A-55 原子力プラントへの形状記憶合金の適用

Application of Shape Memory Alloy in Nuclear Power Plant

○ 服部 成雄(日立)正 小山田 修(日立)正 榎本 邦夫(日立)

Shigeo HATTORI, Osamu OYAMADA, Kunio ENOMOTO Hitachi, Ltd.

In order to utilize a Ni-Ti-Nb SMA in BWR type nuclear power plants, essential material properties such as mechanical properties and fatigne strength were experimentally evaluated. Tensile strength and ductility of the SMA are almost constant in the temperature range 293K-561K(BWR operating temperature). The fatigue strength at 561K is higher than that at the room temperature, and is not influenced by a simulated BWR water environment.

After confirming good properties of the SMA coupling under the inreactor conditions, the coupling was subjected to a verification test of in-core monitor (ICM) housing replacement technology. Precise structural reliability analyses and full scale mock-up test demonstrated the sufficiently good performance of the SMA coupling. In 1997 the SMA coupling was actually applied in the ICM l

In 1997, the SMA coupling was actually applied in the ICM housing replacement at Fukushima Daiichi Unit No.4.

Key Words : Shape memory alloy, Fatigue, Tensile properties, BWR, In-core monitor housing

1. 緒 言

一般に原子力プラントに用いられる材料には厳密な信頼 性が要求されることから、歴史的に十分工業用途での実績 があり、諸特性が把握されたものが用いられている。要求 される特性としては①機械的強度・靱性、②疲労強度、が ほとんどの重要構造材に共通しており、その他は製作・使 用条件によって、③溶接性、④耐食性、⑤耐摩耗性、⑥耐 照射性などがある。

国内の発電用原子力プラントはその半数以上が沸騰水型 軽水炉(BWR)であり、初期のプラントは運転期間が約 30 年 になろうとしている。このようなプラントには、運転開始 初期にオーステナイト系ステンレス鋼(304 鋼)の一次系配 管溶接部で高温純水環境での応力腐食割れ(SCC)を経験し ているものがある。当該配管系に対しては、耐 SCC 性ステ ンレス鋼への取替えや、溶接残留応力低減工法などの SCC 対策がなされてきた。

しかし、原子炉圧力容器内の構造物については、その対 策実施が困難である。炉内の比較的上部にある構造物につ いては取替工法が確立し、初期プラントから順次、予防保 全として耐 SCC 材への取替えが進められている。アクセス が困難な炉底部の構造物に対しては、給水系からの水素の 微量注入による炉水の腐食性の緩和(水素注入)が予防保全 策として講じられている。一方、これら構造物についても 取替工法の開発、適用化が進められてきた。その一例とし て SCC 事例のある中性子計測モニタ(ICM)の収納管(ハウジ ング)があり、民間・国の連携のもとで取替工法の開発と実 証がなされ実機に適用された。その中で、特筆すべき技術 の一つに、管状構造物締結への形状記憶合金(SMA)の適用 がある。これは、接合位置の厳密な特定が困難な部位に対す る、遠隔水中溶接が不可能に近いことによる。

ここでは、使用材料の選定に際して保守的な原子力プラ ントにおいて、工業的には斬新な材料である SMA を実用化 するに際して実施した特性確認研究¹⁾の一端並びに実機適 用の実績²⁾を紹介し、原子力分野が材料技術に対して単に 「保守的=信頼性」、という図式に捉縛されず、新規な材料 技術にも向かい合っていることを示したい。

2. 実験方法

2.1 供試材と試験片

供試材は化学成分を表1に示すとおり、Ni-Ti 系 SMA に Nb を約11%添加した Ni-Ti-Nb 系 SMA であり、形状回復温度 が約350K と高く、形状記憶後も室温保管が可能な SMA であ る。形状回復後(オーステナイト組織:A 相)の変態温度を表2 に示す。

供試材は図1に示すようなリング形状で、試験片はSMA を561Kに加熱して形状を回復させた後、図のように試験片 の軸方向をリングの周方向に一致させてワイヤ放電加工で 採取し、機械加工した。試験片の形状を図2に示す。

日本機械学会〔No.00-3〕材料力学部門分科会・研究会合同シンポジウム講演論文集 (研究の最前線:21世紀へ向けて)〔'00-3.30,31,東京〕 2.2 実験方法

引張試験は JIS Z 2241, JIS G 0567 に準拠して行った。 試験温度は 213K, 253K, 293K, 373K, 561K, 623K, 及び 673K の 7 温度である。

疲労試験は室温大気中(293K),高温大気中(561K)及び高 温純水中(561K)の3条件とした。各試験ともに荷重制御と し、応力比は R=-1, R=0, R=0.5の3条件である。高温水中 (561K)の試験は、溶存酸素濃度が0.2ppm、導電率が0.3 μ S/cm 以下の純水が循環するオートクレーブ中で行った。疲 労試験における応力繰返し速度は、負荷応力振幅に応じて 5Hz から20Hz とし、最大繰返し数は10⁷回とした。

Table 1 Chemical composition of Ni-Ti-Nb SMA

							(wt%)
Ni	Ті	Nb	С	Cu	Co	Fe	Тa
 51.1	37.5	10.7	0.005	<0.001	0.02	0.005	0.01

Table 2	Transformation temperatures	of	Ni-Ti-Nb
	SMA after shape recovery		(K)

Ms	Mf	As	Af	
162	115	197	240	

Ms : Starting temperature of martensitic transformation.

Mf : Finishing temperature of martensitic transformation.

As : Starting temperature of austenitic transformation. Af : Finishing temperature of austenitic transformation.



Fig. 1 Shape of SMA ring and sampling direction of tensile and fatigue specimens

- 3. 実験結果
- 3.1 機械的特性

引張試験の結果を図3に示す。図3(a)は引張強さと降伏 応力(0.2%耐力)の温度依存性を示す。Ni-Ti-Nb系SMAの引 張強さと降伏応力の温度依存性は、試験温度(T)に応じて三 つの領域(領域 I:T<293K,領域II:293K $\leq T \leq 561$ K,領域 II:561K<T)に大別される。

図 3(b)は伸びと絞りの温度依存性を示す。伸びと絞りは 温度の上昇に伴って徐々に増加し、561K を超えると絞りの 増加が大きい。

図 3 (c)は縦弾性係数の温度依存性を示す。縦弾性係数は 約 70GPa (213K) から約 90GPa (673K) へと、温度とともに 直線的に増加した。



Fig. 3 Effect of temperature on mechanical properties of Ni-Ti-Nb SMA



Fig. 4 Results of fatigue tests on Ni-Ti-Nb SMA

3.2 疲労強度

図 4(a), (b) 及び(c) に、室温大気中(293K),高温大気中 (561K) 及び高温純水中(561K) における試験結果をそれぞれ 示す。(a) では、応力比によらず S-N 曲線の折曲り点が 10⁵ 回程度の比較的短寿命側にあり、疲労限度が明確に現れた。 一方、(b) と(c) の結果では S-N 曲線の匂配が緩やかになり、 折曲り点が高サイクル側に移る傾向であった。

疲労限度(繰返し数 10⁷回疲労強度)は応力比の増加に伴って低下する。また、すべての応力比において、疲労強度

は室温大気中よりも高温大気中と高温純水中のほうが高い 値となった。

4. 考察

4.1 機械的特性に及ぼす温度の影響

SMAの機械的強度は図3(a)に示したように、温度(T)に応 じて三つの領域に大別される。領域I(T<293K)では、荷重 負荷の途中で、A相からマルテンサイト相(M相)への伸びを 伴う相変態が生じ、見かけ上、降伏応力が低下する。この 応力誘起相変態が生じた後はM相とA相の混合組織となり、 M相の強度がA相より低いため、変態が進むにつれて引張強 度は低下すると考えられる。図3(a)における最も低い試験 温度213Kでの結果は、低い応力でM相への変態が開始し、M 相の割合が大きくなったために、引張強度が最も低下した ことを示唆している。

領域Ⅱ(293K≦T≦561K)では、応力誘起相変態が生じる前 に、負荷応力が A 相の降伏応力に達してすべり変形を開始 し、その後 M 相に変態することなく、A 相の引張強度に達し て試験片が破断したと考えられる。領域Ⅲ(561K<T)では、 一般の金属材料と同様に、高温で材料の軟化が生じること を示しており、試験温度が上昇するにつれて機械的強度は 減少し、図 3(b)に示したように伸び、絞りは増加する。

4.2 疲労強度に及ぼす温度と環境の影響

引張温度の影響係数 f_r と、環境の係数 f_e とを式(1)と式 (2)のように定義し、温度と炉水環境が疲労強度に及ぼす影響を検討した。

 $f_{T} = \sigma_{a} (561 \text{K}) / \sigma_{a} (293 \text{K}) \cdot \cdot \cdot \cdot (1)$

ここで、

σ_a(561K):561K における疲労強度

σ。(293K):293Kにおける疲労強度

 $f_E = \sigma_a (water) / \sigma_a (air) \cdot \cdot \cdot \cdot (2)$

σ_a(water):純水中における疲労強度

σ_a(air):大気中における疲労強度

 f_{τ} 、 f_{E} と疲労寿命との関係を図 5 に示す。 f_{τ} と f_{E} はとも に 10⁴回から 10⁷回までほぼ一定値を示し、 f_{τ} は約 1.2、 f_{E} は約 1.0 である。すなわち、温度の影響は高温の方が疲労 強度が高くなると示されたが、炉水環境の影響は有意に示 されなかった。

別途実施した腐食試験(温度:288℃、溶存酸素濃度:8ppm、時間:5000h)においては、全面腐食や孔食がほとんど発生せず、Ni-Ti-Nb 系 SMA は耐食性に優れた材料であることを示す結果を得ている。室温大気中と高温純水中での疲労強度がほぼ等しくなったことは、Ni-Ti-Nb 系 SMA が繰返し応力下においても腐食等の環境の影響をほとんど受けないことを示している。

室温(293K)よりも高温(561K)における疲労強度が高くなった理由としては、縦弾性係数の差が主な要因であると考えられる。

4.3 疲労強度に及ぼす平均応力の影響

Ni-Ti-Nb 系 SMA は図 4 に示したように、応力比が増加す るに伴って疲労強度が著しく低下することから、平均応力 の影響を強く受けることがわかる。

疲労試験後の破面の SEM 写真の一例を図 6 に示す。破断 試験片の破面はすべて図 6 のように、疲労き裂が材料内部 に存在する介在粒子を起点として発生・進展して破壊に至 ることを示していた。一般的に延性に富む金属材料の疲労 損傷は、表面から発生することが多い。



Fig. 5 Effect of temperature and environment on fatigue strength of Ni-Ti-Nb SMA



Fig. 6 Fractograph after fatigue test



Fig.7 Microstructure of Ni-Ti-Nb SMA,matrix(A), Ti-rich precipitation(B) and Nb-rich precipitation(C)

Table 3 Chemical compositions of precipitates

			(wt%)
Chemical elements	Matrix(A)	Ti-rich precipitate(B)	Nb-rich precipitate(C)
Ni	53.9	36.4	12.1
Ti	41.0	53.2	15.9
NÞ	5.1	10.4	71.9



Fig. 8 EDX analysis of chemical composition at crack initiation point



Fig. 9 Proposed fatigue strength assessment curve for Ni-Ti-Nb SMA

一方、表面層を硬化させた材料の場合には、比較的短寿 命領域においても内部を破壊の起点とするフィッシュアイ が認められている。Ni-Ti-Nb 系 SMA の疲労破壊形態は表面 硬化材と似た、介在粒子を起点とした内部き裂発生の様相 を示している。

供試材の組織は図7に示すように、Ni-Ti-Nbマトリック ス中にTiリッチの硬い粒状の析出物と、Nbリッチの延性に 富む紡すい状の析出物が混在する組織となっている。表3 に析出物の化学成分を示す。疲労破壊の起点になっている 介在粒子をX線を用いて成分分析した結果、図8に示すよう にTiリッチの析出物であることがわかった。引張平均応力 の増加に伴って疲労強度の低下が大きくなる原因の一つと しては、材料中に存在するTiリッチの硬い析出物が欠陥と して作用することが示唆される。

疲労強度に及ぼす引張平均応力の影響を図 9 に示す。図 中には修正 Goodman 線図を示しているが、引張平均応力の 増加に伴って疲労強度は著しく低下し、 $\sigma_m/\sigma_B \ge 0.3$ では取 得データの多くが修正 Goodman 線図の下側となる。そのた め、Ni-Ti-Nb 系 SMA に対しては修正 Goodman 線図は非保守 的な評価となる。そこで、平均応力の影響評価式として式 (3)を提案する。

 $(\sigma_a/\sigma_a^*)^{n+}(\sigma_m/\sigma_B)^{m=1} \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot (3)$ ここで、 σ_a は応力振幅、 σ_a^* は R=-1 における応力振幅、 σ_m は平均応力、 σ_B は引張強さ、m は係数である。

なお、データのベストフィットカーブは m=3/4, データの 下限包絡曲線は m=2/3 である。したがって、式(3)を用いて m=2/3 とすれば、Ni-Ti-Nb 系 SMA の引張平均応力下の疲労強 度を保守的に評価できる。

5. 実機への適用

BWR では、国内外の経年プラントを中心に、304 鋼製の 炉内構造物の SCC による損傷事例が報告されている。この ため、SCC 発生を未然に防止する各種の予防保全技術が開 発され、プラントへの適用が進められている。³⁾

また、炉内構造物を耐SCC性材料製の新規構造物と取り 替える工法の開発も進められている。大規模な工法となる 場合が多いが、SCCの抜本的な対策となるため、予防保全 としても、万一の損傷発生時の対策としても有効である。

原子炉底部の貫通孔に取り付けられ、炉心の中性子東モ ニタを納める円筒状(内径:約38mm,板厚:約6mm)の 中性子計測(ICM)ハウジングに関しては、1988年、国内 プラントにてハウジング取付溶接部にSCCによる損傷が初 めて発見された。これを機に、BWRプラントの電力会社と メーカーが、予防保全/補修工法として、耐食肉盛工法³⁾ と取替工法の開発を共同で進めてきた。

ICM ハウジング取替工法では、既設のハウジング(図 10) を撤去し、耐 SCC 性に優れた材料から構成されるハウジン グを新たに取り付ける。取替え前後の構造比較を図 11 に示 す。

この中で、新規ハウジングと既設案内管を遠隔自動溶接 により接続するのは困難なため、SMA を利用したカップリ ングによる締結方法を採用した。これは、SMA カップリン グを両端に装着した新規 ICM 案内管を、既設 I CM案内管 の下端と新規 ICM ハウジング上端との間に設定し、蒸気を 供給して加熱し締結するというものである。SMA カップリ ングを所定の位置に設置する様子を図 12 に示す。

SMA カップリングは、2 個の SMA リングと SUS316 製 のライナとから構成される(図 13)。SMA リングは拡管し た状態にあり、約 100℃以上に加熱されると形状回復して収 縮し、ライナを塑性変形させる。ライナ内面には、突起状 の刃があり、この刃が ICM ハウジング及び案内管に食い込 むことにより締結される。SMA リングの形状記憶効果は一 方向性なので、プラント停止時に炉水温度が低下しても、 加熱前の SMA リング径に戻ることはない。

広く利用されている Ni-Ti 合金は、形状回復温度が室温 以下のため、冷却状態での保管・装着が必要となっている が、Ni-Ti-Nb 合金では、Nb 系析出物が相変態の障害とな って相変態温度が室温以上となっているため、室温での保 管・施工が可能である。

国内の BWR 炉内への適用実績のない SMA カップリン グに関しては、SMA 単体の化学組成、微細組織、相変態特 性、耐食性、機械的特性、中性子照射影響等を把握すると ともに、カップリングとしての引抜き強度、疲労強度、耐 食性(全面腐食、ガルバニック腐食、SCC)及び熱時効特 性を実験結果に基づいて評価し、地震時の荷重や流動振動 による疲労に耐える十分な締結強度を有すること、ならび に炉内環境下での耐食性にも優れていることを確認した。2)

また、(財)原子力発電技術機構による「原子力プラン ト保全技術信頼性実証試験」⁴⁾において、ICM ハウジング 取替工法の構造強度解析及び実規模モックアップ試験が行 われ、構造設計の妥当性が確認された。その中で、新規案 内管取付装置の機能試験を行い、所定位置への SMA カップ リングの設定と蒸気加熱ができることを確認した。モック アップ試験での SMA カップリングの装着状態を図 14 に示 す。

その後、福島第一原子力発電所 4 号機の定期検査中の 1997年、1本の ICM ハウジングのJ 溶接部に SCC による ひびが発見された。実証試験で確認された手法に基づいて、 対象部位の構造設計を行うとともに、対象部位に対する施 工手順及び条件を設定した。

取替工事は 1997 年 12 月に開始され、59 日間で完了した。新規 ICM 案内管設定及び SMA カップリングによる締結は5 日間であった。

今回開発された遠隔での溶接、加工、検査技術と並んで SMA カップリングの技術及び構造の長期健全性評価結果 は、炉内の他の部位の遠隔補修技術開発へ活用されていく ものと期待される。







Fig.11 Comparison of pre-and post-replacement structures



Fig.12 SMA coupling installation



Fig.13 SMA coupling



Fig.14 SMA couplings in the mock-up test

6. 結 言

Ni-Ti-Nb 系形状記憶合金の機械的特性と疲労特性に及 ぼす温度と環境の影響を明らかにした。また、BWR の ICM ハ ウジング取替工法の一環として SMA カップリングが実機に 適用された。結果を以下に要約する。

- 1)機械的特性の温度依存性として、降伏応力、引張強さ、 伸び、絞りはともに 293K から 561K の温度範囲でほぼ一 定値を示す。
- 高温(561K)の疲労強度は室温(293K)の疲労強度の約 1.2 倍高く得られた。
- 3) 高温純水中(561K)の疲労強度は高温大気中(561K)の疲労 強度と同等であり、高温純水環境の影響はほとんど無い。
- 4) 材料内部に存在する Ti リッチの粒状析出物が欠陥として作用するため、引張平均応力が大きくなると疲労強度は低下する。
- 5) Ni-Ti-Nb 系形状記憶合金の平均応力下の疲労強度を評価 する曲線を提案した。
 - $(\sigma_{a}/\sigma_{a}^{*})^{2/3}+(\sigma_{m}/\sigma_{B})^{2/3}=1$
- 6) 上記 SMA を利用したカップリングが BWR の ICM ハウジン グ取替工法において、新規 ICM ハウジングと既設 ICM 案 内管の締結に十分な有効性と信頼性を持つことが実証 され、東京電力福島第一原子力発電所4号機での SCC に よるひび割れ対策として適用された。

本研究の実施並びに ICM ハウジング取替工法の実証試験 においてご審議頂いた朝田泰英 東京大学名誉教授ならび に各委員の方々に感謝いたします。また、本研究の推進、 実機施工でご指導頂いた東京電力(株)山下裕宣氏、松本純 氏に感謝いたします。



(1) 小山田修、天野和雄、榎本邦夫、茂中尚登、松本純、 朝田泰英、機論、64-622. A(1998), 1667-1672

文

- (2) 小山田修、古川秀康、藤森治男、山下裕宣、松本純、 B. A. Jacobson、日本原子力学会誌、41-10(1999), 1075-1083
- (3) 成瀨明輔、服部成雄、榎本邦夫、遠藤丈典、日立評論, 74, (1992)17
- (4) 大坪徹、「炉内構造物の取替工法実証試験」平成10年度 火力原子力発電大会要旨集,(1998) p.98