

原環センター トピックス

RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT FUNDING AND RESEARCH CENTER TOPICS

2015.3.NO.113

目 次

センターの活動状況	①
処分容器の健全性評価における金属工学的アプローチ	③

センターの活動状況

I 運営状況

第15回理事会の開催

平成27年3月3日開催の第15回理事会において、平成27年度事業計画及び収支予算等について付議し、それぞれ原案のとおり承認されました。

第11回評議員会の開催

平成27年3月9日開催の第11回評議員会において、平成27年度事業計画及び収支予算、評議員の選任等について付議し、それぞれ原案のとおり承認されました。今回の選任により、次の方が交代されました。

(敬称略)

区 分	退 任 者	新 任 者	新任者所属・役職
評議員	川井 吉彦	工藤 健二	日本原燃株式会社 代表取締役社長 社長執行役員

Ⅱ 成果等普及活動の実施状況

平成26年度 第3回原環センター講演会の開催

平成26年度第3回原環センター講演会を以下のとおり開催しました。

開催日時：平成27年1月28日(水) 15:00～17:00
会場：公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター 第1、2会議室
演題：ベントナイトの遮水性能の正しい認識と誤解の払拭
講演者：早稲田大学理工学術院
創造理工学部 社会環境工学科
小峯 秀雄 教授

福島第一原子力発電所内の地下貯水槽からの汚染水漏洩でのベントナイトを用いた粘土系土質遮水技術への誤解に対し、これを払拭するための基礎知識とともに、上記の汚染水漏洩問題の定量的な解釈をお話し頂きました。



平成26年度 第4回原環センター講演会の開催

平成26年度第4回原環センター講演会を以下のとおり開催しました。

開催日時：平成27年3月26日(木) 15:00～16:45
会場：日本交通協会 大会議室
演題：欧米主要国での放射性廃棄物処分事業の進捗状況
講演者：技術情報調査プロジェクト
チーフ・プロジェクト・マネジャー
稲垣 裕亮

様々な進捗状況にある欧米主要国の放射性廃棄物処分事業の大きな流れと、フィンランド、スウェーデン、フランス、ドイツ、英国、スイス、カナダ、米国での処分事業の現状を紹介しました。

各国の現状の詳細は、当センターホームページ「諸外国の高レベル放射性廃棄物処分等の状況」
<http://www2.rwmc.or.jp/wiki.php> をご覧下さい。



処分容器の健全性評価における金属工学的アプローチ

処分工学調査研究プロジェクト

小林 正人

1.はじめに

“鉄”と“炭素鋼”は一括りに取り扱われているごくありふれた材料ではあるが、非常に興味深い性質を持つ材料である。本稿では“鉄”と“炭素鋼”について、その概要を示すとともに、高レベル放射性廃棄物の処分容器であるオーバーパックについて、金属材料と腐食の観点から、健全性の考え方について述べる。

◆炭素鋼オーバーパックの製作

高レベル放射性廃棄物の地層処分の目標は、長期間にわたり放射性廃棄物を人間環境から隔離し、安全性を確保することである[1]。この目標を達成するための地層処分システムは、ガラス固化体、オーバーパック、緩衝材から構成される人工バリアと、その人工バリアが構築される安定な岩盤といった地質環境からなる。それぞれが期待される安全機能を発揮することで、地層処分を実現する。今回取り上げるオーバーパックの安全機能は、発熱が著しい期間にガラス固化体と地下水との接触を防止することである。この安全機能が期待されるのは現状では閉鎖後約1,000年間とされており、わが国ではオーバーパックの有力な候補材料として炭素鋼が検討されている[1]。

オーバーパックは内部にガラス固化体を収納する構造であるため、本体にガラス固化体を挿入した後、蓋を何らかの方法で閉じる必要があるが、安全機能を満足する封入手段として溶接が検討されてきた[2]。原環センターでは平成12年度から一般産業界で使用されている種々の溶接技術について調査、溶接試験等を開始し、アーク溶接法であるTIG (Tungsten Inert Gas)溶接、MAG (Metal Active Gas)溶接と、高エネルギービーム溶接であるEBW(Electron Beam Welding)の3つの手法について、平蓋構造及び落し蓋構造の実規模スケールの溶接試験を実施し、オーバーパックの封入工程に対して技術的実現性を示した[2]。

◆炭素鋼オーバーパックの健全性

オーバーパックの安全機能と「構造評価」と「腐食評価」の関連を図-1に示す。このようにオーバーパックの健全性は6つの要素を2つの観点で整理して示すことができる。炭素鋼オーバーパックの安全機能は前述のとおりであるから、この安全機能が発揮されている状態が「オーバーパックが健全な状態」

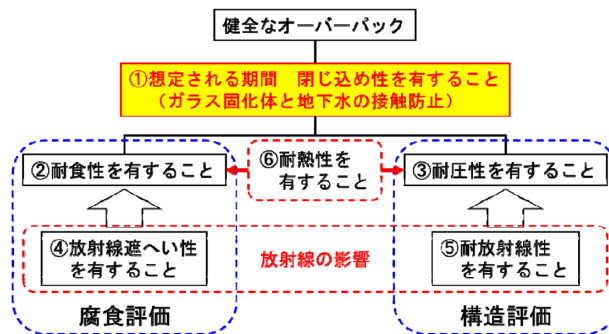


図-1 健全なオーバーパックの考え方

であり、この健全な状態が閉鎖後1,000年間維持されれば、オーバーパックはその役目を果たしたことになる。この観点から1,000年後の健全なオーバーパックを考えた場合、外力に対抗してガラス固化体を納める内空が確保されていることが求められ、これは「構造評価」から説明される。一方、炭素鋼は地層処分環境では腐食することから、構造的に必要な肉厚(耐圧厚さ)に「腐食評価」から得た1,000年間分の腐食減肉量(腐食しろ)を加えたものが、長期健全性を確保するオーバーパックになる。オーバーパックが1,000年間健全な状態であることを示すためには、耐圧厚さに上乗せした腐食しろが想定通りに減ることを示せば良く、オーバーパックの材料は「腐食評価」から選定することが必要である。

◆オーバーパック腐食しろの設定

炭素鋼オーバーパックにおいて、期待される寿命を腐食しろの確保で達成するためには、以下の点が前提条件となる

- ①処分環境においてオーバーパック全体が均一に腐食する。
- ②全腐食量、もしくは腐食速度が定量的に把握できる。
- ③応力腐食割れや水素脆化等の局所的な破損が発生しない。
- ④不均一腐食や割れが発生する場合、その度合いが定量的に予測できる。

これに対し、わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—(以下、HLW第2次取りまとめ)では、炭素鋼オーバーパックの母材を対象とした検討

により、腐食しろ40mmを設定した[1]。①の均一腐食については緩衝材共存環境では炭素鋼が不働態化しないpHの範囲になること、②については酸化性雰囲気での浸漬試験より酸素による全腐食量を、低酸素雰囲気での浸漬試験より平均腐食速度を求め、腐食しろの設定のための根拠とした。③の局所的な破損については既往の文献調査や鋼中水素濃度の観点からの検討により、炭素鋼では生起しないものとした。④について、酸化性雰囲気での不均一性は試験片の形状計測の結果から極値統計を用いて推定した最大腐食深さ、低酸素雰囲気では腐食の局在化を考慮して、腐食速度から求めた1,000年間の腐食深さの倍を採用している。

◆オーバーパック製作時の不均一性

以上の見解は均一な材料として取り扱うことが可能な母材の場合である。一方、オーバーパックの溶接封入部には、母材と大きく異なる3つの点がある。

- ⑤アーク溶接等の溶接材料（ワイヤー）を使用する溶接法では、溶接金属の化学成分が母材と異なる。
- ⑥溶接時の熱履歴や成分の違いにより、金属組織が異なる。
- ⑦溶接時の熱履歴により、溶接部近傍には残留応力が発生する。

図-2にTIG溶接試験体の溶接部の金属組織を例示する。TIG溶接は多層盛り溶接となるため、上段の断面マクロ写真のように規則的な模様を呈す。より高倍率で観察すると、部位ごとに全く異なる金属組織形態となっていることが分かる。このような金属組織写真は、材料を鏡面研磨しエッチング溶液で腐食させて金属組織を明瞭にした後に、顕微鏡で観察することで得られる。エッチングは溶液に対する金属組織ごとの腐食の差を利用して凹凸を設ける手法である。つまり、図-2上段の写真のような縞模様は、部位ごとの腐食挙動の差を視覚的に表していることに他ならない。

このように部位ごとに腐食挙動が異なる溶接金属部を、腐食試験に供するとどのような結果になるのであろうか。原環センターでは平成16年度より、製作した模擬オーバーパック溶接試験体に対する腐食試験を開始した。その結果、酸化性雰囲気における浸漬試験ではアーク溶接試験体に図-3に示すような溶接金属部の選択的な腐食が発生した。図-3はTIGの例であるが、MAGでも同様の現象が観察されている。溶接金属には極端な化学成分の偏りは無いと考えられるから、この選択的な腐食の特異な点は、溶接金属内で生じた腐食が溶接時の熱履歴に対応していることである。このような材料自体の不均一性に

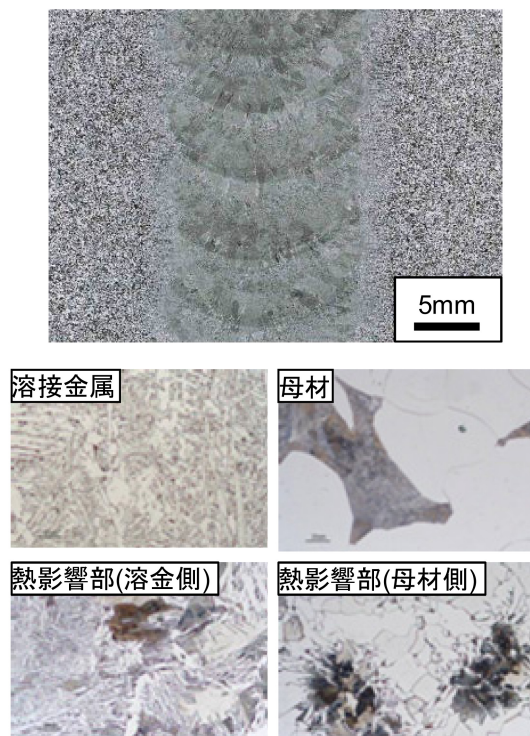


図-2 オーバーパック溶接試験体の金属組織

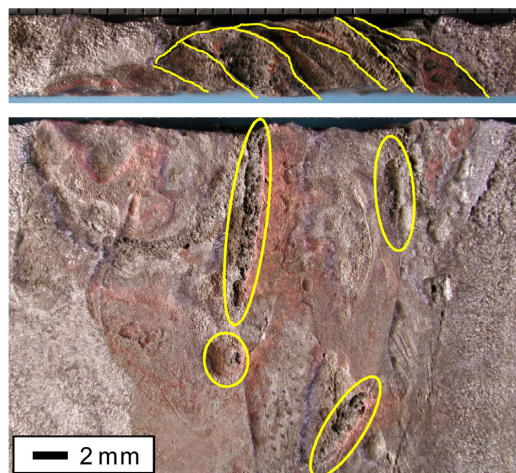


図-3 TIG溶接金属で発生した選択腐食

起因する不均一腐食は、腐食しろの前提条件①に影響するため、アーク溶接の使用においては対策が必要であることを示唆している。

◆溶接部の選択腐食の改善手法の検討

このようなアーク溶接部の選択的な腐食に対して、厚板狭開先の溶接条件を固定し溶接材料の化学成分の改良による改善手法を検討した。その結果、Niを微量添加した溶接材料を使用することで、図-4に示すように、溶接金属内の溶接パスに対応する不均一な腐食を低減出来ることを実験事実として確認した。

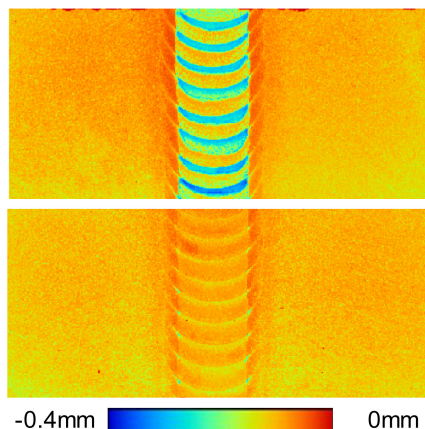


図-4 溶接材料の改良による品質改善効果
上段：従来材、下段：Ni添加材

◆金属材料という観点からの検討の必要性

以上のように、腐食しるにより健全性を確保しようとする炭素鋼オーバーパックにおいて、材料自体の不均一性が均一な腐食を阻害する要因となることが示唆された。溶接部の存在は「閉じ込め性」を実現しようとする封入手法上避けることが出来ないため、このような材料の不均一性に対してどのように対処していくのかという考え方が重要である。

2. 金属材料としての炭素鋼

人類が材料を利用する上では、原料の入手性及び原料からの抽出工程の容易性、ある程度の量が安定的に確保できるなどといった材料自体の入手性が重要である。

現在、人類が利用可能な鉱物資源は、半径約6,400kmの地球の中で、表面の薄皮一枚程度の数kmに存在するものだけである。この地表付近に存在する元素の割合を簡便に示すクラーク数（質量パーセント比）というものがある。この値は人類の元素へのアクセス容易性を示しているともいえる。酸素(49.5)、ケイ素(25.8)、アルミニウム(7.56)、鉄(4.70)と続いている[3]。複合オーバーパックの耐食層として検討が進められている、チタン(0.46)は10番目、銅(0.01)に至っては25番目である。このように鉄は4番目に多く、原料の鉄鉱石が露天掘りで大量に採掘可能であることも原料の入手性という点で大きなメリットである。

人類と金属材料との関係は自然銅として産出する銅から始まり、銅に錫を加えた青銅を利用する青銅器時代、鉄の出現により鉄器時代へと移り現代に至る。鉄よりも存在割合が高いアルミニウムは電解精錬法であるホール・エルー法と原料の高純度アルミナの大量生産を可能にしたバイヤー法、チタンはクロール法と、1800年代後半以降でようやく商業利用を可能にする精錬法が発明され、人類の歴史からみれば新素材の部類に入る。鉄は青銅といった銅合金

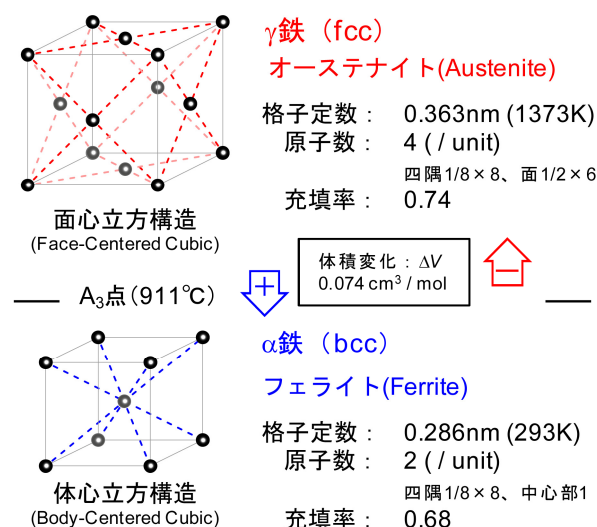


図-5 鉄の結晶構造

よりも強度が大きく、また後述する炭素鋼特有の性質のため、構造材料や武器として広く利用され、その性質は歴史をも変えた。このように鉄と人類の付き合いは他の金属と比較しても長く密接なものになっている。さらに、鉄の精錬はたたら製鉄のようなバッチ生産から高炉法による連続生産へと進化し、現在では粗鋼生産量が年間10億トンを超える規模になっており、鉄の利用から数千年経た現代においても未だ主たる金属材料の地位は揺るぎない。このように、その中で鉄に係る多くの知見が蓄積され、また遺跡から出土した鉄器がナチュラルアナログとして我々に時を経た姿を示してくれる。

◆炭素鋼という材料と金属組織

処分容器の候補材料として検討されている炭素鋼(Carbon Steel)は、鉄(Fe)に炭素(C)が入った材料である。容器の母材と溶接封入部の組織について、鉄という材料から説明を始める。

液体の純鉄を冷却すると、常圧化では融点(1536°C)で凝固しδ鉄(bcc 常磁性)と呼ばれる固体となる。さらに温度を下げていくと変態を起こし、A₄点(1392°C)でγ鉄(fcc)、A₃点(911°C)でα鉄(bcc 常磁性)、A₂点(キュリー点: 780°C)でα鉄(bcc 強磁性)になる。この中でA₃点における相変態が鉄の性質上重要である。

図-5にA₃点における相変態による結晶構造の変化を示す。γ鉄(オーステナイト)の結晶構造は細密構造の面心立方構造(fcc: Face-Centered Cubic)であるのに対し、α鉄(フェライト)は体心立方構造(bcc: Body-Centered Cubic)であるため、γ→αの相変態は体積膨張、α→γは体積収縮を伴う。またこの変態は鉄原子の拡散が必要である。

鉄に炭素を少量加えると相及び相平衡が変化し、図-6に示す平衡状態図のようになる。最も大きな特

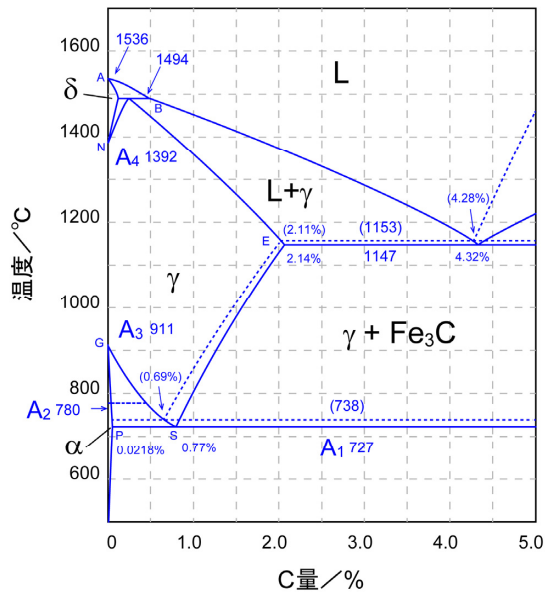


図-6 Fe-C系平衡状態図
(実線：Fe-Fe₃C系 点線：Fe-黒鉛系)

微はA₁点が生ずることである。状態図のようにオーステナイトやフェライトに溶け込むことができる炭素量は温度によって変化する。オーステナイトでは最大2.11%固溶できるのに対しフェライトでは僅かに0.0218%であるため、オーステナイトを冷却すると固溶限を超えた炭素は黒鉛や鉄炭化物(Fe₃C)として析出する共析変態が生じる。炭素濃度0.77%の共析組成の鋼を共析鋼、これ以下の鋼を亜共析鋼、0.77%~2.0%程度の鋼を過共析鋼、2.0%よりも炭素濃度が高いものを一般的に鋳鉄と呼ぶ。炭素濃度が低い方が溶接性が良いため、溶接封入する処分容器は一般的に亜共析鋼である。

図-6の平衡状態図から亜共析鋼の部分のみを抽出したものを図-7に示す。鉄に炭素が全て固溶したγ鉄を除く、平衡状態に限りなく近づけた組織を標準組織と言うが、標準組織は図-8に示すように炭素濃度によって大きく変化する。

温度T_{b1}の共析組成の鋼をA₁点直上のT_{b2}まで冷却しても全相オーステナイトであり、A₁点を超えた瞬間に共析変態を起こし、フェライトとFe₃Cに分解する。この変態ではフェライトとFe₃Cが縞状を呈すパーライトと呼ばれる組織を形成する。よって共析鋼はパーライト組織となる。

一方、炭素濃度が0.028%~0.77%の亜共析鋼の場合、温度T_{a1}から冷却するとA₃線を越えた段階で結晶粒界からフェライトが析出し始める。さらに冷却するとフェライト結晶粒が成長するとともに固溶限を超えた炭素がオーステナイト中に吐き出される。そしてA₁線直上のT_{a3}では、フェライトと共析組成のオーステナイトが共存した状態となり、A₁線を越えた瞬間にオーステナイトが共析変態を起こす。よって亜共析鋼はフェライトとパーライトが混在した組織と

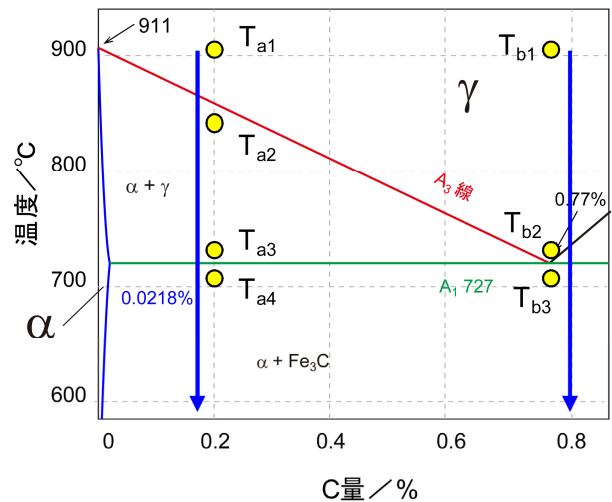


図-7 亜共析鋼の平衡状態図

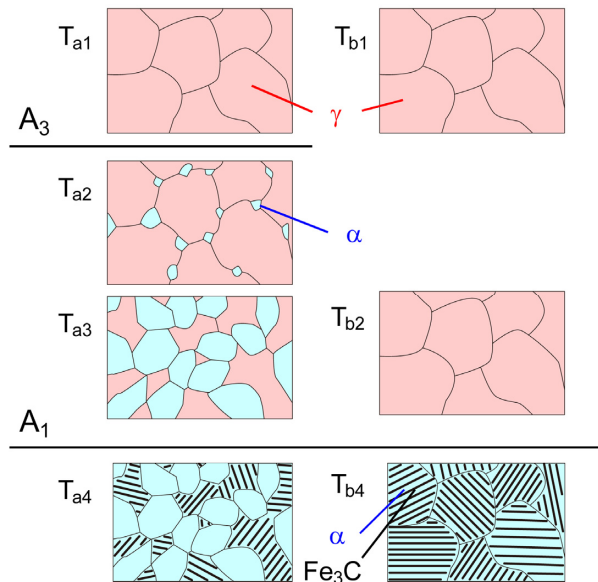


図-8 亜共析鋼（左）、共析鋼（右）の標準組織（模式図）

なる。フェライトとパーライトの割合は炭素濃度によって変化する。炭素濃度が低いほどフェライト量が多くなる。

このように炭素鋼はA₁点において共析変態が生じるために、炭素鋼と言っても炭素濃度で組織が劇的に変化する。これら組織の違いは材料そのものの性質と強く関連しており、炭素鋼が様々な分野で幅広く利用される理由の一つになっている。

◆炭素鋼の冷却過程と金属組織

溶接部は融点を超える温度まで急速に加熱された後に急速に冷えて凝固するため、図-8に示したような標準組織からは外れた状態となる。前述したようにオーステナイトからフェライトへの相変態は、fccからbccへの結晶構造の変化と固溶限を超えたフェ

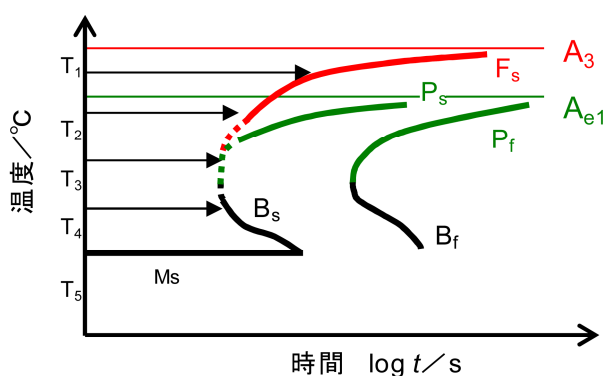


図-9 亜共析鋼の恒温変態線図（模式図）

ライト中の炭素の吐き出しが必要であり、これらは鉄原子や炭素原子の拡散によって成される。そのため変態が開始するまでに潜伏期間や変態が完了するまでのある程度の時間が必要である。亜共析鋼を A_3 線以上の温度に保持して全相オーステナイト化させた後、ある温度 T_k まで急冷してそのまま保持した時の相変態の開始までに要する時間（潜伏期間）及び終了時間の関係をまとめると図-9のような恒温変態線図（TTT曲線：Time-Temperature Transformation Diagram）になる。図中のFはフェライト、Pはパーライト、Bはベイナイトを示し、下付きのsとfは変態の開始までの潜伏時間と、終了時間をそれぞれ示している。例えば T_1 の場合、 F_s 線（フェライト析出開始点を結んだもの）までの潜伏期間を経た後に図-8の T_{a2} の様にフェライトが析出する。 T_2 の場合、共析変態温度である A_{e1} を下回っているが T_2 まで急冷されたことにより過冷却状態になっており、 F_s までの潜伏期間を経た後フェライトが析出し始め、 P_s で共析変態が始まり P_f で終了する。 T_3 ではフェライトの析出を伴わずに共析変態を起こし、亜共析鋼であるにも関わらず全面がパーライト組織になる。さらに急冷した T_5 では原子の拡散が間に合わないため、無拡散変態であるマルテンサイト変態が生じ、焼き入れ状態となる。このように同じ炭素濃度でも保持温度が変わることで炭素鋼の組織は標準組織から変化する。

TTT曲線はある温度まで急冷した後に保持することで得られる組織を表しているが、溶接において溶接部は連続的に冷却されていく。 A_3 線以上の温度のオーステナイトをある一定の速度で冷却し、変態の開始及び終了点を結ぶと図-10のような連続冷却変態線図（CCT曲線：Continuous Cooling Transformation Diagram）が得られる。連続的に冷却する場合、変態が終了する前に温度が下がるため、変態に必要な原子の拡散が不可能になり変態が中断する現象が生じる。図-10上の点線はある一定の冷却速度を示している。図上の冷却速度 R_{c1} ではマルテンサイト変態が生じ、全面がマルテンサイトとなる。 R_{c2} では初めにパ

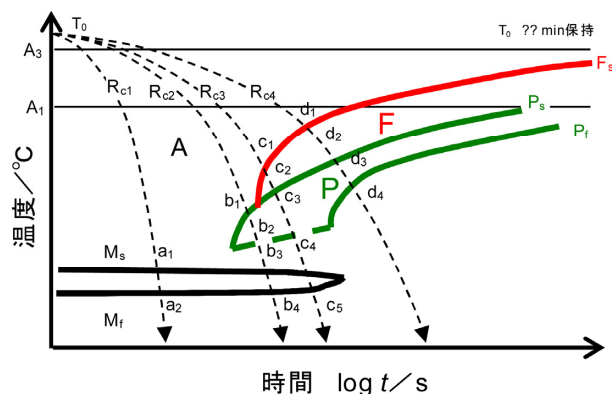


図-10 亜共析鋼の連続冷却変態線図（模式図）

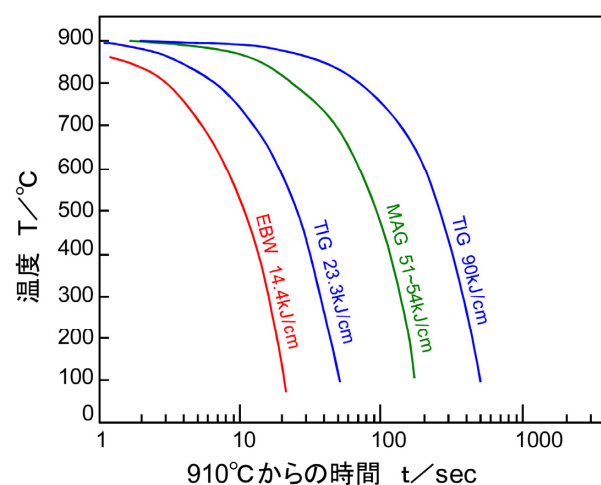


図-11 溶接手法ごとの等速冷却曲線のイメージ（※参考文献[4]を元に作成。）

ーライトが析出するが、冷却速度が速く変態が中断し、残ったオーステナイトがマルテンサイト変態を起こすため、パーライトとマルテンサイトが混在した組織となる。 R_{c3} では先ずフェライトが析出し、次にパーライト最後にマルテンサイトと3つの異なる組織が混在したものとなる。このように冷却速度が変わることで炭素鋼の組織は変化し、図-6の平衡状態図上では現れない相や図-8に示した標準組織とは似ても似つかない組織になる。さらに過冷却状態ではオーステナイト結晶内部からも新たな結晶が生じやすくなるため、より複雑な組織構成となる。

以上のように炭素鋼は炭素濃度と冷却方法で全く異なる組織になる。さらに炭素以外の合金元素の中にはオーステナイトやフェライトの安定性に寄与しCCT曲線の形を変化させるものがある。

3. 溶接部の組織の推定

図-10のように、対象とする材料の溶接CCT線図と溶接時の冷却曲線があれば、溶接により生成する組織をある程度推定することが可能になる。各種炭素鋼の溶接用CCT線図は様々な文献等で報告されて

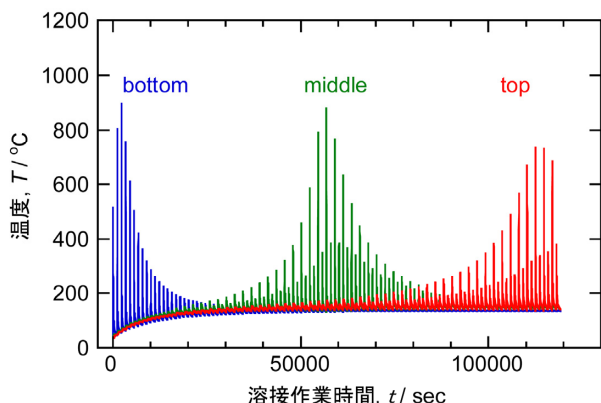


図-12 数値解析で推定したTIG溶接時のHAZの入熱サイクル（図中の凡例は深さ190mmの開先モデル上のメッシュの位置を示す）

いる[4]。また各溶接手法の冷却曲線は溶接対象物の大きさや溶接条件によって変化するが、入熱量で整理されたものがある[4]。この図を参考にして、過年度に実施した溶接試験における入熱量から推定した冷却曲線を図-11に示す。EBWは入熱量が小さいためTIG溶接やMAG溶接と比較して冷却が速くなることがわかる。

EBWは1パスで溶接されるため、溶融した金属が凝固した原質組織となるが、多層盛り溶接では、次のパスの溶接に伴う熱影響を受けることになり、その熱によっても金属組織が変化する。例えばTIG溶接で190mm全層溶接した場合、熱影響部は図-12のように溶接トーチの位置に対応した熱履歴となる[5]。最高到達温度は A_1 点や A_3 点を超えており、部分的にオーステナイトが生成し、冷却に伴って共析変態を起こす。このよう多層盛り溶接の溶接部の組織はより複雑なものとなる。

4. 工学技術への反映

前章までに示したように、溶接部の組織は加熱後の冷却過程に強く依存したものとなる。多層盛り溶接の溶接金属部で発生した選択腐食は、溶接材料の改良により改善出来る目途を得ているが、どのようなメカニズムにより改善効果が得られたのかは明らかになっていない。

溶接入熱量は溶接電流と電圧、溶接速度から決まるため、溶接施工性を検討すればその値は決まる。この入熱量と母材の板厚や予熱温度から、冷却曲線が導き出される。一方、CCT線図は化学成分から決

まる。溶接金属で発生した選択腐食に対し、金属組織の観点から腐食に対して優位な組織が明らかになれば、その組織が生成するように溶接条件や化学成分を調整することが可能になると考えられる。この一連の検討フローは、材料の選択から溶接封入までのオーバーパックの製作プロセスに対応する。

5. まとめ

オーバーパックの長期健全性に対し、腐食に寄与する金属材料側の観点からの検討を試みた。安全機能を満足する健全なオーバーパックを設計・製作するためには、鋼種選定と溶接方法を分離して検討することはできない。オーバーパックの材料や溶接方法の選定は、効率やコストを検討の中心にするのではなく、溶接部を含めた長期健全性を満足するオーバーパックの姿を描き、それを実現するための手段の一つとすべきであると筆者は考える。そのためにも鉄や炭素鋼といった材料について、地層処分に携わる多方面の方に興味をもって頂けるよう、努めていきたい。

参考文献

- [1] 核燃料サイクル開発機構、わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—分冊2 地層処分の工学技術、JNC TN1400 99-022、平成11年11月。
- [2] 例えば、公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター、平成24年度地層処分技術調査等事業高レベル放射性廃棄物処分関連：処分システム工学要素技術高度化開発 平成19年度～24年度の取りまとめ報告書、平成25年3月。
- [3] 西川精一、新版 金属工学入門、アグネ技術センター
- [4] 日本鉄鋼協会生産技術部門実用構造用鋼の基礎特性技術検討部会編、溶接構造用鋼の溶接用CCT図集：実用構造用鋼の基礎特性技術検討部会資料集、日本鉄鋼協会
- [5] 公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター、平成24年度地層処分技術調査等事業高レベル放射性廃棄物処分関連：処分システム工学要素技術高度化開発 第2分冊(1/2)、平成25年3月。