

JAERI-Research  
2000-047



JP0050856



軽水炉圧力容器用ステンレス肉盛クラッドの  
残留応力と経年劣化評価  
(受託研究)

2000年10月

西山 裕孝・鬼沢 邦雄・出井 義男・鈴木 雅秀

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問い合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 2000

編集兼発行 日本原子力研究所

軽水炉圧力容器用ステンレス肉盛クラッドの残留応力と経年劣化評価  
(受託研究)

日本原子力研究所東海研究所安全性試験研究センター原子炉安全工学部  
西山 裕孝・鬼沢 邦雄・出井 義男・鈴木 雅秀

(2000年9月12日受理)

軽水炉圧力容器内面のステンレス肉盛クラッドに用いられている代表的な2種類の溶接方法、すなわち、エレクトロスラグ溶接 (ESW)、サブマージーク溶接 (SAW) によってクラッド供試材を製作し、溶接残留応力分布を明らかにするとともに、クラッド材の熱時効及び中性子照射脆化について評価した。クラッドから母材にかけての逐次切断法により溶接残留応力分布を評価した結果、クラッド部には降伏応力に達する程度の引張応力、母材溶接熱影響部に圧縮応力が存在することが明らかとなった。400℃×10000 h の熱時効においては、ESW、SAWM クラッド材とも降伏応力の上昇、延性脆性遷移温度 (DBTT) の高温側へのシフト及び上部棚吸収エネルギー (USE) の低下が生じた。290℃、 $1.2\sim 1.5\times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup> (E>1MeV) の中性子照射によっても同様な変化を示した。これらの変化は、ESW、SAWM ともほぼ同程度であったが、初期値については ESWの方が DBTT が低く USE が高かった。また、クラッド材と母材の中性子照射による DBTT シフトを比較した場合、クラッド材のシフト量は母材に比べて小さいという結果が得られた。

---

本報告書は、電源開発促進対策特別会計法に基づき、科学技術庁からの委託によって得られた試験研究の成果である。

東海研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

Residual Stresses and Aging Degradation of Stainless Steel Weld Overlay Cladding  
for Nuclear Reactor Pressure Vessel  
(Contract Research)

Yutaka NISHIYAMA, Kunio ONIZAWA, Yoshio IDEI and Masahide SUZUKI

Department of Reactor Safety Research  
Nuclear Safety Research Center  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received September 12, 2000)

This paper reports the residual stresses and thermal aging and neutron irradiation embrittlement of stainless steel weld overlay cladding made by electroslag and submerged arc methods on low-alloy pressure vessel base steels. The results of residual stress distribution measurements by layer removal method showed that high tensile stresses and compressive stresses were found in the clad and heat affected zone of the base metal, respectively. Thermal aging at 400°C for 10000 h caused a slight increase in strength, the shift in ductile to brittle transition temperature (DBTT) and the loss of the upper shelf energy (USE). The similar results were obtained in the neutron irradiated cladding to a fluence of  $1.5-2.0 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> (E>1MeV). Such hardening and degradation in the Charpy related properties were comparable in electroslag and submerged arc weld overlay cladding, while the initial DBTT and USE in electroslag weld overlay cladding were lower and higher than those in submerged arc weld overlay cladding, respectively. The shift in DBTT due to neutron irradiation in the weld overlay cladding was lower than that in the low-alloy pressure vessel base steels.

**Keywords:**

Reactor Pressure Vessel, Stainless Steel Weld Overlay Cladding, Weld Residual Stresses, Thermal Aging, Neutron Irradiation, Embrittlement, Ductile to Brittle Transition Temperature

---

This report includes the test results obtained under the contract between JAERI and the Science and Technology Agency of Japan under the auspices of the special account law for electric power development promotion.

## 目 次

1. 序.....	1
2. 試験方法.....	1
2.1 供試体の製作.....	1
2.2 残留応力測定.....	3
2.3 熱時効試験.....	3
2.4 中性子照射試験.....	3
2.5 機械的性質試験.....	4
3. 結果及び考察.....	5
3.1 溶接残留応力.....	5
3.2 熱時効脆化.....	6
3.3 中性子照射脆化.....	8
4. 結言.....	10
参考文献.....	11

## Contents

1. Introduction.....	1
2. Experimental Procedure.....	1
2.1 Test Material.....	1
2.2 Residual Stresses Measurement.....	3
2.3 Thermal Aging.....	3
2.4 Neutron Irradiation.....	3
2.5 Mechanical Tests.....	4
3. Results and Discussions.....	5
3.1 Weld Residual Stresses.....	5
3.2 Thermal Aging Embrittlement.....	6
3.3 Neutron Irradiation Embrittlement.....	8
4. Conclusions.....	10
References.....	11

This is a blank page.

## 1. 序

軽水炉圧力容器内面には、母材の腐食を防止し、耐食性を確保するとともに冷却水の水質を維持するため、内張として厚さ 5~7mm 程度の肉盛溶接が施されている。圧力容器の部位によって溶着金属の種類は異なるが、炉心からの中性子照射が最も厳しい圧力容器中・下部胴内面ではステンレス肉盛溶接（ステンレスオーバーレイクラッド、以後、クラッド）が施されている。現行の原子力設備の技術基準においてクラッドは強度部材としては考慮されていないため、これまでクラッドは経年劣化研究の対象外であった。しかし、圧力容器の健全性評価においてクラッドの経年劣化を評価することの重要性が指摘されている<sup>[1][2]</sup>。ここでは、クラッドの破壊抵抗及び経年劣化特性が関係する事象として加圧熱衝撃（PTS）が挙げられている。クラッドを貫通する浅いき裂（シャロークラック）やアンダークラッドき裂は、溶接残留応力と PTS による熱応力などにより、クラッド/母材の境界近傍の応力拡大係数が大きくなり、クラッドにおいてき裂が進展する可能性がある。き裂進展解析のためには、クラッドの引張特性及び破壊靱性値等が不可欠であるが<sup>[3]</sup>、これらは溶接方法に大きく依存するため、必要なデータが極めて限られている。また、クラッドは母相はオーステナイト地であるが 10%程度の $\delta$ フェライトを含むため、この $\delta$ フェライトが割れの起点となって低温で脆性破壊が現れ、中性子照射脆化及びスピノーダル分解等に代表される熱時効脆化によって延性脆性遷移温度（DBTT）のシフト、ならびに上部棚破壊靱性値の低下が生じる可能性がある。

本報告書では、軽水炉圧力容器クラッドに適用されている代表的 2 種類の溶接方法によりクラッド/母材供試体を製作し、その溶接残留応力分布を明らかにするとともに、熱時効及び中性子照射による引張特性・破壊靱性の変化を評価した結果について報告する。さらに、母材とクラッドの中性子照射脆化感受性の違いについても検討する。

## 2. 試験方法

### 2.1 供試体の製作

#### (1) エレクトロスラグ溶接（ESW）クラッド

エレクトロスラグ溶接（ESW）は、おおむね 1985 年以降に製造されている圧力容器に適用されている溶接方法である。クラッドの厚みは、1 層あるいは 2 層盛りで 5~7mm である。供試体の製作においては、前述のシャロークラック・アンダービードクラックの主なき裂進展は板厚方向であることから、この

方向にき裂を有するシャルピー衝撃試験片、破壊靱性試験片等を加工するための厚みを確保するため、クラッドを 5 層盛りで約 20 mm とした。帯状電極は 75mm 幅のものを使用し、母材から第 1 層目の溶接材料は母材による希釈を考慮し D309L、2 層目以降の溶接材料は D308L とした。クラッドの初期靱性、熱時効及び中性子照射脆化感受性に影響する  $\delta$  フェライト量は溶接後熱処理後において 10% を目標とした。溶接後熱処理条件は、 $615^{\circ}\text{C} \pm 20^{\circ}\text{C} \times 7\text{H}$  である。溶接に供した母材の寸法は  $850\text{mm} \times 400\text{mm}$  であり、厚さは 200mm である。この母材は、中性子照射脆化に最も影響及ぼすと考えられる鋼中の不純物元素である燐、硫黄及び銅を調整し、1985 年以降最近まで製造されている最新の圧力容器鋼の不純物含有量を模擬した鋼材（以下、最新材）とした。

第 2-1 図に ESW クラッド供試体の製造手順を示す。溶接後熱処理の後、周囲約 30mm を切り捨てた。第 2-1 表に母材側からクラッド第 1 層（母材側）と最終層の化学成分分析値を、第 2-2 表に最新材の化学成分分析値を示す。また、第 2-2 図に ESW クラッド第 1 層目の溶接後熱処理（以下、PWHT）後の組織写真、第 2-3 表に PWHT 前後の  $\delta$  フェライト含有量測定結果を示す。

## (2) サブマージドアーク溶接 (SAW) クラッド

サブマージドアーク溶接 (SAW) はおおむね 1982 年ごろまでに製造された圧力容器に適用された溶接方法である。供試体におけるクラッドの厚み、層数は ESW クラッドと同様とした。SAW では 50mm 幅の帯状電極を使用し、母材から第 1 層目の溶接材料は母材による希釈を考慮し D309L とし、2 層目以降の溶接材料は D308L とした。また、フラックスの化学成分を調整することにより  $\delta$  フェライト量に 3 種類の目標値を設定した。すなわち  $\delta$  フェライト量をより高く調整したもの (15~20%)、実機相当 (10%程度、以後 SAWM)、低く調整したもの (5%程度) である。なお、ここでは SAWM のみの結果についてののみ報告する。溶接後熱処理条件は、ESW と同じく  $615^{\circ}\text{C} \pm 20^{\circ}\text{C} \times 7\text{H}$  である。溶接に供した母材の寸法は  $850\text{mm} \times 550\text{mm}$  であり、厚さは 200mm である。この母材は、1968 年前後に製造された圧力容器鋼の不純物を模擬しており（以下、在来材）燐、硫黄及び銅の含有量を ESW 用の母材よりも多く調整してある。

第 2-3 図に SAWM クラッド供試体の製造手順を示す。この母材試験材は、550W を 350W と 200W の 2 つにガス切断を行い、前者の表裏面に  $\delta$  フェライト量の目標値を 10%、後者の表裏それぞれに  $\delta$  フェライト 15~20%、5% とした溶接を施した。溶接後熱処理の後、周囲約 30mm を切り捨てた。第 2-4 表に母材側からクラッド第 1 層（母材側）と最終層の化学成分分析値を、第 2-5 表に在来材の化学成分分析値を示す。また、第 2-4 図に SAWM クラッド第 1 層目の PWHT 後の組織写真、第 2-6 表に PWHT 前後の  $\delta$  フェライト含有量測定結果を示す。

次に、第 2-1 図、第 2-3 図で示したクラッド供試体を、さらに第 2-5 図、第 2-6



図に示すように各種試験用ブロックに切断した。第 2-5 図の ESW 試験用ブロック中、網掛けで示した部分は、次の 2.2 で説明する逐次切断法による残留応力測定用のためのブロックである。第 2-7 表に各ブロック番号とその用途を示す。

## 2.2 残留応力測定

クラッドから母材にわたる板厚方向への残留応力分布は、クラッド表面にひずみゲージを貼付し、母材側からクラッド外表面の向って逐次切断していき、その都度計測される解放ひずみにより求めた。使用したひずみゲージは、東京測器研究所製 2 軸歪ゲージ (FCA-2-17-1L) であり、貼付後にコーティング剤で被覆した。第 2-7 図に逐次切断の詳細を示す。肉盛溶接方向 (x 方向) とその垂直方向 (y 方向) に、それぞれ  $\sigma_x$ 、 $\sigma_y$  なる残留応力をもつとし、ESW クラッド供試体 A、B から x 方向、y 方向に細い短冊状試験片を切出した。次に、縦型鋸盤によって板厚の 1/2 断面で切断 (図中①) した。切断に伴って発生する熱による残留応力の緩和を極力抑えるため、切断速度は 1mm/min とした。その後、クラッド外表面に向かって切断幅が 15mm として逐次切断 (②~③) を行った。切断されたブロックの板厚が約 57mm となつてからは、ワイヤカットを用いて切断し、切断幅を 5mm として逐次切断 (④) を行った。ワイヤの直径は 0.2mm であり、切断速度を 0.5mm/min とした。なお、切断中は冷却水を吹き付けることにより、切断に伴う熱による応力の緩和を防ぐようにした。

## 2.3 熱時効試験

熱時効試験は、290℃、325℃、350℃、400℃の各温度で、第 2-5 表で示したブロックを熱風循環型の電気炉に装荷して行った。所定の時間でブロックを電気炉より取り出し、クラッド部から引張試験片、シャルピー衝撃試験片、破壊靱性試験片を加工し、熱時効による引張特性、破壊靱性特性等の変化を評価した。なお、ここでは、最長 10000 h までの熱時効試験結果について報告する。

## 2.4 中性子照射試験

中性子照射は JMTR において 2 体のキャプセルを用いて行った。中性子照射量は、 $9 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$  ( $E > 1 \text{ MeV}$ ) を目標とした。なお、中性子束は実機の PWR プラントと比較して約 300 倍の加速照射となる。照射温度については  $290 \pm 5^\circ \text{C}$  と設定した。また、原子炉起動時の低温照射の影響を除外するため、原子炉起動前から真空・ヒータ温度制御によって目標照射温度に昇温する完全温度制御と

した。照射条件をまとめると次のとおりである。

#### 照射条件

##### 97M-10A キャプセル

照射日数	: 75 日間 (JMTR3 サイクルに相当)
照射孔	: I-12
目標中性子量	: 平均値で $9 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$ ( $E > 1 \text{MeV}$ )
中性子束	: 約 $1.3 \times 10^{13} \text{n/cm}^2 \text{s}$ ( $E > 1 \text{MeV}$ )
照射温度	: $290 \pm 5^\circ\text{C}$ (完全温度制御)
照射試料	: ESW クラッド

##### 97M-11A キャプセル

照射日数	: 75 日間 (JMTR3 サイクルに相当)
照射孔	: J-12
目標中性子量	: 平均値で $9 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$ ( $E > 1 \text{MeV}$ )
中性子束	: 約 $1.3 \times 10^{13} \text{n/cm}^2 \text{s}$ ( $E > 1 \text{MeV}$ )
照射温度	: $290 \pm 5^\circ\text{C}$ (完全温度制御)
照射試料	: SAW クラッド

## 2.5 機械的性質試験

### (1) 引張試験

引張試験に用いた試験片は、第 2-8 図に示す平行部長さ 7.62 mm、平行部厚さ 0.76mm の小型引張試験片 (SS-3) であり、試験片長手方向が溶接方向と平行になるように、採取・加工した。試験温度は  $-150^\circ\text{C}$  ~  $290^\circ\text{C}$ 、クロスヘッド速度は 0.1 ~ 0.2 mm/min とし、降伏応力、引張強さ、破断伸び (記録紙上) を求めた。

### (2) シャルピー衝撃試験

シャルピー衝撃試験に用いた試験片は、第 2-9 図に示す深さ 2 mm の V ノッチを有する  $10 \times 10 \times 55$  mm の標準型シャルピー試験片である。試験片採取の方向は、L-S 方向 (L は溶接方向、S は板厚方向) であり、V ノッチの先端は肉盛第 2 層に位置するようにし、き裂はクラッド外表面に進む方向とした。

### 3. 結果及び考察

#### 3.1 溶接残留応力

第 3-1 図、第 3-2 図に、母材の板厚中央部を切断後にクラッド外表面に向って逐次切断した場合における、切断深さ（母材 1/2 切断面からの距離）とクラッド外表面に貼付されたゲージによって測定された長手方向ひずみの関係を示す。溶接方向（X）、溶接直角方向（Y）とも、切断にともなって圧縮（-）ひずみが増加し、母材溶接熱影響部近傍で最も大きな圧縮ひずみに達する。その後、母材-溶接部界面近傍から圧縮ひずみが減少し、クラッド内ではほぼ一定となる。いずれのゲージによってもこのひずみの変化はほぼ同じであるので、ここでは、第 2-7 図に示した試験片長手方向中央部に貼付された歪ゲージ C3、D3 の測定結果に対してはりの曲げ理論を適用し、もとの ESW クラッド供試体を母材板厚 1/2 断面で切断したブロックにおける任意断面位置における X 方向、Y 方向の残留応力分布を計算する<sup>14)</sup>。

(3-1)(3-2)式よりの残留応力測定用短冊状試験片長手方向の残留応力 ( $\sigma_x^*$ 、 $\sigma_y^*$ ) を計算する。

$$\sigma_x^*(a) = -\frac{E}{2} \left[ (h-a) \frac{d\varepsilon_x}{da} - 4\varepsilon_x + 6(h-a) \int_0^a \frac{\varepsilon_x}{(h-z)^2} dz \right] \quad (3-1)$$

$$\sigma_y^*(a) = -\frac{E}{2} \left[ (h-a) \frac{d\varepsilon_y}{da} - 4\varepsilon_y + 6(h-a) \int_0^a \frac{\varepsilon_y}{(h-z)^2} dz \right] \quad (3-2)$$

ここで、h: 残留応力測定用短冊試験片 1/2 切断後の厚さ (=117mm)

E: ヤング率       $\varepsilon$ : クラッド外表面において測定されるひずみ

a: 切断深さ

次に、第 2-7 図に示した X 方向残留応力測定用短冊状試験片、Y 方向残留応力測定用短冊状試験片は、それぞれ同一平板ブロックから切り出されたものと仮定し、次の(3-3)(3-4)式により X 方向残留応力 ( $\sigma_x$ )、Y 方向残留応力 ( $\sigma_y$ ) を計算する。

$$\sigma_x(a) = \frac{1}{1-\nu^2} (\sigma_x^*(a) + \nu\sigma_y^*(a)) \quad (3-3)$$

$$\sigma_y(a) = \frac{1}{1-\nu^2} (\sigma_y^*(a) + \nu\sigma_x^*(a)) \quad (3-4)$$

ここで、 $\nu$ : ポアソン比

第 3-3 図にゲージ C3、D3 により測定された解放ひずみから算出した残留応力  $\sigma_x$ 、 $\sigma_y$  の板厚方向分布を示す。ここでは、残留応力計測用短冊状試験片の切出し、及び母材板厚の中央での切断による残留応力の解放は考慮していない。この図から、X 方向、Y 方向とも、クラッド内で引張の残留応力が存在し、その大きさはほぼ降伏応力に達するものである。また、母材/クラッド界面で残留応力が引張から圧縮へと変化し、母材溶接熱影響部には圧縮応力のピークが存在している。この残留応力は、溶接後熱処理後の冷却過程で母材とクラッドの熱膨張係数の違いによって発生したものと考えられる。これまで、原子炉圧力容器クラッドの残留応力の測定結果は、3 ワイヤシリーズアーク溶接法の場合が報告されているだけである<sup>[5]</sup>。この溶接法では、ESW と比較し、溶接にともなう入熱が大きいために母材によるクラッドの希釈が大きく、また溶接には帯状電極ではなくワイヤー電極を用いているためビード幅が狭いものである。しかし、このような溶接方法の違いによらず、報告された残留応力分布は、本結果とほぼ同じ結果となった。

### 3.2 熱時効脆化

第 3-4 図、第 3-5 図に、ESW、SAWM それぞれの受領材と熱時効材（400℃×10000 h）について、-150℃～290℃で実施した引張試験結果を示す。試験片は母材側から肉盛第 1 層、第 2 層から採取したものを使用した。なお、破断ひずみは、試験片破断時におけるクロスヘッド変位から求めた。試験片肩部（R 部）に治具を当てることにより負荷したため、試験片肩部の治具のすべりに起因するばらつきが大きい結果となっている。

400℃、10000 h の熱時効により、ESW、SAWM ともわずかな降伏応力、引張強さの上昇が認められる。クラッドと類似の組織、成分を有する 2 相ステンレス鋼の熱時効に伴う組織変化の観察結果によれば<sup>[6]</sup>、時効温度 400℃～300℃における脆化の主因は、フェライト中の Cr の濃度の変調、すなわちスピノーダル分解及び Ni 及び Si リッチの G 相の析出である。スピノーダル分解の初期段階で生じる濃度変調は後期段階（G 相の析出より長時間側）においては Fe の濃縮した相（ $\alpha$ ）と Cr の濃縮した相（ $\alpha'$ ）に分離する。そして、これらはフェライト相の硬化をもたらすことが知られている。現在、熱時効材について透過電子顕微鏡観察を進めているが、2 相ステンレス鋼のフェライト相の温度-時間-析出（TTT）線図を参考にすれば<sup>[6]</sup>、400℃、10000 h という熱時効条件では、フェライト相内における Cr 濃度の変調と、さらには G 相の析出が考えられる。本結果においても、以上のような組織変化に起因しフェライト相が硬

化していると考えられる。なお、マトリックスであるオーステナイト ( $\gamma$ ) 相は硬化しない<sup>17)</sup>。しかし、第 3-4 図、第 3-5 図で示した降伏応力・引張強さがほとんど変化しない結果は、室温以上における引張破壊はすべり変形によるものであり、試験に供したクラッド材はいずれも  $\delta$  フェライト量が 10%程度と少ないため、引張特性は主としてマトリックスである  $\gamma$  相の塑性変形に支配されているためと考えられる。また、試験温度が低温になるに伴い、 $\gamma$  相は fcc なのでへき開破壊はおこらないが、 $\delta$  フェライト相がへき開破壊する場合は考えられる。この場合、破断伸びの大きな減少を伴うが、本試験においては破断伸びのばらつきが大きいものの、そのような傾向は認められなかった。

第 3-6 図、第 3-7 図に、ESW、SAWM それぞれの受領材と時効温度が 290℃～400℃で最長 10000 h の熱時効材について、試験温度とシャルピー吸収エネルギーの関係を示す。ESW、SAWM とも延性脆性遷移挙動を示し、400℃、10000 h の熱時効では、DBTT が高温側にシフトし、上部棚吸収エネルギー (以下、USE) が低下する。41J エネルギーレベルにおける DBTT シフトと USE 低下率は、ESW、SAWM でそれぞれ 55℃、25%、および 37℃、23%である。第 3-8 図、第 3-9 図に、ESW の 400℃、10000 h の熱時効材について、試験温度が遷移温度域 (-100℃)、上部棚域 (+100℃) である試験片破壊面の SEM 観察写真を示す。遷移温度域では、 $\gamma$  相は延性破面 (ディンプル) であるが、フェライト部はへき開破面を呈するとともに、フェライト相/ $\gamma$  相の界面割れが認められる。上部棚域では、 $\gamma$  相、フェライト相とも延性破面である (写真中央部は伸長ディンプル)。これらの破壊様式の試験温度による変化は、SAWM 熱時効材でも同じであり、また、受領材でも同様である。したがって、ESW、SAWM の延性脆性遷移挙動はフェライト相の破壊様式の変化によるものである。また、熱時効に伴う DBTT のシフト、USE の低下は、上記の組織変化に起因するフェライト相の硬化によるものと考えられる。

なお、SAWM 受領材の DBTT は、ESW 受領材と比較して高温であり、USE が低くなっている。すなわち、遷移温度域・上部域とも破壊抵抗が低くなっている。この原因の一つとしては、SAWM の C 含有量が高いことが考えられる。ESW、SAWM とも溶接電極材料の C 含有量は 0.01～0.02%であるが、SAWM は溶接時の入熱量が大きいため母材成分による希釈の影響を受けやすく、母材の溶け込みによって C 含有量が大きくなっている (第 2-1 表、第 2-3 表)。クラッド材では溶接後熱処理により炭化物  $M_{23}C_6$  がフェライト相/ $\gamma$  相の界面に析出するが、C の含有量が多い SAWM の場合は、より多くの  $M_{23}C_6$  が析出することになる。したがって、SAWM では、このような  $M_{23}C_6$  により遷移温度域において第 3-8 図で示したような界面割れが生じやすくなって DBTT が高くなり、上部棚域においても  $M_{23}C_6$  が延性き裂の優先的なパスとなって<sup>17)</sup>、USE が低下すると考えられる。

次に、軽水炉圧力容器の実用温度は約 290℃であるが、この実用温度より高い温度で熱時効をおこなって脆化時間を短縮させる試験、いわゆる加速試験により、実用温度・長時間のクラッド材の脆化を予測することが可能であるかを検討する。クラッド材と類似の組成をもつ 2 相ステンレス鋼においては、次式で示される時効パラメータ P により時効温度と時間が異なる熱時効試験結果を一つのマスター曲線で扱えることが示されており<sup>1)例えば 8)</sup>、このパラメータ P によりクラッド材の熱時効脆化データを整理してみる。

$$P = \log t + 0.4343 \frac{Q}{R} \left( \frac{1}{673} - \frac{1}{T} \right) \quad (3-5)$$

t は時効時間(h)、T は時効温度(K)、R はガス定数

Q は脆化の活性化エネルギー(kJ/mol)

活性化エネルギー Q は、組成、組織、熱履歴及び温度により、100~200 kJ/mol の範囲で変動するといわれているが、ここでは SUS308 規格のステンレス鋼溶接部におけるスピノーダル分解の活性化エネルギーとされている Q=200 kJ/mol<sup>9)</sup>を用いた。第 3-10 図は、ESW、SAWM 熱時効材の室温におけるシャルピー吸収エネルギーを時効パラメータ P で整理したものである。今回のデータセットの範囲から判断すれば、ESW、SAWM とも、時効パラメータ P によって、温度及び時間が異なる熱時効によるシャルピー吸収エネルギーの低下を統一的に扱えると考えられる。しかし、(3-5)式により高温側・短時間のデータにより低温・長時間を予測するためには、これらの温度における脆化機構が同じであることが前提となる。よって、(3-5)式による予測精度をあげる意味においても、今後はさらに低温、長時間のデータを蓄積し、組織変化の比較などを行う計画である。

### 3.3 中性子照射脆化

第 3-11 図、第 3-12 図に、ESW、SAWM それぞれの受領材と中性子照射材について、-150℃~290℃で実施した引張試験結果を示す。熱時効と同様に、引張試験片は母材側からクラッド第 1 層、第 2 層から採取・加工した。引張試験片における中性子照射条件は、ESW が 290℃、 $1.5 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> (E>1MeV)、SAWM が 290℃、 $1.2 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> (E>1MeV)である。中性子照射により、ESW、SAWM それぞれ降伏応力が上昇し、温度が低いほどその上昇が大きい。290℃、150℃及び室温における ESW、SAWM の降伏応力の上昇は、平均でそれぞれ 25%、33%、41%および 33%、38%、44%である。SAWM は ESW と比較して中性子照射量がやや低いが、降伏応力の上昇が大きい。引張強さについては、ESW、SAWM とも中性子照射によるあまり変化しない。また、破断伸びについては、SAWM において中性子照射により低下する傾向が顕著である。熱時効の場合と異なり、

中性子照射による降伏応力の上昇、いわゆる照射硬化には、フェライト相だけでなく $\gamma$ 相の硬化も寄与していると考えられ、また、硬化の感受性はフェライト相の方が大きいことが知られている<sup>[10]</sup>。よって、SAWM が ESW と比較して降伏応力の上昇が大きいのは、SAWM のフェライト量が若干多いことによるものと考えられる。

第 3-13 図、第 3-14 図に、ESW、SAWM それぞれの受領材と中性子照射材に対する試験温度とシャルピー吸収エネルギーの関係を示す。ESW、SAWM それぞれに中性子照射により DBTT は高温側にシフトし、USE が低下する。41J エネルギーレベルにおける DBTT シフトと USE 低下率は、ESW、SAWM でそれぞれ 44℃、16%、および 50℃、17%である。照射硬化と同様な傾向で、SAWM の方が、中性子照射によるシャルピー特性の変化が大きい結果となっている。中性子照射の効果を明らかにするため、照射期間 (290℃、1745 h) 相当以上の熱時効の結果 (290℃、2700 h) も同図に示してあるが、遷移温度域、上部棚域でも吸収エネルギーに大きな差異はない。よって、これら中性子照射によるシャルピー特性の変化においては、熱時効の効果は含まれていない。

クラッド材における熱時効脆化と中性子照射脆化の重畳については、厳密には同時進行する脆化の重畳となっていないが、クラッド材をまず熱時効しその後中性子照射を行った場合のシャルピー試験結果が報告されている<sup>[2]</sup>。ここでは、熱時効脆化と中性子照射脆化は加算的であるが、熱時効が中性子照射脆化を増大させるものではないことが示された。この結果を参考に、本報告のクラッド材と母材について、圧力容器の 60 年間を越える運転における DBTT シフトを比較してみる。クラッドの熱時効脆化については(3-5)式と  $Q=200$  kJ/mol が適用できるとすると、時効パラメータが 3 の熱時効は 290℃で 60 年相当の熱時効に相当するため、時効パラメータが 4 である 400℃、10000 h の熱時効では 60 年運転を十分に越える脆化量を与えることができる。また、国内初期プラントの圧力容器内面が受ける中性子照射量は 32EFPY (40 年間×80%稼働率) で約  $5.7 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup> (E>1MeV) であることから<sup>[11]</sup>、本報告における中性子照射量  $1.2 \sim 1.5 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup> (E>1MeV) は 60 年運転を越える中性子照射量となっている。以上から、60 年を上回る運転における熱時効・中性子照射による ESW と SAWM の DBTT シフトを、第 2 節で述べた通りクラッドの製造時期に合わせて鋼中不純物を調整した ESW 及び SAWM 用母材の中性子照射による DBTT シフトと比較したのが第 3-15 図である。受領状態の DBTT (以下、初期値) は、ESW、SAWM とも、それぞれの母材よりも低い。また、中性子照射による DBTT シフトは、母材の方が大きい。両クラッド材において、中性子照射、熱時効による DBTT シフト分を初期値に加算しても、母材における中性子照射後の DBTT より低くなっている。したがって、クラッド部における脆性破壊の発生は、母材と比較して極めてその可能性が低いといえる。しかし、延性破壊については、特に

SAWM においては受領状態の USE が低く、また、ここで明らかにされたように中性子照射及び熱時効により USE は低下するので、別途検討が必要である。今後は、熱時効、中性子照射後のクラッド材についての J-R 曲線による評価を行う予定である。

#### 4. 結言

エレクトロスラグ溶接 (ESW) 及びサブマージドアーク溶接 (SAWM) により、2 種類の圧力容器母材/ステンレス肉盛クラッド供試材を製作し、溶接残留応力を測定するとともに、これらクラッド材の熱時効及び中性子照射脆化を評価した。その結果、以下のことを明らかにした。

- (1) ESW クラッド供試材の溶接残留応力分布を、逐次切断法により測定した。クラッド部には降伏応力に達する程度の引張応力が、また、母材溶接熱影響部に圧縮応力が存在する。この残留応力は、溶接後熱処理後の冷却過程におけるクラッドと母材の熱膨張係数の違いによって生じたものである。
- (2) クラッド材は、母相がオーステナイト相でも、10 %程度含まれる  $\delta$  フェライトによって延性脆性遷移挙動を示す。
- (3) 400°C、10000 h の熱時効により、降伏応力の上昇と、延性脆性遷移温度 (DBTT) の高温側へのシフト及び上部棚吸収エネルギー (USE) の低下が認められる。これらの変化は、熱時効に伴うフェライト相の硬化によるものである。また、SAWM クラッドは、ESW クラッドと比較し、受領状態の DBTT が高く USE が低い。
- (4) 290°C、 $1.2 \sim 1.5 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup> ( $E > 1$  MeV) の中性子照射によっても、降伏応力は上昇し、DBTT のシフトと USE の低下が生じる。
- (5) クラッド材は母材に比べ初期の DBTT が低い。中性子照射によるクラッド材と母材の DBTT シフトを比較すると、クラッド材におけるシフトの方が小さい。また、クラッド材において中性子照射と熱時効が重畳する場合の DBTT は、母材の中性子照射後の DBTT よりも低い。



参考文献

- [1] F. M. Haggag et al., "Tensile and Charpy Impact Behavior an Irradiated Three-Wire Series-Arc Stainless Steel Cladding", ASTM STP 1046, 1990, pp. 361-372
- [2] M. Bethmont et al., "Toughness Properties of End of Life Reactor Pressure Vessel Cladding", IAEA Specialist Meeting on Irradiation Embrittlement and Mitigation, Oct. 23-26, 1995, Espoo, Finland.
- [3] J. Keeney-Waker et al., "Evaluation of the Effects of Irradiated Cladding on the Behavior of Shallow Flaws Subjected to Pressurized-Thermal-Shock Loading", SMiRT 11 Transactions Vol. G07/3, 1991, Tokyo, Japan.
- [4] 金谷茂、「残留応力の発生と対策」、養賢堂、1975
- [5] D. E. McCabe, "Fracture Resistance of Irradiated Stainless Steel Clad Vessels," ASTM-STP 1046, 1990, pp.348-360
- [6] H. M. Chung et al., "Long-Term-Aging Embrittlement of Cast Austenitic Stainless Steels Mechanism and Kinetics", in Properties of Stainless Steels in Elevated Temperature Service, The American Society of Mechanical Engineers, New York, 1987, pp.17-34
- [7] J. M. Vitek et al., "Low Temperature Aging Behavior of Type 308 Stainless Steel Weld Metal", Acta Metall. Mater., Vol. 39, No. 4, pp503-516, 1991
- [8] K. Chopra et al., "Cast Stainless Steel Aging: Mechanisms and Predictions", 17<sup>th</sup> Water Reactor Safety Information Meeting, Rockville, MD, Oct. 23-25, 1989
- [9] 桑野寿他, 材料とプロセス, Vol. 11, 1998, p.1221
- [10] F. M. Haggag et al., "Effects of Irradiation on the Fracture Properties of Stainless Steel Overlay Cladding", Nuclear Engineering and Design, Vol.124, 1990, pp.129-141
- [11] 中村他、"PWR プラント原子炉容器の脆性破壊に対する健全性について", 電気評論, 1993, pp.59-64,

第 2-1 表 ESW クラッドの化学成分分析値(wt%)

	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	N
第 1 層	0.013	0.62	1.28	0.020	0.002	10.7	19.5	0.02	0.007
最終層	0.013	0.65	1.18	0.020	0.002	10.7	19.6	0.02	0.008

第 2-2 表 ESW クラッド用母材 (最新材) の化学成分分析(wt%)

	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Cu	Mo	Co	N
最新材	0.19	0.19	1.44	0.004	0.001	0.66	0.13	0.04	0.50	0.011	0.014

第 2-3 表 ESW クラッドの $\delta$ フェライト含有量

	PWHT 前 $\delta$ フェライト含有量(%)	PWHT 後 $\delta$ フェライト含有量(%)
第 1 層	9.1	8.6
最終層 (第 5 層)	10.0	8.4

PWHT：溶接後熱処理

第 2-4 表 SAW クラッド第 1 層及び最終層 (第 5 層) の化学成分(wt%)

	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	N
第 1 層	0.058	0.57	1.49	0.013	0.008	9.90	19.5	0.08	0.014
最終層	0.030	0.84	1.56	0.009	0.009	10.4	19.6	<0.01	0.028

第 2-5 表 SAWM クラッド用母材(在来材)の化学成分(wt%)

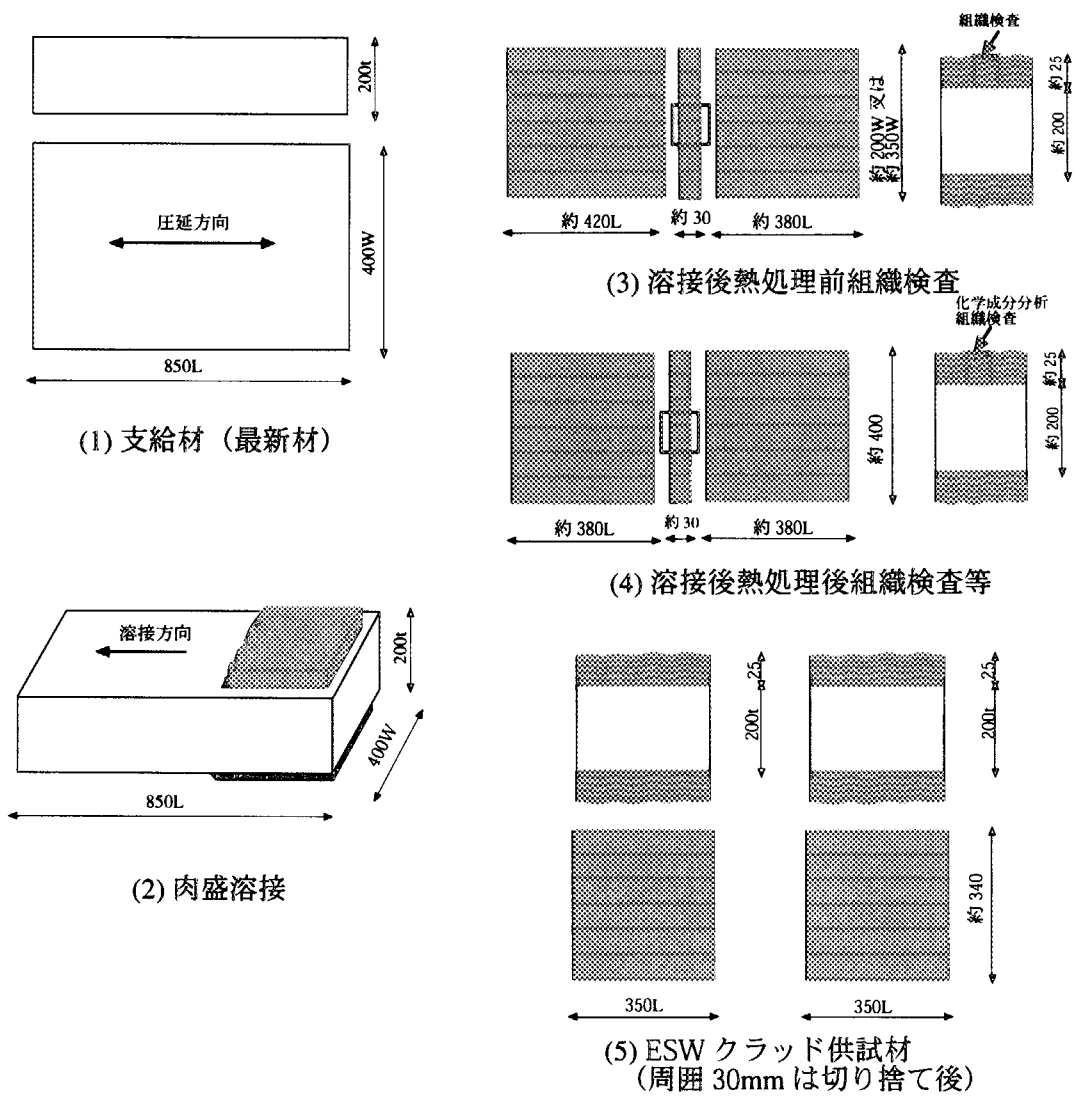
	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Cu	Mo	Co	N
在来材	0.20	0.30	1.32	0.015	0.010	0.68	0.17	0.16	0.53	0.011	0.010

第 2-6 表 SAWM クラッドの $\delta$ フェライト含有量

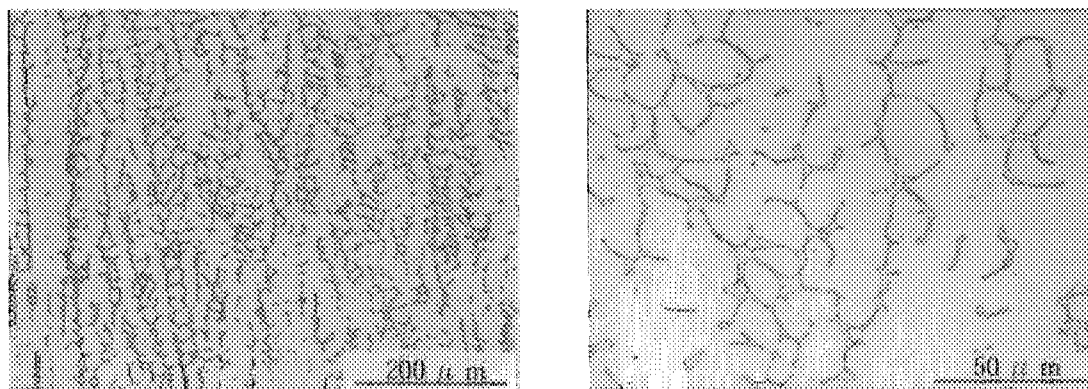
	PWHT 前 $\delta$ フェライト含有量(%)	PWHT 後 $\delta$ フェライト含有量(%)
第 1 層	10.4	10.5
最終層 (第 5 層)	12.9	10.6

第 2-7 表 切断されたブロックの試験用途

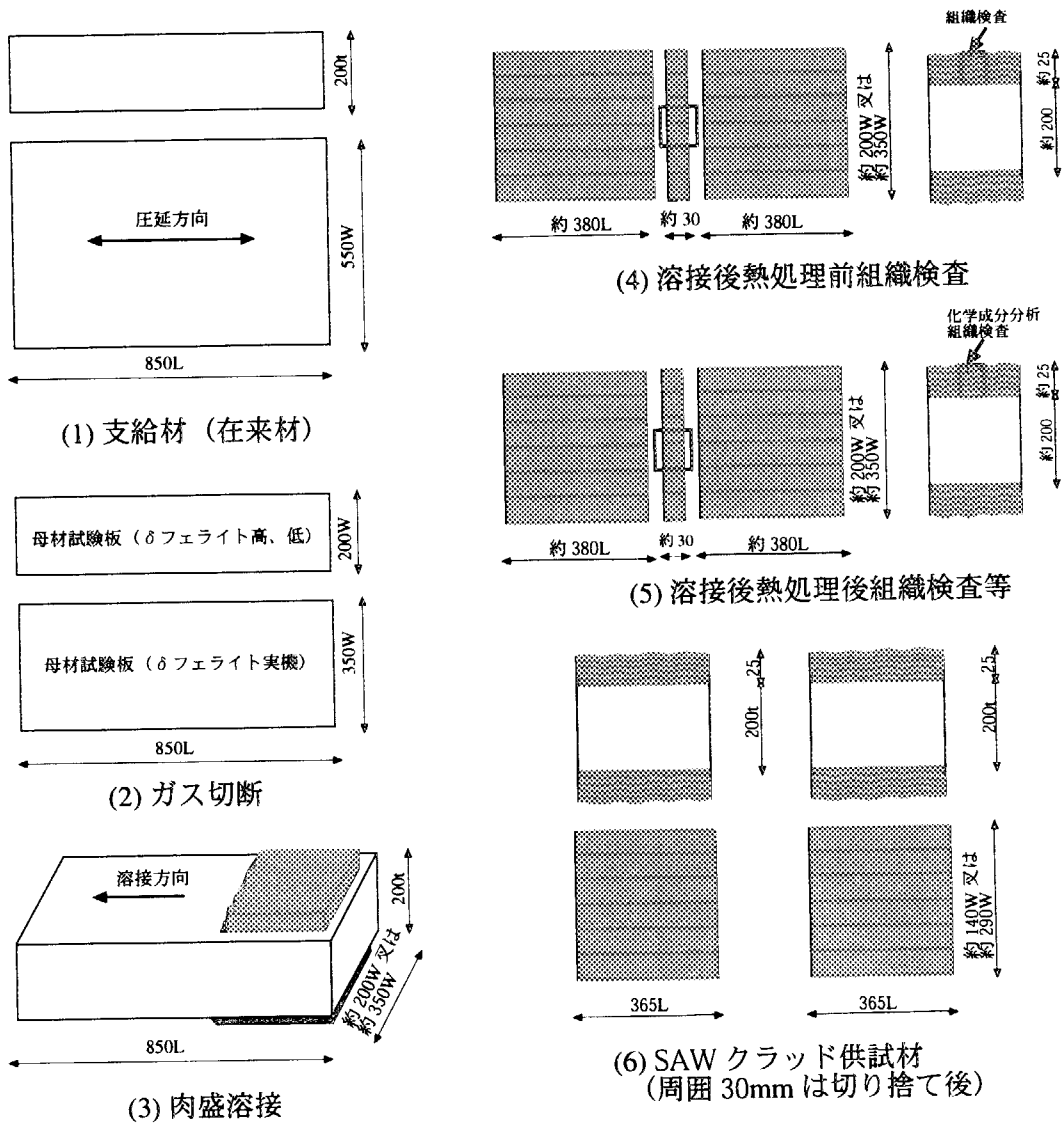
	ESW	SAWM
受領材試験	EA-4	SAM1-4
中性子照射試験	EA-2	SAM1-2
熱時効試験	EA1,EA5,EA6 EA8 EB9,EB10 EB11,EB12 EB13,EB14 EB15,EB16	SAM1-1,SAM1-3, SAM1-5,SAM1-6, SAM1-7,SAM1-8, SAM2-1,SAM2-2, SAM2-3,SAM2-4, SAM2-5,SAM2-6, SAM2-7,SAM2-8



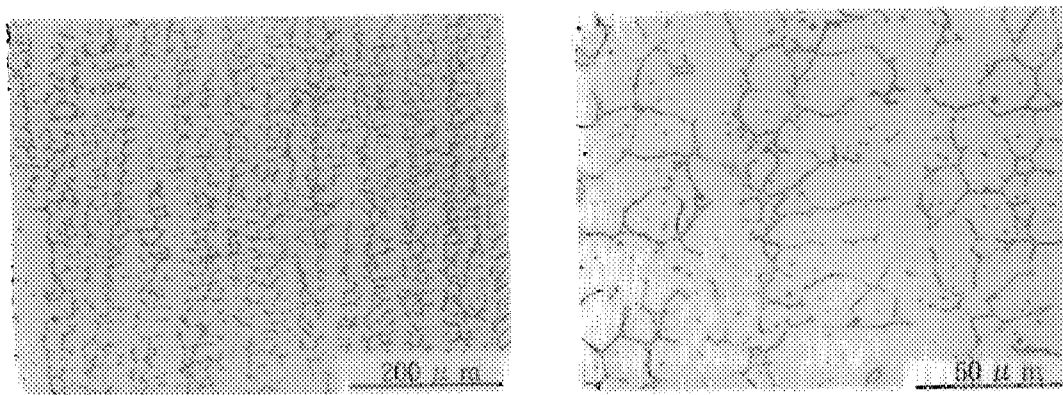
第 2-1 図 ESW クラッド供試体の製造



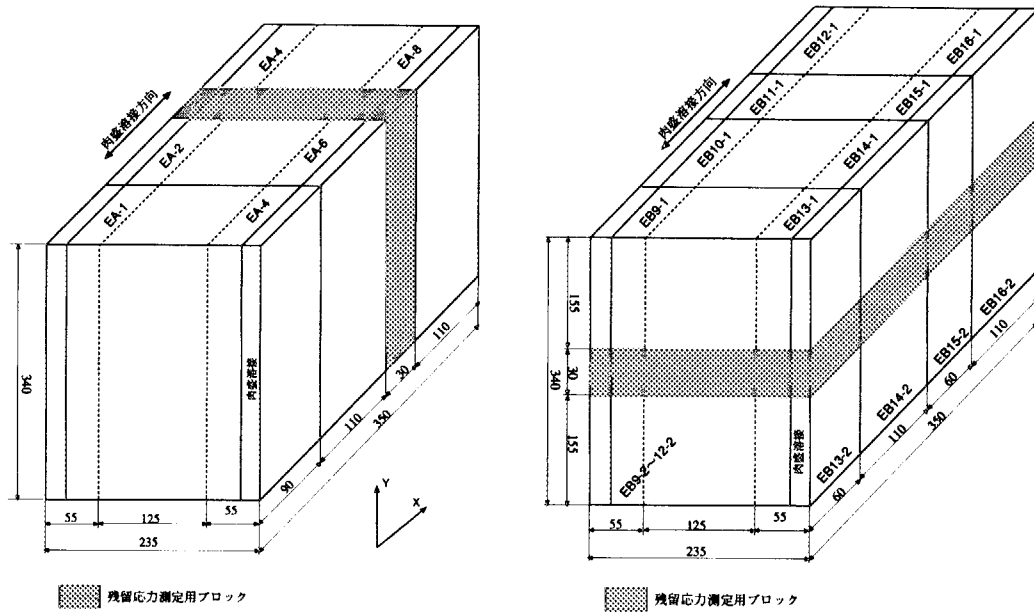
第 2-2 図 ESW クラッドの溶接後熱処理後の組織写真 (第 1 層目)



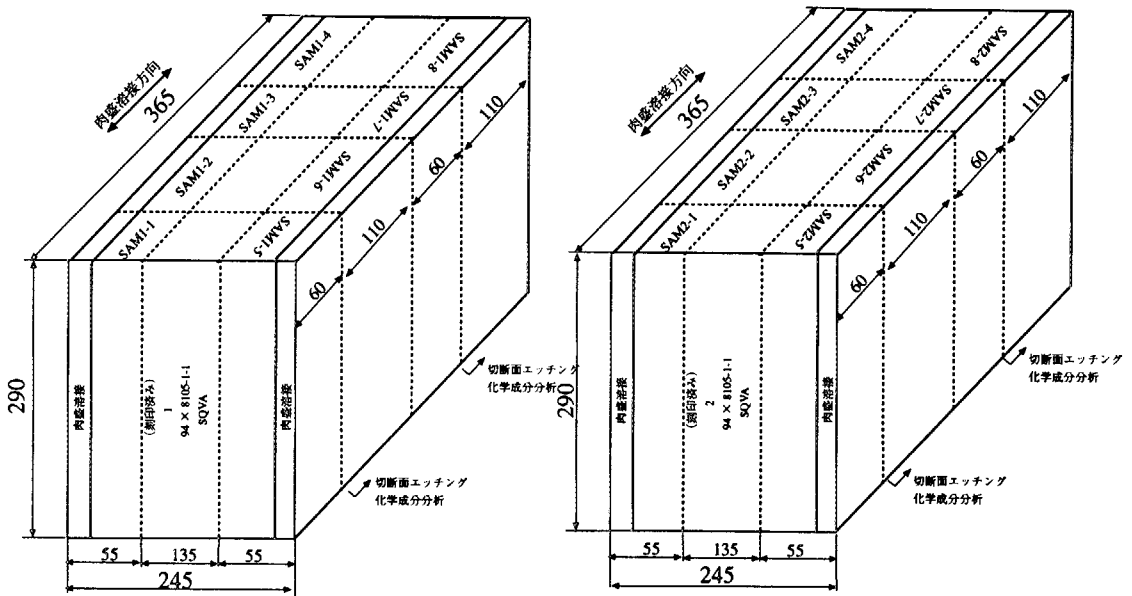
第 2-3 図 SAWM クラッド供試体の製造



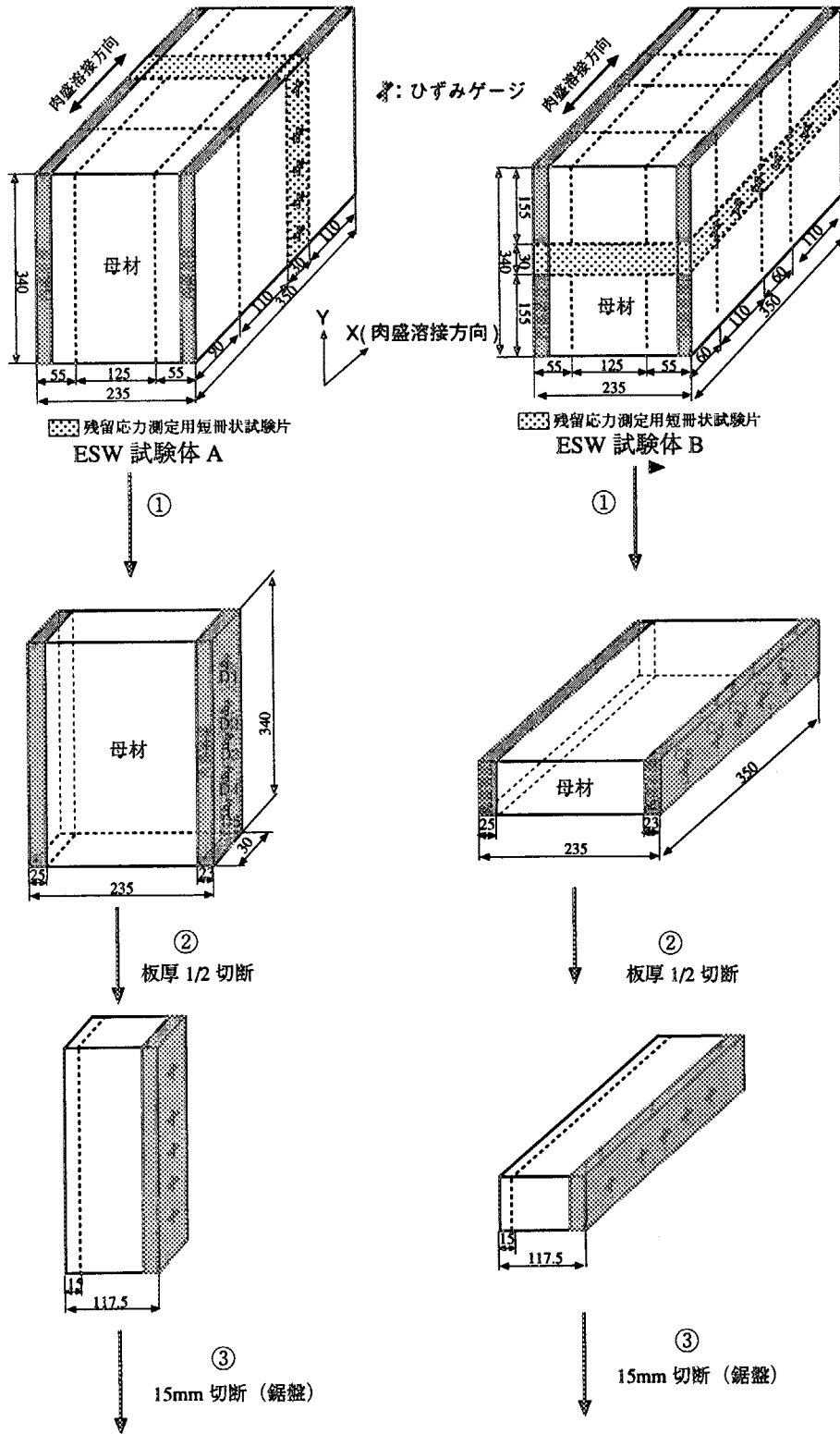
第 2-4 図 SAWM クラッドの溶接後熱処理後の組織写真 (第 1 層目)



第 2-5 図 ESW クラッド試験用ブロックの切断



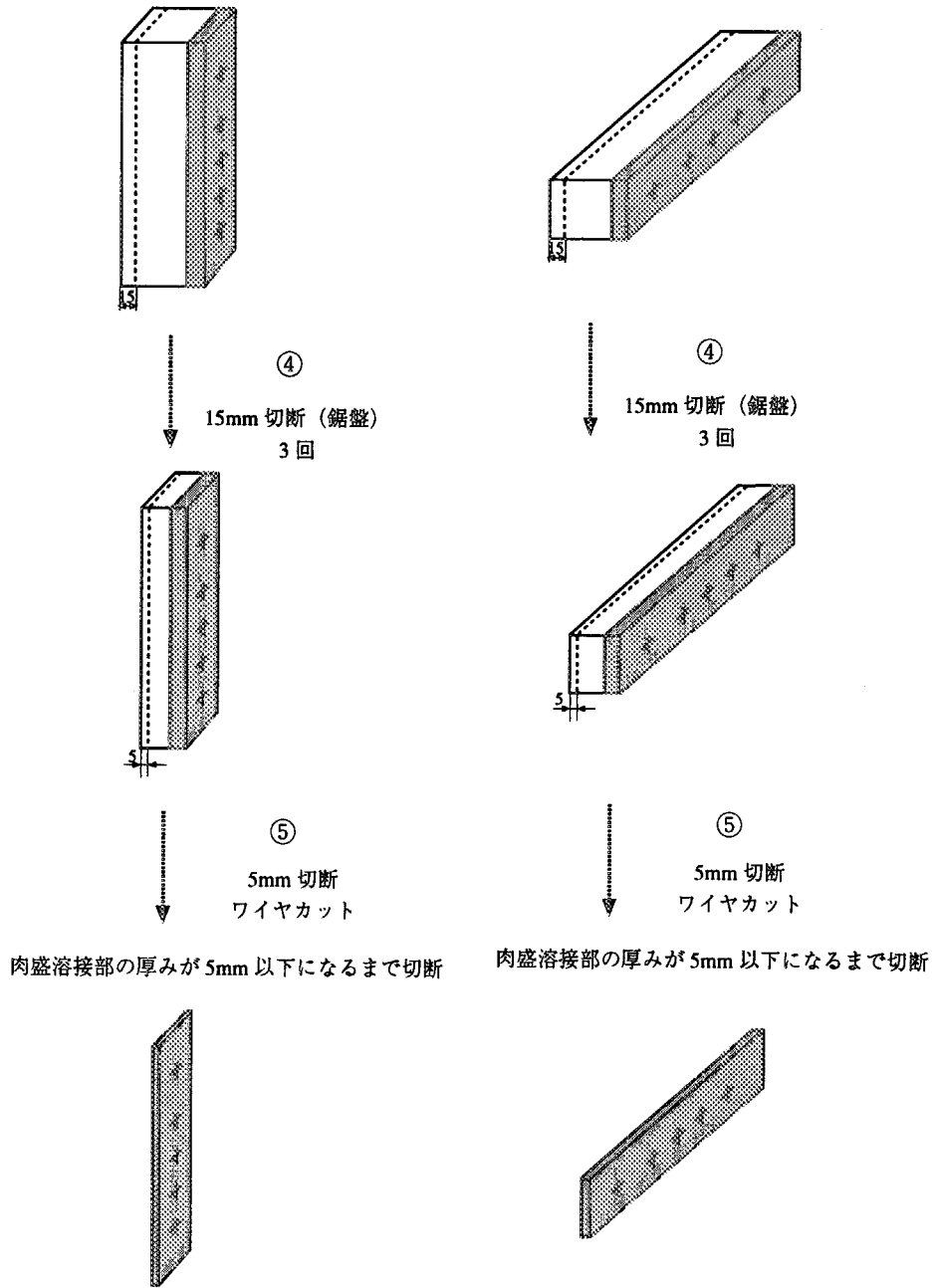
第 2-6 図 SAWM クラッド試験用ブロックの切断



(続く)

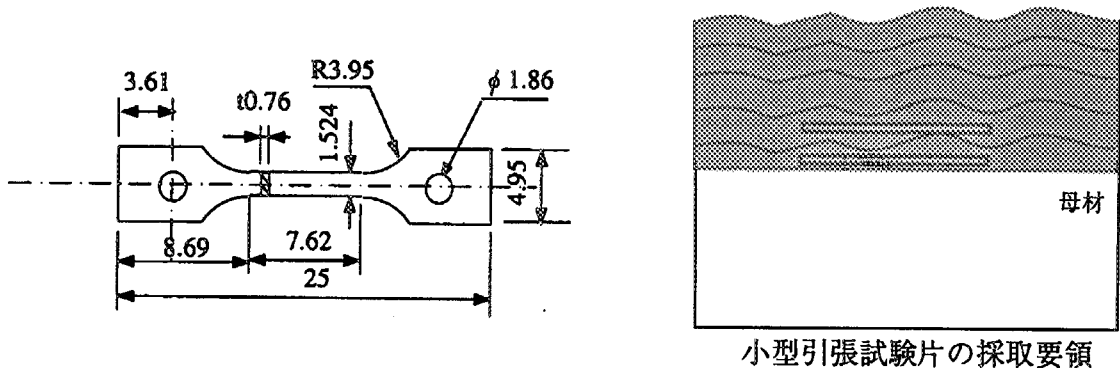
第 2-7 図 溶接残留応力測定のための逐次切断 (その 1)

(続き)

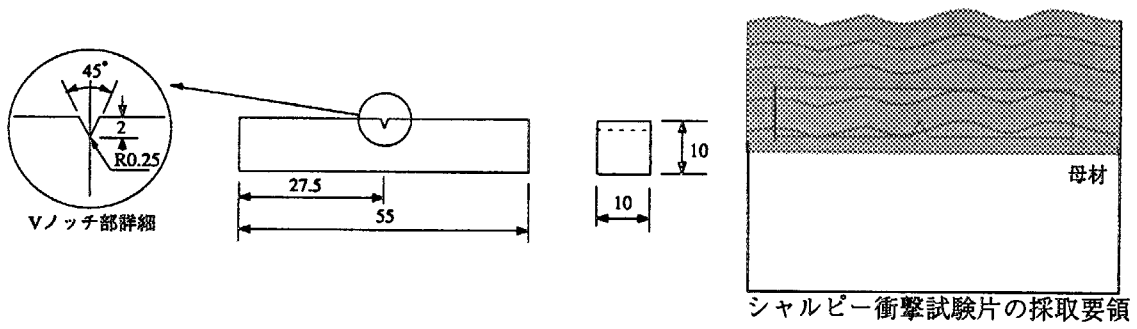


第 2-7 図 溶接残留応力測定のための逐次切断 (その 2)

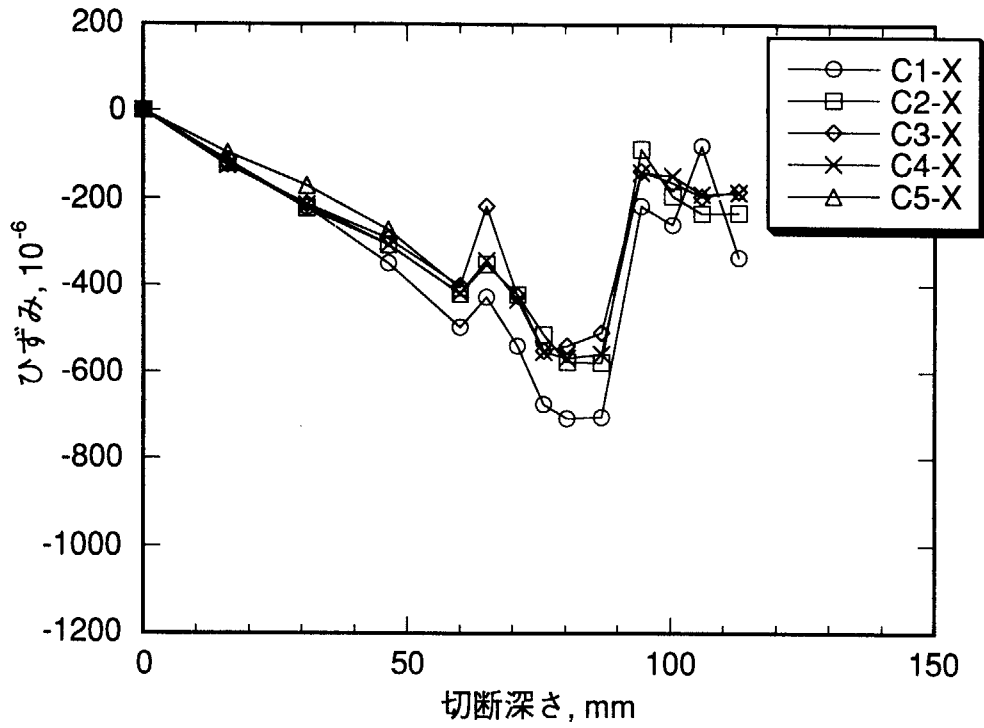




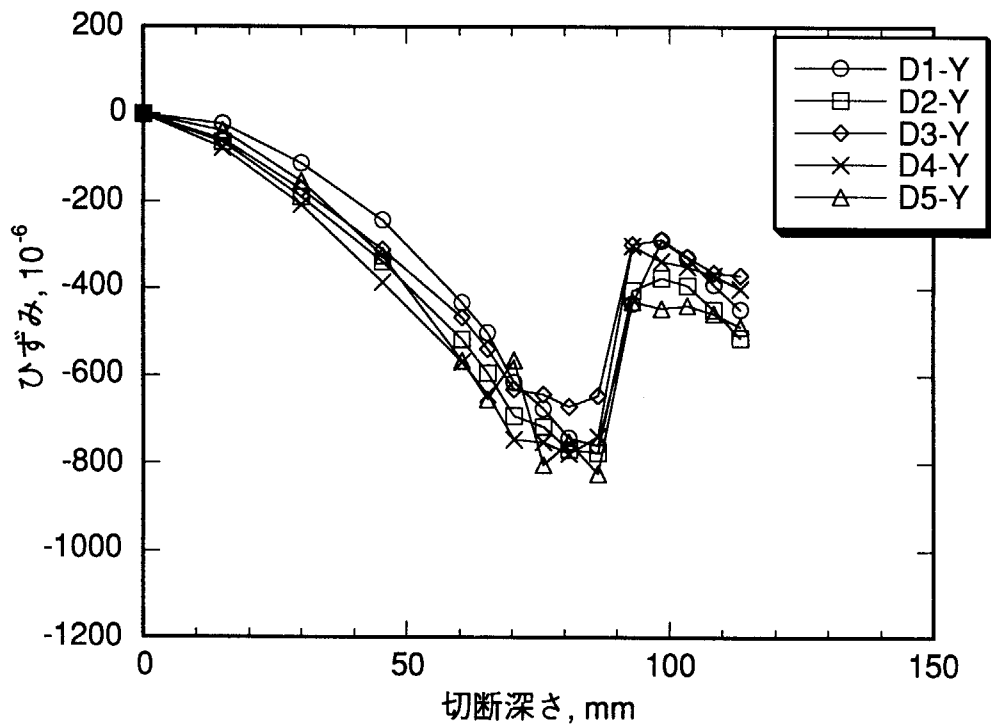
第 2-8 図 小型引張試験片(SS-3)



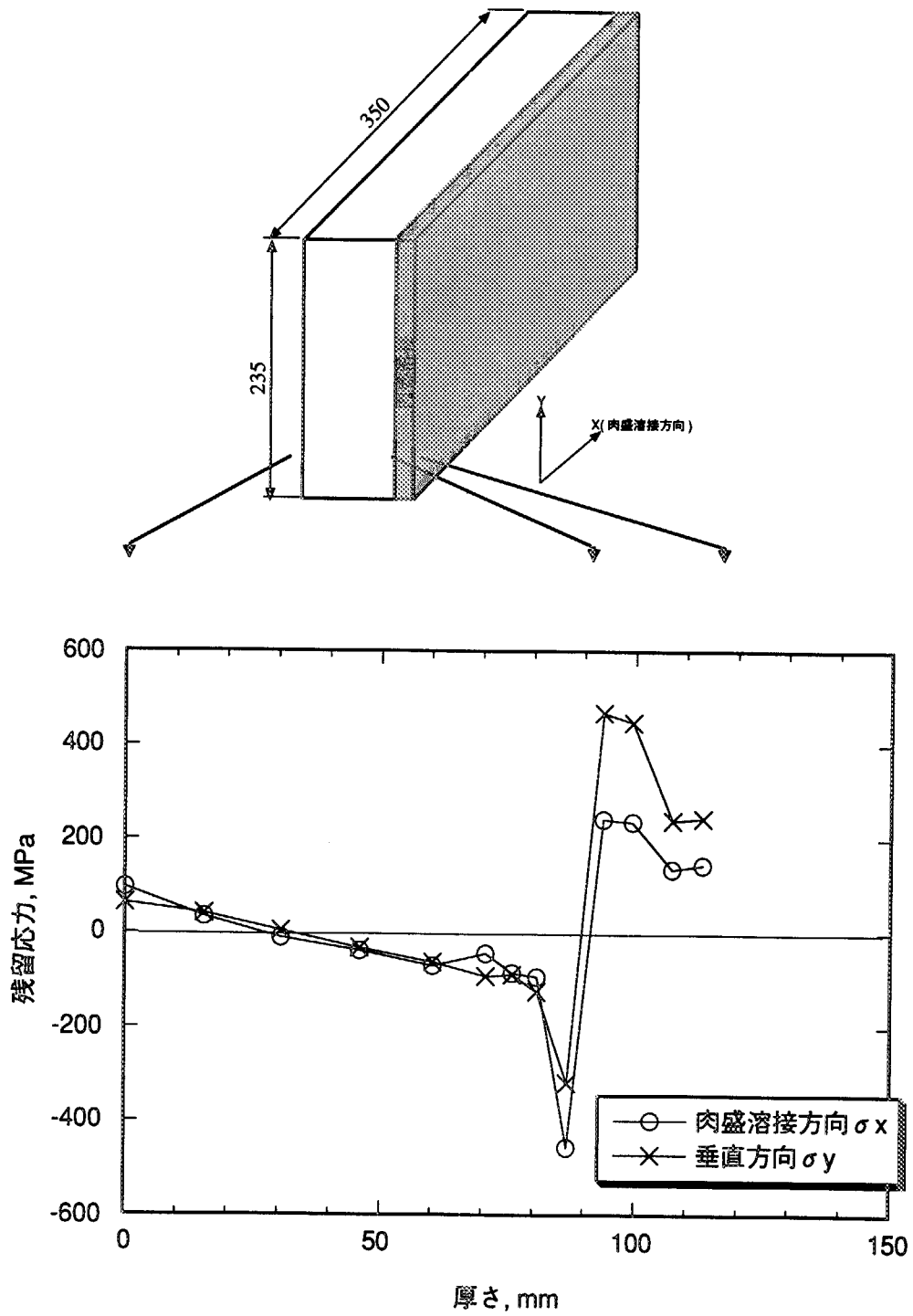
第 2-9 図 シャルピー衝撃試験片



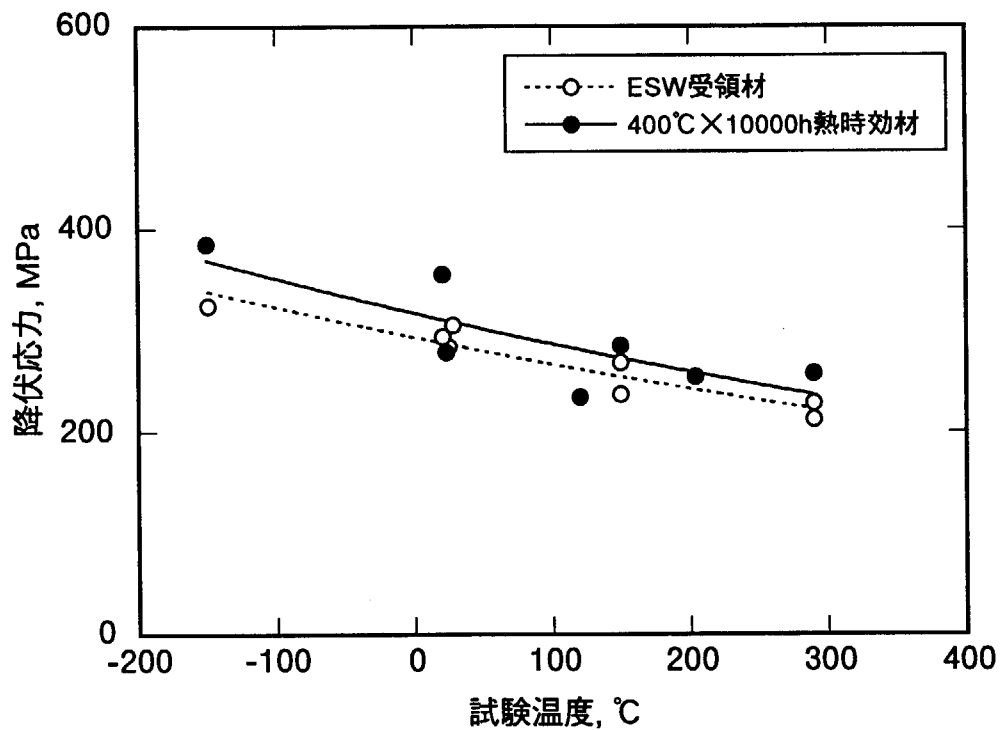
第 3-1 図 ゲージ C1-C5 によって測定された X 方向ひずみの逐次切断による変化



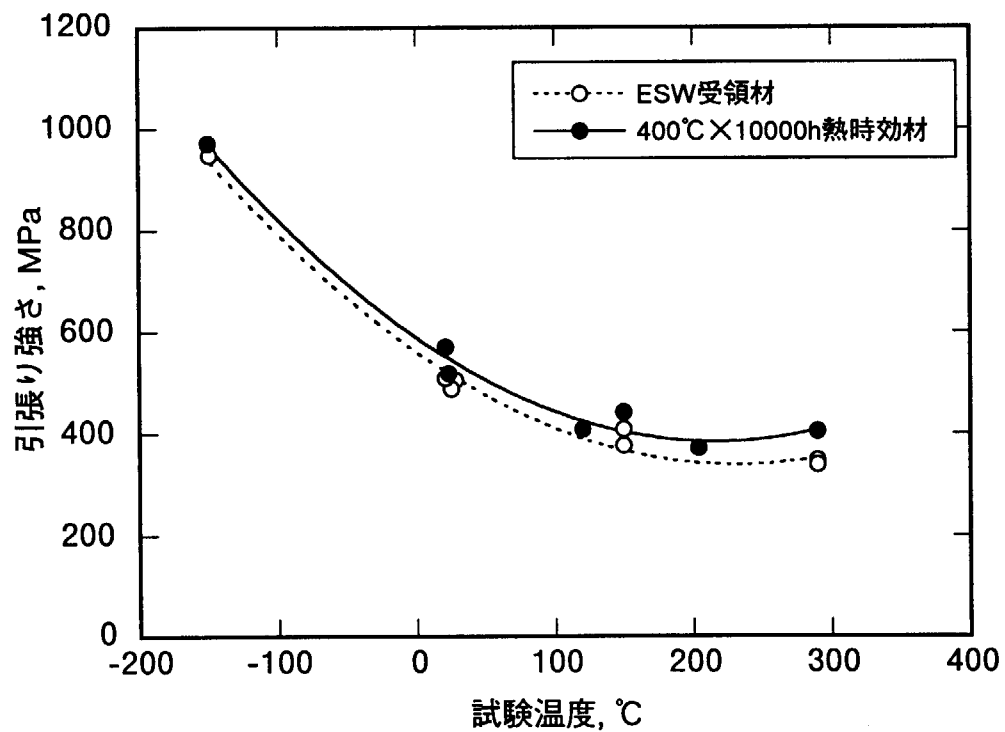
第 3-2 図 ゲージ D1-D5 によって測定された X 方向ひずみの逐次切断による変化



第 3-3 図 ゲージ C3 と D3 のひずみ測定値により計算された溶接残留応力分布

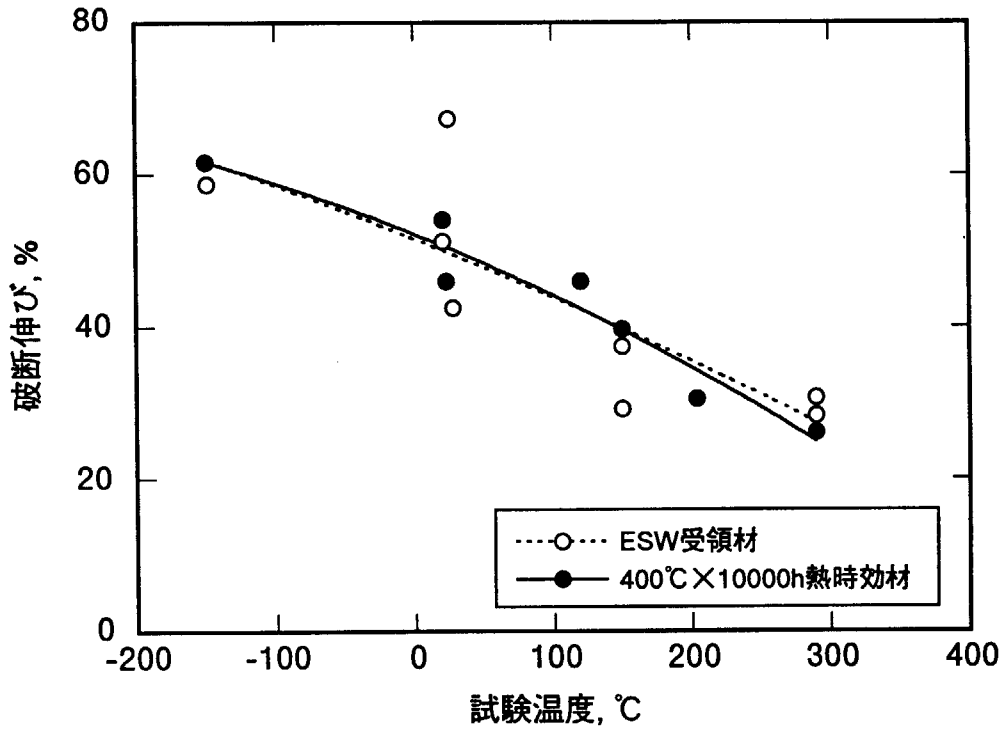


(1) 降伏応力



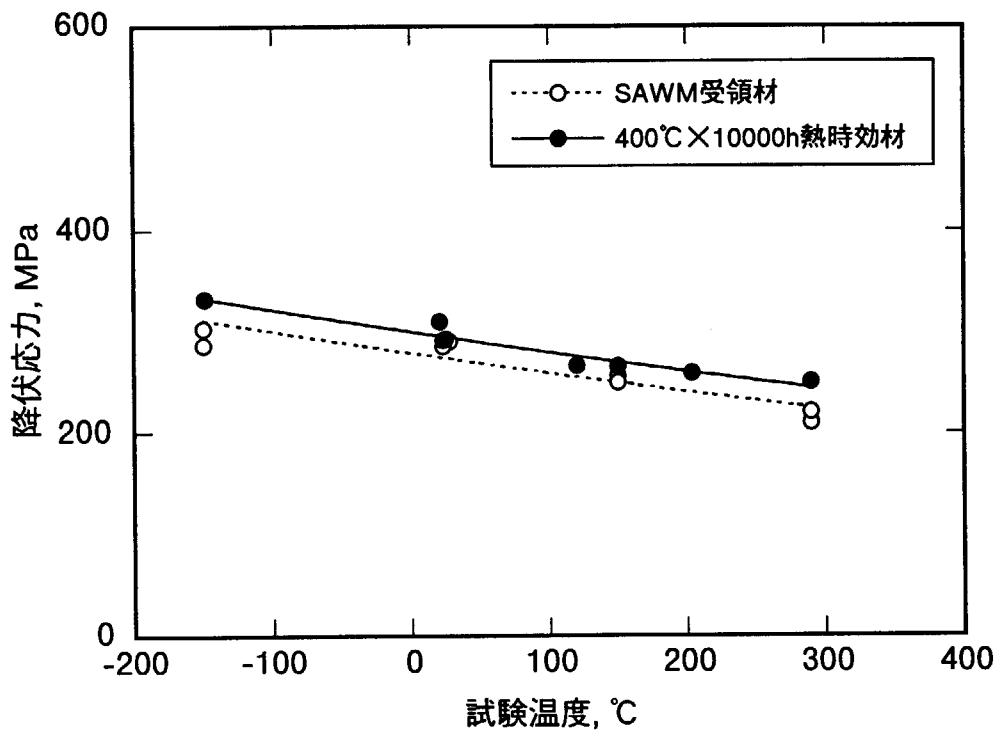
(2) 引張り強さ

第3-4図 ESWクラッド熱時効材(400°C × 10000 h)の引張試験結果 (続く)



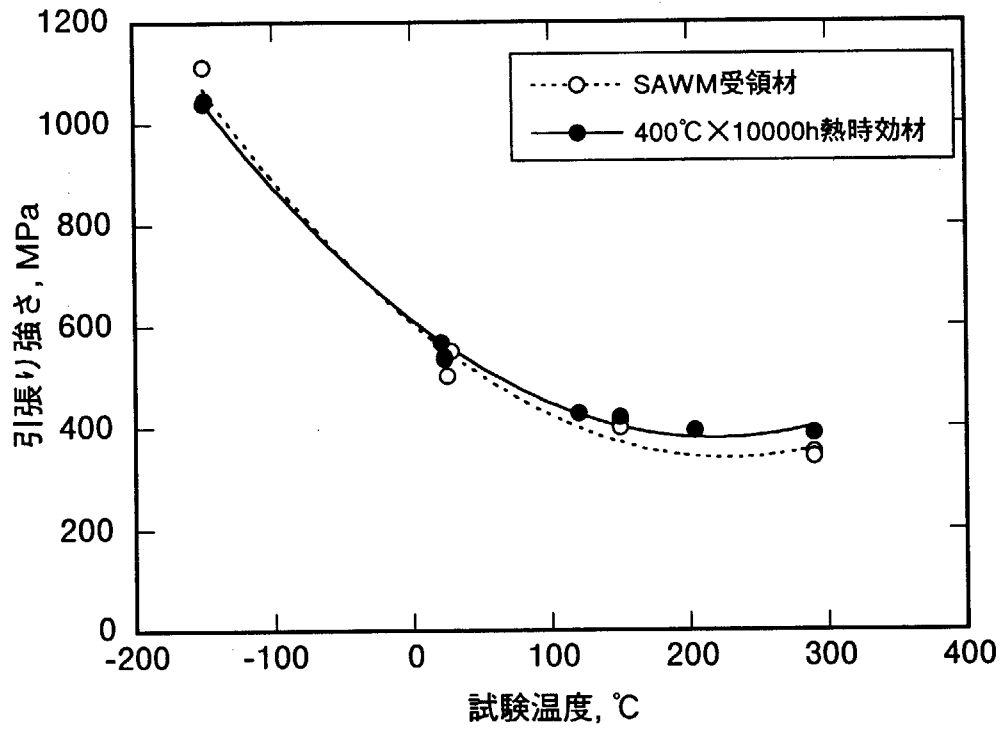
(3) 破断伸び

第 3-4 図 ESW クラッド熱時効材(400°C×10000 h)の引張試験結果

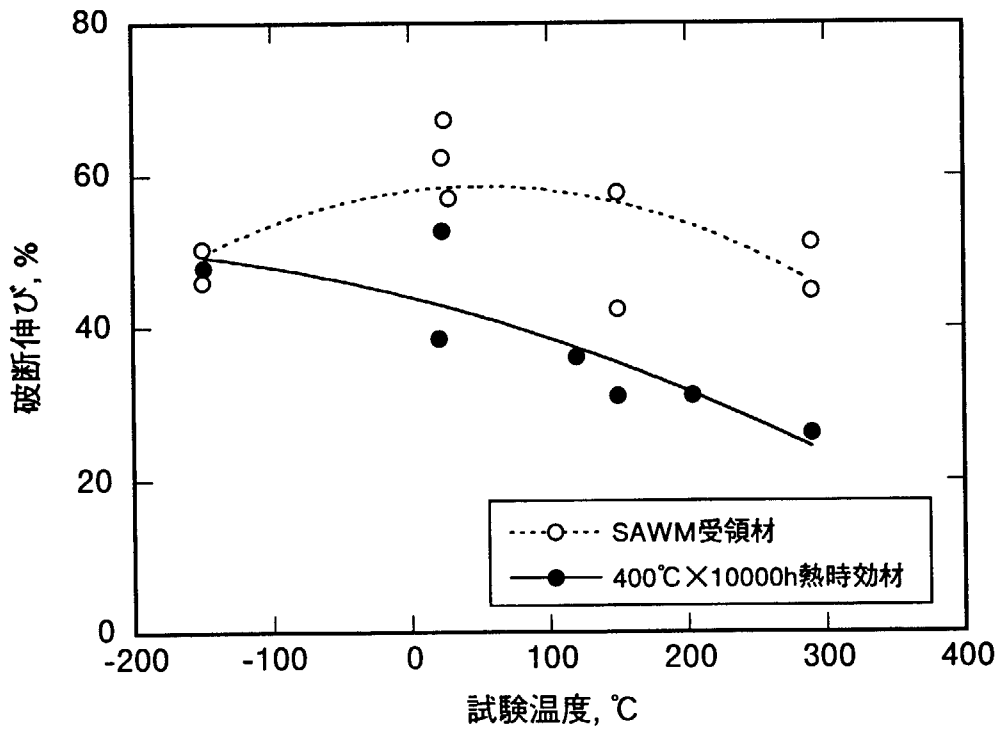


(1) 降伏応力

第 3-5 図 SAWM クラッド熱時効材(400°C×10000 h)の引張試験結果 (続く)

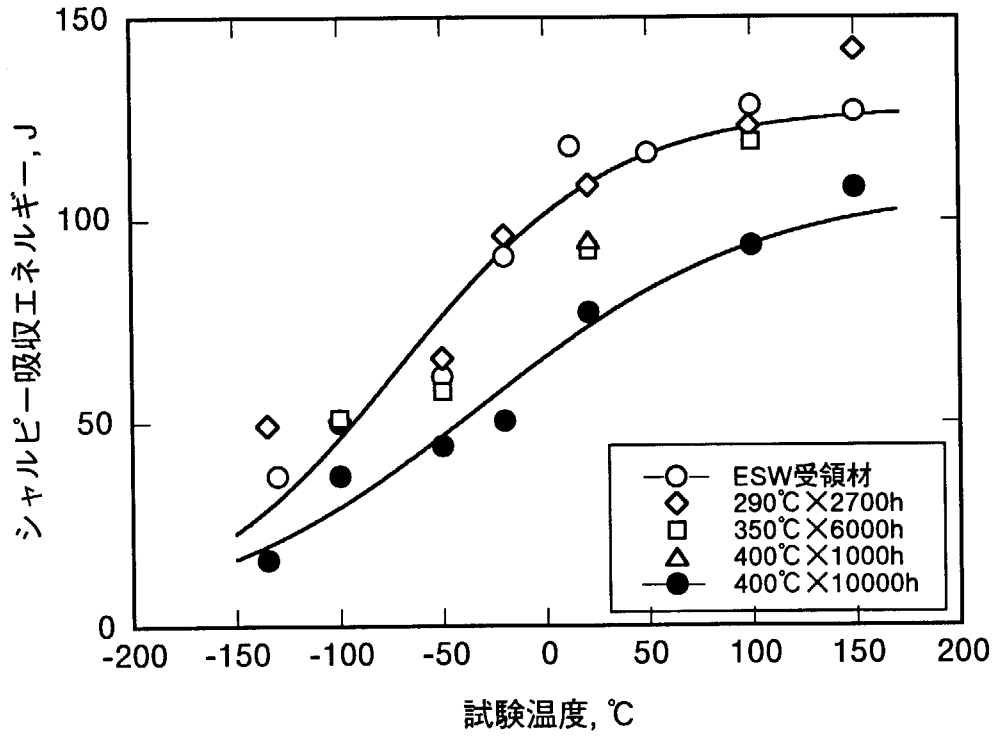


(2) 引張り強さ

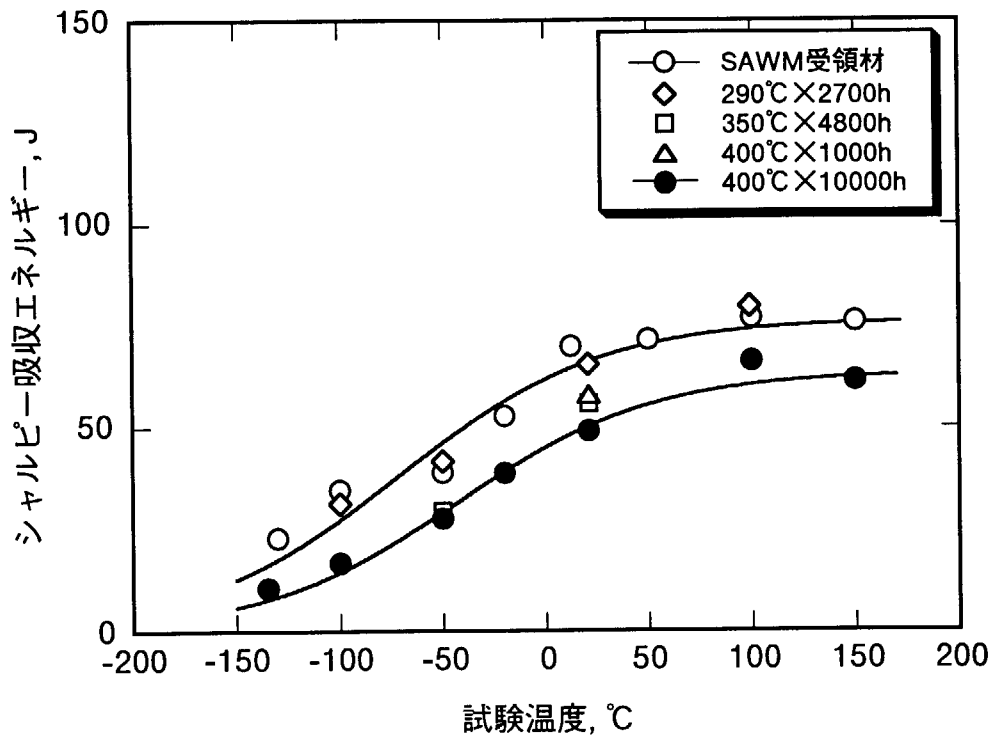


(3) 破断伸び

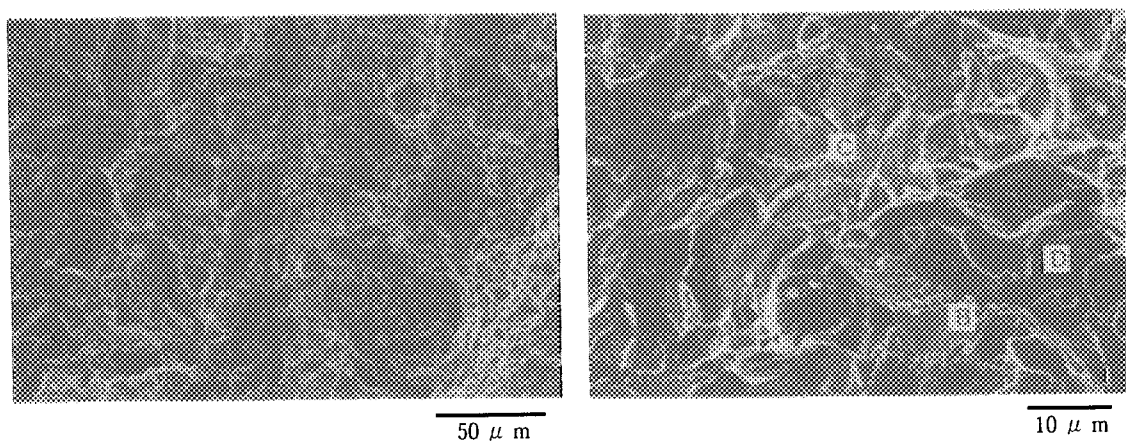
第 3-5 図 SAWM クラッド熱時効材(400°C×10000 h)の引張試験結果



第3-6図 ESWクラッド熱時効材のシャルピー衝撃試験結果

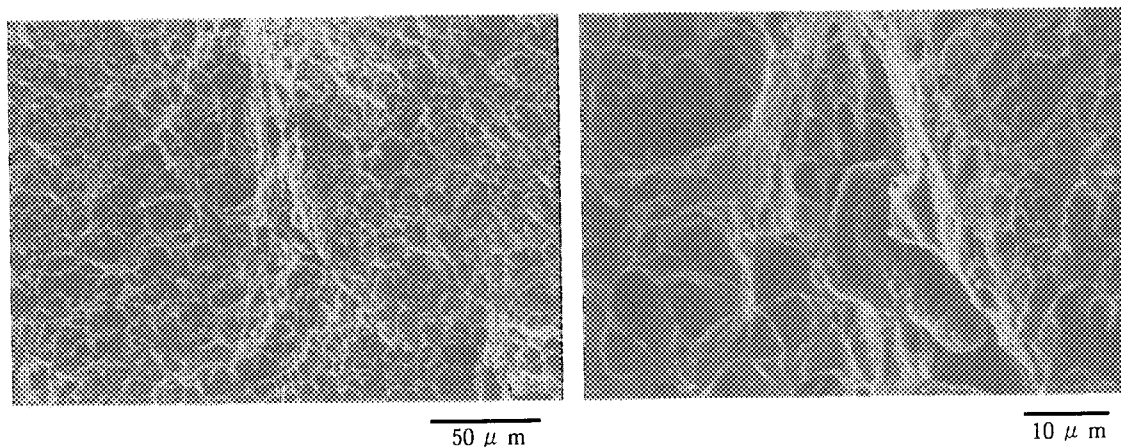


第3-7図 SAWMクラッド熱時効材のシャルピー衝撃試験結果



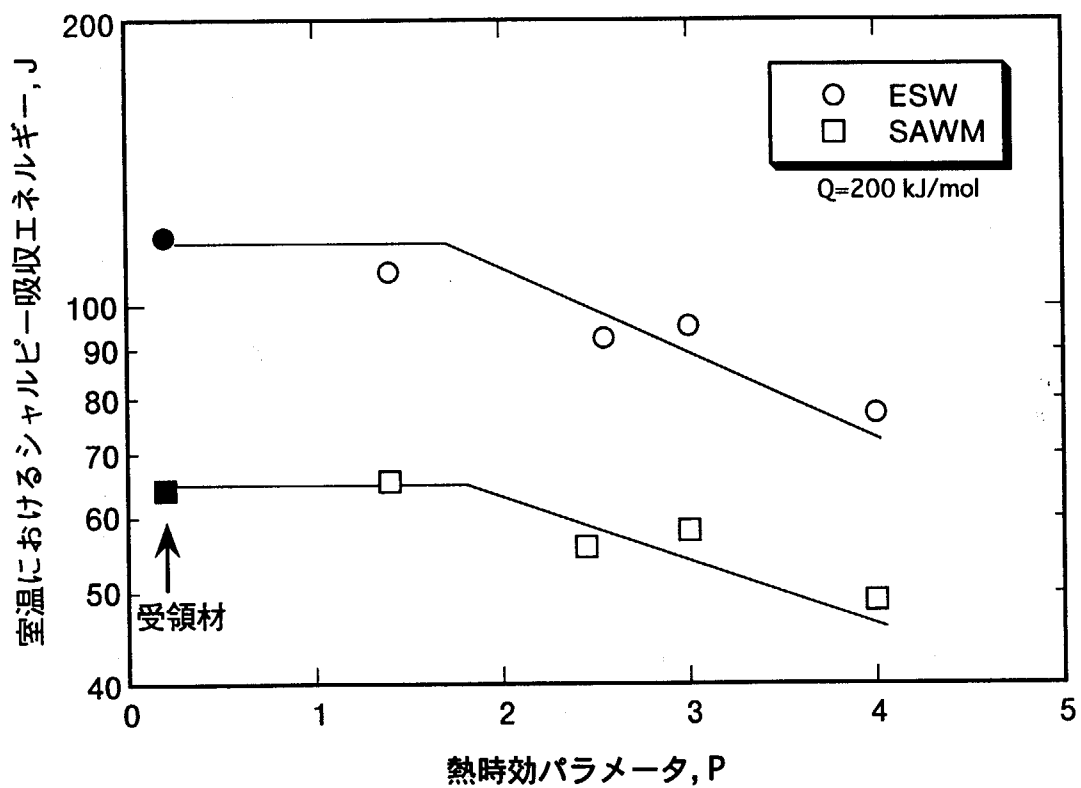
第 3-8 図 ESW クラッド熱時効材のシャルピー試験片破壊面観察写真  
(遷移温度域)

C : へき開破壊、D : 延性破壊、B : 界面破壊

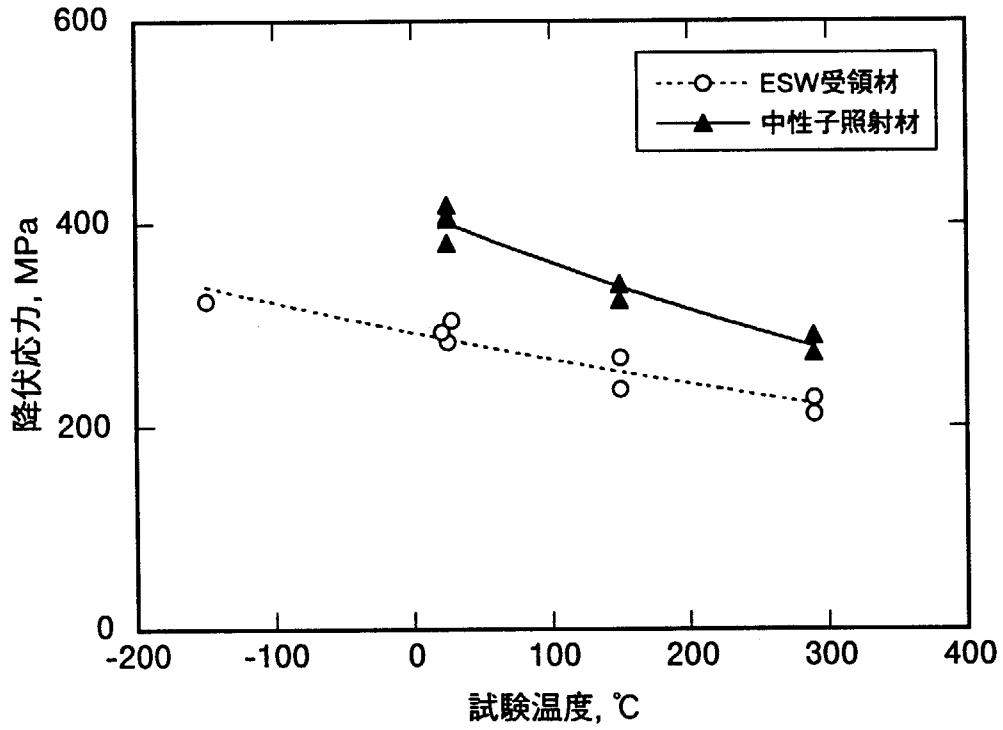


第 3-9 図 ESW クラッド熱時効材のシャルピー試験片破壊面観察写真  
(上部柵域)

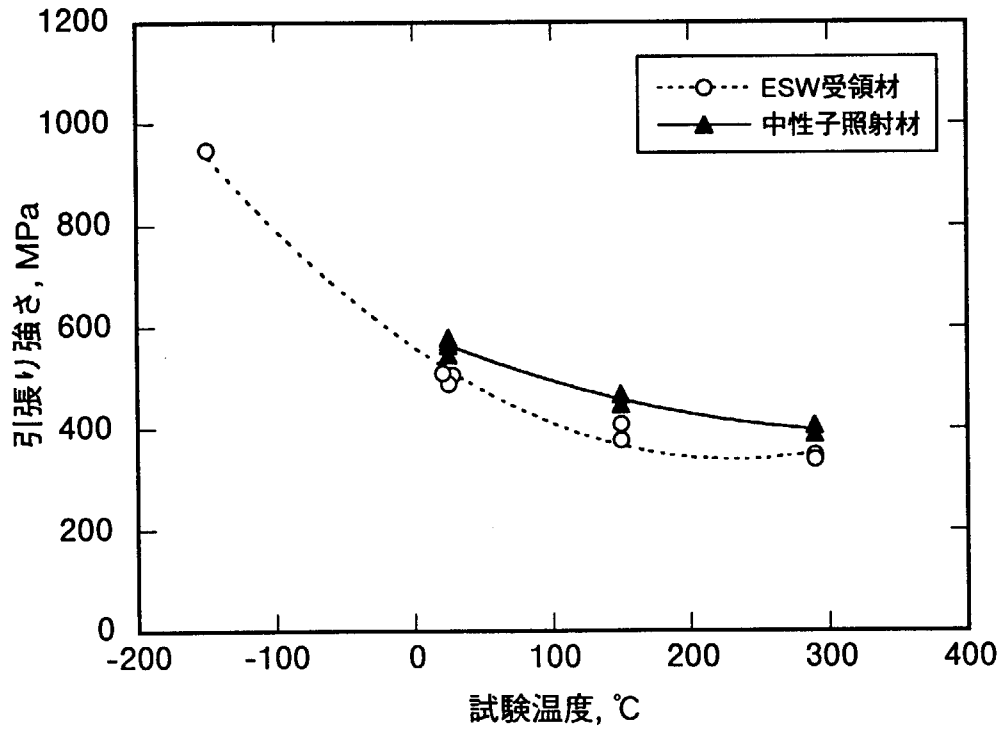




第 3-10 図 室温のシャルピー吸収エネルギーと熱時効パラメータの関係

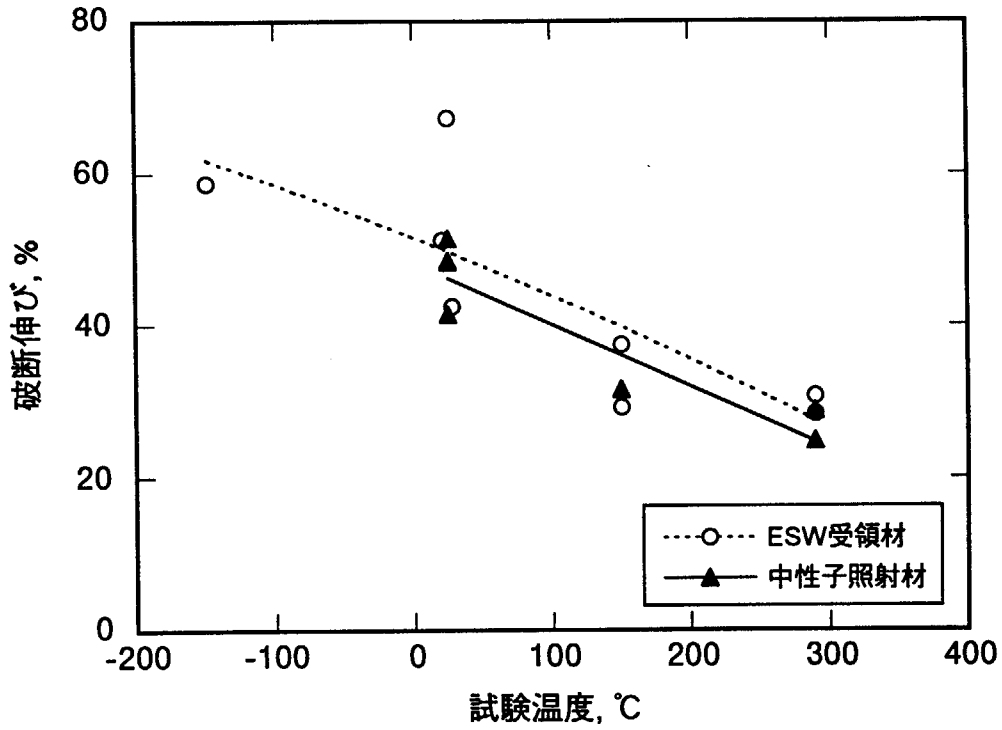


(1) 降伏応力



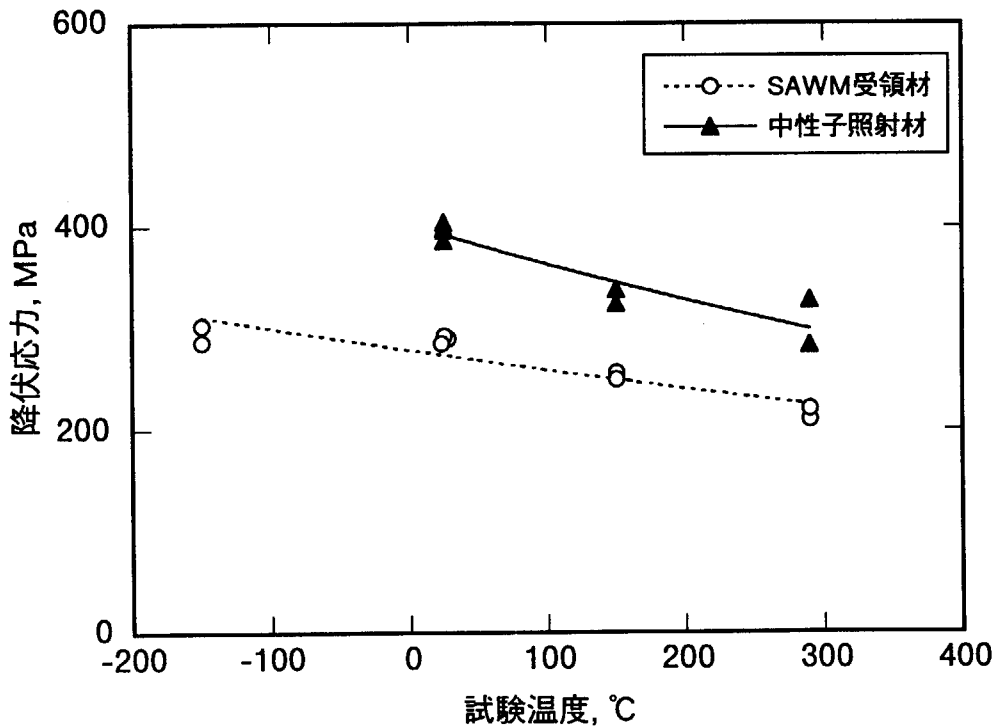
(2) 引張り強さ

第 3-11 図 ESW クラッド中性子照射材の引張試験結果 (続く)



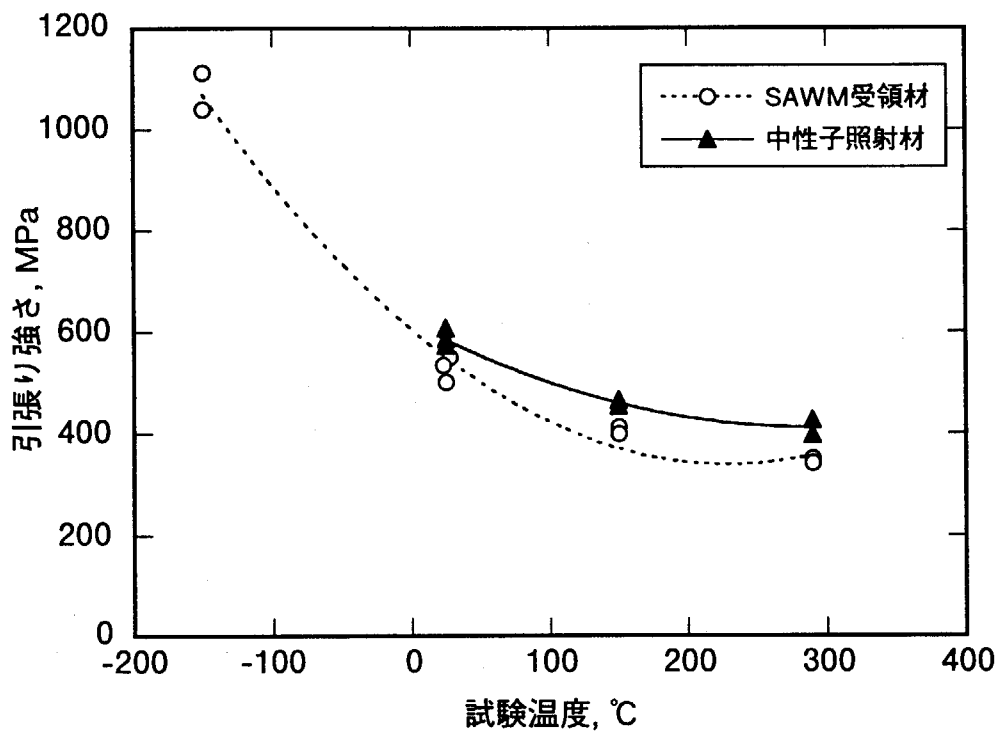
(3) 破断伸び

第 3-11 図 ESW クラッド中性子照射材の引張試験結果

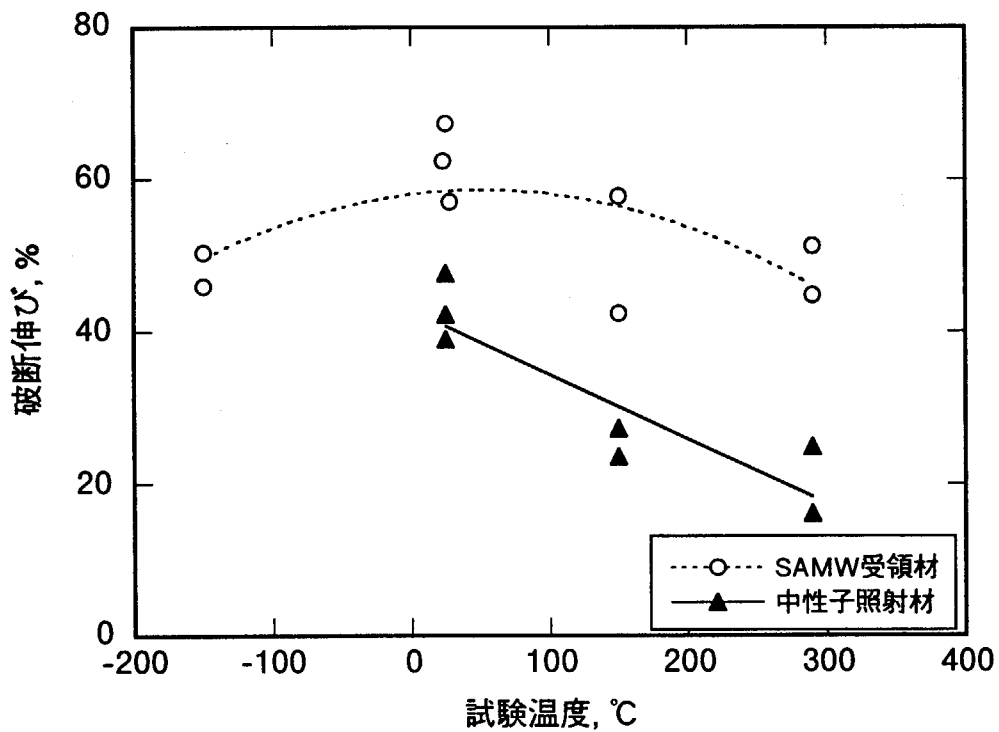


(1) 降伏応力

第 3-12 図 SAWM クラッド中性子照射材の引張試験結果 (続く)

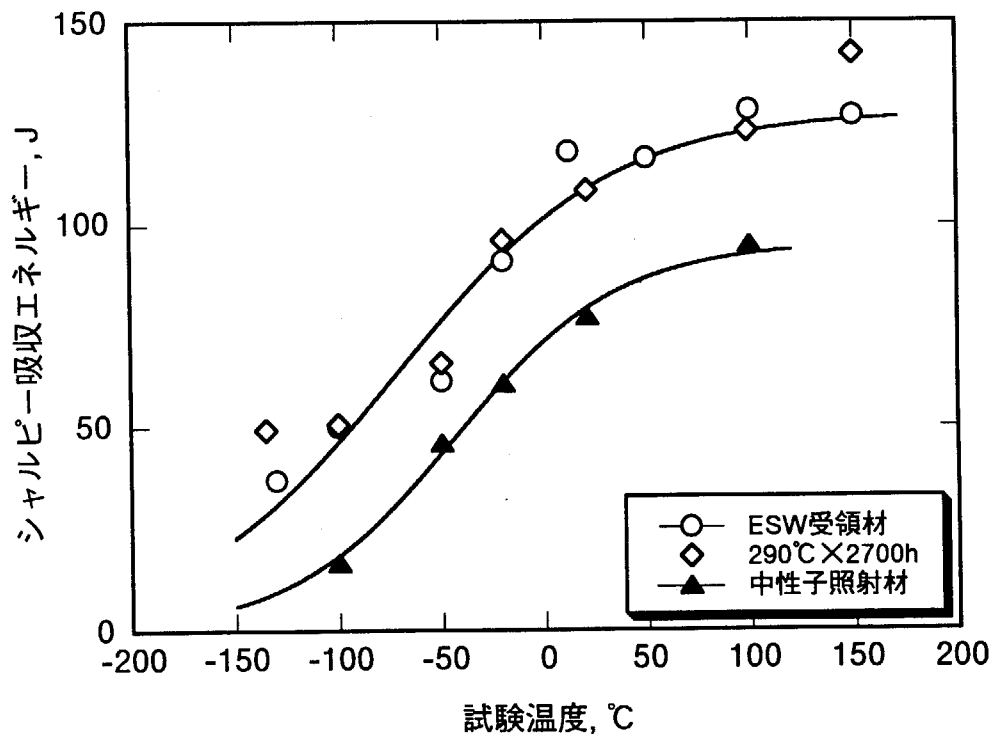


(2) 引張り強さ

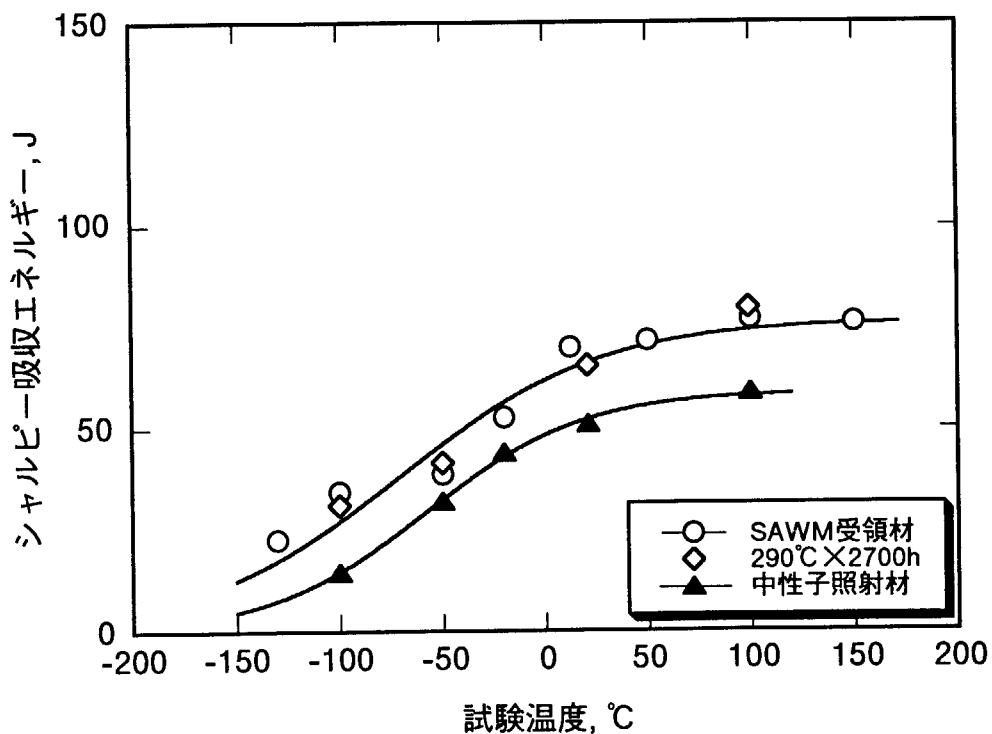


(3) 破断伸び

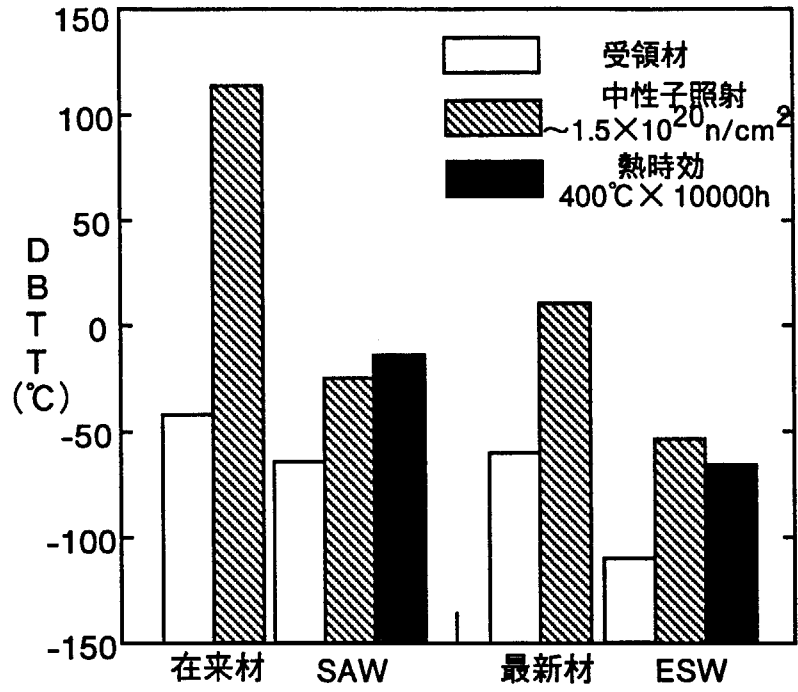
第 3-12 図 SAWM クラッド中性子照射材の引張試験結果



第 3-13 図 ESW クラッド中性子照射材のシャルピー衝撃試験結果



第 3-14 図 SAWM クラッド中性子照射材のシャルピー衝撃試験結果



第 3-15 図 クラッド材と母材の延性脆性遷移温度の比較

# 国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s <sup>-1</sup>
力	ニュートン	N	m·kg/s <sup>2</sup>
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	N·m
工率、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	A·s
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m <sup>2</sup>
放射能	ベクレル	Bq	s <sup>-1</sup>
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量等量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV=1.60218×10<sup>-19</sup>J  
1 u=1.66054×10<sup>-27</sup>kg

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 <sup>18</sup>	エクサ	E
10 <sup>15</sup>	ペタ	P
10 <sup>12</sup>	テラ	T
10 <sup>9</sup>	ギガ	G
10 <sup>6</sup>	メガ	M
10 <sup>3</sup>	キロ	k
10 <sup>2</sup>	ヘクト	h
10 <sup>1</sup>	デカ	da
10 <sup>-1</sup>	デシ	d
10 <sup>-2</sup>	センチ	c
10 <sup>-3</sup>	ミリ	m
10 <sup>-6</sup>	マイクロ	μ
10 <sup>-9</sup>	ナノ	n
10 <sup>-12</sup>	ピコ	p
10 <sup>-15</sup>	フェムト	f
10 <sup>-18</sup>	アト	a

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バ	b
バール	bar
ガリ	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å=0.1nm=10<sup>-10</sup>m  
1 b=100fm<sup>2</sup>=10<sup>-28</sup>m<sup>2</sup>  
1 bar=0.1MPa=10<sup>5</sup>Pa  
1 Gal=1cm/s<sup>2</sup>=10<sup>-2</sup>m/s<sup>2</sup>  
1 Ci=3.7×10<sup>10</sup>Bq  
1 R=2.58×10<sup>-4</sup>C/kg  
1 rad=1cGy=10<sup>-2</sup>Gy  
1 rem=1cSv=10<sup>-2</sup>Sv

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC関係理事会指令ではbar, barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

## 換算表

力	N(=10 <sup>5</sup> dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1 Pa·s(N·s/m<sup>2</sup>)=10 P(ポアズ)(g/(cm·s))

動粘度 1 m<sup>2</sup>/s=10<sup>6</sup>St(ストークス)(cm<sup>2</sup>/s)

圧	MPa(-10bar)	kgf/cm <sup>2</sup>	atm	mmHg(Torr)	lbf/in <sup>2</sup> (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062×10 <sup>2</sup>	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322×10 <sup>-1</sup>	1.35951×10 <sup>-2</sup>	1.31579×10 <sup>-2</sup>	1	1.93368×10 <sup>-2</sup>
	6.89476×10 <sup>-3</sup>	7.03070×10 <sup>-2</sup>	6.80460×10 <sup>-2</sup>	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 <sup>7</sup> erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778×10 <sup>-7</sup>	0.238889	9.47813×10 <sup>-4</sup>	0.737562	6.24150×10 <sup>18</sup>
	9.80665	1	2.72407×10 <sup>-6</sup>	2.34270	9.29487×10 <sup>-3</sup>	7.23301	6.12082×10 <sup>19</sup>
	3.6×10 <sup>6</sup>	3.67098×10 <sup>7</sup>	1	8.59999×10 <sup>5</sup>	3412.13	2.65522×10 <sup>6</sup>	2.24694×10 <sup>25</sup>
	4.18605	0.426858	1.16279×10 <sup>-6</sup>	1	3.96759×10 <sup>-3</sup>	3.08747	2.61272×10 <sup>19</sup>
	1055.06	107.586	2.93072×10 <sup>-1</sup>	252.042	1	778.172	6.58515×10 <sup>24</sup>
	1.35582	0.138255	3.76616×10 <sup>-7</sup>	0.323890	1.28506×10 <sup>-3</sup>	1	8.46233×10 <sup>18</sup>
	1.60218×10 <sup>19</sup>	1.63377×10 <sup>20</sup>	4.45050×10 <sup>26</sup>	3.82743×10 <sup>21</sup>	1.51857×10 <sup>22</sup>	1.18171×10 <sup>19</sup>	1

1 cal= 4.18605J (計量法)  
= 4.184J (熱化学)  
= 4.1855J (15°C)  
= 4.1868J (国際蒸気表)  
仕事率 1 PS(仏馬力)  
= 75 kgf·m/s  
= 735.499W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270×10 <sup>-11</sup>
	3.7×10 <sup>10</sup>	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58×10 <sup>-4</sup>	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

軽水炉圧力容器用ステンレス肉盛クラッドの残留応力と経年劣化評価