

陽電子寿命法を用いた Ni 基合金残留応力緩和メカニズムの検討

Consideration on Mechanism of Residual Stress Relaxation Behavior of Ni-based Alloy Using Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy

于 麗娜	Lina YU	Member
才田 一幸	Kazuyoshi SAIDA	Non-member
荒木 秀樹	Hideki ARAKI	Non-member
杉田 一樹	Kazuki SUGITA	Non-member
水野 正隆	Masataka MIZUNO	Non-member
西本 和俊	Kazutoshi NISHIMOTO	Non-member
千種 直樹	Naoki CHIGUSA	Member
	于 麗娜 才田木田野本村 形本田野本種 正和種 千種	于 麗娜Lina YU才田 一幸Kazuyoshi SAIDA荒木 秀樹Hideki ARAKI杉田 一樹Kazuki SUGITA水野 正隆Masataka MIZUNO西本 和俊Kazutoshi NISHIMOTO千種 直樹Naoki CHIGUSA

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 has been investigated by positron annihilation lifetime spectroscopy, which quantitatively and more sensitively enables to evaluate the lattice defects of the alloy. It was found that the positron lifetime obtained in all the laser peening (LP), water jet peening (WJP) and Buffing samples is longer than that of the solution-treated sample. Further, the positron lifetime increased in the order of Buffing, WJP and LP samples, and the positron lifetime all decreased after thermal aging. Based on the experimental results, it was assumed that the stress relaxation behavior was attributed to the recovery behavior due to the decrease of vacancies and dislocations. Even after thermal aging, LP, WJP and Buffing samples have a longer positron lifetime than the solution-treated sample at the position near the surface of the sample. It follows that the introduced compressive stress by residual stress improving treatment may keep long term stability due to the strain accompanied by dislocations remaining even after thermal aging.

Keywords: Ni-Based Alloy 600, Water Jet Peening, Laser Peening, Buff, Positron Annihilation, Lattice Defect.

1. 緒言

原子力発電プラントの高経年化に伴い発生する経 年劣化事象の一つである応力腐食割れ(Stress Corrosion Cracking: SCC)の防止対策として、溶接に伴 って発生した引張残留応力を圧縮残留応力に変化さ せる応力改善が有効である[1-5]。現在、原子力プラ ントにおける残留応力改善工法として、レーザピー ニング(Laser Peening: LP)、ウォータジェットピーニ ング(Water Jet Peening: WJP)、超音波ショットピーニ ング(Ultrasonic Shot Peening: USP)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原子力プ ラントの予防保全工法のガイドラインとして制定さ れるとともに、実機へも適用されている[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 573 K にも達し、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熱時効初期 において緩和する可能性も報告されている[9]。従っ

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@mapse.eng.osaka-u.ac.jp て、原子力プラントの耐SCC性を担保するためには、 応力改善工法により導入された圧縮残留応力が実機 運転時の高温環境下においても安定して残存するこ とを実証することが重要となる。高温環境下での圧 縮残留応力緩和挙動に関しては過去の研究[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 善効果の減少が生じるが、その後の応力改善効果は 長期安定であることが示唆された。しかしながら、 その応力緩和挙動に関しては組織解析や速度論的検 討など詳細なメカニズムの解明はほとんど行われて いない。そのため、各応力緩和工法による効果の安 定性や施工部の耐SCC性の尤度も明確にされていな いのが現状である。

過去の研究[12]では種々の応力改善工法を適用した 試料について 電子後方散乱回折法 (Electron Backscatter Diffraction: EBSD)による結晶方位解析を 用いて、応力緩和過程の組織学的変化挙動の差異を 明らかにした。本研究では、材料内部の格子欠陥の 存在状態を定量的に、かつ、高感度に評価できる陽 電子寿命法[13,14]を採用することにより、応力改善 工法の施工により導入された残留応力に密接に関連 する格子欠陥や転位によるひずみの存在を調査した。 さらに、熱時効過程の応力緩和時の格子欠陥や転位 の変化挙動を検討し、その結果に基づき各工法施工 材における熱時効過程の応力緩和メカニズムを考察 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 100 mm⁴ ×50 mm^w × 10 mm⁴の寸法を有する板材であり、機械 加工(Grinding:高速回転する砥石車によって加工物 の表面を除去し平滑な面を得る方法)した面に対し 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。

観察試験片として、上記の試験体より加工による ひずみに影響を極力少なくするため放電加工法を用 いて、試験片を6mm⁴×6mm^w×10mm⁴の大きさに切 り出した。熱時効試験はマッフル炉を用いた。マッ フル炉を用いた場合は設定温度まで昇温した炉内に 試験片を投入することにより加熱した、冷却は水冷 とした。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713 K で、保持時 間 50時間の条件で行った。

空孔型欠陥の測定には、陽電子寿命法を用いた。 陽電子寿命法は、電子の反粒子である、陽電子が材 料中の電子と対消滅するまでの時間から、材料中に 存在する空孔型のナノ欠陥(原子空孔、転位など) を非破壊で評価可能な方法である。陽電子を用いた 欠陥検出の概念図を Fig.1 に示す。 陽電子は正の電 荷を持つため、空孔型欠陥が存在しない場合は、正 の電荷を持った原子核から離れた格子間位置で消滅 する。材料中に空孔型欠陥が存在すると、そこにト ラップされた後に周囲の電子と対消滅する。陽電子 の寿命は電子と陽電子の出会う確率、すなわち電子 密度と陽電子密度の積に反比例する。欠陥位置では、 格子間位置と比較して電子密度が小さいため、その 時の空孔型欠陥が材料中に存在すると、陽電子寿命 が長くなる。また、格子欠陥の密度が高くなるほど 欠陥位置にトラップされ消滅する陽電子の割合が高 くなるため、陽電子寿命が増加する[14-16]。

陽電子寿命測定には Teledyne Lecroy 製デジタルオ シロスコープ Wave Runner 610Zi と BaF₂シンチレー

タをマウントした2対の光電子増倍管(浜松ホトニ クス製H3378-51) で構成された測定システムを用い た。陽電子線源としては日本アイソトープ協会製 Na-22 薄膜陽電子線源 NA351 を用い、2 枚の試料で 挟み込んだ状態で 298K の大気雰囲気中にて陽電子 寿命測定を行い、300万カウントの陽電子寿命スペク トルを収集した。純ニッケルに対する陽電子寿命ス ペクトルを RESOLUTION [17]で解析することによ って、測定システムの時間分解能 177 ps、線源成分 陽電子寿命 397 ps、相対強度 15%と決定した。これ らのパラメータは POSITRONFIT Extended [18]を用 いた、以後の陽電子寿命スペクトル解析に用いた。 陽電子消滅法による測定される領域の直径は約5 mm であった。Ni 基合金への Na-22 陽電子線源から 放出される陽電子の侵入深さ分布の計算結果を Fig. 2 に示す。ここから陽電子の侵入深さは 30~40 µm に最も集中していることがわかる。

各施工法による陽電子寿命への影響を検討するた め、溶体化処理 (Solution Treatment: ST) 材、機械加 工施工材、LP施工材、WJP施工材、バフ研磨施工材 の5つと、熱時効の影響を検討するため、LP+熱時効 材、WJP+熱時効材、バフ研磨+熱時効材の3つ、計 8つの試験片で行った。本研究では陽電子寿命の測定 を試験片の表面付近と内部で実施することによって、 試料表面と内部の格子欠陥評価を行った。それぞれ の測定位置をFig. 3 に表す。試験片の内部について は各加工面に対して、電解研磨により逐次除去して 深さ方向の陽電子寿命測定を実施した。

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



Fig. 1 Schematic diagram of positron annihilation lifetime technique.



Fig. 2 Positron penetration depth for Inconel alloy.





3. 陽電子寿命法による格子欠陥の評価 3.1 機械加工材の陽電子寿命測定結果

LP、WJP およびバフ研磨の各工法の施工前に試験 片に加えられた機械加工の影響を確認するために、 機械加工まま材と溶体化処理材の陽電子寿命の一成 分解析結果を比較した。Fig. 4 に示す比較結果から、 溶体化処理材に比べて機械加工を施すことで試験片 表面付近の陽電子寿命が117.3 psから180.5 psまで増 加したことがわかった。したがって、機械加工によ り空孔型格子欠陥が導入されることが確認された。



Fig. 4 Positron lifetime comparison between ST and grinding.

3.2 応力改善工法による陽電子寿命の比較

各応力改善工法の施工効果を調べるために、溶体 化処理材、機械加工まま材、LP施工材、バフ研磨施 工材、WJP施工材の5つ試験片に対して陽電子寿命 を測定した。その結果をFig.5に示す。全試験片を 比較すると、溶体化処理材<Buff<機械加工まま材 <WJP施工材<LP施工材の順に陽電子寿命が増加 することが確認できた。これは試験片への応力改善 工法の施工により、格子欠陥が導入されたことを示 していると考えられる。また、バフ研磨施工材にお いては、応力改善工法施工前の機械加工材とほぼ同 等の陽電子寿命が得られた。これは、バフ研磨施工 では試験片表面が除去されるため、その時にバフ研 磨加工によって導入された格子欠陥の一部も同時に 除去され、バフ研磨前の機械加工面が露出するため と考えられる。

次に、三工法を比較すると、Buff<WJP<LPの順 で陽電子寿命が長くなる結果となっている。このこ とから、Buff<WJP<LPの順で試験片表面付近に導 入される格子欠陥密度が高くなっている増加するも のと考えられる。

3.3 試験片深さ方向の陽電子寿命比較

各応力改善工法の深さ方向の施工効果を確認する ために、試験片表面付近と内部の二か所で陽電子寿 命を測定した。その測定結果を Fig. 6 に示す。試験 片内部での測定位置の深さは図中に示したとおり試 験片表面から 0.3 mm である。

試験片表面と試験片内部を比較すると、内部では、 表面に比べ陽電子寿命値が減少することがわかる。



Fig. 5 Comparison of positron lifetime of various residual stress improvement methods.

すなわち、試験片内部では試験片表面に比べて格子 欠陥の存在量が少ないことがうかがえる。特に、バ フ研磨施工材では試験片内部の陽電子寿命値は大幅 に低下することがわかる。これに対して、LPとWJP 施工材では(特にLP施工材)、試験片内部の陽電子 寿命がほとんど減少していないことがわかる。この 結果より、バフ研磨に比べてLPとWJPでは施工に より導入された圧縮残留応力が施工面から深い領域 にも安定的に存在することが推測できる。

3.4 熱時効前後の陽電子寿命比較

熱時効の影響を調べるために、熱時効(713 Kで、 保持時間 50 時間)した試験片表面付近の陽電子寿命 を測定した。その結果を熱時効前の試験片と比較し て Fig. 7 に示す。熱時効した試験片については、熱 時効前の試験片に比べ陽電子寿命が減少することが 認められた。このことから、各工法施工によって導 入された格子欠陥が熱時効によって低減することが 示唆される。しかしながら、熱時効後においても、 試験片表面では溶体化処理材に比べて大きな陽電子 寿命が維持されていることから、熱時効後も各工法 施工によって導入された格子欠陥が残存することが 推測される。

代表として熱時効前後機械加工なしのWJP施工材 に対して、陽電子寿命計測で得られたスペクトルを3 成分解析し、全空孔型欠陥に対する転位と空孔の量 を算出してTable 2 に示す。熱時効によって空孔はほ ぼ全部消滅したことが確認できる。熱時効によって 転位密度は低減したが、熱時効後においてもST材と 比較して高い値を示しており、熱時効後においても 格子欠陥の存在が確認された。つまり、応力改善工 法の施工材に対して、熱時効によって空孔が大量に 消滅し、転位が部分的に残存していることになる。 以上の結果から、初期緩和は主に空孔の消滅による ものであり、部分的な転位の残存により長期安定で あることが推測される。

3.5 陽電子寿命と硬さの関係

応力改善工法の施工材の陽電子寿命が Buff<WJP <LPの順で長くなる傾向は、既報で示した硬さの変 化傾向と一致する[11]。このことをさらに明確にする ため、施工の種類及び熱時効の有無を含めた全試験 片について、硬さと陽電子寿命の関係を Fig. 8 に整 理した。この図からみられるごとく、試験片の硬さ と陽電子寿命がおおよそ正の相関がみられることが わかる。一方、既報[10]で示したごとく、硬さの低下 率と残留応力の緩和量に相関がみられた。これらの ことから、陽電子寿命と残留応力にも正の相関関係 があるものと推察される。



Fig. 6 Positron lifetime comparison between surface and inside of the sample.



Fig. 7 Positron lifetime comparison before and after thermal aging.





Fig. 8 Relationship between positron lifetime and hardness.

Table 2 Dislocation density and vacancy concentrationof WJP before and after thermal aging.

4. 残留応力緩和挙動の組織学的メカニズ ム検討

これまで示した結果から、高温環境下における応 力改善工法の施工により導入された圧縮残留応力の 緩和のメカニズムについて考察する。本研究で実施 した陽電子寿命法と過去の研究[12]で示した EBSD による結晶方位解析の結果より、応力改善工法を施 工した試験片に塑性ひずみと共に転位を含む格子欠 陥が導入されることが確認された。また、本研究で の格子欠陥について解析した結果(Fig.7とTable 2)か ら、各工法によって導入された格子欠陥は熱時効に より減少するものの、熱時効後もある割合は残存す ることが明らかとなった。すなわち、熱時効による 応力緩和時には塑性ひずみがわずかに緩和される様 子が見られたものの、溶体化処理材に比べ大きなひ ずみが残存することが判明した。以上のことより、 本研究条件範囲での熱時効においては、応力改善工 法の施工により導入された塑性ひずみに緩和する部 分と緩和しない部分があると考えることができる。 その結果導入された圧縮残留応力のある部分が緩和 されるものその他の部分は緩和されずに残り、これ が応力改善工法の施工部において高温保持後も圧縮 残留応力が安定して残存する[19-21]原因となってい るものと推察される。

以下では、応力改善工法の施工部に導入される格 子欠陥について考察する。格子欠陥とは原子空孔・ 空孔集合体・ボイド、転位などのことであり、格子 欠陥の減少はこれらの減少を意味する。したがって、 熱時効によって生じる格子欠陥の減少は、原子空孔 の減少および転位の再配列および減少などに起因す るものと推察される。ここで、Ni 基合金の再結晶温 度は 823~873 K といわれており、今回の熱時効温度 では再結晶は起こらないものと考えられる。また、 今回の時効温度は 713 K であり、一般的にクリープ 発生温度とされる 0.4~0.5 Tm (Tm:溶融温度(K)) より十分に低温である。以上のことから、熱時効に よる応力緩和の原因は、従来の知見通り、原子空孔 の消滅、転位の消滅や再配列をはじめとした回復現 象であるものと推測される。本研究で実施した陽電 子寿命の測定結果からも応力改善工法の施工部に導 入された格子欠陥のある部分が消滅することが示唆 された。

次に、熱時効後も残留応力の緩和しない部分につ いて考察する。熱時効後も残存する格子欠陥は、こ の緩和しない部分に何らかの影響をもたらしている と考えられる。熱時効による回復時にはまず原子空 孔などの点欠陥の消滅がおこり、次いで転位の消滅 や低エネルギー状態への再配列が起こる[22]。本研究 結果でも熱時効により格子欠陥が大きく減少してい る。 この場合、加熱温度があまり高くない温度域の 熱時効では、原子空孔や空孔集合体が大きく減少す るのに対して、転位はそれほど多く消滅せず残存す ることが想像される。すなわち、熱時効後も残存す る格子欠陥の多くは転位であることが推察され、こ のような転位の存在が残留応力のある部分が残存す る原因となっている可能性が考えられる。

以上述べた応力改善工法の施工部に導入された残 留応力の残存に関するメカニズムを模式的に Fig. 11 に示す。この図に示すごとく、ピーニング施工によ り導入された空孔および転位は、熱時効により減少 するが、転位の中には消滅せずに一部は再配列する などを行い、比較的安定な形で残存する可能性が考 えられる。このように残存する転位が原子力プラン トの運転時の高温保持過程においても応力改善工法 の施工部に導入された残留応力が長期に渡る安定的 な残存に寄与するのと推察される。



Fig. 11 Mechanism of residual stress relaxation during thermal aging.

5. 結言

本研究では、残留応力改善工法によって導入され た圧縮残留応力の挙動メカニズムを組織学的に解明 することを目的として、機械加工施工材、および、 それにLP、WJP、バフ研磨を施工した試験片につい て、陽電子寿命法による陽電子寿命測定を行い、工 法および熱時効による格子欠陥ならびにひずみの挙 動の差異を検討した。得られた主な結果を以下に示 す。

- 陽電子寿命法において、LP、WJP、バフ研磨を 施工した材料の全てで溶体化処理材に比べ大き な陽電子寿命が得られた。LP、WJP、バフ研磨 の三工法においてはLP>WJP>バフ研磨の順で 大きな陽電子寿命となった。
- LP、WJP、バフ研磨の施工材において、熱時効 による陽電子寿命の低下が見られた。
- 3) 熱時効による影響を受けた後でも、LP、WJP、 バフ研磨の施工面付近において溶体化処理材に 比べて大きな陽電子寿命が維持されていること から、熱時効後も格子欠陥が残存していると推 測された。
- 4) 応力緩和挙動は原子空孔や空孔集合体や一部の 移動しやすい転位などの格子欠陥の減少に伴う 回復によるものと推察した。
- 5) 熱時効後も格子欠陥が残存することにより、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)に関する現在まで 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", Proceedings of the 16th

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] 于 麗娜, 才田一幸, 西本和俊, 千種直樹:
 "EBSD 解析による Ni 基合金応力緩和過程の組織学的検討", 保全学, Vol. 19, No. 4, pp. 99-106 (2021).
- [13] K. Sugita, N. Matsuoka, M. Mizuno, H. Araki: "Vacancy formation enthalpy in CoCrFeMnNi high-entropy alloy", Scripta Materialia, Vol. 176, pp. 32-35 (2020).
- [14] 山脇正人:"サブナノ・ナノ空孔評価のための陽 電子寿命測定技術の現状と課題",産総研計量標

準報告, Vol. 8, No. 3, pp. 367-381 (2011).

- [15] 長谷川雅幸: "陽電子消滅法の原理と格子欠陥研 究", まてりあ, Vol. 35, No. 2, pp. 93-102 (1996).
- [16] 山下孝子,勝山仁哉,佐藤馨,水野正隆,荒木 秀樹,白井泰治: "陽電子消滅法を用いた Fe-Cu 合金の低温時効硬化の評価",鉄と鋼, Vol. 97, No. 11, pp. 18-25 (2011).
- [17] P. Kirkegaard, M. Eldrup, O. E. ogensen and N. J. Pedersen: "Program system for analysing positron lifetime spectra and angular correlation curves", Computer Physics Communications, Vol. 23, pp. 307-335 (1981).
- [18] P. Kirkegaard and M. Eldrup: "POSITRONFIT extended: A new version of a grogram for analysing positron lifetime spectra", Computer Physics Communications, Vol. 7, pp. 401-409(1974).
- [19] 前口貴治,堤一也,豊田真彦,太田高裕,岡部武 利,佐藤知伸: "ピーニングによる応力腐食割れ 防止効果に関する研究",日本保全学会第7回学 術講演会要旨集, pp. 568-571 (2010).
- [20] 齋藤昇, 波東久光, 吉久保富士夫, 守中廉: "WJP による残留応力改善効果の持続性評価", 日本材 料学会 第 59 期 学術講演会講演論文集, pp. 307-308 (2010).
- [21] D. Y. Ju, B. Han: "Investigation of water cavitation peening-induced microstructures in the near-surface layer of pure titanium", Journal of Materials Processing Technology, Vol. 209, pp. 4789-4794 (2009).
- [22] 義家敏正: "金属材料の照射効果と格子欠陥研究の最前線 点欠陥集合体の1 次元運動とボイド成長を中心に—",日本金属学会誌,Vol. 73,No. 2, pp. 65-73 (2009).
 (2020年5月19日受理,2020年9月2日採択)