

高燃焼度・MOX使用済燃料用バスケット材の開発

小崎明郎¹ 安島辰郎² 猪原康人³ 大江耕一郎³

高性能の中性子吸収効果を期待できると考えられるボロンあるいは濃縮ボロンを高濃度に添加した 1) ボロン含有ステンレス鋼, 2) ボロン含有 3 層クラッド材 (B-Stainless Steel/Cu/B-Stainless Steel), ならびに, 3) ボロン含有アルミニウム合金, を対象にバスケット用中性子吸収構造材料としての適用性を検討するとともに, 種々の材料試験を行い, 基準化等に必要データを取得し使用上配慮すべき点についてまとめた. この結果, これらの材料をバスケット材に適用することで未臨界性と除熱性能の向上が図られ, 将来発生する高燃焼度・MOX 使用済燃料も金属キャスクにより安全に貯蔵可能であることが示された.

Keywords: バスケット, キャスク, ボロン含有ステンレス鋼, クラッド材, ボロン含有アルミニウム合金, 高燃焼度使用済燃料, MOX 使用済燃料

We investigated three structural materials which may not contain a high level of boron or enriched boron, such as (1) Borated stainless steel (B-Stainless Steel), (2) Composite material (three-layered clad plate composed of B-Stainless Steel/Cu/B-Stainless Steel structure), and (3) Borated aluminum alloy. Applicability of these material for baskets was studied, several material tests were conducted, and the material data which was required for the standardization, etc. were obtained. Also, matters to be considered were described. As a result of above study, by using above 3 materials with cask baskets the designs of casks and cask baskets which corresponded to high burnup and MOX spent fuels could be specifically indicated.

Keywords: Basket, Cask, Borated stainless steel, Clad material, Borated aluminum alloy, High burnup spent fuels, MOX spent fuels

1 はじめに

軽水炉のウラン燃料では段階的な高燃焼度化が進んでおり, 再処理により得られた MOX を軽水炉燃料とするプルサーマル計画も進んでいる[1]. これらの燃料は従来のウラン燃料に比較して²³⁵U の初期濃縮度やプルトニウム濃度が高い. また, 発生する使用済燃料も放射能強度が高いため, 崩壊熱およびβ線や中性子線の放出率が高いことを特徴としており, これらを効率的に貯蔵するためのキャスクが今後必要となる.

バスケットはキャスクの内部構造物であり, 収納された使用済燃料を個々に隔離して系の未臨界を保ち, かつ, 発生する崩壊熱を取り除いて収納物の健全性を保つ機能を有する重要な部材である. したがって, 上記の課題解決のためにバスケットの性能向上が果たす役割は非常に大きい. バスケットに必要とされる未臨界性能, 除熱性能, および構造強度等を向上させる方法として, 個々の機能に優れた単体の材料を組み合わせたバスケット構造とする方法も有効であるがバスケット構造が複雑化する. このため, バスケット構造材自身に必要とされる性能を付与して材料自身の性能を複合的に向上させた高性能中性子吸収材を新たに開発し, これを単一材料として構造材に用いた高性能のバ

スケットが望まれる.

以上のことから, 本試験では, 高性能の中性子吸収効果を期待できると考えられるボロンあるいは濃縮ボロンを高濃度に添加した 1) ボロン含有ステンレス鋼, 2) ボロン含有 3 層クラッド材 (B-Stainless Steel/Cu/B-Stainless Steel), ならびに, 3) ボロン含有アルミニウム合金, を対象にバスケット用中性子吸収構造材料としての適用性を検討するとともに, 基準化等に必要となる材料データを整備し, 高燃焼度・MOX 使用済燃料貯蔵の実用化に資することとした.

本報では, 高燃焼度・MOX 使用済燃料をキャスクで効率良く貯蔵するための高性能バスケット材として, これらの 3 種類の中性子吸収構造材料について必要とされる要件をまとめるとともに, 種々の材料試験を実施した結果とバスケットへの適用に際しての留意点について報告する.

2 高性能バスケット用中性子吸収構造材として必要とされる要件[2,3]

2.1 前提条件

高性能バスケット用中性子吸収構造材として必要とされる要件の検討に用いた PWR 用使用済燃料集合体の仕様を Table 1 に示す. PWR 用使用済燃料を選んだのは, BWR 用使用済燃料と比べて貯蔵時の条件が厳しいためであり, 燃焼度についても燃料の最大燃焼度を検討の対象とした.

Table 1 に示す高燃焼度・MOX 使用済燃料を収納する高性能バスケットおよびこれを使用したキャスクに必要とされる要件の例を Table 2 に示す. この要件を満たす高性能バスケットを上述の 3 種類の材料で検討し, それぞれの材料で必要とされるボロン濃度および¹⁰B濃縮度, また, 板厚や水ギャップ等のバスケット構造の検討を行った.

Development of cask basket for high burnup and MOX spent fuels, by Akio Kosaki(kosaki@criepi.denken.or.jp), Taturou Ajima, Yasuto Inohara, Koichiro Ohe

- (財) 電力中央研究所 我孫子研究所 材料構造部 Materials Science & Structural Engineering Department, Abiko Research Laboratory, Central Research Institute of Electric Power Industry (CRIEPI) 〒270-1194 千葉県我孫子市我孫子 1646
- 三菱マテリアル(株) Mitsubishi Materials Corporation 〒100-8117 東京都千代田区大手町 1-5-1
- 日本鋼管(株) 総合材料技術研究所 Materials and Processing Research Center, NKK 〒210-0855 川崎市川崎区西渡田町 1-1

Table 1 Specifications of high burnup and MOX spent fuels for study.

燃料の種類		初期濃縮度	燃焼度(GWd/tU) (平均, 最大)	冷却年数
高燃焼度燃料	PWR	4.7wt% ²³⁵ U	49.0, 55.0	5年
	BWR	4.3 wt% ²³⁵ U	49.0, 55.0	5年
MOX 燃料	PWR	0.2 wt% ²³⁵ U 5.8 wt%Puf	43.0, 48.0	10年
	BWR	0.8 wt% ²³⁵ U 3.4 wt%Puf	40.0, 50.0	10年

Table 2 Evaluation method and design criteria.

検討項目	評価方法	評価基準・要件
1) 未臨界性	KENO 等の臨界解析コードを使用する.	水プール内での燃料取り扱い時に keff+3σ が 0.95 以下であること.
2) 除熱性能	TRUMP 等の電熱解析コードを使用する.	バスケット内部の燃料被覆管温度が 390°C以下に保たれること. (PWR の場合)
3) 構造体強度 (バスケット)	落下衝撃時にバスケットに発生する荷重を解析または解析コードにより求める.	材料強度 (降伏応力) が 9 m落下時にバスケット部材に発生する応力を上回ること.
4) 遮蔽性能	DOT.3.5, ANISN 等の遮蔽解析コードを用いる.	線量率がキャスク表面で 2mSv/h, 1mの距離で 0.1mSv/h 以下であること.
5) キャスクの重量・寸法	代表的な発電所付属プールのクレーン設備で取り扱い可能であること.	クレーン水平吊り時に 125t 以下, 全巾 2.5 m, 全長 6.25 m 以下であること.

以下に材料毎に検討した結果を示す.

2.2 ボロン含有ステンレス鋼

ボロン含有ステンレス鋼バスケットを使用したキャスクの検討結果例を Table 3 に, また, バスケット構造の例を Fig.1 に示す. ボロン含有ステンレス鋼バスケットに収納できる燃料集合体は, 除熱および遮蔽に関する検討より 12 体に限定され, また, 発熱量の大きな MOX 使用済燃料では除熱性能を上げるため一部に 30mm 厚の板材を使用する必要があった. さらに, 除熱性能を向上させる必要があることから水ギャップを設けることができなかったが, 濃縮ボロンの採用やバスケット構造材の板厚が増したことで ¹⁰B 含有量が大きくなり, 未臨界性の確保が可能となった. この条件で未臨界性, 構造強度および重量・寸法制限も満たした.

2.3 ボロン含有3層クラッド材

ボロン含有 3 層クラッド材バスケットを使用したキャスクの検討結果を Table 4 に, また, バスケット構造の例を Fig.2 に示す. 高燃焼度使用済燃料用バスケットは 3 層クラッド

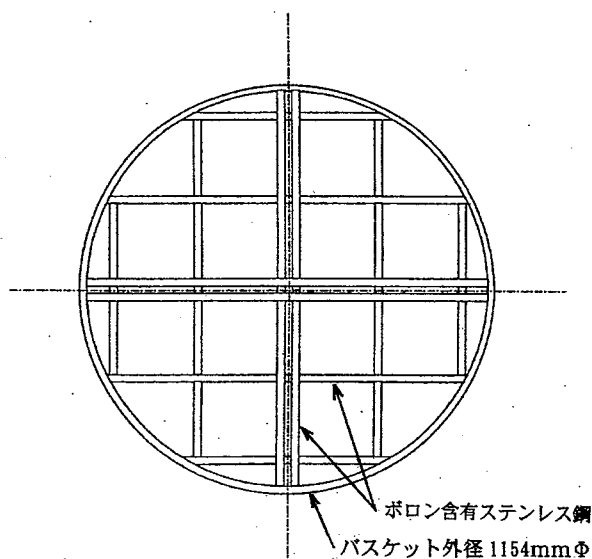


Fig. 1 Example of basket structure made of Borated stainless steel.
(For the dray storage of high burnup spent fuels)

Table 3 Example of the cask design with Borated stainless steel basket.

項目		高性能 B-SUS 使用キャスク I	高性能 B-SUS 使用キャスク II
対象燃料 (PWR)		高燃焼度使用済燃料	MOX 使用済燃料
収納体数 (体)		12	12
発熱量 (kW/キャスク)		16.6	21.9
キャスク	主要 寸法	外形/内径 (mm)	2,208/1,200
		胴肉厚 (mm)	300
		中性子遮蔽厚み (mm)	100
	遮蔽性能 (at 1m,mSv/h)	0.097	0.0452
	容器重量 (吊上時, t)	99.5	115.3
バスケット	ボロン濃縮度 (wt%) ・濃度 (wt%)		90wt%濃縮・1.3wt%
	板厚 (mm)		20
	実行増倍係数 ($k_{eff}+3\sigma$)		0.94473
	燃料被覆管最高温度 (°C)		318
	バスケット材強度 (MPa) *		260.6
	落下時の発生応力 (MPa) **		51.0

* SUS304 の許容応力

**曲げ+圧縮応力

材とボロン含有ステンレス鋼の併用とし、除熱性に裕度があるため最小でも 15mm の水ギャップを設けることができた。MOX 使用済燃料用バスケットはすべての格子板に 3 層クラッド材を使用し、水ギャップも一部以外は 40mm 確保できた。水ギャップをとれたことで未臨界性に余裕が生じ天然ボロンの適用ですんだ。収納できる燃料集合体は、遮蔽に関する検討より、高燃焼度使用済燃料の場合で 17 体、

MOX 使用済燃料の場合で 12 体となった。この条件で未臨界性、除熱性、構造強度および重量・寸法制限も満たすことができる。

2.4 ボロン含有アルミニウム合金

ボロン含有アルミニウム合金バスケットを使用したキャスクの検討結果を Table 5 に、また、バスケット構造の例を

Table 4 Example of the cask design with Borated clad material basket.

項目		複合材バスケット 使用キャスク I	複合材バスケット 使用キャスク II
対象燃料 (PWR)		高燃焼度使用済燃料	MOX 使用済燃料
収納体数 (体)		17	12
発熱量 (kW/キャスク)		23.6	21.9
キャスク	主要 寸法	外形/内径 (mm)	2,430/1,470
		胴肉厚 (mm)	480 (遮蔽層含む)
		中性子遮蔽厚み (mm)	80φ 2層
	遮蔽性能 (at 1m,mSv/h)	0.078	0.083
	容器重量 (吊上時, t)	112	107
バスケット	ボロン濃縮度 (wt%)・濃度 (wt%)		天然ボロン・1.0wt%
	板厚 (mm)		20 (7/6/7) および 10mm の B-SUS
	実行増倍係数 ($k_{eff}+3\sigma$)		0.943
	燃料被覆管最高温度 (°C)		354
	バスケット材強度 (MPa) *		545
	落下時の発生応力 (Mpa) **		354

* ボロンステンレス鋼部分のみの降伏強度 (予備試験材料データによる)

**一次膜応力+一次曲げ応力強さ

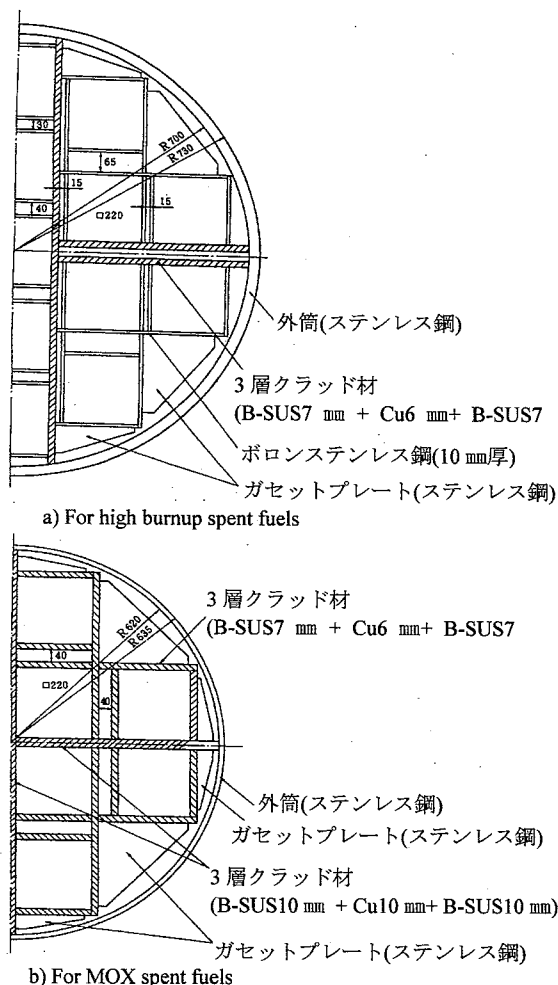


Fig. 2 Example of basket structure made of Borated clad material (B-Stainless Steel/Cu/B-Stainless Steel). (For the dry storage of high burnup spent fuels)

Fig.3に示す。ボロン含有アルミニウム合金バスケットに収納できる燃料集合体は、遮蔽と重量制限に関する検討より、高燃焼度使用済燃料の場合で17体、MOX使用済燃料の場合で7体となった。ボロン含有アルミニウム合金は ^{10}B 含有量が相対的に少ないため、濃縮ボロンの採用が必要となった。さらに、未臨界性確保の観点から水ギャップを大きくする必要が生じたが、除熱性に余裕があることから水ギャップは高燃焼度使用済燃料の場合で25mm、MOX使用済燃料の場合で35mmが可能となった。この条件で未臨界性、除熱性および構造強度も満たした。

2.5 まとめ

以上、3種類の高性能バスケット用中性子吸収構造材について、高燃焼度・MOX使用済燃料に対して設定したバスケットについて検討した。3種類の材料すべてにおいて、要件を満たすバスケット設計が可能であることが明らかになるとともに、その場合の材料の必要特性（ボロン含有量、強度、必要板厚等）も明らかとなった。

ステンレス鋼およびアルミニウム合金のいずれもが、そ

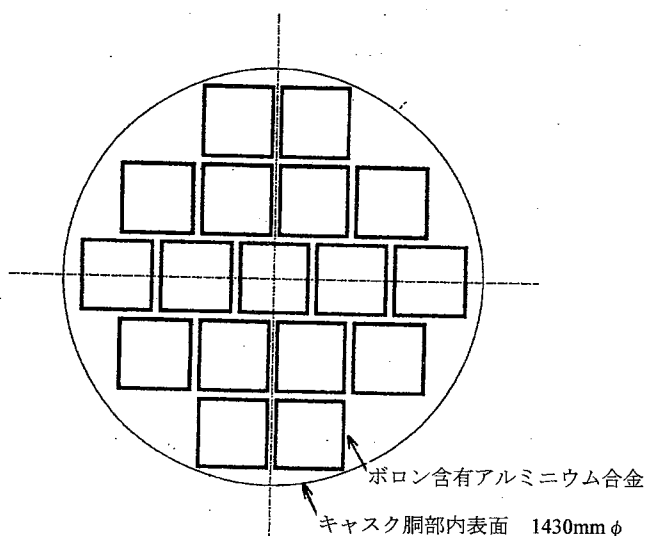


Fig.3 Example of basket structure made of Borated aluminum alloy. (For the dry storage of high burnup spent fuels)

の合金特性上、ボロンの添加量に限界があるため、これらの材料を高燃焼度・MOX使用済燃料用バスケット材として単独で用いる場合には ^{10}B の濃度を高めた濃縮ボロンの使用が必要となった。

ボロン含有ステンレス鋼はボロン含有アルミニウム合金と比較して単位体積当たりのボロン含有量が多いため中性子吸収特性に優れ、材料強度も高いが、熱伝導度が低いため単体での使用では除熱設計で制約を受ける。

3層クラッド材は臨界防止性能に優れたボロン含有ステンレス鋼層と熱伝導性に優れた銅層の層厚比を変えることにより、必要特性に対して柔軟な対応が可能であり、合理的なバスケットの設計が可能になると考えられる。

ボロン含有アルミニウム合金は伝熱性には優れるが、その材料強度は低く延性も少ないため実用上に不安が残る。また、中性子吸収特性もボロン含有ステンレス鋼に比べて劣るため、多くの水ギャップが必要となった。次項以下では、3種類の材料について行った材料特性試験の結果を示す。

3 高性能バスケット用中性子吸収構造材の材料特性

3.1 ボロン含有ステンレス鋼[3-5]

(1) 試験条件

Table 6に本試験で用いたボロン含有ステンレス鋼の仕様およびボロン含有ステンレス鋼を用いたバスケット材の要件を示す。

オーステナイト系ステンレス鋼に対するボロンの固溶限界は100ppm程度であり、添加したボロンの大部分は硬く脆いボライド $[(\text{Fe} \cdot \text{Cr})_2\text{B}]$ として母相中に分散析出する。

Table 5 Example of the cask design with Borated aluminum alloy basket.

項目		高性能 B-AI 使用キャスク I	高性能 B-AI 使用キャスク II
対象燃料 (PWR)		高燃焼度使用済燃料	MOX 使用済燃料
収納体数 (体)		17	7
発熱量 (kW/キャスク)		23.6	12.8
キャスク	主要寸法	外形/内径 (mm)	2,396/1,430
		胴肉厚 (mm)	250
		中性子遮蔽厚み (mm)	160
	遮蔽性能 (at 1m,mSv/h)	0.08	0.058
	容器重量 (吊上時, t)	115.3	115.6
バスケット	ボロン濃縮度 (wt%) ・ 濃度 (wt%)	60wt%濃縮 ・ 1.0wt%	60wt%濃縮 ・ 1.0wt%
	板厚 (mm)	10	10
	実行増倍係数 ($k_{eff}+3\sigma$)	0.94473	0.92323
	燃料被覆管最高温度 (°C)	316	221
	バスケット材強度 (MPa) *	244	244
	落下時の発生応力 (MPa) **	164	164 以下

* ボロンアルミの設計降伏強度 (予備試験材料データによる)

**曲げ応力

そのため、熱間加工性をはじめ、諸材料特性に大きな影響を与える。Table 7 に製造したボロン含有ステンレス鋼の化学組成を示す。本材料特性試験では、実際の使用条件をカバーするために室温から 500°C までの各材料特性データを取得した。

(2) 試験結果および評価

Figure 4 に引張試験の結果を示す。ボロン含有材の引張強度および 0.2% 耐力は、母材である SUS304L 鋼と比較すると増加しているが、1.4wt%B 含有材の引張強度は室温で

460N/mm² 前後と、1.1wt%B 含有材のおよそ 630N/mm² を大きく下回った。伸びと絞りの値はボロン含有量の増加と共に減少した。

シャルピー衝撃試験の結果、SUS304L 鋼の吸収エネルギー値は室温で 250J 強であるが、ボロン含有材は 10~20J であり、延性の著しい劣化が確認された。しかし、破面を SEM 観察すると延性的な特徴が見られた。このことから、衝撃値の低下は母相に析出したボライドの影響と考えられる。

曲げ試験の結果を Table 8 に示す。ボロンの添加により、

Table 6 Specification and requirements of Borated stainless steel.

用途	材料/要件	供試材No.	ボロン含有量	板厚 (mm)	サイズ (mm)
MOX 使用済燃料 乾式貯蔵用 バスケット材	1.1wt%天然ボロン 含有ステンレス鋼	A	1.14wt%	17	1,000×1,000
		B	1.08 wt%	17	1,000×1,000
	バスケット材要件	—	1.0 wt% (天然ボロン)	20	1,200×4,000 (概寸、最大)
高燃焼度使用済燃料 乾式貯蔵用 バスケット材	1.4wt%天然ボロン 含有ステンレス鋼	C	1.42 wt%	17	1,000×1,000
		D	1.43 wt%	17	1,000×1,000
	バスケット材要件	—	1.3 wt% (濃縮ボロン)	20,30	1,200×4,000 (概寸、最大)

Table 7 Chemical composition of Borated stainless steel (wt.%) .

供試材	B	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr
A	1.11	0.025	0.69	0.91	0.016	0.001	9.23	18.87
B	1.07	0.021	0.57	0.99	0.005	0.001	9.12	19.30
C	1.35	0.021	0.27	0.89	0.024	0.001	11.90	18.41
D	1.42	0.017	0.27	0.87	0.022	0.001	12.20	18.65
SUS304L	—	<0.030	<1.00	<2.00	<0.045	<0.030	9.00 13.00	18.00 20.00

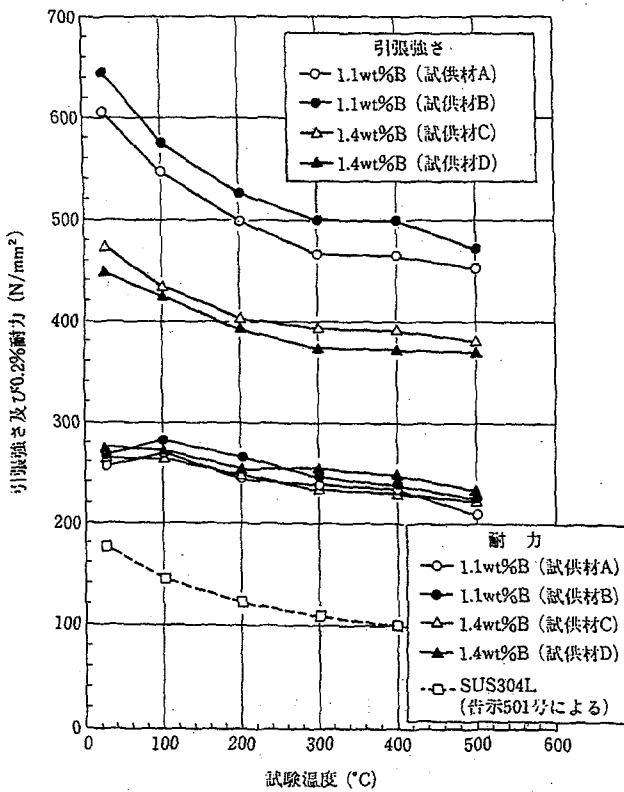


Fig.4 Tensile stress(TS) and 0.2% proof stress(0.2% PS) of Borated stainless steel.

曲げ変形性の低下が認められた。特にボロン含有量の高いCおよびD材で延性の低下が著しかった。

静的破壊靱性試験では全ての温度域において塑性変形は起こらず、破壊靱性値 J_{ic} は 39N/mm 以上であった。試験温度依存性は見られなかった。動的破壊靱性試験における破壊靱性値 J_{id} は 35N/mm 以上と、 J_{ic} に比べて若干小さな値であったが、静的試験と同様に試験温度依存性は見られなかった。また、全ての破面は延性破面であった。

クリープ破断試験および疲労試験については、母材とほぼ同等の結果が得られた。

縦弾性係数はボロン含有量の増加と共に上昇したが、剛性率、熱膨張係数、熱伝導率、比熱等は母材との大きな差は見られなかった。また、組織観察の結果では、析出ボライドの圧延方向への分布が見られたが、材料特性の顕著な異方性は認められなかった。

溶接部では、溶接施工性は母材の SUS304L 鋼と変わらず、引張試験は正常部とほぼ同等の結果が得られたが、曲げ変形性の低下が認められた。

また、溶接部のシャルピー衝撃試験の吸収エネルギー値は、供試材 A (1.1wt%B 含有) で 40J 弱、供試材 C (1.4wt%B 含有) で 20J 前後と、正常部より高い値となった。溶接部の組織観察も行ったが、問題となる欠陥は認められなかった。

ボロン含有ステンレス鋼は、そのボロン含有量の増加に伴い、母材の SUS304L 鋼と比較して、強度の増加は見られ

るものの延性が大きく劣化することが確認された。バスケット用構造材としてのボロン含有ステンレス鋼では、延性確保の観点からボロン含有量は少なくとも 1.2wt%以下が望ましいと考えられる。さらにステンレス鋼では伝熱性能の向上が課題であり、アルミニウム合金等と比較して劣る伝熱性能等の材料物性をバスケット構造の設計等で補う必要がある。

3.2 ボロン含有 3 層クラッド材[3-5]

(1) 試験条件

ボロン含有 3 層クラッド材は、中性子吸収特性に優れたボロン含有ステンレス鋼層の間に伝熱特性に優れた銅層を配し、クラッド材として一体化させることにより、ボロン含有ステンレス鋼の構造材としての強度特性や中性子吸収能等を保持したまま、伝熱特性の向上を狙った材料である。Table 9 に本試験で用いたボロン含有 3 層クラッド材の仕様および 3 層クラッド材を用いたバスケット要件を示す。

(2) 試験結果および評価

Figure 5 に引張試験の結果を示す。全厚状態のクラッド材に対する引張試験結果は、構成するそれぞれの材料の強度データから検討すると、層厚比に応じた複合則が成立していることがわかった。

Figure 6 にシャルピー衝撃試験の試験片採取位置、にシャルピー衝撃試験の結果を示す。銅層があるため吸収エネルギーの値はボロン含有ステンレス鋼よりも増加するが、吸収エネルギーの試験温度依存性は見られなかった。Fig. 7 にシャルピー衝撃試験の結果を示す。銅層があるため吸収エネルギーの値はボロン含有ステンレス鋼よりも増加するが、

Table 8 Bending propaties of Borated stainless steel.

供試材 および採取方法**		曲げ半径*			
		1tR (18mm)	2tR (36mm)	3tR (50mm)	4tR (70mm)
供試材:A (1.1wt%B 含有)	RD 方向	○△	○○	○○	—
	TD 方向	△▲	○○	○○	—
供試材:B (1.1wt%B 含有)	RD 方向	○○	○○	○○	—
	TD 方向	○△	○○	○○	—
供試材:C (1.4wt%B 含有)	RD 方向	▲	▲	○○	○○
	TD 方向	×	▲	○○	○○
供試材:D (1.4wt%B 含有)	RD 方向	×	▲	○○	○○
	TD 方向	×	×	○△	○○

○ : 180° まで曲げ可能, △ : 曲げ角度 180° ~ 90° で破断, ▲ : 曲げ角度 90° ~ 45° で破断, × : 曲げ角度 45° 未満で破断
* 曲げ治具の半径: 板厚の整数倍
**RD 方向: 圧延方向、TD 方向: 板幅方向

Table9 Specification and requirements of Borated clad material.

要件/供試材	ボロン濃度	板厚	層厚比
MOX 使用済燃料用バスケット材要件	1.0wt% (天然ボロン)	30mm 20mm	10/10/10 7/6/7
高燃焼度使用済燃料用バスケット材要件	1.0wt% (天然ボロン)	20mm 10mm厚 B-SUS 板併用	7/6/7 —
供試材 : A	1.14wt%	20mm	7/6/7
供試材 : B	1.42wt%	20mm	7/6/7

吸収エネルギーの試験温度依存性は見られなかった。

Table 10 に曲げ試験の結果を示す。ボロン含有ステンレス鋼の部分に 1.4wt%B 含有材を用いたものは、1.1wt%B 含有材を用いたものに比べ著しい曲げ変形性の低下が見られた。しかし、ボロン含有ステンレス鋼と銅の接合界面についてはこの曲げ試験および剪断試験により評価したが、剥離等は見られず、接合は健全であることが確認された。

ボロン含有 3 層クラッド材は、ボロン含有ステンレス鋼に近い強度を持ちながら、熱伝導性を向上させた材料である。ボロンの添加により、ステンレス鋼部分には、ボロン含有ステンレス鋼と同様に延性の劣化が認められたが、ボロン含有 3 層クラッド材を使用することによって、かなり自由度の高いバスケット設計が可能になると考えられる。

3.3 ボロン含有アルミニウム合金[3-5]

(1)試験条件

Table 11 に本試験で用いたボロン含有アルミニウム合金 (¹⁰B 濃縮度 100%の濃縮ボロンの使用を前提にしてボロン

Table10 Bending propaties of Borated clad material.

供試材		曲げ半径*	2tR	3tR	4tR
供試材 : A (1.1wt%B 含有)	RD 方向		○△	○○	○○
	TD 方向		△△	○○	○○
供試材 : B (1.4wt%B 含有)	RD 方向		××	××	○×
	TD 方向		××	××	××

○ : 180° まで曲げ可能, △ : 曲げ角度 180° ~ 90° で破断, ▲ : 曲げ角度 90° ~ 45° で破断, × : 曲げ角度 45° 未満で破断

保証下限値 0.6wt%) の仕様およびバスケット材の要件を示す。

ボロン含有アルミニウム合金の母材としたのは時効硬化により高強度を達成した A6061 合金であり、これにボロンを 0.6wt%以上添加し、供試材を 2 溶解試作した。Table 12 に製造したボロン含有アルミニウム合金の化学組成を示す。アルミニウム母相中にボロンはほとんど固溶せず、添加されたボロンは主に Al-B 系の化合物として析出する。

(2)試験結果および評価

引張試験の結果を Fig.8 に示す。引張強さは室温で 320~330N/mm², 0.2%耐力は室温で 280N/mm² を示し、母材の

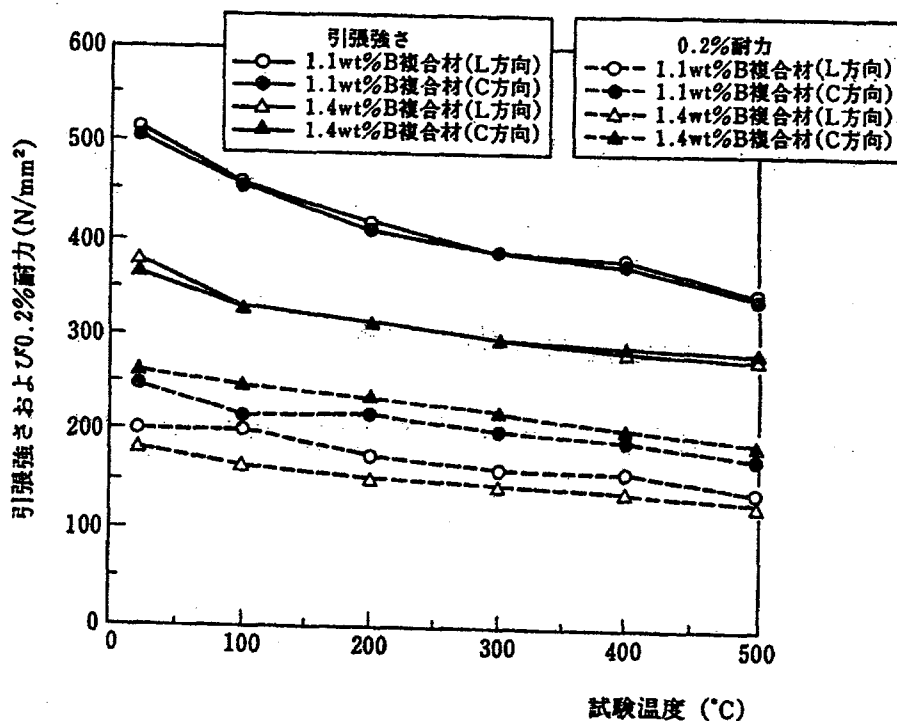


Fig.5 Tensile stress(TS) and 0.2% proof stress(0.2%PS) of Borated clad material.

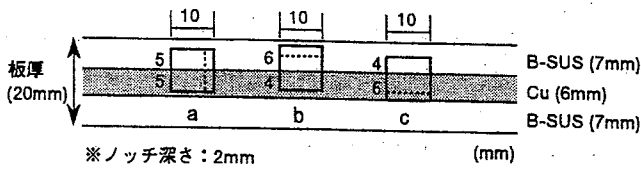


Fig. 6 Located position of test pieces of Borated clad material.

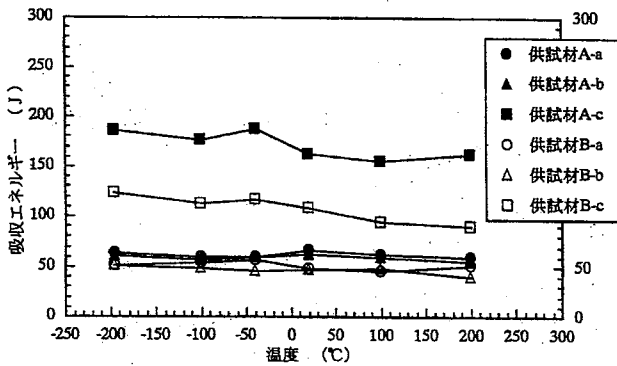


Fig. 7 Absorbed energy of Borated clad material. (RD: Rolling Direction)

A6061 合金とほぼ同等である。しかし、試験温度の上昇に伴い、引張強さおよび0.2%耐力が著しく低下することが確認された。300°Cにおいては、室温の半分以下の値であった。

シャルピー衝撃試験の結果、衝撃吸収エネルギーは3~4J程度(-50~250°Cの温度範囲)と低い値を示した。ただし、破面はボロン含有ステンレス鋼の場合と同様に延性破面であった。このことから、Al-B系の析出物の存在が延性劣化に大きな影響を与えていると考えられる。

Table 13 に曲げ試験の結果を示す。曲げ試験でも低い曲げ変形性が認められた。RD方向(圧延長手方向)と比較するとTD方向(圧延長手方向に直角な方向)の曲げ変形性の方が劣っている。

疲労試験の結果、ボロン含有アルミニウム合金の疲労強度は母材のA6061合金の値(98.1N/mm²)とほぼ同等であった。

静的破壊靱性試験で得られたJ_{ic}値は、-75°C~150°Cの範囲で約10~20N/mmであり、試験温度に対する明瞭な遷移曲線は得られなかった。すべての破面が延性破面であった。

ミクロ組織観察では、ボロン系化合物と思われる析出物が分散析出している様子が観察され、EPMAの元素面分析

Table 11 Specification and requirements of Borated aluminum alloy. (For the dry strage of high burnup and MOX spent fuels)

要件/供試材	ボロン濃度	板厚	許容応力 (膜応力+曲げ応力)
バスケット材要件	1.0wt% (¹⁰ B: 60at%)	10mm	14.9kgf/mm ² (高) 24.9kgf/mm ² (M)
供試材: A	0.7~0.8wt% (100at% ¹⁰ B前提)	12mm	—
供試材: B	0.8~0.9wt% (100at% ¹⁰ B前提)	12mm	—

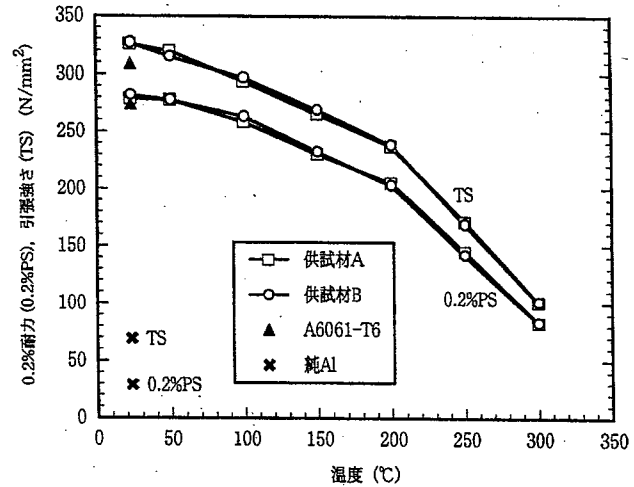


Fig. 8 Tensile stress (TS) and 0.2% proof stress(0.2%PS) of Borated aluminum alloy.

(Ref. TS: Type 304L with 1.1wt%B=606 N/mm² (R.T.), 467 N/mm² (300°C)
0.2%PS: Type 304L with 1.1wt%B=256 N/mm² (R.T.), 238 N/mm² (300°C))

により、この析出物が主にAl-B系の化合物であることが確認された。

また、長期健全性の評価を目的として、材料に実機バスケットを模擬した270°C前後の温度履歴を付与し、その後の引張特性およびシャルピー衝撃特性を評価した。

Figure9に温度履歴付与後の引張試験の結果を示す。ボロン含有アルミニウム合金の引張強度および0.2%耐力は温度履歴付与時間と共に低下し、10000時間の温度履歴付与後では、それぞれ初期(温度履歴付与なし)の半分以下に低下した。ただし、強度低下の割合は時間とともに減少し、温度履歴付与時間が3000時間から10000時間の間では強度低下はほとんど認められなかった。伸びおよび絞りの増加も100時間経過までは急であるが、300時間を過ぎると徐々

Table 12 Chemical composition of Borated aluminum alloy (wt.%) .

供試材	B	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti
A-(T)	0.7	0.71	0.46	0.29	<0.005	1.11	0.15	<0.005	0.004
A-(B)	0.8	0.74	0.46	0.29	<0.005	1.14	0.16	<0.005	0.004
B-(T)	0.9	0.71	0.45	0.29	<0.005	1.17	0.17	<0.005	0.005
B-(B)	0.8	0.73	0.46	0.29	<0.005	1.14	0.14	<0.005	0.004
参考値	0.6% 以上相当	0.40 ~0.80	0.70 以下	0.15 ~0.40	0.15 以下	0.80 ~1.20	0.04 ~0.35	0.25 以下	0.15 以下

注: Siは重量法、他はICP分析法、参考値はB以外はJIS6061による。

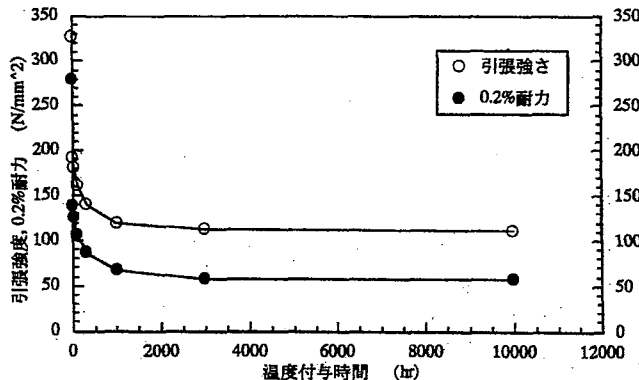
Table 13 Bending propaties of Borated aluminum alloy.
a) Tensile stress and 0.2% proof stress. b) Elongation and reduction.

供試材No.		曲げ半径					
		25R (約 2tR)	40R (約 3tR)	50R (約 4tR)	65R (約 5tR)	75R (約 6tR)	108R (約 9tR)
A	RD 方向	×(48°)	○	○	—	○	○
	TD 方向	—	—	×(57°)	×(33°) ×(70°)	○	○
B	RD 方向	×(40°) ×(50°)	○	○	—	○	○
	TD 方向	—	—	×(60°) ×(40°)	○	○	○

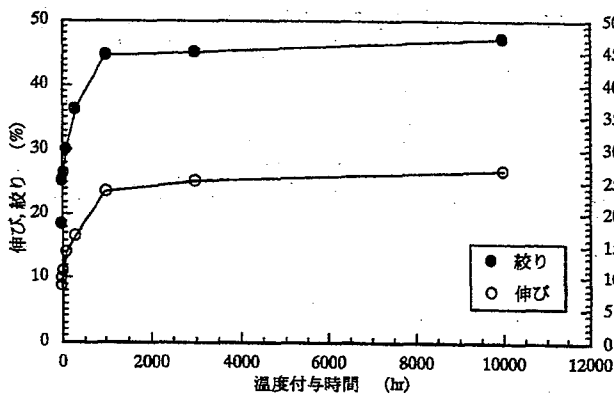
○ : 割れなし
 × : 割れあり、() 内は割れ発生角度

に緩やかになった。本試験に用いたボロン含有アルミニウム合金は時効硬化型の A6061 合金を母材としているため、温度履歴を与えると復元が起こると考えられる。つまり、高強度を与える Mg₂Si が温度履歴付与によって成長、粗大化し、強化作用が低下するのである。温度履歴付与による強度低下は 10000 時間でほぼ停止したと考えられる。

温度履歴付与後のシャルピー衝撃試験の結果、吸収エネ



a) Tensile Stress and 0.2% Proof Stress.



b) Elongation and Reduction.

Fig.9 Time dependence of tensile properties of Borated aluminum alloy.
 (Tensile test results at room temperature after given the history of 270°C)

ルギーの試験温度依存性はほとんど認められなかった。温度履歴付与時間との関係については、温度履歴を与えなかった試験片の吸収エネルギー値が約 4J であったのに対し、100 時間の温度履歴を与えたものは 10J 強、さらに 3000 時間の温度履歴を与えたものは 15~20J と増加傾向を示し、横膨出量も同様に増加が認められた。これは、温度履歴を与えることにより復元が起こり、強度が低下するとともに延性が増加したためと考えられる。

以上に示したように、ボロン含有アルミニウム合金のボロン添加に伴う延性の劣化および温度履歴付与による強度低下が確認された。また、ボロン含有アルミニウム合金では、ボロン系化合物の析出による熱中性子吸収効果の低下も予想された。特に温度履歴付与による強度低下およびボロン系化合物の析出による熱中性子吸収効果の低下は、これまでのバスケット設計ではあまり考慮されておらず、今後の設計時においては十分に配慮する必要があると考えられる。

4 まとめ

高性能の中性子吸収効果を期待できると考えられるボロンあるいは濃縮ボロンを高濃度に添加した 1) ボロン含有ステンレス鋼, 2) ボロン含有 3 層クラッド材 (B-Stainless Steel/Cu/B-Stainless Steel), ならびに, 3) ボロン含有アルミニウム合金, を対象にバスケット用中性子吸収構造材料としての適用性を検討するとともに、種々の材料試験を行い、基準化等に必要データを取得し使用上配慮すべき点をまとめた。

- 1) 高燃焼度使用済燃料を対象としたバスケットでは未臨界性の向上が課題であったが、構造材に高濃度ボロン・濃縮ボロンを添加することにより課題の解決は可能である。
- 2) 除熱性能の向上が課題であった MOX 使用済燃料を対象とするボロン含有ステンレス鋼バスケットでは、部材の伝熱性を高めた構造とすることや、複合材を用いることが効果的である。
- 3) バスケットの構造も材料自体の特性と同様にバスケッ

トの未臨界性や除熱性能の向上を検討するうえで重要である。

4) ボロン含有ステンレス鋼

ボロン含有ステンレス鋼については、ボロンの添加により0.2%耐力と弾性率は増加、引張強度、延性、衝撃値、曲げ変形性等は減少した。特に、1.4wt%のボロンを含有した材料は引張強度、衝撃値の著しい低下が認められた。クリープ特性、疲労特性、熱的性質等は母材のSUS304L鋼と比較して、あまり変化が見られなかった。組織的には析出ボライドの圧延方向への分布が見られたが、材料特性の顕著な異方性は認められなかった。また、溶接部では、溶接施工性は母材のSUS304L鋼と変わらず、非溶接部と比較して引張強度の変化は見られなかったが、曲げ変形性の低下が認められた。バスケット用構造材としてのボロン含有ステンレス鋼では、延性確保の観点からボロンの添加は1.2wt%程度以下が望ましいと考えられる。

5) ボロン含有3層クラッド材

3層クラッド材については、引張強さはボロン含有ステンレス鋼との複合則の成立が示され、曲げ性の低下が認められた。また、溶接部でも曲げ性の低下が認められた。伝熱性能はボロン含有ステンレス鋼と比較して、著しい向上が認められた。

6) ボロン含有アルミニウム合金

ボロン含有アルミニウム合金では、ボロンの添加により、衝撃吸収エネルギー、伸び、曲げ性等の低下が確認されたが、引張強度、硬さおよび熱的性質等は母材とほとんど変わらなかった。また、母材が熱処理型のA 6061合金であるため、10000時間の温度履歴付与後では、引張強度、0.2%耐力は初期の半以下に低下することが確認された。温度履歴付与により、吸収エネルギーには増加が認められた。温度履歴付与による強度低下は、これまでのバスケット設計ではあまり考慮されておらず、今後の設計時には十分に考慮する必要があると考えられる。

以上の検討結果から、種々配慮すべき点はあるもののこれらの材料をバスケット材に適用することで未臨界性と除熱性能の向上が図られ、将来発生する高燃焼度・MOX使用済燃料も金属キャスクにより安全に貯蔵可能であることが示された。

5 今後の課題

本研究で試作したボロン含有ステンレス鋼、ボロン含有アルミニウム合金それぞれについて、ボロンの添加による延性の劣化が確認された。これは、添加したボロンが、ステンレス鋼中においてもアルミニウム合金中においてもほとんど固溶せず、その大部分が化合物として母相中に析出するためである。でき

るだけ細かく分散析出するように製造時に制御することが、材料特性を向上させるうえでの今後の課題である。

また、ボロン含有アルミニウム合金では、ボロン系化合物の析出による熱中性子吸収効果の低下も予想された。今後、これらの材料を使用する場合には、このような特性を理解したうえで適用することが重要である。

本試験において3種類の材料の材料特性データを概ね取得できたが、バスケット用材料として規格化を行うには、さらに多くの供試材を用いた材料データの充実が望ましい。

謝辞

終始御指導を戴きました東京大学矢川元基先生、同大学中沢正治先生、横浜国大酒井譲先生をはじめ、多くの方々に謝意を表します。また、材料試験においては中立的な立場でのデータ取得のために、概ね神戸試験所にて実施し、取得困難なデータについては、三菱マテリアル(株)、(株)日本製鋼所、(株)神戸製鋼所、NKK等多くの材料メーカーの御協力を得て実施した。ここに厚く御礼申し上げます。さらに、本報の内容には経済産業省(当時、通産省)からの受託研究の成果が一部含まれていることを付記し、ここに謝意を表します。

参考文献

- [1] Ichikawa, M.: Nuclear Engineering, **39**, 5, The NIKKAN KOGYO SIMBUN LTD. (1993).
- [2] Ajima, T., Kosaki, A., Inohara, Y. et.al.: Development of cask basket for high burnup and MOX spent fuels. *PATRAM'95*, 1447-1454 (1995).
- [3] 安島辰郎, 小崎明郎, 猪原康人, 横山速一: 高性能中性子吸収構造材を用いた高燃焼度・MOX使用済燃料貯蔵用バスケット. 日本原子力学会誌 **39**, 156-165 (1997).
- [4] Kosaki, A., Inohara, Y. et.al.: Advanced R&D on spent fuel storage -spent high burn-up fuel and MOX(Mixed-Oxide: Pu and U) fuel-. INMM (Institute of nuclear materials management), *Proc. of INMM spent fuel management seminar 14th.*, Washington, January 29-31 (1997).
- [5] 小崎明郎, 大江耕一郎, 安島辰郎, 猪原康人: ボロン含有バスケット用材料の靱性と伝熱特性. 日本原子力学会 1997秋の大会, 沖縄 10月14~17日, J67 (1997).