

69.14.018.29:621.039.531:539.125.5.043
: 539.56

原子炉構造用鉄鋼材料の照射脆化の研究*

川崎正之**・藤村理人***・中崎長三郎***・生田目宏***

Embrittlement of Reactor Structural Steels by Neutron Irradiation.

Masayuki KAWASAKI, Tadato FUJIMURA, Chozaburo NAKAZAKI and Hiroshi NAMATAME

Synopsis :

The embrittlement of steels by neutron irradiation is one of the most important problems in the construction and operation of reactors. An in-pile test rig was constructed by the authors in JRR-2 for the irradiation test of structural steels.

In the present report, the authors describe the test rig, experimental conditions available with the rig in a vertical experimental tube of JRR-2, and the results of the irradiation tests, including the post-irradiation V-notch Charpy tests on the A 302 B steel, its welded portion and an aluminium killed steel.

(Received 20 May 1965)

1. は し が き

動力用原子炉において鉄鋼材料は主として压力容器および配管系構造などの高温、高圧部材として使用される。このような構造は、原子炉の安全性を確保するため、重要な役割を果すので、きわめて高品質な鋼材であることが要求される。さらにこれらの鋼材の溶接施工など成形にさいしても部材の安定性の高いことが強く要求されている。その上、压力容器鋼材は原子炉運転中に速中性子照射をうけて、いわゆる照射脆化を生じて、压力容器の寿命中にいちじるしく脆性破壊遷移温度が上昇することが、最近までの海外の研究で明らかになった^{1)~6)}。このため、海外の原子力先進国では精力的に照射脆性の研究が進められている。

わが国においては、この問題の究明はおくれてはいたが、1963年6月より、日本原子力研究所東海研究所のJRR-2がようやく出力5MWで定常運転に入り、照射試験も軌道にのせることができ、大型研究炉を利用した工学的照射試験研究が実用の段階に入り、鉄鋼材料の照射脆性試験が開始された。

著者らは1962年より日本溶接協会鉄鋼照射委員会に参加し、また1964年より日本鉄鋼協会、日本溶接協会、日本学術振興会の合同鉄鋼照射委員会に参加して、本研究の遂行に努力してきた。

著者らは1963年秋より1964年夏にかけて5回にわたり、日本原子力研究所JRR-2により照射試験を実施したが、本報告はその照射試験および照射後試験の結果について述べるものである。

2. 照 射 試 験

2.1 照射条件

わが国で工学的照射試験の実施し得る研究炉はJRR-2に限られる。同炉はFig. 1に示すように物理または化学系の基礎研究と共同で利用されるため、原子炉構造材料の照射試験は主として垂直実験孔が利用されている。これらの垂直実験孔においてもTable 1に示すように、高い速中性子束が得られる実験孔は中央垂直実験孔(VT-1)のみである。VT-1実験孔の速中性子束分布はFig. 2に示すごとくであるが、同実験孔では長さ約310mm、経95mmの照射ホルダ3本を同時に照射することができる。しかしながら、同実験孔は現在アイソトープ製造と各種原子炉材料の照射に共用されるのできわめて利用度が高い。このため、現在、炉出力10MW(最高出力)で期待される速中性子照射量は1~2原子炉サイクルでほぼ $0.5 \sim 2 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ 程度である。 10^{20} n/cm^2 の照射量を得るためには、約1年以上の長期照射を必要とするが、現状では利用度の面から制約されている。さらに高い速中性子照射量を得るためには材料試験炉(JMTR)の稼動にまたねばならない。著者らは高照射量の照射試験を垂直実験孔VT-1で実施した以外に低照射量の照射試験を炉中央より75cmはなれた垂直実験孔VT-2, 4, 7を使用して実施した。

VT-1実験孔は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の発生)を防ぐため、実験孔内に

* 昭和39年10月本会講演大会にて発表
昭和40年5月2日受付
** 日本原子力研究所東海研究所, 工博
*** 日本原子力研究所東海研究所

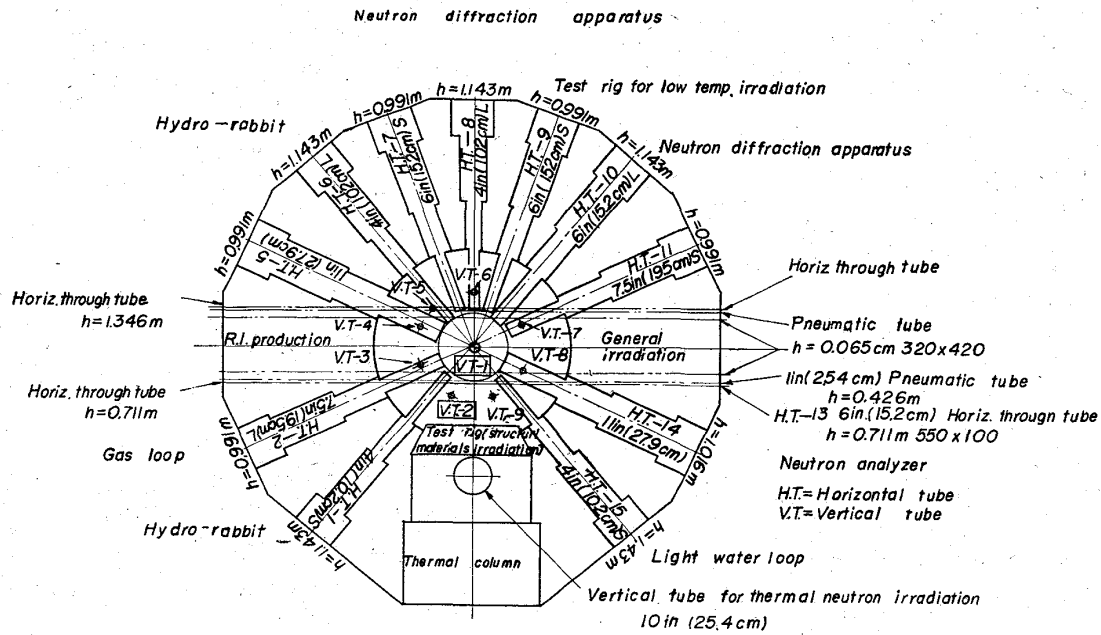


Fig. 1. Location of experimental tubes in JRR-2.

Table 1. Irradiation performance in JRR-2 experimental tubes.

| Experimental tube | VT-1 | VT-2 |
|--|------------------------|------------------------|
| Thermal neutron flux (n/cm ² . sec. MW) | 3.7 × 10 ¹² | 4.6 × 10 ¹² |
| Fast neutron flux (1MeV <) (n/cm ² . sec. MW) | 2.2 × 10 ¹² | 1.6 × 10 ¹⁰ |
| Fast neutron dose for 1 reactor cycle (1 week-130 hr) at 5MW operation | 5.0 × 10 ¹⁸ | 4.7 × 10 ¹⁶ |

重水を充填している（これによつて燃料ほぼ1本分の反応度の節約となつている）。このため、照射試験はすべて重水中に浸漬して行なわれ、さらにこの充填重水の温度は重水の沸騰蒸発を防ぐため 80°C 以下に保持しなければならない。このさい照射試料は Fig. 3. に示すように炉内の γ 線によつていちじるしく発熱するが、その発熱量は、すべて充填された重水の自然対流か、または強制循環冷却によつて除去しなければならない。著者らは γ 熱の除去と照射後ホット・ラボラトリにおけるハンドリングを容易ならしめるように、独自の設計による照射ホルダを製作した。Photo. 1 は著者らの試作した標準

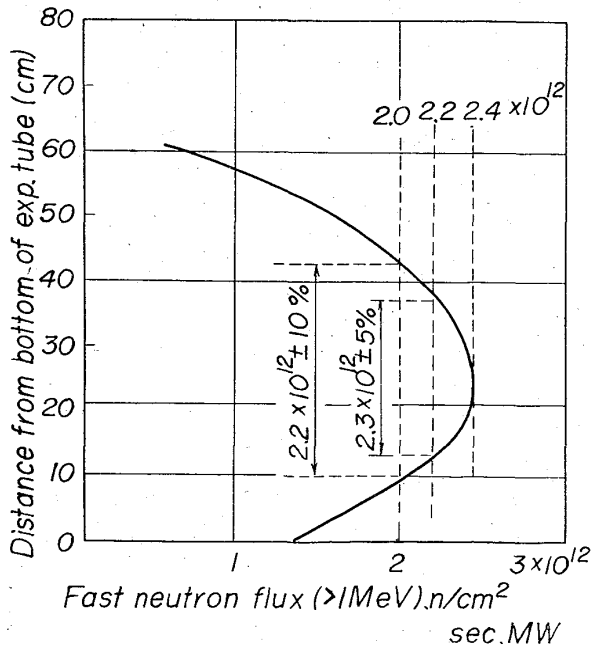


Fig. 2. Distribution of fast neutron flux in JRR-2.VT-1.

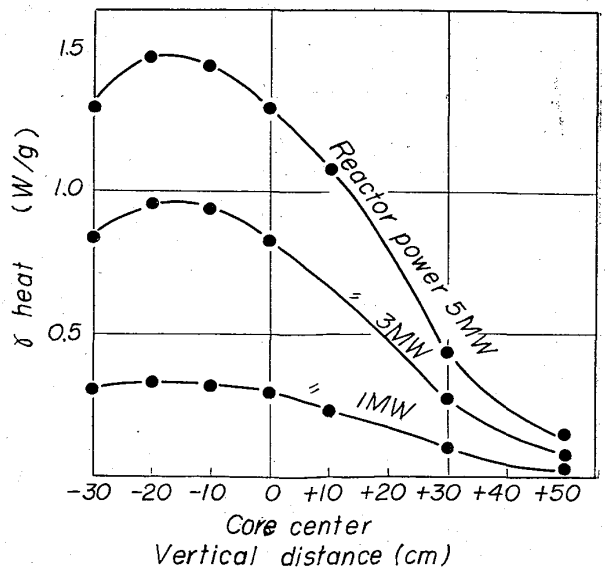


Fig. 3. γ heat in JRR-2.VT-1.

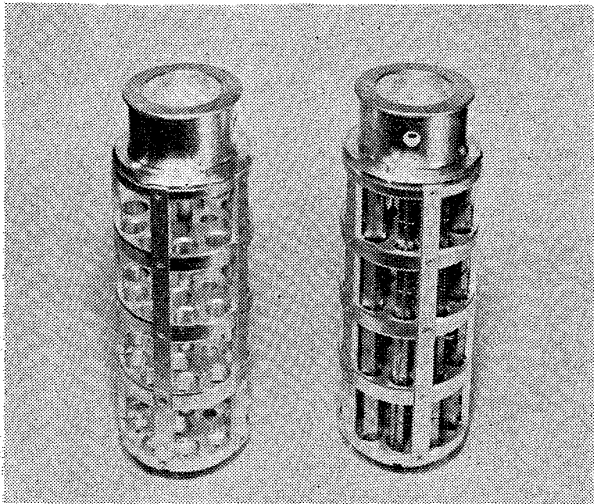


Photo. 1. Specimens holder for irradiation test.

シャルピ衝撃試験片用ホルダである。

さらに、照射条件の第2の問題点は、鉄鋼材料のように、中性子の吸収の大きい材料を多量照射する場合に、照射試験に割当てられている炉の過剰反応度をいちじるしく消耗することである。とくに VT-1 は鉄鋼材料約 1 kg で過剰反応度を約 1% 消耗するので VT-1 に割当てられた過剰反応度が 1.5% であるとき、鉄鋼材料の1回の照射試験の供試量は 1.5 kg となり、標準シャルピ衝撃試験片では32本の照射が最大限となる。このことがJRR-2 を利用したときの工学試験の限界となる可能性があり、反応度の増加のため、燃料要素の改良などが今後進められなければならない。

2.2 照射試験装置

JRR-2 における上述の照射条件下において、照射試験を行なうため、著者らは照射試験装置を製作した。Fig. 4 は VT-1 に設置した照射試験装置のブロック線図であり Photo. 2 は同装置の写真である。同装置は、照射試料と照射ホルダが γ 発熱し、充填重水の温度が上昇するとき照射プラグに内蔵したポンプにより充填重水を強制循環せしめ、同じく照射プラグに内蔵した熱交換器 (除熱能力 8 kW) により充填重水の温度を 80°C 以下に冷却保持すること

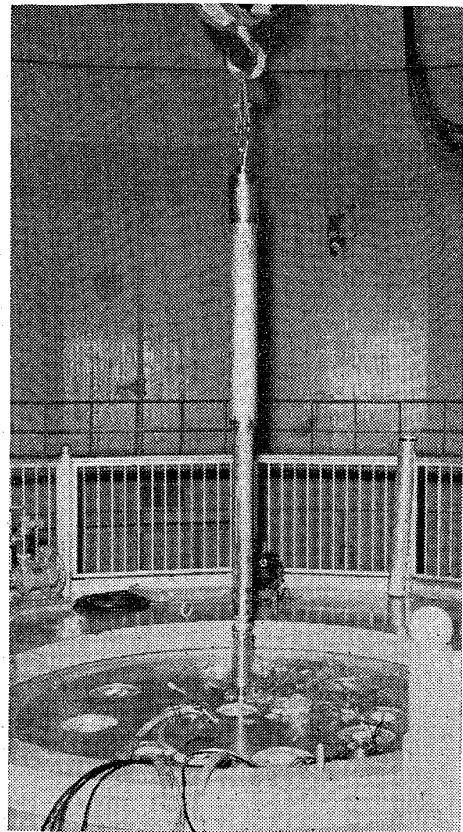


Photo. 2. Irradiation test rig in JRR-2-VT-1.

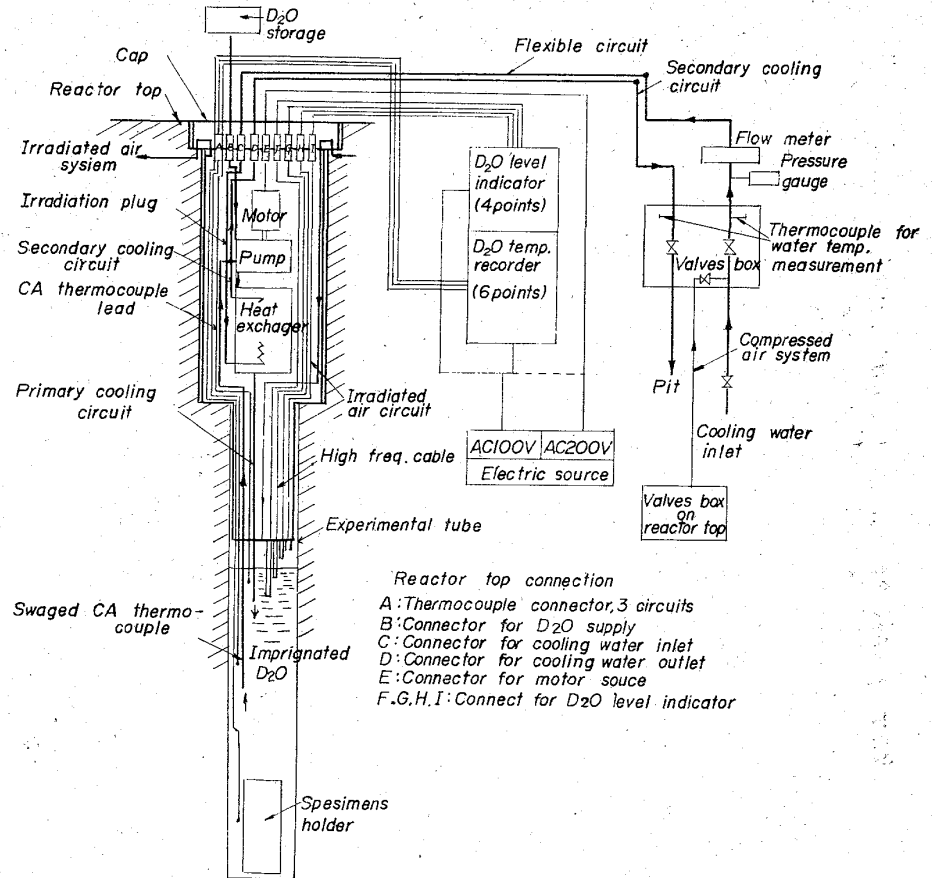


Fig. 4. Flow sheet of irradiation test rig in JRR-2-VT-1.

が可能である。照射プラグに重水強制冷却回路を内蔵せしめた理由は、充填重水が照射により、トリチウムを生ずるが、このトリチウムは人体有害であるため、安全衛生上炉外に持ち出されることを防いだためである。照射プラグ内にポンプ、モーター、熱交換器、各種配管をコンパクトに配置し、かつ安定した強制冷却を行ない、さらに各種放射線の遮蔽を十分にするためには、製作技術上多くの困難があつたが、国内メーカーの技術で問題点はすべて解決することができた。なおこの照射装置は充填重水の温度2点、充填重水の水位4点を測定することができる。また炉項においては配管、配線類が、燃料交換時に、容易に着脱できるように、設計上の工夫がなされた。

3. 照射後試験装置

照射後試験は当研究所ホット・ウボラトリに整備した特殊仕様の試験機を用いて行なった。照射脆性試験はすべて標準シャルピ衝撃試験片によつて行なつた。このためホット・ケープ内で遠隔操作により試験できる 30kg-

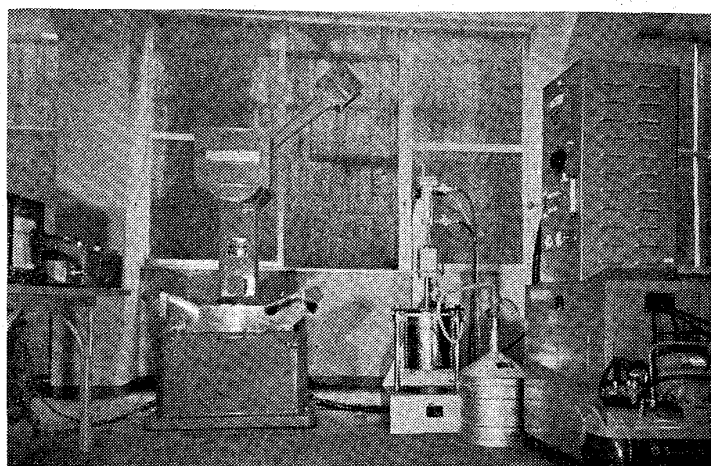


Photo. 3. Remote handling Charpy tester (left) and specimens cooling bath (right).

mシャルピ試験機をとくに試作した。Photo. 3は試作した遠隔操作シャルピ衝撃試験機を示す。同試験機は衝撃ハンマの落下衝撃値の指示および記録、衝撃ハンマのスタート位置への復帰が一動作でできるすぐれた機構を有している。さらに試験片の冷却槽も遠隔操作により-100°C~+100°Cまで自由に温度制御ができる冷却槽を試作した。これらの装置はすべて国産である。

Dose (n/cm²):

| | ϕ_f (Measured) | ϕ_f (Calculated) |
|---|----------------------|-----------------------|
| ○ | 3.6×10^{19} | 6.0×10^{18} |

Run: No.5 (15th-16th R.C.) 262 hr, at 5MW.

Experimental location: JRR-2, VT-1.

Irradiated temperature: 60°C in D₂O

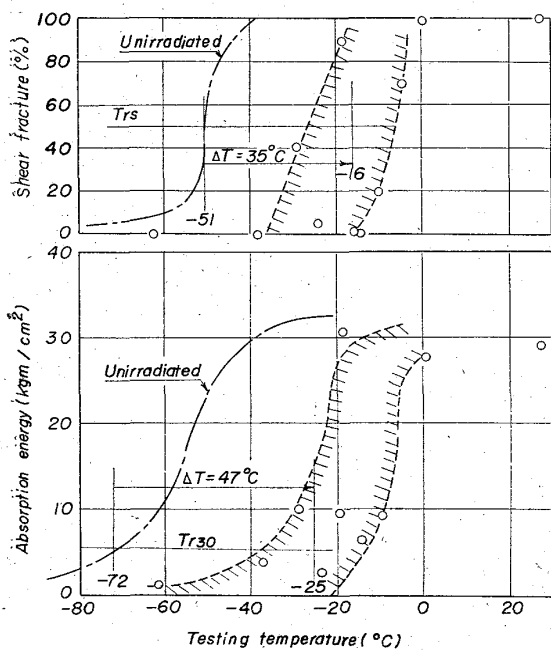


Fig. 5. Results of post-irradiation V-Charpy test on A302B parent plate.

4. 照射脆性試験の結果

4.1 A 302 B 鋼 (八幡製鉄製) について

Dose & Run No.:

| ϕ_f (Calculated) | ϕ_f (Measured) | Run No. |
|-------------------------------|-------------------------------|---------|
| $1.4 \times 10^{15} \pm 43\%$ | $1.8 \times 10^{15} \pm 22\%$ | 1 |
| $1.7 \times 10^{16} \pm 17\%$ | $5.6 \times 10^{15} \pm 7\%$ | 3 |
| $1.1 \times 10^{18} \pm 45\%$ | | 2 |
| 3.4×10^{18} | 2.0×10^{19} | 4 |
| 6.0×10^{18} | 3.6×10^{19} | 5 |

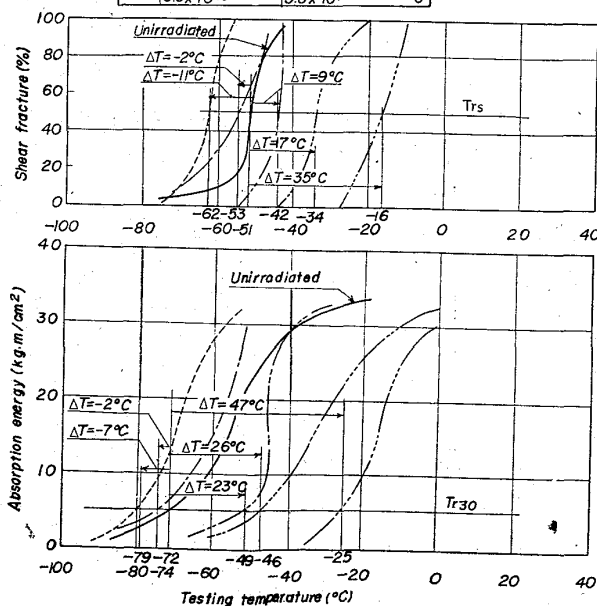


Fig. 6. Results of post-irradiation V-Charpy test on A302B parent plate.

Table 2. Chemical composition, heat treatment and mechanical properties of A302B steel.
(a) Chemical composition (in wt.%)

| C | Si | Mn | P | S | Cu | Ni | Cr | Mo | Al | Fe |
|------|------|------|-------|-------|------|------|------|------|-------|-----|
| 0.18 | 0.21 | 1.28 | 0.009 | 0.006 | 0.09 | 0.03 | 0.04 | 0.55 | 0.024 | Re. |

Plate thickness: 100mm

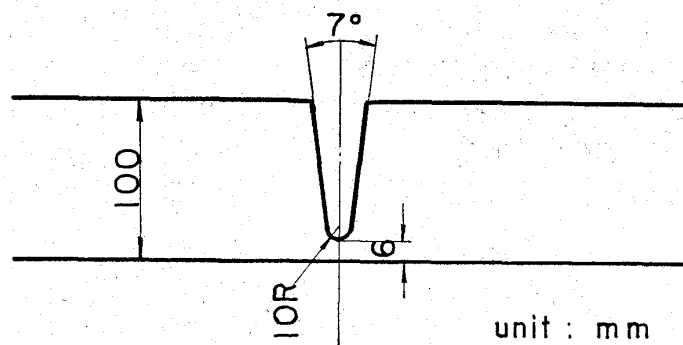
Heat treatment: Quenched and tempered in accordance with the specification.

(b) Mechanical properties

| Location | | Tensile properties | | | | Charpy transition temperature (°C) | |
|----------|-----|-----------------------------------|---|----------------|-----------------------|------------------------------------|-----|
| | | Yield point (kg/mm ²) | Ultimate strength (kg/mm ²) | Elongation (%) | Reduction of area (%) | Tr 15 | Trs |
| Long. | t/2 | 50.6 | 67.3 | 29.5 | 72.0 | -92 | -24 |
| | t/4 | 49.5 | 63.4 | 29.7 | 72.8 | -92 | -54 |
| | t/2 | 49.8 | 64.0 | 28.2 | 66.9 | -88 | 5 |
| Trans. | t/4 | 49.4 | 63.3 | 29.6 | 67.9 | -80 | -55 |

Table 3. Welding performance of test plate.

Type of joint



| Step | Passage | Process | Filler and flux | Welding condition | Preheating |
|-------|---------|-----------------------|-----------------|--------------------------|------------|
| No. 1 | 1~6 | Submerged arc welding | Y-DM: 4.0 φ | 400 A, 27 V 50 cm/min | 150°C |
| No. 2 | 7~42 | | YF-15 | 800 A, 36 V 25 cm/min | |

Table 4. Shift of transition temperatures of A 302 B steel by irradiation.

| Neutron dose n/cm ² (1 MeV<) | 30ft-lb transition °C | | 50% shear fracture transition, °C | |
|---|-----------------------|----|-----------------------------------|-----|
| | Tr 30 | ΔT | Trs | ΔT |
| 0 | -72 | | -51 | |
| 1.4 × 10 ¹⁵ | -79 | -7 | -62 | -11 |
| 1.7 × 10 ¹⁶ | -74 | -2 | -53 | -2 |
| 1.1 × 10 ¹⁸ | -49 | 23 | -42 | 9 |
| 3.4 × 10 ¹⁸ | -46 | 26 | -34 | 17 |
| 6.0 × 10 ¹⁸ | -25 | 47 | -16 | 35 |

Table 2 に照射試験に供した A302B 鋼の素材の化学成分および機械的性質を示す。また照射試験に供した溶接部は Table 3 に示すような溶接条件による溶接施工および応力除去焼鈍を施したものである。これらの溶接した試験板からは母材、溶着鋼熱影響部にわけて、それ

ぞれ試験片を採取した。これらの試験片はいずれも板厚 100mm の 1/4 の部分より採取した。

照射後、標準シャルピ衝撃試験の結果を、素材*について、代表的例として速中性子照射量† $6 \times 10^{18} \text{n/cm}^2$ について Fig. 5 に、5 回の照射後試験の結果をまとめて Fig. 6 に示す。また求めた脆性破壊遷移温度は Table 4

* 製鋼メーカーより受入れ時の鋼板を素材 (parent metal) とよび製造メーカーにより熱処理、溶接施工などの履歴が与えられた後の鋼板を溶接部と対比せしめて母材 (base metal) とよんで区別した。

† 速中性子照射量, ϕ_f は、熱中性子照射量 ϕ_t をコバルト・モニタによつて測定した結果より、あらかじめ測定してある中性子分布より計算により求めた。

に示す。

これらの試験の結果を考察すると次のごとくなる。

1) Fig. 5 に示した. 遷移域における測定点のばらつきは, 遠隔操作試験のための試験片温度の制御の不良

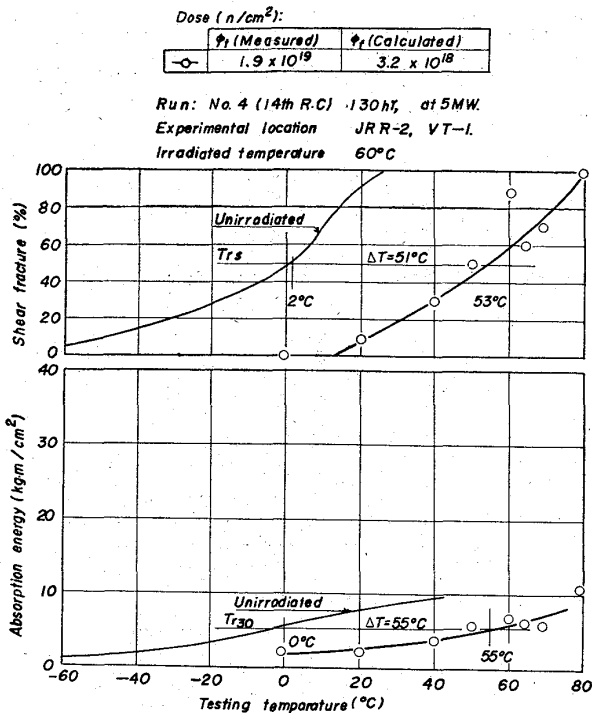


Fig. 7. Results of post-irradiated V-Charpy test on A302B weld metal.

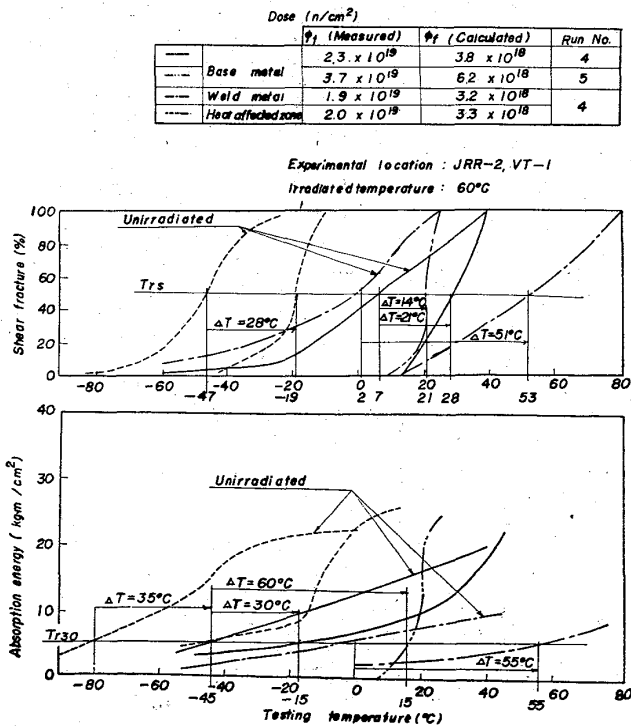


Fig. 8. Result of post-irradiation V-Charpy test on A302B welds.

Table 5. Shift of transition temperatures of A 302 B steel welds by irradiation.

(a) Base metal in welded plate

| Neutron dose n/cm ² (1MeV<) | 30ft-lb transition °C | | 50% shear fracture transition, °C | |
|--|-----------------------|----|-----------------------------------|----|
| | Tr 30 | ΔT | Trs | ΔT |
| 0 | -45 | | 7 | |
| 3.8×10^{18} | -15 | 30 | 28 | 21 |
| 6.2×10^{18} | 15 | 60 | 21 | 14 |

(b) Weld metal

| Neutron dose n/cm ² (1MeV<) | 30ft-lb transition, °C | | 50% shear fracture transition, °C | |
|--|------------------------|----|-----------------------------------|----|
| | Tr 30 | ΔT | Trs | ΔT |
| 0 | 0 | | 2 | |
| 3.2×10^{18} | 55 | 55 | 53 | 51 |

(c) Heat affected zone

| Neutron dose n/cm ² (1MeV<) | 30ft-lb transition °C | | 50% shear fracture transition, °C | |
|--|-----------------------|----|-----------------------------------|----|
| | Tr 30 | ΔT | Trs | ΔT |
| 0 | -80 | | -47 | |
| 3.3×10^{18} | -45 | 35 | -19 | 28 |

によるよりも, むしろ試験片それぞれの照射量の違いによるものか, または各試験片の材質的条件の違いによりあらわれたものである. このようにして脆性破壊遷移温度およびその上昇値は約 ±10°C の精度であらわさざるをえない.

2) Fig. 6. に示した速中性子照射量 1.4×10^{15} n/cm² の照射によって遷移温度は低温側へ11°C 移行した結果が得られた. この結果は後述するアルミキルド調質鋼 (YND鋼) でさらに明瞭に観察されたものであるが, この特異な現象は海外にも若干の報告がある. 今後, さらにミクロ的な各種の試験を実施し, その傾向, 要因を究明しなければならない.

3) 海外の照射試験の報告では照射量が多くなると吸収エネルギーそれ自体が減少する結果が報告されているが著者らの試験結果ではその傾向はまだ明瞭に観察されていない.

4) 照射量の上昇にともなう脆性破壊遷移温度の上昇は, 海外の照射試験結果とほぼ一致した結果が得られた.

A 302 B 鋼の溶接部の照射後試験のうち, 溶着鋼の速中性子 3.2×10^{18} n/cm² 照射した結果を Fig. 7 に, 溶接各部の照射後試験結果をまとめて Fig. 8 に示す. 求めた脆性破壊遷移温度を Table 5 に示す.

Table 6. Chemical composition, heat treatment and mechanical properties of Al killed steel (YND).

(a) Chemical composition (in wt.%)

| C | Si | Mn | P | S | Cu | Fe |
|------|------|------|-------|-------|------|-----|
| 0.09 | 0.22 | 1.20 | 0.015 | 0.013 | 0.05 | Re. |

Plate thickness: 20mm.

Heat treatment: Quenched and tempered in accordance with the specification

(b) Mechanical properties

| Yield strength (kg/mm ²) | Ultimate strength (kg/mm ²) | Elongation (%) | Reduction of area (%) |
|--------------------------------------|---|----------------|-----------------------|
| 40 | 50 | 18 | 13.8 |

Table 7. Shift of transition temperature of Al killed steel (YND) by irradiation.

| Neutron dose n/cm ² (1MeV<) | 30ft-lb transition °C | | 50% shear fracture transition, °C | |
|--|-----------------------|-----|-----------------------------------|-----|
| | Tr 30 | ΔT | Trs | ΔT |
| 0 | -78 | | -70 | |
| 1.4×10 ¹⁵ | -92 | -14 | -75 | -5 |
| 1.7×10 ¹⁶ | -95 | -17 | -80 | -10 |
| 1.1×10 ¹⁸ | -55 | 26 | -44 | 26 |

A302B 鋼の溶接部の照射試験の結果を考察すると次のごとくなる。

1) 溶接心線の選定がよくなかったため、溶着鋼の特性は母材より良好でなかったが、溶着鋼の照射試験結果は、素材または母材* よりも脆性破壊遷移温度の上昇はいちじるしかった。

2) 照射量が大きくなると遷移曲線が遷移域において直立することが明らかに示された。

4.2 アルミキルド調質鋼 (YND 鋼) について

Table 6 に照射試験に供したアルミキルド調質鋼 (YND 鋼) の化学成分および機械的性質を示す。同鋼材は低温において切欠靱性の良好な鋼種である。同鋼によつて速中性子照射量 10¹⁵, 10¹⁶, 10¹⁸ n/cm² 程度照射した試験結果をまとめて Fig. 9 に示す。また求めた脆性破壊遷移温度は Table 7 に示す。

これらの試験の結果を考察すると次のごとくなる。

1) 低照射量によつて遷移温度が低温側に移行する現象は A302B 鋼におけるよりも、明瞭に観察された。その程度は照射量 1.5~1.9×10¹⁶ n/cm² のほうが、1.4×10¹⁵ n/cm² 照射のときより顕著にあらわれている。このことは A302B 鋼と逆である。

2) 高い照射量によつて遷移温度が高温側に移行する

現象は前述の A302B 鋼および海外の試験結果と同様に観察されたが吸収エネルギー値の低下は観察されなかった。

4.3 海外の研究結果¹⁾²⁾⁴⁾との比較

Fig. 10 は海外の照射試験による延性—脆性遷移温度の上昇についての試験結果に著者らの照射試験の結果を加えたものである。著者らの照射試験の結果は海外の照射試験結果とほぼよい一致を示している。

5. む す び

本報告はわが国における研究炉 (JRR-2) による最初の国産原子炉用鋼材および溶接部の速中性子照射試験結果である。

本研究は JRR-2 が炉出力 5 MW で運転されているときの試験結果であるが、昭和 40 年 1 月以降炉出力 10MW の全出力運転に入ったので、速中性子束も増加され、1~3×10¹⁹ n/cm² (>1MeV) の照射量の試験結果が今後得られる予定である。さらに昭和40年度中にホット・ラボラトリーの研究施設が拡充整備されるので、今後さらに精度の高いデータが得られるであろう。

| Dose (n/cm ²) | Irradiated Temperature | Experimental location | RunNo. |
|------------------------------|------------------------|-----------------------|--------|
| | | | |
| 1.8 × 10 ¹⁵ ± 22% | Unknown | JRR-2.VT-4 | 1 |
| 5.5 × 10 ¹⁶ ± 11% | 50 °C | JRR-2.VT-9 | 3 |
| 6.6 × 10 ¹⁸ ± 27% | 70 °C | JRR-2.VT-1 | 2 |

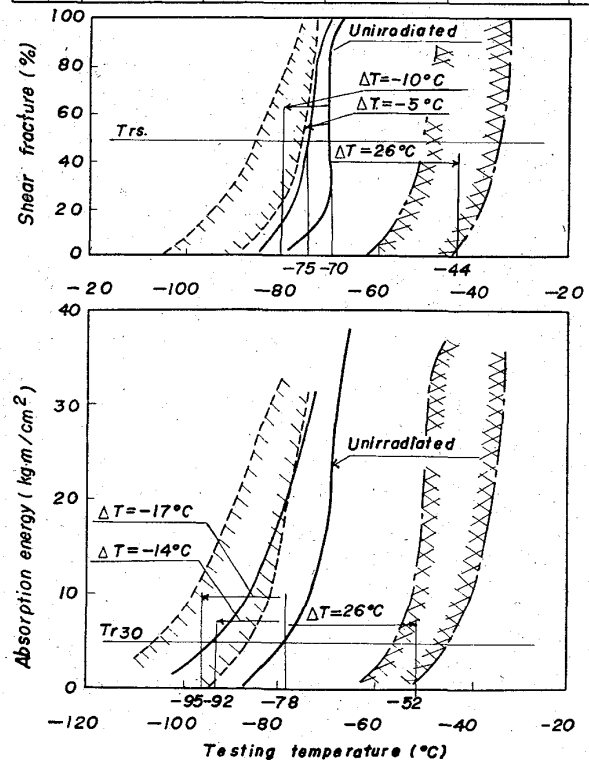


Fig. 9. Results of post-irradiation Charpy test on Al killed steel. (YND) parent plate

今後、照射試験技術については、1) 純ニッケル細線による速中性子照射量の直接測定、2) 使用温度における高温制御照射の2点を解決しなければならないが、これらの照射技術の開発についても、現在、着々実験が進められている。

本研究では、海外の照射試験結果を国産動力炉用鋼材について JRR-2 によってトレースしたとともに、2、3の新らしい観察が得られた。

研究炉による照射試験は、試験技術上の種々の問題点があり、炉運転員、照射試験員、ホット・ラボラトリ作業員の十分な協力がなくては実施し得ない。ここに当所東海研究所研究炉管理部 JRR-2 管理課およびホット・ラボ管理室の各位の協力が心から感謝したい。

また本研究は本協会鉄鋼の照射研究委員会の研究に参加しており、東京大学木原博教授、早稲田大学長谷川正義教授および東京大学安藤良夫教授の御助言に感謝の意を表したい。なお鉄鋼試料は八幡製鉄株式会社より提供されたものである。

文 献

1) AISI SR (1958) No. 69

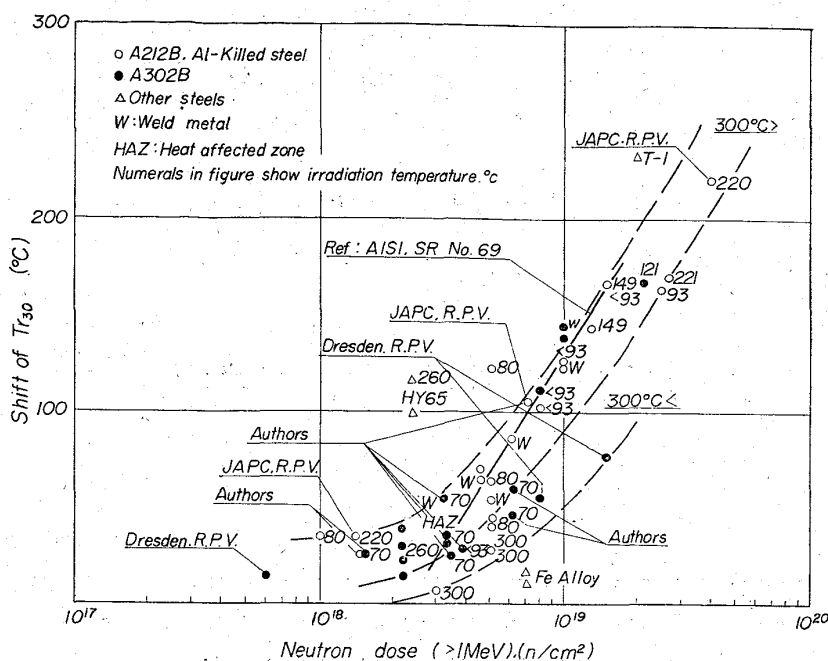


Fig. 10. Neutron irradiated effect on steels.

2) ASTM STR (1962) No. 314, 341
 3) F. R. SHOBER: Nucleonics, 20 (1962), p. 134
 4) W. S. PELLINI et alii: Welding J., 6 (1962), 455 S
 5) G. F. CARPENTER et alii.: Nuclear Science and Eng., 19 (1964), p. 18
 6) HW-81334-Part 2 (1964)