



# EBSD 解析による Ni 基合金応力緩和過程の組織学的検討

## Microstructural Investigation of Residual Stress Relaxation Process of Ni-based Alloy by EBSD Analysis

大阪大学大学院工学研究科	于 麗娜	Lina YU	Member
大阪大学大学院工学研究科	才田 一幸	Kazuyoshi SAIDA	Non-member
大阪大学大学院工学研究科	西本 和俊	Kazutoshi NISHIMOTO	Non-member
関西電力株式会社	千種 直樹	Naoki CHIGUSA	Member

In order to clarify the stress relaxation mechanism in residual stress improving treated nickel base alloys, the microstructural change during stress relaxation in the high temperature environment was investigated by Electron Backscatter Diffraction (EBSD) microstructural analysis. As a result of crystal orientation analysis by EBSD, introduction of strain accompanied by dislocation was observed in the specimens treated by laser peening (LP), water jet peening (WJP) and buffing. The strain was large near the surface of the sample, and decreased as the depth increased. Further, it was observed that the strain increased near the grain boundary. The magnitude of the strain increased in the order of Grinding, Buffing, WJP and LP, which showed a similar tendency of the hardness measurement result. After thermal aging, the strain introduced by the LP, WJP, and buffing was slightly relaxed only in the layer near the surface of the specimens. Therefore, it was suggested that the introduced compressive stress may keep long term stability even in the high actual working temperature environment of nuclear power plants.

**Keywords:** Ni-based alloy 600, Water jet peening, Laser peening, Buff, EBSD, Microstructure.

### 1. 緒言

原子力発電プラントの経年劣化事象の一つとして、Ni 基合金溶接部における応力腐食割れ (Stress Corrosion Cracking : SCC) の発生が知られている[1]。SCC は材料、力学、環境の三因子が重畳した際に生じる損傷で、その発生防止にはいずれかの因子を除くことが有効とされている[2]。最近では、材料や環境に対する様々な対策[3-5]を施しているにも関わらず SCC の発生が確認される場合があることから、力学因子としての引張残留応力を低減する対策が併用される場合も多い。その対策として、レーザーピーニング (Laser Peening : LP)、ウォータージェットピーニング (Water Jet Peening : WJP) などピーニング工法および、表面研磨による応力改善工法がガイドラインとして制定されるとともに実機へ適用されている[6-8]。しかしながら、実機 PWR プラント運転時には炉内の温度はおよそ 300 °C に達するため、前述の残留応力改善工法により導入された圧縮残留応力は

運転初期において緩和することが報告されている[9]。したがって、原子力プラントの更なる安全性を確保するためには、応力改善工法により導入された圧縮残留応力を高温環境においても安定して残存させることが重要となり、そのために、残留応力改善工法により導入された圧縮残留応力の高温環境下での緩和挙動に関する検討が求められる。

この問題については過去の研究[10,11]により、ごく表面付近では短時間で回復による応力改善効果の減少が見られるが、それ以降では応力改善効果は長期安定であることが示唆された。しかしながら、この応力緩和挙動のメカニズムについて、組織解析や速度論的検討など材料学的側面からの体系的なメカニズムの解明はほとんど行われていない。特に、応力改善工法間での比較検討を行った研究はほとんど見られない。本研究では、PWR プラント運転を想定した熱時効初期の残留応力緩和メカニズム解明の一環として、LP、WJP、バフ研磨の三工法および機械加工を施した 600 合金について、熱時効時の組織変化を明確にすることを目的とした。各工法の施工材

連絡先: 于麗娜、〒565-087 大阪府吹田市山田丘 2-1  
大阪大学大学院工学研究科  
E-mail: yulina@mapsc.eng.osaka-u.ac.jp

について EBSD 解析を行うことにより、応力緩和過程に関与すると考えられる組織学的因子の検討を実施した。

## 2. 供試材料および実験方法

本研究で用いた供試材料は、Table 1 に示す化学組成を有する Ni 基 600 合金である。試験体は 100mm<sup>l</sup>×50mm<sup>w</sup>×10mm<sup>t</sup> の寸法を有する板材であり、機械加工面に対して、WJP、LP およびバフ研磨を実施した。WJP、LP およびバフ研磨の施工条件は過去の研究[11]と同じである。試験片の長手、幅および板厚方向をそれぞれ x、y および z 方向とした。

各種の応力緩和手法を施工した試験片及び比較材とした機械加工まま材の試験片表面近傍の結晶方位の変化を調査するため、電子後方散乱回折法 (Electron Backscatter Diffraction : EBSD) による結晶方位解析を行った。観察試験片として、上記の試験片より放電加工法を使って組織解析用試験片 (6mm<sup>l</sup>×6mm<sup>w</sup>×10mm<sup>t</sup>) を切り出した。熱時効は実機の運転状態を加速的に再現するため、実機の運転温度より高い 440 °C で実施した。熱時効はマッフル炉を用い、保持時間 1 時間および 50 時間の 2 条件で行った。それぞれ応力緩和が 50% 程度完了と応力緩和が完了の条件である。試験片は切断面に対して耐水研磨紙 3000 番まで湿式研磨を行い、1 μm ダイヤモンドペーストにてバフ仕上げを行うことで断面を鏡面に仕上げた。その後、電解液 20% 硫酸メタノール、温度 20 °C、電流密度 1.92 A/cm<sup>2</sup> の状況で電解研磨を行い、組織観察用試料とした。EBSD の測定条件は加速電圧 25 kV、照射電流 15 nA とし、倍率は 100 倍、ステップサイズ 3 μm とした。

EBSD による結晶方位解析情報から、結晶方位を示す逆極点図 IPF (Inverse Pole Figure) マップ、菊池線の信号強度を示す IQ (Image Quality) マップ、隣接ピクセル間の結晶方位差を示す KAM (Kernel Average Misorientation) マップ、同一結晶粒内の方位差を平均した局所方位差を示す GOS (Grain Orientation Spread) マップ、および、同一結晶内で基準方位に対する場

所ごとの方位差を示す GROD (Grain Reference Orientation Deviation) マップを作成した。なお、IQ 値は菊池パターンの明瞭さを表し、パターンが不明瞭なすなわち結晶格子の変形によって結晶方位が乱されている部分が暗く表示される傾向があるため、局所的な変形の存在を推定することができる。KAM 値は個々の測定点における近傍 6 点の結晶方位差の平均値であり、塑性ひずみ分布に対応する (Fig. 1 に KAM の概念図を示す)。GOS 値は同一結晶粒内で、任意の点とそれ以外の点での方位差を平均した方位差パラメータの一つで、ひずみの大きさの指標となる (Fig. 2 に GOS の概念図を示す)。GROD 値は結晶粒ごとに決定した基準方位と、個々の測定点の方位差を表した結晶方位パラメータである (Fig. 3 に GROD の概念図を示す)。

Table 1 Chemical composition of alloy 600 (mass%).

C	Si	Mn	S	Cu	Cr	Fe	Ni
0.001	0.19	0.49	0.001	0.01	15.5	7.97	Bal.

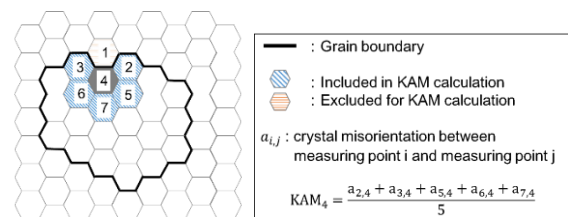


Fig. 1 Schematic diagram of Kernel Average Misorientation (KAM).

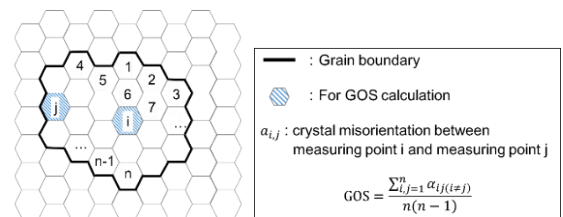


Fig. 2 Schematic diagram of Grain Orientation Spread (GOS).

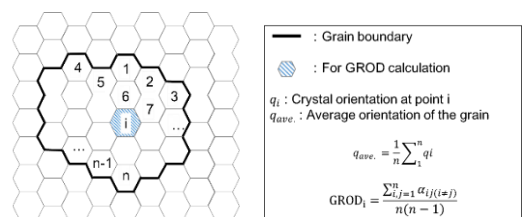


Fig. 3 Schematic diagram of Grain Reference Orientation Deviation (GROD).

### 3. 結晶方位解析による熱時効過程の組織学的検討

LP、WJP、バフ研磨などの応力改善方法による試験片表面近傍の組織の変化を調査するため、切り出し後の試験片断面で EBSD による結晶方位解析を行った。試験片の組織解析には EBSD の IQ、IPF、KAM、GOS、GROD マップを使用した。GROD マップには結晶粒界を共に示した。このマップには黒線で結晶粒界を示している。

#### 3.1 施工まま状態における工法間の差異

応力改善方法の比較を行うため、機械加工まま状態および LP、WJP、バフ研磨施工材の観察を行った。機械加工まま材の結晶方位解析から得られた EBSD マップを Fig. 4 に示す。Fig. 4 において、上から、IQ、IPF、GOS、KAM および GROD マップである。これらのマップは同一測定部において得られた結晶方位の情報をそれぞれ別の方法で表したものである。いずれのマップも上部が試験片表面であり、表面から内部に向けて約 500  $\mu\text{m}$  の範囲で測定を行った。

Fig. 4(a)の IQ マップでは結晶粒界が暗く表示される様子が確認できる。Fig. 4(b)の IPF マップでは結晶方位ごとに決まった色が割り当てられ、測定位置ごとに結晶方位が示される。IPF マップでは表面付近の同一結晶内にグラデーションが見られる。このことから、機械加工の施工によって塑性変形に伴う結晶方位回転が生じ、ひずみが導入された可能性が示唆される。Fig. 4(c)の GOS マップでは方位差が大きいほど赤色が濃く表示される。GOS 値は表面で大きな値を示し、表面からの深さが深くなるにつれ減少していく様子が見られた。Fig. 4(d)の KAM マップでは、ピクセル間の方位差の大きさを 5 段階に分けて評価し色付けしている。赤くなるほど近隣との方位差が大きく、青いほど方位差が小さい。試験片の表面付近で大きな KAM 値が得られた。また、表面から深いところでは粒界に相当する部分でわずかに KAM 値が上昇する様子が見られた。Fig. 4(e)の GROD マップでは、赤くなればなるほど基準方位からのずれが大きく、青ければ小さい。すなわち、同

一結晶粒内で方位のばらつきが大きければ赤や橙を示す部分が多くなる。GROD マップにおいても GOS マップや KAM マップと同様に、表面付近で大きな GROD 値が得られた。一つの結晶粒内でも色の分布が見られた。結晶粒中心部より結晶粒界付近で大きな GROD 値が得られ、結晶粒界付近でも、試験片表面側の方が試験片深部に比べて大きな値を示した。IPF でグラデーションが見られた部分においては特に大きな GROD 値が観測された。これらの結果から、機械加工によって表面付近では大きいひずみが導入されていることがわかった。

同様に LP、WJP、バフ研磨材の 3 種類の残留応力改善工法を施工した試験片に対しても結晶方位解析を行った。その結果を Figs. 5-7 に示す。

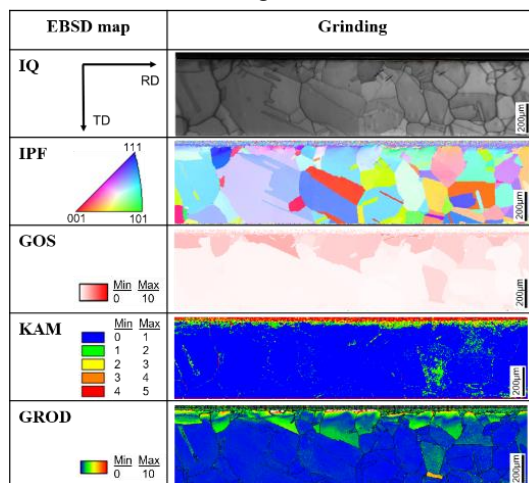


Fig. 4 Crystal orientation maps of grinding specimen.

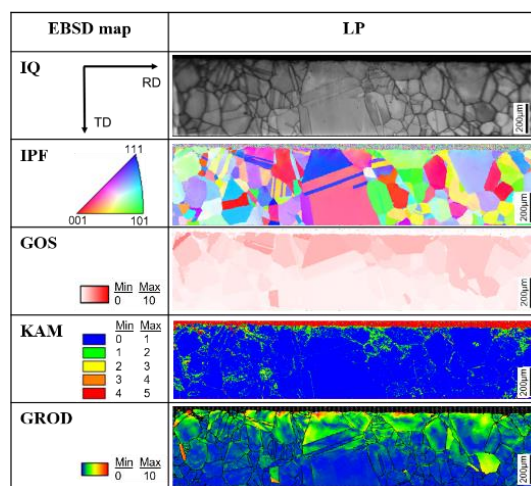


Fig. 5 Crystal orientation maps of LP specimen.

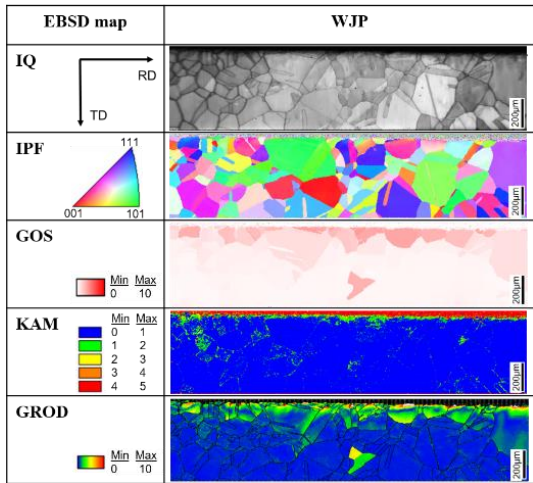


Fig. 6 Crystal orientation maps of WJP specimen.

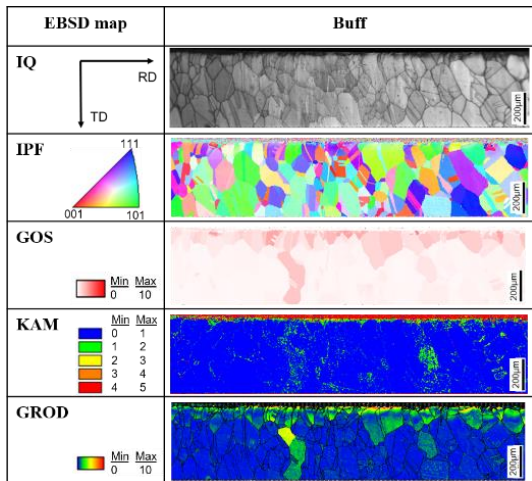


Fig. 7 Crystal orientation maps of Buff specimen.

IQ と IPF マップより、上記三工法施工材においても機械加工まま材と同様に結晶粒界および結晶方位が観測されるが、三工法施工材と機械加工まま材の間に特に大きな差は見られなかった。GOS マップでは機械加工材と同様に表面付近で GOS 値が大きくなる様子が見られ、GOS 値が大きい結晶粒内で GROD 値が大きくなる様子が見られた。また、試験片表面及び結晶粒界で KAM 値が高くなる様子も見られた。表面や結晶粒界以外で、部分的に KAM 値が高くなる場所があるが、これらの場所では GOS 値や GROD 値も高くなっている様子が見られる。GOS と GROD マップでは LP 施工材において、WJP やバフ研磨材、機械加工まま材に比べて表面から深い部分でも GOS 値や GROD 値の上昇が見られた。

KAM マップでは、機械加工まま材で見られた表面付近の KAM 値の高い部分において、LP 施工材で他の施工材より広い範囲の KAM 値上昇が見られた。しかしながら、表面から深い部分の粒界付近の KAM 値上昇部分については他の工法と大きな差は見られなかった。

次に LP、WJP、バフ研磨の三工法施工材と機械加工まま材の無時効状態において、GOS 値および KAM 値の定量的な変化および工法間の差異を調べるため、それぞれの値の深さ方向分布を調査した。その結果を Figs. 8-9 に示す。プロット点は試験片表面から 0、100、200、300、400、500 µm の計 6 点の深さで測定された GOS 値および KAM 値の平均値である。図中の点線は母材の GOS 値および KAM 値である。

全試験片において試験片表面から深くなるにつれ GOS 値、KAM 値が低下する傾向が見られた。LP、WJP、バフ研磨の三工法施工材のいずれにおいても表面付近で機械加工材より大きな GOS 値、KAM 値が得られた。これらはバフ研磨、LP、WJP それぞれの施工によってひずみが導入されたためと考えられる。また、GOS 値では LP > WJP ≒ バフ研磨、KAM 値では LP > バフ研磨 > WJP の順に大きな値が得られた。LP 施工材では表面から 500 µm 以上の深い部分まで母材に比べ高い GOS 値、KAM 値が得られた。さらに、バフ研磨施工材では表面での値が大きく表面付近で他の施工材に比べ一気に低下する様子が見られた。これらの特徴は先行研究の硬さの変化傾向と一致する[11]。

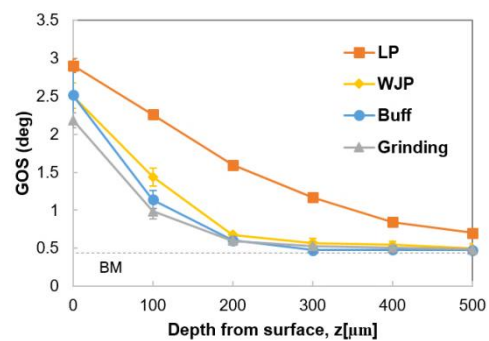


Fig. 8 Depth distribution of GOS [deg].

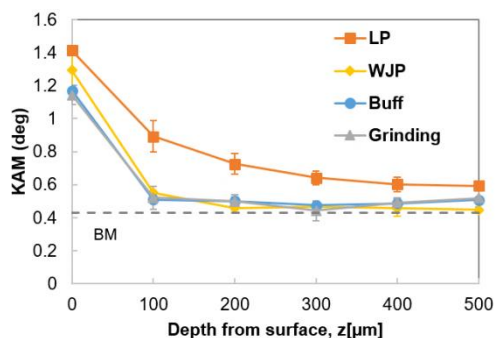


Fig. 9 Depth distribution of KAM [deg].

### 3.2 熱時効による組織変化挙動

LP、WJP、バフ研磨の三工法施工材と機械加工ま  
ま材において、熱時効による組織の変化を調べるた  
め、熱時効(440°Cで保持 1 時間と 50 時間)した試験  
片に対して EBSD による結晶方位解析を行った。工  
法ごとに得られた EBSD マップを Figs. 10-13 に示す。

無時効材と同様に IQ と IPF マップでは結晶粒界お  
よび結晶方位が確認された。これらに無時効材との  
大きな変化は見られない。また、GOS、KAM と GROD  
マップについても、表面付近で GOS 値、KAM 値、  
GROD 値が大きくなり、GOS が大きい結晶粒内で高  
い GROD 値を観測した。これらのマップでも熱時効  
前後で大きな差異は確認できなかった。LP 施工材で  
他の工法に比べ GOS 値、GROD 値が大きくなる傾  
向は熱時効前と同様であった。

全試験片の GOS マップおよび KAM マップをまと  
めて Fig. 14 に示す。これらは Figs. 4-7 および Figs.  
10-13 に示した GOS マップおよび KAM マップと同  
じものである。これらのマップ比較から判るごとく  
GOS 値および KAM 値は熱時効前後で大きな差異は  
確認できなかった。

次に、機械加工および LP、WJP、バフ研磨の三工  
法施工材の熱時効後の GOS 値および KAM 値の定量的  
変化を調査するため、それぞれの値の深さ方向分  
布を得た。その結果を Fig. 15 に示す。図中の点線は  
母材の GOS 値、KAM 値である。熱時効後も全試験  
片において試験片表面から深くなるにつれ GOS 値  
および KAM 値が低下する傾向が見られた。熱時効  
前後の GOS 値および KAM 値を比較すると、LP、

WJP、バフ研磨施工材では表面付近において、わず  
かに低下する様子が見られた。そして、低下後も母  
材に比べて大きな GOS 値や KAM 値を示す様子が見  
られた。

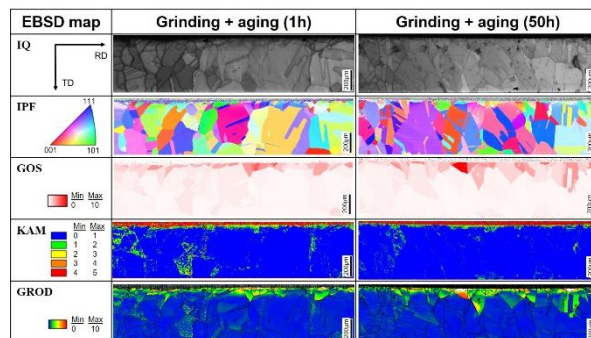


Fig. 10 Crystal orientation maps of grinding specimen after aging.

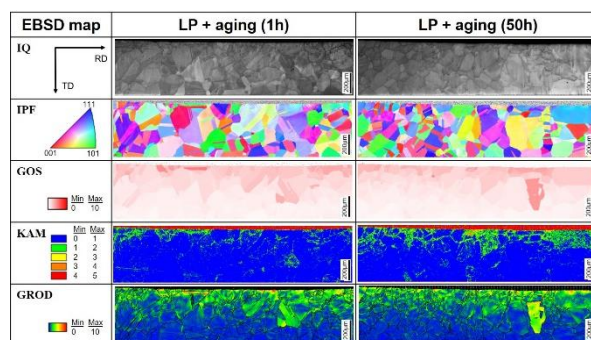


Fig. 11 Crystal orientation maps of LP specimen after aging.

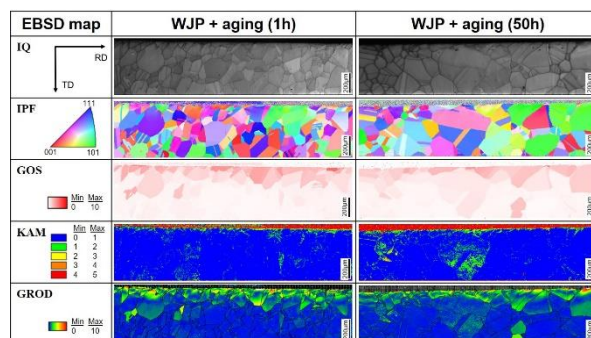


Fig. 12 Crystal orientation maps of WJP specimen after aging.

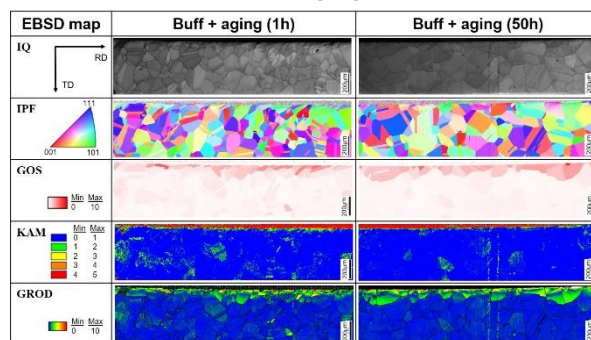


Fig. 13 Crystal orientation maps of Buff specimen after aging.

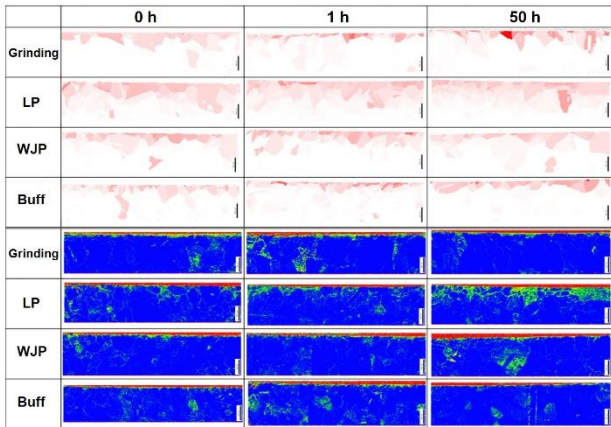


Fig. 14 GOS and KAM maps of all specimens.

### 3.3 GOS 値・KAM 値と硬さの関係調査

GOS 値、KAM 値と硬さの関係も調べた。各工法の施工による GOS 値および KAM 値の増加量と各工法の施工による硬さの増加量をグラフにしたものが Fig. 16 および Fig. 17 である。各工法の施工による

GOS 値および KAM 値ともに増加量は硬さの増加量と相関をもつことが分かった。

### 4. 結晶方位解析結果に基づくひずみおよび転位の挙動検討

EBSD で得られる方位差情報は材料の転位分布と密接に関係しており、KAM については GN 転位密度に依存したパラメータであることが知られている [12,13]。梅崎ら [14] はひずみ解析で使用する指標として、塑性ひずみ量の定量化方法を確立することを目的に、塑性ひずみを負荷したオーステナイト鋼中の結晶方位測定を行った。その結果、GOS 値および KAM 値はともにひずみ量とともに単調に増加したと述べている。また、ひずみ量に伴う GOS 値の変化は結晶粒径に依存しなかったのに対し、KAM 値のそれは結晶粒径に依存したとの報告もある。

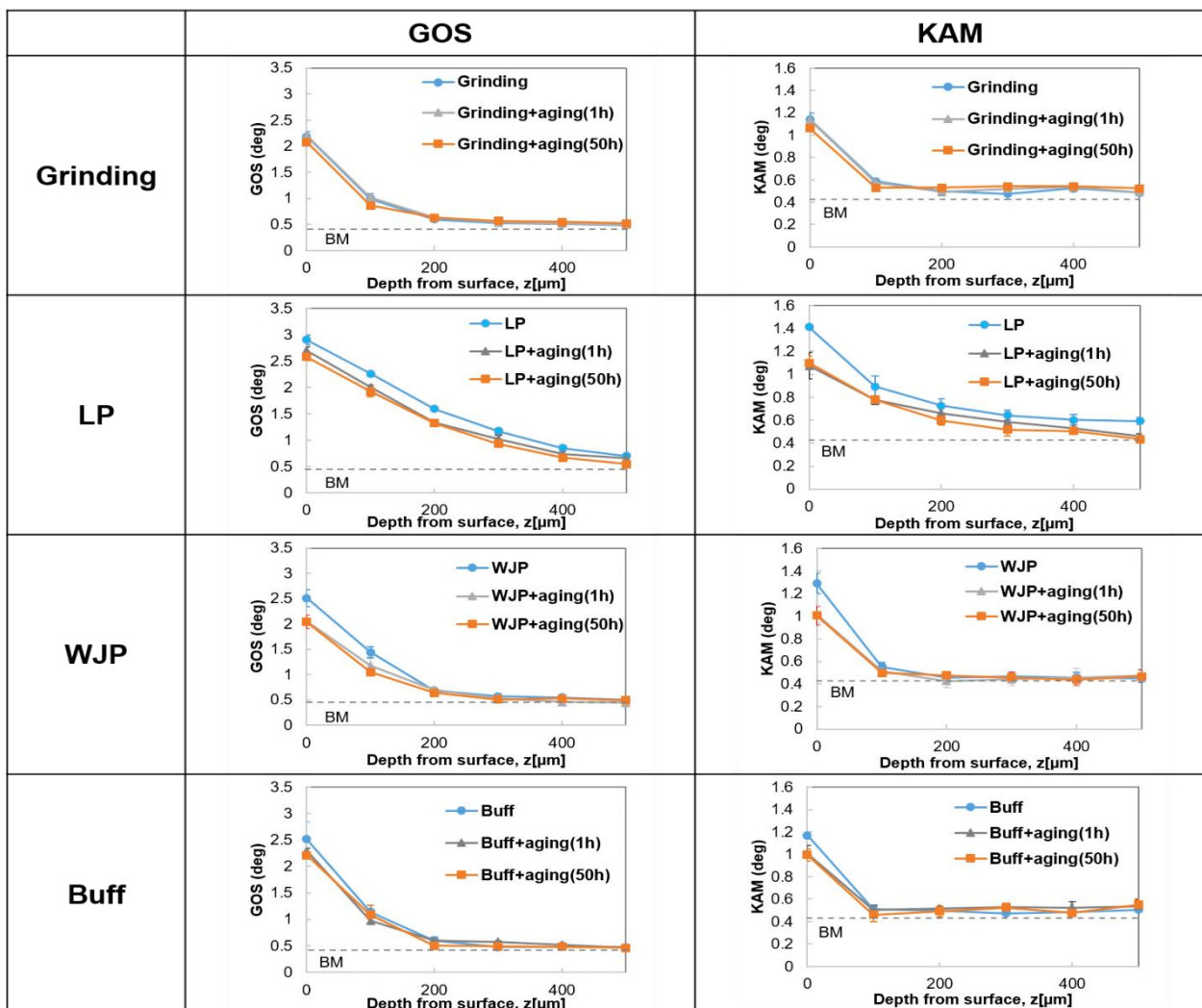


Fig. 15 Depth distribution of GOS and KAM before and after thermal aging

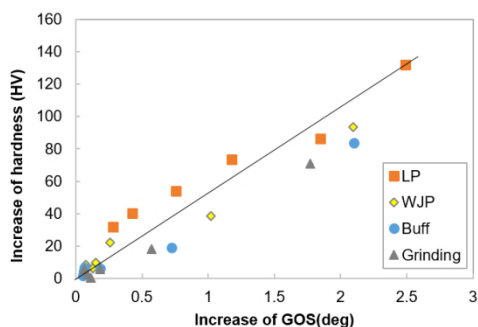


Fig. 16 Relationship between hardness increase and GOS increase.

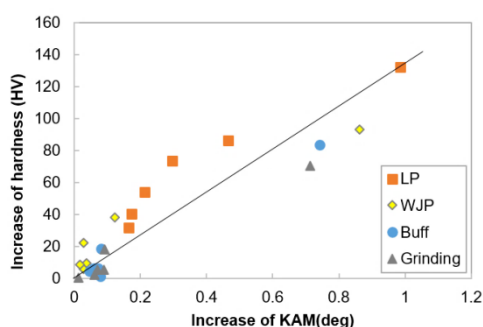


Fig. 17 Relationship between hardness increase and KAM increase.

佐々木ら[15]は、純銅において塑性ひずみと結晶方位差の関係について検討した。それによると、材料の変形が不均一になるような微視組織レベルでひずみを評価した場合、ひずみと局所方位差の相関について、巨視的ひずみ(塑性ひずみ)は GOS 値と、微視的ひずみは KAM 値とそれぞれ相関を持つとの結論を得ている。これらの結果から、結晶粒径の影響については考慮しなくてはならないものの、GOS 値、KAM 値の両方から、微視的ひずみ評価は有用であると考えられる。このことを踏まえて、三工法のひずみ導入および緩和挙動をまとめると、以下のようになる。

まず、LP、WJP、バフ研磨の施工によって転位を伴うひずみの導入が確認された。また、ひずみが試験片表面で大きく、深くなるにつれ減少していく様子や、粒界付近でひずみが大きくなるような様子も見られた。工法によるひずみの大きさの傾向はおおよそ LP>WJP>バフ研磨>機械加工となり、硬さの

測定結果と類似の傾向を示した[11]。さらに、バフ研磨施工材で、表面でのひずみが大きく、表面付近で他の施工材に比べ一気に低下する様子や、LP 施工材で 500 μm以上の深い部分までひずみが導入されていることが確認された。これらの特徴も先行研究の硬さ測定結果と一致する[11]。また、これらのひずみおよび転位について、熱時効により LP、WJP、バフ研磨施工材では表面で緩和する可能性が示唆されたものの、その変化はわずかであり、熱時効後も多くのひずみおよび転位が残存している状態であると考えられる。以上の結果より、残留応力改善工法により導入された圧縮残留応力が熱時効後も残存する転位を伴うひずみによって、長期的に安定に存在する可能性が示唆された。

## 5. 結言

本研究では、残留応力改善工法によって導入された圧縮残留応力の緩和挙動を材料学的見地から把握するため、機械加工施工まま材、および、その上に LP、WJP、バフ研磨を施工した試験片について、EBSD 結晶方位解析を行うことにより、応力緩和過程の微視的な内部ひずみ変化について検討した。得られた主な結果を以下に示す。

- 1) EBSD で結晶方位解析を行った結果、LP、WJP、バフ研磨の施工によって転位を伴うひずみの導入が確認された。ひずみは試験片表面で大きく、深くなるにつれ減少していく様子が見られた。さらに、粒界付近でひずみが大きくなるような様子も見られた。残留応力改善工法によるひずみの大きさの傾向はおおよそ LP>WJP>バフ研磨>機械施工となり、硬さの測定結果と類似の傾向を示した。
- 2) LP、WJP、バフ研磨の各施工によって導入されたひずみが、熱時効によって試験片表面でわずかに緩和する様子が見られた。
- 3) 熱時効後も残存する転位を伴うひずみによって、残留応力改善工法により導入された圧縮応力が長期的に安定する可能性が示唆された。

## 謝辞

本研究の過程において、大阪大学大学院工学研究科の原美由樹工学学士に多大な協力をいただいた。ここに記して謝意を表する。

## 参考文献

- [1] 独立行政法人原子力安全基盤機構: “高経年化技術評価審査マニュアル応力腐食割れ”, JNES-RE-2013-9012, (2013).
  - [2] 原子力安全・保安院 独立行政法人原子力安全基盤機構: “応力腐食割れ(SCC)に関する現在の知見の総括”, (2006).
  - [3] K. Okimura, T. Ohta, T. Konno, M. Narita and M. Toyoda: “Reliability of Water Jet Peening as Residual Stress Improvement Method for Alloy 600 PWSCC Mitigation”, Proceeding of the 16<sup>th</sup> International Conference on Nuclear Engineering, Vol. 1, pp. 565-570 (2008).
  - [4] 千田格, 角谷利恵, 吉岡洋明, 斎藤大蔵, 澤徹, 小林大輔, 伊藤明洋, 宮部正道, 鍵谷幸生: “ニッケル基超合金 Alloy 706 のレーザピーニングによる応力改善”, 日本機械学会論文集, Vol. 79, No. 799, pp. 249-252 (2013).
  - [5] 財団法人電力中央研究所: “軽水炉の経済性・信頼性向上を目指す水化学・材料運用管理技術の研究”, (2004).
  - [6] 日本原子力技術協会: “予防保全工法ガイドライン[外面からの加熱による応力改善工法]”, JANTI-VIP-02, (2006).
  - [7] 日本原子力技術協会: “予防保全工法ガイドライン[ピーニング工法]”, JANTI-VIP-03, (2006).
  - [8] 日本原子力技術協会: “予防保全工法ガイドライン[研磨による応力改善工法]”, JANTI-VIP-10, (2007).
  - [9] T. Hashimoto, Y. Osawa, S. Itoh, M. Mochizuki and K. Nishimoto: “Long-Term Stability of Residual Stress Improvement by Water Jet Peening Considering Working Processes”, Journal of Pressure Vessel Technology, Vol. 135, pp. 0316011-0316018 (2013).
  - [10] 于麗娜, 才田一幸, 西本和俊, 千種直樹: “ウォータージェットピーニング施工材の実機環境下における残留応力緩和挙動—Ni 基合金に対する応力改善効果の長期安定性評価(第1報)—”, 保全学, Vol. 18, No. 1, pp. 91-98 (2019).
  - [11] 于麗娜, 才田一幸, 西本和俊, 千種直樹: “各種残留応力改善工法による効果の安定性に関する速度論的検討—Ni 基合金に対する応力改善効果の長期安定性評価(第2報)—”, 保全学, Vol. 18, No. 1, pp. 99-106 (2019).
  - [12] 野村恭兵, 久布白圭司, 榊原洋平, 高橋聰, 吉澤廣喜: “650°Cで引張ひずみを付与したオーステナイト鋼の EBSD ひずみ解析に及ぼす結晶粒径の影響”, 材料, Vol. 61, No. 4, pp. 371-376 (2012).
  - [13] 久布白圭司, 榊原洋平, 大谷俊博: “SEM/EBSD法を用いたオーステナイトステンレス鋼のクリープひずみ評価”, 材料, Vol. 64, No. 2, pp. 106-112 (2015).
  - [14] 梅崎正太, 村田純教, 野村恭兵, 久布白圭司: “塑性変形オーステナイト鋼中の転位密度の定量化”, 日本金属学会誌, Vol. 78, No. 6, pp. 218-224 (2014).
  - [15] 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, Vol. 74, No. 7, pp. 467-474 (2010).
- (2020年5月19日受理, 2020年9月11日採択)