

図 3.2.1-3 NaOH 溶液浸漬試験後の Ta より得られた水素放出曲線
 (7mol/L、室温)

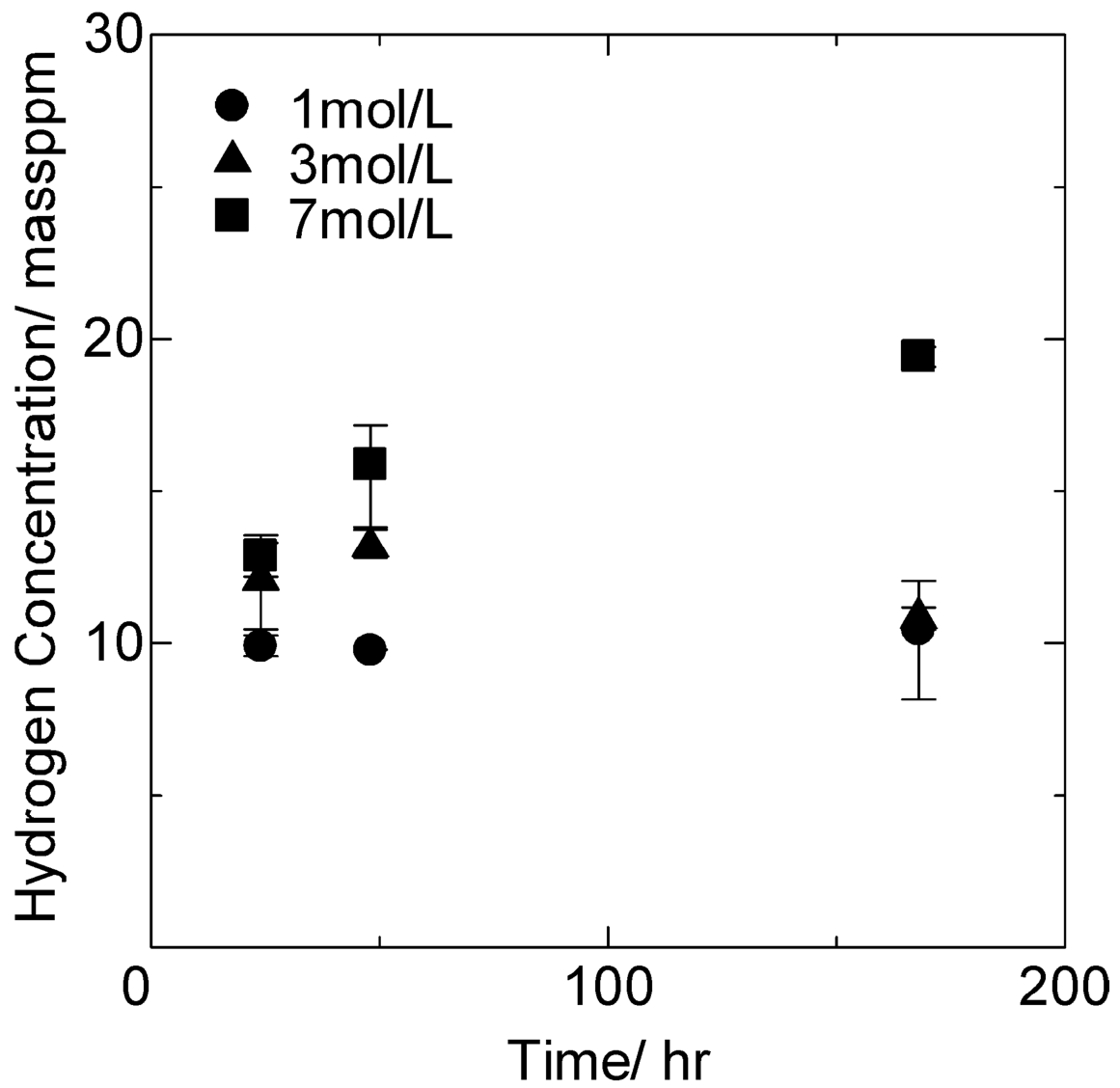


図 3. 2. 1-4 NaOH 溶液浸漬試験後の Ta における水素量の浸漬時間依存性

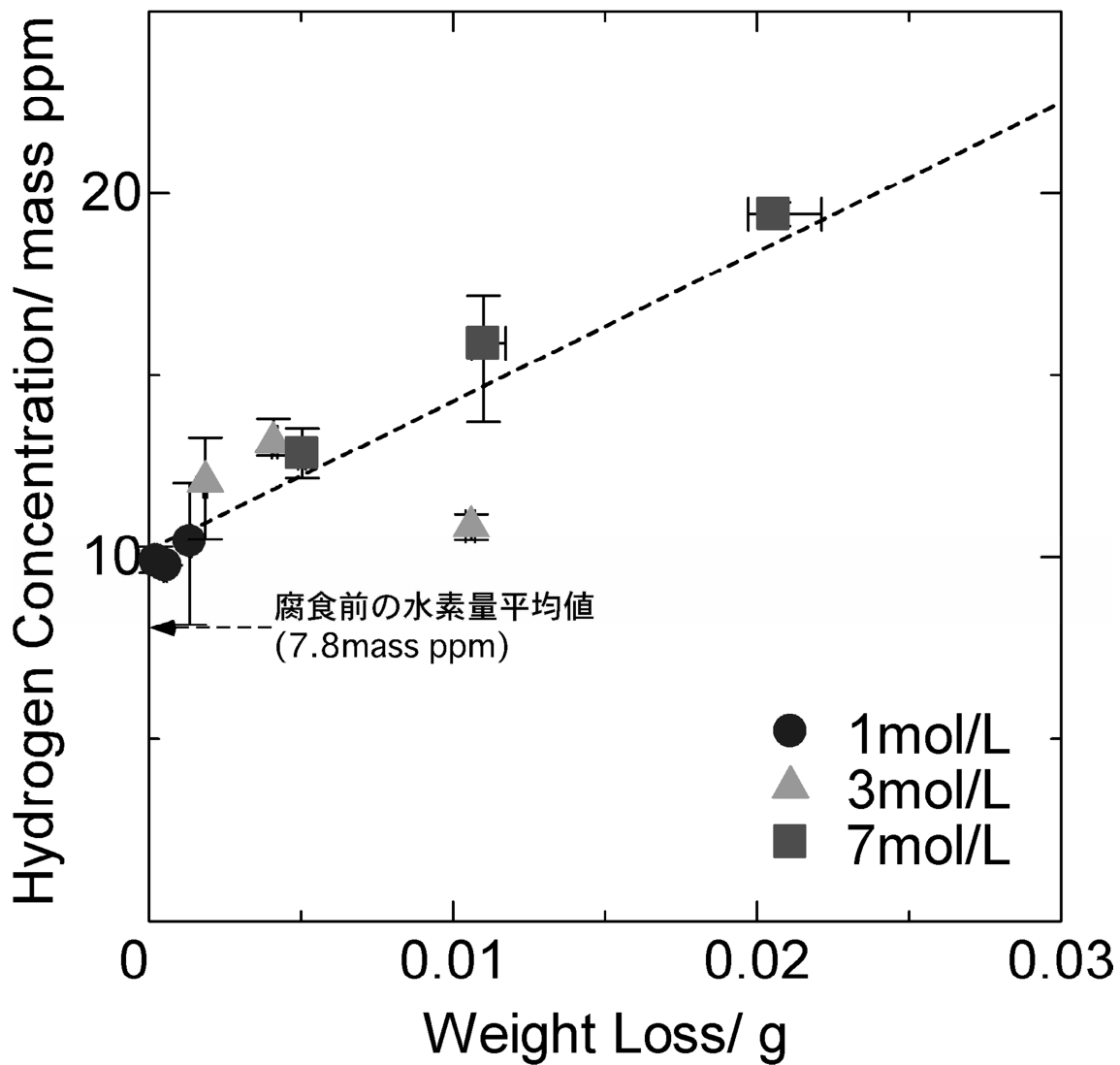


図 3. 2. 1-5 室温での NaOH 溶液浸漬試験後の Ta における水素量と腐食減量との関係

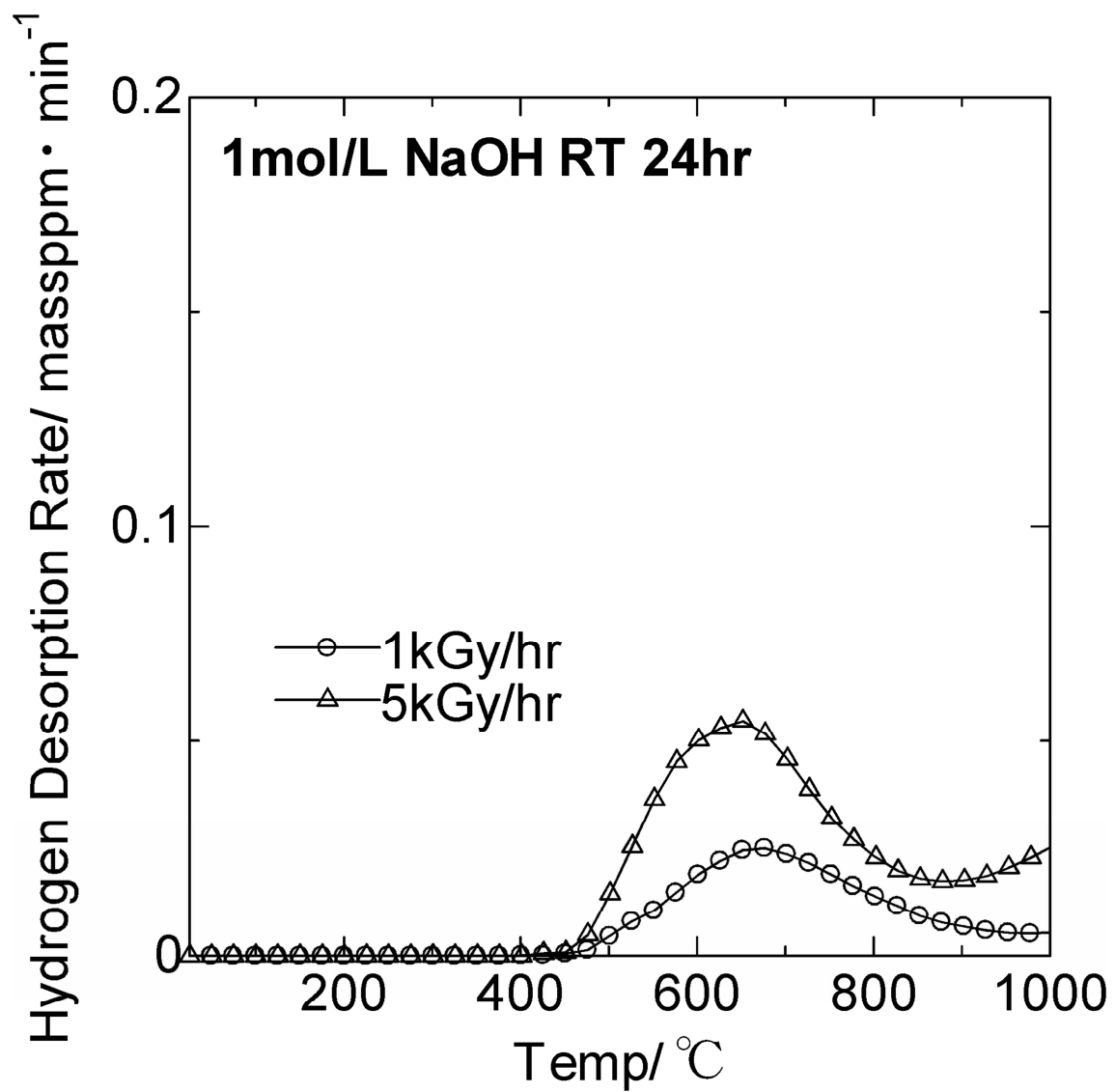


図 3.2.1-6 γ 線照射下浸漬試験後の Ta より得られた水素放出曲線
(1mol/L、室温)

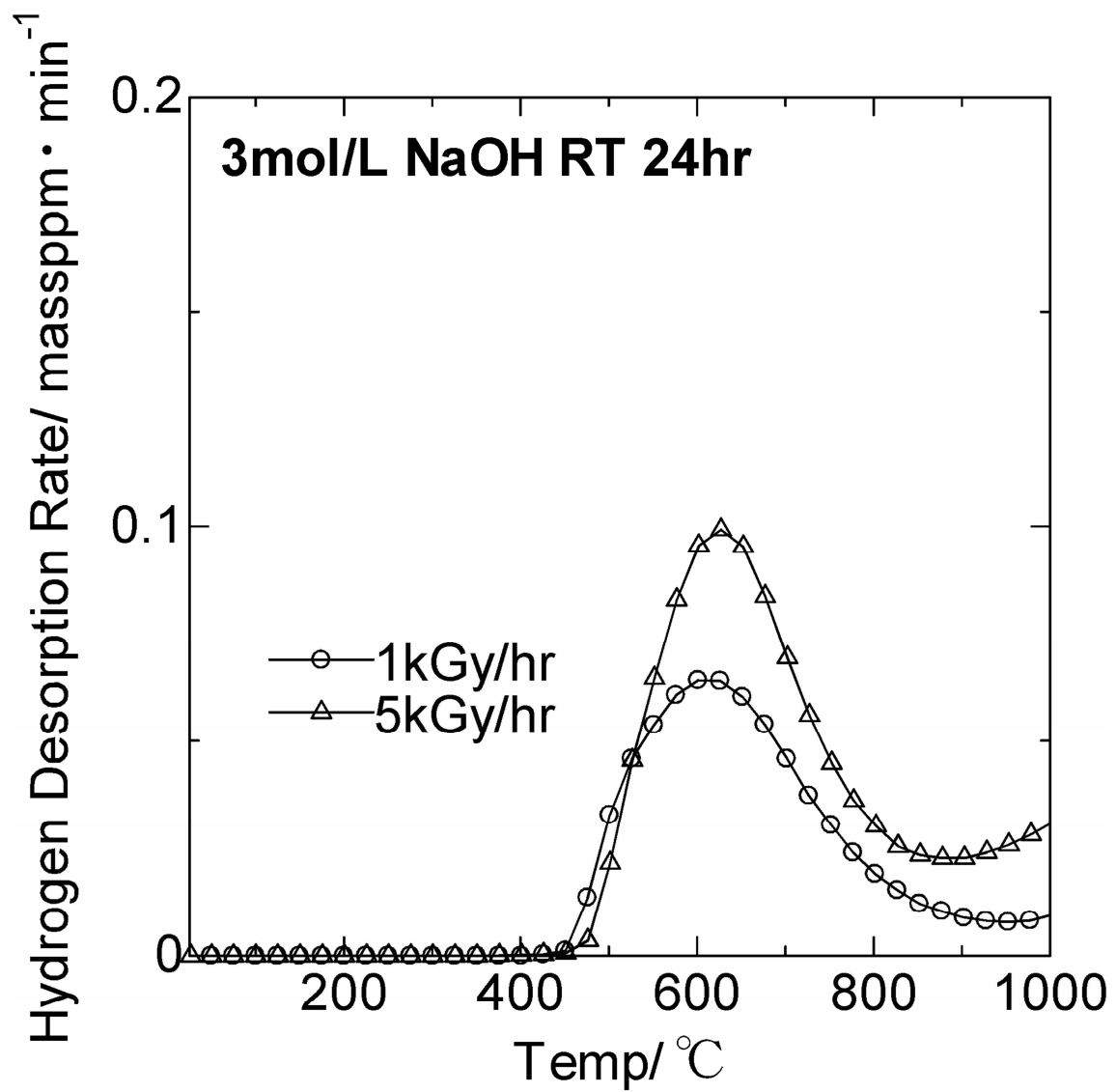


図 3.2.1-7 γ 線照射下浸漬試験後の Ta より得られた水素放出曲線
(3mol/L、室温)

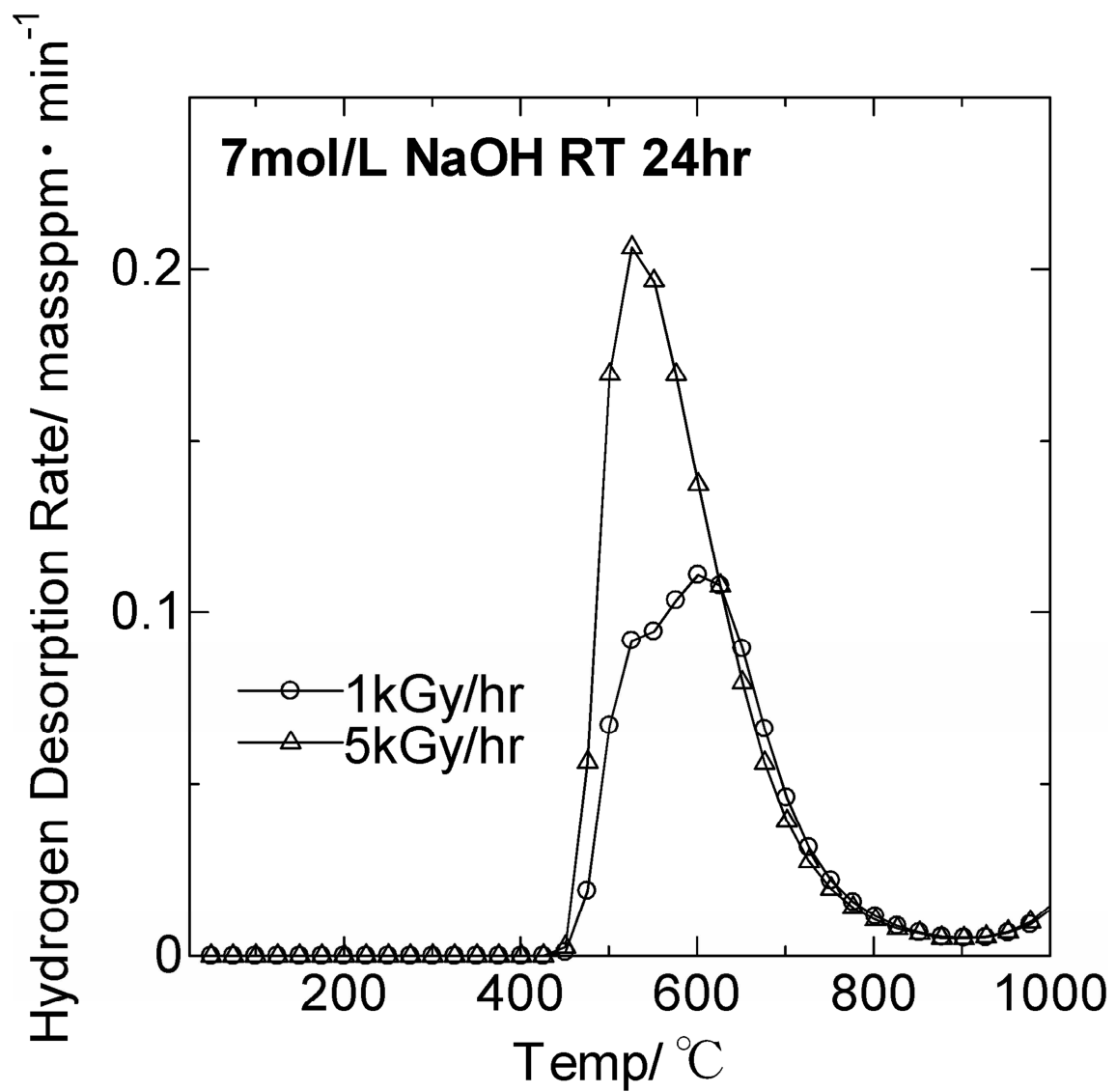


図 3.2.1-8 γ 線照射下浸漬試験後の Ta より得られた水素放出曲線
(7mol/L、室温)

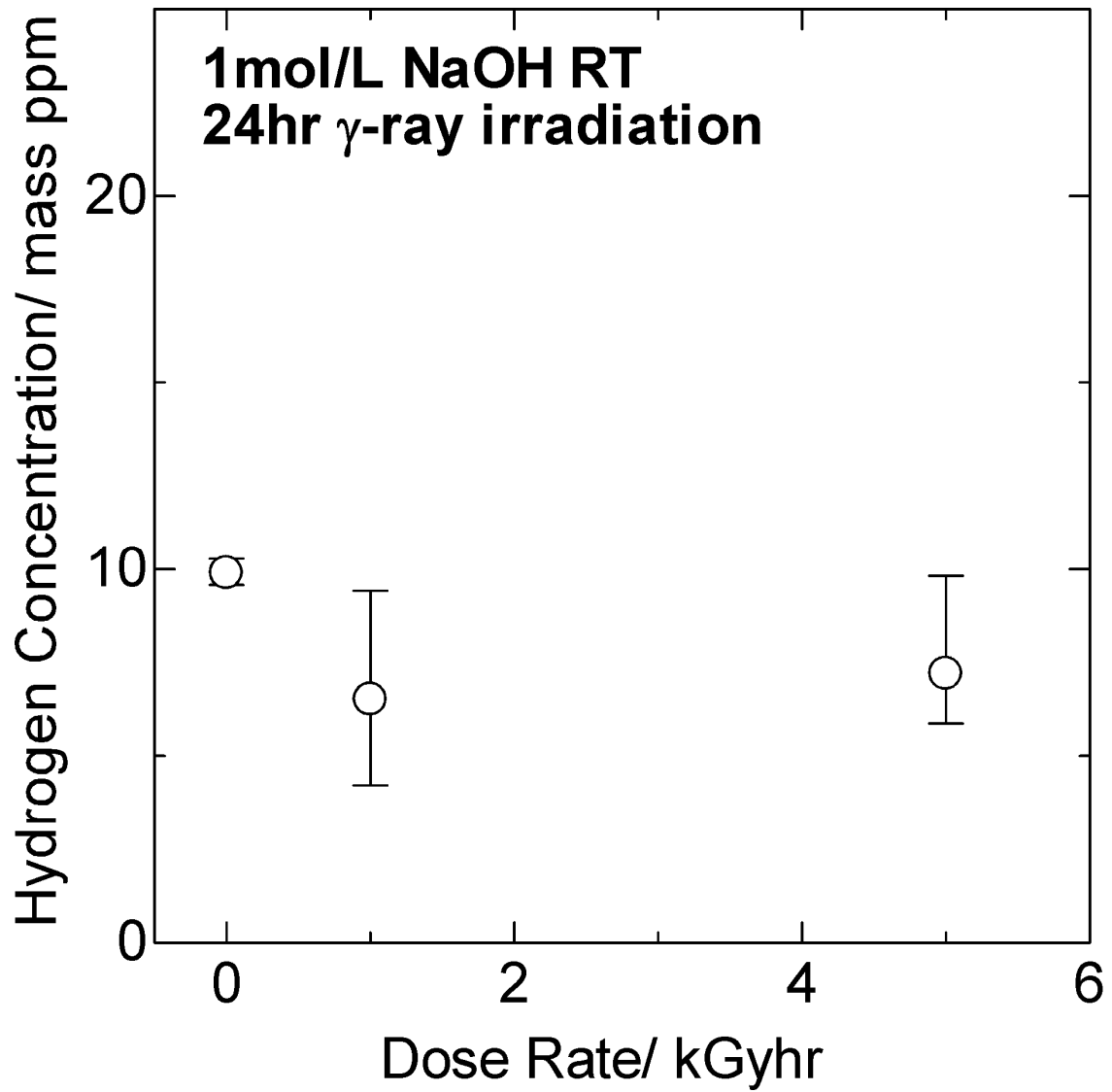


図 3. 2. 1-9 γ 線照射下浸漬試験後の Ta 中水素濃度の線量率との関係
(1mol/L、室温)

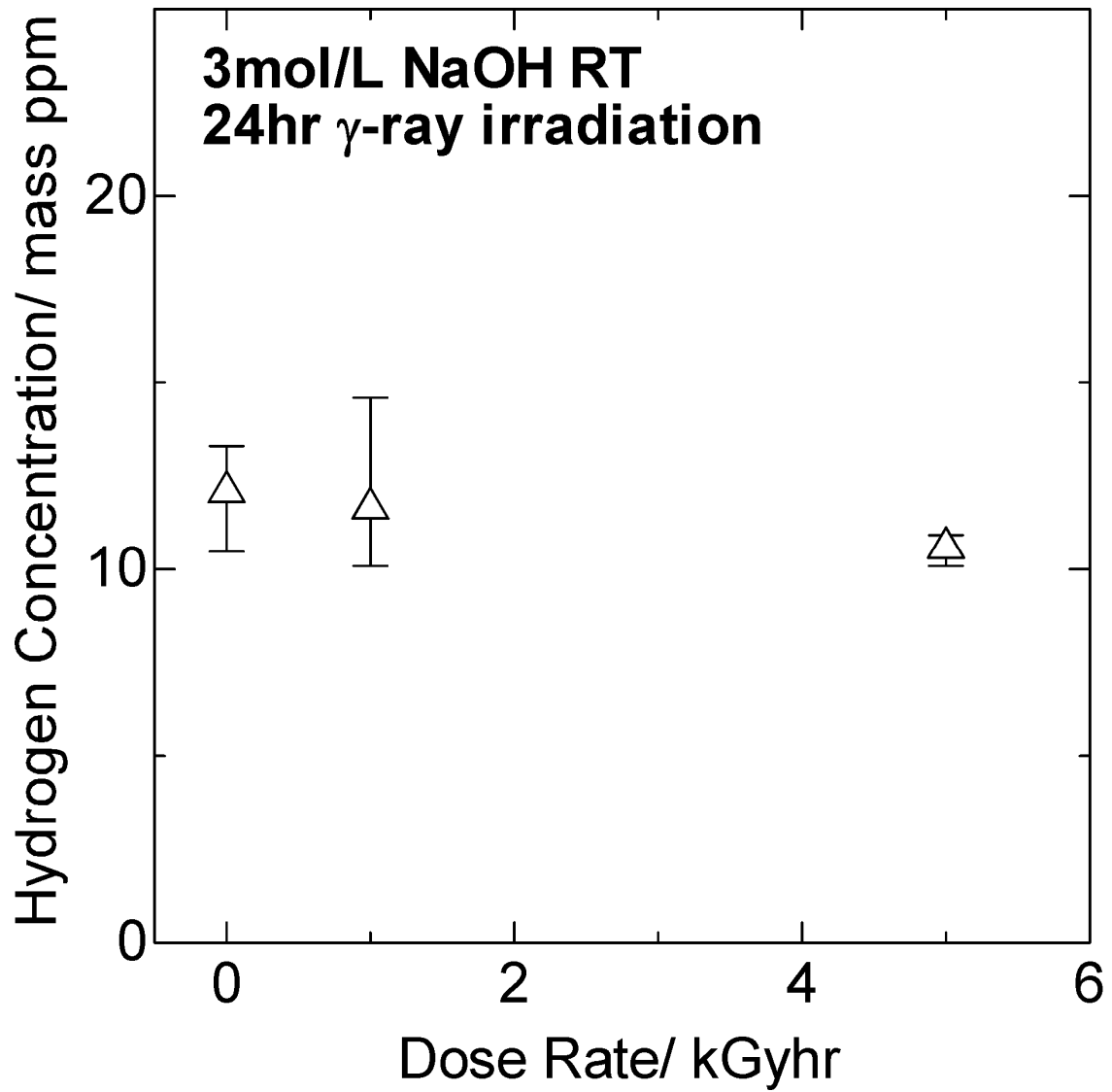


図 3. 2. 1-10 γ 線照射下浸漬試験後の Ta 中水素濃度の線量率との関係
(3mol/L、室温)

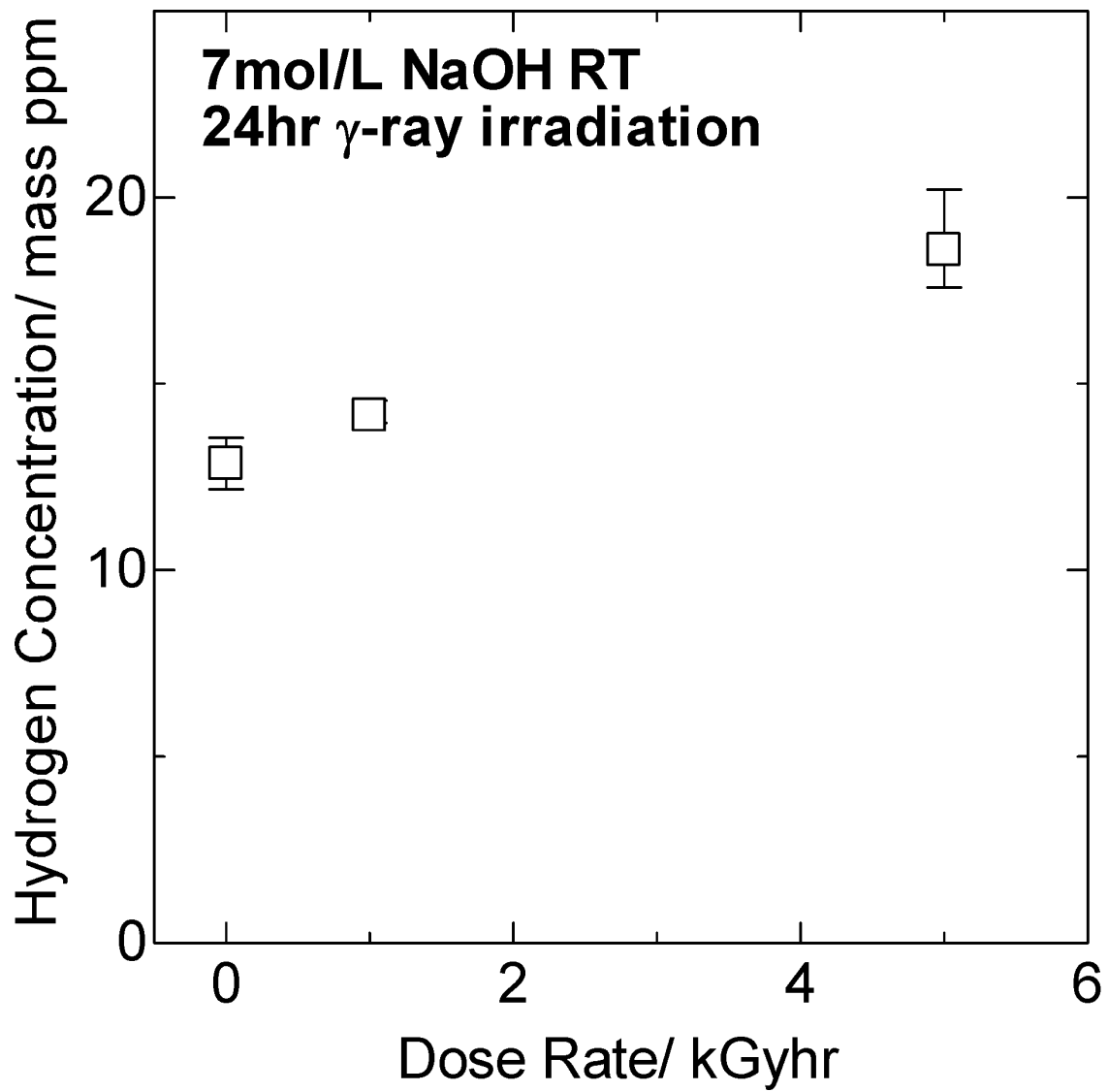


図 3.2.1-11 γ 線照射下浸漬試験後の Ta 中水素濃度の線量率との関係
(7mol/L、室温)

3.2.2 機械的特性に及ぼす時効の影響確認試験

水素を吸収させた Ta について、機械的特性に及ぼす時効の影響及びその機構を検討するため、大気雰囲気下で熱時効を行った後、引張試験を実施した。

(a) 試験方法

機械的特性評価には 6×60×1mm (幅×長さ×厚さ) の純 Ta 短冊形試験片を用いた。腐食による試料表面形態の変化を検討しないことから、試料表面は#600 までのエメリー紙研磨とし、アセトンにて脱脂洗浄後、水素吸収後熱時効処理を行い、引張試験に供した。図

3.2.2-1 に短冊試験片の外観写真を示す。

水素吸収前の純 Ta 中の水素量は平均約 7.8 mass ppm (N 数=3) であった。水素吸収処理は電気化学的手法 (水素チャージ) で実施した。水素吸収条件は、室温、0.9%NaCl 中、100A/m² で実施し、水素吸収量は電流印加時間を制御することで調整した。目標水素量として、熱時効が考慮されていない過去の Ta の水素ぜい化研究 (参 3.2.2-1) では延性低下がみられていない 40 及び 100 質量百万分率 (mass ppm) とした。また、比較として未チャージの Ta についても熱時効及び引張試験を実施した。表 3.2.2-1 に各チャージ時間における水素チャージ後の Ta における水素濃度 (N 数=1) を示す。この結果より、水素チャージ時間を 3 及び 6 時間とした。

純 Ta 板材は、第 2 章 2 節 1 項で実施したものと同一ものを使用した

熱時効は、恒温槽及び電気炉を用い大気中にて 24、168、1000、2000 及び 4000hr 実施した。N 数は各温度、時間、水素濃度に対して 3 試料を準備したが、より長時間の熱時効が必要になる可能性を考慮し、得られた応力-ひずみ線図において明確なぜい化がみられない場合は N 数を 1 とし、より長時間の熱時効を実施した。

引張試験は、所定の熱時効時間後に、室温の大気中にて整備した引張試験装置を用い、クロスヘッドスピード 0.5mm/sec (ひずみ速度 : 8.33×10^{-4} /s 相当) で実施した。引張試験後、試料の破断面及び側面を SEM により観察した。

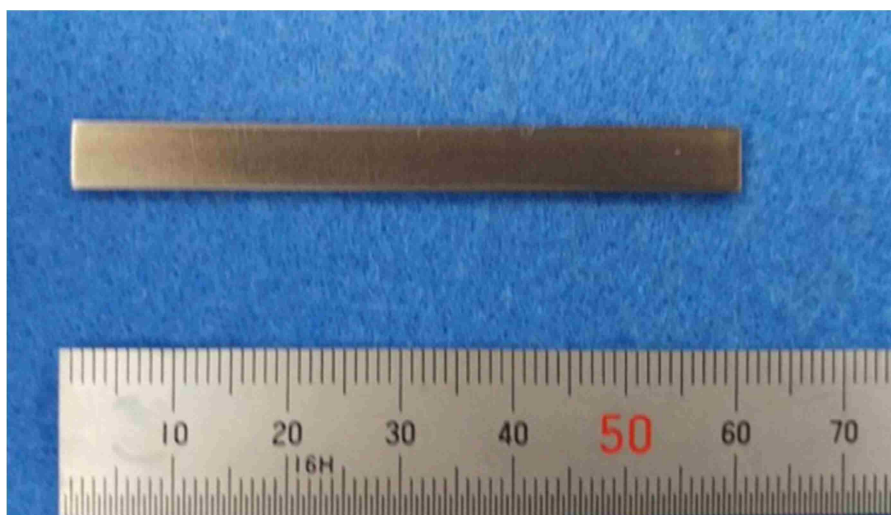


図 3.2.2-1 短冊試験片外観

表 3.2.2-1 水素チャージ時間と水素量との関係

チャージ時間 (hr)	水素量 (mass ppm)
1	26
3	34
6	99
24	164

(b) 試験結果

図 3.2.2-2 から 4 に熱時効を行っていない未チャージ材、3 時間チャージ材及び 6 時間チャージ材より得られた応力-ひずみ線図を示す。

熱時効を行った短冊試験片より得られた応力-ひずみ曲線を図 3.2.1-5 から 13 に示す。応力-ひずみ線図は、いずれのチャージ時間、熱時効温度、及び熱時効時間においても破断伸びが約 0.8 から 1.2 を示すとともに、未時効・未チャージのものと比較しても明確な破断伸びの減少及び最大引張応力の変化はみられなかった。

図 3.2.2-14 から 61 に、引張試験後の平板試験の破断面の SEM 写真を破断面の観察結果より下記の式より評価した断面収縮率 (Reduction of Area: RA) とともに示す。

$$\text{断面収縮率} = ((\text{試験前の断面積}) - (\text{試験後の断面積})) \div (\text{試験前の断面積}) \times 100$$

また、図 3.2.2-62 から 109 に、引張試験後の平板試験の側面の SEM 写真を示す。

引張試験後の破断面観察結果より、2000 時間までの熱時効では、熱時効温度、及びチャージ時間によらず破断面において全面的にぜい性破面を呈する試料はなかった。しかしながら、図 3.2.2-43 に示すように 300℃で 1000 時間熱時効することで試験片の端部において粒内型のぜい性的な破面が観察され、熱時効による延性低下を示唆する破面も観察された。一方、4000 時間の熱時効を行うと、200 及び 300℃で時効した 3 及び 6 時間チャージ材で明確な粒内型のぜい性破面が観察された (図 3.2.2-57、58、60 及び 61)。この観察結果は一定量の水素を吸収した Ta は 200℃以上で 4000 時間以上熱時効されることでぜい化することを示唆するが、異材接合継手の想定される最高温度の 80℃では 4000 時間の熱時効では 200℃熱時効でぜい化する量の水素を吸収しても明確なぜい化を生じないことも示している。

破断面 SEM 写真より各熱時効条件後の試料における断面収縮率を評価した結果を図 3.2.2-110 から 112 に示す。未チャージ材では 2000 時間までは大きな変化はみられなかったが、4000 時間の熱時効で 200 及び 300℃の熱時効温度で断面収縮率がそれぞれ 70 及び 55% に減少し、未チャージ材中に存在する水素濃度 (約 7.8 massppm) では 200℃以上の温度で 4000 時間以上熱時効することで延性低下を生じることが示唆される。また、3 時間チャージ材では 300℃で 2000 時間以上熱時効することで、6 時間チャージ材では 200 及び 300℃で 2000 時間以上熱時効することで断面収縮率の減少が生じており、水素吸収量が増加することでより低い熱時効温度で、短時間に延性低下が生じることが示された。一方で、80℃の熱時効では未チャージ材及び水素チャージ材いずれも 4000 時間までの熱時効では顕著な断

面収縮率の減少はみられず、想定される実機の最高温度では明確な延性低下は生じないことも示された。

以上の断面収縮率の検討結果は、本年度の熱時効条件において Ta は引張試験における破断伸びの減少はみられない熱時効条件でも、破断時における断面収縮量が低下することを示しており、異材接合継手中の Ta が破断に近い変形を受けた際に、急速に破断する可能性があることを示唆するものである。また、熱時効における Ta の機械的特性変化の指標として、破断伸びより断面収縮率の方が保守的な指標であると考えられる。

熱時効材の引張試験後の側面観察結果より、300℃時効では、6時間チャージ材では168時間以上、未チャージ及び3時間チャージ材では2000時間以上の熱時効を行う事で試験片側面全体にき裂の発生がみられた。また、200℃時効では4000時間時効した試料で側面き裂が観察された。80℃時効ではいずれのチャージ時間の試料においても明確な側面き裂は観察されず、時効温度が高いほど、チャージ時間が長いほど側面き裂が発生しやすくなる傾向がみられた。

以上の側面観察結果は、熱時効により試料表面の延性が低下していることを示唆すると考えられるが、応力-ひずみ線図では明確な延性低下が見られなかった。破断面観察では試験片表面に近い端部でぜい性的な破面が観察されたものの、ほぼ延性破面を呈していた。従って、試料内部の延性は低下していないため、応力-ひずみ線図では明確な延性低下がみられなかったと考えられる。

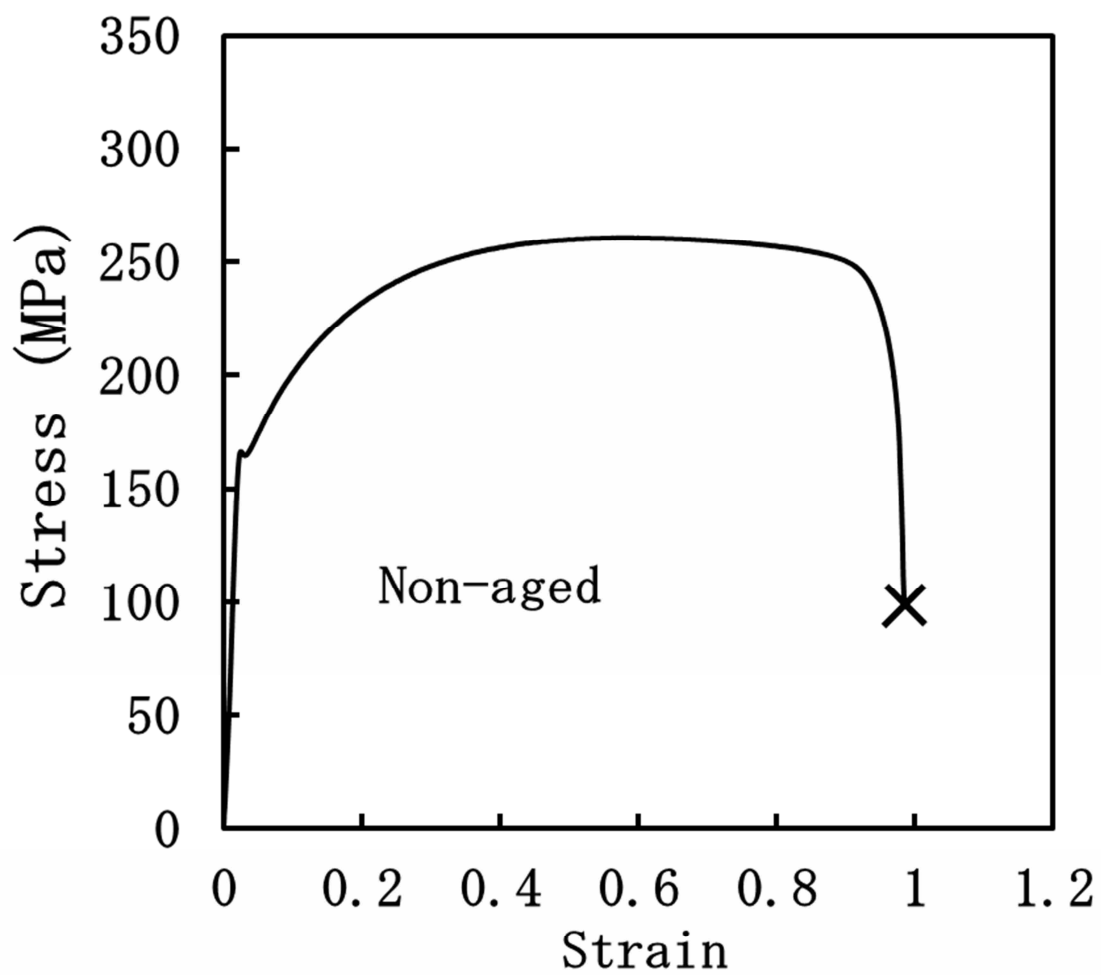


図 3.2.2-2 未チャージ材の応力-ひずみ曲線 (未時効材)

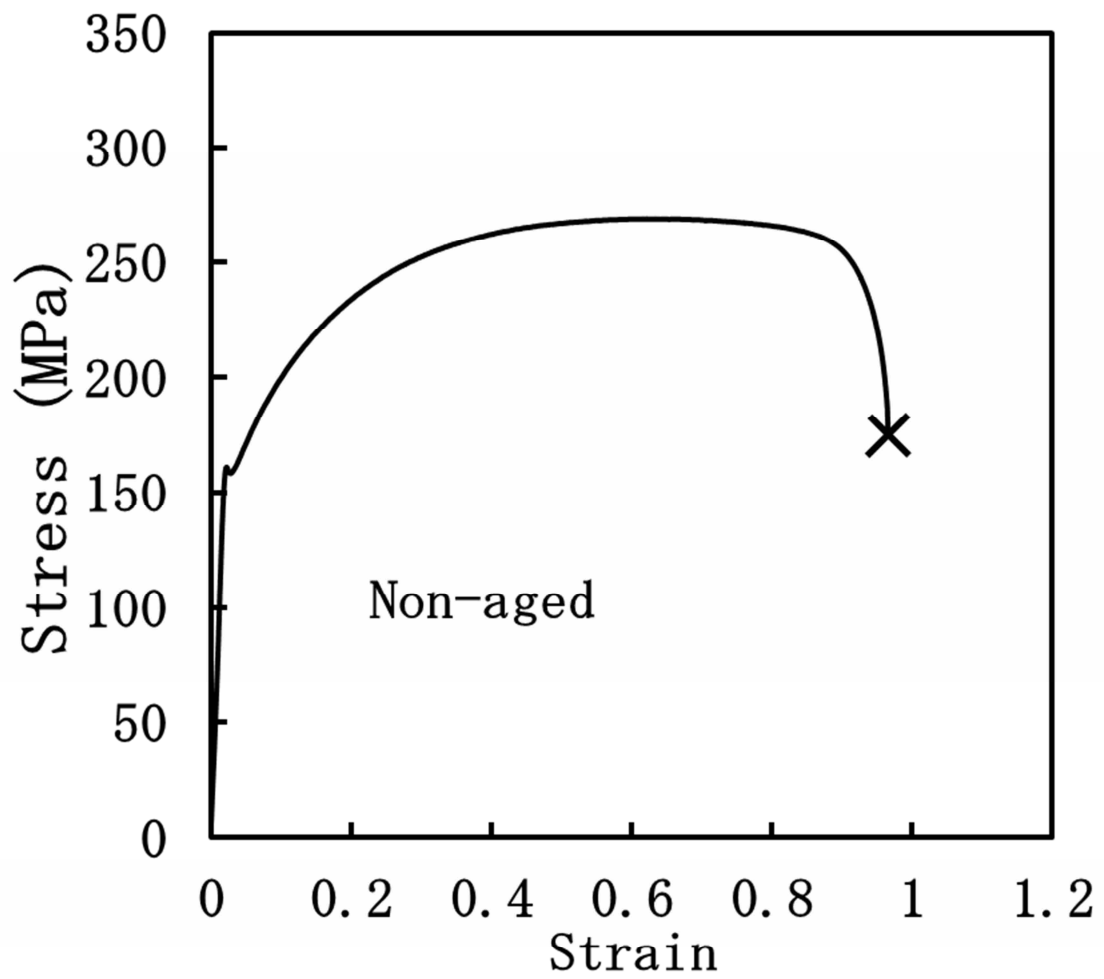


図 3.2.2-3 3時間チャージ材の応力-ひずみ曲線 (未時効材)

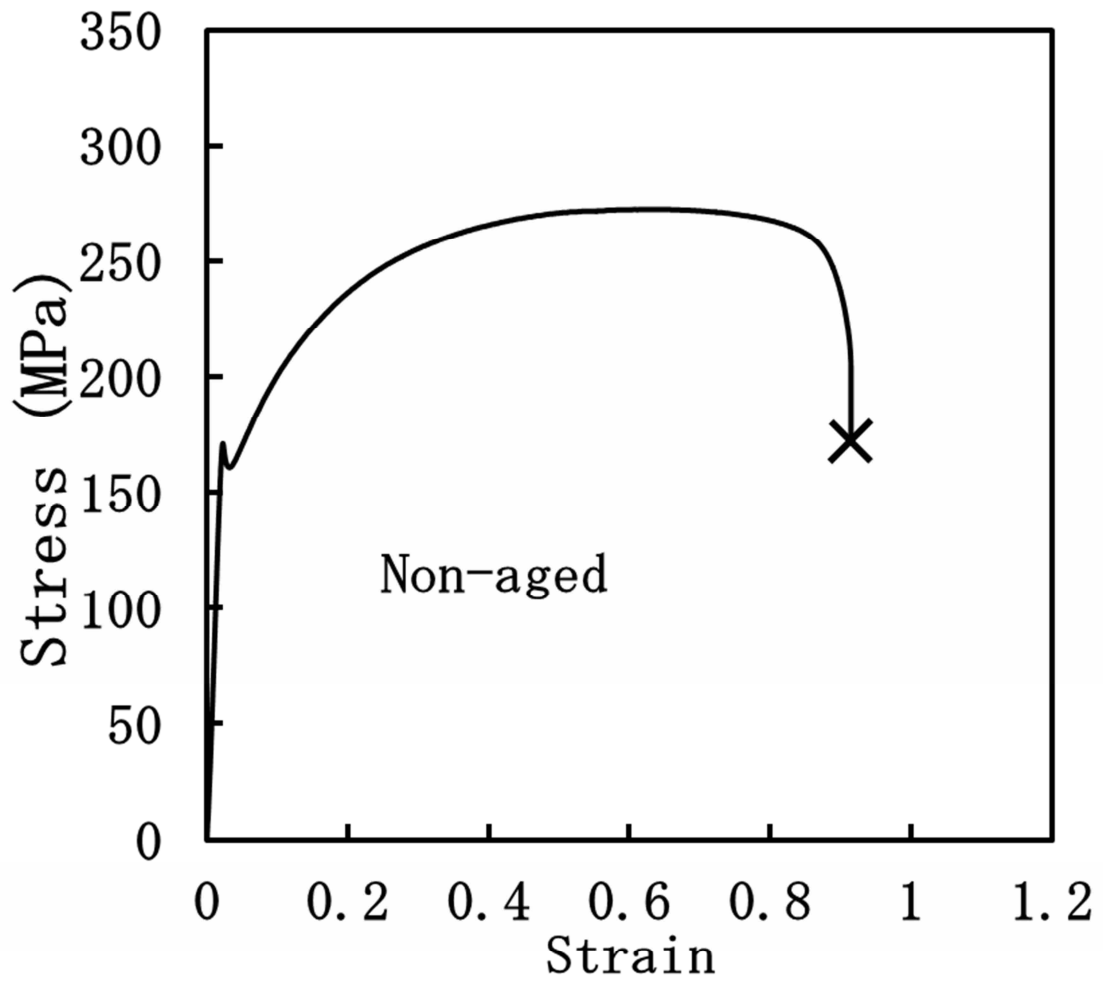


図 3.2.2-4 6時間チャージ材の応力-ひずみ曲線 (未時効材)

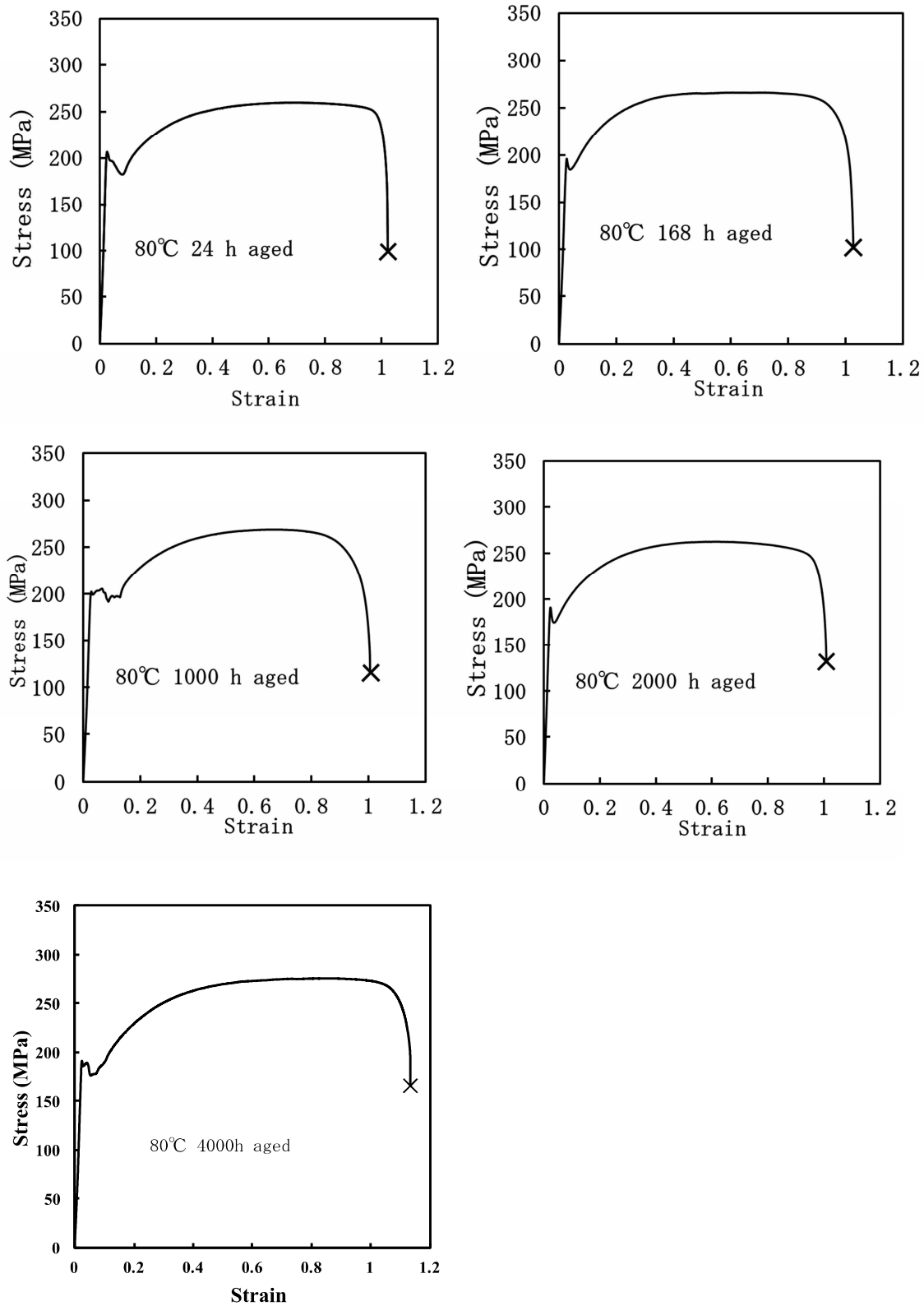


図 3. 2. 2-5 80°Cで熱時効した未チャージ材の応力-ひずみ曲線

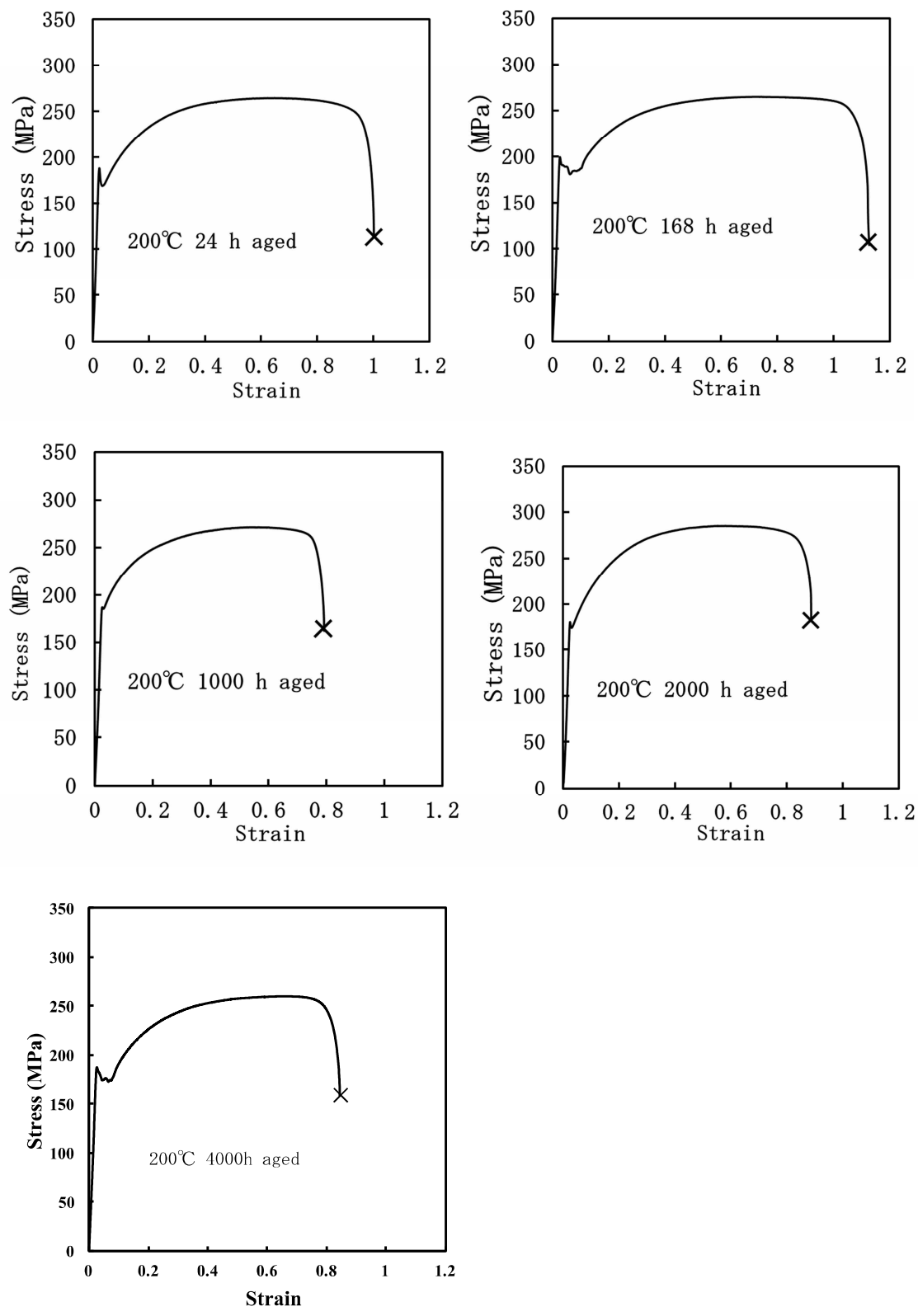


図 3.2.2-6 200°Cで熱時効した未チャージ材の応力-ひずみ曲線

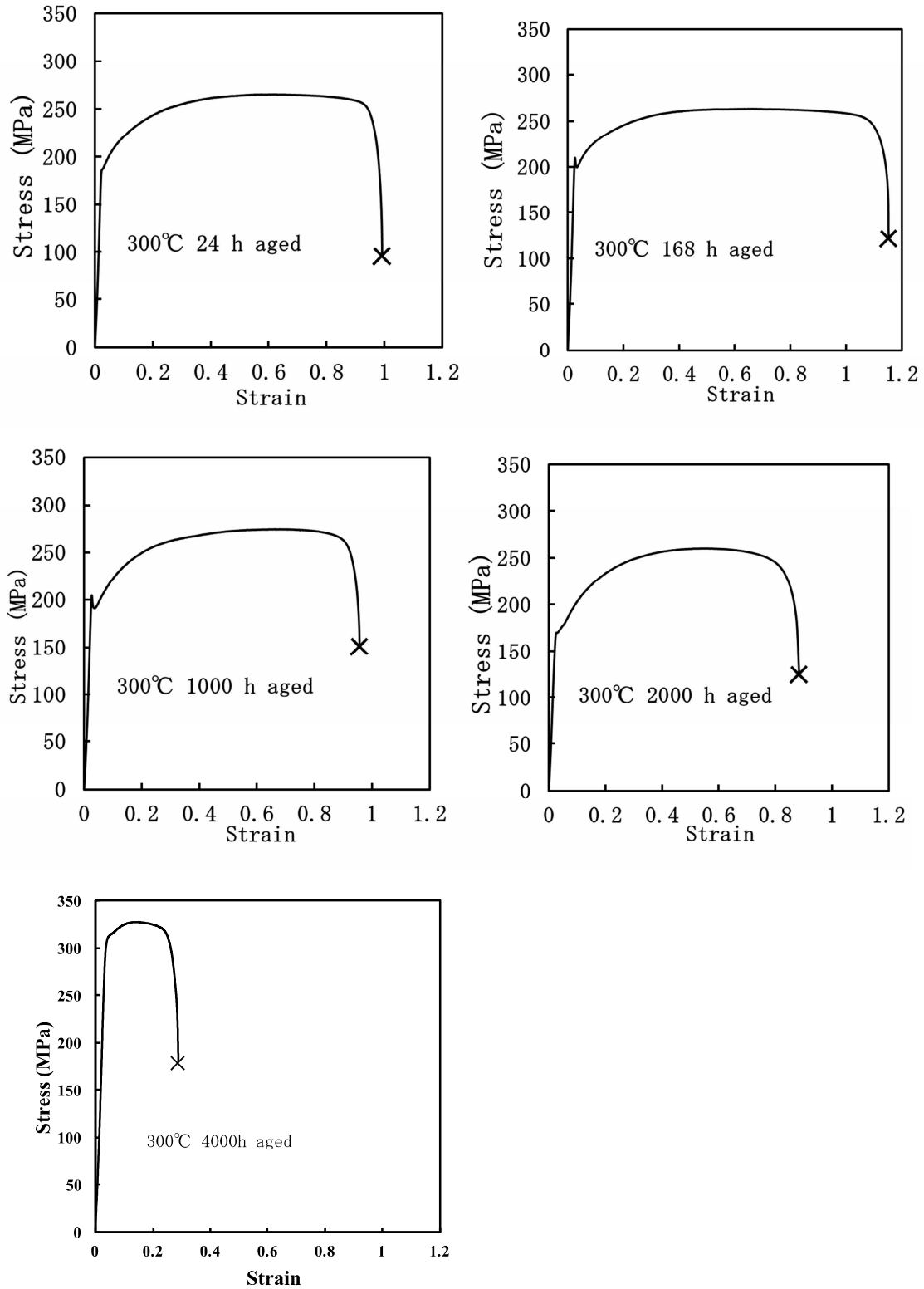


図 3.2.2-7 300°Cで熱時効した未チャージ材の応力-ひずみ曲線

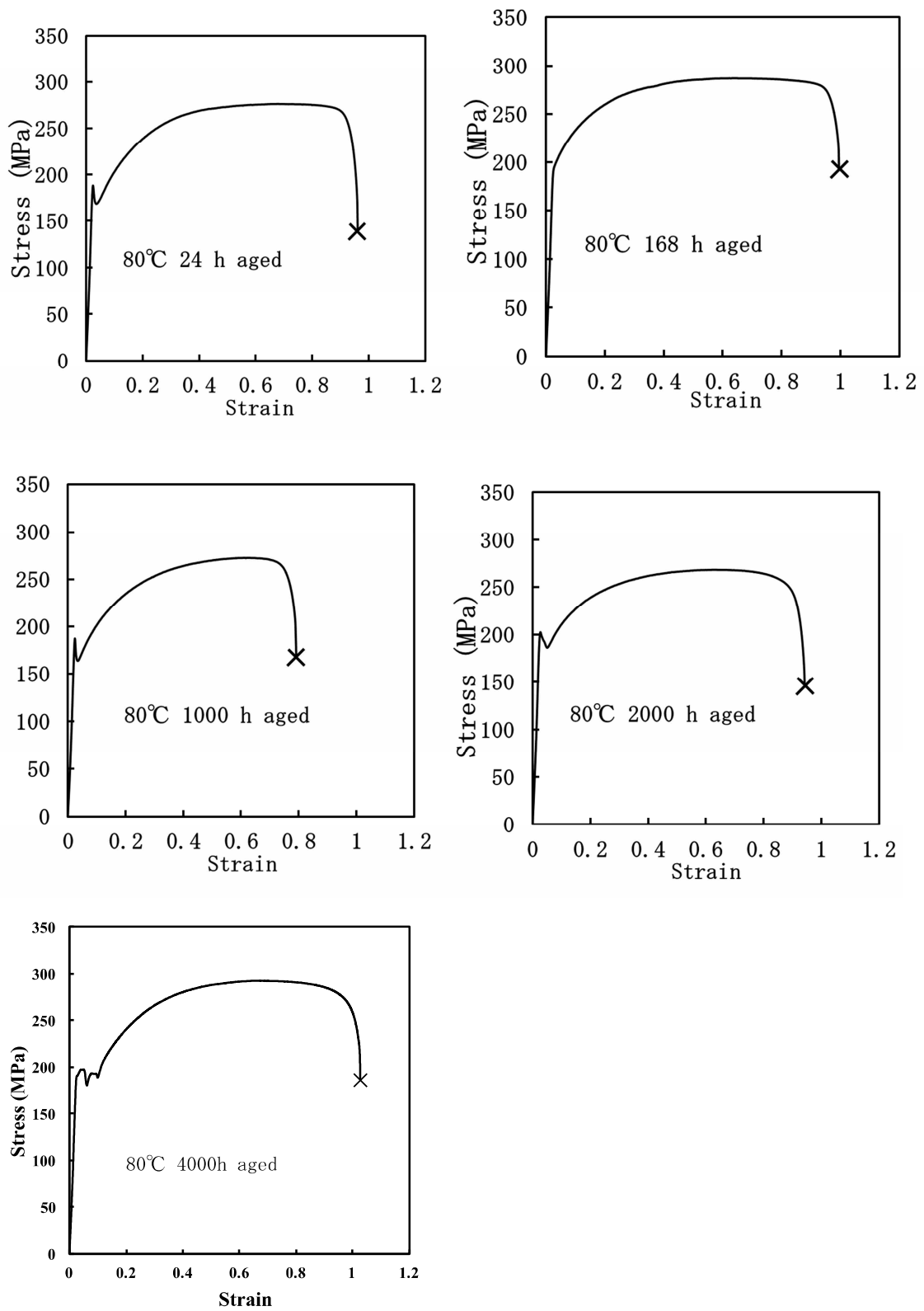


図 3. 2. 2-8 80°Cで熱時効した3時間チャージ材の応力-ひずみ曲線

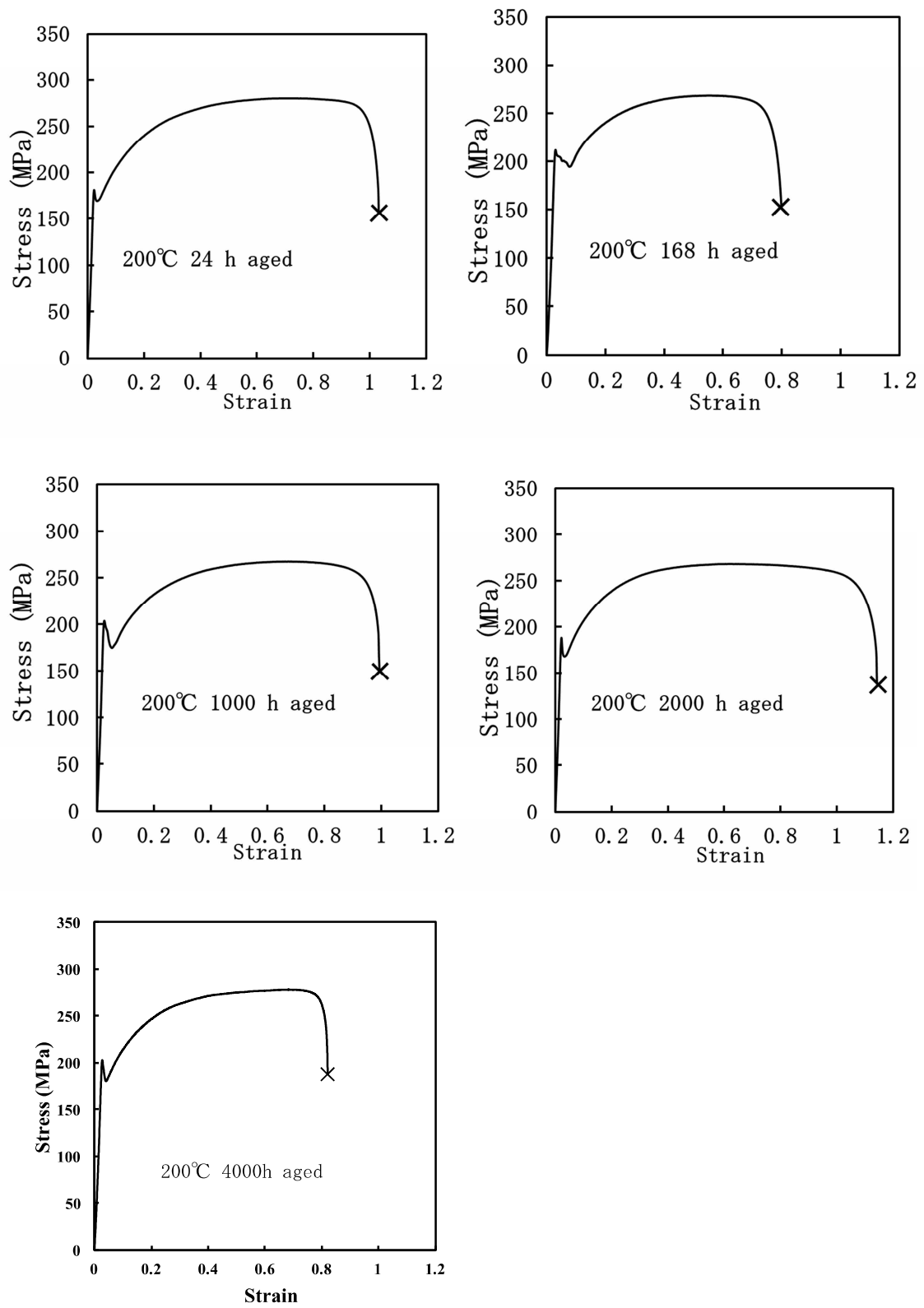


図 3. 2. 2-9 200°Cで熱時効した3時間チャージ材の応力-ひずみ曲線

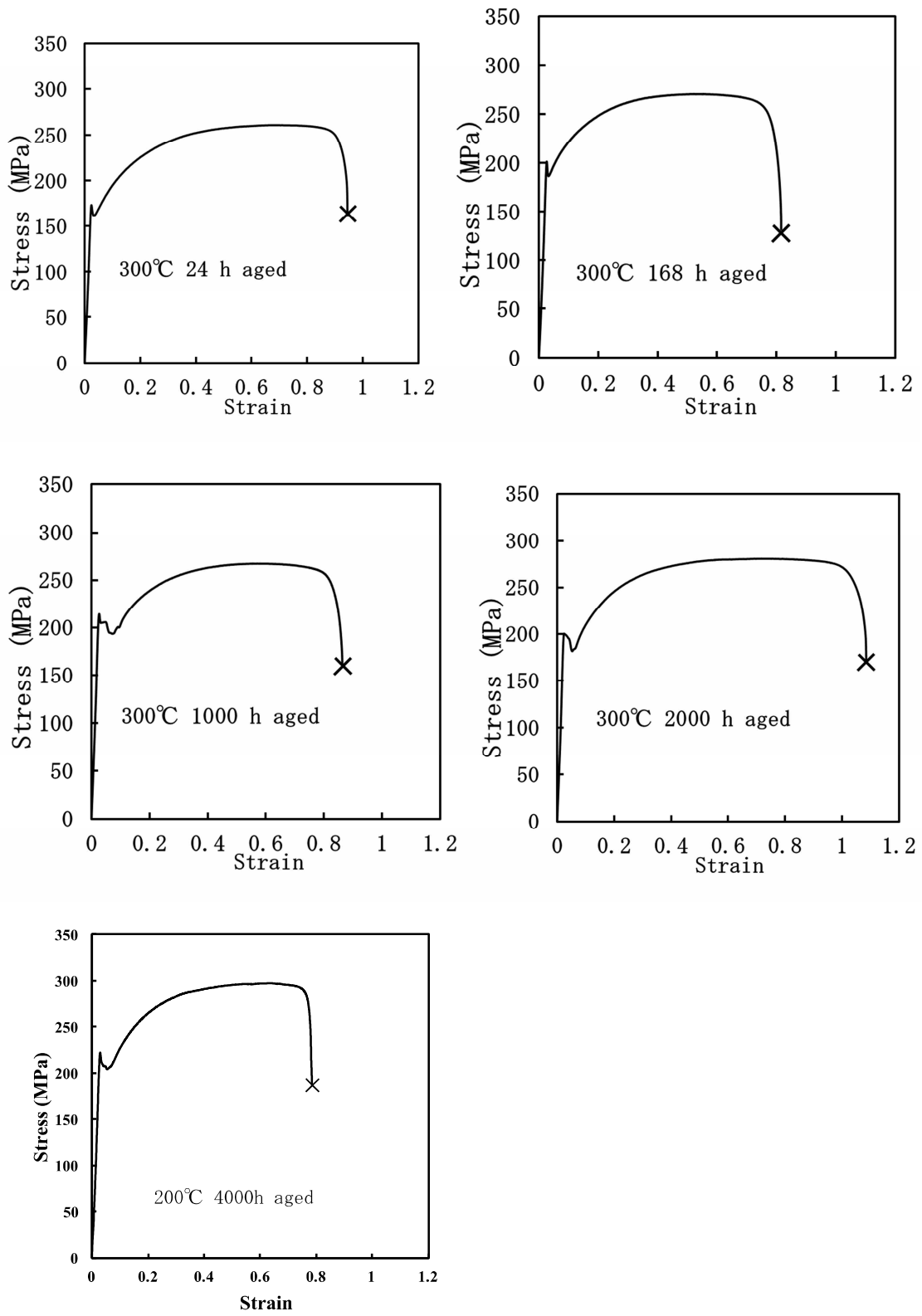


図 3. 2. 2-10 300°Cで熱時効した3時間チャージ材の応力-ひずみ曲線

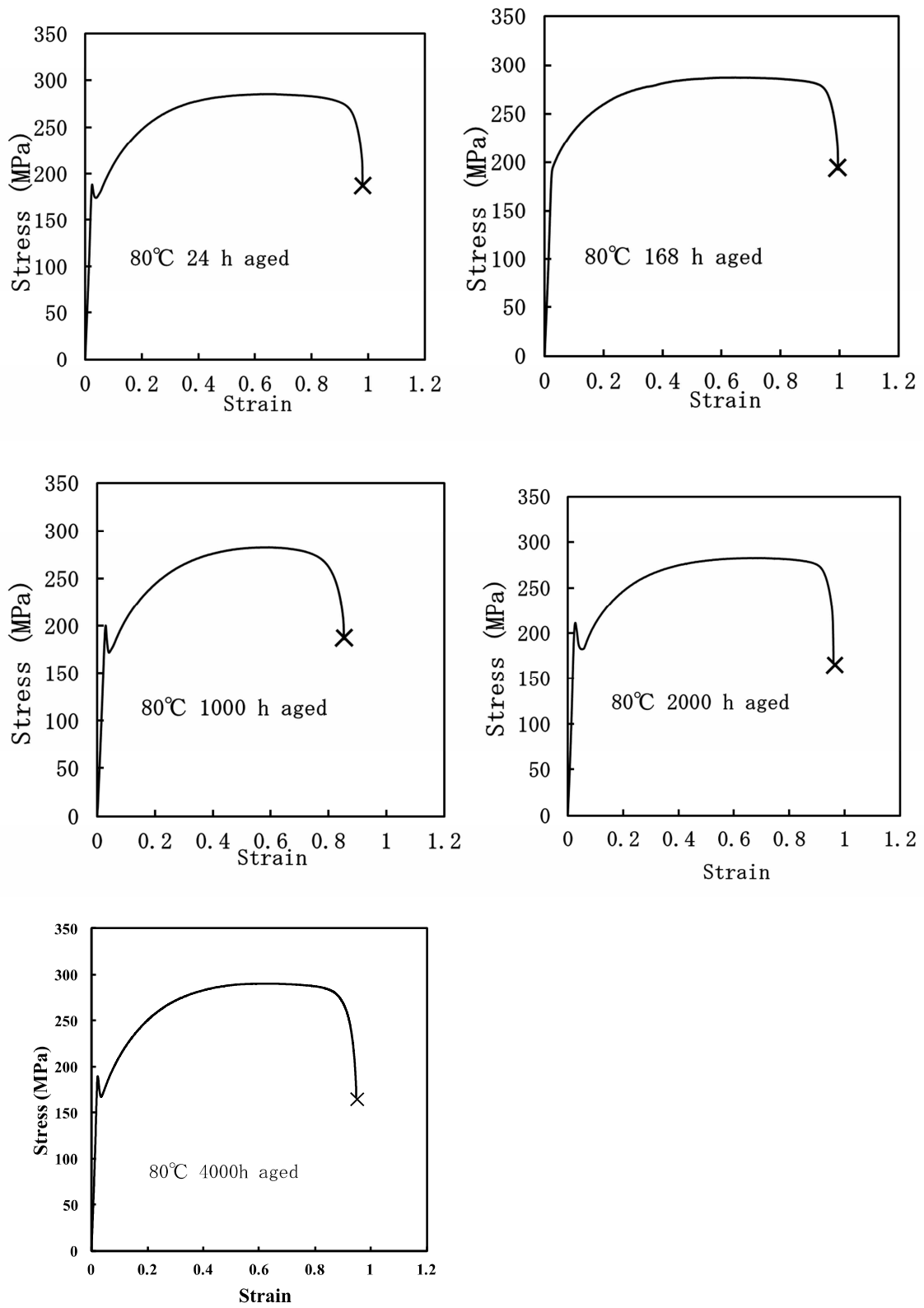


図 3. 2. 2-11 80°Cで熱時効した6時間チャージ材の応力-ひずみ曲線

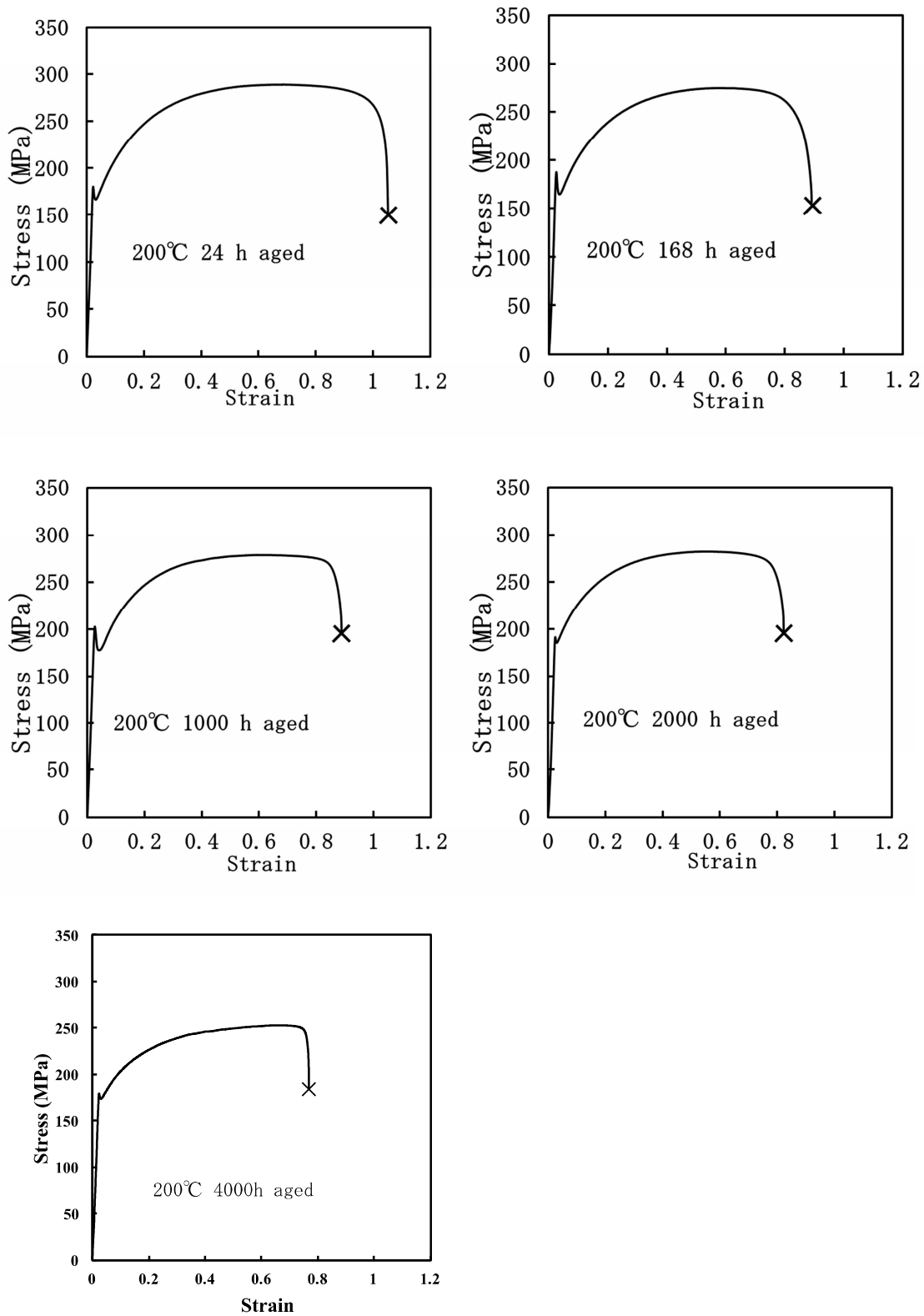


図 3. 2. 2-12 200°Cで熱時効した6時間チャージ材の応力-ひずみ曲線

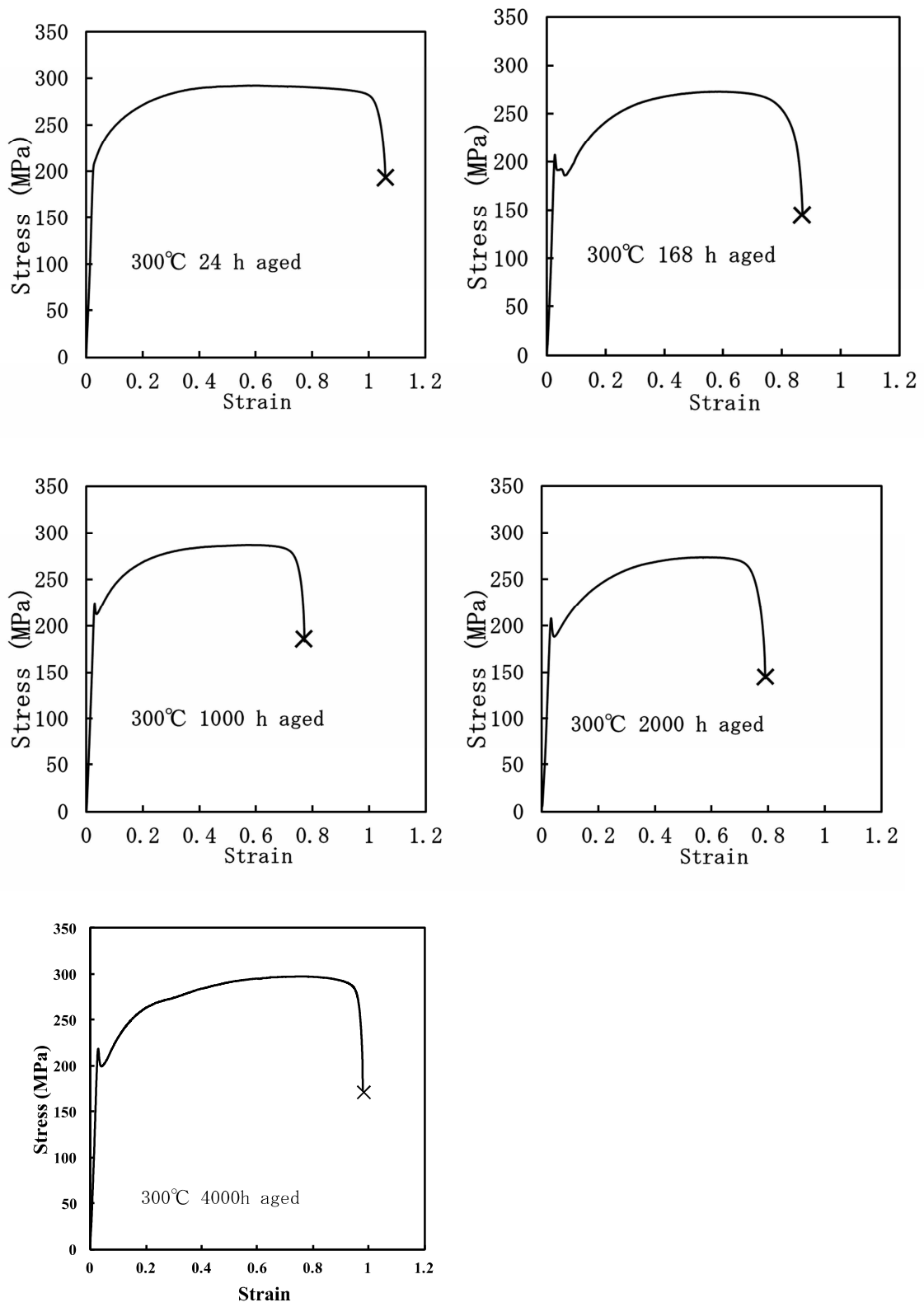


図 3. 2. 2-13 300°Cで熱時効した6時間チャージ材の応力-ひずみ曲線

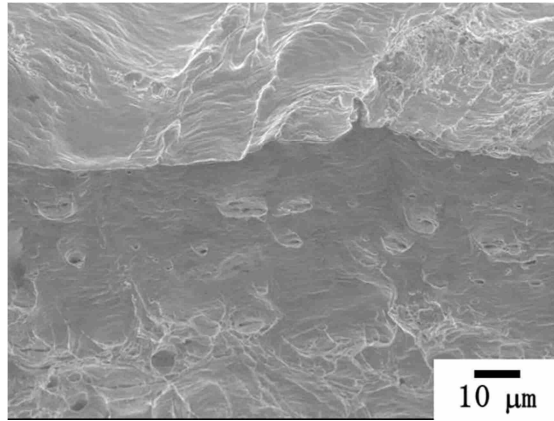
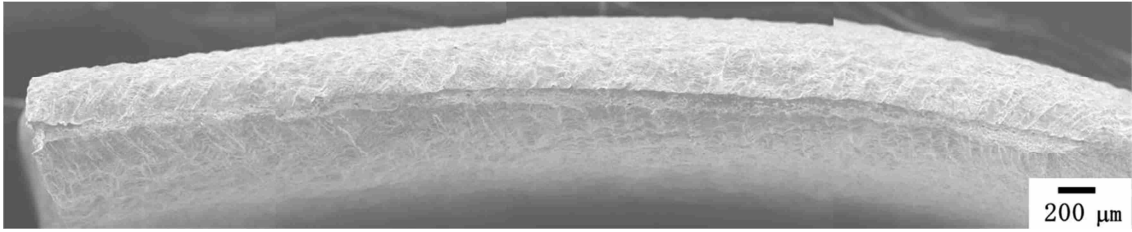


図 3. 2. 2-14 未時効の未チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=96%)

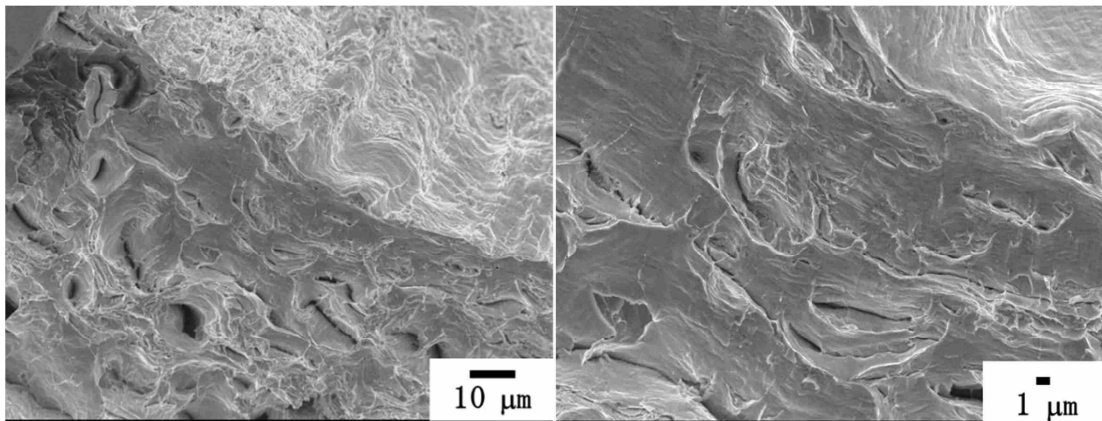
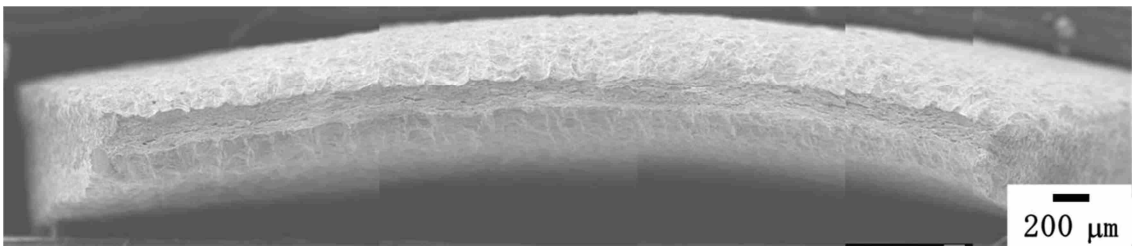


図 3. 2. 2-15 未時効の 3 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=88%)

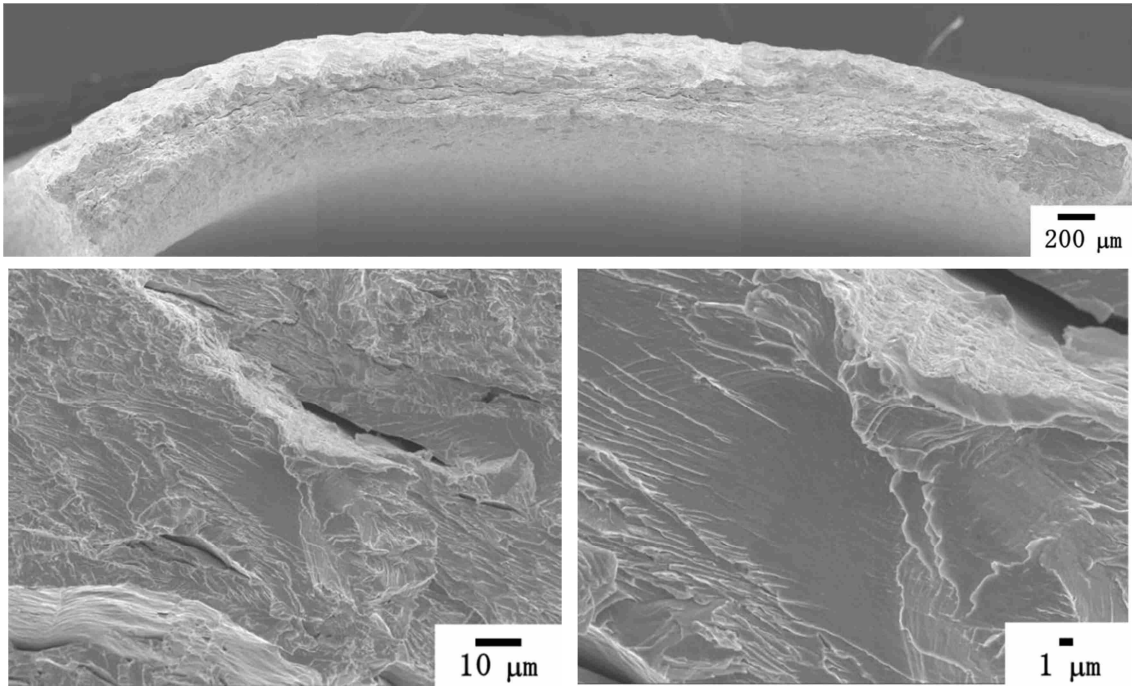


図 3. 2. 2-16 未時効の 6 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=76%)

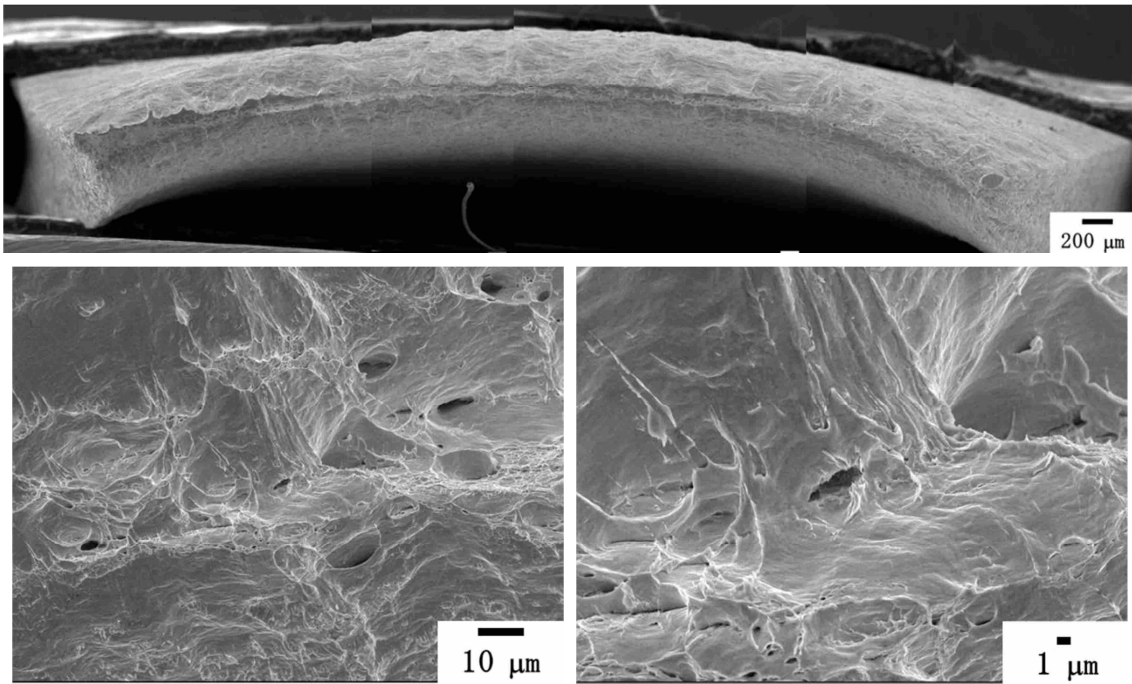


図 3. 2. 2-17 80°C24 時間時効した未チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=93%)

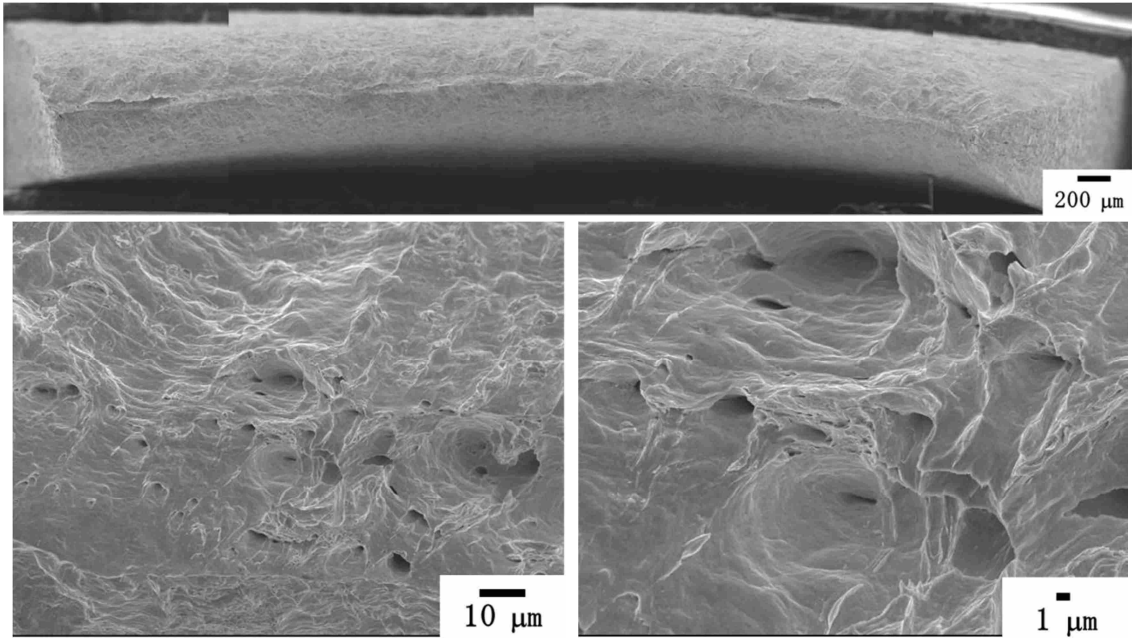


図 3.2.2-18 200°C24 時間時効した未チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=94%)

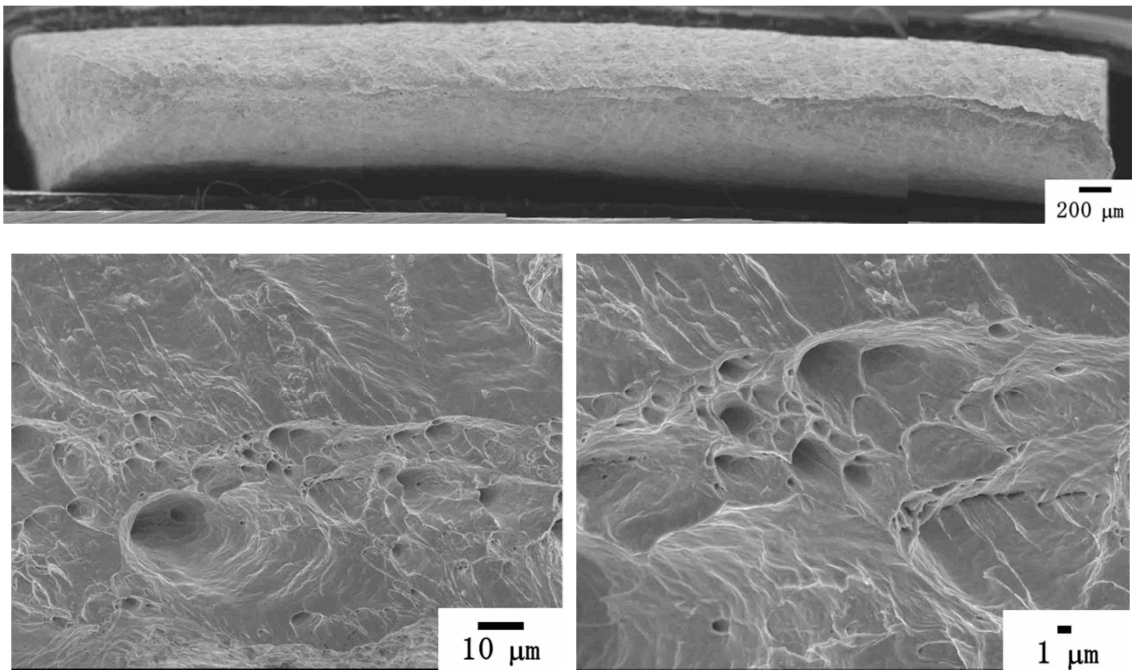


図 3.2.2-19 300°C24 時間時効した未チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=96%)

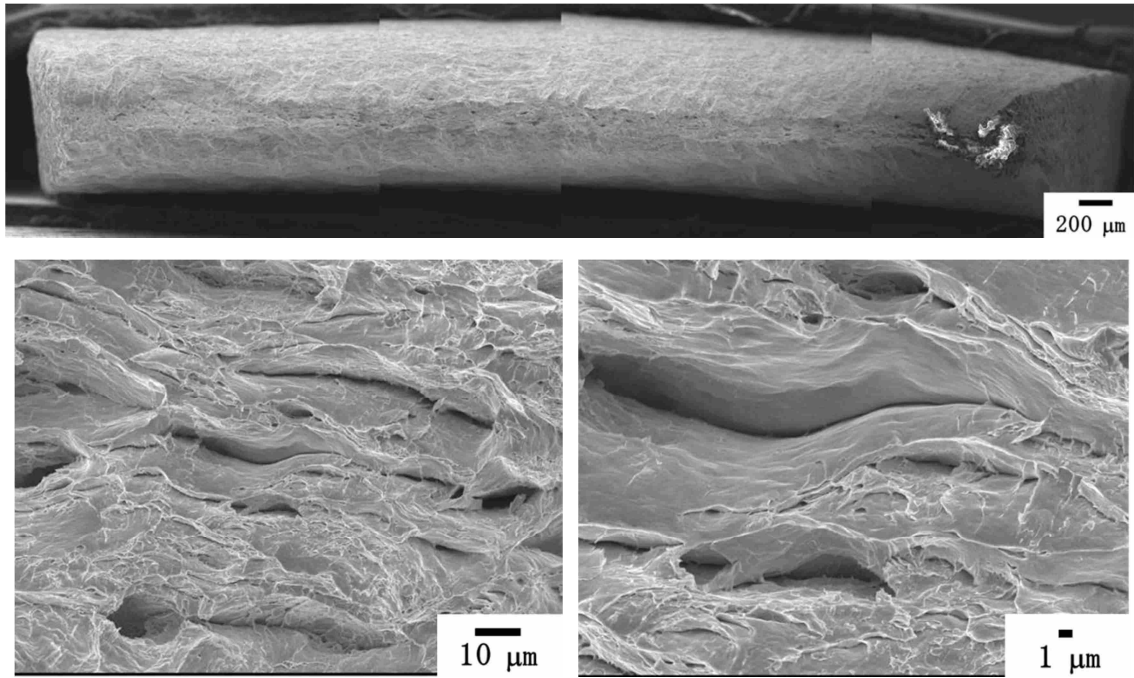


図 3. 2. 2-20 80°C24 時間時効した 3 時間チャージ材引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=85%)

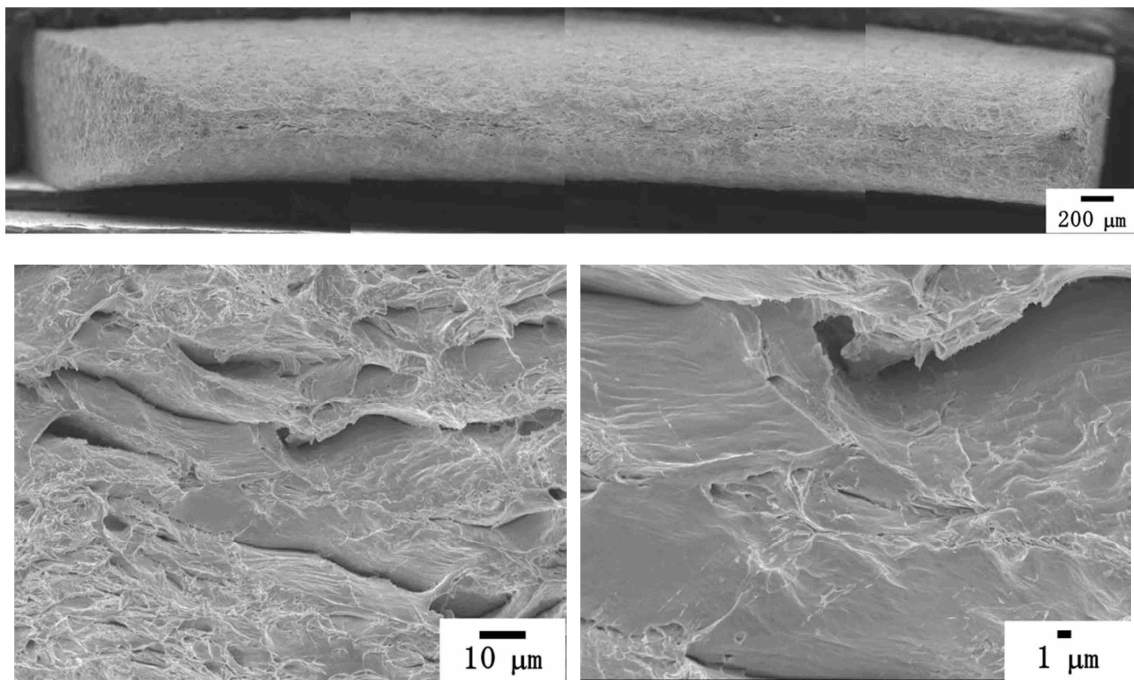


図 3. 2. 2-21 200°C24 時間時効した 3 時間チャージ材引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=84%)

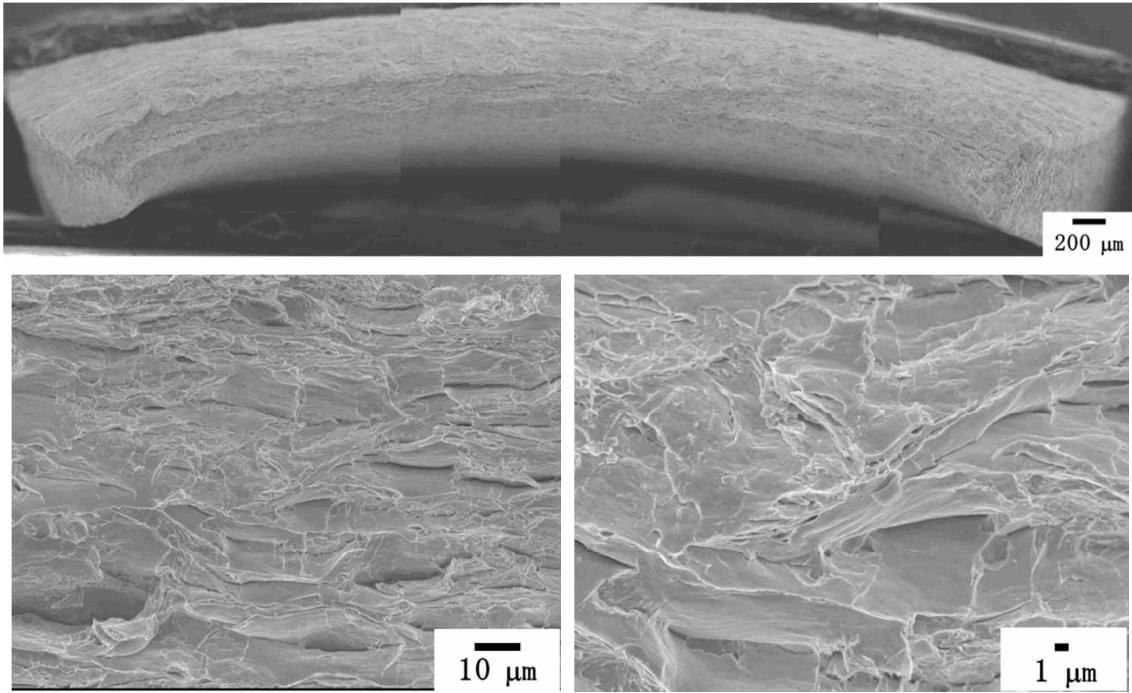


図 3. 2. 2-22 300°C24 時間時効した 3 時間チャージ材引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=84%)

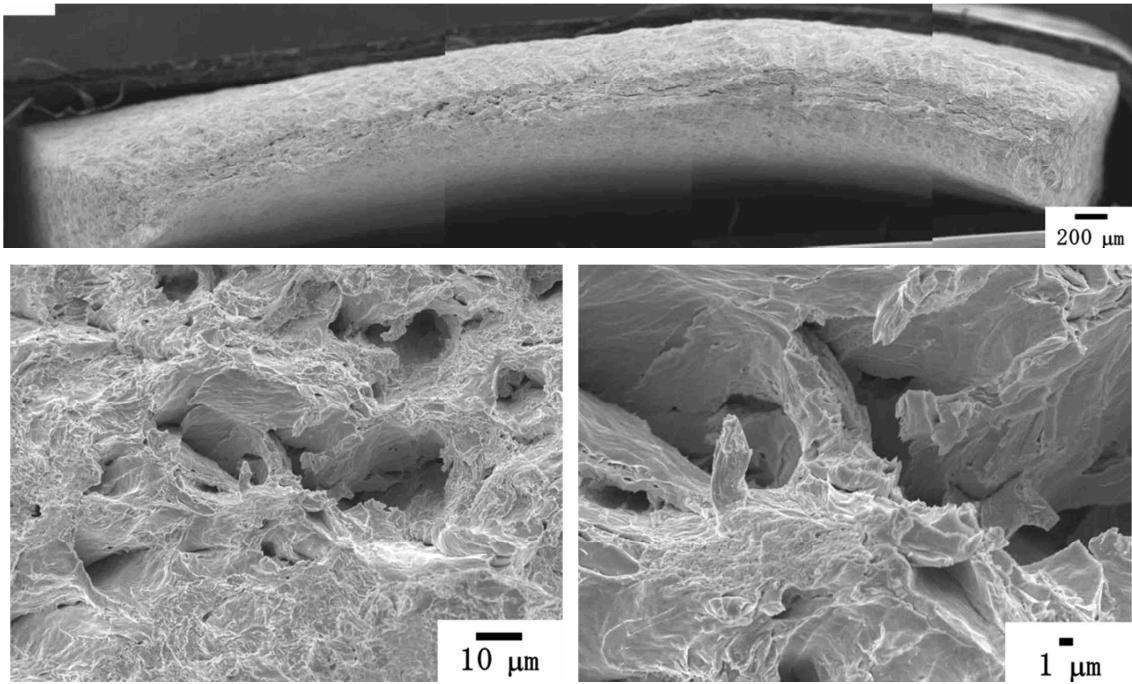


図 3. 2. 2-23 80°C24 時間時効した 6 時間チャージ材引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=81%)

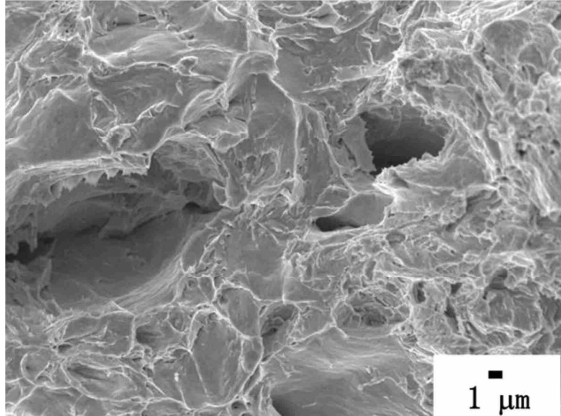
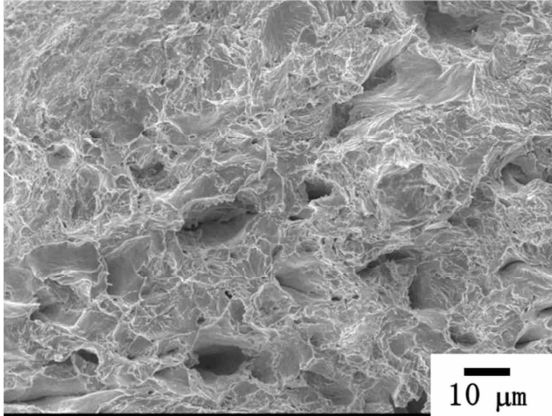


図 3. 2. 2-24 200°C24 時間時効した 6 時間チャージ材引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=78%)

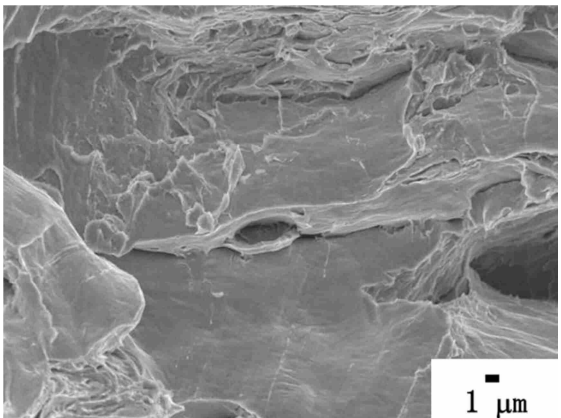
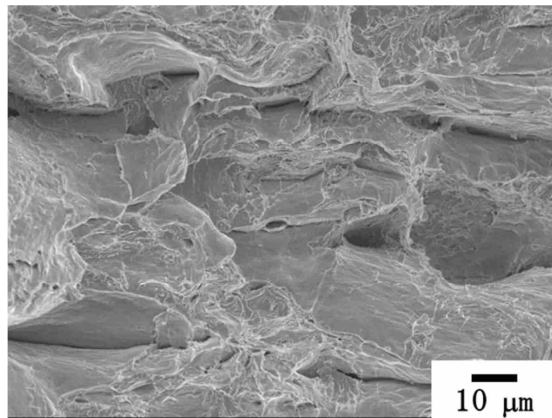
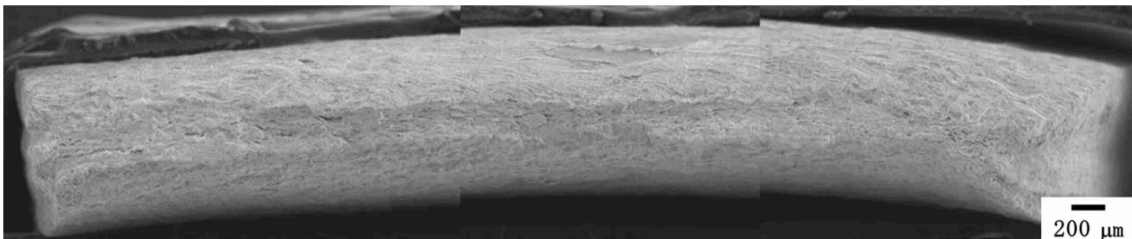


図 3. 2. 2-25 300°C24 時間時効した 6 時間チャージ材引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=80%)

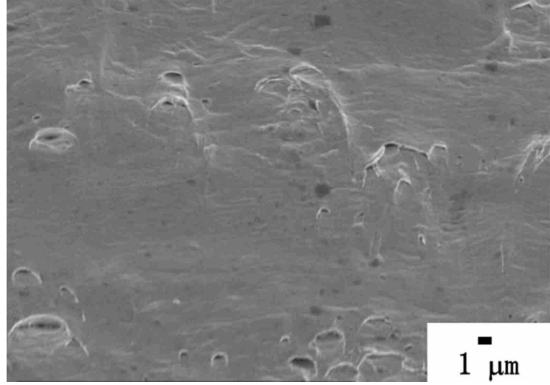
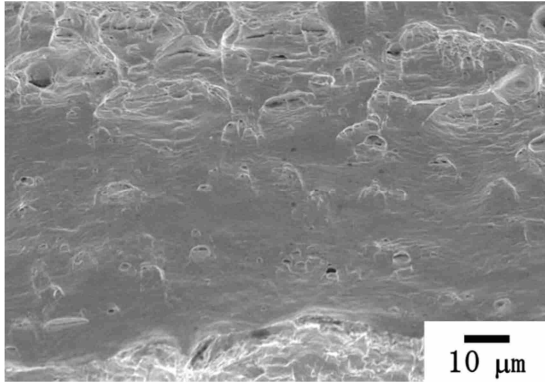
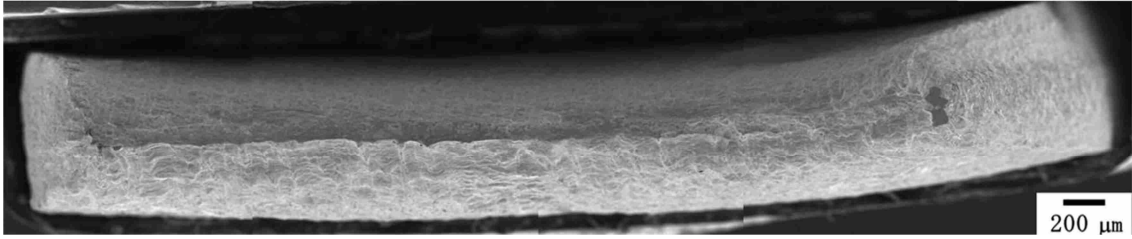


図 3. 2. 2-26 80°C168 時間時効した未チャージ材引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=95%)

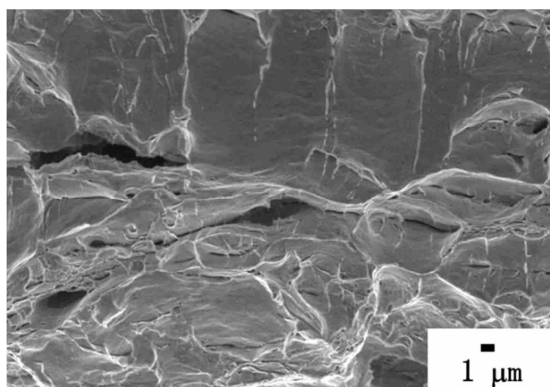
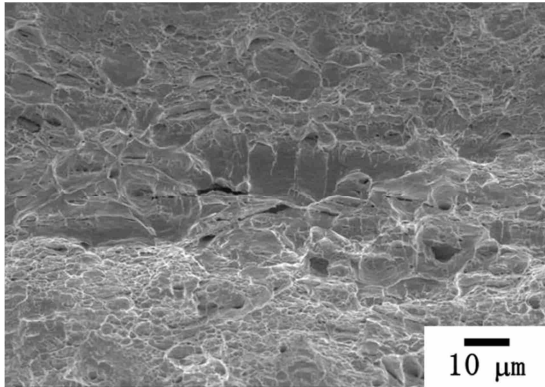
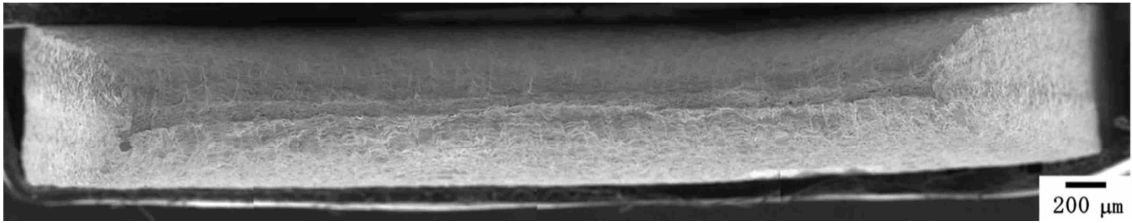


図 3. 2. 2-27 200°C168 時間時効した未チャージ材引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=95%)

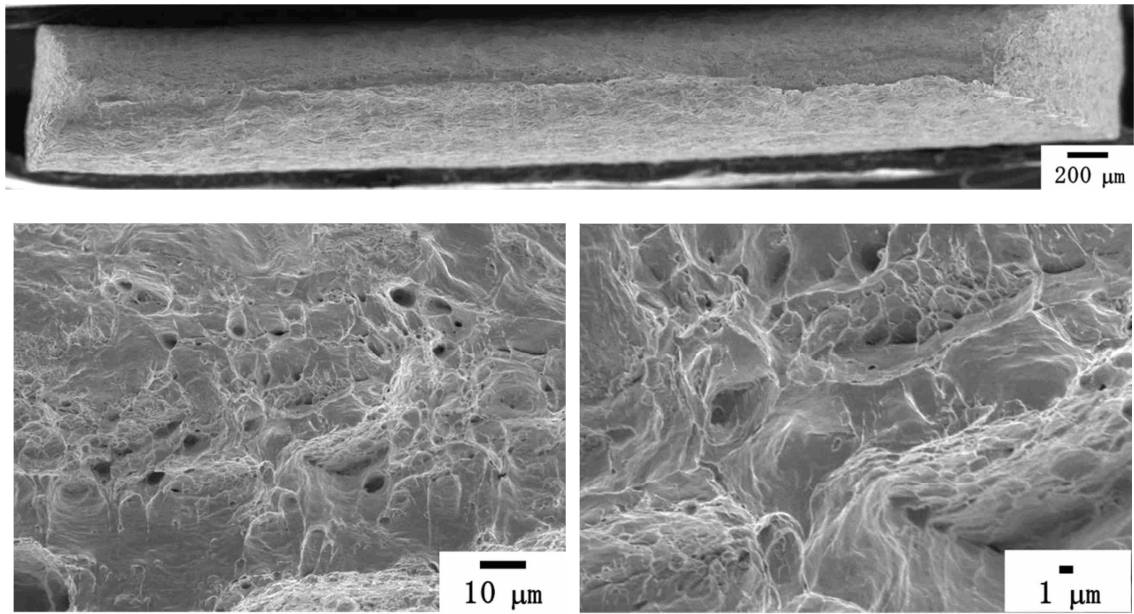


図 3. 2. 2-28 300°C168 時間時効した未チャージ材引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=95%)

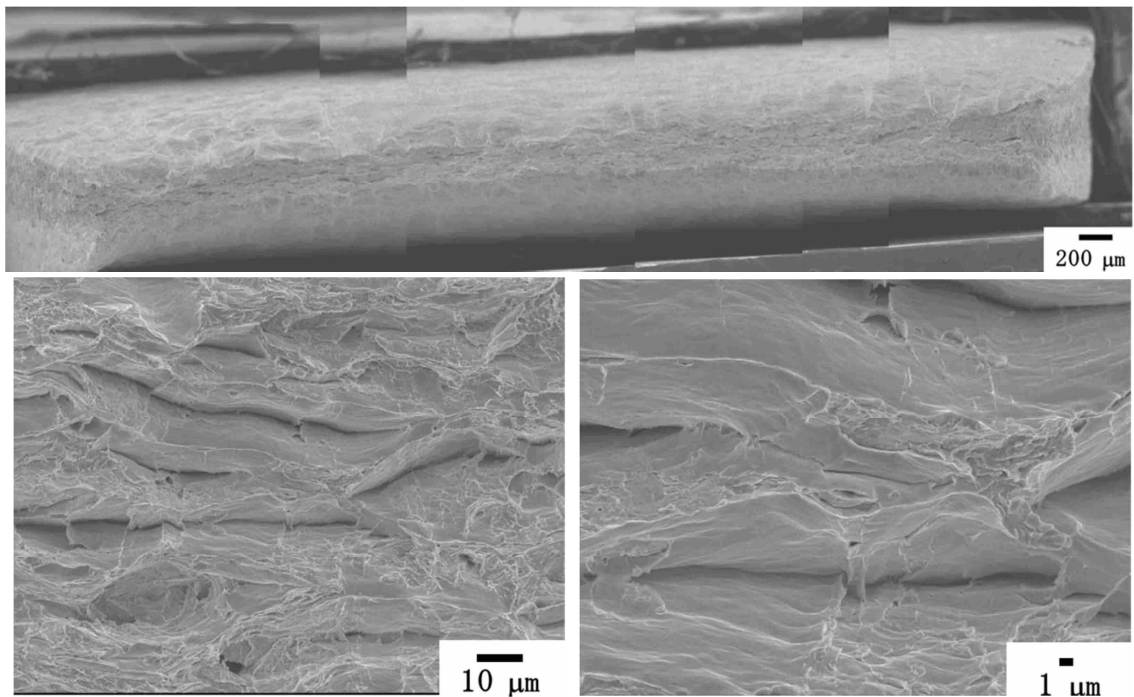


図 3. 2. 2-29 80°C168 時間時効した 3 時間チャージ材引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=81%)

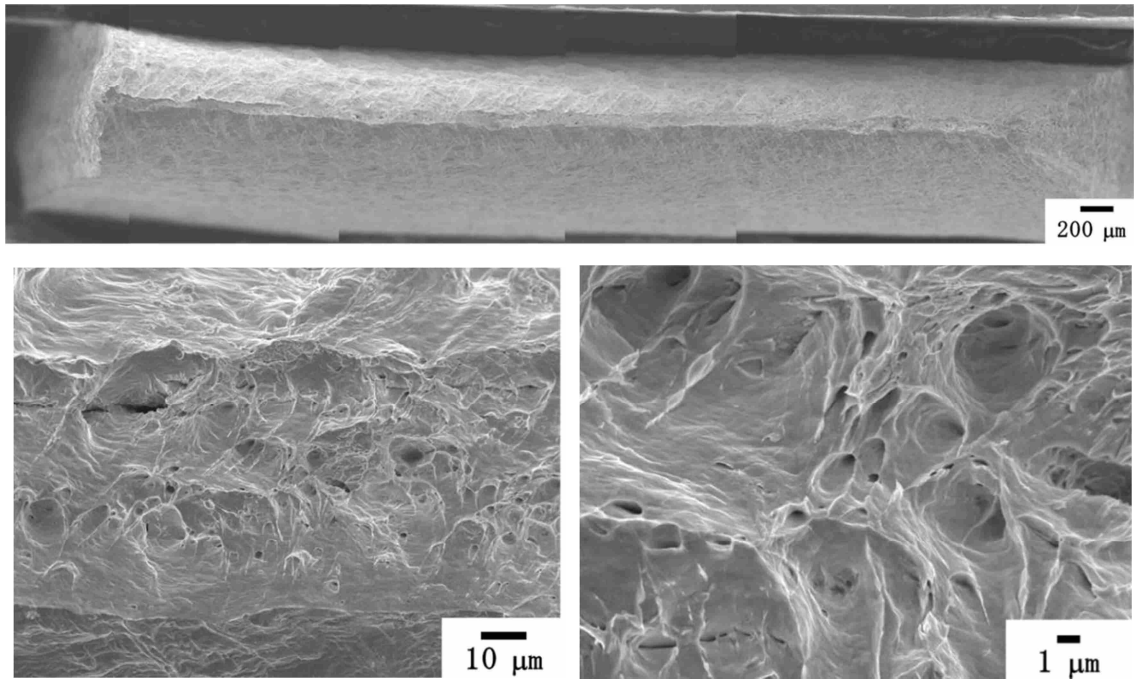


図 3. 2. 2-30 200°C168 時間時効した 3 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=93%)

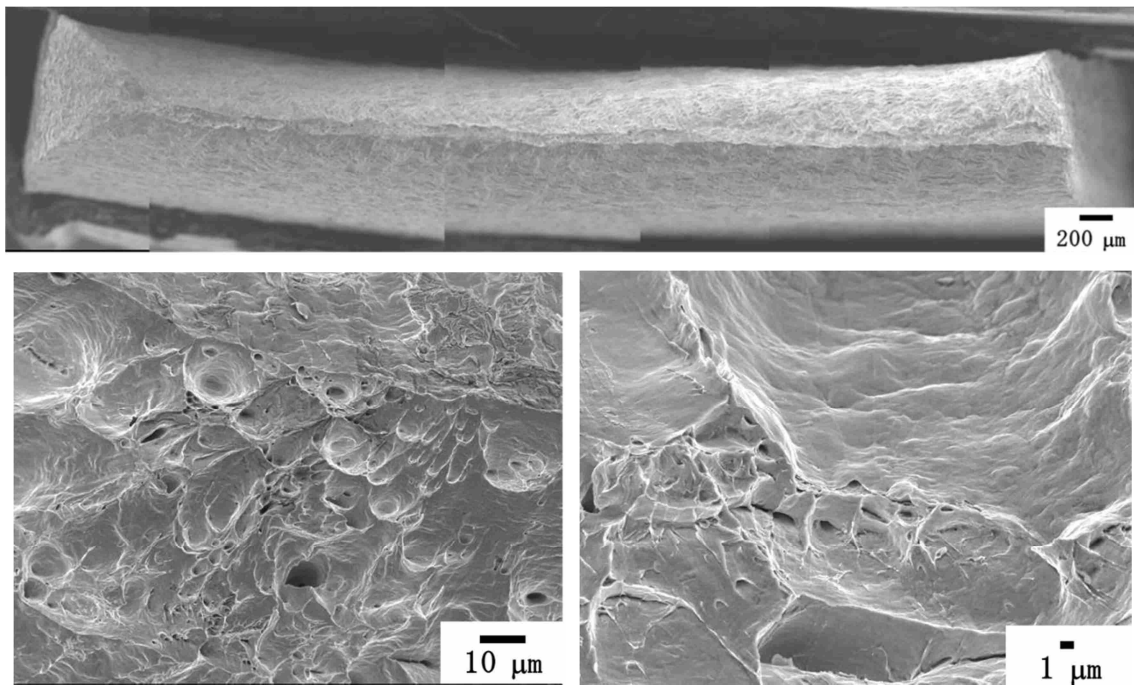


図 3. 2. 2-31 300°C168 時間時効した 3 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=93%)

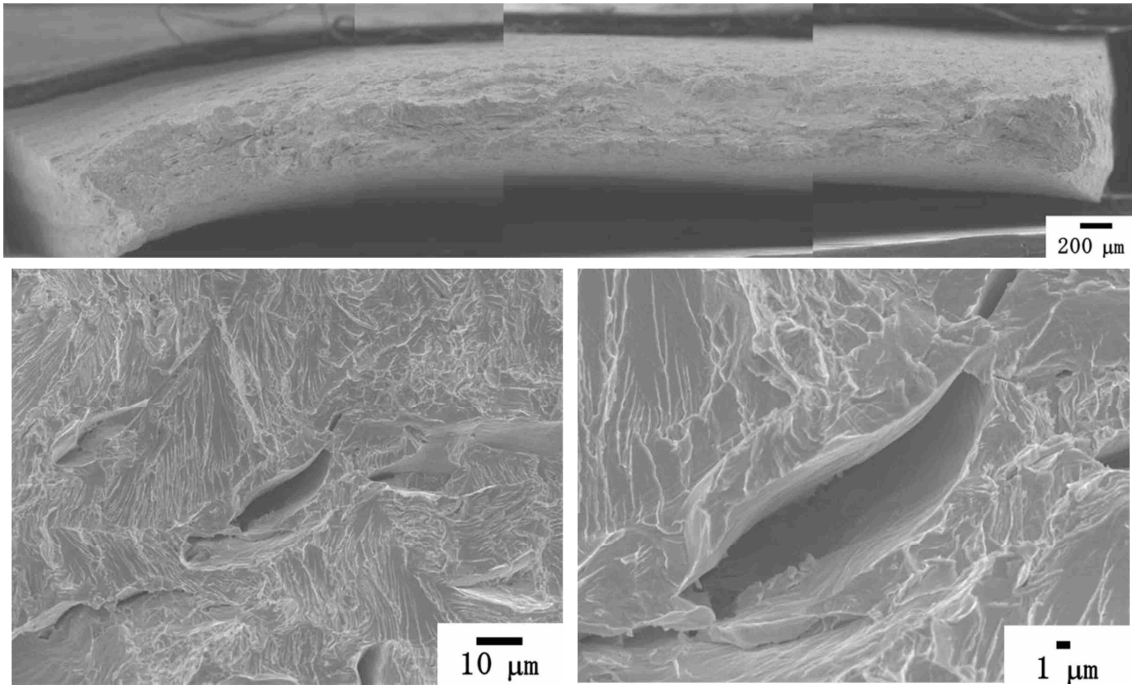


図 3. 2. 2-32 80°C168 時間時効した 6 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=76%)

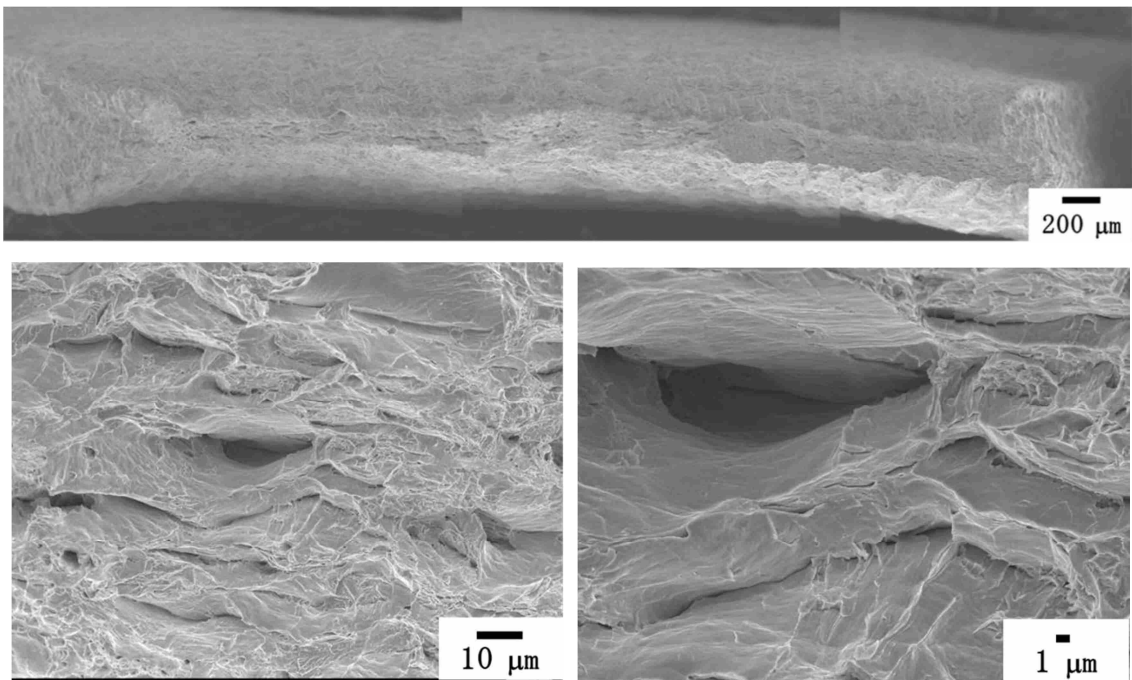


図 3. 2. 2-33 200°C168 時間時効した 6 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=83%)

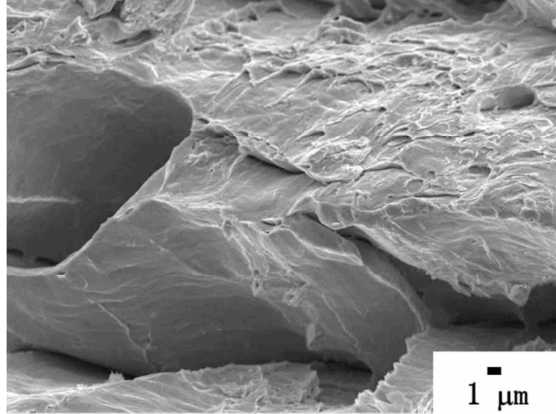
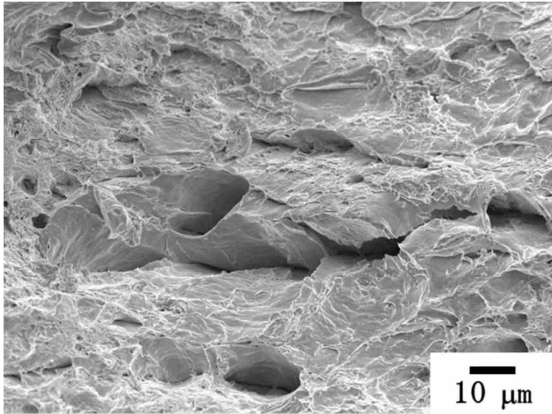
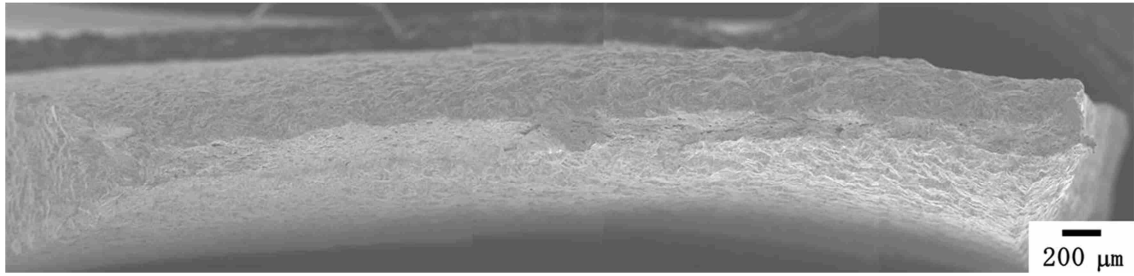


図 3. 2. 2-34 300°C168 時間時効した 6 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=86%)

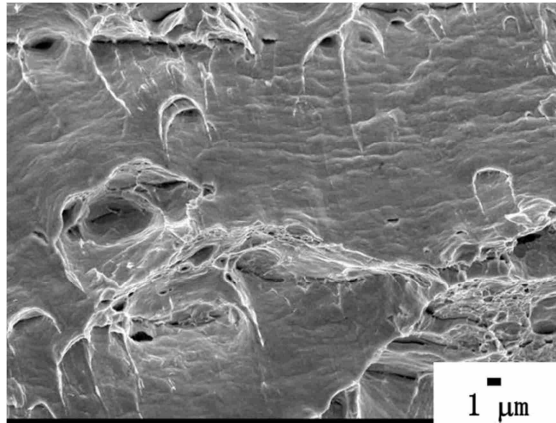
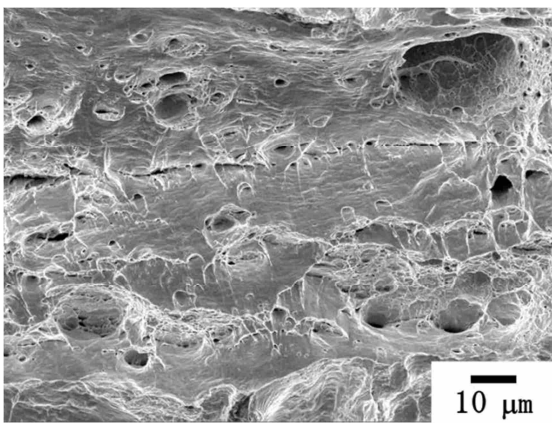
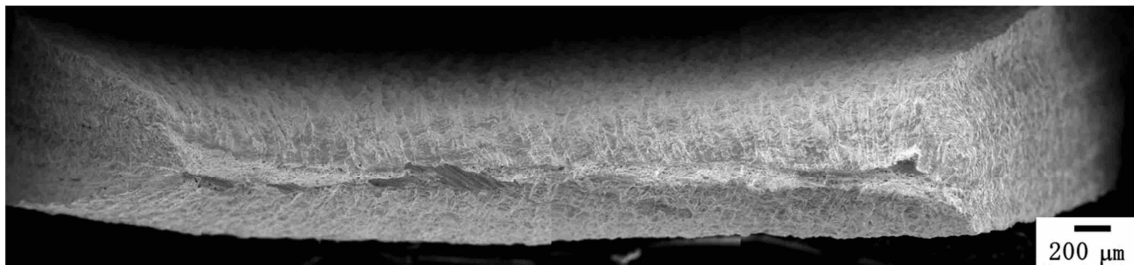


図 3. 2. 2-35 80°C1000 時間時効した未チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=94%)

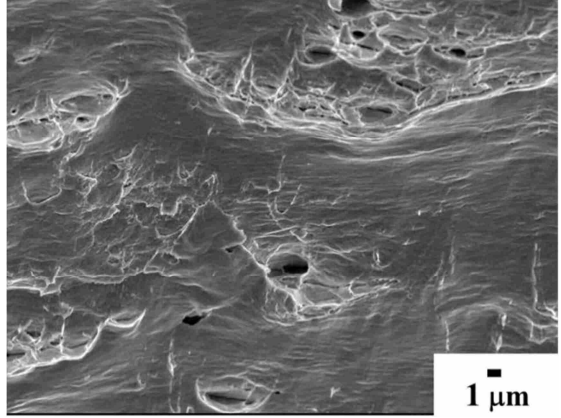
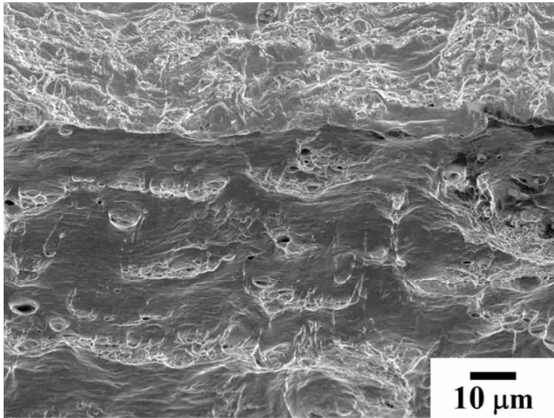
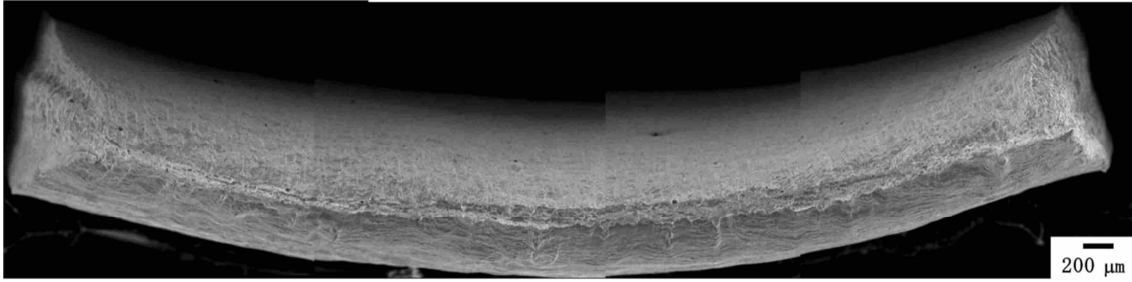


図 3. 2. 2-36 200°C1000 時間時効した未チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=93%)

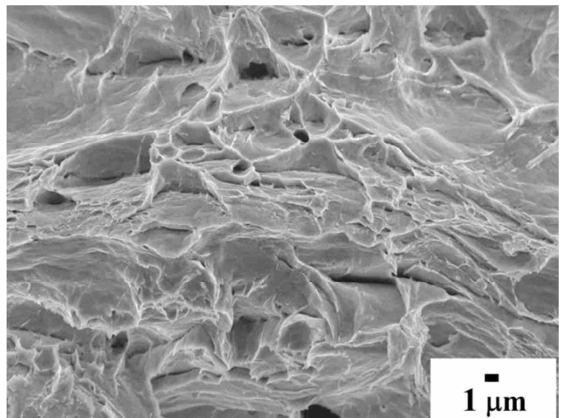
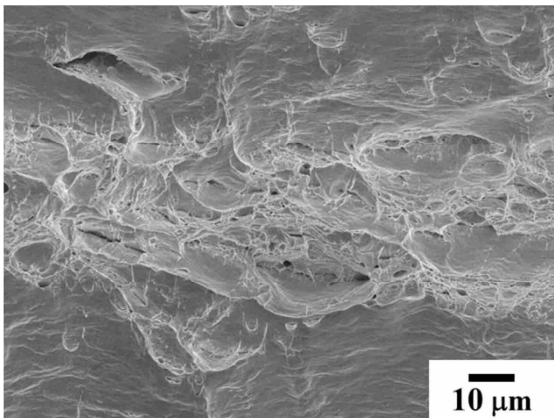
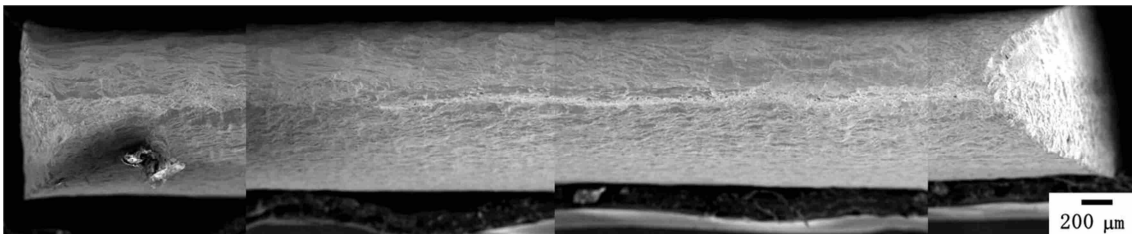


図 3. 2. 2-37 300°C1000 時間時効した未チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=90%)

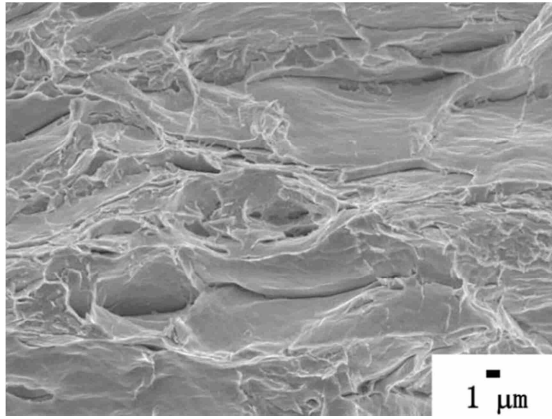
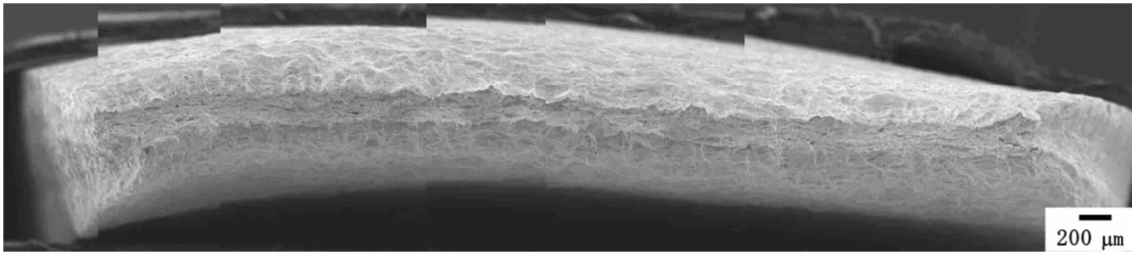


図 3. 2. 2-38 80°C1000 時間時効した 3 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=88%)

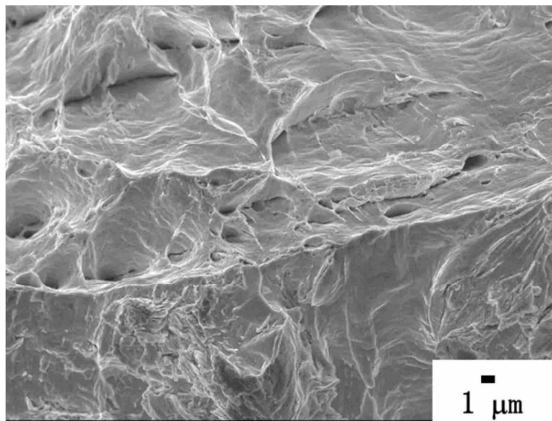
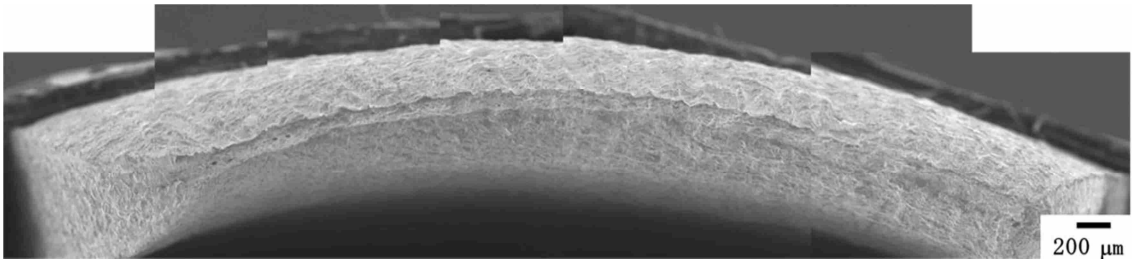


図 3. 2. 2-39 200°C1000 時間時効した 3 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=90%)

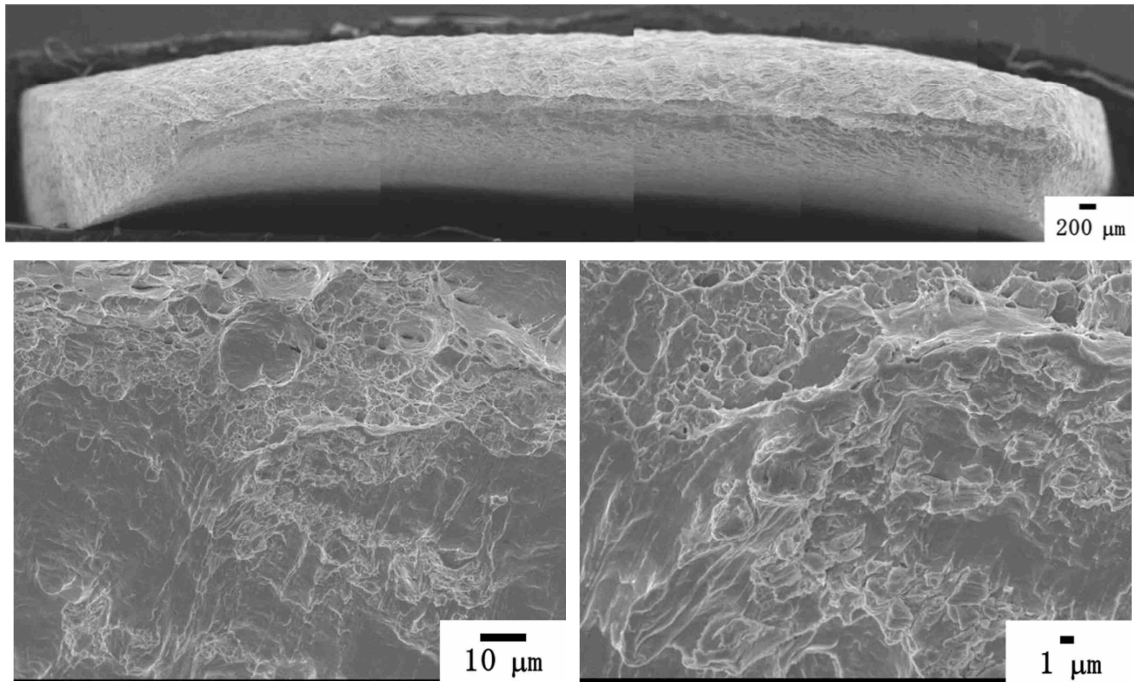


図 3. 2. 2-40 300°C1000 時間時効した 3 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=91%)

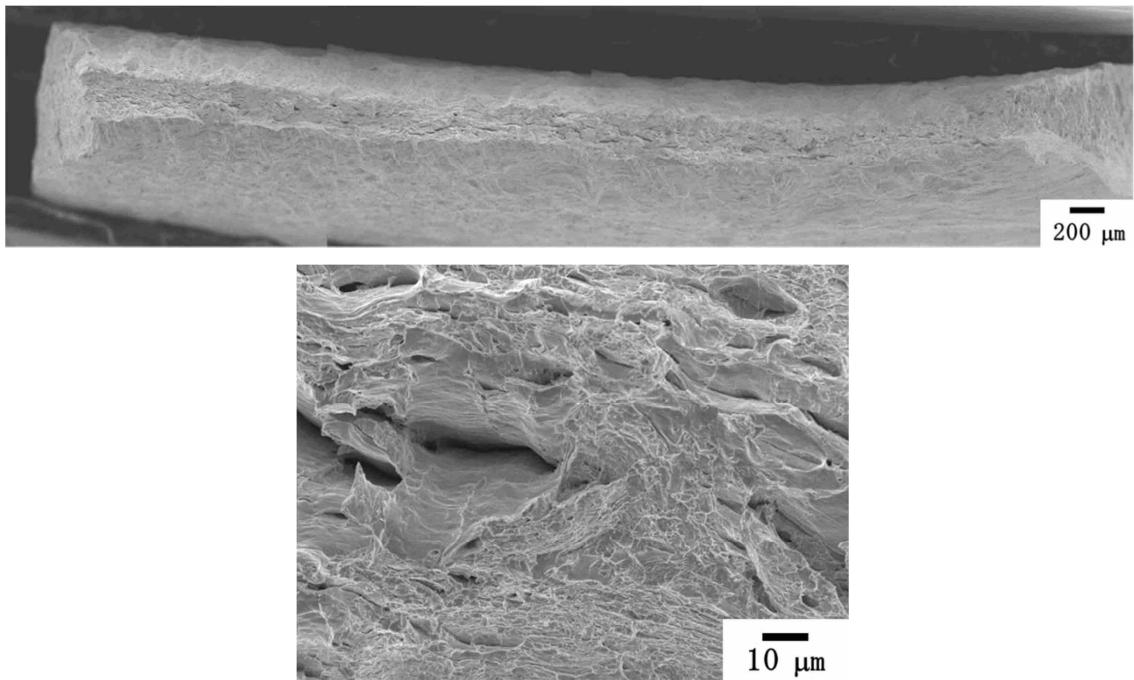


図 3. 2. 2-41 80°C1000 時間時効した 6 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=84%)

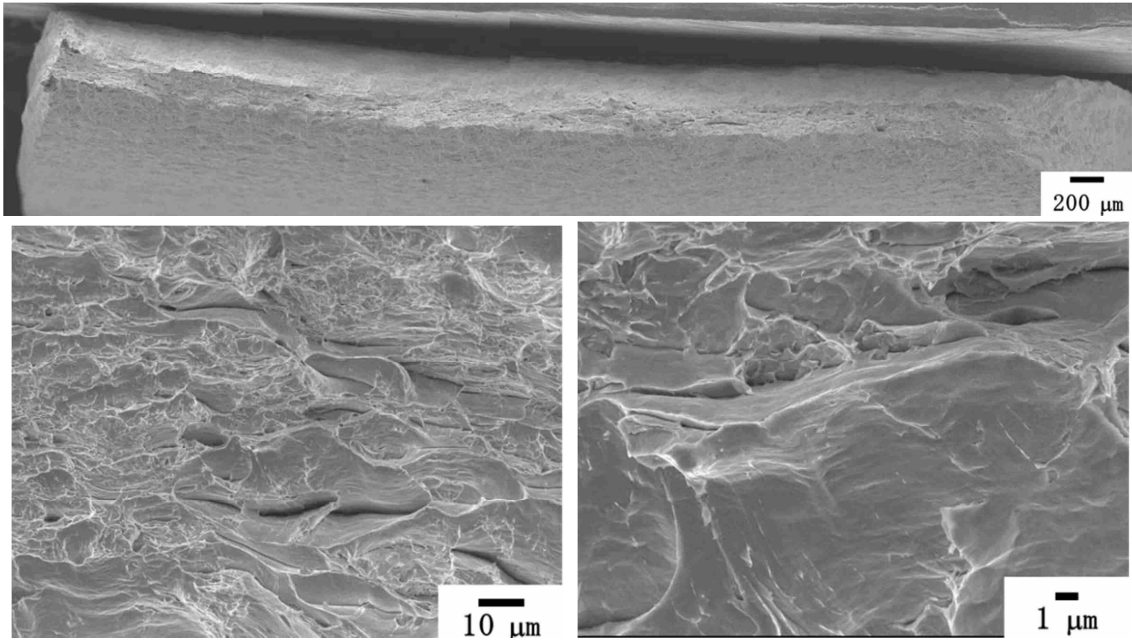


図 3. 2. 2-42 200°C1000 時間時効した 6 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=83%)

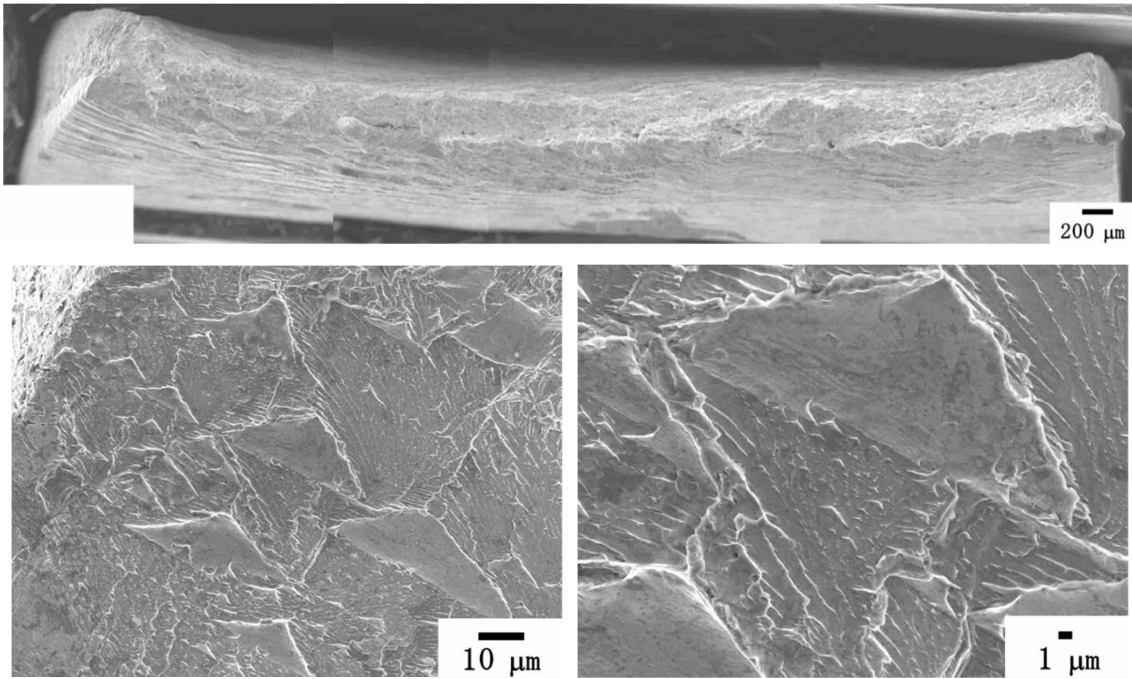


図 3. 2. 2-43 300°C1000 時間時効した 6 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=83%)

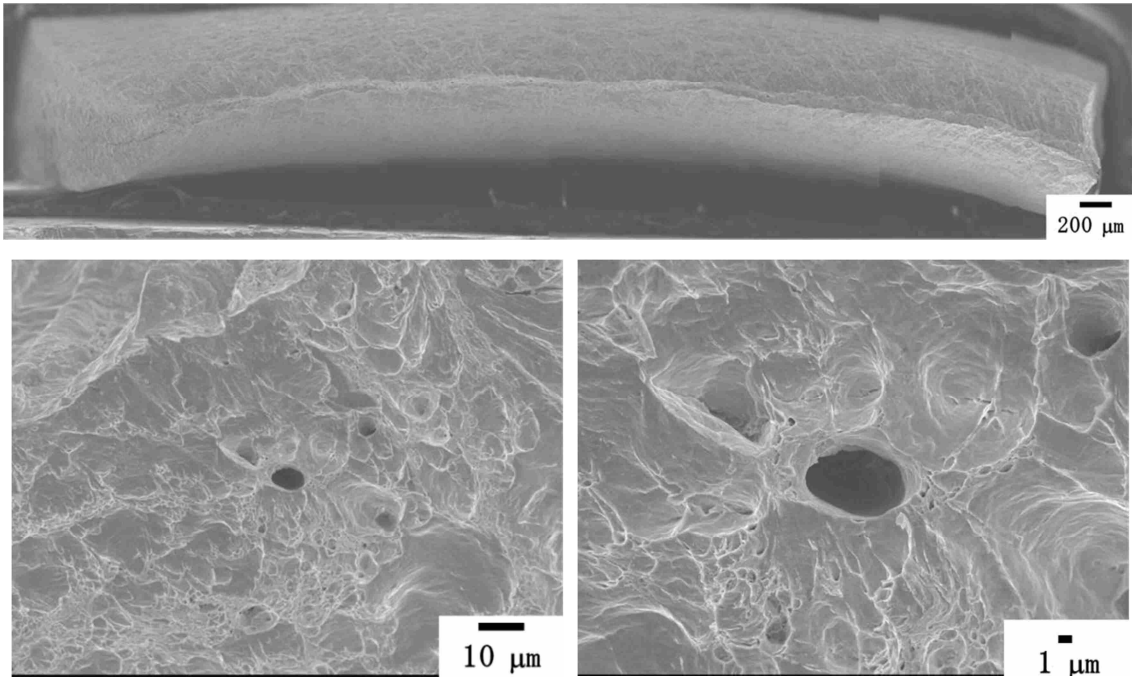


図 3. 2. 2-44 80°C2000 時間時効した未チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=92%)

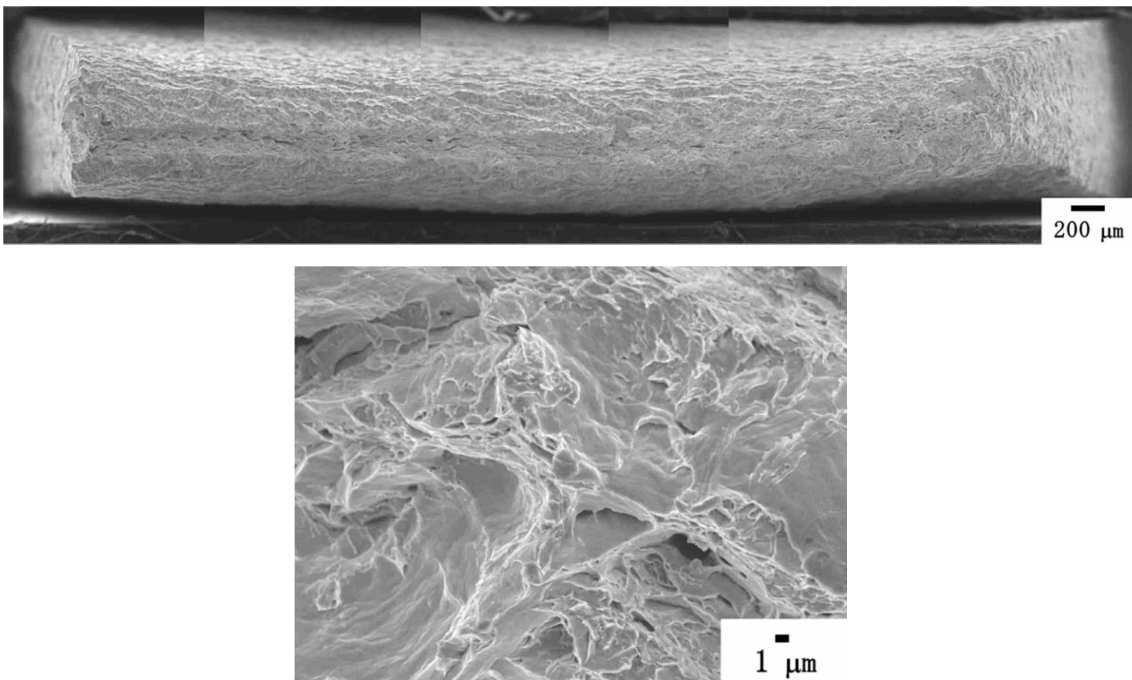


図 3. 2. 2-45 200°C2000 時間時効した未チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=88%)

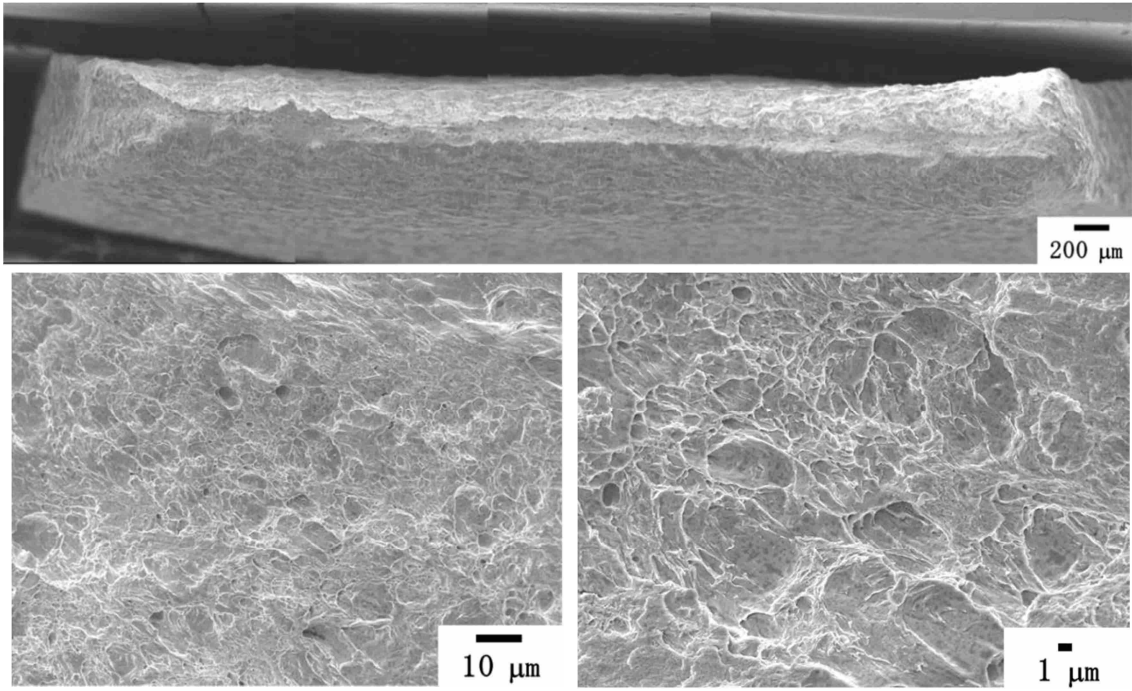


図 3. 2. 2-46 300°C2000 時間時効した未チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=90%)

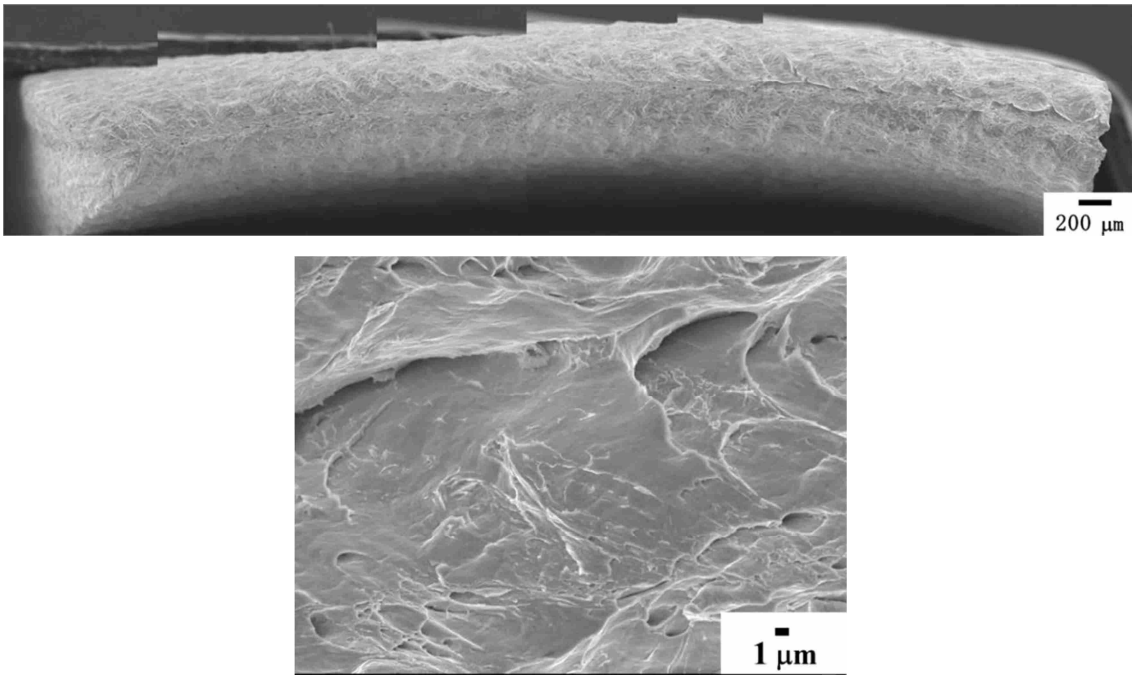


図 3. 2. 2-47 80°C2000 時間時効した 3 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=90%)

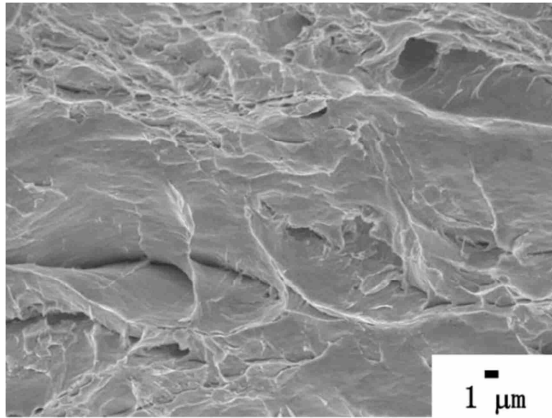
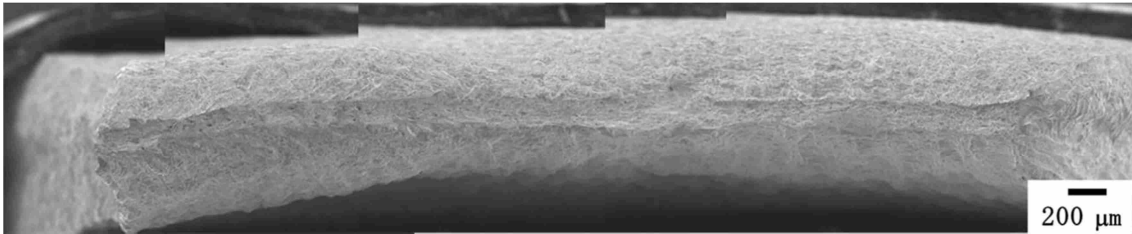


図 3. 2. 2-48 200°C2000 時間時効した 3 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=91%)

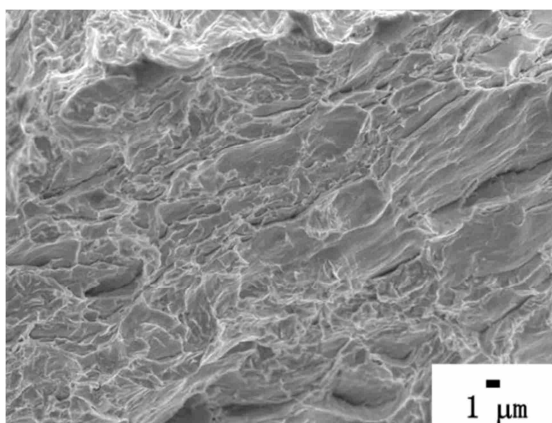
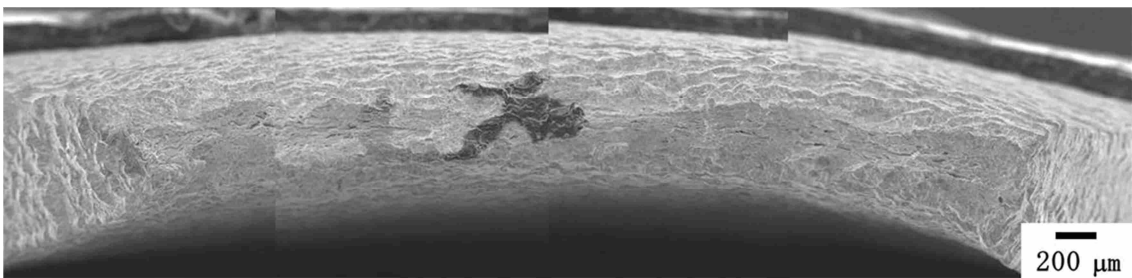


図 3. 2. 2-49 300°C2000 時間時効した 3 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=81%)

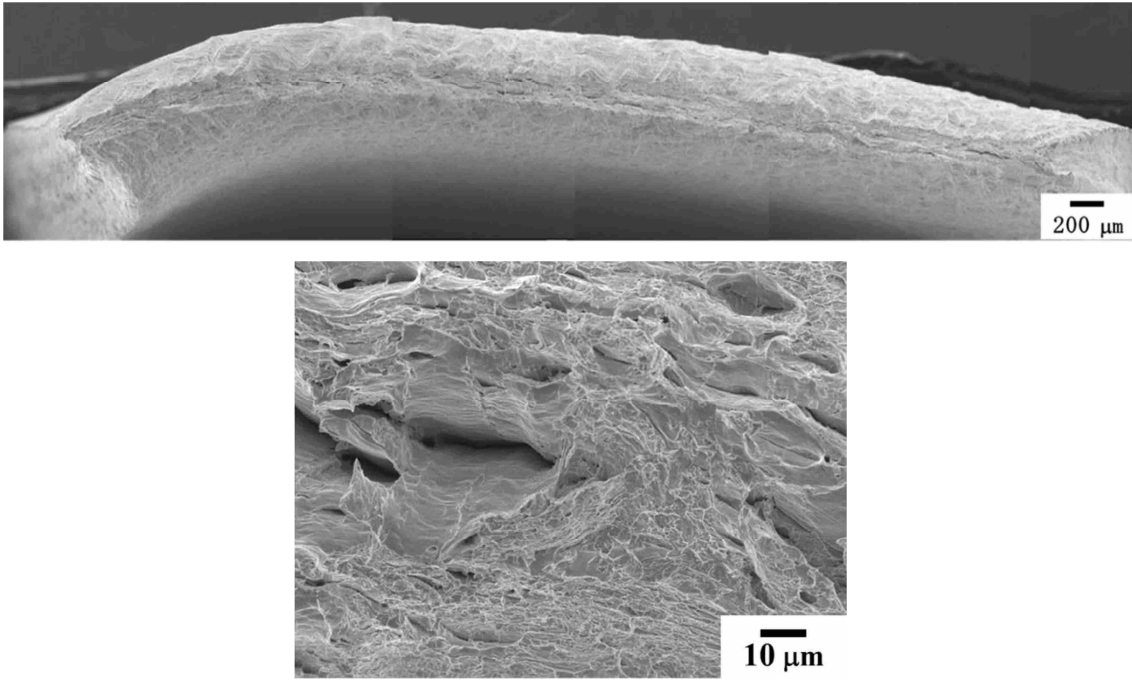


図 3. 2. 2-50 80°C2000 時間時効した 6 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=84%)

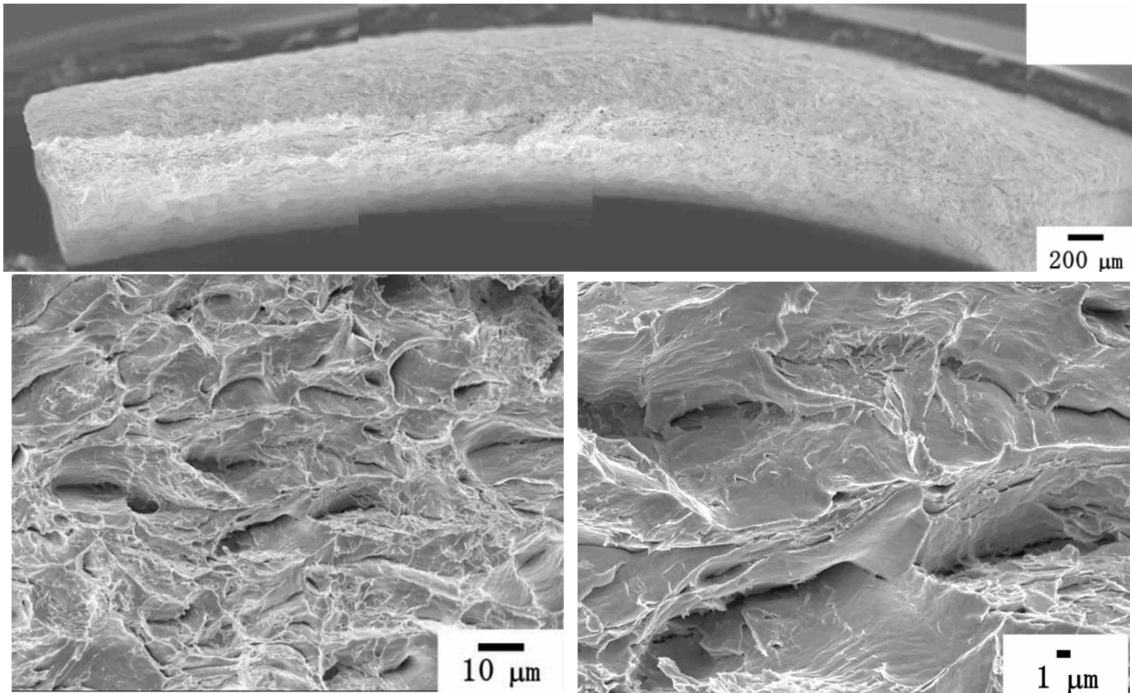


図 3. 2. 2-51 200°C2000 時間時効した 6 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=76%)

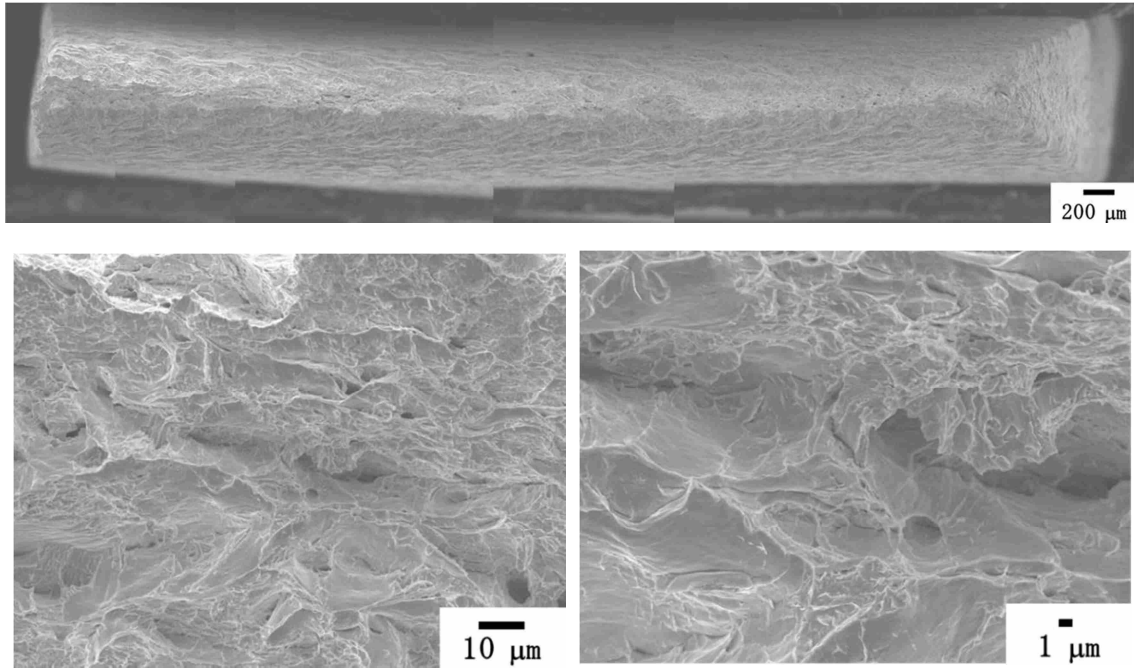


図 3. 2. 2-52 300°C2000 時間時効した 6 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=74%)

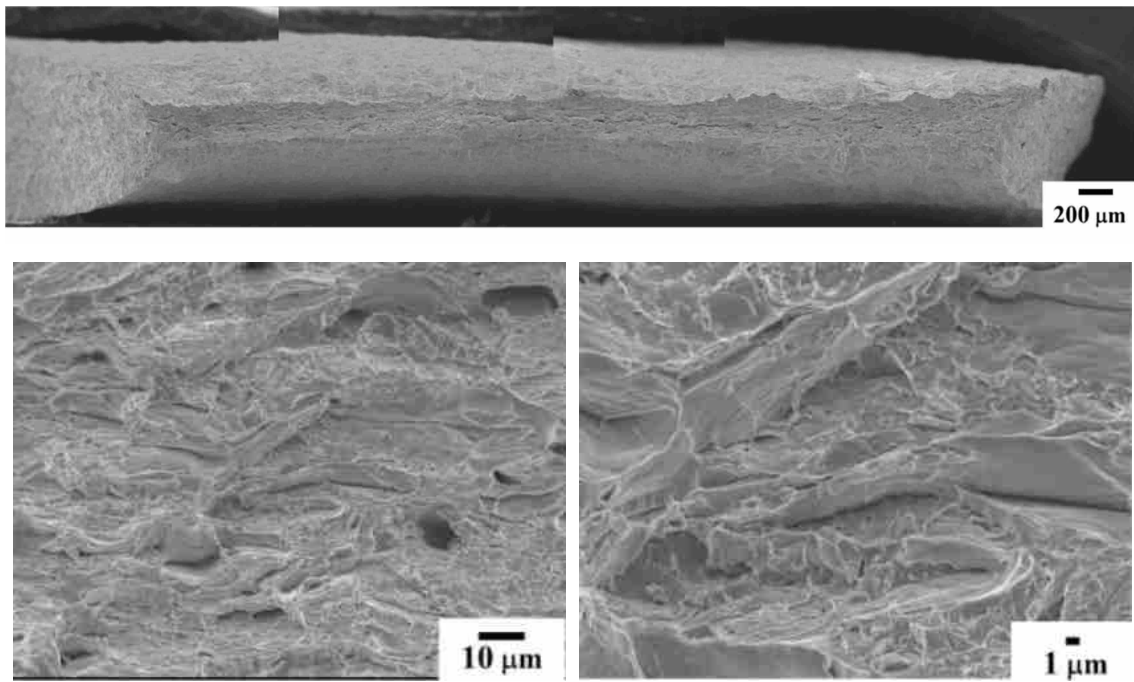


図 3. 2. 2-53 80°C4000 時間時効した未チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=84%)

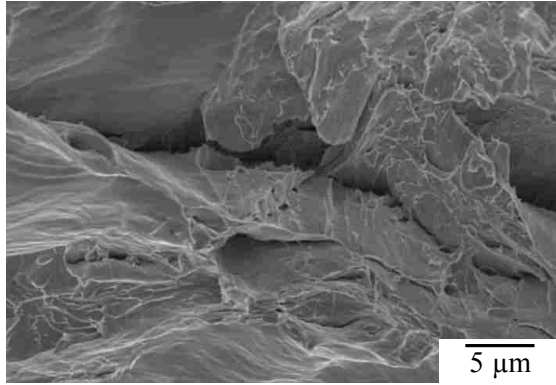
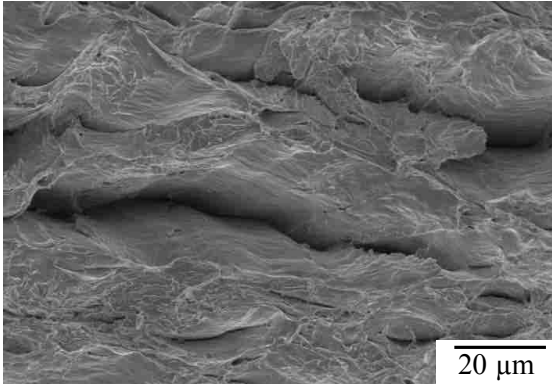
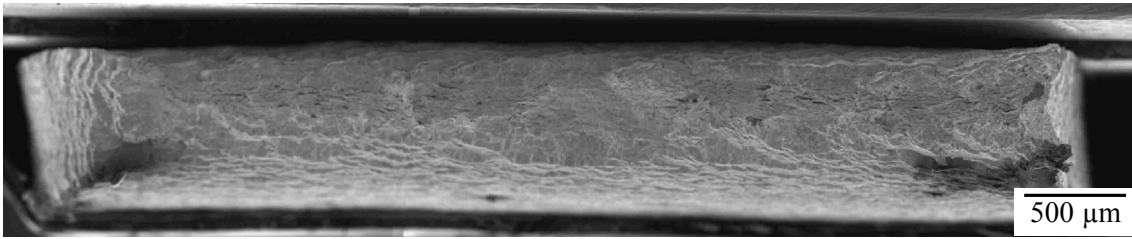


図 3. 2. 2-54 200°C4000 時間時効した未チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=70%)

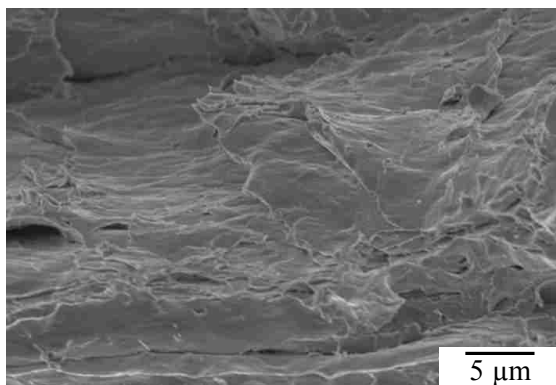
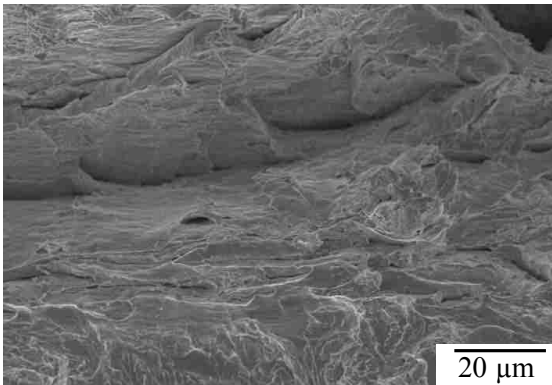
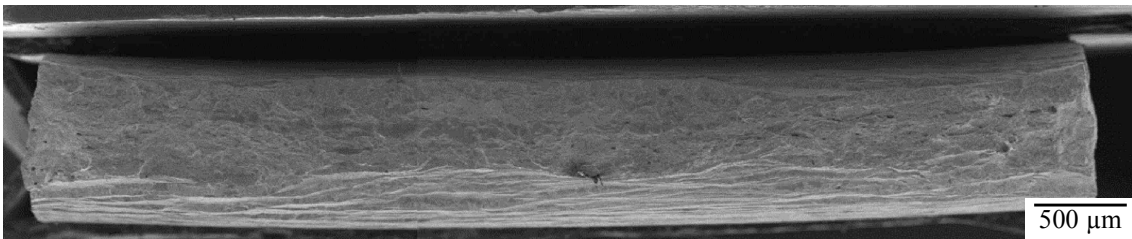


図 3. 2. 2-55 300°C4000 時間時効した未チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=55%)

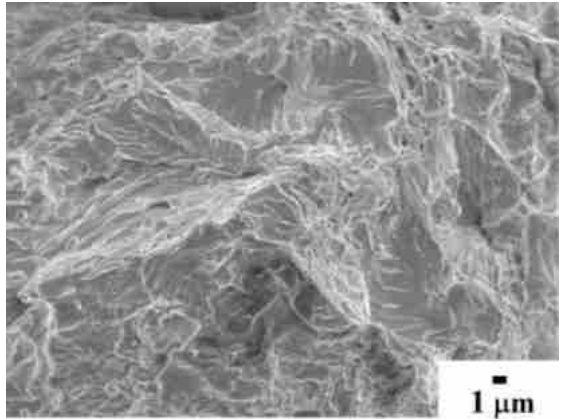
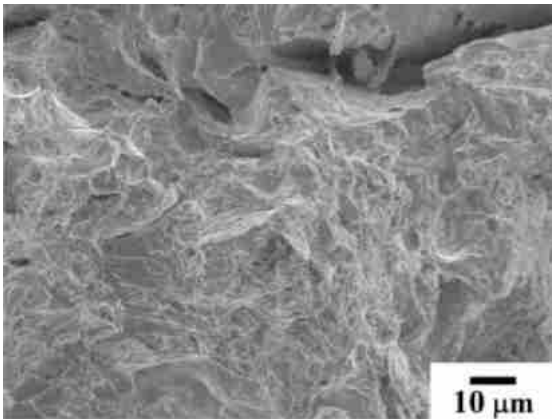
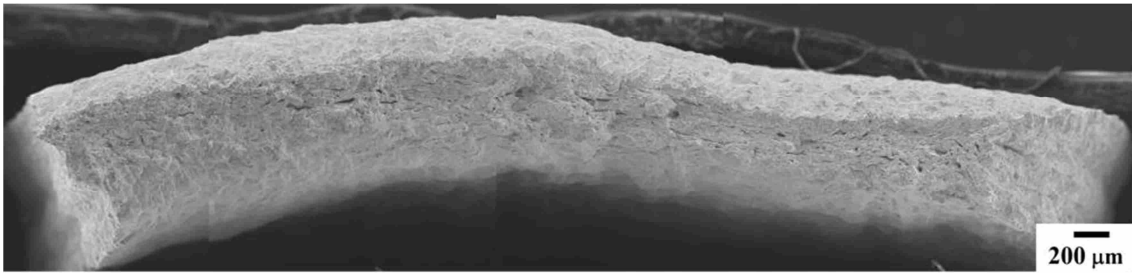


図 3. 2. 2-56 80°C4000 時間時効した 3 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=77%)

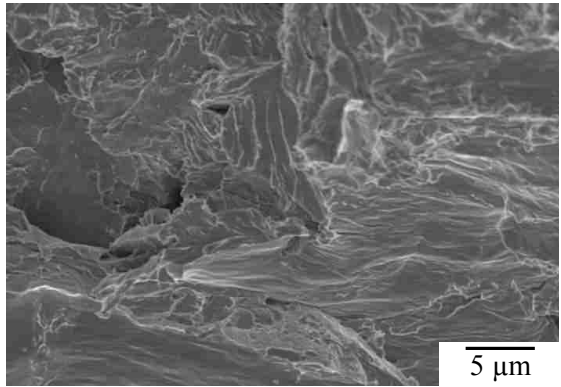
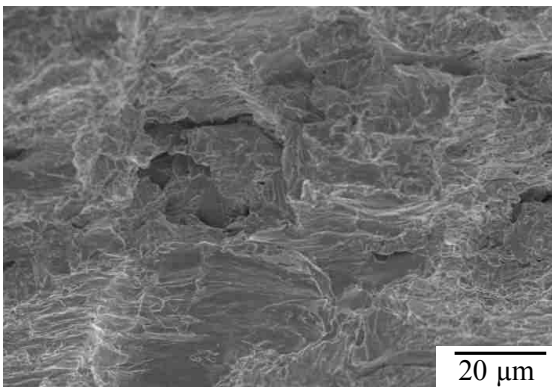
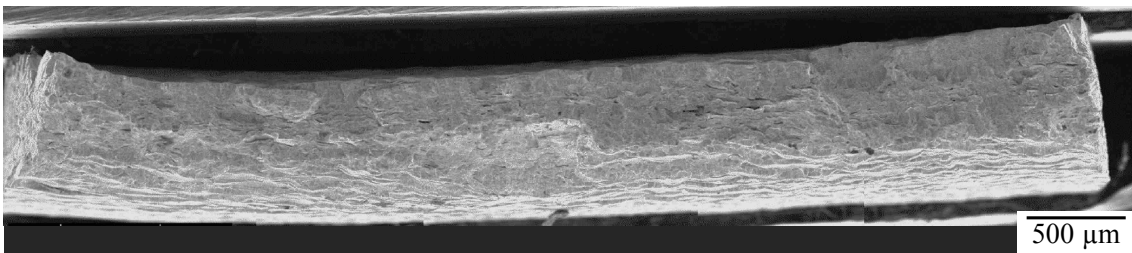


図 3. 2. 2-57 200°C4000 時間時効した 3 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=57%)

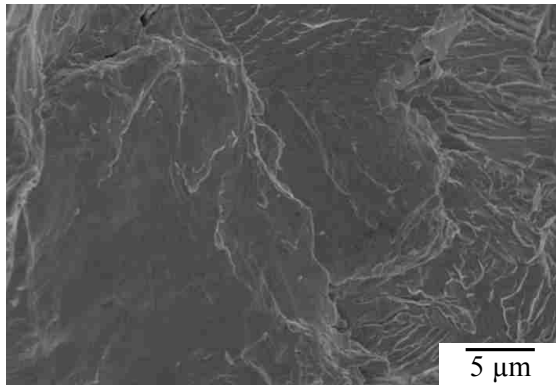
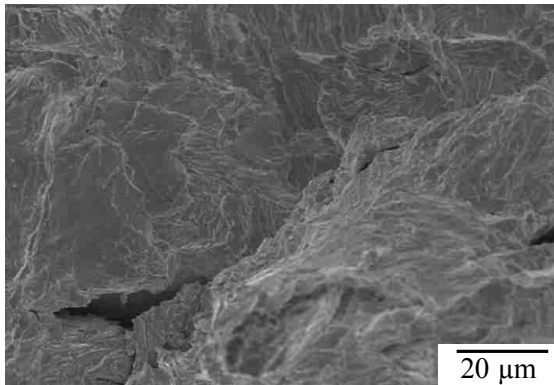
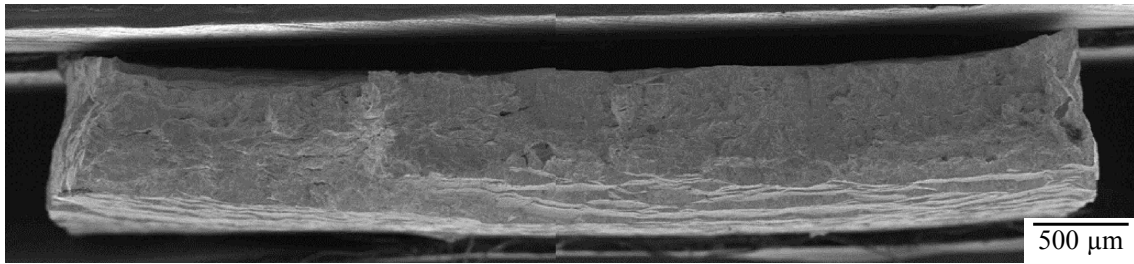


図 3. 2. 2-58 300°C4000 時間時効した 3 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=48%)

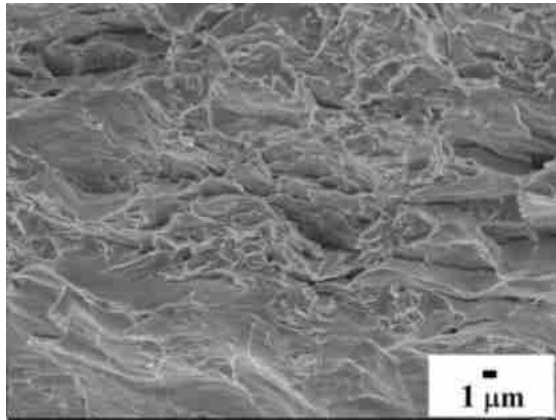
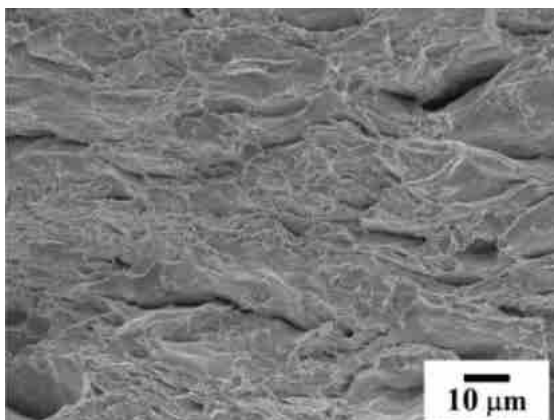
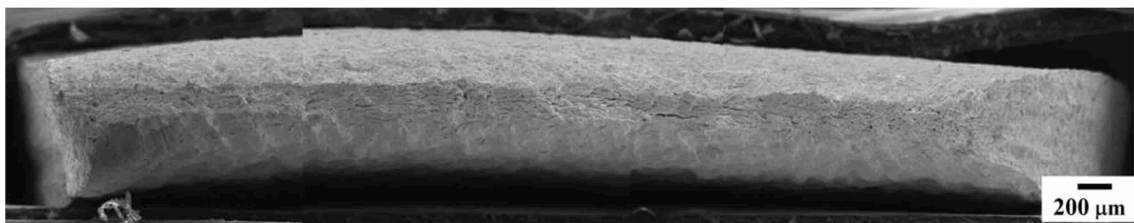


図 3. 2. 2-59 80°C4000 時間時効した 6 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=84%)

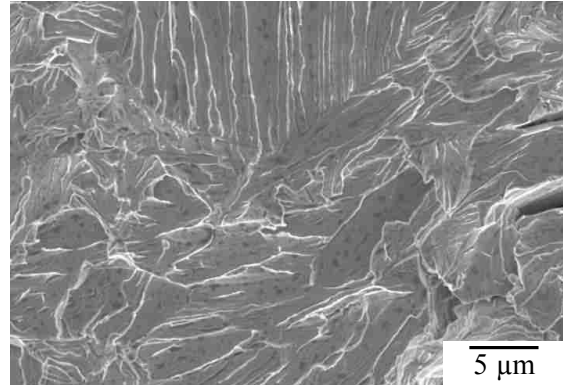
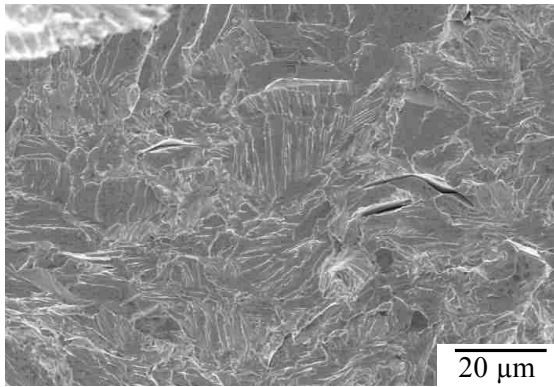
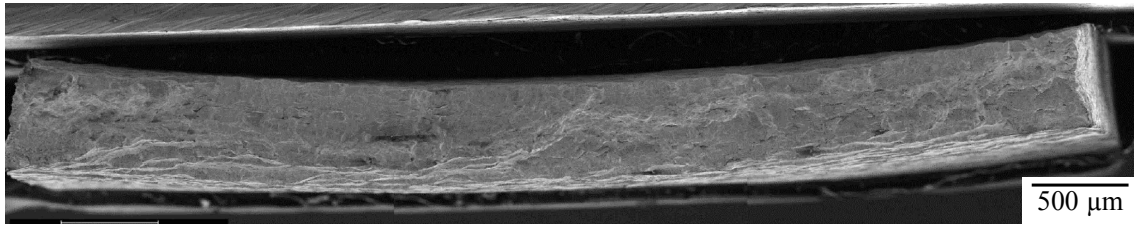


図 3. 2. 2-60 200°C4000 時間時効した 6 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=62%)

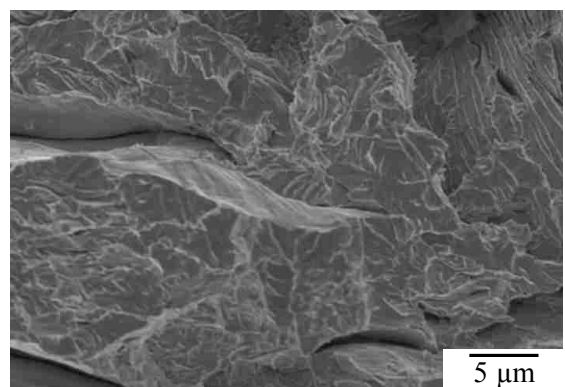
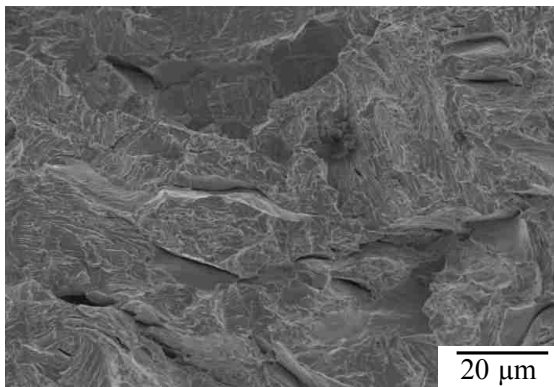
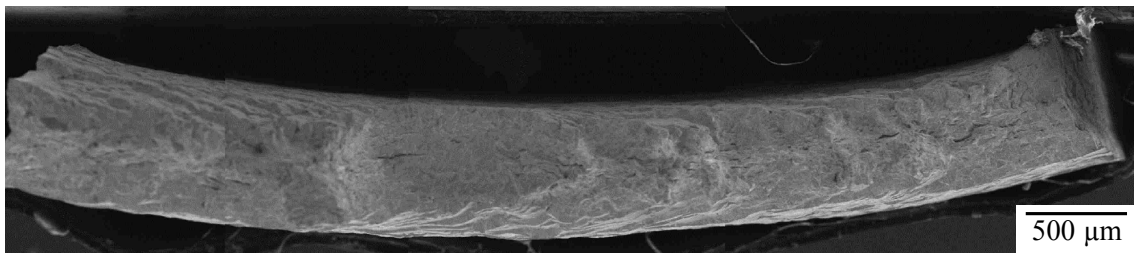


図 3. 2. 2-61 300°C4000 時間時効した 6 時間チャージ材の引張試験後破断面 SEM 写真 (RA=54%)

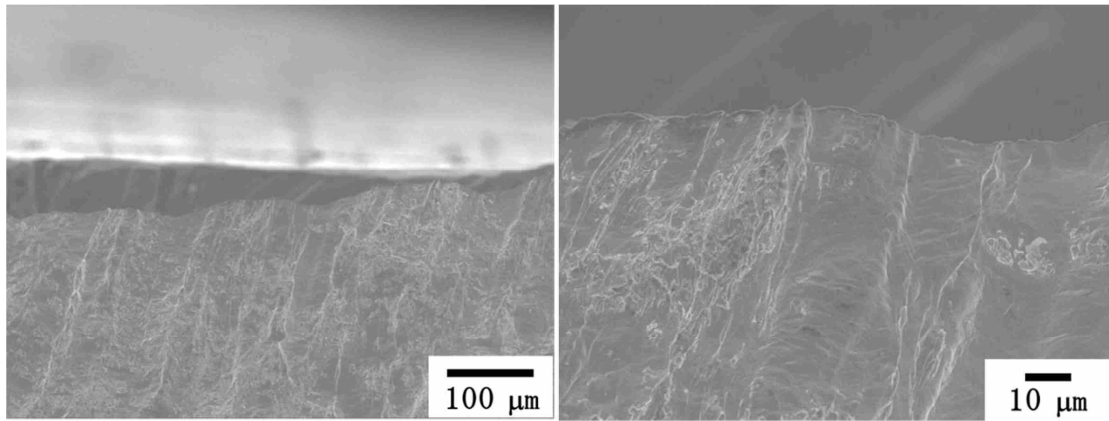
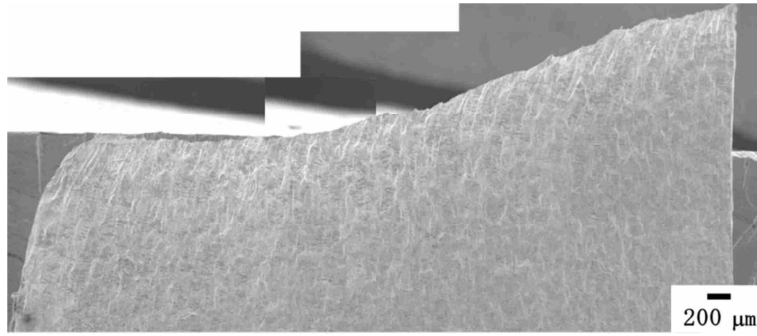


図 3. 2. 2-62 未時効の未チャージ材の引張試験後側面 SEM 写真

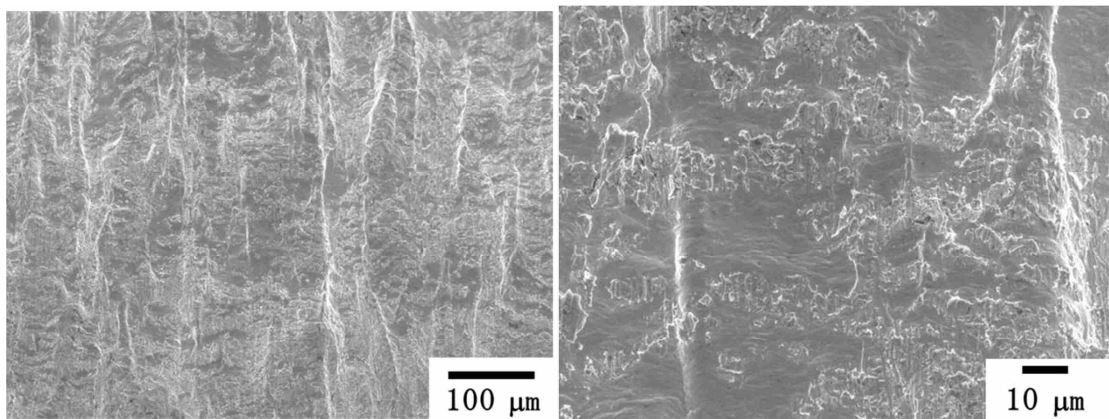
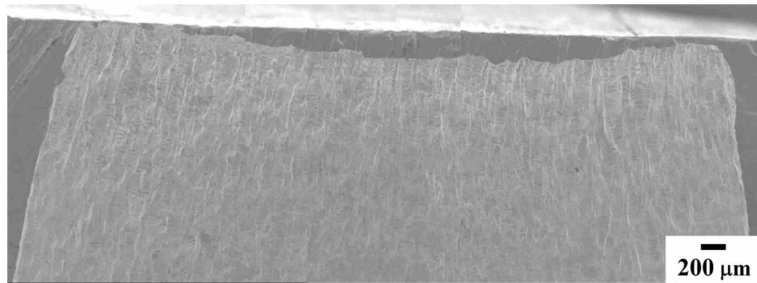


図 3. 2. 2-63 未時効の 3 時間チャージ材の引張試験後側面 SEM 写真

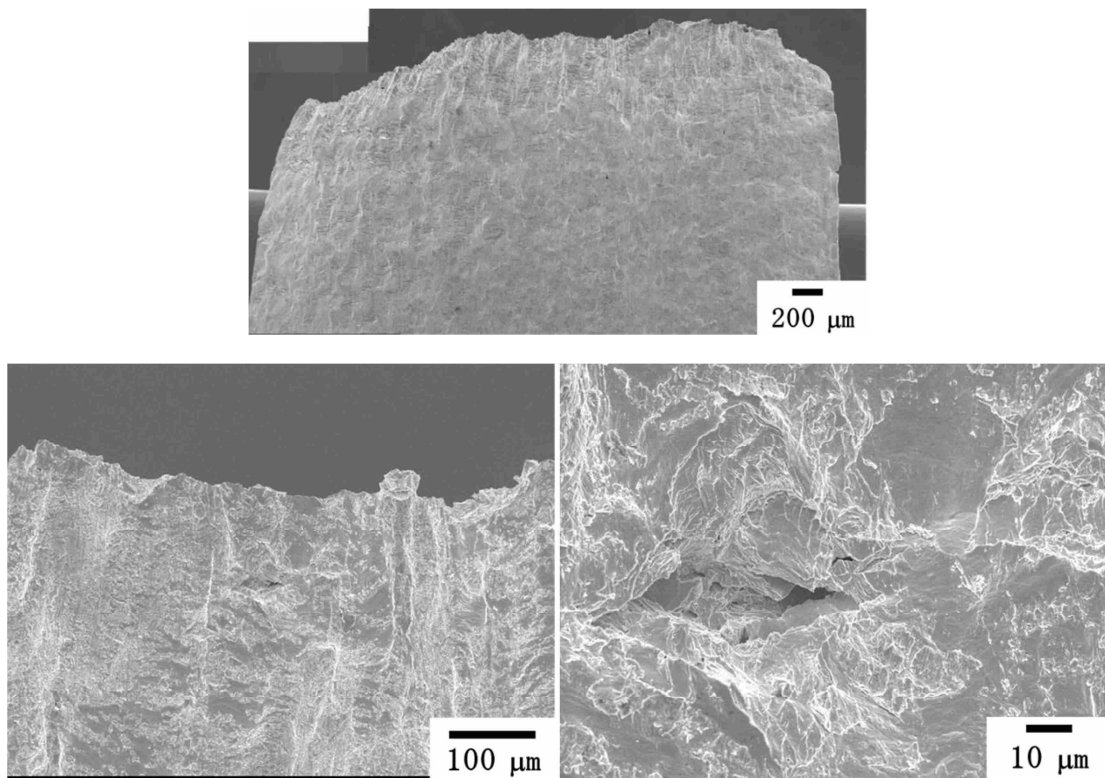


図 3. 2. 2-64 未時効の 6 時間チャージ材の引張試験後側面 SEM 写真

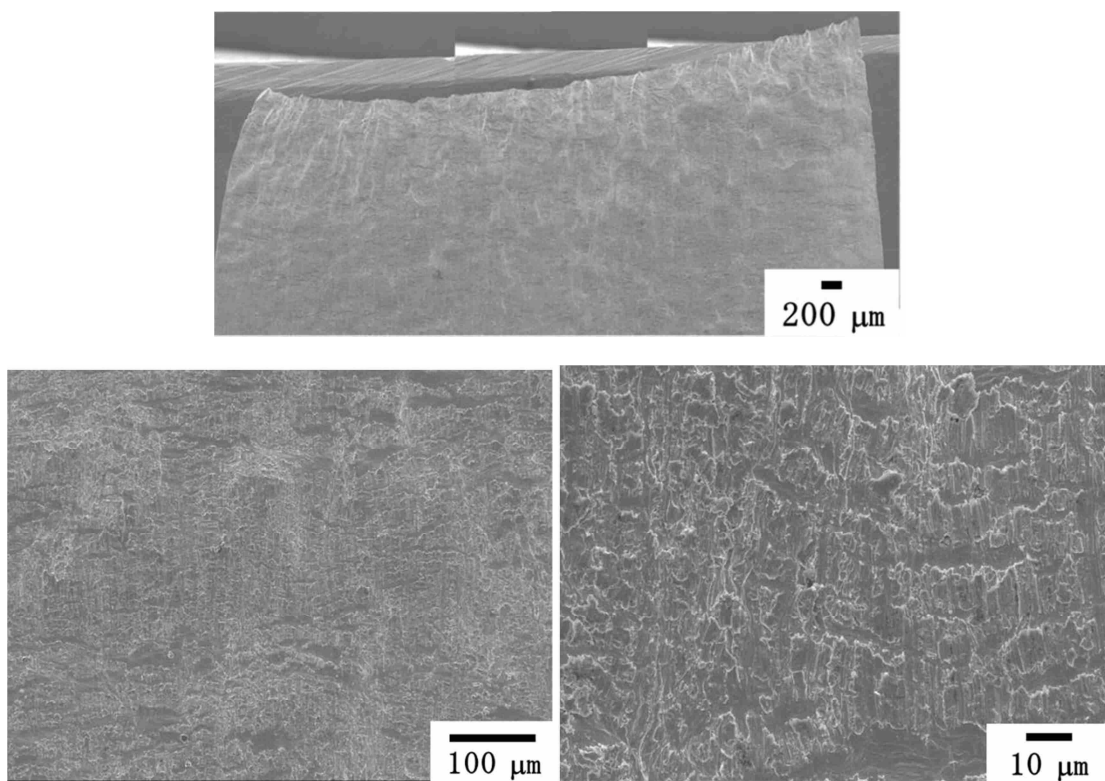


図 3. 2. 2-65 80°C24 時間時効した未チャージ材の引張試験後側面 SEM 写真

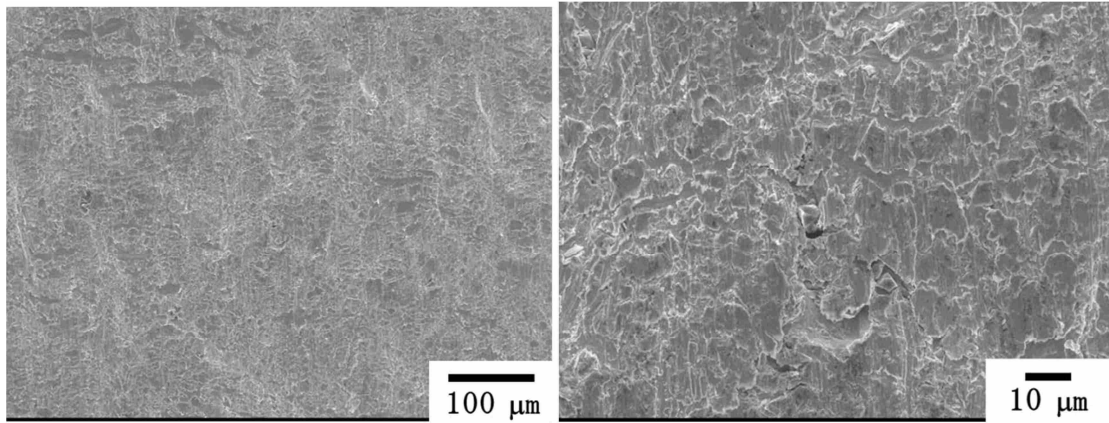
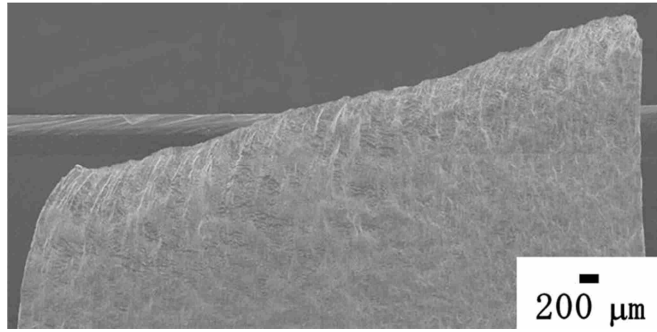


図 3. 2. 2-66 200°C24 時間時効した未チャージ材の引張試験後側面 SEM 写真

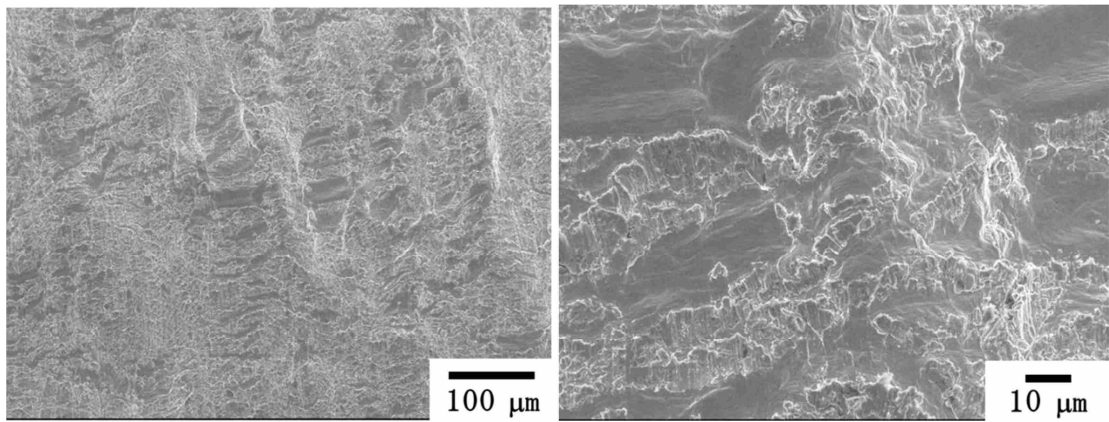
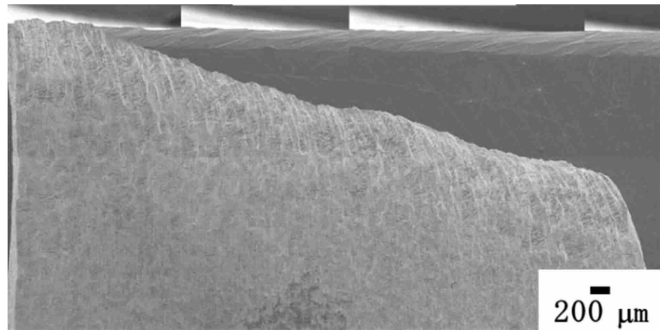


図 3. 2. 2-67 300°C24 時間時効した未チャージ材の引張試験後破側面 SEM 写真

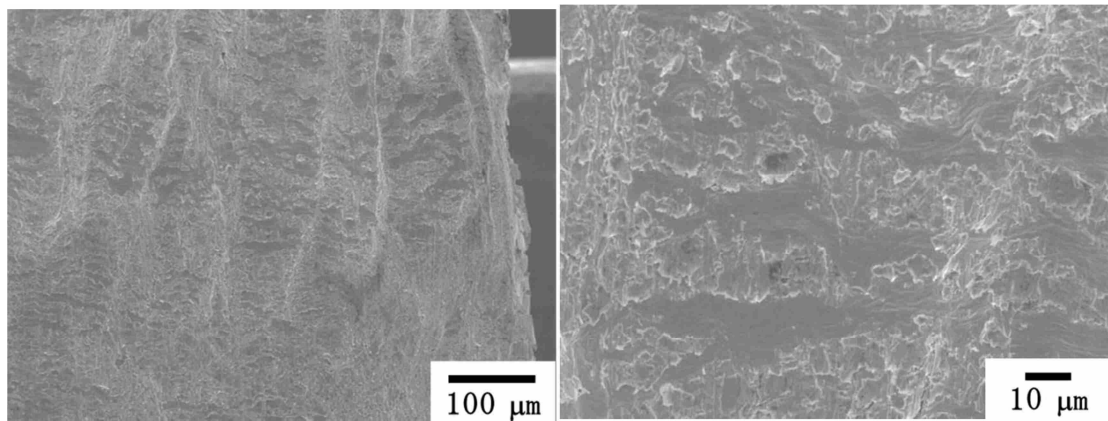
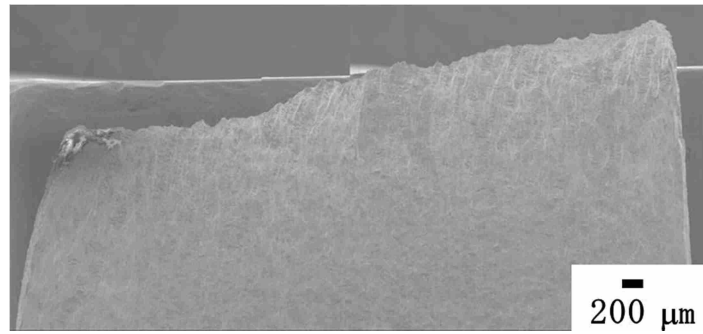


図 3. 2. 2-68 80°C24 時間時効した 3 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

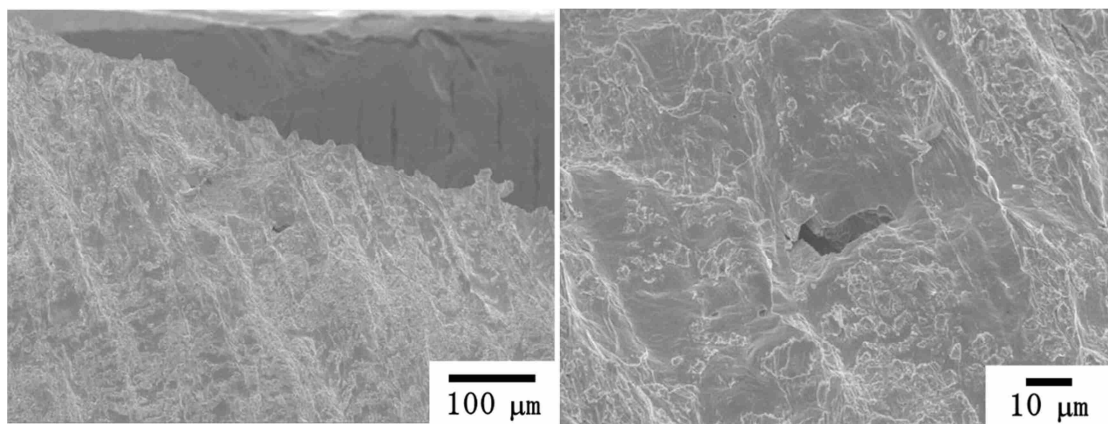
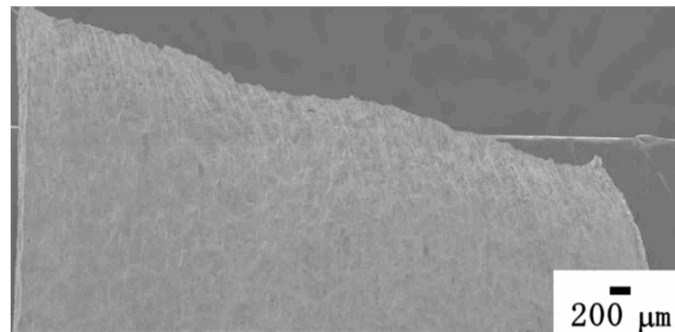


図 3. 2. 2-69 200°C24 時間時効した 3 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

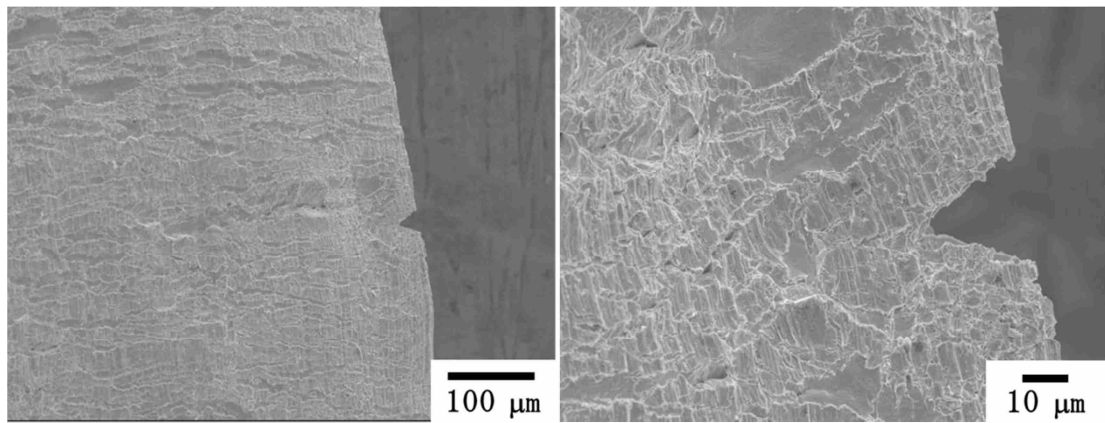
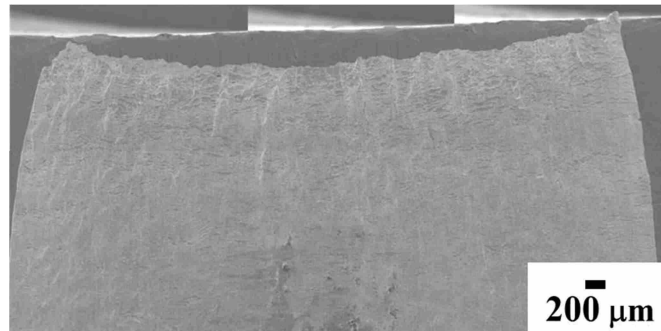


図 3. 2. 2-70 300°C24 時間時効した 3 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

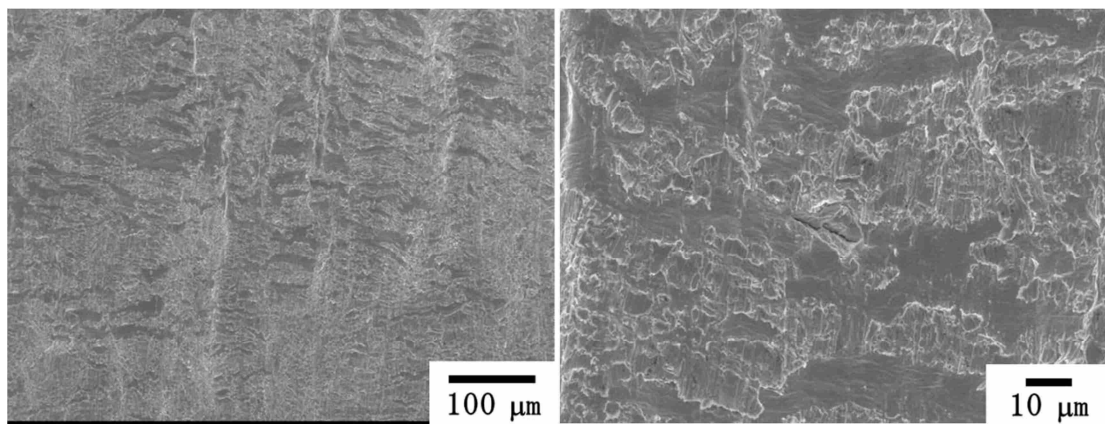
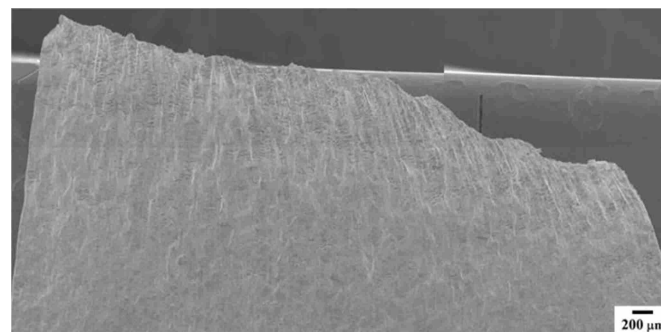


図 3. 2. 2-71 80°C24 時間時効した 6 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

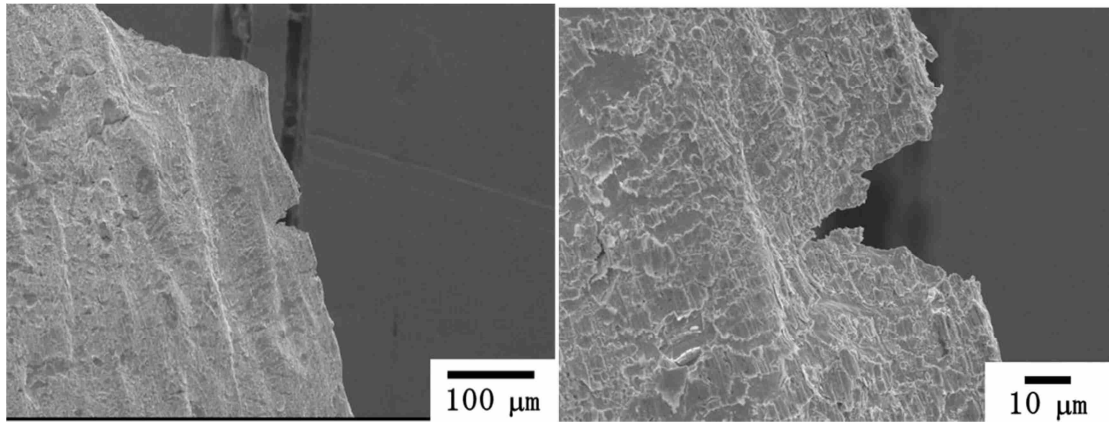
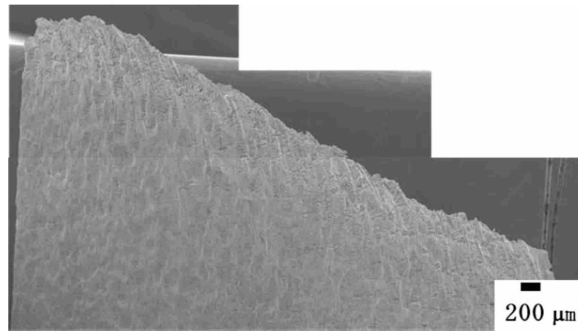


図 3. 2. 2-72 200°C24 時間時効した 6 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

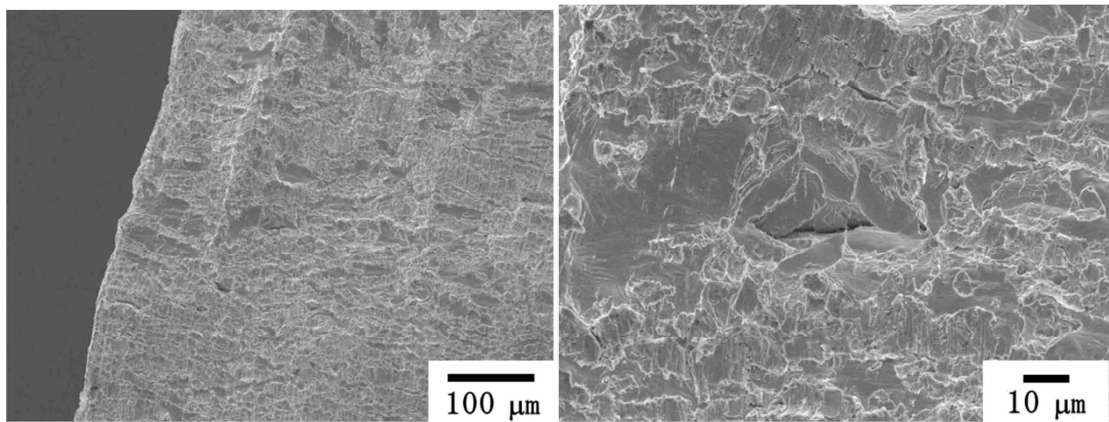
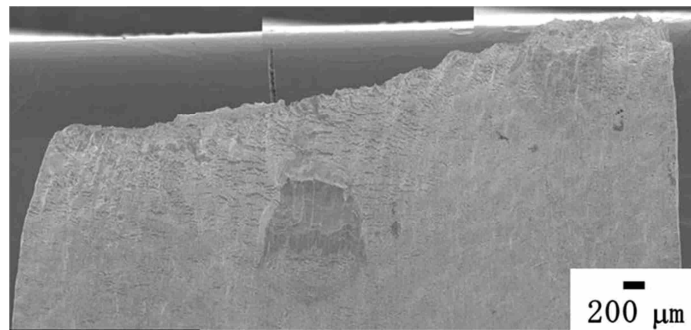


図 3. 2. 2-73 300°C24 時間時効した 6 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

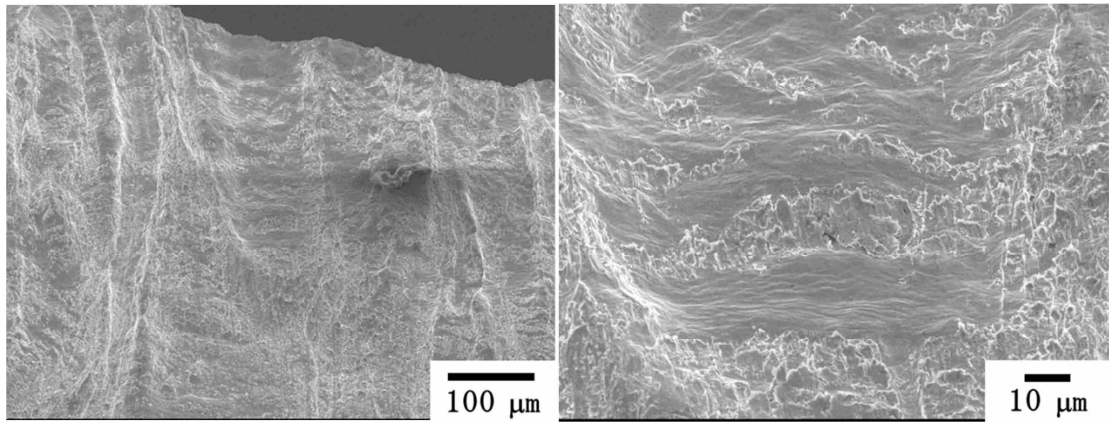
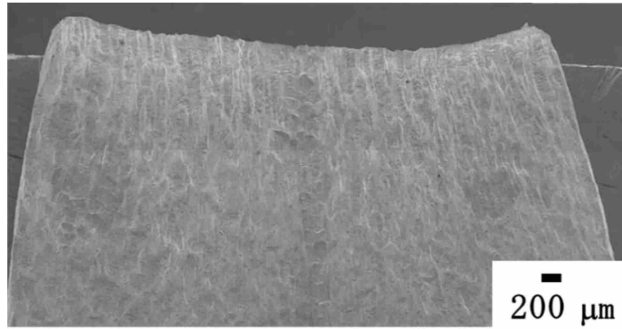


図 3. 2. 2-74 80°C168 時間時効した未チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

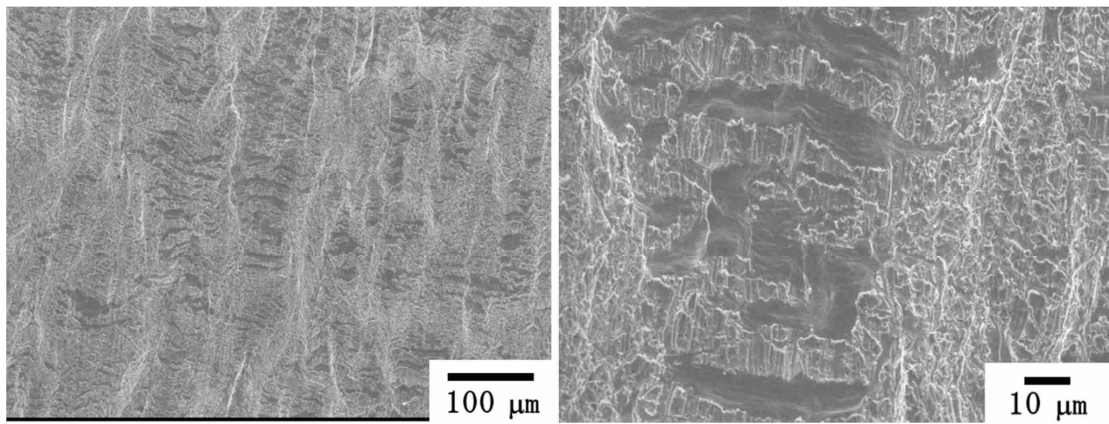
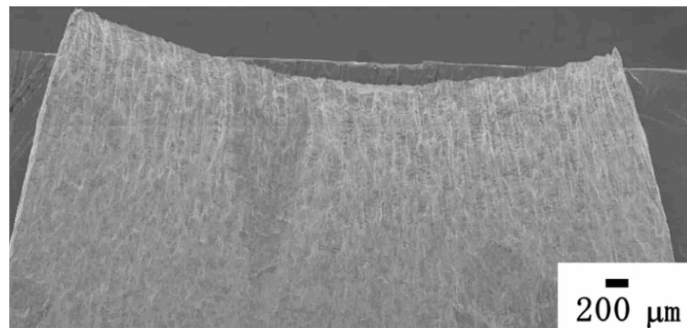


図 3. 2. 2-75 200°C168 時間時効した未チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

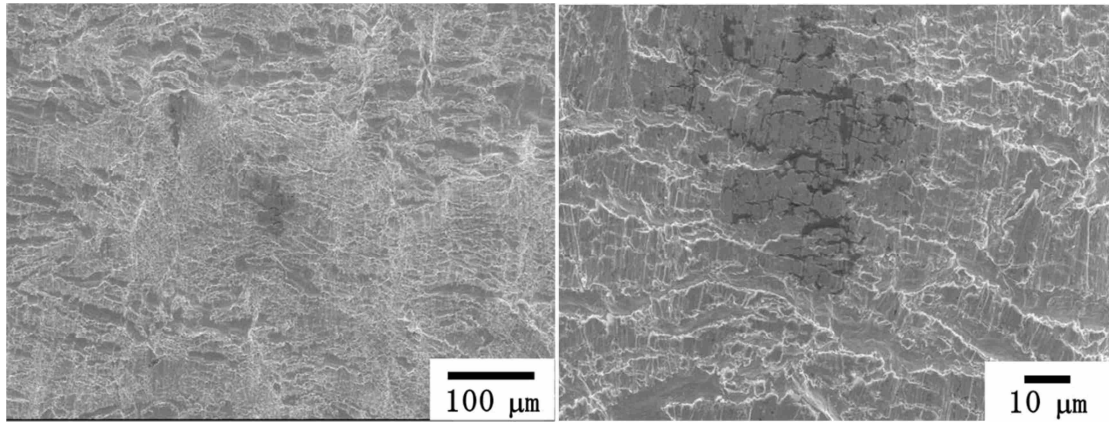
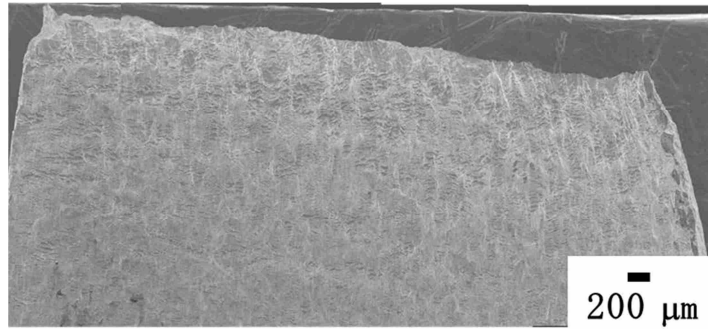


図 3. 2. 2-76 300°C168 時間時効した未チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

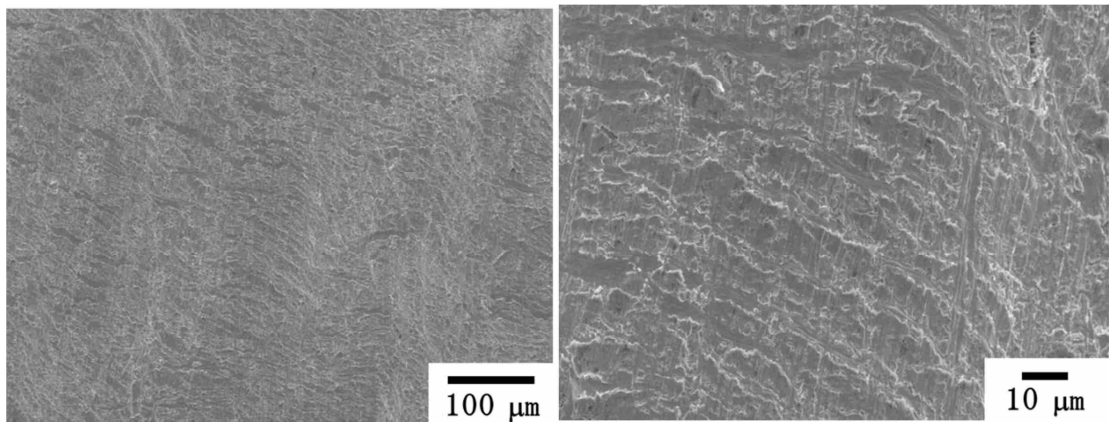
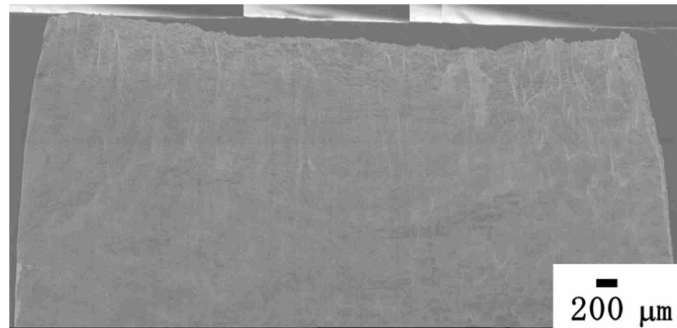


図 3. 2. 2-77 80°C168 時間時効した 3 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

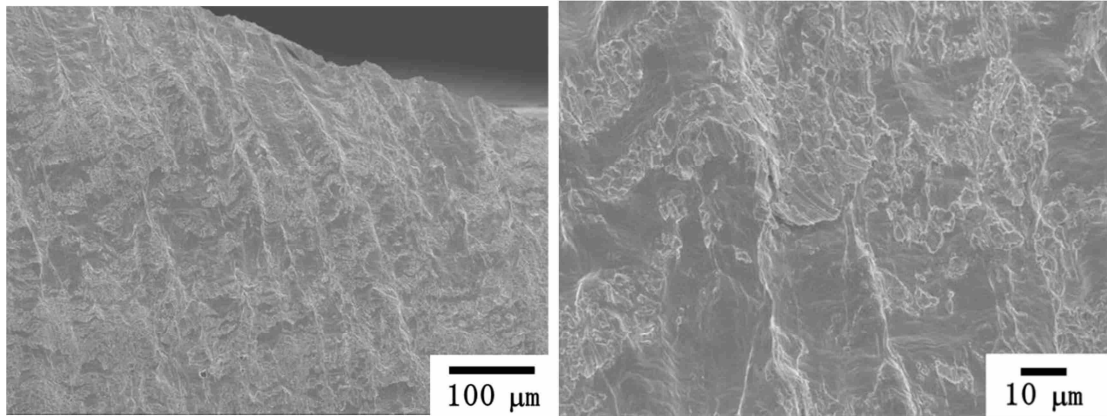
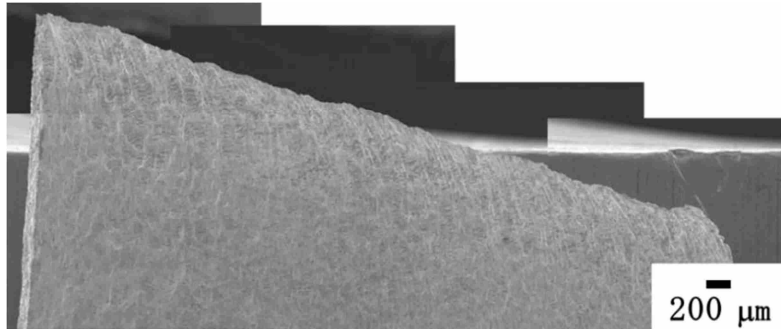


図 3. 2. 2-78 200°C168 時間時効した 3 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

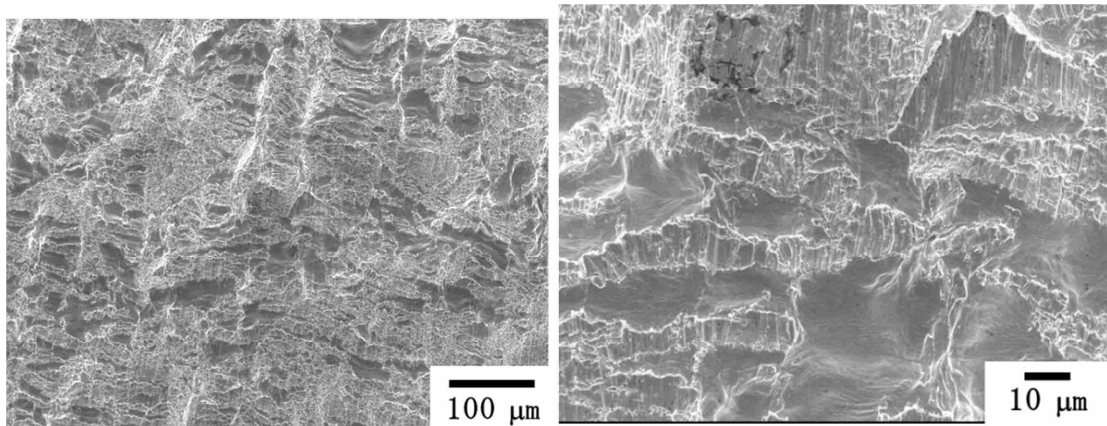
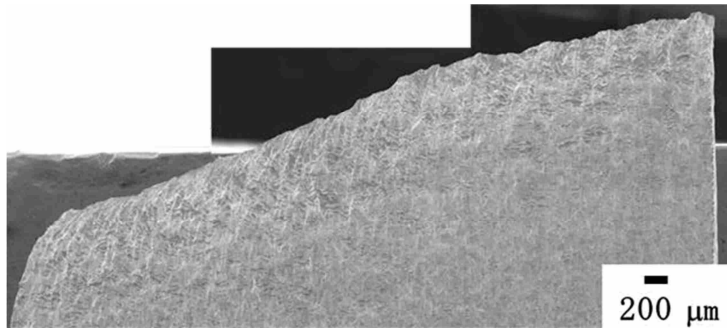


図 3. 2. 2-79 300°C168 時間時効した 3 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

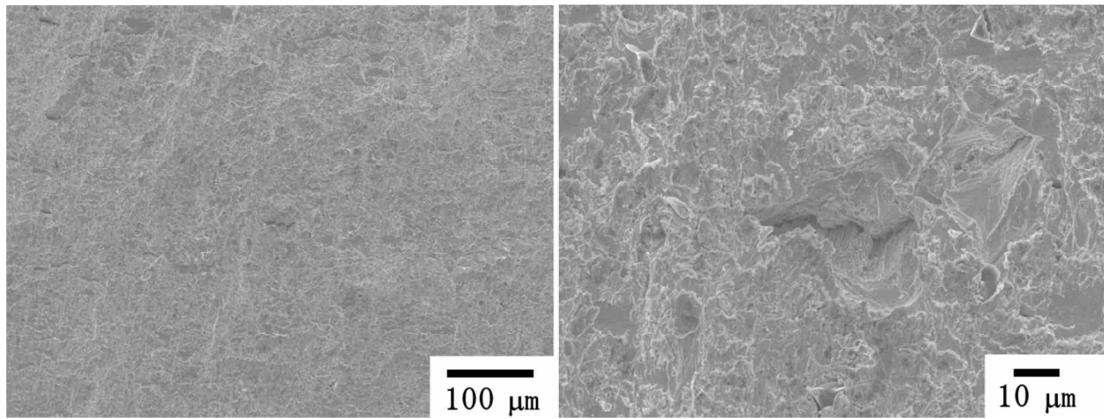
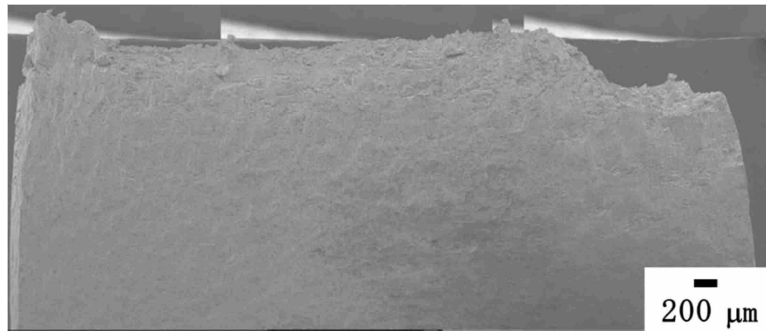


図 3. 2. 2-80 80°C168 時間時効した 6 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

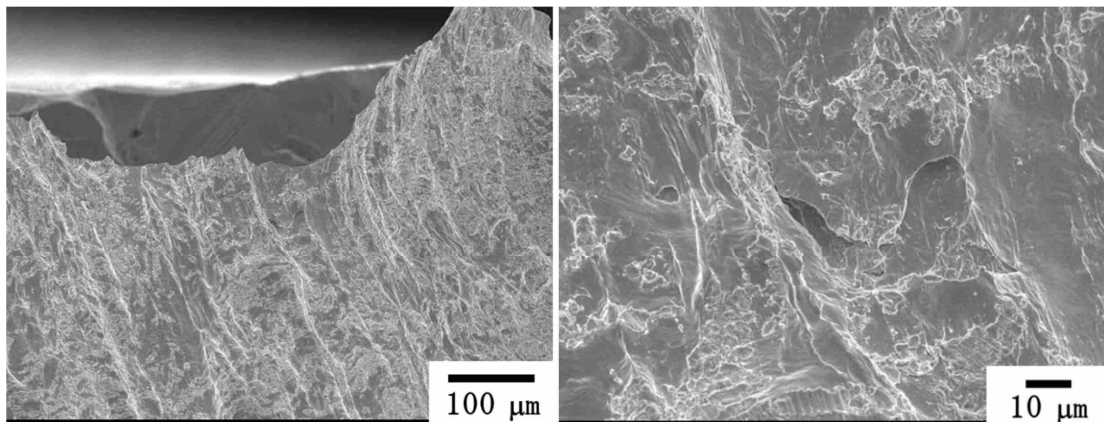
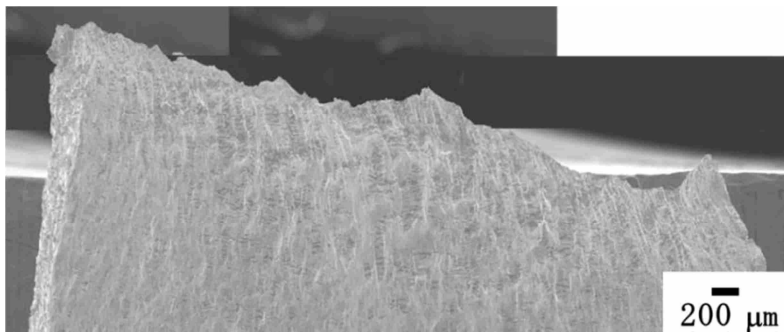


図 3. 2. 2-81 200°C168 時間時効した 6 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

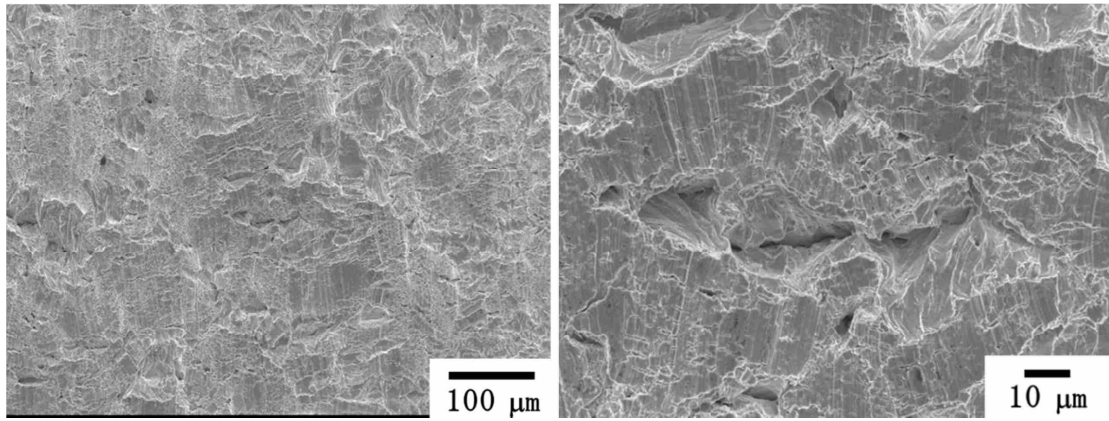
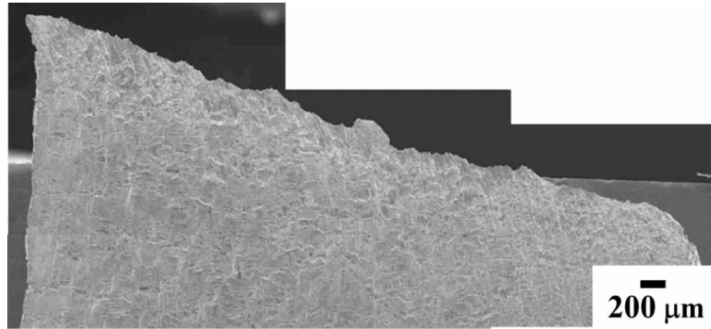


図 3. 2. 2-82 300°C168 時間時効した 6 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

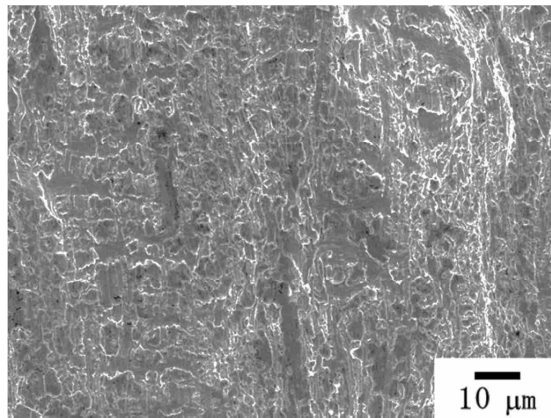
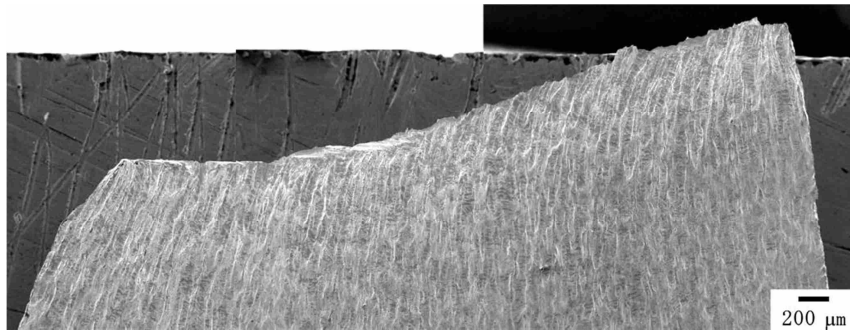


図 3. 2. 2-83 80°C1000 時間時効した未チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

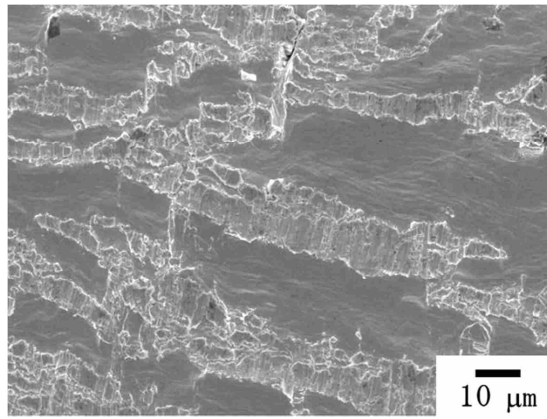
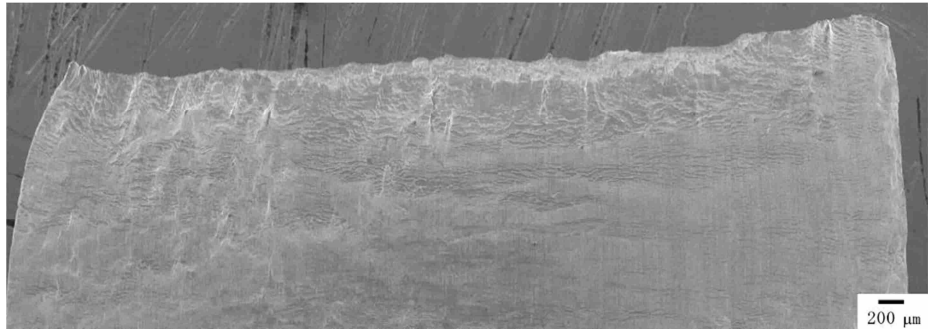


図 3. 2. 2-84 200°C1000 時間時効した未チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

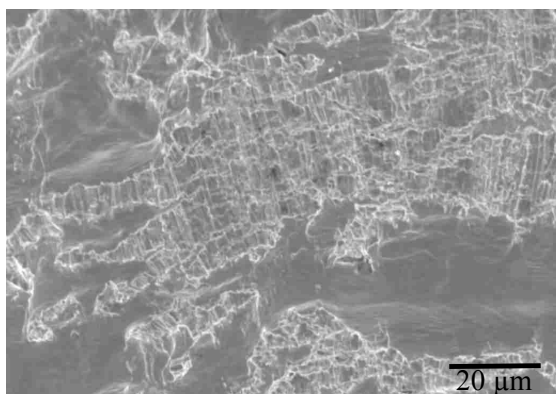
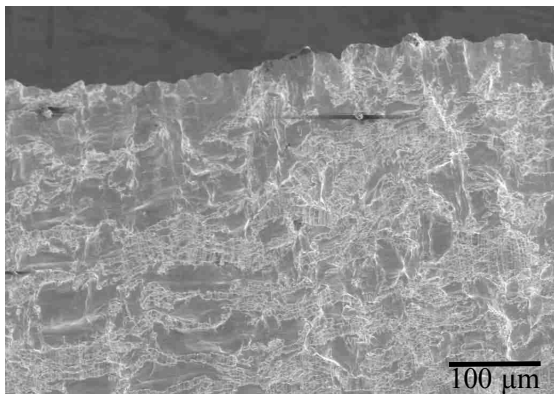
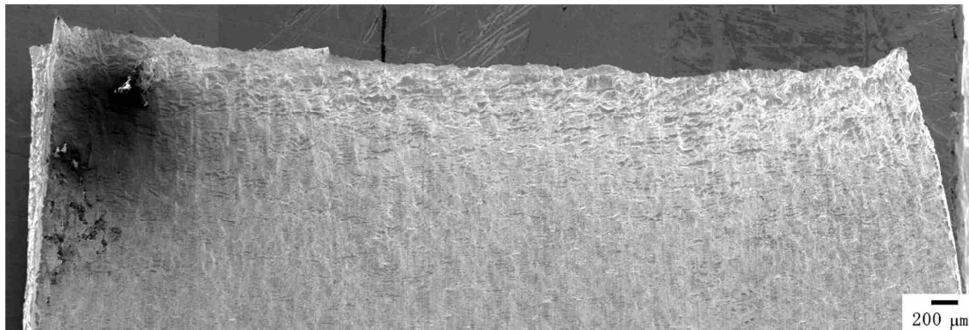


図 3. 2. 2-85 300°C1000 時間時効した未チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

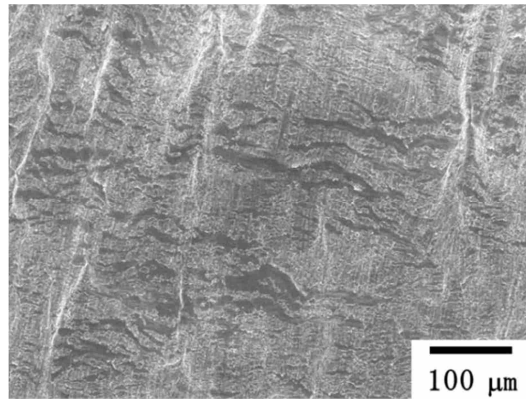
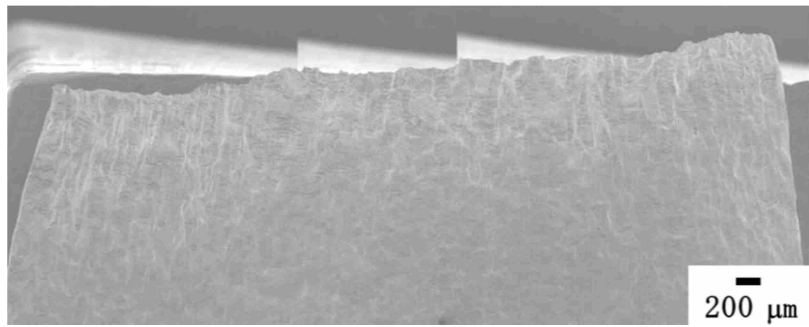


図 3.2.2-86 80°C1000 時間時効した 3 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

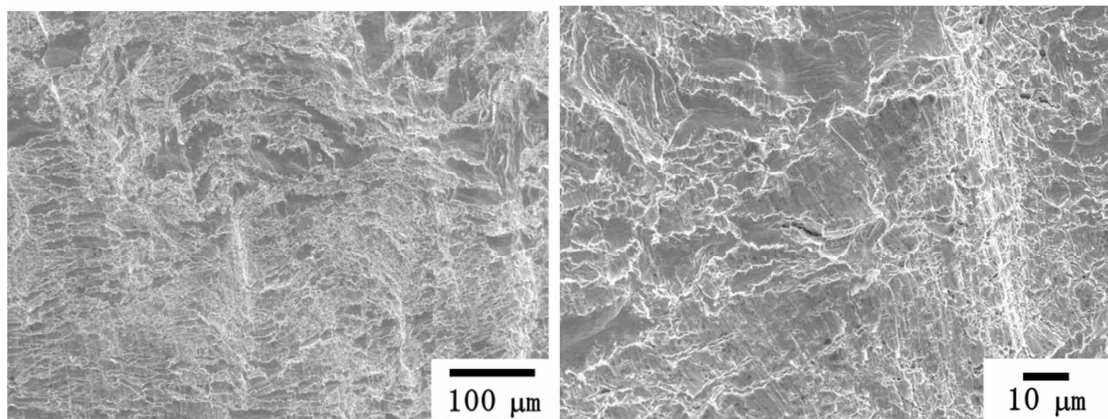
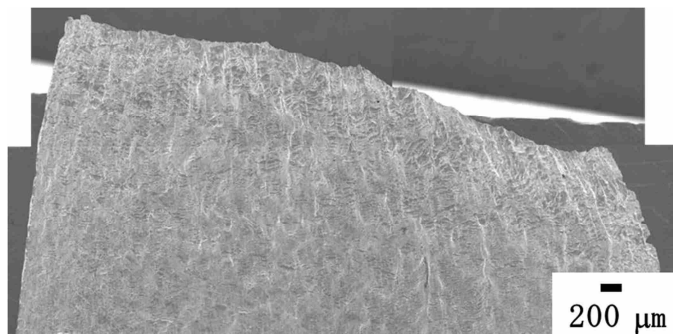


図 3.2.2-87 200°C1000 時間時効した 3 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

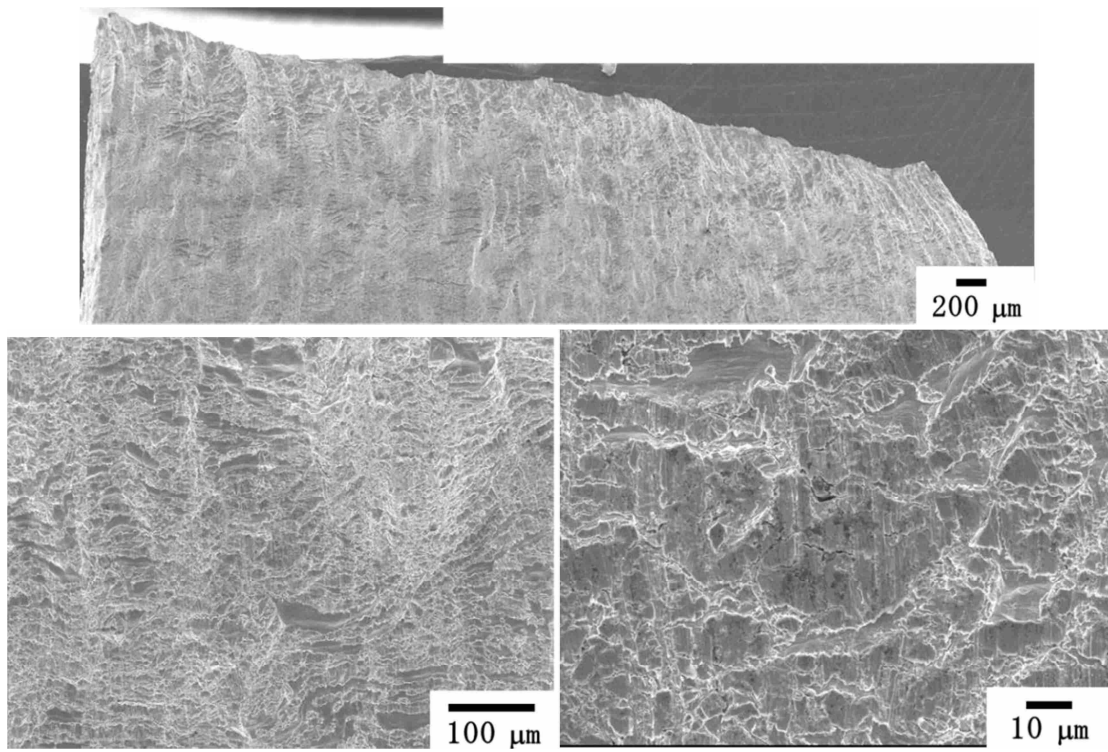


図 3. 2. 2-88 300°C1000 時間時効した 3 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

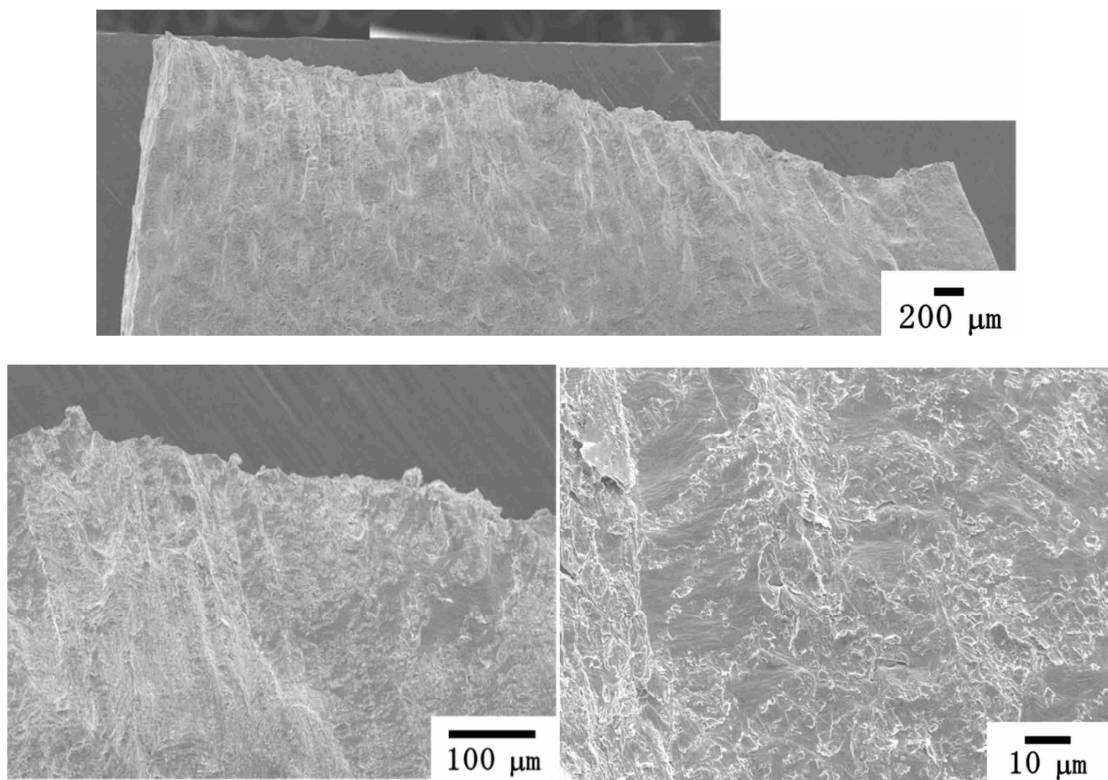


図 3. 2. 2-89 80°C1000 時間時効した 6 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

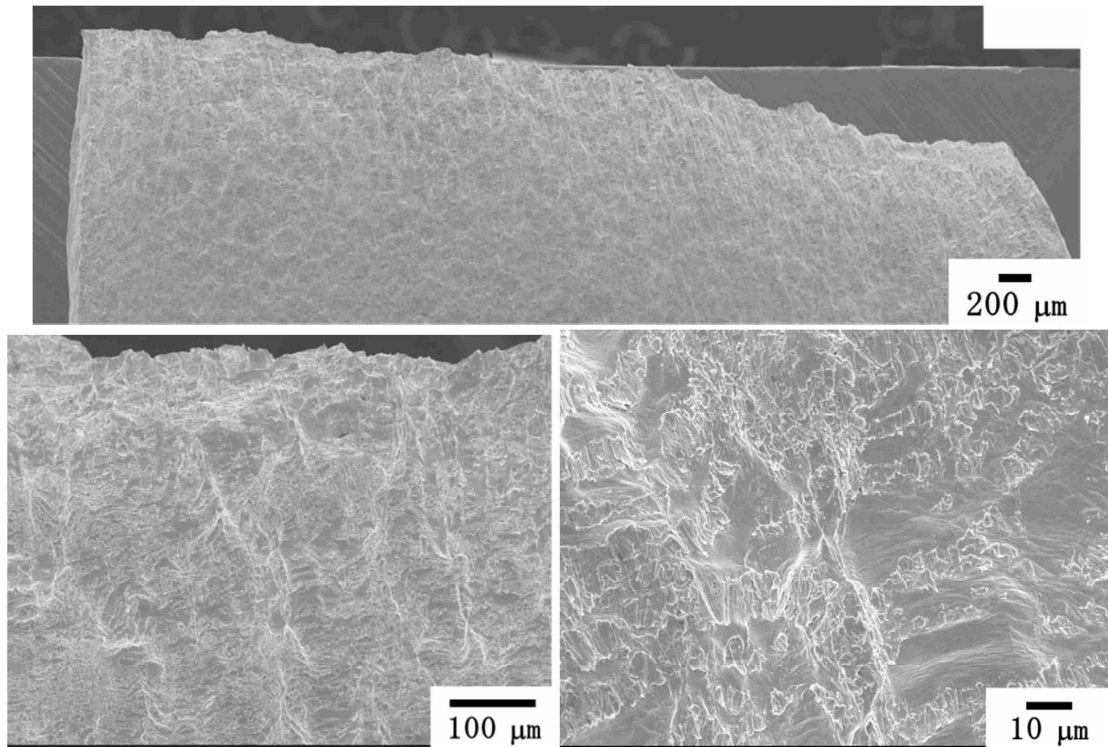


図 3. 2. 2-90 200°C1000 時間時効した 6 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

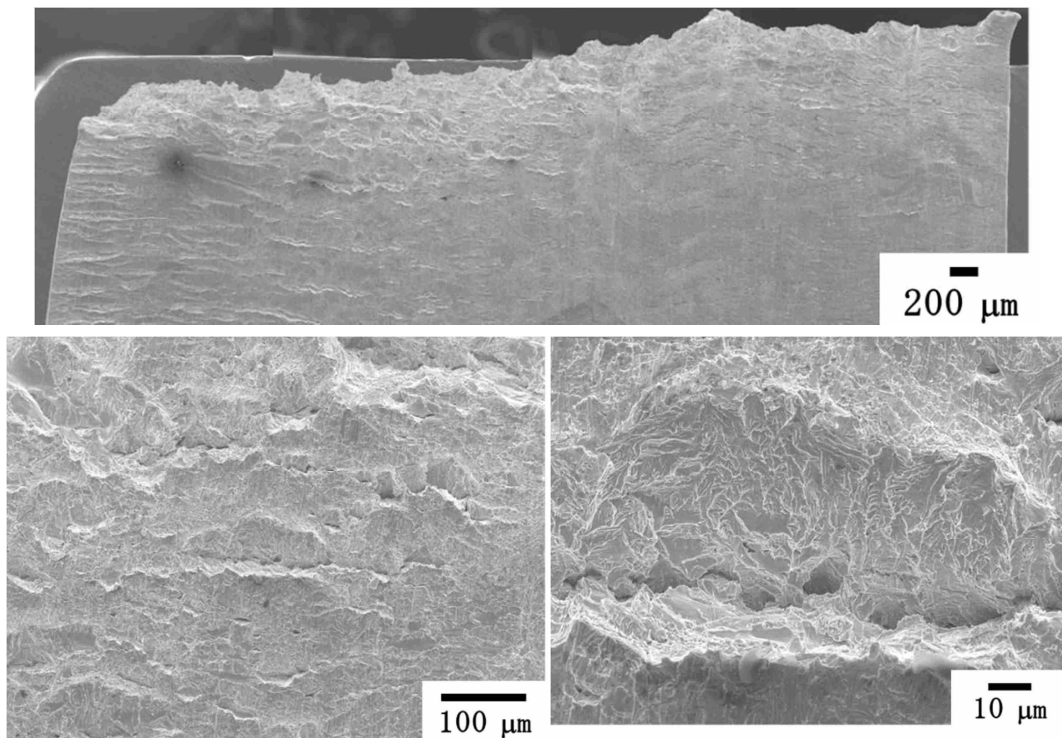


図 3. 2. 2-91 300°C1000 時間時効した 6 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

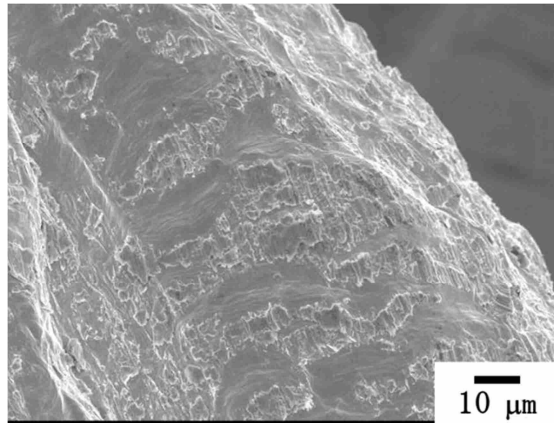
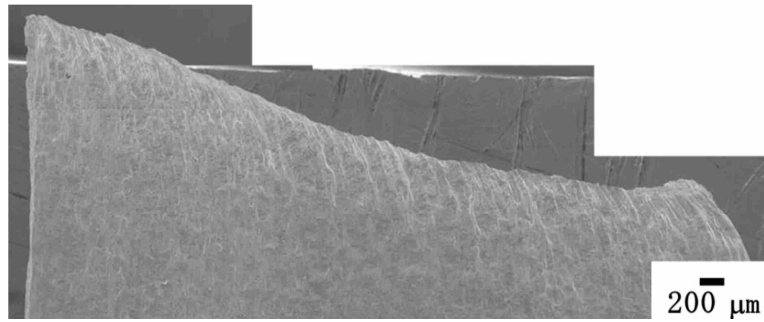


図 3. 2. 2-92 80°C2000 時間時効した未チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

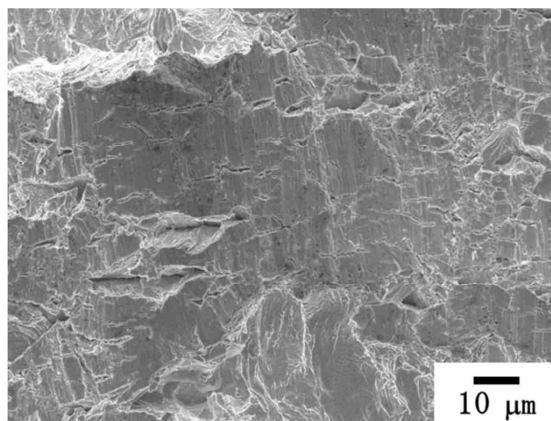
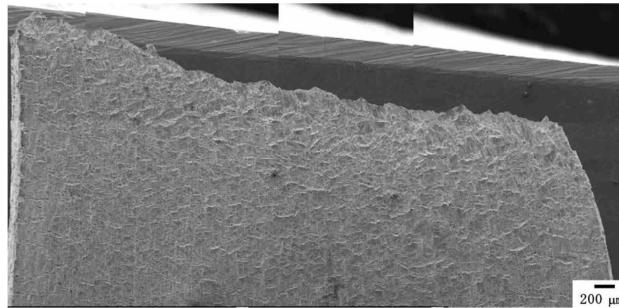


図 3. 2. 2-93 200°C2000 時間時効した未チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

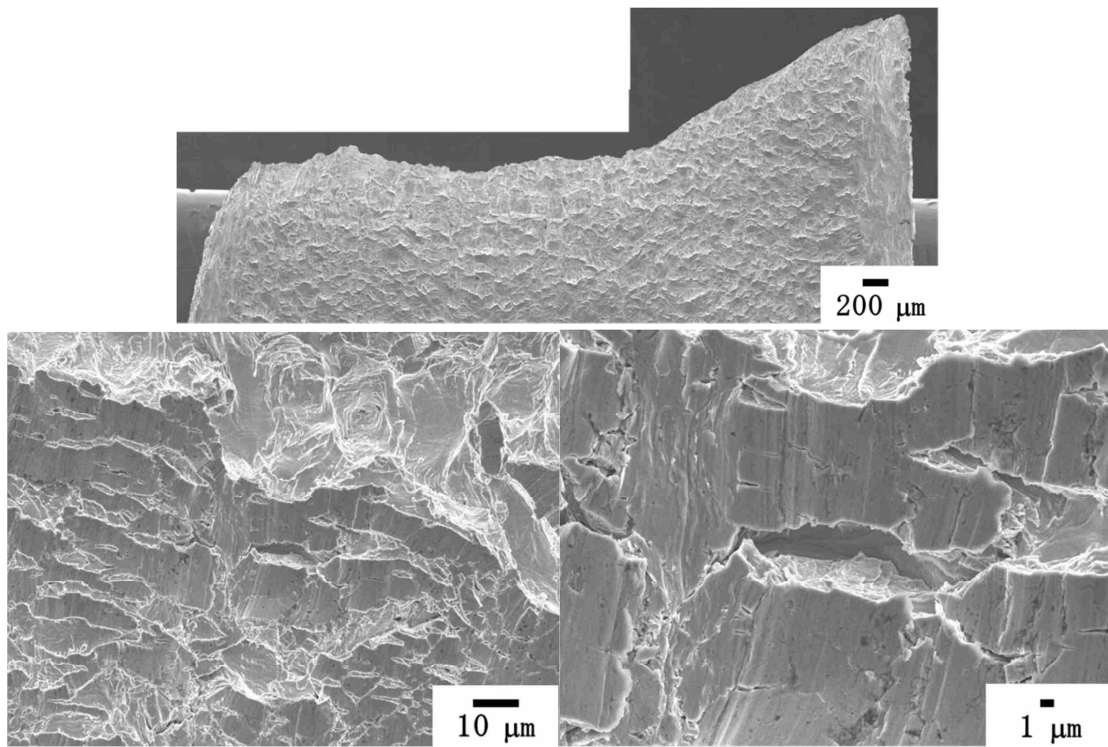


図 3. 2. 2-94 300°C2000 時間時効した未チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

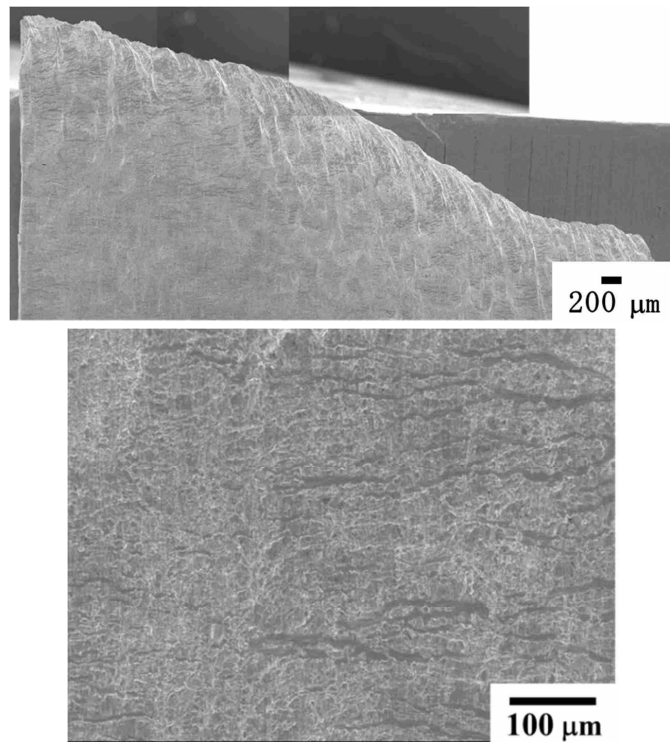


図 3. 2. 2-95 80°C2000 時間時効した 3 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

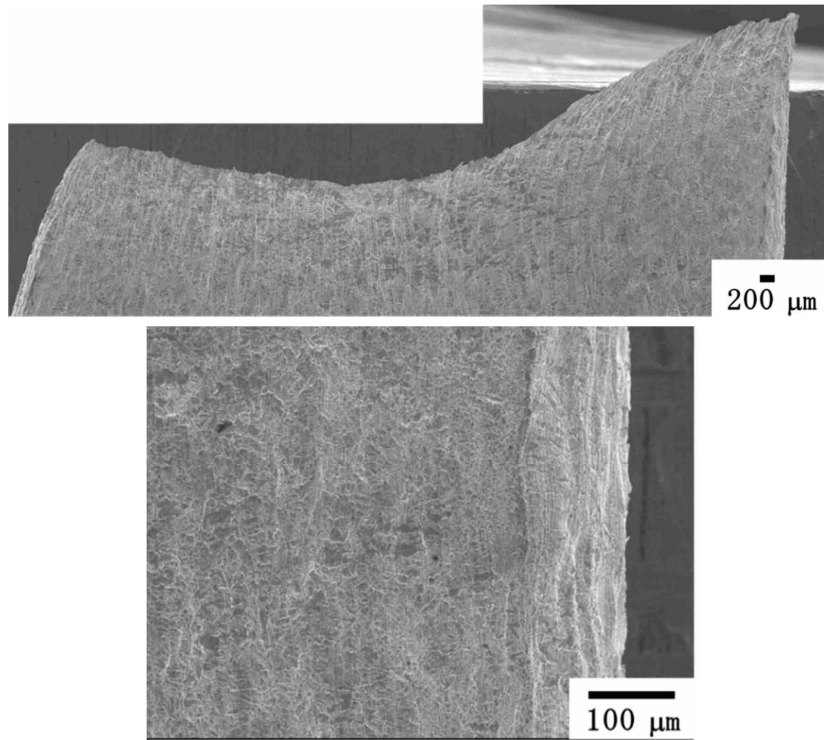


図 3. 2. 2-96 200°C2000 時間時効した 3 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

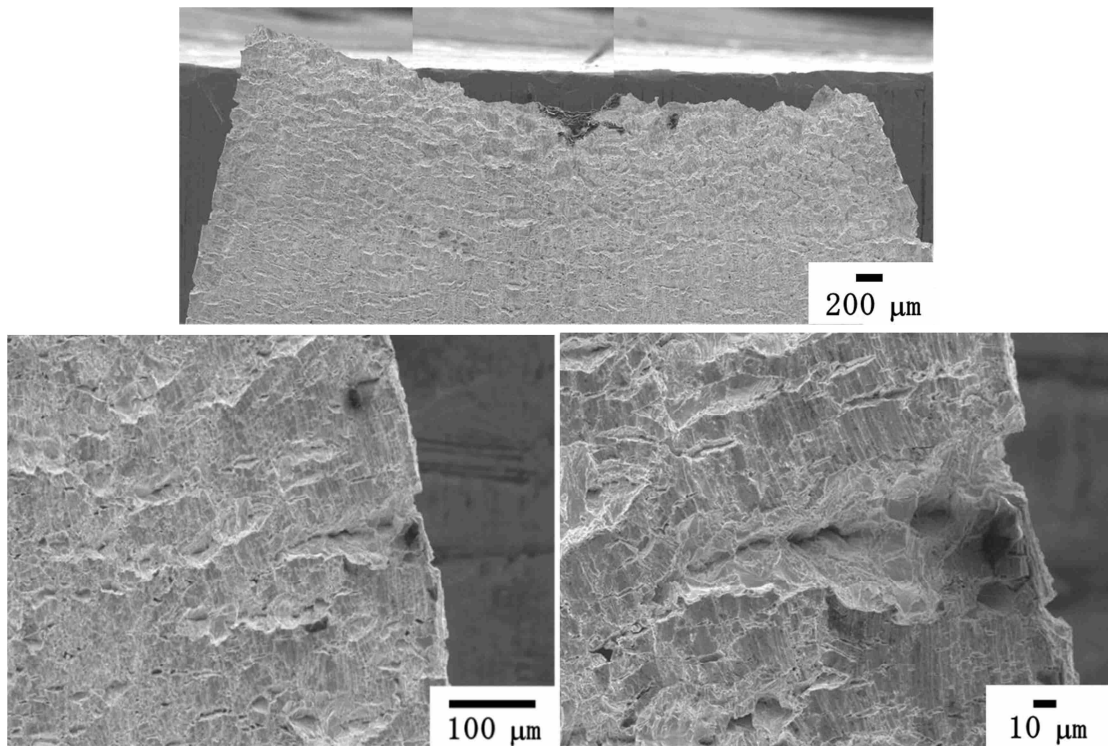


図 3. 2. 2-97 300°C2000 時間時効した 3 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

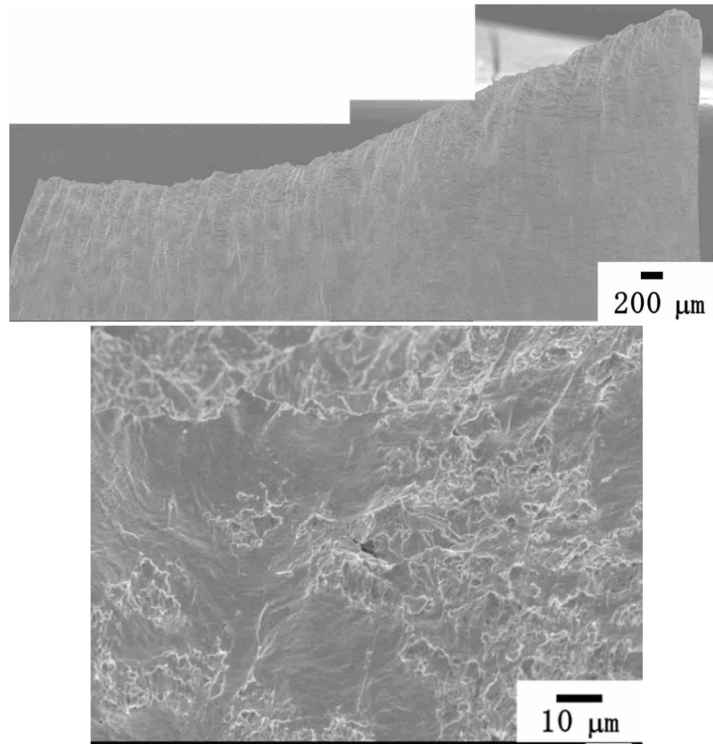


図 3. 2. 2-98 80°C2000 時間時効した 6 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

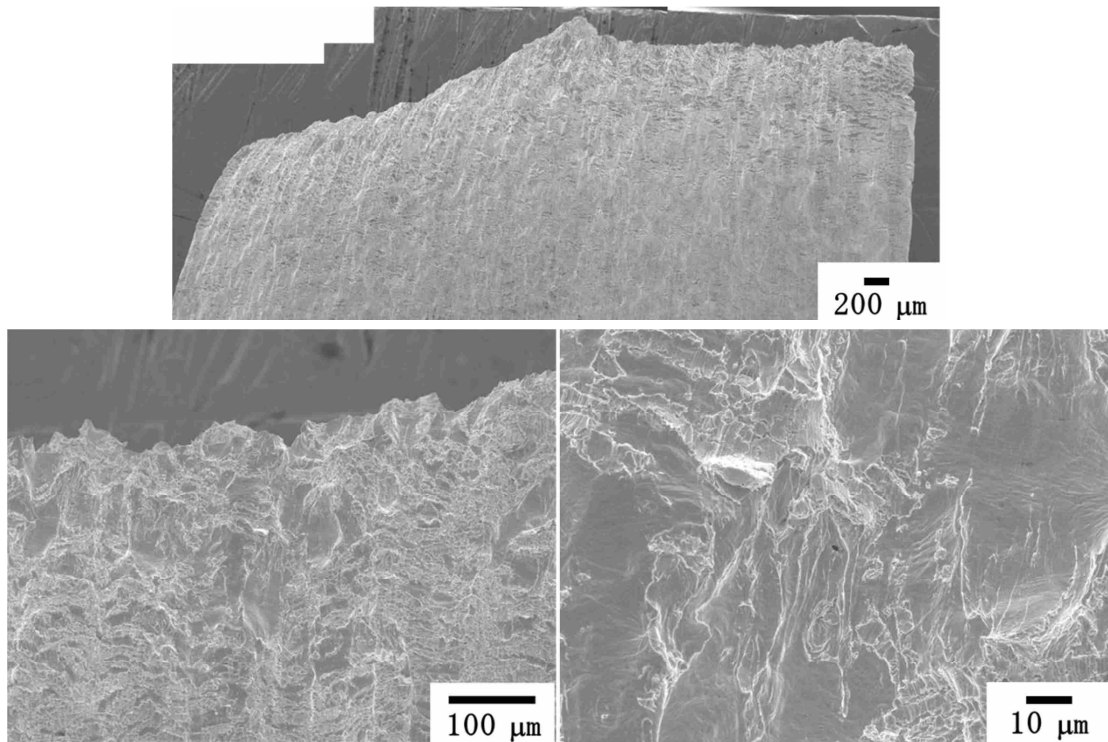


図 3. 2. 2-99 200°C2000 時間時効した 6 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

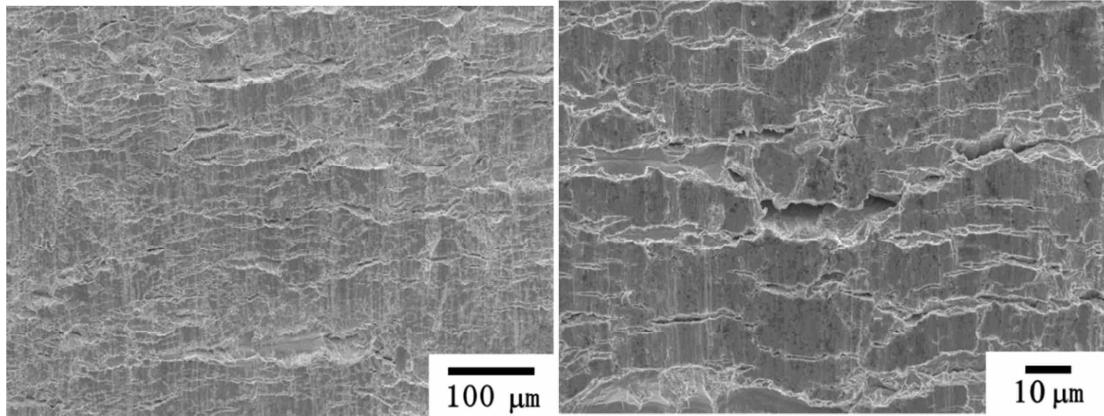
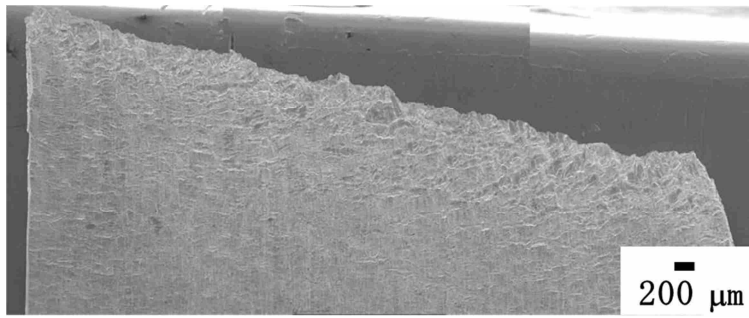


図 3. 2. 2-100 300°C2000 時間時効した 6 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

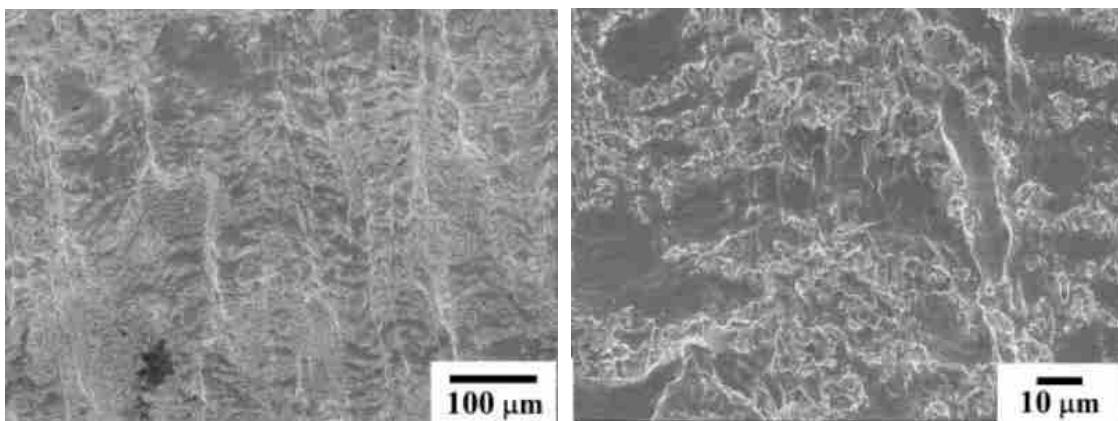
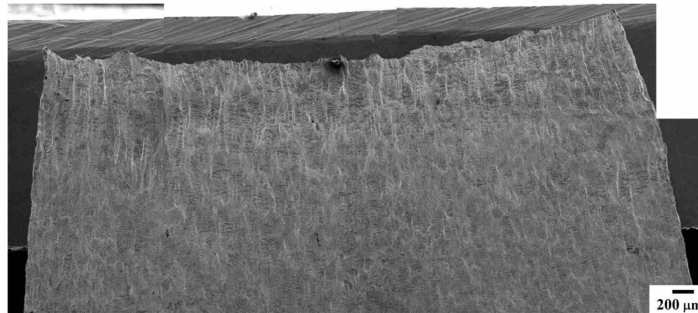


図 3. 2. 2-101 80°C4000 時間時効した未チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

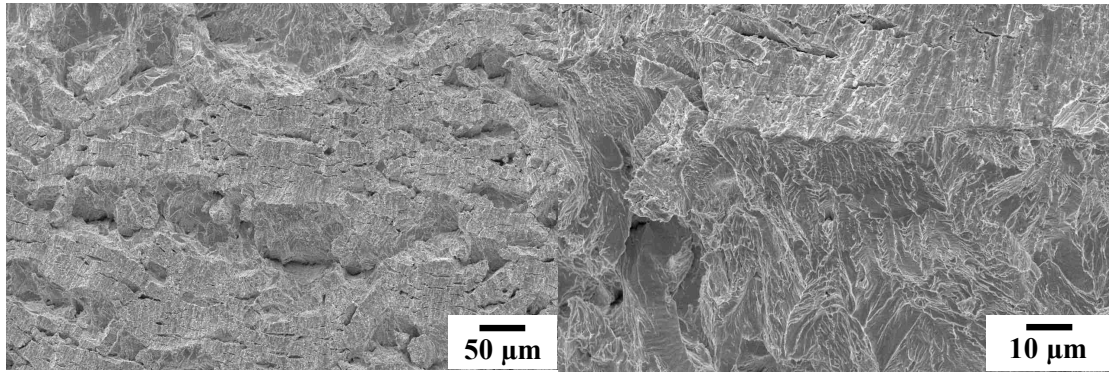
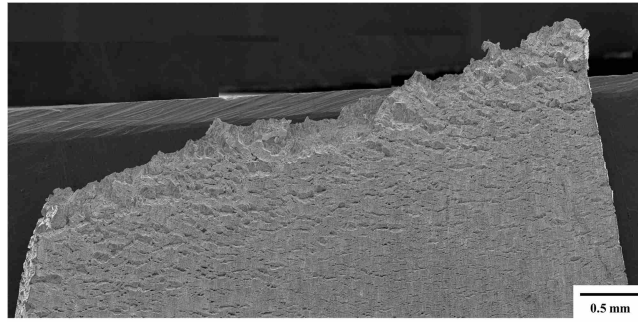


図 3.2.2-102 200°C4000 時間時効した未チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

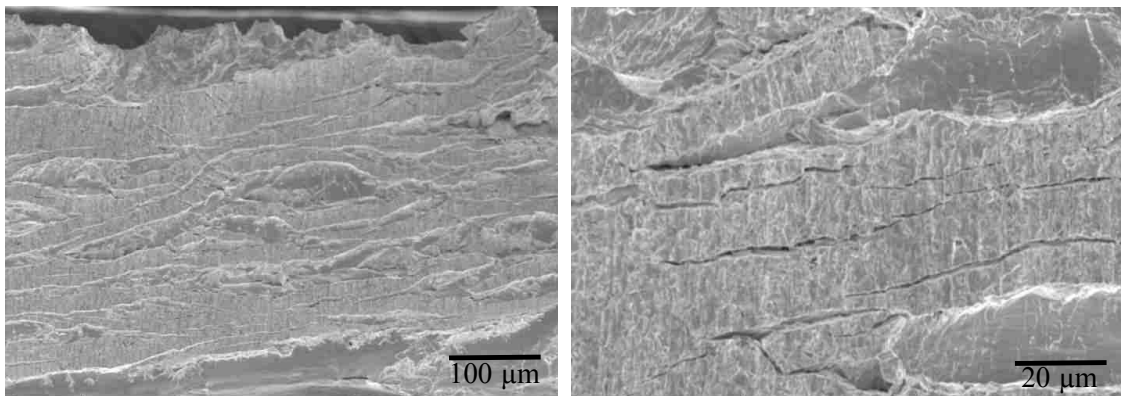
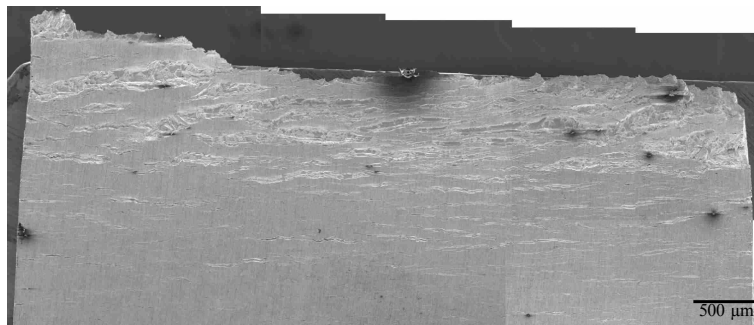


図 3.2.2-103 300°C4000 時間時効した未チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

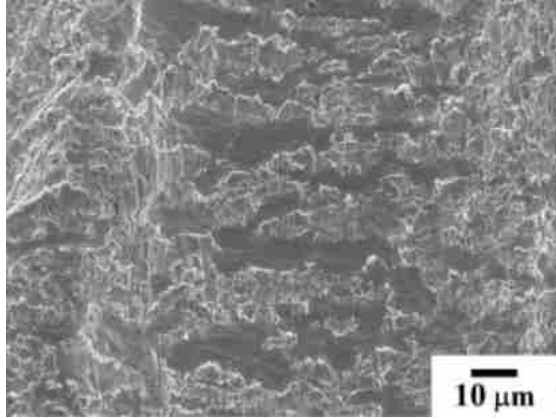
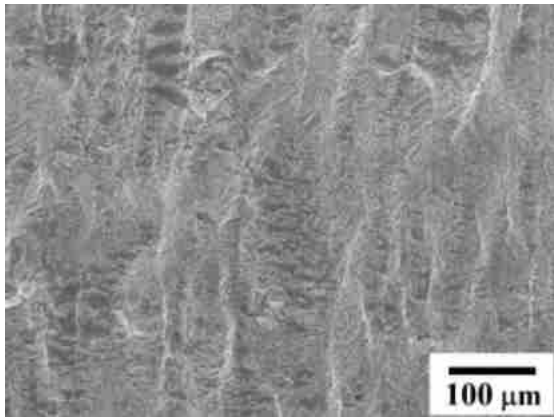
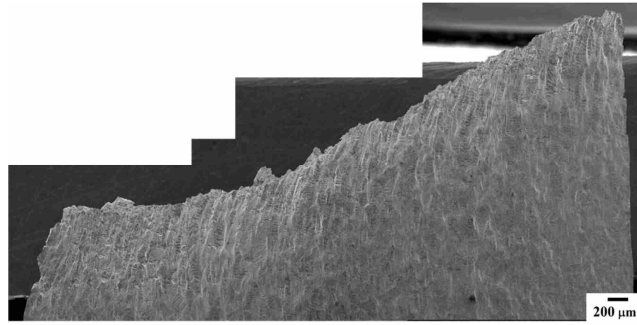


図 3. 2. 2-104 80°C4000 時間時効した 3 時間チャージ材の引張試験後側面 SEM 写真

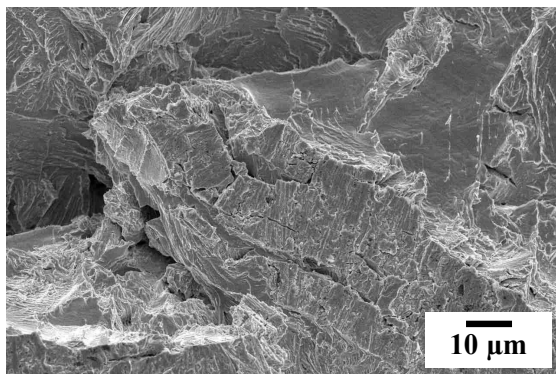
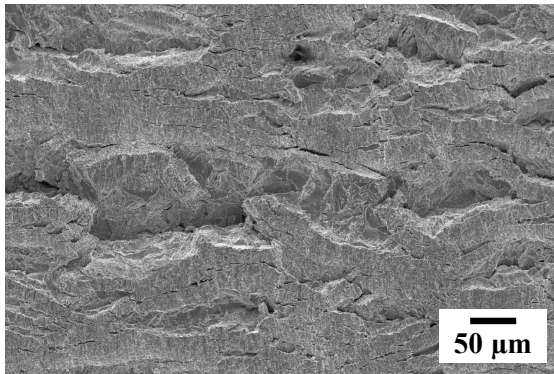
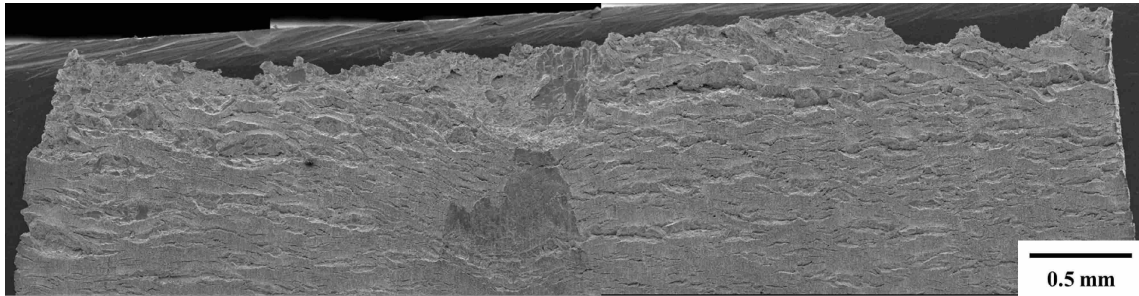


図 3. 2. 2-105 200°C4000 時間時効した 3 時間チャージ材の引張試験後側面 SEM 写真

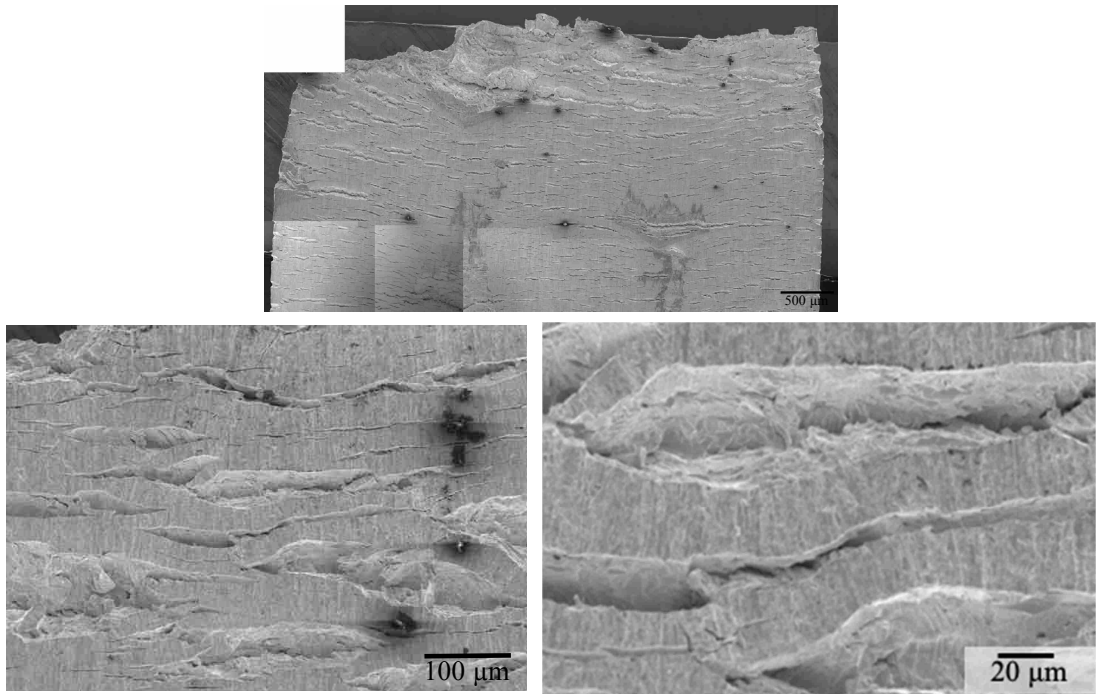


図 3. 2. 2-106 300°C4000 時間時効した 3 時間チャージ材の引張試験後側面 SEM 写真

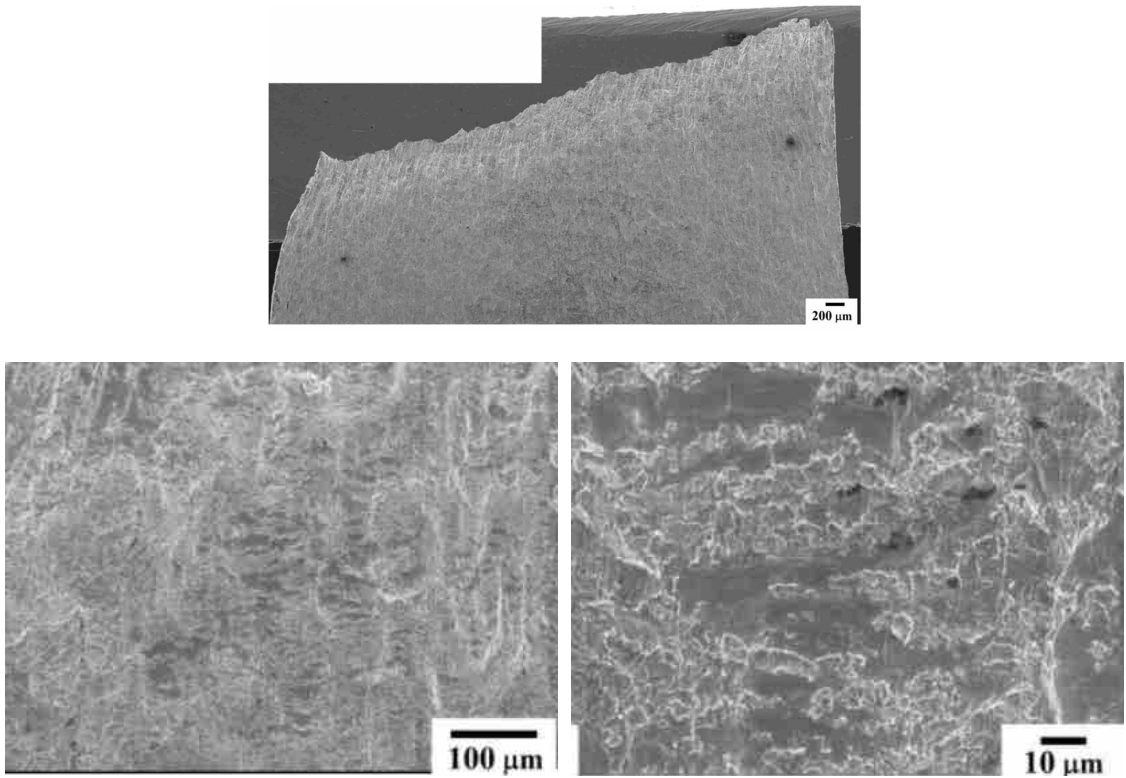


図 3. 2. 2-107 80°C4000 時間時効した 6 時間チャージ材引張試験後側面 SEM 写真

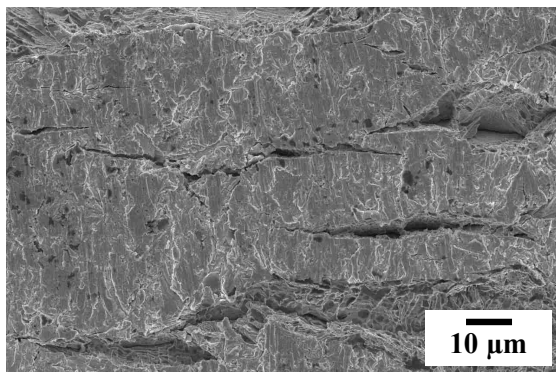
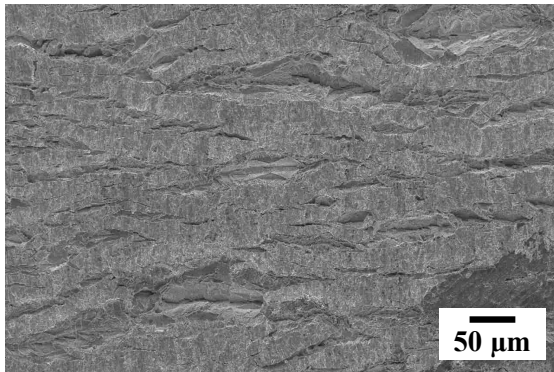
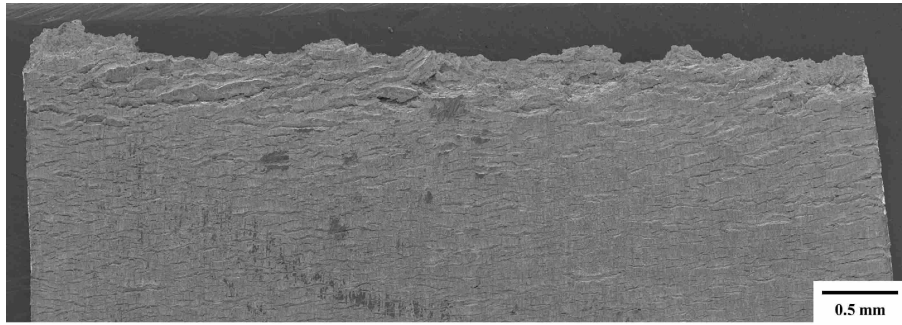


図 3. 2. 2-108 200°C4000 時間時効した 6 時間チャージ材の引張試験後側面 SEM 写真

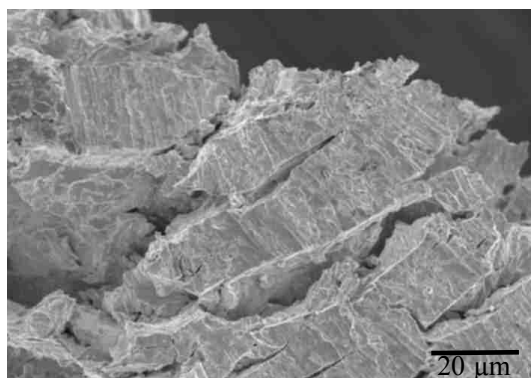
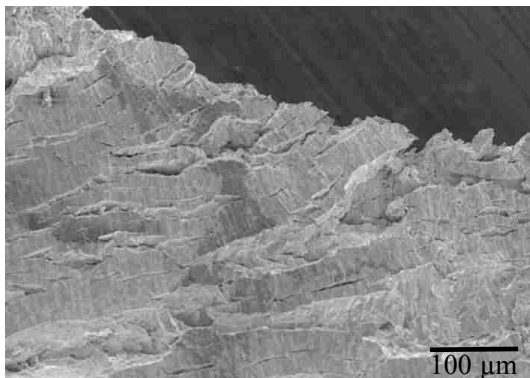
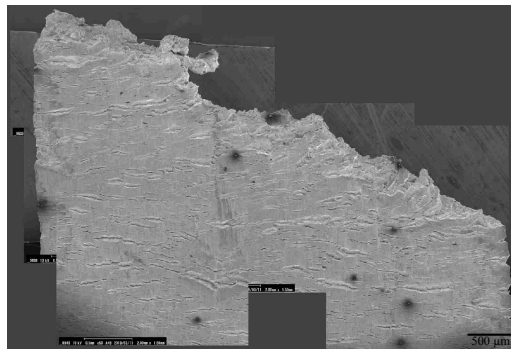


図 3. 2. 2-109 300°C4000 時間時効した 6 時間チャージ材の引張試験後側面 SEM 写真

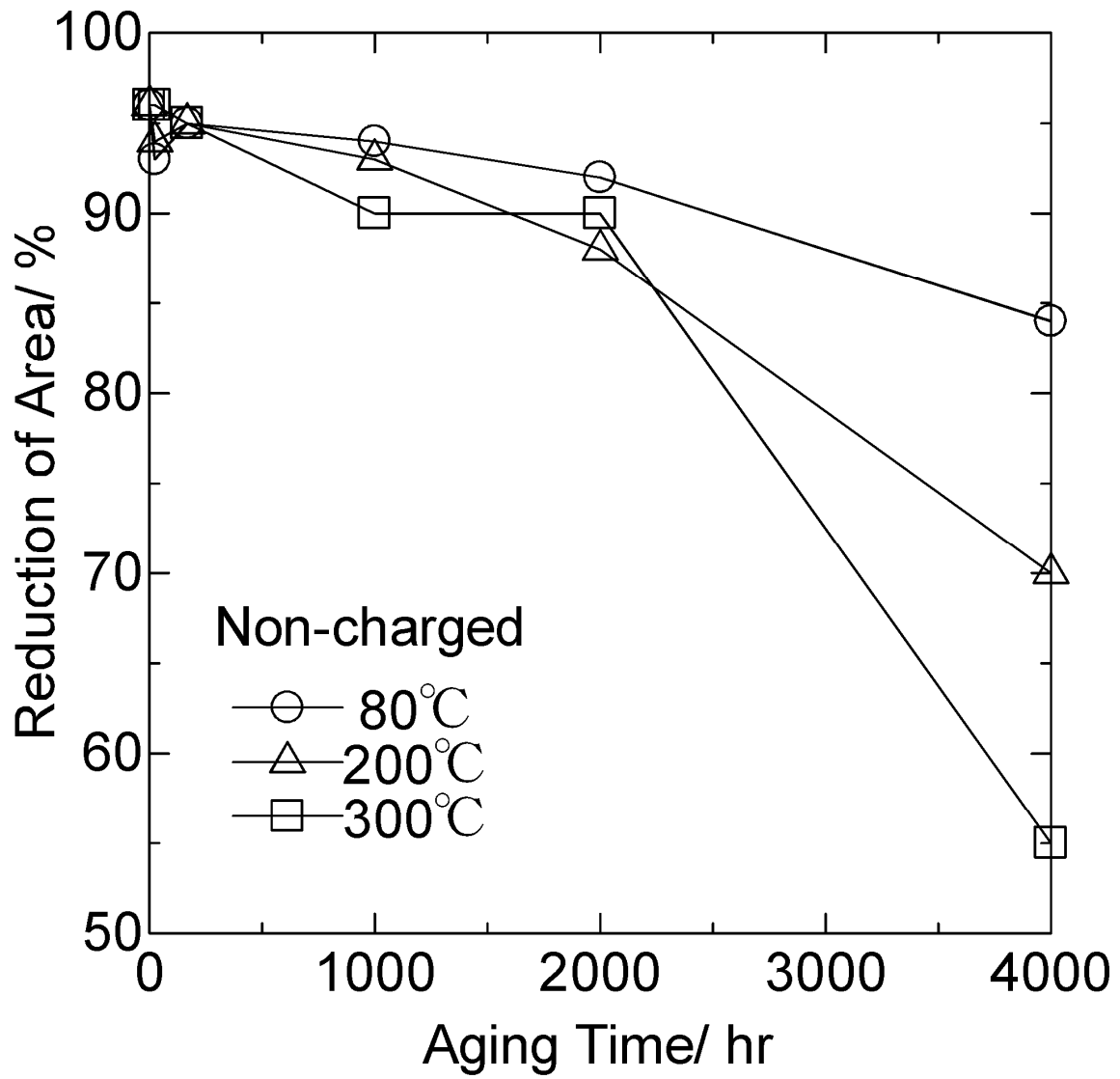


図 3.2.2-110 未チャージ材における断面収縮率と熱時効時間との関係

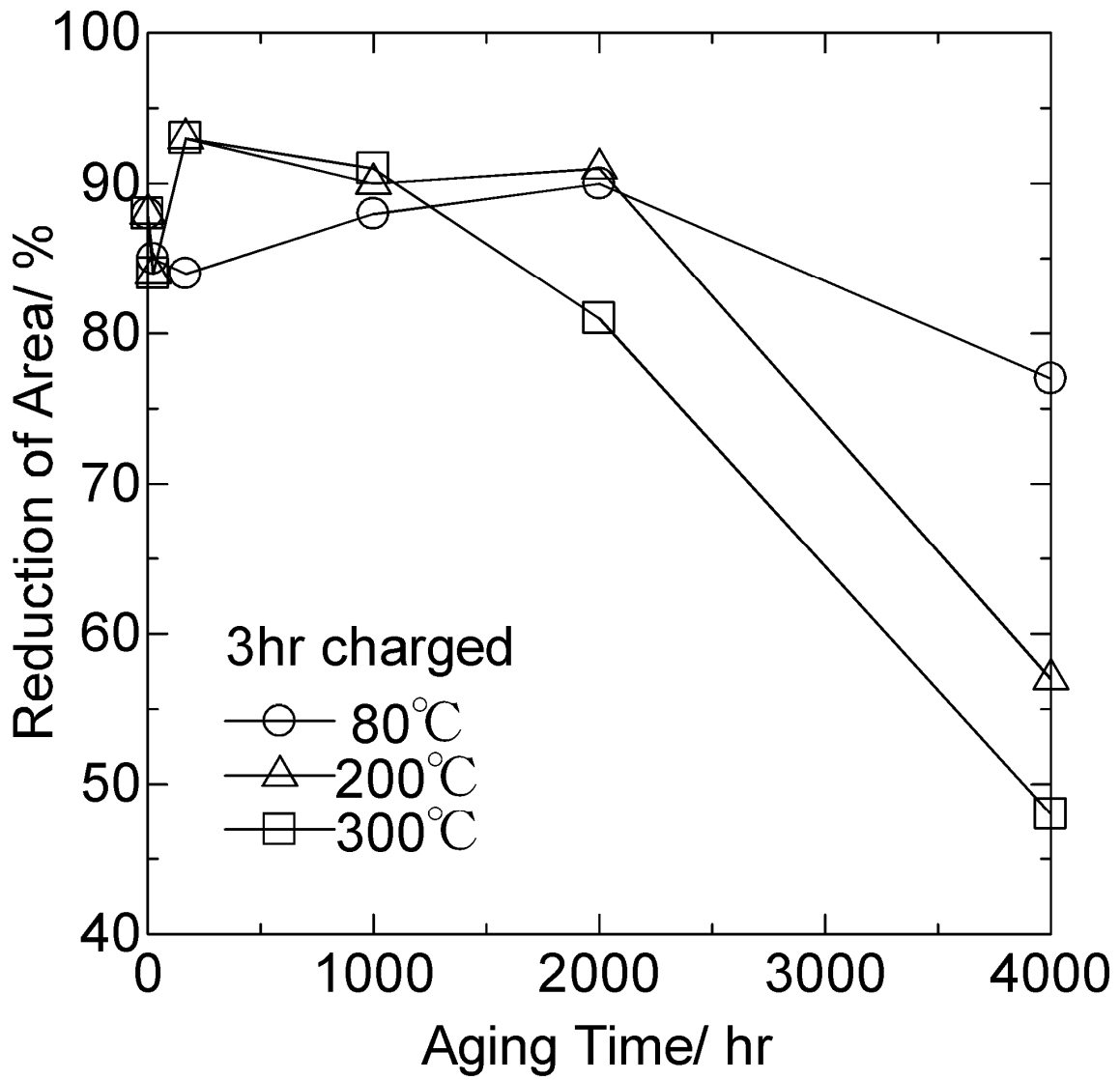


図 3.2.2-111 3時間チャージ材における断面収縮率と熱時効時間との関係

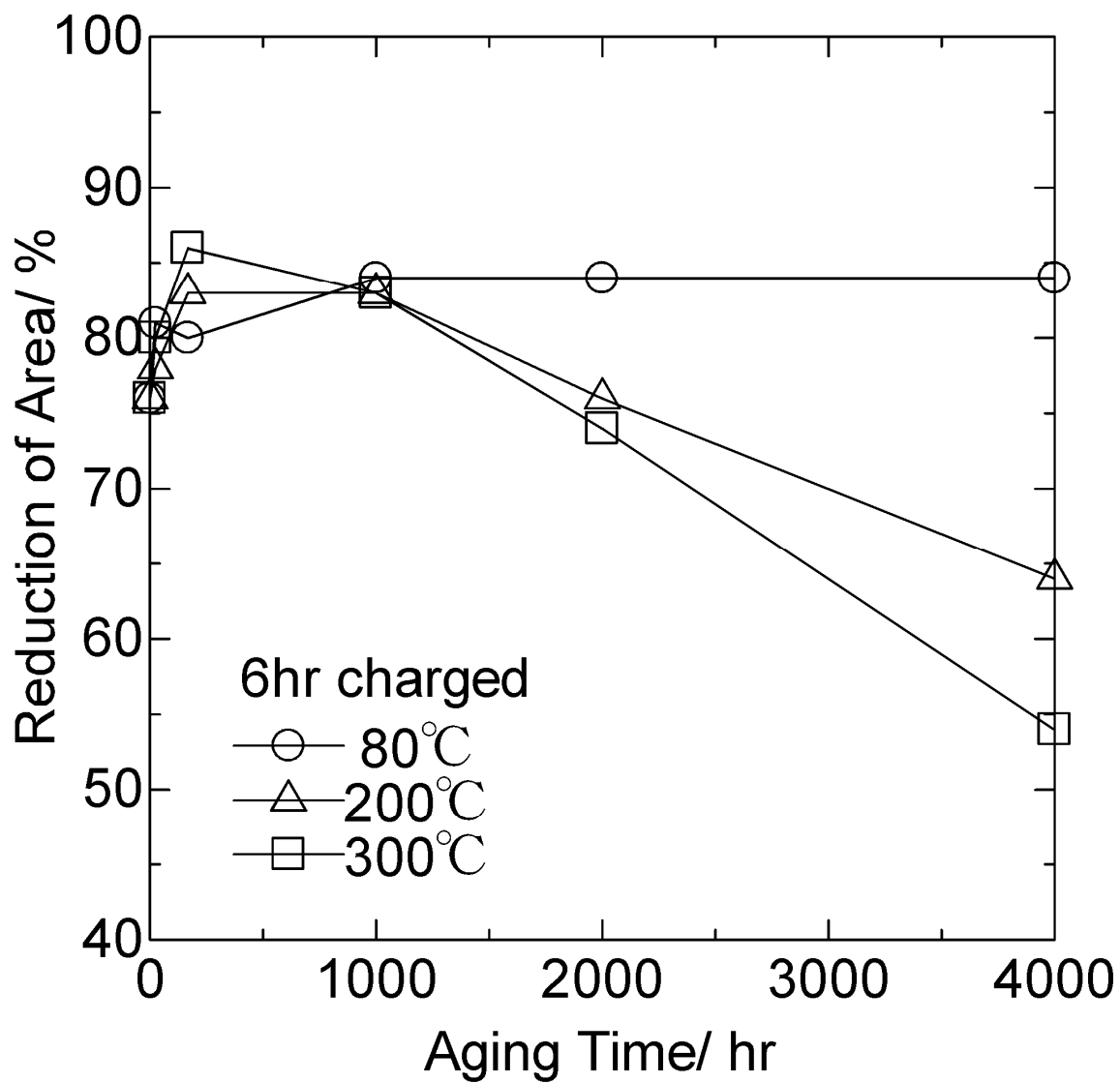


図 3.2.2-112 6時間チャージ材における断面収縮率と熱時効時間との関係

3.2.3 水素ぜい化機構検討試験

Ta 中の水素が熱時効により転位の運動に影響を与えることを想定した弾性率及び内部摩擦測定を本年度整備した弾性率測定装置 (JE2-C1/JE2-RT) を用いて行い、Ta 中の水素が熱時効に及ぼす影響および水素ぜい化機構について検討を行った。

(a) 試験方法

供試材は第3章2節2項で使用したものと同様の短冊試験片を用いた。

水素チャージは、第3章2節2項と同様に3及び6時間実施した。熱時効条件は大気中にて、80、200及び300°Cにおいて、24、168、1000及び2000時間実施した。熱時効後、弾性率 (Young Modulus) は半価幅法を用いて室温で測定した。また、比較材として水素チャージを行っていない試料についても熱時効を実施し弾性率及び内部摩擦を測定した。

(b) 試験結果

80、200及び300°Cで時効した試料から得られた弾性率の時効時間との関係を図3.2.3-1から3.2.3-3にそれぞれ示す。

熱時効材の弾性率は80及び200°Cの時効温度では2000時間までの時効により弾性率は約180GPaで大きな変化は見られなかった。また時効温度が300°Cになると3及び6時間チャージ材において弾性率が約160GPaに低下し機械的特性に変化がみられた。

80、200及び300°Cで時効した試料から得られた内部摩擦の時効時間との関係を図3.2.3-4から3.2.3-6にそれぞれ示す。

いずれの熱時効温度においても、未チャージ材では内部摩擦は約 1×10^{-4} 程度で時効時間による変化はみられなかった。一方、3及び6時間チャージ材ではチャージ直後の内部摩擦は約2.4から 2.6×10^{-4} とチャージ材と比較して約2倍を示し、いずれの熱時効温度においても24時間経過時には約 1.0×10^{-4} まで減少する傾向がみられた。

内部摩擦は金属内の変形や振動の伝達を阻害する存在の大きさを示す指標であり、転位や粒界等の欠陥、溶質原子の存在等で大きくなる。本研究において内部摩擦は同ロットのTa板で測定しているため結晶粒径の差異は無いと考えられる。またTaは融点が3017°Cと高く今回の熱時効温度(80から300°C)では再結晶や焼鈍による転位の消滅は考えにくい。従って、今回の測定で得られた時効による内部摩擦の減少は、チャージ直後はTa内部に固溶していた水素が、熱時効によりTaに初めから存在する転位や粒界等にトラップされたことを示唆すると考えられる。

このような水素の転位へのトラップは転位の運動を阻害し延性を低下する要因となると考えられる。しかしながら本研究では明確な応力-ひずみ線図の変化はみられなかった。一

方で断面収縮率は水素チャージ後に熱時効することで減少し延性低下を示唆しているため、熱時効による水素のトラップは延性低下を引き起こしていないのでは無く、顕著なぜい化を示すほどの水素濃度では無いが、あるいはより長時間の熱時効でトラップ水素が増えることによりぜい化を示す可能性も考えられる。このような水素と Ta 中の欠陥との関係に及ぼす熱時効の影響の解明が Ta の水素ぜい化機構の解明に必要であると考えられる。

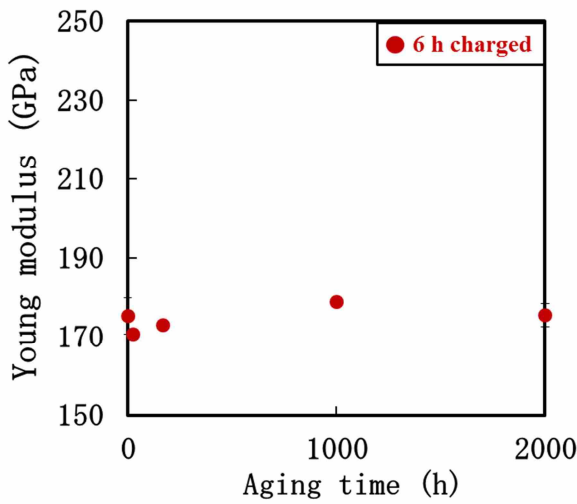
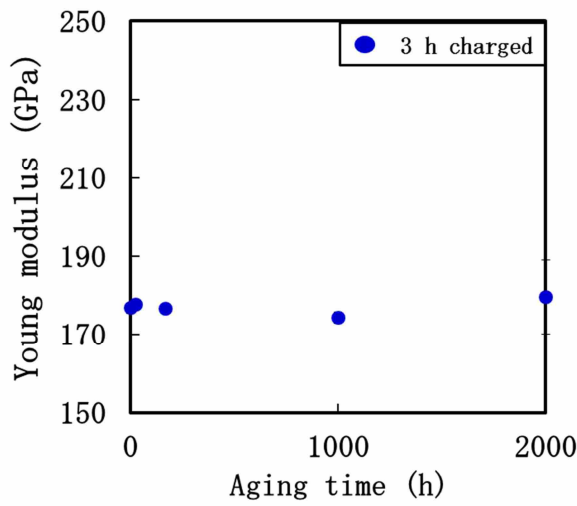
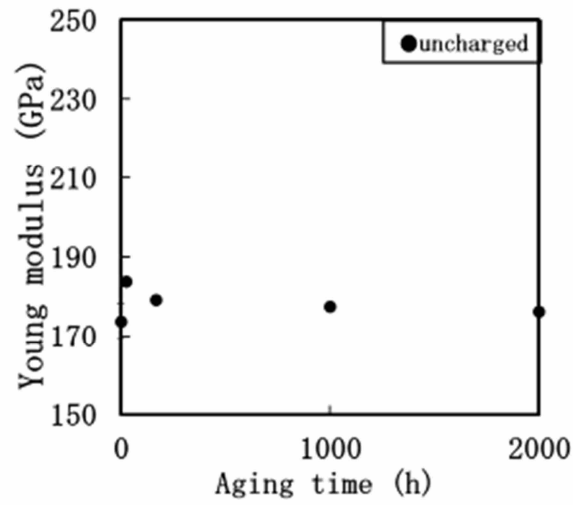


図 3.2.3-1 80℃熱時効材における弾性率の時効時間との関係

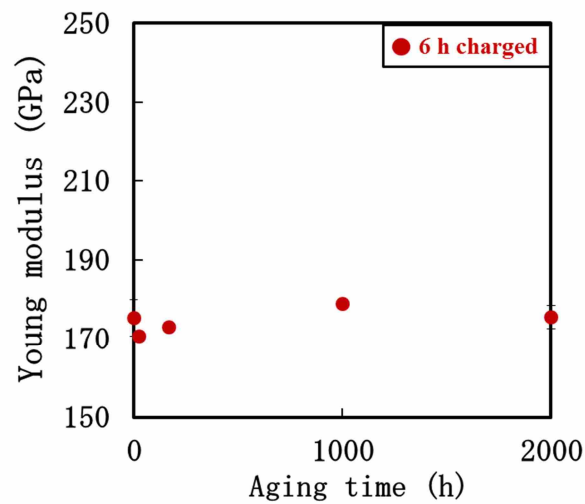
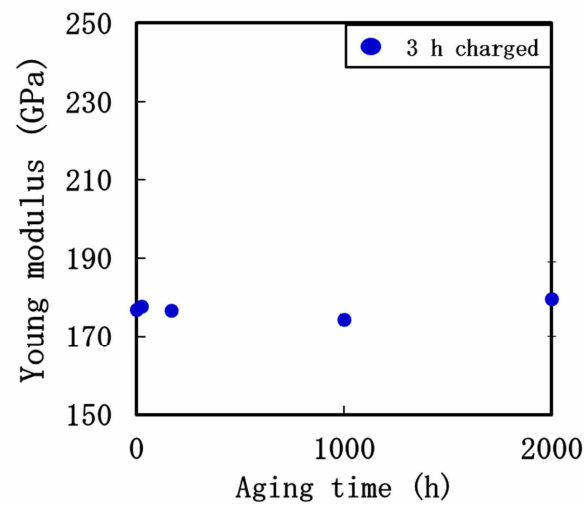
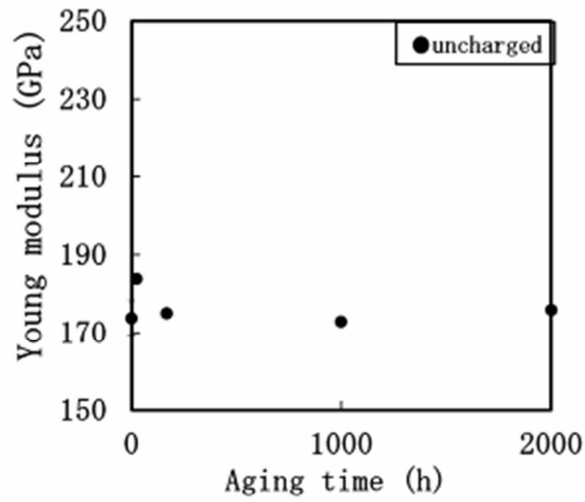


図 3. 2. 3-2 200°C熱時効材における弾性率の時効時間との関係

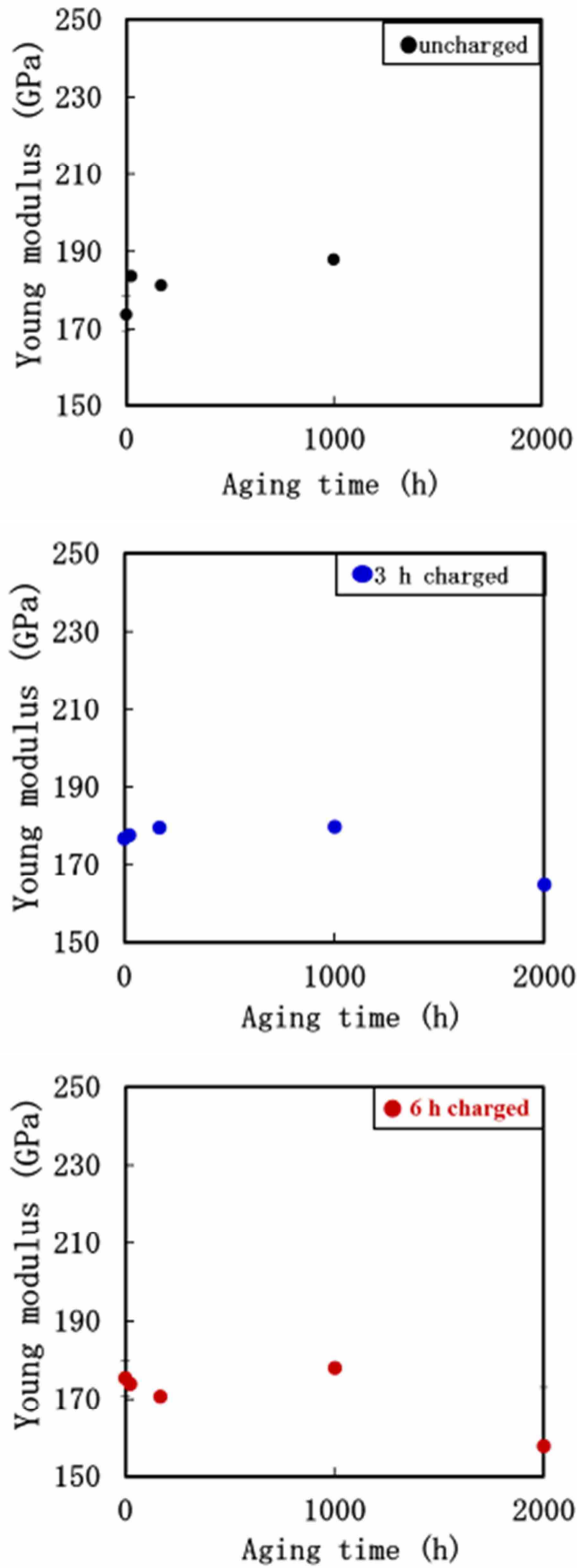


図 3.2.3-3 300°C熱時効材における弾性率の時効時間との関係

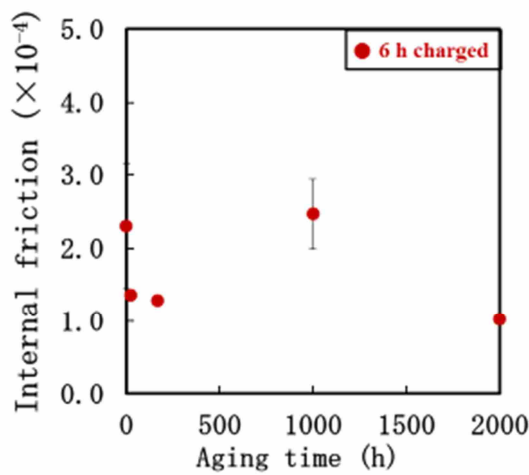
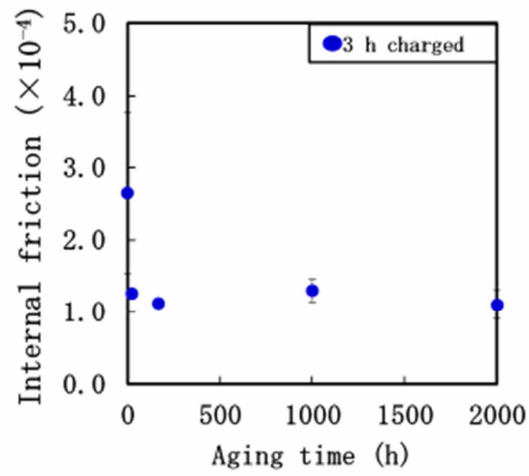
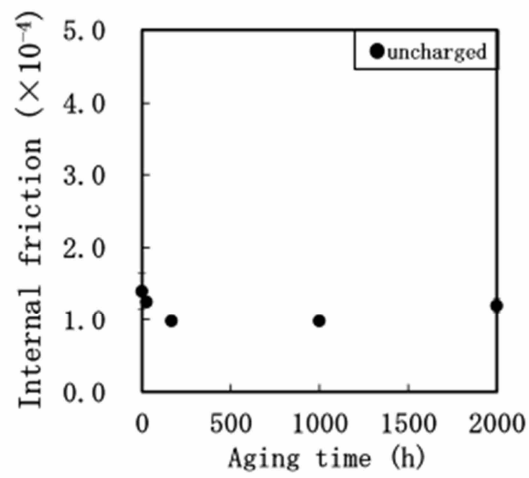


図 3.2.3-4 80°C熱時効材における内部摩擦の時効時間との関係

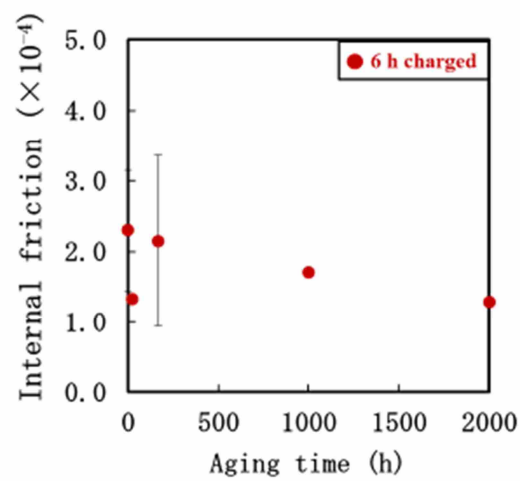
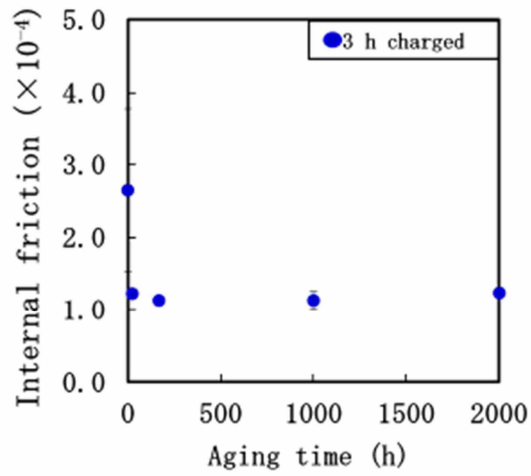
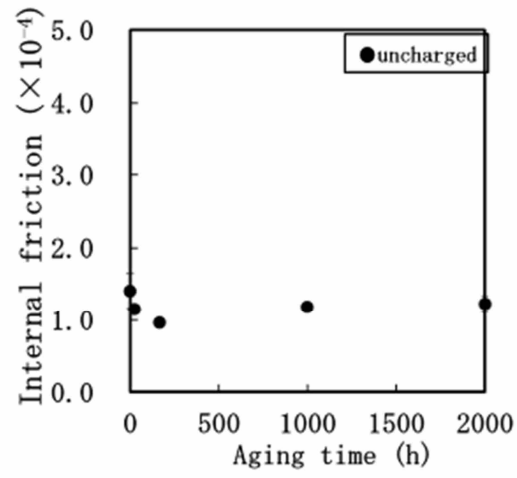


図 3. 2. 3-5 200°C熱時効材における内部摩擦の時効時間との関係

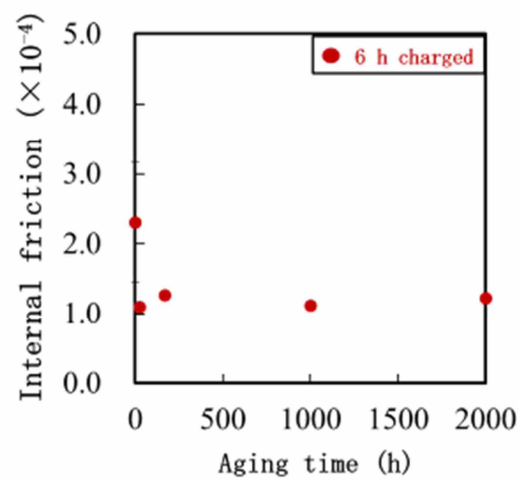
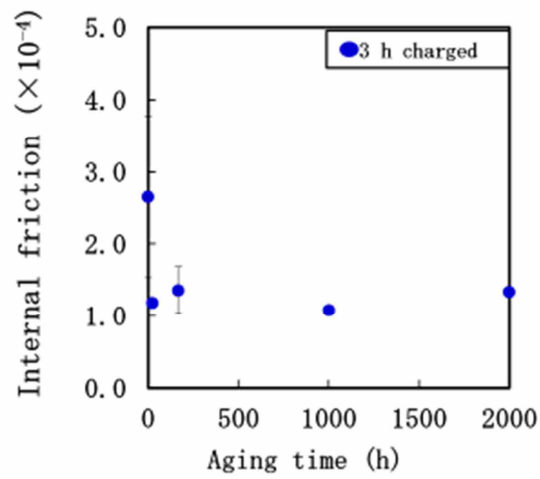
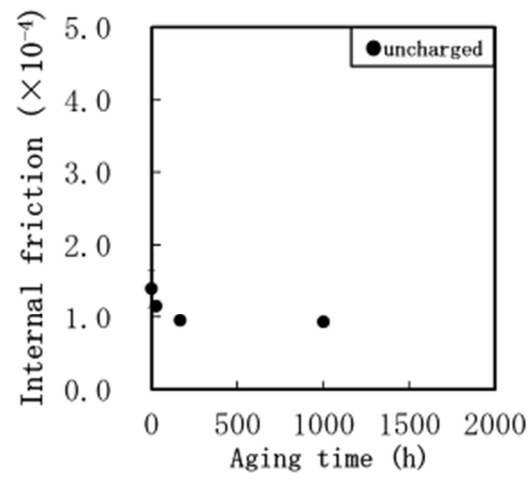


図 3. 2. 3-6 200°C熱時効材における内部摩擦の時効時間との関係

3.3 まとめ

本研究では、アルカリ溶液中におけるタンタル (Ta) の水素吸収挙動と、水素吸収後の時効による機械的特性への影響を明らかにするため、水酸化ナトリウム (NaOH) 水溶液中での Ta の水素吸収挙動について、浸漬条件と吸収水素量との関係を分析調査し、水素吸収した後の時効効果による機械的特性への影響を明らかにするため、吸収水素量測定試験及び時効による機械的特性への影響を確認する機械的特性確認試験(引張試験)を実施した。また、予備試験として放射線の影響を確認するため、 γ 線照射環境下での NaOH 溶液中で浸漬試験を実施し水素吸収量を検討した。また、熱時効による延性低下機構解明のため、熱時効材について内部摩擦及び弾性率の測定を行った。

また、得られた試験結果より Ta の NaOH 溶液浸漬による水素吸収量は同条件での腐食減量と正の相関を持ちこれを用いることで評価可能と考えられることがわかった。さらに、熱時効による水素ぜい化挙動は引張試験後の破断面観察により評価される断面収縮率の熱時効条件との関係で整理することがより保守的であることがわかった。

4. 外部専門家のレビュー

本研究の成果は安全規制の技術的な根拠に資することから、研究計画、試験方法及び取得したデータの透明性及び客観性を高めるために、原子力機構の安全研究委員会の下に設ける原子力機構外の専門家による再処理施設経年変化研究専門部会を設置・運営し、有識者からの意見を参考とするとともに技術的側面からのレビューを受けた。表 4-1 に専門部会委員の氏名及び所属を示す。

平成 30 年 6 月 22 日に開催した第 20 回の専門部会においては、以下のような講評を得た。

- 実機で、どのような時に時効が起きると想定するか、洗浄と使用のサイクルなど、履歴のモデルケースを想定し試験条件・計画を進めて欲しい。

平成 30 年 11 月 5 日に開催した第 21 回の専門部会においては、以下のような講評を得た。

- NaOH 溶液中における酸素は皮膜の条件にも影響を及ぼすと考えられるので、酸素の影響は調べておく必要があると考えられる。
- 熱時効影響による機械的特性の変化についてどのような整理を行うかを決めるのは難しそうではあるが、具体的には使用環境を考慮してどう判断するかになるので、試験データを拡充し検討を進めていくことになると思われる。

平成 31 年 2 月 27 日に開催した第 22 回の専門部会においては、以下のような講評を得た。

- 今後の進め方が非常に重要である。どういう順序でどう選択して進めていくか。今、機械的なデータだけを見ると、水素ぜい化することはないだろうと思うが、本当に最終的な評価として結論するには工夫が必要である。
- Ta の水素吸収によるぜい化挙動を検討することは重要な研究であると思われる。現在得られている知見をみるといい方向に進んでいると思うが、細部を詰めることも重要であると考えられる。

表 4-1 再処理施設経年変化研究専門部会委員の氏名及び所属（敬称略）

	名 前	所 属
主査	鈴木 雅秀	長岡技術科学大学 教授 大学院工学研究科 原子力システム安全工学専攻
委員	石丸 裕	大阪大学 特任教授 大学院工学研究科 ビジネスエンジニアリング専攻
委員	藤本 慎司	大阪大学 教授 大学院工学研究科 マテリアル生産科学専攻
委員	渡邊 豊	東北大学 教授 大学院工学研究科 量子エネルギー工学専攻
委員	黒崎 健	大阪大学 准教授 大学院工学研究科 環境・エネルギー工学専攻

5. あとがき

本事業では、商用再処理施設で使用される各種耐硝酸材料のうち異材接合継ぎ手を構成するタンタル (Ta) について、点検・補修作業の際にアルカリ溶液（水酸化ナトリウム水溶液）及び硝酸を用いて行われると想定される除染作業の影響を受けて経年劣化事象（腐食及び水素ぜい化）が生じることが懸念されることから、同作業が Ta 製機器の耐食性及び機械的特性低下に及ぼす影響に関する最新技術的知見を収集・蓄積することを目的として実施した。

腐食に関する試験研究では、Ta がアルカリ溶液にさらされたのちに沸騰硝酸溶液中で使用される場合に、この環境変化が及ぼす Ta の耐食性への影響を明らかにするため、水酸化ナトリウム (NaOH) 水溶液中でアルカリ腐食した条件での Ta の表面皮膜の性状及びそれが水素吸収に与える影響を分析し、アルカリ環境の表面皮膜への影響を調べる。次いで、アルカリ腐食後に実機環境を模擬した硝酸溶液中での腐食試験や電気化学特性試験を行い、アルカリ腐食に及ぼす影響を確認する試験を実施する。本研究では、上記内容を完遂するための試験装置を整備するとともに、耐食性確認試験として腐食試験、電気化学特性試験及び表面皮膜確認試験を実施した。結果を以下に記す。

- ・ NaOH 水溶液中でアルカリ腐食した条件でのタンタル Ta の表面皮膜の性状及びそれが水素吸収に与える影響の分析を目的とした、アルカリ環境の表面皮膜の断面性状を評価するためのワイヤソー、断面試料作成装置及び薄膜成膜装置を整備した。また、アルカリ溶液の流れの影響を明らかにするための回転電極装置を整備した。
- ・ NaOH 溶液中条件が Ta の耐食性におよぼす影響を明らかにするため、NaOH 溶液における Ta の浸漬腐食試験を行い、NaOH 溶液濃度、浸漬温度及び浸漬時間の腐食量への影響を調査した。その結果、腐食減量は NaOH 溶液濃度及び浸漬温度によらず浸漬時間とともに増加した。腐食速度は、1mol/L の NaOH 溶液濃度では 50℃で時間とともに減少する一方室温及び 80℃では浸漬時間による変化はみられず、3mol/L の NaOH 溶液濃度では 50 及び 80℃では浸漬時間とともに腐食速度は減少する一方室温では変化がみられず、また 7mol/L の NaOH 溶液濃度ではいずれの浸漬温度でも時間とともに腐食速度が減少した。
- ・ 皮膜の組織観察および XPS およびラマン分光分析により 80℃1mol/L の NaOH 溶液浸漬で生成した皮膜はタンタル酸ナトリウムであることが明らかになった。
- ・ Ta の NaOH 溶液浸漬における腐食挙動を電気化学的に検討するため、NaOH 溶液濃度及び浸漬時間をパラメータとした電気化学特性評価試験として、腐食電位測定、分極測定、及びインピーダンス測定試験を実施した。その結果、0.03 および 0.3mol/L では不動態皮膜等の皮膜が生成しかつ安定に存在することを、また 1 から 7mol/L では浸漬直後から腐食による溶解反応が進行していることが明らかとなった。また、インピーダンス測定より NaOH 溶液における腐食速度の経時的な減少が腐食による皮膜生成に起因していることを示唆する結果が

得られた。

- ・ 異材接合継手構造を考慮した異種金属接触（ガルバニック）測定、配管の流れの影響を考慮した回転電極による腐食電位測定を予備試験として実施した。その結果、7mol/L の NaOH 溶液では Ta は Zr および SUS304 との接触により短時間では腐食が加速されるが 100 時間以上の浸漬では腐食速度が小さくなることを明らかにした。また、溶液の流れが NaOH 溶液環境において Ta の腐食を促進する可能性を示唆する結果が得られた。

水素ぜい化に関する試験研究では、アルカリ溶液中における Ta の水素吸収挙動と、水素吸収後の時効による機械的特性への影響を明らかにするため、NaOH 水溶液中での Ta の水素吸収挙動について、浸漬条件と吸収水素量との関係を分析調査し、水素吸収した後の時効効果による機械的特性への影響を明らかにするための試験を実施する。本研究では、上記内容を完遂するための試験装置を整備するとともに、NaOH 溶液中で浸漬した Ta について水素吸収量測定試験を実施するとともに、水素チャージを行った Ta について機械的特性に及ぼす時効の影響評価試験を実施した。結果を以下に記す。

- ・ 機械的特性に及ぼす時効の影響評価試験のための試験装置の整備として、弾性率測定装置を整備した。
- ・ 吸収水素量測定試験として、平成 29 年度までに整備した試験装置を用いて Ta に対して NaOH 溶液中での浸漬試験を実施した。試験では、NaOH 溶液濃度を変え、吸収水素量に及ぼす影響を確認した。その結果、Ta 中の水素量は NaOH 溶液濃度及び浸漬時間とともに増加することが示された。また、Ta の NaOH 溶液中における水素吸収量は腐食減量により評価可能である事を示した。
- ・ 実機環境は放射線雰囲気であることから放射線の影響を確認するため、予備試験として γ 線照射環境下での NaOH 溶液中で浸漬試験を実施し水素吸収量を検討した。その結果、7mol/L の NaOH 溶液濃度では γ 線照射下で浸漬した試料は非照射のものと比較して線量率とともに増加した。これは、7mol/L の NaOH 溶液濃度では保護性を有する不動態皮膜が安定して存在することが難しくなり、通常の腐食に加えて放射線分解により発生する水素が吸収された可能性が考えられた。
- ・ 機械的特性に及ぼす時効の影響確認試験として、平成 29 年度までに整備した試験装置を用いて時効による機械的特性への影響を確認する機械的特性確認試験（引張試験）を実施した。試験では、時効時間及び時効温度を変え、時効による機械的特性低下への影響を確認した。その結果、未時効・未チャージのものと比較しても明確な破断伸びの減少および最大引張応力の変化はみられなかった。一方断面収縮率の検討結果より、引張試験における破断伸びの減少はみられない熱時効条件でも、破断時における断面収縮率が減少し、異材接合継手中の Ta が破断に近い変形を受けた際に、急速に破断する可能性があることを示唆するとともに、

熱時効における Ta の機械的特性変化の指標として、破断伸びより断面収縮率の方が保守的な指標であると考えられた。

- ・ 金属中の水素状態が機械的特性に及ぼす影響を分析するために必要な試験装置を整備し時効後への影響を検討した。その結果、3 および 6 時間チャージ材ではチャージ直後の内部摩擦は約 2.4 から 2.6×10^{-4} とチャージ材と比較して約 2 倍を示し、いずれの熱時効温度においても 24 時間経過時には約 1.0×10^{-4} まで減少する傾向がみられた。この時効による内部摩擦の減少は、チャージ直後は Ta 内部にランダムに固溶していた水素が、熱時効により Ta に初めから存在する転位や粒界等にトラップされたことを示唆すると考えられた。

本事業の実施にあたって研究成果の客観性、公正さをより高めるために、5 名の外部専門家からなる再処理施設経年変化研究専門部会を設置し、平成 30 年 6 月 22 日に第 1 回(通算第 21 回)、平成 30 年 11 月 5 日に第 2 回(通算第 22 回)そして、平成 31 年 2 月 27 日に第 3 回(通算第 23 回)を開催し、研究計画及び研究結果についてレビューを受けた。