# 平成 30 年度

# 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に 関する技術開発事業

直接処分等代替処分技術高度化開発

# 報告書

# 平成 31 年 3 月

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

本報告書は,経済産業省資源エネルギー庁からの委託事業として、国立 研究開発法人日本原子力研究開発機構が実施した平成30年度高レベル 放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業「直接処分等代替処分技 術高度化開発」の事業報告書である。

目	次		

目次	i
<ol> <li>はじめに</li> <li>1.1 背景と目的</li> <li>1.2 本事業の全体計画</li> <li>1.3 平成 30 年度の実施内容</li> <li>2. 処分容器の挙動評価・</li> </ol>	1-1 1-1 1-2 1-4
2.1 処分容器の腐食挙動評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-1
2.2 使用済燃料処分での処分後臨界安全評価······	2-38
2.3 まとめ	2-51
3. 使用済燃料、緩衝材の挙動評価	3-1
3.1 使用済燃料集合体からの核種溶解挙動評価	3-1
3.2 緩衝材の長期挙動評価	3-35
3.3 まとめ	3-42
4. 直接処分システムの成立性の多角的な確認	4-1
5. その他の代替処分オプションについての調査	5-1
<ul> <li>6. おわりに</li> <li>6.1 成果の総括</li> <li>6.2 今後の計画</li> </ul>	6-1 6-1 6-2

## 図目次

义	1.1-1	本事業での実施項目と先行事業での実施項目の対応・・・・・・・・・	1-3
汊	2.1-1	試験セルの模式図・・・・・	2-3
义	2.1-2	純銅の動電位アノード/カソード分極測定結果・・・・・・・・・・・・	2-4
义	2.1-3	銅と硫化水素の反応の模式図・・・・・	2-4
义	2.1-4	純銅の定電位試験後試験片の外観・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-6
义	2.1-5	X 線回折結果の一例 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-7
义	2.1-6	分極測定に使用した試験カラムの模式図・・・・・・・・・・・・・・・・	2-8
义	2.1-7	緩衝材中の測定系の模式図・・・・・	2-9
义	2.1-8	3.5 % NaCl および 3.5 % NaCl + 1 mM Na <sub>2</sub> Sの水溶液中での銅電極の分極	
		挙動	2-10
义	2.1-9	3.5 % NaCl および 3.5 % NaCl + 1mM Na <sub>2</sub> S を浸潤した圧縮ベントナイト	
		ならびに圧縮銅型化ベントナイト中での銅電極の分極挙動・・・・・	2-11
义	2.1-10	3.5 % NaCl を浸潤した圧縮ベントナイトおよび圧縮ハイドロタルサイ	
		ト中での銅電極の分極挙動 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-12
义	2.1-11	3.5 % NaCl + 1 mM Na <sub>2</sub> S を浸潤した圧縮ベントナイトおよび圧縮ハイド	
		ロタルサイト中での銅電極の分極挙動 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-12
义	2.1-12	緩衝材中での試験カラムの模式図・・・・・	2-13
义	2.1-13	試験後試験片の外観・・・・・・	2-15
义	2.1-14	腐食生成物の X 線回折結果の例・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-16
义	2.1-15	硫化水素濃度と平均腐食速度の関係・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-18
义	2.1-16	応力腐食割れの機構 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-19
义	2.1-17	浸漬試験の模式図・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-20
义	2.1-18	純水膨潤ベントナイト中での浸漬試験後の試験片外観・・・・・・	2-21
义	2.1-19	純水膨潤ベントナイト中にさまざまな期間浸漬した試料に生成した硫化	
		物皮膜と酸化物皮膜の厚さ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-22
义	2.1-20	Uベンド試験模式図・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-23
义	2.1-21	Uベンド試験片の形状および曲げ時の形態と試験片領域 ・・・・・・	2-23
义	2.1-22	純水膨潤ベントナイト中での U ベンド試験片の試験後試料外観写真	2-24
义	2.1-23	純水膨潤ベントナイト中での U ベンド試験片の試験後外観写真および	
		SEM 像·····	2-25
义	2.1-24	SSRT 用平板引張試験片 ······	2-27
义	2.1-25	SSRT に使用した環境セルの模式図 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-27
义	2.1-26	純水および NH <sub>3</sub> 水溶液膨潤ベントナイト中での SSRT 後試験片外観写真・	2-28
义	2.1-27	純水および NH <sub>3</sub> 水溶液膨潤ベントナイト中での SSRT 後試験片 SEM 像 ···	2-28
义	2.1-28	ベントナイト中での腐食モニタリング用セルの模式図と試験条件・・・・・	2-30
义	2.1-29	炭素鋼の電気化学インピーダンスの経時変化・・・・・・・・・・・・・・	2-31

义	2. $1 - 30$	Fe-1.4 %Si 合金の電気化学インピーダンスの経時変化 ・・・・・・・・・・	2-32
义	2.1-31	Fe-2.8 %Si 合金の電気化学インピーダンスの経時変化 ・・・・・・・・・	2-33
义	2.1-32	Fe-1.5 %Ni 合金の電気化学インピーダンスの経時変化 ・・・・・・・・・	2-34
义	2.1-33	Fe-2.2 %Ni 合金の電気化学インピーダンスの経時変化 ・・・・・・・・・	2-34
义	2.1-34	ベントナイト中での炭素鋼の等価回路・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-35
义	2.1-35	電荷移動抵抗 R <sub>ct</sub> の逆数の経時変化・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-36
义	2.1-36	周波数1 mHz でのインピーダンスの逆数(1/Z <sub>1mHz</sub> )の経時変化 ・・・・・・・	2-37
义	2.2-1	竪置き(球体系)と横置き(円筒形)の臨界安全評価モデルの概念図・・・	2-39
义	2.2-2	スウェーデンの臨界解析で対象とされた処分容器の構造・・・・・	2-44
义	2.2-3	英国の臨界解析で対象とされた処分容器の構造・・・・・・・・・・・・	2-45
义	2.2-4	材料の腐食等による配置の変化を考慮した英国の臨界モデルの概念	2-46
义	3.1-1	使用済燃料中の核種分布および核種放出の概念・・・・・・・・・・・・	3-2
义	3.1-2	燃料溶解速度の全炭酸濃度依存性に関する文献情報・・・・・・	3-5
义	3.1-3	先行研究で得られた二酸化ウラン溶解速度の全炭酸濃度依存性	3-5
义	3.1-4	電気炉概要図・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-7
义	3.1-5	U <sub>3</sub> 0 <sub>8</sub> を還元処理して作製した UO <sub>2</sub> 試料の XRD パターン	3-8
义	3.1-6	$UO_2 ペレット外観・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・$	3-8
义	3.1-7	焼結後のペレット表面の SEM 写真・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-9
义	3.1-8	Uの溶解におよぼす炭酸イオン濃度の影響 ・・・・・・・・・・・・・・	3-11
义	3.1-9	浸漬後の UO₂ペレットの SEM 観察と EDX 分析における (a) SEM 写真と(b) U	
		のマッピング結果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-11
义	3.1-10	既往研究の燃料溶解速度と本研究で求めた UO2溶解速度の比較	3-12
义	3.1-11	ウラン溶解度試験結果の酸化還元電位依存性・・・・・・・・・・・・・・・	3-15
义	3.1-12	U02溶解度試験で酸化還元電位や全炭酸濃度の影響を調査した例	3-16
义	3.1-13	核分裂生成ガス放出プロセスの概要・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-17
义	3.1-14	核分裂生成ガス放出のペレット中心しきい温度の燃焼度依存性・・・・・・	3-19
义	3.1-15	EU「First-Nuclides」プロジェクトにおける FGR の(a)燃焼度および	
		(b)線出力依存性······	3-21
义	3.1-16	燃焼度と FGR の関係・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-21
义	3.1-17	炉外加熱試験で得られた Kr、Cs、I のバースト放出開始温度の燃焼度	
		依存性	3-22
义	3. 1-18	ペレット径方向 Cs-137 局所配列比と局所 FP ガス放出率の関係・・・・・・	3-24
义	3. 1-19	ペレット径方向 Cs 放出率と燃料要素平均の FP ガス放出率との関係・・・・	3-24
义	3.1-20	C-H-0系の支配化学種のダイアグラム・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-28
义	3.1-21	10 日後と 200 日後の液相濃度(FIAP)から求めた各元素の IRF・・・・・・	3-30
义	3.1-22	浸漬試験約 0.5 年後の Mo-100 の累積放出率・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-30
义	3.1-23	燃料ペレット内の局所燃焼度と空隙率の半径方向の分布の例	3-31
义	3.1-24	浸漬試験の Cs、Rb、Sr、Mo、Tc の IRF の結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-34

义	3.2-1	テフロン製変質試験カラム概略図・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-39
义	3.2-2	2 試験後の銅試験片との接触面の圧縮ベントナイト試料写真・・・・・	3-40
义	3.2-3	3 銅試験片との接触界面の圧縮ベントナイト試料の EPMA 分析結果・・・・・・	3-40
义	3.2-4	4 バッチ変質試験試料の XRD 測定結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-42
义	4-1	処分容器の識別 ID 付与位置・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-6
义	4-2	調査孔と定置トンネルの位置関係・・・・・	4 - 7
义	4-3	PWR 燃料 4 体が収容された処分容器 1 体あたりのインベントリの推移 ・・・・・	4-19
义	4-4	BWR 燃料 12 体が収容された処分容器 1 体あたりのインベントリの推移 ・・・・	4-19
义	4-5	PWR 燃料4体が収容された処分容器1体あたりの中性子数、光子数、放射	
		能量の推移・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-20
义	4-6	BWR 燃料 12 体が収容された処分容器 1 体あたりの中性子数、光子数、放射	
		能量の推移・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-21
义	4 - 7	PWR 燃料4体が収容された処分容器の表面から1mの位置における線量当	
		量率の推移・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-21
义	4-8	BWR 燃料 12 体が収容された処分容器の表面における線量当量率の推移 ・・・・	4-22
义	4-9	核検知装置の例・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-27
义	4-10	爆発物検知装置の例・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-27
义	4-11	外部からの要求事項と評価因子の関係のイメージ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-30
义	4-12	設計因子と検討対象を組み合わせた二次元マトリクスフォーマット例・・・・	4-39
义	5-1	Deep Isolation 社が提案する処分概念のイメージ ・・・・・・・・・・・・・・	5-3
义	5-2	超深孔処分の適用性・成立性に影響する因子の検討アプローチのイメージ・	5-16
义	5-3	因子の設定や組合せに応じた核種移行経路や核種移行挙動等の違いの整理・	5-18
义	5-4	平成 30 年度の検討で想定した超深孔処分での核種移行の場の概念図	5-19
义	5-5	平成 30 年度の検討で構築した核種移行解析モデルの概念図・・・・・	5-27
义	5-6	平成 30 年度に実施した熱対流の解析体系(直交座標系)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-30
図	5-7	核種移行への影響パターンに応じた感度解析の結果(評価核種:I-129)・・	5-33

## 表 目 次

表	1.1-1	本事業で利用・引用する主な過去の研究開発成果・・・・・・・・・・・・	1-1
表	2.1-1	電気化学試験条件・・・・・	2-2
表	2.1-2	溶存硫化物の拡散限界電流の計算結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-5
表	2.1-3	浸漬試験条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-14
表	2.1-4	X 線回折により同定された腐食生成物 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-16
表	2.1-5	重量法により得られた純銅の平均腐食深さと平均腐食速度・・・・・	2-17
表	2.1-6	試料として用いた純銅板の化学組成・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-20
表	2.1-7	浸漬試験の実験条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-20
表	2.1-8	Uベンド試験の試験条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-23
表	2.1-9	低ひずみ速度試験の試験条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-26
表	2.1-1	0 腐食モニタリング試験の試験条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-31
表	2.2-1	調査対象とした文献・・・・・	2-40
表	2.2-2	諸外国の臨界安全評価の概要・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-42
表	2.2-3	感度解析で扱う状態変化の候補の整理結果・・・・・・・・・・・・・・・・	2-48
表	2.2-4	感度解析のパラメータの候補・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-50
表	3.1-1	先行研究における国内向け瞬時放出率(IRF)の設定値・・・・・・・・・・・	3-3
表	3.1-2	先行研究における国内向け長期溶解速度の設定値・・・・・・・・・・・・	3-3
表	3.1-3	瞬時放出および長期溶解の評価に係る主な不確実性因子・・・・・	3-3
表	3.1-4	浸漬実験条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-10
表	3.1-5	UO <sub>2</sub> 溶解度試験の諸条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-14
表	3.1-6	ペレットの採取場所、試料形態を変えた浸漬試験の Rb、Sr、Mo、Tc、Cs	
		の IRF の結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-29
表	3.1-7	使用済燃料試料に対する溶解試験のリスト・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-33
表	3.1-8	α-ドープ試料と UO2標準試料に対する溶解試験リスト ·····	3-34
表	3.2-1	試験手法と目的、対象とする変質現象などのまとめ・・・・・・・・・・・	3-37
表	3.2-2	試験に使用した人工海水の組成・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-39
表	4-1	事業者が保存しなければならないと考えられる核セキュリティに関する事	
		項の例(1/2)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-10
表	4-1	事業者が保存しなければならないと考えられる核セキュリティに関する事	
		項の例(2/2)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-11
表	4-2	事業者が保存しなければならないと考えられる保障措置に関する事項の例・	4-12
表	4-3	事業者が保存しなければならないと考えられるその他の事項の例・・・・・	4-13
表	4-4	直接処分施設閉鎖後以降も事業者が保存すべき核セキュリティ・保障措置	
		に関する具体的な記録の例・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4 - 14

表	4-5	解析に用いた燃料集合体の仕様・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-16
表	4-6	解析に用いた核燃料物質の仕様(PWR)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-16
表	4-7	解析に用いた核燃料物質の仕様(BWR)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-17
表	4-8	1 個の核爆発装置が製造される可能性を排除できない核物質のおおよその	
		量として IAEA が定めている有意量・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-18
表	4-9	冷却期間終了後における Th、U233、U235、Pu のインベントリ・・・・・	4-18
表	4-10	調査対象とした文献一覧・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-29
表	4-11	評価カテゴリーと評価因子・・・・・	4-31
表	4-12	直接処分システムの構成要素と設計オプション・・・・・・・・・・・・	4-36
表	4-13	事業の段階、立地場所・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-36
表	4-14	直接処分を対象とした設計因子の例・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-37
表	4-15	議論・確認すべきことの分析に適用できると考えられる方法・・・・・・	4-39
表	5 - 1	使用済燃料および HLW を対象とした超深孔処分の検討事例の比較・整理の	
		例	5-9
表	5-2	その他の廃棄物(使用済燃料および HLW 以外)を対象とした超深孔処分の	
		検討事例の比較・整理の例・・・・・	5-9
表	5-3	断層による天然バリアへの影響・・・・・	5-14
表	5-4	断層による人工バリア設置環境への影響・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-15
表	5-5	断層による人工バリアの安全機能の変化・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-15
表	5-6	超深孔処分に影響を及ぼす可能性のある因子の候補・・・・・・・・・・・・	5-17
表	5-7	各影響パターンでの核種移行経路および核種移行の特徴の具体化の例	
		(パターン①の場合) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-20
表	5-8	各影響パターンでの核種移行経路および核種移行の特徴の具体化の例	
		(パターン②の場合)・・・・・	5-21
表	5-9	各影響パターンでの核種移行経路および核種移行の特徴の具体化の例	
		(パターン③の場合)・・・・・	5-22
表	5-10	各影響パターンでの核種移行経路および核種移行の特徴の具体化の例	
		(パターン④の場合) ・・・・・	5-23
表	5-11	条件分岐フローでの3つの因子の取り扱い・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-28
表	5-12	解析ケース一覧・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-28
表	5-13	熱対流解析での各領域の物性値・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-31
表	5-14	熱対流解析ケースの一覧・・・・・	5-31
表	5-15	熱対流の解析結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-32
表	5 - 16	予察的な核種移行解析時に設定する熱対流流速と熱対流の継続期間・・・・・	5-32

# 第1章

はじめに

## 1 章詳細目次

1. はじめに・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	1
1.1 背景と目的 ・・・・・・・・・・・ 1-	1
1.2本事業の全体計画 ······ 1-	2
(1) 処分容器の挙動評価・・・・・ 1-	2
(2) 使用済燃料、緩衝材の挙動評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・-1-	2
(3) 直接処分システムの成立性の多角的な確認・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・-1-	2
(4) その他の代替処分オプションについての調査・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・-1-	3
(5) 情報収集および評価委員会の設置と運営・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 1-	3
1.3 平成 30 年度の実施内容・・・・・ 1-	3
(1) 処分容器の挙動評価・・・・・ 1-	4
(2) 使用済燃料、緩衝材の挙動評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4
(3) 直接処分システムの成立性の多角的な確認・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4
(4) その他の代替処分オプションについての調査・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・-1-	4
参考文献 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	6

#### 1. はじめに

#### 1.1 背景と目的

特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針(資源エネルギー庁,2015)において、 「国及び関係研究機関は、幅広い選択肢を確保する観点から、使用済燃料の直接処分その他 の処分方法に関する調査研究を推進するものとする。」となっている。

使用済燃料の直接処分に関する研究開発については、平成25年度から進められ、平成27年 には「我が国における使用済燃料の地層処分システムに関する概括的評価一直接処分第 1次 取りまとめー」(日本原子力研究開発機構, 2015a)にて、使用済燃料の直接処分特有の課 題が抽出され、これまでに課題解決に向けた研究開発が進められている。これをうけ、「地 層処分研究開発に関する全体計画(平成30年度~平成34年度)」(地層処分研究開発調整会 議, 2018)(以下、全体計画)では、今後5年間も、引き続き同取りまとめで抽出された使用 済燃料の直接処分に特有の課題について検討の実施及びその他代替オプションの検討を進め ることとした。

本事業は、これらの状況を踏まえ、全体計画に基づき、使用済燃料の直接処分に係る人工 バリアの成立性の評価の高度化への対応、地質環境条件や使用済燃料の多様性への対応等に 係る技術開発を重点に行う。また、その他代替オプションの我が国における成立性に関する 検討を行う。

なお、本事業の実施においては、高レベル放射性廃棄物(ガラス固化体)の地層処分、TRU 廃棄物の地層処分、および使用済核燃料の直接処分に関する過去の研究開発成果を適宜活用・ 引用する(表 1.1-1 参照)。

過去の研究開発成果	略称
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-	H12 レポート
地層処分研究開発第2次取りまとめー(核燃料サイクル開発機構,	
1999a ; 1999b ; 1999c ; 1999d)	
TRU 廃棄物処分技術検討書-第2次 TRU 廃棄物処分研究開発取り	第 2 次 TRU レポート
まとめー(電気事業連合会,核燃料サイクル開発機構,2005)	
わが国における使用済燃料の地層処分システムに関する概括的評	直接処分第1次取り
価 -直接処分第1次取りまとめ-(日本原子力研究開発機構,	まとめ
2015a)	
平成25年度地層処分技術調查等事業「使用済燃料直接処分技術開	平成 25 年度報告書
発」報告書(日本原子力研究開発機構,2014)	
平成 26 年度地層処分技術調查等事業「使用済燃料直接処分技術開	平成 26 年度報告書
発」報告書(日本原子力研究開発機構,2015b)	
平成 27 年度地層処分技術調查等事業「直接処分等代替処分技術開	平成 27 年度報告書
発」報告書(日本原子力研究開発機構,2016)	
平成28年度地層処分技術調查等事業「直接処分等代替処分技術開	平成 28 年度報告書
発」報告書(日本原子力研究開発機構,2017)	
平成29年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に 関する技術開	平成 29 年度報告書
発事業「直接処分等代替処分技術開発」報告書(日本原子力研究	
開発機構, 2018a)	
高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 「直	5 か年取りまとめ報
接処分等代替処分技術開発」5か年取りまとめ報告書(日本原子	告書
力研究開発機構, 2018b)	

表 1.1-1 本事業で利用・引用する主な過去の研究開発成果

#### 1.2 本事業の全体計画

本事業では、わが国の地質環境条件や使用済燃料の特性を踏まえ、直接処分などの代替処 分技術についての調査、検討、技術開発を実施する。代替処分技術のうち、直接処分技術に ついては、諸外国の事例調査を通じて最新の技術動向や技術的課題などを把握したうえで、 使用済燃料の直接処分に係る人工バリア成立性評価の信頼性向上を図る。その他代替オプシ ョンについては、超深孔処分を対象に、諸外国の事例調査を通じて最新の技術動向や技術的 課題などを把握したうえで、わが国における成立性を評価する。これにより、わが国におけ る使用済燃料の直接処分等代替処分技術の高度化を図ることを目標とする。

上記に基づき、使用済燃料の直接処分に関する技術開発およびその他代替オプションについての調査や検討を、わが国の諸条件を考慮して検討を行っておくことが重要と考えられる 課題に注力しつつ進めるために、以下の実施項目を設定し技術開発を進める。

- 処分容器の挙動評価
- 使用済燃料、緩衝材の挙動評価
- 直接処分システムの成立性の多角的な確認
- その他の代替処分オプションについての調査
- 情報収集および評価委員会の設置と運営

以下に、各実施項目についての全体的な計画をまとめる。

#### (1) 処分容器の挙動評価

処分容器の挙動評価として、純銅処分容器の我が国の地質環境への適用の検討に向けた取 り組みを行う。また、銅以外の候補材料として炭素鋼、チタン等について、長寿命化の見通 し、適用条件等の提示に資するための腐食現象のモデル化に関する知見や腐食データの整備 等を行う。さらに、より現実的な材料配置を想定し、使用済燃料の処分後の臨界安全評価技 術の高度化を図る。

#### (2) 使用済燃料、緩衝材の挙動評価

使用済燃料の挙動評価として、放射能レベルの高い使用済核燃料集合体やそれを模した材料を用いて、ウラン酸化物の溶解速度の水質影響について、詳細な実験的調査を実施するとともに、燃料挙動解析コード等を用いた使用済燃料からの核種放出の評価に関する検討を行う。また、緩衝材の挙動評価として、様々な環境における、緩衝材と処分容器との相互作用 に関する試験研究を実施する。

#### (3) 直接処分システムの成立性の多角的な確認

直接処分システムの成立性の多角的な確認として、核セキュリティ・保障措置等の国際的 な進展や議論から特に重要となる要素の最新の知見の分析を進めると共に、システムの成立 性を効果的に検討するための課題(取得するべき情報の種類・量・質など)について整理を行 う。

#### (4) その他の代替処分オプションについての調査

その他代替オプションとして、諸外国で現在検討が進められている超深孔処分を対象とし て、国内外での最新の関連情報等の分析を実施すると共に、我が国における超深孔処分の成 立性などに影響を与えうる因子の抽出やその影響の程度について分析を行う。

#### (5) 情報収集および評価委員会の設置と運営

本事業の実施にあたり、調査研究の品質の確保の観点から、国内外の関係研究機関や大学 等との連携を行い最新の知見を入手する。また、外部の専門家等で構成される委員会を設置 し、研究計画・実施方法・結果の評価に関する審議を行う。

参考として、本事業の実施項目と先行事業「高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する 技術開発事業(直接処分等代替処分技術開発)」(日本原子力研究開発機構,2018b)での実施 項目の対応の整理結果を図 1.1-1 に示す。



図 1.1-1 本事業での実施項目と先行事業での実施項目の対応

本事業は、「日本での直接処分における人工バリアの成立性の評価の信頼性を向上する」こ とに着目し、わが国と海外での先行事例との条件の違い(地質環境条件、使用済燃料条件な ど)や求められる性能の違い(処分容器寿命など)などに起因して我が国で検討しておくべ き課題に重点をおいて基盤研究を積み重ねていくことを重視している。なお、先行事業での 実施項目のうち、本事業での実施項目に直接対応する項目がない内容は、必要に応じて「(3) 直接処分システムの成立性の多角的な確認」の一部として、最新情報の調査や過年度の調査 結果の再整理等を実施していく。

#### 1.3 平成 30 年度の実施内容

以下では、1.2節で示した各実施項目の全体的な計画を踏まえて設定した、平成30年度の

実施内容を示す。

#### (1) 処分容器の挙動評価

純銅処分容器の我が国の地質環境への適用の検討について、平成30年度は、純銅の処分容 器としての適用条件や長寿命を達成可能な環境条件の評価に資するため、個別の現象や個々 の影響因子に着目して、幅広い地下水環境における純銅の腐食試験を行い、腐食データを取 得するとともに、それに基づいて腐食現象の理解を進めた。また、銅以外の候補材料として の炭素鋼、チタンなどについて、平成30年度は、腐食現象のモデル化に関する知見や腐食デ ータの整備などとして、長期的な腐食量の評価に資するための腐食速度や皮膜特性等のデー タ取得を進めるとともに、耐食性に影響を及ぼす因子を明らかにするための腐食試験等を実 施した。

使用済燃料の処分後の臨界安全評価技術の高度化について、平成30年度は、燃料および処 分容器の配置について過度に保守的とならない臨界安全評価技術の構築に資するため、処分 後の臨界現象に影響する可能性のある、燃料集合体と処分容器の腐食進展や破壊による形状 変化とそれによる材料配置についての知見などの整備を進めた。

#### (2) 使用済燃料、緩衝材の挙動評価

使用済燃料の挙動評価について、平成30年度は、諸外国に比べてわが国のモデル緩衝材間 隙水組成では無機炭素濃度が高いことに着目し、燃料マトリクス成分であるウラン酸化物の 溶解速度などに及ぼす炭酸影響について、詳細な実験的調査を実施した。また、燃料挙動解 析コードなどを用いた国内外の使用済燃料からの核種放出(特に瞬時放出)の評価に関する調 査を実施するとともに、使用済燃料からの核種放出挙動に関する実測データを整理し、直接 処分の安全評価に資するデータ取得条件などを検討した。

緩衝材の挙動評価について、平成30年度は、直接処分事業などが進められている諸外国で 処分容器の材料として採用されている銅などを対象に、緩衝材と銅の化学的相互作用や変質 などの有無を調査するための試験研究を多様な条件で実施した。

#### (3) 直接処分システムの成立性の多角的な確認

直接処分システムの成立性の多角的な確認のために、核セキュリティ・保障措置について は、平成30年度は、諸外国の最新の検討状況、保存すべき核セキュリティ・保障措置データ の種類、インベントリ変化のデータ、脅威の動向やその対策などについての調査・分析を進 めた。

また、システムの成立性の効果的な検討については、平成30年度は、システムの成立性を 効果的に検討していくために着目すべきシステムの各要素の設計や性能の内容、それらの組 み合わせ、および取得・整備していくべき情報の種類・量・質などの分析を、設計や性能に ついての最新情報なども踏まえながら進めた。

#### (4) その他の代替処分オプションについての調査

その他代替処分オプションの国内外での最新の関連情報などの分析については、平成30年

度は、超深孔処分に関する米国等の諸外国での検討動向・事例、超深孔処分に関連し得る地 質環境条件や工学技術などについての国内外での検討動向・事例などについての最新情報の 収集・整備を進めた。

また、我が国における超深孔処分の成立性などに影響を与えうる因子については、平成30 年度は、想定され得る主な移行経路や移行プロセスとそれらに影響を与えうる因子の候補の 地質環境条件や設計条件などとの関係に着目した抽出、それら因子により特徴付けられる影 響の種類や影響の程度などについてのシナリオ分析や核種移行感度解析などによる分析を進 めた。 【参考文献】

- 電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構 (2005): TRU 廃棄物処分技術検討書-第2次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ-, JNC TY1400 2005-013/FEPC TRU-TR2-2005-02.
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2014): 平成 25 年度地層処分技術調査等事業「使用 済燃料直接処分技術開発」報告書,

http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity\_and\_gas/nuclear/rw/library/2 013/25-11-1.pdf(2019 年 3 月 28 日閲覧).

- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2015a):わが国における使用済燃料の地層処分シス テムに関する概括的評価 - 直接処分第1次取りまとめ-, JAEA-Research-2015-016.
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2015b): 平成 26 年度地層処分技術調査等事業「使用済燃料直接処分技術開発」報告書,

http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity\_and\_gas/nuclear/rw/library/2 014/26fy\_sf.pdf (2019 年 3 月 28 日閲覧).

原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2016): 平成27年度地層処分技術調査等事業「直接 処分等代替処分技術開発」報告書,

http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity\_and\_gas/nuclear/rw/library/2 015/27fy\_sf.pdf (2019年3月28日閲覧).

原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2017): 平成 28 年度地層処分技術調査等事業「直接 処分等代替処分技術開発」報告書,

http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity\_and\_gas/nuclear/rw/library/2 016/28fy\_sf.pdf (2019年3月28日閲覧).

原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2018a): 平成29年度高レベル放射性廃棄物等の地 層処分に関する技術開発事業「直接処分等代替処分技術開発」報告書,

http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity\_and\_gas/nuclear/rw/library/2 017/29fy\_sf.pdf (2019年3月28日閲覧).

原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2018b): 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関す る技術開発事業 「直接処分等代替処分技術開発」5か年取りまとめ報告書,

http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity\_and\_gas/nuclear/rw/library/2 017/25-29fy\_sf\_torimatome.pdf(2019年3月28日閲覧).

- 核燃料サイクル開発機構(1999a):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-総論レポート、INC TN1400 99-020.
- 核燃料サイクル開発機構(1999b):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1,核燃料サイクル開発機構技術報 告書. JNC TN1400 99-021.
- 核燃料サイクル開発機構(1999c):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.核燃料サイクル開発機構技術報 告書. JNC TN1400 99-022.
- 核燃料サイクル開発機構(1999d):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3.核燃料サイクル開発機構技術報

告書. JNC TN1400 99-023.

資源エネルギー庁(2015):特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針(平成27年5月22日閣議決定),

http://www.meti.go.jp/press/2015/05/20150522003/20150522003-1.pdf (2019年3月 28日閲覧).

地層処分研究開発調整会議(2018): 地層処分研究開発に関する全体計画(平成30年度~平 成34年度),

http://www.meti.go.jp/report/whitepaper/data/pdf/20180329001\_01.pdf (2019年3月 28日閲覧).

# 第2章

処分容器の挙動評価

## 2 章詳細目次

0 4	ᄟᄼᅌᄪᇂᅆᄮᇍᅗᄺ	0 1
2. 叉		2-1
2.1	処分容器の腐食季動評価······	2-1
(1)	本項目の背景と目的····································	2-1
(2)	硫化物共存環境における純銅の腐食挙動・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-1
1)	硫化水素吹き込み下の電気化学試験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-2
(	① 試験片・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-2
(	② 試験溶液・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-2
(	③ 試験条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-2
(	④ 試験結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-3
2)	硫化ナトリウム共存下の電気化学試験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-7
(	① 試験片・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-7
	② 試験溶液・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-7
	③ 緩衝材・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-7
(	④ 試験方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-8
(	⑤ 試験結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-9
3)	浸漬試験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-13
	① 試験片・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-13
	② 試験溶液・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-13
	③ 緩衝材・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-13
(	④ 試験条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-13
(	⑤ 試験結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-14
(3)	ベントナイト共存環境における純銅の応力腐食割れ挙動・・・・・・・・・・・	2-18
1)	浸漬試験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-19
	① 試験方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-19
	② 試験結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-21
2)	U ベンド試験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-22
(	① 試験方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-22
(	② 試験結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-24
3)	低ひずみ速度試験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-26
(	① 試験方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-26
	② 試験結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-27
4)	考察	2-29
(4)	他の候補材料を対象とした腐食試験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-29
1)	試験方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-30
2)	試験結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-31
2.2	使用済燃料処分での処分後臨界安全評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-38
(1)	本項目の背景と目的・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-38

(2)	処分後の臨界安全評価の海外事例の文献調査・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-40
1)	諸外国の臨界安全評価の概要・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-40
2)	処分容器の腐食の進展等による材料配置の変化による影響に関する知見の抽	
	出 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	2-43
(3)	処分容器の状態等の変化による影響を把握するための感度解析で必要な情報の	
	整備 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	2-46
1)	感度解析の候補となる状態変化の抽出・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-46
2)	感度解析で候補となるパラメータの抽出・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-49
3)	感度解析における留意点・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-50
2.3	まとめ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-51
参考	文献・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-52

#### 2. 処分容器の挙動評価

人工バリアの成立性に関する信頼性向上や閉じ込め性の高度化、地質環境条件などの多様 性への対応性向上に向けた取り組みとして、処分容器については、直接処分に特徴的な安全 評価上の支配核種である C-14 の閉じ込めなどに着目した長寿命化や地質環境条件と燃料特 性などの多様性に応じた材料選定・仕様設定などに資する知見の整備が必要である。処分容 器の閉じ込め性や長期的な健全性を支配する主要因として、処分容器材料の地下水への耐食 性が挙げられる。また、処分容器には直接処分に特有の要件として臨界安全性が求められて おり、人工バリアの成立性を示す上でその評価手法の構築が重要である。以上のことから、 本章では処分容器の腐食挙動と臨界安全性に関する検討を実施した。

以上に関する検討について、以下の構成で報告する。

- 2.1 処分容器の腐食挙動評価
- 2.2 使用済燃料処分での処分後臨界安全評価
- 2.3 まとめ

#### 2.1 処分容器の腐食挙動評価

#### (1) 本項目の背景と目的

処分容器候補材料として、ガラス固化体の処分におけるオーバーパックと同様に、炭素鋼、 チタン、ニッケル基合金、純銅などが挙げられる。このうち、純銅は熱力学的な安定性から 酸素濃度の低い水環境でほとんど腐食が進展しないという特徴を有する。諸外国では 10<sup>5</sup>~ 10<sup>6</sup>年以上の閉じ込めを期待する国もあり、環境条件によっては極めて長い寿命を期待でき る材料といえる。しかし、硫化物を含む環境では熱力学的な安定性を失い、濃度条件などの 環境条件に応じて腐食が進展すると考えられる。また、酸素を含む環境では腐食が進展し、 条件によっては孔食や応力腐食割れなどの短期破損要因となりうる腐食を生じる可能性があ る。よってわが国の幅広い地質環境条件に対する純銅の適用性や環境条件に応じた寿命など の評価に資するため、幅広い環境条件に対する腐食データの整備が必要である。

本項では、低酸素濃度下での純銅の腐食挙動に影響の大きい代表的な環境因子のひとつで ある硫化物共存環境における純銅の腐食挙動を予察的に検討した。具体的には、幅広い酸化 還元状態(電位)に対応した腐食挙動を把握するための電気化学試験(アノード/カソード 分極試験)および初期腐食速度などを把握するための浸漬試験を実施した(後述(2))。また、 純銅の短期破損の要因となりうる現象である応力腐食割れに着目し、ベントナイト共存下で の応力腐食割れ試験を行った(後述(3))。さらに、純銅に長寿命が期待できない環境条件な どへの柔軟な対応や材料の選択肢拡充を図る観点から、純銅以外の候補材料についても、長 寿命化の見通しや適用条件などの提示に資することを目的とした腐食挙動の検討を行った。 具体的には、炭素鋼に比較して良好な耐食性を示すことが期待できる低合金鋼を用いてベン トナイト中での腐食モニタリング試験を行い、炭素鋼との比較を行った(後述(4))。また、 本項のまとめを「2.3 まとめ」に示す。

#### (2) 硫化物共存環境における純銅の腐食挙動

硫化水素を含むガスを吹き込んだ試験溶液および硫化ナトリウムを添加した試験溶液を用

いて、硫化物共存や濃度による純銅のアノード/カソード分極特性への影響を調査した(後述 1)、2))。また、純銅の腐食量評価と腐食生成物の分析のため、硫化水素を含むガスを吹き込んだ試験溶液を用いて短期(7日間)の浸漬試験(後述 3))を行った。

#### 1) 硫化水素吹き込み下の電気化学試験

#### ① 試験片

純銅試験片には無酸素銅(JIS C1020)を用い、試験片表面はダイヤモンドペーストを用いて鏡面に仕上げた。試験片の浸漬面の表面積は1 cm<sup>2</sup>とし、浸漬面以外は試験溶液に触れないよう、絶縁処理を行った。

#### 2 試験溶液

試験溶液には人工海水(ASTM D1141-98 準拠)を用い、窒素ガス、所定の硫化水素濃度の 窒素-硫化水素混合ガス、硫化水素ガスを吹き込んだ。

#### ③ 試験条件

試験条件を表 2.1-1 に示す。表中の電位は KC1 飽和銀塩化銀電極を参照電極とした値である(以下、vs.SSE)。自然電位を安定した値になるまで測定したのち、動電位法によりアノード/カソード分極測定を行った。電位走査速度は 20 mV min<sup>-1</sup>とした。分極測定に使用した 試験セルの模式図を図 2.1-1 に示す。

動電位法により得られた分極特性に基づき、特徴的な挙動を示した電位条件にて 24 時間 の定電位分極試験を行った。

硫化水素を含むガス吹き込み条件では自然電位、Ecorr付近(Ecorr+0.05 V)での定電位 分極試験も実施した。

定電位分極試験後の試験片については、代表的な条件について X 線回折により腐食生成物の分析を行った。

試験	温度	緩衝材	吹き込みガス	動電位分	定電位試験(V. vs.SSE)	
溶液	(°C)			極試験		
			100 %N <sub>2</sub>	0	-1.0, -0.8, -0.6, -0.2, 0, 0.2	
			$99 \ \%N_2 + 1 \ \%H_2S$	0	-1.0, -0.79, -0.4, -0.15	
人工	20	721	$95 \ \%N_2 + 5 \ \%H_2S$	0	-	
海水	80	80	なし	$90 \ \%N_2 + 10 \ \%H_2S$	0	-1.0, -0.82, -0.4, -0.15
			$50 \ \%N_2 + 50 \ \%H_2S$	0	-	
			100 %H <sub>2</sub> S	0	-1.0, -0.74, -0.4, -0.15	

表2.1-1 電気化学試験条件



図 2.1-1 試験セルの模式図

#### ④ 試験結果と考察

動電位アノード/カソード分極試験結果を図 2.1-2 に示す。窒素ガス(100 %N<sub>2</sub>)の場合に は、アノード分極曲線において複数のピークが観察されており、銅酸化物などの皮膜形成に よる電流値の減少に伴うピークのほか、皮膜の酸化(Cu(I)→Cu(II))に伴うピークの可能 性が考えられる。硫化水素を含む条件では、自然電位が窒素ガス(100 %N<sub>2</sub>)の場合に比べて 0.5~0.6 V卑な値を示し、アノード分極曲線では電流値の停滞する領域が見られた。この停 滞領域での電流値は硫化水素濃度が高いほど大きくなっており、硫化水素ガス濃度にほぼ比 例している。硫化物を含む系での純銅の電気化学挙動については既往の検討例があり、アノ ード分極により以下のような反応により Cu<sub>2</sub>S 皮膜が形成されると考えられる。

上記の反応では、銅表面での電気化学的な反応速度が十分大きい場合には硫化物の拡散が 律速すると考えられる。そこで、図 2.1-3 に示すような系を仮定して、硫化水素分圧に応じ た溶液中の硫化物濃度を推定し、銅表面の硫化物濃度をゼロと仮定して Nernst 拡散層を通 して供給される硫化物の定常状態におけるフラックスを、以下の式を用いて電流密度に換算 して求めた。

i=nF D (C<sub>1</sub>-C<sub>0</sub>)/ $\delta$  ······式2.1-1

i:電流密度, n: 価数(=2), D:硫化物の拡散係数, C<sub>1</sub>:溶液バルクの硫化物濃度, C<sub>0</sub>:銅表面の硫化物濃度(=0), δ:Nernst 拡散層厚さ(=0.05 cm)



図 2.1-2 純銅の動電位アノード/カソード分極測定結果



図 2.1-3 銅と硫化水素の反応の模式図

硫化物の拡散係数は 1.40x10<sup>-5</sup> cm<sup>2</sup> s<sup>-1</sup> (25℃) (Chen et al., 2011)、活性化エネルギーを 15.05 kJ mol<sup>-1</sup>(田島, 1986)として拡散係数の温度補正を行い、80 ℃での値を求めた。溶液 バルクの硫化物濃度は 80 ℃の 1 気圧の硫化水素ガスの溶解度(国立天文台編, 2019)の値 (水 1 cm<sup>3</sup>中に 0 ℃, 1 気圧での体積で 0.92 cm<sup>3</sup>)より算出し、ヘンリー則にしたがって硫化 水素分圧に比例すると仮定した。計算結果を表 2.1-2 に示す。得られた拡散限界電流は図 2.1-2 に示すアノード側での停滞電流の値に概ね整合した。よって、この停滞電流は硫化銅 生成反応における溶存硫化物の拡散限界電流に相当している可能性がある。

硫化水素濃度(%)	拡散限界電流 (μA cm <sup>-2</sup> )			
0	$5.7 \mathrm{x} 10^{1}$			
5	$2.9 \mathrm{x} 10^2$			
10	$5.7 x 10^{2}$			
50	$2.9x10^{3}$			
100	$5.7 \mathrm{x} 10^3$			

表 2.1-2 溶存硫化物の拡散限界電流の計算結果

カソード分極曲線については、窒素ガス(100 %N<sub>2</sub>)の場合には約-0.4~-0.8 V(vs. SSE) で電流値の停滞が認められた。あらかじめ十分脱気した溶液を用いているため、酸素還元反 応の拡散限界電流とは考えにくく、この電流の停滞の原因は明らかではないが、人工海水中 の硫酸イオンなどの成分の還元電流や銅試験片に大気中で生成した酸化皮膜の還元電流の可 能性などが考えられる。硫化水素を含む場合には硫化水素濃度100 %の条件で電流値が大き いものの、それ以外では類似の挙動を示した。高硫化水素濃度条件では通常の水環境におけ るプロトンまたは水の還元反応に加えて H<sub>2</sub>S がプロトンの供給源となり、カソード反応が促 進された可能性(石油公団石油開発技術センター, 1997)がある。

次に、各電位での腐食挙動をより詳細に把握するために行った定電位試験の結果として、 試験後試験片の外観を図 2.1-4 に、X 線回折結果の一例を図 2.1-5 に示す。図 2.1-4 中には X線回折により同定された腐食生成物も記した。X線回折では硫化水素を含む条件で硫化銅 Cu<sub>2</sub>S が同定された。窒素ガス(100 %N<sub>2</sub>)の場合には-0.8 V(vs. SSE)以下では溶解や腐食生 成物形成の様相は見られず、-0.6 V(vs. SSE)においても干渉模様の薄い皮膜が形成されて いたのみであった。-0.2 V(vs. SSE)以上では表面が溶解しており、部分的または全体的に 素地が露出していた。表面に付着していた腐食生成物として、Cu<sub>2</sub>0, CuCl といった Cu(I)の 酸化物、塩化物が同定された。ただし、-0.2 V(vs. SSE)以上では取り出し時に腐食生成物 が表面から容易に脱離して素地が露出しており、他の腐食生成物も生じていた可能性があ る。例えば、0.2 V (vs. SSE)では試験片周囲の樹脂に緑色の腐食生成物が付着しているこ とから、例えば塩基性塩化銅 (Cu<sub>2</sub>(0H)<sub>3</sub>Cl など)、塩基性炭酸銅 (Cu<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>(0H)<sub>2</sub>など)のよう な腐食生成物が生じていたことが示唆される。硫化水素を1%、10%含む条件では、電位が 低い-1.0 V(vs. SSE)の条件で銅表面にほとんど変化がなく、自然電位付近 (Ecorr+0.05 V) と-0.4 V(vs. SSE)の条件で灰色〜黒色の皮膜が形成されていた。これは X 線回折結果か ら硫化銅 Cu<sub>2</sub>S を含むと考えられる。-0.15 V(vs. SSE)でも黒色の皮膜が形成されていた が、一部脱離して金属素地が露出していた。この電位条件では図 2.1-2 のアノード分極曲線 において電流値が急激に立ち上がっており、金属の活性溶解が生じていたと推察される。

2-5

電位	H <sub>2</sub> S 濃度	電位	H <sub>2</sub> S 濃度		
(V. vs. SSE)	0%	(V. vs. SSE)	1%	10%	100%
-1.0		-1.0		Cu	Cu, Cu <sub>2</sub> S
-0.8		E <sub>corr</sub> +0.05V -0.79(1%) -0.82(10%) -0.74(100%)		Cu <sub>2</sub> S	Cu <sub>2</sub> S
-0.6	Cu	-0.4		Cu <sub>2</sub> S	Cu <sub>2</sub> S
-0.2	Cu, Cu <sub>2</sub> O	-0.15		Cu, Cu <sub>2</sub> S	Cu, Cu <sub>2</sub> S
0	Cu, CuCl				
0.2	Cu, Cu2O				

図 2.1-4 純銅の定電位試験後試験片の外観



図 2.1-5 X 線回折結果の一例(100 %H<sub>2</sub>S:-0.15 V)

#### 2) 硫化ナトリウム共存下の電気化学試験

### ① 試験片

純銅試験片の材料には、直径が 0.5 mm の純銅線(純度:99.99 %以上、無酸素銅)を使用した。エタノール洗浄で表面の油分を除去した後、試験容器との短絡を避けるため、長さ 7.5 cm の露出部(面積:1.2 cm<sup>2</sup>)を残して、他の表面をテフロン熱収縮チューブで被覆した。露出部はエメリー紙で 1000 番まで乾式研磨で仕上げてから、エタノール中で超音波洗浄し、送風乾燥した。

#### ②試験溶液

試験溶液には以下の2種類の水溶液を用い、硫化物の有無による分極特性の違いを調査した。

•3.5 % NaCl 水溶液

•3.5 % NaCl + 1 mM Na<sub>2</sub>S 水溶液

#### ③ 緩衝材

本試験は、緩衝材を模擬したベントナイト中および水溶液中で行い、上述の硫化水素の有 無に加えて緩衝材共存の影響についても調べた。ベントナイトの材料には、クニミネ工業製 のクニゲル V1 を使用し乾燥密度が 1.4 g cm<sup>-3</sup>あるいは 0.5 g cm<sup>-3</sup>となるように、試験片と ともに図 2.1-6 に示すように圧縮成型した。以下、このベントナイト(クニゲル V1)を"Bt" と表記する。このベントナイトはナトリウム型であるが、銅製処分容器の使用を想定し、腐 食により放出された銅イオンとの相互作用によってベントナイトが銅型化する可能性を考慮 して、銅型化ベントナイトを作成して試験に供した。銅型化ベントナイトの合成は、Kozai ら(Kozai et al., 2001)の FeCl<sub>2</sub>水溶液を使った鉄型化ベントナイトの調製法を参考に、CuCl<sub>2</sub> 水溶液を用いて行った。クニゲル V1 50 g に 500 mL の 0.5 M CuCl<sub>2</sub>水溶液を添加してよく撹 拌し、24時間静置した。次に、懸濁している粒子を沈殿させ、上澄み液を除去した。この操作を3回繰り返した。続いて、沈殿物中の塩化物イオンを取り除くために、純水で沈殿物を洗浄した。洗浄は、上澄み液中に0.5 M銀塩化銀水溶液を滴下し、白色の反応物の生成が確認されなくなるまで繰り返し行った。洗浄の完了後、沈殿物を回収し、真空中で乾燥してから乳鉢で粉砕して銅型化ベントナイトの試料を得た。以下、上記の手順で調整した銅型化ベントナイトを "Cu-Bt"と表記する。作成した銅型化ベントナイト試料については、X線回折により層間距離がクニゲルV1に比較して大きくなっていることを確認した。

これらのベントナイトのほか、層間構造を有するベントナイト以外の粘土鉱物としてハイ ドロタルサイトを用いた試験も実施した。ハイドロタルサイトは陰イオン交換性を有する粘 土鉱物であり、カチオン交換性を有するベントナイトとはイオン交換性が対照的である。ハ イドロタルサイトの試料には、和光純薬工業(株)製の粒状の試薬を使用した。以下、ハイド ロタルサイトを"Ht"と表記する。

#### ④ 試験方法

ベントナイト中の試験では、試験溶液中に試験カラムを1時間自然浸漬させたのち、試験 極の分極特性を測定した。分極測定は電位ステップ法で行った。卑な電位から貴側へ20 mV 間隔で電位を変化させた。各電位での保持時間は1分間とした。なお、試験カラムを、Ar ガスで脱気した試験溶液に減圧状態で約48時間浸漬してBt、Cu-Bt、Htに試験溶液を浸潤 させた後に測定を実施した。水溶液中の試験も浸漬時間や電位走査の手順は同様である。



図 2.1-6 分極測定に使用した試験カラムの模式図



Test column

図 2.1-7 緩衝材中の測定系の模式図

### ⑤ 試験結果

3.5% NaCl および 3.5% NaCl + 1mM Na<sub>2</sub>Sの単純溶液中での分極挙動を図 2.1-8に示す。 3.5% NaCl + 1 mM Na<sub>2</sub>S中の自然電位は、3.5% NaCl 中と比較し、0.6 V以上卑となっ た。また、3.5% NaCl + 1 mM Na<sub>2</sub>S 中では、アノード分極曲線において-0.3 Vまでの電位域 において、約 0.3 mA cm<sup>-2</sup>の電流密度の限界電流が生じている。これらの結果は 1)に示した 人工海水系での挙動と類似しており、限界電流に対応する腐食反応は、Cu<sub>2</sub>S 皮膜の生成反応 と推察される。また、いずれの水溶液中でのアノード分極曲線も 0 V 近傍でピーク値を示 し、3.5% NaCl 水溶液中では-0.2 V 近傍に変曲点も見られる。西方ら(1990)は、炭酸塩を 含む塩化物水溶液中での銅の溶解機構をチャネルフロー法で解析した結果、銀/塩化銀電極 基準で約-0.2 V よりも卑な電位域では銅は 1 価のイオンとして、貴な電位域では主に 2 価 イオンとして、それぞれ酸化されることを示しており、本試験においてのこの電位付近で価 数の変化が生じた可能性がある。



図 2.1-8 3.5 % NaCl および 3.5 % NaCl + 1 mM Na<sub>2</sub>S の水溶液中での銅電極の分極挙動

図 2.1-9 に Bt および Cu-Bt 中で測定した銅の分極曲線を示す。Bt 中での自然電位は、1 mM Na<sub>2</sub>S 添加によって数 10 mV 程度卑な値となったが、溶液単独系での Na<sub>2</sub>S 添加による変化 (0.6 V) に比較してはるかに小さい。また、3.5 % NaC1 + 1 mM Na<sub>2</sub>S の分極曲線におい て、自然電位から 60 mV 貴側へ分極された電位域に分極曲線の変曲が認められる。この変曲 が Cu<sub>2</sub>S 皮膜の生成反応によって生じたと仮定すると、変曲点の電流密度は、3.5 % NaC1 + 1 mM Na<sub>2</sub>S の溶液単独系で測定された限界電流密度 0.3 mA cm<sup>-2</sup>の 300 分の 1 である。よっ て、圧縮ベントナイトの存在により、硫化銅の生成反応速度が大きく低下し、Na<sub>2</sub>S 添加によ る影響が緩和されたと考えられる。

Cu-Btのアノード分極曲線は、0.2 Vよりも貴な高電位域を除くと、3.5 % NaCl および 3.5 % NaCl + 1 mM Na<sub>2</sub>S のいずれを浸潤した場合も、Bt の分極曲線と概ね一致している。 ただし、Bt 中に比較して自然電位が約 200 mV 以上貴な値となった。本実験では、2 価の銅 化合物を用いて Cu-Bt を作製したことから、2 価の銅の酸化力によって自然電位が Bt 中よ りも貴な値を示した可能性がある。しかし、自然状態では酸化還元性などに応じて 1 価と 2 価の銅イオンの溶出を想定する必要があるため、今後は、1 価の銅イオンでの銅型化ベント ナイト中での分極挙動を検討する必要があると考えられる。



図 2.1-9 3.5 % NaCl および 3.5 % NaCl + 1 mM Na<sub>2</sub>S を浸潤した圧縮ベントナイト(Bt)な らびに圧縮銅型化ベントナイト(Cu-Bt)中での銅電極の分極挙動

次に、3.5% NaCl および 3.5% NaCl + 1 mM Na<sub>2</sub>S を浸潤した、0.5 g cm<sup>-3</sup>の乾燥密度に圧 縮した Ht と Bt 中での銅の分極挙動を図 2.1-10 と図 2.1-11 に示す。また、図 2.1-11 には、 分極挙動への乾燥密度の影響を検討するため、図 2.1-9 に示した乾燥密度 1.4 g cm<sup>-3</sup>の Bt に 3.5% NaCl + 1 mM Na<sub>2</sub>S を浸潤した条件での結果を再掲した。Na<sub>2</sub>S を添加した溶液を用いた Ht 中(図 2.1-11)では Na<sub>2</sub>S を添加しない場合(図 2.1-10)に比較して自然電位が Bt 中よりも 大きく卑化しており、自然電位から-0.2 Vまでの電位域で限界電流も認められた(図 2.1-11)。 この電流の大きさは溶液単独の場合よりも小さいものの、Bt 中で観察された変曲点での電流 よりも大きい。これらが硫化銅の生成反応に対応するものと仮定すると、Bt と Ht では硫化 銅の生成反応の抑制の効果が異なっていると考えられ、イオン交換性を含め粘土鉱物として の特性の違いが作用している可能性がある。



図 2.1-10 3.5 % NaCl を浸潤した圧縮ベントナイト(Bt)および 圧縮ハイドロタルサイト(Ht)中での銅電極の分極挙動



図 2.1-11 3.5 % NaCl + 1 mM Na<sub>2</sub>S を浸潤した圧縮ベントナイト(Bt)および 圧縮ハイドロタルサイト(Ht)中での銅電極の分極挙動

3) 浸漬試験

### ① 試験片

純銅試験片には無酸素銅(JIS C1020)を用い、試験片表面はダイヤモンドペーストなどを用いて鏡面に仕上げた。試験片の寸法は 30×30×2 mm とした。

### 2 試験溶液

試験溶液には人工海水(ASTM D1141-98 準拠)を用い、所定の硫化水素濃度のガスを通気した。

#### ③ 緩衝材

本試験では、水溶液中での測定のほか、緩衝材中での測定も行った。緩衝材中での試験に 用いた試験カラムの模式図を図 2.1-12 に示す。緩衝材はベントナイト(70 mass%)に3号 ケイ砂(15 mass%)と5号ケイ砂(15 mass%)を混合したものとし、乾燥密度が1.6 g cm<sup>-3</sup> となるように圧縮成型した。

#### ④ 試験条件

試験条件を表 2.1-3 に示す。浸漬中の温度は 80 ℃とし、浸漬期間は 7 日間とした。1 条件あたりの試験片数は n=3 として同一条件でのデータのばらつきを確認した。



図 2.1-12 緩衝材中での試験カラムの模式図

試験溶液	温度 (℃)	浸漬期間	緩衝 材	吹き込みガス
人工海水	80	7日間	なし	$N_2$
				$99 \ \%N_2 + 1 \ \%H_2S$
				$95 \ \%N_2 + 5 \ \%H_2S$
				$90 \ \%N_2 + 10 \ \%H_2S$
				$50 \ \%N_2 + 50 \ \%H_2S$
				100 %H <sub>2</sub> S
			有り	$N_2$
				$99 \ \%N_2 + 1 \ \%H_2S$
				$95 \ \%N_2 + 5 \ \%H_2S$
				$90 \ \%N_2 + 10 \ \%H_2S$
				$50 \ \%N_2 + 50 \ \%H_2S$
				100 %H <sub>2</sub> S

#### 表2.1-3 浸漬試験条件

#### 試験結果と考察

試験後試験片の外観を図 2.1-13 に示す。緩衝材なしの場合には硫化水素を含まない条件 (N<sub>2</sub> ガス)では赤みを帯びた皮膜がわずかに形成されており、硫化水素を含む条件ではいず れも灰色または黒色の腐食生成物で覆われた状態であった。緩衝材ありの条件では硫化水素 濃度5 %以下では赤褐色~黒色の腐食生成物が生成しており、10 %では緑青色の腐食生成 物も見られた。50 %では一部赤褐色の部分も見られたが、灰色~黒色の腐食生成物が見られ、 100 %ではほぼ全面が黒色の腐食生成物で覆われていた。腐食生成物の X 線回折による分析 結果の一例を図 2.1-14 に示す。また、各条件で同定された腐食生成物を表 2.1-4 に示す。 緩衝材なしの条件では硫化水素濃度 1 %以下の場合、銅化合物は同定されなかったが、5 %以 上の条件で Cu<sub>2</sub>S(Chalcocite)が同定された。緩衝材ありの条件では 10 %以下の場合に酸化第 一銅(Cu<sub>2</sub>0)が、50 %以上では Cu<sub>2</sub>S(Chalcocite)が同定された。これらの結果から、硫化水 素を含む水溶液環境では銅は低酸素濃度下において硫化銅として腐食することが確認された。 緩衝材共存下では、試験期間が 7 日間と短期間であったため、十分に飽和せず、間隙に含ま れる残留酸素が比較的容易に銅表面に供給され、低濃度の硫化水素環境では酸化銅として腐 食した可能性がある。硫化水素濃度が 50 %以上では硫化銅としての腐食が卓越したと推察さ れる。

次に、重量法によって求めた平均腐食深さとその値を試験期間で除した値としての平均腐 食速度を表 2.1-5 に示す。また、硫化水素濃度と平均腐食速度の関係を図 2.1-15 に示す。 平均腐食速度は、溶液中では硫化水素濃度の増加とともに腐食速度も大きくなり、硫化水素 が銅の腐食を促進することが認められた。一方、緩衝材中では 100 %の条件で比較的大きな 腐食速度となったが、50 %までは濃度による影響は明瞭ではなかった。前述のとおり緩衝材 中では間隙中の残留酸素による腐食の寄与の可能性があり、50 %までは硫化水素濃度による 影響の寄与が小さかったと推察される。今後、より長期の試験により、腐食速度の経時変化 を確認するとともに、腐食生成物の性状と腐食挙動の関係などについて詳細に検討する必要 がある。
緩衝材	吹き込みガス	試験後外観
	N <sub>2</sub>	
	99%N <sub>2</sub> +1%H <sub>2</sub> S	
<i>t</i> > 1	$95\%N_2 + 5\%H_2S$	
74 U	90%N <sub>2</sub> +10%H <sub>2</sub> S	
	$50\%N_2 + 50\%H_2S$	
	$100\%H_2S$	0
	N <sub>2</sub>	
	$99\%N_2 + 1\%H_2S$	
有り	$95\%N_2 + 5\%H_2S$	
	$90\%N_2 + 10\%H_2S$	
	50%N <sub>2</sub> +50%H <sub>2</sub> S	
	100%H <sub>2</sub> S	

図 2.1-13 試験後試験片の外観



図 2.1-14 腐食生成物の X 線回折結果の例(左:緩衝材なし、右:緩衝材あり)

緩衝材	吹き込みガス	腐食生成物
	$N_2$	-
	$99\%N_2 + 1\%H_2S$	-
721	$95\%N_2 + 5\%H_2S$	$Cu_2S$ (Chalcocite)
なし	$90\%N_2 + 10\%H_2S$	$Cu_2S$ (Chalcocite)
	$50\%N_2 + 50\%H_2S$	$Cu_2S$ (Chalcocite)
	$100\% H_2S$	$Cu_2S$ (Chalcocite)
	$N_2$	$Cu_2O$
	$99\%N_2 + 1\%H_2S$	$Cu_2O$
ちり	$95\%N_2 + 5\%H_2S$	Ι
有り	$90\%N_2 + 10\%H_2S$	$Cu_2O$
	$50\%N_2 + 50\%H_2S$	$Cu_2S$ (Chalcocite)
	100%H <sub>2</sub> S	$Cu_2S$ (Chalcocite)

表 2.1-4 X線回折により同定された腐食生成物

緩衝材	吹き込みガス	平均腐食深さ (mm y <sup>-1</sup> )	平均腐食速度(mm y <sup>-1</sup> )
	$N_2$	4. $28 \times 10^{-5}$	2. $23 \times 10^{-3}$
		2. $74x10^{-5}$	$1.43 \mathrm{x} 10^{-3}$
		2. $91 \times 10^{-5}$	$1.52 \mathrm{x} 10^{-3}$
	$99\%N_2 + 1\%H_2S$	4. $31 \times 10^{-4}$	$2.25 \mathrm{x} 10^{-2}$
		$3.88 \mathrm{x} 10^{-4}$	$2.02 \mathrm{x} 10^{-2}$
		4. $92 \times 10^{-4}$	2. $57 \times 10^{-2}$
	$95\%N_2 + 5\%H_2S$	7. $79 \times 10^{-4}$	4. $06 \times 10^{-2}$
		7. $44 \times 10^{-4}$	$3.88 \mathrm{x} 10^{-2}$
721		7. $99 \times 10^{-4}$	4. $17 \text{x} 10^{-2}$
14 U	$90\%N_2 + 10\%H_2S$	$1.04 \mathrm{x} 10^{-3}$	5. $44 \times 10^{-2}$
		$1.01 \times 10^{-3}$	$5.28 \mathrm{x} 10^{-2}$
		$1.06 \mathrm{x} 10^{-3}$	5. $54 \text{x} 10^{-2}$
	$50\%N_2 + 50\%H_2S$	2. $24x10^{-3}$	$1.17 \mathrm{x} 10^{-1}$
		2. $20 \times 10^{-3}$	$1.15 \mathrm{x} 10^{-1}$
		$2.25 \mathrm{x} 10^{-3}$	$1.17 \mathrm{x} 10^{-1}$
	$100\% H_2S$	2. $12 \times 10^{-3}$	$1.10 \mathrm{x} 10^{-1}$
		2. $11 \times 10^{-3}$	$1.10 \mathrm{x} 10^{-1}$
		2. $20 \times 10^{-3}$	$1.15 \mathrm{x} 10^{-1}$
	$N_2$	2. $22 \times 10^{-3}$	$1.16 \mathrm{x} 10^{-1}$
		2. $32 \times 10^{-3}$	$1.21 \mathrm{x} 10^{-1}$
		$1.38 \mathrm{x} 10^{-3}$	7. $18 \times 10^{-2}$
	$99\%N_2 + 1\%H_2S$	$1.16 \mathrm{x} 10^{-3}$	6. $06 \times 10^{-2}$
		$1.19 \mathrm{x} 10^{-3}$	6. $23 \times 10^{-2}$
		$1.01 \mathrm{x} 10^{-3}$	$5.29 \mathrm{x} 10^{-2}$
	$95\%N_2 + 5\%H_2S$	4. $54 \times 10^{-4}$	2. $37 \times 10^{-2}$
		4. $20 \times 10^{-4}$	$2.19 \times 10^{-2}$
有り		$1.80 \mathrm{x} 10^{-4}$	9. $39 \times 10^{-3}$
11 >	$90\%N_2 + 10\%H_2S$	$1.56 \mathrm{x} 10^{-3}$	8. $15 \times 10^{-2}$
		4. $50 \times 10^{-3}$	$2.35 \mathrm{x} 10^{-1}$
		$5.80 \mathrm{x} 10^{-3}$	$3.03 \mathrm{x} 10^{-1}$
	$50\%N_2 + 50\%H_2S$	$3.96 \times 10^{-3}$	2. $07 \times 10^{-1}$
		2. $65 \times 10^{-3}$	$1.38 \mathrm{x} 10^{-1}$
		4. $28 \times 10^{-3}$	$2.23 \text{x} 10^{-1}$
	$100\%\mathrm{H_2S}$	7. $10 \times 10^{-3}$	3. $70 \times 10^{-1}$
		9. $40 \times 10^{-3}$	4. $90 \times 10^{-1}$
		6. $60 \times 10^{-3}$	$3.44 \mathrm{x} 10^{-1}$

表 2.1-5 重量法により得られた純銅の平均腐食深さと平均腐食速度



図 2.1-15 硫化水素濃度と平均腐食速度の関係

# (3) ベントナイト共存環境における純銅の応力腐食割れ挙動

銅はアンモニアの存在する環境にて応力腐食割れを生じる (Pugh et al., 1966; Uhlig and Dupette, 1969; Suzuki, 1981) ことが広く知られている。一般に応力腐食割れは、図 2.1-16 (a) に示すように、応力によりアノード溶解が局在化して進行する活性経路型腐食とともに、 銅などの酸化物皮膜の成長速度が速い金属では、図 2.1-16 (b) に示すように生成した酸化物 皮膜 (変色皮膜)が応力の作用で脆性破壊して下地銅が露出されると、更にその部位での酸化 物生成が優先されて酸化物が局部的に生成し、酸化物皮膜の割れと皮膜再生成との繰り返し によって亀裂として進展する変色被膜破壊型応力腐食割れが知られている。変色皮膜型応力 腐食割れでは数 nm の厚さの不働態皮膜よりはるかに厚いさび層を形成し、そのさび層の割 れが局在化の要因となっている。したがって、さびの成長挙動とその性質が変色皮膜型応力 腐食割れに関与する主要な要因となる。

処分容器の周囲は初期には酸素のある環境と考えられる。しかし、その酸素はベントナイ ト中の成分あるいは処分容器の腐食などによって消費されるとともに、地下水の浸潤に伴い ベントナイト中での酸素の移行は抑制されてくるため、いずれは、銅表面は低酸素濃度環境 になると考えられる。銅は前述のとおり一般的に酸素濃度の低い天然水環境では熱力学的な 安定性により腐食がほとんど進展しないという特徴を有するが、硫化物の共存下ではその性 質を失うことが知られている。緩衝材の主成分であるベントナイト中にはパイライト(硫化 鉄)が含まれ、低酸素濃度下での銅の腐食に寄与する可能性がある。したがって、低酸素濃 度下におけるベントナイト中での銅の変色皮膜破壊型応力腐食割れ挙動を検討する必要があ る。

そのため、低酸素濃度下(脱気環境)での純銅の皮膜形成過程および応力腐食割れ発生挙動を検討するとともに NH<sub>3</sub>の影響を調査した。





(b)変色皮膜破壊型 図 2.1-16 応力腐食割れの機構

# 1) 浸漬試験

腐食生成物皮膜の同定および成長速度を調査するため、後述 2)、3)の応力腐食割れ試験と 同じ試験環境(膨潤ベントナイト中)で浸漬試験を行った。

# ① 試験方法

純水

試験は図 2.1-17 に示す系で行った。試料は市販の厚さ 2 mm の純銅板 (99.99 %)を用いた。 この化学組成を表 2.1-6 に示す。この板材から 10×10 mm<sup>2</sup>試験片を放電加工により切り出し た。SiC 紙#1000 乾式研磨の後、試験片をベントナイト中へ埋設し、容器を密封した。この 容器を恒温庫にて所定の時間 50 ℃に保持した。試験期間は 7、30、60 日間の 3 種類とした。

試験に用いるベントナイトには以下の条件で水を混合した。

ベントナイト(クニミネ工業製クニゲル V1) 140 g

1200 g

脱気環境での試験では、上記の作業を真空排気可能なステンレス鋼製グローブボックス内 にて行った。

試験終了後、試験片を水洗い・乾燥後、銅表面の腐食生成物を同定するため、光学顕微 鏡・SEM 観察とともに、酸化物および硫化物の厚さを算出するため、既往の検討(原子力機構, 2017)に従って、脱気した 60 ℃の 0.1 mol 1<sup>-1</sup> NaCl 水溶液中にて動電位カソード還元法を行った。電位走査は自然電位からカソード方向へ-1500 mV まで、0.25 mV s<sup>-1</sup>の走査速度で 2 往復した。硫化物と酸化物の還元電流が現れる電位域が既知であるので、分極曲線に現れたそれぞれの成分の電流を積分して電気量を計算し、Cu<sub>2</sub>0、CuS の生成を仮定することで、生成した酸化物、硫化物の厚さをそれぞれ算出した。

表 2.1-7 に実験条件を示す。



図 2.1-17 浸漬試験の模式図

表 2.1-6 試料として用いた純銅板の化学組成

												(pp	m)	
Cu(%)	Ag	Pb	Sn	Fe	Ni	Bi	As	Sb	Se	Te	Zn	Р	Cd	0
≧99.99	9	≦1	≦1	3	≦1	0.2	≦1	≦1	$\leq 5$	$\leq 2$				

膨潤ベントナイト	温度	脱気	浸漬期間
			7 日
純水(140g)		あり	30 日
+ ベントナイト (1200g)	50°C		60 日
			7 日
		なし	30 日
			60 日

表 2.1-7 浸漬試験の実験条件

## 2 試験結果

図 2.1-18 に試験後の試験片の外観写真を示す。銅の腐食生成物の色は概ね Cu0(黒色)、 Cu<sub>2</sub>0(赤褐色)、CuS(青黒色)、Cu<sub>2</sub>S(銀色ないし鉄灰色)と分類できる。脱気なし試料では腐食 生成物の色調は褐色から黒色へと変化していることから、銅酸化の初期に生成する亜酸化銅 Cu<sub>2</sub>0 から時間の経過とともに Cu0 が主に生成していることがわかる。一方、脱気あり試料で は、全般的に腐食生成物の色調は薄く、初期の亜酸化銅 Cu<sub>2</sub>0 から硫化物(CuS ないしは Cu<sub>2</sub>S) 主体の皮膜が生成していると考えられる。



図 2.1-18 純水膨潤ベントナイト中での浸漬試験後の試験片外観

50 ℃のベントナイト中にさまざまな期間浸漬した試料の、繰り返し動電位カソード還元 法より得られた電気量より算出した硫化物皮膜厚さと酸化物皮膜の厚さを、脱気なし、およ び脱気あり環境について、図 2.1-19(a)、(b)にそれぞれ示す。図 2.1-19(b)に示した脱気あ り環境では、硫化物皮膜の厚さは約 1500 時間(約 2 ヶ月まで)浸漬時間に対して単調に増加 していることが分かる。一方、酸化物の量は硫化物と比べて明らかに少なく、また経時変化 は明確でない。また、脱気なしの場合(図 2.1-19(a))は、脱気ありの場合と比べ硫化物、酸 化物とも多いが、硫化物が単調に増加するとともに酸化物は浸漬時間とともに成長する様子 は見られないことについては同様の傾向を示している。なお、硫化物の生成速度は、脱気な しと脱気ありの場合にそれぞれ 1.8  $\mu$ m year<sup>-1</sup>、0.74  $\mu$ m year<sup>-1</sup>であった。



皮膜と酸化物皮膜の厚さ(a)脱気なし(b)脱気あり

### 2) Uベンド試験

低酸素分圧下でのベントナイト中の応力腐食割れ感受性を調査するため、既往の大気下での検討例(原子力機構,2018)と同様にUベンド試験(定ひずみ試験)を行った。

① 試験方法

試験は図 2.1-20 に示す試験系で行った。試料は前述 1)の浸漬試験と同じ純銅板(表 2.1-6)を使用した。この板材から図 2.1-21 に示す試験片を放電加工により切り出し、SiC 研磨 と 0.3 μmアルミナペーストを用いての鏡面仕上げの後に、定ひずみ維持のためのボルトを 締結し、さらにベントナイト中に埋設した容器を密閉した。脱気環境での試験では、ベント ナイトの調製を含むここまでの作業はグローブボックス内にて行った。この容器を恒温庫に て所定の時間 50 ℃に保持した。試験期間は 30、60、240 日間の 3 種類とした。試験条件を 表 2.1-8 に示す。

試験に用いるベントナイトの調製方法も前述 1)の浸漬試験と同様の方法で行った。



図 2.1-20 Uベンド試験模式図

膨潤ベントナイト	温度	脱気	期間
			30 日
純水(140g)		なし	60 日
+ ベントナイト (1200g)	50℃		240 日
			30 日
		あり	60 日

表 2.1-8 Uベンド試験の試験条件



図 2.1-21 Uベンド試験片の形状および曲げ時の形態と試験片領域

# 2 試験結果

試験後の試料外観写真を図 2.1-22 に示す。図 2.1-22 より、脱気なしでは酸化物皮膜に起因する黒色(Cu0)や褐色(Cu20)が主体として見られた。一方、脱気ありでは腐食生成物が少なく、硫化物皮膜に起因する青黒色(CuS)や鉄灰色(Cu2S)が主に観察された。



図 2.1-22 純水膨潤ベントナイト中での U ベンド試験片の試験後試料外観写真

次に、試験後試験片表面の SEM 像を図 2.1-23(a)、(b) にそれぞれ示す。

脱気なしでは、30日間および 60日間浸漬ともに、Cu0 と見られる析出物や Cu20 層が多く 確認された。腐食生成物が厚いため、腐食生成物の割れは確認できたが下地銅の割れについ ては確認できなかった。一方、脱気ありについては、Cu0 の析出物や Cu20 層は確認されず、 代わりに局部腐食が多く確認された。30日間浸漬では下地銅の割れ、あるいはすべりステッ プに沿った開口部がみられた。60日間浸漬については腐食生成物が厚くなっており、明確な 割れは確認できないが、すべりステップに沿った開口部を伴う局部溶解がみられる。すべり ステップに沿った局部腐食はそこに応力が集中し、割れに発展しやすいため、脱気ありの条 件でも応力腐食割れ感受性は高いと考えられる。したがって、U ベンド試験の静的応力の下 でも銅の応力腐食割れが生じることが確認された。ベントナイト中での応力腐食割れの生起 条件については、4)で考察する。



図 2.1-23 純水膨潤ベントナイト中での U ベンド試験片の試験後外観写真および SEM 像

#### 3) 低ひずみ速度試験

低溶存酸素濃度のベントナイト中での応力腐食割れ感受性を調査するため、上記のUベンド試験に加えてより高い感度で応力腐食割れ感受性を評価できると考えられる低ひずみ速度 試験(SSRT)を行った。また、応力腐食割れ感受性におよぼす NH<sub>3</sub>の影響も調査した。

## ① 試験方法

試料は前述 1)の浸漬試験と同じ純銅板(表 2.1-6)を使用した。この板材から図 2.1-24 に 示す試験片を放電加工により切り出し、表面は 0.3 μm アルミナペーストを用いて鏡面仕上 げとした。SSRT 用に作成した環境セル(図 2.1-25)内に、純水および 5 mM ないしは 10 mM NH<sub>3</sub> 水溶液を浸潤させたベントナイトを充填するとともに、試験片を固定した。この環境セルは 外部からの酸素の侵入を防止する密閉構造となっている。脱気環境での試験では、ベントナ イトの調製を含むここまでの作業はグローブボックス内にて行った。試験条件を表 2.1-9 に 示す。環境セルを 50 ℃に保ち、ひずみ速度を 1.67×10<sup>-7</sup> s<sup>-1</sup>とし、引張伸びが 10 %に達し た時点で試験を停止し、ただちに試料を取り出した。

純水を浸潤させたベントナイトの調製方法は前述 1)の浸漬試験と同様の方法で行った。 NH<sub>3</sub>水溶液を浸潤させたベントナイトの調製は、あらかじめアンモニア水を調製し、純水の 場合と同様に調製した。

A 2.1 J BU JOP KER WERKT					
ベントナイト	脱気	温度	ひずみ速度		
純水(140 g) +	あり				
ベントナイト(1200 g)	なし				
5 mM NH3水溶液(140 g) + ベントナイト(1200 g)	なし	50 ℃	1.7×10 <sup>-7</sup> s <sup>-1</sup>		
10 mM NH3水溶液(140 g) +	あり				
ベントナイト(1200 g)	なし				

表 2.1-9 低ひずみ速度試験の試験条件



図 2.1-24 SSRT 用平板引張試験片



図 2.1-25 SSRT に使用した環境セルの模式図

# 2 試験結果

SSRT 後の試験片外観を図 2.1-26 に示す。いずれも黒色(Cu0)ないしは鉄灰色(Cu<sub>2</sub>S)を呈し、特に脱気なしの場合に硫化物の特徴である青黒色(CuS)、鉄灰色(Cu<sub>2</sub>S)がみられた。



図 2.1-26 純水および NH<sub>3</sub>水溶液膨潤ベントナイト中での SSRT 後試験片外観写真

次に、SSRT 後の試験片の SEM 画像を図 2.1-27 に示す。脱気なしでは、試料表面に Cu0 と みられる粒状の腐食生成物が多数観察されたが、これらの腐食生成物の下には大小の SCC 亀 裂がみられた。また、NH<sub>3</sub>の添加によって割れの発生頻度は増大していた。

一方、脱気ありでは、割れの発生頻度は少なくなっているとともに、脱気なしの場合に見 られる亀裂上の粒状腐食生成物はほとんど見られなかった。さらに、脱気なしと同様に、 NH<sub>3</sub>の添加によって割れの発生頻度は増大するとともに、割れの形態も明確となっていた。



図 2.1-27 純水および NH<sub>3</sub>水溶液膨潤ベントナイト中での SSRT 後試験片 SEM 像

### 4) 考察

1)~3)の結果からベントナイト中でのCuの腐食生成物形成過程およびCuの応力腐食割れの生起条件について考察する。

ベントナイト中には硫化鉄(パイライト)が含まれており、HS<sup>-</sup>が存在する。このとき、銅は 例えば

$$2Cu + HS^- \rightarrow Cu_2S + H^+ + 2e^-$$

の反応に基づき、硫化物を生成する。

既往の検討例によると、溶存酸素があるベントナイト中では、Cu は初期に酸化物(Cu<sub>2</sub>0)を 生成し、次第に硫化物(Cu<sub>2</sub>S)主体の皮膜を生成するようになる(原子力機構, 2014a)。このと き、Cu に加工ひずみないしは残留引っ張り応力がある場合には多数の局部腐食を生じ、局部 腐食発生部位に CuO のマウンド状の腐食生成物が形成される(原子力機構, 2018)。また、 SSRT 試験のような動的なひずみが与えられると短時間で局部腐食を生じ、典型的な変色皮膜 破壊型応力腐食割れを観察している(原子力機構, 2017)。一方、U ベンド試験では大きな定 ひずみが与えられて局部腐食が多数発生するが、動的ひずみのときと比べて局部腐食の局在 化が生じにくく、必ずしも変色皮膜型応力腐食割れを生じないことが示されている(原子力 機構, 2017; 2018)。

本試験での、脱気ありの場合には、局部腐食の発生が少ないものの、亀裂の発生が確認さ れた。一般に、応力腐食割れは腐食の局在化とその成長のバランスによって発生・成長する ことが知られている。大きなひずみが加わると銅の局部腐食が多数発生するが、腐食速度が 大きくなると腐食の局在化が生じにくくなり、厚い腐食生成物を生じても割れ発生には至ら ない場合もある。脱気がある場合には、局部腐食の成長は抑制されるが、多数発生する局部 腐食のうち少数に成長が集中し、結果として局在化が生じて応力腐食割れを発生した可能性 が考えられる。

NH<sub>3</sub>の有無は、大気下で行った先行事業(原子力機構, 2018)では、応力のない平板試験片 については局部腐食の発生挙動に特に影響しなかった。一方、本試験での脱気ありの条件で の SSRT 試験では NH<sub>3</sub> は変色皮膜型応力腐食割れの発生頻度を増大させた。その理由について は明らかではないため、今後、NH<sub>3</sub> 共存下での溶存酸素濃度による腐食生成物の性状や割れ 発生への影響とそのメカニズムなどを明らかにする必要がある。

## (4) 他の候補材料を対象とした腐食試験

ベントナイト中の炭素鋼の腐食反応は、初期過程では酸素との反応で、その後、水との反応に移行すると想定される。酸素との反応では、ベントナイト中の酸素の拡散過程により腐 食が律速される場合には鋼種による腐食速度の違いは現れないものと思われるが、水との反応に移行すると、水の還元反応は電荷移動律速となるため、鋼種により腐食速度の違いが現 れる可能性がある。すなわち、添加する合金元素によっては腐食を抑制できる可能性があ る。そこで、本試験では、SiおよびNiを少量含有する低合金鋼を用い、ベントナイト中で の電気化学インピーダンス法による腐食モニタリングを行い、還元性雰囲気での炭素鋼の腐 食に及ぼす合金元素の影響について検討した。 1) 試験方法

腐食モニタリングには、エポキシ樹脂に埋め込んだ2電極式セル(電極サイズ:10 mm× 5 mm×2 mm)を用いた(図2.1-28)。試験片はFe(炭素鋼)、Fe-1.5 %Ni、Fe-2.2 %Ni、Fe-1.4 %Si、Fe-2.8 %Siの5鋼種とした。これらの試験片により腐食モニタリング用の2電極式セルを作 製した。

密閉型セルの模式図を図 2.1-28 に示す。プローブ電極上に間隔 5 mm のすき間を形成する ようにアクリル板を固定し、そのすき間にベントナイト混合物(ベントナイト(70 wt%)と SiO<sub>2</sub>(30 wt%)の混合物に超純水を加えたもの)を充填した。ベントナイト中に存在する酸素を できるだけ早く腐食反応により消費させるため(なるべく早く酸素との反応から水との反応 に移行させるため)、密閉型の小型セルを使用した。

ベントナイト混合物は、ベントナイト(SiO<sub>2</sub>を含む)と水の混合比をベントナイト 10 g に 対して超純水を 50 mL とした。今後、ベントナイト(SiO<sub>2</sub>を含む)および超純水を混合したベ ントナイト混合物を単にベントナイトと呼ぶ。

腐食モニタリングは電気化学インピーダンス計測により行った。インピーダンス測定条件 は、交流振幅 10 mV、周波数範囲は 10 kHz~1 mHz とした。試験条件を表 2.1-10 に示す。



図 2.1-28 ベントナイト中での腐食モニタリング用セルの模式図と試験条件

試験片	ベントナイト	温度	インピーダンス 測定
炭素鋼	ベントナイト		
Fe-1.4Si	(70wt%)		☆法垢梔 10mⅤ
Fe-2.8Si	+	安沮	又加派幅 1000
Fe-1.5Ni	$SiO_2(30wt\%)$	<u>= 1</u>	□ 10kHz~1mHz
Fe-2.2Ni	+ 超純水		TORNZ TIMIZ

表 2.1-10 腐食モニタリング試験の試験条件

## 2) 試験結果と考察

ベントナイト中での炭素鋼の電気化学インピーダンス特性(Bode 線図)を図 2.1-29 に示す。 浸漬初期の低周波数領域から中間周波数領域のインピーダンスは大きく変化しているが、時 間とともに変化しているわけではなかった。一方、8 日以降では全周波数領域で時間的な変 化は小さかった。電気二重層容量に関係する中間周波数領域のインピーダンスはほぼ一定値 を示しているので、炭素鋼とベントナイトの界面に存在している腐食生成物量はほとんど変 化していないと考えられる。最終的に低周波数でのインピーダンスは10<sup>5</sup> Ω cm<sup>2</sup>程度となり、 先行事業(原子力機構, 2018)での報告の水との反応の電荷移動抵抗と同程度であった。



図 2.1-29 炭素鋼の電気化学インピーダンスの経時変化

図 2.1-30 には Fe-1.4 %Si の Bode 線図を示す。浸漬初期の低周波数領域でのインピーダン スは時間とともに増加した(図 2.1-30(a))。これは、時間とともに腐食速度が減少すること を意味しているが、腐食速度は炭素鋼と比較して大きな値となっていた。一方、中間周波数 領域のインピーダンスは時間とともに減少する傾向が見られた。これは、腐食生成物が時間 とともに増加することを意味しており、炭素鋼に比べてより多くの腐食生成物が生じている ことを示唆している。また、8 日以降は低周波数領域に拡散に関わるインピーダンス(図 2.1-30 矢印)が現れており、先行事業(原子力機構,2018)で報告されてきたインピーダンス特 性とは異なっている。

図 2.1-31 には Fe-2.8 %Si の Bode 線図を示す。Fe-1.4 %Si と同様の挙動を示しているが、 拡散に関わるインピーダンスは現れなかった。そのため、Fe-1.4 %Si で拡散に関わるインピ ーダンスが出現したのは、Si を添加したことが原因ではないと考えられる。

以上から、Fe-1.4 %Si がこれまでに観察されたものと異なるインピーダンス特性を示しているのは、試験セルに酸素が侵入するなどにより腐食が不均一に進行している可能性がある。



図 2.1-30 Fe-1.4 %Si 合金の電気化学インピーダンスの経時変化



図 2.1-31 Fe-2.8 %Si 合金の電気化学インピーダンスの経時変化

Fe-1.5 %Ni のインピーダンス特性を図 2.1-32 に示す。炭素鋼や Fe-Si 合金と比較して全 周波数領域でインピーダンスの値は大きく、腐食試験開始後 1 日で、低周波数 1 mHz のイン ピーダンスは 10<sup>6</sup>  $\Omega$  cm<sup>2</sup>以上の値をとった。これは炭素鋼および Fe-Si 合金で測定された定 常値より 1 桁以上大きな値であるが、時間とともに小さくなり、炭素鋼の値に近づく傾向に ある。図 2.1-33 に Fe-2.2 %Ni の結果を示す。基本的には、Fe-1.5 Ni と同様な挙動であ り、低周波数のインピーダンス絶対値は 10<sup>6</sup>  $\Omega$  cm<sup>2</sup>以上であった。



図 2.1-32 Fe-1.5 %Ni 合金の電気化学インピーダンスの経時変化



図 2.1-33 Fe-2.2 %Ni 合金の電気化学インピーダンスの経時変化

以上の図 2.1-29~図 2.1-33 から、炭素鋼および低合金鋼のインピーダンス特性はほぼ同様な挙動をとり、図 2.1-34(a)で示す電荷移動抵抗 R<sub>ct</sub> と電気二重層容量 C<sub>d1</sub>の並列回路にベントナイトの抵抗(溶液抵抗)R<sub>so1</sub> が直列結合した最も単純な等価回路により表されることがわかった。ただし、Fe-1.4 %Si だけが、8日以降に拡散のインピーダンスが現れたことから、図 2.1-34(b)の拡散のワールブルグインピーダンス W<sub>s</sub>を含む等価回路をとる。

次に、得られたインピーダンスデータに等価回路をフィッティングし、電荷移動抵抗  $R_{et}$ を決定した。電荷移動抵抗の逆数  $1/R_{et}$  は腐食速度の指標となる値であり、Stern-Geary の 式を用いておおよその腐食速度を計算できる。以下の腐食速度の値は、Stern-Geary の式の 係数 k を 20 mV と仮定して計算した値である。フィッティングの際には電気二重層容量のコ ンデンサーの理想挙動からのずれを補正する Constant Phase Element (CPE) を  $C_{d1}$  の代わり に用いた。



 $R_{sol}$ ; Solution resistance ( $\Omega$ cm<sup>2</sup>)  $R_{ct}$ ; Charge transfer resistance ( $\Omega$ cm<sup>2</sup>)  $C_{dl}$ ; Double layer capacitance (F cm<sup>-2</sup>) Ws; Finite Warburg impedance (Ws-R, Ws-P) CPE; Constant Phase element (CPE-T, CPE-P)

(a) 拡散のインピーダンスを含まない回路 (b) 拡散のインピーダンスを含む回路 図 2.1-34 ベントナイト中での炭素鋼の等価回路

フィッティングで得られた電荷移動抵抗 R<sub>ct</sub> の逆数を時間に対してプロットした結果を図 2.1-35 に示す。ただし、1.5 %Ni および 2.2 %Ni については、図 2.1-34 の等価回路によるフ ィッテングが難しいため、周波数が 1 mHz のときのインピーダンスの値の逆数をプロットし た。また、図 2.1-36 に、全ての材料の 1 mHz におけるインピーダンスの逆数のプロットを 示す。図 2.1-35 と図 2.1-36 とを比較すると、炭素鋼よりも Si 添加合金の値は大きく、Ni 添加合金の値は小さいという傾向は同じであったため、腐食速度の大小の比較や変化の傾向 の把握に 1mHz におけるインピーダンスの逆数を使用できると考えられる。

腐食速度の指標である 1/R<sub>ct</sub> は、試験初期に減少するが、その後定常状態に達する。本試 験での炭素鋼の結果を、これまでに実施した炭素鋼の腐食モニタリング(原子力機構, 2018) と比べると、5 日後の腐食速度は同様な値であるが、本試験の腐食開始初期には 10<sup>-6</sup> Ω cm<sup>2</sup> 以下(腐食速度 < 0.2  $\mu$ m 年<sup>-1</sup>)の値をとった後、5日の時点で急激に腐食速度が1桁以上増加するという明らかに異常な挙動が見られた。腐食開始初期のような挙動については、今後その原因を明らかにする必要がある。ただし、5日以降はこれまでの試験と同様な値をとることから、定常状態での結果は一致している。Fe-Si 合金の腐食速度は炭素鋼に比べ大きな値(約8~3  $\mu$ m 年<sup>-1</sup>)を示した。一方、Fe-Ni 合金については、炭素鋼に比べ著しく小さな腐食速度を示した。

以上のことから、Fe-Si 合金と Fe-Ni 合金の 1/R<sub>et</sub> は炭素鋼と異なる値を示すこと、Ni の 添加は腐食を抑制する可能性があることがわかった。また、Fe-Si 合金で拡散に関するイン ピーダンスが現れたことや、炭素鋼の 1/R<sub>et</sub> が急激に変化するなど、モニタリング結果に一 部異常な挙動が観察されている。そのため、今後は酸素の混入の可能性など試験系に起因す る影響などをより厳密に制御し、腐食速度の違いを明らかにする必要がある。



図 2.1-35 電荷移動抵抗 R<sub>et</sub>の逆数の経時変化 (1.5 %Ni, 2.2 %Ni は 1 mHz におけるインピーダンスの逆数をプロット)



図 2.1-36 周波数 1 mHz でのインピーダンスの逆数(1/Z<sub>1mHz</sub>)の経時変化

## 2.2 使用済燃料処分での処分後臨界安全評価

### (1) 本項目の背景と目的

使用済燃料を直接処分する場合、相当量の核分裂性のウランおよびプルトニウムが含まれ ることから、わが国において、従来、地層処分の対象廃棄物として調査・研究が進められて きたガラス固化体や超ウラン元素を含む TRU 廃棄物の場合とは異なり、処分場への廃棄体の 導入によって再臨界が起こる可能性を無視出来ない。処分場において臨界が起こると、多重 バリアシステムに期待される安全機能の劣化・喪失や、周辺岩盤における地下水流動および 放射性核種の移行挙動が変化して安全評価の不確実性が増大するなどの影響が生じる可能性 が考えられることから、このような可能性を最小限に抑えるために、処分場の地下施設にお いて長期間に渡って未臨界状態が維持されることを処分施設の設計要件に反映することが不 可欠である。

地上施設の臨界安全管理では、設計において臨界安全性を担保すると共に、製作、施工に おいて設計条件が満たされていることを確認し、さらに運転において設計通り臨界安全を維 持できるように管理することが必要とされている(日本原子力研究所,1999)。このような 臨界安全管理では、燃料やその周辺の材料が把握出来ているとともに幾何形状や組成などが 想定以上に変化しないことが前提とされている。これに対して、処分場閉鎖後の地下の処分 システムでは、処分容器や使用済燃料の構造材料などの腐食の進展、強度低下による破損、 さらには燃料の溶解・沈殿などによって、処分場閉鎖後の長期的な時間スケールでこれらの 形状や組成などが埋戻し直後の状態から変化していくと考えられ、これらを考慮した上で、 長期的な管理に依らずに、廃棄体埋戻し以降の長期間に渡って臨界安全性が担保できるよう に処分システムを設計することが必要である。

「直接処分第1次取りまとめ」や先行事業における直接処分の臨界安全評価(原子力機構, 2015a;2015b;2016a)では、人工バリアシステムを対象とする臨界安全性について安全側 の評価を行うことを目的として、地下水が処分容器内部に浸入して腐食が進展し、処分容器 内部の構造が破損して、容器に収納されている複数の燃料集合体が1つの領域に集まって大 きな燃料領域を形成すると仮定した、極めて保守的な(臨界になりやすい)想定に基づく臨 界解析モデルでの評価が行われている。また、燃料領域の周囲には、鉄の反射体が配置され ることにより、中性子が系外に漏れる確率が低く抑えられるとし、また、燃料領域において は、燃料棒の形状が維持され、実効増倍率が最も高い値となるように配列されている。この 評価における解析モデルの概念を図2.2-1に示す。



このような体系で解析を行うと、実効増倍率が未臨界判定基準値を下回るための設計要件 として、1体の処分容器へ収納できる燃料集合体の体数を大幅に減らす必要が生じるとされ ている(例えば、原子力機構(2016a))。そのため、前述のような極めて保守的な想定以外の 想定が考えられるか、またその場合に収容体数がどう変わるかを検討していくことで、今後 の臨界安全と、処分容器の設計の合理化に向けた検討の材料を整えておくことが重要である と考えられる。一方で、臨界安全性の評価においては、未臨界性の確保に対する確実性が強 く求められることから、不確実性を有するこのような長期的な時間スケールでの状態の変化 のモデルへの取り込みにおいては、極めて保守的な想定以外の想定でモデル化を進めること の是非や、考慮すべき状態変化の種類などについて慎重に検討を進めることが必要である。

このとき、極めて保守的な想定に基づく臨界解析モデルで想定された燃料と燃料以外の材料の状態の変化は、材料の腐食や燃料の溶解などの化学的な挙動、あるいは強度を失うことによるそれらの崩落などの力学的な挙動に関する研究分野の知見を踏まえて、処分場閉鎖後の長期的な時間スケールにおいて現実に起こりうるものとして想定されたわけではないことから、このような分野の知見も参照しつつ、実際に起こりうる状態の変化の範囲を把握し、

その範囲においてどのようなモデルによる評価が考えられるかを提示できるようにしておく ことが重要になると考えられる。

そこで、本項では、燃料と燃料以外の材料の長期的な状態変遷の臨界安全性への影響に関 する予備的検討として、人工バリアシステムを対象とする臨界安全評価に関する諸外国の事 例調査を行い、処分容器の腐食進展や、破壊などによる燃料集合体の状態の変化などの、臨 界安全評価における扱いや、これらの影響の有無・程度などに関する知見を抽出して整理し た。また、今後の本検討においての燃料と燃料以外の材料の状態変化の影響を把握するため の感度解析の実施に向けて、わが国の直接処分の人工バリアシステムで使用される材料の長 期挙動に関する知見を整備するために、上記に示した諸外国の検討事例の調査では抽出され なかったものも含めて、長期的時間スケールにおける状態の変化のうち臨界安全性への影響 が考えられるものを抽出し、これらを対象とする感度解析での留意点を整理した。これらの 検討の成果を「(2)処分後の臨界安全評価の海外事例の文献調査」と「(3)処分容器の状態等 の変化による影響を把握するための感度解析で必要な情報の整備」にそれぞれ示す。また、 本項のまとめを「2.3 まとめ」に示す。

#### (2)処分後の臨界安全評価の海外事例の文献調査

#### 1) 諸外国の臨界安全評価の概要

人工バリアシステムの臨界安全性に関する検討事例として、わが国で検討されている人工 バリアシステムと構造や使用されている材料などの類似性が高いスウェーデン、フィンラン ド、スイス、英国を中心に調査を実施し、燃料および処分容器の処分場閉鎖直後からの配置 や組成の変化が、人工バリアシステムを対象とする臨界安全評価に及ぼす影響に関する情報 を抽出して整理した。調査対象とした国名および文献を表 2.2-1 に、調査結果の概要を表 2.2-2 にそれぞれ示す。

国名	文献
スウェーデン	Agrenius (2010), Agrenius and Spahiu(2016)
フィンランド	Antilla (2005), STUK(2015)
スイス	Herrero et al.(2017)
英国	Hicks et al.(2014)

表 2.2-1 調査対象とした文献

表 2.2-1 に示した 4 か国のうち、スウェーデンおよび英国においては、燃料中に含まれる 核種の生成・崩壊による組成変化の影響について、燃焼度クレジットの概念(燃料の燃焼に 伴う反応度の低下を考慮すること(例えば、日本原子力研究所, 2001))を導入して、これ らの影響を考慮した評価が行われている(Agrenius, 2010; Agrenius and Spahiu, 2016; Hicks et al., 2014)。また、燃料の配置の変化による影響については、長期溶解の影響など が評価されている(Agrenius and Spahiu, 2016; Hicks et al., 2014)。処分容器や燃料集合 体の構造材料などの配置の変化による影響については、燃料被覆管と処分容器の腐食・崩落 などによる状態の変化に着目して、複数のパターンを想定した臨界モデルによる評価が行われている (Agrenius and Spahiu, 2016; Hicks et al., 2014)。スウェーデンおよび英国の事 例の内容の詳細については次項 2)で述べる。

フィンランドおよびスイスでは、燃料中に含まれる核種の生成・崩壊による組成変化の影響については、スウェーデンおよび英国と同様に、燃焼度クレジットの概念を導入して、これらの影響を考慮した評価が行われていることを示す記述が見られる(Antilla, 2005; Herrero et al., 2017)。他方、燃料、処分容器および燃料集合体の構造材料などの配置の変化による影響については、今後の検討が重要であるとの記述があり(STUK, 2015; Herrero et al., 2017)、少なくとも当該文献が執筆された時点では、このような影響評価 に関する具体的な情報は公開されていないと考えられる。

次項2)では、スウェーデンと英国における、燃料集合体や処分容器の腐食進展・破壊など による状態の変化などの情報の臨界安全評価における扱いや、これらの影響の有無・程度な どに関する知見に関する調査結果を示す。

項目	スウェーデン	フィンランド	スイス	英国
燃料(核 種)の配置 と時間変遷	<ul> <li>・核種の生成・崩壊による反応度の時間依存性について、燃焼度クレジットを導入した評価を実施。</li> <li>・燃料の配置の変化について、長期溶解と再沈殿を考慮した評価を実施。</li> </ul>	<ul> <li>・核種の生成・崩壊による 反応度の時間依存性について、燃焼度クレジットを導入した評価を実施。</li> <li>・燃料中の核種の配置の変化による影響については、今後検討を進める予定(2015年時点の情報)。</li> </ul>	<ul> <li>・核種の生成・崩壊による 反応度の時間依存性について、燃焼度クレジットを導入した評価を実施。</li> <li>・燃料中の核種の配置の変化による影響については、今後検討を進める予定(2017年時点の情報)。</li> </ul>	<ul> <li>・核種の生成・崩壊による反応度の時間依存性について、燃焼度クレジットを導入した評価を実施。</li> <li>・燃料の配置の変化について、溶解後に地下水と均質に混合する単純化したモデルで評価を実施。</li> </ul>
燃料以外の 材料 <sup>**</sup> の配置 と時間変遷	燃料被覆管と処分容器の腐 食・崩落等による状態の変 化について、複数のパター ンを想定したケーススタデ ィを実施。	処分容器、燃料集合体の構 造材料等の配置の変化によ る影響については、今後検 討を進める予定(2015年時 点の情報)。	処分容器、燃料集合体の構 造材料等の配置の変化によ る影響については、今後検 討を進める予定(2017年 時点の情報)。	燃料被覆管と処分容器の劣化に よる状態の変化について、地下 水と均質に混合する単純化した モデルで評価を実施。

# 表 2.2-2 諸外国の臨界安全評価の概要

※燃料集合体の構造材料(被覆管など)と処分容器および緩衝材などの人工バリア材料を想定。

# 2) 処分容器の腐食の進展等による材料配置の変化による影響に関する知見の抽出

### <u>スウェーデン</u>

スウェーデンの臨界解析で対象とされた、PWR 使用済燃料集合体 4 体の収容を想定した処 分容器の断面構造を図 2.2-2 に示す。スウェーデンでは、燃料と燃料以外の材料の配置の初 期(処分場閉鎖直後)の状態からの時間変遷が臨界安全性にもたらす影響を把握することを 目的として、主に以下に示す点に着目して SCALE コードシステムの KENO を用いた臨界解析 が行われている (Agrenius and Spahiu, 2016)。

- 処分容器や使用済燃料の構造材料の腐食の進展(腐食生成物の体積膨張や母材の減肉 など)による材料配置の変化による影響
- ② 上記の腐食生成物の種類や含水比などの違いによる影響
- ③ 強度を失った腐食生成物が崩落して材料配置が大きく変化することによる影響
- ④ 燃料の長期溶解と処分容器内部での再沈殿による配置の変化による影響

まず、処分容器の材料の状態の変化については、主に、鋳鉄および炭素鋼の腐食に伴う初 期状態からの材料配置の変化による影響に着目した評価が行われている。

上記①については、主たる鉄腐食生成物としてマグネタイト(Fe<sub>3</sub>0<sub>4</sub>)を想定して、これが 使用済燃料の収納スペースに膨張する可能性に着目し、膨張の進展・収容スペースの変形に 伴う反応度の変化による影響を解析的に評価している。その結果、収容スペースの内壁から 1 cm程度の厚さの炭素鋼あるいは鋳鉄が腐食して、収容スペース内側に向けて鉄腐食生成物 が膨張して 2 cm程度の厚さになることにより、使用済燃料の周囲の水が鉄腐食生成物で置き 換わるとした状況で実効増倍率は最大となり、さらに、腐食膨張が進展して使用済燃料内部 までマグネタイトが進入すると実効増倍率が低下する結果となっている(ただし、BWR の場 合では、チャンネルボックスによって、それ以上内側に腐食生成物が浸入することが妨げら れるものと想定されており、腐食生成物がチャンネルボックス外壁に接したところで実効増 倍率は最大となる)。

上記②については、①の検討の結果、最も実効増倍率が高くなる上記の材料配置を対象と して、マグネタイトへの他の腐食生成物(シデライト(FeCO<sub>3</sub>)など)の混入率をパラメー タとした感度解析が行われている。その結果、炭素原子を含むシデライトの混入量の増加と 共に反応度が高くなるなどの結果が報告されている。さらに、腐食により生成した水素が処 分容器内部の地下水に溶存する影響についても評価が行われており、水素を含むことにより 反応度が若干増加することが報告されている。

上記③についても、①の検討の結果、最も実効増倍率が高くなる上記の材料配置を対象と して、燃料集合体周辺に膨張した 2 cm程度の厚さの腐食生成物が崩落して処分容器底部で堆 積することを想定した評価が行われており(竪置きを想定)、反応度を減少させると報告し ている。なお、本節冒頭の図 2.2-1 で示した極めて保守的な想定に基づくモデルにおいても、 処分容器の鉄の腐食が進展して内部構造が破損する状態を想定しているが、スウェーデンの 事例では、上記で示したように大部分の鋳鉄が崩落せずに残っている状態を想定しているた め、図 2.2-1 のモデルとは材料配置が異なる。

次に、使用済燃料の構造材料の状態の変化については、主に、燃料被覆管を構成するジル カロイについて、処分容器に生じる状態の変化と同様に、腐食に伴う初期状態(処分場閉鎖 直後)からの材料配置の変化による影響に着目した評価が行われている。上記①については、 燃料被覆管が腐食して腐食生成物の体積膨張が起こると、燃料棒周辺の地下水が腐食生成物 に置き換わることで、反応度が低下すると報告されている。上記②については単一の腐食生 成物のみが対象とされ、組成の違いなどの影響は検討されていない。上記③については、被 覆管の腐食が進展した結果、強度を失って、燃料被覆管が燃料集合体収容スペースの下部に 堆積する可能性についても評価が行われており(堅置きを想定)、この場合には、離散した 燃料ペレットも崩落して下部に堆積して、実効増倍率が減少すると報告されている。

最後に、燃料の状態の変化については、上記④に関する検討が行われており、長期的な時 間スケールで燃料が地下水に溶解し、その後に、処分容器の燃料集合体収容スペースの内壁 に生成した鉄腐食生成物の表面において沈殿することが想定され、このような状態の変化に より反応度が増加することが報告されている。ただし、燃料に含まれる核種ごとに溶解・沈 殿挙動が異なる可能性については考慮されていない。

本事例では、上記に示した、燃料と燃料以外の材料の配置が初期状態から変化することに よる実効増倍率の増加量のうち影響の大きなものを足すことにより、これらが同時に生じる 場合の臨界安全性への影響が評価されている。この結果は、処分後に未臨界が維持されるた めに必要な燃焼度の数 MWd kgU<sup>-1</sup>程度の上昇に相当するとされている。なお、上記に示した、 燃料と燃料以外の材料の状態の変化による影響評価のための臨界解析では、燃料の溶解・沈 殿を想定した解析でのみ燃焼度クレジット(アクチニドのみを考慮)を導入した評価が行わ れているものの、それ以外の解析においては燃焼度クレジットを導入せず、未照射燃料を対 象とした評価が行われている。



(PWR 使用済燃料の例)

英国

英国の臨界解析で対象とされた、PWR 使用済燃料集合体 4 体の収容を想定した処分容器の 断面構造を図 2.2-3 に示す。英国では、近年、処分後の未臨界性の維持の確認を目的として、 臨界に影響する事象についての FEP 分析に基づき、使用済燃料と処分容器の劣化による状態 の変化を抽出し、以下の二種類の材料配置を想定したモデルを構築して MCNP コードによる 臨界解析が行われている (Hicks et al., 2014)。このモデルの概念を図 2.2-4 に示す。

- ① 使用済燃料および処分容器の劣化が進展して崩落し、処分容器底部で均質に混合して 堆積すると共に、その上部には地下水が存在する材料配置。上部の液層部分にウラン およびプルトニウムが含まれる。
- ② 処分容器内部に残留している材料とウランおよびプルトニウムが地下水と均質に混合 する材料配置。

なお、いずれのモデルに対しても、燃料が地下水に溶解した後に容器外部へ放出する挙動 が計算され、これによる反応度の時間変化が評価されている。燃焼度クレジットの対象核種 としてはアクチニドのみが考慮されている。

上記の二種類の材料配置を想定した臨界計算の結果、②の配置を想定する場合では、①の 配置に比べて実効増倍率が高い値となることが示されている。また、①と②では、材料の容 器外部への放出に伴う反応度の変化の挙動が異なることが示されている。いずれの配置にお いても、実効増倍率の最大値は 0.5 程度で、未臨界状態が維持される結果となっている。な お、このように、燃料と燃料以外の材料が地下水と均質混合する体系でモデル化することに ついては、実効増倍率を過小評価することがあるとされており(日本原子力研究所, 1999)、 安全側の評価ではない可能性があると考えられる。



軸方向断面図

### 径方向断面図

図 2.2-3 英国の臨界解析で対象とされた処分容器の構造(PWR 使用済燃料の例)



図 2.2-4 材料の腐食等による配置の変化を考慮した英国の臨界モデルの概念 (左:材料の堆積物と水の分離を想定、右:材料と水の均質混合を想定)

### (3) 処分容器の状態等の変化による影響を把握するための感度解析で必要な情報の整備

(1)で示したように、不確実性の大きい長期的な時間スケールでの燃料と燃料以外の材料 の状態の変化による影響を、臨界安全性の評価モデルに取り込むことについては、慎重に検 討を進めることが求められることから、これらの影響を考慮したモデル化に着手する前に、 燃料と燃料以外の材料において想定される個別の状態の変化が臨界安全性にどのような影響 を及ぼす可能性があるかなどに関する情報を、感度解析などを通して把握し、知見を蓄積し ていくことが重要と考えられる。

そこで、本項では、今後の感度解析で必要な情報として、解析で扱う状態変化の候補を既 往の状態変化に関する知見の調査などにより抽出した。具体的には、使用済燃料および処分 容器の状態変化の影響が評価されている英国とスウェーデンの事例のうち、個別の状態の変 化が臨界安全性に及ぼす影響に関する解析的検討が行われているスウェーデンの事例

(Agrenius and Spahiu, 2016)を参考に、この事例から抽出された状態の変化に加えて、 わが国における各種材料の長期挙動評価に関する現象論的な研究で得られた知見から臨界安 全性への影響の有無や程度の把握が重要となる可能性がある状態の変化を抽出した。さらに、 これらの状態の変化を対象として感度解析を行う場合のパラメータの候補を抽出した。なお、 燃料の状態の変化については、地下水への溶解・沈殿および処分容器外部への移行などによ って核種毎の分布状態が時間変化することを考慮する必要があると考えられるが、これらを 検討するための情報や知見が不足していること、また燃料中の材料の変化の想定に応じて 様々に変わり得ることから、今回の検討では対象外とした。

## 1) 感度解析の候補となる状態変化の抽出

感度解析で扱う状態変化の候補の整理結果を表 2.2-3 に示す。地上の核燃料施設において 臨界安全評価の条件として検討が必要とされる項目(日本原子力研究所,1999)や、(2)で 調査したスウェーデンの事例を参考に、着目すべき燃料以外の材料の状態の変化を表す項目 として「組成」、「密度」、「形状・寸法」、「材料成分の分布状態」の4項目を設定した。また、 人工バリアシステムの構成要素として、燃料被覆管、処分容器および緩衝材を対象として、 これらと上記の4項目を縦軸と横軸に配置したマトリクスに、上記のスウェーデンの事例で 対象とされた状態の変化を整理した。なお、英国の事例については、前項(2)で示したよう に、燃料および燃料以外の材料が地下水と均質混合する体系をモデル化して解析を行ってお り、スウェーデンの事例のような個別の状態の変化に関する検討は行われていないので、対 象とはしなかった。

(2)で示したように、スウェーデンの事例においては、主に燃料被覆管(ジルカロイ)と 処分容器(鋳鉄、炭素鋼、銅から構成される複合材料)の状態の変化を対象としているが、 緩衝材の状態の変化および処分容器と緩衝材の相互作用による状態の変化とその影響につい ては検討されていない。そこで、ガラス固化体の処分システムを対象とする性能評価(核種 移行)への影響の観点から整理された、緩衝材や埋め戻し材に対して重要とされる現象、ま た、これら材料と処分容器との相互作用で重要とされる現象の整理結果(原子力機構, 2016b)から、上記の4項目の観点からも影響があると考えられる状態の変化を抽出して、 上記のマトリクスに追加した。また、燃料被覆管に使用されるジルコニウム合金には、軽水 炉での運転中に水素吸収による水素化物への変化とそれによる脆性破壊の可能性が指摘され ており(例えば、永井(1969)、Northwood and Kobayashi(1982))、処分後においても、鉄の 腐食に伴い水素ガスが発生すると、このような状態の変化を考慮に入れる必要が生じる可能 性があると考えられる。このような状態の変化も上記のマトリクスに追加した。

なお、外側に耐食性の銅を用いた処分容器では、数万年に渡って内部への地下水の浸入が 妨げられることで臨界になりやすい状態となることを防ぐとともに、核分裂性核種の変換が 十分に進むまでの時間をかせぐことで、臨界に影響する可能性も考えられるが、臨界を抑制 することになり安全側の想定になると考えられることから、本検討では考慮しなかった。

	組成の変化	密度の変化	形状・寸法の変化	材料成分の分布状態の変化	
燃料袖覆管	・燃料被覆管の腐食の進展 ウム)の成長	・腐食生成物(酸化ジルコニ	・腐食による減肉・腐食の進展・腐食生成物	燃料被覆管の酸化物や水素	
(ジルカロイ)	・処分容器および燃料被覆 た水素の吸収による水素化	膏の腐食の進展により発生し 物への変化	(酸化ジルコニウム)の体 積膨張	化物への変化・強度劣化に よる燃料棒の分解・崩落	
処分容器 (炭素鋼、鋳鉄 等の鉄材料)	材料の腐食の進展・鉄腐食 た水素の地下水への溶解	生成物の成長、腐食で生成し	<ul> <li>・腐食による減肉</li> <li>・腐食の進展・燃料集合体収納スペースへの鉄腐食生成物の体積膨張</li> </ul>	腐食の進展・強度劣化によ る処分容器の崩落	
寺の政内科)			緩衝材側への鉄腐食生成物 の体積膨張		
緩衝材 (ベントナイト とケイ砂の混合 材料)	処分容器の腐食で発生す る水酸化物イオンとの反 応による緩衝材の溶解お よび鉄イオンとの反応に よる鉄ケイ酸塩鉱物等の 二次鉱物の沈殿	<ul> <li>・処分容器の腐食膨張等による圧密</li> <li>・地下水による緩衝材浸食</li> </ul>	処分容器の腐食膨張等で圧 密されることによる厚さの 減少	<ul> <li>腐食の進展に伴い放出される鉄イオンの緩衝材への拡散</li> <li>処分容器の腐食の進展・強度劣化による崩落の後に、緩衝材が膨潤して内部のスペースを充填</li> </ul>	

表 2.2-3 感度解析で扱う状態変化の候補の整理結果

・グレー:スウェーデンの文献 (Agrenius and Spahiu, 2016)から抽出された状態の変化。

・白:各種材料の長期挙動評価に関する現象論的な研究の知見(原子力機構,2016b等)から臨界安全性への影響が考えられるものとして 抽出された状態の変化。

2 - 48

#### 2) 感度解析で候補となるパラメータの抽出

1)で抽出された材料の状態の変化を対象とする場合に、解析で候補となるパラメータを抽 出した。この結果を表 2.2-4 に示す。

燃料被覆管の劣化による影響については、スウェーデンの事例で検討されていない、水素 吸収による影響に着目した感度解析が特に重要となる可能性がある。水素脆化によって被覆 管が崩落すると燃料棒の構造が維持できなくなり、燃料ペレットも崩落して燃料集合体にお ける良好な減速状態の配列が失われると、反応度は低下すると考えられる。しかしながら、 水素は、良好な中性子減速材として作用し得ることから、崩落せずに燃料棒の形状が維持さ れる場合には、被覆管の水素吸収による影響は重要となり得る。この場合では、被覆管への 水素吸収量をパラメータとして解析を行うことが有効となる可能性がある。

処分容器の劣化による影響については、スウェーデンの事例では、(2)で記述したように 使用済燃料の収納スペースの内壁から使用済燃料までの隙間が腐食生成物の成長によって減 少することに伴って反応度が増加する結果を得ている。また、鋳鉄や炭素鋼中のC原子やSi 原子の含有量が高いほど反応度が高くなる結果を得ている(Agrenius, 2010)。この理由と して、Fe原子とこれらの原子で、中性子吸収断面積や散乱断面積などの核的特性が異なるこ とが考えられる。このような観点から、表2.2-4に示すパラメータの候補のうち、特に、腐 食生成物の体積膨張率や組成などをパラメータとして解析を行い、スウェーデンの事例に対 して情報を拡充していくことが重要である。

緩衝材の状態の変化による影響については、地下水で飽和した緩衝材は水と同程度の減速 能を持つことがわかっており、崩落した燃料ペレットが処分容器底部に堆積する場合でも、 その後に緩衝材が処分容器内部に向けて膨潤して空隙を充填する場合では、良好な減速状態 を維持する可能性が否定できない。また、緩衝材と周辺岩盤では核的特性が大きく変わるこ とは無いと考えられ、腐食の進展に伴い、形状、配置が大きく変化し得る鉄材料と比べて、 これらはほぼ無制限に反射体として機能し得る可能性がある。このような点から、緩衝材の 状態の変化による影響を把握するための解析を行うことは重要性が高いと考えられる。

対象とする緩衝材の状態の変化については、特に、処分容器の鉄との相互作用などに伴う 状態の変化によって、緩衝材の中性子の減速能や反射体効果が受ける影響の有無や程度を把 握するための解析が重要となる可能性がある。鉄との相互作用については、腐食により生成 した鉄イオンのうち、鉄腐食生成物(マグネタイト、シデライト、水酸化鉄など)として消 費されるものと、緩衝材中を拡散によって移動してバーチェリンなどの変質鉱物として消費 されるものなどが想定され(例えば、原子力機構(2016b)、笹本ほか(2012)など)、その発生 の割合は、これらの鉱物の沈殿速度や溶液組成の違いによって影響を受けることから、その ような相互作用による鉄の分布状態やその時間変化には不確実性があるとされる。また、鉄 の腐食生成物の体積膨張を想定する場合には、緩衝材が圧密されることによって密度の上昇 と厚さの低下をもたらす可能性がある。このような観点から、鉄と緩衝材の相互作用の現象 理解に関する知見を参考としつつ、表2.2-4に示すような、緩衝材における状態を表すパラ メータを対象として、鉄の分布状態として想定される複数のパターンに対応した緩衝材の中 性子の減速能や反射体効果の変化を想定した解析を行うことが有効となる可能性がある。

	状態変化の項目	状態の変化	パラメータの候補
	組成・密度	腐食の進展	<ul><li>・ 複数の腐食生成物の混合率</li><li>・ 腐食生成物への水の混合率</li></ul>
		水素化物への変化	水素化物への水素吸収量
燃 料 被 ��答	武小	腐食による減肉	減肉割合
1友日	形状・寸伝	腐食生成物の体積膨張	体積膨張率
	材料成分の分布状 態	強度劣化による燃料被覆管 の崩落	崩落する材料の量
	組成・密度	腐食の進展	<ul> <li>・ 複数の腐食生成物の混合率</li> <li>・ 腐食生成物への水の混合率</li> </ul>
		地下水への水素溶解	水素含有量
処分容	武平,十许	腐食による減肉	減肉割合
奋	形状・寸伝	腐食生成物の体積膨張	体積膨張率
	材料成分の分布状 態	強度劣化による処分容器の 崩落	崩落する材料の量
WI AT ++	組成・密度	緩衝材の変質 (溶解・二次鉱物の沈殿)	<ul> <li>・ 複数の鉱物の混合率</li> <li>・ 変質が生じる範囲</li> </ul>
		圧密	緩衝材の密度
破倒的	形状・寸法	圧密による厚さの減少	緩衝材の厚さ
	材料成分の分布状	鉄イオンの分布の変化	鉄イオンの広がりの範囲(密度分布)
	態	緩衝材の膨潤	緩衝材の厚さ、形状

表 2.2-4 感度解析のパラメータの候補

・グレー:スウェーデンの文献 (Agrenius and Spahiu, 2016) で対象とされた状態の変化と、対応する 感度解析のパラメータの候補

・白:各種材料の長期挙動評価に関する現象論的な研究の知見(原子力機構, 2016b 等)から抽出された 状態の変化と、対応する感度解析のパラメータの候補

上記に示したような状態変化による影響を把握するための感度解析においては、スウェー デンの事例と同様に、核種組成の評価誤差などの影響を含めずに、状態の変化による影響の みを把握する観点から、燃焼度クレジットを導入せずに未照射燃料を対象とすることが有効 と考えられる。また、このような感度解析を行うための臨界計算コードとデータライブラリ としては、(2)で調査対象とした諸外国で利用実績のある、MCNP コードと SCALE コードおよ び ENDF ライブラリや、原子力機構で開発され、わが国における地層処分を対象とする臨界 解析において実績のある MVP コード (Y. Nagaya et al., 2005) および JENDL (奥村・長家, 2011) を利用することが考えられる。

#### 3) 感度解析における留意点

今後、極端に保守的な想定以外の想定とすることで収容体数がどのようになるかを検討す ることを目的として、上記で示した材料の状態の変化およびパラメータなどを対象として、 燃料や燃料以外の材料において想定される個別の状態の変化が臨界安全性に及ぼす影響に関 して、例えば、以下に示すような知見を蓄積していくことが重要であると考えられる。

- ・どのような想定がどのようなメカニズムで臨界に影響を及ぼすか。
- ・臨界に影響する複数の事象の組合せは重要となる可能性があるか。
- ある想定が他の想定による影響の発現の前提となるか。
・反応度に対して逆方向に影響し、そのトータルのバランスによって臨界に対する影響の方向性が決まるような注意すべき組合せがあるか。さらに、想定の組合せに何らかの関係性があり、それらが共鳴するように影響しあって、反応度が上昇(または低下)するような注意すべき組合せがあるか。

# 2.3 まとめ

純銅処分容器の我が国の地質環境への適用の検討については、純銅の処分容器としての適 用条件や長寿命を達成可能な環境条件の評価に資するため、硫化物環境での腐食挙動など個 別の現象や個々の影響因子に着目して、硫化物濃度をパラメータとした純銅の腐食試験を行 い、電気化学的特性や腐食速度におよぼす硫化物共存や硫化物濃度の影響に関する腐食デー タを取得した。また、ベントナイト共存下での応力腐食割れ感受性を調査し、応力条件や地 下水成分の影響を把握した。銅以外の候補材料についても、炭素鋼およびより高い耐食性を 示す可能性のある低合金鋼を対象とした緩衝材中での腐食モニタリング試験を行い、合金成 分による腐食速度への影響などを把握した。

使用済燃料の処分後の臨界安全評価技術の高度化については、燃料および処分容器の配置 について過度に保守的とならない臨界安全評価技術の構築に資するため、海外事例の文献調 査などを行い、より現実的な材料配置の影響を加味して臨界現象をモデル化するうえで重要 となると考えられる現象や状態に関する知見の収集、整理などを実施した。また、この結果 を踏まえ、処分容器の状態などの変化による臨界安全性への影響を把握するための感度解析 で必要な情報の整備を行った。今後は、使用済燃料や処分容器に対して想定される挙動や再 配置などが臨界安全性に及ぼす影響の有無や程度について、諸外国の事例では検討されてい ない緩衝材の状態の変化による影響なども含めて、個々の状態の変化が臨界安全性に及ぼす 影響に関する感度解析などを行うと共に、これらの情報の分析などを通じて、臨界安全評価 技術の高度化で鍵となる挙動や配置及びその評価方法などを提案することが必要と考えられ る。 【参考文献】

- Chen, J., Qin, Z. and Shoesmith, D.W. (2011): Long-term corrosion of copper in a dilute anaerobic sulfide solution, Electrochemica Acta, Vol. 56, pp. 7854-7861.
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2014a): 平成25年度地層処分の安全審査に向けた 評価手法等の整備(安全審査に向けた評価手法の整備)報告書.
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2014b): 平成 25 年度地層処分技術調査等事業使用 済燃料直接処分技術開発 報告書.
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2015a): わが国における使用済燃料の地層処分シ ステムに関する概括的評価-直接処分第1次取りまとめ-, JAEA-Research 2015-016.
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2015b): 平成 26 年度地層処分技術調査等事業 使 用済燃料直接処分技術開発 報告書.
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2016a): 平成 27 年度地層処分技術調査等事業 直接処分等代替処分技術開発 報告書.
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2016b): 平成 27 年度地層処分技術調査等事業 処 分システム評価確証技術開発 報告書.
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2017): 平成 28 年度地層処分技術調査等事業 直接 処分等代替処分技術開発 報告書.
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2018): 平成 29 年度高レベル放射性廃棄物等の地 層処分に関する技術開発事業 直接処分等代替処分技術開発 報告書.
- J.J. Herrero, A. Vasiliev, M. Pecchia, D. Rochman, H. Ferroukhi, L. Johnson & S. Caruso (2017): Criticality safety assessment for geological disposal of spent fuel using PSI BUCSS-R methodology, Nagra Arebeitsbericht NAB 17-23.
- 国立天文台編 (2019): 理科年表, 丸善.
- Kozai, N., Adachi, Y., Kawamura, S., Inada, K., Kozaki, T., Sato, S., Ohashi, H., Ohnuki, T., Banba, T. (2001): Characterization of Fe-montmorillonite: A Simulant of Buffer Materials Accommodating Overpack Corrosion Product, Journal of Nuclear Science and Technology, 38, pp.1141-1143.
- Lennart Agrenius (2010) : Criticality safety calculations of disposal canisters, SKB Public Report 1193244.
- Lennart Agrenius, Kastriot Spahiu (2016): Criticality effects of long-term changes in material compositions and geometry in disposal canisters, SKB, TR-16-06.
- Markku Anttila (2005): Criticality Safety Calculations for Three Types of Final Disposal Canisters, Posiva, Working Report 2005-13.
- 永井 信行 (1969): II. ジルコニウム合金の水素吸収, 防蝕技術, 18 巻, 11-12 号, p. 496-502.
- 日本原子力研究所(1999): 臨界安全ハンドブック第2版, JAERI-1340.
- 日本原子力研究所(2001): 燃焼度クレジット導入ガイド原案, JAERI-Tech 2001-055.
- 西方 篤, 板垣 昌幸, 水流 徹, 春山 志郎, 藤井 栄一郎(1990):炭酸塩及び塩化物溶液中に おける銅のアノード溶解機構-アルカリ性溶液中における溶解機構-, 防食技術, 39, 10.

- Northwood, D. O., Kobayashi, U. (1982): Corrosion and hydriding behavior of Zr-2.5 Wt. Pct Nb alloy nuclear reactor pressure tubing, Journal of Materials for Energy Systems, Volume 4, Issue 1, pp 3-15.
- 奥村啓介,長家康展 (2011): JENDL-4.0 に基づく連続エネルギーモンテカルロコード MVP 用 の中性子断面積ライブラリーの作成と ICSBEP ハンドブックの臨界性ベンチマーク解析 への適用, JAEA-Data/Code 2011-010.
- Pugh, E. N., Montague, W.G., Westwood, A.R.C. (1966): Stress-corrosion cracking of copper, Corrosion Science, Vol. 6, pp. 345-347.
- 笹本広, James Wilson, 佐藤努 (2012): 鉄との相互作用による緩衝材への変質影響評価:
   影響要因に関する解析的検討, 原子力バックエンド研究, Vol. 20 No. 2.

石油公団石油開発技術センター(1997): 石油開発における腐食と耐食材料.

STUK (2015) : Review report post-closure safety case.

- Suzuki, Y. (1981): Stress Corrosion Cracking of pure Copper in Dilute Ammonical Solutions, Corrosion Science, 9, pp.353-368.
- 田島栄(1986): 電気化学通論第3版, 共立出版.
- T.W. Hicks, T.D. Baldwin and J.M. Solano, D.G. Bennett (2014): The Likelihood of Criticality Following Disposal of SF/HLW/HEU/Pu, AMEC Report Reference 7293-TR-022.
- Uhlig, H.H., Duqette, D.J. (1969): Alleged stress-corrosion cracking of pure Cu, Corrosion Science, 9, pp.557-560.
- Y. Nagaya, K. Okumura, T, Mori, M. Nakagawa (2005): "MVP/GMVP II : General Purpose Monte Carlo Codes for Neutron and Photon Transport Calculations based on Continuous Energy and Multigroup Methods", JAERI 1348, 388p.

# 第3章

使用済燃料、緩衝材の挙動評価

# 3 章詳細目次

3. 使用済燃料、緩衝材の挙動評価・・・・・	3-1
3.1 使用済燃料集合体からの核種溶解挙動評価・・・・・・・・・・・・・・・・	3-1
(1) 本項目の背景と目的・・・・・・ 3	3-1
1) 背景と先行研究の成果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-1
2) 使用済燃料マトリクスの溶解速度に及ぼす炭酸成分の影響・・・・・・・・・:	3-4
3)わが国の使用済燃料からの核種放出挙動に関する調査・・・・・・・・・・・	3-6
(2) 燃料溶解速度に及ぼす炭酸影響評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・:	3-6
1) はじめに・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-6
2)二酸化ウランペレットの調製・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-6
① UO <sub>2</sub> ペレットの調製・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-6
② 調製結果・・・・・・:::::::::::::::::::::::::::::::	3-8
3) UO <sub>2</sub> ペレットの浸漬実験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-9
① 実験手順・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-9
② 試験結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-10
4) UO2溶解速度の算出と既往文献値との比較	3-12
(3) U02溶解度に及ぼす酸化還元電位および炭酸影響評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-13
1) はじめに・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-13
2) 実験方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-13
3) 結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-14
(4) 使用済燃料からの核種放出挙動に関する調査・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-16
1) はじめに・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-16
2) 瞬時放出率・核分裂生成ガス放出率に関する調査・・・・・・・・・・・・・・	3-16
<ol> <li>         ① 核分裂生成物の生成・移動と分類・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・</li></ol>	3-16
<ol> <li></li></ol>	3-18
<ol> <li>         ③ 炉内で揮発性となる核種の放出・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・</li></ol>	3-21
④ セレン 79(Se-79)の瞬時放出 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-25
⑤ 炭素 14(C-14)の瞬時放出 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-26
⑥ モリブデンおよびテクネチウムの瞬時放出率・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-28
⑦ 高燃焼度燃料のリム領域からの核種の瞬時放出・・・・・・・・・・・・	3-30
3)燃料溶解速度・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-32
3.2 緩衝材の長期挙動評価・・・・・	3-35
<ol> <li>本項目の背景と目的・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・</li></ol>	3-35
1) 調査対象・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-35
2) 調査手法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-36
3)本年度の調査内容・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-37
(2) 硫化水素イオン共存下での銅試験片と圧縮ベントナイトとの接触試験	
(カラム変質試験)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-37

1	) 試験手順および条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-37
2	) 試験結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-39
(3)	銅粉を用いたバッチ系でのベントナイト変質試験・・・・・・・・・・・3	3-41
1	) 試験手順および条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-41
2	) 試験結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-41
3.3	まとめ・・・・・・3	3-42
参考	考文献・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-44

#### 3. 使用済燃料、緩衝材の挙動評価

#### 3.1 使用済燃料集合体からの核種溶解挙動評価

# (1) 本項目の背景と目的

#### 1) 背景と先行研究の成果

直接処分システムの安全性を評価する上で、ガラス固化体の地層処分と大きく異なる特徴 のひとつとして、処分容器による閉じ込め機能が喪失した場合に放射性核種が使用済燃料か ら地下環境へ放出される際の挙動が挙げられる。具体的には、放出される放射性核種の種類、 放出量、放出時期、放出速度、化学形態などである。なお、以下ではこれらを評価することを 総称して「ソースターム評価」と呼ぶ。

使用済燃料中の核種分布および核種放出の概念を図 3.1-1 に示す。燃焼・照射によって燃料中に生じる超ウラン元素、核分裂生成物などの多様な放射性核種の一部は、二酸化ウラン (U02)の結晶粒界に逼在化し、さらに、燃料ペレット内部に生じるガス気泡やひび割れなど の気相を介して、燃料と被覆管とのギャップ(隙間)にまで移行する。これらは、燃料と地下 水が接触した場合に比較的速やかに放出される(瞬時放出)と考えられている。瞬時放出率 に関する核種放出現象については、燃料ペレット片等の浸漬試験から、炉内燃焼時にガス状 もしくは液状となる状態変化、および U02 格子内の欠陥の体積拡散により移行し、移行途中で の化合物の物理化学的特性と温度、酸素ポテンシャル、蒸気圧等の変化によって U02 と固溶体 を生成する元素、酸化物もしくは金属析出物として析出する元素、もしくはガス状のまま燃 料ペレット内から放出され、燃料棒内のギャップ、プレナム部等のすき間に堆積する元素な ど様々なものがある。一方、その他の核種は、燃料マトリクス中に分散して存在し、燃料マ トリクスが地下水へ長期にわたってゆっくりと溶解することと調和的に放出される(長期溶 解)と考えられている。加えて、ジルカロイ被覆管の放射化で生成する核種(主に C-14)は、 酸化膜中に存在する場合は比較的速やかに放出され(瞬時放出)、母材中に存在する場合は 日材の腐食溶解にともなって比較的緩慢に放出される(長期溶解)と考えられている。

瞬時放出の程度を示すパラメータは、使用済燃料中の核種毎の総インベントリのうち瞬時 放出されるインベントリの割合が用いられ、気体として放出されるものは核分裂生成ガス放 出率(FGR)、地下水等に溶出するものは瞬時放出率(IRF)で表される。FGRで評価される核 種はクリプトン(Kr)およびキセノン(Xe)の同位体であるが、これらの核種の半減期は短く その他の核種はIRF 成分となる。また、長期溶解の程度を示すパラメータは、UO<sub>2</sub>ペレットあ るいはジルカロイ被覆管が溶解や腐食によって消失するまでの年数の逆数である溶解速度が 用いられる。

わが国における直接処分を対象としたソースターム評価の事例としては、使用済燃料の地 層処分システムに関する概括的評価第1次取りまとめ(原子力機構,2015a)(以下、「直接処 分第1次取りまとめ」という)において安全評価を試行した際の設定が最初である。当時はス イスで検討されたソースタームパラメータをそのまま採用しており、各々のパラメータの設 定値および設定根拠などについての詳細な検討は行われなかった。このことから、先行研究 (原子力機構,2015b;2016;2017;2018)において、直接処分を検討している諸外国におけ るソースターム評価の考え方や、それらの根拠となっている文献情報(試験データ)を調査・ 整理するとともに、最近行われた、あるいは現在も進行中のソースターム評価に関する試験 研究の成果なども参考として、わが国の直接処分に適したソースタームパラメータの更新を 試みた。



図 3.1-1 使用済燃料中の核種分布および核種放出の概念

先行研究で設定した瞬時放出および長期溶解のパラメータ(原子力機構,2018)を、それ ぞれ表3.1-1 および表3.1-2 に示す。これらは、直接処分第1次取りまとめで想定した使用 済燃料(加圧水型軽水炉(PWR);燃焼度45 GWd t<sup>-1</sup>U)に対する値として設定されている。あ わせて、瞬時放出および長期溶解の評価に係る主な不確実性因子を表3.1-3 に示すとおり整 理した。

表 3.1-3 に示した不確実性を踏まえ、後述するように、「使用済燃料マトリクスの溶解速 度に及ぼす炭酸成分の影響」と「わが国の使用済燃料からの核種放出挙動に関する調査」の2 点を特に重要な課題と考えた。

技 孫		設定値 [%]		
1次 1里		推奨値	最大値	
核分裂生成ガス放出率	മ (FGR)	2.0	7.0	
	<sup>14</sup> C	10.0	14.0	
	<sup>36</sup> C1	6.0 <sup>*1</sup>	24.0 <sup>*1</sup>	
	<sup>79</sup> Se	1.0	7.0	
	<sup>129</sup> I	2.0 *1	10.0 $^{*1}$	
使用済燃料の IRF	<sup>135</sup> Cs <sup>137</sup> Cs	$1.2^{*1}$	7.0 *1	
	<sup>90</sup> Sr	1.0	4.0	
	<sup>96</sup> Tc	1.0	5.0	
	<sup>107</sup> Pd	1.0	5.0	
	<sup>126</sup> Sn	0.1	7.0	
構造材金属の IRF	<sup>14</sup> C	20	40	

# 表 3.1-1 先行研究における国内向け瞬時放出率(IRF)の設定値

(原子力機構, 2018)

\*1FGRとの相関関係から算出。

# 表 3.1-2 先行研究における国内向け長期溶解速度の設定値

(原子力機構, 2018)

部位	長期溶解速度 [y-1]
燃料マトリクス	10 <sup>-7</sup>
構造材金属	10 <sup>-4</sup> (ジルカロイ、SUS、インコネルなど全金属)

# 表 3.1-3 瞬時放出および長期溶解の評価に係る主な不確実性因子

# (原子力機構, 2018)

不確実性田子	影響を受けるパラメータ			
个唯美性因于	瞬時放出	長期溶解		
処分対象燃料の多様性(炉型,設計仕様,燃焼度など)	0	0		
核分裂生成ガス放出率(FGR)の導出手法	$\bigcirc$			
核種放出割合を実測する試験方法の妥当性	$\bigcirc$	$\bigcirc$		
リム組織生成の寄与	$\bigcirc$			
使用済燃料特性の経時変化(放射線影響を含む)	$\bigcirc$			
構造材金属からのC-14の放出挙動、C-14の化学形態	$\bigcirc$	$\bigcirc$		
燃料ペレットの比表面積		$\bigcirc$		
地質環境条件(炭酸濃度など)の多様性		$\bigcirc$		
地質環境条件の経時変化(放射線影響を含む)		$\bigcirc$		

#### 2) 使用済燃料マトリクスの溶解速度に及ぼす炭酸成分の影響

直接処分第1次取りまとめにおいて設定した評価ケースにおいて、緩衝材を通過した地下水(緩衝材間隙水)の成分には17 mM (M: mol dm<sup>-3</sup>)の無機炭素濃度が含まれている。これは、欧米諸国の設定値が1 mM 程度であるのに比べると、1 桁以上高い値である。無機炭素濃度の成分としては、炭酸成分(H<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>(aq), HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>および CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>)もしくは溶存メタン(CH<sub>4</sub>(aq))が考えられる。直接処分のような還元環境では、ウランの酸化状態は4価であると考えられることが多いものの、水溶液中の全炭酸濃度(H<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>(aq), HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>および CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>の各濃度の合計)が高くなると6価の炭酸錯体(UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>4-</sup>等)が生成する可能性が指摘されている(Kitamura et al., 2010)。水溶液中の炭酸濃度が高くなると、このようなウラン(VI)炭酸錯体の生成が促進されることが懸念される。このことから先行研究では、文献情報に基づき二酸化ウランや使用済燃料の溶解速度に及ぼす炭酸影響を調査した(原子力機構, 2016; Kitamura and Akahori, 2017)。

得られた結果を図 3.1-2 に示す。全体的には、溶解速度が全炭酸濃度の上昇とともに高く なっている傾向が見られる。しかしながら、地層処分環境に近い酸化還元電位で取得された データが 2 文献のみ(図 3.1-2 の Cachoir et al., 2005 と REDUPP (Evins et al., 2014)) であるうえ、いずれも炭酸成分の影響の有無に着目したデータではないことから、より詳細 にデータを取得することが必要であると判断された。先行研究では UO<sub>2</sub> の粉末試料を用いて 溶解速度測定実験を行い、図 3.1-3 に示すような結果が得られた(原子力機構, 2016)。得 られた結果のうち、還元剤に鉄片を用いた試料については、表 3.1-2 に示した燃料溶解速度 (10<sup>-7</sup> y<sup>-1</sup>)を概ね支持するものと思われるものの、溶解速度に及ぼす表面積の影響など、よ り詳細なデータを取得することで設定値の信頼性を向上させることが必要と考えられた。一 方、還元剤に塩化スズ(SnCl<sub>2</sub>)を用いた試料については、特に炭酸水素ナトリウム(NaHCO<sub>3</sub>) 濃度が高い条件において良好な還元条件を維持することができなかったことから、結果の信 頼性に疑問が残った。

さらに、図 3.1-3 に示した UO<sub>2</sub> 溶解速度実験において、溶存ウラン濃度の時間変化があま り見られなかったことから、ウランが溶解平衡状態に達している可能性が考えられた。平衡 状態に到達していた場合は溶解速度が過小に評価されることから、UO<sub>2</sub>溶解速度を適切に評価 するために、UO<sub>2</sub>の溶解度(固液が平衡状態に到達したときの溶存濃度)に及ぼす炭酸影響に ついてもあわせて調査する必要があると考えられた。



図 3.1-2 燃料溶解速度の全炭酸濃度依存性に関する文献情報 (実線は燃料溶解速度 10<sup>-7</sup> y<sup>-1</sup>を換算した値であり、破線はその不確実性範囲(上限及び下 限値)を表す(原子力機構, 2016))



図 3.1-3 先行研究で得られた二酸化ウラン溶解速度の全炭酸濃度依存性 (SF-1: 10<sup>-7</sup> [y<sup>-1</sup>]の実線は、直接処分第1次取りまとめの設定値に相当する値であり、 破線はその不確実性の範囲を表す(原子力機構, 2018))

#### 3) わが国の使用済燃料からの核種放出挙動に関する調査

先行研究開始前には、わが国で直接処分の性能評価を目的とした使用済燃料による実験研 究は皆無であったことから、先行研究では IRF や燃料溶解速度の設定について、諸外国の設 定値や手法を参考にして実施した。したがって、すべての IRF 実測データは欧米の使用済燃 料を用いて取得されたものである。その一方で、FGR は使用済燃料の特性を評価するためにわ が国でも調べられており、一部のデータが公開されている(原子力発電技術機構, 2002a; 2002b;原子力安全基盤機構, 1999; 2007; 2008)。先行研究では、これらの実測に基づく FGR データや燃料挙動解析コードを用いて得られた FGR データを活用して、処分環境における FGR 設定に使用していることから、結果的に FGR と相関関係を持つとされている I、 Cs および C1 の IRF 設定にも活用された。

しかしながら、FGR は I、 Cs および C1 の IRF 設定を簡便に行うために用いられているに 過ぎず、瞬時放出パラメータで設定されるべきものは IRF である。また、FEMAXI (鈴木ほか, 2011)など燃料棒中の核分裂生成ガス (FP ガス)の評価に使用される燃料挙動解析コードは、 燃料ペレットの照射時のふるまい、特に希ガスで化学形態変化を伴わないクリプトンやキセ ノンを対象としているため、FP がペレット内に留まるのか、もしくはペレット外に放出され るかを決定するためのモデルがないことがわかった。このことから、IRF の設定に向けての試 験研究をわが国で実施することを考えた場合に参考となる情報を収集することを目的として、 諸外国で実施された使用済燃料浸漬試験の最新の文献情報を実施することとした。

#### (2) 燃料溶解速度に及ぼす炭酸影響評価

1) はじめに

(1)(2)で述べたとおり、水溶液中の炭酸濃度が高くなると、ウラン(VI)炭酸錯体の生成 が促進されることが懸念される。このことから、UO<sub>2</sub>の溶解速度に及ぼす炭酸成分の影響を実 験的に調査することとした。先行研究ではUO<sub>2</sub>粉末を使用しており、溶解速度に及ぼす表面積 の影響を確認するために、平成30年度はペレット状に成型したUO<sub>2</sub>の溶解速度測定を実施し た。

#### 2) 二酸化ウランペレットの調製

U02ペレットの調製

a. 加熱処理

U<sub>3</sub>0<sub>8</sub>を水素雰囲気下において 1000 ℃で加熱還元処理して UO<sub>2</sub>を調製した。この反応式は式 3.1-1 のとおりである。

図 3.1-4 に示す管状型電気炉に雰囲気制御ガスが導入可能な石英反応管をセットし、この 反応管中に所定量秤量した U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>を入れたアルミナボートを置いた。加熱中は Ar + 10 % H<sub>2</sub>混 合ガス(大陽日酸株式会社製)を 60 mL min<sup>-1</sup> で流入させ、還元雰囲気を維持した。加熱プ ログラムは次のとおりである。

- (a) 加熱開始から1時間で1000 ℃まで上昇。
- (b) 1000 °Cで6時間加熱。
- (c) 加熱終了後1時間で炉を冷却。



図 3.1-4 電気炉概要図

#### b. 粉末 X 線回折 (XRD) による同定

加熱処理後の試料の結晶構造を X 線回折により調べた。X 線は Cu-K  $\alpha$  線( $\lambda$  = 0.154056 nm)を使用し、管球電圧は 40 kV、フィラメント電流は 40 mA で使用した。測定条件は、サン プリング幅は 0.02 deg、測定範囲は 20°-140°、スキャン速度は 2° min<sup>-1</sup>とした。格子定 数の計算の際はリガク株式会社製統合粉末X線解析ソフトウェアである PDXL2 を用いた。

### c. サンプルペレット成型

前項で調製した UO<sub>2</sub> 粉末をペレットに成型した。用いたダイスは SKD-11 製、 $\phi$ 10 mm である。油圧ポンプを用いて 8 MPa の加圧を 3 分間維持して成型した。

## d. サンプルペレット焼結

前項で成型したサンプルペレットを水素雰囲気下において 1600 ℃で焼結した。a. で使用 した電気炉を用いて、焼結中は Ar + 10 % H<sub>2</sub>混合ガス(大陽日酸株式会社製)を 20 mL min<sup>-</sup> <sup>1</sup> で流入させ、還元雰囲気を維持した。加熱プログラムは次のとおりである。

- (a) 加熱開始から3時間で1000 ℃まで上昇。1
- (b) 1時間かけて1300 ℃まで上昇。
- (c) さらに1時間 40 分かけて 1600 ℃まで上昇。
- (d) 1600 °Cで2時間加熱。
- (e) 加熱終了後3時間で炉を冷却。

## e. ペレット表面の観察

浸漬前後で走査型電子顕微鏡(SEM)にてサンプルペレット表面を観察した。

#### 2 調製結果

①で調製した試料の XRD パターンを Inorganic Crystal Structure Database (ICSD)に掲載されている UO<sub>2</sub> のパターンと比較して図 3.1-5 に示す。ここから、U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> が還元され、UO<sub>2</sub> が得られたことを確認した。



図 3.1-5 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>を還元処理して作製した UO<sub>2</sub> 試料の XRD パターン

成型した UO<sub>2</sub> ペレットの外観を図 3.1-6 に示す。焼結後のペレットは高さ 1.4 mm、 直径 9.6 mm であった。



図 3.1-6 UO2ペレット外観

焼結後の UO<sub>2</sub>ペレットの SEM 写真は図 3.1-7 のとおりである。図 3.1-7(a)は 1000 倍、(b) は 10000 倍で撮影した。図 3.1-7(a)を見ると、粒界と間隙が確認できる一方で、図 3.1-7(b) では焼結により粒界内の粒子同士が溶融して密になっていることを確認した。



(a) 1000 倍

(b) 10000 倍

図 3.1-7 焼結(1600 ℃, Ar-10%H<sub>2</sub>, 2 h)後のペレット表面の SEM 写真(浸漬前)

# 3) UO<sub>2</sub>ペレットの浸漬実験

## ① 実験手順

還元雰囲気の溶液に浸漬した UO<sub>2</sub>の溶解挙動に及ぼす溶液中の炭酸水素イオンの濃度の影響を評価するためにバッチ実験を行った。溶液相の体積は 011i1a (2008)を参考に、焼結後のペレット表面積 SA[m<sup>2</sup>]と溶液体積 V[m<sup>3</sup>]の比が 5 m<sup>-1</sup> となる量を設定した。塩化ナトリウム (NaC1)と炭酸水素ナトリウム (NaHCO<sub>3</sub>)水溶液を調製し、NaC1 濃度を 0.1 M (M: mol dm<sup>-3</sup>)、NaHCO<sub>3</sub> 濃度を 0-50 mM に調整した。水溶液の pH は 8.4 程度に調整し、pH を安定させる ために pH 緩衝剤 EPPS (3-[4-(2-Hydroxyethy1)-1-piperaziny1]propanesulfonic acid)を添加した。還元剤には、炭酸成分との相互作用を回避するために亜ジチオン酸ナトリウム (Na<sub>2</sub>S<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)を使用し、予備的な検討から濃度を 5 および 10 mM の 2 種類に設定した。水溶液 を調製したのちに、UO<sub>2</sub>ペレットを容器に投入した。調製した試料の各条件を表 3.1-4に示す。

浸漬開始から5、12、25日の各時点で、試料溶液のpHおよびE<sub>h</sub>(vs.SHE)を測定する とともに、上澄み液を孔径0.45 µmおよび10 kDa のフィルターでろ過し、溶存ウラン濃度 を誘導結合プラズマ発光分光分析(ICP-AES)および誘導結合プラズマ質量分析(ICP-MS)で 定量した。さらに、水溶液中の炭酸イオン濃度を、炭酸電極で測定した。

浸漬開始から 50 日後に UO<sub>2</sub>ペレットを溶液から取り出し、真空乾燥した後に、走査型電子 顕微鏡を用いて SEM 観察を行った。あわせて、エネルギー分散型 X 線分析(EDX)を行なった。

溶存ウラン濃度の定量やUO2ペレットのSEM観察・EDX分析以外の作業は、酸素濃度0.1%以下のアルゴン雰囲気で実施した。

試料	NaHCO <sub>3</sub> (mM)	pH 緩衝 剤 EPPS (mM)	NaCl(M)	Na <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>4</sub> (mM)	UO2ペ レッ ト数 (個)	UO <sub>2</sub> ペレ ット表 面積 (m <sup>2</sup> )	UO <sub>2</sub> 質量 (mg)	溶液 体積 V(mL)						
1-1	50					1.87E-4	708.2	37						
1-2	10	]				1.84E-4	705.1	37						
1-3	5	2	2 0.1				5		1.90E-4	702.6	38			
1-4	1						1.87E-4	706.5	37					
1-5	0			9	2 0.1		2 0.1	1	1.87E-4	707.9	37			
1-6	50					0.1		0.1	0.1	2 0 1			1.87E-4	704.7
1-7	10			0.1						1.90E-4	709.0	38		
1-8	5						10		1.97E-4	704.0	39			
1-9	1					1.94E-4	703.0	39						
1-10	0						1.84E-4	710.5	37					
1-11	5			5	0	-	-	40						
1-12	5						10	0	_	_	40			

表 3.1-4 浸漬実験条件

#### ② 試験結果と考察

U02の溶解速度におよぼす炭酸イオン濃度の影響の結果の例(試料1-1~1-5)を図3.1-8に 示す。横軸の全炭酸濃度には、炭酸電極で実測した値を使用している。図3.1-8から、溶液 中の炭酸イオン濃度が上昇するほど、溶存ウラン濃度も増加する傾向が確認された。U02の溶 解は、先行研究(原子力機構,2018)に示したように、以下の反応で進行すると考えられる。

 $U^{IV}O_2(s)$  + x HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> →  $U^{VI}O_2(CO_3)_x^{2-2x}$  +x H<sup>+</sup> + 2 e<sup>-</sup>····· 式 3. 1-2

式 3.1-2 で示した反応は、pH、 Eh (SHE) および炭酸水素イオン濃度の 3 因子に依存して進 行する反応であり、いずれの因子もパラメータ値が高いほど反応がより進行すると考えられ る。式中の炭酸イオンの UO2<sup>2+</sup>への配位数 x は、3 と推定される。図 3.1-8 に示した溶存ウラ ン濃度は、溶解平衡に到達したか確認されていないことから、直接、式 3.1-2 をあてはめて 結果を解釈することはできないものの、溶存炭酸イオン濃度が高くなると溶液中のウラン濃 度が高くなると解釈できる。また、液相中のウラン濃度はろ過に用いるフィルターの孔径に 顕著には依存しなかったことから、本研究の実験では 10 kDa を超えるような分子量を持つ U のコロイド化学種の存在は無視できることがわかった。一方、炭酸塩を初期に 1 mM 添加した 試料では、浸漬後に測定した溶存炭酸イオン濃度が初期の添加量を上回った。これは、炭酸 イオン濃度測定中に大気中の二酸化炭素が混入したためと考えられる。なお、図 3.1-8(a) に 示す 12 日後の溶存ウラン濃度が図 3.1-8(b) に示す 25 日後の結果より高くなった原因につい ては調査中である。

試料 1-6 で使用した UO<sub>2</sub> ペレットの浸漬開始から 50 日後の走査型電子顕微鏡 (SEM) 写真 (×10000) とエネルギー分散型 X 線分光 (EDX) による U のマッピング結果を図 3.1-9 に示 す。図 3.1-9(a) によると UO<sub>2</sub>粒子のまわりに析出物が確認できる。これはペレット試料の真 空乾燥時に析出した共存物質(塩化物、炭酸塩)が主であるとみられる。



図 3.1-8 Uの溶解におよぼす炭酸イオン濃度の影響



(a) SEM 写真

(b) U  $M_{\alpha 1}$ 

図 3.1-9 浸漬後の UO<sub>2</sub>ペレットの SEM 観察と EDX 分析における (a) SEM 写真 (×10000)と (b) U のマッピング結果

(観察・分析した試料は表 3.1-4 中の 1-6 である)

#### 4) U02 溶解速度の算出と既往文献値との比較

3)に示した結果から、UO2の溶解速度を求め、これを先行研究の結果と比較する。本研究で は溶解速度は次式で定義した。

$$D_R\left[\frac{mg}{m^2 \cdot d}\right] = \frac{C * V * M}{A * t} * 10^3 \cdots$$
  $\ddagger 3.1-3$ 

ここで、C:溶解したU濃度[mol L<sup>-1</sup>], V:溶液体積[L], M:<sup>238</sup>U 質量数[g mol<sup>-1</sup>]、A:U02幾 何学的表面積(ペレットの直径および高さより算出)[m<sup>2</sup>],t:浸漬時間[day] である。得ら れた溶解速度を、既往研究で求められている燃料溶解速度と比較して図 3.1-10 に示す。本研 究で得た溶解速度は既往研究の報告値と比較して低い値のグループに属し、既往研究のうち 最も低い燃料溶解速度である REDUPP (Evins et al., 2014)の報告値と同程度となった。ま た、炭酸イオン濃度の対数値に対する依存性も同様であることを確認するとともに、全炭酸 イオン濃度 5×10<sup>-2</sup> M までの範囲で相関することを示した。今後、燃料溶解速度の溶存炭酸イ オン濃度依存性を多様な条件で調べ、燃料溶解挙動を明らかにしていく予定である。



図 3.1-10 既往研究の燃料溶解速度と本研究で求めた UO<sub>2</sub>溶解速度の比較 (図 3.1-2 に加筆)

#### (3) UO2 溶解度に及ぼす酸化還元電位および炭酸影響評価

#### 1) はじめに

(1) 3)で述べたとおり、図 3.1-3 に示した UO<sub>2</sub>溶解速度実験において、溶存ウラン濃度の 時間変化があまり見られなかったことから、ウランが溶解平衡状態に達している可能性が考 えられた。溶解平衡状態に到達していた場合は溶解速度が過小に評価されることから、UO<sub>2</sub>の 溶解速度の評価を適切に行えるようにするために、UO<sub>2</sub>の溶解度(溶解平衡状態に到達したと きの溶存濃度)に及ぼす炭酸影響についても調査することとした。また、直接処分第 1 次取 りまとめで想定した処分環境における緩衝材間隙水(降水系、pH = 8.4,標準水素電極に対 する酸化還元電位( $E_h$ ) = -280 mV、等)において、熱力学計算ではウランの支配的な溶存化 学種が 6 価炭酸錯体( $UO_2(CO_3)_3^4$ 、等)となることから、熱力学計算の妥当性を検証するため の溶解度測定をあわせて実施した。

#### 2) 実験方法

溶解度試験条件を表 3.1-5 に示す。試験溶液は、0.02 M NaCl 水溶液、0.02 M NaHCO<sub>3</sub> 水溶 液、および 0.08 M NaCl + 0.02 M NaHCO<sub>3</sub> 混合水溶液の 3 種類とした。使用した還元剤は、  $1 \times 10^{-3}$  M 亜ジチオン酸ナトリウム (C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>O<sub>2</sub>)、 $1 \times 10^{-3}$  M アスコルビン酸 (C<sub>6</sub>H<sub>8</sub>O<sub>6</sub>)の 2 種類で あるが、還元剤添加による液相への影響を確認するため、各種試験溶液について還元剤を添 加しないブランクケースを設定した。また、試験の再現性を確認するため、同一条件の試料 を 2 個ずつ用意した。

試験溶液を入れたポリ容器は、雰囲気制御グローブボックスに入れ基本的に暗所保管した。 試験開始後、2回/週を目安として試験溶液のpHとEhを測定し、初期状態から変動が認めら れる場合は、必要に応じて酸・アルカリ、還元剤水溶液を添加し、初期状態に近づくように 調整した。

試験開始後の試験溶液中のウラン濃度を確認するため、1、2、4、8、12週間後にポリ容器 を取り出し、試験溶液を分取し 0.45  $\mu$ m メンブランろ過、および限外ろ過(分画原子量 10<sup>4</sup> (10 kDa))した溶液を ICP 質量分析(パーキンエルマー NexION2000B)により定量した。ま た試験溶液のウラン濃度の定量と合わせて試験溶液の pH と Eh を測定し、必要に応じて酸・ アルカリ、還元剤水溶液を追加し、試験溶液を試験開始時の pH と Eh に近づけた。

併せて、一部の試験溶液については、試験開始1週間後と最終分取時についてテノイルト リフルオロアセトン(TTA)による溶媒抽出等により試験溶液中のウランの酸化状態を調査し た。また、試験終了後、一部の試験ケースについて試験溶液中に生成した沈殿物の粉末X線 回折スペクトルの取得を試みた。

項目	内容				
試験方法	過飽和溶解度試験				
	※試験開始時のウランはⅥ価であるが、還元剤の添加によりⅣ 価に還元されることを想定。				
試験溶液	脱気水に硝酸ウラニル(UO2(NO3)2)貯蔵液を混合し、以下の溶				
	質を加えた水溶液(全ウラン濃度:1×10⁻³ M)				
	• 0.02 M NaCl				
	• 0.02 M NaHCO <sub>3</sub>				
	• 0.08 M NaC1 + 0.02 M NaHCO <sub>3</sub>				
рН	9程度				
還元剤	<ul> <li>10<sup>-3</sup> M 亜ジチオン酸ナトリウム</li> </ul>				
	• 10 <sup>-3</sup> M アスコルビン酸				
試験温度	室温				
試験雰囲気	高純度 Ar ガス雰囲気(0₂濃度≦1 ppm)				
サンプリング	試験開始後1、2、4、8、12週間後				
固液分離方法	<ul> <li>0.45 µmメンブランろ過</li> </ul>				
	• 分画分子量 10 <sup>4</sup> (10 kDa)限外ろ過(フィルタユニット法)				
分析項目	<ul> <li>ウラン濃度: ICP 質量分析 (パーキンエルマー、NexION200B)</li> </ul>				
	• 全炭酸濃度: TOC 分析 (平沼産業、TOC-200)				
	• pH および Eh : ガラス電極法				

表 3.1-5 UO2溶解度試験の諸条件

#### 3)結果と考察

溶解度試験結果を図 3.1-11 に示す。結果的に、試験試料の酸化還元電位を想定地層処分環 境の値(緩衝材間隙水として Eh-0.3V 程度)に近づけることは困難であった。還元剤の選定 や調整方法に課題があると言える。

得られた結果は、先行研究(北村ほか,2015a)の結果と同様で、還元条件において炭酸水 素イオンが含まれている水溶液中のウラン溶解度は、炭酸水素イオンが含まれていない水溶 液中の値に比べて顕著に高い値を示すことがわかった。この差異については、既往の熱力学 熱力学データベースを用いた計算により説明できることがわかっている(北村ほか,2015a)。 なお、Rodríguez-Villagra ほか(2017)も炭酸水素イオン濃度0.02 MにおけるUO<sub>2</sub>溶解度測 定を実施して、無炭酸水溶液等との比較を行っている(図3.1-12)。この研究では、過塩素 酸ナトリウム水溶液(すなわち炭酸を含まない水溶液)、模擬地下水(図3.1-12 中の"ABG-36"; "Granitic-bentonitic"と書かれているので、おそらく花崗岩系地下水が緩衝材と相互 作用したものと推定される。ただし、全炭酸濃度は記載がないため不明)、および高炭酸水 (図3.1-12 中の"CARBON"; 0.02 M HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>)の3種類の(全炭酸濃度の異なる)水溶液中での 溶存ウラン濃度を、Ehを電気化学的に制御した系で測定している。図3.1-12 から、溶存ウラ ン濃度が水溶液の種類ごとに異なっており、全炭酸濃度が高いほど溶存ウラン濃度が高くな っていることが確認される。

今後、報告者らによる溶解度測定においても、酸化還元電位を適切に調整し、さらに詳細 にデータを取得するとともに、文献情報も参照しつつ熱力学計算の妥当性を検証することが 必要である。

なお、前項の溶解速度測定で得られた溶存ウラン濃度(図 3.1-8)を本試験結果と比較する と、図 3.1-11 に示すとおり、前項の溶存ウラン濃度の方が低いことがわかる。前項で実施し た溶解速度測定は不飽和側(ウランの固相が溶解)の試験であることから、まだウランの溶 解が平衡状態に到達していないことが推定される。



図 3.1-11 ウラン溶解度試験結果の酸化還元電位依存性 (白抜きは先行研究(北村ほか,2015a)の結果であることを示す。)



図 3.1-12 UO<sub>2</sub>溶解度試験で酸化還元電位や全炭酸濃度の影響を調査した例 (Rodríguez-Villagra et al., 2017を改訂、 プロットの詳細については記載がないので不明である)

#### (4) 使用済燃料からの核種放出挙動に関する調査

1) はじめに

(1)項で述べたとおり、先行事業では IRF や燃料溶解速度の設定について、諸外国の設定値 や手法を参考にして実施した。このうち、燃料溶解速度については、(3)項に示した実験的な 調査を開始している。その一方で、IRF については、一部元素において国内の FGR の実測デー タ(原子力発電技術機構, 2002a; 2002b;原子力安全基盤機構, 1999; 2007; 2008)を相関 関係のベースとして参照したものの、それ以外は諸外国の浸漬試験結果等を参照しているの みであり、これらがわが国の直接処分の性能を評価するのに十分かどうかの検証が必要であ る。

これらのことから、IRF の設定に向けての試験研究をわが国で実施することを考えた場合 に参考となる情報を収集することを目的に、諸外国で実施された使用済燃料浸漬試験の最新 の文献情報を実施することとした。あわせて、燃料マトリクス等の長期溶解挙動に関する最 新情報も調査した。

#### 2) 瞬時放出率・核分裂生成ガス放出率に関する調査

# ① 核分裂生成物の生成・移動と分類

核分裂生成物の生成・移動の原理を知り、類似する核種もしくは放射性元素ごとに分類す ることは、放射性核種の瞬時放出率を考察する上で、核種が使用済燃料内に存在する経緯や インベントリの大小を考察する、もしくは複雑な使用済燃料を簡略化もしくは概略化して包 括的に捉えるために必要となる。 燃焼期間中の UO<sub>2</sub> ペレット内には、FP、アクチノイドおよび放射化生成物が生成・蓄積する。その蓄積量は燃料の濃縮度等の製造パラメータの他、運転時の線出力と燃焼度等の照射パラメータ、さらに冷却期間に依存する。代表的な FP としては、FP ガス(Xe、Kr 等)、Cs、I、Sr、Ba、Mo、Zr、希土類元素等が知られている。

燃焼期間中の炉内は高温であり、燃料棒の設計では通常運転時(線出力 43.1kW m<sup>-1</sup>)、およ び運転時の異常な過渡変化時(線出力 59.1 kW m<sup>-1</sup>)ではそれぞれ約1,800 ℃、約2,200 ℃ と評価された事例がある。UO<sub>2</sub>は比較的低温な状態では 0/U 比が 0~2 の唯一の化合物である が、U の核分裂や FP の蓄積により酸素が過剰となり、酸素がペレット内を拡散により移動し て、U<sub>3</sub>O<sub>7</sub>、U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>、UO<sub>3</sub>等の 0/U 比が異なる様々な相を形成する。UO<sub>2</sub>の融点は定比状態で 2,865 ±15 ℃とされ、定比状態から外れる場合や Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が固溶する場合では液相が共存する温度が 低下するが、上記に挙げた約 2,200 ℃では融点未満である。

U02の結晶格子内に生成した FP 原子は、①拡散、②反跳、③はじき出しによってペレット 表面およびペレット内に発生した微細クラック表面等の自由表面に放出される。その過程で、 燃料ペレットの結晶粒界、微細クラック、ペレット-被覆管ギャップ等に蓄積する。②反跳は、 ペレット自由表面近くで核分裂片が与える反跳エネルギーにより直接ペレットから放出され る機構である。一方、③はじき出しは、U02表面近くにある FP 原子が核分裂片による衝突や カスケード状衝突により放出される機構である。反跳とはじき出しは、温度に依存しない機 構であり、ペレットからの全放出量に対する寄与が小さい現象 (FP ガス放出での寄与率は1% 以下と見積もられている)のため、拡散による寄与が小さくなる 700~800 ℃以下の低温域で 有意となる現象である。

FP 原子は約 800 ℃以上の高温域では、図 3.1-13 の模式図に従うプロセスを経て自由表面 へ拡散・移動する。図 3.1-13 は FP ガスのプロセスであるが、他の FP も基本的に同じプロセ スを経て移動する。





粒内で発生した FP ガス原子は、U02格子の複合欠陥(例えば、1個のウラン空孔と2個の酸素空孔の空孔クラスタ)を介して体積拡散すると考えられている。希ガス(Xe、Kr)および融点とU02への溶解度が低い揮発性 FP は、粒内の大きな欠陥(転位、亜粒界)や製造時の微小気孔および粒界等に気泡として析出する。気泡は、核分裂片の通過による破壊、気泡内でのFP の一部溶解、粒内からのガス状 FP の放出、核分裂片の通過による気泡の破壊、などを繰り返しながら粒界へ拡散移動し、拡散係数が大きな粒界で粒界気泡として大きく成長する。その後、粒界気泡はお互いに連結して粒界トンネルを形成し、FP ガスの場合には、瞬時に自由空間に放出される。一方、揮発性 FP の場合には、周辺の温度、酸素ポテンシャル、揮発性 FP の蒸気圧に従い様々な化学形態をとり、FP ガスとは異なる放出速度となる。

U0<sub>2</sub>結晶粒内で生成した FP およびアクチニドについては、それら元素のペレット内の移動 と放出挙動が、それら元素の酸素に対する親和性(酸素ポテンシャル)とU0<sub>2</sub>への固溶性によ り大きく影響を受ける。Kleykamp(1985)は、酸化物燃料(U0<sub>2</sub>、(U、Pu)0<sub>2</sub>)と FP および FP 酸 化物の温度と2元系平衡酸素ポテンシャル( $\Delta G_{02}$ )の関係図(エリンガム図)を示しており、 0/U 比に応じた酸化物燃料の $\Delta G_{02}$ と FP 酸化物の $\Delta G_{02}$ を比較することにより FP が酸化物と して存在し得るかを判断する参考となる。製造時は U0<sub>2</sub>の 0/U 比は 2.000 であるが、酸素の 再分配とともに照射 U0<sub>2</sub>の $\Delta G_{02}$ は徐々に高まり-400 kJ mol<sup>-1</sup>程度で飽和する。この飽和傾向 については FP 収率が大きい Mo の一部が酸化平衡に達していることがバッファーになってい る(Mo の酸化により酸素が消費されている)可能性が示されている。照射 U0<sub>2</sub>ペレットでは Ba、Sr、Zr、希土類元素(Y や Ce から Eu までのランタニド元素)、アクチニド元素は酸化物 として存在し、一方で Sb、Te、Se 及び Tc、Ru、Rh、Pd 等の白金族は金属あるいは金属間化 合物として存在する。U0<sub>2</sub>ペレット内の余剰酸素と反応して生じた FP 酸化物が U0<sub>2</sub>に固溶す るのか、もしくは第2 相酸化物として析出するかは U0<sub>2</sub>への固溶限(溶解度)により決まる。 以上より分類した結果(Kleykamp, 1985)を以下に示す。

- ガス相:Kr、Xe
- 燃料固溶相: Zr、Sr、希土類 FP、アクチニド
- 酸化物析出相:Ba、Cs
- 金属析出相: Mo、Tc、Ru、Rh、Pd、Sb、Sn、Te、Se

#### ② 核分裂生成ガスの放出挙動

核分裂生成ガスは、被覆管内のガス圧の上昇に伴う被覆管の破損、燃料ペレット内の温度 を被覆管に伝熱するなど、炉内における燃料挙動に密接な関係があるため燃料の健全性の観 点から研究が進められている。処分場の安全評価の観点では I、Cs 等の炉内高温時に揮発性 となる核種の瞬時放出率(IRF)と核分裂生成ガス放出率(FGR)との相関があるとされてい る点で重要となる。

核分裂生成ガスの評価では、U-235 の核分裂生成物で収率が大きい Xe と Kr が対象とされる。Xe、Kr の同位体は、極めて半減期が長いかもしくは数日未満と短いため、これらの放射性元素が長期安全評価に影響するとは考えにくい。しかし、Kr-85 については、その半減期が10.78 年で核分裂収率もそれなりにあるため、処分場での操業時では対象となる可能性がある。

核分裂生成ガスの放出が始まる温度は、ハルデン炉の燃料棒内圧計装データから得られた 燃料棒平均のFPガス放出率(FGR)が1%となるしきい値(ハルデンしきい温度)が判断の目 安に用いられており、燃料棒平均燃焼度が約 30~40 GWd tU02<sup>-1</sup>ではペレット中心温度が約 1,100~1,200 ℃を超えると顕著なFPガス放出が見られるとされる。ハルデンしきい温度の 式は低~中燃焼度燃料について適用された式であり、高燃焼度燃料への適用性が検討されて いるが現在のところ結論は出されていない。図 3.1-14 に示すように、50 GWd tU02<sup>-1</sup>以上の高 燃焼度域における商用炉燃料データでは、FP ガス放出開始温度は約 700~800 ℃と評価され ている。



# 図 3.1-14 核分裂生成ガス放出(燃料要素平均で1%以上)のペレット中心しきい温度の燃 焼度依存性 (Rest et al., 2019を改訂)

ハルデンしきい温度式は、もともと 35 GWd tU0<sub>2</sub><sup>-1</sup>以下の低~中燃焼度領域の燃料を対象と しており、PWR 燃料についても適用されている。43 GWd tU0<sub>2</sub><sup>-1</sup>燃料(Wiesenack, 1993)の FGR 積算価が 1%となるペレット中心温度はハルデンしきい温度式とよく一致しているが、59 GWd tU0<sub>2</sub><sup>-1</sup>燃料(Tverberg and Wiesenack, 1999)はハルデンしきい温度式よりも 85 ℃ほど下回 っている。50 GWd tU0<sub>2</sub><sup>-1</sup>以上の高燃焼度領域におけるしきい温度の低下について、ペレット 熱伝導率の低下の影響、リム領域からの核分裂生成ガスの放出、経時的線出力低下にも関わ らず高温に維持されたペレット温度分布の影響、ガス原子が粒内気泡内で再溶解することに よるガス原子の拡散係数への影響等が検討されているが、これらの影響を示す根拠となるデ ータは得られていない(Rest et al., 2019)。

核分裂生成ガスのペレット内における移動機構は拡散であり、ハルデンしきい温度を超えると顕著に FGR が増大することが知られている。結晶粒内におけるガス原子の拡散係数は温度に依存することが知られており、従来から燃焼度との依存性が調査された。EU「First-

Nuclides」プロジェクトで対象となった BWR 燃料と PWR 燃料の燃焼度もしくは線出力と FGR の関係を図 3.1-15 に示す。「First-Nuclides」プロジェクトは、燃焼度 42.2~70.2 GWd tHM<sup>-1</sup>、燃料棒平均線出力が 14.3~30.6kW m<sup>-1</sup>の高燃焼度燃料を対象としている。図 3.1-15 に示 されるように燃焼度で FGR を整理するとそれらに相関性は確認できないものの、線出力で FGR を整理すると相関性が確認できる。

「First-Nuclides」プロジェクトにおいて積極的に取り扱っていない MOX 燃料は、UO2燃料 と比べて同じ燃焼度でも出力が高く FGR が大きくなると言われている。Blanpain ほか(2001) は、燃焼度 40 GWd t<sup>-1</sup>の UO2 燃料と MOX 燃料を対象に線出力で整理することで、MOX 燃料の FGR を UO₂燃料と同じように整理できることを示している。このようになる理由として、燃焼 度は燃料がどの程度消費されたかを示す指標であるのに対し、線出力はペレット内の温度分 布を決定するパラメータであるため、燃焼度よりも線出力の方が体積拡散により移行する核 分裂生成ガスの移行現象に対して相関性が高いためと考えられる。しかし、FGR を類推するた めの線出力として、燃料ペレットの平均線出力が良いのか、経験線出力が良いのかについて は明らかにされていない。図 3.1-16 は PWR 使用済燃料(KWU データと FRANCE データ(EDF デ ータ))の FGR の燃焼度依存性を調べた結果である。KWU データは、15×15PWR 燃料集合体を 使用し、最初の2サイクルを29~33 kW m<sup>-1</sup>で運転し、その後 FP の蓄積等によって出力が徐々 に低下し燃料寿命時の線出力が~14 kW m<sup>-1</sup>となった、言わば初期に比較的高出力で運転した 燃料である。一方で EDF データは運転期間中に線出力が 15~20 kW m<sup>-1</sup>を超えないように比較 的低い出力で運転した燃料である。図 3.1-16 を見ると KWU の FGR データは EDF よりも高く、 燃料寿命近くでは線出力が EDF に近いにも関わらず格段に FGR が増加している。このように 瞬間的な線出力で整理した場合には線出力と FGR は相関性が悪くなる傾向が見られた。



図 3.1-15 EU「First-Nuclides」プロジェクトにおける FGR の(a)燃焼度および(b)線出力 依存性



(Rest et al., 2019を改訂)

# ③ 炉内で揮発性となる核種の放出

# a. 放出現象の概要

U02ペレットからの FP ガスと Cs、I 等の揮発性 FP の放出では、結晶粒内から粒界に体積拡 散して粒内気泡内に取り込まれるまで同じプロセスをとるが、揮発性核種の場合は粒界気泡 内で単体、あるいは化合物として存在し、粒界トンネルが形成されるとその化学形態に依存 した蒸気圧に応じて粒界トンネルや微細クラック等を通って低温部(ペレット外縁部やペレ ット端面部)に移動する。希ガスの場合は単体で存在すると考えられるが、揮発性核種の場 合は単体や化合物の融点/沸点が異なり、存在する場所や化学形態が異なる。

#### b. 核種放出の開始温度

揮発性核種はある程度の温度以上から放出を始めるが、元素の種類によってその温度が変 わる可能性がある。I と Cs がペレットから放出を開始する温度(バースト放出開始温度)は、 核分裂生成ガスと同程度の温度である。Une and Kashibe(1992)は商用 BWR で照射された UO<sub>2</sub> 燃料(燃焼度 6~28 GWd t<sup>-1</sup>)とUO<sub>2</sub>-2wt%Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>燃料(燃焼度 4~38 GWd t<sup>-1</sup>)について 1,400 ~1,800 ℃の炉外加熱試験を実施した。図 3.1-17 は FP ガス(Kr)と揮発性 FP(Cs、I)のバ ースト放出開始温度と試料燃焼度との関係を示したものである。この試験の結果は、粒界ト ンネル形成による核分裂生成ガス(Kr)と揮発性 FP(I、Cs)のバースト放出開始温度と試料 燃焼度との関係を示しているものと考えられている。FP ガスと Cs、I の放出開始温度は良く 一致していることがわかる。



図 3.1-17 炉外加熱試験で得られた Kr、Cs、I のバースト放出開始温度の燃焼度依存性 (Kr-85: Une and Kashibe, 1992、Cs と I: Peehs et al, 1993 を改訂)

#### c. ペレット中の核種の拡散係数および移行速度

Turnbull ほか(1982) による、微小な U0<sub>2</sub>試料の炉外加熱試験により得られた I と Xe の拡 散係数を比較した結果では、800~1,400 ℃の高温域で両者はアレニウス型の温度異存性を示 すが、700~800 ℃以下の低温では温度異存を示さない。また、Xe と I の拡散係数の測定値は 同じオーダの値が得られている。しかし、Desgranges ほか(2013) が実施した PWR でのベース 照射後の出力急昇試験(最高到達出力で保持されない試料(NHT、燃焼度 26GWd t<sup>-1</sup>、到達線出 力 450W cm<sup>-1</sup>) と 1.5 分間保持した試料(SHT、燃焼度 35GWd/t、到達線出力 520W cm<sup>-1</sup>)の2 試料)のペレット径方向の Xe、Cs、I、Te の濃度分布を見ると、Xe と Cs はペレット中心部か らほとんど移動していないのに対して、I と Te は明らかにペレット中心部からの移動が見ら れる。上記の Desgranges ほか(2013)の炉外加熱試験では、ペレット外縁部の Xe、Cs、I、Te の SIMS マッピング像によって I は Te と同じ場所に分布しており Te Ix の存在が示唆されてい る。一方、Walker ほか(2009)の燃焼度 65GWd t<sup>-1</sup>の PWR 使用済燃料の外縁部の I、Te、Cs の SIMS マッピング像は、I は U0<sub>2</sub>内でほぼ均一に分散しており、Cs と Te も別々の気泡内に分布 していることを示している。このように、Cs や I は温度やその場所の酸素ポテンシャル等に よって異なる化合物となっている可能性がある。I、Cs は炉内で揮発性となると考えられてお り、I と Xe の拡散係数は同じオーダの値が得られているが、ペレット外周への到達時間は Xe より I の方が早い場合がある。しかし、EU の First-Nuclides プロジェクトで得られた I の IRF は FGR と同程度以内の値しか得られていない。この理由としては、揮発性 FP の粒界到達 率がペレット外への放出率に直結するものではなく、それらの化学形に依存した蒸発特性に 影響されるためであると考えられるが、現在のところ I のペレット内での挙動(特に化学形 態等)に関する知見は少なく、I の瞬時放出率とペレット内の挙動を結びつける知見は得られ ていない。

#### d. Csの瞬時放出率と核分裂生成ガス放出率との関係

Csの瞬時放出率については、Lassmann ほか(2002) が示した Cs のペレット中の拡散係数が Xe の拡散係数の 0.66 倍に相当するという関係から FGR の  $1/\sqrt{3}$  倍を設定している。この方 法は、最新の性能評価書であるスイスの STG-E2 性能評価のためのソースターム評価 (Johnson, 2014) や先行研究 (原子力機構, 2017) においても採用されている。しかしながら、本年度 に Cs と FGR の関係性について文献調査した結果、必ずしも  $1/\sqrt{3}$  倍の関係性に従わないデー タもあることがわかった。

国内 BWR でベース照射後の FP ガス放出率とペレット径方向の Cs の再配列比の関係 (Ohuchi and Sakurai, 1998、原子力発電技術機構, 2002a)を図 3.1-18 に示す。図 3.1-18 左側の Cs の径方向の再配列比はマイクロ  $\gamma$ 線スキャンデータをもとに評価され、FGR はマイクロ  $\gamma$ 線 スキャン試料と隣接したペレット試料の溶解試験から得られたデータであり、両者の相関に 高い信頼性が期待される。図 3.1-18 右側の結果は Cs の径方向の再配列比はマイクロ  $\gamma$ 線ス キャンデータであるが燃焼度補正がなされている。また FGR は当該燃料要素平均値である。 図 3.1-18 左側では FGR と Cs の放出率が 1:1 の関係で相関するのに対し、図 3.1-18 右側も FGR と Cs の関係に 1:1 の関係があるが×0.5~×2 倍程度のばらつきが確認される。

次に、PWR 燃料ペレットの径方向の Cs 濃度分布から得られた Cs 放出率と燃料要素平均の FGR の比較結果を図 3.1-19 に示す。この測定では、EPMA による Xe 濃度分布も測定されてい るものの、ペレット内の Xe 濃度を正確に示していないとの判断から、パンクチャ試験による FGR を比較対象としている。図 3.1-19 の結果から、Xe と Cs の放出率は良く一致しているこ とがわかる。EPMA 分析でサブミクロン以上の気泡内に閉じ込められた Xe に対する検出感度 が気泡径と共に急激に低くなることについては、 Rest ほか(2019)も指摘しており、EPMA で 捉えられない微細空隙中の Xe が XRF 分析において確認できることを報告している。また、 RISO プロジェクトにおいて実施されたベース照射された UO<sub>2</sub> セグメント燃料棒を用いたラン プ試験において XRF 分析により測定されたペレット径方向 Cs 分布 (マイクロ γ スキャン) と Xe 分布 (XRF 分析) の関係でも、Xe と Cs の放出率が 1:1の関係性が確認できる (Manzel and Walker, 2000)。

本調査だけで Cs の IRF と Xe の放出率(すなわち FGR)の相関関係を見直すのは早計であるが、今後も IRF と FGR の相関関係から IRF を評価する場合には、その相関係数を再検討することが必要と考えられる。



図 3.1-18 ペレット径方向 Cs-137 局所配列比と局所 FP ガス放出率の関係 (左: Ohuchi and Sakurai, 1988 Fig. 12 を改訂、右:原子力発電技術機構, 2002a 図 3.1.13-10 を改訂)



図 3.1-19 ペレット径方向 Cs 放出率と燃料要素平均の FP ガス放出率との関係 (Manzel and Walker, 2000 の数値をもとに作図)

Lassman ほか(2002) も EPMA が大きな径の気泡に含まれる Xe の検出感度が悪くなることを 承知しており、ペレットの最外周部のデータを除いた EPMA データから Xe と Cs の局所放出率 の関係を評価している。しかし、(とくに高燃焼度燃料について)リム領域とは異なるより燃 料ペレットの中心に近い領域で EPMA により確認できない Xe の存在が疑われている報告もあ ること (Rest et al., 2019)、これまでの IRF の設定方法は多くが文献情報にもとづいてお り、EPMA 分析を使用した試験結果も含まれるため、Cs の IRF が分析方法によらず十分な保守 性をもっていることを確認しておく必要がある。

#### e. CIの瞬時放出率

塩素 (C1) は C1-35 と C1-37 の 2 種類の安定同位体があり、長半減期核種は半減期が  $3.0 \times 10^5$ 年の C1-36 のみである。原子炉内の C1-36 の生成要因は C1-35 の中性子捕獲反応 ( $^{35}$ C1 +  $^{1n}$ →  $^{36}$ C1 +  $\gamma$ ) であるが、使用済燃料中の存在形態は良くわかっていない (Hummel, 2017)。 これまでの各国の性能評価書の C1-36 の IRF の設定根拠としては、Tait ほか(1997) が実施 した未照射および照射済 CANDU 炉燃料中に不純物として含まれる C1 含有率の測定結果をも とに評価した結果が適用されている。本年度、使用済燃料中の C1-36 の IRF に関する知見を 調査したが、新たな知見は得られなかった。

#### ④ セレン 79 (Se-79) の瞬時放出

Se は 6 種類の安定同位体(Se-74、Se-76、Se-77、Se-78、Se-80、Se-82)、1 種類の長半 減期の同位体 Se-79(半減期 3.3×10<sup>5</sup>年)と2 種類の主な短半減期の同位体 Se-75(半減期 119.78日)とSe-72(半減期 8.5日)があり、その他の Se 同位体の半減期は8時間よりも 短い。処分場閉鎖後の長期安全評価では Se-79が重要となる。Se-79は原子炉内において Se-78の中性子捕獲反応により生じる。Se-78の中性子捕獲反応の反応断面積は0.4005 burn と 低いが、放射化生成物の Se-79の半減期が長いこと、および Se-78の安定同位体中の存在比 が23.77%と比較的多量に存在するので、被ばく線量に関連するのに十分な量の Se-79が生 じる。Se-79は酸化還元条件に敏感な核種であり-II価、-I価、0価、IV価、VI価の酸化数を とる可能性がある。過去の性能評価書(例えば、スウェーデンの SR-Site 性能評価(SKB, 2011))では炉内照射時の Se の移行性と価数による存在形態の不確実性を排除できないため 核種インベントリの一部を瞬時放出として取り扱っている。Se の瞬時放出率の設定方法は、 炉内で Se が揮発性となることを仮定して FGR と相関させて設定している国(例えば、スウェ ーデン)と、浸出試験時の液相中への Se の放出量が少ないことから、この以上は放出しない という考えられる量をバウンディング値として設定している国(例えば、スイスなど)があ る。

欧州連合(EU)の「FIRST-Nulides」プロジェクトでは、高燃焼度燃料の燃料ペレット内の Seの存在形態に着目した研究が実施された。Curti ほか(2014)は、2ヶ所のBWR 原子力発電 所の高燃焼度燃料ペレット(Leibstadt 炉(スイス、平均燃焼度 78.7 GWd tU<sup>-1</sup>)、Oskarsham-3 炉(スウェーデン、平均燃焼度 62.9 GWd tU<sup>-1</sup>))についてマイクロ X 線吸収分光( $\mu$ -XAS) /マイクロ蛍光 X 線法( $\mu$ -XRF)、マイクロ X 線吸収微細構造分析( $\mu$ -XANES)による分析 を実施した。Leibstadt 炉試料を $\mu$  X-ANES により分析し、スペクトルの形状は Na<sub>2</sub>Se(-II)も しくは ZnSe(-II)に類似しているが、全体的に 1~3eV シフトした結果が得られた。この結果 と Lenz ほか(2008)が実施した様々な Se の標準的化合物の K-edge スペクトルの結果との対 比から、燃料ペレット内の Se が UO<sub>2</sub> と同じ蛍石型の分子構造をとっていると推定している。 また、Se の K-edge スペクトルをもとに分子軌道法(ab-initio 法)により分子構造を最適化し たところ UO<sub>2</sub>格子の 0 が Se に置換した USe<sub>2</sub> に類似した構造が得られている。

Se は 0 価で存在する場合には炉内高温時に揮発する可能性があり、IV価もしくはVI価で存 在する場合には 0 価や-II 価の場合よりも溶解度が高い可能性がある (Curti et al., 2014)。 しかし、「First-Nuclides」プロジェクトの成果では金属 Se や Se の可溶性塩は検出されて いない。「First-Nuclides」プロジェクトの成果として示されているように Se が-II 価で UO<sub>2</sub> 構造中の 0 と置換して存在するとした場合は、Se は UO<sub>2</sub>の溶解とともにゆっくり放出される 可能性がある (Hummel, 2017)。

#### ⑤ 炭素 14 (C-14) の瞬時放出

使用済燃料からの C-14 は、ペレット-被覆管間のギャップ(プレナム等のすき間を含む)、 燃料ペレットの結晶粒界やクラックのほか被覆管の酸化被膜などから放出される。使用済燃 料の C-14 の主な成因は、燃料ペレットや被覆管に含まれる N-14 や 0-17 の中性子捕獲反応に よるものである(Johnson and Tait, 1997)。

近年の EU 共同研究プロジェクトでは、「First-Nuclides」プロジェクトにおいて燃料ペレ ット関係の C-14 の瞬時放出現象、「CAST」プロジェクトにおいて被覆管関係の瞬時放出現象 を取り扱っている。「First-Nuclides」プロジェクトおよび「CAST」プロジェクトでの成果概 要を以下に示す。

#### a. 燃料ペレット関係の C-14 の瞬時放出現象

EUの「First-Nuclides」プロジェクト(Kienzer et al., 2013; Mennecart et al., 2014) では、スイスの Gösgen 炉(PWR) で照射された PWR 使用済燃料(燃焼度 50.4 GWd tHM<sup>-1</sup>、照 射期間 1,226 日)に対するプレナム部のガス分析とベルギーの Tihangel 号機で照射された PWR 使用済燃料(燃焼度 50.5GWd tHM<sup>-1</sup>、被覆管付き試料と被覆管除去試料)の 374 日間の浸 漬試験(試験初期溶液 19 mM NaCl+1 mM NaHCO<sub>3</sub>、初期 pH 7.4)が実施された。

Gösgen 発電所の PWR 燃料について燃料中心温度 1,000~1,200 °C、被覆管付近温度 500 °C で安定に存在する可能性がある金属元素および FP の炭化物を調査した結果、被覆管付近の燃 料ペレット中では ZrC として存在する可能性が推定された。また、Glassner (1957) のデータ から C と競合する可能性がある元素としては Cs と Mo があり、これらの  $\Delta$  G 値 (ギプス生成 エネルギー)を比較した結果、C0 もしくは CO<sub>2</sub> が形成される可能性が示唆された (ただし、 Mo のデータは 1,100 K 以上のデータのみ)。実際に Gösgen PWR 使用済燃料 (濃縮度 3.8%、燃 焼度 50 GWd tHM<sup>-1</sup>、平均線出力 26kW m<sup>-1</sup>、FGR = 7.0 % Kr + 8.5 % Xe) のパンクチャ試験で プレナム部より採取されたガスの分析では、ガス相に 0.13 vol% (モル数で 7.2×10<sup>-7</sup> mol) の CO<sub>2</sub> が含まれており、全体の C-14 の総量として 4.6×10<sup>-6</sup> mol (窒素含有率~11 ppm から換 算される C-14 モル数 2.1×10<sup>-4</sup> mol の 0.2 %)が推定された。

また、Tihange1 号機で照射された PWR 使用済燃料(燃焼度 50.5 GWd tHM<sup>-1</sup>、被覆管付き試料と被覆管除去試料)の 374 日間の浸漬試験(試験初期溶液 19 mM NaCl + 1 mM NaHCO<sub>3</sub>、初期 pH 7.4)では、C-14の液相中の濃度は検出下限値未満であり、検出下限値をもとに推定した累積 IRF 値として 1.5%未満と結論している。

燃料ペレットからの C-14 の瞬時放出については、これまで Stroess-Gascone ほか(1996) の CANDU 炉燃料の浸漬試験による 2.7 %をもとに Johnson ほか(2005) が示した保守側の値 (=10 %) がスウェーデンの SR-Site 性能評価書等で適用されている。First-Nuclides プロ ジェクトでは、Johnson ほか(2005) が示した 10 %よりも 1 桁程度低い値が得られているが、 C-14 の化学形態や C-14 の液相濃度の分析方法等に不確実性があることを理由に、直近の IRF 設定値であるスイスの STG-E2 性能評価のための値(Johnson, 2014)においても従来の 10% が使用されていることがわかった。

#### b. 被覆管関係の C-14 の瞬時放出現象

被覆管関係の C-14 の瞬時放出に関しては、国際学会「Migration-2017」において、2018 年 3月に研究が終了した EU プロジェクト「CAST」の成果が公開されており、それ以外の新たな 知見は確認できなかった。

「CAST」プロジェクトの研究対象は、放射化金属廃棄物(炭素鋼、ステンレス鋼等の鋼材 とジルコニウムおよびジルコニウム合金)、廃イオン交換、黒鉛であり、これらのうち地層処 分に関連する鋼材とジルコニウム/ジルコニウム合金の関連事項を調査した。

鋼材およびジルコニウム/ジルコニウム合金中のC-14の主な起源は不純物として存在する窒素である。

「CAST」プロジェクトでは、炉内構造物、圧力容器、燃料集合体等に使用される低炭素含 有率の鋼材(ステンレス鋼)を中心として研究が進められた。材料中の窒素含有率は、材料 中の窒素含有率と材料が受けた熱中性子フルエンスにより幅広くばらつくことが確認できた。 また、プロジェクトに参加した廃棄物管理機関から報告された原子炉材料中の C-14 濃度は、 炉心構造物で 10<sup>5</sup> Bq g<sup>-1</sup>のオーダ、圧力容器では 10<sup>3</sup> Bq g<sup>-1</sup>のオーダであった。ステンレス鋼 の無酸素条件での一様腐食の腐食速度は、アルカリ性条件では非常に遅い速度であり 0.01  $\mu$ m y<sup>-1</sup>未満の測定結果が報告されている。また、照射済ナットを pH=12.5 のセメント平衡模擬 間隙水(ポルトランダイトとの平衡)に 412 日間浸漬させた試験では、ギ酸、酢酸、シュウ 酸、グリコール酸、乳酸といったカルボン酸と少量のメタン、エタンが検出されている。

ー方、ジルコニウム/ジルカロイ合金の窒素含有率は、21 年間超に及ぶ 100,000 体の燃料集合体を解析したフランスの研究成果では、ジルカロイ-4 について 34±10ppm と報告があるほか、窒素の不純物レベルについては多くは 100 ppm を超えない濃度が報告されている。窒素はジルコニウム中に固溶して存在するのに対し、炭素はジルコニウム中の溶解度が低く(~100 ppm)、面心立法型の炭化物(fcc-ZrC)として沈殿すると推定されている。CAST プロジェクトで調査されたジルコニウム/ジルカロイ合金中の C-14 の濃度は 10<sup>4</sup> Bq kg<sup>-1</sup>のオーダ(0.03~0.08 Bq kg<sup>-1</sup>)であった。また、日本の BWR 使用済燃料の被覆管(ジルカロイ-2)を調査した結果では、被覆管に含まれる C-14 の 92.5 %が基盤金属中に、7.5 %が酸化被膜中に存在する結果となった。これまでの性能評価書(スウェーデン SR-Site (SKB, 2011)、等)では、Yamaguchi ほか(1999)が報告した PWR 使用済燃料中のハルにおける測定結果をもとに、被覆管に存在する C-14 の瞬時放出率を低く抑制できる可能性が示された。またジルコニウム/ジルコニウム合金の腐食速度は、無酸素かつアルカリ性条件では非常に遅く、全体的に 10<sup>-2</sup> µm y<sup>-1</sup>以下、浸漬開始 6 年後で 1 nm y<sup>-1</sup>未満(すなわち 10<sup>-3</sup> µm y<sup>-1</sup>未満)の結果が得られている。

また、ジルコニウム/ジルコニウム合金から放出される C-14 の化学形態については、熱力 学的な研究も実施された。ジルコニウム/ジルコニウム合金中から放出する C-14 の化学形態 としては、浸漬試験の結果から低級のカルボン酸、アルデヒド類、アルコール類が確認され ている。一方で、メタンやエタン等のガス状形態をとる C-14 の存在があり、C-14 がこれらの 化学形態をとる場合は核種移行経路上でのバリア材への吸着が期待できない。CAST プロジェ クトでは、これらの低級のカルボン酸、アルデヒド類、アルコール類の解離定数が調査され た。図 3.1-20 左側は、これらの解離定数をもとに実施された化学計算の結果(Neeft, 2018, Wieland and Hummel, 2015)であり、メタン(CH<sub>4</sub>(aq))を考慮した pH-Eh ダイアグラムであ り、右側はメタン(CH<sub>4</sub>(aq))を考慮していない pH-Eh ダイアグラムである。化学計算におい て化学平衡を仮定しており、アルコール類がメタンになる反応は反応速度が遅いことからメ タンが生成しないという仮定をたてるとメタンを考慮しない右側の pH-Eh ダイアグラムの方 が被覆管の浸漬試験の結果を説明できる。中性~アルカリ性領域での支配化学種はカルボン 酸が解離したアニオン種が支配化学種となる。



図 3.1-20 C-H-O 系の支配化学種のダイアグラム (Neeft,2018 (原図は Wieland and Hummel,2015) のグラフに追記)

# ⑥ モリブデンおよびテクネチウムの瞬時放出率

これまでにとりあげた元素以外に放出挙動が特徴的だったのは Mo と Tc である。González-Robles ほか(2015) は、平均燃焼度が同程度で照射時間が異なる PWR 使用済燃料(平均燃焼 度 52GWd tU<sup>-1</sup>、平均線出力 30.9kW m<sup>-1</sup>、照射時間 975 日)と BWR 使用済燃料(平均燃焼度 53 GWd tU<sup>-1</sup>、平均線出力 19.1 kW m<sup>-1</sup>、照射時間 1,368 日) について被覆管付き試料の浸漬試験 (浸漬期間 200 日以上、大気雰囲気条件、1.9 mM NaCl+1 mM NaHCO<sub>3</sub>水溶液)を実施した。試 験溶液中の各元素の濃度を濃度の立ち上がりを見て 3 つの期間に分け、ギャップ+結晶粒界 に含まれる元素と内部粒界に含まれる元素に区別している。10 日後と 200 日後の各元素の IRF を図 3.1-21 に示す。炉内で揮発性となると考えられる Cs、Rb は早期(10 日後)に放出 していることがわかる(10 日後と 200 日後の Total IRF の値が近い)。Tc は 200 日後で IRF に対する内部粒界の寄与が高い。ただし 10 日後の IRF 値は、IRF 合計値と内部粒界の IRF の 大小関係が逆転しており 10 日後の Tc の IRF 値は信頼性に乏しいと考えられる。Mo は文献中 では具体的な考察等はないが、Tc の同様に内部粒界の寄与が高い。

FIRST-Nuclides プロジェクトにおいて実施された燃料試料の溶解試験 (Serrano-Purroy et
al., 2014)の事例を以下に示す。使用済燃料のセグメントペレット試料(Pellet)、ペレットの内側部分(CORE)、およびペレットの外側部分(OUT)を浸漬させた試験が実施された。最長 190日の浸漬試験の結果得られた。ペレット試料、CORE 試料、OUT 試料の浸漬試験の結果として、Rb、Sr、Mo、Tc、およびCsのIRFの結果を表 3.1-6に示す。CORE 試料とOUT 試料のIRFを比較すると、Mo、Tc の結果が顕著に異なっており、CORE 試料では溶解性が乏しい化学形態(固溶体等)であり、OUT 試料では比較的水に溶解する化学形態となっていることが推定されている。なお、Pellet 試料試料のIRF は粉末試料(CORE 試料および OUT 試料)のIRF に比べて 1 桁程度小さな値を示しているが、別途測定された比表面積を考慮すると同等の値にあることが確認されている。

	· ~ //H		
IRF (%)	Pellet	CORE	OUT
Rb	$0.11 \pm 0.01$	$0.8 \pm 0.1$	$0.9 \pm 0.1$
Sr	$0.05 \pm 0.01$	$0.7 \pm 0.1$	$0.7 \pm 0.1$
Мо	$0.12 \pm 0.01$	_	$0.9 \pm 0.1$
Tc	$0.09 \pm 0.01$	_	$0.5 \pm 0.1$
Cs	$0.24 \pm 0.01$	$2.1\pm0.2$	$1.6 \pm 0.2$

表 3.1-6 ペレットの採取場所、試料形態を変えた浸漬試験の Rb、Sr、Mo、Tc、Cs の IRF の結果

注) 「-」は検出下限値未満であることを示す。

このほか、First-Nuclides プロジェクト報告書(Kienzler et al. (ed.), 2014)では、PWR 試料および BWR 試料の浸漬試験を実施し、試料の形状によって Mo の累積濃度に明確な違いが あることが述べられている。STUDSVIK のチームが実施した浸漬試験(Roth et al., 2014)の 0.5年後の Mo-100の累積放出率を図 3.1-22 に示す。図 3.1-22 において、L04 および L07 は 被覆管で覆われた BWR 燃料ペレット、03C1 および 5A2 が BWR 燃料ペレット片と被覆管をばら した試料、VG81 が PWR 燃料ペレット片と被覆管をばらした試料である。L04 および L07 とい った被覆管で覆われた BWR 燃料ペレットの放出率が、燃料ペレット片と被覆管をばらした試 料に比べて低いことがわかる。



図 3.1-21 10 日後と 200 日後の液相濃度(FIAP)から求めた各元素の IRF (González-Robles et al., 2015 Table 6 より作図)





# ⑦ 高燃焼度燃料のリム領域からの核種の瞬時放出

リム領域は高燃焼度燃料に特有の現象であり、ペレットの最外周部から顕在化する特異的 なリム組織(HBS=High Burnup Structure)により特徴づけられる。リム組織の特徴は、約10 µm サイズの製造時結晶粒からのサブミクロンサイズの微細粒(再結晶粒)への細粒化、サブ ミクロンからミクロンサイズの新たな気泡の形成(粗大化気泡の形成)である。Manzel and Walker (2000)は、燃焼度 67 GWd tU<sup>-1</sup>と 102 GWd tU<sup>-1</sup>のペレット外縁部の金相写真を示して おり、ペレットの中心側から外縁部に向かってリム気泡の径が大きくなること、また Mo を含 む白色金属析出物の粒径もペレット外側に向かって大きくなる傾向を示している。リム領域 は燃焼に伴う U-238 の熱外中性子の共鳴吸収によりペレット外縁部に Pu-238 が蓄積する核 的リム効果などによりとくにペレット外縁部を最高点として局所燃焼度が上昇する。燃料棒 平均燃焼度が98 GWd tHM<sup>-1</sup>に到達した PWR 使用済燃料の局所燃焼度と空隙率の半径方向の分 布を図 3-23 に示す。ペレット外縁部は局所燃焼度と空隙率が急激に増加し、この PWR 使用済 燃料の事例ではペレット外縁部の局所燃焼度は210 GWd tHM<sup>-1</sup>に達している。





リム空隙には周囲の粒内バブルよりも高圧で FP ガスが閉じ込められているが、FP ガスや 炉内揮発性 FP はほとんど放出されていないことが現状認識されている(例えば、Nogita and Une, 1995)。しかし、冷却水喪失事故(LOCA)や反応度事故(RIA)のようなペレット外縁部 の温度が急激に上昇するような状況を想定し、燃焼度が 36~86 GWd tU<sup>-1</sup>の被覆管無し試料を 1.7~4,600 °C s<sup>-1</sup>で 600~1,800 °Cに加熱する炉外試験では、バブル内の内圧上昇によるマ イクロクラックの増加(リム領域組織の粉砕化)による FGR の急増加が確認されている(Une et al., 2006)。また、スイスの Gösgen 原子力発電所より取り出した PWR 使用済燃料の浸漬 試験(González-Robles et al., 2016)では、試料を浸漬中に FP ガスが継続的に放出される 現象が確認されている。このようにリム空隙に FP ガスが蓄圧している場合、局所的に FGR を 増加させる可能性がある。また、この結果は、ペレット内での FP 元素の化学形態の相違が核 種の溶出特性に影響することを示している。しかしながら、リム領域における FP 元素の化学 形態と FP 元素の放出挙動を組み合わせた調査事例が見当たらなかった。

# 3) 燃料溶解速度

DISCO (Modern Spent Fuel Dissolution and Chemistry in Failed Containers) プロジ エクトは欧州連合 (EU) が進めている国際プロジェクトであり、欧州 8 ヶ国 16 機関の研究 機関が参加し、2017 年 6 月 1 日より 4 年間 (48 ヶ月)の計画で開始されている。本プロジ ェクトの目的は、以下の 2 点である。

- 代表的な還元性処分環境下における使用済燃料の溶解挙動の理解の向上
- 新しい種類の燃料(MOX、Cr ドープ燃料)の溶解挙動の評価

本プロジェクトでは、溶解試験と核種放出現象のモデル化の両面から研究される計画であ り、溶解試験では、①使用済燃料、②α-ドープ試料、③UO2試料の3種類が使用される。使 用済燃料は、新しい種類の燃料のほか、一部 First-Nuclides プロジェクトにおいて燃料特性 を調査されていない燃料について実施される予定である。

試験溶液は、重炭酸水 (Bicarbonate Water)、Ca 共存初期セメント水 (Yang cementitous water with Ca)、模擬 Cox 水 (Callovo-Oxfordian Water)を基本とし、一部の α-ドープ試料の溶解試験ではフィンランドの実地下水の使用も検討されている (Riba and Duro, 2017)。

使用済燃料についての試験リストを表 3.1-7 に示す。DISCO プロジェクトは燃料溶解に関 するプロジェクトであるが、一部の使用済燃料については IRF も調査される予定であるが、 Cr ドープ燃料は IRF の調査対象とはなっていない。溶解試験の雰囲気条件は、酸化性雰囲気 条件、亜ニチオン酸塩や水素(H<sub>2</sub>)を共存させた還元性条件が設定されている。

また、プロジェクトで計画されている α-ドープ試料と UO<sub>2</sub>標準試料の試験リストを合わせ て表 3.1-8 に示す。

試験溶液	雰囲気条件等	燃料の 種類	燃焼度 (GWd/tHM)	繰返し 試験数	試験試料	研究機関	研究対象
	低酸素条件	MOX	40~60	2	被覆管付きセグメ ント試料(2.5mm)	JRC	IRF, マトリクス
	低酸素条件、亜 ニチオン酸によ る還元性条件	U02	60	1	被覆管付きセグメ ント試料(2.5mm)	CTM	IRF, マトリクス
重炭酸水		MOX	38	3	被覆管付きセグメ ント試(10mm)、 燃料切断片	KIT-INE	IRF, マトリクス
(pH~8.3) 還元性条件 (H <sub>2</sub> 雰囲気条 件)	$UO_2$	57.1	1	被覆管除外燃料切 断片	Studsvik	マトリクス	
	U0 <sub>2</sub> - Cr/A1 ド ープ	59.1	1	被覆管除外燃料切 断片	Studsvik	マトリクス	
	U02-Cr ドープ	60	1	被覆管除外燃料切 断片	JRC	マトリクス	
Ca 共存初期セ メント水	酸化性条件 (大気平衡条 件)	$UO_2$	60	1	被覆管付きセグメ ント試料(2.5mm)	CTM	IRF, マトリクス
(pH~13.5)	還元性条件	U0 <sub>2</sub>	60	1	被覆管付きセグメ ント試料	CTM	IRF, マトリクス

表 3.1-7 使用済燃料試料に対する溶解試験のリスト

Riba and Duro, 2017 の表を和訳

JRC: Joint Research Center, CTM: Centre Tecnològic de Manresa, KIT-INE: Karlsruhe Institute of Technology, Institute for Nuclear Waste Disposal, STUDSVIK: STUDSVIK NUCLEAR AB

DISCO プロジェクトでは、2018 年 5 月に 1 回目の国際進捗ワークショップが開催され、発表された論文が公開されている。その内容は試験試料の調整や試験の準備がほとんどであったが、一部使用済燃料からの IRF の予察試験が公開されていたので以下に示す。

この予察試験は、PWR 使用済燃料(局所燃焼度 73 GWd tU<sup>-1</sup>)より採取した被覆管付き試料 (ペレット間の境界を含まない)を大気条件下で 120 日間浸漬させた試験である(Iglesias et al., 2018)。試験溶液は、初期セメント平衡水(73YCWCa:pH 13.4、[CO<sub>3</sub><sup>-1</sup>]濃度 2.5 mMol·L<sup>-1</sup>) と模擬炭酸水(73BIC:pH7.4、[CO<sub>3</sub><sup>-1</sup>]濃度 1 mMol·L<sup>-1</sup>)である。試験の結果得られた Cs、 Rb、Sr、Mo、Tc の IRF の結果を図 3.1-24 に示す。初期セメント平衡水の試験溶液では Cs、 U、Mo の濃度は早期に上昇することが確認されたが、模擬炭酸水の試験溶液では Mo 濃度の上 昇は確認されていない。試験試料に同じ Mo 鉱物が含まれていたとすると、試験溶液の相違も Mo 等の IRF に影響するものと考えられる。また、試験溶液中のU 濃度は、初期セメント平衡 水の方が模擬炭酸水よりも 2 桁程度高い結果が得られている。この段階では試験の結論は出 ていないが、模擬炭酸水では U の溶解速度が遅いか、難溶性の二次鉱物の生成を推定してい る。

DISCOプロジェクトでは、今後 MOX 燃料やCr ドープ燃料の溶解試験を実施するだけでなく、 いくつかの IRF に関する試験データも溶解試験の結果とあわせて公開される可能性があり、 これらのデータについては継続して調査していく必要がある。また、Mo 等の白色金属相につ いては、ペレット内の不均質性とともに浸入する地下水組成にも着目して検討する必要があ

試験試料	重炭酸水 (必要に応じて成分添加) 還元性低酸	Ca 共存初期セメント水 (pH~13.5) 注素条件	模擬 Cox 水 (±金属 Fe)	天然地下水 (+金属 Fe)
UO2 (標準試料)	Juelich, SCK-CEN, USFD	Juelich, SCK-CEN		
α-ドープ UO <sub>2</sub> 試料 (Pu-238/U-233)	Juelich, SCK-CEN, VTT	Juelich, SCK-CEN	_	VTT
UO <sub>2</sub> +Cr/Al	Juelich, SCK-CEN, Ciemat, USFD	Juelich, SCK-CEN, Ciemat	—	—
UO <sub>2</sub> +Gd	Ciemat	Ciemat	_	_
UO <sub>2</sub> +Cr/Al+αドープ試料 (Pu-238/U-233)	Juelich, SCK-CEN, VTT	SCK-CEN, Juelich	_	VTT
UO <sub>2</sub> +Gd+αドープ試料 (Pu-238/U-233)	Ciemat	Ciemat	_	_
未照射 MOX 試料 (均質, U <sub>x</sub> Pu <sub>1-x</sub> O <sub>2</sub> , 高α)	_	_	CEA	_
$MOX (U_x Th_{1-x}O_2)$	UCAM	UCAM	—	_

# 表 3.1-8 α-ドープ試料と UO2 標準試料に対する溶解試験リスト

Riba and Duro,2017 を和訳

Juelich: Forschungszentrum Jülich GmbH, SCK-CEN: Studiecentrum voor Kernenergie -Centre d'étude de l'Energie Nucléaire, VTT: VTT Technical Research Centre of Finland Ltd, UCAM: University of Cambridge, CEA: Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives, USFD: University of Sheffield, CIEMAT: Centro de Investigaciones Energéticas





# 3.2 緩衝材の長期挙動評価

# (1) 本項目の背景と目的

# 1) 調査対象

使用済燃料の直接処分においては、使用済燃料集合体を収容する処分容器の材料として、 長期の寿命が期待できる銅が候補材料の一つとして考えられる。銅製の処分容器については、 スウェーデンやフィンランド等において処分への適用が検討されてきており、諸外国の知見 を活用することが可能である(SKB, 2011; POSIVA, 2012)。一方で、銅処分容器をわが国の 処分へ適用する上では、わが国の処分環境において想定される地下水条件や人工バリア等の 設計条件に関して、銅処分容器の適用性を独自に検討し、知見の拡充を行っていく必要があ る。

銅製の処分容器の適用性を評価する上では、腐食挙動等の処分容器自体の寿命に関するデ ータを拡充することが重要であると同時に、処分容器の周囲に圧縮ベントナイトが配置され ることから、ベントナイトの膨潤性や放射性核種の収着能の低下を引き起こす可能性のある 銅の腐食に伴う圧縮ベントナイトの変質についても評価を行うことが必要である。平成 29 年 度まで実施した先行事業においては、銅の腐食反応に伴うベントナイトの変質に関する調査 として、低酸素雰囲気下、硫化水素イオン共存条件に限定し、変質挙動について概略的な分 析を行った(原子力機構, 2017; 2018)。本調査では、先行事業より試験条件や分析手法を 拡充し、より詳細な変質挙動の調査を行うとともに、調査においては、以下に記すわが国の 地層処分に特有の条件を考慮する。

わが国の地層処分特有の条件として、まず、ベントナイトとしてクニミネ工業製のクニゲ ル V1 の使用が想定されることが挙げられる。クニゲル V1 は、包括的技術報告書レビュー版 においてもベントナイトの候補材料として選定されており(原子力発電環境整備機構,2018)、 わが国において直接処分を想定する場合においても、クニゲル V1 をベントナイトの候補材料 と想定することが適切と考えられる。これに対し、銅製処分容器の使用が予定されている諸 外国においては、他種ベントナイトが使用されることから、クニゲル V1 を対象としたデータ 取得はほとんど行われていない。ベントナイトの種類が異なる場合、その変質挙動も異なる 可能性があることから、クニゲル V1 を対象とした評価を行うための基礎データの拡充が必要 である。また、わが国の地層処分においては、炭酸濃度の高い地下水環境を有するサイトが 処分場として選定される可能性が想定されることを考慮する必要がある。包括的技術報告書 レビュー版において、処分場設計の対象とする地下水中の全炭酸濃度は 4.7×10<sup>-2</sup> mol 1<sup>-1</sup>ま で設定されており(原子力発電環境整備機構、2018)、直接処分においても同様の地下水環 境への処分を考慮しておく必要があると考えられる。さらに、包括的技術報告書レビュー版 においては、廃棄体の定置技術として PEM(Prefabricated Engineered Barrier System Module) を適用した方式が検討されている(原子力発電環境整備機構,2018)。この方式においては、 廃棄体と人工バリアを PEM 容器に入れて一体化し、地下施設に搬入して定置することが想定 されている。PEM 容器は鋼製が想定されているため、PEM 容器の腐食に伴い鉄腐食生成物等が 圧縮ベントナイト中に移行することから、銅の腐食反応に伴うベントナイトの変質に及ぼす 鉄腐食生成物の影響を評価することが必要である。

上記の検討より、わが国の地層処分に特有の条件として、ベントナイトとしてクニゲル V1

の使用が想定されること、炭酸濃度の高い地下水環境を有するサイトが処分場として選定される可能性が想定されること、PEM 容器の腐食により生成する鉄腐食生成物の影響が想定されること、の3点に着目し、銅の腐食に伴う圧縮ベントナイトの変質について調査を行う。

# 2) 調査手法

本調査において対象とする変質環境として、廃棄体定置後に圧縮ベントナイト等に残存す る酸素による銅製処分容器の腐食に伴うベントナイトの変質と、残存する酸素が消費され、 周辺が還元条件になった環境での銅製処分容器の腐食に伴うベントナイトの変質を想定する。 酸素が残存する比較的酸化性の条件では、溶存酸素による銅の酸化によって銅が腐食する。 この際、塩化物イオンが腐食に関与することが知られている(King et al., 2002)。一方で、 酸化剤が存在しない環境では銅は熱力学的に安定であり、腐食は起こりにくいものの、硫化 水素イオン共存下では水の還元反応をカソード反応とした腐食により硫化銅が生成し、腐食 が進展することが知られている(谷口ほか, 2007)。これらのことを考慮し、本調査では、 酸化性雰囲気では NaCl 溶液条件下で、還元雰囲気では硫化水素イオン共存下で銅を腐食さ せ、それに伴うベントナイトの変質について調査する。

対象とするベントナイトの変質については、圧縮ベントナイトに期待される機能に影響を 及ぼす変質として、ベントナイトの主要構成鉱物であるモンモリロナイトの他鉱物への変質 と、銅製処分容器の腐食に伴い放出される銅イオンがモンモリロナイトへ収着することによ り起こるモンモリロナイトの Cu 型化について検討を行う。モンモリロナイトが他鉱物へ変質 した場合(特に、非膨潤性鉱物に変質した場合)、ベントナイトに期待される膨潤性が失わ れるとともに、ベントナイトの陽イオン交換容量が低下し、放射性核種の収着能が低下する 可能性がある。また、モンモリロナイトの Cu 型化については、Na 型から Cu 型への変化に伴 う膨潤挙動の変化に加えて、陽イオン交換容量や膨潤挙動の低下の可能性も報告されている (たとえば、Made jová et al., 2006)。このことから、ベントナイトの特性に大きな影響を 及ぼすと考えられる上記のベントナイト変質現象について、調査の対象とすることとする。

調査では、銅とベントナイトの相互作用に伴うベントナイトの変質挙動を調査するための 手法として、カラムを用いてベントナイトを圧縮した状態で銅試験片と接触させて変質挙動 を観察するカラム変質試験と、溶液中にベントナイトと銅粉を分散させて変質挙動を観察す るバッチ変質試験の2種類の手法により変質挙動の検討を行う。カラム変質試験は、圧縮ベ ントナイトが直接銅に接触しているため、圧縮ベントナイトが周囲に配置された状態で銅製 処分容器が腐食し、それに伴うベントナイトの変質が想定される実際の処分環境に近い状態 で変質挙動を観察することが可能である。そのため、実際の処分環境において発生する現象 や変質速度等を評価することが可能な試験体系である。一方で、銅の腐食速度が遅いことや 銅とベントナイトの接触面積が限られていることなどから、ベントナイトが変質した場合で も変質量が少なく、変質挙動の十分な分析が難しい可能性もある。これに対し、バッチ変質 試験の場合には、銅粉を使用するため銅の表面積が大きく、また、ベントナイトに対する銅 の比率を上げることができるため、銅の腐食に伴うベントナイト変質の可能性を調査するの に適している。また、ベントナイトが変質した場合、変質量が大きくなると考えられ、カラ ム変質試験に比べて銅の変質挙動を観察することが容易になると考えられる。加えて、溶液 の組成変化等を観察することが可能であるため、銅の腐食やベントナイトの変質に伴う鉱物 の溶解等についても、溶液組成の変化から推測することが可能である。しかしながら、バッ チ変質試験は、圧縮ベントナイトが銅製処分容器と接触する実際の処分環境とは試験系が大 きく異なっている。本調査では、カラム変質試験においては、実際の処分環境において起こ る現象の把握、バッチ変質試験においては、ベントナイトの変質条件の検討や変質メカニズ ムの理解に焦点を当てて調査を行い、これら2つの手法を組み合わせてベントナイトの変質 についての評価を行う。表 3.2-1 に、試験手法や目的についてまとめる。

試験手法	カラム変質試験	バッチ変質試験	
試験の目的	実際の処分環境環境に近い条件	銅との相互作用によるベントナ	
	での銅との相互作用による圧縮	イトの変質可能性の検討、変質メ	
	ベントナイトの変質挙動の評価	カニズムの理解	
対象とする変質環	・処分場に残存した酸素による酸化性の条件での変質(NaCl 共存下)		
	・残存する酸素が消費され還元条件になった環境での変質(硫化水		
児	素イオン共存下)		
対象とする変質	・モンモリロナイトの他鉱物への変質		
	・モンモリロナイトの Cu 型化		

表 3.2-1 試験手法と目的、対象とする変質現象などのまとめ

### 3) 本年度の調査内容

本年度の調査においては、還元環境での変質を想定した硫化水素イオン共存下でのカラム 試験と、酸化性雰囲気でのバッチ変質試験を実施した。カラム変質試験については、先行事 業において実施した圧縮ベントナイトの乾燥密度 0.8 Mg m<sup>-3</sup>の条件から(原子力機構, 2017; 2018)、より実際の処分環境に近い乾燥密度 1.6 Mg m<sup>-3</sup>の条件へ変更して実施するとともに、 変質挙動をより詳細に分析するため、先行事業でも実施した EPMA による分析に加えて、XRD による鉱物の同定を実施した。また、バッチ変質試験については、先行事業では実施してお らず本調査ではじめて行うことから、まず低酸素雰囲気の維持が不要で技術的に容易な大気 下での試験を実施し、試料の XRD 測定により鉱物の変質状況について調査を行った。

# (2) 硫化水素イオン共存下での銅試験片と圧縮ベントナイトとの接触試験(カラム変質試験)

# 1) 試験手順および条件

カラム変質試験は、図 3.2-1 に示すテフロン製の変質試験カラムを使用して実施した。試 験カラムは、内部にベントナイトを圧縮充填するスペースが設けられており、圧縮ベントナ イトの片側端面には、銅試験片を設置できるスペースが設けられている。圧縮ベントナイト の反対側端面は、フィルターを介して外部の試験溶液と接触しており、試験期間中は圧縮ベ ントナイトの含水飽和状態が維持される構造となっている。圧縮ベントナイトの形状は、直 径 20 mm、長さ 20 mm であり、銅試験片の形状は、直径 25 mm、厚さ 4 mm である。フィルタ ー部の形状は、直径 25 mm、厚さ3 mm であり、孔径 70 μm のポリプロピレン製フィルター板 (フロン工業製・F-3023-02)を使用した。また、このフィルターと圧縮ベントナイトの間に は、ベントナイトの漏出を防ぐため、孔径 0.22 μm の親水性 PVDF メンブレンフィルター(Merck 社製 GVWP02500)を設置した。

先行事業においては、銅との相互作用に伴うベントナイトの変質挙動について、EPMA 観察 により基礎的かつ概略的な評価を行った(原子力機構,2017;2018)。また、ベントナイト はわが国の地層処分において使用が想定されているクニゲル V1 を使用したものの、乾燥密度 が低いほどより銅試験片の腐食が進行し、腐食に伴うベントナイトの変質挙動が観察しやす いと考え、実際の処分場条件とは異なる乾燥密度 0.8 Mg m<sup>-3</sup>で試験を実施した。本調査にお いては、より実際の処分環境に近い条件で変質挙動を観察するため、乾燥密度 1.6 Mg m<sup>-3</sup>の 条件で試験を実施した。試験溶液は、標準的な海水の組成から微量元素を除いた人工海水に、 0.01 mol 1<sup>-1</sup>となるように Na<sub>2</sub>S を添加したものを使用した。試験に用いた人工海水の組成を 表 3.2-2 に示す。銅試験片の材質は無酸素銅 C1020P-1/2H とし、試験温度は 80℃とした。試 験期間は約 40 日とし、試験期間中は低酸素雰囲気を維持した。なお、本調査の結果を先行事 業の結果と比較しやすくするため、試験条件については、乾燥密度と試験期間を除いて先行 事業と同じ条件とした。

試験は、ベントナイト試料を試験カラムに充填した後、酸素濃度1 ppm以下の窒素雰囲気 グローブボックス内に搬入し、図 3.2-1(a)の状態で試験溶液に1ヶ月程度浸漬して、圧縮ベ ントナイトを含水飽和させた。その後、試験カラムの片側の蓋を取り外し、銅試験片を設置 した蓋と取り替えて試験カラムを組み立て、図 3.2-1(b)のように再度試験溶液に浸漬した。 試験カラムを浸漬したテフロン製容器は、雰囲気制御グローブボックス外でも低酸素雰囲気 を維持するため、酸素透過率の低い素材の保存袋に酸素吸収剤とともに溶着して封入し、そ れをさらに同様の方法で酸素吸収剤とともに封入して二重梱包の状態とした。保存袋に封入 した試験カラムは、雰囲気制御グローブボックスより搬出し、80 ℃の恒温槽内で所定の試験 期間加熱した。加熱後、試験カラムを容器から取り出して解体した。EPMA分析用の試料につ いては、圧縮ベントナイトから銅試験片を取り外した後、銅試験片との接触面を含む数 mm 角 程度に圧縮ベントナイトから銅試験片を取り外した後、銅試験片との接触面を含む数 mm 角 たて切断し、金蒸着を行って分析に使用した。XRD 測定用の試料については、圧縮ベント ナイトから銅試験片を取り外した後、圧縮ベントナイトをカラムより押し出して銅試験片と の接触面を含む厚さ約 0.2 mm の切断片を採取し、窒素雰囲気グローブボックス内で乾燥さ せ、めのう乳鉢で粉砕することにより作製した。



図 3.2-1 テフロン製変質試験カラム概略図

元素	濃度(mol 1 <sup>-1</sup> )	元素	濃度(mol 1 <sup>-1</sup> )
C1-	0.56	$\mathrm{K}^+$	0.010
Na <sup>+</sup>	0.48	S04 <sup>2-</sup>	0.029
$Mg^{2+}$	0.055	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.0028
Ca <sup>2+</sup>	0.011		

表 3.2-2 試験に使用した人工海水の組成

# 2) 試験結果

図 3.2-2 に、試験カラムを解体し、銅試験片を取り外した後のベントナイト表面の写真を 示す。銅試験片との接触面は黒色を呈しており、試験期間中に銅の腐食が進んだことがわか る。この黒色に変色した銅試験片との接触界面を含む圧縮ベントナイト試料について、EPMA により分析を行った。図 3.2-3 に、EPMA 分析結果を示す。画像の視野は約 280×280 µm<sup>2</sup>で あり、BEI が観察表面の反射電子像、Cu,S,Fe,Si,Al,Ca,Cl で示す画像が各元素のマッピング 分析結果である。マッピング分析では、色の明るい部分が各元素の濃度が高い部分、色が暗 い部分が濃度の低い部分である。また、各画像下部の Cu の濃度が高い部分が、圧縮ベントナ イトが銅試験片と接触していた界面である。

図 3.2-3 より、銅試験片との接触界面で銅(Cu)の濃度が高くなっており、銅試験片の腐 食に伴って Cu が圧縮ベントナイト中へ移行していることが確認された。この Cu の濃度が高 い部分では S の濃度も高くなっており、試験溶液中に含まれる硫化水素イオンにより銅が腐 食し、硫化銅が生成していることを示していると考えられる。また、図中の白矢印で示す部 分では、Fe, S, Cu の濃度が高くなっていることが確認できる。この粒子は、クニゲル V1 中に 元々含まれる黄鉄鉱 (FeS<sub>2</sub>)であり、Cu はこの粒子付近で高い濃度を示している。検出され た Cu は、黄鉄鉱粒子の周辺部で特に高い濃度を示していることから、黄鉄鉱粒子に元々含ま れている Cu ではなく、銅試験片の腐食により圧縮ベントナイト中に移行した Cu が、ベント ナイト中に含まれる黄鉄鉱の周辺部で沈殿したことを示すものと考えられる。

3 - 39

先行事業の EPMA 分析結果と比較すると、銅試験片との接触界面で Cu と S の濃度が高くなっている傾向が同様であったが、先行事業においては、黄鉄鉱の周辺部での Cu の濃集は観察されていない(原子力機構, 2018)。この結果が、乾燥密度の違いによる影響かどうかは不明である。

XRD による鉱物の同定については、銅試験片との接触界面を含む圧縮ベントナイト試料に ついて測定を行ったものの、新たな鉱物の生成を示すピークは観察されなかった。また、EPMA 分析により生成が推測された硫化銅についても、その存在を示すピークを確認することがで きなかった。



図 3.2-2 試験後の銅試験片との接触面の圧縮ベントナイト試料写真



図 3.2-3 銅試験片との接触界面の圧縮ベントナイト試料の EPMA 分析結果

# (3) 銅粉を用いたバッチ系でのベントナイト変質試験

### 1) 試験手順および条件

バッチ変質試験は、フッ素樹脂製遠沈管に試験溶液と銅粉、およびベントナイトを混合し、 一定期間反応させることにより実施した。ベントナイトは、モンモリロナイト以外の鉱物が ほとんど含まれていない精製ベントナイトであるクニミネ工業製のクニピア F を使用し、粒 径 75~150 µmの銅粉末(関東化学製 銅(粉末)07439-31)を銅試料として使用した。試験 溶液は、0.5 mol 1<sup>-1</sup>の NaCl 溶液とし、試験開始前に1時間程度バブリングを行い、大気平 衡としたものを用いた。試験温度は 80 ℃とし、試験期間は約 35 日とした。試料の液固比は、 試験溶液とベントナイトの比として 20 ml g<sup>-1</sup>及び 50 ml g<sup>-1</sup>の2条件とした。また、各液固 比の試料に対して、銅とベントナイトの比を 4:1, 1:1, 1:4 の3条件で実施した。

試料は、所定の試験期間反応させた後に、定方位試料と不定方位試料を作製して XRD 測定 を行い、新しく生成した鉱物の同定を行った。定方位試料については、試験試料を1分程度 静置した後、マイクロピペットで液面から2 cm 程度の位置から上澄みを採取し、試料板に滴 下、自然乾燥させることにより作製した。不定方位試料は、遠沈管を遠心分離して固相を沈 殿させた後、上澄み液を廃棄して固相を採取し、大気下で乾燥、めのう乳鉢で粉砕すること により作製した。

## 2) 試験結果

図 3.2-4 に、定方位試料の XRD 測定結果を示す。図に示す試料は、液固比 20 ml g<sup>-1</sup>、銅と ベントナイトの比が 1:4 の試料である。測定結果より、Cu のピークに加え、Cu が酸化して生 成した Cu<sub>2</sub>0 及び Cu0 のピークが確認され、試料中で Cu の腐食反応が起こっていることが確 認された。しかしながら、これらのピーク以外にはモンモリロナイトと溶液中に含まれてい る NaCl のピークのみが観察され、その他の鉱物のピークは確認されなかった。この結果は、 不定方位の試料の測定結果でも同様であり、液固比や銅ーベントナイト比が異なる試料でも 同様であった。このことは、本試験の条件において Cu の腐食反応が起こっているものの、そ れに伴ってモンモリロナイトが変質し、新たな鉱物に変化する反応が起こっていないことを 示している。ただし、モンモリロナイトが変質した場合でも、非晶質の物質が生成している 場合には鉱物のピークとして観察されないため、今後、モンモリロナイト量の変化について 分析を実施し、その結果からモンモリロナイト変質の可能性について検討を行う必要がある と考えられる。なお、試験溶液の初期 pH が 5.6 程度、試験終了時の試験溶液の pH は 8~9 の 範囲であり、モンモリロナイトの溶解が顕著となる pH 領域 (pH 10 以上)まで上昇すること はなかった。



図 3.2-4 バッチ変質試験試料の XRD 測定結果(定方位試料)

# 3.3 まとめ

使用済燃料集合体からの核種溶解挙動評価

炭酸共存下における使用済燃料の溶解速度の評価を目的として、ペレット状の二酸化 ウラン(UO<sub>2</sub>)の溶解速度を測定した。得られた溶解速度は全炭酸濃度の増加とともに高 くなることがわかった。また、炭酸共存下におけるウラン(IV)の溶解度測定を実施し たところ、炭酸共存下での溶解度が炭酸を含まない水溶液中の溶解度よりも顕著に高い ことが確認されるとともに、本調査での溶解速度測定試験が定常状態に達していないこ とが推定された。

使用済燃料からの核種放出挙動に関しては、文献調査により、使用済燃料ペレットの 中心部と周辺部で一部の核種の放出挙動が異なることが確認されるとともに、リム領域 と呼ばれる高燃焼度領域での核種放出挙動に注意を払う必要性が確認された。また、従 前は大気下で実施されていた燃料浸漬試験を、処分環境を模擬した低酸素・還元条件で 実施する計画があることを確認した。

使用済燃料の挙動評価については、ウラン酸化物の溶解速度などに及ぼす炭酸影響に ついて、より幅広い条件(ペレット密度の高低など)で実験的調査を実施するとともに、 実験後の固相表面の観察を実施するとともに、還元条件・炭酸共存下におけるウラン溶 解度の信頼性を向上させるためのデータ拡充を行う。また、実際の使用済燃料からの核 種放出挙動に関する実測データ取得のための作業環境整備などを実施する。

・ 緩衝材の長期挙動評価

処分容器の候補材料である銅が腐食した際に緩衝材が受ける影響について、低酸素雰 囲気、硫化水素イオン共存下でのカラム変質試験と、大気雰囲気、NaC1 共存下でのバッ チ変質試験により検討を行った。これまでに得られていない新しい知見として、銅の腐 食に伴って圧縮ベントナイト中に移行した Cu が、圧縮ベントナイト中に元々含まれてい る黄鉄鉱の周辺部に濃集することがカラム試験により確認された。一方で、カラム変質 試験とバッチ変質試験の両試験において、銅の腐食は確認されたものの、XRD による分析 では、モンモリロナイトの変質を示す結果は確認されなかった。 今後は、緩衝材と銅の化学的相互作用や変質などの試験研究を、より幅広い条件(鉄 共存下など)で実施するとともに、粉末 X 線回折以外の分析方法でも変質の有無を確認 する。

# 【参考文献】

- Blanpain, P. and Charelli G. (2001): MOX fuel experience:Present status and future improvements, Proc. Global 2001 International conference on "back-end of the fuel cycle from research to solutions", Paris, France, pp. 9-13.
- Bruno, J., Casas, I., Cera, E., de Pablo, J., Giménez, J. and Torrero, M. E. (1995): Uranium(IV) dioxide and SIMFUEL as chemical analogues of nuclear spent fuel matrix dissolution. A comparison of dissolution results in a standard NaCl / NaHCO<sub>3</sub> solution, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol. 353, pp. 601-608.
- Cachoir, C., Carbol, P., Cobos-Sabate, J., Glatz, J. P., Grambow, B., Lemmens, K., Martínez-Esparza, A., Mennecart, T., Ronchi, C., Rondinella, V. V., Serrano-Purroy, D., Spahiu, K., Wegen D. and Wiss, T. (2005): Effect of Alpha Irradiation Field on Long-Term Corrosion Rates of Spent Fuel, Contract No. FIKW-CT-2001-00192 SFS, European Commission, Deliverable D9.
- Casas, I., de Pablo, J., Clarens, F., Giménez, J., Merino, J., Bruno, J. and Martínez-Esparza, A. (2009): Combined effect of H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> and HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> on UO<sub>2</sub>(s) dissolution rates under anoxic conditions, Radiochim. Acta, Vol. 97, pp. 485-490.
- Curti, E., Froideval-Zumbiehl, A., Martin, M., Bullemer, A., Günther-Leopold, I., Puranen, A., Jädernäs, D., Roth, O., Grolimund, D., Borca C. N. and Velea, A. (2014): X-ray absorption spectoroscopy of selenium in high-burnup UO<sub>2</sub> spent fuel from the Leibstadt and Oskarshamn-3 reactors, FIRST-Nuclides project deliverable report 5.4, Final (3rd) Annual Workshop Proceedings, pp. 127-136.
- De Pablo, J., Casas, I., Giménez, J., Molera M. and Torrero, M. E. (1997): Effect of temperature and bicarbonate concentration on the kinetics of UO<sub>2</sub>(s) dissolution under oxidizing conditions, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol. 465, pp. 535-542 (1997).
- Desgranges, L, Right-Martial, Ch., Aubrun, I., Pasquet, B., Roure, I., Lamontagne, J. and Blay, T. (2013): Evidence of tellurium iodine commponds in a power-ramped irradiated UO<sub>2</sub> fuel rod, Journal of Nuclear Materials, 437, pp. 409-414.
- Evins, L. Z., Juhola, P. and Vähänen, M. (2014): REDUPP final report, Working Report 2014-12, Posiva Oy (2014).
- 原環機構(原子力発電環境整備機構)(2018): 包括的技術報告:わが国における安全な地層 処分の実現-適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築-(レビュー版)、 NUMO-TR-18-03.
- 原子力安全基盤機構(1999): 平成10年度軽水炉改良技術確証試験(高燃焼度等燃料に関す るもの)に関する報告書.
- 原子力安全基盤機構(2007): 平成18年度高燃焼度 9×9 型燃料信頼性実証成果報告書(総合評価編),07基炉報-0002.
- 原子力安全基盤機構(2008): BWR 燃料照射後試験における測定燃焼度評価の見直し, JNES-

SS-0807.

- 原子力安全協会(2013): 軽水炉燃料のふるまい,実務テキストシリーズ No. 3(改訂第5版).
- 原子力発電技術機構(2002a): 平成13年度高燃焼度等燃料安全試験に関する報告書(BWR 高 燃焼度燃料総合評価編)
- 原子力発電技術機構(2002b): 平成13年度高燃焼度等燃料安全試験に関する報告書(PWR 高 燃焼度燃料総合評価編)
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構) (2015a):わが国における使用済燃料の地層処分シ ステムに関する概括的評価-直接処分第1次取りまとめ-、JAEA 技術報告書、JAEA-Research2015-016.
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2015b): 平成 26 年度地層処分技術調査等事業「使用済燃料直接処分技術開発」報告書、平成 27 年 3 月.
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2016):平成27年度地層処分技術調査等事業「直接処分等代替処分技術開発」報告書、平成28年3月.
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2017):平成28年度地層処分技術調査等事業「直接処分等代替処分技術開発」報告書、平成29年3月.
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2018):平成29年度高レベル放射性廃棄物等の地 層処分に関する技術開発事業「直接処分等代替処分技術開発」報告書、平成30年3月.
- Glassner, A. (1957): The thermochemical properties of the oxides, fluorides, and chlorides to 2500° K, Argonne National Laboratory, ANL-5750.
- González-Robles, E., Serrano-Purroy, D., Sureda, R., Casas, I. and de Pablo, J. (2015): Dissolution experiments of commercial PWR(52 MWd/kgU) and BWR(53 MWd/kgU) spent nuclear fuel cladded segments in bicarbonate water under oxidizing conditions. Experimental determination of matrix and instant release fraction, J. Nucl. Mater., Vol. 465, pp. 63-70.
- González-Robles, E., Metz, V., Wegen, D.H., Herm, M., Papaioannou, D., Bohnert, E., Gretter, R., Nüller, N., Nasyrow, R., de Weerd, W., Wiss, T. and Kienzler, B. (2016): Determination of fission gas relase of spent fuel in puncturing test and in leaching experiments under anoxic conditions, J. Nucl. Mater., Vol. 479, pp. 67-75.
- Gray, W. J., Leider, H. R. and Steward, S. A. (1992): Parametric study of LWR spent fuel dissolution kinetics, J. Nucl. Mater., Vol. 190, pp. 46-52.
- Gray, W. J., Thomas, L. E. and Einziger, R. E. (1993): Effects of Air oxidation on the dissolution rate of LWR spent fuel, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol. 294, pp. 47-54 (1993).
- Hummel, W. (2017): Chemistry of selected dose-relevant radionuclides, NAGRA Technical Report 17-05.
- Iglesias, L., Serrano-Purroy, D., Martínez-Torrents, A., Clarens, F. and de Pablo, J. (2018): High-burnup spent nuclear fuel dissolution under highly alkaline

conditions, DISCO Project Deliverable Report, D1.10, pp. 33-36.

- Johnson, L. H. and Tait, J. C. (1997): Release of segregated nuclides from spent fuel, SKB Technical report TR-97-18.
- Johnson, L., Ferry, C., Poinssot, C. and Lovera, P. (2005): Spent fuel radionuclides source-term model for assessing spent fuel performance in geological disposal. Part I: Assessment of the instant release fraction, J. Nucl. Mater., Vol. 346, pp. 56-65.
- Johnson, L. (2014): A model for radionuclide release from spent UO2 and MOX fuel, Nagra Working Report NAB 13-37.
- Kienzler, B., Bohnert, E., González-Robles, E., Herm, M., Gaona, X. and Borkel, C. (2013): Harmodynamic considerations on the seciation of <sup>14</sup>C in spent nuclear fuel, 2nd Annual Workshop Proceedings of the Collaborative Project "FAST/Instant Release of Safety Relevant Radionulides from Spent Nuclear Fuel", KIT Scientific Reports 7676, pp. 45-53.
- Kinzler, B., Mets, V. and Valls, A. (ed.) (2014): Final scientific report, FIRST-Nulides project deliverable report, No. 5.13
- King, F., Ahonen, L., Taxén, C., Vuorinen, U. and Werme, L. (2002): Copper corrosion under expected conditions in a deep geologic repository, POSIVA 2002-01.
- 北村暁,伊藤美貴,赤木洋介,吉田泰(2015a):ウランの溶解度に及ぼす炭酸濃度および酸 化還元状態の影響と熱力学計算の適用性確認,日本原子力学会2015年秋の大会,H03.
- 北村暁,近沢孝弘,赤堀邦晃,舘幸男(2015b):諸外国における使用済燃料直接処分のソー スターム評価 -(2) 使用済燃料および構造材の溶解速度評価、日本原子力学会、原子力 バックエンド研究, Vol. 23 No. 1, pp. 55-72.
- Kitamura, A., Doi, R. and Yoshida, Y. (2010): Evaluated and estimated solubility of some elements for performance assessment of geological disposal of high-level radioactive waste using updated version of thermodynamic database, Proc. 13th Int. Conf. Environmental Remediation and Radioactive Waste Management (ICEM2010), October 2010, Tsukuba, Japan, Paper No. ICEM2010-40172.
- Kitamura, A. and Akahori, K (2017): Effect of carbonate concentration on the dissolution rates of UO<sub>2</sub> and spent fuel - A review, In: Advances in Materials Science for Environmental and Energy Technologies VI, Ohji, T. et al. eds., , Wiley, pp. 133-144.
- Kleykamp, H. (1985): The chemical state of the fission products in oxide fuels, J. Nucl. Mater., Vol. 131, pp. 221-246.
- Lenz, M., Van Hullenbusch, E. D., Farges, F., Nikitenko, S., Borca, C. N., Grolimund, D., Lens, P. N. L. (2008): Selenium speciation assessed by X-ray absorption spectroscopy of sequentially extracted anaerobic biofilms. Environ. Sci. Technol., Vol. 42, pp. 7587-7593.

Lassman, K. A., Schubert, A., Van de Laar, J. and Walker, C. T. (2002): On the

diffusion coefficient of cesium in UO2 fuel, fission gas behavior of water reactor fuels, in: Seminar Proc. 26-29, September 2000, NEA, pp. 321-334.

- Madejová, J., Pálková, H. and Komadel, P. (2006): Behaviour of Li<sup>+</sup> and Cu<sup>2+</sup> in heated montmorillonite: Evidence from far-, mid-, and near-IR regions, Vib. Spectrosc., Vol. 40, pp. 80-88.
- Manzel, R. and Walker, C.T. (2000): High burnup fuel microstructure and its effect on fuel rod performance, Int. Topical Meg. On Light Water Reactor Fuel Performance, Park City, Utah, April 10-13.
- Mennecart, T., Lemmens, K. and Cachoir, C. (2014): Characterisation and leaching tests for the experimental determination of irf radionuclides from belgian highburnup spent nuclear fuel, FIRST-Nuclides project deliverable report No. 5.4, Final (3<sup>rd</sup>) Annual Workshop Proceedings, pp. 137-145.
- Neeft, E.A.C. (2018) : Final overview of CAST, CAST Project Deliverable report, No.7.23, revision 2, p.10
- Nguyen, S. N., Weed, H. C., Leider H. R. and Stout, R. B. (1992): Dissolution kinetics of UO<sub>2</sub>. I. Flow-through tests on UO<sub>2.00</sub> pellets and polycrystalline schoepite samples in oxygenated, carbonate / bicarbonate buffer solutions at 25 °C, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol. 257, pp. 339-344.
- Nogita, K. and Une, K. (1995): Irradiation-induced recrystallization in high burnup UO<sub>2</sub> fuel, J. Nucl. Mater., Vol. 226, pp. 302-310.
- Ohuchi A. and Sakurai H. (1999): STUDY ON FISSION PRODUCTS BEHAVIOR IN BWR FUEL RODS, Proceedings of the International Topical Meeting on LWR FUEL PERFORMANCE, Williamsburg, Virginia, April 17-20, p. 185
- Ollila, K. (2008): Dissolution of unirradiated UO<sub>2</sub> and UO<sub>2</sub> doped with <sup>233</sup>U in lowand high-ionic-strength NaCl under anoxic and reducing conditions, Working Report 2008-50, Posiva Oy.
- Peehs, M., Kaspar, G. and Neeb, K.H. (1983): Cs AND I RELEASE SOURCE TERMS FROM IRRADIATED LWR FUEL, Journal of Nuclear Materials, 119, pp.284-290.
- POSIVA (2012): Safety Case for the Disposal of Spent Nuclear Fuel at Olkiluoto, POSIVA 2012-12.
- Rest, J., Cooper, M.W.D., Spino, J., Turnbull, J.A., Ulffelen, P.V., Walker, C.T. (2019): Fission gas release from UO<sub>2</sub> nuclear fuel: A review, Journal of Nuclear Materials, 513, pp. 310-345.
- Riba, O. and Duro, L. (2017): Agreement of conditions to consider in the models: Discussions between modelling and experimentalists, DISCO Deliverable Report, D5.1.
- Rodríguez-Villagra, N., Cobos, J., Nieto, J., Serrano, L., Durán, S. and Cobo, J.
  M. (2017): Dissolution studies of UO<sub>2</sub> under reducing conditions and the influence of pH and carbonate concentration, presented at the 16th International Conference

on the Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere (MIGRATION 2017), September 10 - 15, 2017, Barcelona, Spain, PA1-12.

- Roth, O., Askeljung, C., Purannen, A., Granfors, M., Cui, D. and Low, J. (2014): LEACHING OF HIGH BURN UP FUEL WITH AND WITHOUT MATRIX DOPANTS, FIRST-Nuclides Project, Final (3<sup>rd</sup>) Annal Workshop Proceedings, pp. 173-190
- Serrano-Purroy, D., de las Heras, L.A., Winckel, S.V., Torrents, A.M., Sureda, R., Glatz, J.P., Rondinella, V.V. (2014): WP3. Dissolution based release irf corrosion tests of commercial UO<sub>2</sub> BWR spent nuclear fuel, FIRST-Nuclides Project Deliverable report No. 5.4, Final (3<sup>rd</sup>) Annal Workshop Proceedings, pp. 105-114.
- SKB (2011): Long-term safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark, SKB TR-11-01
- Steward, S. A. and Gray, W. J. (1994): Comparison of uranium dissolution rates from spent fuel and uranium dioxide, Proc. 5th Annual Int. High-Level Radioactive Waste Management Conference, Vol. 4, pp. 2602-2608.
- Stroes-Gascoyne, S. (1996): Measurements of instant-release source terms for <sup>137</sup>Cs, <sup>90</sup>Sr, <sup>99</sup>Tc, <sup>129</sup>I and <sup>14</sup>C in used CANDU fuels, Journal of Nuclear Materials, Vol. 238, pp. 264-277
- Stroes-Gascoyne, S. and Betteridge, J. S. (2004): The effect of alpha-radiolysis on UO<sub>2</sub> dissolution determined from batch experiments with <sup>238</sup>Pu-doped UO<sub>2</sub>, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol. 824, pp. 175-181.
- 鈴木元衛、斎藤裕明、宇田川豊 (2011): 軽水炉燃料解析コード FEMAXI-7 のモデルと構造、 JAEA-DATA/Code 2010-035.
- Tait, J. C., Cornet, R. J. J., Chant, L. A. and Jirovec, J. (1996): Determination of Cl impurities and 36Cl Instant Release from Used Candu Fuels, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XX, Mat.Res. Soc. Symp. Proc., Vol. 465, pp. 503-510.
- 谷口直樹、川崎学、内藤守正(2007): 低酸素濃度環境における純銅の腐食挙動に及ぼす硫 化物の影響と銅オーバーパック寿命の超長期化の可能性、JAEA-Research 2007-022.
- Turnbull, J.A., Frisney, C.A., Findlay, J.R., Johnson, F.A., Walter, A.J. (1982): The diffusion coefficients of gaseous and volatile species during the irradiation of uranium dioxide, Journal of Nuclear Materials, Vol. 107, pp. 168-184.
- Tverberg, T. and Wiesnack, W. (1999) : Fission gas release and temperature data from instrumented high burnup LWR fuel, On "Technical and economic limits to fuel burnup extension", IAEA-TECDOC-1299
- Ulrich, K.-U., Ilton, E. S., Veeramani, H., Sharp, J. O., Bernier-Latmani, R., Schofield, E. J., Bargar, J. R. and Giammar, D. E. (2009): Comparative dissolution kinetics of biogenic and chemogenic uraninite under oxidizing conditions in the presence of carbonate, Geochim. Cosmochim. Acta, Vol. 73, pp. 6065-6083.

- Une, K. and Kashibe, S. (1992): Fission gas release during postirradiation annealing of UO<sub>2</sub>-2wt% Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> fuels, J. Nucl. Mater., Vol. 189, pp. 210-216.
- Une, K., Kashibe, S. and Takagi, A. (2006): Fission gas release behavior from high burnup UO<sub>2</sub> fuels under rapid heating conditions, J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 43, No. 9, pp. 1161–1171.
- Yamaguchi, T., Tanuma, S, Tasutomi, I, Nakayama, T., Tanabe, H., Katsurai, K., Kawamura, W., Maeda, K., Kitao, H., and Saigusa, M. (1999): A study on chemical forms and migration behavior of radionuclides in hull wastes, Proc. ICEM'99, Nagoya, Japan, Sept. 26-30, ASME.
- Walker, C.T., Staicu, D., Sheindlin, M., Papaionannou, D., Goll, W. and Sontheimer,
  F. (2006): On the thermal conductivity of UO<sub>2</sub> nuclear fuel at a high burn-up of around 100 MWd/kgHM, Journal of Nuclear Materials, 350, pp.19-39.
- Walker, C.T., Bremier, S., Portier, S., Hasnaoui, R. and Goll, W. (2009): SIMS analysis of an UO<sub>2</sub> fuel irradiated at low temperature to 65MWd/kgHM, J. Nucl. Mater., Vol. 393, pp. 212-223.
- Wiesenack, W. (1993): Experimental techniques and results related to high burn-up investigations at the OECD Halden Reactor Project, on "Fission gas release and fuel rod chemistry related to extended burnup", IAEA-TECDOC-697.
- Wieland E and Hummel W (2015): Formation and stability of 14C-containing organic compounds in alkaline iron-water systems: preliminary assessment based on a literature survey and thermodynamic modelling, Mineralogical Magazine Vol 79,6, pp. 1275-1286

# 第4章

直接処分システムの成立性の多角的な確認

# 4章 詳細目次

4. 直接処分システムの成立性の多角的な確認・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-1
<ol> <li>本項目の背景と目的・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・</li></ol>	4-1
(2) システムの成立性の検討に資する情報・知見の収集・整備・・・・・・・・・・・	4-2
1) 核セキュリティ・保障措置に関する調査・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-2
① 海外情報の調査・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-2
a. IAEA シンポジウムにおける聞き取り調査結果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-3
b. フィンランドにおける直接処分施設の検討事例調査結果・・・・・・・・・	4-4
c. SKB 技術者への聞き取り調査結果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-7
② 保存すべき核セキュリティ・保障措置データの種類の整理・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-8
a. 法令により要求されている事項・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-8
b. 地層処分施設閉鎖後も保存すべき記録・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-14
③ インベントリの経時変化推定・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-14
a. 解析条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-15
b. インベントリの推移に関する解析結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-18
c. 放射線量の推移に関する解析結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-19
d. インベントリなどの時間変化に基づく核セキュリティ・保障措置対策に関	
する考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-22
④ 最新の核セキュリティ上の脅威および技術に関する調査・・・・・・・・・・	4-23
a. 世界のテロ発生状況と傾向・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-23
b. 国内外における最新のセキュリティ技術の開発動向の調査・整理	4-25
(a) 核検知技術・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-26
(b) 爆発物検知技術 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	4-27
2) 直接処分システムの各構成要素の設計オプションなどについての情報・知見の	
調査	4-27
① 処分概念オプションの選択の考え方や手法に関する調査・・・・・・・・・・・	4-30
② 事業の段階に応じた検討事項や意思決定事項の変化に関する調査	4-31
③ ガラス固化体のみの処分から直接処分が追加となった場合の検討事項の相	
違/類似性に関する調査 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-32
④ その他の文献からの情報・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-33
(3) システムの成立性に関係する検討対象などの抽出・整理・・・・・・・・・・・・	4-35
1) システムの成立性に関係する検討対象の抽出・整理・・・・・・・・・・・・・・・・	4-35
2) システムの成立性を論じるために議論・確認すべきことの分析・整理のアプロ	
ーチ案・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-37
(4) まとめ・・・・・・	4-40
参考文献 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	4-41

# 4. 直接処分システムの成立性の多角的な確認

# (1) 本項目の背景と目的

本項目では、直接処分システムの成立性の多角的な確認に向けて、核セキュリティ・保障 措置等の国際的な進展や議論から特に重要となる要素の最新の知見の分析を進めるととも に、システムの成立性を効果的に検討するための課題(取得するべき情報の種類・量・質な ど)について整理を行う。

ここで、先行事業である「高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業(直接処分等代替処分技術開発)5か年とりまとめ報告書」(日本原子力研究開発機構,2018)では、設計検討などを通じて直接処分システムを構成する要素(以下、構成要素という)(廃棄体、処分容器、緩衝材、地下施設(坑道等)、搬送・定置設備、地上施設 など)について、既存技術(ガラス固化体の地層処分についての同様の技術、海外での直接処分での同様の技術など)を用いた予察的な設計検討などを通じて、それら既存技術の適用性や各構成要素の技術的実現性の確認などを進めてきた。

今後、直接処分システムのシステムとしての成立性を論じていくためには、たとえば、技術的実現性についても、先行事業で行ったような、システムの各構成要素についての代表的な仕様を対象にした限定的な範囲での検討に加えて、各構成要素についての設計オプション、異なる地質環境条件などをはじめとして、物、状況・条件、視点など(以下、検討対象という)をより幅広く考慮して検討することが必要になると考えられる。また、技術的実現性以外にも、設計によって処分場に持たせようとする性能や能力などについて幅広く検討することも必要になると考えられる(たとえば設計因子(原子力発電環境整備機構, 2004a))。さらに、このような検討としては、成立するかどうかという最終的な結論を得ることだけでなく、そのために何を議論・確認すべきか、それについての既往の取り組みや

情報などの現段階での有無・充足度はどうかなどを分析・整理し、今後取り組むべき課題な どを抽出していくことも含むことになる。

本項目では、直接処分システムの成立性を論じるために議論・確認すべきことの分析・整 理の進め方を、物、状況・条件、視点などの検討対象を幅広く考慮することで、先行事業に おける取り組みに対してより多角的な議論としていくことに留意しつつ検討し提示すること を目指す。なお、使用済燃料の直接処分においては、従来のガラス固化体の地層処分に係る 研究開発などでは着目してこなかった保障措置・核セキュリティを考慮することが必要とな る。そのため、本項目においては、保障措置・核セキュリティについての諸外国の最新の検 討状況などについて、システムの成立性の検討に資する情報・知見としての収集・整備も行 う。あわせて、保障措置・核セキュリティ以外についても、上記検討に関連する最新情報な どの収集・整備を行う。

本項目の初年度である平成30年度は以下を行った。

- システムの成立性の検討に資する情報・知見の収集・整備((2)参照)
- システムの成立性に関係する検討対象などの抽出・整理((3)参照)
- また、それらを踏まえて今後の課題や進め方などを整理した((4)参照)。

# (2) システムの成立性の検討に資する情報・知見の収集・整備

本項では、システムの成立性の検討に資する情報・知見として、まず、使用済燃料の直接 処分において考慮することが必要となる核セキュリティ・保障措置についての諸外国の最新 の検討状況などについての情報・知見の収集・整備を行った「1)項参照」。また、先行事業で の直接処分システムの各構成要素についての設計検討などで得られた情報・知見の継続的な 更新・拡充、および直接処分システムの成立性を論じるため考慮する可能性のある検討対象 についての情報の拡充として、諸外国での各構成要素の設計オプションなどについての最新 の検討事例、バリア性能の最新の評価事例などについての情報・知見の収集・整備を行った 「2)項参照」。

### 1) 核セキュリティ・保障措置に関する調査

核セキュリティおよび保障措置は使用済燃料の処分施設の設計段階において考慮しておく ことが必要な対策のひとつであり、国内法および国際約束を満足させる設計・適用が要求さ れる。そのため、まず、IAEAや諸外国における核セキュリティや保障措置に係る検討の経緯 や要件の整理状況の把握、およびそれら要件などの使用済燃料の処分施設の設計、建設、操 業、閉鎖の各段階に応じた適用方法などを検討することが重要である。

平成 30 年度は、IAEA および諸外国における使用済燃料の直接処分施設に適用する核セキ ュリティ対策および保障措置実施手順の検討状況についての調査を行い、最新情報を入手し た。また、核セキュリティ・保障措置対策については、大量の使用済燃料が同一の場所に非 常に長期に埋設されることを踏まえて、長期的に管理すべき核セキュリティ・保障措置に関 する記録の種類を整理するとともに、長期的な管理に対する処分容器内のプルトニウム量な どの核物質のインベントリ変化の影響を評価するためのインベントリデータの整備を実施し た。さらに、最近の脅威の動向やその対策、最新の核セキュリティ技術の開発状況を調査し た。

上記の調査結果について、それぞれ「① 海外情報の調査」、「② 保存すべき核セキュリティ・保障措置データの種類の整理」、「③ インベントリの経時変化推定」、「④ 最新の核セキュリティ上の脅威および技術に関する調査」に示す。

# ① 海外情報の調査

IAEA が平成 30 年 11 月 5 日から 8 日に開催した保障措置シンポジウム (Symposium on International Safeguards: Building Future Safeguards Capabilities) に参加し、IAEA や参加国から使用済燃料の直接処分施設に対する保障措置アプローチの検討状況や直接処分施 設建設に向けた動向などに関する情報を収集した。また、直接処分施設の検討が進んでいる フィンランドを訪問し、直接処分施設に適用する核セキュリティ・保障措置対策の検討状況 を聴取した。さらに、スウェーデンにおける直接処分施設に対する保障措置対策の現状や最 近の進捗状況について SKB の技術者から聴取した。

平成 30 年度に実施した内容について、それぞれ「a. IAEA シンポジウムにおける聞き取り 調査結果」、「b. フィンランドにおける直接処分施設の検討事例調査結果」、「c. SKB 技術者への 聞き取り調査結果」に示す。

# a. IAEA シンポジウムにおける聞き取り調査結果

本シンポジウムには 88 カ国および 15 機関 (IAEA、EC (European Commission)、ESARDA (European Safeguards Research and Development Association) など) から 800 名を超え る関係者が参加し、保障措置に関連する様々な内容について発表や議論が行われた。

以下に、シンポジウムにおいて発表された内容のうち、直接処分施設に関連するものを示 す。なお、発表内容は発表者個人(もしくはその所属団体)の考えに基づいたものであり、国 際的な合意や認証を受けたものではない。

- フィンランドオルキルオトサイトでは、放射性廃棄物の処分に関する IAEA の安全要 件や STUK 規制ガイドに基づいて、様々なモニタンリングを実施しているが、それら から得られる微小地震、岩盤内の水頭、および地表の利用状況に関するデータは保 障措置にも利用可能である。
- 直接処分施設のような新しいタイプの施設では「3S (Safety, Security, Safeguards) by Design」コンセプトを初期段階から適用することが重要である。
- フィンランドでは 40 年以上の期間をかけて、安全、セキュリティ、保障措置を含む 直接処分施設に対する規制システムや関連技術の開発を実施してきたが、成功要因 の1つは、目前のステップと近い将来に関連する問題に焦点を当ててきたことであ る。
- 地下に埋設しようとする使用済燃料の知識の連続性が喪失した場合は再検認を行い、
   知識の連続性が確保されているものだけが埋設されるようにする。
- IAEAは、詰替施設と地層処分施設のそれぞれに対する Model Safeguards Approach を発行しているが、追加議定書に基づく保障措置活動が十分に反映されている訳で はない。追加議定書に基づく保障措置活動により国レベルで未申告活動がないこと が確認できれば、上記 Approach で要求されている検認活動のうち、未申告の掘削を 検知するためのモニタリングの一部、および埋設された使用済燃料に対する検認活 動の一部は不要になると考えられる。
- 地層処分施設に埋設された使用済燃料は再検認することができないため、地層処分 施設の入口で封じ込め・監視機器により知識の連続性を確保することが重要である。
   そのための機器として、ビデオカメラ、放射線モニタ、赤外線(熱感知)モニタ、秤 量器を地下へのアクセスポイントに設置することが推奨される。
- 地層処分施設に対する保障措置を支援するためにいくつかの検認技術が開発されているが、詰替施設や地層処分施設で効果的な保障措置を実施するために達成されなければならない性能要件も検討されるべきである。
- 微小振動を検知することが可能な地震監視技術を活用したセンサーネットワークを 構築し、得られたデータを解析処理することにより、振動の発生原因、発生位置、移 動軌跡を検知できる可能性がある。これを用いることで、直接処分施設の敷地や地 下坑道への不法立ち入りや未申告の掘削を検知・防止できる可能性がある。
- IAEA はパッシブガンマトモグラフィ (PGET: Passive Gamma Emission Tomography)
   装置によって使用済燃料集合体からの燃料ピンの抜き取りを検知することが可能で

あることを検証し、検認機器として認証した。

また、本シンポジウムにおいて、直接処分施設に対する保障措置の適用期間について議論 が行われた。以下に本議論において挙げられた主な意見を示す。

- 使用済燃料中の核分裂生成物が減衰後、直接処分施設は所謂 Pu 鉱山となることか ら、厳格な保障措置を継続させる必要がある。
- 使用済燃料中の放射能の減衰は自然現象であり、生態系から隔離すれば、その後の 放射線安全を目的とした管理を放棄することもできる。しかし、核物質の転用は人 間の意志によるものであるから、地下に埋設されていたとしても転用の可能性は否 定できない。安全上の要件と保障措置上の要件は意味合いが違う。
- 将来、氷河期のような環境の激変により直接処分施設へのアクセス性が大きく変わることも考えられる。このような環境変動も考慮して保障措置を検討すべき。
- 直接処分施設に対する保障措置を長期間にわたって適用する必要があることは理解できるが、施設のモニタリングや管理を継続して維持できるのかという現実的な問題がある。また、使用済燃料の回収可能性も現実的な視点で検討すべきである。このような様々な条件のバランスを考えたうえで、保障措置の終了も含めて適用法を考えるべきである。
- IAEA は直接処分施設に適用する保障措置の終了に関する検討を行い、ガイドライン を作成すべきである。
- IAEA は詰替施設、地層処分施設それぞれに対する Model Safeguards Approach を 2010年(詰替施設)と2011年(地層処分施設)に発行しているが、これらは標準モ デルである。実際の適用にあたっては、各国の事情に合わせてローカライズするべ きである。
- 直接処分施設に対する保障措置に関する検討は、1994年~1998年に開催された「地層処分場での使用済燃料最終処分に関する保障措置の開発のための IAEA 作業グループ会合(SAGOR)」、1999年~2005年に開催された SAGOR-II、2006年~2017年に開催された「地層処分への保障措置適用に関する専門家会合(ASTOR)」において実施されている。これら国際会議で本議論も行われており、後世のために全ての成果をまとめた報告書を作成すべきである。

本シンポジウムでは、上記の発表や議論を経て、技術や環境、情勢の変化を予測すること は不可能であるため、現時点では IAEA が策定した Policy Paper 15の要求に従って、保障措 置協定が有効である限り直接処分施設に対する保障措置は継続されなければならないと考え るべきであるとした一方で、将来、保障措置の終了に関して議論を行う必要性が生じるであ ろうとの結論に落ち着いた。

# b. フィンランドにおける直接処分施設の検討事例調査結果

フィンランドの安全規制機関である放射線・原子力安全センター(STUK)を訪問し、直接 処分施設に対する核セキュリティおよび保障措置について技術打合わせを行った。また、直 接処分施設のサイトを訪問し、現地調査および Posiva 社との意見交換を行った。技術打合わせおよび現地調査において得られた情報を以下に示す。

- 現在、地上部分では詰替施設の基礎工事が、地下では、トンネルの掘削工事に加え、
   発熱体を入れた実際の処分容器と同サイズの試験用容器を使ったテストや地下水の
   染み出し状況のモニタリングなどのテストが実施されている。
- 現在のスケジュールによると、詰替施設の建設開始が2019年、直接処分施設としての操業開始が2024年頃、操業終了が2120年頃、施設のデコミッション完了が2126年頃という計画になっている。
- 地層処分施設に処分可能な核物質量は、処分する使用済燃料の発生元である Loviisa
   1,2号機,01kiluoto1-3号機の運転計画に基づいて6,500 tU、(処分容器で3,300本)となっている。
- 地層処分施設は処分容器の回収可能性を考慮して設計されている。
- 直接処分施設の管理は、操業中は Posiva 社が、閉鎖後は国が責任を負うことになっているが、閉鎖後の管理期間を 100 年と想定しており、それ以降の管理については現時点では検討されていない。
- フィンランドでは、事業者が作成し STUK が承認した SG Handbook に従って保障措置が運用される。SG Handbook には、計量管理手段、保障措置の実施方法、保障措置 機器の設置場所、報告システムなど、施設に適用する保障措置に関する情報が機微 情報も含めて記載されるため、非公開文書となっている。直接処分施設の SG Handbook もすでに作成されている。
- 2009年に、ECに提出する設計情報文書であるBTC(Basic Technical Characteristics) が Posiva 社によって作成・提出されている。
- 設計情報検認(DIV: Design Information Verification)が年1回以上実施されている。DIVでは、IAEAおよびECは未申告のトンネル掘削や埋め戻しなどの活動がないことを検認するため、3Dスキャナーによる地下坑道のスキャンデータを取得している。Posiva社としても坑道を掘削するために発破をかける都度、3Dスキャニングを行い、取得したデータはIAEAおよびECに提供している。
- Posiva 社では、掘削や爆破による岩盤への影響を監視する目的で地震波センサーによるモニタリングを実施している。このモニタリングにより未申告の掘削作業を検知できる可能性があるということから、保障措置技術開発への協力という観点でIAEA および EC にデータを提供している。
- 直接処分に使用する処分容器の識別 ID の付与方法は検討中であるが、蓋に刻印する 方法が採用される可能性が高い(図 4-1)。刻印は腐食などにより消失する可能性が あるが、消失するとしてもかなり未来のことであり、対処が必要となった時点で検 討すべき問題と考えているようであった。



処分容器(Heikki Raiko, 2013) 処分容器の蓋 断面図 図 4-1 処分容器の識別 ID 付与位置

- ブラックボックスコンセプトを採用し、地層処分施設に搬入された使用済燃料が収容されている処分容器の検認は実施しない。その代わり、地層処分施設へのアクセスルートの監視や未申告の掘削の検知などの手段により核物質の転用を防止・検知する計画となっており、IAEA および EC もこの方法を適用することについて了解しているようである。
- フィンランドでは原子力施設の設計にあたって、Regulatory Guides "YVL A.11 「Security of a nuclear facility」"に規定された核セキュリティ要件を満足する 必要があり、直接処分施設もこの規則に従って航空機衝突やテロなどの脅威を想定 して設計されている。
- 地層処分施設に通じる換気口、および地質調査のために地下約100 mまでボーリングした調査孔(約50カ所)の地表面には施錠された建屋が設置されており、セキュリティの観点で特定の者しか開けられないようになっている。
- 調査孔は地下約100 mまでボーリングしてあるため、調査孔がない場所と比べると 地層処分施設へのアクセスが容易となる。このため、調査孔の直下には処分容器を 定置するトンネルが配置されないような設計となっている(調査孔と定置トンネル の位置関係を図4-2に示す。なお、図4-2には調査孔の一部のみが示されている。 また、定置トンネルは処分可能量を9,000 tUとした場合のレイアウトとなってい る。)(Timo Saanio et al., 2013)。



# c. SKB 技術者への聞き取り調査結果

スウェーデンにおける直接処分施設に対する保障措置対策の現状や最近の進捗状況について、SKB 技術者から以下の情報を得た。

- SKBは2011年に3件(詰替施設、地層処分施設、施設全体のシステム)の許認可を 申請しているが、キャニスターの長期安全性および地層処分施設閉鎖後の管理体制・ 組織について環境裁判所からコメントがあり、現在その対応中である。
- 当初、詰替施設は 2028 年頃に、地層処分施設は 2032 年頃に操業を開始する計画で あったが、上記許認可対応などの理由から遅れが生じる可能性が高い。
- キャニスターの識別 ID を付与するための様々な技術・方法を検討中であり、溶接部の超音波探傷により得られた画像をキャニスターの識別 ID とすることも候補技術のひとつである。一方、刻印などのキャニスター表面に加工を施す方法も候補のひとつではあるが、埋設後に不測の影響が生じる恐れがあるため、現時点では採用する可能性は小さい。
- スウェーデンのウプサラ大学で PGET やデジタルチェレンコフ光視認装置 (DCVD: Digital Cherenkov Viewing Device)の研究開発を行っており、これら装置を詰替 施設における使用済燃料の検査装置として使用することを検討しているが、検査ス テーションは1カ所しか設けない予定であるため、IAEA による認証を受けて査察検 認用装置としても使用する予定である。
- 使用済燃料の非破壊検認装置であるフォーク型検出器では事業者の申告値と測定値の間に有意な差が出ることがあり、その解決に向けて先行しているフィンランドが IAEAと協議を行うものと考えられ、SKBとしてもその結果を注視している。
- IAEA が査察活動で得た結果と施設の申告値が一致しないケースが発生することがあ る。通常の原子力施設では、必要により再検認を実施して記録の修正を行っている

が、直接処分施設においては埋設後に再検認を実施することができないため、同様 のケースが発生した場合の対応について懸念している。

# ② 保存すべき核セキュリティ・保障措置データの種類の整理

①項で示したように、直接処分施設に対する保障措置は、IAEA が策定した Policy Paper 15 の要求に従って、保障措置協定が有効である限り直接処分施設に対する保障措置は継続され なければならないと考えるべきというのが現時点における国際的なコンセンサスになってい る。このことから、現時点では、IAEA は核物質の転用および未申告活動がないことを長期間 にわたって保障することを求めていると解釈できる。加えて、核セキュリティ上も、直接処 分施設に処分された使用済燃料の盗取や直接処分施設への妨害破壊活動が行われないように 対策を長期的に講ずる必要がある。このためには、使用済燃料や直接処分施設が核セキュリ ティ・保障措置上の観点で変化していないことを示す必要があり、そのための手段として施 設の建設中、操業中、閉鎖後のそれぞれで収集する核セキュリティ・保障措置に関する記録 と時間経過後の記録とを照合する方法が考えられる。

本節では施設の建設中、操業中、閉鎖後の期間において事業者が収集可能な直接処分施設 に関する核セキュリティ・保障措置の記録のうち、地層処分施設閉鎖以降も保存すべきと考 えられる記録について検討した。

なお、査察や設計情報検認、規定の遵守状況調査により得られる記録、さらには敷地周辺の気象や自然災害、火山や洞窟の位置などの環境情報、人口や土地利用状況などの社会情報 に関する記録は IAEA または国が管理すべき記録と考えられるため、ここでは除外した。

### a. 法令により要求されている事項

わが国では、法令で原子力事業者が記録すべき事項が定められている他、核物質防護規定 や計量管理規定などの規定を策定し、その中で原子力施設が実施すべき事項や記録すべき事 項を定めることが要求されている。直接処分施設においても、他の原子力施設と同様に、法 令や規定に従い、必要な事項に係る記録を作成・保存することになるが、現時点では直接処 分事業に対する法令は存在しない。また、原子力事業者が策定する規定も非公開文書となっ ている。このため、ここでは、「核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律(昭 和三十二年法律第百六十六号)」に加え、使用済燃料集合体を取り扱う施設である原子炉施設、 使用済燃料貯蔵施設に関する規則(「実用発電用原子炉の設置、運転等に関する規則(昭和五 +三年通商産業省令第七十七号)」、「使用済燃料の貯蔵の事業に関する規則(平成十二年通商 産業省令第百十二号)」)、および保障措置の適用を受ける核燃料物質などに関する規則(「国 際規制物資の使用等に関する規則(昭和三十六年総理府令第五十号)」)、さらには核燃料物質 または核燃料物質によって汚染された物の廃棄に関する規則(「核燃料物質又は核燃料物質に よって汚染された物の第一種廃棄物埋設の事業に関する規則(平成二十年経済産業省令第二 十三号)」、「核燃料物質又は核燃料物質によって汚染された物の第二種廃棄物埋設の事業に関 する規則(昭和六十三年総理府令第一号)」、「核燃料物質又は核燃料物質によって汚染された 物の廃棄物管理の事業に関する規則(昭和六十三年総理府令第四十七号)」)において保存し なければならない記録として要求されている事項、ならびに、設置許可申請書、または核物 質防護規定や計量管理規定で定めることが要求されている事項を参考に、直接処分施設の事 業者が保存しなければならないと考えられる事項を列挙した。表 4-1 に直接処分施設の事業 者が保存しなければならない核セキュリティに関する事項の例を、表 4-2 に保障措置に関す る事項の例を示す。また、直接処分施設の名称などの一般的事項や直接処分施設固有の特徴 に起因する事項など、表 4-1、表 4-2 以外に保存すべきと考えられる事項の例を表 4-3 に示 す。

核セキュリティに関する事項	• 関係法令および核物質防護規定の遵守のための体制
	<ul> <li>核セキュリティに関する業務に従事する者の職務および組織</li> </ul>
	• 防護区域、周辺防護区域、立入制限区域の設定
	• 周辺防護区域、立入制限区域への人の侵入を確認することができる設備または装置
	• 周辺防護区域周辺に設置する人に警告するための設備または装置
	• 核物質、施設または防護設備の妨害破壊行為に対応可能な物品
	• 防護区域、周辺防護区域、立入制限区域出入口の施錠
	<ul> <li>核物質の管理方法</li> </ul>
	• 核物質またはその取扱設備・装置の異常、および異常の通報
	• 核物質の防護のために必要な設備または装置の操作に係る情報システム
	• 情報システムに対する外部からのアクセスを遮断するシステム
	• 情報システムに対する妨害破壊行為への対応計画
	• 施設に対する妨害破壊行為への対応計画
	• 核物質の防護の設備・装置の点検・保守
	• 防護区域内、周辺防護区域内および立入制限区域内、ならびに関係機関との連絡設備
	• 警報装置から発せられた警報の内容
	• 放射線管理記録
	<ul> <li>見張人による巡視の状況</li> </ul>
	• 防護区域、周辺防護区域、立入制限区域に立ち入ろうとする者への証明書などの発行の状況
	• 防護区域、周辺防護区域、立入制限区域への物品の持込み、持出しの点検の状況
	• 出入口および核物質の常時監視の状況
	• 核物質を取り扱う設備および装置の点検の状況
	• 防護のために必要な設備および装置の点検ならびに保守の状況

# 表 4-1 事業者が保存しなければならないと考えられる核セキュリティに関する事項の例(1/2)

核セキュリティに関する事項	• 防護のために必要な教育および訓練の実施状況
	• 核物質の防護に関する秘密の範囲および業務上知り得る者の指定の状況
	• 核物質の防護に関する秘密の管理方法
	• 防護措置の評価および改善の実施状況
	<ul> <li>施設の修理の状況</li> </ul>
	• 埋設した放射性廃棄物の種類、数量、放射性廃棄物に含まれる放射性物質の数量
	• 放射性廃棄物の埋設日、埋設場所
	• 放射性廃棄物を収容した容器の封入方法
	• その他、核セキュリティ上必要な事項

表 4-1 事業者が保存しなければならないと考えられる核セキュリティに関する事項の例(2/2)

-	
保障措置に関する事項	• 核燃料物質の種類別の在庫変動の量およびその原因
	• 使用済燃料の燃焼度
	• 燃料の照射が行われた原子炉の型式、熱出力
	• 使用済燃料の施設内における配置
	• 使用済燃料の原子炉からの取出しから払出しまでの期間
	• 核燃料物質の種類別の実在庫量
	• 核燃料物質の種類別の不明物質量
	• 核燃料物質の測定をするための機器の校正
	• 核燃料物質の計量および管理を行う者の職務および組織
	• 核燃料物質計量管理区域の設定および当該核燃料物質計量管理区域に付する符号
	• 主要測定点の設定および当該主要測定点に付する符号
	• 核燃料物質をバッチに区分する方法および当該方法により区分したバッチの符号の付し方
	• バッチに区分した核燃料物質の組成、形状などを表わす略号
	• 核燃料物質の核燃料物質計量管理区域への受入れ、核燃料物質計量管理区域からの払出しまたは廃棄が行わ
	れた場合の当該核燃料物質の計量および管理
	• 核的生成、核的損耗、事故損失などにより核燃料物質に増加または減少が生じた場合の当該核燃料物質の計
	量および管理
	• 実在庫量の確認の方法
	• 主要測定点における核燃料物質の測定の方法および測定をするための機器の管理
	• 核燃料物質の在庫変動量、受払間差異、実在庫量、不明物質量を種類別に記録する場合の供給当事国に関す
	る事項を記載する方法
	• その他、保障措置上必要な事項

# 表 4-2 事業者が保存しなければならないと考えられる保障措置に関する事項の例
その他事項	<ul> <li>氏名または名称および住所ならびに法人にあっては、その代表者の氏名</li> </ul>
	• 直接処分施設を設置する工場または事業所の名称および所在地
	• 直接処分施設の建設、操業、廃止、閉鎖後段階における管理責任組織の名称、住所、代表者の氏名
	<ul> <li>使用の目的</li> </ul>
	• サイトのレイアウト
	• 施設内のレイアウト(補助施設、設備、トンネルなどの配置含む)
	<ul> <li>地質情報</li> </ul>
	• 核燃料物質の取扱工程
	• 年間のスループット量
	• 使用済燃料の処分能力
	• 処分容器の設計情報
	• 施設の建設、操業、廃止、閉鎖に関する計画
	• 地層処分施設の掘削計画
	• 地層処分施設付近に存在する洞窟や土木工事などの情報
	<ul> <li>施設周辺の環境データ</li> </ul>

## 表 4-3 事業者が保存しなければならないと考えられるその他の事項の例

#### b. 地層処分施設閉鎖後も保存すべき記録

a. 項において挙げた保存すべき事項のうち、直接処分施設閉鎖後以降も保存すべき事項に 関する記録として、以下を選定し整理した。

- 核セキュリティ:直接処分施設の核セキュリティ体制を長期的に維持するために必要となるもの、および情報が外部に漏洩した場合、盗取や妨害破壊行為などの脅威の発生に繋がる可能性があるもの
- ・保障措置:直接処分施設閉鎖後にIAEAや国が保障措置を適用するときに必要となるもの、および定置した処分容器または使用済燃料の回収が行われた際の再検認実施時に必要となるもの

このとき、地層処分施設閉鎖後時点には撤去されていると考えられる詰替施設を含む地上の 施設は存在しないものとし、これら施設に関する核セキュリティ・保障措置の記録は保存す る必要がない記録とした。さらに、査察や監査など、IAEA や国が実施する活動に関する記録 は IAEA または国が保存すべきと考えられるため、これについても除外した。

直接処分施設閉鎖後以降も事業者が保存すべきと考えられる具体的な記録の例を表 4-4 に 示す。

# 表 4-4 直接処分施設閉鎖後以降も事業者が保存すべき核セキュリティ・保障措置に関する 具体的な記録の例

核セキュリ	- 管理責任者
ティに関す	- サイトの所在地
る記録	- 埋設量
	- 放射線量
	- サイトマップ(防護区域、周辺防護区域、立入制限区域、出入口、など)
	- 地層処分場マップ(トンネル、換気口、埋設位置など)
	- 核セキュリティ設備に関する情報(名称、数量、配置、仕様、など)
保障措置に	- 処分容器 ID
関する記録	- 燃料集合体 ID
	- 燃料集合体の仕様(種類、初期濃縮度、重量など)
	- 燃料集合体ごとの核物質量(化合物重量、元素重量、核分裂性物質重量、
	同位体組成)
	- 処分容器と燃料集合体の関係(収容体数、配置、重量など)
	- 照射履歴(原子炉の型式、燃焼度、冷却期間、など)
	- 計量方法(測定設備の情報、解析コード、インプットデータ、など)
	- バッチナンバー

#### ③ インベントリの経時変化推定

直接処分施設で取り扱う使用済燃料中のインベントリおよび放射線量は時間の経過ととも に徐々に変化してゆく。原子力施設に適用する核セキュティおよび保障措置のレベルは、施 設で取り扱う核物質の種類や量、または放射線量により決定されるため、特に長期間にわた って使用済燃料が埋設される地層処分施設については、経時変化するインベントリや放射線 量に応じた核セキュリティ・保障措置対策の見直しを行う必要が生じる可能性がある。この ため、平成30年度は、インベントリおよび放射線量の時間変化を解析し、核セキュリティ・ 保障措置対策への影響を評価するためのデータを整備した。ただし、本来このような評価は、 施設内に存在するすべての核物質を対象に行わなければならないが、ここでは今後の評価に 向けての基盤となるデータの整備として、処分容器1体に含まれる核物質量に基づいてイン ベントリや放射線量の経時変化を評価した。

#### a. 解析条件

解析には ORIGEN 2.2 コードを使用し、表 4-5 に示す燃料集合体の仕様、および表 4-6 と表 4-7 に示す核燃料物質の仕様を解析入力値とした。表 4-5 に示す燃料集合体の仕様は、PWR に ついては平成 25 年度報告書(日本原子力研究開発機構, 2014)にてレファレンスとして設定 した仕様であり、BWR については平成 26 年度報告書(日本原子力研究開発機構, 2015)にて レファレンスとして設定した仕様である。表 4-6、表 4-7 に示す核燃料物質の仕様は、高レベ ル放射性廃棄物に関する第 2 次取りまとめ(核燃料サイクル開発機構, 1999)(以下、「H12 レ ポート」という)におけるガラス固化体の解析に用いた仕様、および、わが国の再転換・成型 加工事業者が設定している未照射ウランおよび再処理回収ウランの仕様(日本原燃株式会社 ほか, 2006;新金属協会核燃料加工部会, 2009)であり、それぞれを仕様 1、仕様 2、仕様 3 とした。また、解析で用いるライブラリとしては、PWR 燃料の解析においては PWR41J40 を、 BWR 燃料の解析においては BS340J40 を用いた。

なお、平成27年度から平成29年度の報告書では、平成25年度や平成26年度にレファレ ンスとして設定した燃料集合体の仕様などを変えることで様々な条件での臨界や遮へい対策 への影響評価を実施している。しかし、核セキュリティ・保障措置対策は施設内に存在する あらゆる核物質の総量に基づいて評価することになるため、燃料集合体の仕様などの違いに よって一部の使用済燃料での核物質の量が変化しても核物質の全量への影響はそれほど大き くないと考えられることから、核セキュリティ・保障措置対策に与える影響も小さいものと 予想される。このため、本解析では表4-5から表4-7の条件のみを対象とした。

4 - 15

# 表 4-5 解析に用いた燃料集合体の仕様

## (日本原子力研究開発機構, 2014; 2015)

百日	設定値		
項日	PWR 燃料	BWR 燃料	
燃料タイプ	PWR (17x17)	BWR (9x9)	
初期濃縮度	4.5 %	4.0 %	
照射期間	1184.21 日	1730.769 日	
燃焼度	$45~{ m GWd}~{ m MTU}^{-1}$	$45~{ m GWd}~{ m MTU}^{-1}$	
比出力	$38~{ m MW}~{ m MTU}^{-1}$	$26~{ m MW}~{ m MTU}^{-1}$	
燃料集合体1体あたりのウラン量	461.4 kgU	172.0 kgU	
冷却期間	50 年	50 年	
処分容器中の集合体数	4 体	12 体	

## 表 4-6 解析に用いた核燃料物質の仕様(PWR)

		仕様 1	仕様 2	仕様 3
		$[g MTU^{-1}]$	$[g MTU^{-1}]$	$[g MTU^{-1}]$
	U232	1.00E-04	1.00E-04	1.00E-02
	U234	4.50E+02	4.95E+02	1.20E+03
ウラン同位体	U235	4.50E+04	4.50E+04	4.50E+04
	U236	2.50E+02	5.00E+02	2.50E+04
	U238	9.54E+05	9.54E+05	9.29E+05
	Np237	-	-	3.83E-03
超ウラン元素	Pu238	-	-	1.31E-07
	Pu239	-	-	2.66E-06
	Pu240	-	-	1.25E-06
	Pu241	-	-	2.36E-06
	Tc99	1.00E-02	1.00E-02	2.23E-02
核分裂生成物	Ru106	_	Ι	1.61E-07
	Sb125	_	_	5.22E-08
備考		注 1	注 2	注 3

## (日本原燃株式会社ほか,2006;新金属協会核燃料加工部会,2009)

注1: H12 レポート(核燃料サイクル開発機構, 1999)におけるガラス固化体の解析に用いた 仕様値。ASTM C996-96 Standard(ASTM, 1996)の標準仕様値と同じ。

- 注 2: 再転換・成型加工事業者の未照射ウランの受入仕様値に基づいて算出。ASTM C996-96 Standard (ASTM, 1996)の追加仕様値と同じ。
- 注3: 再転換・成型加工事業者の濃縮回収ウランに基づいて算出。ただし、Pu238、Pu239、 Pu240 の含有率は受入仕様では規定されていないため、未照射ウラン中の仕様核種以 外の放射性不純物濃度試算結果(日本原燃株式会社ほか,2006)に示されている Pu238、

Pu239、Pu240の量の比に基づいて推定した。

		仕様1	仕様 2	仕様 3
		$[g MTU^{-1}]$	$[g MTU^{-1}]$	$[g MTU^{-1}]$
	U232	1.00E-04	1.00E-04	1.00E-02
	U234	4.00E+02	4.40E+02	1.20E+03
ウラン同位体	U235	4.00E+04	4.00E+04	4.00E+04
	U236	2.50E+02	5.00E+02	2.50E+04
	U238	9.59E+05	9.59E+05	9.34E+05
	Np237	-	-	3.83E-03
超ウラン元素	Pu238	-	-	1.31E-07
	Pu239	-	-	2.66E-06
	Pu240	-	-	1.25E-06
	Pu241	-	-	2.36E-06
核分裂生成物	Tc99	1.00E-02	1.00E-02	2.23E-02
	Ru106	-	-	1.61E-07
	Sb125	-	-	5.22E-08
備考		注 1	注 2	注 3

表 4-7 解析に用いた核燃料物質の仕様(BWR)

(日本原燃株式会社ほか,2006;新金属協会核燃料加工部会,2009)

注1: H12 レポート(核燃料サイクル開発機構, 1999)におけるガラス固化体の解析に用いた 仕様値。ASTM C996-96 Standard(ASTM, 1996)の標準仕様値と同じ。

注 2: 再転換・成型加工事業者の未照射ウランの受入仕様値に基づいて算出。ASTM C996-96 Standard (ASTM, 1996)の追加仕様値と同じ。

注3: 再転換・成型加工事業者の濃縮回収ウランに基づいて算出。ただし、Pu238、Pu239、 Pu240 の含有率は受入仕様では規定されていないため、未照射ウラン中の仕様核種以 外の放射性不純物濃度試算結果(日本原燃株式会社ほか,2006)に示されているPu238、 Pu239、Pu240 の量の比に基づいて推定した。

本解析では、保障措置対策への影響を検討するため、処分容器1体中のインベントリと表 4-8に示す有意量(1個の核爆発装置が製造される可能性を排除できない核物質のおおよその 量としてIAEAが定めている量)(IAEA, 2002)を比較した。併せて、核セキュリティ対策へ の影響を検討するため、放射線量の推移も評価した。

# 表 4-8 1 個の核爆発装置が製造される可能性を排除できない核物質のおおよその量として IAEA が定めている有意量(IAEA, 2002)

核種	有意量
Pu (注1)	8 kgPu
U233	8 kgU233
U235(濃縮度 20 %以上)	25 kgU235
U235(濃縮度 20 %未満)(注 2)	75 kgU235
Th	20 tTh

注1: Pu-238の含有量が80%未満のPu

注2: 低濃縮ウラン、天然ウラン、劣化ウランも含む。ただし、天然 ウランのみの場合は10 tU、劣化ウランのみの場合は20 tU。

## b. インベントリの推移に関する解析結果

有意量が設定されている Th、U233、U235、Pu を解析対象核種とし、まず、使用済燃料の冷 却期間終了後(炉取り出しから 50 年後)における処分容器1体中のインベントリを求め、そ の後、処分容器を定置してから 10 年後(炉取り出しから 60 年後)から 100 万年後までの期 間における処分容器1体中のインベントリの推移を解析した。

解析で得られた冷却期間終了後(炉取り出しから 50 年後)における Th、U233、U235、Pu の インベントリを有意量との比として整理した結果を表 4-9 に、処分容器を定置してから 10 年 後(炉取り出しから 60 年後)から 100 万年後までの期間における処分容器 1 体中のインベン トリの推移を有意量との比として整理した結果を図 4-3、図 4-4 に示す。燃料タイプや核燃 料物質の仕様の違いにかかわらず、Th、U233、U235 の量が有意量を超えることはなかったが、 Pu については約 2 万年後までは有意量未満にはならなかった。

		仕様 1	仕様 2	仕様 3
PWR 燃料 4 体が収容さ	Th	3.59E-09	3.88E-09	1.22E-08
れた処分容器	U233	3.73E-06	3.94E-06	1.56E-05
	U235	2.64E-01	2.65E-01	2.69E-01
	Pu	2.22E+00	2.22E+00	2.44E+00
BWR燃料12体が収容さ	Th	3.57E-09	3.86E-09	1.33E-08
れた処分容器	U233	3.44E-06	3.64E-06	1.56E-05
	U235	1.99E-01	1.99E-01	2.05E-01
	Pu	2.24E+00	2.24E+00	2.49E+00

# 表 4-9 冷却期間終了後(炉取り出しから 50 年後)における Th、U233、U235、Pu のインベ ントリ(有意量との比)



図 4-3 PWR 燃料 4 体が収容された処分容器 1 体あたりのインベントリの推移



図 4-4 BWR 燃料 12 体が収容された処分容器 1 体あたりのインベントリの推移

#### c. 放射線量の推移に関する解析結果

放射線量の推移は、PWR 燃料 4 体が収容された処分容器については、平成 25 年度報告書(日本原子力研究開発機構, 2014)において評価された処分容器から1 m 離れた地点における線量当量率(中性子線:2.14E+2 uSv h<sup>-1</sup>、ガンマ線:4.51E+1 uSv h<sup>-1</sup>)が、本解析で得られた中性子数、光子数の経時変化に合わせて減少していくとして求めた。また、BWR 燃料 12 体が収容された処分容器については、平成 26 年度報告書(日本原子力研究開発機構, 2015)において評価された処分容器表面における吸収線量率(中性子線:4.00E+2 uGy h<sup>-1</sup>、ガンマ線:

5.85E+3 uGy h<sup>-1</sup>、二次ガンマ線:1.84E+2 uGy h<sup>-1</sup>)が、本解析で得られた中性子数、光子数 の経時変化に合わせて減少していくとし、さらにそれを線量当量率に換算することで求めた。 ここで、処分容器表面における吸収線量率としては、平成 26 年度報告書(日本原子力研究開 発機構, 2015)で求められている処分容器の厚さが 5, 10, 15, 20, 25 cmの場合の値のう ち、PWR 燃料の処分容器と同等の厚さである 15 cmの場合の値を用いることとした。さらに、 吸収線量率から線量当量率に換算するための放射線荷重係数は、ガンマ線については、ICRP Pub.60 (ICRP, 1991)の規定に基づき 1 とした。一方、中性子線については、ICRP Pub.60 (ICRP, 1991)の規定ではエネルギーにより 5, 10, 20 を選択することになっているが、こ こではエネルギーが不明のため、処分容器にアクセス可能になる期間が短くなるように放射 線荷重係数を 5 として線量当量率に変換した。加えて、平成 25 年度報告書(日本原子力研究 開発機構, 2014)および平成 26 年度報告書(日本原子力研究開発機構, 2015)における線量 率は、仕様 1 に該当する核燃料物質の仕様に対して求めたものであるため、ここでの放射線 量の推移も仕様 1 のみの評価とした。

まず、中性子数、光子数の経時変化を解析により求めた。また、参考として放射能量の推移も解析した。中性子数、光子数、放射能量の推移を図 4-5 と図 4-6 に示す。さらに、中性子数、光子数の経時変化率を用いて推定した放射線量の推移を図 4-7 と図 4-8 に示す。



注:仕様1の条件における中性子数/光子数/放射能量は仕様2とほぼ同じ値であるため、 仕様2のプロットと重なっている。



中性子数、光子数、放射能量の推移





図 4-6 BWR 燃料 12 体が収容された処分容器 1 体あたりの 中性子数、光子数、放射能量の推移



図 4-7 PWR 燃料 4 体が収容された処分容器の表面から 1 m の位置における 線量当量率の推移



○線量当量率(仕様1 ガンマ線荷重係数:1、中性子線荷重係数:5)

#### d. インベントリなどの時間変化に基づく核セキュリティ・保障措置対策に関する考察

核セキュリティおよび保障措置のための対策は、施設内に存在するすべての核物質および 関連施設に対して適用されなければならないため、インベントリや放射線量の推移も施設全 体を見て検討する必要がある。しかし、ここでは今後の評価に向けての基盤となるデータの 整備として、施設全体ではなく処分容器1体を対象として検討した。

炉取り出し後の冷却期間を50年とし、そこから100万年後の範囲で処分後の処分容器1体 中のインベントリの推移を評価したところ、燃料タイプや核燃料物質の仕様の違いにかかわ らず、Th については 100 万年後、U233 については 60 万年後、U235 については 30 万年後に 最大値を示したが、有意量を超えることはなかった。一方、Pu については炉取り出し後 50 年 冷却後に最大値を示し、約2万年後まで有意量を超えるインベントリとなった。核兵器の不 拡散に関する条約第3条1及び4の規定の実施に関する日本国政府と国際原子力機関との間 の協定(以下、日・IAEA保障措置協定という)では、第28条において、保障措置の目的を 「有意量の核物質が平和的な原子力活動から核兵器その他の核爆発装置の製造のため又は不 明な目的のために転用されることを適時に探知すること及び早期探知の危倶を与えることに よりこのような転用を抑止することにある」と規定している。つまり、日・IAEA 保障措置協 定の要件に従えば、直接処分施設では、定置してから約2万年後までは処分容器1体の転用 を適時に探知できる対策を取る必要があることになる。しかし、地層処分施設においては、 定置後の処分容器の検認は実施しないというコンセンサスが国際的に構築されていることか ら、地層処分施設閉鎖までは設計情報検認や監視カメラなどによって、地層処分施設閉鎖後 は人工衛星や地震波モニタリングなどによって、転用を適時に探知できるようにすることが 保障措置上は必要となる。

核セキュリティに関しては、処分容器へアクセスすることが比較的容易になる時間を推定 することで、核セキュリティ対策への影響を検討した。脅威者の処分容器へのアクセスが容

図 4-8 BWR 燃料 12 体が収容された処分容器の表面における線量当量率の推移

易になるには、処分容器から放出される放射線量がある程度低下している必要があるが、脅 威者が盗取や妨害破壊行為を行う場合の時間や放射線遮へい用の資機材の準備状況などによ り許容値は変わってくる。さらに PWR 燃料については処分容器表面から1 mの位置における 線量当量率、BWR 燃料については処分容器表面における線量当量率を求めたことから、両者を 同一の基準で比較することができない。このため、ここでは、「核燃料物質等の工場又は事業 所の外における運搬に関する規則(昭和五十三年総理府令第五十七号)」で定める基準、つま り PWR 燃料に対しては同規則第5条第1項第8号で定める輸送物の表面から1 m離れた位置 において許容される最大線量当量率(100 uSv h<sup>-1</sup>)を、BWR に対しては同規則第5条第1項 第7号で定める輸送物表面において許容される最大線量当量率(2 mSv h<sup>-1</sup>)を許容値と仮定 し、どちらか一方が許容値である最大線量当量率を下回った時点で処分容器へのアクセスが 容易になると仮定した。

図 4-7 および図 4-8 から、PWR 燃料では定置してから約 40 年後に、BWR 燃料では約 70 年後 にこの許容値を下回ることがわかる。つまり、早ければ定置してから 40 年後には脅威者が処 分容器に容易にアクセスできるようになる可能性があり、フィンランドでの事例のように直 接処分施設の操業年数を約 100 年と想定すると、操業期間中に脅威者が容易にアクセスでき る状況が生ずることも考えられるということになる。ここで、操業中は処分容器定置用のト ンネルの掘削工事や埋設作業が継続的に行われ、処分容器や掘削用資機材などの搬出入、人 員や車両の出入りも頻繁に発生するため、地層処分施設閉鎖後に比して処分容器へのアクセ スが容易と考えられる。このため、操業開始 40 年から地層処分施設閉鎖までは、特に処分容 器への不審な接近を検知できるような核セキュリティ対策が求められる可能性がある。

#### ④ 最新の核セキュリティ上の脅威および技術に関する調査

原子力施設では取り扱う核物質の量や種類、さらには施設に対する潜在的な脅威などを勘 案して核セキュリティ対策を講じる必要がある。施設で取り扱う核物質の量や種類は施設自 体に起因するパラメータであることから、これらを変更する場合は情報を事前に入手し核セ キュリティ対策を検討することができる。しかし、潜在的な脅威に関する情報は事前に入手 することが困難である上、常に新しい手段や武器が生み出されているため、これに対応する ための核セキュリティ対策を講じるためには、原子力施設の潜在的な脅威となりうる事象に 関する最新の情報、およびセキュリティ技術の開発動向を把握することが重要である。

本節では、直接処分施設の核セキュリティ対策の検討に資するため、軍や警察または政府 関係の施設もしくは原子力施設などを対象として発生したテロ事象、および国内外における 最新のセキュリティ技術の開発動向について調査し、その結果を「a.世界のテロ発生状況と 傾向」および「b.国内外における最新のセキュリティ技術の開発動向の調査・整理」に整理 した。

#### a. 世界のテロ発生状況と傾向

テロリズム(以下、「テロ」という)に関する情報は、現在、様々なメディア、公的・私的 機関、あるいはそれらを取り巻くネット上の情報など数多くの情報が散見される。しかし、 これら情報には、情報源が地域的に偏っている場合が多く、世界的な発生状況、発生件数な どを客観的、科学的に俯瞰できるものが少ない。このような背景の中で、米国の国土安全保 障省 (DHS) は中核研究拠点として START (National Consortium for the Study of Terrorism and Responses to Terrorism) を 2005 年に設立し、このコンソーシアムが中心となってテロ に関するデータベースである GTD (Global Terrorism Database)を、さらに、原子力施設へ の爆破、破壊などの事象を記録する包括的なデータベースとして NuFAD (Nuclear Facilities Attack Database)を構築している。2018 年末現在、GTD には 1970 年以降に発生した 18 万件 以上のテロに関するデータが、NuFAD には 1961 年~2014 年に発生した原子力施設へのテロに 関する 80 件のデータが登録されている。

まず、GTD に登録されているデータから、原子力施設で適用されているセキュリティ対策と 同等以上または類似のセキュリティ対策が適用されていると考えられる政府関係機関、警察、 軍、港湾施設、輸送設備、電力、石油パイプライン、変電所、高電圧線、ガスおよび電力設備 を対象としたテロであって、直近の10年間に原子力技術保有国において発生したものとして 16,343 件を抽出し、最近の傾向について調査した。データにより、以下のことが分かった。

- テロの発生件数は1970年代、1980年代に比べても近年依然として高い傾向にある。
- パキスタン(5,338 件)、インド(3,528 件)、タイ(1,491 件)、エジプト(1,384 件)、 ウクライナ(1,135 件)、トルコ(1,015 件)、ロシア(752 件)でのテロが多く、紛争地 帯や政治的混乱がある地域で多発している。
- テロ攻撃の対象と件数は、政府関連施設で654件、警察関係で1,206件、軍事施設で959件、輸送関連施設で453件、食糧・水施設で454件、ユーティリティ施設(電気、ガス、石油)で881件あったが、発電所へのテロ攻撃はなかった。
- テロ攻撃では、車両爆弾が 561 件、手りゅう弾が 890 件、ロケット砲などが 1,645
   件、銃が 607 件など、典型的な武器が用いられている。
- イスラム国、タリバンを始めとする過激民族主義や人種的、宗教的イデオロギーに 加え、反戦、反政府、反資本主義、社会正義、環境保護主義など様々なイデオロギー によるものが近年多く関与し始めているという傾向がある。
- 大規模なテロ行為は 9.11の米国同時多発テロ以外は無く、上記に示すとおり、ほぼ 宗教的、政治的混乱地域に集中している。

次に、NuFAD に登録されている原子力施設へのテロの情報を調査した。NuFAD に登録されて いるテロ事象としては、GTD の事例に見られるような攻撃による殺傷を伴うものは少なかっ た。一方で、グリーンピースなどのグループによる原子力施設への侵入など、セキュリティ 上の脆弱性を露呈させるような行為や、インサイダによる実行または協力を伴うテロ事象な ど、原子力施設特有と考えられる事象が見受けられた。以下に原子力施設へのテロの傾向を 示す。

- 爆弾を用いた攻撃(スペイン・Equipos 原子力発電所での爆弾テロにより主要施設に
   600万ドルの損害など、19件)、または銃器を用いた攻撃(フランス・スーパーフェニックス高速増殖炉建設中に対戦車ロケット5発が着弾など、6件)が一般的なテロと比較すると少ないとはいえ、発生している。
- GTD の事例に見られるような殺傷、誘拐などは少ない。

- 軍や研究所といった施設での盗取や侵入が散見される。
- インサイダによる実行・協力などによってテロ実行者が原子力施設のシステムや状況を事前に把握していると推定されるケースがある(ベルギー・Doel 発電所において地下貯蔵タンクに油が流し込まれ、4号機のタービンがオーバーヒートなど、24件(関与の疑いがある事案を含む))。
- テロ行為とは言えないような単なるアピールのための行為が見受けられる(スウェ ーデン・Oskarshamn 原子力発電所に侵入し、原子炉建屋に垂れ幕を掲示など、11件)。
- パラグライダやドローンを用いた空からの侵入が発生したケースがある(フランス・ Bugey 原子力発電所内の建屋屋上にパラグライダで侵入し着陸など、3件)。

上記 GTD、NuFAD のデータに基づく一般的なテロと原子力施設に特化したテロの傾向の検討 結果から、近い将来発生する可能性のあるテロの傾向を整理した。

- テロは、紛争地帯や政治的混乱がある地域に集中する傾向があるものの、原子力技術を有する国で原子力施設が攻撃を受ける可能性も十分高いと言える。
- テロを起こす者や組織は、過激民族主義や人種的、宗教的イデオロギーに加え、反戦、反政府、反資本主義、社会正義、環境保護主義など様々なイデオロギーによるものを動機とする傾向がある。
- テロ攻撃には、対象となる施設に関わらず、爆発物やロケット弾などの強力な武器 が使用される傾向がある。
- 軍の施設を含む原子力施設に対しては、管理が杜撰な核物質の盗取を目的にしたテロ行為が発生する可能性がある。
- インサイダによる実行や協力は今後ますます大きな脅威となる。
- ドローンなどの新しい技術がテロに利用される傾向が高まる。
- 原子力施設への単なる侵入など、テロ行為とまでは言えないような事象の発生が多くなる可能性がある。

#### b. 国内外における最新のセキュリティ技術の開発動向の調査・整理

a.項で示したように、最近は原子力施設への単なる侵入など、テロ行為とまでは言えない ような事象も多いが、インサイダの関与もしくはインサイダ自身による実行が疑われる核物 質の盗取も発生している。さらに、一般的なテロでは、爆発物やロケット弾などの強力な武 器が使用されることが多く、将来、原子力施設に対してもこれらの武器を使ったテロが発生 する可能性がある。以上のことから、ここでは、核物質の不法持ち出しを検知するための核 検知技術、爆発物の持ち込みを検知するための爆発物検知技術について最新の開発状況を調 査した。

また、一般社団法人日本技術者連盟が 2018 年 11 月に実施した、イスラエルにあるセキュ リティ技術の開発や運用をしている国家機関や企業への訪問調査、およびイスラエルで開催 された国際展示会(HLS&サイバーカンファレンス 2018)出展企業への聞き取り調査の報告会 に参加し、最近のセキュリティ機器の開発トレンドについて情報を収集した。調査団の報告 によると、最近の傾向としては AI 技術を搭載したセキュリティ機器の開発が進んでおり、収 集データを機械学習することで設定した定常状態からのズレを AI が判断することで高い蓋 然性をもって対象物を検出・特定できる機能を備えた機器が多くなっているということであ った。このことから、直接処分施設など将来建設される施設に適用される核セキュリティシ ステムも AI 技術が組み込まれたものになる可能性が高いと考えられる。

#### (a) 核検知技術

IAEA では、規制上の管理を外れた核物質およびその他の放射性物質が関わる核セキュリティに関連する犯罪行為または無許可の行為の検知のためのシステムおよび措置の確立に向けて、既存の核セキュリティ検知の設計思想の策定または改善に関する手引きを提供することを目的として、IAEA 核セキュリティ・シリーズ No.21「Nuclear Security Systems and Measures for the Detection of Nuclear and Other Radioactive Material out of Regulatory Control (IAEA, 2013)」を2013年に発行している。この手引書において、パッシブおよびアクティブの放射線検知装置に言及し、それぞれの装置の主な特性について説明している。また、検知技術を評価するにあたって考慮すべき特性として以下の要件を挙げている。

- 脅威評価に由来した情報に基づく検知能力の要件
- 運用状況下での検知機器の性能
- 検知された放射線の種類の同定のための検知機器の性能
- 検知機器の範囲、感度および効率性
- 検知機器の可搬性または配置場所の変更に関する性能
- コスト、ライフ・サイクルの費用、耐温または耐衝撃性、その他の運用要件(エネル ギー消費量、重量、冷却要件)、および物理的寸法

直接処分施設に設置する核検知装置も、具体的な施設の設計や脅威評価結果、または検知 機器の運用方法などを考慮して設置・使用する必要がある。その候補技術の例として、ガン マ線および中性子線でスキャンすることで車両や歩行者が携帯する核物質を検知することが 可能な装置の例を図 4-9 に示す。



図 4-9 核検知装置の例 (Arktis Radiation Detectors Ltd.のパンフレット)

## (b) 爆発物検知技術

爆発物を検知するための技術は、爆発物から気化したガスや微粒子を検出する技術、また は爆発物そのものを検出する技術に大別できる。これら技術の一方もしくは両方を組み込ん だ爆発物検知装置が世界各国で開発されており、空港や国境、または大規模イベントなどで 使用されている。たとえば爆発物検知装置の例として、図4-10に示すウォークスルー型の爆 発物検知装置では、ターゲットに照射したマイクロ波の散乱データと誘電特性データを解析 することで爆発物を識別できるようになっている。



装置設置例



警告表示例

図 4-10 爆発物検知装置の例 (Apstec Systemsのパンフレット)

2) 直接処分システムの各構成要素の設計オプションなどについての情報・知見の調査

直接処分システムの各構成要素の設計オプションなどについての最新の情報・知見の収集・ 整備として、主に以下の観点からの文献調査を行った。

(ア) 処分施設を構成する各要素(処分容器、緩衝材、坑道、搬送・定置設備、地上設備など)やその設計オプションについての諸外国などでの最新の検討事例、設計事例、設

計の実施および設計に係る情報管理への適用技術の検討事例

- (イ) 諸外国などでの最新のバリア性能の評価事例
- (ウ) 多種多様な情報・知見の特徴の把握や比較がしやすい情報整理方法

調査対象とした文献の一覧を、上記の3つの観点で分類して表4-10に示す。

|--|

観点	文献名	当該文献を調査する際 の着目点
	SFL concept study Main report(SKB, 2013a)	処分概念オプションの 選択の考え方・手法
	The Nagra Research, Development and Demonstration (RD&D) Plan for the Disposal of Radioactive Waste in Switzerland(NAGRA, 2016)	事業の段階に応じた検 討事項や意思決定事項 の変化
	APPLICATION FOR LICENCE UNDER THE NUCLEAR ACTIVITIES ACT(SKB, 2011)	
	核燃料物質又は核燃料物質によって汚染された物の第一種廃棄物埋設の事業に関する 規則(平成二十年経済産業省令第二十三号)	
(ア)処分施設を構 成する各要素の設	地層処分事業の安全確保(2010年度版)(原 子力発電環境整備機構, 2011) Position Paper in Reversibility, January	_
計オフションなど についての諸外国 の最新の検討事例、	2016 (ANDRA, 2016a)他 The Nagra Research, Development and	ガラス固化体のみの処
設計事例、設計の実施および設計に係る情報管理への適	Demonstration (RD&D) Plan for the Disposal of Radioactive Waste in Switzerland (NAGRA, 2016)	分から直接処分が追加 となった場合の検討事 項の相違/類似性
用技術の検討事例	Development of Repository Concepts for Volunteer Siting Environments(原子力発電 環境整備機構, 2004b)	場の違いによる評価指 標の優位性の検討事例 の調査
	Horizontal Deposition of Canisters for Spent Nuclear Fuel Summary of the KBS-3H Project 2004 - 2007 (POSIVA, 2008)	定置方式の違いによる 処分容器の再取り出し 性の違い
	KBS-3H - Design, Production and Initial State of the Supercontainer (POSIVA, 2016a)	PEM の定置方式 (KBS- 3H)の最新の設計
	Safety Evaluation for KBS-3H Spent Nuclear Fuel Repository at Olkiluoto - Description of the Disposal System (POSIVA, 2016b)	
(イ)諸外国などで の最新のバリア性 能の評価事例	Modelling of Radionuclide Transport along the Underground Access Structures of Deep Geological Repositories (NAGRA, 2014)	トンネルシステムに 沿った核種移行
<ul> <li>(ウ)多種多様な情報・知見の特徴の把握や比較がしやすい情報整理方法</li> </ul>	SFL Concept Study Technical design and evaluation of potential repository concepts for long-lived low and intermediate level waste (SKB, 2013b) Upstream Optioneering:Optimised Management of Orphan Wastes(NDA(UK), 2013)	分かりやすい情報の提 示方法

以下に文献調査結果の概要を示す。

#### ① 処分概念オプションの選択の考え方や手法に関する調査

処分概念オプションを選択の考え方や手法に関する調査として、SKB の SFL concept study Main report (SKB, 2013a)の調査を行った。

本報告書では、スウェーデンの長寿命低・中レベル廃棄物の処分概念として検討されてい る複数の候補を対象に、関連する法律、規則、所有者や公衆からの要求事項を特定し、その 要求事項に基づいて評価因子を構築し、処分概念オプションの選択においてそれらを適切に 関連付ける事によって、処分概念オプションの外部からの要求などを満たすかどうかの評価 を実施している(図 4-11)。



図 4-11 外部からの要求事項と評価因子の関係のイメージ

ここで、処分システムはさまざまな要素によって構成されるため、要求事項もシステム全体に適用するもの(レベル1)と特定の要素に適用するもの(レベル2)を考え、レベル2の要求事項は以下の要素と対応するよう分類されている。

- 廃棄物と容器
- ・ 外部輸送のためのシステム
- ・ 処分システム内の設備(廃棄物処理施設、貯蔵施設、閉鎖後の処分施設)
- ・ 処分場(長期安全性のためのバリアシステム)

また、要求事項に基づいて評価因子を構築する際には、各要求事項を少なくとも一つの評価因子に関連付けることによって、要求事項と評価因子の関係を追跡可能にしている。なお、評価因子は表 4-11 の評価カテゴリーに分類される。

評価カテゴリー	評価因子
長期安全性	閉鎖後安全評価の実施可能性、バリアの安全機能のロバスト性
環境と社会	人間の健康と環境への影響、土地・資源の必要性、受容性、将来世
	代への負担
技術	作業員の安全性と作業環境、設計・建設の実現性、技術・操業方法
	の実現性、柔軟性
費用・時間	費用、時間

表 4-11 評価カテゴリーと評価因子

このような、要求事項と評価因子の関連付けにより、要求事項を満足しない処分概念を除外することが可能である。

こうした外部からの要求事項をブレークダウンして構造化し、評価因子と対応づける手法 は、原子力発電環境整備機構における要件管理システム(原子力発電環境整備機構, 2007) においても、類似の考え方が用いられている。このような手法は、設計オプションの選択に おける要求事項の分析や意思決定手順の追跡性の確保などの活用できる可能がある。また、 (3)項でのシステムの成立性を論じるために議論・確認すべきことの分析・整理のアプローチ 案の検討においても、議論・確認すべきことの分析に適用できると考えられる方法の候補の ひとつとした(表 4-15)。

#### 事業の段階に応じた検討事項や意思決定事項の変化に関する調査

事業の段階に応じた検討事項や意思決定項目の変化に関する調査として、NAGRA の The Nagra Research, Development and Demonstration (RD&D) Plan for the Disposal of Radioactive Waste in Switzerland (NAGRA, 2016)の調査を行った。

本報告書では、R&D や実証試験の対象となる技術や材料について、最終決定する事業段階を 見据えた R&D を計画しており、各事業段階までにどのような検討事項を考慮する必要がある か整理されている。具体的には、2024 年に予定されている概要承認申請に向けて今後 5~10 年間に行うべき作業計画について、様々な承認手続きのタイミングも考慮しながら示してい る。

スイスでの承認手続きの各段階における主な決定事項を以下に示す。

- General license (概要承認手続き):サイトの決定、主要施設のおおよその規模と位置、廃棄物の種類、最大の処分能力、処分を進めていく上での適合基準、モニタリング及び閉鎖の概念を特定する。環境影響評価の第一段階を実施。処分システムの構成要素については、設計オプションを候補として維持するとしている。
- Nuclear construction license (建設承認手続き):処分場の収容能力、技術的実現性の主要な要素、モニタリング段階のためのプロジェクトと閉鎖のための計画、処分場の詳細なレイアウトと設計を決定する。環境影響調査の第二段階を実施。処分施設の基本設計を提示するとともに、詳細な人工バリアシステムのレイアウト、定置坑道の配置、詳細設計を明らかにする。また、レファレンスの材料を選択するが、将来の技術

発展を期待してオプションの検討も継続するとしている。

- Nuclear operating license (操業承認手続き): 処分場の収容能力、環境モニタリン グの方法、操業の着手段階を特定する。また、廃棄物に適用される要求事項(特に濃度 制限)を決定する。操業承認手続きの際には回収技術の実証が必要であるとし、概要承 認手続きまでの期間に、回収の概念を改良し、回収可能性の要求事項を全体の概念設 計に適切に統合するとしている。
- Closure of the repository (処分場の閉鎖):連邦政府は、人間及び環境への長期的 な防護ができることを確認できた場合、モニタリング段階の終了後に閉鎖を命じる。
   閉鎖後、連邦政府はさらにモニタリングの期間を命じることができる。

これらの調査結果から、本報告書は、必要な研究開発の課題をリスト的に挙げるだけでな く、どの事業段階までに何をする必要があるかを整理しつつ、課題設定を事業の段階と対応 付けて整理することの必要性と有用性を示していると考えられる。

# ③ ガラス固化体のみの処分から直接処分が追加となった場合の検討事項の相違/類似性に関 する調査

NAGRAの The Nagra Research, Development and Demonstration (RD&D) Plan for the Disposal of Radioactive Waste in Switzerland, Technical Report 16-02 (NAGRA, 2016) では、ガラス固化体のみの処分から直接処分が追加となった場合の検討事項の相違/類似性に 関する記述がないかを調査した。NAGRA は当初ガラス固化体のみを対象とした処分システム を検討していたが、その後使用済燃料を含めた直接処分システムも追加になった背景がある。

本報告書では、まず、ガラス固化体のみを対象にする場合とは異なる使用済燃料特有の課 題として挙がっている事項を調査した。その結果、主に廃棄物の特性評価に関する分野につ いて以下のような事項が挙げられていた。

- 廃棄物インベントリは長期安全性評価の観点では十分特徴づけられているが、使用済 燃料の取扱い、容器への封入のためのインベントリ量の把握についてはさらに改良し ていく予定である。
- 安全評価で最も重要な特性は、操業時および長期処分条件下において臨界要件を超えないこと、および処分条件下での核種の放出率とガス発生率である。これまでの安全評価から分かっていることとして、使用済燃料からの核種の放出率に関する調査を進めることが最も重要な課題である。また還元条件での使用済燃料の溶出率(特に MOX)、地化学環境の影響についてのデータベースを拡充していく予定である。さらに、燃焼度に基づく臨界評価の方法論をまもなく完成させる。
- 燃料の取扱いに関連して、以下のような検討も行われている。
  - 中間貯蔵期間中の使用済燃料集合体の長期の完全性、封入施設での損傷燃料の取扱いについては継続して注意を払う必要がある。
  - 使用済燃料に対し、輸送、ハンドリング、容器への封入などを行うため、起こり得る燃料の損傷についての検討を開始している。

また、ガラス固化体と使用済燃料の比較結果としては、両者のバリアシステムには設計上 では特段に大きな違いは見られなかった。一方、それらを並置処分する場合には、使用済燃 料ではガラス固化体と比較して長期の冷却期間が必要であるため、定置はガラス固化体が先 になることから、ガラス固化体の先行的な定置が使用済燃料の処分場のレイアウトにも反映 されていることが分かった。

これらの調査結果から、本報告書でガラス固化体と使用済燃料との違いに着目しているこ とは、わが国でのガラス固化体に対する代替処分概念としての使用済燃料直接処分への取り 組みと共通するところがあり、本報告書で挙げられた使用済燃料特有の課題が、先行事業お よび本事業で設定している課題と整合的であることが確認できた。

#### ④ その他の文献からの情報

表 4-9 に示した文献のうち、①~③で示した以外の文献からの主な情報を以下に示す。

事業の段階に応じた検討事項や意思決定事項の変化に関する検討事例の調査

「核燃料物質又は核燃料物質によって汚染された物の第一種廃棄物埋設の事業に関す る規則(平成二十年経済産業省令第二十三号)」では、放射性廃棄物のうち政令で定める基 準を超えるものの埋設による最終的な処分(第一種廃棄物埋設事業)を行うものについて 定めており、本規則の規定内容から、各事業段階で提出すべき許可申請の内容を把握する ことが可能と考えられる。

また、ANDRAの「Position Paper in Reversibility」(ANDRA, 2016a) について、以下 の文献の調査を行い、フランスでは、高レベル放射性廃棄物および長寿命中レベル放射性 廃棄物については「可逆性のある地層処分」を行うことが基本とされ、これら文献におい て、高レベル放射性廃棄物に対する回収実験、可逆性における管理システム(Governance systems)と工学的プロジェクト管理システム(Project management systems)の役割など が検討・整理されていることを確認した。

- ✓ Position Paper on Reversibility January 2016(ANDRA, 2016a)
- ✓ Activity Report 2015(ANDRA, 2016b)
- ✓ Cigeo Project, Deep geological facility for radioactive waste in Meuse/Haute-Marne departments(ANDRA, 2016c)

これらの情報は、各事業段階における回収可能性の評価や、異なる事業段階における情報の管理、伝達方法の検討などにおいて参考になると考えられる。

設計オプションに関する情報の調査

定置方式の違いによる処分容器の再取り出し性の違いに関する調査として「Horizontal Deposition of Canisters for Spent Nuclear Fuel Summary of the KBS-3H Project 2004 - 2007」(POSIVA, 2008)を対象に調査を行った。しかし、定置方式の違いにより再取り出 しの手順に違いが生じる可能性に言及しているものの、具体的な検討時期などについては 記載されていなかった。

また、定置方式については、KBS-3H に関する最新の設計情報の調査を、「KBS-3H - Design, Production and Initial State of the Supercontainer」(POSIVA, 2016)を対象に行った。 本報告書では、スーパーコンテナーについての最新の設計基準、組立方法が記載されてい る。スーパーコンテナーの組立は処分場深部に設置する積替えステーションにおいて縦方 向で実施され、組立には搬送管が用いられる。このための搬送管の傾転作業の実証試験が 行われている。これらの組立や搬送技術などは、たとえば、PEM 容器の製造施設の設計オ プションや搬送定置の設計オプションの検討などにおいて参考になると考えられる。

#### 最新のバリア性能の評価事例の調査

最新のバリア性能の評価事例の調査として、トンネルシステムに沿った核種移行解析に 関する調査として、「Modelling of Radionuclide Transport along the Underground Access Structures of Deep Geological Repositories」(NAGRA, 2014)を対象に調査を行 った。本報告書では、止水プラグのシール性能をパラメータとしてシャフトトンネルなど が核種移行経路となった場合の解析を実施し、プラグの性能がある程度劣化しても評価上 成立することが確認されている。こうした評価手法は、止水プラグを設計オプションとし た場合の評価方法などにおいて参考になると考えられる。

#### • 多種多様な情報・知見の特徴の把握や比較がしやすい情報整理方法

「SFL Concept Study Technical design and evaluation of potential repository concepts for long-lived low and intermediate level waste」(SKB, 2013b)では、処分 概念オプションの評価因子ごとの成立性の見込みや評価因子の重要性などを視覚的に分 かりやすく3色で表現し、今後その評価因子に関する評価をどう進めていくべきかの判断 に使われるとしている。こうした情報の整理と表示の手法は、システムの成立性を論じる ために議論・確認すべきことの分析結果(例えば、議論・確認の論点の抽出結果、重要性 などの評価結果など)のわかりやすい提示方法などとして参考になると考えられる。

#### (3) システムの成立性に関係する検討対象などの抽出・整理

本項では、(1)で述べた、「本項目では、直接処分システムの成立性を論じるために議論・ 確認すべきことの分析・整理の進め方を、物、状況・条件、視点などの検討対象を幅広く考慮 することで、先行事業における取り組みに対してより多角的な議論としていくことに留意し つつ検討し提示することを目指す」に向けて、まず、システムとしての成立性を論じる際の 検討対象となる物、状況・条件、視点などについて、本項目において対象とするものを抽出・ 整理したうえで(「1)」項参照)、成立性を論じるために議論・確認すべきことを効果的に分 析・整理していくためのアプローチの案を示す(「2)」項参照)。

#### 1) システムの成立性に関係する検討対象の抽出・整理

システムとしての成立性を論じる際の検討対象となる物、状況・条件、視点などについて、 本項目において対象とするものを抽出・整理する。

まず、「物」としては、直接処分システムの構成要素が対象となり、さらに、各構成要素が 複数の設計オプションを有する場合には、各設計オプションも対象になる(表 4-12)。また、 ガラス固化体を対象とした H12 レポート(核燃料サイクル開発機構, 1999)の処分概念をベ ースとした場合(横置きなど)に対して、廃棄体と緩衝材を一緒に容器に封入する PEM (Prefabricated Engineered barrier system Module)方式や大規模空洞処分概念(CARE) などの、システムの構成要素も変わる可能性のある処分概念オプションも対象になる。さら に、直接処分システムの成立性を、使用済燃料以外の廃棄物であるガラス固化体や TRU 廃棄 物の地層処分と比較して論じることも考えられるため、廃棄物の種類(使用済燃料、ガラス 固化体、TRU 廃棄物(地層処分相当)も検討対象になると考えられる。

「状況・条件」としては、例えば、成立性の議論は、どの時間断面を対象にするか、どのような地質環境条件を対象とするかなどに依存して変わってくることが考えられるため、事業の段階、立地場所(表 4-13)なども検討対象の候補になる。さらに、本項目での検討対象としては挙げないものの、どのような立場(ステークホルダー:地域住民、一般公衆、国、規制、実施主体、研究機関、大学など)で検討するかによっても、成立性は変わってくることが考えられる。

最後に、「視点」としては、直接処分システムが満たすべき性能や能力を挙げることが適切 と考えられる。これについては、原子力発電環境整備機構が、ガラス固化体の地層処分を対 象として、設計によって処分場に持たせようとする性能や能力として設定した「設計因子」 (原子力発電環境整備機構,2011)が共通的に活かせると考えられる。本項目での検討対象 としては、ガラス固化体を対象とした設計因子(原子力発電環境整備機構,2011)を基本に、 設計因子(小)について一部加筆するとともに、設計因子(大)として直接処分に特有の留意 事項である「保障措置」と「核セキュリティ」を加えた(表4-14)。

システム構成要素	設計オプション例	
廃棄物	廃棄体収納体数(炉型毎:PWR, BWR 等)	
処分容器	容器材料(炭素鋼、銅等)	
緩衝材	定置方式 (ブロック、ペレット方式、PEM)	
支保	支保の有無、普通、低アルカリセメント	
	アクセス坑道の種類(立坑、斜坑、スパイラル坑)	
坑道	連絡坑道の種類(一方通行、双方向通行、行き止まり型、	
	全周包囲型)	
	埋め戻し材料のベントナイト配合比	
埋め戻し材・プラグ	設置方式(ブロック方式、埋め戻し)	
	プラグ材料(普通セメント、低アルカリセメント)	
搬送・定置	堅置き、横置き	
母岩	パネル数	
	パネルの配置層数(単層、多層)	
地上施設	配置(地上集中・分散方式、半地下化、全地下化)	

表 4-12 直接処分システムの構成要素と設計オプション

# 表 4-13 事業の段階、立地場所

	現段階
	文献調査
	概要調査
事業の段階	精密調査
	建設許認可
	操業許認可
	閉鎖許認可
计专曲引	内陸
<u> </u>	沿岸海底下

設計因子 (大)	設計因子 (小)	
明然然目期空入州	放射性物質の移行	
闭頭仮長朔女主性	人工バリアの長期安定性	
· 提 类 穴 入 姓	放射線安全	
傑希女生性	一般労働安全	
	工程	
工学的成立性/品質保証	建設の実現性	
	定置作業性(操業の実現性)	
	閉鎖の実現性	
	技術開発の進展	
	<b>効率性(物流)</b>	
	地下環境への適応性	
工学的信頼性		
サイト調査とモニタリング		
回収可能性		
環境影響		
社会経済的側面	経済性	
	社会的受容性	
古拉加八に叱ての十年	保障措置	
旦	核セキュリティ	

表4-14 直接処分を対象とした設計因子の例

## 2) システムの成立性を論じるために議論・確認すべきことの分析・整理のアプローチ案

システムの成立性についての検討では、1)項で挙げたような検討対象を幅広く考慮するこ とで多角的な議論としていくこととあわせて、検討の内容としては、(1)項で述べたように、 成立するかどうかという最終的な結論を得ることだけでなく、そのために何を議論・確認す べきか、それについての既往の取り組みや情報の有無・充足度はどうかなどを分析・整理し、 今後取り組むべき課題などを抽出していくことも含むこと、に留意する必要がある。特に、 代替処分技術として使用済燃料直接処分の技術の高度化を図ることを目標とする本事業では、 直接処分システムの成立性についての最終的な結論を得ることでなく、今後取り組むべき課 題などを抽出していくことを重視することが適切と考えられる。

今後取り組むべき課題などの抽出に向けて、そのために何を議論・確認すべきか、それに ついての既往の取り組みや情報の有無・充足度はどうか、などを分析・整理していくアプロ ーチとしては複数の案が考えられる。何を議論・確認すべきかの分析については、たとえば、 以下のような切り口が考えられる:

システムの成立性を論じるために考える必要のありそうなことを俯瞰できるようにする。そのために、考える必要があることをなるべく網羅的に抽出し提示する。

- ② システムの成立性を論じる際の相対的な重要性や有利性などをハイライトできるようにする。このとき、重要性や有利性の意味が設計因子によって異なること、さらに、相対的な重要性や有利性が検討対象の「物」や「状況・条件」の違いより変化することなどから、重要性や有利性の意味や検討対象を明確にしていくことが重要となる。
- ③ 特定の前提条件において特に着目・注意すべきことをハイライトできるようにする。た とえば、直接処分を考える場合に特に着目・注意すべきことを、従来の地層処分と異な る検討が必要な部分、諸外国の検討事例をそのまま使うことが難しい部分などとして抽 出し提示する。

ここで、このような分析を効果的に行うためには、作業者がそれぞれのやり方で行うこと がないように、体系的な方法論としていくことが有用になると考えられる。その一案として、 わかりやすさと簡単さの観点から、設計因子を共通の軸として、それと様々な検討対象とを 組み合わせた二次元のマトリクスを基本フォーマットにすることが考えられる(図4-12)。こ のようなフォーマットにより、たとえば、以下のような分析がやりやすく、また結果をわか りやすく表示できることが期待される。

- 分析方向1:検討対象の特定の要素について、設計因子ごとに考慮の要否の分析・評価を行う(たとえば、前述の切り口①での、システムの成立性の検討として考える必要のある設計因子の抽出に該当)
- 分析方向2:特定の設計因子について、検討対象の複数の要素の類似点・相違点を分析・評価する(たとえば、前述の切り口③での、直接処分と従来の地層処分とで異なる検討が必要な部分の抽出に該当)

また、このような分析を具体的に進めていくための手法としては、たとえば表 4-15 のような 手法の適用が考えられる。なお、特定の検討対象、切り口、分析方向に対してどの手法を適 用することが適切なのかは、経験などを積み上げていく中で、推奨される手法の選択や適用 方法を具体化していくことが必要になると考えられる。

上記のような切り口、整理方法、分析方向の組み合わせにより、何を議論・確認すべきか の分析・整理が進むことにより、次のステップとして、議論・確認すべきことについて、すで に検討されているかどうか、情報や知見が十分かどうかなどを分析することで、現在の検討 状況が俯瞰できるようになるとともに、システムの成立性を効果的に検討するための課題な ど(含む、取得するべき情報や知見の種類・量・質)を抽出していくための基盤も整えられる ことになる。なお、図4-12に例示した二次元マトリクスフォーマットは、このような既往の 検討や関係する情報・知見の状況(有無やレベル)などを色付けや記号の表示で多彩に表示 可能であり、さらには、必要に応じて根拠情報をハイパーリンクで紐づけすることも容易で あることから、情報管理の観点での効果も期待できる。

システムの成立性を論じるために議論・確認すべきことの分析・整理についての今後の進 め方としては、上記のアプローチ案も参考にしながら、たとえば、直接処分の検討としてわ が国で重点的に取り組んでいくべき課題などを、システム成立性の議論への反映先を明確に しつつ提示できるようにするアプローチの構築に重点をおくことが考えられる。

		検討	対象	
		分析7	5向2	
設計	6向1			
因子	もあた			
	<b>↓</b> K			

図 4-12 設計因子と検討対象を組み合わせた二次元マトリクスフォーマット例

表 4-15 議論・確認すべきことの分析に適用できると考えられる方法

手法の分類		手法の候補	
エキスパー トジャッジ	主観的判断	専門家が経験や知見を踏まえて決定する方法。必要に応じ	
		て様々な分野の専門家へのヒアリングや議論を行う。	
	文献調査	文献の情報を踏まえて決定する方法。	
	個別要素の要	システムへの要求機能(評価指標)を個別の要素の要件に	
	件等の詳細分	ブレークダウンする手法。	
	析法	SKB(2013a)や原子力環境整備機構(2007)での要件管理シ	
		ステムの検討の中で採用されている手法。	
数理的意思決定手法		意思決定のための比較や判断を定量性をもって行うために	
		用いられる方法。	
		階層分析法(AHP)、多属性効用解析(MAA)、ゲーム理論、機	
		械学習等がある。	

#### (4) まとめ

直接処分システムの成立性の多角的な確認として、核セキュリティ・保障措置などの国際 的な進展や議論から特に重要となる要素の最新の知見の分析を進めると共に、システムの成 立性を効果的に検討するための課題(取得するべき情報の種類・量・質など)について整理を 行うためのアプローチなどの検討を進めた。

保障措置・核セキュリティについては、まず、IAEA シンポジウムへの参加、フィンランド への往訪調査およびスウェーデン SKB 技術者との打合せにより、IAEA および諸外国における 直接処分施設に適用する核セキュリティおよび保障措置の状況を調査し最新情報を整理した。 保存すべき核セキュリティ・保障措置データの種類の整理については、既存の法令などにお ける使用済燃料の取扱いに関する要求事項を参考に、直接処分施設の核セキュリティ体制の 長期的な維持や使用済燃料の再検認における必要性の観点から保存すべきと考えられる記録 を抽出・整理した。また、プルトニウム量などの核物質量が長期的な管理に対して与える影 響を評価するための基盤となるデータとして、使用済燃料が収容された処分容器中の核物質 のインベントリと放射線量の時間変化を解析した。さらに、世界で発生している最近のテロ の状況を調査し、またそのような状況を踏まえて直接処分施設に設置することが推奨される 最新のセキュリティ機器に関する調査を行い、最新情報を整理した。 今後も IAEA および諸外 国の状況の調査を継続し、わが国における検討に適宜反映できるようにする。さらに、例え ば、地震波モニタリングや人工衛星といった最新技術を活用して得られる情報を用いること で効果的・効率的な核セキュリティ・保障措置を長期間にわたって維持できると考えられる ことから、これら技術の適用可能性などについても検討する。また、処分容器に収容されて いない使用済燃料の転用や盗取・妨害破壊行為の可能性、ならびに INFCIRC/225/Rev.5 (IAEA, 2011)の規定に基づく防護区分の変更の可能性についても検討する。

システムの成立性の効果的な検討に向けては、まず、システムとしての成立性を論じる際 の検討対象について、本項目において対象とするものとして、物(直接処分システムの構成 要素、各構成要素が複数の設計オプション、処分概念オプション、廃棄物の種類)、状況・条 件(事業の段階、立地場所)、視点(設計因子)を抽出した。また、システムの成立性につい ての検討として、成立するかどうかという最終的な結論を得ることではなく、そのために何 を議論・確認すべきか、それについての既往の取り組みや情報の有無・充足度はどうかなど を分析・整理し、今後取り組むべき課題などを抽出していくことに着目し、それらを効果的 に進めていくためのアプローチの案を検討した。今後の課題としては、平成 30 年度に検討し たアプローチ案も参考にしながら、たとえば、直接処分の検討としてわが国で重点的に取り 組んでいくべき課題などを、システム成立性の議論への反映先を明確にしつつ提示できるよ うにするアプローチの構築などに重点をおくことが考えられる。具体的には、構成要素の設 計オプションについて、直接処分の検討としてわが国で重点的に取り組んでいくべき課題な ど(含む、取得するべき情報や知見の種類・量・質など)を、設計因子との照らし合わせによ り、技術的実現性だけでなく、処分場に持たせようとする性能や能力の観点も含めてチェッ クしながら抽出する手法を具体化する。さらに、抽出された課題などについて、すでに取り 組んでいる課題であれば位置づけの再整理や取り組み内容の見直しなどへの反映、未着手の 課題であれば今後取り組んでいくことが望まれる課題としての提示を進める。

## 【参考文献】

- American Society for Testing and Materials (ASTM) (1996) : Standard Specification for Uranium Hexafluoride Enriched to Less Than 5 % 235U, ASTM C996-96.
- ANDRA(2016a) : Position Paper on Reversibility January 2016, ANDRA 577VA, 2016.

ANDRA(2016b) : Activity Report 2015, ANDRA 581VA, 2016.

ANDRA(2016c) : Cigeo Project, Deep geological facility for radioactive waste in Meuse/Haute-Marne departments, ANDRA 568BVA, 2016.

Apstec system, Human Security Radar パンフレット.

- Arktis Radiation Detectors Ltd: https://www.arktis-
- detectors.com/fileadmin/user\_upload/ARK-P2000-0418.pdf(2019 年 3 月 28 日閲覧).
- 原子力発電環境整備機構(2004a): 高レベル放射性廃棄物地層処分の技術と安全性―「処分 場の概要」の説明資料―, TR-04-01, 2004 年 5 月.
- 原子力発電環境整備機構(2004b): Development of Repository Concepts for Volunteer Siting Environments, NUMO-TR04-03, August 2004.
- 原子力発電環境整備機構(2007): 段階的な事業推進における構造化アプローチと要件管 理, NUMO-TR-07-01, 2007 年 7 月.
- 原子力発電環境整備機構(2011):地層処分事業の安全確保 2010 年度版) 確かな技術によ る安全な地層処分の実現のために―, NUMO-TR-11-01, 2011 年 9 月.
- 日本原子力研究開発機構(2014): 平成 25 年度地層処分技術調査等事業 使用済燃料直接処分技術開発報告書,平成 25 年 3 月.
- 日本原子力研究開発機構(2015): 平成 26 年度地層処分技術調査等事業 使用済燃料直接処分技術開発報告書,平成 26 年 3 月.
- 日本原子力研究開発機構(2018): 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発 事業(直接処分等代替処分技術開発)5か年とりまとめ報告書.
- Heikki Raiko (2013) : CANISTER DESIGN 2012, POSIVA 2012-13, April 2013.
- IAEA (2002) : IAEA SAFEGUARDS GLOSSARY 2001 Edition.
- IAEA (2011) : Nuclear Security Recommendations on Physical Protection of Nuclear Material and Nuclear Facilities (INFCIRC/225/Revision 5), January 2011.
- IAEA (2013) : Nuclear Security Systems and Measures for the Detection of Nuclear and Other Radioactive Material out of Regulatory Control, May 2013.
- ICRP (1991) : ICRP Publication 60, 1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection.
- 実用発電用原子炉の設置、運転等に関する規則: http://elaws.e
  - gov.go.jp/search/elawsSearch/elaws\_search/lsg0500/detail?lawId=353M50000400077 (2019 年 3 月 28 日閲覧).
- 核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律: http://elaws.e
  - gov.go.jp/search/elawsSearch/elaws\_search/lsg0500/detail?lawId=332AC0000000166 (2019 年 3 月 28 日閲覧).

- 核兵器の不拡散に関する条約 第3条1及び4の規定の実施に関する日本国政府と国際原子 力機関との間の協定:http://www.nsr.go.jp/data/000026343.pdf(2019年3月28日閲 覧).
- 核燃料物質又は核燃料物質によって汚染された物の第一種廃棄物埋設の事業に関する規則: http://elaws.e-

gov.go.jp/search/elawsSearch/elaws\_search/lsg0500/detail?lawId=420M60000400023 \_20180608\_430M60080000006&openerCode=1(2019年3月28日閲覧).

核燃料物質又は核燃料物質によって汚染された物の第二種廃棄物埋設の事業に関する規則: http://elaws.e-

gov.go.jp/search/elawsSearch/elaws\_search/lsg0500/detail?lawId=363M50000002001 \_20180608\_430M60080000006&openerCode=1(2019 年 3 月 28 日閲覧).

核燃料物質又は核燃料物質によって汚染された物の廃棄物管理の事業に関する規則:

http://elaws.e-

gov.go.jp/search/elawsSearch/elaws\_search/lsg0500/detail?lawId=363M50000002047 \_20180608\_430M60080000006&openerCode=1(2019 年 3 月 28 日閲覧).

核燃料物質等の工場又は事業所の外における運搬に関する規則: http://elaws.e-

gov.go.jp/search/elawsSearch/elaws\_search/lsg0500/detail?lawId=353M50000002057 \_20180608\_430M60080000006&openerCode=1(2019 年 3 月 28 日閲覧).

核燃料サイクル開発機構(1999): 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-総論,核燃料サイクル開発機構技術 報告書. JNC TN1400 99-020.

国際規制物資の使用等に関する規則: http://elaws.e-

gov.go.jp/search/elawsSearch/elaws\_search/lsg0500/detail?lawId=336M50000002050 (2019 年 3 月 28 日閲覧).

NAGRA(2014) : Modelling of Radionuclide Transport along the Underground Access Structures of Deep Geological Repositories, Technical Report 14-10, 2014.

- NAGRA(2016) : The Nagra Research, Development and Demonstration (RD&D) Plan for the Disposal of Radioactive Waste in Switzerland, Technical Report 09-06, 2009.
- NDA(UK)(2013): Upstream Optioneering:Optimised Management of Orphan Wastes, AREVA RMC Report Number:R12-152(A).
- 日本原燃株式会社,原子力研究開発機構,株式会社 / ローバル・ニュークリア・フュエル・ジャパン, 三菱 原子燃料株式会社,原子燃料工業株式会社,株式会社ジェー・シー・オー(2006):ウ ラン廃棄物の処分及びクリアランスに関する検討書,平成18年3月.
- Nuclear Facilities Attack Database (NuFAD): https://www.start.umd.edu/nuclearfacilities-attack-database-nufad (2019年3月28日閲覧)

SKB(2013a) : SFL concept study Main report, TR-13-14.

POSIVA(2008) : Horizontal Deposition of Canisters for Spent Nuclear Fuel Summary of the KBS-3H Project 2004 - 2007, POSIVA 2008-03, December 2008. POSIVA(2016a) : KBS-3H - Design, Production and Initial State of the Supercontainer, POSIVA 2016-08, February 2018.

POSIVA(2016b) : Safety Evaluation for KBS-3H Spent Nuclear Fuel Repository at Olkiluoto - Description of the Disposal System, POSIVA 2016-04, May 2017.

新金属協会核燃料加工部会(2009):新金属協会核燃料加工部会において取り扱うウラン

核種とその濃度原子力安全委員会「ウラン取扱施設におけるクリアランスレベルについて」(平成 21 年 10 月) (抜粋), 平成 21 年 12 月 24 日.

使用済燃料の貯蔵の事業に関する規則: http://elaws.e-

gov.go.jp/search/elawsSearch/elaws\_search/lsg0500/detail?lawId=412M50000400112 (2019 年 3 月 28 日閲覧).

SKB(2011) : APPLICATION FOR LICENCE UNDER THE NUCLEAR ACTIVITIES ACT.

SKB(2013a) : SFL concept study Main report, TR-13-14, December 2013.

SKB(2013b) : SFL concept study Technical design and evaluation of potential repository concepts for long-lived low and intermediate level waste, R-13-24, December 2013.

The Global Terrorism Database:https://www.start.umd.edu/gtd/ (2019 年 3 月 28 日閲 覧).

Timo Saanio, Antti Ikonen, Paula Keto, Timo Kirkkomäki, Tapani Kukkola, Juha Nieminen, Heikki Raiko (2013) : Design of the Disposal Facility 2012, POSIVA, Working Report 2013-17, November 2013.

# 第5章

その他の代替処分オプションについての調査

# 5 章詳細目次

5. その他の代替処分オプションについての調査 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5 - 1
(1) 本項目の背景と目的 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5 - 1
(2) 超深孔処分および関連分野の最新情報の収集・整備 ・・・・・・・・・・・・・	5-2
<ol> <li>超深孔処分に関する最新情報の収集 ······</li> </ol>	5-2
① 米国の Deep Isolation 社の超深孔処分の検討事例 ・・・・・・・・・・・・	5-2
② 英国シェフィールド大学での超深孔処分の報告事例 ・・・・・・・・・・・	5-5
③ 韓国の超深孔処分の検討事例 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-6
④ 超深孔処分に関する関連分野の最新情報の収集 ・・・・・・・・・・・・・	5-7
2) 超深孔処分に関する情報の横断的分析 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-7
① 諸外国の超深孔処分に関する情報の分析・整理 ・・・・・・・・・・・・・・・	5-8
② 超深孔処分に大きな影響を及ぼす可能性のある因子に関する情報の	
分析・整理 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-10
(3) 超深孔処分の適用性・成立性に影響する因子の検討 ・・・・・・・・・・・・・・	5-16
1) 因子の候補の抽出・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-17
2) 因子が与える影響の抽出・整理 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-17
3) 因子の影響の条件分岐に基づく予察的解析 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-24
① 超深孔処分の核種移行の場および主要な移行プロセスの想定 ・・・・・・	5-24
② 評価シナリオと感度解析ケースの設定の考え方 ・・・・・・・・・・・・・・	5-25
③ 超深孔処分の核種移行解析上の主な取り扱い ・・・・・・・・・・・・・・・・	5-26
④ 核種移行解析モデルの構築・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-26
⑤ 解析ケースの設定 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-27
⑥ 超深孔処分で考慮する熱対流の算出 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-29
⑦ 感度解析結果および考察 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-32
(4) まとめ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-36
参考文献	5-38

#### 5. その他の代替処分オプションについての調査

#### (1) 本項目の背景と目的

高レベル放射性廃棄物の最終処分方式としては、国際的共通認識として地層処分が最 も有望な方法とされており、わが国においても、最新の科学的知見を踏まえて地層処分 に関する研究開発が進められてきている。一方、総合資源エネルギー調査会電力・ガス 事業分科会原子力小委員会放射性廃棄物 WG(以下、「放射性廃棄物 WG」という)による 「放射性廃棄物 WG 中間とりまとめ(平成 26 年 5 月)」(放射性廃棄物 WG, 2014)(以下、 「WG 中間とりまとめ」という)では、高レベル放射性廃棄物の最終処分方式として、現 在各国が取り組んでいる地層処分のほかに、代替処分概念として、海洋投棄、海洋底下 処分、沈み込み帯への処分(以上はロンドン条約により禁止)、氷床処分(南極条約によ り禁止)、超深孔処分、岩石溶融処分、井戸注入処分、宇宙処分などについての国際的な 評価が示されている。また、地層処分の安全性の不確実性を今後の研究開発などにより 低減することと並行して、今後の技術の進捗により潜在的課題が克服され、検討の対象 となりうる代替処分概念については、その可能性を模索する、という国際的な考え方が 示されている。

このような背景を踏まえ、先行事業である「高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関 する技術開発事業(直接処分等代替処分技術開発)|(日本原子力研究開発機構, 2018a) において、平成27年度よりわが国の高レベル放射性廃棄物の処分方法について、将来世 代の幅広い選択肢を確保するために、代替処分概念などに関する調査研究を行うことと した。本調査では、WG 中間とりまとめに示されている代替処分概念、および最終処分以 外の方式(たとえば、使用済燃料の中長期的な貯蔵、暫定保管、核種分離・変換)を検 討対象として情報を整理するとともに、超深孔処分など、現在検討段階にある代替処分 概念については、諸外国の事例調査を行うことにより、それらの考え方、特徴、検討の 背景、技術的課題などを明らかにし、わが国の諸条件を考慮した場合の有効な代替処分 概念について検討することとした。具体的には、全体の調査研究計画の策定、その他の 代替処分オプション(長期貯蔵などを含む)についての調査、および現在検討段階にあ る代替処分概念として超深孔処分に着目した情報の整理や課題の検討を行った。特に、 超深孔処分については、超深孔処分相当の深度での地質環境の特徴の調査および情報整 理、超深孔掘削などの関連技術の開発動向や実績に関する調査および情報整理、および 超深孔処分による安全確保の見通しに関する情報整理と予察的な検討を行い、超深孔処 分をわが国に適用する場合に想定される諸外国との共通点や相違点、それらに基づく今 後検討が必要な課題などの整理を進めた。

本事業では、先行事業の内容を発展的に継続し、その他代替オプションとして、諸外 国で現在検討が進められている超深孔処分を対象として、国内外での最新の関連情報等 の分析を実施すると共に、わが国における超深孔処分の成立性などに影響を与えうる因 子の抽出やその影響の程度について分析を行う。

その他代替オプションの国内外での最新の関連情報等の分析については、平成30年度 は、超深孔処分に関する米国等の諸外国での検討動向・事例、超深孔処分に関連し得る 地質環境条件や工学技術等についての国内外での検討動向・事例などについての最新情 報の収集・整備を進めた。

また、わが国における超深孔処分の成立性などに影響を与えうる因子については、平 成30年度は、想定され得る主な移行経路や移行プロセスとそれらに影響を与えうる因子 の候補の地質環境条件や設計条件などとの関係に着目した抽出、それら因子により特徴 付けられる影響の種類や影響の程度等についてのシナリオ分析や核種移行感度解析など による分析を進めた。

(2)以降において、以下の構成で平成30年度の実施内容などについて示す。

- ・超深孔処分および関連分野の最新情報の収集・整備((2)参照)
- 超深孔処分の適用性・成立性に影響する因子の検討((3)参照)
- ・まとめ((4)参照)

#### (2) 超深孔処分および関連分野の最新情報の収集・整備

本項では、わが国への超深孔処分の適用性や成立性の検討に資するために、超深孔処 分の検討が積極的に進められてきた米国を中心に、これら諸外国で検討されている超深 孔処分および関連分野の最新情報について収集するとともに、超深孔処分特有の特徴の 提示等を目的とした諸外国の情報(先行事業での調査結果を含む)の横断的分析を試み た。以下に実施内容を示す。

- ・超深孔処分に関する最新情報の収集(「1)」参照)
- 超深孔処分に関する情報の横断的分析(「2)」参照)

#### 1) 超深孔処分に関する最新情報の収集

わが国への超深孔処分の適用性や成立性の検討に資するために、これまでに、諸外国 における超深孔処分に対する地質環境の基本要件、サイト選定条件の考え方、掘削技術 などの工学技術に関する技術的要件などに関する背景や根拠についての最新情報を調査 した。特に米国においては、米国エネルギー省(DOE)のもとで超深孔処分についての調 査やフィールド試験に向けての具体的な計画の検討などが進められて来た(ただし、フ ィールド試験については、2017年に政府の方針により中止が発表された(DOE, 2017)) ことから、平成 30年度も米国の情報を中心に最新情報について調査を実施した。

以下、平成30年度の調査において新たに得られた以下の4つの情報や知見を示す。

- 米国の Deep Isolation 社の超深孔処分の検討事例(①参照)
- ・英国シェフィールド大学での超深孔処分の報告事例(②参照)
- ・ 韓国の超深孔処分の検討事例(③参照)
- 超深孔処分に関する関連分野の最新情報の収集(④参照)

#### 米国の Deep Isolation 社の超深孔処分の検討事例

超深孔処分に関する最新の検討事例として、米国の一般企業である Deep Isolation 社 の検討事例 (Deep Isolation Inc, 2018) について調査した。Deep Isolation 社では、 最新の掘削技術を活用した超深孔処分の概念として、地下深くでの水平掘削孔に放射性 廃棄物を処分する方法が提案されている。また、クラウドファンディングによる資金調
達といった試みも行われており、2019 年 1 月 16 日のプレスリリースによると、1000 万 米ドル超の資金の調達に成功したとしている。

以下、Deep Isolation 社の検討事例 (Deep Isolation Inc, 2018) について調査した 結果を示す。

処分概念の概要:

Deep Isolation 社が提案する超深孔処分の概念では、廃棄物が処分される2マイル(約3,200m)の水平掘削孔と、それにアクセスするための1マイル(約1,600m)の垂直アクセス孔、および水平掘削孔と垂直アクセス孔を接続している湾曲部分から構成される(図5-1参照)。この処分概念は、DOEによる超深孔処分の検討(SNL,2013)から着想を得たものである。



図 5-1 Deep Isolation 社が提案する処分概念のイメージ

- ・一般的な超深孔処分の概念においては垂直な掘削孔に廃棄物を処分するのに対し、 Deep Isolation 社の超深孔処分の概念では、深さ1マイル(約1,600m)の深度に 掘った水平の掘削孔に廃棄体が定置処分される。水平掘削孔は、一般的に結晶質 岩上部の堆積岩の領域に掘削される。堆積岩については米国では多くの掘削実績 があり、また米国周辺では広大な検層記録が公開されていることが利点として挙 げられる。堆積岩以外の他の岩においても、10万~100万年の期間で生活圏から 隔離されると判断することができれば、Deep Isolation 社が提案する超深孔処分 の概念で処分することが可能であるとしている。
- また、Deep Isolation 社が対象としている堆積岩の領域には、複数のシェール層 からなる地層があり、そこでは揮発性ガスが数千万年もの間保持されている。こ うしたガスの存在は、深部の堆積岩等の岩盤が地表から十分隔離されていること を示す根拠となる。

掘削の実現可能性:

- ・ 掘削技術の飛躍的な向上により、長い水平掘削孔を掘ることは一般的になってきている。Deep Isolation 社の仕様を満たすことが可能な掘削業者は米国内に多く存在する。
- ・上述のような水平坑道は堆積岩では日常的に掘削されており、これまでに 5000 個以上掘削された実績がある。ただし、使用済燃料の場合には、水平掘削孔の直径を、一般的な掘削の大きさである 9 インチ(約 23 cm)から 18 インチ(46 cm)に拡張する必要がある。また、Deep Isolation 社で検討している掘削孔は炭素鋼性の連続したパイプによってケーシングされ、30 フィート(約 9.1 m)の区画毎にねじで固定される。

核種移行経路、核種移行挙動:

- Deep Isolation 社が対象としている米国の堆積岩の領域(シェール層)は透水性 が低く、地下水の流れは非常に遅いと考えられている。地下水の流れが最も起こ りそうな状況としては、小規模あるいは中規模のサイズの亀裂ネットワークの存 在や、断層やその他の不連続な水理学的特徴を持つ層と接触している場合が考え られる。こうした亀裂中を核種が移行する場合、核種は鉱物の表面へ収着しつつ、 周辺岩盤マトリクス中の静止した間隙水中を拡散で移行する。Deep Isolation 社 が対象としている堆積岩の領域は飽和でかつ還元環境のため、ユッカマウンテン のような不飽和でかつ酸化性環境のものとは大きく異なることになる。
- 地下水の流れを引き起こす主な要因は圧力勾配であり、これは岩盤の特性や局所 的な水理条件によって支配される。水理条件としては地形、涵養の速度、さらに 上向きの熱対流が含まれる。これらの境界条件は自然、または人間により引き起 こされる気候変動によっても変わる可能性がある。圧力勾配は、温度、塩分濃度、 腐食ガスの発生によって起こる水の密度の変化により局所的に発生すると考えら れる。
- その他として、垂直アクセス孔のプラグの施工不良がある可能性も考えられる。 DOEの超深孔処分研究のアイデア(SNL, 2013)に倣い、Deep Isolation 社ではケ ーシングを除去した後は掘削孔内を岩石や砂利、ベントナイトでシーリングする ことが検討されている。シェールや岩塩層を通る領域では、周辺岩盤と近い性質 の材料で埋め戻すことが考えられている。小さな割れ目や空間は、粘土含有率の 高い岩盤や岩塩のクリープで埋め戻すことで良好なシーリングになるだろうと考 えられている。
- Deep Isolation 社の超深孔処分の概念の特徴としては、廃棄物が処分される水平 掘削孔がわずかに上向きに傾斜している点が挙げられる。これにより、廃棄体か ら放出された放射性核種が垂直アクセス孔を介して地表付近まで移行するために は、水平掘削孔内を一度下向きに移行したうえで垂直アクセス孔内を上向きに移 行することが必要になるため、水平掘削孔の上向きの傾斜が追加の隔離機能とし て働くことになる。

熱対流の影響:

- ・ 廃棄体から発生する初期の熱については、使用済燃料の場合は11 kW ton<sup>-1</sup>、Cs/Sr カプセルの場合は15~18 kW ton<sup>-1</sup>であり、核種の崩壊とともに減衰していく。
- ユッカマウンテンプロジェクトにおいては、廃棄体の温度は坑道内のあらゆる水 を沸騰させ、周辺の岩盤を乾燥させるほど高いものである。一方、Deep Isolation 社では深度が深く高い圧力のために水が沸騰することはないとしている。
- ・ BWR の燃料集合体がシェール層内の水平掘削孔に定置された場合の温度変化が数値計算により示されている。定置領域の深度は5,000 フィート(約1,500 m)、地温は50 ℃である。廃棄体自身の最高温度は定置後約15 年後に135 ℃になるが、この深度での水の沸点は350 ℃であるため水蒸気は発生しない。また、この廃棄体温度は十分低いため、腐食耐性のある合金であればその主要な腐食耐性と強度は維持される。廃棄体周辺の温度はピークに到達した後、急激に減衰し、100 年後には約75 ℃になる。廃棄体から85 m離れたシェール層においては温度のピークは140 年後と遅れるが、元の地温に対する温度上昇は非常に小さいという計算結果になっている。

廃棄体の回収可能性に関する検討:

- Deep Isolation 社では、同社の超深孔処分の概念において廃棄体の回収が可能で あることを示すために、2018 年 11 月に、実際に地下の水平掘削孔に模擬廃棄体 を定置、そして回収までの作業のデモンストレーションを実施した実績がある。
- このデモンストレーションで利用された掘削孔は、垂直方向に約 670 mの深度、
   その最下部から水平方向に 121 mの長さである。模擬のキャニスタはこの水平掘
   削孔に一度定置されたあと、数時間後にワイヤーにより地上まで引き上げられた。
- 使用された模擬のキャニスターは Sr/Cs カプセルを保持できるサイズでかつ同程 度の質量(約 37 kg)のものが用いられた。なお、デモンストレーションでは、 放射性廃棄物は用いられていない。

### ② 英国シェフィールド大学での超深孔処分の報告事例

英国シェフィールド大学の物質科学・工学科(Department of Materials Science and Engineering)では超深孔処分についての研究が進められており、Collier (2018) は高レベル放射性廃棄物を対象とした超深孔処分での使用を想定したセメント系グラウトの性能評価に関する論文を 2018 年に発表している。

Collier は、超深孔処分におけるシーリング材およびサポートマトリックスとしての 使用を想定し、セメント系グラウトを開発するとしている。ここで想定しているのは、 最深度 5,000 m、その下部 1,000~2,000 mを廃棄体定置部とする超深孔処分であり、周 囲温度や圧力は、深度や地質条件によるが、それぞれ 80~130 ℃(Best, 2003) と 30~ 50 MPa (ボアホール流体の水頭分布によって引き起こされる局所的な周囲圧力) と想定 している。ここで、このような条件下ではグラウトの増粘が促進されるため、シーリン グ材等としての配置を容易にするため、増粘を遅らせることが必要とされる。Collier は、増粘の遅延剤として、ホウ酸塩、リン酸塩、スズおよび亜鉛といった無機化合物の 遅延特性を、特に高温および高圧の条件下において調査している。

実験の結果、120 ℃、50 MPa を想定した塩化スズを含むグラウトのコンシステンシー (稠度)は、おおむね時間、温度および圧力の増加とともに減少し、あるところから急 激に立ち上がる(すなわち、極小値を持つ)結果となった。また、各実験条件(遅延剤 の混合率および温度)に対し、全ての遅延剤で増粘の遅延自体は認められた。しかし、 Collierは、遅延剤の要求性能として、コンシステンシーが70 Bc に達するまでの時間 を4時間(廃棄体パッケージを定置するまでに必要な時間を参考)と設定しており、こ の要求性能を90 ℃において満たしていたのはホウ酸塩(0.75 %以上添加)のみであっ た。ただし、120 ℃においては、最も遅延効果の大きいホウ酸塩(1%以上添加)の場合 でも、要求性能を僅かに下回っていた。

以上の結果から、Collierは、120 ℃を上回る可能性のある超深孔処分において、今回テストを行った遅延剤は適していないと判断している。

#### ③ 韓国の超深孔処分の検討事例

近年、韓国では使用済燃料の代替処分の案として超深孔処分が検討されている。その 理由としては、特に長期の安全性を考えた際に、処分の候補地が限られる中で超深孔処 分のフットプリントが小さいことが重要であることと、さらに、地元住民の受容性の観 点から、従来型の地層処分の代替案として超深孔処分について検討する価値があるとし ている。

韓国の超深孔処分の検討事例(Lee et al., 2016)では、使用済燃料を対象に、従来型の地層処分で想定している深度 500 m 程度の結晶質岩中に超深孔処分の概念で処分すると仮定した簡略的な性能評価を実施している。なお、この検討においては、熱対流によるボーリング孔に沿った上向きの移行については考慮されていない。

核種移行の概念としては、掘削孔中の廃棄体定置領域(廃棄体と岩盤との間の隙間) には緩衝材が設置されており、透水性が十分に低いため主に拡散支配による移行を想定 している。一方、掘削孔周辺の EDZ では、移流による地下水移行が卓越することを想定 している。EDZ 中を移流により上方向に移行した核種は、横方向の拡散により定置領域 上部の緩衝材や埋戻し材中へと移行するか、あるいは周辺の亀裂性岩盤へと移行する。 生活圏へと到達する経路は大きく分けて 2 種類あり、1 つ目は掘削孔およびその周辺の EDZ 中を上方向に移行(EDZ 中は移流による移行、掘削孔内の緩衝材および埋戻し材中は 拡散により移行)して掘削孔上部の帯水層に到達する移行経路であり、2 つ目は EDZ か ら母岩および高透水性の断層を通って河川または海へと到達する移行経路である。

韓国の超深孔処分の検討事例では、米国での超深孔処分の検討事例(Brady et al., 2009)における基本シナリオのうちシナリオ3(ボーリング孔から離れた母岩中での移行)に相当する核種移行解析とともに、シナリオ3に加えて2万年後に地震が発生することを想定した地震発生シナリオでの核種移行解析を実施している。なお、核種移行解析は、汎用シミュレーションソフトウェア GoldSim(GoldSim Technology Group LLC, 2018)を用いて行われている。基本シナリオの核種移行解析と、地震発生シナリオでは、地震

の発生により岩盤中の亀裂および断層中の流れが速くなるとともに、超深孔周辺の亀裂 性岩盤の安全機能が完全に失われることを想定しているため、高透水性の断層が処分場 から生活圏への主要な移行経路になると考えられる。その結果、超深孔処分での地震発 生シナリオでは、地震が発生する2万年以降から急激に線量が高くなり、その最大線量 は基本シナリオより1桁以上高い結果を示している。

### ④ 超深孔処分に関する関連分野の最新情報の収集

超深孔処分相当深度での地質環境条件の最新情報について、公開文献を中心に 2018 年 ~ 2019 年の論文を調査したが、特筆すべき情報追加的な最新の知見は得られなかった。 これは、米国でのフィールド試験が 2017 年に中断していることも要因のひとつと考えられる。

一方、掘削などの工学技術の開発動向や実績に関する最新情報について調査した結果、 超深孔処分のシール材として適用できる可能性がある工学技術として、岩盤溶融概念に 対応する人工花崗岩の開発について調査した。

- ・ 岩盤溶融概念とは、粉砕した岩盤(米国の場合は花崗岩)をヒーターで溶融し、 母岩に近い物理・化学特性の材質で、主に廃棄体周辺を埋め戻す概念である(SNL, 2016)。石油やガス採掘の際に同様の目的で使用されている素材としてアスファル トがあるが、有機酸が浸出する可能性があるため、放射性廃棄物用の素材として は考えづらい。
- ・上記の概念は近年提唱されたものであるが、実際には天然材料だけでは廃棄物周辺を密封するために必要な条件(例えば溶融温度や圧密性、結晶化速度、力学的強度、廃棄物容器への接着性等)が満たされない可能性がある。
- そこで、Yang et al. (2019) は、採掘された花崗岩を人工的に加工して、力学特性を損なうことなく、結晶化速度等を改善する研究として、Al<sub>2</sub>0<sub>3</sub>や B<sub>2</sub>0<sub>3</sub>, Ca0 を 混ぜた人工の花崗岩を試作し、それらの性質を評価した。
- ・試作したサンプルの評価結果より、人工花崗岩については、再結晶化プロセスを 加速させることができ、また力学特性はよく知られたシリカガラス(パイレック スやバイコールガラス)と比べてほぼ同等であったとしている。
- このような岩盤溶融概念に対応する人工花崗岩については、今後の超深孔処分でのシール材等の候補になりうる可能性があると考えられる。

### 2) 超深孔処分に関する情報の横断的分析

先行事業および平成 30 年度の調査により、超深孔処分に関する国内外の情報の収集は 進んできている。一方で、収集した情報については、検討を実施している国・機関、年 代、さらには対象としている廃棄物等が異なっており、情報を同じレベルで比較しにく いため、わが国を想定したときの超深孔処分に関する検討において必ずしも使いやすも のにはなっていない。 そこで、本項では、超深孔処分に関する既存の調査情報(先行事業の調査結果)と最 新の調査情報(平成 30 年度の調査結果)を対象に、共通点や相違点さらには超深孔処分 特有の特徴の抽出などを目的とした、複数の情報源の横断的な分析・整理を試みた。

以下に実施内容を示す。

- 諸外国の超深孔処分に関する情報の分析・整理(①参照)
- ・超深孔処分に大きな影響を及ぼす可能性のある因子に関する情報の分析・整理
   (②参照)

### ①諸外国の超深孔処分に関する情報の分析・整理

米国やその他の諸外国での超深孔処分の過去の検討事例(たとえば、Brady et al. (2009)、Arnold et al. (2011)、SNL (2016)など)では、検討事例ごとに対象廃棄物が 使用済燃料、HLW(ガラス固化体)、Cs/Sr カプセルなどと異なっている場合が多い。こ のため、本項では、超深孔処分に関する情報を、廃棄物の括りで分類してみることで、 廃棄物毎での超深孔処分の違いの有無等の分析を試みた。

超深孔処分においては、超深部まで掘削した数十 cm 程度の比較的孔径の小さい超深孔 内に廃棄物を設置するという条件から、廃棄物が比較的少量であること、サイズが小さ いこと、比較的高放射能レベルであることの3つの条件を満足するような廃棄物が適し ていると考えられる一方、通常の地層処分の代替オプションとして社会・制度的な条件 のもとで、地層処分において処分対象となるような使用済燃料や HLW を想定して検討さ れた事例も多い。ただし、より実際的な観点から廃棄体を検討した事例として、特殊な 廃棄物 (プルトニウム、セラミック製の SYNROC 中に固定された高レベル放射性廃棄物、 軍事廃棄物 (Cs/Sr カプセル))を対象とした事例も存在する。

このため、本項での廃棄物の括りでの分類においては、使用済燃料および HLW(ガラ ス固化体)を対象とした検討事例と、それ以外の廃棄物の検討事例に分類したうえで、 処分深度、廃棄体定置領域の長さ、坑井最下部の直径、廃棄体に含まれる廃棄物量、想 定されている超深孔の本数といった処分概念の基礎的な情報がどのように設定されてい るのかを比較できるように整理した。その結果を表 5-1 および表 5-2 に示す。

国・機関 [公開年]	米国 [1983] *1	SKB [1989] *2	UK [2008] *3	MIT [2009] *4	SNL [2009] *5	SNL [2011] *6
廃棄物の 種類	使用済・ 再処理済燃料	使用済燃料	HLW、使用 済燃料	使用済・再処 理済燃料	HLW、使用 済燃料	使用済 燃料
母岩	(特に規定さ れていない)	結晶質岩	結晶質岩	結晶質岩	結晶質岩	結晶質岩
超深孔処分の 深度	6,000m	4,000m	4,000m	3,000m	5,000m	5,000m
廃棄体定置領域 の長さ	3,000m	2,000m	1,000m	1,000m	1,000m∼ 2,000m	2,000m
超深孔最下部の 直径	50.8cm	80cm	80cm	50.8cm	44.5cm	44.5cm
孔1本あたりの パッケージ数	(記載なし)	296	(記載 なし)	200	200~400	400
想定されている 超深孔の本数	<ul><li>(記載なし)</li></ul>	35 本	<ul><li>(記載 なし)</li></ul>	800本	950 本	950 本

# 表 5-1 使用済燃料および HLW を対象とした超深孔処分の検討事例の比較・整理の例

引用文献:

\*1 WoodWard-Clyde Consultants(1983)

\*2 Juhlin and Sandstedt (1989)

\*3 Beswick (2008)

\*4 Sapiie and Driscoll (2009)

<sup>\*5</sup> Brady et al. (2009)

<sup>\*6</sup> Arnold et al. (2011)

## 表 5-2 その他の廃棄物(使用済燃料および HLW 以外)を対象とした

# 超深孔処分の検討事例の比較・整理の例

国・機関	LLNL	Australia	SNL
[公開年]	$[1996]^{*1}$	[2001] *2	$[2016]^{*3}$
廃棄物の種類	プルトニウム	SYNROC 中に	Cs/Sr カプセル
		固定された HLW	
母岩	結晶質岩	結晶質岩	結晶質岩
超深孔処分の深度	4,000m	4,000m	5,000m
廃棄体定置領域の長さ	2,000m	2,500m	2,000m
超深孔最下部の直径	66cm	120cm	22cm and 43cm
孔1本あたりの	300	1000	108
パッケージ数			
想定されている	3~19(想定する	<ul><li>(記載なし)</li></ul>	1本のみ
超深孔の本数	Pu の量に依存)		

引用文献:

 $^{\ast 1}$  Wijesinghe et al. (1996)

\*2 Sizgek (2001)

\*<sup>3</sup> Sandia National Laboratories (2016)

表 5-1 および表 5-2 に基づく分析結果を以下に整理する。

- ・表 5-1 および表 5-2 の各廃棄物の超深孔処分の深度と廃棄体定置領域の長さについては、一本の超深孔当りの廃棄物の定置量を増やすことにより必要となる処分孔の数をできるだけ減らすという条件と、放射性廃棄物の人間環境からの隔離性能を可能な限り確保するという条件、掘削の実現性やコストの諸条件などを総合的に考慮した上で設定されていると想定される。想定する廃棄物に応じて異なることとしては、SNLにより検討された Cs/Sr カプセルを対象廃棄物とした超深孔処分以外は、すべて複数の超深孔を想定していることである。これは、廃棄物の総量が関係しており、軍事廃棄物である Cs/Sr カプセルについは廃棄物の総量が少ないため1本の超深孔で処分可能であるのに対して、HLWや使用済燃料の場合には総量が多くなり、処分するためには多数の超深孔が必要になるためである。このことから、超深孔処分の処分概念を検討する上では、廃棄物の種類の違いに加えて、その廃棄物の総量およびそれに応じて決まる超深孔の本数を合わせて考えることが重要になると考えられる。また、処分深度については、廃棄体による明確な差異も見られなかった。
- 表 5-1 および表 5-2 の比較により、超深孔処分の処分深度はほとんどのケースで 4,000~6,000 m 程度が想定されている。WoodWard-Clyde(1983)は6,000 m の深度 を提示しているが、それ以降、Brady et al.(2009)が5,000 m のプロファイルを 提示するまでは、3,000 m~4,000 m を対象に超深孔処分概念が検討されている。
- 母岩については、基本的に結晶質岩が想定されており、廃棄物による差異は見られなかった。
- ・超深孔処分の現実的な掘削可能性という観点では、超深孔最下部(廃棄体定置領域)の直径が対象廃棄物と大きく関連すると考えられる。この点については、オーストラリアでのSYNROCといった特殊な廃棄物を超深孔処分する事例で120 cmと突出して大きく、その他の廃棄物でも45~80 cmとばらつきがある。最も小さい直径は、Cs/Srカプセルを対象とした SNLの事例であり22 cmである。このように、廃棄物毎に超深孔の直径が異なることは、超深孔の直径が必ずしも超深部での掘削可能性や掘削実績に基づいて設定されたものではなく、単純に主に対象とする廃棄物の大きさや形状に基づいて仮定されたためであると考えられる。
- 表 5-1 および表 5-2 の再整理の結果より、現段階までの検討事例に基づく分析では、廃棄物毎での超深孔処分の顕著な違いは確認することができなかった。

### ② 超深孔処分に大きな影響を及ぼす可能性のある因子に関する情報の分析・整理

本項では、超深孔処分に大きな影響を及ぼす可能性のある因子に関する情報の調査お よび分析・整理を実施した。具体的には、"超深孔周辺の EDZ"および"地震・断層"を 対象とした。"超深孔周辺の EDZ"は、従来の地層処分の安全評価において影響が大きい と考えられる因子であり、超深孔処分においても優先的な核種移行経路となったときに その影響が大きい可能性がある。また、"地震・断層"は、断層が発生し超深孔と交差し たときに主要な核種移行経路になることから、潜在的な影響が大きくなる可能性がある。

### a. 超深孔周辺の EDZ

米国における Cs/Sr カプセルを対象とした超深孔処分の安全評価事例(SNL, 2016)に おいては、超深孔の掘削が原因で永続的な影響を受けた擾乱母岩を岩盤損傷領域(DRZ) として定義している。なお、岩盤損傷領域(DRZ)は掘削影響領域(EDZ)と同義であると考 えられるため、ここでは DRZ と EDZ は区別しないで EDZ の名称で統一して論じることと する。

超深孔処分の場合、EDZ はボーリング孔に半径方向に隣接する母岩で発生する。ボー リング孔の直近では、EDZ の受けた影響(例えば、掘削による力学的変化)は永続的で ある可能性が高い。超深孔周辺の EDZ では、掘削による応力変化によって、母岩マトリ クス部より透水性が上昇すると考えられる。EDZ では、最小主応力の方向に垂直な割れ 目は最小主応力の方向に開き、深部での高い地盤圧力のために、割れが水平になると考 えられる。したがって、亀裂はボーリング孔の両側に広がる。また,最小主応力の方向 は深さによって異なることになる。

岩石の受ける歪みは、既存の割れ目や目地などの岩石の構造的特徴にも依存する。こ のため、EDZの大きさは掘削孔の長さに沿って空間的に変わる可能性があると考えられ る。米国における Cs/Sr カプセルを対象とした超深孔処分の安全評価事例 (SNL, 2016) においては、これらの力学的変化を受ける EDZ の半径方向の厚さは掘削孔の半径の 1~2 倍を設定している。この設定については、EDZ の検討事例 (Tsang et al., 2005) にお いて、通常処分深度での試錐孔の EDZ の大きさは試錐孔の半径と同程度という記述があ るため、仮置きでその情報を超深孔処分の評価に適用しているものと推察される。

また、EDZ の透水性や間隙率については、力学的および化学的プロセスにより経時的 に変化し得る。セメントとベントナイトの両方が、EDZ の露出した割れ目を充填する可 能性があり、この際に EDZ の透水性や間隙率を減少させる可能性があると考えられる。 また、EDZ 内の流体の熱膨張により亀裂開口幅が広がる可能性がある。また、亀裂表面 が露出した場合は、地下水と反応する可能性があり、鉱物との溶解反応で亀裂開口幅が 広がる可能性や、逆に水和反応によって二次鉱物の沈澱が生じることにより亀裂開口幅 が減少する可能性も考えられる(Yardley and Bodnar, 2014; Stober and Bucher, 2015)。

米国における Cs/Sr カプセルを対象とした超深孔処分の最新の安全評価事例(SNL, 2016)では、EDZ 内の岩石や流体の特性(実効拡散係数、熱的性質、流体化学組成、溶 解度、収着)については、結晶質の基盤母岩と同様であると想定している。

なお、わが国における超深部での EDZ の検討事例は公開文献を中心に調査したものの 見つからなかった。ちなみに、わが国での通常処分の EDZ の取り扱いの情報として、包 括的技術報告書レビュー版(原子力発電環境整備機構, 2018)では、EDZ は坑道壁面から 1.0mの範囲としている。これは、井尻ほか(1999)により整理された国内外の事例(発 破掘削による EDZ の幅は 1m 程度、透水性の増加は 1~2 桁程度、機械掘削による EDZ の 幅は 0.5m 以下、透水性の増加は 1 桁程度)、および日本原子力研究開発機構の幌延の深 地層研究施設における試験結果(弾性波トモグラフィー調査から、坑道壁面から 1.0 m の範囲内で弾性波は速度が顕著な低下を示している)ことを踏まえて設定されている。

### b. 地震•断層

超深部での事前の調査が難しくなることに起因して一部の断層が超深孔と交差する可 能性等などを考えると、超深孔処分において"地震・断層"の潜在的な影響が従来の地 層処分よりも重要となる可能性も考えられる。このため、本項では、超深部における地 震・断層の取り扱いに着目し、米国の超深孔処分の検討事例における超深部での地震・ 断層の取り扱いに関する情報を中心に追加調査および再整理を実施した。

### (a) 地下深部における断層についての知見

超深孔処分においては、地下深部における断層が廃棄体やボアホールと交差する場合 に放射性核種の移行経路になることが考えられるため、海外における超深孔処分のサイ ト選定条件についての検討では、地層処分の場合と同様に、基本的には断層を避けるべ きであるとしている(たとえば、米国では Heiken et al. (1996)や DOE(2014)、スウェ ーデンの Åhäll(2006)が挙げられる)。

従って、地下深部における断層についての知見を得ることは重要である。地下深部に おける断層調査の手法としては、例えばトレンチ調査やボーリング探査、重力探査や弾 性波探査等の物理探査といった手法が用いられる(岡田,2008)。トレンチ調査やボーリ ング探査等の目視による探査は高精度で断層の位置が判明するが、地下の広範囲や深部 の探査には不向きである。物理探査では不確実性が伴い、特に超深部を対象とした探査 を行う場合、手法によっては大がかりな装置の使用が必要になることも考えられるが、 地下深部を広範囲に探査可能である。特に、地震波の三次元の速度情報を利用して地下 深部の状態を探る「地震波トモグラフィー」と呼ばれる手法は、近年、地下深部の広範 囲にわたるデータ収集の手段として用いられることが多い。

国内における活断層の関連データとしては、産業技術総合研究所が公表している「活 断層データベース」(産業技術総合研究所,2018)が存在する。このデータベースは、既往 の国内の活断層における文献データを網羅的に収集したものであり、以下のような4種 類のデータから構成されている。

- 日本全国の活断層(活動セグメント)の分布とそのパラメータ
- 日本の活断層に関係する文献の書誌データ
- ・ 文献から採録された、調査地点ごとの調査結果データ
- 地下数十キロメートルまでの地下構造データ

ここに掲載されている活断層データは上述のような手法で収集されたものであるが、 「地下数十キロメートルまでの地下構造データ」については、上記の地震波トモグラフ ィーによって推定された弾性定数等の関連パラメータが示されているのみで、地下深部 における断層面の具体的な位置については示されていない。このようなデータから断層 面の具体的な位置を示す手法についてはまだ発展途上にあると考えられ、例えば竿本ほ か(2015)の研究にある、地表変位から断層形状を推定するといったような手法の開発 が必要と考えられる。

### (b) 通常の地層処分における地震・断層の取り扱い

通常深度の地層処分におけるサイト選定条件としては、例えばわが国でも平成27年に 「特定放射性廃棄物の最終処分に関する法律」の基本方針の改訂により、処分場に著し い影響を与えうる地質・気候関連事象は、立地選定時の概要調査の段階で回避すること が求められており、活断層もこれに該当する要件である。

しかし、その時点で存在する活断層を回避したとしても、地下深部で新たに発生した 断層による影響については予見が難しいあるいは不可能であることが考えられ、超深孔 処分においても同様の懸念が存在する。ここでは、そのような影響についての評価事例 の一つとして、活断層から派生した断層(以後、派生断層)がHLWの地層処分場に与え る影響についての検討事例(高井ほか,2016)を調査した。

高井ほか(2016)の論文においては、活断層から分岐した「分岐断層」と、分岐断層 の共役系として形成される「バックスラスト」の2種類を考えている。国内においても、 東北地方の逆断層や近畿。中部地方の横ずれ断層において、このような派生断層が発生 している(Kagohara et al., 2006; 東郷, 2000; Sato, 2006; Miyauchi and Takeda, 2004; MIURA, 2002; Suzuki et al., 2008)。高井ほか(2016)は、国内の過去数10万年以内 に発生した分岐断層およびバックスラストの事例から、分岐断層の発生位置が活断層か ら 2~10 km 程度離れていること、また分岐断層に伴いバックスラストが発生することを 確認している。

これらの情報から、高井ほか(2016)は、まず深度 300~500 m の処分施設が、活断層 から数 km~10 km 程度の距離を確保した位置に存在し、また処分サイトにおいては地下 1 km 程度の範囲まで派生断層が存在しないことが判明しているという前提を置いたうえ で、深度 1 km より深い場所に検出できなかった派生断層が伏在し、それがその後の地震 活動によって分岐断層やバックスラストが成長して処分施設を直撃するというシナリオ を想定した。なお、上記は、現在の断層探査技術の多くが 1 km 程度の可探深度を持つこ とを前提としており、このことは、超深孔処分において考える必要のある 1 km 以深の超 深部での断層については、現在の断層探査技術では探査できないということを示してい る。これは、超深孔処分での重要な留意点の一つになると考えられる。

高井ほか(2016)は上述したシナリオ以上のような条件の下、幌延地域で得られてい る水理・地質データを参考にし、仮想的な堆積岩サイトに派生断層の成長を仮定した水 理・地質モデルを構築した。この水理・地質モデルによって得られた核種移行経路につ いては、派生断層が処分施設に達していない場合(処分施設閉鎖時)と、派生断層が地 表に達した後の核種移行経路には差が生じており、後者では断層に沿って核種が移行す る経路がみられた。

なお、この事例は通常深度の地層処分を対象にしたものであり、超深孔処分の場合に 同様の検討を実施するためには、以下のような点についての検討や考察が必要になると 考えられる。

- ・ 超深部での断層探査技術(可探深度)についての情報収集
- 超深孔処分の定置領域深度での断層の派生についての知見収集
- 派生断層の直接的な影響(派生断層が超深孔のボーリングを直撃するようなケー

ス)を回避することが可能な派生断層と超深孔との距離についての検討・派生断層が生じた場合の超深孔処分への間接的な影響についての検討(例えば、

派生断層が超深孔のボーリングを直撃はしないものの、核種移行経路の下流部に 派生断層が生じたケース等)

また、わが国の通常処分における断層シナリオの取り扱いとして、H12 レポート(核 燃料サイクル開発機構,1999)では、断層活動が地層処分システムに与える可能性のあ る影響についての検討が行われている。その中では、あえて活断層の発生を時間的、空 間的にランダムな事象と捉え、新たに発生した活断層が処分場に影響を及ぼす確率を試 験的に算出したうえで、予察的な評価が実施されている。

また、わが国における閉鎖後の地層処分システムに断層が与える影響として、平成 29 年 度の「処分システム評価確証技術開発」の報告書(日本原子力研究開発機構, 2018c)で は、最新の知見を踏まえながら断層が地層処分システムに与える影響について様々な検 討を実施している。この中で地層処分場に断層が直撃した場合に生じる環境の変化、そ れにともなう多重バリアの安全機能(天然バリア、人工バリア設置環境、人工バリアの 安全機能)の変化について考察が表 5-3~表 5-5 のようにまとめられており、超深孔処 分においても同様の影響が検討対象になりうると考えられる。

天然バリアは	こよる放射性核種の移行遅延に X要な地質環境条件	断層による地質環 境の変化	安全機能の変化
地質構造	・大規模な断層破砕帯など選 択的な移行経路となりうる構 造から十分な距離が確保でき ること		・障壁の劣化(喪失)
地下水の流 動特性	・動水勾配、透水性が低い小さ な地下水流速であること	断 層 破 砕 帯 に よ る 地 層 処 分 場 と 地 下	<ul> <li>・地下水流速の増大</li> <li>・移行時間短縮による核</li> <li>種の崩壊による減衰が期</li> <li>待できなくなる</li> </ul>
地下水の地 球化学特性	・還元性で放射性核種を溶解 しがたい地球化学環境である こと	深部及び地表を結 ぶ水みちの形成	<ul> <li>・断層破砕帯を通じて想</li> <li>定外の水質の地下水流入</li> <li>による熱環境や化学環境</li> <li>の変化</li> </ul>
岩盤中での 物質移動特 性	・十分な遅延効果 (マトリクス 拡散・吸着など) があること		<ul> <li>・地下水流速の増大による遅延効果の劣化</li> <li>・化学環境の変化による影響</li> </ul>

表 5-3 断層による天然バリアへの影響(日本原子力研究開発機構, 2018c)

表 5-4 断層による人工バリア設置環境への影響(日本原子力研究開発機構, 2018c)

人工	バリアの設置要件	設置環境の変化
地下水の流動特性	・動水勾配、透水性が低い小さ な地下水流速であり、人工バリ ア中に浸透する流量、速度が小 さいこと ・緩衝材が流失するような大き な地下水流速ではないこと	・新たな水みちの形成
地下水の地球化学 特性	・オーバーパックの腐食や核種 の溶解を抑制する還元性の環 境であること	・断層破砕帯を通じて想定外の水質の地 下水流入による化学環境の変化
岩盤の熱特性・ 力学特性	<ul> <li>・緩衝材の温度を制限値以下に</li> <li>維持できる地温環境であること</li> <li>・応力状態が均質に近いこと</li> </ul>	<ul> <li>・断層による処分坑道の破壊</li> <li>・断層破砕帯を通じて熱水侵入等による</li> <li>熱環境の変化</li> </ul>

表 5-5 断層による人工バリアの安全機能の変化(日本原子力研究開発機構, 2018c)

設置環境の変化	状態の変化	地層処分システム への影響		安全機能の変化
				・緩衝材が破壊され、核種の
	・地下水流		廃棄体	溶解度の増加・吸着性能の
* ひたの形式	動の変化	·地下水流速	の 破 壊	低下
小みらの形成	・化 学 環 境	・流量の増大	あり	・ガラス固化体からの放射
地衣小の加八	の変化	·溶解促進		性核種の溶出が促進される
休部熬水仍加八	・熱的環境	·移行時間短縮	廃棄体	・緩衝材の機能劣化
	の変化		の破壊	・移行速度の増加、吸着性能
			なし	の低下

## (c)米国の超深孔処分の検討事例での地震・断層の取り扱い

米国での超深孔処分の検討事例(Brady et al., 2009)では、安全評価のシナリオとして、移行経路に応じた以下の3つのシナリオが提示されている。

- ・ シナリオ 1:ボーリング孔内の移行
- ・ シナリオ 2:ボーリング孔周辺の擾乱母岩(EDZ)中の移行
- ・ シナリオ 3:ボーリング孔から離れた母岩中での移行

上述の3つのシナリオの中では、地震・断層の発生の影響は取り扱われていない。た だし、断層については、シナリオ3において既存の断層が優先的な移行経路になること が想定されている。シナリオ3は、断層やボーリング孔周辺での亀裂が主な移行経路と なるシナリオであり、結晶質岩の母岩や堆積層を通じた水理的移行により浅部の帯水層 へ移行し、その水が生活圏に汲み上げられるとしたシナリオである。このシナリオの発 生要件としては、亀裂または断層の透水性が十分に高いこと、および水理学的ポテンシ ャルにおいて上方向の勾配が維持されることが挙げられている。また、結晶質岩の上方 向の透水性が低く、上部には堆積層があるような場合、相互に接続した亀裂帯または断層が存在すれば大量の地下水が浅部の帯水層へと流れることになる。ただし、米国での 超深孔処分の検討事例(Brady et al., 2009)では、主要なシナリオとしてシナリオ 1 とシナリオ 2 の組み合わせについては予察的な性能評価が試みられているが、シナリオ 3 を対象とした予察的な性能評価は実施されていない。シナリオ 3 を評価対象にしてい ないことについては、その理由の明確な記載はないものの、周辺母岩の透水性が低く設 定されていることから、地下水流れなどによるボーリング孔から離れる方向での母岩中 の移行が顕在化しないと想定したと考えられる。また、Cs/Sr カプセルを対象とした米 国での超深孔処分の最新の評価事例(SNL, 2016)においても、やはり Brady et al. (2009) と同様の 3 つのシナリオが想定されているものの、シナリオ 3 に対応する評価は実施さ れていない。

### (3) 超深孔処分の適用性・成立性に影響する因子の検討

わが国における超深孔処分の適用性や成立性などに影響を与えうる因子については、 以下のような検討を通じて、それら因子の影響を概略的に見通せるようにしておくこと が重要になると考えられる。

- ・ 想定され得る主な移行経路や移行プロセスとそれらに影響を与えうる地質環境条件や設計条件などに着目しつつ因子の候補を抽出する
- それら因子による特徴的な影響の種類や程度についてのシナリオ解析や核種移行
   感度解析などによる分析を実施する

ここでは、超深孔処分の安全性に顕著な影響を与える可能性のある因子に着目し、図 5-2のアプローチに基づいた検討を行う。

以下にその実施内容を示す。

- 因子の候補の抽出(「1)」参照)
- ・因子が与える影響の抽出・整理(「2)」参照)
- ・ 因子の影響の条件分岐に基づく予察的解析(「3)」参照)

因子0	)候補の抽出		H30年度:
	•		アプローチ案
因子が与え	る影響の抽出・整理		「通り天旭」
	•		H31年度:
評価シナリオ、核	種移行解析モデルの構築		アプローチの 改良や内容
		_	拡充等
感度解析の実施			

図 5-2 超深孔処分の適用性・成立性に影響する因子の検討アプローチのイメージ

### 1) 因子の候補の抽出

ここでは、わが国で検討する可能性のある場を想定しつつ、超深孔処分の安全性に対 して影響を及ぼす可能性のある因子の候補を抽出した。因子の候補を抽出する際には、 従来の地層処分(H12レポート分冊3(核燃料サイクル開発機構,1999)や直接処分第1 次取りまとめ(日本原子力研究開発機構,2015))の安全評価において影響が大きいと考 えられた因子(例えば、母岩の透水性など)や、超深孔処分特有で安全性への影響が大 きくなる可能性がある因子(例えば、熱対流など)に着目しつつ因子の候補を抽出した。 また、抽出した因子の候補については、超深孔処分での核種移行経路や核種移行挙動に どのような影響を及ぼすかについて分析したうえで、以下に示す5つの項目に分類して 整理した。

- ・ 超深孔内および超深孔周りの地下水流動に関係する因子
- 廃棄体定置領域での核種移行に関係する因子
- ・ シール材領域での核種移行に関係する因子
- 地質環境条件に関係する因子
- 適用可能な工学技術に関係する因子

超深孔処分の安全性に対して影響を及ぼす可能性があるとして抽出した因子の候補を 表 5-6 に示す。

着目した項目 (核種移行経路、核種移行挙動等)	影響を及ぼす可能性のある因子の候補
超深孔内および超深孔周辺の地下水流動	・廃棄体
	. 經衝封
	102(117) - CD 7(11日 当1 早く2月 4日 + 111)
	·CD2(伽引於音限域)
	・シール村
	・上部埋戻し材
	・プラグ
廃棄体定置領域での核種移行	・処分容器の有無
	・処分容器の核種閉じ込め性能の有無
	・緩衝材の有無
	·EDZの有無
シールサ谷域での技種な行	こうしょう ( べい トナノト 半天笠) の 澤口
シール州限域での核性物1」	・シール物(ハント)イト、右右寺)の迭折
	・EDZの有無
	・ブラグの有無
地質環境条件	・岩種(結晶質岩/堆積岩)
	・地下水(降水系/海水系)
	<ul> <li>・母岩の透水性(高透水性/低透水性)</li> </ul>
	・母岩の不均質性
	<ul> <li>優先的な地下水移行経路の存在</li> </ul>
	·新屋
	- 初次70加八相火次度ズの温度・圧力
	「喧冻れ湿力怕当休及での温及・圧力 (宣泪・宣圧)
海田可能たて労士術	(同/皿)同/上/ 振測ス(タルトを制約)
週用り能な上子技術	「畑則九住による利約」
	(掘削れ径か掘削実績程度(径約20cm)だ
	と、緩衝材や核種閉じ込め性能を有する処分
	容器を設置できない可能性)

#### 表 5-6 超深孔処分に影響を及ぼす可能性のある因子の候補

### 2) 因子が与える影響の抽出・整理

1) で示した各因子が超深孔処分における核種移行経路や核種移行挙動に与える影響は、 様々なものが考えられ、さらにその影響は、因子自体の設定さらには複数の因子の組合 せに応じて変化すると考えられる。

因子自体の設定が与える影響の変化:

例えば、母岩の透水性が"中~高透水性"であれば、母岩中の亀裂等が主要な核 種移行経路になると考えられるが、母岩の透水性が"低透水性"であれば、母岩 の亀裂等は主要な移行経路にはならず、超深孔の廃棄体定置領域およびシール材 中あるいはその周辺の EDZ が主要な移行経路になる可能性が高くなる。

・ 複数の因子の組合せによる影響の変化:

例えば、廃棄体の発熱に起因する熱対流による超深孔の廃棄体定置領域およびシ ール材中での上向きの移行が核種移行に与える影響が考えられるが、熱対流の影 響が発生している期間は数百年間に限定されるため、処分容器がその期間にわた って核種を閉じ込めておくことができれば、核種移行に対する熱対流の影響は無 視することができる。また、超深孔処分相当深度での高温・高圧およびその環境 での化学的プロセスへの影響による移行特性の変化なども考えられる。

このような因子自体やその組み合わせに起因する様々な影響を抽出・整理するために は、上述のような因子の設定や組合せに応じた核種移行経路や核種移行挙動等の主な違 いをわかりやすく表現するとともに、因子の設定や組合せに応じた複合的な影響を抽 出・整理する必要があると考えられる。

平成30年度の検討においては、表5-1の因子の候補の中から、従来の地層処分を想定 したときにも一般的に重要となると考えられる、"母岩の透水性"、"処分容器の核種閉じ 込め性能"、"EDZによる優先的な移行経路"に着目し、これら3つの因子の設定(母岩 の透水性の低透水性/中~高透水性、閉じ込め性能のなし/あり、EDZによる優先的な 移行経路のなし/あり)とその組み合わせ(条件分岐)に応じて核種移行経路や核種移 行挙動にどのような違いが生じるのか、またそこで生じる違いが核種移行にどのように 影響するのか、その影響がパターン化できるか等について定性的な分析・整理を実施し た。このような考え方での分析・整理の結果(条件分岐フロー)を図 5-3に示す。



図 5-3 因子の設定や組合せに応じた核種移行経路や核種移行挙動等の違いの整理 (条件分岐フロー)

図 5-3 の条件分岐フローに基づく分析・整理により、3 つの因子の設定とその組合せ により超深孔処分の核種移行経路や核種移行挙動の特徴が違ってくる可能性があること、 またそのような核種移行への影響はその特徴の類似性・相違性に基づいて主に 4 つのパ ターンに分類することができると考えられる。

- パターン①:熱対流による上方向の核種移行が重要になる可能性があるパターン (さらに、EDZによる優先的な移行経路のある/なしで核種移行が変化する)
- ・ パターン②:拡散による核種移行が重要になる可能性があるパターン
- パターン③:移流による母岩中の核種移行が重要になるパターンに対して熱対流
   による上方向の核種移行の影響も加味される可能性のあるパターン(さらに、EDZ
   による優先的な移行経路のある/なしで核種移行が変化する)
- パターン④:移流による母岩中の核種移行が重要になるパターン(さらに、EDZ による優先的な移行経路のある/なしで核種移行が変化する)

平成30年度の検討での超深孔処分での核種移行の場の想定を図5-4としたうえで、各 パターンの核種移行経路や核種移行の特徴の具体化し、表5-7~表5-10にまとめた。な お、図5-4で示す超深孔処分での核種移行の場の想定の詳細については、後述3)で詳し く述べることとする。また、図5-3の条件分岐フローおよび表5-7~表5-10の核種移行 への影響パターンについて、因子が具体的にどのような条件およびどのような組み合わ せのときにどの影響パターンになるかは、実際に予察的な核種移行解析等を実施してそ の影響を定量的に把握する必要があると考えられる。これについても、後述3)で詳しく 述べることとする。



図 5-4 平成 30 年度の検討で想定した超深孔処分での核種移行の場の概念図



# 表 5-7 各影響パターンでの核種移行経路および核種移行の特徴の具体化の例

(パターン①の場合)

\*1 母岩が低透水性であるため EDZ も低透水性であると想定した結果、EDZ 中の優先的な移行経路による核種移 行の影響も小さいと定性的に判断している。なお、この判断が正しいかどうかは、後述 3)の予察的な核種 移行解析により定量的に確認することとする。

# 表 5-8 各影響パターンでの核種移行経路および核種移行の特徴の具体化の例



# (パターン②の場合)



# 表 5-9 各影響パターンでの核種移行経路および核種移行の特徴の具体化の例

5-22



# 表 5-10 各影響パターンでの核種移行経路および核種移行の特徴の具体化の例

### 3) 因子の影響の条件分岐に基づく予察的解析

本項では、2)で検討した条件分岐フローに基づいて、因子の条件の設定や組合せに応 じて核種移行経路や核種移行挙動にどのような違いが生じるかを定量的に把握するため の予察的な解析を実施する。具体的には、条件分岐フローで着目した因子である"母岩 の透水性"、"処分容器の核種閉じ込め性能"、"EDZ による優先的な移行経路"がどのよ うな条件や組合せになったときに核種移行経路や核種移行挙動が変化するのか等につい て感度解析を実施して分析・把握を試みる。

以下に実施内容を示す。

- ・ 超深孔処分の核種移行の場の想定および主要な移行プロセスの想定(①参照)
- ・ 評価シナリオと感度解析ケースの設定の考え方(②参照)
- 超深孔処分の核種移行解析上の主な取り扱い(③参照)
- 核種移行解析モデルの構築(④参照)
- 解析ケースの設定(⑤参照)
- ・超深孔処分で考慮する熱対流の算出(⑥参照)
- ・ 感度解析結果および考察(⑦参照)

### ① 超深孔処分の核種移行の場および主要な移行プロセスの想定

図 5-4 に示した、本検討での超深孔処分での核種移行の場の概念図において、場の状況や主な移行プロセスの想定は以下のとおりである。

<u>廃棄体定置領域:</u>

- ・ 深度 5,000 m~3,000 mの幅 2,000 mの領域に廃棄体が均等に分布している。
- 廃棄体からの発熱および地温勾配から、本領域内で温度勾配が発生し熱対流が生じる。ここで、廃棄体の発熱に由来する熱対流の継続時間は数百年である。
- 廃棄体定置領域はベントナイトで充填され低透水性のバリアを形成すると仮定し、
   本領域内では熱対流と濃度勾配による拡散で核種が本領域内を上方向へ移行する。
   収着性の核種は、その移行過程でベントナイトへの収着により遅延する。
- ・ 廃棄体定置領域周辺の EDZ 領域との濃度勾配により、核種は拡散で廃棄体定置領 域から EDZ 領域に(横方向へ)移行する。

シール材領域:

- 深度 3,000 m~2,000 mの 1,000 mの領域をシール材領域とする。
- 廃棄体定置領域からの熱および地温勾配から、本領域内で温度勾配が発生し熱対
   流が生じる。ここで、廃棄体の発熱に由来する熱対流の継続時間は数百年である。
- ・シール材領域はベントナイトで充填され低透水性のバリアを形成すると仮定し、
   本領域内では熱対流と濃度勾配による拡散で核種が本領域内を上方向へ移行する。
   収着性の核種は、その移行過程でベントナイトへの収着により遅延する。
- ・シール材領域周辺の EDZ 領域との濃度勾配により、核種は拡散でシール材領域から EDZ 領域に(横方向へ)移行する。

ボーリング孔上部領域:

- ・ 深度 2,000 m~地表までの長さ 2,000 mの領域をボーリング孔上部領域とする。
- 本検討では、この領域は移行経路として考えない(シール材領域の上部に到達した核種は瞬時に生活圏へと到達すると仮定する)。

<u>EDZ 領域:</u>

- ・ EDZ が処分孔(廃棄体定置領域、シール材領域)周辺に発生することを考える。
- 廃棄体定置領域からの熱および地温勾配から、EDZ 領域内でも温度勾配が発生し
   熱対流が生じる。ここで、廃棄体の発熱に由来する熱対流の継続時間は数百年である。
- EDZ 領域内での核種の上方向の移行については、主な移行挙動として、熱対流に よる移行、EDZ の透水性に応じての濃度勾配による拡散あるいは地下水の流れに よる移流が考えらえる。収着性の核種は、その移行過程で EDZ 中の岩石への収着 により遅延する。
- ・ EDZ 領域からの核種の横方向の移行については、拡散あるいは地下水の流れによ る移流・分散が考えられる。

母岩領域:

- 深度 5,000 mから地表までの領域に母岩が均等に分布していると仮定する。
- 廃棄体定置領域周辺の EDZ 領域およびシール材領域周辺の EDZ 領域から移行して きた核種は、透水性に応じての濃度勾配による拡散あるいは地下水の流れによる 移流・分散で母岩中を横方向に移行する。収着性の核種は、その移行過程で母岩 への収着により遅延する。
- ・母岩中を横方向に移行した核種は、下流側にある大規模な破砕帯を含む断層に到 達する。本検討では、保守的に断層は核種移行経路として考えない(母岩外側に 到達した核種は、瞬時に生活圏へと到達すると仮定する)。
- ・ 処分孔から断層までの母岩中の核種移行の評価距離は 1,000 m と仮定する。

### ② 評価シナリオと感度解析ケースの設定の考え方

平成30年度の予察的な解析では、2)で検討した条件分岐フローに基づき、核種移行への影響パターン毎の核種移行経路と核種移行挙動の特徴を核種移行の評価シナリオとして取り扱うこととし、それら評価シナリオに応じた核種移行経路と核種移行挙動を取り扱うことが可能な核種移行解析モデルを構築した。

感度解析ケースについては、各影響パターンでの核種移行経路や核種移行挙動(移行率)の違いを把握し、さらに、それらの違いに"母岩の透水性"、"処分容器の核種閉じ込め性能"、"EDZの透水性"の3つの因子がどのように影響しているのか(どの因子が、どのような組み合わせ、どのような条件下でその影響が顕在化しているのか、あるいはその影響がなくなっているのか)等の分析を実施することを主な目的として設定した。

### ③ 超深孔処分の核種移行解析上の主な取り扱い

予察的な核種移行解析における超深孔処分の解析上の主な取り扱いを以下に示す。

- ・超深孔処分の想定に対応する熱対流の発生期間や流速については、先行事業(日本原子力研究開発機構,2018b)では米国の熱対流解析(Clayton et al., 2011)を参考に熱対流の流速とその発生期間を設定していたが、平成30年度の予察的解析では、平成30年度の超深孔処分の核種移行の場の想定に合わせた熱対流解析を試行して、その結果から熱対流の流速とその発生期間を設定した(後述⑤参照)。
- ・本検討で処分対象として想定する廃棄体としては、廃棄体定置領域の孔径が狭い ことを考慮して、廃棄体パッケージ1本当たり燃料集合体1体を収容するものと 仮定した。また、米国の事例では1本のボーリング孔に対して400本の廃棄体パ ッケージを定置することを想定していることから、本検討でも同様に一本のボー リング孔に対して400本の廃棄体パッケージを定置することを仮定した。これは 直接処分第1次取りまとめにおける廃棄体(燃料集合体2体収容)200本に相当 する(直接処分第1次取りまとめでの廃棄体(燃料集合体2体収容)36,477本に 対して約200分の1)。
- ・インベントリについては、直接処分第1次取りまとめでは処分後1,000年で廃棄 体から核種が放出されるとしているため、炉取り出し1,050年(貯蔵50年+処分 後1,000年)時点での値を設定しているが、本検討では定置完了後すぐに全量が 放出されると仮定しているため、直接処分第1次取りまとめと同様の使用済燃料 (PWR、濃縮度4.5%、燃焼度45,000 MWD MTU<sup>-1</sup>)の仕様に対し、炉取り出し50年後 のインベントリを初期値として設定した。
- 廃棄体定置領域(ベントナイトでの充填を想定)、シール材領域(ベントナイトでの充填を想定)、母岩での核種の移行に関するパラメータ(拡散係数、分配係数、溶解度など)については、直接処分第1次取りまとめなどから設定した。
  - 評価対象核種については、直接処分第1次取りまとめにおける基本シナリオでの 主要核種のひとつであり、長半減期、可溶性、収着なしの核種である I-129 を選 定した。
- 各移行経路での核種移行率を比較するための評価ポイントとして、シール材領域 最上部、シール材領域周辺の EDZ 領域の最上部、母岩外側の3ポイントを設定し、 各ポイントでの核種移行率を評価する(図 5-5)。各ポイントでの核種移行率を、 核種移行への影響パターンに基づく核種移行経路および核種移行挙動の違いの比 較、およびその違いに及ぼす3つの因子の影響の検討などに使用する。

### ④ 核種移行解析モデルの構築

評価シナリオについては、2)の検討において核種移行への影響パターン毎に具体化した核種移行経路や移行挙動(表 5-7~表 5-10)を評価シナリオをとして取り扱う。核種移行への影響のパターンについては、EDZによる優先的な移行経路のあり/なしを区分すると7個のパターンとなるため、これら7個のパターンの核種移行経路や核種移行挙動に基づく核種移行を評価することが可能な核種移行解析モデルを汎用シミュレーショ

ンソフトウェア GoldSim (GoldSim Technology Group LLC, 2018) を用いて構築した。

7 個のパターンの核種移行経路や核種移行挙動の想定から、核種移行解析モデルとしては、以下に示す3種類の移行経路を取り扱うことができる必要がある。

- ・超深孔中(廃棄体定置領域およびシール材領域中)での熱対流および拡散による 上方向の核種移行
- ・ 超深孔周辺の EDZ 領域中での熱対流および拡散および移流による上方向の核種移 行
- 母岩中での移流による横方向の核種移行

構築した核種移行解析モデルの概念図を図 5-5 に示す。



図 5-5 平成 30 年度の検討で構築した核種移行解析モデルの概念図

# ⑤ 解析ケースの設定

2)で検討した条件分岐フローでの3つの因子("母岩の透水性"、"処分容器の核種閉じ 込め性能"、"EDZの透水性")の条件の設定や組合せに応じた核種移行経路や核種移行挙 動の違いを確認・把握するための解析ケースを設定した。

まず、3つの因子の核種移行解析上のパラメータとしての取り扱いについて検討・整理した結果を表 5-11 に示す。

因子	条件分岐での変化	解析上での取り扱い(設定内容)
母岩の	低透水性	低透水性場を想定している米国の事例(SNL, 2016)での 母岩の透水係数を設定(1×10 <sup>-13</sup> m/s)
透水性	中~高透水性	直接処分第1次取りまとめ(日本原子力研究開発機構, 2015)での母岩の透水係数を設定(1×10 <sup>-10</sup> m/s)
処分容器 の核種 閉じ込め 性能	あり	熱対流解析結果における熱対流継続期間(200 y)を処分 容器の核種閉じ込め期間として設定(200 y 経過後、処分 容器中の核種を瞬時放出させる)。これにより、処分容器 の核種閉じ込め性能のあり/なしと熱対流の影響のあり /なしを対応させている(処分容器の核種閉じ込め性能 ありの場合は、熱対流の発生期間中は核種が処分容器内 で閉じ込められるため、熱対流の影響が無視できる。)
	なし	処分開始直後(0 y)に瞬時放出を設定
EDZ による 優先的な 移行経路	あり	EDZ による優先的な移行経路の影響を評価するために、母 岩中での流速の100倍の流速を"EDZ 中での上方向の流れ" として設定。なお、このような設定は、EDZ による優先的 な移行経路発生の影響の有無や程度を検討するための仮 想的な設定である。
	なし	EDZ 中の上刀回の価40なして設た (孤速 0 m/y)

表 5-11 条件分岐フローでの 3 つの因子の取り扱い

そのうえで、条件分岐フローでの3つの因子による全ての分岐条件(因子の条件の組 み合わせ)および核種移行への全ての影響パターン(4パターン)を包含する形で解析 ケース(7ケース)を設定した(表 5-12)。

表 5-12 解析ケース一覧

		解析ケー	ス						
		1	2	3	4	5	6	7	
核種移行への	影響のパターンNo		1	2		3		4	
	母岩の透水性	低透水性 (1 × 10 <sup>-13</sup> [m/s])		低透水性         中~高透水性           (1×10 <sup>-13</sup> [m/s])         (1×10 <sup>-10</sup> [m/s])					
因子の条件・ 組み合わせ	処分容器の核種 閉じ込め性能	なし	なし	あり	なし	なし	あり	あり	
	EDZによる 優先的な移行経路	なし	あり	なし	なし	あり	なし	あり	
感度解析 パラメータ の設定	母岩中のダルシー 流速 [m/y]	3.2 × 10 <sup>-8</sup>			3.2 × 10 <sup>-5</sup>				
	処分容器の核種 閉じ込め期間[y]	0		200	0			200	
	EDZ中の上方向 のダルシー流速 [m/y]	0	"低透水性 母岩中の ダルシー流速" ×100	0	0	<sup>"</sup> 中~高透水性 母岩中の ダルシー流速" ×100	0	<sup>"</sup> 中~高透水性 母岩中の ダルシー流速" ×100	

このような解析ケースの設定により、3つの因子の影響を以下の観点から定量的に把 握し確認することができると考えられる。

- ・ 母岩が低透水性の条件下における影響把握:
  - ✓ ケース1とケース3(あるいはケース2とケース3)の比較では、処分容器の核種閉じ込め性能がどの程度影響するのか(あるいは影響しないのか)を確認する。これは、熱対流の影響把握と同義である。
  - ✓ ケース1とケース2の比較では、熱対流の影響が生じる状況において、EDZ による優先的な移行経路の有無が変化を与えるのか等について確認を行う。
- 母岩が中~高透水性の条件下における影響把握:
  - ✓ ケース4とケース6(あるいはケース5とケース7)の比較では、処分容器の核種閉じ込め性能がどの程度影響するのか(あるいは影響しないのか)を確認する。これは、熱対流の影響把握と同義である。
  - ✓ ケース4とケース5の比較では、熱対流の影響が生じる状況において、EDZ による優先的な移行経路の有無が変化を与えるのか等について確認を行う。
  - ✓ また、ケース6とケース7の比較では、EDZによる優先的な移行経路の有無 が変化を与えるのか等についての確認を、熱対流の影響が生じない状況を対 象に行う。
- 母岩が透水性の条件の違いの影響把握:
  - ✓ 母岩が低透水性の条件下における結果(ケース1~3)と母岩が中~高透水 性の条件下における結果(ケース4~7)とを相互に比較することで、母岩 の透水性の条件の違いにより、全体的な移行経路や移行挙動の特徴に変化が 生じるかどうか、あるいは上記で確認する各透水性の条件下での熱対流の影 響の有無や EDZ による優先的な移行経路の有無が移行経路や移行挙動に与 える影響に変化が生じるかどうかなどの確認を行う。

### ⑥ 超深孔処分で考慮する熱対流の算出

⑤の感度解析で考慮する超深孔処分での熱対流の流速とその発生期間については、平成 30 年度の超深孔処分の核種移行の場の想定に合わせた熱対流解析を試行し、その結果から設定した。

### a. 解析体系

平成 30 年度の熱対流解析の解析体系を図 5-6 に示す。基本的に (Brady et al., 2009) の同様の解析体系を参考に設定しているが、処分孔径や EDZ の厚さ、廃棄体定置領域や シール材の (上方向の)長さについては、平成 30 年度の超深孔処分の核種移行の場の想 定に合わせた値を設定している。

初期温度は地温勾配 25 ℃ km<sup>-1</sup>に基づき設定し,上部境界 60 ℃,下部境界 160 ℃とした。



図 5-6 平成 30 年度に実施した熱対流の解析体系(直交座標系)

# b. 評価パラメータおよび解析ケースの設定

熱対流解析における各領域での物性値を表 5-13 に示す。

- ・ 母岩領域やシール材領域の透水係数と間隙率は、わが国の地層処分の安全評価 解析(第2次TRUレポート(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構,2005) など)で一般的に用いられている値を設定した。
- ・ EDZ 領域の透水係数については、わが国の地層処分の安全評価解析(第2次 TRU レポート(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構,2005))を参考に、母岩の 透水係数の100倍の値を設定した。
- ・ 廃棄体定置領域に関しては、充填物の考え方等が定まっていないため、透水係数 はシール材と同じ値,間隙率は(Brady et al., 2009)と同じ値を仮想的に設定 した。

パラメータ	単位	母岩	EDZ	シール材	廃棄体定置領域
透水係数	m/s	1 × 10 <sup>-10</sup>	1 × 10 <sup>-8</sup>	1 × 10 <sup>-11</sup>	$1 \times 10^{-11}$
間隙率	_	0.02	0.02	0.41	0.0001
真密度	kg∕m³	2,750	2,750	2,750	2,750
比熱	MJ/(kg K)	790	790	760	760
熱伝導率	W/(m K)	3.0	3.0	0.8	46.0

表 5-13 熱対流解析での各領域の物性値

なお、熱対流で解析条件として考慮する "母岩の透水性"と"EDZ の透水性"は、2) で検討した条件分岐フローで着目した因子でもあり、核種移行の感度解析での設定でそ れらが変わる場合には、それらと整合的な条件での熱対流の解析結果が必要になる(例 えば、核種移行の感度解析において、母岩の透水性の因子が"低透水性"の場合には、 同 様な"低透水性"の条件での熱対流の解析結果を用いる)。このため、条件分岐フローで の"母岩の透水性"と"EDZ の透水性"の条件の違いを考慮した 4 ケースの熱対流解析 ケースを設定することで、超深孔処分での核種移行解析の場に可能な範囲で合わせるよ うにした。

熱対流解析の解析ケースの一覧を表 5-14 に示す。

	熱対流解析ケース					
パラメータ	ケース1	ケース2	ケース3	ケース4		
	(基準ケース)					
熱対流解析 ケースの概要	<ul> <li>・母岩が中~高透水性でかつ</li> <li>EDZによる優先的な移行経路 ありの分岐条件に対応。</li> <li>・EDZによる優先的な移行経路 があるため、EDZ領域の透水 係数を母岩領域の100倍の値 に設定。</li> </ul>	<ul> <li>・母岩が中~高透水性でかつ</li> <li>EDZによる優先的な移行経路なしの分岐条件に対応。</li> <li>・EDZ領域の透水係数を母岩領域と同じ値に設定。</li> </ul>	<ul> <li>・母岩が低透水性でかつEDZ による優先的な移行経路あり の分岐条件に対応。</li> <li>・EDZによる優先的な移行経路 があるため、EDZ領域の透水 係数を母岩領域の100倍の値 に設定。</li> </ul>	・母岩が低透水性でかつEDZ による優先的な移行経路なし の分岐条件に対応。 ・超深孔内でのみ熱対流を発 生させるため、母岩領域とEDZ 領域の透水性を極めて小さい 値に設定。		
廃棄体温度 [℃]		1	50			
廃棄体温度の 減衰時期 [y]	200					
廃棄体定置領域 透水係数 [m/s]		1 ×	10 <sup>-11</sup>			
シール材領域 透水係数 [m/s]		1 ×	10 <sup>-11</sup>			
母岩領域の 透水係数 [m/s]	$1 \times 10^{-10}$	$1 \times 10^{-10}$	$1 \times 10^{-13}$	$1 \times 10^{-20}$		
EDZ領域の 透水係数 [m/s]	1 × 10 <sup>-8</sup>	$1 \times 10^{-10}$	1 × 10 <sup>-11</sup>	1 × 10 <sup>-20</sup>		

表 5-14 熱対流解析ケースの一覧

## c. 熱対流の解析結果

熱対流の解析結果を表 5-15 に示す。

		評価ポイント				
熱対流 解析結果		処分孔		EDZ		
解析ケース	(最大値)		廃棄体定置		廃棄体定置	
		シール材上端	領域上端	シール材上端	領域上端	
ケース1	ダルシー流速 [m/y]	$5.4 \times 10^{-5}$	$3.5 \times 10^{-4}$	$5.4 \times 10^{-2}$	$2.3 \times 10^{-1}$	
ケース2	ダルシー流速 [m/y]	$5.3 \times 10^{-5}$	$5.5 \times 10^{-4}$	$5.3 \times 10^{-4}$	$6.2 \times 10^{-3}$	
ケース3	ダルシー流速 [m/y]	$5.5 \times 10^{-4}$	$1.0 \times 10^{-2}$	$5.5 \times 10^{-4}$	1.1 × 10 <sup>-2</sup>	
ケース4	ダルシ <mark>ー</mark> 流速 [m/y]	$1.7 \times 10^{-4}$	$6.8 \times 10^{-3}$	$4.2 \times 10^{-12}$	2.1 × 10 <sup>-9</sup>	

表 5-15 熱対流の解析結果

予察的な核種移行解析において考慮する熱対流流速としては、最も高い流速である廃 棄体定置領域上端における最大値をケース毎に設定し、その流速を廃棄体定置領域とシ ール材領域の両方に保守的に適用した(表 5-16)。

熱対流 解析 ケース	核種移行解析時に設定する熱対流に係るパラメータ			
	熱対流流速(ダルシー流速)[m/y]		熱対流	核種移行解析時に適用する 感度解析ケース
	処分孔(廃棄体定置領域、 シール材領域)	EDZ領域	継続期间 [y]	
ケース1	$3.5 \times 10^{-4}$	2.3 × 10 <sup>-1</sup>	200	ケース5、ケース7 (母岩の透水性:中~高透水性、 EDZによる優先的な移行経路あり)
ケース2	$5.5 \times 10^{-4}$	6.2 × 10 <sup>-3</sup>		ケース4、ケース6 (母岩の透水性:中~高透水性、 EDZによる優先的な移行経路なし)
ケース3	$1.0 \times 10^{-2}$	1.1 × 10 <sup>−2</sup>		ケース2 (母岩の透水性:低透水性、 EDZによる優先的な移行経路あり)
ケース4	$6.8 \times 10^{-3}$	2.1 × 10 <sup>-9</sup>		ケース1、ケース3 (母岩の透水性:低透水性、 EDZによる優先的な移行経路なし)

表 5-16 予察的な核種移行解析時に設定する熱対流流速と熱対流の継続期間

# ⑦ 感度解析結果および考察

図 5-7 に、核種移行への影響パターンに応じた感度解析における I-129 の最大核種移 行率の比較結果を示す。



図 5-7 核種移行への影響パターンに応じた感度解析の結果(評価核種:I-129)

図 5-7 の感度解析結果に基づき、I-129 の核種移行経路や核種移行挙動が因子の条件 設定や組合せに応じてどのように変わるのかについて分析した。分析結果を以下に示す。

核種移行への影響パターン①の場合:

上部方向への核種移行において熱対流による核種移行が重要になる可能性があ ると考えられた影響パターン①について、まず、EDZによる優先的な移行経路を想 定しないケース1では、母岩領域外側からの最大移行率だけが有意な値を示して おり、シール材領域最上部および EDZ 領域最上部からは有意な最大移行率は得ら れなかった。これは、継続期間が 200 年である熱対流の上部方向への核種移行へ の影響が今回の評価ポイント(移行距離はシール材入口(最下部)から最上部ま での 1000m)までは及ばなかったこと、および母岩が低透水性の条件下でも母岩中 の移流による横方向の核種移行の影響が重要となることを示唆している。

また、EDZ による優先的な移行経路があるケース2においては、シール材領域最 上部および EDZ 領域最上部の最大移行率が母岩領域外側からの最大移行率とほぼ 同じ値になっているが、その発生時間が熱対流の継続期間である 200 年よりも後 であることから、熱対流の影響ではなく、EDZ による優先的な移行経路が存在する ことに起因する影響を示している。この結果は、母岩が低透水性の条件でかつ EDZ の透水性が母岩に比べて大きい場合には、EDZ 領域を通じての上部方向への移流に よる核種移行が顕在化し母岩領域外側への核種移行と同程度になり得ることを示 唆している。

核種移行への影響パターン②の場合:

シール材領域を通じての上部方向への核種移行において熱対流の影響はなく、 拡散による核種移行が重要になる可能性があると考えられる影響パターン②(ケ ース3)については、母岩領域外側からの最大移行率だけが有意な値を示してい る。このことから、影響パターン②においては、シール材領域を通じての上部方 向への拡散のみによる核種移行は母岩領域外側への核種移行に比べて無視できる ほど小さく、また、影響パターン①と同様に、母岩が低透水性の条件下でも母岩 中の移流による横方向の核種移行の影響が重要となることを示唆している。

なお、母岩領域外側からの最大移行率は、同じ低透水性の条件で熱対流の影響 を考慮する影響パターン①(ケース1およびケース2)の最大移行率とほぼ同じ となっている。

核種移行への影響パターン③の場合:

母岩が中~高透水性であることによる母岩中の移流による核種移行に加えて、 熱対流による上部方向への核種移行の影響も加味される可能性のある影響パター ン③(ケース4とケース5)については、母岩が中~高透水性の条件下であるこ とから予測される通り、母岩領域外側からの最大移行率が支配的になっている。 なお、EDZによる優先的な移行経路の存在を想定するケース5については、母岩領 域外側からの最大移行率よりは約5桁小さいものの、熱対流の影響がある期間に おいて EDZ 領域最上部からの最大移行率の発生が示されている。なお、この EDZ 領域最上部からの最大移行率は、熱対流の影響による EDZ 領域を通じての上部方 向への核種移行によるものである。この結果は、母岩が中~高透水性の条件でか つ EDZ の透水性がその母岩の透水性よりも大きく優先的な移行経路になり得る場 合には、母岩中での移流による横方向の移行が大きくなるとともに、熱対流によ る上部方向への核種移行の影響が EDZ 領域最上部(移行距離はシール材入口(最 下部)から最上部までの上方向の1000m)まで及ぶ可能性があることを示唆してい ると考えられる。また、ケース5では EDZ 最上部からの熱対流による最大移行率 の発生が示されているものの、近接するシール材領域最上部については移行が顕 在化していない。シール材領域最上部からの移行率は、シール材領域の下部から 上部方向に移行してきたものではなく、EDZ 領域を移行してきた核種が EDZ からシ ール材領域に移行することにより生じると考えられる。しかし、このケースでは、 EDZ 中での熱対流による上部方向の核種移行が生じている期間が短いため、EDZ か らシール材領域に移行する核種があったとしてもその量が少なく、シール材領域 最上部からの移行が顕在化していないと考えられる。

・ 核種移行への影響パターン④の場合:

上部方向への核種移行において熱対流の影響はなく、母岩が中~高透水性であ ることによる移流による核種移行の影響が重要になると考えられる影響パターン ④ (ケース6とケース7)については、母岩が中~高透水性の条件下であること から予測される通り、母岩領域外側からの最大移行率が支配的になっている。ま た、影響パターン③において熱対流による上部方向への核種移行の影響が限定的 であったことから、結果的には、影響パターン③と影響パターン④での母岩領域 外側からの最大移行率は同じとなっている。

以上の分析結果より、3 つの因子の設定や組合せの I-129 の核種移行に対する主な影響については、以下のようにまとめることができると考えられる。

・超深孔処分での核種移行については、母岩中での核種移行が拡散支配ではない条件(移流が生じ得る透水性)を想定した場合、母岩中の移流による核種移行が重要になる可能性が大きいことがわかった。このことから、従来の地層処分と同様に超深孔処分においても母岩の透水性が重要な因子になると考えられる。また、母岩の透水性やEDZの透水性のバランスによっては熱対流の影響が見えてくる可能性のあることもわかった。なお、平成30年度の検討においては、熱対流の影響と母岩中での移流の影響の大小等について概略的に把握することを主眼としたため、母岩の透水性を均質と仮定するなどの簡単な取り扱いとしていた。しかしながら、母岩の透水性が重要な因子になることが明らかとなったため、実際の母岩で想定されるような透水性の不均質性等を考慮し、それが超深孔処分での核種移行にどのような影響を与えうるかをより詳しく検討することが今後の課題になる

と考えられる。また、そのような母岩の透水性の核種移行への影響が、超深孔処 分のバリア性能やプラグの設置等によりどのように変化し得るかを把握すること も今後の課題になると考えられる。

- 熱対流(=処分容器の核種閉じ込め性能)については、母岩の透水性の大きさに 関係なくその影響が小さい結果となった。これは、平成30年度の検討において、 熱対流の評価ポイントをシール材領域やEDZ領域の最上部(移行距離はシール材 入口(最下部)から最上部までの1000m)に設定したことから、継続期間が200 年である熱対流の影響だけではシール材領域やEDZ領域の最上部まで核種が到達 しなかったと考えられる。一方、平成29年度の検討においては、熱対流の影響の 評価ポイントを廃棄体定置最上部(シール材領域入口(最下部))にしており、そ の場合には、母岩の透水性の条件に応じて熱対流の影響が変化する傾向が確認さ れている。これらのことから、上部方向への熱対流の影響をより詳細に把握して いくために、廃棄体定置領域最上部からシール材領域やEDZ領域のどの程度の距 離まで熱対流の影響が及んでいるのかの確認等の検討を実施していくことも今後の課題になると考えられる。
- EDZによる優先的な移行経路の影響については、母岩が低透水性の条件下では、
   EDZを通じての移流による核種移行が母岩中での移流による核種移行と同等のレベルで発生していることから、低透水性の条件下では EDZ による優先的な移行経路の影響が重要になる可能性があると考えられる。また、母岩の透水性が中~高透水性の条件下において EDZ による優先的な移行経路が存在する場合には、熱対流による上部方向への核種移行の影響が EDZ 領域最上部の評価ポイントまで及ぶ可能性が示唆された。これらのことから、EDZ の透水性の母岩の透水性とのバランスやシール材領域に沿った不均質性等が上部方向の核種移行に与える影響の把握が今後の課題になると考えられる。その際には、前述の母岩の透水性の不均質性等による影響との関係にも留意していくことが必要になると考えられる。
- ・また、核種閉じ込めや移行抑制性能については、廃棄体定置領域・シール領域・ 母岩のバリア性能、超深孔沿いのプラグの設置の有無やプラグの性能などに着目 し、それらの想定が移行経路や移行挙動に及ぼす影響の把握が今後の課題になる と考えられる。その際には、核種遅延特性について、超深孔処分相当深度での THMC 条件の影響にも留意していくことも必要になると考えられる。

## (4) まとめ

その他代替オプションとして、諸外国で現在検討が進められている超深孔処分を対象 として、国内外での最新の関連情報等の分析を実施すると共に、超深孔処分の成立性な どに影響を与えうる因子の抽出やその影響の程度について分析を進めた。

国内外での最新の関連情報等の分析では、超深孔処分に関しては、新しい情報は多くないものの、たとえば、米国の Deep Isolation 社の検討事例について、地下の水平掘削孔 に模擬廃棄体を定置して回収する作業のデモンストレーションなども含めて情報を収集 した。超深孔処分に関連し得る地質環境条件や工学技術等についても、新しい情報はほ とんどないものの、超深孔処分のシール材として適用できる可能性がある工学技術とし て、岩盤溶融概念に対応する人工花崗岩の開発について調査した。今後の課題としては、 引き続き、超深孔処分の成立性の検討の基盤情報になるように、超深孔処分および関連 する地質環境条件や工学技術等についての最新情報の調査を継続するとともに、超深孔 処分の現状把握がより確かなものとなるように、これまでに収集・整理してきた情報等 も活用して、超深孔処分の特徴、設計仕様および安全性などに関する現段階での理解や 不確かさなどの分析・整理を進める。

超深孔処分の成立性などに影響を与えうる因子については、想定され得る主な移行経 路や移行プロセスとそれらに影響を与えうる因子の候補の地質環境条件や設計条件など との関係に着目した抽出、それら因子により特徴付けられる影響の種類や影響の程度等 についてのシナリオ分析や核種移行感度解析などによる分析を進めた。その結果、"母 岩の透水性"、"処分容器の核種閉じ込め性能"、"EDZ による優先的な移行経路"の3つ の因子に着目し、それら因子の条件設定や組み合わせによる核種移行経路や核種移行挙 動の主な違いを4つのパターンに整理した。さらに、それら4つのパターンでの核種移 行の違いについて、感度解析により定量的な評価を試みた。この結果では、たとえば I-129 の核種移行に及ぼす影響については、母岩中において移流による核種移行が発生する場 合には、熱対流による上部方向への核種移行が発生しても、移流による母岩中での核種 移行が支配的になっており、母岩の透水性の影響が大きいことが例示された。さらに、 母岩の透水性は、熱対流の影響による上部方向の移行や EDZ に沿った上部方向の移行等 が顕在化するか否か等にも関係し、EDZ の透水性と母岩の透水性とのバランスが重要と なることも示唆された。

今後の課題としては、核種移行経路や核種移行挙動に対して、母岩の透水係数の条件 設定が大きく影響することから、たとえば、それらの条件をより細かく変えた感度解析 により、熱対流の影響が発生する条件や EDZ による優先的な移行経路の影響が発生する 条件等を分析していくことで、超深孔処分での核種移行挙動を特徴付ける条件を具体化 していくことが考えられる。また、超深孔処分深度での地質環境条件や工学技術につい ての情報の収集・整理を継続するとともに、たとえば、高温・高圧下での核種移行特性 についての既往の知見の有無等についても調査していく。

### 【参考文献】

- Arnold et al. (2011): Reference Design and Operations for Deep Borehole Disposal of High-Level Radioactive Waste. Sandia National Laboratories, SANDIA REPORT SAND2011-6749, 66p.
- Åhäll (2006): Final Deposition of High-level Nuclear Waste in Very Deep Boreholes: An evaluation based on recent research of bedrock conditions at great depths., MKG Report2, 28p.
- Best (2003): Igneous and Metamorphic Petrology. Blackwell Science, Malden, MA, USA.

Beswick (2008): Status of technology for deepborehole disposal. Contract or report to UK Nuclear Decommissioning Authority. 91pps.

- Brady et al. (2009): Deep Borehole Disposal of High-Level Radioactive Waste. Sandia National Laboratory, Albuquerque, USA. Report No: SAND2009-4401. 75 pps.
- Clayton, D., G. Freeze, T. Hadgu, E. Hardin, J. Lee, J. Prouty, R. Rogers, W. M. Nutt, J. Birkholzer, H. H. Liu, L. Zheng, and S. Chu (2011): Generic Disposal System Modeling - Fiscal Year 2011 Progress Report. FCRD-USED-2011-000184, SAND 2011-5828P. Sandia National Laboratories, Albuquerque, NM.
- Collier(2018): Deep borehole disposal grouts are inorganic retarders appropriate.
- Deep Isolation Inc (2018): Deep Isolation 公式 HP <https://www.deepisolation.com/>. (閲覧日:2019年3月28日).
- DOE (2014): Request for Information (RFI) Deep Borehole Field Test. US Department of Energy Idaho Operations Office, Solicitation Number DE-SOL-0007705.
- DOE (2017): Studying the Feasibility of Deep Boreholes, <https://energy.gov/under-secretary-science-and-energy/articles/studying-f easibility-deep-boreholes>. (閲覧日:2019年3月28日).
- 電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構(2005): TRU 廃棄物処分技術検討書-第2次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ-, JNC TY1400 2005-013/FEPC TRU-TR2-2005-02.
- 日本原子力研究開発機構(2015):わが国における使用済燃料の地層処分システムに関する概括的評価-直接処分第1次取りまとめ-, JAEA 技術報告書, JAEA-Research2015-016.
- 日本原子力研究開発機構(2018a): 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開 発事業「直接処分等代替処分技術開発」5か年取りまとめ報告書、平成30年3月.
- 日本原子力研究開発機構(2018b): 平成 29 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関 する技術開発事業「直接処分等代替処分技術開発」報告書、平成 30 年 3 月.
- 日本原子力研究開発機構(2018c): 平成 29 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に 関する技術開発事業「処分システム評価確証技術開発」報告書、平成 30 年 3 月
- GoldSim Technology Group LLC (2018): GoldSim Contaminant Transport Module User's Guide, Version7.1, GoldSim Technology Group LLC.

Heiken et al. (1996): Disposition of Excess Weapon Plutonium in Deep Boreholes,
Site Selection Handbook, Los Alamos National Laboratory, LA-13168-MS, 48p. 放射性廃棄物 WG (総合資源エネルギー調査会電力・ガス事業分科会原子力小委員会放射

性廃棄物 WG) (2014): 放射性廃棄物 WG 中間とりまとめ 平成 26 年 5 月.

- 井尻裕二,澤田淳,赤堀邦晃 (1999): 我が国の岩盤の水理特性について, JNC TN8400 99-090.
- Juhlin and Sandstedt (1989) : Storage of nuclear waste in very deep boreholes.
- Kagohara, K., Imaizumi, T., Miyauchi, T., Sato, H., Uchida, T., Echigo, T., Toda, S. (2006) : Active tectonics of the Senya hills and evolution of the Senya active fault, eastern margin of the Yokote basin fault zone, northeast Japan. Journal of Geography (Chigaku Zasshi), 115(6), 691-714.
- 核燃料サイクル開発機構(1999): 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3 地層処分システムの安全評価, JNC TN1400 99-023, 379p.
- Miyauchi, T. and Takeda, D. (2004) : Late Quaternary evolution and activity of the northern part of the western marginal fault zone of Nagano Basin, central Japan. Active Fault Res., 24, 77-84.
- MIURA, D. (2002): Recent faulting history at the Ichinose fault group, southern part of the Itoigawa-Shizuoka Tectonic Line, central Japan. J. Seismol. Soc. Jpn., 55(2), 33-45.
- 原子力発電環境整備機構(2018): 包括的技術報告書レビュー版, 附属書 4-44 埋戻し 材・プラグの設計における掘削損傷領域の設定.
- 岡田篤正(2008): 日本における活断層調査研究の現状と展望. 活断層研究, 2008(28), 7-13.
- Sapiie and Driscoll (2009): A Review of Geology-Related Aspects of Deep Borehole
  Disposal of Nuclear Wastes. Massachusetts Institute of Technology,
  MIT-NFC-TR-109.
- Sato, H. (2006) : Seismic reflection profiling across active folds in the eastern Shinjo basin, NE Japan. Bull. Earthquake Res. Inst. Univ. Tokyo, 81(2), 157-169.
- Sizgek (2001): Thermal Considerations in a Very Deep Borehole Nuclear Waste Repository for SYNROC.
- SNL Sandia National Laboratories (2013) : Research, Development, and Demonstration Roadmap for Deep Borehole Disposal. + Fuel Cycle Research & Development, FCRD-USED-2012-000269, SAND2012-8527P, 90p.
- SNL Sandia National Laboratories (2016): Deep Borehole Disposal Safety Analysis <http://prod.sandia.gov/techlib/access-control.cgi/2016/1610949r.pdf>. (閲 覧日:2019年3月28日).
- Stober and Bucher (2015) : Hydraulic conductivity of fractured upper crust: insights from hydraulic tests in boreholes and fluid-rock interaction in

crystalline basement rocks. Geofluids, 15(1-2), 161-178. doi: 10.1111/gfl.12104

- Suzuki, Y., Watanabe, M., Nakata, T., Koiwa, N., Sugito, N., Kumahara, Y., Shimazaki, K. (2008): The active fault related to the 2008 Iwate-Miyagi Nairiku Earthquake in Japan: Preliminary report of the earthquake fault in Genbi-cho, Ichinoseki city. Active Fault Research, 29, 25-34.
- 産業技術総合研究所(2018): 活断層データベース.
  - <https://gbank.gsj.jp/activefault/index\_gmap.html?search\_no=%20j001&versio n\_no=1&search\_mode=2>(閲覧日:2019 年 3 月 28 日).
- 竿本英貴,加瀬祐子,森宏,吉見雅行,堀川晴央,阿部信太郎(2015): 位相最適化に基づく断層形状推定手法の開発. 土木学会論文集 A1 (構造・地震工学),71(4), I\_21-I\_31.
- Tsang et al. (2005) : "Geohydromechanical processes in the Excavation Damaged Zone in crystalline rock, rock salt, and indurated and plastic clays - in the context of radioactive waste disposal", International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences, 42(1), 109-125. doi: 10.1016/j.ijrmms.2004.08.003.
- 高井静霞,武田聖司,酒井隆太郎,島田太郎,宗像雅広,田中忠夫(2016):派生断層の 成長による地層処分システム周辺の地下水流動への影響評価.日本原子力学会和文 論文誌,J16-003.
- 東郷正美(2000): 微小地形による活断層判読. 古今書院.
- Wijesinghe et al. (1996): Fissile Materials Disposition Program Alternative Technical Summary Report for Direct Disposition in Deep Boreholes.
- WoodWard-Clyde Consultants (1983) : Very Deep Hole Systems Engineering Studies: Technical Report.
- Yardley and Bodnar (2014) : Fluids in the continental crust. Geochemical Perspectives, 3(1), 1-127.
- Yang, P., Wang, Y., Rodriguez, M. A., & Brady, P. V. (2019) : Rock-welding materials development for deep borehole nuclear waste disposal. Materials Chemistry and Physics, 221, 178-187.
- Lee .Y, Choi.H and Kim.K (2016): A preliminary comparison study of two options for disposal of high-level waste. Prog. Nucl. Energy 90, 229.

# 第6章

おわりに

# 6. おわりに

# 6.1 成果の総括

本事業では、使用済燃料の直接処分に係る人エバリアの成立性の評価の高度化への対応、 地質環境条件や使用済燃料の多様性への対応などに係る技術開発を重点に行うこと、また、 その他代替オプションのわが国における成立性に関する検討を行うことを目的として、以下 の事業項目を設定し調査などを実施した。

- ・処分容器の挙動評価(2章参照)
- ・使用済燃料、緩衝材の挙動評価(3章参照)
- ・直接処分システムの成立性の多角的な確認(4章参照)
- ・その他の代替処分オプションについての調査(5章参照)
- 情報収集および評価委員会の設置と運営

以下に平成30年度に実施した上記事業項目の成果を総括する。

# (1) 処分容器の挙動評価

純銅処分容器のわが国の地質環境への適用の検討については、純銅の処分容器としての適用 条件や長寿命を達成可能な環境条件の評価に資するため、硫化物環境での腐食挙動など個別 の現象や個々の影響因子に着目して、硫化物濃度をパラメータとした純銅の腐食試験を行い、 電気化学的特性や腐食速度に及ぼす硫化物共存や硫化物濃度の影響に関する腐食データを取 得した。また、ベントナイト共存下での応力腐食割れ感受性を調査し、応力条件や地下水成 分の影響を把握した。銅以外の候補材料についても、炭素鋼およびより高い耐食性を示す可 能性のある低合金鋼を対象とした緩衝材中での腐食モニタリング試験を行い、合金成分によ る腐食速度への影響などを把握した。

使用済燃料の処分後の臨界安全評価技術の高度化については、燃料および処分容器の配置に ついて過度に保守的とならない臨界安全評価技術の構築に資するため、海外事例の文献調査 などを行い、より現実的な材料配置の影響を加味して臨界現象をモデル化するうえで重要と なると考えられる現象や状態に関する知見の収集、整理などを実施した。また、この結果を 踏まえ、処分容器の状態などの変化による臨界安全性への影響を把握するための感度解析で 必要な情報の整備を行った。

# (2) 使用済燃料、緩衝材の挙動評価

使用済燃料の挙動評価については、諸外国に比べてわが国のモデル緩衝材間隙水組成では無 機炭素濃度が高いことに着目した調査などを実施した。燃料マトリクス成分であるウラン酸 化物をペレット状に成型し、溶解速度の全炭酸濃度影響を実験的に調査するとともに、ウラ ンの溶解平衡状態を確認するための溶解度測定を実施した。また、使用済燃料からの核種放 出の評価に関する文献調査を通して、直接処分の安全評価に資するデータ取得条件の整理な どを行った。

緩衝材の挙動評価については、処分容器の材料の候補である銅を対象に、緩衝材との化学的 相互作用や変質などの有無を調査するための試験研究を多様な条件(不活性雰囲気,硫化水 素イオン共存下など)で実施した。

# (3) 直接処分システムの成立性の多角的な確認

直接処分システムの成立性の多角的な確認のために、核セキュリティ・保障措置については、 国際的な進展や議論から特に重要となる要素の最新の知見の分析として、海外情報の調査、 保存すべき核セキュリティ・保障措置データの種類の整理、最新の核セキュリティ上の脅威 および技術に関する調査を実施した。さらに、大量の使用済燃料が同一の場所に長期的に埋 設されることを踏まえて、処分容器内のプルトニウム量などの核物質量が長期的な管理に対 して与える影響を評価するためのインベントリデータの整備を実施した。

また、システムの成立性の効果的な検討については、システムとしての成立性を論じる際の 検討対象について、本項目において対象とするものを抽出した。さらに、システムの成立性 についての検討として、何を議論・確認すべきか、それについての既往の取り組みや情報の 有無・充足度はどうかなどを分析・整理し、今後取り組むべき課題などを抽出していくこと に着目し、それらを効果的に進めていくためのアプローチの案を検討した。

# (4) その他の代替処分オプションについての調査

国内外での最新の関連情報などの分析については、超深孔処分に関する検討事例として米国の Deep Isolation 社の検討事例、超深孔処分に関連し得る地質環境条件や工学技術などについては超深孔処分のシール材として適用できる可能性がある岩盤溶融概念に対応する人工花 協岩の開発、などについて調査した。

また、超深孔処分の成立性などに影響を与えうる因子の抽出やその影響の分析については、 "母岩の透水性"、"処分容器の核種閉じ込め性能"、"EDZ による優先的な移行経路"の3つの 因子に着目し、それら因子の条件設定や組み合わせによる核種移行経路や核種移行挙動の主 な違いを4つのパターンに整理した。さらに、それら4つのパターンでの核種移行の違いに ついて、感度解析により定量的な評価を試みた。その結果、たとえば I-129 の核種移行に及 ぼす影響については、母岩中での移流が支配的になり、透水性の影響が大きいことが例示さ れた。さらに、熱対流の影響による上方向の移行や EDZ に沿った上方向の移行等が顕在化す るか否か等にも、母岩の透水性が関係することも示唆された。

#### (5) 情報収集および評価委員会の設置と運営

本事業の実施に当たり、国内外の関係機関や大学などとの間で必要に応じて情報交換など を実施し、関連技術などについての最新情報を入手するとともに、成果の普及などを積極的 に行った。また、本事業に係る専門家・有識者などで構成される委員会を設置し、研究計 画、実施方法、結果の評価などに関する審議・検討を行い、事業報告書として本報告書を取 りまとめた。

## 6.2 今後の計画

# (1) 処分容器の挙動評価

純銅処分容器のわが国の地質環境への適用の検討については、環境条件による純銅の腐食へ の影響に関し、化学種濃度などの幅広い環境因子に着目したデータ取得や長期データの取得 を進める。純銅以外の候補材料については、炭素鋼の腐食生成物性状の違いによる腐食抑制 効果への影響を把握することなどにより長期腐食速度評価手法の高度化を図るとともに、合 金成分添加の効果などに着目した腐食試験やより高い耐食性を示す金属材料などに関する腐 食データの取得を行い、腐食速度低減や耐食性向上の達成の見通しを提示する。

使用済燃料の処分後の臨界安全評価技術の高度化については、使用済燃料や処分容器に対し て想定される挙動や再配置などが臨界安全性に及ぼす影響の有無や程度について、諸外国の 事例では検討されていない緩衝材の状態の変化による影響なども含めて、個々の状態の変化 が臨界安全性に及ぼす影響に関する感度解析などを行うと共に、これらの情報の分析などを 通じて、臨界安全評価技術の高度化で鍵となる挙動や配置およびその評価方法などを提案す る。

# (2) 使用済燃料、緩衝材の挙動評価

使用済燃料の挙動評価については、ウラン酸化物の溶解速度などに及ぼす炭酸影響につい て、より幅広い条件(ペレット密度の高低など)で実験的調査を実施するとともに、実験後 の固相表面の観察を実施する。また、使用済燃料からの核種放出挙動に関する実測データ取 得のための作業環境整備などを実施する。

緩衝材の挙動評価については、緩衝材と銅の化学的相互作用や変質などの試験研究を、より 幅広い条件(鉄共存下など)で実施する。

# (3) 直接処分システムの成立性の多角的な確認

直接処分システムの成立性の多角的な確認のために、核セキュリティ・保障措置については、 国際機関や海外での議論や研究開発などの最新動向の調査を継続するとともに、インベント リの変化による核セキュリティ・保障措置への影響評価の拡充、人工衛星などによる外部モ ニタリング情報の適用可能性の評価などを実施し、保障措置・核セキュリティについての最 新の対策や考え方を整理する。

また、システムの成立性の効果的な検討については、直接処分の検討として我わが国で重点 的に取り組んでいくべき課題などを、システム成立性の議論への反映先を明確にしつつ提示 できるようにするアプローチなどに着目し、その手法の具体化や試行などを通じて、成立性 の検討の内容に応じて必要となる課題など(取得するべき情報や知見の種類・量・質などを 含む)を具体化する。

# (4) その他の代替処分オプションについての調査

関連情報などの分析については、引き続き、超深孔処分の成立性の検討の基盤情報になるように、超深孔処分および関連する地質環境条件や工学技術などについての最新情報の調査を 継続するとともに、超深孔処分の現状把握がより確かなものとなるように、これまでに収集・ 整理してきた情報なども活用して、超深孔処分の特徴、設計仕様および安全性などに関する 現段階での理解や不確かさなどの分析・整理を進める。

また、超深孔処分の成立性などに影響を与えうる因子の抽出やその影響の分析については、 何が卓越的な核種移行経路や核種移行挙動になるかに対して、母岩の透水係数や EDZ の透水 係数の条件設定が大きく影響することから、たとえば、母岩の透水係数や EDZ の透水係数の 条件をより細かく変えた感度解析により、熱対流が卓越する場合と母岩中の移行(あるいは EDZ 中での移行)が卓越する場合とがどのような条件で切り替わり得るのかなどについて詳 しく調べていく。

# (5) 情報収集および評価委員会の設置と運営

本事業の実施にあたり、調査研究の品質の確保の観点から、国内外の関係研究機関や大学 等との連携を行い最新の知見を入手する。また、外部の専門家などで構成される委員会を設 置し、研究計画・実施方法・結果の評価に関する審謡を行う。