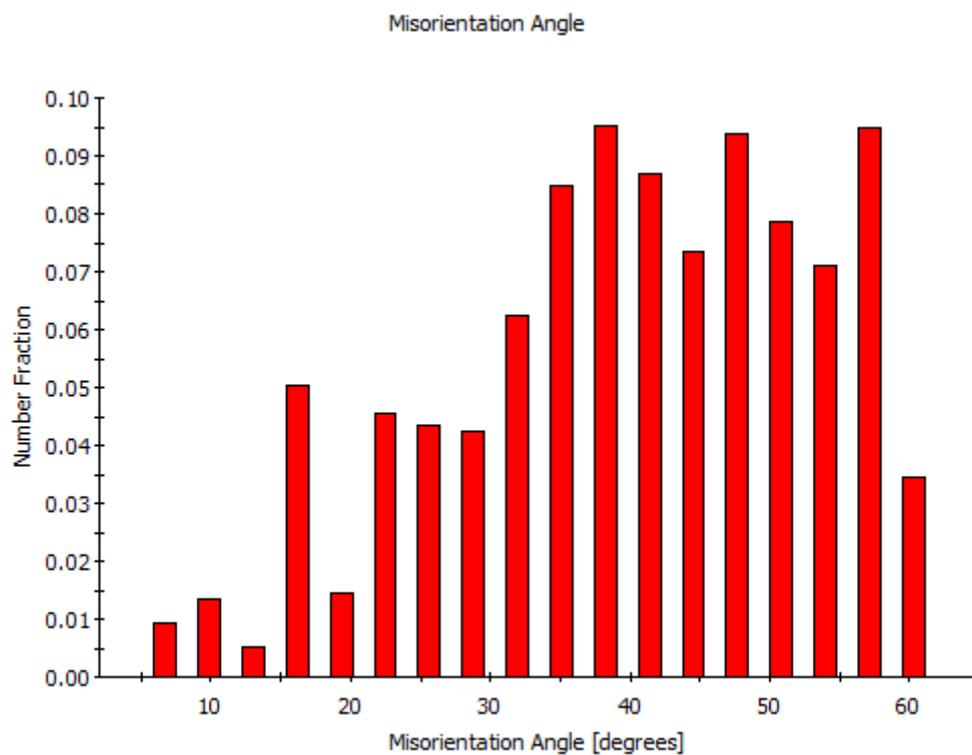


Fig.5-19 クロム及び双晶粒界を除いた粒界の方位差分布

5.4.2 非進展粒界

観測によって得られた、非進展粒界における結晶方位差と粒界線/粒界面角度との関係を Fig.5-20 に、先行研究の結果を Fig.5-21^[3]に示す.

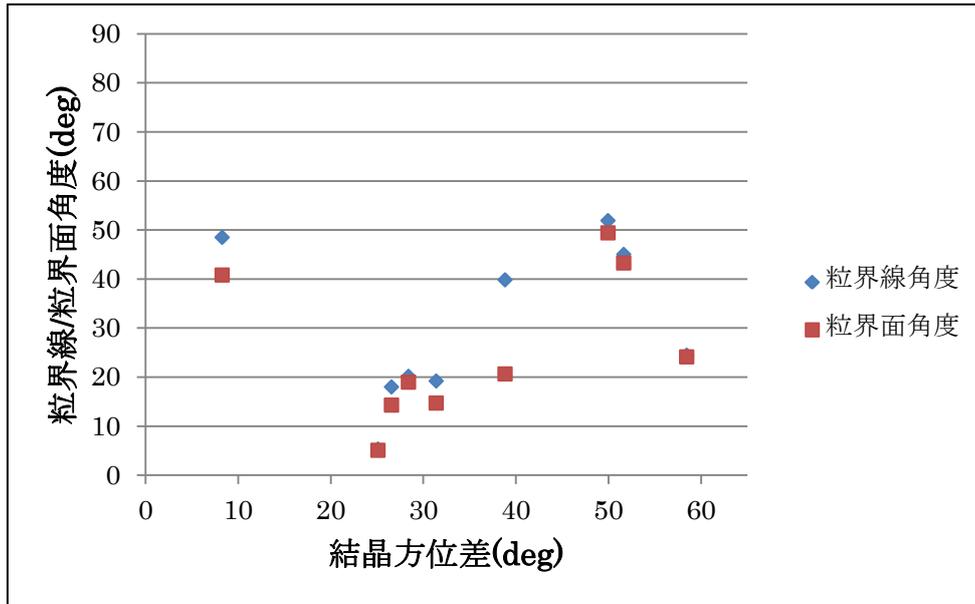


Fig.5-20 非進展粒界における結晶方位差と粒界線/粒界面角度の関係

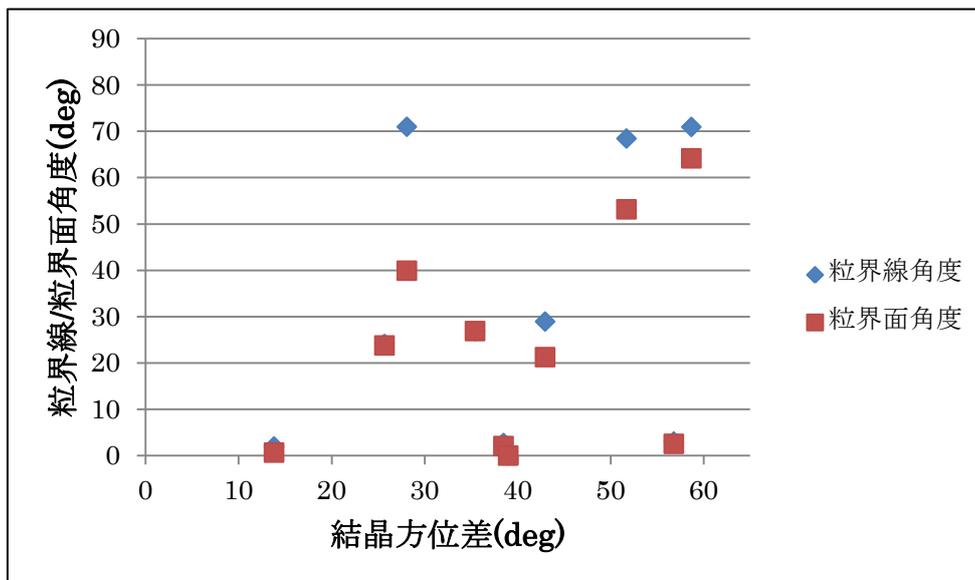


Fig.5-21 非進展粒界における結晶方位差と粒界線/粒界面角度の関係(先行研究)

参考として、Fig.5-22 に双晶・対応粒界を含めた(Fig.5-20 に 18 標本追加)非進展粒界における結晶方位差と粒界面角度の関係を示す。結晶方位差が 60° 付近の粒界が増加する事が分かる。これは、双晶間の方位差が 60° であるからだと考えられる。

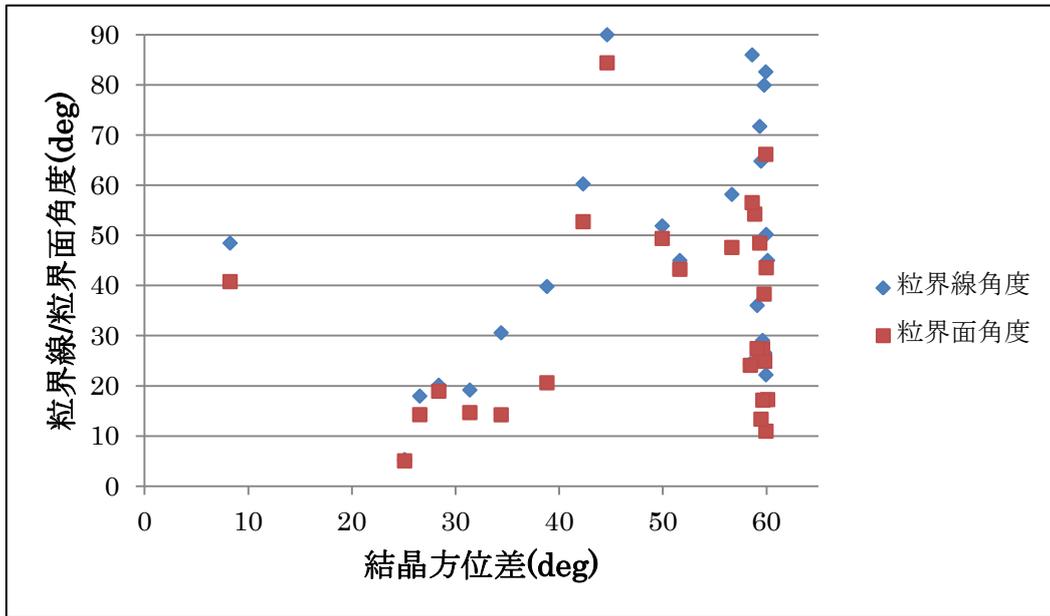


Fig.5-22 双晶及び対応粒界を加えた非進展粒界における結晶方位差と粒界面/粒界面角度の関係

5.4.3 進展粒界と非進展粒界における比較

先行研究のデータを含め、進展粒界と非進展粒界における結晶方位差と粒界線/粒界面角度の関係と比較検討する。横軸を結晶方位差、縦軸を粒界線 or 粒界面角度とし、90%確率長円を記入した図を Fig.5-23 と Fig.5-24 に示す。さらに、進展粒界・非進展粒界における各パラメータの平均値を Table 5-1 に示す。

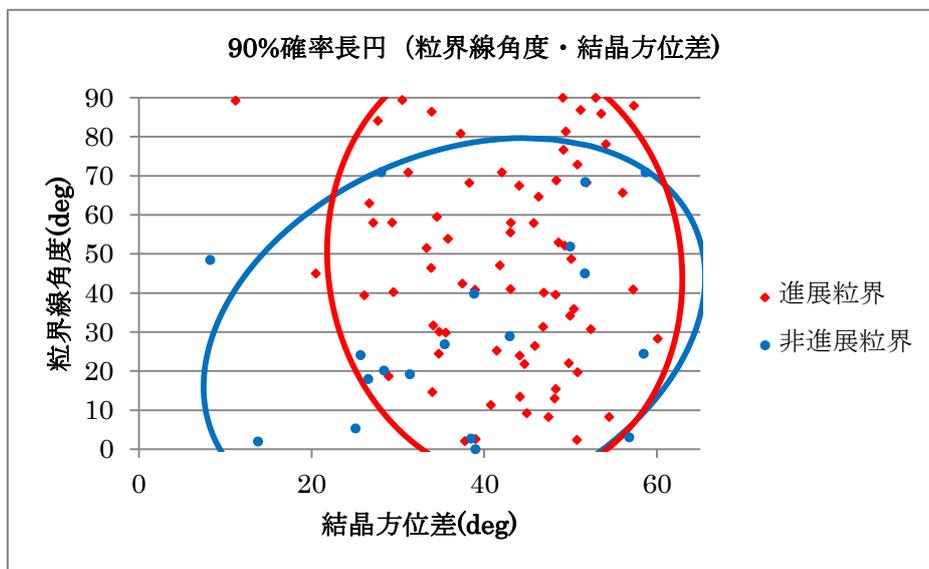


Fig.5-23 結晶方位差と粒界線角度の関係

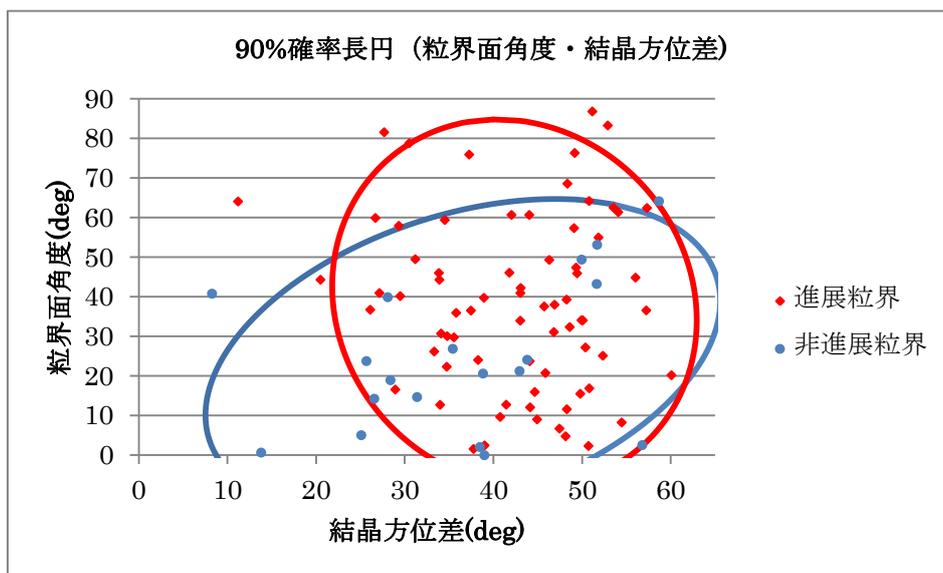


Fig.5-24 結晶方位差と粒界面角度の関係

Table 5-1 進展・非進展粒界における粒界線・面角度平均値

	進展粒界	非進展粒界
粒界線角度平均(deg)	45.68	31.38
粒界面角度平均(deg)	38.13	25.57
結晶方位差(deg)	42.37	36.55
粒界面角度分散	467.73	350.58
粒界線角度分散	661.04	535.14
結晶方位差分散	91.81	204.91

Fig.5-23 と Fig.5-24, Table5-1 より, 非進展粒界においては進展粒界よりも結晶方位差が低い結果が得られた. これは, 方位差が大きいほど粒界エネルギーが高くなり, 耐粒界腐食性が低下するからであると考えられる^{[20][21]}.

さらに粒界線・粒界面角度は両者とも, 非進展粒界において進展粒界よりも値が小さくなっている. 応力方向に対し角度が小さい粒界でき裂が進展しにくい理由として, 応力方向に平行に近い粒界では, 粒界面に対して垂直方向の応力が小さくなる. よって, き裂先端部で不動態膜が破壊される領域が小さく, 結果腐食を受けにくくなった事が考えられる.

今回の結果から, 粒界線・粒界面角度と結晶方位差はき裂の進展を決定するパラメータの一つであると考えられる. しかしながら, これら二つの因子だけで非進展・進展を判別するには不十分である. また, 左上に点が無い事や, 縦長と横長の確率長円となった事から, これら二つの因子は何らかの関係がある可能性がある.

第 6 章 き裂分岐部の 3 次元観察及び評価

第6章 き裂分岐部の3次元観察及び評価

以下では、き裂非分岐部及び分岐部の観察を行い、き裂分岐方向がどのように決定されるかについて考察する。Fig.6-1 に非分岐部の、Fig.6-2 に分岐部の3次元モデルを示す。進行方向に粒界が分岐しており、一方が非進展粒界、もう一方が進展粒界(一方向進展粒界と呼ぶ)である部分を非分岐部、進行方向に向かってき裂が分岐している部分を分岐部(便宜的に主き裂側の粒界を分岐A、もう一方を分岐Bと呼ぶ)と定義する。作成した3次元像から分岐点、非分岐点共に8点ずつ抽出した。

また、分岐部は3次元形状になっている。そのため、本章以降は3次元観察を中心に行い、第5章で取り扱った粒界線角度等の2次元観察の結果は扱わない事にする。5章同様、双晶粒界及び対応粒界も除外して考える。2次元観察結果は付録Cにて示す。

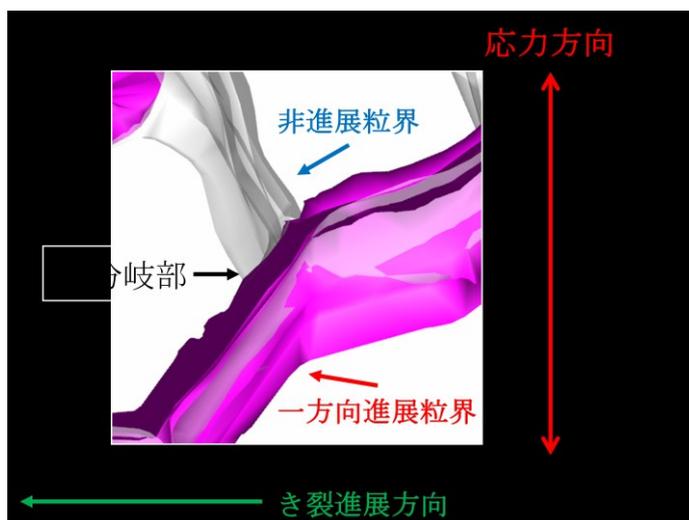


Fig.6-1 非分岐部モデル

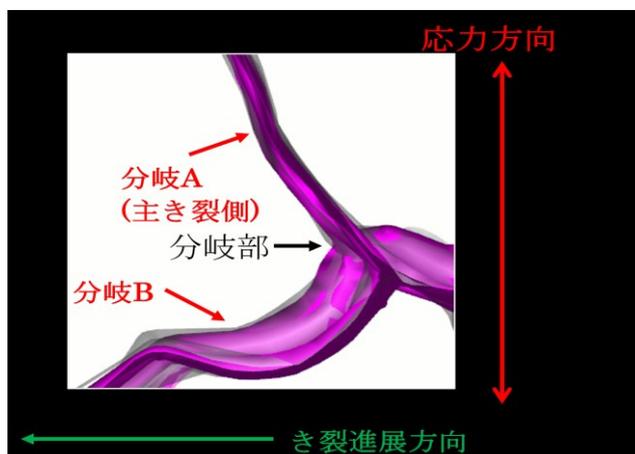


Fig.6-2 分岐部モデル

6.1 因子考察

分岐方向決定因子の候補として、粒界面角度・結晶方位差・シュミット因子差・応力伝達係数・進展面角度の5因子を考えた。各因子について、分岐方向決定因子か否かを観察によって確認する。

6.1.1 粒界面角度

5章において、粒界面角度がき裂の進行を決定するパラメータであると示された。分岐部においても、このパラメータが作用し、分岐方向決定因子となっている可能性について調査を行う。非分岐部における粒界面角度を Fig.6-3 に、分岐部における粒界面角度を Fig.6-4 に、それぞれの平均値を Table 6-1 に示す。

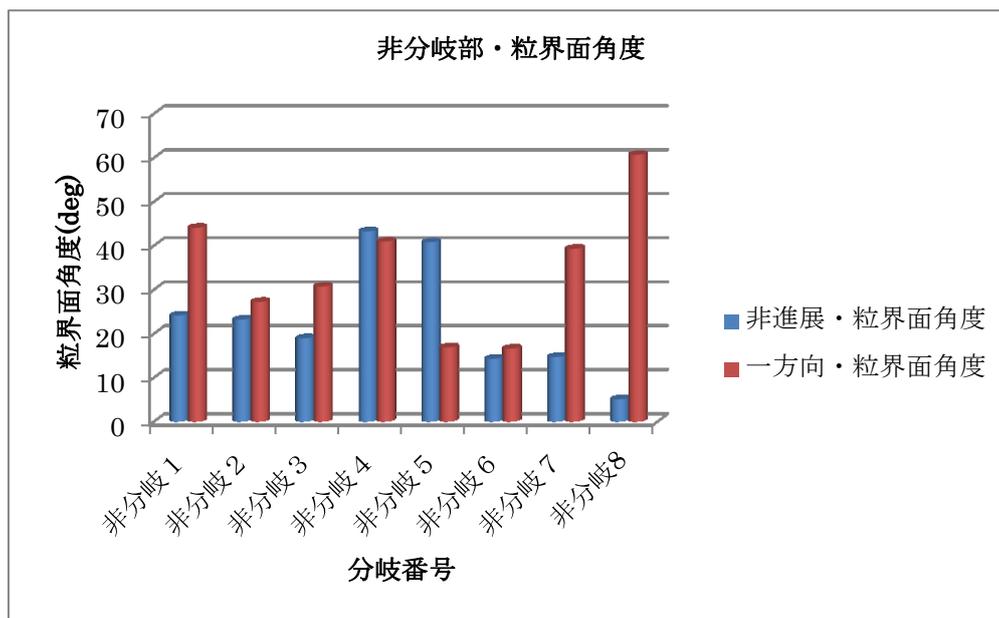


Fig.6-3 非分岐部における粒界面角度

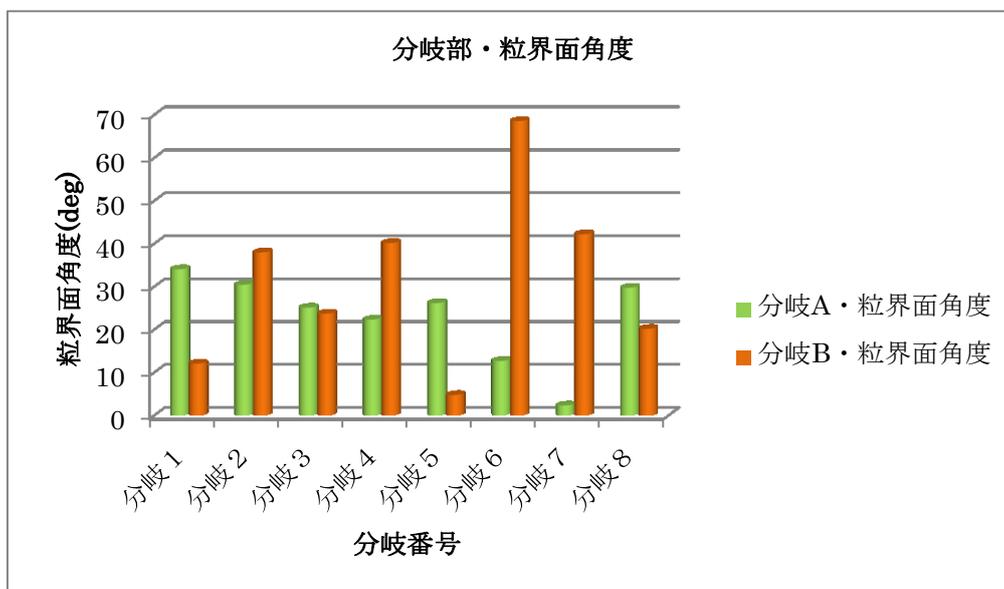


Fig.6-4 分岐部における粒界面角度

Table 6-1 非分岐部・分岐部における粒界面角度平均

	粒界面角度平均(deg)
非進展	23.03
一方向	34.55
分岐	27.05

なお、Fig.6-4における分岐A・Bは便宜上分けたものであり、主き裂側に進展したき裂を分岐A・主き裂から遠ざかる向きに進展したき裂を分岐Bとしている。また、Table 6-1の「非進展」は非進展粒界、「一方向」は一方向進展粒界、「分岐」は両方向に分岐した粒界の事を指す。以下、同様の呼び方をする。

Fig.6-3より、非分岐部8個中・6個において粒界面角度が大きい(応力方向に垂直に近い)粒界にき裂が進展し、小さい粒界には進展しないという結果となった。また、逆の結果となった非分岐4においては、非進展粒界も一方向進展粒界も粒界面角度はさほど変わらなかった。この事より、粒界面角度が分岐方向決定因子として働いていると分かった。

また、粒界面角度はせん断応力に関係してくるので、応力要素として作用していると考えられる。

6.1.2 結晶方位差

粒界面角度と同様、5章において結晶方位差がき裂の進行を決定するパラメータであると示された。分岐部において、このパラメータが作用し、分岐方向決定因子として作用している可能性について調査を行う。非分岐部及び分岐部において、結晶方位差についてまとめたものを Fig.6-5・Fig.6-6・Table 6-2 に示す。

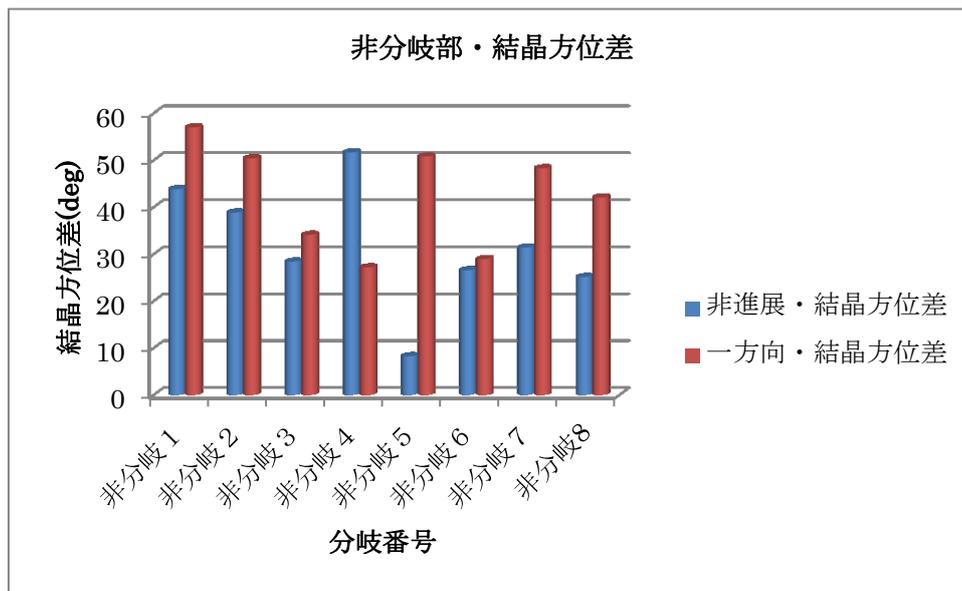


Fig.6-5 非分岐部における結晶方位差

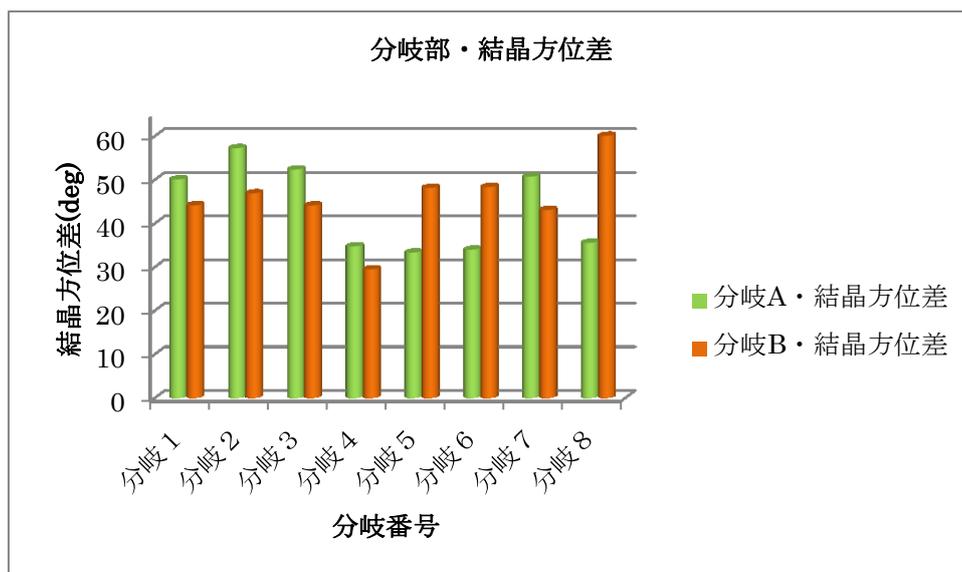


Fig.6-6 分岐部における結晶方位差

Table 6-2 非分岐部・分岐部における結晶方位差平均

	結晶方位差平均(deg)
非進展	31.75
一方向	42.33
分岐	44.52

Fig.6-5 より，非分岐部 8 個中・7 個において結晶方位差が大きい粒界にき裂が進展し，小さい粒界には進展していないという結果になった．この事より，非分岐部において，結晶方位差が進展方向決定のパラメータとして働いていると考えられる．

さらに，Fig.6-5 と Fig.6-6 を比較した時，Table 6-2 より分かるように，全体的に一方向進展粒界と分岐進展粒界における結晶方位差の値が非進展粒界よりも大きい結果となった．よって，結晶方位差は粒界面角度と同様，分岐方向決定因子となっている事が分かる．

なお，溶体化した SUS310S の粒界腐食試験において，結晶方位差が大きいと腐食深さが深くなるという研究がある^[25]．このことから，結晶方位差は腐食要素として作用していると考えられる．

6.1.3 シュミット因子差

本研究で用いた SUS304 は fcc (face-centered cubic: 面心立方格子) 構造を持つ。これは、単位格子 1 つに対して 4 つのすべり面があり、それぞれのすべり面に対し 3 つのすべり方向があるので、計 12 個のすべり系が存在する。すべり面 $[111]$ とそのすべり方向を Fig.6-7 に示す。灰色にぬりつぶされている面がすべり面で、矢印がすべり方向である。

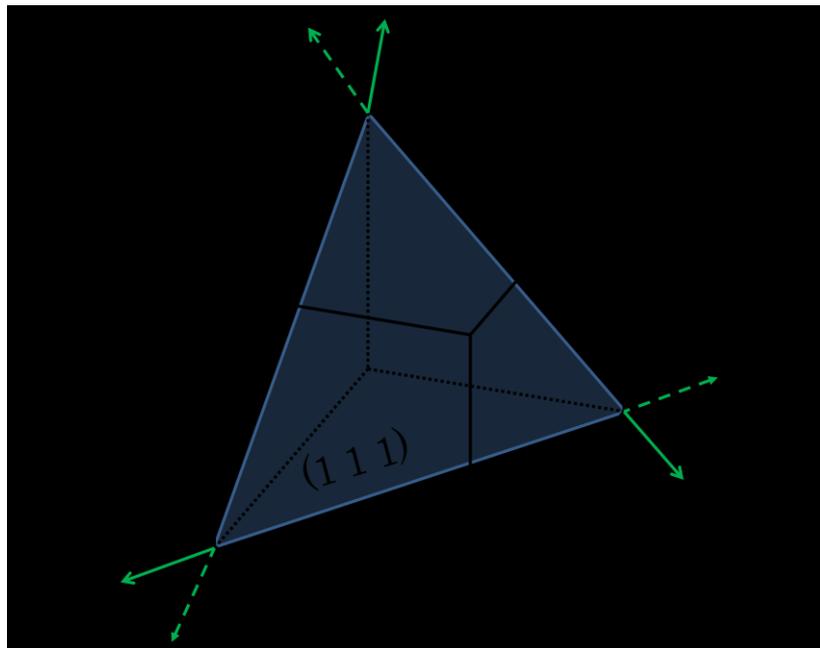


Fig.6-7 fcc のすべり面とすべり方向

すべり面上に作用する、すべり方向のせん断応力を、そのすべり系の分解せん断応力と言う。Fig.6-8 のように引張荷重がかかっている部材において、引張荷重 F と分解せん断応力 τ_R の間には、以下の関係式が成り立つ。

$$\tau_R = \frac{F}{A} \cos \phi \cos \theta \quad (4)$$

ここで、 ϕ は応力軸とすべり面法線とのなす角度、 θ は応力軸とすべり方向とのなす角度を表す。

Table 6-3 fcc のすべり面の法線ベクトルとすべり方向ベクトル

すべり面の法線ベクトル	すべり方向ベクトル
$\left(\frac{1}{\sqrt{3}}, \frac{1}{\sqrt{3}}, \frac{1}{\sqrt{3}}\right)$	$\left(\frac{1}{\sqrt{2}}, -\frac{1}{\sqrt{2}}, 0\right)$
	$\left(0, \frac{1}{\sqrt{2}}, -\frac{1}{\sqrt{2}}\right)$
	$\left(\frac{1}{\sqrt{2}}, 0, -\frac{1}{\sqrt{2}}\right)$
$\left(-\frac{1}{\sqrt{3}}, \frac{1}{\sqrt{3}}, \frac{1}{\sqrt{3}}\right)$	$\left(\frac{1}{\sqrt{2}}, \frac{1}{\sqrt{2}}, 0\right)$
	$\left(0, \frac{1}{\sqrt{2}}, -\frac{1}{\sqrt{2}}\right)$
	$\left(\frac{1}{\sqrt{2}}, 0, \frac{1}{\sqrt{2}}\right)$
$\left(\frac{1}{\sqrt{3}}, -\frac{1}{\sqrt{3}}, \frac{1}{\sqrt{3}}\right)$	$\left(\frac{1}{\sqrt{2}}, \frac{1}{\sqrt{2}}, 0\right)$
	$\left(0, \frac{1}{\sqrt{2}}, \frac{1}{\sqrt{2}}\right)$
	$\left(\frac{1}{\sqrt{2}}, 0, -\frac{1}{\sqrt{2}}\right)$
$\left(-\frac{1}{\sqrt{3}}, -\frac{1}{\sqrt{3}}, \frac{1}{\sqrt{3}}\right)$	$\left(\frac{1}{\sqrt{2}}, -\frac{1}{\sqrt{2}}, 0\right)$
	$\left(0, \frac{1}{\sqrt{2}}, \frac{1}{\sqrt{2}}\right)$
	$\left(\frac{1}{\sqrt{2}}, 0, \frac{1}{\sqrt{2}}\right)$

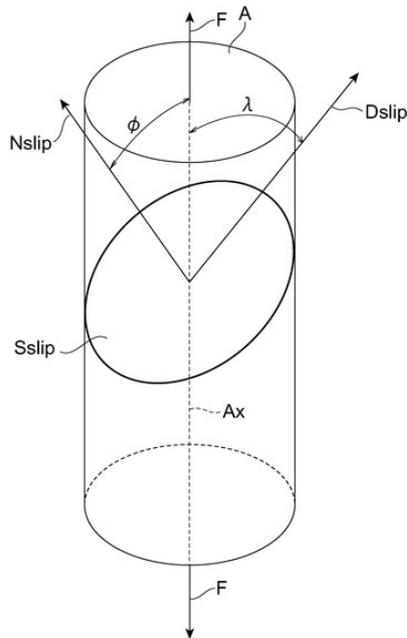


Fig.6-8 引張荷重を受ける部材^[22]

OIM Analysis では、各結晶粒の結晶方位データ $\text{phi}1$, PHI , $\text{phi}2$ が得られる。この値は、EBSD に固定された試料座標系を結晶格子の座標系に合わせるためのオイラー角である。よって、それぞれ試料座標系の z 軸回りに $\text{phi}1$ 回転、その後の x 軸回りに PHI 回転、その後の z 軸回りに $\text{phi}2$ 回転させれば良い。よって、Table 6-3 に示す、すべり面の法線ベクトル及びすべり方向ベクトルを z 軸回りに $\text{phi}1$ 回転、その後の x 軸回りに PHI 回転、その後の z 軸回りに $\text{phi}2$ 回転することで、結晶粒ごとのすべり面の法線ベクトルとすべり方向ベクトルが求まる。

なお、式(4)中にある $\cos \phi \cos \theta$ の値をシュミット因子と呼ぶ。引張荷重の大きさに関わらず、すべり系が複数存在する場合、シュミット因子が最大のすべり系が主すべり系となり、分解せん断応力が高くなるため活動しやすくなる。

シュミット因子最大値の差は、2 結晶の変形しやすさの差を表す。この値がき裂進展しやすさに関わると考え、粒界を挟んだ結晶粒のシュミット因子最大値の差(因子差)を算出した。なお類似の研究として、ピーク時効した多結晶 Al-Mg-Si 合金において、粒界を挟む 2 結晶のシュミット因子最大値の差によって、粒界破壊の発生しやすさが変化するという富山大学・松田らの研究^[27]がある。非分岐部におけるシュミット因子差を Fig.6-9 に、分岐部におけるシュミット因子差を Fig.6-10 に、それぞれの平均値を Table 6-4 に示す。

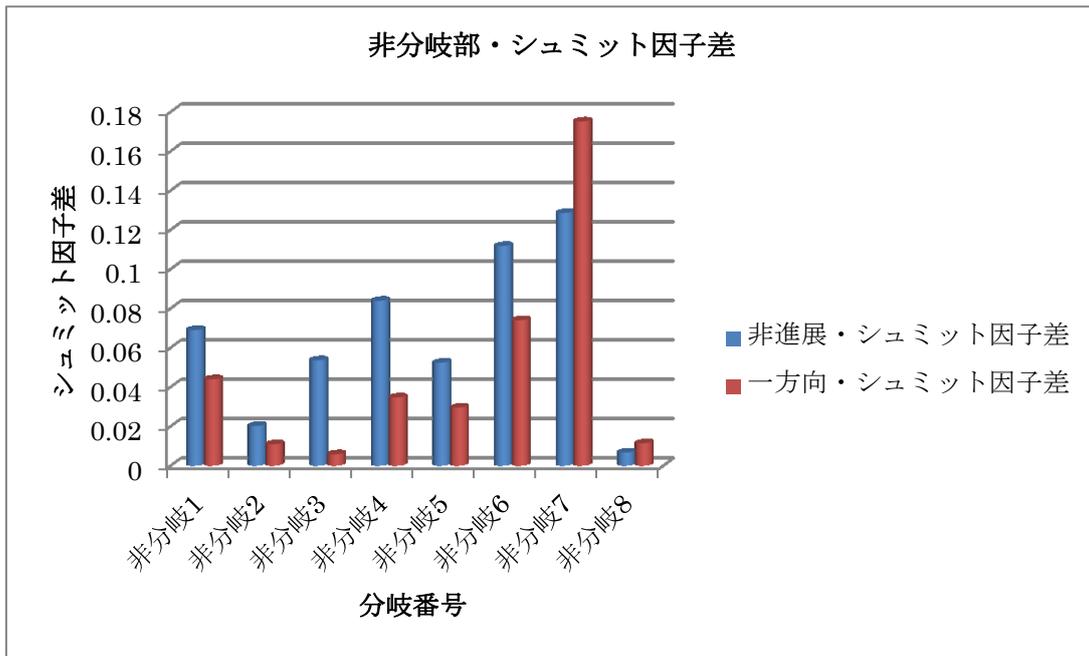


Fig.6-9 非分岐部におけるシュミット因子差

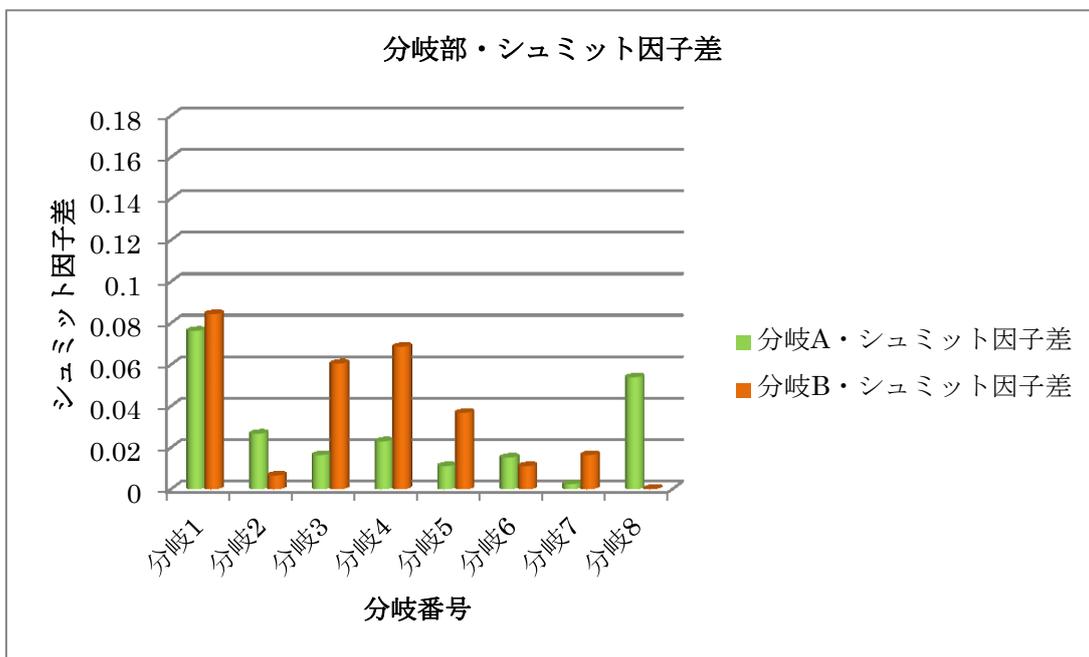


Fig.6-10 分岐部におけるシュミット因子差

Table 6-4 非分岐部・分岐部におけるシュミット因子差平均

	シュミット因子差平均
非進展	0.0657
一方向	0.0481
分岐	0.0318

Fig.6-9 より，非分岐部 8 個中・6 個においてシュミット因子差が小さい粒界にき裂が進展し，大きい粒界には進展していないという結果になった。

また，Fig.6-9 と Fig.6-10 を比較した時，Table 6-4 より分かるように，全体的に非進展粒界におけるシュミット因子差は大きく，一方向と分岐進展粒界において，シュミット因子差は小さい値を取る事が分かった。よって，シュミット因子差も分岐方向決定因子であると考えられる。

逆の結果となった非分岐部 7 と 8 においては，Fig.6-3 に示したように非進展粒界と一方向進展粒界の粒界面角度が，非分岐部 7 で「15° と 39°」，非分岐部 8 で「5° と 61°」であり，差が大きい。よって粒界面角度の影響があったと考えられる。よって，分岐の有無や進行方向について考える時，シュミット因子のみならず粒界面角度等他の分岐方向決定因子についても考えなくてはならないと分かる。

なお，シュミット因子は塑性変形に関わる値である。シュミット因子の差が小さいと，一方の変形しにくい結晶粒によって，ずれ量が抑制される。この現象が，割れの伝播を抑制している可能性がある。よって，シュミット因子差は応力因子であると言える。

6.1.4 応力伝達係数

結晶粒がすべり変形を起こし、粒界に隙間が生じてしまうと、それを埋めるために結晶粒部分の別のすべり系が余分の変形をしなければならない、その能力の程度を表すのが式(5)で表される応力伝達係数であり、0~1の値をとる。

$$N_{ij} = (e_i \cdot e_j + g_i \cdot g_j) + (e_i \cdot g_j + g_i \cdot e_j) \quad (5)$$

e はすべり方向, g は法線ベクトル

応力伝達係数が小さいと粒界での応力集中が発生し、き裂が進展しやすくなると考え、応力伝達係数の算出を行った。なお、すべり面及び方向はシュミット因子最大のすべり系を利用した。また、シュミット因子差と同様、類似の研究としてピーク時効した多結晶 Al-Mg-Si 合金において、粒界を挟む2結晶の応力伝達係数によって、割れの伝播しやすさが変化するという富山大学・松田らの研究^[27]がある。非分岐部における応力伝達係数を Fig.6-11 に、分岐部における応力伝達係数を Fig.6-12 に、それぞれの平均値を Table 6-5 に示す。

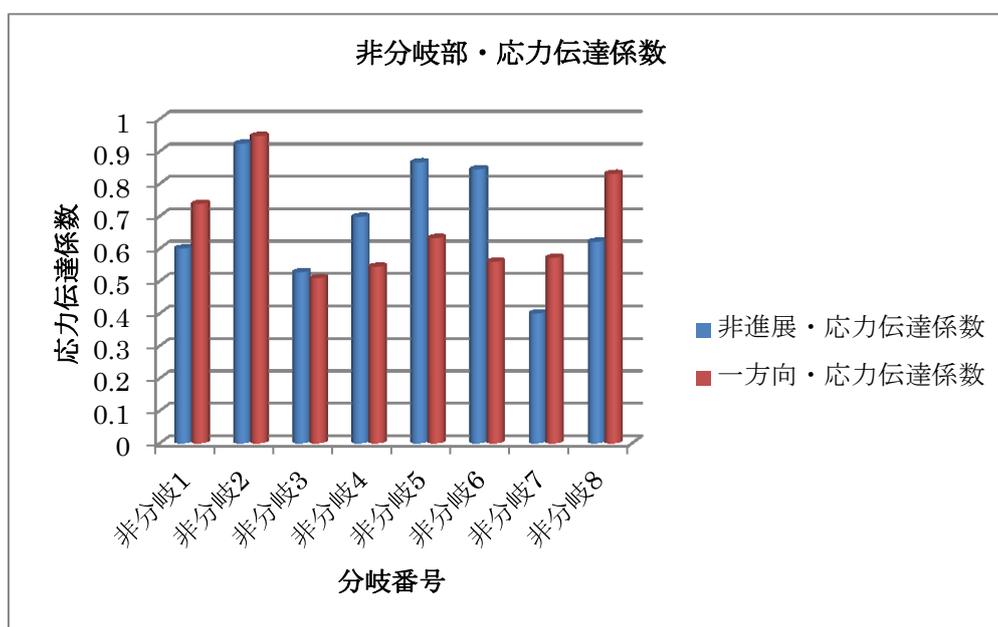


Fig.6-11 非分岐部における応力伝達係数

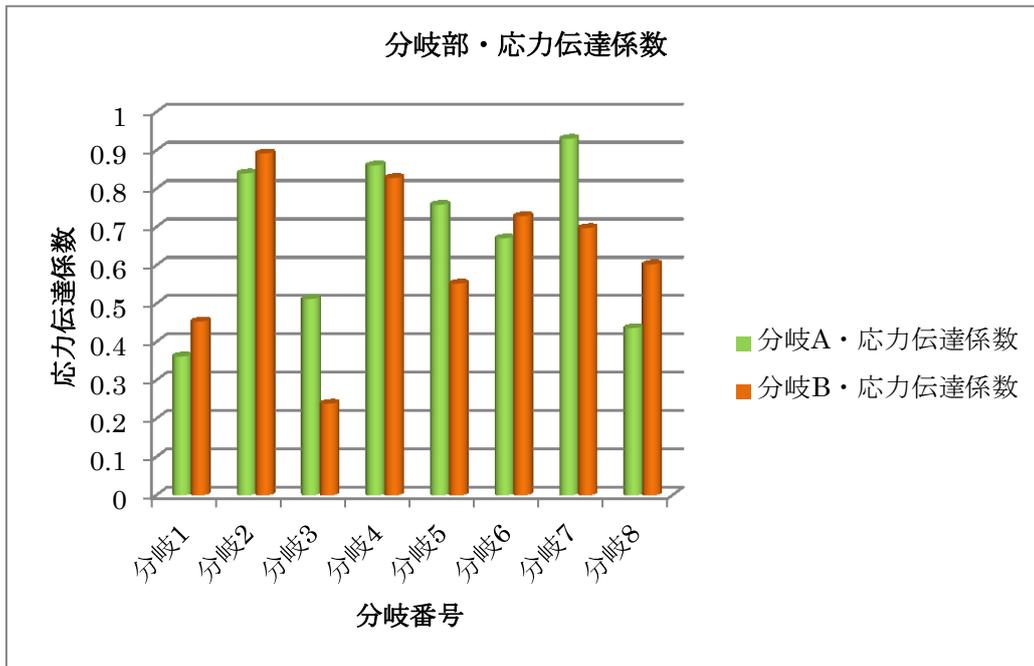


Fig.6-12 分岐部における応力伝達係数

Table 6-5 非分岐部・分岐部における応力伝達係数平均

	応力伝達係数平均
非進展	0.6849
一方向	0.6664
分岐	0.6477

Fig.6-11, Fig.6-12 の比較及び Table 6-5 より, 非進展粒界とそれ以外の進展粒界で応力伝達係数の差を見る事ができない。よって, 応力伝達係数は分岐方向決定因子とは強い相関が無い事が分かる。

6.1.5 進展面角度

分岐部に達するまでの進展面と、分岐後の粒界面との角度によって進展しやすさが左右されると考え、Fig.6-13 に示すように面同士の角度を進展面角度とし、算出を行った。非分岐部における進展面角度を Fig.6-14 に、分岐部における進展面角度を Fig.6-15 に、それぞれの平均値を Table 6-6 に示す。

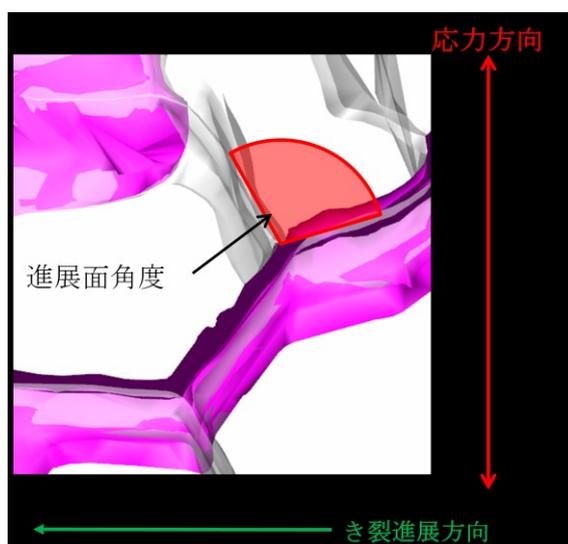


Fig.6-13 進展面角度模式図

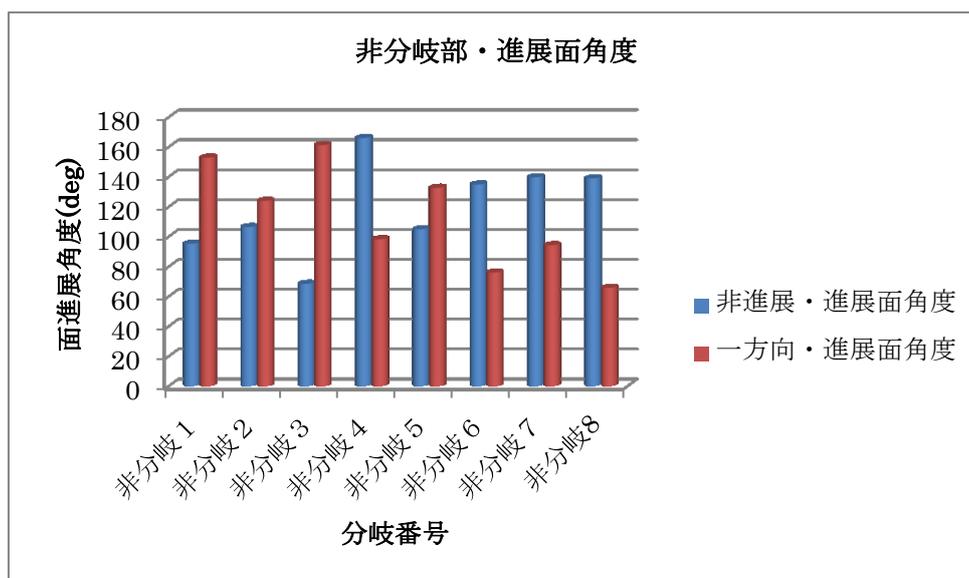


Fig.6-14 非分岐部における進展面角度

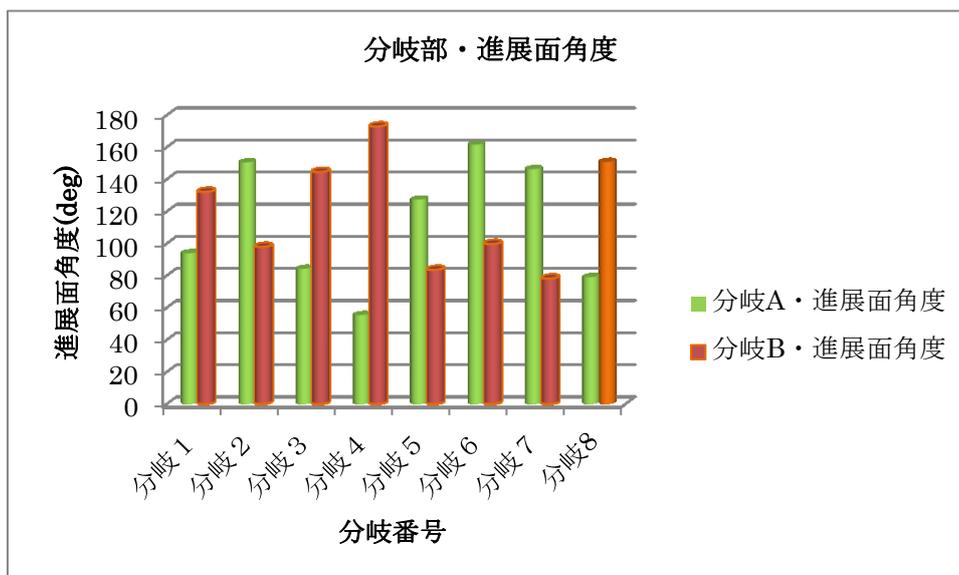


Fig.6-15 分岐部における進展面角度

Table 6-6 非分岐部・分岐部における進展面角度平均

	進展面角度平均(deg)
非進展	119.34
一方向	113.12
分岐	116.16

Fig.6-14, Fig.6-15 の比較及び Table 6-6 より, 非進展粒界とそれ以外の進展粒界で進展面角度の差を見る事ができない. よって, 進展面角度は分岐方向決定因子とは強い相関が無い事が分かる. 同じ角度因子でも, 粒界面角度(応力とのなす角)の方が分岐を考える際には重要であると考えられる.

6.2 Fisher の線形判別

6.1 より, 5 因子中 3 因子(粒界面角度・結晶方位差・シュミット因子差)が分岐方向決定因子として寄与している事が分かった. これらは大別すると粒界面角度とシュミット因子差が応力要素であり, 結晶方位差が腐食要素である. これら異なる要素の因子がどのように互いに寄与しているか, かつ 3 因子を用いて分岐・非分岐を判別できるかについて, Fisher の線形判別を用いて考察する.

Fisher の線形判別^[28]とは, D 次元空間上に存在するラベル付けされた複数のデータを, データの分離を最大とする 1 次元に投影する方法である. Fig.6-16 に 2 変数で表される 2 データの場合の例を示す. 左側のようにランダムに選択された直線 w 上の射影は上手く分離出来ていないが, 右側だと 2 つのデータが上手く分類出来ている事が分かる. この直線 w に直交する線が判別線となっている.

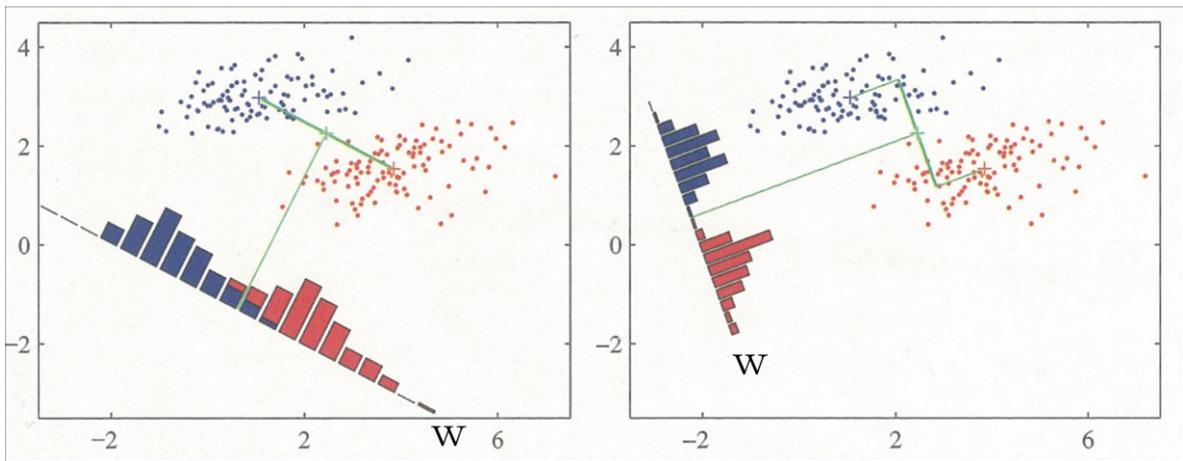


Fig.6-16 Fisher 線形判別モデル(2次元例)^[28]

以下に, Fisher の線形判別を用いた, D 次元上に存在する 2 つのデータ(C_1 , C_2)の最大分離射影方向を表す単位ベクトル w の算出方法を示す.

まず, D 次元上に存在するデータ毎の平均値を算出する.

$$\mathbf{m}_1 = \frac{1}{N_1} \sum_{n \in C_1} \mathbf{x}_n, \quad \mathbf{m}_2 = \frac{1}{N_2} \sum_{n \in C_2} \mathbf{x}_n \quad (5)$$

\mathbf{w} 上に射影された際のデータ分離で最も簡単な方法は、射影された平均値の差が最大となる \mathbf{w} を選択することである。式で表すと、式(6)を最大化する \mathbf{w} となる。

$$m_2 - m_1 = \mathbf{w}^T (\mathbf{m}_2 - \mathbf{m}_1) \quad (6)$$

ここで、

$$m_k = \mathbf{w}^T \mathbf{m}_k \quad (7)$$

しかし、この \mathbf{w} だと Fig.6-16 左側図のようにデータの重なり合いが多くなってしまう。これはデータ毎の共分散が強いために起こる問題である。Fisher の線形判別では、射影されたデータ平均間の分離度を大きくすると同時に、各データ内では小さな分散を与える関数を最大化する。その結果、データの重なり合いを最小に出来る。ここで、射影変換の式(9)を用いると、データ C_k から射影されたデータ分散は式(9)のように表される。

$$y = \mathbf{w}^T \mathbf{X} \quad (8)$$

$$s_k^2 = \sum_{n \in C_k} (y_n - m_k)^2 \quad (9)$$

算出した射影データ平均差、射影データ分散を用いて、Fisher の判別基準は式(10)のように定義される。

$$J(\mathbf{w}) = \frac{(m_2 - m_1)^2}{s_1^2 + s_2^2} \quad (10)$$

$J(\mathbf{w})$ を最大とする \mathbf{w} が、求めるべき射影ベクトルである。

さらに式(10)は、式(7)~(9)を用いて、式(11)のように表される。

$$J(\mathbf{w}) = \frac{\mathbf{w}^T \mathbf{S}_B \mathbf{w}}{\mathbf{w}^T \mathbf{S}_W \mathbf{w}} \quad (11)$$

ただしこの時,

$$\mathbf{S}_B = (\mathbf{m}_2 - \mathbf{m}_1)(\mathbf{m}_2 - \mathbf{m}_1)^T \quad (12)$$

$$\mathbf{S}_W = \sum_{n \in C_1} (\mathbf{x}_n - \mathbf{m}_1)(\mathbf{x}_n - \mathbf{m}_1)^T + \sum_{n \in C_2} (\mathbf{x}_n - \mathbf{m}_2)(\mathbf{x}_n - \mathbf{m}_2)^T \quad (13)$$

である. 式(11)を微分する事で, 下に示す式(14)が満たされる時に $J(\mathbf{w})$ が最大となる事が分かる.

$$(\mathbf{w}^T \mathbf{S}_B \mathbf{w}) \mathbf{S}_W \mathbf{w} = (\mathbf{w}^T \mathbf{S}_W \mathbf{w}) \mathbf{S}_B \mathbf{w} \quad (14)$$

式(14)の両辺に左から \mathbf{S}_W^{-1} を掛ける事で式(15)を得る.

$$\mathbf{w} \propto \mathbf{S}_W^{-1} (\mathbf{m}_2 - \mathbf{m}_1) \quad (15)$$

式(15)より, 射影方向を表す単位ベクトル \mathbf{w} を得る事が出来る.

今回, 粒界面角度・結晶方位差・シュミット因子差を軸に取った 3 次元空間上に, 非分岐粒界・一方向進展粒界・分岐部で進展した 2 粒界(分岐進展粒界と呼ぶ)の 3 つをプロットし, 式(15)を用いて射影ベクトルの算出を行った. なお計算においては, 非分岐粒界を C_1 , 一方向進展粒界と分岐粒界を加えたデータを C_2 とした. さらに, 式(16)で表される 2 データ平均値の midpoint \mathbf{m} を通り, ベクトル \mathbf{w} と直角をなす面を判別面と決め, 分岐部においてき裂が進展するか否か判別面によって判断できるかを確かめる.

$$\mathbf{m} = \frac{\mathbf{m}_1 + \mathbf{m}_2}{2} \quad (16)$$

結果, Fig.6-17 のように判別面を描くことが出来た. なお, Fig.6-17 は判別面が直線に見える方向から観察している. 判別面が 3 次元的に見える角度から見た図を Fig.6-18 に示す.

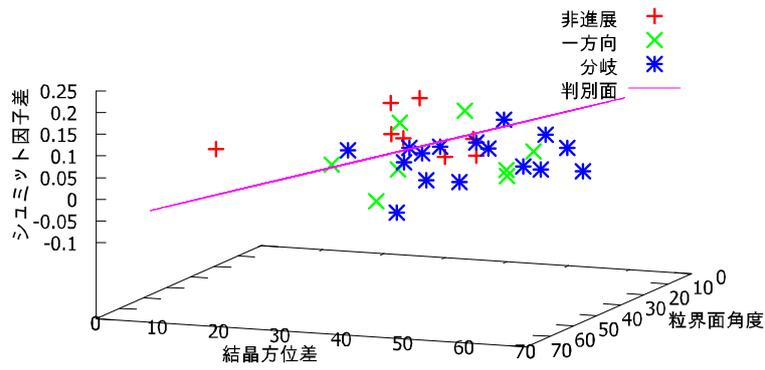


Fig.6-17 Fisher の線形判別結果(判別面が直線になる方向から見た図)

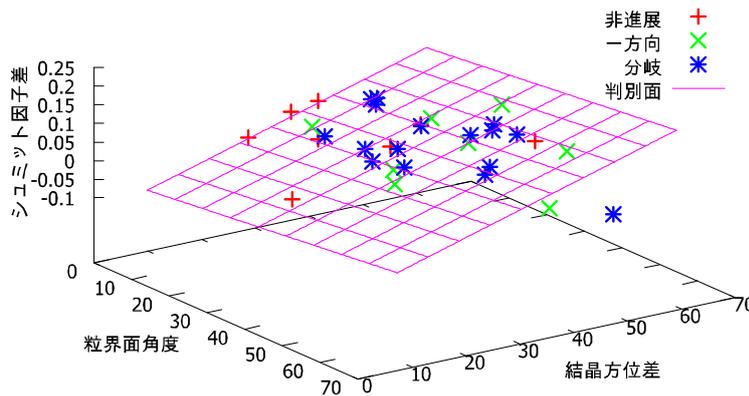


Fig.6-18 Fisher の線形判別結果

判別面を作成した結果、判別面の上部に非進展粒界が 8 点中 5 点、下部に一方向進展粒界及び分岐進展粒界が 24 点中 18 点存在する結果となった。これは 32 粒界中 23 粒界(約 72%)を正しく判別できたという事になる。

なお、判別面の法線ベクトルは、粒界面角度を x 、結晶方位差を y 、シュミット因子差を z とした場合 $[0.015, 0.055, -13.36]$ である。面が 3 方向に傾いている事から、各因子が互いに関係している事が分かる。さらに、粒界面角度が小さい・結晶方位差が小さい・シュミット因子差が大きい粒界ほど、分岐部においてき裂が進展しにくい事が分かる。また、次元とスケールが同じ x と y を比較すると、き裂進展に及ぼす影響は粒界面角度よりも結晶方位差の方が大きいと考えられる。

6.3 因子の寄与率

6.2 で線形判別を行う事によって、因子によって進展・非進展を判別できる可能性を示した。次に、これら 3 因子がどの程度判別に寄与しているかについて考える。寄与率が高い程、その因子は分岐の進行方向について支配的であると考えられる。今回、各因子が正規分布か否かは分からないため、簡便な方法で寄与率の大小を算出する。

各データを粒界面角度・結晶方位差・シュミット因子差それぞれの軸に射影する。そして、判別率が最大となる判別面を求め、判別率の大小が寄与率の大小を表すとした。ただし、今回サンプル抽出方法の関係で非進展粒界と一方向進展粒界＋分岐進展粒界の数が異なるため、非進展粒界の判別割合と一方向進展粒界＋分岐進展粒界の判別割合の平均値を判別率とする。各軸に射影した際の判別面の式と判別率を Table 6-7 に、各軸に射影し判別面を記入した図を Fig.6-19・Fig.6-20・Fig.6-21 に示す。

Table 6-7 射影軸毎の判別面式及び判別率

射影軸	判別面式	判別率
粒界面角度(x 軸)	$x=25$	0.69
結晶方位差(y 軸)	$y=32$	0.75
シュミット因子差(z 軸)	$z=0.05$	0.73

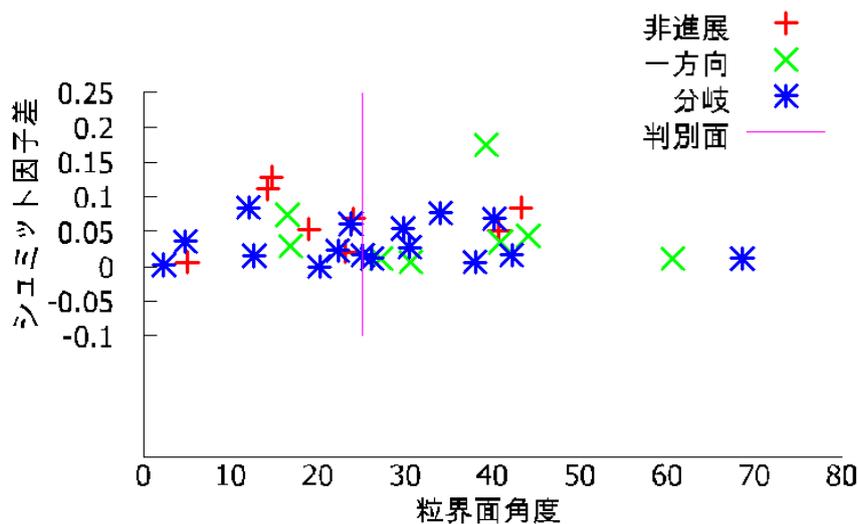


Fig.6-19 粒界面角度(x 軸)に射影した図

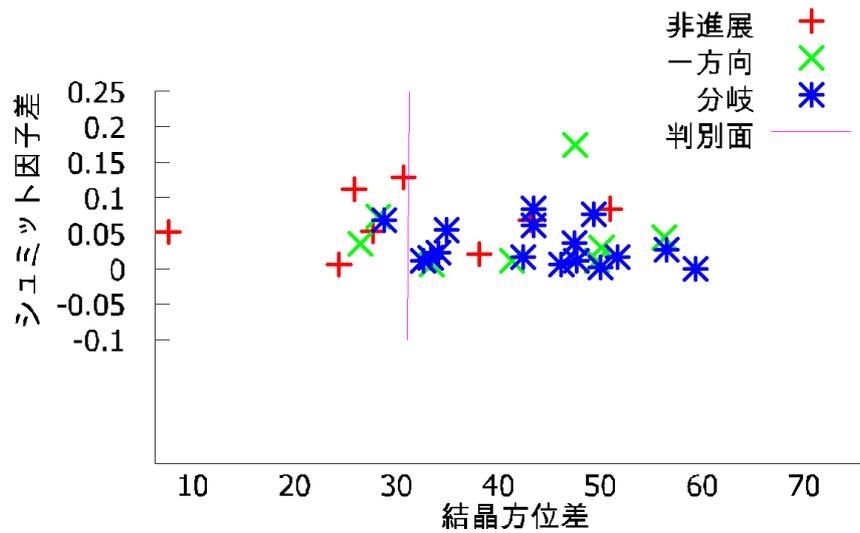


Fig.6-20 結晶方位差(y 軸)に射影した図

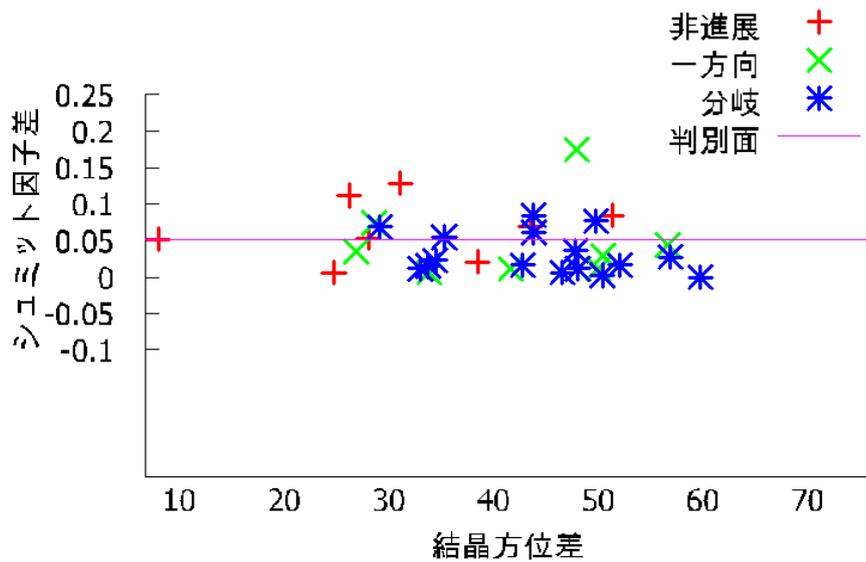


Fig.6-21 シュミット因子差(z 軸)に射影した図

Table 6-7 より，結晶方位差→シュミット因子差→粒界面角度の順に寄与率が高いと考えられる．この事は，判別面の法線ベクトルから，粒界面角度よりも結晶方位差の寄与率が高いという 6.2 の結果と合致している．

よって，3 因子の中では結晶方位差が分岐の進行方向に関して最も支配的であると考えられる．

第 7 章 結論

第7章 結論

7.1 本研究における結論

本研究では、3D-EBSD 法を用いた SUS304 の粒界型応力腐食割れのき裂分岐部に着目した観察を行った。以下に本研究の成果をまとめる。

- ・ EBSD 観察により、クロム結晶、オーステナイト双晶・対応粒界にはき裂が進展していない事を確認した。

- ・ 3D-EBSD 法を用いて、き裂とランダム粒界のマイクロ 3 次元モデルを作成した。

- ・ き裂は応力方向に対して平行に近く、結晶方位差が小さい粒界では進展しにくい事が分かった。

- ・ ランダム粒界分岐部において、粒界面角度(応力方向となす角)・結晶方位差・シュミット因子差が分岐方向決定因子として寄与しており、逆に応力伝達係数・進展面角度は寄与しない事が分かった。

- ・ 粒界面角度・結晶方位差・シュミット因子差について Fisher の線形判別を行う事で、各因子が互いに関係している事が確認できた。また、判別面によって分岐の有無が判別できる可能性を示した。

- ・ 粒界面角度・結晶方位差・シュミット因子差それぞれの軸にデータを射影し、判別面を作成する事で、結晶方位差→シュミット因子差→粒界面角度の順に分岐方向決定因子としての寄与率が高い事が分かった。

7.2 今後の課題

本研究では、非分岐部・分岐部共に十分なサンプルのデータを得る事が出来なかった。また、昨年度より観察範囲を広げた分 step 数を粗くしたので、EBSD 像からき裂や粒界を抽出する際ははっきりと読み取るのが難しい事もあった。なので、より多くの領域で高精度のデータを得る必要がある。

さらに、今回は主き裂から分離し、比較的主き裂と平行に進展していく部分のき裂の観察を行った。しかし、主き裂から分離している部分では主き裂と直角方向に進展しており、こういった部分では分岐方向決定因子が異なる可能性がある。よって、き裂状態が異なる部分での観察も必要になってくる。

分岐方向決定因子は、本研究で分かった 3 因子以外にも様々な物があると考えられる。そこで、元素分析等異なる手法も併せて観察を行う必要があると考えられる。

7.3 今後の展望

本研究においては、観察を行う事で因子の特定を行った。今後、これらの因子が分岐に関わる物理的な背景を解明する事で、き裂進行のメカニズムが解明されるであろう。

き裂進行のメカニズムが分かる事により、SCC を制御した材料開発や、SCC 発生を見越した保守点検への応用につながるだろう。

参考文献

参考文献

- [1] 山本正弘他 12 名, 軽水炉の応力腐食割れ(SCC)事象とその評価手法, JAEA, pp. 1, 2012.
- [2] 八田圭三, 本田航空株式会社所属ベル式 206B 型 JA9143 千葉県市原市昭和 58 年 5 月 14 日, 航空事故調査報告書, 航空事故調査委員会, 1985.
- [3] 磯崎洋平, 3D-EBSD を用いたオーステナイト系ステンレス鋼における SCC3 次元幾何形状の計測, 2013.
- [4] 中東重雄, 放射光 CT イメージングによる Ni 基合金溶接金属中 SCC のき裂検出, 溶接・非破壊検査技術センター, 技術レビュー, vol.3, pp31-37, 2007.
- [5] 中東重雄, 放射光 CT イメージングによるステンレス鋼中 SCC き裂の観察, 溶接・非破壊検査技術センター, 技術レビュー, vol.5, pp25-31, 2008.
- [6] V. Y. GERTSMAN, S. M. BRUEMMER, Study of grain boundary character along intergranular stress corrosion, *Acta Materialia*, pp1589-1598, 2001.
- [7] Gregory S. Rohrer, The distribution of grain boundary planes in polycrystals, *JOM Journal of the Minerals, Metals and Materials Society*, Vol. 59, No. 9, pp38, 2007.
- [8] 鈴木清一, EBSD 読本, TSL ソリューションズ, 2009.
- [9] 榎本正人, シリアルセクションニングによる鉄鋼組織の 3 次元可視化と解析, *鐵と鋼*, Vol. 90, No. 4, pp. 183-189, 2004.
- [10] A. B. Geltmacher and A. C. Lewis, Image-based modeling of the response of experimental 3D microstructures to mechanical loading, *Scripta Materialia*, pp81-85, 2006.
- [11] 田中雅浩, EBSD を用いた金属結晶方位の計測と有限要素解析への応用, pp8-10, 2010
- [12] 片岡哲志, Cr-Mo-V 鋼のクリープ損傷過程におけるボイドの 3 次元形態および空間分布の変化, pp9-36, pp95-98, 2010.
- [13] 興石和輝, 配管溶接熱影響部におけるクリープボイドの 3 次元幾何形状の計測, pp12-22, 2012
- [14] José Baruchel, Jean-Yves Buffiere, Peter Cloetens, Marco Di Michiel, Emilie Ferrie, Wolfgang Ludwig, Eric Maire and Luc Salvo, *Advances in synchrotron radiation microtomography*, *Scripta Materialia*, Vol. 55, Issue 1, pp. 41-46, 2006.
- [15] 足立吉隆, 3D-EBSD 法による 3 次元可視化, *ふえらむ*, Vol. 13, No. 10, pp. 28-32, 2008.
- [16] Shoji T, Progress in the Mechanistic Understanding of BWR SCC and Its Implication to the Prediction of SCC Growth Behavior in Plants, *Proceedings of 11th Int. Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power System-Water Reactors*, pp588-597,

2003.

- [17] Hosford, W. F., *The Mechanics of Crystals and Textured Polycrystals*, Oxford University Press, p36, 1993.
- [18] 沼田俊一, D. Dorner, 足立吉隆, 山田哲広, 小島真由美, 友田陽, EBSD によるオーステナイト系ステンレス鋼の塑性変形と応力腐食割れの検討, pp141.142, 茨城講演会講演論文集, 2008.
- [19] 粉川博之, 双晶導入による粒界構造の低エネルギー化に基づく高耐粒界腐食性ステンレス鋼の開発, 鉄と鋼, pp467, 2006.
- [20] 佐々木孔英, 釜谷昌幸, 三浦照光, 福谷耕司, 微視的な塑性ひずみ分布と結晶方位差の関係, 日本金属学会誌, 第 74 巻, 第 7 号, pp467-474, 2010.
- [21] 宮本博之, 強ひずみ加工法による超微細結晶材料における粒界平衡化と熱的安定性, 科学研究費調査報告書, 2009.
- [22] 住友電気工業株式会社, 公告番号 WO2010095340 A1 特許, 2010 公開.
- [23] 宮本博之, 結晶粒界と諸現象, pp3-19, 2004.
- [24] 粉川博之他 5 名, 結晶粒界構造制御による原子炉配管材料の粒界鋭敏化抑制効果, 日本原子力研究所, 原子力基礎研究 H11-023, pp1-4, 2003.
- [25] 佐藤昭規, 毘謙造, 辻川茂男, 久松敬弘, 溶体化処理した SUS310S 鋼粗大柱状晶の粒界腐食の結晶方位差依存性, 鉄と鋼, pp89, 1987.
- [26] A. C. Lewis and A. B. Geltmacher, Image-based modeling of the response of experimental 3D microstructures to mechanical loading, *Scripta Materialia*, Vol. 55, No. 1, pp. 81-85, 2006.
- [27] 松田健二, 築山淳次, 上谷保裕, 池野進, ピーク時効した多結晶 Al-Mg-Si 合金の粒界破断に対する結晶粒方位の影響, 軽金属第 58 巻 第 8 号, pp388-394, 2008.
- [28] Christopher M. Bishop, パターン認識と機械学習 上, pp185-187, 2011.
- [29] JR. Kremer, DN. Mastrorade and JR. McIntosh, Computer Visualization of Three-Dimensional Image Data Using IMOD, *Journal of structural biology*, Vol.116, No.1, pp.71-76, 1996.
- [30] 小林重昭, 松山正典, 粒界工学に基づくニッケルの偏析脆化抑制, 日本機械学会年次大会講演論文集 2010(1), pp347, 2010.

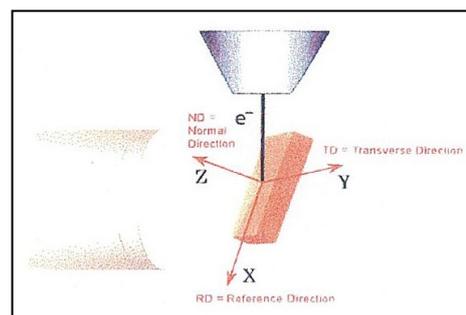
付録

付録 A : OIM 解析^[12]

OIM(Orientation Imaging Microscope)解析について説明する。OIM で測定したデータは、各ピクセルに対して xy 座標値, オイラー角, CI 値, Fit 値, IQ 値, 相情報, 像情報(2 次電子像などの情報), そして必要に応じて Hough 変換の情報が付加される。

➤ オイラー角

…オイラー角は、試料に固定された座標系(試料座標系)と測定点の結晶格子に固定された座標系(結晶座標系)の回転関係を 3 つの回転角で表現するものである。OIM では、Bunge の定義によるオイラー角, Passive 法(=試料座標系(sample)を回転して結晶座標系(crystal)に一致させる方法)を用いている。



付録 Fig.1 OIM 試料座標系

➤ CI 値(Confidence Index:信頼性指数)

…パターンの指数付け, 算出した結晶方位が正しいのか評価するための指標。算出した結晶方位が正しいのか評価するのに用いられる。CI 値は, 0.1 以上で 95%以上が正しく, 立法晶の場合は 0.2-0.3 程度あれば問題ないとされている。

➤ Fit 値

…Voting 法により得られた方位から, それぞれのバンドがどの位置に現れるべきかを計算し, 実際に検出されたバンドとのズレ角を算出し平均化したもの。キャリブレーション, 結晶系の適切性などを評価するための指標。Fit 値が最小になるように WD 値を調整する。1.0-1.5 以下程度であれば問題ないとされている。

➤ IQ 値(Image Quality)

…Hough 空間上のバンドを示すピークの強度情報。バンドが鮮明なほど強くなる。バンドが鮮明になるということは, パターンの発生領域の結晶性が良い, つまり IQ 値は, 結晶性の良し悪しを示していることになる。IQmap は, 残留ひずみの定性的な評価パラメータとして使用することができる。また, 質の低い測定点の情報を削除したりする場合にも有効に使用できる。

○結晶粒界の認識

✓ **Minimum Boundary Misorientation Angle**

…ピクセル間の方位差がこの角度以上ある場合には、そのピクセル間に境界があると内部的に認識しておくもの。本研究においては 2°である。

✓ **Grain Tolerance Angle**

…結晶粒を認識するための基準。ピクセル間の方位差がこの角度以下の場合に、同じ結晶粒に属すると判断される。本研究においては 5°である。

✓ **Misorientation Angle**

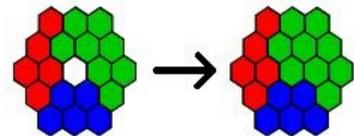
…結晶粒界を表示するための基準。ピクセル間の方位差がこの角度以上の場合に、これらのピクセル間に粒界があるとして表示する。これは、表示上の問題のみで、結晶粒径を計算したりする結晶粒の認識などには関与していない。

○Clean up 処理

OIM データ測定時において、試料表面の傷や試料研磨が不完全など様々な理由によりうまく測定できなかったピクセルの方位データを、その周囲の正常な測定がなされたピクセルのデータで補完する方法である。これら 3 つを組み合わせ、Clean up 処理を行った。

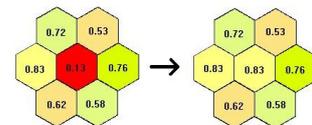
✓ **Grain Dilation**

…結晶粒と認識されなかったピクセルの方位データを、周辺の結晶粒と認識されたピクセルの方位に置き換える方法。周囲の最大 CI 値ピクセル方位に置き換える。最もよく使用される処理である。



✓ **Neighbor CI Correlation**

…ユーザ指定 CI 値以下のピクセルの結晶方位と CI 値を、隣接するピクセルのうち最も高い CI 値のピクセルデータに置き換える方法。

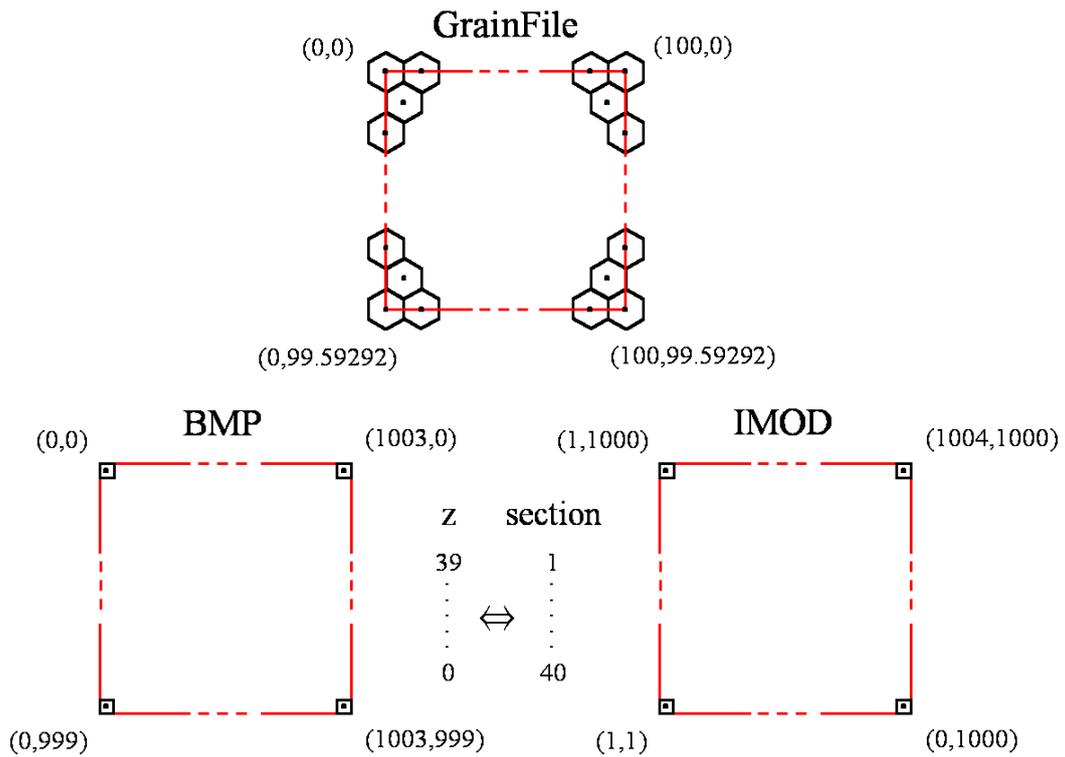


✓ **Average Orientation per Grain**

…結晶粒内のすべての方位データを、結晶粒内で平均化した方位データで置き換える方法。

○GrainFile

GrainFile とは、元の測定データに GrainID を加えたテキストデータのことである。各ピクセルに対して、オイラー角, xy 座標値, IQ 値, CI 値, Fit 値, GrainID, 相情報が含まれている。付録 Fig.2 に, GrainFile, BMP, IMOD におけるピクセル形状および座標系の違いを示す。ピクセル形状が六角形のため, GrainFile の座標に注意する必要がある。また, z 座標が高い方から低い方へセクショニングしていくので, IMOD モデル作成の際には順序を逆にする必要がある。



付録 Fig.2 EBSD と IMOD におけるピクセル形状および座標系の違い

付録 B : IMOD コマンド^[12]

実際に使用した IMOD コマンドの詳細について説明する.

○**tif2mrc** : `tif2mrc <TIFF image file> <MRC image file>`

○**midas** : `midas <MRC image file>`

○**imodauto**

`imodauto [options] <MRC image file> <IMOD model file>`

-c <r, g, b> : color

-l <value> : low threshold 以下に輪郭線 (black 0~255 white)

-m <value> : 輪郭作成する最小ピクセル数 (default is 10)

-o : smooth areas

-z <value> : z 方向 step[μm] / (xy 面の pixel の 1 辺[$\mu\text{m}/\text{pixel}$])

→研磨量/EBSD ステップサイズ

○**smoothsurf**

`smoothsurf [options] <Input_IMOD model file> <Output_IMOD model file>`

-nz <value> : フィッティングに含めるセクション数

-dist <value> : フィッティングに含めるピクセル数

○**imodmesh**

`imodmesh [options] <IMOD model file>`

-C : すべてにキャップ

-R : 分解能

○**3dmod**

`3dmod [options] <MRC image file> <IMOD model file>`

-V : model view window

○**3dmodv**

`3dmodv [options] <IMOD model file>`

-s <width, height> : window size

-f : フルスクリーン表示

○**imodinfo**

`imodinfo [options] <IMOD model file>`

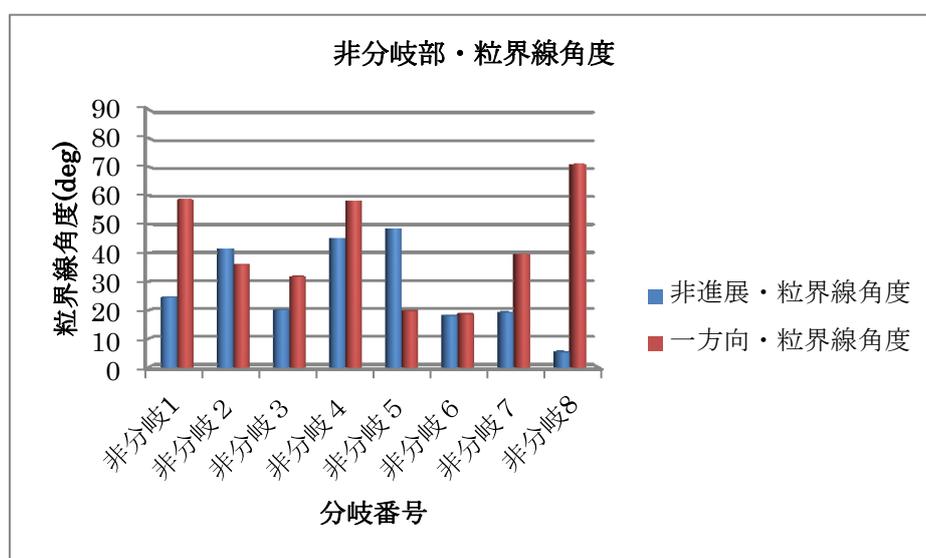
-f <filename> : ファイル保存

-vv : 詳細情報の表示

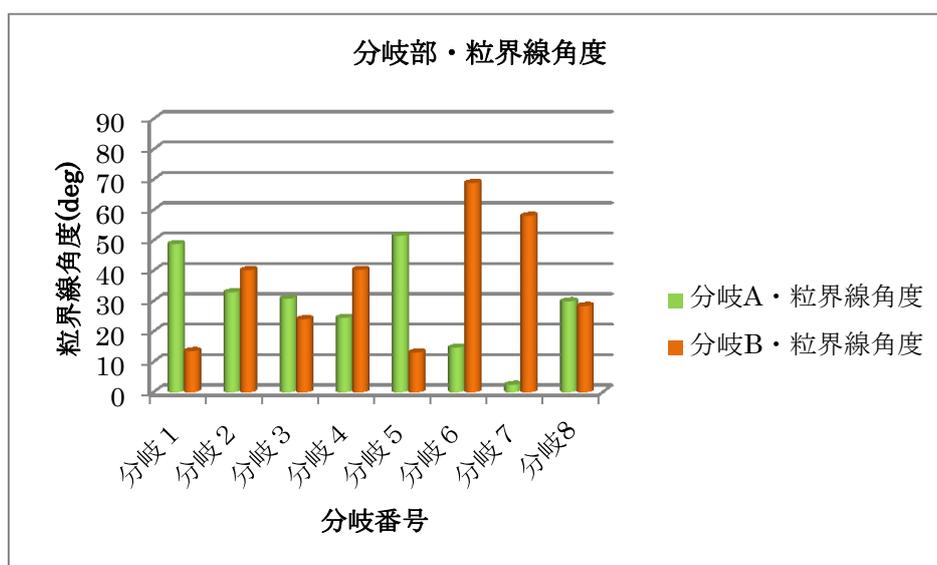
-a : 座標表示

付録 C：き裂分岐部の 2 次元観察

3次元観察の非分岐部・分岐部それぞれから、2次元像を8点ずつ抽出し、分岐方向決定因子について考察を行った。結晶方位差とシュミット因子、応力拡大係数は3次元観測と同じなので割愛する。粒界線角度と進展線角度について述べる。なお、粒界線角度は粒界面角度を、進展線角度は進展面角度をそれぞれ2次元観察したものである。粒界線角度についてまとめた結果を付録 Fig.3, 付録 Fig.4, 付録 Table 1 に示す。



付録 Fig.3 非分岐部における粒界線角度



付録 Fig.4 分岐部における粒界線角度

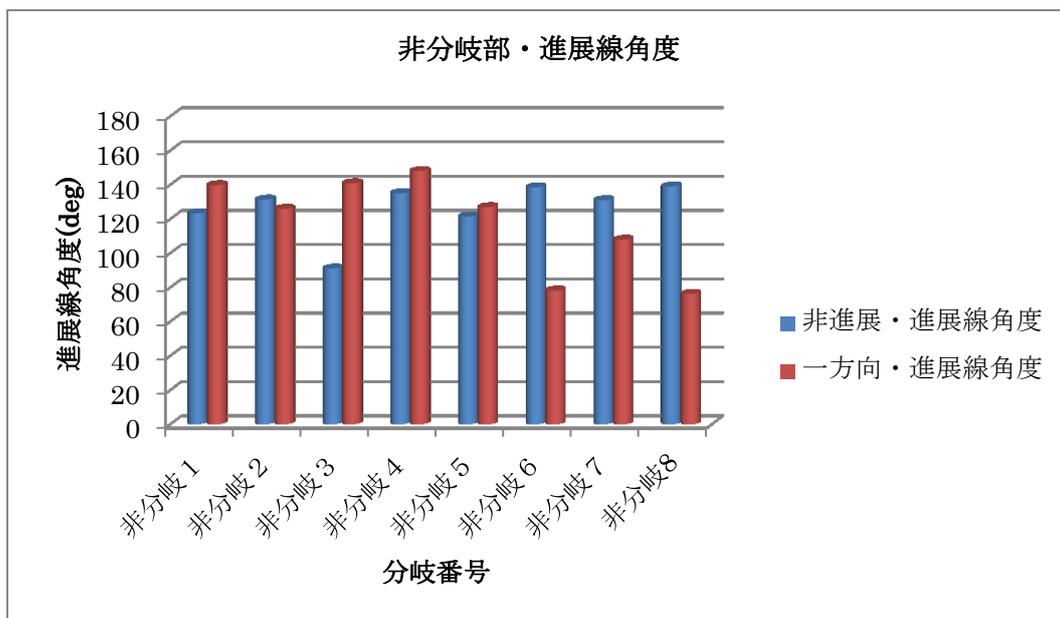
付録 Table 1 非分岐部・分岐部における粒界線角度平均

	粒界線角度平均(deg)
非進展	27.72
一方向	41.63
分岐	32.56

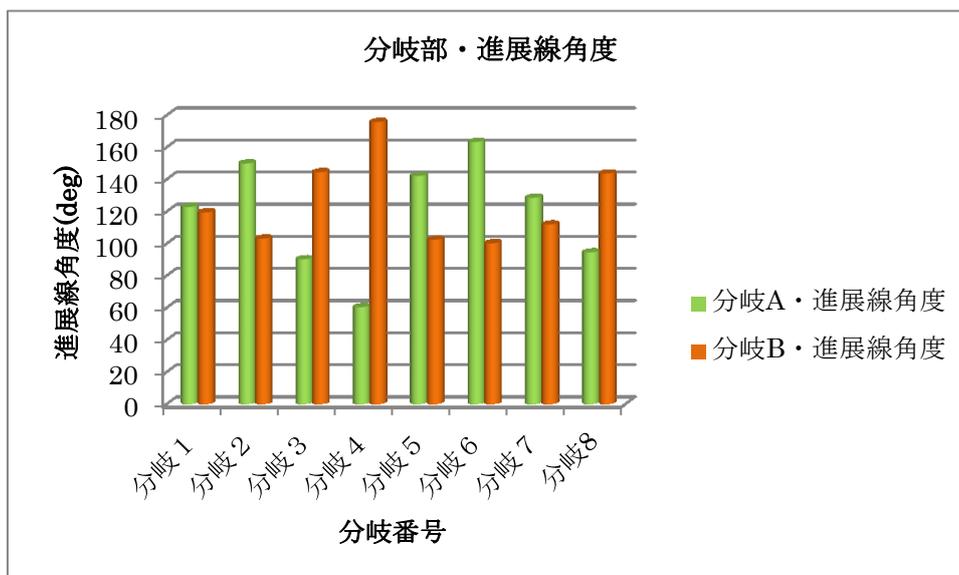
付録 Fig.3 より，非分岐部 8 個中・6 個において粒界線角度が大きい粒界にき裂が進展し，小さい粒界には進展していないという結果になった。

また，付録 Fig.3 と付録 Fig.4 を比較した時，付録 Table 1 より分かるように，全体的に非進展粒界における粒界線角度は小さく，一方向と分岐進展粒界において，粒界線角度は大きい値を取る事が分かった。よって，分岐方向決定因子として動いていると考えられる。これは粒界面角度同様，応力因子であると考えられる。

次に，進展線角度について調べた結果を付録 Fig.5，付録 Fig.6，付録 Table 2 に示す。



付録 Fig.5 非分岐部における進展線角度



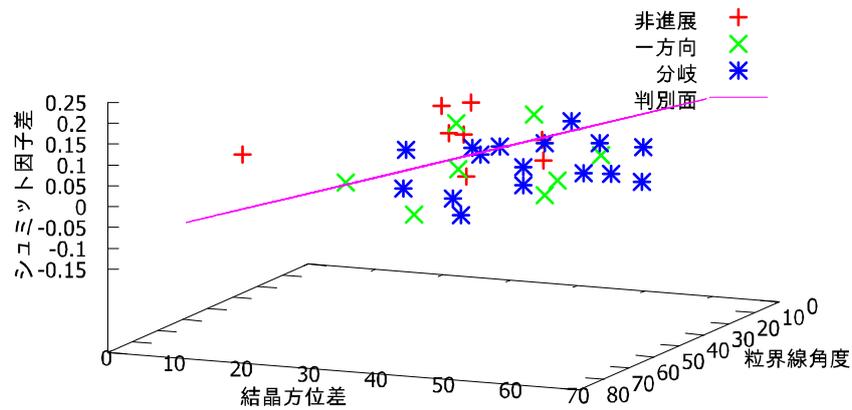
付録 Fig.6 分岐部における進展線角度

付録 Table 2 非分岐部・分岐部における進展線角度平均

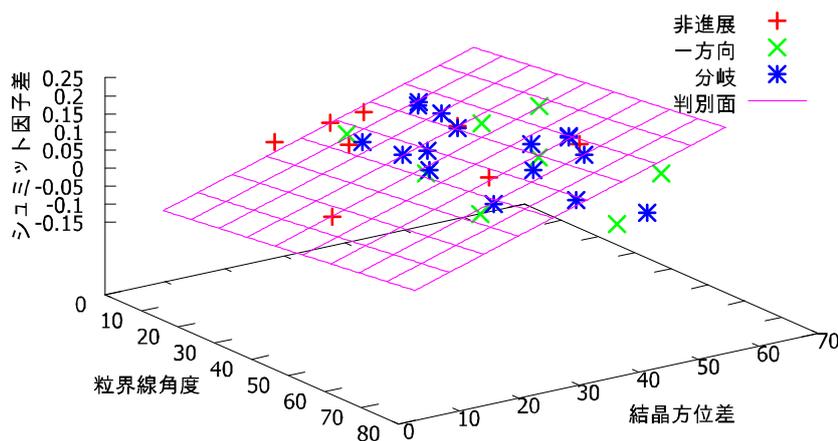
	進展線角度平均(deg)
非進展	126.28
一方向	117.94
分岐	122.02

付録 Fig.5, 付録 Fig.6 の比較及び付録 Table 2 より, 非進展粒界とそれ以外の進展粒界で進展線角度の差を見る事ができない。

よって, 2次元観察においては, 粒界面角度・結晶方位差・シュミット因子差が分岐方向決定因子として寄与していると考えられる。3次元観察同様, Fisher の線形判別を行う。結果を付録 Fig.7 及び付録 Fig.8 に示す。



付録 Fig.7 2次元観察による Fisher の線形判別(判別面が直線になる方向から見た図)



付録 Fig.8 2次元観察による Fisher の線形判別

判別面を作成した結果、判別面の上部に非進展粒界が 8 点中 5 点、下部に一方向進展粒界及び分岐粒界が 24 点中 17 点存在する結果となった。これは 32 粒界中 22 粒界(約 69%)を判別できたという事になる。これは 3 次元評価に比べ、若干精度が落ちている。加えてき裂は 3 次元的な現象である事から、3 次元観察の方が望ましい可能性がある。

謝辭

謝辞

本研究は、著者が酒井・泉研究室在籍中に酒井信介教授のご指導の下行ったものである。研究会や勉強会で貴重なご意見を頂いた事に感謝の意を表します。自己責任・自己決定という点で、非常に自由に研究をさせていただいた点に、重ねて感謝申し上げます。

泉聡志教授には、多くの場面で助言を頂いた事を感謝いたします。田中展，波田野明日可両助教授には、普段の研究室生活において大変お世話になりました。有難うございます。

株式会社 IHI の高梨正祐様にはお忙しい中、試験片準備からアドバイス，修士論文の添削まで、何から何までお世話になりました。ありがとうございました。

労働安全衛生総合研究所の山際謙太様には貴重な実験機器を使用させて頂きました。さらに研究内容のみならず，多くの経験談を聞かせて頂けるなど，とても楽しかったです。

同研究室の先輩，同期，後輩の皆様には，研究室生活を送る上で大変お世話になりました。

本研究を進めるにあたり，多くの方々にお世話になりました。ここに重ねて厚く謝意を表し，謝辞とさせていただきます。

以上

通し番号 1-102 完

修士論文

平成26年2月6日提出

機械工学専攻 37-126168

池田 和寛