

令和 2 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 3 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令和2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 背景と目的	1-1
1.2 本事業の全体計画	1-2
1.3 令和2年度の実施内容	1-4
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
2.2 使用済燃料処分での処分後臨界安全評価	2-39
2.3 まとめ	2-64
3. 使用済燃料、緩衝材の挙動評価	3-1
3.1 使用済燃料集合体からの核種溶解挙動評価	3-1
3.2 緩衝材の長期挙動評価	3-41
3.3 まとめ	3-55
4. 直接処分システムの成立性の多角的な確認	4-1
5. その他の代替処分オプションについての調査	5-1
6. おわりに	6-1
6.1 成果の総括	6-1
6.2 今後の計画	6-3
付録1 中間評価報告書	付 1-1
付録2 課題の表現や詳細度の見直しに関する検討結果	付 2-1
付録3 地下水水質の評価解析	付 3-1
付録4 超深孔処分での核種移行パターンの発生の有無やその発生条件等を把握するための三次元水理・物質移行解析結果	付 4-1

目 次

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	1-3
図 2.1-1 U ベンド試験片の模式図	2-3
図 2.1-2 試験後の U ベンド試験片の外観	2-5
図 2.1-3 試験後の U ベンド試験片の断面観察結果	2-6
図 2.1-4 U ベンド試験片の皮膜成長速度	2-7
図 2.1-5 緩衝材中での試験カラムの模式図	2-8
図 2.1-6 重量減少量から算出した腐食速度	2-10
図 2.1-7 分極測定に使用した試験カラムの断面図	2-12
図 2.1-8 分極およびカソード還元 の測定系	2-13
図 2.1-9 白金電極での分極測定の結果 ((I) の試験)	2-14
図 2.1-10 銅電極での分極測定の結果 ((I) の試験)	2-14
図 2.1-11 定電流法による銅電極の分極挙動 ((II) の試験)	2-16
図 2.1-12 定電流法による白金電極の分極挙動 ((II) の試験)	2-17
図 2.1-13 スメクタイト含有率の異なるベントナイト試料中での白金電極のカソード分極挙動	2-17
図 2.1-14 応力腐食割れの機構	2-19
図 2.1-15 湿潤ベントナイト中での浸漬試験の模式図	2-21
図 2.1-16 60 °C の純水膨潤ベントナイトに埋設後の加工度の異なる純銅試験片の表面写真	2-22
図 2.1-17 60 °C の純水膨潤ベントナイトに埋設後の加工度の異なる純銅試験片表面の X 線回折	2-23
図 2.1-18 60 °C の純水膨潤ベントナイト中での純銅試料の被膜厚さの経時変化	2-24
図 2.1-19 相対湿度を制御した 60 °C 密閉容器内に曝した粉末ベントナイトの質量の経時変化	2-25
図 2.1-20 湿潤ベントナイト粉末中に埋設した純銅試験片の表面写真	2-26
図 2.1-21 湿潤ベントナイト粉末中に埋設した純銅試験片上腐食生成物の X 線回折	2-26
図 2.1-22 湿潤ベントナイト粉末中に埋設した純銅試験片上の皮膜厚さの経時変化	2-27
図 2.1-23 アンモニア共存下で湿潤させたベントナイト粉末中に埋設した純銅試験片上の皮膜厚さの経時変化 (相対湿度 75 %)	2-28
図 2.1-24 湿潤ベントナイト粉末中に埋設した冷間加工度を変化させた純銅試料に生成した皮膜厚さの経時変化 (相対湿度 75 %)	2-28
図 2.1-25 S-H ₂ O 系電位-pH 図	2-29
図 2.1-26 U ベンド試験片の模式図	2-33
図 2.1-27 試験のイメージ図	2-33
図 2.1-28 圧縮ベントナイト中での U ベンド試験片の外観および断面写真	2-34
図 2.1-29 局部腐食付近のマッピング分析結果	2-35

図 2.1-30	非圧縮ベントナイト中での U ベンド試験片の試験後外観写真および SEM 像	2-35
図 2.1-31	すきま腐食試験片の模式図	2-37
図 2.1-32	電気化学試験模式図	2-37
図 2.1-33	Alloy C-276 の定電位試験結果	2-38
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	2-40
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	2-44
図 2.2-3	ジルカロイの腐食メカニズム模式図	2-45
図 2.2-4	燃料被覆管の腐食の進展と水素化物の生成による状態の変化を考慮した臨界解析モデルの概念	2-45
図 2.2-5	臨界解析で対象とする燃料集合体、処分容器および緩衝材の幾何形状	2-46
図 2.2-6	燃料被覆管・IT/GT 管の状態の変化による実効増倍率	2-52
図 2.2-7	燃料被覆管・IT/GT 管の状態の変化による反応度効果	2-52
図 2.2-8	各ケースにおける k_{inf} の評価結果	2-53
図 2.2-9	収容スペースの間の仕切り部が破損する状況の例	2-57
図 2.2-10	燃料集合体収容スペースの容積が拡大する状況	2-57
図 2.2-11	力学解析における解析体系	2-60
図 2.2-12	解析結果の例（最小主応力分布の時間変化）	2-61
図 2.2-13	腐食代部材と処分容器構造材の相当応力および処分容器の半径方向の変位の時間変化	2-62
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	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
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	3-4
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の例（SA/V=5、平成 31 年度実施）	3-5
図 3.1-5	UO ₂ 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	3-5
図 3.1-6	(U, Mg)O ₂ 固溶体試料の MgO 最強線付近 ($2\theta = 40.88 \sim 44.88^\circ$) の XRD 測定結果	3-8
図 3.1-7	微粉化後、加熱前試料の SEM 画像と EDX によるマッピング画像	3-9
図 3.1-8	条件① (Ar + 10 % H ₂ 、1,600 °C) で加熱した (U, Mg)O ₂ 固溶体試料の SEM 画像と EDX によるマッピング画像	3-10
図 3.1-9	条件② (Ar、1,600 °C) で加熱した (U, Mg)O ₂ 固溶体試料の SEM 画像と EDX によるマッピング画像	3-10
図 3.1-10	条件② (Ar、1,600 °C) で加熱した試料 XRD 測定結果	3-11
図 3.1-11	各浸漬試験試料における pH の時間変化	3-13
図 3.1-12	各浸漬試験試料における液相の E _h の時間変化	3-14

図 3.1-13	各試料における液相の炭酸水素イオン濃度の時間変化	3-14
図 3.1-14	浸漬開始からの経過日数と U 濃度の対数値	3-16
図 3.1-15	浸漬開始からの経過日数と Mg 濃度の対数値	3-16
図 3.1-16	(U, Mg)O ₂ 浸漬試験での Mg 溶出速度評価	3-17
図 3.1-17	非晶質 UO ₂ の調製開始時と固相熟成期間の試験容器の状況	3-18
図 3.1-18	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に使用した測定セルの概念図	3-20
図 3.1-19	バッチ法による 8 週間後に得られたウラン濃度の全炭酸濃度依存性	3-21
図 3.1-20	電気化学的に酸化還元電位を制御したウラン溶解度試験における pH および E _h の経時変化	3-22
図 3.1-21	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結果	3-23
図 3.1-22	ウラン溶解度の計算値と全炭酸濃度 (IC) との関係	3-24
図 3.1-23	浸漬後 UO ₂ ペレット試料の平均ラマンスペクトル	3-26
図 3.1-24	T _{2g} ピーク (445 cm ⁻¹) および欠陥由来のラマンピーク (500-700 cm ⁻¹) の解析例	3-27
図 3.1-25	2L0 の T _{2g} の比較	3-28
図 3.1-26	U3 の T _{2g} の比較	3-29
図 3.1-27	浸漬試験前および後の U ₃ O ₈ 試料のラマンスペクトル (還元条件)	3-31
図 3.1-28	浸漬試験前および後の U ₃ O ₈ 試料のラマンスペクトル (酸化条件)	3-32
図 3.1-29	炭酸水溶液中での U ₃ O ₈ と H ₂ O ₂ との反応によるウランの溶出挙動 (左) と H ₂ O ₂ の濃度変化 (右)	3-32
図 3.1-30	モックアップ試験による操作性の確認と浸漬容器の改良	3-35
図 3.1-31	実燃料切断後の様子	3-35
図 3.1-32	アラニン線量計への放射線照射時の様子	3-36
図 3.1-33	試料からの距離と空間線量率の関係	3-37
図 3.1-34	浸漬試験実施中の様子	3-37
図 3.1-35	pH および H ₂ O ₂ 濃度の経時変化	3-38
図 3.1-36	Cs-133, Sr-90, Tc-99 および U-238 の溶出挙動	3-39
図 3.2-1	変質試験手法概略図	3-42
図 3.2-2	テフロン製変質試験カラム概略図	3-45
図 3.2-3	試験試料の CEC 測定結果 (低酸素雰囲気でのバッチ変質試験)	3-48
図 3.2-4	試験試料の溶液組成分析結果 (低酸素雰囲気でのバッチ変質試験)	3-49
図 3.2-5	銅粉カラム変質試験試料の EPMA 分析結果 (約 400×400 μm ²)	3-52
図 3.2-6	炭酸共存下および非共存下での銅粉カラム変質試験試料の XRD 測定結果	3-53
図 3.2-7	銅粉カラム変質試験試料の CEC 測定結果	3-53
図 3.2-8	Fe(II) イオン共存下および非共存下での銅粉カラム変質試験試料の XRD 測定結果	3-55
図 4-1	C-14 や I-129 等の瞬時放出成分の影響を起点とした課題の整理結果	4-3

図 4-2	想定される条件に応じたシステム（構成要素）の安全機能や設計仕様等の例示の検討の流れ	4-4
図 4-3	使用済燃料中の放射能に対する核種別の寄与（炉取り出し 1,000 年後）	4-7
図 4-4	処分容器寿命と支配核種の感度解析結果	4-8
図 4-5	IRF の最大値と推奨値の各組み合わせにおける処分容器寿命と最大線量の関係	4-11
図 4-6	開口時期分散（1,000 年～100,000 年）を考慮した解析結果例（対数分布）	4-14
図 4-7	開口時期分散（10,000 年～1,000,000 年）を考慮した解析結果例（対数一様分布）	4-14
図 4-8	地下水水質の検討の流れ	4-16
図 4-9	岩盤～使用済燃料集合体での地下水水質の変化に影響しうる主要なプロセス	4-19
図 4-10	モデル 1 およびモデル 2 における炭酸濃度の評価の流れ	4-24
図 4-11	モデル 3 およびモデル 4 における硫化物濃度の評価の流れ	4-29
図 4-12	保障措置・核セキュリティ対策技術のシステム性能への影響の検討の作業フロー	4-32
図 4-13	ヒアリングの分担	4-32
図 4-14	CNSC の規制の枠組みの主要素	4-37
図 4-15	カナダの乾式貯蔵容器（DSC）の封印	4-38
図 5-1	Deep Isolation 社が提案する処分概念のイメージ	5-3
図 5-2	石油天然ガス基礎調査において掘削された坑井の深度と温度環境	5-7
図 5-3	地熱開発促進調査において掘削された坑井の掘削深度、温度環境、および岩種の整理	5-9
図 5-4	海外において掘削された坑井の深度、温度環境、岩種、および坑径	5-10
図 5-5	調査手法のイメージ	5-13
図 5-6	結晶質岩・深成岩中での坑井内試験の実績の整理	5-25
図 5-7	掘削技術の情報と放射性廃棄物の情報の連携のイメージ	5-27
図 5-8	利用可能な情報レベルに応じた核種移行パラメータの設定方法の候補	5-27
図 5-9	超深孔処分システム全体を想定したときに考えられる核種移行経路や核種移行挙動の違いの整理（条件分岐フロー）	5-33
図 5-10	超深孔の設置位置での地下水流動の方向のイメージ	5-37
図 5-11	圧力水頭分布のイメージ	5-37
図 5-12	解析条件に対する移行パターンの類型化	5-41
付図 2-1	「C-14 や I-129 などの瞬時放出成分による突出した影響の出現」に関する課題の整理結果（平成 31 年度版）	付 2-3
付図 2-2	「C-14 や I-129 などの瞬時放出成分による突出した影響の出現」に関する課題の見直し結果（令和 2 年度版）	付 2-3

付図 2-3	「U ₂ マトリクス溶解促進の影響」に関する課題の整理結果（平成 31 年度版）	付 2-4
付図 2-4	「U ₂ マトリクス溶解促進の影響」に関する課題の見直し結果（令和 2 年度版）	付 2-4
付図 2-5	「U および Pu のインベントリが大きいことの影響」に関する課題の整理結果（平成 31 年度版）	付 2-5
付図 2-6	「U および Pu のインベントリが大きいことの影響」に関する課題の見直し結果（令和 2 年度版）	付 2-5
付図 2-7	「岩盤強度や透水性が北欧等と異なることの影響」に関する課題の整理結果（平成 31 年度版）	付 2-6
付図 2-8	「岩盤強度や透水性が北欧等と異なることの影響」に関する課題の見直し結果（令和 2 年度版）	付 2-6
付図 4-1	ケース 1-1 の解析結果（地下水流動：上方向，母岩の透水係数： $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-12} \text{ m s}^{-1}$ ）	付 4-2
付図 4-2	ケース 1-2 の解析結果（地下水流動：上方向，母岩の透水係数： $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$ ）	付 4-3
付図 4-3	ケース 1-3 の解析結果（地下水流動：上方向，母岩の透水係数： $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-7} \text{ m s}^{-1}$ ）	付 4-4
付図 4-4	ケース 1-4 の解析結果（地下水流動：上方向，母岩の透水係数： $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-5} \text{ m s}^{-1}$ ）	付 4-5
付図 4-5	ケース 1-5 の解析結果（地下水流動：上方向，母岩の透水係数： $1 \times 10^{-9} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-12} \text{ m s}^{-1}$ ）	付 4-6
付図 4-6	ケース 1-6 の解析結果（地下水流動：上方向，母岩の透水係数： $1 \times 10^{-9} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$ ）	付 4-7
付図 4-7	ケース 1-7 の解析結果（地下水流動：上方向，母岩の透水係数： $1 \times 10^{-9} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-7} \text{ m s}^{-1}$ ）	付 4-8
付図 4-8	ケース 1-8 の解析結果（地下水流動：上方向，母岩の透水係数： $1 \times 10^{-9} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-5} \text{ m s}^{-1}$ ）	付 4-9
付図 4-9	ケース 1-9 の解析結果（地下水流動：上方向，母岩の透水係数： $1 \times 10^{-8} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-12} \text{ m s}^{-1}$ ）	付 4-10
付図 4-10	ケース 1-10 の解析結果（地下水流動：上方向，母岩の透水係数： $1 \times 10^{-8} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$ ）	付 4-11
付図 4-11	ケース 1-11 の解析結果（地下水流動：上方向，母岩の透水係数： $1 \times 10^{-8} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-7} \text{ m s}^{-1}$ ）	付 4-12
付図 4-12	ケース 1-12 の解析結果（地下水流動：上方向，母岩の透水係数： $1 \times 10^{-8} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-5} \text{ m s}^{-1}$ ）	付 4-13
付図 4-13	ケース 2-1 の解析結果（地下水流動：下方向，母岩の透水係数： $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-12} \text{ m s}^{-1}$ ）	付 4-14

- 付図 4-14 ケース 2-2 の解析結果（地下水流動：下方向，母岩の透水係数：
 $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$ ）…………… 付 4-15
- 付図 4-15 ケース 2-3 の解析結果（地下水流動：下方向，母岩の透水係数：
 $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-7} \text{ m s}^{-1}$ ）…………… 付 4-16
- 付図 4-16 ケース 2-4 の解析結果（地下水流動：下方向，母岩の透水係数：
 $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-5} \text{ m s}^{-1}$ ）…………… 付 4-17
- 付図 4-17 ケース 2-5 の解析結果（地下水流動：下方向，母岩の透水係数：
 $1 \times 10^{-9} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-12} \text{ m s}^{-1}$ ）…………… 付 4-18
- 付図 4-18 ケース 2-6 の解析結果（地下水流動：下方向，母岩の透水係数：
 $1 \times 10^{-9} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$ ）…………… 付 4-19
- 付図 4-19 ケース 2-7 の解析結果（地下水流動：下方向，母岩の透水係数：
 $1 \times 10^{-9} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-7} \text{ m s}^{-1}$ ）…………… 付 4-20
- 付図 4-20 ケース 2-8 の解析結果（地下水流動：下方向，母岩の透水係数：
 $1 \times 10^{-9} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-5} \text{ m s}^{-1}$ ）…………… 付 4-21
- 付図 4-21 ケース 2-9 の解析結果（地下水流動：下方向，母岩の透水係数：
 $1 \times 10^{-8} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-12} \text{ m s}^{-1}$ ）…………… 付 4-22
- 付図 4-22 ケース 2-10 の解析結果（地下水流動：下方向，母岩の透水係数：
 $1 \times 10^{-8} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$ ）…………… 付 4-23
- 付図 4-23 ケース 2-11 の解析結果（地下水流動：下方向，母岩の透水係数：
 $1 \times 10^{-8} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-7} \text{ m s}^{-1}$ ）…………… 付 4-24
- 付図 4-24 ケース 2-12 の解析結果（地下水流動：下方向，母岩の透水係数：
 $1 \times 10^{-8} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-5} \text{ m s}^{-1}$ ）…………… 付 4-25

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	U ベンド試験の試験条件	2-3
表 2.1-2	断面写真から測定した皮膜厚さ (μm)	2-7
表 2.1-3	浸漬試験の試験条件	2-9
表 2.1-4	浸漬試験の結果	2-10
表 2.1-5	試料として用いた無酸素銅の化学組成	2-20
表 2.1-6	U ベンド試験条件	2-32
表 2.1-7	試験片の材質と成分分析値	2-36
表 2.2-1	燃料集合体、処分容器および緩衝材の解析条件	2-46
表 2.2-2	燃料被覆管・IT/GT 管の状態の変化による影響を評価するための解析ケース	2-47
表 2.2-3	解析ケースの設定で用いたジルコニウムおよび酸化ジルコニウム、水素化ジルコニウムの密度	2-48
表 2.2-4	燃料被覆管および IT/GT 管の腐食・水素化の進展に伴い変化させるパラメータ	2-49
表 2.2-5	実効増倍率への最大の影響の整理結果	2-53
表 2.2-6	処分後の臨界の起こりやすさに影響を及ぼす可能性がある因子の整理結果	2-55
表 2.2-7	力学解析の解析条件	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	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	(U, Mg)O ₂ 固溶体ペレットの諸元 (加熱前)	3-11
表 3.1-4	(U, Mg)O ₂ 固溶体ペレットの諸元 (加熱後)	3-11
表 3.1-5	(U, Mg)O ₂ 固溶体ペレットの浸漬試験条件	3-12
表 3.1-6	固相熟成後の懸濁液中の各種結果	3-18
表 3.1-7	ウラン溶解度試験条件の一覧	3-19
表 3.1-8	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条件の一覧	3-20
表 3.1-9	ラマン分光分析に供した浸漬試験後 UO ₂ 試料	3-25
表 3.1-10	浸漬試験のために採取した試料の諸元	3-36
表 3.1-11	浸漬開始における E _h および CO ₂ 濃度	3-38
表 3.2-1	試験手法と目的、対象とする変質環境・現象などのまとめ	3-42
表 3.2-2	基礎的な変質挙動の評価に関する試験条件	3-44
表 3.2-3	炭酸および鉄共存下での変質挙動の評価に関する試験条件	3-44
表 3.2-4	試験に使用した人工海水の組成	3-47

表 4-1	国内向けのソースタームパラメータとしての瞬時放出割合の一覧	4-10
表 4-2	処分容器の長寿命化や開口時期分散の C-14 と I-129 の移行率への影響の推定	4-10
表 4-3	処分容器開口時期の分散の影響についての解析ケース	4-13
表 4-4	本検討で着目したモデル地下水	4-20
表 4-5	本検討で着目した緩衝材間隙水水質	4-21
表 4-6	炭酸濃度の検討において着目した鉱物	4-23
表 4-7	評価ケース（炭酸濃度評価）	4-25
表 4-8	硫化物濃度の検討で着目した因子	4-27
表 4-9	評価ケース（硫化物濃度評価、銅腐食生成物の影響）	4-30
表 4-10	カナダの放射線・原子力利用に関する規制文書の区分一覧	4-40
表 5-1	超深水平処分の閉鎖後安全評価における天然バリアの透水性の設定	5-4
表 5-2	石油天然ガス基礎調査における 3000 m 超の掘削実績	5-6
表 5-3	地熱開発促進調査における 1800 m 超の掘削実績	5-8
表 5-4	海外における超深度・高温・高圧環境・大坑径掘削の実績	5-10
表 5-5	超深孔処分における要件と調査対象に寄与する調査手法（1/2）	5-14
表 5-5	超深孔処分における要件と調査対象に寄与する調査手法（2/2）	5-15
表 5-6	超深孔処分において有効な物理探査手法の概要	5-16
表 5-7	超深孔処分において有効な物理探査手法の整理（1/2）	5-17
表 5-7	超深孔処分において有効な物理探査手法の整理（2/2）	5-18
表 5-8	放射性廃棄物の種類とその超深孔処分に必要な孔径の整理例	5-27
表 5-9	米国の超深孔処分の検討事例における核種移行パラメータ設定の比較	5-29
表 5-10	因子の検討での解析上の取り扱い	5-32
表 5-11	各移行パターンの発生に関係する各分岐の取り扱い	5-38
表 5-12	解析ケース一覧（超深孔の設置位置での地下水流動の方向：上方向）	5-39
表 5-13	解析ケース一覧（超深孔の設置位置での地下水流動の方向：下方向）	5-39
付表 3-1	炭酸濃度に及ぼす鉄腐食生成物および鉄炭酸塩鉱物の影響を評価するための平衡計算結果（初期溶液に FRHP 緩衝材間隙水 1 を使用）	付 3-2
付表 3-2	炭酸濃度に及ぼす鉄腐食生成物および鉄炭酸塩鉱物の影響を評価するための平衡計算結果（初期溶液に MRNP 緩衝材間隙水を使用）	付 3-3
付表 3-3	硫化物濃度に及ぼす銅腐食生成物の影響を評価するための平衡計算結果（初期溶液に SRHP 緩衝材間隙水 1 を使用）	付 3-4
付表 3-4	硫化物濃度に及ぼす銅腐食生成物の影響を評価するための平衡計算結果（初期溶液に SRHP 緩衝材間隙水 2 を使用）	付 3-5
付表 3-5	硫化物濃度に及ぼす銅腐食生成物の影響を評価するための平衡計算結果（初期溶液に FRHP 緩衝材間隙水 1 を使用）	付 3-6

付表 3-6	硫化物濃度に及ぼす銅腐食生成物の影響を評価するための平衡計算結果 (初期溶液に FRHP 緩衝材間隙水 2 を使用)	付 3-7
付表 4-1	解析ケース一覧 (超深孔の設置位置での地下水流動の方向：上方) (表 5-12 の再掲)	付 4-1
付表 4-2	解析ケース一覧 (超深孔の設置位置での地下水流動の方向：下方) (表 5-13 の再掲)	付 4-1

第 1 章

はじめに

1 章詳細目次

1. はじめに	1-1
1.1 背景と目的	1-1
1.2 本事業の全体計画	1-2
1.3 令和2年度の実施内容	1-4
参考文献	1-7

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－直接処分第1次取りまとめ－」（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わ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）。

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

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－地層処分研究開発第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構，1999a;1999b;1999c;1999d）	H12 レポート
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（電気事業連合会，核燃料サイクル開発機構，2005）	第2次 TRU レポート
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（日本原子力研究開発機構，2015a）	直接処分第1次取りまとめ
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（日本原子力研究開発機構，2014）	平成25年度報告書
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（日本原子力研究開発機構，2015b）	平成26年度報告書
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（日本原子力研究開発機構，2016）	平成27年度報告書
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（日本原子力研究開発機構，2017）	平成28年度報告書
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（日本原子力研究開発機構，2018a）	平成29年度報告書
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（日本原子力研究開発機構，2018b）	5 か年取りまとめ報告書
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）	平成30年度報告書
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（日本原子力研究開発機構，2020）	平成31年度報告書

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、本事業では以下の実施項目を設定し技術開発を進めることとした。

- ・ 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、純銅処分容器のわ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に向けて、システムの成立性を効果的に検討するための課題の整理およびそれら課題への対応を進めるとともに、核セキュリティ・保障措置等について、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等を進める。

(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、わが国における超深孔処分の適用性や成立性の検討を行ううえで着目すべき、超深孔処分に影響を与える可能性のある因子とその影響等の分析を行う。

(5) 情報収集および評価委員会の設置と運営

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

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

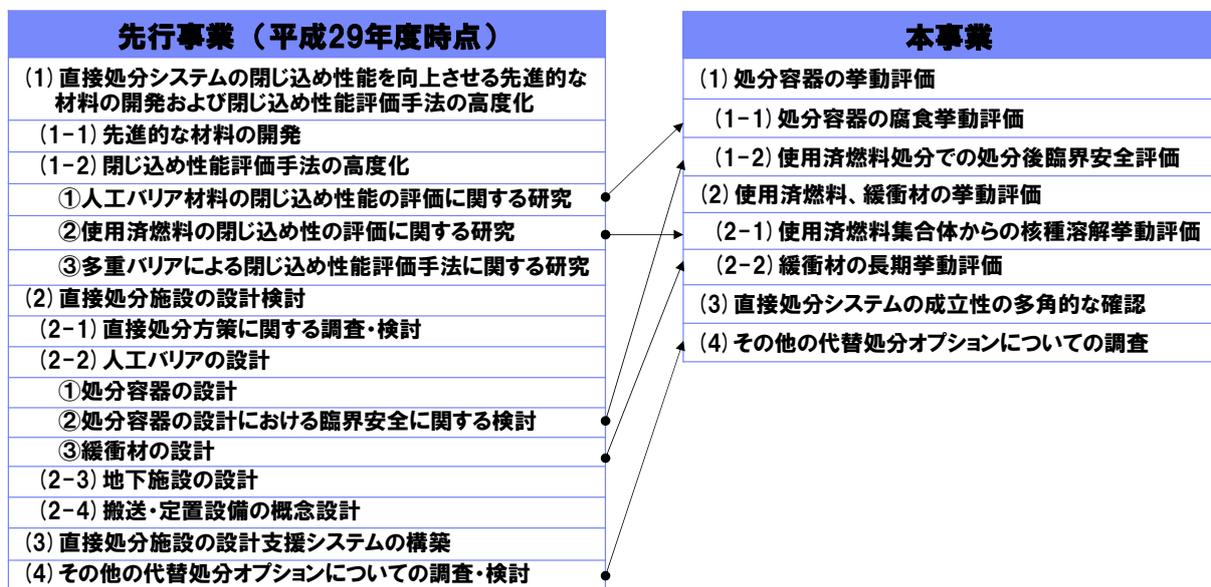


図 1.1-1 本事業での実施項目と先行事業での実施項目の対応

本事業は、「日本での直接処分における人工バリアの成立性の評価の信頼性を向上する」ことに着目し、わが国と海外での先行事例との条件の違い（地質環境条件、使用済燃料条件など）や求められる性能の違い（処分容器寿命など）などに起因してわ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。

ここで、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。なお、「(3)直接処分システムの成立性の多角的な確認」に該当する調査や検討については、令和2年度段階で区切りがついたことから、令和3年度は本項目についての新たな調査・検討の実施は予定していない。

また、事業の最終年度には、事業の全体的な成果を取りまとめた報告書の作成を行うこととしているが、本事業の最終年度である令和4年度では、本事業の成果だけではなく先行事

業の成果も含めることで、直接処分第1次取りまとめ以降の研究開発の進展がわかるものとするとともに、幅広い選択肢を確保する観点からのわが国での直接処分研究開発として引き続き取り組んでいくべきと考えられる課題等も含めて整理する予定である。これは、本事業の成果だけではなく、令和4年度段階における直接処分第1次取りまとめ以降の研究開発の進展と将来に向けての提案等を含むことから、直接処分に係る研究開発全体の進捗状況を示す「プログレスレポート」と位置付けることができると考えられる。このような目的に沿ったプログレスレポートの内容は、本事業の複数の項目の内容及び先行事業の内容を集約し、また、横断的に分析・整理することも必要になるため、これらのプログレスレポートの準備・作成のための作業を、令和4年度に「(3)直接処分システムの成立性の多角的な確認」の作業と位置付けて実施することを予定している。

1.3 令和2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、令和2年度の実施内容を示す。

(1) 処分容器の挙動評価（2章参照）

純銅処分容器のわが国の地質環境への適用の検討について、令和2年度は、硫化物や共存化学種による腐食への影響に関して平成31年度までの試験データ等に基づいて、純銅の局部腐食や応力腐食割れ等の短期破損原因になりうる環境因子（水質・温度等）を抽出し、それら因子の種々の条件の組み合わせに対して腐食データを取得して、わが国での純銅の適用条件の見通しの提示に必要なデータを拡充した。純銅以外の候補材料については、既往の知見や平成31年度までの試験データ等に基づいて、耐食性の向上が期待できる合金種等を選定し、従来材で比較的多くのデータが取得されている模擬地下水中等の環境条件を設定して腐食挙動等に関するデータを取得した。その結果と従来材での結果の比較等により耐食性向上を示唆するデータを取得した。

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、令和2年度は、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こと、さらに、構造材材料の影響、平成31年度までの処分容器や緩衝材の影響、さらにはそれらの複合的な効果等を詳細に評価していくための課題等を提示した。

(2) 使用済燃料、緩衝材の挙動評価（3章参照）

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、令和2年度は、使用済燃料の溶解挙動を適切に評価することを目的として、ウラン酸化物の溶解速度等に及ぼす炭酸影響について、溶解に伴う固相表面の変化や再沈殿の影響等を含めた実験的調査を実施した。また、ウラン酸化物の溶解度については、異なる溶液条件（例えば、海水系）での実験的調査を実施しデータを拡充した。さらに、使用済燃料からの核種放出挙動に関する実燃料を用いたデータ取得のための浸漬試験に着手した。

緩衝材の挙動評価について、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、令和 2 年度は、わが国特有の地下水条件を想定した高濃度の炭酸共存下や、処分場において想定される鉄共存下での試験により、これらが緩衝材の変質に及ぼす影響を調査した。また、処分において想定される長期間の変質挙動について調査するため、緩衝材と銅粉を混合させて圧縮成型する等により、銅と緩衝材の反応表面積を増加させた条件での試験を実施した。

(3) 直接処分システムの成立性の多角的な確認（4 章参照）

直接処分システムの成立性の確認について、令和 2 年度は、システムの信頼性向上に向けての課題等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等を、複数の構成要素の組み合わせにより生じる課題や核セキュリティ・保障措置対策等にも着目しつつ実施した。

核セキュリティ・保障措置について、令和 2 年度は、核セキュリティ・保障措置についての諸外国での考え方、技術開発、対策等についての調査・分析等を実施し、最新の検討状況等を整理した。

(4) その他の代替処分オプションについての調査（5 章参照）

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、令和 2 年度は、超深孔処分や関連分野についての最新の情報・技術の調査と分析・整理の拡充を行い、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の情報整備に係る課題等を提示した。

また、超深孔処分の適用性や成立性に影響を与える因子については、令和 2 年度は、超深孔処分で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る各種因子（地質環境条件や設計条件等）の組み合わせ等による移行経路や移行プロセスへの影響についての水理・核種移行解析等による定量的知見の拡充と詳細化を図るとともに、わが国における超深孔処分の適用性や成立性の検討に向けてのシステム性能や技術的実現性等に係る留意点や課題等を提示した。

(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した。

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 3 回行った（第 1 回：8 月 6 日、第 2 回：12 月 2 日、第 3 回：3 月 5 日）。このうち、第 2 回は、本事業の中間評価として、平成 30 年度の本事業開始から令和 2 年度 11 月時点までの進捗状況と達成度及び本事業での今後の課題等について、以下の観点でのコメントやご意見をいただき（付録 1 参照）、今後の事業の計画立案と実施に反映することとした。

（項目ごと）

- ・評価される点
- ・今後の課題

- ・その他のコメント・ご意見

(事業全体)

- ・事業の目的に照らしてこれまでの研究内容とその成果の妥当性
- ・残された課題や5ヵ年（今後）の実施計画の妥当性
- ・その他のコメント・ご意見

【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/2013/25-11-1.pdf（2021年3月29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/2014/26fy_sf.pdf（2021年3月29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/2015/27fy_sf.pdf（2021年3月29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/2016/28fy_sf.pdf（2021年3月29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/2017/29fy_sf.pdf（2021年3月29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/2017/25-29fy_sf_torimatome.pdf（2021年3月29日閲覧）。
- 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，
https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2018/30fy_spent-fuel.pdf（2021年3月29日閲覧）。
- 原子力機構（日本原子力研究開発機構）（2020）：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，
https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2019/31fy_spent-fuel.pdf（2021年3月29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），
https://www.meti.go.jp/shingikai/enecho/denryoku_gas/genshiryoku/pdf/012_s03_00.pdf（2021年3月29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（2021年3月29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応力腐食割れ試験	2-2
① 試験方法	2-2
② 試験結果と考察	2-3
2) 硫化水素吹き込み下の浸漬試験	2-8
① 試験方法	2-8
② 試験結果と考察	2-9
3) 硫化ナトリウム共存下の電気化学試験	2-11
① 試験方法	2-11
② 試験結果と考察	2-13
(3) ベントナイト共存環境における純銅の応力腐食割れ挙動	2-18
1) 浸漬試験	2-20
① 試験方法	2-20
② 試験結果	2-21
③ 考察	2-28
2) 圧縮ベントナイト中でのUバンド試験	2-32
① 試験方法	2-32
② 試験結果と考察	2-33
(4) 他の候補材料を対象とした腐食試験	2-35
1) 高耐食性金属のすきま腐食試験	2-36
① 試験方法	2-36
② 試験結果と考察	2-38
2.2 使用済燃料処分での処分後臨界安全評価	2-39
(1) 本項目の背景と目的	2-39
(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	2-42
1) 臨界解析で対象とする材料等の状態の変化の選定	2-42
2) 燃料被覆管・IT/GT管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	2-45
① 臨界解析の基本条件の設定	2-45
② 解析ケースおよび解析条件等の設定	2-47
3) 解析結果	2-50
(3) 個別の影響が複合的に作用する場合の評価手法の検討	2-54
1) 処分後に臨界を引き起こす可能性がある変形・破壊挙動のパターンの抽出	2-54
① 臨界が起こる可能性が高い材料配置のパターン	2-54

② 臨界が起りやすい材料配置をもたらす材料の変形・破壊挙動	2-56
2) 臨界を引き起こす可能性がある変形・破壊挙動の生起可能性の把握に向けた力学解析	2-58
① 解析手法・ツール	2-58
② 解析体系・解析条件	2-59
③ 解析結果	2-60
(4) 過度に保守側ではない現実的で合理的な臨界安全評価手法の構築に向けた課題の抽出	2-62
2.3 まとめ	2-64
参考文献	2-65

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は、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処分後の臨界安全性が求められており、人工バリアの成立性や処分容器への廃棄体の収納本数の上限等を論じていく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処分後臨界安全性に関する検討を実施した。

以上に関する検討について、以下の構成で報告する。

2.1 処分容器の腐食挙動評価

2.2 使用済燃料処分での処分後臨界安全評価

2.3 まとめ

2.1 処分容器の腐食挙動評価

(1) 本項目の背景と目的

処分容器候補材料として、ガラス固化体の処分におけるオーバーパックと同様に、炭素鋼、チタン、ニッケル基合金、純銅などが挙げられる。このうち、純銅は熱力学的な安定性から酸素濃度の低い水環境でほとんど腐食が進展しないという特徴を有する。諸外国では $10^5 \sim 10^6$ 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、純銅の短期破損要因となりうる現象である応力腐食割れ感受性を把握するための硫化物共存環境での応力腐食割れ試験および硫化物共存環境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、ベントナイト共存環境での純銅の皮膜形成挙動およびベントナイトの乾燥密度が応力腐食割れ感受性に与える影響に着目し、ベントナイト共存下での浸漬試験および圧縮ベントナイト中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、高耐食性金属(ニッケル基合金)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検討を行った(後述(4)項参照)。本項目のまとめについては「2.3 まとめ」に示す。

(2) 硫化物共存環境における純銅の腐食挙動

純銅は一般的に溶存酸素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ことから極めて長期の腐食寿命が期待される。しかしながら、硫化水素ガスや硫化水素イオン等の硫化物が共存する環境では熱力学的な安定性が失われ、溶存酸素濃度が低い環境でも硫化物濃度条件等の環境条件に応じて腐食が進展しうる。平成 30 年度は硫化物共存環境における純銅の腐食挙動を予察的に検討した。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および初期腐食速度などを把握するための短期間の浸漬試験を実施し、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、幅広い硫化水素濃度と電位に対し、銅の腐食形態や皮膜形成挙動を把握した。平成 31 年度は、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、緩衝材中では溶液単独系よりも硫化水素による腐食への影響が緩和されることが確認された。

令和 2 年度は、純銅の短期破損要因となりうる現象である応力腐食割れに着目し、硫化物濃度による純銅の応力腐食割れへの影響を把握することを目的とした応力腐食割れ試験を実施し、データを取得した。また、純銅の腐食速度を把握することを目的とした浸漬試験を実施し、腐食速度の経時変化および緩衝材が腐食速度に及ぼす効果を調査した。さらに、低酸素濃度下での純銅の腐食速度を電気化学的手法により推定するための基礎的知見を得るため、硫化物を含む淡水系地下水を想定した試験溶液中での電気化学試験を実施した。

1) 硫化水素吹き込み下の応力腐食割れ試験

純銅は、上述(2)のとおり、一般的に溶存酸素の低い天然水環境では腐食がほとんど進展しないが、硫化物を含む環境では熱力学的な安定性が失われ、腐食が進展しうる。硫化物が共存する環境では、腐食進展による破損のほか、応力腐食割れによる破損も考慮する必要がある。しかし、硫化物共存下における低酸素濃度条件での純銅の応力腐食割れに関する知見は少ない。そこで、硫化物濃度による純銅の応力腐食割れへの影響を把握することを目的として、硫化水素吹き込み下での応力腐食割れ試験を実施した。

① 試験方法

純銅試験片には無酸素銅 (JIS C1020) を用い、試験片表面はエメリー紙 #2000 まで研磨した。試験片の寸法は $75 \times 10 \times t_1$ mm に切り出した平板に $\phi 6$ mm の穴を明け、R8 曲げ加工を施した。図 2.1-1 のように A と B が平行になるよう、ボルトで締め付けた。ボルト類は試験片と同じ素材のものを使用した。

試験溶液には人工海水 (ASTM D1141-98 準拠) を用いた。試験片を溶液に浸漬させた後に、窒素ガス、所定の硫化水素濃度の窒素-硫化水素混合ガス、硫化水素ガスを通気した。100 % H_2S の場合の水中の硫化物濃度は、ヘンリーの法則 ($p=K_H X$, p : 蒸気圧、 K_H : ヘンリー一定数、 X : モル分率) から計算すると、80 °C の純水中で $[H_2S]=0.04$ M 程度である。人工海水中では、純水中よりも溶解しにくくなると考えられるため、試験溶液中に溶解している H_2S 濃度は 0.04 M より小さいと推測される。

試験条件を表 2.1-1 に示す。浸漬期間は 30 日間および 60 日間とした。試験前後に目視に

より試験片の外観観察、試験後に光学顕微鏡を用いて断面の観察を行った。

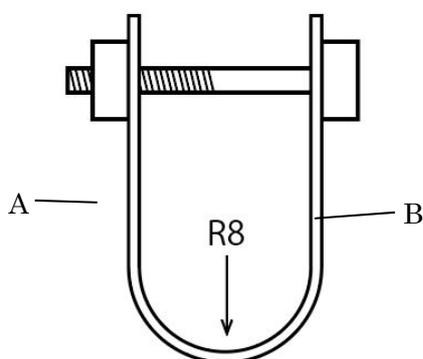


図 2.1-1 U ベンド試験片の模式図

表 2.1-1 U ベンド試験の試験条件

試験溶液	温度 (°C)	浸漬期間	吹き込みガス
人工海水	80	30日間	100 %N ₂
			99 % N ₂ +1% H ₂ S
			95 %N ₂ +5% H ₂ S
			90 %N ₂ +10% H ₂ S
			50 %N ₂ +50% H ₂ S
			100 %H ₂ S
		60日間	100 %N ₂
			99 %N ₂ +1 %H ₂ S
			95 %N ₂ +5 %H ₂ S
			90 %N ₂ +10 %H ₂ S
			50 %N ₂ +50 %H ₂ S
			100 %H ₂ S

② 試験結果と考察

試験前後の試験片の外観を図 2.1-2 に示す。いずれの試験片にも目視で割れは観察されなかった。また、試験ガスに硫化水素を含む条件では、黒色の皮膜が生成されていた。黒色の皮膜は総じて剥離しやすい状態となっており、例えば 95 %N₂+5 %H₂S の条件の 30 日間のものは、取出しの際に皮膜が剥離し、試験片の一部に下地の銅が露出した。

図 2.1-3 に光学顕微鏡による試験片左肩付近の断面観察結果を示す。試験ガスの硫化水素濃度が高いほど、また試験期間が長いほど、試験片上に厚い皮膜が観察された。表 2.1-2 に断面観察の結果から測定したおおよその皮膜厚さを示す。表 2.1-2 に示した皮膜厚さから算

出した皮膜成長速度を図 2.1-4 に示す。皮膜の成長速度は、 H_2S 濃度が 50 %以上の条件で試験期間 30 日より 60 日のほうが小さくなっており、皮膜形成速度は経時的に低下すると推察される。

また、試験ガスに硫化水素が含まれる条件の試験片においては、皮膜の下に粒界腐食と思われる形態が観察された。その深さは、硫化水素濃度が高いほど深く、100 % H_2S の条件で 20 ~30 μm 程度であった。粒界腐食は局部腐食の一種であり、処分容器の短期破損要因となる可能性があるため、この粒界腐食が応力を負荷したことによって発生したかどうか把握する必要がある。

今回の試験結果では、典型的な応力腐食割れは発生しなかったものの、局部腐食（粒界腐食のような腐食形態）が観察されており、現時点のデータでは応力腐食割れ感受性を判定することは難しい。今後、応力負荷のない試験片（U ベンド試験片の平行部等）の断面観察を実施し、同様の局部腐食の有無を調査する必要がある。また、より長期の試験を実施し、粒界腐食が割れに進展しないかどうかを確認する必要がある。しかし、有毒ガスを扱う試験であること等、長期試験には制約があることから、実際の応力状態よりも厳しい条件となるが比較的短期間で割れ感受性を評価できると考えられる SSRT（低ひずみ速度試験法）による試験データを取得する予定である。

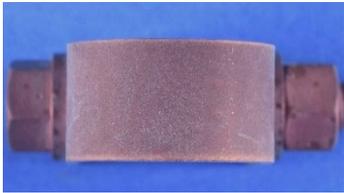
吹込みガス	浸漬期間	
	30 日	60 日
100 %N ₂		
99 %N ₂ + 1 %H ₂ S		
95 %N ₂ + 5 %H ₂ S		
90 %N ₂ + 10 %H ₂ S		
50 %N ₂ + 50 %H ₂ S		
100 %H ₂ S		

図 2.1-2 試験後の U ベンド試験片の外観

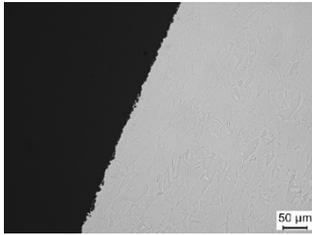
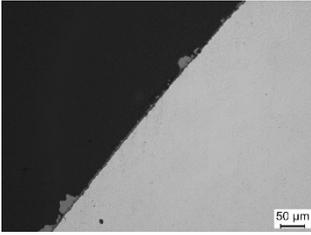
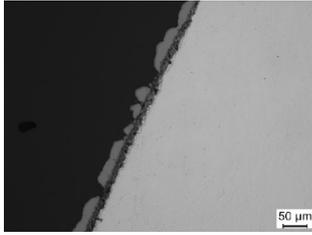
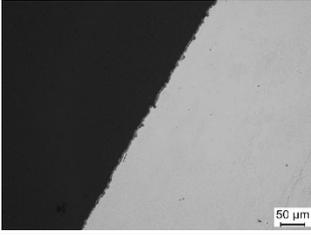
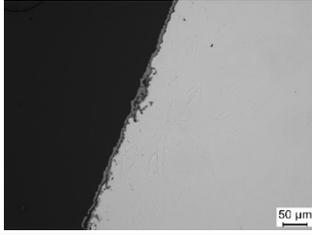
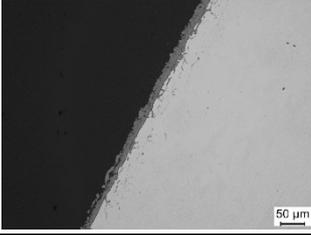
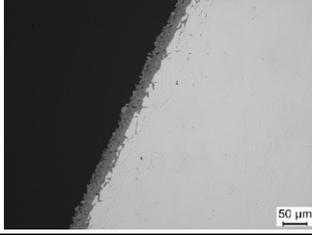
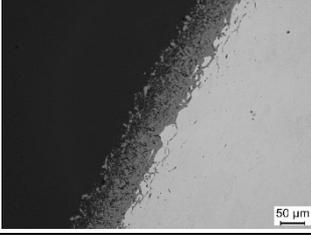
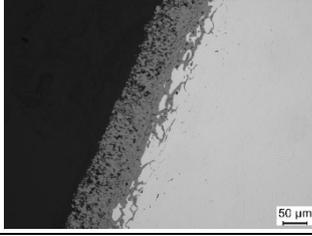
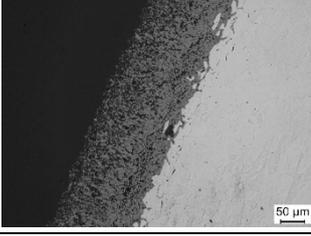
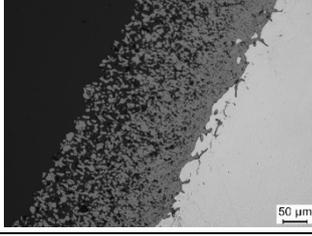
吹込みガス	浸漬期間	
	30 日	60 日
100 %N ₂		
99 %N ₂ + 1 %H ₂ S		
95 %N ₂ + 5 %H ₂ S		
90 %N ₂ + 10 %H ₂ S		
50 %N ₂ + 50 %H ₂ S		
100 %H ₂ S		

図 2.1-3 試験後の U ベンド試験片の断面観察結果

表 2.1-2 断面写真から測定した皮膜厚さ(μm)

吹込みガス	皮膜厚さ(μm)	
	30日	60日
100 %N ₂	0.00	0.00
	0.00	0.00
	0.00	0.00
99 %N ₂ +1 %H ₂ S	1.25	10.0
	5.00	17.5
	7.50	12.5
95 %N ₂ +5 %H ₂ S	2.50	5.00
	2.50	7.50
	2.50	5.00
90 %N ₂ +10 %H ₂ S	12.5	25.0
	12.5	27.5
	12.5	25.0
50 %N ₂ +50 %H ₂ S	80.0	50.0
	87.5	50.0
	72.5	50.0
100 %H ₂ S	150	288
	143	150
	138	200

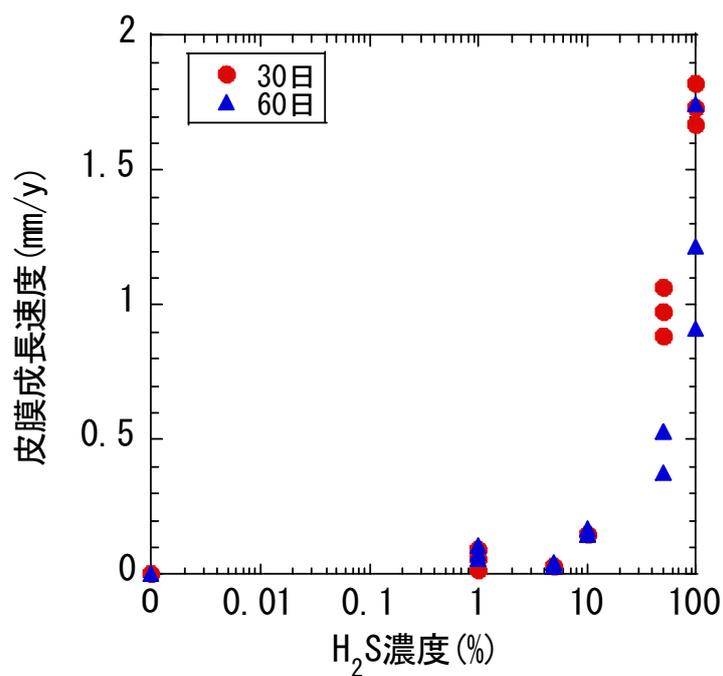


図 2.1-4 U ベンド試験片の皮膜成長速度

2) 硫化水素吹き込み下の浸漬試験

純銅は、上述(2)のとおり、一般的に溶存酸素の低い天然水環境では腐食がほとんど進展しないが、硫化物を含む環境では熱力学的な安定性が失われ、腐食が進展しうる。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、自然浸漬状態での腐食挙動および腐食速度を把握することを目的として、硫化水素吹き込み下での浸漬試験を実施した。

① 試験方法

純銅試験片には大きさが 30×30×2 mm の無酸素銅 (JIS C1020) を用い、試験片表面はダイヤモンドペースト等を用いて鏡面に仕上げた。試験溶液には人工海水 (ASTM D1141-98 準拠) を用いた。あらかじめ脱気した試験溶液に窒素ガス、所定の硫化水素濃度の窒素-硫化水素混合ガス、硫化水素ガスを通気した。本浸漬試験では、水溶液中での試験のほか、緩衝材中での試験も行った。緩衝材中での試験に用いる試験カラムの模式図を図 2.1-5 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。

試験条件を表 2.1-3 に示す。浸漬中の温度は 80 °C、浸漬期間は 30 日間および 60 日間とした。浸漬期間終了後、試験片の脱錆を行い、重量測定を行った。

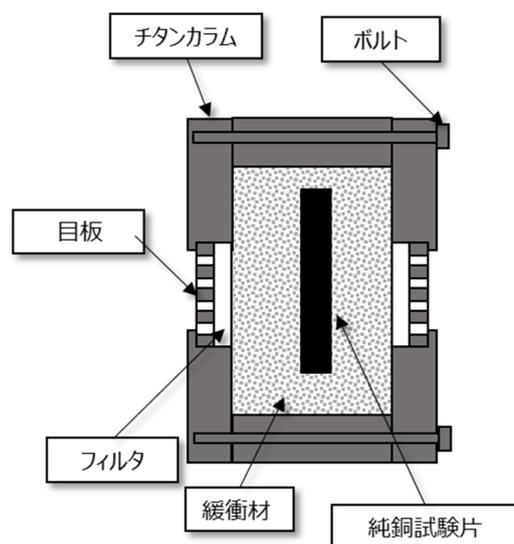


図 2.1-5 緩衝材中での試験カラムの模式図

表 2.1-3 浸漬試験の試験条件

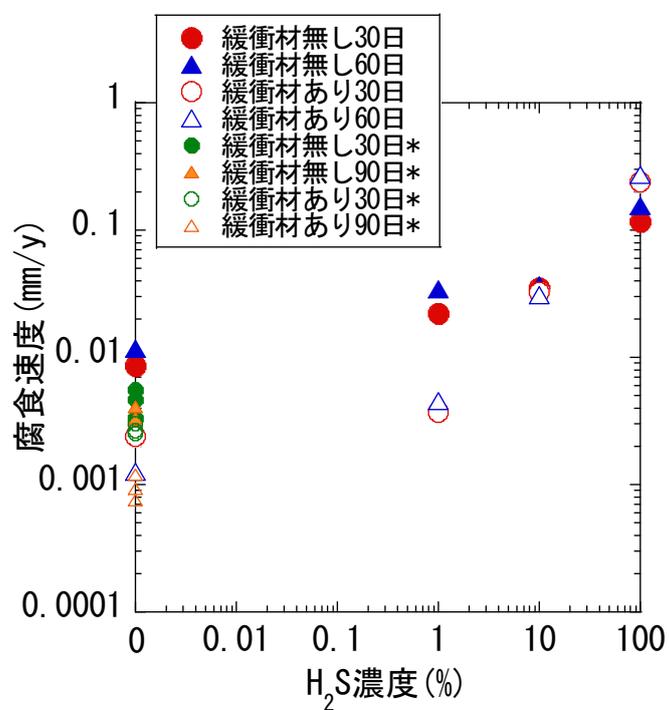
試験溶液	温度 (°C)	浸漬期間	緩衝材	吹き込みガス
人工海水	80	30日間	あり	100 %N ₂
				99 %N ₂ +1 %H ₂ S
				90 %N ₂ +10 %H ₂ S
				100 %H ₂ S
			なし	100 %N ₂
				99 %N ₂ +1 %H ₂ S
				90 %N ₂ +10 %H ₂ S
				100 %H ₂ S
		60日間	あり	100 %N ₂
				99 %N ₂ +1 %H ₂ S
				90 %N ₂ +10 %H ₂ S
				100 %H ₂ S
			なし	100 %N ₂
				99 %N ₂ +1 %H ₂ S
				90 %N ₂ +10 %H ₂ S
				100 %H ₂ S

② 試験結果と考察

試験前後の重量測定から算出した平均腐食深さおよび腐食速度を表 2.1-4 に、試験ガスの H₂S 濃度に対する腐食速度のプロットを図 2.1-6 に示す。緩衝材共存下の 100 %N₂ では、腐食速度は浸漬期間 30 日より 60 日のほうが小さくなっており、既報（谷口ほか，2007）の値と概ね一致した。H₂S を含む条件では、試料表面に Cu₂S と考えられる黒色の腐食生成物が生成し、H₂S 濃度が高いほど腐食速度は大きくなった。10 %H₂S および 100 %H₂S では、溶液単独系も緩衝材共存系も腐食速度は同程度となった。H₂S 濃度が 1 %の場合、腐食速度は溶液単独系より緩衝材共存下のほうが小さくなっており、緩衝材共存下では硫化水素による腐食への影響が緩和されると推察される。平成 31 年度に実施した硫化水素吹込み下での腐食試験の結果では、重量法では H₂S 濃度 5 %以上、Tafel 外挿法では H₂S 濃度 10 %以上の場合に、濃度とともに腐食速度が増加し、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ることが示唆されている（原子力機構，2020）。本試験では H₂S 濃度 5 %は実施していないため不明であるが、H₂S 濃度 1 %の条件において平成 31 年度と同様の結果が得られた。また、腐食速度の経時変化はほとんど認められず、上述の(2)1) 項での U ベンド試験で推定した皮膜成長速度の結果とは異なっていた。原因は不明であるが、脱スケール時の影響などの可能性が考えられる。今後は、腐食生成物の分析等によって、より詳細な腐食形態や皮膜形成挙動の把握が必要である。

表 2.1-4 浸漬試験の結果

吹込みガス	浸漬期間(日)	緩衝材	平均腐食深さ (mm)	腐食速度 (mm y ⁻¹)
0 %H ₂ S +100 %N ₂	30	あり	0.197 × 10 ⁻³	2.46 × 10 ⁻³
		なし	0.706 × 10 ⁻³	8.59 × 10 ⁻³
	60	あり	0.205 × 10 ⁻³	1.25 × 10 ⁻³
		なし	1.93 × 10 ⁻³	1.17 × 10 ⁻²
1 %H ₂ S +99 %N ₂	30	あり	0.306 × 10 ⁻³	3.72 × 10 ⁻³
		なし	1.83 × 10 ⁻³	2.23 × 10 ⁻²
	60	あり	0.749 × 10 ⁻³	4.55 × 10 ⁻³
		なし	5.57 × 10 ⁻³	3.39 × 10 ⁻²
10 %H ₂ S +90 %N ₂	30	あり	2.64 × 10 ⁻³	3.21 × 10 ⁻²
		なし	2.92 × 10 ⁻³	3.55 × 10 ⁻²
	60	あり	5.02 × 10 ⁻³	3.05 × 10 ⁻²
		なし	6.15 × 10 ⁻³	3.74 × 10 ⁻²
100 %H ₂ S +0 %N ₂	30	あり	1.94 × 10 ⁻²	2.36 × 10 ⁻¹
		なし	9.52 × 10 ⁻³	1.16 × 10 ⁻¹
	60	あり	4.48 × 10 ⁻²	2.73 × 10 ⁻¹
		なし	2.52 × 10 ⁻²	1.53 × 10 ⁻¹



*谷口ほか(2007)

図 2.1-6 重量減少量から算出した腐食速度

3) 硫化ナトリウム共存下の電気化学試験

銅は貴金属であり、酸素などを含まない、プロトンのみが酸化剤として作用する水溶液中では熱力学的に安定である。しかし、水溶液中に硫化物イオンが存在する場合にはその濃度に応じて銅の腐食が加速されることが知られている。

平成 30 年度は、海水系地下水を想定した試験溶液を用いて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、カソード還元挙動から腐食量等を見積もることができる可能性があることがわかった。また、銅は前述の通り、淡水に対する耐食性が安定しているが、硫化物イオンだけではなく炭酸水素イオンを含む場合にも、顕著な腐食が進行する可能性がある(永田, 1987; 山内・佐藤, 1981)。そこで、令和 2 年度は、淡水系地下水を想定した試験溶液を用いて、低酸素濃度環境での純銅の腐食挙動への硫化物イオンおよび炭酸水素イオンの影響について調査するため、下記の(I)および(II)の試験を実施した。また、ベントナイト中の硫化物が腐食に与える影響を評価するため、ベントナイト純度を変化させた試験(下記の(III))も実施した。

- (I) 純銅の試験極のカソード分極挙動を、硫化物を添加した淡水系模擬地下水の試験液を浸潤した圧縮ベントナイト中で、動電位法の一つである電位ステップ法を用いて測定した。比較のため、白金の試験極を用いた測定も行った。
- (II) (I)と同じ環境条件において、定電流法を用いて純銅の試験極にカソード定電流を印加した際の試験極のカソード分極挙動(電位の時間変化)を測定した。比較のため、白金の試験極を用いた測定も行った。
- (III) ベントナイトの純度が圧縮ベントナイト中での試験極のカソード分極挙動におよぼす影響をカソード分極測定により検討した。試験極には白金を用いた。また、比較のため、ベントナイトが共存しない試験溶液中でのカソード分極挙動も測定した。

① 試験方法

・試験極

試験極には直径 0.5 mm、純度 99.5 %以上の純銅線および直径 1 mm、純度 99.95 %以上の白金線を用いた。以下、それぞれの試験極を、銅電極および白金電極と呼ぶ。試験極の先端部の 1.2 cm²を露出部として残し、他は PTFE 製の熱収縮チューブで覆った。露出部は 1000 番のエメリー紙で仕上げてからエタノール中で 5 分間の超音波洗浄を行い、送風乾燥した。

・ベントナイト

ベントナイトには、ク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”とする。(III)の試験では、ベントナイト純度のカソード分極挙動への影響を評価するため、このクニゲル® V1-RW に、精製ベントナイト(クニピア®)および純度 99.9 % 以上の SiO₂ 粒を混合し、純度(スメクタイト含有率)の異なるベントナイト試料を調製した。ベントナイト試料の純度は、クニゲル® V1-RW、クニピア®ならびに SiO₂ 粒でのスメクタイト含有率をそれぞれ 48 %、100 %、0 %として混合時の質量比から計算した。以下、精製ベントナイト(クニピア®)を“Kp”と表記する。

・試験溶液

試験溶液の基本組成は 50 mM NaCl + 0.1 M NaHCO₃ とした。この溶液ならびに Na₂S を下記の ii) および iii) に示した 2 水準で添加した溶液を試験溶液とした。

- i) 50 mM NaCl + 0.1 M NaHCO₃
- ii) 50 mM NaCl + 0.1 M NaHCO₃ + 1 mM Na₂S
- iii) 50 mM NaCl + 0.1 M NaHCO₃ + 10 mM Na₂S

・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、カラム内に所定の質量の Bt を充填した。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 に示したとおりにカラムを組み立てた。

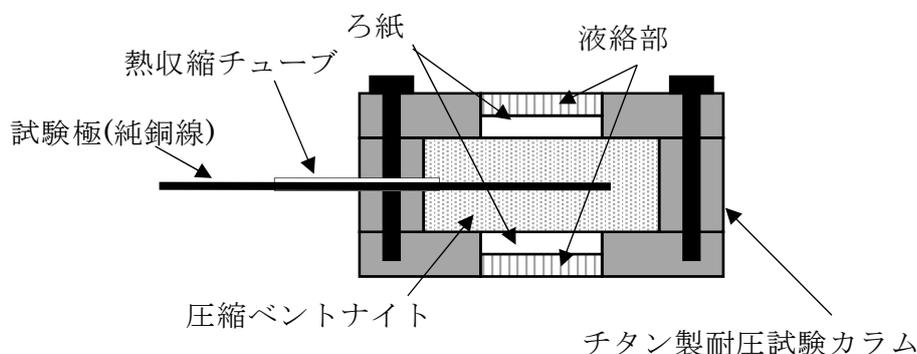


図 2.1-7 分極測定に使用した試験カラムの断面図

組み立てた試験カラムを、試験溶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、浸漬した試験溶液を、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 圧縮体中で銅電極を腐食させた。比較のために実施した白金電極を用いた試験も、銅電極と同様の方法で 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 圧縮体中に約 240 時間浸漬してから分極測定に供した。

・動電位法によるカソード分極測定

(I)および(III)の試験では、以下の方法で、銅電極および白金電極の試験極のカソード分極挙動を測定した。試験条件の項で述べた方法で試験カラムを減圧環境で約 240 時間の保持後に、試験カラムを試験液に浸漬したままセパラブルフラスコ内に大気を導入してから、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、速やかに試験液中への 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 KCl の銀/塩化銀参照電極 (RE) を用いた。対極 (CE) 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。

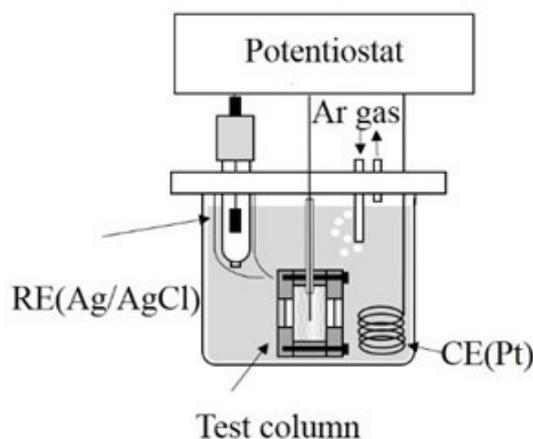


図 2.1-8 分極およびカソード還元の実験系

・定電流法によるカソード分極測定

(II)の試験では、以下の方法で、定電位電流を印加した銅電極および白金電極の試験極のカソード分極挙動 (試験極の電位の経時変化) を測定した。試験カラムを減圧環境での約 240 時間の保持後に、試験極にカソード定電流を印加し、試験極の電極電位の時間変化を測定した。参照極ならびに対極、Ar ガス吹き込み管のセットおよび Ar ガスの吹き込みは、前述の動電位法によるカソード分極測定と同じ手順で行った。参照極には、内部溶液が 3.33 M KCl 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た後、試験極に $-50 \mu\text{A cm}^{-2}$ のカソード電流を印加し、試験極の電極電位の経時変化を測定した。

② 試験結果と考察

a. 試験液を浸潤した圧縮ベントナイト中での試験極のカソード分極挙動 ((I)の試験)

試験液を浸潤した圧縮ベントナイト中での白金電極および銅電極のカソード分極特性の測定結果を図 2.1-9 と図 2.1-10 にそれぞれ示す。両図に示す “w/o Na₂S”、“+ 1mM Na₂S” ならびに “+ 10mM Na₂S” のプロットは、それぞれ、①で述べた i)、ii) ならびに iii) の試験液を浸潤した際の結果である。

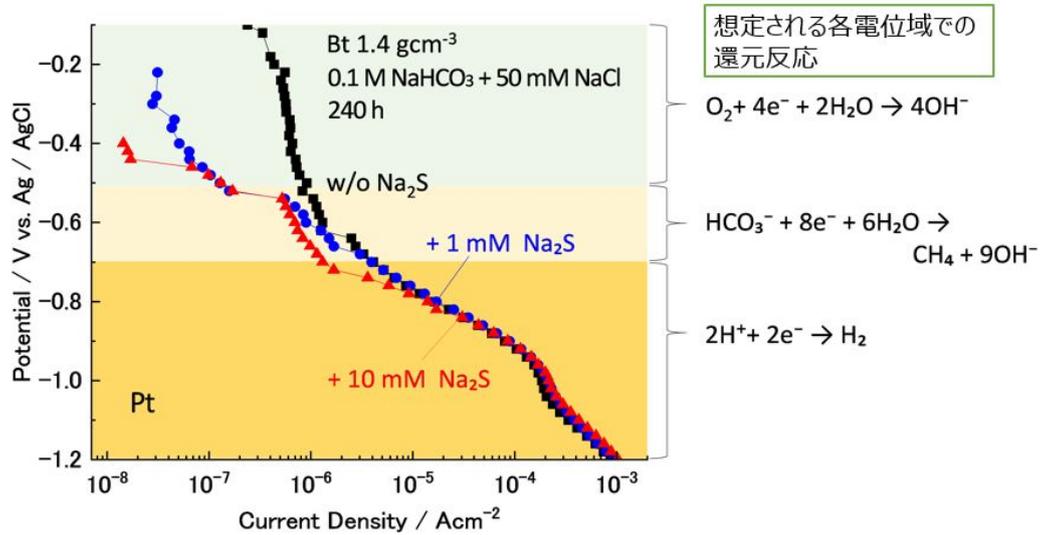


図 2.1-9 白金電極での分極測定の結果 ((I)の試験)

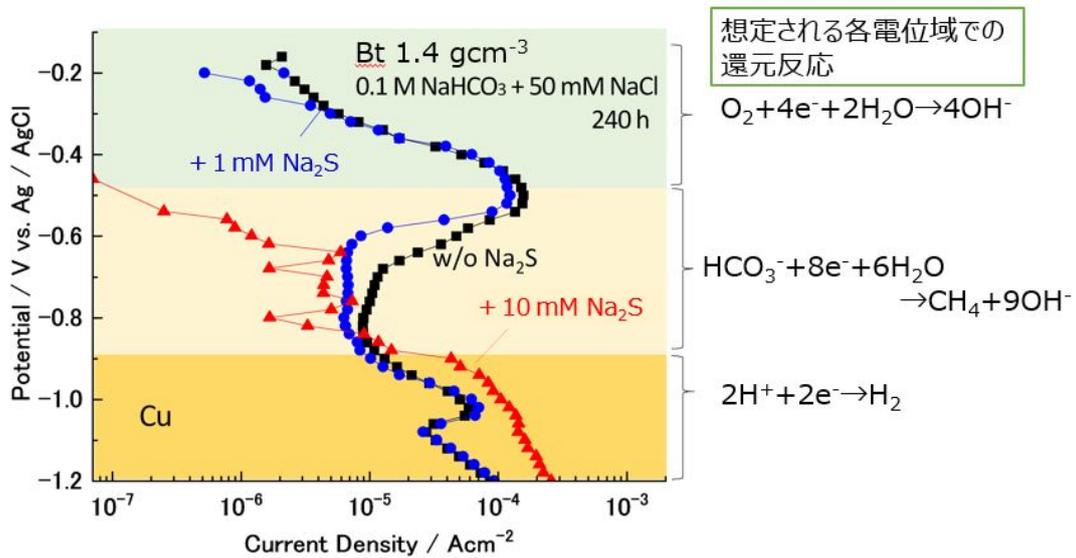


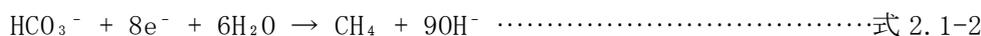
図 2.1-10 銅電極での分極測定の結果 ((I)の試験)

図 2.1-9 および図 2.1-10 の右部に、長田ほか (2020) による 1 M の NaHCO₃ を基本組成とする試験液を用いた結果から推定した各電位域でのカソード反応を示した。本試験での試験液の NaHCO₃ の濃度は 0.1 M であるが、カソード反応の種類および電位域は概ね等しいと推察した。白金および銅のいずれの電極も、-0.5 V よりも貴な電位域では、電極と Bt との界面で浸潤した試験液中の酸素の還元反応が進行すると考えられる (長田ほか, 2020)。試験液中の酸素は、脱気された試験液が Bt 中を電極界面まで浸潤する間に、Bt の間隙に残留している大気から取り込まれたと推測される。白金電極では-0.5 V から-0.7 V の電位域で、銅電極では-0.5 V から-0.9 V までの電位域では、電極との界面において浸潤した試験液の炭酸水素イオンがメタンガスに還元される反応が進行すると考えられる (長田ほか, 2020)。

カソード分極測定 (図 2.1-10) を行った各銅電極の表面には、①で述べた分極測定前の 240 時間の保持中の銅電極の腐食反応によって、腐食生成物が沈殿していると考えられる。その根拠を以下に示す。

- 図 2.1-10 の Na₂S が無添加および 1 mM 添加された試験液での結果 (“w/o Na₂S” および “+ 1mM Na₂S” のプロット) では、-0.5 V および-1.05 V 付近の 2 つの電位域でカソード電流のピークが認められる。
- これらは、1 M の NaHCO₃ を基本組成とする試験液を用いた結果 (長田ほか, 2020) でのピークと比較すると、極大の電位はいずれも-0.05 V 卑側にシフトしているものの、前者の電位域では CuO などの 2 価の銅化合物 (長田ほか, 2020) の、後者では Cu₂O および Cu₂S などの 1 価の銅化合物の還元電流 (長田ほか, 2020) にそれぞれ対応していると推察される。

10 mM の Na₂S が添加された試験液での結果では、分極開始前の自然電位が、図に示したとおり-0.48 V まで卑化している。また、炭酸水素イオンがメタンガスへの還元される反応が生じていると推測される-0.5 ~-0.9 V の電位域でのカソード限界電流の電流密度は、-2 μA cm⁻² 以下から-5 μA cm⁻² 以上の範囲に分布しているものの、硫化物が添加されていない試験液 (w/o Na₂S) でのカソード限界電流の電流密度 (-9 から-10 μA cm⁻² 程度) と比較し、明らかに低下している。硫化物を含む試験溶液中の銅電極では、この電位域において、Cu₂S の生成による腐食反応 (アノード反応) が、炭酸水素イオンの還元反応と同時に進行すると考えられる (長田ほか, 2020)。つまり、カソード限界電流密度の低下は、硫化物イオンによる銅の酸化反応 (式 2.1-1) のアノード部分電流の限界電流密度が、炭酸水素イオンの還元反応 (式 2.1-2) のカソード部分電流の限界電流密度に近い高い値であったため、両者の加算である測定されるカソード電流の全電流が有意に減少したと推察される。



以上の結果から、低酸素雰囲気での電位域でのカソード反応の全電流は、硫化物イオンによる銅の酸化反応のアノード部分電流と炭酸水素イオンの還元反応のカソード部分電流の加

算となることが示された。この結果は、硫化物濃度が高い環境であっても、純銅の腐食速度は、炭酸水素イオンの還元反応速度を超えないことを示唆している。

b. 定電流法による試験極のカソード分極挙動 ((II)の試験)

定電流法を用いて試験液を浸潤した圧縮 Bt 中の銅電極および白金電極にカソード定電流を印加した際の、試験極のカソード分極挙動（電位の時間変化）を測定した。結果を図 2.1-11 と図 2.1-12 にそれぞれ示す。図 2.1-11 に示した結果より、動電位法で測定した図 2.1-10 と同様の電位で、CuO などの 2 価の銅化合物および Cu₂O および Cu₂S などの 1 価の銅化合物への還元が生じることが確認された。図 2.1-12 の結果より、定電流法においても、図 2.1-9 の分極曲線の $-50 \mu\text{A cm}^{-2}$ における電位に相当する -0.85 V で電位が安定することが確認された。したがって、定電流法でも動電位法 ((I)の試験) で得られた結果と同様の分極挙動が確認された。

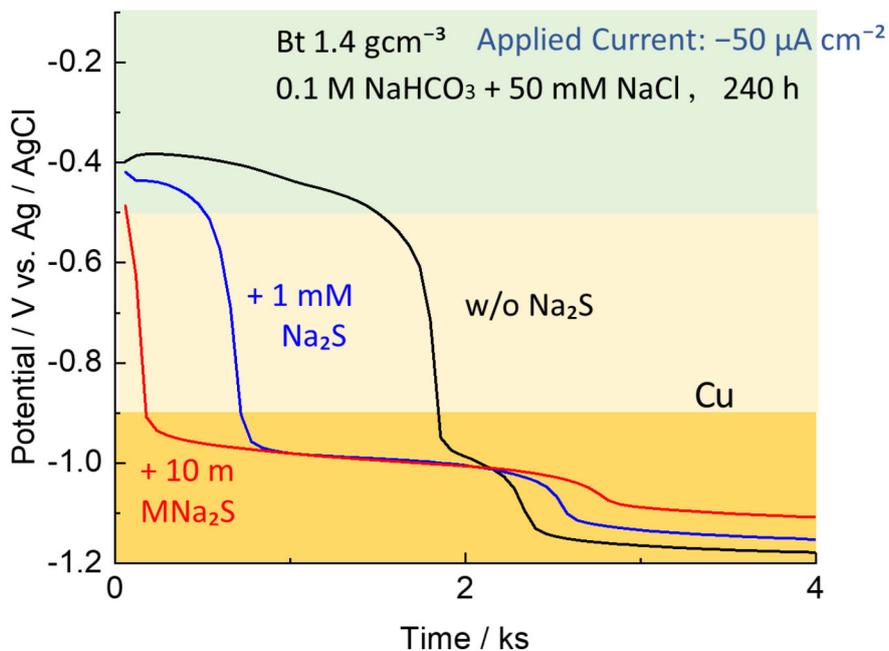


図 2.1-11 定電流法による銅電極の分極挙動 ((II)の試験)

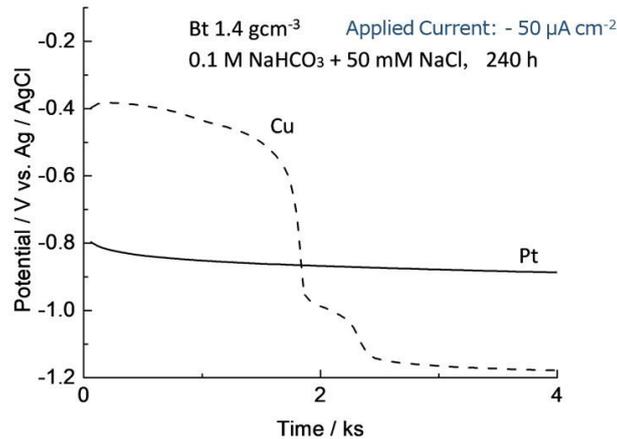


図 2.1-12 定電流法による白金電極の分極挙動 ((II)の試験)

(比較のため、図 2.1-11 の w/o Na₂S の試験溶液中での銅電極の結果を破線で表示)

c. ベントナイト純度のカソード分極挙動への影響 ((III)の試験)

スメクタイト含有率の違う (すなわち純度が異なる) ベントナイト試料を用い、ベントナイトの純度が圧縮ベントナイト中での試験極のカソード分極挙動におよぼす影響を検討した。スメクタイトの含有率の異なるベントナイト試料を①で述べた方法で調製した。試験極には白金を用いた。試験液には①で述べた各種の試験液の内、硫化物を含まない基本組成の溶液 i) 50 mM NaCl + 0.1 M NaHCO₃を用いた。比較のため、ベントナイトが共存しない試験溶液中でのカソード分極挙動も測定した (図 2.1-13 中の 'in Solution')。結果を図 2.1-13 に示す。図 2.1-13 からは、スメクタイト含有率 (ベントナイト純度) のカソード分極特性への影響は認められなかった。つまり、今回の試験条件ではベントナイト (Bt) に含まれる硫化物の影響は確認できなかった。ただし、カソード分極挙動は硫化物だけではなく精製ベントナイト (Kp) の高い配向性や、混合する SiO₂ 粒試料と試験極の接触などによっても影響を受ける可能性があるため、今後、試験条件や試験方法の検討が必要である。

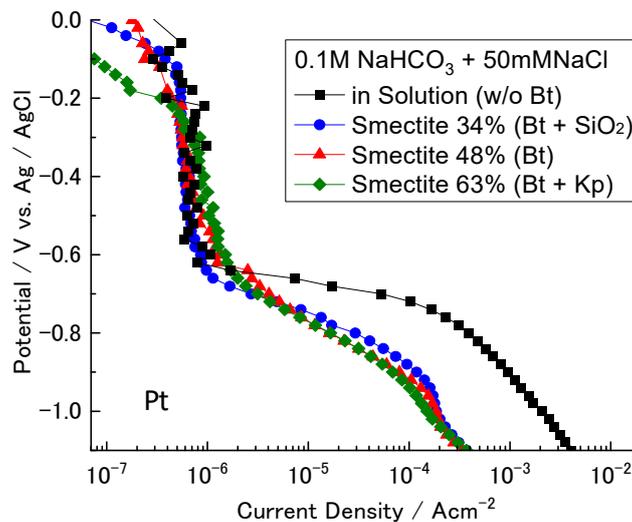


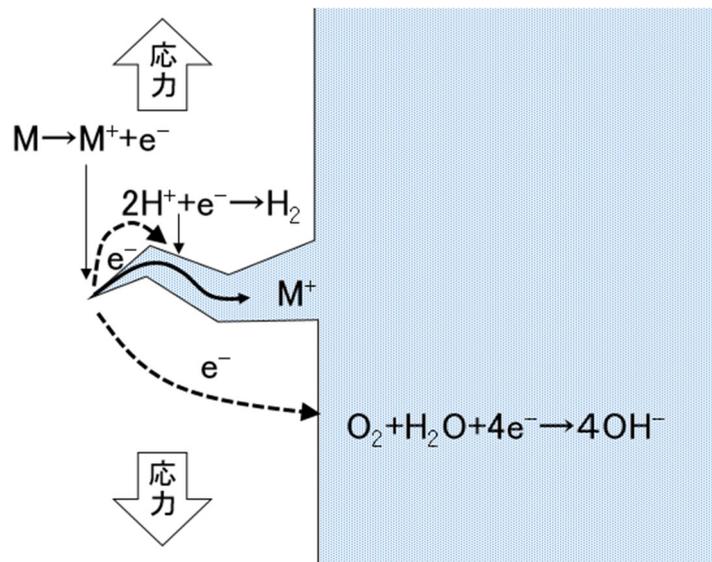
図 2.1-13 スメクタイト含有率の異なるベントナイト試料中での白金電極のカソード分極挙動

(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

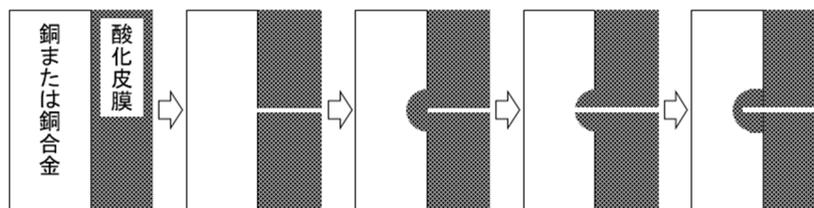
(2)で述べたように、銅は保護性に優れた腐食生成物を生じるとともに、酸素がなければ熱力学的には酸化しない(小玉, 1980)。しかし、緩衝材として処分容器と直接に接するベントナイト中にはパイライト(硫化鉄)が含まれるので、酸化物を生成しない環境でも銅の硫化物を生成する。また、土壌、地下水、あるいはベントナイトに含まれるその他の各種化学物質が銅に対して特異な腐食要因となることが考えられる。さらに、地下に生息する微生物の影響もありうるので、生物由来のアンモニアも影響する可能性がある。

ここで、銅は歴史的にはアンモニアの存在する環境にて季節割れ(Season crack)と呼ばれる応力腐食割れを生じることが知られている(Pugh et al., 1966, Uhlig and Duquette, 1969, Suzuki, 1981, Moore et al., 1921)。処分環境においても、すでに谷口らによって地下埋設環境を想定した純銅の応力腐食割れ挙動が検討されている(谷口ほか, 2010a)。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 2.1-14 (a))とともに、酸化物皮膜の成長速度が速い Cu などでは図 2.1-14 (b) に示すように、生成した酸化物皮膜(変色皮膜)が応力の作用で脆性破壊して下地銅が露出されると、さら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との繰り返しによってき裂として進展する変色皮膜破壊型応力腐食が知られている。処分容器の周囲は、閉鎖後の初期段階では酸素が存在し、また銅に関しては溶接等の加工に伴う残留応力の存在も想定されるので応力腐食割れの可能性がある。そこで、水で膨潤させたベントナイト中で銅の応力腐食割れ感受性を低ひずみ速度試験法(SSRT)によって評価したところ、銅に典型的な変色皮膜破壊型応力腐食割れを生じた(原子力機構, 2016a)。このとき、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、き裂の進展が加速されることも明らかとなった(Fujimoto et al., 2021)。さらに、高い相対湿度の大気中に晒して水分子を吸収させたベントナイト粉末中でも同様の変色皮膜破壊型応力腐食割れが生じることが明らかになっている(原子力機構, 2016a)。

平成 30 年度は、脱気した条件(低酸素濃度)での純銅の皮膜形成挙動および応力腐食割れ発生挙動を検討するとともに、応力腐食割れ感受性に対するアンモニウムイオンの影響を調査した。脱気した条件下でも応力腐食割れが発生し、アンモニウムイオンの存在は SSRT 試験での変色皮膜破壊型応力腐食割れの発生頻度を増大させることがわかった。また、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、種々の酸素濃度下での応力腐食割れ発生に及ぼすアンモニウムイオンの影響を調査した。酸素濃度が高いほど皮膜は厚く、脱気条件では皮膜中の硫化物の割合が大きくなることがわかった。また、アンモニウムイオン共存での割れの生じた条件で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が示唆された。



(a)活性経路機構(APC)



(b)変色皮膜破壊機構(TR)

図 2.1-14 応力腐食割れの機構

これまでの研究における割れの発生状況を検討したところ、 Cu_2O の均一な酸化物層が応力によって破壊すると CuO が急速に生成し、その破壊によっても変色皮膜破壊型応力腐食割れが進行することが明らかとなった（原子力機構，2018a）。すなわち、塑性変形に伴う CuO の生成が変色皮膜破壊型応力腐食割れと密接な関係があると考えられる。金属を塑性変形させると転位が導入される。転位が表面に現れている部分では、原子の配列が乱れているため周囲よりも高いエネルギー状態にあり、腐食の起点となりうる。例えば、銅は塑性変形によって転位が表面に露出するとエッチングできることが古くから知られており、転位密度の増大が腐食速度を大きくすると考えられる。

そこで、令和 2 年度は、塑性変形（転位密度の増大）が銅の皮膜形成過程に及ぼす影響について検討した。転位を導入するために冷間加工を施した銅を過去（原子力機構，2016a）に応力腐食割れが観察された膨潤ベントナイトおよび湿潤ベントナイト中に浸漬し、腐食生成物の厚さを評価した。さらに、応力を負荷しない条件での皮膜形成に対するアンモニウムイオンの効果についても検討した。これらの実施内容と結果については、「1) 浸漬試験」に示す。

また、平成 30 年度および平成 31 年度の検討では、膨潤ベントナイト中で応力腐食割れ挙動を調査し、低酸素濃度下でも割れが発生することが確認された（原子力機構，2019；

2020)。しかし、実際の処分環境では試験に使用した膨潤ベントナイトよりも密度の高い緩衝材を使用する予定であるため、より実際の処分環境に近い圧縮ベントナイト中で割れが発生するかどうかを調査する必要がある。そこで、令和2年度は、圧縮ベントナイト中でUバンド試験を行い、応力腐食割れ挙動に対するベントナイトの乾燥密度の効果を検討した。これらの実施内容と結果については、「2) Uバンド試験」に示す。

1) 浸漬試験

冷間加工（転位密度の増大）が銅の皮膜形成過程に及ぼす影響について検討するため、過去に（原子力発機構，2016a）応力腐食割れが観察されている膨潤ベントナイト中および湿潤ベントナイト中で浸漬試験を行い、腐食生成物皮膜の同定および成長速度を調査した。

①では試験方法を、②試験結果では純水膨潤ベントナイトおよび湿潤ベントナイト中に埋設した試料の腐食生成物について示す。最後に、③考察において、腐食生成物および冷間加工の効果についての考察を示す。

① 試験方法

試料は市販の厚さ2 mmの純銅板（99.99 %）に冷間加工をしないもの、および冷間加工を施したもの（冷間加工度0.1および0.2）の3種類を用いた。この試料の化学組成を表2.1-5に示す。純銅板から10×10 mm²の大きさの試料を放電加工により切り出し、これをSiC紙 #1000 乾式研磨仕上げ、水洗の後、下記の試験に供した。

表 2.1-5 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	P	Cd	0
≥99.99	9	≤1	≤1	3	≤1	0.2	≤1	≤1	≤5	≤5	≤5	≤5	≤5	≤2

膨潤ベントナイト中での浸漬試験では、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の比率で混合して作製した。調整に使用した純水は脱気を行わなかった。

- ・ベントナイト（クニミネ工業製クニゲル®V1） : 5.8 g
- ・純水 : 50.0 g

上記の銅試料を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60℃の恒温庫に所定の時間設置した。

一方、湿潤ベントナイト中での浸漬試験では、まず、デシケータ内で乾燥させたベントナイト粉末を飽和塩法にて相対湿度（RH）を80 %、75 %および63 %に制御した密閉容器内で水蒸気を吸収させて約3日間にわたって重量の変化を計測した。重量変化がなくなった後、浸漬試験を開始した。この浸漬試験では、図2.1-15に示すように密閉容器底に塩の飽和溶液を満たし、さらに通気性のある小容器をこの塩の飽和溶液に触れないように設置してベントナイト粉末を充填し、そのなかに銅試料を埋設した。アンモニアの効果を検討するために、

この飽和塩溶液に所定濃度のアンモニアを同時に溶解させた。浸漬期間は7日～56日間とした。

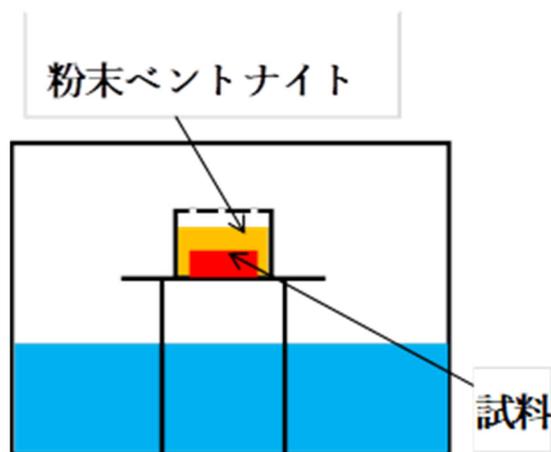


図 2.1-15 湿潤ベントナイト中での浸漬試験の模式図

試験終了後、試験片を水洗い・乾燥後、光学顕微鏡観察、X線回折、ならびにSEM観察とともに、電気化学還元法による銅表面の腐食生成物の定量評価を、脱気した60℃の0.1M NaCl水溶液中にて動電位カソード還元法で行った。動電位カソード還元法では、参照電極には銀/塩化銀電極(3.3M KCl)を用い、電位走査は自然電位からカソード方向へ-1500 mVまで、 0.25 mV s^{-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分かっているので、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 Cu_2O 、 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 試験結果

以下では、純水膨潤ベントナイト中での浸漬試験の結果および湿潤ベントナイト中での浸漬試験の結果を、それぞれa.およびb.で示す。試験結果の考察は③考察でまとめて示す。

a. 純水膨潤ベントナイトに埋設した試料の腐食生成物

60℃の純水膨潤したベントナイト中で、冷間加工なし、および冷間加工度0.1と0.2の板状試験片を7、14、56日間浸漬した。試験後の試料外観写真を図2.1-16に示す。銅の腐食生成物の色は概ね「 CuO : 黒色」、「 Cu_2O : 赤褐色」、「 CuS : 青黒色」、「 Cu_2S : 銀色ないし鉄灰色」に分類できる(原子力機構, 2020)。試験後の試料での腐食生成物の色調は褐色から黒色へと変化しており、従って銅酸化の初期に生成する亜酸化銅 Cu_2O から時間の経過とともに CuO ないしは Cu_2S が主に生成していることがわかる。冷間加工度の違いによる外観の差異は明確でない。

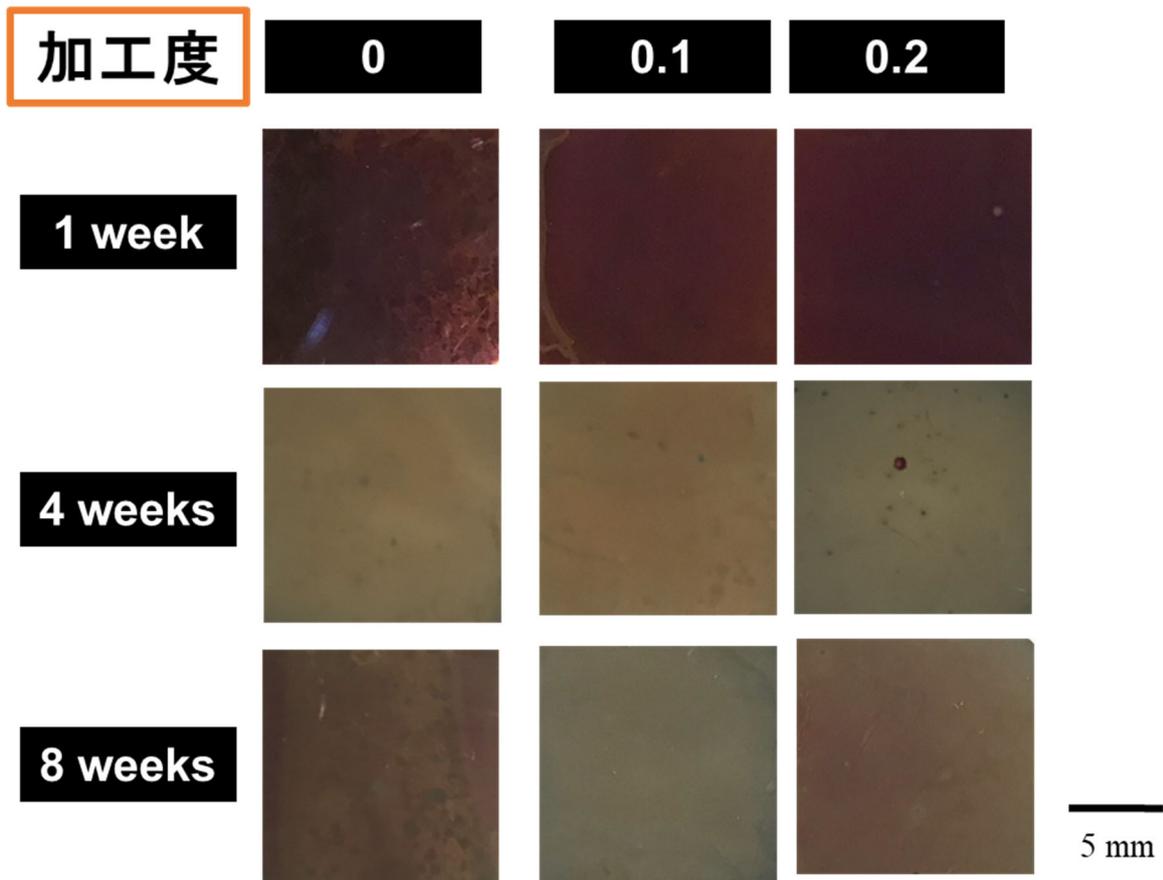


図 2.1-16 60 °Cの純水膨潤ベントナイトに埋設後の加工度の異なる純銅試験片の表面写真

X 線回折の結果を図 2.1-17 に示す。銅の酸化物は Cu_2O のみで、X 線回折では CuO は検出されなかった。硫化物としては Cu_2S が検出された。いずれの試料でも 7 日 (1w) では硫化物は検出されず、28 日 (4w) より 56 日 (8w) の方がピークが高くなっている。また、冷間加工なし (加工度 0) より加工あり (加工度 0.1、0.2) の方がピークが高い傾向がみられる。

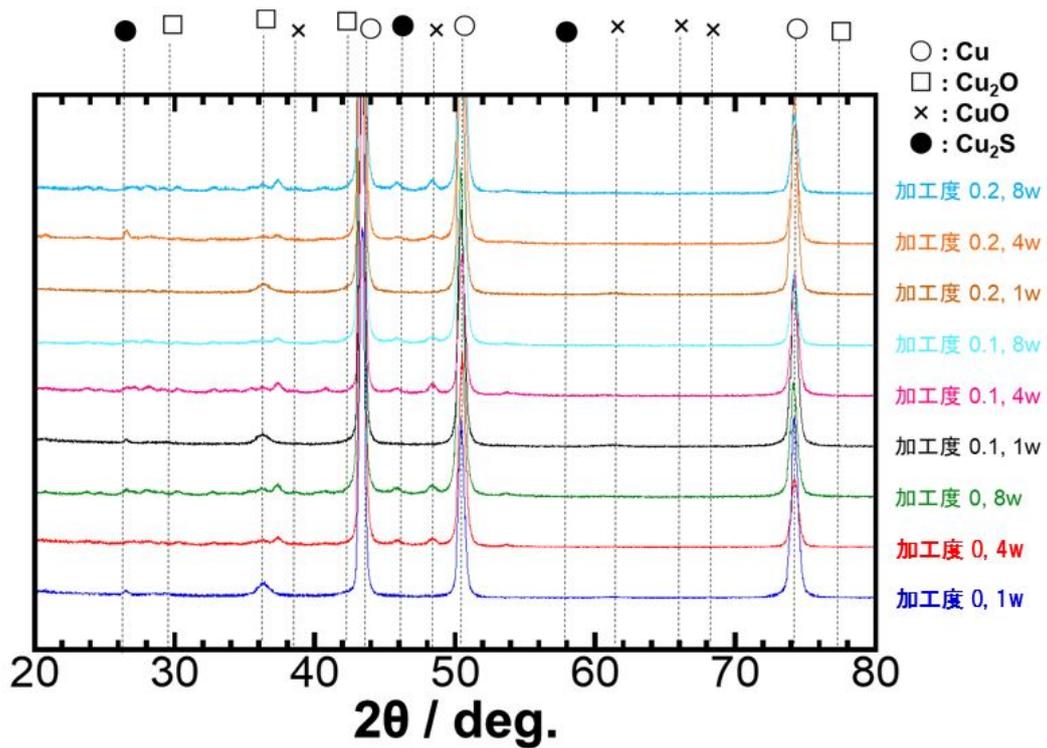
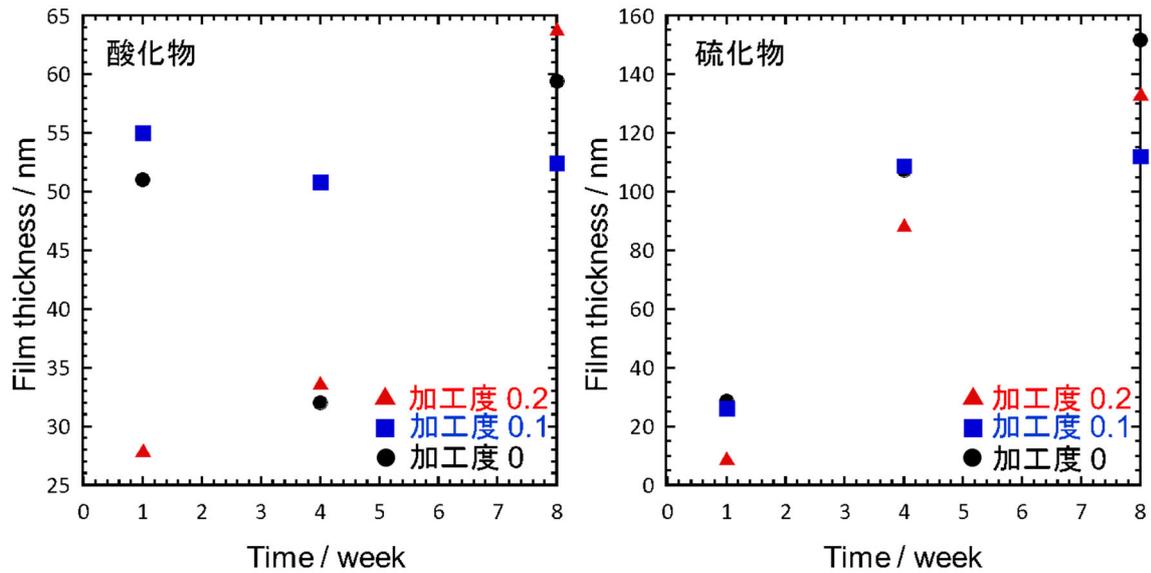


図 2.1-17 60 °Cの純水膨潤ベントナイトに埋設後の加工度の異なる純銅試験片表面の X 線回折

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、図 2.1-18 に示す。図 2.1-18 (b)に示すように、硫化物皮膜の厚さは単調に増加しているが、冷間加工の有無の影響については明確でない。一方、図 2.1-18(a)に示すように、酸化物皮膜の厚さは加工度 0.2 を除き、単調な増加を示さない。これは、硫化物皮膜と比べて酸化物皮膜は薄く、ばらつきが大きいことが影響している可能性がある。ゆえに、酸化物皮膜の厚さに対しても冷間加工の効果は明確ではない。



(a) 酸化物皮膜の厚さ

(b) 硫化物皮膜厚さ

図 2.1-18 60 °C の純水膨潤ベントナイト中の純銅試料の被膜厚さの経時変化

b. 湿潤ベントナイトに埋設した試料の腐食生成物

相対湿度 (RH) を 80 %、75 % および 63 % に維持した密閉容器中に曝した粉末ベントナイトの質量を連続的に計測した。図 2.1-19 に嵩体積 1 cm³ あたりの乾燥ベントナイト粉末の質量増加を示す。時間とともに質量は増加し、30 時間程度でほぼ一定となり、ベントナイト粉末が各相対湿度で飽和したと考えられる。この飽和値は相対湿度が大きいほど大きくなった。

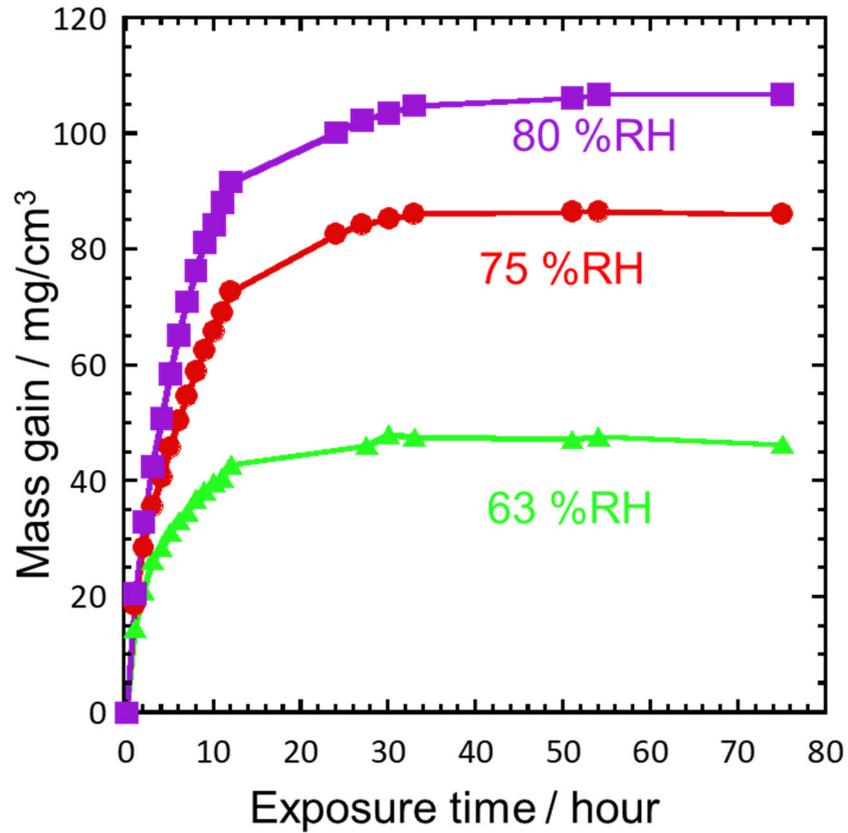


図 2.1-19 相対湿度を制御した 60 °C 密閉容器内に曝した粉末ベントナイトの質量の経時変化

次に、湿潤ベントナイト粉末中に埋設した純銅試験片の表面を図 2.1-20 に示す。図 2.1-16 に示した膨潤ベントナイト中よりも腐食生成物の成長は遅いが膨潤ベントナイト中と同様の皮膜生成がみられる。このときの X 線回折の結果を図 2.1-21 に示す。酸化物については膨潤ベントナイトの場合と異なり、Cu₂O とともに CuO がみられる。また、浸漬時間が長いほどこれらの回折ピークは大きくなる。一方、硫化物についてはほとんど検出されなかった。

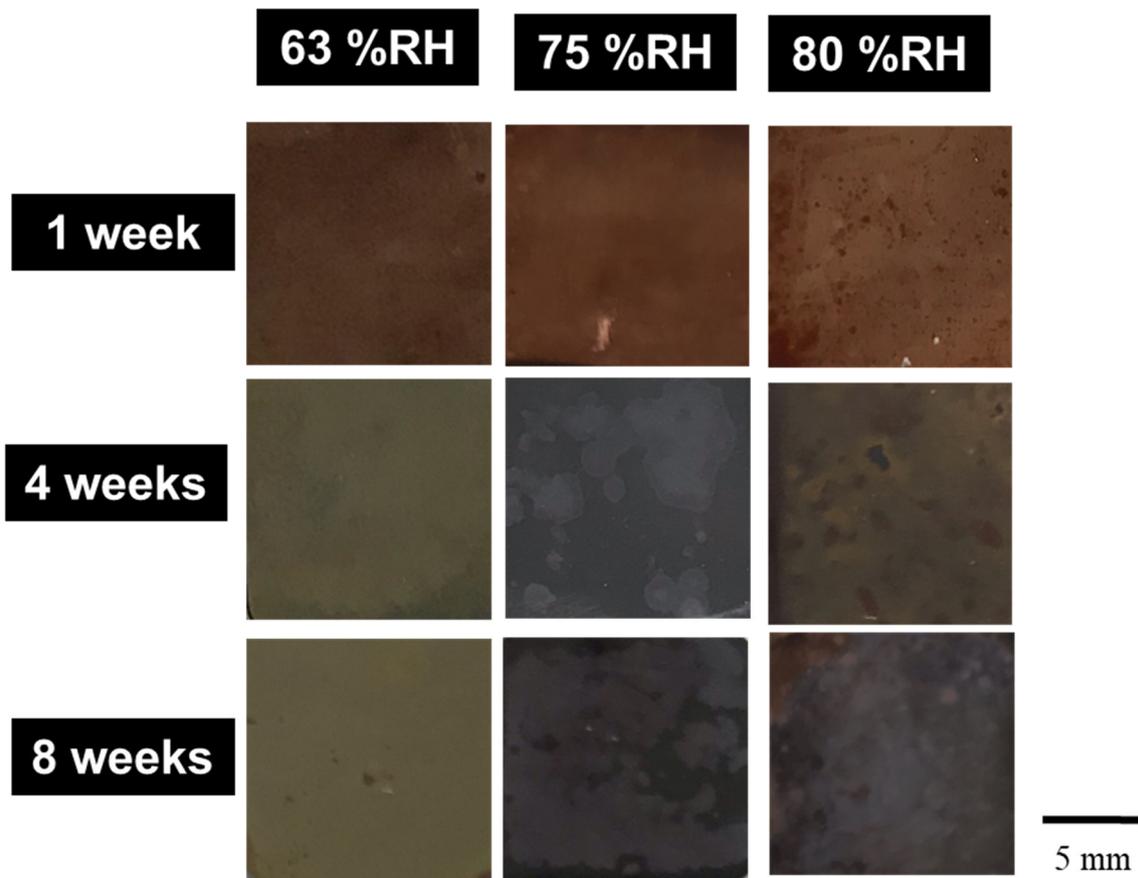


図 2.1-20 湿潤ベントナイト粉末中に埋設した純銅試験片の表面写真

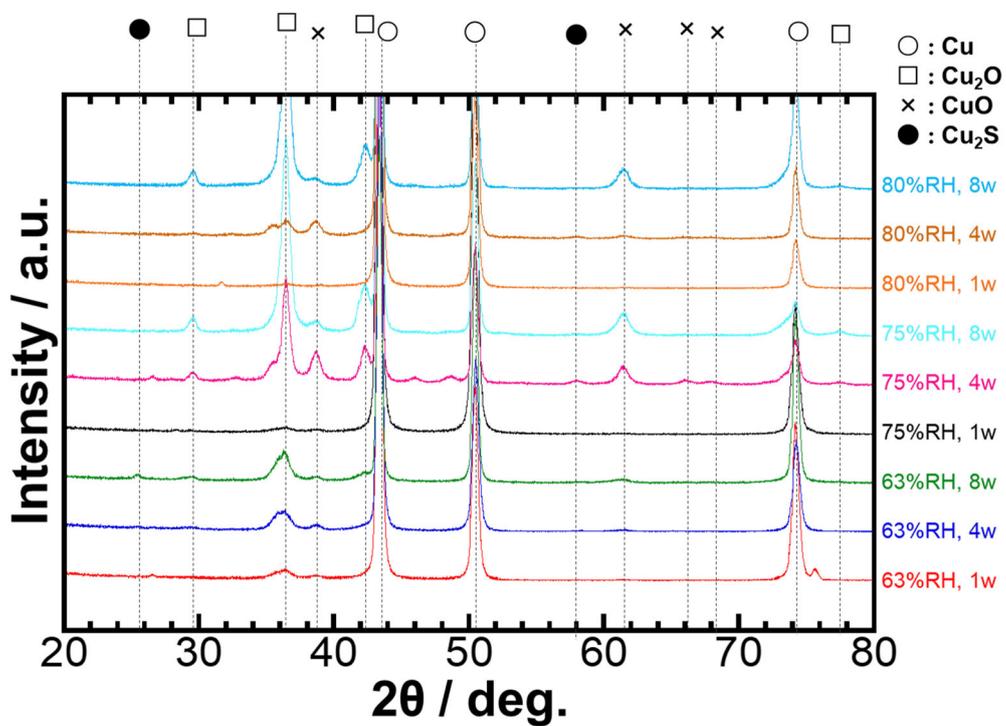


図 2.1-21 湿潤ベントナイト粉末中に埋設した純銅試験片上腐食生成物の X 線回折

次に、皮膜厚さの経時変化を図 2.1-22 に示す。硫化物については 75 %RH のときを除けば時間とともに単調に増大しているが、相対湿度の影響は不明である。また、X 線回折で硫化物がほとんど検出されなかったのは、皮膜の厚さが小さかったためであることがわかった (X 線回折で皮膜を検出するためには数十 nm 以上の厚さが必要である)。一方、酸化物についても時間の経過とともに厚くなっている。75 %RH のときと 80 %RH の差異は不明確であるが、63 %RH よりも大きくなっている。

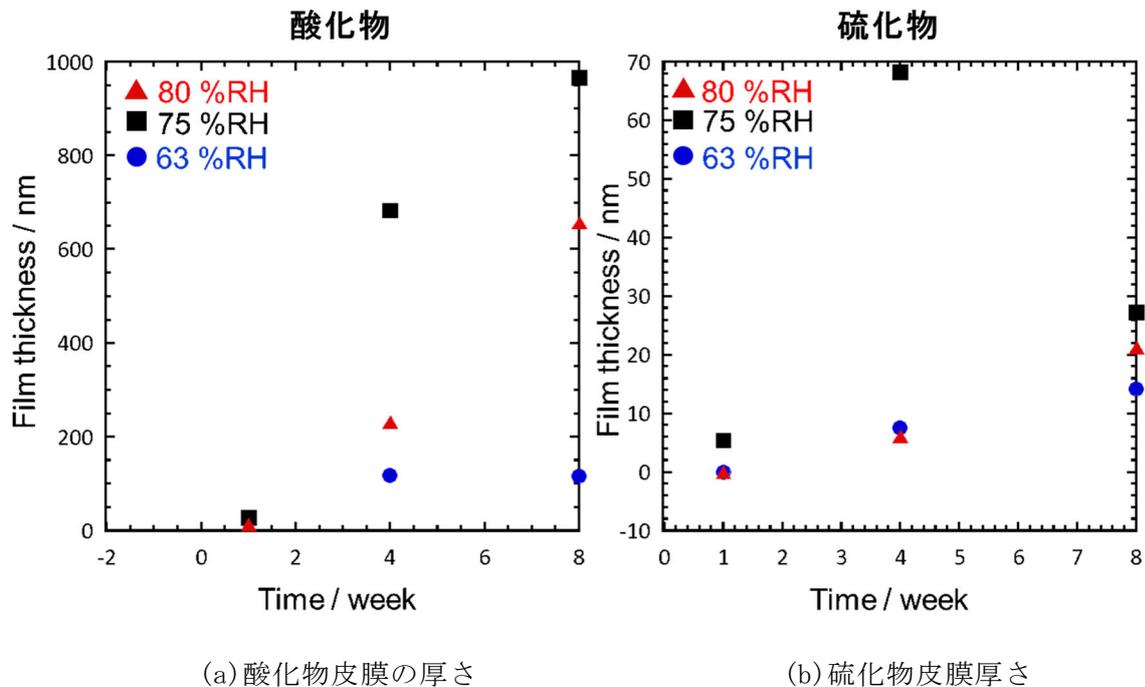
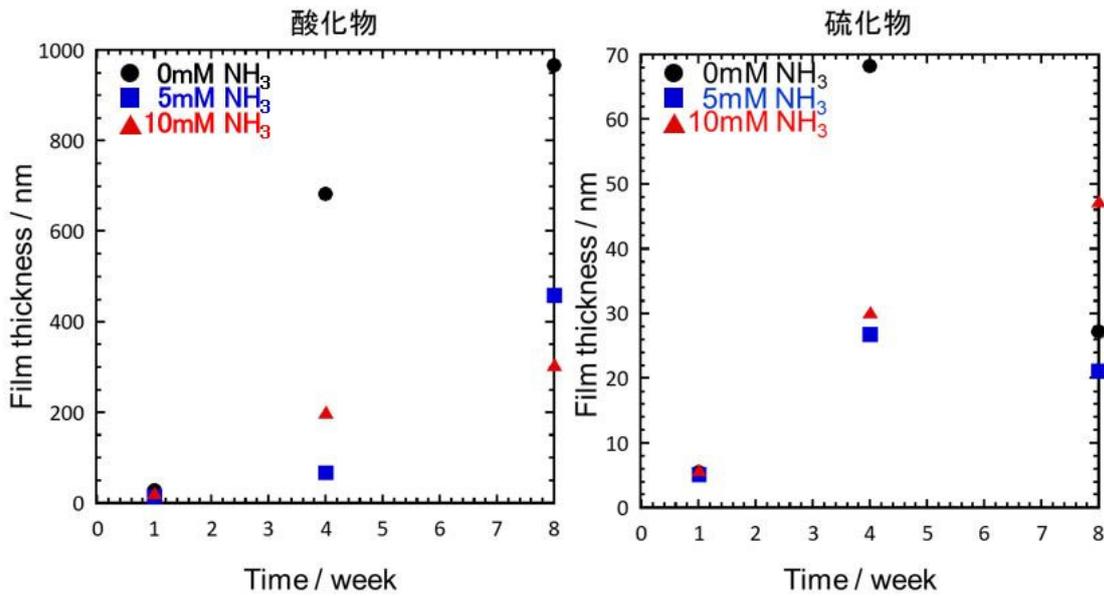


図 2.1-22 湿潤ベントナイト粉末中に埋設した純銅試験片上の皮膜厚さの経時変化

次に、75 %RH のときのアンモニアの効果について図 2.1-23 に示す。酸化物については、5 mM と 10 mM との差異は明確ではないが、アンモニア添加によって皮膜の厚さが小さくなっている。一方、硫化物皮膜についてはアンモニアの効果は明確でない。

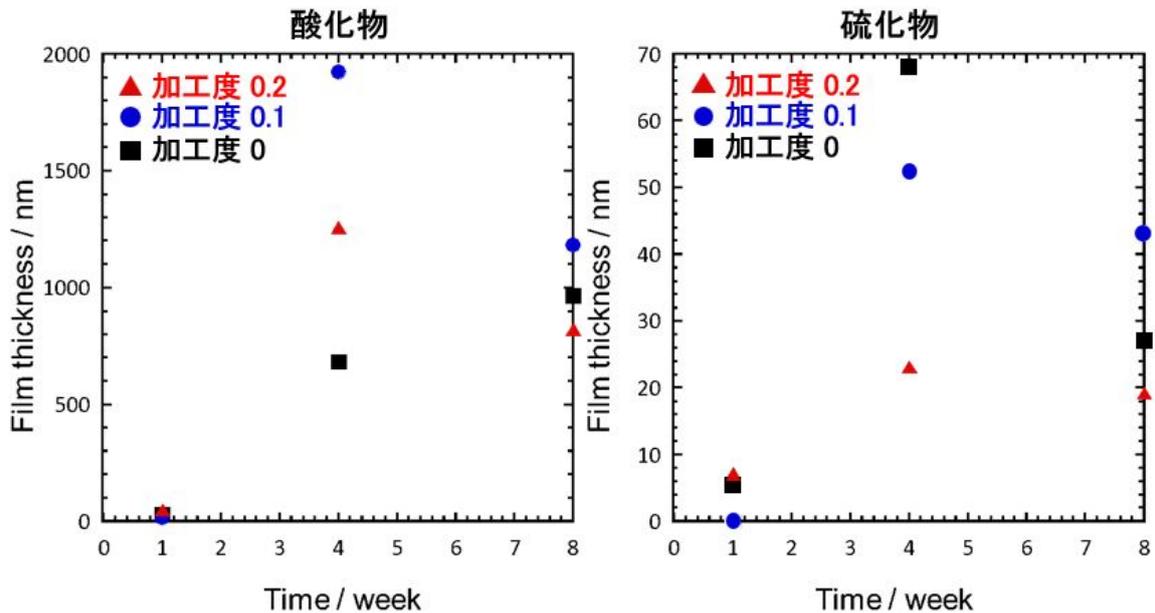
また、75 %RH のときの銅の腐食生成物厚さに対する冷間加工の影響を図 2.1-24 に示す。膨潤ベントナイトの場合と同様に結果のばらつきが大きく、冷間加工の影響は明らかでない。



(a) 酸化物皮膜の厚さ

(b) 硫化物皮膜厚さ

図 2.1-23 アンモニア共存下で湿潤させたベントナイト粉末中に埋設した純銅試験片上の皮膜厚さの経時変化 (相対湿度 75 %)



(a) 酸化物皮膜の厚さ

(b) 硫化物皮膜厚さ

図 2.1-24 湿潤ベントナイト粉末中に埋設した冷間加工度を変化させた純銅試料に生成した皮膜厚さの経時変化 (相対湿度 75 %)

③ 考察

本研究では、地下埋設環境での銅の変色皮膜破壊型応力腐食割れ感受性を検討するために、銅に生成する腐食生成物皮膜の生成挙動に対する冷間加工とアンモニアの効果、ならびに湿潤ベントナイト中での銅の腐食挙動を検討した。

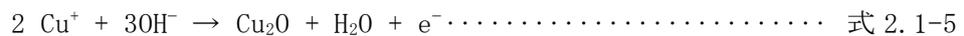
a. 純水膨潤ベントナイト中での腐食生成物形成過程

脱気なし条件での純水膨潤ベントナイト中での純銅の腐食生成物は、初期には Cu₂O が生成し、時間の経過とともに CuO ないしは Cu₂S が主に生成することがわかった。また、酸化物皮膜と比べて硫化物皮膜は厚く、時間とともに厚さは増加した。これらの結果から、純水膨潤ベントナイト中での腐食生成物形成過程について考察する。

Cu/Cu⁺電極反応の平衡電位は O₂ / H₂O 電極反応の平衡電位より卑なので、酸素存在下では以下の式 2.1-3 のアノード反応、式 2.1-4 のカソード反応により銅の腐食が発生する。



式 2.1-4 の反応で OH⁻が豊富に生成されることから、膨潤したベントナイト中は塩基性環境になると考えられる。Ambrose ほか (1973) と Strehblow ほか (2001) によると、銅は式 2.1-5 の反応で急速に酸化銅(Cu₂O)になり、銅表面に保護性の皮膜を形成する。初期の腐食生成物の Cu₂O はこの反応により生成すると考えられる。



ベントナイトに含まれるパイライトは、酸素を含む水溶液中で酸化され、その結果 SO₄²⁻を生成する (Gennero de Chialvo et al., 1986)。塩基性溶液中に SO₄²⁻が存在するとき、図 2.1-25 に示す S-H₂O 系電位-pH 図に従って、HS⁻が生成しうる。また、Smith らは地下環境では SO₄²⁻が微生物の活動により還元され、HS⁻を生成すると考えている (Chen et al., 2011 ; Smith et al., 2007)。これらのことから膨潤ベントナイト中には HS⁻が存在すると考えられる。

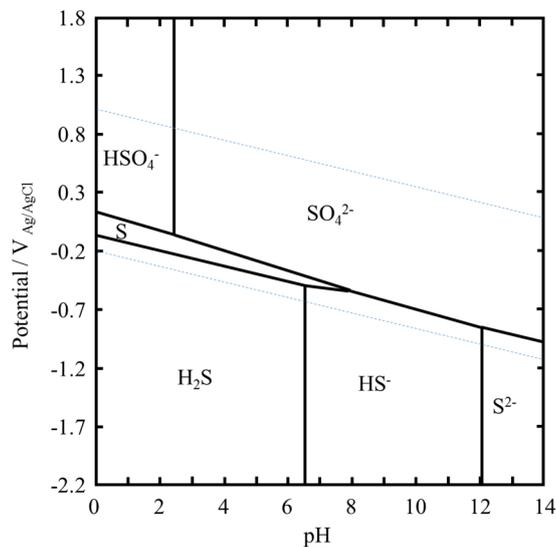
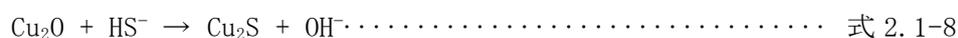


図 2.1-25 S-H₂O 系電位-pH 図

Chen et al. (2017) は、銅の腐食は式 2.1-6 の反応によって Cu(SH)ads (ads は吸着を表す) 状態が形成したのち、HS⁻と銅表面および Cu(SH)ads とが反応して式 2.1-5 が起こることで Cu₂S 層が形成されると報告した。



しかし、Cu₂O は保護性の緻密な皮膜なので HS⁻が拡散して Cu と反応する式 2.1-6 や式 2.1-7 は必ずしも生じず、式 2.1-8 に示すように Cu₂O から Cu₂S が形成していると考えられる (Smith et al., 2006)。



すなわち、溶解した Cu⁺が式 2.1-5 によって Cu₂O を生成し、その後に式 2.1-8 から Cu₂S を生成することによって、酸化物皮膜の上に硫化物皮膜が形成していると考えられる。

b. 湿潤ベントナイト中での銅の腐食反応

脱気なし条件での湿潤ベントナイト中での純銅の腐食生成物は、成長速度は遅いものの純水膨潤ベントナイトと同様に初期には Cu₂O が生成し、時間の経過とともに CuO ないしは Cu₂S が主に生成することがわかった。これらの結果から、純水膨潤ベントナイト中での腐食生成物形成過程について考察する。

令和 2 年度検討した湿潤ベントナイトは水分子を含むが流動性のある粉末状態なので、見かけ上銅試料が濡れることはない。しかし、図 2.1-19 からわかるように、相対湿度 (RH) が 80 %では水の体積率は 10 %を越えており、ベントナイトを主に構成する層状ケイ酸塩鉱物であるモンモリナイトが層間に水分子を保持していると思われる。モンモリロナイトの層間には Ca²⁺、Na⁺などの陽イオンが存在し、水分子が侵入するとこれらの陽イオンと水和する。侵入する水分子が多くなると層間幅がもとの 5 倍程度まで拡大する。本試験では図 2.1-19 に示したように一定の相対湿度にて水分子吸収量が飽和値を示すので、大気中の水分子濃度と層間水分子との間には一種の平衡関係が成立しているものと思われる。

湿潤ベントナイト中での銅の腐食速度は、膨潤ベントナイト中での酸化物や硫化物の生成速度と比べてやや遅いものの大差がない。また、生成した酸化物、硫化物の見かけ上の様態も類似しており、膨潤ベントナイト中と湿潤ベントナイト中とでは銅の腐食機構は同様と考えられる。ただし、酸化物については膨潤ベントナイト中で X 線回折にてほとんど検出されない CuO が湿潤ベントナイト中では存在する。これは、膨潤ベントナイトと湿潤ベントナイトの通気性の違いが影響している可能性が考えられる。湿潤ベントナイトの場合、ベントナイトは微細な粒子状となっているため、粒子間の間隙や銅表面に存在する水分子に気相中の酸素が溶解し、式 2.1-3、式 2.1-4 の反応が生じるものと考えられる。

以上のことから、相対湿度の高い環境で湿潤ベントナイトが銅表面に接触している状態では、スラリー状(純水膨潤ベントナイト)より速度は遅いものの、純水膨潤ベントナイト中と同様の反応機構で腐食が進行すると考えられる。

c. 銅の腐食反応に及ぼす冷間加工の効果

上述(3)の通り、転位論の議論の初期段階で、銅は転位の導入をエッチングにより容易に検出できる金属として知られており(Young, 1961)、転位密度の増大に伴い腐食速度が増大する可能性がある。また、これまでの研究(原子力機構, 2017; 2018a; 2019; 2020; Fujimoto et al., 2021)より、SSRTあるいはUベンド試験後の試料上には浸漬試料と比べてはるかに厚い酸化物が生成されており、冷間加工によって導入された転位と腐食速度との関係を明らかにする必要がある。本試験では、あらかじめロール圧延によって冷間加工を施した試料と焼鈍材とを同一条件にてベントナイト環境に浸漬した。図 2.1-18、図 2.1-24 に示したように実験結果のばらつきは大きい、加工度 0.2 までの冷間圧延によって腐食生成物の成長挙動に特段の傾向は認められなかった。

応力腐食割れの過程では、ひずみ速度が小さくとも動的な変形がある。ここで、動的変形の下では腐食生成物皮膜の連続的破壊にともなう新生面の出現があるため緻密な Cu_2O 皮膜の環境遮断性が機能せず、下地 Cu のアノード溶解が進行し、特に酸素濃度が高い場合には保護性に乏しい CuO を生成するので、静的状況と比べて大きな厚さの皮膜を生じたと考察している。すなわち、動的なひずみのもとで銅は静止状態と比べて厚い皮膜を形成し、変色皮膜破壊型応力腐食割れを生成すると考えられる。これまでの検討(原子力機構, 2017)より、Uベンド試験で変色皮膜破壊型の応力腐食割れは明確には再現できていないが、膨潤ベントナイト中での 3 カ月の浸漬で剥離を生じるほどの皮膜を生成しているため、ひずみ速度が $10^{-7} \sim 10^{-8}$ s 程度のクリープ変形でも静止状態よりも数倍以上厚い腐食生成物皮膜を生成するものと思われる。

以上より、膨潤ベントナイト中での皮膜形成に対する下地銅の冷間加工の効果は明確ではなかった。一方、動的な加工を与える SSRT では明らかに厚い皮膜を形成することがわかっていることから、加工度 0.2 程度の冷間加工による転位等の格子欠陥の導入は、銅の腐食速度に影響を及ぼさないと考えられる。また、動的なひずみを加えた場合には、クリープ変形程度の歪み速度でも保護性に乏しい皮膜を形成し、静止状態と比べて厚い皮膜を形成すると推察される。今後は、SSRT および Uベンド試験後の試料についても表面皮膜厚さの定量評価を実施し、本試験で得られた静止状態の結果と比較することで、応力腐食割れ感受性へ皮膜形成挙動の影響を把握する必要がある。ただし、SSRT および Uベンド試験後の表面皮膜は多孔質で厚いことから、本試験と同様の方法では評価はできないと考えられるため、表面皮膜厚さの評価方法についても検討する必要がある。

水蒸気を含む大気中の曝露によって水分子を吸収させた湿潤ベントナイト中で、純銅は純水膨潤ベントナイト中と同様に酸化物、硫化物皮膜を形成することがわかった。また、相対湿度が大きいほど、これらの皮膜形成速度は大きくなる。また、アンモニアの存在は皮膜形成をやや抑制することがわかった。

2) 圧縮ベントナイト中でのUバンド試験

平成 30 年度および平成 31 年度の膨潤ベントナイト中における応力腐食割れ挙動の検討で、低酸素濃度下でも割れが発生することが確認された（原子力機構，2019；2020）。しかし、実際の処分環境では試験に使用した膨潤ベントナイトよりも密度の高い緩衝材を使用する予定であるため、より実際の処分環境に近い圧縮ベントナイト中で割れが発生するかどうかを調査する必要がある。そこで、令和 2 年度は、圧縮ベントナイト中で U バンド試験を行い、応力腐食割れ挙動に対するベントナイトの乾燥密度の効果を検討した。

① 試験方法

試験片には、無酸素銅を使用した。試験条件を表 2.1-6 に示す。試験溶液には、純水を用いた。

表 2.1-6 U バンド試験条件

試験片	無酸素銅（大きさ：75×10×1 mm）
温度	80℃
緩衝材	クニゲル®V1+ケイ砂(30 mass%)
乾燥密度	1.6 g cm ⁻³
雰囲気	N ₂
試験溶液	純水
浸漬期間	80 日

試験片表面はエメリー紙 #2000 まで研磨し、エタノールで脱脂した。樹脂製のボルトで試験片を図 2.1-26 のように締め付け、図 2.1-27 に示すようにチタン製のカラム内に試験片と緩衝材を入れ、緩衝材が乾燥密度 1.6 g cm⁻³ になるように圧縮成型した。試験溶液中の溶存酸素の除去を行うため 24 時間以上窒素ガスを吹き込んで置換した。さらに試験カラムを試験溶液に浸漬させる際には、雰囲気制御グローブボックス内において 24 時間以上真空含水を行い、カラム内の緩衝材に試験溶液を浸潤させた。

テフロン容器に、試験片と緩衝材を充填し試験溶液を浸潤させたカラムと、試験溶液を装荷した。雰囲気制御グローブボックス内の恒温槽または送風型恒温槽内にテフロン容器を設置し、80 日間、80 °C で保持した。

試験終了後、カラムから試験片を取り出して脱イオン水等で洗浄し、表面観察・写真撮影を行った。一部の試験片は、樹脂に埋め込み後に断面を顕微鏡観察し、元素マッピングを行った。

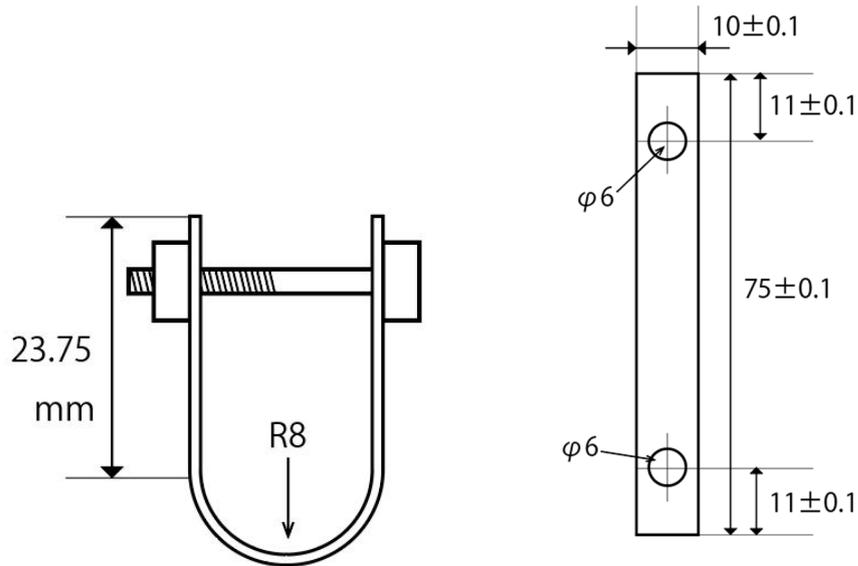


図 2.1-26 U ベンド試験片の模式図

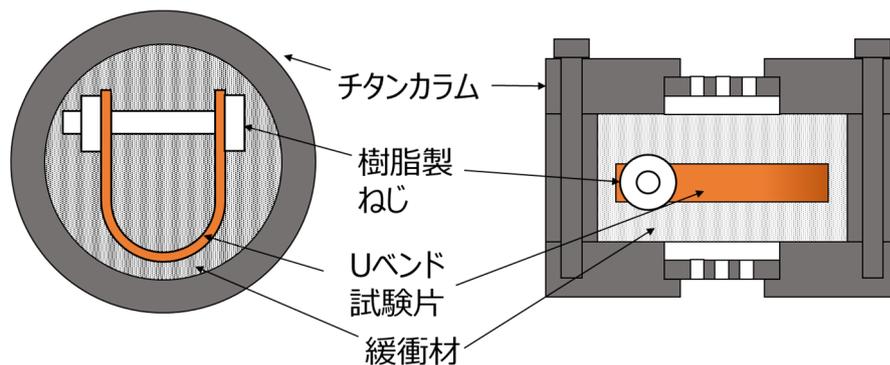


図 2.1-27 試験のイメージ図

② 試験結果と考察

試験後の U ベンド試験片の外観写真と断面写真を図 2.1-28 に示す。腐食生成物は Cu_2O と考えられる酸化物皮膜であった。断面観察では孔食状の局部腐食が観察され、典型的な割れは発生しなかった。局部腐食を中心に EPMA による元素マッピング分析を実施した。その結果を図 2.1-29 に示す。比較のため、図 2.1-29 中には、低酸素濃度下で実施した非圧縮ベントナイト中での SSRT 試験後試料の断面の SEM 画像および EDX 元素分析像（原子力機構，2020）を示した。また、平成 30 年度に低酸素濃度下において非圧縮ベントナイト中での U ベンド試験を実施しており（原子力機構，2019）、図 2.1-30 に 60 日浸漬後試料の外観写真および表面の SEM 像を示す（断面の分析は未実施）。

外観写真を比較すると、圧縮ベントナイト中では酸化物皮膜が生成し、非圧縮ベントナイト中では硫化物皮膜が生成（原子力機構，2019）しており、主な腐食生成物が異なっている。また、圧縮ベントナイト中の局部腐食の内部には、酸化物および硫化物が生成しており、非圧縮ベントナイト中での結果と類似している点もある。非圧縮ベントナイト中の表面の SEM

像では、すべりステップに沿った開口部を伴う局部溶解が観察され、低酸素濃度条件でも応力腐食割れ感受性は高いと報告されている（原子力機構，2019）。圧縮ベントナイト中で観察された局部腐食も割れの起点となる可能性があるため、今後より長期の試験を実施する必要がある。また、比較のため圧縮ベントナイト中での試験片の表面の SEM 観察を実施し、開口部の有無の確認や観察、皮膜厚さ等の分析を実施する必要がある。

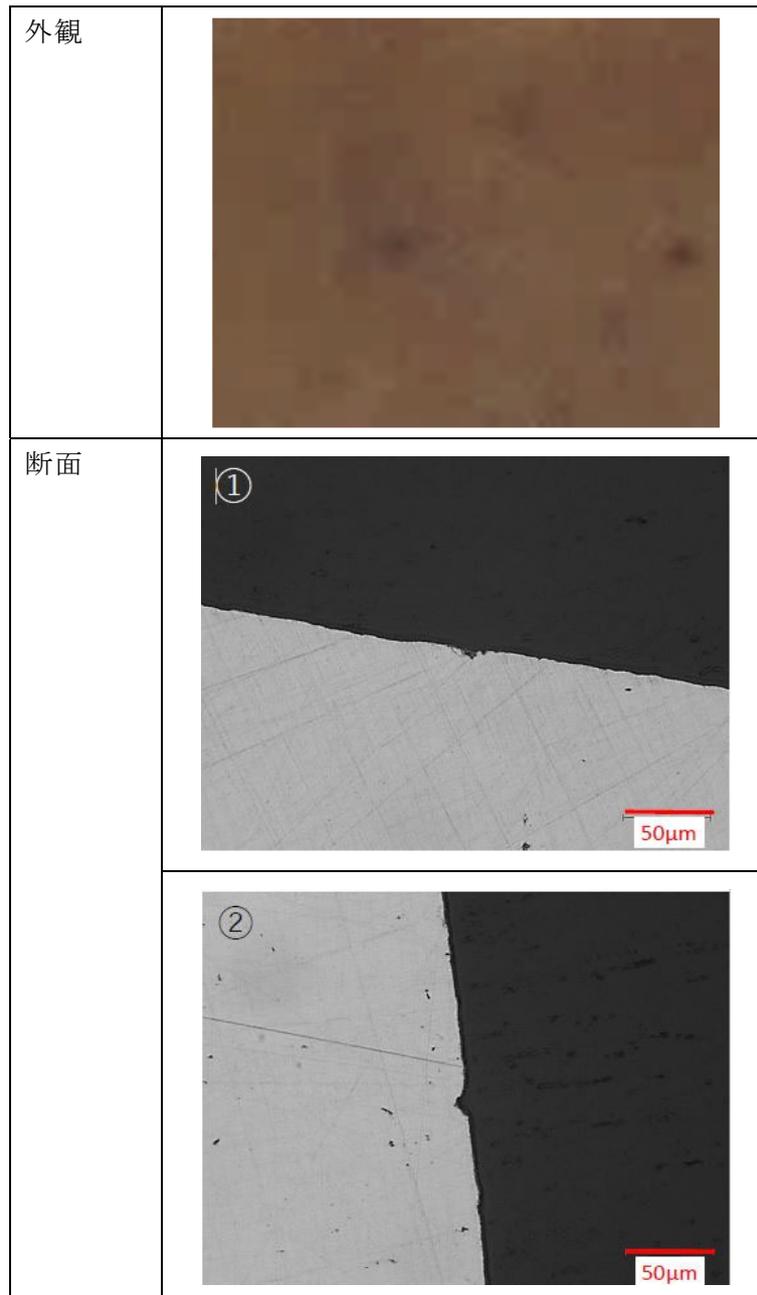
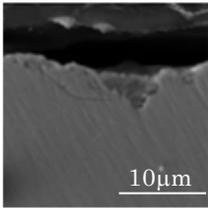
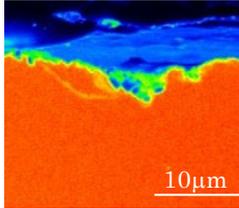
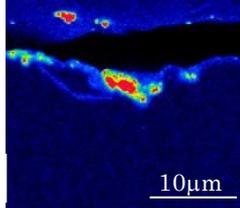
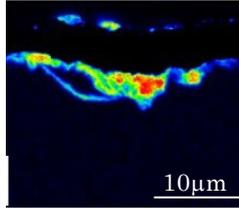
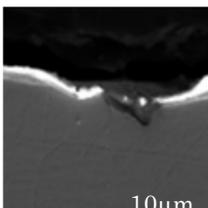
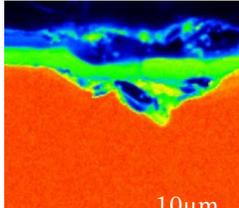
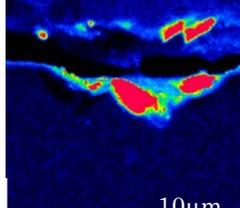
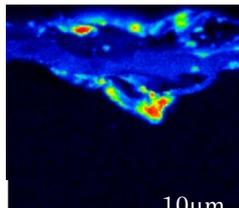
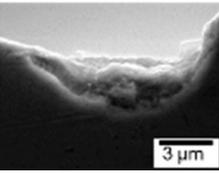
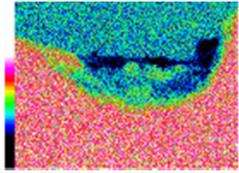
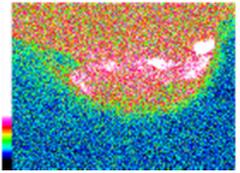
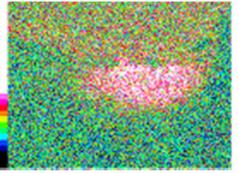


図 2.1-28 圧縮ベントナイト中での U ベンド試験片の外観および断面写真

	SEM 像	Cu	O	S
純水 (圧縮ベントナイト中、 U ベンド試験、 低酸素濃度)				
				
純水 (非圧縮ベント ナイト中、 SSRT 試験、 低酸素濃度)*				

*原子力機構 (2020)

図 2.1-29 局部腐食付近のマッピング分析結果

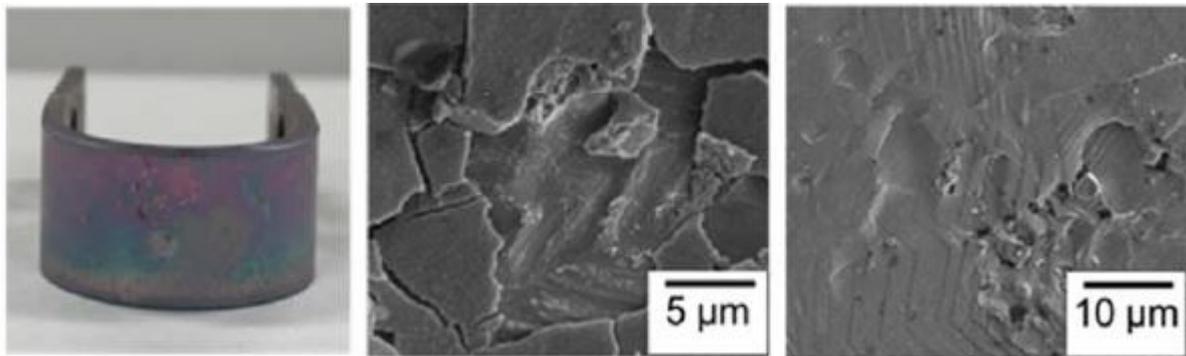


図 2.1-30 非圧縮ベントナイト中での U ベンド試験片の試験後外観写真および SEM 像
(原子力機構, 2019)

(4) 他の候補材料を対象とした腐食試験

純銅に長寿命が期待できない環境条件などへ対応するため、材料の選択肢の一つとして、高耐食性金属を対象にした腐食挙動の検討を行い、適用条件を把握することが重要となる。ここで、高耐食性金属を使用する場合、最も重要となる腐食挙動は、塩化物イオン等が存在する酸化性環境での局部腐食であり、最も発生しやすい局部腐食と考えられるすきま腐食を対象として腐食試験を行った。

1) 高耐食性金属のすきま腐食試験

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、平成 31 年度は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である純チタンおよびニッケル基合金、ステンレス鋼を対象とした、塩化物イオンを含む水溶液中でのアノード分極測定を行い、耐食性の比較を行った（原子力機構，2020）。その結果、酸化性環境での耐食性を比較すると、ニッケル基合金である Alloy C-276 が最も優れていることが示唆された。前述のとおり、局部腐食の中でもすきま腐食は最も発生しやすい腐食形態と考えられることから、すきま腐食の発生限界を把握することが重要である。Alloy C-276 についてすきま腐食に対する高い耐食性が期待できる場合、すきま腐食が発生する下限塩化物イオン濃度が他の高耐食金属と比較してより高いことが期待され、例えば、高耐食性金属としての検討対象としてデータが取得されてきた純チタンと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。すきま腐食の発生限界を定量的に評価する手法として、一旦発生・進展したすきま腐食が停止する電位である再不動態電位 $E_{R, CREV}$ を求める方法（再不動態化法）が有効と考えられる。そのため、令和 2 年度は、再不動態化法によるすきま腐食の発生限界の評価に必要なすきま腐食の発生方法を確立するため、平成 31 年度に高い耐食性を示した Alloy C-276 について、海水相当以上の比較的高い塩化物濃度で試験片の電位を一定に保持する定電位法によるすきま腐食試験を行った。

① 試験方法

a. 試験片

高耐食性金属材料には Alloy C-276 を用いた。本試験で用いた試験片の材質と成分分析値を表 2.1-7 に示す。30×15×t2 mm の試験片にφ6 mm の穴を空け、表面をエメリー#800 にて研磨した。カーボンテープでリード線を取り付け、その部分を信越シリコーンでマスキングした。露出した試験片の表面はエタノールにより脱脂した。すきま形成材にはテフロンを用い、試験を両面からステンレスのボルトナットで挟んだ。すきま腐食試験片の模式図を図 2.1-31 に示す。

表 2.1-7 試験片の材質と成分分析値

材料	成分分析値 [%]
ニッケル基合金 Alloy C-276 ASME UNS N10276	C: 0.004, Si: 0.05, Mn: 0.6, P: 0.01, S: 0.00, Cr: 16.2, Mo: 15.6, Co: 0.2, W: 3.2, Fe: 6.8, V: 0.03

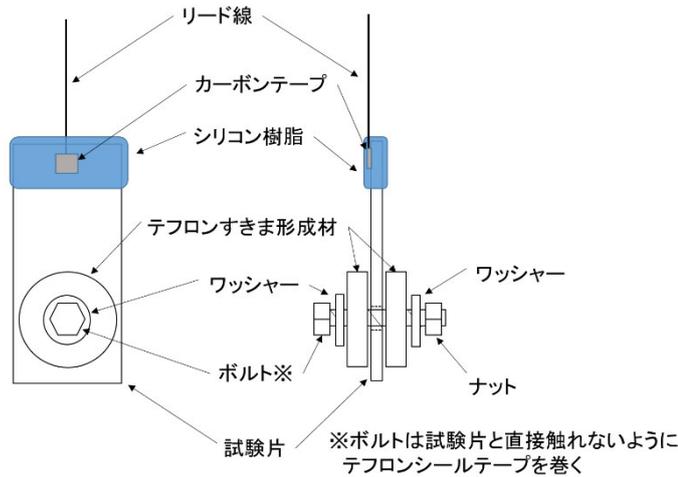


図 2.1-31 すきま腐食試験片の模式図

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

すきま付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 °C 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、所定の電位で 48 時間の定電位試験を行った。深谷ほか (2007) は再不動態化法による Ni-Cr-Mo 合金の対すきま腐食可使用条件の定量評価において、500 mV vs. SHE (301 mV vs. SSE) の定電位保持ですきま腐食発生の操作を行っており、本試験での電位の設定はその値を参考とした。電気化学試験の模式図を図 2.1-32 に示す。

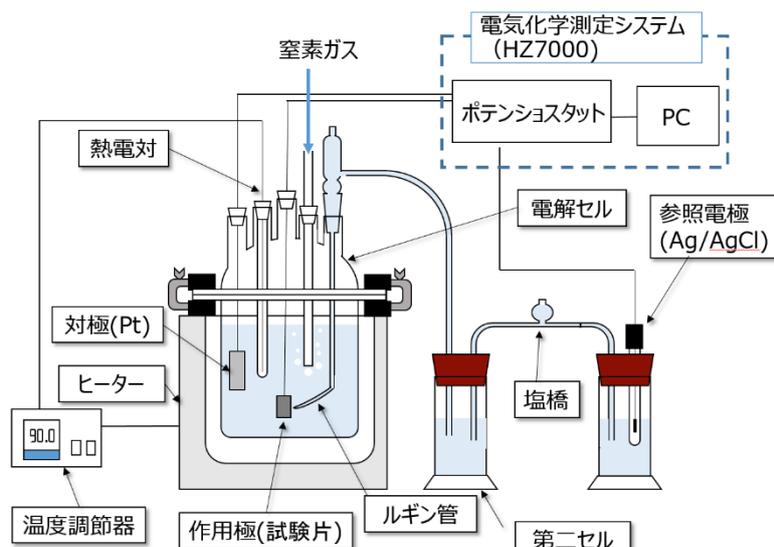


図 2.1-32 電気化学試験模式図

② 試験結果と考察

Alloy C-276 のすきま付試験片の定電位試験結果を図 2.1-33 に示す。0.5 M の NaCl 水溶液中では、深谷ほか (2007) の設定した値にほぼ等しい 300 mV vs. SSE ではすきま腐食の発生に伴う電流値の増加は認められず、より高い 380 mV vs. SSE までの電位でも、すきま腐食に対応するような電流値の増加は観察されなかった。同様に 1 M の NaCl 水溶液中でも、設定した 300~360 mV vs. SSE の電位では、すきま腐食に対応するような電流値の増加は観察されなかった。0.5 M および 1 M の NaCl 水溶液どちらの条件でも設定電位にかかわらず、電流値は同程度の値を示した。また、試験後試験片のすきま部を観察してもすきま腐食の形跡は見られなかった。

深谷ほか (2007) は、Alloy 22 を用いた試験で、本試験で設定した電位に近い電位条件ですきま腐食を発生させ、再不動態化電位 $E_{R, CREV}$ を求めているが、本試験での試験時間 (48 時間) の範囲ではすきま腐食が発生しなかったことから、1M 以下の塩化物イオン濃度でのすきま腐食を発生させる過程において、Alloy C-276 は Alloy22 と比較してすきま腐食が発生しにくい可能性がある。再不動態化法による評価を行うには、確実にすきま腐食を発生可能な条件や試験方法の検討が必要と考えられる。本試験で設定した電位は、深谷ほか

(2007) が求めた過不動態による溶解の生じうる電位領域に近く、より高い電位での試験には限界があるものの、平成 31 年度に実施した動電位アノード分極測定によると、今回設定した電位条件や深谷ほか (2007) が求めた過不動態溶解の生じうる電位よりも貴な電位であっても不動態の状態と考えられるため、より貴な電位条件の設定や設定電位以外の条件である塩化物イオン濃度や定電位試験の試験時間なども含めて、確実にすきま腐食が発生可能な条件を検討することが必要と考えられる。

今後は、Alloy C-276 についてすきま腐食発生限界の定量的評価手法を確立し、データを取得して酸化性環境での処分容器としての適用条件を明確にするとともに、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いことから、低酸素濃度下での腐食量評価や水素吸収・脆化挙動など実験的な検討をしていく必要がある。

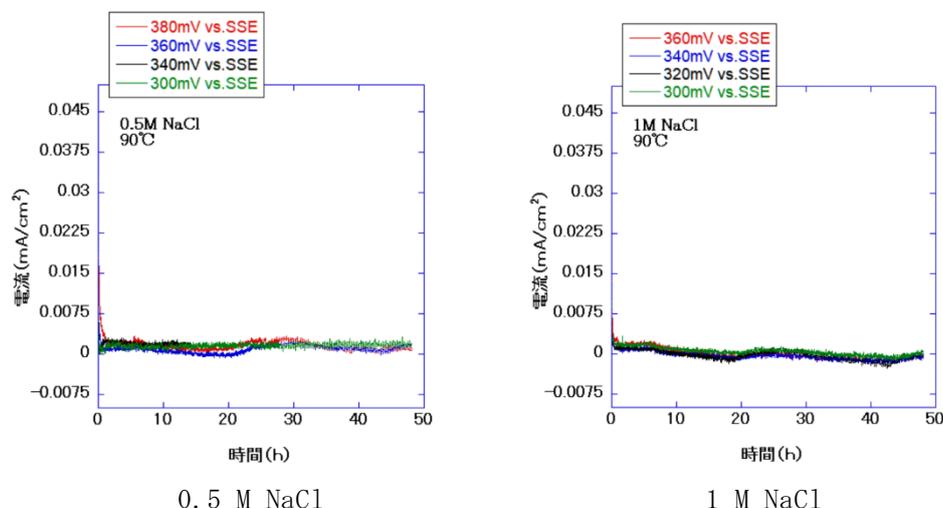


図 2.1-33 Alloy C-276 の定電位試験結果

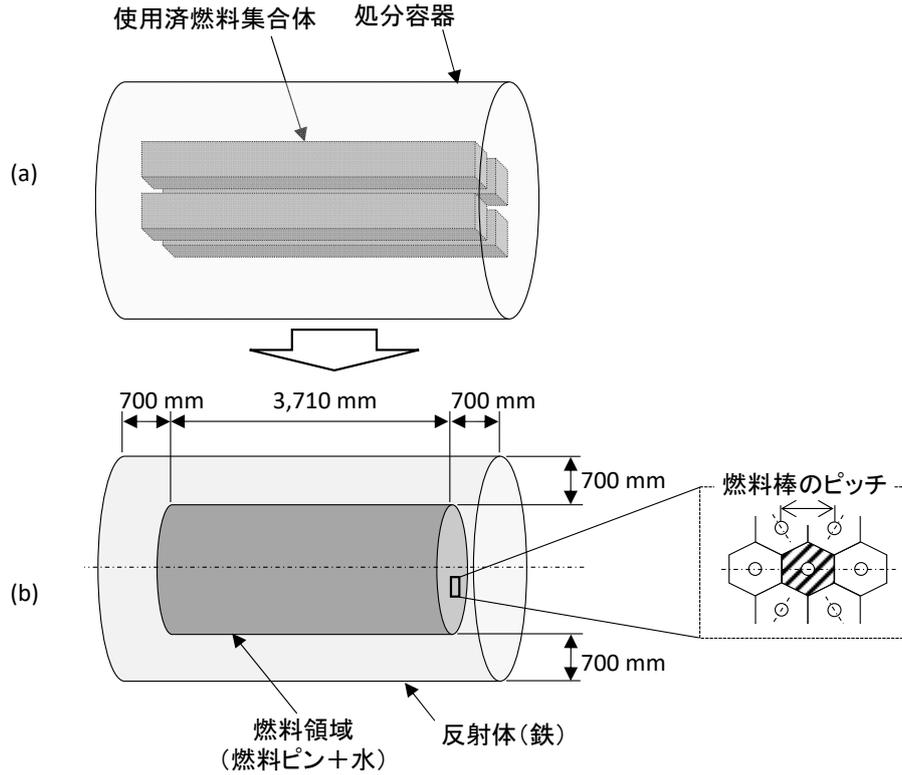
2.2 使用済燃料処分での処分後臨界安全評価

(1) 本項目の背景と目的

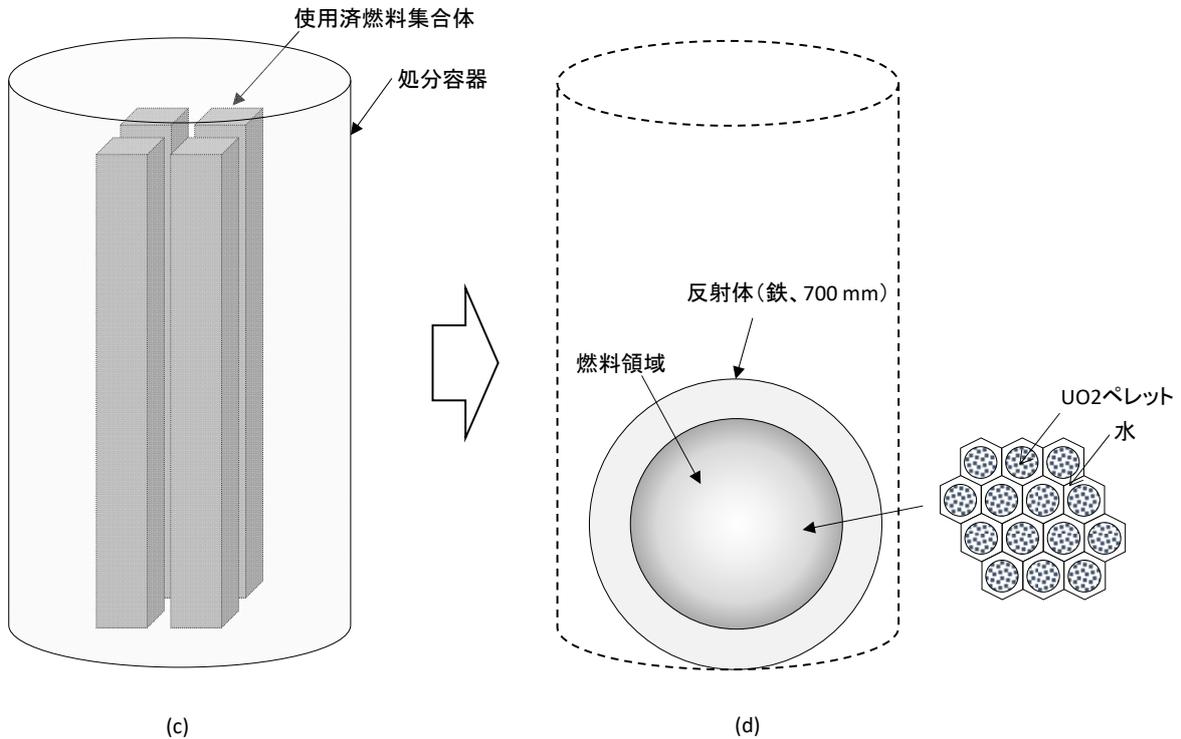
使用済燃料を直接処分する場合、相当量の核分裂性のウランおよびプルトニウムが含まれることから、わが国において、従来、地層処分の対象廃棄物として調査・研究が進められてきたガラス固化体や超ウラン元素を含む TRU 廃棄物の場合とは異なり、処分場への廃棄体の導入によって再臨界が起こる可能性を無視出来ない。処分場において臨界が起こると、多重バリアシステムに期待される安全機能の劣化・喪失や、周辺岩盤における地下水流動および放射性核種の移行挙動が変化して安全評価の不確実性が增大するなどの影響が生じる可能性が考えられることから、このような可能性を最小限に抑えるために、処分場の地下施設において長期間に渡って未臨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ともに、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、使用済燃料の直接処分における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、処分容器に収容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、変化後の燃料領域の形状等によらず、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になっていることが仮定されている。このような臨界解析モデルの概念を図2.2-1に示す。



横置き ((a) 処分直後の状態、(b) 臨界安全評価モデル：円筒体系)



縦置き ((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、特に豎置きの場合では、1体の処分容器へ収容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状況が起こりえるか、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、あるいは材料が膨潤することや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、その範囲において状態の変化の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年度から平成31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化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、燃料と燃料以外の材料の状態変化の影響を定量的に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す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、長期的な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（原子力機構，2019）。また、上記に示した文献調査等により抽出された、処分容器の腐食の進展とそれに伴う緩衝材の状態の変化による影響に着目して臨界解析を実施し、実効増倍率への影響の程度や変化の傾向に関する情報を整理した。さらに、それら臨界解析の結果を参考にしつつ、現実的で合理的な臨界安全評価手法の構築に向けた課題を抽出した（原子力機構，2020）。

令和2年度においては、燃料被覆管の腐食の進展による影響に着目して臨界解析を実施し、実効増倍率への影響の程度や変化の傾向に関する情報を整理した。また、上記で示した、処分容器や燃料被覆管の腐食の進展等の個別の状態の変化がもたらす影響が複合的に作用する場合の評価手法の検討の一環として、処分容器や人工バリアの腐食・強度劣化等によって引き起こされ得る材料の変形・破壊による影響の評価に向けた予備検討にも着手した。さらに、上記の検討結果を踏まえて、過度に保守的とならない現実的で合理的な臨界安全評価を行うための課題を整理した。

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) 個別の影響が複合的に作用する場合の評価手法の検討」および「(4) 過度に保守側ではない現実的で合理的な臨界安全評価手法の構築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（原子力機構，2019）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、腐食等による材料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を整理するとともに、それに対して、わが国におけるガラス固化体等の地層処分についての閉鎖後の処分容器や緩衝材等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（原子力機構，2016b 等）のうち、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たものである。

平成 31 年度の検討（原子力機構，2020）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など海外の事例においてもほとんど考慮されていない、処分容器と緩衝材との化学的あるいは力学的な相互作用に着目し、鉄の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、それら変化による反射体効果の変化（鉄→腐食生成物）等の実効増倍率に対する影響を把握するために感度解析を実施した。この結果、処分容器の腐食反応によって腐食生成物が生成し、その体積膨張によって緩衝材が圧密されるケースにおいて、最大 1.3 % $\Delta k/k$ の影響（実効増倍率が最大 1.3%増加）が確認された。このことから、反射体が鉄から腐食生成物に変化することによって、実効増倍率が高くなる傾向が示されたが、その影響は小さいことがわかった。

令和 2 年度では、より実効増倍率への影響が大きいと考えられる燃料領域周辺、すなわち燃料集合体に着目し、図 2.2-2 で示した状態の変化のうち、燃料被覆管および計装管/制御棒案内管（以下、「IT/GT 管」という。）と地下水の反応による腐食の進展や水素化物の生成による状態の変化を対象とし、燃料被覆管および IT/GT 管の形状や組成等の状態の変化が実効増倍率に与える影響を把握するための臨界解析を行うこととした。

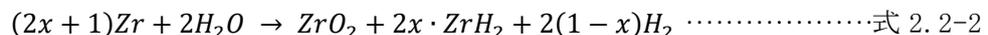
ジルカロイの基本的な腐食挙動については、原子力環境整備促進・資金管理センター（以下、「原環センター」という。）の報告（原環センター，2012）によると、ジルカロイは水と反応することによって腐食し、黒色の酸化被膜(ZrO_2)を形成するとされている。その被膜は、図 2.2-3 に示すようなポーラスな層と緻密な層があるとされており、一般的な腐食反応式は一般的な酸化反応のみを考慮し、



とされている。

また、金属ジルコニウムは、式 2.2-1 で発生するような水素を吸収しやすい物質であるこ

とが知られている。原環センターの報告（原環センター，2014）では、ジルカロイ中の水素の固溶限は極めて小さいため、ジルカロイに吸収された水素のほとんどが水素化物（ZrH₂）として存在すると推察している。また、別の原環センターの報告（原環センター，2018a）では、酸化と水素化を含めた反応式として、ジルコニウムの水素吸収率を考慮した式 2.2-2 が提案されている。



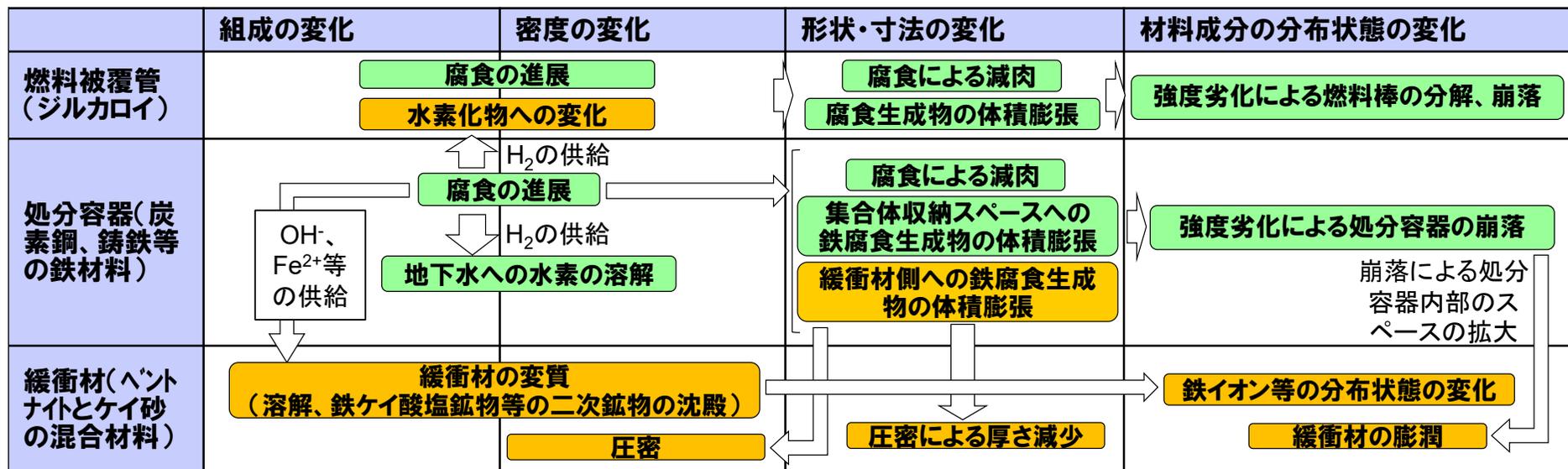
ここで、水素化吸収率が極めて高いと仮定して x を 1 とした場合、



となり、腐食によって消費される Zr は酸化 1 に対して水素化では 2 となり、酸化だけを考慮した場合に比べて Zr 消費量は 3 倍となる。

以上の文献調査の結果を踏まえ、燃料被覆管の腐食の進展と水素化物の生成による状態の変化を考慮した臨界解析モデルの概念を図 2.2-4 のように設定した。図 2.2-4 では、燃料被覆管の腐食反応による状態の変化を 2 つのプロセスに分けてモデル化した。プロセス①は、式 2.2-1 のように燃料被覆管が腐食して酸化ジルコニウム（ZrO₂）が生成し、体積膨張するプロセスである。また、プロセス②は、式 2.2-3 のようにジルコニウムの酸化と水素化の双方が起こるプロセスである。

なお、令和 2 年度の検討における燃料被覆管および IT/GT 管の組成については、平成 31 年度と同様にジルコニウム（Zr）で代表するものとした。また、IT/GT 管と地下水との反応については、前述の燃料被覆管の腐食の進展と水素化物の生成と同じプロセスをモデル化するものとした。さらに、IT/GT 管の内側についても、平成 31 年度と同様に地下水で満たされているものとし（原子力機構，2020）、IT/GT 管の内側からの腐食による状態変化についても考慮することとした。



- ・ 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 (原子力機構, 2020)

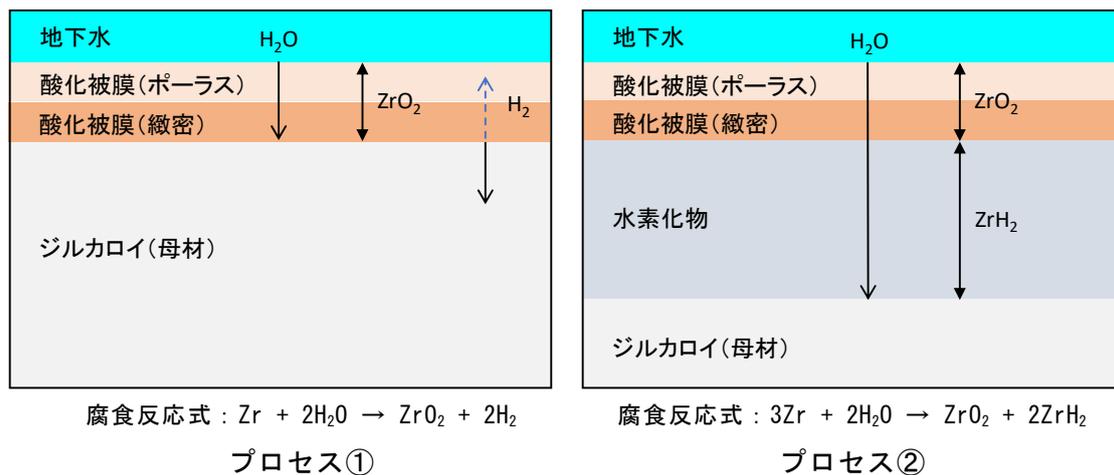


図 2.2-3 ジルカロイの腐食メカニズム模式図

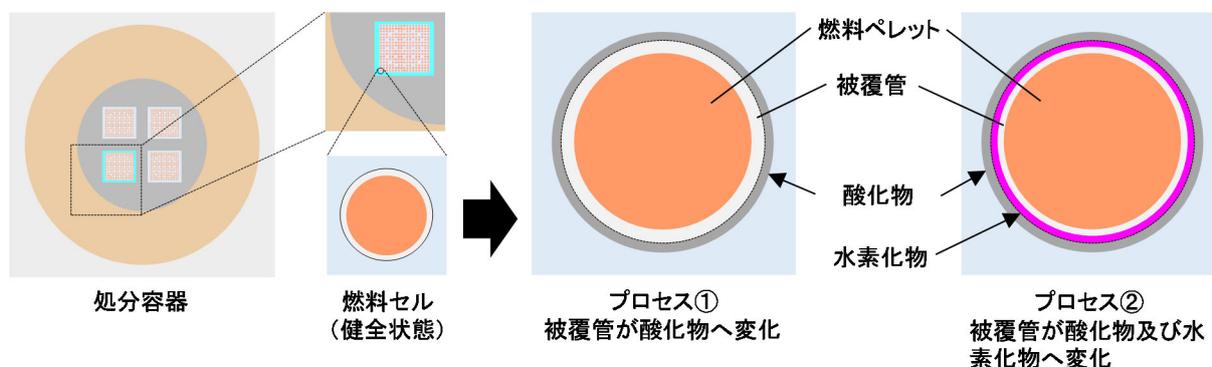


図 2.2-4 燃料被覆管の腐食の進展と水素化物の生成による状態の変化を考慮した
臨界解析モデルの概念

2) 燃料被覆管・IT/GT 管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

① 臨界解析の基本条件の設定

処分場閉鎖直後の燃料集合体、処分容器および緩衝材の幾何形状を図 2.2-5 に、解析条件を表 2.2-1 に示す。臨界解析コードについては MVP-2.0 (Nagaya et al., 2005) を使用し、核データライブラリについては JENDL-4.0 (Shibata et al., 2011) を使用した。計算ヒストリは 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 とした総ヒストリ数 900 万とし、統計誤差が 0.03 %以内となる設定とした。

燃料の核種組成については、平成 31 年度の検討と同様とし、表 2.2-1 に示す PWR 燃料の条件 (U-235 濃縮度 4.5 %、燃焼度 45 GWd t^{-1}) において燃焼計算コード ORIGEN2.0 (Croff, 1983) を用いて燃焼計算した結果から、表 2.2-1 に示す燃焼度クレジットの対象核種の組成データを抽出した。なお、本検討に使用する核種組成は、処分容器健全体系における核種崩壊に伴う組成の経時変化による実効増倍率の変化を把握するために平成 31 年度に実施した予備解析 (原子力機構, 2020) から、その予備解析で実効増倍率が最大となった 18,000 年後の核種組成を用いるものとした。

なお、予備解析において 18,000 年後に実効増倍率が最大となったことを踏まえて、臨界が起り易い状況を敢えて想定する観点から、処分容器の材質としては鉄を想定し、より長

期間の閉じ込め性能が期待できる銅製処分容器については想定しなかった。

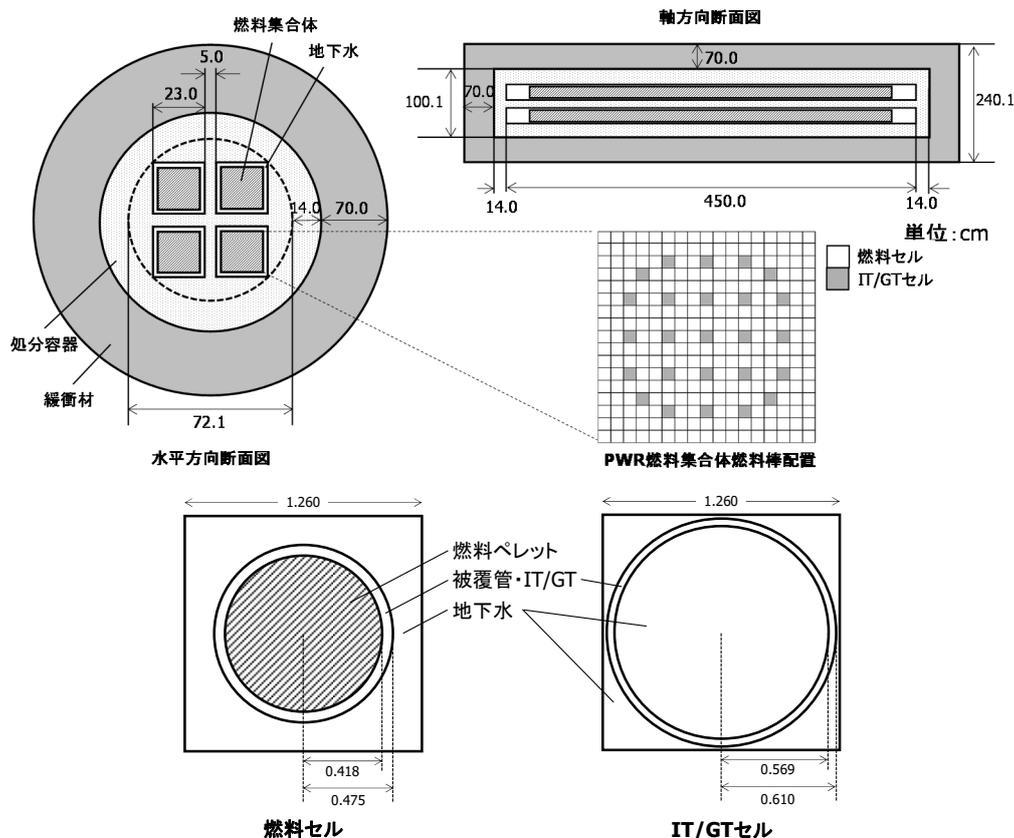


図 2.2-5 臨界解析で対象とする燃料集合体、処分容器および緩衝材の幾何形状

表 2.2-1 燃料集合体、処分容器および緩衝材の解析条件

使用済燃料組成	<ul style="list-style-type: none"> ・ PWR 燃料 (UO_2 使用済燃料)、17×17 燃料集合体 ・ ^{235}U 濃縮度 4.5 %、燃焼度 45 GWd t^{-1} ・ 燃料冷却期間 50 年 ・ 処分後経過年数：18,000 年
燃料集合体の仕様	<ul style="list-style-type: none"> ・ 寸法：図 2.2-5 を参照 ・ 燃料被覆管・IT/GT 管材質：ジルコニウム
処分容器と緩衝材の仕様	<ul style="list-style-type: none"> ・ 寸法：図 2.2-5 を参照 ・ 燃料集合体収容体数：4 体 ・ 処分容器材質：鉄 ・ 緩衝材材質：ベントナイトとケイ砂の混合材料※¹
解析体系・条件	<ul style="list-style-type: none"> ・ 図 2.2-4 に示す状態の変化を想定した体系 ・ 処分容器スペースは地下水で満たされていると想定 ・ 緩衝材の外に岩盤を設定 ・ 真空境界条件
燃焼度クレジット対象核種※ ²	<ul style="list-style-type: none"> ・ アクチノイド核種：^{234}U、^{235}U、^{238}U、^{238}Pu、^{239}Pu、^{240}Pu、^{241}Pu、^{242}Pu、^{241}Am、^{237}Np ・ FP 核種：^{95}Mo、^{99}Tc、^{103}Rh、^{133}Cs、^{147}Sm、^{149}Sm、^{150}Sm、^{152}Sm、^{143}Nd、^{145}Nd、^{153}Eu、^{155}Gd

※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」（日本原子力研究所、2001）の推奨核種に ^{237}Np を加えた核種を対象とした。

② 解析ケースおよび解析条件等の設定

燃料被覆管・IT/GT 管の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。1)項で選定したプロセス①およびプロセス②の他に、直接処分体系において臨界性に影響を与えると考えられる燃料領域の減速材、すなわち地下水や水素化物に含まれる水素の影響を把握するため、現実的な現象ではないが、ジルコニウムの腐食反応を無視し、燃料被覆管・IT/GT 管が全て水素化物に変化する「全水素化物ケース」を、また、燃料被覆管・IT/GT 管を地下水に置換することで、燃料ペレットと地下水のみを仮定した「地下水置換ケース」を設定した。

なお、JENDL-4.0 の MVP 用核データライブラリでは、 ZrH_2 に対して熱中性子散乱則 (Thermal Scattering law) による断面積データが整備されており (奥村・長家, 2011)、プロセス②の解析では、このデータを用いて解析を行った。なお、燃料被覆管が全て水素化物に変化するケースでは、 ZrH_2 に対して熱中性子散乱則の断面積データを用いた解析に加えて自由ガスの断面積データを用いた解析も行い、断面積データの違いに起因する影響についても確認することとした。

表 2.2-2 燃料被覆管・IT/GT 管の状態の変化による影響を評価するための解析ケース

解析ケース	燃料被覆管			IT/GT 管		
	減肉深さ [cm]	酸化ジルコニウム (ZrO_2)の厚さ [cm]	水素ジルコニウム (ZrH_2)の厚さ [cm]	減肉深さ [cm]	酸化ジルコニウム (ZrO_2)の厚さ [cm]	水素ジルコニウム (ZrH_2)の厚さ [cm]
レファレンス ケース	0	—	—	0	—	—
プロセス①を想定 するケース	0.01	0.015	—	0.02	0.031	—
	0.02	0.031	—	0.04	0.062	—
	0.03	0.046	—	0.041	0.064	—
	0.04	0.061	—	0.041	0.064	—
	0.05	0.076	—	0.041	0.064	—
	0.057	0.086	—	0.041	0.064	—
プロセス②を想定 するケース	0.01	0.005	0.008	0.02	0.010	0.016
	0.02	0.010	0.016	0.04	0.021	0.032
	0.03	0.015	0.024	0.041	0.021	0.033
	0.04	0.020	0.032	0.041	0.021	0.033
	0.05	0.024	0.040	0.041	0.021	0.033
	0.057	0.028	0.046	0.041	0.021	0.033
全水素化物ケース※	0.057	—	0.067	0.041	—	0.049
地下水置換ケース	燃料被覆管を H_2O に置換			IT/GT 管を H_2O に置換		

※ ZrH_2 に対して、熱中性子散乱則と自由ガスのそれぞれの断面積データによる解析を実施。

なお、燃料被覆管・IT/GT 管に生成する ZrO_2 の厚さや ZrH_2 の厚さの算出には腐食生成物の体積膨張率が必要になるが、プロセス①およびプロセス②の状態変化で想定する生成物の種類によって密度が異なるため、それにより体積膨張率も異なることとなる。本検討では体積

膨張率として、平成 31 年度の検討と同様にスウェーデンでの検討事例 (Agrenius and Spahiu, 2016) で適用している Pilling-Bedworth ratio (ピリングベドワース比: R_{pb}) を用いることとした。以下に腐食生成物の体積膨張率を算出する式を示す。

$$R_{pb} = \frac{V_{cor}}{V_{metal}} = \frac{M_{cor} \cdot \rho_{metal}}{n \cdot M_{metal} \cdot \rho_{cor}} \quad \dots\dots\dots \text{式 2.2-4}$$

ここで、 R_{pb} は、ジルコニウム原子が酸化物あるいは水素化物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。 V はモル体積 [$\text{cm}^3 \text{mol}^{-1}$]、 M は質量数 [g mol^{-1}]、 ρ は密度 [g cm^{-3}] である。添え字の「*metal*」は母材となるジルコニウムを、「*cor*」は腐食生成物をそれぞれ示している。 n は腐食生成物に含まれるジルコニウム原子数である。この体積膨張率より、プロセス①では減肉したジルコニウム体積に対して R_{pb} を乗じることにより ZrO_2 体積を算出し、表 2.2-2 に示す解析ケースでの燃料被覆管・IT/GT 管に生成する ZrO_2 の厚さを算出した。また、プロセス②および全水素化物するケースにおいて水素化物として設定する ZrH_2 についても、体積膨張率として式 2.2-4 を用いて ZrH_2 体積を算出し、表 2.2-2 に示す解析ケースでの燃料被覆管・IT/GT 管に生成する ZrH_2 の厚さを算出した。

上述の体積膨張率の計算に使用したジルコニウム (Zr)、酸化ジルコニウム (ZrO_2) および水素化ジルコニウム (ZrH_2) の密度を表 2.2-3 にまとめて示す。

表 2.2-3 解析ケースの設定で用いたジルコニウムおよび酸化ジルコニウム、水素化ジルコニウムの密度

	密度 [g cm^{-3}]	引用文献
ジルコニウム (Zr)	6.55	鈴木ほか (2011)
酸化ジルコニウム (ZrO_2)	5.68	William M. Haynes (2015)
水素化ジルコニウム (ZrH_2)	5.61	RJ McConn Jr et al. (2011)

燃料被覆管および IT/GT 管の腐食・水素化の進展に伴い変化させるパラメータを表 2.2-4 に示す。パラメータとなる燃料被覆管および IT/GT 管の減肉深さ、すなわち腐食反応による減肉量は、ジルカロイの腐食速度に依存する。高温域においては、炉内での腐食速度が Hillner (1977) によって提唱され、定式化されている。他方、処分環境に近い低温域での検討事例としては、海外では、例えばスウェーデンの検討事例 (Agrenius and Spahiu, 2016) が報告されており、20 °C 前後では花崗岩の間隙水中におけるジルカロイの腐食速度は 1~2 nm y^{-1} と非常に遅い可能性があると考えられている。国内の検討事例では、第 2 次 TRU レポートにおいて、20 nm y^{-1} のジルカロイ腐食速度を設定している (電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005)。また、原環センターが低温域におけるジルカロイ腐食速度の継続的な実験・検討を進めており、10 年間の試験の成果として、5 nm y^{-1} 程度になると報告している (原環センター, 2018a)。

これらのジルカロイ腐食速度の知見から、解析ケースの設定で考慮すべき減肉深さの上限

値を設定した。ジルカロイ腐食速度は概ね数 nm y^{-1} から数十 nm y^{-1} の範囲であり、前述の①項で述べたように、予備解析で実効増倍率が最大となった 18,000 年後の核種組成を用いることから、その時点までの減肉深さ（概算で数十 μm オーダーから数百 μm オーダー程度）を目安として考えると、燃料被覆管・IT/GT 管ともに全てが腐食する状態を上限とすることが妥当であると考えられる。このことから、燃料被覆管（0.057 cm）・IT/GT 管の厚さ（0.041 cm）を最大減肉深さとする設定とした。

表 2.2-4 燃料被覆管および IT/GT 管の腐食・水素化の進展に伴い変化させるパラメータ

対象とするプロセス	パラメータ	設定の考え方
プロセス①	燃料被覆管の減肉深さ	<ul style="list-style-type: none"> 最大減肉深さを燃料被覆管の厚さ（0.057 cm）として設定 燃料被覆管の外側から減肉が進行
	IT/GT 管の減肉深さ	<ul style="list-style-type: none"> 最大減肉深さを IT/GT 管の厚さ（0.041 cm）として設定 IT/GT 管の内側・外側から減肉が進行
	腐食生成物の厚さ	<ul style="list-style-type: none"> 各減肉厚さを減肉体積に換算し、Rpb を乗じた腐食生成物体積から腐食生成物の厚さを設定 燃料被覆管の外側に腐食生成物が生成 IT/GT 管の内側・外側に腐食生成物が生成
プロセス②	燃料被覆管の減肉深さ	・プロセス①と同様
	IT/GT 管の減肉深さ	・プロセス①と同様
	腐食生成物の厚さ	<ul style="list-style-type: none"> 腐食生成物の厚さの設定はプロセス①と同様 燃料被覆管の外側に水素化物層の上に腐食生成物が生成 IT/GT 管の内側・外側に水素化物層の上に腐食生成物が生成
	水素化物の厚さ	<ul style="list-style-type: none"> 各減肉厚さを減肉体積に換算し、Rpb を乗じた水素化物体積から水素化物の厚さを設定 燃料被覆管の外側に水素化物が生成 IT/GT 管の内側・外側に水素化物が生成

臨界解析の解析体系については、平成 31 年度と同様に、図 2.2-5 に示した幾何形状をモデル化した（原子力機構，2020）。緩衝材の周囲には厚さ 100 cm の岩盤を配置し、その外側となる境界条件は真空条件とした。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個数密度を設定した。

3) 解析結果

燃料被覆管・IT/GT 管の状態の変化による実効増倍率の解析結果を図 2.2-6 に、またその実効増倍率へ与える影響を反応度効果として整理したものを図 2.2-7 に示す。横軸は、燃料被覆管・IT/GT 管の腐食および水素化の進展による減肉深さを指標として表している。図 2.2-6 の縦軸となる実効増倍率は、解析結果の実効増倍率 (k_{eff}) に計算誤差として解析結果の統計誤差の 3 倍 (3σ) を足した $k_{eff} + 3\sigma$ とした。図 2.2-7 の縦軸となる燃料被覆管・IT/GT 管の状態の変化による反応度効果は、以下の式で評価した。

$$\Delta k/k = (k_{transition} - k_{ref})/k_{ref} \dots\dots\dots \text{式 2.2-5}$$

ここで、 $\Delta k/k$ は実効増倍率への影響を示しており、 k_{ref} は処分直後の健全状態の実効増倍率、すなわちレファレンスケースの実効増倍率を、 $k_{transition}$ は状態変化後の実効増倍率である。

図 2.2-6 をみると、プロセス①では、減肉の進行に伴い腐食生成物 ZrO_2 が成長、燃料集合体収容スペースの地下水量が減少することで、実効増倍率が低下する結果となった。

プロセス②では、減肉の進行に伴い腐食生成物 ZrO_2 および水素化物 ZrH_2 が成長することで、実効増倍率が上昇する結果となった。図 2.2-7 より、この状態変化による反応度効果は最大で 1.9% $\Delta k/k$ であった。プロセス①では ZrO_2 の生成によって実効増倍率が低下したものの、プロセス②では ZrO_2 に対し ZrH_2 は 1:2 の割合で生成する等の理由から、 ZrH_2 への状態変化を含むプロセス②は臨界性を高める現象となることがわかった。このことから、地下水や水素化物に含まれる水素が実効増倍率に影響を与える大きな因子になっている可能性がある。

上記で示したプロセス①や②の解析結果について、実効増倍率の変化の傾向を燃料領域の減速効果の一因と考えられる水素に着目して考察した。一般的に実効増倍率は以下の式で表すことができる。

$$k_{eff} = k_{inf} \times \frac{1}{1+L^2B^2} \dots\dots\dots \text{式 2.2-6}$$

k_{inf} は無限体系中性子増倍係数（無限増倍率）、 $\frac{1}{1+L^2B^2}$ はその系からの中性子の漏れを表している。ここで、本検討で対象としている、燃料被覆管・IT/GT 管の腐食による酸化物の生成や水素化では、中性子が漏れる量が変わることはほぼ無いため、 k_{inf} のみに着目し評価した。 k_{inf} は核分裂による中性子発生反応と中性子の吸収反応から以下のように表すことができる。

$$k_{inf} = \nu\Sigma_f/\Sigma_a \dots\dots\dots \text{式 2.2-7}$$

ここで、 ν 、 Σ_f および Σ_a はそれぞれ、一回当たり核分裂で放出される中性子数、核分裂断面積および吸収断面積を示している。

図 2.2-8 に k_{inf} の評価結果を示す。 ZrO_2 のみが生成するプロセス①では、 ZrO_2 が成長するに従い k_{inf} が低下した。これは、燃料集合体収容スペースの地下水量が減少することで、燃

燃料領域での減速材となる地下水、すなわち水素の量が減少していくことにより減速効果が薄れ、 k_{inf} が減少するためである。スウェーデンでの検討事例 (Agrenius and Spahiu, 2016) では、燃料被覆管の体積膨張を考慮して酸化ジルコニウムに置換した評価が行われており、腐食膨張により燃料領域の地下水量が低下することで、実効増倍率が低下したことが報告されている。また、燃料集合体の燃料棒間のスペースに鉄腐食生成物が流入する評価も行われており、同様に実効増倍率が低下すると報告されている。これは、燃料領域における減速材が減少したことによるもので、本検討は同じ傾向を示す結果となった。

腐食生成物 ZrO_2 と水素化物 ZrH_2 が生成するプロセス②では、これらの生成に伴う被覆管の体積膨張によって、プロセス①と同様に周辺の地下水量が減少するのにもかかわらず、プロセス①とは逆に k_{inf} が上昇する結果となった。これは、 ZrH_2 の水素原子個数密度が地下水中の水素原子個数密度よりも大きく、燃料近傍において減速を高める効果が生じているためと考えられる。また、中性子の減速効果を高める ZrH_2 と、減速効果を下げる ZrO_2 との生成割合は 2:1 であり、 ZrH_2 の生成割合が高いことから、 ZrH_2 が成長するに従い、最適減速状態に近づくことも要因の一つとして考えられる。

また、全水素化物ケースでは、水素化ジルコニウムに対して熱中性子散乱則の断面積データを使用すると、自由ガスの断面積データを使用する場合よりも k_{inf} が若干低い結果となった。すなわち水素化ジルコニウムの熱中性子散乱則の断面積データは自由ガスの断面積データより減速効果が低いことがわかった。また、熱中性子散乱則の断面積データを用いた全水素化物ケースの k_{inf} は、地下水置換ケースの結果と比較しても若干低い値となった。熱中性子散乱則の断面積データを用いた全水素化物ケースの k_{inf} の方が低い値となった要因として、上記で述べた ZrH_2 と地下水 (H_2O) 中の水素原子個数密度の差異が与える影響よりも、 ZrH_2 と H_2O を構成する断面積データの違いによる影響が大きいものと考えられる。

上記で示したように、臨界解析で使用する断面積データの種類によって解析結果は異なる可能性がある。熱中性子散乱則の断面積データは、固有の材料の測定データ等から核データを評価したデータであり (竹田ら, 2018)、臨界解析の不確実性を低減させることが期待できる (多田, 2017)。本解析で使用した JENDL-4.0 における熱中性子散乱則の断面積データとしては、処分環境で重要となる物質としては H_2O や ZrH_2 等の一部しか整備されておらず、かつ、地層処分以外の分野で重要となる物質についても熱中性子散乱則の断面積データとして整備されているものは限られている (鬼柳, 2014)。今後は臨界解析における不確実性低減のため、臨界安全上重要となる材料の熱中性子散乱則の断面積データの整備が進むことが期待される。

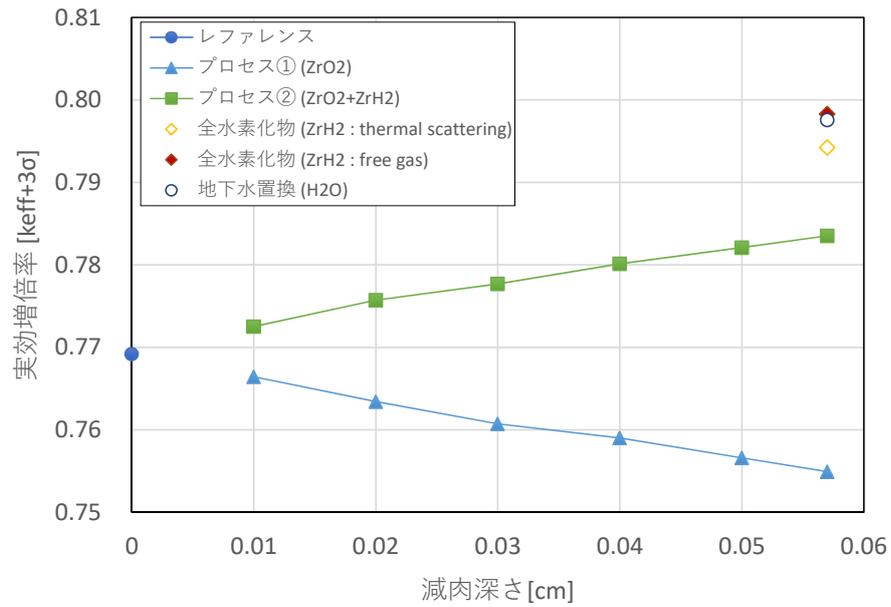


図 2.2-6 燃料被覆管・IT/GT 管の状態の変化による実効増倍率

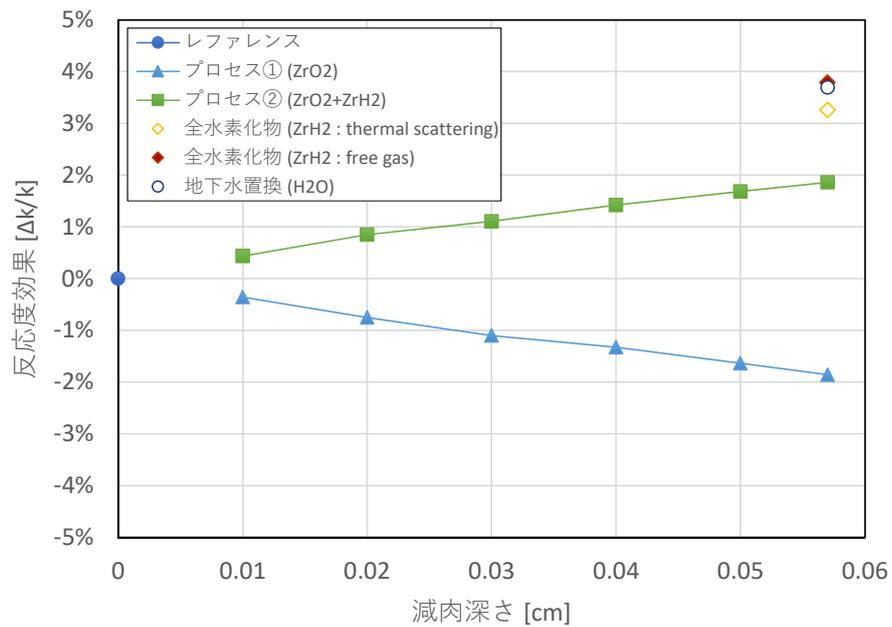


図 2.2-7 燃料被覆管・IT/GT 管の状態の変化による反応度効果

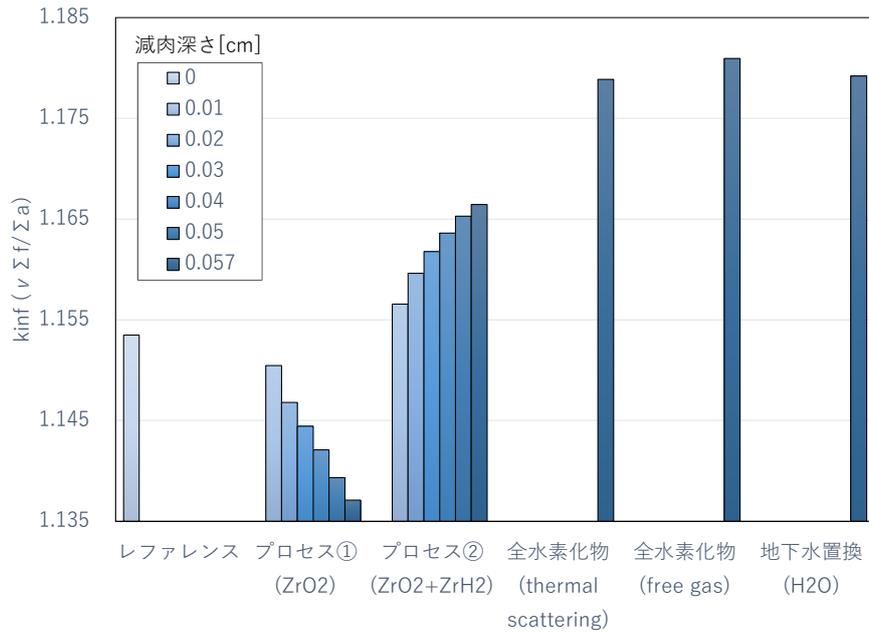


図 2.2-8 各ケースにおける k_{inf} の評価結果

現実的な現象を想定した燃料被覆管および IT/GT 管の状態の変化のうち、腐食生成物 (ZrO_2) のみが生成するケース (プロセス①)、および腐食生成物 (ZrO_2) と水素化物 (ZrH_2) が生成するケース (プロセス②) における実効増倍率の最大値の整理結果を表 2.2-5 に示す。

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 ; 2018a ; 2018b) や、スウェーデンにおける処分容器への影響を評価した既往の事例 (Agrenius, 2002 ; Agrenius, 2010) では、処分容器の設計要件として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現実的な現象を想定した燃料被覆管および IT/GT 管の状態の変化のパターンにおいても同様の未臨界判定基準値と比較すると、未臨界判定基準値と比較して大幅に低く抑えられることが分かった。また、実効増倍率への影響は、最大で 1.9 % $\Delta k/k$ となり、平成 31 年度に検討した処分容器を構成する鉄の腐食に伴い緩衝材が圧密される相互作用を考慮した状態変化による影響の最大であった 1.3 % $\Delta k/k$ よりも高い評価となったが、影響としてはそれほど大きいとはいえない結果となった。

表 2.2-5 実効増倍率の最大値の整理結果

解析ケース	実効増倍率 ($k_{eff}+3\sigma$)	反応度効果 (% $\Delta k/k$)
初期状態	0.7692	—
プロセス① 腐食生成物として ZrO_2 を想定	0.7666	-0.3 %
プロセス② 腐食生成物として ZrO_2 、水素化物として ZrH_2 を想定	0.7835	1.9 %

(3) 個別の影響が複合的に作用する場合の評価手法の検討

(2)項で示した、燃料被覆管および IT/GT 管の腐食の進展による材料の組成・密度の変化や、平成 31 年度に着目した、処分容器の腐食生成物の体積膨張等の個別の状態の変化は、現実に起こる可能性があり、臨界への影響を検討しておく必要がある。しかしながら、そのような状態の変化の個々に着目するだけでは、臨界への影響が大きい可能性のある状態の変化を把握するための検討としては不十分である。例えば、腐食が進展することで材料の強度が劣化するとともに、外から圧力が加わることで処分容器や人工バリアに変形や破壊が起こることによって、保守的なモデルで想定される材料配置に近い配置に至る等、個別の状態の変化が複合的に作用することによる実効増倍率への影響の評価が必要となる可能性がある。

そこで、個別の状態の変化が複合的に作用することによる影響に関する調査・検討の一環として、処分容器や人工バリアで現実的に生じる可能性がある変形・破壊を伴う現象に着目し、このような変化による臨界安全性への影響の評価に向けた予備検討に着手した。具体的には、処分後に臨界が起こる可能性が高い材料配置のパターンを整理し、このような材料配置のパターンが現実に起こり得るかを把握するための情報の整理を行うとともに、抽出された材料配置のパターンが生起する可能性の把握に向けた予備的な力学解析を実施した。

なお、本検討では、(2)と同様の理由により処分容器の材質としては鉄（炭素鋼）を想定した。

1) 処分後に臨界を引き起こす可能性がある変形・破壊挙動のパターンの抽出

平成 31 年度に実施した、緩衝材との境界での処分容器の腐食の進展（原子力機構，2020）や、(2)項で対象とした燃料被覆管の腐食の進展に伴う、これらの材料の密度や組成等の変化を想定する場合とは異なり、人工バリアおよび処分容器に岩盤等から圧力が加わって変形し、材料の配置が大きく変化する場合では、実効増倍率が大きく変化する可能性を考える必要がある。ここでは、図 2.2-1 で示した保守的な臨界解析モデルにおける材料配置と、処分直後の材料配置を比較することにより、臨界が起こる可能性が高い材料配置のパターンを整理するとともに、既往の文献等の情報を参考に、そのような材料配置をもたらす可能性がある力学挙動を整理することとした。

① 臨界が起こる可能性が高い材料配置のパターン

以下に示す臨界状態を表す実効増倍率の式 2.2-8 から、処分後の臨界の起こりやすさに影響を及ぼす可能性がある因子を抽出するとともに、図 2.2-1 に示す保守的なモデルの材料配置と、処分直後の材料配置での上記の因子の違いを整理した結果を表 2.2-6 に示す。

$$k_{\text{eff}} = \frac{\nu \Sigma_f / \Sigma_a}{1 + L^2 B^2} \dots\dots\dots \text{式 2.2-8}$$

ここで、 Σ_f : 核分裂断面積 [cm^{-1}]、 Σ_a : 吸収断面積 [cm^{-1}]、 ν : 一回の核分裂で放出される中性子数 [個]、 $L^2 = D/\Sigma_a$: 中性子の拡散面積 [cm^2]、 $L = \sqrt{D/\Sigma_a}$: 中性子の拡散距離 [cm]、 B : バックリング [cm^{-1}]である。

表 2.2-6 処分後の臨界の起こりやすさに影響を及ぼす可能性がある因子の整理結果

実効増倍率の式におけるパラメータ	抽出された影響因子	処分直後の材料配置に対する保守的なモデルでの因子の違い	
		処分容器の横置きを想定した円筒形状モデル	処分容器の縦置きを想定した球形状モデル
$\nu \Sigma_f / \Sigma_a$	燃料組成	材料配置の違いによって燃料組成が変わることを想定していない。	
	燃料に対する減速材の体積割合	保守的なモデルでは、実効増倍率が最大となるように燃料棒間のピッチが設定されていることから、処分直後の材料配置と比較して、燃料に対する減速材の体積割合が高い。	
B^2	燃料領域の寸法	保守的なモデルでは、処分直後の材料配置と比較して、複数の燃料集合体収容スペースが処分容器の中央に集まって大きな燃料領域を形成しており、処分直後の材料配置と比較して、燃料領域の寸法は大きい。	
	燃料領域の形状	保守的なモデルも、処分直後と同じ円筒形状。	保守的なモデルでは、処分直後の円筒形状よりも中性子の漏れが少ない球形状。

表 2.2-6 の影響因子のうち「燃料領域の寸法」については、保守的なモデルでは、複数の燃料集合体収容スペースが処分容器の中央に集まって大きな燃料領域を形成しており、処分直後の材料配置と比較して、燃料領域の寸法は大きい。このような複数の燃料集合体収容スペースが集まって燃料領域を形成する可能性があるかを調べるには、以下のような現象が現実に関わり得るかを検討することが重要と考えられる。

(ア) 収容スペースの間に存在する仕切り部（これ以降、単に「仕切り部」と呼ぶ。）が破断するような処分容器の変形・破壊現象。

また、「燃料に対する減速材の体積割合」については、保守的なモデルでは、実効増倍率が最大となるように燃料棒間のピッチが設定されていることから、処分直後の材料配置と比較して、燃料に対する減速材の体積割合が高い。これは、炉心において減速材温度が上昇したときに負の反応度が入るように燃料集合体が設計されており、燃料集合体における燃料棒間のピッチが最適減速条件より小さな値となっているためである。このため、処分直後の材料配置と比較して燃料に対する減速材の体積割合が増加し、保守的なモデルでの減速材体積割合に近づく可能性があるかを調べるには、以下の現象が現実に関わり得るかを検討することが重要と考えられる。

(イ) 燃料集合体収容スペースの容積が拡大するような処分容器の変形・破壊現象。

(ウ) 燃料集合体の支持格子や燃料被覆管が破損して燃料棒や燃料ペレットが離散し、中性子が減速しやすい配列に至る現象。

② 臨界が起りやすい材料配置をもたらす材料の変形・破壊挙動

上記①で整理された(ア)～(ウ)の現象のうち、ここでは、処分容器の変形・破壊現象である、(ア)および(イ)に着目し、SKB と POSIVA の KBS-3 システムで想定されているキャニスター（処分容器に相当する）を対象とした構造健全性の評価事例（Jonsson et al., 2018）を参考に、上記の(ア)および(イ)の現象が現実に関起り得るかを把握するための情報の整理を行った。

SKB と POSIVA で想定されているキャニスターは、燃料集合体収容スペースを含む内側の構造材（これ以降、「処分容器構造材」と呼ぶ。）として炭素鋼が使用され、耐食性を担う腐食代部分を含む外側円筒（これ以降、「腐食代部材」と呼ぶ。）には銅が使用されている。また、上記の評価事例（Jonsson et al., 2018）では、炭素鋼製の処分容器構造材に対して生じ得る変形・破壊のモードとして、「延性破断」と「座屈」が想定されている。本検討では、腐食代部材および処分容器構造材の材料として、いずれも炭素鋼を想定していることから、ここでは、上記の SKB と POSIVA の事例を参考として、処分容器の延性破断あるいは座屈により、上記の(ア)および(イ)が起る破壊・変形モードとして想定される状況の例を整理した。この結果を図 2.2-9 および図 2.2-10 にそれぞれ示す。

なお、処分容器の腐食代部材の止水性が失われて処分容器内部に地下水が浸入すると、腐食代部材と処分容器構造材との境界部で腐食が進展していき、さらに、処分容器構造材の止水性が失われると、燃料集合体収容スペースの内部に地下水が浸入して、収容スペースの内壁表面で腐食が進展していくと考えられる。このため、これらの金属表面では、鉄腐食生成物が成長することで体積膨張（腐食生成物が腐食による減肉分を上回ることによる正味の体積増加）が生じると考えられる。このため、ここでは、腐食代部材と緩衝材の境界、腐食代部材と処分容器構造材の境界、および燃料集合体の収容スペースの内壁表面の3か所において、鉄腐食生成物が体積膨張していくことを想定した。

収容スペースの間の仕切り部が破損する状況

図 2.2-9 に示すように、各々の燃料集合体収容スペースの内壁において腐食生成物の体積膨張が起り、内部の燃料集合体と腐食生成物が接触して反力が生じると（図 2.2-9 中の左図の青矢印）、仕切り部に引張応力が載荷される可能性が考えられる（同図の赤矢印）。仕切り部の腐食減肉によって強度低下が進むとともに、腐食生成物の成長によって引張応力が増加していくと、ある時点で弾性範囲を超えて変位が急激に増大して塑性変形が発生し、最終的には最大引張応力を超えて破断に至ることが考えられる。燃料集合体の収容スペースごとに腐食の開始時期や進展の速度が異なり、腐食生成物の生成量に差がある場合では、この傾向はさらに顕著なものとなる可能性がある。

他方、緩衝材から処分容器に対して圧密反力が作用することで（図 2.2-9 中の中央図および右図の黒矢印）、仕切り部に平行に圧縮応力が載荷される可能性も考えられる（右図の赤矢印）。腐食代部材、処分容器構造材および仕切り部が初期の厚さを保つ場合には地圧相当

の外圧にも耐え得る強度を有するように設計されると考えられるが、腐食減肉による強度低下のために座屈に対する限界応力が低下すると、座屈による仕切り部の急激な変形が生じる可能性があると考えられる。

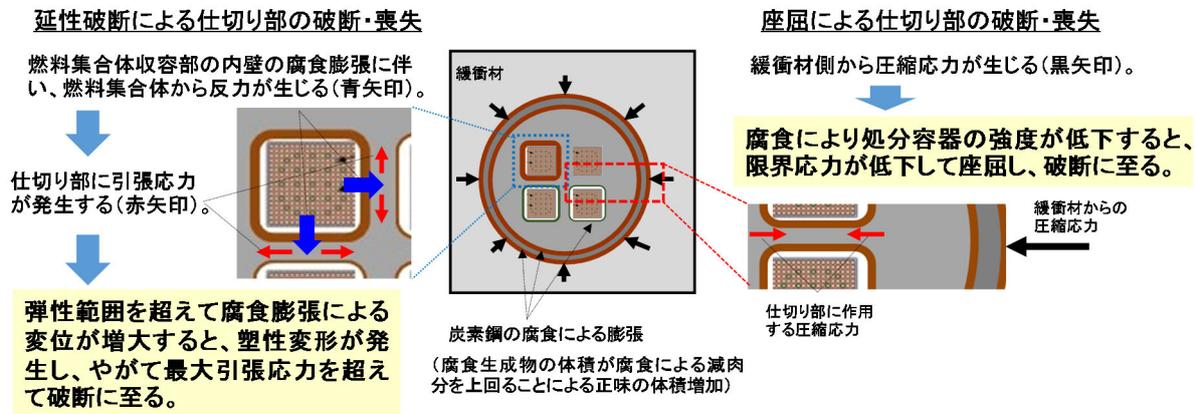


図 2.2-9 收容スペースの間の仕切り部が破損する状況の例

燃料集合体收容スペースの容積が拡大する状況

図 2.2-10 に示すように、図 2.2-9 で示した状況と同様に、各々の燃料集合体收容スペースの内壁において腐食生成物の体積膨張が起こり、内部の燃料集合体と接触して反力が生じると(図 2.2-10 中の左図の青矢印)、特に隅角部において、腐食代部材と処分容器構造材で円周方向に引張応力が作用する可能性が考えられる(同図の赤矢印)。隅角部においては、処分容器構造材の厚さが薄いことから、応力が大きくなり易い。これにより、当該箇所における処分容器構造材の最大引張応力を超えてさらに塑性変形が増大していくと、亀裂が発生し、最終的に破断して收容スペースの容積が拡大する可能性が考えられる。

他方、一様の外圧が载荷された状態において、腐食によって強度が低下した隅角部(弱部となった最も板厚が薄くなる箇所)が起点となって、処分容器の内側に向かって過大な圧縮応力が生じることも考えられる(図 2.2-10 中の右図の赤矢印)。この場合では、腐食代部材および処分容器構造材に圧縮応力が作用して、変形が起こるとともに剛性が低下し、最終的に剛性を失って座屈して破断し、收容スペースの容積が拡大する可能性が考えられる。

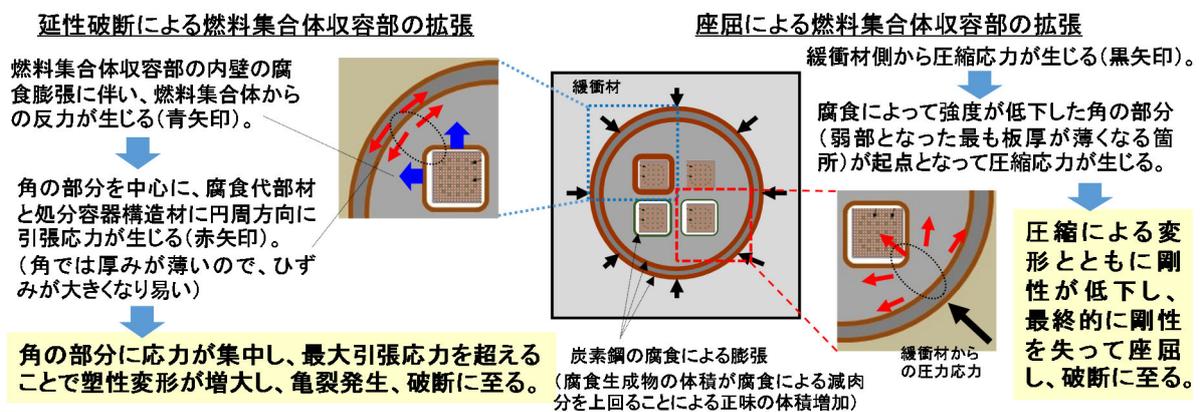


図 2.2-10 燃料集合体收容スペースの容積が拡大する状況

なお、実際の処分環境においては、図 2.2-9 および図 2.2-10 に示したような処分容器の円筒断面における変形パターンには含まれない、処分容器の軸方向への応力の載荷を含む三次元的な変形パターンが生じる可能性も否定できない。しかしながら、先に述べた SKB および POSIVA における構造健全性の評価事例 (Jonsson et al., 2018) においては、軸方向の外力に対する強度が側面からの応力に対する強度と比較して高いことから、外からの圧縮応力による処分容器の軸方向の変形 (座屈など) については考慮されていない。このため、これを参考として、本検討では三次元的な変形パターンについては考慮せず、処分容器の二次元断面での変形パターンを対象とした。

2) 臨界を引き起こす可能性がある変形・破壊挙動の生起可能性の把握に向けた力学解析

前項 1) で示した状況が生起する可能性の把握に向けて、令和 2 年度は、燃料集合体からの反力を考慮せず、処分容器のみで破壊に至るかを把握するための予備的な力学解析を実施した。

① 解析手法・ツール

炭素鋼製の処分容器を弾塑性体として扱い、応力およびひずみを評価するものとした。炭素鋼は延性材料であるため、ひずみ硬化および軟化を含む von Mises モデル (弾塑性体) を用いて解析を実施するものとし、ひずみ硬化により塑性変形を、ひずみ軟化により破断ひずみ到達後の破断をそれぞれ評価するものとした。

炭素鋼のひずみ ε は弾性ひずみ ε^e と塑性ひずみ ε^p の和で表わされる。

$$\varepsilon = \varepsilon^e + \varepsilon^p \dots\dots\dots \text{式 2.2-9}$$

また、弾性ひずみは Mises 応力 σ とヤング率 E を用いて以下のように表わされる。

$$\varepsilon^e = \frac{\sigma}{E} \dots\dots\dots \text{式 2.2-10}$$

塑性領域における Mises 応力 $g(\varepsilon^p)$ と塑性ひずみ ε^p は Ludwik 硬化則を用いて下記のように表わされる。

$$g(\varepsilon^p) = \sigma_0 + A \cdot (\varepsilon^p)^n \dots\dots\dots \text{式 2.2-11}$$

ここで、 σ_0 は降伏応力であり、 A は降伏応力と引張応力および破断ひずみから求められる直線の傾きとなる。本試解析では、降伏応力と引張応力の間の硬化曲線は炭素鋼の応力-ひずみ応答の近似値から直線 ($n=1$) に設定した。なお、有限要素法による解析等において、炭素鋼の応力-ひずみ曲線を直線で近似する手法は一般的に用いられている (Tomota and Tamura, 1982)。

破断は塑性ひずみが予め設定した破断ひずみに到達した際に起こるとして解析を実施し

た。破断後の変形については、ひずみ軟化として表現するものとし、ひずみ軟化が終了した後に残留する応力（残留応力）については、腐食生成物の降伏応力と同一と仮定した。

数値解析手法としては、処分容器の変形・破壊挙動のシミュレーションを行う解析手法として、有限個別要素法（FDEM）を選定し、これによる力学解析コードとして Elfen（桑原ほか，2007：Crook et al.，2008：佐藤ほか，2009；2010：松田ほか，2010：Nikolinakou et al.，2015）を使用して、前項 1)の検討と同様に、処分容器の二次元断面を対象とする力学解析を行うものとした。

② 解析体系・解析条件

PWR 燃料を 4 体収容する処分容器を想定して処分容器二次元鉛直断面の解析体系をモデル化した。力学解析における解析体系を図 2.2-11 に示す。処分容器の寸法については、直接処分第 1 次取りまとめ等の既往の検討（原子力機構，2015a；2015b；2016a）と同様とした。また、燃料集合体および緩衝材についてはモデル化せず（燃料集合体収容スペースは空洞）、処分容器の変形・破壊のみを対象とする解析を行うものとした。

境界条件としては、既往の検討（核燃料サイクル開発機構，1999）を参考に、処分深度 500 m 相当での地下水静水圧、岩盤クリープおよび腐食生成物膨潤圧による緩衝材の圧密反力を足し合わせた値として、処分容器の表面に鉛直方向内向きに 6.8 MPa を与えるものとした。また、腐食代部材の外表面は変位拘束しない条件であり、緩衝材との相互作用（緩衝材の応力緩和作用等）については考慮しないものとした。この外圧の下で、腐食代部材の外側表面、腐食代部材と処分容器構造材の境界、燃料集合体収容スペース表面（内面）に、処分容器の閉じ込め性が喪失したことで浸入する地下水によって鉄腐食生成物が生成し体積膨張していく状態を想定し、腐食に伴う腐食代部材および処分容器構造材の応力状態の変化・変形挙動を解析によって評価するものとした。

また、前項 1)で整理された、燃料集合体収容スペースの間の仕切り部が破損する状況では、収容スペースごとに腐食の開始時期や進展の速度が異なり、腐食生成物の生成量に差がある場合に、仕切り部の破損がより起こり易くなる可能性が考えられたことから、解析においても、収容スペースの内壁における腐食の開始時期に差を設けた。図 2.2-11 に示すように、処分後 1,000 年後に腐食代部材と処分容器構造材の止水性が損なわれて燃料集合体収容スペース①に地下水が浸入して腐食が開始し、それ以降、順に②から④にかけて 1,000 年ずつ遅れて腐食が開始するものとした。

以上の条件に基づき予備的な力学解析を行った。なお、解析の評価期間は、前項(2)で示したように、平成 31 年度に実施した予備的な臨界解析において、実効増倍率が最大となる燃料の核種組成として 18,000 年後の組成を用いたことから、これを目安として、処分直後から 18,000 年後までを対象とすることとした。

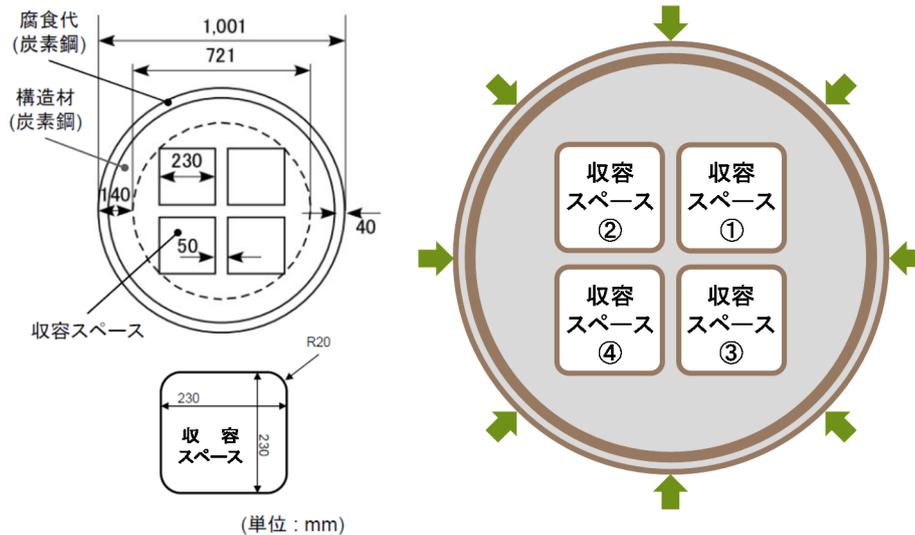


図 2.2-11 力学解析における解析体系

力学解析の解析条件を表 2.2-7 に示す。令和 2 年度の予備的な解析においては、個々の解析条件の値の不確実性等を考慮して感度解析的に条件を変化させることはせず、具体的な評価と結果の例を示すことを優先して、代表的な条件を想定した解析を行うものとした。

表 2.2-7 力学解析の解析条件

項目	腐食代部材・処分容器構造材（炭素鋼）	腐食生成物
ヤング率 [MPa]	210,000 ^{*1}	21,000 ^{*5}
ポアソン比 [-]	0.3 ^{*1}	0.35 ^{*6}
降伏応力 [MPa]	315 ^{*2}	12.6 ^{*7}
引張強さ [MPa]	538 ^{*2}	—
破断ひずみ [-]	0.19 ^{*2}	—
密度 [kg m ⁻³]	7860 ^{*3}	2620 ^{*8}
腐食速度 [$\mu\text{m y}^{-1}$]	1.0 ^{*4}	—
腐食膨張率	—	炭素鋼の 3 倍 ^{*8}

*1: 核燃料サイクル開発機構 (1999) より設定。
 *2: 規格鋼材” JIS G 3106 SM490” より設定。
 *3: 原子力環境整備・資金管理センター (2018b) より設定。
 *4: 谷口ほか (2010b) より設定。
 *5: 核燃料サイクル開発機構 (2002) の知見より母鋼材（炭素鋼）の 10% として設定。
 *6: Kataoka ら (1984) より設定。
 *7: 腐食生成物は健全な母鋼材と比較して強度が無視できる条件として、母鋼材の降伏応力の 4% と仮定。
 *8: 原子力機構 (2015a) より母鋼材（炭素鋼）の 3 倍に膨張するとして設定。

③ 解析結果

解析結果の例として、最小主応力分布の時間変化を図 2.2-12 に示す。処分直後において

は、载荷された外圧による圧縮応力が支配的である。

1,000 年後までは腐食代部材の止水性が維持されていることから、腐食代部材の表面のみで腐食生成物の体積膨張が起こり、処分容器構造材の応力分布には殆ど変化は認められなかったが、2,000 年以降においては処分容器構造材に载荷される圧縮応力が大きく増加した。これは、外側境界から 6.8 MPa の外圧が载荷され続けるとともに、主に腐食代部材と処分容器構造材の境界に生成した腐食生成物の体積膨張が起こることによるものと考えられる。この圧縮応力の増加に伴い、処分容器の外側と近い位置にある燃料集合体収容スペースの角近傍において特に応力が集中するとともに、仕切り部においては、部分的に引張応力が载荷される傾向が認められたものの、18,000 年後までのいずれの時点においても処分容器構造材の変形は弾性範囲内に留まり、表 2.2-7 に示した破断ひずみには至らず、破断しない結果となった。他方、腐食代部材においては、処分容器構造材の鉄腐食生成物の成長に伴う内側からの体積膨張により円周方向に引張応力が载荷される結果となったが、処分容器構造材と同様に破断には至らなかった。

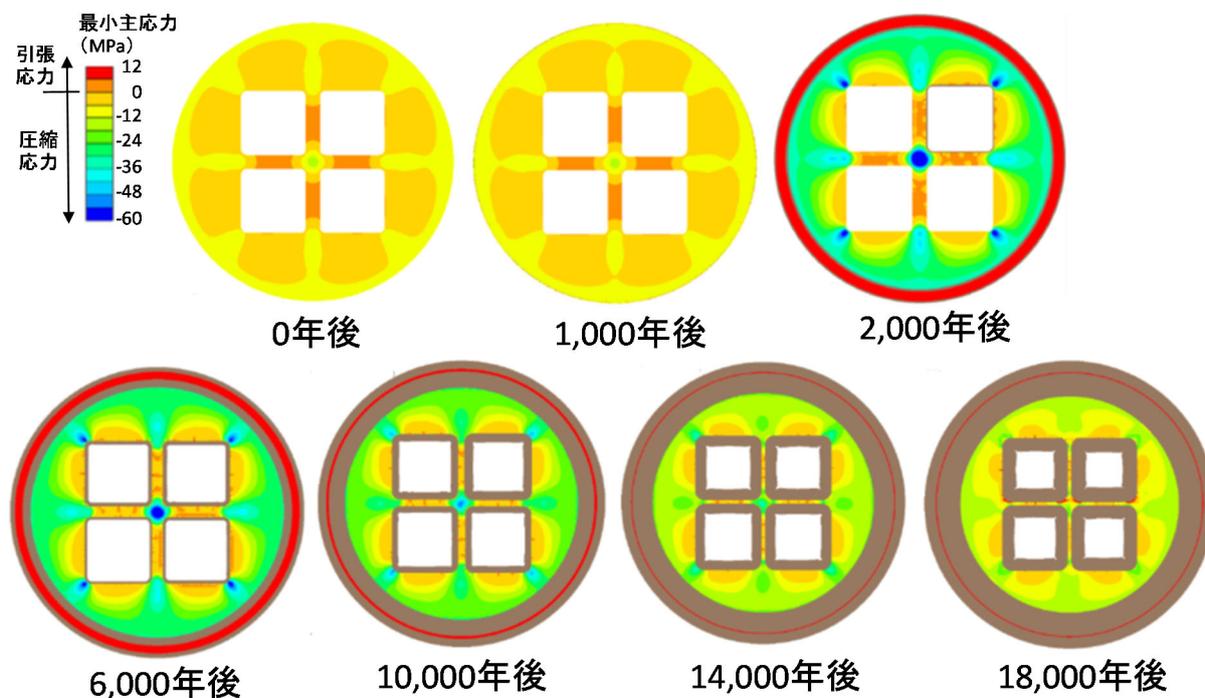


図 2.2-12 解析結果の例（最小主応力分布の時間変化）

※腐食生成物には強度が期待できないことから、腐食せずに残った鉄の部分のみ応力分布を示している。

腐食代部材と処分容器構造材の相当応力（式 2.2-11 の Mises 応力に相当）および処分容器構造材の半径方向の変位の時間変化を図 2.2-13 に示す。腐食代部材の相当応力は、処分後 1,000 年後から 1,400 年後にかけて急激に増加するが、その後は緩やかに増加する傾向が確認された。また、処分容器構造材の半径方向の変位は、処分後 1,000 年後から 1,400 年後にかけて急激に減少するが、その後は緩やかな増加に転じる傾向が確認された（ただし、変

位置はごく小さな値に留まる)。これは、処分後 1,400 年後において、腐食代部材と処分容器構造材の境界での腐食膨張により腐食代部材が降伏して変形し始めたことによるものであり、それ以降の時間では、図 2.2-12 で示されているように処分容器構造材の圧縮応力が減少し続ける結果となり、このため、仕切り部等において破断が生じなかったと考えられる。

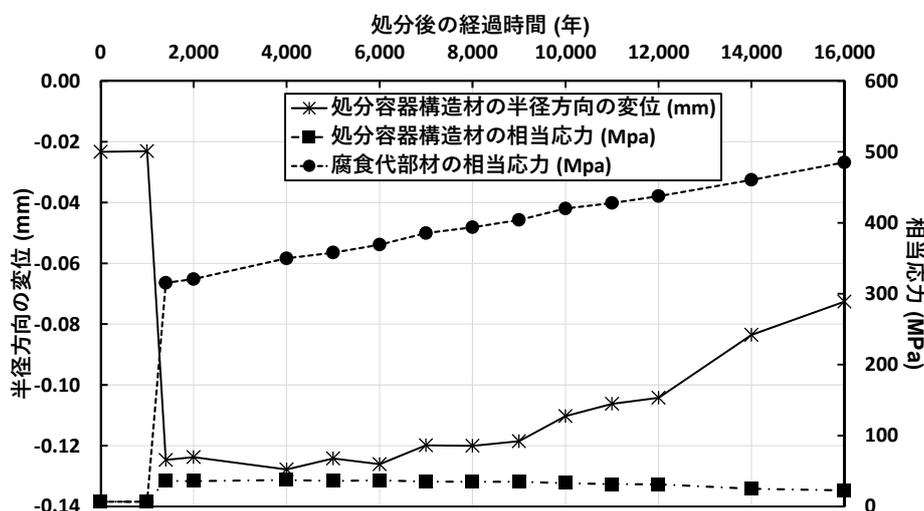


図 2.2-13 腐食代部材と処分容器構造材の相当応力および処分容器の半径方向の変位の時間変化

(4) 過度に保守側ではない現実的で合理的な臨界安全評価手法の構築に向けた課題の抽出

(2)項では、燃料被覆管等の腐食の進展による影響に着目して臨界解析を実施し、実効増倍率への影響の程度や変化の傾向に関する情報を整理するとともに、(3)項では、個別の影響が複合的に作用する場合の評価手法の検討の一環として、処分容器や人工バリアの腐食・強度劣化等によって引き起こされ得る材料の変形・破壊による影響の評価に向けた予備検討等の成果を示した。

今後、複数材料の状態変化の組み合わせや、材料の変形・破壊による配置の変化がもたらす影響といった、複合的な影響の評価に向けた課題への対処が必要であると考えられる。

複合的な影響の評価に向けた課題の例を以下に示す。

処分容器、緩衝材、燃料被覆管等の複数材料の状態変化の組み合わせによる影響の課題

平成 31 年度および令和 2 年度の(2)項で示した、材料の状態の変化を想定した臨界解析においては、図 2.2-2 に示されている、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のうち、処分容器の腐食とこれに伴う緩衝材の状態の変化および燃料被覆管の腐食の進展に伴う状態の変化を対象として、実効増倍率への影響の程度や変化の傾向を確認してきた。

これら単体の材料の変化による影響は最大で $2\% \Delta k/k$ 程度にとどまるものの、本検討で対象とした個々の影響を組み合わせた場合の影響、さらには、本検討では計算を行っていない、SKB で対象とされた燃料集合体収容スペース内部への鉄腐食生成物の侵入の影響

(Agrenius and Spahiu, 2016) などとの組み合わせを考慮するなど、複合的な影響についての検討をさらに進めていくことが必要になると考えられる。

そこで、このような検討を効率的に進めていくための課題として以下が挙げられる。

- ・ 上記の SKB での解析結果についての詳細な分析や再現解析の実施なども含めて、複数材料での状態変化が同時に起こる場合に実効増倍率の変化を引き起こす要因や程度等についての分析と理解を進めて知見として整理しておくこと。

材料の変形・破壊によって配置が変化することによる影響の課題

処分容器や燃料集合体等の金属材料の腐食の進展と、岩盤等の外部からの圧力が加わることにより、これらの材料に破壊や変形が生じて材料の分布状態が大きく変化することを想定した(3)項の予備的な解析では、処分後 18,000 年後までは、図 2.2-9 や図 2.2-10 で示したような処分容器の破断による仕切り部の喪失や収容スペースの拡張が生じることはなく、処分容器の変位は弾性領域内に留まる結果であった。

今後、現実的な材料の変形・破壊挙動を想定した場合に臨界が起り得るかについて、以下の課題に対してさらに検討を進めることが必要である。

- ・ 鉄の腐食速度や降伏応力等の力学パラメータの値に対して、現実的な範囲の中で不確実性の幅を考慮する場合でも破断が生じない結果となるかどうかを確認すること。
- ・ 今回の予備的な解析では 18,000 年までを対象として解析を行ったが、それ以降の期間において仕切り部等の破断が生じる可能性を検討すること。
- ・ 図 2.2-9 および図 2.2-10 に示した処分容器が破断する状況の例に示されているような、燃料集合体収容スペース内部への鉄腐食生成物の体積膨張に伴う燃料集合体からの反力の影響や、燃料集合体の構造的健全性が失われて燃料棒や燃料ペレットが離散する可能性 ((3)1)の(ウ)) を検討すること。

なお、上記に示した課題に対処するだけでは、複数の材料の変化を組み合わせた場合の臨界安全性への包括的な影響を評価するには不十分である可能性があり、発生確率が極めて低いものの、臨界安全への影響を無視できないような状態の変化の組み合わせ等についても、今後、着目すべき組み合わせの洗い出し、およびその発生可能性や影響の評価手法を検討することが必要となる可能性がある。また、それら検討を踏まえて、臨界安全への影響を現実的かつ合理的に評価していくために詳細に評価していくべき事項と簡便な取扱いのできる事項の把握、臨界影響の大小を決めるうえで鍵となる事項の同定やその発生可能性の評価・判断の方法等、過度に保守的とならない臨界安全評価としていくための基盤となる知見の提示に向けた検討を進めていくことが重要になると考えられる。

2.3 まとめ

・ 処分容器の腐食挙動評価

硫化物共存環境における純銅の腐食挙動について、硫化水素濃度をパラメータとした浸漬試験の結果からは、硫化水素濃度が 1 %の条件で、緩衝材共存下では溶液単独系よりも硫化水素による腐食への影響が緩和されること、および、硫化物共存下で実施した U ベンド試験の結果からは、皮膜下に粒界腐食のような腐食形態が観察されたが、60 日間までの試験では典型的な割れは発生しないことがわかった。また、圧縮ベントナイト中での応力腐食割れ試験の結果からは、ベントナイト密度が皮膜形成挙動に影響を与える可能性があることがわかった。さらに、他の候補材料（高耐食性金属）の腐食について、電気化学試験によりニッケル基合金（Alloy C-276）のすきま腐食に対する耐食性を調査した結果、1 M 以下の塩化物イオン濃度では Alloy 22 と比較してすきま腐食が発生しにくいことがわかった。

今後は、硫化物や他の地下水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、緩衝材密度の作用や長期的な影響などの知見を拡充していく。また、高耐食性金属については、知見の不足している低酸素濃度下での腐食量評価・水素吸収挙動等の実験的な検討を行う。

・ 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、燃料被覆管等の腐食による酸化物の生成と水素化に着目し、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、処分容器や燃料被覆管の腐食の進展等の個別の影響が複合的に作用する場合の評価手法の検討の一環として、処分容器や人工バリアで現実的に生じる可能性がある変形・破壊を伴う現象に着目し、このような変化による臨界安全性への影響の評価に向けた予備検討に着手した。具体的には、処分後に臨界が起こる可能性が高い材料配置のパターンを整理し、このような材料配置のパターンが現実に起こり得るかを把握するための情報の整理を行うとともに、抽出された材料配置のパターンが生起する可能性の把握に向けた予備的な力学解析を実施した。さらに、これらの検討結果から、過度に保守的とならない現実的で合理的な臨界安全評価を行うための課題を整理した。

今後は、処分容器、緩衝材、燃料被覆管等の複数材料での状態変化が同時に起こる場合の実効増倍率の変化の傾向および変化を引き起こす要因等の把握、臨界に影響のある材料の変形や破壊が起こり得るかどうかを把握するための解析モデル等の構築、それら検討で重要となる不確実性の取り扱い方法の整備等を実施していく。

【参考文献】

- 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., Spahiu, K. (2016): Criticality effects of long-term changes in material compositions and geometry in disposal canisters, SKB, TR-16-06.
- Ambrose, J., Barradas, R., Shoesmith, D.W. (1973): Investigations of copper in aqueous alkaline solutions by cyclic voltammetry, *Journal of Electroanalytical Chemistry and Interfacial Electrochemistry*, Vol. 47, pp.47-64.
- Chen, J., Qin, Z., Shoesmith, D.W. (2011): Rate controlling reactions for copper corrosion in anaerobic aqueous supplied solutions, *The International Journal of Corrosion Processes and Corrosion Control*, Vol. 46, pp.138-141.
- Chen, J., Qin, Z., Martino, T., Shoesmith, D.W. (2017): Non-uniform film growth and micro/macro-galvanic corrosion of copper in aqueous sulphide solutions containing chloride, *Corrosion Science*, Vol. 114, pp.72-78.
- Croff, A.G. (1983): ORIGEN2: A Versatile Computer Code for Calculating the Nuclide Compositions and Characteristics of Nuclear Materials, *Nucl. Technol.* 62, p.335.
- Crook, A.J.L., Yu, J.G., Flatebo, R.E., Kristiansen, T.G. (2008): Computational Modelling of the Rate Dependent Deformation and Liquefaction of Chalk, 42nd US Rock Mechanics Symposium and 2nd U.S.-Canada Rock Mechanics Symposium, American Rock Mechanics Association, ARMA 08-176.
- 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.
- Fujimoto, S., Tsuchiya, H., Ogawa, S., Iida, Y., Taniguchi, N. (2021): Stress Corrosion Cracking of Copper in Swollen Bentonite Simulating Nuclear Waste Disposal Environment, *Materials and Corrosion*, Vol. 72, pp.333-338.
- 深谷祐一, 明石正恒, 佐々木英次, 辻川茂男 (2007): Ni-Cr-Mo 合金の対すきま腐食可使用条件の定量評価, *IHI 技報* Vol. 47 No.4.
- 原環センター (原子力環境整備促進・資金管理センター) (2012): 平成 23 年度 地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処分技術 ヨウ素・炭素処理・処分技術高度化開発報告書 (第 3 分冊) .
- 原環センター (原子力環境整備促進・資金管理センター) (2014): 平成 25 年度 地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 報告書 (第 2 分冊) .
- 原環センター (原子力環境整備促進・資金管理センター) (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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発平成 25 年度~29 年度取りまとめ報告書.
- 原環センター (原子力環境整備促進・資金管理センター) (2018b): 平成 29 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 処分システム工学各省技術開発 平成

- 25年度～平成29年度の取りまとめ報告書.
- Gennero de Chialvo, M.R., Zerbino, J.O., Marchiano, S.L., Arvia, A.J. (1986): Correlation of electrochemical and ellipsometric data in relation to the kinetics and mechanism of Cu_2O electro formation in alkaline solutions, *Journal of Applied Electrochemistry*, 16, pp.517-526.
- 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.
- 原子力機構（日本原子力研究開発機構）(2020): 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.
- Haynes, W.M. (2015): *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, 96th Edition.
- Hillner, E. (1977): *Corrosion of Zirconium-Base Alloys-An Overview*, *Zirconium in the Nuclear Industry*, ASTM STP 633, 211-235.
- Jonsson M., Emilsson E., Emilsson L. (2018): *Mechanical design analysis for the canister*, Posiva SKB Report, ISSN 2489-2742.
- 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2 地層処分の工学技術, JNCTN1400 99-022.
- 核燃料サイクル開発機構（2002）: オーバーパック腐食生成物の弾性係数の測定, JNC TN8400 2002-010.
- Kataoka, K., Yamazawa, T., Pyun, Y-J., Homma, T. (1984): *An X-Ray Study of Strain Generation Behavior of a Steel-scale System during High Temperature Oxidation in Air*, *Transactions ISIJ*, Vol. 24, pp.365-371.
- 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.
- 鬼柳善明 (2014): 「熱中性子散乱則データのこれまでとこれから」(2)熱中性子散乱則の表

- 式と現状の断面積の問題点, 2014 年原子力学会春の年会 核データ部会・炉物理部会合同セッション, 核データニュース, No.108.
- 小玉俊明 (1980): 腐食百科-緑青, 銅の I 型および II 型孔食, 防食技術 29, pp.361-362.
- 桑原仁史, 高瀬博康, 千葉保, 藤井直樹 (2007): 現実的性能評価の開発 (その 3) -オーバーパックからの応力によるガラス固化体破碎解析-, 日本原子力学会 2007 年秋の大会.
- 松田武, 山本修一, 米澤健次, 佐藤伸 (2010): 有限個別要素法による鉄筋コンクリート構造物の破壊シミュレーション, 土木学会第 65 回年次学術講演会(平成 22 年 9 月), V-574.
- 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.
- Moore, H., Beckinsale, S., Mallinson, C.E. (1921): The Season Cracking of Brass and other Copper Alloys, Journal of the Institute of Metals, 25, pp. 59-125.
- 永田公二 (1987): 耐食材料としての銅および銅合金, 軽金属, Vol. 37, No.1, pp.89-99.
- 長田柗平, 井上博之, 北山彩水, 土橋竜太 (2020): 圧縮ベントナイト中での銅電極のカソード分極への硫化物イオンの影響, 第 67 回材料と環境討論会講演集, A-303, 腐食防食学会.
- 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.
- 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.
- Nikolinakou, M. A., Peter, B. F., Michael, R. H. (2015): Modeling of Shales in Salt-Hydrocarbon Systems, Rock Mech Rock Eng, DOI 10.1007/s00603-015-0863-2.
- 奥村 啓介, 長家 康展 (2011): JENDL-4.0 に基づく連続エネルギーモンテカルロコード MVP 用の中性子断面積ライブラリーの作成と ICSBEP ハンドブックの臨界性ベンチマーク解析への適用, JAEA-Data/Code 2011-010.
- Pugh, E. N., Montague, W. G., Westwood, A. R. C. (1966): "Stress-corrosion cracking of copper", Corrosion Science, 6, pp.345-347.
- 佐藤伸, 山本修一, 武内邦文, 金子岳夫, 庭瀬一仁, 伊藤裕紀 (2009): 鉄筋の腐食膨張を考慮した余裕深度処分施設の長期力学挙動解析, 土木学会第 64 回年次学術講演会(平成 21 年 9 月), CS5-032.
- 佐藤伸, 山本修一, 武内邦文, 金子岳夫, 庭瀬一仁, 伊藤裕紀 (2010): 余裕深度処分施設の長期力学安定性に与える鉄筋の腐食膨張の影響, 土木学会第 65 回年次学術講演会(平成 22 年 9 月), CS7-054.
- 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., Katakura, J. (2011): JENDL-4.0: A New Library for

- Nuclear Science and Engineering, J. Nucl. Sci. Technol. 48(1).
- Smith, J., Qin, Z., King, F., Werme, L., Shoemith, D.W. (2007): Sulfide Film Formation on Copper under Electrochemical and Natural Corrosion Conditions, Corrosion, Vol. 63, pp.135-144.
- Smith, J., Qin, Z., Shoemith, D.W. (2006): The Influence of Pre-oxidation on the Corrosion of Copper Nuclear Waste Canisters in Aqueous Anoxic Sulphide Solutions, in Proceeding of Materials Research Society 2006 fall Meeting, Materials Research Society.
- Strehblow, H.-H., Maurice, V., Marcus, P. (2001): Initial and later stages of anodic oxide formation on Cu, chemical aspects, structure and electronic properties, Electrochimica Acta, Vol. 46, pp.3755-3766.
- 鈴木元衛, 斎藤 裕明, 宇田川豊 (2011): 軽水炉燃料解析コード FEMAXI-7 のモデルと構造, JAEA-Data/Code 2010-035.
- Suzuki, Y. (1981): Stress Corrosion Cracking of pure Copper in Dilute Ammonical Solutions, Corrosion Science, Vol. 21, pp.353-368.
- 多田健一 (2017): 評価済み核データライブラリの処理, 第 49 回炉物理夏期セミナー, 講義 4.
- 竹田敏, 牟田幹彦, 山口光, 北田孝典, 大岡靖典, 松岡正悟, 長野浩明 (2018): 水素の熱中性子散乱則の違いによる軽水炉体系での影響, 第 7 回「炉物理専門研究会」.
- 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.
- 谷口直樹, 川崎学, 内藤守正 (2010a): アンモニア水溶液およびアンモニウムイオンを含む地下水における純銅の応力腐食割れ挙動, JAEA-Research 2009-067.
- 谷口直樹, 川崎学, 内藤守正 (2010b): 低酸素濃度下での模擬地下水の飽和した圧縮ベントナイト中における炭素鋼の腐食挙動, 材料と環境, vol. 59, no.11, pp.418-429.
- Tomota, Y., Tamura, I. (1982): Mechanical Behavior of Steel Consisting of Two Ductile Phases, Transactions ISIJ, Vol. 22, pp.665-677.
- Uhlig, H.H., Duquette, D.J. (1969): Alleged stress-corrosion cracking of pure Cu, Corrosion Science, Vol. 9, pp.557-560.
- 山内重徳, 佐藤史郎 (1981): 淡水中における銅管の腐食について, 防食技術 30, pp.469-477.
- Young Jr, F.W. (1961): Etch Pits at Dislocations in Copper, Journal of Applied Physics 32, pp.192.

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	3-3
1) はじめに	3-3
2) マトリクス溶解指標物質を二酸化ウランに固溶させたペレットの調製	3-5
① マトリクス溶解指標物質の選定	3-5
② 二酸化ウランおよび酸化マグネシウムの粉末混合試料の調製	3-6
③ (U,Mg)O ₂ 固溶体ペレットの成形および焼結条件の検討	3-6
④ 調製したペレットの分析と評価	3-7
3) (U,Mg)O ₂ 固溶体ペレットの浸漬試験	3-12
① 試験手順	3-12
② 試験結果と考察	3-13
(3) UO ₂ 溶解度に及ぼす酸化還元電位および炭酸の影響評価	3-17
1) はじめに	3-17
2) 試験方法	3-17
① 非晶質二酸化ウランの調製	3-17
② 溶解度試験	3-18
3) 結果と考察	3-20
(4) UO ₂ 等ウラン酸化物の表面分析等による溶解挙動の考察	3-24
1) はじめに	3-24
2) 浸漬済み UO ₂ 表面状態のラマン分光分析	3-25
① 試験方法	3-25
② 結果と考察	3-26
3) U ₃ O ₈ 試料の浸漬試験	3-29
① 試験方法	3-29
② 結果と考察	3-30
(5) 使用済燃料からの核種の瞬時放出挙動に関する調査	3-33
1) はじめに	3-33
2) 実燃料を使用した浸漬試験（作業環境整備を含む）	3-34
① 浸漬試験容器等のモックアップ	3-34
② 実燃料の調製および周辺の空間線量測定	3-35
③ 空間線量測定結果	3-36
④ 浸漬試験方法	3-37
⑤ 浸漬試験結果と考察	3-37
3.2 緩衝材の長期挙動評価	3-41
(1) 本項目の背景と目的	3-41

1) 試験の目的、手法、対象とする変質環境・現象	3-41
2) 調査内容	3-43
(2) 銅試験片と圧縮ベントナイトの接触試験（試験片カラム変質試験）	3-44
1) 酸化性雰囲気での試験片カラム変質試験	3-44
① 試験手順および条件	3-45
② 試験結果	3-46
2) 低酸素雰囲気での試験片カラム変質試験	3-46
① 試験手順および条件	3-46
② 試験結果	3-47
(3) 銅粉とベントナイトを混合した接触試験（バッチ変質試験）	3-47
1) 低酸素雰囲気でのバッチ変質試験	3-47
① 試験手順および条件	3-47
② 試験結果	3-48
(4) 銅粉と圧縮ベントナイトの接触試験（銅粉カラム変質試験）	3-49
1) 酸化性雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験	3-49
① 試験手順および条件	3-49
② 試験結果	3-50
2) 低酸素雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験	3-53
3) 低酸素雰囲気・鉄共存下での銅粉カラム変質試験	3-54
① 試験手順および条件	3-54
② 試験結果	3-54
3.3 まとめ	3-55
参考文献	3-57

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、以下ではこれらを実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 (UO_2) 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 UO_2 格子内の欠陥の体積拡散により移行する途中で UO_2 と固溶体を生成する元素、酸化物もしくは金属析出物として析出する元素、もしくはガス状のまま燃料ペレット内から放出され燃料棒内のギャップに蓄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（瞬時放出）、母材中に存在する場合は母材の腐食溶解にともなって比較的緩慢に放出される（長期溶解）と考えられている。

瞬時放出の程度を示すパラメータは、使用済燃料中の核種毎の総インベントリのうち瞬時放出されるインベントリの割合が用いられ、気体として放出されるものは核分裂生成ガス放出率（FGR）、地下水等に溶出するものは瞬時放出率（IRF）で表される。FGR で評価される核種はクリプトン（Kr）およびキセノン（Xe）の同位体であるが、これらの核種の半減期は短いため、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、これまでに 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溶解速度であり、例えば UO_2 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期間の逆数が用いられる。

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、2015；2016；2017；2018）において、直接処分を検討している諸外国におけるソースターム評価の考え方や、それらの根拠となっている文献情報（試験データ）を調査・整理するとともに、最近行われた、あるいは現在も進行中のソースターム評価に関する試験研究の

成果なども参考として、わが国の直接処分に適したソースタームパラメータの更新を試みた。

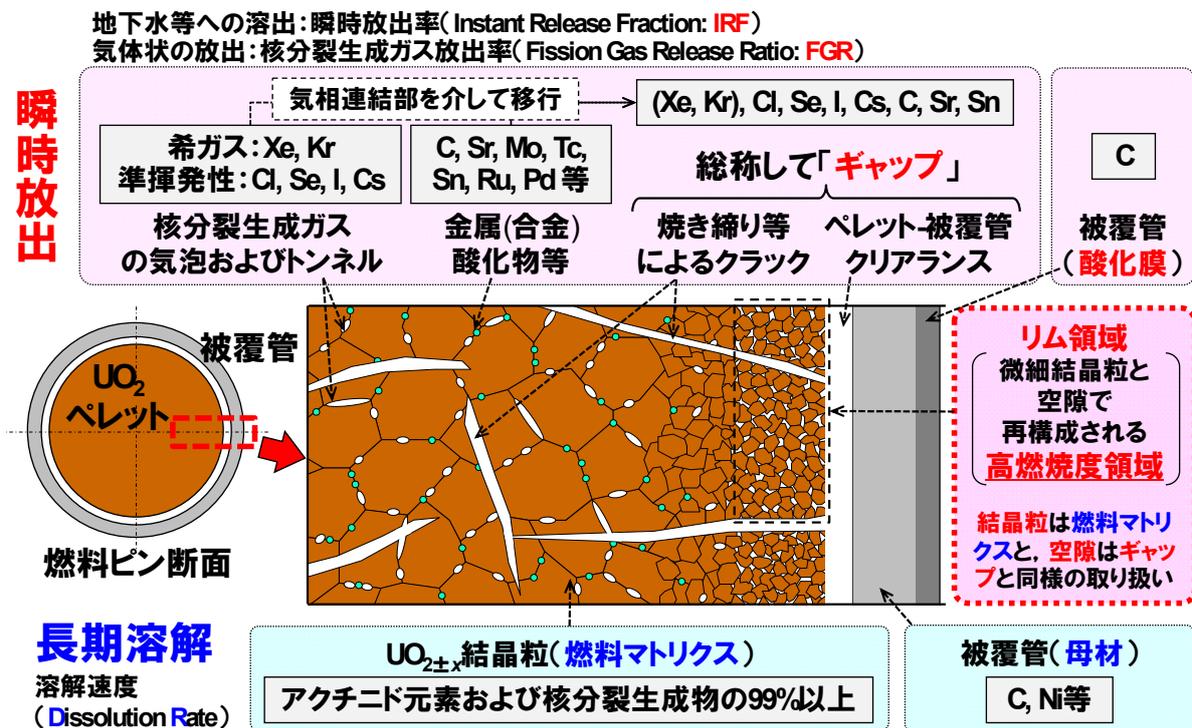


図 3.1-1 使用済燃料中の核種分布および核種放出の概念

先行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；北村ほか，2020）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 GW d MTU⁻¹）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)₃⁴⁻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状況を想定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、本項では、「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)

～(4)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」((5)項参照)の2点を特に重要な課題と考え、それらについての令和2年度の成果を以下に示す。

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 ; 北村ほか, 2020)

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	
使用済燃料の IRF	¹⁴ C	10.0	14.0
	³⁶ Cl	6.0 *	24.0 *
	⁷⁹ Se	1.0	7.0
	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
構造材金属の IRF	¹²⁶ Sn	0.1	7.0
	¹⁴ C	20	40

*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炭酸濃度の影響に着目した溶解速度測定試験を行い、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、試験的調査を継続することとした。平成 30~31 年度

には、ペレット状に成型した UO_2 の溶解速度測定を実施した（図 3.1-4～図 3.1-5）（原子力機構，2020）。これらの結果（図 3.1-4～図 3.1-5）においては、溶存ウラン濃度が試験初期に一旦高くなったあと低下する傾向が見られたことから、ウランが一旦溶解したあと再び沈殿した可能性が考えられた。このようなウランの再沈殿が含まれた結果に基づき溶解速度を設定すると、再沈殿しない元素に対する溶解速度が過小評価となることから、令和 2 年度は、再沈殿の可能性がないようなマトリクス溶解指標物質を UO_2 ペレットに固溶させて UO_2 の溶解速度評価のための浸漬試験データを取得することとした。

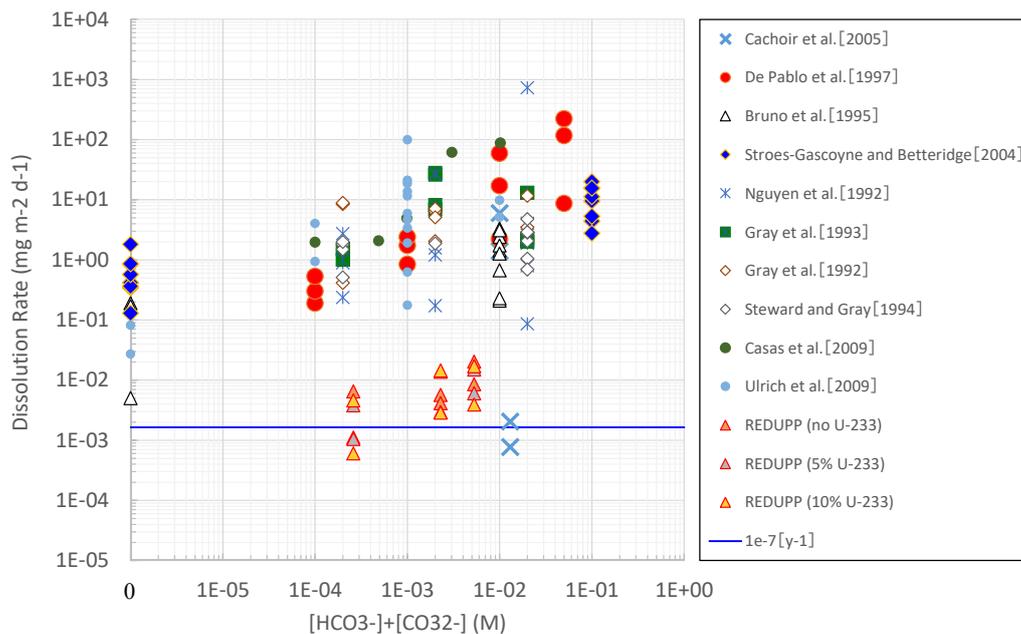


図 3.1-2 燃料溶解速度の全炭酸濃度依存性に関する文献情報

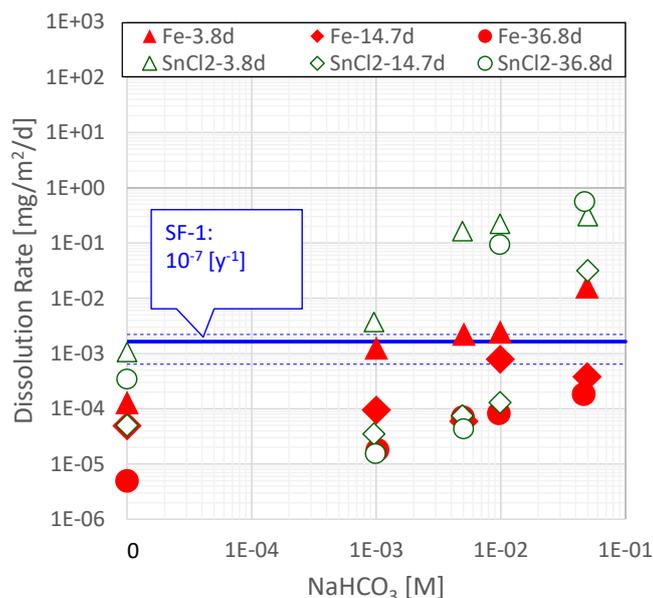


図 3.1-3 先行事業で得られた二酸化ウラン溶解速度の全炭酸濃度依存性（原子力機構，2016）

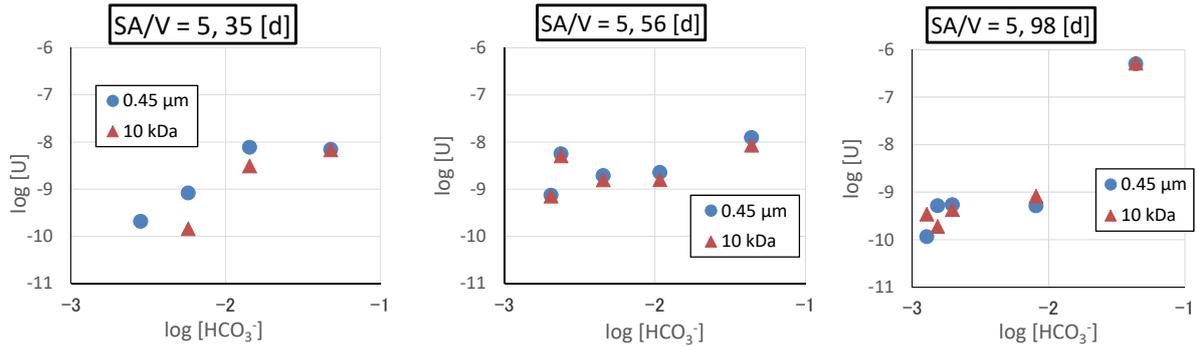


図 3.1-4 ウランの溶出に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響の例
(SA/V=5、平成 31 年度実施) (原子力機構, 2020)

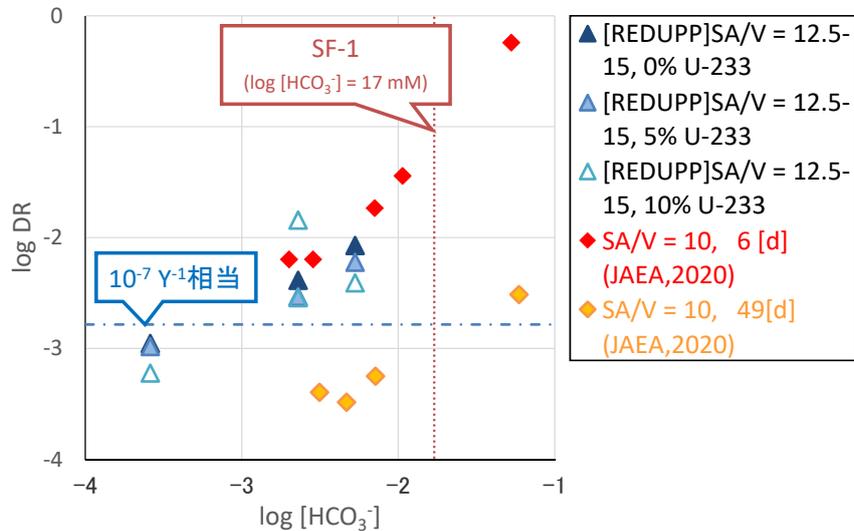


図 3.1-5 UO_2 の溶解速度に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響における REDUPP
(Evins et al., 2014) 文献値との比較 (原子力機構, 2020)

2) マトリクス溶解指標物質を二酸化ウランに固溶させたペレットの調製

① マトリクス溶解指標物質の選定

溶解速度試験を実施するにあたって、 UO_2 に固溶させるマトリクス溶解指標物質の選定を行った。既往研究では、マトリクス溶解指標物質にストロンチウム (Sr) が用いられている (Grambow et al., 2000; Loida et al., 2007)。しかしながら、Sr は炭酸共存下では炭酸塩を生成して沈殿してしまうため、本試験系には不向きである。炭酸塩を生成しないことだけに着目すれば、セシウム (Cs) などのアルカリ金属元素が最適であるが、アルカリ金属元素は UO_2 に固溶しにくいとやはり適切とは言えない。検討を重ねた結果、Sr と同じく炭酸塩を生成しやすいアルカリ土類金属元素であるものの、 UO_2 マトリクス構造において U(IV) と置換して組み込まれ、炭酸塩の溶解度が比較的高く、液相へ溶出後は加水分解が殆ど進行しないマグネシウム (Mg(II)) をマトリクス溶解指標物質として使用することとした。

② 二酸化ウランおよび酸化マグネシウムの粉末混合試料の調製

二酸化ウラン (UO_2) 粉末の調製は、平成 31 年度 (原子力機構, 2020) と同様に実施した。得られた UO_2 粉末に酸化マグネシウム (MgO) (シグマアルドリッチ社製) をモル分率 $UO_2:MgO = 95:5$ となるよう秤量し混合した。酸化マグネシウム (MgO) は、大気中の水分を吸湿し重量が増加している可能性があることから、その影響を小さくするために秤量前にマuffle炉を用いて $1000\text{ }^\circ\text{C}$ まで加熱し、その後冷却する操作を行った。こうして得られた UO_2 と MgO の混合試料を、遊星ミルを用いて微粉化した。粉砕ポッド (容量 45 mL) および混合試料とともにポッドに投入する粉砕ボール 10 個は、いずれもタングステンカーバイド (WC) 製である。実施した手順は以下のとおりである。

1. 簡易グローブボックスの中にあらかじめ秤量した UO_2 と MgO の混合試料 (以下、 UO_2 - MgO 混合試料)、粉砕ボールを入れた粉砕ポッド、アルミニウムテープを入れた。
2. 簡易グローブボックス内を真空排気した後、高純度 Ar ガス (大陽日酸製 ; 99.9999%) で置換した。この操作を 3 度繰り返した後、酸素濃度計で酸素濃度が 0.0% と表示されていることを確認した。
3. UO_2 - MgO 混合試料をポッドの中に投入し、アルミニウムテープで密封した後、グローブボックスから取り出した。
4. ポッドを遊星ミルにセットした。
5. 回転数 700 rpm で 1 時間 (5 分運転 \times 12 回繰り返し、インターバル 5 分) のプログラムで微粉化を行った。
6. 終了後、自然冷却した後、試料を取り出した。

③ (U, Mg) O_2 固溶体ペレットの成形および焼結条件の検討

上記の手順で調製した UO_2 - MgO 混合試料を $0.7 \pm 0.01\text{ g}$ 秤量し、有限会社テクノサイエンス製プレス治具 $\phi 10\text{ mm}$ に入れ、理研精機株式会社製ミニプレスセット CDM-20PA を用いて成型圧約 1.9 t cm^{-2} を 3 分間かけペレットを成型した。成型したペレットの直径、高さ、重量を測定した。その後、下記の焼結条件に応じて Ar + 10% H_2 ガスまたは高純度 Ar ガス (99.9999%) 雰囲気とした有限会社テクノサイエンス製高温ガス置換式横型管状炉の石英反応管の中で焼結処理を行った。焼結条件は以下の 4 通りである。条件②の加熱時には、U の酸化状態を評価するための UO_2 ペレット (Mg を含まない) も同時に加熱した。

条件① : Ar + 10% H_2 ガス、 $1,600\text{ }^\circ\text{C}$ で 4 時間加熱。

条件② : Ar ガス、 $1,600\text{ }^\circ\text{C}$ で 4 時間加熱。

条件③ : Ar ガス、 $1,600\text{ }^\circ\text{C}$ で 4 時間加熱後取出し、Ar + 10% H_2 ガス、 $1,600\text{ }^\circ\text{C}$ で 4 時間再加熱。

条件④ : Ar ガス、 $1,700\text{ }^\circ\text{C}$ で 4 時間加熱。

ここで、加熱プログラムは以下の通りである。

【 $1,600\text{ }^\circ\text{C}$ で 4 時間加熱】

1. 加熱開始から 3 時間で $1,000\text{ }^\circ\text{C}$ まで昇温させる。

2. その後 1 時間で 1,300 °C まで昇温させる。
3. さらに 1 時間 40 分かけて 1,600 °C まで昇温させる。
4. 1,600 °C を 4 時間維持する。
5. 冷却。

【1,700 °C で 4 時間加熱】

1. 加熱開始から 1 時間 30 分で 900 °C まで昇温させる。
2. その後 2 時間 30 分かけて 1,700 °C まで昇温させる。
3. 1,700 °C を 4 時間維持する。
4. 冷却。

④ 調製したペレットの分析と評価

前項で調製したペレット内で Mg が UO₂ ペレットに固溶されているかを確認するため、粉末 X 線回折 (XRD) および構造解析用としたものをめものう乳鉢で粉砕した。この粉末試料に対して UO₂ の酸化状態を調べるために、粉末 X 線回折 (XRD) 測定を行った。これに加えて、MgO ピークの有無を確認するために、その最強線が存在する範囲に対してより低速度で XRD 測定を行った (Fujino et al., 1997)。その条件は以下のとおりである。

- ・ 使用 X 線 : Cu-K α 線 ($\lambda = 0.154056$ nm)
- ・ 管球電圧 : 40 kV
- ・ フィラメント電流 : 15 mA
- ・ サンプリング幅 : 0.01 °
- ・ 2 θ 測定範囲 : 40.88 ~ 44.88 °
- ・ スキャン速度 : 0.1 ° min⁻¹

微粉化した UO₂-MgO 混合試料を前項で示した 4 つの加熱条件 (①~④) で焼結させたあとの分析結果と、それに基づく考察を以下に示す。条件④の Ar ガス、1,700 °C の加熱条件で調製したペレットは、加熱中に配管からの酸素混入により UO₂ が酸化してしまい、今回の浸漬試験には適さないものとなってしまったため、以下の解析は残りの 3 条件に対して行った。まず、MgO の最強線前後に対して行った XRD の結果を図 3.1-6 に示す。図からわかるように、加熱前の UO₂, MgO 混合粉末でもピークが確認できない。この結果は微粉化処置によって結晶性の低下および固溶が進んだ可能性があることを示唆しているが、後述する走査型電子顕微鏡 (SEM) による粉末形状の観察と、エネルギー分散型 X 線分析 (EDX) を用いた粒子の観察および元素色マッピングの結果と併せて考察すると、微粉化によって UO₂ および MgO の結晶性が低下したことで XRD ピークが確認できなくなったと考えられる。一方、Ar + 10 %H₂ ガス、1,600 °C で加熱した条件①では、ICSD に掲載されている 2 $\theta = 42.89$ ° の MgO 最強線が確認でき、加熱による粒子の焼結によって粒界サイズが大きくなったこと、および MgO が固溶せず存在していることがわかる。続いて、Ar ガス、1,600 °C で加熱した条件②では MgO のピークが確認できないことから、この条件では Mg の固溶が促進されていると考えられる。ま

た、条件②と同条件での加熱後に Ar + 10 %H₂ガス、1,600 °Cでの加熱を行った条件③では再び、条件①の場合とは異なるものではあるものの ICSD に掲載される $2\theta = 42.36^\circ$ の MgO 最強線が確認できることから、Ar + 10 % H₂ガス中という強い還元環境下での加熱では、加熱処理による Mg の拡散と固溶よりも還元作用による MgO の再凝集が進行したと考えられる。

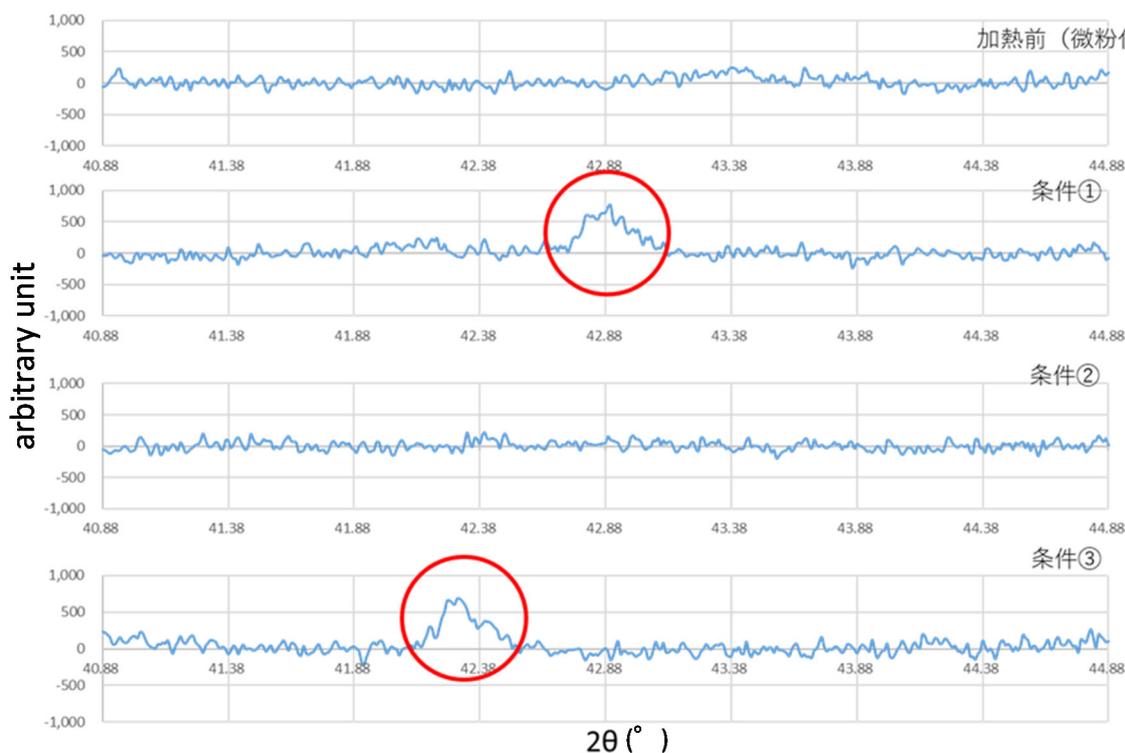


図 3.1-6 (U, Mg)O₂ 固溶体試料の MgO 最強線付近 ($2\theta = 40.88\sim 44.88^\circ$) の XRD 測定結果

UO₂ と MgO を混合した粉末試料および焼結試料に対して、SEM (日立製作所製) 観察および EDX (堀場製作所製) を用いた元素色マッピングによって、U、Mg および O 原子の分布状態の分析を行った。粉末試料は綿棒で微量をカーボンテープ上に落とす形で固定し、Au-Pd コーティングを施したうえで観察・分析を行った。

SEM-EDX による試料の観察結果を図 3.1-7~図 3.1-9 に示す。観察倍率はいずれも 7,000 倍である。図 3.1-7 は加熱前の UO₂-MgO 混合粉末を微粉化した試料、図 3.1-8 は条件① (Ar + 10 % H₂、1,600 °C) で加熱した試料、図 3.1-9 は条件② (Ar、1,600 °C) で加熱した試料それぞれの SEM 観察画像 (左上) と EDX による O (右上)、U (左下)、Mg (右下) の元素分布である。

微粉化後加熱前の結果 (図 3.1-7) を見ると、Mg のマッピング画像において明るくなっている部分があった。このことから、ボールミルを用いた微粉化处理のみでは Mg は十分には固溶せず、小さな粒界として点在していることが考えられる。続いて、加熱条件①の SEM 画像 (図 3.1-8 左上) を見ると、Ar + 10 %H₂ガス中での加熱で焼結が起り、粒子が大きくなっていることが見て取れるが、Mg のマッピング画像からは加熱前よりもさらに明るく Mg が点在する箇所がある。このことから、XRD による解析から得られた考察と同様に、Ar + 10 %H₂

ガス中での加熱は MgO 粒子の凝集を促進することが考えられる。一方、加熱条件②の結果 (図 3.1-9) を見ると、Mg の分布が U の分布と良く一致しており、同じ試料に対して行った 30 視野分の解析のうち、Mg の偏在が確認できたのは 1 視野中の 1 点のみであった。また、図 3.1-9 に示した視野中における U に対する Mg の原子存在比率は 4.6 % であり、初期添加量である 5 % に近い値が得られた。

以上の XRD および SEM-EDX の結果から、条件②による加熱によって得られた試料が最もよく固溶しており、(U, Mg)O₂ 固溶体ペレットの浸漬試験に適切であるという結論が得られた。

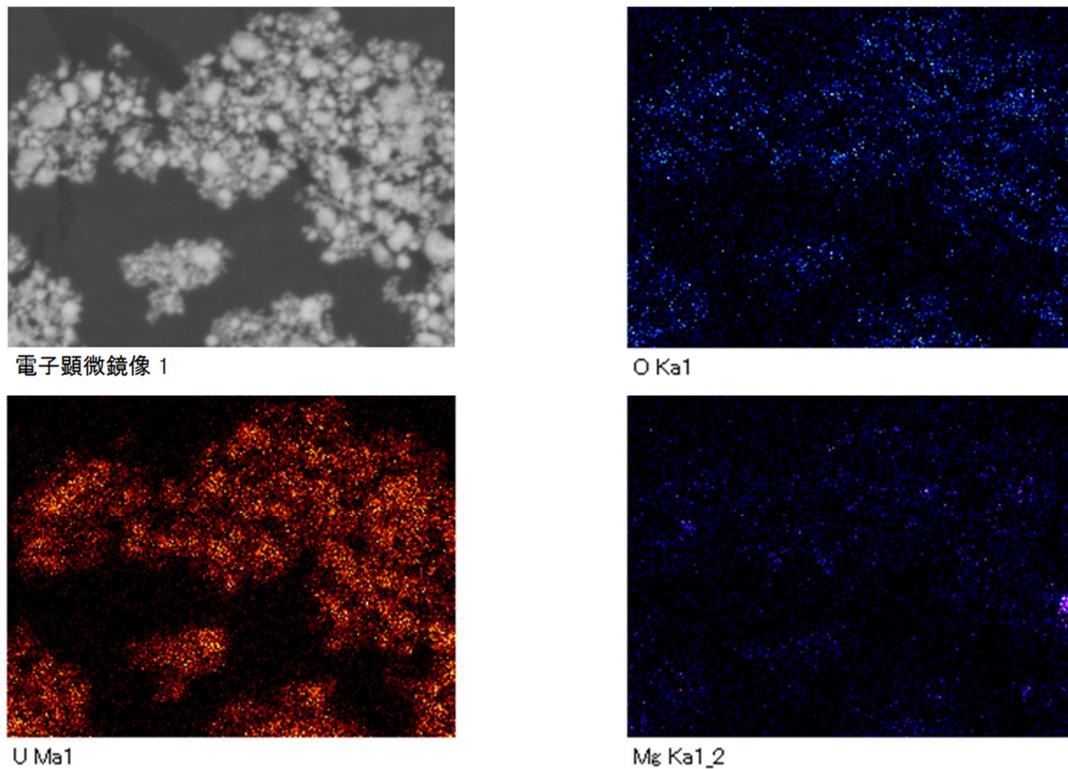
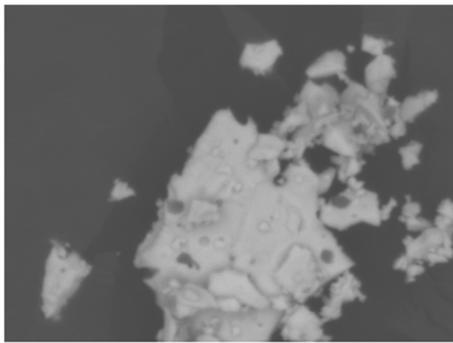
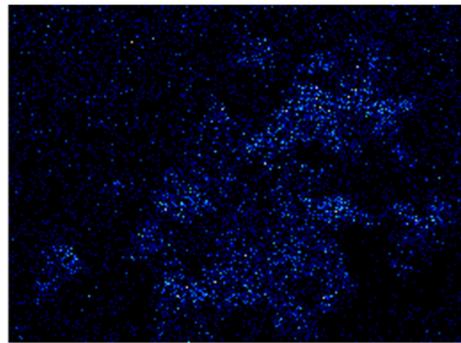


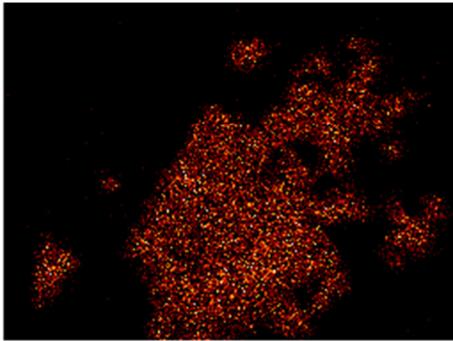
図 3.1-7 微粉化後、加熱前試料の SEM 画像と EDX によるマッピング画像
(左上 : SEM 画像、右上 : EDX O 分布、左下 : EDX U 分布、右下 : EDX Mg 分布)



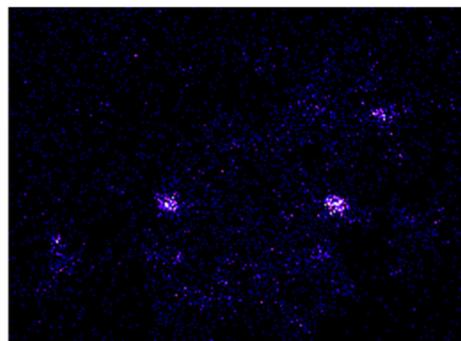
電子顕微鏡像 1



O Ka1



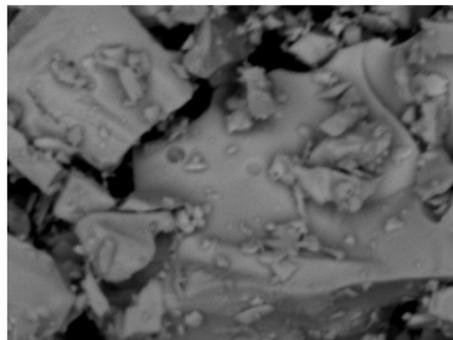
U Ma1



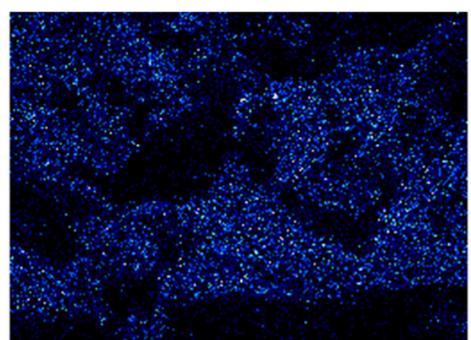
Mg Ka1_2

図 3.1-8 条件① (Ar + 10 % H₂、1,600 °C) で加熱した (U, Mg)O₂ 固溶体試料の SEM 画像と EDX によるマッピング画像

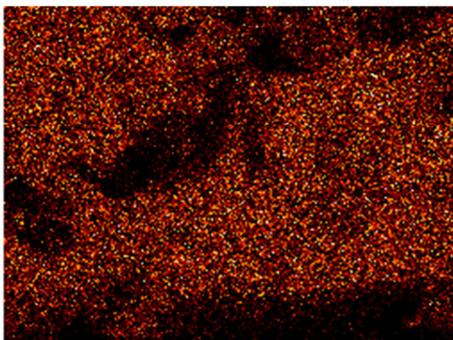
(左上 : SEM 画像、右上 : EDX O 分布、左下 : EDX U 分布、右下 : EDX Mg 分布)



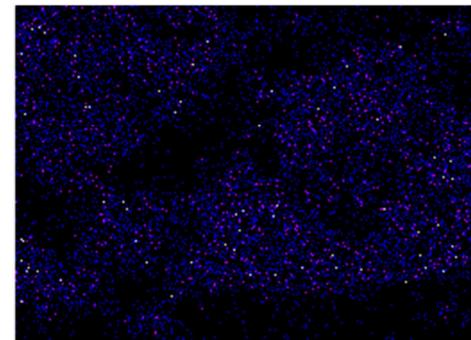
電子顕微鏡像 1



O Ka1



U Ma1



Mg Ka1_2

図 3.1-9 条件② (Ar、1,600 °C) で加熱した (U, Mg)O₂ 固溶体試料の SEM 画像と EDX によるマッピング画像

(左上 : SEM 画像、右上 : EDX O 分布、左下 : EDX U 分布、右下 : EDX Mg 分布)

次に、上記検討を踏まえて浸漬試験で用いることとした、条件② (Ar、1,600 °C) で加熱して調製した (U, Mg)O₂ 固溶体ペレットの加熱前後の直径、厚さ、重量および密度をそれぞれ表 3.1-3 および表 3.1-4 に XRD 測定結果を図 3.1-10 に示す。UO₂ ペレットの格子定数は、5.469 Å と算出された。UO_{2.00} 格子定数の報告値が 5.472 Å である (Leinders et al., 2015) ことから、この条件の加熱では U(IV) の酸化がほとんど進んでいないことが確認された。一方、(U, Mg)O₂ 固溶体ペレットの格子定数は 5.441 Å であった。以上の結果から、この条件では UO₂ の酸化はほとんど進まず、イオン半径の小さい Mg が U と置換することによる格子定数の減少が確認された。

表 3.1-3 (U, Mg)O₂ 固溶体ペレットの諸元 (加熱前)

試料	直径 [mm]	高さ [mm]	重量 [g]	密度 [g cm ⁻³]
No. 1	10.02	1.24	0.7006	7.17
No. 2	10.02	1.24	0.7008	7.17
No. 3	10.03	1.27	0.7019	6.99
No. 4	10.02	1.25	0.7017	7.12

表 3.1-4 (U, Mg)O₂ 固溶体ペレットの諸元 (加熱後)

試料	直径 [mm]	高さ [mm]	重量 [g]	密度 [g cm ⁻³]
No. 1	9.00	1.16	0.6962	9.43
No. 2	8.97	1.17	0.6959	9.41
No. 3	8.89	1.17	0.6952	9.61
No. 4	8.90	1.22	0.6971	9.18

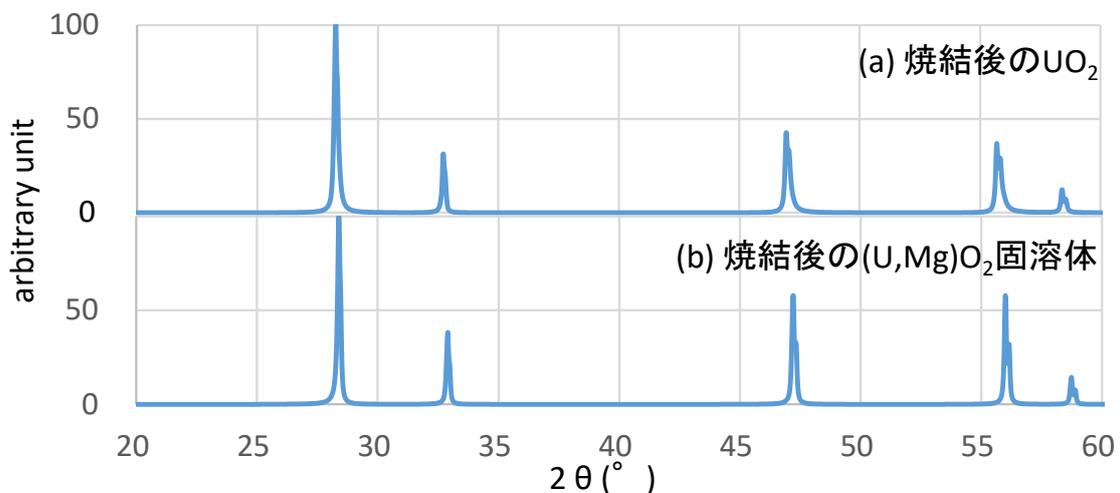


図 3.1-10 条件② (Ar、1,600 °C) で加熱した試料 XRD 測定結果
(a) UO₂ ペレット、(b) (U, Mg)O₂ 固溶体ペレット)

3) (U, Mg)O₂ 固溶体ペレットの浸漬試験

前述 2) 項で調製したペレットのうち、XRD および SEM-EDX 分析結果から U と Mg が最もよく固溶していると判断された条件②の焼結条件によって調製された (U, Mg)O₂ 固溶体ペレットを用いて、U と Mg の溶出挙動を評価するためのバッチ式浸漬試験を行った。

① 試験手順

浸漬試験は、深部地下の低酸素・還元環境を模擬した環境下で行うために、酸素濃度 100 ppm 以下を保持したアルゴン雰囲気グローブボックス中で行った。浸漬液中の炭酸水素イオン (HCO₃⁻) 濃度は、0、10、50、100 mM (mM: 10⁻³ mol dm⁻³) の 4 条件とした。イオン強度は、NaCl を用いて 100 mM に調整した。また、4 種すべての溶液に対して、pH 7.5~8.5 の範囲で pH 緩衝作用を持つグッド緩衝剤の一種である EPPS (3-[4-(2-Hydroxyethyl)-1-piperazinyl]propanesulfonic acid) と、還元剤である亜ジチオン酸ナトリウム (分子式 Na₂S₂O₄) をそれぞれ同濃度となるよう添加した。溶液相の体積は、同様の手法を用いて精力的にデータ取得を実施している Ollila (2008) を参考に、焼結後のペレットの幾何学的表面積 SA [m²] と溶液体積 V [m³] の比 SA/V が 5 m⁻¹ となるように設定した。浸漬試験条件を表 3.1-5 に示す。

表 3.1-5 (U, Mg)O₂ 固溶体ペレットの浸漬試験条件

試料	NaHCO ₃ [mM]	NaCl [mM]	EPPS [mM]	Na ₂ S ₂ O ₄ [mM]	SA/V [m ⁻¹]	ペレット 幾何学的表面積 [m ²]	ペレット中 全U量 [mol]	ペレット中 全Mg量 [mol]	溶液体積 [mL]
No.1	0	100	2	3	5	1.60 × 10 ⁻⁴	2.558 × 10 ⁻³	1.346 × 10 ⁻⁴	32
No.2	10	90				1.59 × 10 ⁻⁴	2.557 × 10 ⁻³	1.346 × 10 ⁻⁴	32
No.3	50	50				1.57 × 10 ⁻⁴	2.555 × 10 ⁻³	1.345 × 10 ⁻⁴	32
No.4	100	0				1.59 × 10 ⁻⁴	2.562 × 10 ⁻³	1.348 × 10 ⁻⁴	32

これらの溶液の調製からペレットの浸漬試験開始までの手順を以下に示す。なお、以下の作業は全て Ar 雰囲気グローブボックス内で行った。

1. 超純水に Ar + 10 % H₂ ガスを通気させ、溶存酸素を低減させた。
2. 超純水に秤量した NaCl、EPPS、Na₂S₂O₄、NaHCO₃ を添加した。
3. 0.1 M NaOH 水溶液を用いて pH を 8.0 前後に調整した。
4. それぞれの溶液を PP 製容器 (容量 50 mL) に SA/V = 5 m⁻¹ となる量取り分けた。
5. それぞれの容器に (U, Mg)O₂ 固溶体ペレットを投入して蓋をし、アルミビーズを約 3 L 入れ設定温度 25 °C とした恒温ビーズバス (アズワン株式会社製 型式:BBCW-2) の中に静置した。これを浸漬試験の開始とした。

浸漬溶液に対しては、マルチ水質計 (東亜 DKK 製) により pH および標準水素電極に対する酸化還元電位 (E_h) を測定し、pH は NaOH 水溶液および NaCl 水溶液を添加することで浸漬期間中を通して 7.5~9.0 の範囲内となるように適宜調整した。

液相に溶出した U および Mg の濃度を測定するために、浸漬開始から 1、3、7、14、25、39、60 日経過後のそれぞれの試料溶液から 650 μL の上澄み液をサンプリングし、孔径 0.45 μm

のフィルターカップに入れて遠心ろ過した。なお、浸漬開始直後はペレット最表面の U の酸化や、固溶せずに存在する Mg の存在などの要因で、U および Mg の溶出量が大きくなることが考えられるため、浸漬開始後 1 日経過後および 3 日経過後に関しては、サンプリング後に溶液を全量交換する操作を行った。そのため、浸漬開始から 3 日経過以降のデータがバッチ試験の結果となる。

ろ液に含まれる U 濃度および Mg 濃度を誘導結合プラズマ質量分析装置 (ICP-MS) で、全炭酸濃度を炭酸電極 (東興化学研究所製) で測定した。また、固溶体中の Mg 含有量を確認するため、粉碎した (U, Mg)O₂ 固溶体ペレットの一部を硝酸で溶解し、U 濃度および Mg 濃度を ICP-MS で測定用した。

② 試験結果と考察

a. 浸漬試験中の液相環境

浸漬試験中のそれぞれの液相の pH 変動を図 3.1-11 に示す。目標 pH は 7.5~9.0 であった。図中の試料 No. は表 3.1-5 に示した試料 No. に対応している。No. 3 ([NaHCO₃] = 50 mM) において、わずかに pH 9.0 を上回ったものの、おおむね目標通りの pH を維持することができた。pH の上昇に関しては、No. 2 ([NaHCO₃] = 10 mM) と No. 4 ([NaHCO₃] = 100 mM) においても同じ傾向がみられるため、溶存炭酸水素イオンの一部が脱ガスしたことが原因と考えられる。続いて、E_h の変動を図 3.1-12 に示す。E_h はどの試料においても -550~-500 mV 程度であり、強い還元環境は維持されていたと考えられる。また、炭酸電極を用いて測定した炭酸水素イオン濃度を図 3.1-13 に示す。浸漬初期は試料中の炭酸水素イオン濃度測定を適切に行うことができなかったことから、図 3.1-13 には結果を示していないものの、概ね初期設定値付近で安定していることがわかる。結果を見ると、No. 4 ([NaHCO₃] = 100 mM) の測定結果にばらつきがあるものの、添加量から大きく濃度が変化しているものは確認されず、いずれの試料からも脱ガスした炭酸イオンは微量であった。

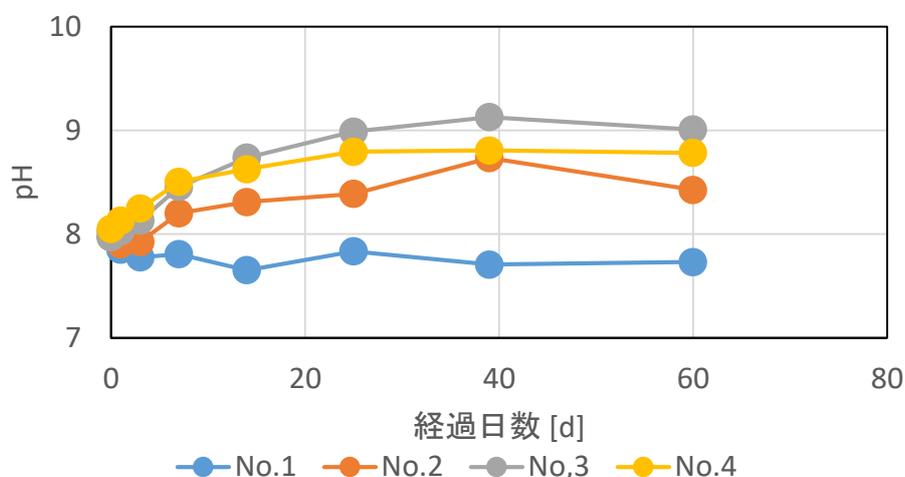


図 3.1-11 各浸漬試験試料における pH の時間変化

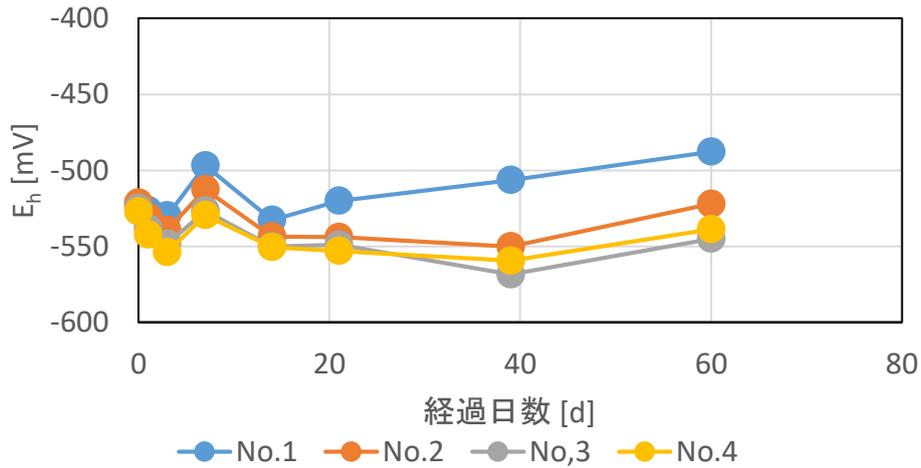


図 3.1-12 各浸漬試験試料における液相の E_h の時間変化

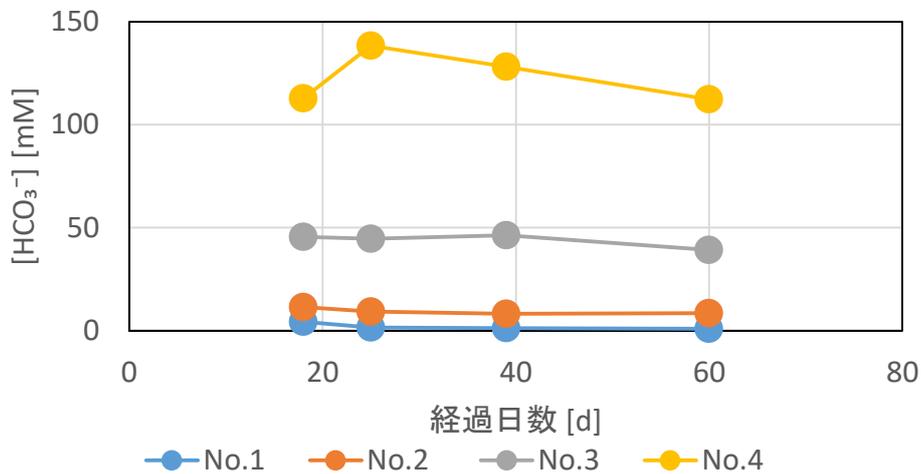


図 3.1-13 各試料における液相の炭酸水素イオン濃度の時間変化

b. U および Mg の溶出挙動

浸漬試験における U および Mg の溶出挙動をそれぞれ図 3.1-14 および図 3.1-15 に示す。浸漬開始 1 日経過後、3 日経過後には溶液を全量交換しているため、U および Mg 濃度として注目すべきは経過日数 7 日以降のデータである。

図 3.1-14 より、U は $10^{-10} \sim 10^{-8}$ M の範囲でみかけの平衡状態に近づいていく傾向がみられる一方、図 3.1-15 からは Mg 濃度が単調増加していく傾向がみられる。この Mg の結果について、線形最小二乗適合を行い、(U, Mg)₀₂ 固溶体ペレットからの Mg 溶出速度を評価した。結果を図 3.1-16 に示す。ここで、Mg の溶出速度 D_{Mg} [d⁻¹] を

$$D_{Mg} = x / x_0 \dots \dots \dots \text{式 3.1-1}$$

と定義した。x は 1 日あたり溶出した Mg 物質質量 [mol] であり、 x_0 は初期の (U, Mg)₀₂ 固溶体ペレット中の全 Mg 物質質量 [mol] である。ただし、3) ①項に示したように、浸漬試験では浸漬開

始 1 日および 3 日経過後に初期溶出成分を除去するために浸漬液の全量交換を行っている。このため、溶出速度の評価は、全量交換後の 7、14、25 日経過後の Mg 濃度測定結果より行った。

図 3.1-16 に示すように、[Mg]は浸漬日数に対して線形に上昇し、ここから求めた浸漬試験 No.1 の D_{Mg} は $(0.82 \sim 1.6) \times 10^{-5} \text{ d}^{-1}$ ($\equiv (3.0 \sim 5.9) \times 10^{-3} \text{ y}^{-1}$) と極めて大きな値になった。また、共存炭酸水素イオン濃度に対する依存性は確認されなかった。この値は平成 30~31 年度まで同じ試験系(同様の UO_2 ペレット調製手法、幾何学形状および固液比)で実施した、 UO_2 ペレット浸漬試験結果から評価した U 溶出速度 ($D_U = 10^{-8} \sim 10^{-5} \text{ y}^{-1}$) (原子力機構, 2020) と比較すると著しく大きい。

この極めて過大な Mg 溶出率が算出される理由としては、(U, Mg) O_2 固溶体ペレットに存在している微量の MgO の存在とそこからの Mg(II) の溶出が考えられる。浸漬試験に用いた (U, Mg) O_2 固溶体ペレットと同じ条件で調製したペレットの一部を粉砕し、硝酸で全溶解させたサンプルの ICP-MS 測定結果は、溶解液中の U 濃度が 472.77 ppt、Mg 濃度が 395.26 ppt であった。ペレット中には Mg が U のおよそ 5 mol%、重量では約 0.8 %含まれているはずであることから、U 濃度が 472.77 ppt であるとき、Mg は約 4 ppt 程度となるはずであるから、U の溶解量に比べて Mg の溶解量が非常に多くなっていることがわかる。

図 3.1-10 の XRD パターンが示すように、令和 2 年度の浸漬試験に供した (U, Mg) O_2 固溶体ペレット中にはマクロ成分としての MgO の存在は認められない。しかしながら、図 3.1-8 に示したような SEM-EDX による元素マッピング結果を詳細に調べると、極めて微量にはあるものの、U の分布と比較して Mg が局在している部分が確認されている。このような微小領域に MgO が存在した結果、ペレット中には (U, Mg) O_2 固溶体中の Mg(II) と MgO 構造中の Mg(II) の 2 種類が存在したと考えられる。MgO 構造中の Mg(II) の存在割合は全 Mg(II) 中の 1 %以下と考えられるものの、浸漬試験中に MgO が水和し $Mg(OH)_2$ となった場合の Mg(II) の溶出速度は極めて高いため、図 3.1-16 に示された浸漬期間 25 日までの試験では、この MgO 構造中の Mg(II) の溶出が観察されたと推察される。また、 D_{Mg} が共存炭酸水素イオン濃度に依存しないことも、観察されている Mg(II) の溶出が (U, Mg) O_2 固溶体からではなく、 $Mg(OH)_2$ からの溶出であることの推察を支持していると考えられる。

したがって、今後は、今回の試験に供した (U, Mg) O_2 固溶体ペレットを酸化力のない 1 mM 程度の希塩酸および純水で洗浄するなどにより、微量に共存している MgO 相を除去し、そのうえで浸漬試験を同様に実施し、(U, Mg) O_2 固溶体中の Mg(II) の溶出速度の評価を行う必要がある。

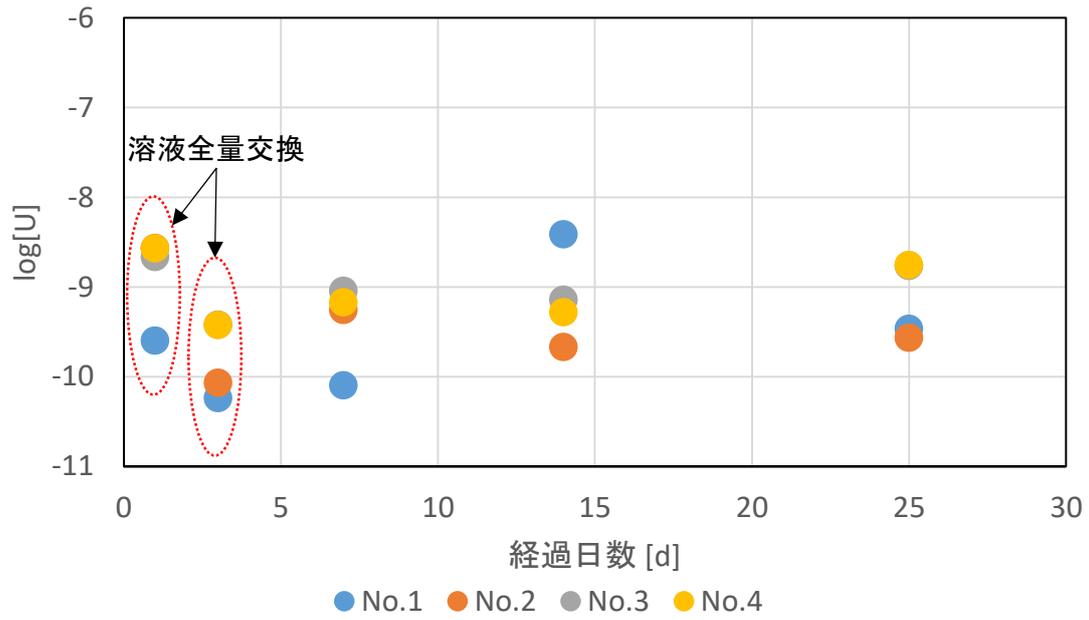


図 3.1-14 浸漬開始からの経過日数と U 濃度の対数値

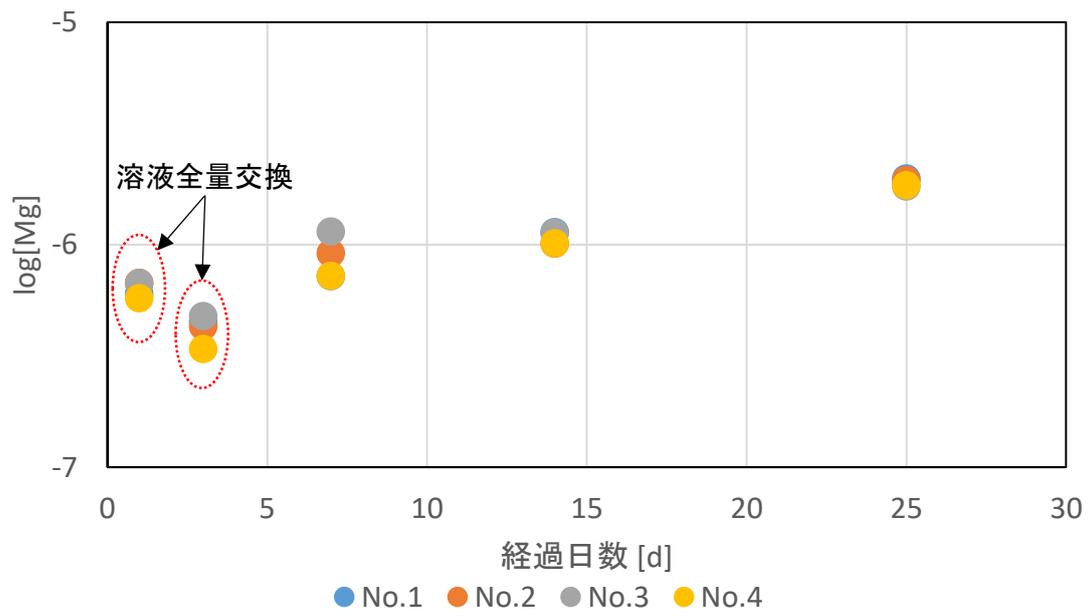


図 3.1-15 浸漬開始からの経過日数と Mg 濃度の対数値

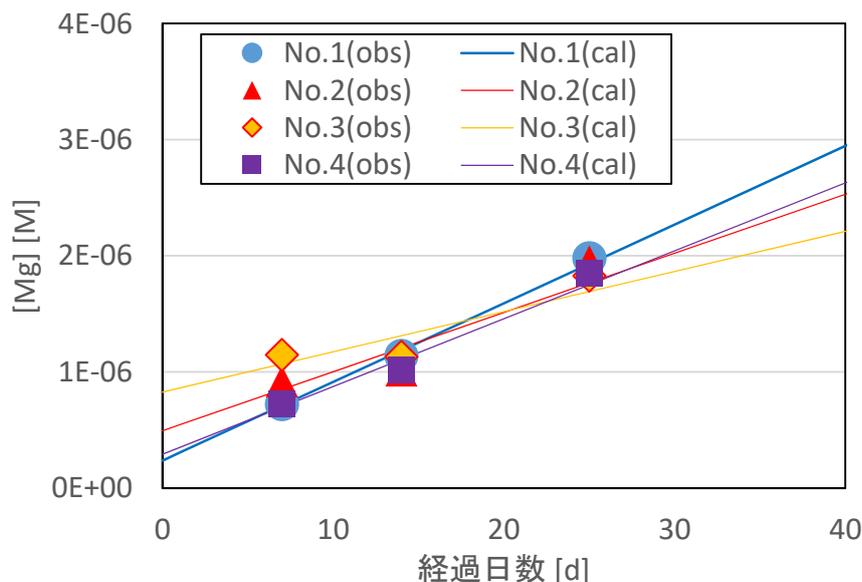


図 3.1-16 (U, Mg)O₂ 浸漬試験での Mg 溶出速度評価

(3) UO₂ 溶解度に及ぼす酸化還元電位および炭酸の影響評価

1) はじめに

平成 31 年度までに実施した UO₂ 溶解速度試験においては、ウランの溶存濃度が低下する傾向が確認された(図 3.1-4)。試験開始時の溶液にはウランが含まれていないことから、ペレットから溶解したウランが溶解度制限を超えて沈殿した可能性が考えられる。このことから、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。また、既往研究(北村ほか, 2015)では、還元条件におけるウランの溶解度は水溶液の酸化還元電位に敏感であることから、酸化還元電位を適切に制御することが課題として挙げられていた。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試験的調査を実施することとした。平成 30~31 年度は、塩濃度 0.02 M における溶解度測定を実施した。令和 2 年度は、平成 30~31 年度の結果の信頼性を向上させるとともに、標準状態(イオン強度ゼロ)の熱力学データの算出を目指して溶解度の塩濃度依存性を取得するためにより高い塩濃度に着目することとし、海水系地下水を意識した塩濃度 0.1 M における溶解度測定を実施した。この溶解度試験では、従前より実施している還元剤を添加することで酸化還元電位を制御した試験とともに、還元剤を使用せず電気化学的に酸化還元電位の制御を試みた試験も実施した。

2) 試験方法

① 非晶質二酸化ウランの調製

不飽和試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。窒素雰囲気グローブボックス内で、硝酸ウラニル 6 水和物(UO₂(NO₃)₂·6H₂O)を 1N-塩酸に溶解し 0.2mol L⁻¹のウラン(VI)母溶液を作成した。この母溶液に NaOH 水溶液を加えアルカリ性とした後、1

M の $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 溶液を添加し 2 週間保管した。

$\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 溶液添加後の試験溶液の時間変化を図 3.1-17 に、調製した懸濁液中の pH、 E_h および溶存ウラン濃度（フィルター孔径 $0.45 \mu\text{m}$ および分画分子量 10^4 (10 kDa) 通過成分) の結果を表 3.1-6 に示す。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 日後には黒緑色となり、7 日後以降は黒色であったことから、 $\text{UO}_2(\text{am})$ が生成したと考えられる。

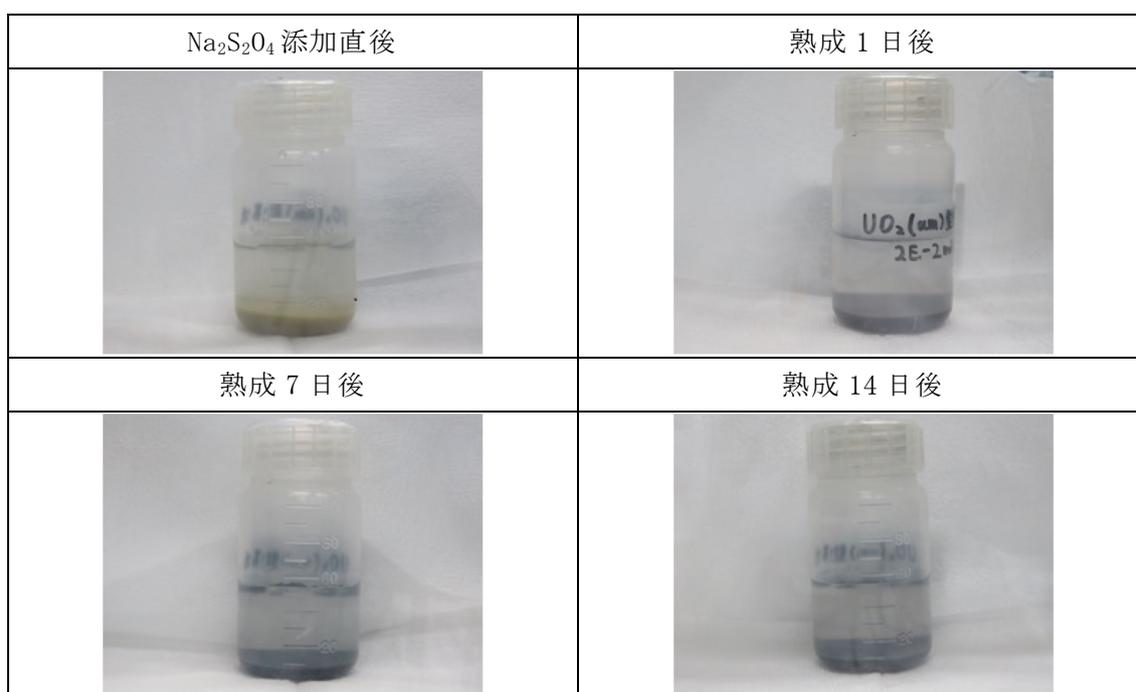


図 3.1-17 非晶質 UO_2 の調製開始時と固相熟成期間の試験容器の状況

表 3.1-6 固相熟成後の懸濁液中の各種結果

pH	E_h (mV vs SHE)	フィルター 孔径	溶存ウラン濃度 [mol dm^{-3}]
8.85	-436	0.45 μm	1.45×10^{-7}
		10 kDa	6.74×10^{-9}

② 溶解度試験

溶解度試験の条件を表 3.1-7 に示す。①項で調製した $\text{UO}_2(\text{am})$ 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する過飽和溶解度試験を実施した。不飽和溶解度試験では、 $\text{UO}_2(\text{am})$ 懸濁液に、塩化ナトリウム (NaCl) もしくは炭酸水素ナトリウム (NaHCO_3) を表 3.1-7 に示す濃度となるよう添加した。塩濃度については、平成 31 年度(原子力機構, 2020)は 0.02 M に設定したのに対し、令和 2 年度は海水系地下水を意識するとともに標準状態 (イオン強度ゼロ) の熱力学データ算出を目的として 0.1 M に設定した。過飽和溶解度試験では、ウラン(VI)母溶液に NaCl 、 NaHCO_3 および $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 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 0.001

mol dm⁻¹となるようウラン量を調整した。

試験溶液は、pHとE_hの調整後に、N₂雰囲気グローブボックス内(O₂濃度 < 500 ppm)で保持し、1週間に2回以上の頻度でpHとE_h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、E_hは-200 mV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装置(ICP-MS)にて定量した。あわせて、試験溶液中の上澄み液を分取し、炭酸ガス電極により試験溶液中の全炭酸濃度(IC)を定量した。

なお、平成31年度(原子力機構, 2020)に続き、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。具体的には、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容器を設置し、試験容器には試験液、白金電極を装荷し、攪拌用スターラーおよび試験溶液の液電位(ORP)とpHの測定器を配置した。溶液内に窒素ガスを導入(バブリング)することで、試験系を窒素雰囲気に制御し、必要に応じて水素ガスを混合した窒素ガスを導入した。装置の概念図と試験条件をそれぞれ図3.1-18および表3.1-8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。

表 3.1-7 ウラン溶解度試験条件の一覧

No.	出発物質	水溶液中濃度 [M]			ウラン濃度 [M]	pH		
		NaCl	NaHCO ₃	Na ₂ S ₂ O ₄				
1	UO ₂ (am)	0.1	0	0.001	1 × 10 ⁻³	8.5		
2		0.08	0.02					
3		0.099	0.001					
4		0.1	0			10		
5		0.08	0.02					
6		0.099	0.001					
7	ウラン(VI)母溶液	0.1	0			0.001	1 × 10 ⁻³	8.5
8		0.08	0.02					
9		0.099	0.001					
10		0.1	0					10
11		0.08	0.02					
12		0.099	0.001					

注) 同じ試験条件に対して2試料ずつを用意。

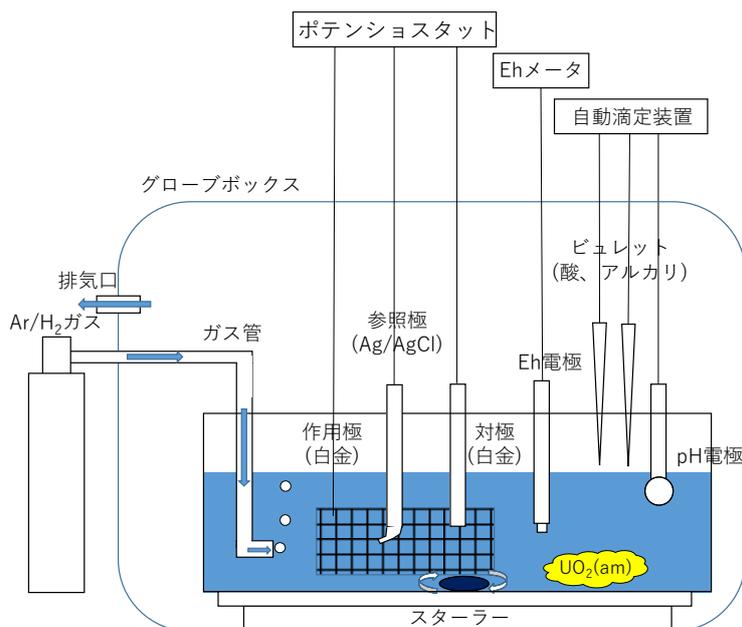


図 3.1-18 電気化学的に酸化還元電位を制御したウランの溶解度試験に使用した測定セルの概念図

表 3.1-8 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条件の一覧

Run	1	2	3
浸漬期間	1～2 週間目	3～4 週間目	5～6 週間目
濃度 (mol dm ⁻³)	NaHCO ₃	-	0.001
	NaCl	0.02	
	U	0.001	
試験水溶液量	約 1000 mL		
試験水溶液温度	約 25°C (室温)		
目標 pH	8.5		
目標 E _h [mV]	-300		

3) 結果と考察

まず、亜ジチオン酸ナトリウムにより E_h を調整した溶解度試験の 8 週間後のウラン濃度の定量結果を試験溶液中の IC を横軸として図 3.1-19 に示す。同図には、過年度に取得した溶解度試験（不飽和、過飽和）の結果を併記した。本試験における孔径 0.45 μm 通過成分の結果は、過年度のデータと整合した一方、10 kDa 通過成分の結果は全体的に過年度の結果よりもウラン濃度が低いことが確認された。このことから、本試験ではウランのコロイド種（粒径 10 kDa～0.45 μm）が生成していることがわかった。なお、平成 31 年度の結果と同様に、E_h が試験中に上昇しては Na₂S₂O₄ を追加するという作業を行ったため、E_h は主に -400～0 mV の間で変動を繰り返す結果となり、信頼できる E_h の制御に課題が残った。

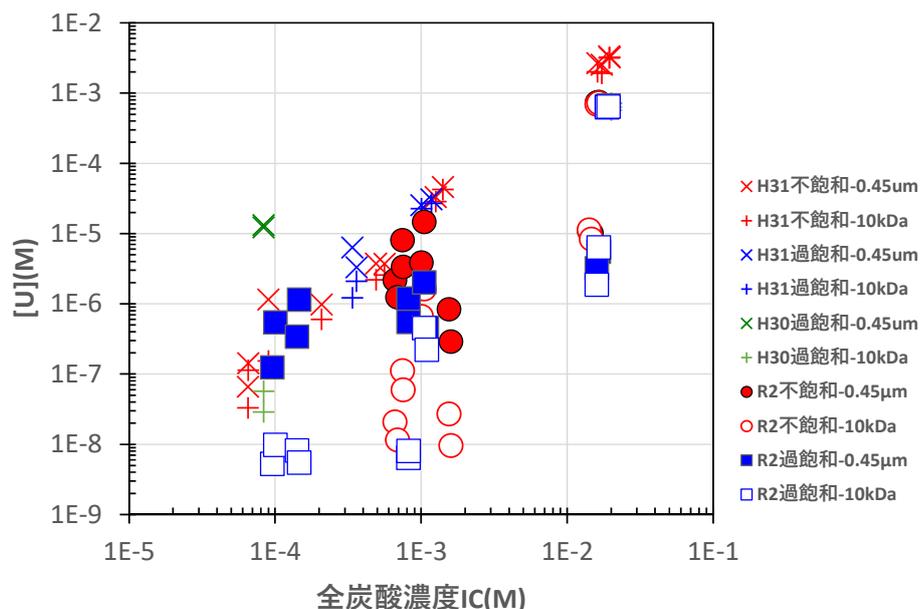
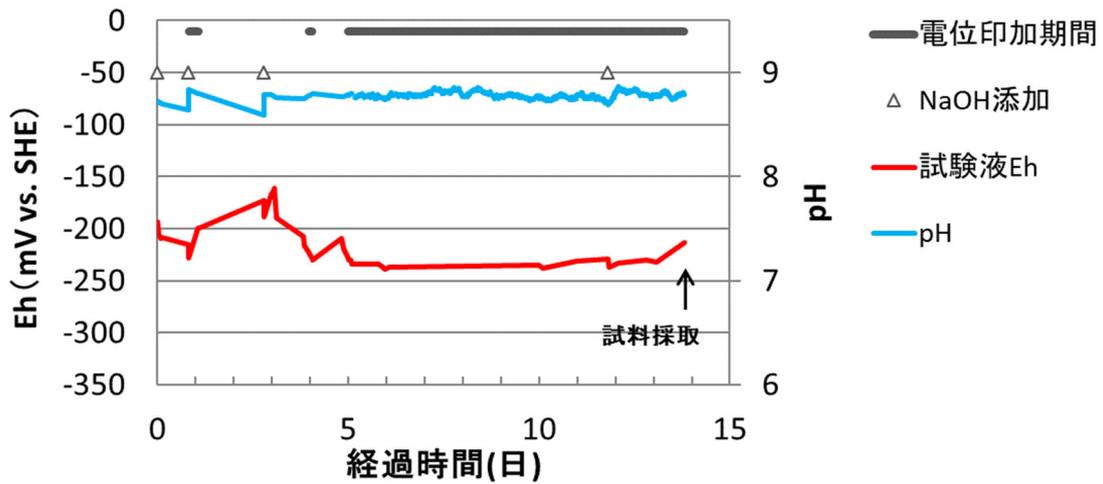
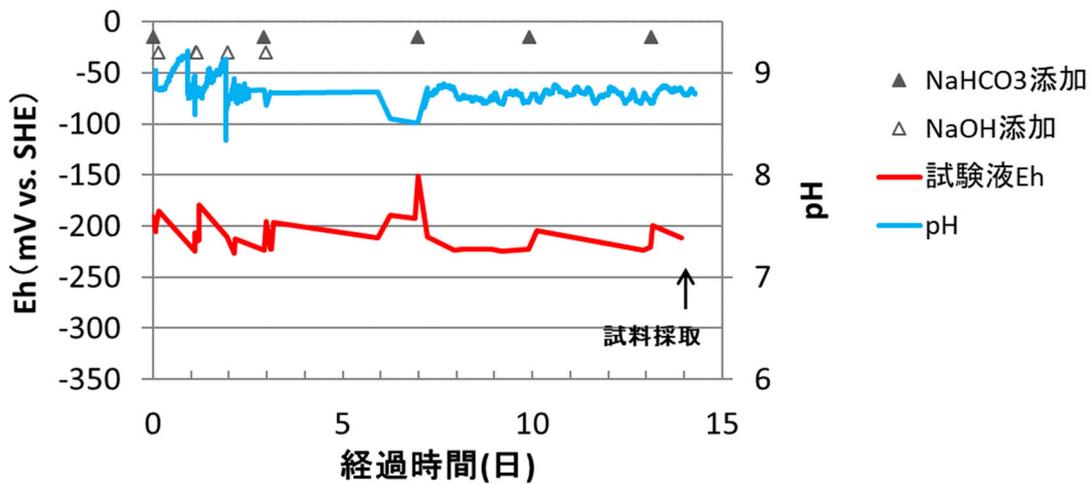


図 3.1-19 バッチ法による 8 週間後に得られたウラン濃度の全炭酸濃度依存性

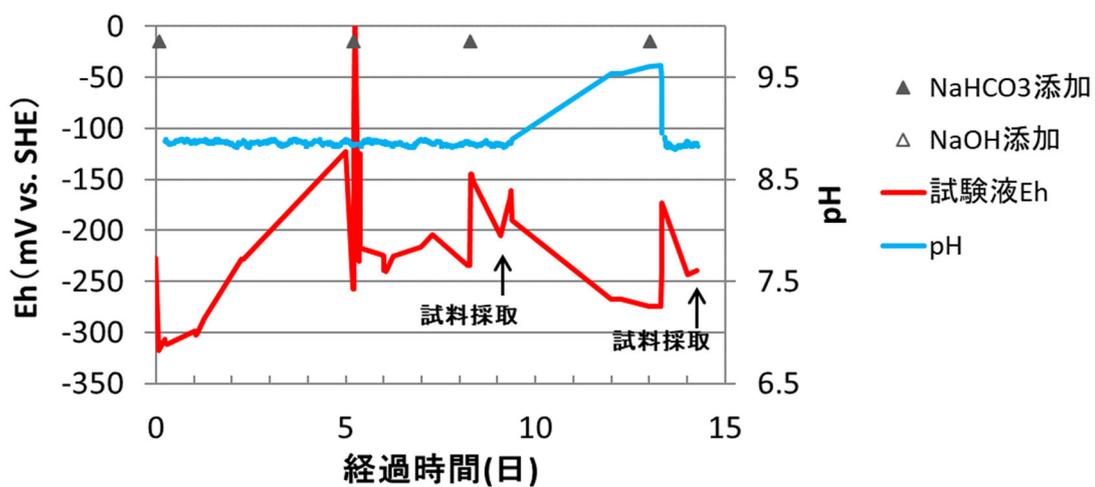
次に、電気化学的に酸化還元電位を制御したウランの溶解度試験について、pH および E_h の経時変化を図 3.1-20 に示す。図 3.1-20 より、Run-3 では pH および E_h の変動がやや大きいものの、概ね pH は 8.5~9 に、 E_h は -250~-200 mV 程度に制御されていたことがわかる。また、ウラン溶解度の IC 依存性を図 3.1-21 に示す。図 3.1-21 における灰色のプロットは、図 3.1-19 に示したバッチ試験の結果である。水素と窒素の混合ガスを導入しながら電気化学的に E_h を制御した本試験のウラン濃度は、過年度のバッチ試験の結果および今回のバッチ試験の孔径 0.45 μm 通過成分の結果と整合していることが確認された。また、この試験においては、溶存ウラン濃度の顕著なフィルター孔径依存性は見られなかった。



(a) Run-1 ($[\text{NaHCO}_3] = 0 \text{ M}$)



(b) Run-2 ($[\text{NaHCO}_3] = 1 \text{ mM}$)



(c) Run-3 ($[\text{NaHCO}_3] = 20 \text{ mM}$)

図 3.1-20 電気化学的に酸化還元電位を制御したウラン溶解度試験における pH および E_h の経時変化

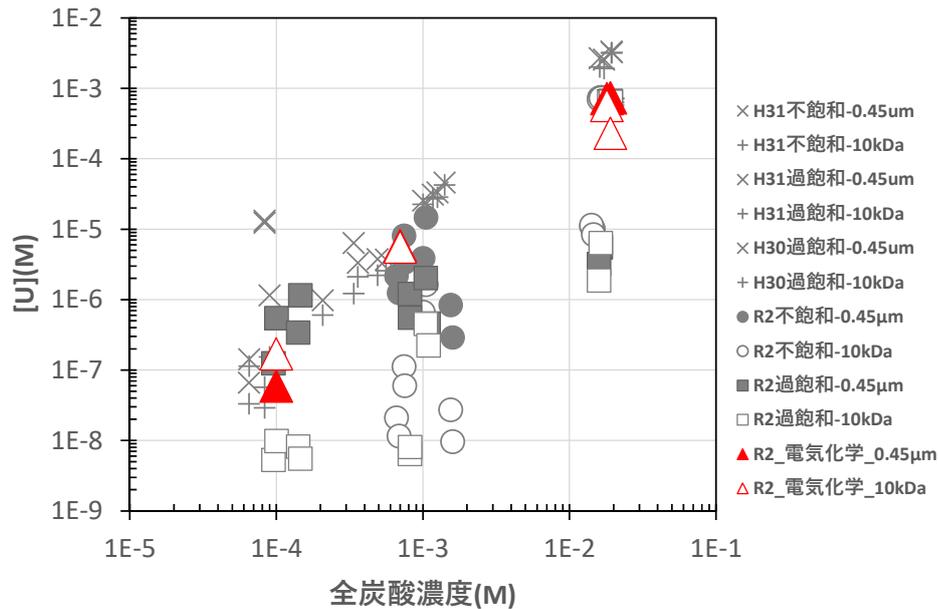


図 3.1-21 電気化学的に酸化還元電位を制御したウランの溶解度試験結果
(灰色はバッチ試験の結果を表す)

以下では、令和 2 年度および過年度の試験結果を踏まえ、ウラン溶解度の炭酸依存性について考察する。

過年度のバッチ溶解度試験結果や図 3.1-21 に示した電気化学試験結果からは、溶存ウラン濃度の全炭酸濃度依存性が両対数グラフで傾き 2 の直線となっており、支配的な溶存化学種が 6 価の炭酸錯体と推定される。一方、令和 2 年度のバッチ溶解度試験結果を見てみると、全炭酸濃度 10^{-3} M 以下では溶存ウラン濃度 (10 kDa 通過成分) が 10^{-8} M 程度と低い上に顕著な全炭酸濃度依存性が見られないこと、ウランのコロイドの生成が確認されたことを考えると、溶存ウランは 4 価の加水分解種として存在すると推定される。

試みとして、 $\text{pH} = 8.5$ 、 $E_h: -400 \sim -100$ mV において、溶解度制限固相を $\text{UO}_2(\text{am})$ と仮定した場合のウラン溶解度の熱力学計算を実施した結果について、横軸を IC としたものを図 3.1-22 に示す。計算にあたっては、熱力学データベースに原子力機構が整備した JAEA-TDB (190329s0.tdb) (Kitamura, 2019) を、計算プログラムに米国地質調査所が開発している汎用地球化学計算コード PHREEQC Ver. 3 (Parkhurst and Appelo, 2013) を用い、溶解度を制限する固相として $\text{UO}_2(\text{am})$ を仮定した。図中に示す化学種は、熱力学計算で支配的に存在すると推定されたものである。図 3.1-22 から、 $E_h = -200$ mV における計算値が、図 3.1-21 に示した試験結果とよく整合していることがわかる。このことから、本条件における JAEA-TDB を用いたウラン溶解度の熱力学計算の信頼性が確認できたと考えられる。あわせて、図 3.1-22 には、各プロットにおける支配的な溶存化学種を記載した。この計算結果によれば、支配的な 6 価の炭酸錯体は $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ であること、また図 3.1-19 での溶存ウラン濃度 10^{-8} M 付近のプロットに対応する支配溶存化学種が $\text{U}(\text{OH})_4(\text{aq})$ と推定されることがわかる。ただし、ウラン溶解度の熱力学計算は、特に E_h や IC のわずかな変化によって結果が大きく変わることもあるため、得られた結果については慎重に考察する必要がある。

以上のように、バッチ試験における E_h の制御に課題は残ったものの、過年度の結果を含め、ウランの溶解度に全炭酸濃度が大きく影響することを試験的に確認することに成功した。また、JAEA-TDB を用いた熱力学計算が実測値を概ね説明できることも確認できた。 UO_2 の溶解速度試験時のウランの溶解度を検討する際には、熱力学計算がその推定に利用できると考えられるものの、炭酸濃度、 E_h 、および溶解度を制限する固相の種類に注意する必要がある。

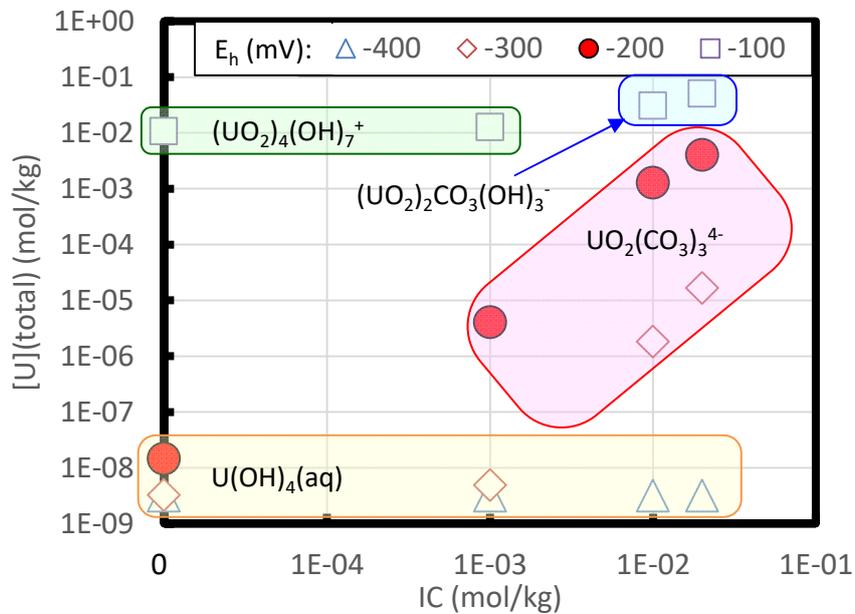


図 3.1-22 ウラン溶解度の計算値と全炭酸濃度 (IC) との関係
(図中に示す化学種は、熱力学計算で支配的に存在すると推定されたものである。)

(4) UO_2 等ウラン酸化物の表面分析等による溶解挙動の考察

1) はじめに

平成 31 年度実施の使用済燃料の溶解速度に及ぼす全炭酸濃度の影響評価の結果から、 UO_2 固相の溶解ではウランの溶出と再沈殿が並行して進むため、これらの反応過程を区別した上で反応機構に基づいて溶解速度をより適切に評価することが課題として抽出された ((2) 項参照)。この課題について検討するため、ウラン酸化物の表面分析等の試験を実施し、ウランの溶出および再沈殿過程のメカニズムについて考察を行った。

UO_2 固相が溶解する際のウランの溶出過程については、表面のウランが 4 価から 6 価に酸化され、6 価のウランが水溶性の炭酸錯体を形成して溶出する反応過程が既往研究により明らかにされている (Eriksen et al., 2012)。他方、再沈殿過程については、一度溶解した 6 価のウランが還元的な地下水の雰囲気において 4 価に戻り、 UO_2 として析出すると考えられる。この UO_2 の析出過程では 4 価の溶存ウランの加水分解が進み、非晶質の水酸化物ないしは水和酸化物 ($UO_2 \cdot xH_2O$) を経由して、結晶性の UO_2 が形成されることが考えられている (Neck and Kim, 2001)。 $UO_2 \cdot xH_2O$ の溶解度は結晶性の UO_2 に比べて高いため、水溶液中の 4 価ウランと平衡状態にある固相が非晶質の $UO_2 \cdot xH_2O$ であるか結晶性の UO_2 であるかによって、再沈殿を踏まえた溶解速度の評価は異なってくると予想される。そのため、わが国の地下環境を想定した炭酸

濃度条件において、どのような化学形のウランが再沈殿の結果として UO_2 固相表面に形成されるのかを把握することは、反応機構に立脚した溶解速度評価には不可欠である。

そこで、浸漬試験における UO_2 の表面状態の変化を分析した。 UO_2 の表面状態分析には、ラマン分光法を採用した。ラマン分光法は既往研究においても UO_2 の過定比状態等の分析に用いられてきた (Elorrieta et al., 2016) 。還元雰囲気での UO_2 の浸漬試験では、試料母材の UO_2 と再沈殿によって形成される UO_2 との間に明瞭な化学状態の差異は期待できないため、 UO_2 の微細な状態変化をラマンピークの強度やシフトから解析することを試みた。さらに、両者の峻別に資する情報を得るために、高酸化状態の U_3O_8 を試料として用いた浸漬試験を行った。 U_3O_8 試料での浸漬試験の狙いは、 U_3O_8 表面での再沈殿 UO_2 の形成をラマンスペクトルの明瞭な変化として確認し、ウランの溶出と再沈殿が並行して進むこと示すことである。また、 U_3O_8 と UO_2 のラマンスペクトルが大きく異なることを利用すれば、観測されたスペクトルから U_3O_8 成分を差し引くことで、再沈殿 UO_2 のスペクトルを取得できる。このようにして再沈殿 UO_2 のラマンスペクトルの特徴を把握できれば、 UO_2 の浸漬試験においてラマンスペクトルの形状やピークの解析から UO_2 再沈殿を判断する基準として利用できると期待した。

2) 浸漬済み UO_2 表面状態のラマン分光分析

① 試験方法

還元性炭酸塩水溶液への浸漬による UO_2 表面状態の変化を把握するため、ラマン分光分析を行った。分析に供した試料は、平成 31 年度本事業で浸漬試験を実施した試料であり、 UO_2 粉末をペレット状に圧縮成型し、10 %水素雰囲気にて 1,600 °C で 2 時間の焼結処理を行った後、298 日間の浸漬を実施したものである。表 3.1-9 に UO_2 試料の浸漬条件を示す。浸漬時には炭酸塩加えて、酸化還元電位の調整のため還元剤として亜ジチオン酸ナトリウム ($Na_2S_2O_4$) を、pH 緩衝材として EPPS を加えている。平成 31 年度の浸漬試験ではウランの溶出挙動から UO_2 の再沈殿が示唆されており、平成 31 年度の試料表面の状態を詳細に評価することで、 UO_2 の再沈殿をより具体的な反応過程として理解できる可能性がある。

表 3.1-9 ラマン分光分析に供した浸漬試験後 UO_2 試料

試料 番号	$NaHCO_3^-$ [mM]	NaCl [M]	SA/V ^a	Pellet density	Immersion days
19-1-1	50	0.1	5	6.6	298
19-1-2	10	0.1	5	6.6	298
19-1-5	0	0.1	5	6.6	298

a: ペレット表面積 SA[m²] と水溶液体積 V[m³] の比

分析には日本分光製顕微ラマン分光装置 NRS-4500 を用いた。分析光源には 532 nm、0.5 mW のレーザー光を用いて、倍率 100 の対物レンズを通して試料表面に集光させ、試料からの散乱光を測定することでラマンスペクトルを取得した。3 軸試料ステージを用いることで水平

方向および垂直方向の走査分析を行った。顕微光学系の空間分解能は、水平方向に 1 μm 、垂直方向に 1.5 μm である。水平方向のマッピング測定では、5 μm 間隔で 10 \times 10 点の分析を実施し、各分析点で 10 秒間積算測定を 2 回行い、平均スペクトルを取得した。深さ方向分析では試料表面から深部に向けて、散乱光が検出されなくなるまで 0.2 μm 間隔で分析を行った。各分析点では 20 秒積算の測定を 3 回行い、平均スペクトルを取得した。

② 結果と考察

還元性雰囲気にて浸漬した各 UO_2 試料のラマンスペクトルを図 3.1-23 に示す。図示した各スペクトルは、10 \times 10 点のマッピング測定で得られたデータを平均化処理したものである。 UO_2 のラマンスペクトルは、完全結晶であれば波数 445 cm^{-1} のピーク (T_{2g}) のみが活性であるが (Allen et al., 1987)、試験的に観測されるスペクトルでは多くの場合、結晶格子の歪みや欠陥に由来するピークが検出される。図 3.1-23 に示したラマンスペクトルにも、 T_{2g} ピークの他に、波数 1,150 cm^{-1} に大きなピークが観測され、また波数 500–700 cm^{-1} の領域にブロードな信号が見られた。

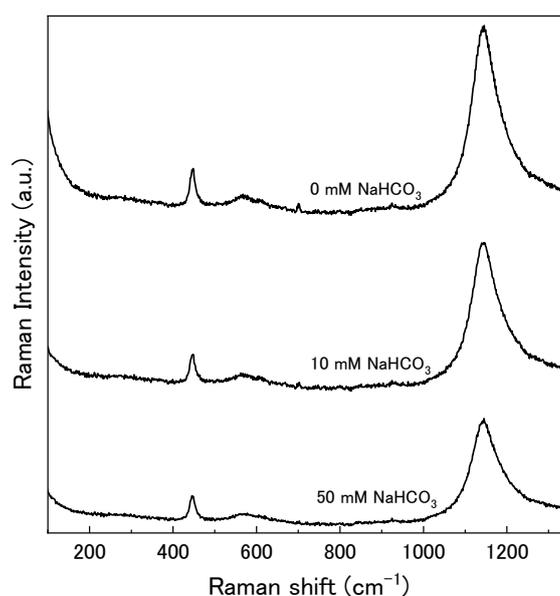


図 3.1-23 浸漬後 UO_2 ペレット試料の平均ラマンスペクトル

波数 500–700 cm^{-1} に見られる信号は欠陥由来であり、この波数領域には 3 種類のピークが現れることが報告されている。この欠陥由来のラマン信号について T_{2g} ピークと併せて解析した結果を図 3.1-24 に示した。波数 570 cm^{-1} に生じるピークは、理想的な結晶ではラマン不活性な格子振動に由来するピーク (1L0) で、欠陥や粒界による対称性の乱れを反映すると考えられている (Ekeröth et al. 2006; Rickert et al., 2019)。波数 610 cm^{-1} に現れるピーク (U3) は、 UO_2 結晶の中に入り込んだ余剰の酸素原子である格子間酸素に起因する (Senanayake et al., 2005; Livneh and Sterer, 2006; He and Shoesmith, 2010; Jégou et al., 2010b; Guimbretière et al., 2012; Elorrieta et al., 2016; Tan et al., 2019)。この U3 ピークは本試験でも観測されており、表面の酸化に伴う欠陥生成の指標として解析を行った。ま

た、定比よりも酸化状態の低い亜定比状態にある UO_{2-x} では、酸素欠陥に由来するピークが波数 525 cm^{-1} 付近に生じることが報告されているが (Guimbretière et al., 2012; Rickert et al., 2019)、本試験の分析では観測されなかった。図 3.1-23 のスペクトルには波数 700 cm^{-1} に微弱なピークが観測されるが、ウラン酸化物のラマンスペクトルについての文献情報では該当する報告がなく、帰属することができなかった。波数 $1,150\text{ cm}^{-1}$ のピークの帰属は 1L0 ピークの倍波数の 2L0 ピークとする報告 (Livneh and Sterer, 2006) と、結晶場遷移 (CFT) に対応させる報告 (Jung et al., 2015) がありその帰属解釈は分かっている。近年、この波数 $1,150\text{ cm}^{-1}$ ピークに対して、Elorrieta らは、2L0 ピークが正確に 1L0 ピークの 2 倍の波数位置に現れるとして、若干高波数側に現れる CFT ピークと分離する解析法を報告した (Elorrieta, et al., 2018)。本試験では 532 nm のレーザーを励起光として用いたが、この場合には UO_2 に励起光が吸収されることで 2L0 ピークの強度が増すことが知られている (Livneh and Sterer, 2006; Sarsfield et al., 2012)。そのため、本試験ではこの $1,150\text{ cm}^{-1}$ のピークを主として 2L0 に帰属し、Elorrieta らの方法を採用して CFT の寄与を差し引く解析を行った。

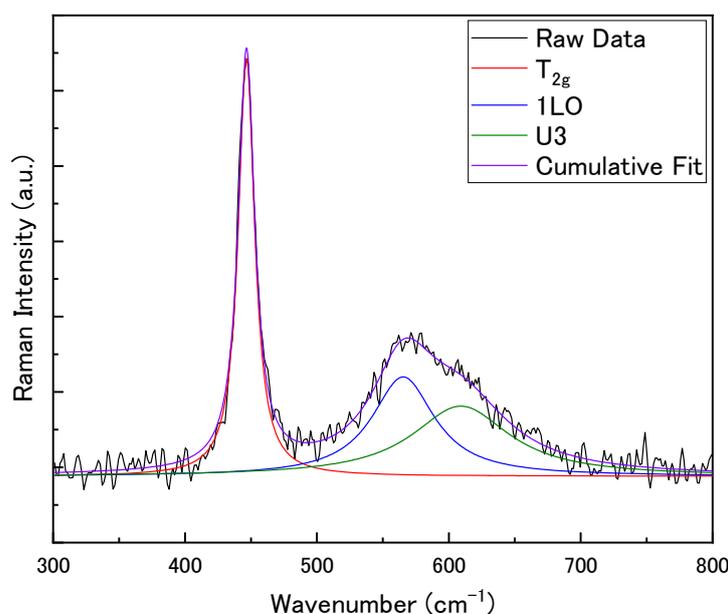


図 3.1-24 T_{2g} ピーク (445 cm^{-1}) および欠陥由来のラマンピーク ($500\text{--}700\text{ cm}^{-1}$) の解析例

これらのラマンバンドを解析することにより、浸漬後の UO_2 表面の状態について調べた。まず、波数 $1,150\text{ cm}^{-1}$ の 2L0 ピークに着目すると、その強度が炭酸塩濃度に比例して弱くなっていることが分かる。2L0 ピークの T_{2g} ピークに対する相対強度は UO_2 結晶中の欠陥の増加に従って減少することが知られており、 $2L0/T_{2g}$ の強度比および面積比は格子欠陥の目安として用いることができる (Rickert et al., 2019)。そこで、 T_{2g} と 2L0 の 2 本のピークの強度および面積値の比を取って、各試料の比較を行った。二本のピークの強度比および面積比を図 3.1-25 に示す。各炭酸塩濃度での 3 点のプロットは、同一試料の表面から無作為に定めた 3 箇所での分析エリアでの結果であり、各分析エリアで 121 点の点分析を行って平均を求めたものである。図 3.1-25 に示した $2L0/T_{2g}$ の強度比および面積比は、浸漬時の炭酸塩濃度の増加

によって減少する傾向を示しており、高濃度の炭酸塩水溶液に曝露されることで、 UO_2 表面での欠陥形成が促進されたことが示唆される。表面の欠陥生成は還元性雰囲気での浸漬においても、 UO_2 の表面状態を変化させる反応が生じたことを示すものである。また、異なる分析エリアの間で分析値に有意な差が観測されたことから、試料表面の欠陥形成に至る反応は不均一に進行したと考えられる。

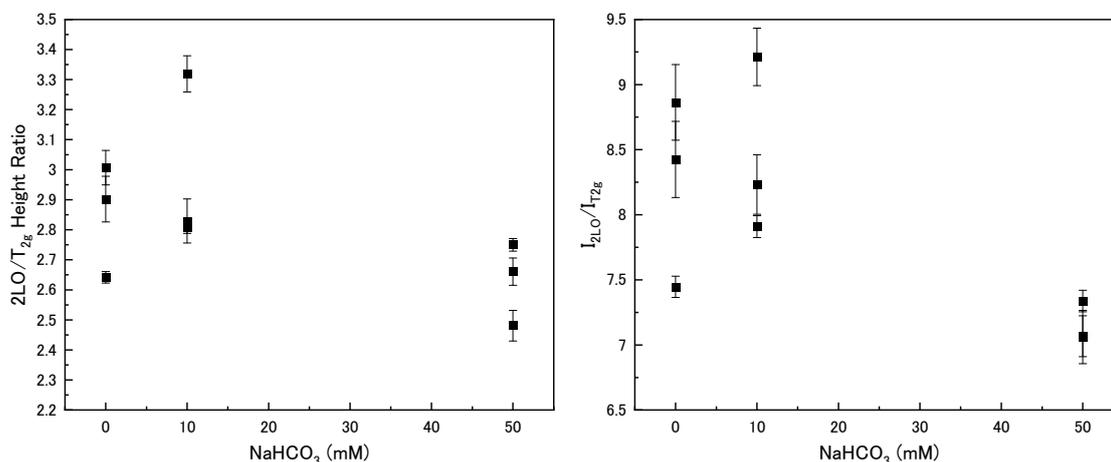


図 3.1-25 2L0 と T_{2g} の比較 (左：ピーク強度比、右：面積比)

次に、格子間酸素に起因する $U3$ ピークに注目し、表面の酸化に伴う欠陥の生成について解析した。 $2L0$ ピークの解析と同様に、 T_{2g} ピークに対する面積比を解析し、結果を図 3.1-26 に示す。 $2L0$ ピークと比較すると、 $U3$ ピークの面積比には同じ分析エリア内においても各点の分析の結果に大きなばらつきが見られ、試料 19-1-1 (炭酸塩濃度 50 mM) の 1 データを除いて、各試料間・分析エリア間の有意な差は認められなかった。試料 19-1-1 では $U3$ ピークが顕著に観測されたエリアが存在しており、 UO_2 表面の酸化が局所的に進んだと考えられる。この $U3/T_{2g}$ 面積比の増加は $2L0/T_{2g}$ の解析結果と整合しており、表面酸化に伴って格子欠陥が増加したと解釈できる。一方で、他の分析エリアでは $U3$ ピークの面積比は炭酸塩濃度に有意に依存していないが、 $2L0$ ピークには減少傾向が見られたため、この結果は格子間酸素以外の欠陥が生じた結果と考えることができる。この酸化を伴わずに欠陥密度が増加する状況は、表面 UO_2 の結晶性の低下を示唆するものと考えられる。平成 31 年度浸漬試験で溶出ウラン濃度の低下が観測されたことを踏まえると、還元条件での溶存ウラン濃度の低下は 4 価ウランが水酸化物もしくは酸化物として再沈殿したと考えられる。この結果生じた非晶質の $UO_2 \cdot xH_2O$ が表面に存在し、その結晶性の低さが欠陥として観測された可能性がある。

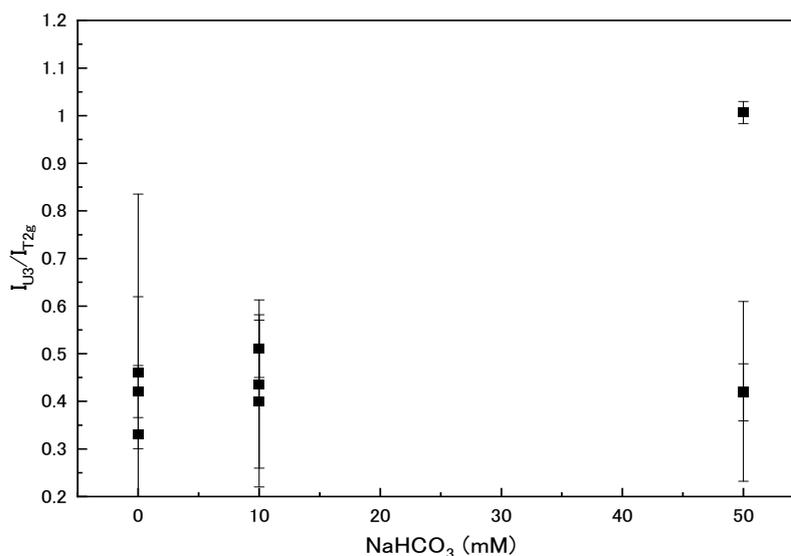


図 3.1-26 U3 と T_{2g} の比較 (面積比)

これらのラマン分光分析の結果をまとめると、浸漬時の炭酸塩濃度に依存して、表面には欠陥が形成されるが、この欠陥形成は表面の酸化反応に伴うものと、結晶性の低下によるものと考えられる。これらは表面酸化によるウランの溶出と再沈殿による非晶質の $UO_{2-x}H_2O$ の生成に対応した表面状態の変化である可能性がある。ただし、2L0 ピーク強度も U3 ピーク強度も分析値に大きなばらつきがあるため、これらの表面反応は全面的に同じではなく、場所毎に不均一に進行したことが分かる。試料表面の状態の不均一性に加えて、2種類の反応を示唆する分析結果の複雑さもあり、令和2年度の結果から溶出と再沈殿を表面分光により確認できたと断定するには至らなかった。そのため、今後の課題として、試料表面の不均一性を踏まえ、さらにデータ点を拡充した上で統計的に解析し、ラマンスペクトルの変化と浸漬時の試料表面での反応との対応関係を明確にする必要がある。なお、使用済燃料の浸漬試験で報告されたような酸化や照射による劇的なスペクトル変化 (Jégou et al., 2010a) は観測されていないため、この点は UO_2 の還元条件の浸漬試験の結果として妥当なものと考えられる。

3) U_3O_8 試料の浸漬試験

① 試験方法

UO_2 表面状態のラマン分光分析では炭酸塩濃度に依存した欠陥の形成が示唆された。このラマンスペクトルの変化での $U3/T_{2g}$ 面積比の増加と $2L0/T_{2g}$ 面積比の減少は、それぞれ表面の酸化の進行に伴ってウランが溶出する過程と UO_2 の再沈殿過程を反映したものと期待される (Eriksen et al., 2012)。そこで、 UO_2 と組成の異なる U_3O_8 試料を用いた $Na_2S_2O_4$ 還元性水溶液への浸漬試験を行い、再沈殿 UO_2 のラマンスペクトル測定を試みた。本試験の狙いは、 U_3O_8 を用いることでの再沈殿 UO_2 の形成をラマンスペクトルの明瞭な変化として確認することであり、具体的には浸漬試験後のラマンスペクトルに結晶性の低い UO_2 のスペクトルが現れることを期待した。この再沈殿 UO_2 のスペクトルを取得し、そのスペクトル形状やピーク位置等の特徴を把握できれば、 UO_2 再沈殿が生じたか否かを判断する基準データとして利用できる

る。また、ウランの溶出が U_3O_8 のラマンスペクトル与える影響を把握するため、過酸化水素 (H_2O_2) を添加した酸化性雰囲気での試験についても実施した。これは、 U_3O_8 からのウランの溶出に伴って U_3O_8 表面のラマンスペクトルに変化が生じる場合、還元性雰囲気での浸漬試験において、ウランの溶出によるスペクトル変化を UO_2 再沈殿の結果と誤って解釈する可能性があるためであり、酸化性雰囲気での浸漬試験によりウランの溶出によるスペクトル変化を UO_2 の再沈殿の結果と誤認する可能性を排除するために実施した。酸化性雰囲気の試験では、意図的に再沈殿の生じない条件で U_3O_8 からウランを溶出させ、ラマンスペクトルの変化を調べた。これらの試験では、還元条件での浸漬後に U_3 と $2L_0$ のどちらのピークも弱い UO_2 スペクトルが観測され、酸化性雰囲気の試験でウランの溶出が U_3O_8 のラマンスペクトル有意な変化を与えないことが確認できることを期待した。このような結果が得られれば、前項の UO_2 の表面状態の分析で観測されたラマンスペクトルの変化うち、 U_3/T_{2g} が増加せずに $2L_0/T_{2g}$ が減少する変化が UO_2 再沈殿によるものと考えることができる。さらに、再沈殿 UO_2 の基準となるスペクトルが得られれば、そのスペクトルを利用して前項で取得したラマンスペクトルデータを再解析することで、ラマンスペクトルの変化と UO_2 再沈殿過程の関連をより明確に示すことができる。

浸漬試験に用いた U_3O_8 試料は、金属ウランから調製した。金属ウラン片を硝酸水溶液に加熱溶解し、蒸発乾燥させて硝酸ウラニルを得た。この硝酸ウラニルを粉碎後に、空気中にて $750\text{ }^\circ\text{C}$ で 3 時間加熱し、 U_3O_8 とした。 U_3O_8 の生成は粉末 X 線回折により確認した。この U_3O_8 粉末を直径 7 mm のペレット状に圧縮成型し、浸漬中の折損を防ぐため樹脂上に固定した。

還元条件での U_3O_8 試料の浸漬は、炭酸塩濃度 0.1 mM および 1 mM の条件で 3 週間実施した。水溶液は予め Ar ガスで脱気し、還元剤として $Na_2S_2O_4$ を 5 mM 添加した。また、pH 制御のため緩衝剤 (EPPS) を 6 mM 加え、水酸化ナトリウム (NaOH) を添加して pH を 8 に調整した。浸漬はウォータージャケット付きのガラス容器で行い、温度を $25\text{ }^\circ\text{C}$ に保持した。浸漬後に U_3O_8 試料を取出し、真空デシケータで乾燥させたのち、ラマン分光測定を実施した。

酸化性雰囲気での試験は、試験時間を短縮するため U_3O_8 を成型する前の粉末を用いた。またウランの溶出を促進するため H_2O_2 を酸化剤として添加した。 U_3O_8 粉末 50 mg を炭酸塩濃度の異なる水溶液 50 cm^3 加えた後、 $300\text{ }\mu\text{M}$ の H_2O_2 を添加した。試料には pH を約 9 に調整するため NaOH を添加し、 $25\text{ }^\circ\text{C}$ に保持した。試料溶液を適時分取し、 H_2O_2 濃度と溶存ウラン濃度を測定した。 H_2O_2 濃度の測定には Ghomley tri-iodide 法 (Allen A. O., 1952) を、溶存ウランの測定には誘導結合プラズマ発光分析装置 PerkinElmer 製 Avio 200 を用いた。ウランの溶出を確認した後、 U_3O_8 粉末を回収し、ラマン分光測定を実施した。

② 結果と考察

還元条件での U_3O_8 浸漬試験では、浸漬後の試料表面をラマン分光法により分析した結果、浸漬前後に有意なラマンスペクトルの変化は観測されなかった。図 3. 1-27 に浸漬前後の U_3O_8 試料のラマンスペクトルを示す。還元性雰囲気での浸漬後にも UO_2 に帰属できるスペクトルが観測されなかったことから、浸漬による表面の変化が本試験で用いたラマン分光測定の検出限界未満であったと考えられる。測定に用いたラマン分光装置の空間分解能は深さ方向に $1.5\text{ }\mu\text{m}$ であるため、再沈殿 UO_2 がこの分解能よりも著しく薄層である場合、その情報は母材

のスペクトルに埋もれる。そのため、平成 31 年度の UO_2 浸漬試験においても、本試験と同様に有意なラマンピークを与えるほど再沈殿が進んでいなかった可能性は考えられる。還元条件での UO_2 浸漬試験中の溶出ウランの濃度は $10^{-10} \sim 10^{-8}$ M と極めて低濃度であり、再沈殿した UO_2 が微量であるために 1.5 μm の深さ方向分解能では検出できない可能性は十分に考えられる。再沈殿 UO_2 の積層厚さが本試験で用いたラマン分光装置の検出限界以下であった可能性を踏まえると、図 3.1-25 および図 3.1-26 に示したラマンスペクトルの変化を UO_2 再沈殿によるものと断定することはできない。ただし、本試験での UO_2 の再沈殿反応が不十分であった可能性も考えられる。本浸漬試験の条件は UO_2 の試験を参考にしたが、 U_3O_8 は UO_2 に比べて高酸化状態であるため、 UO_2 の再沈殿を生じさせるにはより多くの還元剤が必要と考えられる。実際に、3 週間の浸漬後には酸化還元電位が +100 mV 程度まで上昇しており、 $Na_2S_2O_4$ の消費が確認された。そのため、溶出したウランの還元反応は起きていると考えられるが、浸漬液を還元条件に保つには $Na_2S_2O_4$ の濃度が不足していたと考えられる。再沈殿 UO_2 の基準データを取得するためには、浸漬期間中に $Na_2S_2O_4$ を追加する、もしくは浸漬液を交換する等、浸漬条件について検討し、 UO_2 再沈殿反応がさらに進むような条件で試験を行う必要であると考えられる。

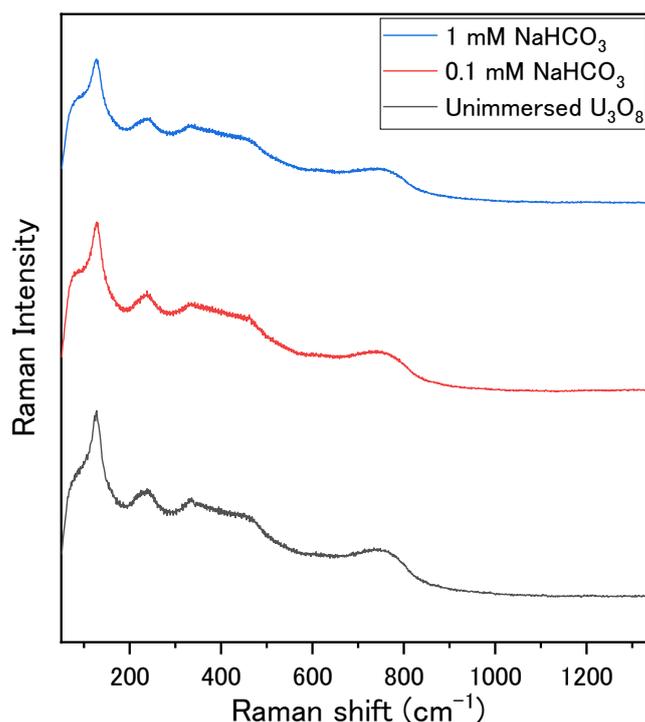


図 3.1-27 浸漬試験前および後の U_3O_8 試料のラマンスペクトル（還元条件）

一方で、酸化性雰囲気での浸漬試験では、浸漬後のラマンスペクトルに変化が観測された。浸漬試験前後の U_3O_8 試料のラマンスペクトルを図 3.1-28 に示す。スペクトルの変化は炭酸塩濃度の高い試料において顕著であった。 U_3O_8 の水溶液中での反応によるラマンスペクトルの変化については、参照となる文献情報が乏しく、 U_3O_8 の物性変化との対応関係を明確にすることはできなかった。しかし、以下に記載するように浸漬液の分析結果との比較から、ウラン

の溶出との関係性が示唆された。

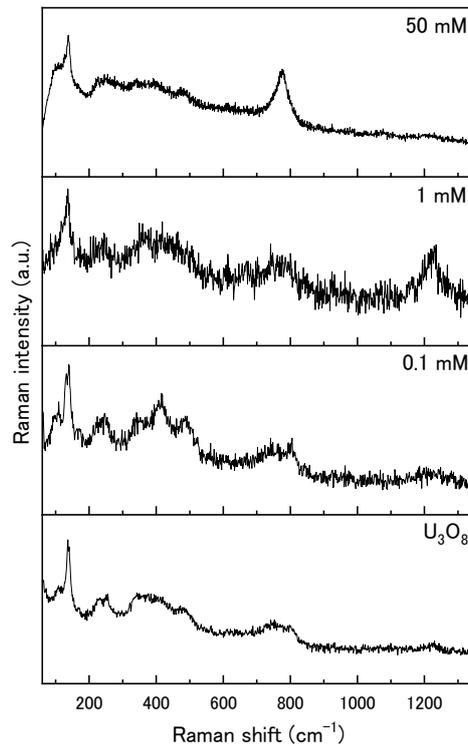


図 3.1-28 浸漬試験前および後の U_3O_8 試料のラマンスペクトル（酸化条件）

U_3O_8 試料の浸漬試験におけるウランの溶出挙動と H_2O_2 の濃度変化を図 3.1-29 に示す。ウランの溶出は炭酸塩濃度に依存して大きく増加した。一方で、これと比較すると、 H_2O_2 の反応挙動に対する炭酸塩濃度の影響は大きくない。炭酸塩濃度の低い条件では、ウランの溶出を伴わずに H_2O_2 の反応が進行したため、6 価に酸化されたウランは U_3O_8 試料の表面に留まったと考えられる。

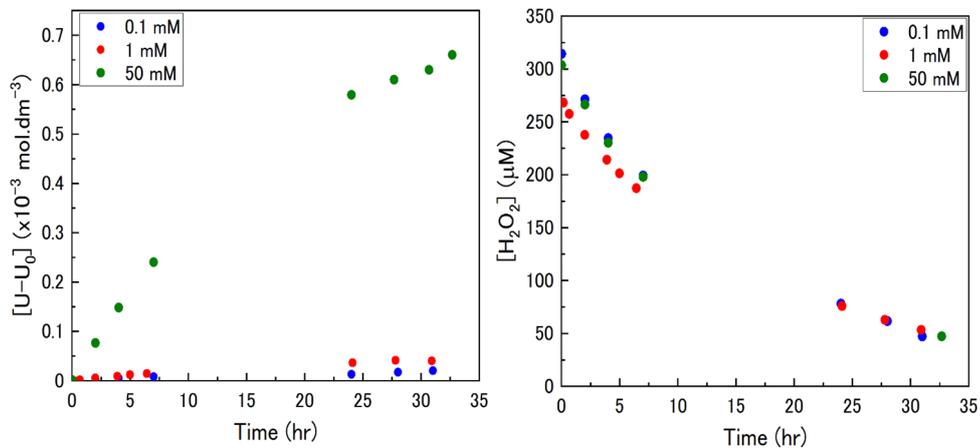


図 3.1-29 炭酸水溶液中での U_3O_8 と H_2O_2 との反応によるウランの溶出挙動（左）と H_2O_2 の濃度変化（右）

溶出ウラン濃度の分析結果から炭酸塩濃度の高い条件においてウランの溶出が顕著であり、同時にラマンスペクトルの変化も観測されていることから、酸化性雰囲気での U_3O_8 の浸漬試験で観測されたラマンスペクトルの変化はウランの溶出によるものと推測される。他の 6 価ウラン化合物の析出もラマンスペクトルを変化させる要因となる（例えば、重ウラン酸ナトリウムは波数 790 cm^{-1} に強いラマンバンドを持ち、低波数側にも幾つかのバンドが観測される（Lin et al, 2014））ものの、変化が観測された炭酸塩濃度の高い条件では 6 価ウランの溶解が促進されるため、ラマンスペクトルの変化が析出物によるものとは考えにくい。一方で、炭酸塩濃度 0.1 mM の条件で実施した浸漬試験では有意なラマンスペクトルの変化は観測されなかった。したがって、再沈殿 UO_2 の基準データを取得するためには、ウランの溶出によってラマンスペクトルが変化する可能性の低い低炭酸塩濃度の浸漬液を用いることが好ましく、還元条件での浸漬試験における炭酸塩濃度の設定（ 0.1 mM 、 1 mM ）は妥当であったと考えられる。

これらの U_3O_8 試料の浸漬試験では当初期待したような再沈殿 UO_2 に帰属できるスペクトルは観測されず、還元性雰囲気での浸漬においても再沈殿 UO_2 の生成量は本試験で用いたラマン分光装置の検出限界以下である可能性を示唆する結果となった。浸漬時の還元条件の維持に課題は残るものの、2) 項で観測された UO_2 試料のラマンスペクトルの変化を UO_2 の再沈殿に帰属することを支持する結果は得られなかった。そのため、2) 項の結果から示唆される表面の結晶性の低下に関しては、再沈殿だけではなく、欠陥生成を伴う UO_2 母材の変化を反映している可能性が示唆される。

本試験では再沈殿 UO_2 を観測することができなかつたため、今後はまず非晶質の $UO_2 \cdot xH_2O$ の分光特性を把握することを進める。本事業で実施している還元雰囲気での浸漬試験の条件からは外れるが、6 価ウラン水溶液を出発物質として還元反応により UO_2 を析出させ、ウラン水酸化物や非晶質の $UO_2 \cdot xH_2O$ のラマンスペクトルを取得する。これらの析出物の分光データに基づいて還元性雰囲気での浸漬した UO_2 の表面のラマンスペクトルを解析し、 UO_2 の再沈殿過程の検討を深める。

(5) 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、わが国での直接処分性能評価を目的とした使用済燃料による瞬時放出率（IRF）や燃料溶解速度についての試験研究は皆無であったことから、先行事業ではそれらの設定について、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、参考としたすべての 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、核分裂生成ガス放出率（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、FGR と相関関係を持つとされている I、Cs および C1 の IRF 設定に活用した。

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評価まではできない。

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) に浸漬し、溶出核種の時間変化から IRF を測定する試験研究を実施することとした (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、実際の使用済燃料を用いた試験を行うホットセル内に還元雰囲気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し、大気雰囲気での試験手順や操作等を確立するとともに参考となるデータ取得を行うこととした。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とともに、適切な試験容器や治具の設計および製作を実施した。令和 2 年度は、平成 31 年度に設計した試験容器および治具類を使用したモックアップを実施し、より作業効率を高め、かつ安定して試験が遂行できるように部材の改良を実施した (後述の 2) ①項)。並行して、浸漬試験中に使用済燃料試料周囲に生じる過酸化水素量の評価のため、燃料試料周辺に着目したセル内の空間線量率を測定した (後述の 2) ②項および③項)。以上の作業を実施した上で、大気雰囲気での使用済燃料の浸漬試験に着手した (後述の 2) ④項および⑤項)。

2) 実燃料を使用した浸漬試験 (作業環境整備を含む)

① 浸漬試験容器等のモックアップ

浸漬試験の実施に先立ち、浸漬試験容器および溶液分取用治具のモックアップを実施した。平成 31 年度までに、ガラス製容器を用いて浸漬することを決定している。令和 2 年度は、燃料を保持する籠を検討し、マニピュレータを用いた遠隔操作性を確認した (図 3.1-30 参照)。籠を用いる目的は、燃料の容器壁面への接触を防止し、燃料の表面と水溶液が常に接触している状態に保つことである。海外で実施された実燃料の浸漬試験では、籠の材質として、耐蝕性・耐放射線性に優れた白金を採用した例があるため、本試験でも、白金製のかごを製作した。最初に、海外の既往研究にならい、吊り下げ型を製作し、マニピュレータによる遠隔操作性を確認した結果、蓋の開閉に繊細な操作が要求されることが分かった。そこで、容易に蓋が開閉できるように床置き型に改良し、操作性も良好であることを確認したため、浸漬試験に採用した。

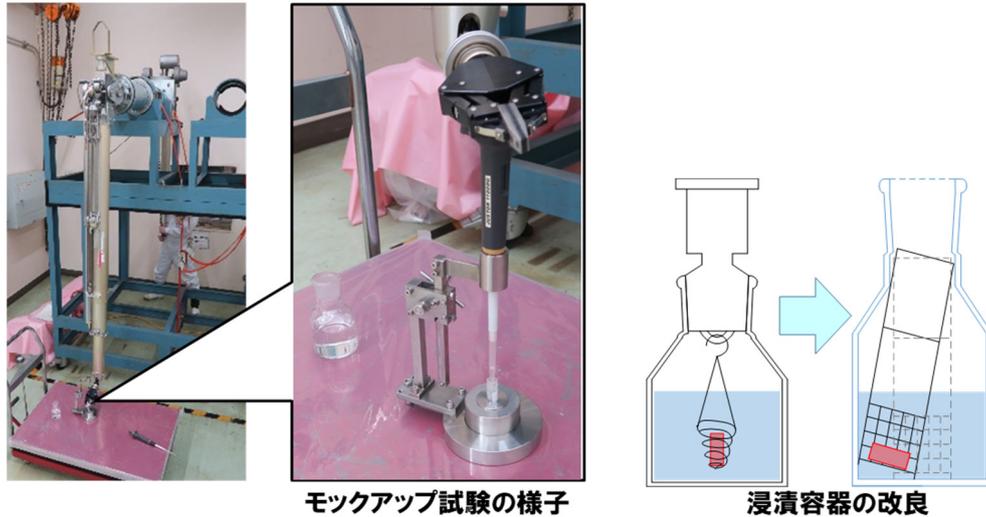


図 3.1-30 モックアップ試験による操作性の確認と浸漬容器の改良

② 実燃料の調製および周辺の空間線量測定

浸漬試験に供する実燃料として、平成 31 年度までに、8×8 型 BWR と比較して、使用条件、燃料仕様および冷却材出口温度や冷却材圧力などの照射中の挙動が類似していることから核分裂生成物 (FP) の放出挙動が類似していると考えられる新型転換炉 (Advanced Thermal Reactor : ATR) 原型炉「ふげん」の使用済燃料を選定している。浸漬試験のための試料の調製として、「ふげん」燃料集合体 E09 の外層に装荷された燃料ピンの下部から 4 試料を採取した。ペレットの仕様は、MOX 燃料ペレット (Pu 富化度 2.59 wt%、ペレット外径 12.4 mm)、ジルカロイ-2 被覆管 (被覆管外径 14.5 mm) であり、照射条件は、燃焼度 47 GW d t⁻¹、最高線出力 42.0 kW m⁻¹ (FP ガス放出率約 19 %) である。既往研究 (Martinez-Torrents et al, 2018) において、ペレット端部を含む試料と含まない試料で、ペレット端部に蓄積した核分裂生成物の影響により、核種溶出挙動が異なることが報告されている。そこで、燃料ピンのガンマスキャン測定結果から、燃料ピン内における各ペレット端面の位置を予測し、切断箇所とペレット端面が重ならないように約 5 mm ごとに切断したことにより、ペレット端部を含むもの 2 試料と、含まないもの 2 試料を採取した。実燃料切断後の様子を図 3.1-31 に示す。また、採取した試料を表 3.1-10 に示す。

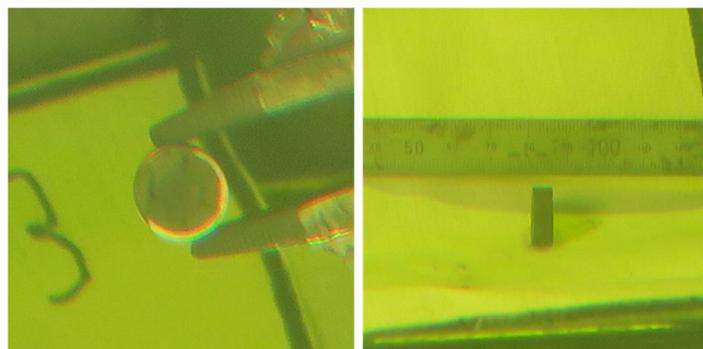


図 3.1-31 実燃料切断後の様子

表 3.1-10 浸漬試験のために採取した試料の諸元

試料名称	ペレット 端部	試料長 [mm]	試料重量 [g]	浸漬溶 液種類
試料 1	あり	5.3	7.29	NaCl
試料 2	なし	5.0	7.82	NaCl
試料 3	あり	5.6	8.70	NaHCO ₃
試料 4	なし	5.6	7.86	NaHCO ₃

なお、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、浸漬試験に供する実燃料の周辺にアラニン線量計を配置して、実燃料周辺の空間線量率を評価した。実燃料からの距離が離れるに従い、線量が低下すると予想されるため、アラニン線量計を、実燃料から 6、13、25 および 64 mm の位置に配置し、9 日間照射を行った（図 3.1-32 参照）。実燃料としては、ペレット端部ありとなしの 2 種類があるため、両方を使用した。照射前後のアラニン線量計中のラジカル量を、(国研)量子科学技術研究開発機構高崎量子応用研究所にて測定した。

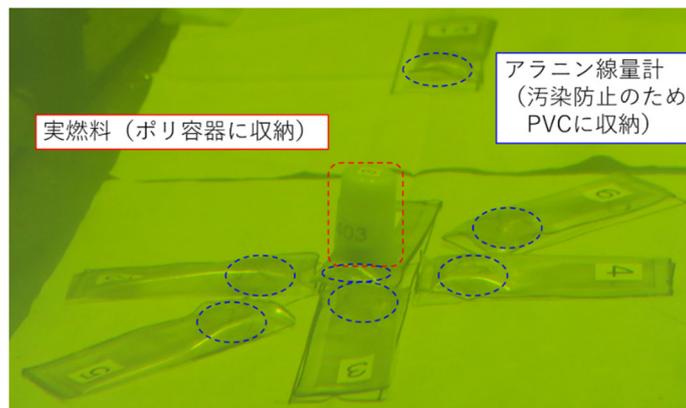


図 3.1-32 アラニン線量計への放射線照射時の様子

③ 空間線量率測定結果

空間線量率の測定結果と試料からの距離の関係を図 3.1-33 に示す。試料から 10 mm 以内の位置が高い線量率となり、そこから離れると急激に低下することが確認された。よって、浸漬容器の内部においても、試料近傍と少し離れた位置では、空間線量率に大きな差異があると予想される。また、線量率は試料 3 (ペレット端部あり) の方が高い結果となった。これは、ペレット端部に Cs-137 等の FP が蓄積しているためであると考えられる。測定した空間線量率は、浸漬試験に及ぼす放射線影響評価に資する基盤データとして有益となる。

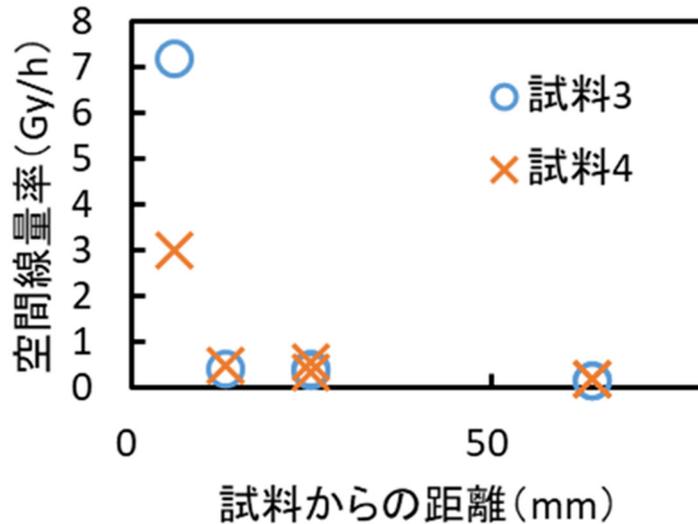


図 3.1-33 試料からの距離と空間線量率の関係

④ 浸漬試験方法

ガラス（パイレックス）製の容器4つに、実燃料を1つずつ入れた後、20 mM NaCl または 20 mM NaHCO₃（100 mL）を加え、浸漬試験を開始し、開始時点の pH, E_h および全炭酸濃度を測定した。浸漬開始後、1、3、7、15、31、63、127 日後を目安に溶液を 3 mL ずつ採取し、pH と H₂O₂ 濃度を測定することとした。また、分画分子量 10⁴ のフィルターによる限外ろ過を実施後、ガンマ線スペクトル測定および ICP-MS 測定を実施し、溶存核種濃度を評価した。

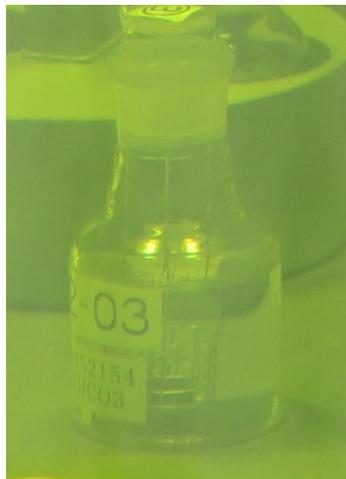


図 3.1-34 浸漬試験実施中の様子

⑤ 浸漬試験結果と考察

浸漬開始時の E_h および全炭酸濃度を表 3.1-11 に示す。E_h は大気雰囲気下における溶液として、通常の値であった。全炭酸濃度については、NaHCO₃ 溶液において、添加した NaHCO₃ の量に相当する量が検出された。

浸漬開始から 1、3、7、14 日後に試料溶液を採取し、pH および H₂O₂ 濃度を測定した結果を図 3.1-35 に示す。pH については、7～9 の範囲での試験を目標としていたが、NaCl 溶液では

時間経過に伴い低下する傾向が確認された。事前に、燃料を含まない溶液でモックアップを行ったところ、pH は安定していたことから、燃料の溶解に起因して pH が低下していると考えられる。H₂O₂ については、NaCl 溶液で検出された。H₂O₂ の生成に関する G 値は、NaHCO₃ 溶液よりも NaCl 溶液で高い値となるため、NaCl 溶液でのみ検出されたと考えられる。

表 3.1-11 浸漬開始における E_h および CO₂ 濃度

溶液	E _h [mV]	全炭酸濃度 [mM]
20 mM NaCl	441	0.8
20 mM NaHCO ₃	372	20.5

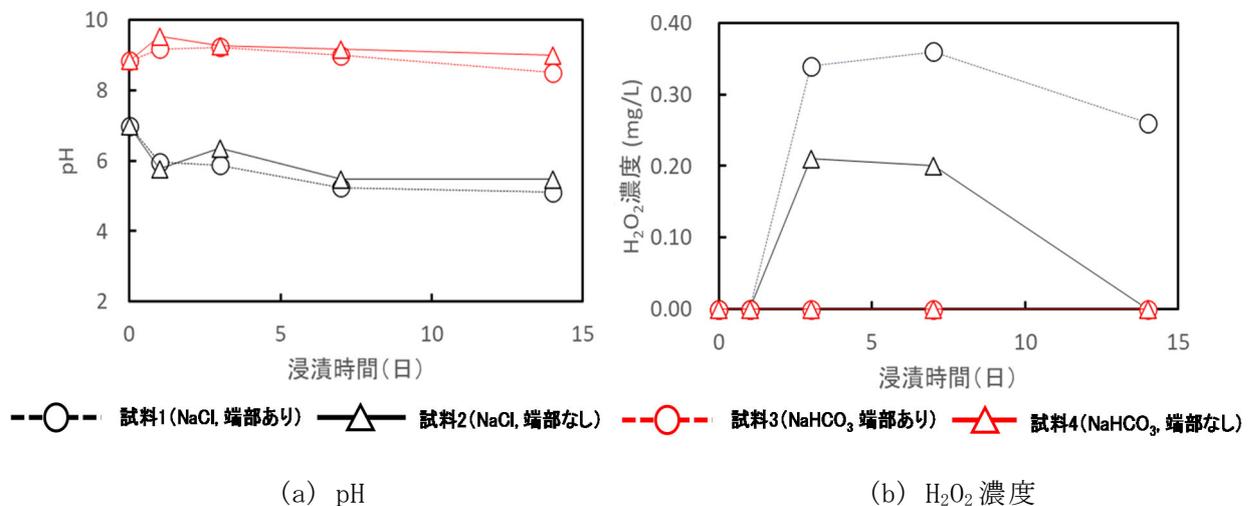


図 3.1-35 pH および H₂O₂ 濃度の経時変化

限外ろ過後の試料溶液に対し、ガンマ線スペクトル測定および ICP-MS 測定を実施した。ICP-MS では、Cs、Sr 等の IRF に係る核種を含めて、多数の核種が検出された。代表的な核種の溶出挙動を図 3.1-36 に示す。

- セシウム (Cs)

Cs-133 が ICP-MS により検出され、時間経過に伴い溶出量が増加する傾向を示しつつも一定値に収束しつつある。今回のデータからは、NaCl と NaHCO₃ による差異や、端部の有無による差異は確認されなかった。ガンマ線スペクトル測定で Cs-137 が検出されており、ICP-MS で測定された Cs-133 と同様の溶出挙動を示した。Cs の初期インベトリとして ORIGEN 計算結果を用いて、暫定的な溶出割合を評価した結果、5 %以下となった。

- ストロンチウム (Sr)

Sr-90 が ICP-MS により検出された。NaHCO₃ 溶液でも Sr-90 が溶出していると考えられたが、NaHCO₃ 溶液では Zr-91 も検出されたことから、Zr-90 を含めた過大評価になっている可能性があるため、NaHCO₃ 溶液の結果は図示していない。Sr-90 は、浸漬時間に伴い単調

に増加しており、端部ありの方で高めの値を示している。初期インベトリとして ORIGEN 計算結果を用いて、暫定的な溶出割合を評価した結果、0.2 %以下となった。

- テクネチウム (Tc)

Tc-99 が ICP-MS により検出された。同重体として Ru-99 が考えられるが、Ru-101 が検出されていないため、Ru-99 による妨害（過大評価）はないと判断した。Tc-99 の濃度は、浸漬時間に伴い増加しつつも Cs と同様に液相濃度の増加が緩やかになっている。NaCl 溶液よりも NaHCO₃ 溶液で溶出量が多く、さらに、端部ありで溶出量が多い結果となった。初期インベトリとして ORIGEN 計算結果を用いて、暫定的な溶出割合を評価した結果、0.2 %以下となった。

- ウラン (U)

U-238 が ICP-MS により検出された。浸漬時間に伴い増加しつつも、Cs と同様に液相濃度の増加が緩やかとなった。NaHCO₃ 溶液では、NaCl 溶液の場合よりも 10 倍程度高い濃度となった。これは、HCO₃⁻ の共存により UO₂ の溶解速度が高まったためと考えられる。端部ありとなしによる差異は認められなかった。

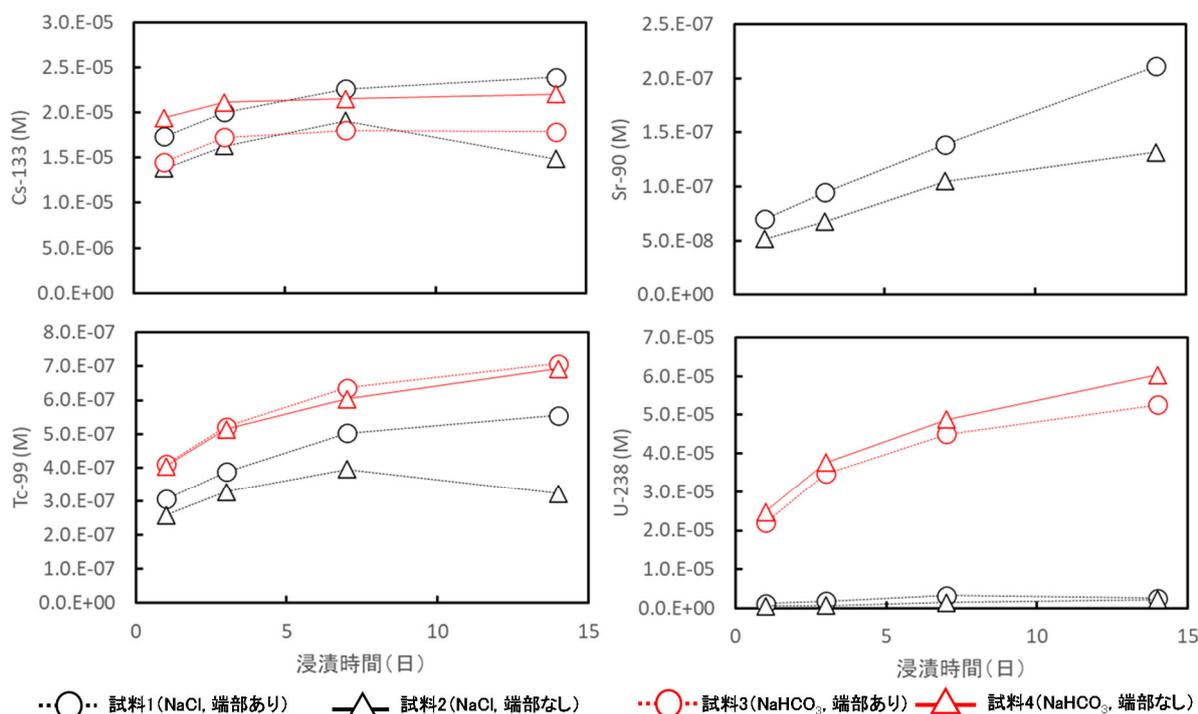


図 3.1-36 Cs-133, Sr-90, Tc-99 および U-238 の溶出挙動

以上から、令和 2 年度は浸漬試験容器の改良とモックアップ試験による確認、試験試料周辺の空間線量率の測定を実施し知見を拡充するとともに、ふげん燃料の浸漬試験に着手し試験開始 14 日後までの測定結果について各元素の放出挙動の結果の取得に成功した。その結果、Cs、Sr、Tc について暫定的な放出割合を示すことができた。しかし、幾つかの

元素については液相濃度が一定値となるか、もしくは元素の放出速度が一定値に到達していない可能性が確認されたため、今後より長期のデータ取得を実施する予定である。また、照射履歴の異なる燃料試料を用いた浸漬試験を実施し、核種の溶出挙動に及ぼす影響を調査する。あわせて、諸外国の性能評価でも知見が少ない C-14 や Cl-36 の放出量の測定や、還元雰囲気条件下でのデータ取得の検討に着手する予定である。

3.2 緩衝材の長期挙動評価

(1) 本項目の背景と目的

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吸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。

- ・わが国の地層処分においてベントナイトとしての使用が想定され、諸外国で使用が想定されているベントナイトとは鉱物組成等が異なるクニミネ工業製クニゲル V1 の変質挙動に着目
- ・わが国では炭酸濃度の高い地下水環境を有するサイトが処分場として選定される可能性があることから、炭酸が共存した条件での圧縮ベントナイトの変質挙動に着目
- ・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圧縮ベントナイトの変質挙動に及ぼす影響に着目

以下に調査手法と調査内容の概要を示す。

1) 試験の目的、手法、対象とする変質環境・現象

試験の目的、手法、対象とする変質環境・現象について表 3.2-1 に示す。

平成 31 年度までの調査では、試験手法として、銅試験片を用いたカラム変質試験（以下、試験片カラム変質試験）と銅粉を用いたバッチ変質試験（以下、バッチ変質試験）の 2 種類の手法により試験を実施した。試験片カラム変質試験は、図 3.2-1(a)に示すように、カラムを用いてベントナイトを圧縮した状態で銅試験片と接触させて変質挙動を観察する試験であり、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。一方、バッチ変質試験は、図 3.2-1(b)に示すように、溶液中にベントナイトと銅粉を分散させて変質挙動を観察する試験である。バッチ変質試験は、実際の処分環境とは系が異なるものの、銅粉を使用するため銅の表面積が大きくベントナイトの変質量を上げることが可能であり、また、試験溶液の pH や組成を測定することが可能であるため、ベントナイトの変質可能性の検討や変質メカニズムの検討を行う上で試験片カラム変質試験に比べて有利な点がある。

表 3.2-1 試験の目的、手法、対象とする変質環境・現象などのまとめ

試験手法	試験片カラム変質試験	バッチ変質試験	銅粉カラム変質試験
試験の目的	実際の処分環境に近い条件での銅との相互作用による圧縮ベントナイトの変質挙動の評価	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、変質メカニズムの理解	圧縮系かつ銅とベントナイトの接触表面積の大きい試験系での変質挙動の評価、変質メカニズムの理解
対象とする変質環境	<ul style="list-style-type: none"> ・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 (NaCl 共存下) ・残存する酸素が消費され低酸素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) 		<ul style="list-style-type: none"> ・左記環境および左記環境に炭酸を共存させた条件 (酸化性および低酸素の両方の条件) および鉄を共存させた条件 (低酸素条件のみ) での変質
対象とする変質	<ul style="list-style-type: none"> ・モンモリロナイトの他鉱物への変質 ・モンモリロナイトの Cu 型化 		

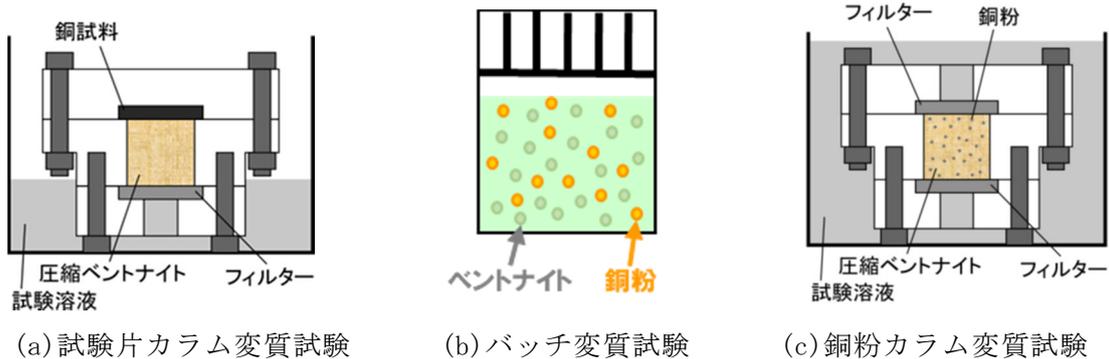


図 3.2-1 変質試験手法概略図

ここで、平成 31 年度までの調査で実施した試験片カラム変質試験においては、銅とベントナイトの接触表面積が限られ変質挙動の観察が困難であった。また、バッチ変質試験においては、圧縮状態でのベントナイトの変質試験である試験片カラム変質試験と異なる結果が観察された。このことから、令和 2 年度の調査では、圧縮ベントナイトを使用し、かつ、銅とベントナイトの接触表面積を増加させることが可能な試験系として、図 3.2-1(c) に示す銅粉とベントナイトを混合してカラムに圧縮して変質挙動を観察する試験（以下、銅粉カラム変質試験）を試験手法として採用し、ベントナイトの変質について調査した。

また、本調査において対象とする変質環境としては、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、残存する酸素が消費されて周辺が低酸素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銅の腐食に関与し (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銅の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、銅の腐食に伴うベントナイトの変質について、酸化性雰囲気では NaCl 溶液条件下で銅を腐食させることで、また、低酸素雰囲気では硫化水素イオン共存下で銅を腐食させることで調査した。さらに、令和 2 年度より、これらの条件に加えて、炭酸濃度の高い地下水環境を想定した炭酸共存下での試験と、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を想定した鉄共存下での試験を開始した。炭酸共存下の試験では、上記の酸化性条件下および低酸素条件下の両方の条件に対して炭酸を添加した条件で変質挙動を調査した。一方、鉄共存下での試験については、3 価の鉄鉱物はほとんど溶解しないことから酸化性条件下での試験は行わず、低酸素条件下での Fe(II) イオン共存下での変質挙動を調査した。

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吸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、放射性核種の吸着能が低下する可能性があり、また、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についても低下あるいは失われる可能性がある。また、モンモリロナイトが Cu 型化した場合にも、膨潤性や吸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(表 3.2-1)。

2) 調査内容

1) 項に示した試験の目的、手法、対象とする変質環境・現象に対して、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 31 年度までの調査においては、表 3.2-2 に示す試験①～④を実施し、EPMA 観察、XRD 測定等により変質挙動を調査した。その結果、腐食によりベントナイト中に移行した 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、液固比等の条件によってはモンモリロナイトの Cu 型化が起こる可能性が示唆される結果が得られた。一方、試験片カラム変質試験およびバッチ変質試験の両試験において、モンモリロナイトの他鉱物への変質を示す新たな鉱物の生成は確認されていない。

令和 2 年度の調査では、平成 31 年度までに未実施である試験①～③の CEC 分析と溶液組成分析を実施し、モンモリロナイトの変質状況について調査した。また、炭酸および鉄共存下での変質挙動の調査として、表 3.2-3 に示す条件での試験を実施した。炭酸共存下での変質挙動の調査である試験 A および試験 B については、処分場設計の対象となっている地下水中の炭酸濃度の最高値 ($4.7 \times 10^{-2} \text{ mol l}^{-1}$) を考慮し(原環機構, 2018)、 0.05 mol l^{-1} の炭酸が共存する条件とした。鉄共存下の試験 C については、PEM 容器の腐食により生成する鉄腐食生成物を水酸化鉄(II)と想定し、その溶解度を考慮して 0.001 mol l^{-1} の FeCl_2 溶液を共存させた条件とした。試験は、技術的に容易である酸化性雰囲気での試験(試験 A)より開始し、その後、低酸素雰囲気での試験(試験 B および試験 C)を開始した。また、分析は、試験 A の試料については、XRD 測定による Cu 型化の分析を除く全ての分析(EPMA 観察、XRD 測定によ

る鉱物同定、CEC 測定)を実施した。試験 C については、分析試料の作製が短期間で可能である XRD 測定による鉱物同定のみ実施した。試験 B については、同じ炭酸共存下での試験である試験 A の状況を確認し、試験上の問題点がないことを確認した後、試験のみ実施した。試験 A~C に用いた緩衝材試料はクニゲル V1 であり、試験手法は銅粉カラム変質試験とした。銅粉は、ガスアトマイズ法で作製された粒径 150 μm 以下の試料(福田金属箔粉工業株式会社製、Cu-At-100 At2)を使用した。

表 3.2-2 基礎的な変質挙動の評価に関する試験条件

環境	試験溶液	試験手法	緩衝材	分析手法	
酸化性	0.5 mol l ⁻¹ NaCl 溶液	試験片 カラム	クニゲル V1	EPMA/XRD/CEC 測定	試験①
			クニピア F		
		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 + 0.01 mol l ⁻¹ Na ₂ S 溶液	試験片 カラム	クニゲル V1	EPMA/XRD/CEC 測定	試験③
			クニピア F		
		バッチ	クニピア F	XRD/CEC 測定/溶液組成分析	試験④

表 3.2-3 炭酸および鉄共存下での変質挙動の評価に関する試験条件

環境		試験溶液	分析手法	
酸化性	炭酸 共存下	0.5 mol l ⁻¹ NaCl + 0.05 mol l ⁻¹ NaHCO ₃ 溶液	EPMA XRD (鉱物同定・Cu 型化の分析) CEC 測定	試験 A
低酸素	炭酸 共存下	0.5 mol l ⁻¹ NaCl + 0.05 mol l ⁻¹ NaHCO ₃ + 0.001 mol l ⁻¹ Na ₂ S 溶液		試験 B
	鉄共存下	0.5 mol l ⁻¹ NaCl 溶液 + 1×10 ⁻⁴ mol l ⁻¹ FeCl ₂ 溶液		試験 C

(2) 銅試験片と圧縮ベントナイトの接触試験 (試験片カラム変質試験)

以下では、1)酸化性雰囲気での試験片カラム変質試験と、2)低酸素雰囲気での試験片カラム変質試験の試験手順と条件および試験結果について述べる。

1) 酸化性雰囲気での試験片カラム変質試験

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、酸化性雰囲気での試験片カラム変質試験(表 3.2-2 の試験①、ただし、分析は過年度に未実施の CEC 測定のみ)を実施した。

① 試験手順および条件

カラム変質試験は、図 3.2-2 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。

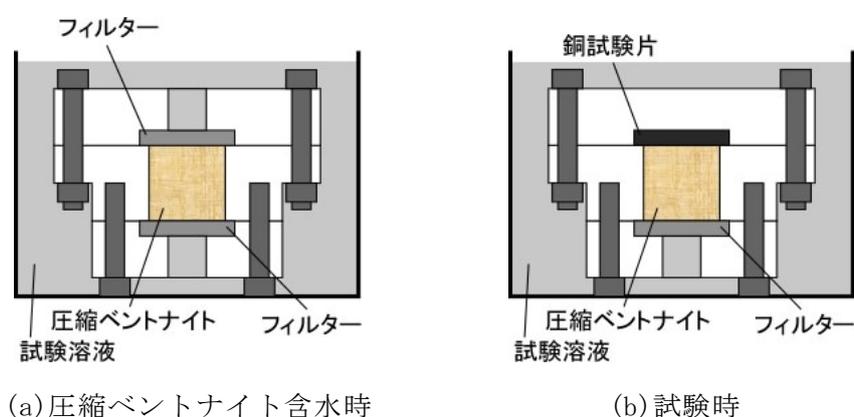


図 3.2-2 テフロン製変質試験カラム概略図

平成 31 年度までに、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鉍物の同定を行い、圧縮ベントナイト中に移行した銅が硫化銅として存在することや、ベントナイトの変質により生成した新たな鉍物の存在を示すピークが観察されないことを確認した。

令和 2 年度は、酸化性雰囲気での試験片カラム変質試験後のベントナイト試料の CEC 分析を行い、ベントナイト中の鉍物の変質の可能性について検討した。

酸化性雰囲気での試験片カラム変質試験は、ベントナイトを試験カラムに充填した後、テフロン製容器内で図 3.2-2(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 3.2-2(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容器は、80 $^{\circ}\text{C}$ の恒温槽内で 209 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。

CEC 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 1 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。この試料について、1 mol l^{-1} の NH_4Cl 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、試料中の陽イオン交換サイトを NH_4^+ で飽和させた。その後、1 mol l^{-1} の KCl 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、上

澄み液中に抽出された NH_4^+ の濃度をイオンクロマトグラフにより測定した。残った上澄み液は廃棄した。この作業を 3 回実施し、3 回の作業により抽出された NH_4^+ 量の合計より CEC を算出した。

② 試験結果

試験の結果、試料の CEC は $(5.9 \pm 0.2) \times 10^{-4} \text{ eq g}^{-1}$ であった。この値は、試験に使用したベントナイトであるクニゲル V1 とほぼ同じ値であり、CEC 測定の結果からは、銅粉との相互作用によりベントナイトが変質していないと推測された。

2) 低酸素雰囲気での試験片カラム変質試験

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、低酸素雰囲気での試験片カラム変質試験（表 3.2-2 の試験③、ただし、分析は過年度に未実施の CEC 測定のみ）を実施した。試験片カラム変質試験は、前述の 1) に記載の酸化性雰囲気での試験片カラム変質試験と同じ構造の試験カラムを使用して実施した。

① 試験手順および条件

平成 31 年度までに、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。その結果、銅試験片と圧縮ベントナイトの接触界面や、ベントナイト中に含まれる黄鉄鉱周辺で、銅が硫化銅として沈殿していることや、ベントナイトの変質により生成した新たな鉱物の存在を示すピークは観察されないことを確認した。

令和 2 年度は、低酸素雰囲気での試験片カラム変質試験後のベントナイト試料の CEC 分析を行い、ベントナイト中の鉱物の変質の可能性について検討した。

低酸素雰囲気での試験片カラム変質試験は、ベントナイトを試験カラムに充填した後、酸素濃度 1 ppm 以下の窒素雰囲気グローブボックス内に搬入し、図 3.2-2(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 3.2-2(b) のように再度試験溶液に浸漬した。試験カラムを浸漬したテフロン製容器は、雰囲気制御グローブボックス外でも低酸素雰囲気を維持するため、酸素透過率の低い素材の保存袋に酸素吸収剤とともに溶着して封入し、それをさらに同様の方法で酸素吸収剤とともに保存袋に封入して二重梱包の状態とした。保存袋に封入した試験カラムは、雰囲気制御グローブボックスより搬出し、80 °C の恒温槽内で 820 日間加熱した。加熱後、保存袋に封入した試験カラムを雰囲気制御グローブボックスに搬入し、試験カラムを取り出して解体した。

CEC 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試験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 1 mm の切断片を採取し、雰囲気制御グローブボックス内で乾燥させ、めのう乳鉢で粉砕することにより作製した。この試料について、前述の 1) に記載の酸化性雰囲気での試験片カラム変質試験と同じ処理を行い、CEC を算出した。

② 試験結果

試験の結果、試料の CEC は $(5.8 \pm 0.2) \times 10^{-4} \text{ eq g}^{-1}$ であった。この値は、試験に使用したベントナイトであるクニゲル V1 とほぼ同じ値であり、CEC 測定の結果からは、銅粉との相互作用によりベントナイトが変質していないと推測された。

(3) 銅粉とベントナイトを混合した接触試験（バッチ変質試験）

以下では、1) 低酸素雰囲気でのバッチ変質試験の試験手順と条件および試験結果について述べる。

1) 低酸素雰囲気でのバッチ変質試験

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、ただし、分析は過年度に未実施の CEC 測定および溶液組成分析のみ）を実施した。

① 試験手順および条件

バッチ変質試験は、フッ素樹脂製遠沈管に試験溶液と銅粉およびベントナイトを混合し、一定期間反応させることにより実施した。ベントナイト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）を使用した。試料の液固比は溶液量とベントナイト重量の比で 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 l^{-1} となるように Na_2S を添加したものをを使用した。試験に用いた人工海水の組成を表 3.2-4 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保存袋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 $^{\circ}\text{C}$ の恒温槽内で 735 日間加熱した。

表 3.2-4 試験に使用した人工海水の組成

元素	濃度 [mol l^{-1}]	元素	濃度 [mol l^{-1}]
K^+	0.010	HCO_3^-	0.0028
Na^+	0.48	SO_4^{2-}	0.029
Ca^{2+}	0.011	Cl^-	0.56
Mg^{2+}	0.055		

CEC 測定には、所定の試験期間反応させた後に、遠心分離を行って固相を採取し、乾燥させた試料を使用した。この試料について、前述の (2) 1) に記載の酸化性雰囲気での試験片カラム変質試験と同じ処理を行い、CEC を算出した。また、溶液組成分析は、遠心分離後の上澄み液

を採取し、イオン交換水で 50 倍に希釈した後、誘導結合プラズマ発光分光分析法(ICP-AES)により Cu 濃度およびベントナイトの構成元素である Si, Al 濃度の測定を行った。

② 試験結果

まず、図 3.2-3 に、CEC 測定の結果を示す。図 3.2-3 左側が銅粉とクニピア F を混合して実施した試験の結果、右側が銅粉を混合せず、クニピア F のみで実施した試験の結果である。両試験試料中のクニピア F の CEC 測定値に違いは見られず、CEC 測定の結果からは、銅粉との相互作用によりクニピア F が変質していないことが CEC 測定の結果から推測された。

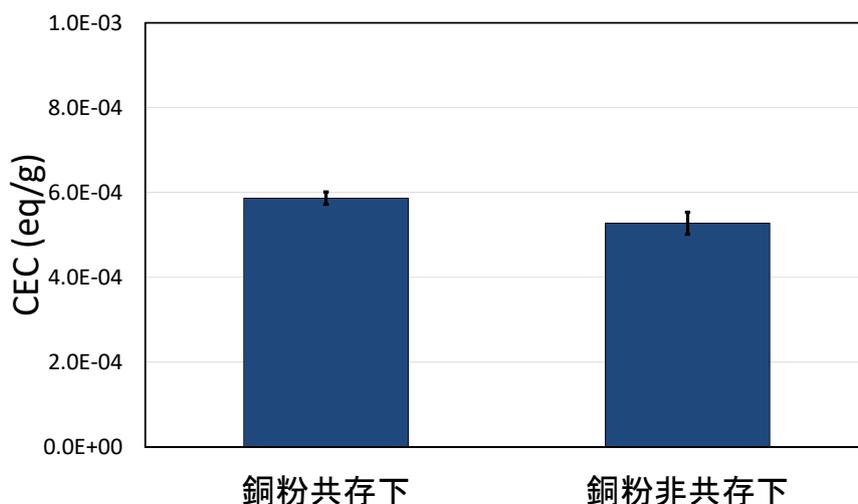


図 3.2-3 試験試料の CEC 測定結果 (低酸素雰囲気でのバッチ変質試験)

次に、図 3.2-4 に、溶液組成分析の結果を示す。銅粉ベントナイト混合試料と記載した試料は、銅とクニピア F を 1:1 の重量比で混合して試験した試料の結果であり、比較のため、銅粉のみで実施した試験結果と、ベントナイト (クニピア F) のみで実施した試験結果を示す。溶液組成分析の結果、銅粉ベントナイト混合試料においても、ベントナイトの構成成分である Si, Al に有意な濃度上昇は見られず、ベントナイトが溶液中への溶解していないことが確認された。一方で、Cu 濃度は銅粉ベントナイト混合試料において有意に高い値が得られ、ベントナイトの共存により銅粉の溶解が促進される可能性が示唆された。ただし、Si、Al 濃度測定の結果や CEC 測定の結果等からはベントナイトの変質は示唆されず、この Cu の溶解量の上昇はベントナイトの変質を促進していないと推測される。また、この現象については、バッチ変質試験特有の現象である可能性があることから、銅粉カラム変質試験においては、今後圧縮ベントナイト中での銅粉の溶解速度等を確認しながら調査を進める。

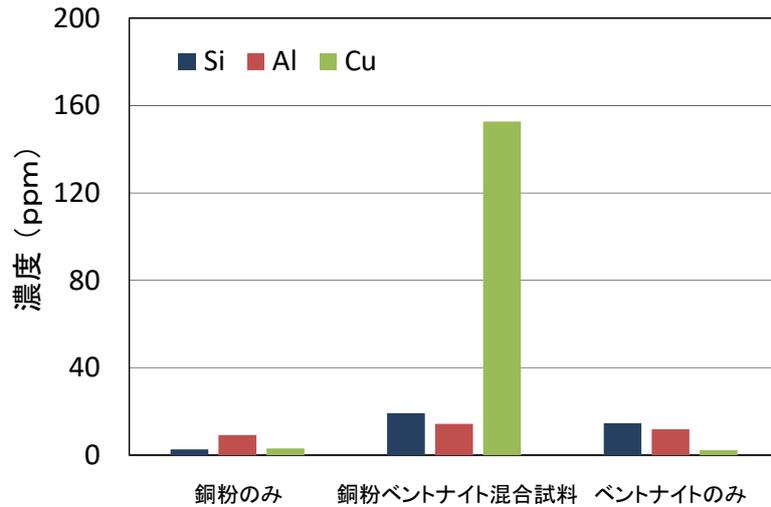


図 3.2-4 試験試料の溶液組成分析結果（低酸素雰囲気でのバッチ変質試験）

(4) 銅粉と圧縮ベントナイトの接触試験（銅粉カラム変質試験）

以下では、1)酸化性雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験、2)低酸素雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験、3)低酸素雰囲気・鉄共存下での銅粉カラム変質試験の試験手順と条件および試験結果について述べる。

1) 酸化性雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験

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、かつ、炭酸濃度の高い地下水環境を想定した炭酸が共存した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・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験（表 3.2-3 の試験 A）を実施した。

① 試験手順および条件

銅粉カラム変質試験は、図 3.2-1(c)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。試験カラムの構造は、前述の(2)1)に記載の酸化性雰囲気での試験片カラム変質試験と同じである。

令和 2 年度は、酸化性雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験を行い、試験後の試料について、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。

酸化性雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験は、銅粉を混合比 30 %でベントナイトと混合して試験カラムに圧縮充填した後、テフロン製容器中で図 3.2-1(c)の状態となるように試験溶液に浸漬した。試験溶液は、表 3.2-3 の試験 A に示す 0.45 mol l^{-1} の NaCl 溶液に 0.05 mol l^{-1} の NaHCO_3 溶液を添加した溶液とし、比較のために炭酸を含まない 0.5 mol l^{-1} の NaCl 溶液でも試験を実施した。銅粉とベントナイトの混合試料の充填密度は 2.1 Mg m^{-3} とした。この密度においては、銅粉を除くベントナイト部分の密度が 1.6 Mg m^{-3} となる。試験カラムを浸漬したテフロン製容器は、恒温槽内で 21 日間加熱した。試験試料を高温で加熱する

と、溶液に添加した NaHCO_3 の分解が促進されるため、加熱温度は $50\text{ }^\circ\text{C}$ に設定した。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、圧縮ベントナイトをカラムより押し出して数 mm 角程度に切断し、切断片を乾燥させて樹脂包埋した後、マイクロ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、カラムより押し出した圧縮ベントナイトを採取し、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。

CEC の測定には、めのう乳鉢で粉砕した試料を使用し、前述の(2)1)に記載の酸化性雰囲気での試験片カラム変質試験と同じ処理を行い、CEC を算出した。

② 試験結果

図 3.2-5(a)に、炭酸を含まない 0.5 mol l^{-1} の NaCl 溶液において実施した試験の EPMA 分析結果を示す。画像の視野は約 $400 \times 400\ \mu\text{m}^2$ であり、BEI が反射電子像、Cu、S、Fe、Si、Al、Ca、Cl 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 3.2-5(a)からわかるように、BEI 上で白色の球形粒子として確認できる部分は、Cu のマッピング画像において Cu の濃度が高いことを示す明るい部分と一致しており、この粒子が銅粉粒子であることが確認できる。Cu のマッピング画像においては、銅粉粒子周辺に色の明るい領域が広がっており、Cu が銅粉から周囲のベントナイト中に移行していることが確認できる。また、図中に矢印で示す Cu、S、Fe の濃度が高い部分は、ベントナイト中に含まれる黄鉄鉱粒子であり、黄鉄鉱粒子周辺で Cu が硫化銅として沈殿していることが観察できる。平成 31 年度に分析を実施した本試験と同じ条件での試験片カラム変質試験（表 3.2-2 の試験①）でも硫化銅の生成が観察されており、本試験でも同様の結果が得られたものと考えられる。

図 3.2-5(b)に、 0.45 mol l^{-1} の NaCl 溶液に 0.05 mol l^{-1} の NaHCO_3 溶液を添加した溶液において実施した試験の EPMA 分析結果を示す。本溶液で実施した試験試料においても、図 3.2-5(a)に示す炭酸を含まない溶液で実施した試験と同様に、Cu が銅粉から周囲のベントナイト中に移行していることが確認できるとともに、図中に矢印で示す部分に、黄鉄鉱粒子周辺で Cu が硫化銅として沈殿していることが観察できる。一方、図 3.2-5(a)と図 3.2-5(b)を比較しても、炭酸が共存することによる変質挙動の違いは見られず、EPMA 分析結果からは、炭酸の共存が変質挙動に及ぼす影響は観察されなかった。

図 3.2-6(a)に、 0.5 mol l^{-1} の NaCl 溶液において実施した試験の XRD 測定結果を、図 3.2-6(b)に 0.45 mol l^{-1} の NaCl 溶液に 0.05 mol l^{-1} の NaHCO_3 溶液を添加した溶液において実施した試験の XRD 測定結果を示す。どちらの試料の測定結果においても、ベントナイトに元々含まれているモンモリロナイトや石英等のピークが観察されるとともに、添加した銅粉に由来する Cu のピークと、銅粉の腐食により生成した CuO のピークが観察されている。測定結果からは、新たに生成した鉱物の存在を示すピークは観察されず、銅粉の腐食に伴うベントナイトの変質は起こっていないものと推測される。また、炭酸非共存下（図 3.2-6(a)）と炭酸共存下（図 3.2-6(b)）のピークを比較しても大きな相違は見られず、XRD 測定結果からも、炭酸の共存がベントナイトの変質挙動に及ぼす影響は観察されなかった。

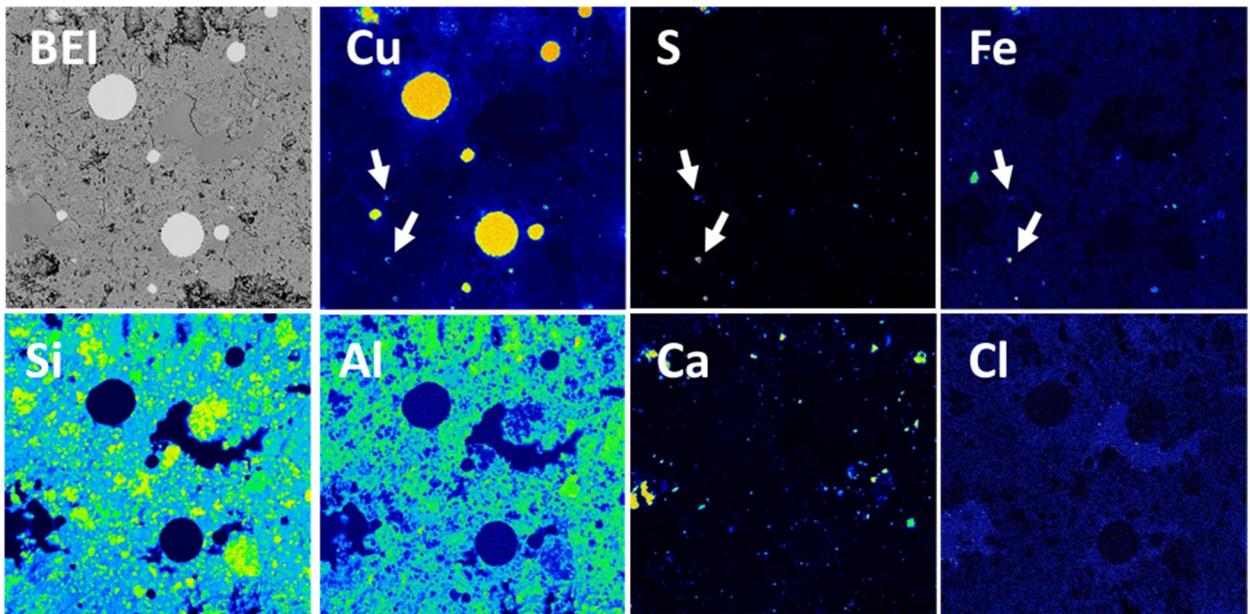
図 3.2-7 に、CEC 測定の結果を示す。 0.5 mol l^{-1} の NaCl 溶液および 0.45 mol l^{-1} の NaCl

溶液に 0.05 mol l^{-1} の NaHCO_3 溶液を添加した溶液において実施した両試験において、CEC 測定値に違いは見られず、溶液中に含まれる炭酸の影響は観察されなかった。

これまでに実施した EPMA 分析、XRD 測定による鉱物同定、CEC 測定においては、炭酸共存下と炭酸非共存下での結果に違いは観察されず、炭酸の共存が銅粉の腐食に伴う圧縮ベントナイトの変質挙動に影響を及ぼしていないことが示唆される結果となった。炭酸が共存した場合、銅の腐食生成物として炭酸銅 (CuCO_3) が生成する可能性があるが、 CuCO_3 の溶解度は本試験において観察されている銅腐食生成物である硫化銅や酸化銅よりも高いため、圧縮ベントナイト中で CuCO_3 が沈殿することはなく、変質挙動にも影響を及ぼさなかったものと推測される。

今後、湿度制御 XRD 測定による試料の分析を実施し、炭酸の共存によるベントナイトの Cu 型化の可能性について検討を行う予定である。

(a) $0.5 \text{ mol l}^{-1} \text{ NaCl}$ 溶液



(b) $0.45 \text{ mol l}^{-1} \text{ NaCl} + 0.05 \text{ mol l}^{-1} \text{ NaHCO}_3$ 溶液

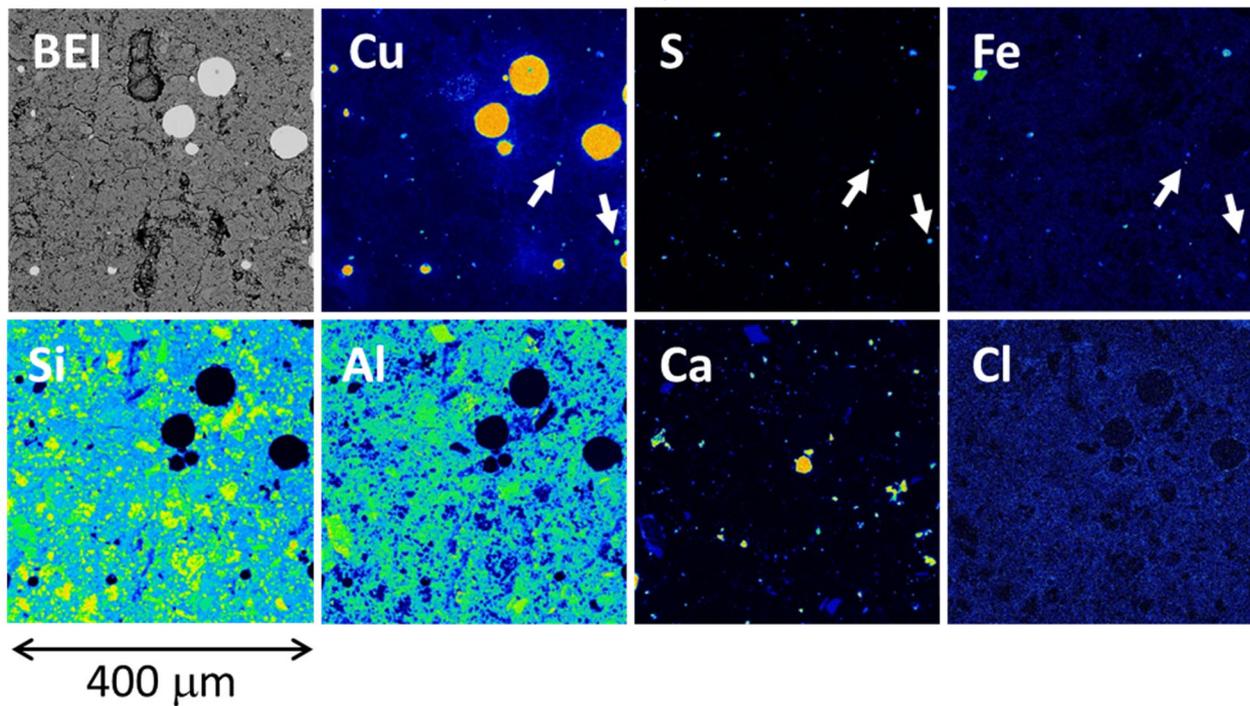


図 3.2-5 銅粉カラム変質試験試料の EPMA 分析結果 (約 $400 \times 400 \mu\text{m}^2$)

(酸化性雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験)

((a) $0.5 \text{ mol l}^{-1} \text{ NaCl}$ 溶液 (b) $0.45 \text{ mol l}^{-1} \text{ NaCl} + 0.05 \text{ mol l}^{-1} \text{ NaHCO}_3$ 溶液)

(BEI は反射電子像、Cu, S, Fe, Si, Al, Ca, Cl は各元素のマッピング分析結果)

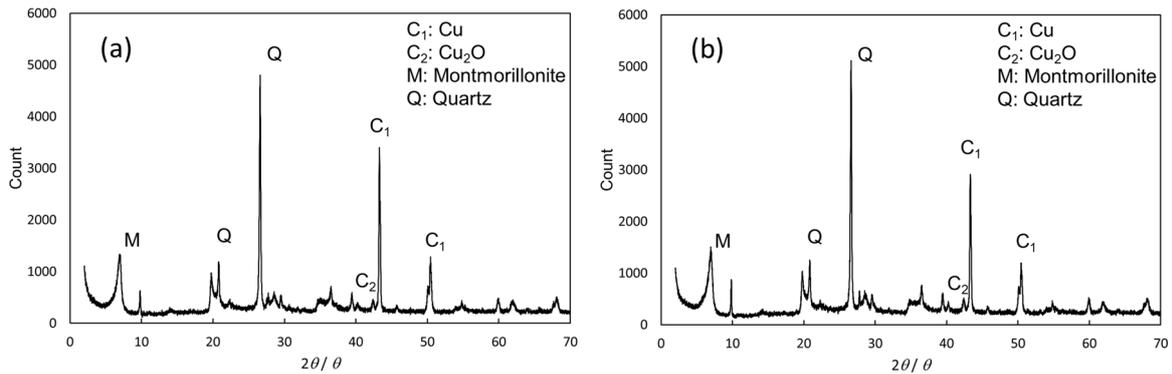


図 3.2-6 炭酸共存下および非共存下での銅粉カラム変質試験試料の XRD 測定結果
 (酸化性雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験)
 ((a) 0.5 mol l⁻¹ NaCl 溶液 (b) 0.45 mol l⁻¹ NaCl + 0.05 mol l⁻¹ NaHCO₃ 溶液)

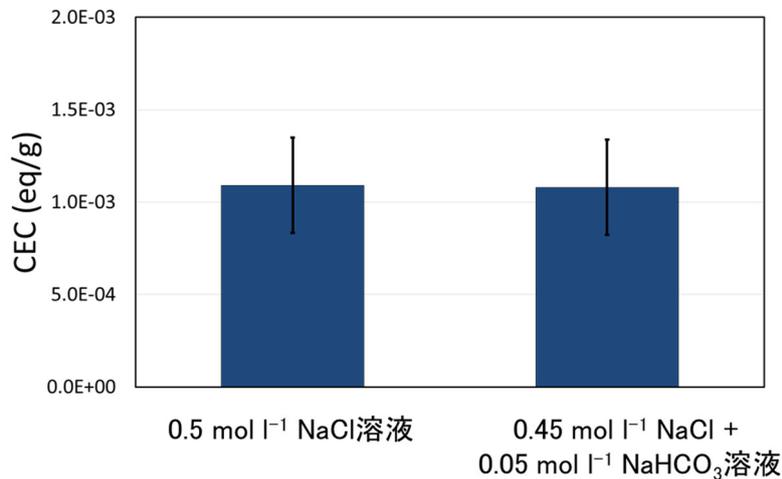


図 3.2-7 銅粉カラム変質試験試料の CEC 測定結果
 (酸化性雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験)

2) 低酸素雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験

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あり、かつ、炭酸濃度の高い地下水環境を想定した炭酸が共存した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、低酸素雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験（表 3.2-3 の試験 B）を実施した。銅粉カラム変質試験は、図 3.2-1(c) 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。試験カラムの構造は、前述の(2)1)に記載の酸化性雰囲気での試験片カラム変質試験と同じである。

令和 2 年度は、以下に示す手順で試験試料を作製して低酸素雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験を開始した。

低酸素雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験は、銅粉を混合比 30 % でベントナイトと混合して試験カラムに圧縮充填した後、酸素濃度 1 ppm 以下の窒素雰囲気グローブボックス内に搬入し、テフロン製容器中で図 3.2-1(c) の状態となるように試験溶液に浸漬した。試

験溶液は、表 3.2-3 の試験 B に示す 0.45 mol l^{-1} の NaCl 溶液に 0.05 mol l^{-1} の NaHCO_3 溶液と 0.001 mol l^{-1} の Na_2S 溶液を添加した溶液とし、比較のために炭酸を含まない 0.5 mol l^{-1} の NaCl 溶液に 0.001 mol l^{-1} の Na_2S 溶液を添加した溶液でも試験を実施した。銅粉の混合比、銅粉とベントナイトの混合試料の充填密度は、前述の 1) 酸化性雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験と同じとした。試験カラムを浸漬したテフロン製容器は、前述の (2)2) に記載の低酸素雰囲気での試験片カラム変質試験と同様の手順で酸素吸収剤とともに保存袋に封入し、 $50 \text{ }^\circ\text{C}$ の恒温槽内に静置した。

3) 低酸素雰囲気・鉄共存下での銅粉カラム変質試験

本試験では、廃棄体定置直後に残存する酸素が消費されて還元条件になった環境であり、かつ、鉄腐食生成物の影響により Fe(II) イオンが共存する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、低酸素雰囲気・鉄共存下での銅粉カラム変質試験（表 3.2-3 の試験 C）を実施した。

① 試験手順および条件

銅粉カラム変質試験は、図 3.2-1(c) 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。試験カラムの構造は、前述の (2)1) に記載の酸化性雰囲気での試験片カラム変質試験と同じである。

令和 2 年度は、低酸素雰囲気・鉄共存下での銅粉カラム変質試験の結果に対して、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、前述の 2) 低酸素雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験と同じ手順で実施した。試験溶液は、表 3.2.-3 の試験 C に示す 0.5 mol l^{-1} NaCl 溶液に $1 \times 10^{-4} \text{ mol l}^{-1}$ FeCl_2 溶液とし、比較のために炭酸を含まない 0.5 mol l^{-1} の NaCl 溶液でも試験を実施した。試験溶液には、溶存している Fe(II) イオンの酸化を防ぐため、還元剤として 0.005 mol l^{-1} の亜ジチオン酸ナトリウム ($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$) を添加した。試験カラムを浸漬したテフロン製容器は、 $80 \text{ }^\circ\text{C}$ の恒温槽内で 30 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。XRD 測定用の試料については、カラムより押し出した圧縮ベントナイトを採取し、雰囲気制御グローブボックス内で乾燥させ、めのう乳鉢で粉砕することにより作製した。

② 試験結果

図 3.2-8(a) に、 0.5 mol l^{-1} の NaCl 溶液において実施した試験の XRD 測定結果を、図 3.2-8(b) に 0.5 mol l^{-1} の NaCl 溶液に $1 \times 10^{-4} \text{ mol l}^{-1}$ の FeCl_2 溶液を添加した溶液において実施した試験の XRD 測定結果を示す。どちらの試料の測定結果においても、ベントナイトに元々含まれている鉱物、添加した銅粉に由来する Cu および CuO のピークが観察されている。また、Fe(II) イオン共存下の試験である図 3.2-8(b) に示す測定結果にのみ、 FeSO_4 と推測されるピークが観察されている。この FeSO_4 は、還元剤として添加した亜ジチオン酸ナトリウム由来の硫酸イオンが、Fe(II) イオンとともに沈殿したものと推測される。 FeSO_4 は溶解度が高いことから、試験時には FeSO_4 は溶解しており、試験後に試料を乾燥した際に生成したものと考えられ、変質挙動には影響を及ぼしていないと推測される。この FeSO_4 と推測されるピークを除

き、測定結果からは新たに生成した鉱物の存在を示すピークは観察されず、Fe(II)イオン共存下での銅粉の腐食に伴うベントナイトの変質は起こっていないものと推測される。

今後、EPMA 観察、湿度制御 XRD 測定によるベントナイトの Cu 型化の分析、CEC 測定を実施し、Fe(II)イオンの共存による変質への影響についてより詳細に検討を行う予定である。

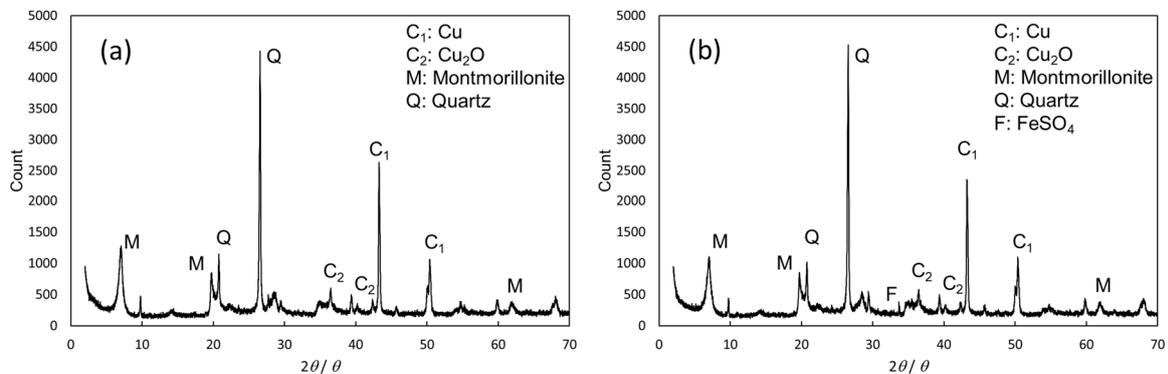


図 3.2-8 Fe(II)イオン共存下および非共存下での銅粉カラム変質試験試料の XRD 測定結果 (低酸素雰囲気・鉄共存下での銅粉カラム変質試験)
 ((a) 0.5 mol l⁻¹ NaCl 溶液 (b) 0.5 mol l⁻¹ NaCl + 1×10⁻⁴ mol l⁻¹ FeCl₂ 溶液)

3.3 まとめ

・使用済燃料集合体からの核種溶解挙動評価

使用済燃料の溶解速度に及ぼす炭酸の影響の評価を目的として、マトリクス溶解指標物質を固溶させた二酸化ウランペレットを用いた溶解速度測定試験に着手した。マトリクス溶解指標の最適物質としてマグネシウムを選定し、マグネシウムの固溶条件を試験的に調べた上で最適な調製条件を選定し、マグネシウムが固溶された二酸化ウランの調製に成功した。しかしながら、溶解速度測定試験で得られたマグネシウムの溶解速度は予想よりも大幅に大きかったことから、一部のマグネシウムが固溶体以外の成分（酸化物）として存在していることが推定された。今後、固溶体以外の成分を除去した上で試験を行うことが課題である。

炭酸共存下における非晶質二酸化ウランの溶解度について、海水系地下水を意識したやや高い塩濃度条件でのデータ取得を実施した。得られた溶解度のうち、孔径 0.45 μm 通過成分や電気化学的手法の結果は過年度の結果と整合した一方、10 kDa 通過成分は過年度の結果より大幅に低い値となった。熱力学計算結果が本試験結果を概ね再現できることが確認された。今後、熱力学計算を併用しつつ詳細に考察する必要がある。

ウラン酸化物の溶解挙動については、表面分析等により溶解挙動を詳細に考察することを目的として、UO₂ や U₃O₈ の浸漬試験を実施し、表面のラマン分光分析等を行った。その結果、炭酸成分がウラン酸化物の溶解に寄与し、UO₂ の酸化と結晶性の低下によるものと推定される UO₂ の欠陥の生成が観察されたが、溶解と再沈殿を表面分光により確認できたとは至っていない。今後は、非晶質の UO₂xH₂O の分光特性の把握するため、6 価ウラン水溶液を出発物質とした浸漬試験とラマン分析を実施し、ウラン水和物や非晶質の UO₂xH₂O のラマンスペクトルを取得し UO₂ の再沈殿過程を検討する。

さらに、実際の使用済燃料を模擬地下水（緩衝材間隙水）に浸漬する試験に着手した。2 週

間の浸漬で Cs、Sr、Tc および U などの溶出が確認され、一部の元素では端部の有無の影響や炭酸水素イオンの有無の影響の検討に資する情報が得られ始めた。今後、より長期のデータ取得を実施するとともに、照射履歴の異なる燃料試料を用いた浸漬試験を実施し、核種の溶出挙動に及ぼす影響を調査する。あわせて、諸外国の性能評価でも知見が少ない C-14 や Cl-36 の放出量の測定や、還元雰囲気条件下でのデータ取得の検討に着手する予定である。

・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、銅試験片を用いたカラム変質試験（以下、試験片カラム変質試験）、銅粉を用いたバッチ変質試験（以下、バッチ変質試験）、銅粉とベントナイトを混合してカラムに圧縮して変質挙動を観察する試験（以下、銅粉カラム変質試験）を実施した。試験片カラム変質試験とバッチ変質試験については、平成 31 年度までに実施していない酸化性雰囲気および低酸素雰囲気での試験片カラム変質試験と低酸素雰囲気でのバッチ変質試験の試料についての、CEC 測定および溶液組成分析を実施した。その結果、CEC 測定および溶液組成分析からは、銅との相互作用によりベントナイトが変質していないと推測された。銅粉カラム変質試験については、酸化性雰囲気・炭酸共存下での試験を実施し、試験試料の EPMA 観察、XRD 測定による鉱物同定、CEC 測定を実施した。また、低酸素雰囲気・鉄共存下での試験を実施し、試験試料について XRD 測定による鉱物測定を実施した。これまでに得られている試験結果からは、炭酸および鉄の共存が圧縮ベントナイトの変質挙動に影響を及ぼさないことが示唆されている。低酸素雰囲気・炭酸共存下での試験については、令和 2 年度は試験の開始のみとした。

今後、酸化性雰囲気・炭酸共存下、低酸素雰囲気・炭酸共存下、低酸素雰囲気・鉄共存下の 3 種類の銅粉混合カラム試験について試料の分析を実施し、炭酸および鉄の共存がモンモリロナイトの変質に影響を及ぼす可能性について検討を行う。分析は、EPMA 観察、XRD 測定による鉱物同定、湿度制御 XRD 測定によるベントナイトの Ca 型化の分析、CEC 測定を予定しており、各試料に対して、令和 2 年度までに終了していない分析を実施する。また、この結果を元に、緩衝材の変質が顕著となる可能性のある条件を抽出し、抽出した条件に着目して、銅の腐食量と緩衝材変質量の関係等を明らかにすることを目的とした試験に着手する。

【参考文献】

- Allen, A. O., Hochanadel, C. J., Chormley J. A., and Davis T. W. (1952): Decomposition of water and aqueous solutions under mixed fast neutron and γ -radiation, Journal of Physical Chemistry, Vol.56, pp.575-586.
- Allen, G.C., Butler, I.S., and Nguyen, A.T. (1987): Characterisation of uranium oxides by micro-Raman spectroscopy, Journal of Nuclear Materials, Vol.144, pp. 17-19.
- Cachoir, C., Carbol, P., Cobos-Sabate, J., Glatz, J. P., Grambow, B., Lemmens, K., Martínez-Esparza, A., Menecart, 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.
- Ekeroth, E., Roth, O., and Jonsson, M. (2006): The relative impact of radiolysis products in radiation induced oxidative dissolution of UO_2 , Journal of Nuclear Materials, Vol.355, pp. 38-46.
- Elorrieta, J.M., Bonales, L.J., Rodríguez-Villagra, N., Baonza, V.G., and Bobos, J. (2016): A detailed Raman and X-ray study of UO_{2+x} oxides and related structure transitions, Physical Chemistry Chemical Physics, Vol.18, pp.28209-28216.
- Elorrieta, J.M., Bonales, L.J., Baonza, V.G., and Cobos, J. (2018): Temperature dependence of the Raman spectrum of UO_2 , Journal of Nuclear Materials, Vol.503, pp.191-194.
- Eriksen, T.E., Shoesmith, D.W., and Jonsson, M. (2012): Radiation induced dissolution of UO_2 based nuclear fuel - A critical review of predictive modelling approaches, Journal of Nuclear Materials, Vol.420, pp.409-423.
- Evins, L.Z., Juhola, P. and Vähänen, M. (2014): REDUPP final report, Working Report 2014-12, Posiva Oy.
- Fujino, T., Nakama, S., Sato, N., Yamada, K., Fukuda, K., Serizawa, H., and Shiratori, T. (1997): Solubility of magnesium in uranium dioxide, J. Nuclear Mater., 246(2-3), pp. 150-157.
- 原環機構（原子力発電環境整備機構）（2018）：包括的技術報告：わが国における安全な地層処分の実現－適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築－（レビュー版），NUMO-TR-18-03.
- 原子力安全基盤機構（1999）：平成10年度軽水炉改良技術確証試験（高燃焼度等燃料に関するもの）に関する報告書.
- 原子力安全基盤機構（2007）：平成18年度高燃焼度 9×9 型燃料信頼性実証成果報告書（総合評価編），07 基炉報-0002.
- 原子力安全基盤機構（2008）：BWR 燃料照射後試験における測定燃焼度評価の見直し，JNES-SS-0807.
- 原子力発電技術機構（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) (2015) : 平成 26 年度地層処分技術調査等事業「使用済燃料直接処分技術開発」報告書, 平成 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.
- 原子力機構 (日本原子力研究開発機構) (2020) : 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.
- Grambow, B., Loida, A., Martinez-Esparza, A., Diaz-Arocas, P., de Pablo, J., Paul, J.-L., Marx, G., Glatz, J.-P., Lemmens, K., Ollila, K., and Christensen, H. (2000): Source term form performance assessment of spent fuel as a waste form, EUR 19140, European Commission.
- Guimbretière, G., Desgranges, L., Canizarès, A., Carlot, G., Caraballo, R., Jégou, C., Duval, F., Raimboux, N., Ammar, M. R., and Simon, P. (2012): Determination of in-depth damaged profile by Raman line scan in a pre-cut He^{2+} irradiated UO_2 , Applied Physics Letters, Vol.100, 251914.
- He, H. and Shoesmith, D. (2010): Raman spectroscopic studies of defect structures and phase transition in hyper-stoichiometric UO_{2+x} , Physical Chemistry Chemical Physics, Vol.12, pp.8108-8117.
- Jégou, C., Caraballo, R., De Bonfils J., Broudic, C., Peugeot, S., Vecouter, T., and Roudil, D. (2010a): Oxidizing dissolution of spent MOX47 fuel subjected to water radiolysis: Solution chemistry and surface characterization by Raman spectroscopy, Journal of Nuclear Materials, Vol.399, pp.68-80.
- Jégou, C., Caraballo, R., Peugeot, S., Roudil, D., Desgranges, L., and Magnin, M. (2010b): Raman spectroscopy characterization of actinide oxides $(\text{U}_{1-y}\text{Pu}_y)\text{O}_2$: Resistance to oxidation by the laser beam and examination of defects, Journal of Nuclear Materials, Vol.405, pp.235-243.
- Jung, E. C. Cho, H.-R., Baik, M.H., Kim, H., and Cha, W. (2015): Time-resolved laser fluorescence spectroscopy of $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$, Dalton Transactions, Vol.44, pp.18831-18838.

- 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.
- 北村暁, 伊藤美貴, 赤木洋介, 吉田泰 (2015) : ウランの溶解度に及ぼす炭酸濃度および酸化還元状態の影響と熱力学計算の適用性確認, 日本原子力学会 2015 年秋の大会, H03.
- Kitamura, A. and Akahori, K. (2017): Effect of carbonate concentration on the dissolution rates of UO_2 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 isosaccharinate, tentative selection of thermodynamic data for ternary $M^{2+}-UO_2^{2+}-CO_3^{2-}$ system and integration with JAEA's thermodynamic database for geochemical calculations, JAEA-Data/Code 2018-018.
- 北村暁, 赤堀邦晃, 長田正信 (2020) : 使用済燃料直接処分における放射性核種の瞬時放出率設定手法の構築, 原子力バックエンド研究, 27(2), pp. 83-93.
- Leinders, G., Cardinaels, T., Binnemans, K., and Verwerft, M. (2015): Accurate lattice parameter measurements of stoichiometric uranium dioxide., J. Nucl. Mater., 459, pp. 135-142.
- Lin, D.H.M, Manara, D., Lindqvist-Reis, P., Fanghänel, T., and Mayer K. (2014) : The use of different dispersive Raman spectrometers for the analysis of uranium compounds, Vibrational Spectroscopy, 73, pp. 102-110.
- Livneh, T. and Sterer, E. (2006): Effect of pressure on the resonant multiphonon Raman scattering in UO_2 , Physical Review B, Vol.73, 085118.
- Loida, A., Metz, V., and Kienzler, B. (2007): Alteration behavior of high burnup spent fuel in salt brine under hydrogen overpressure and in presence of bromide, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol. 985, pp. 15-20.
- Madejová, J., Pálková, H. and Komadel, P. (2006): Behaviour of Li^+ and Cu^{2+} in heated montmorillonite: Evidence from far-, mid-, and near-IR regions, Vib. Spectrosc., Vol. 40, pp. 80-88.
- Martínez-Torrents, A., Serrano-Purroy, D., Casas, I., and de Pablo, J (2018): Influence of the interpellet space to the instant release fraction determination of a commercial UO_2 boiling water reactor spent nuclear fuel, J. Nucl. Mater., Vol. 499, pp. 9-17.
- Neck, V and Kim, J.I. (2001): Solubility and hydrolysis of tetravalent actinides, Radiochimica Acta, Vol. 89, pp. 1-16.

- Ollila, K. (2008): Dissolution of unirradiated UO_2 and UO_2 doped with ^{233}U in low- and 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, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations, Chapter 43 of Section A (Groundwater) in Book 6 (Modeling Techniques), U. S. Geological Survey.
- Rickert, K., Prusnick T.A., Kimani, M.M., Moore, E.A. Merriman, C.A., and Mann, J.M. (2019): Assessing UO_2 sample quality with μ -Raman spectroscopy, Journal of Nuclear Materials, Vol.514, pp.1-11.
- Sarsfield, M.J., Taylor, R.J., Puxley, C., and Steele, H.M. (2012): Raman spectroscopy of plutonium dioxide and related materials, Journal of Nuclear Materials, Vol.427, pp.333-342.
- Senanayake, S. D., Rousseau, R., Colegrave, D., and Idriss, H. (2005): The reaction of water on polycrystalline UO_2 : Pathways to surface and bulk oxidation, Journal of Nuclear Materials, Vol.342, pp.179-187.
- Tan, B. T., Popel, A. J., Wilbraham, R. J., Day, J., Lampronti, G. I., Boxall, C., and Rarnan, I. (2019): Surface and electrochemical controls on UO_2 dissolution under anoxic conditions, Journal of Nuclear Materials, Vol.520, pp.41-55.
- 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.

第 4 章

直接処分システムの成立性の多角的な確認

4 章詳細目次

4. 直接処分システムの成立性の多角的な確認	4-1
(1) 本項目の背景と目的	4-1
(2) システムの成立性に関する多角的な検討に資する情報の整理	4-2
1) システムの成立性に関する多角的な検討に資する情報の整理の着眼点、方針	4-2
① 課題の表現や詳細度の見直しと多様性への対応の確認	4-5
② 課題についての関連情報の充実	4-6
2) システムの成立性に関する多角的な検討に資する情報の検討	4-15
① 処分容器の腐食挙動や使用済燃料マトリクス of 溶解挙動への影響の観点からの地下水水質の検討	4-15
② 保障措置・核セキュリティ対策技術のシステム性能への影響	4-31
(3) 保障処置・核セキュリティに関する情報・知見の収集・整理	4-34
1) カナダの保障措置協定および実施状況	4-35
2) カナダの保障措置および核セキュリティ等の原子力規制の枠組みの状況	4-35
3) カナダの保障措置および核セキュリティ等に関する規制内容	4-39
4) カナダでの Safeguards by Design (SbD) への取組み	4-41
5) カナダの地層処分実施主体における保障措置・核セキュリティ対策の考え方	4-42
6) カナダにおける知識継承 (Knowledge Preservation) についての対策	4-43
7) カナダにおける人材育成への取組み	4-44
(4) まとめ	4-44
参考文献	4-46

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、人工バリアの成立性の評価の高度化、地質環境条件や使用済燃料の多様性への対応性向上のために重要となる、直接処分システムの成立性の多角的な確認に向けて、システムの成立性を効果的に検討するための課題の整理およびそれら課題への対応を進めるとともに、直接処分において考慮が必要となる保障措置・核セキュリティ等について、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等を進める。

直接処分システムの成立性の確認に向けては、平成 31 年度までに、システムの信頼性向上に向けての課題等の分析を実施してきている。令和 2 年度は、これら課題等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等を、複数の構成要素の組み合わせにより生じる課題や保障措置・核セキュリティ対策の導入により生じる課題等にも着目しつつ実施する。

まず、課題等の分析について、これまでの成果と令和 2 年度の実施内容は次のとおりである。直接処分第 1 次取りまとめでの課題の整理では、着目すべき課題をリストアップすることに重点をおいており、課題間の関係についての十分な整理まではなされていなかった。また、直接処分第 1 次取りまとめで整理した課題を踏まえて実施した先行事業では、まず各構成要素の工学的成立性に係る課題（処分容器、緩衝材、搬送・定置設備等のそれぞれの設計検討等）への取り組みを中心に行ってきた。そこで、システムの成立性についてより多角的な確認としていくための課題の分析・整理として、平成 31 年度までに、複数の構成要素の組み合わせや工学的成立性以外の観点、諸外国の検討事例等との違い（対象とする地質環境や廃棄体などの違いとそれによる課題の違い等）、複数のシステム構成要素や技術領域との関係などに着目した課題の詳細な分析を進めた。これにより、課題全体の中での特定の課題の位置づけや他の課題との関係などを俯瞰できるようになった（含む、本事業で取り組んできている個別課題の課題全体の中での位置づけ、それら個別課題の検討をさらに進めていくうえで今後留意が必要になる可能性のある個別課題との関係性を有する課題等の確認）。令和 2 年度は、これら課題等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等として、わが国での直接処分を考える場合に想定される状況や条件を対象に、直接処分に特有なシステム性能を例示していくこと、また、想定される状況や条件での設計仕様や設計上の留意点を例示していくことに着目し、その実施に向けての基本的考え方や手順の検討、さらにそのような例示の実施に必要な基盤的な情報の整備を進めることとした。なお、これらの検討においては、複数の構成要素の組み合わせより生じうる状況を適切に取り込むこと、また、本事業の他項目（2 章～3 章参照）で実施している個別現象に関する研究開発の成果の効果的な反映を図ること、などに留意することとした。

保障措置・核セキュリティについては、平成 31 年度までに、諸外国での検討状況、人工衛星等の外部モニタリング情報の適用可能性等についての調査・分析等を実施してきている。令和 2 年度は、保障措置・核セキュリティについての諸外国での考え方、技術開発、対策等についての調査・分析等を実施し、最新の検討状況等を整理した。この中では、諸外国での考え方・技術開発等についての最新の情報の調査・整理を進めるとともに、これまでに調査・整理してきた保障措置・核セキュリティについての情報や知見を、前述の直接処分システム

の成立性の確認に向けての取り組みの中での、想定される状況や条件での設計仕様の例示や設計上の留意点の例示に向けての基本的考え方や手順の検討にも反映した。具体的には、核セキュリティ・保障措置対策技術を直接処分システムに導入した場合に、システムの設計や安全評価の観点で注意すべき影響は生じうるか、生じうる場合にはその程度や緩和・回避の対策としてどのようなことが考えられるかなどの抽出・整理を行うための基盤情報として、これまでに調査・整理してきた保障措置・核セキュリティ対策技術についての情報や知見を活用した。

本章では、直接処分システムの成立性の確認に向けての検討として、まず、システムの成立性に関する多角的な検討に資する情報の整理について述べる（後述(2)参照）。次に、保障措置・核セキュリティに関する情報・知見についての最新の調査・整理の結果を提示する（後述(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) システムの成立性に関する多角的な検討に資する情報の整理

本項では、システムの成立性に関する多角的な検討に資する情報をより充実させるための情報の整理についての着眼点や整理の方針を定め（後述1）参照）、それに基づく情報の検討と整理を実施した（後述2）参照）。

1) システムの成立性に関する多角的な検討に資する情報の整理の着眼点、方針

(1)項で述べたように、平成31年度までに、システムの成立性についてより多角的な確認としていくための課題の分析・整理として、複数の構成要素の組み合わせや工学的成立性以外の観点、諸外国の検討事例等との違い（対象とする地質環境や廃棄体などの違いとそれによる課題の違い等）、複数のシステム構成要素や技術領域との関係などに着目した課題の詳細な分析を進めた。この結果として、既往の検討事例で認識されている課題の分析から、様々な課題の起点となる主要な要因として以下の4つの要因が抽出された。

- C-14 や I-129 等の瞬時放出成分の影響
- UO₂マトリクス溶解促進の可能性
- 岩盤強度や透水性が北欧等と異なることの影響
- U及びPuのインベントリが大きいことの影響

さらに、これら4つの主要な要因を起点として派生する問題点や対策等を、複数のシステム構成要素や技術領域との関係に着目して整理すること(図4-1)で、課題の位置づけや他の課題との関係性を俯瞰できるようになり、先行事業及び本事業で取り組んできた以下の個別課題の課題全体の中での位置づけや、それら個別課題の検討をさらに進めていくうえで今後留意が必要になる可能性のある個別課題との関係性を有する課題等を確認できるようになった。

2章2.1節 処分容器の腐食挙動評価（図4-1の①に該当）

2章2.2節 使用済燃料処分での処分後臨界安全評価（図4-1の②に該当）

3章3.1節 使用済燃料集合体からの核種溶解挙動評価（図4-1の②に該当）

3章3.2節 緩衝材の長期挙動評価（図4-1の②に該当）

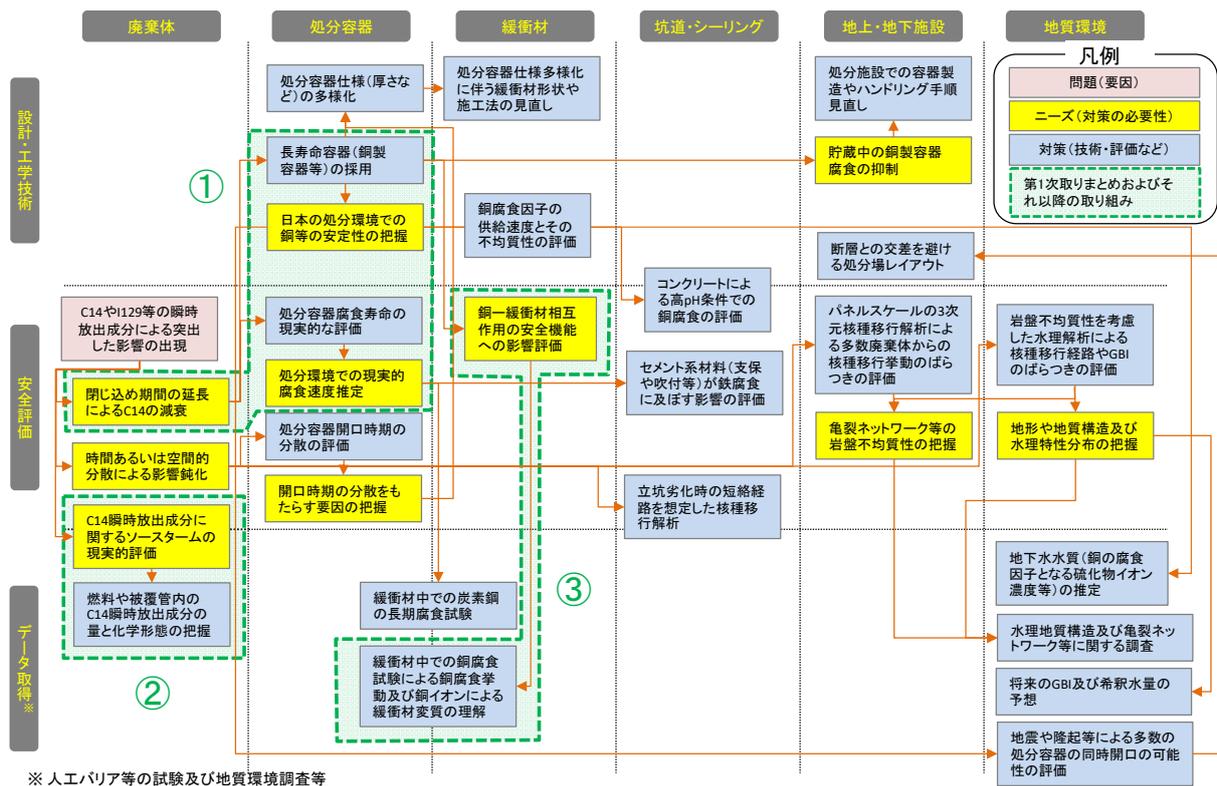


図 4-1 C-14 や I-129 等の瞬時放出成分の影響を起点とした課題の整理結果

ここで、直接処分システムの成立性の確認に向けては、システム性能の評価として、例えば使用済燃料の地層処分システムに関する概括的評価第 1 次取りまとめ(原子力機構, 2015) (以下、「直接処分第 1 次取りまとめ」という)の内容と比較することなどが望まれるが、先行事業および本事業(原子力機構, 2018; 2019; 2020)においてすべての課題に取り組んできているわけではないため、直接処分第 1 次取りまとめと対比可能なようなシステム全体を対象とした性能の検討まではできない。しかしながら、先行事業および本事業の中では、システム全体の性能に直接的に大きな影響を与える可能性のある因子についての「現象の理解深化」(特定の現象についての様々な条件での試験の実施、結果の条件依存性や結果を規定するプロセスの検討など)を、使用済燃料マトリクスの溶解や処分容器の腐食挙動などを対象に重点的に進めてきており、それら研究成果を反映することで、燃料マトリクス溶解速度や処分容器寿命などといったシステムの構成要素の安全機能に着目した検討を行うことは可能である。

そこで、このような「現象の理解深化」の成果、また先行事業での設計研究などの「各要素の設計」の成果を活用することで、「想定される条件に応じたシステム(構成要素)の安全機能の例示」や「想定される条件に応じた設計仕様の例示」などを行うことを考えている(図 4-2)。「想定される条件に応じたシステム(構成要素)の安全機能の例示」では、想定しうる条件(処分環境条件や使用済燃料)を整理し、その条件のもとでのシステムの構成要素の安全機能(燃料マトリクス溶解速度、処分容器寿命など)の違いの有無や程度、さらにはそれらの核種移行解析結果への影響を例示することが考えられる(図 4-2 の左側のルート)。一方、「想定される条件に応じた設計仕様の例示」については、想定しうる条件(処分環境

や使用済燃料)、さらには直接処分システムの設計仕様の検討の前提条件のひとつとなり得る
 保障措置・核セキュリティ対策の導入について、それら条件において既往の設計仕様がその
 まま適用できるか、あるいは、設計仕様を変更する必要があるかなどについての検討を行う
 ことが考えられる (図 4-2 の右ルート)。

このような検討の成果は、直接処分システムの成立性に関する多角的な確認に資する情報
 の一部になるとともに、個別課題についての成果の活用事例ともなり、令和 4 年度に予定し
 ているプログレスレポート (1 章参照) のコンテンツのひとつとしても有用になると考える。

令和 2 年度は、「想定される条件に応じてのシステム (構成要素) の安全機能の例示」の
 準備として、想定される条件のひとつとして重要な処分環境条件である地下水水質に着目し、
 使用済燃料マトリクス¹⁾の溶解挙動に影響する炭酸濃度、および処分容器の腐食挙動に影響す
 る硫化物濃度の人工バリアの各領域での違いの有無や程度に関する情報の整理を「処分容器
 の腐食挙動や使用済燃料マトリクス¹⁾の溶解挙動への影響の観点からの地下水水質の検討」(後
 述の 2)①参照) として行う。また、「想定される条件に応じての設計仕様の例示」の準備と
 しては、設計仕様の検討の前提として、保障措置・核セキュリティ対策技術のシステムの設
 計や安全機能への影響が無視できるか、あるいは、対策などを施すことでそれら影響を回避
 あるいは緩和できるかの確認が必要となる可能性があるかなどについての見通しを得ること
 を目指し、「保障措置・核セキュリティ対策技術のシステム性能への影響の検討」(後述の
 2)②参照) を行う。

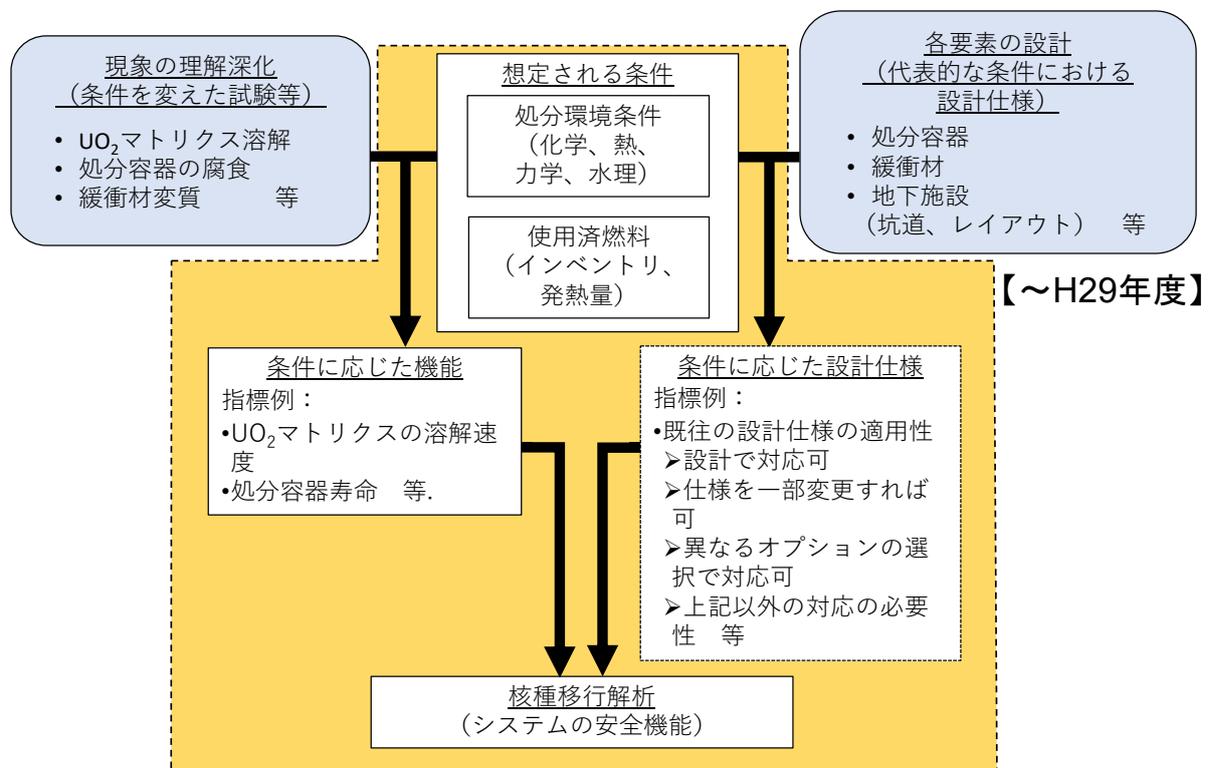


図 4-2 想定される条件に応じてのシステム (構成要素) の安全機能や設計仕様等の例示の
 検討の流れ

ここで、平成 31 年度までに実施した課題の整理については、前述のように先行事業及び本事業で取り組んできた個別課題の課題全体の中での位置づけや今後留意が必要になる可能性のある課題等を確認できるものであり有用であるが、複数のシステム構成要素や技術領域との関係の中で示されている多数の課題の整理結果を細かく見ると、課題の表現や課題の粒度については必ずしも高度な統一までができていない。例えば、課題の表現については、課題の記載に用いる用語や記載内容の長さ、あるいは詳細度にばらつきがあり、課題の粒度についても、各課題の内容の大きさにはばらつきがある。また、平成 31 年度までの課題の分析・整理において参考とした諸外国の検討事例の調査・分析の結果や、引き続き行っている諸外国での検討の進捗状況などに関する最新情報の調査結果については、必ずしも課題との対応がわかりやすい形や参照しやすい形では整理できていない。そのため、平成 31 年度までの課題の整理結果を、本事業及び今後の直接処分の研究開発の基盤情報として活用していくためにも、課題に関する情報の見やすさ、わかりやすさ、有用性などの向上を図ることとする。具体的には、平成 31 年度までに実施した課題の整理結果に対して、以下を実施した。

- ・ 課題の表現や詳細度の見直しによる見やすさ、わかりやすさの向上
- ・ 課題の使用済燃料や地質環境条件の多様性への対応の確認による有用性の向上
- ・ 課題についての関連情報の充実による有用性の向上

以下では、これらへの取組みを、「①課題の表現や詳細度の見直しと多様性への対応の確認」及び「②課題についての背景情報の充実」として示す。

① 課題の表現や詳細度の見直しと多様性への対応の確認

本項目では、まず、平成 31 年度までに実施した課題の整理結果に対して、各課題で対象とする内容の範囲の違いなどを確認し、必要に応じて課題の細分化、統合、あるいは追加などを行い、課題の粒度のばらつきを小さくしていく。例えば、「U 及び Pu のインベントリが大きいことの影響」（付録 2 の付図 2-5）において、保障措置・核セキュリティ対策に関するニーズの粒度が大きく、また対策について表現の一部が適切ではないことや、これまでに本事業の中で調査・整理してきた保障措置・核セキュリティ対策技術との対応関係が分かりづらくなっていたことから、これらを解消するための課題の表現及び課題の粒度の見直しを行った（付録 2 の付図 2-6）。このような見直しを、「C-14 や I-129 などの瞬時放出成分による突出した影響の出現」「UO₂ マトリクス溶解促進の影響」「岩盤強度や透水性が北欧などと異なることの影響」についても行った。その結果を付録 2 に示す。

つぎに、平成 31 年度までに実施した課題の整理結果に対して、各課題の使用済燃料や地質環境条件の多様性への対応の確認を行う。これは、使用済燃料の燃料タイプ、燃焼度、初期濃縮度などの違いにより生じ得る使用済燃料の特性や挙動への影響が既存の課題でカバーできているか、同じく、地質環境の岩種、地下水、深度などの違いにより生じ得る地質環境条件の違いやそれによるシステムの挙動などへの影響が既存の課題でカバーできているか、などの確認を行うことを目指すものである。

使用済燃料の多様性については、インベントリ、発熱量、瞬時放出率、UO₂ マトリクス溶解速度などがどのような使用済燃料においても共通的に重要な特性や挙動であると考えられ、

それらは既に課題として挙げられていたり、課題を考えるうえでの重要な因子と位置付けられており、特性や挙動の使用済燃料の多様性に応じた違いは既存の課題の範囲で基本的に対応可能と考える。一方、燃料タイプや燃焼度によっては、発熱量がかなり大きくなることで、既往の処分施設の設計要件（緩衝材最高温度 100 °C 以下）を満たす離間距離の設定が難しくなる場合も想定され得る。そのため、このことにも対応できるように、「緩衝材制限温度などの設定の考え方の再検討」を追加した。これは、直接処分第 1 次取りまとめにおいても設計の最適化等の観点から検討の可能性が指摘されていたものである。

また、地質環境条件の多様性については、処分環境での熱-水理-力学-化学（THMC）条件がどのような地質環境および処分システム（従来の高レベル放射性廃棄物の地層処分、使用済燃料の直接処分など）においても共通的に重要な特性と考えられ、平成 31 年度までに実施した課題の整理全般で課題を考えるうえでの重要な因子と位置付けられている。さらに、THMC 条件に応じたシステムの挙動として使用済燃料の直接処分で特に着目すべきは、使用済燃料からの核種溶出挙動（瞬時放出、UO₂ マトリクス溶解）や処分容器の長寿命化による C-14（半減期 5,730 年）の影響の低減であると考えられるが、それらも既に課題として挙げられている。これらのことから、特性や挙動の地質環境条件の多様性に応じた違いは既存の課題の範囲で基本的に対応可能と考える。しかし、直接処分においては可溶性で収着性の低い C-14 や I-129 の移行が特に重要となることから、地質環境条件として地下水流動が比較的速い場合には、核種移行の空間分散の影響を効果的に取り入れることが有効になると考えられる。このために、例えば、「処分パネルの多段化」を追加した。これは、地下水流動が比較的速い場合への対応だけでなく、隆起・侵食が比較的大きい場合などの対応としても有用になる可能性がある。

以上から、平成 31 年度までに実施した課題の整理結果について、使用済燃料の多様性及び地質環境条件の多様性は、既存の課題の範囲で基本的に対応可能と考える。

② 課題についての関連情報の充実

本項目での課題についての関連情報の充実として、平成 31 年度までに実施した課題の整理結果に対して、本事業において取り組んでいない課題などについても、諸外国や国内での取り組みの状況や懸念事項などを把握し、それらを関連情報として課題と対応付けることができるように、処分容器開口時期の分散の影響や燃料の多様性と α 線影響の関係についての情報を整理した。

さらに、各課題で示されている着目すべき現象や特性がシステムの性能や設計にどのような影響を及ぼす可能性があるかについての情報を整理することも、課題についての関連情報の充実として有用であると考えられる。例えば、重要な課題と認識されている処分容器の腐食について、腐食挙動の不均質性や不確実性による開口時期の違いや時間的なばらつきなどが核種移行解析結果にどのような影響を及ぼす可能性があるかは、システムの安全性や設計目標などを論じる上での有用な情報であり、前述の「想定される条件に応じたシステム（構成要素）の安全機能の例示」や「想定される条件に応じた設計仕様の例示」とも関係することから、それについての影響の有無や程度、さらには影響が顕在化する条件などに関する見通しを得ておくことは有用であると考えた。そこで、本項目において、処分容器の開口時

期の違いや時間的なばらつきなどが核種移行解析にどのような影響を及ぼすかについての解析的検討を行うこととした。

まず、処分容器開口時期の分散の影響や燃料の多様性と α 線影響の関係についての情報の整理について示す。

- ・ 処分容器開口時期の分散の影響

①で示したように、直接処分においては可溶性で収着性の低い瞬時放出成分の C-14 や I-129 の移行が特に重要となり、令和 2 年度の課題の整理では、「時間あるいは空間的な分散による影響鈍化」が課題として示された。処分容器開口時期の空間的な分散を考慮した事例として、SKB(2011)において、亀裂ネットワークの統計的不均質性によって銅製処分容器に供給される硫化物のフラックスを考慮した評価が実施されている。また、処分容器開口時期の変化や分散の影響については、後述に示すような予察的な検討を行い、知見を得ている。

- ・ 燃料の多様性と α 線影響の関係

使用済燃料としては、PWR 燃料や BWR 燃料に加えて、MOX 燃料や高速炉、研究炉なども想定され、これらの使用済燃料については、図 4-3 に示すように、Pu-239、Pu-240 及び Am-241 といった主要な α 核種のインベントリが軽水炉よりも顕著に大きい点に留意する必要がある。特に、処分容器の破損時期を 1,000 年程度と仮定すると、プルスーマルや高速炉の使用済燃料での α 線が他の燃料の場合に比べて大きくなり、 α 線による水の放射線分解で生ずる酸化剤が多くなる可能性がある。これにより、例えば、炉型によって、U₂O₃マトリクス溶解 (Oxidative Dissolution) を促進する可能性に留意する必要性が生じる可能性がある。

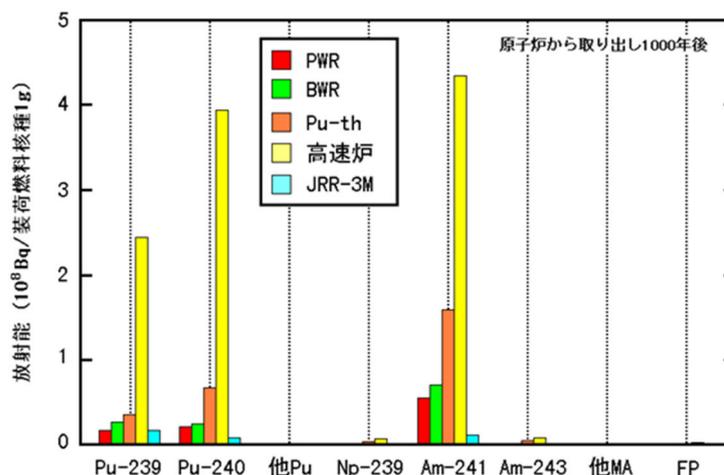


図 4-3 使用済燃料中の放射能に対する核種別の寄与 (炉取り出し 1,000 年後)

(原子力機構, 1998)

このような調査により得られた情報と課題との対応付け、さらには先行事業や本事業の報告書で整理された研究開発成果や調査結果などの情報と課題との対応付けなどには、直接処

分に関連する情報の特徴の表現に適したキーワードの設定、各情報の属性情報の付与とその属性情報のキーワードでの表現、キーワード検索による指定されたキーワードを属性情報として持つ情報の抽出・表示等が有効になると考えられ、それらの準備の一環として、機能の基本部分の具体化と試行を、先行事業や本事業の報告書に含まれる情報を例として行った。また、このような機能は、令和4年度に予定しているプログレスレポート（1章参照）の作成においても、プログレスレポートコンテンツと先行事業や本事業の報告書の内容の対応付けを容易にすることなどを促進する方法のひとつとしても活用できると考えられる。

次に、前述の「処分容器開口時期の分散の影響」において言及した、処分容器の開口時期の違いや時間的なばらつき等が核種移行解析にどのような影響を及ぼすかについての解析的検討の結果を示す。

先行事業において、処分容器寿命によって総線量がどのように変化するかについての評価が実施された（図4-4）。この評価では、C-14（半減期：約5,730年）の崩壊の影響により、処分容器寿命が1万年程度まではC-14が支配的であるが、寿命がそれよりも長くなると支配核種はI-129となり、5万年程度となると総線量に対するC-14の影響が顕在化しなくなった。この結果を参考に、処分容器の長寿命化の検討においては5万年程度の寿命がひとつの目安とされた。

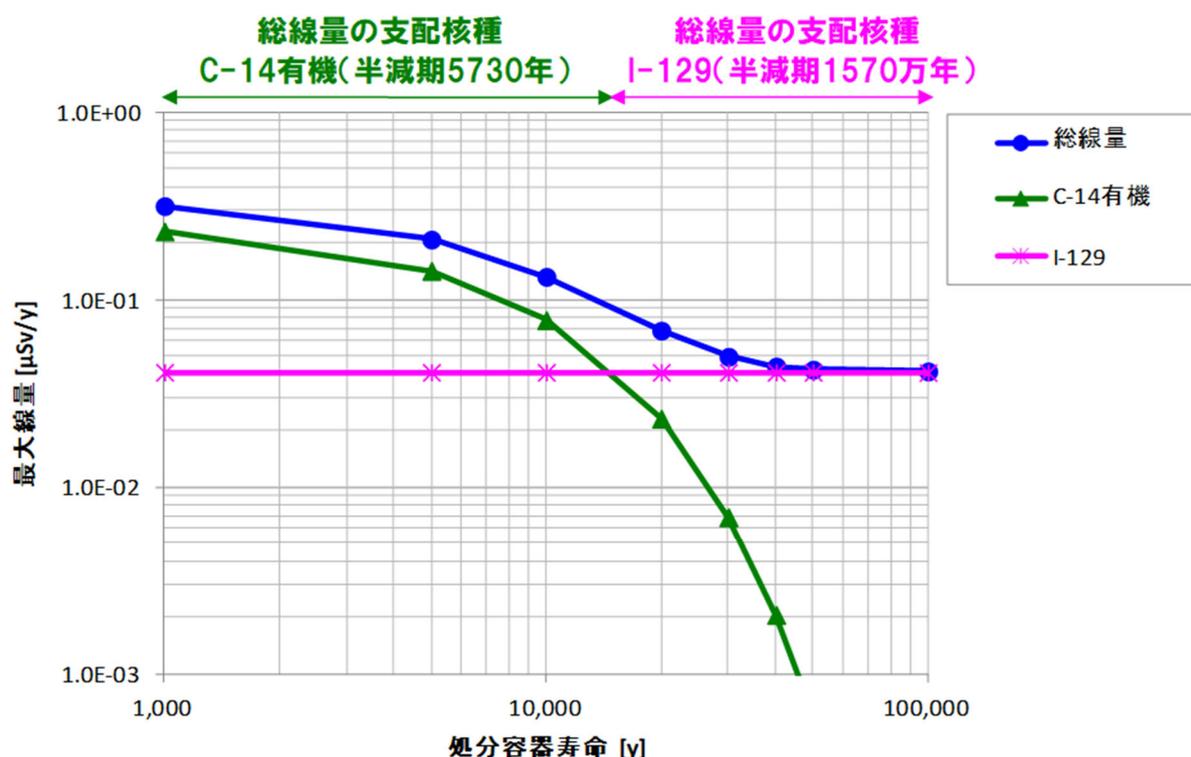


図 4-4 処分容器寿命と支配核種の感度解析結果（原子力機構，2015）

ここで、総線量の主要な支配核種である C-14 と I-129 の移行率は、瞬時放出割合（IRF）に比例する。IRF については、図 4-4 に示した評価を行った以降の先行事業での検討（北村ほか，2020）の中で、諸外国の設定値や国内での試験などを参考に、PWR 使用済燃料からの IRF

の推奨値と最大値が表 4-1 のように整理されている。C-14 と I-129 の IRF についても推奨値と最大値が設定されており、前述の評価（図 4-4）は、表 4-1 の C-14 と I-129 の推奨値を組み合わせた場合の評価に近い。一方、推奨値の組み合わせ以外にも、C-14 と I-129 のそれぞれの推奨値と最大値の組み合わせも考えられ、その場合には、処分容器寿命の長期化の効果により総線量に対する C-14 の影響がみられなくなる時期、すなわち処分容器の長寿命化の目安となる時期は、図 4-4 で示したものと異なるものとなる可能性がある。

また、直接処分第 1 次取りまとめや先行事業の評価においては、保守的に処分容器が同じ時期に全数が破損すると仮定して評価を行っているが、実際の処分環境においては、保守的に設定した破損時期よりも後に破損する処分容器も多く存在すると考えられること、さらに処分容器の腐食挙動は各処分容器を取り巻く地質環境の違い（地下水組成や流速、応力など）の影響も受けると考えられることなどから、処分容器の開口時期は時間的な分散を有すると考えられる。ここで、保守的に処分容器が同じ時期に全数が破損する（すなわち、IRF 分が全ての処分容器で同時に放出される）と仮定する場合と、処分容器の開口時期が時間的に分散する（すなわち、IRF 分の放出タイミングが処分容器によって異なる）と考える場合とでは、後者のほうが核種移行の時間的な希釈が生じ核種移行率が低くなる可能性がある。

以上のことを踏まえ、本検討では以下の 2 つに着目し、それらの総線量の主要な支配核種（C-14 と I-129）の移行率への影響を解析的に検討する。

- a. 処分容器の長寿命化の効果と C-14 と I-129 の IRF の関係
- b. 処分容器の開口時期分散の影響

なお、処分容器の長寿命化や開口時期の分散が総線量の主要な支配核種の移行率へ与える影響は、定性的には表 4-2 のようになり、C-14 については核種の崩壊効果と時間的希釈効果の両方が影響する可能性があり、I-129 については時間的希釈効果のみが影響すると考えられる。

表 4-1 国内向けのソースタームパラメータとしての瞬時放出割合の一覧（北村ほか，2020より抜粋）

核 種		瞬時放出割合（IRF）[%]		
		SF1 設定値	推奨値	最大値
FGR[%]		-	2.0	7.0
使用済燃料	³⁶ Cl	10.0	6.0	24.0
	¹²⁹ I	4.0	2.0	10.0
	¹³⁵ Cs ¹³⁷ Cs	4.0	1.2	7.0
	¹⁴ C	10.0	10.0	14.0 *1
	⁷⁹ Se	4.0	1.0	7.0 *1
	⁹⁰ Sr	1.0	1.0	4.0 *1
	⁹⁶ Tc	2.0	1.0	5.0 *1
	¹⁰⁷ Pd	2.0	1.0	5.0 *1
	¹²⁶ Sn	4.0	0.1	7.0 *1
構造材金属	¹⁴ C	20.0	20.0	40.0 *1

*1：諸外国における瞬時放出割合設定値のうち最も大きな値に3%を加算

表 4-2 処分容器の長寿命化や開口時期分散の C-14 と I-129 の移行率への影響の推定

	C-14	I-129
長寿命化	崩壊効果	—
開口時期分散	崩壊効果 + 時間的希釈効果	時間的希釈効果

a. 処分容器の長寿命化の効果と C-14 と I-129 の IRF の関係

本項では、表 4-1 に示した C-14 と I-129 の IRF の推奨値と最大値の組み合わせによって、支配核種や総線量に対する C-14 の影響が顕在化しなくなる時期がどのように変化するかを把握するための感度解析について述べる。なお、ここでの解析では、処分容器の開口時期の時間的な分散は考慮せず、感度解析のパラメータとして設定した処分容器寿命においてすべての処分容器が破損すると仮定した解析を行った。また、C-14 と I-129 以外の瞬時放出割合およびその他の解析条件は直接処分第 1 次とりまとめの PWR 燃料の設定値と同じ値とした。図 4-5 に解析結果を示す。

この結果、処分容器寿命の長期化の効果により総線量に対する C-14 の影響がみられなくなる時期、すなわち処分容器の長寿命化の目安とする時期は、C-14 と I-129 の IRF の推奨値と最大値のどの組み合わせでもほぼ 5 万年前後であり、違いが小さい事が分かった。この結果から、これまで処分容器の長寿命化の検討においては 5 万年程度の寿命を目安としてきたことの妥当性が確認されたと考えられる。

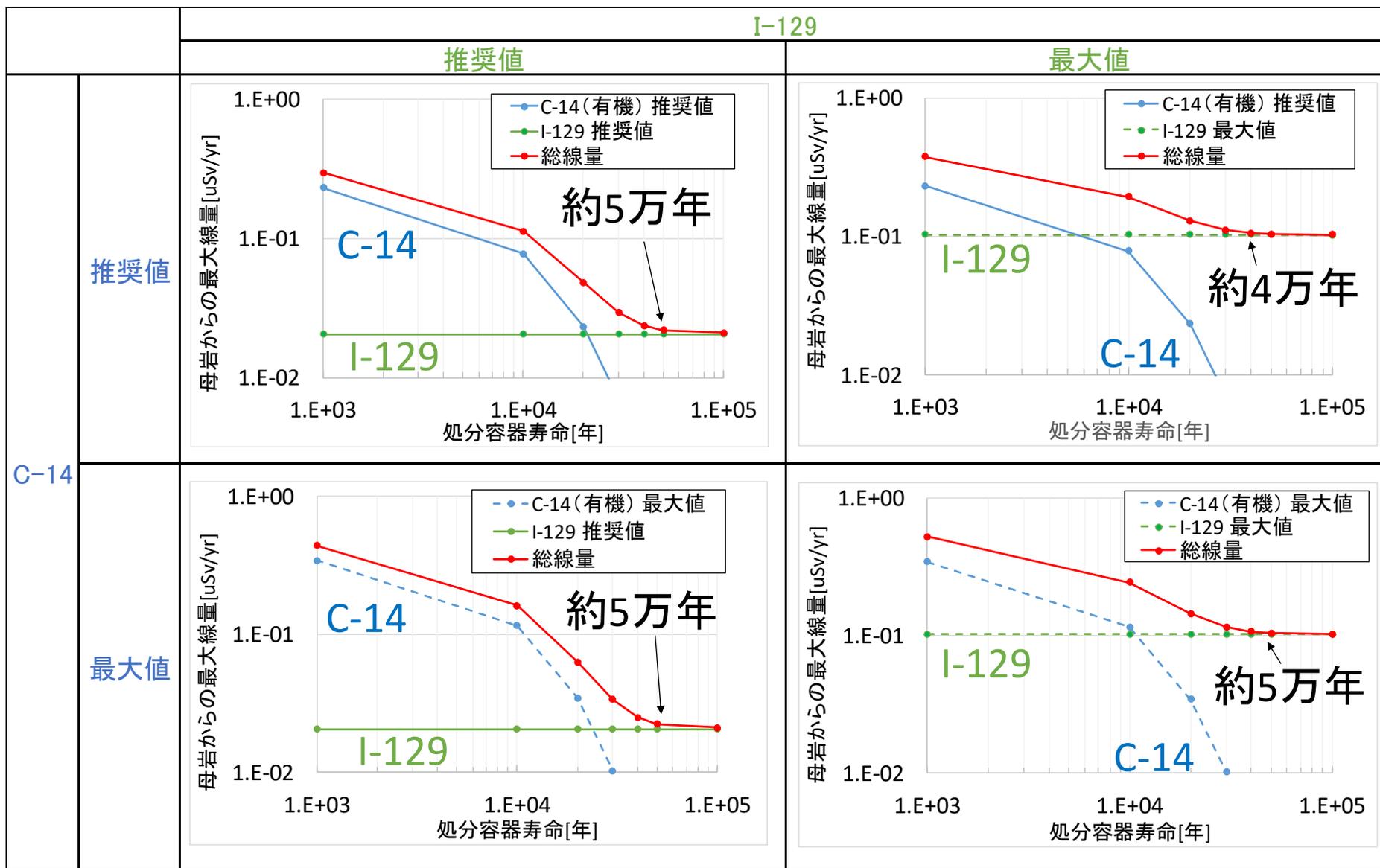


図 4-5 IRF の最大値と推奨値の各組み合わせにおける処分容器寿命と最大線量の関係

b. 処分容器の開口時期分散の影響

本項では、処分容器の開口時期の分散が核種移行率にどのような影響を及ぼすかに関して、以下の2つの場合の核種移行解析結果の対比を通じた検討について述べる。

- 処分容器の寿命を均一とする場合
- 上記で均一として設定した寿命を下限としたある時間幅に寿命が分散する場合

なお、表 4-2 のように、C-14 については核種の崩壊効果と時間的希釈効果の両方が影響する可能性があり、I-129 については時間的希釈効果のみが影響すると考えられる。ここで、これらの C-14 と I-129 の効果の総線量への影響は、開口時期の分散の幅だけでなく、開口時期の分散のどの時間帯でどの程度の数の廃棄体が開口するか、すなわち開口時期の分散の分布型も重要になると考えられる。具体的には、C-14 の崩壊効果については、図 4-4 及び前項 a で述べた C-14 が総線量に寄与する時間帯（～処分後 5 万年程度）での効果を適切に評価するためには、C-14 の半減期（5,730 年）に対して、崩壊が顕在化しない時間帯で開口する廃棄体、崩壊が進む時間帯で開口する廃棄体、および崩壊が大きく進んだ後の時間帯で開口する廃棄体のそれぞれを、過度に多くあるいは少なくカウントすることのないように分布型を設定することが重要となる。一方、時間的希釈効果については、C-14 の崩壊効果の総線量への寄与が顕在化する時間帯よりも遅い時間帯が特に重要となり、その時間帯で開口する廃棄体を過度に多くあるいは少なくカウントすることのないように分布型を設定することが重要になると考えられる。理想的には、想定される環境条件（地下水条件、水理条件など）を踏まえた現実的な開口時期分散の分布型を設定できることが望ましいが、現段階ではそのような検討を行うための情報は整っていない。一方、パラメータの分散を取り扱う際によく用いられる一般的な分布型である、一様分布や対数一様分布を想定した場合、例えば、一様分布からのサンプリングでは、設定した時間幅の中で遅い時間帯でのサンプルが相対的に多くなり、逆に、対数一様部分では、一様分布に比べて早い時間帯でのサンプルが相対的に多くなる。このことは、例えば、1,000 年を下限として 2 桁の開口時期分散区間（1,000 年～100,000 年）を考え、かつ、処分容器の寿命を 1,000 年で均一とする場合の結果と比較することを考えた場合、一様分布では、C-14 の半減期（5,730 年）を大きく超えた時間帯でのサンプルが多くなり、その結果としての C-14 の崩壊が進んだあとの総線量を処分容器の寿命を 1,000 年で均一とする場合の総線量と比較することになる。一方、同じ開口時期分散で対数一様分布を考えた場合には、C-14 の半減期（5,730 年）を大きく超えない時間帯でのサンプルも相当数あり、その結果としての C-14 の崩壊の効果がある場合とない場合が混在する状況での総線量を処分容器の寿命を 1,000 年で均一とする場合の総線量と比較することになる。

そのため、本検討では、処分容器の開口時期の分布型の設定により核種移行解析の結果がどのように異なるのかを、上記のような特徴を持つ一様分布と対数一様分布を事例として解析的に検討してみることにした。

また、そのような処分容器の開口時期の分散や分布型が核種移行解析結果に与える影響について、さらに処分容器寿命の下限値の設定の違いも影響を及ぼすかどうかにも着目し、

- ・ 直接処分第 1 次とりまとめにおいて、炭素鋼処分容器を対象に一律に 1,000 年で開口するとしていること
- ・ 前出の a 項で述べたように、本事業や先行事業において、5 万年程度を C-14 の閉じ込

めのための長寿命化の目安としていること

を参考に、C-14 の崩壊に着目しない場合の下限の例として「1,000 年」を、C-14 の崩壊に着目する場合の下限の例として「10,000 年」を考慮した検討を実施することとした。

これらを踏まえて設定した解析ケースを表 4-3 に示す。解析では、直接処分第 1 次取りまとめでの核種移行評価モデルとパラメータを用い、開口時期のみを変更した。開口時期については、表 4-3 に示した開口時期分散区間の中からランダムに 100 回サンプリングし、各開口時期での核種移行解析結果を足し合わせることで総線量を算出した。なお、比較対象とする処分容器の寿命を均一とする場合については、開口時期分散区間の下限である処分後 1,000 年あるいは 10,000 年で全処分容器が破損するとした。

表 4-3 処分容器開口時期の分散の影響についての解析ケース

開口時期分散区間	分布型	
	一様分布	対数一様分布
1,000 年～100,000 年	ケース 1	ケース 2
10,000 年～1,000,000 年	ケース 3	ケース 4

各ケースの結果を図 4-6 および図 4-7 に示す。これらの図では、総線量の評価結果（各ケース及び処分容器の寿命を均一とする場合）とともに、参考として、各ケースでサンプリングした開口時期もプロットした。これらの解析の結果、開口時期の分散を考慮することで、処分容器の寿命を均一とする場合に比べて総線量の低減が見られた。さらに、前述の定性的な予想のとおり、一様分布と対数一様分布において違いが見られ、一様分布の場合の方が総線量が低く見積もられている。さらに、図 4-6 と図 4-7 の比較からは、開口時期分散の下限が 1,000 年の場合の方が 10,000 年の場合よりも総線量が相対的に大きく（C-14 の崩壊の効果が小さく）なっており、これは、開口時期が C-14 の半減期（5,730 年）を大きく超えない廃棄体が、1,000 年の場合の方が 10,000 年の場合に比べて多くカウントされるためである。

これらの結果は、開口時期の分散を考慮する場合には、このような開口時期分散の分布型の違いならびに開口時期分散の幅の違いなどにより生じ得る核種移行解析結果の違いの可能性を認識したうえで、C-14（半減期 5,730 年）の崩壊効果、および C-14 や I-129 の時間的希釈効果を現実的に考慮できる分布型の設定を目指すことの重要性を示していると考えられる。

なお、図 4-7（開口時期分散：10,000 年～1,000,000 年、対数一様分布）において、処分後 10,000 年～100,000 年の間での総線量のグラフが滑らかではない。これは、対数一様分布を想定したことで異なる時間帯でのサンプルに偏りが生じ（10,000 年～100,000 年では 9 ケース、100,000 年～1,000,000 年では 91 ケース：図 4-7 のサンプリングした開口時期のプロット参照）、かつ、10,000 年～100,000 年ではある程度の時間的希釈の効果も生じていることから、サンプル数が多ければスムーズなグラフになると考えられるものの、本解析ではサンプル数が少ないために生じたと考えられる。

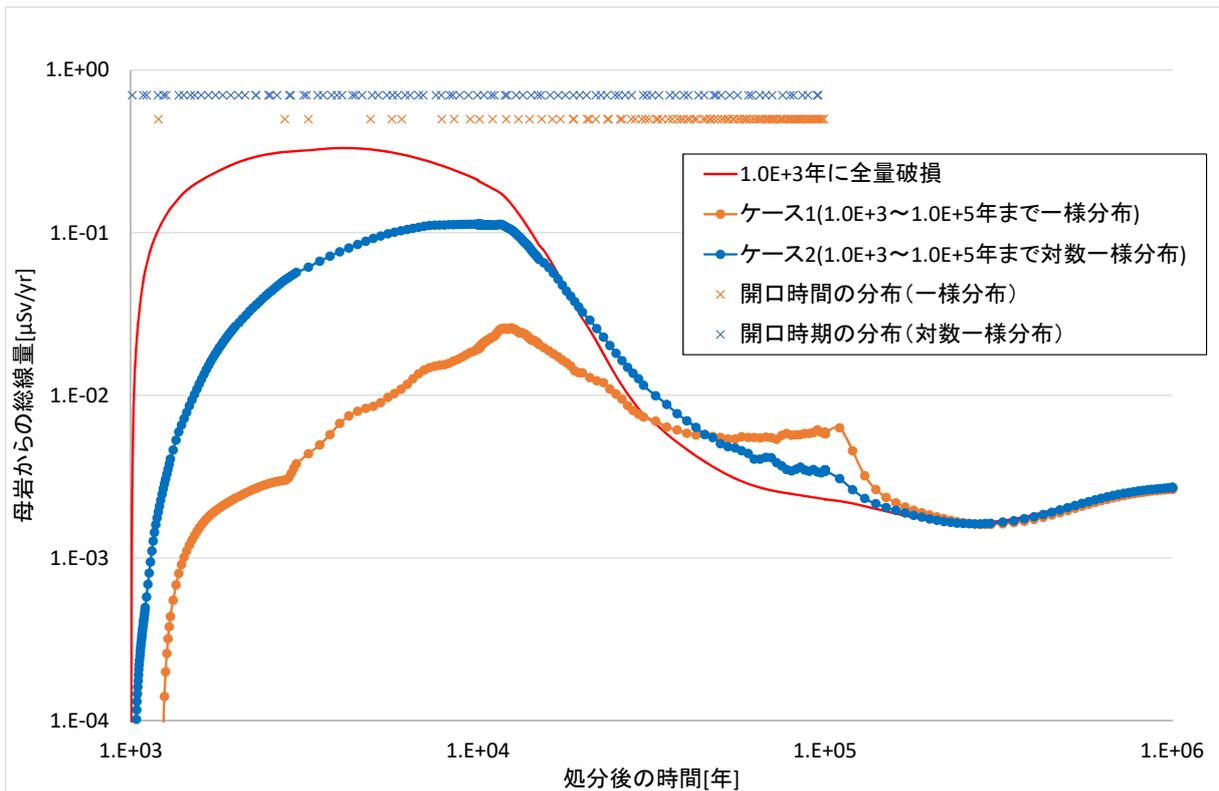


図 4-6 開口時期分散 (1,000 年～100,000 年) を考慮した解析結果例 (対数分布)

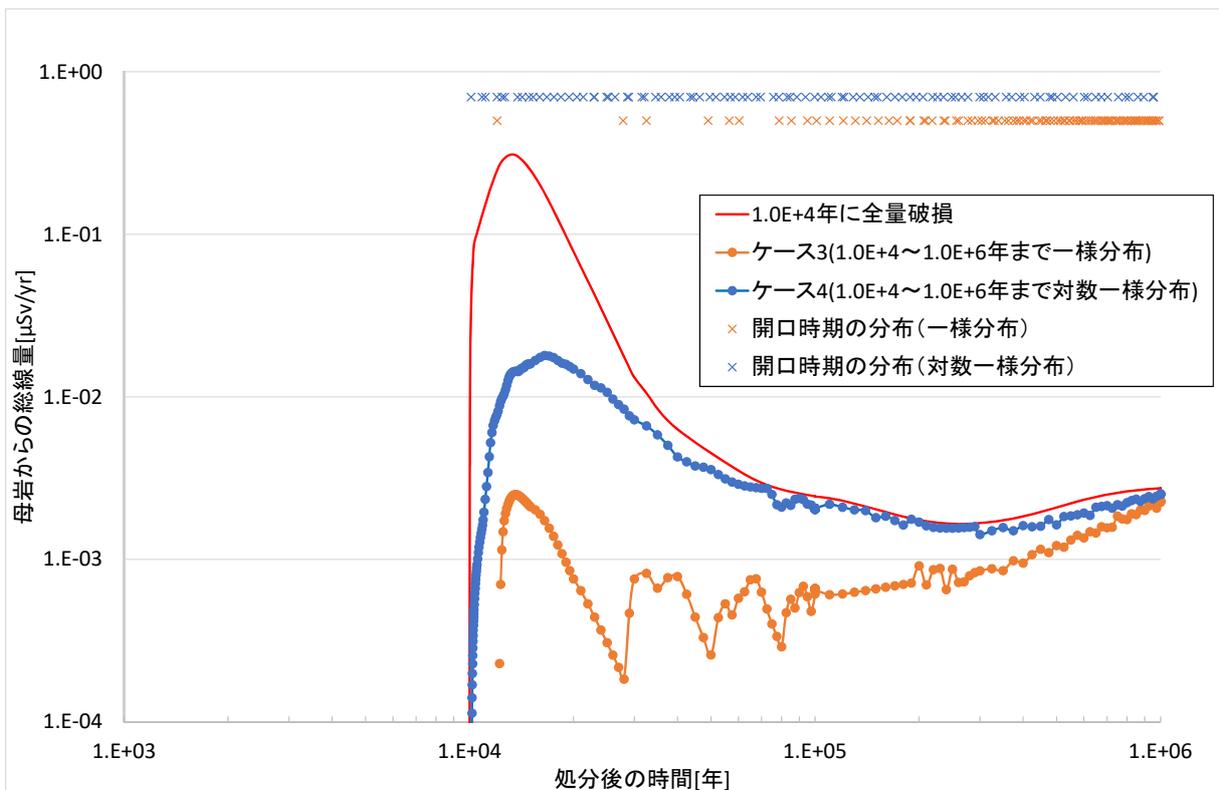


図 4-7 開口時期分散 (10,000 年～1,000,000 年) を考慮した解析結果例 (対数一様分布)

2) システムの成立性に関する多角的な検討に資する情報の検討

本項目では、「想定される条件に応じてのシステム性能（構成要素）の例示」の準備として、想定される条件のひとつとして重要である地下水水質に着目し、処分容器の腐食挙動に影響する硫化物濃度、および、使用済燃料マトリクスの溶解挙動に影響する炭酸濃度の人工バリアの各領域での違いの有無や程度に関する情報の整理を「処分容器の腐食挙動や使用済燃料マトリクスの溶解挙動への影響の観点からの地下水水質の検討」として行う。また、「想定される条件に応じての設計仕様の例示」の準備としては、設計仕様の検討の前提として、保障措置・核セキュリティ対策技術のシステム性能への影響が無視できるか、あるいは、対策などを施すことでシステム性能への影響を回避あるいは緩和できるかの確認が必要となる可能性があるか等についての見通しを得ることを目指し、「保障措置・核セキュリティ対策技術のシステム性能への影響の検討」を行う。

① 処分容器の腐食挙動や使用済燃料マトリクスの溶解挙動への影響の観点からの地下水水質の検討

本事業での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の一環として、地質環境条件や使用済燃料の多様性に応じたシステム性能の検討を行うことが考えられる。ただし、先行事業及び本事業においてシステム性能に関与しえるすべての因子に関する研究開発を網羅的に行っているわけではないため、システム性能に係るすべての項目についての情報を更新したうえでシステム全体の性能を評価し、例えば直接処分第1次取りまとめと比較することなどまではできない。しかしながら、本事業の中では、システム全体の性能に直接的に大きな影響を与える可能性のある因子である使用済燃料マトリクスの溶解や処分容器の腐食挙動に関する研究開発を重点的に進めてきており、それらの研究成果を反映することで、燃料マトリクス溶解速度や処分容器寿命といったシステムの構成要素が担う安全機能に着目した検討を行うことは可能である。このようなシステムの構成要素の安全機能には、その構成要素の近傍での地下水水質の条件が影響する可能性があり、従来の評価よりも構成要素の近傍での地下水水質を注意深く設定することが重要になると考えられる。なお、本項目では、システム中の水については、存在する領域によらず地下水と呼ぶこととするが、緩衝材中の水を特に区別するときには緩衝材間隙水という表現を用いることとする。

高レベル放射性廃棄物に関する第2次取りまとめ(核燃料サイクル開発機構, 1999) (以下、「H12 レポート」という) や原子力発電環境整備機構の包括的技術報告書(原子力発電環境整備機構, 2021) (以降、包括的技術報告書) においては、ガラス固化体からの核種の溶解速度の評価並びに人工バリア中での溶解度や分配係数の設定では、緩衝材との平衡および炭素鋼の腐食による鉄腐食生成物との平衡を考慮した緩衝材間隙水水質が適用された。しかしながら、人工バリア各領域の地下水水質は、人工バリア各領域の構成要素との相互作用および、各領域内あるいは複数の領域間での地下水の移行との組み合わせにより、空間分布さらには時間分布なども生じることが考えられ、例えば、燃料マトリクスの溶解に着目すると、それに寄与する使用済燃料近傍の地下水水質は、前述の緩衝材間隙水水質とまったく同じとは限らず、その緩衝材間隙水と緩衝材から燃料マトリクス表面との間の領域に存在する物質(処分容器の成分、使用済燃料の構造材の成分など) との相互作用の種類及びそれら相互作用の

反応速度、さらにはその領域での地下水の移行速度などが係わり、それらのプロセスの組み合わせによって、前述の緩衝材間隙水水質とは異なる水質となる可能性がある。そしてこのような地下水水質の違いの可能性は、炭酸濃度が燃料マトリクス溶解に影響を及ぼす可能性があること（3.2節参照）、また、硫化物濃度が銅を外層とする処分容器（以下では単に「処分容器」という）の腐食に影響を及ぼす可能性があること（2.2節参照）から、直接処分特に留意が必要になると考えられる。そのため、このような観点から、燃料マトリクス溶解や処分容器の腐食挙動のそれぞれが生じる人工バリア領域での地下水水質に特に着目して、緩衝材間隙水水質と異なる可能性の有無や、異なる場合の地下水水質を評価し、燃料マトリクス溶解速度や処分容器寿命の評価で着目すべき情報として整備しておくことは重要と考えられる。

そこで、本項目では、燃料マトリクス溶解に影響を及ぼす可能性のある燃料マトリクス表面近傍での炭酸濃度、および処分容器の腐食に影響を及ぼす可能性のある処分容器表面近傍での硫化物濃度に着目し、それら地下水水質に影響する可能性のある人工バリア各領域におけるプロセスを考慮して地下水水質を解析的に評価することで、想定される燃料マトリクス表面近傍での炭酸濃度や処分容器表面近傍での硫化物濃度を整理することを試みる。

本項目での地下水水質の検討の流れおよび成果の反映先を図4-8に示す。

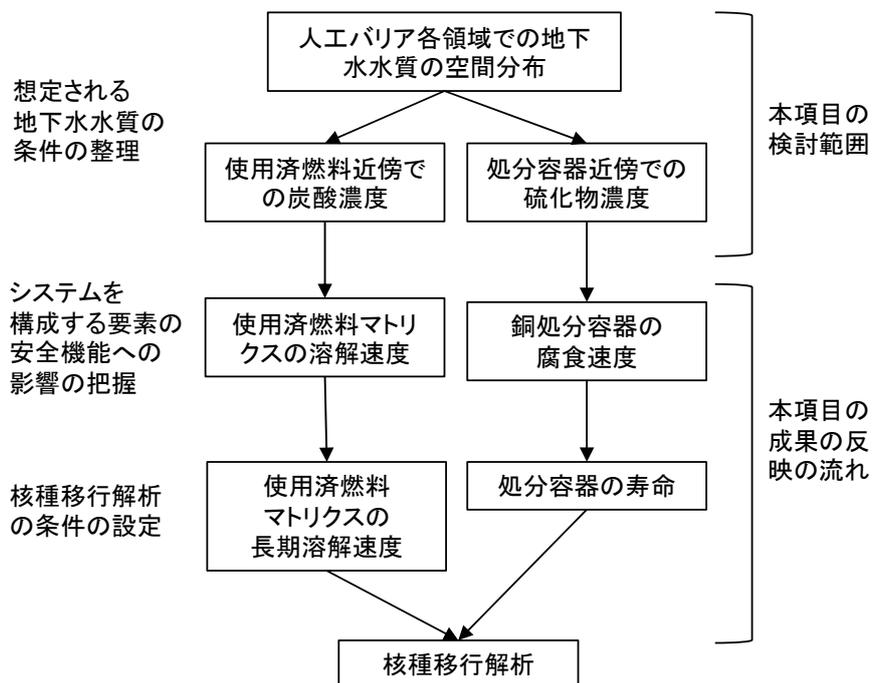


図 4-8 地下水水質の検討の流れ

ここで、現段階では、実際の地質環境条件下を対象とし、かつ人工バリアの各領域で具体的にどの反応が生じるかなどを特定したうえで、使用済燃料マトリクスの溶解速度あるいは銅処分容器の腐食速度や寿命評価への影響の可能性の検討で対象とすべき地下水水質を確定的に提示することはできない。しかし、どの反応が生じ得るかを想定し、それら反応を想定

した場合に生じえる地下水水質の特徴を、例えば前述の緩衝材間隙水水質との違いとして例示することは可能と考えられる。

なお、このような観点での地下水水質の検討の結果は、使用済燃料マトリクス of 溶解速度あるいは銅処分容器の腐食速度や寿命評価への影響の可能性の検討だけではなく、例えば以下のような観点での技術開発などへの反映も期待できると考えられる。

- ・ システムの構成要素での個別現象についての研究開発については、構成要素の安全機能や核種移行への影響が大きくなる条件などでの実験的あるいは解析的な取り組みを効率的に実施していく観点から、燃料マトリクス of 溶解や銅処分容器の腐食の現象理解・深化のための試験で着目する溶液条件やそのバリエーション・範囲の具体的な設定などへの反映が期待される。
- ・ また、地下水水質評価に係る技術開発については、燃料マトリクス or 銅処分容器の安全機能の検討に向けて、地下水水質 of どのようなバリエーションあるいは空間的・時間的な分布に着目すべきか、またそれらバリエーション or 分布 of どのような精度で評価できるようにしておくことが有効かなどの目標の設定への反映が期待される。

以下では、まず本検討の準備として、「地下水水質 of 検討の進め方」(a. 項参照)および「地下水水質 of 変化に影響するプロセス of 整理」(b. 項参照)を示し、そのあとに具体的な検討の内容と結果等を「燃料マトリクス表面近傍での炭酸濃度の解析・評価」(c. 項参照)と「処分容器表面近傍での硫化物濃度の解析・評価」(d. 項参照)に示す。

a. 地下水水質 of 評価の進め方

燃料マトリクス of 溶解に影響を及ぼす燃料マトリクス表面近傍での炭酸濃度および処分容器の腐食に影響を及ぼす処分容器表面近傍での硫化物濃度を評価するための地下水水質 of 検討を以下の手順で実施した。

- i. 人工バリア各領域における地下水水質 of 変化に影響する可能性のある主要なプロセス of 整理
- ii. 燃料マトリクス表面近傍での炭酸濃度および処分容器表面近傍での硫化物濃度の解析・評価
 - ・ 着目するプロセス of 設定
 - ・ 着目するプロセス of モデル化、評価ケース of 設定
 - ・ 地下水水質 of 評価(緩衝材間隙水水質と異なる可能性の有無 or その場合 of 地下水水質など)

上記 i. を次項の「b. 地下水水質 of 変化に影響するプロセス of 整理」に示す。また、上記 ii. を以降において「c. 燃料マトリクス表面近傍での炭酸濃度の解析・評価」および「d. 処分容器表面近傍での硫化物濃度の解析・評価」として示す。

b. 地下水水質 of 変化に影響するプロセス of 整理

岩盤中の地下水が人工バリアを通過して使用済燃料集合体に至る過程での地下水水質 of 変化に影響しうる主要なプロセスを人工バリアなどの各領域について整理した。

- ・ 岩盤
 - 人工バリアへの地下水の浸入
- ・ 支保
 - 岩盤から浸入した地下水の移行
 - セメントと地下水の相互作用（二次鉱物の生成）
- ・ 緩衝材
 - 岩盤または支保から浸入した地下水の移行
 - ベントナイトと地下水の相互作用（ベントナイト構成鉱物の溶解、二次鉱物の生成等）
 - 処分容器・腐食生成物（銅、炭素鋼）と地下水の相互作用（腐食生成物、二次鉱物の生成等）
 - 処分容器・腐食生成物（銅、炭素鋼）と緩衝材の相互作用（緩衝材変質など）
- ・ 処分容器
 - 緩衝材から処分容器開口部への地下水の浸入と移行
 - 処分容器・腐食生成物（銅、炭素鋼）と地下水の相互作用（腐食生成物、二次鉱物の生成等）
 - 処分容器開口部への緩衝材の侵入（開口部での地下水と緩衝材の共存）
- ・ 使用済燃料集合体
 - 燃料集合体構造物と地下水の相互作用（腐食生成物、二次鉱物の生成等）

上記のプロセスは、使用済燃料集合体に関連するプロセスを除き、ガラス固化体の場合と基本的には共通である。しかしながら、燃料マトリクス溶解に影響する燃料マトリクス表面近傍の炭酸濃度や銅を外層とする処分容器の腐食に影響する処分容器表面での硫化物濃度などの特定の領域での特定の地下水水質に特に着目する場合には、それぞれで着目する領域やその近傍でのプロセスをもう少し詳しく考慮する必要があると考えられる。その観点からは、まず、燃料マトリクス表面近傍の炭酸濃度は、そのバリエーションとして、緩衝材間隙水あるいはそれに近い地下水水質と考えられる場合から、緩衝材と燃料マトリクスの間で生じる反応により規定されることにより緩衝材間隙水とは異なる地下水水質を考慮することが必要となる場合もあると考えられることから、処分容器開口部（図 4-9 の赤点線枠の領域）における地下水と処分容器に係わる反応をより詳しく見ていくこととした。また、処分容器表面での硫化物濃度については、処分容器表面と接する緩衝材領域（図 4-9 の青点線枠の領域）を中心に、硫化物濃度に影響する可能性のある反応をより詳しく見ていくこととした。

↔ 地下水の浸入・移行 ⇔ 相互作用

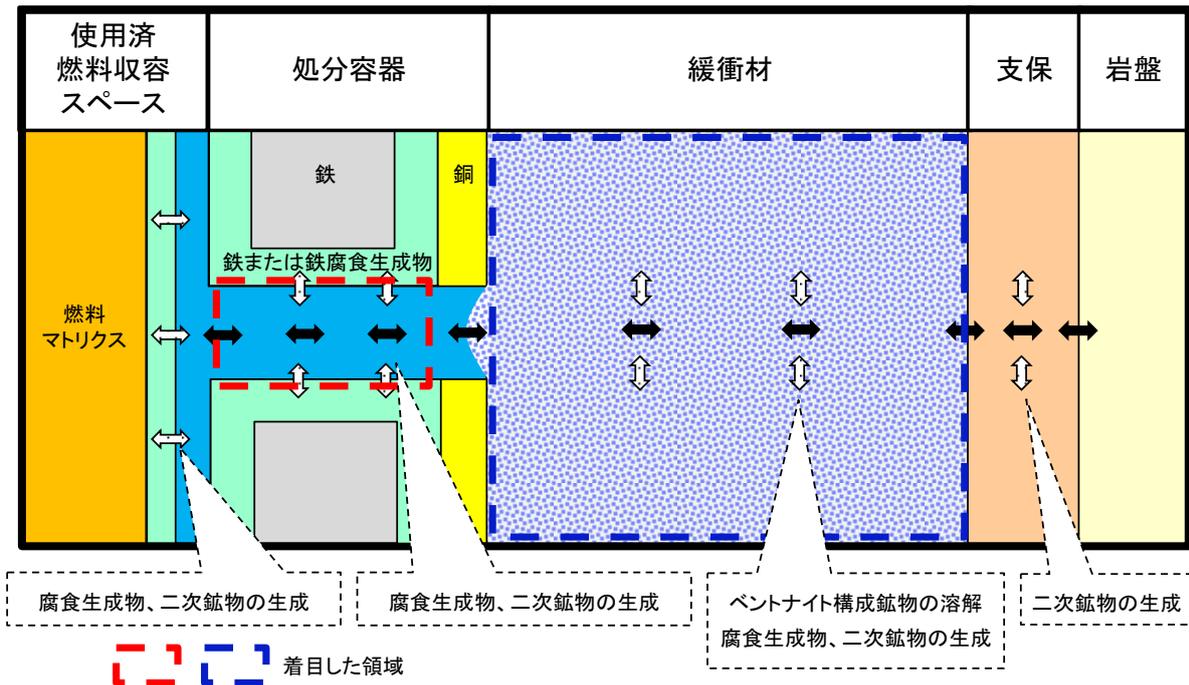


図 4-9 岩盤～使用済燃料集合体での地下水水質の変化に影響しうる主要なプロセス

なお、本検討では、H12 レポートに向けて検討された緩衝材間隙水水質（小田ほか，1999）を参照した。小田ほか（1999）における緩衝材間隙水水質の評価では、緩衝材間隙水の起源となる地下水の3つの種類（降水系還元性高 pH モデル地下水 FRHP、海水系還元性高 pH モデル地下水 SRHP、高炭酸系還元性中性型モデル地下水 MRNP）のそれぞれと緩衝材との反応ならびに可溶性不純物（Impurity）の溶解や鉄腐食生成物（Magnetite）との平衡の有無によって、緩衝材間隙水水質のバリエーションが評価された。小田ほか（1999）の緩衝材間隙水水質の基になったモデル地下水（Yui et al., 1999）および小田ほか（1999）の緩衝材間隙水水質のバリエーションのうち本検討で着目するものをそれぞれ表 4-4 および表 4-5 に示す。なお、小田ほか（1999）の緩衝材間隙水水質の評価において考慮された、ベントナイト中での可溶性不純物（Impurity）の組成は、NaCl 0.0011 wt%、KCl 0.0044 wt%、CaSO₄ 0.38 wt%（Ochs et al., 1999）である。因みに、H12 レポートでの性能評価で用いられた緩衝材間隙水は、可溶性不純物（Impurity）の溶解なし、かつ、鉄腐食生成物（Magnetite）との平衡ありの条件で評価された緩衝材間隙水であり、それに対して、本検討では、緩衝材間隙水では鉄腐食生成物（Magnetite）との平衡なしの条件に着目している。これは、本検討では、処分容器として炭素鋼ではなく銅を外層とする処分容器を想定していることから、緩衝材間隙水の評価で鉄の腐食生成物である Magnetite との平衡の想定が適切ではないためである。また、可溶性不純物（Impurity）がある場合も考慮するのは、銅の腐食に寄与する硫化物濃度への影響に着目するためである。

表 4-4 本検討で着目したモデル地下水 (Yui et al. (1999) から抜粋)

名称	FRHP (降水系還元性高 pH 型)	SRHP (海水系還元性高 pH 型)	MRNP (高炭酸系還元性中性型)
pH	8.46	7.95	7.07
pe	-4.76	-5.14	-4.14
単位 : [mol dm ⁻³]			
Total Na	3.55×10^{-3}	6.77×10^{-1}	3.09×10^{-1}
Total K	6.15×10^{-5}	1.06×10^{-2}	7.99×10^{-2}
Total Mg	5.00×10^{-5}	2.49×10^{-4}	3.32×10^{-4}
Total Ca	1.09×10^{-4}	3.34×10^{-4}	4.52×10^{-4}
Total Fe	9.73×10^{-10}	3.89×10^{-8}	1.99×10^{-8}
Total Al	3.43×10^{-7}	3.21×10^{-9}	6.62×10^{-10}
Total F	5.40×10^{-5}	1.02×10^{-4}	1.02×10^{-4}
Total Cl	1.46×10^{-5}	5.90×10^{-1}	2.95×10^{-1}
Total S	1.08×10^{-4}	3.0×10^{-2}	1.51×10^{-2}
Total S(+6) SO ₄ ²⁻	1.08×10^{-4}	3.16×10^{-5}	1.51×10^{-5}
Total S(-2) HS ⁻	3.88×10^{-9}	3.0×10^{-2}	1.51×10^{-2}
H ₂ S	3.76×10^{-9}	2.80×10^{-2}	9.65×10^{-3}
	1.18×10^{-10}	2.10×10^{-3}	5.44×10^{-3}
Total P	2.86×10^{-6}	2.63×10^{-7}	2.63×10^{-7}
Total N	2.30×10^{-5}	5.15×10^{-3}	5.15×10^{-3}
Total C	3.54×10^{-3}	3.46×10^{-2}	2.00×10^{-1}
Total Si	3.39×10^{-4}	2.95×10^{-4}	2.94×10^{-4}
Total B	2.93×10^{-4}	1.71×10^{-3}	1.71×10^{-3}

表 4-5 本検討で着目した緩衝材間隙水水質（小田ほか（1999）を改変）

本検討での名称	FRHP 緩衝材間隙水 1	FRHP 緩衝材間隙水 2	SRHP 緩衝材間隙水 1	SRHP 緩衝材間隙水 2	MRNP 緩衝材間隙水
モデル地下水	FRHP	FRHP	SRHP	SRHP	MRNP
Impurity dissolution	×	○	×	○	○
Magnetite equilibrium	×	×	×	×	×
Comment				Gypsum over sat.	
pH	8.4	7.2	6.9	6.7	6.2
pe	-4.7	-3.0	-4.0	-3.3	-3.2
単位：[mol dm ⁻³]					
Total Na	2.8×10^{-2}	1.6×10^{-1}	5.7×10^{-1}	6.4×10^{-1}	3.3×10^{-1}
Total K	1.2×10^{-4}	1.2×10^{-4}	3.4×10^{-3}	3.4×10^{-3}	7.2×10^{-3}
Total Mg	4.2×10^{-6}	4.2×10^{-6}	1.5×10^{-3}	1.5×10^{-3}	6.1×10^{-4}
Total Ca	5.3×10^{-5}	5.9×10^{-3}	1.5×10^{-2}	3.7×10^{-2}	5.7×10^{-3}
Total Fe	1.6×10^{-9}	1.3×10^{-9}	9.6×10^{-16}	1.2×10^{-16}	4.0×10^{-16}
Total Al	3.4×10^{-7}	3.4×10^{-7}	3.2×10^{-9}	3.2×10^{-9}	6.6×10^{-10}
Total F	5.4×10^{-5}	5.4×10^{-5}	1.0×10^{-4}	1.0×10^{-4}	1.0×10^{-4}
Total Cl	1.5×10^{-5}	2.2×10^{-3}	5.9×10^{-1}	5.9×10^{-1}	3.0×10^{-1}
Total S	1.1×10^{-4}	7.8×10^{-2}	3.0×10^{-2}	1.1×10^{-1}	9.2×10^{-2}
Total S(+6)	1.1×10^{-4}	7.8×10^{-2}	1.0×10^{-5}	5.8×10^{-2}	1.1×10^{-4}
SO ₄ ²⁻	1.0×10^{-4}	6.1×10^{-2}	4.2×10^{-6}	2.3×10^{-2}	6.7×10^{-5}
NaSO ₄ ⁻	8.1×10^{-6}	1.3×10^{-2}	3.6×10^{-6}	2.3×10^{-2}	3.1×10^{-5}
CaSO ₄	2.7×10^{-7}	3.1×10^{-3}	9.7×10^{-7}	1.1×10^{-2}	5.1×10^{-6}
Total S(-2)	4.3×10^{-9}	4.7×10^{-9}	3.0×10^{-2}	4.9×10^{-2}	9.2×10^{-2}
HS ⁻	4.2×10^{-9}	3.3×10^{-9}	1.7×10^{-2}	2.1×10^{-2}	1.9×10^{-2}
H ₂ S	1.5×10^{-10}	1.4×10^{-9}	1.4×10^{-2}	2.9×10^{-2}	7.3×10^{-2}
Total P	2.9×10^{-6}	2.9×10^{-6}	2.6×10^{-7}	2.6×10^{-7}	2.6×10^{-7}
Total N	2.3×10^{-5}	2.3×10^{-5}	5.2×10^{-3}	5.2×10^{-3}	5.2×10^{-3}
Total C	1.6×10^{-2}	8.0×10^{-3}	2.3×10^{-2}	4.0×10^{-3}	9.9×10^{-2}
Total Si	3.4×10^{-4}	3.4×10^{-4}	2.7×10^{-4}	2.7×10^{-4}	2.9×10^{-4}
Total B	2.9×10^{-4}	2.9×10^{-4}	1.7×10^{-3}	1.7×10^{-3}	1.7×10^{-3}

c. 燃料マトリクス表面近傍での炭酸濃度の解析・評価

処分容器開口部での炭酸濃度を評価するためのモデルや条件などの設定のため、処分容器開口部で生じ得る地下水と処分容器の反応に近い可能性がありかつ炭酸濃度の変化を伴うと考えられるプロセスについての事例を調査した。調査を踏まえ、炭酸濃度の変化を伴うと考えられる主要なプロセスに着目し、プロセスのモデル化を行うとともに地下水水質の評価ケースを設定した。評価ケースそれぞれについて、設定したモデルに基づく地下水水質の評価を行った。

以上について以下の構成で示す。

- (a) 炭酸濃度の変化を伴うプロセスについての事例の調査と着目するプロセスの設定
- (b) 着目するプロセスのモデル化、評価ケースの設定
- (c) 地下水水質の評価

(a) 炭酸濃度の変化を伴うプロセスについての事例の調査と着目するプロセスの設定

処分容器開口部において炭酸濃度への影響が考えられるプロセスとして、緩衝材中の地下水（緩衝材間隙水）の浸入とそれと処分容器や鉄腐食生成物とが反応し炭酸濃度に影響するプロセス（特に鉄炭酸塩鉱物などの生成）が考えられることから、処分容器開口部で想定される系（地下水と鉄や鉄に関係する固相とが共存）に比較的近くかつ鉄腐食生成物や鉄炭酸塩鉱物などの生成を伴う事例を調査した。

まず、処分容器開口部で想定される系に比較的近い事例として、溶液中での鉄腐食生成物や鉄炭酸塩鉱物などの生成事例を調査した。

- ・ Dong ほか（2001）は、 $[\text{HCO}_3^-]=2.0 \times 10^{-2} \sim 1.0 \text{ mol dm}^{-3}$ 、 $\text{pH}=8.3 \sim 10$ の溶液中で定電位試験を行い、 -650 mV vs. SCE 以上では Fe_3O_4 が生成するが、これより低い電位では FeCO_3 、 $\text{Fe}_2\text{CO}_3(\text{OH})_2$ 、 $\text{Fe}_6\text{CO}_3(\text{OH})_{12}$ が生成すると報告している。
- ・ Romanek ほか（2009）によれば、 $25 \text{ }^\circ\text{C}$ では Fe-Mg-Ca-CO_3 系の液相中の Fe と Ca の濃度比に応じた組成の $\text{FeCO}_3\text{-CaCO}_3$ の固溶体が生成し、炭酸濃度は方解石平衡よりも低いレベルに保たれる。また、 $70 \text{ }^\circ\text{C}$ では、これに加えて MgCO_3 も含む固溶体が生成するとしている。
- ・ 阪下ほか（2003）は、 $\text{pH } 8.3$ に調整した 0.01 mol dm^{-3} の NaHCO_3 水溶液中での炭素鋼の浸漬試験に基づき、酸化性条件下では主に Fe_3O_4 が生成し、還元性条件下では水酸化鉄が生成すると報告している。しかし、試験条件の制約により炭酸イオンが維持できていない可能性があることから、 FeCO_3 生成の確認を今後の課題している。

また、高炭酸濃度地下水において生じうる鉄腐食生成物や炭酸塩鉱物などの生成事例として、粘土中での鉄腐食試験や緩衝材間隙水の解析的評価の事例も調査した。

- ・ COx (Callovo-Oxfordian) 粘土中での長期鉄腐食試験において、炭酸共存下では Siderite や Chukanovite といった鉄炭酸塩鉱物が生じた (Necib et.al., 2016; Schlegel.al., 2016)。
- ・ 粘土中の釘の考古学的アナログの検討事例 (Mercier-Bion et.al., 2018)によれば、鉄表面付近に主として Siderite から成る腐食生成物層（方解石は含まれない）が生じ、その外側に方解石が集中して沈殿する領域が形成した。

- ・ 大塚ほか (2008) は、処分環境下での炭素鋼腐食に伴う生成物に関する既往の知見を整理し、炭素鋼オーバーパックの腐食が緩衝材間隙水の酸化還元電位 (E_h) に与える影響の解析的評価に必要な腐食生成物を、水酸化鉄 ($\text{Fe}(\text{OH})_2$)、Siderite (FeCO_3)、Magnetite (Fe_3O_4)、Pyrite (FeS_2)、Chukanovite ($\text{Fe}_2(\text{CO}_3)(\text{OH})_2$) とした。
- ・ 圧縮ベントナイト中において、炭素鋼の腐食に伴い生成する鉄腐食生成物は、降水系地下水においては Magnetite が、炭酸濃度が高い地下水中では Siderite が熱力学的に安定な鉱物となると考えられる (H12 レポート)。しかしながら、熱力学的に安定な状態への変遷が長期にわたる場合には、準安定な鉱物が長期間共存する可能性があり、圧縮ベントナイト中に移行した鉄腐食生成物が水酸化物の形態で一定の期間存在するという報告もある (Ishidera et al., 2008)。このような準安定な鉱物が長期間存在する場合、間隙水中の鉄イオンなどの濃度が水酸化鉄(II)の溶解度により支配され、その濃度が大きく上昇する可能性がある (H12 レポート)。

以上の調査を踏まえ、本項目における地下水水質の検討においては、複数の事例で見られている鉱物に着目し、腐食生成物 (鉄腐食生成物) および二次鉱物 (鉄炭酸塩鉱物) として表 4-6 に示す鉱物を対象とすることとした。

表 4-6 炭酸濃度の検討において着目した鉱物

腐食生成物 (鉄腐食生成物)	Siderite (FeCO_3) Magnetite (Fe_3O_4) 水酸化鉄 ($\text{Fe}(\text{OH})_2$)
二次鉱物 (鉄炭酸塩鉱物)	Siderite (FeCO_3) Chukanovite ($\text{Fe}_2\text{CO}_3(\text{OH})_2$)

(b) 着目したプロセスのモデル化、評価ケースの設定

直接処分第 1 次取りまとめ以降のこれまでの燃料マトリクス溶解に関する研究では、H12 レポートで設定されたレファレンスケースの緩衝材間隙水水質での炭酸濃度 (17 mM 等) に該当する状況を含めた条件での試験研究を実施している。しかしながら、緩衝材間隙水が処分容器の開口部を通過して燃料マトリクスに到達する状況では、処分容器の開口部において、緩衝材から流入する地下水 (緩衝材間隙水) と処分容器の鉄あるいは鉄腐食生成物とが反応し、鉄炭酸塩鉱物が生成するプロセスが考えられ、これにより炭酸濃度が減少する可能性があることから、このようなプロセスを踏まえた評価を行うことで、緩衝材間隙水と異なる水質が生じるかを確認することとした。

本項目においては、両者の鉱物の生成の時間的なずれを考えるケースと、両者の鉱物が競合しつつ同時に生成しうるものとして評価するケースの二つを考え、感度解析的に以下の評価モデル (平衡論) で評価することとした。なお、上記のプロセスのモデル化においては、速度論を取り入れることで、より現実的な評価モデルになる可能性があると考えられるものの、速度論に基づく蓋然性の高いモデルを構築することは困難であること、また上記の二つの平

平衡論での評価モデルにより、速度が関係する場合と関係しない場合の両極端を把握できると考えられることから、本検討では平衡論での評価のみを行うこととした。

- モデル 1：まず、緩衝材間隙水と鉄腐食生成物との平衡時の水質を評価する（図 4-10 の左上）。次に、上記の水質の地下水と二次鉱物（鉄炭酸塩鉱物）との平衡時の炭酸濃度を評価する（図 4-10 の左下）。
- モデル 2：緩衝材間隙水と鉄腐食生成物及び二次鉱物（鉄炭酸塩鉱物）との平衡時の炭酸濃度を評価する（図 4-10 の右側）。

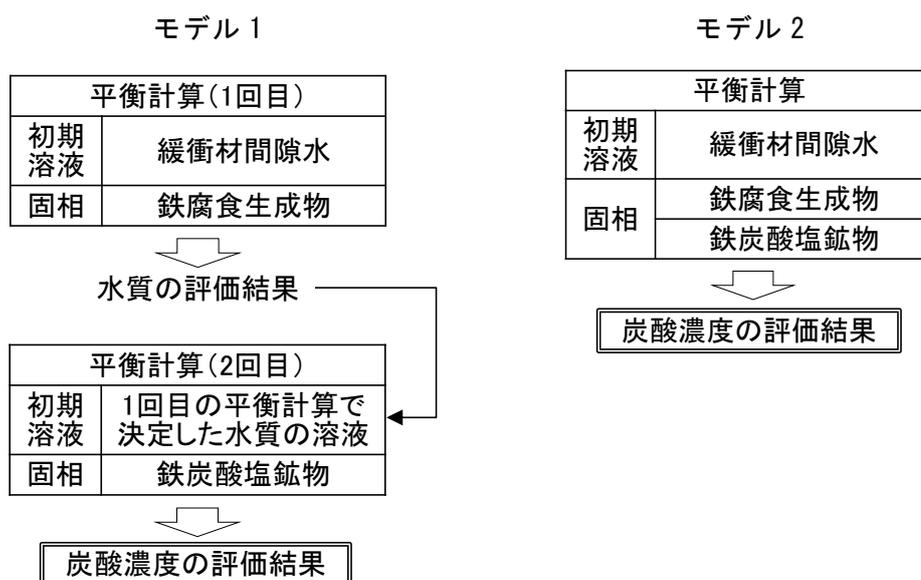


図 4-10 モデル 1 およびモデル 2 における炭酸濃度の評価の流れ

評価ケースについては、上記(a)で設定した鉄腐食生成物と鉄炭酸塩鉱物の組み合わせを基に設定した（表 4-7）。

緩衝材間隙水水質について、表 4-5 には可溶性不純物（Impurity）の溶解を考慮する場合と考慮しない場合が示されており、その条件の違いによって炭酸濃度についても少し違いが見られるが、可溶性不純物には炭酸の成分は含まれていないこと、また可溶性不純物の溶解が無い場合の方が炭酸濃度は高めになっていることから、可溶性不純物の溶解が無い場合の緩衝材間隙水水質を対象に各ケースの評価を行うこととした。具体的には表 4-5 の FRHP 緩衝材間隙水 1 および、炭酸濃度の上限を把握する観点から MRNP 緩衝材間隙水を対象とした。

なお、包括的技術報告書における緩衝材間隙水水質の炭酸濃度の最大値は $4.7 \times 10^{-2} \text{ mol dm}^{-3}$ である一方で、MRNP の炭酸濃度は $9.9 \times 10^{-2} \text{ mol dm}^{-3}$ であることから、本項目での評価は、包括的技術報告書での高炭酸濃度地下水も包含していると考えられる。

表 4-7 評価ケース（炭酸濃度評価）

		鉄炭酸塩鉱物	
		Siderite (FeCO ₃)	Chukanovite (Fe ₂ CO ₃ (OH) ₂)
鉄腐食生成物	Siderite (FeCO ₃)	モデル 2 (※1)	モデル 1 モデル 2
	Magnetite (Fe ₃ O ₄)	モデル 1 モデル 2	モデル 1 モデル 2
	水酸化 (Fe(OH) ₂)	モデル 1 モデル 2	モデル 1 モデル 2

(※1) 鉄腐食生成物と鉄炭酸塩鉱物をともに Siderite (FeCO₃) とした場合、モデル 1 とモデル 2 は同じ内容となるためモデル 2 のみを評価ケースとした。

(c) 地下水水質の評価

解析コードとして PHREEQC Ver. 3、また、熱力学データベースとして JAEA-TDB (PHREEQC19v12. dat) を用いて、表 4-7 に示す評価ケースについての平衡計算を、FRHP 緩衝材間隙水 1 (表 4-5) および MRNP 緩衝材間隙水 (表 4-5) を初期溶液として行った。これらの結果を付録 3 の附表 3-1 および附表 3-2 に示す。

評価結果において炭酸濃度が初期の緩衝材間隙水と大きく異なるケースは多くなかったが、腐食生成物および鉄炭酸塩鉱物をそれぞれ水酸化鉄 (Fe(OH)₂) および Chukanovite (Fe₂CO₃(OH)₂) に設定したケースについては、炭酸濃度が初期状態から大きく低下するケースが見受けられた (FRHP 緩衝材間隙水 1 の場合は初期濃度 $1.6 \times 10^{-2} \text{ mol dm}^{-3}$ から $6.8 \times 10^{-6} \text{ mol dm}^{-3}$ に低下、MRNP 緩衝材間隙水の場合は初期濃度 $1.1 \times 10^{-1} \text{ mol dm}^{-3}$ から $3.3 \times 10^{-4} \text{ mol dm}^{-3}$ に低下)。これらのケースでは、水酸化鉄 (Fe(OH)₂) の溶解により pH が大きく上昇 (FRHP 緩衝材間隙水 1 の場合は初期値 8.4 から 12.1 に上昇、MRNP 緩衝材間隙水の場合は初期値 6.2 から 12.5 に上昇) かつ pe が負の大きな値に変化 (FRHP 緩衝材間隙水 1 の場合は初期値 -4.7 から -8.9 に変化、MRNP 緩衝材間隙水の場合は初期値 -3.2 から -10.9 に変化) しており、他の評価ケースよりも鉄濃度が大きく上昇して鉄炭酸塩鉱物の沈殿が多く生じたことで、炭酸濃度が他の評価ケースより低下したと考えられる。

ただし、水酸化鉄 (Fe(OH)₂) は準安定な鉱物とされており、処分容器開口部においても局所的あるいは限定的な期間存在しうるものである可能性があることから、本検討での水酸化鉄 (Fe(OH)₂) を腐食生成物として評価した炭酸濃度が低くなる結果を、処分システムの構成要素の安全機能の評価や試験条件などの設定で参考にする際には、これら鉱物の関与の有無の想定が大事になる。そのため、想定される環境条件下および着目する領域においてこれら鉱物の関与が実際に起こりえるか否かの判断に資する情報を適宜把握し検討に反映していくことが望まれる。

本検討では、燃料マトリクス表面近傍での炭酸濃度の評価として、処分容器開口部での鉄腐食生成物と鉄炭酸塩鉱物の反応に着目し、その影響の評価を試みた。その結果、本検討で着目した反応の多くでは、処分容器開口部における炭酸濃度は緩衝材間隙水と変わらないと評価されたものの、想定する鉄腐食生成物によっては炭酸濃度が低下する可能性も見いだされた (例えば、腐食生成物として水酸化鉄 (Fe(OH)₂) を想定する場合)。このような炭酸濃度

の低下の可能性を燃料マトリクス溶解の評価に取り込むか否かは、鉄腐食生成物に関する情報を適宜把握しつつ、評価で着目する環境条件下で生じ得るかどうかを判断していくことが重要となる。

d. 処分容器表面近傍での硫化物濃度の解析・評価

銅を外層とする処分容器の表面近傍での硫化物濃度を評価するためのモデルや条件などの設定の参考とするため、硫化物濃度の変化を伴う可能性があると考えられるプロセスについての事例を調査した。調査を踏まえ、硫化物濃度の変化を伴うと考えられる主要なプロセスに着目し、プロセスのモデル化を行うとともに地下水水質の評価ケースを設定し、評価ケースのそれぞれについて、設定したモデルに基づく地下水水質の評価を行った。

以上について以下の構成で示す。

- (a) 硫化物濃度の変化を伴うプロセスについての事例の調査と着目するプロセスの設定
- (b) 着目するプロセスのモデル化、評価ケースの設定
- (c) 地下水水質の評価

(a) 地下水水質の検討において着目するプロセス

緩衝材間隙水の硫化物濃度に影響を及ぼす可能性のあるプロセスとして、緩衝材中に含まれる構成鉱物などとの反応、二次鉱物（特に硫化鉄）や銅腐食生成物（特に硫化銅）の生成が考えられることから、これらのプロセスに関連性が高いと考えられる事例を調査した。

- ・ 小田ほか(1999)は、H12 レポートでの処分システムの性能評価に向けた緩衝材間隙水水質の検討において Pyrite (FeS_2) などの緩衝材構成鉱物との共存などを考慮しつつ、緩衝材中に含まれる硫酸塩などの可溶性不純物の溶解反応の有無を考慮して、緩衝材間隙水水質のバリエーションを評価した。ただし、溶解した可溶性塩については、緩衝材と岩盤との境界条件に依存するものの、オーバーパックの破損時期までに拡散により緩衝材から逸脱すると評価した。
- ・ スイスでは、深部地下のオパリナスクレイ（堆積岩）において、表面が銅でコーティングされた容器による地層処分が計画されており、Pekala ほか(2019)は、銅の腐食に対する硫酸還元性菌の影響評価を目的として、ニアフィールドにおける硫化物フラックスを評価した。その際、主に Mackinawite (Fe_{1+x}S , ここで、 $x=0\sim 0.11$) が硫化物の溶解度制限固相として設定された。
- ・ モン・テリ岩盤研究所において実施されたベントナイト中での鉄の腐食試験（原位置試験）において、Necib ほか(2017)は、腐食生成物の層について電気化学インピーダンス分光測定を実施し、Magnetite や Siderite などとともに Mackinawite を確認したと報告した。
- ・ 膨潤ベントナイト中での銅試験片の浸漬試験（原子力機構, 2019）によれば、脱気なし試料では腐食生成物の色調は褐色から黒色へと変化していることから、銅酸化の初期に生成する酸化銅 Cu_2O から時間の経過とともに CuO が主に生成したと考えられ、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、初期の酸化銅 Cu_2O から硫化銅 (CuS ないしは Cu_2S) 主体の皮膜の生成が考えられるとした。

以上の調査を踏まえ、緩衝材中での硫化物濃度の変化に寄与する因子として、表 4-8 に示す緩衝材中の構成鉱物など、二次鉱物（硫化物）および腐食生成物（銅腐食生成物）を対象とすることとした。

表 4-8 硫化物濃度の検討で着目した因子

緩衝材中の構成鉱物など	Pyrite (FeS ₂) (ベントナイト構成鉱物)
	CaSO ₄ (可溶性不純物)
二次鉱物 (硫化鉄)	Mackinawite (Fe _{1+x} S, ここで、x=0~0.11)
腐食生成物 (銅腐食生成物)	酸化銅 (CuO, Cu ₂ O)
	硫化銅 (CuS, Cu ₂ S)

(b) 着目したプロセスのモデル化、評価ケースの設定

本項目では、まず H12 レポートでの銅オーバーパックの腐食寿命評価を踏まえたうえでプロセスのモデル化や評価ケースの設定を行った。

H12 レポートでの銅オーバーパックの腐食寿命評価では、海水系還元性高 pH モデル地下水 (SRHP モデル地下水) を参考に硫黄分の濃度を $3.0 \times 10^{-2} \text{ mol dm}^{-3}$ 程度とし、この硫黄分が全て硫化物として存在すると仮定した。本事業の銅の腐食挙動に関する検討でも、硫化物濃度として $3.0 \times 10^{-2} \text{ mol dm}^{-3}$ 程度に該当する状況を含めた試験研究を実施している。

なお、H12 レポートで設定された SRHP 緩衝材間隙水の硫黄濃度は低くなっている ($7.2 \times 10^{-9} \text{ mol dm}^{-3}$) が、これは緩衝材間隙水の評価において緩衝材との反応だけでなくオーバーパック材料を炭素鋼とした場合の鉄腐食生成物 (Magnetite) の共存を考慮することで、Magnetite の溶解により鉄濃度が上昇し、一方、Pyrite の沈殿により硫化物濃度の低下が生じると評価されたためである。一方、銅処分容器の腐食を検討する場合には鉄腐食生成物 (Magnetite) の共存を考慮すべきではない。このことを踏まえて、鉄腐食生成物 (Magnetite) の共存を考慮しない条件での SRHP 緩衝材間隙水 (表 4-5 の SRHP 緩衝材間隙水 1 に相当) に着目すると、その場合の硫黄濃度は SRHP モデル地下水組成とほぼ同じであり、ほとんどは硫化物として存在する。また、包括的技術報告書では、緩衝材間隙水における硫黄分の濃度範囲として $4.1 \times 10^{-6} \text{ mol dm}^{-3} \sim 7.8 \times 10^{-2} \text{ mol dm}^{-3}$ を考えている。

これらのことから、銅の腐食に着目した検討において、硫化物濃度として $3.0 \times 10^{-2} \text{ mol dm}^{-3}$ 程度に着目することは妥当であると考えられる。そこで、本項目では $3.0 \times 10^{-2} \text{ mol dm}^{-3}$ 程度より高い硫化物濃度が想定される状況、あるいは逆に $3.0 \times 10^{-2} \text{ mol dm}^{-3}$ 程度よりも低い硫化物濃度が想定される状況について調査することとし、必要に応じて、想定される状況において生じる得るプロセスを想定したモデル化を行い、地下水水質の評価を行うこととした。

まず、緩衝材間隙水水質としては、SRHP モデル地下水と緩衝材構成鉱物との反応を想定した緩衝材間隙水水質 (表 4-5 の SRHP 緩衝材間隙水 1 に相当：硫化物濃度は $3.0 \times 10^{-2} \text{ mol dm}^{-3}$ 程度) を考える。また、硫化物濃度が SRHP 緩衝材間隙水 1 よりも高くなる状況として、SRHP モデル地下水と緩衝材の構成鉱物が反応したうえでさらに可溶性不純物が溶解し、かつ、可溶性不純物が緩衝材から散逸していない状況を想定した。この状況に相当する水質は、SRHP 緩衝材間隙水 2 であり、硫化物濃度は $4.9 \times 10^{-2} \text{ mol dm}^{-3}$ 程度である。

このような緩衝材間隙水に対して、硫化物濃度がより低くなる因子としては、緩衝材中の構成鉱物や二次鉱物（特に硫化鉄）、ならびに、銅腐食生成物（酸化銅、硫化銅）の寄与が考えられることから、それぞれの影響を平衡計算により評価することとした。

以下に、硫化鉄の影響評価および銅腐食生成物の影響評価について述べる。

・ 硫化鉄の影響評価：

硫化鉄が寄与することを想定した場合の影響評価では、表 4-8 に示した本検討で着目する緩衝材の構成鉱物（Pyrite）や二次鉱物（Mackinawite）との反応による硫化物濃度の変化の可能性に着目する。前述のとおり、本検討における初期溶液の候補としては、SRHP 緩衝材間隙水 1 あるいは SRHP 緩衝材間隙水 2 が考えられる。

そこでまず、SRHP 緩衝材間隙水 1 および SRHP 緩衝材間隙水 2 に対する Pyrite および Mackinawite の飽和指数を確認することで、それらとの反応の可能性を確認した。その結果、構成鉱物の Pyrite は概ね平衡であり溶解も沈殿もほぼ生じないと考えられ、また、二次鉱物の Mackinawite は不飽和であり沈殿しないことから、SRHP 緩衝材間隙水 1 および SRHP 緩衝材間隙水 2 に対して、硫化鉄は硫化物濃度の変化には影響しないことが推定された。

また、起こりにくいことではあるが、SRHP モデル地下水（表 4-4 参照）が緩衝材中を移行し処分容器表面近傍に至ることを想定し、初期溶液を SRHP モデル地下水とした場合についても、硫化鉄の反応の硫化物濃度への影響についての検討を試みた。この SRHP モデル地下水について Pyrite および Mackinawite の飽和指数を確認したところ、両方とも過飽和であることが示され、これらの沈殿が硫化物濃度を低下させる可能性が示唆された。しかしながら、以下の理由により、この場合でも、硫化鉄は硫化物濃度の低下には影響しないことが推定される。

- ・ SRHP モデル地下水の鉄濃度 ($3.89 \times 10^{-8} \text{ mol dm}^{-3}$) は硫化物濃度 ($3.0 \times 10^{-2} \text{ mol dm}^{-3}$) よりも大幅に低い。そのため、SRHP モデル地下水を初期溶液として Pyrite の沈殿を想定したとしても、Pyrite の沈殿量は SRHP モデル地下水の鉄濃度 ($3.89 \times 10^{-8} \text{ mol dm}^{-3}$) を超えることはない。このように Pyrite の沈殿量が小さいため、硫化物濃度は初期値である $3.0 \times 10^{-2} \text{ mol dm}^{-3}$ から変化しないと考えられる。このことは、Pyrite の平衡を考慮して求められる SRHP 緩衝材間隙水 1 の硫化物濃度が、初期溶液である SRHP モデル地下水の硫化物濃度と同じと評価されていることにも現れている。
- ・ そのため、SRHP モデル地下水に対して Mackinawite の沈殿が生じることを想定したとしても、Mackinawite は Pyrite よりも熱力学的に不安定とされていることから、Mackinawite の沈殿量は Pyrite の沈殿量よりも小さくなると考えられ、硫化物濃度は初期値である $3.0 \times 10^{-2} \text{ mol dm}^{-3}$ から変化しないと考えられる。

・ 銅腐食生成物の影響評価：

銅腐食生成物が寄与する場合の影響評価については、銅の腐食試験に関する知見に基づき、酸化銅が生成したうえで硫化銅が生成するプロセスに着目し、本項目においては、両者の鉱物の生成の時間的なずれを考えるケースと、両者の鉱物が競合しつつ同時

表 4-9 評価ケース（硫化物濃度評価，銅腐食生成物の影響）

		硫化銅	
		CuS	Cu ₂ S
酸化銅	CuO	モデル 3	モデル 3
		モデル 4	モデル 4
	Cu ₂ O	モデル 3	モデル 3
		モデル 4	モデル 4

初期溶液として、SRHP 緩衝材間隙水 1 および SRHP 緩衝材間隙水 2 に加え、H12 レポートのリファレンスケースである FRHP モデル地下水にもとづく緩衝材間隙水（FRHP 緩衝材間隙水 1 および FRHP 緩衝材間隙水 2）を設定した。なお、FRHP モデル地下水を基に評価された緩衝材間隙水については、SRHP モデル地下水を基にした場合よりも硫化物濃度が低い（例えば、 $4.7 \times 10^{-9} \text{ mol dm}^{-3}$ ）ことが示されているものの、本検討において着目したプロセスを考慮した場合でも硫化物濃度が低く維持されるか、あるいは銅腐食への影響を懸念する水準の硫化物濃度になる可能性はないかなどを確認することを目的として設定した。

(c) 地下水水質の評価

解析コードとして PHREEQC Ver. 3、熱力学データベースとして JAEA-TDB (PHREEQC19v12. dat) を用いて、硫化物濃度に対する Mackinawite の影響評価および銅腐食生成物の寄与の影響評価を行った。なお、Mackinawite についての熱力学データは、JAEA-TDB (PHREEQC19v12. dat) に含まれていないことから、Thermoddem database (v1.10) (BRGM, 2020; Piantone, 2006) から取得し用いた。

銅腐食生成物の影響評価の結果を付録 3 の付表 3-3～付表 3-6 に示す。

・ 銅腐食生成物の影響評価：

初期溶液を SRHP 緩衝材間隙水 1 および SRHP 緩衝材間隙水 2 とした評価結果に関しては、酸化銅と硫化銅の生成の時間的なずれを考慮するケース（モデル 3）と酸化銅と硫化銅が同時に生成しうることを想定するケース（モデル 4）について硫化物濃度の変化の傾向に差異が見られた（付表 3-3 および付表 3-4）。具体的には、モデル 3 において硫化物濃度への影響が生じるケースは少なく、また影響が生じたケースでも硫化物濃度の低下は 1 オーダー程度であった。一方、モデル 4 では、全てのケースで硫化物濃度が大きく低下し（5 オーダー以上）、極端に低下するケースも見受けられた。その原因として、モデル 4 では、モデル 3 よりも酸化銅がより多く溶解してより多くの銅イオンが生じ、硫化銅の沈殿がより多く生じたことが考えられる。一方、酸化銅として CuO を考えるか Cu₂O を考えるか、また硫化銅として CuS を考えるか Cu₂S を考えるかの違いが硫化物濃度に及ぼす影響は顕著ではなかった。以上より、SRHP モデル地下水を基にした緩衝材間隙水に該当する状況を想定する場合には、酸化銅と硫化銅が同時に生成することで硫化物濃度が大きく低下することが起こりえることから、想定される環境条件下および着目する領域においてこれら鉱物の関与が実際に起こりえるか否かの判断に資する情報を適宜把握し検討に反映していくことが望まれる。

一方、初期溶液を FRHP 緩衝材間隙水 1 および FRHP 緩衝材間隙水 2 とした評価ケース（付表 3-5 および付表 3-6）においては、硫化物濃度が初期溶液（ $4.7 \times 10^{-9} \text{ mol dm}^{-3}$ 以下）と同程度以下に低く維持されており、銅腐食への影響の観点で着目すべき硫化物濃度に至るケースは無かった。以上により、FRHP 緩衝材間隙水で想定される硫化物濃度は、SRHP 緩衝材間隙水で想定される硫化物濃度とは大きく異なりうることから、硫化物濃度への銅腐食生成物の影響を考えるうえでは、緩衝材に流入する地下水水質の想定も大事になることに注意が必要である。

本検討では、処分容器表面近傍での硫化物濃度の評価として、緩衝材における二次鉱物（硫化鉄）や銅腐食生成物（酸化銅、硫化銅）の反応に着目し、その影響の評価を試みた。その結果、本検討で着目した反応の多くでは、初期溶液として考えた緩衝材間隙水の硫化物濃度と変わらないと評価されたものの、想定する反応によっては硫化物濃度の低下する可能性も見いだされた（例えば、SRHP 緩衝材間隙水中で酸化銅と硫化銅が同時に存在することを想定する場合）。このような硫化物濃度の低下の可能性を銅処分容器の腐食の評価に取り込むか否かは、それら反応に関する情報を適宜把握しつつ、評価で着目する環境条件下で生じ得るかどうかを判断していくことが重要となる。

② 保障措置・核セキュリティ対策技術のシステム性能への影響

使用済燃料は処分後長期にわたり保障措置・核セキュリティの対象となることから、保障措置・核セキュリティ対策技術を適用することが、直接処分システム全体に対してどのように影響するのか検討し見通しを得ておく必要がある。保障措置・核セキュリティに関しては、これまで国際機関や諸外国での検討の経緯や要件・技術等の整理状況の把握、最新の技術動向の調査・整理を重点的に実施してきた（原子力機構，2018；2019；2020）。本検討では、保障措置・核セキュリティ対策技術が直接処分システムにどのように影響する可能性があるのか（例えば、システムのどの構成要素に適用され、どの構成要素に影響を及ぼす可能性があるかなど）、また処分のどの段階で影響が生じる可能性があるのか（例えば、建設段階、操業段階、閉鎖段階、閉鎖後長期等）等について、これまで調査・整理した保障措置・核セキュリティに関する情報・知見を利用して行う。

上記検討の実施方法としては、諸外国においても、保障措置・核セキュリティ対策の実施とその処分への影響に関しての公開されている情報は少ないことから、機構の保障措置・核セキュリティの専門家及び処分の専門家に対するヒアリングを中心に行うこととした。また、「保障措置・核セキュリティ対策」⇒「処分への影響」の検討は、そのまま取り組もうとするとかなり広範囲で複雑なものになることから、効果的・効率的な検討となるように、図 4-12 の作業フローに示す複数のステップで検討を進めることとした。



保障措置・核セキュリティ対策技術の例

① 使用済燃料の非破壊検認技術	<ul style="list-style-type: none"> 高エネルギーX線CT バックガンマ線トモグラフィ LCS-γ線による核共鳴蛍光法 チェレンコフ光検認装置 フォーク型検出器
② 封じ込め・監視技術	<ul style="list-style-type: none"> 保障措置用監視カメラ(NGSS) 放射線モニター VACOSS封印 EOSS封印 COBRA封印
③ 使用済燃料の再検認技術	<ul style="list-style-type: none"> 3Dレーザ形状測定 溶接部フェーズドアレイ超音波探傷 全γ線測定
④ 地下部分の設計情報検認技術	<ul style="list-style-type: none"> 電磁波法(地中レーザ技術) 3Dレーザースキャナー 地震計による掘削振動のモニタリング 映像監視システムによるモニタリング技術
⑤ 廃棄体の固有性確認技術	<ul style="list-style-type: none"> 溶接部フェーズドアレイ超音波探傷 電子タグ

・保障措置・核セキュリティの専門家、処分の専門家のそれぞれにヒアリング
 ・どの要素、事業のどの段階への影響かにも着目

保障措置・核セキュリティ対策		処分への影響の可能性			対策案
項目	内容	対策が関係する処分システム要素	対策の実現のための処分システム的设计や実施における技術的課題	処分システムに影響を与える因子(熱-水理-力学-化学)	
..
..

図 4-12 保障措置・核セキュリティ対策技術のシステム性能への影響の検討の作業フロー

ヒアリングの範囲については、保障措置・核セキュリティの専門家と処分の専門家がそれぞれの専門性を活かして参加しやすいように図 4-13 に示す分担を設定した。

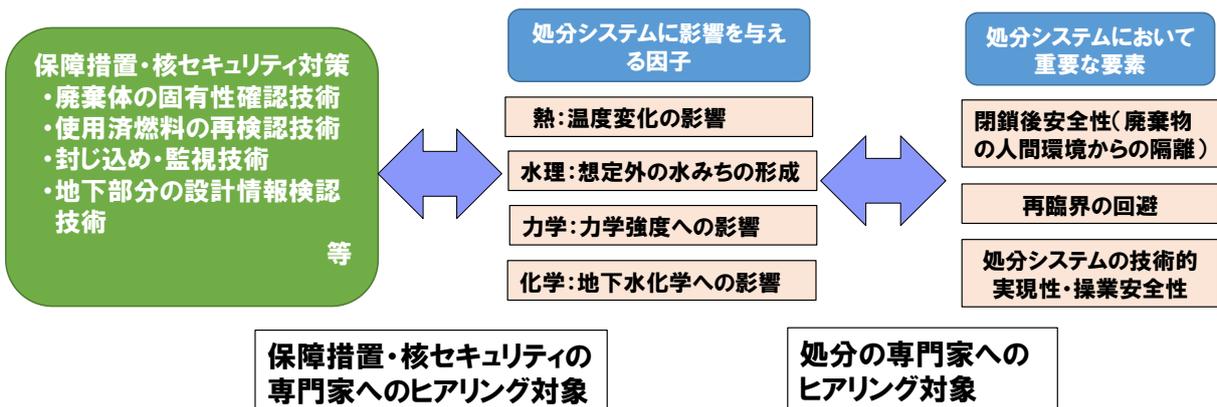


図 4-13 ヒアリングの分担

図 4-12 で示した作業フローの具体的な実施手順を以下に示す。

- ・ 調査・整理では、まず、これまでの保障措置・核セキュリティに関する調査で挙げられた技術について、直接処分システムのどの要素・どの段階に適用され、どの要素・どの段階に影響する可能性があるかの整理を実施する(保障措置・核セキュリティの専門家中心)。上記整理に対して、直接処分システムの個別要素(又はシステム全体)に対してどのような影響が起こりえるか(あるいは起こらないか)の分析・整理を行う(処分の専門家中心)。
- ・ このような作業フロー及び分担でのヒアリング結果をもとに、処分システムへの影響について懸念事項がある場合には、それがどのような条件で生じるか(例えば、常に起こり得るか、限定的な条件下のみで起こり得るかなど)、さらにはその影響についてどのような緩和策が考えられるか等を検討・整理する(保障措置・核セキュリティの専門家と処分の専門家間で適宜協働)。

- ・ ただし、現段階では、直接処分システムが設置される環境条件、安全規制等の観点で直接処分システムに求められる保障措置・核セキュリティの要件、及び実際にどの技術をどの範囲や期間で適用するかなどを具体的に設定することはできないため、いくつかの考えられる想定を仮定し、その範囲での検討を行うことにならざるを得ない。そのため、本検討の成果としては、保障措置・核セキュリティ対策技術のシステム性能への影響の最終的な結論ではなく、保障措置・核セキュリティ対策技術のシステム性能への影響として、まずどの技術のどのような影響に着目すべきかの留意点等を提示することにとどまる。

以下に、図 4-12 に示した作業フローに従って実施したヒアリングの結果を示す。

まず、これまでに調査・整理を行ってきた保障措置・核セキュリティ対策技術を対象に、各技術が直接処分システムのどの要素にどの段階で影響する可能性があるのかについて、保障措置・核セキュリティの専門家へヒアリングを実施した。保障措置・核セキュリティ対策の専門家からの主な意見を以下に示す。

- ・ 処分容器に直接干渉する可能性が考えられる対策（電子タグ、刻印）は、放射線の影響が問題となることや他の技術（超音波探傷による同定）で実現可能なことから、採用は現実的ではなく長期安全評価に影響することは想定しにくい。
- ・ 保障処置対策（検認、固有性確認）については、設計・操業中の課題のため、処分場閉鎖後の安全に直接影響するものは想定しにくい。
- ・ 坑道以外の保障措置・核セキュリティ対策のためだけの坑の設置は想定しておらず、これが長期安全評価に影響することは想定しにくい。

上記のように、現時点では、保障処置・核セキュリティ対策の実施に起因する直接処分システムへの影響として特に重視すべきものは挙げられなかった。

一方、現段階では、保障処置・核セキュリティ対策への国際的な要求や規制からの要求等は定まっておらず、また実際に行う対策の種類、量、規模等を見通すことも困難であるため、保障処置・核セキュリティ対策の実施に起因する直接処分システムへの影響がないと言い切ることも時期尚早と考えられる。そのため、直接処分システムへの影響として特に重視すべきものがないとの現段階での見通しをより確かなものとしていくために、以下の典型的な処分システムへの影響をあえて想定し、その影響の可能性や影響の緩和・回避の対策などについて処分の専門家にヒアリングを実施することで、影響の種類・確認方法、顕在化の条件、また必要に応じて影響の緩和・回避の対策についての意見の抽出を行うこととした。

- | | |
|--------------------|---------------------|
| ① 処分容器表面の傷・溝 | : 腐食（化学）、局所的な応力（力学） |
| ② 閉鎖後の処分容器表面の残存物質 | : 腐食（化学、熱）、核種移行（化学） |
| ③ 閉鎖後の水みちとなりうる地中の坑 | : 核種移行（水理） |
| ④ 閉鎖後の地中の残存物質 | : 核種移行（化学） |

処分の専門化からの主な意見を以下に記載する。

- ・ 処分容器表面に数ミリ程度の傷や刻印を行う程度であれば問題ないと思われる（ただし、傷の形状により注意が必要になる可能性はある。例えば、ギザギザした傷など）。
- ・ ID タグのように処分容器表面に装着する装置の場合、両者の素材が同じかどうか、隙間の有無が腐食に影響する可能性がある。
- ・ 処分施設の設計の段階で保障措置・核セキュリティ対策を組み込んでおくことで、保障措置・核セキュリティ対策用とそれ以外の目的の機器やケーブル類を同時に施工できれば、保障措置・核セキュリティ対策に起因する特別な問題は生じないと思われる。ただし、保障措置・核セキュリティ対策では装置の多重化を行う必要が求められる可能性があり、その場合に保障措置・核セキュリティ対策用の特別な機器やケーブル類の施工が必要となる場合には、それらが影響しないことの確認が必要となる。また、処分施設の設計の段階で考慮していなかった保障措置・核セキュリティ対策が、処分施設の建設等の段階で追加される場合にも、同様な確認が必要となると考えられる。

上記のように、保障措置・核セキュリティ対策の実施に起因する直接処分システムへの影響について、現段階では特に重視すべきものは挙げられなかった。また、保障措置・核セキュリティに関する調査・整理において重要性が指摘されていた、処分場の設計段階から「3S(Safety, Security, Safeguards) by Design」といったコンセプトを適用することの重要性が、本検討を通じて再確認され、また保障措置・核セキュリティの専門家と処分の専門家の間で実感をもって共有できた。

なお、保障措置・核セキュリティ対策の実施に起因する直接処分システムへの影響については、今後、保障措置・核セキュリティ対策への国際的な要求や規制からの要求、あるいは実際に行う対策の種類、量、規模等の具体化が進むことに応じて、適宜今回行ったような検討を繰り返し実施することが必要になると考えられる。今回行った検討の手順や結果は、それらを効果的に実施するための参考情報として役立つと考えられる。

(3) 保障措置・核セキュリティに関する情報・知見の収集・整理

使用済燃料の直接処分など、将来の廃棄物対策等を念頭に、保障措置・核セキュリティの成立性向上に向けて、多様な使用済燃料の対策を調査することは、日本における検討においても有用となりえる。このため、令和 2 年度は、最新の検討状況の調査・分析として、保障措置・核セキュリティについての諸外国での考え方、技術開発、対策等についての調査・分析等を実施した。調査対象はカナダを選定した。その理由は、同国では使用済燃料を「核燃料廃棄物」としていることからわかるように再処理せずに高レベル放射性廃棄物として処分する方針としていること、及び最終処分場候補地が 2020 年現在で 2 か所まで絞り込まれ、2023 年までにサイト選定が進められる状況にあり、処分の実施に向けた検討が進んでいると期待されることである。なお、当初は訪問調査を実施する予定であったが、新型コロナウイルスの世界的な感染拡大のため、訪問調査に向けて準備していた質問事項に対して、公開文献をベースとした調査を行った。また、現在は、公開文献の多くは Web 公開が進んでいることもありこれを最大限活用することとした。

カナダでの核燃料廃棄物の長期管理アプローチは、「適応性のある段階的管理」(APM :

Adaptive Phased Management) と呼ばれるもので、2007 年 6 月にカナダの国家方針として決定した。このアプローチは、最終的には地層処分を目指すものであるが、その達成までの期間 (300 年またはそれ以上) の中で「第 1 期：集中管理の準備 (約 30 年)」、「第 2 期：集中貯蔵と技術実証 (約 30 年)」及び「第 3 期：長期閉じ込め、隔離、モニタリング」の 3 つのフェーズに分けて取り組む考え方である。

以下では、令和 2 年度のカナダを対象とした調査・分析の結果を以下の構成で示す。

- ・ 「カナダの保障措置協定及び実施状況」(後述 1) 項参照)
- ・ 「カナダの保障措置及び核セキュリティ等の原子力規制の枠組みの状況」(後述 2) 項参照)
- ・ 「カナダの保障措置及び核セキュリティ等に関する規制内容」(後述 3) 項参照)
- ・ 「カナダでの Safeguards by Design (SbD) への取り組み」(後述 4) 項参照)
- ・ 「カナダの地層処分実施主体における保障措置・核セキュリティ対策の考え方」(後述 5) 項参照)
- ・ 「カナダにおける知識継承 (Knowledge Preservation) についての対策」(後述 6) 項参照)
- ・ 「カナダにおける人材育成への取り組み」(後述 7) 項参照)

1) カナダの保障措置協定および実施状況

使用済燃料の直接処分の実施にあたっては、核不拡散の観点での保障措置対応が必要であり、直接処分事業を検討している他国の保障措置対応を確認しておくことは今後のわが国の検討においても参考になるものとする。本項では、それに関係する情報として、まず、カナダにおける国際原子力機関 (International Atomic Energy Agency、IAEA) との保障措置協定に係る状況についての情報収集・調査を実施した。

原子力安全管理法 (Nuclear Safety and Control Act) (以下、NSCA という) に基づき、カナダはカナダ-IAEA 保障措置協定 (INFCIRC/164) および追加議定書 (INFCIRC/164/Add. 1) を確実に遵守することが義務付けられている。

INFCIRC/164 は、カナダがすべての核物質に関連する情報を IAEA に申告する義務を負い、IAEA がそれらの申告の完全性と正確性を検認する義務を負う包括的保障措置協定で、1972 年以降、施行されている。一方、2000 年から施行されている追加議定書は、カナダが追加情報とアクセス権を IAEA に与えるものである。カナダはさらに、「申告された核物質の転用がなく、また、未申告の原子力活動や核物質が存在しない」ことの結論 (拡大結論、Broader Conclusion: BC) を IAEA から導出されており、2005 年以降、毎年継続して当該結論を得ている。

2) カナダの保障措置および核セキュリティ等の原子力規制の枠組みの状況

本項では、前述のカナダ-IAEA 保障措置協定を達成するための、カナダにおける保障措置及び核セキュリティに関する国内安全規制の構造、文書体系・技術開発状況の把握を目的に、関係する情報を収集・整理を実施した。以下、「規制当局」、「規制の枠組み」、「保障措置技術」

の情報の整理結果を示す。

① 規制当局（カナダ原子力安全委員会）

カナダ原子力安全委員会（The Canadian Nuclear Safety Commission）（以下、CNSC という）は、最大7人の任命委員で構成されており、NSCAに基づく意思決定機関である。CNSCは、政府から一定の距離をとって設置された独立行政機関であり、カナダの原子力エネルギーと核物質の使用を規制する責任を負うとともに、客観的、科学的、技術的、および規制上の情報の一般公衆への普及を行っている。また、規制、許認可条件、規制整備などの保障措置要件の近代化に合わせた取り組みも所掌している。

NSCAは原子力規制に関しCNSCの目的を次のように定めており、上述のカナダ-IAEA保障措置協定遵守は以下に記載するNSCAのSubsections9(a)に基づいている。

9 委員会の目的

(a) 原子力エネルギーの開発、生産および使用、ならびに核物質、所定の機器および所定の情報の生産、所持および使用を規制すること。

(i) その開発、生産、所持または使用に関連する、環境および人の健康と安全に対する不当なリスクを防止する。

(ii) その開発、生産、所持または使用に関連する国家安全保障への不当なリスクを防止する。

(iii) カナダが合意した核物質管理措置および国際的義務への適合を達成する。

(b) 委員会の活動と、環境および人の健康と安全に対する、パラグラフ(a)で言及されている開発、生産、所有および使用の影響に関する客観的な科学的、技術的および規制情報を一般に広めること。

※Nuclear Safety and Control Act. より引用・仮訳

② 規制の枠組

現在、カナダでの保障措置に関する基盤要件は、「General Nuclear Safety and Control Regulations（一般原子力安全管理規則）（SOR2000-202）」（Minister of Justice, 2021a）に記載されており、すべての事業者は、保障措置協定のsection 12(1)(i)を円滑に遵守するために必要なすべての措置を講じる義務があることを示している。

また、核セキュリティに関しては、同法 section12(1)(c)にて、“すべての許可事業者は、人々の環境と健康と安全を守るために、原子力施設及び核物質のセキュリティを維持するためにあらゆる合理的な予防措置を講じなければならない”としているが、示されているのは基本遵守事項のみであるため、具体的には下位にあるガイドライン等を参照する必要がある。

安全規制当局であるCNSCの基盤は前述したようにNSCAである。NSCAは、“Section26 Prohibitions（禁止事項）”に規定されている、核物質・原子力施設に関連する活動はCNSCによる事業許可（License）が必要である旨を示している。また、NSCAは、カナダでの原子力エネルギー・放射線・核物質・放射性物質の利用に関する要件とガイドライン（指針）を確立するための関連する規制ツールを開発する権限もCNSCに与えている。カナダの規制の枠組みを構成する要素を図4-14に示す。

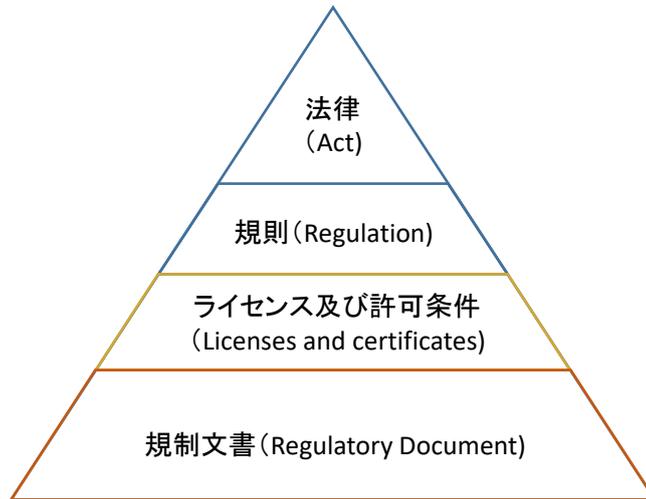


図 4-14 CNSC の規制の枠組みの主要素 (CNSC(2020)を参考に作図)

図 4-14 に示す規則の他、CNSC は法律や規則を補足する以下の規制文書を策定している。

- 規制方針 (Regulatory Policy, “P”) : 規制ミッションに対する CNSC のアプローチの根底にある哲学、原則、または基本的な要素を説明する文書。CNSC スタッフに指示を与え、利害関係者に情報を提供する。
- 規制基準 (Regulatory Standard, “S”) : CNSC 要件を説明する文書。事業許可またはその他の法的強制力のある手段でこの文書が適用される場合、規制対象 (許可事業者) に遵守義務を課す。
- 規制指針 (Regulatory Guide “G”) : 法律、規制、規制基準、またはその他の法的強制力のある規定類に示される、CNSC 要件を満足する方法を示す文書。許可事業者やその他の利害関係者にガイダンスを提供。
- 規制通知 (Regulatory Notice “N”) : 許可事業者およびその他の利害関係者にタイムリーな対応を保証するため、重要事項に関する情報を提供する文書 等

これら規制文書の中で地層処分に関係する文書としては以下のものがあるが、保障措置・核セキュリティに係る言及はなかった。

- REGULATORY POLICY P-299 Regulatory Fundamentals (規制原則)
- REGULATORY POLICY P-290 Managing Radioactive Waste (放射性廃棄物の管理)
- REGULATORY GUIDE G-320 ASSESSING the Long Term Safety of Radioactive Waste Management (放射性廃棄物の長期安全性の評価)

③ 保障措置技術

CNSC は、増加する使用済燃料に対するより効率的な保障措置アプローチを、IAEA と事業者とともに、継続的に模索している。その方針は、IAEA の査察官になるべく依存せず、無人で動作する機器や事業者自身の活動、遠隔監視を多用する保障措置手法を取り入れようというものである。検討されている技術には、全地球測位システム (GPS) を使った燃料の輸送の追跡や、地理情報システム (GIS) を使った未申告活動の発見、RFID (Radio Frequency Identification、無線周波数識別) を用いた簡便なキャスクの ID 確認等が含まれている。カ

ナダで使用されている保障措置技術で特徴的なものの一つに、乾式貯蔵容器（DSC）の封印が挙げられる。カナダ型重水炉 CANDU の使用済燃料のいくつかは、DSC に封入され、貯蔵されている。この DSC には、あらかじめ IAEA が用いる封印用のワイヤーを通す穴が開いており、封印がし易い設計となっている（図 4-15）。これらの技術的工夫は、わが国での使用済燃料の輸送、貯蔵、処分等に係る容器の検討に参考になる可能性がある。

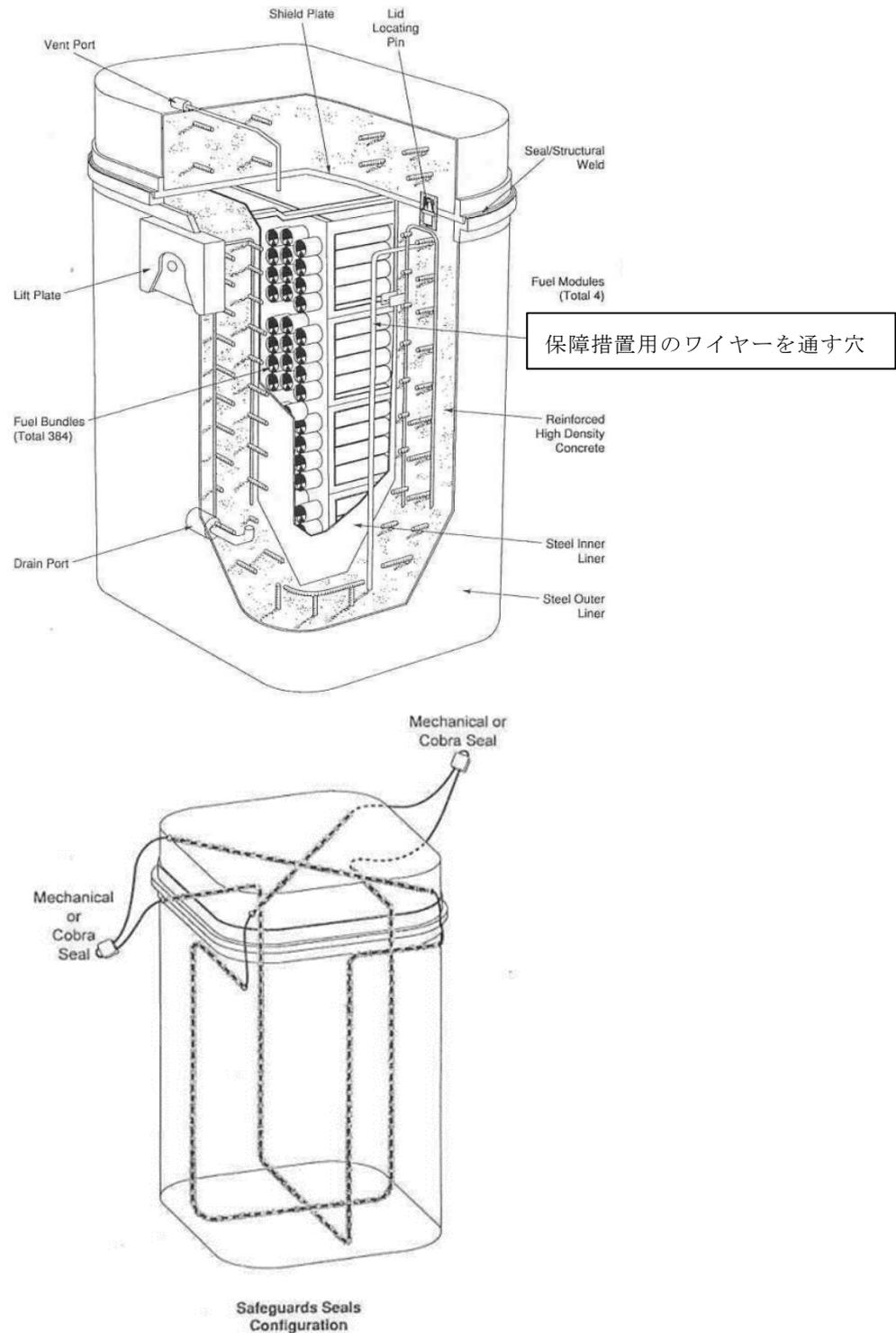


図 4-15 カナダの乾式貯蔵容器（DSC）の封印 (Robert et al., 2001)
 (上図：DSC の概観、下図：ワイヤーを通した様子)

3) カナダの保障措置および核セキュリティ等に関する規制内容

最終処分場の建設・操業に焦点を当てた場合、保障措置・核セキュリティに関する規制面で想定される対応を事前に検討することは円滑な事業の遂行に必要と考えられる。そのため、「2)項」でのカナダでの規制の枠組み等の調査結果を踏まえ、より具体的な規制内容に関する情報を拡充するため、公開されている規則類を対象に関連情報を調査し整理した。

2000年以來、CNSCは、放射性物質利用における安全・管理、放射線防護、輸送容器と輸送、核セキュリティ、核物質及び関連資機材に関する輸出入管理、核物質と放射線装置を含むさまざまな分野で要件を確立する13区分の規制文書（Regulatory document、REGDOC）を公開している（CNSC、2021）。表4-10に、CNSCが整備している規制文書の区分を示す。

表 4-10 カナダの放射線・原子力利用に関する規制文書の区分一覧

規制文書区分	備考
規制対象施設及び活動に関する規制文書関連 (Regulated facilities and activities Series)	
1.0 Regulated facilities and activities	
1.1 Reactor facilities	
1.2 Class IB facilities	
REGDOC-1.2.1, Guidance on Deep Geological Repository Site Characterization	
REGDOC-1.2.2, License Application Guide: Processing Facilities (Not yet developed)	
1.3 Uranium mines and mills	
1.4 Class II facilities	
1.5 Certification of prescribed equipment	
1.6 Nuclear substances and radiation devices	
安全及び管理区域関連 (Safety and control areas Series)	
2.0 Safety and control areas	
2.1 Management system	
2.2 Human performance management	
2.3 Operating performance	
2.4 Safety analysis	
2.5 Physical design	
2.6 Fitness for service	
2.7 Radiation protection	
2.8 Conventional health and safety	
2.9 Environmental protection	
2.10 Emergency management and fire protection	
2.11 Waste management	
2.12 Security	本調査での確認対象分類
REGDOC-2.12.1, High-Security Sites: Volume I: Nuclear Response Force	
REGDOC-2.12.1, High-Security Facilities, Volume II: Criteria for Nuclear Security Systems and Device	非公開 (This document contains prescribed information and is available on a valid need-to-know basis.)
REGDOC-2.12.2, Site Access Security Clearance	
REGDOC-2.12.3, Security of Nuclear Substances: Sealed Sources and Category I, II and III Nuclear Material, Version 2.1	密封RI線源が対象であるため、調査対象外とした
2.13 Safeguards and non-proliferation	本調査での確認対象分類
REGDOC-2.13.1, Safeguards and Nuclear Material Accountancy	保障措置 (計量管理) に関する基準
REGDOC-2.13.2, Import and Export, Version 2	核物質等国際規制物質の輸出入に関する基準であり調査対象外とした
2.14 Packaging and transport	
その他の規制関連 (Other regulatory areas Series)	
3.0 Other regulatory areas	
3.1 Reporting requirements	
3.2 Public and Indigenous engagement	
3.3 Financial guarantees	
3.4 Commission proceedings	
3.5 CNSC processes and practices	
3.6 Glossary of CNSC terminology	

注) 備考欄が斜線となっている区分は、保障措置・核セキュリティとの関係はないと考えられたため、調査対象外とした。

各区分のうち、「2.12 Security (核セキュリティ)」と「2.13 Safeguards and non-proliferation (保障措置)」の規制文書の整備状況などを調査した。

① 「2.12 Security」について

核セキュリティに関する REGDOC は、REGDOC-2.12.1、REGDOC-2.12.2 が整備されているが、関係者以外の閲覧ができない状態 (This document contains prescribed information and is available on a valid need-to-know basis) であり、今回の公開 Web サイトを利用した調査手法では、内容は確認できなかった。

また、これに関連する上位の規則として CNSC の Web サイトに記載のある核セキュリティ規則 (Nuclear Security Regulations, SOR/2000-209) (Minister of Justice, 2021b) では、事業者の許可申請に関する原子力施設の区分に応じた項目、要求等、侵入防止・検知のための監視設備の設置義務、核物質防護設備の設計基準、オペレータ認証・教育基準等、幅広い範囲について規定している。

② 「2.13 Safeguards and non-proliferation」について

CNSC の所掌の一つに、保障措置の検認に関する IAEA とカナダとの合意を実施する権限がある。このための規制文書として、REGDOC-2.13.1「核物質の保障措置及び計量管理 (Safeguards and Nuclear Material Accountancy)」が整備されている。

内容は、IAEA 保障措置協定における義務事項を成文化したものであり、設計情報検認、査察機器運用、封印適用、IAEA 査察活動のためのアクセス (及び補完アクセス)、核物質の計量管理、情報の提供・記録の保持等を定めており、日本の「核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律」と類似の内容で構成されている。

また、REGDOC-2.13.1 では、規制者と事業者間での情報提供に関し、“事業者は、保障措置関連情報の作成、保存、および送信に使用されるシステムの侵害を防止するための対策を講じる必要”を求めている。一部にはセキュリティの観点での対応が記載されており、具体例として、カナダ規格協会 (Canadian Standards Association, CSA) が発刊する「N290.7-14, Cyber Security for Nuclear Power Plants and Small Reactor Facilities」を参照することが記載されている。なお、CSA が発刊する文書で閲覧権限がないものは、内容を確認することはできない。これは、枢要機器や機微情報に関連する情報を含むためと推測される。

4) カナダでの Safeguards by Design (SbD) への取組み

IAEA が円滑な保障措置活動に資することを目的に整備が進められている「Safeguards by Design : SbD (保障措置の設計への取入れ)」に関し、カナダでの取り組み状況を確認するため、関係情報の調査を実施した。

IAEA では、保障措置が適用される原子力施設に対する Safeguards by Design (SbD : 保障措置の設計への取入れ) に関する文書を作成している。SbD とは、対象原子力施設の早期の設計プロセスから、査察機器・計量管理の手法・技術を取り入れ、保障措置のみならず、経済、運用、安全、およびセキュリティの最適化を踏まえた設計検討を進める考え方である。現在、基本原則を含め、施設種別ごとに全 7 文書が Nuclear Energy Series として作成されており (IAEA の Web サイト上で公開 (IAEA, 2021))、SbD の効用は以下のように紹介されている。

- ・保障措置対策・機器を既存の施設に適用すると、通常、コストのかかる再設計作業、プロジェクトへ費やす時間の増加、および人的資源のコストが増加し、また、改造に関連する事業者のプロジェクト費用だけでなく、IAEA にも費用がかかる。
- ・一方、SbD を適用することにより、施設設計者、当該国、および IAEA の間で早期に議論が交わされる。場合によっては、対象施設、対象測定等を考慮した新しい IAEA の保障措置用機器を設計する必要性が生じる場合もある。また、すべての利害関係者が早期に関与することの利点により、すべての関係者が施設の意図と運用、および基本的な保障措

置手段の目的を確実に理解できる利点が挙げられる。

以下では、別途 CNSC より入手した保障措置文書整備に関する報告書「SAFEGUARDS FOR NEW TYPES OF NUCLEAR FACILITIES AND CAMPAIGNS IN CANADA」(Sarah et al., 2018) を参考に、地層処分施設 (Deep geological repository) (以下、DGR という) に関する SbD の取り組み状況を概説する。

本資料にて示された使用済燃料の直接処分において予測される保障措置の主な課題は以下のとおり。

- ・ 最終処分のために定置された核物質の回収可能性が低い
- ・ 施設の固有の設計は、核物質が地表から数百メートル下に定置されるため、IAEA にとって自然なアクセスと検認の困難が生じる
- ・ 運用段階の期間中、DGR が段階的に建設・拡張される可能性がある
- ・ 施設の変更が発生する場合に備えて、保障措置対策は柔軟に行う必要がある
- ・ 遠い将来の施設の管理と関連する記録の保持を操業期間全体として考慮する必要がある

また、同報告書では、次のようなことも述べている。

- ・ 核物質の検認に関する問題は、処分容器に使用済燃料が収納されたのちの ID 管理である (腐食により処分容器表面に追加の欠陥が生じる可能性等)。したがって、地表のキャニスタ収納施設での IAEA 査察手順上、検認上の課題が発生することがある。

さらに、将来の DGR プロジェクトを検討している国の場合、DGR に関して国内の保障措置の実績はほとんどない状況にあり、そのため、国際的な保障措置手法の協議への関与を維持し、現在進行中の DGR プロジェクト (例: フィンランドとスウェーデンでのプロジェクト) において保障措置がどのように検討されているかを注視することの必要性を述べている。

また、IAEA 専門家会合 (the Application of Safeguards to Geological Repositories (ASTOR))、DGR に保障措置を適用するための対策と技術開発における加盟国からの技術的専門会合) 等への継続的な参加を進め、加盟国と IAEA の間で情報の共有を促進することの重要性を示している。

5) カナダの地層処分実施主体における保障措置・核セキュリティ対策の考え方

ここでは、被規制者となる事業実施主体が、保障措置・核セキュリティに関する規制条件に対して検討している対策等についてのコンセプトとその根拠について整理するため、関係する情報の調査を実施した。

冒頭に述べた状況・調査方針に基づき、実施主体である NWMO の公開情報 (NWMO, 2008) を参考に、核セキュリティ及び保障措置対策に関し調査した。NWMO では、使用済核燃料の安全で長期的な管理に関するカナダの計画として、適用性のある段階管理 (Adaptive Phased Management) (以下、APM という) というアプローチを基本とし事業を進めるとしている。これは、以下のような段階を通じて、必要な場合に使用済燃料の可逆性 (回収可能性) を確保しつつ、操業中及び閉鎖後の安全性が妨げられないことを要求する考え方である (NWMO, 2020)。

- ・ サイト選択と規制当局の承認
- ・ サイトの準備と建設

- ・ 施設操業（使用済燃料定置）
- ・ 施設拡張と監視
- ・ 地上施設廃止措置と閉鎖
- ・ 閉鎖後の監視

NWMO（2008）における検討において、保障措置・核セキュリティに関し懸念として考慮された事項は、軍事転用、妨害破壊行為、盗取等であり、その他の事項は以下のとおりである。

- ・ カナダのアプローチの世界的な核不拡散への影響
- ・ 核セキュリティリスクとしての内部脅威の可能性
- ・ 社会への脅威

一方で、深地層での集中的な封じ込めを隔離の目標を含む APM は、NWMO により、敵対者のアクセス困難性などの理由から推奨されている。

使用済燃料管理アプローチは、強力な規制による監視、核セキュリティ、および保障措置を確保する必要がある。ここで考慮すべき事項は、

- ・ 適切な脅威の評価
- ・ 情報管理（情報開示対象要員の選択とスクリーニング、情報の公開の禁止、対応力の利用可能性、サイバー攻撃の対象となる可能性のある電子情報（電子メールなど）および資産（コンピューターなど）のセキュリティ）
- ・ （使用済燃料貯蔵における）頑健なコンテナの適用

などである。また、これらの考えは、NWMO が関与すべき項目として、情報管理 (Information)、キャスクによる中間貯蔵 (Storage)、処分施設までの輸送 (Transportation) にその要点がまとめられており、特に地層処分施設に関しては以下の整理がなされている。

- ・ 使用済燃料が地下に置かれ、施設が埋め戻されて閉鎖されると、アクセスが困難になり、盗難、敵対的介入、核物質の拡散の範囲が限定される。閉鎖前であっても、地下貯蔵庫内の使用済燃料へのアクセスが制限され、地表までの離隔距離が約 500 m であるため、核セキュリティの脅威に対する重要な防護機能が高まる
- ・ 長期的には、閉鎖され密閉された処分施設での使用済燃料の核セキュリティは、能動的制度的管理に依存しない
- ・ 回収可能性と核セキュリティのバランスについて議論が必要となる
- ・ 処分施設の保障措置は、長年にわたり国際的に議論され、IAEA が主導する具体的な措置が開発されている状況にある。そのため、NWMO はこれらの議論に継続参加する必要がある

6) カナダにおける知識継承 (Knowledge Preservation) についての対策

長期にわたる地層処分事業において、公衆防護の観点でも重要と考えられる施設の存在認知 (知識継承) に関してどのような対策を検討しているのかを把握するため、関係する情報を調査し、整理した。

カナダの DGR 技術活動結果を取りまとめた NWMO の報告書「NWMO's Program for Research and Development for Long-Term Management of Used Nuclear Fuel」(NWMO, 2019) では、知識管理に関し、主に以下の考え方が示されている。

- ・ 処分施設の監視に関して、計画と決定プロセスに関連する情報を将来世代へ提供・維持する重要性
- ・ 継承を確実にするためにさまざまなアプローチの使用の必要性
- ・ 重要な情報ファイルの形式等についてカナダ国立図書館文書館と議論されるべきであること

しかしながら、本調査の範囲では、申請に関するインベントリデータを更新する、今後も国際グループの文献等を定期的にレビューする等、の記述にとどまり、具体的な技術開発状況までは確認されなかった。

このような状況は過年度に調査を行ったフィンランドも同様であり、今後数十年にわたる建設・操業期間における将来の技術開発に期待しているものと推察される。

7) カナダにおける人材育成への取組み

長期にわたる事業においては、それを運用し、また安全性を高めるための技術開発を継続するための人材の確保が重要と考えられる。そのため、他国での対応を今後の検討での参考とするため、カナダにおける当該情報について調査を実施した。

廃棄物管理 (Radioactive Waste Management) に関しては、2017 年に CNSC が刊行した「Canadian National Report for the Joint Convention on the Safety of Spent Fuel Management and on the Safety of Radioactive Waste Management」(CNSC, 2017) に NWMO における人材育成に関する取組み状況が記載されている。具体的な事項として、K. 5. 3. 4 にて、“Continuously improving technical knowledge (専門知識の継続的な向上)” に、「オーストラリア、ベルギー、フィンランド、日本、韓国、スウェーデン、スイス、英国、米国との協力」、「カナダ自然科学工学研究評議会 (the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada) (以下、NSERC という) 等と協力し、オタワ大学に 5 年間の助成金を授与し、大学の新しい先端研究施設に高度な水文地球化学センター (hydrogeochemistry centre of excellence) を設立」したことなどが記載されており、産学連携を図り、人材育成に取り組んでいることが報告されている。

(4) まとめ

平成 31 年度までに実施した、システムの成立性についてより多角的な確認としていくための課題の分析・整理結果を踏まえ、令和 2 年度はこれらの課題など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として、わが国での直接処分を考える場合に想定される状況や条件を対象に、直接処分に特有なシステム性能を例示していくこと、また、想定される状況や条件での設計仕様や設計上の留意点を例示していくことに着目し、その実施に向けての基本的考え方や手順の検討、さらにそのような例示の実施に必要となる基盤的な情報の整備として、以下を実施した。

- ・ 使用済燃料マトリクスの溶解挙動や処分容器の腐食挙動への影響の観点からの地下水水質の検討：想定されうる炭酸濃度や硫化物濃度の幅などを、使用済燃料マトリクスの溶解や処分容器の腐食の評価などに反映できるように整理

- ・ 保障措置・核セキュリティ対策の直接処分の設計などへの影響：保障措置・核セキュリティ対策により影響を受ける可能性のある直接処分システムの構成要素、影響の種類・程度ならびに対策案などについて、保障措置・核セキュリティ対策の直接処分の設計等への影響の可能性についての検討に反映できるように、現段階での情報に基づき予察的に整理

また、平成 31 年度までの課題の整理結果について、そのわかりやすさや有用性などの向上のための課題の表現や課題の粒度の統一、補足情報の対応付け等を実施した。

保障措置・核セキュリティに関しては、最新の情報・知見の収集・整理として、保障措置・核セキュリティについての諸外国での考え方、技術開発、対策等についての調査、分析として 2023 年までにサイト選定が進められる予定のカナダの CNSC および NWMO の公開情報を調査した。規制については、保障措置及び核セキュリティが相互参照する関係にあるものの、独立した規則体系で構成されていることを確認した。また、地層処分施設の立地・設計審査ガイドとなる規制文書が 2021 年 1 月に公開となっており、2023 年のサイト選定に向けた法整備が進んでいることを確認した。そのほか、様々な技術を取り入れた保障措置技術の開発が進んでいることが確認された。一方、2S Synergy (Safeguard と Security の相乗効果を考慮した設計思想) については、今回の調査結果からは確認されなかった。また、処分施設にどのような保障措置手段を適用するのかについてのカナダでの具体的な検討状況は今回調査した範囲では確認できなかった。

本事業項目については、システムの成立性を効果的に検討するための課題の整理およびそれら課題への対応を進めるという目的に対して一定の成果が得られたと考えられる。そのため、今後、本事業項目では、令和 4 年度のプログレスレポート作成（先行事業および本事業での個別課題の成果の体系的な取りまとめ、システムの成立性に係る議論等を含む）の全体管理を行うこととする。

【参考文献】

- BRGM (2020): Thermochemical and Mineralogical Tables for Geochemical Modeling, <https://thermoddem.brgm.fr/> (2021年3月31日閲覧).
- Christopher S. Romanek, Concepcio ´ n Jimenez-Lo ´ pez, Alejandro Rodriguez Navarro, Monica Sa ´ nchez-Roma ´ n, Nita Sahai, Max Coleman (2009): Inorganic synthesis of Fe-Ca-Mg carbonates at low temperature, *Geochimica et Cosmochimica Acta* 73, 5361-5376.
- CNSC (Canadian Nuclear Safety Commission) (2017): Canadian National Report for the Joint Convention on the Safety of Spent Fuel Management and on the Safety of Radioactive Waste Management, Sixth Report October 2017.
- CNSC (Canadian Nuclear Safety Commission) (2020) : <https://nuclearsafety.gc.ca/eng/acts-and-regulations/regulatory-documents/published/html/regdoc3-5-3/index.cfm> (2021年3月15日閲覧)
- CNSC (Canadian Nuclear Safety Commission) (2021) : <http://www.nuclearsafety.gc.ca/eng/acts-and-regulations/regulatory-documents/> (2021年3月18日閲覧)
- Dong, J., Nishimura, T., Kodama, T. (2001): Corrosion Behavior of Carbon Steel in Bicarbonate (HCO_3) Solutions, Proc 48th Jpn. Conf. Materials and Environments, p. 321, JSCE.
- 原子力発電環境整備機構(2021) : 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－ 本編および付属書, NUMO-TR-20-03.
- 原子力機構 (日本原子力研究開発機構) (1998) : 軽水炉、プルサーマル炉、高速炉および研究炉の使用済燃料中の放射能 (04-07-01-10), ATOMICA https://atomica.jaea.go.jp/data/detail/dat_detail_04-07-01-10.html (2021年3月18日閲覧).
- 原子力機構 (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-Research2015-16.
- 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.
- 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.
- 原子力機構 (日本原子力研究開発機構) (2020) : 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.
- IAEA(International Atomic Energy Agency)(2021): <https://www.iaea.org/topics/assistance-for-states/safeguards-by-design-guidance> (2021年3月18日閲覧)
- Ishidera T., Xia X., Idemitsu K. & Kikuchi Y. (2008) Corrosion Products from Carbon Steel Formed in Compacted Bentonite under Reducing Conditions, *Journal of Nuclear Science and Technology*, 45:8, 763-772.
- 核燃料サイクル開発機構 (1999) : わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信

- 頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—総論, 核燃料サイクル開発機構 技術報告書, JNC TN1400 99-020.
- 北村暁, 赤堀 邦晃, 長田 正信(2020): 使用済燃料直接処分における放射性核種の瞬時放出率設定手法の構築, 原子力バックエンド研究, 27 巻 2 号, p. 83-93.
- Mercier-Bion F, Li J, Lotz H, Tortech L, Neff D, Dillmann P. (2018): Electrical properties of iron corrosion layers formed in anoxic environments at the nanometer scale, *Corros Science* 137, 98-110.
- Minister of Justice (2021a): General Nuclear Safety and Control Regulations, SOR/2000-202, CANADA.
- Minister of Justice (2021b): Nuclear Security Regulations, SOR/2000-209, CANADA.
- Necib, S., Linard, Y., Crusset, D., Michau, N., Daumas, S., Burger, E., Romaine, A., Schlegel, M. (2016): Corrosion at the carbon steel-clay borehole water and gas interfaces at 85 °C under anoxic and transient conditions. *Corrosion Science* 111, 242-258.
- Necib, S., Diomidis, N., Keech, P., Nakayama, M. (2017): Corrosion of carbon steel in clay environments relevant to radioactive waste geological disposals, Mont Terri rock laboratory (Switzerland), *Swiss J Geosci* (2017) 110:329-342.
- NWMO(Nuclear Waste Management Organization)(2008) : <https://www.nwmo.ca/~media/Site/Files/PDFs/2015/11/18/10/21/NWMO-Backgrounder--Security-and-Safeguards.ashx?la=en> (2021年3月15日閲覧).
- NWMO(Nuclear Waste Management Organization)(2019): RD 2019-NWMO's Program for Research and Development for Long-Term Management of Used Nuclear Fuel,
- NWMO(Nuclear Waste Management Organization)(2020) : <https://www.nwmo.ca/en/A-Safe-Approach/About-the-Project/Project-Phases>(2021年3月15日閲覧).
- Ochs, M. Lothenbach, B., Shibata, M. and Yui, M. (1999), Bentonite Porewater Chemistry, JNC TN8400 99-075.
- 小田治恵, 柴田雅博, 油井三和(1999): 地層処分研究開発第2次取りまとめにおける緩衝材間隙水化学の評価, JNC TN8400 99-078.
- 大塚伊知郎, 瀧洋, 山口徹治, 飯田 芳久, 山田 文香, 稲田大介, 田中忠夫(2008): 処分場の緩衝材間隙水の酸化還元電位へのオーバーパック腐食の影響 —重要パラメータの取得及び Eh の予備解析—, JAEA-Research 2008-043.
- Pekala, M., Wersin, P., Cloet, V., Diomidis, N., (2019): Reactive transport calculations to evaluate sulphide fluxes in the near-field of a SF/HLW repository in the Opalinus Clay, *Applied Geochemistry* 100, 169-180.
- Piantone P., Nowak C., Blanc P., Lassin A. et Burnol A. (2006): Thermodynamique et Modélisation de la Dégradation DEchets Minéraux. Rapport d' avancement, BRGM/RP-54547-FR, 51 p., 29 ill.

- Robert B., Q. S. Bob T., Richard K., Neville W., & Brian G. (2001) : Designing a safeguards approach for the transfer and storage of used fuel (IAEA-SM--367), International Atomic Energy Agency (IAEA).
- 阪下真司, 中山武典, 中西智明, 西村務, 和田隆太郎, 栗本宣孝, 建石剛, 藤原和雄 (2003) : 還元性環境における腐食生成物の同定, 第 50 回材料と環境討論会, A-206.
- Sarah B., Henry G. and Omer E. (2018) : SAFEGUARDS FOR NEW TYPES OF NUCLEAR FACILITIES AND CAMPAIGNS IN CANADA, Safeguards Symposium 2018.
- Schlegel, M.L., Necib, S., Daumas, S., Blanc, C., Foy, E., Trcera, N., Romaine, A. (2016) : Microstructural characterization of carbon steel corrosion in clay borehole water under anoxic and transient acidic conditions, Corrosion Science 109, 126-144.
- SKB (2011) : Long-term safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark Main report of the SR-Site project, Technical Report TR-11-01.
- Yui, M., Sasamoto, H. and Arthur, R.C. (1999) : Groundwater Evolution Modeling for the Second Progress Performance Assessment (PA) Report, JNC TN8400 99-030.

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
1) 超深孔処分の評価事例	5-3
2) 超深孔処分に係る関連情報	5-5
① 掘削技術	5-5
② 地質環境調査技術	5-11
③ 設計・安全評価に係るデータ取得技術	5-19
3) わが国での超深孔処分の技術的実現性や課題等の検討に向けた情報処理の アプローチの検討	5-25
① 各種情報の分析・処理や提示の方法を含む情報処理のアプローチの検討	5-26
② 核種移行特性の設定の考え方や設定方法の整備に向けての検討	5-27
(3) 超深孔処分の閉鎖後安全性に影響する因子の検討	5-30
1) 着目する因子の整理	5-30
2) 超深孔処分システム領域全体を対象とした影響評価のアプローチ	5-32
3) 超深孔処分システム領域全体を対象とした影響評価の結果	5-35
① 解析モデルの構築	5-35
② 解析条件および解析ケースの設定	5-37
③ 解析結果および考察	5-40
(4) まとめ	5-44
参考文献	5-45

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、岩石熔融処分、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、平成 27 年度より、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、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。先行事業における調査では、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）を対象として情報を整理するとともに、超深孔処分など、調査の時点で検討段階にある代替処分概念については、諸外国の事例調査を行うことにより、それらの考え方、特徴、検討の背景、技術的課題などを明らかにし、わが国の諸条件を考慮した場合の有効な代替処分概念について検討することとした。

具体的には、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、超深孔処分相当深度での地質環境の特徴の調査と情報整理、超深孔処分相当深度での掘削などについての関連技術の開発動向や実績に関する調査と情報整理、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、その他の代替処分オプションについての調査と整理として、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。

超深孔処分を対象とした国内外での最新の関連情報等の調査については、平成31年度までに、超深孔処分技術および関連す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・事例などの調査と情報・技術の整理を実施した。令和2年度は、超深孔処分に関係する諸外国や関連分野についての最新の情報・技術の調査、および情報・技術の分析・整理の拡充を行い、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の情報整備に係る課題等を提示する。

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31年度までに、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など）の抽出、それら因子による閉鎖後安全性への影響についての水理・核種移行解析等による定量的知見の蓄積を進めてきた。令和2年度は、各種因子の組み合わせ等による移行経路や移行プロセスへの影響についての水理・核種移行解析等による定量的知見の拡充と詳細化を図るとともに、わが国における超深孔処分の適用性や成立性の検討に向けてのシステム性能や技術的実現性等に係る留意点や課題等を提示する。

(2)項以降において、以下の構成で令和2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）
- 超深孔処分の閉鎖後安全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

わが国での諸条件を考慮した場合における超深孔処分の適用性・成立性の検討に資するために、その基盤になると考えられる以下の3つの技術に着目して情報の収集・整理を実施する。

- 掘削技術：地下数千mの超深部まで、廃棄物の処分に必要な大孔径（約50cm以上）の孔を現状技術で掘削して維持することができるのか、どのような留意点や課題があるか等。
- 地質環境調査技術：超深部を含めた地下深部の地質環境情報を現状技術でどの程度まで調査・取得できるのか、わが国において超深孔処分に適した地質環境の場所があるのかどうか等を判断していくためにどのような情報が必要となるか、どのような留意点や課題があるか等。
- データ取得技術：超深部の高温・高圧環境等の過酷な条件下における設計・安全評価に係るデータを現状技術でどの程度まで調査・取得できるのか、どのような留意点や課題があるか等。

本節では、これら3つの技術に対して、現段階での技術の状況や参考となる適用事例の把握を目的とした既存情報の調査・整理を行う。

- 掘削技術：掘削技術に関する既存事例などを調査・整理し、現状の技術でどの程度の孔径でどの程度の深さまで掘ることができるかについての現段階での見通しや超深孔処分相当深度への適用のための課題等を分析・整理する。また、掘削による影響の発生やその回避・緩和に係る技術等についても同様の調査と分析・整理を行う。
- 地質環境調査技術：地下深部の既存探査手法の現状を調査し、探査手法毎の調査範囲・調査深度・分解能などの関係についての現段階での見通しや超深孔処分相当深度への適用のための課題等を分析・整理する。
- データ取得技術：設計・安全評価に係るデータ取得技術の現状を調査し、高温・高圧等の過酷な条件下におけるデータ取得についての現段階での見通しや超深孔処分相当深度への適用のための課題等を分析・整理する。

さらに、調査した3つの技術に関する各種情報等について、わが国での超深孔処分の現段階での技術的実現性や課題・留意点等の検討に利用しやすくすることを目的とした、情報の分析・処理や提示の方法を含む情報処理のアプローチについても検討していく。令和2年度の実施内容を以下に示す。

- 超深孔処分の評価事例（後述1）参照）
- 超深孔処分に係る関連情報（後述2）参照）
- わが国での超深孔処分の技術的実現性や課題等の検討に向けた情報処理のアプローチの検討（後述3）参照）

1) 超深孔処分の評価事例

本項では、諸外国の超深孔処分の検討事例の最新動向として、米国 Deep Isolation 社の超深孔処分の検討事例（Deep Isolation Inc, 2020）について調査した。米国の一般企業である Deep Isolation 社は、最新の掘削技術を活用した超深孔処分の概念として、地下深くの水平掘削孔に放射性廃棄物を処分する方法を提案している（以後、この形式を「超深水平処分」と呼ぶ。）。具体的には、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方法を提案している（図5-1参照）。

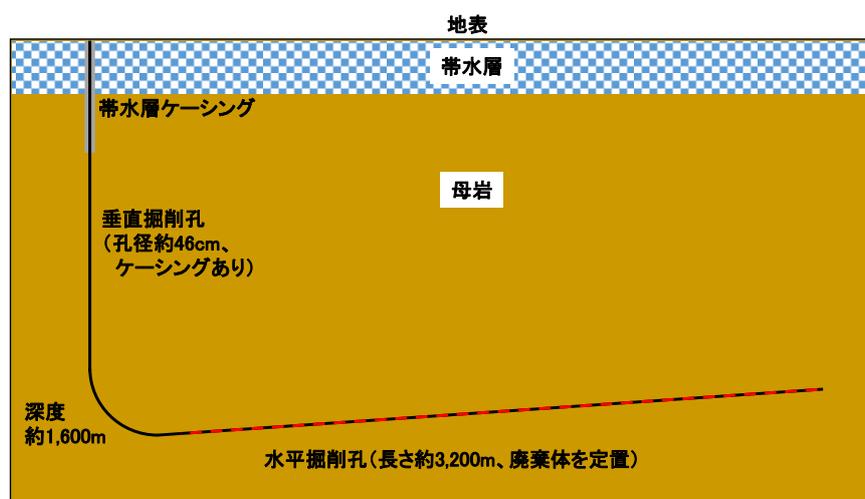


図 5-1 Deep Isolation 社が提案する処分概念のイメージ

以下では、使用済燃料を対象とした超深水平処分の予備的な閉鎖後安全評価（Deep Isolation Inc, 2020）の概要を示す。

解析モデル・条件：

- 超深水平処分場の全体を考慮（縦方向（深度）2,000 m × 横方向約 5,000 m × 奥行 50 m）
- 放射性廃棄物は処分容器内に配置される。処分容器は、ケーシングが設置された水平掘削孔内に設置される。また、腐食により 10,000 年後に処分容器が破損すると仮定する。
- 天然バリアは、帯水層、表層、母岩、塩水層の4層で構成される。各層は、空間的な分布を

- 持つ不均質な空隙率を有する。放射性廃棄物が定置される水平掘削孔は母岩中に存在する。
- 線量の評価ポイントは帯水層としている。
 - 評価対象核種は、使用済燃料において重要核種になると考えられる I-129、Cl-36、Tc-99、Se-79 としている。
 - 生活圏については、超深水平処分場の上部に位置する井戸から飲料水を摂取すると仮定して線量換算係数を算出している。
 - 熱流体として、ダルシーの法則による粘性流を考慮する。熱伝導および対流熱伝達も考慮している。
 - 初期条件として、地下水位は地表に近いと仮定している。初期温度分布は地熱勾配に従う。初期の圧力分布はほぼ静水圧であり、温度変化による密度効果と塩分濃度の変化を考慮している。さらに、母岩の下の塩水層では局所的な圧力勾配が適用され、モデル領域全体の初期圧力と温度分布にわずかに影響を与えている。
 - 水理および核種移行解析には、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 の拡張バージョン (Pruess and Moridis, 2012) を使用している。
 - 超深水平処分の予備的な閉鎖後安全評価における対象廃棄物は、使用済燃料集合体 1 体 (0.435 MTU per PWR assembly) を収容した廃棄体 153 体としている。
 - 天然バリアの 4 層の透水性の設定を表 5-1 に示す。予備的な閉鎖後安全評価 (Deep Isolation Inc, 2020) に掲載されているのは固有透過係数であるため、透水係数に換算した値も合わせて示す。

表 5-1 超深水平処分の閉鎖後安全評価における天然バリアの透水性の設定

母岩の層	固有透過係数[m ²]		透水係数[m s ⁻¹]の推定値 ¹⁾	
	水平方向	鉛直方向	水平方向	鉛直方向
帯水層	10 ⁻¹²	10 ⁻¹³	10 ⁻⁵	10 ⁻⁶
表層	10 ⁻¹⁴	10 ⁻¹⁵	10 ⁻⁷	10 ⁻⁸
母岩 ²⁾	10 ⁻¹⁷	10 ⁻¹⁸	10 ⁻¹⁰	10 ⁻¹¹
塩水層	3 × 10 ⁻¹⁶	3 × 10 ⁻¹⁷	2.94 × 10 ⁻⁹	2.94 × 10 ⁻¹⁰

¹⁾ Freeze and Cherry(1979)に示された permeability (固有透過係数、k[cm²]) と透水係数 K[m s⁻¹] の関係 (1 cm²=9.80 × 10² m s⁻¹) から推定。

²⁾ 放射性廃棄物が定置される水平掘削孔は母岩中に存在。

シナリオ :

- 予備的な閉鎖後安全評価では、基本シナリオの他に、破壊的シナリオとして断層シナリオと早期の処分容器破損シナリオを設定している。
- 基本シナリオは、擾乱のない条件下における超深水平処分場の性能を評価している。
- 断層シナリオでは、大規模な地殻変動や地震の発生により、新しい (または既存の) 垂直下断層が活性化 (または再活性化) し、超深水平処分場の水平掘削孔の中央部と交差する破砕帯が発生すると仮定した評価が行われている。

解析結果：

- 基本シナリオや断層シナリオの解析結果は、地下水の流れが遅いことで地圏全体に核種が拡散して濃度が大幅に低下することにより、その最大線量は約 100 万年後に約 $0.1 \mu\text{Sv y}^{-1}$ と低い結果となっている。また、線量の支配核種は I-129 となっている。

2) 超深孔処分に係る関連情報

本項では、超深孔処分に係る関連情報として 3 つの技術（掘削技術、地質環境調査技術、データ取得技術）について調査した。以下の構成で調査結果を示す。

- 掘削技術（①項参照）
- 地質環境調査技術（②項参照）
- 設計・安全評価に係るデータ取得技術（③項参照）

① 掘削技術

本項では、国内外における深部掘削が、どのような岩種、温度・圧力条件で行われた実績があるのかを明確にするとともに、超深孔処分で要求される超深度・大坑径掘削のわが国における可能性や、数千メートルにおよぶ定置区間での坑井の仕上がり、安定性、ケーシング撤去の適否・可能性・段取り、およびケーシング撤去がもたらす悪影響などについての知見を収集・整理することを目標とする。

以下に、令和 2 年度の実施内容を示す。

- 国内外における超深度掘削と高温環境掘削の実績の概要（a. 項参照）
- 国内における超深孔処分相当深度での掘削実績の調査・整理（b. 項参照）
- 海外における超深孔処分相当深度での掘削実績の調査・整理（c. 項参照）
- ケーシング抜管技術の実績の調査・整理（d. 項参照）
- 掘削技術の令和 2 年度の調査結果のまとめと今後の課題（e. 項参照）

a. 国内外における超深度掘削と高温環境掘削の実績の概要

国内外における超深度掘削と高温環境掘削についてのこれまでの実績については、長縄(2017)に詳細にまとめられている。長縄(2017)によると、石油天然ガスの探鉱・開発を目的とした坑井としては Bertha Rogers 1 孔（1974 年、米国オクラホマ州）の 9,583 m が、科学掘削を目的とした坑井としては Kola SG-3 孔（1984 年、旧ソ連コラ半島、205 °C）の 12,261 m が、また、国内の坑井としては基礎試錐「新竹野町」（1993 年、新潟県、197 °C）の 6,310 m が、それぞれ掘削深度の最大記録であることが分かる。また、高温環境での超深度掘削としては、海外においては KTB-HB 孔（1994 年、ドイツ、9,101 m）の坑底温度 260 °C が、国内においては基礎試錐「三島」（1992 年、新潟県、6,300 m）の坑底温度 226 °C などがあり、地熱分野では、国内の葛根田 WD-1a 孔（1995 年、岩手県、3,729 m）における坑底温度 500 °C 超というような超高温環境においても、すでに掘削実績があることが分かる。すなわち、超深孔処分に必要となる坑井条件（深度、温度、孔径）のうち、深度と温度に関しては、国内外において、少なくとも掘削の実績はあ

ると言える。

b. 国内における超深孔処分相当深度での掘削実績の調査・整理

国内における超深孔処分相当深度での掘削の実績については、「石油天然ガス基礎調査における掘削実績」((a)項参照)と「地熱フィールドにおける掘削実績」((b)項参照)を調査・整理した。

(a) 石油天然ガス基礎調査における掘削実績の調査・整理

JOGMEC(旧石油開発公団、旧石油公団含む)によって実施されてきた石油天然ガス基礎調査での掘削の実績を調査し、掘削深度が3,000 mを超えている坑井についての文献(岩松, 1971; 須田, 1972; 河井・中西, 1972; 藤岡・佐賀, 1980; 猪岡, 1991; 佐藤修・佐藤時幸, 1992; 河合, 1993; 土田・吉村, 1996; 栗田・小布施, 1997; 高山, 2001; 今村・岩田, 2004; 氏家・新井, 2005)を基にして、それらの掘削深度や温度を整理した。整理結果を表5-2に示す。さらに、掘削深度と温度環境についての実績を明示するために、図5-2に示す掘削深度を縦軸とする棒グラフを作成したうえで、高温(200℃以上)の坑井についてはその坑底温度を付した。

表5-2および図5-2より、国内の石油天然ガス調査を目的とした掘削では、特に新潟県において、高温環境での超深孔が少なからず掘削されていることがわかる。

表5-2 石油天然ガス基礎調査における3000 m超の掘削実績

掘削年	坑井名	掘削深度	到達層準	坑井所在地	最大地温勾配(°C/km)
1968	升瀉	5015	先七谷層(七谷層)	新潟県西蒲原郡瀉東村	31
1970	空知	3713	先白亜紀層(白亜紀層)	北海道美唄市美唄	
1970	頸城	3782	火打山層(難波山層)	新潟県中頸城市柿崎町	103
1971	稚内	4017	石狩層群(白亜紀層)	北海道稚内声問	26
1973	南幌	4376	空知層群(白亜紀層)	北海道空知郡南幌町	
1973	遠別	4012	上部エゾ層群(上部エゾ層群)	北海道天塩郡遠別町	26
1974	軽舞	4374	幌内層(白亜紀層)	北海道勇払郡厚真町	
1975	新冠	4505	新老層(白亜紀層)	北海道新冠郡新冠町	
1981	黒松内	3310	訓縫層(訓縫層)	北海道寿都郡黒松内町	
1982	豊頃	3305	オコッペ沢層(オコッペ沢層)	北海道中川郡豊頃町	
1984	富山	3020	岩瀬層(黒瀬谷層)	富山県片岡市戸出春日	
1985	留萌	5023	隈根尻層群(白亜紀層)	北海道苫前郡苫前町	
1986	高田平野	5241	火打山層(火打山層)	新潟県中頸城郡大瀉町	68
1987	仁賀保	5000	西黒沢層(西黒沢層)	秋田県由利郡仁賀保町	
1988	相良	3230	西郷層群(先中新統)	静岡県小笠原郡浜岡町	
1989	東頸城	6004	七谷層(グリーンタフ)	新潟県狩羽高柳町	31
1989	新潟平野	6000	七谷期グリーンタフ	新潟県白根市大字十五間	
1990	新米山	4800	グリーンタフ	新潟県中頸城郡柿崎町	68
1991	三島	6300	七谷層(グリーンタフ)	新潟県三島郡三島町脇野町	
1993	天北	5050	上部蝦夷(上部蝦夷)	北海道天塩郡幌延町	
1996	馬追	5500	基盤岩(基盤岩)	北海道千歳市泉郷	
1997	夕張	4465	白亜紀層(白亜紀層)	北海道夕張市清水沢清栄町	
1999	小国	5850	下部寺泊層(グリーンタフ)	新潟県千谷市大字西吉谷	

の整理結果を表 5-3 に示す。また、特に温度環境と岩質についての実績を明示するために、掘削深度を縦軸とする棒グラフにおいて、温度や岩種の情報などを色分けして整理したものを図 5-3 に示す。

これらの図表より、地熱開発促進調査においては、際立った超深度掘削こそ行われていないものの、高温環境での掘削の実績はかなりあることが分かる。また、結晶質岩・深成岩を掘削した実績も相当な数に上ることが分かる。

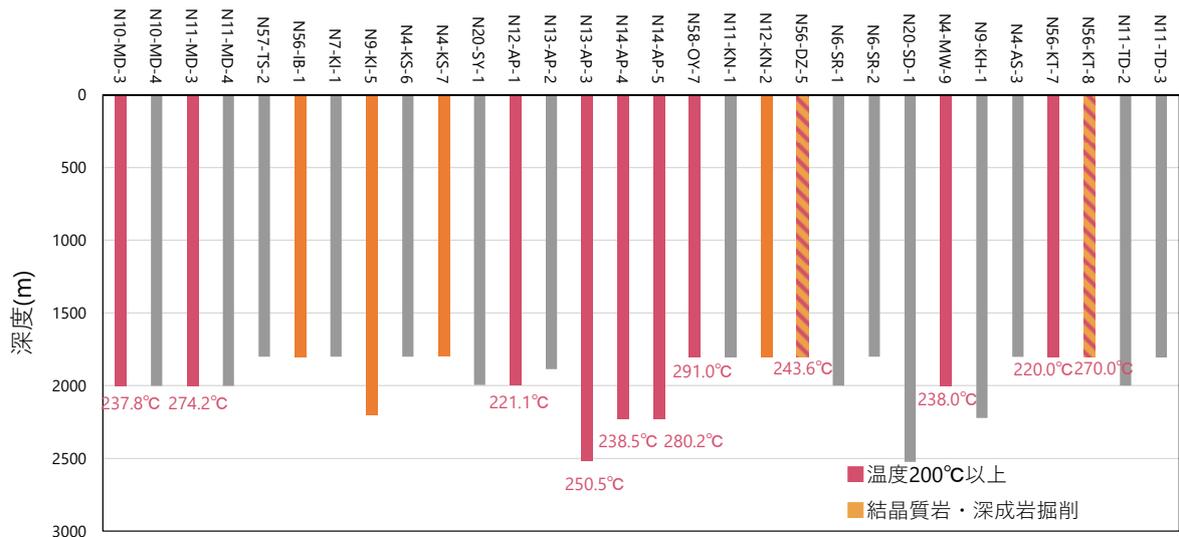
以上のことから、国内においても、超深孔処分で要求される掘削条件のうち、岩種と高温環境掘削については十分な実績があると言える。

表 5-3 地熱開発促進調査における 1800m 超の掘削実績

地域名	坑井名	深度(m)	最高温度(°C)	最下層の地質	結晶質岩・深成岩
武佐岳	N10-MD-3	2001	238	デイサイト質火砕岩	
武佐岳	N10-MD-4	2001	161	玄武岩	
標津妹羅山	N11-MD-3	2001	274	玄武岩	
標津妹羅山	N11-MD-4	2001	198	デイサイト質火砕岩	
弟子屈西部	N57-TS-2	1800	140	変質角礫安山岩	
胆振	N56-IB-1	1802	129	花崗閃緑岩	
熊石	N7-KI-1	1801	194	ホルンフェルス化砂岩	
熊石	N9-KI-5	2200	154	石英閃緑岩	
上の湯・三岱	N4-KS-6	1800	179	石灰岩	
上の湯・三岱	N4-KS-7	1801	194	粘板岩	
下湯	N20-SY-1	1995	139	安山岩質凝灰岩	
安比	N12-AP-1	2000	221	安山岩	
安比	N13-AP-2	1887	125	泥岩、デイサイト質火砕岩互層	
安比	N13-AP-3	2516	251	デイサイト質火砕岩	
安比	N14-AP-4	2228	239	ドレライト	
安比	N14-AP-5	2233	280	デイサイト質火砕岩	
湯沢・雄勝	N58-OY-7	1808	291	石英安山岩質凝灰岩	
桑ノ沢	N11-KN-1	1802	134	トータル岩	
桑ノ沢	N12-KN-2	1803	195	花崗閃緑岩	
銅山川下流	N56-DZ-5	1802	244	花崗岩	
猿倉嶽	N6-SR-1	2000	176	流紋岩火山礫凝灰岩	
猿倉嶽	N6-SR-2	1800	193	軽石凝灰岩	
佐渡	N20-SD-1	2524	93	デイサイト質凝灰岩	
水分峠南部	N4-MW-9	2003	238	凝灰角礫岩	
崩平山	N9-KH-1	2222	63	変質安山岩	
阿蘇山西部	N4-AS-3	1802	148	火山角礫岩	
栗野・手洗	N56-KT-7	1802	220	千枚岩質粘土岩	
栗野・手洗	N56-KT-8	1801	270	玢岩	
辻之岳	N11-TD-2	2000	107	最下層部はノンコア	
辻之岳	N11-TD-3	1806	133	安山岩	

色分け：

- ピンク色：最高温度が 200°C を超えていた坑井
- オレンジ色：結晶質岩・深成岩を掘削した坑井



色分け：

- ▶ 赤色あるいは赤色のストライプ：最高温度が200°Cを超えていた坑井
- ▶ オレンジ色あるいはオレンジ色の背景：結晶質岩・深成岩を掘削した坑井

図 5-3 地熱開発促進調査において掘削された坑井の掘削深度、温度環境、および岩種の整理

c. 海外における超深孔処分相当深度での掘削実績の調査・整理

海外における超深度掘削の実績について、Kuhlman ほか(2019)および長縄(2017)でまとめられている坑井について調査したうえで、その調査結果を岩種、深度、温度、孔径などを確認・比較しやすいような形に整理した。整理した結果を表 5-4 に示す。さらに、とくに温度環境と岩質、および孔径についての実績を明示するために、図 5-4 に示す掘削深度を縦軸とする棒グラフを作成したうえで、各種情報を色分けする形で示した。

また、超深孔処分相当深度での大孔径 (40 cm ~ 50 cm) の掘削実績について、世界における超深度・大孔径掘削の実績を網羅している Tynan ほか(2017)を調査し、38.1 cm(15 インチ)以上の孔径で 3,000 m 以上の深部まで掘削している坑井を抽出して整理した。

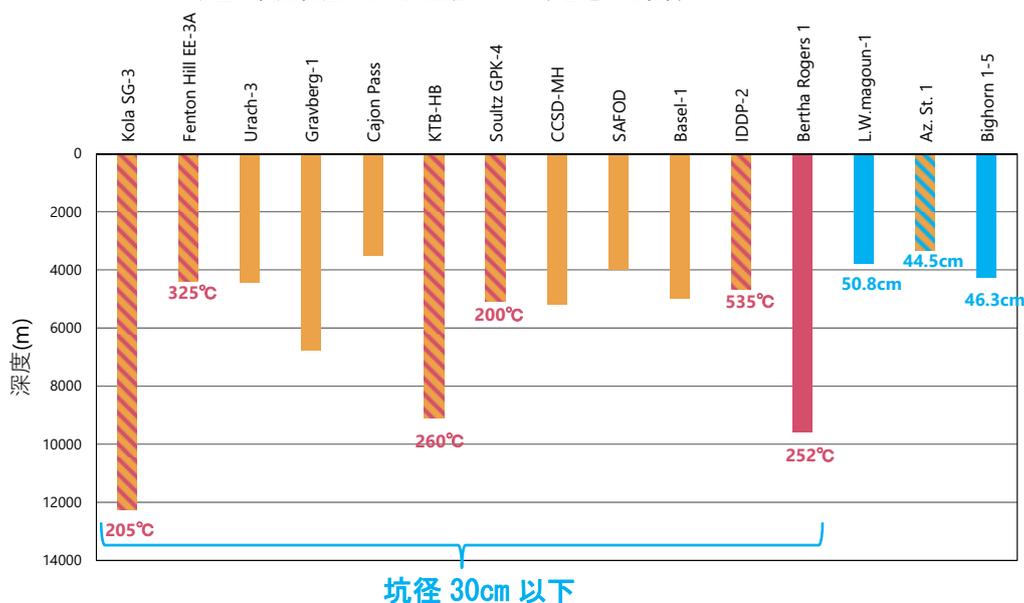
これらのことから、海外における超深孔処分相当深度での掘削実績については、高温環境で超深度まで掘削した実績は少なからずあることが分かる。一方で、大孔径で超深孔処分相当深度まで掘削した実績については 3 件の情報が見つかったものの、岩種や温度情報などの一部の情報は不明である。

表 5-4 海外における超深度・高温・高圧環境・大坑径掘削の実績

プロジェクト	坑井名	場所	目的	岩種	掘削深度(m)	坑底温度(°C)	坑底坑径(cm)
Kola	Kola SG-3	旧ソ連・コラ半島	地質調査・技術開発	結晶質岩	12261	205	21.6
Fenton Hill	Fenton Hill EE-3A	米国・ニューメキシコ州	地熱	結晶質岩	4394	325	25.1
Urach	Urach-3	ドイツ	地熱	結晶質岩	4444	170	21.6
Gravberg	Gravberg-1	スウェーデン	天然ガス	結晶質岩	6779	100	16.5
Cajon Pass	Cajon Pass	米国・カリフォルニア州	学術（断層の調査）	結晶質岩	3510	142	15.9
KTB	KTB-HB	ドイツ	地質調査・技術開発	結晶質岩	9101	260	14.0
Soultz	Soultz GPK-4	フランス	地熱	結晶質岩	5080	200	24.2
CCSD	CCSD-MH	中国	地質調査	結晶質岩	5183	135	15.2
SAFOD	SAFOD	米国・カリフォルニア州	学術（断層の調査）	結晶質岩	3987	114	22.2
Basel	Basel-1	スイス	地熱	結晶質岩	5000	174	21.6
IDDP	IDDP-2	アイスランド	地熱	結晶質岩	4659	535	15.2
Bertha Rogers	Bertha Rogers 1	米国・オクラホマ州	石油	ドロマイト	9583	252	20.0
L.W.magoun	L.W.magoun-1	米国・ルイジアナ州	天然ガス	?	3800	-	50.8
Az. St.	Az. St. 1	米国・アリゾナ州	石油天然ガス?	結晶質岩	3333	-	44.5
Bighorn	Bighorn 1-5	米国・ワイオミング州	天然ガス	?	4258	-	46.3

色分け：

- オレンジ色：結晶質岩・深成岩を掘削した坑井
- 黄緑色：深度 6000 m を超える坑井
- 赤色：坑底温度が 200 °C を超える坑井削
- 水色：坑底坑径が 38.1 cm(15 インチ) を超える坑井



色分け：

- オレンジ色：結晶質岩・深成岩を掘削した坑井
- 赤色あるいは赤色のストライプ：最高温度が 200°C を超えていた坑井
- 水色あるいは水色のストライプ：大坑径掘削をした坑井

図 5-4 海外において掘削された坑井の深度、温度環境、岩種、および坑径

d. ケーシング抜管技術の実績の調査・整理

超深孔処分においては、坑井掘削に伴って設置するケーシングを抜管する可能性が考えられる。例えば、SNL の検討事例 (Brady et al., 2012) においては、坑底に設置するライナーをガイドするタイバックケーシング (34.0 cm 径) については、廃棄体の定置前に、廃棄体定置領域より上の 3,000 m 区間にわたって完全に撤去する考え方が示されている。そこで、ケーシング抜管技術についての石油開発における現状を、Melder ほか(2017)によって調査した。

ケーシングを抜管する方法には、ケーシングを削る方法（Milling）と、ケーシングを少しずつ切断して回収する方法（Cut and Pull）とがある。またMillingには、ケーシング部材を完全に削るPilot Millingと、ケーシングの内径を大きくするに留めるSection Millingがある。したがって、超深孔処分におけるケーシングを完全撤去するための方法としては、Pilot MillingとCut and Pullの二つの方法があると言える。中でも最近よく用いられる方法はCut and Pullであり、24.4 cm 径 ～ 50.8 cm 径のケーシングに対して、適用可能なシステムが現存する。

Cut and Pullにおいては、まず切断装置を降下させて対象ケーシングの上部を一定の長さに切断する。つぎに、回収装置を降下させ、切断したケーシング区間に結合させる。結合後は、上位ケーシングへのアンカリングと60 cm程度の引き上げ作業を繰り返して、切断区間の回収を行う。そして、この切断と回収の作業を回収区間全体について繰り返すことによって所定の抜管作業を完了させる。北海における最近の実例においては、34.0 cm 径の上位ケーシングにアンカーをとったCut and Pullによって、深度1,853 ～ 2,270 mに設置された27.3 cm 径のケーシングを回収する抜管作業を行った実績がある。

以上のことから、超深部で大口径（50 cm程度）のケーシングの抜管の実績は現段階では確認されていない。

e. 掘削技術の令和2年度の調査結果のまとめと今後の課題

令和2年度の調査・整理によって、わが国での超深孔処分を仮定したときに要求される掘削条件のうち、岩種、高温環境、深度の3つの条件を満たして掘削された実績が、国外では少なからずあることが分かった。また、国内においても、これら3つの条件を個別に満たして掘削された実績については十分にあることが分かった。しかし、大口径（例えば50 cm程度の）掘削の実績については、国内外ともほとんどないことが分かった。このことから、現状として、超深孔処分で必要な坑井をわが国で掘削するためには、特に大口径掘削に関して多くの工夫や技術開発が必要になると考えられる。

また、ケーシングの抜管技術については、超深部で大口径（50 cm程度）のケーシングの抜管の実績は現段階では確認されていない。

これらを踏まえ、今後は、国内外で掘削された超深度・大口径の坑井について引き続き調査するとともに、令和2年度に調査した掘削技術の情報についても、より詳細に掘削地点における地質環境、THMC環境、掘削作業に伴う難点等の情報を精査・整理していくことが課題として挙げられる。

② 地質環境調査技術

本項では、わが国での超深孔処分相当深度において、超深孔処分で必要な地質環境についての調査が実施可能であるかどうかに関する知見を調査・整理することを目標とする。

以下に、令和2年度の実施内容を示す。

- 超深孔処分における調査項目とそれを調査するための調査手法の整理（a. 項参照）
- 物理探査手法の調査（b. 項参照）
- 地質環境調査技術の令和2年度の調査結果のまとめと今後の課題（c. 項参照）

a. 超深孔処分における調査項目とそれを調査するための調査手法の整理

超深孔処分の検討に必要なになると考えられる調査項目として、地質環境、熱環境 (T)、水理環境 (H)、力学環境 (M)、および化学環境 (C) に関わる要件と関連する評価項目 (条件)、およびその調査対象を整理した。

また、各調査対象について必要な情報を提供し得る調査手法を、情報の有効性に注目して整理した。まず、調査手法としては、地表・空中物理探査、坑井利用型物理探査、坑井内試験、物理検層、およびコア試験の5分類とした。また、情報については、山本(2007)は、地下の性質に関する情報には、鉱物組成や地下水成分のような物質の成分に関する情報、弾性波速度・比抵抗・孔隙率・浸透率などの物性値、結晶レベルから地質構造まで様々なスケールでの構造の情報、および圧力・応力・温度といった状態に関する情報があるとしている。

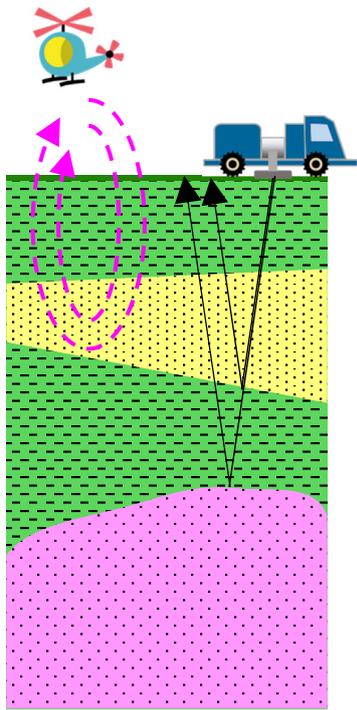
本検討では、山本(2007)を踏まえて、各手法と着目する情報の対応を次のように定義した。

- ① 地表・空中物理探査：地表面あるいは空中において、地下の物性値や構造の情報を推定するために地下物質による物理量を測定し、解析と解釈を施す技術。測定する物理量の主なものとしては、弾性波の走時や波形の変化、電気ポテンシャルの違い、磁場や重力場の強度、および温度などがある（本定義は、概ね Society of Exploration Geophysicists(2021) によるものと同じである）。
- ② 坑井利用型物理探査：前項の地表・空中物理探査の定義における「地表面あるいは空中において」を「坑井内あるいは地表面と坑井内において」に替えたもの。
- ③ 坑井内試験：坑井内において、地下物質の成分、物性値、および状態に関する情報を取得するために行う試験。
- ④ 物理検層：坑井内において、とくに坑井周辺の地下物質の成分、物性値、および状態に関する情報を取得するために各種物理現象を測定し、解析と解釈を施す技術。測定する物理現象の主なものとしては、電気、音響、放射線、その他がある。
- ⑤ コア試験：坑井内で採取した岩石コアを用いて、地下物質の成分や物性値を測定する技術。

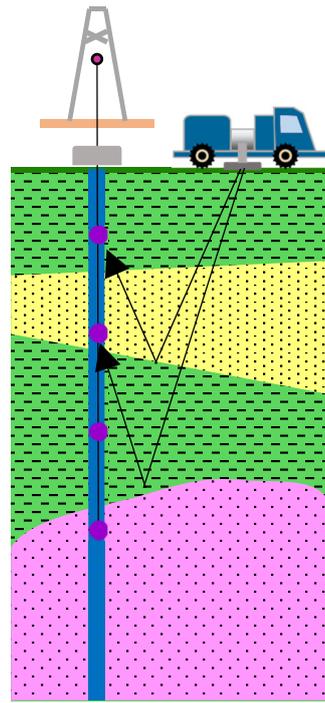
コア試験を除く各調査手法のイメージを図 5-5 に示す。

各調査手法が提供し得る情報の有効性は、1) 非常に有効、2) ある程度有効、3) あまり有効ではない、の3分類とし、あまり有効でない情報しか提供できない手法についてはまったく有効な情報を提供できない手法と同一視した。調査手法の抽出と各調査手法の有効性についての判断は、超深孔処分のための調査手法について記述している文献 (Brady et al., 2012 ; Arnold et al., 2012 ; Kuhlman et al., 2015 ; Kuhlman et al., 2019)、高レベル放射性廃棄物処分のための調査手法を記述している文献 (核燃料サイクル開発機構, 2005 ; 原子力発電環境整備機構, 2018)、および各専門分野のハンドブック (物理探査学会, 2016 ; 石油技術協会, 2013)、教科書 (Zoback, 2010 ; 日本地下水学会, 2009)、およびレビュー文献 (竹内ほか, 2007) を参照して行った。

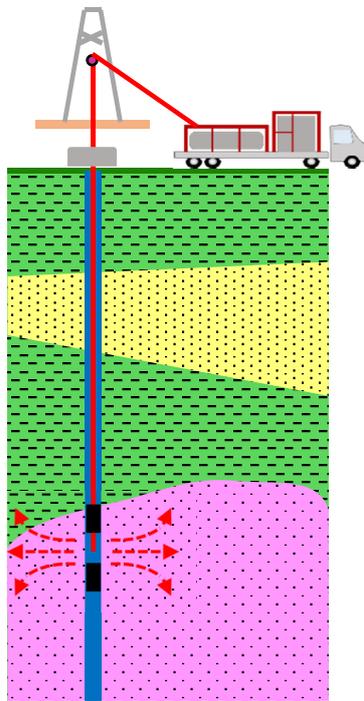
整理結果を表 5-5 に示す。これらの表において、濃色の塗りつぶしは、当該調査手法が非常に有効な情報を提供し得る調査手法であること、淡色の塗りつぶしは、当該調査手法がある程度有効な情報を提供し得る調査手法であることを示す。



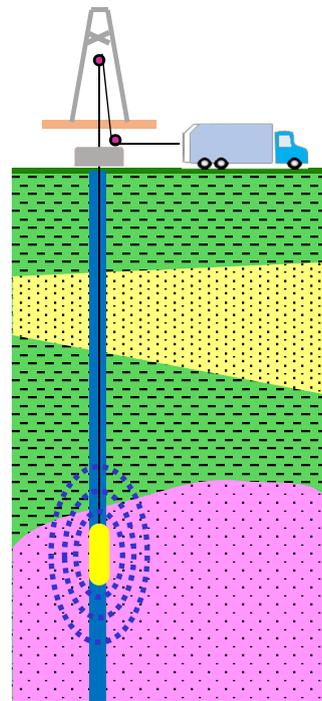
(a) 地表・空中物理探査



(b) 坑井利用型物理探査



(c) 坑井内試験



(d) 物理検層

図 5-5 調査手法のイメージ

表 5-5 超深孔処分における要件と調査対象に寄与する調査手法 (1/2)

要件種別	評価項目 (条件)	調査対象	地表・空中 物理探査	坑井利用型 物理探査	坑井内試験	物理検層	コア試験
地質環境	上位地層の地質・岩石分布	地質層序					
		岩相、岩質					
		変質岩の分布					
	上位地層の構造	断層の分布、活動性、走向・傾斜					
		断裂体の分布					
		隆起・浸食・褶曲構造					
	閉塞領域の分布・構造・岩石分布	結晶質岩・深成岩の上限面深度					
		結晶質岩・深成岩の規模と形状					
		結晶質岩・深成岩の構造					
		変成岩・貫入岩の分布					
断裂帯の分布							
	放射性鉱物の分布						
熱環境 (T)	場の熱特性	地温、地温勾配					
		熱流量					
	岩石の熱物性	熱伝導率					
		熱拡散率					
		比熱					
熱膨張係数							
水理環境 (H)	上位地層の水理環境	帯水層の分布					
		高透水層の分布					
	閉塞領域の水理特性	動水勾配					
		地下水の密度勾配					
		透水係数					
		間隙水圧					
		間隙率					
		水みち					
		割れ目密度、開口幅、方位					

濃色の塗りつぶし：非常に有効、淡色の塗りつぶしは：ある程度有効

表 5-5 超深孔処分における要件と調査対象に寄与する調査手法 (2/2)

要件種別	評価項目 (条件)	調査対象	地表・空中 物理探査	坑井利用型 物理探査	坑井内試験	物理検層	コア試験
力学的環境 (M)	場の力学特性	応力場					
		岩盤強度					
		泥岩の塑性					
		力学定数					
		岩石密度					
	調査坑井近傍の力学的環境	孔跡の実現性					
		孔径の均質性・安定性					
		水平応力の異方性					
		ブレイクアウトの発生					
		孔壁の無拘束性					
	掘削影響領域の状態 (広がり、割れ目分布)						
化学環境 (C)	核種移行環境	鉱物組成					
		分散係数					
		分配係数					
	地下水の化学特性	地下水の塩分濃度					
		地下水の炭酸濃度					
		地下水のpH					
		酸化還元状態					
		地下水年代					

濃色の塗りつぶし：非常に有効、淡色の塗りつぶしは：ある程度有効

b. 物理探査手法の調査

物理探査手法について、前項 a. 項で整理した超深孔処分における各調査項目のうちのどの項目について情報を提供できるものであるかを整理した。まず、物理探査学会(2016)に基づいて、多岐にわたる物理探査手法を網羅的にリストアップした。次に、文献情報（山本，2007；物理探査学会，2008；高倉，2014；物理探査学会，2016；SERDP and ESTCP，2020）に基づいて、超深孔処分における調査項目に情報を提供できると考えられる手法について測定物理量、調査範囲、可探深度、および分解能を調査・整理した。各物理探査手法の概要を表 5-6 に、超深孔処分における調査項目に情報を提供できると考えられる手法についての調査・整理結果を表 5-7 に示す。

表 5-6 超深孔処分において有効な物理探査手法の概要

物理探査手法	概要
重力探査法	地表または空中において重力場あるいはその変化率を測定し、地下の密度構造を推定する探査法である。
磁気探査法	地表または空中において磁場あるいはその成分（例えば鉛直成分）を測定し、地下の磁気強度構造を推定する探査法である。
比抵抗法	地表において、1組の電流電極によって直流あるいはごく低周波数の電流を送信することによって電位場を発生させ、それを別の1組の電位電極によって測定して、地下の比抵抗構造を推定する探査法である。
自然電位法	地表において、地下物質と地下水との相互的物理化学作用によって発生する自然電位を測定し、その原因となる物理化学機構およびその発生場所を推定する探査法である。
強制分極法	地表において、1組の電流電極によって低周波数の交流電流を送信することによって電位場を発生させ、地下物質と地下水との相互的物理化学作用が電位場に与えるゆらぎを別の1組の電位電極によって測定し、ゆらぎの原因となる物理化学機構およびその発生場所を推定する探査法である。
TEM [Transient Electro Magnetic] 法	地表あるいは坑井に設置した電流源から直流電流を送信することによって地下に直流磁場を発生させ、送信電流を遮断した後の（直流磁場を維持するセンスで発生する）過渡電流によって誘導される2次磁場を、地表、空中、坑井内で測定し、地下の比抵抗構造を推定する探査法である。
CSEM [Controlled Source Electromagnetic] (CSMT [Controlled Source Magnetotelluric]) 法	地表あるいは坑井に設置した電流源から交流電流を送信することによって発生する電磁場を、地表、空中、坑井内で測定し、地下の比抵抗構造を推定する探査法である。
MT [Magnetotelluric] (AMT [Audio Magnetotelluric]) 法	太陽活動や遠方の雷などによる自然の電磁気現象を地表、空坑井内で測定し、地下の比抵抗構造を推定する探査法である。MT法とAMT法の違いは利用する周波数帯域の違いであり、より低周波数の信号を利用するMT法は深部探査に、より高周波数の信号を利用するAMT法は浅部探査に使われる。
レーダーイメージング	坑井内においてレーダーによって電磁波を送信し、その反射信号を同一坑井または別の坑井において受信することによって、電磁波の反射強度に影響を与える比誘電率の局所コントラストをイメージングする探査法である。
反射法	地表あるいは坑井に設置した震源によって弾性波を送信し、その反射信号を地表あるいは坑井において受信することによって、弾性波の反射強度に影響を与えるインピーダンスの局所コントラストをイメージングする探査法である。
屈折法・弾性波トモグラフィ	地表あるいは坑井に設置した震源によって弾性波を送信し、その伝播時間を地表あるいは坑井において受信し、弾性波の伝播時間を決定する速度構造を推定する探査法である。
微動アレイ探査法	波浪や各種の生産活動による微動を地表で測定し、微動に含まれる表面波の速度の周波数分散を利用してS波の速度構造を推定する探査法である。

表 5-7 超深孔処分において有効な物理探査手法の整理 (1/2)

探査法種別	探査法名称	測定物理量	超深孔処分サイト調査において 適用可能な調査対象	地表探査		空中探査の 適用性	孔井利用型探 査の適用性
				可探深度	分解能		
重力探査	重力探査法	密度	断層の分布、活動性、走向・傾斜 隆起・浸食・褶曲構造 結晶質岩・深成岩の上限面深度 結晶質岩・深成岩の規模と形状 変成岩・貫入岩の分布	0～数1000m	数10～数100m	○	-
磁気探査	磁気探査法	磁気異常	断層の分布、活動性、走向・傾斜 隆起・浸食・褶曲構造 結晶質岩・深成岩の上限面深度 結晶質岩・深成岩の規模と形状 変成岩・貫入岩の分布	0～15000m	数10～数100m	○	-
電気探査	比抵抗法	比抵抗	変質岩の分布 断層の分布、活動性、走向・傾斜 変成岩・貫入岩の分布 帯水層の分布	1～2000m	数～100m	-	-
	自然電位 (SP) 法	酸化還元・流動・拡散電位	変質岩の分布 帯水層の分布	0～500m	100m	-	-
	強制分極 (IP) 法	分極率、充電率	変質岩の分布	1～200m	数～100m	-	-
電磁探査	TEM法	比抵抗	変質岩の分布 断層の分布、活動性、走向・傾斜 変成岩・貫入岩の分布 帯水層の分布	10～5000m	数～100m	○	○
	CSEM(CSMT)法	比抵抗	変質岩の分布 断層の分布、活動性、走向・傾斜 変成岩・貫入岩の分布 帯水層の分布 水みち	10～1000m	数～100m	○	○
	MT(AMT)法	比抵抗	変質岩の分布 断層の分布、活動性、走向・傾斜 隆起・浸食・褶曲構造 結晶質岩・深成岩の上限面深度 結晶質岩・深成岩の規模と形状 結晶質岩・深成岩の構造 変成岩・貫入岩の分布 帯水層の分布	10～数10km	数10～数100m	-	-

表 5-7 超深孔処分において有効な物理探査手法の整理 (2/2)

探査法種別	探査法名称	測定物理量	超深孔処分サイト調査において 適用可能な調査対象	地表探査		空中探査の 適用性	孔井利用型探 査の適用性
				可探深度	分解能		
地中レーダー探査	レーダーイメージング	比誘電率反射率	断裂体の分布	-	-	-	○
弾性波探査	反射法	P/S波インピーダンス反射率	断層の分布、活動性、走向・傾斜 隆起・浸食・褶曲構造 結晶質岩・深成岩の上限面深度 結晶質岩・深成岩の規模と形状 結晶質岩・深成岩の構造 変成岩・貫入岩の分布 断裂体の分布	0~10000m	1~60m	-	○
	屈折法・弾性波トモグラフィ	P/S波速度・減衰率	断層の分布、活動性、走向・傾斜 隆起・浸食・褶曲構造 結晶質岩・深成岩の上限面深度 結晶質岩・深成岩の規模と形状 結晶質岩・深成岩の構造 変成岩・貫入岩の分布	0~15km	1~400m	-	○
	微動アレイ探査法	S波速度	結晶質岩・深成岩の上限面深度	0~4000m	100~400m	-	-

c. 地質環境調査技術の令和2年度の調査結果のまとめと今後の課題

令和2年度の調査・整理によって、物理探査手法では、地質環境に係わる調査項目（例えば、結晶質岩・深成岩の上限面深度や規模と形状等）については、超深部（深度3000 m以深）においても調査可能であることを確認した。

これらを踏まえ、今後は、物理探査手法だけでは調査が難しい項目（水みち、掘削影響領域の状態等）を含めて、坑井内試験等の他の調査手法の調査等を進めていくことが課題として挙げられる。

③ 設計・安全評価に係るデータ取得技術

本項では、高温・高圧になると考えられる超深部等の過酷な条件を考慮した超深孔処分の水理・物質移行解析等を実施する際に必要になると考えられる岩盤強度や透水係数等のパラメータの取得について、現状技術での可能性について調査する。

以下に、令和2年度の実施内容を示す。

- 高温・高圧環境についての考え方の調査・整理（a. 項参照）
- 超深度・高温・高圧環境での坑井内試験の実績および整理（b. 項参照）
- 設計・安全評価に係るデータ取得技術の令和2年度の調査結果のまとめと今後の課題（c. 項参照）

a. 高温・高圧環境についての考え方の調査・整理

坑井内試験や物理検層のような地下に直接アプローチする作業にとって、超深孔処分で予想される坑井内の高温・高圧環境は過酷なものとなり得る。長縄(2013)は、坑井内で使用する機器や素材の耐熱・耐圧性能によって温度圧力環境を区分し、DeBruijn(2008)などに基いてまとめている。それによれば、坑井内試験や物理検層の実施にあたって特段の注意を必要としない「標準(Standard)環境」は、温度が150℃以下でかつ圧力が69 MPa以下の環境であり、この条件を満たさない坑井はすべて高温・高圧環境に分類される。そして、高温・高圧環境はさらに3種類に区分される。すなわち、温度が205℃以下でかつ圧力が138 MPa以下の高温・高圧環境は「HP/HT環境」と呼ばれ、エラストマー製パッカーとその部品（オーリング、結合バネなど）などについて交換して使用する程度の工夫が必要となる。「HP/HT環境」の範囲には収まらないが温度が260℃以下でかつ圧力が241 MPa以下の高温・高圧環境は「Ultra HP/HT環境」と呼ばれ、坑井内試験や物理検層を実施するためには、まず電子部品を守るための仕組み（内蔵のヒートシンクや耐熱用の真空容器）などについての技術開発が必要となる。そして、「Ultra HP/HT環境」の範囲にも収まらない超高温・超高圧環境は「HP/HT-bc環境」と呼ばれ、機器や素材に対して、近い将来においては実現が見込めないほどの改良が必要だと考えられる。したがって、超深孔処分の環境を坑井内試験や物理検層の実施可能性の観点で限定するとすれば、「HP/HT環境」の範囲あるいは少なくとも「Ultra HP/HT環境」の範囲には収まる温度・圧力環境が対象となる。

- 標準(Standard)環境：温度が150℃以下でかつ圧力が69 MPa以下の環境
- HP/HT環境：温度が205℃以下でかつ圧力が138 MPa以下の環境

- ・ Ultra HP/HT 環境：温度が 260 °C 以下でかつ圧力が 241 MPa 以下の環境
- ・ HP/HT-bc 環境：Ultra HP/HT 環境の範囲にも収まらない超高温・超高压環境

「HP/HT 環境」において坑井内試験や物理検層を実施するための工夫については葛根田 WD-1a 孔での事例 (Saito et al., 1998) が参考になる。特に泥水循環とそれに関連する地上設備を含めた最適化技術とによって適切な冷却システムを構築することが必要になる。

一方で、「Ultra HP/HT 環境」に区分されるより過酷な環境において、坑井内試験や物理検層を実現するためには多くの技術開発が必要となる。DeBruijn(2008)は、要求される技術開発項目を次のように 3 種類に大別し、その現状を紹介している。

- ・ 坑井内流体：

坑井内流体のうちの掘削泥水については、坑井内に適切な状態で存在し、かつ期待される機能について安定していることが必要である。最近になって使用されるようになったギ酸塩系の坑井内流体は、化学的に安定であるとともに、高温・高压環境でも腐食しにくい性質をもっており、現段階では非常に高価であるという難点はあるものの、このような掘削泥水を使用することは、「Ultra HP/HT 環境」での適用に向けた具体的な方向性の一つである。

一方、水圧破碎に使用する流体については、とくにその粘性による破碎性能の劣化が障害要因となる。この障害を高温・高压環境において回避するための流体としては、大きな摩擦環境においても破碎性能を発揮するホウ酸塩架橋と高温・高压環境においても安定しているジルコン酸塩架橋との混合物などが有力であり、すでに 191 °C の耐熱性能が達成されている。

- ・ 機械的装置とその部品：

坑井内試験においては、試験区間をパッカーで閉塞する作業が基本となるため、パッカーとその部品（エラストマー部品、オーリング、結合バネなど）、およびシールなどの耐熱・耐圧性能を向上させることが重要である。これらのうち、パッカーについては、2019 年に専門学会 (Society of Petroleum Engineers) で発表された最新性能が 177 °C、103 MPa 程度であり (Guijun et al., 2019)、まだ「HP/HT 環境」の域に留まっている。一方、シールについては、炭素繊維を合金製のジャケットに織り込んだものがすでに 340 °C の耐熱性能を達成しており、「Ultra HP/HT 環境」での適用の域に入りつつある。

- ・ 電子機器とその部品：

電子機器とその部品の耐熱性能は、一般的には 177 °C 程度である。したがって、電子機器とその部品を高温環境で使用するためには、例えば耐熱用の真空容器に格納するなどの方法が必要となる。使用時間の長さにも依存するが、この方法によって 260 °C 程度の耐熱性能が確保できる。一方、耐圧性能を上げるためには、例えばチタン合金製の容器への格納などが効果的な方法である。

以上の現状をまとめると、坑井内試験を「Ultra HP/HT 環境」で行うための研究は各方面で行われているが、現段階において坑井内試験を実施できる環境は「HP/HT 環境」までであると言える。

b. 超深度・高温・高圧環境での坑井内試験の実績および整理

本項では、始めに地下深部での応力場測定と透水試験の方法について調査・整理したうえで、海外において超深度・高温・高圧環境での応力場測定および透水試験を実施した5つの実績について調査した。

(a) 応力場測定の方法

世界中で地殻応力を測定した結果を集大成した Zoback(1992)によれば、人為的手法が用いられたケースのうち、78 %はブレイクアウト法（物理検層）、13 %は水圧破砕法（坑井内試験）、9 %は応力開放法（坑井内試験）によるものであった。ところが、深度 1,000 m を超える坑井内試験では主に水圧破砕法が用いられており、さらに深度 3,000 m を超える応力場測定のほとんどでは、ブレイクアウト法が用いられている。

各手法の概要は以下のとおりである（佐野，2005；山本，2007）。

- ブレイクアウト法（物理検層）

深度 3,000 m 程度を超える地下深部では、坑壁に応力集中が起これり損傷が生じることが多い。特に圧縮応力の集中域で生じる損傷はブレイクアウトと呼ばれ、その中央が最小水平主応力方向に向くとともに、その損傷域の大きさは応力状態を反映する。ブレイクアウト法は、このようなブレイクアウトの状態を物理検層によって測定し、それを解析して応力場を推定する方法である。

- 水圧破砕法（坑井内試験）

坑井内の水圧を高めることによって周辺岩盤に亀裂を生じさせ、亀裂が坑井から離れるにつれて最小主応力に直交する面内に進展する性質を利用して、亀裂内の流体圧力と亀裂の法線方向応力との釣り合い条件を用いて最小主応力を推定する方法である。

- 応力解放法（坑井内試験）

坑底から小径の試験孔を掘削して歪計などのセンサーを設置し、その外側を大径のコアビットによって円筒状に掘削することによってセンサー周辺の応力を開放させ、変形量を測定することによって応力値を推定する方法である。

(b) 透水試験の方法

世界中において、深度 2,000 m 以浅に分布する結晶質岩の透水係数を測定した 29,000 件をコンパイルした Achtziger-Zupančič ほか(2017)によれば、集められたデータのうち、単孔式によっているものの測定法のほとんどは、スラグ試験、パルス試験、あるいは注水・揚水試験のどれかに分類される。各手法の概要は以下のとおりである（竹内ほか，2007）。

- スラグ試験

坑井内の閉鎖試験区間の水圧を突然変化させ、その後の水圧変化から透水性を把握する試験である。

- パルス試験

坑井内の閉鎖試験区間に瞬時の水圧変化（パルス）を与え、平衡水圧に回復する

までの水圧変化から透水性を把握する試験である。なお、これと同様の方法を用いるものとしてドリルシステムテストがある。ドリルシステムテストの主目的は間隙水圧の測定であるが、開放しておいた試験区間のバルブを突然閉鎖し、回復する圧力を測定することで透水性を把握する。

- 注水・揚水試験

注水または揚水に伴う試験区間の水圧変化から透水性を把握する試験である。

(c) 海外における超深度・高温・高圧環境での応力場測定および透水試験の事例

サンディア国立研究所での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の文献 (Kuhlman et al., 2019) で示されている、海外において超深度・高温・高圧環境での応力場測定および透水試験を実施した 5 つの事例についてその詳細を調査した。調査結果を以下に示す。

- Fenton Hill (地熱 ; 米国)

Fenton Hill プロジェクトは、地熱増産システム (Enhanced Geothermal System) の概念実証を目的として、1975 年～1987 年にニューメキシコ州で実施されたものであり、最高温度 325 °C に達する環境において、4 孔の超深孔が坑径 22.2 cm ないし 25.1 cm で掘削された。各坑井は深度約 730 m で結晶質岩に達し、それぞれ 2,930 m (GT-2 孔)、3,060 m (EE-1 孔)、4,390 m (EE-2 孔)、および 3,980 m (EE-3 孔) まで掘削された。

応力場測定については、EE-1 孔の深度 2,950 m (約 200 °C ; 約 58 MPa) において水圧破碎試験が行われており、そのデータを亀裂力学の理論に基づいて解析する方法が適用された (Murphy, H.D. et al., 1976)。その結果は、EE-3 孔とそのサイドトラックである EE-3A 孔におけるブレイクアウト法によって測定された応力値と統合される形で、応力場プロファイルを示した (Barton, C.A. et al., 1988)。

透水試験については、深度 2,930 m 付近 (約 200 °C : 約 58 MPa) において、EE-1 孔での水圧破碎によって GT-2 孔との間に亀裂を進展させ、流体圧入による透水試験を行った。このとき、亀裂の透水係数が母岩に比べて十分に大きい時に成立する考え方である、亀裂の水頭拡散率が亀裂圧力の変化と圧入レートとによって推定できるとする理論が使われた (Murphy, H.D. et al., 1976)。

- Urach (地熱 ; ドイツ)

Urach プロジェクトは、高温岩体地熱発電の研究を目的として、1978 年～1992 年にドイツ南西部で実施されたものであり、最高温度が 160 °C を超える環境において超深孔 Urach-3 孔が、坑底坑径 14.0 cm で掘削された。Urach-3 孔は深度約 1,600 m で結晶質岩に達し、4,400 m まで掘削された。

応力場測定については、Urach-3 孔の深度 3,352 m (結晶質岩中 ; 約 135 °C ; 約 70 MPa) の試験区間 (Bucher, K. and Stober, I., 2016) において、水圧破碎法による応力場測定が行われた (Tenzer, H. et al., 1999)。その結果は、坑底付近を含むより深い深度で行われた物理検層やコア試験によって得た応力値と統合され、応力場プロファイルを示した。

透水試験については、Urach-3 孔の深度 3,262 m 付近、3,274 m 付近、および 3,297 m 付近のパーフォレーション区間 (約 130 °C ; 約 70 MPa) と深度 4,400 m の坑底の裸孔部 (160 °C 超 ; 約 90 MPa) を含む試験区間において、注水試験による透水試験が行われ、透水係数 $4.0 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$ が得られた (Stober, I., 2011)。

- Gravberg (天然ガス ; スウェーデン)

Gravberg-1 孔が掘削された Siljan Ring 地域でのプロジェクトは、天然ガス資源調査を目的として、1986 年～1987 年にスウェーデン中央部で行われたものであり、低い温度勾配 ($16.1 \text{ }^\circ\text{C km}^{-1}$) による坑底温度 100 °C 超という比較的低い温度環境において、超深孔 Gravberg-1 が坑底坑径 16.5 cm で掘削された。結晶質岩が地表から分布する地質環境において、Gravberg-1 孔は 6,779 m まで掘削された。事前の反射法弾性波探査で得られた反射イベントが、マントルから上昇している天然ガスであると解釈されて掘削に至ったが、掘削の結果、実は同イベントは細粒花崗岩の貫入岩であり、天然ガス資源調査としては失敗に終わった。

応力場測定については、水圧破砕法的一种である Leak-Off Test による応力場測定が最大深度 5,000 m (約 85 °C ; 約 120 MPa) まで、また水圧破砕法による応力場測定が坑底 6,600 m (100 °C 超 ; 約 130 MPa) までと、いずれも超深度まで実施され、それらを統合することによって応力場プロファイルが作成された (Lund, B. and Zoback, M.D., 1999)。

透水試験については、ドリルシステムテストによる透水試験が 5,453 m～坑底までの区間 (90 °C～100 °C 超 ; ～約 130 MPa) で実施され、透水係数 $3.3 \times 10^{-11} \text{ m s}^{-1}$ が得られた (Castano, J.R., 1993)。

- KTB (地質調査および技術開発 ; ドイツ) :

KTB プロジェクトは、地質調査と技術開発を目的として、1987 年～1994 年にドイツ南部で実施されたものであり、最高温度 265 °C に達する環境において、主坑井 (KTB-HB 孔) と試験坑井 (KTB-VB 孔) の 2 孔が坑底坑径 15.2 cm ないし 16.5 cm で掘削された。結晶質岩が地表から分布する地質環境であり、KTB-HB 孔は 9,100 m まで、KTB-VB 孔は 4,000 m まで掘削された。

応力場測定については、KTB-HB 孔において、34 cm 径のケーシング底とした深度 6,000 m 地点 (約 180 °C ; 約 170 MPa) で水圧破砕法による応力場測定が行われた。ケーシングシューから掘削した 31 cm 径部分で、耐差圧性能 51.7 MPa、耐熱性能 230 °C のパッカーを使用して行い、水圧を 113.5 MPa まで上げたところで、安全のために加圧を停止した。したがって、加圧停止時の圧力が最小水平主応力の下限值であると判断された (Brudy, M et al., 1997)。

透水試験については、KTB-HB 孔において、深度 6,030 m 地点の 20 m 区間 (約 180 °C ; 約 170 MPa) と坑底 9,101 m 付近の 70 m 区間 (265 °C ; 約 270 MPa (推定)) でドリルシステムテストによる透水試験が行われた。また、同坑井の深度 6,000～7,200 m 区間 (180 °C～200 °C ; 170 MPa～220 MPa) と 7,800～8,700 m 区間 (210 °C～250 °C ; 250 MPa～260 MPa (推定)) で注水試験が行われた (Huenges, E. et al., 1997)。その結果、 $10^{-11} \text{ m s}^{-1} \sim 10^{-12} \text{ m s}^{-1}$ オーダーの透水係数プロファイルが得

られた。

- Soultz (フランス ; 地熱) :

Soultz (Soutz-sous-Forêts GPK) プロジェクトは、地熱増産システム (Enhanced Geothermal System) を目的として、1995 年～2003 年にフランス北東部で実施されたものであり、最高温度 200 °C に達する環境において、2 孔の試験孔 (EPS 孔、GPK1 孔) に続いて 3 孔の超深孔 (GPK2 孔、GPK3 孔、GPK4 孔) が坑底坑径 24.4 cm で掘削された。各坑井は深度約 1,400 m で結晶質岩に達し、超深孔 3 孔はそれぞれ 5,100 m (GPK2 孔)、5,100 m (GPK3 孔)、および 5,300 m (GPK4 孔) まで掘削された。

応力場測定については、GPK-1 孔において、深度 1,450 m と 1,990 m (いずれも 150 °C 弱 ; 約 25 MPa と約 38 MPa) において既存亀裂への注水による応力場測定が、また深度 3,510 m (150 °C 超 ; 約 76 MPa) において水圧破砕法による応力場測定が、それぞれ行われた (Rummel, F. and Baumgärtner, J., 1991)。これらの結果は、より深部まで掘削された GPK2～GPK4 孔でのブレイクアウト法による応力値と統合され、応力場プロファイルを示した (Valley, B. and Evans, K.F., 2007)。

透水試験については、GPK-1 孔において、深度 2,850 m ～ 3,400 m の断層を含む 550 m 区間 (約 150 °C ; 73 MPa) で注水試験が行われた。その結果、 $10^{-10} \text{ m s}^{-1}$ オーダーの透水係数が測定された (Enans, K.F., 2005)。

(d) 超深度・高温・高圧環境での坑井内試験の実績および整理

上述(c)項の海外における超深度・高温・高圧環境での応力場測定および透水試験を実施した 5 つの事例の実績を、前述 a. 項で示した使用する機器や素材の耐熱・耐圧性能による環境の区分 (長縄, 2013) の考え方を適用して整理した。整理結果を図 5-6 に示す。

図 5-6 より、KTB での KTB-HB 孔の坑底 (265 °C ; 270 MPa) で行われた透水試験での温度・圧力環境が突出してはいるものの、それ以外では、応力場測定、透水試験の多くが、「HP/HT 環境」に区分される温度・圧力環境において行われていることが分かる。このことから、結晶質岩・深成岩を対象とした超深部における高温・高圧環境下での坑井内試験については、「Ultra HP/HT 環境」よりも厳しい環境における実績こそ国外においてもほとんどないが、現段階では「HP/HT 環境」であれば実現できる可能性が高いと考えられる。

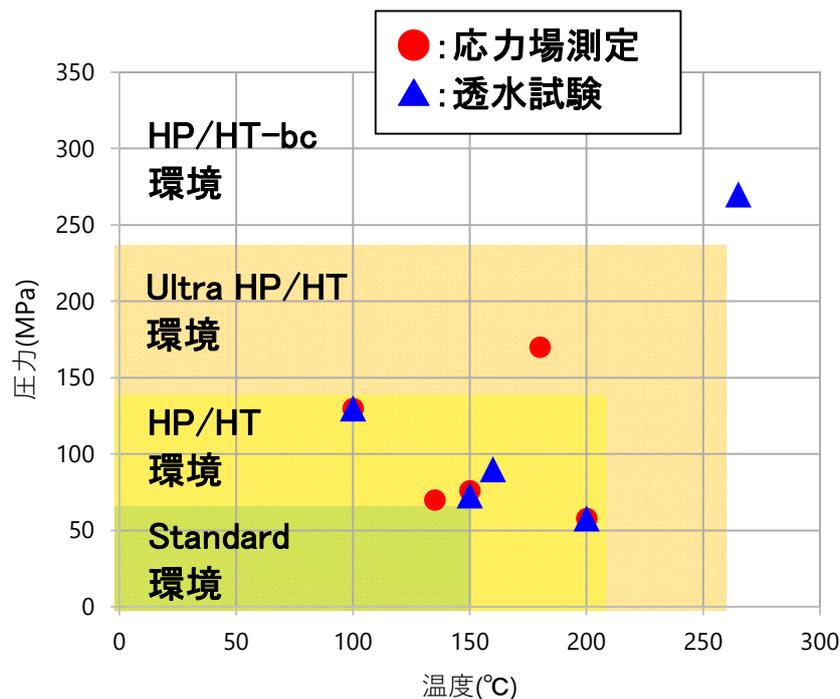


図 5-6 結晶質岩・深成岩中での坑井内試験の実績の整理

c. 設計・安全評価に係るデータ取得技術の令和 2 年度の調査結果のまとめと今後の課題

令和 2 年度の調査・整理により、結晶質岩・深成岩を対象とした超深部における高温・高圧環境下での坑井内試験については、現段階では「HP/HT 環境」であれば実現の可能性が高いと考えられる。

これらを踏まえ、今後は、国内外において超深度で実施された坑井内試験のうち、特に高透水層の分布、動水勾配、地下水の密度勾配、間隙水圧、および岩盤強度に関する情報を得ているものや、超深部の採水試験について調査していくことが課題として挙げられる。また、高温・高圧環境での坑井内試験を実施可能にするために必要な技術開発の内容を精査して、それらの見通しについて整理するとともに、国内外において、超深度・高温・高圧環境で実施された物理検層およびコア試験の実績について調査などを進めていくことも課題として挙げられる。

3) わが国での超深孔処分の技術的実現性や課題等の検討に向けた情報処理のアプローチの検討

調査した 3 つの技術に関する各種情報等について、わが国での超深孔処分の現段階での技術的実現性や課題・留意点等の検討に利用しやすくすることを目的とした、情報の分析・処理や提示の方法を含む情報処理のアプローチについて検討した。

また、超深孔処分相当深度を対象とした核種移行解析等を試みる際に重要となる、核種移行特性の設定の考え方や設定方法の整備に向けての検討として、諸外国での超深孔処分に関する検討事例において、地質環境条件をどのように設定しているか、また核種移行特性の設定に地質環境条件をどのように反映できているか等に着目した情報の分析・整

理を行った。これらを踏まえ、当面目指すべき核種移行特性の設定のレベル等について考察した。

以下に令和2年度の実施内容を示す。

- 各種情報の分析・処理や提示の方法を含む情報処理のアプローチの検討（①項参照）
- 核種移行特性の設定の考え方や設定方法の整備に向けての検討（②項参照）

① 各種情報の分析・処理や提示の方法を含む情報処理のアプローチの検討

本項では、前述2)項で調査した3つの技術（掘削技術、地質環境調査技術、データ取得技術）を主な対象に、個々の情報のわかりやすい整理や表示の方法、また複数の情報を関係付けた検討を支援するための方法等の検討に着手した。

まず、情報のわかりやすい整理や表示の方法の一つとしては、例えば、前述2)項の「③ 設計・安全評価に係るデータ取得技術」における結晶質岩・深成岩中での高温・高圧環境下での坑井内試験の実績の整理（図5-6）が挙げられる。これは、既存の技術の超深孔処分条件での適用可能性のわかりやすい提示方法の例と考えられ、他の技術についても、わかりやすい整理としてどのような整理・提示方法が可能かについて引き続き検討していく。

また、個々の情報のわかりやすい整理や表示としては、個々の情報を一括して表示することが有効になり得ると考えられる。個々の情報としては、例えば、各坑井の深度、温度環境、岩種、および坑径などの掘削に関する情報が挙げられる。前述2)項の「① 掘削技術」において既に示しているように、それぞれの情報を単独で示すのではなく、複数の情報を表形式で併記して示すことで情報を漏れなく確認できるようにするとともに、例えば図5-4のような形式で、深度の情報をメインとしつつ、それ以外の温度環境、岩種、坑径などの情報について、着目したい情報を選択し、かつ、表示のルールを決めて示すことにより、深度—温度、深度—岩種、深度—坑径、岩種—温度などの関係を視覚的にわかりやすく示すことができると考えられる。

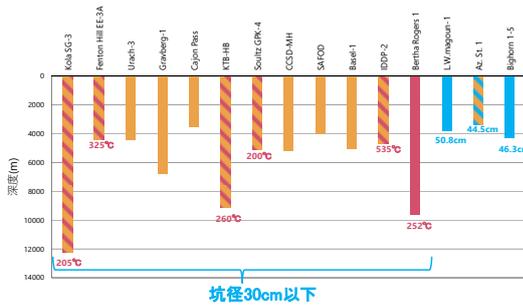
さらに、複数の情報を関係付けた検討の支援については、例えば、超深孔処分での掘削の実現性や課題等について検討するために、掘削孔径に応じた掘削深度の実績や見通し等の工学技術の観点での整理だけではなく、掘削孔径と処分可能な放射性廃棄物の大きさの関係を整理することで、わが国の掘削技術の実績や見通し等から、どの放射性廃棄物をどのくらいの量まで処分できるのか、またある掘削孔径の場合にある放射性廃棄物を処分しようとする場合において処分容器が導入できるのか否か等も含めた、掘削技術の観点と放射性廃棄物処分の観点とを関連づけた検討を支援することができると期待される。このような複数の情報の関係付けの例として、掘削に関する情報を一括して表示することを試みている前述2)項の図5-4と、表5-8に示す放射性廃棄物の種類とその超深孔処分に必要な孔径の整理例について、図5-7のイメージで連携させていくことが考えられる。

このような、情報のわかりやすい整理や表示の方法の検討、また複数の情報の関連付けを意識した情報の整理などについて引き続き取り組み充実させていくことは、技術的実現性や課題、留意点の検討に利用しやすい情報の充実に資すると期待される。

表 5-8 放射性廃棄物の種類とその超深孔処分に必要な孔径の整理例

対象となる放射性廃棄物	項目	超深孔の掘削孔径(最深部での掘削孔径)		
		215mm程度 (わが国での実績)	500mm程度 (諸外国で検討 されている径)	1000mm程度 (十分なスペースを 有する径)
BWR燃料集合体1体: 幅140mm×奥行140mm× 高さ4500mm	掘削孔に何体入るか	○(1体)	○(1体)	○(2体~4体)
	処分容器が導入できるか	×	○	○
	廃棄体定置領域(2000mを想定) に何体入れられるか	約400体	約400体	約800体~1600体
PWR燃料集合体1体: 幅210mm×奥行210mm× 高さ4200mm	掘削孔に何体入るか	×	○(1体)	○(2体)
	処分容器が導入できるか	×	○	○
	廃棄体定置領域(2000mを想定) に何体入れられるか	×	約400体	約800体
HLWガラス固化体1体: 固化ガラスをステンレス容器に 入れた状態で直径430mm×高さ 1340mm	掘削孔に何体入るか	×	○(1体)	○(1体)
	処分容器が導入できるか	×	×	○
	廃棄体定置領域(2000mを想定) に何体入れられるか	×	約1000体	約1000体

複数の情報の一括表示の例(深度、温度、岩種、坑径)



実績
VS
ニーズ

複数の情報の関係づけの例
(廃棄物の種類とその超深孔処分に必要な孔径)

対象となる放射性廃棄物	項目	超深孔の掘削孔径(最深部での掘削孔径)		
		215mm程度 (わが国での実績)	500mm程度 (諸外国で検討 されている径)	1000mm程度 (十分なスペースを 有する径)
BWR燃料集合体1体: 幅140mm×奥行140mm× 高さ4500mm	掘削孔に何体入るか	○(1体)	○(1体)	○(2体~4体)
	処分容器が導入できるか	×	○	○
	廃棄体定置領域(2000mを想定) に何体入れられるか	約400体	約400体	約800体~1600体
PWR燃料集合体1体: 幅210mm×奥行210mm× 高さ4200mm	掘削孔に何体入るか	×	○(1体)	○(2体)
	処分容器が導入できるか	×	○	○
	廃棄体定置領域(2000mを想定) に何体入れられるか	×	約400体	約800体
HLWガラス固化体1体: 固化ガラスをステンレス容器に 入れた状態で直径430mm×高さ 1340mm	掘削孔に何体入るか	×	○(1体)	○(1体)
	処分容器が導入できるか	×	×	○
	廃棄体定置領域(2000mを想定) に何体入れられるか	×	約1000体	約1000体

図 5-7 掘削技術の情報と放射性廃棄物の情報の連携のイメージ

② 核種移行特性の設定の考え方や設定方法の整備に向けての検討

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を対象とした核種移行解析を実施する必要が生じる。その場合には、どのような THMC 環境を設定するか(設定できるか)、またその THMC 環境の想定を核種移行パラメータの設定にどのように反映するか(反映できるか)が重要となる。

ここで、超深孔処分相当深度を対象とした核種移行解析に向けた核種移行パラメータの設定方法については、利用可能な情報レベルに応じて図 5-8 で示すような設定方法の候補が考えられる。

- 情報なし
- 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の仮設定。
 - エキスパートジャッジを用いた仮設定。
 - 教科書レベルの一般的な傾向に基づく設定。
 - 限定的な情報に基づく設定。
- 情報あり
- 超深孔処分相当深度での THMC 条件に基づく設定。

図 5-8 利用可能な情報レベルに応じた核種移行パラメータの設定方法の候補

わが国では、超深孔処分相当深度を対象とした本格的な核種移行解析は実施しておらず、また、平成 31 年度に、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（原子力機構，2020）。

そのため、令和 2 年度の検討においては、まず、先行して検討が進められている米国の超深孔処分での核種移行解析の検討事例を対象に、THMC 条件の想定や核種移行パラメータの設定についての考え方や設定の現状等を把握することにより、わが国での THMC 条件の想定や核種移行パラメータの設定において当面目指すべき方向性やレベル等についての検討に反映することとした。

具体的には、米国の超深孔処分の検討事例において、超深孔処分相深度の地下深部での環境条件に関する情報（例えば、地下深部での温度や圧力、岩種等の情報）の想定、また設計や性能評価解析時において超深孔処分相深度の地下深部での環境条件をどのように取り扱っているか（例えば、分配係数（Kd）等の核種移行パラメータの設定でどのような環境条件を想定し、どのように取り扱っているか等）に関する情報抽出・整理を実施した。

米国の超深孔処分の検討事例としては、以下の 2 つを調査対象とした。

- 米国サンディア国立研究所（以下、「SNL」という）の超深孔処分の検討事例（対象深度：3,000 m ～ 5,000 m 程度。鉛直孔に処分する超深孔処分としては一般的な処分概念に対する事例）
- Deep Isolation 社の超深水平処分の検討事例（対象深度：1,500 m 程度。現在活発に検討が進められている、地下深くの水平掘削孔に処分する特殊な超深孔処分の概念に対する事例）

SNL における超深孔処分を対象とした検討事例（SNL，2016）では、Sr/Cs カプセルの処分を想定し、Sr および Cs を対象とした核種移行解析が行われている。この事例では、決定論的および確率論的な核種移行解析が行われているため、パラメータについては、決定論的な設定値と確率論的な分布がそれぞれ設定されている。分配係数（Kd）は、シール材領域中のベントナイトと母岩（結晶質岩）にそれぞれ設定されており、その他の廃棄体やプラグなどは保守的に収着なしの設定となっている。この Kd の設定値は、2016 年以前の SNL での超深孔処分の検討（Clayton et al., 2011; Brady et al., 2009）でも使われているが、更に元を辿ると、確率論的な分布については McKinley and Scholtis (1993) で検討された Kd の最大値と最小値を用いている。また、決定論的な核種移行解析における Kd の設定値については、上述の分布の幅（最大値および最小値）の平均値としている。SNL の事例での母岩（結晶質岩）に対して用いられている McKinley and Scholtis (1993) での Kd については、化学的還元条件下での花崗岩に対する Kd であるが、SNL の事例では、超深孔処分相当の岩盤での塩分濃度の高い環境での収着を考慮するために、McKinley and Scholtis (1993) での Kd の 1/10 の値が設定されている。

Deep Isolation 社の事例（Deep Isolation Inc, 2020）では、深度約 1,000m 程度の地層を対象とした超深水平処分概念での閉鎖後安全評価を実施している。この事例での Kd

は、上述した SNL (2016) と同様に McKinley and Scholtis(1993) での Kd を用いているが、Deep Isolation 社の事例ではシェール層を対象としていることから、McKinley and Scholtis(1993) での堆積岩に対する Kd が用いられている。

SNL の検討事例 (SNL, 2016) と Deep Isolation 社の最新の検討事例 (Deep Isolation Inc, 2020) での核種移行パラメータ (母岩の分配係数など) に係る情報を整理し表 5-9 に示す。表 5-9 より、米国の検討事例での核種移行パラメータについては、想定している超深孔処分深度相当での THMC 情報等に対応した値が設定されているわけではなく、通常の地層処分深度での設定値を仮置きしていることが確認された。

なお、SNL や Deep Isolation 社の事例では、超深孔処分相当深度における高温・高圧下の条件等を反映した核種移行パラメータ設定を使うことの必要性やそのための課題の設定等に関する具体的な記述は見当たらず、少なくとも現状では、超深孔処分相当深度に相当する核種移行パラメータの設定よりも、廃棄体の熱や地温勾配による熱対流の影響の方が重視されているようである。

表 5-9 米国の超深孔処分の検討事例における核種移行パラメータ設定の比較

事例	SNLの検討事例(2016)	Deep Isolation社の検討事例(2020)
超深孔処分概念	超深孔処分	超深水平処分
処分深度と想定温度	処分深度4500m~5000mで125~140℃ (地表温度:10℃、地温勾配:2.5℃/100m、深度6000mからの地熱流束60mW/m ² も考慮)	処分深度約1000mで約43℃ (地表温度:13℃、地温勾配:3℃/100m)
対象廃棄物	Cs/Srカプセル	使用済燃料
岩種	深成岩(花崗岩)	シェール層(頁岩(堆積岩の一種))
核種移行評価時のパラメータ設定	<ul style="list-style-type: none"> ・THMC情報等は陽的に記述されていなかった ・核種移行パラメータについては、通常深度の地層処分を想定して設定されたMcKinley and Scholtis(1993)から引用。その中の花崗岩設定値を使用。 ・超深孔処分相当の岩盤での塩分濃度の高い環境での収着を考慮するために、上記の花崗岩設定値の1/10の値が設定されている。 	<ul style="list-style-type: none"> ・THMC情報等は陽的に記述されていなかった ・SNLの検討事例と同じく、核種移行パラメータについては、通常深度の地層処分を想定して設定されたMcKinley and Scholtis(1993)から引用。その中の堆積岩設定値を使用。

これらを踏まえると、わが国での THMC 条件の想定や核種移行パラメータの設定においては、図 5-8 で示している利用可能な情報レベルに応じた核種移行パラメータの設定方法の候補の中の「超深孔処分相当深度での THMC 条件に基づく設定」に相当するような、超深孔処分相当深度での着目すべき THMC 条件のすべてを具体的に設定し、かつ、核種移

行パラメータの設定もそれら THMC 条件に対応する現実的な値を設定することを目指すのは、平成 31 年度の調査・整理（原子力機構，2020）でも確認されたように、現状では参考とできる情報等が決定的に不足しているため合理的ではない。さらに、超深孔処分に関する検討が先行している米国の検討事例でも、前述のように、想定している超深孔処分深度相当での THMC 情報等に対応した核種移行パラメータが設定されているわけではなく、通常の地層処分深度での設定値を仮置きしている。

以上のことから、わが国での THMC 条件の想定や核種移行パラメータの設定において当面目指すべき方向性やレベル等としては、まずは最低限として、表 5-9 の米国事例でも行われているように「従来の地層処分相当深度での核種移行パラメータ設定値の仮置き」を行い、それに対して、THMC 条件について部分的にでも超深孔処分相当深度で生じる特徴が見いだされた場合や、核種移行パラメータの THMC 条件の依存性等に関して参考となる知見が得られた場合には、「エキスパートジャッジ」や「教科書レベルの一般的な傾向に基づく設定」などを試みていくことで、対象となる元素はかなり限定されると考えられるが、少しずつでも「従来の地層処分相当深度での核種移行パラメータ設定値の仮置き」を更新していくことを目指すことが合理的であると考えられる。そのうえで、長期的な観点では、超深孔処分深度相当での THMC に係るデータの取得、および核種移行特性パラメータの THMC 条件依存性等に関する研究の進展などに応じて、図 5-8 の「限定的な情報に基づく設定」、さらには「超深孔処分相当深度での THMC 条件に基づく設定」に近づくための取組みも段階的に進めていくことが考えられる。

(3) 超深孔処分の閉鎖後安全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、超深孔処分の安全性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（後述 1）参照）
- 超深孔処分システム領域全体を対象とした影響評価のアプローチ（後述 2）参照）
- 超深孔処分システム領域全体を対象とした影響評価の結果（後述 3）項参照）

1) 着目する因子の整理

本項では、わが国で検討する可能性のある場を幅広く想定しつつ、超深孔処分の閉鎖後安全性に対して影響が大きいと考えられる因子の候補を抽出する。本項目では、過年度（平成 30～31 年度）までの検討結果を踏まえたうえでの、令和 2 年度に着目する因子に

ついて検討・整理する。

まず、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を想定し、かつ、廃棄体定置領域およびシール材領域周辺に着目した局所的な系を想定し、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（超深孔に沿って発生する EDZ 中での地下水流れによる上方向への移行）
- 核種閉じ込め・移行抑制効果

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方向への移行が発生しても、それに比べて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方向への移行や超深孔に沿って発生する EDZ 中での地下水流れによる上部方向へ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。

これら結果を踏まえ、平成 31 年度の検討においては、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、より実際の場合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した。具体的には、「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として、超深孔の周りに不均質に存在する小さい亀裂や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。ただし、平成 31 年度は、母岩の透水性の不均質性を三次元水理・物質移行解析（感度解析）で取り扱える計算量とするために、廃棄体定置領域周辺の一部のみを対象としたスケール（100 m×100 m×100 m）での水理・物質移行解析を実施した。なお、このようなスケールでは、実際の場合で想定されうる長い移行距離が物質移行に与える影響などを詳細に評価することは難しいものの、超深孔処分での閉鎖後安全性で着目すべき超深孔近傍かつ廃棄体定置領域近傍での物質移行挙動に対する母岩の透水性の不均質性の影響を概略的に把握することが可能であると考えられる。この解析の結果、廃棄体定置領域近傍での移行経路は、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、傾度など）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、あるいは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い場合には、超深孔中での移行が顕在化し、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。

平成 30～31 年度の検討結果を踏まえ、令和 2 年度の検討では、平成 31 年度の検討において廃棄体定置領域近傍の局所的なスケール（100 m×100 m×100 m）に着目したことに対して、超深孔処分で想定されうる、超深孔の底部から地表までの縦方向の移行、および母岩中での超深孔から下流側あるいは地表までの移行などを取り扱えるようにするための想定として、超深孔処分システム全体のスケールを設定したうえで、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。具体的には、発生した場合に特に影響が大きい移行経路となる可能性がある超深孔中および超深孔沿いの上方向の移行等に着目し、超深孔処分システム全体のスケールにおける上方向の移行の顕在化の可能性を含めて、想定される移行のパターンとその発生条件などの把握を目的とした解析的検討を行う。

平成 30～令和 2 年度までの解析上の取り扱いをまとめたものを表 5-10 に示す。

表 5-10 因子の検討での解析上の取り扱い

	平成 30 年度	平成 31 年度	令和 2 年度
取り扱い	<ul style="list-style-type: none"> ・母岩の透水性を均一と仮定 ・廃棄体定置領域、シール材領域、母岩を考慮した領域 (二次元、簡略的な系) 	<ul style="list-style-type: none"> ・母岩の透水性の不均質性を想定 ・廃棄体定置領域近傍の領域 (100m×100m×100m、三次元) 	<ul style="list-style-type: none"> ・母岩の透水性を均一と仮定 ・超深孔処分システム全体の領域 (6,000m×3,100m×10m、三次元)

2) 超深孔処分システム領域全体を対象とした影響評価のアプローチ

1) 項で着目した 3 つの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は、3 つの因子についての個々の設定さらには複数の因子の設定の組合せやバランスに応じて変化すると考えられる。また、超深孔処分においては深度数 km の超深部の処分孔に廃棄体が定置されるため、従来の地層処分の場合と比べると、母岩中の移行に加えて超深部中あるいはそれに沿った上向きの移行が関係する特徴的な核種移行パターンの発生が予想される。

それらを踏まえ、超深孔処分での特異的な核種移行パターンと考えられる超深孔中および超深孔沿いでの上方向の地下水流動とそれによる物質移行に特に着目し、かつ、超深孔処分システム全体のスケールを考えることで、以下の検討を行うこととした。

- 上方向（超深孔中および超深孔沿い）の移行を含む超深孔処分での核種移行のパターンの整理
- 上方向の移行の顕在化の可能性とその発生条件、および上方向以外の移行の顕在

化の可能性とその発生条件

- 上方向の移行に対するバリア性能（人工バリア、プラグ、シールなど）の効果

このような超深孔処分システム全体のスケールを考えたときに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、母岩や超深孔の透水性を始めとした各因子の状況に応じて発生する可能性のある核種移行パターンとしてどのようなものが起こり得るかを事前に想定し、その特徴に基づき核種移行パターンをある程度絞り込むことが効果的と考えられる。

令和 2 年度の検討においては、まず、超深孔処分システム全体を想定したときに考えられる、「超深孔中の上方向の移行」、「超深孔から周辺母岩への移行」、「上方向の移行に対するバリア機能」に着目し、これらの設定（有無、程度：大きい／小さい）に応じて核種移行経路や核種移行挙動にどのような違いが生じるのか、またそこで生じる違いが核種移行にどのように影響する可能性があるのかなどの分析・整理に基づくパターン化を実施した。分析・整理の結果（条件分岐フロー）を図 5-9 に示す。

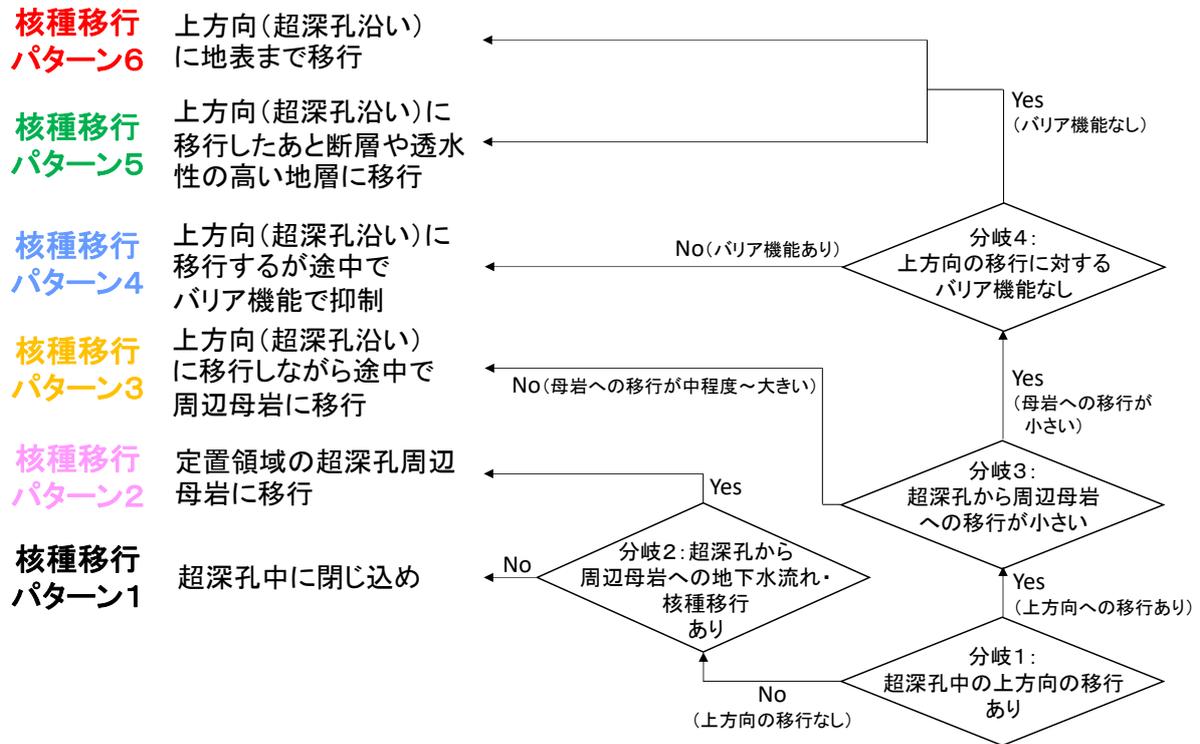


図 5-9 超深孔処分システム全体を想定したときに考えられる核種移行経路や核種移行挙動の違いの整理（条件分岐フロー）

図 5-9 の条件分岐フローにより、超深孔処分システム全体を想定したときの核種移行経路や核種移行挙動は、各分岐の設定とその組合せにより、主に以下の 6 つのパターンに分類・整理できると考えられる。

- パターン 1 「超深孔中に閉じ込め」:
超深孔（廃棄体定置領域）中に核種が閉じ込められる、あるいは核種の放出が極めて小さいパターン。米国の超深孔処分の検討事例で想定されている場のように、

超深孔および周辺母岩の透水性が極めて小さい場合に発生すると考えられる。

- パターン 2 「廃棄体定置領域の超深孔周辺母岩に移行」：
核種が地下深部の廃棄体定置領域から周辺の母岩に移行するパターン。母岩中での核種の移行距離が長くなる、母岩中に核種が散逸することなどにより母岩中での移行遅延等が期待される。
- パターン 3 「上方向（超深孔沿い）に移行しながら途中で周辺母岩に移行」：
核種の超深孔（廃棄体定置領域、シール材領域）中あるいは超深孔に沿った上方向の移行が発生するものの、その途中で周辺母岩に移行するパターン。母岩中への核種の散逸が、上方向の核種移行の抑制効果として機能することが期待される。
- パターン 4 「上方向（超深孔沿い）の移行が途中のバリア機能により抑制」：
パターン 3 の派生パターン。核種の超深孔（廃棄体定置領域、シール材領域）中あるいは超深孔に沿った上方向の移行が発生するものの、廃棄体定置領域やシール材領域でのバリア機能より上方向の核種移行が抑制され、その結果として母岩中に核種が移行する。このパターンでの母岩中に移行後の挙動は、パターン 2 での母岩中に移行と類似するものになると推定される。
- パターン 5 「上方向（超深孔沿い）に移行したあと断層や透水性の高い地層に移行」：
これもパターン 3 の派生パターンであり、核種の超深孔（廃棄体定置領域、シール材領域）中あるいは超深孔に沿った上方向の移行が発生し、かつ、その途中での周辺母岩に移行が小さいパターン。ただし、地表までは到達せず、超深孔が地表付近の断層や透水性の高い地層に接することにより、それらを通じて核種が移行するパターン。地表近傍まで核種が到達して閉鎖後安全性に比較的大きな影響が生じる可能性がある。
- パターン 6 「上方向（超深孔沿い）に地表まで移行」：
これはパターン 5 の派生パターンであり、超深孔中での上方向の流れにより核種が上方向に移行し、さらに地表まで到達する可能性のあるパターン。超深孔処分における最短経路になり得るため、閉鎖後安全性への影響が大きくなる可能性がある。

令和 2 年度の検討では、上記の 6 パターンを対象に、各移行パターンの発生条件（どの因子が、どのような組合せ、どのような条件のときに、どの移行パターンが発生するのか、あるいは発生することはないのか）などについて、三次元水理・物質移行解析を実施することにより検討を行う。

この検討にあたっては、まず、超深孔処分の閉鎖後安全性への影響が大きいと考えられるパターン 5 や 6 が発生するかどうか、また発生するならばどのような条件の場合かなどを把握できるようにすることを重視した。そのために、超深孔中での上方向の地下水流動の発生に大きな影響を与えると考えられる超深孔中の透水係数等を感度解析的に変化させること、また、地下水流動の上方向の流れが発生する場を想定することなどを含めた広域の三次元水理移行解析を行い、さらに三次元地下水流動解析結果に基づく粒子追跡線解析を行うことで、数千 m の超深孔中を地下水が上方向に流れ得るのか、地表まで核

種が到達しうるのか、またその場合の発生条件などはどのようなものかの把握を試みることにした。

また、パターン2～4についてもどのような条件で各パターンが生じるのかを把握できるように、広域の三次元地下水流動解析とそれに基づく粒子追跡線解析を、超深孔中の透水係数、地下水流動の方向、母岩の透水係数を感度解析的に変化させながら行うこととする。なお、パターン4で着目するバリア機能による核種移行の抑制効果については、廃棄体定置領域の上部にあるシール材領域に対してバリア機能（低透水性）を設定した解析ケースを設定することにより確認を行う。

3) 超深孔処分システム領域全体を対象とした影響評価の結果

本項では、2)項で示したアプローチに基づいて、超深孔処分システム全体のスケールにおいて各移行パターンの発生の有無や発生条件などを把握するための検討を行う。

ここでは、以下の項目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システム全体のスケールにおいての各移行パターンの発生の有無や発生条件等の把握を試みる。

- 超深孔処分の場合での地下水流動の方向（上方向の流れ、下方向の流れ）
- 母岩の透水性、超深孔中の透水性（廃棄体定置領域の透水性、シール材領域の透水性）
- 超深孔に対するバリア機能の有無（シール材領域の透水性）

本項での実施内容を以下に示す。

- 解析モデルの構築（①項参照）
- 解析条件および解析ケースの設定（②項参照）
- 解析結果および考察（③項参照）

① 解析モデルの構築

ここでは、超深孔処分システム全体を対象とした解析で使用した三次元水理・物質移行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。

全体的な場：

- 令和2年度の検討においては、超深孔処分システム全体を考慮するため、広域の評価領域（縦（Z方向）3,100 m×横（X方向）6,000 m×奥行き（Y方向）10 m）を設定した。
- 3次元水理・物質移行解析においては、母岩の透水性は均質としている。ここで、上方向の移行などに着目する場合には、超深孔から母岩への移行（超深孔から母岩への核種の散逸）は、上方向の移行を低減させる効果がある。また、母岩の透水性の不均質性を想定することは、母岩での高い透水性の領域の存在を考慮することになり、そのような領域の存在は超深孔から母岩への移行を促進させることになり、

その結果として、均質を想定した場合よりも母岩への移行による上方向の移行の低減効果が大きくなる可能性がある。そのため、母岩の透水性を均質とすることは、そのような母岩への移行による上方向の移行の低減効果を小さめに評価する、すなわち上方向の移行を大きめに評価することになると期待される。

超深孔領域：

- 深度 3,000 m、直径 0.5 m の超深孔を仮定する。
- 掘削影響領域 (EDZ) については超深孔領域内に含まれていると仮定する (EDZ 領域を超深孔領域の外側に別領域として設定することはしていない)。
- 超深孔の領域を 3 つの領域に分けて設定している (廃棄体定置領域：深度 3,000～2,000 m、シール材領域：深度 2,000～深度 1,000 m、上部埋戻し材領域：深度 1,000～深度 0 m (地表))
- 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種類や特性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、超深孔の各領域の透水性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、廃棄体定置領域 (深度 3,000～2,000 m) から粒子を発生させる (縦 (Z 方向) に 20 m の間隔で 50 個の粒子を発生させる)。
- 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。

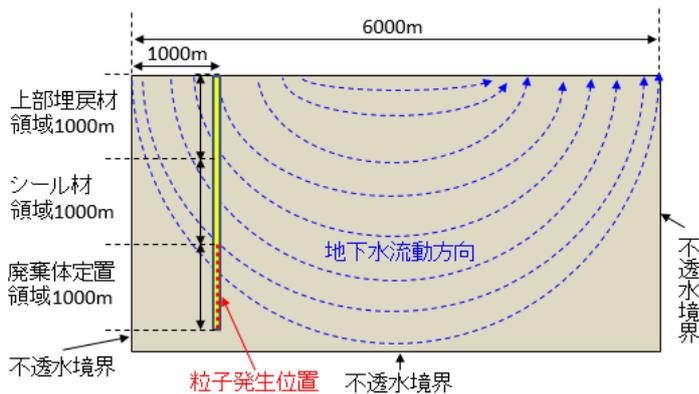
母岩領域：

- 3,100 m×6,000 m×10 m の三次元の領域に母岩が分布していると仮定する。
- 母岩の透水性は均一と仮定する。
- 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・分散で母岩中を移行する。

超深孔の設置位置での地下水流動の方向：

- 超深孔の設置位置での地下水流動の方向として「下方向の流れ」と「上方向の流れ」を想定する。
- 上述の超深孔の設置位置での 2 つの地下水流動の方向を考慮するために、超深孔の設置位置として図 5-10 に示す 2 つのパターンを設定する。

超深孔周辺の地下水
流動として下方向の
流れを想定する場合
($X=1,000$ m の位置に
超深孔を設置)



超深孔周辺の地下水
流動として上方向の
流れを想定する場合
($X=5,000$ m の位置に
超深孔を設置)

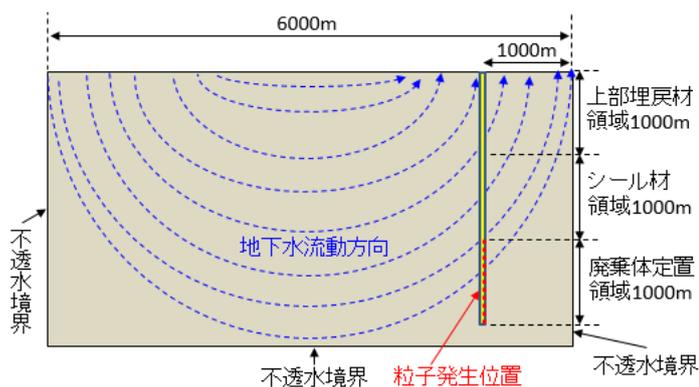


図 5-10 超深孔の設置位置での地下水流動の方向のイメージ

水理解析の境界条件：

- X 方向水平に動水勾配を設定する。
- Z 方向上端のみを圧力固定を設定する。
- 深孔の設置位置での地下水流動の方向を設定するために、図 5-10 に示す不透水境界を設定する。

上記の条件で設定される圧力水頭分布のイメージを図 5-11 に示す。

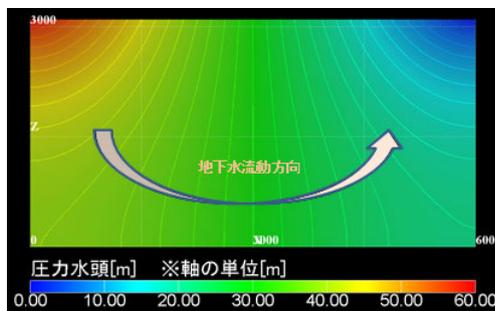


図 5-11 圧力水頭分布のイメージ

② 解析条件および解析ケースの設定

2) 項で示したアプローチを踏まえ、また、前項で示した解析モデルを用いて、超深孔処分での核種移行パターンの発生の有無やその発生条件などを把握するための三次元水

理・物質移行解析を感度解析的に実施する。

感度解析ケースについては、各移行パターンの発生の有無を把握し、さらに、発生した移行パターンに「超深孔の設置位置での地下水流動の方向」、「母岩の透水性」、「超深孔の透水性」の因子がどのように影響しているのか（どの因子が、どのような組合せ、どのような条件のときにどの移行パターンが発生するのか、あるいは発生することはないのか）などの分析を実施することを主な目的として設定した。

まず、各移行パターンの発生に関する各分岐について、水理・物質移行解析上のパラメータとしての取り扱いについて検討・整理した結果を表 5-11 に示す。それらの因子の取り扱いの組合せにより、表 5-12 および表 5-13 に示す解析ケース（計 24 ケース）を設定した。

表 5-11 各移行パターンの発生に関する各分岐の取り扱い

分岐	分岐での変化	解析上での因子の取り扱い(設定内容)
分岐1: 超深孔中の上方向の移行あり	上方向の移行あり	<p>超深孔の設置位置での地下水流動の方向が「上方向」になるように超深孔を設置(X=5000mの位置に超深孔を設置。)</p>
	上方向の移行なし	<p>超深孔の設置位置での地下水流動の方向が「下方向」になるように超深孔を設置(X=1000mの位置に超深孔を設置。)</p>
分岐2と分岐3: 超深孔から周辺母岩への移行が小さい	小さい	<p>周辺母岩への移行への影響を把握するため、母岩の透水係数として3つのパターンを設定。</p> <ul style="list-style-type: none"> 母岩の透水係数 $1e-8 \text{ m s}^{-1}$ 母岩の透水係数 $1e-9 \text{ m s}^{-1}$ 母岩の透水係数 $1e-10 \text{ m s}^{-1}$
	大きい	
分岐4: 上方向の移行に対するバリア機能なし	バリア機能なし	超深孔全体の透水性を高透水性に設定(透水係数 $1e-5 \text{ m s}^{-1}$)。
	バリア機能あり	<p>バリア機能ありを表現しその影響を把握するため、シール材領域の透水係数として以下の3つのパターンを設定。</p> <ul style="list-style-type: none"> シール材領域の透水係数 $1e-7 \text{ m s}^{-1}$ シール材領域の透水係数 $1e-10 \text{ m s}^{-1}$ シール材領域の透水係数 $1e-12 \text{ m s}^{-1}$

表 5-12 解析ケース一覧（超深孔の設置位置での地下水流動の方向：上方向）

解析ケース	水理・物質移動解析に関する設定						
	超深孔の設置位置での地下水流動の方向	動水勾配 [-]	母岩	透水係数 [m s ⁻¹]			
				廃棄体定置領域	シール材領域	上部埋戻し材領域	
1-1	上方向	0.01	1 × 10 ⁻¹⁰	1 × 10 ⁻⁵	1 × 10 ⁻¹²	1 × 10 ⁻⁵	
1-2							1 × 10 ⁻¹⁰
1-3							1 × 10 ⁻⁷
1-4							1 × 10 ⁻⁵
1-5			1 × 10 ⁻⁹				1 × 10 ⁻¹²
1-6							1 × 10 ⁻¹⁰
1-7							1 × 10 ⁻⁷
1-8							1 × 10 ⁻⁵
1-9			1 × 10 ⁻⁸				1 × 10 ⁻¹²
1-10							1 × 10 ⁻¹⁰
1-11							1 × 10 ⁻⁷
1-12							1 × 10 ⁻⁵

表 5-13 解析ケース一覧（超深孔の設置位置での地下水流動の方向：下方向）

解析ケース	水理・物質移動解析に関する設定						
	超深孔の設置位置での地下水流動の方向	動水勾配 [-]	母岩	透水係数 [m s ⁻¹]			
				廃棄体定置領域	シール材領域	上部埋戻し材領域	
2-1	下方向	0.01	1 × 10 ⁻¹⁰	1 × 10 ⁻⁵	1 × 10 ⁻¹²	1 × 10 ⁻⁵	
2-2							1 × 10 ⁻¹⁰
2-3							1 × 10 ⁻⁷
2-4							1 × 10 ⁻⁵
2-5			1 × 10 ⁻⁹				1 × 10 ⁻¹²
2-6							1 × 10 ⁻¹⁰
2-7							1 × 10 ⁻⁷
2-8							1 × 10 ⁻⁵
2-9			1 × 10 ⁻⁸				1 × 10 ⁻¹²
2-10							1 × 10 ⁻¹⁰
2-11							1 × 10 ⁻⁷
2-12							1 × 10 ⁻⁵

このような解析ケースの設定により、超深孔処分での核種移行パターンの発生の有無やその発生条件等を以下の観点から把握することができると考えられる。

- 超深孔処分の閉鎖後安全性への影響が大きいと考えられる移行パターン5と6の発生の有無やその発生条件等の把握：

超深孔を通過の上方向の地下水流動とそれに伴う地表までの核種移行が起こりやすいと考えられる条件をあえて想定することで、超深孔処分の閉鎖後安全性への影響が大きいと考えられる移行パターン5や6（上方向（超深孔沿い）に移行し、地表やその近傍まで至る）の発生の有無や、その発生条件などを確認する。そのために、超深孔の設置位置での地下水流動が上方向でかつ超深孔全体が高透水性の条件で、かつ、母岩に異なる透水性を想定するケースである、ケース1-4、ケース1-8、ケース1-12を比較する。

- 移行パターン2の発生条件等の把握：

移行パターン2（廃棄体定置領域の超深孔周辺母岩に移行）の発生条件、すなわち、上方向（超深孔沿い）の移行が生じない条件を確認する。これに関しては、超深孔の設置位置での地下水流動の方向が上方向か下方向かの違いが大きく影響すると予想されることから、まずは、超深孔の設置位置での地下水流動が上方向のケース（ケース1-1～1-12）と下方向のケース（ケース2-1～ケース2-12）とを比較する。また、それ以外の超深孔や母岩の透水性の違いもパターン2の発生条件に影響を与えるのかなどについても適宜確認を行う（ケース1-1～1-12の間での比較、ケース2-1～ケース2-12の間での比較など）。

- 移行パターン3の発生条件等の把握：

移行パターン3（上方向（超深孔沿い）に移行しながら途中で周辺母岩に移行）の発生条件などを確認する。移行パターン3の発生には、超深孔から母岩への核種の有意な散逸がカギとなることから、まずは、超深孔全体が高透水性でかつ母岩が低透水性の条件下のケースと超深孔全体が高透水性でかつ母岩が高透水性の条件下のケースを比較する（例えば、ケース1-4とケース1-12、あるいはケース2-4とケース2-12など）。

- 移行パターン4の発生条件等の把握：

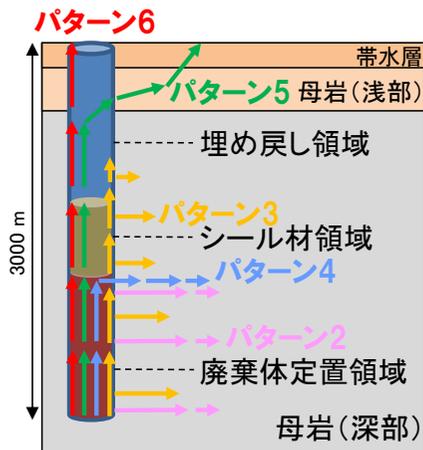
移行パターン4（上方向（超深孔沿い）の移行が途中のバリア機能により抑制）の発生の有無やその発生条件などを確認する。そのために、まずは、同じ母岩の透水性の条件下においてシール材領域の透水性を変化させたケースを比較する（例えば、ケース1-1～1-4など）。

③ 解析結果および考察

②項で設定した解析ケース（計24ケース）についての解析を実施した。その結果から、各移行パターンの発生は、3つの因子（超深孔処分の場合での地下水流動の方向、母岩の透水性、超深孔の透水性（含むバリア機能の有無））の組合せにより、図5-12のように整理・類型化できると考えられた。なお、個々のケースの解析結果については付録4に示す。

【移行パターンの類型化】

【移行パターンのイメージ】



5-41

		超深孔処分場での地下水流動			
		下向き	上向き		
		母岩の透水係数 [$m s^{-1}$]	母岩の透水係数 [$m s^{-1}$]		
		1×10^{-10} 、 1×10^{-9} 、 1×10^{-8}	1×10^{-10}	1×10^{-9}	1×10^{-8}
超深孔(シール材領域)の透水係数*1 [$m s^{-1}$]	1×10^{-7} 、 1×10^{-10} 、 1×10^{-12}	<p>パターン2</p> <p>例) ケース2-4</p>	<p>パターン4</p> <p>例) ケース1-3 超深孔</p> <p>例) ケース1-11 超深孔</p>		
	1×10^{-5}		<p>一部パターン6</p> <p>パターン3</p> <p>例) ケース1-4</p> <p>例) ケース1-12 超深孔</p>		

*1 超深孔中の廃棄体定置領域および上部埋戻し材領域の透水係数は、全てのケースで 1×10^{-5} [$m s^{-1}$]とした。

図 5-12 解析条件に対する移行パターンの類型化

図 5-12 の整理・類型化の考え方を以下に示す。

- 移行パターン 5 や 6 の発生の有無やその発生条件の確認：

超深孔処分の閉鎖後安全性への影響が大きいと考えられる移行パターン 5 や 6（上方向（超深孔沿い）に移行し、地表やその近傍まで至る）については、ケース 1-4 の解析での粒子線解析の結果の一部でのみ発生している。なお、ケース 1-4 での他の多くの粒子の移行パターンは、パターン 3（上方向（超深孔沿い）に移行しながら途中で周辺母岩に移行）に該当する。

ケース 1-4 の特徴は、超深孔中の上方向の移行が発生しやすい地下水流動場、かつ、超深孔全体の透水性が大きく移行しやすい条件下、かつ、母岩の透水性が小さいことに起因して超深孔から周辺母岩への散逸が小さい条件下であることである。

ここで、ケース 1-4 以外、すなわち上記の条件が満たされないケースでは移行パターン 5 や 6 に相当する結果は得られておらず、移行パターン 5 や 6 の発生条件はかなり限定されると考えられる。また、仮に発生したとしても、地表近傍まで移行する核種は全体の一部に限られ、さらにケース 1-4 の特徴にもなっている母岩の透水性が小さいことに起因して超深孔から周辺母岩への散逸が小さいことについては、実際の環境では、母岩は透水性に不均質性を有し高い透水性の領域の存在による母岩への散逸が生じることも考えられることから、本検討で仮定した母岩での透水性が均一な場合よりも母岩への散逸が多くなり、地表近傍まで移行する核種はさらに減少する傾向になると推測される。

【移行パターン 5 や 6 の発生条件】

以下の 3 つの条件を満たしたときにのみ限定的に発生する可能性がある。

- 超深孔の設置位置での地下水流動が上方向（超深孔中の上方向の移行あり）
- 超深孔全体の透水性が大きい（バリア機能なし、超深孔中を移行しやすい）
- 母岩の透水性が小さい（超深孔から周辺母岩への散逸が小さい）

- 移行パターン 2 の発生条件の確認：

移行パターン 2（廃棄体定置領域の超深孔周辺母岩に移行）については、超深孔の設置位置での地下水流動を下方向に設定した全てのケース（ケース 2-1～2-12）で発生している。これは、超深孔中の上方向の移行が発生しない条件下でパターン 2 が発生する、言い換えればそのような条件下ではパターン 3 などは発生しないことを示唆していると考えられる。

【移行パターン 2 の発生条件】

- 超深孔の設置位置での地下水流動が下方向（超深孔中の上方向の移行なし）

- 移行パターン3の発生条件の確認：

移行パターン3（上方向（超深孔沿い）に移行しながら途中で周辺母岩に移行）については、超深孔の透水性が $1 \times 10^{-5} \text{ m s}^{-1}$ と高い条件下での、ケース1-8（超深孔の設置位置での地下水流動が上方向、母岩の透水係数： $1 \times 10^{-9} \text{ m s}^{-1}$ ）およびケース1-12（超深孔の設置位置での地下水流動が上方向、母岩の透水係数： $1 \times 10^{-8} \text{ m s}^{-1}$ ）で発生している。これは、超深孔中の上方向の移行が発生する条件下においても、母岩の透水性が中程度～大きいことに起因して超深孔から周辺母岩への散逸がある程度発生する場合においてパターン3が発生することを示唆していると考えられる。

【移行パターン3の発生条件】

- 超深孔の設置位置での地下水流動が上方向（超深孔中の上方向の移行あり）
- 超深孔全体の透水性が大きい（バリア機能なし、超深孔中を移行しやすい）
- 母岩の透水性が中程度～大きい（超深孔から周辺母岩への散逸が中程度～大きい）

- 移行パターン4の発生条件の確認：

移行パターン4（上方向（超深孔沿い）の移行が途中のバリア機能により抑制）については、超深孔の設置位置での地下水流動が上方向の条件下で、かつ、母岩の透水性が同じ条件下において、シール材領域の透水性が高い条件（ $1 \times 10^{-5} \text{ m s}^{-1}$ ）で、限定的ではあるものの一部の粒子でパターン5や6に相当する移行も見られたケース1-4と、シール材領域の透水性を中程度～低透水性に設定したケース（例えば、ケース1-1～1-3の $1 \times 10^{-12} \text{ m s}^{-1} \sim 1 \times 10^{-7} \text{ m s}^{-1}$ ）を比較した結果、後者のシール材領域の透水性を中程度～低透水性に設定したケースにおいて、 $1 \times 10^{-7} \text{ m s}^{-1}$ 程度の想定でも移行パターン4が発生している。これは、超深孔中の上方向の移行が想定されるような条件であっても、超深孔中のバリア機能がある程度期待できるようになれば、超深孔中の上方向の移行を効果的に抑制できることを示唆していると考えられる。

【移行パターン4の発生条件】

- 超深孔の設置位置での地下水流動が上方向（超深孔中の上方向の移行あり）
- 超深孔中のバリア機能あり（シール材領域の透水係数が中程度～小さい）

上記の考え方による、想定される移行パターンとその発生条件等の図5-12のような整理・類型化は、超深孔処分においてどの移行パターンが顕在化するかについて、「地下水流動の方向」、「母岩の透水係数」、「超深孔の透水性（含む、バリア機能の有無）」の3つの因子のバランスが大きく寄与する可能性を示唆している。

今後は、上記の3つの因子に関する情報について、(2)項での「超深孔処分および関連分野の最新情報の収集・整備」での取り組みを通じて整備していくとともに、それら情報

を図 5-12 の整理・類型化に当てはめてみるなどにより、わが国においてそれら 3 つの因子のバランスがどの程度になりそうか、そのバランスによりどのような移行パターンが重要になりそうか、さらにその重要な移行パターンをより詳しく検討するために必要な情報は何かなどの知見を得ていくことができると考えられる。

(4) まとめ

その他代替オプションとして、諸外国で現在検討が進められて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る因子の抽出やその影響の程度についての分析を実施した。

超深孔処分および関連分野の最新情報の収集・整備では、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 社の超深水平処分の閉鎖後安全評価の事例等の調査・整理を実施した。また、米国事例における超深孔処分相当度での THMC 情報とそれに基づく核種移行特性の設定に関連する知見の調査・分析を実施した。さらに、超深孔処分に関係する 3 つの技術（掘削技術、地質環境調査技術、設計・安全評価に係るデータ取得技術）について情報収集・整理を実施するとともに、調査した 3 つの技術の情報について、超深孔処分の現段階での技術的実現性や課題等の検討で使いやすくするための、わかりやすい整理や表示等のアプローチの検討に着手した。

今後の課題としては、引き続き、3 つの技術に関する情報収集等を継続するとともに、上記アプローチの検討を進めることにより、わが国での超深孔処分の技術的実現性や課題等の検討に向けての情報整備を進める予定である。

超深孔処分の閉鎖後安全性に影響する因子の検討については、超深孔処分の閉鎖後安全性に着目し、超深孔処分システム全体での核種移行のパターンを、超深孔中の上向きの移行等に着目して整理した。さらに、超深孔処分システム全体を対象とした水理・物質移行解析を実施することにより、各移行パターンの発生の有無やその条件等を分析した。その結果、どの移行パターンが顕在化するかは、「地下水流動の方向」、「母岩の透水係数」、「超深孔の透水性（含む、バリア機能の有無）」のバランスに依存する可能性が示唆された。なお、超深孔処分の閉鎖後安全性に影響する因子の解析的検討については、本年度までに、因子の抽出および因子が影響する条件の整理等の検討が一通り実施でき、目的に対して所定の成果が得られたと考えられるため、本年度で終了とする。これらの閉鎖後安全性に影響する因子についての成果や知見については、前述の超深孔処分および関連分野の情報の収集・整理での重要ポイントの設定等に適宜活用していく予定である。

【参考文献】

- Achtziger-Zupančič, P., Loew, S., and Mariéthoz, G. (2017): A new global database to improve predictions of permeability distribution in crystalline rocks at site scale, *J. Geophysical Research*, 10.1002, JB014106, pp.3513-3539.
- Aichholzer, C., Düringer, Ph., Orciani, S., and Genter, A. (2016): New stratigraphic interpretation of the Soultz-sous-Forêts 30-years-old geothermal wells calibrated on the recent one from Rittershoffen (Upper Rhine Graben, France), *Geothermal Energy*, 4:13, 26p.
- Arnold, B.W., Brady, P.V., Bauer, S.J., Herrick, C., Pye, S., and Finger, J. (2011): Research, Development, and Demonstration Roadmap for Deep Borehole Disposal, Prepared for US Department of Energy Used Fuel Disposition Campaign, 152p.
- Barton, C.A. Zoback, M.D., and Burns, K.L. (1988): In-situ stress orientation and magnitude at the Fenton geothermal site, New Mexico, determined from wellbore breakouts, *Geophysical Research Letters*, vol.15, no.5, pp.467-470.
- Bradbury, K.K. Barton, D.C., Solum, J.G., Draper, S.D., Evans, J.P. (2007): Mineralogic and textural analysis of drill cuttings from the San Andreas Fault Observatory at Depth (SAFOD) boreholes: Initial interpretations of fault zone composition and constraints on geologic models, *Geosphere*, vol.3, no.5, pp.299-318.
- Brady, P.V., Arnold, B.W., Freeze, G.A., Swift, P.N., Bauer, S.J., Kanney, J.L., Rechar, R.P., and Stein, J.S. (2009): Deep Borehole Disposal of High-Level Radioactive Waste. Sandia National Laboratory, Albuquerque, USA. Report No: SAND2009-4401. 75 pp.
- Brady, P., Arnold, B.W., Altman, S., and Vaughn, P. (2012): Deep Borehole Disposal of Nuclear Waste: Final Report, Sandia National Laboratories, SANDIA REPORT SAND2012-7789, 31p
- Bram, K., Draxler, J., Hirschmann, G., Zoth, G., Hiron, S., and Kühr, M. (1995): The KTB borehole – Germany’s Superdeep telescope into the earth’s crust, *Oilfield Review*, January, pp.4-22.
- Brudy, M, Zoback, M.D., Fuchs, K., Rummel, F., and Baumgärtner, J. (1997): Estimation of the complete stress tensor to 8km depth in the KTB scientific drill holes: Implications for crustal strength, *J. Geophysical Research*, vol.102, no.B8, pp.18453-18475.
- Bucher, K. and Stober, I. (2016): Large-scale chemical stratification of fluids in the crust: hydraulic and chemical data from the geothermal research site Urach, Germany, *Geofluids*, vol.16, pp.813-825.
- 物理探査学会 (2008): 新版 物理探査適用の手引き, 539p.
- 物理探査学会 (2016): 物理探査ハンドブック, 1045p.

- Castano, J.R. (1993) : Prospects for commercial abiogenic gas production: Implication from the Siljan Ring area, Sweden, The Future of Energy Gases, U.S. Geological Survey professional paper 1570, pp.133-154.
- Clayton, D., G. Freeze, T. Hadgu, E. Hardin, J. Lee, J. Prouty, R. Rogers, W.M. Nutt, J. Birkholzer, H.H. Liu, L. Zheng, and S. Chu (2011): Generic Disposal System Modeling - Fiscal Year 2011 Progress Report. FCRD-USED-2011-000184, SAND 2011-5828P. Sandia National Laboratories, Albuquerque, NM.
- Dash, Z.V., Murphy, H.D., and Cremer, G.M. (ed.) (1981) : Hot Dry Rock Geothermal Reservoir Testing: 1978 to 1980, Los Alamos National Laboratory, 62p.
- DeBruijn, G., Skeates, C., Greenaway, R., Harrison, D., Parris, M., James, S., Mueller, F., Ray, S., and Riding, M. (2008) : High-Pressure, High-Temperature Technologies, Oilfield Review, Autumn pp.46-60.
- Deep Isolation Inc (2020) : Spent Nuclear Fuel Disposal in a Deep Horizontal Drillhole Repository Sited in Shale: Numerical Simulations in Support of a Generic Post-Closure Safety Analysis., DI-2020-01-R0.
- Emmermann, R. and Lauterjung, J. (1997) : The German Continental Deep Drilling Program KTB: Overview and major results, J. Geophysical Research, vol.102, no.B8, pp.18179-18201.
- Enans, K.F. (2005) : Permeability creation and damage due to massive fluid injections into granite at 3.5 km at Soultz: 2. Critical stress and fracture strength, J. Geophysical Research, vol.110, no.B04204, 14p.
- Friðleifsson, G. Ó, Elders, W.A., Zierenberg, R.A., Stefánsson, A., Fowler, A.P.G., Weisenberger, T.B., Harðarson, B.S., and Mesfin, K.G. (2017) : The Iceland deep drilling project 4.5km deep well, IDDP-2, in the seawater-recharged Reukjanes geothermal field in SW Iceland has successfully reached its supercritical target, Scientific Drilling, vol.23, pp.1-12.
- 藤岡展价, 佐賀肇 (1980) : 基礎試錐「南幌」における滝の上層と幌内層群の境界, 石油技術協会誌, vol.45, no.4, pp.193-201.
- 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.
- 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, 第3章 地層処分に適した地質環境の選定およびモデル化, NUMO-TR-18-03, 111p.
- 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か年取りまとめ報告書、平成30年3月。
- 原子力機構 (日本原子力研究開発機構) (2020) : 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。
- Genter, A., Evans, K., Cuenot, N., Fritsch, D., and Sanjuan, B. (2010) :

- Contribution of the exploration of deep crystalline fractured reservoir of Soultz to the knowledge of enhanced geothermal systems (EGS), *Comptes Rendus Geoscience*, vol.342, pp.502-516.
- Gorbatsevich, F.F. (2014) : Density and velocity model of metamorphic rock properties in the upper and middle crystalline crust in the Kola superdeep borehole (SG-3) section, *Acta Geodyn. Geomater.*, vol.11, no.2, pp.165-174.
- Gtigsby, C.O., Goff, F., Trujillo, P.E., and Counce, D.A. (1984) : Geochemical behavior of a Hot Dry Rock geothermal reservoir, *New Mexico Geological Society Guidebook, 35th Field Conference*, pp.265-270.
- Guijun Deng, Alexander Kendall, Christopher Cook, John Wakefield, Frank Maenza, Andy Tom, Mark Knebel (2019) : A Completion Technology Milestone: A HPHT Ultra-High Expansion Openhole Packer for Multi-Stage Completions, *SPE Annual Technical Conference and Exhibition, Calgary, Alberta, Canada, SPE-196044-MS*.
- Häring, M.O., Schanz, U., Ladner, F., and Dyer, B.C. (2008) : Characterization of the Basel 1 enhanced geothermal system, *Geothermics*, vol.37, pp.469-495.
- He, L., Hu, S., Huang, S., Yang, W., Wang J. Yuan, Y., and Yang S. (2008) : Heat flow study at the Chinese Continental Scientific Drilling site: Borehole temperature, thermal conductivity, and radiogenic heat production, *J. Geophysical Research*, vol.113, B02404, 16p.
- 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.
- Huenges, E., Erzinger, J., and Kück, J. (1997) : The permeable crust: Geohydraulic properties down to 9101m depth, *J. Geophysical Research*, vol.102, no.B9, pp.18255-18265.
- 今村哲己, 岩田尊夫 (2004) : 新潟地域における深部探鉱, *石油技術協会誌*, vol. 69, no. 2, 2004, pp. 155-166.
- 猪岡春喜 (1991) : 基礎試錐「東頸城」の実績と今後の課題, *石油技術協会誌*, vol. 56, no. 5, 1991, pp. 422-436.
- 岩松暉 (1971) : 基礎試錐「頸城」のコアに認められるスレートへき開, *地球科学*, vol. 25, no. 4, 1971, pp. 181-183.
- 核燃料サイクル開発機構 (2005) : 高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する知識基盤の構築—平成 17 年取りまとめ—, 分冊 1 深地層の科学的研究, *JNC TN1400 2005-014*, 415p.
- 河合宏則 (1993) : 基礎試錐「三島」におけるプロダクションテストについて, *石油技術協会誌*, vol. 58, no. 5, 1993, pp. 363-370.
- 河井興三, 中西聡 (1972) : 基礎試錐「空知」の坑井地層における弾性波の反射係数について, *石油技術協会誌*, vol. 37, no. 3, 1972, pp. 129-130.
- Kuhlman, K.L., Brady, P.V., Mackinnon, R.J., Gardner, W.P., Heath, J.E.,

- Herrick, C.G., Jensen, J.E., Hadgu, T., and Sevouglan, S.D. (2015) : Deep Borehole Field Test: Characterization Borehole Science Objectives, Prepared for US Department of Energy Used Fuel Disposition Campaign, 48p.
- Kuhlman, K.L., Hardin, E.L., Rigali, M.J. (2019) : Deep Borehole Laboratory and Borehole Testing Strategy: Generic Drilling and Testing Plan, SANDIA REPORT SAND2019-1896, 156p.
- 栗田裕司, 小布施明子 (1997) : 北海道北部、基礎試錐「天北」における第三系～上部白亜系有機質微化石層序, 石油技術協会誌, vol.62, non.1, 1997, pp.13-24.
- Ladner, F. et al. (2009) : Hydraulic characteristics of the Basel 1 enhanced geothermal system, GRC Transactions, vol.33, pp.199-203.
- Lund, B. and Zoback, M.D. (1999) : Orientation and magnitude of in situ stress to 6.5km depth in the Baltic Shield, Int. J. Rock Mech. Min. Sci., vol.36, pp.169-190.
- McKinley, I.G. and Scholtis, A. (1993) : A comparison of radionuclide sorption databases used in recent performance assessments, J. Contam. Hydrol., 13, 347-363.
- Melder, J.E., Hartman, C.J., and Hern, G. (2017) : Change casing removal to a simple and dependable method, The SPE/IATMI Asia Pacific Oil & Gas Conf. Exhib., Jakarta, 5p.
- Murphy, H.D., Lawton, R.G., Tester, J.W., Potter, R.M., Brown, D.W., and Aamodt, R.L. (1976) : Preliminary assessment of a geothermal energy reservoir formed by hydraulic fracturing, SPE ann. Mtg., New Orleans, 17p.
- 長縄成実 (2013) : 国際陸上科学掘削超高温地熱掘削プロジェクト JBBP の実現に向けた技術開発, 石油技術協会誌, vol.78, no.5, pp.360-365.
- 長縄成実 (2017) : 超深度・超高温掘削プロジェクトとそれに伴う技術開発の変遷, 石油技術協会誌, vol.82, no.5, pp.324-331.
- 日本地下水学会 (原位置トレーサー試験に関するワーキンググループ) (2009) : 地下水のトレーサー試験—地下水の動きを知る, 技報堂出版, 396p.
- Pejac, R.D. and Fontenot, E.P. (1988) : Design, Testing, and Planning considerations for a 20-in. record casing string, SPE Drilling Engineering, June, pp.187-194.
- Pratson, E.L., Anderson, R.N., Dove, R.E., Mitchell, L., Silver, L.T., James, E.W., and Chappell, B.W. (1992) : Geochemical logging in the Cajon Pass drill hole and its application to a new, oxide, igneous rock classification scheme, J. Geophysical Research, vol.97, no.B4, pp.5167-5180.
- Pruess, K., C. Oldenburg, and G. Moridis (2012) : TOUGH2 User's Guide, Version 2.1, Report LBNL-43134, Lawrence Berkeley Laboratory, Berkeley, California.
- Rummel, F. and Baumgärtner, J. (1991) : Hydraulic fracturing stress measurements in the GPK1 borehole, Soultz Sous Forets, Geotherm, Sci. & Tech, vol.3,

- no. 1-4, pp. 119-148.
- Saito, S., Sakuma, S., and Uchida, T. (1998) : Drilling procedures, techniques and test results for a 3.7km deep, 500°C exploration well, Kakkonda, Japan, Geothermics, vol.27, no.5/6, pp.573-590.
- 佐野修 (2005) : 地殻応力計測手法と岩石力学, 地学雑誌, vol.114, no.6, pp.1003-1021.
- Sass, J.H., Lachenbruch, A.H., Moses, T.H., and Morgan, P. (1992) : Heat flow from a scientific research well at Cajon Pass, California, J. Geophysical Research, vol.97, no.B4, pp.5017-5030.
- 佐藤修, 佐藤時幸 (1992) : 秋田および新潟油田地域に発達する西黒沢期玄武岩－基礎試錐「仁賀保」・「新潟平野」で認められた玄武岩のもつ意義, 石油技術協会誌, vol.57, no.1, 1992, pp.91-102.
- Schleicher, A.M., Tourscher, S.N., van der Pluijm, B.A., and Warr, L.N. (2009) : Constraints on mineralization, fluid-rock interaction, and mass transfer during faulting at 2-3 km depth from the SAFOD drill hole, J. Geophysical Research, vol.114, B04202, 12p.
- 石油技術協会 (2013) : 石油鉱業便覧, 960p.
- SERDP (The Strategic Environmental Research and Development Program) and ESTCP (Environmental Security Technology Certification Program), ENVIRO Wiki, Geophysical Methods, http://erwiki.org/index.php?title=Geophysical_Methods, (参照 : 2020 年 12 月 6 日).
- 新エネルギー・産業技術総合開発機構 (2021) : 地熱開発促進調査報告書, 石油天然ガス・金属鉱物資源機構ホームページ, <<http://geothermal.jogmec.go.jp/gathering/nedo.html>>. (閲覧日 : 2021 年 1 月 8 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).
- Society of Exploration Geophysicists (2021), SEG wiki, https://wiki.seg.org/wiki/Main_Page (参照 : 2021 年 1 月 10 日).
- Stober, I. (2011) : Depth- and pressure-dependent permeability in the upper continental crust: data from the Urach 3 geothermal borehole, southwest Germany, Hydrogeology J., vol.19, pp.685-699.
- 須田孝一 (1972) : 「基礎試錐稚内」の掘さく障害, 第 37 回石油技術協会総会作井シンポジウム, 1972, pp.316-323.
- 高倉伸一 (2014) : 電磁探査から推定される広域的な地熱系の構造, 物理探査, vol.67, no.3, pp.195-203.
- 高山徳次郎 (2001) : 応力原位置測定のためのブレークアウト法適用条件の確立と同法を用いた地殻応力方位の解析－北海道基礎試錐群における実例－, 千葉大学学位論文,

- 2001, 280p.
- 竹内真司、中野勝志、平田洋一、進士喜英、西垣誠 (2007) : 深層岩盤を対象としたシーケンシャル水理試験手法の開発と適用, 地下水学会誌, vol.49, no.1, pp.17-32.
- Tenzer, H., Schanz, U., and Homeier, G. (1999) : HDR research programme and results of drill hole Urach 3 to depth of 4440 m -The key for realisation of a HDR programme in southern Germany and northern Switzerland, European Geothermal Conf. Basel '99, Proceedings, vol.2, 10p.
- 土田邦博, 吉村尚久 (1996) : I/S 混合層の変化にみられる 2 つの転換帯～基礎試錐「富倉」を例に～, 日本粘土学会 第 40 回粘土科学討論会講演要旨集, 1996, pp.60-61.
- Tynan, M.C., Russell, G.P., Perry, F.V., Kelley, R.E., and Champenois, S.T. (2017) : A Global Survey of Deep Underground Facilities; Examples of Geotechnical and Engineering Capabilities, Achievements, Challenges (Mines, Shafts, Tunnels, Boreholes, Sites and Underground Facilities for Nuclear Waste and Physics R&D): A Guide to Interactive Global Map Layers, Table Database, References and Notes, Idaho National Laboratory, Idaho83415, pp.164-192.
- 氏家良博・新井俊広 (2005) : 花粉化石の明度変化からみた堆積岩の続成作用－基礎試錐「小国」の例－, 地球科学, vol.59, 2005, pp.185-191.
- Valley, B. and Evans, K.F. (2007) : Stress state at Soultz-sous-Forêts to 5km depth from wellbore failure and hydraulic observations, 32nd Workshop on Geothermal Reservoir Engineering, Proceedings, 10p.
- Xu, Z., Yang, W., Ji, S., Zhang, Z., Yang, J., Wang, Q., and Tang, Z. (2009) : Deep root of a continent-continent collision belt: Evidence from the Chinese Continental Scientific Drilling (CCSD) deep borehole in the Sulu ultrahigh-pressure (HP-UHP) metamorphic terrane, China, Tectonophysics, vol.475, pp.204-219.
- 山本晃司 (2007) : 坑井取得データによる応力計測の実際－総合検討の一部として, 物理探査, vol.60, no.2, pp.113-129.
- Zoback, M.D. (2010) : Reservoir Geomechanics, Cambridge University Press, 502p.
- Zoback, M.L. (1992) : First- and second-order patterns of stress in the lithosphere: The world stress map project, J. Geophysical Research, vol.97, no.B8, pp.11703-11728.

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

以下に令和2年度に実施した上記事業項目の成果を総括する。

(1) 処分容器の挙動評価

純銅処分容器のわが国の地質環境への適用の検討については、純銅の処分容器としての適用条件や長寿命を達成可能な環境条件の評価に資するため、硫化物濃度をパラメータとした純銅の腐食試験（浸漬試験、応力腐食割れ試験）、圧縮ベントナイト中での応力腐食割れ試験、高い耐食性を示す可能性のある候補材料の一つであるニッケル基合金（Alloy C-276）のすきま腐食試験を行った。これらにより、硫化物濃度をパラメータとした純銅の浸漬試験では、硫化水素濃度が1%の条件で、緩衝材共存下では溶液単独系よりも硫化水素による腐食への影響が緩和されることがわかった。また、硫化物共存下で実施したUバンド試験の結果、典型的な割れは発生しないが、生成した皮膜下に粒界腐食のような腐食形態が発生することがわかった。圧縮ベントナイト中での応力腐食割れ試験では、ベントナイト密度が皮膜形成挙動に影響を与える可能性があることがわかった。他の候補材料については、高耐食性金属のひとつであるニッケル基合金（Alloy C-276）のすきま腐食試験を実施した結果、1M以下の塩化物イオン濃度ではAlloy 22と較べてすきま腐食が発生しにくいことがわかった。

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、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、燃料被覆管の腐食による酸化物の生成と水素化に着目した臨界解析を行い、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、処分容器や人工バリアで現実的に生じる可能性がある変形・破壊を伴う現象に着目し、処分後に臨界が起こる可能性が高い材料配置のパターンを整理し、このような材料配置のパターンが現実に関り得るかを把握するための情報の整理を行うとともに、抽出された材料配置のパターンが生起する可能性の把握に向けた予備的な力学解析を実施した。さらに、これらの検討結果から、過度に保守的とならない現実的で合理的な臨界安全評価を行うための課題を整理した。

(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は、使用済燃料の溶解速度に及ぼす炭酸の影響の評価を目的として、マトリクス溶解指標物質としてマグネシウムを固溶させた二酸化ウランペレット

を用いた溶解速度測定試験に着手した。マグネシウムが固溶された二酸化ウランの調製には成功したものの、溶解速度測定試験で得られたマグネシウムの溶解速度は予想よりも大幅に高く、その原因として一部のマグネシウムが酸化物として存在していることの影響が推定された。また、炭酸共存下における非晶質二酸化ウランの溶解度について、海水系地下水を意識したやや高い塩濃度条件でのデータ取得を実施し、熱力学計算結果が過年度分を含めた試験結果を概ね再現できることが確認された。ウラン酸化物の溶解挙動については、表面分析等により溶解挙動を詳細に考察することを目的として、二酸化ウラン等の表面のラマン分光分析等を行い、炭酸成分がウラン酸化物の溶解に寄与し、 UO_2 の欠陥が不均質に生成することが観察された。さらに、使用済燃料からの核種の瞬時放出挙動評価を目的として、大気下において実際の使用済燃料を炭酸水溶液等に浸漬する試験に着手し、いくつかの元素の溶出挙動の特徴を示唆するデータが得られた。

緩衝材の挙動評価については、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、銅試験片を用いたカラム変質試験、銅粉を用いたバッチ変質試験、銅粉とベントナイトを混合してカラムに圧縮して変質挙動を観察する試験を実施し、陽イオン交換容量や溶液組成分析を行うとともに、試験試料の表面観察や構造分析を実施した。その結果、銅との相互作用によりベントナイトが大きく変質していないことが確認されるとともに、炭酸及び鉄の共存が圧縮ベントナイトの変質挙動に影響を及ぼさないことが示唆される結果が得られた。

(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に向けて、システムの性能やシステムの設計仕様の考察の方法の検討、また、その考察に資する情報の整備を進めた。情報の整備では、使用済燃料マトリクスや処分容器の腐食についての評価等に反映できるように、複数の構成要素の影響を考慮した地下水組成の情報（想定される炭酸濃度や硫化物濃度の幅等）を整理するとともに、保障措置・核セキュリティ対策の直接処分の設計等への影響の可能性についての検討に反映できるように、保障措置・核セキュリティ対策により影響を受ける可能性のある直接処分システムの構成要素、影響の種類・程度ならびに対策案などについて、現段階での情報に基づく予察的整理を行った。また、平成 31 年度までの課題の整理結果について、そのわかりやすさや有用性などの向上のための課題の表現や課題の粒度の統一、補足情報の対応付け等を実施した。

保障措置・核セキュリティに関しては、最新の情報・知見の収集・整理として、2023 年までにサイト選定が進められる予定のカナダの CNSC および NWMO を調査し、独立した規則体系が構成されていること、サイト選定に向けた法整備が進んでいることなどを確認した。また、様々な技術を取り入れた保障措置技術の開発が進んでいることを確認した。一方、処分施設にどのような保障措置手段を適用するのかについてのカナダでの具体的な検討状況は今回調査した範囲では確認できなかった。

なお、本事業項目については、システムの成立性を効果的に検討するための課題の整理およびそれら課題への対応を進めるという目的に対して一定の成果が得られたと考えられる。そのため、今後、本事業項目では、令和 4 年度のプログレスレポート作成（先行事業および

本事業での個別課題の成果の体系的な取りまとめ、システムの成立性に係る議論等を含む)の全体管理を行うこととする。

(4) その他の代替処分オプションについての調査

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、まず、国内外での最新の関連情報等の収集・整備として、米国のDeep Isolation社の超深水平処分の閉鎖後安全評価の事例等の調査、また、超深孔処分に関係する3つの技術(掘削技術、地質環境調査技術、設計・安全評価に係るデータ取得技術)についての情報の調査を実施するとともに、調査した3つの技術の情報について、超深孔処分の現段階での技術的実現性や課題等の検討で使いやすくするためのわかりやすい整理や表示等のアプローチの検討に着手した。

また、超深孔処分の閉鎖後安全性に影響する因子の検討については、超深孔処分システム全体での核種移行のパターンを、超深孔中の上向きの移行等に着目して整理した。さらに、水理・物質移行解析により、各移行パターンの発生の有無やその条件等を分析した。その結果、どの移行パターンが顕在化するかは、「地下水流動の方向」、「母岩の透水係数」、「超深孔の透水性(含む、バリア機能の有無)」のバランスに依存する可能性が示唆された。

なお、超深孔処分の閉鎖後安全性に影響する因子の解析的検討については、本年度までに、因子の抽出および因子が影響する条件の整理等の検討が一通り実施でき、目的に対して所定の成果が得られたと考えられるため、本年度で終了とする。これらの閉鎖後安全性に影響する因子についての成果や知見については、超深孔処分および関連分野の情報の収集・整理での重要ポイントの設定等に適宜活用していく。

(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。

また、本事業の中間評価として、平成30年度の本事業開始から令和2年度11月時点までの進捗状況と達成度および本事業での今後の課題等についてコメントやご意見をいただき(付録1参照)、今後の事業の計画立案と実施に反映することとした。

6.2 今後の計画

以下に各事業項目の今後の計画の概要を示す。

(1) 処分容器の挙動評価

純銅処分容器のわが国の地質環境への適用の検討については、環境条件による純銅の腐食への影響に関し、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、緩衝材密度の作用や長期的な影響などの知見を拡充していく。純銅以外の高い耐食性を示す可能性のある候補材料については、酸化性環境での耐食性評価を目的と

してすきま腐食に関するデータを拡充するとともに、知見の不足している低酸素環境での腐食量評価・水素吸収挙動等の実験的な検討を行う。

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、処分容器、緩衝材、燃料被覆管等の複数材料での状態変化が同時に起こる場合の実効増倍率の変化の傾向および変化を引き起こす要因等の把握、臨界に影響のある材料の変形や破壊が起こり得るかどうかを把握するための解析モデル等の構築、それら検討で重要となる不確実性の取り扱い方法の整備等を実施していく。

(2) 使用済燃料、緩衝材の挙動評価

使用済燃料の挙動評価については、マトリクス溶解指標物質を固溶させた二酸化ウランペレットを用いた溶解速度測定試験について、 $(U, Mg)O_2$ ペレット中に含まれる MgO もしくは $Mg(OH)_2$ 成分を除去した上で溶解速度測定を実施する。また、 UO_2 ペレットの表面の分析については、6価ウラニル水溶液を出発物質とした浸漬試験とラマン分析を実施し、ウラン水和物や非晶質の $UO_2 \cdot xH_2O$ のラマンスペクトルを取得することで UO_2 の再沈殿過程を検討する。使用済燃料からの瞬時放出についての実際の使用済燃料を用いた浸漬試験では、照射条件の異なる使用済燃料を用いた浸漬試験を実施するとともに、雰囲気制御下での試験の実現に向けた検討を実施する。

緩衝材の挙動評価については、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・炭酸共存下、低酸素雰囲気・炭酸共存下、低酸素雰囲気・鉄共存下の3種類の銅粉混合カラム試験（銅粉とベントナイトを混合してカラムに圧縮して変質挙動を観察する試験）について試料の分析（EPMA 観察、XRD 測定による鉱物同定、湿度制御 XRD 測定によるベントナイトの Ca 型化の分析、CEC 測定）を実施し、炭酸および鉄の共存がモンモリロナイトの変質に影響を及ぼす可能性について検討を行う。また、この結果を元に、緩衝材の変質が顕著となる可能性のある条件を抽出し、抽出した条件下で銅の腐食量と緩衝材変質量の関係等の検討を目的とした試験に着手する。

(3) その他の代替処分オプションについての調査

超深孔処分について、3つの技術（掘削技術、地質環境調査技術、設計・安全評価に係るデータ取得技術）に関する情報収集等を継続するとともに、それら情報についての、超深孔処分の現段階での技術的実現性や課題等の検討で使いやすくするためのわかりやすい整理や表示等のアプローチの具体化、さらにそのアプローチを適用したわが国での超深孔処分の技術的実現性や課題等の検討に向けての情報整備を進める。

(4) 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。

付録1

中間評価報告書
(本編1章に付す：1.3項)

1. 概要

令和2年12月2日、国内専門家（5名）を招聘し、本事業の平成30年度からの令和2年度途中までの成果や進捗と今後の方針についてレビューを行うための中間評価を実施した。

本報告書は、中間評価としてのコメントを取りまとめたものである。

2. 日時場所

日時：令和2年12月2日（水）10:00～16:15

開催方式：Web会議形式

3. 中間評価コメント

国内専門家から書面で提出された事業全体と項目ごとの以下の観点でのコメントを示す。

（事業全体）

- (a) 事業の目的に照らしてこれまでの研究内容とその成果の妥当性
- (b) 残された課題や5ヵ年（今後）の実施計画の妥当性
- (c) その他のコメント・ご意見

（項目ごと）

- (a) 評価される点
- (b) 今後の課題
- (c) その他のコメント・ご意見

3.1 事業全体

(a) 事業の目的に照らしてこれまでの研究内容とその成果の妥当性

- 第1次取りまとめにおける抽出課題項目は、先行事業および関連事業において検討され、本事業においても発展的に幾つかの評価が進められてきた。特に閉鎖後長期にわたる処分容器候補材の耐久性評価、破壊的事象による臨界シナリオの模索、地下水場における処分容器と緩衝材との相互作用評価、燃料マトリクスの溶解予測モデルの構築など、各評価は、我が国に適した直接処分設計が可能かを検討する重要な材料と認められる。時間・人・予算の制約があることは避けられないものの、多様な専門家を擁する機構が中心となって推進すべき評価課題である。その意味で、実験条件の的確な設定が必要で、これまでの試験計画は概ね妥当であり、課題解決に資する成果が得られつつあると思われる。
- 概ね妥当。直接処分等代替処分技術高度化開発と銘打っているだけに、各研究項目の高度化という目標に向かっての取り組みは評価できる。研究項目の中での成果は、目標達成に近いと考えてもよい状況である。ただし、研究項目が全体計画の中にどのようなパーツとして組み込まれるかの、またその位置づけについて「直接処分システムの成立性」の中で、しっかりと確認、整合性をとる努力が必要であろう。
- 先行事業の成果を踏まえて抽出した重要な課題に対して集中した検討を行う研究内容となっている。いずれも専門性の高い検討が実施されており、計画に対して妥当な成果があげられている。

(b) 残された課題や5ヵ年（今後）の実施計画の妥当性

- ▶ 今後の各項目における試験の計画は概ね妥当である。ただ第1次とりまとめからの時間経過もあり、個々の具体的な成果を統合した上で、システムティックな観点をもって評価することが、次の局面（より多面的で現実的な課題の設定）を見通す鍵となることから、本事業後半ではより柔軟に現実的な落としどころを探っていたきたい。また、最終年度のプログレスレポートにおいては、これまで（先行研究を含む）に得たデータの品質、不確実性の評価も重要と思われる。その上で、様々なシナリオ下でのシステム成立性評価に不可欠な本事業後の技術的課題がその優先度にも留意しつつ抽出されることに期待したい。
- ▶ 実際の「直接処分」と比較したときを考えると、時間スケール、空間スケール（スケール効果）をどのように評価するか、プロジェクトの各段階で考慮に入れておかなければならない（難しい問題ではあるが）。
- ▶ 現在策定されている5ヵ年実施計画は、今年度の中間報告時点で見直しが行われているが、今後内容のチェック、見直しを行い、プログレス レポートに反映させていきたい。
- ▶ いずれの課題についても妥当な実施計画となっていると判断される。

(c) その他のコメント・ご意見

- ▶ プログレス レポートは何であるかを説明しておくこと。Progress はある目標・方向に向かって絶え間なく進んでいく進歩という意味を持っています。そうするとレポートは、五ヶ年計画の最終というわけではなく、更に先を見据えての大きな計画の中での「一区切り」という意味合いになるのでしょうか。
- ▶ 他の委員の方から指摘が出ているようにいろいろな面で長期的な挙動の予測やモデル化が、ここで実施されたことを足掛かりにあるいは継続して進めていかないと手戻りになる感じがします。個々での成果の継続・発展、さらには得られたデータのオープン化を最後には論じてもらえるといいと思います。ここまでJAEAでやってきたので、JAEAでしかできないことを示唆されることも必要かと思います。

3.2 項目ごと

(1) 処分容器の挙動評価

(1-1) 処分容器の腐食挙動評価

(a) 評価される点

- ▶ 我が国特有の処分環境条件が銅等の候補材料の腐食反応・割れ等におよぼす影響に着目して、試験を行っている。試験方法や条件（特に硫化物）を適切に選択し、影響度の評価が着実に進められている。
- ▶ 実験等により様々な環境下での純銅の挙動が解明されてきており、腐食挙動評価で成果が上がっている。
- ▶ 銅以外の候補材料を対象とした腐食試験が実行され、処分容器としての性能評価に関連付けた検討が着実に進められている。

- ▶ 処分場閉鎖後長期の純銅製容器の健全性を保証する際に重要となる、低酸素濃度下での純銅の腐食挙動への硫化物イオンの影響を硫化水素ガス吹き込み下で検討している。また、処分容器の短期破壊の要因となる応力腐食割れについても、同じく硫化水素ガス吹き込み下で純銅の応力腐食割れ感受性を検討している。令和3年度には、緩衝材が共存した条件での純銅の割れ感受性の評価が計画されている。

硫化水素ガス吹き込み下での検討は、緩衝材に浸潤する模擬地下水硫化物イオン濃度を任意の一定値に保てるため再現性に優れるが、高濃度の有毒ガスを扱うため大学などでの実施は困難であり、本事業での実施は大きな意義がある。本年度までの検討結果から、緩衝材共存下においては硫化物による純銅の腐食挙動が有意に緩和されることが示された。この結果は、銅容器の適用条件の拡大や長寿命達成の可能性を提示するものである。また、再現性に優れる方法での結果であることから、今後の機構検討の基準データとして広く活用されることが期待できる。

(b) 今後の課題

- ▶ これまでの比較的短期の試験を今後継続発展させる中で、より現実的な環境条件下での反応機構の理解、それに基づく長期予測モデルの検討を視野により定量的な評価を目指して頂きたい。候補材性能の相互比較はその後の課題抽出に重要であり、プログレスの取りまとめで総括されることに期待したい。
- ▶ 局部腐食の生起可能性をどこまで突き詰められるか、出来る範囲の見極めが必要であろう。
- ▶ 硫化水素ガスを吹き込んだ条件下での実験の溶液には、いずれも海水系地下水を想定した人工海水が使用されている。国内の幅広い地下環境での耐食性を考えると、今後のプロジェクトでは、必要に応じて淡水系地下水を想定した溶液中での同様の検討が望まれる。

(c) その他のコメント・ご意見

- ▶ 記載されているように、腐食試験、長期の挙動、長期の試験結果を取得しておくことが必要かと思えます。一方で、最低、〇〇時間の試験はしなければならない、というものがあれば、それを記載して、そこだけは必ず実施できるように継続されてはどうでしょうか。長ければ長いほどいいのかもしれませんが、難しいですね。実際のプロジェクトも長期のものなので、どれだけやっても短いような印象を与えますね。難しいところですね。
- ▶ 主として実験室内での小スケールの実験に基づいた結果より、性能評価がなされているが、実現象へのスケールアップをどのように考えればいいのか、今後プロジェクトの終盤に向けてアップスケールリングについての検討が行われても良いのではないかと。
- ▶ 大学では出来ない条件で実験が行われており、今後の成果の公表が期待される。
- ▶ 各種のニッケル基合金の中で、すき間腐食感受性に関するデータが充分では無い276合金のすき間腐食試験が実施されている。最終年度の検討では、ユッカマウンテン計画での候補材であった22合金など、同じニッケル基合金で既にすき間腐食感受性が検討されている材料との比較を整理することが望まれる。また、276合金や22合金はいずれもNiやMoなどのレアメタルを主な成分とする高価な材料であることから、経済性を評価する際に必要となる鋼製の内部構造との複合化の方法（肉厚や施工の方法など）についても、現時点での技術課題を含

めて整理し提示することが望まれる。

(1-2) 使用済燃料処分での処分後臨界安全評価

(a) 評価される点

- ▶ 本評価の机上検討では、個々の状態設定で妥当な保守性を堅持しつつ、設定の重畳が過度に保守的となるのを避けて検討するという困難な課題であるが、既往の臨界解析手法を基礎に成果が得られつつある。
- ▶ 類似の条件を有する諸外国での検討結果がまとめられたこと、また、日本独自の条件設定が行われており、諸外国と異なる知見が得られていることは、高評価である。
- ▶ 下記の3点については、順調な進捗が図られており、十分評価できる。
 - 文献調査
 - 鉄容器の腐食による影響の解析
 - 被覆管の腐食による影響の解析
- ▶ 諸外国で実施された解析では十分に考慮されていなかった、個別の影響が複合的に作用する場合（処分容器や人工バリアの崩落等によって引き起こされる大きな変形・破壊による影響）の評価に取り組んでいる。新規な検討であり、直接処分を検討している諸外国の安全評価にも影響を与える本質的な成果が期待される。

(b) 今後の課題

- ▶ 臨界性の感度解析では、将来の課題抽出に取りこぼしが起きないように、例えば、複数材料の状態変化の組合せ、放射線場の影響など、複合的な場の設定を想定して評価を進めることが望ましい。
- ▶ 処分容器の腐食による臨界安全性への影響に対するSKB（スウェーデン）での解析結果について、詳細な分析や再現解析の実施などにより、k-eff変化を引き起こす要因とその度合いを明らかにしておくこと。
- ▶ Zr・水反応により生成される水素化Zrに対する臨界安全解析においては、熱中性子の散乱モデル（Scattering Kernel）の影響を評価しておくこと。

(c) その他のコメント・ご意見

- ▶ 文章表現の整合性はとれているか？「・・・臨界になり易い体系を過度に保守的に仮定して臨界解析を実施」に対して「現実的な材料配置を想定し、過度な保守性を排除した臨界安全評価手法」
- ▶ 大きな変形・破壊の影響に関する予備検討：力学モデルを作成するにあたって処分容器や人工バリアを個別に評価するのではなく、周りにある岩盤環境や力学条件を加味して、モデルを作成する必要があると思います。せん断破壊の例図は現実味がない。断層の動きを考慮するのであれば、可能性ありです。
- ▶ 令和2年度実施「3. 個別の影響が複合的に作用する場合の評価手法の検討」については、検討内容をより明確にし、解析方法についてもより具体的に設定すること。

- ▶ 個別の影響が複合的に作用する場合の評価については、新規な取り組みであることから、本事業の期間内で小さくまとめるのではなく、次のフェーズに続けることを前提に、課題抽出に重点を置いた検討を行った方が良いかもしれない。

(2) 使用済燃料、緩衝材の挙動評価

(2-1) 使用済燃料集合体からの核種溶解挙動評価

(a) 評価される点

- ▶ 溶解速度評価において、特に炭酸影響を中心に試験が着実に進められている。同パラメータは臨界シナリオ検討にも重要と思われる。溶解反応機構の理解を助ける様々な分析アプローチが試みられており、これまでに無い新規な成果も得られている。信頼性の高い溶解速度モデルの構築に至るまで更なる努力に期待したい。また、我が国の実試料を用いる溶解挙動評価について、試験の計画を含む準備が着実に進められている。
- ▶ 文献調査の結果等を踏まえ、試験体制を確立し、大気雰囲気における燃料浸漬試験が実施可能であるという見通しを得ることが出来た。
- ▶ 燃料の代表成分である UO_2 の溶解度等は無機炭素濃度依存性が見られることを明らかにした。
- ▶ 炭酸が存在することの影響が重要であると指摘できたことは、成果が出ていると言える。
- ▶ 我が国の処分環境の特性を考慮し、ウラン酸化物の溶解への炭酸塩の影響について、文献調査も含め着実な検討が行われている。非晶質 UO_2 の溶解速度と炭酸塩の濃度との関係について詳細な解析が行われている。使用済燃料の浸漬試験については、瞬時放出率を推定する上で重要であるが、他機関での実施は困難であり、本事業での実施は大きな意義がある。

(b) 今後の課題

- ▶ 引き続き溶解速度データや熱力学データの取得を目指し、模擬燃料・実燃料による試験を継続することが望ましい。その際、長期溶解速度が過小評価とならないよう留意し、試験計画を策定すべきである。例えば、固相近傍での溶解再沈殿によるウランの見かけ濃度の低下原因を明らかにするための試験に加え、還元的なORP電位を制御するための電気化学的手法の高度化、ラマン分光等による直接観察による状態情報の取得など、データの解釈を助ける情報の蓄積も必要である。
- ▶ 燃料集合体の長期溶解速度について、炭酸濃度等地下水水質の影響を考慮したより信頼性の高い値を求めるべき、一層の検討が必要と思われる。

(c) その他のコメント・ご意見

特になし

(2-2) 緩衝材の長期挙動評価

(a) 評価される点

- ▶ 種々の化学条件下での緩衝材の変質挙動の把握は、長期安全評価に不可欠である。緩衝材と銅+硫黄との相互作用に着目し、化学影響の複合的な評価が進められ、着実な成果が認められる。これま

での成果から注目すべき変質・劣化は概ね見られないものの、一部でCu型化進行の可能性も見られており、メカニズムの理解を含む影響評価が順当に進んでいる。

- 処分容器としての銅と我が国固有の緩衝材クニゲルV1の相互影響を高炭酸濃度の地下水環境下で評価したもので、貴重な知見が得られている。
- 銅との接触に伴う緩衝材の長期挙動について体系的な検討が行われている。ベントナイト中に移行した銅の存在位置や形態について丁寧に解析されており、銅の腐食挙動への緩衝材の影響を考察する上でも有用なデータが得られている。

(b) 今後の課題

- 上記検討（種々の化学条件下での緩衝材の変質挙動の把握、緩衝材と銅+硫黄の相互作用に着目した化学影響の複合的な評価）に加えて、緩衝材境界で重要な鉄および炭酸の影響を評価する試験が進むなど、より多くの複雑かつ現実的なシナリオの検討に入る段階にあると認められる。各試験の発展が期待される。
- 比較的短い試験期間の試験結果が、実現象の超長期環境にどのように外挿できるかは、難しくても継続的に議論しておく必要がある。
- 緩衝材が変質した場合の影響度（化学的、力学的）を異なる観点からどうなるか解説しておいて欲しい。

(c) その他のコメント・ご意見

- 安全評価パラメータの視点、例えばCu型化ベントナイト生成時に透水性に及ぼす影響や、予想される変質領域厚みなどの知見が、バリア設計に反映される形でプロGRESSとして取りまとめられることに期待する。
- 我が国特有の条件の前に、基本的に考えなければならない条件を示さなくていいでしょうか？
- 我が国特有の条件と変質挙動の関係がよくわかりません。
- トンネル工事では、モンモリロナイトなど粘土鉱物においてCa型かNa型か混在型か確認して、膨潤性挙動の発現を確認することがあります。初歩的な質問で申し訳ないのですがクニゲルV1はどのようなものになるのでしょうか？
- 前段において、カラム試験とバッチ試験それぞれの試験目的と両試験方法の違い、なぜ2種類の試験を行うかを整理して説明していただきたい。
- 変質しているかどうかの線引きは何か。変質量の多寡が、緩衝材の中の他の種々のパラメータに及ぼす影響をどのように評価できるか？

(3) 直接処分システムの成立性の多角的な確認

(a) 評価される点

- 第1次取りまとめ以降抽出されてきた課題が本事業に反映され、個々の評価のためのR&Dとしては着実な成果が見られ、それらのもと、システムの成立性を多角的に検討する試みはこれまで重視され

ておらず挑戦的な課題と言える。ただ現状本事業の様々な最新知見を反映した検討には至っていないため、より現実的な評価検討を進め、取り纏める必要がある。

- ▶ 多種多様な処分システムの成立において検討すべき項目が網羅的に整理されている。また、それらの関連が示されており、システムの全体像を把握するのに非常に理解しやすいまとめ方になっている。
- ▶ 真摯に我が国で直接処分システムが成り立つのかを様々な視点から評価しようと努力している。
- ▶ 我が国の地層処分環境で直接処分を実施する際の課題について、起点となる代表的な4つの要因についてPIM手法を用いた整理が行われている。本事業の個別課題の成果のまとめならびに今後のプロジェクトで重点的な検討が必要な課題の抽出への活用が期待される。

(b) 今後の課題

- ▶ プロGRESSレポート（最終報告）では、例えば、我が国の直接処分システムのどの構成要素の組み合わせがより大きな影響を及ぼしうるのか、成立性の検討においてどの課題が優先されるべきなのか（個別の成果を統合した上でのアウトプット、つまりシステム全体からの視点で新たな課題が抽出できたというように踏み込んだもの）といった観点で評価することが望ましい。
- ▶ 「操業時の坑道力学的安定性の確保」となっていますが、水理学的な安定性も考慮しながら進めるべきでは。グラウト注入が前提で対応となっているが、グラウト注入は一般に力学的な安定性の確保にはあまり寄与せず（検討には含まないのが一般的）、止水性等水理学的な安定性に寄与することが前提となっている。
- ▶ 保障措置・核セキュリティ対策については、物理的な対策だけでなく、サイバー攻撃のような仮想空間におけるセキュリティとは何かを検討しておく必要があるのではないかと？

(c) その他のコメント・ご意見

- ▶ 言葉の使い方の問題ですが、「地下施設（坑道 レイアウト等）」となっていますが、坑道とレイアウトが併記されるのが、異なる種類のものなので違和感があります。「処分空洞、アクセストンネルおよびそれらのレイアウト」ならわかるのですが。狭いところへの記載なので、仕方がないのかもしれませんが。
- ▶ プロGRESS レポートと銘打つ理由を今一度解説の中に入れていただきたい。なぜPROGRESSなのか。
- ▶ 使われている言葉、用語の定義をしっかりと、意味のはき違えがないように注意されたい。

(4) その他の代替処分オプションについての調査

(a) 評価される点

- ▶ 掘削技術やTHMC情報の事例調査が着実に進められており、我が国への適用における課題が抽出されている段階にある。

- 超深孔処分という全く異なる発想の処分オプションを検討することによって新しい知見を得ることが出来、刺激を受けている。

(b) 今後の課題

- 本事業では、我が国で掘削する際に参照しうる技術があるか、また深地層での環境条件は従来の処分概念でカバーできるかといった、大枠の議論が中心であるように見える。今後、さらに多岐にわたる技術開発や安全評価に必要と思われる条件（例えば回収可能性、高温高压での水化学）が無い確認し、より幅広い課題抽出につながることを期待する。
- どのような超深孔が掘削できるのか。深さと口径に対する細かい検討が必要であり、逆にどのような条件が必要なのか、その条件を満たすための技術はあるのかについても整理する必要がある。（処分容器に収納できる燃料集合体の体数は、堅置きを想定する場合で最も厳しい評価となり、PWRで1体以下、BWRでは4体以下となる という記述から必要な口径が決まるのではないか。）
- 科学的適地の中で、超深孔処分に対応出来る場所は選定可能なのか、全く可能性はないのかの検討は検討しておくべきではないか。
- 掘削深度や口径に関しては、過去にチリの鉱山での落盤事故により閉じ込められた作業員達を救出するために掘削された立坑は、深さ1000m程度、口径は人を助け出すために必要な大きさを持っているので、相当の大きさだったと記憶していますが、定かではありません。確認が必要である。

(c) その他のコメント・ご意見

- 超深孔処分は、一つの選択だと思います。ただし、調査だけでも莫大な費用を要する感じがします。コスト面での実現可能性について、言及できる方がいいですね。
- 深部、応力状態をまず調べないと成立しないのではないのでしょうか？プレートのぶつかり合う日本列島では、深部での水平応力場がどのようなになっているのか、知っておく必要があると思います。
- 定置を縦長に考えられていますが、長い距離にわたって正確に地質条件・応力場を計測するより、一定の深度で水平に展開する方が有利ではないのでしょうか？ただ、水平掘削の難しさがありますね。
- なぜこのような超深孔処分の発想が出てきたのか、その利点は何なのかを整理し、出来ないという理由を述べるのではなく、どうしたら実現可能性が向上するかの検討をすると前向きな議論が出来る。

以上

付録 2

課題の表現や詳細度の見直しに関する
検討結果

(本編 4 章に付す：4. (2) 1) ①項)

本付録では、4章で述べた、課題の表現や詳細度の見直しによる見やすさ、わかりやすさの向上についての検討結果を示す。

具体的には、平成31年度までに実施した以下の4つの要因についての課題の整理結果に対して、各課題で対象とする内容の範囲の違いなどを確認し、必要に応じて課題の細分化、統合、あるいは追加などを行い、課題の粒度のばらつきを小さくしていくなどの検討を行った。また、課題の配置や課題間をつなぐ線の配置などの見直しも適宜行った。

- C-14 や I-129 等の瞬時放出成分の影響
- UO_2 マトリクス溶解促進の可能性
- 岩盤強度や透水性が北欧等と異なることの影響
- U及びPuのインベントリが大きいことの影響

以下では、4つの因子ごとに「令和2年度に実施した主な見直しの内容」を示し、あわせて「平成31年度までに整理した課題」と「令和2年度に見直しを行った課題」を示す。

- C-14 や I-129 等の瞬時放出成分の影響

令和2年度に実施した平成31年度の整理に対する主な見直しは以下のとおりである。

- ▶ 対策「地震・断層や隆起などによる多数の処分容器の同時開口の可能性の評価」については、平成31年度の整理ではニーズ「日本の処分環境での銅などの安定性の把握」に対する対策として記載していたが、「時間あるいは空間的分散の影響鈍化」に対する対策として記載するように修正
- ▶ ニーズ「処分環境での現実的腐食速度推定」に対する対策として、「処分容器仕様（厚さなど）の多様化」を追加
- ▶ ニーズ「亀裂ネットワーク等の岩盤不均質性の把握」に対する対策として、「処分パネルの多段化による核種移行の空間的分散」を追加

「平成31年度までに整理した課題」を付図2-1に、「令和2年度に見直しを行った課題」を付図2-2に示す。

- UO_2 マトリクス溶解促進の可能性

令和2年度に実施した平成31年度の整理に対する主な見直しは以下のとおりである。

- ▶ 大きな見直しは無く、同様の課題が複数の因子に係る課題として現れる場合があり、その場合に表現のばらつきがあったことに対して、表現の見直し、用語の統一のみ実施した。

「平成31年度までに整理した課題」を付図2-3に、「令和2年度に見直しを行った課題」を付図2-4に示す。

- 岩盤強度や透水性が北欧等と異なることの影響

令和2年度に実施した平成31年度の整理に対する主な見直しは以下のとおりである。

- ▶ 対策「臨界を回避可能な処分容器の設計」を「臨界を回避可能な処分容器への収納体数の設定」に修正
- ▶ 対策「隆起・侵食によって処分場が地表に接近し、酸化還元フロントを横断する

際にUの濃集・臨界が生ずる可能性の評価」について、平成31年度の整理では対策「 α 線による放射線分解で生ずる酸化還元フロントの伝播に伴う坑道近傍でのPuやUの濃集・臨界が生ずる可能性の評価」に対する対策として記載していたが、ニーズ「溶出したPuやUが化学フロントなどで濃集し臨界に至る可能性」に対する対策として記載するように修正

- ▶ 対策「将来の酸化還元フロント深度分布の予想」に対する対策として、対策「処分パネルの多段化」を追加
- ▶ 使用済燃料の多様性に関する項目として、ニーズ「使用済燃料の特性（インベントリ、発熱量等）」および対策「既存の設計事例の適用性の評価、代替案の提示」、「緩衝材制限温度などの設定の考え方の再検討」を追加

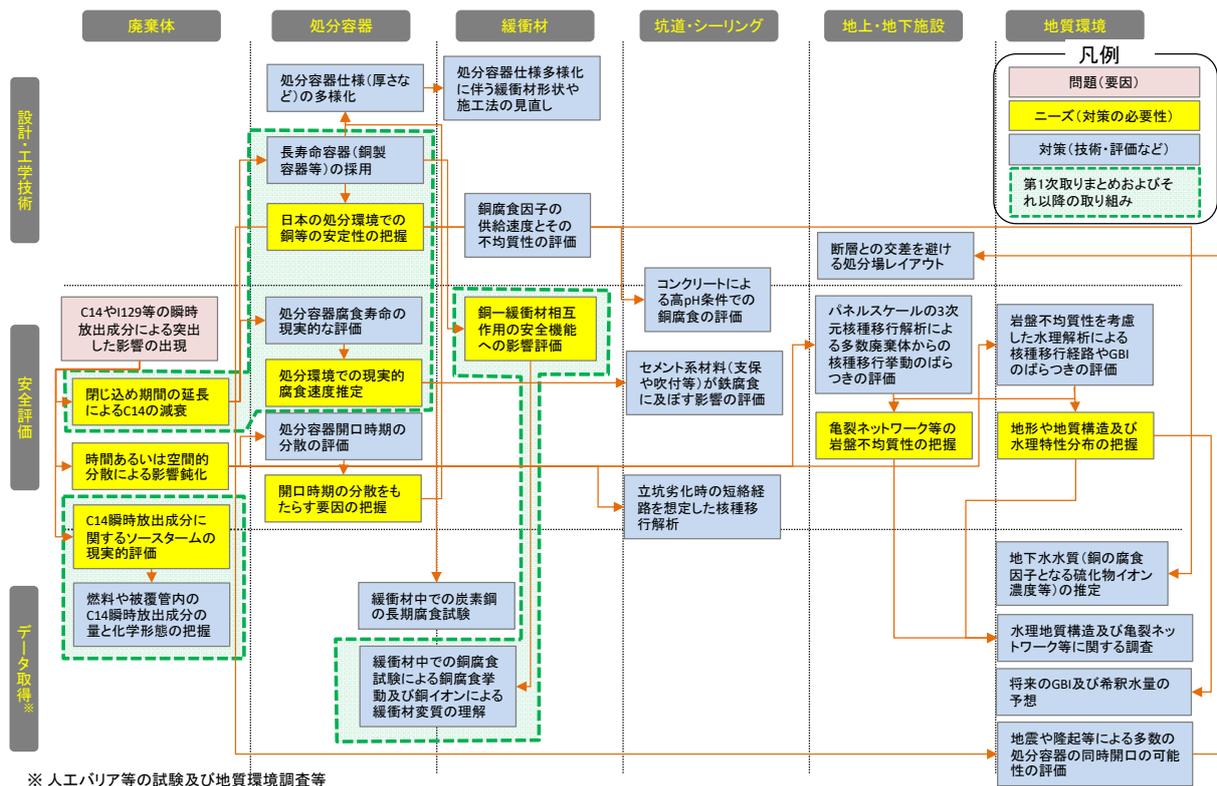
「平成31年度までに整理した課題」を付図2-5に、「令和2年度に見直しを行った課題」を付図2-6に示す。

- U及びPuのインベントリが大きいことの影響

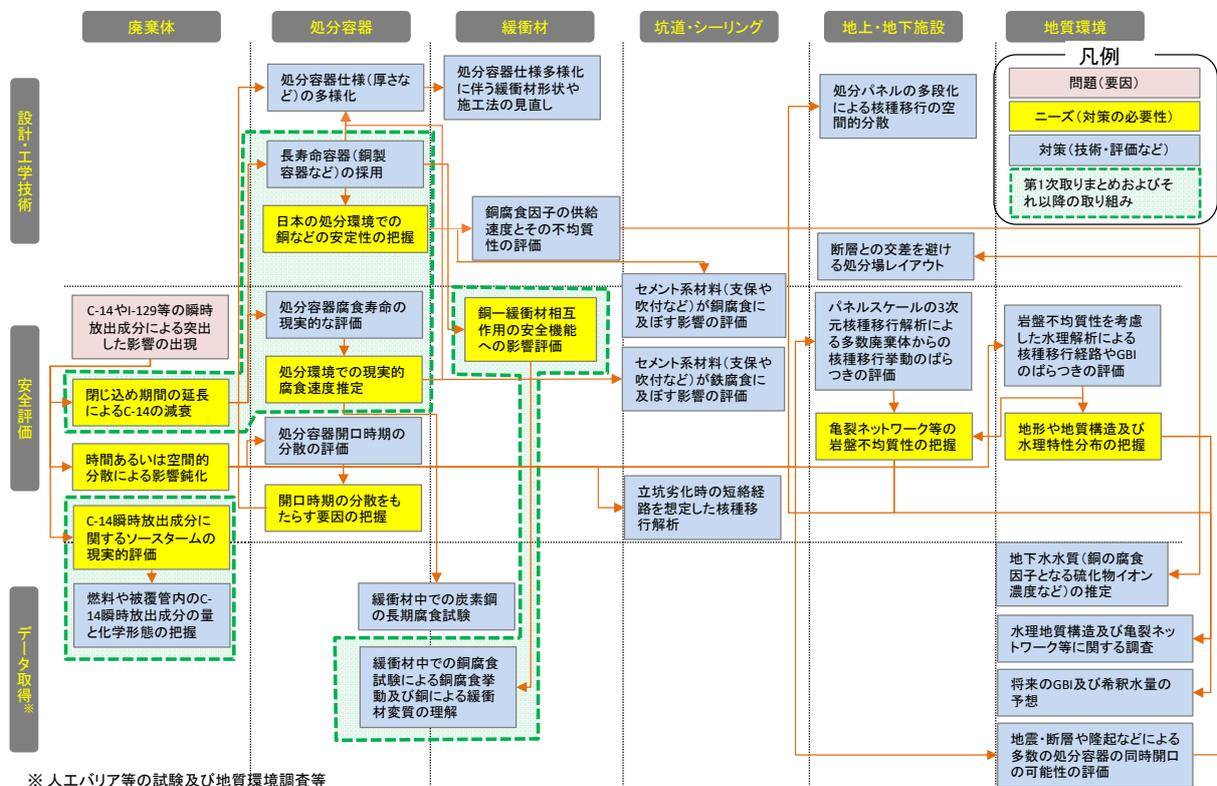
令和2年度に実施した平成31年度の整理に対する主な見直しは以下のとおりである。

- ▶ ニーズ「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」は、上位の対策「高pH条件での炭素鋼の孔食や不動態化に関する試験」との関係性が弱く、また他の因子の課題としてあげられているため、関連する対策を含めて削除

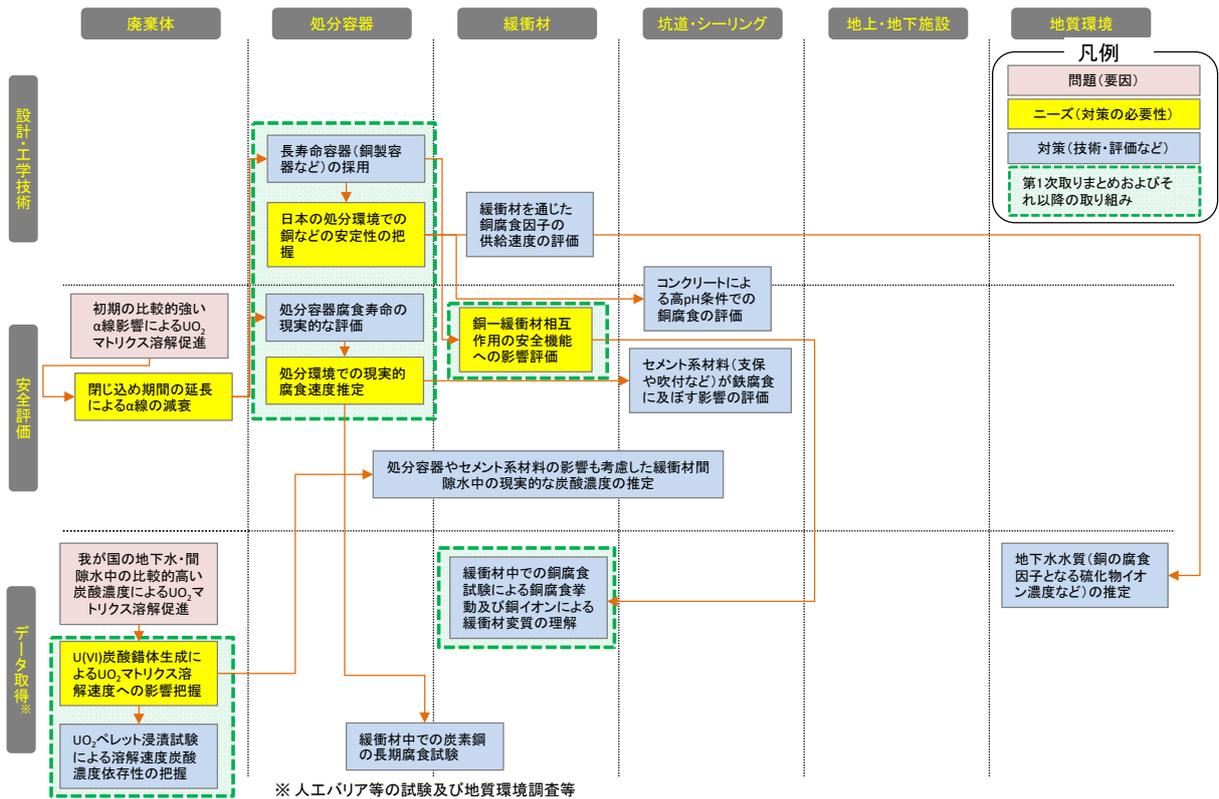
「平成31年度までに整理した課題」を付図2-7に、「令和2年度に見直しを行った課題」を付図2-8に示す。



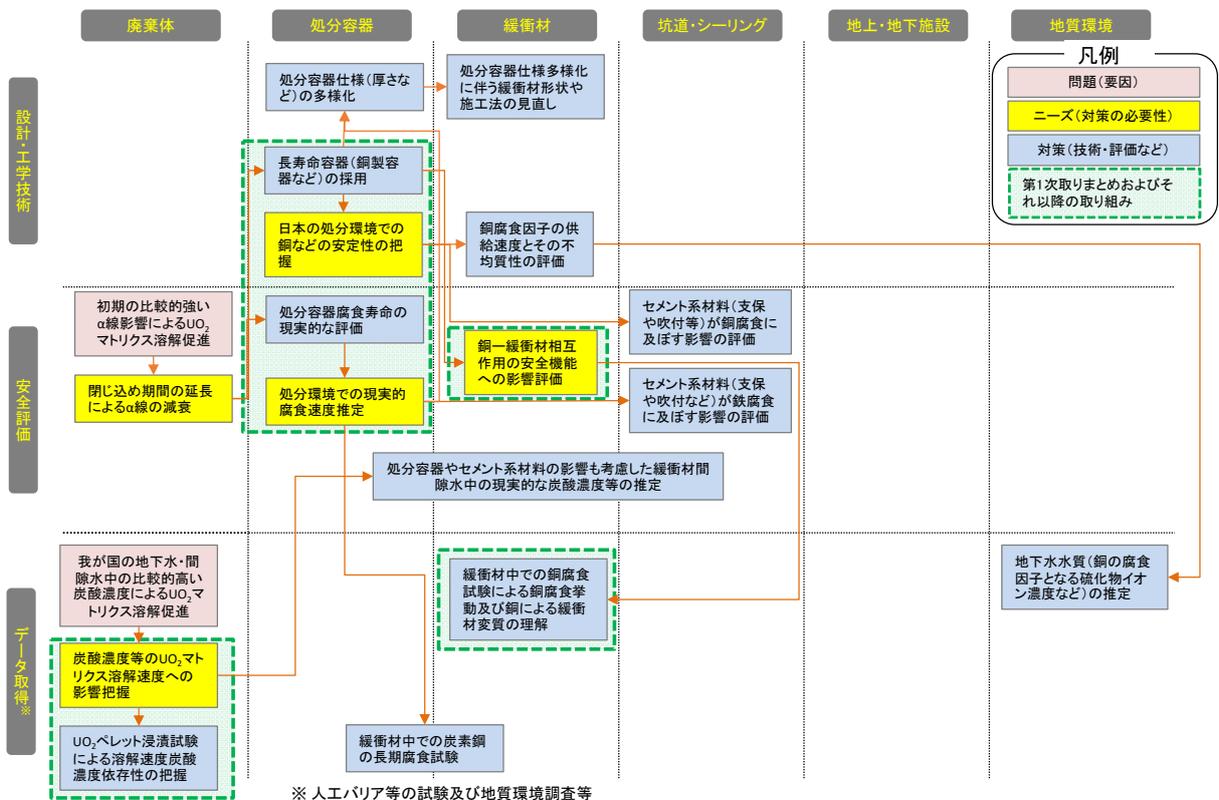
付図 2-1 「C-14 や I-129 などの瞬時放出成分による突出した影響の出現」に関する課題の整理結果（平成 31 年度版）



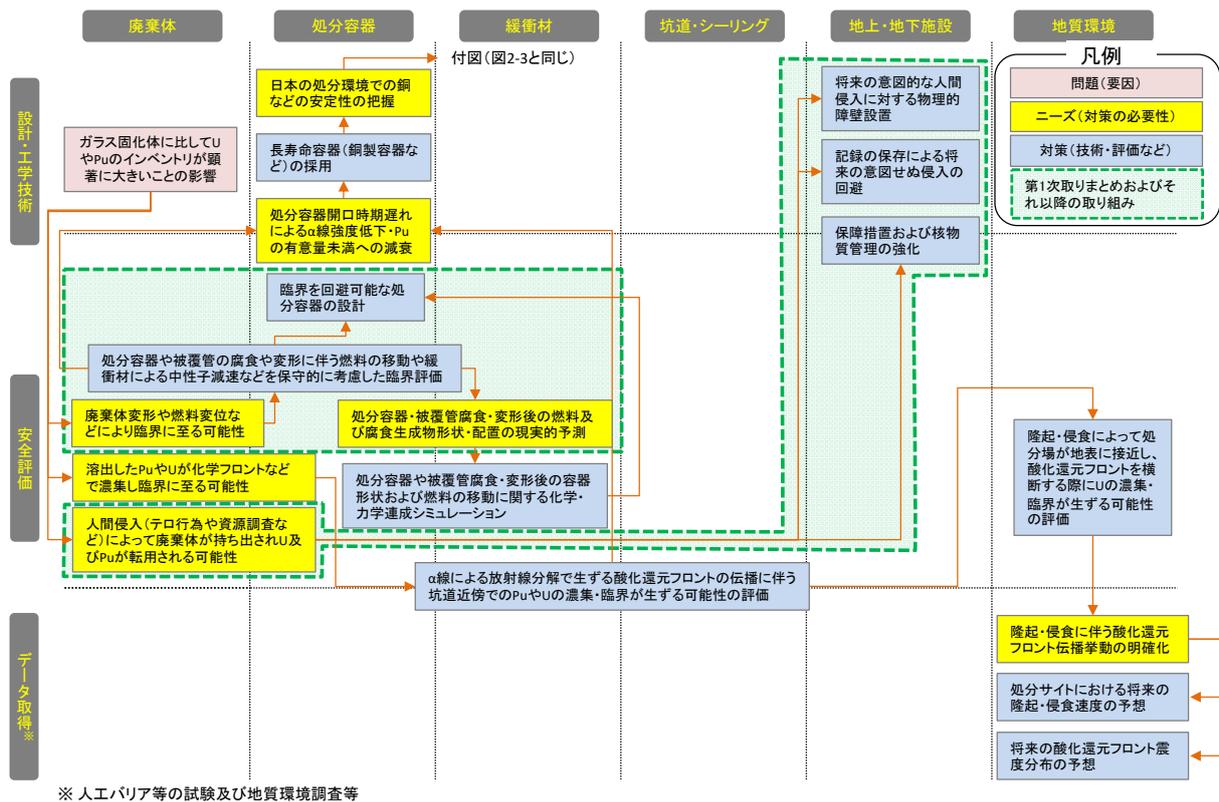
付図 2-2 「C-14 や I-129 などの瞬時放出成分による突出した影響の出現」に関する課題の見直し結果（令和 2 年度版）



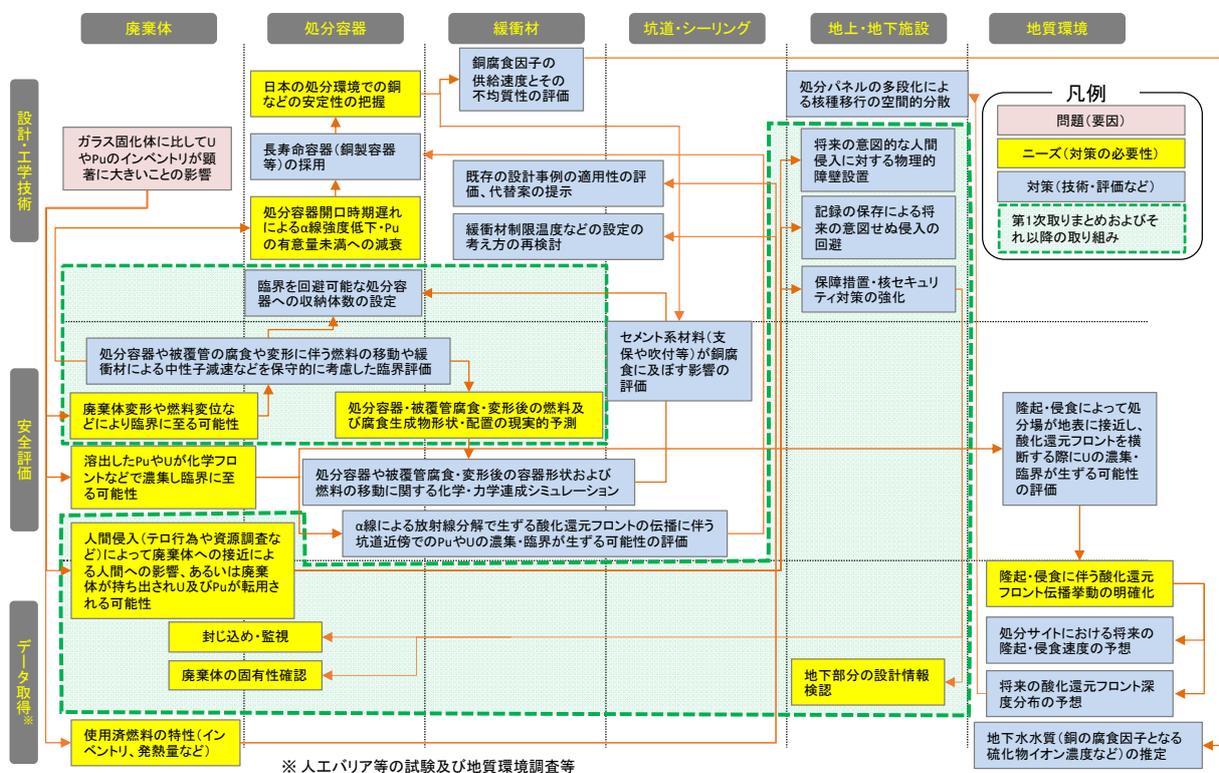
付図 2-3 「UO₂マトリクス溶解促進の影響」に関する課題の整理結果 (平成 31 年度版)



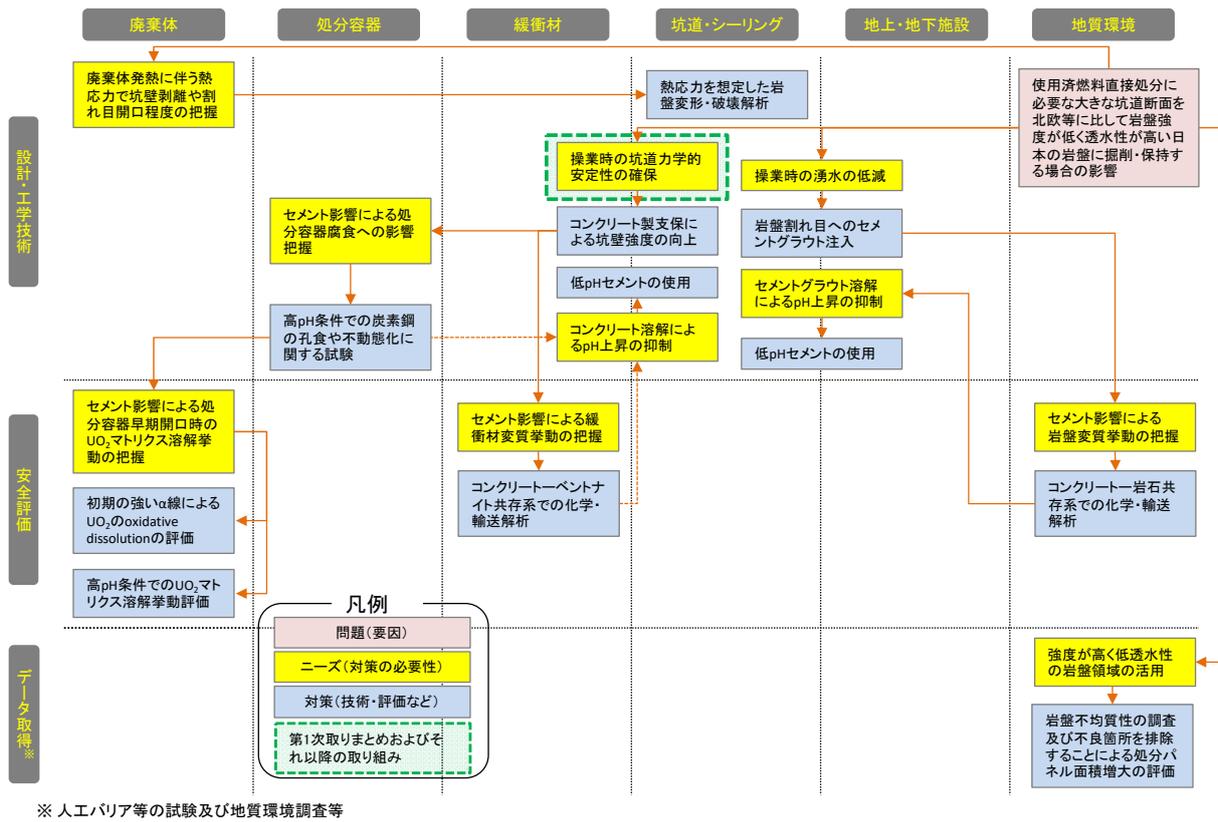
付図 2-4 「UO₂マトリクス溶解促進の影響」に関する課題の見直し結果 (令和 2 年度版)



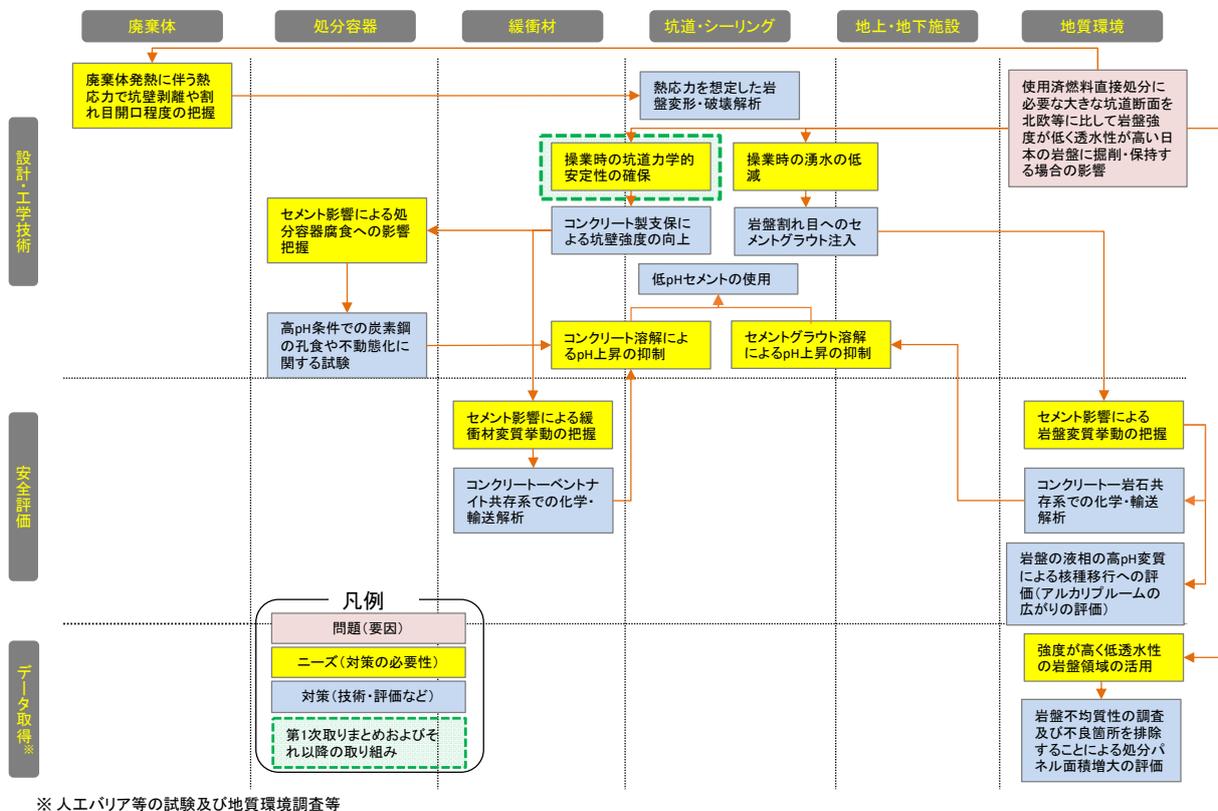
付図 2-5 「U および Pu のインベントリが大きいことの影響」に関する課題の整理結果 (平成 31 年度版)



付図 2-6 「U および Pu のインベントリが大きいことの影響」に関する課題の見直し結果 (令和 2 年度版)



付図 2-7 「岩盤強度や透水性が北欧等と異なることの影響」に関する課題の整理結果 (平成 31 年度版)



付図 2-8 「岩盤強度や透水性が北欧等と異なることの影響」に関する課題の見直し結果 (令和 2 年度版)

付録 3

地下水水質の評価解析

(本編 4 章に付す : 4. (2)2) ①項)

本付録は、本編 4. (2)2)①「処分容器の腐食挙動や使用済燃料マトリクスの溶解挙動への影響の観点からの地下水水質の検討」（以降、「本編」）において地下水水質の評価のための平衡計算を行った結果を収録したものである。本検討においては、燃料マトリクスの溶解に影響を及ぼす可能性のある燃料マトリクス表面近傍での炭酸濃度、および処分容器の腐食に影響を及ぼす可能性のある処分容器表面近傍での硫化物濃度が、H12 レポートで評価された地下水水質（緩衝材間隙水水質）と異なる可能性などを解析的に評価した。

燃料マトリクス表面近傍での炭酸濃度の評価については、処分容器開口部において緩衝材間隙水が浸入し、鉄腐食生成物及び鉄炭酸塩鉱物が生成することで炭酸濃度が変化する可能性を平衡論で評価した。その際、初期溶液として、本編に示した FRHP 緩衝材間隙水 1 または MRNP 緩衝材間隙水 2 を対象とした。

また、処分容器表面近傍での硫化物濃度の評価については、銅腐食生成物が生成することで硫化物濃度が変化する可能性を平衡論で評価した。その際、初期溶液として、本編に示した FRHP 緩衝材間隙水 1、FRHP 緩衝材間隙水 2、SRHP 緩衝材間隙水 1、SRHP 緩衝材間隙水 2 を対象とした。

収録した平衡計算結果の一覧を以下に示す。

- 付表 3-1 炭酸濃度に及ぼす鉄腐食生成物および鉄炭酸塩鉱物の影響を評価するための平衡計算結果（初期溶液に FRHP 緩衝材間隙水 1 を使用）
- 付表 3-2 炭酸濃度に及ぼす鉄腐食生成物および鉄炭酸塩鉱物の影響を評価するための平衡計算結果（初期溶液に MRNP 緩衝材間隙水を使用）
- 付表 3-3 硫化物濃度に及ぼす銅腐食生成物の影響を評価するための平衡計算結果（初期溶液に SRHP 緩衝材間隙水 1 を使用）
- 付表 3-4 硫化物濃度に及ぼす銅腐食生成物の影響を評価するための平衡計算結果（初期溶液に SRHP 緩衝材間隙水 2 を使用）
- 付表 3-5 硫化物濃度に及ぼす銅腐食生成物の影響を評価するための平衡計算結果（初期溶液に FRHP 緩衝材間隙水 1 を使用）
- 付表 3-6 硫化物濃度に及ぼす銅腐食生成物の影響を評価するための平衡計算結果（初期溶液に FRHP 緩衝材間隙水 2 を使用）

付表 3-1 炭酸濃度に及ぼす鉄腐食生成物および鉄炭酸塩鉱物の影響を評価するための平衡計算結果（初期溶液に FRHP 緩衝材間隙水 1 を使用）

		鉄炭酸塩鉱物					
		Siderite (FeCO_3)			Chukanovite ($\text{Fe}_2\text{CO}_3(\text{OH})_2$)		
鉄腐食生成物	Siderite (FeCO_3)		モデル 1※	モデル 2※		モデル 1	モデル 2
		pH			8.4	8.4	7.4
		pe			-4.7	-4.7	-3.3
		単位：[mol dm ⁻³]			単位：[mol dm ⁻³]		
		Total Fe			5.4×10^{-5}	1.3×10^{-6}	7.50×10^{-6}
		Total C			1.6×10^{-2}	1.6×10^{-2}	1.80×10^{-2}
	固相			Siderite 4.3×10^{-6} 溶解	Chukanovite 1.5×10^{-6} 沈殿	Siderite 3.4×10^{-3} 溶解 Chukanovite 1.7×10^{-3} 沈殿	
	Magnetite (Fe_3O_4)		モデル 1	モデル 2		モデル 1	モデル 2
		pH	8.4	8.4	8.4	8.4	8.4
		pe	-4.5	-4.5	-4.5	-4.5	-4.5
単位：[mol dm ⁻³]			単位：[mol dm ⁻³]				
Total Fe		1.4×10^{-6}	1.4×10^{-6}	1.4×10^{-6}	1.3×10^{-6}	1.30×10^{-6}	
Total C		1.6×10^{-2}	1.6×10^{-2}	1.6×10^{-2}	1.6×10^{-2}	1.60×10^{-2}	
固相	Siderite 沈殿なし	Magnetite 4.6×10^{-7} 溶解 Siderite 沈殿なし		Chukanovite 6.2×10^{-8} 沈殿	Magnetite 5.4×10^{-7} 溶解 Chukanovite 1.8×10^{-7} 沈殿		
水酸化鉄 ($\text{Fe}(\text{OH})_2$)		モデル 1	モデル 2		モデル 1	モデル 2	
	pH	9.4	11.1	9.1	9.1	12.1	
	pe	-6.0	-7.7	-5.5	-5.5	-8.9	
	単位：[mol dm ⁻³]			単位：[mol dm ⁻³]			
	Total Fe	5.4×10^{-5}	1.10×10^{-4}	5.0×10^{-5}	5.0×10^{-5}	1.1×10^{-3}	
	Total C	1.3×10^{-2}	7.50×10^{-3}	1.5×10^{-2}	1.5×10^{-2}	6.8×10^{-6}	
固相	Siderite 2.6×10^{-3} 沈殿	$\text{Fe}(\text{OH})_2$ 8.7×10^{-3} 溶解 Siderite 8.5×10^{-3} 沈殿		Chukanovite 1.3×10^{-3} 沈殿	$\text{Fe}(\text{OH})_2$ 3.3×10^{-2} 溶解 Chukanovite 1.6×10^{-2} 沈殿		

※ 鉄腐食生成物と鉄炭酸塩鉱物をともに Siderite (FeCO_3) とした場合、モデル 1 とモデル 2 は同じ評価結果になると考えられるためモデル 2 のみで評価した。

付表 3-2 炭酸濃度に及ぼす鉄腐食生成物および鉄炭酸塩鉱物の影響を評価するための平衡計算結果（初期溶液に MRNP 緩衝材間隙水を使用）

		鉄炭酸塩鉱物					
		Siderite (FeCO ₃)			Chukanovite (Fe ₂ CO ₃ (OH) ₂)		
鉄腐食生成物	Siderite (FeCO ₃)		モデル 1※	モデル 2※		モデル 1	モデル 2
		pH	/	6.2	pH	6.2	6.2
		pe		-3.2	pe	-3.2	-3.2
		単位：[mol dm ⁻³]			単位：[mol dm ⁻³]		
		Total Fe	/	4.9×10 ⁻⁵	Total Fe	5.0×10 ⁻⁵	4.9×10 ⁻⁵
		Total C		1.0×10 ⁻¹	Total C	1.0×10 ⁻¹	1.0×10 ⁻¹
	固相		Siderite 4.9×10 ⁻⁵ 溶解	固相	Chukanovite 沈殿なし	Siderite 4.9×10 ⁻⁵ 溶解 Chukanovite 沈殿なし	
	Magnetite (Fe ₃ O ₄)		モデル 1	モデル 2		モデル 1	モデル 2
		pH	6.2	6.4	pH	6.2	6.2
		pe	-2.9	0.2	pe	-2.8	-0.5
単位：[mol dm ⁻³]			単位：[mol dm ⁻³]				
Total Fe		4.5×10 ⁻⁵	3.4×10 ⁻⁵	Total Fe	2.7×10 ⁻⁴	2.6×10 ⁻⁴	
Total C		9.7×10 ⁻²	7.4×10 ⁻²	Total C	1.0×10 ⁻¹	8.8×10 ⁻²	
固相	Siderite 6.4×10 ⁻³ 沈殿	Magnetite 9.0×10 ⁻³ 溶解 Siderite 2.7×10 ⁻² 沈殿	固相	Chukanovite 3.1×10 ⁻³ 沈殿	Magnetite 9.0×10 ⁻³ 溶解 Chukanovite 1.3×10 ⁻² 沈殿		
水酸化鉄 (Fe(OH) ₂)		モデル 1	モデル 2		モデル 1	モデル 2	
	pH	8.5	11.0	pH	6.6	12.5	
	pe	-5.8	-8.8	pe	-3.6	-10.9	
	単位：[mol dm ⁻³]			単位：[mol dm ⁻³]			
	Total Fe	4.2×10 ⁻⁶	1.1×10 ⁻⁴	Total Fe	9.2×10 ⁻⁵	3.2×10 ⁻³	
	Total C	5.2×10 ⁻²	2.4×10 ⁻²	Total C	7.8×10 ⁻²	3.3×10 ⁻⁴	
固相	Siderite 5.2×10 ⁻² 沈殿	Fe(OH) ₂ 7.7×10 ⁻² 溶解 Siderite 7.7×10 ⁻² 沈殿	固相	Chukanovite 2.6×10 ⁻² 沈殿	Fe(OH) ₂ 2.0×10 ⁻¹ 溶解 Chukanovite 1.0×10 ⁻¹ 沈殿		

※ 鉄腐食生成物と鉄炭酸塩鉱物をともに Siderite (FeCO₃) とした場合、モデル 1 とモデル 2 は同じ評価結果になると考えられるためモデル 2 のみで評価した。

付表 3-3 硫化物濃度に及ぼす銅腐食生成物の影響を評価するための平衡計算結果
(初期溶液に SRHP 緩衝材間隙水 1 を使用)

		硫化銅					
		CuS			Cu ₂ S		
			モデル 3	モデル 4		モデル 3	モデル 4
酸化銅	Cu ₂ O	pH	6.9	12.1	pH	6.9	12.1
		pe	-4.0	-12.7	pe	-4.0	-7.5
		単位 : [mol dm ⁻³]			単位 : [mol dm ⁻³]		
		Total Cu	8.6×10 ⁻²²	9.6×10 ⁻¹⁴	Total Cu	1.5×10 ⁻²⁰	1.1×10 ⁻¹³
		Total S	3.0×10 ⁻²	4.3×10 ⁻⁷	Total S	3.0×10 ⁻²	4.9×10 ⁻⁶
		Total S(+6)	4.8×10 ⁻⁶	1.3×10 ⁻³³	Total S(+6)	4.8×10 ⁻⁶	4.9×10 ⁻⁶
		Total S(-2)	3.0×10 ⁻²	4.3×10 ⁻⁷	Total S(-2)	3.0×10 ⁻²	2.1×10 ⁻²¹
	固相	CuS 1.5×10 ⁻⁸ 沈殿	Cu ₂ O 1.5×10 ⁻² 溶解 CuS 3.0×10 ⁻² 沈殿	固相	Cu ₂ S 7.7×10 ⁻⁹ 沈殿	Cu ₂ O 3.0×10 ⁻² 溶解 Cu ₂ S 3.0×10 ⁻² 沈殿	
	CuO	pH	11.3	12.1	pH	6.9	11.3
		pe	-8.7	-7.8	pe	-3.7	-4.9
		単位 : [mol dm ⁻³]			単位 : [mol dm ⁻³]		
		Total Cu	2.0×10 ⁻²¹	1.1×10 ⁻⁶	Total Cu	1.8×10 ⁻²⁰	1.3×10 ⁻⁷
		Total S	1.2×10 ⁻²	5.0×10 ⁻⁶	Total S	2.1×10 ⁻²	6.0×10 ⁻³
		Total S(+6)	6.1×10 ⁻⁴	5.0×10 ⁻⁶	Total S(+6)	1.8×10 ⁻²	6.0×10 ⁻³
Total S(-2)		1.1×10 ⁻²	4.6×10 ⁻¹⁹	Total S(-2)	2.9×10 ⁻³	4.7×10 ⁻³²	
固相	CuS 1.8×10 ⁻² 沈殿	CuO 3.0×10 ⁻² 溶解 CuS 3.0×10 ⁻² 沈殿	固相	Cu ₂ S 9.0×10 ⁻³ 沈殿	CuO 4.8×10 ⁻² 溶解 Cu ₂ S 2.4×10 ⁻² 沈殿		

付表 3-4 硫化物濃度に及ぼす銅腐食生成物の影響を評価するための平衡計算結果
(初期溶液に SRHP 緩衝材間隙水 2 を使用)

		硫化銅					
		CuS			Cu ₂ S		
			モデル 3	モデル 4		モデル 3	モデル 4
酸化銅	Cu ₂ O	pH	6.7	12.3	pH	6.7	12.1
		pe	-3.3	-8.6	pe	-3.3	-7.0
		単位 : [mol dm ⁻³]			単位 : [mol dm ⁻³]		
		Total Cu	3.5×10 ⁻²²	7.2×10 ⁻¹⁴	Total Cu	2.3×10 ⁻²⁰	1.7×10 ⁻¹³
		Total S	1.1×10 ⁻¹	5.7×10 ⁻²	Total S	1.1×10 ⁻¹	6.4×10 ⁻²
		Total S(+6)	6.3×10 ⁻²	5.7×10 ⁻²	Total S(+6)	6.3×10 ⁻²	6.4×10 ⁻²
		Total S(-2)	4.5×10 ⁻²	3.4×10 ⁻¹¹	Total S(-2)	4.5×10 ⁻²	2.4×10 ⁻²¹
	固相	CuS 3.0×10 ⁻⁸ 沈殿	Cu ₂ O 2.5×10 ⁻² 溶解 CuS 5.0×10 ⁻² 沈殿	固相	Cu ₂ S 1.5×10 ⁻⁸ 沈殿	Cu ₂ O 4.4×10 ⁻² 溶解 Cu ₂ S 4.4×10 ⁻² 沈殿	
	CuO	pH	11.4	12.1	pH	6.6	5.9
		pe	-8.6	-7.3	pe	-3.2	1.6
		単位 : [mol dm ⁻³]			単位 : [mol dm ⁻³]		
		Total Cu	1.7×10 ⁻²¹	5.3×10 ⁻⁷	Total Cu	3.7×10 ⁻²⁰	1.2×10 ⁻³
		Total S	7.7×10 ⁻²	6.4×10 ⁻²	Total S	9.2×10 ⁻²	7.2×10 ⁻²
		Total S(+6)	6.4×10 ⁻²	6.4×10 ⁻²	Total S(+6)	6.8×10 ⁻²	7.2×10 ⁻²
Total S(-2)		1.3×10 ⁻²	5.3×10 ⁻¹⁹	Total S(-2)	2.5×10 ⁻²	4.6×10 ⁻³⁴	
固相	CuS 3.1×10 ⁻² 沈殿	CuO 4.4×10 ⁻² 溶解 CuS 4.4×10 ⁻² 沈殿	固相	Cu ₂ S 1.6×10 ⁻² 沈殿	CuO 7.1×10 ⁻² 溶解 Cu ₂ S 3.5×10 ⁻² 沈殿		

付表 3-5 硫化物濃度に及ぼす銅腐食生成物の影響を評価するための平衡計算結果
(初期溶液に FRHP 緩衝材間隙水 1 を使用)

		硫化銅					
		CuS			Cu ₂ S		
			モデル 3	モデル 4		モデル 3	モデル 4
酸化銅	Cu ₂ O	pH	8.4	8.4	pH	8.4	8.4
		pe	-4.7	-3.8	pe	-4.7	-2.7
		単位 : [mol dm ⁻³]			単位 : [mol dm ⁻³]		
		Total Cu	3.6×10 ⁻¹⁶	4.5×10 ⁻¹⁰	Total Cu	4.1×10 ⁻¹⁸	4.5×10 ⁻¹⁰
		Total S	1.1×10 ⁻⁴	1.1×10 ⁻⁴	Total S	1.1×10 ⁻⁴	1.1×10 ⁻⁴
		Total S(+6)	1.1×10 ⁻⁴	1.1×10 ⁻⁴	Total S(+6)	1.1×10 ⁻⁴	1.1×10 ⁻⁴
		Total S(-2)	5.2×10 ⁻⁹	5.1×10 ⁻¹⁶	Total S(-2)	5.2×10 ⁻⁹	4.0×10 ⁻²⁵
	固相	CuS 4.5×10 ⁻¹⁰ 沈殿	Cu ₂ O 3.2×10 ⁻⁹ 溶解 CuS 6.0×10 ⁻⁹ 沈殿	固相	Cu ₂ S 2.3×10 ⁻¹⁰ 沈殿	Cu ₂ O 5.5×10 ⁻⁹ 溶解 Cu ₂ S 5.2×10 ⁻⁹ 沈殿	
	CuO	pH	8.4	8.4	pH	8.4	8.4
		pe	1.0	1.0	pe	1.0	1.0
		単位 : [mol dm ⁻³]			単位 : [mol dm ⁻³]		
		Total Cu	1.2×10 ⁻⁷	1.2×10 ⁻⁷	Total Cu	1.2×10 ⁻⁷	1.2×10 ⁻⁷
		Total S	1.1×10 ⁻⁴	1.1×10 ⁻⁴	Total S	1.1×10 ⁻⁴	1.1×10 ⁻⁴
		Total S(+6)	1.1×10 ⁻⁴	1.1×10 ⁻⁴	Total S(+6)	1.1×10 ⁻⁴	1.1×10 ⁻⁴
Total S(-2)		0※	0※	Total S(-2)	0※	0※	
固相	CuS 沈殿なし	CuO 1.2×10 ⁻⁷ 溶解 CuS 沈殿なし	固相	Cu ₂ S 沈殿なし	CuO 1.2×10 ⁻⁷ 溶解 Cu ₂ S 沈殿なし		

※ 10⁻⁴⁰[mol dm⁻³]未満であり” 0” と表記。

付表 3-6 硫化物濃度に及ぼす銅腐食生成物の影響を評価するための平衡計算結果
(初期溶液に FRHP 緩衝材間隙水 2 を使用)

		硫化銅					
		CuS			Cu ₂ S		
			モデル 3	モデル 4		モデル 3	モデル 4
酸化銅	Cu ₂ O	pH	7.2	7.2	pH	7.2	7.2
		pe	-2.0	-2.0	pe	-1.1	-0.9
		単位 : [mol dm ⁻³]			単位 : [mol dm ⁻³]		
		Total Cu	5.2×10 ⁻⁹	9.2×10 ⁻⁹	Total Cu	2.2×10 ⁻⁹	9.3×10 ⁻⁹
		Total S	7.8×10 ⁻²	7.8×10 ⁻²	Total S	7.8×10 ⁻²	7.8×10 ⁻²
		Total S(+6)	7.8×10 ⁻²	7.8×10 ⁻²	Total S(+6)	7.8×10 ⁻²	7.8×10 ⁻²
		Total S(-2)	2.5×10 ⁻¹⁷	1.3×10 ⁻¹⁷	Total S(-2)	9.0×10 ⁻²⁵	4.8×10 ⁻²⁶
	固相	CuS 4.1×10 ⁻⁹ 沈殿	Cu ₂ O 6.6×10 ⁻⁹ 溶解 CuS 4.0×10 ⁻⁹ 沈殿	固相	Cu ₂ S 3.6×10 ⁻⁹ 沈殿	Cu ₂ O 8.2×10 ⁻⁹ 溶解 Cu ₂ S 3.5×10 ⁻⁹ 沈殿	
	CuO	pH	7.5	7.5	pH	7.5	7.5
		pe	3.1	3.1	pe	3.1	3.1
		単位 : [mol dm ⁻³]			単位 : [mol dm ⁻³]		
		Total Cu	2.6×10 ⁻⁷	2.6×10 ⁻⁷	Total Cu	2.6×10 ⁻⁷	2.6×10 ⁻⁷
		Total S	7.8×10 ⁻²	7.8×10 ⁻²	Total S	7.8×10 ⁻²	7.8×10 ⁻²
		Total S(+6)	7.8×10 ⁻²	7.8×10 ⁻²	Total S(+6)	7.8×10 ⁻²	7.8×10 ⁻²
Total S(-2)		0※	0※	Total S(-2)	0※	0※	
固相	CuS 沈殿なし	CuO 2.6×10 ⁻⁷ 溶解 CuS 沈殿なし	固相	Cu ₂ S 沈殿なし	CuO 2.6×10 ⁻⁷ 溶解 Cu ₂ S 沈殿なし		

※ 10⁻⁴⁰[mol dm⁻³]未満であり” 0” と表記。

【参考文献】

小田治恵，柴田雅博，油井三和（1999）：地層処分研究開発第2次取りまとめにおける緩衝材
間隙水化学の評価，JNC TN8400 99-078.

Yui, M., Sasamoto, H. and Arthur, R. C. (1999): Groundwater Evolution Modeling for
the Second Progress Performance Assessment (PA) Report, JNC TN8400 99-030.

付録 4

超深孔処分での核種移行パターンの発生の
有無やその発生条件等を把握するための
三次元水理・物質移行解析結果
(本編 5 章に付す : 5. (3)3) ③項)

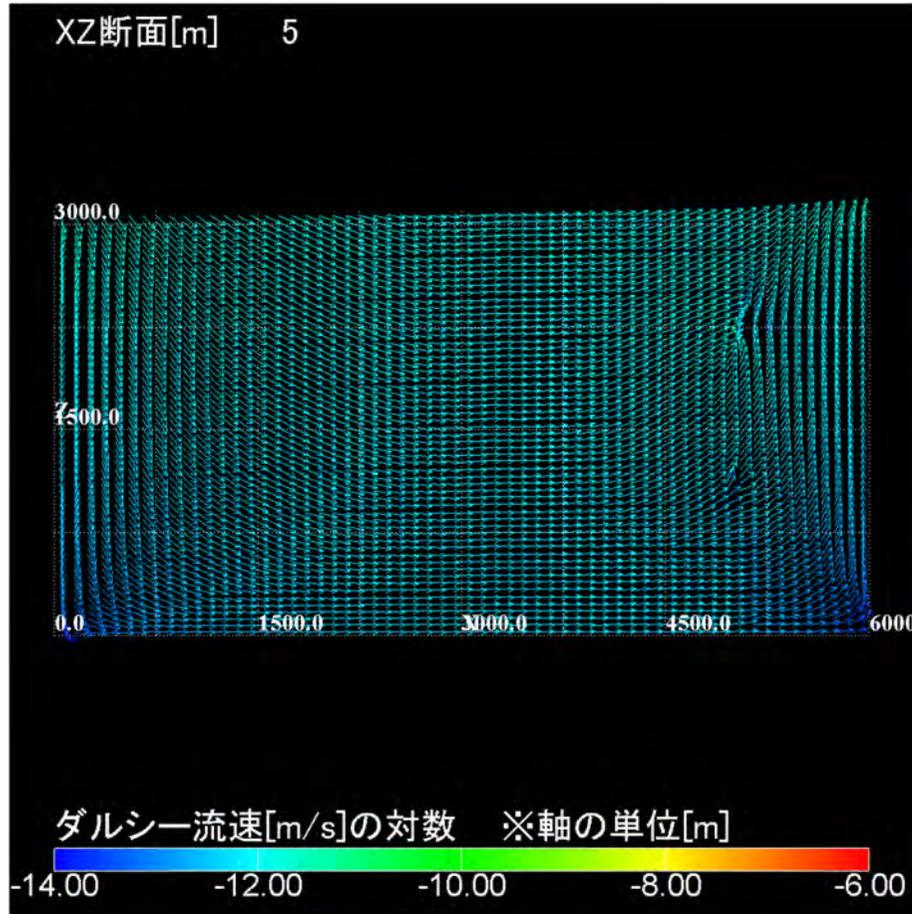
本付録では、本文5章(3)3③(解析結果および考察)で述べた、超深孔処分での核種移行パターンの発生の有無やその発生条件等を把握するための三次元水理・物質移行解析の解析ケースを付表4-1および付表4-2に示す。また、各ケースの解析結果(水理解析結果(ダルシー流速分布)、粒子追跡線解析結果)を付図4-1~付図4-24に示す。

付表4-1 解析ケース一覧(超深孔の設置位置での地下水流動の方向:上方向)
(表5-12の再掲)

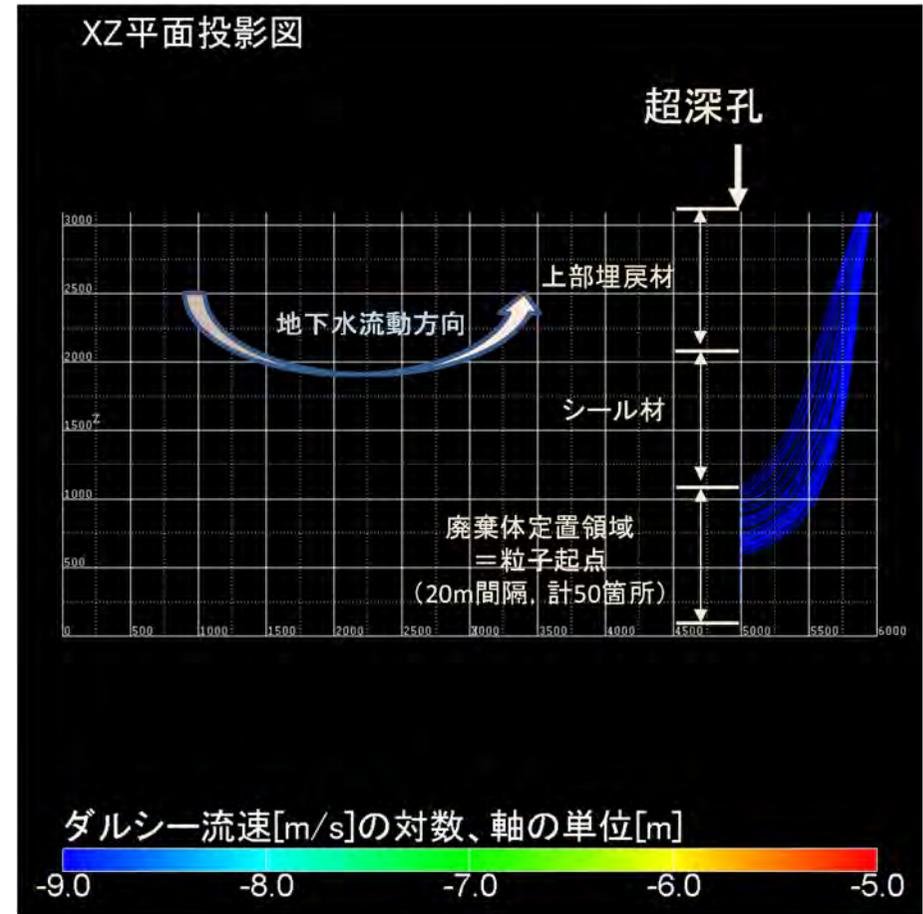
解析ケース	水理・物質移動解析に関する設定						
	超深孔の設置位置での地下水流動の方向	動水勾配 [-]	母岩	透水係数 [m s ⁻¹]			
				超深孔	廃棄体定置領域	シール材領域	上部埋戻し材領域
1-1	上方向	0.01	1 × 10 ⁻¹⁰	1 × 10 ⁻⁵	1 × 10 ⁻¹²	1 × 10 ⁻⁵	
1-2							1 × 10 ⁻¹⁰
1-3							1 × 10 ⁻⁷
1-4							1 × 10 ⁻⁵
1-5			1 × 10 ⁻⁹				1 × 10 ⁻¹²
1-6							1 × 10 ⁻¹⁰
1-7							1 × 10 ⁻⁷
1-8							1 × 10 ⁻⁵
1-9			1 × 10 ⁻⁸				1 × 10 ⁻¹²
1-10							1 × 10 ⁻¹⁰
1-11							1 × 10 ⁻⁷
1-12							1 × 10 ⁻⁵

付表4-2 解析ケース一覧(超深孔の設置位置での地下水流動の方向:下方向)
(表5-13の再掲)

解析ケース	水理・物質移動解析に関する設定						
	超深孔の設置位置での地下水流動の方向	動水勾配 [-]	母岩	透水係数 [m s ⁻¹]			
				超深孔	廃棄体定置領域	シール材領域	上部埋戻し材領域
2-1	下方向	0.01	1 × 10 ⁻¹⁰	1 × 10 ⁻⁵	1 × 10 ⁻¹²	1 × 10 ⁻⁵	
2-2							1 × 10 ⁻¹⁰
2-3							1 × 10 ⁻⁷
2-4							1 × 10 ⁻⁵
2-5			1 × 10 ⁻⁹				1 × 10 ⁻¹²
2-6							1 × 10 ⁻¹⁰
2-7							1 × 10 ⁻⁷
2-8							1 × 10 ⁻⁵
2-9			1 × 10 ⁻⁸				1 × 10 ⁻¹²
2-10							1 × 10 ⁻¹⁰
2-11							1 × 10 ⁻⁷
2-12							1 × 10 ⁻⁵

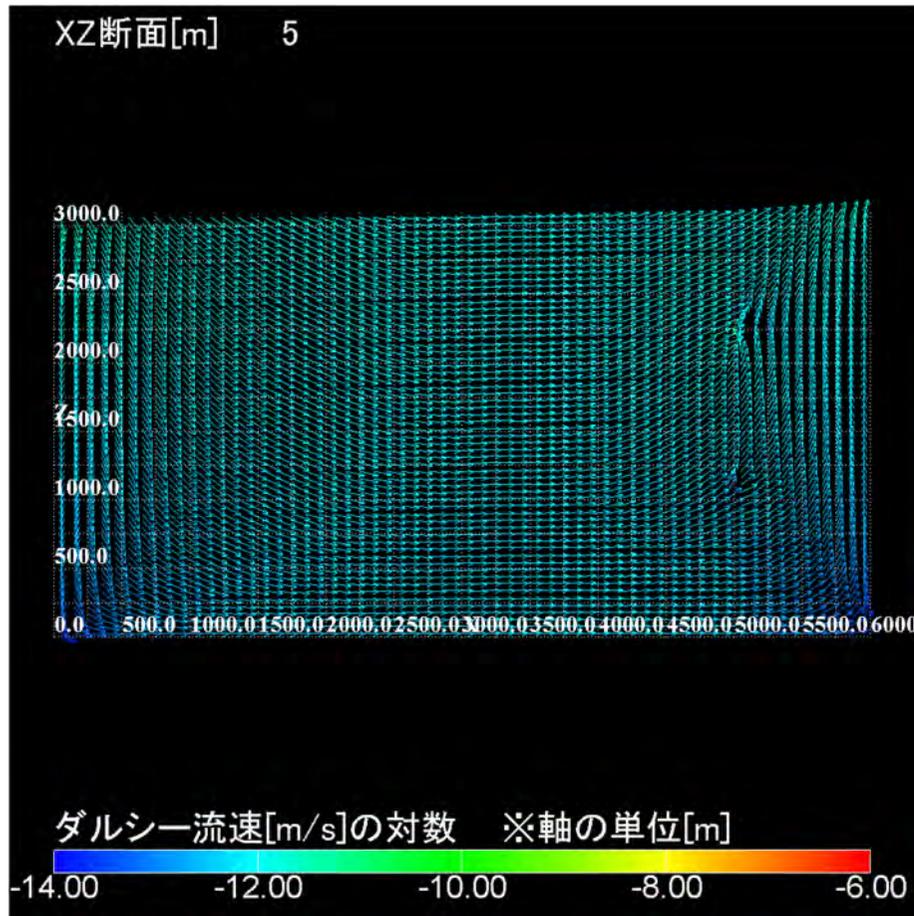


(a) ダルシー流速分布

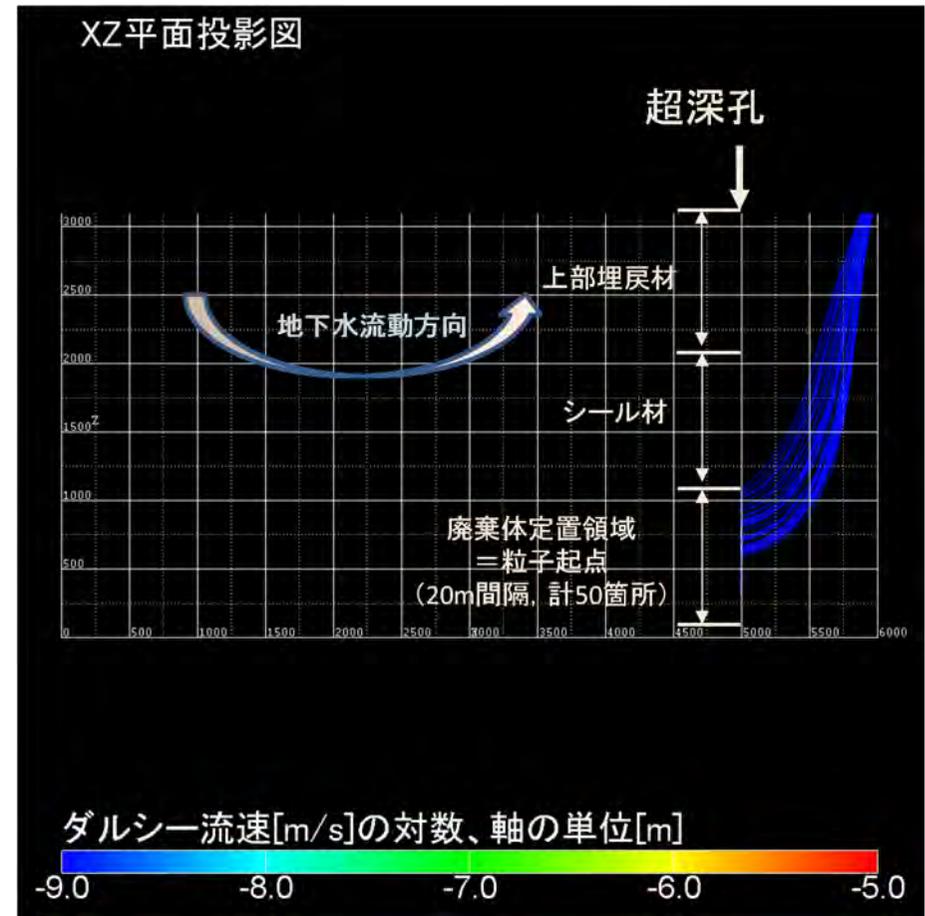


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-1 ケース 1-1 の解析結果 (地下水流動: 上方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-12} \text{ m s}^{-1}$)

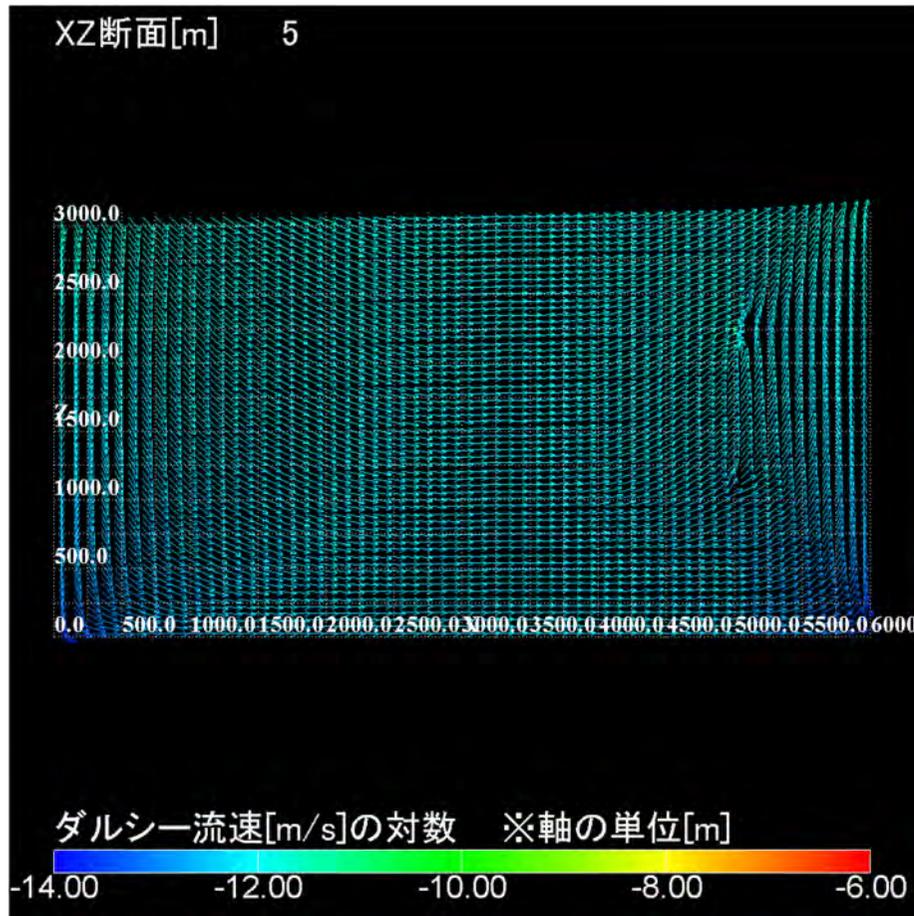


(a) ダルシー流速分布

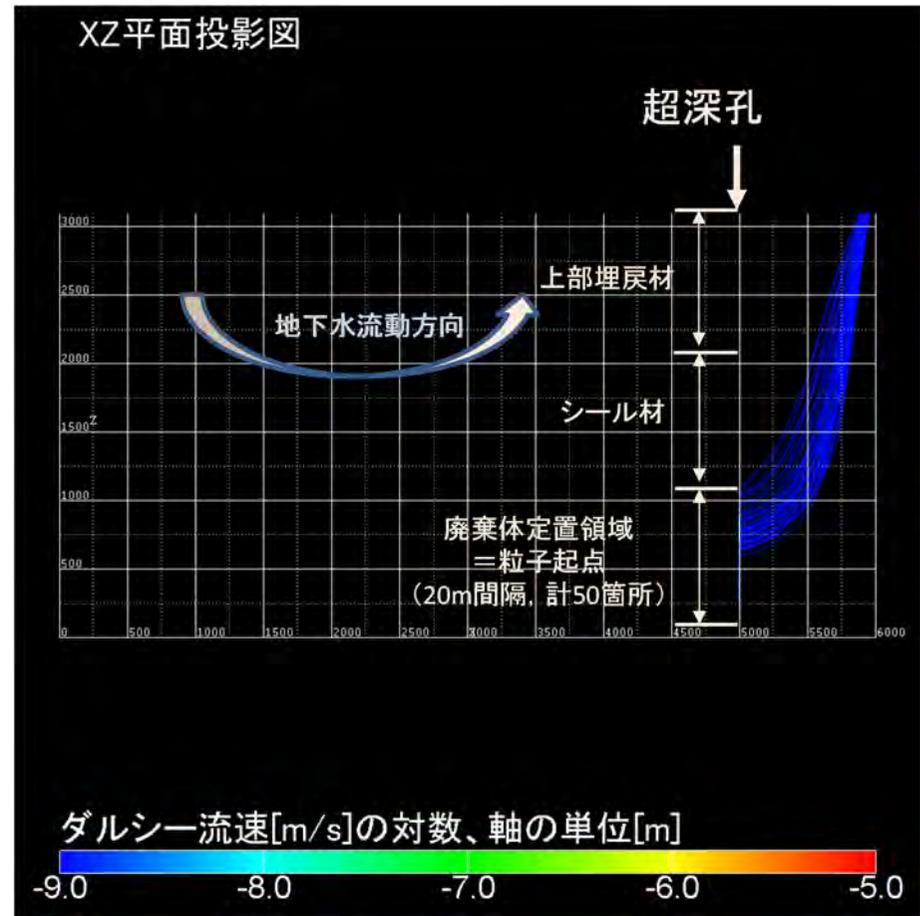


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-2 ケース 1-2 の解析結果 (地下水流動：上方向, 母岩の透水係数： $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$)

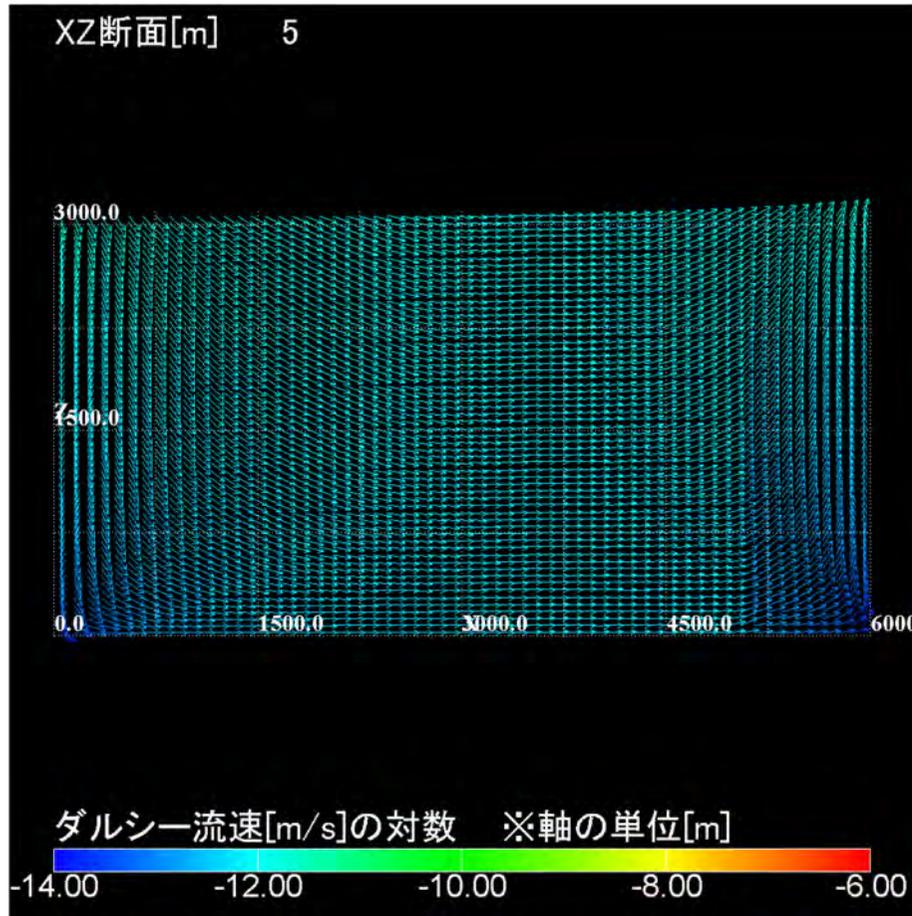


(a) ダルシー流速分布

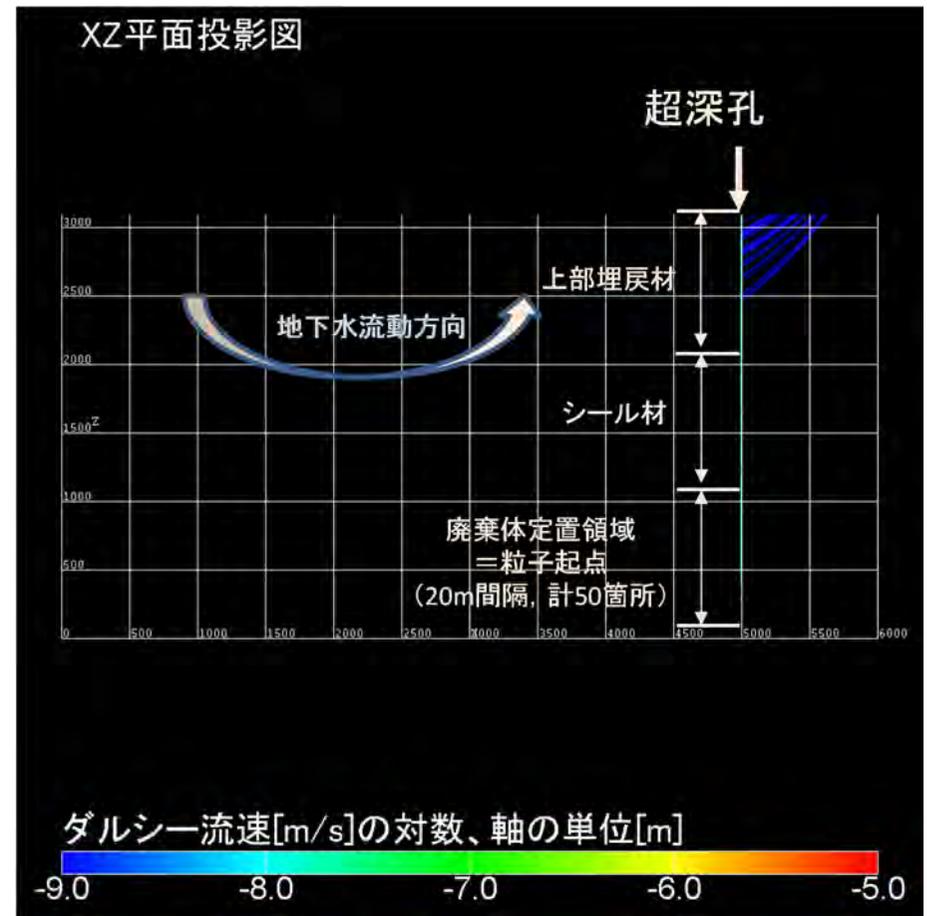


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-3 ケース 1-3 の解析結果 (地下水流動: 上方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-7} \text{ m s}^{-1}$)

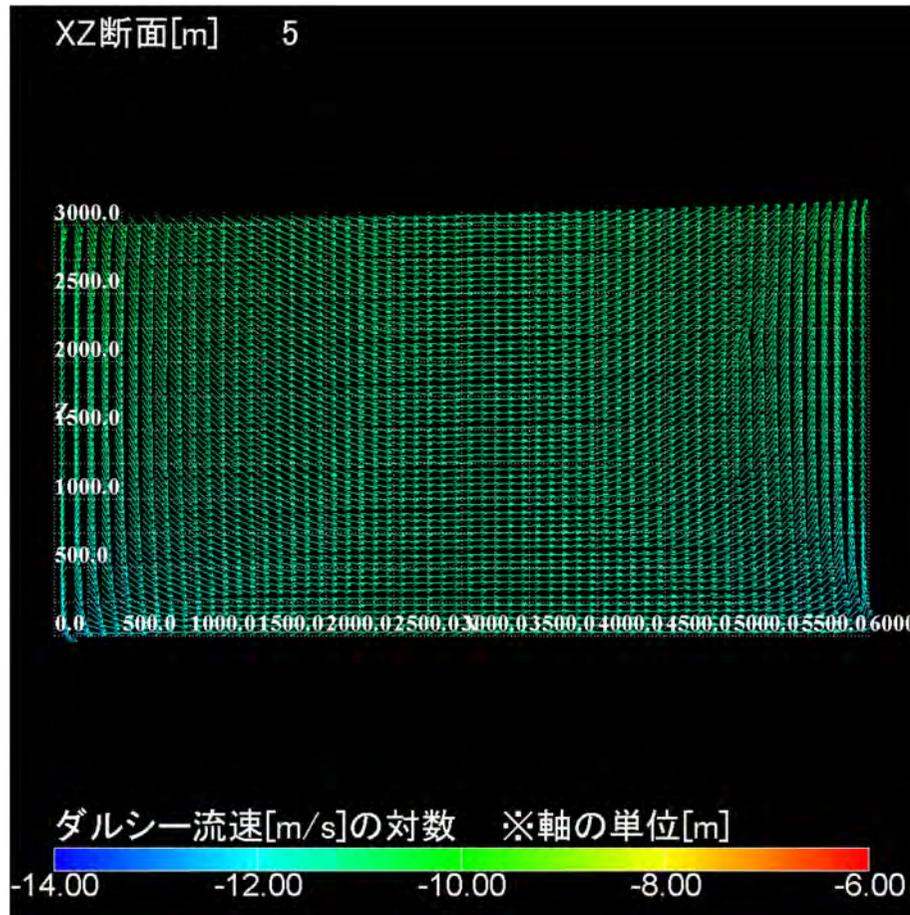


(a) ダルシー流速分布

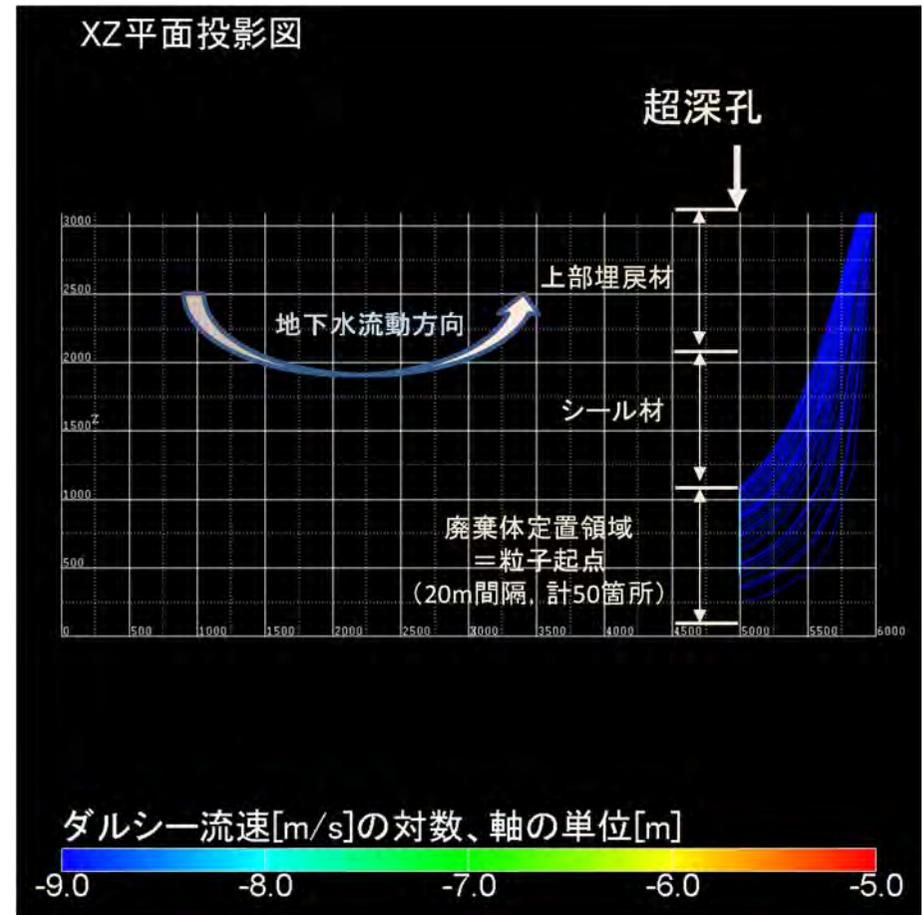


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-4 ケース 1-4 の解析結果 (地下水流動: 上方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-5} \text{ m s}^{-1}$)

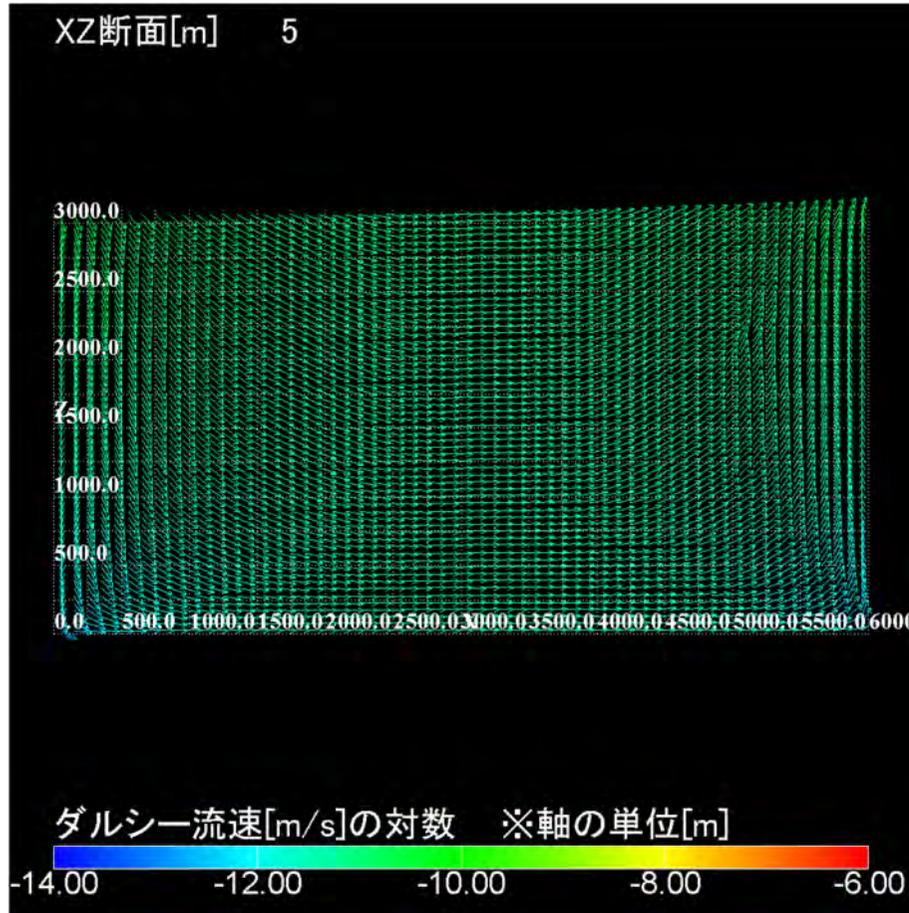


(a) ダルシー流速分布

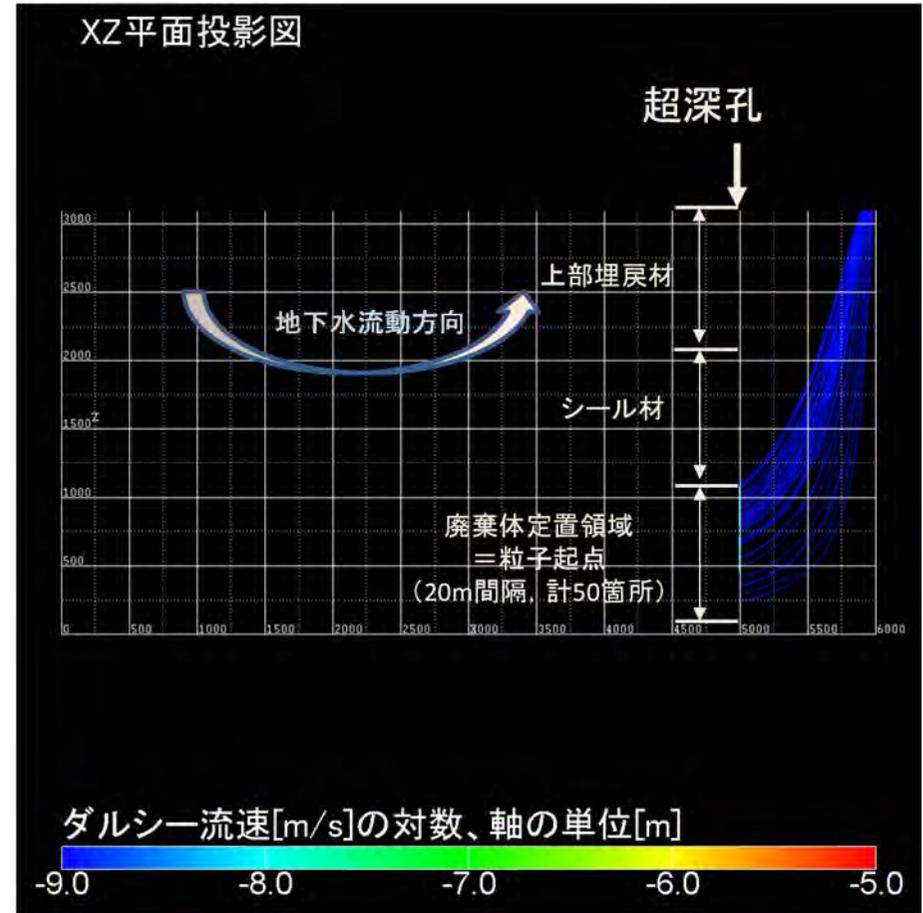


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-5 ケース 1-5 の解析結果 (地下水流動: 上方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-9} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-12} \text{ m s}^{-1}$)

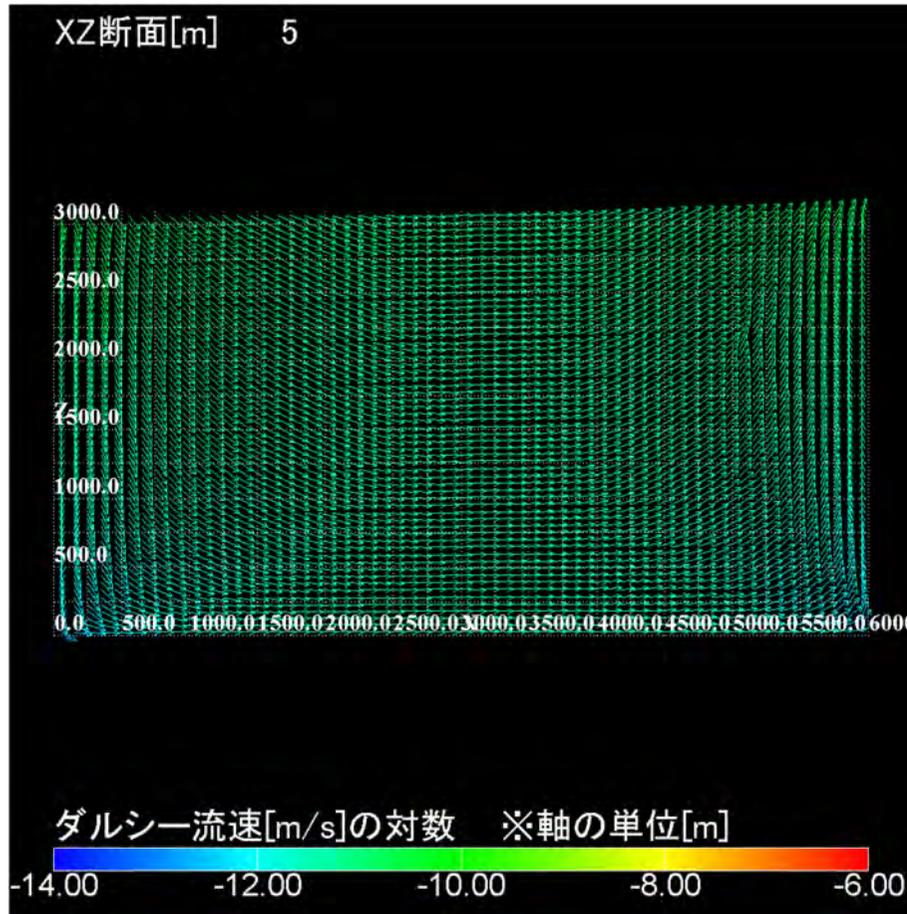


(a) ダルシー流速分布

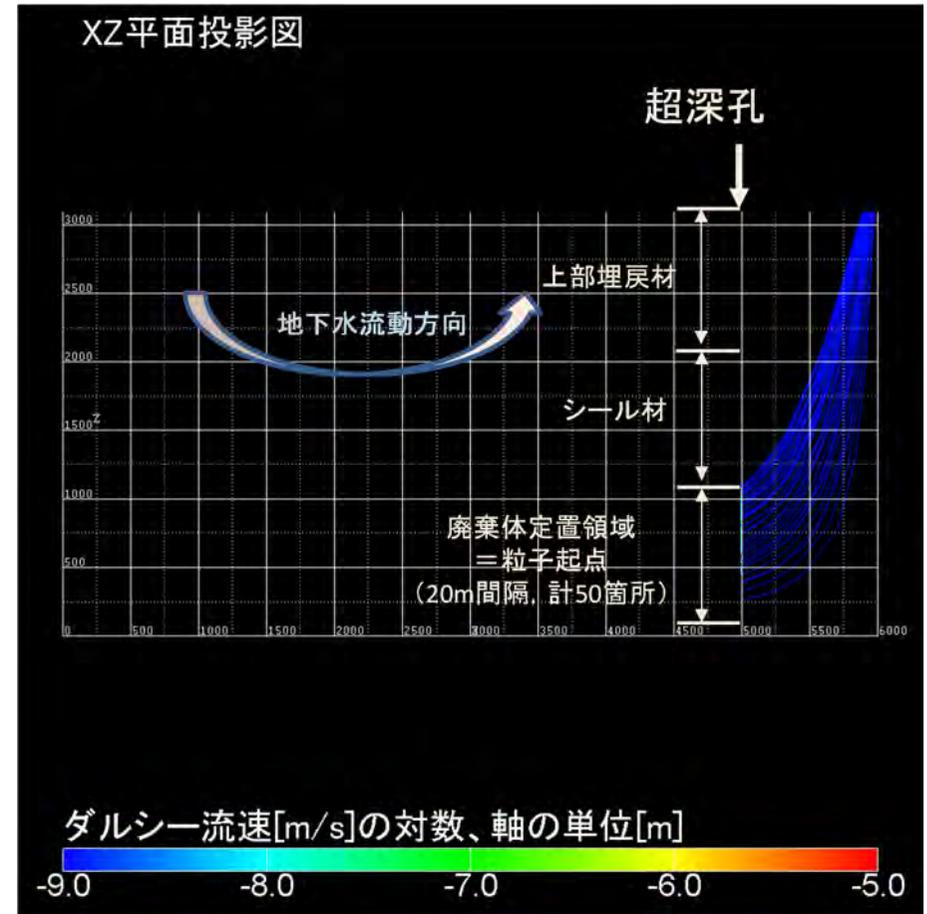


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-6 ケース 1-6 の解析結果 (地下水流動: 上方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-9} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$)

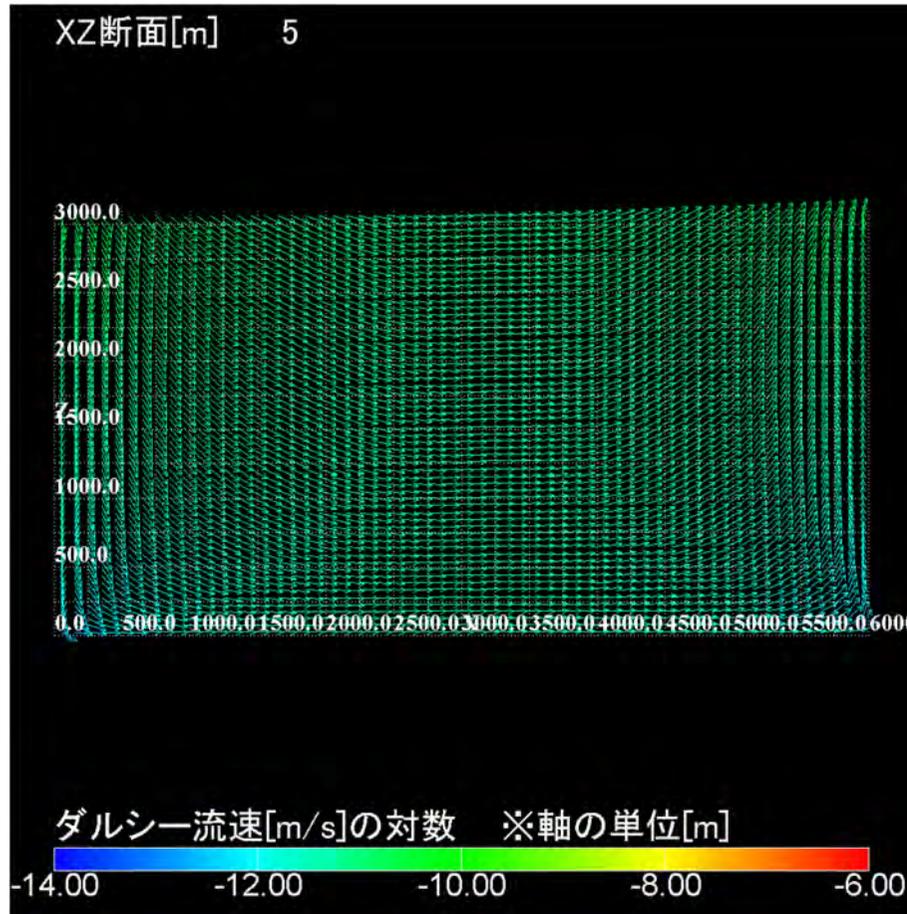


(a) ダルシー流速分布

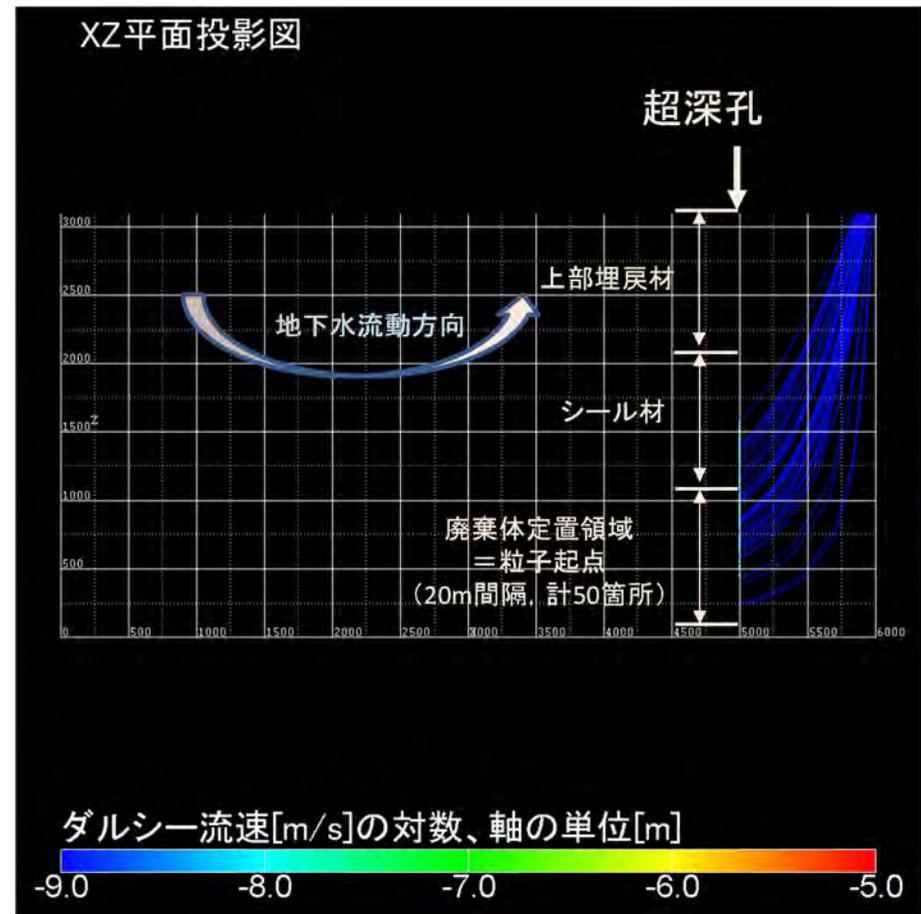


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-7 ケース 1-7 の解析結果 (地下水流動: 上方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-9} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-7} \text{ m s}^{-1}$)

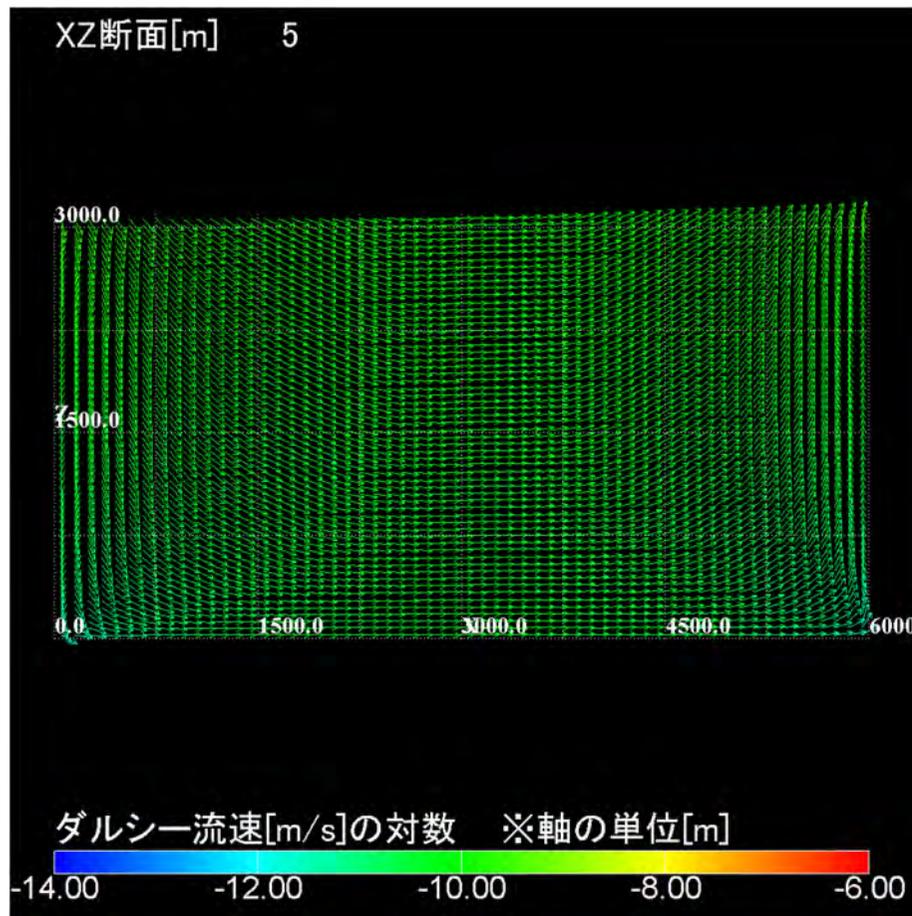


(a) ダルシー流速分布

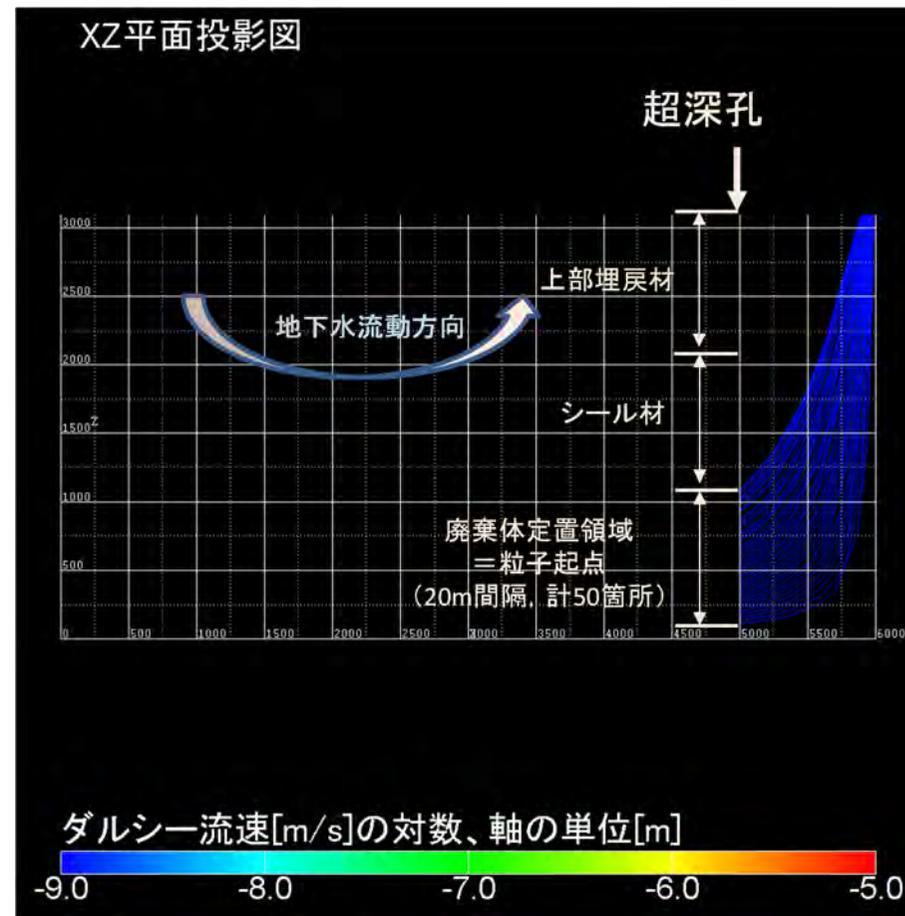


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-8 ケース 1-8 の解析結果 (地下水流動: 上方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-9} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-5} \text{ m s}^{-1}$)

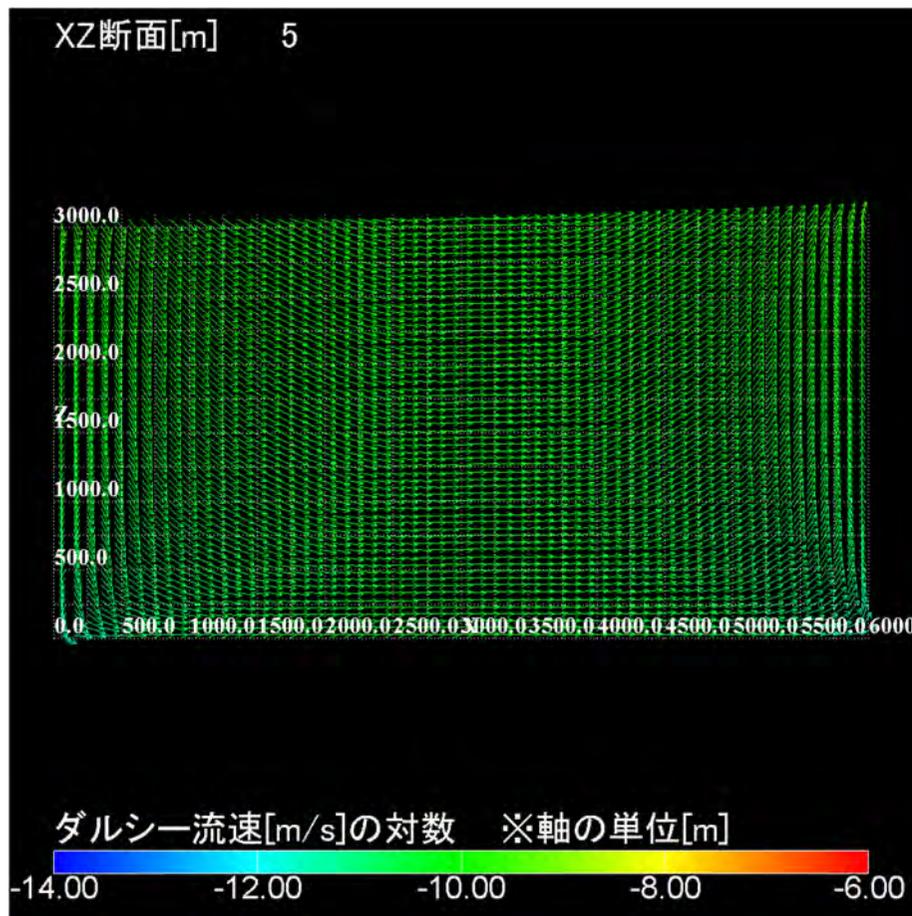


(a) ダルシー流速分布

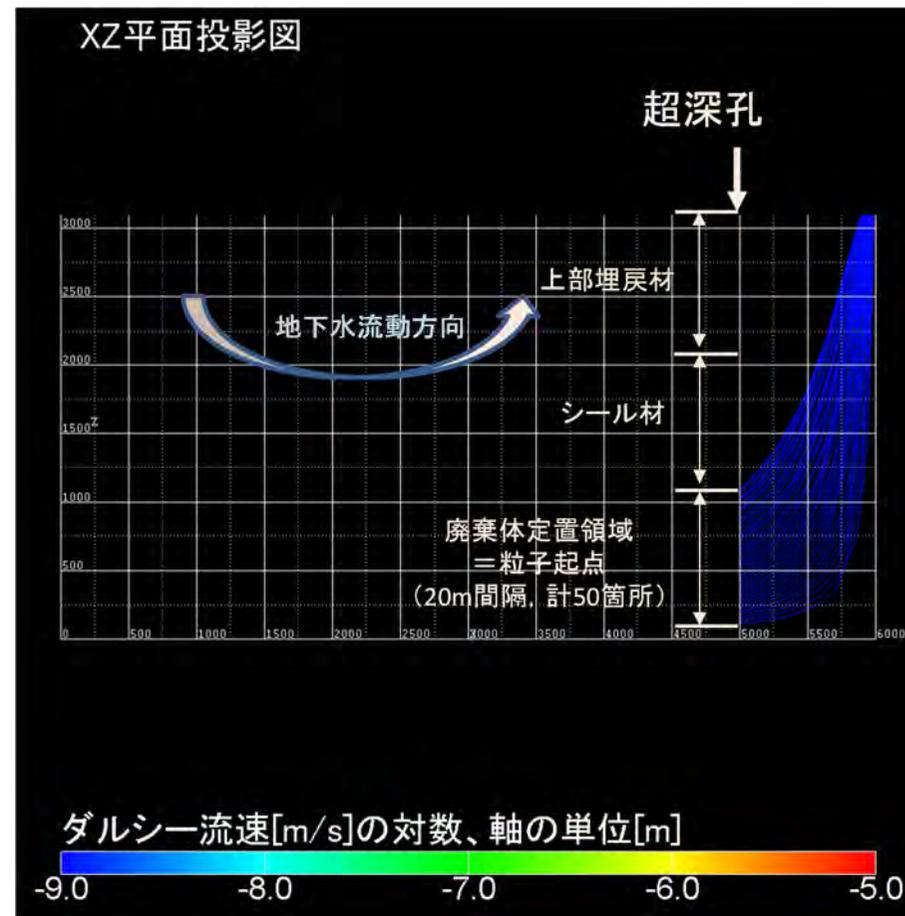


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-9 ケース 1-9 の解析結果（地下水流動：上方向，母岩の透水係数： $1 \times 10^{-8} \text{ m s}^{-1}$ ，シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-12} \text{ m s}^{-1}$ ）

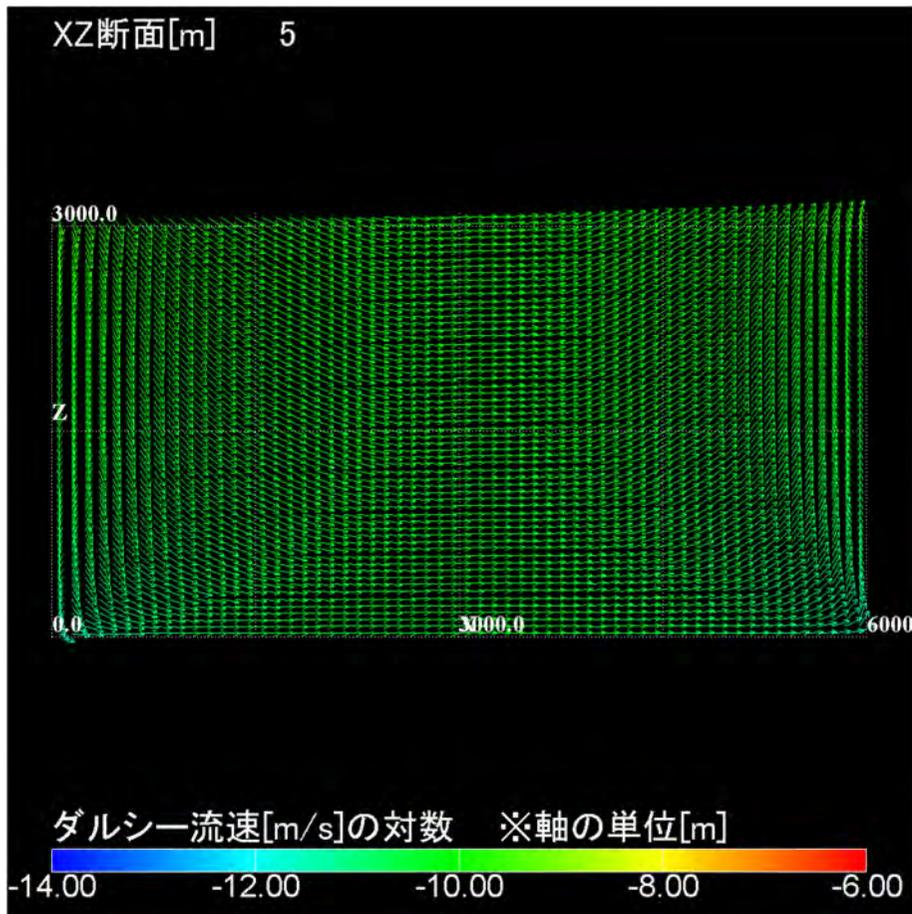


(a) ダルシー流速分布

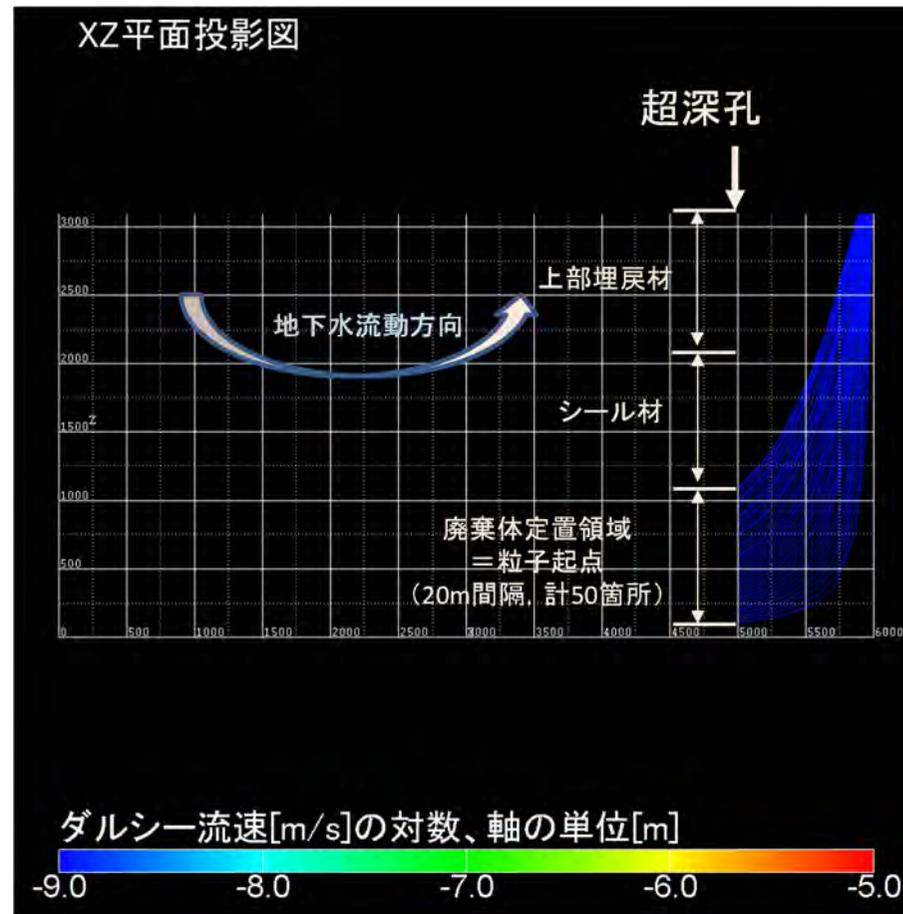


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-10 ケース 1-10 の解析結果 (地下水流動: 上方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-8} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$)

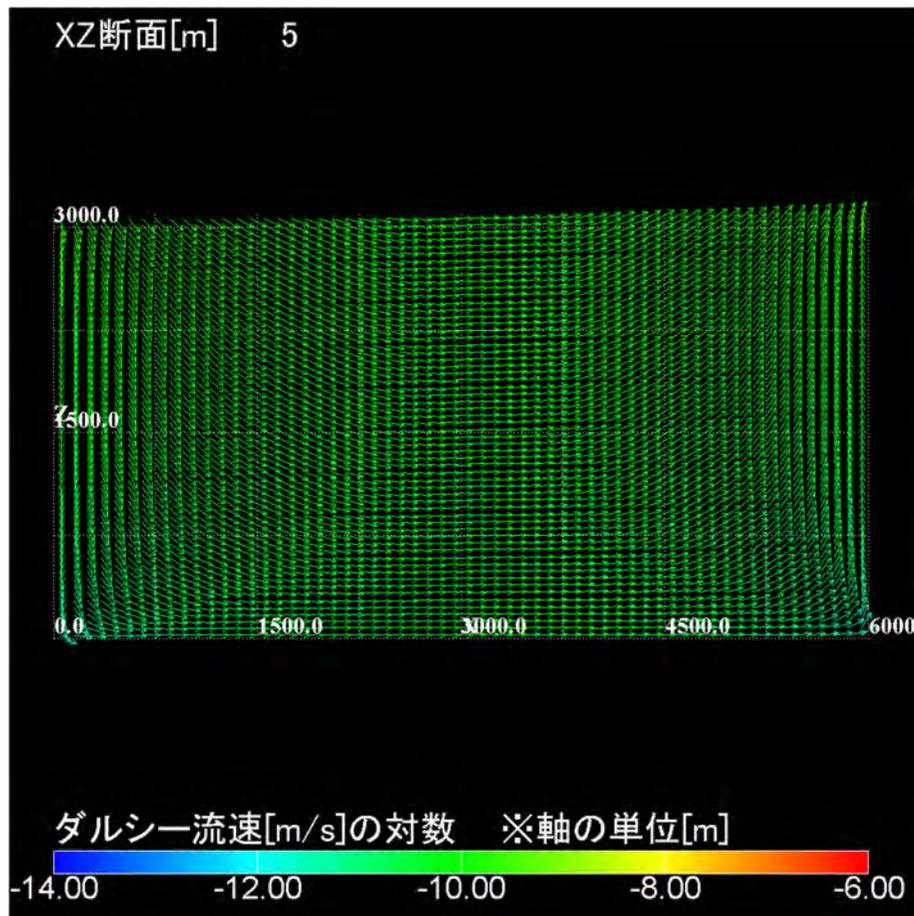


(a) ダルシー流速分布

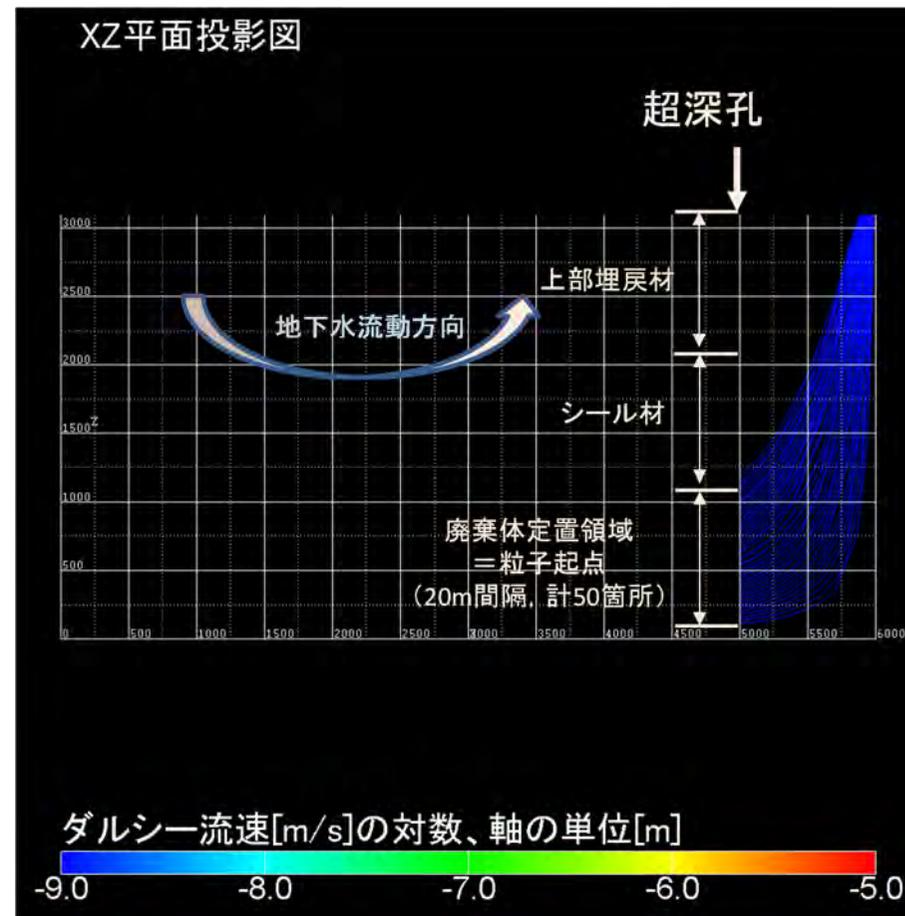


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-11 ケース 1-11 の解析結果 (地下水流動: 上方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-8} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-7} \text{ m s}^{-1}$)

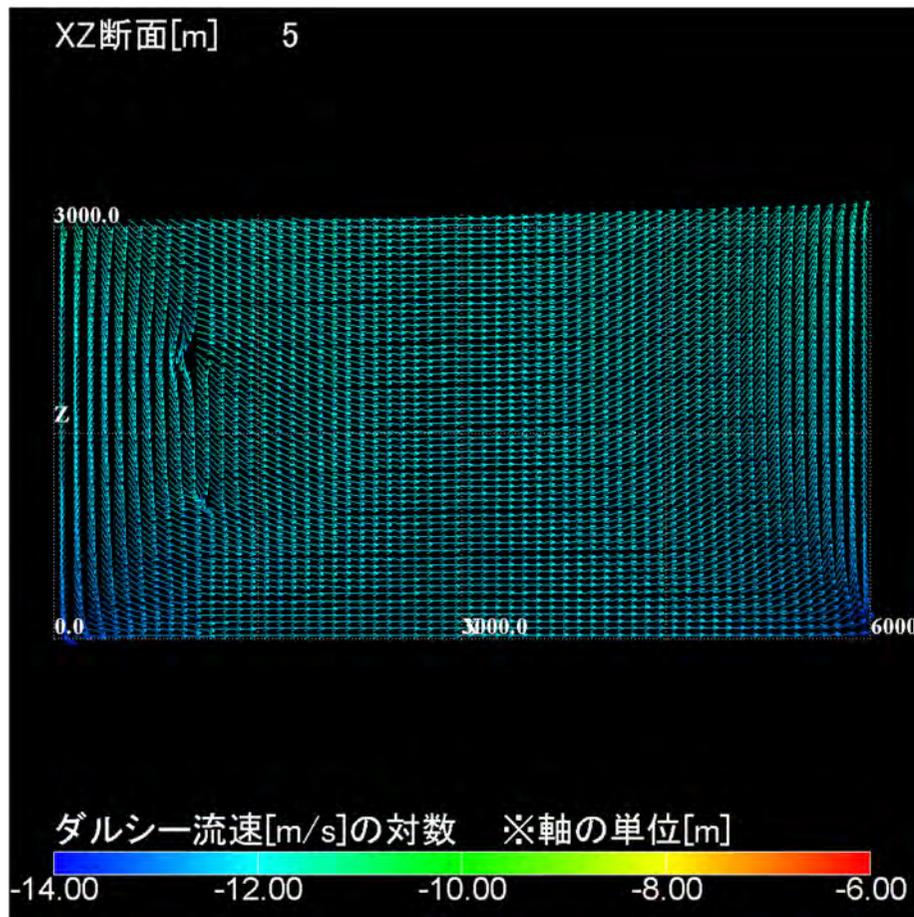


(a) ダルシー流速分布

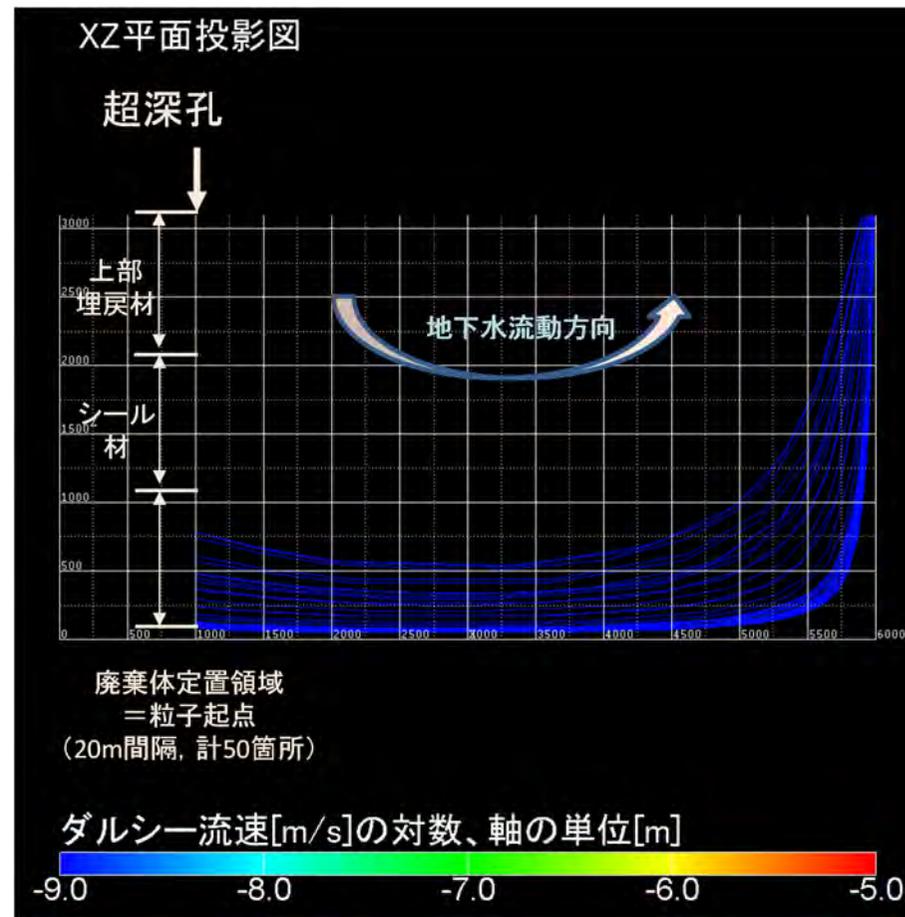


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-12 ケース 1-12 の解析結果 (地下水流動: 上方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-8} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-5} \text{ m s}^{-1}$)

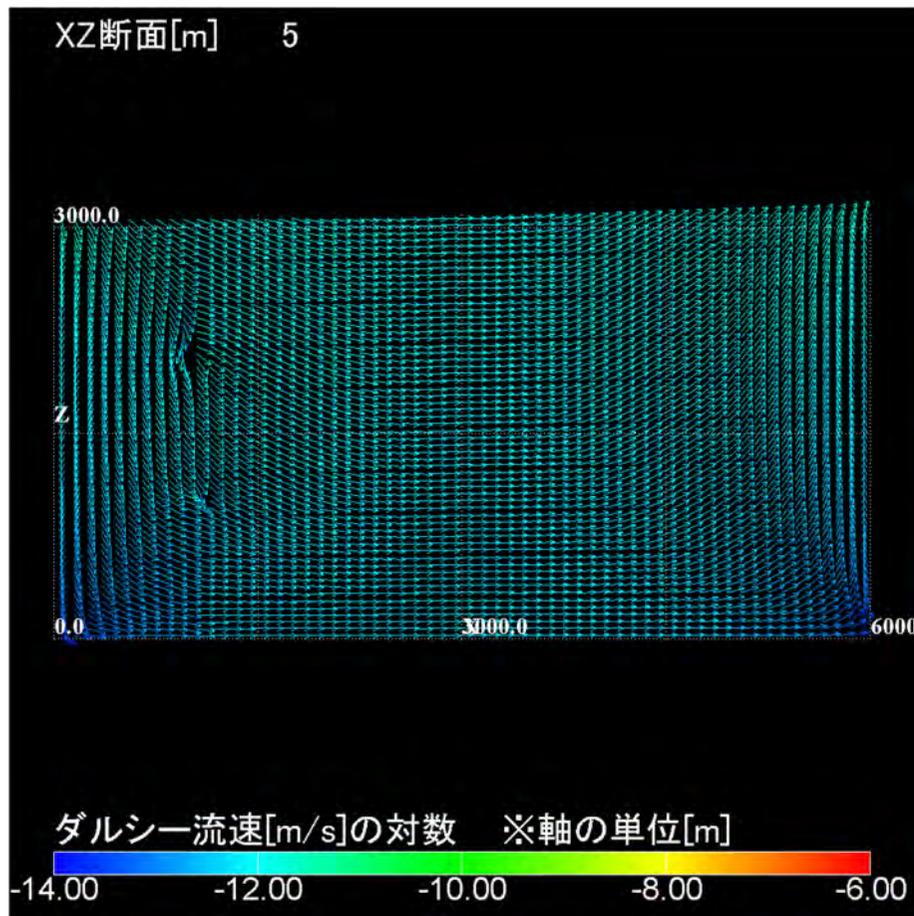


(a) ダルシー流速分布

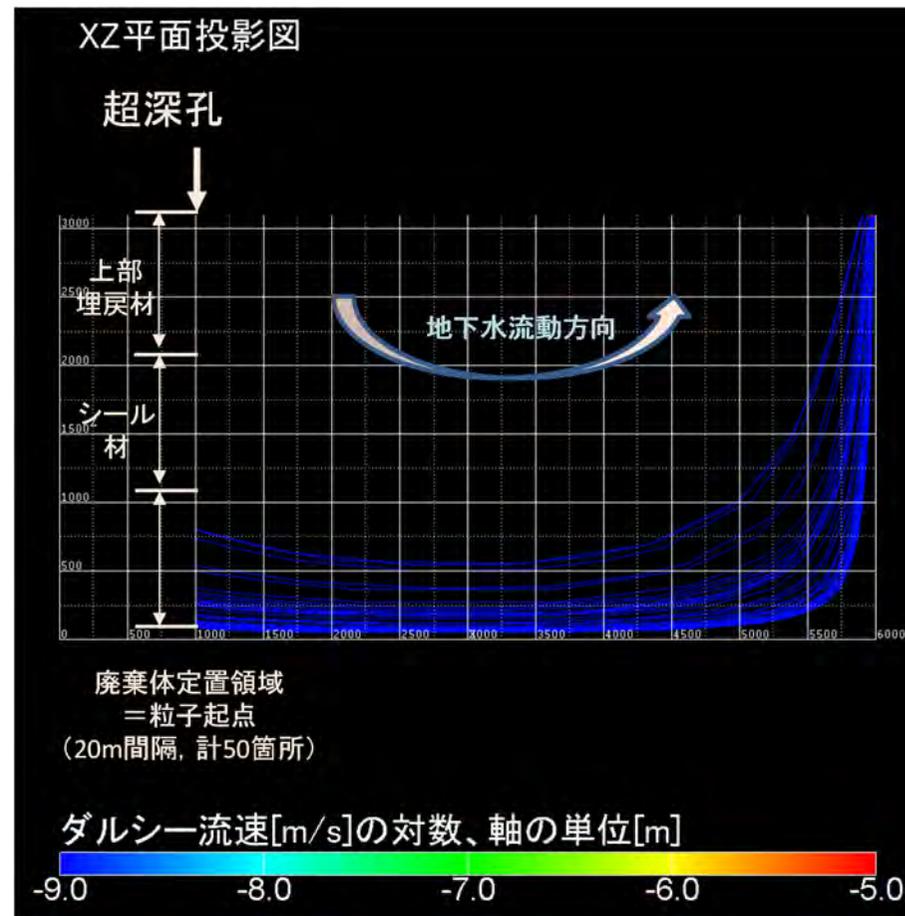


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-13 ケース 2-1 の解析結果 (地下水流動: 下方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-12} \text{ m s}^{-1}$)

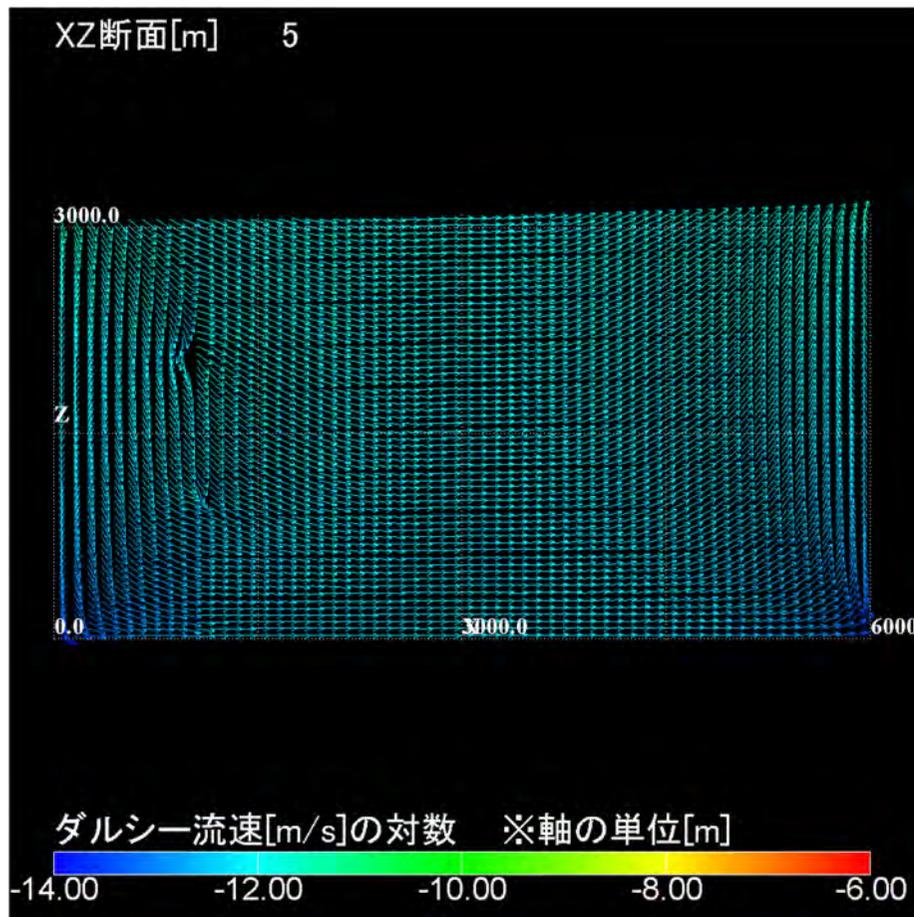


(a) ダルシー流速分布

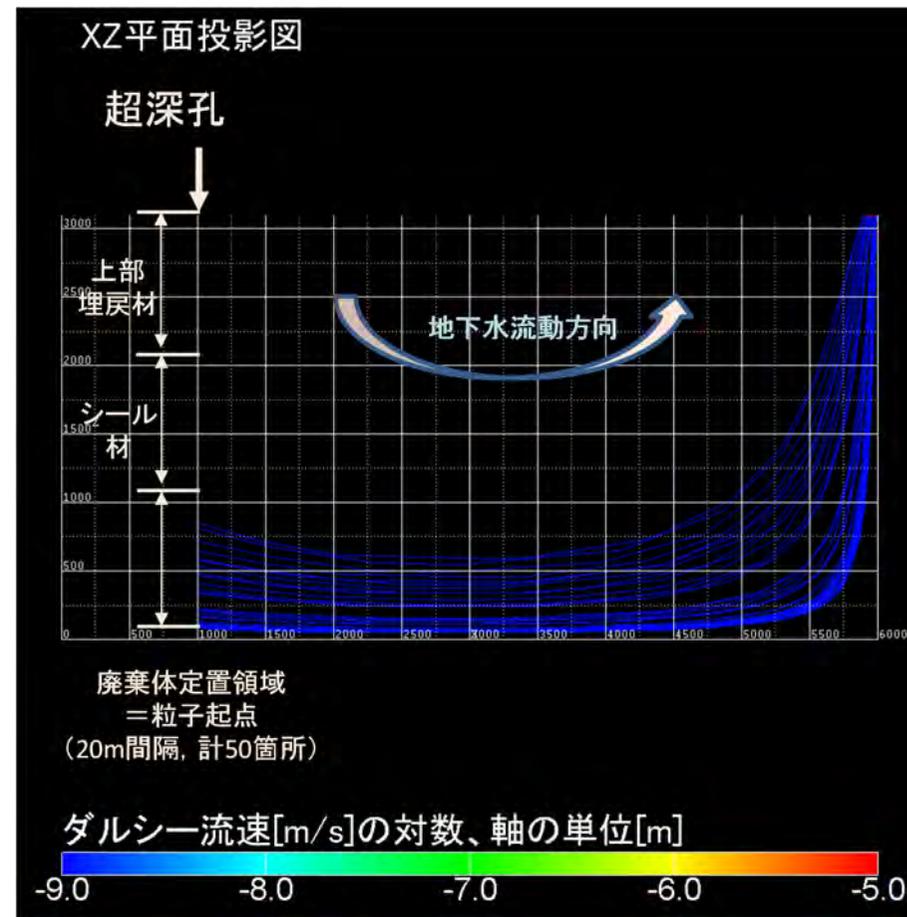


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-14 ケース 2-2 の解析結果 (地下水流動: 下方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$)

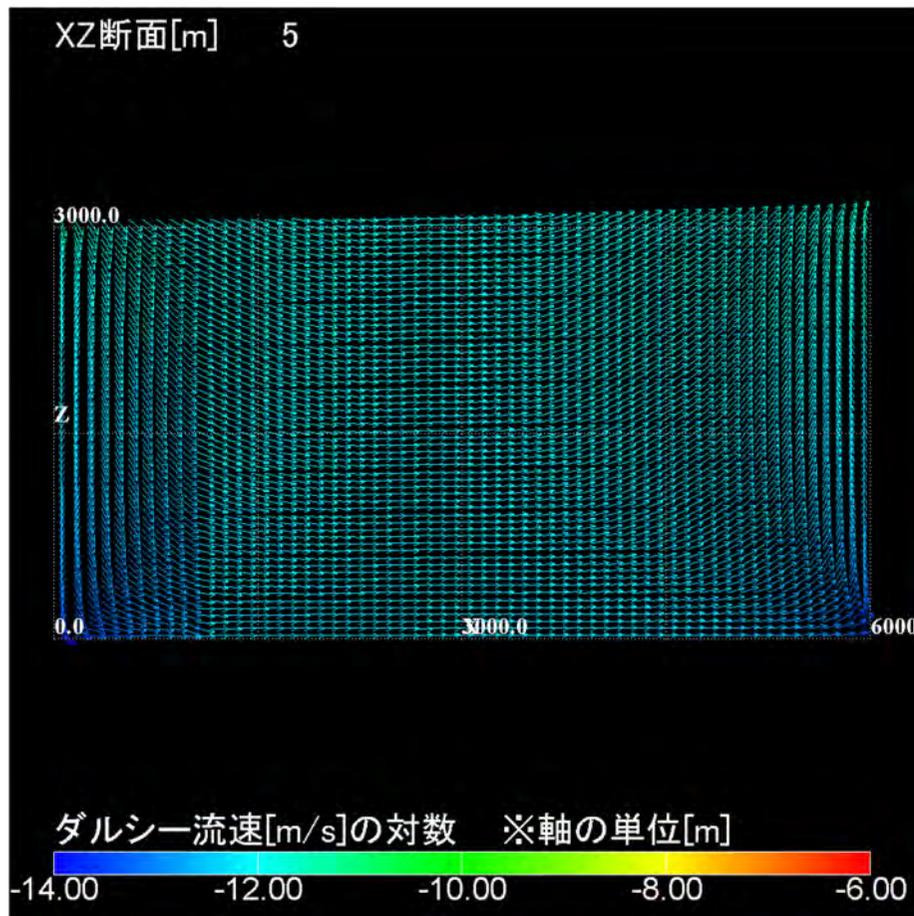


(a) ダルシー流速分布

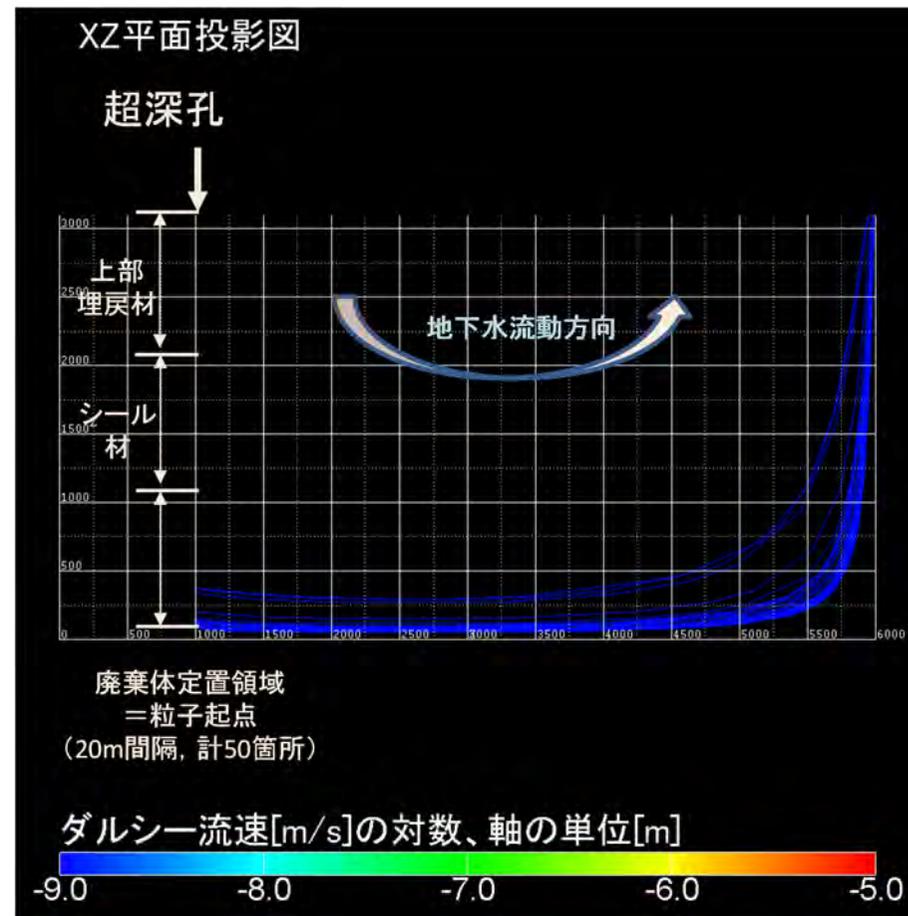


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-15 ケース 2-3 の解析結果 (地下水流動: 下方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-7} \text{ m s}^{-1}$)

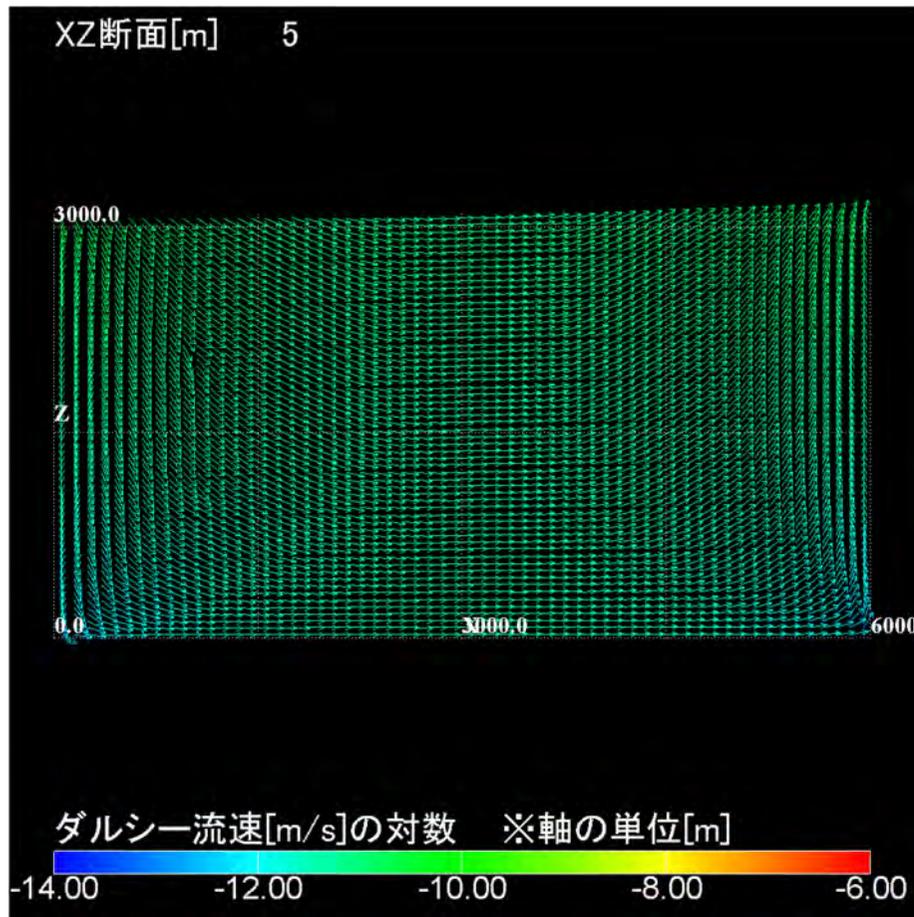


(a) ダルシー流速分布

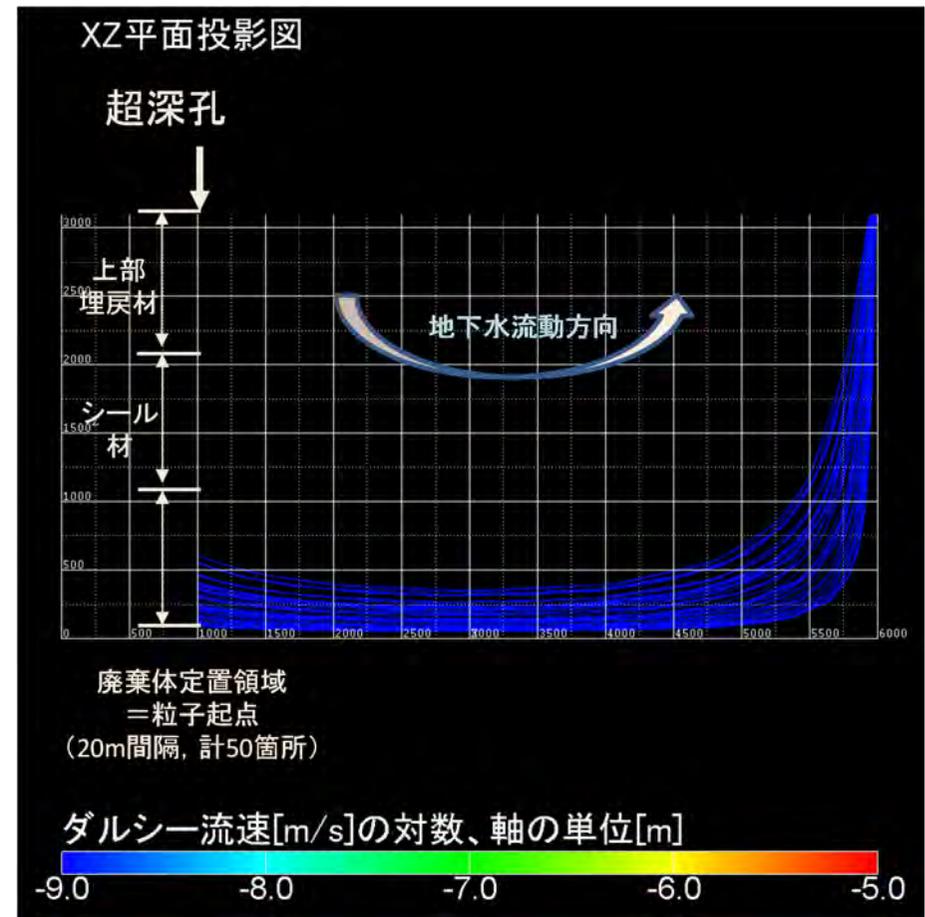


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-16 ケース 2-4 の解析結果 (地下水流動: 下方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-5} \text{ m s}^{-1}$)

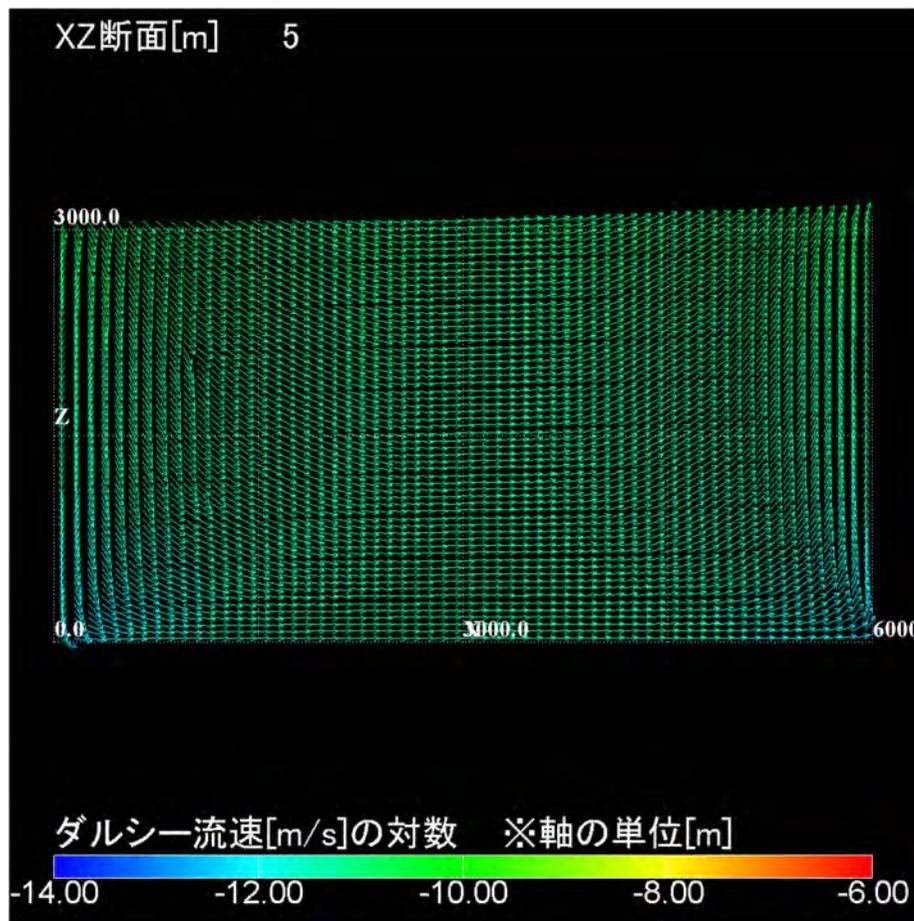


(a) ダルシー流速分布

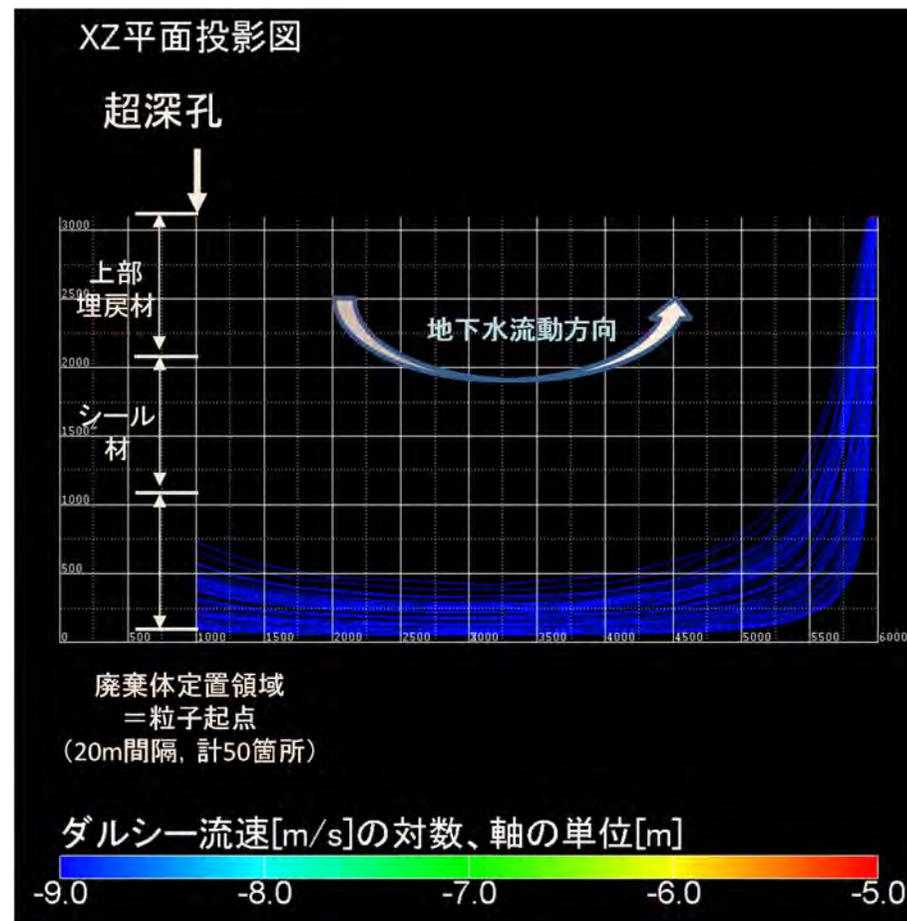


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-17 ケース 2-5 の解析結果 (地下水流動: 下方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-9} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-12} \text{ m s}^{-1}$)

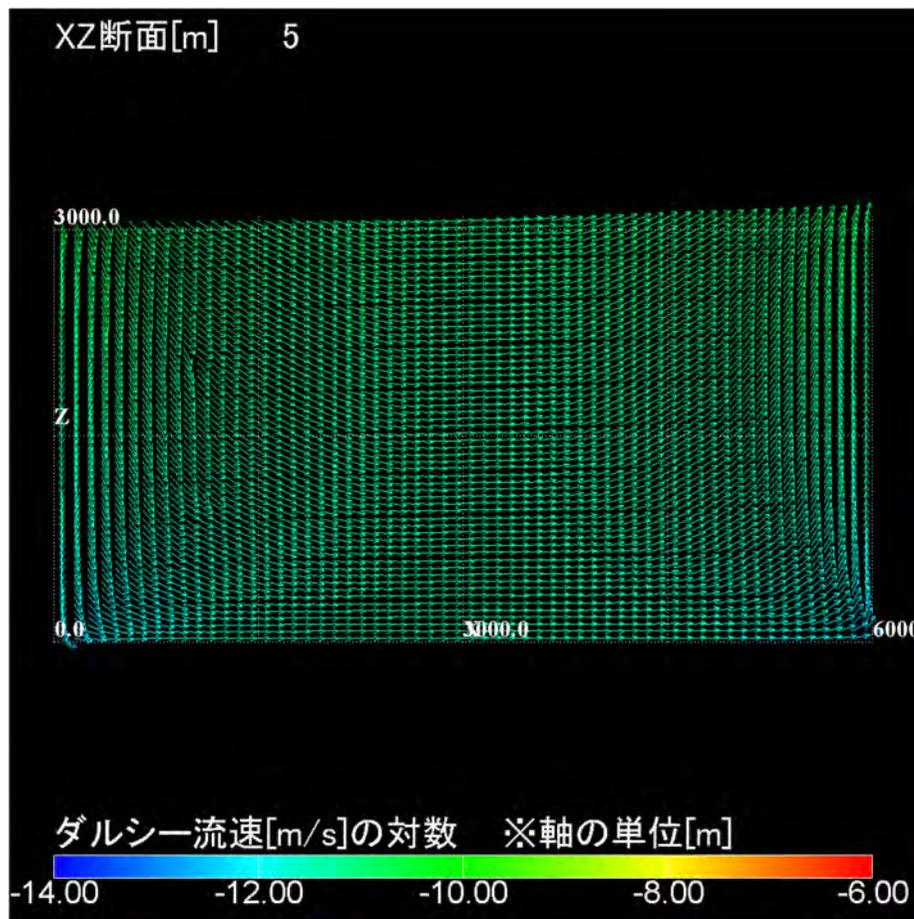


(a) ダルシー流速分布

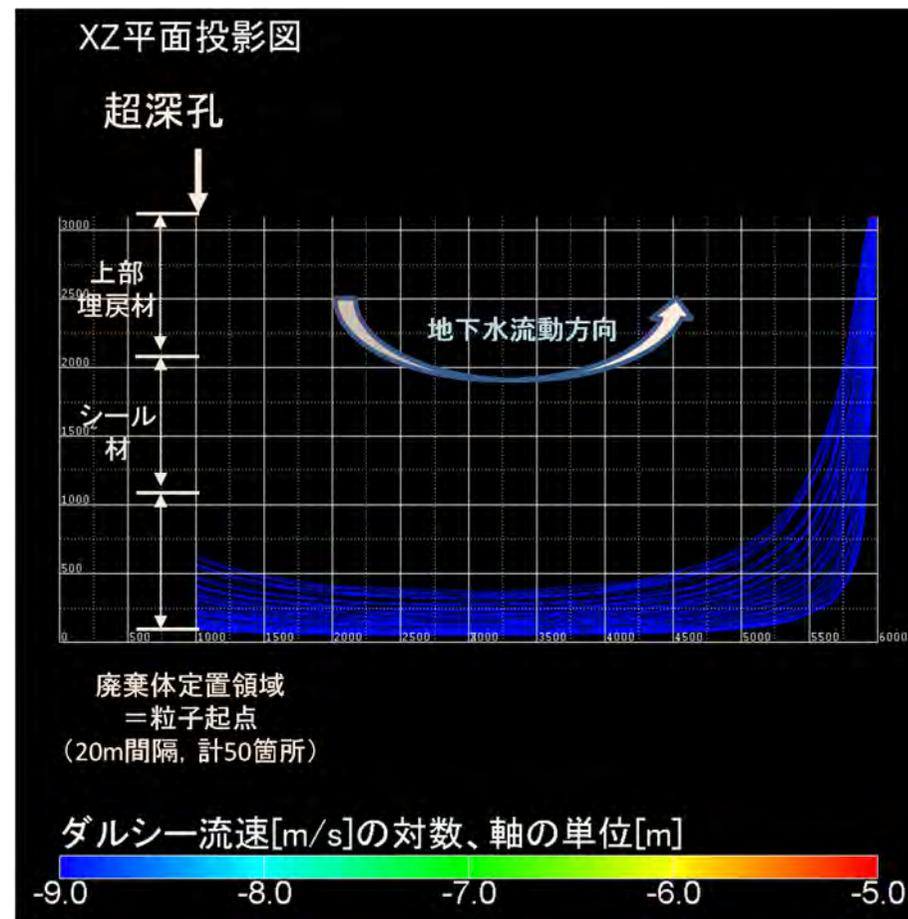


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-18 ケース 2-6 の解析結果 (地下水流動: 下方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-9} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$)

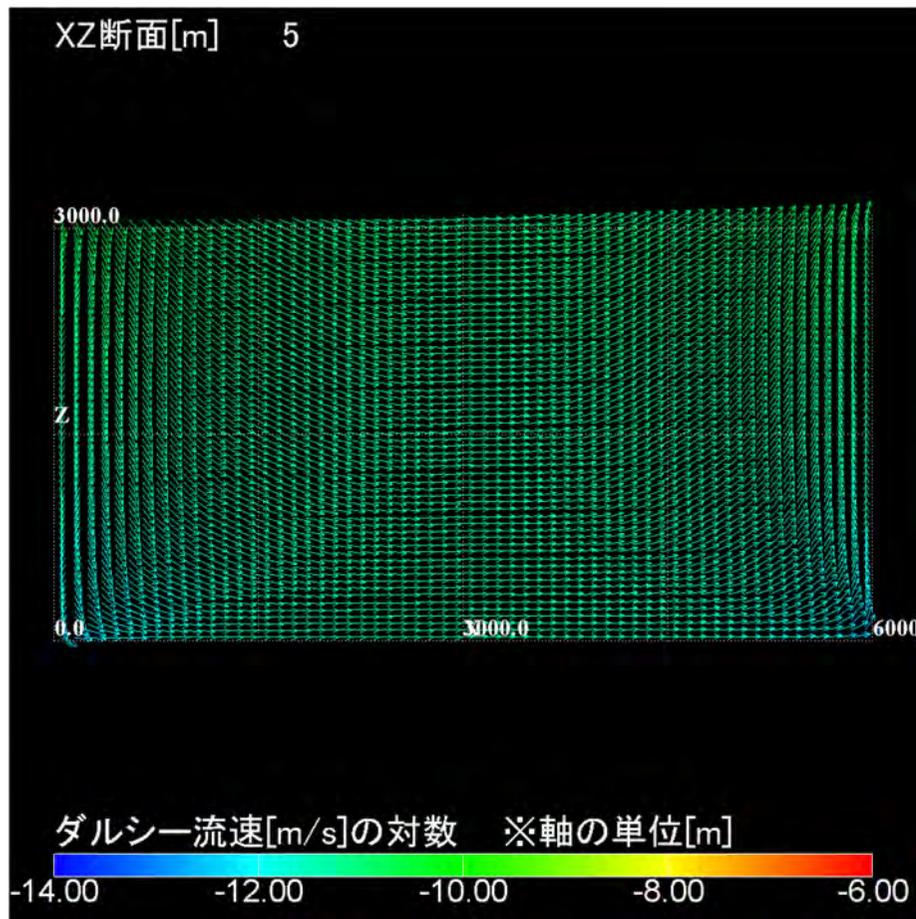


(a) ダルシー流速分布

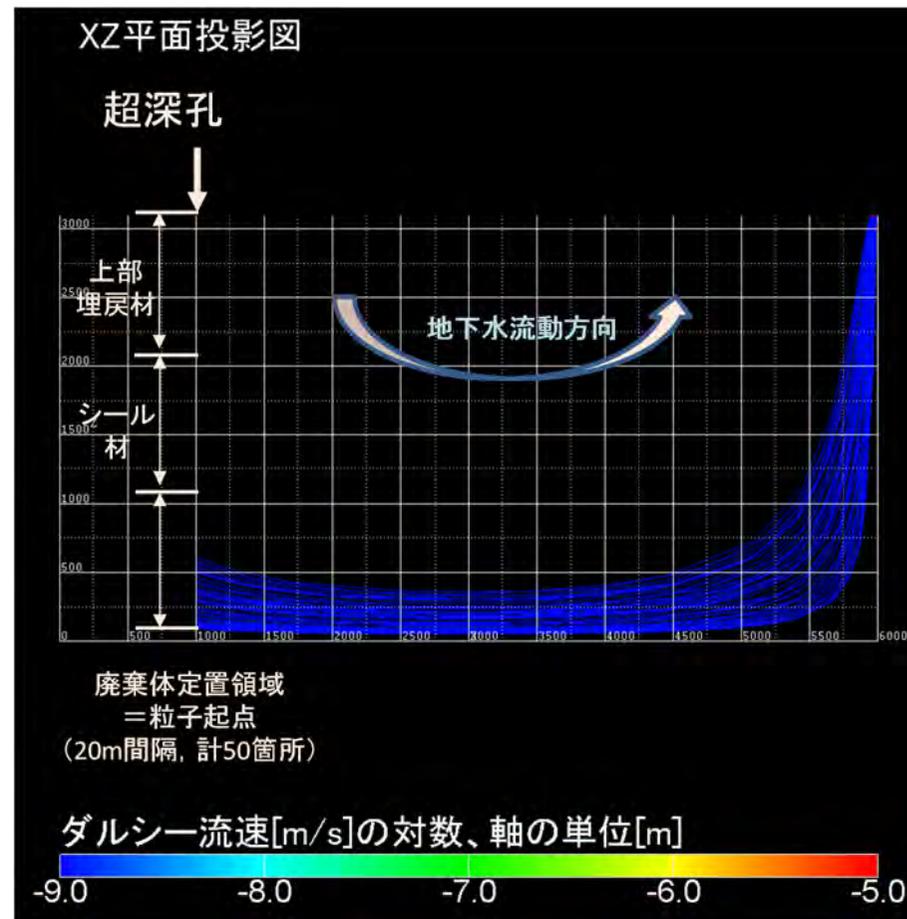


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-19 ケース 2-7 の解析結果 (地下水流動: 下方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-9} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-7} \text{ m s}^{-1}$)

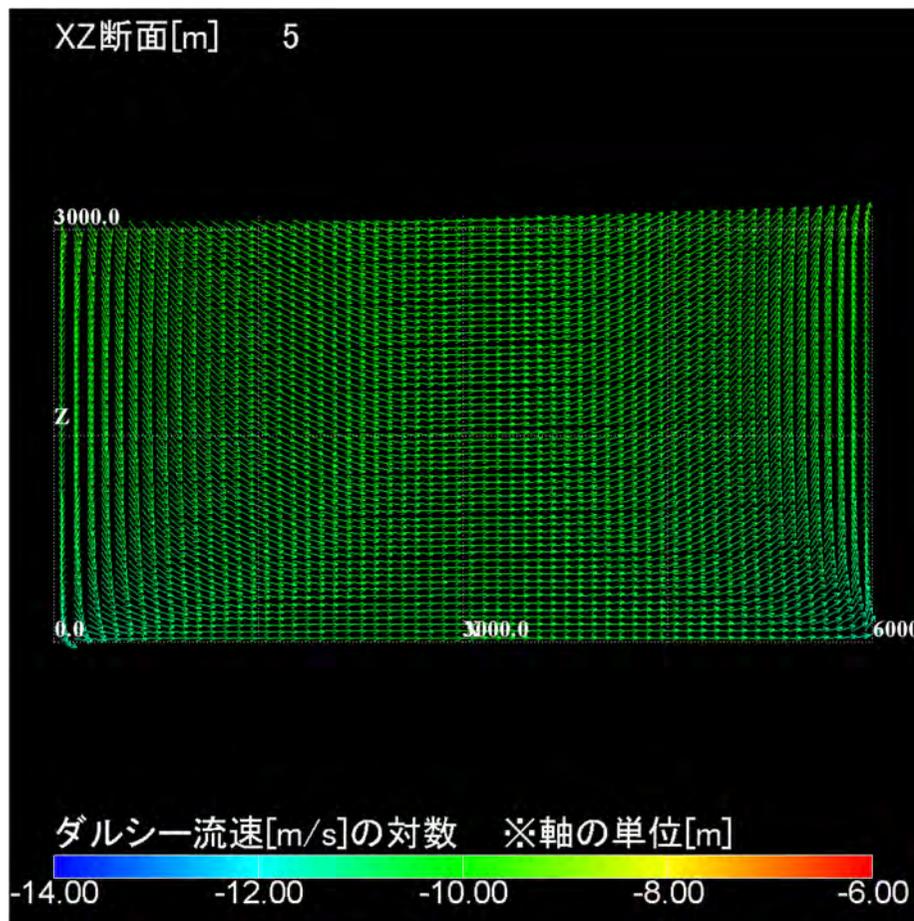


(a) ダルシー流速分布

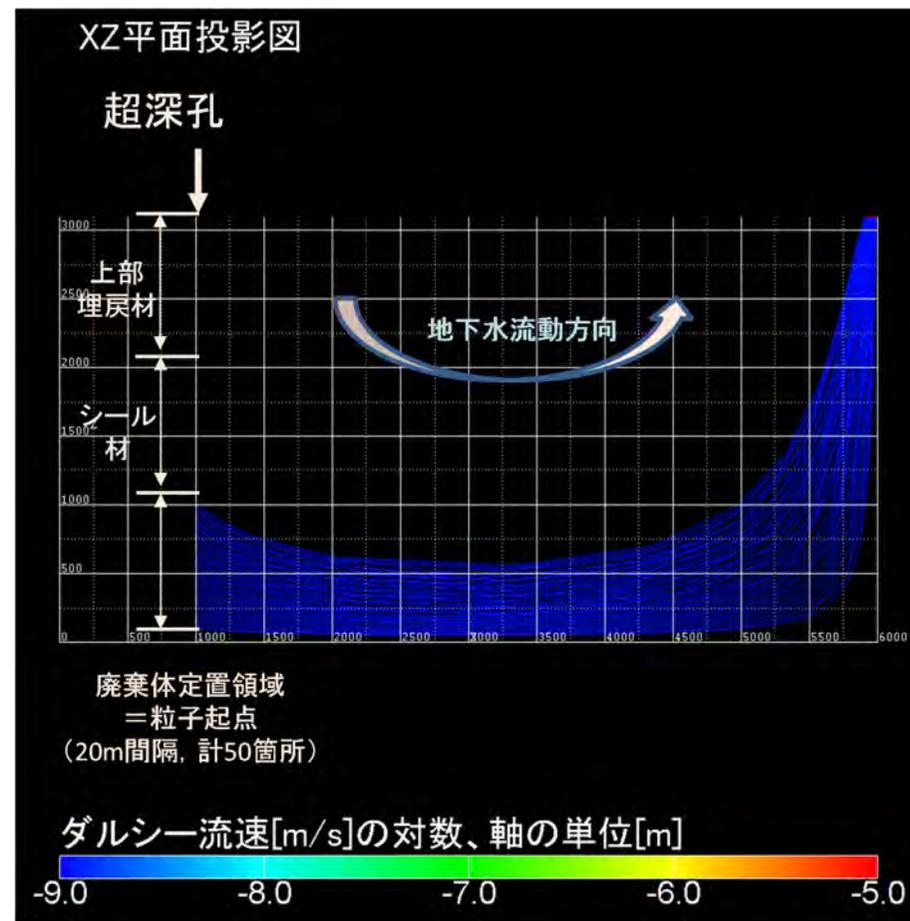


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-20 ケース 2-8 の解析結果 (地下水流動: 下方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-9} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-5} \text{ m s}^{-1}$)

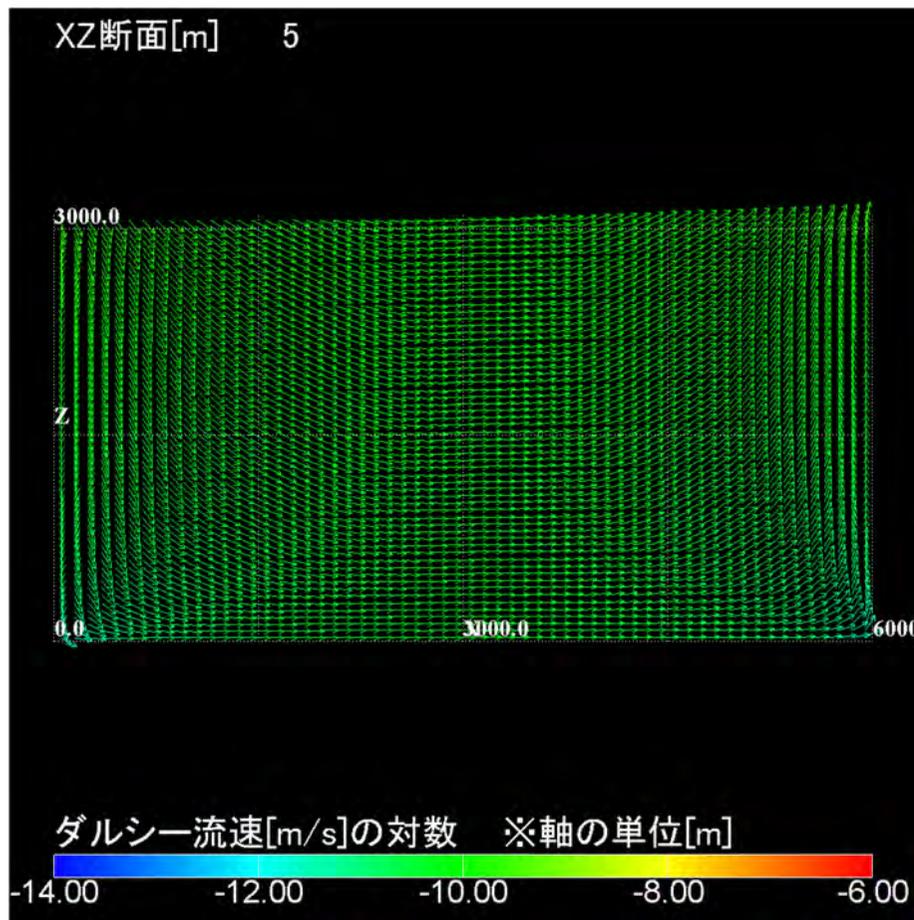


(a) ダルシー流速分布

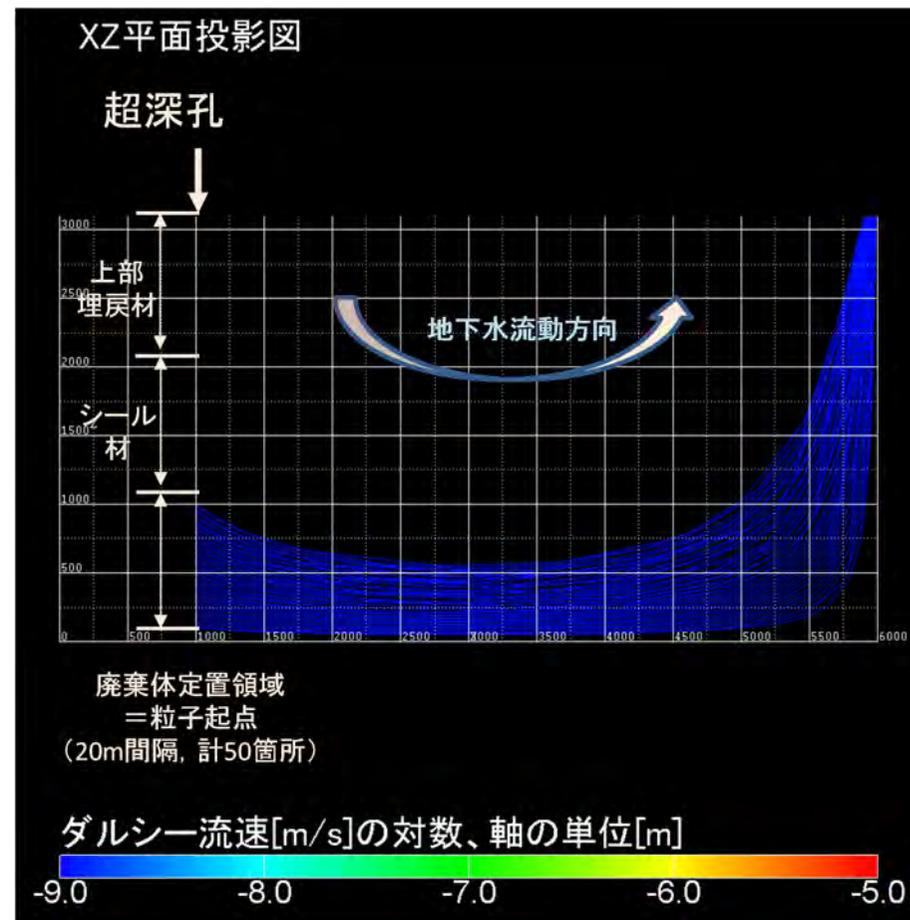


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-21 ケース 2-9 の解析結果 (地下水流動: 下方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-8} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-12} \text{ m s}^{-1}$)

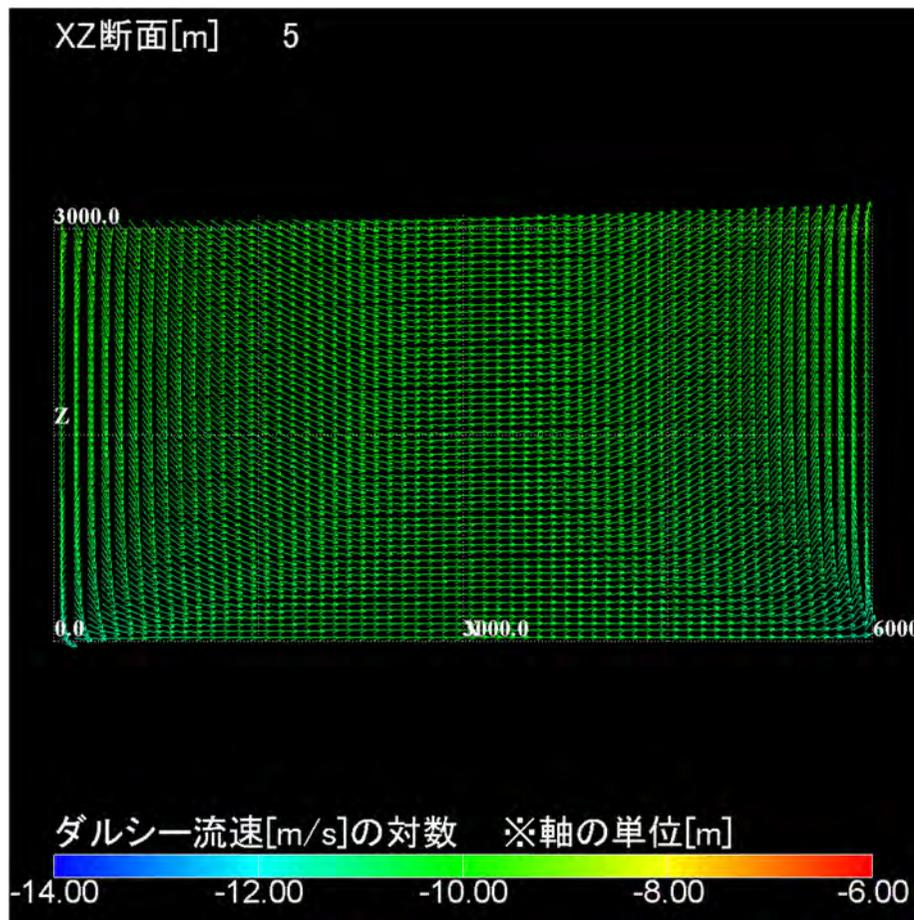


(a) ダルシー流速分布

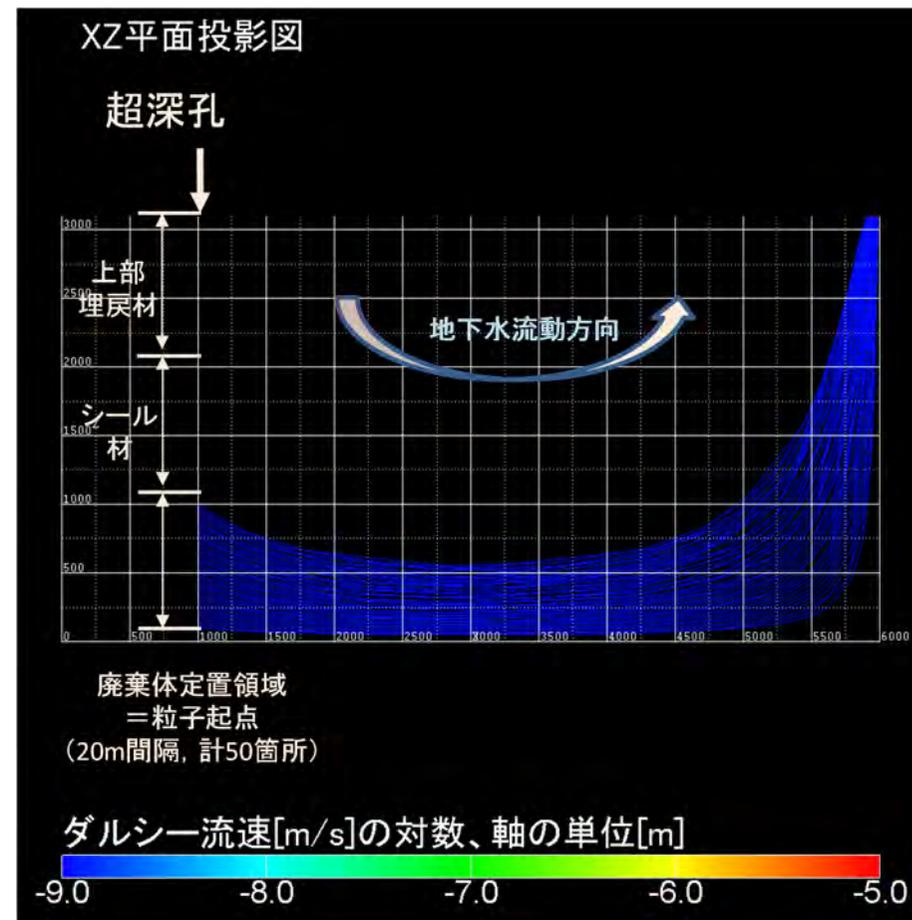


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-22 ケース 2-10 の解析結果 (地下水流動: 下方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-8} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$)

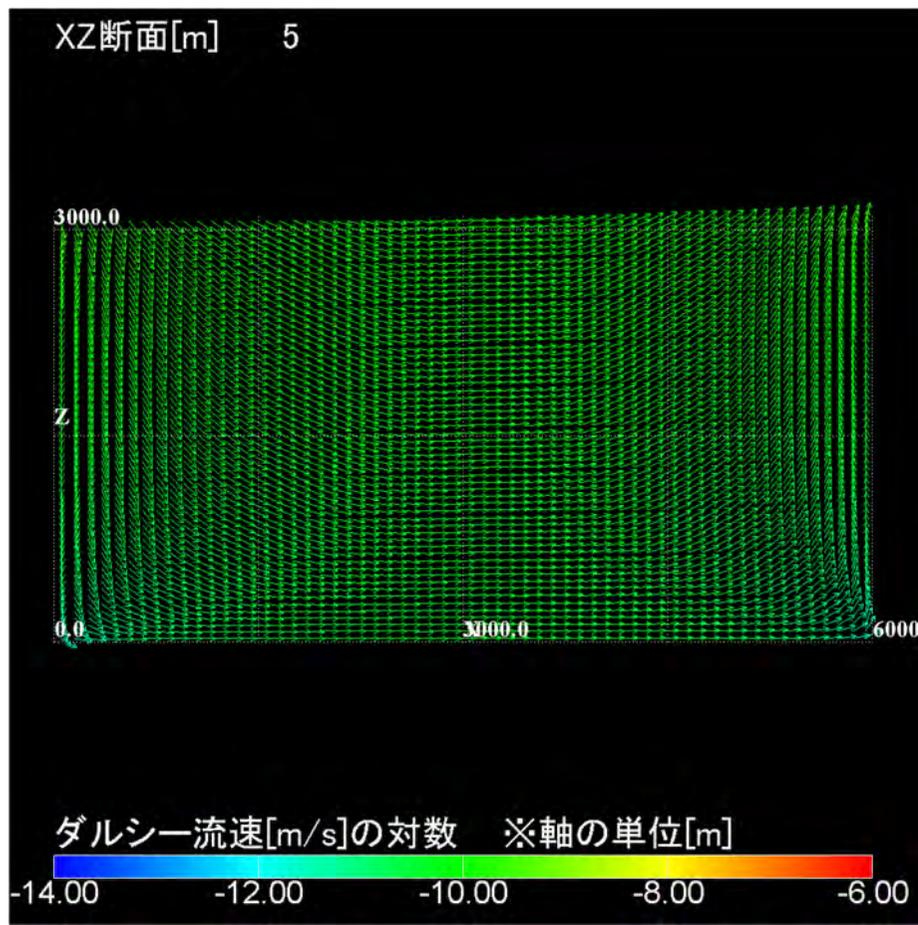


(a) ダルシー流速分布

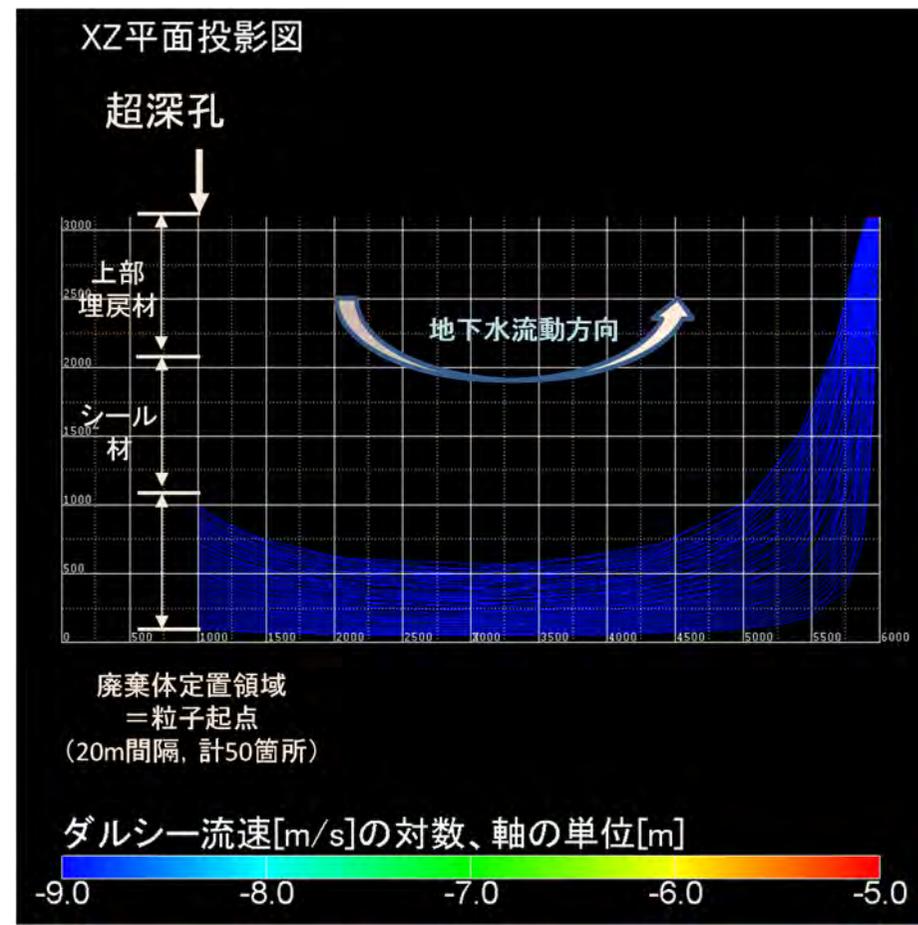


(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-23 ケース 2-11 の解析結果 (地下水流動: 下方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-8} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-7} \text{ m s}^{-1}$)



(a) ダルシー流速分布



(b) 粒子追跡線解析結果

付図 4-24 ケース 2-12 の解析結果 (地下水流動: 下方向, 母岩の透水係数: $1 \times 10^{-8} \text{ m s}^{-1}$, シール材領域の透水係数 $1 \times 10^{-5} \text{ m s}^{-1}$)

