

# NRA 技術ノート

NRA Technical Note Series

## 商用再処理施設の除染作業における機器の劣化に関する留意点

— 異材接合継手のアルカリ腐食による水素脆化 —

Points of attention to prevent deterioration of components due to decontamination works in commercial fuel reprocessing facilities

— Hydrogen embrittlement caused by alkaline corrosion of explosive bonded joints —

野島 康夫 山口 晃範 古田 昌代

NOJIMA Yasuo, YAMAGUCHI Akinori, and FURUTA Masayo

システム安全研究部門

Division of Research for Reactor System Safety

原子力規制庁

長官官房技術基盤グループ

Regulatory Standard and Research Department,  
Secretariat of Nuclear Regulation Authority (S/NRA/R)

令和4年9月  
September 2022

本報告は、原子力規制庁長官官房技術基盤グループが行った安全研究等の成果をまとめたものです。原子力規制委員会は、これらの成果が広く利用されることを期待し適時に公表することとしています。

なお、本報告の内容を規制基準、評価ガイド等として審査や検査に活用する場合には、別途原子力規制委員会の判断が行われることとなります。

本報告の内容に関するご質問は、下記にお問い合わせください。

原子力規制庁 長官官房 技術基盤グループ システム安全研究部門  
〒106-8450 東京都港区六本木 1-9-9 六本木ファーストビル  
電 話：03-5114-2223  
ファックス：03-5114-2233

## 商用再処理施設の除染作業における機器の劣化に関する留意点 －異材接合継手のアルカリ腐食による水素脆化－

原子力規制庁 長官官房技術基盤グループ  
システム安全研究部門

野島 康夫 山口 晃範 古田 昌代

### 要 旨

Ta 製部材を使用した化学プラントにおいて、熱処理により供用中の Ta 製部材の水素脆化割れ防止の管理を行っている事例が報告されている。商用再処理施設に設置されている Zr/Ta/R-SUS304ULC の異材接合継手については、水素拡散、集積挙動及び水素化物の析出挙動に関する計算機シミュレーション解析による研究により、水素脆化が起こった場合にも 100°C (373 K) 程度の加熱処理によって回復する可能性があることが報告されている。しかし、異材接合継手における水素脆化の回復に関する実験的検証は行われていない。そこで、水素チャージし加熱処理した Zr/Ta/R-SUS304ULC 異材接合材試験片の引張試験を委託研究により実施し、試験の異材接合継手が化学除染に伴うアルカリ腐食により水素脆化した場合の回復手段としての加熱処理の有効性を調べた。その結果、極微量の水素をチャージした条件であっても、80 °C の温水による加熱処理では水素脆化の回復を期待できないことが確認された。これを踏まえ、アルカリ性の除染溶液を用いた除染作業を計画する際には、アルカリ溶液を用いた除染作業における異材接合継手の水素脆化を防止するために、事前に除染溶液による水素脆化割れの可能性を確認するための引張試験を製造ロットの異なる多数の異材接合継手相当材試験片を用いて実施しておくことが必要であることを示した。

なお、本技術ノートは、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構に委託した原子力施設等防災対策等委託費（商用再処理施設の経年変化に関する研究）事業（平成 31 年度～令和 2 年度）を通じて、国立大学法人九州工業大学が実施した試験の成果の一部と既往の研究成果に基づいて作成したものである。

Points of attention to prevent deterioration of components due to decontamination works  
in commercial fuel reprocessing facilities  
— hydrogen embrittlement caused by alkaline corrosion of explosive bonded joints —

NOJIMA Yasuo, YAMAGUCHI Akinori, and FURUTA Masayo  
Division of Research for Reactor System Safety,  
Regulatory Standard and Research Department,  
Secretariat of Nuclear Regulation Authority (S/NRA/R)

Abstract

In chemical plants using tantalum (Ta) components, it has been reported that management measures are taken to prevent hydrogen embrittlement cracking in such components by heat treatment for dehydrogenation. Previous research with computer simulation analysis on hydrogen diffusion, its accumulation behavior, and precipitation behavior of hydrides in explosive bonded joints made of Zr/Ta/stainless steel installed in commercial fuel reprocessing facilities has reported that hydrogen embrittlement of such joints may be restored by post-bond heat treatment at about 373 K, but experimental verification has not been performed. The purpose of this NRA Technical Note is to experimentally verify the effectiveness of heat treatment as a measure to restore hydrogen embrittlement of explosive bonded joints used in Japanese commercial reprocessing facilities caused by alkaline corrosion from chemical decontamination works, and to derive the points of attention to prevent deterioration of components due to decontamination works. We conducted simple tensile tests using test specimens of hydrogen-charged materials used for explosive bonded joints under various heat treatment conditions. The results showed that restoration of hydrogen embrittlement may not be expected by heat treatment using hot water at 80 °C, even in the cases where a very small amount of hydrogen was charged. Therefore, we evaluated the test results with reference to the previous research results, and suggest that it is necessary to carry out a tensile test using a large number of test specimens made from different production lots in advance in order to prevent hydrogen embrittlement cracking caused by the decontamination solution, when an alkaline solution is to be used during decontamination works.

This technical note was based on part of the research done by the Japan Atomic Energy Agency (JAEA) under the auspices of the Nuclear Regulation Authority (FY2019 to FY2020), especially, the experiments conducted by Kyushu Institute of Technology as a subcontractor of the JAEA.

## 目 次

1. 序論	1
2. 試験方法	4
2.1 供試材及び試験片	4
2.2 試験条件	5
2.2.1 水素チャージ条件	5
2.2.2 水素チャージ後の熱処理条件	6
2.2.3 引張試験条件	7
2.2.4 水素含有量の測定条件	7
3. 試験結果	8
3.1 水素未チャージで熱処理をしていない試験片の引張試験結果及び Ta 部の水素含有量	8
3.2 NaOH 溶液浸漬により水素チャージした試験片の引張試験結果及び Ta 部の水素含有量	9
3.2.1 熱処理が破断形態に及ぼす影響	9
3.2.2 熱処理が接合界面での水素拡散に及ぼす影響	9
3.3 電気化学的に水素チャージした試験片の引張試験結果及び Ta 部の水素含有量	10
3.3.1 熱処理が破断形態に及ぼす影響	10
3.3.2 熱処理が接合界面での水素拡散に及ぼす影響	11
4. 考察	20
4.1 異材接合継手の延性回復に対する熱処理の有効性	20
4.1.1 破断形態による有効性の確認	20
4.1.2 Ta 部の残留水素量の減少挙動による有効性の確認	20
4.2 供用中の異材接合継手の機械的特性に影響を及ぼす可能性が高くなる水素含有量	21
4.3 化学除染時の異材接合継手の維持管理	21
4.3.1 熱処理による異材接合継手の維持管理の可能性	21
4.3.2 異材接合継手の水素脆化防止のための管理方法	22
5. 結論	23
5.1 熱処理の有効性の検証	23
5.2 除染作業における水素脆化防止に関する留意点	24

参考文献一覽 .....	26
執筆者一覽 .....	28

## 表 目 次

表 3.1	NaOH 溶液浸漬により水素チャージした異材接合材試験片の引張試験の結果 .....	10
表 3.2	電気化学的に水素チャージした異材接合材試験片の引張試験の結果 .....	12

## 目 次

図 2.1	研磨前の R-SUS304ULC/Ta/Zr 異材接合材試験片の外観.....	5
図 2.2	異材接合材試験片の NaOH 溶液浸漬試験において得られた昇温脱離水素 分析曲線.....	8
図 2.3	引張試験装置に取り付けられた試験片の概要図.....	8
図 3.1	水素未チャージで熱処理をしていない異材接合材試験片の応力-ひずみ曲線 及び破断箇所の外観.....	9
図 3.2	NaOH 浸漬により水素チャージした異材接合材試験片の応力-ひずみ曲線 及び破断箇所の外観（浸漬時間：168 h、加熱温度：80 °C、200 °C）.....	13
図 3.3	電気化学的に水素チャージした異材接合材試験片の応力-ひずみ曲線及び 破断箇所の外観（チャージ時間：10 min、加熱温度：80 °C）.....	14
図 3.4	電気化学的に水素チャージした異材接合材試験片の応力-ひずみ曲線 及び破断箇所の外観（チャージ時間：10 min、加熱温度：200 °C）.....	15
図 3.5	電気化学的に水素チャージした異材接合材試験片の応力-ひずみ曲線 及び破断箇所の外観（チャージ時間：10 min、加熱温度：300 °C）.....	16
図 3.6	電気化学的に水素チャージした異材接合材試験片の応力-ひずみ曲線 及び破断箇所の外観（チャージ時間：1 h、加熱温度：80 °C）.....	17
図 3.7	電気化学的に水素チャージした異材接合材試験片の応力-ひずみ曲線 及び破断箇所の外観（チャージ時間：1 h、加熱温度：200 °C）.....	18
図 3.8	電気化学的に水素チャージした異材接合材試験片の応力-ひずみ曲線 及び破断箇所の外観（チャージ時間：1 h、加熱温度：300 °C）.....	19



## 用語の定義

電気化学的な水素チャージ	カソード（陰極）チャージ法とも呼ばれ、溶液中に試験片と対極を浸漬し、試験片を陰極として水の電気分解を行うことにより、試験片表面を水素環境に暴露させ、試験片に水素をチャージすること。溶液の種類、電流密度等の制御によって目標の水素量を短時間でチャージしやすい。
脆性的に破断	本技術ノートにおいては、引張試験において、急に耐力を失い、降伏点に達する前あるいは降伏点付近で、その材料の引張強さよりも小さい応力で、ほとんど塑性変形を生じず破断することを「脆性的に破断」としている。
延性的に破断	本技術ノートにおいては、引張試験において、引張強さに達した後に、十分に塑性変形して破断することを「延性的に破断」としている。

## 1. 序論

使用済核燃料再処理施設（以下「再処理施設」という。）においては、約 110 °C で、強力な酸化剤である硝酸（以下「HNO<sub>3</sub>溶液」という。）により使用済燃料を溶解し、有機溶媒により当該溶解液からウラン及びプルトニウムの抽出を行う。主要な機器のプロセス溶液には HNO<sub>3</sub> 溶液とともに使用済燃料から溶解した核分裂生成物等が含まれており、溶解した核分裂生成物等の中には腐食を加速する金属イオンが存在することから、施設内の機器は過酷な腐食環境にさらされる。国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（以下「原子力機構」という。）の再処理施設においては HNO<sub>3</sub> 溶液に対して耐食性に優れたオーステナイト系ステンレス鋼が主として使用されてきたが、腐食環境の厳しい沸騰 HNO<sub>3</sub> 溶液条件下等で使用される一部の機器では材料の腐食による放射性物質の漏えいのトラブルを経験してきた<sup>1,2</sup>。そこで、我が国の商用再処理施設（以下「六ヶ所再処理施設」という。）では、常圧沸騰状態で 2 mol/L 以上の HNO<sub>3</sub> 溶液を取り扱う機器の材料として、さらに耐食性に優れたジルコニウム（以下「Zr」という。）が使用されている<sup>3</sup>。

オーステナイト系ステンレス製機器と Zr 製機器の接合部には、耐硝酸腐食性を考慮し通常のオーステナイト系ステンレス鋼 SUS304L よりも炭素含有量をさらに低くした R-SUS304ULC（以下「R-SUS304ULC」という。）製の配管と Zr 製機器の配管との間にはタンタル（以下「Ta」という。）を挟んで爆薬の爆発力を利用して圧着した異材接合継手が使用されている<sup>4</sup>。

化学プラントにおける Ta 製部材の破損は水素脆化による割れが多く、Ta 自身の腐食によって、または接触している炭素鋼やステンレス鋼などの腐食（Ta は腐食せずカソードとなって水素を吸収する。）によっても起きるので注意すべき現象として知られている<sup>5</sup>。中原は<sup>6</sup>、高温の硫酸含有環境で使用した Ta 製温度計保護管の割れ事例について検討し、Ta 中に約 300 mass ppm 以上の水素を吸収した場合に割れが発生していること、312 mass ppm の水素を吸収した Ta 製部材（温度計保護管）では約 800 °C（1073 K）以上の温度で 1 時間の真空熱処理を施すことにより脱水素が可能であり、これにより Ta 部材の機械的特性が回復することが明らかになったこと、並びにこの方法を用いた供用中の Ta 部材の維持管理方法を報告している。一方、旧科学技術庁は平成 3 年度から平成 11 年度までに、一般社団法人日本溶接協会（以下「日本溶接協会」という。）に異材接合継手の安全性実証試験<sup>7</sup>を委託している。同試験を実施した才田らは<sup>8-10</sup>、水素脆化機構について検討するために、電気化学的に強制的に水素チャージした異材接合材試験片を用いて Zr の水素化物析出挙動を調査し、水素化物あるいは水素化物と Zr 母相の界面で割れが生じている様子を直接観察するとともに、計算機シミュレーションによる検討も行った。これらの結果から異材接合継手の Ta/Zr 界面における水素脆化は、爆発接合前の Ta 素材中に含有していた水素が接合後 Zr 側に拡散・集積し、Ta/Zr 接合界面近傍の Zr 中において Zr 水素化物（以下、才田らの論文<sup>8-10</sup>と同様に「ZrH」と表記する。）を形成することにより生じるものと推察されたことを報告している。

また、才田ら<sup>10</sup>は、爆発接合後の Ta/Zr 界面における水素濃度分布及び ZrH の析出状況を計

算した。その結果、Ta中の初期水素量が10 mass ppm<sup>(注)</sup>、Zr中の初期水素量が5 mass ppmの条件では、接合界面での水素集積は、常温放置(約20 °C (293 K))の場合には最大1100 mass ppmを越えるが、接合後熱処理することで水素集積が360 mass ppm程度にまで低下することが予測された。また、Ta/Zr界面近傍のZr側の水素濃度が最大値を迎える時間も大幅に短時間側に移行した。さらに、シミュレーション条件範囲では、常温放置の場合にはZrH析出数は時間経過に伴い増加し続けるが、約100 °C (373 K)の接合後熱処理を施した場合は、約0.8 h (約3 ks)以上の加熱時間においてZrH析出数は減少に転じ、加熱時間が約4.4 h (約16 ks)でZrHが完全に消失する結果を得ており、接合後熱処理によりTa/Zr接合界面での水素拡散集積及び水素化物析出は大幅に抑制あるいは解消できることが明らかとなったとしている。また、これらの解析結果からTa/Zr接合界面の水素脆化は、約100 °C (373 K)程度の接合後熱処理によって抑制でき、短時間で完全に消失できる可能性が示唆されたとしている。ただし、実験的検証が今後の課題であることを報告している。

さらに、才田らは<sup>9</sup>、異材接合継手の水素脆化に対する施工健全性について検討するために、水素量と作用応力を評価指標として水素脆化割れ試験を実施し、標準的な爆発接合条件(爆薬量 6.0 kg/m<sup>2</sup>)では、割れが発生しない接合前のTa部の水素含有量は8 mass ppm以下であり、10 mass ppmより多くなると、水素脆化割れが発生する可能性が非常に高いことを報告している。前述の中原が<sup>6</sup>、Ta中に約300 mass ppm以上の水素を吸収した場合に割れが発生していると報告している化学プラントのTa製部材の事例と比較して、この才田らの報告は<sup>9</sup>、TaをR-SUS304ULCとZrの爆発接合のインサート材として使用した異材接合継手の水素脆化感受性が著しく高いことを示している。日本溶接協会の異材接合部耐食安全性実証試験総合報告書<sup>7</sup>には「爆発接合部を、水素を吸蔵する環境下に積極的にさらしたりした場合には、接合界面のZr側において水素に起因した剥離割れや脆化割れの発生が危惧される。」こと及び「使用環境や製作時の環境は多様であり、実際の使用に当たってはZr/Ta/SUS304ULC接合部が高い水素脆化感受性を有することを考慮して、使用環境や製造方法には十分な配慮が必要といえる。」ことが記載されている。

再処理施設では、使用済核燃料からウラン及びプルトニウムなどの核燃料物質を回収する際に、使用済核燃料を非密封で取り扱うため、主要な機器及び配管類は放射性核種により汚染されている。このため、機器等を維持するための点検又は補修作業を行う場合には作業員の被ばくを低減するために除染作業が必要となる。再処理施設においては除染試薬として、HNO<sub>3</sub>溶液及び水酸化ナトリウム溶液(以下「NaOH溶液」という。)が使用されている<sup>11</sup>。六ヶ所再処理施設においても除染作業への利用を目的にNaOH溶液が保管されている<sup>12</sup>。しかし、アルカリ水溶液中ではR-SUS304ULCとZrは耐食性に優れるが、Taは耐食性に劣ることが知られている<sup>13</sup>。また、原子力機構は原子力規制庁が委託した研究の中で、0.3、1及び3 mol/L NaOH溶液に室温で24 h浸漬させたR-SUS304ULC、Ta及びZrで構成され

---

(注) 本報告において示す水素含有量の単位が才田らの報告と一致しない場合があるが、本報告で使用する単位が正しいことを確認している私信(2022年4月28日)。

る異材接合材試験片のTa部の水素濃度及び未浸漬の異材接合材試験片のTa部の水素含有量の測定を行い、NaOH濃度の増加とともに水素含有量が増加することを報告している<sup>14</sup>。前述の日本溶接協会の報告<sup>7</sup>を踏まえれば、異材接合継手のTa部のアルカリ腐食により水素が発生するような条件（濃度、液温）でNaOH溶液を用いた化学除染を行う場合には、それにより水素脆化割れが発生することが懸念される。

核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律（昭和三十二年法律第百六十六号）（再処理施設の維持）第四十六条の二に基づき、再処理事業者は再処理施設の性能が原子力規制委員会規則で定める技術上の基準に適合するようにその再処理施設を維持することが義務づけられている。また、再処理施設の技術基準に関する規則（令和二年原子力規制委員会規則第九号）第十七条第一項第二号イにおいては、以下のとおり規定されており、再処理施設の技術基準に関する規則の解釈（令和2年2月5日 原規規発第2002054号-4 原子力規制委員会決定）によれば、第1項第2号イの「全体的な変形を弾性域に抑えること」とは、構造上の全体的な変形を弾性域に抑えることに加え、材料の引張り強さに対しても十分な構造強度を有することをいう、とされている。

しかし、異材接合継手が水素脆化すると材料の引張り強さに対して十分な構造強度を確保できず、材料が降伏するまでの弾性域において破損する可能性がある。

（材料及び構造）

第十七条 安全機能を有する施設に属する容器及び管並びにこれらを支持する構造物のうち、再処理施設の安全性を確保する上で重要なもの（以下この項において「容器等」という。）の材料及び構造は、次に掲げるところによらなければならない。この場合において、第一号及び第三号の規定については、法第四十六条第二項に規定する使用前事業者検査の確認を行うまでの間適用する。

一 （略）

二 容器等の構造及び強度は、次に掲げるところによるものであること。

イ 設計上定める条件において、全体的な変形を弾性域に抑えること。

ロ・ハ （略）

三 （略）

2 （略）

そこで、才田ら<sup>10</sup>の異材接合継手の接合後熱処理に関する計算機シミュレーションによる解析結果報告を踏まえ、加熱処理が応力-ひずみ曲線及び破断形態に及ぼす影響に関する委託研究<sup>15,16</sup>を実施し、NaOH溶液を使用した異材接合継手の化学除染において、除染後に同継手を加熱することにより同継手の水素脆化割れを防止できる可能性を実験的に確認した。本技術ノートにおいては、当該実験結果を才田ら<sup>8-10</sup>の水素脆化メカニズムに関する研究成果を踏まえて考察し、異材接合継手の水素脆化防止の観点から、アルカリ溶液を用い

た除染作業を行う際に留意すべき点について検討を行った。

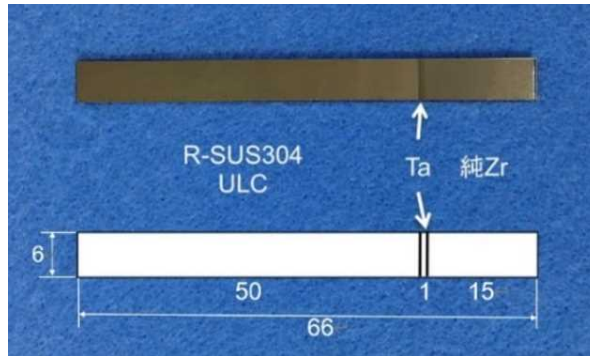
なお、本技術ノート<sup>2</sup>の2章及び3章は、原子力規制庁の加工施設及び再処理施設の内部火災等に関するリスク評価手法に関する研究<sup>17</sup>の一部として原子力規制庁が原子力機構に委託した原子力施設等防災対策等委託費（商用再処理施設の経年変化に関する研究）事業（平成31年度～令和2年度）を通じて、国立大学法人九州工業大学（以下「九州工業大学」という。）が実施した報告書<sup>15,16</sup>の一部に基づいて作成したものである。2章は、九州工業大学が委託研究において実施した試験<sup>15,16</sup>の方法を簡潔にまとめたものであり、試験条件の設定根拠を追記している。3章においては上記委託試験で実施した引張試験の結果及び水素含有量の測定結果を、熱処理の有効性を確認するために整理している。

## 2. 試験方法

試験<sup>15,16</sup>では、異材接合継手の水素脆化回復のための熱処理の有効性を確認するため、除染作業を模擬した条件として、NaOH溶液に浸漬し水素チャージした異材接合材試験片を用いて浸漬直後に引張試験を実施し、破断形態を確認するとともに、浸漬後に更に熱処理を行った場合について引張試験を実施し、破断形態に及ぼす影響を調査した。また、加熱温度及び加熱時間の影響をより詳細に確認するために、室温で電気化学的に水素チャージした異材接合継手材試験片を用いて、これらのパラメータを変えながら引張試験を実施した。

### 2.1 供試材及び試験片

本試験<sup>15,16</sup>で用いた試料は規格<sup>18</sup>に基づき爆着接合法により製作された実機相当のR-SUS304ULC/Ta/Zr異材接合材である。試験片は板状であり、全長は約66 mm（R-SUS304ULC部：約50 mm、純Ta部：約1 mm、Zr部：約15 mm）、板幅は約6 mm、板厚は約1 mmである。研磨前の試験片の外観を図2.1に示す。才田ら<sup>19</sup>は、異材接合継手は湿式で研磨すると水素脆化割れが発生し、研磨時間の増加に伴い拡大することを報告しているため、表面を600番のSiC研磨紙を用いて乾式で表面仕上げした後、5分間アセトン洗浄を行ったものを水素チャージに供した。



出典) 九州工業大学 (2020) <sup>15</sup>

図 2.1 研磨前の R-SUS304ULC/Ta/Zr 異材接合材試験片の外観 (単位 : mm)

Fig. 2.1 Photo of an explosive bonded materials test specimen made of zirconium, tantalum and R-SUS304ULC stainless steel before polishing (unit: mm)

## 2.2 試験条件

### 2.2.1 水素チャージ条件

本試験<sup>15, 16</sup>では2つの水素チャージ法を用いた。ひとつはNaOH溶液浸漬であり、除染作業を模擬した条件での延性回復を確認する試験に用いた。もうひとつは、電気化学的な水素チャージ法である。この方法では水素チャージ量を多くすることができるとともに、チャージする水素量の制御が比較的容易であり、脆性的な破断から延性的な破断に遷移する領域を詳細に評価する試験に適用した。

#### (1) NaOH溶液浸漬により水素チャージする試験片

再処理施設の運転中は異材接合継手には高放射性のプロセス溶液が流れており、同継手は運転停止中であっても放射性物質により汚染されているため、作業員の放射線被ばく防止の観点から作業員が熱処理のために直接同継手にアクセスすることは困難である。しかし、簡易な熱処理方法として同継手の上流側の加熱機器を利用して水を沸騰温度に近い温度まで加熱して供給することが可能と考えられる。また、同様の方法で除染溶液も加熱することも可能と考えられる。腐食反応の速さは、反応に関わる物質の濃度と反応速度式の数値定数に比例し、速度定数は活性化エネルギーと温度に依存することから、NaOH溶液浸漬により水素チャージ量を多くし、熱処理による延性回復の有効性を確認しやすくするためにはNaOH溶液の濃度と液温を高くすることが必要である。そこで、NaOH溶液浸漬により水素チャージする試験片の浸漬条件は、液温を80 °Cとし、NaOH溶液の濃度は異材接合継手が使用されている六ヶ所再処理施設のZr製機器の使用環境<sup>3</sup>を参考に7 mol/Lとした。浸漬時間については、除染期間は機器の汚染状況によりさまざまであり、原子力機構の再処理施設においては除染期間が約3ヶ月間となったとの報告<sup>11</sup>もあるが、才田ら<sup>10</sup>の異材接合継手の接合後熱処理に関する計算機シミュレーションによる解析結果報告を踏まえると、浸漬時間を長時間とすれば浸漬中にTa部からZr部側に拡散する水素量も増え、浸漬後の熱

処理による水素脆化割れの防止効果が確認しにくくなると考え、168 h (1週間) とした。

浸漬後は試験片表面に析出した腐食生成物を取り除くために、600番のSiC研磨紙を用いて乾式で数 $\mu\text{m}$ 程度研削した後、5 minアセトン洗浄を行った。

## (2) 電気化学的に水素チャージする試験片

電気化学的に水素チャージする試験片については、熱処理により延性が回復することを確認するために、以下の2種類を作製した。

- 予備試験の結果に基づき、水素チャージ直後の引張試験では脆性的に破断すると見込まれるTa部に40 mass ppm程度の水素を含有する試験片 (以下「水素多量含有試験片」という。)
- 才田ら<sup>9</sup>が行った施工健全性の試験研究において水素脆化割れが発生する可能性が非常に高くなることを報告している領域を確認するための、Ta部に10 mass ppm程度の水素を含有する試験片 (以下「水素少量含有試験片」という。)

水素チャージは電流密度を100 A/m<sup>2</sup>、チャージ温度を25 °C、溶液を0.9 wt% NaCl水溶液で行うこととし、水素チャージ時間は、目標の水素含有量となるように、水素多量含有試験片は1 hとし、水素少量含有試験片は10 minとした。チャージ後は、600番のSiC研磨紙を用いて乾式で表面仕上げした後、5 minアセトン洗浄を行った。

### 2.2.2 水素チャージ後の熱処理条件

水素チャージした試験片の熱処理は定温乾燥機により大気中で行った。

実機における加熱方法としては、2.2.1(1)に記したとおり容易に実施できる方法として同継手の上流側の加熱機器を利用して沸騰温度に近い温水を供給し加熱する方法が想定される。本試験ではこの温度を80 °Cと設定したが、試験では、加熱温度の影響を調査するためにこの温度より高い温度での熱処理も行った。

木村ら<sup>20</sup>は、Taの機械的性質は他の体心立方金属の場合と同様C、N、Oなどの浸入型不純物元素によって大きな影響を受けること、Taの高温引張り強さについては多くの研究がなされているが、加工材及び再結晶焼鈍材のいずれの場合でも300 °C前後に強度伸びの不連続が認められ、この現象は浸入型不純物元素による歪時効に基づくものと考えられることを報告している。よって、300 °Cを上限としてNaOH溶液浸漬により水素チャージした試験片は80 °C及び200 °Cとし、電気化学的に水素チャージした試験片は80 °C、200 °C及び300 °Cとした。

なお、原子力機構は原子力規制庁が委託した研究の中で、0.3、1及び3 mol/L NaOH溶液に室温で24 h浸漬させたTa材試験片及びR-SUS304ULC/Ta/Zr異材接合材の水素含有量の測定を行っている<sup>14</sup>。昇温脱離ガス分析法 (Arガス雰囲気) により取得したTa材の水素放出曲線は、Taからの水素放出が約500 °Cから開始し、600 °C付近にピークがあることを示した。しかし、異材接合材試験片のNaOH溶液浸漬試験後に取得した昇温脱離水素分析曲線 (図

2.2) に示すとおり、水素を含有するR-SUS304ULC/Ta/Zr異材接合材の水素放出曲線はTa材とは異なり、600 °C付近にピークはなくこの温度よりも低温域に小さなピーク、高温域に大きなピークが存在した。ステンレス鋼及びZrの水素脆化に関する文献<sup>21, 22</sup>を参考に推定すると、SUS316Lは200 °C付近に、Zrは約630~730 °C (900~1000 K) 付近に水素の放出ピークがあり、前者のピークはR-SUS304ULC部からの水素放出であり、後者のピークはZr部からの水素放出であると考えられる。また、未浸漬のものと浸漬後を比較とすると、後者のZr部からの放出ピークは前者に比べて大きく増加している。よって、R-SUS304ULC/Ta/Zr異材接合材の場合には、室温から昇温し約500 °Cに達する前にTa部のアルカリ腐食によりTa部に吸収された水素の大部分がZr部側に拡散した可能性が考えられる。

加熱時間条件については、上限を2000 hまでとし、NaOH溶液浸漬により水素チャージした試験片の加熱時間を168 h、1000 h及び2000 h、電気化学的に水素チャージした試験片の加熱時間を24 h、168 h、1000 h及び2000 hとした。

### 2.2.3 引張試験条件

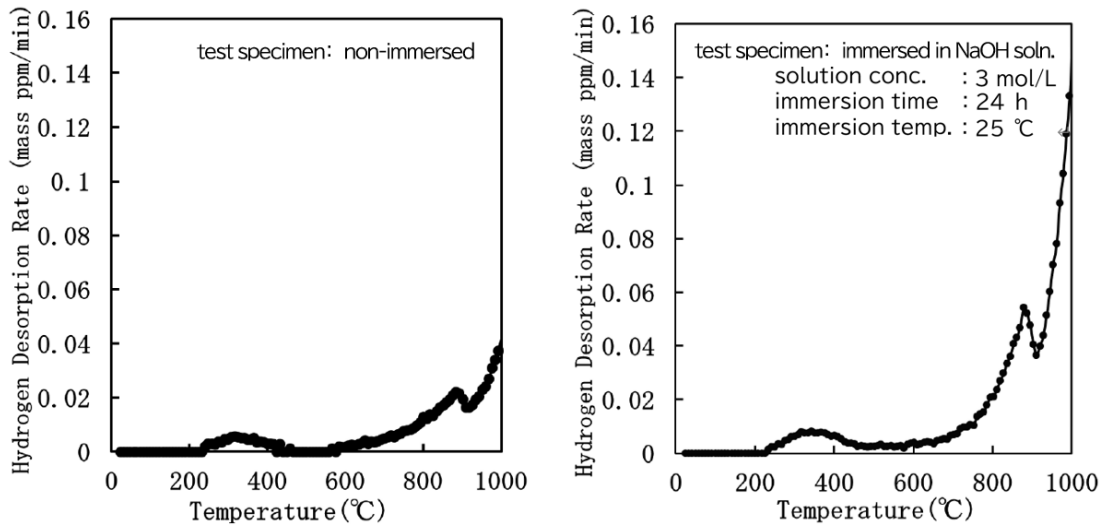
引張試験は、異材接合材試験片（以下、「試験片」という。）を600番のSiC研磨紙を用いて乾式で表面仕上げした後、5分間アセトン洗浄を行ったものを図2.3に示すように接合部が中心になるように試験機に取り付けた。試験片の平行部長さ10 mm（SUS部：4.5 mm、純Ta部：1 mm、純Zr部：4.5 mm）、板幅は約6 mm、板厚は約1 mmである。ひずみ速度を $8.33 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ （クロスヘッドスピード0.5 mm/min）とし、室温で実施した。

### 2.2.4 水素含有量の測定条件

Ta部の水素含有量は昇温脱離ガス分析法により実施し、測定条件は雰囲気をArガス中、昇温速度を100 °C/hとし、室温からTa部からの放出が概ね終了する650 °Cまでの放出水素量で評価した。

NaOH溶液浸漬により水素チャージした試験片及び電気化学的に1 h水素チャージした試験片については、引張試験後に試験片のTa部のみを精密切断機により切り出した後、測定した。電気化学的に10 min水素チャージした試験片については、水素含有量が非常に少ないために測定中のZr部側への拡散（Ta/Zr接合界面で破断した試験片の場合、Ta/Zr接合界面で脆性的に破断した試料から、SUS/Taの界面のTa側を切断し、Ta部分のみにした試料を水素分析する。この場合、Ta/Zr接合界面で破断した面にはZrが僅かに残っている可能性がある。）による影響を受けやすいと考え、引張試験に供せず破断していない10 min水素チャージ終了直後の試験片のTa部分のみを10 min以内に精密切断機を用いて切り出した後、測定した。なお、水素チャージしていない試験片については母材のZr部で延性的に破断するため切り出したTa部にZrが残っている可能性は少なく、引張試験後に試験片のTa部のみを精密切断機により切り出した後に測定した。

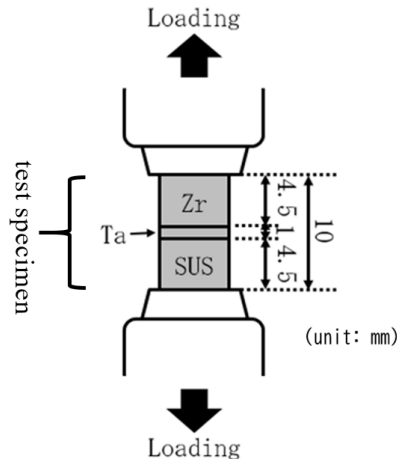




出典) 原子力機構 (2018) <sup>14</sup>

図2.2 異材接合材試験片のNaOH溶液浸漬試験において得られた昇温脱離水素分析曲線

Fig. 2.2 Hydrogen thermal desorption analysis curves obtained by conducting NaOH solution immersion experiments of R-SUS304ULC/Ta/Zr explosive bonded materials test specimens



出典) 九州工業大学 (2020) <sup>15</sup>

図2.3 引張試験装置に取り付けられた試験片の概要図

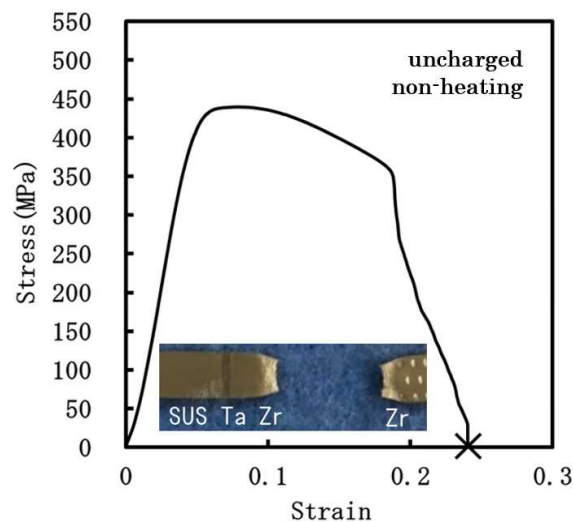
Fig. 2.3 Schematic view of specimen attached to tensile test equipment

### 3. 試験結果

#### 3.1 水素未チャージで熱処理をしていない試験片の引張試験結果及びTa部の水素含有量

水素未チャージで熱処理もしていない試験片の引張試験により得られた公称応力-公称ひずみ曲線を破断箇所の外観とともに図3.1に示す。試験片は、引張強さに達した後、塑性

変形を伴い延性的に破断し、破断部は母材のZr部であった。また、破断後のTa部の水素含有量は6.8 mass ppmであった。



出典) 九州工業大学 (2020) <sup>15</sup> (試験結果を整理)

図3.1 水素未チャージで熱処理をしていない異材接合材試験片の公称応力-公称ひずみ曲線及び破断箇所の外観

Fig. 3.1 Stress-strain diagram and photo of the fractured part for R-SUS304ULC/Ta/Zr explosive bonded materials test specimens without hydrogen charge and heat treatment

### 3.2 NaOH溶液浸漬により水素チャージした試験片の引張試験結果及びTa部の水素含有量

#### 3.2.1 熱処理が破断形態に及ぼす影響

NaOH溶液浸漬によるチャージ直後の試験片の引張試験により得られた公称応力-公称ひずみ曲線及びチャージ後に熱処理した試験片の引張試験により得られた公称応力-公称ひずみ曲線を、破断箇所の外観とともに図3.2に示す。80℃のNaOH溶液に168 h浸漬した直後に引張試験を行った場合、母材のZr部で延性的に破断した。168 h浸漬した後に80℃及び200℃の大気中で熱処理した試験片のうち、80℃で168 h熱処理した試験片のみが、Ta部とZr部の界面で脆性的に破断した。それ以外の条件（80℃で1000 h熱処理、200℃で168 h及び1000 h熱処理）では母材のZr部で延性的に破断した。なお、延性的に破断した試験片の最大引張強さ及び破断ひずみは水素未チャージで熱処理をしていない条件の試験片と比較して明確な違いは確認されなかった。

#### 3.2.2 熱処理が接合界面での水素拡散に及ぼす影響

各試験条件における引張試験後の破断モードを熱処理条件及びTa部の水素含有量の測定結果により整理し、表3.1に示す。Ta部の水素含有量は、加熱温度80℃の場合は、加熱時間168 hでは11.1 mass ppm、1000 hでは11.0 mass ppmであり、加熱前のTa部の水素含有量12.8 mass ppm及び13.0 mass ppmに比較して減少率は小さかった。一方、加熱温度200℃の場合

は、加熱時間168 hでは7.9 mass ppm、1000 hでは7.1 mass ppmであり、加熱前のTa部の水素含有量12.8 mass ppmに比較して減少率は大きかった。加熱温度が高くなればTa部の水素はZr部あるいはR-SUS304ULC部への拡散量が増加することを示唆している。さらに、図2.2に示す異材接合材試験片のNaOH溶液浸漬試験において得られた昇温脱離水素分析曲線から、拡散量はR-SUS304ULC側よりもZr側への方が多いと考えられる。

表 3.1 NaOH 溶液浸漬により水素チャージした異材接合材試験片の引張試験の結果  
Table 3.1 Results of tensile test using R-SUS304ULC/Ta/Zr explosive bonded materials specimens charged with hydrogen through immersion in NaOH solution

Test specimens before heat treatment (immersed for 168h at 80°C in 7M NaOH soln.)			Heat-treated test specimens			
			Heating temperature (°C)		Heating time (h)	
					168	1000
Conc.	12.8	13.0	80	Conc.	11.1	11.0
				Mode	×	○
Mode	○	○	200	Conc.	7.9	7.1
				Mode	○	○

Conc.: Average hydrogen concentration in Ta (mass ppm)

Mode: Fracture mode ○: Ductile fracture ×: Brittle fracture

RT: Room temperature

出典) 九州工業大学 (2021) <sup>16</sup> (試験結果を整理し、表に編集)

### 3.3 電気化学的に水素チャージした試験片の引張試験結果及びTa部の水素含有量

各試験条件における引張試験後の破断モードを熱処理条件及びTa部の水素含有量の測定結果により整理し、表3.2に示す。

#### 3.3.1 熱処理が破断形態に及ぼす影響

電気化学的に10 min水素チャージし、チャージ直後の試験片の引張試験により得られた公称応力-公称ひずみ曲線及びチャージ後にさらに80 °Cで熱処理した試験片の引張試験により得られた公称応力-公称ひずみ曲線を、破断箇所の外観とともに図3.3に示す。また、熱処理温度を200 °C及び300 °Cとした試験片の引張試験により得られた結果をそれぞれ図3.4と図3.5に示す。さらに、電気化学的に1 h水素チャージし、チャージ直後に80 °C、200 °C及び300 °Cで熱処理した試験片の引張試験の結果をそれぞれ図3.6から図3.8に示す。なお、NaOH溶液浸漬により水素チャージした試験片と同様に、延性的に破断した試験片の最大引張強さ及び破断ひずみは水素未チャージで熱処理をしていない条件の試験片と比較して明確な違いは確認されなかった。

10 min水素チャージした試験片(水素チャージ直後の水素含有量は9.9 mass ppm)の場合、熱処理しない条件では、母材のZr部で延性的に破断する場合と、Ta/Zr界面で脆性的に破断する場合があった。80 °Cで168 h加熱した試験片は、同じ加熱条件のNaOH溶液浸漬により

水素チャージした試験片（浸漬直後の水素含有量:12.8 mass ppm）と同様にTa/Zr界面で脆性的に破断する場合があります、同温度で2000 h加熱した試験片の場合にもTa/Zr界面で脆性的に破断する場合があります。しかし、200 °C及び300 °C加熱条件では熱処理後は母材のZr部で延性的に破断した。

なお、80 °C及び200 °C加熱条件での引張試験の結果は除染作業を模擬したNaOH溶液浸漬により水素チャージした試験片（水素チャージ直後の水素含有量は12.8及び13.0 mass ppm）の同じ加熱条件の引張試験の結果と概ね同じであった。

1 h水素チャージした試験片（水素チャージ直後の水素含有量は36.8 mass ppm）の場合、熱処理しない条件では塑性変形を伴わずTa/Zr界面で脆性的に破断している。この試験片を80 °C及び200 °Cでそれぞれ2000 h加熱してもTa/Zr界面で脆性的に破断している。しかし、加熱温度が300 °Cの場合には1000 h加熱した試験片について、塑性変形を伴い母材のZr部で延性的に破断した場合と、24 h、168 h加熱した場合と同様にTa/Zr界面で脆性的に破断した場合が確認され、2000 h加熱した試験片についてはTa/Zr界面での脆性的な破断ではなく母材のZr部での延性的な破断に変化した。

### 3.3.2 熱処理が接合界面での水素拡散に及ぼす影響

NaOH溶液浸漬により水素チャージした試験片よりも水素含有量が多い電気化学的に1 h水素チャージした試験片の場合、Ta部の水素含有量は熱処理前には36.8 mass ppmであったが、80 °C-2000 h加熱後には20.7 mass ppm、200 °C-2000 h加熱後には15.1 mass ppm、300 °C-2000 h加熱後には13.9 mass ppmと減少した。全体的にはNaOH溶液浸漬により水素チャージした試験片と同様に、加熱温度が高くなれば、水素チャージによってTa部に吸収された水素が熱処理によりZr部側に拡散する水素量が増加することが示唆された。ただし、加熱時間により影響に違いが認められ、80 °C条件では加熱時間1000 hまでは拡散は抑制されているが、300 °Cでは逆に1000 hまでに拡散が速やかに進行し、それ以降は緩慢となる傾向が示唆された。

なお、Ta部からZr部側への水素の拡散挙動は、才田ら<sup>10</sup>のシミュレーション解析に従えば、ジルコニウム水素化物の析出、成長及び溶解に影響し、水素拡散が活発であれば、脆化回復時期が早まると考えられる。

表 3.2 電気化学的に水素チャージした異材接合材試験片の引張試験の結果  
 Table 3.2 Results of tensile test using cathodic hydrogen-charged R-SUS304ULC/Ta/Zr explosive bonded materials test specimens

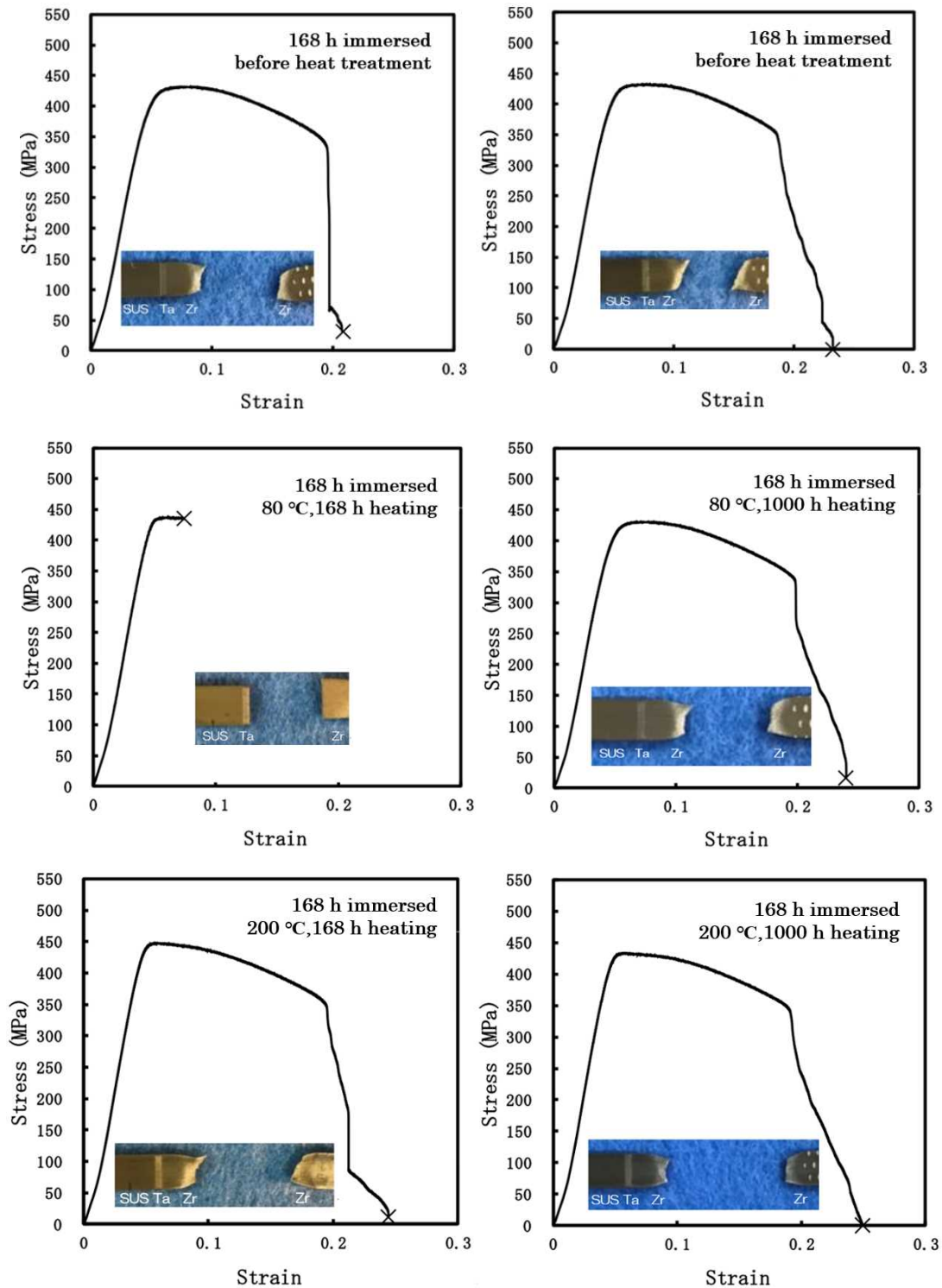
Test specimens before heat treatment	Heated test specimens						
	Heating temperature (°C)	Mode	Heating time (h)				
			24	168	1000	2000	
Conc.: 9.9 (RT, charged for 10min) Mode: ○, ×	80	Mode	○	×	○	×	
	200	Mode	○	○	○	○	
	300	Mode	○	○	○	○	
Conc.: 36.8 (RT, charged for 1h) Mode: ×	80	Conc.	32.8	-	38.6	20.7	
		Mode	×	×	×	×	
	200	Conc.	26.8	-	20.9	15.1	
		Mode	×	×	×	×	
	300	Conc.	19.8	-	7.2	14.7	13.9
		Mode	×	×	○	×	○

Conc.: Average hydrogen concentration in Ta (mass ppm) - : Unmeasured

Mode: Fracture mode ○: Ductile fracture ×: Brittle fracture

RT: Room temperature

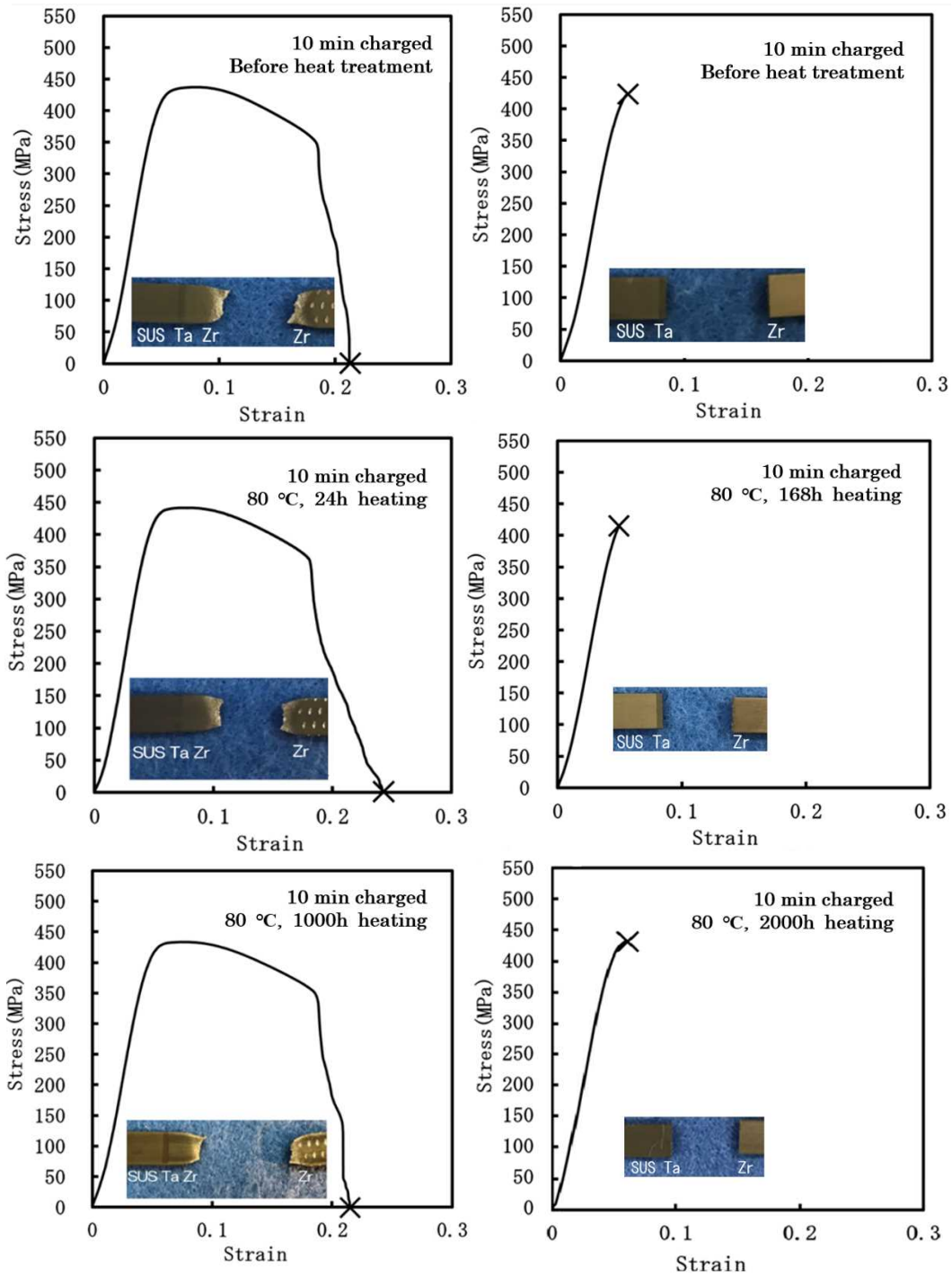
出典) 九州工業大学 (2020) <sup>15</sup> (試験結果を整理し、表に編集)



出典) 九州工業大学 (2021) <sup>16</sup> (試験結果を整理)

図 3.2 NaOH 浸漬により水素チャージした異材接合材試験片の公称応力-公称ひずみ曲線及び破断箇所の外観 (浸漬時間: 168 h、加熱温度: 80 °C, 200 °C)

Fig. 3.2 Stress-strain diagram and photo of the fractured part for R-SUS304ULC/Ta/Zr explosive bonded materials test specimens charged with hydrogen through immersion in NaOH solution. (immersion time : 168 h , heating temperature : 80 °C, 200 °C)

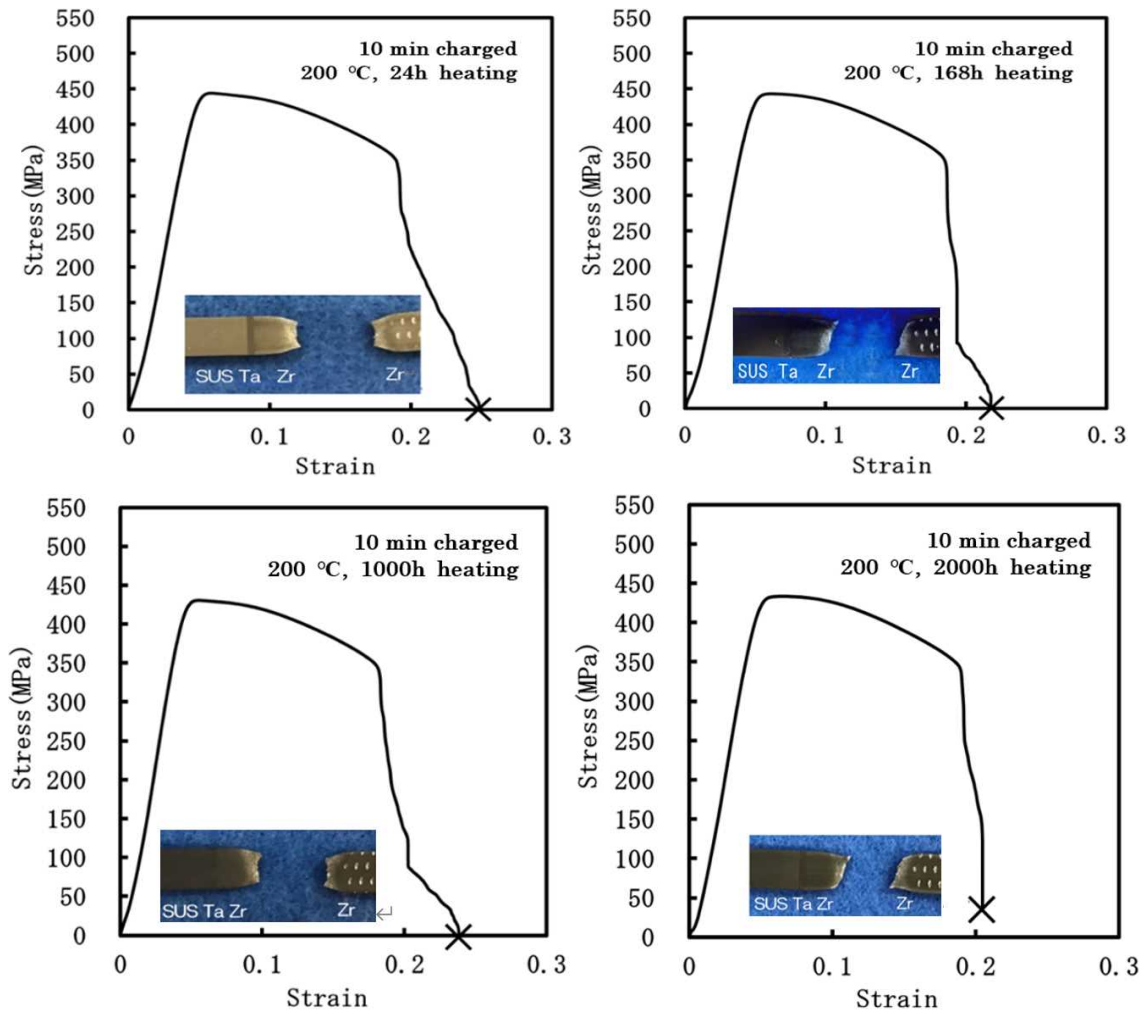


出典) 九州工業大学 (2020) <sup>15</sup> (試験結果を整理)

図 3.3 電気化学的に水素チャージした異材接合材試験片の公称応力-公称ひずみ曲線及び破断箇所の外観 (チャージ時間 : 10 min、加熱温度 : 80 °C)

Fig.3.3 Stress-strain diagram and photo of the fractured part for R-SUS304ULC/Ta/Zr explosive bonded materials test specimens with electrochemical hydrogen charge.

(hydrogen charging time : 10 min, heating temperature : 80 °C)



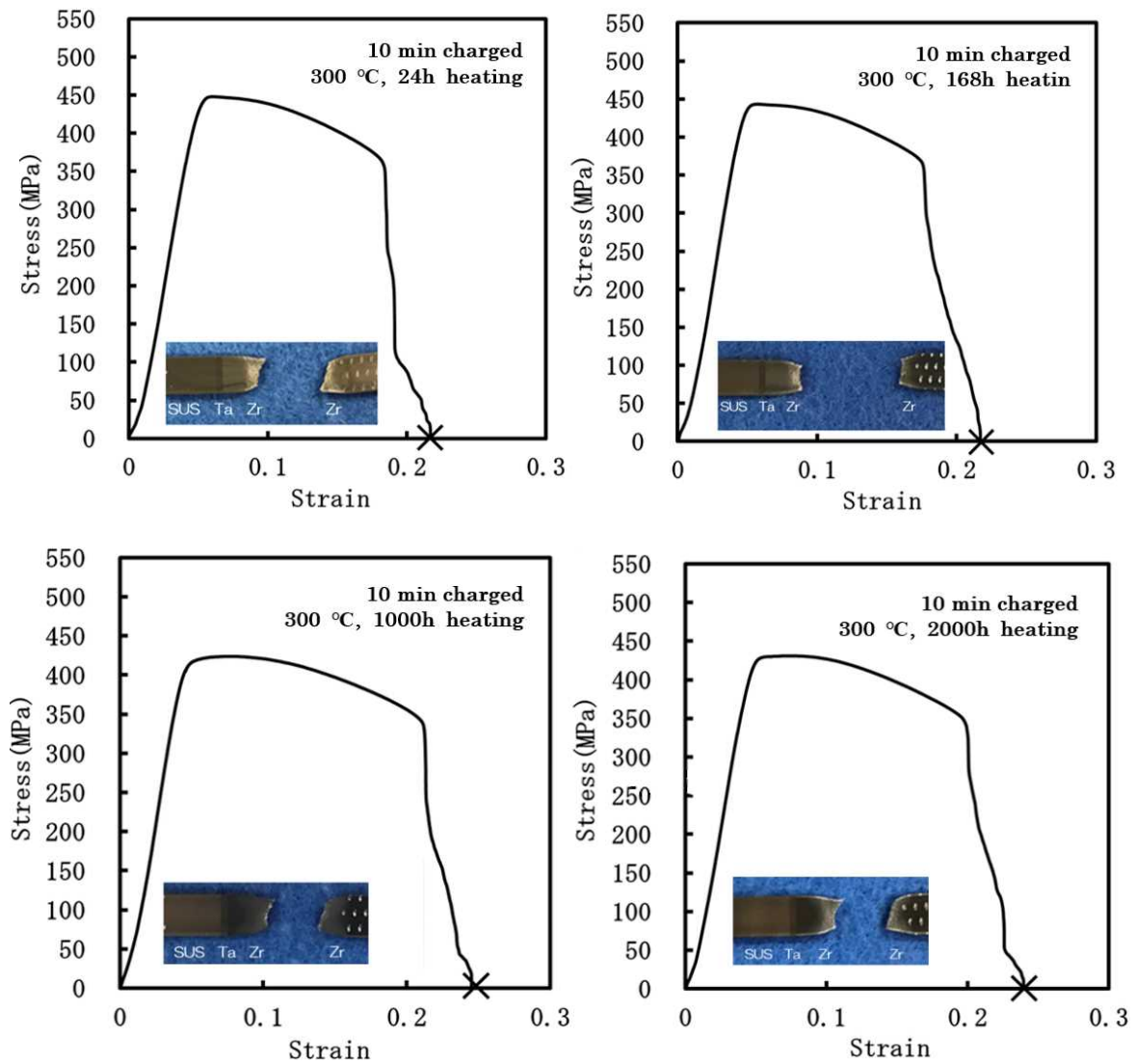
出典) 九州工業大学 (2020) <sup>15</sup> (試験結果を整理)

図3.4 電気化学的に水素チャージした異材接合材試験片の公称応力-公称ひずみ曲線及び破断箇所の外観 (チャージ時間: 10 min、加熱温度: 200 °C)

Fig.3.4 Stress-strain diagram and photo of the fractured part for R-SUS304ULC/Ta/Zr explosive bonded materials test specimens with electrochemical hydrogen charge.

(hydrogen charging time :10 min, heating temperature : 200 °C)

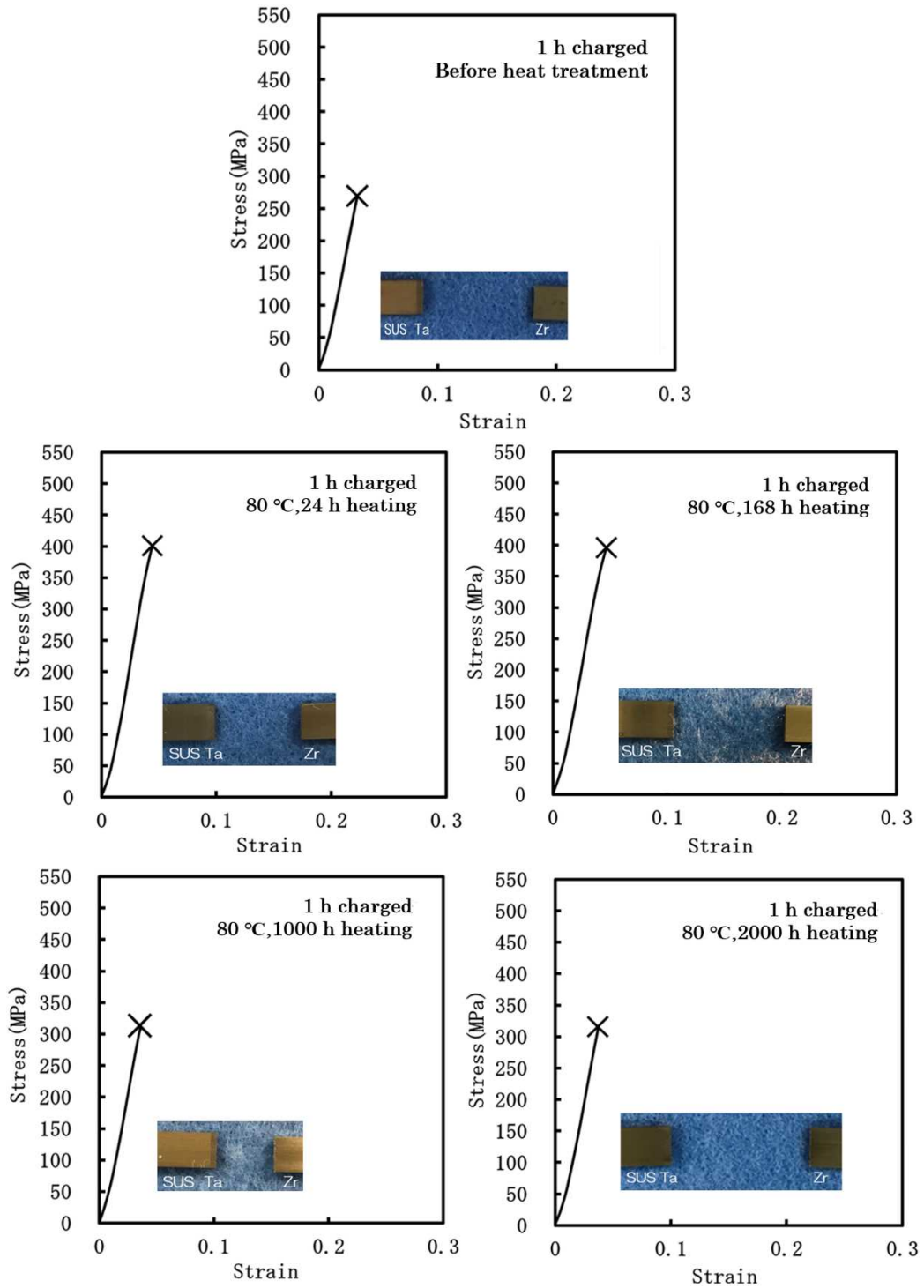




出典) 九州工業大学 (2020) <sup>15</sup> (試験結果を整理)

図 3.5 電気化学的に水素チャージした異材接合材試験片の公称応力-公称ひずみ曲線及び破断箇所の外観 (チャージ時間 : 10 min、加熱温度 : 300 °C)

Fig.3.5 Stress-strain diagram and photo of the fractured part for R-SUS304ULC/Ta/Zr explosive bonded materials test specimens with electrochemical hydrogen charge. (hydrogen charging time : 10 min, heating temperature : 300 °C)

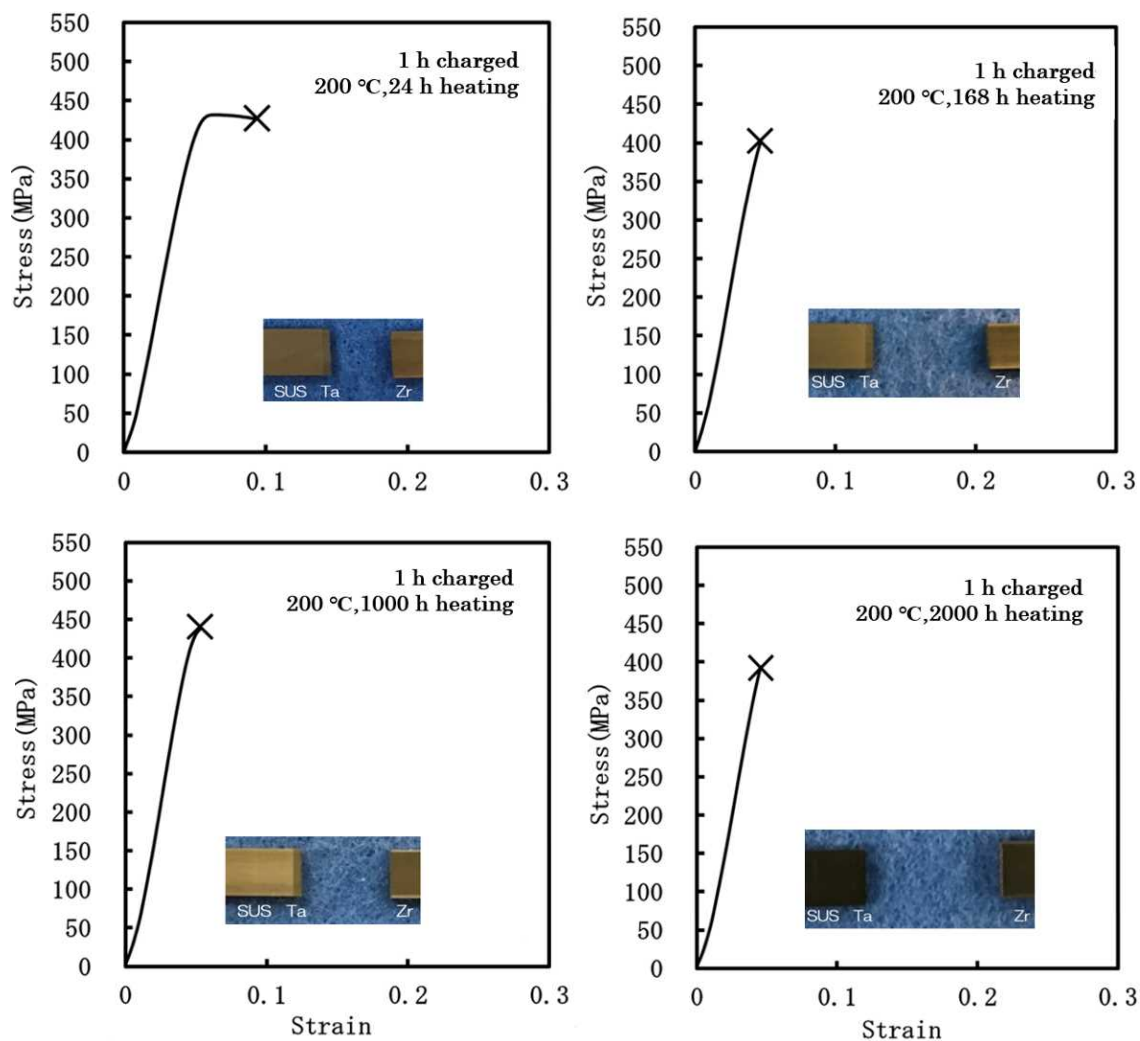


出典) 九州工業大学 (2020) <sup>15</sup> (試験結果を整理)

図 3.6 電気化学的に水素チャージした異材接合材試験片の公称応力-公称ひずみ曲線及び破断箇所の外観 (チャージ時間 : 1 h、加熱温度 : 80 °C)

Fig.3.6 Stress-strain diagram and photo of the fractured part for R-SUS304ULC/Ta/Zr explosive bonded materials test specimens with electrochemical hydrogen charge.

(hydrogen charging time : 1 h, heating temperature : 80 °C)

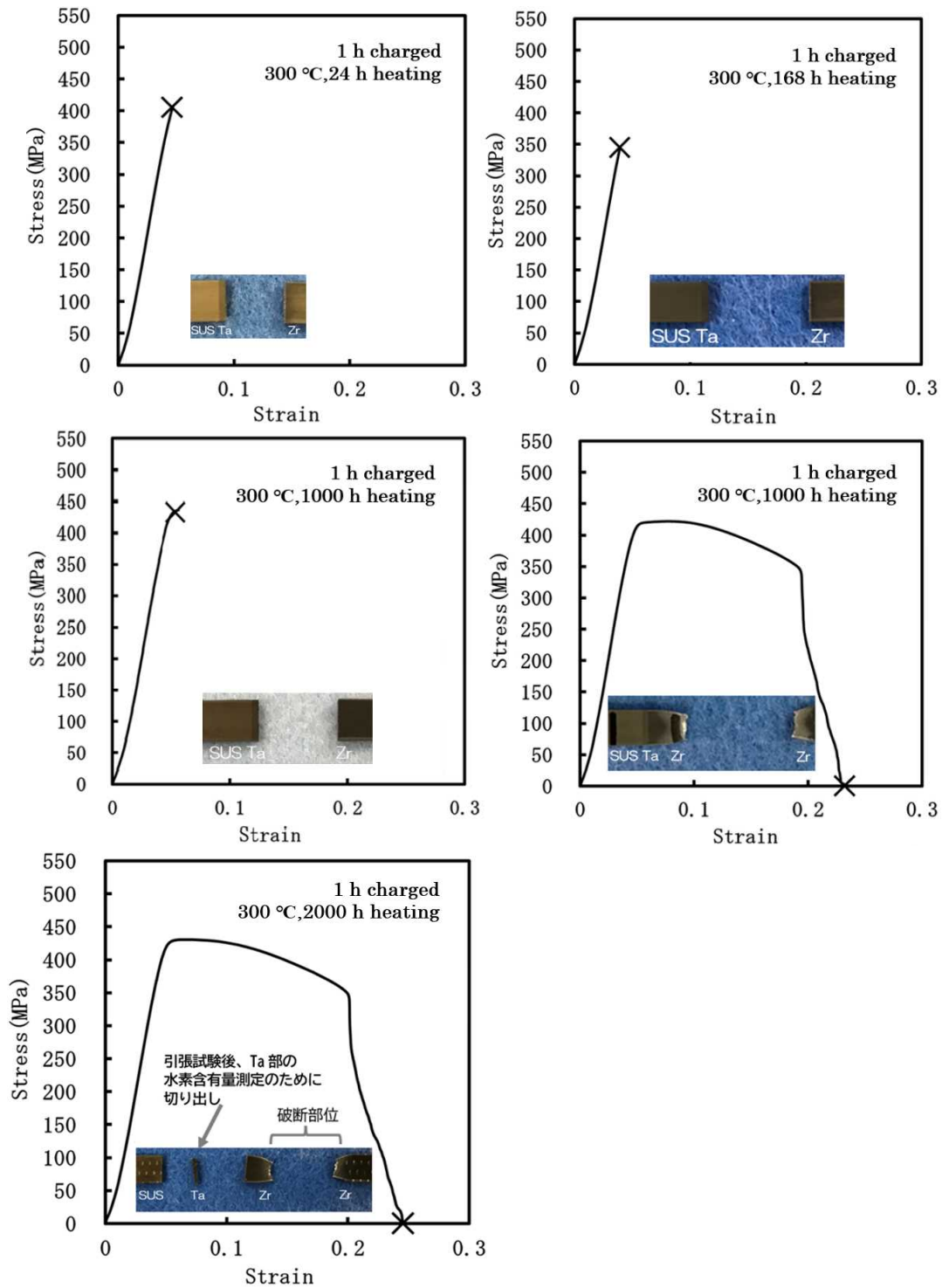


出典) 九州工業大学 (2020) <sup>15</sup> (試験結果を整理)

図 3.7 電気化学的に水素チャージした異材接合材試験片の公称応力-公称ひずみ曲線及び破断箇所の外観 (チャージ時間 : 1 h、加熱温度 : 200 °C)

Fig.3.7 Stress-strain diagram and photo of the fractured part for R-SUS304ULC/Ta/Zr explosive bonded materials test specimens with electrochemical hydrogen charge.

(hydrogen charging time : 1 h, heating temperature : 200 °C)



出典) 九州工業大学 (2020) <sup>15</sup> (試験結果を整理)

図 3.8 電気化学的に水素チャージした異材接合材試験片の公称応力-公称ひずみ曲線及び破断箇所の外観 (チャージ時間 : 1 h、加熱温度 : 300 °C)

Fig. 3.8 Stress-strain diagram and photo of the fractured part for R-SUS304ULC/Ta/Zr explosive bonded materials test specimens with electrochemical hydrogen charge.

(hydrogen charging time : 1 h, heating temperature : 300 °C)

## 4. 考察

### 4.1 異材接合継手の延性回復に対する熱処理の有効性

#### 4.1.1 破断形態による有効性の確認

電気化学的に水素チャージした直後の引張試験で脆性的に破断する水素多量含有試験片（チャージ直後の水素含有量：36.8 mass ppm）を用いて、破断形態を基にチャージ後の熱処理によるTa/Zr界面強度の回復の有効性の有無を確認した。委託研究<sup>15, 16</sup>の試験条件である加熱時間2000 hまでにTa/Zr界面で破断せずZr母材で延性的に破断することが確認できたのは加熱温度が300 °Cの場合だけであり、加熱時間については1000 h付近がTa/Zr界面での脆性的な破断からZr母材での延性的な破断に遷移する臨界時間と考えられる。

#### 4.1.2 Ta部の残留水素量の減少挙動による有効性の確認

破断形態の変化により延性回復が確認できた300 °Cで加熱した水素多量含有試験片（チャージ直後の水素含有量：36.8 mass ppm）のTa部の残留水素の減少は加熱温度80 °C及び200 °C条件に比較して著しく低減しており、才田ら<sup>10</sup>のシミュレーション解析と同様に、高温になることによりZrHの溶解が生じるとともに、水素拡散が活発になることにより、Ta部中に含有していた水素が短時間でZr部側の内部へ拡散・散逸するためと考えられる。

NaOH溶液浸漬により水素チャージした試験片のTa部に残留している水素量は、浸漬直後は12.8 mass ppm及び13.0 mass ppmであるが、200 °Cで加熱処理すると、加熱時間168 hで7.9 mass ppm、1000 hで7.1 mass ppmに減少している。水素未チャージで熱処理もしていない試験片のTa部中の水素含有量の測定値は6.8 mass ppmであることから、200 °C条件の場合に、1000 h経過するまでにNaOH溶液浸漬により試験片にチャージされた水素はほぼZr部側に拡散されたと考えられる。また、2000 h経過するまでに脆性的に破断することも確認されなかった。また、電気化学的に水素チャージした水素少量含有試験片（チャージ直後の水素含有量：9.9 mass ppm）も同様に、200 °C条件の場合には2000 h経過するまでに脆性的な破断が確認されていない。よって、Ta部中の初期の水素含有量が10 mass ppm程度である場合には、加熱温度200 °C条件では、成長したZrHの溶解が早期に生じ、熱処理が有効である可能性がある。

一方、才田ら<sup>10</sup>のシミュレーション解析において、ZrHの析出・成長の抑制が期待される温度条件（約100 °C）に近い80 °C条件でNaOH溶液浸漬により水素チャージ後に加熱処理した試験片のTa部に残留している水素量の減少量は僅かであった。このことは、水素チャージ後に2000 h加熱しても80 °CのNaOH溶液浸漬中も含めZrHの溶解がほとんど生じていない可能性が考えられ、しかも、水素チャージ直後では母材のZr部で延性的な破断していた試験片が168 h熱処理後にTa/Zr界面で脆性的に破断する場合もあったことから、この加熱温度条件の熱処理については有効性を確認できなかった。

才田ら<sup>10</sup>はシミュレーション解析において、約100 °CでのZr中の水素の固溶度を124.8 mass-ppmと設定（この固溶限の数値の出典なし）している。一方、J.J.Kearns<sup>23</sup>が報告して

いる固溶限と温度に関する相関関係のアレニウス式により100 °Cの固溶限を推算すると約0.9 mass-ppmであり、才田らは約140倍高く設定している。才田らの設定値はJ.J.Kearns<sup>23</sup>が報告している450 °CでのZr合金中の水素の固溶度（約120 mass-ppm）に相当しており、固溶限の設定を誤っている可能性がある。

固溶限が高ければTa/Zr界面近傍の水素濃度の減少も速やかに進展することになることから、80 °Cでの試験結果において熱処理の有効性が確認できなかったのは才田らのシミュレーション研究における固溶限の設定値が妥当でないことが要因として考えられる。

#### 4.2 供用中の異材接合継手の機械的特性に影響を及ぼす可能性が高くなる水素含有量

本試験では、電気化学的に水素チャージした水素少量含有試験片（チャージ直後の水素含有量：9.9 mass ppm）はチャージ直後の条件での引張試験では延性的に破断する場合と脆性的に破断する場合があります、加熱温度80 °C条件では168 h及び2000 h加熱後に脆性破断する場合がありますことが確認された。

1. において記したように、才田ら<sup>9</sup>は、接合前のTa部の水素含有量と応力を評価指標として選定し、異材接合継手の施工時における水素脆化割れ発生条件を調査する試験研究を行い、標準的な爆発接合条件（爆薬量 6.0 kg/m<sup>2</sup>）では、割れが発生しない接合前のTa部の水素含有量は8 mass ppm以下であり、10 mass ppmより多くなると、水素脆化割れが発生する危険性が非常に高いことがわかると報告している。

よって、電気化学的に水素チャージしたTa部中の水素含有量が9.9 mass ppmの試験片による引張試験の結果は、施工時と同様に供用中の異材接合継手においてもおおむねこの程度の水素含有量が延性的な破断から脆性的な破断に遷移する領域である可能性があることを示唆していると考えられる。

#### 4.3 化学除染時の異材接合継手の維持管理

##### 4.3.1 熱処理による異材接合継手の維持管理の可能性

機器の供用期間中における化学除染は、基本的に機器及び配管の表面に付着している放射性核種を含む金属イオンのみを酸化溶解あるいは還元溶解して選択的に除去し、機器及び配管の母材の劣化を避けることが求められる。よって、異材接合継手がNaOH溶液を用いた化学除染に伴い発生した水素により脆化した場合には再処理施設の運転再開までに延性を改善させておく必要がある。

しかし、再処理施設内の機器等の点検又は補修作業のために化学除染を行い、その後、運転再開までの期間を1週間（168 h）、又は1か月間（720 h）と想定すると、本研究の結果は、同継手が、作業員が直接アクセスすることが困難な空間線量率の高い環境に設置されていることを考慮して、最も現実的に実施可能な、高い加熱温度と考えて設定した80 °Cではこれらの期間中に機械的特性を改善することは困難であることを示している。

よって、化学プラントにおいて実施されている熱処理による供用中のTa製部材の水素脆

化損傷防止管理の事例<sup>6</sup>のような維持管理は商用再処理施設では困難であると考えられる。

#### 4.3.2 異材接合継手の水素脆化防止のための管理方法

前項を踏まえ、NaOH溶液のようなアルカリ性の除染溶液が、水素脆化感受性が高い異材接合継手が設置されている配管に流入する除染作業を行う場合には、同継手の脆化を防止するように慎重な管理が求められる。水素脆化防止のための管理方法としては、水素含有量の測定と引張試験による破断モードの確認が考えられる。それぞれの方法について、熱処理の有効性の検証のために実施した委託試験結果を整理して得られた知見及び才田ら<sup>9</sup><sup>10</sup>が報告に基づいて、以下の(1)及び(2)に示すとおり検討を行った。

その結果、異材接合材試験片を、除染計画を模擬した試験条件で浸漬させた後に、引張試験により弾性域において脆性的に破断する可能性を確認するという方法が適切であり、その際には、「製造ロットの異なる多数の試験片を供すること」が望ましいと考えられる。

##### (1) Ta部の水素含有量の測定による管理

異材接合材試験片を、除染作業を模擬した試験条件で浸漬させた後に、試験片のTa部のみを精密切断機により切り出し、水素含有量を測定することは可能である。しかし、4.2に記したように水素脆化に対する施工健全性を確保するための接合前のTaの水素含有量に関する管理値は報告<sup>10</sup>されているが、供用中の健全性を確保するための接合後のTaの水素含有量に関する管理値に関する報告はない。よって、水素含有量の測定値により異材接合継手の健全性の確保を判定することは困難と考える。

##### (2) 引張試験による破断モードの確認による管理

異材接合材試験片を、除染計画を模擬した試験条件で浸漬させた後に、引張試験により弾性域において脆性的に破断する可能性を確認するという方法を想定した。

才田ら<sup>10</sup>は計算機シミュレーションにより Ta/Zr 界面に集積する水素量は Zr の加工度が大きいほど高い値を示し、接合界面近傍に多量の水素化物が析出することが明らかとなったことを報告している。本研究においては水素チャージ直後の水素含有量が 9.9 mass ppm の試験片は、熱処理しない条件では延性的に破断する場合と、脆性的に破断する場合があった。除染溶液に浸漬後の試験片の水素含有量が延性的な破断から脆性的な破断に遷移する領域と考えられる水素含有量が少量の試験片の場合には、引張試験における破断形態は爆発接合による接合部と母相との境界における微視的な組織の不均一性や硬さの違い、爆発接合時の残留応力等の違いの影響を受けやすいと考えられる。才田ら<sup>9</sup>は、施工健全性の研究において、標準的な爆発接合条件（爆薬量 6.0 kg/m<sup>2</sup>）で接合を行ったときは、接合前の Ta の水素含有量が 8 mass ppm 以下では、Zr 中に集積する水素が限界水素量を超えないため、割れは発生しないが、爆発接合条件が多少変動しても十分な耐水素脆化割れ性を

確保するためには、Ta 中の水素量を約 5 mass ppm 以下に抑制できる施工法が推奨されることも報告している。

よって、この方法で管理する場合には、爆発接合条件の変動はZrの加工度に影響を及ぼすことから除染作業の影響を受けないことを確実に確認するためには、製造ロットの異なる多数の試験片を供することが望ましいと考えられる

なお、橋倉ら<sup>24</sup>は、原子力規制庁が原子力機構に委託した試験研究の成果<sup>25</sup>の一部を用いて、室温で静止した溶液条件でのジルコニウムの放射性核種からの放射線による分解水素の吸収挙動について報告している。この報告によれば、 $\gamma$ 線線量率3 kGy/hでは水素吸収が発生せず、5 kGy/h以上で急速に水素吸収が生じる。ジルコニウム表面から水素が吸収された場合には、水素はジルコニウム表面に水素化物を形成するが、この水素化物は脆いため、すぐにはく離する。この水素化物の形成—はく離が繰り返されると、表面に微小な亀裂が生じ、この亀裂が爆着時の残留応力の効果により更に進展する可能性も否定はできないとのこと。実機環境が放射線分解水素を吸収する可能性がある場合には、上記の管理方法は変わる可能性がある。

## 5. 結論

### 5.1 熱処理の有効性の検証

才田ら<sup>10</sup>は、Ta部の初期水素量が10 mass ppm程度の条件でのTa/Zr接合界面の水素脆化について計算機シミュレーションにより解析し、約100 °C (373 K) 程度の接合後熱処理によって約4.4 h (約16 ks) で改善できる可能性が示唆されたことを報告しているが、実験的には検証されていない。異材接合継手が化学除染に伴うアルカリ腐食により水素脆化した場合の回復手段としての熱処理の有効性を規格<sup>18</sup>に基づき爆着接合法により製作された実機相当のR-SUS304ULC/Ta/Zr異材接合材を用いて実験的に検証することを目的として九州工業大学が行った試験<sup>15, 16</sup>の結果は、以下のようにまとめられる。

- (1) Ta部の初期水素含有量が10 mass ppm程度及び13 mass ppm程度の場合、加熱温度80 °Cでは加熱時間2000 hまでに改善できていると確認できる結果は得られなかったが、加熱温度が200 °Cであれば、加熱時間1000 hまでに水素脆化を改善できる可能性が示唆された。
- (2) Ta部の初期水素含有量が40 mass ppm程度の場合には、加熱時間2000 hまでに延性が改善できる可能性が示唆される加熱温度は300 °C条件であった。

異材接合継手が、作業員が直接アクセスすることが困難な環境に設置されていることを考慮すると、現実的に実施可能な温度は80 °Cであるが、水素含有量が10 mass ppm程度の少量であっても、この温度では才田ら<sup>10</sup>が報告しているような短時間での回復効果を確認



できなかった。80℃での試験結果において熱処理の有効性が確認できなかった要因の可能性として、才田らのシミュレーション研究における固溶限の設定値が妥当でないことが考えられる。よって、再処理施設において、上流側の加熱機器を利用した温水による熱処理を実施したとしても、Ta製部材を使用した化学プラントにおいて行われている熱処理による供用中の水素脆化割れ防止管理<sup>6</sup>を行うことは困難であると考えられる。

## 5.2 除染作業における水素脆化防止に関する留意点

熱処理の有効性の検証のために実施した試験結果<sup>15, 16</sup>を才田ら<sup>8-10</sup>の水素脆化メカニズムに関する研究成果を踏まえて考察した結果は以下のとおりである。

化学プラントにおける供用中のTa製部材の水素脆化割れ事例<sup>6</sup>では、Ta中に約300 mass ppm以上の水素を吸収した場合に割れが発生しているが、九州工業大学で行われた試験研究<sup>15, 16</sup>において、電気化学的水素チャージした異材接合材試験片はTa部の初期水素含有量が10 mass ppm程度でも、Zr/Ta部において脆性的に破断する場合があることが確認されたことから、供用中も異材接合継手の水素脆化感受性がTa製部材に比較して著しく高いことが示唆された。

日本溶接協会<sup>7</sup>は、旧科学技術庁の委託を受け異材接合継手の安全性実証試験を実施し、使用環境や製作時の環境は多様であり、実際の使用に当たってはZr/Ta/SUS304ULC接合部が高い水素脆化感受性を有することを考慮して、使用環境や製造方法には十分な配慮が必要といえることを報告している。

したがって、供用中の異材接合継手の健全性を確保する観点から、商用再処理施設においてアルカリ性の除染溶液を用いた除染作業を計画する際には、事前に除染溶液による水素脆化割れの可能性を確認するための引張試験を異材接合継手相当材の試験片を用いて実施しておくことが必要である。その際、水素脆化回復のための熱処理の有効性の検証のために実施した委託試験で得られた知見を踏まえれば、引張試験を実施する際には製造ロットの異なる多数の試験片を供することが望ましいと考える。

## 謝辞

本技術ノートを作成するにあたり、試験を実施していただくとともに有益なご示唆ご討論を頂いた九州工業大学横山賢一准教授に対し深く感謝の意を表します。

## 参考文献一覧

- 1 榎彰、“東海再処理施設の腐食環境と機器の腐食速度評価”、サイクル機構技報、14、pp. 39 - 63、2002
- 2 武田誠一郎、林正太郎、“再処理分野における材料技術開発の現状”、動燃技報、67、pp. 64 - 75、1988
- 3 和田史博、“再処理プラントにおける信頼性向上技術”、材料と環境、48巻、pp. 771 - 775、1999
- 4 田中紀一、鈴木一弘、“再処理施設における材料面での特徴”、原子力工業、第38巻、第8号、pp. 55 - 63、1992
- 5 今川博之、松野健三、山岡五雄、“タンタルの水素ぜい化の評価法”、材料、Vol.44、No.506、pp. 1138 - 1343、1995
- 6 中原正大、“化学プラントにおけるタンタルおよびニッケル基合金の水素の関与した割れ事例”、材料と環境、60巻、5号、pp. 254 - 258、2011
- 7 (社)日本溶接協会、“平成11年度異材接合部耐食安全性実証試験総合報告書”、平成12年3月
- 8 才田一幸、藤本哲哉、西本和俊、“Ta/Zr接合界面における水素脆化割れの特徴とZr母材の水素脆化機構”、溶接学会論文集、第28巻、第2号、pp. 216 - 221、2010
- 9 才田一幸、藤本哲哉、西本和俊、“Ta/Zr接合界面における水素脆化防止に対する施工指針の提案”、溶接学会論文集、第28巻、第2号、pp. 248 - 254、2010
- 10 才田一幸、藤本哲哉、西本和俊、“Ta/Zr接合界面における水素拡散および水素化物析出の計算機シミュレーション”、溶接学会論文集、第28巻、第2号、pp. 236 - 247、2010
- 11 小山兼二、渡辺義之、“再処理施設の除染技術”、原子力工業、第36巻、第8号、pp. 40 - 45、1990
- 12 日本原燃(株)、“六ヶ所再処理施設における新規制基準に対する適合性【重大事故等対処施設】”、六ヶ所再処理施設に係る新規制基準の適合性に関する事業者ヒヤリング資料、2019.1.10
- 13 (社)腐食防食協会、“腐食・防食ハンドブックCD-ROM 2000年版、pp.iv-6-21
- 14 (国研)日本原子力研究開発機構、“平成29年度原子力施設等防災対策等委託費(商用再処理施設の経年変化に関する研究)事業報告書”、平成30年3月
- 15 (国)九州工業大学、“平成31年度タンタルの水素ぜい化挙動評価試験(3)受託研究成果報告書”、令和2年2月
- 16 (国)九州工業大学、“令和2年度タンタルの水素ぜい化挙動評価試験(4)受託研究成果報告書”、令和3年1月
- 17 森憲治、横塚宗之、山口晃範、瀧澤真、古田昌代、櫻井智明、寺垣俊男、久保田和

- 雄、野島康夫、“加工施設及び再処理施設の内部火災等に関するリスク評価手法”、原子力規制庁、安全研究成果報告、RREP-2021-3003、令和3年6月
- 18 (社)日本高圧力技術協会、“核燃料再処理設備規格 ジルコニウム/ステンレス鋼管継手規格”、2011年制定
- 19 才田一幸、藤本哲哉、西本和俊、“水中研磨過程でのTa/Zr界面の水素脆化割れ現象と水素脆化機構”、溶接学会論文集、第28巻、第2号、pp. 230 - 235、2010
- 20 木村啓造、佐々木靖男、“タンタル”、日本金属学会誌、Vol.4、No.9、pp. 585 - 598、1965
- 21 高井健一、村上耕太、矢部宣明、鈴木啓史、萩原行人、“Inconel 625とSUS 316Lの水素昇温脱離特性と電解チャージによる高圧水素ガス環境の模擬”、日本金属学会誌、第72巻、第6号、pp. 448 - 456、2008
- 22 石島暖大、上野文義、阿部仁、“ジルコニウムの硝酸溶液中における $\gamma$ 線照射下での放射線分解水素吸収挙動”、日本原子力学会和文論文誌、Vol.16、No.2、pp. 100 - 106、2017
- 23 J. J. Kearns: "Terminal solubility and partitioning of hydrogen in the alpha phase of zirconium, Zircaloy-2 and Zircaloy-4", J. Nucl. Mater., 22, 292, 1967
- 24 橋倉靖明、石島暖大、上野文義、阿部仁：“再処理施設の異材接合継手における水素脆化評価に関する考察”、保全学、Vol.20、No.2、2021
- 25 (国研)日本原子力研究開発機構、“平成28年度原子力施設等防災対策等委託費（商用再処理施設の経年変化に関する研究）事業報告書”、平成29年3月

## 執筆者一覧

原子力規制庁 長官官房 技術基盤グループ システム安全研究部門  
野島 康夫 技術参与  
山口 晃範 技術研究調査官  
古田 昌代 技術研究調査官