

JAERI-Research
99-039



JP9950405



沸騰硝酸溶液中での Ti - 5Ta 合金の
疲労き裂進展挙動

1999 年 5 月

本岡隆文・木内 清

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開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、お申し越し下さい。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）で複写による実費領布を行っております。

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.

沸騰硝酸溶液中でのTi-5Ta合金の疲労き裂進展挙動

日本原子力研究所東海研究所エネルギーシステム研究部

本岡 隆文・木内 清

(1999年4月16日受理)

再処理施設仕様のTi-5Ta合金の沸騰硝酸溶液中における疲労き裂進展挙動を調べた。疲労き裂成長速度の応力拡大係数範囲依存性を、沸騰硝酸溶液中と室温大気中で比較した。疲労試験後の破面について、X線回折による結晶配向性の評価及び走査型電子顕微鏡による形態観察を行い、き裂進展機構を解析した。

Ti-5Ta合金の疲労き裂成長速度は、室温大気、沸騰硝酸溶液中ともほぼ同じ傾向を示した。また、破面解析及びX線回折から、結晶配向性は硝酸溶液中での疲労特性に与える影響が小さいことが明らかとなった。

Crack Propagation Behavior of Ti-5Ta Alloy in Boiling Nitric Acid Solution

Takafumi MOTOOKA and Kiyoshi KIUCHI

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

(Received April 16, 1999)

The crack propagation behavior of Ti-5Ta alloy both in boiling nitric acid solution and in air at room temperature has been investigated. The crack growth rate of Ti-5Ta alloy was measured as a function of the stress intensity factor range. After the tests, the fracture surface morphology was observed by a scanning electron microscope and the crystallographic orientation was examined by X-ray diffraction analysis.

Difference in the crack growth behavior was not observed in both environments. The crack growth rate in boiling nitric acid solution was similar to that in air at room temperature. Moreover, the crystallographic orientation of Ti-5Ta alloy had little effect on the fatigue behavior, because this alloy does not have the susceptibility to SCC in nitric acid solution.

Keywords : Ti-5Ta Alloy, Nitric Acid, Fatigue Crack, Crystallographic Orientation

目 次

1. 緒 言	1
2. 実験方法	1
2.1 試験片	1
2.2 疲労き裂進展挙動の評価	1
3. 結果と考察	2
3.1 疲労き裂の成長と結晶配向性	2
3.2 環境効果	2
3.3 破面解析	2
4. 結 言	3
謝 辞	3
参考文献	4

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental Procedures	1
2.1 Test Specimen	1
2.2 Evaluations of Crack Propagation Behavior	1
3. Results and Discussions	2
3.1 Propagation of Fatigue Cracks and Crystallographic Orientation	2
3.2 Environmental Effects	2
3.3 Fractography of Fracture Surface	2
4. Conclusions	3
Acknowledgment	3
References	4

This is a blank page.

1. 緒 言

Ti系材料は、その優れた機械的性質と耐食性から発電炉を含めた原子力プラント用材料として幅広く使用されている^{1)~5)}。そのうち、耐硝酸材料のTi-5Ta合金は、再処理プラント用材料として、既に東海再処理施設の酸回収蒸発缶等に使用されている。

Ti-5Ta合金の高温硝酸溶液中の耐食性に関しては、これまでに数多く報告されているが、応力腐食割れ(SCC)と腐食疲労(CF)についての研究報告例が少ない^{6)~10)}。沸騰硝酸溶液中のSCC感受性に関しては、加藤ら⁶⁾が低歪速度引張試験法(SSRT)により調査し、同溶液中でのSCC感受性の無いことを明らかにしている。別種の再処理プラント材料である金属ジルコニウムについては、SCC及びCFに関する調査研究が行われており、共沸点温度範囲の沸騰硝酸溶液中においてもSCCに対する感受性を持ち^{7)・8)}、疲労き裂の進展がSCCにより加速されることが明らかとなってきた^{9)・10)}。一方、Ti-5Ta合金のSSRT試験では沸騰硝酸溶液中でSCC感受性を示さないことが明らかとなっている⁶⁾。当該観点から、Ti-5Ta合金の沸騰硝酸溶液中の疲労き裂の進展特性は、SCC感受性を有するZrのそれとは異なると考えられる。

本研究では、硝酸環境中でSCC感受性を示さないTi-5Ta合金について、疲労き裂進展挙動の観点からの評価試験を実施した。

2. 実験方法

2. 1 試験片

試験に供したTi-5Ta合金は、Table 1に示す再処理施設仕様の化学組成を有する6mmの厚さに圧延加工した板材である。この板材から放電加工によってFig. 1に示す形状のTaperd Double Cantilever Beam(TDCB)型の試験片を切り出した。試験片はノッチの向きと素材の圧延方向との関係から2つに区別した。ノッチの向きが圧延方向に同じものをT材(T-type)、直角なものをL材(L-type)とした。それらはFig. 2に示す位置関係にある。試験片は、ダイヤモンドペーストで鏡面研磨してから疲労試験に用いた。

2. 2 疲労き裂進展挙動の評価

疲労き裂進展挙動の評価は、油圧サーボ型疲労試験機を用いて、Zrの疲労き裂進展挙動の評価試験⁹⁾と同様に、室温大気中で約3mmの疲労予き裂を入れた試験片に、応力比(R)0.1、繰返し速度0.1Hzの条件で応力を負荷して、室温大気と沸騰3規定硝酸溶液の各試験環境で、疲労き裂を成長させた。疲労き裂成長速度(da/dN)を算出するのに必要となる疲労き裂成長長さ(Δa)は、室温大気中では疲労き裂長さ(a)を光学顕微鏡により測定し求めた。沸騰硝酸溶液中でのそれは、疲労試験後に試験片を室温大気中で強制破断させた後、破面を光学顕微鏡で観察して求めた。そして、疲労き裂進展挙動をSlawreyの式¹¹⁾から求めた応力拡大係数範囲(ΔK)と da/dN の関係から評価した。また、走査型電子顕微鏡(SEM)により破面を観察す

るとともに、X線回折（XRD）測定して破面の結晶配向性を調べた。さらに、疲労き裂の成長と金属組織の関連を調べるため、エッチング処理した試験片の表面を光学顕微鏡により観察した。

3. 結果と考察

3. 1 疲労き裂の成長と結晶配向性

Fig. 3 に、Ti-5Ta 合金の室温大気中での da/dN と応力拡大係数範囲 (ΔK) の関係を示す。○がL材、□がT材である。L材とT材で da/dN に大きな差は認められず、板幅方向と圧延方向での疲労き裂進展挙動はほぼ同じであった。わずかにT材の方が疲労き裂速度が大きかった。当該傾向は、シャルピー衝撃試験による破壊靱性の評価結果の違いと対応している¹²⁾。

Fig. 4 に、沸騰3規定硝酸溶液中での da/dN と ΔK の関係を示す。●がL材、■がT材である。室温大気中と同様にL材とT材では da/dN に大きな差は認められなかった。室温大気中同様に、T材の方がわずかに疲労き裂の進展が早かった。

疲労き裂成長と素材の結晶配向性との関わりを破面のXRD測定により調べた。X線回折ピーク強度の相対比から破面の結晶配向性を評価したところ、Fig. 5 に示すように、L材では $(10\bar{1}1)$ が優先的に配向しており、T材では $(10\bar{1}0)$ が優先配向していた。

純Tiの結晶構造は α 型の稠密六方晶であり、すべり面は $(10\bar{1}0)$ $(10\bar{1}1)$ (0001) である。Ti-5Ta合金の基本結晶構造も α 型の稠密六方晶である。したがって、すべり面の存在割合から判断すると、L材、T材とも同程度に塑性変形し得ると考えられる。これは、疲労き裂進展速度の測定結果に両材で明瞭に差が現れていないことと一致する。

3. 2 環境効果

Fig. 6 にL材の試験環境による疲労き裂進展特性の違いを、Fig. 7 にT材のそれを示す。白印（○・□）が室温大気中、黒印（●・■）が沸騰硝酸中の結果を示している。それぞれ、室温大気中と沸騰硝酸溶液中で da/dN に大きな差はなく、明瞭な環境効果の違いは認められなかった。これまでのSSRT試験によりTi-5Ta合金は沸騰硝酸溶液中でSCCを起こさないことが明らかとなっている⁶⁾。Zrの沸騰硝酸溶液中での疲労き裂進展を加速する原因はSCCであると考えられており、疲労き裂成長速度の増大が確認されている。当該観点から、沸騰硝酸環境では、Ti-5Ta合金はSCCを起こさないため、疲労き裂進展特性に環境効果が現れなかったと考えられる。

3. 3 破面解析

Photo. 1 は、疲労試験後に試験片全体を光学顕微鏡により観察した写真である。室温大気中、沸騰3規定硝酸溶液中とも疲労破面は白色の金属光沢を呈しており腐食による変色が見られなかった。これは、Zrの沸騰硝酸溶液の疲労破面が黄褐色に着色していたのとは違っている^{9) 10)}。また、急速破断部の厚さの変化の様子はL材とT材ではほぼ同じである。なお、Zrでは急速破断

部の断面収縮率の変化はL材が大きくT材は小さく、明瞭に違っていた。当該傾向はシャルピー衝撃試験の傾向と一致している^{1,2)}。

Photo. 2 と 3 は試験後の疲労破面のSEM写真である。Photo. 3 に示すように、室温大気中のものは、疲労破面に特有の延性ストライエーション（縞状模様）が観察されており、L材とT材とも同じ様相であった。また、Photo. 3 に示すように、硝酸環境でも室温大気中と同様の延性ストライエーションが観察されており、SCCにより生じたと判断されるような擬劈開型の粒内割れ、リバーパターンといった破面形態は観察されなかった。

室温大気及び沸騰硝酸溶液中、どちらの環境においても疲労き裂の進展形態は貫粒型が大部分を占めており、破面に延性ストライエーションが観察された。Ti-5Ta合金は、腐食作用が強い沸騰硝酸溶液中でも、室温大気中と同様の延性破壊により、き裂が進展していると考えられる。

4. 結 言

再処理施設仕様のTi-5Ta合金の室温大気中と沸騰3規定硝酸溶液中での疲労き裂進展挙動を、疲労き裂成長速度の測定、破面観察並びにXRD測定により調査して、以下の結果を得た。

(1) 疲労き裂成長速度はL材よりもT材の方が若干高いものの、素材の結晶配向性は疲労き裂成長にほとんど影響していなかった。

(2) 硝酸環境による疲労き裂成長速度の増大や破面形態の変化は見られなかった。これはTi-5Ta合金が沸騰硝酸溶液中でSCC感受性を示さないためと考えられる。

謝 辞

実験の遂行にあたりご協力頂いた複合環境材料研究グループ菊地正彦氏に深謝いたします。

参考文献

- (1) Te-Lin Yau : Corrosion, 39, 167 (1983)
- (2) 森口康夫：チタニウム・ジルコニウム, 21, 97 (1973)
- (3) 武田誠一郎、林正太郎：動燃技報, 67, 64 (1988)
- (4) 武田誠一郎、永井崇之、小泉務：日本原子力学会誌, 36, 146 (1994)
- (5) 武田誠一郎、永井崇之、安正三、小泉努：材料と環境, 44, 24 (1995)
- (6) 加藤千明、木内清、菊地正彦：JAERI-Research 96-019, " 硝酸中におけるジルコニウム
およびチタン合金の応力腐食割れの評価" (1996)
- (7) 加藤千明、木内清：日本原子力学会「1995年秋の大会」予稿集, p.512 (1995)
- (8) 早川均、木内清、菊地正彦：第39回腐食防食討論会講演集, 腐食防食協会, p.327 (1992)
- (9) 本岡隆文、木内清：JAERI-Research 95-032, " 沸騰硝酸中におけるジルコニウムの腐食疲労
挙動" (1995)
- (10) 本岡隆文、木内清：JAERI-Research 96-021, " 沸騰硝酸中におけるジルコニウム溶接継手の
腐食疲労挙動" (1996)
- (11) J. F. Srawley and B. Gross : NASA TND-3820, (1967)
- (12) 遠山晃、木内清、菊地正彦：JAERI-Research 96-020, " 稠密六方晶の結晶構造を有する
リフラクトリー金属の機械的性質に及ぼす結晶学的異方性の影響" (1996)

Table 1 Chemical composition of Ti-5Ta alloy (mass%).

Ti	Ta	Fe	Cr	C	H	N	O
bal.	5.1	0.020	-	-	0.0009	0.0031	0.08

bal.: balance

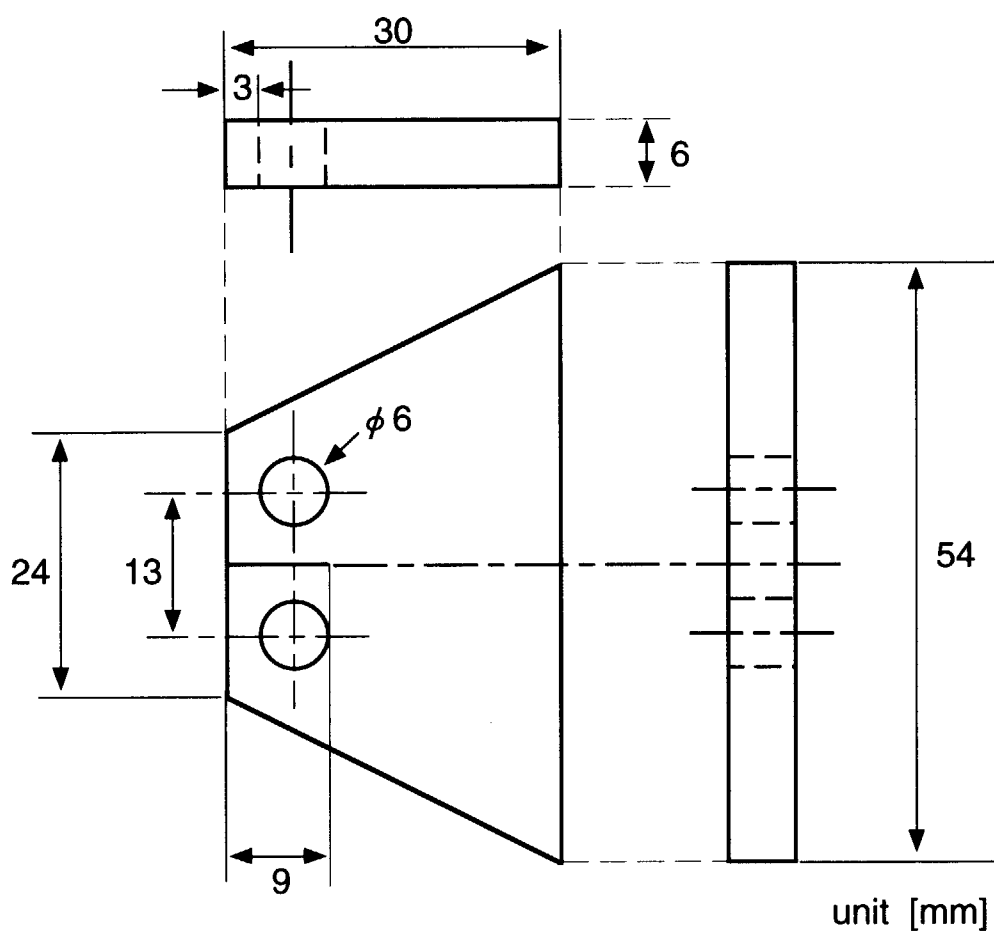


Fig. 1 Configuration of TDCB type specimen.

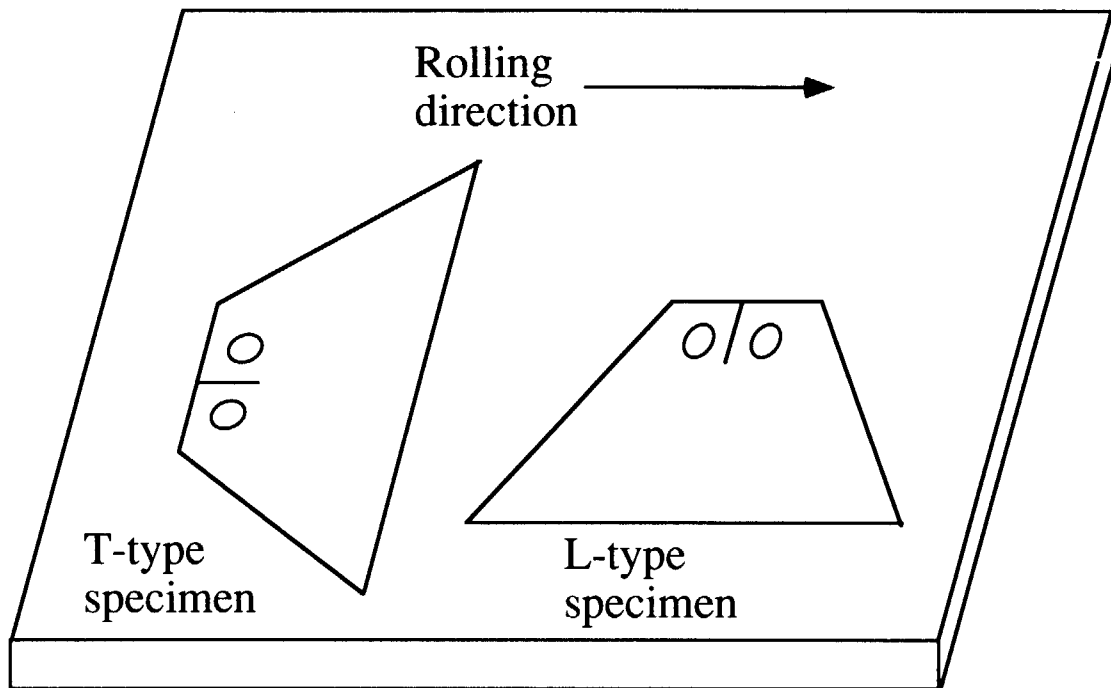


Fig.2 Machined-out locations of test specimens.

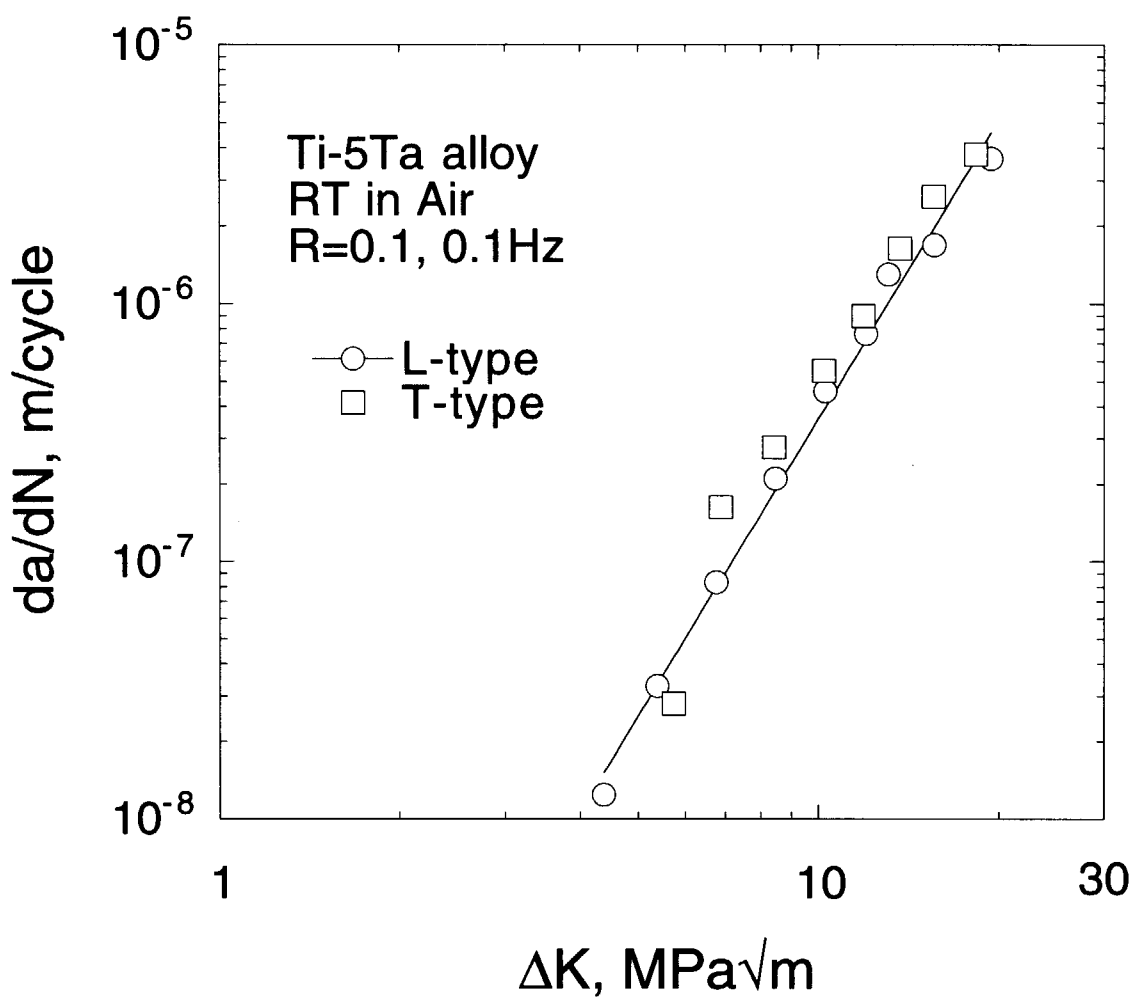


Fig.3 Crack growth rates of Ti-5Ta alloy in air at room temperature.

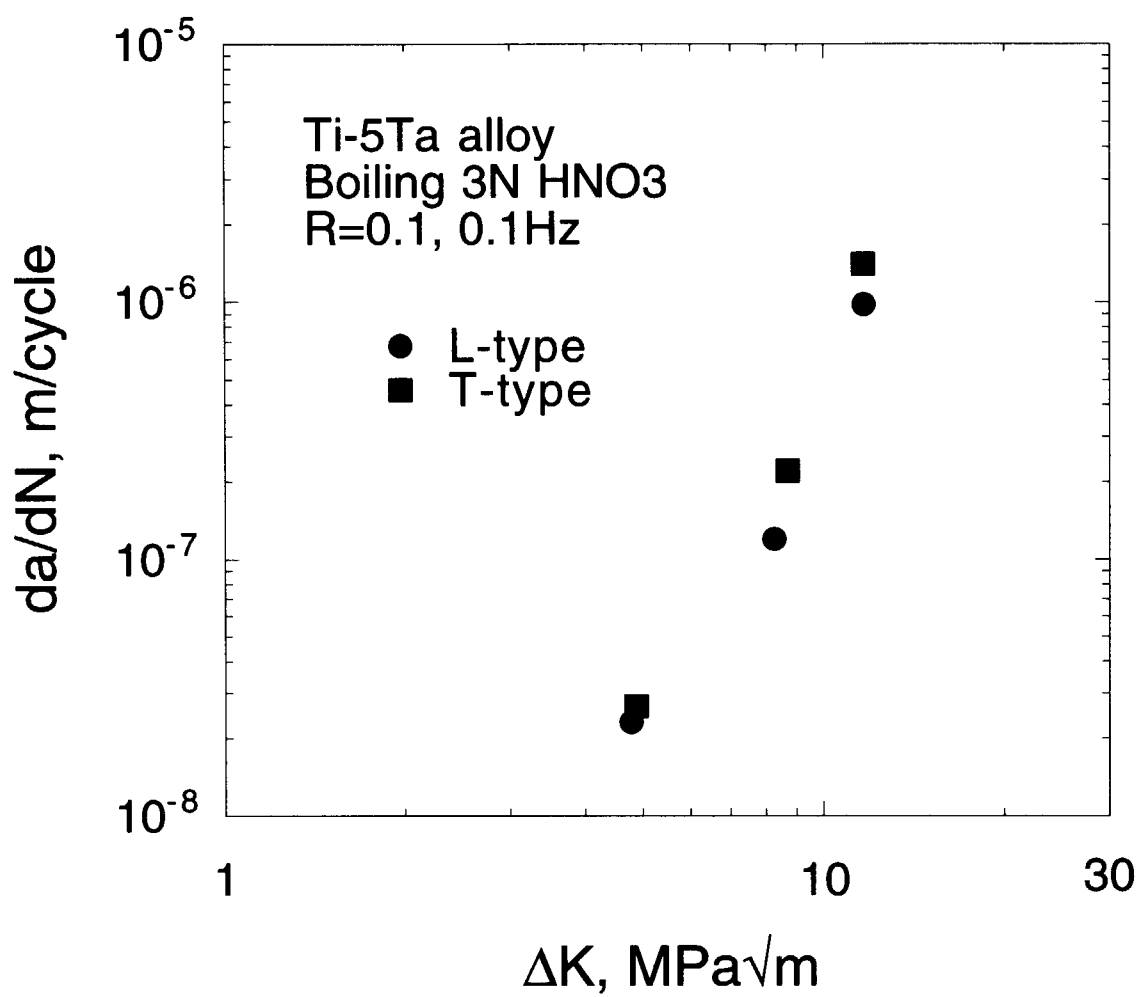


Fig.4 Crack growth rates of Ti-5Ta alloy in boiling 3N nitric acid.

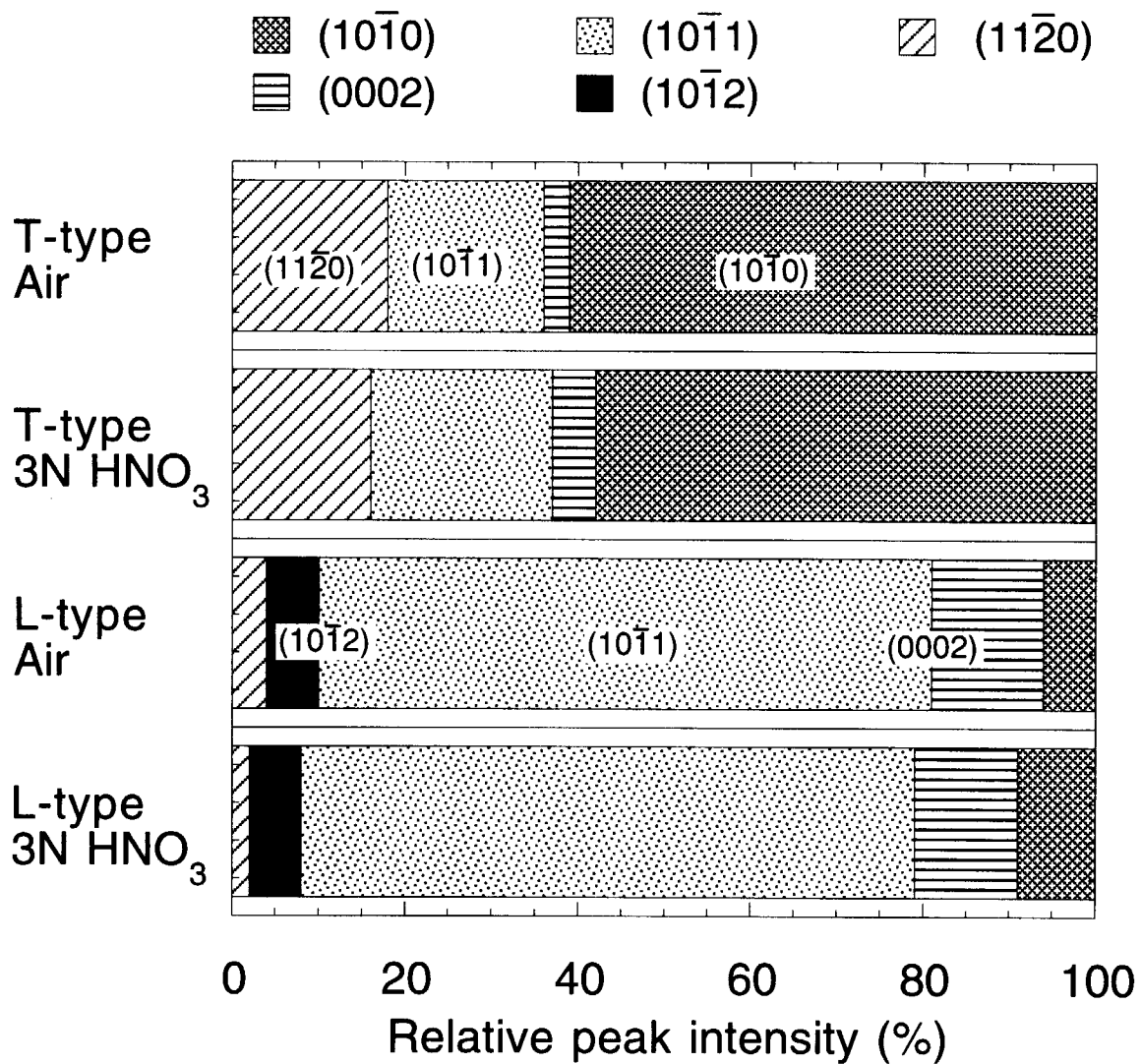


Fig.5 Crystallographic orientation of fracture surface analyzed by X-ray relative intensity.

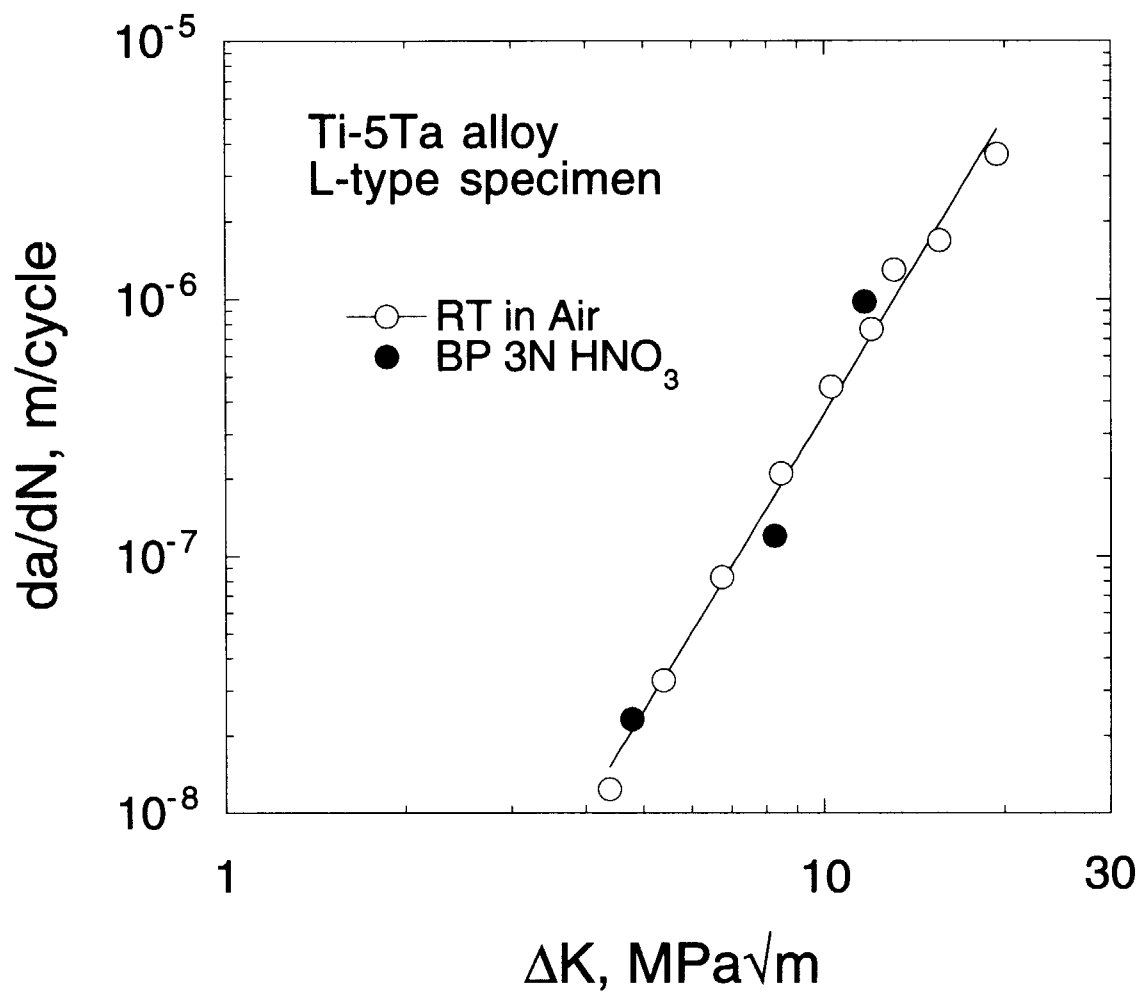


Fig.6 Comparison of crack growth rates in air at room temperature and in boiling 3N nitric acid on L-type specimens.

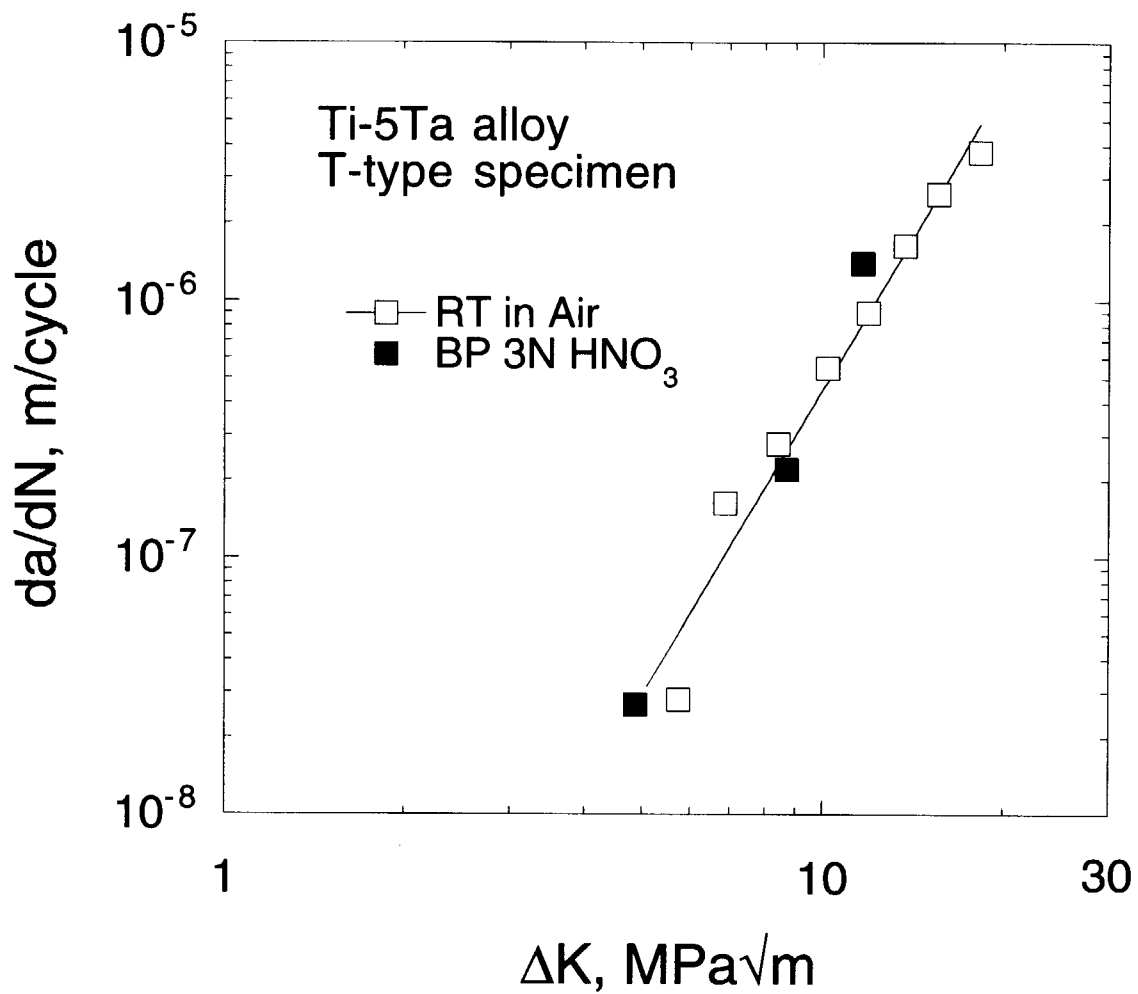


Fig.7 Comparison of crack growth rates in air at room temperature and in boiling 3N nitric acid on T-type specimens.

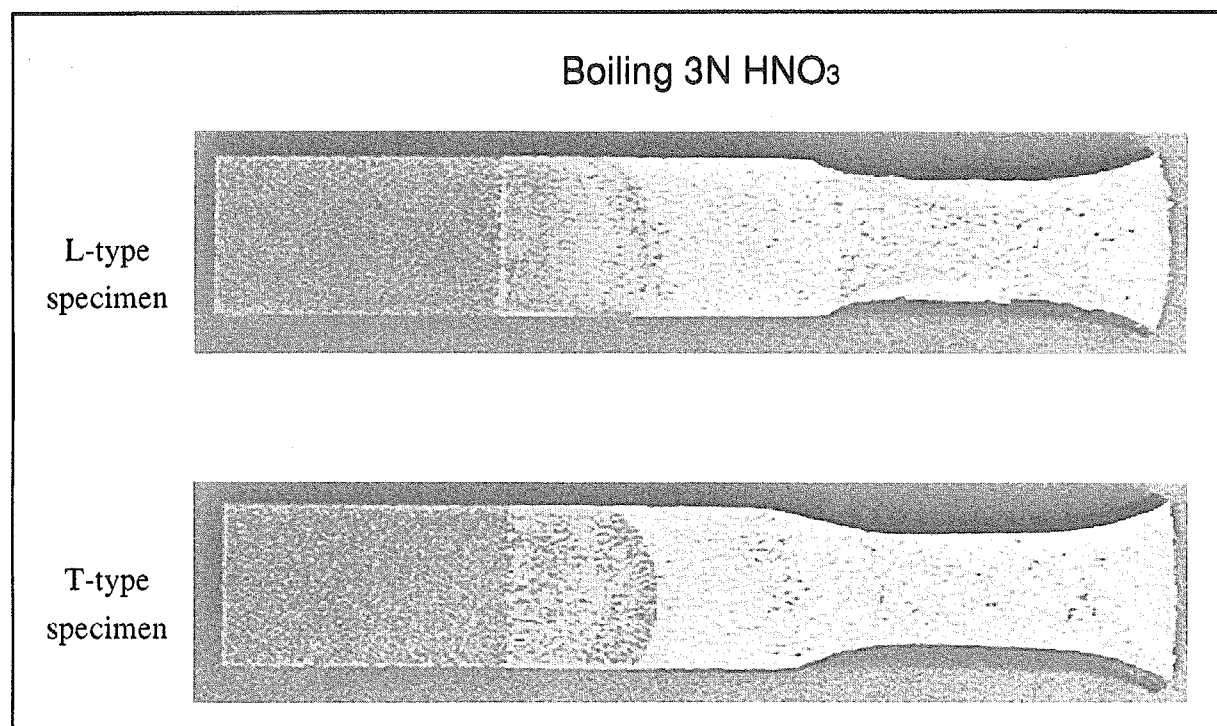
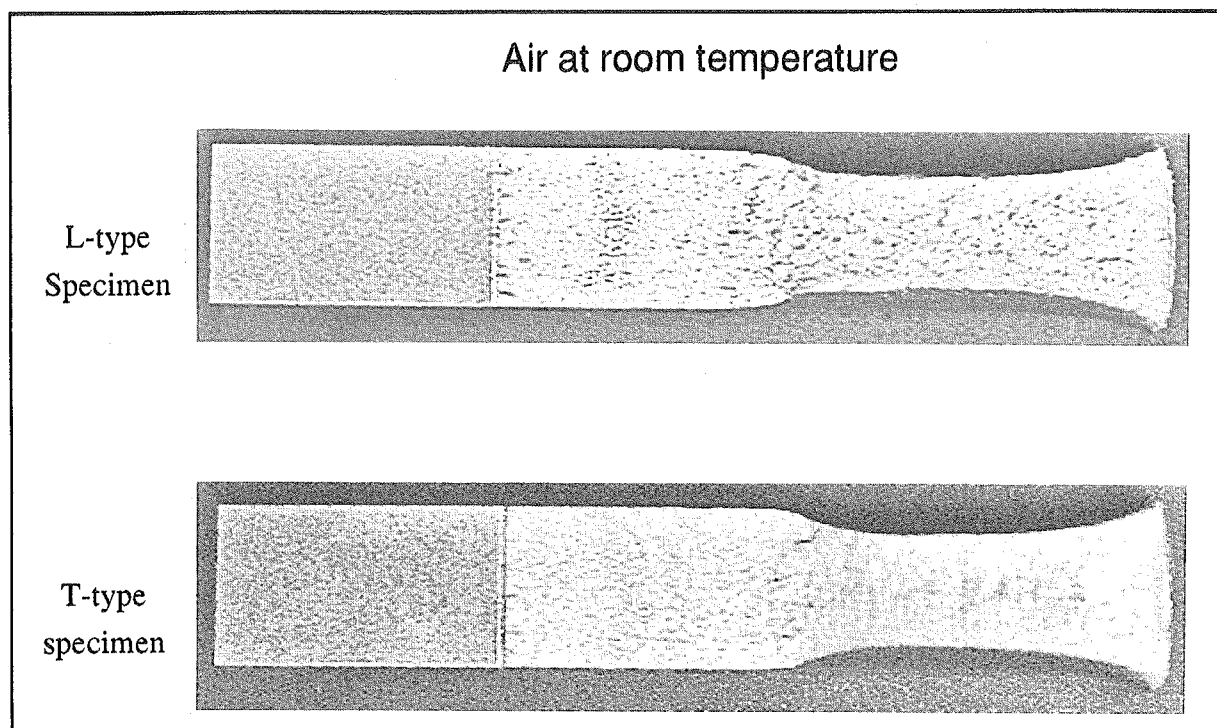
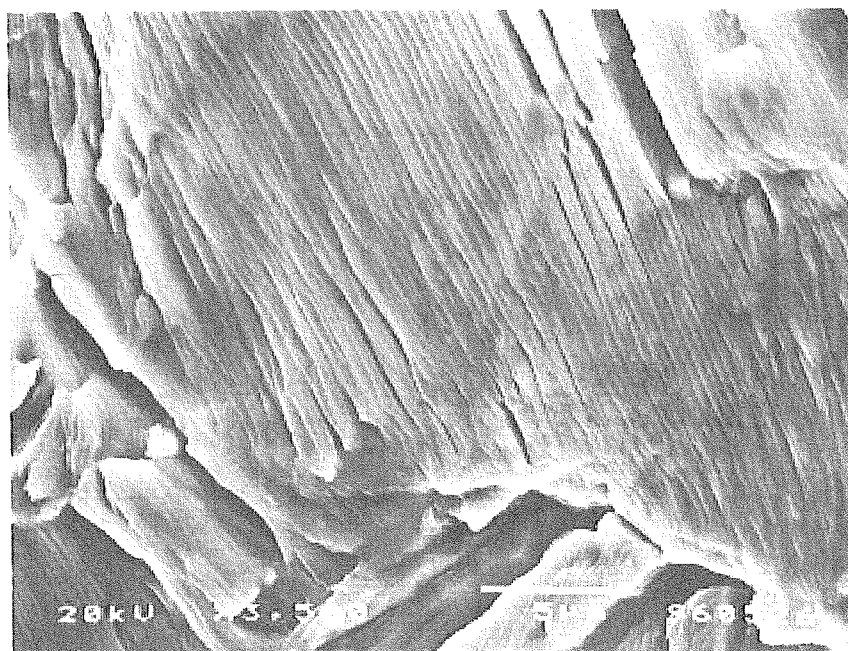
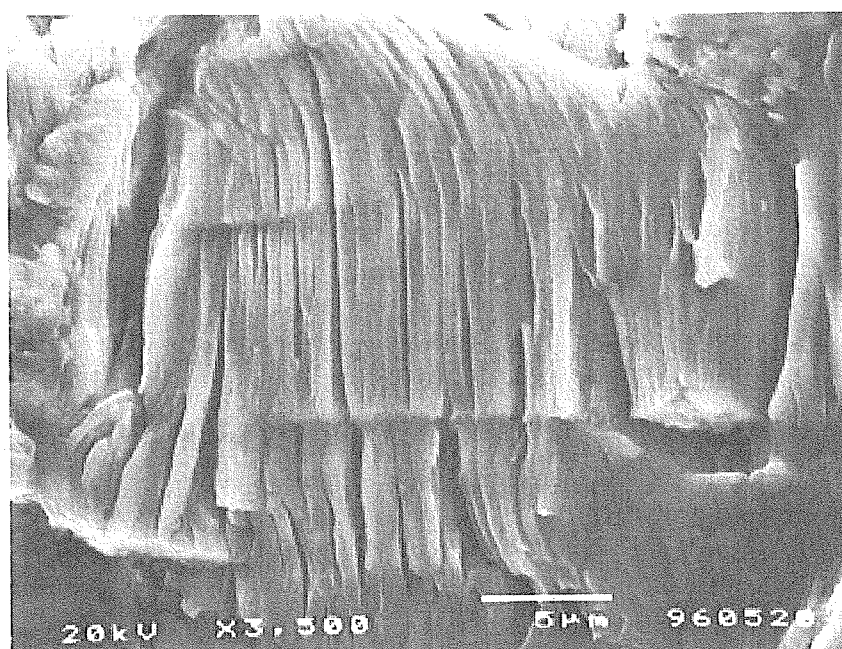


Photo.1 Over-view of test specimens after fatigue testing.



L-type specimen

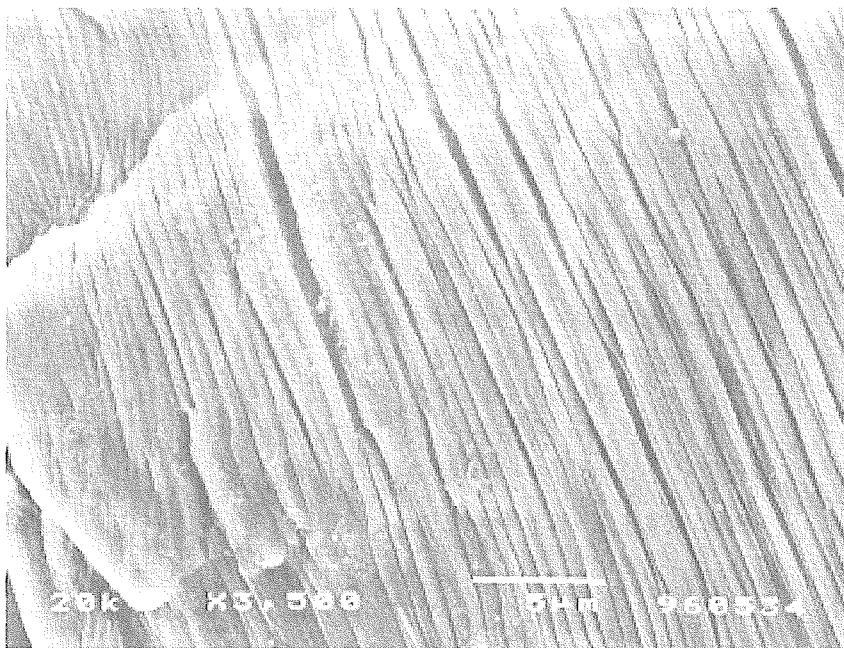


T-type specimen

Photo.2 Microstructure of fracture surface after fatigue testing in air at room temperature.



L-type specimen



T-type specimen

Photo.3 Microstructure of fracture surface after faigue testing in boiling 3N nitric acid.

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^{-1}
力	ニュートン	N	$m \cdot kg / s^2$
圧力, 応力	パスカル	Pa	N / m^2
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	$N \cdot m$
工率, 放射束	ワット	W	J / s
電気量, 電荷	クーロン	C	$A \cdot s$
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	ジーメンズ	S	A / V
磁束	ウェーバ	Wb	$V \cdot s$
磁束密度	テスラ	T	Wb / m^2
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	$^{\circ}C$	
光束	ルーメン	lm	$cd \cdot sr$
照射度	ルクス	lx	lm / m^2
放射能	ベクレル	Bq	s^{-1}
吸収線量	グレイ	Gy	J / kg
線量当量	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	$^{\circ}, ', ''$
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

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	$\text{\AA}$
バ	b
バ	bar
ガ	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラ	rad
レ	rem

$$1 \text{ \AA} = 0.1 \text{ nm} = 10^{-10} \text{ m}$$

$$1 \text{ b} = 100 \text{ fm}^2 = 10^{-28} \text{ m}^2$$

$$1 \text{ bar} = 0.1 \text{ MPa} = 10^5 \text{ Pa}$$

$$1 \text{ Gal} = 1 \text{ cm/s}^2 = 10^{-2} \text{ m/s}^2$$

$$1 \text{ Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ Bq}$$

$$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{ C/kg}$$

$$1 \text{ rad} = 1 \text{ cGy} = 10^{-2} \text{ Gy}$$

$$1 \text{ rem} = 1 \text{ cSv} = 10^{-2} \text{ Sv}$$

表5 SI接頭語

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

(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, 1 eV および 1 u 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のカテゴリに分類されている。
- EC閣僚理事会指令では bar, barn および「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリに入れている。

換算表

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

粘度 $1 \text{ Pa} \cdot \text{s} (= \text{N} \cdot \text{s} / \text{m}^2) = 10 \text{ P (ポアズ)} (g / (\text{cm} \cdot \text{s}))$

動粘度 $1 \text{ m}^2 / \text{s} = 10^4 \text{ St (ストークス)} (\text{cm}^2 / \text{s})$

圧	MPa (=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg (Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062×10^3	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322×10^{-4}	1.35951×10^{-3}	1.31579×10^{-3}	1	1.93368×10^{-2}
	6.89476×10^{-3}	7.03070×10^{-2}	6.80460×10^{-2}	51.7149	1

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

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

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270×10^{-11}
	3.7×10^{10}	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58×10^{-4}	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

(86年12月26日現在)

