Lamb 解析と直接観察による Type 304 箔のポリチオン酸 SCC における高速劈開破壊

竹本 幹男*, 田村 宙治**

* 青山学院大学理工学部

** 青山学院大学理工学部大学院

A Fast Cleavage Fracture in the Polythionic SCC of Type 304 Stainless Foil Revealed by the Lamb Wave Analyses and Direct Observation

Mikio Takemoto* and Okiharu Tamura*

* Faculty of Science and Engineering, Aoyama Gakuin University

** Graduate student, Aoyama Gakuin University

With the aim of visualizing the fast cleavage fracture suggested by the AE source simulation of bulk waves, both the microscopic video image and Lamb wave monitoring were attempted for a loaded type 304 foil in a polythionic acid solution. A laser ultrasonic system revealed that the Mode-I fracture in the foil emitted the Lamb wave with the largest amplitude in the direction of crack opening vector. PZT transducers used for SCC test of the thin foil SUS 304 monitored only the zero-th order anti-symmetric Lamb mode (Ao-Lamb) whose amplitude and velocity are dispersive depending on the fracture kinetics. Polythionic intergranular SCC of a sensitized Type 304 foil emitted a number of high frequency Ao-Lamb waves. Direct observation by a CCD video demonstrates the fast crack opening at the source location of the Lamb waves. The developed system, applicable to a thin foil, possesses a potential capability for visualizing the microscopic fracture mechanism of SCC, when both the time and frequency resolution of the system are improved.

Key words : fast cleavage crack, Lamb wave, CCD image, IG-SCC, thin foil

1. 緒 言

著者は、AE 原波形解析を用いて、酸性テトラチオン酸と中性フッ化物溶液による準安定オーステナイトステンレス SUS 304 鋼の APC-SCC に高速粒界破壊が関与していることを報告¹⁾した。また、塩化物溶液による粒内型 SCC にも平均的 SCC 伝播速度の 10^9 倍にも達する破壊が関与していることを明らかにした²⁾。破壊のダイナミックスは、実体波（主として縦波）の面外変位を測定し、解析あるいは実験的に求まる媒体の応答関数を用いてシミュレーション法で推定した^{3), 4)}。このため、比較的大きな試験片を必要とし、材料内部で本当に高速破壊が発生しているのかを実証することができなかった。いわゆる“逆解析における解の一意性の証明”で、最も手取り早い方法は可視化である。箔状試験片を用い

て弾性波を計測するとともに、SCC を直接高速撮影すれば、破壊のダイナミックスをより現実的なものにできる。しかし、箔状試験片内の破壊によって発生・伝播する弾性波は、Lamb 波（板波）⁵⁾である。Lamb 波には、対称 (symmetric mode, Si, $i=0, 1, 2, \dots$) と非対称モード (Anti-symmetric mode, Ai) が存在し、これらは分散性（周波数の速度依存性）であるため、その解析は極めて面倒で、破壊のダイナミックスの解析には向いていない。Newman ら⁶⁾は、電位制御した銅合金箔の NaNO_3 溶液中での AE モニタリングと電流密度変化から、SCC は terrace に相当する crack jump によって伝播するとしている。この実験では、Lamb 波を検出しているが、定量的な解析は行っていない。破壊速度は、AE 持続時間と波面観察からやや強引に推定されたもので、その絶対速度については問題が多い。破壊によってどのような Lamb 波が発生・検出できるのか、またどのような解析を行えば破壊のダイナミックスが推

*,** 〒157 東京都世田谷区千歳台 6-16-1 (16-1, Chitosedai 6-chome, Setagaya-ku, Tokyo, 157 Japan)

Fig.1 Experimental system for monitoring the Lamb waves excited by dipole sources.

定できるのかについては超音波の分野でも全く研究されていない。そこで、破壊のダイナミクスを解明するための Lamb 波に関する基礎的研究を行うとともに、粒界型 SCC 中の Lamb 波検出を行った。また、ビデオカメラによる SCC の直接観察を試みた。ビデオカメラには高速 CCD 撮影を試みたが、光源不足のため撮影できなかった。そこで、通常の顕微鏡ビデオ撮影（倍率 400 倍、時間分解能 1/30 秒）を行い、Lamb 波との対応を調べた。検出 Lamb 波から破壊のダイナミクスを推定することについては今後相当の基礎的研究が必要であるが、本研究によって、鋭敏化 SUS 304 箔のテトラチオン酸 SCC 中には頻繁に高周波成分の Lamb 波が検出されること、Lamb 波の多くは高速開口と同期していることが分かった。すなわち、この系の SCC に高速破壊が関与していると言うこれまでの実験結果を再確認した。本報では、線状レーザの断熱膨張を疑似破壊源とする Lamb 波の解析法、SCC 中の Lamb 波モニタリング、ビデオカメラによる撮影結果を報告する。

2. 箔状試験片の Lamb 波解析

Fig. 1 に示すようなレーザ超音波システムを用いて、厚さ 150 μm の SUS 箔に線状（長さ 4 mm、幅 0.3 mm）の Q-スイッチ YAG レーザ（半値持続時間 5 ns）を照射した。なお、図の下には、後述する放射パターン計測用の AE モニタリングシステムも示した。比較的出力の弱い線状 YAG レーザを照射した時の音源は、線法線方向（図では X 方向）の断熱膨張⁷⁾であ

Fig. 2 The Ao-Lamb wave due to the Mode-I fracture with $n_i = b_i = X$

Fig. 3 Comparison of the group velocity dispersion of the experimental Ao-Lamb wave with the theoretical one.

るが、その大きさは釣合っており、Mode-I 型破壊（破面法線方向ベクトル n_i と開口ベクトル b_i が X 方向）と等価である。ヘテロダイン型レーザ干渉計（ ~ 20 MHz）を用いて X 方向に伝播する Lamb 波の面外変位を計測した（Fig. 2）。この波は、高周波成分が早く、低周波成分が遅れて到達する零次対称モード（Ao）波である。Lamb 波では Ao モードの前に So モードが到達しているはずであるが、振幅が小さく検出されていない。また、Lamb 波振幅は、音源の物理量（断熱膨張の速度と大きさ）と箔物性、厚さに依存して変化するため、解析は相当難しい。Fig. 3 には、この波のウェーブレット変換によって求めた群速度分散と、解析的速度分散（実線）を比較して示した。実測速度分散は、Ao-モードのそれとよく一致している。一方、So モードの低周波数における速度は箔厚に依存しない一定値⁸⁾

$$= \sqrt{\frac{E}{\rho(1-\nu^2)}}$$

（ただし E : ヤング率, ρ : 密度, ν : ポアソン比）を示すので、これが検出できれば音源位置評定も簡単に行えるが、感度の良い PZT センサーを用いても検出できない。Ao-Lamb の解析によって破壊のダイナミクスを解明することの難しさは、Figs. 2, 3 に示すような振幅と速度の顕著な周波数依存性である。そのため、

Fig. 4 Radiation pattern of the Ao-Lamb wave due to the Mode-I fracture with $b_1 = n_1 = X$.

Ao-Lamb の到達時間差から音源位置を評定するにも工夫がいる。そこで、Ao-Lamb 波からどのようにして破壊モードやダイナミクス、音源位置が評定できるかについて検討した。

はじめに、Ao-Lamb 波の放射パターンから破壊のキネティックスを、到達時間差から音源位置を評定する方法を検討した。すなわち、円周上に配置した 8 個の小さなセンサー（アパーチャー径 3 mm, PAC 社 PICO, 以後 PICO センサーと呼ぶ）の中心（座標原点を $(0, 0)$ とし、長手方向を X 軸とする）に線状レーザを照射して X 方向に Lamb 波を発生させ、PICO センサーで検出した。Lamb 波モニタリングシステムは、既報の AE Data Acquisition System (ADAS)⁹⁾ と同じである。なお、センサー感度は、画鋐を接着した縦波励起用 PZT センサーを用いて円中心を点打撃して校正した。Fig. 4 は、Ao-Lamb 波の最大振幅の分布で、顕著な方向依存性を示し破面法線方向で最大となる。Lamb 波の距離減衰¹⁰⁾の補正は結構面倒であるが、音源を中心とする円周状の AE センサーでは、伝播距離が等しいことから、モード I 型破壊の n_1 （または b_1 ）を決定できる。現在のところ、混合モード破壊を模擬できる音源がないので、混合モード破壊が解析できるか否かは不明である。

Ao-Lamb の位相速度は周波数依存性を示すが、2 次元位置は 6 個以上のセンサーを用いて初動 Ao 波の到達時間差を測定すれば、速度を未知数として通常の音源位置評定アルゴリズム¹⁰⁾を用いて計算できる。実測到達時間差から音源座標を求めると、 $(0, 0.6)$ mm となり、最低でも ± 1 mm の精度で求めることができた。なお、Y 方向の精度が悪いのは、レーザ線が長いことによるが、小さな（短い）破壊では亀裂進展方向の振幅が小さいため、評定ができなくなるという相反する条件がある。

破壊のキネティックスを Lamb 波から推定することについては、今後相当の基礎実験が必要で、現在のところ半定量的にしか評価できない。キネティックスについては次のような予備実験を行った。Fig. 5 に示すよう

Fig. 5 Lamb wave system for studying the kinetics of Mode-I fracture

Fig. 6 Lamb wave generated by a S-wave PZT element with different ΔV_r (the upper row) and their Fourier power spectra (the lower).

に、幅 1 mm、長さ 10 mm の横波用 PZT 素子（共振周波数 2 MHz、振動方向は幅方向）を箔に強固に接着し、立ち上がり時間可変型のヘヴィサイドステップ関数ジェネレータ (V_{p-p} : 300 V, 試作品) で Lamb 波を励起し、13.5 mm 離れた位置の伝播波を PICO センサーで検出した。この場合の音源は、線状 PZT 素子の幅方向の振動で、やはりモード I 型破壊を模擬している。Fig. 6 は、励起電圧の立ち上がり時間 ΔV_r を 0.3 から 8 μ s に変化させた時の、Ao-Lamb 波とそのパワースペクトルである。 ΔV_r が小さいとき（高速破壊）には大きな振幅の高周波 Ao-Lamb が波頭に見られ、広周波数帯域を有している。一方、 ΔV_r が遅くなると高周波成分は消滅し振幅も極めて小さくなる。いま、検出波の最大振幅 (V_{max}) とパワースペクトラムの最大値 (P_{max}) をとり、 ΔV_r との関係の求めると Fig. 7 のようになる。周波数依存性が考慮されていないため、2 つの ΔV_r 依存性は異なるが、 ΔV_r が遅くなると振幅は小さくなり Lamb 波は捕られなくなる。逆説的にい

Fig. 7 Rise time of Heaviside step input voltage ΔV_r vs. maximum amplitude of the detected wave $V_{\max}$ and power spectrum $P_{\max}$.

ば、かなり大きくかつ高速な破壊が発生しない限り Lamb 波は検出されないことになる。破壊の生成速度は、検出 Lamb 波の周波数帯域が PICO センサーの周波数帯域上限近傍 (1 MHz) にあれば、1 μ s かそれより早い破壊と考えられる。

なお、この実験では、1) 圧電素子の幅方向振幅の大きさ、振動速度と印荷電圧速度 ΔV_r (V_{p-p} は 300 V で一定) との関係が定量化されていないこと、2) PICO センサーも、0.1~1 MHz に感度を示す共振型 PZT であり、振幅やそのパワースペクトラム強度を単純に破壊のダイナミクスと相関づけられないこと、などの問題を残している。今後、適切な参照パターンが得られれば、検出波のウェーブレット変換による振幅の時間-周波数領域等高線図 (voice print) との相互相関を用いて破壊のダイナミクスを定量化できる可能性があり、検討中である。

基礎実験から、高速破壊が発生すれば Lamb 波が検出され、放射パターンと到達時間差から開口方向と破壊源が同定でき、周波数成分から破壊速度の大きな推定が可能であることがわかった。そこで、SUS 304 箔の粒界 SCC のモニタリングに応用した。

3. 鋭敏化 SUS 304 箔のテトラチオン酸 SCC の Lamb 波モニタリング

3.1 実験方法

試験法を Fig. 8 に示す。厚さ 0.15 mm、幅 30 mm の SUS 304 箔を特殊な拘束治具を用いて圧延方向に定荷重負荷 (膜応力: 20 kgf/mm²) し、8 個の PICO センサー (#1~#8) を直径 27 mm の円周上に 45 度間隔で配置した。腐食液は、硫酸で pH: 2.0 に調整した 0.1 wt% の K₂S₄O₆ 水溶液で、直径約 5 mm の脱脂綿に浸して水平箔の上面、PICO センサーの中心に接触させた。PICO センサーの出力は、広帯域全前置増幅器で 40 dB 増幅したのち、A/D コンバーターでデジタル

Fig. 8 Experimental system for Lamb wave and CCD image monitoring during polythionic SCC of a sensitized SUS 304 foil.

Fig. 9 Elongation curve with timing of Lamb waves.

データとしてワークステーション (SUN, SPARC 5) に取り込んだ。また、試験片下面から、400 倍の CCD ビデオ撮影を行った。ビデオカメラの時間分解能は 1/30 秒であることから、早い破壊の進展過程を撮影することはできなかった。なお、高速熱間圧延で作成された SUS 304 箔は、粒径約 10 μ m の圧延組織をもち、鋭敏化処理しても SCC を起こさなかった。そこで、真空中で 1427°K × 1 時間の粗粒化を兼ねた溶体化熱処理後、923°K × 10 時間の鋭敏化を行った。この試験片の粒径は約 40~50 μ m である。試験片の伸びは作動トランスで計測し、ビデオカメラ、Lamb 波モニタリングと同期させた。

3.2 実験結果および考察

Fig. 9 の伸びの経時変化曲線に Lamb 波の検出タイミングを ▲ で示した。図中の数字は、データカウント (D.C.) で、発生順を意味している。伸びの増加が見られるようになると大きな振幅の Lamb 波が頻繁に検出されるようになるが、SCC 発生時 (= 5 ks) にも、数は少ないものの Lamb 波が検出されている。SCC 発生時の Lamb 波の数が少ないのは、割れが小さく検出限界以下のためと思われる。Fig. 10 には検出 Lamb 波の

Fig. 10 Detected Lamb waves during polythionic SCC.

一例を、Fig.11 には音源位置評定結果を示す。D.C. 1 の Lamb 波は初期に検出されたもので、#3, 6, 8 センサー出力の到達時間が読み取れないため、音源位置評定はできなかった。Lamb 波解析では、最低でも 6 チャンネルが十分な振幅の Lamb 波を正確に検出することが必要で、この条件が満足されないと解析はまったく行えないという難しさがある。 $n_1, b_1 = X$ のモード I 型破壊による Ao-Lamb 波放射パターンは、#2 と 6 センサーで最も大きく、#4 と 8 で小さくなるはずである。D.C. 1 のデータは、この放射パターンからややはずれているが、 n_1 が #1 センサーの方向に向いていることを意味している。この場合には、#1 と 5 が最大で、#3 と 7 が最小となる。なお、図の左右の Lamb 波は、円中心に対して対称な位置で検出されたもので、左右はほぼ同じような振幅の波になるはずであるが、必ずしも一対のデータとして等しい振幅を示しているわけではない。これは、1) 音源が円中心でなく、距離減衰効果があること、2) 脱粒や割れによる伝播妨害（散乱や減衰）、3) ビデオ観察で明らかになったことであるが、開口ベクトルが破面の上下で必ずしも等しくない、すなわち、どちらかの方向へ大きく片開口しその方向の振幅が大きくなるため、と考えられる。3) は今回のように、試験片の一端が拘束（剛性保持）、一端が移動型であるときにしばしば観察される。

一方、D.C. 6 の Lamb 波は、高周波成分が早く到達する典型的な Ao-Lamb 波で、負荷軸に対して約 45 度傾いた方向の割れ (b_1, n_1 が #2 方向) と思われ、その音源は円中心にあった。D.C. 8 以降の Lamb 波は、測定レンジをオーバーシュートしたが、周波数も高く大きな高速破壊によるものである。Fig. 9 に示したように、伸びが大きくなるとこの種の波が頻繁に観察され、音源も円中心近傍にあることから、SCC に高速破壊が関与

Fig. 11 Source location of the Lamb waves detected during SCC.

していることを裏付けている。たとえば、D.C. 6 や 8 の周波数成分は、PICO センサー周波数帯域の上限 (≈ 1 MHz) にあり、高速な破壊であることを示唆している。

応力を変化させた同様な実験は 5 回行ったが、いずれの実験でも再現性よく頻繁に Lamb 波が検出された。CCD ビデオ観察は箔裏面で行ったこと、400 倍の顕微鏡観察では視野が極めて限られることもあって、進展 SCC の先端を捕らえることはできなかったが、1 コマ (1/30 秒) 内で不連続的に開口する現象は頻繁に撮影された。

ここでは、Lamb 波と同期されて撮影された一例を紹介する。Fig.12 は、すでに裏面まで貫通した SCC の進展と開口過程を 2 分おきにプリントしたものである。静止画像の比較では、不連続的な開口は分かりにくい、ビデオ観察では 6 分から 7 分（写真では 6 分は示していないので、5 と 7）の間で瞬間的に開口し、このとき Fig.13 に示すような Lamb 波が観察された。音源位置は試験片中心にあり、ビデオ観察で最も大きく開口

Fig. 12 Crack propagation and opening during 9 minutes. Numbers near the photographs indicate the elapsed time in minute.

した部分と一致していた。図には、各方向（45度おき）の検出 Lamb 波を示したが、振幅分布はモード I 型破壊の放射パターンとほぼ一致し、#1, 8 や #4, 5 で小さく、#2, 3 や 6, 7 で大きい。

前報¹⁾では AE 原波形解析によって最高 40 m/s の破壊速度を報告したが、いま 1 結晶粒（50 μm ）オーダーの破壊が 40 m/s で生成するとすれば、その時間は 1.2 μs となり通常の CCD カメラでその速度を撮影することはできない。CCD カメラで観察したのは、SCC の先端での不連続破壊ではなく、貫通した SCC の開口であるので、必ずしもこの条件を当てはめるわけにはいかな

いが、1/30 秒で開口が終了していることは、進展 SCC の先端（Fig. 13 の場合では、観察した下表面ではなく上表面か箔内部に成長性 SCC の先端があると考えられる）でも高速な破壊が生成していることを示唆している。なお、9 分間の進展を撮影した Fig. 12 から計算される SCC 先端進展速度は、0.7~0.9 m/s にも達しており、長い時間スケールで観察される SCC 速度：10⁻⁶ m/s（Lamb 波観察時間 10 ks 中に 10 mm 進展）に比べればかなり早いことに注目すべきであろう。SCC の進展速度については最近いくつかの報告があるが、壁開破壊を示唆した Ag/Au 合金の film induced cracking^{12), 13)}でも 5~40 mm/s 程度で、ここで観察された速度に比べればかなり遅い。今回用いた箔では、厚さ方向には 4 個程度の結晶粒が含まれているだけで、バルク材のような隣接結晶粒による拘束は受けにくい。すなわち、力学的には後者が平面歪状態での破壊であるのに対し、箔では平面応力状態での破壊になる。粒界破壊では、隣接粒による拘束は SCC 伝播速度に大きな影響を与えることが予想されるが、応力状態が変わればその進展速度は 1 万倍程度は容易に変化することことを意味しているし、更に高速な破壊が関与していることになる。アノード溶解で説明するとすれば、数千 A/cm²程度の電流密度がいることになるが、説明不可能である。

4. 結 論

ポリチオン酸による鋭敏化ステンレス鋼の粒界 SCC のメカニズムの検討を目的として、箔試験片の Lamb 波の計測とビデオ撮影を行った。Lamb 波の定量解析、ビデオ観察については、今後相当の改良が必要であるが、この系の SCC に高速破壊が関与している実験的検証を得た。

結果は以下のように要約される。

1) 線状レーザの断熱膨張、線状 PZT 圧電素子の横方向振動を用いて壁開破壊による Lamb-Ao モードの放射を模擬した。Lamb-Ao モードは変位の運動方向（開口方向）に大きな振幅を持つ固有の放射パターンを示し、マルチチャンネルモニターリングシステムを用いれば開口方向が決定できる。Lamb 波 Ao モードは分散性であるが、6 チャンネル以上のモニターリングシステムを用いれば、位相速度を未知数としたまま音源位置評定ができる。破壊速度が遅いか、破壊規模が小さければ、Lamb 波の高周波数成分は欠如し、生成速度が 10 μs より遅い破壊では検出されない。今後、センサー特性を考慮した定量的解析を行えば、破壊のダイナミックスの同定も可能になる。

2) 平均粒径 50 μm を持つ鋭敏化 SUS 304 箔（厚さ 0.15 mm）の pH=2.0 テトラチオン酸 SCC 中には、

Fig. 13 Detected Lamb waves by a first cleavage fracture shown in photograph.

高速破壊による Lamb 波が相当な頻度で検出される。放射パターンから推定される開口方向は、負荷軸に対し 45 度以内で傾いているが、CCD カメラで観察される破面法線方向と比較的よく一致している。

3) CCD カメラによる直接撮影では、撮影条件の制約もあって SCC 先端での高速破壊を捕らえることはできなかったが、箔試験片の SCC 伝播速度は 0.7~0.9 m/s に達し、長時間尺度から計算される速度 (10^{-6} m/s) に比べればかなり早い。この比較的早い SCC 伝播中に、1/30 秒で開口を終了する不連続の高速破壊が発生し、高周波成分を含む Lamb 波を発生した。これらの事実は、SCC にアノード溶解では説明できないほどの高速破壊が関与していることを裏付けている。

4) 今後、Lamb 波の定量解析を行い破壊のダイナミクスを定量化するとともに、高速度カメラによる直接撮影を行って、いわゆる APC-SCC のメカニズムについて検討する。

謝 辞

Lamb 波発生用の PZT 素子、ファンクションゼネレーターを試作した元研究室助手 鈴木裕晶（現、千代田化工建設(株)）、解析に協力した大学院博士後期課程学生（現 助手）長秀雄君に感謝する。卒業研究生 西高宏、田口一夫君の熱心な協力をえた。研究費の援助を頂いた新日本製鐵株式会社鉄鋼研究所に感謝する。

(Manuscript received April 15, 1997 ;
in final form August 4, 1997)

引用文献

- 1) 竹本幹男, 中澤知之: 材料と環境, **44**, 166 (1995).
- 2) 田村宙治, 竹本幹男: 材料と環境, **46**, 256 (1997).
- 3) 竹本 誠, 林 泰久, 竹本幹男: 材料と環境, **43**, 570 (1994).
- 4) 林 泰久, 竹本幹男: 材料と環境, **40**, 247 (1991).
- 5) I. A. Viktorov: "Rayleigh Wave and Lamb Waves", Plenum, New York (1967).
- 6) R. C. Newman, T. Shahrabi and K. Sierdzki: *Scripta Metallurgica*, **23**, 71 (1989).
- 7) 長 秀雄, 竹本幹男: 材料科学, **31**, 175 (1994).
- 8) 例えば, P. Lloyd and M. Redwood: *Acustica*, **16**, 224 (1965).
- 9) 林 泰久, 竹本幹男: 防食技術, **39**, 231 (1970).
- 10) T. Futatsugi, S. Ogawa, M. Takemoto, M. Yanaka and Y. Tsukahara: *NDT and E International*, **29**, 307 (1996).
- 11) 丹羽義次, 小林昭一, 大津政康: 土木学会論文報告集 [276] 135 (1978).
- 12) R. G. Kelly, A. J. Frost, T. Shahrabi and R. C. Newman: *Metall. Trans. A*, **24**, 531 (1991).
- 13) F. J. Friedersdorf: Ph. D. Thesis, Johns Hopkins Univ. 1993.