

原子力発電プラントの運用の長期化に伴い、機器の健全性評価の重要性が増してきており、材料の劣化度を非破壊的に計測・診断する技術の実用化が望まれている。当社では、主に材料研究の場で利用されてきた陽電子消滅法を応用し、原子炉材料に適用できる劣化計測技術を開発した。

陽電子消滅法は、中性子照射による材料劣化要因の一つである格子欠陥の検出などに有効であるが、従来技術では放射化した照射材を対象とした測定が困難とされてきた。開発した手法では、ガンマ( )線検出部の設計などの最適化と、測定及びデータ処理手順の工夫や劣化メカニズムに基づいた劣化指標解析法の導入により、測定環境や測定器の性能などの条件に依存せず、被検体の材料劣化だけを高感度で検出することが可能となった。

特に、放射化した原子炉用機器などには有効な手法であり、中性子照射された原子炉压力容器用低合金鋼に対して、機械特性劣化と良好な相関性のある測定結果が得られた。

With the increasing demand for light water reactor plant life extension, more accurate nondestructive analysis of material degradation is required in order to evaluate the integrity of plant component materials. We have developed the advanced positron annihilation spectroscopy (PAS) method for the materials of a reactor pressure vessel (RPV), based on the conventional PAS method that has been used for the study of point defects in crystals.

In the development process, the focus in terms of hardware was placed on the gamma-ray measurement system. In terms of software, the measurement procedure was carefully determined to reduce the noise level, and the evaluation parameter was properly defined based on the degradation mechanism of the material. As a result, the highest accuracy is obtained independently of the measurement conditions. This is considered to be a great advantage for nuclear reactor components, which are occasionally highly radioactive.

Utilizing the new system, we analyzed the degradation of simulated model alloy of RPV steels and found that the new parameter  $S_f$  obtained by the advanced PAS method had a good correlation with the parameter obtained by the mechanically destructive test method.

## 1 まえがき

原子力発電プラントの健全性評価は、寿命延長を含む運用の長期化が計画されるなかでその重要性が増している。近年では、機器の材料劣化度を非破壊的に計測する診断手法についても実用化が望まれている。原子力プラントを構成する金属材料は、高速中性子の照射を受けると、結晶中の欠陥の増加や金属組織の変化により劣化することが知られている。このような欠陥量の変化は、材料の機械的特性に影響を与える場合があり、欠陥量の変化を知ることにより劣化の程度を推定できる可能性がある。

固体中の格子欠陥や表面の状態を非破壊で探る研究手法の一つに陽電子消滅法がある<sup>(1)</sup>が、これまで実験室レベルでの利用にとどまり、検査装置として開発された例はほとんどない。また、原子力用機器材料のように測定対象物が放射化している場合には、従来手法ではバックグラウンドレベルが高くなり、有効な計測ができなかった。当社では、陽電子消滅法のなかでも測定方法が簡便であるドップラー広

り法に着目し、非破壊で材料の劣化が診断可能なシステムの開発を進め、測定条件に依存せずに対象物の材料劣化の度合いを高感度で検出できる計測技術を開発したので、その概要を述べる。

## 2 陽電子消滅法

放射性同位元素などから放射される陽電子は、正の電荷を持った電子であり、物質中においてはその中の(陰)電子と対消滅して、2本の $\gamma$ 線をほぼ180度反対方向に発生する性質がある。それらは消滅 $\gamma$ 線と呼ばれ、平均エネルギーは511 keVであるが、ドップラー効果により消滅前の電子対の運動量に比例したエネルギー幅の広がりを持っている。

金属中の場合、消滅相手となる(陰)電子は、原子核の周りの束縛電子と、原子核から離れて自由に動き回る伝導電子に大別される。束縛電子が原子核に近いほど高い運動量を持つのに対して、伝導電子の運動量は相対的に低く、上限値(フェルミ準位に相当)を持っている。したがって、金属

中で発生する消滅 $\gamma$ 線のエネルギースペクトルは、図1に示すように伝導電子との消滅によるエネルギー広がり幅が小さくシャープな成分と、束縛電子との消滅によるエネルギー広がり幅が大きくブロードな成分の合成となる。

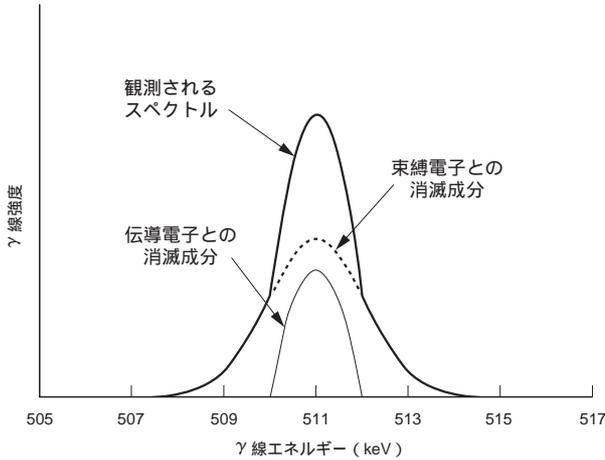


図1. 消滅 $\gamma$ 線スペクトル模式図 観測されるスペクトルは、運動量が高い束縛電子との消滅成分と、運動量が高い伝導電子との消滅成分の合成となる。

Illustration of annihilation gamma-ray

金属結晶中に原子が抜け落ちた格子欠陥がある場合、陽電子は同じ正電荷を持つ原子核から離れようとする。そのため、図2に示すように伝導電子だけが存在する欠陥部に集まり、伝導電子との消滅によるシャープな成分の割合が増加する。また、金属中に微量に含まれる他の元素が析出した場合、元素の組合せにより(例えば、鉄の中の銅やニッケル)元素間のわずかな電位差でも陽電子を引き付けることがで

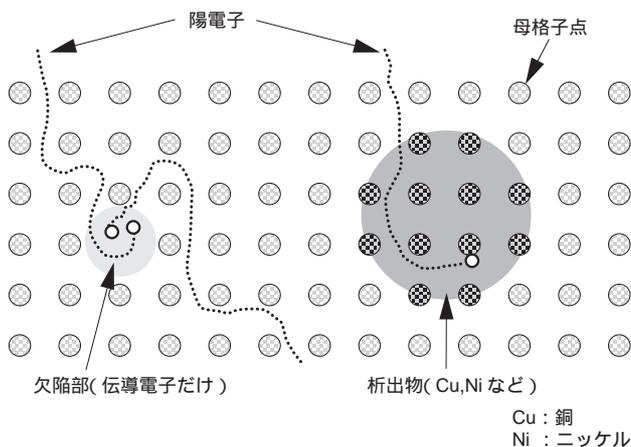


図2. 陽電子挙動模式図 陽電子は、母格子点の間を通りながら、欠陥や析出物に引き寄せられ、その近傍の電子と対消滅する。

Illustration of positron behavior

きる状態となる。そこで陽電子が消滅すると、元素ごとに固有である内殻の束縛電子の運動量分布の違いを反映し、消滅 $\gamma$ 線エネルギースペクトルに変化を生じさせることがある。

陽電子消滅法の一つであるドップラー広がり法は、陽電子のこれらの性質を利用したものであり、精密に測定した消滅 $\gamma$ 線のエネルギースペクトルの形状変化から、格子欠陥濃度や析出物分布を評価する手法である。

### 3 測定装置及び開発のポイント

図3に試験装置の外観を示す。

テーブル状の試料ポートに陽電子源が埋め込まれており、測定対象物はその上に置かれる。陽電子源の下には、特殊なコリメータを介して $\gamma$ 線検出器が設置されている。 $\gamma$ 線検出器の下には検出器冷却用の液体窒素容器がある。検出器で得られた信号はマルチチャンネル波高分析器でエネルギースペクトルデータに変換され、そのデータから計算機によって欠陥定量化や析出物分布の評価が行われる。測定は、試料ポートに測定対象物を置くだけで、データの解析・評価を含めて計算機制御で自動的に行われる。



図3. 測定装置外観 テーブル状の試料ポートの中央部に陽電子源が埋め込まれており、試料ポートの上に任意の測定対象物を置くだけで、自動的に測定が行われる。

Setup of advanced positron annihilation system

試験装置の主な諸元は次のとおりである。

- (1) 陽電子線源  $^{68}\text{Ge}$ (ゲルマニウム) (3.7 MBq)
- (2) 測定範囲 5 mm 以内
- (3) 測定深さ 0.4 mm 以内
- (4) 最少測定時間 30 分
- (5) 測定雰囲気 大気中、常温

次に、この装置の特長について述べる。

### 3.1 検出部ジオメトリの最適化

陽電子源の形状やコリメータ系を最適化し、測定対象物からの消滅 $\gamma$ 線以外の不要な $\gamma$ 線が検出器に極力入らない設計とし、S/N(信号と雑音の比)の向上を図った。

### 3.2 ノイズ処理ソフトウェアの開発

測定対象物以外で発生する消滅 $\gamma$ 線のうち、検出部のコリメータ系で除去しきれなかった分について、その発生メカニズムに応じた詳細な評価を行い、減算処理することで影響を除去するソフトウェアを開発した。測定対象物以外で消滅 $\gamma$ 線が発生する原因は、陽電子源から漏えいした陽電子によるもののほか、放射化した対象物などから発生する高エネルギーの $\gamma$ 線が周囲の構造物で引き起こす電子対生成によるものがあるが、いずれも十分な除去効果が確認でき、対象物の大きさや形状にも依存しない測定・評価が可能となった。

### 3.3 劣化指標の定義

図1に示した消滅 $\gamma$ 線の伝導電子消滅成分と束縛電子消滅成分は、実際の測定で得られるスペクトルデータ上では測定器の持つエネルギー分解能によって見かけ上、更にエネルギーの広がり幅が大きくなる。そこで、図4に示すように、消滅 $\gamma$ 線の各成分についてエネルギー分解能相当のフィルタを掛けたスペクトルモデル関数を作成し、スペクトルデータへのフィッティングにより求められるそれらの成分比(フィッティング関数のシャープ成分のカウン数と両成分の合計カウン数の比)を劣化の指標( $S_f$ パラメータ)として定義した。

これにより、測定機器の個体差や測定条件に依存して変動するエネルギー分解能の影響を排除した、一意的な評価

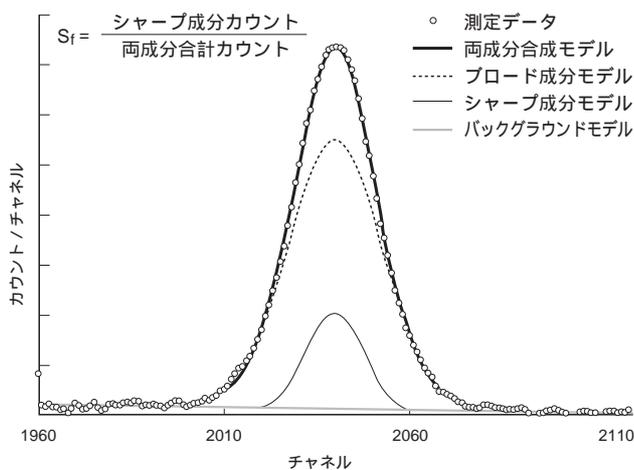


図4 . フィッティング法と $S_f$ パラメータの定義<sup>(3)</sup> フィッティング法により、測定機器のばらつきや、測定条件によるばらつきが除去可能となった。 $S_f$ パラメータは、当社独自の劣化評価指数である。

Fitting method and definition of  $S_f$  parameter

が可能となった。

### 3.4 同時計数ドップラー広がり法の開発

同時計数測定の構成を図5に示す。

この測定方法は、角度による弁別、同時性による弁別、合計エネルギーによる弁別という三重のフィルタを掛けた測定法であり、従来の1,000倍以上という高いS/Nを達成することができた。この方法をドップラー広がり法に応用することにより、従来はノイズに埋もれていて捕えることが困難であった消滅 $\gamma$ 線スペクトルの高運動量成分、すなわちスペクトルのすそ部分の形状変化を検出することができた。すそ部分は、元素ごとに固有な内殻電子の運動量分布の違いが現れやすいため、析出物が存在する場合、この部分の変化を解析することにより、析出物を構成する元素の種類、サイズ分布の違いを知ることができる。

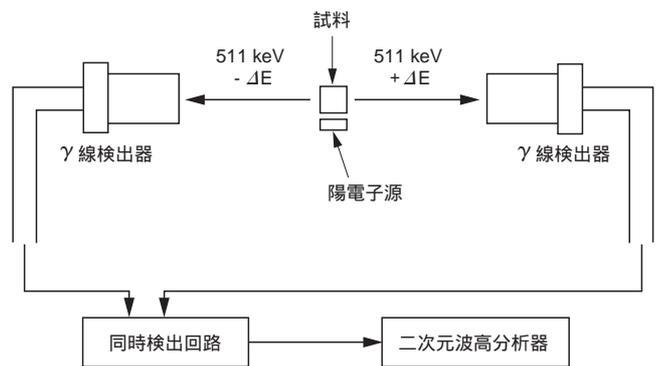


図5 . 同時計数測定の原理<sup>(4)</sup> 正反対方向に配置された2個の検出器により、エネルギーの和が1,022 keVとなる $\gamma$ 線を、同時に検出した場合だけ真の信号とすることで、S/Nが従来の1,000倍以上に改善された。

Principle of coincidence Doppler broadening method

## 4 原子炉材料の評価

### 4.1 測定試験結果と機械特性劣化との相関性

研究用原子炉JMTR(Japan Material Test Reactor)で中性子照射(293 で照射)された原子炉压力容器(RPV)用の低合金鋼について、機械試験であるシャルピー衝撃試験(JIS規格外のミニチュア試験片を使用)を実施し、劣化の程度を表わす延性脆性(ぜいせい)遷移温度変化( $\Delta DBTT$ )を求めた。

中性子照射量と $\Delta DBTT$ の関係を図6に示す。照射量の増加に伴い $\Delta DBTT$ が増加し、劣化が進行していると判断される。

陽電子消滅法で評価した材料劣化 $S_f$ パラメータと $\Delta DBTT$ との関係を図7に示す。その結果、両者には良い相関性が認められ、 $S_f$ パラメータによる材料劣化測定が可能であることが明らかとなった。

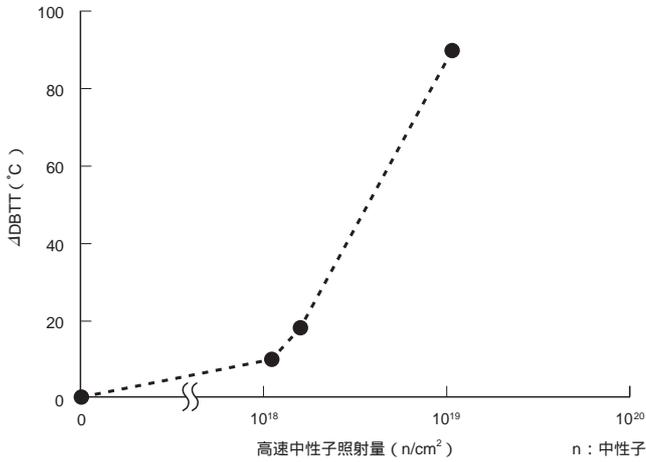


図6. 機械試験によるDBTTの照射量依存性 中性子照射量の増加に伴いΔDBTTも増加し、試験片が照射脆化(劣化)していることを示す。  
Ductile brittle transition temperature (DBTT) measured by Charpy impact test as function of irradiation dose

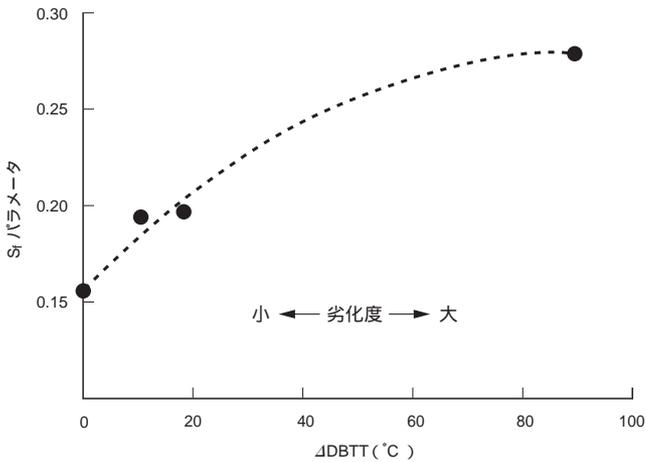


図7. DBTTと陽電子消滅測定によるSᵢパラメータの関係<sup>(5)(8)</sup>  
ΔDBTTの増加に伴って、Sᵢパラメータも増加することから、劣化との相関性が確認された。  
Relation between DBTT and Sᵢ parameter by positron annihilation

#### 4.2 陽電子消滅法による析出物挙動評価

熱時効処理した鉄・1%銅合金及び純銅の、同時計数法による電子対運動量の消滅γ線発生方向成分分布の純鉄に対する比率曲線の測定結果を図8に示す。

この図は、図4の消滅γ線のすそ部分の変化を拡大するために表わした比率曲線である。横軸は、エネルギーシフト幅から求めた電子対の運動量の消滅γ線方向成分(PL)であり、縦軸は、γ線強度を純鉄のそれに対する比で表わしたものである。熱時効前は、比率曲線が1に近いフラットな分布で、純鉄とほぼ等しいことを示しているが、熱時効により純銅に近い分布形状へと変化しており、熱時効により銅

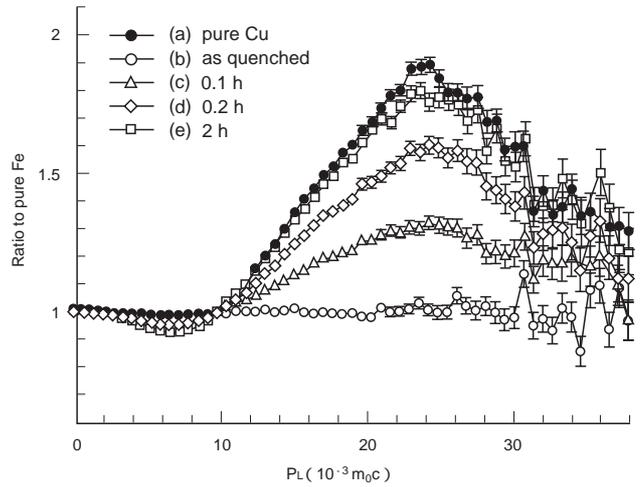


図8. 熱時効熱処理された鉄・1%銅合金及び純銅の、同時計数法による運動量分布比率曲線の形状変化<sup>(6)</sup> 熱時効前はγ線強度比が1に近いフラットな分布で、純鉄にほぼ等しいことを示しているが、熱時効により純銅に近い分布形状へ変化しており、熱時効により銅の析出物の分布状態が変化していることが確認できた。  
Evaluation of size distribution of precipitates in aged Fe-Cu alloy using coincidence Doppler broadening method

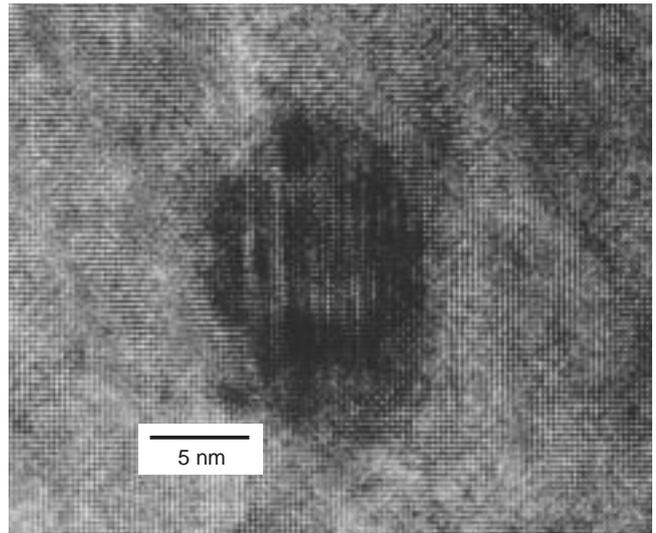


図9. 鉄・1%銅合金中の銅析出物の高分解能電子顕微鏡写真<sup>(7)</sup>  
鉄中の銅析出物を格子像レベルで観察した。母相の鉄と、析出物である銅の間に格子の乱れはほとんどない。これは、析出物によるひずみがほとんどないことを示している。  
High-resolution image of precipitate in Fe-Cu alloy by TEM

の析出状態が変化していることが確認できた。

銅析出物の高分解能電子顕微鏡写真を図9に示す。

鉄と銅の格子定数が近いため、銅析出物と母相の鉄で格子の乱れ、すなわち格子ひずみがほとんどないことがわかる。そのため、従来のX線回折などひずみを利用した測定法では、評価が困難であった。今回、同時計数ドップラー広がり法を適用することにより、鉄中の銅析出物の形成初期過

程を検出することが初めて可能になった。

## 5 あとがき

中性子照射材などを対象とした陽電子消滅法による劣化計測手法を開発し、実験炉による照射試料の測定試験で有効性を確認した。今後は実機環境で劣化した各種材料のデータ蓄積などにより、劣化との相関性評価を進め、実機への適用性を検討していく予定である。

また、劣化評価技術の開発を効率よく進めるために必要な劣化のメカニズム解明についても、新たに開発された手法が有効なツールとして期待され、これらの開発・解明も併行して進めていく。更に、原子力以外の分野を含め、他の機器についても、適用検討を進めていく予定である。

## 謝 辞

この研究は、東北大学金属材料研究所 長谷川雅幸教授、松井秀樹教授、永井康介博士に甚大なるご指導、ご協力をいただいた。また、測定データの一部は、(財)発電技術設備検査協会 鶴見試験研究センターからの委託研究の成果である。関係各位に深く感謝の意を表します。

## 文 献

- (1) 長谷川雅幸 . 陽電子消滅法の原理と格子欠陥研究 . あたりあ(日本金属学会報) . 35, 2, 1996, p.93 - 102.
- (2) 山本琢也 . “ 軽水炉压力容器鋼脆化監視試験の高度化に関する研究 ” . H11年日本金属学会秋期大会予稿集(口頭発表) . 1999 - 9, 日本金属学会 . 1999, p.209.
- (3) 鹿野文寿 . “ 照射されたRPV鋼の改良型陽電子消滅法による劣化計測 ” . H11年日本金属学会秋期大会予稿集(口頭発表) . 1999 - 9, 日本金属学会 . 1999, p.210.
- (4) 永井康介 . “ 陽電子消滅法によるFe-Cuモデル合金中Cu析出物の構造とその照射効果の研究 ” . H11年日本金属学会秋期大会予稿集(口頭発表) . 1999 - 9, 日本金属学会 . 1999, p.208.
- (5) 鹿野文寿 . “ 改良型陽電子消滅法による原子炉压力容器鋼の劣化評価 ” . 日本原子力学会 2000年春の年会要旨集 . 2000 - 3, 日本原子力学会 . 2000. p.1064.
- (6) NAGAI, Y. Position confinement in ultrafine embedded particles : Quantum dot-like state in an Fe-Cu alloy. Phys. Review B. 61, 10, 2000, p.6574 - 6578.
- (7) 鹿野文寿 . “ 鉄中の銅微細析出物の陽電子消滅測定(3) ” . 原子炉压力容器の照射脆化メカニズム究明研究の調査(4) . 日本原子力学会「照射関連法の高度化」研究専門委員会 . 1996, p.54 - 59.
- (8) KANO, F. “ Evaluation of neutron irradiated RPV steel using the advanced position annihilation method ” . Proc. of second International Conference on NDE in Relation to Structural Integrity for Nuclear and Pressurized Components. 2000 - 5, EPRI(米国電力中央研究所) . 2000(予定) .



鹿野 文寿 KANO Fumihisa, D.Eng.

電力システム社 電力・産業システム技術開発センター 金属・セラミクス材料開発部主務, 工博。金属材料の開発・評価に従事。日本金属学会, 日本原子力学会, 日本電子顕微鏡学会会員。

Power and Industrial Systems Research and Development Center



河合 昭雄 KAWAI Akio

電力システム社 電力・産業システム技術開発センター 計測・検査技術開発部主務。放射線応用計測技術開発, 核物質計量管理技術開発に従事。日本原子力学会会員。

Power and Industrial Systems Research and Development Center