

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2010～2013

課題番号：22560736

研究課題名(和文) 蛍光磁粉マイクロカプセルを利用した原子炉熱交換器伝熱管内壁検査技術の高度化

研究課題名(英文) Upgrade of the inspection technique by the capsule which included magnetic particles

研究代表者

伊東 富由美 (ITO, Fuyumi)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究職

研究者番号：10549489

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円、(間接経費) 960,000円

研究成果の概要(和文)：渦電流探傷試験による電気信号結果だけでなく磁粉探傷試験(MT)による目視観察を行う事で、伝熱管内壁検査の高精度化を目指す事を目的とした。磁粉液を散布するMTの欠点を補完するため、磁粉内包蛍光カプセル(MPMC)の作製及び評価を行った。MPMCの移動速度及び観察結果より、磁粉濃度は6.7wt%が妥当であると判断した。6.7wt%MPMCを模擬欠陥試験片に散布し、複合型光ファイバ先端に取付たレーザトーチにより観察した結果、欠陥部にMPMCが集合する事を確認した。加えて、1インチ管に挿入可能な磁化器を作製し磁粉分散液(市販)を散布した結果、A型試験片(15/50)欠陥部に磁粉が集合する事を確認した。

研究成果の概要(英文)：Our purpose is an upgrade of the inner wall inspection. The magnetic particle micro capsule (MPMC) was based on the laser fusion target technology. Because the conventional microencapsulation method could not provide sufficiently spherical balls and capsules, the density-matched  $W_i/O/W_o$  emulsion method was developed for generic polymers. Density-matched emulsions were produced by a hand shaking method. And then, these emulsions became capsules by heating. The content rate of the magnetic particle is 6.7wt%. We observed the crack by using these MPMCs, a magnetizer (magnetomotive force: 1099AT), the laser torch, and the composite-type optical fiber. When the pipe was magnetized, these 6.7wt%MPMCs assembled on the crack (length: 10mm, depth: 50um). In addition, we manufactured a small size electromagnet. And then we sprayed these commercial magnetic particles dispersion liquid on the A type test piece. As the result, these magnetic particles gathered on the crack of this test piece.

研究分野：材料加工・処理

科研費の分科・細目：表面・界面制御

キーワード：マイクロカプセル 磁性 漏洩磁束密度

### 1. 研究開始当初の背景

現在までに国内外問わず蒸気発生器(SG)伝熱管内壁の水側からの腐食による事故が発生しており検査・補修技術が重要である。しかしながら、検査により欠陥部を発見した場合、欠陥部が存在するSG伝熱管全体の交換を行っており、欠陥を補修して使用するに至っていないのが現状である。この欠陥を微小な段階で発見する事で補修作業が容易になるという利点があるため、微小欠陥のうちに検査する必要がある。現在は主に渦電流探傷試験(Eddy Current Testing: ECT)により欠陥部の有無を発見している。このECT試験は計測結果が電気信号として得られるため高速な検査が可能という長所があるものの、材料の磁気特性や微小な形状の変化に影響を受けやすいという短所がある。

### 2. 研究の目的

非破壊検査として、超音波探傷試験・ECT・磁粉探傷試験(Magnetic Particle Testing: MT)などの超音波や電磁場を用いる方法がある。ECTの短所を補完する技術として、複雑な形状および深さが数 $\mu\text{m}$ の微小欠陥をも検出可能なMTに応用し、SG伝熱管内壁検査に適用させることが目的である。

MTとは、強磁性体に磁場を加え、欠陥部に生じた漏洩磁場により磁粉を磁化させ、欠陥部に生じた磁極に磁粉を吸着させる手法であり、磁粉の磁気模様の有無により欠陥の検出が行われる。しかし、このMTをSG伝熱管に適用する場合、伝熱管内に磁粉液を散布する必要があるという短所がある。一般に使用されている磁粉の粒径は $0.2\sim 60\mu\text{m}$ と微細であり、観察後の欠陥内部に吸着した磁粉除去は困難である。さらに、暗室での観察に用いる蛍光磁粉の場合、時間経過とともに磁粉と蛍光色素が分離するため、補修作業を行う際に、残存した磁粉は不純物となり、補修不良の原因となるおそれがある。

一方、カプセルは液体や固体物質を壁膜物質で被覆したものであるが、被覆しない場合と比べると、多種多様な性質を持たせることが可能である。とりわけレーザ慣性核融合の燃料ターゲットにおいては、極めて高精度な形状のマイクロカプセル(Micro Capsule: MC)製造技術が要求されている。そこで本研究では、磁粉液をMC中に収めることにより、MT試験後に磁粉を容易に除去することができる磁粉内包蛍光MCの開発を行う。これにより、MT試験の短所である試験後の磁粉の残留問題の解決を試みる。この磁粉内包蛍光MCを利用したMTにより、SG伝熱管内検査はECTによる電気信号の結果だけでなくMTによる目視観察も行うため、より検査精度が向上する。

### 3. 研究の方法

#### (1) 磁粉内包蛍光MCの作製

エマルジョンを安定化させるため、油相(O

相)と水相(W1相)の密度を一致させ、重力の影響を緩和する方法で作製し、溶媒散逸過程におけるO相の壁膜の厚みを一樣にする攪拌過程を経て、市販の磁粉を内包した磁粉内包蛍光MCを作製した。エマルジョンのO相は、溶媒の散逸後に残留した高分子がカプセルの殻になるため、高分子を溶解した有機溶媒を用いた。W1相は磁粉・0.05wt%界面活性剤・純粋であり、W2相は5wt%ポリビニルアルコール水溶液である。W1相の0.05wt%界面活性剤を加えることにより、容易にエマルジョンを作製することが容易となる。また、W1相の磁粉濃度が0.1, 0.2, 2.0, 6.7, 10, 20, 100wt%になるように調整した。O相はベンゼンと1,2-ジクロロエタンの混合有機溶媒に高分子であるポリスチレンを溶解させた液体である。これら3種類の溶液密度を調整することにより、溶媒散逸過程でのエマルジョン崩壊を軽減することが可能となる。大量に使用するW2相およびW1相の密度は約1.05であるため、ベンゼン(密度:  $0.876\text{g}/\text{m}^3$ 、沸点:  $80.1^\circ\text{C}$ )と1,2-ジクロロエタン(密度:  $1.235\text{g}/\text{m}^3$ 、沸点:  $83.5^\circ\text{C}$ )の比率を変化させてO相の密度も1.05に調整した。

図1に示すように、サンプル瓶にO相(4.5mL)・W1相(3mL)の順に入れ攪拌することによりW1相をO相に内包するW1/Oのエマルジョンを作製した。その後、攪拌機を用いてW2相(500mL)を500rpmで攪拌させ、この中にW1/Oエマルジョンを投入し分散させた。500rpmで10秒間攪拌した後、200rpmまで減速し70 $^\circ\text{C}$ で2時間加熱攪拌を行った。2時間経過後、溶媒の散逸状態を確認するため一部を取出し、ポリスチレンがカプセル化したことを確認し、W2相を取り除くため洗浄し、水中での保管を行った。

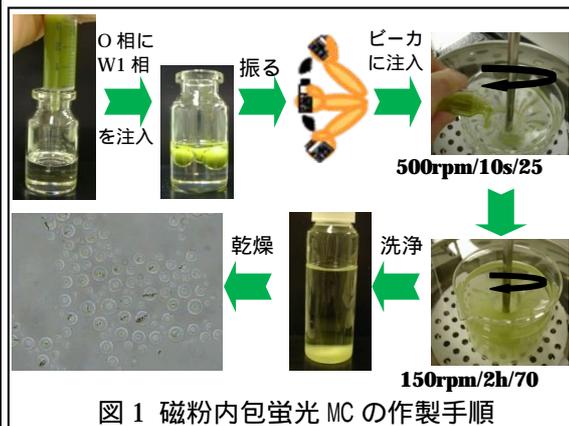


図1 磁粉内包蛍光MCの作製手順

#### (2) 磁粉内包蛍光MCの性能評価

磁粉内包蛍光MCを実機に適用する場合、高精度かつ短時間での検査が必須であり、磁粉内包蛍光MCの移動速度および移動量を評価するため、起磁力が100ATおよび200ATの電磁石を作製した。その後、磁粉内包蛍光MCを水中に浮遊させた直径80mmシャーレ底部に電磁石を置き磁化させた。加えて、配管内壁欠陥に付着した磁粉内包蛍光MCを観察するためには、外部からの照明光が必要と

なる。照明光として白色光および紫外光を用い、磁粉濃度の異なる磁粉内包蛍光 MC の顕微鏡観察を行った。

(4) 磁粉内包蛍光 MC を用いた模擬試験

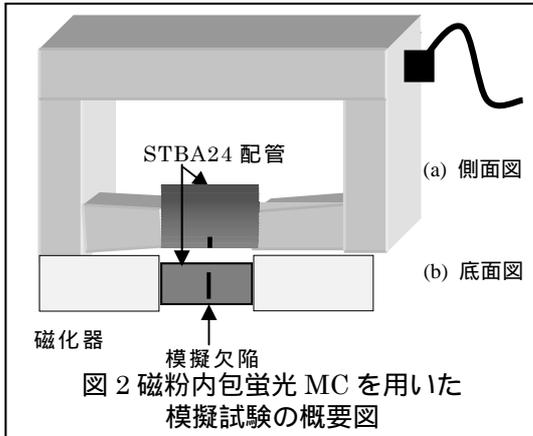
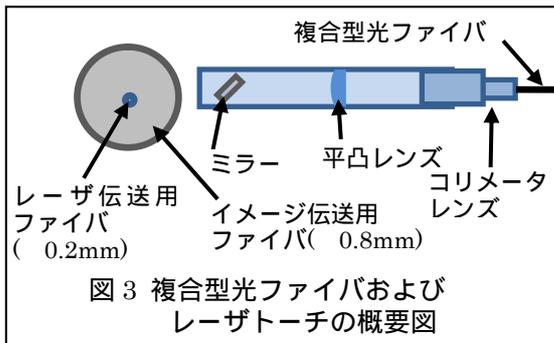


図 2 磁粉内包蛍光 MC を用いた模擬試験の概要図

内壁に欠陥(深さ: 50  $\mu\text{m}$ ・長さ: 10mm・幅: 0.6mm)を付けた 1 インチの STBA24 配管(化学成分: C: 0.15; Si: 0.5; Mn: 0.3 - 0.6; P: 0.03; S: 0.03; Mo: 0.87-1.13; Cr: 1.9 - 2.6)を準備した。図 2 に示すように、模擬欠陥が下部になるように設置し、また磁粉内包蛍光 MC 分散液の散布後、市販磁化器により配管を磁化させた。その後、図 3 に示す複合型光ファイバ先端部に取り付けたレーザーチを挿入し内部観察を行った。



(5) 小型磁化器の作製および性能評価

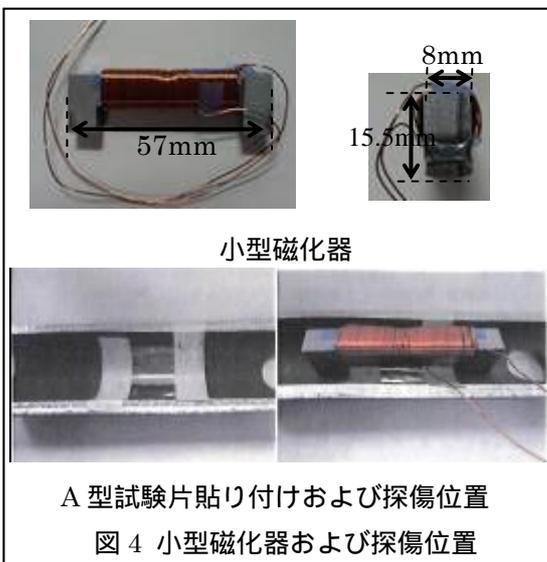


図 4 小型磁化器および探傷位置

1 インチ配管に挿入するため直径 15.5mm、長さ 57mm の磁化器の作製を行った。配管への接地面は 8mm  $\times$  8mm とし、空気中への磁束漏れを防ぐため、接地面を配管の湾曲と一致させた。その後、1 インチ配管を 1/2 にカットした配管内壁に A1 型試験片を貼り付け、磁粉 (FY-6400S(0.8g/L)) および磁粉分散剤 (PRC-04(5g/L)) の分散液を散布し、小型磁化器の性能評価を行った。A1 型試験片(15/50)とは厚み 50  $\mu\text{m}$  の平板に、円状の人工欠陥(深さ 15  $\mu\text{m}$ )を有した試験片である。

4. 研究成果

(1) 磁粉内包蛍光 MC の作製結果

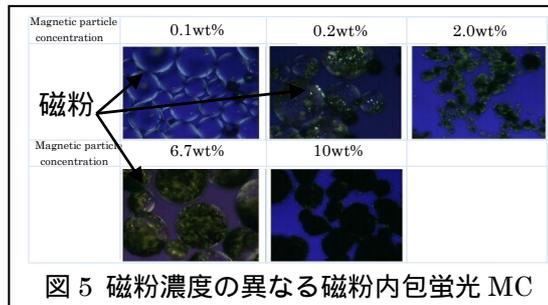


図 5 磁粉濃度の異なる磁粉内包蛍光 MC

MC に内包する磁粉分散濃度を变化させてカプセル作製を試みた結果、50wt%磁粉内包蛍光 MC の場合、形状は球形ではなく楕円形状であった。O 相に含まれるポリスチレンは、重合による MC 法に比べて、重合反応中の密度増加および単量体の影響が少ないため、歪みや気泡の欠陥が生じにくいという長所があるにもかかわらず、楕円形状が得られた。この原因として、O 相・W1 相・W2 相の密度不整合が考えられる。MC 作製過程において、重力を緩和した状態で作製する必要があり、O 相・W1 相・W2 相の密度整合は不可欠である。しかし W1 相の場合、0.05wt%界面活性剤を溶解させた水溶液の密度は 1.05 であるが、磁粉の見掛け密度は 2.2g/ $\text{m}^3$  以上である。そのため、時間経過とともに磁粉が下部に沈降することを溶液調整段階で確認した。沈降する前に O 相の有機溶媒を散逸することができれば、エマルション崩壊を防ぐことが可能となる。磁粉内包蛍光 MC の磁粉濃度が低い場合、下部に沈降する磁粉量が少ないためエマルションは崩壊せず、50wt%磁粉内包蛍光 MC の場合、加熱攪拌中にエマルション内に磁粉が沈殿し、さらに攪拌中のエネルギーがエマルションに加わるため、形状が変形したと推察される。10wt%および 20wt%磁粉内包蛍光 MC では、磁粉内包蛍光 MC 同士の集合する傾向が認められた。これは磁粉内包蛍光 MC 自体が磁化体となり集合したと推察する。しかし、0.1wt%磁粉内包蛍光 MC の場合、磁粉内包蛍光 MC の集合は確認できなかった。乾燥後に撮影した 0.1 ~ 6.7wt%磁粉内包蛍光 MC を図 5 に示す。図 5 の MC 内部にある部分は磁粉であり、一カ所に集合していることが確認できる。これは密度の高い磁粉が有機溶媒の散逸後に下部

に溜まったと考えられる。  
 また、W1相とO相の攪拌によりO相にW1相が分散し、この分散したW1の大きさが磁粉内包蛍光MCの内径であることを確認した。そこで、微粒子の大きさを制御するため、W1相とO相の攪拌速度を変化させた結果、磁粉内包蛍光MCの直径はこれに応じて変化することを確認した。従って、攪拌速度をパラメータとすることで、検出対象の欠陥部の大きさに適した磁粉内包蛍光MCの作製が可能である。

(2) 磁粉内包蛍光 MC の性能評価結果(磁粉内包蛍光 MC の移動速度および顕微鏡観察)

Magnetic particle concentration	0.1wt%	0.2wt%	2.0wt%
			
Magnetic particle concentration	6.7wt%	10wt%	20wt%
			

図 6 起磁力 100AT 場合の磁粉内包蛍光 MC 移動変化

内包した濃度が 10wt%以上の磁粉内包蛍光 MC の場合、起磁力が 50~100AT では僅かに引寄せられた。一方、0.1wt%磁粉内包蛍光 MC の場合、起磁力が 200AT でも引寄せられなかった。この理由として 0.1wt%磁粉内包蛍光 MC の場合、内包した磁粉濃度が僅かなためと考えられる。一般に磁束部分に磁粉が集合するが、0.1wt%磁粉内包蛍光 MC の場合、磁粉が一部に集合しているため、磁粉以外の MC 部分が大部分の磁束を占める結果となる。そのため一部に集合する磁粉の吸引力が小さくなり、集合できなかつたと推察する。

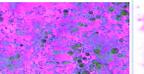
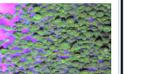
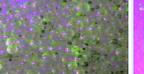
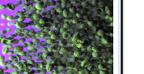
	0.2wt%	2.0wt%	20wt%
落射			
側面			
落射			

図 7 照明光を白色光と紫外光を用いた場合の磁粉内包蛍光 MC の様子

図 7 は 2 種類の照明光(紫外光および白色光)を用い、磁粉濃度の異なる磁粉内包蛍光 MC に照らした顕微鏡結果である。紫外光および白色光を落射照明により観察した場合、0.2wt%磁粉内包蛍光 MC の位置特定は困難であった。2.0wt%および 20wt%磁粉内包蛍光 MC の場合、位置確認は可能であるが、底面の反射光も取り込むため、内包した磁粉のみ確認ができた。一方、紫外光を横方向から照射した場合、0.2wt%磁粉内包蛍光 MC はカプセルの殻部分に反射した紫外光を確認することができ、2.0wt%磁粉内包蛍光 MC

は紫外光が内包した蛍光色素に吸収され、蛍光を発することが確認できた。20wt%磁粉内包蛍光MCは紫外光を左側面からの照射により磁粉内包蛍光MCの左側面の発光は確認できたが、磁粉内包量が多いため内部に紫外光を透過できず磁粉内包蛍光MCの右側面の発光は認められなかった。これらの結果より、照明光は側面からの照射が適当である。

(4) 磁粉内包蛍光 MC を用いた模擬検査結果

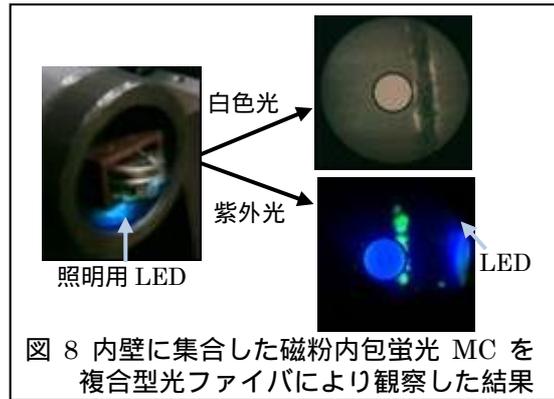


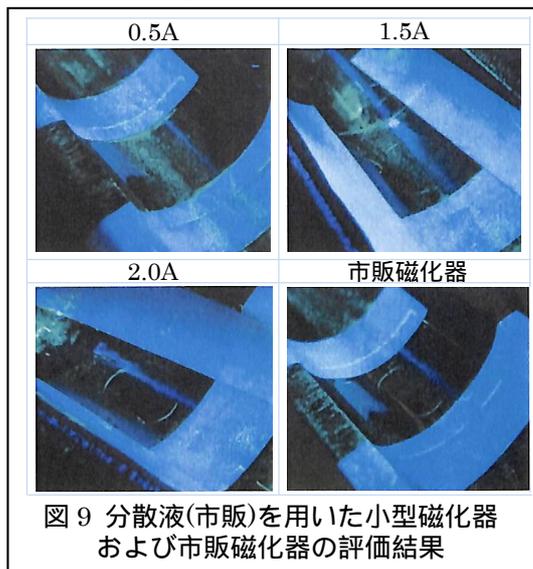
図 8 内壁に集合した磁粉内包蛍光 MC を複合型光ファイバにより観察した結果

MT を試験片に用いる場合、無欠陥の強磁性体では空気よりも強磁性体の透磁率が大きいので、磁束は強磁性体内部にのみ分布し、周りの空間中には漏洩しない。一方、強磁性体中に欠陥が存在する場合、欠陥部分の透磁率は小さいため磁束は欠陥部を迂回して分布し、その一部は空間に漏洩する。ここに磁粉液を塗布すると、磁粉が磁化され欠陥の形状に沿って磁粉が付着し磁粉模様が形成される。強磁性体である STBA24 の磁化後、図 3 に示す複合型光ファイバの先端部に組込んだレーザトーチにより観察中の様子(左図)および配管内壁の様子(右図)を図 8 に示す。光ファイバによる観察位置を容易に観察するため、トーチ先端部に容易に交換ができる LED 照明機構を取付けた。LED に紫外光を用いた場合、欠陥部への磁粉内包蛍光 MC を鮮明に確認したが、磁粉内包蛍光 MC 以外の確認は困難である。そのため ECT の短所である磁気特性や微小な形状の変化が大きい肉盛溶接部までは白色光で観察し、磁粉内包蛍光 MC を用いた MT 時には紫外光を用いることで時間短縮を図る。

(5) 1 インチ配管に挿入可能な小型磁化器

電流値を 0.5~2.0A まで変化させて、磁粉液を試験片に散布した結果、図 9 に示すように 1.5A から磁粉模様が僅かに求められ、2.0A で明瞭な磁粉模様が得られた。さらに、市販磁化器と小型磁化器との比較を行った結果、有意な差は確認できなかった。この結果から小型磁化器を用いた場合 2.0A 以上の電流値にすることにより、配管内部に存在する欠陥の確認が可能である。さらに電流値が 2.0A の時間経過による温度上昇を熱電対により測定した。図 4 に示す小型磁化器を空气中(25 )およびモールドによる断熱影響を得

るためエアーの緩衝材を磁化器のヨーク部に巻いた状態でコイル中央の温度測定を行った結果、空気中の場合、通電開始 20 秒後に 2.5、40 秒後に 6.5、60 秒後に 7.0、80 秒後に 7.5 と徐々に温度上昇するが、磁化器のヨーク部に緩衝材を用いた場合、通電開始 20 秒後に 4.5、40 秒後に 8.0、60 秒後に 12.0、80 秒後に 16.5 と急激な温度上昇を確認した。温度上昇により、コイルの断線が容易に生じるため 80 秒以内に検査する必要がある。



#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 2 件)

“Fabrication and Application of Microcapsules Including Fluorescent Magnetic Particles for Crack Inspection of Pipes”, F. Ito, A. Nishimura, The Materials Research Society of Japan, **38**, 4, pp.667-672, (2013). (査読有)

“Fabrication of Micro Capsule Containing Fluorescent Magnetic Particles for Advanced Inspection Heat Exchanger Tubes”, F. Ito, A. Nishimura, E-Journal of Advanced Maintenance, **4**, 2, pp.57-63, (2012). (査読有)

[学会発表](計 5 件)

“Development of an Inspection Probing System Using Remote Imaging and Spectroscopy for Aging Power Plants”, F. Ito, A. Nishimura, SOCIETY OF PHOTO-OPTICAL INSTRUMENTATION ENGINEERS (2014 年 2 月 4 日、サンフランシスコ(アメリカ))

“原子炉配管狭隘部の検査補修のためのカップリング装置”, 伊東富由美, 富吉健太郎, 西村昭彦, 第 78 回レーザー加工学会講演会(2012 年 12 月 13 日アクトシティ浜松コンgresセンター(静岡県))

“Fabrication of Micro Capsule Packed with Fluorescent Magnetic Particles for Crack Inspection on Piping System”, F. Ito, A. Nishimura, IUMRS-International Conference on Electronic Materials (2012 年 9 月 25 日、パシフィコ横浜(神奈川県))

“高経年化プラント配管内壁の検査補修技術開発”, 伊東富由美, 西村昭彦, 米本幸弘, 寺田隆哉, 島田幸洋, 日本保全学会 第 9 回学術講演会(2012 年 7 月 27 日、一橋大学一橋講堂(東京都))

“マイクロカプセル作製技術の磁粉探傷試験への応用”, 伊東富由美, 西村昭彦, 乗松孝好, 長井圭治, 日本保全学会 第 7 回学術講演会(2010 年 7 月 14 日、浜岡原子力館(静岡県))

#### 6. 研究組織

##### (1)研究代表者

伊東 富由美 (ITO, Fuyumi)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究職  
研究者番号：10549489

##### (2)研究分担者

福岡 克弘 (FUKUOKA, Katuhiro)  
滋賀県立大学・工学部・准教授  
研究者番号：40512778

##### (3)連携研究者

西村 昭彦 (NISHIMURA, Akihiko)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・主任研究員  
研究者番号：90370452