平成 31 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

令和2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31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
1. はじめに	1-1 1-1 1-2 1-3
2. 処分容器の挙動評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-1 2-1 2-47 2-62
 3. 使用済燃料、緩衝材の挙動評価	3-1 3-1 3-31 3-42
4. 直接処分システムの成立性の多角的な確認 4	1-1
5. その他の代替処分オプションについての調査 5.	5-1
 6. おわりに	5-1 5-1 5-3

図 F	1 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
义	2.	1-1	試験カラムと電気化学試験セルの模式図・・・・・・・・・・・・・・・・	2-3
义	2.	1-2	動電位アノード/カソード分極試験結果・・・・・・・・・・・・・・	2-6
义	2.	1-3	定電位分極試験結果・・・・・	2-7
义	2.	1-4	定電位試験における電流密度の経時変化と硫化物の緩衝材中の拡散によ	
			るフラックスから求めた電流密度の比較・・・・・・・・・・・・・・・	2-7
义	2.	1-5	硫化水素の試験溶液への溶解と緩衝材中の硫化物の拡散、銅表面での反	
			応の模式図・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-8
义	2.	1-6	種々の方法で得られた腐食速度の比較・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-8
义	2.	1 - 7	分極測定に使用した試験カラムの模式図・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-10
义	2.	1-8	緩衝材中の測定系の模式図・・・・・	2-10
义	2.	1-9	白金試験極中での分極測定結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-12
义	2.	1-10	銅電極中での分極測定結果・・・・・	2-12
义	2.	1-11	定電位電解における電解電流の経時変化・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-13
义	2.	1-12	定電流電解における試験極電位の経時変化・・・・・・・・・・・・・・・・	2-13
义	2.	1-13	緩衝材中での試験カラムの模式図・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-15
义	2.	1-14	硫化水素吹込み下での緩衝材中の浸漬試験後試験片の外観・・・・・・	2-16
义	2.	1-15	応力腐食割れの機構 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2 - 17
义	2.	1-16	Uベント試験片の形状・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-19
义	2.	1-17	応力負荷前の U ベント試験片・・・・・	2-19
义	2.	1-18	Uベント試験片の組み立て手順・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-20
义	2.	1-19	応力腐食割れ用平板引張試験片・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-20
义	2.	1-20	低ひずみ速度試験応力腐食割れ用環境セルと平板引張試験片・・・・・・・・	2-21
义	2.	1-21	60 ℃の純水および NH₃水溶液を膨潤したベントナイト中で板状試験片	
			を 7、30、60 日間浸漬した試験後の試料外観写真・・・・・・・・・・・	2-21
义	2.	1-22	3.5 ppmの溶存酸素を含む 60 ℃の純水膨潤ベントナイト中に種々期間	
			浸漬する試験後の試料外観写真・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-22
义	2.	1-23	50 ℃の純水膨潤ベントナイト中に種々期間浸漬した試料に生成した硫	
			化物皮膜厚さと酸化物皮膜厚さ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-23
义	2.	1-24	純水膨潤ベントナイト中での U ベント試験片の試料外観写真	2-24
义	2.	1-25	膨潤ベントナイト中での SSRT 試験片の試料外観写真・・・・・・	2-25
义	2.	1-26	脱気膨潤ベントナイト中での SSRT 試験片の試料外観写真・・・・・・	2-26
义	2.	1-27	脱気膨潤ベントナイト中での SSRT 試験片断面の SEM 写真および各元素	
			マップ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-26
义	2.	1-28	脱気 5 mM NH ₃ 膨潤ベントナイト中での SSRT 試験片の試料外観写真 ・・・・	2-27

図 2.1-29 脱気 5 mM NH₃ 膨潤ベントナイト中での SSRT 試験片断面の SEM 写真およ

		び各元素マップ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-27
义	2.1-30	脱気 10 mM NH ₃ 膨潤ベントナイト中での SSRT 試験片の試料外観写真 ・・・	2-28
义	2.1-31	脱気 10 mM NH ₃ 膨潤ベントナイト中での SSRT 試験片断面の SEM 写真お	
		よび各元素マップ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-28
义	2.1-32	ベントナイト中での腐食計測用セルの模式図と実験条件	
		(密閉型セル) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-30
义	2.1-33	ベントナイト中での分極曲線計測用セルの模式図と実験条件	
		(開放型セル) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-31
义	2.1-34	ベントナイト中での炭素鋼の EIS(密閉型セル) ・・・・・・・・・・・	2-32
义	2.1-35	ベントナイト中での Si 含有鋼の EIS(密閉型セル) ・・・・・・・・・・	2-32
义	2.1-36	ベントナイト中での Ni 含有鋼の EIS(密閉型セル) ・・・・・・・・・・	2-33
义	2.1-37	ベントナイト中での炭素鋼の等価回路・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-33
义	2.1-38	腐食速度の経時変化(密閉型セル)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-34
义	2.1-39	腐食モニタリング後の炭素鋼の腐食形態(87日)(密閉型セル) ・・・・・	2-35
义	2.1-40	腐食モニタリング後の Si 含有鋼の腐食形態(87 日)(密閉型セル) ・・・	2-35
义	2.1-41	腐食モニタリング後の Ni 含有鋼の腐食形態(87 日)(密閉型セル) ・・・	2-36
义	2.1-42	炭素鋼の分極曲線・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-37
义	2.1-43	Si 含有鋼の分極曲線 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-37
义	2.1-44	Ni 含有鋼の分極曲線 ······	2-37
义	2.1-45	3 鋼種の分極曲線の比較	2-38
义	2.1-46	炭素鋼の分極後の表面形態・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-39
义	2.1-47	Si 含有鋼の分極後の表面形態 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-39
义	2.1-48	Ni 含有鋼の分極後の表面形態 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-39
义	2.1-49	1.5 % Ni 鋼の分極挙動に及ぼす塩化物イオンの影響 ・・・・・・・・・・	2-40
义	2.1-50	種々の高耐食性金属のアノード分極局挙動・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-42
义	2.2-1	保守的な想定に基づく臨界安全評価モデルの概念・・・・・・・・・・・・	2-48
义	2.2-2	処分後の臨界の起こり易さに影響を及ぼす可能性がある材料等の状態の	
		変化に関する現象間の相関関係の整理結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-51
义	2.2-3	処分容器の腐食の進展とそれによる緩衝材の状態の変化による臨界の起	
		こり易さへの影響の程度等を把握することを目的とする臨界解析モデル	
		の概念	2-52
义	2.2-4	臨界解析で対象とする処分容器と緩衝材の寸法・・・・・・・・・・・・	2-53
义	2.2-5	鉄腐食生成物が処分容器と緩衝材との境界に生成して体積膨張すること	
		で緩衝材が圧密される状態の変化による影響(プロセス①)の評価結果・	2-58
义	2.2-6	鉄イオンが緩衝材中に移行することによる状態の変化の影響(プロセス	
		 ②)の評価結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-59
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

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・・・・・・・・・ 3-4

义	3.1-3	先行事業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	ウランの溶出に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響	
		(SA/V=5、平成 30 年度実施) ······	3-5
义	3.1-5	UO ₂ 粉砕処理の様子・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-6
义	3.1-6	粉砕前後の UO ₂ 粉末の SEM 画像 · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	3-7
义	3.1-7	焼結後のペレットの外観・・・・・	3-8
义	3.1-8	圧縮成型・焼結ペレット表面の SEM 画像	3-8
义	3.1-9	バッチ実験のイメージ・・・・・・	3-9
义	3.1-10	ウランの溶出に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響(抜粋)(SA/V=5、平	
		成 31 年度実施) · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	3-10
义	3.1-11	ウランの溶出に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響(抜粋)(SA/V=10)・・	3-11
义	3.1-12	炭酸水素イオン濃度 10 mM におけるウランの溶出に及ぼす UO2ペレット	
		密度の影響(抜粋)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-11
义	3.1-13	UO₂の溶解速度に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響(SA/V=10 m ⁻¹)・・・・・	3-13
义	3.1-14	U02の溶解速度に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響における REDUPP 文献	
		値との比較・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-13
义	3.1-15	Na ₂ S ₂ O ₄ 溶液添加後の試験溶液の時間変化(写真)・・・・・・・・・・・・・・	3-15
义	3.1-16	試験容器の概要・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-16
义	3.1-17	液相の全無機炭酸濃度とウラン濃度の関係(試験開始8週間後)	3-17
义	3.1-18	ウラン濃度と酸化還元電位(E _h)の関係 ······	3-18
义	3.1-19	ウラン溶解度の計算値と全炭酸濃度(IC)との関係・・・・・・・・・・・	3-19
义	3.1-20	ウラン溶解度の計算値と酸化還元電位(E _h)との関係・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-19
义	3.1-21	電気化学的手法を用いた溶解度試験における溶存ウラン濃度	
		および全炭酸濃度の時間変化・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-20
义	3.1-22	照射燃料試験施設 (AGF) のホットセル外観・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-22
义	3.1-23	燃料集合体および燃料棒の模式図・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-23
义	3.1-24	ガラス製浸漬容器と試料設置のイメージ・・・・・・・・・・・・・・・・	3-24
义	3.1-25	マイクロピペットを用いた化学操作に使用するための台座のイメージ・・	3-24
义	3.1-26	過酸化水素濃度の経時変化・・・・・	3-27
义	3.1-27	PWR 使用済燃料試料(AM2-K12、3V5-013)の Cs と I の累積放出率の時間	
		変化	3-28
义	3.1-28	Gd203含有率、試験温度、02濃度を変数とした模擬 UO2試料の溶解速度・・	3-30
义	3.2-1	テフロン製変質試験カラム概略図・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-34
义	3.2-2	カラム試験後の圧縮ベントナイト試料写真・・・・・・・・・・・・・・	3-34
义	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	
		(約 $260 \times 260 \ \mu \text{ m}^2$) · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	3-36
义	3.2-4	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	
		(図 3.2-3の赤枠部、約 60×60 μ m ²) · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	3-36
义	3.2-5	湿度制御下での XRD 測定結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-39

义	3.2-0	6 モンモリロナイト底面間隔の相対湿度依存性・・・・・・・・・・・・・・・ 3-	-39
义	3.2-7	7 溶液組成分析結果・・・・・ 3-	-40
义	3.2-8	3 CEC 測定結果 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	-40
义	3.2-9	9 低酸素雰囲気下でのバッチ変質試験試料の XRD 測定結果	
		(不定方位試料) · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	-42
义	4-1	直接処分システムの成立性の信頼性向上のための論拠の充実に向けた課題	
		の分析作業の全体フロー・・・・・ 4-	-2
义	4-2	直接処分第1次取りまとめにおいて設定した分類と主な課題・・・・・ 4-	-4
义	4-3	種々の課題や留意点の相関図····· 4-	-13
义	4-4	「C14 や I129 などの瞬時放出成分による突出した影響の出現」に関する	
		Issue 相関図 ······ 4-	-17
义	4-5	「UO2 マトリクス溶解促進の影響」に関する Issue 相関図 ・・・・・・・・・ 4-	-17
义	4-6	「U および Pu のインベントリが大きいことの影響」に関する Issue 相関図	
			-18
义	4-7	「岩盤強度や透水性が北欧等と異なることの影響」に関する Issue 相関図・4-	-18
义	4-8	ボウタイモデルの概念・・・・・ 4-	-22
义	4-9	ボウタイモデルの例 : 多数の廃棄体からの C14 や I129 瞬時放出成分の同時	
		溶出	-23
义	4-10	計算フロー・・・・・・・・・・・	-33
义	4-11	周辺線量当量の様子・・・・・ 3-	-34
义	4-12	線量当量の経時変化・・・・・・ 3-	-34
义	4-13	「押す・握る・切る・叩く・回す・ランダム」の平均識別率・・・・・・ 4-	-36
义	4-14	カメレオンコードの例・・・・・ 4-	-36
义	4-15	受振点配置図・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	-39
义	4-16	電車通過時のノイズ観測事例(波形と周波数の特性)・・・・・・・・・・・・ 4-	-39
义	4-17	静かな環境における3成分受振器のノイズ波形と周波数解析結果・・・・・ 4-	-40
义	4-18	インパクタ振源・・・・・・ 4-	-41
义	4-19	電車ノイズデータとインパクタデータを合成した波形からのインパクタ	
		振動を分離・抽出の例・・・・・ 4-	-41
义	4-20	弾性波(P波)の減衰特性の推定(低周波数振動) ・・・・・・・・・ 4-	-43
义	4-21	弾性波(P波)の減衰特性の推定(高周波数振動) ・・・・・・・・・ 4-	-44
义	4-22	イベント振動と観測点配置の概要図・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・-4-	-45
义	4-23	PALSAR-2 により撮影された画像を用いた差分画像 ・・・・・・・・・・ 4-	-47
义	4-24	OLI により撮影された画像 ・・・・・ 4-	-48
义	4-25	ASTER により撮影された画像 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 4-	-49
义	4-26	DNB により撮影された画像 ・・・・・ 4-	-50

図 5-1 国内外の 1,000m 超の坑井における最終的な深度と孔径の関係 ······ 5-14

义	5-2	わが国での地下深部の温度分布データと各ケースの温度情報の予測結果・・・	5-20
义	5-3	着目する因子についての影響評価のアプローチ・・・・・・・・・・・・・	5-25
义	5-4	母岩の透水性の不均質性として想定されうる状況のイメージ・・・・・	5-27
义	5-5	優先的な移行経路や移行挙動が生じる状況等の検討のための比較的小さな	
		評価領域の設定イメージ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-28
义	5-6	三次元水理・物質移動解析モデルのイメージ・・・・・・・・・・・・・・・	5-30
义	5-7	パターンA(均質場)における粒子追跡線解析結果・・・・・・・・・・・・	5-34
义	5-8	パターン1での統計的亀裂の Random Seed 1における粒子追跡線解析結果・	5-35
义	5-9	パターン1での統計的亀裂の Random Seed 4 における粒子追跡線解析結果・	5-36
义	5-10	パターン1での粒子軌跡の時間変化・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-37
义	5-11	超深孔と高透水性亀裂の交差パターンのイメージ(高透水性亀裂が1本の	
		場合)	5-39
义	5-12	超深孔と高透水性亀裂の交差パターンのイメージ(高透水性亀裂が2本の	
		場合)	5-40
义	5-13	パターン2の解析ケース 2-1 と 2-2 における粒子追跡線解析結果・・・・・・	5-44
义	5-14	パターン2の解析ケース 2-1 と 2-2 における粒子軌跡の時間変化・・・・・・	5-45
义	5-15	パターン2の解析ケース 2-3 と 2-4 における粒子追跡線解析結果・・・・・・	5-46
义	5-16	パターン2の解析ケース 2-3 と 2-4 における粒子軌跡の時間変化・・・・・・	5-47
义	5-17	パターン2の解析ケース 2-3 と 2-3-1~3 における粒子追跡線解析結果	
		(1/2)	5-49
义	5-17	パターン2の解析ケース 2-3 と 2-3-1~3 における粒子追跡線解析結果	
		$(2/2) \cdots \cdots \cdots \cdots \cdots \cdots \cdots \cdots \cdots $	5-50
义	5-18	パターン2の解析ケース 2-3 と 2-3-1~3 における粒子軌跡の時間変化	
		(1/2)	5-51
义	5-18	パターン2の解析ケース 2-3 と 2-3-1~3 における粒子軌跡の時間変化	
		$(2/2) \cdots \cdots \cdots \cdots \cdots \cdots \cdots \cdots \cdots $	5-52
义	5-19	パターン2の解析ケース 2-4 と 2-4-1~3 における粒子追跡線解析結果	
		(1/2)	5-53
义	5-19	パターン2の解析ケース 2-4 と 2-4-1~3 における粒子追跡線解析結果	
		$(2/2) \cdots \cdots \cdots \cdots \cdots \cdots \cdots \cdots \cdots $	5-54
义	5-20	パターン2の解析ケース 2-4 と 2-4-1~3 における粒子軌跡の時間変化	
		(1/2)	5-55
义	5-20	パターン2の解析ケース 2-4 と 2-4-1~3 における粒子軌跡の時間変化	
		$(2/2) \cdots \cdots \cdots \cdots \cdots \cdots \cdots \cdots \cdots $	5-56
义	5-21	パターン2の解析ケース 2-4 と 2-4-4 における粒子追跡線解析結果・・・・・	5-59
义	5-22	パターン2の解析ケース 2-4 と 2-4-4 における粒子軌跡の時間変化・・・・・	5-60
义	5-23	超深孔へのプラグ・シールの設置状況のイメージ(超深孔に対して高透水	
		性亀裂が1本交差している場合)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-62
义	5-24	解析ケース 2-1 と 3-1 における粒子追跡線解析結果・・・・・・・・・・・・	5-65

义	5-25	解析ケース 2-1 と 3-1 における粒子軌跡の時間変化・・・・・・・・・・・・	5 - 66
図	5-26	解析ケース 2-2 と 3-2 における粒子追跡線解析結果・・・・・・・・・・・・	5-67
図	5-27	解析ケース 2-2 と 3-2 における粒子軌跡の時間変化・・・・・・・・・・・・	5-68

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・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-3
表	2.1-2	 各領域のカソード還元の電気量と腐食速度・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-14
表	2.1-3	3 浸漬試験条件・・・・・	2-15
表	2.1-4	↓ 試料として用いた無酸素銅の化学組成・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-18
表	2.1-5	5 試験片の材質・・・・・・	2-41
表	2.2-1	燃料集合体、処分容器および緩衝材の仕様等の条件・・・・・・・・・・	2-53
表	2.2-2	2 処分容器の腐食の進展とそれによる緩衝材の状態の変化による臨界の起	
		こり易さへの影響の程度等を把握するための解析ケース・・・・・・・・	2-54
表	2.2-3	3 プロセス①の解析ケースの設定で用いた鉄および鉄腐食生成物の密度・・・	2-55
表	2.2-4	4 処分容器の腐食の進展に伴い変化させるパラメータ・・・・・・・・・・	2-56
表	2.2-5	5 実効増倍率の最大値の整理結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-60
表	3.1-1	先行事業における国内向け瞬時放出率(IRF)の設定値	3-3
表	3.1-2	2 先行事業における国内向け長期溶解速度の設定値	3-3
表	3.1-3	3 UO2ペレット試料を成型するための諸条件	3-6
表	3.1-4	4 UO2粉末の粉砕処理による格子定数および比表面積の変化	3-7
表	3.1-5	5 ウラン溶解度試験条件の一覧	3-15
表	3.1-6	5 H ₂ O ₂ 添加浸漬試験の液相中のH ₂ O ₂ 消費速度(mol m ⁻² s ⁻¹)	3-31
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	3-32
表	3.2-2	2 基礎的な変質挙動の評価に関する試験条件	3-33
表	3.2-3	3 試験に使用した人工海水の組成	3-41
表	4-1	諸外国における設計及び安全評価の観点からの課題の整理例・・・・・	4-8
表	4-2	複数の要素を考える際に留意すべき点やそれらに関連する課題の抽出例・・・	4-11
表	4-3	保障措置対策に適用可能な技術の例・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-21
表	4-4	抽出に用いたキーワード・・・・・	4-25
表	4-5	訪問調査の結果のまとめ・・・・・	4-31
表	4-6	解析に用いた燃料集合体の仕様・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-33
表	4-7	カメレオンコードの認識率・・・・・	4-36
表	5-1	CCS 分野におけるわが国での掘削実績 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-13
表	5-2	超深孔処分のバリエーションの比較結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-15
表	5-3	わが国の地下深部の THMC に係る情報の再整理結果・・・・・・・・・・・・・・・・	5-17
表	5-4	超深孔処分相当深度で想定されうるような THMC 条件に対する核種移行パ	
		ラメータの検討事例等(1/2)	5-21

表	5 - 4	超深孔処分相当深度で想定されうるような THMC 条件に対する核種移行パ	
		ラメータの検討事例等(2/2) 5	-22
表	5-5	本検討で着目する3つの因子の取り扱い・・・・・ 5	-24
表	5-6	亀裂の統計情報・・・・・ 5	-31
表	5-7	パターン2の解析ケース(a)の一覧······5	-41
表	5-8	パターン2の解析ケース(b)の一覧・・・・・ 5	-42
表	5-9	パターン2の解析ケース(c)の一覧······5	-42
表	5-10	プラグ・シールの影響評価解析ケースの一覧・・・・・・・・・・・・5	-63

第1章

はじめに

1 章詳細目次

1. 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・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	-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・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	-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	-2
(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 31 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・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・1	-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	今文献・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	-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 取りまとめ一」(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-地層処分研究	H12 レポート
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まとめ-(電気	第 2 次 TRU レポート
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価 -直接処	直接処分第1次取り
分第1次取りまとめー(日本原子力研究開発機構, 2015a)	まとめ
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 年度報告書
(日本原子力研究開発機構, 2014)	
平成 26 年度地層処分技術調査等事業「使用済燃料直接処分技術開発」報告書(日	平成 26 年度報告書
本原子力研究開発機構, 2015b)	
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(日	平成 27 年度報告書
本原子力研究開発機構, 2016)	
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 28 年度報告書
(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 関する技術開発事業「直接	平成 29 年度報告書
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 「直接処分等代替	5 か年取りまとめ報
処分技術開発」5か年取りまとめ報告書(日本原子力研究開発機構, 2018b)	告書
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	平成 30 年度報告書
処分等代替処分技術高度化開発」報告書(日本原子力研究開発機構, 2019)	

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、使用済燃料からの核種放出の評価に関する調査研究を行う。 また、緩衝材の挙動評価として、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ともに、システムの成 立性を効果的に検討するための手法の整備や課題(取得するべき情報の種類・量・質など) の整理を行う。

(4) その他の代替処分オプションについての調査

その他の代替処分オプションとして、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ともに、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、我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 31 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31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31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、硫化物濃度をパラ メータとした純銅の腐食試験等を行い、純銅の腐食速度の経時変化や共存化学種濃度との関 係に関するデータを拡充した。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や合金成分添加の効果等に着目した腐食試験等により腐食 データを拡充し、腐食速度低減や耐食性向上の達成の見通しを提示した。

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31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因子として、使用済燃料や処分容器の想定される挙動 や再配置等が臨界安全性に及ぼす影響の有無や程度についての感度解析等による具体化を進 めることを通じて、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の案 等を提示した。

(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31年度は、諸外国に比べて我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、ウラン酸化物の溶解速度等に及ぼす炭酸影 響について、より幅広い条件(ペレット密度の高低等)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した。

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等を 実施した。

緩衝材の挙動評価について、平成31年度は、直接処分事業等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等を対象に、緩衝材と銅の化学的相互作用や変質等の 試験研究を、より幅広い条件で実施した。

(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31年度は、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、人 工衛星等による外部モニタリング情報の適用可能性の評価等を実施し、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した。

また、システムの成立性の効果的な検討については、平成31年度は、システムの成立性を 効果的に検討していくための着眼点の拡充・詳細化を進めつつシステムの成立性の多角的な 検討を実施するための手法を例示するとともに、その試行等を通じて成立性の検討の内容に 応じて必要となる情報の種類・量・質および手法の高度化などの課題を具体化した。

(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31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、これまでに収 集・整理してきた情報等から得られる知見について、後段の超深孔処分の成立性の検討で参 照しやすい形での整理等を行った。

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31 年度は、平成30年度の検討で抽出した移行経路や移行プロセスに影響を与えうる因子の候補 について、それら因子の候補が移行経路や移行プロセスに及ぼす可能性のある影響の内容や その影響の発生条件等についてのより詳細な分析、シナリオ解析や感度解析を通じた核種移 行への影響についての定性的・定量的な知見の拡充を進めるとともに、これらを通じて、我 が国における超深孔処分の成立性を論じる際の留意点や課題等を具体化した。 【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 (2020 年 3 月 27 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(2020年3月27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 (2020年3月27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 (2020年3月27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(2020 年 3 月 27 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(2020年3月27日閲覧).

原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2019): 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,

https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/ 2018/30fy_spent-fuel.pdf(2020年3月27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、JNC 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 (2020 年 3 月 27 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(2020年3月 27日閲覧).

第2章

処分容器の挙動評価

2 章詳細目次

2. 処分容器の挙動評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-1
2.1 処分容器の腐食挙動評価・・・・・	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・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-2
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 緩衝材・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-2
④ 試験条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-3
⑤ 試験結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-4
2) 硫化ナトリウム共存下の電気化学試験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-8
① 試験片・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-9
② 試験溶液・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-9
③ 緩衝材・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-9
 試験方法····································	2-9
⑤ 試験結果と考察・・・・・	2-11
3) 浸漬試験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-14
① 試験片・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-14
② 試験溶液····································	2-14
③ 緩衝材・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-14
④ 試験条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-14
⑤ 試験結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-15
(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・・・・・・・・・・・・	2-16
1) 浸漬試験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-18
① 膨潤ベントナイトの調製・・・・・	2-18
② 平板試料	2-18
③ 膨潤ベントナイト中での浸漬試験と表面腐食生成物の電気化学的定量評価・・	2-18
2) 定ひずみ試験—U ベント試験 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-19
3) 低ひずみ速度試験—SSRT・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-20
4) 試験結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-21
① 浸漬試験結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-21
② 定ひずみ試験—U ベント試験定 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-23
③ 低ひずみ速度試験—SSRT 試験結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-24
④ 皮膜性状と応力腐食割れの関係・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-25
(4) 他の候補材料を対象とした腐食試験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-29
1) ベントナイト中における炭素鋼および低合金鋼の腐食速度と腐食形態・・・・・・	2-29
① 腐食試験方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-29

② 試験結果と考察・・・・・・ 2-3
2) 塩化物イオンを含む水溶液中における高耐食性金属の腐食挙動・・・・・・・・ 2-4
① 試験方法・・・・・・2-4
② 試験結果・・・・・ 2-4
(5) 処分容器の長寿命化および破損時期の分布の定量化に関する課題抽出・・・・・ 2-4
1) 検討委員会における議論
① 前提条件
② 検討委員会の開催実績・・・・・ 2-4-
2) 検討委員会委員による意見 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
3)研究課題の具体化と取り組みのアプローチ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・2-4
2.2 使用済燃料処分での処分後臨界安全評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・2-4
(1)本項目の背景と目的・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
(2) 材料等の状態の変化が臨界の起こり易さに及ぼす影響の把握・・・・・ 2-4
1) 臨界解析で対象とする材料等の状態の変化の選定 ・・・・・・・・・・・・・・・ 2-4
2) 材料等の状態の変化を反映した解析パラメータおよび解析ケースの設定 ・・・・ 2-5
3) 解析結果
(3) 臨界安全評価手法の高度化に向けた課題の抽出・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・2-6
2.3 まとめ・・・・・ 2-6.
参考文献 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·

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、地質環境条件や使用済燃 料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 10⁵~ 10⁶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、硫化物濃度など の環境条件に応じて腐食が進展する場合があると考えられる。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検討した。具体的には、緩衝材中で幅広い酸 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)および低酸素濃度下での腐食挙動を把握するための浸漬試験を実施した(後述 (2)項参照)。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)項参照)。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。加えて、チタン等の高耐食性金属に分類される材料を対象に、高耐食性金属におい て問題となる塩化物イオン等による局部腐食に代表される酸化性環境での耐食性について 種々の代表的な材料の比較検討を行った(後述(4)項参照)。さらに、長寿命化や寿命分布の 定量化に向け、金属腐食に関する専門家からなる委員会を設置し、課題と研究アプローチを 抽出した(後述(5)項参照)。本項目のまとめについては「2.3 まとめ」に示した。

(2) 硫化物共存環境における純銅の腐食挙動

前述のとおり、純銅は硫化物を含む環境では低酸素濃度環境であっても熱力学的な安定性 を失い、硫化物濃度などの環境条件に応じて腐食が進展する場合があることから、硫化水素 を含むガスを吹き込んだ試験溶液(後述 1)項)および硫化ナトリウムを添加した試験溶液(後 述 2)項参照)を用いて、硫化物共存や濃度による緩衝材中での純銅のアノード/カソード分 極特性や腐食生成物性状への影響を調査した。また、低酸素濃度下での純銅の腐食挙動を把 握するため、硫化水素を含むガスを吹き込んだ試験溶液を用いて 90 日間までの浸漬試験(後 述 3)項参照)を行った。

1) 硫化水素吹き込み下の電気化学試験

従来、硫化物共存下での純銅の腐食挙動については、比較的扱いの容易な硫化ナトリウム を模擬地下水に添加したアルカリ性の溶液中で行われている(Taniguchi and Kawasaki, 2008)。しかし、硫化ナトリウムを用いた試験では中性〜弱酸性側のpH条件を再現すること は困難であり、実験的な検討事例が乏しい。そこで、弱酸性〜中性付近での腐食データを取 得することを目的として模擬地下水に硫化水素を吹き込んだ系での電気化学試験を行った。

平成 30 年度は、溶液中での挙動を検討し、硫化水素濃度に応じてアノード側の停滞電流 が変化すること等を確認した。平成 31 年度は、緩衝材共存下での挙動を検討した。

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 cm²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。試験溶液の pH は以下のとおり。

N₂ガス:8.3 (25 ℃)、7.8 (80 ℃)

- 99 %N₂+1 %H₂S : 6.6(25 °C) (7.4 (80 °C))
- 95 $\%N_2$ +5 $\%H_2S$: 6.4 (25 °C), 6.7 (80 °C)
- 90 %N₂+10 %H₂S : 6.1(25 °C) (6.4 (80 °C))
- 50 MN_2 +50 MH_2 S : 5.4(25 °C), 5.7 (80 °C)
- 100 %H₂S : 5.1(25 °C) (5.4 (80 °C))

③ 緩衝材

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⁻³となるように圧縮成型した。緩衝材中での試験 に用いた試験カラムの模式図を図2.1-1(a)に示す。

④ 試験条件

試験条件を表 2.1-1 に示す。表中の電位は飽和 KC1 中の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⁻¹とし、分極範囲は-1.7 V vs. SSE~0.8 V vs. SSE とした。分極測定に使用した試験カラムと試験セルの模式図をそ れぞれ図 2.1-1 の(a)および(b)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(変曲点等) にて 24 時間の定電位分極試験を行った。

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		
			$100 \ \%N_2$		-0.9, -0.65, -0.5, 0, 0.2	
			$99 \ \%N_2 + 1 \ \%H_2S$		-0.9, -0.7, -0.5, 0, 0.2	
人工	80	たり	$95 \ \%N_2 + 5 \ \%H_2S$	1.7~0.8	_	
海水 80	めり	$90 \ \%N_2 + 10 \ \%H_2S$	V vs. SSE	-1.0, -0.8, -0.65, 0		
			$50 \ \%N_2 + 50 \ \%H_2S$		_	
			100 %H ₂ S		-1.0, -0.7, -0.5, 0.15	

表2.1-1 電気化学試験条件





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。硫化水素濃度 10 %以下では自 然電位とアノード分極挙動に大きな違いはなく、0.1~0.2 V vs. SSE 付近までは電流が立ち 上がり、更に高い電位ではいったん低下する挙動が観察された。カソード分極挙動について も 10 %以下では-0.5~-0.7 V 付近に限界電流のような電流値の停滞が観察されたのち、電 流値が立ち上がる挙動を示した。この限界電流は緩衝材中の残存酸素に起因する還元電流の 可能性もあり、硫化水素の吹込みに起因するものかどうかは不明であることから、今後より 詳細な調査が望まれる。硫化水素濃度 50 %以上では 10 %以下の場合よりも自然電位が明ら かに卑な値となり、アノード分極挙動にも大きな違いが認められた。また、0 V vs. SSE 付 近で再び増加する挙動を示した。硫化水素濃度 50%以上でのカソード分極曲線は、自然電位 からアノード分極すると電流のピークが観察されたのち電流値が低下し、一方、硫化水素濃 度10%以下では、自然電位から立ち上がり、過電圧の増加に伴って電流値もほぼ単調に増加 した。次に、定電位試験結果を図 2.1-3 に示す。硫化水素濃度1%では0%と類似しており、 硫化銅に特徴的な黒灰色または灰色の腐食生成物の形成は外観上見られなかった。10 %と 100 %では 10 %-0 V の条件を除いて灰色の腐食生成物が観察され、100 %では全面にわたって 灰色の腐食生成物に覆われた状態であった。腐食生成物の分析は今後実施予定であるが、こ の灰色の腐食生成物が主に硫化銅である場合、1%を超える条件で硫化銅の形成が明瞭に認 められるようになったと考えられる。

図 2.1-2 の動電位アノード/カソード分極試験結果において、硫化水素濃度 50 %と100 % でのアノード分極曲線に電流ピーク後の値の減少が観察されたことから、緩衝材中における 硫化物の拡散が律速している可能性に着目して 100 %でのアノード分極曲線における電流ピーク~電流低下領域の電位条件である-0.5 および-0.7 V vs. SSE での定電位試験における 電流密度の経時変化を検討した。電流密度の実測値の経時変化を図 2.1-4 に示す (図中の〇、 Δ)。電流値は試験開始後から急激に低下して 10 数時間以降には概ね一定かなだらかに低下 する挙動が認められた。ここで、図 2.1-5 に模式的に示すように、硫化水素ガスが試験溶液 中に溶解して溶解度に対応した濃度に達し、緩衝材中に浸潤したと仮定して、緩衝材間隙水 の初期の硫化物濃度 (全領域) C_0 と緩衝材外側の硫化物濃度 C_2 を一定 (0.041 M) とし、銅 表面 (x=0) では以下の硫化銅の生成反応 (式 2.1-1, 式 2.1-2) によって硫化物が消費され るとして濃度 C_1 を0とした。

2Cu	+	H_2S	\rightarrow	Cu_2S +	2H ⁺ +	- 2e ⁻	 式 2.1-1
2Cu	+	HS-	\rightarrow	Cu ₂ S +	$\mathrm{H^{+}}$ +	$2e^{-}$	 式 2.1-2

上記のような硫化銅の生成反応のほか、硫化物のチオ硫酸イオンや硫酸イオンへの酸化反応が生じている可能性もある。硫化水素が溶液に溶解した場合、化学形態には $H_2S(aq)$ 、 HS^- 、 S^2 -が考えられるが、これらのうち、硫化水素を吹き込んだ溶液中または緩衝材間隙水で想定される弱酸性~弱アルカリ性では熱力学的には pH 条件に応じて $H_2S(aq)$ または HS-が支配的となる (Pourbaix, 1966)。

この系での一次元の拡散における時間 t、座標 x における硫化物の濃度 C は以下の式(式

2.1-3) で表される (Crank, 1975)。

$$C = C_1 + (C_2 - C_1)\frac{x}{L} + \frac{2}{\pi}\sum_{1}^{\infty} \frac{C_2 \cos n\pi - C_1}{n} \sin \frac{n\pi x}{L} \exp\left(-\frac{Dn^2 \pi^2 t}{L^2}\right) + \frac{2}{L}\sum_{1}^{\infty} \sin \frac{n\pi x}{L} \exp(-\frac{D\pi^2 n^2 t}{L^2}) \int_0^L C_2 \sin \frac{n\pi x'}{L} dx'$$

...式2.1-3

ここで、L は拡散層厚さすなわち緩衝材厚さであり、L=4 mm とした。拡散係数 D は 1 価の 陰イオン(HS⁻を想定したケースでは 25 ℃での I⁻、C1⁻の拡散係数 4.0×10⁻¹¹ m² s⁻¹を準用 し、中性分子 H₂S(aq)を想定したケースでは HTO の拡散係数 1.2×10⁻¹⁰ m² s⁻¹ (Sato, 1998) を準用)について、活性化エネルギー15.05 kJ mol⁻¹(Case, 1973)として 80 ℃に補正した。 銅表面(x=0)での硫化物のフラックスを以下の式(式 2.1-4)により電流密度 i に換算した。

i = nFD
$$(dC/dx)_{x=0}$$
 b (n =2) 式 2.1-4

算出された電流密度の経時変化を図 2.1-4 中に示す(図中の破線、点線)。電流密度の実 測値(図中の○、△)はいずれも銅表面への硫化物の拡散によるフラックスから求められた 2 つのケースの電流密度の範囲内にあり、経時的な変化の傾向も類似していることが確認さ れた。したがって、緩衝材中のアノード分極曲線において電流値がピーク値から低下傾向を 示す電位領域での反応速度は、緩衝材中の硫化物の拡散に基づいて概ね説明が可能と考えら れる。銅表面における硫化物の反応については、硫化物と銅の反応により硫化銅を生成する 反応を想定したが、銅との反応ではなく、硫酸イオンやチオ硫酸イオン等が生成するような 硫化物の酸化反応等の他の反応が生じている可能性もあり、銅表面付近の反応生成物等の分 析により酸化反応の種類を明らかにする必要がある。

次に、アノード/カソード分極試験結果に基づいて得られた腐食速度推定値の硫化水素濃 度依存性を図 2.1-6 に示す。図中の「アノード限界」は、アノード分極曲線において電流の 停滞または低下の見られた領域での電流値から換算した腐食速度である。図中には平成 30 年度に得られた短期の浸漬試験データ(重量法)も示した。緩衝材なしの場合(図 2.1-6 (a))、腐食速度の大きさはアノード限界電流、Tafel 外挿法、重量法の順でいずれも硫化水 素濃度とともに大きな値を示した。また、Tafel 外挿法による腐食速度は浸漬後数時間程度 での値と見なしうるものであり、かつ、重量法よりも大きな値となっているため、腐食速度 が時間とともに低下していることが示唆される。一方、緩衝材ありの場合(図 2.1-6(b))で は、Tafel 外挿法よりも重量法のほうが、腐食速度が大きくなる場合もあった。この理由は 明らかではないが、いずれも浸漬初期の短期的な腐食速度であり、腐食速度の経時変化につ いては今後より長期的な挙動を確認する必要がある。また、硫化水素濃度による影響につい ては、重量法では濃度5%以上、Tafel外挿法では10%以上の場合に、濃度とともに腐食速 度が増加する傾向が見られており、これらの濃度よりも低い濃度条件では緩衝材の共存によ って硫化水素の影響が緩和されていることが示唆された。緩衝材なし、あり、ともにアノー ド限界電流から得られる腐食速度が最も大きいことから、この限界電流が硫化物の拡散律速 によるものであれば、硫化物の拡散に基づいて腐食速度を推定すれば保守的な評価になると 考えられる。



図2.1-2 動電位アノード/カソード分極試験結果



図 2.1-3 定電位分極試験結果



図 2.1-4 定電位試験における電流密度の経時変化と硫化物の緩衝材中の拡散による フラックスから求めた電流密度の比較



図 2.1-5 硫化水素の試験溶液への溶解と緩衝材中の硫化物の拡散、銅表面での反応の 模式図



2) 硫化ナトリウム共存下の電気化学試験

平成 30 年度は、硫化ナトリウム共存下および非共存下でのアノード/カソード分極挙動 を検討し、硫化物添加の影響を確認するとともに緩衝材共存下での挙動を確認した。平成 31 年度は、自然状態で腐食させた銅表面に生じた腐食生成物量や皮膜性状を電気化学的に調査 した。

金属の腐食量の測定方法として最も直接的に評価が可能な方法は質量減少法である。しか し、腐食量が微量である場合や腐食生成物あるいは皮膜が金属素地に密着して除去が困難な 場合には腐食量の評価が困難となる。また、腐食した銅は酸化物や硫化物の形態で腐食生成 物として沈殿すると考えられるが、その構成や存在比等を把握するためには別途分析等が必 要となる。そこで腐食量や腐食生成物の生成割合をより簡便に測定する手法の構築に資する ことを目的として、圧縮ベントナイト中での浸漬試験後の銅電極に対して、カソード還元法 の適用を試みた。

試験片

試験極の材料には、直径が 0.5 mm の純銅線(純度:99.9 %以上)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 cm²)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。比較のため、直径が 0.5 mm の白金線(純度:99.98 %以上)を試験極とした測定も実 施した。前処理は上述の純銅線の試験極と同様とした。

2 試験溶液

試験溶液の基本組成は 50 mM NaC1 + 1 M NaHCO₃ とした。この溶液ならびに Na₂S を下記の b)および c)に示した 2 水準で添加した溶液を試験溶液とした。

- a) 50 mM NaCl + 1 M NaHCO₃
- b) 50 mM NaCl + 1 M NaHCO₃ + 1 mM Na₂S
- c) 50 mM NaCl + 1 M NaHCO₃ + 10 mM Na₂S

③ 緩衝材

ベントナイト試料には、クニミネ工業製のクニゲル V1-RW を使用した。以下、このベント ナイトを "Bt"と表記する。

④ 試験方法

試験極を、チタン製の耐圧試験カラム内に挿入し、油圧プレスで、カラムの両端から充 填した Bt を加圧し、乾燥密度が 1.4 g cm⁻³となるよう圧縮した。圧縮後、カラムの両端に 多孔質アルミナの液絡部を持つ蓋をチタン製のボルトでねじ止めし、図 2.1-7 に示すカラム を組み立てた。組み立てた試験カラムを、試験液を満たしたセパラブルフラスコ内に浸漬し た。浸漬は、Ar ガス通気で試験液を十分に脱気してから行なった。試験カラムの浸漬後、セ パラブルフラスコの本体と蓋部を密封し、内部を真空ポンプで減圧してカラム内の Bt の圧 縮体に、浸漬した試験溶液を浸潤させた。減圧状態のまま約 240 時間保持し、試験溶液が浸 潤した Bt 圧縮体中で銅試験極を腐食させた。比較のために実施した白金電極を用いた試験 も、上記の方法で Bt 圧縮体中に試験極をセットし、同じく減圧状態のまま、試験溶液を浸 潤させた Bt 圧縮体中に、240 時間浸漬した。

次に減圧容器内に大気を導入後、速やかに、セパラブルフラスコの蓋部に、参照極なら びに対極、Ar ガスの吹き込み管を取り付け、試験溶液中への Ar ガスの吹き込みを開始した (図2.1-8)。参照極には、内部溶液が3.33 M KC1の銀/塩化銀参照電極を用いた(以下、vs. Ag/AgC1)。対極は白金線とした。Ar ガスを吹き込んだままで1時間の自然浸漬を行ってから、 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。自然電位から卑側へ 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。また、1分間の保持 後の(次の電位へステップする直前の)電流を、各電位での電流値として記録した。なお、 分極測定中も、試験液中にAr ガスを連続で吹き込んだ。 また、Bt 圧縮体中での銅試験極の腐食の実施後に、試験極をカソード還元し、カソード 電流の経時変化および電極電位の経時変化を測定した。上述の分極測定と同じ手順で参照極 ならびに対極、Ar ガスの吹き込み管をセットし、試験溶液中へのAr ガスの吹き込みを行っ た。ただし、試験溶液に10 mMのNa₂Sを添加した水溶液を用いた測定では、240時間の保持 後に、まず、試験溶液をNa₂S が添加されていない水溶液と交換し、減圧状態のまま約 20 時 間保持した。その後に、上記と同じ手順で、電極等のセットを行った。参照極には、内部溶 液が3.33 M KC1 の銀/塩化銀参照電極を用いた。対極は白金線とした。Ar ガスを吹き込んだ ままで1時間の自然浸漬を行ってから以下の2 段のステップでカソード還元測定を行った。

(i) -0.28 V (vs. Ag/AgC1) での定電位カソード還元

(ii) (i)に続けて-50 μA cm⁻²での定電流カソード還元

(i)ではカソード電流の経時変化を、(ii)では電極電位の経時変化をそれぞれ測定した。(i)ではカソード電流の積分値から、(ii)では時間と印加の定電流の積から、注目する反応の電気量を求めた。



図 2.1-7 分極測定に使用した試験カラムの模式図


Test column

図 2.1-8 緩衝材中の測定系の模式図

白金での分極測定結果を図 2.1-9 に示す。いずれの試験溶液でのカソード分極曲線も-0.7 V (vs. Ag/AgC1)よりも貴側と卑側で傾きが異なっている。-0.7 Vより貴側の電位域でのカ ソード反応は、圧縮ベントナイトあるいは試験溶液中に残留していた酸素の還元反応と推察 される。一方、-0.7 Vより卑側の電位域での反応は、炭酸水素イオンあるいは水の還元反応 と推察される。10 mMの Na₂S を添加した試験液のアノード分極は硫化水素イオンの酸化反応 に対応すると考えられる。

次に銅試験極のカソード分極挙動を図 2.1-10 に示す。Na₂S を添加していない試験溶液あるいは 1 mM 添加した試験溶液を浸潤させた Bt 中での銅の自然電位は-0.18 V (vs Ag/AgCl)であった。一方、10 mM の Na₂S を添加した試験溶液を浸潤した場合は-0.3 V (vs Ag/AgCl)となった。前者の Na₂S を添加していない試験溶液および 1 mM の Na₂S を添加した試験溶液を浸潤した場合は、図 2.1-10 に示したとおり、-0.30 V (vs. Ag/AgCl)付近で変曲点が確認された。また、-0.44 V (vs. Ag/AgCl)と-0.98 V (vs. Ag/AgCl)に電流の極値が存在した。自然電位から-0.3 V 付近までの領域を Region I、-0.3 V から-0.7 V までの領域を Region I、-0.9 V から-1.0 V までの領域を Region IIとする。Region I では、240 時間の試験液浸潤中の試験極の腐食で溶出した銅イオンの内、腐食生成物となって試験極表面に沈殿することなく、Bt 中のスメクタイト層間に侵入した銅イオンが引き抜かれ、試験極上で銅に還元される反応が進行していると推測される。Region IIおよび Region IIの各電位領域では、それぞれ、試験極上に腐食生成物として沈殿した 1 価および 2 価の銅化合物の還元に対応すると推察される。2 価の銅化合物は Cu0、同じく 1 価は Cu₂S あるいは Cu₂O と考えられる。

Region I に相当する電位域でのカソード還元は、-0.28 V (vs. Ag/AgC1)の定電位で、 Region II および Region IIIに相当する電位域での還元は、-50 μ A cm⁻²での定電流でそれぞれ 行った。結果を、図 2.1-11 と図 2.1-12 に示す。なお、10 mM の Na₂S を添加した試験溶液に ついては、定電位のカソード還元の前に、試験溶液を、Na₂S を添加していない基本組成の水 溶液と交換し、減圧下で 20 時間保持した。この操作により、銅試験極の電極電位は、基本 組成の水溶液を浸潤した場合と同じ-0.16 V (vs. Ag/AgC1) となった。









図 2.1-12 定電流電解における試験極電位の経時変化

表 2.1-2 に、図 2.1-11 および図 2.1-12 に示した結果から求めた、試験溶液毎の各電位域 での電気量をまとめた。図 2.1-11、図 2.1-12、表 2.1-2 における"0 M Na₂S"、"1 mM Na₂S"、 "10 mM Na₂S"は、それぞれ、前述の「②試験溶液」で示した a)、b)、c)の試験溶液を浸潤

させた Bt 中での結果であることを示す。Region I、II での電気量は Na₂S 濃度が低い条件ほ ど大きくなっており、酸化銅の還元量に対応していると考えられる。逆に、Na₂S 濃度が高い 条件ほど低電位側の Region での電気量が大きくなっており、硫化銅の生成量に応じた値に なっていると考えられる。これらの結果が示すように、腐食試験後の試料のカソード還元挙 動から腐食量や腐食生成物の生成割合を見積もることができる可能性があると考えられる。

Region	+ 0 M Na ₂ S	+ $1 \text{mM} \text{Na}_2 \text{S}$	+ 10 mM Na_2S
I	0.43 C	0.23 C	0.01 C
Π	0.17 C	0.11 C	0.08 C
Ш	0.08 C	0.11 C	0.23 C

表 2.1-2 各領域のカソード還元の電気量と腐食速度

3) 浸漬試験

硫化物共存下における低酸素濃度下での純銅の腐食について、自然浸漬状態での挙動を把 握することを目的として、硫化水素吹込み下での浸漬試験を実施した。

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 2.1-13 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⁻³ 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 30 および 90 日間とした。



図 2.1-13 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
				N_2
				$99 \ \%N_2 + 1 \ \%H_2S$
人工海水 80			721	$95 \ \%N_2 + 5 \ \%H_2S$
			なし	$90 \ \%N_2 + 10 \ \%H_2S$
			$50 \ \%N_2 + 50 \ \%H_2S$	
	80	30, 90日間		100 %H ₂ S
				N_2
				$99 \ \%N_2 + 1 \ \%H_2S$
			右り	$95 \ \%N_2 + 5 \ \%H_2S$
			有り	$90 \ \%N_2 + 10 \ \%H_2S$
				$50 \ \%N_2 + 50 \ \%H_2S$
				100 %H ₂ S

表2.1-3 浸漬試験条件

⑤ 試験結果と考察

試験後試験片の外観を図 2.1-14 に示す。緩衝材なしの条件では 30、90 日いずれも硫化水 素を吹き込んだ条件では黒色または黒灰色の腐食生成物が形成され、硫化水素濃度が高い条 件ほど濃い黒色となる傾向が見られた。緩衝材ありの条件については、硫化水素濃度 100 % の場合に全体的に黒色の腐食生成物が生じていたものの、0~10 %までの濃度による外観上 の違いは緩衝材なしの場合に比較して小さいことが確認された。腐食生成物の分析や腐食量 の測定等のより詳細な評価は今後実施予定であるが、前述の 1)項に示した電気化学試験結果 と同様に、緩衝材共存下では硫化水素濃度による影響が緩和されていることを示唆する結果 が得られた。



図 2.1-14 硫化水素吹込み下での緩衝材中の浸漬試験後試験片の外観

(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ことが広く知られている(Pugh et al., 1966; Uhlig and Duquette, 1969; Suzuki, 1981)。一般に応力腐食割れは、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(図 2.1-15(a))と、銅などの酸化 物皮膜の成長速度が速い金属で生じる変色皮膜破壊型応力腐食割れ(図 2.1-15(b))が知ら れている。変色皮膜破壊型応力腐食割れは、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 (図 2.1-15(b))。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

処分容器の周囲は、処分後の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、

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。

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。また、応力腐食割れ感受性についての低歪速度試験法(SSRT) による評価(原 子力機構, 2016)では、ベントナイトを膨潤する水溶液中にアンモニアが含まれると亀裂の 進展が加速される可能性が示唆されたことから、応力腐食割れ感受性への NH₃の影響につい ても調査する必要がある。平成 30 年度は、主に脱気した条件(低酸素濃度)での調査を行 った。平成 31 年度は、種々の酸素濃度下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 NH₃の影響を調査した。



(a)活性経路腐食型



(b)変色皮膜破壊型

図 2.1-15 応力腐食割れの機構

1) 浸漬試験

変色皮膜破壊型応力腐食割れ感受性は表面に生成する皮膜の性状に大きく依存すると考え られることから、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)項および 3)項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 膨潤ベントナイトの調製

純水ならびに特級試薬と純水から調製した膨潤ベントナイトを試験環境とした。純水膨潤 ベントナイトは以下を混合して作成した。

- ・ベントナイト(クニミネ工業製クニゲル V1) 140 g
- ・純水

1,200 g

酸素分圧は、ステンレス鋼製グローブボックス内にて調製し、上記の作業をすべて同グロ ーブボックス内にて行った。アンモニウムを含む場合は、あらかじめ表記濃度のアンモニア 水を調製し、同様の方法で膨潤ベントナイトを調製した。本試験では、脱気した場合および 非脱気の場合、溶存酸素はそれぞれ、約0.07 ppm、約7 ppm となった。また、中間的な溶存 酸素濃度として、3.5 ppm を目標値とした。

2 平板試料

試料としては市販の厚さ2 mmの純銅板(99.99 %)を用いた。この化学組成を表 2.1-4 に 示す。これを、Ar 雰囲気中で 550 ℃、60 min のひずみ除去焼鈍を行った後に、表面皮膜検 討用試料ならびに応力腐食割れ試験を放電加工により切り出した。

表 2.1-4 試料として用いた無酸素銅の化学組成

(ppm)

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	≦5	≦5	≦5	≦5	≦5	≦2

③ 膨潤ベントナイト中での浸漬試験と表面腐食生成物の電気化学的定量評価

上記の②に示した銅板材より 10×10 mm²の試片を切り出し、さらに SiC 紙#1000 乾式研磨 仕上げ、水洗の後、同グローブボックス内で試料を各種膨潤ベントナイト中へ埋設し、容器 を慎重に密封した。この容器を恒温庫に所定の時間(7~180 日間)設置した。

試験終了後、試験片を水洗い・乾燥後、光学顕微鏡ならびに SEM 観察とともに、銅表面の 腐食生成物を同定するために、脱気した 60 ℃の 0.1 mol L⁻¹ NaCl 水溶液中にて動電位カソ ード還元法を行った。参照電極には銀/塩化銀電極 (3.3 M KCl)を用い、電位走査は自然電 位からカソード方向へ-1,500 mV まで、走査速度 0.25 mV s⁻¹での電位走査を 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わかっているので、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、これより Cu₂0、CuS の生成を仮定して、生成した酸 化物、硫化物の厚さをそれぞれ算出した。

2) 定ひずみ試験—Uベント試験

静的な応力下での皮膜形成挙動や応力腐食割れ挙動を把握するため、比較的簡易的に定ひ ずみ状態での試験が可能なUベント試験を実施した。前述の1)②に示した銅板材より図2.1-16および図2.1-17に示す試験片を切り出した。この試料を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、さらに膨潤ベン トナイト中に埋設し、容器を密閉した。これらの作業は前述のグローブボックス内で実施し た。Uベント試験片の組み立ての手順を図2.1-18に示す。この容器を恒温庫にて所定の時間 (30~240日間)50 ℃に保持した。



図 2.1-17 応力負荷前の U ベント試験片



図 2.1-18 Uベント試験片の組み立て手順

3) 低ひずみ速度試験—SSRT

動的な応力条件下での応力腐食割れ感受性の評価手法として代表的な方法である低歪み速 度法(SSRT)による試験を実施した。SSRTに用いた平板試験片を図2.1-19に示す。試料表 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を図 2.1-20に示す。この環境セルは、平成31年度に新たに設計・制作したもので、ガラス筒に ゴム製0リングを介した上下のPTFE製蓋から構成され、上下の蓋には平板試料を貫通させ たシリコンゴムを取り付けるようになっており、平成30年度まで同試験で使用していたも のよりも密閉性を向上させ、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。環境 セル中には、膨潤したベントナイトを充てんするとともに、上記平板試験片を固定した。膨 潤ベントナイトの調製を含むここまでの作業は前述のグローブボックス内にて行った。SSRT は環境セルを50 ℃に保ち、ひずみ速度を1.67×10⁻⁷ s⁻¹として引張伸びが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。



図 2.1-19 応力腐食割れ用平板引張試験片



図 2.1-20 低ひずみ速度試験応力腐食割れ用環境セルと平板引張試験片

4) 試験結果

① 浸漬試験結果

60 ℃の純水、5 mM および 10 mM NH₃を膨潤したベントナイト中で、板状試験片を 7、30、 60 日間浸漬した。試験後の試料外観写真を図 2.1-21 に示す。これまでの検討から、銅の腐 食生成物の色はおおむね下記の 4 色に分類できる。

- ・CuO:黒色
- ・Cu₂0:赤褐色
- ・CuS:青黒色
- ・Cu₂S:銀色ないし鉄灰色

脱気なしでは腐食生成物の色調は褐色から黒色へと変化しており、したがって銅酸化の初 期に生成する亜酸化銅 Cu₂O から時間の経過とともに CuO ないしは Cu₂S が主に生成している ことが分かる。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 Cu₂O から銀色の硫化物 (CuS ないしは Cu₂S) 主体の皮膜が生成していると思われる。NH₃ 水溶液で膨潤したベントナイト中では、全体的に色調は薄く、酸化物、硫化物ともに生成が 抑制されていることが分かる。



図 2.1-21 60 ℃の純水および NH₃水溶液を膨潤したベントナイト中で 板状試験片を 7、30、60 日間浸漬した試験後の試料外観写真

3.5 ppm の溶存酸素を含む 60 ℃の純水膨潤ベントナイト中での種々の期間の浸漬試験を 実施した。試験後の資料写真を、図 2.1-22 に示す。さらに、繰り返し動電位カソード分極 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、これまでに報告し た、脱気なしおよび脱気あり環境での結果とともに、図 2.1-23 に示す。これより、図 2.1-23(b)に示す硫化物皮膜の厚さは放物線則的に増加しており、溶存酸素が多いほど硫化物生 成速度は大きい。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、脱気の有無の影響についても明確でない。



7日間 3.32ppm 30日間 3.67ppm







5mm

図 2.1-22 3.5 ppm の溶存酸素を含む 60 ℃の純水膨潤ベントナイト中に 種々期間浸漬する試験後の試料外観写真 (a) 酸化物

(b) 硫化物



図 2.1-23 50 ℃の純水膨潤ベントナイト中に種々期間浸漬した試料に生成した 硫化物皮膜厚さと酸化物皮膜厚さ

以上の結果はこれまでの研究報告と同様で、すなわち水膨潤ベントナイト浸漬初期には主 に酸化物が生成し、その後硫化物が生成し、その量は単調に増加した。なお、硫化物の生成 速度は、すでに述べたように脱気なしと脱気ありの場合で異なるが直線近似して 2 µm y⁻¹以 下であり、以前の報告と同様である(原子力機構, 2019)。

② 定ひずみ試験—Uベント試験結果

3.5 ppmの溶存酸素を含む 60 ℃の純水膨潤ベントナイト中にて、Uベント試験片を 30、 60、90 日間浸漬した。試験後の試料外観写真を、平成 30 年度に脱気および非脱気純水膨潤 ベントナイト中にて実施した試験結果とともに、図 2.1-24 に示す。これらの写真より、溶 存酸素が少ないほうが、腐食生成物が少ないことが分かる。また、浸漬時間が 60 日を越え ると、腐食生成物の剥離が生じている。60 日までの試験では脱気、非脱気いずれも応力腐食 割れを示唆する結果が得られており(原子力機構, 2019)、60 日を超える条件での割れの有 無等については今後より詳細に調査を行う予定である。

2 - 23



図 2.1-24 純水膨潤ベントナイト中での U ベント試験片の試料外観写真

③ 低ひずみ速度試験—SSRT 試験結果

純水および NH₃水溶液膨潤ベントナイト中での伸びひずみ 10 %までの SRRT 後の試験片外観 を図 2.1-25 に示す。いずれも黒色ないしは鉄灰色を呈し、特に脱気なしの場合硫化物の特 徴である、青黒色、鉄灰色が見られる。



(a)~(c):非脱気,(d)~(f):脱気,(a),(d):純水,(b),(e):5mM NH₃,(c),(f):10mM NH₃。



次に、脱気した純水および 5 mM、10 mM NH₃水溶液膨潤ベントナイト中での SRRT 後試料 SEM 画像と EDX 元素分析像を図 2.1-26~図 2.1-31 に示す。

純水中では試料表面に多数の粒状の腐食生成物が見られるのが特徴である。図 2.1-27(a) に示す断面像で SCC き裂の形態は不明確であるが、孔食状の局部腐食内部には酸化物ととも に硫化物が多く生成していることが分かる。一方、NH₃水溶液膨潤ベントナイト中では試料 表面の粒状の腐食生成物は減少している。図 2.1-29(a)や 2.1-31(a)に見られるようにき裂 周辺に腐食生成物が見られ、典型的な変色皮膜破壊型の割れ形態が見られる。しかし、試料 表面およびき裂周辺に見られる皮膜は酸化物が主体であり、硫化物は特に認められなかった。

④ 皮膜性状と応力腐食割れの関係

浸漬試験結果やUベント試験結果が示すように、酸素濃度が高い条件のほうがより厚い皮 膜が形成されている。また、図 2.1-23 に示すように浸漬試験での酸化物と硫化物いずれも 酸素濃度の高いほど厚く形成されているが、存在割合としては脱気した条件で硫化物の比率 が大きい。Uベント試験では脱気、非脱気いずれも割れが確認されており(原子力機構, 2019)、皮膜の構成や厚さと割れ感受性の関係は明らかではないが、SSRT 試験結果が示すよ うに、割れの生じた NH₃ 共存の条件では亀裂周辺の皮膜は酸化物が主体であることが示唆さ れており、酸化物の皮膜形成が割れ感受性を増大させている可能性もある。静的な応力条件 と動的な応力条件での違いも含めて割れの感受性に及ぼす皮膜性状の影響について今後、詳 細に明らかにする必要がある。



図 2.1-26 脱気膨潤ベントナイト中での SSRT 試験片の試料外観写真



図 2.1-27 脱気膨潤ベントナイト中での SSRT 試験片断面の SEM 写真および各元素マップ



図 2.1-28 脱気 5 mM NH₃膨潤ベントナイト中での SSRT 試験片の試料外観写真



図 2.1-29 脱気 5 mM NH₃ 膨潤ベントナイト中での SSRT 試験片断面の SEM 写真および各元素マップ



図 2.1-30 脱気 10 mM NH₃膨潤ベントナイト中での SSRT 試験片の試料外観写真



図 2.1-31 脱気 10 mM NH₃膨潤ベントナイト中での SSRT 試験片断面の SEM 写真および各元素マップ

(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あり、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。平成 30 年度は、0~30 日間のモニタリング を実施した。しかし、平成 30 年度に使用したモニタリング計測用セルは、酸素が侵入する 可能性があったため、平成 31 年度はモニタリング計測用セルの気密性を改善して 30~75 日 間のモニタリングを実施した。また、腐食速度に加えて腐食形態の検討も電気化学試験によ り行った(後述1)項参照)。

処分容器候補材料には、炭素鋼、銅に代表される準耐食性金属に加えてチタン、低合金チ タンに代表される高耐食性金属が挙げられる。高耐食性金属は表面に保護性の高い不動態皮 膜を形成し、これが健全な限り腐食速度は極めて小さいという特徴を有する。しかし、塩化 物イオン等の不動態皮膜に対して攻撃型の化学種の共存下では、不動態皮膜の局所的破壊に よって、孔食やすきま腐食といった局部腐食を受ける可能性がある。そこで複数種の高耐食 性金属を対象に塩化物イオンを含む水溶液を用いて電気化学試験を行い耐食性の比較を行っ た(後述 2) 項参照)。

1) ベントナイト中における炭素鋼および低合金鋼の腐食速度と腐食形態

平成 30 年度までの検討により、Fe に Ni を添加することによって腐食速度の低減が期待で きる可能性が示唆された。平成 31 年度はより長期のデータ取得を含め、Ni 添加の効果を確 認するとともに、腐食形態への影響についても検討した。

① 腐食試験方法

a. 試験片とプローブ電極

腐食モニタリングには、平成 31 年度までと同様に、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2.1-32)。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。添加元素には、鉄がある程度溶解した 後に皮膜形成が期待できる元素を選択した。



図 2.1-32 ベントナイト中での腐食計測用セルの模式図と実験条件(密閉型セル)

b. 試験環境

ベントナイト (70 wt%) と SiO₂ (30 wt%) の混合物に超純水を加えたものを用いた。温度 は室温 (25 ℃) とした。

c. 実験セル

平成 30 年度においては、図 2.1-32 の密閉型セルを使ってモニタリングを 30 日間行った。 平成 31 年度も継続して密閉系でモニタリングを行った。密閉セル中のベントナイト (Si0₂を 含む)と水の混合比はベントナイト 10 gに対して超純水 (Milli-Q) 50 mLとした。これ以 降、ベントナイト、シリカおよび超純水を混合したものを単にベントナイトと呼ぶ。平成 30 年度のモニタリングでは、このセルを 25 ℃のチャンバー中に設置したが、ニトリルゴム製 ガスケット部からの酸素の侵入が危惧されたので、セル全体を図 2.1-32 に示すようにベン トナイト抽出液中に完全浸漬させ 30 日~75 日まで腐食モニタリングを行った。さらに 75 日 後からベントナイト抽出液中の酸素を窒素バブリングすることにより除去した状態でも腐食 モニタリングを行った。

d. 腐食モニタリング

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。密閉型 のセルによる腐食モニタリングの最初の 30 日間の結果は平成 30 年度報告書に示したが、腐 食モニタリングはその後 87 日まで継続した。

分極曲線測定用のセルの模式図を図 2.1-33 に示す。電極は5 mm×5 mmの試験片をエポキ

シ樹脂に埋め込んだものを使用した。電解液は、ベントナイトと高純度水を混合したもの (左図、Slurry)と、ベントナイトと高純度水を混合しその上澄み液だけを取り出したベン トナイト抽出液(右図、Solution)を用いた。



図 2.1-33 ベントナイト中での分極曲線計測用セルの模式図と実験条件(開放型セル)

2 試験結果と考察

a. 電気化学インピーダンス特性

図 2.1-32 の密閉型セルを使って測定された炭素鋼、Si 含有鋼そして Ni 含有鋼の電気化学 インピーダンス特性 (EIS) を図 2.1-34~図 2.1-36 に示す。炭素鋼/ベントナイト界面は、 ほとんどの場合、単純な時定数 1 の等価回路により表すことができる。図 2.1-37(a)にはそ の等価回路を示す。R_{sol} はベントナイトの溶液抵抗、C_{d1} は金属/ベントナイト溶液界面の電 気二重層容量 C_{d1}、そして R_{et} は電荷移動抵抗である。ただし、一部、腐食初期には拡散のイ ンピーダンスがあらわれており、その場合は図 2.1-37(b)に示す拡散のワールブルグインピ ーダンス W_sを含む等価回路をとる。いずれの試験片も、高周波数にあらわれる R_{sol} は経時変 化がなく一定値を示すのに対し、低周波数であらわれる腐食速度の指標である R_{et} (1/R_{et} が 腐食速度に比例) は時間の経過とともに大きく変化していることが分かる。また、中間周波 数にあらわれる C_{d1} も時間とともに増大する傾向があり、これは腐食生成物が金属/ベントナ イト界面に蓄積していることを示唆している。







図 2.1-35 ベントナイト中での Si 含有鋼の EIS (密閉型セル)



図 2.1-36 ベントナイト中での Ni 含有鋼の EIS (密閉型セル)



 R_{sol} ; Solution resistance (Ω cm²) R_{ct} ; Charge transfer resistance (Ω cm²) C_{dl} ; Double layer capacitance (F cm⁻²) 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場合, (b) 拡散のインピーダンスを含む場合。

図 2.1-37 ベントナイト中での炭素鋼の等価回路

b. 腐食速度の経時変化

腐食モニタリングでは、電荷移動抵抗 R_{ct} の逆数が腐食速度に比例することから、 R_{ct}^{-1} を腐 食速度の指標として使う。 R_{ct} は電気化学インピーダンス(EIS)を測定し、図 2.1-37の等価 回路によりカーブフィッティングして決定することが望ましいが、ここでは、低周波数 1 mHz のインピーダンス Z_{1mHz}^{-1} を R_{ct}^{-1} の代わりに指標とした。それらの値の差はそれほど大き くないことを確認している。腐食速度(Z_{1mHz}⁻¹)の経時変化を図 2.1-38 に示す。30 日目までの結果は平成 30 年度報告書で示したが、初期過程において Ni 含有鋼と炭素鋼が極めて小さな腐食速度を示した。これはベントナイト・高純水環境においては、不働態化する可能性を示唆するものである。その後、炭素鋼では約 5 日後に腐食速度は 2 桁増加し、2.2 % Ni 鋼では約 20 日で1 桁以上増加することが分かる。1.5 % Ni 鋼も 30 日過ぎに腐食速度が 1 桁以上増加した。一方、Si 鋼は不働態化せず、他の鋼にくらべはじめから大きな腐食速度を示した。

30 日以上経過すると、すべての鋼で腐食速度はほぼ一定となり見かけ上定常状態に達した。 定常状態での腐食速度は、Ni 鋼は比較的小さく、Si 鋼は比較的大きな腐食速度となった。 図 2.1-32 の密閉型セルは 25 ℃のチャンバー中(大気中)に直接設置したため、セル中への 酸素の侵入が危惧されたので、密閉型セル全体を図 2.1-32 に示すベントナイト抽出液中に 完全浸漬して腐食モニタリングを継続した。酸素の溶液中への溶解度は小さいため、水中の ほうがセル外部からの酸素の侵入は抑えられるはずである。また、75 日から浸漬しているベ ントナイト溶液中の溶存酸素を、窒素ガスをバブリングすることにより除去した。いずれの 場合にも、腐食速度の著しい変化はなく、定常状態では腐食は酸素消費型から水素発赤型の 腐食にほぼ移行しているものと考えられる。



図 2.1-38 腐食速度の経時変化(密閉型セル)

図 2.1-39~図 2.1-41 に、腐食モニタリング後(87 日後)の試験片表面の腐食形態を示す。 いずれも腐食初期では孔食のような形態を示している。特に、不働態化した状態が長かった Ni 鋼は明確な孔食が観察された。



図 2.1-39 腐食モニタリング後の炭素鋼の腐食形態(87日)(密閉型セル)



(a) 1.4% Si 鋼, (b) 2.8% Si 鋼

図 2.1-40 腐食モニタリング後の Si 含有鋼の腐食形態(87日)(密閉型セル)



(a) 1.5% Ni 鋼, (b) 2.2% Ni 鋼

図 2.1-41 腐食モニタリング後の Ni 含有鋼の腐食形態(87日)(密閉型セル)

c. 分極曲線の測定

炭素鋼、Si 含有鋼、Ni 含有鋼の分極測定結果を図 2.1-42~図 2.1-44 に示す。分極測定は、 ベントナイト懸濁液(Slurry)とベントナイト抽出液(Solution)中で浸漬直後に開始した。 基本的に両溶液ともに同様な分極曲線を示したが、Slurryのほうが、ベントナイト粒子が金 属/溶液界面に存在するため、溶液内の対流が抑制され、物質移動が制限されるため不働態 皮膜は安定となり不働態領域は広くなる傾向があった。3 鋼種を比較すると(図 2.1-45)、 炭素鋼と Ni 含有鋼は明確な不働態領域が観察され、さらにアノード側に分極すると孔食発 生により電流の急激な立ち上がりが観察された。一方、Si 含有鋼は明確な不働態領域は観察 されなかった。これらの結果は腐食モニタリング結果と一致している。図 2.1-46~図 2.1-48 は分極後の試験片の表面写真である。















図 2.1-45 3 鋼種の分極曲線の比較



図 2.1-46 炭素鋼の分極後の表面形態

1.4%Si-Fe

2.8%Si-Fe



図 2.1-47 Si 含有鋼の分極後の表面形態



図 2.1-48 Ni 含有鋼の分極後の表面形態

d. 塩化物イオンの影響

ベントナイト中での不働態化に及ぼす塩化物イオンの影響について分極曲線の測定により 検討した。図 2.1-49 は 1.5 % Ni 鋼のベントナイト中での分極曲線である。右図は左図の -1.0 V~0.1 Vの電位範囲を拡大したものである。カソード分極曲線には塩化物イオンの影 響はほとんどないが、アノード分極では不働態電位領域が塩化物濃度の増加により狭くなる ことが分かる。すなわち孔食電位が塩化物濃度ともに低下し、0.1 %程度 NaCl を添加すると 不働態化は起こらないことが分かる。図 2.1-49 中にはアノード分極後の表面写真を示すが、 いずれも孔食が観察さている。



0.1%NaCl0.5%NaCl1%NaCl図 2.1-491.5 % Ni 鋼の分極挙動に及ぼす塩化物イオンの影響

2) 塩化物イオンを含む水溶液中における高耐食性金属の腐食挙動

チタンやステンレス鋼に代表される高耐食性金属は金属表面に保護性の高い不動態皮膜を 形成することによって腐食の進展が抑制されている。しかし、塩化物イオン等の皮膜攻撃型 の化学種の存在下では不動態皮膜の局所的な破壊に起因する局部腐食や皮膜の保護性の低下 等が生じる可能性がある。そこで、代表的な高耐食性金属や先行事業で検討対象とした材料 について、塩化物イオンを含む水溶液中でアノード分極測定を行い、耐食性の比較を行った。

① 試験方法

a. 試験片

高耐食性金属材料には、ガラス固化体の処分におけるオーバーパック材料として検討事例 を有するチタンおよびニッケル基合金に加え、一般的に幅広い用途で用いられているステン レス鋼を対象とした。これらに加えて先行事業(原子力機構, 2018b)において検討された 先進的材料である金属ガラスのうち、処分容器材料として適用可能性を有するとされた Ni 基の金属ガラス Ni₆₅Cr₁₈Nb₂P₁₆B₄も対象とした。本試験で用いた試験片の材質を表 2.1-5 に示 す。

金属ガラス Ni₆₅Cr₁₈Nb₂P₁₆B₄以外の試験片については 10×10×2 mm の大きさに切り出し、10×10 mm の一方の面にリード線を取り付けた。これをエポキシ樹脂に埋め込み、もう一方の 面が露出するまで研磨した。露出した試験片の表面はエメリー#800 にて仕上げ、エタノール により脱脂した。金属ガラス Ni₆₅Cr₁₈Nb₂P₁₆B₄ については単ロール法にて作製した 40 μ m 厚 さのリボン材を用い、これを約 15 mm の長さに切り、一端にリード線をスポット溶接にて 接続した。接続部周辺と試験面の反対側の面はエポキシ樹脂を塗布した。

材料	成分分析值(%)				
ステンレス鋼	C: 0.06, Si: 0.71, Mn: 1.00, P: 0.030, S: 0.005,				
JIS G 4305 SUS 316	Ni: 10.21, Cr: 16.61, Mo: 2.03				
純チタン	H: 0.004, 0: 0.1, N: 0.01, Fe: 0.06, C: 0.01				
JIS H 4600 TP340C 2種					
ニッケル基合金 Alloy C-276	C: 0.004, Si: 0.05, Mn: 0.6, P: 0.01, S: 0.00,				
ASME UNS N10276	Cr: 16.2,				
	Mo: 15.6, Co: 0.2, W: 3.2, Fe: 6.8, V: 0.03				
金属ガラス Ni ₆₅ Cr ₁₈ Nb ₂ P ₁₆ B ₄	_				

表 2.1-5 試験片の材質

b. 試験溶液

試験溶液には 0.5 M および 1 M の NaCl 水溶液を用いた。

c. 試験手順

試験片を試験溶液に浸漬させ、窒素ガスにて 3 時間以上脱気したのち、90 ℃まで加熱した。試験中も脱気 (20 cc min⁻¹)を継続した。試験片の電位を-1.2 V vs. SSE にて 120 秒間 保持してカソード処理したのち、 自然状態に戻し、自然電位が安定したことを確認したの ち、20 mV min⁻¹の走査速度でアノード分極測定を行った。

2 試験結果

アノード分極測定結果を図 2.1-50 に示す。0.5 M NaCl 水溶液中では SUS316 と純チタンに は数 100 mV 以上のアノード分極後に電流値の急激な増加が観察された。金属ガラス Ni₆₅Cr₁₈Nb₂P₁₆B₄では 0.4 V 付近から電流値の上昇が観察されたが、0.6 V 以上ではほぼ一定と なった。Alloy C-276 は他の材料よりも電流値が 1 桁以上小さく、電位とともになだらかに 電流値が増加した。SUS316 と純チタンに観察された電流値の急激な上昇は局部腐食の発生に よるものと考えられる。純チタンは一般的に天然水中で孔食は生じないが、すきま構造があ る場合にはすきま腐食を生じうる。本試験ではすきま構造は付与していないが、樹脂と試験 片の境目に意図せずすきま部が生じて溶液が浸入し、すきま腐食が起こった可能性がある。 1 M NaCl 水溶液中では SUS316 に 0.5 M NaCl 水溶液中の場合と同様に局部腐食に伴うと思わ れる電流値の急激な増加が観察されたが、他の材料ではそのような挙動は観察されず、電流 値は電位とともに緩やかに上昇した。1 M NaCl 水溶液中でも Alloy C-276 の電流値は他の材 料に比較して著しく小さい値を示した。

以上の結果から、酸化性環境での耐食性を比較すると、本試験で用いた材料の中では Alloy C-276 が最も優れていると考えられる。従来、代表的な高耐食性金属としてオーバー パック等の候補材料に挙げられてきたチタン材料のうち、純チタンは処分環境において約 5 ×10⁻⁴ M 以上の塩化物イオン濃度ですきま腐食の発生する可能性があるとされているが、 Alloy C-276 のすきま腐食が発生する下限塩化物イオン濃度はより高いことが期待され、純 チタンに比較して広範な塩化物イオン濃度条件で適用できる可能性がある。今後、再不動態 化法等により、すきま腐食の発生条件を定量的に評価し、処分容器としての適用条件を明確 にする必要がある。また、Alloy C-276 は Ni-Cr-Mo 合金のひとつであり、組成の違いによる 影響等についてもデータを拡充し、幅広い合金種に対して処分容器としての適用条件や適用 限界等を把握することが課題として挙げられる。更に、Ni 基合金の低酸素濃度下での長期的 な耐食性や水素脆化の可能性等についても知見は十分ではなく、今後実験的な検討が必要で ある。



図 2.1-50 種々の高耐食性金属のアノード分極局挙動(左:0.5M NaCl, 右:1M NaCl)

(5) 処分容器の長寿命化および破損時期の分布の定量化に関する課題抽出

直接処分研究では C-14(半減期 5,730 年)の閉じ込め等の観点から数万年以上を目安と して処分容器の長寿命化に関する検討が行われている。また、長寿命化に加えて、寿命の分 布を考慮して IRF(閉じ込め機能喪失後に速やかに放出される成分の割合)の影響を時間で 希釈することも、直接処分と親和性が高い課題とされている。

処分容器の長寿命化および破損時期の分布の定量化に関し、既存の知見に基づいて今後の 研究課題の具体化とその解決に向けたアプローチを明らかにするために、「処分容器の長寿 命化・破損時期の分布の定量化に関する検討委員会」(以下、「検討委員会」)を設置した。

検討委員会においては、容器の長寿命化・破損時期の分布に関わる既存の知見等に基づき、 長寿命化・破損時期の分布の定量化に向けた研究課題の具体化と取り組みのアプローチを議 論した。委員は地層処分環境での金属材料の腐食研究実績を有する金属腐食の専門家から以 下のとおり選出した。

 委員長
 杉本克久
 東北大学名誉教授

 委員
 安住和久
 北海道大学大学院工学研究院応用化学部門教授

 委員
 井上博之
 大阪府立大学大学院工学研究科物質・化学系専攻准教授

 委員
 西方篤
 東京工業大学物質理工学院材料系教授

 委員
 春名匠
 関西大学化学生命工学部教授

 委員
 藤本愼司
 大阪大学大学院工学研究科マテリアル生産科学専攻教授

1) 検討委員会における議論

① 前提条件

処分容器の長寿命化および破損時期の分布の定量化に関し、具体的な検討には前提条件を 定める必要があるため、議論に際しては以下のとおりに設定した。

- 処分容器材料
 - 炭素鋼、低合金鋼を対象とする。
- 環境条件
 - 温度:閉鎖後数10年で100 ℃ → 徐々に地温まで低下
 - 酸化還元性:閉鎖後 100 年間程度は残留酸素あり → 極低酸素濃度
 - 緩衝材水分飽和度:乾燥状態 → 数10年程度で飽和
 - 地下水水質:降水起源地下水,海水起源地下水
- 人工バリア
 - 緩衝材としてベントナイト/ケイ砂混合体を圧縮成形したものを想定する。
 - ベントナイト/ケイ砂配合比は7:3程度,緩衝材の乾燥密度は1.6g cm⁻³程度、厚さ は数10 cm以上を想定する。
 - 緩衝材は所期の形状・寸法・機能(膨潤性、低透水性、化学的緩衝等)を維持する。
 - 処分容器の腐食代は数10 mm程度を想定し、腐食代が腐食現象によって貫通した時点で破損すると仮定する。

応力腐食割れや水素脆化等を除いて力学的な作用による破壊現象は考慮しない。

後討委員会の開催実績

以下3回の検討を行った。

第1回検討委員会
 日時:令和元年10月31日(木)13:30~16:30
 第2回検討委員会
 日時:令和元年12月17日(月)13:30~16:30
 第3回検討委員会
 日時:令和2年1月24日(金)13:30~17:00

2) 検討委員会委員による意見

処分容器の長寿命化および破損時期の分布の定量化に関し、今後の研究アプローチや進め 方についての検討委員会委員による意見は以下のとおりである。

腐食寿命、腐食速度評価に関する意見

- 適正な寿命評価ができれば破損時期の分布の検討も可能となる。設計寿命ではなく、
 実際の寿命を議論する場合、非常に低い腐食速度をいかに正確に評価できるか、その
 ための技術をどのように高めていくか、そしてそれをどのように用いていくかが重要である。
- ・現状では計算技術的な寿命評価の手法が確立されていない。全体の環境変化に伴う腐 食速度の変化を計算できる計算プログラムがあるとよい。
- 長期に腐食速度がどのように変化していくかに関しては、環境因子も変わるが、ベントナイトに接触している表面で生じる様々な腐食生成物が、抑制的に働くのかどうか等、短期間の網羅的な試験ではなく、ある条件を定めて長期の腐食試験と評価を行う必要がある。
- ・腐食代の増加については、腐食の観点の検討のみでできるかはわからない。処分容器
 材料の変更に関しては、非常に重要なアプローチであり、様々な方法を探れるとよ
 い。
- 短期間に得られたデータや情報に基づく長期的な予測では時間的な外挿の大きさが問題となる。地層処分以外の分野を含めて時間的に大きな外挿を伴った予測事例等を幅広く調査して参考となる考え方等が見いだされればよい。

破損時期の分布評価に関する意見

- 全面腐食を想定すると、基本的にはある寿命の時点で壊れることになる。
- ばらつきの原因として、地下水のわずかな組成のばらつき以上に、一つ一つの処分孔の特性がかなりばらつくのではないか。システム全体に目を向ける必要がある。
- 処分孔を掘削する岩の亀裂がどのように入っているかという点も考慮する必要がある。
- 腐食そのものではなく、例えばベントナイトの膨潤圧が微生物活動を抑制するような 圧力に保たれるかどうかの確率、という視点もある。
- 確率論的アプローチで、どの程度のばらつきが生じるのかということを明らかにする 必要がある。

- 本検討は最終的に腐食現象自体のばらつきや環境因子のばらつきを加味して、具体的 な分布の形として示し、安全を担保するための許容範囲の決定に資することを目指し ていると理解する。
- 想定される条件においてどのような腐食が想定されるかについてれぞれの条件における分布を出すには、実験データ等膨大な情報が必要であり多数の条件における腐食評価を一気に行うアプローチが必要になる。
- 腐食現象がばらつく要因を詳細に突き詰めていこうとすると温度制御の精度等、技術的な要因のほか、環境条件の局所的な分布や材料の局所的な部分への作用等、多くの 複雑な要因が考えられ、結果の見通しが困難な研究に陥る可能性がある。
- ・腐食現象の確率論的なばらつきよりも環境条件のばらつきによる影響が大きければ、 環境因子の変化に対する腐食挙動を決定論的に評価し、環境条件のばらつきを評価することで破損時期の分布を評価するというようなアプローチが有効である。
- 腐食現象の確率論的な扱いによる分布の評価として、例えば、腐食深さ分布の最頻値 (位置パラメータ)と分布の傾き(尺度パラメータ)の経時変化を求め、外挿するア プローチが考えられる。

試験の標準化に関する意見

- 確率論的アプローチは長時間の試験を要する。標準化した上で、次の世代に送るよう にして、組織的に取り組む必要がある。
- 試験手法の標準化については、現在の知見に基づき、実際に検討を始めてもよいのではないか。それを基に長期的な計画を作り、次世代に続く試験にできるとよい。

個別試験の取り組みに関する意見

- 地下水水質をモデル化し、モデル地下水の組成、成分の配合表を決定して、この地下水を対象として個別研究を実施すれば、成果を統一的にまとめることができるのではないか。また、炭素鋼の材質も統一化して標準試料を提供できる体制が整うとよい。
- 大学等での基礎研究への期待として、あるばらつきが生じたときの理由を解釈し、今 まで考えられていなかったモデルがないのかを検証することは可能と思われるが、ば らつきの定量化を目指したモデルを作るのは難しい。
- 問題となるばらつきに関する課題の具体例が示されると結果を出しやすい。

3) 研究課題の具体化と取り組みのアプローチ

検討委員会での議論において、全体課題とアプローチおよび個別研究課題の例について、 以下のとおり整理した。

全体課題とアプローチ

- 全体課題
 - 処分容器の置かれる環境条件とその変化や幅に対応した腐食進展挙動を明らかにし、
 現実的な腐食寿命を評価する手法を構築する。

○ アプローチ

- 環境因子の関数として腐食速度を求めるモデルを作成し、環境条件の時間変化に基づいて寿命評価を行う。モデルへの入力パラメータ値の幅を考慮することにより分布を 評価する。
- 処分場における環境条件の空間的な分布等のばらつきを考慮し、環境条件のばらつきの結果としての腐食速度等の幅に基づいて破損時期の分布を決定論的に評価する(廃棄体、緩衝材の品質や基本特性等のばらつきにも着目)。
- 処分環境で生じうる腐食現象に対して確率論的なばらつきに基づいて破損時期の分布 を評価する。
- 最終的に環境条件のばらつきに基づく決定論的な評価と腐食現象の確率論的な評価の 両方を組み合わせて破損時期の分布を評価する手法の構築をめざす。
- 上記のアプローチによる評価に関連した試験については標準化を図る。また、模擬地 下水、炭素鋼試料についても標準試料を設定する。

個別研究課題の例

- 環境因子(溶存酸素、pH、地下水成分、温度等)の関数としての反応速度式の検討: アノード/カソード分極曲線の理論式の作成とそれによる腐食電位、腐食電流の評価
- 処分環境で想定される微小の腐食速度を定量化する手法の構築
- 材料の変更・改善による耐食性向上や長寿命化の可能性の検討
- 腐食生成物皮膜の性状と腐食抑制に関する長期的な挙動の検討
- ・ 腐食現象の確率的および統計的性質の把握と、確率分布関数のパラメータ(最頻値、 値き等)の経時変化の評価
- 試験手法の標準化に関する調査および試験
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。

臨界安全管理対象施設での臨界安全管理では、施設の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ことととも 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、廃棄体の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、廃棄体の埋戻し以降の長期 間に渡って臨界安全性が担保できるように人工バリア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、処分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な配列が仮定されて いる。このような臨界解析モデルの概念を図2.2-1に示す。



 堅置き((c)処分直後の状態、(d) 臨界安全評価モデル:球体系)
 図2.2-1 保守的な想定に基づく臨界安全評価モデルの概念 (原子力機構, 2015b; 2016aに加筆)

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、特に竪置きの場合では、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(原子力機構, 2016a)。そのため、前述のような極めて保守 的な想定とは異なる人工バリア材料の配置や形状等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、今後の臨界安全評価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変形、破壊、移動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想定と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。

平成30年度においては、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、処分容器の腐食の進展や、燃料集合体や処分容器の破壊などによる状態 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、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 するための臨界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、長期的の時間スケールにおける人工バリアシステムの状態 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、これらを取り込む際の留意点 や課題を整理した。

平成31年度においては、上記に示した平成30年度の文献調査等により抽出された処分場閉 鎖後の材料の状態変化を対象に、それらが臨界の起こり易さに及ぼす影響を把握するための 臨界解析を実施した。また、臨界解析の結果を参考にしつつ臨界安全評価手法の構築に向け た課題を抽出した。これらの検討の成果を「(2)材料等の状態の変化が臨界の起こり易さに 及ぼす影響の把握」と「(3) 臨界安全評価手法の高度化に向けた課題の抽出」にそれぞれ示 す。本項のまとめについては「2.3 まとめ」に示す。

(2) 材料等の状態の変化が臨界の起こり易さに及ぼす影響の把握

1) 臨界解析で対象とする材料等の状態の変化の選定

平成 30 年度の検討で抽出された、処分後の臨界の起こり易さに影響を及ぼす可能性があ る材料等の状態の変化(原子力機構, 2019)の相関関係を図 2.2-2 に示す。この整理結果は、 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)から抽出された状態の変化に対して、わが 国におけるガラス固化体等の地層処分後の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 態の変化を加えて整理されたものである。

ここでは、図 2.2-2 で示した状態の変化のうち、スウェーデンの事例で対象とされておら ず、かつ、現象論的な研究に基づく知見の充足度が高いものとして、処分容器の腐食の進展 とそれによる緩衝材の状態の変化を対象として、これらの材料等の状態の変化による臨界の 起こり易さへの影響の程度や傾向などを把握するための臨界解析を行うものとした。

処分容器の腐食の進展とそれによる緩衝材の状態の変化による臨界の起こり易さへの影響 の程度等を把握することを目的とする臨界解析モデルの概念を図 2.2-3 に示す。ここでは、 図 2.2-3 に示される処分容器と緩衝材との化学および力学的な相互作用による状態の変化を 2 つのプロセスに分けてモデル化するものとした。図 2.2-3(b)は、処分容器の腐食により腐 食生成物が体積膨張して緩衝材を圧密するプロセス(プロセス①と呼ぶ)のモデル化の概念、 図 2.2-3(c)は、腐食により生成した鉄イオンが緩衝材中を拡散により移行するプロセス(プ ロセス②と呼ぶ)のモデル化の概念を示している。

プロセス①では、処分容器の腐食が進展して処分容器が減肉すると共に、鉄腐食生成物が 緩衝材との境界に生成する。腐食生成物は元の鉄より密度が低く、体積膨張することから、 緩衝材は圧密されて密度が増加すると共に、緩衝材の厚さが減少する。プロセス①を対象と する解析モデルでは、初期状態に対して、鉄腐食生成物が存在する領域を追加するモデルを 構築するものとした。

プロセス②では、処分容器の腐食により生成した鉄イオンは、緩衝材中を拡散等で移行し た後に、緩衝材を構成する鉱物と化学的に反応することにより、緩衝材の変質を引き起こす。 すなわちプロセス②では、鉄イオンは処分容器に留まらず、緩衝材の領域にまで分布するこ とを想定し、緩衝材中での鉄イオンの分布を考慮するモデルを構築するものとした。なお、 鉄イオンは緩衝材中で不均質に分布する可能性も考えられるが、ここでは、一定の領域に均 質に鉄イオンが分布するように単純化してモデル化するものとした。

鉄イオンと緩衝材の鉱物反応については、既往の知見(例えば、笹本ほか(2012))では、 緩衝材の変質に影響を及ぼすプロセスとして、緩衝材を構成するスメクタイトの組成のみが 変化する場合と、スメクタイトそのものが鉱物学的に変化してバーチェリンや緑泥石等に変 質する場合が挙げられているが、臨界の起こり易さへの影響の観点では、鉱物の種類や組成 の違いは問題ではなく、構成する原子の組成や密度が重要となることから、ここでは、これ らの違いについては考慮しなかった。



・緑:スウェーデンの事例 (Agrenius and Spahiu, 2016) で対象とされた状態の変化

・橙:各種材料の長期挙動評価に関する現象論的な研究に基づく知見(原子力機構, 2016b 等)から抽出された状態の変化。

図 2.2-2 処分後の臨界の起こり易さに影響を及ぼす可能性がある材料等の状態の変化に関する現象間の相関関係の整理結果



図 2.2-3 処分容器の腐食の進展とそれによる緩衝材の状態の変化による臨界の起こり易さ への影響の程度等を把握することを目的とする臨界解析モデルの概念

2) 材料等の状態の変化を反映した解析パラメータおよび解析ケースの設定

a. 臨界解析の基本条件の設定

処分場閉鎖後の処分容器と緩衝材の長期的な相互作用による状態の変化に関する解析条件 を除く、燃料集合体、処分容器および緩衝材の寸法と仕様等の条件を図 2.2-4 と表 2.2-1 に それぞれ示す。臨界解析コードおよび核データライブラリについては、MVP-2.0 (Nagaya et al., 2005) および JENDL-4.0 (Shibata et al., 2011) を使用した。1 バッチあたりのヒス トリ数1万、バッチ数 1000、捨てバッチ数 100(すなわち総ヒストリ数 900 万)とした。

燃料の核種組成については、まず表 2.2-1 に示す燃料の濃縮度と燃焼度に対する核種イン ベントリを ORIGEN2.0 により計算したうえで、表 2.2-1 に示す燃焼度クレジットの対象核種 データを抽出した。

さらに、埋め戻し直後における処分容器と緩衝材の初期状態を対象として、上記の核種イ ンベントリを使って、処分後の長期における燃料中の核種の崩壊に伴う組成の変化による実 効増倍率の変化を把握するための予備解析を、処分容器等が健全な想定での体系を設定して 行った。この結果、実効増倍率が最大となった 18,000 年後の核種組成を用いて臨界解析を 行うものとした。なお、本検討では、表 2.2-1 に示した代表的な使用済燃料を対象としたが、 多様な濃縮度や燃焼度の燃料を対象とすると、実効増倍率が最大となる時間や実効増倍率の 値が変わる可能性がある。今後、実効増倍率に対する核種組成の違いの影響を把握するため の感度解析を行い、この影響を適切に評価に反映させていくことが必要である。



図 2.2-4 臨界解析で対象とする処分容器と緩衝材の寸法

燃料集合体	 PWR 燃料(U02使用済燃料)、17×17燃料集合体 U-235 濃縮度 4.5%、燃焼度 45GWd t⁻¹ 燃料冷却期間 50 年
処分容器と 緩衝材の仕様	 ・ 寸法:図 2.2-4 に示す。 ・ 処分容器への使用済燃料の収容体数は4体とし、材質として鉄を想定。 ・ 緩衝材としてベントナイトとケイ砂の混合材料を想定^{*1}。
解析体系・条件	 ・ 処分容器と緩衝材の状態の変化を想定した体系。 ・ 実効増倍率が最大となる処分後の経過年数(18,000 年後)での核種組成をインプットとした。
燃焼度クレジット 対象核種 ^{*2}	 アクチニド核種;234U、235U、238U、238Pu、239Pu、240Pu、241Pu、242Pu、241Am、237Np FP 核種;95Mo、99Tc、103Rh、133Cs、147Sm、149Sm、150Sm、152Sm、143Nd、145Nd、153Eu、155Gd

表 2.2-1 燃料集合体、処分容器および緩衝材の仕様等の条件

- ※1:初期状態の緩衝材の土粒子は、ベントナイト(クニゲル V1)、3 号ケイ砂、5 号ケイ砂の混合体(重量比 70: 15: 15(wt%))とし、組成については菊池ほか(2005)を参考に設定した。また、緩衝材の土粒子密度を 2.7 g cm⁻³、乾燥密度を 1.6 g cm⁻³とし、緩衝材の間隙が水で飽和した状態とした。
- ※2:「燃料サイクル安全研究委員会, 燃焼度クレジット導入ガイド原案, JAERI-Tech
 2001-055 (2001)」の推奨核種に 237Np を加えた核種を対象とする。

b. 解析ケースおよび解析条件等の設定

前項1)で選定した状態の変化による影響を評価するための解析ケースを表2.2-2に示す。

表 2.2-2 処分容器の腐食の進展とそれによる緩衝材の状態の変化による臨界の起こり易さ への影響の程度等を把握するための解析ケース

解析ケース名称 -	腐食生成物の種類と特性		
	種類	間隙率	体積膨張率
Process1_Mag-00		0.00	2.10
Process1_Mag-01	コガラカノレ	0.10	2.33
Process1_Mag-03	マク イ タイト	0.30	3.00
Process1_Mag-07		0.70	7.00
Process1_Sid-00		0.00	4.20
Process1_Sid-01	シデライト	0.10	4.70
Process1_Sid-03		0.30	6.00
Process1_Sid-07		0.70	14.00

(a) プロセス①の状態の変化を想定した解析ケース

(b) プロセス②の状態の変化を想定した解析ケース

解析ケース名称	鉄イオンが緩衝材中を移行する距離※
Process2_001	0.01
Process2_010	0.10
Process2_030	0.30
Process2_050	0.50
Process2_100	0.93

※緩衝材の初期厚さ(0.70 m)に対する割合として表記

プロセス①の状態変化では、腐食生成物の種類によって密度が異なり、処分容器の鉄が腐 食して腐食生成物に変化する場合の体積膨張率も異なる値を示すと考えられる。そこで、ガ ラス固化体に使用される炭素鋼オーバーパックの処分後の長期的な腐食挙動を把握するため の室内試験や解析的な検討などにより得られている既往の知見を参考にして、代表的な腐食 生成物として、マグネタイトおよびシデライトを対象とした。

また、これらの腐食生成物の間隙を満たす地下水の量が変わると、中性子の吸収量等が変 化して臨界の起こりやすさに影響を及ぼす可能性が考えられることから、腐食生成物の間隙 率として複数の値を選定し、感度解析を行うものとした。

間隙率の上限値については、鉄腐食生成物の燃料集合体収容スペースへの体積膨張による 臨界安全性への影響が評価された、1)項で示したスウェーデンでの検討事例(Agrenius and Spahiu, 2016)を参考に設定した。このスウェーデンの事例においても、腐食生成物中の間 隙に地下水が含まれることによる影響が感度解析的に評価されており、含水比の上限値が 30 wt%とされている。本検討では、これに相当する間隙率の値(70 %)を上限値として設定し た。なお、間隙中には地下水が飽和している状態のみを想定した。表 2.2-2 の間隙率に対し て、スウェーデンでの検討事例(Agrenius and Spahiu, 2016)と同様に、2.2-1 式により腐 食生成物の体積膨張率を算出した。上記に示した腐食生成物の種類と体積膨張率(又は間隙率)との組み合わせから、8つの解析ケースを設定した(表 2.2-2(a))。

$$R_{pb} = \frac{V_{cor}}{V_{metal}} = \frac{M_{cor} \cdot \rho_{metal}}{n \cdot M_{metal} \cdot \rho_{cor}} ,$$

$$R'_{pb} = \frac{R_{pb}}{1 - \xi_{cor}} \dots \dots \square \ddagger 2.2 - 1$$

ここで、R_{pb}は、鉄原子が酸化物や炭酸塩等に変化することに伴う理論的な体積膨張率を表し ている。また、R_{pb}'は、R_{pb}に対して間隙率を考慮した際の体積膨張率を表している。V、M、 ρはそれぞれモルあたりの体積、分子量、密度を示しており、添え字の「metal」と「cor」 は、元の母材の鉄と鉄腐食生成物であることをそれぞれ示している。nは腐食生成物に含ま れる鉄原子数である。ξ_{cor}は腐食生成物の間隙率である。上記の計算に使用した鉄、マグネ タイトおよびシデライトの密度を表 2.2-3 にまとめて示す。

表 2.2-3 プロセス①の解析ケースの設定で用いた鉄および鉄腐食生成物の密度

	密度(Mg m ⁻³)	引用文献
鉄	7.85	原子力機構(2015a)
マグネタイト	5.17	Agrenius and Spahiu (2016)
シデライト	3.96	化学大辞典編集委員会(1964)

プロセス②の状態変化では、処分容器の鉄の腐食により発生した鉄イオンが緩衝材に移行 する距離によって鉄イオンの分布状態が異なる。緩衝材中を鉄イオンが移行する距離につい ては、緩衝材の化学的あるいは力学的な場の状態によって変わる可能性があり、特定の値に 設定することは難しいことから、処分容器との境界の近傍にとどまる場合から、岩盤との境 界まで移行する場合までを幅広く想定して、移行する距離に対応した 5 つの解析ケースを設 定した(表 2.2-2(b))。

ガラス固化体のオーバーパックの腐食やそれによる緩衝材の圧密による状態の変化に関す るわが国の検討事例を参考に、処分容器の腐食の進展に伴い変化させるパラメータを設定し た結果を表 2.2-4 に示す。処分容器の腐食深さの上限については、プロセス①とプロセス② のいずれに対しても、直接処分第1次取りまとめにおいて設定されている処分容器の厚さで ある 0.14 m (遮へい厚さ 0.1 m に腐食代 0.04 m を加えた厚さ)とすることで、処分容器の 使用済燃料収容スペースの形状に腐食の影響が及ばない範囲を想定した。プロセス①に対す る緩衝材の変位量については、使用済燃料を直接処分したのちの処分容器の腐食膨張による 緩衝材の圧密量を評価した既存の力学解析の結果(原子力機構, 2017)に基づき、処分容器 が腐食膨張した分だけ変位するものとして設定した。また、緩衝材の密度と組成については、 上記の緩衝材の変位量に基づき、緩衝材を構成する土粒子の原子数は保存されるように設定 した。但し、緩衝材中の間隙水については、鉄腐食生成物の膨張による緩衝材の圧密に伴い

対象とする プロセス	パラメータ	設定の考え方		
	処分容器の腐食深さ (図 2.2-3(b)のdに相 当する値)	最大腐食深さを処分容器の厚さ (0.14 m) として設定。		
プロセス①	緩衝材の変位量(図 2.2-3(b)のδに相当す る値)	腐食膨張による緩衝材の圧密量を評価した 既存の力学解析の結果に基づき、処分容器 が腐食膨張した分だけ変位するものとして 設定。		
	緩衝材の密度・組成	圧密による緩衝材の変形に応じて、間隙水 が排水される効果を考慮しつつ、土粒子は 保存されるものとして設定。		
	処分容器の腐食深さ (図 2.2-3(c)の d'に 相当する値)	最大腐食深さを処分容器の厚さ(0.14 m) として設定。		
プロセス②	鉄イオンが緩衝材中を 移行する距離 (図 2.2-3(c)のδ'に 相当する値)	鉄イオンが、初期の処分容器外側境界から 緩衝材中へ移行する距離をパラメータとし て設定。最大移行距離を緩衝材の厚さ (0.7 m)に設定。		
	腐食により生成した鉄 イオンが移行する領域 の密度・組成	緩衝材中において、均質に鉄イオンが分布 するように単純化してモデル化。		

表 2.2-4 処分容器の腐食の進展に伴い変化させるパラメータ

臨界解析の解析体系については三次元直方体体系とし、体系の中心に、図 2.2-4 に示した 断面寸法に基づく円筒形でモデル化した処分容器および緩衝材を配置した。緩衝材の周囲に は岩盤を配置し、岩盤の外側を真空境界とした。岩盤の最小厚さ(外側境界面から緩衝材ま での距離)は1mとした。岩種としては花崗岩を想定し、既往の文献(McConn et al., 2011) の組成を参考に原子数密度を設定した。なお、緩衝材周りの花崗岩の最小厚さを0 m から 1 m まで変化させた予備解析を行ったところ、系全体の実効増倍率への影響は殆ど認められな かった。このことから、花崗岩の密度や組成等の状態の違いによる臨界安全性への影響は殆 ど無視できると考えられる。

3) 解析結果

処分容器の腐食の進展に伴い、鉄腐食生成物が処分容器と緩衝材との境界に生成し体積膨 張することで緩衝材を圧密することによる状態の変化による影響(プロセス①)を評価した 結果を図 2.2-5 に示す。横軸は、処分容器の腐食の進展の程度を処分容器の腐食深さを指標 として表している。縦軸は実効増倍率である。

鉄腐食生成物中に間隙が存在せず、地下水が含まれない場合(Process1_Mag-00、

Process1_Sid-00) では、処分容器が腐食し、腐食生成物の体積膨張と緩衝材の圧密が進展 することに伴い、実効増倍率が増加する傾向が認められた。この理由として、鉄腐食生成物 の体積が膨張して厚みが増加することにより中性子の反射体効果が増加すること等が考えら れる。これに対して、鉄腐食生成物中の間隙が地下水で飽和している場合(Process1_Mag-01、03、07 および Process1_Sid-01、03、07)では、腐食の進展に伴って実効増倍率が減少 する傾向が認められた。また、鉄腐食生成物中の間隙率が高く、地下水の含有量が高いほど、 実効増倍率が低い値を示した。

上記で示したように、鉄腐食生成物に地下水が含まれる場合においてのみ、腐食の進展に 伴って実効増倍率が減少する傾向を示した理由としては、JENDL-4.0 (Shibata et al., 2011) などのデータによると、鉄原子の中性子捕獲断面積が熱中性子のエネルギー領域において特 に高い値となることと、鉄腐食生成物の間隙水中のH原子等との散乱によって中性子のエネ ルギーが熱中性子領域まで減速されること等が考えられる。すなわち、腐食の進展とともに、 金属鉄から間隙中に地下水が存在する鉄腐食生成物に変化していくことによって、反射体と して働く鉄腐食生成物中で熱中性子まで減速されて鉄原子に吸収される中性子の割合が増加 し、その影響で実効増倍率が減少傾向となることが考えられる。



(a) 鉄腐食生成物としてマグネタイトを想定した場合



(b) 鉄腐食生成物としてシデライトを想定した場合

図 2.2-5 鉄腐食生成物が処分容器と緩衝材との境界に生成して体積膨張することで緩衝 材が圧密される状態の変化による影響(プロセス①)の評価結果 処分容器の腐食とそれにより生成した鉄イオンが緩衝材中に移行することで処分容器および緩衝材の状態が変化することによる影響(プロセス②)を評価した結果を図 2.2-6 に示す。 横軸は、処分容器の腐食の進展の程度を処分容器の腐食深さを指標として表している。縦軸 は実効増倍率である。

鉄イオンが緩衝材中へ移行する距離の異なる解析ケースのうち、腐食で生成した鉄イオン が緩衝材の厚さの1%の距離を移行して均一に混合するケース(Process2_001)を除き、腐 食の進展に伴って実効増倍率が減少する傾向が認められた。この理由としては、プロセス① と同様に、JENDL-4.0 (Shibata et al., 2011)などのデータによると、鉄原子の中性子捕 獲断面積が熱中性子のエネルギー領域において特に高い値となることと、鉄原子が移行した 緩衝材の領域に含まれる H 原子や Si 原子等との散乱によって中性子のエネルギーが熱中性 子領域まで減速されることが考えられる。すなわち、腐食の進展とともに、金属鉄の一部が 緩衝材に移行していくことによって、反射体として働く鉄イオンが多く存在する緩衝材領域 中で熱中性子まで減速され、鉄原子に吸収される中性子の割合が増加し、その影響で実効増 倍率が減少傾向となることが考えられる。



図 2.2-6 鉄イオンが緩衝材中に移行することによる状態の変化の影響(プロセス②)の 評価結果

上記で示した処分容器と緩衝材の状態の変化のうち、地下水を含まない鉄腐食生成物が体 積膨張して緩衝材を圧密する場合(Process1_Mag-00、Process1_Sid-00)と、鉄イオンが緩 衝材中を移行する距離が、緩衝材の初期厚さ(0.70 m)に対して1 %の場合(Process2_001) では、初期の材料の状態と比較して実効増倍率が増加した。これらの解析ケースの実効増倍 率の最大値のみを整理した結果を表 2.2-5 に示す。初期状態との実効増倍率との差は最大で 0.01 程度であった。

処分後の材料等の状態の変化を想定して保守的な解析を行った先行事業での評価(原子力 機構,2015b;2016a;2017;2018)や、スウェーデンにおける処分容器の腐食膨張による影 響を評価した既往の事例(Agrenius, 2002;Agrenius, 2010)では、未臨界判定基準値を 0.95としており、本解析で対象としたいずれの状態の変化のパターンにおいても、未臨界判 定基準値と比較して大幅に低い値に抑えられることが分かった。

	解析ケース	実効増倍率の最大値※
	初期状態	0.7691 (-)
Process1_Mag-00	腐食生成物として間隙の無いマグネタイトを想定	0.7789 (0.0098)
Process1_Sid-00	腐食生成物として間隙の無いシデライトを想定	0.7773 (0.0082)
Process2_001	鉄イオンが緩衝材近傍に留まる状態を想定	0.7696 (0.0004)

表 2.2-5 実効増倍率の最大値の整理結果

※括弧内の数値は初期状態との差を示す。

(3) 臨界安全評価手法の高度化に向けた課題の抽出

(2)項に示した臨界解析では、処分容器と緩衝材における化学的および力学的な相互作用 による材料等の状態の変化のみに着目して、これらの臨界安全性への影響を評価した。しか しながら、処分場閉鎖後において起こりうる状態の変化を適切にモデルに取り入れた臨界安 全評価を行うには、(2)項に示した臨界解析で対象としなかった材料の状態の変化による影 響との組み合わせを考慮することで、(2)項に示した臨界解析の結果と比べて臨界の起こり やすさに大きな影響を及ぼす可能性がないかを検討しておくことが重要である。図 2.2-2 に 示した、臨界安全性への影響が想定される材料等の状態の変化に関する現象間の相関関係の 整理結果から、このような組み合わせを考慮する必要性が考えられる現象として、以下に示 すように、「処分容器の外側(緩衝材と接する部分)での腐食の進展と、内側(集合体の収 納スペースの内壁)での腐食の進展の組合せによる影響」と「処分容器の腐食と被覆管の水 素吸収・脆化の組合せによる影響」の二つを抽出した。

処分容器の外側での腐食の進展と内側での腐食の進展の組合せによる影響

地下水の閉じ込め機能が処分容器において喪失される状況を想定して、処分容器外側での 腐食のみに着目した、(2)項で示したプロセス①および②の解析では、いずれも臨界の起こ り易さへの影響は限定的であった。しかしながら、このように地下水の閉じ込め機能が処分 容器において喪失される状況を想定した場合では、本来は処分容器の外側だけではなく、内 側でも腐食は進展すると考えられ、外側のみの腐食を考慮する場合とは臨界の起こり易さへ の影響は異なる可能性がある。

スウェーデンの評価では、処分容器内側への腐食膨張による影響は、平成 31 年度の解析 結果で認められた処分容器外側への腐食膨張による影響よりやや高い程度だが、腐食生成物 が使用済燃料集合体の内部に入り込むことで増倍率が低い値に維持されている可能性を排除 できない。鉄腐食生成物が燃料集合体の内部まで入り込まずに燃料集合体の内部およびその 周辺で地下水が存在する状態が維持されると、スウェーデンの評価より実効増倍率が高い値 となる可能性がある。

また、スウェーデンの臨界解析で対象とされている処分容器の寸法では、集合体収容スペースの間の鉄の厚さは 20cm 程度であるが(Agrenius, 2002; Agrenius, 2010; Agrenius and Spahiu, 2016)、わが国の処分容器のレファレンスの仕様では、5 cmとされているため(原子力機構, 2015a)、使用済燃料集合体から発生する中性子が隣接する使用済燃料集合体における核分裂反応の起こりやすさに影響を与えやすいと考えられることから、このような状態の変化による影響は無視できないものとなる可能性が否定できない。

処分容器の腐食と被覆管の水素吸収・脆化の組合せによる影響

処分容器の鉄の腐食の進展に伴い、水素ガスが発生することを考慮することが臨界安全性 の評価にとって重要となる可能性がある。燃料被覆管に使われるジルカロイは水素を吸収し やすく、また、処分容器の腐食で発生した水素を吸収することによって被覆管の組成の変化 や水素脆化が生じる可能性がある。前者のジルカロイによる水素の吸収については、吸収さ れた水素が減速材として作用することで、処分容器の腐食のみを考慮する場合と比較して実 効増倍率が高い値を示す可能性がある。後者の被覆管の組成の変化や水素脆化については、 水素脆化によるジルカロイの崩落・剥がれ等が生じて水と燃料の距離が縮まると、実効増倍 率が増加する可能性がある。他方、被覆管の支持が失われて燃料棒の形状を保てなくなるこ とによって増倍率が極端に減少することも考えられる。

今後、上記に示したような材料の状態の変化の組み合わせを考慮することで、単体の現象 による影響と比較して臨界が起こりやすくなる可能性がある場合も対象とし、かつ、現実性 や説明性を高めつつ非保守側の評価にならないように配慮した臨界解析モデルを構築して評 価を行うための手法を構築することが必要である。なお、上記に示したような、平成 31 年 度に実施した臨界解析の結果等に基づき、起こり得る状態の変化による影響を積み重ねて評 価を行うアプローチだけではなく、最も臨界が起こり易い状態からのずれの程度が臨界に及 ぼす影響を示すアプローチも有効となり得ると考えられる。すなわち、図 2.2-1 に示した保 守的な想定に基づく臨界安全評価モデルにおいて、UO₂ ペレットのピッチ、燃料領域の形状、 反射体の形状・材料組成等の臨界の起こりやすさに関係する因子について、現実的な起こり やすさは考えずに最も臨界が起こりやすい状態を設定していることに対して、それら因子が 最も臨界が起こりやすい状態からずれた状態となることで実効増倍率がどのように変化し得 るかを、感度解析等を通じて定量的に評価していくことが考えられる。

このような手法を活用した臨界安全評価においては、本検討では考慮しなかった燃料の濃 縮度や燃焼度等の多様性がもたらす影響も含めて評価すると共に、解析によってもたらされ る計算誤差が評価結果にもたらす影響についても適切に考慮していくことが今後必要となる と考えられる。

2-61

2.3 まとめ

処分容器の腐食挙動評価

硫化水素濃度をパラメータとした腐食試験の結果、緩衝材共存下では溶液単独系よりも硫 化水素による銅の腐食への影響が緩和された。

酸素濃度とアンモニア濃度をパラメータとした応力腐食割れ試験の結果、アンモニア濃度 が高いほどベントナイト中の応力腐食割れ感受性は高くなることや、割れ感受性には皮膜中 の硫化物の割合が関わっている可能性が示された。

電気化学試験により鉄に添加する合金元素の耐食性への影響を調べた結果、ニッケルは腐 食速度低減が期待できる可能性があるものの、不動態化を促進して局部腐食を発生させる傾 向があることが分かった。また、シリコンは、腐食速度低減が期待できないが、不動態化を 抑制し全面腐食の傾向を高める可能性のあることが分かった。

ステンレス鋼 (SUS 316)、純チタン (JIS 2種)、ニッケル基合金 (Alloy C-276)、ニッケ ル基金属ガラス (Ni₆₅Cr₁₈Nb₂P₁₆B₄)を対象とした高塩化物イオン溶液中でのアノード分極測 定を行い、Alloy C-276 は 1M の NaCl 溶液中においても局部腐食を生じず、不動態保持電流 も最も小さいことから広範な環境で高い耐食性を示す可能性が示唆された。

今後は、硫化物や他の地下水中成分等が銅の腐食速度、腐食形態、割れ感受性等に及ぼす 影響について個別の因子に加えて複数の因子(酸素濃度、地下水成分等の組み合わせ)の作 用や長期的な影響などの知見を拡充していく。また、炭素鋼の耐食性改善が期待できる可能 性があるニッケルの添加の効果については、圧縮ベントナイト中での挙動等を明らかにして いく。高耐食性金属についてはすきま腐食を対象に再不動態化法等により臨界電位の評価と 材料間の耐食性比較を行う。

使用済燃料処分での処分後臨界安全評価

臨界安全性に影響を及ぼす可能性のある処分場閉鎖後において起こりうる人工バリアシス テムの状態の変化として、鉄腐食生成物が処分容器と緩衝材との境界に生成し体積膨張する ことで緩衝材を圧密すること、および処分容器の腐食とそれにより生成した鉄イオンが緩衝 材中に移行することで処分容器および緩衝材の状態が変化することに着目し、臨界の起こり 易さに及ぼす影響の程度や傾向などを把握するための臨界解析を行い、これらの現象が臨界 の起こり易さに及ぼす影響は限定的であることを確認した。また、処分場閉鎖後において起 こりうる状態の変化を適切にモデルに取り入れた臨界安全評価としていくことに向けて、上 記の臨界解析で考慮した状態の変化以外での臨界の起こりやすさへの影響を考慮する必要が あると考えられる状態の変化として、「処分容器の外側(緩衝材と接する部分)での腐食の 進展と内側(使用済燃料集合体の収納スペースの内壁)での腐食の進展の組合せによる影響」 と「処分容器の腐食と被覆管の水素吸収・脆化の組合せによる影響」を抽出した。

今後、これらの材料の状態の変化やその組み合わせなども考慮していくことで、臨界が起 こりやすくなる可能性をより詳細に検討していくとともに、最も臨界が起こりやすい状態か らずれた状態となることで実効増倍率がどのように変化し得るかの評価などとも組み合わせ ていくことで、現実性や説明性を高めつつ非保守側の評価にならないように配慮した臨界解 析モデルを構築して評価を行うための手法を構築する。 【参考文献】

- Case, B. (1973): The Diffusivity of Oxygen in Dilute Alkaline Solution from 0° to 65° C, Electrochimica Acta, Vol. 18, pp. 293-299.
- Crank, J. (1975) The Mathematics of Diffusion, 2nd ed., Oxford Univ. Press.
- 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)(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.
- 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 か年とりまとめ報告書.
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2019): 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.

化学大辞典編集委員会(1964):化学大辞典,共立出版.

- 菊池広人,棚井憲治(2005): 幌延地下水を用いた緩衝材・埋め戻し材の基本特性試験(試験報告), JNC TN8430 2004-005.
- Agrenius, L. (2002): Criticality safety calculations of storage canisters, SKB, TR-02-17.
- Agrenius, L. (2010): Criticality safety calculations of disposal canisters, SKB Public Report 1193244.
- Agrenius, L. and Spahiu, K. (2016): Criticality effects of long-term changes in material compositions and geometry in disposal canisters, SKB, TR-16-06.

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.

- Pourbaix (1966): Atlas of electrochemical equilibria in aqueous solutions, Pergamon Press ltd.
- Pugh, E.N., Montague, W.G., Westwood, A.R.C. (1966): Stress-corrosion cracking of copper, Corrosion Science, Vol. 6, pp. 345-347.
- McConn, R. J., Jr, Gesh, C. J., Pagh, R. T., Rucher, R. A., Williams, R. G., III. (2011) : Compendium of Material Composition Data for Radiation Transport Modeling (PNNL-15870), Pacific Northwest National Laboratory.

- Shibata, K., Iwamoto, O., Nakagawa, T., Iwamoto, N., Ichihara, A., Kunieda, S., Chiba, S., Furutaka, K., Otuka, N., Ohsawa, T., Murata, T., Matsunobu, H., Zukeran, A., Kamada, S., and Katakura, J. (2011): JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering, J. Nucl. Sci. Technol. 48(1).
- Suzuki, Y. (1981): Stress Corrosion Cracking of Pure Copper in Dilute Ammonical Solutions, Corrosion Science, 9, pp. 353-368.
- 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.
- Sato, H. (1998) : Data Setting for Effective Diffusion Coefficients (De) of Nuclides in the Buffer for Reference Case in Performance Assessment of the Geological Disposal of High-Level Radioactive Waste, 1; A Dataset of De Values for Fresh-Reducing-High pH Groundwater (FRHP), PNC-TN8410 98-097.
- Taniguchi, N. and Kawasaki, M. (2008): Influence of sulfide concentration on the corrosion behavior of pure copper in synthetic seawater, Journal of Nuclear Materials, Vol. 379, pp. 154-161.
- Uhlig, H.H., Dequette, D.J. (1969): Alleged stress-corrosion cracking of pure Cu, Corrosion Science, 9, pp. 557-560.
- Nagaya, Y., Okumura, K., Mori, T., Nakagawa, M. (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-	1
(2)使用済燃料の溶解速度に及ぼす全炭酸濃度の影響評価・・・・・・・・・・・-3-	4
1) はじめに・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4
2)二酸化ウランペレットの調製・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・-3-	6
① UO ₂ ペレットの調製・・・・・・3-	6
② 調製結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	7
3) UO ₂ ペレットの浸漬実験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	8
① 実験手順・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	8
② 実験結果と考察・・・・・・3-	9
4) UO2のみかけの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-	14
1) はじめに・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	14
2) 試験方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	14
① 非晶質二酸化ウランの調製・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	14
② 溶解度試験····································	14
3) 結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	16
(4) 使用済燃料からの核種の瞬時放出挙動に関する調査・・・・・・・・・・・・3-	20
1) はじめに・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	20
2)実燃料を使用した浸漬試験の試験計画検討および作業環境整備・・・・・・・・3-	21
① 試験で使用する施設および燃料試料の絞り込み・・・・・・・・・・・・・・・・ 3-	21
 浸漬試験に使用する容器および治具の検討・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	23
③ 試験中の空間線量測定方法の検討・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	24
 ④ 試験で発生する過酸化水素の定量方法の検討・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	25
⑤ 試験計画の検討・・・・・・3-	26
(5) 核種の瞬時放出およびマトリクス溶解に関する最新動向調査・・・・・ 3-	26
1) はじめに・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3-	26
2) 調査結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	27
① 高燃焼度 UO2燃料のギャップからの放出挙動等 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3-	27
② 添加物含有 UO2燃料の長期溶解挙動・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	28
3.2 緩衝材の長期挙動評価・・・・・ 3-	31
(1) 本項目の背景と目的・・・・・ 3-	31
1) 調査対象・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	31
2) 調査手法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	31
3) 調査内容・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	32
(2) 銅試験片と圧縮ベントナイトの接触試験(カラム変質試験) ・・・・・・・・・ 3-	33

1) 試験手順および条件・・・・・ 3-33
2) 試験結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
(3) 銅粉を用いたバッチ系でのベントナイト変質試験・・・・・・・・・・・・3-36
1)酸化性雰囲気でのバッチ変質試験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3-36
 試験手順および条件······3-36
② 試験結果・・・・・ 3-37
2) 低酸素雰囲気でのバッチ変質試験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
 試験手順および条件······3-41
② 試験結果・・・・・・3-41
3.3 まとめ・・・・・・ 3-42
参考文献 ······ 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

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)の結晶粒界に遍在化し、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、様々なものがあること がわかっている。例えば、炉内燃焼時にガス状もしくは液状となる状態変化やU02格子内の欠 陥の体積拡散により移行する途中で 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すき 間に堆積する元素などが挙げられる。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る(長期溶解)と考えられている。使期溶解)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

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い ため、直接処分の安全評価には影響を及ぼさない。したがって、直接処分の安全評価に重要 となるのは、地下水等に溶出する IRF 成分となる。ただし、Cs-137 等一部の核種の IRF が FGR と相関関係にあるという報告があることから、これまでは FGR の評価も進めてきている。ま た、長期溶解の程度を示すパラメータは、UO₂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、直接処分第1次 取りまとめにおいて予備的な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、先行事業(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。



地下水等への溶出:瞬時放出率(Instant Release Fraction: IRF)

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

先行事業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⁻¹U)に対する値として設定されている。

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⁻³)の炭素が含まれている。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。主な炭素の組成として は、炭酸系(H₂CO₃(aq)、HCO₃⁻およびCO₃²⁻)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 (H₂CO₃(aq)、HCO₃⁻および CO₃²⁻の各濃度の合計)が高くなると6価の炭酸錯体(UO₂(CO₃)⁴⁻等) が生成し溶解度が高くなる可能性が指摘されており(Kitamura et al., 2010)、この溶解度 の上昇が使用済燃料のマトリクス成分である UO₂の溶解を速めることが懸念される。したが って、わが国において使用済燃料の直接処分の安全性を評価するためには、諸外国に比べて 緩衝材間隙水中の全炭酸濃度が高いことを考慮した上で核種放出に関するパラメータを設定 する必要がある。

また、使用済燃料からの核種の瞬時放出については、前述した緩衝材間隙水中の全炭酸濃 度の影響が不明であるとともに、表 3.1-1 で示した IRF の設定値の妥当性を確認する必要が ある。

以上を踏まえ、本章の課題として「使用済燃料マトリクスの溶解に及ぼす炭酸成分の影響」 ((2)項および(3)項参照)と「使用済燃料からの核種の瞬時放出挙動に関する調査」((4)項 参照)の2点を特に重要な課題と考えた。あわせて、これらの課題に対する諸外国の最新動 向を調査した((5)項参照)。

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

表 3.1-1 先行事業における国内向け瞬時放出率(IRF)の設定値 (原子力機構, 2018)

*FGR との相関関係から算出。

表 3.1-2 先行事業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 ⁻⁷
構造材金属	10 ⁻⁴ (ジルカロイ、SUS、インコネルなど全金属)

(2) 使用済燃料の溶解速度に及ぼす全炭酸濃度の影響評価

1) はじめに

先行事業では、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)。調査結果を図 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 であると判断した。先行事業ではUO2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 用いて十分に還元された条件における試料については、表 3.1-2 に示した燃料溶解速度(10-7 y⁻¹)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。このことを 受けて、実験的調査を実施することとした。平成 30 年度はペレット状に成型した UO2の溶解 速度測定を実施した(図 3.1-4)。平成 31 年度は、平成 30 年度に調製した UO₂ 溶解速度測定 試料について、平成30年度の試験期間(25日)より長期間の試験を実施するとともに、実際 の燃料ペレットに近づけるために密度をより高くした UO2 ペレットを調製して同様の実験を 行い、得られた結果を平成30年度に得られた結果と比較しつつU02の溶解挙動を考察した。



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



図 3.1-3 先行事業で得られた二酸化ウラン溶解速度の全炭酸濃度依存性 (原子力機構, 2016)



図 3.1-4 ウランの溶出に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響(SA/V=5、平成 30 年度実施) (原子力機構, 2019)

2) 二酸化ウランペレットの調製

U02ペレットの調製

本研究では使用済燃料の溶解に及ぼすペレット密度の影響を検討するために、より高密度の試料を成型するための UO₂ 粉末粉砕条件を表 3.1-3 のとおりとした。なお、粉砕処理をしない試料は平成 30 年度に調製したものである。

U02粉末の調製は、U308を水素雰囲気下において1000 ℃で加熱還元処理することで実施し、 粉末X線回折(XRD)によりU02であることを確認した。調製した試料を図3.1-5(a)に示すジ ルコニアおよびタングステンカーバイド(WC)製粉砕ポットに入れ、これをFRITSCH 社製の 遊星ミルにセットした。粉砕ボールには、ジルコニアおよびWC製粉砕ボール10 個を用いた。 試料粉末、WC製粉砕ボールを入れたWC製粉砕ポットおよびアルミニウムテープを図3.1-5(b) のようにグローブバッグの中に入れ、グローブバッグ内を真空排気後にアルゴンガスで置換 する作業を3回繰り返した。その後、秤量した試料を粉砕ポットに入れ、粉砕ポットの蓋を し、ポット内の密封性を高めるためにふたとポットの間をアルミニウムテープで密封した。 このポットを遊星ミルにセットし、700 rpmで1もしくは2時間(5分×12もしくは24、イ ンターバル5分)反応させた。粉砕処理前後のU02粉末試料の比表面積をBET法により測定 した。

	粉砕なし*	粉砕1時間	粉砕2時間
粉砕処理	なし	700 rpm, 1 h	700 rpm, 2 h
圧縮成型	10 MPa, 3 min.		
运 ⁄士		Ar - 10 vol. % $\rm H_2$	
》为七 术百	1600 °C, 2 h	1700 °C	C, 4 h

表 3.1-3 UO2ペレット試料を成型するための諸条件

*平成 30 年度に調製済。



(a) タングステンカーバイド製 粉砕ボールおよびポット



(b) グローブバッグを用いた粉砕作業

図 3.1-5 UO2粉砕処理の様子

調製した UO₂粉末について、8 MPa の加圧を 3 分間維持してペレット状に成型したのち、水素雰囲気下において 1700 °Cで焼結した。焼結中は Ar + 10 % H₂混合ガスを 20 mL min⁻¹ 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。

- 1. 開始から1時間30分で900 ℃まで上昇。
- 2. 2時間 30 分かけて 1700 ℃まで上昇。
- 3. 1700 ℃で4時間加熱。
- 4. 加熱終了後3時間20分かけて炉を冷却。

焼結後の試料表面を、走査型電子顕微鏡(SEM)で観察した。試料を試料台にカーボンテー プで貼り付けアルミニウムテープで固定し、Au-Pd コーティングした上で観察した。あわせ て、粉末試料の SEM 観察も実施した。

2 調製結果

U02粉末を遊星ミルで粉砕処理した後に XRD によって求めた格子定数と BET 法で求めた比表 面積を、表 3.1-4 に示す。粉砕処理をすることで U02粉末の比表面積が増加、すなわちより粒 径の小さい U02粉末を調製できたことがわかる。粉末の色は、粉砕処理により赤褐色からカー キ色へ変化した。格子定数には変化が見られなかった。図 3.1-6 にそれぞれの U02粉末の SEM 画像を示す。この図からも、(b)および(c)の U02粉末が(a)のものより小さくなっているよう に見えることから、粉砕処理により U02が微粉化されたことがわかる。

粉砕処理	なし*	700 rpm $ imes$ 1 h	700 rpm $ imes$ 2 h
粉末の色	赤褐色	カーキ色	黒みがかったカーキ色
結晶構造	UO_2	UO_2	UO_2
格子定数(Å)	5.472	5.461	5.465
比表面積(cm² g ⁻¹)	0.45	4.6	5.6

表 3.1-4 UO2 粉末の粉砕処理による格子定数および比表面積の変化

*平成 30 年度に調製済。



図 3.1-6 粉砕前後の UO2 粉末の SEM 画像

次にこれらの UO₂ 粉末を用いてペレット成型し、還元雰囲気で焼結したペレットの外観を 図 3.1-7 に示す。粉砕処理をそれぞれ 1 時間、2 時間行った粉末を用いたペレット(以下、1h

ペレット、2h ペレット)は、粉砕処理を行わなかった粉末で成型したペレット(以下、N ペレット)には無い灰色がかった金属光沢が見られた。UO₂の理論密度(10.97 g cm⁻³)に対する各ペレットの直径と厚さから計算した密度の割合(% T. D.)は、N ペレットで平均63 %T. D.、1h ペレットで平均87 %T. D.、2h ペレットで平均80 %T. D. であった。ちなみに、軽水炉のUO₂燃料は95 %T. D. である(真木野, 1969)。粉砕処理でより粒径の小さい粉末を用いたことと、より高温で焼結したことで、実際のUO₂燃料の密度に近いペレットを作製することに成功した。圧縮成型・焼結後の各UO₂ペレットSEM 画像を図3.1-8に示す。粉砕処理を行なうことで、UO₂ペレット表面が密になったことがわかる。

なお、粉砕処理を2時間行なった試料のほうが1時間の場合よりも比表面積は減少するという結果が得られた。これは、粉砕処理でU02が一度解粒したものの、さらに処理を続けたことで逆に粒子が凝集したためと推測される(真木野, 1969;齋藤, 2008)。



図 3.1-7 焼結後のペレットの外観 (左から、Nペレット、1hペレット、2hペレット)



図 3.1-8 圧縮成型・焼結ペレット表面の SEM 画像

3) UO₂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 UO₂の溶解挙動に及ぼす溶液中の炭酸水素イオン濃度の影響 (実験結果と考察は②a.項を参照)および UO₂ペレット密度の影響(実験結果と考察は②b.項 を参照)を評価するために、図 3.1-9 に示すような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 [m²]と溶液体積 V [m³]の比が 5 および 10 m⁻¹となる量を設定した。塩濃度調整のため塩化ナトリウム (NaC1) 濃度を 0.1 M に、全炭 酸濃度調整のため炭酸水素ナトリウム (NaHCO₃) 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-Hydroxyethyl)-1piperazinyl]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 (Na₂S₂O₄) を使用した。水溶液を調製したのちに、UO₂ ペレットを容器に投入した。

浸漬開始から 6~119 日間経過後、試料溶液の pH および標準水素電極に対する酸化還元電 位(E_h 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。また、水溶液中の炭酸イオン濃度を、炭酸電極で測定し た。さらに、浸漬終了後に UO₂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。

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



図 3.1-9 バッチ実験のイメージ

実験結果と考察

a. UO2ペレットの溶解に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響

ウランの溶出に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響の結果について、SA/V = 5 および SA/V =10 の結果の例をそれぞれ図 3.1-10 および図 3.1-11 に示す。各図において、固液分離の際 のフィルターの孔径として 0.45 µm を用いた場合(○) と分画分子量 10⁴ (10 kDa)の限外ろ 過フィルターを用いた場合の結果(△) を区別して示した。横軸の炭酸水素イオン濃度は、 溶液採取時の実測値である。これらの結果から、溶存ウラン濃度は時間経過とともに低下し、 実験開始から概ね 50 日程度までに安定することがわかった。また、炭酸イオン濃度が高いほ どウランの溶出が進行している、すなわちウランの溶出が溶液中の炭酸イオン濃度に依存す ることもわかった。一方、溶存ウラン濃度のフィルター孔径の違いは確認されなかった。し たがって、液相中にウランのコロイド化学種はほとんど形成されていないと考えられる。SA/V の違いによるウランの溶出の違いも顕著ではなかった。

本研究の実験条件は、U0₂ペレット表面に生成する非晶質 U0₂(U0₂(am))が酸化的に溶解して U0₂(C0₃)₃⁴⁻等の炭酸錯体を形成し、溶解が促進される条件であると考えられる。したがっ

て、UO2の溶解は以下の反応で進行すると考えられる(Shoesmith, 2000)。

 $U^{IV}O_2 + O_2(aq) + 2H_2O \rightarrow U^{VI}O_2(OH)_2 + 2OH^- \cdots$ 式 3. 1–1 $U^{VI}O_2(OH)_2 + 3HCO_3^- \rightarrow U^{VI}O_2(CO3)_3^{4-} + H^+ + 2H_2O \cdots$ 式 3. 1–2

これらの反応は長期的には以下の反応式に収束する。

 $U^{IV}O_2(s)$ + 3HCO₃⁻ → $U^{VI}O_2(CO_3)_3^{4-}$ +3H⁺ + 2e⁻······ 式 3. 1-3

式 3.1-3 に示した反応は、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、このように反応が進行するのであれば、いずれのパラメータも高いほど反応がより進行すると考えられる。図 3.1-10~図 3.1-11 に示した結果を見ると、溶存炭酸イオン濃度の増加により、式 3.1-3 の平衡が右側へずれた結果、溶液中のウラン濃度が増加したと解釈できる。

また、溶液中のウラン濃度の経時変化を見ると、実験開始から比較的初期の時点ではウラン濃度が高く、その後徐々に低下し 10⁻⁹~10⁻⁸ M 程度で安定になったことがわかる。これは、 浸漬初期では酸化された表面の U(VI)が炭酸錯体を形成し溶解するが、その後還元雰囲気に 静置することで液相中の U0₂(CO₃)₃⁴⁻が U(IV)に再度還元され、このときにウランの沈殿物が生 成しペレット表面に析出することで濃度が低下したためと考えられる。

なお、図 3.1-10 および図 3.1-11 において、浸漬期間 98 d 以上での高炭酸イオン濃度条件 において高い溶存ウラン濃度が得られているが、これはこの時点での水溶液の pH が初期値で ある 8 付近より、また Eh (SHE) が初期値である-500 mV 付近より大幅に高くなったことから、 炭酸イオン (CO₃²⁻) が増加して UO₂(CO₃)₃⁴⁻が生成しやすくなり、ウランの溶出が促進されたた めと考えられる。なお、SEM 観察では、試験前後に目立った固相の変化は見られなかった。



図 3.1-10 ウランの溶出に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響(抜粋) (SA/V=5、平成 31 年度実施)



図 3.1-11 ウランの溶出に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響(抜粋) (SA/V=10)

b. UO2ペレットの溶解に及ぼすペレット密度の影響

ウランの溶出に及ぼす U0₂ペレット密度の影響について調べた結果を、図 3.1-12 に示す。 図中の縦の点線は、軽水炉の使用済燃料の密度を、U0₂理論密度 10.97 g cm⁻³ に対して 95 % の密度を持つと計算した 10.42 g cm⁻³ を示している。前述の a. 項と同様に、固液分離におけ るフィルターの孔径による差違が見られなかったため、コロイド形成は顕著ではないと判断 した。図 3.1-12 より、U0₂ペレット密度が増加するとウランの溶出が抑制されていることが わかる。これは、微粉化した U0₂粉末でペレット成型したことで、より高密度になり表面積が 小さくなったため、溶液と接する面積が減少したものと考えられる。また、時間の経過にと ともに溶液中のウラン濃度が減少している。さらに、時間経過に伴い、プロットの傾きが小 さくなっている。これは前述の a)項で述べた、「浸漬初期では酸化された表面の U(VI)が炭 酸錯体を形成し溶解するが、その後還元雰囲気に静置することで液相中の U0₂(C0₃)₃4-が U(IV) に再度還元され、このときにウランの沈殿物が生成されペレット表面に析出することで濃度 が低下したためと考えられる」という推測と整合する。U0₂ペレット密度が 6.9 g cm⁻³の場合 は、溶液中のウラン濃度が 10⁻⁹ Mに向かって収束しているように見える。





4) UO2のみかけの溶解速度の算出と既往文献値との比較

3)②項で得られた結果から、UO₂の溶解速度を算出した。ただし、3)②項で述べたとおり、 本実験ではウランがいったん溶出したあと再沈殿してきていると考えられ、本項で算出する 溶解速度は溶出と再沈殿の両方を含む「みかけの」溶解速度と考えられることから、以降は 「みかけの溶解速度」と呼ぶこととする。

ウランの溶解度は、全炭酸濃度だけでなく pH および Eh にも大きく影響を受ける。このた め、ウランの溶解速度も大きな影響を受けると考えられる。しかしながら、実験中に pH や Eh が大きく変動した場合、得られたウランの溶解速度の変化が pH、Eh および炭酸イオン濃度の いずれかの因子に影響を受けたものか判断をすることはできない。そこで、 pH および Eh の 変動による U 溶解速度への影響を最小限に抑えつつ、炭酸イオン濃度の影響のみを評価する ために、比較的 pH および Eh の変動が少なかった結果を用いてみかけの溶解速度を算出する こととした。また、炭酸水素イオン濃度の測定値が検出限界以下になったと思われる結果は 除外した。以上の基準から、SA/V = 5 での 21 d、 35 d、 56 d、 98 d、SA/V = 10 では 6 d、 14 d、 21 d、 36 d、 49 d の結果からウランのみかけの溶解速度を評価した。これらの 実験では SA/V = 5 の場合は pH の変動は 7.86±0.33、Eh の変動は-392.4±94.3 mV、SA/V = 10 の場合は pH の変動は 7.65±0.35、Eh の変動は-500.3±15.1 mV であった。

本実験により得られた結果について、既往の文献値と比較した。ここでは、様々な形状の UO₂を用いた諸外国の試験の結果と比較するため、みかけの溶解速度(DR)を次式のとおり定 義し、UO₂の幾何学的表面積で規格化して比較した。

 $DR[mg m^{-2} d^{-1}] = C \times V \times M / (A \times t) \times 10^3 \cdots t^3 \dots \dots t^3 \dots t^3 \dots t^3 \dots t^3 \dots t^3$

ここで、C:溶解したウラン濃度(M)、V:溶液体積(dm³)、M:²³⁸U 質量数、A:UO₂ペレットの 表面積(ペレットの直径および高さより算出)(m²)、t:浸漬時間(d)である。本実験で得ら れた DR に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響を、図 3.1-13 に示す。参考までに、直接処分 第1次取りまとめを含め多くの直接処分の安全評価報告書で設定されている燃料溶解速度 10⁻⁷ y⁻¹に相当する値を同図に示した。この図を見ると、時間の経過につれて log DR が低下 したことがわかる。また、図 3.1-13 に示す両対数グラフの線形近似の傾きは、時間が経つ につれて低下することがわかる。ウランはいったん溶出したあと再沈殿したと考えられるこ とから、この傾きの変化は、本研究の実験系が溶解律速から二次析出物が関与する見かけの 平衡への変化に伴うものと考えられる。

本実験で得られた DR のうち、SA/V = 10 かつ経過時間 6 dおよび 49 dの結果について、 欧州プロジェクト REDUPP (Evins et al., 2014)の報告値を比較した結果を図 3.1-14 に示 す。REDUPP の報告値は、異なる炭酸水素イオン濃度をもつ 3 つの天然地下水中における還元 雰囲気下での結果である。図 3.1-14 より、本実験で得られた 6 dの結果が REDUPP の報告地 と概ね整合しており、炭酸水素イオン濃度が高くなるほどウランの溶解速度も高くなること がわかる。また、図 3.1-14 から、全炭酸濃度が高い条件でも DR が長期的には 10⁻⁷ y⁻¹相当の 値(もしくはそれ以下)に収束するものと思われるものの、短期的には 10⁻⁷ y⁻¹相当の値より かなり高い値となること、また評価値にはウランの再沈殿が含まれていると考えられること
から、ウランの溶解と再沈殿を区別するなど、より適切な溶解速度の評価を行うことが今後 の課題である。

以上より、燃料溶解速度は炭酸水素イオン濃度の影響を強く受け、炭酸水素イオン濃度が 高くなると燃料溶解速度も顕著に高くなると言える。長期的には溶解速度が低下すると考え られるものの、そのメカニズムを明らかにすることが今後の課題である。



図 3.1-13 UO₂の溶解速度に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響(SA/V=10 m⁻¹)



図 3.1-14 UO₂の溶解速度に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響における REDUPP (Evins et al., 2014) 文献値との比較

(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

先行事業で実施し図 3.1-3 に示した UO₂ 溶解速度実験においては、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。また、(2)項で述べた UO₂溶解速度実験においても、固相にしか含まれていなかったウ ランの溶存濃度が一旦上昇したあと低下したことから、溶解度制限を超えて沈殿が生成した 可能性が考えられる。これらの場合には溶解速度が過小に評価されることから、UO₂溶解速度 を適切に評価するために、炭酸共存下における UO₂の溶解度(固液が平衡状態に到達したとき の溶存濃度)についてもあわせて調査する必要があると考えられた。このことを受けて、還 元条件・炭酸共存下におけるウランの溶解度について実験的調査を実施することとした。平 成 30 年度は、溶液中に過剰量のウランを添加して沈殿を生成させる過飽和法を実施したこと から、平成 31 年度はウランを沈殿物から溶解させる不飽和法を中心に実験を実施した。また、 平成 30 年度に実施した無機炭素濃度(IC) 20 mM では、無機炭素を含まない条件に比べてウ ランの溶解度が顕著に高くなったことから、やや低めの IC = 1 mM での実験も実施した。

2) 試験方法

① 非晶質二酸化ウランの調製

不飽和実験の出発物質として、非晶質二酸化ウラン(UO₂(am))を調製した。窒素雰囲気の グローブボックス内で、二酸化ウラン(UO₂)を硝酸溶液(HNO₃)に溶解して得たウラン(VI)濃 度 0.005 Mの母溶液に NaOH 水溶液を加え pH を 8.5 にした後、1 M Na₂S₂O₄溶液を添加し 4 週 間保管した。溶液試料の保管期間中は 2 日に 1 回以上 pH と Eh を調整した。また、週 2 回程 度容器を振とうした。

Na₂S₂O₄溶液添加後の試験溶液の時間変化を図 3.1-15 に示す。比較のため、図 3.1-15 にVI 価のウラン溶液の写真を併記した。試験溶液の色は、試験開始時にはVI価ウラン特有の黄色 がかった色をしていたが、1 日後では透明に近くなり、UO₂(am)と思われる黒色の沈殿を生じ、 その後顕著な変化は確認されなかった。

2 溶解度試験

溶解度試験の試験ケースを表 3.1-5 に示す。①項で調製した UO₂(am)を出発物質とする不飽 和溶解度試験と、ウラン(VI) 母溶液を出発物質とした過飽和溶解度試験を実施した。不飽和 溶解度試験では、UO₂(am) 懸濁液に塩化ナトリウム(NaC1)もしくは炭酸水素ナトリウム (NaHCO₃)について、表 3.1-5 に示す量を添加した。過飽和溶解度試験では、ウラン(VI) 母溶液 に NaC1、NaHCO₃ および Na₂S₂O₄ 溶液を所定量添加して、ウランの過飽和状態を作成した。過飽 和・不飽和いずれの試験においても、ウランが全て溶解した時の濃度が 0.005 mol dm⁻¹とな るようウラン量を調整した。



図 3.1-15 Na₂S₂O₄溶液添加後の試験溶液の時間変化(写真)

No.	出発 物質	U濃度(M)	水溶液中濃度(M)			mIJ	繰り
			NaC1	NaHCO ₃	$Na_2S_2O_4$	рн	返し数
1	UO ₂ (am)	2 (am) 0. 005 (VI) :溶液	0.02	-	0.001	8.5	2
2			_	0.02			
3			0.019	0.001			
4			0.02	Ι		10	
5			-	0.02			
6			0.019	0.001			
7	U(VI)		0.010	0.001		8.5	
8	母溶液		0.019			10	

表 3.1-5 ウラン溶解度試験条件の一覧

試験溶液は pH と Eh 調整後 N₂雰囲気のグローブボックス内 (0_2 濃度 < 500 ppm) で保持し、 1 週間に 2 回以上の頻度で pH と Eh を確認し、 pH は 7 以下にならないよう水酸化ナトリウム (NaOH) 水溶液、Eh は-0.2 V 以下を維持するように Na₂S₂O₄ 溶液により必要に応じて調整した。 また、試験の再現性を確認するため、同一条件の試料を 2 つずつ用意して試験を実施した。

試験開始後1、2、4、8週間後に試験溶液を分取したのち、孔径0.45 μmのメンブレンフ ィルターおよび分画分子量10⁴(10 kDa)の限外ろ過フィルターによりろ過し、ろ液のウラン濃 度を誘導結合プラズマ質量分析計(ICP-MS)にて定量した。あわせて、試験試料中の上澄み液 を分取し、試験溶液中の全炭酸濃度(IC)を全有機体炭素計(TOC 計)により定量した。 なお、試みとして、還元剤を使用せず電気化学的に酸化還元電位を制御したウランの溶解 度試験を実施すべく、予備的な調査を実施した。ガス置換型のアクリル樹脂製のグローブボ ックス内に、試験液と白金電極を装荷した試験容器および攪拌用のスターラーと試験液の液 電位(ORP)とpHの測定器を配置し、雰囲気を窒素ガスで置換した。装置全体の外観を図 3.1-16 に示す。試験容器には電位を印加する作用極と対極のほか、銀塩化銀の参照電極とpH と 液電位測定用の複合電極を配置した。



図 3.1-16 試験容器の概要

3) 結果と考察

8 週間経過後に得られたウラン溶解度の IC 依存性を図 3.1-17 に示す。比較のため、平成 30 年度に実施した結果(原子力機構, 2019)をあわせて掲載している。最初1週間程度では、 一部の試料のウラン溶解度が多少変化したものの、その後は概ね安定していた。また、pH 8.5 と pH 10 の結果も概ね一致した。さらに、図 3.1-17 に示すとおり、過飽和試験と不飽和試験 の結果もほぼ一致していることが確認された。



図 3.1-17 液相の全無機炭酸濃度とウラン濃度の関係(試験開始 8 週間後)

図 3.1-17 より、ウラン溶解度が IC に依存しており、IC が高くなると溶解度も高くなるこ とがわかる。また、同じウラン溶解度の実測値を酸化還元電位(E_h)に対してプロットした図 を図 3.1-18 に示す。E_hが-500~-400 mV の範囲では、IC が高くなるとウラン溶解度が高くな るという傾向が見られる。これらの図では、溶液採取時の E_hを用いてプロットしているもの の、試験中は E_hの変動が大きく、試験中に E_hが上昇するごとに還元剤を追加して E_hを下げる という作業を繰り返した。この E_hの変動の原因は、グローブボックス中の酸素濃度変化によ るものと考えられるため、今後は試験中の酸素濃度を監視することや酸素の混入を最大限防 ぐ措置をとるといった対策が必要である。

 E_h の変動がウランの溶解度にどれほど影響を及ぼすかを確認するため、熱力学データベースを用いて種々の条件におけるウランの溶解度を計算した。計算に用いた熱力学データベースは JAEA-TDB の最新版 (Kitamura, 2019)、計算プログラムは PHREEQC Ver. 3 (Parkhurst and Appelo, 2013)である。この計算において、pHの入力値は 8.0~10.5、 E_h は-400~0 mV、IC は 0~0.02 mol kg⁻¹とした。得られたウラン溶解度の IC 依存性の計算結果を図 3.1-19 および E_h 依存性の計算結果を図 3.1-20 に示す。計算値においても、ウラン溶解度が IC に対して顕著な依存性を示す一方で、 E_h に対してはあまり大きな依存性が見られないことがわかる。このことから、本試験では E_h の変動が見られたものの、本試験で得られたウラン溶解度の実測値の信頼性はある程度確保されているものと考えられる。その一方で、図 3.1-17 に示した実測値は、(2)項で述べた溶解速度測定試験において得られた溶存ウラン濃度(図 3.1-10~図 3.1-12)や、図 3.1-19 に示した熱力学計算結果に比べて、かなり高くなっている。この原因のひとつとして、(2)項で実施した実験の出発物質が結晶性の UO₂であるのに対し、本項では非晶質の UO₂が溶解度を制限する系となっていることが考えられる。しかしながら、ウラン(IV) は還元雰囲気中でも酸化されやすいことから、これらの結果の差違について原因を明

らかにすることが重要であると考えられる。

3 - 17



図 3.1-18 ウラン濃度と酸化還元電位(E_h)の関係

なお、試みとして実施した電気化学的手法を用いた予備的な過飽和ウラン溶解度試験について、得られた溶存ウラン濃度および全炭酸濃度の時間変化を図3.1-21に示す。ウランを添加する前の E_hが-300 mV 程度になったことを確認して試験を開始したが、試験中の E_hは650 mV 付近で安定しており、E_hを適切な値に設定することができなかった。一方、作用極に UO₂(am) と思われる黒色の固相が析出し、出発物質としたウラン(VI)を還元させることには成功した。 あらかじめ水溶液の E_hを適切に制御した上でウランを添加するなど、試験系の改良が今後の 課題である。

以上より、UO₂(am)の溶解度に及ぼす全炭酸濃度の依存性が図 3.1-17 に示すとおり確認され、直接処分第1次取りまとめで想定される17 mM といった比較的高い全炭酸濃度では、支配的な溶存化学種が UO₂(CO₃)₄²⁻等のウラン(VI)炭酸錯体である可能性が示唆された。このこ

とは、燃料溶解速度の設定のみならず、緩衝材間隙水中におけるウランの溶解度評価にも有 用な結果であると言える。今後、(2)項で述べた溶解速度についての実験結果や熱力学計算結 果との差異の原因について明らかにしていくことが、結果の信頼性向上のために重要である と考えられる。



図 3.1-19 ウラン溶解度の計算値と全炭酸濃度(IC)との関係



図 3.1-20 ウラン溶解度の計算値と酸化還元電位(E_h)との関係



図 3.1-21 電気化学的手法を用いた溶解度試験における溶存ウラン濃度および全炭酸濃度 の時間変化

(4) 使用済燃料からの核種の瞬時放出挙動に関する調査

1) はじめに

先行事業開始前には、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。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)。先行事業では、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、結果的にこれら FGR データは 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(宇田川ほ か,2018)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。

これらのことから、IRF の設定に向けて、実際の使用済燃料を模擬地下水(緩衝材間隙水) に浸漬する試験研究の実施に向けた検討を行うこととした(後述の2)項参照)。この試験研 究では、直接処分環境と同様の還元条件において浸漬試験を実施するのが理想的である。し かしながら、実際の試験を行うホットセル内に還元雰囲気の空間を構築することなどが容易 ではないことから、まずは既存の試験設備を用い、特性が明らかになっている使用済燃料を 用いて大気雰囲気での浸漬試験を実施することを当面の目標とした。ただし、ホットセル内 でマニピュレータを用いて浸漬試験の実施やそのために必要となる化学操作を行うためには、 試験容器や治具を工夫する必要がある。このことから、平成31年度は、試験で使用する使用 済燃料の絞り込みを行う(後述の2)①項)とともに、適切な試験容器や治具の設計および製 作(後述の2)②項)を実施することとした。並行して、浸漬試験中の線量測定方法(後述の 2)③項)や試料の分析技術の確立を目的とした予備的な試験(後述の2)④項)を実施する こととした。これらの実施結果を踏まえ、今後の試験計画を策定した(後述の2)⑤項)。

あわせて、使用済燃料からの瞬時放出挙動と燃料マトリクスからの核種の溶出挙動に関す る最新情報も調査した(後述の3)項参照)。この調査では、実燃料の測定事例は限定的であ るが、分析方法の改良等により過去測定が困難であった事象の測定が実施された、あるいは 過去の測定結果が再評価されたことにより得られた情報に着目した。

2) 実燃料を使用した浸漬試験の試験計画検討および作業環境整備

① 試験で使用する施設および燃料試料の絞り込み

令和2年度以降に実燃料を使用した浸漬試験を実施することを想定し、浸漬試験の試験計 画の検討および作業環境の整備を実施した。

試験を実施する施設について検討を行った。使用済燃料の浸漬試験を実施するためには、 当然ながら使用済燃料が取り扱える施設であることが必須である。また、国内の使用済燃料 が使用できること、使用する燃料の特性がある程度明らかにされていること、試行錯誤を伴 う可能性が高いため試験を柔軟に実施できることが望ましい。さらに、試験を不活性雰囲気 で実施できることが理想的ではあるものの、これらすべてを満たす施設が存在しないことか ら、不活性雰囲気の試験については今後の課題としつつ適切な施設を選定することとした。 結果として、BWR 燃料と仕様が類似していると考えられる新型転換炉(Adavenced Thermal Reactor: ATR)燃料を取り扱うことができ、かつ燃料浸漬試験の実績がある(田中ほか, 2013) 原子力機構大洗研究所内の照射燃料試験施設(AGF)を使用することとした。照射燃料試験施設 (AGF)のホットセルを図 3.1-22 に示す。

浸漬試験に利用する試料としては、ATR 原型炉「ふげん」の使用済燃料の利用を想定してい る。「ふげん」で照射された燃料集合体および燃料ピンの構造の一例として、36 本からなる 燃料(照射用ガドリニア燃料集合体)の模式図を図 3.1-23 に示す。「ふげん」で照射された ATR 燃料と 8×8 型 BWR 燃料の使用条件および燃料仕様を比較すると、被覆材(ジルカロイ-2)、燃料ペレット材(酸化物燃料)、冷却材(軽水)、冷却材入口温度(277~279℃)、冷 却材出口温度(284~286℃)および冷却材運転圧力(68~70.7 kg cm⁻³)が共通しているこ とが確認できる。また、照射中のふるまいにおいても、燃料集合体および燃料棒の外観変化、 FP ガス放出率、寸法変化(クラック、等軸晶成長、ガスバブル析出、スエリング等)ならび に被覆管内外面反応層(ボンディング、ノジュラー腐食等)において、ATR 燃料は、8×8 型 BWR 燃料と類似した挙動を示すことが確認されている。特に、FP ガス放出率については、線 出力への依存性が一致していることが確認されており、FP 核種の放出挙動という点において 類似していると考えられる。また、軽水炉燃料で確認されている高燃焼度組織(リム組織) について、ATR燃料においても確認されている。これより、照射条件の違い等を適切に考慮す れば、BWR使用済燃料からの核種放出挙動等についての知見を得るために、「ふげん」使用済 燃料を模擬材として活用することは可能と考えられる。

浸漬試験時の核種溶出挙動を考察するにあたり、照射後試験により、FP ガス放出率、燃料 ピン内における放射性核種の分布、燃料ペレット内における元素分布等の情報が既に明らか となっている使用済燃料を、浸漬試験に供するのが望ましいと考えられる。よって、浸漬試 験に供することが可能な「ふげん」使用済燃料ピンの切断片を対象に、燃料集合体内装荷位 置、燃料ペレット仕様(U濃縮度等)のほか、照射後試験結果として、燃料ピンガンマスキャ ン測定結果、近傍の燃料ペレット断面の EPMA 測定結果等について整理し、令和2年度以降の 浸漬試験に使用する燃料の絞り込みを行った。その結果、E09 燃料集合体から採取された使用 済燃料ピンの切断片を浸漬試験に供するのが望ましいことを確認した。



図 3.1-22 照射燃料試験施設(AGF)のホットセル外観



図 3.1-23 燃料集合体および燃料棒の模式図

② 浸漬試験に使用する容器および治具の検討

浸漬試験に使用する容器および治具の検討を行った。海外で実施された実燃料の浸漬試験 では、ガラス製容器、プラスチック製容器、金属製容器と、種々の浸漬容器が使用されてい る。ホットセル内で、マニプレータによる遠隔操作時に容器の転倒を防止するためには、容 器それ自体に一定の重量があることが望ましい(Magnin et al., 2015)。また、海外で実施さ れた浸漬試験では、試験中に析出物が生成したことを示すものもあるため、浸漬期間中は目 視にて溶液および実燃料が直接観察できるよう、透明な材質であることが好ましい。以上の 理由から、ガラス製の浸漬容器を製作し、操作性についての確認を行った。製作したガラス 製浸漬容器の一例を図 3.1-24 に示す。透明ガラスで製作したため容器内部の状況が確認でき るほか、底部を平らにしたこととガラスそれ自体の重量により、十分な安定性を有している ことが確認できた。なお、試験時には溶出した放射性核種がガラスに付着する可能性が考え られるため、試験終了後にガラス容器を酸で洗浄するなどの対策を実施する予定である。

あわせて、ホットセル内でマイクロピペットを用いた化学操作を安定して行うために、図 3.1-25に示すようなステンレス製の台座を設計・製作した。ホットセル内でのマニプレータ を用いた作業を容易にするため、マイクロピペットを固定することが可能で、かつピペット の上げ下げが容易にできるよう上下移動をダイヤル式にするとともに、受け側容器の交換も 容易に行えるような工夫を施した。



図 3.1-24 ガラス製浸漬容器と試料設置のイメージ



図 3.1-25 マイクロピペットを用いた化学操作に使用するための台座のイメージ

③ 試験中の空間線量測定方法の検討

実燃料を水溶液に浸漬した際に、実燃料から放出される放射線と水が反応し、種々の放射 線分解生成物が生成し、実燃料からの核種溶出挙動に影響を与える可能性がある。このため、 使用済燃料近傍のガンマ線量率を実測により評価する方法を検討した。高線量率場において 使用された実績のある累積型の線量計として、アラニン線量計がある。アラニン線量計には、 アミノ酸の一種であるアラニンが主要成分として含まれており、放射線が照射されるとアラ ニン中にラジカルが生成し、そのラジカルは常温で安定に保持されるため、受けた放射線量 の増加に伴ってラジカルが蓄積されていく。放射線照射を終了した後に、電子スピン共鳴装 置(ESR)を用いて得られるマイクロ波の吸収スペクトルから、ラジカルの生成量を評価し、 アラニン線量計が設置されていた場の放射線量を評価するものである。高温環境下では、ア ラニン中に生成したラジカルが徐々に消滅することが知られているが、温度が明らかであれ ば、消滅した分のラジカルの量を補正し、正確な放射線量を評価することは可能である。測 定可能な範囲は2 Gy~200 kGy である。照射燃料試験施設(AGF)では、過去にホットセル内に アラニン線量計を搬入し、使用済燃料の近傍で1時間程度静置した後、ホットセル外に搬出 し、ESRを用いた測定に供した実績がある(原子力機構, 2014)。当時の試験から、数 Gy h⁻¹程 度のガンマ線量率であったことが分かっており、ホットセル内のバックグラウンドの線量率 と比較して極めて高い値であった。よって、浸漬試験に供する実燃料に対しても、アラニン 線量計を用いて、その近傍のガンマ線量率を評価することは可能と考えられる。

④ 試験で発生する過酸化水素の定量方法の検討

実燃料の浸漬試験時においては、水の放射線分解による酸化還元状態への影響を評価する ために、浸漬溶液中に生成した過酸化水素の濃度を測定する予定である。実燃料の浸漬はホ ットセル内にて実施するが、装置の耐放射線性等の観点から過酸化水素の測定をホットセル 内で実施することは困難であるため、ホットセル内で浸漬溶液を分取し、別室に設置されて いるグローブボックスに移送した後に、過酸化水素の測定を行う予定である。しかしながら、 一般に過酸化水素は分解しやすい性質を有しているため、ホットセルからグローブボックス に移送する間に分解が進行し、濃度が低下することが懸念される。そのため、安定剤を含ま ない過酸化水素試薬(原子吸光分析用)を用いて、数日間静置した際の濃度変化を評価する 試験を実施した。実燃料を浸漬する容器としては前述②項で示したガラスを用いることを検 討しているが、ホットセルからグローブボックスに移送するための容器としては、ポリエチ レン又はガラス製の容器の使用を検討しているため、試験にはこの2種類の容器を使用した。 また、過酸化水素の分解速度は、共存物質の有無に大きく影響を受けることが知られている ため、イオン交換水の他に、地下水に含まれる代表的な成分である NaCl および NaHCO3 を 1 mM に調整した溶液中においても試験を実施した。アルファ線の放射線分解により生成するバル ク溶液中の過酸化水素濃度は ppm オーダーとの報告があるため(Amme et al., 2012)、初期 の過酸化水素濃度を約1.9 ppmとした。過酸化水素濃度の測定には多項目水質分析計(ラム ダ 9000)を使用し、過酸化水素が 4-アミノアンチピリンとペルオキシターゼと反応し、紫色 に呈色することを利用し、吸光光度法により定量を行った。各条件における過酸化水素濃度 の経時変化を図 3.1-26 に示す。いずれの条件下においても、2回の試験において再現性が認 められ、かつ、急激な過酸化水素濃度の低下は認められなかった。過酸化水素の分解速度は、 条件により異なるため、今後も溶出が予想される金属イオンが共存する系など、種々の条件 下における過酸化水素濃度の経時変化に係るデータを蓄積する予定である。

3 - 25



図 3.1-26 過酸化水素濃度の経時変化

⑤ 試験計画の検討

以上のように、平成 31 年度は燃料浸漬試験を実施する設備を決定するとともに、ホットセ ルの使用を想定して試験容器や治具の設計および製作を実施した。雰囲気を制御した試験の 実施については課題が多いことから、令和 2 年度以降に大気雰囲気における燃料浸漬試験に 着手し、核種放出挙動の全炭酸濃度依存性などを概略的に調査する予定である。並行して、 雰囲気を制御した試験の実施に向けた検討や治具等の製作を実施し、令和 4 年度の雰囲気制 御下での試験の着手を目指す。

(5) 核種の瞬時放出およびマトリクス溶解に関する最新動向調査

1) はじめに

実燃料を使用して多数の燃料を試験することは容易ではなく、燃料ごとのばらつきを検討 するためにはデータが限定的であること、また核種の分析方法や解析方法は日進月歩進化し ており、過去の試験結果の再検討や過去の試験において分析が不可能であった項目の分析の 実施がされることがあるため、最新の知見を調査し情報を蓄積する必要がある。

平成 31 年度は、使用済燃料からの核種の瞬時放出挙動と燃料マトリクスからの核種放出挙動に関する最新情報として、欧州共同体(EU)の国際共同研究(「DisCo」プロジェクト)の年次進捗会議予稿集(Evins et al., 2019)、近年公開された Journal of Nuclear Materials等の公開学術雑誌の文献を調査した。核種の瞬時放出挙動については、使用済燃料の状態と浸漬試験を組み合わせた報告事例は少ないが、高燃焼度燃料でよく見られる燃料ペレットと被

覆管が癒着するボンディングにより特異的な核種放出をする可能性が浸漬試験により捉えら れた事例が報告されていた(後述の 2)①項参照)。また、使用済燃料の燃料マトリクスの溶解 挙動は、溶存酸素や水の放射線分解により生じた H₂O₂等の酸化性化学種、H₂O₂を除去する Fe²⁺、 H₂の還元反応、UO₂の酸化と UO₂ペレット中の白金族相(ϵ -particles)によるウランの還元 反応などが関係する複雑な反応が想定されており、これらの反応の寄与の有無については諸 説があるものの燃料マトリクスの溶解速度は 10⁻⁷ y⁻¹ というような遅い速度となると考えら れている。さらに、燃料マトリクス部の溶解について燃料ペレット中に存在する FP の効果が あり、近年の研究では UO₂燃料に添加する添加物(ガドリニア(Gd₂O₃)など)を FP のアナログ として浸漬試験を実施した事例が報告されており、FP の存在が溶解速度の上昇を抑制する一 つの要因となる可能性があると考えられる(後述の 2)②項参照)。

2) 調査結果

① 高燃焼度 UO2 燃料のギャップからの放出挙動等

使用済燃料からの核種の瞬時放出挙動については、近年公開された公開文献ではスウェー デンの Studsvik 社のホットラボで実施された高燃焼度 PWR-U02燃料の浸漬試験結果 (Roth et al., 2019)のみであった。この試験は、Zwicky et al. (2011)が実施した4種類の高燃焼度 PWR 使用済燃料 (燃料棒平均燃焼度 50.2 ~ 70.2 GW d tU⁻¹(計算値))の被覆管付きセグメン ト試料の浸漬試験を最長 1,889 日間(約5 年間)まで延長するとともに、同じ燃料棒から採取 した燃料片試料の浸漬試験(浸漬期間:最長 1,149 日間(約3 年間))を加えている。

核種の瞬時放出挙動に関する結果として、3V5-013(燃料棒燃焼度 60 GW d tU⁻¹)と AM2-K12 (燃料棒燃焼度 70.2 GW d tU⁻¹)の I-129とCs-137の累積放出率を図 3.1-27に示す。同図 では、3V5-Q13 については I-129、AM2-K12 については Cs-137 と I-129の両方に累積放出率 の急上昇が見られる。この要因として照射時の燃料ペレットと被覆管の癒着(ボンディング) により核種がボンディング層に閉じ込められ、ボンディング層が溶解することにより移行経 路が形成され核種放出が起きたと推定されている。燃料ペレットと被覆管のボンディングの 出現は燃焼度や線出力が起因しており(Nogita and Une, 1997)、高燃焼度になるほど同じペ レット平均燃焼度であっても低い線出力で全周ボンディング相が出現し、例えばペレット平 均燃焼度が 60 GW d tHM⁻¹の使用済燃料では 8 ~15 kW m⁻¹の線出力で全周ボンディングの可 能性があるとされている(原子力安全協会, 2013)。このような線出力範囲は、わが国の高燃 焼度 U02 使用済燃料が経験する可能性が考えられる。

この結果を受けて、同じような核種放出率の急上昇が確認された事例がないかどうか 「FIRST-Nuclides」プロジェクトの第3回年次進捗会議の予稿集(Kienzler et al., 2012)を 調査したが、ギャップからの瞬時放出と考えられる現象は浸漬試験開始から1年以内に生じ ており、図3.1-27と同じ現象は確認されなかった。このことと、Roth et al. (2019)が浸漬 試験をした使用済燃料の全部からボンディング相の核種放出の可能性がある現象が確認され ているわけではないことから、ボンディング相からの核種放出は高燃焼度 UO₂燃料で常時起 きる現象ではないと考えられる。また、ボンディング相からの核種放出はリム領域からの核 種放出と現象が類似していることも考えられる。

ボンディング相からの核種放出を報告した文献は、現在のところ少なく知見も不足してい

ることから、ギャップやリム領域の核種量の知見と併せて、浸出試験において放出された核 種量との関係についての知見の拡充が必要である。



図 3.1-27 PWR 使用済燃料試料 (AM2-K12、3V5-013)の Cs と I の累積放出率の時間変化 (プロットは Roth et al. (2019)のグラフの読み取り値)

② 添加物含有 UO2 燃料の長期溶解挙動

「DisCo」プロジェクトは、使用済燃料からの核種の瞬時放出/早期放出挙動を対象とした 「FIRST-Nuclides」プロジェクトの後継プロジェクトであり、MOX 使用済燃料とクロミア (Cr203)、A1-Cr 系酸化物もしくはガドリニア(Gd203)を添加した UO2燃料の燃料マトリクス からの核種放出挙動(炭酸濃度は 2×10⁻³ M 程度)が主な研究対象であるが、実燃料の浸漬試 験を実施することから核種の瞬時放出率に関するデータも取得する予定である。2019年5月 の年次進捗会議では、プロジェクトで浸漬試験を実施する予定の実燃料の一部と模擬燃料の 大部分が試験に着手しており、試験の大部分は 100 日前後、最長 200 日の浸漬データが取得 されている。また、UO2格子内の Cr や Gd の分子構造的な検討や燃料の燃焼の進展によって生 じる酸素欠陥の検討などが進められており、これらの検討は UO2 中に FP が存在した場合に UO2 が溶解しにくくなる現象に関する検討と類似した検討手法であるので、添加物 UO2 燃料の研 究結果は、添加物(Cr や Gd 等のカチオン元素)を FP のアナログとして考えた知見として利 用できる可能性がある。しかしながら、「DisCo」プロジェクトは、現段階ではプロジェクト の結論までは至っていないことから今後とも調査する必要がある。

添加物含有 U0₂燃料の添加物を U0₂ペレット中の FP のアナログとして模擬 U0₂燃料の浸漬 試験を実施した事例が近年複数公開されている。わが国の商用原子炉燃料で採用されている ガドリニア (Gd₂O₃)添加 UO₂燃料について以下に示す。UO₂ 中で Gd はIII価で存在し、イオン半 径が U(IV)と近いため固溶体を形成しやすい。UO₂ペレットは Gd 含有率が 40 mo1%まで 1 mo1%Gd₂O₃に対し 0.002 Åの割合で純粋な UO₂ペレット試料よりも格子定数が低下する (IAEA, 1995)。この格子定数の低下は、ウランが U(IV)からよりイオン半径が小さい U(V)に変化す ることにより生じ、UO₂ペレット全体の電荷補償の結果 O₂欠陥サイト数の減少が生じて UO₂の 安定性が増し、酸化溶解しにくくなると推定されている (Barreiro Fidalgo and Johnson, 2019)。 Gd₂0₃ 添加燃料の浸漬試験の事例として、Casella et al. (2016)の模擬 U0₂試料のフロー試 験結果を図 3.1-28 に示す。浸漬試験は未照射 U0₂ペレット試料 (Gd₂0₃:0~4 wt%)と未照射 U0₂ 粉末試料 (Gd₂0₃:0~3 wt%) について、Gd₂0₃含有率、温度、酸素濃度をパラメータとし た実施した。ここで、Gd₂0₃含有率の範囲を設定する際に想定した 1,000 年後の使用済燃料は Gd₂0₃ が 0.04 wt%含まれると評価されており、4 wt%の Gd₂0₃含有率は 1,000 年後の使用済燃 料の FP やアクチニド元素の量から設定されている。図 3.1-28 から 25 °Cの 3 wt%Gd₂0₃のデ ータを除き、全体的には Gd₂0₃含有率が増加すると溶解速度が低下する傾向が確認できる。こ の傾向は温度が高温になるほど顕著になる。また、酸素濃度に対しては、Gd₂0₃を添加しない ケースでは酸素濃度が増加すると溶解速度が上昇するのに対し、Gd₂0₃を含むケースでは溶解 速度の上昇が抑制されている。

次に、Barreiro Fidalgo and Johnson (2019)の Gd₂0₃含有率 0 ~ 8 wt%の未照射 U02ペレ ット試料の 10⁻² M NaHCO₃ 水溶液の浸漬試験結果を表 3. 1-6 に示す。Casella et al. (2016) と Barreiro Fidalgo and Johnson (2019)では、使用済燃料に含まれる FP とアクチニド元素 の量および U02 の酸化剤(溶存酸素、H202)が異なる。FP とアクチニド元素の量の差異は、想定 する使用済燃料の炉型、照射条件、炉取り出し後の経過時間等が異なっているためであると 考えられる。表 3. 1-6 中の「Control」は U02ペレット試料を浸漬させない H202 を添加した溶 液のみのケースであり、試験容器の壁などでペレット試料の溶解以外の要因により H202 濃度 が減衰する影響を確認できる。また、H202 による U02 の酸化溶解 (U02(s)+H202→U02²⁺(s)+OH⁻ (酸 化段階); U02²⁺(s)→U02²⁺(aq)</sub>(溶解段階))を考え、H202 の消費速度により U02 の溶解の程度を 確認している。表 3. 1-6 の Gd00~Gd80 の H202 の消費速度を見ると、H202 の消費速度は U02 中 の Gd203 の存在によって低下しており、Gd203 の含有率に依存していないように見える。さら に、試験溶液に H202 溶液を添加する代わりに Gd203添加 U02ペレット試料を加えた 10⁻² M NaHCO3 溶液に Cs-137 線源(γ線源、吸収線量率:0.058~0.150 Gy s⁻¹)で照射する試験においても液 相中の U(IV)濃度の上昇が抑制される傾向が確認されたことが報告されている。

以上の知見から、使用済燃料を酸化させ溶解速度を速くする要因となる溶存酸素と H₂O₂ に 対して、UO₂ 燃料中の FP は燃料マトリクスの溶解速度の上昇を抑制する理由の1つであると 考えられる。この現象については、DisCo プロジェクト等で知見が拡充されるものと考えられ るため継続して調査する必要がある。

3 - 29



注)溶解速度は、試料中のウランの質量で規格化している。

図 3.1-28 Gd₂O₃含有率、試験温度、O₂濃度を変数とした模擬 UO₂試料の溶解速度 (Casella et al., 2019)

試験 ID	U02試料	Gd ₂ O ₃ 含有率 (wt%)	H ₂ O ₂ 消費速度 (mol m ⁻² s ⁻¹)		
Control	なし	0	$(3.6\pm0.1) imes10^{-8}$		
Gd00		0	$(1.8\pm0.1) imes10^{-7}$		
Gd30	たり	3	$(1.03\pm0.09) imes10^{-7}$		
Gd45		4	$(1.02\pm0.09) imes10^{-7}$		
Gd80		8	$(8.8\pm0.1) imes10^{-8}$		

表 3.1-6 H₂O₂ 添加浸漬試験の液相中の H₂O₂ 消費速度(mol m⁻² s⁻¹)

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ひとつとして考えられている。銅製容器の処分への 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評価が必要であると同 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)。本事業では、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、わが国の地層処分に特 有の条件として、以下の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 査を進める。

- ベントナイトとして使用が想定されるクニミネ工業製クニゲル V1 の変質挙動の評価
- ・ 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から、炭酸が共存した条件での変質挙動の評価
- 廃棄体と人工バリアの定置方式のひとつとして鋼製 PEM (Prefabricated Engineered Barrier System Module) 容器の使用が想定されるていることから、PEM 容器の腐食に より生成する鉄腐食生成物が変質挙動に及ぼす影響の評価

2) 調査手法

試験手法や目的について表 3.2-1 に示す。調査では、試験手法として以下の2種類を用いた。

 カラム変質試験: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

・ バッチ変質試験: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

ここで、カラム変質試験は、実際の処分環境に近い圧縮状態でのベントナイトの変質挙動を 観察することが可能であるものの、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、ベントナイトの変質量が少なく、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 イトの変質量が大きくなり、変質挙動を観察することが容易となる一方で、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った。

本調査において対象とする変質環境として、廃棄体定置直後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、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した。また、酸素が残存する比較的酸化性の条件で は塩化物イオンが腐食に関与し(King et al., 2002)、酸化剤が存在しない環境では硫化水 素イオン共存下で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した。

対象とする変質については、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った。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には、ベントナイトの膨潤性が失われるとともに、放射性核種の収着 能が低下する可能性がある。また、モンモリロナイトがCu型化した場合にも、膨潤性や収着 能の低下の可能性も報告されている(たとえば、Madejová et al., 2006)。以上のことから、 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これらの変質現象を調査の対象とし た。

試験手法	カラム変質試験	バッチ変質試験		
	実際の処分環境に近い条件での	銅との相互作用によるベントナ		
試験の目的	銅との相互作用による圧縮ベン	イトの変質可能性の検討、変質メ		
	トナイトの変質挙動の評価	カニズムの理解		
	・廃棄体定置直後に残存する酸素による酸化性の条件でのベントナ			
対色レナス亦所理由	イトの変質(NaCl 共存下)			
対象とりの変員環境	・残存する酸素が消費され還元条件になった環境でのベントナイト			
	の変質(硫化水素イオン共存下)			
計毎しする亦伝	・モンモリロナイトの他鉱物への変質			
刈家とりの変員	・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) 調査内容

1)項および2)項に示した内容に基づいて、まず、炭酸や鉄腐食生成物が共存しない基礎的 な変質挙動の評価として表 3.2-2の条件および分析手法を設定し、平成 30 年度より評価を開 始した。平成 30 年度の調査においては、低酸素条件での硫化水素イオン共存下でのカラム変 質試験(試験③)の EPMA および XRD 分析、および酸化性雰囲気でのバッチ変質試験(試験②) の XRD 測定等を実施した。その結果、カラム変質試験においては、腐食により移行した Cu が ベントナイトに含まれる黄鉄鉱周辺で沈殿していること、実施した試験条件において、モン モリロナイトの変質により生成すると推測される新たな鉱物は生成していないことを確認し た。また、バッチ変質試験においても、実施した試験条件において、モンモリロナイトの変 質を示す結果は得られなかった。

平成 31 年度の調査では、平成 30 年度に未実施であった、酸化性雰囲気でのカラム変質試

験(試験①)((2)項参照)と低酸素雰囲気でのバッチ変質試験(試験④)((3)2)項参照) を実施し鉱物の変質状況について調査するとともに、酸化性雰囲気でのバッチ変質試験(試 験②)の溶液組成分析、陽イオン交換容量(CEC)測定、XRD測定によるCu型化の分析((3)1) 項参照)を実施した。

環境	試験溶液	試験手法	緩衝材	分析手法	
酸化性		カラム	クニゲル V1	EDWA / VDD / CEC 測字	試験①
	0.5 mol l ¹ NaCl 溶液		クニピアF	EPMA/ARD/UEU (则) た	
		バッチ	クニピアF	XRD/CEC 測定/溶液組成分析	試験②
低酸素	人工海水+	カラム	クニゲル V1	EDWA /VDD /CEC 測字	試験③
	0.01 mol l ⁻¹ Na ₂ S 溶液		クニピアF	EPMA/AKD/UEU (則) た	
		バッチ	クニピアF	XRD/CEC 測定/溶液組成分析	試験④

表 3.2-2 基礎的な変質挙動の評価に関する試験条件

(2) 銅試験片と圧縮ベントナイトの接触試験(カラム変質試験)

1) 試験手順および条件

本試験では、処分場への廃棄体定置直後に残存する酸素による酸化性の条件でのベントナ イトの変質について、実際の処分環境に近い圧縮状態でのベントナイトの変質挙動を観察す るため、酸化性雰囲気でのカラム変質試験(表 3.2-2 の試験①)を実施した。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。試験カラム内部の 圧縮ベントナイト充填部の形状は直径 20 mm、長さ 20 mm、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、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。圧縮ベントナイトはフィルターを介し て外部の試験溶液と接触しており、試験期間中は含水飽和状態が維持される構造となってい る。

平成 30 年度の試験においては、低酸素雰囲気下で人工海水に、0.01 mol 1⁻¹となるように Na₂S を添加した溶液を用いて試験を実施した(表 3.2-2の試験③)。その結果、圧縮ベント ナイト中に移行した Cu が黄鉄鉱の周辺部に濃集していることが確認され、また、XRD 分析で は、モンモリロナイトの変質を示す鉱物は検出されなかった。平成 31 年度の試験においては、 酸化性雰囲気で 0.5 mol 1⁻¹ NaCl 溶液を用いて試験を実施し(表 3.2-2の試験①)、圧縮ベ ントナイトの変質状況の分析を行った。平成 31 年度の分析では、EPMA による圧縮ベントナ イトの変質状況の調査と XRD による圧縮ベントナイト中の鉱物の同定を行った。

試験は、ベントナイトを試験カラムに充填した後、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、80 ℃の恒温槽内で 33 日間 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を切断した。切断片は、乾燥させて樹脂包埋した後、ミクロトームを用 いて切断し、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、大気下で乾燥させ、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 3.2-2 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。上端部の銅試験片との接触面の圧縮ベントナイトが一部白色を呈しており、銅試験片 の腐食に伴って銅腐食生成物が圧縮ベントナイト中に移行したと考えられる。この白色に変 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 3.2-2 カラム試験後の圧縮ベントナイト試料写真

図 3.2-3 に、EPMA 分析結果を示す。画像の視野は約 260×260 µm²であり、BEI が観察表面 の反射電子像、Cu とラベルした画像が BEI で示す部分の Cu のマッピング結果である。なお、 これら画像は、画像の下部が圧縮ベントナイトと銅試験片が接触していた界面である。図 3.2-3 からわかるように、Cu のマッピング画像には、Cu の濃度の高いことを示す色の明るい部分 が銅試験片との界面付近にスポット的にわずかに見られるのみであり、銅腐食生成物は圧縮 ベントナイト中に広範に高濃度で分布していないと考えられる。

圧縮ベントナイト中に移行した銅腐食生成物の化学形態について調査するため、図 3.2-3 の赤枠で示す部分について、EPMA 分析を行った結果を図 3.2-4 に示す。図 3.2-3 と同様に、 BEI が反射電子像、Cu、S、Fe、Si、A1、Ca、C1 とラベリングした画像が各元素のマッピング 分析結果である。図 3.2-4 中に矢印で示す色が明るい部分が Cu の濃度が高いことを示してお り、同じ部分でSの濃度も高くなっていることがわかる。一方で、Fe のマッピング分析結果 より、この Cu 濃度が高い部分には、Fe が含まれていないことがわかる。試験に使用したベン トナイトであるクニゲル V1 には、元々Fe と S からなる黄鉄鉱が含まれており、黄鉄鉱には 微量の Cu が含まれているが、これらの黄鉄鉱は S および Fe のマッピング画像の左上に見ら れるようなSとFe両方の濃度が高い部分として検出される。そのため、本マッピング分析に より確認された Cu の濃度が高い部分は、黄鉄鉱に含まれる Cu を検出したものではなく、新 たに生成した硫化銅であると推測される。このことは、本試験においては硫化物を含まない NaCl 溶液を使用して試験を実施しているが、銅試験片の腐食には硫化水素イオンが関与して いることを示唆する結果である。本試験において使用したベントナイトであるクニゲル V1 中 には、硫化鉱物として黄鉄鉱のみが含まれているため、黄鉄鉱が硫化水素イオンの供給源と 考えられる。そのため、黄鉄鉱の溶解により放出された硫化水素イオンにより銅試験片が腐 食し、それに伴い放出された銅が硫化銅として沈殿したと推測される。また、平成 30 年度に 実施した低酸素雰囲気でのカラム変質試験(表 3.2-2 の試験③)においても、硫化銅の生成 が示唆される結果が得られているが、本試験の結果と異なり、黄鉄鉱粒子の周辺部で特に高 い濃度の Cu と S が検出されている。平成 30 年度の試験においては、人工海水に濃度 0.01 mol 1⁻¹の Na₂S を添加した溶液を使用しており、硫化水素イオンが高濃度で含まれていること が試験結果の相違に関係しているものと考えられる。

XRD による分析については、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。



260 µm

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 (約 260×260 μm²)



60 µm

図 3.2-4 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 (図 3.2-3 の赤枠部、約 60×60 μm²)

(3) 銅粉を用いたバッチ系でのベントナイト変質試験

1)酸化性雰囲気でのバッチ変質試験

① 試験手順および条件

本試験では、処分場への廃棄体定置直後に残存する酸素による酸化性の条件における銅との相互作用によるベントナイトの変質可能性の検討と変質メカニズムの理解のため、酸化性雰囲気でのバッチ変質試験(表 3.2-2 の試験②)を実施した。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。平成 30 年度の試験においては、酸化性雰囲気で 0.5 mol 1⁻¹ NaCl 溶液を用いて 試験を実施し、XRD 測定によりモンモリロナイトの変質に伴う新たな鉱物の生成がないこと を確認した。平成 31 年度の試験においては、平成 30 年度に未実施であった XRD 測定による ベントナイトの Cu 型化の分析と、試験溶液の組成分析、ベントナイトの CEC 測定を行い、ベ ントナイトの変質挙動について調査した。本試験では、ベントナイト試料として、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 μ m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 1⁻¹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 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⁻¹および 50 ml g⁻¹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。

平成31年度の分析では、試料を所定の試験期間反応させた後に、定方位試料を作製して湿 度制御下でXRD 測定を行い、モンモリロナイト層間イオンの価数について検討を行った。定 方位試料は、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。また、試験溶液 の組成分析は、試験後の試料について、遠心分離を行った後に上澄み液を採取し、上澄み液 中のA1、Ca、Cu、Fe、Mg、Si 濃度を ICP-AES により測定することにより行った。ベン トナイトの CEC 測定は、遠心分離後に固相を採取し、乾燥させた試料を使用した。CEC 測定で は、この試料について、1 mol 1⁻¹の NH₄C1 溶液を添加して 2~3 日振とうした後、遠心分離 を行って上澄み液を廃棄した。この作業を3回実施した後、1 mol 1⁻¹の KC1 溶液を添加して 2~3 日振とうした後、遠心分離を行って上澄み液を一部採取し、イオンクロマトグラフに より NH₄*濃度の測定を行い、残りの上澄み液は廃棄した。この作業を3回実施し、抽出された NH₄*量より CEC を算出した。

2 試験結果

図 3.2-5 に、湿度制御下での XRD 測定の結果を示す。また、図 3.2-6 に、各試料のモンモ リロナイト底面間隔の変化の相対湿度依存性を示す。モンモリロナイト底面間隔は、図 3.2-5 の XRD 測定結果のピーク位置より算出した。図 3.2-6 に示すように、試料中に銅を含まな い試料 No.1 と、液固比 20 ml g⁻¹で銅ベントナイト比が 4:1 である試料 No.2 では、相対湿度 の変化に伴う底面間隔の変化が Na 型とほぼ同じであるのに対し、これらの試料より液固比の 高い試料 No.3 (銅ベントナイト比 1:1) および試料 No.4 (銅ベントナイト比 1:4) 中のモン モリロナイトの底面間隔は、相対湿度が 30 %程度までの低い相対湿度の領域で Ca 型の挙動 に近づいていることがわかる。このことは、試料中のモンモリロナイトの層間イオンに 2 価 イオンが含まれていることを示唆している。

図 3.2-7 に、溶液組成分析の結果を示す。溶液組成分析の結果より、モンモリロナイト構成元素である Si、A1、Mg 等の元素の溶出はほとんど確認されず、モンモリロナイトの溶解がないことが確認できる(図中*で示す銅粉非共存条件での Si 濃度の上昇は、試料中の非晶質シリカ等の溶解によるものと推測される。銅粉が共存する条件での Si 濃度の低下は、Cu と Si を含む鉱物の沈殿による濃度低下の可能性があるものの、A1、Mg の元素の溶出が確認されないことから、モンモリロナイトの溶解はないと推測される)。また、溶液中の Ca については、全ての試料について比較的高い濃度が検出されており、この濃度上昇は、ベントナイト

試料中に含まれるカルサイトの溶解によるものと推測される。溶液中の Cu 濃度については、 全体的に低い値を示しているものの、試料 No.2 で、他の試料に比べて Cu 濃度が高い傾向が 見られている。これらの結果に基づく検討を以下に示す。

湿度制御下での XRD 測定の結果と溶液組成分析の結果を比較すると、溶液組成分析により 試料 No.1 および試料 No.2 において比較的高い Ca 濃度が検出されている一方で、湿度制御 XRD 測定の結果より、これらの試料中のモンモリロナイトの層間イオンが Na 型であることを 確認している。このことは、本試験の条件では、溶液中の Ca 濃度の上昇によるモンモリロナ イトの Ca 型化が起こらないことを示している。そのため、試料 No.3 および試料 No.4 で示唆 されたモンモリロナイト層間の2価イオンの存在は、銅粉の共存に起因する Cu 型化を示すも のと推測される。一方で、液中の Cu 濃度は全体的に低い値を示し、また、層間に2価イオン が存在することが示唆された試料 No.3 および試料 No.4 に比べて、層間イオンが Na と考えら れる試料 No.2 の方が高い Cu 濃度が検出されている。このことは、モンモリロナイト層間イ オンが Cu 型に変化した要因が、溶液中の Cu 濃度の上昇によるものではないことを示唆して いる。そのため、銅粉の共存によりモンモリロナイトが Cu 型化する可能性が示唆されたもの の、現状においては Cu 型化の要因は不明であり、今後、Cu 型生成条件の検討等が必要である と考えられる。

また、図 3.2-8 に、CEC 測定結果を示す。図中に示す比は、銅とベントナイトの比を示す。 試料の CEC は、いずれの銅ベントナイト比および液固比の試料についても、銅粉を添加して いない試料とほぼ同じ値を示している。モンモリロナイトの変質により生成する可能性のあ る非膨潤性粘土鉱物や非晶質シリカ等は、モンモリロナイトに比べて CEC が大幅に低いこと から、本測定結果は、銅との相互作用によるモンモリロナイトの大きな変質は起こっていな いことを示している。





図 3.2-5 湿度制御下での XRD 測定結果 (液固比は溶液量とベントナイト重量の比を示す)







図 3.2-7 溶液組成分析結果



図 3.2-8 CEC 測定結果 (図中の比は銅ベントナイト比を示す)

2) 低酸素雰囲気でのバッチ変質試験

① 試験手順および条件

本試験では、廃棄体定置直後に残存する酸素が消費され、還元条件になった環境での銅との相互作用によるベントナイトの変質可能性の検討と変質メカニズムの理解のため、低酸素 雰囲気でのバッチ変質試験(表3.2-2の試験④)を実施した。試験は、前述の1)項に示す酸 化性雰囲気でのバッチ変質試験(表3.2-2の試験④)と同様に、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 トナイト試料としてクニピアFを、銅粉試料として粒径75~150 µmの銅粉末(関東化学製 銅(粉末)07439-31)を使用した。試料の液固比は溶液量とベントナイト重量比で20 ml g⁻¹ とし、銅とクニピアFを1:1の重量比で混合した。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 1⁻¹ となるように Na₂S 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 3.2-3 に示す。試験溶液、試験試料の作製は全て酸素濃度 1 ppm 以下の窒素雰囲気グローブボックス内で実施した。また、試験試料作製後、窒素雰囲 気グローブボックス内で、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 袋に封入した試験試料は、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。

試料は、所定の試験期間反応させた後に、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。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。

元素	濃度[mol 1 ⁻¹]	元素	濃度[mol 1 ⁻¹]
K^+	0.010	HCO ₃ ⁻	0.0028
Na^+	0.48	SO_4^{2-}	0.029
Ca ²⁺	0.011	C1-	0.56
Mg^{2+}	0.055	-	-

表 3.2-3 試験に使用した人工海水の組成

2 試験結果

図 3.2-9 に、不定方位試料の XRD 測定結果を示す。測定結果より、Cu のピークに加え、Cu が酸化して生成した Cu₂0 のピークが確認された。一方で、本試験は低酸素雰囲気で実施し、 人工海水に 0.01 mol 1⁻¹ となるように Na₂S を添加した溶液を用いて試験を実施したものの、 硫化銅の生成を示すピークは確認されなかった。平成 30 年度に同様の試験溶液条件で実施し たカラム試験(表 3.2-2 の試験③)においては、EPMA 分析により硫化銅の生成が推測されて いる。この相違の理由等は現段階では不明であるものの、Cu₂O のピークが確認されているこ とから、銅の腐食は発生しており、銅の腐食に伴うモンモリロナイトの変質が起こりうる環 境であると思われる。

モンモリロナイトの変質に関しては、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。 このことから、本試験の条件では、モンモリロナイトが変質し、新たな鉱物に変化する反応 が起こっていないと考えられる。ただし、非晶質の物質が生成している場合には鉱物のピー クが観察されないため、今後、CECの変化についての分析を実施し、その結果などとも組み合 わせながらモンモリロナイト変質の可能性についての検討を行う必要があると考えられる。 なお、試験終了時の試験溶液のpH は 7 程度であり、モンモリロナイトの溶解が顕著となるpH 領域(pH4 以下または pH10 以上)に変化することはなかった。



図 3.2-9 低酸素雰囲気下でのバッチ変質試験試料の XRD 測定結果(不定方位試料)

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、二酸化ウランの溶解速度 について、平成 30 年度に実験を開始した試料を用いてより長期のデータを取得するととも に、より高密度のペレットを用いたデータ取得を行った。溶存ウラン濃度は時間経過ととも に低下し、実験開始から概ね 50 日程度までに安定すること、また全炭酸濃度の増加とともに 高くなる一方で、実験期間が長くなるとその依存性が小さくなる傾向が見られた。その一方 で、初期状態がペレット状のウランが一旦溶解したのち再沈殿する傾向も見られた。得られ た結果を用いて、再沈殿の可能性を含むみかけの溶解速度を算出し、既往の文献値と概ね整 合することを確認した。長期的には溶解速度が下がっていく傾向を示すと考えられるものの、 現状の試験では二次鉱物生成による沈殿の影響が含まれると考えられるので、そのメカニズ ムを明らかにすることが今後の課題である。

炭酸共存下におけるウラン(IV)の溶解度について、過飽和側の試験のみを実施した平成 30年度に実施した試験と比較して、不飽和側の試験を行うとともに無機炭素濃度条件を拡充 してデータを取得したところ、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 りも顕著に高くなる結果が再現され、ウランが酸化されて6価の炭酸錯体が生成したことが 示唆された。その一方で、実測値が熱力学計算値を大きく上回ったことから、その原因を明 らかにすることが課題として残った。

IRF の設定に向けての、実際の使用済燃料を模擬地下水(緩衝材間隙水)に浸漬する試験研

究の実施の準備として、浸漬試験に使用する施設の選定や使用済燃料の絞り込み、試験器具 の準備、試験中の空間線量率測定方法の検討、試験で発生する過酸化水素の定量方法の検討、 試験計画の策定などの作業環境の整備と試験計画の策定を実施し、令和2年度以降の浸漬試 験の着手に向けて順調に準備を進めた。また、核種の瞬時放出率とマトリクス溶解に関する 最新情報の調査として、欧州共同体の国際共同研究と近年公開された公開学術雑誌を調査し たところ、高燃焼度 UO₂燃料のボンディングしたギャップから遅延して核種放出が生じる可 能性もあること、Gd₂O₂等の添加物含有 UO₂燃料の溶解挙動の研究を通じて、使用済燃料中の FP の存在により燃料マトリクスが溶けにくくなる可能性などが示されていた。

今後、ウランの溶解速度評価については、ウランの溶解と再沈殿を区別した実験手法を適 用した実験的調査を実施するとともに、固相表面の観察等をより詳細に観察することにより 溶解速度との関連性を調査する。ウランの溶解度評価についても、溶解速度試験と溶解度試 験でのウラン濃度の違いについて、固相の違いやそれら固相との平衡状態などに着目した検 討を進める。また、海水系など多様な地下水に対応すべく、塩濃度等を変えた溶解度試験を 実施し、これらのデータを拡充する。使用済燃料の浸漬試験については、過酸化水素の定量 方法など浸漬試験に必要な周辺技術の確立を目指すとともに、大気雰囲気下の浸漬試験に着 手する。また、各試験について瞬時放出や燃料溶解に関する海外の最新情報を引き続き調査 し、その成果を各種試験等に反映する。

・ 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を検討するために、酸化 性雰囲気、NaC1 共存下でのカラム変質試験、ならびに、酸化性雰囲気、NaC1 共存下および低 酸素雰囲気、硫化水素イオン共存下でのバッチ変質試験を行い、ベントナイトの変質や Cu 型 化について調べた。その結果、硫化物を含まない NaC1 溶液を使用したカラム変質試験におい ても、圧縮ベントナイト中に移行した銅が硫化銅として存在していることが観察された。ま た、酸化性雰囲気、NaC1 共存下のバッチ変質試験において、モンモリロナイトが一部 Cu 型化 している可能性のある分析結果が得られた。一方で、実施した全ての試験において、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、モンモリロナイトの変質の可能性についてより詳細に検討するために、陽イオン 交換容量(CEC)の測定を実施するとともに、炭酸および鉄共存下での変質試験を実施し、こ れらが変質挙動に及ぼす影響の評価を進める。また、これまでに実施した試験条件において はモンモリロナイトの変質が観察されていないことから、銅粉と圧縮ベントナイトを混合し てカラム試験を実施する等、銅とベントナイトの相互作用を促進させる条件下での試験によ り、モンモリロナイトの変質の有無や挙動についての検討をさらに進める。このような試験 により、実際の環境に近い圧縮ベントナイト中での銅の腐食量とベントナイトの変質挙動の 関係等を検討し、処分環境での長期にわたる銅との相互作用に伴うベントナイトの変質の可 能性について評価する。さらに、これまでの試験により、モンモリロナイトの Cu 型化、圧縮 ベントナイト中での硫化銅の生成の可能性が示唆されたことから、Cu 型化が起こる条件の明 確化や、酸化性雰囲気での硫化物が関与した銅の腐食に伴うベントナイトの変質への影響等 についても焦点を当て、検討を進める予定である。

【参考文献】

- Amme, M., Pehrman, R., Deutsch, R., Roth, O. and Jonsson, M. (2012) : Combined effects of Fe(II) and oxidizing radiolysis products on UO₂ and PuO₂ dissolution in a system containing solid UO₂ and PuO₂, Journal of Nuclear Materials, 430, pp. 1-5.
- Barreiro Fidalgo, A. and Jonsson, M. (2019) : Radiation induced dissolution of (U,Gd)O₂ pellets in aqueous solution - A comparison to satandard UO₂ pellets, Journal of Nuclear Materials, 514, pp. 216-223.
- 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.
- Casella, A., Hanson, B, and Miller, W. (2016) : The effect of fuel chemistry on UO2 dissolution, Journal of Nuclear Materials, 476, pp. 45-55.
- Evins, L. Z., Juhola, P. and Vähänen, M. (2014): REDUPP final report, Working Report 2014-12, Posiva Oy.
- Evins, L.Z., Valls, A. and Duro, L. (ed.) (2019) : 2nd Annual Meeting Proceedings, DISCO DELIVERABLE D1.15.
- 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)(2014):福島第一原子力発電所事故に係る圧力容器/ 格納容器の健全性評価技術の開発;人工海水への照射済燃料成分の溶出と炭素鋼の腐食 に及ぼす影響因子の評価,JAEA技術報告書,JAEA-Research 2014-007.
- 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.
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2019): 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.
- IAEA (1995) : Characteristics and use of urania-gadolinia fuels, IAEA-TECDOC-844, pp. 18-19.
- Kienzler, B., Metz, V., Duro, L. and Valls, A. (ed.) (2012) : Final (3rd) Annual Workshop Proceedings, FIRST-Nuclides DELIBERABLE report D. 5. 4.
- 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.
- 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 UO₂ 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.
- Kitamura, A. (2019): Update of JAEA-TDB: Update of thermodynamic data for zirconium and those for isosaccahrinate, tentative selection of thermodynamic data for ternary M²⁺-UO₂²⁺-CO₃²⁻ system and integration with JAEA's thermodynamic database for geochemical calculations, JAEA-Data/Code 2018-018.
- Madejová, J., Pálková, H. and Komadel, P. (2006): Behaviour of Li⁺ and Cu²⁺ in heated montmorillonite: Evidence from far-, mid-, and near-IR regions, Vib. Spectrosc., Vol. 40, pp. 80-88.
- Magnin, M., Jégou, C., Caraballo, R., Broudic, V., Tribet, M., Peuget, S. and Talip, Z. (2015) : Oxidizing dissolution mechanism of an irradiated MOX fuel in underwater aerated conditions at slightly acidic pH, Journal of Nuclear Materials, 462, pp. 230-241.
- Nogita, K. and Une, K. (1997): Formation of Pellet-Cladding Bonding Layer in High Burnup BWR Fuels, Journal of Nuchear Science and Technolocy, Vol. 34, No. 7, pp. 679 - 686
- 真木野宗次(1969):焼結二酸化ウラン燃料の性状に関する研究(I)一高密度焼結二酸化ウ

ランペレットの製造の研究一,粉体および粉末冶金,16(1), pp. 29-37.

- Ollila, K. (2008): Dissolution of unirradiated UO₂ and UO₂ doped with ²³³U in lowand high-ionic-strength NaCl under anoxic and reducing conditions, Working Report 2008-50, Posiva Oy.
- Parkhurst, D. L. and Appelo, C. A. J. (2013): Description of input and examples for PHREEQC version 3 - A computer program for speciation, batch-reaction, onedimensional transport, and inverse geochemical calculations, U. S. Geological Survey Techniques and Methods, Book 6, Chap. A43, 497 p.
- Roth, O., Cui, D., Askeljung, C., Puranen, A., Evins, L.Z. and Spahiu, K. (2019): Leaching of spent nuclear fuels in aerated conditions: Influences of sample preparation on radionuclide release patterns, Journal of Nuclear Materials, 527, pp. 1-11.
- 齋藤文良(2008):ナノケミカル法の可能性~ナノ粒子設計を資源の高付加価値化~,粉砕, 51, pp. 24-29.
- Shoesmith, D.W. (2000): Fuel corrosion processes under waste disposal conditions, J. Nucl. Mater., 282, pp. 1-31.
- 田中康介,須藤光雄,大西貴士, 圷葉子, 吉武庸光,山下真一郎, 関岡 健, 石ヶ森俊夫, 大林弘,小山 真一:照射済燃料を浸漬させた人工海水の組成分析, JAEA-Research 013-036 (2013).
- 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.
- 宇田川豊,山内紹裕,北野剛司,天谷政樹(2018):燃料挙動解析コード FEMAXI-8の開発— 軽水炉燃料挙動モデルの改良と総合性能の検証—, JAEA-Data/Code 2018-016.
- Zwicky, H., Low, J., Ekeroth, E. (2011) : Corrosion studies with high burnup light water reactor fuel, SKB Technical Report TR-11-03.

第4章

直接処分システムの成立性の多角的な確認

4. 直接処分システムの成立性の多角的な確認・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-1																													
(1) 本項目の背景と目的・・・・・	4-1																													
(2) 直接処分システムの成立性の信頼性向上・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-2																													
1) 日本の直接処分についての課題の分析・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-4																													
2)課題や取り組みの絞り込み・具体化・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-13																													
① 課題や取り組みの種々のシステム構成要素や技術領域との関係の分析・・・・・	4-13																													
② 課題や取り組みの重要性やアプローチの検討・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-19																													
③ 種々の対策の組合せによるリスクマネジメントの検討・・・・・・・・・・・・	4-22																													
(3)保障措置・核セキュリティに関する調査・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-23																													
1) IAEA および諸外国における最新の検討状況の調査 ・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-24																													
① フィンランドの原子力関係法令などからの使用済燃料の直接処分施設の保																														
障措置・核セキュリティに関する条項の抽出と要件の整理	4-24																													
a. 調査対象とする法令の選定・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-24																													
b. フィンランドにおける使用済燃料の直接処分施設の保障措置・核セキュリ																														
ティに関する条項の抽出および日本の原子力施設関係の法令との比較・・・・	4-25																													
c. 考察	4-26																													
② 保障措置および核セキュリティに関するフィンランドおよびドイツの最新																														
情報の収集・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-27																													
a. フィンランド・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-28																													
b. ドイツ・・・・・・	4-29																													
c. フィンランドおよびドイツの調査結果のまとめ・・・・・・・・・・・・・・・	4-31																													
2) 使用済燃料の線量当量率変化の影響評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-32																													
① 使用済燃料が持つインベントリおよびそれらが持つ線量の解析手法・・・・・・	4-32																													
② シミュレーションの結果・・・・・	4-33																													
③ 考察	4-34																													
3) 最近の脅威の動向やその対策などの調査・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-35																													
① 人工知能を利用した手元動作の3次元画像解析手法・・・・・・・・・・・・	4-35																													
② 次世代カラーバーコードを使った動線管理手法・・・・・・・・・・・・・・・	4-36																													
③ 考察	4-37																													
4) 外部モニタリング情報の適用可能性評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-37																													
① 地震波モニタリング情報の適用可能性評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-37																													
a. 観測エリアのノイズ環境の把握・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-38																													
b. 掘削振動波形の判別と抽出・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-40																													
c. 観測エリアの地下構造や地質状況の把握、および振源振動の伝播特性の推																														
定	4-42																													
d. 震源解析に資する観測点配置の検討・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-44																													
 ② 衛星情報の適用可能性評価・・・・・ 	4-45																													
a. 目的・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-45																													
b. 概要·····	4-46																													
	с.	人工	衛星	星に	よ	り耳	反得	引	能	な	観	測	デ	`	タ	••		•••	• •	•••	 •••	•••	••			• •	••	••		 4-46
-----	----	----	-----	----	-----	----	----	---	-----	---	---	-----	---	---	---	----	----	-----	-----	-----	---------	-----	-----	-----	-----	-----	----	----	-----	----------
	d.	考察	•••		•••		••		•••			• •					••	• •	••	• •	 • •	• •	• •	• •	• •	••	••	••	• •	 4-50
(4)	まと	Ø			•••		••		• •									•••			 •••									 4-50

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として、保障措置・核セキュリティ 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ともに、 システムの成立性を効果的に検討するための手法の整備や課題(取得するべき情報の種類・ 量・質など)の整理を行うことを目的とする。

直接処分システムの成立性の多角的な確認のために、保障措置・核セキュリティについては、 平成30年度は、諸外国の最新の検討状況、保存すべき保障措置・核セキュリティデータの種 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。 平成31年度は、インベントリの変化による保障措置・核セキュリティへの影響評価、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した。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などの分析に着手した。平成31年 度は、着眼点の拡充・詳細化を進めつつシステムの成立性の多角的な検討を実施するための 手法を例示するとともに、その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情 報の種類・量・質および手法の高度化などの課題を具体化した。

ここで、前者の保障措置・核セキュリティについては、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、IAEAや諸外国における保障措置や核セキュリティに 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に着目することとし た。

また、後者のシステムの成立性の効果的な検討については、以下のことから、特にシステムとしての成立性に着目し、その信頼性向上のための課題などの具体化に向けた検討を行うこととした。

- ・ 直接処分第1次取りまとめや先行事業である「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)」(原子力機構,2018)では、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(坑道など)、搬送・定置設備、地上施設など)について、既存技術 (ガラス固化体地層処分についての技術、海外での直接処分での技術など)を用いた 予察的な設計検討などを通じて、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。
- しかし、構成要素ごとの技術的実現性のみではシステム全体としての成立性が示されるわけではない。そのため、直接処分システムの成立性の信頼性向上のためには、要素が組み合わされた場合に着目し、また技術的実現性以外にも着目することで、システムとしての成立性についての論拠の充実を図ることが必要となる。

本項目では、まず、直接処分システムの成立性の信頼性向上に係る検討として、論拠の充 実に向けて取り組むべき課題などを分析し提示する((2)参照)。次に、保障措置・核セキ ュリティについての国際的な進展や議論に関連する最新の情報・知見などの調査結果や、関 連技術の適用性などに関する検討結果を提示する((3)参照)。最後に、本項目のまとめや今 後の課題を整理する((4)参照)。

(2) 直接処分システムの成立性の信頼性向上

本項では、日本における直接処分システムの成立性の信頼性向上のための論拠の充実に向 けて、取り組むべき課題などを分析し提示することを目的とした検討を以下の2ステップで 行った。

STEP1:日本の直接処分についての課題の分析 STEP2:課題や取り組みの絞り込み・具体化 これらの検討の全体的なフローを図4-1に示す。





図 4-1 直接処分システムの成立性の信頼性向上のための論拠の充実に向けた課題の分析 作業の全体フロー

具体的には、「STEP1:日本の直接処分についての課題の分析」として、以下を行うことで、 日本における直接処分システムの成立性の信頼性向上のための論拠の充実に向けて、取り組 むべき課題などの候補(以下「取り組むべき課題などの候補」)を分析していく。

 まず、「A)既往の検討事例の調査」として、使用済燃料直接処分事業の先行している 北欧などの「諸外国における検討事例」および「日本におけるガラス固化体地層処分 の検討事例」に関して、各検討事例で着目されている課題や留意点および対策などを 把握するとともに、それらの情報を整理・比較することにより、例えば、以下のよう な差異を抽出する:

- ・ 北欧などの諸外国との差異として着目すべき日本の地質環境の特徴(例:地質環境 条件、隆起・侵食や地震・断層活動など)
- ▶ ガラス固化体との差異として着目すべき使用済燃料の特徴(例:形状、特性、組成、 ハザード(危険要因)など)
- 次に、これらの既往の検討事例の情報から、以下を適宜連携させながら行うことで、
 取り組むべき課題などの候補を洗い出していく。
 - ▶ 「B) 既往の検討事例での課題や留意点などの日本における直接処分への適用の可 能性の検討」として、既往の検討事例での課題や留意点およびその対策などについ て、それらをそのまま日本の直接処分に適用することができるかどうか(例えば、 地質環境や使用済燃料などの特徴の差異などに起因して、適用上の限界や注意すべ き不確実性などがないかどうか)、また、それにより日本の直接処分での特有な取 り組みが必要になる可能性があるかどうかなどを検討し、日本における直接処分へ の適用の候補となる課題などを明らかにしていく。
 - ▶「C)日本における直接処分についての検討で認識されている課題との比較」では、 B)で検討した日本における直接処分への適用の候補となる既往の検討事例での課題などと、直接処分第1次取りまとめで抽出された課題やその後の取り組みなどとの対応を分析することで、直接処分第1次取りまとめの課題などの見直しの要否や内容の検討などを行う。
 - ▶ 上記の検討では、直接関連する構成要素の課題に加えて、他の構成要素との関連に 起因する課題にも着目する。たとえば、使用済燃料の溶解挙動に関して、その周囲 に存在しシステムを構成する処分容器、緩衝材、埋め戻し材・シーリング、地質環 境などが関係するか否かに着目する。

次に、「STEP2:課題や取り組みの絞り込み・具体化」として、日本における直接処分シス テムの成立性の信頼性向上のための論拠の充実に向けて取り組むべき課題などの候補につい て、以下に示す分析を行い、課題や取り組みの絞り込みや具体化を図る。

- まず、「D-1)課題や取り組みの種々のシステム構成要素や技術領域との関係の分析」において、後述する Project Issue Management (MindTools, 2020)の手法を用いて、これまで直接関連する構成要素および研究・技術分野毎に個別に検討を行なっていた諸課題に対して、他の構成要素との関連や他の研究・技術分野への波及効果なども含めた多角的な視点からの分析を試みることで、システムの種々の構成要素間の連関を考慮しつつ、STEP1 で抽出された取り組むべき課題などの候補が、一連の問題解決プロセスの中で分野横断的な視点からどの様に位置付けられるかを明らかにする。またこれにより、特定の構成要素や分野についての個別の検討からは見えてこない、他の構成要素や他分野との関係を考えることで派生する問題点も含め、課題や取り組みに抜け落ちが無いことを確認していく。
- 次に、「D-2)課題や取り組みの重要性やアプローチの検討」では、STEP1で抽出された取り組むべき課題などの候補の位置づけなどについてのD-1)の分析結果を活用し、日本における直接処分についての課題や現在の取り組み(直接処分第1次取りまとめの課題とそれ以降の取り組み)の優先性の確認や、他の構成要素との関連や他の研究・

技術分野への波及効果などの観点から、現在の取り組みと組み合わせて行うことが効 果的と考えられる項目、あるいは現在の取り組みをさらに深化・拡充させていくこと が効果的と考えられる項目などを提示する。

 さらに、「D-3)種々の対策の組み合わせによるリスクマネジメントの検討」として、 直接処分システムの成立性について、その信頼性を効果的に高めていくための方策と して、リスクマネジメントの観点から、種々の対策が全体として多重防護(深層防護) をもたらすような総合的な取り組みとしていくことについて、後述するボウタイモデ ルを用いた検討を試みる。

以下、「STEP1:日本の直接処分についての課題の分析」の実施内容を1)項に、「STEP2: 課題や取り組みの絞り込み・具体化」の実施内容を2)項に示す。

1) 日本の直接処分についての課題の分析

日本の直接処分についての課題の分析においては、直接処分第1次取りまとめにおいて設 定した課題が基本となる。直接処分第1次取りまとめでの課題の整理では、課題を以下の3 つに分類している。

- 直接処分第1次取りまとめにおける予備的な検討をより包括的なものとするための課題
- 使用済燃料に特有の課題
- ガラス固化体・TRU 廃棄物と共通の課題

各分類の主な課題を図 4-2 に示す。





図 4-2 の課題を参考に、「A)検討事例の調査」では、諸外国における文献調査として以下の文章の調査を実施した。

- Long-Term Safety for the Final Repository for Spent Nuclear Fuel at Forsmark: Main Report of SR-Site project. (SKB, 2011)
- Safety case for the Disposal of Spent Nuclear Fuel at Olkiluoto -Synthesis 2012. (Posiva, 2012a)
- Safety Case for the Disposal of Spent Nuclear Fuel at Olkiluoto Formulation of Radionuclide Release Scenarios 2012. (Posiva, 2012b)
- Final storage of spent nuclear fuel. (KBS, 1983)
- Underground design Forsmark Layout D2. (SKB, 2009)
- Climate scenarios for Olkiluoto on a Time-Scale of 120,000 Years. (Natalia et al., 2011)
- Project Opalinus Clay Safety Report. (Nagra, 2002)
- Dossier 2005 ARGILE Tome-Safety evaluation of a geological repository. (ANDRA, 2005a)
- Dossier 2005 ARGILE Tome- Architecture and management of a geological repository. (ANDRA, 2005b)

また、日本におけるガラス固化体地層処分に関しては、H12 レポートや原子力発電環境整備 機構の包括的技術報告書(レビュー版)(原子力発電環境整備機構, 2018)を参考にした。

以下に、図 4-1 の全体フローに沿った「STEP1:日本の直接処分についての課題の分析」の 実施内容を示す。

まず、ガラス固化体地層処分と比較した場合の使用済燃料の主な特徴は以下のようにまと められる。

- C14 や I129 などの比較的長半減期(特に後者)で、可溶性かつ遅延されず移行しやすい核種が燃料中に溶出しやすい形で存在する(Instantaneous Release Fraction (IRF): 瞬時放出成分)
- U や Pu などのアクチニド核種のインベントリが大きいが、その一方で、通常想定される深部地下環境では UO₂マトリクスは極めて溶解しにくく、これらの核種の溶出率も極めて小さい
- 発熱量が大きい
- 廃棄体形状が大きい

また、諸外国における既往の検討事例では、上記に関連した各国共通の主な着眼点として 以下のものが挙げられている。

- 燃料および被覆管中の C14 の瞬時放出成分の存在量や分布および化学形態の把握
- 環境条件に応じた UO₂マトリクス溶解挙動の把握(炭酸濃度依存性(U(VI)炭酸錯体生成による溶解促進)、α線影響等)
- 燃料中の U および Pu による臨界を回避するための廃棄体形状や燃料集合体の収容数の

設定

地上施設および地下施設における操業時ならびに処分場閉鎖後の核物質管理や保障措置

諸外国では、上記の課題のうち、特に C14 や I129 などの移行挙動に着目し、それぞれの地 質環境における以下のような特徴に応じた安全確保の基本的な考え方が採用されている。

- スイス(Nagra, 2002)、フランス(ANDRA, 2005a;2005b)およびベルギー(ONDRAF/NIRAS, 2001)といった軟岩系(粘土層)の母岩を対象とした国々では、粘土層が極めて低透水性であり、天然バリア中の核種移行が拡散に支配されたものであること、そして、特に、長半減期の I129 に対する陰イオン排斥効果によって粘土層中の実効拡散係数が極めて小さい(10⁻¹² m² s⁻¹のオーダー)ことなどから、瞬時放出成分に対する良好な移行抑制機能が期待できるため、地表への移行率は極めて小さいものと予想されている。
- 他方、スウェーデン(SKB, 2011)やフィンランド(Timo et al., 1999)といった北 欧諸国では、母岩が花崗岩等の亀裂系の発達した硬岩であるために、粘土層の場合と は異なり、C14やI129などの瞬時放出成分の移行が天然バリア中で有意に抑制される ことは期待できない。また、このことに加えて、スウェーデンやフィンランドでは、 将来の周期的な気候変動によってスカンジナビア半島の沈降(氷床の重量による)お よび隆起(氷床の融解に伴う)を繰り返すことから、氷河期にはバルト海が陸化した 結果生ずる多数の小規模な湖沼が生活圏における核種の移行先(Geosphere-Biosphere Interface: GBI)となるため、地表近傍での希釈効果が期待できないという制約があ る。

そこで、スウェーデンやフィンランドでは、以下のような 2 つの方策を柱とした安全確保 の基本的な考え方が採られていることが特徴的である。

- 耐食性に優れた銅を用いることによって容器の寿命を長くするとともに、開口時期が 長期に渡って幅広く分布することを示し時間的分散効果を担保する(レファレンスケ ースでは、100万年間に開口する容器は数体でありピークは3桁程度低下する)。また、 廃棄体定置位置によって周囲の岩盤割れ目から供給される銅の腐食因子(硫化物)の フラックスが大きくばらつくことを示す。
- 廃棄体の位置によってそこを起点とする地下水の流線が異なり、結果として異なる湖 沼がGBIとなる。また、一つの廃棄体から移行する核種もその後の亀裂ネットワーク 中での分散挙動によって異なる湖沼に至る。このため、GBIの分散効果によって実質 的な希釈水量が増大する(複数の湖沼の流量の和が希釈水量として期待できるため)。 このような分散効果を定量的に示すために、全ての廃棄体を個別に扱って核種移行解 析を行う。

これら諸外国の直接処分で着目されていることのうち、上述した使用済燃料の特徴や C14 などの閉じ込めに着目した容器寿命の長期化などは、日本における従来の直接処分について の検討(直接処分第1次取りまとめやそれ以降の取り組みなど)においても認識されていた 問題点である。一方、それらへの対応については、前述した C14 や I129 などの移行挙動への 対応も含めて、諸外国での安全確保の考え方の特徴や対象となるサイトの特徴など(例えば、 良好な天然バリア中の移行抑制機能の期待の有無、処分容器の寿命の想定、地表環境での希 釈の想定など)に強く依存している対応も含まれており、諸外国で挙げられている対応のす べてを必ずしも日本での直接処分においても同様に実施すべきということではないと考えら れる。

次に、諸外国において挙げられている、使用済燃料および対象とする地質環境(硬岩系お よび軟岩系)の特徴に起因する設計および安全評価上の課題について、特に安全機能に着目 しつつ調査・整理を試みた例を表 4-1 に示す。また、安全機能ごとに整理した課題につい て、それらの主要な特徴や共通的な特徴の抽出も試みた(表 4-1の備考欄)。その結果、例 えば、スウェーデンやフィンランドといった北欧諸国では、母岩が花崗岩などの亀裂系の発 達した硬岩であるために、粘土層の場合とは異なり、C14やI129などの瞬時放出成分の移 行が天然バリア中で有意に抑制されることは期待できないことから、銅製オーバーパックに よる長期の閉じ込めに関する課題の重要性が高くなっており、また長期の閉じ込めに影響し 得る因子として、微生物による硫化物生成の可能性にも着目している。銅製オーバーパック による長期の閉じ込めは、日本における従来の直接処分についての検討(直接処分第1次取 りまとめやそれ以降の取り組みなど)でも、使用済燃料直接処分に特有の課題として挙げら れ、重点的な取り組みが行われてきているが、微生物による硫化物生成への対応までは具体 化されておらず、直接処分第1次取りまとめでの課題の設定の段階での認識に対して問題点 の捉え方の新たな側面として参考になると考えられる。一方、表 4-1 に挙げたその他の課 題については、例えば、氷河融解による影響に関する課題がいくつかあるが、それらは諸外 国の地質環境に強く依存するものであり、日本でも着目すべきかどうかは、ガラス固化体地 層処分での検討を踏まえて判断することが適切と考えられる。また、表 4-1 に挙げたその 他の課題の多くは、直接処分第1次取りまとめで整理した課題の分類での「ガラス固化体や TRU 廃棄物との共通課題」としているものに該当すると考えられ、これら課題についてわが 国としての取り組みを行う必要がある場合でも、ガラス固化体や TRU 廃棄物の地層処分を対 象とした取り組みが先行し、その成果の利用を期待することができると考えられる。

なお、上記での直接処分第1次取りまとめやそれ以降の取り組みなどとの比較では、直接 処分第1次取りまとめ報告書および本事業や先行事業の報告書を適宜参照しているが、専門 家以外が求める情報を多岐にわたる内容を含む複数の報告書から迅速に抽出することは簡単 ではない。そのため、既存報告書に対する情報の参照性の向上を図ることも必要になると考 えられる。その方法としては、例えば、適切なキーワードを設定して報告書の各セクション にそれらキーワードを属性として付与し、検索機能によりそのキーワードを属性として持つ セクションを報告書横断的に抽出し表示することなどが考えられる。

		スウェーデン、フィンランド(硬岩系	5)	スイス、フランス、ベルギー(軟岩	系)	備考		
			残された不確実性		残された不確実性			
	容器の耐食性	・銅の腐食因子となり得る微生物による硫化物生成の可能性 の把握 ・処分容器の腐食や変形を考慮した臨界評価	 ・硫酸還元パクテリアの生存 可能性 	・粘土中での腐食挙動についての原位置試験		・硬岩系サイトの安全確保では銅製処分容器による長期の閉じ込 めの重要性が高いため、課題としての優先順位が高い		
人エバリア	容器の力学的安定性	・氷河融解時の地震に伴う亀裂面せん断変位による容器破壊 に対するベントナイトの力学的緩衝性の評価及び破壊を回避	・せん断変形に対する亀裂面 の摩擦・抵抗に関する不確実			・硬岩系サイトで氷河融解時の地震動が予想される場合には重 要性が高いと考えられる		
	緩衝材の力学的緩衝性	するための基準の明確化	1生					
	緩衝材による微生物活動抑制	・銅の腐食因子となり得る硫酸還元パクテリアの活動が圧密ベ ントナイト中では制限されるメカニズムの解明	・浸食などによる膨潤圧低下 によって微生物活動が生ずる 可能性			・硬岩系サイトの処分概念では銅製処分容器による長期の閉じ込 めの重要性が高いため,課題としての優先順位が高い		
	ガラスマトリクスあるいは UO ₂ マトリクスによる浸出抑制	・処分場建設・操業時の地表水の侵入及び将来の氷河融解水 の侵入による水質変化の予測 ・過去の氷河融解時の酸化性地下水の侵入等が限定されるこ	・不均質な亀裂ネットワーク中 での水質の異なる地下水の 浸透挙動に関する予測の不	 ・粘土間隙水質の推定及び間隙水抽出時の擾乱補正のための地球化学モデリング 	 ・異種の間隙水(層間水,粒子間水等)間の水質の差異 ・粘土間隙水の抽出時の炭酸 	 ・硬岩系では化学的緩衝材が低いため異種地下水の混合の影響が注目されている ・軟岩系では、粘土が極めて低透水性であること及び結晶表面の 		
	放射性核種の溶解度制限	との立証	確実性		の脱カス等の擾乱	電気化学的特性のために間隙水質の把握目体が課題となる可 能性		
	緩衝材の低透水性	・圧密ペントナイトブロック及び粒状ペントナイトによる坑道埋戻 し技術の開発 ・廃棄体からの発熱、緩衝材含水・膨潤といったTHM連成現象	・緩衝材冠水時のパイピング の可能性 ・氷河融解水によるベントナイ	・圧密ベントナイトブロック及び粒状ベントナイトによる坑道埋め 戻し技術の開発 ・廃棄体からの発熱、緩衝材含水・膨潤といったTHM連成現象	 ・過渡状態での緩衝材と粘土 系母岩の相互作用に関する 不確実性 	 ・硬岩系では亀裂系での局所的な速い流れの影響(過渡期のパ イピング, 氷河融解時の希薄な地下水の侵入)が懸念されている ・数岩系では緩衝材と粘土系母岩のクリープ等による力学的不安 		
	緩衝材のコロイドろ過性	のモデル化・検証	トゾル化の可能性	のモデル化・検証		ホロハンにの限制がと加上水は日のノリーノー・ティーンのノナリイタ		
	埋戻し材の低透水性	・坑道埋め戻し及び止水プラグ等の開発と機能確認		・低透水性であり一定のガス透過性を持つ砂/粘土混合材料 による坑道やアクセス坑道埋め戻し技術の開発		・粘土系母岩の場合には、ガスの移行経路を確保するために埋め戻し材に一定の透過性が求められている。		
天然バリ	地下水による移流の抑制	・試錐孔において観察された亀裂情報(頻度,及び方向の分 桁)と坑壁との差異の分析と補正 ・坑道掘削影響領域を抑制するための坑道掘削時の品質管理 手法の開発 ・坑道の接線方向に生ずる熱応力による岩盤剥離(spalling)の メカニズム及び拘束圧による影響低減の可能性の理解 ・廃棄体からの熱による処分孔近傍での亀裂伝播の可能性の 評価 ・亀裂中でのモンモリロナイトコロイドの移行抑制メカニズムの 理解 ・不飽和代態での亀裂ネットワーク中地下水流動の理解 ・グラウト等に起因する高アルカリプルームの伝播及び岩石と の反応の評価 ・原位置トレーサ試験による亀裂ネットワーク中核種移行モデ ルの検証	・坑道掘削影響領域の連続性 及び透水性についての不確 実性 ・高アルカリ条件での造岩鉱 物の溶解速度に関する不確 実性 ・ブロックスケールの亀裂ネッ トワークモデルによる不均質 場の表現に含まれる不確実 性	・粘土系母岩中の坑道掘削による応力再配分に伴う割れ目開 ロ・せん断/掘削影響領域生成 ・粘土の可塑性による上記擾乱の修復挙動に関する長期モニ タリング ・粘土の水分飽和過程での亀裂の自然修復挙動の理解 ・ガスの移動及びガス透過による水みち形成とその自己修復挙 動に関する理解 ・オパリナス粘土層の鉛直断面における同位体プロファイルが 拡散支配であることの立証 ・坑道支保等に起因する高アルカリブルームの伝播及び岩石 との反応の評価	・据削影響領域の透水性と連 続性に関する不確実性 ・オパリナス粘土の原位置応 カ場及びそこでの可塑性や 強度等の力学特性の不確実 性 ・坑道支保からの高アルカリ ブルームとの反応による粘土 変質フロントの伝播速度の不 確実性	・硬岩系では、亀裂ネットワーク中の不均質な核種移行特性の評価に付随する不確実性が認識されており、長寿命容器による閉じ 込め性能の向上等による補完が図られている ・掘削影響領域はいずれの岩種でも課題となっているが、硬岩系 では熟応力による岩盤剥離の問題が重要視されているのに対し て、軟岩系ではクリーブやせん断割れ目の形成とその自己修復 が注目されている ・コロイドによる核種移行は、軟岩系よりも亀裂の発達した硬岩系 においてより懸念されている ・コンクリートによる高アルカリブルームの影響もいずれの岩種で も課題となっているが、硬岩系では、グラウト、軟岩系では坑道支 保という、各岩種を対象とした施工上において必要性の高い部材 に対してより注目している		
7	核種移行特性	 ・微生物の形成するパイオフィルムによる核種収着やマトリクス 拡散の抑制効果の理解 ・微生物分泌物との錯形成による核種移行への影響の理解 ・岩盤マトリクス中の高塩分の間隙水質の把握 ・核種収着に支配的な寄与をもつ鉱物(黒雲母等)の特定 ・マトリクス間隙の深さ方向の連続性の理解 ・特果の高塩分あるいは低塩分地下水の侵入に対する岩石の イオン交換による緩衝機能 ・コアサンブルによる室内試験と原位置試験結果との比較による Kは補正手法の検証 ・コアサンブルによる室内試験に位置試験結果との比較による Kは補正手法の検証 	・花崗岩等では選択的に核種 を収着する黒雲母等の分布 の不均質性の影響が粉砕試 料のスケールでは顕著となる こと、試料粉砕時の表面積の 増大等の誤差要因があること から原位置でのKdの推定が 難しい	 ・粘土コアサンブルからの間隙水抽出技術及び擾乱の補正手法の開発 ・原位置放射性トレーサ試験による見かけの拡散係数の推定 ・粘土試料を用いた室内試験によるKdの推定及び試験結果に基づく原位置でのKdデータセットの設定 	・高アルカリブルームによる粘 土の変質及び間隙水質変化 のKaへの影響についての不 確実性	・硬岩系では、亀裂とマトリクスから成る二重空隙モデルの体系 に関連して必要となる情報(マトリクス拡散深と、flow-wretted surface area、バイオフィルムによるマトリクス拡散の抑制等)の入 手が課題となる ・花崗岩等では選択的に核種を収着する黒雲母等の分布の不均 質性の影響が粉砕試料のスケールでは顕著となること、試料粉 砕時の表面積の増大等の誤差要因があることから原位置でのKd の推定が難しい ・硬岩系では、亀裂系の化学的緩衝性が比較的小さいために将 来の水質変動の幅が大きく、このため、将来のKd値の推定の不 確実性も比較的大きい		
	その他	・処分場閉鎖前後のモニタリング技術 ・廃棄体回収技術		・処分場閉鎖後モニタリング手法(ワイヤレス送信システムや 非破壊計測技術等)の開発と実証 ・廃棄休回収技術の開発と実証				

表 4-1 諸外国における設計及び安全評価の観点からの課題の整理例

また、わが国における高レベル放射性廃棄物ガラス固化体地層処分に関するこれまでの研 究開発では、地質環境の特徴に起因する課題や人工バリアの構成に関連する種々の課題につ いて検討が行われているが、特に上述した諸外国の事例との対比という意味から、わが国に おける使用済燃料直接処分を検討する際においても留意すべき点として、以下のものが挙げ られる。

- 日本では、スイス、フランスやベルギーで対象としているような極めて低透水性の粘 土層で処分場サイトの候補となり得るものは見出しにくいと考えられ、結晶質岩など の硬岩系や軟岩の場合でも透水性の割れ目系の発達した岩盤が母岩の候補となる可能 性がある。また、これらの候補岩体は諸外国の事例に比して透水性が高く、力学的な 強度が低い可能性がある。
- 日本の地下水には、一般的に硫化物イオンが諸外国の事例に比して比較的高い濃度で 含まれており、銅製処分容器の腐食因子として着目する必要がある。また、これに加 えて、緩衝材として用いるベントナイト中に含まれる黄鉄鉱に由来する硫化物が緩衝 材間隙水中に含まれる可能性にも留意する必要がある。
- 日本の地下水中の炭酸濃度は、地域や岩種あるいは地表環境等の条件に応じて異なるが、緩衝材間隙水中の炭酸濃度は一般に方解石との平衡に近い状態にあると考えられる。例えば、H12 レポートで想定されている緩衝材間隙水中の炭酸濃度は17 mM であり、諸外国に比較して1桁程度高い。
- 隆起・侵食については、気候変動に伴うスカンジナビア半島の周期的な隆起・沈降の 反復とは異なり、日本は一部の例外を除き一般的に隆起傾向にあり、現在のテクトニ クス的状況が継続する限りは隆起・侵食に伴う処分サイトの深度現象と侵食による地 形変化が不可逆的に進行するものと予想される。また、これに加えて、気候変動によ る周期的な海水準変動が繰り返されることにより、海進と海退を繰り返しつつ継続的 な隆起侵食により汀線が後退するものと考えられる。また、この様な変化を通じて、 GBI (Geosphere Biosphere Interface) となる河川湖沼などの地表環境も変遷してい くものと考えられる(海水準変動に伴い、GBI が河口部と上流域の間で周期的に変動 する一方で、より長期の隆起・侵食の影響により、例えば、長期的には現在の沿岸域 の平地が内陸の丘陵地へと変化するなど)。
- 活断層や火山活動などの直接的な影響が生ずる地域はサイト選定において避けることになるが、将来の長期間については相当規模の地震の影響が処分場にも及ぶことを考えておくことも必要になると考えられる。

次に、複数の要素を考える際に留意すべき点やそれらに関連する課題などの検討を試みた。 その際、想定する処分システムとしては、直接処分第1次取りまとめと同様に、日本におけ るガラス固化体地層処分における処分システム(H12レポートのリファレンスデザイン)をベ ースとして、廃棄物をガラス固化体から使用済燃料に置き換える、さらには処分容器として 炭素鋼以外に銅と炭素鋼の複合容器に置き換えることを考える。このような想定のもと、使 用済燃料の溶解挙動や処分容器の腐食挙動などについて、他の構成要素に起因して留意すべ き点やそれらに関連する課題の有無や内容などを整理した。たとえば、使用済燃料の溶解挙 動や処分容器の腐食挙動などへの、その周囲に存在しシステムを構成する処分容器、緩衝材、 埋め戻し材・シーリング、地質環境との組み合わせに起因する影響などに着目した。

表 4-2 複数の要素を考える際に留意すべき点やそれらに関連する課題の抽出例

考慮する構成要素の組み合わせ	留意点や関連する課題
	炭素鋼処分容器の設計上の寿命は1,000年程度であるため、使用済燃料のα線強度が未だ高く、Oxidative dissolutionによりUO ₂ マトリクスの 溶解が促進される可能性の検討
 ・使用済燃料 ・炭素鋼処分容器 	処分容器の寿命が短く、開口時期の時間的ばらつきが小さい場合に、使用済燃料中のC14やI129などのIRFがほぼ同時に放出され大きなピーク となることに対する解決策の検討
	処分容器の腐食や変形を考慮した処分容器内での臨界の可能性についての検討
・使用済燃料	クニゲルV1中の銅腐食因子(黄鉄鉱等に含まれるSなど)の影響についての検討
・銅製処分容器	地下水中に含まれる硫化物などの銅腐食因子の緩衝材を通じた移行についての検討
・緩衝材 (クニゲルV1)	銅処分容器の腐食反応に伴う緩衝材の変質の検討
 ・使用済燃料 ・銅製処分容器 	坑道支保や吹き付けコンクリートなどのセメント系材料と地下水の反応によって生ずる高pH条件におけるUO ₂ マトリクス溶解挙動についての検 討
・緩衝材 (クニゲルV1)	坑道支保や吹き付けコンクリートなどのセメント系材料と地下水の反応によって生ずる高pH条件における銅の腐食についての検討
・埋戻し材/シーリング(ベントナイト・ ズリ、コンクリート)	坑道支保や吹き付けコンクリートなどのセメント系材料と地下水の反応によって生ずる高pH条件での岩石の溶解などによって硫化物などの銅 腐食因子が供給される可能性についての検討
H-田 本 144 m	使用済燃料中のUやPuを考慮した核物質管理の検討
 ・ 使用済然料 ・ 銅製処分容器 ・ 緩衝材 (クニゲルV1) 	使用済燃料と銅製処分容器の組み合わせを想定した場合には、処分坑道断面が大型化することに加えて、比較的透水性が高く強度の低い日本 の岩盤の場合、セメント系材料を使わずに処分坑道の力学的安定性を確保し湧水を適切なレベルに抑えて操業安全性を確保することは困難と なる可能性やその対策の検討
・理戻し材/ンーリンク(ヘントデイト・ ズリ コンクリート)	使用済燃料の発熱量が大きいことから、処分坑道閉鎖後の熱応力による坑壁の剥離や新たな亀裂生成などの可能性の検討
・地上/地下施設	アクセス坑道が短絡移行経路となるシナリオを想定した場合で、アクセス坑道出口がGBIとなり希釈が期待できないという生活圏の想定をした 場合の影響
	諸外国より炭酸濃度が高いため、UO2マトリクスの溶解速度が高くなる可能性の検討
	北欧などに比して日本の地下水中に多く含まれる硫化物などが銅腐食に与える影響を含めて、長寿命化やIRF放出の時間的分散の検討
	腐食開口の可能性が否定できない場合のIRF放出の時間的分散の考慮
	日本の地下水水質でも銅製処分容器の耐食性が確保される場合、開口していない廃棄体が数百万年後に地表に接近して同時期に開口する場合のIRFのピークについての検討
・使用済燃料 ・銅製処分容器	不均質な岩盤中で処分坑道を展開できる良好な特性を持つ領域が限られる可能性とその対策(坑道総延長や処分場フットプリントの増大)の 検討
 ・緩衝材 (クニゲルV1) ・埋戻し材/シーリング (ベントナイト・ズリ、コンクリート) 	比較的透水性が高く強度の低い日本の岩盤の場合、セメント系材料を使わずに処分坑道の力学的安定性を確保し湧水を適切なレベルに抑えて 操業安全性を確保することは困難となる可能性があり、不均質な岩盤中で処分坑道を展開できる良好な特性を持つ領域が限られる可能性やそ の対策(坑道総延長や処分場フットプリントの増大)の検討
•地上/地下施設	北欧とは異なる日本での地震動などによる処分孔のせん断変形が生じた場合の銅製容器破壊の可能性についての検討
・日本の地質環境	GBIについては、日本の場合サイトを特定した検討が未だ行われていないが、何らかの理由で希釈水量の小さい小規模な河川湖沼などがGBIと なる可能性が生じた場合には従来の安全評価における被ばく線量が上昇する懸念についての検討。このような影響は、ガラス固化体などでも 共通であるが、使用済燃料直接処分の場合の方がより顕著なものとなると考えられる
	日本の平均的隆起速度(0.1mm y ⁻¹ のオーダー)では処分場が数百万年間で地表に接近する可能性があり、使用済燃料の場合にはその時点で顕 著なインベントリが廃棄体近傍に残留していることに対する検討
	隆起侵食などにより酸化還元フロントが処分場を通過した場合のUの再濃集や臨界の可能性の検討

4 - 11

表 4-2 の整理で抽出した留意点や課題などの多くは、直接処分第1次取りまとめでの課題 の設定において認識されている、あるいは、設定した課題に必然的に含まれることになると 考えられるが、表 4-2 で整理したような、ある程度詳細なレベルでの留意点や課題などのい くつかは直接処分第1次取りまとめでの課題の設定の段階での認識に対して問題点の捉え方 の新たな側面として参考になるものが含まれていると考えられる。例えば、

- α線影響(水の放射線分解)に由来する酸化剤による UO₂マトリクスの Oxidative dissolution や U あるいは Pu などのインベントリがガラス固化体に比して顕著に大 きいことの影響に関係する課題については直接処分第1次取りまとめにおいて既に重 要性が認識されている。
- 銅あるいはチタン製オーバーパックを外殻として用いることにより処分容器の長寿命 化を図るという課題は示されているが、開口時期を分散させることにより特に長寿命 の I129 瞬時放出成分の溶出・移行を時間的に分散させることの必要性は必ずしも明 確にされていない(容器寿命が仮に100万年まで延長されたとしても、開口時期が分 散しない場合には I129 瞬時放出成分の移行率は有意には減衰しない)。
- 直接処分第1次取りまとめでは、サイトが特定されていないことから、陸域のGBIとして一般的にある程度の流量(10⁹ m³ y⁻¹:現状の一級河川の流量に関する統計において下限に近いレベル)が期待できることを仮定している。今後、処分サイトが特定された場合に実際に予想されるGBIおよび将来の長期にわたる隆起・侵食とこれに伴う地形変化や処分地点の高度の上昇あるいは気候・海水準変動の影響を考えた場合のGBIの変遷を考慮した場合にどの程度の希釈水量を想定することが妥当かという問題点は必ずしも明確にされていない。この点は、ガラス固化体地層処分にも共通の課題ではあるが、C14やI129などの非収着性の瞬時放出成分を有する使用済燃料直接処分においてより重要視すべきものとなる可能性があると考えられる。
- 上記の使用済燃料のインベントリや放射線強度の特徴に起因した留意点・課題の他に
 も、使用済燃料のインベントリや放射線強度以外の特徴に起因して北欧などで検討されている以下のような留意点・課題があり、直接処分第1次取りまとめでの課題の設定の段階での認識に対して問題点の捉え方の新たな側面として参考になるものが含まれていると考えられる。
 - 使用済燃料の発熱に伴う熱応力による坑壁での岩盤剥離(spalling)や既存亀裂の開口
 - 使用済燃料の発熱が大きい期間に地下坑道を埋め戻さず換気・冷却を続ける場合の湧水量の増大およびこれを避けるためにグラウトなどの止水対策を施す場合の 埋戻し後の廃棄体や処分容器に対するセメントの影響
 - アクセス坑道が短絡移行経路となるシナリオを想定した場合で、アクセス坑道出口が GBI となり希釈が期待できないという生活圏の想定をした場合の影響

ここで、次の2)項で行う「STEP2:課題や取り組みの絞り込み・具体化」に先立ち、表 4-2 に挙げた種々の課題や留意点の関係を図 4-3 に示す様な相関図として整理した。この図から 明らかなように、これらの諸項目はそれぞれ独立したものではなく、ガラス固化体と比較し た場合の使用済燃料の特徴や北欧諸国などと異なるわが国の地質環境の特徴である以下の4 つの項目が共通的な要因となって相互に関連していることがわかる(①および②については、 対策としての銅製処分容器の使用を介して、また、④については岩盤強度や透水性に関する 日本の岩盤の特徴を考慮してグラウトや坑道支保などのセメント系材料を使用することを介 して、種々の課題や留意点と関連している)。

- C14 や I129 等の瞬時放出成分の影響
- ② U02マトリクス溶解促進の可能性
- ③ Uおよび Pu のインベントリが大きいことの影響
- ④ 日本の岩盤強度や透水性が北欧等と異なることの影響



図 4-3 種々の課題や留意点の相関図

以上の整理をふまえ、次の2)項の最初において、「D-1)課題や取り組みの種々のシステム 構成要素や技術領域との関係の分析」として、前述の種々の課題や留意点が、これら4つの 共通要因を起点とする問題解決のための多角的な(複数の技術領域にまたがるシステムの 種々の構成要素を対象とした)検討プロセスの中でどの様に位置付けられるかを明らかにす るとともに、派生する課題や留意点も含め抜け落ちがないことを確認する作業を行った。

- 2) 課題や取り組みの絞り込み・具体化
- ① 課題や取り組みの種々のシステム構成要素や技術領域との関係の分析

「STEP2:課題や取り組みの絞り込み・具体化」の最初の作業として、「D-1)課題や取り

組みの種々のシステム構成要素や技術領域との関係の分析」を行う。

わが国における使用済燃料直接処分の成立性の検討において、その信頼性を効果的に高め ていくためには、重点的に取り組むべき課題やそれについての取り組みの内容の適切な絞り 込みと具体化が必要である。その際、これまで直接関連する構成要素および研究・技術分野 毎に個別に検討を行なっていた諸課題に対して、他の構成要素との関連や他の研究・技術分 野への波及効果等も含めた多角的な視点から取り組むべき内容を明らかにしていくことが効 果的と考えられる。

このような観点から、本項では、Project Issue Management の手法を適用してシステム全 体を視野に入れた分野横断的な問題点の整理を行うこととした。Project Issue Management は、プロジェクトマネジメントにおける問題対応とその管理を体系的に行う手法であり、多 分野にまたがる複合的なプロジェクトのライフサイクルを通じて、成功を妨げる要因となり 得る問題(Issue)を網羅的に抽出し、担当部署や期日あるいは問題解決に向けたアプローチ の方法などを明確に記録して管理することを主眼としたものである。ここでは、Project Issue Management の種々の取り組みのうち、リスクの主要な要因などを起点として、どのよ うな構成要素に対してどのような分野でニーズがあり、具体的な対策として何が考えられる か、そしてまた、これらの追加的な対策によって新たにどの分野で何に対してどのような対 応が必要となるか、といった対応の連鎖に即して派生する Issue を包括的に抽出する手法を 用いた分析を行なった。また、分析の結果は、Issue 相関図としてまとめた。

以下では、1)項の図 4-3 で共通要因として着目した 4 つの因子を例に、Project Issue Management による、これまで直接関連する構成要素および研究・技術分野毎に個別に検討を 行なっていた諸課題に対して、他の構成要素との関連や他の研究・技術分野への波及効果な ども含めた多角的な視点から取り組むべき内容の分析を試行した。

• C14 や I129 等の瞬時放出成分による突出した影響の出現(図 4-4)

C14 や I129 などの瞬時放出成分による突出した影響の出現については、まず基盤的 な情報として燃料および被覆管中の C14 の瞬時放出成分の存在量および化学形態を把 握することに加えて、閉じ込め期間の延長による C14 の減衰と長寿命で減衰の期待で きない I129 などについての時間あるいは空間的分散による影響の鈍化という二つの 対策の方向性が考えられる。

このうち前者については、使用済燃料第1次とりまとめのレファレンスケースにお いて設定されている炭素鋼製処分容器の容器寿命(1,000年)に対して現実的な閉じ 込め期間を適切な論拠とともに示していくという方策と、スウェーデンなどの例のよ うに銅あるいはチタンといった高い耐食性を持つ容器や関連する技術を開発し(製作 や搬送の手順も含め)日本の地下水水質など(銅の場合の硫化物の影響など)を考慮 しつつその耐久性を明らかにしていくという方策がそれぞれ考えられる。

また、後者については、処分容器の仕様(厚さや材料特性など)を多様化すること によって開口時期を分散させるという方策と、周囲の不均質岩盤の影響によって開口 時期が自ずと異なる効果(例えば、SR-Site における周囲の岩盤割れ目の透水性に応 じて硫化物イオンの供給速度が異なることによる開口時期の分散など)や各廃棄体か ら移行する核種が不均質岩盤中を移行する中で水理学的に分散するとともに異なる希 釈効果 GBI に至る効果を定量化するという方策が考えられる。

上記に関して、設計・工学技術、安全評価、およびデータ取得(人工バリアなどの 試験および地質環境調査)の各分野において取り組むべき Issue を抽出し、図 4-4 に 示す Issue 相関図としてまとめた。なお、ここで挙げられている、閉じ込め期間の延 長による C14 の減衰(2章参照)、燃料および被覆管中の C14 の瞬時放出成分の存在量 および化学形態の把握(3章参照)、銅製容器と緩衝材の化学的相互作用による緩衝材 の変質(3章参照)については、本事業で検討を実施している。

U0₂マトリクス溶解促進の影響(図 4-5)

 UO_2 マトリクスの溶解を促進する要因としては、前述した α 線および炭酸の影響が 考えられる。このうち、 α 線による UO_2 マトリクス溶解促進の影響に関しては、処分 容器による閉じ込め期間を延長することで容器開口時の α 線強度の低下を図るとい う主として工学的な対策(内容については「C14や I129 などの瞬時放出成分による突 出した影響の出現」で示したものと同様)を採る方向性と、水の放射線分解で生ずる 酸化剤の影響が同時に生ずる水素や処分容器に含まれる鉄などの還元剤の影響によっ て UO_2 マトリクスの 0xidative dissolution が抑制されることを示す基礎研究に重き を置いた方向性の 2 つが考えられる。

次に、炭酸の影響に関しては、本事業で実施中の UO₂ ペレットを用いた浸漬試験に よる UO₂ マトリクス溶解速度の炭酸濃度依存性の把握が課題となる(3 章参照)。また、 これと併せて処分システムに含まれる鉄およびセメントとの相互作用も考慮した緩衝 材間隙水中の現実的な炭酸濃度の推定を行うことが考えられる。

上記に関して、設計・工学技術、安全評価、およびデータ取得の各分野において取り組むべき Issue を抽出し、図 4-5 に示す Issue 相関図としてまとめた。

U および Pu のインベントリが大きいことの影響(図 4-6)

Uおよび Pu のインベントリが大きいことの影響については、テロ行為や意図せぬ人間侵入などを回避することを含む核セキュリティや保障措置に関する課題が重要であり、この点については、本事業においても検討中である(本章の(3)項参照)。

また、処分容器や被覆管の腐食や変形に伴う燃料の移動や緩衝材による中性子減速 などを考慮した臨界評価も重要な課題であり、この点についても、本事業で検討を行 っているところである(3章参照)。なお、本事業で検討に着手している、処分容器お よび燃料棒の腐食や変形や燃料の移動などのそれぞれの状況を区分し、それぞれの状 況の設定を保守的(実効増倍率が高くなるよう)に設定し、それらを足し合わせるこ とで臨界安全性を評価していくアプローチに対して、容器や被覆管腐食・変形後の容 器形状および燃料の移動などの一連の状態変化を化学・力学連成シミュレーションを 活用して解析し設定していくというアプローチも考えられる。

上記に加えて、超長期の時間スケールで考慮すべき事項として、廃棄体から溶出す る U および Pu が再濃集した場合(例えば、α線による水の放射線分解に起因する酸 化還元フロントでの再農集、わが国における地質環境変遷の特徴の一つである将来の 隆起侵食に伴う処分場の地表への接近時における酸化帯の近傍での再濃集)の臨界の 可能性に関する安全評価および関連する種々の知見の整理なども考えられる。 上記に関して、設計・工学技術、安全評価、およびデータ取得の各分野において取り組むべき Issue を抽出し、図 4-6 に示す Issue 相関図としてまとめた。

- 岩盤強度や透水性が北欧などと異なることの影響(図 4-7)
 - 岩盤強度や透水性が北欧などと異なることの影響に関しては、1)項で挙げた熱応力 による岩盤剥離や亀裂開口といった、これまでわが国では認識されていなかった課題 についても検討することが必要となる場合があると考えられる。また、坑道の力学的 安定性を確保するための支保や湧水量を低減するためのグラウトなどについては、こ れらを必要としないような良好な岩盤領域を選択するような(坑道総延長や処分パネ ル面積が増大することを許容した上で)処分場レイアウトを採用する方策と、これら の対策を施す一方で人工バリアや廃棄体へのセメント影響を評価する方策とが考えら れる。後者については、ガラス固化体地層処分においても認識されている課題ではあ るが、ガラスー鉄ーベントナイト系を想定するガラス固化体地層処分での検討に加え て、UO2マトリクス-鉄(あるいは銅、チタン)-ベントナイト系についても検討する ことが必要になる可能性がある。なお、北欧の検討事例では、廃棄体定置領域付近で はセメント系材料を使用しないという設計指針が明確にされており、このため、U02マ トリクスー鉄(あるいは銅、チタン)-ベントナイト系についてのセメント影響の検 討はほとんど行われていないことから、わが国独自の検討が必要になる可能性がある。 なお、高 pH 環境で溶解が促進される傾向にあるガラス固化体とは異なり、UO2マトリ クスに関してはセメント影響が負の影響となるかどうかはが必ずしも明確ではない。

上記に関して、設計・工学技術、安全評価、及びデータ取得の各分野において取り 組むべき Issue を抽出し、図 4-7 に示す Issue 相関図としてまとめた。



図 4-4 「C14 や I129 などの瞬時放出成分による突出した影響の出現」に関する Issue 相関 図



図 4-5 「UO2 マトリクス溶解促進の影響」に関する Issue 相関図







図 4-7 「岩盤強度や透水性が北欧等と異なることの影響」に関する Issue 相関図

② 課題や取り組みの重要性やアプローチの検討

次に、前述の「D-1)課題や取り組みの種々のシステム構成要素や技術領域との関係の分析」 での、諸課題に対する取り組みについての他の構成要素との関連や他の研究・技術分野への 波及効果なども含めた多角的な視点からの分析(図4-4~7)を活用しつつ、「STEP2:課題や 取り組みの絞り込み・具体化」の2つめの作業として、「D-2)課題や取り組みの重要性やア プローチの検討」を試みる。

これまで直接関連する構成要素および研究・技術分野毎に個別に検討を行なっていた諸課 題に対して、「D-1)課題や取り組みの種々のシステム構成要素や技術領域との関係の分析」 において、他の構成要素との関連や他の研究・技術分野への波及効果なども含めた多角的な 視点から取り組むべき内容を明らかにしていくことを試みることで、1)項の図 4-3 で共通要 因として着目した 4 つの因子を起点にして、その課題に対処していくための直接的な対策だ けでなく、その対策がどこに影響を及ぼす可能性があるか、あるいはその対策に他から影響 を及ぼすことはないかなどを俯瞰することができ、着目した課題への対策を立案する際に、 個別に検討・対応するのみではなく、他との相互の連関も考慮した総合的な視点を持った検 討・対応としていくことが可能となる(例えば、特定の対策を検討・実施する際に、その対策 の効果に加え、その対策を有効とするため、あるいは、他構成要素や研究・技術分野に好ま しくない影響を与えないようにするために留意すべきことなどにも配慮していくことができ る)。

例えば、図 4-4「C14 や I129 などの瞬時放出成分による突出した影響の出現」に関する Issue 相関図においては、既存の取り組みである瞬時放出成分である C-14 の現実的な溶出挙動の理 解、C14 や I129 などの減衰のための処分容器の長寿命化の検討が、C14 や I129 などの瞬時放 出成分による突出した影響の出現という問題に対する直近の課題として整理されている。同 様に、長寿命処分容器の候補として銅処分容器を用いるとの想定に対して、緩衝材中での銅 腐食試験による銅の腐食挙動の評価および銅イオンによる緩衝材変質の影響評価が直近の課 題として整理されている。これらのことから、既存の取り組みにおいて優先度が高い課題を 実施していることが確認できたと考える。さらに、処分容器開口時期の時間あるいは空間的 分散による影響鈍化など既存の取り組みとは異なるアプローチも見いだされた。

図 4-5「U02マトリクス溶解促進の影響」に関する Issue 相関図では、既存の取り組みであ る U02マトリクス溶解速度の炭酸濃度依存性の把握が、U02マトリクス溶解促進の影響という 問題の直近の課題として整理された。さらに、その課題に対して、鉄およびセメントとの相 互作用も考慮した緩衝材間隙水中の現実的な炭酸濃度の推定を組み合わせていくという新た な展開案が見いだされた。ここで、鉄およびセメントとの相互作用も考慮した緩衝材間隙水 中の現実的な炭酸濃度の推定については、わが国における緩衝材間隙水中の炭酸イオンにつ いては、諸外国よりも顕著に高い濃度(方解石との平衡に相当する)が想定されているが、 人工バリアシステムの化学環境の変遷に関する鉄ーベントナイトーセメント系の多成分反応 輸送解析の事例では、これらの異種材料との相互作用の結果、炭酸濃度は時間の経過ととも に変遷する可能性が示唆されている。しかし、これらの解析は主としてセメントおよび鉄と の化学的相互作用によるベントナイト変質程度の評価を目的としたものであるため、緩衝材 間隙水中の炭酸濃度の把握という目的に照らして適切な反応系を設定していくことが必要に なると考えられる。

また、図 4-6「U および Pu のインベントリが大きいことの影響」に関する Issue 相関図で は、容器や被覆管の腐食や変形後に伴う燃料の移動や緩衝材による中性子減速などを保守的 に考慮した臨界評価について、それらの個々の状態変化を保守的に想定し影響を足し合わせ ていく現在のアプローチに対して、化学・力学連成シミュレーションなどを活用して一連の 状態変化を推定するアプローチを組み合わせていくといった、新たな展開案が見いだされた。 ここで、化学・力学連成シミュレーションなどを活用した一連の状態変化の推定については、 炭素鋼の腐食膨張、容器および構造材の腐食についての現実的な状態変遷をシナリオとして 想定するとともに、炭素鋼や被覆管の腐食速度、腐食による体積増倍比などのパラメータの 不確実性を感度解析的に取り扱い、これらの与条件の下で、特に Pu が有意量存在する数万年 間程度を対象として、緩衝材の圧密、被覆管の変形や燃料ペレットの変形・割れなどについ て詳細な力学解析(例えば、廃棄体や緩衝材の変形が生ずる初期には連続体モデル(FEM)を 用い、その後の容器開口や燃料の割れといった不連続な現象には破壊力学を加味したモデル (FDEM: Finite and Discrete Element Model)を用いて3次元シミュレーションを行うな ど)を実施することが考えられる。

他方、図 4-7「岩盤強度や透水性が北欧などと異なることの影響」に関する Issue 相関図に ついては、操業時の坑道力学的安定性の確保が、岩盤強度や透水性が北欧などと異なること の影響という問題の直近の課題として整理されており、既往の取り組みにおいてコンクリー ト製支保工による坑壁強度の向上について検討してきている(原子力機構, 2018)。一方、コ ンクリート製支保工を用いることの他の構成要素との関連や他の研究・技術分野への波及効 果として、「セメント影響による炭素鋼処分容器腐食への影響評価」や「セメント影響による 処分容器早期開口時の UO₂マトリクス溶解挙動の把握」が整理されることで、ガラス固化体地 層処分においても認識されているセメント影響という課題に関しても、使用済燃料や直接処 分システムを対象とすることにより必要となる可能性のある対応が見いだされた。

また、構成要素および研究・技術分野毎に個別に検討を行なっていた諸課題とは異なる、 「保障措置・核セキュリティ」については、「表 4-2 廃棄体のみに着目した場合の留意すべ き点や課題などの抽出例」において「使用済燃料中のUやPuを考慮した核物質防護の強化の 必要性」が挙げられ、「図 4-6「U および Pu のインベントリが大きいことの影響」に関する Issue 相関図」では、Uおよび Pu のインベントリが大きいことにより生じるニーズとして「人 間侵入(テロ行為や資源調査など)によって廃棄体が持ち出され Uや Pu が転用される可能 性」を挙げ、それに対する対策例として、「将来の人間侵入に対する物理的障壁設置」「記録 の保存による将来の意図せぬ侵入の回避」「保障措置および核物質防護」などを示している。 直接処分第1次取りまとめにおいても、使用済燃料直接処分に特有の課題として「保障措置・ 核セキュリティの要件に対応した地下施設の設計および建設・操業・閉鎖の概念や設備の検 討」を設定しており、これまでに保障措置や核セキュリティ対策の実現に係る技術の調査(表 4-3)などを行ってきており、本年度も保障措置や核セキュリティに係る調査・整理を実施し ている(後述の(3)項参照)。今後行うべき「保障措置・核セキュリティ」について課題および 取り組みの具体化に向けては、保障措置・核セキュリティ対策だけでなく、それらと直接処 分システムの様々な構成要素の設計および建設・操業・閉鎖との関連を考慮するとともに、

4-20

さらには他の研究・技術分野への波及効果なども含めて、多角的な視点から取り組むべき事 項とその内容の候補を洗い出していくことが重要になると考えられる。このような検討には 前述の Project Issue Management の手法を活用することが効果的と考えられ、来年度以降こ のような分析に取り組んでいく予定である。その中では、既往の取り組みにおいて保障措置・ 核セキュリティに関して調査・整理してきた諸外国や国際機関での検討の動向および保障措 置・核セキュリティ対策の関連技術などの情報を参考にしつつ、たとえば、センサや監視カ メラを設置したことで閉鎖後の水道などになる可能性、処分容器の固有性確認での超音波探 査(日本原子力研究, 2018)のための傷の存在が処分容器の製作や機能へ与える影響の可能 性などの個別要素かつ純粋に技術的な事項に加えて、核セキュリティの観点での坑道の早期 閉鎖と回収可能性のための坑道の開放継続との取り合い、予期せぬ掘削や廃棄体取り出しが ないことを地震計や GPS でモニターするといった管理をどの程度の期間継続する必要がある かといった、事業や制度に関する考え方などにも関係してくる事項も重要になってくると考 えられる。

 ①使用済燃料の非破壊検認技術 	②封じ込る	め・監視技術	③使用済燃料の再検認技術				
・高エネルギーX線CT	・保障措置用監視カ		・3D レーザー形状測定				
・パッシブガンマ線トモグラフィ	ラ(NGSS)		・溶接部フェーズドアレイ				
・LCS-γ 線による核共鳴蛍光法	・放射線モ	ニター	超音波探傷				
・チェレンコフ光視認装置	・VACOSS 封印		 全γ線測定 				
・フォーク型検出器	・COBRA 封	印					
④地下部分の設計情報検認打	⑤廃棄	種体の固有性確認技術					
・電磁波法(地中レーダー技術)	・溶接部フェーズドアレイ超音波探傷						
・3D レーザースキャナー	・電子タグ						
・地震計による掘削振動のモニタリ							
・映像監視システムによるモニタリ							

表 4-3 保障措置対策に適用可能な技術の例

今後は、「D-2)課題や取り組みの重要性やアプローチの検討」によって抽出された、現在の 取り組み以外の、たとえば以下のような取り組みなどについて、必要が生じた場合に迅速に 具体的な検討を進められるように、そのアプローチや内容の具体化などを、Project Issue Management の手法なども活用しつつ進めていく。

- U02マトリクス溶解速度についての検討の拡張:炭酸濃度依存性の把握(現在の取り組み)+処分容器やセメントとの相互作用も考慮した緩衝材間隙水中の現実的な炭酸濃度の推定
- 臨界安全性についての検討の拡張:容器や被覆管の腐食・変形後の形状および燃料の 移動などの個々の状態変化を保守的に想定し影響を足し合わせていくアプローチ(現 在の取り組み)+化学・力学連成シミュレーションなどを活用した一連の状態変化の 推定
- 保障措置・核セキュリティ対策と関係づけた処分システム要素の設計・建設・操業・ 閉鎖の検討

- 北欧などとの地質環境条件の違いに留意した坑道の掘削・保持とその影響の評価
- ③ 種々の対策の組合せによるリスクマネジメントの検討

最後に、「STEP2:課題や取り組みの絞り込み・具体化」の3つめの作業として、「D-3)種々の対策の組合せによるリスクマネジメントの検討」についての検討を行う。

ここまでで述べたように、わが国における使用済燃料直接処分に関して重点的に取り組む べき課題のそれぞれについては、いずれも個別に検討・対応するのみではなく、関連する種々 の構成要素および研究・技術分野の相互の連関も考慮した総合的な取り組みが必要になると 考えられる。さらに、使用済燃料直接処分の成立性の信頼性を効果的に高めていくために、 このような総合的な取り組みをさらに進めて、全体として重要な課題あるいはそれらに対応 して想定されるリスク要因を予防し、仮にリスク要因が生じた場合でもその影響を緩和する ための多重の対策を採り得ることを示していくことも考えられる。

このような視点から、リスクマネジメントにおける標準的な手法の一つであるボウタイモ デル(CGE, 2020)を用いた分析を試みた。ボウタイモデル(図 4-8)は、あるシステムに含ま れるハザードに対するコントロールが失われた場合に影響を顕在化させるような事象(ハザ ードイベント)のそれぞれについて、その原因となり得る種々の脅威を抽出し、これらがハ ザードイベントに繋がる過程を抑止するような予防策を多重に準備するとともに、万一この ような事象が生じてしまった場合でもその状況を回復するあるいは影響を緩和するための多 重の対策(緩和策)を用意して、想定される種々の影響を抑制するといったリスクマネジメ ントの全体像を体系的に示すものである。



図 4-8 ボウタイモデルの概念

ここでは、「C14 や I129 などの瞬時放出成分による突出した影響の出現」を例として、ボウ タイモデルを用いた検討を試行した(図 4-9)。なお、ボウタイモデルにおける予防策や緩和 策という考え方は、想定される種々の影響を抑制するためのものであり、直接処分システム においては、「予防策」は、システムの設計や工学技術により「脅威」の発生確率や影響を抑 制することを、「緩和策」は、「脅威」の影響のバリア中での核種移行率や生活圏での線量へ の伝播をシステムの機能や特徴により抑制することと言い換えることができると考えられる。 この問題は、先行する海外事例において、硬岩系および軟岩系いずれの場合も、その対応の 方向性が使用済燃料直接処分での安全確保方策の基本的考え方を規定するものであるため、 重要性が高いものと考えられる。図 4-9 に示した通り、想定される種々の「脅威」のそれぞ れについて複数の予防策を講じることが可能であり、また、仮にハザードとなるような事象 (この例の場合は多数の廃棄体からの C14 や I129 瞬時放出成分の同時溶出)が生じた場合で もやはり複数の緩和策を講じることによりその影響を低減することが期待できる。

このような種々の方策が全体として多重防護(深層防護)をもたらすような取り組みを相 互に連携しつつ進めていくことは、使用済燃料直接処分の成立性の信頼性を効果的に高めて いくための包括的な取り組みとして有効になる可能性があると考えられる。



図 4-9 ボウタイモデルの例:多数の廃棄体からの C14 や I129 瞬時放出成分の同時溶出

(3) 保障措置・核セキュリティに関する調査

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 31 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、保障措置・核 セキュリティ対策については、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 放射線量が時間の経過とともに徐々に変化していき、それに応じて核セキュティおよび保障 措置のレベルが変化する可能性があることから、使用済燃料の線量当量率の経時変化に伴う 影響評価を実施した。さらに、最近の脅威の動向やその対策、秘密裡にトンネルを掘削し埋 設した燃料にアクセスすることなどを検知するための技術としての地震波や人工衛星画像な どの外部モニタリング情報の適用可能性を検討した。

上記の調査結果について、それぞれ「1) IAEA および諸外国における最新の検討状況の調 査」、「2)使用済燃料の線量当量率変化の影響評価」、「3)最近の脅威の動向やその対策など の調査」、「4)外部モニタリング情報の適用可能性評価」に示す。また、本項のまとめを(4) 項に示す。

1) IAEA および諸外国における最新の検討状況の調査

使用済燃料の直接処分においては、使用済燃料は処分施設の閉鎖後に至るまで IAEA 保障措置の対象であり、また核セキュリティ対策も施す必要がある。効果的、効率的な方策を実施 するには処分施設の設計段階から国際約束および国内規則を考慮した検討が必要になる。

日本での直接処分における保障措置および核セキュリティの制度設計、関係法令の整備に 資するため、処分場の建設が進んでいるフィンランドとの比較法的視点に基づく基礎資料を 収集することを目的として法令を調査するとともに、関係機関への来訪調査を行った。また、 保障措置技術については、既に使用済燃料の中間貯蔵施設を実運用し、使用済燃料キャスク に係る保障措置の技術開発を進めているドイツの情報は有益と考え、ドイツを訪問調査対象 国として選定し、関係機関への来訪調査を行った。

平成 31 年度に実施した内容について、それぞれ「①フィンランドの原子力関係法令などか らの使用済燃料の直接処分施設の保障措置・核セキュリティに関する条項の抽出と要件の整 理」、「②保障措置および核セキュリティに関するフィンランドおよびドイツの最新情報の収 集」に示す。

フィンランドの原子力関係法令などからの使用済燃料の直接処分施設の保障措置・核セキュリティに関する条項の抽出と要件の整理

フィンランドでは、使用済燃料を直接処分することを国として決定後、法律や規則などの 整備を行い、現在は、施設の建設や運用に向けて計画が進められている。法令の整備に当た っては、IAEA が発行している核セキュリティ・シリーズ文書の要件や IAEA と締結している保 障措置協定の要件を勘案した保障措置・核セキュリティに関する規制要件も規定されている と推察され、直接処分施設が地下数百メートルの位置に存在するなどの特殊な特徴を持つこ とから、直接処分施設特有の法令要件が規定されている可能性がある。本項では、処分場建 設で先行するフィンランドの原子力関係法令などから使用済燃料の直接処分施設の保障措 置・核セキュリティに関係する条項を抽出するとともに要件を整理し、日本の保障措置・核 セキュリティに関する法規制要件と比較した。

a. 調査対象とする法令の選定

調査対象とした法令は、2019 年 8 月末時点でフィンランド放射線・原子力安全庁(STUK)の Website (stuklex, 2020) に掲載されている法令 (Act、Decree、STUK Regulation) 203 件の うち、法令の名称から明らかに調査対象とならないもの、保障措置・核セキュリティ・に関 する条文があったとしても、他の法令などを参照しているなど、条文の内容が具体的ではないものは除外した。また、核セキュリティに関しては物理的防護に着目するものとし、情報 セキュリティに関するものについては対象外とした。

b. フィンランドにおける使用済燃料の直接処分施設の保障措置・核セキュリティに関する条 項の抽出および日本の原子力施設関係の法令との比較

前節において調査対象とした法令において、直接処分施設または保障措置・核セキュリティに関するキーワードとして表 4-4 に挙げた用語のいずれかが含まれている条文を抽出した。

encapsulation	inspection
geological	adversary
repository	vulnerability
direct disposal	malicious act
security	unlawful act/action
safeguards	access control
threat	graded approach
sabotage	DBT (design basis threat)
physical protection	restricted area
material account/accounting/accountancy	protected area
theft	vital area

表 4-4 抽出に用いたキーワード

STUK の Website にある法令を調査した結果、施設に対する核セキュリティに関しては「YVL A. 11 Security of a nuclear facility」、保障措置に関しては「YVL D.1 Regulatory control of nuclear safeguards」に要件がまとめられており、それ以外では該当する条文はほとんど ないか、あったとしても前述の2件の法令に包含されていることがわかった。YVL A. 11、YVL D. 1、およびその他の法令において直接処分施設に対する保障措置・核セキュリティに関連性 があるとした条文については、日本の原子力施設関係の法令などで規定されている保障措置・ 核セキュリティに関する要件と比較してその違いを整理した。比較対象とした日本の原子力 施設関係の法令は以下のとおりである。

-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)

-核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律施行令(昭和三十二年政令第三百 二十四号)

- -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)
- -核燃料物質の使用等に関する規則(昭和三十二年総理府令第八十四号)
- -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)

- 廃棄物管理施設の位置、構造及び設備の基準に関する規則(平成二十五年原子力規制委員 会規則第三十一号)
- -核燃料物質等車両運搬規則(昭和五十三年運輸省令第七十二号)
- -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(所外運搬規則)(昭和五十 三年総理府令第五十七号)
- 実用発電用原子炉の設置、運転等に関する規則(実用炉則)(昭和五十三年通商産業省令第 七十七号)
- -使用済燃料の再処理の事業に関する規則(昭和四十六年総理府令第十号)

c. 考察

フィンランドの法規制では、施設のタイプごとに法令が整備されている日本の法体系とは 異なり、安全、保障措置、核セキュリティといった個別の要件ごとに法令が整備されている。 つまり、使用済燃料の直接処分施設に対する保障措置・核セキュリティに関しても、YVL A.11 および YVL D.1に規定されている要件のうち、使用済燃料の直接処分施設に関連のある条文 を適用することになる。核セキュリティに関しては、直接処分施設特有の要求事項は規定さ れていないが、YVL A.11の適用施設として大規模な最終処分施設が含まれており、「最終処分 施設の核セキュリティ対策の必要性は、施設が STUK によって恒久的なものとして承認された 方法で安全に閉鎖された場合のみ終了できる」と規定されている。

一方、保障措置に関しては、「使用済燃料の廃棄に関する特定の要件」として以下のことが YVL D.1に規定されている。

- 使用済核燃料の最終処分施設の運用期間は 100 年を超える。使用済核燃料は施設の 建設と同時期に最終処分施設に定置されるため、保障措置の管理と核セキュリティ の対策を体系化することは非常に困難である。さらに、施設に定置された使用済核燃 料は、後日、地下で検認することは出来ない。
- 事業者は、特に核廃棄物施設および関連する地下施設を設計、建設、運営する際に、 保障措置に必要な準備をしなければならない。さらに、核廃棄物施設の設計、建設、 および運用における適切な考慮は、施設の封鎖後であっても、適切な保障措置を提供 する可能性を与えられなければならない。原子力用品目の移送ルート、予備貯蔵庫、 取り扱い工程、計量管理システムは、核物質の知識の連続性があらゆる段階で保証さ れるように設計および計画されなければならない。地下施設に出入りする核物質の 流れの管理は実行可能でなければならない。。
- 事業者は、STUK と合意した詳細レベルまで核廃棄物施設の建設計画と設計を STUK に 伝え、進捗を報告するものとする。事業者はまた、処分場で保障措置関連の申告され ていない活動が行われていないことを実証しなければならない。
- 事業者は、核廃棄物施設および関連する地下施設の建設中に、施設が申告通りに建設 されていることを実証するものとする。
- 事業者は、最終処分容器が最終処分されるまでの核廃棄物施設の運転中に核燃料ア イテムと最終処分容器を一意に識別できるように核廃棄物施設を設計しなければな らない。燃料アイテムに関連する核物質データは、STUK が承認した信頼できる計算

または実験方法を使用して指定するものとする。この指針の目的に対して、燃料アイ テムは、計量で使用される計量項目の用語とは対照的に、燃料を含む物理的な対象物 を指す。

- 事業者は、施設の運転中に当局が燃料アイテムをカプセル化する前に非破壊的方法 により各燃料アイテムの核物質データ(ソースデータと使用履歴)を検証できるよう に、カプセル化プラントを設計しなければならない。
- 事業者は、燃料アイテムの検認後の管理データの連続性があらゆる段階で保証されるよう、核廃棄物施設とその運転を設計しなければならない。連続性が失われた場合、燃料アイテムを再検認することが可能でなければならない。

その他で使用済燃料の処分施設特有の要求事項として以下の項目がある。

- 処分された使用済燃料またはその他の核物質に関して、事業者は、廃棄物管理義務期
 限が切れたとみなされ、計量義務と責任が国に移転されるまで、記録(ソース文書、
 履歴ファイル、総合台帳および運用記録、在庫変更報告書)を保管するものとする。
- 燃料アイテムの放射能および核物質データを検認するために、事業者は、燃料アイテムが最終処分容器に封入される前に、それらに施されたマーキングに基づいて各アイテムを同定、検査する。燃料アイテムのそのような同定、検査は、例えば、封入施設および封入施設に移動する前に中間貯蔵施設で実施する。
- 核燃料の処分を実施する事業者は、二重の封じ込めおよび監視システムを用いることで、燃料アイテムの健全性が、検認を実施してから最終処分容器に封入されるまで 維持されることを保証する。

前述のとおり、我が国では施設タイプごとに法令が体系化されていることから、我が国に おいて使用済燃料の直接処分施設の建設、操業などを行うことになった場合、直接処分施設 を対象とした法令が整備されるものと思われる。その際、フィンランドの法令で要求されて いる保障措置・核セキュリティに関する要件が参考にされる可能性も考えられるが、フィン ランドにおいても、使用済燃料の直接処分施設固有の核セキュリティに関する要件は規定さ れていないことから、核セキュリティに関する要件については、わが国でも、原子炉施設や 再処理施設等の使用済燃料を取り扱う施設に適用される要件を準用することで体系化するこ とが可能と考えられる。しかし、保障措置に関しては、最終処分容器に詰め替えた後の検認 方法や検認後の知識の連続性など、使用済燃料の直接処分施設固有の要件がフィンランドの 法令で規定されていることから、わが国においても同様の要件を省令または計量管理規定に 追加する必要が生じる可能性がある。

② 保障措置および核セキュリティに関するフィンランドおよびドイツの最新情報の収集

使用済燃料の直接処分などにおける保障措置および核セキュリティに関する諸外国の最 新情報などの収集を目的として、フィンランドおよびドイツの関係機関の訪問調査を行っ た。フィンランドでは、規制機関であるフィンランド放射線・原子力安全庁(STUK)において 処分場における保障措置及び核セキュリティの制度・技術上の対応状況と課題および今後 の方策に関し、最終処分施設の建設許可発給直後(2015年12月)の現地訪問調査以降、施 設建設が進められ、2020年に運転許可の発給が見込まれる状況あることから、この進展な ども含めた最新の状況について調査した(後述の a. 項参照)。またドイツでは、ユーリッヒ 研究所において使用済燃料およびその貯蔵施設の保障措置・核セキュリティ、ドイツにお ける処分計画と課題、長期管理と記録保持に関する制度・技術の検討状況について調査し た(後述の b. 項参照)。また、c. 項にフィンランドおよびドイツの調査結果のまとめを示す。

a. フィンランド

(a) 使用済燃料の処分施設における国レベルアプローチ(当該国に特化した保障措置手法) の位置づけと実施状況

国レベルアプローチの導入については、最終処分場、使用済燃料キャニスタ封入施設(地上施設)の設計にあたり、核物質の取得経路の分析(acquisition path analysis)が、重要な要素と考えられている。それは、この分析で挙げられたあらゆる経路に対して、IAEAの査察活動が活用されることにより、核物質の拡散防止に繋がるものと考えられるからである。

フィンランドにおいては、IAEA によって統合保障措置を 2008 年から開始し、また国レベル アプローチを導入することで査察業務量の削減が行われている。オルキルオト原子力発電所 とロヴィーサ原子力発電所等の保障措置対応のため、2008 年までは IAEA 査察回数が増加し ていたが、2009 年は査察回数が 40 %削減された。2018 年のデータでは、IAEA の査察回数は、 20 回となるなど効果が指摘された。

このような活動は、フィンランドの国内保障措置規制当局である STUK が主体となり、IAEA、 EURATOM や国内の関連する省庁との連携を図り進めている。

(b) 保障措置・核セキュリティおよび原子力安全における施策の相乗効果を期待したシステム設計の可能性

フィンランドでは、施設の検討の初期段階から、保障措置、核セキュリティ、原子力安全 (Safeguards, Security, Safetyの頭文字と取って 3S と称する)の視点での多岐にわたる 関係者間と意見交換を進めてきている。このような活動を通じて、保障措置、核セキュリテ ィおよび原子力安全それぞれが持つ特有の課題を斉一的に解決することができ、計画的かつ 円滑な認可手続き・施設建設が達成されてきている。その中でも原子力安全を鑑みた施設設 計が最初に確立され、更に保障措置と核セキュリティを適用することも考慮し、それぞれの 活動での設備共有などによる合理的・効率的な施設設計・検討に取り組んでいる。この取り 組みは GOSSR (Geological repository Safeguards and Security R&D) Project として、国内 の保障措置概念の確立および保障措置機器の開発に向けて、IAEA や EURATOM などの国外関連 機関と議論しつつ検討を進め、将来の世代の判断による選択性や、このための知識継承も含 めた手法開発を目指していると考えられる。技術開発として、使用済燃料の検認装置開発、 査察活動に求められる検認データや環境監視データの管理手法開発、将来世代に対するデー タ維持手法検討が継続的に進めてられている。

また、現在建設中の使用済燃料キャニスタ封入施設は設計段階から安全・保障措置および 核セキュリティを考慮(3S-by-Design)した施設であり、安全性の側面では、将来世代が最終 処分場の存在を忘失することが前提にある一方、保障措置の側面では、その時々の将来世代 の判断で最終処分した使用済燃料を回収することも選択肢として残すために、最終処分され たことの保証および記録保存・継承に留意しているが、現状の記録紙、電磁媒体など、現状 の記録媒体の長期保管の方法については、将来の技術開発に期待するとのことであった。

(c) 知識保持(埋設に関する記録の長期的な保存方法、技術的な困難性の解消)

最終処分の記録は、世代間で知識を保持することにより、ほぼ永久に維持されるべきであ る。現在、記録保持方法として普及している電子媒体はたかだか 100 年ほど利用されている に過ぎず、超長期間の保存については実証されておらず、代替手法については、IAEA の保障 措置グループなどでも検討されてきている。まだ検討の段階であるが、今後の技術開発の進 展については以下のような状況が想定されている。

- 保存すべき記録・知識として、計量管理データ、規制機関(STUK/EURATOM/IAEA)の決定、サイトの位置情報、検認データなど、多岐・多量にわたるものと想定されている。
 最終処分施設閉鎖後は、事業者から国(政府)に管理責任が移管される。しかし、この課題は、現在の技術開発の範疇を超えるものと考えられており、閉鎖段階である100
 年後の新技術に期待しているとのことである。
- 一方で次世代への知識継承の手法開発に関連、および寄与することが想定される技術 として、施設運転者(事業者)からの情報を複数の規制機関と共有することで情報の 維持や情報改ざんの有無の監視が期待できるブロック・チェーンの研究を 2020 年初 頭から開始する状況にある。この技術は、知識継承のみならず、情報の精度保証や透 明性の向上にも寄与するものとされており、事業者と規制機関(STUK/EURATOM/IAEA) 間での情報共有だけではなく、立地自治体などのステークホルダーも関与する機能・ 運用を想定している模様である。

(d) 処分場閉鎖後の保障措置実施に関する IAEA との協議・技術開発の現状

IAEAは、処分場閉鎖後の保障措置について、地震波と衛星画像による監視になるものと推定している。フィンランドでは、これから佳境に入る地上施設の建設・運転に注力しており、 今のところ処分場閉鎖後の保障措置技術についての議論は進んでいない。

最終処分に係る保障措置上の協議・検討に関して、最終処分施設の閉鎖が100年後である こと、他にも解決すべき多くの課題があることから、現状フィンランドでは深刻なテーマと はなっていない。本課題に関しては、IAEA や海外研究機関との情報共有・解決案の提示を継 続しているところである。最終的には閉鎖時点で管理責任は国(政府)に移譲されるものと 考えている。他方、IAEAの保障措置活動での検認プロセスを支援するために、既述のGOSSER プロジェクトでは、測定技術開発や長期にわたるデータ管理技術の開発を今後も継続して進 められていく状況である。

b. ドイツ

ドイツでは、2019年12月に、フィリップスブルク原子力発電所2号機が運転を停止し、現 在、6基が稼働中(計816.2万kW)であるが、2021年12月に3基(計405.8万kW)が停止 し、2022年12月には全ての原子力発電所が停止する。全ての使用済燃料は、2027年までに 乾式貯蔵施設に搬入され、全ての原子力発電所は2045年までに廃止措置が実施される。一方、 高レベル放射性廃棄物処分場は、2031年までにサイトを選定し、2050年から処分場の運転を 開始する計画である。

(a) 使用済燃料の中間貯蔵施設/処分施設における国レベルアプローチ(当該国に特化した保 障措置手法)の位置づけと実施状況

ドイツでは、当面の方針として、使用済燃料についてドライ・キャスクを採用した中間貯 蔵を進めている。保障措置の側面からは、キャスクに封入後は燃料集合体を1アイテムとし た監視が困難となることから、キャスクを1アイテムと扱うとともに、検認方法は、メタル シール(金属のボタン型封印)あるいはコブラシール(COBRA:光ファイバの切断面を検認) による蓋の封印、およびデジタルカメラによる光学装置を用いたデュアル監視を適用してい る。処分環境に大きく依存する最終処分に対する保障措置アプローチは、現在はサイト選定 の段階であることから未整備の状況であるが、核物質の移動・収支を管理するための計量管 理手法の検討等は継続的に行われている。今後は具体的な施設設計や IAEA の勧告、要件、ガ イダンス等を踏まえた更新を進めていくとのことである。

(b) 保障措置・核セキュリティおよび原子力安全における施策の相乗効果を期待したシステム設計の可能性

ドライ・キャスクによる保管・管理を実施するにあたっては、上記に示した封印・監視装 置について、電子封印情報やカメラによる映像データは IAEA と専用ラインで情報が共有(リ モートモニタリング)されている。また、安全(一般・放射線安全)の観点では、キャスクの 蓋に設置する封印に COBRA シールを採用することで、高所での長時間の査察活動が不要とな り、作業員・査察官の安全・効率化を図っている。一方、保障措置と核セキュリティの相乗効 果については、IAEA が提唱している保障措置情報などの核セキュリティ対策への利用など、 一部情報の共有により効果が期待されるものの、機微情報が公知のものとされることによる 核セキュリティ上のリスクなどの課題があることも認識されており、具体的な応用例あるい はシステム設計には至っていない。

(c) 処分場閉鎖後の保障措置実施に関する IAEA との協議・技術開発の現状

最終処分施設閉鎖後の保障措置活動に関しては、現在はサイト選定の段階であり、手法に 関する IAEA との議論に大きな進捗はない状況にあると考えられるが、下記のような処分場で の未申告活動の監視技術が紹介された。

・衛星による地形観測

・音波/地震波を用いた観測

また、現在重点的に進めている中間貯蔵施設については下記のような技術開発を実施して いるとのことであった。

- ・中間貯蔵施設に保管されるキャスクの封じ込めを担保するための、レーザー測距装置 を用いた 2D の画像診断(米国と共同研究)、また 3D 画像診断による中間貯蔵施設内の キャスク定置状況監視(未申告移動に対する監視)
- ・ミュオントモグラフィによるキャスク内使用済燃料の再検認

c. フィンランドおよびドイツの調査結果のまとめ

表 4-5 にフィンランドおよびドイツの調査結果をまとめる。

項目	フィンランド	ドイツ
訪問先	フィンランド放射線・原子力安全庁 (STUK)	ユーリッヒ研究所(FzJ)
調査の内容	処分場における保障措置及び核セキ ュリティの制度・技術上の対応状況 と課題及び今後の方策	処分場の保障措置に関する計画と課題、 中間貯蔵施設の保障措置、長期管理と記 録保持に関する技術の検討状況
当該国の保障措 置の位置づけ・ 手法	最終処分場、使用済燃料キャニスタ 封入施設(地上施設)の設計にあた り、核物質の取得経路の分析が重要	最終処分サイトの選定状況にあり処分 環境に依存することから、未整備の状況
3S による相乗効 果	GOSSER* Project として、保障措置概 念の確立/保障措置機器の開発を関 連機関と議論しつつ検討中 *: Geological repository Safeguards and Security R&D	保障措置等の情報の核セキュリティ対 策への一部共有に効果が期待されるも のの、核セキュリティ情報の共有につい ては一部に課題があると認識
国内関連法規類	原子力法の下、原子力施行令、STUK 規則、原子力安全・核セキュリティ・ 保障措置の規制に係るガイド (YVL) で構成	2017 年改正の発熱性放射性廃棄物の最 終処分場のサイト選定に関する法律(サ イト選定法:Stand AG) にて対応
回収可能性/可 逆性	GOSSERにて様々な段階でのキャニス タの回収技術、査察機器開発、将来 世代に対するデータ維持手法検討を 実施中	サイト選定法で、運転期間中の回収可能 性、閉鎖後 500 年間の回収に備えた予防 措置の担保を規定
長期の知識・記 録保持技術	超長期間の保持方法は実証されてお らず、新技術に期待。新たな手法と してブロック・チェーンの開発を開 始予定	中間貯蔵を主要な対策と位置付け、最終 処分については、現在、具体的な検討は 進んでいない
処分場閉鎖後の 保障措置実施に 関するIAEAとの 協議等	最終処分施設の閉鎖が 100 年後であ り、今のところ議論は進んでいない。 現在は、これから佳境に入る地上施 設の建設・運転に注力している	サイト選定の段階であり、手法に関する IAEA との議論に大きな進捗はない状況

· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·

2) 使用済燃料の線量当量率変化の影響評価

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 量に応じた保障措置・核セキュリティ対策の見直しを行う必要が生じる可能性がある。悪意 を持った国家あるいはテロリストが、直接処分場に定置された使用済燃料から核物質を転用 あるいは盗取しようとする際には、まず処分容器にアクセスし、取り出さなければならない。 そのため、平成30年度は、処分容器1体に起因する放射線量の経時変化を評価した。この場 合は、処分容器が遮へい材として機能するため、遮へい材を通り抜けた後の線量を評価した ことになる。悪意を持った国家、或いはテロリストが処分容器にアクセスした後に行うこと は、処分容器から使用済燃料集合体を取り出すことにある。そのため、平成31年度は、遮へ い材の無い使用済燃料集合体1体に起因する放射線量の経時変化を評価した。

① 使用済燃料が持つインベントリおよびそれらが持つ線量の解析手法

解析には核種崩壊生成計算コード ORIGEN2 用の断面積ライブラリセット(ORLIBJ40)を使用 した(原子力機構, 2012)。解析で用いるライブラリとしては、BS340J40を用いた。一般的に 線量解析をする場合は、様々な炉心条件を検討し臨界や遮へい対策への影響評価を実施して いる。しかし、保障措置・核セキュリティ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、保障措置・核セキュリティ対策に与える影響も小さいものと予想される。本解析で対 象とするのは、冷却後どれくらい経てば、核物質の転用がしやすくなるか、またはテロリス トが燃料集合体にアクセスしやすくなるかを大まかに評価することであるため、本解析では、 BWR の標準的な 9x9 燃料集合体を対象とし、濃縮度 4.1 %の燃料を燃焼度 45 GWD t⁻¹まで燃焼 させたのち、冷却期間に沿って放射線量がどのように変化するかを解析した。燃料集合体の 仕様は、BWR については西原ら(原子力機構, 2012)の解析にてレファレンスとして設定した 仕様である。表 4-6 に解析に用いた燃料集合体の仕様を記載する。

ORIGENの計算では、導出されたインベントリにより放出される中性子および光子(18群) を導出する。次に、粒子輸送モンテカルロ・コードである PHITS を用いて、使用済燃料付近 の光子及び中性子フラックスを導出する。その後、線量の導出には、得られたフラックスに 周辺線量当量(1センチメートル線量当量)換算係数の文献値(日本原子力学会,2010)を乗 じて、周辺線量当量を導出する。図 4-10 に計算フローを示す。

燃料タイプ	BWR $(9x9)$
初期濃縮度	4.1 %
照射期間	1016 日
燃焼度	$45~{ m GWd}~{ m MTU}^{-1}$
比出力	25.6 MW MTU ⁻¹
冷却期間	取出直後~1 万年

表 4-6 解析に用いた燃料集合体の仕様(原子力機構, 2012)



図 4-10 計算フロー

② シミュレーションの結果

図 4-11 に冷却後 10 年の使用済燃料集合体が作り出す周辺線量当量の様子を示す。図中の 水平方向距離 0 cm の地点に直立しているのが使用済み燃料集合体である。その右隣の黒線の 丸で囲まれた領域を、燃料集合体の表面付近の線量をサンプリングする領域とした。表面付 近の線量当量の経時変化を図 4-12 に示す。



図 4-11 周辺線量当量の様子



図 4-12 線量当量の経時変化

③ 考察

国家やテロリストが核物質を盗取することを考えると、その国家の作業者あるいはテロリ ストが死亡せずに核起爆装置(NED)作製を完遂できるかどうかが、一つの絶対的なしきい値 であると考えられる。致死に至る線量をどのように考えるかは諸説あるが、被曝後 30 日以内 に 50 %の確率で人が死亡する線量(LD50/30)が4 Sv であることを鑑み、数 Sv のオーダー が、人間の致死線量を考えるうえで重要である。そのため、本解析では、1 Sv h⁻¹を評価上重 要な許容値と仮定し、計算結果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 4-12 から、約 100 年~200 年後に線量がこの許容値
を下回ることがわかる。つまり、早ければ定置してから 100 年後には脅威者が処分容器の蓋 を開け、中の燃料集合体にアクセスする可能性がある。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、操業を終えた後から、脅威者が使用済燃料集 合体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。しかし、直接処分 施設の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、処分容器への アクセスが容易と考えられるが、地層処分施設閉鎖後は、それと比べるとトンネルが埋め戻 されているため、処分容器へのアクセスは困難になると考えられる。しかし、テロリストが 穴を掘りアクセスする可能性もあるため、直接処分施設の閉鎖後も、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。

3) 最近の脅威の動向やその対策などの調査

原子力施設に対するセキュリティ対策は、原子力施設への施設外からの攻撃や不法侵入な ど、外部者による脅威に加え、従業員や関連業者などの内部者による脅威も考慮して構築す る必要がある。内部者には核燃料物質の保管場所や核セキュリティ上機微な場所などの枢要 区域へのアクセス権限を有する者もおり、その者が枢要区域にアクセスしたときに、それが 業務上の行動であるか脅威行動であるか判断することが核セキュリティ対策の一つになる。

内部者が核物質や放射性物質の盗取や妨害破壊行為を試みる場合、工具による電源盤、回 路盤などへの工作や、核セキュリティ上重要なエリアや機器への接近など、通常の業務行為 から逸脱した行動をとることが考えられる。電源盤などへの不要な操作に関しては、手元動 作を監視カメラで撮影し、その動作が通常業務の行為から逸脱していることを検知すること で発見することが可能と考えられる。また、核セキュリティ上重要なエリアなどへの接近に ついては、内部者の行動動線を監視することで検知可能と考えられる。

本項では、内部者による脅威の防止・監視に適用可能な最新装置として、人工知能を利用 した手元動作の3次元画像解析技術、および次世代カラーバーコードを使った動線管理技術 を挙げる。

① 人工知能を利用した手元動作の3次元画像解析手法

内部脅威者による妨害破壊行為は、通常の保全作業などとの区別が困難であるという特徴 があるが、工具による電源盤、回路盤などへの工作といった手を用いた妨害破壊行為につい ては、手元動作を監視し、その画像を人工知能で分析することで検知できる可能性があるこ とが出町ら(出町ら, 2017)により指摘されている。

出町らによると、Microsoftの製品である Kinect-v2 を用いて開発した、五指の先端の3次 元座標をリアルタイムで測定する手法により、5 指の正確な指先座標を得ることができるよ うになり、そこで得られた手元動作に関する動画像解析と機械学習により「押す・握る・切 る・叩く・回す」の5種類の手元動作に対し、平均正解率82.5%で識別することができたと している。直接処分施設でも、様々な工具や機器、システムを使用することが想定されるが、 保守点検であれば、マニュアルに沿った動作が実施されるので、毎回ほぼ同じ手元動作にな ることが予想される。しかし、妨害破壊行為では、保守点検ではありえない手元動作が検知 される可能性があり、これを、代表的な手の動きである「押す・握る・切る・叩く・回す」を サンプルとして観察することで、妨害破壊行為を検知できる可能性がある。図 4-13 に「押す・ 握る・切る・叩く・回す・ランダム」の平均識別率を示す。



図 4-13 「押す・握る・切る・叩く・回す・ランダム」の平均識別率(出町ら, 2017)

② 次世代カラーバーコードを使った動線管理手法

次世代カラーバーコードである「カメレオンコード」は、株式会社シフトが開発した、シ アン・マゼンダ・イエロー・ブラック(CMYK)を使ったカラーバーコードであり、高速・高 精度の複数認識が可能なバーコードである(株式会社シフト, 2020)。30万画素カメラの場 合、画像全体の0.6%程度の大きさでコードが含まれていれば認証が可能であり、また、分 速150mで移動するコンベア上の容器も認識できるとしている。これらの技術を利用するこ とにより、内部者の衣服やIDカードにカメレオンコードを付すことで、内部者の動線を把 握でき、通常業務の動線から逸脱していることを検知することが可能となる。図4-14にカ メレオンコードの例を、表4-7にカメラによる認識率を示す。



図 4-14 カメレオンコードの例(株式会社シフト, 2020)

表 4-7	カメレオンコー	ドの認識率(株式会社シフト,	2020)
-------	---------	----------------	-------

画素数	30 万画素	80 万画素	130 万画素以上
ピクセルサイズ(px)	640×480	1024×768	$1280 \times 1024 \sim$
コードの画像内面積占有率	0.60 %	0.20 %	0.15 %以下

③ 考察

内部者による脅威を防止・監視するため、現在は主に、Two-Persons Ruleの適用や従業 員の信頼性評価といったソフト的な対策、施錠や ID カード認証などによるアクセス制限や 監視カメラによる行動監視といったハード的な対策が取られている。

今後は、最近の人工知能技術の発達により、人工知能が組み込まれたハードウエアによる 対策が採用されることが多くなっていくことも考えられるが、先端技術に依存するセキュリ ティ対策であれば万全と言いうことはなく、カメレオンコードのような、いわゆる枯れた技 術を応用した技術や、Two-Persons Ruleの適用や従業員の信頼性評価といった、これまで どおりのソフト的な対策も並行して適用していくことが重要と考えられる。

4) 外部モニタリング情報の適用可能性評価

処分施設の保障措置・核セキュリティ対策に用いられる技術は、例えば、悪意を持った国 家またはテロリストが、秘密裡にトンネルを掘削し、埋設した燃料にアクセスすることの検 知を目的とする。また、そういった対策は、長期間、広範囲にわたって機能を維持していく 必要があることが大きな特徴である。衛星情報や地震波データを用いた外部モニタリング技 術は、その有力な候補技術であり、フィンランドでは、地震波データの活用に関しフィール ド試験をすでに実施しており、IAEAも活用する方向で検討されている。保障措置・核セキュ リティに関しての技術的な情報は機微情報であり、諸外国などからのそれらに関する情報の 入手はかなり限定される可能性が大きいこと、また、保障措置・核セキュリティの対策は各 国がテーラーメイドで行うのが基本であること、などから、海外の進展を確認し取り込んで いくことと並行して、岩盤の特徴などを含めた日本特有の要素を考慮した検討を行い、複数 のオプションを検討・準備しておくことも重要である。また、地震波モニタリングは、自然 地震、車両などの振動、処分場内機器の振動などのノイズとの区別が極めて重要である。本 研究では、日本において地震波データの分析が保障措置・核セキュリティに適用できるかど うか、適用できる場合には検知器をどのように配置するのが最善であるかを検討した(「①地 震波モニタリング情報の適用可能性評価」)。また、人工衛星は、地層処分施設の建設工事開 始前から、建設工事中、さらに運用開始後の地表面や建物の状態に関する経時変化データを 取得することができ、現在、IAEA も未申告活動の検知のために人工衛星を利用している。本 研究では、様々な人工衛星で得られる情報を整理し、それらの情報が処分施設における不正 なアクセス監視技術なるかどうか検討した(②衛星情報の適用可能性評価)。

なお、地震波モニタリング情報や衛星情報の利用自体は、実用化された技術だが、処分施 設に対する保障措置・核セキュリティといった特殊な目的に応用できるかは、新たに検討す る必要がある。例えば、既存技術である ACROSS 振源については、基本的に非常に低い周波数 でかつ狭い帯域(一般に数 Hz から 50 Hz)のスウィープ振動を長期間発振する人工振源で、 長期観測により地下深部の経時変化を監視する技術であり、処分施設の保障措置・核セキュ リティで着目する地震波モニタリングとはスケール感(時間的、サイズ的)が異なる。

① 地震波モニタリング情報の適用可能性評価

使用済燃料の直接処分に特有の課題のひとつとして、地下処分場に埋設された使用済燃料

が地下において、国家による秘密裏の核兵器製造のための核物質の転用、または反社会的組 織による盗取といった事象が発生しないような対策を施す必要があることが挙げられる。こ のような事象を防止するための方法のひとつとして、常時振動観測を行うことで、違法行為 を行うための秘密の地下トンネル、または埋設場所までの立坑の掘削を検知することが考え られる。一方、わが国では地震活動や商業活動により日常的に振動が発生しているため、上 記のような振動が発生したとしても検知できない可能性がある。このため、本項では、①自 然に発生する振動波、②車両等交通手段の運行による振動波、③地下トンネル(水平方向) の掘削時に発生する振動波、④地表から地下(垂直方向)への立坑掘削時に発生する振動波 の比較を行い、それぞれが重複したとしても③と④の振動波を区分して観測可能かを評価す る。

ここでの常時振動観測の目的は、不穏な地下活動を監視し使用済燃料に不正にアクセスさ れることのないように未然に防止することである。したがって、第一義的な観測対象は地下 施設に通じる坑道掘削で生じる振動である。本項では、当該常時振動観測システムの設計に 向けて必要となる、以下の項目について調査、検討を行った。

- a. 観測エリアのノイズ環境の把握
- b. 掘削振動波形の判別と抽出
- c. 観測エリアの地下構造や地質状況の把握、および振源振動の伝播特性の推定
- d. 震源解析に資する観測点配置の検討

a. では振動観測を行うに際に考慮すべきノイズの特性やその大きさについて、実測データ を基に明らかにした。b. では、それらの検討結果を踏まえ坑道掘削振動をノイズから分離・ 抽出する手法を検討し、地震波モニタリングが坑道掘削活動を監視する手法として有効であ ることを示した。さらに c. と d. で想定される観測エリアにおける振動の伝播特性を予測し、 地震波モニタリングシステムや観測点の配置について検討した。以下に、これらの各項目に ついての検討結果をまとめる。

a. 観測エリアのノイズ環境の把握

静かなノイズ環境おける振動特性や人工的なノイズ(電車や車両ノイズ)、自然地震などを 実測し、周波数特性や振動レベルについて把握した。

人工的なノイズはどれも 70 Hz 程を上限にした低周波数振動で、振源の近くでは数 いから 数十 いkine (cm sec⁻¹の速度の単位) 程の振動レベルであった。但し、振源から数百メート ルも離れればその影響はなくなる。以下に電車ノイズの一例を紹介する。

図 4-15 は観測に用いた受振点配置である。図 4-16 は各受振点近傍を電車が通過する際に 記録されたノイズ波形と周波数特性の代表例(観測点②の上下動成分)である。振動レベル はピーク値でおよそ 2 ミリkine、RMS 値(二乗平均平方根値)でおよそ 250 マイクロ kine であっ た。波形をみると、観測点④(線路からの距離はおよそ 210 m)より遠方の観測点では電車ノ イズが視認できないレベルに減衰していることが確認できる。

次に、振動ノイズの少ない静かな環境下で取得したノイズ波形の例を図 4-17 に示す。これ より最も静かな環境における振動レベルは 10 マイクロ kine から 20 マイクロ kine であると考えられ る。



図 4-15 受振点配置図



図 4-16 電車通過時のノイズ観測事例(波形と周波数の特性)



図 4-17 静かな環境における3成分受振器のノイズ波形と周波数解析結果

b. 掘削振動波形の判別と抽出

ここでは、各観測点においてノイズと掘削振動が重畳した場合も、それぞれの周波数成分 の違いに着目した信号処理を適用することで、掘削振動を復元できることを確認した。以下 に検討結果を紹介する。

岩盤発破や機械式掘削機による坑道掘削で発生する振動を実際に取得することはできない ため、機構や起振力が機械式掘削機に近い、陸上反射法地震探査用途に用いられるインパク タ振源の振源波形を取得して坑道掘削時の振源波形として代用した。図 4-18 にインパクタの 外観と諸元を示す。インパクタデータを前項 a. で取得した電車通過ノイズデータと合成する ことでノイズに重畳する掘削振動波形をシミュレーションし、インパクタ振動を分離抽出す ることを試みた。結果を図 4-19 に示す。



JMI-400	: JGI, Inc.
Impaction Energy	: 9,000 joules
Length	: 5.77 m
Width	: 3 m
Weight	: 8.79 tons
Height	: 3 m

図 4-18 インパクタ振源



図 4-19 電車ノイズデータとインパクタデータを合成した波形からのインパクタ振動を分 離・抽出の例

図 4-19 の上段の図が電車ノイズデータとインパクタデータを合成した波形である。4 種類 のインパクタデータを用いて、波形の初動時刻が約 31 秒、約 34 秒、約 37 秒、約 40 秒の位 置にくるように合成した。なお、オリジナルのインパクタ振動は電車ノイズに比べ非常に大きいため、ここではレベルを落として合成波形上で電車ノイズに埋もれて視認できないように調整した。

図 4-19 の下段の図は、合成波形の spectrogram である。これは横軸に時間、縦軸に周波数 をとることで波形の周波数成分の経時変化を示したものである。これより、ノイズの卓越周 波数は数 Hz から 100 Hz 程度まで、インパクタ振動は2 kHz 程度までの広い周波数成分を有 することがわかる。両者の周波数成分の違いに着目して、ノイズの影響がなくなるように単 純なハイパスフィルタを適用し、インパクタ振動を抽出したものが図 4-19 の中段の図であ る。抽出したインパクタ振動波形はインパルス状の特性を保持しており、初動時刻を精度よ く読み取ることが可能である。よって、抽出されたデータは振源解析(震源位置の特定や振 動の到来方向の検出)に資する品質であることが確認された。

c. 観測エリアの地下構造や地質状況の把握、および振源振動の伝播特性の推定

ここでは、後述の「d. 震源解析に資する観測点配置の検討」での観測点の配置やその間隔 の検討に資するため、観測エリア内で発生する振動の伝播特性を予測する。地下数百メート ルの中浅層の岩盤中を伝播する弾性波平面波の振幅低下率と伝播距離の関係を図 4-20 と図 4-21 と仮定した。この減衰特性を求めるために用いた岩盤の基礎的な特性は以下とした。

• 減衰特性(Q値) :50

中浅層のあまり深くない深度にある岩盤を対象として 比較的大きな減衰が生じると仮定

 ・ 弾性波 P 波速度 : 2.2km sec⁻¹ (JAEA 幌延深地層研究センターの地下施設が 建設されている稚内層の実測値を参考に設定)(小川, 2004)

まず、振源から離れた位置に配置された地表振動計の振動検出限界について考える。地下 の坑道掘削工事の際に遠方に設置される地表振動計で記録される振動レベルは最大で 2 gal 程であると考えられる。この値と図 4-20 に示す減衰特性、静かな環境におけるノイズレベル の目安を、前項「a. 観測エリアのノイズ環境」での実測値を参考に 10 マイクロ kine と設定し、 坑道掘削振動の特に低周波数成分の振動検出限界を予測する。振源から遠方に設置された地 表振動計が観測対象とするイベント振動の周波数成分の上限を例えば 100 Hz とすると、振源 位置から 2,000 m 強離れた場所でも掘削振動を検知することができることになる。振動周波 数が 100 Hz より低ければ、さらに遠方まで振動は伝播することになる。例えば 60 Hz では 4,000 m 弱となる。

次に、振源の比較的近くに配置された地下振動計の振動検出限界について考える。地下の 坑道掘削工事の際に近傍に設置された地下振動計で記録される振動レベルは最大で5 gal 程 であると考えられる。この値と図 4-21 に示す減衰特性、地下の静かな環境におけるノイズレ ベルが 20 ミリgal (高性能加速度計の自己ノイズを参考に設定)として、坑道掘削振動の特に 高周波数成分の振動検出限界を予測する。振源の近傍に設置された地下振動計が観測対象と するイベント振動の周波数成分の上限を例えば 1,000 Hz とすると、振源位置からおよそ 300 m 離れた場所でも掘削振動を検知することができることになる。振動周波数が 1,000 Hz より 低ければ、さらに遠方まで振動は伝播することになる。例えば、600 Hz の場合 400 m ほどまで伝播する。



岩盤中を伝播する弾性波P波(低周波数帯域)の減衰特性

岩盤中を伝播する弾性波P波(高周波数帯域)の減衰特性



図 4-21 弾性波(P波)の減衰特性の推定(高周波数振動)

d. 震源解析に資する観測点配置の検討

観測エリアを図 4-22 に示す 5 km×5 km×500 m の黄色線で囲んだキューブと仮定して、地 表観測点(概査システム)と地下観測点(精査システム)を設定することで効率的に観測点 配置を行うことを検討した。

地表観測点については、受振点間隔の目安は3 km~4 km で観測エリアの四隅に4 観測点を 配置する。これらの観測点システムは、数 Hz から 100 Hz までの周波数帯域を高感度に受振 する必要がある。また、観測点は、バックグランドノイズが小さい場所を選点し、表層で高 周波数振動が大きく減衰することが予測さる場合は表層を掘り抜いて受振器を堅牢に設置す るなどの工夫が必要である。受振点間距離は前項「c. 観測エリアの地下構造や地質状況の把 握、および振源振動の伝播特性の推定」の低周波数成分の振動検出限界の検討結果を基に設 定した。

地下観測点については、受振点間隔の目安は 200 m~400 m で地下施設を取り囲むように 4 つの観測点を配置する。これらの観測点については、地表から任意の深度まで観測坑井を掘 削して受振器を設置する方法や地下施設や坑道などの既存の地下空洞を利用して側壁や底盤 に観測孔を掘削して受振器をセメント埋設するなどの方法が考えられる。観測点数は観測対 象である地下施設の大きさにより適宜設定する。受振器には数 Hz から 1 kHz かそれ以上の周 波数の広帯域振動を高感度で受振できる受振器で、なおかつ自己ノイズの小さなものを使用 する。受振点間距離は前項「c. 観測エリアの地下構造や地質状況の把握、および振源振動の 伝播特性の推定」の高周波数成分の振動検出限界の検討結果を基に設定した。

なお、上記での観測点数の4というのは、振源位置決定が可能な最低減の数である。観測

点数がこれより増える毎に、一般に振源位置決定精度が向上する。

各観測点では、受振器からの信号を必要に応じて増幅した後に適切なパラメータを用いて AD 変換し、データを連続的に記録する。観測データをリアルタイムに処理・解析する必要が ない場合、例えば1カ月に一回の頻度で蓄積したデータを回収し、まとめて解析・整理を行 うなどの運用法が考えられる。一方、リアルタイム性が求められる場合は、監視センターと 各観測点を結ぶ高速通信網を整備し、データを監視センターのサーバーまでリアルタイムで 送信する必要がある。一旦データが集積されれば、イベント信号を選別して抽出し、P 波や S 波の初動ピックを行い震源解析を行う一連の処理内容は基本的にオンラインでもオフライン でも同じであるが、オンラインの場合は処理フローを自動化する必要がある。

なお、本常時振動観測システムは、坑道掘削振動のみならず自然地震や観測エリア内の岩 盤で発生する岩盤の緩みや亀裂、崩落などに伴い発生する AE (Acoustic Emission:岩盤破壊 に伴い発生する微小振動) なども観測することができるため、地下施設の維持管理に資する 有用な情報も与えるものである。



図 4-22 イベント振動と観測点配置の概要図

② 衛星情報の適用可能性評価

a. 目的

IAEA が開催した「地層処分への保障措置適用に関する専門家会合(ASTOR)」の報告書 (Technologies Potentially Useful for Safeguarding Geological Repositories (STR-384)によると(IAEA, 2017)、人工衛星による観測技術を用いることで、地層処分施設の建設 工事開始前から建設工事中または運用開始後の地表面や建物の状態に関する経時変化データ を取得することができることから、未申告活動の検知技術として有用と考えられ、地層処分施設に対して適用する保障措置技術として重要な位置を占める可能性があるとしている (IAEA, 2017)。また、敷地周辺も含めた地表部分の利用状況の経時変化を観測することで、 核セキュリティ技術としても適用できる可能性がある。

本節では、人工衛星による観測技術が地層処分施設の保障措置・核セキュリティ技術として適用可能であるか検討する。

b. 概要

地層処分施設では核物質が地下数百メートルに埋設されるため、核物質を施設外に持ち出 して転用しようとしたり、脅威者が核物質にアクセスしようとしたりする場合、その手段の ひとつとして地表から埋設位置までのトンネルを秘密裏に作ることが考えられる。

これを検知するためには、トンネルの掘削によって生じる地表面の穴や窪み、掘削で発生 する廃土による盛土などによって生じる地表面の変異、サイト周辺の植生や温度の変化を観 測することが有効な手段と考えられ、そのためには広大な敷地を有する地層処分施設および その周辺地域を網羅的、かつ効率的に監視することが可能な人工衛星による観測技術が有効 と考えられる。

ここでは、以下の4機の人工衛星で観測したデータに基づいて、それぞれの人工衛星で得 られる情報を比較した。

- ALOS-2
- LANDSAT-8
- Terra
- Suomi-NPP

c. 人工衛星により取得可能な観測データ

(a) ALOS-2

a) ALOS-2 の仕様

ALOS-2 は 2014 年 5 月に打ち上げられた日本の人工衛星であり、観測機器として高性能マ イクロ波センサ「フェーズドアレイ式Lバンド合成開口レーダ PALSAR-2」を搭載している。 合成開口レーダ (SAR: Synthetic Aperture Radar) は昼夜や天候によらず観測できるのが特 徴で、特にLバンドという帯域の電波を使ったこのレーダは、地殻変動や、森林や植物の状 態などを捉えることが可能である。

b) PALSAR-2 により取得した画像データ

図 4-23 に 2014 年 9 月 16 日と 2016 年 3 月 15 日に同一地域を撮影した画像を重ね合わせ、 差分を表示した画像を示す(ALOS-2/PALSAR-2, 2014; 2016)。この差分画像では、2014 年 9 月 16 日に撮影した画像に赤および青を、2016 年 3 月 15 日に撮影した画像に緑を割り当てて重 ね合わせたものであり、2014 年 9 月 16 日から 2016 年 3 月 15 日の期間に変化がなかった場 所は白に、新しく物体ができた場所は緑に、物体がなくなった場所は紫に、レーダ波の吸収・ 乱反射などにより反射波が得られなかった場所は黒く表示されている。 これにより、PALSAR-2 により、ある期間を空けて撮影した複数の画像を利用することで、 その期間中に変化があった場所を抽出することが可能であることが分かる。



2014年9月16日(赤および青)および2016年3月15日(緑)に撮影図 4-23 PALSAR-2 により撮影された画像を用いた差分画像

(b) LANDSAT-8

a) LANDSAT-8の仕様

LANDSAT-8 は 2013 年 2 月に打ち上げられた米国の人工衛星であり、観測機器として Operational Land Imager (OLI) と Thermal Infrared Sensor (TIRS) が搭載されている。 OLI は 433 nm から 1390 nm の波長域を 9 区分のバンドに分け、観測対象によりバンドを選択 することで鮮明な画像を撮影することができる。TIRS は熱赤外線センサであり、地表面の温 度を測定することが可能である。

b) 0LI により取得した画像データ

図 4-24 に 2013 年 10 月 29 日と 2015 年 11 月 4 日に 0LI のバンド 5 により撮影した画像を 示す。バンド 5 (845-885 nm) は近赤外の波長帯で、特に植物からの放射をよくとらえる波長 のため、植生調査などに適している。それぞれの画像を比較すると赤で囲った部分の植生が 変化していることが分かる。



(a) 2013年10月29日



(b) 2015年11月4日

図 4-24 OLI により撮影された画像

(c) Terra

a) Terra の仕様

Terra は 1999 年 12 月に打ち上げられた日本、米国、カナダの人工衛星であり、観測機器と して Advanced Spaceborne Thermal Emission and Reflection Radiometer (ASTER)、Clouds and the Earth's Radiant Energy System(CERES)、Multi-angle Imaging Spectro Radiometer

(MISR)、Moderate-Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS)、および Measurement of Pollution in the Troposphere (MOPITT) の5種類のセンサが搭載されている。これらセンサのうち、ASTER は日本の通商産業省(当時)が開発したもので、0.52 nm から11.65 nm の 波長域を14区分のバンドに分けて観測可能である。

b) ASTER により取得した画像データ

図 4-25 に 2011 年 9 月 12 日に ASTER により撮影した画像を示す。赤く囲った部分に約 22 ~23 ℃の温排水と見られる温度分布が見られる。当該場所には、火力発電所があるため、そ こからの温排水と考えられる。



(d) Suomi-NPP

a) Suomi-NPP の仕様

Suomi-NPP は 2011 年 10 月に打ち上げられた米国の人工衛星であり、観測機器として Advanced Technology Microwave Sounder (ATMS)、Visible/Infrared Imager and Radiometer Suite(VIIRS)、Cross-Track Infrared Sounder (CrIS)、Ozone Mapping and Profiler Suite (OMPS)、Clouds and the Earth's Radiant Energy System (CERES) の5種類のセンサが搭 載されている。これらセンサのうち、VIIRS は 0.4 µm から 12.5 µm の波長域を 22 区分の バンドに分けて観測可能であり、その中のひとつのバンドの機能である夜間の定常光を観測 できる Day Night Band (DNB)を用いることで、地上の定常光の強度を観測することが可能で ある。

b) DNB により取得した画像データ

図 4-26 に DNB の夜間定常光データを用いて求めた、2015 年 3 月および 9 月における、地 表面での定常光の位置、および地上から放射される光の強度の月間平均放射輝度(ラジアン ス)を示す。



2015 年 3 月(背景 2014 年 4 月 23 日)



2015年9月(背景 2015年7月31日) 月間平均放射輝度=9.87×10⁻³ W sr⁻¹ m⁻² 月間平均放射輝度=1.01×10⁻² W sr⁻¹ m⁻²

図 4-26 DNB により撮影された画像

d. 考察

ALOS-2、LANDSAT-8、Terra、Suomi-NPP で得られた情報の整理・比較から、入手可能な画像 データは人工衛星に搭載されているセンサにより異なることが分かった。ある期間を空けて 撮影した ALOS-2(PALSAR-2) または LANDSAT-8(OLI) で撮影した画像データからは、その期 間中における植生変化、掘削、盛土、新たな建造物など地表の状態の変化を観測することが 可能であり、Terra (ASTER) および Suomi-NPP (DNB) で撮影した画像データからは、観測地 点の温度や輝度を測定することが可能である。

このことから、複数の人工衛星またはセンサを用いて画像データを取得し、それらを相互 に比較分析することで、地表面の変化や観測時点における環境状況を推定することが可能と 考えられる。つまり、脅威者が核物質にアクセスするために地表から埋設位置までのトンネ ルを作ったとしても、ALOS-2、LANDSAT-8による観測で地表面の変化や森林が伐採された位置 を特定することが可能であり、さらに Terra、Suomi-NPP による観測で、掘削機械からの放射 熱や照明機器の光を観測することが可能であり、これらを詳細に比較分析することで、脅威 を検知することができる可能性があると考えられる。なお、人工衛星による観測技術を地層 処分施設の保障措置・核セキュリティ技術として実際に適用する際には、衛星情報だけでは なく、処分施設の建設時からの地理情報や地質情報及び施工情報も併せて整備し、比較分析 に活用できるようにしていくことが必要となると考えられる。

(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、システムの成立性を効果的に検討する ための手法の整備や課題の整理を行うともに、保障措置・核セキュリティなどの国際的な進 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た。

システムの成立性の効果的な検討については、その信頼性向上のための課題などの具体化 に向けた検討を行った。具体的には、まず、諸外国における直接処分や日本におけるガラス 固化体地層処分の既往の検討事例について、それぞれの事例で認識されている課題の比較・

分析を行った。これにより、諸外国との差異として着目すべき日本の地質環境の特徴やガラ ス固化体との差異として着目すべき使用済燃料の特徴を抽出するとともに、これらの差異に 着目し、既往の検討事例での課題や留意点およびその対策などを日本の直接処分に適応でき るかどうかの検討、および直接処分第1次取りまとめの課題などの見直しの要否などの検討 を行った。さらに、これまで直接関連する構成要素および研究・技術分野毎に個別に検討を 行なっていた諸課題に対して、他の構成要素との関連や他の研究・技術分野への波及効果な ども含めた多角的な視点からの分析を実施し、現在の課題や取り組みに大きな抜けがないこ とを確認するとともに、現在の取り組みと組み合わせることで新たな側面や価値の付与など が期待される取り組みなどを例示した。

今後は、本年度実施したシステムの信頼性向上に向けての課題や取り組みの体系的分析を 踏まえ、分析により整理された課題や取り組みに対応していくための手法・手順の整備やシ ステムの設計への反映方法の整備などを進めていく。その対象としては、例えば、本年度の 分析により示された、現在の取り組みに対して新たな側面や価値の付与が期待される取り組 み、複数の構成要素の組み合わせにより生じる課題や取り組み、また、システムの設計への 反映に関しては保障措置・核セキュリティ対策と直接処分システムの設計・建設・操業との 関係、などに着目していくことが考えられる。

保障措置・核セキュリティについては、フィンランドの保障措置・核セキュリティに関す る法令調査を行い、日本の法規制要件と比較した。また、保障措置および核セキュリティに 関するフィンランドおよびドイツの最新情報を収集すべく往訪調査を行い、査察機器の開発 状況や、保障措置の知識継承に必要な人材育成の状況といった情報を整理した。また、使用 済核燃料の長期的な管理に対して与える影響を評価するための基礎となるデータとして、使 用済燃料集合体が持つ使用済燃料の線量当量率解析を行い、それが敵対者に対して与える影 響の分析をした。その結果、約 100 年~200 年後に使用済燃料集合体へのアクセスが容易に なることが分かった。さらに、最近問題として認識されつつある内部脅威者の監視に利用可 能な技術を調査し、カメレオンコードと呼ばれる技術を調査した。この技術により、内部脅 威者である作業員が、妨害破壊行為を目的とした通常業務からの逸脱を検知することが可能 であると考えられる。また、外部モニタリング情報の適用可能性評価として、地震波測定に より坑道掘削振動をバックグランドノイズの中から検出・判別できる可能性を確認した。ま た、複数の人工衛星画像データを比較・整理し、複数の人工衛星で得られる情報を組み合わ せることで、違法な掘削などを検知できる可能性を確認した。

今後も IAEA および諸外国の最新の検討状況などの調査を継続し、わが国における検討に適 宜反映できるようにする。その対象としては、例えば、これまで検討した保障措置技術など で技術的課題として残っている事項(例えば、使用済燃料中の核物質量測定技術)や、軽水炉 以外の燃料に関する諸外国での保障措置・核セキュリティ対策などにも着目していくことが 考えらえる。また、これら保障措置・核セキュリティ対策の考え方や技術の情報は、保障措 置・核セキュリティ対策と直接処分システムの設計・建設・操業との関係についての検討に 反映していく。

【参考文献】

ANDRA(2005a) : Dossier 2005 ARGILE - Tome-Safety evaluation of a geological repository. ANDRA(2005b) : Dossier 2005 ARGILE - Tome- Architecture and management of a geological repository.

- CGE(2020):https://www.cgerisk.com/2017/02/bowtie-risk-assessment-for-inspectionauthorities/(2020 年 3 月 16 日閲覧).
- 出町和之、陳実(2017):動画像の時系列解析による原子力施設における妨害破壊行為動作の 検知,第38回日本核物質管理学会年次大会論文集.
- 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.

原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2012): JENDL-4.0 に基づく ORIGEN 2 用断面積ラ イブラリセット: ORLIBJ40, 原子力機構技術報告書, JAEA-Data/Code 2012-032.

- 原子力機構(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.
- IAEA(2017) : Technologies Potentially Useful for Safeguarding Geological Repositories (STR-384).
- 株式会社シフト (2020): https://www.shift-2005.co.jp/index.php(2020 年 1 月 15 日閲 覧)
- KBS(1983) : Final storage of spent nuclear fuel.
- MindTools(2020): https://www.mindtools.com/pages/article/newPPM_69.htm(2020年3月 16日閲覧).
- Nagra(2002) : Project Opalinus Clay Safety Report.
- Natalia Pimenoff, Ari Venäläinen, Heikki Järvinen(2011) : Climate scenarios for Olkiluoto on a Time-Scale of 120,000 Years.
- 西原健司,岩元大樹,須山賢也(2012):福島第一原子力発電所の燃料組成評価,原子力機構 技術報告書, JAEA-Data/Code 2012-018 2012.
- 日本原子力学会(2010):放射線遮へい計算のための線量換算係数 2010—日本原子力学会標 準.
- 小川豊和,松井裕哉(2004):拘束圧下における幌延堆積岩の弾性波速度特性,土木学会第 59回年次学術講演会.
- ONDRAF/NIRAS(2001) : SAFIR2 Safety Assessment and Feasibility Interim Report2, NIROND 2001-06E.
- Posiva(2012a): Safety Case for the Disposal of Spent Nuclear Fuel at Olkiluoto -Synthesis 2012, Posiva Oy, POSIVA 2012-12.

Posiva(2012b) : Safety Case for the Disposal of Spent Nuclear Fuel at Olkiluoto -Formulation of Radionuclide Release Scenarios 2012, Posiva Oy, POSIVA 2012-08.

SKB(2009) : Underground design Forsmark Layout D2, R-08-116.

SKB(2011) : Long-Term Safety for the Final Repository for Spent Nuclear Fuel at

Forsmark: Main Report of SR-Site project, TR-11-01.

stuklex(2020):https://www.stuklex.fi/en/ls(2020年3月16日閲覧).

Timo Vieno, Henrik Nordman (1999) : Safety assessment of spent fuel disposal in Hästholmen, Kivetty, Olkiluoto and Romuvaara TILA-99, POSIVA 99-07.

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
 超深孔処分に関する情報の収集・整理・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-2
① 超深孔処分の検討事例 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-2
② 超深孔処分における工学技術などに関する情報 ・・・・・・・・・・・・・	5-10
③ 超深孔処分のバリエーションについての比較・整理 ・・・・・・・・・・・	5-14
2) 超深孔処分に関連する情報の分析・整理・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-16
 ① 超深孔処分相当深度等における THMC 情報 ······ 	5-16
② 超深孔処分相当深度等における核種移行特性 ・・・・・・・・・・・・・・	5-20
(3) 超深孔処分の適用性・成立性に影響する因子の検討 ・・・・・・・・・・・・	5-23
1) 着目する因子の整理 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-23
2) 着目する因子についての影響評価のアプローチ ・・・・・・・・・・・・・・・・	5-24
3)「母岩中の移行」についての影響評価 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-26
① 母岩の透水性の不均質性の取り扱い ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-26
② 対象領域および主要なプロセスの想定 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-28
③ 解析モデルの構築・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-29
④ パターン1の解析 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-31
⑤ パターン2の解析・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-38
⑥ 考察	5-57
4) 「母岩中の移行」による影響に対する他の因子の影響評価 ・・・・・・・・・	5-61
① 「EDZ の影響」と「核種閉じ込め・移行抑制機能」の取り扱い・・・・・	5-61
② 解析条件および解析ケースの設定 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-62
 ③ 解析結果および考察 ····································	5-63
(4) まとめ ・・・・・	5-69
参考文献 ·····	5-71

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, 2018)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。具体的に先行事業では、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 国で検討が進められてき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 の調査を実施するとともに、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 与えうる因子の抽出やその影響の程度についての分析を行う。

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。平成31年度は、超深孔処分に関する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の情報・技術の調査を行うとともに、それら情報・技術の超深孔処分の適用性や成立性の検討への利用に向けた分析・整理を実施する。

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。平成31年度は、超深孔処分で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(地質環境条件や設計条件)の抽出、それら因子 による影響の種類や程度についての定量的知見の水理・核種移行感度解析等による蓄積 を進め、わが国における超深孔処分の適用性や成立性を論じる際の留意点や課題等の具 体化に着手する。

(2) 項以降において、以下の構成で平成 31 年度の実施内容を示す。

- 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についての最新の情報を収集・整理するとともに、超深孔処分相当深 度での熱-水-力学-化学(THMC)の状況の設定および超深孔処分相当深度の THMC の状況 を反映した核種移行解析に向けての現段階での情報の充足度や利用可能性等の把握を目 的とした既存情報の収集・整理に着手した。以下に実施内容を示す。

- 超深孔処分に関する情報の収集・整理(「1)」参照)
- 超深孔処分に関連する情報の分析・整理(「2)」参照)

1) 超深孔処分に関する情報の収集・整理

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、諸外国での超深孔処 分に関する技術的検討の最新動向や、超深孔処分に関連する情報(地質環境条件、掘削・ 定置技術)などの最新の情報について調査を実施した。

① 超深孔処分の検討事例

以下、平成31年度に調査した以下の3つの超深孔処分の検討事例を示す。

- 米国サンディア国立研究所の超深孔処分の検討事例(a項参照)
- 米国の Deep Isolation 社の超深孔処分の検討事例(b項参照)
- ドイツの超深孔処分の検討事例(c項参照)

a. 米国サンディア国立研究所の超深孔処分の検討事例

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きた。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)。サンディア国立研究所(以後、SNL)では、2017年まで実施してきた超深孔処分の検討の成果を以下の2つの最新文献に取りまとめている。

- Geoff Freeze, Emily Stein, Patrick V.Brady, Carlos Lopez, David Sassani, Karl Travis, Fergus Gibb (2019): Deep Borehole Disposal Safety Case, SANDIA REPPORT, SAND-2019-1915.
- Ernest L. Hardin, Andrew Clark, Jiann Su and Fred Peretz (2019):Preclosure Risk Assessment for Deep Borehole Disposal, SANDIA REPORT, SAND-2019-1827

以下に、上述の2つの最新文献について調査した結果を示す。

(a) 超深孔処分スケールにおける密度流解析

本項では、超深孔処分スケールにおける密度流解析 (Freeze et al., 2019)の概要に ついて説明する。

超深孔の処分概念においては、地下数kmの地下水が水理学的に隔離されていることが 放射性物質の生活圏からの隔離という点で重要な役割を担うことが想定されているが、 結晶質岩盤中の地下水は深い部分に高濃度の塩水性地下水、浅い部分に低濃度の塩水性 地下水が存在するといった層別が生じる場合が多い。Freeze et al. (2019)では、こう した密度の違いによる地下水の層別によって、超深孔処分深度の地下水が水理学的に隔 離された状態が維持されるかどうかを確認するための密度流解析を実施している。

概念モデルおよび前提条件:

超深孔処分スケールでの地下水の密度流解析においては、幅 10,000 mおよび深さ 5,000 mの二次元の概念モデルが設定されている。この概念モデルでは、上位に厚さ 2,000 mの 堆積岩が存在し淡水の密度を有する地下水($\rho_0 \Rightarrow 1.00$ g cm⁻³)で飽和しており、一方、下 位の結晶質基盤岩はより密度の高い塩水性地下水($\rho_{bo} \sim 1.20$ g cm⁻³)としている。初期条 件として、上位 2,000 mの堆積岩は、

- k (固有透過係数) = 1×10⁻¹⁵ m²
- φ (間隙率) = 0.20
- C_t (塩分濃度) = 0.029 mol L⁻¹ (ρ_o ≈ 1.00 g cm⁻³)

下位 3,000m の結晶質基盤岩)は、

- k (固有透過係数) = 1×10⁻¹⁸ m²
- φ (間隙率) = 0.005
- C_t (塩分濃度) = 4.45 mol L⁻¹ (ρ_{bo}~ 1.20 g cm⁻³)

が設定された。なお、塩分濃度は、塩化ナトリウムの分子量を有するトレーサーの濃度 (Ct) として計算されており、化学的性質は考慮されていない。密度流解析においては、 モデルの上端境界における 2 つの領域で定圧境界条件が適用され、それぞれ涵養および 流出が生じ、水頭差(H=50 m)が生じる(動水勾配は 0.01 となる)。地下水流動解析および 非反応性トレーサー輸送解析には PFLOTRAN (Lichtner and Hammond, 2012)を用いた。

解析結果および結論:

超深孔処分スケールの密度流解析により、涵養位置から排出位置までの流路は堆積岩の底部で循環することが確認された。なお、堆積岩中のダルシー流速は、1×10⁻³ m y⁻¹のオーダーであった。基盤岩の透過透水係数(k = 1×10⁻¹⁸ m²)が低いため、基盤岩中の塩水には有意な移流は発生しておらず堆積岩中のフラックスよりも3~4桁小さいので基盤岩への有意な淡水流入は認められなかった。このため、超深孔処分深度の塩水層は100万年間保持されるとしている。

(b) 超深孔処分における閉鎖前安全評価

本項では、超深孔処分における操業時のリスク及び閉鎖前安全評価(Ernest L. Hardin et al., 2019)の概要について説明する。この検討における閉鎖前安全評価は、超深孔処 分における工学的実証に向けて操業時のリスクを取りまとめ、分析することにより、安全 機能の追加等を処分場設計にフィードバックすることを期待して実施された。操業時の オペレーションを洗い出し、Event tree analysis (ETA), Fault tree analysis(FTA)を 用いた定量的なリスク評価が実施されている。

超深孔処分における操業時オペレーションの洗い出し:

超深孔処分場における操業時オペレーションは主に以下の工程から成る。

- 処分孔の品質確認
- ② 廃棄体パッケージの受領
- ③ 輸送用キャスクの準備と輸送ステーションへの移動
- ④ 輸送ステーションでの荷扱い
- ⑤ 輸送キャスクの坑口ステーションへの輸送
- ⑥ 輸送キャスク・廃棄体パッケージ・坑口・ワイヤーラインの配置
- ⑦ 処分孔への定置・リリース
- ⑧ ワイヤーラインの回収
- ⑨ 次回オペレーションのための機器類の調整
- 10 インターバル・プラグの設置、坑口閉鎖

閉鎖前安全評価:

前述の各工程において詳細な手順が洗い出され定量的なリスク評価を実施している。 例えば、処分孔への定置の工程では、ワイヤーラインで廃棄体パッケージを扱っている工 程において廃棄体パッケージを地上や処分孔内に落下させる、定置中にパッケージが坑 内に詰まるあるいは坑口付近で引っかかる、パッケージの発熱等により坑内の流体が不 安定になりパッケージが上昇し損傷する、定置時に利用したツール群を回収時に処分坑 内に落下させパッケージが損傷するなど等のオンサイト被ばくにつながる可能性のある リスクが抽出されている。

上記のような定置オペレーションのリスク抽出、評価に加え、廃棄体パッケージが落下 した際のシミュレーションを行い、容器の強度に関する分析を行っているほか、外部要因 (地震等)に起因するリスク評価等も実施している。本検討では、サンディア国立研究所の超深孔処分概念において、一部の安全機能については検討途上の要素であるものの、一般的な工業製品の生産工場などで利用される ETA(Event tree analysis)や FTA(Fault tree analysis)などの手法を用いて、超深孔処分のリスク評価が可能なレベルで具体化できることを確認したとしている。

b. 米国の Deep Isolation 社の超深孔処分の検討事例

本項では、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, 2019) 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(以後、この形式を「超深水平処分」と呼 ぶ)。

以下、Deep Isolation 社から 2019 年度に出された 2 つの最新文献について調査した結 果を示す。

- 水平掘削孔内に定置された放射性廃棄物処分容器近傍の熱変遷(Finsterle et al., 2019)((a)項参照))
- 水平掘削孔内に定置された人工バリア材の腐食性能の研究(Joe H. Payer et al., 2019)((b)項参照))

(a) 水平掘削孔内に定置された放射性廃棄物処分容器近傍の熱変遷

Deep Isolation 社では、深度1マイル(約1.6 km)の深さでの長さ2マイル(約3.2 km)の水平な処分坑道に放射性廃棄物を処分する超深水平処分の方法を提案している。

超深水平処分では、放射性核種の減衰により熱が放出され、処分容器内の温度が上昇す る。放出された熱は周辺の構成要素や母岩に拡散する。温度上昇により人工バリアの構成 要素である金属類、ベントナイト、セメントの劣化が生じ得るため、温度の予測は必須で ある。また、温度変化は放射性核種の移行特性にも影響する。このことを踏まえ、 Finsterle et al. (2019)では、地下深部の水平掘削孔内に耐食性の処分容器を用いて使 用済燃料や高レベル放射性廃棄物を定置した際の熱変遷について検討している。

人工バリアの温度変遷は実験および数値解析を用いて広く研究されている。超深水平 処分では、水平な処分孔内に廃棄体を直線的に配置することにより、通常の地層処分と比 べると廃棄体が密集しなくなるため放熱しやすくなる。また、放熱などにより温度変化が 小さくなることで、水蒸気相が発生した場合に生じる複雑な熱-水-地球化学プロセス を回避することができる。そのため、処分場内の最大許容温度は、各深度(圧力)におけ る沸点以下であることが望ましく、水蒸気発生を回避することで処分容器の腐食も抑制 できる。これにより性能評価における不確実性が大幅に低減され、安全評価の技術的基盤 が強化される。

解析条件:

水平掘削孔内の人工バリアは、最高温度が各構成要素に対して設定した限界未満に維

持されるように設計される必要がある。廃棄体周辺の熱変遷を調べることを目的とした 数値解析の手法を以下に示す。

解析体系の構成要素としては、廃棄体(Cs/Sr カプセル)、処分容器、ケーシング、埋め戻し材、岩盤がモデル化されており、構成要素ごとに透水係数、熱伝導率、熱容量が設定されている。Cs/Sr カプセルの平均出力はそれぞれ 143.6 W 及び 193.2 W であり、カプセル自体の発熱のみを考慮し、他の構成要素の発熱は考慮していない。

解析には多孔質媒体中の非等温、多相、多成分の流れを計算可能な TOUGH2 (Pruess et al., 2012)が用いられた。初期温度は 40 ℃であり、モデル領域の外径でディリクレ境界 条件として気圧 100 bar と温度 40 ℃が与えられている。

<u>解析結果:</u>

初期のCs/Srカプセル当たりの放熱を100 Wとし、3 種類の定置間隔(2フィート(0.6096 m)、4フィート(1.219 m)、6フィート(1.829 m))の場合の温度変遷と減衰熱出力を計算した。その結果、定置間隔が広いほどカプセル周辺の温度が低くなり、定置間隔が2mを超えると隣接するカプセルの影響をほとんど受けなくなることが示された。また、パラメータの感度解析を実施した結果、以下の傾向が示された。

- 母岩の熱伝導率が最も影響が大きく、熱源の強度が次に影響するパラメータである。
- 一方で、埋め戻し材の熱伝導率は Cs/Sr カプセル温度にある程度の影響を及ぼすが、処分容器外の温度にはほぼ影響しない。
- 廃棄体、処分容器、ケーシングの熱伝導率はほとんど影響しない。

結論:

処分場の性能評価に影響する主要な要因は水平掘削孔内および周囲母岩の最高温度で ある。水平掘削孔内の廃棄体の直線配置は比較的大きな比表面積が確保されるため、大量 の廃棄体が密に詰め込まれる他の処分場概念と比較して放熱はそれほど困難ではない。

本文献の計算結果は、約2 mの適度なカプセル間隔でデザインされた廃棄体の配置が 水平掘削孔内の温度を管理するために非常に効果的であることを示している。

Cs カプセルの最高温度は 100 ℃未満であり、沸点よりもはるかに低いことがわかった。 一方、Sr カプセルのごく一部で温度が著しく上昇するが、十分な定置間隔を取ることで 容易に対処することが可能である。定置間隔を広げるという対策については、使用済燃料 などの他の廃棄物にも適用することが可能であると考えられる。

本文献で実施した熱伝導は、掘削孔の一部を対象とした解析と捉えることができるが、 腐食ガスの移動、局所的な地下水流動、放射性核種の移行といった他のプロセスも同時に 考慮する場合には、掘削孔全体のモデル化が必要になると考えられる。

(b) 水平掘削孔内に定置された人工バリア材の腐食性能の研究

Deep Isolation 社が提案している超深水平処分の概念では、1~3 kmの深さまで垂直 に掘削し、次に廃棄体定置領域として約3 kmの長さで水平に掘削し、鋼製のケーシング を掘削孔に沿って挿入する。ケーシングと掘削孔の隙間はセメントで充填される。 廃棄体 は水平な処分孔に定置した後、掘削孔はベントナイトで埋め戻される。本検討では、超深 水平処分の人工バリアで用いられる金属の腐食挙動について分析した。

Payer et al. (2019) では、Cs/Sr カプセルを水平な処分孔に処分することを想定した うえで、人工バリアで用いられる金属の腐食挙動について解析し、処分容器およびケーシ ングの腐食深さや貫通するまでの時間、並びに生成する水素及び酸化金属類の量を算出 した。

解析条件:

人工バリアは廃棄体、処分容器、充填材、埋戻し材、シーリングを含む。Cs/Sr カプセ ルをNi-Cr-Mo 合金である合金 625 (UNS N06625)を用いた処分容器に挿入して密封する。 処分容器は長さ 0.6 m、外直径 11.4 cm、厚さ 9.5 mm である。内直径 14 cm、厚さ 12.5 mm のケーシング内に処分容器を設置する。ケーシングには炭素鋼である L80 鋼を使用す る。ケーシングの外直径は 16.5 cm、超深孔直径は 21.6 cm であり、その隙間はセメント での充填を想定する。廃棄体間の間隔は 0.6 m であり、水平方向の処分坑道の深さは 1km である。また、廃棄体からの放熱は 100 Wを想定している。

処分容器の材料として選定した Ni-Cr-Mo 合金は、耐久性のある不動態膜を有し、局部 腐食プロセスに対して強固な耐性を有する。ケーシングの材料として選定した LC80 鋼は、 構造強度および耐食性が高い。腐食生成物の多くは、Ni-Cr-Mo 合金処分容器よりも LC80 鋼ケーシングの腐食によって生じる。

水素および金属酸化物は、核種移行、収着及び他のプロセスに影響を及ぼす可能性があ るが、人工バリア性能に対するそれらの影響の分析は本検討には含まれない。水素は微生 物の栄養素になる可能性がある。体積が固定された空間では、水素の生成および金属酸化 物の生成による膨張は、圧力を増大させるかあるいは核種移行を促進する。

腐食挙動解析は極めて長い処分期間(10,000年間)を5つの期間(2年後、20年後、100年後、1,000年後、6,000年後)に分割して行った。なお、局部腐食やガルバニック 腐食は本検討では考慮していない。

処分容器及びケーシングについて、経時的な金属損失および最初の貫通時期を計算した。また、生成した水素及び金属酸化物の量を全腐食反応について求めた。なお、Ni-Cr-Mo 合金の嫌気性環境における腐食速度の報告値は 0.01 μm y⁻¹オーダーであるが、設定値 はこれより約 100 倍高い値に設定した。このため、現実的な速度を用いた解析では、処分 容器及びケーシングの寿命予測が著しく延びると考えられる。

腐食速度は上述の5つの期間に一定値をそれぞれ割り当て、累積の金属損失から腐食 深さを決定した。合金625とL80鋼の金属損失から水素と金属酸化物の生成量を求めた。 処分孔内は初期の酸化状態から一定期間後、嫌気性、還元性となる。主要元素であるFe、 Ni、Cr、Moの嫌気条件下での腐食反応は以下のように、水によって酸化され、水素が発 生する反応である。この反応式に従い、処分容器及びケーシングそれぞれについて腐食物 及び水素の生成量、腐食深さを算出した。

$3Fe + 4H_20 \rightarrow Fe_3O_4 + 4H_2$	式 5-1
$Ni + H_2O \rightarrow NiO + H_2 \dots \dots \dots$	式 5-2
$2Cr + 3H_20 \rightarrow Cr_2O_3 + 3H_2$	式 5-3
$Mo + 2H_2O \rightarrow MoO_2 + 2H_2 \qquad \dots \qquad \dots$	式 5-4

鉄と水を嫌気的に腐食させると、水酸化鉄(Fe(OH)₂)と水素が生成する。Fe(OH)₂は、低い温度で安定であるが、高い温度では熱力学的に安定な磁鉄鉱(Fe₃O₄)に変換すると予想 される。セメントを含む一連の条件下での長期腐食挙動の解析からは、Fe₃O₄ が優勢な腐 食生成物であることが見出されている。生成する水素量は腐食生成物に依存する。Fe(OH)₂ ではなく Fe₃O₄ が生成すると、鉄1モル当たり 0.33 モルの水素が生成する。処分孔周辺 の温度は 60℃であるため、Fe₃O₄ の生成を仮定して水素生成量を決定する。

解析結果:

放射性核種の閉じ込め性とシステムの頑健性を評価するために、人工バリアで用いら れている金属の腐食速度を計算した。

人工バリアの最高温度については、廃棄体182 ℃、処分容器170 ℃、ケーシング165 ℃、 処分孔壁面160 ℃、岩盤の厚さ1 mの位置で105 ℃である。温度は20 年後に120 ℃、 100 年後に80 ℃、300 年後に60 ℃まで低下した。

- 期間 I (0~2 年後):初期は酸化状態である。酸素が存在する間、腐食反応は Fe (OH)。のような Fe³⁺を含む化合物が生成し、水素は生成しない。腐食が進行するにつれて、酸素が消費されて Fe³⁺が還元され、水素生成が始まる。Fe₃0₄ に変化するとより多くの水素が生成される。
- 期間 II (2~20 年後):人工バリアが最高温度に達する(廃棄体 182 ℃、処分容器 170 ℃、ケーシング 165 ℃、処分孔壁面 160 ℃、岩盤の厚さ1 mの位置で 105 ℃)。
 酸素が消費され無酸素、かつ還元性に移行する。
- 期間 III (20~100 年後): 温度が 120~80 ℃まで低下する。無酸素、還元性である。
- 期間 IV (100~1,000 年後):温度が 60 ℃まで低下する。無酸素、還元性である。
- 期間 V (1,000~10,000 年後): 温度は 60 ℃であり、10,000 年以降も一定である。 無酸素、還元性である。

100 年後の処分容器の腐食深さの計算結果は 120~140 μ m、ケーシングについては 270 ~310 μ m であった。

腐食速度の設定値は最初の3つの期間(0~100年後)で高く、後半の2つの期間(100~10,000年後)では、不動態皮膜や腐食生成物および堆積物の蓄積により腐食速度が極めて遅くなる。

処分容器(Ni-Cr-Mo 合金)は優れた耐食性のため腐食深さは短く、1,000 年で 0.4 mm、 10,000 年で 8 mm であった。処分容器貫通までの時間を厚さの 50 %が腐食した時点と定 義すると、貫通は 40,000 年後となる。また、ケーシング(L80 鋼)の場合、貫通は約 3,000 年後となる。いずれの材料も腐食面は完全には平滑ではない。また、金属損失の結果とし て処分容器の力学的強度が減少する。

結論および考察:

本文献では、超深孔処分の腐食挙動解析において、環境変遷と腐食経路の解析が重要で あることを示した。また、腐食解析の結果、処分容器は数万年間貫通しないことが示され た。

本文献の結果に基づくと、Ni-Cr-Mo 合金の処分容器は、極めて低い腐食速度と、高温や 酸化環境での局所腐食に対する強固な耐性を持つと考えられる。また、Ni-Cr-Mo 合金と 鋼鉄はいずれも廃棄体から生じる高温にも耐える高い力学的強度を持ち、既往の製造工 程で製造できるため、超深孔処分にも無理なく適用可能であると考えられる。

c. ドイツの超深孔処分の検討事例

本項では、超深孔処分に関してドイツのコンサルタント会社が新しく提案している Deep Big Hole Disposal (以後、DBHD) と呼ばれる新しい処分概念 (Ingenieur- und Architekturbüro Goebel GmbH, 2019) について調査した結果を示す。

DBHBの最大の特徴は処分孔のサイズにあり、従来の超深孔処分概念では直径 0.5~1 m 程度、深さが約 3~7 km 程度の処分孔が想定されてきたのに対し、BDHD では直径 12 mの シャフトを用い、深度 1~3 km 程度の処分孔を掘削することが想定されている。この孔 径であれば、ドイツの Castor や Pullux キャスクのような多目的(輸送・貯蔵・処分)の キャスクを処分することが可能となる。

DBHD の概念は主に岩塩層への適用を中心に検討されてきており、カナダを対象とした 検討では深度 1~2 km の岩塩層、中国を対象とした検討では深度 2~3 km の岩塩層への 処分の検討事例がある。中国を対象とした検討事例においては、460 基の Castor キャス クのそれぞれに 28 個の HLW 廃棄体を処分(合計およそおよそ 13,000 体) することが検 討されている。

DBHD の検討経緯:

DBHDの概念は、前述のように Ingenieur- undArchitekturbüroGoebel GmbH によって開発された。当初はドイツの国家プログラムに焦点を当てていたが、最近ではカナダや中国、ロシア、アメリカ、ブラジル、英国、インドなどの様々な国際プログラムに合わせた検討が行われてきた。これらのすべての場合において、対象となる母岩は岩塩層である。

なお、Ingenieur- undArchitekturbüroGoebel GmbH 社では、これまで公開されていた YouTube 上の動画やホームページ上の情報(画像や図面)のほとんどを 2019 年 7 月頃か ら一般には公開しなくなっているため、同社による現在及び今後の取り組み状況等は不 明である。

DBHD の特徴:

DBHD に独自の主な特長としては、以下のような点が挙げられる。

• シャフトのサイズが大きく、Castor キャスクを使用しているため、廃棄体の量や

形状に対し非常に柔軟であること。ガラス固化体、使用済燃料、またはより少量の TRU 廃棄物など、廃棄体の量に合わせて容易に調整できる可能性がある。例えば、 Castor キャスクを別のパッケージに交換すると、TRU 廃棄物をそのシャフトにす べて廃棄できる可能性も考えられる。

- また、以下のような通常の超深孔処分概念と同様のメリットも挙げられる。
 - 処分深度が大きいため、地表の摂動(気候変動や界面変動)からの影響を受けにくくなる。
 - 地下水のフラックスや流量が低くなると想定される。
 - 隆起・侵食の影響(例えば酸化性地下水の影響)を受けにくい。
 - 人間侵入のリスクが小さくなる。
- なお、本文献では DBHD についての課題として以下が挙げられている。
 - ・ 廃熱の影響:カナダの事例で 832本の DSC コンテナ (dry storage container、使用済み燃料用の容器)の処分を想定した場合 0.98 MW の発熱が想定される (Ingenieur- und Architekturbüro Goebel GmbH, 2019)。すべての廃棄体が同時に設置され、上記の熱負荷があると想定した単純なモデルを使用して、熱計算を実施した結果、シャフト壁の温度が10年以内に40 ℃上昇することが示されており、 深部での地熱の影響も考慮した熱管理が課題になると考えられる。
- さらに、本文献の情報に基づくと、以下のような課題が推定される。
- ・地質条件:DBHDに限らず一般的な課題ではあるが、地震対策も含めて、地質調査、
 特性評価、安全対策等のために追加的なコストが発生する可能性がある。
- ・地熱の影響:深さ 2~3 kmの周囲の岩石の温度は 75~105 ℃の範囲にある可能性が高いため、シャフト内での労働環境の維持のためクーラー等の提供が課題になる。これまでの検討例では冷却パイプが設計上含まれることになっているが、建設・運用に関しての検討は未だ不十分である。
- 地下水の影響:岩塩層への廃棄を中心に検討されてきたため、未だ地下水流動の影響と対策について検討されてきていない。
- オフショアの可能性:海域でのDBHD については未だ検討されてきていない。しかし島国では有効なオプションになりえる。
- 掘削技術:掘削技術が急速に進歩していることを考えると、現時点で掘削技術の観点からこの概念の実現可能性を棄却することはできない。ただし、これまで主に検討してきたのは岩塩層であるため、対象国の地質環境に応じた詳細な検討が、通常の超深孔処分同様に必要になると考えられる。

② 超深孔処分における工学技術などに関する情報

本項では、超深孔処分に関する工学技術等の関連分野の情報について、公開文献を中心に調査を行った。以下に、実施内容を示す。

- 掘削孔のケーシング(a項参照)
- 超深孔掘削時における掘削孔の安定性(b項参照)
- 超深部での掘削事例 (c項参照)

a. 掘削孔のケーシング

超深孔を始め、石油掘削や調査井の掘削においては一般的にケーシングが必要になる。米国 SNL の超深孔処分の検討事例や二酸化炭素貯留プロジェクト (carbon dioxide capture and storage:以後、CCS)の事例においては、ケーシングと岩盤の間の隙間

(アニュラス)が核種や CO₂の移行経路になる可能性が懸念されている。このため、石 油掘削や CCS の事例を中心に、ケーシングを地中に残すのか、あるいは取り外すのかと いったケーシングの取り扱いに関する技術について文献調査を行った。

文献調査の結果、廃坑時のケーシングの取り外しの要否について直接的に述べられた 文献は見つからなかったものの、ケーシングの取り外しに言及した文献はいくつか見つ かった。

- 石油ガス生産井廃坑時の処理において、坑井内機器は必ずしも除去する必要はない。通常の廃坑では、坑井内をセメントで数か所にプラグを設置し、ケーシング上部を海底面(mud line)の下 3~5 m で切断し、海底坑口装置と共に除去する(国土交通省(2018))。
- 石油生産井の廃坑では、後日地下に残った油やガスが噴出するのを防ぐため、坑井(ケーシングパイプ内)にプラグ(栓)をセットし、セメントで固める。また、坑口装置を地上に残す場合、海底に形跡が残らないようにする場合がある。
 地下にはセメントで固められた坑井(ケーシングパイプ)が残される(日本エネルギー経済研究所、石油天然ガス・金属鉱物資源機構(2018))。
- 温泉井戸の埋戻しについては温泉法に規定があり、「可燃性天然ガスが発生する 温泉井戸埋戻し方法」(環境省自然環境局(2015))に温泉法に準ずる埋戻し手順 が記載されている。温泉井戸を適切に埋め戻すには、可燃性天然ガスの湧出層と 地表部分との導通をセメントプラグで密閉することにより完全に遮断する必要が あるが、ケーシングの取り外しについては指定されていない。ただし地表部の埋 戻し方法として以下のような記述がある。「地表部(井戸の最上部)について は、地表付近に長さ30m以上のセメントプラグを設置し、井戸を密閉する。な お、アニュラスにセメント等が充填されていないため、ストレーナー部と地表が 導通している場合は、セメントプラグの設置を予定していたケーシングを切断・ 抜管し、ケーシング切断部の上に 30 m以上のセメントプラグを設置する」。石油 ガス生産井の場合には、高圧状態の石油・ガスを採取するために井戸を強固にす る必要がありアニュラスにセメント等が充填されるが温泉井戸ではそうではない 場合がある。このためにストレーナー部と地表が導通している場合にはケーシン グの切断、抜管が必要となる。また、孔径の異なるケーシングによって仕上げら れた井戸の場合、孔径の異なるケーシングの重複部が老朽化によりケーシング及 び遮水に用いた部材の劣化が起きやすく、可燃性天然ガスがアニュラスへ漏れ出 す経路となることから、その部分から上下それぞれ 30 m以上の範囲にわたる部 分にセメントプラグを設置するとの記載がある。

以上の調査より、結論としては石油・ガス生産井、温泉井戸においては井戸の廃坑の 際に地表付近の数メートルについてケーシングを除去することがあるようであるが、場 合により必ずしも必須とはされないようである。ガスの場合は仮にアニュラスへ漏れ出 したとしても地表に漏れ出す手前で止まっていれば問題ないと考えられるが、放射性廃 棄物の処分の場合には地表付近まで移行するとそれ自体が問題になる可能性があると考 えられる。

平成 31 年度の調査においては、石油掘削や CCS の公開文献を中心に、ケーシングの 取り扱いの一般的な考え方や技術について調査したものの、放射性廃棄物処分で着目す るような移行経路としての影響(例えば、ケーシングを残すことで移行経路が発生する 可能性など)に着目した検討事例は見つからなかった。これは、石油掘削や CCS では、 地表への湧出を抑えるための地表近傍での対処に主に着目しているためと考えられる。 放射性廃棄物処分で着目するような移行経路としての影響について参考となる情報を得 るためには、調査の対象を、石油掘削や CCS での一般的な考え方や技術だけでなく、実 際の現場で対象とする地下から地表を含む実務的な情報や検討にまで広げてみることが 考えられる。また、ケーシングを残すことで移行経路が発生し、それが超深孔処分にお いて大きな問題になる場合には、移行経路の発生を抑制するための新たな技術開発(ケ ーシングを残す場合の対処技術、ケーシングを残さない場合の除去技術等)を超深孔処 分のためだけに行うことが必要になる可能性がある。

b. 超深孔掘削時における掘削孔の安定性

超深孔処分では 5,000 m の鉛直な掘削孔を掘ることが想定されているが、一般的に深 度が深くなると掘削孔の自立が難しくなってくることが知られている。こうした超深孔 の安定性に関してはサンディア国立研究所でも検討され始めており、Kristopher L. Kuhlman et al. (2019)では、超深孔の掘削時における掘削孔の安定性を評価するための 力学解析を実施している。以下に概要を示す。

掘削時におけるボーリング孔のブレイクアウトは、通常、ボーリング孔壁付近の母岩 の局所的な破損によって引き起こされる。

ブレイクアウト及び引張亀裂は、米国での超深孔のフィールドテスト(2017年に中 止)のために計画されたボーリング孔の特徴付け及び試料採取に著しく影響を及ぼす可 能性がある。考えられる最大の影響は、試験区間がパッカーで効果的に密閉出来なくな ることであり、サンプルの収集やトレーサー試験にも影響を与えてしまう。その他に、 ワイヤーラインによる検層、ならびにボーリング孔の幾何学的形状の影響を受ける他の 調査および画像に人為的影響を与えてしまう可能性がある。なお、ブレイクアウトから 生じるこれらの問題があるものの、本文献では、将来の超深孔処分において例えブレイ クアウトが超深孔掘削時に起こったとしても廃棄物を効果的に隔離することが可能であ るとしている。

c. 超深部での掘削事例

わが国での超深部の掘削技術に関する情報を拡充するため、CCSのわが国での掘削実 績等に関する最新の情報を調査し、平成28年度に調査・整理した掘削実績の情報を拡 充した。 CCS 分野におけるわが国での掘削実績の調査結果を表 5-1 に示す。なお、CCS では鉛直 方向に掘削するのではなく斜めに掘削されることもあるため、CCS での最終的な深度(垂 直深度)は通常のボーリング等での掘進長よりも短くなる。また、国内外の 1,000 m 超の 坑井における最終的な深度と孔径の関係のグラフに CCS 分野の情報を追加したものを図 5-1 に示す。なお、図 5-1 では、一般的に鉛直方向に掘削されるボーリングや井戸等につ いては掘進長を最終的な深度とし、斜めに掘削される CCS については垂直深度を最終的 な深度としてプロットしている。

場所	坑井名	掘進長 [m]	最終的な 深度 (垂直深度) [m]	最終 孔径 [mm]	岩種	備考	引用文献
苫小牧	調査井 CCS-1	3700	3050	244.475	泥岩	海域	阿部ほか (2011)
苫小牧	滝ノ上層圧入井	5800	2754	216	火山 岩類	海域	日本 CCS
苫小牧	萌別層圧入井	3500	1161	216	砂岩	海域	調 <i>압</i> (2014)
長岡	Injection well 1W-1	1230	1230	139.7	堆積 岩類	陸	棚瀬ほか (2008)
長岡	Observation well OB-2	1319	1319	139.7	堆積 岩類	陸	
長岡	Observation well OB-3	1270	1270	139.7	堆積 岩類	陸	
長岡	Observation well OB-4	1322	1332	139.7	堆積 岩類	陸	

表 5-1 CCS 分野におけるわが国での掘削実績



図 5-1 国内外の 1,000m 超の坑井における最終的な深度と孔径の関係

表 5-1 および図 5-1 より、CCS の最終的な深度(垂直深度)については、最大で深度 約 3,000 mの事例が存在するものの、それ以外の大半の事例は深度 1,000 m程度になっ ていることを確認した。

なお、海外事例についても調査を試みたが、現在世界で CO₂ 圧入を実施しているプロ ジェクトは数十~数百程度(CCS 関連であれば 300 程度)あるが、個別の事例では掘削 深度や孔径等の情報は見られたものの、掘削深度や孔径等についての整理された情報は 見当たらなかった。

このため、超深孔処分深度での掘削についての技術的な課題やその難易度の検討に資 する情報を拡充するため、今後も、海外の CCS の個別事例等も含めた超深部での掘削に 関する情報の調査を継続していく必要があると考えられる。

③ 超深孔処分のバリエーションについての比較・整理

平成31年度の調査により、超深孔処分の概念については、従来の米国SNLの検討事例 のように垂直方向で孔径0.5m程度の超深孔を掘る形式の他に、米国Deep Isolation社 の超深水平処分の形式や、ドイツのDBHDの検討事例のように大孔径シャフト掘削による 超深部への処分といったバリエーションが出てきている。

そこで、本項では、上述の超深孔処分のバリエーションを比較することにより、超深孔 処分の各バリエーションの特徴、共通的あるいは特異的なメリットやデメリットの有無 等についての分析・整理を試みた。比較結果を表 5-2 に示す。
表 5-2	超深孔処分のバリエーションの比	較結果
-------	-----------------	-----

超深孔処分		米国SNLの検討事例	Deep Isolation社の検討事例	ドイツのDeep Big Hole Disposal	
の検討事例		[2011, 2016]	[2019]	の検討事例 [2019]	
		従来の超深孔処分(垂直の掘削孔を	垂直アクセス孔(深度1600 m)の最下	直径12 mのシャフトを使用して超深孔	
概要		使用した処分)	部地点から掘削した水平掘削孔(長さ	を掘削して処分する	
			約3200 m)に廃乗物を処分する		
対象としている	岩種	結晶質岩	堆積岩	岩塩層	
対象としている	廃棄物	使用済燃料、Cs/Srカプセル	使用済燃料、Cs/Srカプセル	HLW、使用済燃料、TRU廃棄物等	
根当次中		5000 m(深さ3000~5000 m	1600 m(深さ1600 mの深度に掘った	·処分深度(掘削深度):2000~3000	
(加分涩度)		(長さ2000 m)の領域に廃棄体	水平掘削孔(長さ約3200 m)に廃棄体	m	
(远方派度)		を定置)	を定置)		
掘削孔径		22~44.5 cm	22~44.5 cm	1200 cm	
回収可能性の	考慮				
メリット	共通的 なもの	・長い移行柱路が期待できる ・地下水の移動が遅くなることが期待 できる(一般的に地下深部になると、 水の流れが遅くなる) 「処分深度が深いため、地表の摂動 (気候変動や界面変動)からの影響を 受けにくい。 ・処分深度が深いため、隆起・侵食の 影響を受けにくい ・掘削実績がある(一般的に、垂直掘 削孔については、石油、天然ガス、地 熱、地球科学的分野など様々な分野 において超深部まで掘削実績がある)	・長い移行経路か期付でぎる ・掘削実績がある(掘削孔径が22 cm 程度であれば、シェールガス分野等に おいて、コントロールボーリングを含め た掘削実績がある)	・長い移行柱路が期待できる ・地下水の移動が遅くなることが期待できる(一般的に地下深部になると、水の流れが遅くなる) 「処分深度が深いため、地表の摂動 (気候変動や界面変動)からの影響を受けにくい。 ・処分深度が深いため、隆起・侵食の 影響を受けにくい。	
	特異的 なもの	・従来の超深孔処分なので、諸外国で の研究実績の蓄積がある	・他の超深孔処分の事例と比較すると 深度が浅いため、超深部のTHMC(例 えば、高温・高圧)の影響を受けにくい	・掘削孔径の制約を受けないため、 様々な施工や調整が容易に実施可能 (対象廃棄物の選択、廃棄体の設置 調整、掘削孔のケーシング施工等) ・大孔径掘削孔なので、掘削時には シャフト内に人間が立ち入ることが可 能(廃熱等の熱管理ができる場合)	
デメリット	共通的 なもの	・掘削孔径の制約を受ける(廃棄体定 置等) ・超深部のTHMC(例えば、高温・高 圧)の影響を受ける ・超深部での約20 cm程度の孔径で の掘削事例はあるものの、約40 cm以 上の孔径での掘削事例等はなく、使 用済燃料を対象とする場合にはその ような孔径での技術開発が必要にな る	・掘削孔径の制約を受ける(廃棄体定置等) ・超深部での約20 cm程度の孔径での掘削事例はあるものの、約40 cm以上の孔径での掘削事例等はなく、使用済燃料を対象とする場合にはそのような孔径での技術開発(コントロールボーリングも含む)が必要になる	・超深部のTHMC(例えば、高温・高 圧)の影響を受ける	
	特異的 なもの	・掘削孔径と廃棄体定置領域の長さか ら推測した場合、掘削孔1本あたりの 廃棄体の処分量が他のパリエーション よりも少なくなるため、より多くの超深 孔が必要になる。	・他のバリエーションよりは処分深度が 浅いため、他のバリエーションと比較し た場合、地下水の移動が遅くならな い、地表の摂動や隆起・侵食の影響を 受けやすくなる。	・超深部での約12 mの孔径の掘削事 例はない。大孔径での掘削機器等の 技術開発が新たに必要になる ・運用上の安全性や閉鎖後の安全性 についての明らかになっていない	

表 5-2 に基づく分析結果を以下に整理する。

 Deep Isolation 社の検討事例やドイツの DBHD の検討事例については、従来の超深 孔処分におけるデメリットを減らすあるいは無くすための概念変更などの改良が 行われており、従来の超深孔処分に対してプラスの効果が発生するとしている。例 えば、Deep Isolation 社の検討事例の場合には、従来の超深孔処分のデメリット である超深部の THMC(例えば、高温・高圧)の影響を受けにくくするため、掘削 深度を浅くしたうえで水平方向に処分孔を掘削している。ドイツの DBHD の検討事 例の場合には、従来の超深孔処分のデメリットである掘削孔径の制約(約 20~50 cm の孔径内で廃棄体の定置等を行う必要がある)の影響を無くすために、大孔径 (直径 12 m) で超深孔を掘削している。

一方で、上述の超深孔のバリエーションにおいて、従来の超深孔処分におけるデメリットを減らすあるいは無くすための概念変更等の改良を行うことが、従来の超深孔処分でのメリットを低減させるといったマイナスの効果も発生し得る。例えば、Deep Isolation 社の検討事例の場合には、他の超深孔処分のバリエーションと比較して深度が浅いため地下水の移動が遅くならない可能性や、隆起・侵食の影響の受けやすくなる可能性といったマイナスの効果が発生し得る。ドイツのDBHDの検討事例の場合には、大孔径で超深孔を掘削するために、超深部まで大孔径で掘削できる掘削機器等の新規技術開発が必要になるといったマイナスの効果が発生し得ると考えられる。

上述で示したように、超深孔処分のバリエーションについては、従来の超深孔処分に対 するプラスの効果とマイナスの効果にトレードオフの関係があることに留意する必要が あると考えられる。

2) 超深孔処分に関連する情報の分析・整理

超深孔処分においては、地下数千メートルの超深部に放射性廃棄物を処分するため、超 深部でのTHMC環境を考慮する必要がある(例えば、超深部の高温・高圧環境さらには水 理や化学の特徴なども考慮した掘削技術や核種移行特性等)。さらに、超深孔処分では処 分深度の幅が広くなり(米国等の検討事例では、廃棄体を深度3,000 m~5,000 mの区間 に定置)、その範囲の各深度に応じた THMC環境(THMC環境の深度依存性等)を考慮する ことも必要となる可能性がある。H12 レポートおよび直接処分第1次取りまとめ等の従来 の処分深度(深度1,000 mまで)での地層処分においては、わが国でのTHMC環境に関す る情報やその環境を考慮した核種移行特性等の情報の整備は進んでいるが、より深い超 深孔処分相当深度のような超深部でのTHMC環境の情報やその環境を考慮した核種移行特 性には着目してきていない。そこで、本項では、超深孔処分相当深度等でのTHMCに関す る情報の有無や、情報がある場合にはその情報のレベル(明確な情報なのか、限定的な情 報なのか、深度依存性などの特徴が見いだせるか等)の現状把握を目的とした分析・整理 を試みた。

以下に実施内容を示す。

- 超深孔処分相当深度等における THMC 情報(①項参照)
- 超深孔処分相当深度等における核種移行パラメータ(②項参照)

① 超深孔処分相当深度等における THMC 情報

本項では、超深孔処分相当深度等における THMC 環境の情報として、まず、先行事業(平 成28年度報告書)においてわが国の超深部(深度5,000m程度)までを対象として収集 した情報を対象に、THMC に関する情報の有無や深度依存性に関する情報や知見があるか どうか等の観点からの再整理・分析を試みた。さらに THMC に関するデータが比較的多く 得られている情報を対象に、わが国の地下深部での深度依存性の傾向等の把握を試みた。 以下に実施内容を示す。

- わが国の地下深部での THMC に係る情報(a項参照)
- 地下深部の温度の深度依存性(b項参照)

a. わが国の地下深部での THMC に係る情報

まず、先行事業(平成28年度報告書)で収集したわが国の超深部(深度5000m程度) までの情報について、THMC に関する情報の有無や深度依存性に関する情報の有無等の観 点からの再整理および分析を実施した。再整理・分析結果を表 5-3 に示す。

わが国の 地下深部に係る パラメータ	特性 区分	平成 28 年度調査時のデータの 有無	平成 28 年度調査時のデータの 一般的な傾向
地温	Т	有り (深度 6,000 mまで)	深度依存性の傾向あり(ただし、基
	(温度)		礎試錐と地熱開発で温度の傾向が
			大幅に変わる)
透水係数	Н	限定的な情報あり(浸透率を透水	深度依存性の有無ははっきりしな
	(水理)	係数に換算したもの。新第三紀堆	い(場所に依存すると考えられる)。
		積岩、先進第三紀堆積岩では深度	
		5,000 m程度までの情報もある)	
圧力	М	情報なし(Mとして、一軸圧縮強	圧力についての情報がないため深
	(力学)	度や密度、間隙率、内部摩擦角等	度依存性は不明。一軸圧縮強度や内
		の情報はあるが、圧力情報はな	部摩擦角の深度依存性の有無はは
		い)	っきりしない (ばらつきが大きい)。
			間隙率については、深度依存性の傾
			向あり(深度の増加とともに間隙率
			が小さくなる傾向を示す)
地下水組成	С	限定的な情報あり(地下水組成と	深度依存性の傾向なし(塩化物イオ
(塩分濃度、	(化学)	して一式そろった情報はないが、	ン濃度:深度との明確な関係は認め
炭酸濃度など)		一部について塩化物イオン濃度	られない。水質型:特定の水質型が
		や水質型の情報が示されている	特定の深度に多くなるといった傾
		場合あり)	向は認められない)。

表 5-3 わが国の地下深部の THMC に係る情報の再整理結果

表 5-3 に基づき、先行事業(平成 28 年度報告書)で収集したわが国の超深部までの情報の分析結果を以下に整理する。

- わが国の超深部までのTHMCに係る情報については、情報がないものや、情報があっても限定的な場合が多い。
- 深度依存性の傾向についても、複数の場所のデータが混在していることや、深い深度になるほどデータ数自体が少なくなることなどから、深度依存性の有無や程度の判断が難しく、傾向がはっきりしない場合が多い。
- わが国の超深部までの温度については、超深部までのデータもあり深度依存性の 傾向も見て取れる。

さらに、わが国での超深部までの情報や知見を拡充するために、原子力機構の地質環境 調査の分野の研究者を対象に、わが国での超深部までのTHMC 情報に関する聞き取り調査 を実施した。その結果、以下に示す参考情報や意見が得られた。なお、以下に示す情報や 意見については、研究者の経験等に基づく情報や私見が含まれることに留意する必要が ある。

- 地下深部の情報やその傾向は、実際の場を調べてみないと確定的なことは言えない。そのことを踏まえたうえでの一般論としては、以下の傾向が考えられる。
 - ✓ 水理(H):深度が深くなると動水勾配や透水係数が小さくなる可能性はあるが、
 場所に依存すると考えられる。
 - ✓ 地下水組成(C):超深部になると地下水の滞留時間が長くなることおよび水・ 岩石反応が平衡に達すると考えられるため、塩分濃度が高い古海水や岩石と 長期間反応した地下水などが存在することが考えられる。
- 地下深部での温度(T)、圧力(M)や地下水組成(C)の情報については、石油・天 然ガスや地熱の資源探査・開発に関する機関や企業は持っていると思われるが、技 術情報のため詳細については公開されていないと考えられる。
- 文献に載っている超深部での THMC の情報については、きちんと精査することは困難である。例えば、文献に記載されている地下水の情報が深いボーリング坑から揚水ポンプ等により坑口で採取されたものである場合、その地下水が本当に坑底付近から出てきたものだけなのか、あるいはより浅部の途中深度から流入したものの混入の可能性の有無などを判断することはかなり難しい。

上記より、全体的に、既存の公開情報では超深孔処分相当深度のTHMC 情報は揃ってお らず、現段階では、超深孔処分相当深度のTHMC をセットとして想定するだけでなく、THMC のそれぞれを想定することも難しいと考えられる。そのため今後も、超深孔処分相当深度 でのTHMC に係る情報の設定の参考となり得る情報や知見の収集と分析・整理を継続して 行う必要があると考えられる。その際には、公開文献の調査とともに、石油や地熱の分野 に存在する情報の参照の可能性も検討していく。また、THMC のより詳細な関係性、例え ば、C については地下水組成だけではなく、化学反応(C)により岩石や不連続面の構造 の変化等も考えられ、構造が変われば力学特性(M)や水理特性(H)も変化する可能性も 考えられるといったより詳細な関係等についても情報や知見の収集を試みる必要がある と考えられる。なお、超深孔処分の核種移行解析の試行等では、当面は、従来の地層処分 相当深度でのTHMC 条件を仮定し、その条件における核種移行パラメータの設定値をベー スにすることになると考えられるが、超深孔処分相当深度でのTHMC 条件のエキスパート ジャッジなどを活用した仮設定や不確実性を考慮した幅の設定等を試行し、それらを後 述の「② 超深孔処分相当深度等における核種移行特性」の検討につなげていくことなど も考えられる。

b. 地下深部の温度の深度依存性の分析

先行事業(平成28年度報告書)においてデータが比較的多く得られている地下深部の

温度データを対象に、深度依存性を把握するための分析を実施した。

先行事業(平成28年度報告書)では、わが国の地下深部(深度1,000m以上)の温度 特性に係る以下のデータを調査・整理している。

- 石油資源等の調査を行っている基礎試錐の孔内温度データ(データ数:36)
- 地熱開発に係るボーリング調査の孔内温度データ(データ数:181)

わが国での地下深部の温度情報を分析・整理するにあたり、地熱開発に関する地域は超 深孔処分の候補地から除外される可能性が高いため、上述のデータの中から地熱開発に 関するデータは除外したうえで、基礎試錐の孔内温度データを用いて、わが国での地下深 部の温度情報の深度依存性に関する分析を実施した。分析の内容を以下に示す。

ケース1:わが国の地温勾配等を用いた予測

H12 レポートおよび直接処分第 1 次取りまとめでは、わが国の地表面での地温 15 \mathbb{C} (年平均地温)および平均地温勾配 3 \mathbb{C} /100 mを用いて処分深度での温度を 設定している。ケース 1 では、これらと同様に、わが国の地表面での地温 15 \mathbb{C} (年 平均地温)および平均地温勾配 3 \mathbb{C} /100 mを用いて深度依存性を考慮した温度の 近似式を設定した。深度を X[m]、温度を Y[\mathbb{C}]とすると、近似式は次式で表される。

Y = 0.03X+15式 5-5

• ケース2:基礎試錐データに対する線形回帰予測

図 5-2 で示した基礎試錐の孔内温度データ(図中の青のプロット)に対して線形 回帰分析を行い、深度依存性を考慮した温度の近似式を設定した。深度を X[m]、温 度を Y[℃]とすると、近似式は次式で表される。

$Y = 0.0321X + 10.532 \qquad (R^2 = 0.699) \qquad \dots \qquad \vec{x} \ 5-6$

ケース3:基礎試錐データに対する線形回帰予測(高温側の不確実性を考慮)
 図 5-2 より、各深度における温度は不確実性(ばらつき)があり、各深度においてケース1やケース2の近似式よりも高温になる可能性が考えられるため、ケース2の近似式を高温側に+40℃補正した近似式を設定した。

わが国での基礎試錐の孔内温度データに対して、上記の各ケースの近似式を適用して 超深孔処分相当深度までの温度情報を設定し比較した結果を図 5-2 に示す。



図 5-2 わが国での地下深部の温度分布データと各ケースの温度情報の予測結果

図 5-2 より、わが国での地下深部の温度情報およびその深度依存性を以下にまとめる。

- わが国での超深孔処分を考えたときの温度設定については、深度 3,000 m 程度で 100 ℃以上、深度 5,000 m で約 170 ℃、深度 5000 m で高温側の不確実性まで含め た場合には最大で約 210 ℃までを考慮する必要があると考えられる。超深孔処分 の検討を進めていくうえでは、これらの高温を考慮した処分施設の設計や操業と ともに、核種移行パラメータ等についての検討(例えば、高温条件下でのデータの 有無の確認、高温条件下でのパラメータの設定方法の見通しなど)が今後必要にな ると考えられる。これらの検討については、後述の②項で別途検討を試行している。
- 図 5-2 において、ケース1のわが国の地温勾配等に基づく予測の直線と、ケース2の基礎試錐データに対する線形回帰予測の直線が概ね一致している。このことから、サイトを特定しない段階でのジェネリックな検討において、わが国の地表面での地温15 ℃(年平均地温)および平均地温勾配3 ℃/100 mを用いた式5-1を用いて超深孔処分相当深度の温度情報を設定することは適切であると考えられる。

2 超深孔処分相当深度等における核種移行特性

わが国での超深孔処分を想定した場合の安全性を論じるためには、わが国での超深孔 処分相当深度等の超深部でのTHMC環境を考慮した核種移行パラメータを設定したうえで 核種移行解析を実施する必要が生じる。そこで、超深孔処分相当深度のTHMC環境を考慮 した核種移行パラメータの設定に向けた既存情報の調査・整理を行った。

具体的には、超深孔処分相当深度を含めたわが国の超深部での THMC の条件が仮に与え られたときに(例えば、①で示したわが国の地下深部での高温条件:100 ℃~最大で 210 ℃)、与えられた条件に対応した核種移行パラメータを設定するために必要になると 考えられる情報および知見の調査を行い、現段階での情報の有無やレベル(質、量、核種 移行パラメータを設定への利用の可能性など)の把握を試みた。

超深孔処分相当深度で想定されうるような THMC 条件に対する核種移行パラメータの検 討事例や情報に関する調査・整理結果を表 5-4 に示す。

表 5-4 超深孔処分相当深度で想定されうるような THMC 条件に対する核種移行パラメ ータの検討事例等(1/2)

核種移行	検討事例等
<u></u> 溶解度	 一般的な溶解度は1気圧のもの(高圧に対する溶解度データはほとんどない)。 1気圧の名供工において、高限になったしたの溶解度の変化についてい、部件
	 1気圧の条件下において、高温になったとさの溶解度の変化については、一般的 には真視の支が溶解度が真くなる傾向があると言われているが、一支で、国相
	は高温になると安定になり溶解度が下がる傾向もあり得るので、結果として高
	温条件下で溶解度が高くなるかどうかなどの傾向を一義的に決めることは難し
	V.
	【研究例】
	▶ 1気圧の条件で溶解度に及ぼす温度の影響について検討した例。NpとSe
	の平衡定数の対数(log K)について、25~50 ℃における溶解度の変化を
	調査した結果、ほぼ同じか若干低下気味であり、溶解度が顕著に上昇する
	可能性は低い(日本原子力研究開発機構,2005)。
	▶ In の溶解度を至温と900℃調へに例。90 ℃では溶解度制限固相が結晶化 して溶解度が低下(Poi at al 2000)
	して俗解及が低下(Kai et al., 2000)。 \blacktriangleright Thの茨解度を 40 \cap と 60 \cap で調べた例 温度が高くたろにつれて茨解度
	が低下 (Nishikawa et al., 2018)。
	 高圧環境での溶解度については、鉱物や一部の固相についての情報はある。塩
	化物でも、圧力が高くなった場合に溶解度が上がるものと下がるものがある。
	【研究例】
	▶ 高圧力下の固体の水への溶解度を調べた例(澤村,1993)、高圧力下にお
	ける各種化合物の溶解度を測定した例(澤村,2009)、各種化合物の高圧
	溶解挙動と部分モル体積を調べた例(澤村,2015)。例えば、水中の無機
	化合物の高圧溶解挙動については、加圧と共に溶解度が増加するものと減
	少するものかめる。 ▶ (には言□ co が唼uナて担託に如八担た連連ナてこしけないすの
	▶ (一板には筒圧 002 が慣出する場所に処分場を建設することはないものの)約 10 MP。の真正 00. ガスサ友下の冬桃でけ 00. が地下水へ溶解す
	Aことにより nH が低下し、 Fh が 10~100 mV 程度上昇する ならに ウラ
	ン等のアクチノイド核種は炭酸錯体を形成し、溶解度が増加し、Kd が低
	下し、地層処分の安全性に影響を与える可能性がある(和田ほか、
	2002)。

表 5-4 超深孔処分相当深度で想定されうるような THMC 条件に対する核種移行パラメ

核種移行 パラメータ	THMC の条件に関する検討事例等
拡散係数	 通常の地層処分での温度の想定(60 ℃くらいまで)に対する拡散データの温度 依存性やそのメカニズムについては多くの研究事例がある。 【研究例】 > 実測データは室温(25 ℃)のデータであり、実際の処分環境である 60 ℃ への補正は、自由水中の拡散係数の活性化エネルギーをもとに補正すると ともに、Cs についてはその妥当性を実効拡散係数の温度依存性データによ って確認した(直接処分第1次取りまとめ)。 高温・高圧下のデータについては、数は少ないものの研究例はある。 【研究例】 > 80 ℃以下の酸化性(大気)条件下の10~40 MPa 程度の流体圧力範囲内に おいて、ベントナイトの重水およびCs の拡散係数に圧力感度がないことを 確認した(和田ほか, 2002)。
分配係数	 通常の地層処分での温度の想定(60 ℃くらいまで)に対する収着データの温度 依存性やそのメカニズムについては多くの研究事例がある。 【研究例】 分配係数の温度依存性については、たとえば、イオン交換性のCsなど一部 の元素については明瞭な傾向性が認められているが、あらゆる核種に対し て傾向性を判断するための根拠は不十分(直接処分第1次取りまとめ)。 高温・高圧下のデータについては、数は少ないものの研究例はある。 【研究例】 (一般には高圧 CO₂ が噴出する場所に処分場を建設することはないもの の)約10 MPa の高圧 CO₂ ガス共存下の条件では、CO₂ が地下水へ溶解する ことにより pH が低下し、Eh が10~100 mV 程度上昇する。さらにウラン等 のアクチノイド核種は炭酸錯体を形成し、溶解度が増加し、Kd が低下し、 地層処分の安全性に影響を与える可能性がある(和田ほか,2002)。 初期の高温環境への対応として、フランスでの150 ℃くらいの温度までの 収着データの取得に取り組んだ事例では、Ni、Cs、及びランタノイドのモン モリロナイトへの収着に関して pH、温度(150 ℃まで)の実測が行われた (Tertre et al, 2005)。
その他	 地球化学計算の熱力学データベースの中には、広範囲にわたる圧力・温度条件(圧力:1~5000 bars、温度:0~1000 ℃)下での鉱物の熱力学特性を計算することができるものも存在する(SPRONS, INC)(Arthur et al. 1999)。

ータの検討事例等(2/2)

表 5-4 の調査・整理結果より、超深孔処分相当深度での THMC 条件に対して核種移行パ ラメータを設定するための情報は現段階では揃っていないことがわかる。また、核種移行 特性についても、従来の地層処分相当深度よりも深い深度に相当する THMC 条件を対象に した研究例は限定的であり、また、関連する可能性のある研究例があっても、そのような 深い深度での特殊な条件下で核種移行パラメータがどのように変化するのか等の一般的 な傾向等を導き出せる情報までにはなっていないことがわかる。そのため今後も、文献調 査を中心とした、超深孔処分相当深度での核種移行パラメータの設定の参考となり得る 情報や知見の収集と分析・整理を継続して行う必要があると考えられる。なお、超深孔処 分の核種移行解析の試行等では、当面は、従来の地層処分相当深度での核種移行パラメー タの設定値をベースすることになると考えられるが、超深孔処分相当深度での核種移行 定等を試行し、核種移行解析を感度解析的に行うことが考えられる。また、このような感 度解析を通じて、どの核種移行パラメータのどのような条件が超深孔処分の核種移行解 析結果にどのように影響するかを把握することで、超深孔処分相当深度の条件に応じた 設定が重要となる核種移行パラメータの絞り込みをしていくことなども考えられる。

(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の検討に向けて、以下のような検討を通 じて、それらに影響を与えうる因子を抽出するとともに、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。

本項では、超深孔処分の安全性に影響を与える可能性のある因子に着目した以下の検 討を行う。

- 想定されう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について、地質環境条件や設計条件などに着目しつつ候補を抽出する
- それら因子による移行経路や移行プロセスなどへの特徴的な影響の種類や程度についてのシナリオ解析や物質移行感度解析などによる分析を実施する

本項目での実施内容を以下の構成で示す。

- 着目する因子の整理(1)項参照)
- 着目する因子についての影響評価のアプローチ(2)項参照)
- 「母岩中の移行」についての影響評価(3)項参照)
- 「母岩中の移行」による影響に対する他の因子の影響評価(4)参照)

1) 着目する因子の整理

平成30年度の検討においては、わが国で超深孔処分の適用性や成立性を検討する可能 性のある場の一般的な特徴等を想定しつつ、超深孔処分の安全性に影響を及ぼす可能性 のある因子の候補について検討を行い、重要になると考えられた以下の因子に対して、そ れら因子の影響の把握を試みた。ただし、平成30年度は、それら因子の影響についての 最初のステップとして、超深孔処分の場として均質かつ簡略的な系を想定し、予察的な物 質移行解析を実施した。

- 母岩中の移行(地下水流れによる超深孔から離れる方向の移行)
- EDZ の影響(EDZ に沿った方向の移行)
- 核種閉じ込め・移行抑制性能

その結果、たとえば I-129 の移行に及ぼす影響については、母岩中において地下水流 れが存在しそれによる超深孔から離れる方向の移行が発生する場合には、米国において 物質移行の主要なプロセスとされている熱対流による上部方向への移行が発生しても、 地下水流れによる母岩中での移行が支配的になり、母岩の透水性の影響が大きいことが 例示された。わが国においては、超深孔処分相当深度においても地下水流れを無視するこ とのできない可能性があることから、母岩の透水性の影響をより詳しく検討することが 必要と考えられた。さらに、母岩の透水性は、熱対流の影響による超深孔上部方向の移行 や EDZ に沿った上部方向の移行等の影響が顕在化するか否か等にも関係し、母岩の透水 性と EDZ の透水性とのバランスなどが重要となる可能性のあることも示唆された。

平成 31 年度の検討においては、平成 30 年度の検討結果を踏まえ、上述の3つの因子 に引き続き着目し、平成 30 年度では超深孔処分の場として均質かつ簡略的な系を想定し たことに対して、より現実的な場の特徴を考慮したうえでそれら因子の影響について検 討を行うこととした。具体的には、平成 30 年度の検討で均質かつ簡略的な想定をしてい た超深孔処分の場に対して、より実際の場で起こり得る想定として、母岩の透水性の不均 質性を考慮した場を設定したうえで、3つの因子が地下水シナリオにおける物質移行に 与える影響について検討する。

平成 31 年度の検討での 3 つの因子の主な取り扱いを、平成 30 年度での取り扱いと対比させて表 5-5 に示す。

	因子の取り扱い					
因于	条件	平成 30 年度	平成 31 年度			
母岩中の移行	母岩の	・均質を想定	・不均質を想定			
(地下水流れに	透水性		(不均質な亀裂の存在、			
よる超深孔から			高透水性の亀裂の存在)			
離れる方向の移		・透水性の想定:	・透水性の想定:			
行)		2パターン(低透水性、	母岩と超深孔の透水性の組			
		中~高透水性)	合せ			
EDZ の影響	EDZ の	・均質を想定	・不均質性を想定			
(EDZ に沿った	透水性	・透水性の想定:	・透水性の想定:			
上部方向の移		低透水性~高透水性	母岩と EDZ の透水性の組合			
行)			せ			
核種閉じ込め・	バリア	バリア機能の想定:	バリア機能の想定:			
移行抑制性能	機能	・処分容器の核種閉じ込め	・廃棄体定置領域およびシー			
		の有無(無の場合は熱対	ル材領域の低透水性のバリ			
		流が影響する期間での核	エーション (プラグ・シール			
		種放出を想定、有の場合	の設置を想定)			
		はその期間での放出を想				
		定しない)				

表 5-5 本検討で着目する3つの因子の取り扱い

2) 着目する因子についての影響評価のアプローチ

1)項で着目した因子が超深孔処分における移行経路や移行挙動に与える影響には様々 なものが考えられ、さらにその影響は、個々の因子の設定さらには複数の因子の設定の組 合せに応じて変化すると考えられる。平成 30 年度の検討においては、超深孔処分の場を 均質かつ簡略的な系と仮定した予察的な物質移行解析を行い、"母岩中の移行"(母岩中に おける移流による物質移行)の因子の影響が大きいことが例示されている。

また、超深孔処分においては深度数 km の超深部に廃棄体が定置されるため、従来の地 地層処分の場合に対して母岩中の移行距離が長くなることでの母岩による移行遅延の向 上が期待される可能性がある。一方、母岩中で地下水流動や物質移行が大きい移行経路 (例えば、母岩の特定の経路での移行、超深孔沿いの移行、それらの組み合わせなど:以 下「優先的な移行経路」)が発生した場合には、超深部に廃棄体が定置されたとしても母 岩による移行遅延の向上を期待することができなくなる可能性があると考えられる。こ のため、超深孔処分を想定した場合について、母岩中での優先的な移行経路の発生の有無 に着目することが重要になると考えられる。

そこで、平成 31 年度の検討においては、まず、平成 30 年度の検討において影響が大き い因子であることが例示された"母岩中の移行"について、その特徴を規定する重要な条 件である母岩の透水性に着目し、平成 30 年度の検討において簡略的な系とするために母 岩の透水性を均質と想定したことに対して、より実際の場に近い状況として母岩の透水 性の不均質性を想定した水理・物質移動解析を実施する。具体的には、実際の場に近い状 況での母岩の透水性の不均質性として、高い頻度で不均質に存在する小さい亀裂の存在 や高透水性亀裂の存在等を想定した水理・物質移動解析(感度解析)を行うことで、優先 的な移行経路としてどのような移行経路が発生する可能性があるか、またそのような移 行経路はどのような条件で発生する可能性があるか("母岩中の移行"の因子の影響が大 きくなる条件)等の把握を試みる。

次に、上述の評価結果に基づき見出された超深孔処分の母岩の透水性の不均質性に起 因する優先的な移行経路の発生に対して、残り2つの因子である"EDZの影響"や"核種 閉じ込め・移行抑制性能"がどのように影響し得るかについて確認・把握する。たとえば、 優先的な移行経路が発生する母岩の透水性の不均質性の条件に対して、"核種閉じ込め・ 移行抑制性能"として、超深孔沿いにシール材やプラグを設置することの影響(優先的な 移行経路における移行の低や優先的な移行経路の変化など)を水理・物質移動解析により 定量的に把握する。

これにより、3つの因子がどのような条件や組合せで超深孔処分の物質移行に影響す るのか等を定量的知見に基づき提示することができると考えられる。またこのような知 見は、超深孔処分の物質移行がどのような因子でどのように変化する可能性があるかの 全体像の把握にも資することが期待される。

このような考え方に基づく、着目する因子についての影響評価のアプローチを図 5-3 に 示す。



図 5-3 着目する因子についての影響評価のアプローチ

3) 「母岩中の移行」についての影響評価

本項では、2)項で示したアプローチに基づいて、影響が大きい因子である"母岩中の移 行"に着目し、母岩の透水性の不均質性を想定したときの超深孔処分の母岩中での優先的 な移行経路の発生の有無や発生条件等を把握するための検討を行う。

母岩の透水性の不均質性には様々なものが考えられるが、ここでは主な不均質性とし て、優先的な移行経路の発生の有無に対して影響が大きいと考えられる"高い頻度で不均 質に存在する小さい亀裂"と"高透水性亀裂"の2つを取り扱うこととし、それらの設定 や組み合わせに応じた水理解析、粒子追跡線解析を実施して超深孔処分の母岩中での優 先的な移行経路の発生の有無や発生条件等の把握を試みる。

本項では以下の構成で実施内容を示す。

- 母岩の透水性の不均質性の取り扱い(①項参照)
- 対象領域および主要なプロセスの想定(②項参照)
- 解析モデルの構築(③項参照)
- 解析(④⑤項参照)
- 考察(⑥項参照)

母岩の透水性の不均質性の取り扱い

母岩中での透水性の不均質性の影響については様々なものが考えられるが、影響の大 きさや起こりやすさ等を勘案して以下の2つの特徴に着目することとした。

高い頻度で不均質に存在する小さい亀裂の影響:
 高い頻度で不均質な小さい亀裂が発生し、それが繋がることで母岩中での優先的な移行経路が構成される可能性が考えられる。

高透水性亀裂の影響:
 高透水性亀裂が不均質に発生し、それが超深孔と交差(接続)することにより母岩中での優先的な移行経路が構成される可能性が考えられる。また、高透水性亀裂と不均質な小さい亀裂が繋がることによる複合的な影響で母岩中での優先的な移行経路が構成される可能性も考えられる。さらに、複数の高透水性亀裂が超深孔と交差した場合には、その間の廃棄体が定置された超深孔中が速い水みち(移行経路)となる可能性も考えられる。

このような母岩の透水性の不均質性に起因して生じ得る様々な影響についての定量的 な評価を効率的に行うためには、母岩の透水性の不均質性の状況に応じて発生する可能 性のある特徴的な移行経路としてどのようなものがあり得るかを事前に想定し、着目す る状況や移行経路をある程度絞り込むことが効果的と考えられる。

平成31年度の検討においては、まず、母岩の透水性の不均質性として想定される状況 と、その影響により超深孔処分の母岩中において発生しうる優先的な移行経路について 検討した。実際の場で想定され得る状況を、上述の母岩の透水性の不均質性として着目す る2つの特徴で表現したイメージを図5-4に示す。



図 5-4 母岩の透水性の不均質性として想定されうる状況のイメージ

図 5-4 に示したように、母岩の透水性の不均質として想定されうる状況は、主に以下の2つのパターンが考えられる。

- パターン1「不均質として小さい亀裂を想定」:
 不均質性として、"高い頻度で不均質に存在する小さい亀裂"のみを想定したパターン。不均質な小さい亀裂が高い頻度で発生しており、それらの亀裂が繋がった場合には優先的な移行経路が構成される可能性がある。不均質な小さい亀裂を統計的に発生させた複数ケースの解析を実施し、特徴的な移行経路が発生するケースを抽出する。
- パターン2「不均質性として高透水性亀裂と小さい亀裂を想定」:
 不均質性として、超深孔と高透水性亀裂の交差を想定したパターン。実際の場を 想定した場合、高透水性亀裂のみの発生は起こりにくいと考えられるため、小さ い亀裂についても発生させ、高透水性亀裂と小さい亀裂の両方の不均質性を考慮 したうえで優先的な移行経路を確認・把握する。小さい亀裂を統計的に発生させ たケースに対して、高透水性亀裂を決定論的に設定する。

なお、上述のパターンの影響を確認するための確認・比較用として、母岩に対して均質 場を設定したパターン(パターンA)を別途設定する。

平成 31 年度の検討では、母岩の透水性の不均質性を考慮したパターン1と2について 水理・物質移行解析を実施することにより、各パターンで発生すると考えられる優先的な 移行経路、および優先的な移行経路が発生する場合の条件等について検討する。

検討に当たっては、はじめにパターン1の不均質に存在する小さい亀裂の影響につい て検討する。パターン1においては、不均質な小さい亀裂を統計的に発生させた水理・物 質移行解析を10ケース実施し、その中から、不均質に存在する小さい亀裂の影響により 母岩中での特徴的な移行経路が生じるものを数ケース程度抽出する。この特徴的な移行 経路が生じる小さい亀裂を考慮したケースを、次のパターン2の検討で考慮する小さい 亀裂の設定とする。

パターン2については、はじめに優先的な移行経路が発生すると考えられる高透水性 亀裂と超深孔の交差方法について定性的に検討して設定したうえで、設定した交差方法 とパターン1で抽出した特徴的な移行経路が生じる小さい亀裂ケースを組み合わせた複 合的な場に対して水理・物質移行解析を実施することにより、高透水性亀裂と小さい亀裂 の双方を想定したときの優先的な移行経路等について検討する。

② 対象領域および主要なプロセスの想定

平成 31 年度の検討における超深孔処分の水理および物質移行の場の設定や主な移行プロセスの想定は以下のとおりである。

全体的な場:

母岩の透水性の不均質性を考慮した超深孔処分の水理・物質移行解析を三次元で実施する場合、数kmの深度のスケールに対して数+ cmの径のスケールの超深孔等を考慮する必要があり、スケールの差が大きくなる。このため、計算精度を確保するためには要素やメッシュを細かく切る必要があるといった課題が生じる。

そのような課題に対応するため、平成31年度の検討においては、超深孔処分における母岩の透水性の不均質性の影響を効率的に評価するための比較的小さな評価領域

(超深孔処分相当深度の 100 m×100 m×100 mの領域に、長さ 80 m で孔径 0.5 mの超 深孔を模擬した評価領域)を設定して評価を実施することとした。なお、このような 評価領域では、実際のスケールで想定されうる長い移行距離が物質移行に与える影響 等を評価することは難しいものの、母岩の透水性の不均質性の影響自体については概 略的に把握することが可能であると考えられる。評価領域のイメージを図 5-5 に示



XY俯瞰図

XZ 断面図(Y=50m)



超深孔領域(領域 No. 1 ~ 領域 No. 3):

- 深度 80 m、径 0.5 mの超深孔を仮定する。
- 超深孔の領域を3つの領域に分けて設定できるようにしている(領域1:深度 80 ~40 m、領域2:深度 40~20 m、領域3:深度 20~0 m)。領域毎に異なる物性を設定することが可能であり、超深孔の部分を廃棄体定置領域やシール材領域に分けて別の物性などを設定することができる。ただし、本項(3)「母岩中の移行」の影響の評価)では、優先的な移行経路を把握することが目的のため、領域1~領域3はひとつの超深孔として扱い同一の物性を設定している(図 5-6)。
- 超深孔の領域は何らかの物質で充填されていることを仮定し、本領域内では物質の仮定に応じて移流あるいは濃度勾配による拡散で核種が移行することを想定する。これは、超深孔領域の透水性等の設定で表現することになる。また、収着性の核種は、その移行過程で物質への収着により遅延することを想定する。これは、超深孔領域の分配係数等の設定で表現することになる。
- 粒子追跡線解析を実施する場合は、超深孔領域1 (深度 80~40 m)から粒子を発 生させる。
- 超深孔周辺の母岩では、移流あるいは濃度勾配による拡散により、粒子が超深孔から母岩領域に移行する。

母岩領域:

- 100 m×100 m×100 mの三次元の領域に母岩が分布していると仮定する。
- 不均質性による小さい亀裂は統計的に発生させる。
- 超深孔から移行してきた粒子は、透水性に応じた地下水の流れによる移流・分散で 母岩中の亀裂(小さい亀裂、高透水性亀裂)を移行する。

③ 解析モデルの構築

ここでは、平成31年度実施するパターン1と2についての解析で使用した三次元水理・ 物質移動解析モデルについて説明する。なお、これらの解析モデルに基づく評価を実施す るためのツールとして、三次元不均質場核種移行解析ツール Partridge(原子力発電環境 整備機構,2011)を用いた。

平成 31 年度の検討で用いた三次元水理・物質移動解析モデルの有限要素分割のイメージの一例を図 5-6 に示す。体系は XYZ 各方向とも 100 m の長さであり、モデルの XY 座標の中心に深さ 80 m の超深孔を設定した。メッシュサイズは超深孔部分を 0.2 m、母岩外部境界部分は最大で 10 m に設定した。また、モデルの境界条件を以下に示す。

水理解析の境界条件:

- X方向水平に動水勾配を設定
- YおよびZ境界は不透水境界を設定

物質移動解析の境界条件:

- X 下流端のみをゼロ濃度境界を設定
- その他の境界は反射境界を設定

<u>評価ポイント:</u>

 優先的な移行経路からの移行率を確認するための評価ポイントとして、母岩の下 流側の境界面の地点を設定し、非収着性・保存性トレーサーの移行率(規格化)等 を求める。



(a) 解析モデルの概要 (XZ 断面図 (Y=50 m))



(b) 有限要素分割の断面(XZ 断面図(Y=50 m))図 5-6 三次元水理・物質移動解析モデルのイメージ

④ パターン1の解析

パターン1では、母岩中で不均質に存在する小さい亀裂の影響について把握するため、 不均質な小さい亀裂を統計的に発生させた水理・物質移行解析を10リアライゼーション (亀裂の統計的サンプリングを10回)実施し、その結果から母岩中での特徴的な移行経 路を2リアライゼーション程度を抽出した。

a. 解析条件

パターン1の解析における不均質な亀裂の統計情報や物性値等を以下に示す。

亀裂の統計情報:

透水量係数分布の設定等については、直接処分第1次取りまとめ(日本原子力研究開 発機構、2015)の設定を適用した。なお、超深孔処分相当深度では、透水係数が深度依 存性を有することも考えられるが、深度依存性の有無や程度は場所に大きく依存する と考えられること、そのような情報は現段階ではそろっていないこと((2) 2) ① a 項 参照)、さらに、本検討は特定の場所を想定した検討ではないことなどから、本検討で は透水係数が深度依存性は考慮せず、直接処分第1次取りまとめの設定をそのまま用 いることとした。

岩盤中亀裂統計データ	設定		
1 次元亀裂密度 (本 m ⁻¹)	0.3		
透水量係数の分布	対数正規分布		
透水量係数(m ² s ⁻¹)分布の対数平均 値	-9.99		
透水量係数分布の対数標準偏差	1.07		
亀裂の半径分布	べき乗分布		
べき指数	3.0		
モデル化する亀裂の最小半径(m)	7.0		
モデル化する亀裂の最大半径 (m)	300.0		
亀裂の方向性分布(走向、傾斜、パラ メータ)比率	Fisher 分布 (0、90、10) 0.5 (90、90、10) 0.5		
母岩マトリクスの透水係数 (m s ⁻¹)	不透水		

表 5-6 亀裂の統計情報

その他の条件設定:

- 動水勾配:0.01 (直接処分第1次取りまとめの設定を適用)
- 超深孔中のベントナイトの間隙率:0.41 (直接処分第1次取りまとめの設定を適用)

- 超深孔中のベントナイトの乾燥密度:1600 kg m⁻³(直接処分第1次取りまとめの 設定を適用)
- 超深孔中の透水係数:1×10⁻⁵ m s⁻¹(超深孔中での移行を速くするために、一般的な砂の透水係数を仮想的に設定。なお、このような設定をした場合には、超深孔中の間隙率や乾燥密度を一般的な砂の設定に変更する必要があるものの、超深孔中での速い移行を取り扱うための便宜的な想定であることに注意する。)

b. 解析設定

パターン1での解析設定を以下に示す。

- 動水勾配:0.01
- 統計的亀裂の分布:表 5-6 参照(透水量係数分布:対数正規分布、対数平均-9.99、 標準偏差1.07 など)
- 超深孔の透水係数:1×10⁻⁵ m s⁻¹
- 統計的亀裂の Random Seed: 1~10 (亀裂の統計的サンプリングを 10 回実施)

また、パターン1の影響を確認するための比較確認用として設定した前述のパターン A (均質場を想定)についても解析を実施した。なお、パターンAでの母岩中の透水係数 については、パターン1での10リアライゼーションについて亀裂の統計的サンプリング を行い、それぞれのリアライゼーションでの亀裂分布の平均透水係数を求め、それらを平 均化した値 (2.79×10⁻¹⁰ m s⁻¹)を用いた。また、パターンAの他の物性値はパターン1 と同じ物性値を設定した。

c. 解析結果

はじめに、各解析結果で示している図の概要について説明する。

- 透水係数分布、圧力水頭分布:三次元地下水流動解析結果に基づく透水係数分布や 圧力水頭分布を可視化したもの。圧力水頭分布や透水係数分布については、主に超 深孔から下流側への圧力水頭場や透水係数場の状況を確認するために、超深孔が 設置されている Y=50 m 地点での XZ 断面(図 5-5 右図参照)を可視化している。 なお、平成 31 年度の三次元解析モデルでは、Z 方向に超深孔を設置し、また、X 方 向に動水勾配を設定し地下水が流れることとしている(XZ 断面で見ると左側から 右側に地下水が流れる:図 5-6 参照)。
- ダルシー流速分布:三次元地下水流動解析結果に基づくダルシー流速分布を可視化したもの。主に、超深孔から下流側へのダルシー流速の状況を確認するために、超深孔が設置されているY=50 m地点でのXZ断面を可視化している。また、XZ断面全体(100 m×100 m)でダルシー流速を可視化してしまうと、直径0.5 mの超深孔内部のダルシー流速が分かりにくくなるため、超深孔内部のダルシー流速を抽出したうえで別途可視化したものを、「ダルシー流速分布(超深孔内部のみ)」としている。
- ・ 粒子軌跡:三次元物質移行解析結果に基づく粒子軌跡を可視化したもの。主に、超 深孔から下流側への粒子軌跡(移行経路)の状況を確認するために、超深孔が設置

されている Y=50 m 地点での XZ 断面を可視化している。可視化した図で時間が表示されていないものについては、10⁶年後の粒子軌跡を示している。粒子軌跡の時間変化を示している図の場合には、時間情報(10³年後、10⁴年後、10⁵年後、10⁶年後)も併せて表示している。

Z座標での粒子存在確率:三次元物質移行解析結果に基づく粒子軌跡において、下流端(X=100 m地点でのYZ断面:図5-5右図参照)で粒子がZ座標のどの位置に分布しているのかを確率分布で示したもの。例えば、高透水性亀裂が存在するZ座標付近の確率が高い場合には、粒子が高透水性亀裂に集中していることを示している。

比較確認用のパターンA(均質な場)の解析結果を図 5-7 に示す。均質場の場合には、 超深孔中の鉛直方向(上下方向)への粒子の動きは発生しておらず、超深孔から出た粒子 は母岩中を概ね横方向に地下水流れの下流方向(左→右)に移動している。このことから、 均質場の場合には、母岩中での粒子の複雑な動きは発生していない。

パターン1の亀裂の統計的サンプリングが異なる10リアライゼーションの解析結果に ついては、不均質な小さい亀裂の超深孔との交差位置や交差本数等に様々な違いがある ため、超深孔および母岩中の粒子は複雑な動きを示している。10リアライゼーションの 粒子追跡線解析結果については、大まかではあるが、主に2つの傾向(優先的な移行経路 の候補)が考えられる。1つ目の傾向としては、初期から超深孔から母岩中への移行が生 じ、そのまま母岩中を下流側まで移行するもの、2つ目の傾向としては、まず超深孔に沿 った上向きの移行が生じ、その後に、母岩中を下流側に移行するものである。1つ目の傾 向を示す例として統計的亀裂のRandom Seed 1に着目した(図 5-8)。Random Seed 1で は、超深孔領域1(粒子を発生させた領域)に対して、透水量係数が比較的大きい亀裂が 交差しているため、粒子が超深孔から母岩中へ直ぐに移行していると考えられる(図 5-10の上段部分)。2つ目の傾向を示す例として統計的亀裂のRandom Seed 4に着目した (図 5-9)。Random Seed 4では、超深孔領域1で交差する亀裂が比較的少ないが、超深孔 上部で透水量係数が大きな亀裂と交差しているため、超深孔を経由して超深孔上部の大 きな亀裂に向かう超深孔中の上向きの移行が生じていると考えられる(図 5-10の下段部 分)。

平成 31 年度の検討では、上述の統計的亀裂の Random Seed 1 と Random Seed 4 を、パ ターン1における母岩中での特徴的な移行経路として抽出し、パターン2の解析に供す ることとした。



図 5-7 パターンA(均質場)における粒子追跡線解析結果



図 5-8 パターン1 での統計的亀裂の Random Seed 1 における粒子追跡線解析結果



図 5-9 パターン1 での統計的亀裂の Random Seed 4 における粒子追跡線解析結果



<u>統計的亀裂のRandom Seed 1</u>



統計的亀裂のRandom Seed 4

図 5-10 パターン1 での粒子軌跡の時間変化

⑤ パターン2の解析

パターン2では、母岩の透水性の不均質性として、高透水性亀裂と小さい亀裂の双方を 考慮したときの影響について検討する。はじめに、高透水性亀裂と超深孔の交差方法につ いて定性的に検討して設定する。そのうえで、設定した交差方法とパターン1で抽出した 特徴的な移行経路が生じる小さい亀裂の状況(パターン1での統計的亀裂の Random Seed 1 と 4)を組み合わせた複合的な場に対して水理・物質移行解析を実施することにより、 高透水性亀裂と小さい亀裂の双方を想定したときの優先的な移行経路を検討する。さら に、優先的な移行経路の発生条件等について検討するために、高透水性亀裂や超深孔の透 水性等を変化させた感度解析を実施し、高透水性亀裂や超深孔の透水性がどのような条 件下になると、高透水性亀裂と小さい亀裂の双方を想定したときの特徴的な移行経路が 生じるか、あるいはその影響が小さくなるのか等の分析・把握を試みる。

a. 高透水性亀裂と超深孔の交差方法の検討

パターン2で設定する必要がある高透水性亀裂と超深孔の交差方法について検討した。 ここでは、優先的な移行経路が発生する可能性がある高透水性亀裂と超深孔の交差方法 の候補(高透水性亀裂が1本の場合、高透水性亀裂が2本の場合、さらに高透水性亀裂が 2本の場合にはその距離が近い場合と遠い場合等)を設定したうえで定性的な検討を実施 し、パターン2での優先的な移行経路の発生とその条件等を検討するという解析の目的 と照らして適切な交差方法を検討・設定する。

①項で示した超深孔に対して高透水性亀裂が交差する場合(図 5-4 のパターン2)を 想定する。はじめに、超深孔に対して1本の高透水性亀裂が交差することを考える。超深 孔との交差状況や、高透水性亀裂が地下水流れ(左→右)の上流側あるいは下流側のいず れに存在するか等を考えると、超深孔処分と1本の高透水性亀裂の交差については、図 5-11 に示すようなケースが考えられる。これらのケースの中で、どれが実際の場で起こり やすそうか、起こりにくそうか、あるいは発生した場合の影響の大きさはどうかなどにつ いて定性的な検討を試みる。高透水性亀裂と超深孔が交差すると仮定した場合には、一般 的に高透水性亀裂の端部が超深孔と接続するようなケース A とケース E は起こりにくい と考えられるため除外する。また、上流側の境界と下流側の境界の両方と接続している高 透水性亀裂(ケース C) については、実際のスケールを想定した場合には数 km の高透水 性亀裂(大規模亀裂)になり、その発生確率は低いと考えられるためケース C も除外す る。超深孔と高透水性亀裂が交差するケース B、D、F は比較的類似した状況ではあるが、 物質移行を考えた場合には母岩の下流端まで高透水性亀裂が存在しているケース B の物 質移行が最も大きくなると考えられるため、高透水性亀裂が 1 本の場合の想定として、 影響が生じる場合に影響が見えやすくなると考えられるケース B を用いることとした。



図 5-11 超深孔と高透水性亀裂の交差パターンのイメージ (高透水性亀裂が1本の場合)

次に、超深孔に対して2本の高透水性亀裂が交差することを考える。1本目の高透水性 亀裂については、先述の超深孔に対して1本の高透水性亀裂が交差するときに物質移行 が最も大きくなると考えられる図5-11のケースBでの「上流側の途中から下流端にいた りその途中で超深孔と交差する高透水性亀裂」を想定する。2本目の亀裂については、こ のケースBで想定する下流端につながる高透水性亀裂に大きな地下水流れを供給する可 能性があり、かつそれにより超深孔中の廃棄体定置領域を洗い流すような移流が発生す る可能性があると考えられる高透水性亀裂として、「上流端と接続しかつ1本目の高透水 性亀裂とある程度離れた位置で超深孔と交差している高透水性亀裂」を想定した。これらの想定により、超深孔中に廃棄体定置領域を洗い流すような地下水流れが発生し、それにより高い核種濃度となった地下水が、高透水性亀裂を移行して母岩外側まで速く移行する経路が構成される可能性があると考えられる。また、この想定における超深孔中の地下水流れの程度などについては、2つの高透水性亀裂の距離により変わる可能性があると考えられる。このため、超深孔に対して2本の高透水性亀裂が交差するケースとしては、図5-12に示すケースG(2つの高透水性亀裂が比較的離れた位置で接続しているケース)とケースH(2つの高透水性亀裂が比較的近い位置で接続しているケース)の2つのケースが考えられるが、2つの高透水性亀裂が離れている場合には、超深孔の地下水流れが発生しても途中で母岩中に地下水が漏洩する割合も大きくなり、その結果、超深孔中を通じての移行は、2つの高透水性亀裂の距離が近い方が相対的に大きくなる可能性があると考えられるため、高透水性亀裂が2本の場合の想定として、ケースH(2つの高透水性亀裂が2本の場合の想定として、ケースH(2つの高透水性亀裂が比較的近い位置で接続しているケース)を用いることとした。

なお、上流側と下流側の高透水性亀裂の上下位置が逆の状況も考えられ、その場合には 超深孔中での地下水の流れる方向は異なことになるが、いずれも上流側から流れ込んだ 地下水が超深孔中の廃棄体定置領域を洗い流した後、下流側の亀裂へと流出することを 想定するという点では同じであるため、大きな違いは発生しないと考えられる。



図 5-12 超深孔と高透水性亀裂の交差パターンのイメージ (高透水性亀裂が 2 本の場合)

b. パターン2の解析内容および解析条件

パターン2の解析条件については、高透水性亀裂以外はパターン1の解析条件と同じ である。高透水性亀裂に関する情報を以下に示す。

高透水性亀裂の条件設定:

- 決定論的に設定
- 透水量係数:1×10-7 m² s⁻¹で固定。H12 レポート(核燃料サイクル開発機構、1999)

における母岩の透水量係数分布における最大値を設定している。

 ・ 高透水性亀裂が2本ある場合の縦方向の距離:30 m

c. パターン2の解析ケースの設定

パターン2の解析では、はじめに、高透水性亀裂と小さい亀裂の双方を想定したときの 優先的な移行経路を把握するための解析ケースとして、パターン1で抽出した特徴的な 移行経路が生じる小さい亀裂の状況と、a項で設定した高透水性亀裂と超深孔の交差方法 を組み合わせた場を想定した解析ケースを設定した。さらに、高透水性亀裂と小さい亀裂 の双方を想定したときの優先的な移行経路に対して、超深孔や高透水性亀裂の透水性等 の条件変化に応じて移行経路や移行挙動に違いが生じるのか、影響が変化するのか等を 確認・把握するための解析ケースを設定した。

・解析ケース(a):高透水性亀裂と小さい亀裂の双方の影響を想定したときの移行経路 把握

パターン1で抽出した特徴的な移行経路が生じる小さい亀裂の状況(統計的亀裂の Random Seed 1と4)と、a項で設定した高透水性亀裂と超深孔の交差方法(高透水性亀 裂が1本の場合の想定:図5-11のケースB、高透水性亀裂が2本の場合の想定:図5-12のケースH)を組み合わせた場を想定した解析ケースを設定して、高透水性亀裂と小 さい亀裂の双方を想定したときの優先的な移行経路を検討する。

設定した解析ケースを表 5-7 に示す。

パニューク	パターン2解析ケース					
// <i>/////y</i>	2-1	2-2	2-3	2-4		
動水勾配 [-]	0.01					
統計的亀裂の分布	表5-6 参照(透水量係数)	表5-6 参照(透水量係数分布:対数正規分布、対数平均-9.99、標準偏差1.07 等)				
統計的亀裂のRandom Seed	1	4	1	4		
超深孔の透水係数 [m s⁻¹]	1 × 10 ⁻⁵					
高透水性亀裂の透水係数[m s⁻¹]	1 × 10 ⁻⁷					
高透水性亀裂の本数等の情報	高透水性亀裂1本が超深 孔と接続(ケースB)	高透水性亀裂1本が超深 孔と接続(ケースB)	高透水性亀裂2本が超深 孔と接続(ケースH)、高 透水亀裂間の距離30 m	高透水性亀裂2本が超深 孔と接続(ケースH)、高 透水亀裂間の距離30 m		

表 5-7 パターン2の解析ケース(a)の一覧

・解析ケース(b): 超深孔の透水性の条件の違いが解析ケース(a)の移行経路に与える 影響把握

解析ケース(a)で把握した高透水性亀裂と小さい亀裂の双方の影響を想定したときの 優先的な移行経路については、超深孔の透水性が変化するとその移行経路や移行挙動等 が変わる可能性が考えられる。例えば、超深孔の透水性が小さくなると、超深孔を経由し て超深孔と交差している高透水性亀裂に向かう移行が小さくなり、物質移行への影響が 小さくなる可能性が考えられる。ここでは、超深孔の透水係数を変化させた感度解析を実 施して、解析ケース(a)で把握した高透水性亀裂と小さい亀裂の双方の影響を想定したと きの優先的な移行経路に与える影響を検討する。 設定した解析ケースを表 5-8 に示す。

1°=1 5	パターン2解析ケース							
// <i>/////j</i>	2-3	2-3-1	2-3-2	2-3-3	2-4	2-4-1	2-4-2	2-4-3
動水勾配 [-]	(0.	.01				
統計的亀裂の分布	表5-6 参照(透水量係数分布:対数正規分布、対数平均-9.99、標準偏差1.07 等)							
統計的亀裂のRandom Seed	1			4				
超深孔の透水係数 [m s ^{−1}]	1 × 10 ⁻⁵	1 × 10 ⁻⁸	1×10^{-10}	1×10^{-12}	1×10^{-5}	1 × 10 ⁻⁸	1×10^{-10}	1×10^{-12}
高透水性亀裂の透水量係数[m ² s ⁻¹]	1 × 10 ⁻⁷							
高透水性亀裂の本数等の情報	高透水性亀裂2本が超深孔と接続(ケースH)、高透 水亀裂間の距離30 m			高透水性亀3 水亀裂間のB	₿2本が超深∄ 巨離30 m	孔と接続(ケー	スH)、高透	

表 5-8 パターン2の解析ケース(b)の一覧

・解析ケース(c):高透水性亀裂の透水性の違いが解析ケース(a)の移行経路に与える影響の把握

解析ケース(a)で把握した高透水性亀裂と小さい亀裂の双方の影響を想定したときの 優先的な移行経路については、高透水性亀裂の透水性が変化するとその移行経路や移行 挙動等の影響が変わる可能性が考えられる。例えば、高透水性亀裂の透水性が小さくなる と、超深孔中が高透水性であっても、超深孔を経由して高透水性亀裂に向かう粒子の移行 が小さくなるといった影響が発生する可能性が考えられる。ここでは、超深孔中の透水性 が高い条件下において高透水性亀裂の透水量係数を1桁減少させた感度解析を実施する ことにより、高透水性亀裂の透水量係数を1桁減少させることの影響を、パタ ーン1の検討において超深孔中の移行が大きい傾向を示した統計的亀裂の Random Seed 4 と高透水性亀裂 2 本が超深孔と交差する場を設定しているケース 2-4 を基準とした表 5-9 に示す1ケースで確認してみることとした。

パニュータ	パターン2解析ケース				
// <u>)</u> ,	2-4	2-4-4			
動水勾配 [-]	0.01				
統計的亀裂の分布	表5-6 参照(透水量係数分布:対数正規分布、対数 平均-9.99、標準偏差1.07 等)				
統計的亀裂のRandom Seed	4				
超深孔の透水係数 [m s ⁻¹]	1 × 10 ⁻⁵				
高透水性亀裂の透水量係数[m² s⁻¹]	1 × 10 ⁻⁷	1 × 10 ⁻⁸			
高透水性亀裂の本数等の情報	高透水性亀裂2本が超深孔と接続(ケースH)、高透 水亀裂間の距離30 m				

表 5-9 パターン2の解析ケース(c)の一覧

d. パターン2の解析結果

解析ケース(a):高透水性亀裂と小さい亀裂の双方の影響を想定したときの移行経路把握 ケース 2-1~ケース 2-4(表 5-7 参照)の解析結果を図 5-13~図 5-16に示す。高透水 性亀裂と小さい亀裂の双方の影響を考慮したときの優先的な移行経路になると考えられ るケース 2-1~2-4については、高透水性亀裂と小さい亀裂の双方の影響により、超深孔 を通って下流側の高透水性亀裂に粒子が移行する傾向や、超深孔の高透水性亀裂に比較 的近い部分において不均質に存在する小さい亀裂の影響により超深孔から母岩中の小さ な亀裂を介して高透水性亀裂に向かう粒子の移行など様々な傾向が見られる。特に特徴 的な傾向を示しているのは高透水性亀裂2本が超深孔と接続しているケース2-3および ケース 2-4 である。ケース 2-4 については、超深孔中を移行し下流端に続く高透水性亀 裂に向かう速い流れが発生し(図 5-15 の下段の超深孔中のダルシー流速が大きくなって いる(赤色))、図 5-16の下段の粒子軌跡線および図 5-15の下段の Z 座標の粒子存在確 率は、粒子の大半が超深孔から下流端に続く高透水性亀裂に引き込まれる傾向を示して いる。一方、ケース 2-3 についても、超深孔中で下流端に続く高透水性亀裂に向かう速い 流れが発生している(図 5-15 の上段の超深孔中のダルシー流速が大きくなっている(赤 色)) ものの、図 5-16 の上段の粒子軌跡線および図 5-15 の上段の Z 座標の粒子存在確率 は、超深孔から下流端に続く高透水性亀裂に粒子があまり引き込まれていない傾向を示 している。これは、ケース 2-3 の場を構成している小さい亀裂 (パターン1の統計的亀裂 の Random Seed 1) においては、粒子発生位置(超深孔領域1) に対して透水量係数が比 較的大きい亀裂が交差しているため、粒子の超深孔から母岩中への直接の移行も発生す ることから(図 5-8)、粒子の移行として超深孔中の移行と超深孔から母岩中への移行の 両方が生じるため、このような傾向を示していると考えられる。

これらのことから、高透水性亀裂と小さい亀裂の双方の影響を考慮したときの優先的 な移行経路については、高透水性亀裂の状況だけでなく、それと小さな亀裂との関係など により様々な移行経路や移行挙動が起こり得ることが示唆されたと考えられる。

平成 31 年度の検討では、上述のケース 2-3 とケース 2-4 を、パターン 2 における母岩 中での優先的な移行経路として抽出し、これ以降のパターン 2 での解析ケース(b)と解析 ケース(c)の検討に供することとした。



解析ケース2-1 (統計的亀裂のRandom Seed 1、高透水性亀裂1本が超深孔と交差)



解析ケース2-2 (統計的亀裂のRandom Seed 4、高透水性亀裂1本が超深孔と交差)

図 5-13 パターン2の解析ケース 2-1 と 2-2 における粒子追跡線解析結果



解析ケース2-1 (統計的亀裂のRandom Seed 1、高透水性亀裂1本が超深孔と交差)



解析ケース2-2 (統計的亀裂のRandom Seed 4、高透水性亀裂1本が超深孔と交差)

図 5-14 パターン2の解析ケース 2-1 と 2-2 における粒子軌跡の時間変化



解析ケース2-3 (統計的亀裂のRandom Seed 1、高透水性亀裂2本が超深孔と交差)



解析ケース2-4 (統計的亀裂のRandom Seed 4、高透水性亀裂2本が超深孔と交差)

図 5-15 パターン2の解析ケース 2-3 と 2-4 における粒子追跡線解析結果



解析ケース2-3 (統計的亀裂のRandom Seed 1、高透水性亀裂2本が超深孔と交差)



解析ケース2-4 (統計的亀裂のRandom Seed 4、高透水性亀裂2本が超深孔と交差)

図 5-16 パターン2の解析ケース 2-3 と 2-4 における粒子軌跡の時間変化

解析ケース(b): 超深孔の透水性の条件の違いが解析ケース(a)の移行経路に与える影響

把握

高透水性亀裂と小さい亀裂の双方の影響を考慮したときの優先的な移行経路として抽 出したケース 2-3 に対する超深孔の透水性の影響についての感度解析結果として、ケー ス 2-3-1~ケース 2-3-3 (表 5-8 参照)の解析結果を図 5-17~図 5-18 に示す(感度解析 ケースの比較用としてケース 2-3 の解析結果は再掲している)。また、ケース 2-4-1~ケ ース 2-4-3 (表 5-8 参照)の解析結果を図 5-19~図 5-20 に示す(感度解析ケースの比較 用としてケース 2-4 の解析結果は再掲している)。

これら感度解析結果から、ケース 2-3 やケース 2-4 に対して超深孔の透水係数を変化 させたことにより、粒子の移行挙動や Z 座標での粒子存在確率などが様々に変化する可 能性があることが例示された。例えば、超深孔中の透水係数が小さくなることに応じて、 ケース 2-4 で見られた超深孔を介して下流側の高透水性亀裂に粒子が引き込まれる挙動 が抑制される傾向、また、超深孔から小さい亀裂を介して高透水性亀裂に粒子が引き込ま れる挙動が相対的に顕在化する傾向などが見られた。

これらの結果より、高透水性亀裂と小さい亀裂の双方の影響を考慮したときの優先的 な移行経路や移行挙動については、超深孔の透水性とも関係して様々なものが生じ得る ことが例示された。しかしながら、現段階では感度解析の条件設定(ケース数)が限定的 であるため、移行経路や移行挙動の変化のバリエーションとその理由を解きほぐすこと はできていない。今後、母岩の透水性の不均質性、高透水性亀裂の透水性、超深孔の透水 性をより細かく変えた感度解析により、どのような条件設定でどのような移行経路が重 要になるか、移行経路が変化する場合にはその理由は何かなどの知見を蓄積していくこ とが重要になると考えられる。



<u>解析ケース2-3(超深孔の透水係数1×10⁻⁵ m s⁻¹、統計的亀裂のRandom Seed 1、高透水性亀裂2本が超深孔と交差)</u>



<u>解析ケース2-3-1 (超深孔の透水係数1×10⁻⁸ m s⁻¹、統計的亀裂のRandom Seed 1、高透水性亀裂2本が超深孔と交差)</u>

図 5-17 パターン2の解析ケース 2-3 と 2-3-1~3 における粒子追跡線解析結果(1/2)



<u>解析ケース2-3-2(超深孔の透水係数1×10⁻¹⁰ m s⁻¹、統計的亀裂のRandom Seed 1、高透水性亀裂2本が超深孔と交差)</u>



5

-50

<u>解析ケース2-3-3(超深孔の透水係数1×10⁻¹² m s⁻¹、統計的亀裂のRandom Seed 1、高透水性亀裂2本が超深孔と交差)</u>

図 5-17 パターン2の解析ケース 2-3 と 2-3-1~3 における粒子追跡線解析結果(2/2)


解析ケース2-3 (超深孔の透水係数1×10⁻⁵ m s⁻¹、統計的亀裂のRandom Seed 1、高透水性亀裂2本が超深孔と交差) における粒子軌跡の時間変化



<u>解析ケース2-3-1 (超深孔の透水係数1×10⁻⁸ m s⁻¹、統計的亀裂のRandom Seed 1、高透水性亀裂2本が超深孔と交差)</u> <u>における粒子軌跡の時間変化</u>

図 5-18 パターン2の解析ケース 2-3 と 2-3-1~3 における粒子軌跡の時間変化(1/2)



<u>解析ケース2-3-2(超深孔の透水係数1×10⁻¹⁰ m s⁻¹、統計的亀裂のRandom Seed 1、高透水性亀裂2本が超深孔と交差)</u> における粒子軌跡の時間変化



<u>解析ケース2-3-3(超深孔の透水係数1×10⁻¹² m s⁻¹、統計的亀裂のRandom Seed 1、高透水性亀裂2本が超深孔と交差)</u> における粒子軌跡の時間変化

図 5-18 パターン2の解析ケース 2-3 と 2-3-1~3 における粒子軌跡の時間変化(2/2)



<u>解析ケース2-4 (超深孔の透水係数1×10⁻⁵ m s⁻¹、統計的亀裂のRandom Seed 4、高透水性亀裂2本が超深孔と交差)</u>



<u>解析ケース2-4-1 (超深孔の透水係数1×10⁻⁸ m s⁻¹、統計的亀裂のRandom Seed 4、高透水性亀裂2本が超深孔と交差)</u>

図 5-19 パターン2の解析ケース 2-4 と 2-4-1~3 における粒子追跡線解析結果(1/2)



<u>解析ケース2-4-2(超深孔の透水係数1×10⁻¹⁰ m s⁻¹、統計的亀裂のRandom Seed 4、高透水性亀裂2本が超深孔と交差)</u>



<u>解析ケース2-4-3 (超深孔の透水係数1×10⁻¹² m s⁻¹、統計的亀裂のRandom Seed 4、高透水性亀裂2本が超深孔と交差)</u>

図 5-19 パターン2の解析ケース 2-4 と 2-4-1~3 における粒子追跡線解析結果(2/2)



<u>解析ケース2-4 (超深孔の透水係数1×10⁻⁵ m s⁻¹、統計的亀裂のRandom Seed 4、高透水性亀裂2本が超深孔と交差)</u> <u>における粒子軌跡の時間変化</u>



解析ケース2-4-1 (超深孔の透水係数1×10⁻⁸ m s⁻¹、統計的亀裂のRandom Seed 4、高透水性亀裂2本が超深孔と交差) における粒子軌跡の時間変化

図 5-20 パターン2の解析ケース 2-4 と 2-4-1~3 における粒子軌跡の時間変化(1/2)



<u>解析ケース2-4-2(超深孔の透水係数1×10⁻¹⁰ m s⁻¹、統計的亀裂のRandom Seed 4、高透水性亀裂2本が超深孔と交差)における粒子軌跡の時間変化</u>



<u>解析ケース2-4-3(超深孔の透水係数1×10⁻¹² m s⁻¹、統計的亀裂のRandom Seed 4、高透水性亀裂2本が超深孔と交差)</u> における粒子軌跡の時間変化

図 5-20 パターン2の解析ケース 2-4 と 2-4-1~3 における粒子軌跡の時間変化(2/2)

解析ケース(c):高透水性亀裂の透水性の違いが解析ケース(a)の移行経路に与える影響の把握

高透水性亀裂の透水性の影響について確認するため(表 5-9 参照)、ケース 2-4 での優先的な移行経路(パターン1の統計的亀裂の Random Seed 4)の小さい亀裂と、高透水性 亀裂 2 本の影響を考慮した優先的な移行経路)に対して、ケース 2-4(高透水性亀裂の透 水量係数が 1×10^{-7} m² s⁻¹)とケース 2-4-4(高透水性亀裂の透水量係数が 1×10^{-8} m² s⁻¹)の解析結果を比較した(図 5-21 および図 5-22)。

その結果、高透水性亀裂の透水性の違いにより、粒子の移行挙動や Z 座標での粒子存 在確率が変わることが例示された。例えば、高透水性亀裂の透水係数が小さくしたケース 2-4-4において、ケース 2-4 で見られた超深孔を介して下流側の高透水性亀裂に粒子が引 き込まれる挙動が抑制される傾向、また、超深孔から小さい亀裂を介して高透水性亀裂に 粒子が引き込まれる挙動が相対的に顕在化する傾向などが見られた(図 5-22)。これにつ いても、前述の解析ケース(b)と同様に、現段階では感度解析の条件設定(ケース数)が 限定的であるため、移行経路や移行挙動の変化のバリエーションとその理由を解きほぐ すことはできていない。今後、母岩の透水性の不均質性、高透水性亀裂の透水性、超深孔 の透水性をより細かく変えた感度解析により、どのような条件設定でどのような移行経 路が重要になるか、移行経路が変化する場合にはその理由は何かなどの知見を蓄積して いくことが重要になると考えられる。

6 考察

パターン1およびパターン2の解析結果より、"母岩中の移行"の因子の条件設定である母岩の透水性の不均質性の想定が、超深孔処分の母岩中での優先的な移行経路や移行 挙動に与える影響については、以下のようにまとめることができると考えられる。

- パターン1の解析により、母岩中で不均質に存在する小さい亀裂の影響については、不均質な小さい亀裂の状況(透水性、位置、本数など)が様々に想定されるため、それに応じた様々な移行経路が発生する可能性が考えられる。基本的には、超深孔から母岩に直接移行することが中心になる場合と、超深孔中を移行したうえで超深孔に交差する(透水性が比較的大きい)亀裂から母岩に移行する場合も超深孔の透水性が高い条件下においては想定されうることから、これら2つがパターン1での優先的な移行経路の例になると考えられる。
- パターン2の解析により、母岩中で不均質に存在する小さい亀裂と、超深孔と交差 する高透水性亀裂の双方を考慮したときの影響については、超深孔から高透水性 亀裂への移行がパターン1とは大きく異なる特徴的な移行経路になると考えられ る。この超深孔から高透水性亀裂への移行については、超深孔から小さな亀裂を介 しての高透水性亀裂への移行が想定されるとともに、超深孔の透水性が高い場合 には超深孔中の移行が顕在化し、これにより超深孔を経由しての高透水性亀裂への移行が卓越する場合も想定される。ただし、高透水性亀裂の影響や超深孔中の移 行の影響は、母岩の透水性の不均質性、高透水性亀裂の透水性、超深孔の透水性の バランスにより変化すると考えられるため、それらのより詳細な組み合わせを考

慮した水理・物質移行解析(感度解析)を実施し、どのような条件設定でどのよう な移行経路を考えることになるか等の知見を蓄積していくことが重要になると考 えられる。

また、このような、超深孔処分を想定した場合の移行経路や移行挙動が、超深孔処分相当深度での透水性やその不均質性、さらには高透水性亀裂の透水性や超深孔の透水性も含めたバランスにより様々に変化する可能性のあることは、諸外国での想定のような極めて小さな透水性を期待できない可能性のあるわが国においては、超深孔処分の安全性を議論するうえで非常に重要になると考えられる。また、3つの因子のうちの「母岩中の移行」にこのような不確実性があることは、残りの2つ因子である「EDZの影響」と「核種閉じ込め・移行抑制性能」に着目し、移行経路や移行挙動の抑制にどのように寄与できるか(後述の4)項参照)、また、そのような不確実性の緩和等にどのように寄与できる可能性があるかなどについて検討することの意義を高めることにもなると考えられる。



解析ケース2-4 (高透水性亀裂の透水量係数 1×10^{-7} m² s⁻¹、統計的亀裂のRandom Seed 4、高透水性亀裂2本が超深孔と交差)



解析ケース2-4-4 (高透水性亀裂の透水量係数1×10⁻⁸ m² s⁻¹、統計的亀裂のRandom Seed 4、高透水性亀裂2本が超深孔と <u>交差</u>)

図 5-21 パターン2の解析ケース 2-4 と 2-4-4 における粒子追跡線解析結果



<u>解析ケース2-4 (高透水性亀裂の透水量係数1×10⁻⁷ m² s⁻¹、統計的亀裂のRandom Seed 4、高透水性亀裂2本が超深孔</u> <u>と交差)における粒子軌跡の時間変化</u>



<u>解析ケース2-4-4 (高透水性亀裂の透水量係数1×10⁻⁸ m² s⁻¹、統計的亀裂のRandom Seed 4、高透水性亀裂2本が</u> 超深孔と交差)における粒子軌跡の時間変化

図 5-22 パターン2の解析ケース 2-4 と 2-4-4 における粒子軌跡の時間変化

4) 「母岩中の移行」による影響に対する他の因子の影響評価

本項では、3)項の「母岩中の移行」による影響の評価結果に基づき見出された、母岩 の透水性に起因する超深孔処分の優先的な移行経路の発生に対して、残り 2 つの因子 である「EDZの影響」や「核種閉じ込め・移行抑制性能」がどのように影響し得るかに ついて確認・把握するための解析を実施する。これにより、「母岩中の移行」を含めた 3 つの因子がどのような組合せや条件で超深孔処分の物質移行に影響するのか等の定 量的な把握を試みる。

本項の実施内容以下の構成で示す。

- 「EDZの影響」と「核種閉じ込め・移行抑制機能」の取り扱い(①参照)
- 解析条件および解析ケースの設定(②参照)
- 解析結果および考察(③参照)

① 「EDZの影響」と「核種閉じ込め・移行抑制機能」の取り扱い

超深孔処分に対する「EDZの影響」と「核種閉じ込め・移行抑制機能」の因子の影響については様々なものが考えられる。

• EDZ の影響:

超深孔周辺に高透水性の EDZ が発生した場合には、超深孔沿いに上向きの流れ が発生することで優先的な移行経路が構成される可能性が考えられる。例えば、 平成 30 年度の検討においては、EDZ による優先的な移行経路のある/なしが超深 孔処分の物質移行に与える影響について検討を行った。その結果、EDZ の透水性と 母岩の透水性とのバランスによっては EDZ による優先的な移行経路の影響が発生 することが示唆された。

• 核種閉じ込め・移行抑制機能の影響:

優先的な移行経路が発生する可能性のある超深孔およびその周辺母岩(EDZ など)に対してプラグやシールを設置することにより、優先的な移行経路をなくす、 あるいはその影響を低減させる措置を取ることが考えられる。また、処分容器の 核種閉じ込め性能を向上させることにより、放射性核種の量を崩壊により低減さ せることも考えられる。

上述の2つの因子のうち「EDZの影響」については、前述の3)項で示した平成31年度 に構築した三次元水理・物質移行解析モデルにおいてはEDZ領域を陽には設定していな いものの、3)項での解析において、超深孔中での速い移行を想定するために超深孔中の透 水係数を高く設定(例えば、1×10⁻⁵ m s⁻¹)したケースを設定していることから、超深孔 周辺に発生する高透水性EDZの影響の可能性もすでに考慮していると考えることができ る。

このため、平成31年度の検討では、高透水性EDZを設定した解析を改めて設定することはせず、今後の母岩の透水性の不均質性をより詳細に取り扱ったモデル等の検討で、高透水性EDZの取り扱いについてもより詳細に検討していく予定である。

また「核種閉じ込め・移行抑制機能の影響」の因子については、3)項で検討したパター ン1およびパターン2での優先的な移行経路において、高透水性の超深孔に沿った粒子 の移行が多かったことを踏まえ、高透水性の超深孔に対してプラグ・シールを設置したと きに、上述の優先的な移行経路に対する移行抑制効果があるのか等について確認を行う こととした。

平成31年度の検討においては、3)項で検討したパターン1およびパターン2の優先的 な移行経路の中で、超深孔に対して高透水性亀裂が1本交差している移行経路(ケース 2-1および2-2)を対象に、その交差部と超深孔の廃棄物定置領域の間にプラグ・シール を設置した状況を想定して、超深孔中やプラグの上部にある高透水性亀裂への粒子の移 行にどのように影響するのか等を検討し例示することとした。プラグ・シールの設置状況 のイメージを図 5-23 に示す。



図 5-23 超深孔へのプラグ・シールの設置状況のイメージ (超深孔に対して高透水性亀裂が1本交差している場合)

② 解析条件および解析ケースの設定

4)項における超深孔処分の水理および物質移行の場の状況、主な移行プロセスの想定、 三次元水理・物質移行解析モデルは、基本的には「3)「母岩中の移行」の因子が及ぼす 影響の評価」と同じである。ここでは、3)項と異なる取り扱いの部分について記載する。

プラグ・シールの設置:

ケース 2-1 および 2-2 の優先的な移行経路に対して設置するプラグ・シールについて は、廃棄体定置領域最上部から高透水性亀裂までの間に設置することを想定する。具体的 には図 5-5 で示した評価領域での超深孔領域2(Z=60~80 mの 20 m区間)がプラグ・シー ル部になることを想定する。解析上の取り扱いとしては、プラグやシールが設置されるこ とにより超深孔領域2全体が低透水性になると仮定し、超深孔領域2での透水係数を低 透水性である1×10⁻¹² m s⁻¹に設定した。

解析ケースの設定:

超深孔に対して高透水性亀裂が1本交差しているケース2-1および2-2を基準ケース としたうえで、ケース2-1およびケース2-2の超深孔領域2をプラグ・シール部に変更 して、その透水係数を低透水性である1×10⁻¹² m s⁻¹に設定したものを追加ケースの3-1 と3-2として設定することにより、ケース2-1および2-2の優先的な移行経路に対する プラグ・シールの効果等について確認して例示する。解析ケースを表5-10に示す

パラメータ	「母岩中の移行」の影響に対する他の因子の影響の評価 解析ケース			
	2-1	2-2	3-1	3-2
動水勾配 [-]	0.01			
統計的亀裂の分布	表5-6 参照(透水量係数分布:対数正規分布、対数平均-9.99、標準偏差1.07 等)			
統計的亀裂のRandom Seed	1	4	1	4
超深孔の透水係数 [m/s]	1 × 10 ⁻⁵			
プラグ・シール部の透水係数 [m s⁻¹]	1 × 10 ⁻⁵		1×10^{-12}	
高透水性亀裂の透水係数[m ² s ⁻¹]	1 × 10 ⁻⁷			
高透水性亀裂の本数等の情報	高透水性亀裂1本が超深 孔と接続(ケースB)	高透水性亀裂1本が超深 孔と接続(ケースB)	高透水性亀裂1本が超深 孔と接続(ケースB)	高透水性亀裂1本が超深 孔と接続(ケースB)

表 5-10 プラグ・シールの影響評価解析ケースの一覧

3 解析結果および考察

ケース 2-1 とプラグ・シールを設置したケース 3-1 の解析結果の比較を図 5-24 および 図 5-25 に、ケース 2-2 とプラグ・シールを設置したケース 3-2 の解析結果の比較を図 5-26 および図 5-27 に示す。この結果、プラグ・シールを設置しているケース 3-1 およびケ ース 3-2 の下流側の高透水性亀裂周辺の 2 座標の粒子存在確率が、プラグ・シールを設 置していないケース 2-1 およびケース 2-2 よりも大幅に低下していることがわかる。こ のことから、プラグ・シールを設置することにより、超深孔での移行を介して下流側の高 透水性亀裂に粒子を引き込まれる挙動が大幅に抑制されることが示唆されたと考えられ る。一方で、プラグ・シールを設置しているケース 3-1 およびケース 3-2 の粒子軌跡や 2 座標の粒子存在確率を見てみると、プラグ・シールにより超深孔中を上向きに移行できな くなった多くの粒子については、母岩中を下流側までの移行するようになるだけでなく、 一部の粒子はプラグ・シールを迂回して高透水性亀裂に移行する挙動が見られ (図 5-25 および図 5-27)、特に統計的亀裂の Random Seed 4 においてその挙動が顕著に見られる (図 5-27) ことから、プラグ・シールが設置されたことによる影響は、母岩中の小さな 亀裂等の影響も関係して、様々な移行経路や移行挙動が起こり得ることが示唆される。

以上の結果より、3)項で見出された超深孔の透水性が高い場合の超深孔中での粒子の 移行が卓越する可能性に対して、「核種閉じ込め・移行抑制性能」の影響としてプラグ・ シールの設置による影響を検討した結果は、以下のようにまとめることができると考え られる。

・超深孔の透水性が高い場合の超深孔中での粒子の移行が卓越する可能性に対してのプラグ・シールを設置することによる移行抑制機能については、プラグの上部で

超深孔と交差する高透水性亀裂への移行抑制効果が期待できると考えられる。

 一方で、母岩の不均質性としての小さい亀裂の存在により、プラグ・シールを迂回 する形で高透水性亀裂に移行することも考えられるなど、プラグ・シールの移行抑 制効果についても、母岩の透水性の不均質性、高透水性亀裂の透水性、超深孔の透 水性のバランスで異なるため、それらのより詳細な組み合わせを考慮した水理・物 質移行解析(感度解析)を行い、どのような条件設定でどのような移行経路を考え ることになるか等の知見を蓄積することが重要になると考えられる。



解析ケース2-1 (プラグ・シールなし、統計的亀裂のRandom Seed 1、高透水性亀裂1本が超深孔と交差)



解析ケース3-1 (プラグ・シールあり、統計的亀裂のRandom Seed 1、高透水性亀裂1本が超深孔と交差)

図 5-24 解析ケース 2-1 と 3-1 における粒子追跡線解析結果



解析ケース2-1 (プラグ・シールなし、統計的亀裂のRandom Seed 1、高透水性亀裂1本が超深孔と交差)



解析ケース3-1 (プラグ・シールあり、統計的亀裂のRandom Seed 1、高透水性亀裂1本が超深孔と交差)

図 5-25 解析ケース 2-1 と 3-1 における粒子軌跡の時間変化



解析ケース2-2(プラグ・シールなし、統計的亀裂のRandom Seed 4、高透水性亀裂1本が超深孔と交差)



解析ケース3-2 (プラグ・シールあり、統計的亀裂のRandom Seed 4、高透水性亀裂1本が超深孔と交差)

図 5-26 解析ケース 2-2 と 3-2 における粒子追跡線解析結果



解析ケース2-2(プラグ・シールなし、統計的亀裂のRandom Seed 4、高透水性亀裂1本が超深孔と交差)



解析ケース3-2 (プラグ・シールあり、統計的亀裂のRandom Seed 4、高透水性亀裂1本が超深孔と交差)

図 5-27 解析ケース 2-2 と 3-2 における粒子軌跡の時間変化

(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き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調査・整理を実施するとともに、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の分析を進め た。

超深孔処分技術および関連分野の最新情報の調査・整理では、超深孔処分に関しての最 も新しい情報として米国の Deep Isolation 社の検討事例、また、超深部の掘削技術に関 する情報として CCS のわが国での掘削実績等の調査・整理等を実施した。超深孔処分相 当処分深度における THMC 情報については、既存情報の再整理・分析を行い、既存の公開 情報では超深孔処分相当深度の THMC 情報は揃っていないことを確認した。さらに、超深 孔処分相当深度の THMC 条件を考慮した核種移行パラメータの設定に向けた既存情報の調 査・整理を行った結果、従来の地層処分相当深度よりも深い深度を想定した研究例は限定 的であり、超深孔処分相当深度の THMC 条件を考慮した核種移行パラメータを設定するた めの情報は現段階では揃っていないことを確認した。

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、およ び我が国の超深部の THMC に係る情報やその THMC 条件を考慮した核種移行特性を設定す るために参考となる情報の収集と分析・整理を継続する。さらに、超深孔処分を対象とし た THMC 条件や核種移行特性に関する検討を効率的に行えるように、超深孔処分での核種 移行解析を通じて、どの THMC 条件や核種移行特性のどのような条件が核種移行解析結果 にどのように影響するかを感度解析により把握することで、超深孔処分相当深度の条件 に応じた設定が重要となる THMC 条件や核種移行特性の絞り込みをしていくことなども考 えられる。

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、超深孔処分で想定され得 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(地質環境条件や設計条 件)の抽出、それら因子("母岩中の移行"、"EDZ の影響"、"核種閉じ込め・移行抑 制性能")による影響の種類や程度についての定量的知見の水理・物質移行解析等による 蓄積を進めた。その結果、"母岩中の移行"の因子の重要な条件である母岩の透水性の不 均質性(超深孔の周りに不均質に存在する小さい亀裂、超深孔と交差する高透水性亀裂 等)に着目し、優先的な移行経路の発生の有無や発生条件等の把握を試みた。その結果、 移行経路は、小さな亀裂の透水性、高透水性亀裂の透水性、超深孔の透水性、および超深 孔と小さな亀裂や高透水性亀裂との交差状況(位置、頻度など)により、超深孔から母岩 への直接的な移行が卓越する場合、超深孔を経由しての高透水性亀裂への移行が卓越す る場合、さらにはその組み合わせなど、様々な移行経路が生じる可能性のあることがわか った。特に、高透水性亀裂が超深孔に交差し、かつ、超深孔の透水性が高く想定される場 合には、超深孔中の移行が顕在化し、さらにそのほとんどが超深孔から高透水性亀裂に流 れ込み、高透水性亀裂を下流側まで移行するという特異的な移行経路が想定されること が例示された。さらに、"核種閉じ込め・移行抑制性能"の因子に関する検討として、超 深孔を経由しての高透水性亀裂への移行が卓越するような移行経路に対して、プラグ・シ

ールの設置による影響を検討した。その結果、超深孔と交差する高透水性亀裂への超深孔 を経由した移行については抑制効果が期待できる一方、小さい亀裂の存在によりプラグ・ シールを迂回する形で高透水性亀裂に移行する経路も生じ得るなど、プラグ・シールの効 果についても、母岩の透水性の不均質性の想定との組み合わせにより様々に異なったも のになる可能性が示唆された。

今後の課題としては、平成31年度の検討で様々な移行経路が生じる原因となることが 示された母岩の不均質性について、不均質性の設定に応じた移行経路をより詳細に把握 するために、透水性(小さな亀裂、高透水性亀裂、超深孔など)や超深孔と亀裂との交差 状況(位置、頻度など)をより細かく変えた感度解析を行い、どのような条件設定でどの ような移行経路になるかの知見を蓄積する。また、感度解析結果の比較・分析により、類 似する移行経路の抽出とパターン分類等を試みることで、超深孔処分の核種移行解析で 重要となる移行経路や移行挙動などを明らかにする。さらに、これらの知見も参考にしな がら、超深孔処分での母岩中の移行における透水性の不均質性の影響、EDZの影響、プラ グ・シールの影響等の評価に適した水理・物質移行解析モデルを、重要となる移行経路や 移行挙動などに絞って詳細化することにより、評価の詳細化と計算の効率化のバランス がとれたものとして構築する。 【参考文献】

- 阿部正憲,斎藤滋,棚瀬大爾(2011):日本における CCS 実証試験に向けた取り組み, 石油技術協会誌 第76巻,第6号(平成23年11月), pp.538-543.
- 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.
- Dhanpat Rai, Dean A. Moore, Charles S. Oakes and Mikazu Yui (2000) : Thermodynamic model for the solubility of thorium dioxide in the Na⁺-Cl⁻-OH⁻-H₂O system at 23°C and 90°C, Radiochimica Acta 88, 297-306.
- Deep Isolation Inc (2019): Deep Isolatios 社 HP <https://www.deepisolation.com/>. (閲覧日:2020年3月19日).
- DOE (2017): Studying the Feasibility of Deep Boreholes, <https://energy.gov/under-secretary-science-and-energy/articles/studyingfeasibility-deep-boreholes>. (閲覧日:2020年3月19日).
- Emmanuel Tertre, Gilles Berger, Sylvie Castet, Michel Loubet and Eric Giffaut (2005) : Experimental sorption of Ni²⁺, Cs⁺ and Ln³⁺ onto a montmorillonite up to 150°C, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 69, No. 21, pp. 4937–4948.
- Ernest L. Hardin, Andrew Clark, Jiann Su and Fred Peretz (2019):Preclosure Risk Assessment for Deep Borehole Disposal, SANDIA REPORT, SAND-2019-1827.
- Geoff Freeze, Emily Stein, Patrick V. Brady, Carlos Lopez, David Sassani, Karl Travis, Fergus Gibb (2019): Deep Borehole Disposal Safety Case, SANDIA REPPORT, SAND-2019-1915.
- 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.
- Ingenieur- und Architekturbüro Goebel GmbH (2019): Ingenieur- und Architekturbüro Goebel GmbH 社 HP<https://www.ing-goebel.de/>. (閲覧日:2019年6月28日).
- Joe H. Payer, Stefan Finsterle, John A. Apps and Richard A. Muller (2019): Corrosion Performance of Engineered Barrier System in Deep Horizontal Drillholes. Energies 2019, 12, 1491; doi:10.3390/en12081491.
- 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.
- 環境省自然環境局(2015):可燃性天然ガスが発生する温泉井戸埋戻し方法, <https://www.pref.kyoto.jp/yakumu/documents/gasuumemodosi.pdf>.(閲覧日: 2020年1月25日).
- 原子力発電環境整備機構(2011): 地層処分事業のための安全評価技術の開発(Ⅱ)-核種 移行解析モデルの高度化-, NUMO-TR-10-10.
- 国土交通省(2018): 海洋開発工学概論 海洋資源開発編 改訂第 1 版 , <http://www.mlit.go.jp/common/001235508.pdf>,第4章,p309. (閲覧日:2020

年1月25日).

- Kristopher L. Kuhlman, Ernest L. Hardin & Mark J. Rigali (2019) : Deep Borehole Laboratory and Borehole Testing Strategy: Generic Drilling and Testing Plan, SANDIA REPPORT, SAND-2019-1896.
- Lichtner, P.C. and G.E. Hammond (2012) :Quick Reference Guide: PFLOTRAN 2.0 (LA-CC-09-047) Multiphase-Multicomponent-Multiscale Massively Parallel Reactive Transport Code, DRAFT LAUR-06-7048, Los Alamos National Laboratory.
- 日本 CCS 調査株式会社(2014): 苫小牧地点における CCS 大規模実証事業: 滝ノ上層入 井及び萌別層圧入井の掘削工事の実施について, <https://www.japanccs.com/wp/wp-content/uploads/2014/08/圧入井掘削作業の説 明資料-.pdf>.(閲覧日:2020年1月25日).
- 日本エネルギー経済研究所、石油天然ガス・金属鉱物資源機構(2018):石油・天然ガス 開発の仕組み 技術・鉱区契約・価格とビジネスモデル,兼清賢介監修 第7版, 化学工業日報社, p300.
- 日本原子力研究開発機構(2005):平成 17 年度 放射性廃棄物処分の長期的評価手法の調 査 報告書 [確率論的アプローチによる長期的評価手法の調査].
- 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(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か年取りまとめ報告書、平成30年3月.
- Pruess, K., Oldenburg, C., Moridis, G. (2012) : TOUGH2 User' s Guide, Version 2.1, LBNL-43134, Lawrence Berkeley National Laboratory: Berkeley.
- Randolph C Arthur, Hiroshi Sasamoto, Masahiro Shibata, Mikazu Yui, Atsushi Neyama (1999) :Development of Thermodynamic Databases for Geochemical Calculations (地球化学計算のための熱力学データベースの開発), JNC TN8400 99-079.
- 澤村精治(1993):高圧力下の固体の水への溶解度,熱分析 7, 36/40.
- 澤村精治 (2009): 高圧力下における各種化合物の溶解挙動, 材料 Vol.58, pp465-470.
- 澤村精治(2015):高圧溶解挙動とそこから見える部分モル体積,高圧力の科学と技術 25,pp239.
- Shogo Nishikawa, Taishi Kobayashi, Takayuki Sasaki and Ikuji Takagi (2018): Solubilities and solubility products of thorium hydroxide under moderate temperature conditions, Radiochimica Acta, <https://doi.org/10.1515/ract-2017-2917>. (閲覧日:2020年3月19日).
- SNL Sandia National Laboratories (2016): Deep Borehole Disposal Safety Analysis <http://prod.sandia.gov/techlib/access-control.cgi/2016/1610949r.pdf>. (閲 覧日:2020年3月19日).

- Stefan Finsterle, Richard A. Muller, Rod Baltzer, Joe Payer and JamesW. Rector (2019): Thermal Evolution near Heat-Generating Nuclear Waste Canisters Disposed in Horizontal Drillholes. Energies 2019, 12, 596; doi:10.3390/ en12040596.
- 棚瀬大爾, 薛自求, 嘉納康二 (2008):長岡における二酸化炭素圧入実証試験, Journal of MMIJ, Vol.124, p.50-60.
- 和田隆太郎,山本誠一,山口憲治,西村務,清水孝浩,中西智明,竹内靖典,長崎晋 也,藤原和雄,西口信彦,今北毅,舛形剛,栗本宜孝,坂本俊(2002):地層処分 場の高圧環境における性能評価手法に関する技術開発, <https://www.iae.or.jp/KOUBO/innovation/theme/pdf/h12-7-14.pdf>(閲覧日: 2020年3月19日).

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31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

純銅処分容器の我が国の地質環境への適用の検討について、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、硫化水素濃度をパラメータとした 純銅の腐食試験等を行い、緩衝材共存下では溶液単独系よりも硫化水素による銅の腐食への 影響が緩和されること等、純銅の腐食に及ぼす硫化物濃度の影響や共存化学種濃度との関係 に関するデータを拡充した。純銅以外の候補材料については、鉄への合金成分添加(ニッケ ルおよびシリコン)の効果等に着目した腐食試験等により腐食データを拡充し、腐食速度低 減や耐食性向上の達成の可能性を提示するとともに、合金成分添加による腐食形態への影響 に関するデータを取得し、今後の課題として腐食速度と腐食形態の両方の観点からの検討の 必要性を示した。

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、処分容器の腐食の 進展に伴う鉄腐食生成物の体積膨張や緩衝材中への鉄イオンの拡散等の現象とそれによる緩 衝材の状態の変化(緩衝材の圧密、鉄イオンと緩衝材との混合による組成の変化)に着目し、 臨界の起こり易さに及ぼす影響の程度や傾向などを把握するための臨界解析を行った。その 結果、これらの状態の変化が臨界の起こり易さに及ぼす影響は限定的であるとの見通しを得 た。また、これらの状態の変化との組み合わせで臨界がより起こり易くなる可能性があるそ の他の状態の変化として、「処分容器の外側(緩衝材と接する部分)での腐食の進展と内側 (集合体の収納スペースの内壁)での腐食の進展の組合せによる影響」および「処分容器の

(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、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、ペレット状のウラン酸化物の長期の浸漬データとペレット 密度に着目した浸漬データを取得した結果、ペレット状のウラン酸化物が一旦溶解したのち ウランが再沈殿する傾向が確認され、より適切な溶解速度の評価のためにこれら溶解と再沈

腐食と被覆管の水素吸収・脆化の組合せによる影響」の二つを抽出した。

殿を区別することの重要性が示された。ウランの溶解度については、平成30年度の過飽和側 の試験に加え不飽和側の試験を実施し無機炭素濃度条件を拡充してデータを取得することに より、両試験でのUO₂(am)の溶解度の無機炭素濃度依存性が一致することを確認した。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実使用済燃料の浸漬試験の 実施準備として、試験を行う施設や使用する使用済燃料の選定および試験器具の製作などの 作業環境整備、ならびに試験計画の策定を実施した。さらに、海外の最新情報の調査を通じ て、UO₂燃料中のFPの存在による溶解速度の抑制効果について、ガドリニア添加UO₂燃料の溶解 試験などが参考になることを確認した。

緩衝材の挙動評価について、処分容器の材料の候補として採用されている銅を対象に、緩 衝材と銅との化学的相互作用や変質等に関する試験研究を、幅広い条件(酸化性雰囲気かつ NaC1共存下、酸素雰囲気かつ硫化水素イオン共存下)について実施し、実施した試験条件に おいて、モンモリロナイトの変質が確認されないこと、一部条件において、圧縮ベントナイ ト中で銅腐食生成物が主に硫化物として存在していることやモンモリロナイトがCu型化して いること等を確認した。

(3) 直接処分システムの成立性の多角的な確認

システムの成立性の効果的な検討については、システムの信頼性向上のための課題などの 具体化に向けて、既往の検討事例(諸外国における直接処分、日本におけるガラス固化体地 層処分)で認識されている課題の分析とそれとの比較などによる、直接処分第1次取りまと めで設定した課題の見直しの要否などの検討を行った。さらに、これまで直接関連する構成 要素および研究・技術分野毎に個別に検討を行なっていた諸課題に対して、他の構成要素と の関連や他の研究・技術分野への波及効果なども含めた多角的な視点からの分析を実施し、 現在の課題や取り組みに大きな抜けがないことや本事業で設定している事業項目の位置付け などを確認するとともに、現在の取り組みと組み合わせることで新たな側面や価値の付与な どが期待される取り組みなどを例示した。

保障措置・核セキュリティについては、諸外国の最新の検討状況の調査を行い、諸外国で の関連する法令の状況としてフィンランドの事例、また、内部脅威者の監視に利用可能な技 術としてカメレオンコードと呼ばれる作業員の通常業務からの逸脱を検知する技術などを把 握した。さらに、違法な掘削などの検知への外部モニタリング情報の適用可能性について、 地震波測定や複数の人工衛星から得られる情報を利用できる可能性を確認した。

(4) その他の代替処分オプションについての調査

超深孔処分技術および関連分野の最新情報の調査・整理では、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、また、超深部の掘削技術に関する情報として 二酸化炭素貯留プロジェクトのわが国での掘削実績等の調査・整理等を実施した。また、超 深孔処分相当深度におけるTHMC情報およびそのTHMC条件を考慮した核種移行パラメータにつ いての既存情報の整理・分析を行い、超深孔処分相当深度の情報は現段階では揃っていない こと等を確認した。

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、"母岩中の移行"、"EDZの影

響"、"核種閉じ込め・移行抑制性能"に着目し、まず、"母岩中の移行"の重要な条件であ る母岩の透水性の不均質性について、優先的な移行経路の発生の有無や発生条件等の把握を 試みた。その結果、小さな亀裂の透水性、高透水性亀裂の透水性、超深孔の透水性、および超 深孔と小さな亀裂や高透水性亀裂との交差状況(位置、頻度等)の影響を受けて様々な移行 経路が生じる可能性のあることが例示された(超深孔から母岩への直接的な移行が卓越する 場合、超深孔を経由した高透水性亀裂への移行が卓越する場合、それらの組み合わせなど)。 さらに、"核種閉じ込め・移行抑制性能"に係るプラグ・シールの効果についても、母岩の透 水性の不均質性の想定との組み合わせにより様々に異なったものになる可能性が示唆された。

(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

純銅処分容器の腐食に関しては、硫化物や他の地下水中成分等が銅の腐食速度、腐食形態、 割れ感受性等におよぼす影響について個別の因子に加えて複数の因子(酸素濃度、地下水成 分等)の組み合わせの作用や長期的な影響などの知見を拡充する。また、純銅以外の候補材 料については、炭素鋼の耐食性改善が期待できる可能性があるニッケルの添加の効果につい ては圧縮ベントナイト中での挙動等を明らかにする。

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、燃料集合体の構造材材料に 着目し、それに対して想定される挙動や再配置等が臨界安全性に及ぼす影響の有無や程度を、 感度解析等を通じて定量的に示すと共に、燃料集合体の構造材材料ならびに処分容器や緩衝 材の状態の変化やその組み合わせなども考慮していくことで、臨界が起こりやすくなる可能 性をより詳細に検討する。また、最も臨界が起こりやすいとして仮想的に設定した極めて保 守的な状態について、そこからずれた状態となることで実効増倍率がどのように変化し得る かの評価などとも組み合わせていくことで、現実性や説明性を高めつつ非保守側の評価にな らないように配慮した臨界解析モデルを構築して評価を行うための手法の構築に向けた課題 等を提示する。

(2) 使用済燃料、緩衝材の挙動評価

使用済燃料からの核種放出挙動について、ウランの溶解速度については、ウラン酸化物の 溶解とウランの再沈殿を区別できる手法を適用した実験的調査を実施するとともに、固相表 面の観察等をより詳細に実施することにより、固相と溶解速度との関連性を調査する。ウラ ンの溶解度についても、溶解速度試験と溶解度試験でのウラン濃度の違いについて、固相の 違いやそれら固相との平衡状態などに着目した検討を進める。また、多様な地下水に対応す べく、塩濃度等を変えた溶解度試験を実施し、これらのデータを拡充する。使用済燃料の浸 漬試験については、大気雰囲気下の浸漬試験に着手するとともに、過酸化水素の定量方法な ど浸漬試験に必要な周辺技術の確立を目指し、大気雰囲気下の浸漬試験に着手する。また、 瞬時放出や燃料溶解に関する海外の最新情報を引き続き調査し、その成果を各種試験等に反 映する。

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は、モンモリロ ナイトの変質の可能性をより詳細に検討するため、陽イオン交換容量の測定、炭酸及び鉄共 存の影響の評価、銅粉と圧縮ベントナイトを混合させる等の銅とベントナイトの相互作用を 促進させた条件下での試験などを行う。モンモリロナイトのCu型化、圧縮ベントナイト中で の硫化銅の生成については、Cu型化が起こる条件の明確化や、酸化性雰囲気での硫化物が関 与した銅の腐食に伴うベントナイトの変質などに着目した検討を進める。さらに、実際の環 境に近い圧縮ベントナイト中での銅の腐食量とベントナイトの変質挙動の関係等を検討し、 処分環境における長期の銅との相互作用に伴うベントナイトの変質の可能性について評価す る。

(3) 直接処分システムの成立性の多角的な確認

システムの成立性の効果的な検討については、平成 31 年度に実施したシステムの信頼性向 上に向けての課題や取り組みの体系的分析を踏まえ、これらの分析により整理された課題や 取り組みに対応していくための手法・手順の整備やシステムの設計への反映方法の整備など を進めていく。その対象としては、例えば、現在の取り組みに対して新たな側面や価値の付 与が期待される取り組み、複数の構成要素の組み合わせにより生じる課題や取り組み、また、 システムの設計への反映に関しては保障措置・核セキュリティ対策と直接処分システムの設 計・建設・操業との関係、などに着目していくことが考えられる。

保障措置・核セキュリティについては、IAEA および諸外国の最新の検討状況などの調査を 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。その対象としては、例えば、こ れまで検討した保障措置技術などで技術的課題として残っている事項(例えば、使用済燃料 中の核物質量測定技術)や、軽水炉以外の燃料に関する諸外国での保障措置・核セキュリテ ィ対策等にも着目していくことが考えられる。また、これら保障措置・核セキュリティ対策 の考え方や技術の情報は、保障措置・核セキュリティ対策と直接処分システムの設計・建設・ 操業との関係についての検討に反映していく。

(4) その他の代替処分オプションについての調査

超深孔処分および関連分野の最新情報の収集・整備については、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 等についての最新情報の調査、および我が国の超深部の THMC に係る情報やその THMC 条件を 考慮した核種移行特性を設定するための情報の収集と分析・整理を継続する。このとき、THMC 条件や核種移行特性を変化させた超深孔処分での核種移行の感度解析などにより、超深孔処 分相当深度の条件に応じた設定が重要となる THMC 条件や核種移行特性を絞り込んでいくこ とも試みる。 また、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、母岩の不均質性の設定 に応じた移行経路をより詳細に把握するために、透水性(小さな亀裂、高透水性亀裂、超深 孔など)や超深孔と亀裂との交差状況(位置、頻度など)をより細かく変えた感度解析等に より、どのような条件設定でどのような移行経路になるのかなどの知見を蓄積する。また、 感度解析結果の比較・分析により、類似する移行経路の抽出とパターン分類等を試みること で、超深孔処分の核種移行解析で重要となる移行経路や移行挙動を明らかにし、水理・物質 移行解析モデルの詳細化などに反映していく。

(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議を行う。 報告書の題名 平成31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

委託事業名 平成31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)

受注事業者名 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

頁	図表番号	タイトル
4-47	図4-23	PALSAR-2により撮影された画像を用いた差分画像
4-48	図 4-24	OLIにより撮影された画像
4-49	送 4-25	ASTERにより撮影された画像
4-50	図4-26	DNBにより撮影された画像