

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 7 年 6 月 11 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2022～2024

課題番号：22K12438

研究課題名（和文）回収可能性を確保する放射性廃棄体パッケージ複合材料の開発

研究課題名（英文）Development of composite material for retrievable radioactive waste package

研究代表者

酒瀬川 英雄（Sakasegawa, Hideo）

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・人形峠環境技術センター・研究主幹

研究者番号：00566250

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,900,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は、放射性廃棄物の廃棄体のパッケージ材料の第一候補である炭素鋼に対して、より優れた耐食性をもつ銅合金、そして、より高い耐圧性をもつ超硬合金から成る新しい複合材料の開発することを目的とした。これより、耐食性を受けもつ酸化物分散強化型銅製の外容器に耐圧性を受けもつ超硬合金を内容器を組み合わせることで、廃棄体パッケージ材料が成立する見通しを得た。特に、耐食性を受けもつ外容器の銅合金が酸化物分散強化されていることで、さらに耐圧性が向上しているところが特徴である。この材料が実装されれば、埋設後の廃棄体の腐食や変形を大きく抑制することができ、その回収可能性が確保されることにつながる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

銅合金と炭素鋼を用いた廃棄体パッケージの例はこれまでに報告されているものの、回収可能性の確保に着目し、酸化物分散強化型銅と超硬合金を組み合わせたパッケージの例はこれまで存在しない。本研究の成果により、第一候補とされている炭素鋼を大きく上回る革新的な耐久性を備えたパッケージ材料の実用化が期待され、放射性廃棄物の埋設処分における長期的な安全性向上に大きく貢献できる。加えて、このような高耐久性パッケージの実装は、放射性廃棄物の埋設処分に対する社会的受容性の向上にもつながる。

研究成果の概要（英文）：This study aims to develop a new composite material for radioactive waste disposal packages, improving upon the current leading candidate, carbon steel, by combining a copper alloy with superior corrosion resistance and a cemented carbide with exceptional pressure resistance.

The proposed design pairs an outer container made of oxide dispersion-strengthened (ODS) copper alloy, responsible for corrosion protection, with an inner container made of cemented carbide to withstand high pressure. Notably, the ODS copper alloy used for the outer layer not only provides excellent corrosion resistance but also enhances the overall mechanical strength of the package. After this material is implemented, it is expected to greatly suppress corrosion and deformation of the waste packages after burial, significantly improving the potential for safe retrieval in the future.

研究分野：材料工学

キーワード：放射性廃棄物 回収可能性 廃棄体パッケージ材 複合材料

1. 研究開始当初の背景

高レベル放射性廃棄物のオーバーパック材や低レベル放射性廃棄物のドラム缶を始めとする現在のパッケージ材は炭素鋼が選択されている。しかしながら、2015年、特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針にて「廃棄物の搬出の可能性（回収可能性）を確保すること」という改訂がなされた。国際的には、2012年のOECD/NEAの放射性廃棄物管理の報告書「決定の可逆性と放射性廃棄物の回収可能性」にて回収可能性が議論され[1]、そして、回収可能性を高める措置の一つとして「できるだけ耐久性の高い廃棄体と廃棄物容器を使用すること」を挙げている。

現在、この流れに応じた緩衝材の除去技術などの回収技術の研究開発が着手されているが[2]、そもそも回収対象である廃棄体のオーバーパック材である炭素鋼は回収を想定して選択されたものではない。とりわけ、埋設中の腐食によって構造健全性を損なう可能性があり、これは廃棄体の可搬性を損ない、そして、回収の可能性を損なう致命的な問題となることが危惧される。

2. 研究の目的

埋設後の回収可能性を確保できる放射性廃棄体の全く新しいパッケージ複合材料の開発を目的とした。具体的には、図1に示したように、炭素鋼と比較してより優れた耐食性をもつ銅合金（寿命で10倍以上）[3]を、より高い耐圧性をもつ超硬合金（圧縮強さで8倍以上）[4]に被覆させた新しいパッケージ複合材料を開発する。

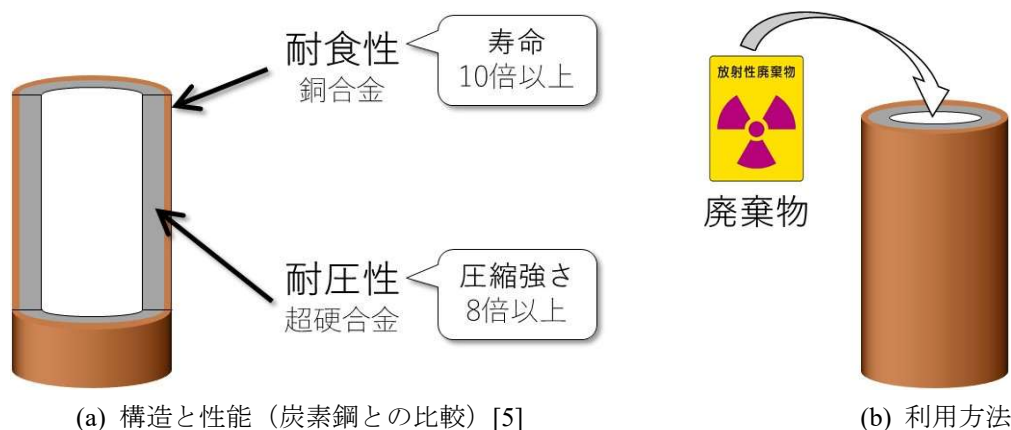


図1 新しいパッケージ複合材料

3. 研究の方法

(1) 耐食性の評価

パッケージ複合材料の耐食性を担う銅合金として、無酸素銅（C1020）と酸化物分散強化型銅（GLIDCOPAL-60）を候補とした。耐食性の観点からは無酸素銅のみが候補となるが[6, 7]、ここでは無酸素銅により高い耐圧性も具備させることで、埋設後の構造健全性の向上がさらに期待できるパッケージ複合材料を開発すべく、微細な酸化物粒子の分散により強度特性の改善が図られた酸化物分散強化型銅も候補とした。

これらの候補銅合金に対して炭酸塩-塩化物水溶液中における分極試験を実施した。試験条件は地層処分におけるオーバーパック材の腐食環境を考慮して設定したものであり、ベントナイト接触水の組成を模擬したものとした[6, 7]。特に、塩化物イオンが銅合金表面に生成する不働態被膜を破壊して耐食性を損なうという報告があるため、塩化物イオン濃度の影響に注目した[7]。

(2) 耐圧性の評価

パッケージ複合材料の耐圧性を担う超硬合金（株式会社トーカロイ MTG 製 超硬合金 G6 VC-60 JIS B 4054）の変形と破壊挙動について、SPring-8 のビームライン BL22XU に設置されている CT（Computed Tomography、コンピュータ断面撮影法）用負荷装置を利用して注目した。具体的には U ノッチ入り引張試験片に引張荷重を負荷しながら CT 観察とひずみ分布計測を実施した。

次に、埋設後の荷重負荷状態に近い、一定荷重を負荷した環境下におけるその変形と破壊挙動に注目した。ここではスモールパンチクリーブ試験を利用した。この試験は直径 8 mm、厚さ 0.5 mm という小さな円盤状試験片に対して一定荷重を負荷、破壊までの変位と時間を計測する試験である。超硬合金は一般的な金属材料と比較して極めて強度が高い特徴があるため、難加工性であり標準的なクリーブ試験片の製作が難しくなるという事実があった、これに対してスモールパンチクリーブ試験は小さなコイン形状の試験片を利用するため、試験片の

製作が標準的なクリープ試験片の製作よりも容易であり体積も小さいため、限られた時間でより多くの試験実施が可能な利点がある。

(3) 製作性の検討

パッケージ複合材料製作のためには銅合金と超硬合金を一体構造とする必要がある、そのための製作工程や接合方法を検討した。耐食性を担う銅合金に対して接合方法として溶接を適用する場合、その接合中の熱影響により組織が粗大化して、超音波探傷では欠陥として誤検出される報告がある[8]。そこで本研究は、銅合金や超硬合金の組織構造や材料特性に対して、一体構造化のプロセスが及ぼす影響をできるだけ抑制でき、且つできるだけ簡素となる製作プロセスを検討した。

4. 研究成果

(1) 耐食性の評価[9]

炭酸塩-塩化物水溶液中の分極試験を通じて、無酸素銅と酸化物分散強化型銅の腐食挙動を比較した結果、酸化物分散強化型銅の方が若干低い電位でアノード電流が立ち上がり、不働態化する挙動を確認することができた(図2)。

これより、無酸素銅よりも酸化物分散強化型銅の耐食性が優れることが考えられた。

次に、塩化物イオン濃度を変化による不働態化現象の変化に注目したところ、酸化物分散強化型銅の方がより高い電位でアノード電流が立ち上がることが分かり、改めて酸化物分散強化型銅の耐食性の方がより優れることが考えられた[9]。

不働態皮膜の安定性は電位に依存する可能性があるため、今後の継続実験や考察が必要ではあるが、耐食性を担う銅合金として酸化物分散強化型銅を採用することが望ましいと考えられる。

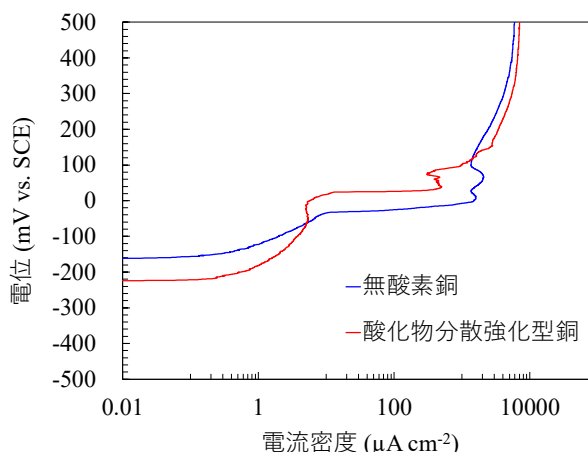


図2 分極試験結果の例[9]

(2) 耐圧性の評価[5]

超硬合金の変形と破壊メカニズムについて、Uノッチ入り引張試験片に引張荷重を負荷しながらひずみ分布状態を評価した結果、最も応力が集中しやすいと考えられたUノッチ先端部ではなく、ノッチから少し内側に入った試験片内部にひずみが集中している現象が確認できた(図3)。超硬合金はタングステンカーバイド粒を結合相のコバルトで焼結固化した材料であるが、ノッチ部よりも未焼結部に存在する空隙などの不連続部に応力集中して破断に至る可能性が考えられた。

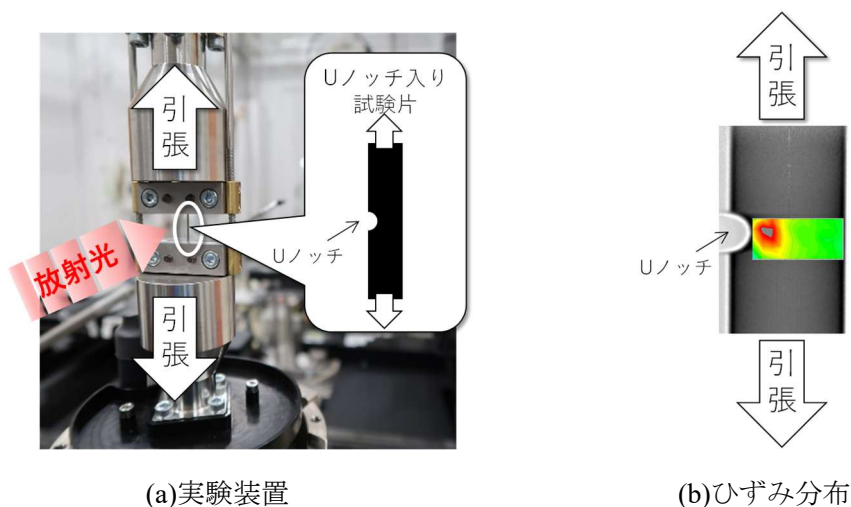


図3 S-Pring-8 を利用したひずみ分布計測[5]

スモールパンチクリープ試験の結果、廃棄体パッケージ材料の第一候補の炭素鋼よりも、超硬合金が極めて優れたクリープ特性を有することが確かめられた。しかしながら、その試験結果は金属材料と比較してばらつきが大きい傾向が確かめられた。これは図3のひずみ分布状態の評価から考えられたように、未焼結部に存在する空隙などに応力集中した影響が先ず考えられた。超硬合金をパッケージ複合材料の耐圧性を担う構造材料として利用する場合、この材料製作プロセスにおける未焼結部の制御が重要になると考えられる。

(3) 製作性の検討

パッケージ複合材料の製作のための銅合金と超硬合金を一体構造とするプロセスを検討した結果、耐食性を担う銅合金製の外容器に耐圧性を担う超硬合金性の内容物を単純に挿入することで耐食性と耐圧性を損なわず、極めて簡素な製作工程が実現できることが考えられた。しかしながら、廃棄物を封入した破棄体パッケージを完全に密閉するためには、銅合金製の外容器には蓋をして、その間隙を接合する必要がある。

本研究は銅合金として酸化物分散強化型銅の採用を考えているが、この接合プロセス中にその組織構造への影響を抑制しつつ、また、強度強化因子である酸化物粒子ができるだけ凝集もしくは粗大化しないような接合技術を選択する必要がある。そこで、接合技術の中でも最も酸化物粒子の分散状態への影響を抑制できるものとして、摩擦攪拌接合法 (FSW: Friction Stir Welding) を選択した。摩擦攪拌接合は従来の溶接のように母相溶解をとまなう接合法ではなく固相状態のまま接合できる方法であり、酸化物粒子の凝集や粗大化を抑制しながら接合できることが考えられたためである。

ここでは、酸化物分散強化型合金の接合を達成するとともに、その最適な接合条件 (回転速度と走行速度) について見通しを得ることができた (図4)。本研究は材料開発段階までを目的としたが、今後の実装に向けては、実際のサイズや製作工程を考慮した実規模パッケージの製作技術を開発する段階となる。



図4 FSW 接合材

【参考文献】

- [1] OECD/NEAホームページ https://www.oecd-nea.org/jcms/pl_48564/
- [2] NUMOホームページ https://www.numo.or.jp/q_and_a/faq/faq100089.html
- [3] 例えば、F. King, L. Ahonen, C. Taxén, U. Vuorinen, L. Werme, Copper corrosion under expected conditions in a deep geologic repository, Svensk Kärnbränslehantering AB Technical Report TR-01-23 (2001)
- [4] (株) トーカロイホームページ <http://www.to-kaloy.co.jp/products/material.html>
- [5] 酒瀬川英雄、菖蒲敬久、富永亜希、岡本芳浩、廃棄体容器材料のための超硬合金の変形と破壊挙動の放射光によるその場観察、JAEA Review 2023-049, 17 (2023)、DOI:10.11484/jaea-review-2023-049
- [6] 川崎学、谷口直樹、内藤守正、炭酸塩水溶液中における純銅のアノード分極挙動、JAEA Research 2008-012, 55 (2008)
- [7] 杉本克久、オーバーパック材料としての炭素鋼、チタン、銅の地層処分模擬環境中における腐食特性研究の現状、材料と環境 62、208 (2013)
- [8] 本間信之、千葉恭彦、棚井憲治、銅-炭素鋼複合オーバーパックの試作、JNC-TN8400 99-049 (1999)
- [9] 酒瀬川英雄、中島基樹、廃棄体容器材料のための銅合金の腐食挙動、JAEA Review 2024-050, 20 (2024)、DOI:10.11484/jaea-review-2024-050

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 0件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 2件）

| | |
|--|---------------------|
| 1. 著者名 酒瀬川英雄、菖蒲敬久、富永亜希、岡本芳浩 | 4. 巻 2023-049 |
| 2. 論文標題 廃棄体容器材料のための超硬合金の変形と破壊挙動の放射光によるその場観察 | 5. 発行年 2024年 |
| 3. 雑誌名 JAEA-Review | 6. 最初と最後の頁 17-19 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.11484/jaea-review-2023-049 | 査読の有無 無 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である） | 国際共著 - |

| | |
|--|---------------------|
| 1. 著者名 酒瀬川英雄、中島基樹 | 4. 巻 2024-050 |
| 2. 論文標題 廃棄体容器材料のための銅合金の腐食挙動 | 5. 発行年 2025年 |
| 3. 雑誌名 JAEA-Review | 6. 最初と最後の頁 20-23 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.11484/jaea-review-2024-050 | 査読の有無 無 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である） | 国際共著 - |

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| | 氏名 （ローマ字氏名） （研究者番号） | 所属研究機関・部局・職 （機関番号） | 備考 |
|-------|--|---|----|
| 研究分担者 | 中島 基樹 (Nakajima Motoki) (00899437) | 国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・六ヶ所研究所 核融合炉材料研究開発部・主任研究員 (82502) | |

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| | |
|---------|---------|
| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|