

米国高速炉廃材を用いた照射下ミクロ組織の非破壊検査技術開発 (2) 理論的検討

Development of non-destructive inspection technique for microstructures
under irradiation using decommissioned materials
(2) An theoretical approach

原子燃料工業株式会社	江藤 淳二	Junji Etoh	Member
原子燃料工業株式会社	匂坂 充行	Mitsuyuki SAGISAKA	Member
原子燃料工業株式会社	松永 嵩	Takashi MATSUNAGA	Member
原子燃料工業株式会社	枝川 文哉	Humiya EDAGAWA	
原子燃料工業株式会社	礮部 仁博	Yoshihiro ISOBE	Member
東京大学	沖田 泰良	Taira OKITA	Member

Abstract

It is desired to develop an ultrasonic inspection technique non-destructively measuring various forms of irradiation-induced degradation in structural components of nuclear reactors.

In order to evaluate the depth distributions of irradiation-induced microstructural changes, we have developed a numerical simulation model of ultrasonic wave changes caused by microstructural changes in austenitic stainless steel based on the developed theory of ultrasonic wave propagation for comparison with experimental results.

In this simulation we focused primarily on simplified distributions of void swelling which was found to dominate the microstructures of the EBR-II thick blocks.

This simulation produced results that were consistent with the experimental results, providing confidence that this technique can indeed be used to interrogate reactor internal components to measure not only the bulk-averaged swelling but also the depth distribution of swelling.

Keywords: microstructure, stainless steel, ultrasonic inspection, void, depth distribution, backscattering echo

1. 緒言

原子炉などの過酷な条件や環境で用いられる構造物の損傷の程度の把握と余寿命の予測は構造物の健全性の保証と安全性の確保のためにも重要な課題であり、信頼性の向上に資する非破壊検査手法の開発が期待される。

超音波法は材料内部の欠陥や損傷を非破壊的に評価できる手法として適用例は多く、き裂などの比較的マクロな欠陥の検出に利用されている。しかしながら、照射によって材料内部に発生したボイドなどのミクロ組織を定量的に評価することは課題であった。また、実機構造物は照射量や温度の勾配、応力状態など、複合的で且つ経時変化する環境で使用されるため、ミクロ組織が偏在し、分布が不均一であることも考えられる。従って、ミクロ組織の深さ方向の分布に関する情報をも含んだ非破壊的な評価手法の検討も必要であると考えられる。材料内部のミクロ組織より散乱される超音波の後方散乱波は、ミクロ組織の深さ方向の分布に関する情報を含んだ超音波

信号であり、この信号を周波数解析することによりミクロ組織分布を非破壊的に評価できる可能性がある。

本研究では、照射による構造物の材料劣化を定量的に評価する手法として、超音波を用いた非破壊検査技術の開発を行った。具体的には、米国の高速実験炉 EBR-II で構造材料として使用されてきたオーステナイト系ステンレス鋼照射ブロック材に対して超音波検査を実施した。超音波検査で得られた材料底面からの反射波の解析より得られる音速結果などから材料内部の平均的なミクロ組織変化を定量的に評価し、材料内部のミクロ組織からの後方散乱波の解析より深さ方向のミクロ組織分布を定量的に評価した。

本報では、(1)実験的検討で得られた材料内部の平均的なミクロ組織変化の定量結果を用いて、弾性波動理論に基づく後方散乱波のシミュレーションを実施し、材料内部の深さ方向のミクロ組織分布を定量的に評価する手法について理論的に検討した。

連絡先: 江藤淳二、〒590-0451 大阪府泉南郡熊取町
朝代西1-950、原子燃料工業株式会社
E-mail: junji-etoh@nfi.co.jp

2. 超音波によるマイクロ組織定量の検討

2.1 照射材の概要

米国の高速炉 EBR-II で反射材として供されてきたオーステナイト系ステンレス鋼の六角柱形状をした面間厚み 52mm の照射ブロック材を超音波検査に用いた。

(1) 実験的検討で得られた透過型電子顕微鏡(TEM)によるマイクロ組織観察結果や断面からの超音波検査に基づく、側面からの深さ方向の音速測定結果において炉心部に近い位置にあった照射量 28 dpa のスライス材 3D, 3E ではボイドが深さ方向に分布を持つことが確認された(Table1)。

Table1 TEM observation results of irradiation materials

Sample	Depth (mm)	Temperature (°C)	Dose (dpa)	Swelling (%)
3D	12.5	390	28	1.18
	25			2.94
	37.5			2.08
3E	12.5	390	28	1.84
	25			2.76
	37.5			1.95

本研究では、スライス材 3D の側面における後方散乱波の実験データ及び超音波の理論に基づいてボイドスエリングの深さ方向分布の定量評価を実施した。

2.2 後方散乱波の周波数解析

材料内部に入射した超音波は、中性子照射により生じたボイドなどのマイクロ組織によって散乱され、後方散乱波として検出される。その信号の変化を捉えることにより、材料内部のマイクロ組織変化の分布を検出できる可能性がある。

まず、後方散乱波の解析手法について述べる。例として、本研究で使用したピーク周波数が 10 MHz である超音波を用いた場合の後方散乱波の超音波信号を Fig.1 に示す。後方散乱波の変化は非常に微小な変化であり、周波数に依存するため、得られた信号に対して FFT 解析を実施し、周波数ごとの信号の変化を捉えることとした。また、深さ方向のマイクロ組織変化を捉えるため、FFT 解析範囲(12 mm)を深さ方向に移動させながら、深さごとの後方散乱波の周波数分布を得た。この周波数分布のうち、6-9 MHz 間の信号強度を積分した値を後方散乱波の積分強度と定義し、深さ 18 mm の位置で規格化した値を積分強度比とした(Fig.2)。

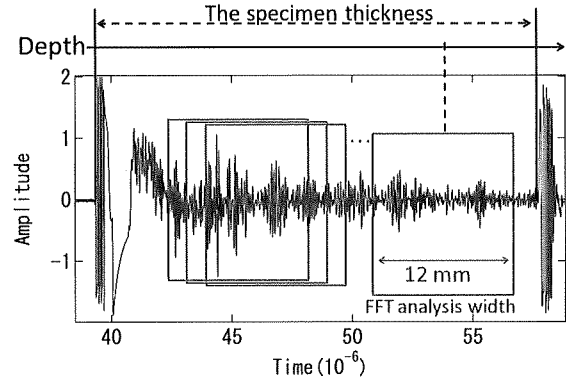


Fig.1 Ultrasonic signal of backscattering echo

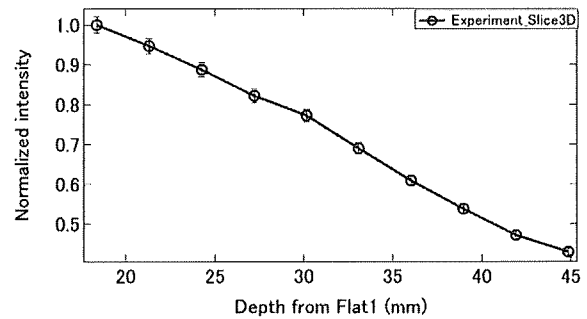


Fig.2 Normalized intensity of backscattering echo
(Frequency integration range:6-9 MHz)

2.3 理論的検討

本研究で開発したマイクロ組織の定量評価手法は、材料内部に発生したボイドや炭化物などのマイクロ組織変化を、結晶粒と超音波の相互作用から評価する手法である。具体的には、結晶粒内に発生したボイドなどのマイクロ組織変化により、密度やヤング率、結晶粒径などの結晶粒の物性値が変化することに着目して、マイクロ組織変化を定量評価する手法である。

材料内部に入射した超音波の波長が結晶粒径に比べて十分に長い場合、すなわち Rayleigh 散乱領域では、結晶粒による超音波の減衰係数は次式で表される^[1-2]。

$$\text{(縦波)} \quad \alpha_L = \frac{8\pi^3 V f^4 A^2}{375 \rho^2 v_L^8} \left[2 + 3 \left(\frac{v_L}{v_t} \right)^5 \right] \quad (2-1)$$

V : 結晶粒の体積, f : 超音波の周波数, v_L : 縦波音速, v_t : 横波音速
 A : 音響異方性($= C_{11} - C_{12} - 2C_{44}$), C_{ij} : 弾性係数

材料内部に入射した超音波は、材料内の結晶粒等のマイクロ組織によって散乱減衰を受けながら進む。この時に材料内部で散乱され、超音波探触子で受信される信号を後方散乱波と呼び、音圧 P_0 で材料に入射した超音波が材

料内で距離 x だけ進み、その地点から散乱されて受信される後方散乱波の音圧 $P(x, \omega)$ は次式で表される^[3-6]。

$$P(x, \omega) = CP_0(\omega) \sqrt{\left(\frac{d\gamma}{d\Omega}\right)_{L, \pi}} \exp(-2\alpha x) \quad (2-2)$$

$P(\omega)$: 角周波数 ω 成分の音圧, α : 減衰係数, C : 比例定数, $\left(\frac{d\gamma}{d\Omega}\right)$: 散乱体の微分散断面積

結晶粒径に比べて超音波波長が十分長い Rayleigh 散乱領域では、結晶粒によって散乱される超音波が等方散乱であると近似できることから、結晶粒の微分散断面積は減衰係数を全立体角 4π 除した値として次式のように求めることができる^[7-8]。 n は散乱体の単位体積当たりの数である。

$$n \left(\frac{d\gamma}{d\Omega}\right) = \frac{\alpha}{4\pi} \quad (2-3)$$

この微分散断面積と式(2-2)から、材料内部の結晶粒による後方散乱波が求められる。

また、ポイドスエリングによる材料の密度やヤング率、結晶粒径の物性値変化は、(1)実験的検討で得られた以下に示す値を用いた。

密度変化 $\rho = \rho_0(1-s) \quad (2-4)$

音速変化 $V = \sqrt{\frac{(1-2.5s)E_0(1-\nu)}{(1-s)\rho_0(1+\nu)(1-2\nu)}} \quad (2-5)$

結晶粒径変化 $D = D_0 \sqrt[3]{(1-s)} \quad (2-6)$

ρ : 密度, s : ポイドスエリング (%), V : 縦波音速,

ν : ポアソン比, D : 結晶粒径

ρ_0 : 初期密度, E_0 : 初期縦弾性係数, D_0 : 初期結晶粒径

2.4 超音波信号変化の予測

照射下マイクロ組織が一樣に分布する場合及び材料内部で分布を持つ場合の超音波信号変化を未照射材より得られたデータを用いて検討した。

(1) ミクロ組織が一樣に分布する場合

オーステナイト系ステンレス鋼にマイクロ組織が一樣に分布する場合の超音波信号変化のシミュレーションを実施した。Fig.3 にポイドスエリングが一樣に 1, 2, 3% 発生した場合の底面波の変化を示す。ポイドスエリングが材

料内部で一樣に分布している場合には、ポイドスエリングの発生量が増加するにつれて、未照射材に比べて底面波の周波数分布が低周波数側へシフトする結果が得られた。この時の後方散乱波の積分強度比の変化を Fig.4 に示す。ポイドスエリングが発生することにより、未照射材に比べて積分強度比が小さくなる結果が得られた。これらの変化は、ポイドスエリングが発生したことにより、結晶粒が膨らみ、密度低下が生じたこと、加えて超音波の音速が低下したことによる材料の結晶粒に関する物性値が変化し、結晶粒による散乱減衰が増大したことによる。

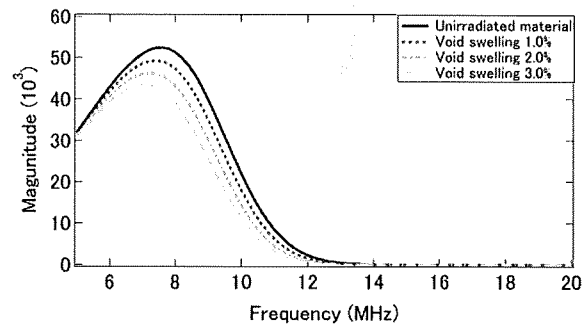


Fig.3 Frequency distribution changes of back-wall echo
(Uniform void swelling: 1%, 2%, 3%)

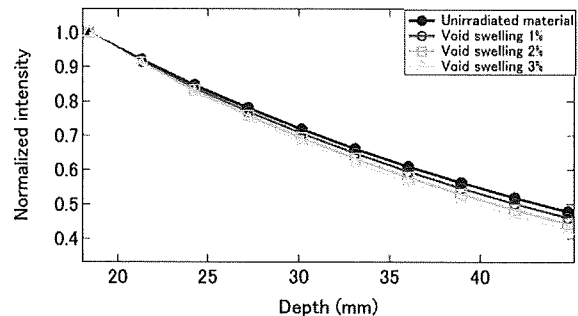


Fig.4 Normalized intensity of backscattering echo
(Frequency integration range: 6-9 MHz)

(2) ミクロ組織が材料内部で分布を持つ場合

実機構造物は照射量や温度の勾配などが存在する複合的な環境で使用されるため、マイクロ組織が偏在し、分布が不均一であることも考えられるため、オーステナイト系ステンレス鋼にマイクロ組織が材料内部で分布を持つ場合の超音波信号変化のシミュレーションを実施した。この超音波シミュレーションでは、ポイドスエリングが深さ分布を持つ場合の積分強度比の変化を定性的に理解するために、材料の深さ方向に領域を 3 分割し、平均的な

ボイドスエリングは 1%で一定としてシミュレーションを実施した(Fig.5, 6)。

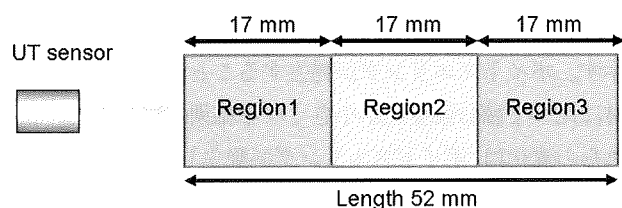


Fig.5 Schematic diagram of ultrasonic simulation

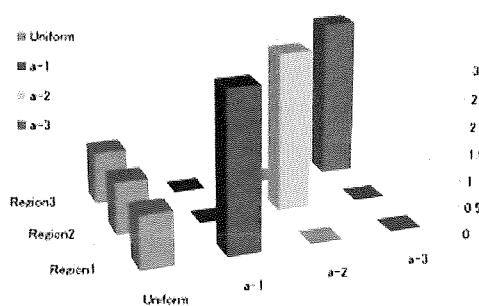


Fig.6 Assumed depth distributions of void swelling

得られたシミュレーション結果を Fig.7 に示す。2.3 節で述べたように、後方散乱波の強度は、ある深さに存在するマイクロ組織からの散乱強度と超音波信号がある深さまで伝播し、その後散乱されて超音波探触子まで返ってくる伝播経路における散乱減衰の 2 つの影響を考慮しなければならない。

(a-1)の分布の場合には、第 1 領域にボイドスエリングが集中しているために、第 1 領域での伝播経路における減衰が第 2、第 3 領域に比べて大きく、かつ第 2、第 3 領域におけるマイクロ組織からの散乱強度が第 1 領域と比較して小さいことから、一様分布を全ての深さで下回る結果が得られた。

(a-2)の分布の場合には、第 2 領域にボイドスエリングが集中しているために、第 1 領域での伝播経路における減衰が小さく、かつ第 2 領域におけるマイクロ組織からの散乱強度が大きいことから、規格化点以降で一旦一様分布を上回り、その後ボイドスエリングが無い第 3 領域でマイクロ組織からの散乱強度が小さく、かつ第 2 領域における伝播経路における減衰が大きいため、一様分布を下回る結果が得られた。

(a-3)の分布の場合には、第 3 領域にボイドスエリングが集中しているために、第 2 領域までは一様分布の場合とほとんど同じ傾向を示すが、第 3 領域でマイクロ組織からの散乱強度が大きく、かつ第 1、第 2 領域の伝播経路における減衰が小さいことから、一様分布を大きく上回る結果が得られた。

このように、ボイドが深さ分布を持つ場合には、一様分布と異なり、後方散乱波の積分強度比は顕著に変化していることが確認された。

以上のシミュレーション計算結果から、ボイドスエリングが深さ分布を持つ場合、後方散乱波の周波数積分強度比は未照射材、一様分布の場合の双方に比べて、超音波で検出可能な程度に有意に変化する結果が得られた。また、ボイドスエリングの深さ方向分布が異なる場合についても、積分強度比がボイドスエリングの深さ分布を識別可能な程度に有意に変化する結果が得られた。本解析を任意の超音波検査信号へ適用することによりマイクロ組織の深さ分布を非破壊的に検出できる可能性がある。

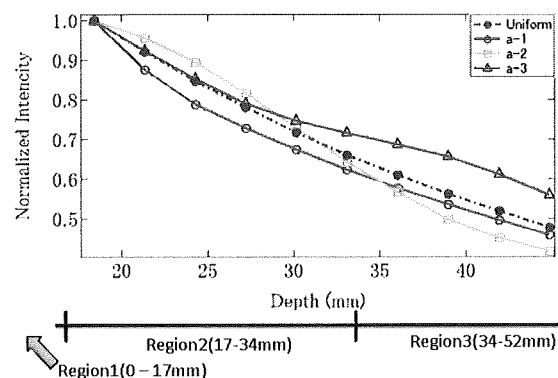


Fig.7 Backscattering intensity changes caused by void swelling
(Frequency integration range:6-9 MHz)

3. 超音波によるマイクロ組織定量評価

2.4 節で検討した手法をスライス材 3D の側面からの後方散乱波の超音波検査結果に適用し、マイクロ組織の深さ分布を定量的に評価することを試みた。

(1) 深さ方向の結晶粒径分布の推定

照射ブロックスライス材 3D のマイクロ組織の深さ分布定量評価を実施するにあたり、照射ブロック材の深さ方向の結晶粒径分布を評価することが重要である。しかしながら、スライス材 3D の未照射状態における深さ方向の結晶粒径分布に関する情報は入手不可能であった。照射後ではボイドスエリングなどのマイクロ組織変化が発生

しており、結晶粒径が変化していることが考えられる。そこで、INL より提供された未照射材を用いて深さ方向の結晶粒径分布を評価し、スライス材 3D の深さ方向の結晶粒径分布を以下の関係式を用いて推定することを試みた。

$$\alpha_p \propto R^3 f^4 : \text{Rayleigh散乱} (\lambda \gg R)$$

R : 結晶粒径, λ : 超音波波長, f : 周波数

深さ方向の結晶粒径分布は、未照射材の深さ方向に減衰係数を測定し、得られた減衰係数から結晶粒径の深さ分布の評価を実施した。未照射材の断面からの超音波検査に基づく、側面からの深さ方向の減衰係数の測定結果を Fig.8 に示す。減衰係数は中心部付近で大きく、外周部付近で急下に小さくなる結果が得られた。この測定結果を用いて結晶粒径の側面からの深さ方向分布を算出した(Fig.9)。縦軸は減衰係数の平均値で規格化している。また、未照射材より得られた結晶粒径分布は概ね中心から同心円状に対称に分布していた。従って、結晶粒径分布は回転対称であると仮定し、放射線状に測定を実施した値の平均値を算出し、シミュレーションに用いた。

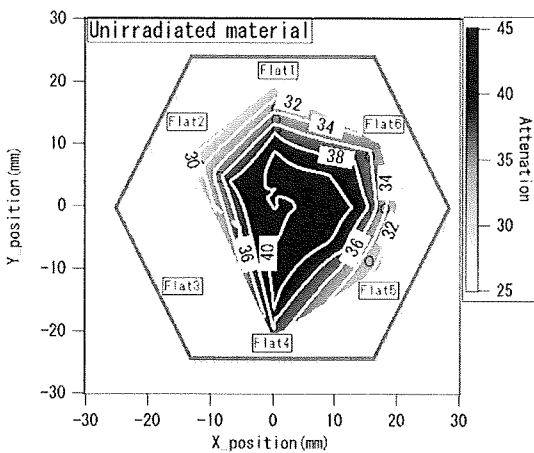


Fig.8 Depth distributions of attenuation in un-irradiated material

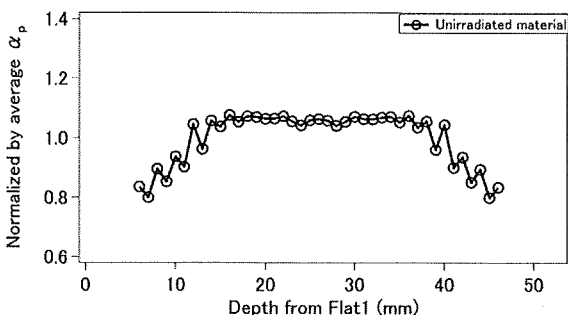


Fig.9 Depth distributions of particle size in un-irradiated material

(2) ミクロ組織の深さ分布定量評価

まず、ボイドスエリングが深さ方向に分布を持つかどうか診断するために、ボイドスエリングが一様に分布していると仮定した場合のシミュレーションを実施し、実験結果と比較を行った(Fig.10)。材料内部の平均的なボイドスエリングは、側面からの超音波検査より得られた音速から定量した値を用いた。2.4 節におけるボイドスエリングが深さ方向に分布を持つ場合のシミュレーションとの比較から、ボイドスエリングは側面から深さ 30 mm 付近で極大値を持つような分布を持つことが推定された。

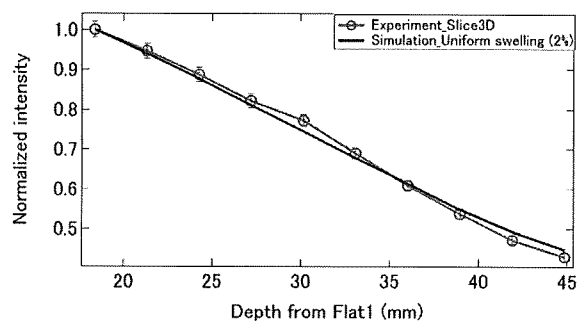


Fig.10 Simulation of uniform swelling (2%)

ボイドスエリングの深さ方向分布の定量評価を行うシミュレーションは、面間厚み 52 mm のスライス材を 7 分割し、モンテカルロ法により領域毎に種々のボイドスエリングを与え、後方散乱波の積分強度比の算出を行った(Fig.11)。オーステナイト系ステンレス鋼であるスライス材 3D では材料表面から 12 mm 程度が超音波の不感帯領域があること、材料内部を超音波が散乱されながら伝播することで超音波信号強度が減少し、材料表面から深い程測定精度が減少することなどを考慮し、1, 7 領域では領域幅を中心部に比べて広く設定した。

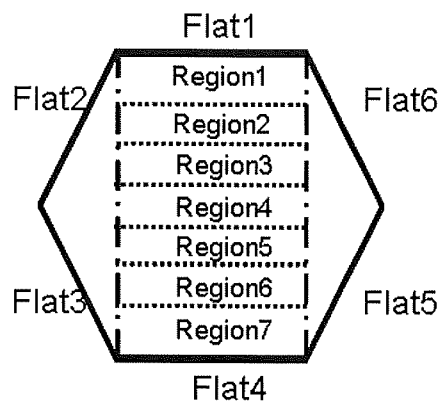


Fig.11 Segmented model of simulation

後方散乱波のシミュレーションより得られた結果を Fig.12 に示す。シミュレーションで得られた積分強度比は、スライス材 3D の側面からの超音波検査より得られた積分強度比に概ね一致し、深さ 30 mm 付近での積分強度比の変化を再現できていることがわかる。

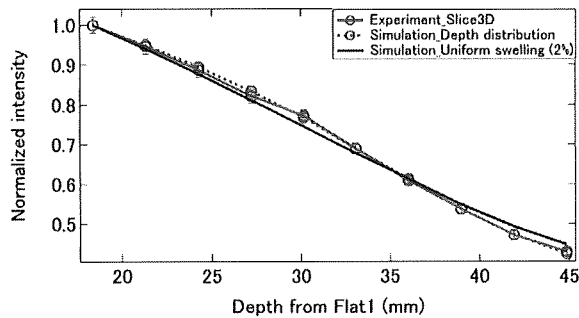


Fig.12 Simulation results of Slice3D backscattering echo

このシミュレーションで得られた積分強度比を与えた結果のポイドスエリングの深さ分布を密度測定結果及びマイクロ組織観察結果との比較した結果を Fig.13 に示す。密度測定結果と理論計算から得られたポイドスエリングの深さ分布は概ね一致する結果を示し、相違は±0.4%以下であった。この相違は、スライス材の結晶粒径分布を未照射材の結晶粒径分布から推定していることに起因する誤差が主な要因であることが考えられる。また、マイクロ組織観察結果と理論計算から得られたポイドスエリングの深さ分布は、TEM 観察におけるマイクロ組織の局所的なバラツキの範囲内(±10%)で一致する結果が得られた。

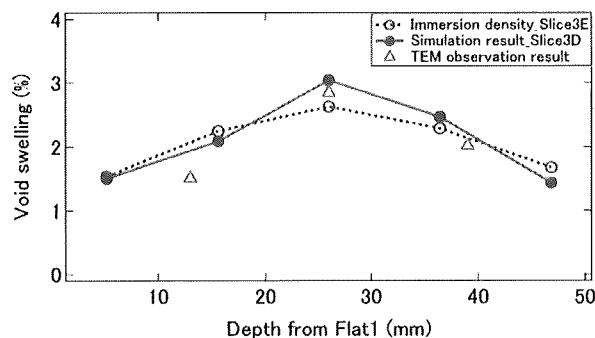


Fig.13 Simulation result of depth distribution of swelling in Slice3D

4. 結言

本報では、材料内部の深さ方向のマイクロ組織分布を定量的に評価する手法について理論的に検討し、中性子照射によって材料内部に生じたポイドスエリングの深さ分布を定量的に評価した。

本研究で開発された非破壊でマイクロ組織を定量的に評価する手法は、まず照射ブロック材の広範囲の領域を超音波検査し、得られた音速や底面波、減衰係数の変化からマイクロ組織の深さ方向の材料特性変化の平均値を定量するスクリーニング検査を実施し、マイクロ組織の一様分布を診断する。次に、スクリーニング検査から構造材の劣化が検出された領域に対して詳細検査を実施し、マイクロ組織の深さ方向分布を定量し、詳細な劣化状態を把握する手法である。このスクリーニング検査と詳細検査を実施することで、構造物の損傷の程度を把握することが可能となり、構造物の信頼性の向上に資すると考える。

謝辞

本研究は、特別会計に関する法律（エネルギー対策特別会計）に基づく文部科学省からの受託事業において得られた成果の一部であり、ここに謝意を表します。

参考文献

- [1] I. M. Lifshits, G. D. Pharkhomovskii, J. Exp. Theor. Phys., (USSR), Vol.20, 1950, pp.175.
- [2] A. B. Bhatia., "Scattering of high-frequency sound waves in polycrystalline materials", J. Acous. Soc. Ame., Vol.31, 1959, pp.1140
- [3] Odonnel, M. and Miller, J. G. "Quantitative broadband ultrasonic backscatter: An approach to nondestructive evaluation in acoustically inhomogeneous materials", J. Appl. Phys., Vol.52, 1981, pp.1056.
- [4] Russel, M. D. et al., "Experimental estimation of the longitudinal-wave backscatter coefficients for ultrasonic interrogation of weak scattering materials", J. Acoust. Soc. Ame., Vol.93, 1993, pp.1267.
- [5] Yalda, I. et al., "Ultrasonic grain noise in polycrystals: A monte carlo model", J. Acoust. Soc. Ame., Vol.99, 1996, pp.3345.
- [6] Ying, C. F and Truell, R. "Scattering of plane longitudinal wave by a spherical obstacle in an isotropically elastic solid", J. Appl. Phys., Vol.27, 1956, pp.1086.
- [7] 今中拓一, "超音波法による材料劣化の評価", 検査技術, 10, 2005
- [8] J. E. Gubernatis et al., "Formal aspects of the theory of the scattering of ultrasound by flaws in elastic materials", J. App. Phys., Vol.48, 1977, 2804.

(平成 24 年 7 月 25 日)