

陽電子消滅法によるステンレス鋼の疲労評価

Fatigue Evaluation by Positron Annihilation Lineshape Analysis

河川 恭寛 (Yasuhiro Kawaguchi)* 中村 規子 (Noriko Nakamura)†

要約 加圧水型原子炉PWRの一次系ステンレス配管に蓄積される疲労を、亀裂が発生する以前に非破壊評価することをねらいとして、陽電子消滅法を疲労評価に適用することを試みた。本研究では、 ^{68}Ge を陽電子源として用い、消滅線のエネルギーピークの拡がりを観測した。その結果、応力振幅が200MPaより高い範囲では疲労の蓄積が進むにつれエネルギー拡がりを示すパラメータが増加することを観測した。これにより、ある応力振幅以上では陽電子消滅法によるステンレス鋼の疲労程度の評価が可能であることが示された。

キーワード 疲労, 非破壊評価, 陽電子消滅, 消滅線, 応力振幅

Abstract Aiming at non-destructive evaluation of fatigue stored in a stainless steel (SUS316) pipe of the primary cooling water in pressurized water reactors (PWR) before generation of cracks, we tried to apply positron annihilation lineshape analysis to fatigue evaluation. ^{68}Ge was used as a positron source and decrement of energy spread of the annihilation gamma ray peak was observed. As a result, it was found that the energy decrement parameter increased with stored stress for the case in which stress amplitude was higher than 200 MPa. Thereby, the possibility to evaluate the degree of fatigue in stainless steel by the positron annihilation lineshape analysis above some stress amplitude was shown.

Keywords fatigue, non-destructive evaluation, positron annihilation, annihilation gamma ray, stress amplitude

1. はじめに

原子力発電プラントが運転を開始してから30年近く経過しており、プラント設備を構成する機器材料は、長年の使用により経年的に変化が生じていると考えられる。そのため、機器の機能が損なわれる以前に経年劣化を検出し、機器材料の劣化の程度を評価することは極めて重要である。

本研究では、原子力発電所一次系ステンレス配管に蓄積される疲労について、その劣化程度を非破壊的に検出し評価するため、「陽電子消滅法」に着目した。陽電子消滅法は、加速器や放射性同位元素から得る陽電子と材料中の電子が消滅する際に発生する線のドップラー拡がりや、陽電子が材料中で消

滅するまでの時間分布を測定する方法であり、クラック発生以前の塑性変化による空孔や転位と言ったミクロ組織の変化に敏感であることが知られている⁽¹⁾⁻⁽³⁾。ここでは、容易に原子力発電所内の配管等の疲労を測定することを目指しているため、システムをより簡単にできる消滅対線のエネルギー拡がりを観測する方法(ドップラーブロードニング法)を取った。

ドップラーブロードニング法は、これまでにいくつかの金属材料に関して塑性変形や疲労損傷について実験が行われているが⁽⁴⁾⁻⁽⁶⁾、系統的なデータの評価は行われていない。本報では、原子力発電所で広く用いられているステンレス鋼SUS316に疲労を加えた試験片について、陽電子消滅法による測定を行

* (株)原子力安全システム研究所 技術システム研究所

† 石川島播磨重工業(株)

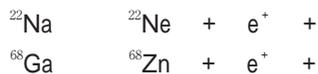
い、その疲労評価の可能性を調べると共に、同じ試験片についてマイクロ組織観察も行って比較した結果について示す。さらに、今後この技術を原子力発電所の実際の機器材料に適用するために解決すべき課題を提示する。

2. 実験方法

2.1 陽電子消滅法

2.1.1 測定原理

図1に陽電子消滅の概念図を示す。陽電子(e^+)は、 ^{68}Ga 、 ^{22}Na 等の次に示すような崩壊によって発生するものである。



ただし、 ^{68}Ga はしばしば ^{68}Ge の電子捕獲(EC)で生成して使う。本研究でも ^{68}Ge を用いた。

陽電子を材料にあてると、減速した後に材料中の電子と対消滅を起こし、ほぼ正反対に2本の線が発生する。静止した電子と陽電子が対消滅を起こしたときの1本の線のエネルギーは511keVであるが、電子が動いているためにドップラー効果によってエネルギーの幅が生じる(陽電子も動いているが電子よりもずっと遅いため、その動きは無視できる)。従って、陽電子消滅の線のエネルギー分布を測定することにより材料中の電子の状態がわかる。

図2に劣化検出の原理を示す。材料中の電子には内殻電子と伝導電子があるが、全ての陽電子が内殻電子と消滅した場合に発生する線のエネルギー分布は、図中(a)および(b)に一点鎖線で示したように幅広いものとなる。一方、全ての陽電子が伝導電子と消滅した場合の線のエネルギー分布は図中(a)および(b)に二点鎖線で示したように釣鐘型となる⁽⁷⁾。実際に測定される線のエネルギー分布はこの2つを合わせたものであり、陽電子消滅に関与する電子の、伝導電子もしくは内殻電子の割合によって線のエネルギー分布の形状が決まる。

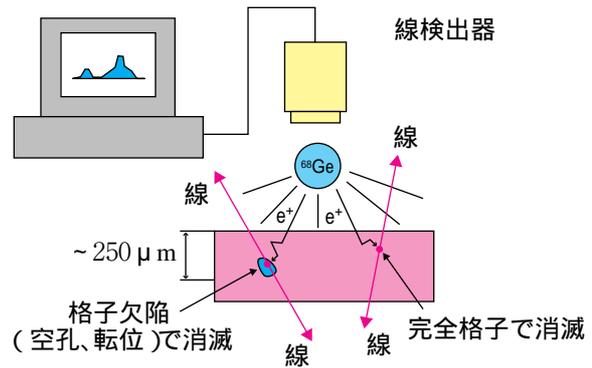
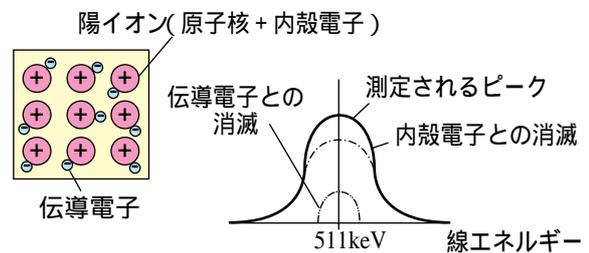
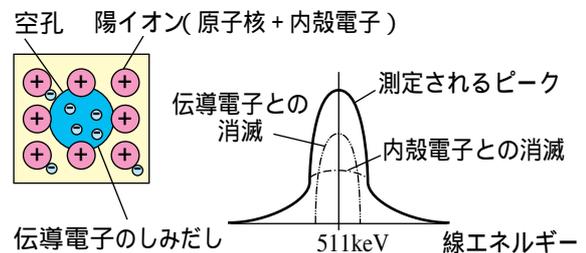


図1 陽電子消滅法の概要

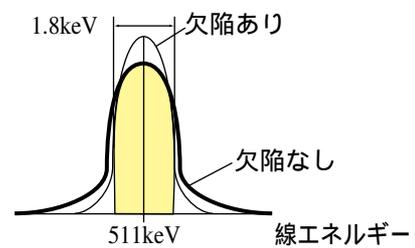


(a) 欠陥なし(完全格子での消滅)



(b) 欠陥あり(空孔での消滅)

図2 消滅線のエネルギー分布



$$S = \frac{\text{ピーク中央部のカウント数}}{\text{全体のカウント数}}$$

図3 陽電子消滅法でのSパラメータの定義

材料中に空孔があると周りの原子から伝導電子のしみだしが起こり、うっすらと負に帯電した状態が生じる。陽電子は正の電荷を持っているので、そこに引き寄せられて伝導電子と対消滅をおこす割合が大きくなる。従って、空孔の数が多くなるにつれて、伝導電子との消滅の割合が大きくなり、線のエネルギー分布の幅が狭く、ピークが鋭くなる。

線エネルギー分布の評価は一般に、図3に示すようにピーク中央部のカウント数と全体のカウント数との比で表されるSパラメータで行う。金属材料に損傷が付与され、空孔や転位が多くなるほど線のエネルギー分布の幅が狭く、ピークが鋭くなるので、Sパラメータは大きくなる。

2.1.2 測定装置

実験に用いた陽電子消滅測定装置を図4に示す。全体は高純度Ge線検出器（分解能： ^{60}Co (1.332 MeV) においてFWHM = 1.75keV、検出器を冷却するための液体窒素デューワーを含む）、前置増幅器、高電圧電源、計数部（主増幅器、アナログ/デジタル変換器、カウンタ）、解析部、陽電子源およびその他の構成部品からなる。本研究では陽電子源には ^{68}Ge を用い、このECで生成する ^{68}Ga の陽電子はエネルギーが高いので試料の奥深くまで試験できる。陽電子源は当て金材と一体化されており、測定時には当て金材と反対側から発する陽電子を測定試料にあてる。試料中の電子・陽電子対消滅により発生した線は、試料および陽電子源の前方に位置する線検出器によりとらえられ、増幅、デジタル化され、パーソナルコンピュータで解析した。1点の測定時間は6分程度で、検出された信号はその場で解析しSパラメータを計算した。

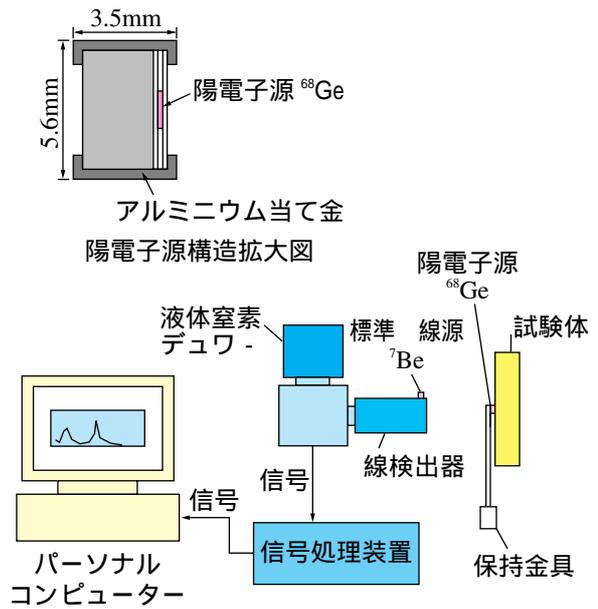


図4 陽電子消滅測定装置

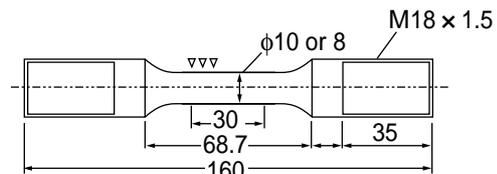


図5 試験体の形状

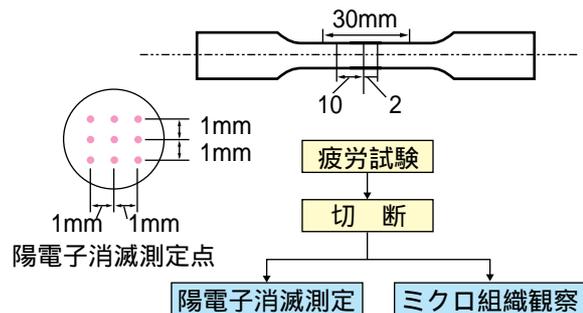


図6 試験片評価手順

2.2 疲労試験

ステンレス鋼SUS316の200A Sch120または160（それぞれ板厚18.2または23.0mm）の鋼管より丸棒試験片を作製し、室温にて疲労試験を行った。試験体の形状を図5に示す。試験片平行部は機械加工後、

エメリ紙の1000番まで長手方向に研磨した。疲労試験は表1に示すように完全引張圧縮軸ひずみ、または荷重制御で、室温大気中にて行った。ひずみ制御試験では、ひずみ速度は0.4%/secで、荷

重制御試験では1～3Hzとした．応力振幅200MPaを越える条件では，まず破断まで疲労試験を行い，破断繰返し数 N_f を求めた．繰返し数を N ， N/N_f を疲労寿命比とし，いくつかの N/N_f に相当する途中止め試験片の作製も行った．また，200MPa以下の試験では，まず100MPaから200MPaまで20MPa毎の6条件で $N=100,000$ 回の試験片を作製し，その結果より3条件（120，180，200MPa）を選び，その前後の繰返し数の試験片の作製を行った．

これらの試験片に対して，図6に示すように中央部を切断し陽電子消滅測定と透過型電子顕微鏡（TEM）によるミクロ組織観察を行った．陽電子消滅法では各試験体について9点の測定を行い，その平均値を試験体のSパラメータとした．

3. 実験結果および考察

3.1 ミクロ組織観察結果

図7に応力振幅220MPaのTEMによるミクロ組織観察結果を示す．ステンレス鋼SUS316は1000以上で固溶化熱処理を行うため，受入状態（すなわち疲労寿命比0%）でのミクロ組織は転位などの欠陥が少なく，また析出物も観察されない．疲労寿命比1%で転位の増加が見られるが，転位は局部的に集まり絡みあっている．また，その集まり方は，同一結晶粒内で方向が揃っている．疲労が進むと，転位がさらに増殖して，疲労寿命比100%でかなり転位密度は増加する．しかし，破壊近くの繰返し数でしばしば見られるセル組織にまで発達している部位は少なく，セルと言うよりは，「迷路状」になっている．

3.2 陽電子消滅法測定結果

図8に応力振幅215MPa以上およびひずみ振幅0.31%の測定結果を，横軸に疲労寿命比（ N/N_f ），縦軸にSパラメータの非損傷材からの変化量として各試験片毎にプロットした図を示す．また，表2にそれぞれの破断回数を示す．

ひずみ振幅0.31%は1/2 N_f 近傍のサイクル数で約

表1 疲労試験条件

材 料	SUS316	
制御方法	荷重制御	ひずみ制御
試験温度	室 温	室 温
応力・ひずみ 振 幅	100.120.140.160 180.200.215.220 230Pa	0.31%

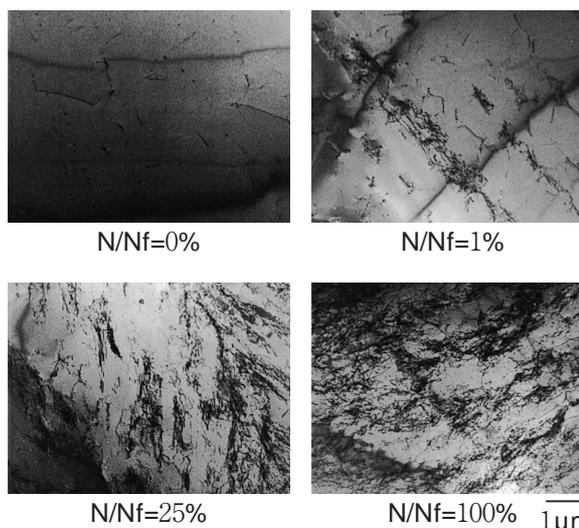


図7 応力振幅220MPa疲労試験片のTEM観察

表2 215Mpa以上での疲労試験回数

応力・ひずみ振幅	破壊回数
0.31%	36,950
230MPa	87,246
220MPa	393,300
215MPa	1,860,000

250MPaと計測されていることからわかるように，今回の試験条件では疲労寿命は最も短く（104オーダー），1サイクル当たりの損傷付加でいえば最も厳しい条件である．疲労寿命比25%程度の比較的低い疲労寿命比まででSパラメータの変化量は大きく，それ以降は飽和傾向を示した．特に，疲労寿命比10%までの増加量が大きかった．

応力振幅220MPaの場合には疲労初期でのSパラメータの増加量は緩やかで，比較的疲労寿命の全体に

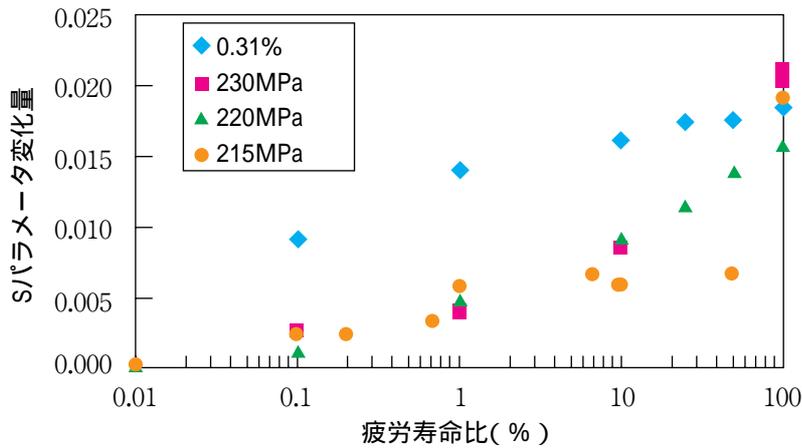


図8 応力振幅215MPa以上および歪み振幅0.31%疲労試験片での陽電子消滅法測定結果

わたってSパラメータの増大傾向が見られた。

応力振幅215MPaの場合には、疲労寿命は1,000,000回を越え、今回の試験条件では最も緩やかな、ほぼ疲労限に近いと思われる疲労試験条件である。応力振幅230MPaと220MPaの場合もSパラメータの変化量は単調増加を示している。

疲労寿命の全体を通して見てみると、Sパラメータの増加傾向は疲労初期での増加量の方が疲労中期以降に比べて高いが、ひずみ振幅0.31%で見られたような飽和の傾向は見られない。また、疲労初期での増加は、ひずみ振幅0.31%と比較して緩やかである。応力振幅215MPaは疲労寿命は1,000,000回を越え、ほぼ疲労限に近いと思われる疲労試験条件である。Sパラメータの飽和傾向は見られず、またSパラメータにばらつきはあるものの、繰返し数の増加に伴い、Sパラメータも増加傾向を示している。

図9に100MPaから200MPaまで20MPa毎の6条件で作製した $N=100,000$ 回の試験体の測定結果を、215MPaの $N=100,000$ 回の結果と併せて示す。横軸に応力、縦軸にSパラメータの非損傷材からの変化量としてプロットした。応力振幅100MPaでは、非損傷材とほぼ同程度のSパラメータである。それ以上の応力振幅では、Sパラメータは非損傷材よりも高くなっている。これより、応力振幅100MPa、繰返し数100,000回の損傷が、陽電子消滅法による検出の限界に近いと思われる。また、応力振幅120、140および160MPaでの変化量はほぼ同程度である。

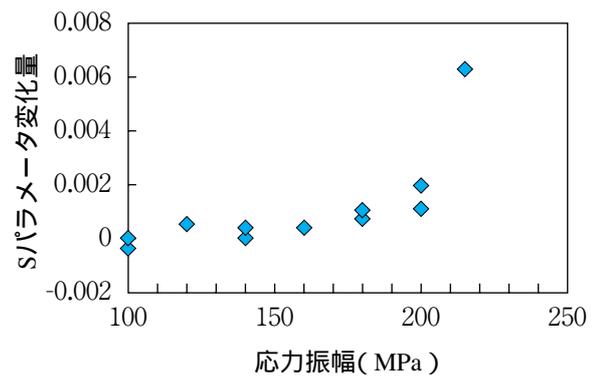


図9 100,000回疲労試験片での陽電子消滅測定結果

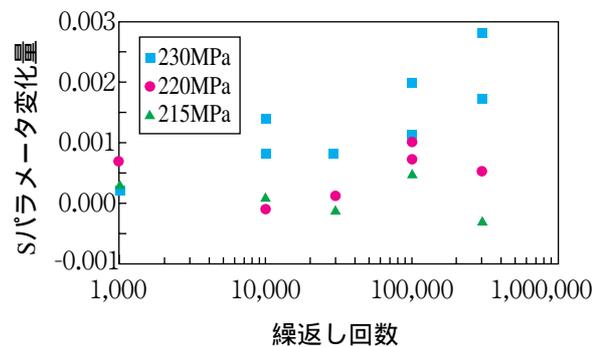


図10 200MPa以下の応力振幅疲労試験片での陽電子消滅法測定結果

180MPaで若干増加し、200MPaではさらに増加している。

この結果より、変化の見られた応力振幅である200MPaと180MPa、および、パラメータに若干の増加が見られた120MPaの3条件にて、引き続き試験を行うこととした。

図10にその結果を示す。応力振幅200MPaの試験では、全体として繰り返し数の増加に伴い、Sパラメータも増加の傾向を示すが、ばらつきもみられる。これは応力振幅215MPaと傾向が似ている。180MPaの試験では、繰返し数1,000回でSパラメータは若干増加するが、10,000回および30,000回では非損傷材とほぼ同等の値となる。応力振幅120MPaの場合も、繰返し数1,000回でSパラメータは若干増加するが、その差異は非常に微小でありその後は若干の減少に転じる。これらの試験は応力振幅がかなり低く、また、それぞれの応力振幅の差も小さいため、わずかな設定条件、試験条件の違いが、疲労試験に影響したものと考えられる。従って応力振幅180MPa以下の場合、繰返し損傷を付与すればSパラメータが増加する可能性は高いと考えられるが、低応力振幅疲労試験でみられる「ばらつき」の程度と、Sパラメータの変化量がほぼ同程度（0.001以下）であるため、現時点のデータからは、応力振幅180MPa以下の範囲では疲労損傷の定量的な評価は困難であると思われる。

これらの結果と図6のミクロ組織観察結果との比較を行うと、Sパラメータの増加の様子と転位密度の増加および絡みに相関があるように思われる。すなわち、Sパラメータは、転位の挙動といったミクロ組織に敏感であると言える。疲労損傷により欠陥の密度が増加し、これらの欠陥が陽電子の消滅サイトとなり、Sパラメータが増加すると考えられる。また、組織観察は、実際の状態を観察できるため、得られる情報が多いが、定量的な評価を行うことは難しい。一方、陽電子消滅法は、組織の微妙な差異をSパラメータの変化量としてとらえることができるが、ひずみおよび応力振幅依存性があることがわかる。

以上のことからドブローロードニング法による陽電子消滅法でのステンレス鋼SUS316の異なったひずみおよび応力振幅での疲労の進行に伴うSパ

ラメータの挙動および疲労損傷の検出限界を確認することができた。

3.3 疲労損傷度評価方法

実プラント材料の損傷度を評価するためには、測定パラメータ（ここではSパラメータ）と損傷度（ここでは疲労寿命比 N/N_f または繰返し数 N ）のマスターカーブを事前に作成することが必要である。

陽電子消滅測定により得られるSパラメータはひずみ振幅、または応力振幅依存があるため、このマスターカーブもひずみ振幅または応力振幅を考慮したものとする必要があり。現状では、図8および9の測定結果より作成することを考えているが、今後測定点数を増やして検討を行いたい。また、得られた測定パラメータから損傷評価を行うため図11にデータを整理した。

これはステンレス鋼SUS316の疲労曲線上に、今回測定した試験片のそれぞれの点でのSパラメータの測定値を範囲を区切って示したものである。これより、測定したSパラメータの値より疲労材料が疲労曲線上のどの範囲に位置するのか把握することができる。さらに評価部位の全ひずみ範囲がわかれば、測定したSパラメータの値より繰返し数および疲労寿命比を評価することが可能である。

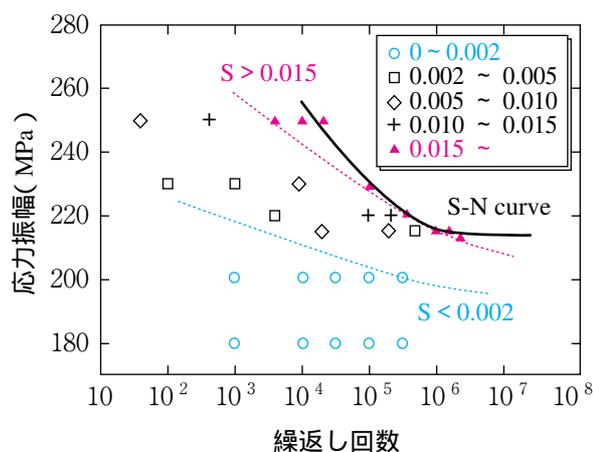


図11 S-N曲線とSパラメータ変化量の関係

4. 結論

4.1 まとめ

非破壊手法として用いることのできる陽電子消滅法により、原子力発電所一次系配管に用いられているステンレス鋼SUS316材の疲労損傷測定を行い、損傷度評価の可能性について検討を行った。以下に、得られた結果をまとめる。

- 1) 応力振幅220MPa以上では、Sパラメータは単調増加である。このデータを基にしてマスターカーブを作り、これを用いて精度よく疲労評価を行うことが可能であると思われる。
- 2) 応力振幅200～215MPaでは、Sパラメータにはばらつきはあるものの、繰返し数の増加に伴い、Sパラメータも増加傾向を示している。この増加量はある程度の繰返し数（10,000回以上）を越えれば非損傷材と比較して有為な差であると言えるため、測定データを充実させ、ある程度の精度を持ったマスターカーブを作成することができれば、疲労評価は可能であると考えられる。
- 3) 応力振幅180MPa以下の場合も、繰返し損傷を付与すればSパラメータが増加する可能性は高いと考えられるが、低応力振幅疲労試験でみられる「ばらつき」の程度と、Sパラメータの変化量がほぼ同程度であるため、現時点のデータからは、疲労損傷の定量的な評価は困難であると考えられる。

4.2 今後の課題

- 1) Sパラメータの変化は応力振幅、歪み振幅に依存することから、この関係を明らかにし、マスターカーブの充実を図るため、データの蓄積を図り、そのデータをマスターカーブに反映させる。
- 2) 原子力発電所では環境の線が陽電子消滅法による測定に影響することが考えられるため、現場

放射線環境を調査し、実機放射線環境下での適用性の検討を行う。

- 3) 現在行っているのは、室温における疲労試験片であるため、実機環境により近い高温環境疲労試験片のSパラメータ測定を行う。
- 4) 繰返し応力の分布が一様でない疲労試験片でのSパラメータ分布測定を行う。
- 5) 疲労評価アルゴリズムの検証を行う。

文献

- (1) Hautojarvi, P. ed., "Positrons in Solid", Springer-Verlag, Heidelberg, Finland (1979)
- (2) Brauer G., L. Liskay, B. Molnar and R. Krause, "Microstructural aspects of neutron embrittlement of reactor pressure vessel steels." A view from positron annihilation spectroscopy," Nuclear Engineering and Design, Vol. 127, pp. 47-68 (1991)
- (3) 長谷川雅幸, 「陽電子消滅法の原理と格子欠陥研究」, materija, Vol. 35, pp. 93-102 (1993)
- (4) Hughes, A.E., "Probing Materials with Positrons," Materials in Engineering, Vol. 2, pp.34-40 (1980)
- (5) Uchida, M., Y. Ohta, N. Nakamura and K. Yoshida, "Application of positron annihilation lineshape analysis to fatigue damage and thermal embrittlement for nuclear plant materials," Proceedings of the 13th International Conference on NDE in the Nuclear and Pressure Vessel Industries, pp.349-353 (1995)
- (6) Maeda, N., N. Nakamura, M. Uchida, Y. Ohta and K. Yoshida, "Application of positron annihilation lineshape analysis to fatigue damage for nuclear plant materials," Nuclear Engineering and Design, Vol. 167, pp.169-174 (1996)
- (7) 谷川庄一郎, 「陽電子を用いた表面研究」, 物理学最前線 5, pp.75-80(1983)