

Doc No. 18-180-I-174 Rev. 2

2021年4月6日

トランスニュークリア株式会社

株式会社神戸製鋼所

バスケット用ほう素添加アルミニウム合金 (1B-A3J04-0)
に関する強化機構の維持に係る説明資料

本資料のうち、枠囲いの内容は、商業機密等に属しますので公開できません。

1. はじめに

本図書では、ほう素添加アルミニウム合金（1B-A3J04-0）（以下、「本アルミ合金」という。）に使用した材料の強化機構が供用期間（最大 60 年）維持されることについて説明する。また、本図書の改訂 2 版にて、2021 年 3 月 5 日付け説明資料「TK-26 型キャスク型式証明 ほう素添加アルミニウム合金の説明方針について（Doc No. 18-180-I-178 Rev.1）」の 6 項、7 項及び 8 項に対応した内容を追記した。

2. 供用期間中の強化機構の維持

本アルミ合金は、供用期間（最大 60 年）中に強度低下を生じない強化機構として Mg の固溶強化と Mn 系化合物（ $Al_6(Mn, Fe)$ 及び $Al_{12}(Mn, Fe)_3Si$ など）の粒子分散強化を使用している。

2.1 Mg の固溶強化の維持について（参照：補足説明資料 1-7 別紙 3）

本アルミ合金に固溶している Mg の固溶強化については、添加量を 1.0mass% に設定すれば供用期間中（最大 60 年間）の低下は生じないと判断した^{1),2)}。この Mg 添加量の妥当性の評価に係る概要を以下に示す。

Mg は本アルミ合金の供用期間中の温度低下により、その固溶限が低下し、過飽和状態を生じる可能性がある。その場合、過飽和分の固溶 Mg 量は、Mg 系化合物（ Al_3Mg_2 ）を生じ、結果として固溶強化の効果が低下することが懸念される。しかしながら、本アルミ合金では Mg 添加量を高々 1mass% 程度に制限しているため過飽和状態（Mg の添加量が固溶限を上回った状態）となる温度は 100℃ 付近となることから、Mg 系化合物の析出の駆動力となる過飽和度は非常に小さく、固溶 Mg のアルミニウム母相における拡散係数も非常に小さい。このため、現実的な試験時間で 60 年後においても固溶強化を維持できる Mg 添加量を評価することは極めて困難である。そこで本申請では、まず Mg 系化合物の析出挙動に関する数理モデルを構築した。次に、約 1~5mass% の Mg 添加量を有する試料を用いて 10,000h までの長時間時効処理試験を実施し、この試験結果に基づき当該モデルの妥当性を確認した。次にこのモデルを用いて、Mg 系化合物の析出開始条件が過飽和度と拡散距離により定まることを確認した。この評価を行うダイアグラムを、本申請では「S-L 平面」と称している。図 1 に示す S-L 平面より、Mg の添加量が 1.0mass% であれば 60 年基準線（実機条件を想定し 60 年間一定温度で保持した条件）が、試験により得られた Mg の析出開始線よりも原点側の領域にあり、Mg 系化合物が析出しないことが分かる。本評価から、供用期間中に想定されるいかなる熱履歴においても、貯蔵初期の固溶強化が維持できると判断される。

なお、本アルミ合金には Mg 添加量 1.0mass% を確保するため 1.0~1.4mass% の Mg が含まれているが、保守的な評価とするために許容応力は、Mg 添加量を 1.0mass% とした機械試験用供試材^{※1} に対して設定されている³⁾。

※1) 許容応力を保守的に評価するため、添加元素量をほぼ下限値に調整した供試材。

2.2 Mn 系化合物の粒子分散強化の維持について (参照：補足説明資料 1-7 別紙 2)

Mn 系化合物の粒子分散強化については、アルミニウム中の Mn の不純物拡散係数に基づき評価した拡散距離を用いて、供用期間 (最大 60 年) の熱履歴に対応する拡散距離を保守的に評価した加速試験条件として $300^{\circ}\text{C} \times 1,000\text{h}$ を設定し、本アルミ合金に有意な強度変化がないことを確認した⁴⁾。以下に $300^{\circ}\text{C} \times 1,000\text{h}$ を設定した理由を示す。

Mn 系化合物の析出物は、熱暴露による粒成長に伴い数密度が低下し、粒子分散強化の効果が低下する可能性がある。このような現象は、Mn の拡散律速によって生じると考えられる。そこで、供用期間である 60 年間の熱履歴による拡散距離を Mn の拡散係数により評価し、これを包絡する加速試験条件を定めることとした。供用期間中の熱履歴は、保守的に TK-26 型におけるバスケットの最高使用温度 (225°C) が 60 年間継続するものとした。Mn の拡散度合いは、(1)式で表される拡散距離 L を用いて評価した。

$$L = \sqrt{2Dt} \dots (1)$$

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \dots (2)$$

ここで、 D : 拡散係数 (cm^2/s)、 t : 時間 (s)、 D_0 : 振動数因子 $380 (\text{cm}^2/\text{s})$ ⁵⁾、 Q : 活性化エネルギー $221 (\text{kJ}/\text{mol})$ ⁵⁾、 R : 気体定数 $8.314 (\text{J}/(\text{K} \cdot \text{mol}))$ 、 T : 温度 (K) である。なお、この拡散距離は、異なる熱履歴の条件を相対比較するための指標として用いるものであり、その絶対値を議論するものではない。表 1 に、拡散距離の計算結果を示す。この表には、供用期間中の熱履歴を包絡するように設定した加速試験条件 ($300^{\circ}\text{C} \times 1,000\text{h}$) における Mn の拡散距離も合わせて示す。ここで、温度条件となっている 300°C は、本アルミ合金の最終熱処理温度 ($^{\circ}\text{C}$) とバスケットの最高使用温度 (225°C) の中間値として設定した。なお、Al-Mn 系状態図によれば、 400°C 程度以下の温度領域では、アルミニウム母相における Mn の固溶限はゼロに漸近してくる⁶⁾。つまり 400°C 程度以下であれば、供用期間中と同様に Mn の再固溶を極力抑制できているため、任意の温度で $225^{\circ}\text{C} \times 60$ 年間に対応する時間を保持することにより、実機における熱履歴を温度加速により模擬できる。表 1 に示す通り、 $300^{\circ}\text{C} \times 1,000\text{h}$ の Mn の拡散距離は、 $225^{\circ}\text{C} \times 60$ 年間 ($525,960\text{h}$) のそれよりも十分大きく設定されており、Mn 系化合物による粒子分散強化を維持する観点からは保守的な条件となる。

今回加速試験 ($300^{\circ}\text{C} \times 1,000\text{h}$) に供した本アルミ合金の供試材の化学成分分析値を表 2 に示す。加速試験前後の本アルミ合金について、TEM 観察を実施した。ここでは、供試材 No. 20 で代表させた。この結果を図 2 に示す。アルミニウム母相中に分散した Mn 系化合物のサイズ、及び数密度に有意な変化は認められない。次に、この供試材の加速試験前後における室温引張試験を表 3 に示す条件で実施した。この結果得られた強度特性

2

2

2

(0.2%耐力及び引張強さ)を表4、図3及び図4に示す。図3では、加速試験による強度変化を比較するため、各供試材について初期材の強度（貯蔵初期に相当）で規格化した。表4では、各試験条件の標本平均及び標準偏差から、 t 分布を用いて母平均の95%信頼区間を求めた^{※2}。図4では、この標本平均と母平均の95%信頼区間を室温における許容応力（ S_y 、 S_u ）^{※3}と比較した。なお、本申請では、加速試験前後で信頼区間に重複している領域があれば、有意な強度変化は生じていないと判断することとした。これより図4では、いずれの供試材についても、加速試験前後で有意な強度変化は生じていないと判断される。また、許容応力は、いずれの試料の95%信頼区間の下限値よりも小さい値となっており、設定の妥当性が確認された。以上の試験結果より、Mn系化合物の粒子分散強化は供用期間（最大60年）維持されると判断される。なお、本アルミ合金の許容応力は、保守的な条件として加速試験後の材料に対する引張試験及びクリープ試験に基づき設定されている³⁾。

2

2

※2) t 分布を用いた信頼区間は下式により計算できる⁷⁾。

$$\bar{x} - t \frac{s}{\sqrt{n-1}} < \mu < \bar{x} + t \frac{s}{\sqrt{n-1}}$$

ここで、標本平均： \bar{x} 、標準偏差： s 、試験N数： n である。 t の値については、本説明資料の付録を参照のこと。

2

※3) 許容応力は、日本機械学会 発電用原子力設備規格 材料規格に準拠して設定した。

3. 10,000h後の強度特性について（参照：補足説明資料1-7別紙10）

本申請では、本アルミ合金の実機温度を想定した4温度条件（125℃、150℃、175℃、200℃）で10,000h保持する長時間熱処理を実施している。表5に供試材の化学成分分析値を示す。さらに、長時間熱処理前後に室温引張試験を実施した。試験条件を表6、試験結果を表7及び図5にそれぞれ示す。表7では、各条件の標本平均と標準偏差を用いて t 分布による母平均の95%信頼区間を求めた。この結果を図6に示す。いずれの試験条件の95%信頼区間も、初期条件の95%信頼区間と重複している領域があることから、10,000hを通じて有意な強度変化は生じていないと判断される。以上より、本図書2章で説明した本アルミ合金の強化機構の維持に関する評価は実機温度条件において妥当であることが確認された。

2

参考文献)

- 1) 篠崎崇、下条純、松本克史、新谷智彦、赤松博史、“使用済燃料輸送・貯蔵兼用キャスクのバスケット用 Al-Mn-Mg 系合金の Mg 添加量の設定方法”、軽金属学会第 135 回秋期大会講演概要、No. 9、(2018)
- 2) 篠崎崇、下条純、赤松博史、松本克史、新谷智彦、水谷淳、中林洋右、“Al-Mn-Mg 合金における β 相の析出挙動に及ぼす Mg 添加量の影響とそのモデル化”、軽金属、Vol. 70、No. 2、(2020)
- 3) J. Shimojo, T. Shinozaki, T. Shinya, H. Akamatsu, “Development of Aluminum Extruded Alloy for Basket of Transport/Storage Casks (2) - Properties and allowable stress of the borated aluminum alloy 1B-A3J04-0 -”, Proceedings of the 19th International Symposium on the Packaging and Transportation of Radioactive Materials, Paper No.1331, (2019)
- 4) T. Shinozaki, J. Shimojo, K. Matsumoto, H. Akamatsu, T. Shinya, J. Mizutani, Y. Nakabayashi, “Development of Aluminum Extruded Alloy for Basket of Transport/Storage Casks (1) - Strengthening mechanism after long term storage and design of chemical composition -”, Proceedings of the 19th International Symposium on the Packaging and Transportation of Radioactive Materials, Paper No. 1316, (2019)
- 5) 平野賢一、“アルミニウム中の拡散”、軽金属、29 巻、p249、(1979)
- 6) 梶山毅、深田和博、“Al-Mn 系合金”、軽金属、38 巻、p362、(1988)
- 7) 大村平、“統計のはなし—基礎・応用・娯楽—【改訂版】”、日科技連、(2002)

表 1 実機条件と加速試験条件における Mn の拡散距離

	実機条件	加速試験条件
熱処理条件	225°C × 60 年 (525, 960h)	300°C × 1, 000h (225°C × 約 120 年に相当)
拡散距離 (μm)	3.10×10^{-2}	4.44×10^{-2}

2

表 2 機械試験用供試材*の化学成分の分析結果

供試材 No.	断面形状	分析結果 (mass%)								
		Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Zn	B	その他 (Ti)	Al
No. 22	フラットバー									残部
No. 24										残部
No. 26										残部
No. 20	中空材									残部
No. 28										残部
No. 30										残部

※) 材料強度を保守的に設定するための供試材。

表 3 加速試験前後の引張試験条件

材質	1B-A3J04-0 (機械試験用供試材)
長時間熱処理	無し (初期材)、有り (300°C × 1, 000h)
供試材 No.	フラットバー ; No. 22、24、26 中空材 ; No. 20、28、30
試験片形状	JIS Z 2241 14A 号試験片
試験片方向	押出方向
試験温度	室温
試験方法	JIS Z 2241 準用
試験 N 数	各供試材当り 3 個

表 4 (1/2) 実機材の引張試験データに関する 95%信頼区間の計算

供試材 No.	初期材		統計処理 ($t=3.182$)		
	0.2%耐力 (MPa)	引張強さ (MPa)	—	0.2%耐力 (MPa)	引張強さ (MPa)
No. 22					
No. 24					
No. 26					
No. 20					
No. 28					
No. 30					

2

注) 有効数字は、算出過程における誤差を考慮し、標準偏差については小数点第2位まで、標本平均及び上下限値は小数点第1位までとした。

表 4 (2/2) 実機材の引張試験データに関する 95%信頼区間の計算

供試材 No.	熱処理材		統計処理 ($t=4.303$)		
	0.2%耐力 (MPa)	引張強さ (MPa)	—	0.2%耐力 (MPa)	引張強さ (MPa)
No. 22					
No. 24					
No. 26					
No. 20					
No. 28					
No. 30					

注) 有効数字は、算出過程における誤差を考慮し、標準偏差については小数点第2位まで、標本平均及び上下限值は小数点第1位までとした。

表 5 実用温度で長時間保持した材料

(mass%)

供試材 No.	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Zn	B	Al
1-1B								残部
1B-A3J04-0	0.25 以下	0.25 以下	0.05 以下	1.2 以上 1.6 以下	1.0 以上 1.4 以下	0.05 以下	0.8 以上 1.3 以下	残部

表 6 実用温度で長時間保持した材料の引張試験条件（室温）

材質	ラボスケール材（機械試験用供試材相当）
長時間熱処理	初期材 有り (125/150/175/200℃) × (50/200/1,000/2,500/5,000/10,000h)※
供試材 No.	No. 1-1B
試験片形状	JIS Z 2241 14A 号試験片
試験片方向	押出方向
試験温度	室温
試験方法	JIS Z 2241 準用
試験 N 数	各供試材当り 3 個

※) 目標保持時間

表 7 (1/4) 実用温度での時効処理試験後引張試験に関する 95%信頼区間の計算

(a) 125°C

保持時間 (h)		
0.2%耐力 (MPa)		
統計処理 ($t=4.303$)	標本平均	
	標準偏差	
	上限値	
	下限値	
引張強さ (MPa)		
統計処理 ($t=4.303$)	標本平均	
	標準偏差	
	上限値	
	下限値	

2

注) 有効数字は、算出過程における誤差を考慮し、標準偏差については小数点第2位まで、
標本平均及び上下限値は小数点第1位までとした。

表 7 (2/4) 実用温度での時効処理試験後引張試験に関する 95%信頼区間の計算

(b) 150°C

保持時間 (h)		
0.2%耐力 (MPa)		
統計処理 ($t=4.303$)	標本平均	
	標準偏差	
	上限値	
	下限値	
引張強さ (MPa)		
統計処理 ($t=4.303$)	標本平均	
	標準偏差	
	上限値	
	下限値	

2

注) 有効数字は、算出過程における誤差を考慮し、標準偏差については小数点第2位まで、
標本平均及び上下限値は小数点第1位までとした。

表 7 (3/4) 実用温度での時効処理試験後引張試験に関する 95%信頼区間の計算

(c) 175°C

保持時間 (h)		
0.2%耐力 (MPa)		
統計処理 ($t=4.303$)	標本平均	
	標準偏差	
	上限値	
	下限値	
引張強さ (MPa)		
統計処理 ($t=4.303$)	標本平均	
	標準偏差	
	上限値	
	下限値	

2

注) 有効数字は、算出過程における誤差を考慮し、標準偏差については小数点第2位まで、
標本平均及び上下限値は小数点第1位までとした。

表 7 (4/4) 実用温度での時効処理試験後引張試験に関する 95%信頼区間の計算

(d) 200°C

保持時間 (h)		
0.2%耐力 (MPa)		
統計処理 ($t=4.303$)	標本平均	
	標準偏差	
	上限値	
	下限値	
引張強さ (MPa)		
統計処理 ($t=4.303$)	標本平均	
	標準偏差	
	上限値	
	下限値	

2

注) 有効数字は、算出過程における誤差を考慮し、標準偏差については小数点第2位まで、
標本平均及び上下限値は小数点第1位までとした。

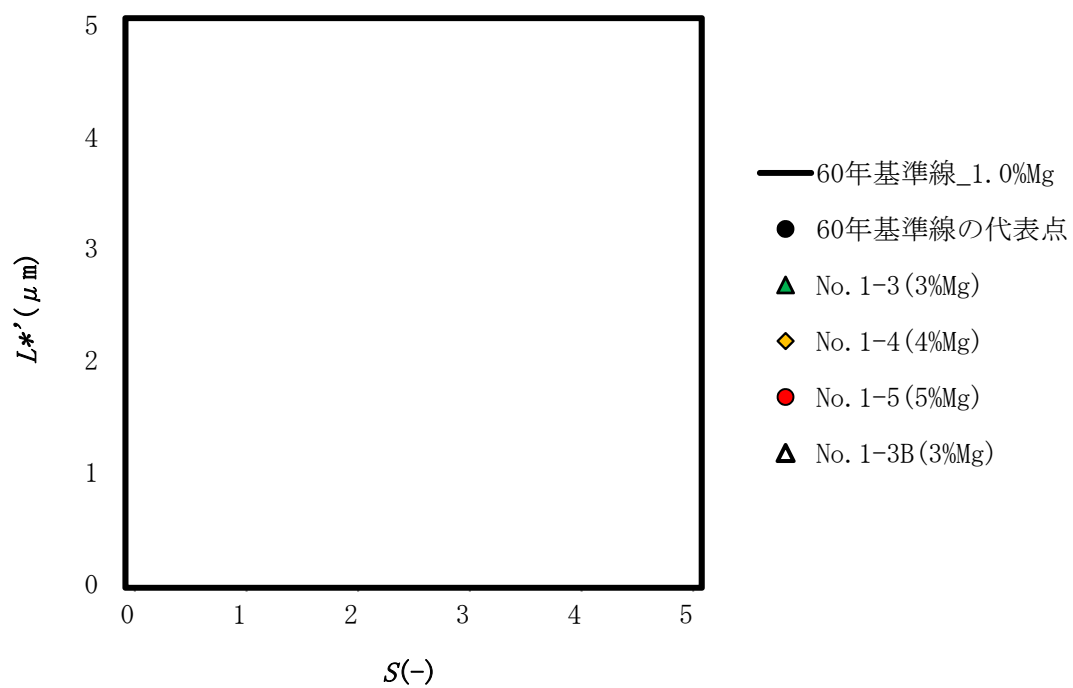


図1 過飽和度と拡散距離による析出開始条件の評価 (S-L 平面)

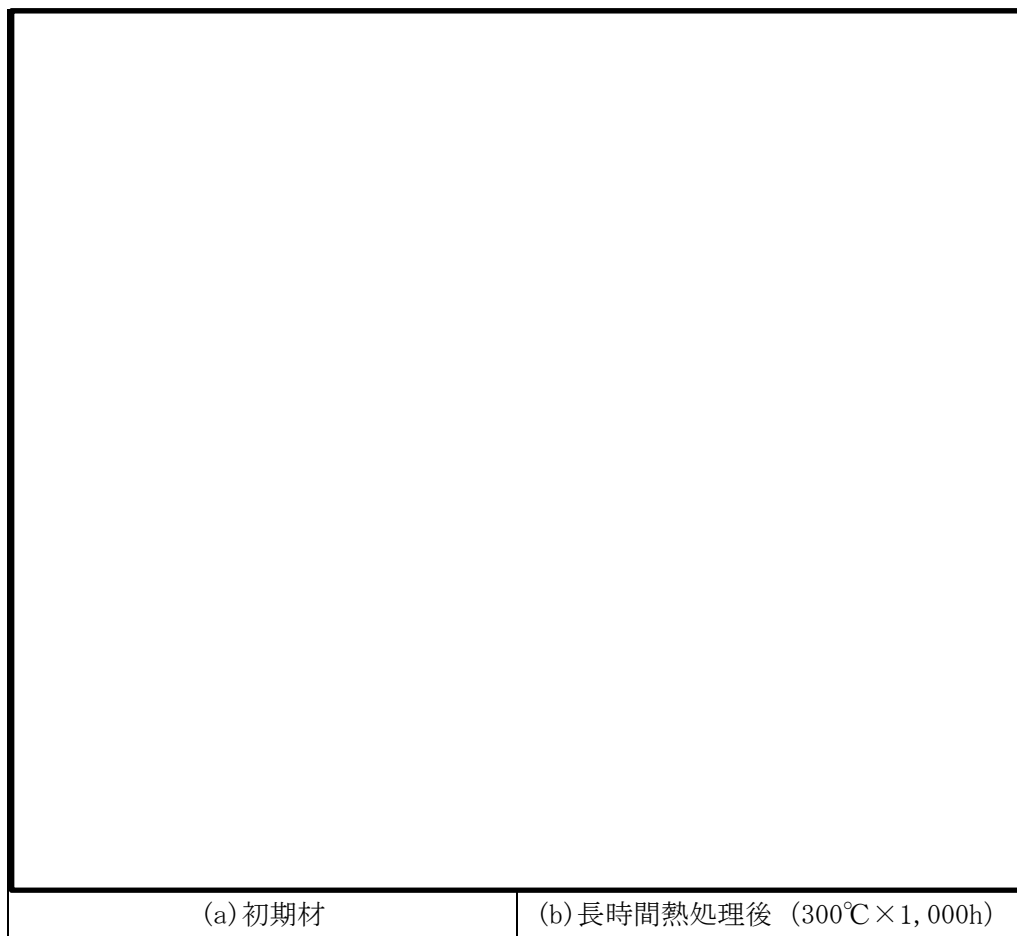
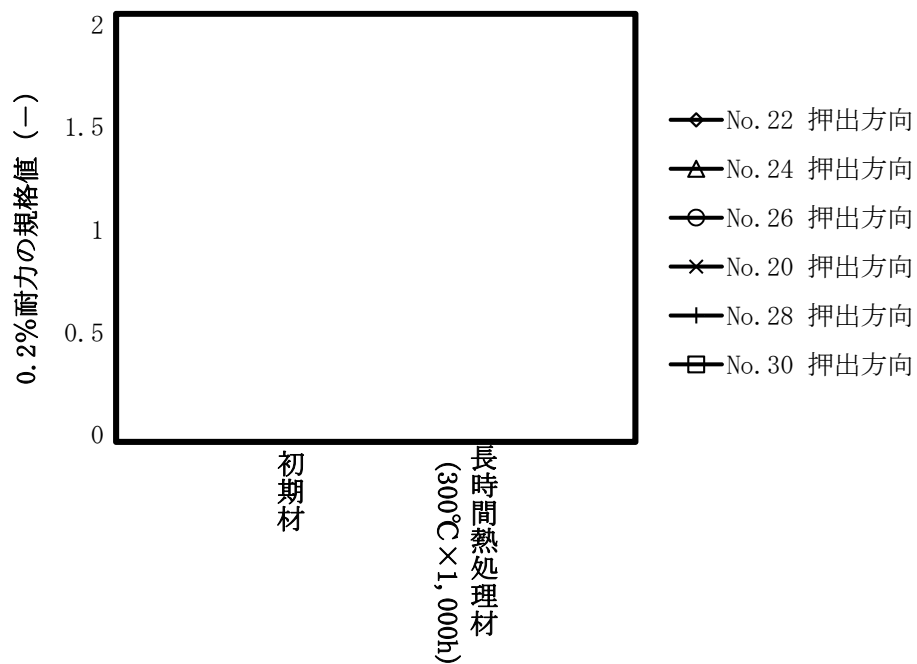
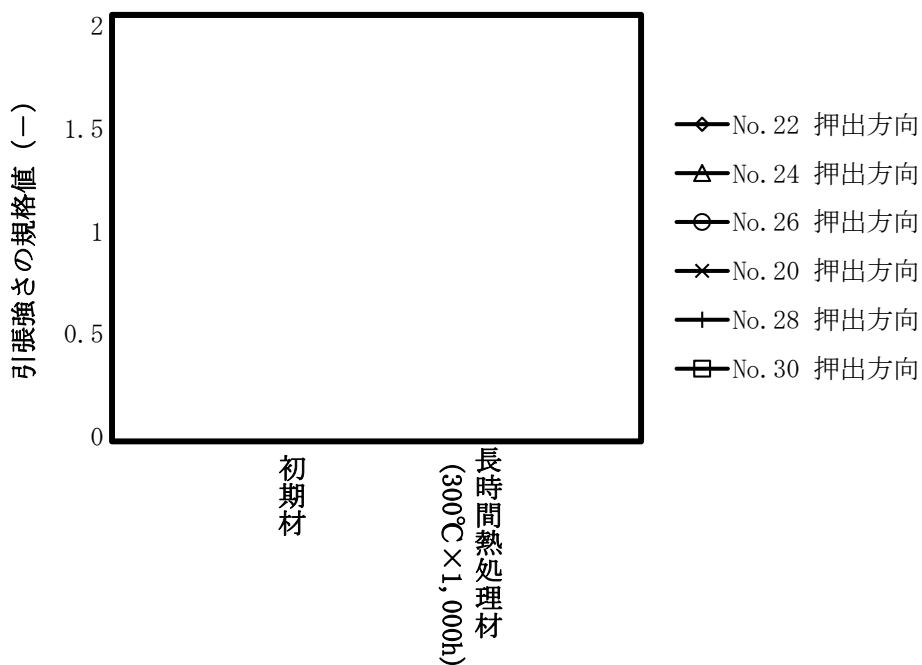


図 2 長時間熱処理後の TEM 組織比較 (供試材 No. 20)

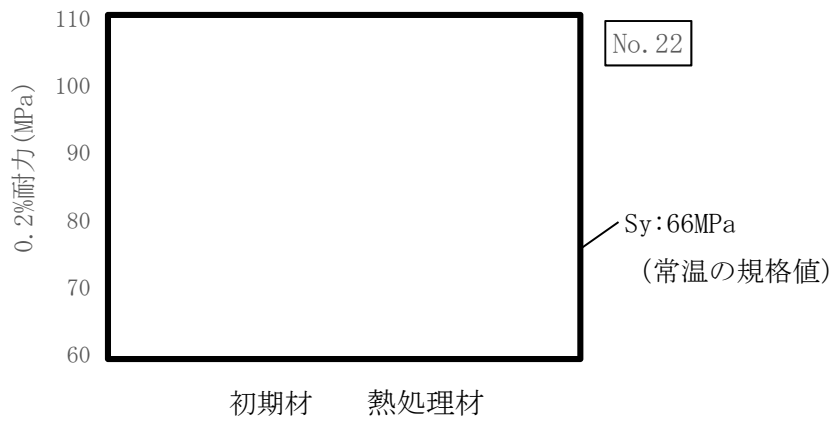


(a) 0.2%耐力の変化率 (機械試験用供試材、押出方向)

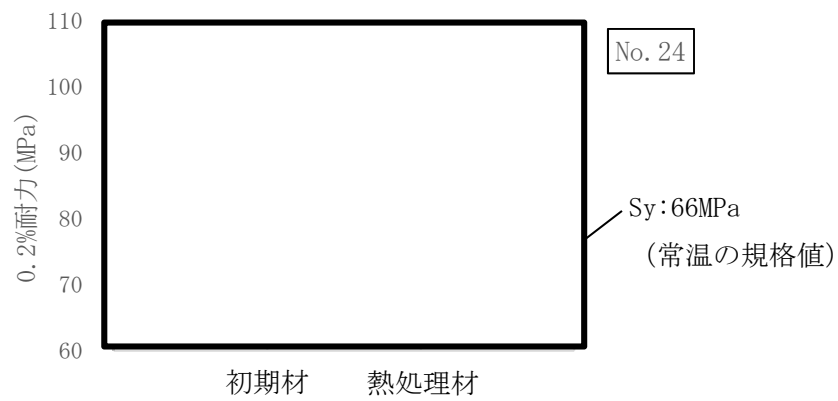


(b) 引張強さの変化率 (機械試験用供試材、押出方向)

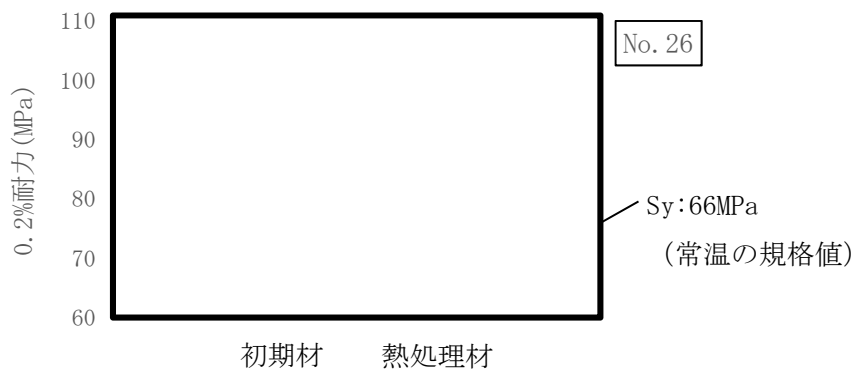
図 3 長時間熱処理後の室温強度の比較



(a) フラットバー (No. 22) 、0.2%耐力



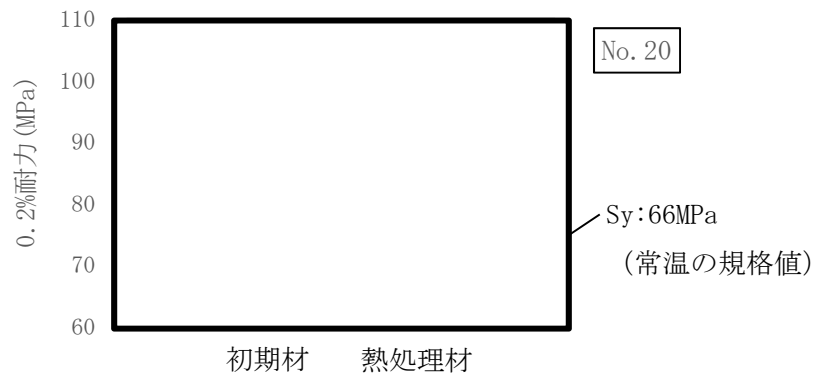
(b) フラットバー (No. 24) 、0.2%耐力



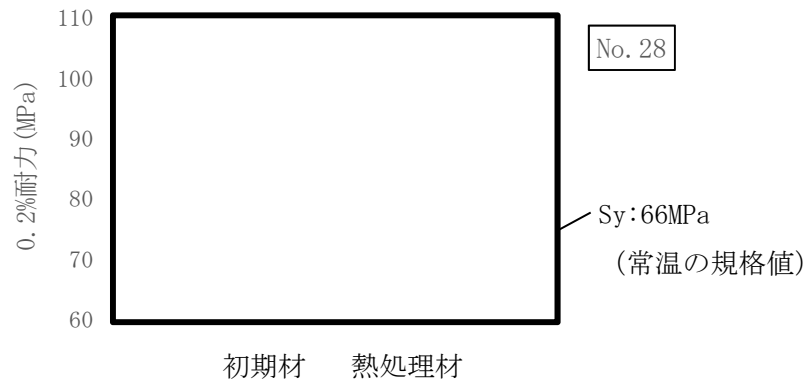
(c) フラットバー (No. 26) 、0.2%耐力

2

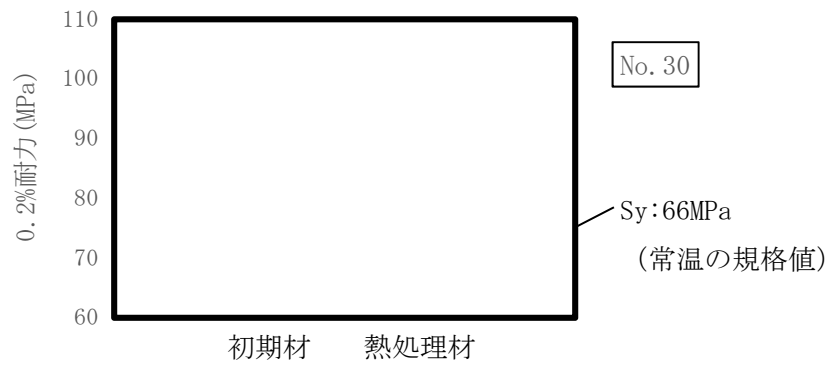
図4 加速試験前後の室温強度特性の比較 (0.2%耐力) (1/4)



(d) 中空材 (No. 20) 、0.2%耐力

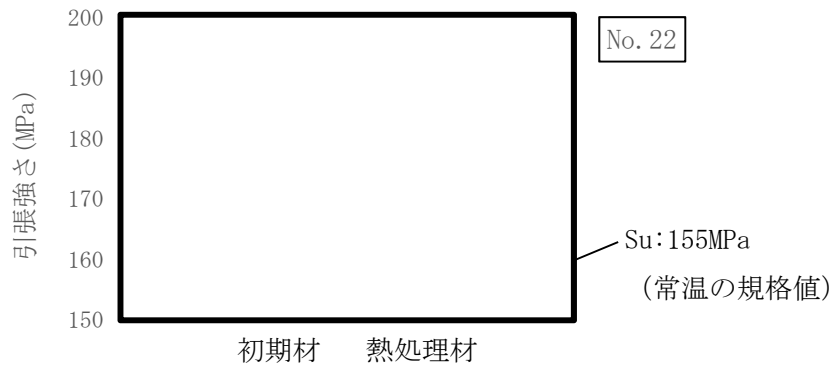


(e) 中空材 (No. 28) 、0.2%耐力

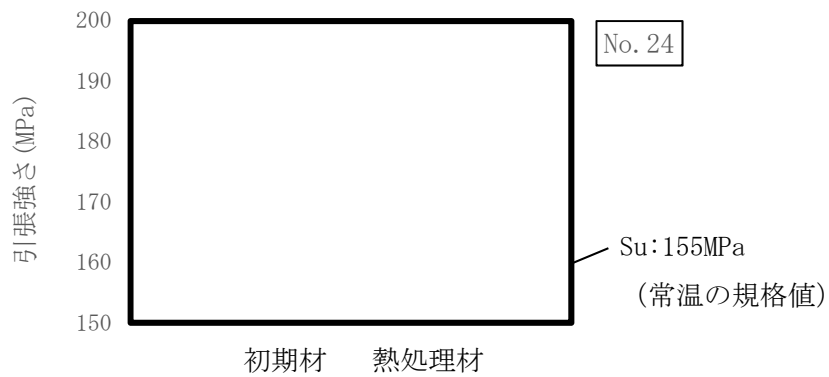


(f) 中空材 (No. 30) 、0.2%耐力

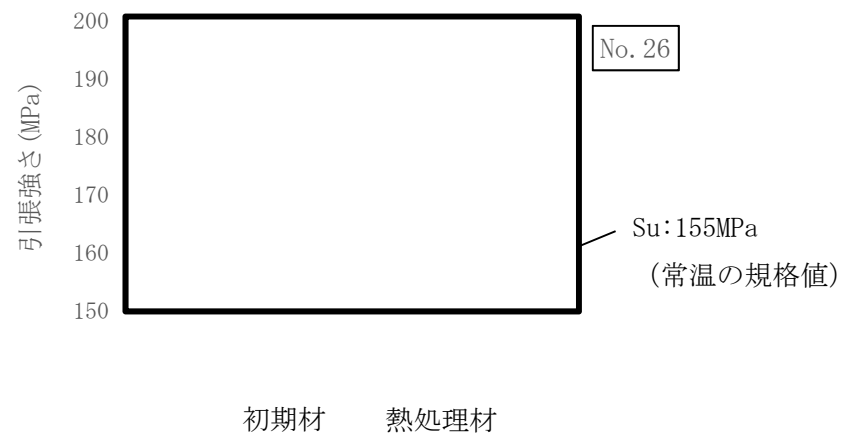
図4 加速試験前後の室温強度特性の比較 (0.2%耐力) (2/4)



(a) フラットバー (No. 22) 、引張強さ

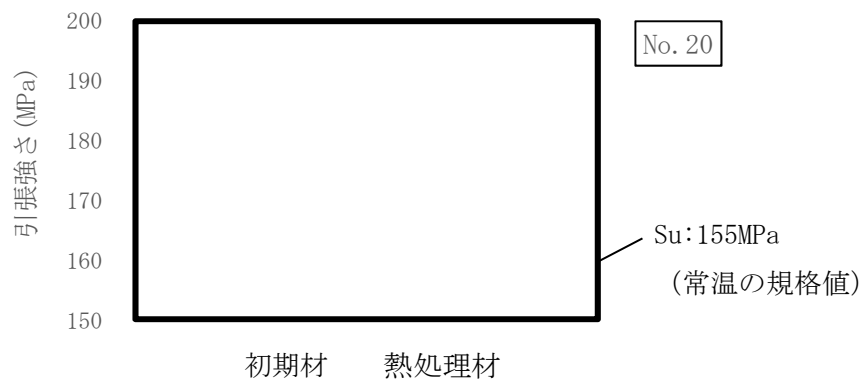


(b) フラットバー (No. 24) 、引張強さ

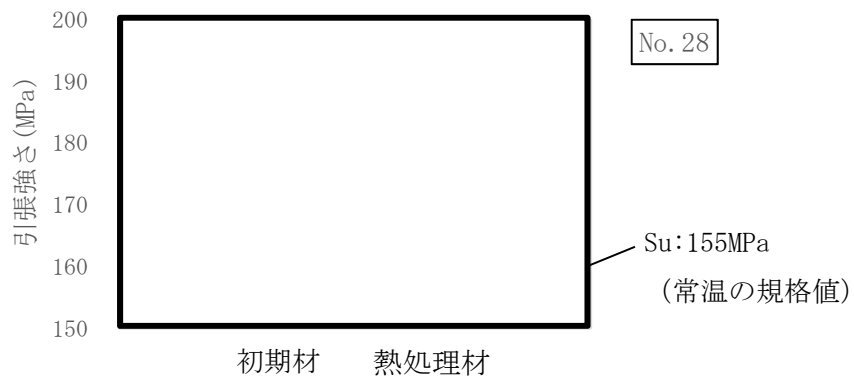


(c) フラットバー (No. 26) 、引張強さ

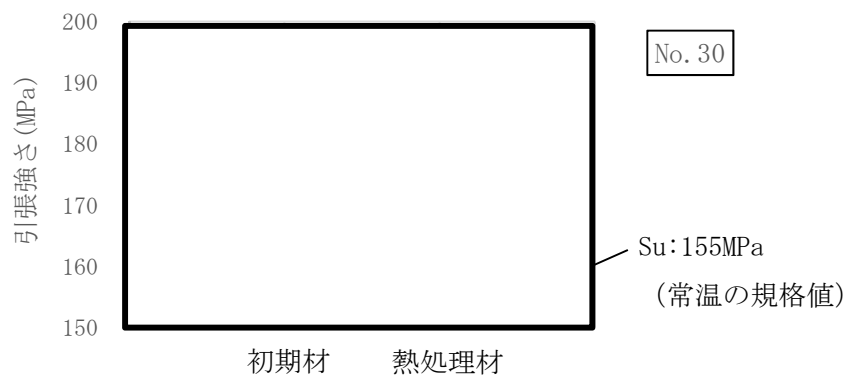
図 4 加速試験前後の室温強度特性の比較 (引張強さ) (3/4)



(d) 中空材 (No. 20)、引張強さ

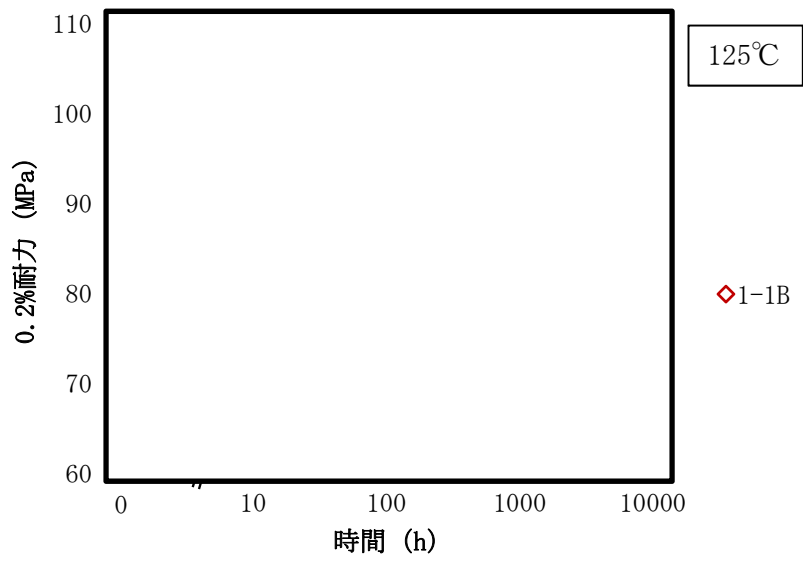


(e) 中空材 (No. 28)、引張強さ

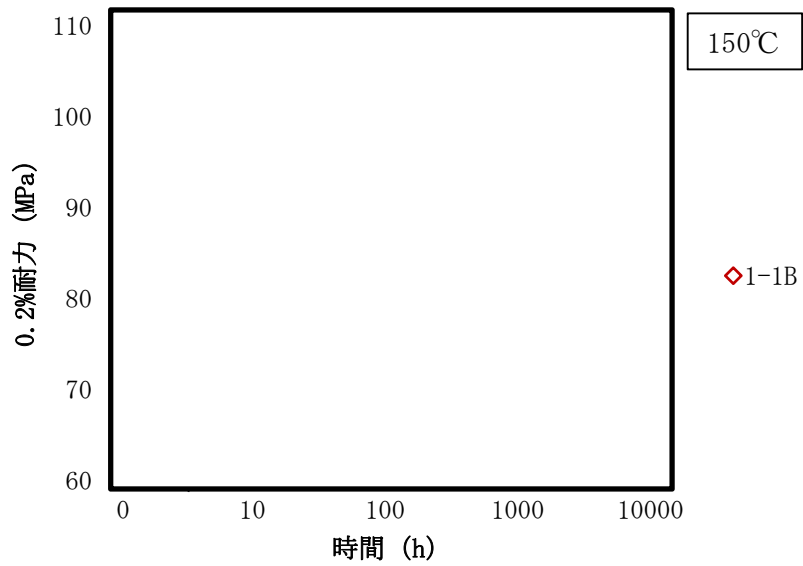


(f) 中空材 (No. 30)、引張強さ

図4 加速試験前後の室温強度特性の比較 (引張強さ) (4/4)

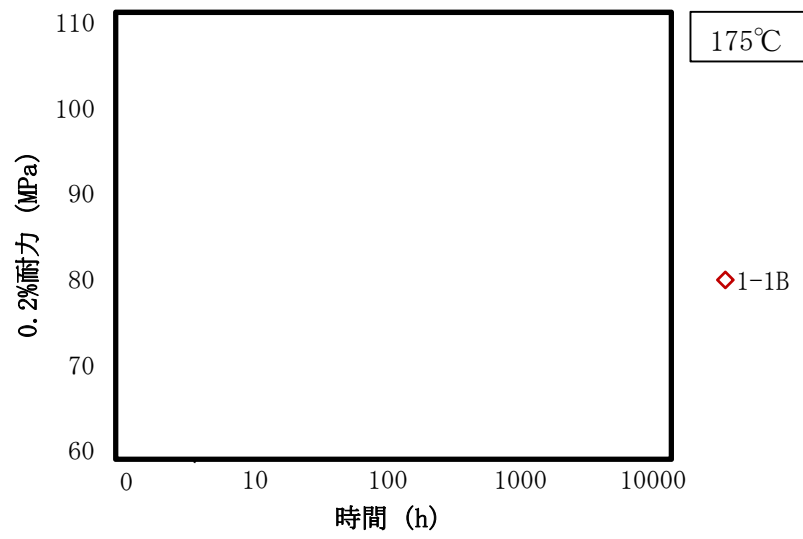


(a) 保持温度：125°C、0.2%耐力

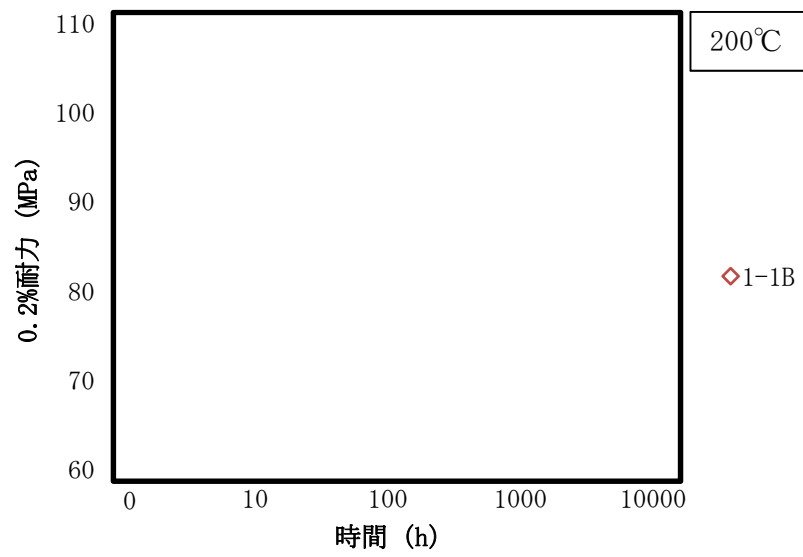


(b) 保持温度：150°C、0.2%耐力

図 5 長時間熱処理による室温強度特性の変化傾向 (0.2%耐力) (1/4)

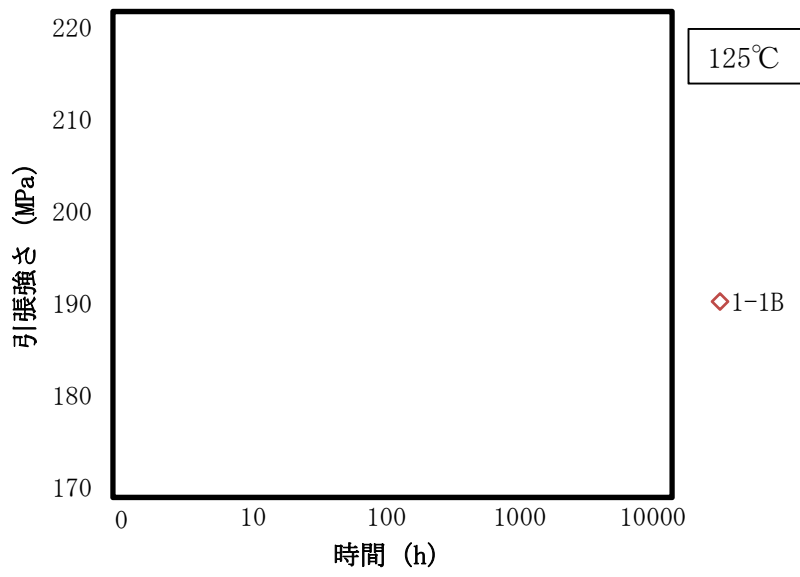


(c) 保持温度：175°C、0.2%耐力

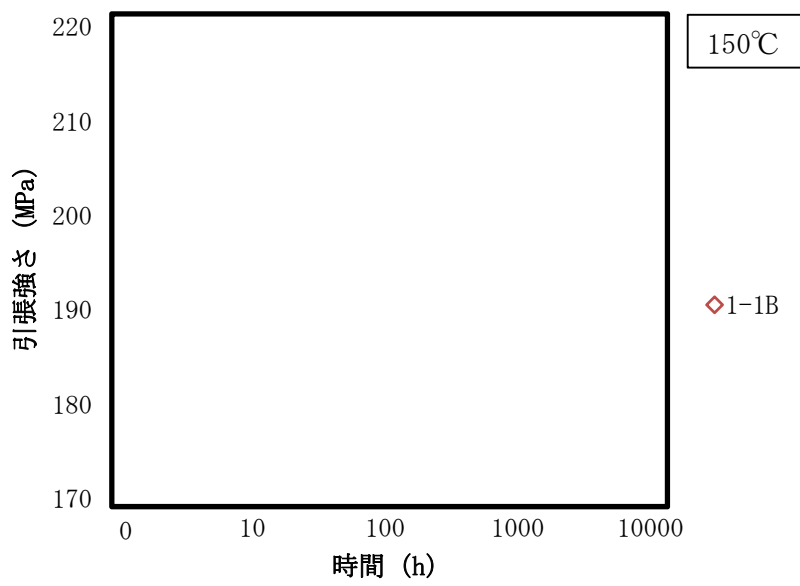


(d) 保持温度：200°C、0.2%耐力

図 5 長時間熱処理による室温強度特性の変化傾向 (0.2%耐力) (2/4)

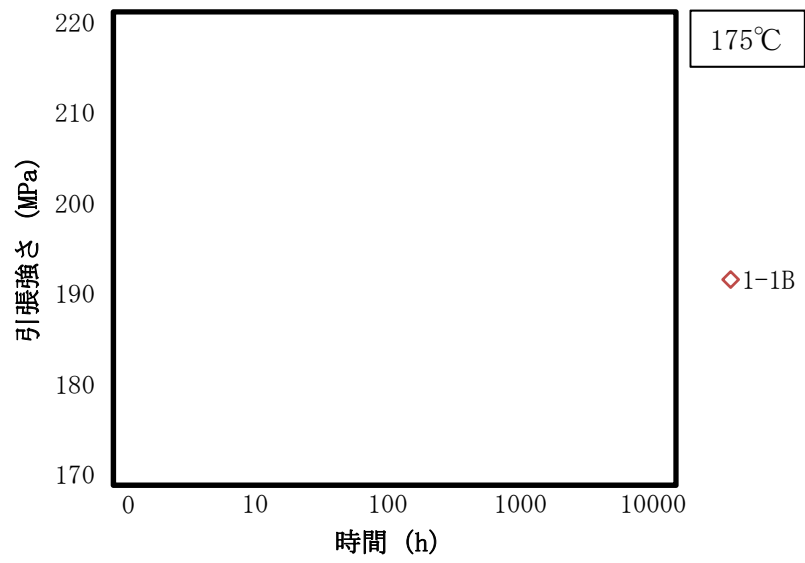


(e) 保持温度：125°C、引張強さ

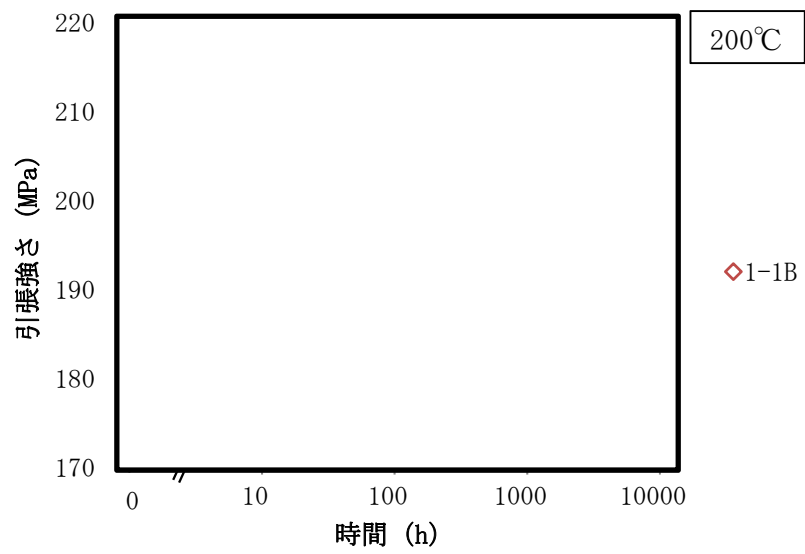


(f) 保持温度：150°C、引張強さ

図 5 長時間熱処理による室温強度特性の変化傾向（引張強さ）（3/4）

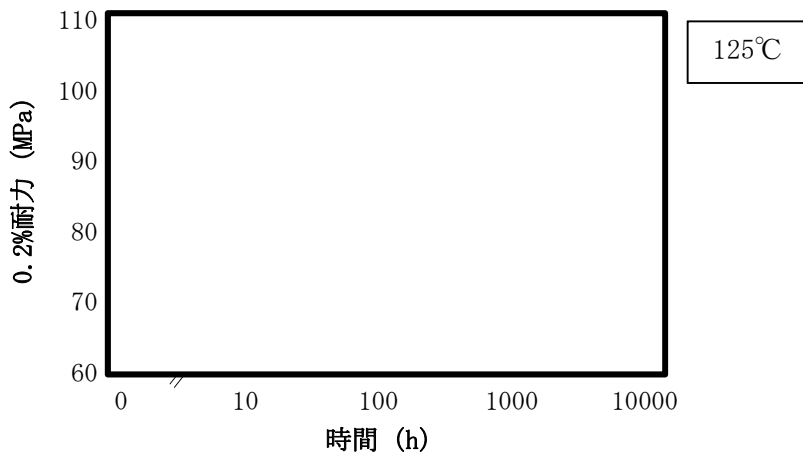


(g) 保持温度：175°C、引張強さ

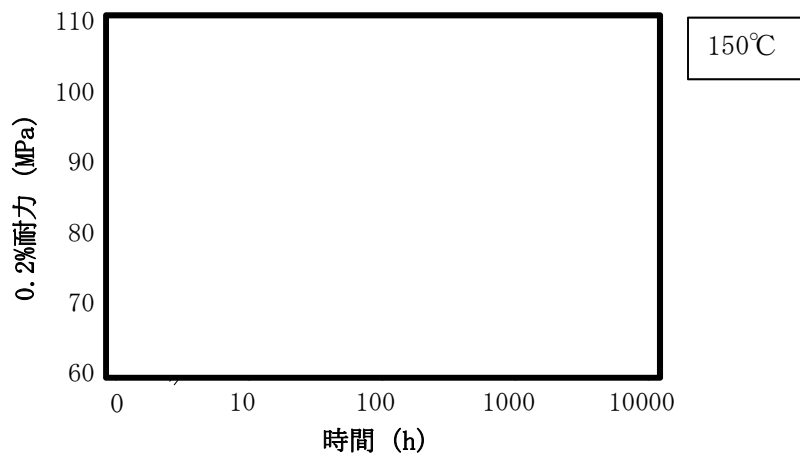


(h) 保持温度：200°C、引張強さ

図 5 長時間熱処理による室温強度特性の変化傾向（引張強さ）（4/4）



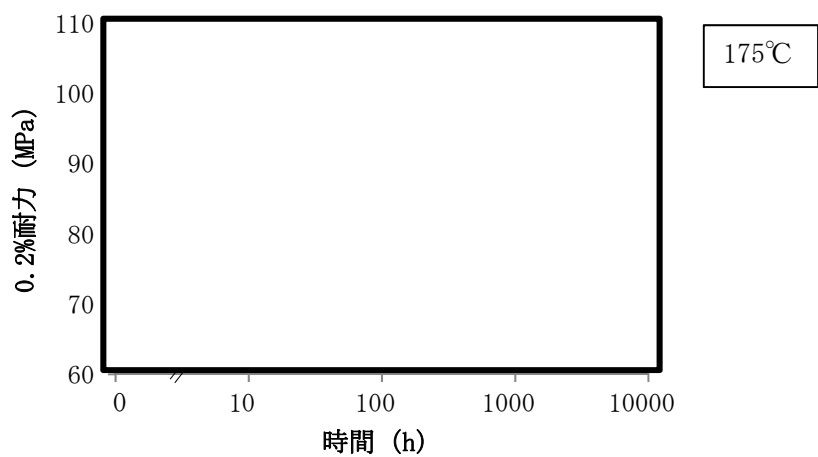
(a) 保持温度：125°C、0.2%耐力



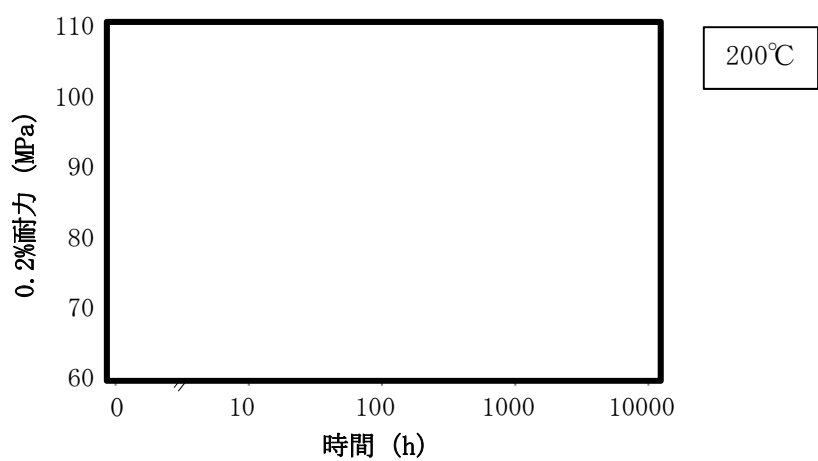
(b) 保持温度：150°C、0.2%耐力

図6 時効処理試験による室温強度特性の変化傾向 (0.2%耐力- t 分布) (1/4)

2



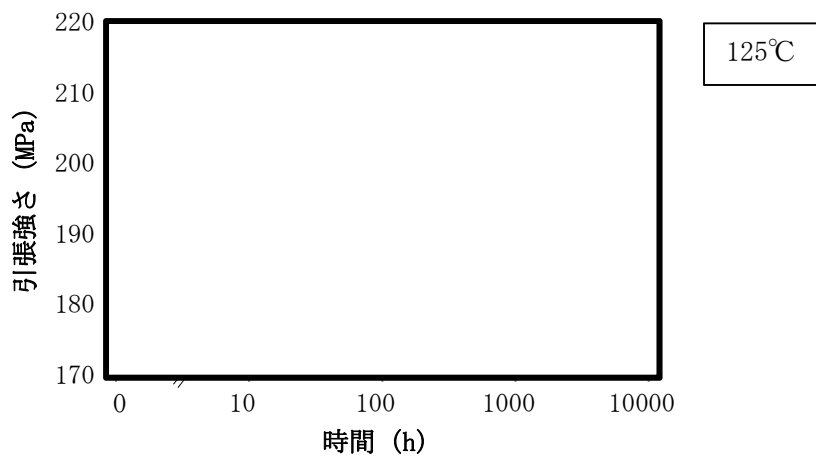
(c) 保持温度：175°C、0.2%耐力



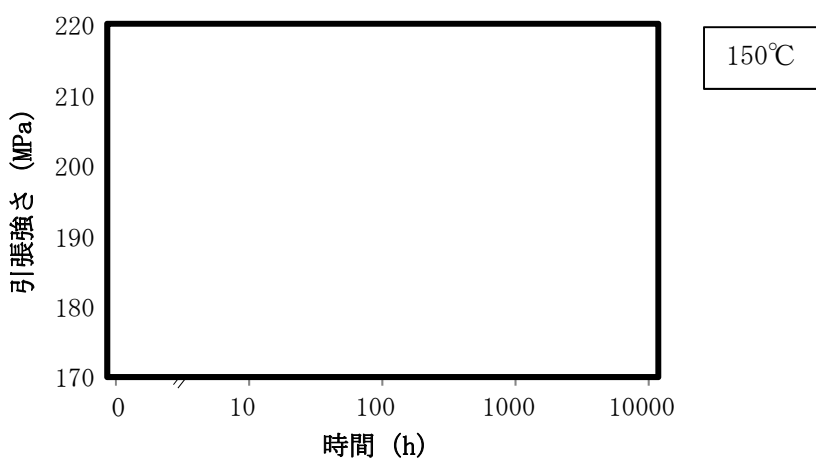
(d) 保持温度：200°C、0.2%耐力

2

図6 時効処理試験による室温強度特性の変化傾向（0.2%耐力- t 分布）（2/4）



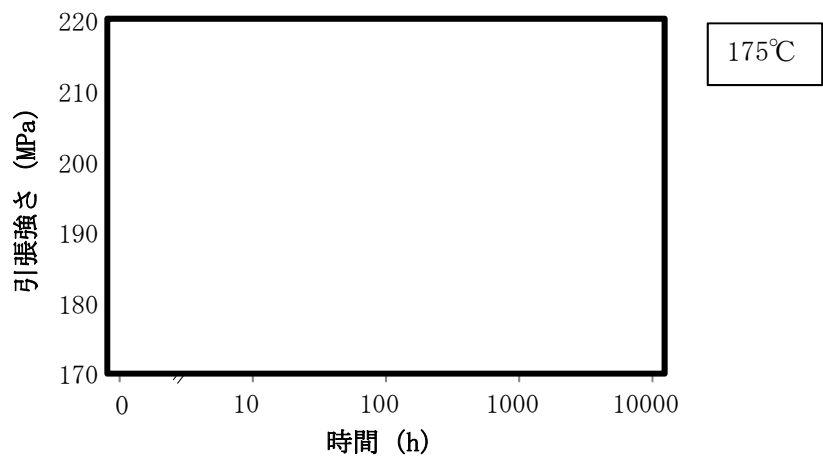
(e) 保持温度：125°C、引張強さ



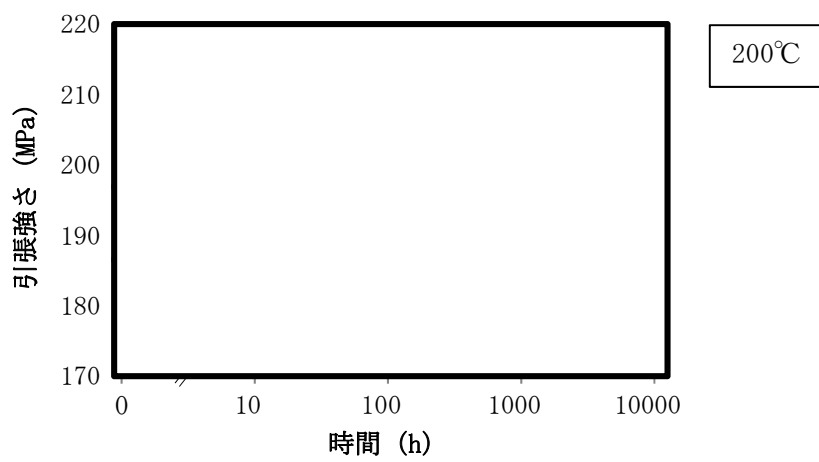
(f) 保持温度：150°C、引張強さ

△
2

図6 時効処理試験による室温強度特性の変化傾向（引張強さ- t 分布） (3/4)



(g) 保持温度：175°C、引張強さ



(h) 保持温度：200°C、引張強さ

2

図6 時効処理試験による室温強度特性の変化傾向（引張強さ- t 分布）（4/4）

(付録) t 分布表⁷⁾

本説明資料で 95%信頼区間の計算に用いた t の値は下表から引用した。 $P=0.05$ の列に、95%信頼区間に対応する t の値が記載されている。また、自由度 $\phi=n-1$ である。したがって、試験 N 数 3 のとき $\phi=2$ であるから、この場合 95%信頼区間に対応する t の値は 4.303 である。同様に試験 N 数 4 のとき、 $t=3.182$ である。

付表 2 t 分布表

両すその面積が P になるような t の値



$\phi \backslash P$	0.50	0.40	0.30	0.20	0.10	0.05	0.02	0.01	0.001	$P \backslash \phi$
1	1.000	1.376	1.963	3.078	6.314	12.706	31.821	63.657	636.619	1
2	0.816	1.061	1.386	1.886	2.920	4.303	6.965	9.925	31.598	2
3	0.756	0.978	1.250	1.638	2.353	3.182	4.541	5.841	12.941	3
4	0.741	0.941	1.190	1.533	2.132	2.776	3.747	4.604	8.610	4
5	0.727	0.920	1.156	1.476	2.015	2.571	3.365	4.032	6.859	5
6	0.718	0.906	1.134	1.440	1.943	2.447	3.143	3.707	5.959	6
7	0.711	0.896	1.119	1.415	1.895	2.365	2.998	3.499	5.405	7
8	0.706	0.889	1.108	1.397	1.860	2.306	2.896	3.355	5.041	8
9	0.703	0.883	1.100	1.383	1.833	2.262	2.821	3.250	4.781	9
10	0.700	0.879	1.093	1.372	1.812	2.228	2.764	3.169	4.587	10
11	0.697	0.876	1.088	1.363	1.796	2.201	2.718	3.106	4.437	11
12	0.695	0.873	1.083	1.356	1.782	2.179	2.681	3.055	4.318	12
13	0.694	0.870	1.079	1.350	1.771	2.160	2.650	3.012	4.221	13
14	0.692	0.868	1.076	1.345	1.761	2.145	2.624	2.977	4.140	14
15	0.691	0.866	1.074	1.341	1.753	2.131	2.602	2.947	4.073	15
16	0.690	0.865	1.071	1.337	1.746	2.120	2.583	2.921	4.015	16
17	0.689	0.863	1.069	1.333	1.740	2.110	2.567	2.898	3.965	17
18	0.688	0.862	1.067	1.330	1.734	2.101	2.552	2.878	3.922	18
19	0.688	0.861	1.066	1.328	1.729	2.093	2.539	2.861	3.883	19
20	0.687	0.860	1.064	1.325	1.725	2.086	2.528	2.845	3.850	20
21	0.686	0.859	1.063	1.323	1.721	2.080	2.518	2.831	3.819	21
22	0.686	0.858	1.061	1.321	1.717	2.074	2.508	2.819	3.792	22
23	0.685	0.858	1.060	1.319	1.714	2.069	2.500	2.807	3.767	23
24	0.685	0.857	1.059	1.318	1.711	2.064	2.492	2.797	3.745	24
25	0.684	0.856	1.058	1.316	1.708	2.060	2.485	2.787	3.725	25
26	0.684	0.856	1.058	1.315	1.706	2.056	2.479	2.779	3.707	26
27	0.684	0.855	1.057	1.314	1.703	2.052	2.473	2.771	3.690	27
28	0.683	0.855	1.056	1.313	1.701	2.048	2.467	2.763	3.674	28
29	0.683	0.854	1.055	1.311	1.699	2.045	2.462	2.756	3.659	29
30	0.683	0.854	1.055	1.310	1.697	2.042	2.457	2.750	3.646	30
40	0.681	0.851	1.050	1.303	1.684	2.021	2.423	2.704	3.551	40
60	0.679	0.848	1.046	1.296	1.671	2.000	2.390	2.660	3.460	60
120	0.677	0.845	1.041	1.289	1.658	1.980	2.358	2.617	3.373	120
∞	0.674	0.842	1.036	1.282	1.645	1.960	2.326	2.576	3.291	∞

