

超微小試験技術 Ultra-micro Tensile test system for Crack Tip (UTCT) の開発

Development of the Ultra-micro Tensile test system for Crack Tip (UTCT)

藤井 克彦 (Katsuhiko Fujii)^{*1} 野志 勇介 (Yusuke Noshi)^{*1} 前田 悠希 (Yuuki Maeda)^{*1}

要約 応力腐食割れ (SCC) の発生と進展の機構解明に向けて、SCC 亀裂先端に引張応力を加えた状態で走査型透過電子顕微鏡 (STEM) 観察・分析を実施する手法 (Ultra-micro Tensile test system for Crack Tip; UTCT) を開発した。

キーワード SCC 亀裂先端のミクロ組織, STEM 内引張試験, SEM-TKD

Abstract To elucidate the mechanism of stress corrosion cracking (SCC) initiation and propagation, an Ultra-micro Tensile test system for Crack Tip (UTCT) was developed to observe and analyze SCC crack tips with a scanning transmission electron microscope (STEM) under tensile stress.

Keywords SCC crack tip microstructure, tensile testing in STEM, SEM-TKD.

1. はじめに

高温水中の応力腐食割れ (stress corrosion cracking, SCC) の発生と進展では、水による腐食と引張応力によるひずみが重畳する。SCC 発生や SCC 進展試験後も、腐食に伴う亀裂先端の組織や組成の変化は保持されると考えられるため、亀裂先端を調べることで腐食の影響に関する知見は得ることが可能であると考えられる⁽¹⁻³⁾。しかし、応力とひずみの影響については、既に荷重が除去されているため、走査型透過電子顕微鏡 (scanning transmission electron microscope, STEM) 等で亀裂先端のナノメートルスケール分析を実施する段階ではその影響は評価できず、進展下にある亀裂先端の状態を知ることはできない。このため、SCC 亀裂先端に引張応力を加えた状態で STEM 観察・分析を実施する手法が必要となる。これまでに、亀裂先端での塑性変形のその場観察などは行われているが、SCC 亀裂先端における観察例はない。そこで、本研究ではナノメートルスケールで駆動可能な STEM 内引張ホルダーを用いて、SCC 亀裂先端の組織を観察しながら超微小引張が可能な方法 (Ultra-micro Tensile test system for Crack Tip; UTCT) を開発した⁽⁴⁾。

2. 超微小試験技術 Ultra-micro Tensile test system for Crack Tip (UTCT)

2.1 コンセプト

UTCT を開発するにあたり、次の項目を技術的の要求事項に設定した。

- (1) 任意の SCC 亀裂先端のサンプリング
- (2) SCC 亀裂先端の薄膜試料化
- (3) 負荷前の SCC 亀裂先端の STEM 観察・分析
- (4) SCC 亀裂へのモード I の負荷
- (5) 負荷過程の SCC 亀裂先端の STEM 観察
- (6) 負荷前後の SEM-TKD 測定

なお、SEM-TKD は走査型電子顕微鏡-透過菊池回折 (scanning electron microscope - transmission Kikuchi diffraction) である。

2.2 駆動機構

集束イオンビーム (focused ion beam, FIB) 加工装置 (HITACHI 製 NB5000) と STEM (HITACHI 製 HD2700) で共用可能な引張ホルダー (SANYU 製オリジナル)⁽⁵⁾ を駆動機構として用いた。

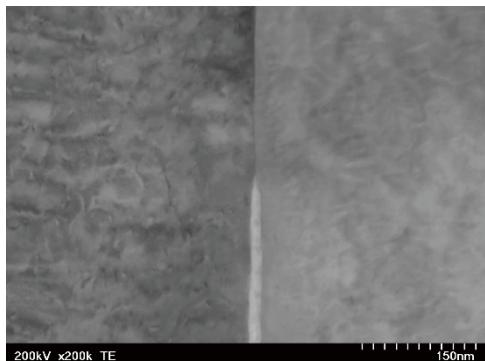
引張ホルダーは X/Y/Z の 3 軸の微動機構と X 方向

※1 (株) 原子力安全システム研究所 技術システム研究所

(ホルダーの軸方向) の粗動機構を有する。微動 X 軸のストロークは $50 \mu\text{m}$, 微動 Y/Z 軸のストロークは $40 \mu\text{m}$ である。なお、微動機構はピエゾ素子によるものであり、コントローラーにより速度調整が可能であり、自動試験も可能である。

2.3 任意のSCC亀裂先端のサンプリングと薄膜試料化、負荷前のSCC亀裂先端のSTEM観察・分析

任意の SCC 亀裂先端のサンプリングと SCC 亀裂先端の薄膜試料化には FIB 加工装置を用いた。SUS316 鋼の SCC 進展試験片断面からマイクロサンプリングして薄膜加工後に STEM で亀裂先端を観察した例を図 1 に示す。SCC 亀裂先端に幅 20 nm の酸化した領域が観察される。なお、FIB 加工で SCC 亀裂先端部を厚さ 100 nm 程度まで薄膜化したのち、FIB 加工時のダメージを除去するため、1 kV の Ar イオンミリングで最終加工を実施している。



(1) 透過電子(TE)像



(2) Z コントラスト(ZC)像

図 1 SCC 亀裂先端の STEM 観察例

2.4 SCC亀裂へのモード I の負荷

図2にUTCT装置の負荷部を示す。固定側Mo片先端(右側)にFIB加工で引張試料台を製作し、凸部と引張軸に平行な試料保持部を設けている。試料保持部には、SCC進展試験片断面からマイクロサンプリングした SCC 亀裂先端を含む微小なブロック試料($4 \times 4 \times 2 \mu\text{m}$)をW蒸着により固定する。

X/Y/Zの3軸駆動可能なMo片先端(左側)には凹部を作製している。この凹部で固定側Mo片先端の凸部を牽引し引張軸方向に動かすことで、亀裂開口方向への応力、モード I の応力を加えることが可能である。

なお、亀裂先端を含む試料の位置はUTCT装置の軸部からずらした設計にしている。試料の断面は $1 \mu\text{m}^2$ 以下であり、UTCT装置の軸部の断面(約 $100 \mu\text{m}^2$)に対して十分小さく、主な引張変形は軸部が担うことになる。

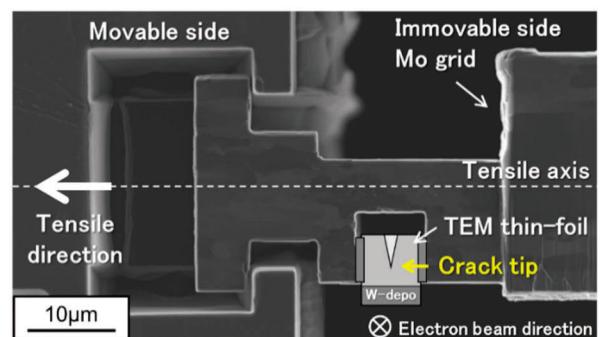
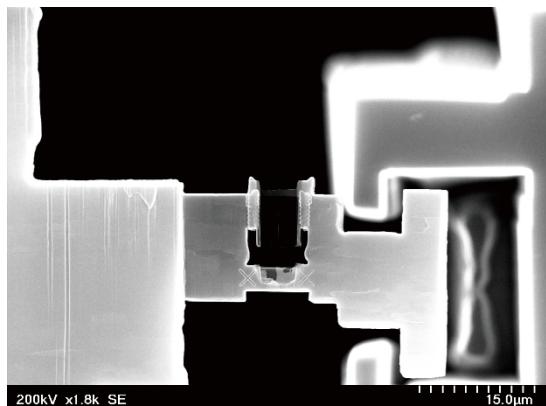


図 2 UTCT 装置の負荷部

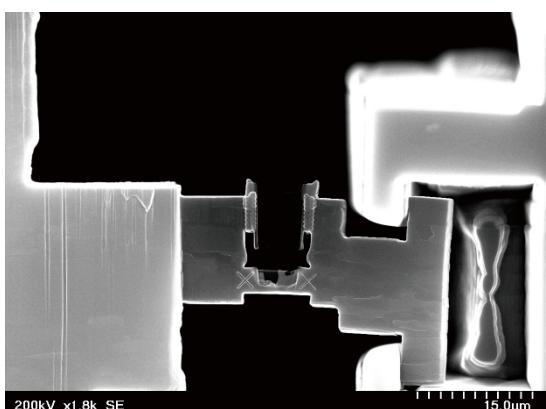
2.5 負荷過程のSCC亀裂先端のSTEM観察

図3にSTEM内での超微小引張試験の結果の例を示す。負荷前後のUTCT装置の負荷部のSTEM/SE像を示した。また、図4には、図3に示した負荷後の試験片のSTEM/TE像を示した。駆動機構によりSTEM内で超微小引張試験に成功した。ただし、UTCT装置の負荷部と駆動軸とのかみ合わせのわずかなずれから、試験片にわずかな曲げ荷重が作用して試験片の亀裂の反対側(図3、4の上側)が先に変形したため、試験片端部で割れが発生し、亀裂とつながり、図4のような破壊を生じたと考えられる。今後、駆動部の加工精度の向上が必要であることが分かった。

図5に負荷後の亀裂先端のSTEM観察結果を示す。図1と亀裂先端の酸化の形状は同じであり、亀裂先端より先の酸化していない粒界は剥離していないと考えら



(1) 負荷前



(2) 負荷後

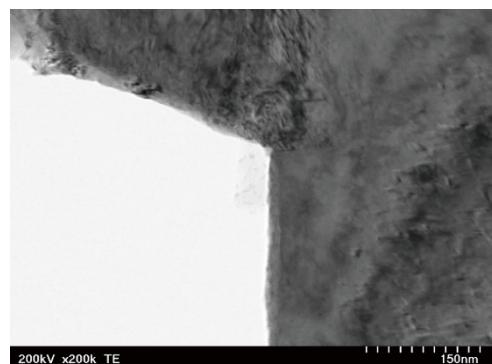
図3 負荷前後のUTCT装置の負荷部の例



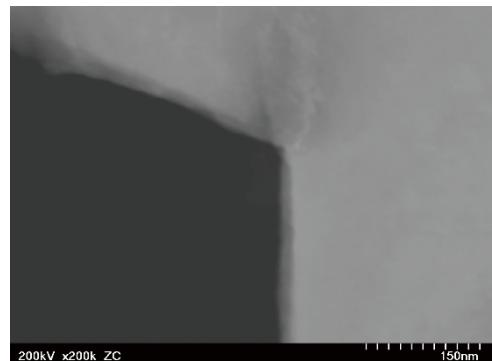
図4 負荷後の試験片の STEM/TE 像

れる。ただし、図1のSTEM/TE像で認められた粒界のコントラストは認められない。これは亀裂先端が塑性変形したこと、粒界のコントラストが識別し難くなつたためと考えられる。なお、粒界のコントラストが消えた領域は約300 nmであった。

負荷前のSTEM像と詳細に比較した結果、左側の結晶



(1) TE 像



(2) ZC 像

図5 負荷後のSCC亀裂先端のSTME観察結果

粒と酸化物の界面で約200 nmにわたり割れが発生していることが分かった。この結晶粒と酸化物の界面での割れは試験片左上部の粒内で割れが発生したのちに生じたものと考えられ、負荷の前までは割れていなかったと考えられる。今後、動的な破壊の進行を観察し、亀裂先端の酸化部の破壊挙動を解明する計画である。また、UTCT装置の軸部の変形量を計測して力を算出し、破壊応力についてもデータを得る計画である。

2.6 負荷前後のSEM-TKD測定

UTCTでは亀裂先端の粒界にモードIの負荷をかけて試験することを技術的要件としているため、亀裂と結晶粒との結晶方位関係を調整して試験片を準備することは難しい。そこで、SEM-TKD測定を用いて、亀裂先端での結晶方位解析を実施してすべり系の配置を決定し、亀裂先端での負荷の影響をより詳細に解析する計画である。また、転位解析を実施して幾何学的に必要な転位 (geometrically necessary dislocation, GND) の分布の変化等を評価して亀裂進

展機構の解明を進める計画である。図6に、最新の高性能走査電子顕微鏡システム (Zeiss製Gemini SEM560) を用いてSCC亀裂先端をSEM-TKD測定した例としてGND密度分布を示す。亀裂は、右から粒界に沿って矢印で示した位置まで進展している。上側の結晶粒に認められる筋状のコントラストは双晶によるものであり、下側の結晶粒に認められる筋状のコントラストはすべり帯によるものである。亀裂及び亀裂先端より先の粒界で、下側の結晶粒にGND密度の高い領域が認められる。これは、下側の結晶粒が主に変形を担って亀裂が進展していることを示唆する。今後、負荷前後のSTEMによるミクロ組織観察とSEM-TKD測定によるミクロ構造解析を組み合わせることで、SCC亀裂進展の機構の解明が期待される。

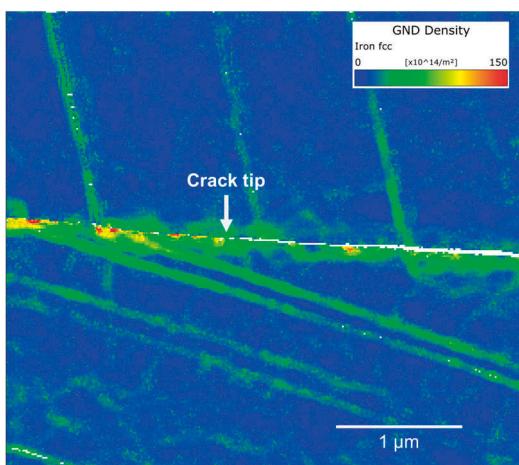


図 6 SCC 亀裂先端の SEM-TKD 測定の例

3. まとめ

SCC の発生と進展の機構解明に向けて、SCC 亀裂先端に引張応力を加えた状態で STEM 観察・分析を実施する手法 (Ultra-micro Tensile test system for Crack Tip; UTCT) を開発した。

SCC 亀裂先端の酸化した領域 (幅 20 nm) が応力の

負荷により結晶粒との界面に沿って破壊する様子が観察されるなど、設計通り STEM 観察中に SCC 亀裂先端への応力の負荷が可能であることが確認された。今後、動的な破壊の進行を観察し、亀裂先端の酸化部の破壊挙動を解明する計画である。

また、最新の分析法である SEM-TKD 測定を活用して、亀裂先端での結晶方位解析を実施してすべり系の配置を決定し、亀裂先端での負荷の影響をより詳細に解析するとともに、転位解析を実施して GND の分布の変化等を評価して亀裂進展機構の解明を進める計画である。

文献

- (1) 藤井克彦, 野志勇介, 寺地巧, 山田卓陽, 有岡孝司, “ステンレス鋼の PWR 1 次系模擬水中の SCC 発生・進展機構 (1) 亀裂先端のナノスケール分析からの検討,” 材料と環境 2024, A-310.
- (2) 藤井克彦, 山岡祐樹, 寺地巧, 山田卓陽, 有岡孝司, “ステンレス鋼の PWR 1 次系模擬水中の SCC 発生・進展機構 (2) 亀裂先端での元素量の変化とその温度と環境の依存性,” 第 71 回材料と環境討論会, A-314.
- (3) 藤井克彦, 野志勇介, 寺地巧, 有岡孝司, “ステンレス鋼の PWR 1 次系模擬水中の SCC 発生・進展機構 (3) 亀裂先端のミクロ組織に対する環境の影響,” 材料と環境 2025, A-310.
- (4) 野志勇介, 藤井克彦, 寺地巧, 有岡孝司, “ステンレス鋼の PWR 1 次系模擬水中の SCC 発生・進展機構 (4) 応力付加状態での亀裂先端のミクロ組織の観察,” 材料と環境 2025, E-214.
- (5) 三浦照光, 藤井克彦, 福谷耕司, “PWR1 次系模擬水中で照射ステンレス鋼溶接金属に形成した酸化膜のミクロ組織と破壊挙動,” INSS JOURNAL 31 2024 NT-6.