原子炉圧力容器鋼材 (A302B 鋼) 溶接継手の 中性子照射試験*

藤村 理人** 中崎長三郎** 生田目 宏***

Neutro Irradiation Test on Reactor Pressure Vessel Steel (A302B Steel) Weldment*

by Tadato Fujimura** Chozaburo Nakazaki** and Hiroshi Namatame***

Abstract

The fast-neutron irradiation embrittlement of structural steels is an important problem in the design of the pressure vessel of a nuclear power reactor. Many studies have been made on the irradiation embrittlement of steels in foreign countries.

In Japan, plans are also in progress on the irradiation tests of domestic structural steels, and some have already been carried out by Research Committee of Irradiation Embrittlement of Steels, The Iron and Steel Institute of Japan, acting as the center's.

The present paper shows a part of above studies, the results of irradiation tests with JRR-2 of JAERI and also of the postirradiation tests of domestic steels, namely ASTM A302B steel, aluminium-killed steel and their weld metals.

The contents of this paper include (1) irradiation condition of JRR-2, (2) test rig for irradiation, (3) apparatus for the post-irradiation test, and (4) results of the irradiation embrittlement tests and tensile test.

The results obtained are as follows:

(1) The transition temperature shifts for brittle fracture at 6~9 n/cm² neutron doses were 67°C on A302B base metal, 107°C on its weld metal and 95°C on its bond metal.

(2) The change of tensile property due to neutron irradiation in aluminium-killed steel was larger than in A302B steel.

1. は し が き

原子炉圧力容器の設計条件および使用条件を検討するとき、中性子照射による鋼材の劣化をじゅう分考慮に入れなければならないことは、他の工業分野における圧力容器の設計条件と全く異なった新しい問題点である。このため、速中性子による圧力容器材料の照射損傷については、基礎研究および確性試験が海外およびわが国において精力的に進展している。

原子炉圧力容器は、じん性挙動を示す鋼材を使用する条件のもとに設計し、かつ使用温度範囲がきめられているので、鉄鋼材料の照射損傷のうち、照射ぜい化はもっとも直接に原子炉圧力容器の安全性に影響する重要な劣化因子として注目されている。このような照射ぜい化を国産鋼材について検討した報告はいくつかある¹⁻⁴⁾。著

者らは、日本原子力研究所東海研究所の JRR-2 (第2号研究炉) を利用して、国産鋼材の照射試験を進めてきた。すなわち、1963, 64年において、5MW 運転時において、鉄鋼材料の照射試験を実施し、その結果をすでに報告した¹⁾。その後、1966, 67年において 10MW 全出力運転時において、国産 ASTM A302B 改良鋼の溶接継手試験片の照射確性試験 (V シャルピ衝撃試験片および引張り試験片について) を4回実施した。本報告ではそれらの鋼材の照射試験およびホット・ラボラトリにおける照射後試験の結果を報告する。

2. 供 試 材 料

供試材料は八幡製鉄㈱で溶製した ASTM A302B 改良鋼 (最近の規格では ASTM A533B 鋼) である。その供試鋼板の板厚は 100 mm であり、Table 1 に化学成分および熱処理条件を示す。供試鋼板は Table 2 に示す溶接心線およびフラックスを用いて、サブマージ・アーク溶接法により溶接継手試験板を製作した。溶接条件を Table 3 に、開先形状を Fig. 1 に示す。K 型開

*原稿受付 昭和44年2月18日 (42年度秋季全国大会にて発表)

**正 員 日本原子力研究所 Member, Tokai Establishment, Japan Atomic Research Institute

***日本原子力研究所東海研究所 Takai Establishment, Japan Atomic Research Institute

Table 1 Tested A302B Steel Plate

Chemical composition (%)										Remark
C	Si	Mn	P	S	Cu	Ni	Cr	Mo	Al(Sol.)	
0.18	0.23	1.23	0.016	0.008	0.06	0.02	0.10	0.50	0.014	Ladle analysis value

Plate thickness : 100 mm

Heat treatment :

Normalizing—Temperature 930°C

Keeping time 4 hrs

Quenching —Splay cooling

Tempering —Temperature 650°C

Keeping time 4 hrs

Table 2 Composition of Welding Rod and Flux

(a) Welding rod (%)

System	C	Si	Mn	P	S	Cu	Ni	Cr	Mo
Mn-Ni-Mo	0.10	0.05	2.14	0.013	0.010	0.10	0.52	0.10	0.51

(b) Flux (%)

SiO ₂	CaO	MgO	MnO	Al ₂ O ₃	Others
29.80	30.54	20.54	0.23	9.80	9.05

Table 3 Welding performance

Pass No.	Rod dia (mm)	Flux grade (mesh)	Current (A)	Voltage (V)	Preheating (°C)	Interpass temp. (°C)
1~5	4.0	12×65	400	27	200~250	200~250
6~9	4.8	48×D	600	30	"	"
10<	4.8	48×D	700	25	"	"
Surface	4.8	48×D	700	25	"	"

Fig. 1 Type of welding joint

先を使用した理由はボンド部より試験片の採取を容易にするため、垂直のボンド部をつくることを考慮したためである。

以上のようにして、製作した溶接継手試験板を、実際施工上の溶接後熱処理として、625°C に 4 時間保持した。その昇温条件は 600°C より 625°C まで 50°C/hr 降温条件は 300°C まで 50°C/hr であり、以後急冷し

た。この施工条件は ASME の原子炉压力容器設計基準に準拠したものである。このような後熱処理サイクルを 5 回繰返し施工し、625°C の保持時間の総計は 20 時間である。

Table 4 は溶接継手試験板の母材および溶着金属の化学成分を示す。Fig. 2 は溶接試験板よりのシャルピ衝撃試験片の採取位置を示す。引張試験片の採取も同様な方法で採取している。

3. 試験装置

3.1 照射条件

JRR-2 は、材料試験炉 (JMTR, 熱出力 50MW) が照射試験に利用できるまでは、もっとも高い速中性子束を得ることができる研究炉である。Fig. 3 は JRR-2 炉本体の横断面を示すが、著者らの利用した照射実験孔は

Table 4 Chemical composition of welded test Plate

Element	C	Si	Mn	P	S	Cu	Ni	Cr	Mo	Al	Remark
Base metal	0.17	0.25	1.24	0.019	0.007	0.07	0.02	0.12	0.51	0.03	Sampled from 1/4 plate thickness
Weld metal	0.06	0.22	1.40	0.013	0.005	0.15	0.50	0.07	0.51	0.01

Fig. 2 Cutting location of V-Charpy specimens **Fig. 3** Location of experimental tubes in JRR-2
HT: horizontal tube VT: vertical tube

VT-1 とよばれる中央垂直実験孔であって、同実験孔は、燃料要素に囲まれているため、同炉でもっとも高い速中性子束をうることができ、かつ速中性子束の変動も少ない良好な照射条件下にある。Table 5 に VT-1 実験孔の照射条件を示すが、同孔を利用することによって、はじめて1原子炉サイクル(130時間)で速中性子照射量ほぼ 1×10^{19} n/cm² (1MeV 以上のエネルギーの速中性子束について) の照射が可能である。Fig. 4 は VT-1 実験孔の速中性子束および熱中性子束の分布を示す。

Table 5 Irradiation performance in VT-1 experimental tube, JRR-2

Thermal neutron flux (n/cm ² . sec. MW)	1.8×10^{13}
Fast neutron flux (1 MeV<) (n/cm ² . sec. MW)	2.2×10^{12}
Fast neutron dose during 1 reactor cycle (130 hrs) at 10MW operation (n/cm ²)	approximately 1.0×10^{19}

Fig. 4 Distribution of fast neutron flux in JRR-2-VT-1

しかしながら、VT-1 実験炉は原子炉の過剰反応度を有利に維持し、かつ空気の汚染（アルゴン41放射性ガスの発生）を防ぐために、実験炉内に常時、重水を充填し、その重水は、実験炉シンプルの貫通孔を通して、炉心冷却重水とともに一次冷却材として循環している。このため、照射試験は約 60°C の重水に浸漬された状態で実施される。また、照射試料および照射ホルダは 1 グラム当たり 3 ワット（10MW 出力時の γ 線による発熱を生ずるので、重水の沸騰をさけ、さらに、原子炉の余剰反応度を有利に維持するため、特殊な試料ホルダを設計して使用した。この照射ホルダの写真を Photo. 1 に示す。

3.2 照射後試験

照射後試験はすべて、日本原子力研究所東海研究所ホット・ラボラトリにおいて実施した。同ホット・ラボラトリにおいては、遠隔操作によるシャルピ衝撃試験機および試験片冷却槽と、同じく遠隔操作による万能機械試験機を独自の構造設計によって、国産により試作した。その詳細についてはすでに報告¹⁾してあるで、ここでは省略する。

4. 試験結果およびその考察

4.1 V ノッチ・シャルピ衝撃試験

圧力容器のぜい性破壊遷移温度として、NDT 温度（

Photo. 1 Holder for irradiation specimens

無延性遷移温度)を採用することが、アメリカにおける設計基準として一般化されている。軽水冷却型原子炉は、当分の間、アメリカより導入される傾向を有しているため、照射ぜい化傾向についても、NDT 温度の上昇を求める方向で照射後試験の結果を整理した。A302B 鋼では、NDT 温度に対応する V シャルピ衝撃試験による遷移温度は、30ft-lb 遷移温度 (Tr30) が安全側に

考慮してよい一致を有するとしている。著者らは、このぜい性破壊基準を一応受け入れることにして、照射ぜい化傾向を 30ft-lb 遷移温度の上昇で考察することにし、破面遷移温度 (Trs) も参考のため、測定することにした。

Fig. 5, 6, 7 は、それぞれ、A302B 鋼の母材、溶着金属およびボンド部の照射後 V ノッチ・シャルピ衝撃試験の結果を示す。速中性子照射量 ($1\text{MeV} <$) はそれぞれ、 $6 \sim 9 \times 10^{18} \text{n/cm}^2$ である。

母材は $6.6 \times 10^{18} \text{n/cm}^2$ の照射でぜい性破壊遷移温度 Tr30 の上昇は 67°C であった (Trs の上昇は 450°C)。また上部だなの吸収エネルギー値は約 10 kg-m/cm^2 の減少をしめし、遷移曲線の急峻化の傾向を示している。この現象は、一般に常温に近い温度で照射した場合の傾向としてすでにいくつかの報告^{5,6)} で認められているものである。

溶着金属は $6.2 \times 10^{18} \text{n/cm}^2$ の照射でぜい性破壊遷移温度の上昇は 103°C であった (Trs の上昇は 76°C)。母材の試験結果と同様、遷移曲線の急峻化が観察されているが、上部だな吸収エネルギーの減少については確認できなかった。

ボンド部は $8.9 \times 10^{18} \text{n/cm}^2$ の中性子照射でぜい性破壊遷移温度 Tr30 の上昇は 95°C であった (Trs の上昇は 88°C)。この場合、V ノッチシャルピ衝撃遷移曲線の急峻化が観察されず、また上部だな吸収エネルギーの減少はわずかに観察された。

Fig. 5 Results of post-irradiation V-Charpy test on A 302B steel (base metal)

Fig. 6 Results of post-irradiation V-Charpy test on A 302B steel (weld metal)

Fig. 7 Results of post-irradiation V-Charpy test on A 302B steel (bond metal)

以上の試験結果をまとめて、Fig. 8 に示す。同図は海外の照射後試験データの傾向曲線も同時にのせてある⁷⁻⁸⁾。

また、著者らの既報の A302B 鋼“素材”(成形加工履歴を經ていない材料、これに対して、成形加工履歴を經た材料は溶接継手と対称して“母材”と呼び區別している)の照射後試験データ¹⁾を比較のためのにのせてある。

同図より明らかなように、溶接鋼、熱影響部(ボンド

Fig. 8 Result of irradiation embrittlement test on the A 302B steel and its welds

Fig. 9 Shift of brittle fracture transition temperature on the neutron irradiation

部)は、母材に比較して照射ぜい化傾向が大きいことを示している。このことは、原子炉压力容器の建造において、完工時には、压力容器の構造設計基準によって、溶接継手の性能は母材の性能と同等、あるいはそれ以上の性能を示すように設計および施工が進められるが、原子炉運転が進展し、プラント寿命末期に到達したときは、Fig. 9 に示すように、母材のぜい性破壊遷移温度より、溶接部のそれの方が高くなる可能性を示すものである。このように、プラント寿命末期においては压力容器の健全性を保証するためには、母材のみを中心として照射監視試験計画を組むことは不じゅう分であることを示している。

4.2 引張り試験

引張り試験片の照射試験は、シャルピ衝撃試験片とは別の試料ホルダに組みこんで試験を実施した。ホルダの形状、照射条件、照射試験方法はシャルピ衝撃試験片の場合と同じである。引張試験片の形状は長さ：120 mm×試験部径：5 mm (つかみ部径：12 mm) の丸棒

試験片である。また、ホット・ラボラトリ試験で、試験片の中央部で破断せしめるため、平行部は 300 mmR の曲率をつけている。

試験片は A302B 鋼試験片 4 本のほか比較のためアルミニウム・キルド炭素鋼 (YND 鋼) 4 本を同時に照射試験に供した。この照射試験における速中性子照射量は平均 $1.4 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ であった。照射後引張試験の結果を Table 6 に示し、Fig. 10 に著者らの照射後試験結果とともに、鉄鋼照射合同研究委員会* (委員長：長谷川正義早大教授) がベルギー・モルの BR-2 炉で照射試験を実施した国産 A302B 鋼の照射後試験結果を比較のために示してある。両者の間には中性子照射量の相違があるが、降伏強さの照射効果が引張り強さのそれより大きいこと、また、アルミニウム・キルド鋼の照射効果より、A302B 鋼の照射効果の方が小さいことなどについて明らかにされたことは興味深い。これらの研究成果は海外で報告された既往の照射試験結果とも一致するものである。

Fig. 10 Results of post-irradiation tensile test

5. む す び

わが国の研究炉を利用した照射試験においてはほぼ 10^{19} n/cm^2 の照射を実施したのは本試験が最初である。溶接継手の中性子照射による損傷については、機械的性質への影響と同時に冶金学的観察が必要と考えられるが、著者らの研究では冶金的研究まで手を広げることができなかった。著者らは将来、高温における照射試験を計画しているが、照射試験方法がさらに開発され、加えて

*日本鉄鋼協会、日本溶接協会、日本学術振興会が合同で昭和38～40年度科学技術庁原子力平和利用研究補助金の交付をうけて実施した照射試験研究

Table 6 Results of post-irradiation tensile test (Neutron dose: 1.4×10^{19} n/cm²)

steel	condition	Specimen No.	Tensile Strength (kg/mm ²)	Increment (%)	Yield strength (kg/mm ²)	Increment (%)
A 302 B steel	Unirradiated	L - 6	63.6	12.0	—	42.1
		- 7	64.2		49.3	
		-10	64.2		49.1	
	Irradiated	L - 1	71.6		69.6	
		- 2	72.7		—	
		- 3	71.3		—	
		- 4	71.0		70.2	
			mean 64.0		mean 49.2	
			mean 71.4		mean 70.2	
A1 killed steel (YND)	Unirradiated	Y - 3	50.4	21.6	37.5	—
		- 8	49.8		35.5	
		- 9	49.0		33.8	
		-10	48.7		35.2	
	Irradiated	Y - 4	60.5		—	
		- 5	59.9		—	
		- 6	59.7		—	
		- 7	60.5		—	
			mean 49.5		mean 35.5	
			mean 60.2			

JRR-2 より, はるかに高い速中性子束と原子炉余剰反応度を有する材料試験炉 (JMTR) が稼動するようになれば, 研究の質, 量はともに格段と充実するであろう。

本研究については, 早稲田大学長谷川正義教授の御助言をえた。また八幡製鉄より試験材の提供をうけた。ここに厚く感謝の意を表する次第である。また, 本研究は日本鉄鋼協会, 日本溶接協会, 日本学術振興会が合同で実施した鉄鋼照射研究計画の一環であることを付記する。

参 考 文 献

- 1) 川崎, 藤村, 中崎, 生田目: “原子炉構造用鉄鋼材料の照射脆化の研究”, 鉄と鋼, Vol. 51 (1965) No.13, p. 2328~2335.
- 2) 鉄鋼の照射合同委員会: “原子炉压力容器用 ASTM A302B 鋼の
- 中性子照射に関する試験研究 (第一次鉄鋼の照射試験)”, 1968
- 3) 同上: “原子炉用 ASTM A302B 鋼溶接部の中性子照射に関する試験研究 (第二次鉄鋼の照射試験)”, 1968
- 4) 同上: “原子炉压力容器用高張力鋼の中性子照射に関する試験研究 (第三次鉄鋼の照射試験)”, 1968
- 5) R.C. Berggen et al: “Recent Data on the Effects of Neutron Irradiation”, ORNL CF-56-11-1 (1957)
- 6) M. Grounes: “Swedish Work on Brittle-Fracture Problems in Nuclear Reactor Pressure Vessels”, AE-221 (1966)
- 7) R.W. Nichols and D.R. Harries: “Brittle Fracture and Irradiation Effects in Ferritic Pressure Vessel Steels”, ASTM STP 341 (1963) p. 162~197
- 8) G.F. Carpenter et al: “Anomalous Embrittlement Effects Observed During Irradiation Studies on Pressure Vessel Steels” Nuclear Science and Eng. Vol. 9 (1964) p. 18~38
- 9) L.E. Steele: “Radiation Embrittlement of Reactor Pressure Vessel Steels, Nuclear Eng. and Design, Vol. 3 (1966) p. 287~298