令和3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4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3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3年度の実施内容・・・・・	1-5
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・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-40
2.3 まとめ・・・・・	2-67
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・・・・・	3-46
3.3 まとめ・・・・・	3-60
4. その他の代替処分オプションについての調査・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-1
5. おわりに・・・・・	5-1
付録1 ウラン化合物のラマンスペクトルデータ	付 1-1

図 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 ・・・・・・・・・・	1-4
⊠ 2.1-1	SSRT 試験片の模式図・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-3
図 2.1-2	SSRT 試験結果(応力-クロスヘッド変位図)・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-5
図 2.1-3	SSRT 試験中の自然電位・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-5
図 2.1-4	SSRT 試験後の試験片の外観······	2-6
図 2.1-5	破断部近傍の SEM 観察結果例 (100%N ₂)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-7
図 2.1-6	破断部近傍の SEM 観察結果例 (1%H ₂ S)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-8
図 2.1-7	破断部近傍の SEM 観察結果例 (100%H ₂ S) · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	2-9
図 2.1-8	Uベンド試験片の模式図・・・・・	2-10
図 2.1-9	試験後のUベンド試験片の外観 ・・・・・	2-12
図 2.1-10	Uベンド試験片の皮膜成長速度・・・・・	2-13
図 2.1-11	緩衝材中での試験カラムの模式図 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-14
図 2.1-12	試験後の試験片外観およびラマン分光測定点 ・・・・・・・・・・・・・	2-16
図 2.1-13	XRD 分析結果(1/2)······	2-17
図 2.1-13	XRD 分析結果(2/2)······	2-18
⊠ 2.1-14	ラマン分光分析結果(1/2) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-19
図 2.1-14	ラマン分光分析結果(2/2) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-20
図 2.1-15	緩衝材断面試料の例・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-21
図 2.1-16	緩衝材断面試料の元素マッピングおよび線分析結果 ・・・・・・・・・・	2-22
図 2.1-17	緩衝材中における硫化物輸送の概念図(円筒壁モデル) ・・・・・・・・・	2-24
図 2.1-18	平板モデルによる計算結果と浸漬試験結果の比較 ・・・・・・・・・・・	2-24
図 2.1-19	円筒壁モデルによる長期評価 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-26
図 2.1-20	応力腐食割れの機構・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-27
図 2.1-21	Uベンド試験片の模式図・・・・・	2-29
図 2.1-22	試験のイメージ図 ・・・・・	2-29
図 2.1-23	EPMAによる元素マッピング結果 ((a):10 mM NH4C1 溶液、(b):人工海	
	水) • • • • • • • • • • • • • • • • • • •	2-30
⊠ 2.1-24	すきま腐食試験片の模式図 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-33
図 2.1-25	電気化学試験模式図 ······	2-33
図 2.1-26	Alloy C-276の定電位試験結果(令和2年度)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-35
図 2.1-27	Alloy C-276の定電位試験結果(令和3年度)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-35
図 2.1-28	Alloy C-276の定電位試験後試料表面観察比較・・・・・・・・・・・・・・・・	2-36
図 2.1-29	試験に用いたチタン製カラムのイメージ図 ・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-38
図 2.1-30	試験前試験片の表面分析結果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-39
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 ・・・・・・・・・・・・	2-41
⊠ 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・・・・・・・・・・・・・・・	2-46
义] 2.2-3	直接処分環境において起こりうる状態変化の組み合わせ候補の概念図 ・・・	2-47
义] 2.2-4	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 ・・・	2-49
义] 2.2-5	収容スペース内部における腐食挙動に係る位置関係を示すパラメータ ・・・	2-52
义] 2.2-6	収容スペース内壁での腐食の進展における実効増倍率 ・・・・・・・・・・	2-53
义] 2.2-7	SKBの評価との比較(マグネタイト)	2-54
义] 2.2-8	収容スペース内壁および燃料被覆管における腐食の進展の複合的現象を	
		考慮した実効増倍率(マグネタイト)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-55
义] 2.2-9	収容スペース内壁および燃料被覆管における腐食の進展の複合的現象を	
		考慮した実効増倍率(シデライト)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-55
义	2.2-10	収容スペースの間の仕切り部が破損する状況の例 ・・・・・・・・・・・	2-59
义	2.2-11	燃料集合体収容スペースの容積が拡大する状況の例 ・・・・・・・・・・	2-59
义	2.2-12	力学解析における解析体系 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-61
义	2.2-13	解析結果の例(相当応力の時間変化) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-63
义	2.2-14	臨界が発生しうる材料配置パターンのロジックツリーによる整理例 ・・・・	2-65
义	3.1-1	使用済燃料中の核種分布および核種放出の概念	3-2
义] 3.1-2	燃料溶解速度の全炭酸濃度依存性に関する文献情報 ・・・・・・・・・・	3-4
义	3.1-3	先行事業で得られた二酸化ウラン溶解速度の全炭酸濃度依存性 ・・・・・・	3-5
义	3.1-4	ウランの溶出に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響の例(SA/V=5、平成 31	
		年度実施)	3-5
义	3.1-5	U02の溶解速度に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響における REDUPP 文献	
		値との比較・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-6
义	3.1-6	UO2ペレット(上段)、 (U, Mg)O2固溶体ペレット(中段)、および	
		(U, ²⁶ Mg)02固溶体ペレット(下段)粉砕試料の XRD パターン・・・・・	3-7
义] 3.1-7	(U, ²⁶ Mg) 02 固溶体ペレットの塩酸洗浄による U 濃度時間変化	3-8
义] 3.1-8	(U, ²⁶ Mg) 02 固溶体ペレットの塩酸洗浄による ²⁶ Mg 濃度時間変化・・・・・・	3-8
义	3.1-9	各浸漬試験試料における pH の時間変化	3-11
义	3.1-10	各浸漬試験試料における液相の Eh の時間変化 ・・・・・・・・・・・・・・・	3-12
义	3.1-11	各試料における液相の炭酸イオン濃度の時間変化 ・・・・・・・・・・・	3-12
义	3.1-12	各試料における液相の U 濃度の対数値の時間変化 ・・・・・・・・・・・	3-13
义	3.1-13	各試料における液相の ²⁶ Mg 濃度の時間変化 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-13
义	3.1-14	各試料における液相の ²⁴ Mg 濃度の時間変化 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-14
义	3.1-15	(U, ²⁶ Mg) 0 ₂ 固溶体ペレットからの ²⁶ Mg 溶出濃度の時間変化・・・・・・・	3-15
义	3.1-16	バックグラウンド由来の ²⁶ Mg 濃度の時間変化 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-15
义] 3. 1-17	(U, ²⁶ Mg) 0 ₂ ペレットからの ²⁶ Mg 溶出率の時間変化・・・・・・・・・・・・	3-17
义] 3. 1-18	DR に及ぼす炭酸イオン濃度の影響・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-18
义	3.1-19	DR の先行研究との比較結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-19
汊	3.1-20	電解還元試験の条件(左)と電解還元セル(右) ・・・・・・・・・・・	3-21

図 3.1-21	過塩素酸ウラニル溶液の電解還元で析出した黒色微粒子(pH2の条件)・3-	-21
⊠ 3.1-22	pH4 における電解還元前後の作用極表面のラマンスペクトル(左)と	
	顕微鏡像(右)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3·	-22
⊠ 3.1-23	電解還元析出物の顕微ラマン分析結果(左)と顕微鏡像・試料外観	
	(右) ····································	-23
⊠ 3.1-24	電解析出物の SEM 像(左)と元素マッピングと半定量分析の結果(右) 3-	-23
⊠ 3.1-25	U0 ₂ ペレット試料の XRD 測定結果および作成条件 ・・・・・・ 3-	-24
⊠ 3.1-26	In-situ ラマン分析時の溶液条件と試験装置の模式図・・・・・・ 3-	-25
⊠ 3.1-27	In-situ 分析で観測された UO2ペレット表面のラマンスペクトル	
	$(NaHCO_3: 1.0 \times 10^{-2} mol dm^{-3} H_2O_2: 1.0 \times 10^{-2} mol dm^{-3}) \cdots 3^{-3}$	-26
⊠ 3.1-28	重ウラン酸ナトリウムのラマンスペクトル ・・・・・・・・・・・・ 3-	-27
⊠ 3.1-29	浸漬試験実施中の様子・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3・	-30
⊠ 3.1-30	実燃料 (試料 4) 溶解時の様子・・・・・ 3-	-31
⊠ 3.1-31	pH および H ₂ O ₂ 濃度の時間変化・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	-32
⊠ 3.1-32	Cs-133、Sr-90、Tc-99 および U-238 の溶出挙動・・・・・・ 3-	-34
⊠ 3.1-33	Cs-133、Sr-90、Tc-99 および U-238 の放出割合 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	-35
⊠ 3.1-34	U-238の溶出割合で規格化された核種の溶出割合と IRF 設定値との比較・3-	-36
⊠ 3.1-35	C-14 分析結果・・・・・ 3-	-37
⊠ 3.1-36	5A2の浸漬試験における各核種濃度の時間変化(U、Pu、Np、Am、Cm) ·· 3·	-41
⊠ 3.1-37	5A2の浸漬試験における各核種濃度の時間変化(Tc、Sr、Mo、Cs、I) · · 3·	-41
⊠ 3.1-38	C1の浸漬試験における各核種濃度の時間変化(U、Pu、Np、Am、Cm) ··· 3-	-41
⊠ 3.1-39	C1の浸漬試験における各核種濃度の時間変化(Tc、Sr、Mo、Cs、I) ··· 3-	-42
⊠ 3.1-40	被覆管付き試料の浸漬試験における核種濃度と浸漬日数の関係(アクチ	
	ニド核種) ・・・・・・ 3-	-44
⊠ 3.1-41	被覆管付き試料の浸漬試験における核種濃度と浸漬日数の関係(Sr、	
	Cs, Tc, I)	-44
⊠ 3.1-42	粉末試料の浸漬試験における核種濃度と浸漬日数の関係(アクチニド核	
	種)	-44
図 3.1-43	粉末試料の浸漬試験における核種濃度と浸漬日数の関係(Sr、Cs、Tc、	
	I)	-45
⊠ 3.2-1	変質試験手法概略図 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	-47
図 3.2-2	モンモリロナイト底面間隔の相対湿度依存性(酸化性雰囲気・炭酸共存	
	条件) ····································	-51
図 3.2-3	浸出陽イオン量測定結果(酸化性雰囲気・炭酸共存条件) ・・・・・・・・ 3-	-52
図 3.2-4 (a)) 低酸素雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験試料の EPMA 分析	
	結果(約 400×400 μm²)(0.5 mol l ⁻¹ NaCl 溶液下) ・・・・・・・・・ 3·	-54
図 3.2-4(b)) 低酸素雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験試料の EPMA 分析	
	結果(約 400×400 μ m ²)(0.45 mol 1 ⁻¹ NaCl + 0.05 mol 1 ⁻¹	
	NaHCO3 + 0.001 mol 1 ⁻¹ Na2S 溶液) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3・	-54

図 3.2-5 低酸素雰囲気・炭酸共存下での銅粉	カラム変質試験試料の XRD 測定結果 ・ 3-55
図 3.2-6(a) 低酸素雰囲気・鉄共存下での銅粉	カラム変質試験試料の EPMA 分析結
果(約 400×400 μm²)(0.5 mol	1 ⁻¹ NaCl 溶液下) ····· 3-57
図 3.2-6(b) 低酸素雰囲気・鉄共存下での銅粉	カラム変質試験試料の EPMA 分析結
果(約 400×400 μm²)(0.5 mol	l ⁻¹ NaCl + 1×10 ⁻⁴ mol l ⁻¹ FeCl ₂ 溶
液下)	
図 3.2-7 銅粉カラム変質試験試料の CEC 測定紙	結果 • • • • • • • • • • • • • • • • • 3-58
図 4-1 Deep Isolation 社が提案する処分概念	のイメージ・・・・・・・・・・・・・・・・ 4-2
図 4-2 エストニアの位置・・・・・・・・・・・・	
図 4-3 エストニアにおける地質学的適合性評(西項目およびスクリーニング基準 ・・・ 4-8
図 4-4 超深孔処分において想定される事業段	皆の区分および要求事項の設定 ・・・・ 4-14
図 4-5 複数の事業段階・要求事項に関連する	設計要件の整理イメージ ・・・・・・ 4-17
図 4-6 坑壁に作用する応力のイメージ・・・・・	
図 4-7 仮定した地下構造モデルのイメージ・・	
図 4-8 作成した地下構造モデルにおける地層	波壊圧勾配と間隙水圧勾配の深度プ
ロファイル(ピンク線:地層破壊	寝圧勾配、青線:間隙水圧勾配)・・・・4-28
図 4-9 作成した地下構造モデルにおける温度	王力環境・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 4-29
図 4-10 ケーシングに作用する負荷 ・・・・・・	
図 4-11 構造 la に最適なケーシングプログラ.	Ь
図 4-12 構造 1b に最適なケーシングプログラ.	ム
図 4-13 構造 1c に最適なケーシングプログラ.	<i>ц</i> 4-36
図 4-14 構造 2 に最適なケーシングプログラム	4-37
図 4-15 水圧破砕法 (XLOT) による坑井内試験	4-43
図 4-16 異方性応力場に現れるブレイクアウト	と引張亀裂 ・・・・・ 4-44
図 4-17 DST 装置の概観・・・・・・・・・・・	
図 4-18 RFT プローブの概観・・・・・	
図 4-19 一軸圧縮試験の概念図 ・・・・・・・・	
図 4-20 WFT 装置の概観・・・・・・・・・・・・	
図 4-21 諸外国における超深度・結晶質岩中で	の透水試験の実績および温度・圧力
情報のわかりやすい整理・表示力	ラ法の例・・・・・ 4-56

表	Ħ	次
1	н	

表 1.1-1	本事業で利用・引用する主な過去の研究開発成果	1-2
表 2.1-1	SSRT 試験の試験条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-3
表 2.1-2	Uベンド試験の試験条件・・・・・	2-10
表 2.1-3	試験後のUベンド試験片の外観観察結果 ·····	2-12
表 2.1-4	断面写真から測定した皮膜厚さ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-13
表 2.1-5	浸漬試験の試験条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-15
表 2.1-6	腐食生成物分析結果 ······	2-21
表 2.1-7	Uベンド試験条件・・・・・	2-29
表 2.1-8	試験片の材質と成分分析値	2-33
表 2.1-9	すきま腐食発生条件調査結果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-36
表 2.1-10	浸漬試験の試験条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-37
表 2.1-11	水素吸収試験の試験条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-37
表 2.2-1	状態変化を考慮する必要性が高い組み合わせの候補の評価結果のまとめ・	2-47
表 2.2-2	処分環境で想定しうる鉄腐食生成物を考慮した予備解析結果 ・・・・・	2-48
表 2.2-3	燃料集合体、処分容器および緩衝材の解析条件	2-49
表 2.2-4	状態変化の組み合わせによる影響を評価するための解析ケース ・・・・・	2-51
表 2.2-5	鉄腐食生成物を構成する原子核の断面積データ ・・・・・・・・・・・	2-56
表 2.2-6	実効増倍率の最大値および反応度効果の整理結果 ・・・・・・・・・・・	2-57
表 2.2-7	力学解析の解析条件(物性値) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-62
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	$(U, {}^{26}Mg) 0_2 固溶体ペレットの諸元 (加熱前) ····································$	3-7
表 3.1-4	$(U, {}^{2b}Mg) 0_2 固溶体ペレットの諸元 (加熱後) ····································$	3-7
表 3.1-5	 (U, ²⁶Mg) 02 固溶体ペレット浸漬試験条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-9
表 3.1-6	Mgの天然存在比と試験に使用した ²⁰ Mg同位体濃縮試薬の存在比······	3-10
表 3.1-7	浸漬試験に供する試料の仕様、照射条件	3-29
表 3.1-8	浸漬試験のために採取した試料の諸元	3-30
表 3.1-9	浸漬試験に使用された使用済燃料の性状・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-38
表 3.1-10	浸漬溶液の組成(主な元素および pH) ···································	3-38
表 3.1-11	1RF[%]算出結果 ····································	3-39
表 3.1-12	浸漬試験に使用された使用済燃料の性状	3-39
表 3.1-13	谷核種の濃度測定結果(5A2 試料) ···································	3-40
表 3.1-14	各核種の濃度測定結果(C1 試料) ······	3-40
表 3.1-15	浸漬試験に使用された使用済燃料の性状	3-42
表 3.1-16	被覆管付き試料の浸漬試験結果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-43

表	3.1-1	17 粉末試料の浸漬試験結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-43
表	3.2-2	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・・・・・・・	3-47
表	3.2-2	2 基礎的な変質挙動の評価に関する試験条件 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-49
表	3.2-3	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 ・・・・・	3-49
表	3.2-4	4 処分環境での緩衝材変質の可能性の評価に関する試験条件 ・・・・・・・・	3-59
表	4-1	各シナリオにおける透水係数の設定値 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-4
表	4-2	ウェビナーでの主な Q&A (1/2)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-5
表	4-2	ウェビナーでの主な Q&A (2/2)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-6
表	4-3	超深孔処分における事業段階と各段階における要求事項および設計要件の	
		検討結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4 - 17
表	4-4	坑径(内径)と掘削深度による坑井掘削の技術的可能性	4-18
表	4-5	各事業段階における設計要件の実現に必要な技術・情報・課題	4-20
表	4-6	超深孔掘削のための掘削装置とその性能 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-22
表	4-7	各層の P 波速度 (Vp)、S 波速度 (Vs) および密度 (ρ) の仮定 ······	4-23
表	4-8	水平主応力と間隙水圧の設定 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-24
表	4-9	仮定した地下構造モデルの地質環境・THMC 環境設定・・・・・・・・・・・・・	4-26
表	4-10	安全係数の推奨値・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-33
表	4-11	構造 1a に最適なケーシング仕様と安全係数 ・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-34
表	4-12	構造 1b に最適なケーシング仕様と安全係数 ・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-35
表	4-13	構造 1c に最適なケーシング仕様と安全係数 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-36
表	4-14	構造2に最適なケーシング仕様と安全係数 ・・・・・・・・・・・・・・・・	4-37
表	4-15	作成した地下構造モデルにおける目標仕様での掘削の可能性 ・・・・・	4-39

付表 1-1	ウラン化合物のラマンスペクトルデータ(1/3) ・・・・・・・・・・・・・・	付 1-1
付表 1-1	ウラン化合物のラマンスペクトルデータ(2/3) ・・・・・・・・・・・・・・	付 1-2
付表 1-1	ウラン化合物のラマンスペクトルデータ(3/3) ・・・・・・・・・・・・・・	付 1-3

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3年度の実施内容・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	1-5
参表	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。また、この方針は、上記全体計画の令和2年3月の改訂でも踏襲されている (地層処分研究開発調整会議,2020)。

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)。

過去の研究開発成果	略称
わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性-地層処分研究	H12 レポート
開発第2次取りまとめー(核燃料サイクル開発機構, 1999a;1999b;1999c;1999d)	
TRU 廃棄物処分技術検討書-第2次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ-(電気	第 2 次 TRU レポート
事業連合会,核燃料サイクル開発機構,2005)	
わが国における使用済燃料の地層処分システムに関する概括的評価 -直接処	直接処分第1次取り
分第1次取りまとめー(日本原子力研究開発機構, 2015a)	まとめ
平成25年度地層処分技術調査等事業「使用済燃料直接処分技術開発」報告書	平成 25 年度報告書
(日本原子力研究開発機構, 2014)	
平成 26 年度地層処分技術調査等事業「使用済燃料直接処分技術開発」報告書(日	平成 26 年度報告書
本原子力研究開発機構, 2015b)	
平成 27 年度地層処分技術調査等事業「直接処分等代替処分技術開発」報告書(日	平成 27 年度報告書
本原子力研究開発機構, 2016)	
平成28年度地層処分技術調査等事業「直接処分等代替処分技術開発」報告書	平成 28 年度報告書
(日本原子力研究開発機構, 2017)	
平成29年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に 関する技術開発事業「直接	平成 29 年度報告書
処分等代替処分技術開発」報告書(日本原子力研究開発機構, 2018a)	
高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 「直接処分等代替	5 か年取りまとめ報
処分技術開発」5か年取りまとめ報告書(日本原子力研究開発機構, 2018b)	告書
平成30年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 「直接	平成 30 年度報告書
処分等代替処分技術高度化開発」報告書(日本原子力研究開発機構, 2019)	
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	平成 31 年度報告書
処分等代替処分技術高度化開発」報告書(日本原子力研究開発機構, 2020)	
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	令和2年度報告書
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, 2021)	

表 1.1-1 本事業で利用・引用する主な過去の研究開発成果

1.2 本事業の全体計画

本事業では、わが国の地質環境条件や使用済燃料の特性を踏まえ、直接処分などの代替処 分技術についての調査、検討、技術開発を実施する。代替処分技術のうち、直接処分技術に ついては、諸外国の事例調査を通じて最新の技術動向や技術的課題などを把握したうえで、 使用済燃料の直接処分に係る人工バリアの信頼性向上や地質環境条件や使用済燃料の多様性 への対応などに資する技術開発を重点に行う。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や課題の検討に資する調査を重点に行う。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係る人工バリアの信頼性向上やわが国での地質環境条件や 使用済燃料の多様性への対応」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、必要に応じて図 1.1-1の「(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こととした。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・検討は実施していない。

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年度の取りまとめ報告書の作成では、本事業 期間(平成30年度~令和4年度)の成果だけではなく先行事業期間(平成25年度~平成29 年度)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全体的な進展が わかるものとするとともに、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。このような目的に沿った取りまとめ報告書の作成では、本事業および先行 事業での広範な実施内容の全体像を俯瞰できるようにすることを主眼とし、本事業期間およ び先行事業期間における実施内容や成果のポイントを端的に示すことを重視しつつ、年度報 告書や論文等を適切に引用することで、必要に応じて詳細な技術情報にも容易にアクセスで きるようにする予定である。また、このような取りまとめ報告書の作業は、図1.1-1の「(3) 直接処分システムの成立性の多角的な確認」に該当する作業と位置付けて実施する。

1.3 令和3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3年度の 実施内容を示す。

なお、1.2項で述べたように、令和3年度は「直接処分システムの成立性の多角的な確認」 についての新たな調査・検討は実施していないため、令和3年度の実施内容として、以下の 3項目を示す。

- (1) 処分容器の挙動評価
- (2) 使用済燃料、緩衝材の挙動評価
- (3) その他の代替処分オプションについての調査

(1) 処分容器の挙動評価(2章参照)

純銅処分容器の我が国の地質環境への適用の検討について、令和3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令和2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水溶液中だけでなく実際の処分環境に近い緩衝材中で の腐食データも取得して、わが国での純銅の適用条件の見通しを提示した。純銅以外の候補 材料については、既往の知見や令和2年度までの試験データ等に基づいて、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低酸素下での耐食性の向 上が期待できる合金種等の腐食挙動やその経時的な変化等に関する腐食データを取得した。 その結果と従来材での結果の比較等により耐食性向上の効果を確認した。

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3年度は、燃料集合体の 被覆管の長期的な変化や処分容器等の腐食の進展等に伴い組成や密度等が変化していく場合 において、臨界安全性への影響が大きい状態変化の組み合わせを把握するための臨界解析や、 処分容器等の大きな変形・破壊が生起する可能性等を把握するための力学解析を行った。ま た、これらの結果に基づき、処分後の臨界安全にとって鍵となる状態変化のパターンや材料 の変化の種類や幅等を提示した。

(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3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等を継続した。また、使用済燃料の浸漬試験 について、令和2年度とは異なる条件で実施し実燃料を用いたデータを拡充した。

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などを対象に、銅との相互作用に伴う緩衝材の変質等の有無を調査す るため、令和3年度は、炭酸共存条件および鉄共存条件での試験を継続し、これらが緩衝材 の変質に及ぼす影響を継続して調査するとともに、この調査を含めたこれまでに実施した調 査の結果から、緩衝材の変質が顕著となる可能性のある条件を抽出した。また、抽出された 条件下での、処分環境での長期にわたる銅との相互作用に伴う緩衝材の変質量を評価するた めに必要な緩衝材変質量と銅の腐食量の関係式を導出することを目的に、溶液条件等の試験 条件をこの目的のために最適化した変質試験に着手した。

(3) その他の代替処分オプションについての調査(4章参照)

その他代替処分オプションについて、令和3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・分析の拡充を図るとともに、それら調査結果に基づき、わが国にお ける超深孔処分の現段階での技術的実現性や課題・留意点等をわかりやすい形で提示してい くための整理・取りまとめの方法の具体化と試行を行った。

また、上記3項目に共通な事項として、以下に示す情報収集および評価委員会の設置と運 営を実施した。

- ・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。
- ・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:6月7日、第2回:12月8日、第3回:3月4日)。なお、 令和3年度の上記3回の委員会は全てWEB会議で実施した。

【参考文献】

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

https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/ 2013/25-11-1.pdf(2022 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,

https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/ 2014/26fy_sf.pdf(2022 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,

https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/ 2015/27fy_sf.pdf(2022 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,

https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/ 2016/28fy_sf.pdf(2022 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, https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/ 2017/29fy_sf.pdf(2022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, https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/ 2017/25-29fy_sf_torimatome.pdf(2022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(2022 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(2022年3月29日閲覧).
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2021): 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,

https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/ 2020/2fy_spent-fuel.pdf (2022 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_0 0.pdf (2022 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),

https://www.meti.go.jp/report/whitepaper/data/pdf/20180329001_01.pdf(2022 年 3 月 29 日閲覧).

地層処分研究開発調整会議(2020): 地層処分研究開発に関する全体計画(平成30年度~令 和4年度),

https://www.meti.go.jp/shingikai/energy_environment/chiso_shobun/pdf/20200331_ 001.pdf (2022 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) 硫化物共存環境下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 SSRT 試験 ······	2-3
② U ベンド試験 ······	2-10
2) 硫化水素吹き込み下の浸漬試験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-14
① 試験方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-14
② 分析方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-14
③ 試験結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-15
3) 硫化物の定常拡散を考慮したモデルによる腐食挙動評価・・・・・・・・・・・・	2-23
(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・・・・・・・・・・・・	2-26
1) 圧縮ベントナイト中での U ベンド試験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-28
① 試験方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-28
② 分析方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-30
③ 試験結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-30
(4) 他の候補材料を対象とした腐食試験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-31
1) 高耐食性金属のすきま腐食試験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-32
① 試験方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-32
② 試験結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-34
2) 高耐食性金属の水素吸収挙動等を把握するための試験・・・・・・・・・・・・・・	2-37
① 試験方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-37
 試験前試料の分析・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-38
2.2 使用済燃料処分での処分後臨界安全評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-40
(1) 本項目の背景と目的・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-40
(2) 処分容器や燃料集合体等の構成材料における複合的な状態変化の組み合わせ	
を想定する場合の感度特性等の情報の整理・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-43
1)処分環境に存在しうる構成材料による状態変化の組み合わせの整理・・・・・・	2-43
2)解析ケースおよび解析パラメータの設定・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-48
 臨界解析の基本条件の設定・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-48
② 解析ケースおよび解析条件等の設定・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-50
3) 解析結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-52
(3) 臨界に影響しうる材料の変形や破壊の生起可能性の把握に向けた力学解析手	
法の具体化・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-58
1) 力学解析で対象とする処分容器の状態の変化・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-58
2) 力学解析のモデル・パラメータの設定・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-59

	① 解析手法・ツール・・・・・	2-60
	② 解析体系・解析条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-60
3)	解析結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-62
(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・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-64
2.3	まとめ・・・・・	2-67
(1)	処分容器の腐食挙動評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-67
(2)	使用済燃料処分での処分後臨界安全評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-68
参考	·文献·····	2-70

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処分容器の材料選定・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容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。

これらのことから、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 10⁵~ 10⁶ 年以上の閉じ込めを期待する国もあり、環境条件によっては極めて長い寿命を期待でき る材料といえる。しかし、硫化物を含む環境では熱力学的な安定性を失い、硫化物濃度など の環境条件に応じて腐食が進展する場合があると考えられる。また、処分後初期の酸素を含 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下での応力腐食 割れ試験および硫化物共存環境下での腐食挙動を把握するための浸漬試験を実施した(後述 (2)項参照)。また、緩衝材共存環境での純銅の皮膜形成挙動および緩衝材の乾燥密度が応力 腐食割れ感受性に与える影響に着目し、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)。なお、銅の応力腐食割れ挙動のメカニズムについては後述(3)項に示す。 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の評価に資するためすきま腐食試験を実施するとともに、緩衝材共 存下かつ低酸素濃度下での腐食メカニズムを把握することを目的とした浸漬試験を開始した (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) 硫化物共存環境下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の予察的な検討として、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、緩衝材共存下での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確認された。

令和2年度は、硫化水素濃度をパラメータとした60日間の浸漬試験を実施し、その結果か ら、硫化水素濃度が1%の条件では、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、また、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ものの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。

令和3年度は、緩衝材共存下での純銅の応力腐食割れ挙動について、比較的短期間で割れ 感受性を評価できる低ひずみ速度試験(SSRT 試験)により、割れ発生に対する硫化物濃度の 影響を調査した。また、令和2年度にも実施した硫化物共存環境における純銅のUベンド試 験については、より長期の試験を実施し、粒界腐食が割れに進展するかどうかを調査した。 これらの実施内容と結果を「1)硫化水素吹き込み下の応力腐食割れ試験」に示す。さらに、 硫化物共存環境における純銅の腐食挙動については、より長期の浸漬試験により、硫化水素 による腐食への影響の経時変化に関するデータを取得して、腐食生成物の保護性の有無に係 る調査を行った。これらの実施内容と結果を「2)硫化水素吹き込み下の浸漬試験」に示す。

1) 硫化水素吹き込み下の応力腐食割れ試験

純銅は、上記のとおり、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、全面腐食の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、比較的短期間で割れ感受性を評価できる SSRT 試験(低ひずみ速度試験)を実施するとともに、粒界腐食が割れに進展するかどうかなどを確認するための U ベンド試験を、令和

2年度よりも試験期間を長期間に設定して実施した。SSRT 試験および U ベンド試験について それぞれ、以下の①および②に示す。

① SSRT 試験

試験方法、および試験結果と考察をそれぞれ、以下の a. および b. に示す。

a. 試験方法

試験片には無酸素銅(JIS C1020)を用い、平行部の表面はエメリー紙#800まで研磨した。 試験片の形状を図 2.1-1 に示す。

試験溶液には人工海水(ASTM D1141-98 準拠)、ならびに不活性環境でのデータとの比較の ためシリコンオイルを用いた。試験片を試験セルにセットした後、窒素ガスで試験セル内を 脱気し、試験溶液を試験セル内に導入した。試験溶液の脱気を行った後に、窒素ガス、所定 の硫化水素濃度の窒素-硫化水素混合ガス、硫化水素ガスを約 120 分間、100 cc min⁻¹の通気 量で通気し、昇温を開始した。試験ガスの通気量を数 cc min⁻¹とした後、引張を開始した。 試験条件を表 2.1-1 に示す。試験速度は1 μ m min⁻¹ (クロスヘッド変位速度で規定)とし、 電位は印加せず自然浸漬状態で試験を実施した。試験片破断後、試験片の外観観察を行った。 除錆後、破面および側面の SEM 観察を行った。

100%H₂S の場合の水中の硫化物濃度は、ヘンリーの法則 ($p=K_{H,\chi}$, p:蒸気圧、 K_{H} : ヘンリー定数、 χ : モル分率)から計算すると、80 °Cの純水中で[H₂S]=0.04 M 程度である。ただし、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 H₂S 濃度は 0.04 M より小さいと推測される。



図 2.1-1 SSRT 試験片の模式図

試験溶液	温度 (℃)	吹き込みガス
シリコンオイル		なし
	80	$100\%N_{2}$
		$99\%N_2 + 1\%H_2S$
人工海水		$90\%N_2 + 10\%H_2S$
		$100\% H_2S$

表 2.1-1 SSRT 試験の試験条件

b. 試験結果と考察

図 2.1-2 に応力-変位図を示す。破断点はいずれの試験も明確ではなかったものの、破断 伸びはシリコンオイルが最も大きく、人工海水中においては試験ガスの硫化水素ガス濃度が 高いほど小さい傾向があった。図 2.1-3 に試験中の自然電位を示す。100%N2の条件が最も高 い電位を示し、硫化水素が含まれる条件においては、硫化水素ガス濃度が大きいほど電位は 高くなった。また、100%H2S、1%H2S の条件では、破断前に自然電位が上下に振動する挙動が 見られた。図 2.1-4 に試験後の試験片の外観を示す。硫化水素を含む試験ガスを吹き込んだ 条件では、試験後に灰色の皮膜が観察された。図 2.1-5 から図 2.1-7 に試験片の SEM 観察結 果を示す。破面の観察の結果、特に硫化水素を含む試験ガスを吹き込んだ条件については、 破面の溶解により腐食モードに関わる痕跡を判別することが困難であったものの、およそい ずれの条件の試験片も延性破壊の様相を呈していた。一方、側面の観察の結果、シリコンオ イル以外の試験条件の試験片には、引張軸方向に対しておよそ 45°の傾きを有する稲妻形の 模様または亀裂が観察された。また、この模様は試験ガスに含まれる硫化水素の濃度が高い ほど明瞭に観察された。この模様は、引張によって試料表面の硫化銅皮膜に亀裂が生じ、そ の亀裂の底の銅が選択腐食を受けた結果であると考えられる(Bhaskaran et al., 2013)。

応力腐食割れ感受性について、今回の試験結果では、破面の溶解により腐食モードに関わる痕跡を確認できなかったため、破面率による評価はできなかった。破面率以外に応力腐食 割れ感受性を評価する方法に最大応力比($\sigma_{oil}^{max}/\sigma_{SCC}^{max}$)がある。今回の結果では、最大応力 はシリコンオイル以外の条件でほとんど同じ値となっているため、硫化物は純銅の応力腐食 割れ感受性を増大させないことが示唆されたものの、今後、破断後の破面の溶解を抑制する 方法を検討し、腐食モードに関する痕跡の観察を行いつつ、応力腐食割れ感受性を詳しく評 価する必要がある。



図 2.1-3 SSRT 試験中の自然電位

試験条件	試験後外観
シリコンオイル	
100%N ₂	
99%N ₂ +1%H ₂ S	
90%N ₂ +10%H ₂ S	
100%H ₂ S	

図 2.1-4 SSRT 試験後の試験片の外観



図 2.1-5 破断部近傍の SEM 観察結果例(100%N₂)



図 2.1-6 破断部近傍の SEM 観察結果例(1%H₂S)



図 2.1-7 破断部近傍の SEM 観察結果例(100%H₂S)

② Uベンド試験

試験方法、および試験結果と考察をそれぞれ、以下の a. および b. に示す。

a. 試験方法

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 75×10×t1 mm に切り出した平板にφ6 mm の穴をあけ、R8 曲げ加工した。図 2.1-8 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材質 (C1020)を用いた。

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、 試験溶液に試験ガスを通気した。試験条件を表 2.1-2 に示す。試験前後に目視により外観観 察を行い、割れの有無を確認した。また、試験後に光学顕微鏡を用いて断面の観察を行い、 割れの有無および皮膜の形成状況を確認した。



図 2.1-8 Uベンド試験片の模式図

試験溶液	温度	浸漬期間	緩衝材	吹込みガス
人工海水	80 °C	60 日間	あり	$100\%N_2$
				$99\%N_2 + 1\%H_2S$
				$90\%N_2 + 10\%H_2S$
				$100\%H_2S$
		100 日間	あり	$100\%N_2$
				$99\%N_2 + 1\%H_2S$
				$90\%N_2 + 10\%H_2S$
				$100\%H_2S$
			なし	$100\%N_2$
				$99\%N_2 + 1\%H_2S$
				$90\%N_2 + 10\%H_2S$
				100%H ₂ S

表 2.1-2 Uベンド試験の試験条件

b. 試験結果と考察

試験前後の試験片の外観および外観観察のまとめをそれぞれ図 2.1-9 および表 2.1-3 に示 す。比較のため令和 2 年度に実施した試験期間 30 日、60 日(緩衝材なし)の写真も示してい る。いずれの試験片にも目視で割れは確認されなかった。試験後の目視観察の結果、100%N2 の場合、試験期間 100 日、緩衝材なしの条件で緑色の皮膜が形成されており、試験期間 30 日、60 日では茶褐色に変色、またはほとんど皮膜が形成されていなかった。99%N₂+1%H₂S の 場合、試験期間 100 日、緩衝材なしの条件では皮膜が観察されなかった。しかし、試験容器 の底部に黒色の沈殿物が存在していたことから、試験中、あるいは試験後の取出し前の N₂ ガ ス吹込み中に皮膜が脱落した可能性がある。また、試験期間 100 日、緩衝材なし以外の条件 では黒色の皮膜が形成されていた。90%N₂+10%H₂S および 100%H₂S の場合、いずれの試験片に も黒色の皮膜が形成されていた。

試験後の光学顕微鏡による断面の観察の結果について、試験ガスに含まれる硫化水素ガス 濃度が高いほど、また試験期間が長いほど、試験片表面には厚い皮膜が観察された。特に 100%H₂S の条件は、皮膜が緻密ではなく皮膜の剥がれや割れも観察された。また、試験ガス に硫化水素が 10%以上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。その深さは例えば 100%H₂S の条件において 20~30 μm 程度であった。令和 2 年度に実施した U ベンド試験でも同様に、皮膜の下に粒界腐食と思われる形態が観察され ており、深さも同程度であった(原子力機構, 2021)。

断面写真から測定した皮膜厚さおよび皮膜厚さから推定した皮膜成長速度をそれぞれ表 2.1-4および図2.1-10に示す。比較のため、令和2年度に取得したデータも記載した。1%H₂S は皮膜が脱落したため比較できないが、10%H₂S の条件では、試験期間 60 日、緩衝材ありの 皮膜成長速度が最も小さく、100%H₂S ではどの条件もほとんど同じ皮膜成長速度であった。 このことから、10%H₂S の場合、試験期間 60 日までは緩衝材によって試験片表面への硫化物 の移行が抑制されていると推測される。また、100%H₂S では緩衝材による硫化物の移行を遅 延させる効果が発揮されないことが推察される。また、試験期間 100 日までの試験で皮膜の 成長速度(腐食速度に相当)の経時的な低下がみられなかったことから、硫化物共存、かつ、 海水相当の塩化物濃度の条件で生成する腐食生成物皮膜に保護性はなく腐食速度は経時的に 低下しないと推察される。

今回の試験結果(人工海水条件)からは、緩衝材の有無に関わらず、皮膜による保護効果 が確認されなかった。しかし、海外の研究(Chen et al., 2017)によれば、緩衝材非共存、 硫化物濃度10⁻³ Mかつ塩化物濃度0.5 M(海水相当)では、腐食速度の経時的な低下が観察 されず、その原因は、試験片表面に生成する硫化銅皮膜が多孔質で保護性がないためとされ ている。一方、硫化物濃度10⁻³ Mの条件においても、塩化物濃度を0.1 Mとした場合は腐食 速度が経時的に低下する傾向があり、これは硫化銅皮膜が緻密で保護性があるためとされて いる。したがって、硫化銅皮膜の保護性は、塩化物濃度の影響を受けると考えられる。また、 硫化銅皮膜の保護性については、皮膜が緻密であっても亀裂を生じやすい場合は保護性が低 下することが考えられる。以上を踏まえ、今後の調査においては、硫化銅皮膜の保護性につ いて、塩化物濃度のより低い条件(人工海水を希釈したものや淡水など)や皮膜の安定性 (亀裂の生じやすさなど)にも着目しつつ、試験期間の適切性にも配慮した上で検討を進め る必要がある。

		吹込みガス			
試験 期間	緩衝材	$100\%N_2$	$99\%N_2 + 1\%H_2S$	90%N ₂ +10%H ₂ S	$100\%H_2S$
30 日	なし				
60 日	なし				
	あり				
100 日	なし				
	あり				

図 2.1-9 試験後の U ベンド試験片の外観

		吹込みガス			
試験 期間	緩衝材	$100\%N_2$	$99\%N_2 + 1\%H_2S$	90%N ₂ +10%H ₂ S	100%H ₂ S
30 日	なし	ほとんど 皮膜無し	黒灰色皮膜	黒灰色皮膜	黒灰色皮膜
60 日	なし	ほとんど 皮膜無し	灰色皮膜	黒灰色皮膜	黒灰色皮膜
	あり	ほとんど 皮膜無し	灰色皮膜	黒灰色皮膜	黒灰色皮膜
100 日	なし	緑色皮膜	皮膜なし (試験中に脱落)	黒灰色皮膜	黒灰色皮膜
	あり	灰色皮膜	灰色皮膜	黒灰色皮膜	黒灰色皮膜

表 2.1-3 試験後の U ベンド試験片の外観観察結果
	皮膜厚さ(µm)							
吹込みガス	30 日*	60 日*	60 日	100 日	100 日			
	緩衝材なし	緩衝材なし	緩衝材あり	緩衝材なし	緩衝材あり			
	0.00	0.00	0.00	19.2	0.00			
$100\%N_2$	0.00	0.00	0.00	24.6	0.00			
	0.00	0.00						
00%N -	1.25	10.0	0.00	0.00	0.00			
99%N ₂ + 1%H ₂ S	5.00	17.5	0.00	0.00	0.00			
1/01125	7.50	12.5						
05%N -	2.50	5.00						
$95\%N_2 + 5\%H_0S$	2.50	7.50						
5701125	2.50	5.00						
0.0%N -	12.5	25.0	9.50	54.6	30.0			
$90\%N_2 + 10\%H_s$	12.5	27.5	13.2	47.9	51.8			
10/01125	12.5	25.0						
50%N -	80.0	50.0						
$50\%N_2 + 50\%N_2$	87.5	50.0						
50/01125	72.5	50.0						
	150	288	221	292	375			
$100\%H_2S$	143	150	225	350	408			
	138	200						

表 2.1-4 断面写真から測定した皮膜厚さ

*: 令和2年度測定(原子力機構, 2021)



*: 令和2年度測定(原子力機構, 2021)

図 2.1-10 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、前述のとおり、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。そのため、硫 化物共存下かつ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、硫化水素吹込み下での浸漬試験を実施した。

浸漬試験の試験方法、分析方法、試験結果と考察を、それぞれ以下の①から③に示す。

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 2.1-11 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 2.1-5 に示す。浸漬中の温度は 80 ℃、浸漬期間は 100 日間とした。

② 分析方法

浸漬期間終了後、試験片と緩衝材を分離し、試験片については X 線回折 (XRD) 分析およ びラマン分光分析、緩衝材については X 線分析顕微鏡分析 (蛍光 X 線元素マッピング) を行 った。なお、緩衝材は、試験片との接触面に直交する断面で試料を切断して、研磨時に水を 使わない乾式研磨法 (特許第 5633078 号「乾式研磨法による脆弱試料薄片の作製法」) にて 厚さ約 3 mm の断面試料を作製して分析した。XRD 分析は、X 線回折装置: RINT2500H/PC (リ ガク製)を用い、管球: Co、管電圧: 30 kV、管電流: 100 mA、測定範囲 (2 θ): 10° ~ 105°、ラマン分析は、ラマン分光装置: LabRAM HR Evolution (HORIBA 製)、励起波長: 458 nm、回折格子刻線: 600 本/mm、対物レンズ: 50 倍、X 線分析顕微鏡分析は、微小部蛍光 X 線分析装置: XGT-9000 (株式会社堀場製作所製)、管電圧: 30 kV、管電流: 1000 μ A、X 線 照射径: 15 μ m、分析雰囲気: 真空の条件でそれぞれ実施した。



図 2.1-11 緩衝材中での試験カラムの模式図

表 2.1-5 浸漬試験の試験条件

試験溶液	温度	浸漬期間	緩衝材	吹込みガス
人工海水				$100\%N_2$
	80 °C	100 日間	721	$99\%N_2 + 1\%H_2S$
			んし	$90\%N_2 + 10\%H_2S$
				100%H ₂ S
八工海小				$100\% N_2$
			ちり	$99\%N_2 + 1\%H_2S$
			Ø 9	$90\%N_2 + 10\%H_2S$
				100%H ₂ S

試験結果と考察

試験片の外観分析、XRD 分析、ラマン分析、X 線分析顕微鏡分析にもとづく分析結果と考察を、それぞれ以下の a. ~d. に示す。

a. 試験片外観

試験後の試験片の外観を図 2.1-12 に示す。10%H₂S 以上の条件の試料は黒色の皮膜が生成 されていた。1%H₂S 緩衝材なしの条件の試料は皮膜が剥離し、下地の金属銅が露出していた。

b. XRD 分析およびラマン分析

XRD分析およびラマン分光分析の結果をそれぞれ図 2.1-13 および図 2.1-14に示す。また、 これらの分析結果の整理表を表 2.1-6 に示す。ラマン分光の測定箇所は図 2.1-12 に赤丸で 示した。XRD分析において 0~1%H₂S の条件では Cu₂O が検出され、10%H₂S 以上の条件では Cu₂S と Cu₂O が検出されているが、ラマン分析では 10%H₂S 以上の条件における Cu-S(恐らく Cu₂S) のピーク強度は低く、100%H₂S 緩衝材ありの条件では Cu-S に帰属するピークが認められない。 Cu-S のピーク強度が低い原因として、Cu₂S のラマン活性が低いこと、および 100%H₂S 緩衝材 ありの試料については XRD 分析で緩衝材由来の鉱物のピークが検出されており、Cu₂S のピー ク強度も低いことから、腐食生成物が生成している試験片表面が緩衝材の残留物によって覆 われていることが考えられる。また、10%H₂S 以上の条件では、XRD 分析において Cu₂S と Cu₂O が検出されているが、腐食生成物皮膜内でそれぞれがどのように分布しているのかは今回の 分析では不明であるため、電子顕微鏡を用いた詳細観察を今後実施するとともに、Cu₂S や Cu₂O の分布が皮膜の保護性に及ぼす影響を調査する必要がある。

c. X線分析顕微鏡分析

緩衝材断面試料の例および分析結果を、それぞれ図 2.1-15 および図 2.1-16 に示す。図 2.1-16の水色の部分は緩衝材に混合したケイ砂の粒子である。図 2.1-16において100%H₂S条件の試料にのみ、試験片接触面に Cu と S からなる厚さ 250 µm 程度の皮膜(恐らく Cu₂S)が 残留していることが分かる。線分析(緩衝材領域のみとし、100%H₂S条件については皮膜領 域を含まない)による緩衝材中の Cu の強度は 100%H₂S条件が他の条件と較べて 1 桁程度高い が、浸入している深さはいずれの条件においても 200 µm 程度である。緩衝材間隙中の Cu₂S の分布状態は銅/緩衝材界面への硫化物のフラックスに影響を及ぼし、その結果として腐食 速度に影響を及ぼす可能性があることから、今後、電子顕微鏡を用いて詳細に観察する必要がある。

	緩衝材なし	緩衝材あり
100%N ₂	Point A O Jun	Point B O
99%N ₂ + 1%H ₂ S	Point A Point Point Point B	Point A O Jam
90%N ₂ + 10%H ₂ S	Point A Point B	Point, A O Point Jam
100%H ₂ S	Point A Point B	Point B Company of the second se

図 2.1-12 試験後の試験片外観およびラマン分光測定点



図 2.1-13 XRD 分析結果(1/2)



図 2.1-13 XRD 分析結果(2/2)



図 2.1-14 ラマン分光分析結果(1/2)



図 2.1-14 ラマン分光分析結果(2/2)

	緩衝材	分析方法	Cu ₂ O	Cu ₂ C1 (OH) ₃	Cu-S*
$100\%N_2$	± 10	XRD	\bigcirc		
	めり	ラマン分光	\bigcirc	\bigtriangleup	
	721	XRD	0	0	
	なし	ラマン分光	\bigcirc	0	
	たり	XRD	\bigcirc		\bigtriangleup
$99\%N_2 +$	<i>w</i> , <i>y</i>	ラマン分光	\bigcirc	?	?
$1\%H_2S$	なし	XRD			
		ラマン分光	\bigtriangleup		
	5 N	XRD			0
$90\%N_2 +$		ラマン分光	\bigcirc	\bigtriangleup	\bigtriangleup
$10\%H_2S$	なし	XRD	?		0
		ラマン分光	\bigcirc		
100%H ₂ S	たり	XRD			0
	<i>w</i>) <i>y</i>	ラマン分光	\bigtriangleup		
	なし	XRD	?		0
		ラマン分光	0	?	?

表 2.1-6 腐食生成物分析結果

○:検知、△:わずかに検知、?:含有の可能性が否定できない、空欄:検知せず
※XRD では Cu₂S を検出



L10 mm 2.1-15 緩衝材断面試料の例



(左:銅、右:硫黄)

3) 硫化物の定常拡散を考慮したモデルによる腐食挙動評価

銅は、酸素がない条件では熱力学的に安定であるが、前項2)で示したように、硫化物が存在する条件では腐食生成物として硫化銅を生成して高い速度で腐食する。海水起源の地下水のように塩化物濃度が高い条件では腐食抑制効果の小さい多孔質な硫化銅が生成することが知られており、高い腐食速度は銅表面に生成する腐食生成物の保護性の低さが関係している(例えば, Chen et al., 2017)。H12 レポートでは、銅製オーバーパックの腐食量のうち硫化物寄与分を、緩衝材中での硫化物の定常拡散を仮定したモデルで評価している。ここでは、令和2年度に実施した硫化物共存下での銅の浸漬試験(原子力機構, 2021)にもとづく腐食速度との比較によりH12 レポートで採用された硫化物の定常拡散を仮定したモデルの妥当性を確認した後、処分環境を模擬した条件下での腐食深さの評価を試みた。

本項目では、H12 レポートと同様に、拡散場となる緩衝材中を移行して処分容器表面に到 達した硫化物 HS⁻と処分容器表面の銅が瞬時に反応して硫化銅 Cu₂S が生成すると仮定し、腐 食速度あるいは腐食深さを評価した。また、硫化物フラックスについては、定常拡散を考慮 し、拡散場の形状に応じた評価式を選択した上で評価した。以上の考え方にもとづく腐食速 度および腐食深さの評価方法を、本項目では「腐食挙動評価モデル」と呼ぶ。また、拡散場 の形状によって硫化物フラックスが異なることから、拡散場として平板を想定する場合ある いは円筒壁を想定する場合の腐食挙動評価モデルを、それぞれ「平板モデル」、「円筒壁モデ ル」と呼び区別する。平板モデルおよび円筒壁モデルにおける、定常状態の硫化物フラック スの評価式をそれぞれ式 2.1-1 および式 2.1-2 に示す。なお、式 2.1-2 は H12 レポートに示 された、単位長さあたりの硫化物フラックスの評価式を単位面積あたりの硫化物フラックス の評価式に修正したものである。

平板モデル $J = D (C_1 - C_0) / (r_1 - r_0)$ ······ 式 2.1-1

円筒壁モデル $J = D (C_1 - C_0) / ln (r_1 / r_0) / r_2 \cdots 式 2.1-2$

ここで、J は硫化物フラックス(単位時間あたり、単位面積あたりの硫化物の供給量)、C₁ は拡散場の境界 r₁の濃度、C₀ は拡散場の境界 r₀の濃度、D は拡散係数である。また、円筒 壁モデルにおける r₀、r₁は円筒座標系での半径であり、r₂は硫化物フラックスの評価位置で ある。なお、拡散係数 D について、本項目における評価では、硫化物イオンの価数を考慮し て、1 価の陰イオンの実効拡散係数(I⁻、Cl⁻について 25 ℃で 4.0×10⁻¹¹ m² s⁻¹)を準用し (Sato, 1998)、活性化エネルギー15.05 kJ mol⁻¹(Sato, 1998)として、拡散場の温度条件に 応じて補正した。また、C₀は、銅/緩衝材境界での銅と硫化物の反応が瞬時に起こることを 仮定することから常にゼロとした。

緩衝材中における硫化物輸送の概念図(円筒壁モデル)を図 2.1-17 に示す。



図 2.1-17 緩衝材中における硫化物輸送の概念図(円筒壁モデル)

令和2年度においては、平板状の銅試験片を緩衝材中に設置した試験カラムを、硫化物を 含む溶液(温度80℃)に30日または60日の期間浸漬し、試験前後の試験片の重量変化か ら腐食速度が推定された。推定された腐食速度を図2.1-18にプロット点として示す。一方、 令和2年度の浸漬試験条件にもとづき、腐食挙動評価モデルとして平板モデルを選択し、硫 化物濃度に応じた腐食速度を計算した。その結果を、図2.1-18において実線で示す。

平板モデルによる腐食速度は、浸漬試験にもとづく値および硫化物濃度に応じた変化の傾 向を良好に模擬できていることから、本項目で設定した腐食挙動評価モデルは、硫化物によ る銅の腐食挙動評価への適用性があると考えられる。



図 2.1-18 平板モデルによる計算結果と浸漬試験結果の比較

次に、処分環境を模擬した条件を腐食挙動評価モデルに設定し、長期の腐食深さの評価を 試みた。腐食挙動評価モデルとしては、処分容器周囲の緩衝材の形状を考慮して円筒壁モデ ルを選択した。処分容器表面での銅の腐食を評価するためには、処分容器と緩衝材の界面に おける硫化物フラックスが必要となることから、硫化物フラックスの評価位置(式 2.1-2 の r_2)を r_0 に設定した。直接処分第1次取りまとめにおけるレファレンス仕様をもとに、 r_0 を 処分容器の半径 41.95 cm、 r_1 を緩衝材の外側境界の半径 111.95 cm とした。

緩衝材領域の温度勾配はないと仮定した上で緩衝材領域の温度変化をステップ状の関数と して単純化することとし、腐食深さの評価期間を 5 万年として、使用済燃料集合体収容体数 2 体の場合の人工バリア周辺の温度変化(直接処分第 1 次取りまとめ)を基に、100 ℃が 1,000 年間、80 ℃が 9,000 年間、60 ℃が 40,000 年間それぞれ継続するとした。また、 100 ℃、80 ℃および 60 ℃における硫化物の実効拡散係数を、それぞれ 1.36×10⁻¹⁰ m² s⁻¹、 1.03×10⁻¹⁰ m² s⁻¹ および 7.57×10⁻¹¹ m² s⁻¹ に設定し、拡散係数の温度依存性を考慮した。

以上の設定にもとづく円筒壁モデルにより評価した5万年の腐食深さを図2.1-19に示す。 図中に示した腐食深さ40 mmはH12 レポートにおいて1000年の腐食寿命が期待できるとされ た厚さであり、3 mmはカナダにおいて設定されている処分容器表面の銅コーティング厚さで あり、100万年の腐食寿命が期待できると評価されている(Hall et al., 2021)。また、図 中の赤破線(3×10^{-2} mol L⁻¹)は、H12 レポートにおいて、銅の腐食深さを評価する際に設 定された硫化物濃度である。なお、直接処分の検討が進んでいる諸外国で想定している処分 場の硫化物濃度は、H12 レポートでの設定値よりも大幅に低く、例えばカナダでは、腐食深 さの保守的な評価において硫化物濃度 3×10^{-5} mol L⁻¹が使用されている(Hall et al., 2021)。

図 2.1-19 に示されるとおり、例えば、硫化物濃度として 10⁻² mol L⁻¹ を想定する場合、5 万年の腐食深さは全面腐食で約 45 mm となり、また、孔食による腐食の不均一化を考慮して 孔食係数を 3 倍 (H12 レポート)とすると約 134 mm となる。これらの腐食深さはいずれも 40 mm を超過している。一方、わが国の沿岸部の地下水中の硫酸イオン濃度として最大で 10⁻² mol L⁻¹程度の値が報告されていることから (産業技術総合研究所ほか, 2020)、処分環境に おける微生物活動等により硫酸イオンの硫化物への還元を仮定した場合は硫化物濃度がさら に高くなることが考えられる。このことと本項目での腐食深さの評価にもとづけば、銅外層 を 40 mm に設定した処分容器に長期の腐食寿命を期待することが困難となることが示唆され る。

なお、上記の評価では、拡散係数の温度依存性にもとづく腐食速度の変化が考慮されてい るものの、処分容器の腐食により生成した硫化銅などが処分容器表面および緩衝材中に蓄積 して、緩衝材中の硫化物フラックスが変化し、銅の腐食速度に影響を及ぼすことなどの影響 は反映されていない。そこで、より現実的な腐食深さの評価となるように、このような腐食 速度の低下に寄与する可能性のある現象に着目し、適切な試験条件や評価期間を設定した試 験によるデータ取得をとおして腐食速度の低下に影響する現象を確認した上でそのメカニズ ムを明らかにし、適宜、硫化物フラックスの評価に反映し、腐食挙動評価モデルの高度化を 図ることが必要である。



図 2.1-19 円筒壁モデルによる長期評価

(3) ベントナイト共存環境における純銅の応力腐食割れ挙動

銅は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 Duqette, 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 2.1-20 (a))とともに、酸化物皮膜の成長速度が速い Cu などでは、図 2.1-20 (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 れと皮膜再生成との繰り返しによって亀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、亀裂の進 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ならびに 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 ウムイオン共存下で割れの生じた条件での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。



(b)変色皮膜破壊機構(TR)

図 2.1-20 応力腐食割れの機構

これまでの研究における応力腐食割れの発生状況を検討したところ、Cu₂0 の均一な酸化 物層が応力によって破壊するとCu0 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Cu0 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。

また、平成30年度および平成31年度においては、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ベンド試験(試験期間80日間)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。

令和3年度は、令和2年度よりも長期のUベンド試験(試験期間365日間)を行い、皮膜 形成挙動ならびにベントナイトの条件(ベントナイト密度など)による応力腐食割れ感受性 への影響を確認した。これらの実施内容と結果を以下の1)に示す。

1) 圧縮ベントナイト中でのUベンド試験

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、これら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Uベンド試験(試験期 間 80 日間)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影響を検討した。 試験後の試験片について、試験片表面に生じた局部腐食の内部では圧縮ベントナイト中およ び非圧縮ベントナイト中のいずれの条件においても酸化物および硫化物が生成していること が確認されたものの、試験片表面の外観観察では圧縮ベントナイト中の条件では酸化物が確 認され、一方、非圧縮ベントナイト中の条件では硫化物が確認された。また、圧縮ベントナ イト中の条件では応力腐食割れが観察されなかったが、非圧縮ベントナイト中の条件下では 応力腐食割れが観察された。以上の結果から、ベントナイト密度が皮膜性状や応力腐食割れ に影響を及ぼすことが確認された。

令和3年度は、Uベンド試験(試験期間365日間)を行い、令和2年度よりも長期の皮膜 形成挙動ならびにベントナイトの条件(ベントナイト密度など)による応力腐食割れ感受性 への影響を調査した。Uベンド試験の試験方法、分析方法、試験結果と考察について、それ ぞれ以下の①~③に示す。

試験方法

試験片には、無酸素銅を使用した。試験条件を表 2.1-7 に示す。試験溶液には、10 mM NH4C1 水溶液および人工海水を用いた。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 2.1-21 のように締め付け、図 2.1-22 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、365日間、80 ℃で保持した。

試験片	無酸素銅(大きさ:75×10×1 mm)
温度	80 °C
緩衝材	クニゲル®V1(70 mass%)+ケイ砂(30 mass%)
乾燥密度	1.6 g cm ⁻³
雰囲気	N ₂
試験溶液	10 mM NH ₄ C1 水溶液、人工海水
浸漬期間	365 日

表 2.1-7 Uベンド試験条件



図 2.1-21 Uベンド試験片の模式図



図 2.1-22 試験のイメージ図

② 分析方法

浸漬期間試験終了後、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、断面試料を作製し、電子線マイクロアナライザ(EPMA) による元素マッピング分析を行った。EPMA分析は、装置:電界放出型電子プローブマイクロ アナライザ(FE-EPMA) JXA-8500F(日本電子株式会社製)を用い、加速電圧:15 kVの条件 で実施した。

3 試験結果と考察

10 mM NH4C1 水溶液条件および人工海水条件での EPMA 分析の結果を図 2.1-23 に示す。10 mM NH4C1 水溶液条件および人工海水条件において、それぞれ 10 μm および 3 μm 程度の硫 化銅とみられる S を含有する皮膜が認められる。10 mM NH4C1 水溶液条件については、長さ 20μm 程度の割れとみられる部分が 1 箇所確認でき、その先端には酸化物が認められる。人 工海水条件については、割れとみられる部分は認められなかった。今後は、浸漬期間 2 年間 の試料の分析・観察を行い、圧縮ベントナイト中における割れ感受性の評価を実施する必要 がある。



図 2.1-23 EPMA による元素マッピング結果((a):10 mM NH₄C1 溶液、(b):人工海水)

(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。

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。また、低酸素濃度下では、腐食に伴い発生した水素の一部が 高耐食性金属内に吸蔵されることで、高耐食性金属が水素脆化割れに至る可能性がある。

平成 31 年度は、代表的な高耐食性金属や先行事業(原子力機構, 2016a; 2017; 2018a) で検討対象とした材料である純チタン、ニッケル基合金、ステンレス鋼および金属ガラスを 対象として、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。ただし、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 ンに比較して広範な塩化物イオン濃度条件で適用できる可能性がある。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 ER.CREV を求める方法(再不動態化法)が有効と考えられる。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となる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 い塩化物濃度において試験片の電位を一定に保持する定電位法による電気化学試験を行った。 その結果、Alloy C-276 は、1 M 以下の塩化物イオン濃度では、米国ユッカマウンテン (DOE, 2002) において処分容器材料としての適用が検討されているニッケル基合金 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。

令和3年度は、Alloy C-276についてすきま腐食が生じやすい条件(例えば、より高い電 位やより高い塩化物イオン濃度など)ですきま腐食の発生条件を調査するとともに、既往の 知見が不足している、緩衝材共存下かつ低酸素濃度下での腐食メカニズムを把握することを 目的として、このような環境下での腐食量および水素吸収挙動に関するデータを取得するた めの実験的な検討を行った。なお、すきま腐食の発生条件の調査においては、その調査結果 にもとづき、高耐食性金属の代表として従来から検討されているチタンとの耐食性の比較を 試みた。以上について、「1)高耐食性金属のすきま腐食試験」および「2)高耐食性金属の 水素吸収挙動等を把握するための試験」として以下に示す。

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、ニッケル基合金、ステンレス鋼および金属ガラスを対 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。

令和2年度は、Alloy C-276を対象として、再不動態化法によるすきま腐食の発生限界の 評価に必要となるすきま腐食の発生方法を確立するため、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。その結果 0.5 Mおよび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ず、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。

令和3年度は、より高い塩化物イオン濃度での定電位試験を実施し、確実にすきま腐食が 発生する条件を調査した。すきま腐食試験の試験方法、ならびに試験結果と考察をそれぞれ、 以下の①および②に示す。

試験方法

試験に使用した試験片、試験溶液、試験手順を、それぞれ以下の a. ~c. に示す。

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 2.1-8 に示す。30×15×2 mm の試験片に φ 6 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 2.1-24 に示す。

b. 試験溶液

試験溶液には 1.5 M、1.75 M、2.0 M、3.0 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 ℃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。深谷ら(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 2.1-25 に示す。

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

表 2.1-8 試験片の材質と成分分析値







図 2.1-25 電気化学試験模式図

② 試験結果と考察

|令和 2 年度に実施した Alloy C-276 のすきま付試験片の定電位試験結果を図 2.1-26 に示 す。その結果、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、す きま腐食の発生に伴う電流値の増加は認められず、電流値は同程度の値を示し、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。令和3年度に実施した塩化 物イオン濃度の高い条件での Alloy C-276 のすきま腐食発生条件調査結果を表 2.1-9 に、定 電位試験結果を図 2.1−27 示す。その結果、1.5 M以上の塩化物イオン濃度で設定した 300~ 380 mV vs. SSE の電位では、すきま腐食に対応する電流値の増加が観察される条件が見られ た。しかし、いくつかの塩化物イオン濃度で電位条件が同一条件であるにもかかわらず、す きま腐食に対応する電流値の増加が観察される条件と観察されない条件が混在していた。同 一条件での試験後試料の一例を図 2.1-28 示す。図中右側の試験片表面にはすきま腐食の形 跡が見られた。一方、左側の試験片表面にはすきま腐食の形跡が見られなかった。1.75 Mの 塩化物イオン濃度では340 mV vs. SSE 以上の電位があればすきま腐食に対応する電流値の 増加が見られ、2.0 Mの塩化物イオン濃度では 320 mV vs. SSE 以上の電位あればすきま腐食 に対応する電流値の増加が見られた。これら、すきま腐食に対応する電流値の増加が見られ た試験片表面には、すきま腐食の形跡が見られ、すきま腐食が発生可能な条件を見出すこと ができた。

塩化物イオン濃度および電位が同一の条件のいくつかで、すきま腐食に対応する電流値の 増加が観察される条件と観察されない条件が混在していた原因については、すきま腐食の発 生領域の境界がこのあたりにあるためと推測されるが、境界を求めるにはさらにデータを増 やす必要がある。

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するため、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)により、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し ていく必要がある。

また、従来材との耐食性の比較として、高耐食性金属の代表として従来から検討されてい るチタンとの比較を試みた。H12 レポートでは、チタンのすきま腐食の再不働態化電位 E_{R.CREV} のデータが純チタンおよび Grade12 チタン (Ti-0.8%Ni-0.3%Mo 合金) について塩化物イオン 濃度との関係として整理されている。H12 レポートによれば、令和 3 年度の試験条件のうち 海水よりも塩化物イオン濃度の高い 1.5 M において純チタンよりも耐すきま腐食性の高い Grade12 チタンの再不働態電位 E_{R.CREV} は 0 mV vs. SHE 以下とされている。一方、本試験結果 から、1.5 M での高耐食性金属 Alloy C-276 のすきま腐食発生下限界電位を求めると、+320 mV vs. SSE (+519 mV vs. SHE) であった。一般に、再不働態化電位は、長期の定電位試験に より求められるすきま腐食発生下限界電位と同じ値となることから、これらの値をもってす きま腐食発生の臨界電位として評価できる。今回の48時間までの定電位試験では Grade12 チ タンの E_{R.CREV} よりも十分貴な電位においてもすきま腐食の発生は認められていないが、臨界 電位はより卑な電位となる可能性があり、今後より長期の定電位試験等により発生下限界電 位を詳細に確認するとともに、再不動態化電位との比較により臨界電位を評価してより詳細 に耐食性を比較する必要がある。



図 2.1-26 Alloy C-276 の定電位試験結果(令和2年度)



図 2.1-27 Alloy C-276 の定電位試験結果(令和3年度)

電位	試験	試験	塩化物イオン濃度(M)					
(mV vs.SSE)	(°C)	时间 (h)	0.5	1.0	1.5	1.75	2.0	3.0
+380			0	0	00	•	•	
+360			0	0	$\bigcirc ullet$	••	••	••
+340	90	48	0	0	$\bigcirc ullet$	••	•	
+320			0	0	••	$\bigcirc ullet$	•	
+300			0	0	0	0	$\bigcirc ullet$	

表 2.1-9 すきま腐食発生条件調査結果

○:すきま腐食発生なし

●:すきま腐食発生あり



1.5 M NaCl 48 h 90 °C +340 mV vs.SSE



1.5 M NaCl 16 h 90 °C +340 mV vs.SSE

図 2.1-28 Alloy C-276 の定電位試験後試料表面観察比較

2) 高耐食性金属の水素吸収挙動等を把握するための試験

Alloy C-276 について、緩衝材共存下かつ低酸素濃度下での腐食速度ならびに水素吸収挙動を把握するための浸漬試験を開始した。令和3年度は、試験後のAlloy C-276の腐食量や水素吸収量の測定方法の選定、および試験前の試験片の表面状態の把握に資するため、試験前の試料の分析を実施した。浸漬試験の試験方法および試験前試験片の分析結果を、それぞれ以下の①および②に示す。

① 試験方法

a. 試験片

試験片には、Alloy C-276(ハステロイC-276)を用い、材料を下記の形状に切り出し、表面 はエメリー#800の湿式研磨にて仕上げた。水素吸収試験に用いる試験片はベーキング処理 (250 ℃で4時間ほど加熱して水素を追い出す)を施した上で使用した。

形 状:○ 浸漬試験用平板(30×30×2 mm)

○ 水素吸収試験用(30×10×2 mm)

b. 試験溶液

試験溶液には、人工海水(ASTM D1141 準拠)を用いた。

c. 試験手順

図2.1-29に示すように、チタン製のカラム内にAlloy C-276試験片と緩衝材(30 wt%ケイ 砂混合ベントナイト)を入れ、緩衝材が所定の密度(1.6 g cm⁻³)になるように圧縮成型し た。試験溶液は、窒素雰囲気のグローブボックス中(気相部酸素濃度1 ppm以下)で24時間 以上ボックス内のガスを試験溶液に通気することにより溶存酸素を除去した。

その試験片と溶液とをテフロン製の容器に入れ、80 ℃に設定した恒温槽内に静置した。 試験条件を表2.1-10および表2.1-11に示す。

-					
	溶液	材質	温度(℃)	期間	試料数(枚)
	人工海水	C-276	80	3か月	4
	人工海水	C-276	80	1年	4
	人工海水	C-276	80	3年	4
I	人工海水	C-276	80	5年	4

表2.1-10 浸漬試験の試験条件

溶液	材質	温度(℃)	期間	試料数(枚)
人工海水	C-276	80	3か月	4
人工海水	C-276	80	1年	4
人工海水	C-276	80	3年	4
人工海水	C-276	80	5年	4

表2.1-11 水素吸収試験の試験条件



図 2.1-29 試験に用いたチタン製カラムのイメージ図

② 試験前試料の分析

上記試験後の Alloy C-276 の腐食量や水素吸収量の測定方法の選定、および試験前の試験 片の表面状態の把握に資するため、試験前の試料を対象にグロー放電発光分析(GD-OES)お よび X 線光電子分光分析(XPS)を実施した。

GD-0ES 分析は以下の条件で実施した。

- ・ 装置:マーカス型高周波グロー放電発光分析装置 GD-Profiler2(堀場製作所製)
- 測定領域: φ4 mm
- ・ 高周波出力:35 ₩
- アルゴン圧力:600 Pa

XPS 分析は以下の条件で実施した。

- ・ 装置:走査型 X 線光電子分光分析装置 Quantera SXM (アルバック・ファイ製)
- X 線源: mono-A1Kα (hν: 1486.6 eV)
- X線径: φ約100 μm
- 検出深さ:数 nm
- 取込角度:45°
- スパッタイオン種:Ar+
- 加速電圧:1 kV
- ラスター:3×3 mm
- スパッタ速度:1.0 nm min⁻¹ (SiO₂換算値)

試験前の試料についての、GD-OES 分析および XPS 分析結果を図 2.1-30 に示す。図に示し た元素のうち水素については標準試料がないため濃度換算は行わず、強度プロファイルを示 した。GD-OES 分析と XPS 分析で酸素濃度に 2 倍程度の違いが生じているが、その他の元素に ついては濃度プロファイルの傾向は概ね一致した。また、GD-OES 分析については、試験片表 面に水素が浸入している状態が確認できる。今後、これらの分析結果を、試験後の試験片の 分析や解釈に適用し、皮膜厚さや水素浸入量の経時変化を把握する。また、水素脆化の可能 性を評価するには、水素脆化を生じない臨界水素濃度を把握する必要があるため、臨界水素 濃度の測定手法について調査を行う必要がある。



(b) XPS

図 2.1-30 試験前試験片の表面分析結果

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増大するなどの影響が生じる可能性 が考えられることから、このような可能性を最小限に抑えるために、処分場の地下施設にお いて長期間に渡って未臨界状態が維持されることを処分施設の設計要件に反映することが不 可欠である。

臨界安全管理対象施設での臨界安全管理では、施設の設計において臨界安全性を担保する とともに、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、強度低下による変形・破損・移動、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。この臨界解析モデルでは、さらに臨界になりや すい想定として、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。図2.2-1に 示されるように、処分容器を横置きで定置する場合と堅置きで定置とする場合で、それぞれ 円筒体系と球体系のモデルが想定されている。



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

このような体系で解析を行うと、実効増倍率が未臨界判定基準値を下回るための設計要件 として、特に竪置きの場合では、1体の処分容器へ収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、現実的には、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うるか、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的に起こりうるも のとして想定されたわけではないことから、このような分野の知見も参照しつつ、実際に起 こりうる状態の変化の範囲を把握し、その範囲において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。

このため、平成 30 年度から令和 2 年度においては、以下を実施した。

- ・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。さらに、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される材料の長期挙動に関する知見を整備するために、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文献調査等により抽出し、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)。
- ・ 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 による影響および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(原子力機構, 2020; 2021)。
- ・ 処分容器や人工バリアが腐食することに留まらず、腐食による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て、臨界可能性を高める材料の 配置パターンの成立性を判断するための力学解析の実施などを含む予備検討に着手し た。さらに、それら臨界解析等の結果を参考にしつつ、材料の変形・破壊挙動を想定し た場合に臨界が起こり得るかについて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, 2021)。

令和3年度においては、燃料集合体の燃料被覆管および処分容器等の腐食の進展等に伴い

腐食生成物等の材料組成や密度等が変化していく場合において、これらの個別の状態変化の 組み合わせに着目した臨界解析を行い、組み合わせによる臨界安全性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、上記で述べた令和2年度の予備検討の結果から抽出 された課題への対処として、処分容器等の大きな変形・破壊が生起する可能性等を把握する ための力学解析手法を具体化して力学解析を行うとともに、これらの結果から処分後の臨界 安全評価を効果的かつ合理的に行うために重要となる状態変化のパターンや材料の変化の種 類や幅等を提示した。

これらの検討の成果を、「(2) 処分容器や燃料集合体等の構成材料における複合的な状態 変化の組み合わせを想定する場合の感度特性等の情報の整理」と「(3) 臨界に影響しうる材 料の変形や破壊の生起可能性の把握に向けた力学解析手法の具体化」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) 処分容器や燃料集合体等の構成材料における複合的な状態変化の組み合わせを想定する 場合の感度特性等の情報の整理

1) 処分環境に存在しうる構成材料による状態変化の組み合わせの整理

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)から抽出された処分容器や料被覆管の腐食の進展等による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として、燃料被覆管の水素化や、処分容器が腐食膨張することによる緩衝材の圧密現象等を加えて整理されたものである。

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に伴う緩衝材の圧密状 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の臨界解析を実施した。その結果、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%Δk/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。

令和2年度の検討(原子力機構, 2021)では、図2.2-2で示した状態変化のうち、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実施した。燃料 被覆管・IT/GT 管の腐食に伴い、腐食生成物および水素化物が生成するケースにおいて、完 全に腐食することで最大 1.9% $\Delta k/k$ の影響(実効増倍率が最大 1.9% 増加)となり、前述の処 分容器の腐食に伴う緩衝材の圧密状態の変化による影響より高い評価となったが、 $\Delta k/k$ の 変化量としては小さいことがわかった。

令和3年度においては、過年度で対象とした上記の状態変化とSKBの評価(Agrenius and Spahiu, 2016)で対象とされた状態変化から、臨界安全評価において状態変化を考慮する必要性が高い組み合わせを選定し、その状態変化の組み合わせによる影響を把握するための臨界解析を実施して、影響の程度や変化の傾向等の情報を整理するものとした。

臨界安全評価において、状態変化を考慮する必要性が高い組み合わせの候補となる評価結 果のまとめを表 2.2-1 に示す。表 2.2-1 は状態変化が実効増倍率へ与える影響を把握するた めに実施された 17 ケースを整理しており、ケース 1~ケース 9 は過年度の臨界解析で対象と した処分容器と燃料被覆管の腐食に伴う状態変化を、ケース 10~ケース 17 は SKB における 臨界評価で対象とされている状態変化を示している。なお、表中の「間隙水の考慮/未考慮」 については、腐食生成物中に間隙水を考慮するか否かを表している。実効増倍率へ与える影 響(反応度効果)である Δk/k については、以下の式で評価した。

 $\Delta k/k = (k_{transision} - k_{ref})/k_{ref} \quad \cdots \quad \exists 2.2-1$

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、すなわち初期状態の実効増倍率を、 $k_{transision}$ は状態変化後の実効増倍率である。

SKBの評価 (Agrenius and Spahiu, 2016) では、燃料集合体と処分容器の隙間に鉄腐食生 成物が充填する現象や、腐食により発生した水素ガスが地下水中へ溶存する現象等が実効増 倍率にもたらす影響が評価されている。燃料集合体と処分容器の隙間に生成される鉄腐食生 成物の影響評価では、表 2.2-1 のケース 10 において腐食生成物としてマグネタイト(Fe₃O₄) を選定すると、ギャップ (腐食生成物層表面から燃料集合体表面までの距離) が約 0.2 cmの ときに実効増倍率への影響が最大 (1.5% Δ k/k) となり、さらに腐食が進み、燃料棒間にマ グネタイトが充填されると、その影響は大幅に下がる結果となっている。燃料集合体の燃料 棒間スペースがマグネタイトで完全に充填されるケース 15 では、その影響は-69.3% Δ k/k と なり、臨界からはほど遠い評価となっている。これは、減速材となる地下水が失われるため である。ケース 16 のマグネタイトに間隙水が含まれることを考慮した評価では、-21.6% Δ k/k と影響は上昇するが、埋め戻し直後の状態と比較すると実効増倍率はかなり低い。

SKB では、燃料集合体と処分容器の隙間に生成される鉄腐食生成物の影響が最大となるギャップ地点(約0.2 cm)において、マグネタイトに間隙水を考慮したケース 11 の評価も行っている。その評価は-3.3%Δk/k であり、この影響によって実効増倍率が低下する状態変化となっている。また、ケース 12 では処分容器の腐食過程において生成される水素が地下水に溶存する影響も評価しており、この場合 0.1%Δk/k と比較的小さい影響となっている。腐食生成物として選定したケース 10 のマグネタイトが、シデライト(FeCO₃)もしくはマッキナワイト(FeS)と複合的に生成した場合の評価(ケース 13 およびケース 14)では、シデライトとの混合体では 1.7%Δk/k、マッキナワイトとの混合体では 0.5%Δk/k の影響となった。ただし、マッキナワイトとの混合物はマグネタイト 100%の評価と比較した場合、マグネタイト

100%の評価に対して-1.0%Δk/kとマイナスの影響となる。さらに、最終的に処分容器全てが 腐食してマグネタイトに置き換わるケース 17 の評価も行っているが、上述のとおり減速材 となる地下水が枯渇した条件のため、その影響は-66.9%Δk/kとなっている。

上記で示した、過年度の臨界解析で対象とした、処分容器と燃料被覆管の腐食に伴う状態 変化と、SKB における臨界評価で対象とされている状態変化を、以下の3つのカテゴリーに 分類した。

状態変化①:処分容器外表面での腐食の進展

状態変化②:燃料被覆管の腐食の進展

状態変化③:処分容器の燃料集合体収容スペースでの腐食の進展

上記の状態変化の概念を図 2.2-3 に示す。状態変化①は、状態変化②および状態変化③が 生じる燃料領域から離れた処分容器外側の領域で起こるため、状態変化①と、状態変化②や 状態変化③が同時に起こる場合では、比較的小さな影響に留まる可能性が高い。このため、 臨界評価において燃料領域となる状態変化②および状態変化③との組み合わせで、かつ、実 効増倍率が埋め戻し直後に比べて上昇する状態変化の組み合わせとして、表 2.2-1 において ムk/k の最大値が大きい、すなわち実効増倍率への影響が大きいケース 8、10 および 13 を 「組み合わせを考慮する必要性が高い解析ケースの候補」とし、これに対応する解析ケース を設定して次項 2) で示す臨界解析を行うことを通じて、状態変化の組み合わせによる影響 の程度や変化の傾向を把握することとした。

ただし、状態変化③については、SKB の事例を参考にしつつ、次項 2)の臨界解析で対象と する腐食生成物の種類を選定することを目的として、処分環境で現実に想定しうる鉄腐食生 成物の種類の違いが実効増倍率に与える影響(Δk/k)を概略的に把握するための予備解析 を行った。予備解析では、後述の図 2.2-4 で示す使用済燃料、処分容器および緩衝材を対象 とし、使用済燃料の周囲に鉄腐食生成物を配置して、鉄腐食生成物単体の影響をΔk/k で評 価した。予備解析の評価結果を表 2.2-2 に示す。酸化鉄のマグネタイト(Fe₃O₄)および鉄炭 酸塩鉱物のシデライト(FeCO₃)、チュカノバイト(Fe₂(CO₃)(OH)₂)のΔk/k はプラスの評価 であり、SKB で対象としている鉄硫酸塩鉱物のマッキナワイト(FeS)や水酸化鉄(Fe(OH)₂) はマイナスの評価となった。鉄炭酸塩鉱物としては、チュカノバイトよりシデライトの値が 大きかったことから、次項 2)の臨界解析では、代表的な鉄腐食生成物の種類として、Δk/k の大きい酸化鉄のマグネタイトと鉄炭酸塩鉱物のシデライトを選定するものとした。また、 表 2.2-1 のマグネタイトと広(ケース 10)とシデライトを選定するものとした。また、 表 2.2-1 のマグネタイト生成(ケース 10)とシデライト集合体生成(ケース 13)のΔk/kの 差が 0.2%に対し、単体で評価した表 2.2-2 のマグネタイト生成とシデライト生成の差が 0.25%であること、かつ、解析モデルの単純化のため、SKBの事例で対象としている鉄腐食生 成物の混合体については想定しなかった。

状態変化②については、表 2.2-1 のケース 8 のとおり、Zr 酸化物(Zr0₂)と Zr 水素化物(ZrH₂)が生成することを想定した。



・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 直接処分環境において起こりうる状態変化の組み合わせ候補の概念図

対象とする状態変化			解析ケース				
山松太小〇		1		間隙水未考慮		1.3%	
<u>状態変化①</u>	腐食生成物の体積膨張と	2	Fe ₃ O ₄ か生成	間隙水考慮		-1.6%	
処分谷希外	緩衝材の圧密	3		間隙水未考慮		1.1%	
衣囲じの腐		4	FeUU ₃ が生成	間隙水考慮		-1.0%	
良の進展	緩衝材へ鉄イオンの移行	5	鉄イオンの移	行距離が 0~0.7	m	0.1%	
		6	フロぶ生亡	間隙水未考慮		-1.9%	
状態変化②		7	ZrU ₂ 加生成	間隙水考慮		*2	
燃料被覆管の腐食の進展		8	$ZrO_2 \succeq ZrH_2$	間隙水未考慮		1.9%	
		9	が生成	間隙水考慮		*2	
		10		間隙水未考慮	溶存水素 未考慮	1.5%	
		11	Fe ₃ 0 ₄ が生成	間隙水考慮	溶存水素 未考慮	-3.3%	
<u>状態変化③</u> 処分容器の	燃料集合体周囲までの隙 間が鉄腐食生成物で充填	12		間隙水未考慮	溶存水素 考慮	0.1%	
燃料集合体 収容スペー		13	Fe ₃ 0 ₄ と FeCO ₃ が生成	間隙水未考慮	溶存水素 未考慮	1.7%	
スでの腐食 の進展		14	Fe ₃ 0 ₄ とFeS が生成	間隙水未考慮	溶存水素 未考慮	0.5%	
	燃料集合体内部まで鉄腐	15	下のぶ生产	間隙水未考慮	溶存水素	-69.3%	
	食生成物が充填	16	re ₃ U ₄ 邓生成	間隙水考慮	未考慮	-21.6%	
	処分容器が全て腐食	17	Fe ₃ O ₄ が生成	間隙水未考慮	溶存水素 未考慮	-66.9%	

表 2.2-1 状態変化を考慮する必要性が高い組み合わせの候補の評価結果のまとめ

※1:状態変化①は原子力機構(2020)、状態変化②は原子力機構(2021)、状態変化③は SKB (Agrenius and Spahiu, 2016)に記載の文献値を元に算出した値

※2:影響評価が未実施

鉄腐食生成物	腐食生成 物厚さ [cm]	$\Delta\mathrm{k/k}$
腐食生成物なし	0.0	—
マグネタイト (Fe ₃ 0 ₄)		0.28%
シデライト(FeCO ₃)		0.53%
マッキナワイト (FeS)	0.4**	-0.13%
水酸化鉄 (Fe(OH) ₂)		-0.08%
チュカノバイト (Fe2(CO3)(OH)2)		0.29%

表 2.2-2 処分環境で想定しうる鉄腐食生成物を考慮した予備解析結果

※鉄腐食生成物単体の影響をみるため処分容器の減肉は未考慮

2) 解析ケースおよび解析パラメータの設定

① 臨界解析の基本条件の設定

本検討の初期状態となる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 2.2-4 に、解析条件を表 2.2-3 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、18,000年後に実効増倍率が最大となったことを踏まえて、臨界が起こり易い状況を 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。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。

また、減速材については、過年度までに採用していた地下水、および地下水以外で直接処 分環境における減速材となり得る材料として緩衝材や岩盤を構成する主成分である SiO₂に着 目し、図 2.2-4 の解析体系において地下水を SiO₂に置換した予備解析を実施したところ、置 換した湿潤 SiO₂および乾燥 SiO₂の Δ k/k の評価結果は基準となる地下水の評価結果(式 2.2-1 の k_{ref}) に対してそれぞれ約-25% Δ k/k、約-80% Δ k/k とかなり低くなる評価となった。ま た、直接処分に係る国際ベンチマークの結果(Suyama et al., 2020)では、処分環境にお いて存在しうる減速材として湿潤 SiO₂減速材より水減速材が実効増倍率に与える影響が高い
ことが報告されている。これらの結果から、本検討では厳しめの評価となる減速材として地 下水を設定した。



図 2.2-4 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

使用済燃料組成	 PWR 燃料(U0₂使用済燃料)、17×17 燃料集合体 U-235 濃縮度 4.5%、燃焼度 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	・ 寸法:図 2.2-4 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	 ・ 寸法:図 2.2-4 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	 ・ 図 2.2-3 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}	 アクチニド核種;U-234、U-235、U-238、Pu-238、 Pu-239、Pu-240、Pu-241、Pu-242、Am-241、Np-237 FP 核種;Mo-95、Tc-99、Rh-103、Cs-133、Sm-147、 Sm-149、Sm-150、Sm-152、Nd-143、Nd-145、Eu-153、Gd-155

表 2.2-3 燃料集合体、処分容器および緩衝材の解析条件

※1:初期状態の緩衝材の土粒子は、ベントナイト(クニゲル V1)、3 号ケイ砂、5 号ケイ砂の混合体(重量比 70:15:15 [wt%])とし、組成については菊池ほか(2005)を参考に設定した。 また、緩衝材の土粒子密度を 2.7 g cm⁻³、乾燥密度を 1.6 g cm⁻³とし、緩衝材の間隙が水で飽 和した状態とした。

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 Np-237 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

前項1)で示したように、状態変化②と状態変化③の組み合わせで、かつ、実効増倍率が埋 め戻し直後に比べて増加する状態変化の組み合わせを「組み合わせを考慮する必要性が高い 解析ケースの候補」とし、これに対応する解析ケースを設定した。また、SKB で対象とされ た状態変化③について、わが国で想定されている使用済燃料や処分容器等を対象とする場合 に、SKB の検討例と同様の実効増倍率の変化が生じるかを把握するための解析ケースを設定 した。この結果をまとめて表 2.2-4 に示す。また、表 2.2-4 の状態変化③における収容スペ ース内部の腐食挙動に係る位置関係を示すパラメータを図 2.2-5 に示す。

状態変化③は、処分容器の燃料集合体収容スペース内部における腐食挙動であり、収容ス ペース内壁で処分容器が腐食することによって鉄腐食生成物が生成し、収容スペースを埋め ていく状態変化である。腐食挙動によって収容スペース内壁は減肉し、収容スペースは広が る。この減肉後の収容スペース内壁の位置を図 2.2-5 のとおり「処分容器減肉境界」とし、 「収容スペース内壁」と「処分容器減肉境界」の間の幅をパラメータ「減肉深さ」と定義し た。また、処分容器が減肉するに伴い、鉄腐食生成物も生成する。鉄腐食生成物は、体積膨 張することが知られており、スウェーデンでの検討事例(Agrenius and Spahiu, 2016)で も適用している Pilling-Bedworth ratio(ピリングベッドワース比: R_{pb})を用いることで表 現できる。以下に腐食生成物の体積膨張率を算出する式を示す。

ここで、 R_{pb} は、鉄原子が酸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[cm³ 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」は母材となる鉄を、「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鉄原子数である。この体積膨張率より、減肉した鉄体積に対して R_{pb} を乗じることにより鉄腐食生成物の体積を算出している。

体積膨張した鉄腐食生成物の表面を「腐食生成物表面」とし、「収容スペース内壁」と 「腐食生成物表面」の間の幅をパラメータ「腐食膨張厚さ」と定義した。このパラメータと して定義した「減肉深さ」と「腐食膨張厚さ」を足すと「腐食生成物厚さ」となる。さら に、「燃料集合体表面」と「腐食生成物表面」の間の幅をパラメータ「ギャップ」と定義し た。この「ギャップ」と同じ定義のパラメータは SKB の評価でも使用されている。また、本 検討では、燃料集合体の内部に燃料棒1本の領域分、すなわち1セル分(1.26 cm)腐食生 成物が侵入するまでを「ギャップ」のパラメータ値として与え、解析対象とした。

状態変化②の燃料被覆管の腐食挙動に関するパラメータについては、令和2年度報告書 (原子力機構, 2021)と同様に、腐食による燃料被覆管の減肉を「減肉深さ」、その腐食反応による ZrO₂および ZrH₂の生成厚さをそれぞれ「ZrO₂厚さ」、「ZrH₂厚さ」と定義した。ただし、令和2年度において状態変化②の傾向は把握できているため、パラメータ値の幅については簡略し、6点から4点に変更している。

142	収容スペース内部			燃料被覆管			IT/GT 管					
状態変化	腐食 生成 物	減肉深さ	腐食膨張 厚さ	ギャップ	腐食 生成 物	減肉 深さ	ZrO ₂ 厚さ	ZrH2 厚さ	腐食 生成 物	減肉 深さ	ZrO ₂ 厚さ	ZrH2 厚さ
	_	[cm]	[cm]	[cm]		[cm]	[cm]	[cm]		[cm]	[cm]	[cm]
	7	0.1786	0.20	0.59								
	イグ	0.3511	0.40	0.39								
حلار	ネタ	0.5177	0.60	0.19								
	イト	0. 6707 ^{%1}	0. 79 ^{%1}	0.00 ^{**1}								
悲		1. 2005 ^{**2}	2.05 ^{**2}	-1.26^{2}								
変化		0.0617	0.20	0.59					\searrow			
1L	シデ	0.1220	0.40	0.39								
3	ラ	0.1807	0.60	0.19								
	イ ト	0. 2352 ^{**1}	0. 79 ^{%1}	$0.00^{\%1}$								
		0. 4274 ^{**2}	2. 05 ^{**2}	-1.26^{2}								
状能	2					0.02	0.01	0.016		0.04	0.021	0.032
変	クネタ	状態変化③)の影響評価	「より、影		0.04	0.02	0.032		0. 041 ^{**4}	0. 021 ^{**4}	0. 033 ^{**4}
化	イト	響が高くな	る腐食膨張	厚さとし								
2		て、			ZrO_2	0.057 ^{**3}	0. 028 ^{**3}	0. 046 ^{**3}	ZrO_2	0.041 ^{**4}	0.021 ^{**4}	0.033**4
+					+				+			
状	37	0.20, 0.	40, 0.60,	0.79 cm	ZrH_2	0.02	0.01	0.016	ZrH_2	0.04	0.021	0.032
態	~ デ											
変	ライ	の4点を選	邊 択			0.04	0.02	0.032		0. 041 ^{**4}	0. 021 ^{**4}	0. 033 ^{**4}
化	ŀ					0.055%	0.000**	0.04082		0.04184	0.001.84	0.00084
3						0.057**3	0.028**3	0.046**3		0.041**4	0.021**4	0. 033 ^{**4}

表 2.2-4 状態変化の組み合わせによる影響を評価するための解析ケース

※1:燃料集合体表面と収容スペース内壁との隙間が完全に充填されている状態

※2:燃料集合体表面と収容スペース内壁との隙間が完全に充填されていることに加え、燃料集合体のうち外側表面から1セル分(1.26 cm)が腐食生成物で充填されている状態

※3:燃料被覆管が完全に腐食した状態

※4: IT/GT 管が完全に腐食した状態



図 2.2-5 収容スペース内部における腐食挙動に係る位置関係を示すパラメータ

3) 解析結果

状態変化③(処分容器の燃料集合体収容スペースでの腐食の進展)を想定する場合の実効 増倍率の解析結果を図 2.2-6 に示す。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}+3σ とした。 横軸は、2)項で定義した「ギャップ」(燃料集合体表面と腐食生成物表面間の距離)を示す。 なお、ギャップがマイナスの数値を示す領域では、腐食生成物が燃料集合体内部に侵入して いることを意味する。

図 2.2-6 をみると、収容スペース内壁から徐々に充填される鉄腐食生成物によって実効増 倍率も上昇し、ギャップ 0.19 cm の位置で最大の実効増倍率になっていることがわかる。ま た、そのまま鉄腐食生成物の充填が進展し、燃料集合体表面を超えて内部の燃料棒間スペー スまで侵入するに従い、実効増倍率が低下していることがわかる。

この現象は、ギャップと燃料集合体内部に存在する水減速材と燃料の比率、すなわち中性 子の減速条件によるものと考えられる。初期状態では過減速(水の割合が多い)の状態であ り、徐々に鉄腐食生成物が収容スペースに充填されることによって地下水量が減っていき、 ギャップ 0.19 cmの位置で最適減速条件(実効増倍率が一番高くなる条件)に達する。その 後も鉄腐食生成物の充填が進展することによって、地下水量が減少していき、今度は減速不 足に陥っていく現象が現れているものと推測される。

生成する鉄腐食生成物の違いでは、マグネタイトよりシデライトの生成によって実効増倍 率が若干高くなる傾向を示した。これは、鉄腐食生成物を構成する鉄(Fe-56)の吸収断面 積による影響が高いためと考えられる。マグネタイトは化学式がFe₃04であることからFeの 原子数は3であり、シデライトは化学式がFeCO₃であることからFeの原子数は1である。マ グネタイトとシデライトを比較すると、マグネタイトの方が鉄の原子個数密度が約2倍大き い、すなわちマグネタイトの方がFe-56による吸収断面積も大きくなることで実効増倍率も 低くなる。このことが、マグネタイト生成に比べてシデライト生成を考慮することで実効増 倍率が増加する理由であると考えられる。これら鉄腐食生成物を構成する鉄以外の元素であ る酸素(0-16)と炭素(C-nat.:炭素の天然同位体)は、Fe-56に対して全断面積と吸収断 面積のいずれもかなり小さいことから、実効増倍率への寄与がかなり低いものと考えられる。 参考として表 2.2-5に鉄腐食生成物を構成する原子核の断面積データ(原子力機構, 2022) を示す。

図 2.2-6 の実効増倍率の変化の傾向は、SKB の評価(Agrenius and Spahiu, 2016)と同様であった。両者を比較した結果を図 2.2-7 に示す。同図では、燃料集合体表面での実効増倍率を基準値として規格化した実効増倍率を縦軸に示している。SKB の評価では、腐食生成物をマグネタイトとし、燃料集合体表面から約 0.2 cm の位置で最大の実効増倍率が得られたと報告されており、ピーク位置は SKB の結果とほぼ一致した。また、ピークを越えた後、鉄腐食生成物が燃料集合体表面までのスペースを充填するまでの傾向も SKB の結果とほぼ一致した。

他方、燃料集合体表面を超えて、鉄腐食生成物が内部の燃料棒間スペースに侵入すると、 SKBの結果との差異が見られた。燃料集合体表面の地点とギャップ-1.26 cmの地点の実効増 倍率を比較すると、本検討では約3%の低下に比べ、SKBの評価では約10%近く低下してい る。このような差が生じた理由として、燃料集合体の型式や収容スペースの仕様が異なるた めに、中性子を減速させる地下水量が、SKBの方が本解析の想定より少ないこと等が考えら れる。しかしながら、ピークの位置を含む実効増倍率の変化の傾向がSKBの評価とほぼ一致 したことから、地下水量の減少による基本的な中性子減速のメカニズムも一致していると考 えられ、本解析における収容スペース内壁での腐食の進展に着目した評価の妥当性を示す結 果となった。





(横軸は「ギャップ」(燃料集合体表面と腐食生成物表面間の距離)を示す。ギャップがマイナスの数値を 示す領域では、腐食生成物が燃料集合体内部に侵入していることを意味する)



図 2.2-7 SKB の評価との比較(マグネタイト)

次に、状態変化②(燃料被覆管の腐食の進展)と状態変化③が複合的に起こることを考慮 した実効増倍率の結果を図 2.2-8 および図 2.2-9 に示す。

図 2.2-8 は状態変化③における鉄腐食生成物としてマグネタイトを想定した実効増倍率の 結果である。状態変化②における燃料被覆管の減肉深さが異なる場合でも、鉄腐食生成物の 膨張に伴う実効増倍率の変化の傾向はほぼ同様であった。このことは、状態変化②と状態変 化③の現象が複合的に生じることによって、実効増倍率の上昇を促進させる相互作用が生じ ないことを示唆している。この原因として、水による減速により、状態変化②が生じる地点 と状態変化③が生じる地点間の距離より中性子の平均自由行程が短くなることで、実効増倍 率へ与える影響が単独の状態変化の影響のみに依存すること等が考えられる。

図 2.2-9 は状態変化③における鉄腐食生成物としてシデライトを想定した実効増倍率の結果であり、マグネタイトとほぼ同じ傾向となった。また、シデライトを想定する場合では、状態変化③の単独の解析結果と同様に、マグネタイトより実効増倍率が若干高くなる傾向を示した。この原因としては、上記に示したように、状態変化②と状態変化③との間には相互作用がほぼ起きていないことから、それぞれの鉄腐食生成物での鉄(Fe-56)の原子個数密度が異なることが考えられる。

⁽横軸は「ギャップ」(燃料集合体表面と腐食生成物表面間の距離)を示す。ギャップがマイナスの数値を 示す領域では、腐食生成物が燃料集合体内部に侵入していることを意味する)





(横軸は「ギャップ」(燃料集合体表面と腐食生成物表面間の距離)を示す。ギャップがマイナ スの数値を示す領域では、腐食生成物が燃料集合体内部に侵入していることを意味する)



図 2.2-9 収容スペース内壁および燃料被覆管における腐食の進展の複合的現象を考慮 した実効増倍率(シデライト)

(横軸は「ギャップ」(燃料集合体表面と腐食生成物表面間の距離)を示す。ギャップがマイナスの 数値を示す領域では、腐食生成物が燃料集合体内部に侵入していることを意味する)

技種	Maxwe	ellian Average [Unit	: b]
1次 1里	吸収断面積	弾性散乱断面積	全断面積
Fe-56	2. 593	13.770	16.350
0-16	0.00019	4.474	4.474
C-nat.	0.169	2.249	2.418

表 2.2-5 鉄腐食生成物を構成する原子核の断面積データ(原子力機構, 2022)

Maxwell 平均断面積(300K), JENDL-4.0

上記に示した、状態変化②(表 2.2-1のケース 8)と状態変化③(表 2.2-1のケース 10と 13)が複合的に起こることを考慮した実効増倍率の結果から、実効増倍率の最大値および実 効増倍率へ与える影響を反応度効果(式 2.2-1参照)として整理したものを表 2.2-6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としている。本解析結果に対しても未臨界判定基準値を0.95とす ると、実効増倍率の最大値は、未臨界判定基準値より大幅に低く抑えられる結果となった。 また、反応度効果は、状態変化②と状態変化③は最大0.8%Δk/kであり、複合的に起こる現象 の最大値との差は1.9%Δk/kとなる。これは、令和2年度に検討した燃料被覆管の腐食の進 展における個別の状態変化②の最大の反応度効果1.9%Δk/kと合致する。このことからも、 状態変化②と状態変化③の間で中性子の相互作用は生じないと考えられる。なお、表2.2-1 のケース10より、SKBの評価(Agrenius and Spahiu,2016)における状態変化③のマグネ タイトの反応度効果は1.5%Δk/kであり、本検討の結果と差異が生じている。この理由とし て、本検討で想定している、収容スペース内壁から燃料集合体表面までの距離(腐食が起こ る前のギャップの値に相当)が、SKBに比べて短いためと考えられる(SKBの検討では、約 1.2 cmと読み取れるのに対して、本検討では0.79 cm)。

本検討では、状態変化の組み合わせの候補として、反応度効果が高い状態変化を表 2.2-1 より抽出し、燃料領域付近における状態変化②(燃料被覆管の腐食の進展)と状態変化③ (処分容器の燃料集合体収容スペースでの腐食の進展)の複合的現象による相互作用の影響 を把握するための影響評価を行った。その結果、状態変化②と状態変化③との組み合わせで は、中性子が水中で減速されることにより、状態変化②が起こる部位と状態変化③が起こる 部位との距離と比べて平均自由行程が十分短くなることによって、各状態変化が起こる領域 間の距離では実効増倍率に対する相互作用の影響はほぼ起きてないことがわかった。この結 果は、上記に示した SKB の評価 (Agrenius and Spahiu, 2016)と同様に、臨界安全評価の健 全体系に対し、個別の反応度効果を積み上げる、すなわち推定臨界下限増倍率に対して安全 尤度として与える評価手法の考え方(日本原子力研究所, 1999;原子力機構, 2018b)が適 用できる可能性を示唆するものと考えられる。

今後は、表 2.2-1 において反応度効果が最大 1.3% Δk/k となり、臨界安全評価モデルでは

2 - 56

反射体領域となる処分容器外部での腐食の進展において鉄腐食生成物が生成する状態変化① が、燃料領域となる状態変化②や状態変化③と複合的に起こる場合に実効増倍率に与える影 響について、(2)の1)で示したように小さな影響に留まるかを確認することが必要である。 さらに、表2.2-1において未実施となっている、状態変化②のうちZrO₂に間隙水が含まれる 場合の影響や、SKBにおいて実効増倍率に影響を及ぼす評価となっている、状態変化③の腐 食反応によって生成する水素が地下水に溶存することで実効増倍率に与える影響も把握する ことで、直接処分における現実的な状態変化を踏まえた臨界安全評価手法として整理してい くことが重要である。

	2 000 HILL 100 H			
	解析ケース	庭食生成物	_ 実効増倍率 (keff+3 σ)	反応度効果 (%Δk/k)
	状態変化	版及土內的	(110111 0 0)	
	初期状態	—	0.7692	_
状態変化②	燃料被覆管における腐食の 進展を想定(令和2年度)	$Zr0_2 + ZrH_2$	0.7835	1.9%
中能亦化①	収容スペース内壁における	マグネタイト	0.7740	0.6%
状態変化の	腐食の進展を想定	シデライト	0.7752	0.8%
	収容スペース内壁および燃	マグネタイト	0.7884	2.5%
状態发化②+③	料被覆管における腐食の進 展を想定	シデライト	0.7900	2.7%

表 2.2-6 実効増倍率の最大値および反応度効果の整理結果

(3) 臨界に影響しうる材料の変形や破壊の生起可能性の把握に向けた力学解析手法の具体化

(2)項で示した、処分容器や燃料被覆管等の腐食の進展による材料の組成・密度の変化等 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。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、過度に保守的な モデルで想定した最も臨界が起こり易い材料配置に近い配置に至る可能性と、それによる実 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、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検討を行った。具体的に は、令和2年度における予備的な力学解析の結果から抽出された課題(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のモデル化)への 対応として、この反力の発生を考慮できるように解析モデルを改良するとともに、鉄腐食生 成物の物性値の不確実性を考慮して、現実的な物性値として想定し得る複数のパラメータの 組み合わせから解析ケースを設定し、処分環境において臨界可能性が高くなる変形や破壊が 起こりうるかを把握するための力学解析を行った。さらに、この解析結果から、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と、このような材料配置のパターンが生起する 条件を整理した。

なお、本検討では(2)項と同様に、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、臨界が起こり易い状況を敢えて想定する観点から、より長期間の閉じ 込め性能が期待できる銅製処分容器を考慮せず、令和 2 年度の検討と同様に処分容器の材質 としては鉄(炭素鋼)を想定した。

1) 力学解析で対象とする処分容器の状態の変化

令和2年度においては、図2.2-1で示した過度に保守的な臨界解析モデルにおける臨界が 起こり易い材料配置と、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を 高める処分容器の配置のパターンとして、以下を抽出した。

- (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。
- (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。

さらに、令和2年度は、このような配置に至る材料の変形・破壊現象として、現実に起こ り得るものを整理した。この結果を図2.2-10および図2.2-11に示す。



(弱部となった最も板厚が薄くなる箇 所)が起点となって圧縮応力が生じる。 角の部分を中心に、腐食代部材 と処分容器構造材に円周方向に 圧縮による変 引張応力が生じる(赤矢印)。 形とともに剛 (角では厚みが薄いので、ひず みが大きくなり易い) 性が低下し、 最終的に剛性 を失って座屈 角の部分に応力が集中し、最大引張応力を超える 炭素鋼の腐食による膨張 緩衝材から の圧力応力 ことで塑性変形が増大し、亀裂発生、破断に至る。 (腐食生成物の体積が腐食による減肉 し、破断に至る。 分を上回ることによる正味の体積増加)

図 2.2-11 燃料集合体収容スペースの容積が拡大する状況の例(原子力機構, 2021)

令和3年度においても引き続き、図2.2-10および図2.2-11に示した、腐食生成物の体積 膨張に伴って生じる応力で引き起こされる延性破断や座屈現象等によって炭素鋼が破断し、 収容スペースの間の仕切り部が破損する状況や燃料集合体収容スペースの容積が拡大する状 況が生じる可能性に着目し、これらを把握するための力学解析手法(モデル、パラメータ) を具体化した。なお、令和2年度の検討と同様に、本検討においては、処分容器が軸方向に 圧縮されること等により、図2.2-1に示した球体系に近づく可能性については想定せず、同 図の円筒体系に近づく可能性に着目して、処分容器の二次元断面での変形パターンを対象と した検討を行った。

2) 力学解析のモデル・パラメータの設定

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3年度は、収容スペースの間 の仕切り部が破損する状況や燃料集合体収容スペースの容積が拡大する状況の可能性を評価 するための基盤となる、処分容器の腐食膨張に伴う、燃料集合体からの反力を考慮できるよ うにするためのモデルを構築した。また、鉄腐食生成物の物性値の不確実性を考慮した解析 ケースを設定して力学解析を実施した。

① 解析手法・ツール

令和2年度に実施した予備解析と同様に、炭素鋼製の処分容器を弾塑性体として扱い、応 カ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 (原子力機構, 2021)。炭素鋼の腐食生成物については、降伏応力に達した後に塑性変形を せずに直ちに破壊に至る脆性材料として考慮した。数値解析コードとしては、令和2年度に 実施した予備解析と同様に、有限個別要素法(FDEM)による解析が可能な力学解析コードと 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)でも述べたように、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(原子力機構, 2021)。

② 解析体系·解析条件

令和2年度に実施した予備解析と同様に、PWR 燃料を4体収容する処分容器を想定して処 分容器二次元水平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2.2-12 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。

燃料集合体については、均一な特性を持つ剛体としてモデル化することにより、処分容器の腐食膨張によって生じる燃料集合体の応力に対応する反力を考慮するものとした。

その他の境界条件については、令和2年度と同様に、既往の検討(核燃料サイクル開発機構,1999)を参考に処分容器の表面に径方向内向きに6.8 MPa(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)を与えるものとした。また、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、応力の非等方性により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、その影響を考慮するために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。具体的には図2.2-12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仮定した。以上の条件に基づき力学解析を行った。



図 2.2-12 力学解析における解析体系(原子力機構, 2021)

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った(原子力機構, 2021)。本検討においては、炭素鋼の腐食生成物の特性についての不確実性を考慮すること で、処分後に臨界が引き起こされる可能性の有無をより幅広に検討するものとした。この腐 食生成物の体積膨張により炭素鋼に応力が加わり破断する可能性は、腐食生成物の剛性と強 度によって影響を受ける。このため、腐食生成物の剛性と強度を規定する物性値であるヤン グ率と降伏応力について、文献値から確認された不確実性の幅を考慮して、これらの値がい ずれも高く炭素鋼の破断が起こりやすいパターンと、いずれの値も低く破断が起こり難いパ ターンを設定し、それぞれ解析ケース1および解析ケース2とした。これらの結果を比較す ることを通じて、鉄腐食生成物の特性の違いによって臨界が起こり易くなる材料配置パター ンの生起の仕方に違いが生じるかを確認するものとした。

なお、SKB における処分容器の腐食による臨界への影響に関する既往の検討(Agrenius and Spahiu, 2016)では、ヤング率等の物性値の測定結果に基づき、炭素鋼の腐食生成物が 極めて柔らかい特性を持つものと想定されている。このため、腐食生成物が膨張しても燃料 集合体に応力を与えることはなく、自ら変形して燃料集合体内部に侵入することが臨界解析 において想定され、この影響が評価されている。

	解析	ケース1	解析ケース 2		
	腐食代部材·		腐食代部材·		
項目	処分容器構造	腐食生成物	処分容器構造	腐食生成物	
	材 (炭素鋼)		材 (炭素鋼)		
ヤング率[MPa]	$210,000^{*1}$	40^{*5}		105, 000 ^{*8}	
ポアソン比[-]	$0.\ 30^{*1}$	0.48^{*5}		0.48^{*9}	
降伏応力[MPa]	$315.\ 00^{*2}$	3.15^{*6}		279.00^{*10}	
引張強さ[MPa]	538^{*2}	—	解析ケース1	—	
破断ひずみ[-]	$0. 19^{*2}$	—	と同様	—	
密度[kg m ⁻³]	7860^{*3}	2620^{*7}		2620^{*7}	
腐食速度[µm y ⁻¹]	$1.0*^4$	_		_	
腐食膨張率	_	炭素鋼の3倍*7		炭素鋼の3倍*7	

表 2.2-7 力学解析の解析条件(物性値)

*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(2018)より設定。

*4: 谷口ほか(2010b)より設定。

*5: Balafas ら(2011)より設定。ポアソン比については、同文献のヤング率および体積弾性率から算出 した最大値として設定。

*6: 腐食生成物が脆い特性を示す代表的な降伏応力として、炭素鋼の降伏応力の1%と仮定。

*7: 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。

*8: 本間ほか(2002)より設定。

*9: Balafas ら(2011)から算出した*5のポアソン比が、*8のヤング率にも適用できると仮定。

*10:磯本ら(2004)のヤング率と降伏応力の相関図より、直線内挿した*8のヤング率から設定。

3) 解析結果

解析結果の例として、相当応力分布の時間変化を図 2.2-13 に示す。解析ケース 1 では 11,000 年後で、解析ケース 2 では 13,000 年後で炭素鋼のひずみが過大となり解析が停止し たため、それまでの解析結果を示す。鉄腐食生成物のヤング率と降伏応力が低い解析ケース 1 では、使用済燃料収容スペースの炭素鋼の腐食生成物の体積膨張に伴い、使用済燃料から の反力が加わり、特に、腐食代部材から近い収容スペースの角部で時間の経過とともに応力 が集中していく傾向が認められた。この応力は、腐食が最も早く開始すると想定した収容ス ペース①において、最も大きな値となった(図 2.2-13、解析ケース 1 の 7,000 年後を参照)。 さらに、10,200 年後で炭素鋼の引張強さを超え、炭素鋼が破断した(図 2.2-13、解析ケー ス 1 の赤点線内)。また、10,200 年後以降では、収容スペースの角部の破断が生じた後に、 仕切り部においても応力が集中した 2 か所において炭素鋼の引張強さを超えて破断の発生が 認められたが(図 2.2-13、解析ケース 1 の黄色点線内)、それ以外の部位での破断は認めら れなかった。

鉄腐食生成物のヤング率と降伏応力が高い解析ケース2においても、解析ケース1と同様 に、収容スペースの角部に応力が集中する結果となり、特に、収容スペース①の角部で最も 高い応力となった(図2.2-13、解析ケース2の7,000年後を参照)。発生した応力は、解析 ケース1より大きな値となった。これは、鉄腐食生成物のヤング率が解析ケース1より高い ためである。また、解析ケース1と同様に、収容スペース①の角部の応力が集中した部分に おいて炭素鋼の引張強さを超えて破断が発生した(図2.2-13、解析ケース2の赤点線内)。 また、仕切り部においても破断が認められた(図2.2-13、解析ケース2の黄色点線内)。た だし、解析ケース2では仕切り部と角部の破断の発生は同時期であった。破断が発生した後 では、解析ケース1と同様に、それ以外の部位での破断は認められなかった。

上記に示すように、鉄腐食生成物のヤング率と降伏応力が低い解析ケース1と、逆に高い 解析ケース2のいずれのケースでも、処分容器での破断の発生が局所的であった理由として は、応力が集中した仕切り部や角部で破断が生じた後では、処分容器全体の応力が緩和され るためと考えられる。

以上の解析結果で示された処分容器の仕切り部の破断・崩落や、角部の破断に伴う収容スペース拡大の可能性を踏まえて、臨界の起こり易さや起こり難さを左右する材料配置のパタ ーンの分類を試行的に実施した。この結果を次項(4)で示す。



図 2.2-13 解析結果の例(相当応力の時間変化)

※黄色点線は仕切り部の破断箇所を、赤点線は角部の破断箇所をそれぞれ示す。

(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

(3)項では、処分容器の腐食・強度劣化等によって引き起こされる材料の変形・破壊によって臨界が起こり易い材料配置が生起するかを把握するための力学解析を実施した。本項では、この結果から、鉄腐食生成物の物性値等の現実的な不確実性の幅において、処分容器の破壊によって生じ得る複数の材料配置パターンと、これらが成立するための分岐条件について、ロジックツリーによる整理を試みた。

(3)1)項で示したように、臨界が起こり易い材料配置と起こり難い材料配置としては、仕切り部が破断して複数に分割されている使用済燃料の収容スペースが一つの燃料領域として 形成される場合とそうでない場合、並びに燃料集合体収容スペースの容積が拡大する場合と しない場合の組み合わせで大まかに分類されると考えられる。このため、これらの組み合わ せから、処分容器の材料配置パターンを4つに分類した。

なお、(3)項の解析では、仕切り部の破断の可能性や、使用済燃料の収容スペースの角部 が破断することで収容スペースの容積が拡大する可能性が示唆されたが、令和2年度に実施 した予備解析の結果では、いずれの部位の破断も認められなかった(原子力機構, 2021)。 令和2年度の予備解析では、(3)項の解析とは異なり、鉄腐食生成物の体積膨張による燃料 集合体からの反力の発生が考慮されていないことから、処分容器が破断に至るかどうかを左 右する条件として、炭素鋼の腐食生成物の体積膨張に伴って燃料集合体から反力が発生する かどうかが重要と考え、この条件と処分容器内部への地下水の浸入を併せた条件を、上記の 4つの材料配置パターンに至る分岐条件として整理した。

以上に示した材料配置パターンと分岐条件の整理結果を図 2.2-14 に示す。

なお、図 2.2-14 に示した 4 つの材料配置パターンは、いずれも、(2)1)項で示した③の状 態変化のうち、処分容器の燃料集合体収容スペースで腐食が進展し、鉄腐食生成物が燃料集 合体の周囲を充填する状態変化の後に生じる可能性がある。また、(2)項で示した、SKBの評 価(Agrenius and Spahiu, 2016)では、燃料集合体の内部まで処分容器の腐食生成物が進 入することが想定されており、これは、図 2.2-14 の材料配置パターン 1 に相当すると考え られる。



図 2.2-14 臨界が発生しうる材料配置パターンのロジックツリーによる整理例

(3)項に示した解析結果から、以下のことが明らかとなった。

- 鉄腐食生成物の剛性・強度が高い場合のみならず、低い場合でも処分容器は破断するため、パターン1が成立する可能性は低いと考えられる。これは、前項(3)の2)②で示した、SKB における処分容器の腐食による臨界への影響に関する既往の検討(Agrenius and Spahiu, 2016)の想定(腐食生成物が膨張しても炭素鋼に応力を与えることはなく、自ら変形して燃料集合体内部に侵入する)とは異なる結果である。
- 鉄腐食生成物の物性値によらず、仕切り部の破断は局所的であることから、仕切り 部の全体が崩落して個々の収容スペースが全体的に連結する可能性は低いと考えら れた。このことは、パターン3および4より、パターン2が成立する可能性が高い ことを示唆している。

今後、処分後の現実的な材料の変形・破壊挙動を評価モデルに反映した、過度に保守的で はない臨界安全評価を行ううえで、以下の a)、b)の課題について、さらに検討を進めること が必要と考えられる。

- a)本年度の力学解析よりも破壊の起こりやすい極端な条件を想定して、使用済燃料の収容スペースが一つの燃料領域として形成されるとともに燃料集合体収容スペースの容積が拡大する材料配置となることで、より臨界が起こりやすい状態となるパターン3および4となる可能性の大小を見通すための補足的な力学解析を行うこと(例えば、4か所の収容スペースで同時に腐食が開始・進展することで4か所の角部で応力が集中して破断する可能性の有無の確認等)。
- b) それら材料配置の変化に前出の燃料被覆管や処分容器の腐食による状態変遷がもたら す材料の組成・密度等の変化も組み合わせた解析を行うことを通じて、現実的な臨界 の起こりやすさと起こりにくさの見直しを行いつつ、想定に対応した評価手法を例示 すること。
 - 具体的には、
 - 図 2.2-14 に示した、処分容器の変形や破壊により生じる材料配置のパターンを 反映した評価モデルに対して、項目(2)で示した以下の状態変化を反映すること。

状態変化①:処分容器外表面での腐食の進展による状態変化

- 状態変化②:燃料被覆管の腐食の進展による状態変化
- 状態変化③:処分容器の燃料集合体収容スペースでの腐食の進展による状態変化

例えば、図 2.2-14 に示す材料配置パターン 3 や 4 と、燃料被覆管が腐食して Zr 水素化物が生成する現象が同時に生じる場合では、これらの材料配置パタ ーンのみを想定する場合より実効増倍率が高い値となる可能性がある。

図 2.2-14 に示した、処分容器の変形や破壊により生じる材料配置のパターンのみならず、これらと燃料棒の配列パターン(例えば、燃料棒が一定の間隔を保って配列されることで、中性子の減速が起こり易い状態になるパターンや、燃料棒が処分容器底部に積み重なることで中性子の減速が起こり難い状態になるパターン等)との組み合わせを検討して評価モデルに反映すること。

なお、上記に示した課題に対処するだけでは、複数の材料の状態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。

2.3 まとめ

(1) 処分容器の腐食挙動評価

処分容器の候補材料である純銅、および純銅に長寿命が期待できない条件等に対応するた めの代替候補材料について、処分環境条件を想定した各種の腐食試験による腐食データの整 備を進め、わが国の幅広い地質環境条件に対するこれら候補材料の処分容器としての適用性 や環境条件に応じた寿命などの評価を行う。

令和2年度までに、純銅については低酸素濃度下で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腐食挙動を把握するため、60日間までの浸漬 試験を実施して腐食速度の経時変化を把握するとともに、定ひずみ試験であるUベンド試験 を 60日間実施して応力腐食割れへの硫化物の影響に関する知見を取得した。また、純銅の 応力腐食割れ感受性に対する環境条件の影響に関する知見を拡充するため、圧縮ベントナイ ト中のUベンド試験を 80日間実施し、応力腐食割れ挙動に対する緩衝材乾燥密度の効果に 関するデータを取得した。他の候補材料については、複数の代表的な高耐食性金属等を対象 とした酸化性環境での耐食性の比較によりニッケル基合金である C-276 を選定するとともに、 高耐食性金属において問題となる酸化性環境での耐食性の評価に資するため、C-276 の定電 位法によるすきま腐食試験を実施し、1Mまでの塩化物濃度ではすきま腐食が発生しないこと を確認した。

令和3年度、純銅については硫化物共存下の100日間までの浸漬試験およびUベンド試験 を実施するとともに、比較的短期間で割れ感受性を評価できる低ひずみ速度試験(SSRT試験) を実施し、腐食速度および応力腐食割れに対する硫化物の影響に関するデータを拡充した。 また、上記浸漬試験データに基づき硫化物の定常拡散を考慮した腐食モデルの妥当性を確認 するとともに、同モデルを用いて地下水中の硫化物濃度と純銅製容器の腐食寿命の関係を把 握した。さらに、純銅の応力腐食割れ感受性に対する環境条件の影響に関し、塩化アンモニ ウム溶液又は人工海水を用いた圧縮ベントナイト中のUベンド試験を1年間実施し、応力腐 食割れ挙動に対する溶液条件および緩衝材乾燥密度の効果に関するデータを拡充した。他の 候補材料については、ニッケル基合金 C-276 を対象に、定電位法を用いたすきま腐食試験に より塩化物濃度3 Mまでの条件ですきま腐食発生条件を調査するとともに、緩衝材共存下か つ低酸素濃度下での腐食メカニズムを把握することを目的とした浸漬試験を開始した。

今後、純銅については、硫化物共存下の腐食挙動に対する塩化物濃度等の影響も含め、腐 食速度の経時変化および応力腐食割れ感受性に関するデータを拡充するとともに、得られた データを踏まえ緩衝材中の腐食生成物の析出を考慮したより現実的なモデルの検討を進める。 また、複数の溶液条件における最長2年間の圧縮ベントナイト中のUベンド試験を実施し、 純銅の応力腐食割れ感受性に対する溶液条件と緩衝材乾燥密度の効果を整理する。他の候補 材料については、ニッケル基合金 C-276 のすきま腐食の発生下限界電位を詳細に確認すると ともに、再不動態化電位との比較により臨界電位を評価し、ニッケル基合金 C-276 による耐 食性向上の効果をより詳細に確認・整理する。また、緩衝材共存下かつ低酸素濃度下での最 長1年間の浸漬試験により、処分環境におけるニッケル基合金 C-276 の腐食メカニズムを把 握する。

(2) 使用済燃料処分での処分後臨界安全評価

燃料集合体の燃料被覆管および処分容器等の腐食の進展等に伴い腐食生成物等の材料組成 や密度等が変化していく場合において、これらの個別の状態変化の組合せに着目した臨界解 析を行い、組合せによる臨界安全性への影響の程度や変化の傾向に関する情報を整理した。 具体的には、過年度に実施した臨界解析や文献調査の結果から整理された状態変化から、組 み合わせを考慮する必要性が高い解析ケースとして、燃料被覆管の腐食の進展による状態変 化と、処分容器の燃料集合体収容スペースでの腐食の進展による状態変化の組合せを抽出し、 これら個別の状態変化による影響との比較等を行うことにより、組合せによる実効増倍率へ の影響が軽微であることを確認した。

また、処分容器の腐食で強度が劣化することにより、腐食生成物の体積膨張に伴う応力が 載荷することで処分容器の変形や破壊が起こり、臨界が起こりやすい材料配置に変化する可 能性の把握に向けて、燃料集合体収容スペースでの鉄の腐食膨張に対する燃料集合体からの 反力を考慮できるように力学モデルを構築するとともに、文献調査の結果から鉄腐食生成物 の物性値の不確実性を考慮し、剛性と強度が高い腐食生成物と低い腐食生成物を想定して力 学解析を行った。その結果、腐食生成物の物性値の大きさにかかわらず処分容器の破断が発 生することや、破断の発生は局所的な部位に留まること等が明らかとなった。

さらに、臨界が起こりやすい材料配置パターンの成立性の鍵となる「燃料集合体収容スペ ースの間の仕切り部の破断とそれによる崩落」と「処分容器の破断による燃料集合体収容ス ペースの拡大」の組み合わせから材料配置パターンを整理し、上記の力学解析の結果から、 これらの材料配置パターンの起こりやすさに関する知見を整理した。具体的には、腐食生成 物の物性値の大きさにかかわらず処分容器の破断が認められたことから、破断の発生を想定 したモデルで臨界安全評価を行う必要性が否定できないこと、および、破断の発生は局所的 な部位に留まったことから、燃料領域が一か所に集積するような厳しい材料の配置の想定を 回避できる可能性があること等が明らかとなった。

今後は、燃料集合体の燃料被覆管および処分容器等の腐食の進展等に伴い材料組成や密度 等が変化することによる影響の把握に向けた検討については、本検討で対象とした、燃料被 覆管の腐食と処分容器の燃料集合体収容スペースでの腐食の組み合わせによる影響に加え、 反射体領域となる処分容器外部で進展する腐食反応による状態変化等が複合的に起こる場合 の影響の把握に向けて、感度解析等による検討を進めることが必要である。また、処分容器 の変形や破壊が起こり、臨界が起こりやすい材料配置に変化する可能性の把握に向けた検討 としては、本検討の力学解析よりも破壊の起こりやすい極端な条件を想定して(例えば、4 か所の収容スペースで同時に腐食が開始・進展することで4か所の角部で応力が集中して破 断する可能性の有無の確認等)、より臨界が起こりやすい材料配置のパターンが成立する可 能性の大小を見通すための補足的な力学解析を行い、この結果も踏まえて、本検討で整理し た試行的な材料配置のパターン分類の結果をさらに細分化することの要否の確認などを行う ことが必要である。さらに、上記の2つの検討結果を踏まえ、これらの結果を反映して臨界 安全評価を行うための解析モデルの候補を上記で整理した材料配置のパターンごとに提案す るとともに、各々のモデルを活用した臨界解析を行い、現実的な臨界の起こりやすさと起こりにくさを反映した臨界安全評価手法を例示していく。

【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.
- Balafas, I. and Burgoyne, C. J. (2011): Modeling the Structural Effects of Rust in Concrete Cover, JOURNAL OF ENGINEERING MECHANICS, ASCE.
- Bhaskaran, G., Carcea, A., Ulaganathan, J., Wang, S., Huang, Y., Newman, R.C. (2013): Fundamental aspects of stress corrosion cracking of copper relevant to the Swedish deep geologic repository concept, SKB TR-12-06.
- Chen, J., Qin, Z., Martino. T., Shoesmith, D. W. (2017): Effect of chloride on Cu corrosion in anaerobic sulphide solutions, CORROSION ENGINEERING, SCIENCE AND TECHNOLOGY, 2017, VOL. 52, NO. S1, 40-44.
- 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.
- DOE (U.S. Department of Energy, Office of Civilian Radioactive Waste Management) (2002): Yucca Mountain Science and Engineering Report, Technical Information Supporting Site Recommendation Consideration, DOE/RW-0539 Rev.1.
- 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 №4.
- Hall, D.S., Behazin, M., Binns, W.J., Keech, P.G. (2021): An evaluation of corrosion processes affecting copper-coated nuclear waste containers in a deep geological repository, Progress in Materials Science 2021, Vol.118, 100766.
- 本間 信之,谷口 直樹,川崎 学,川上 進(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.
- 礒本 良則,向井 康博,津村敏則(2004):高温腐食環境における炭素鋼酸化皮膜の機械 的性質の検討,材料と環境, Vol. 53 No. 2.
- 原環センター(原子力環境整備促進・資金管理センター)(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 処分システム工学確証技術開発 平成 25 年度~平成 29 年度の取りまとめ報告書.

- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2015a): わが国における使用済燃料の地層処分シ ステムに関する概括的評価-直接処分第1次取りまとめー, 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,平成 27 年 3 月.
- 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, 平成 28 年 3 月.
- 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,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)(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,平成30年3月.
- 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, 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.
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2021): 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.
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)核データ研究グループ JENDL-4.0: https://wwwndc.jaea.go.jp/jendl/j40/J40_J.html (2022年1月6日閲覧).
- 核燃料サイクル開発機構(1999):わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的 信頼性-地層処分研究開発第2次取りまとめー,分冊2地層処分の工学技術, JNCTN1400 99-022.
- 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.
- 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砕解析–, 日本原子力学会 2007 年秋の大 会.
- 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.
- 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.
- 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.
- Pugh, E.N., Montague, W.G., Westwood, A.R.C. (1966): "Stress-corrosion cracking of copper", Corrosion Science, 6, pp. 345-347.
- Sato, H. (1998): Data Setting for Effective Diffusion Coefficient (De) of Nuclide in Bentonite for Reference Case in Performance Assessment of the Geological Disposal of High-Level Radioactive Waste (I), Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation, PNC TN8410 98-097.
- 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.
- 産業技術総合研究所, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 電力中央研究所 (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(沿岸部処分 システム評価確証技術開発) 成果報告書.
- 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).
- Suyama, K., Kataoka, M., Yamamoto, K., Akie, H. (2020) : Used Nuclear Fuel Criticality Safety Benchmark SiO₂ Reflector Effect: The Reflector Effect of Silicon Dioxide (SiO2) for the Criticality Safety of Direct Disposal of Used Nuclear Fuel, NEA/NSC/R(2019)4.
- Suzuki, Y. (1981): Stress Corrosion Cracking of pure Copper in Dilute AmmonicalSolutions, Corrosion Science, Vol. 21, pp. 353-368.
- 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 地下水中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. Uhlig, H.H., Duqette, D.J. (1969): Alleged stress-corrosion cracking of pure Cu, Corrosion Science, Vol. 9, pp.557-560.

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	3-1
3.1 使用済燃料集合体からの核種溶解挙動評価・・・・・・・・・・・・・・・	3-1
(1) 本項目の背景と目的・・・・・ 3	3-1
(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	3-3
2) 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と前処理・・・・・ 3	3-6
① (U, ²⁶ Mg) 0 ₂ 固溶体ペレットの調製・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-6
② 塩酸洗浄による(U, ²⁶ Mg) 0 ₂ 固溶体ペレットからの MgO 相の除去	3-8
3) (U, ²⁶ Mg)0 ₂ 固溶体ペレットの浸漬試験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-9
① 試験方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-9
② 結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-11
(3) U02等ウラン酸化物の表面分析などによる溶解挙動の考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-19
1) はじめに・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-19
2) 電解還元析出物のラマン分析・・・・・ 3	3-20
① 試験方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-20
② 結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-21
3) 溶解反応過程における UO2表面状態の In-situ ラマン分析 ・・・・・・・・・ 3	3-24
① 試験方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-24
② 結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-25
4) ラマンスペクトルデータの拡充・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-27
(4) 使用済燃料からの核種の瞬時放出挙動に関する調査・・・・・・・・・・・・ 3	3-27
1) はじめに・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-27
2) 実燃料を使用した浸漬試験・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-29
① 試験方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-29
② 結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-31
3) 瞬時放出率、長期溶解速度に関する最新動向調査・・・・・・・・・・・・・3	3-38
① 調査結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-38
② まとめ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-45
3.2 緩衝材の長期挙動評価・・・・・ 3	3-46
 本項目の背景と目的・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-46
1) 試験の目的、手法、対象とする変質環境・現象・・・・・・・・・・・・・・	3-46
2) 調査内容・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-48
(2) 炭酸および鉄共存下での変質挙動の調査・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	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(試験A) ・・・・・・・・3	3-49
 試験手順および条件······· 	3-49
② 試験結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-51
2) 低酸素雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験(試験 B) ・・・・・・・・3	3-52

	 試験手順および条件······ 	3-52
	② 試験結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-53
3))低酸素雰囲気・鉄共存下での銅粉カラム変質試験(試験C) ・・・・・・・・・	3-55
	 試験手順および条件······ 	3-55
	② 試験結果・・・・・	3-56
(3)	処分環境での緩衝材変質の可能性の評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-58
3.3	まとめ・・・・・	3-60
(1)	使用済燃料集合体からの核種溶解挙動評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-60
(2)	緩衝材の長期挙動評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-60
参考	う文献・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-62

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、放出現象およびそのメカニズム、放出核種の化学形態などで ある。なお、以下ではこれらを評価することを総称して「ソースターム評価」と呼ぶ。

使用済燃料中の核種分布および核種放出の概念を図 3.1-1 に示す。燃焼・照射によって燃料中に生じる超ウラン元素、核分裂生成物などの多様な放射性核種の一部は、二酸化ウラン(U02)の結晶粒界に逼在化し、さらに、燃料ペレット内部に生じるガス気泡やひび割れなどの気相を介して、燃料と被覆管とのギャップ(隙間)にまで移行する。これらは、燃料と地下水が接触した場合に比較的速やかに放出される(瞬時放出)と考えられている。瞬時放出に関する核種放出現象については、燃料ペレット片などの浸漬試験から、様々なものがあることがわかっている。例えば、炉内燃焼時にガス状もしくは液状となる状態変化やU02格子内の欠陥の体積拡散により移行する途中でU02と固溶体を生成する元素、酸化物もしくは金属析出物として析出する元素、もしくはガス状のまま燃料ペレット内から放出され燃料棒内の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日材の腐食溶解にともなって比較的緩慢に放出される(長期溶解)と考えられている。

瞬時放出の程度を示すパラメータは、使用済燃料中の核種毎の総インベントリのうち瞬時 放出されるインベントリの割合が用いられ、気体として放出されるものは核分裂生成ガス放 出率(FGR)、地下水等に溶出するものは瞬時放出率(IRF)で表される。FGRで評価される核 種はクリプトン(Kr)およびキセノン(Xe)の同位体であるが、これらの核種の半減期は短い 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、地下水などに溶出する IRF 成分となる。ただし、Cs-137 など一部の核種の 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 UO₂ペレットあるいは ジルカロイ被覆管が溶解や腐食によって消失するまでの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。



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

図 3.1-1 使用済燃料中の核種分布および核種放出の概念

先行事業で設定した瞬時放出および長期溶解のパラメータ(原子力機構,2018;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 GWd 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 CO₃⁻の各濃度の合計)が高くなると6価の炭酸錯体 (UO₂(CO₃)⁴⁻な ど)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の評価の

ために、「(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」では、溶解指標物質を 固溶させた UO₂ペレットを用いて、マトリクス溶解速度に及ぼす全炭酸濃度影響を調査する とともに、「(3) UO₂等ウラン酸化物の表面分析等による溶解挙動の考察」において、炭酸共 存下での燃料マトリクスの溶解挙動を把握するため、In-situ ラマン等によるウラン酸化物 の表面状態の分析を試みた。「(4)使用済燃料からの核種の瞬時放出挙動に関する調査」で は、ふげん使用済燃料の大気雰囲気下での浸漬試験における溶解挙動と放出割合を調査した。

それらについての令和3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

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

(原子力機構, 2018;北村ほか, 2020)

*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 UO2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 定する場合、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として Mg を UO2ペレットに固溶させて マトリクス溶解速度評価のための浸漬試験データを取得したが、ペレット表面に残存してい た Mg0 の溶出によって溶解速度が過大に評価された可能性が示唆された。そのため、令和3 年度は、昨年度と同様に調製したペレットを、希塩酸に浸漬して表面に残存している MgO を 除去した後に浸漬試験に供して、マトリクス溶解速度を評価する。ペレット調製および洗浄 手順を2)項に、浸漬試験手順および結果の考察と溶解速度の評価について3)項に示す。



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 UO₂の溶解速度に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響における REDUPP (Evins et al., 2014) 文献値との比較(原子力機構, 2020)

2) 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と前処理

(U, ²⁶Mg) 0₂ 固溶体ペレットの調製

溶解速度試験を実施するにあたって、UO₂に固溶させるマトリクス溶解指標物質は、令和2 年度同様にマグネシウム(Mg(II))を選定した。Mgは環境中に広く多量に存在する典型元 素であり、容器や作業環境中の塵などから混入する Mg が ICP-MS 測定による ppt オーダーの 定量の障害となる。そこで、環境中から混入する Mg とペレット中から溶出する Mg を区別す るために、ISOFLEX USA 社製²⁶Mg 同位体濃縮 MgO(同位体純度 99.61 ± 0.06 %)(以下²⁶MgO) を使用し、モル分率 UO₂:MgO(²⁶MgO) = 95:5 となるように秤量し混合した。

二酸化ウラン(U0₂)粉末の調製、および(U,²⁶Mg)0₂固溶体ペレットの調製は、令和2年 度(原子力機構,2021)と同様に実施した。成形焼結したペレットの加熱前後の直径、厚さ、 重量、密度を表 3.1-3 および表 3.1-4 に示す。また、U0₂構造中に²⁶Mg が固溶していることを 確認するため、加熱後のペレットの一部を粉砕し、XRDパターン測定および U0₂構造の格子定 数の決定を行った。その XRD 測定結果を令和2年度に合成した純粋な U0₂ペレットと通常の Mg0 試薬を用いて調製した(U,Mg)0₂固溶体ペレットと比較した結果を図 3.1-6 に示す。令 和2年度に合成した純粋な U0₂ペレットの格子定数は 5.469 Åであり、通常の Mg0 試薬を固 溶させた(U,Mg)0₂固溶体ペレットの格子定数は 5.441 Åであった。U0_{2.00}格子定数の報告 値が 5.472 Åであること(Leinders, G., 2015)から、(U,²⁶Mg)0₂固溶体ペレットを調製 するための加熱では、U(IV)の酸化がほとんど進んでいないことが確認された。また、令和3 年度に調製した(U,²⁶Mg)0₂固溶体ペレットの XRDパターンは、令和2年度に調製した(U, Mg)0₂固溶体ペレットと同様であり、格子定数も 5.441 Åと一致した。

以上の結果から、本研究のペレット調製条件では、U02の酸化はほとんど進まず、U⁴⁺と比較 してイオン半径の小さな Mg²⁺が U⁴⁺と置換することで格子定数が減少しており、添加した ²⁶Mg が U02に固溶していると判断した。
試料	直径 [mm]	高さ [mm]	重量 [g]	密度 [g cm ⁻³]
No. 1	10.04	1.26	0.6990	7.01
No. 2	10.02	1.27	0.6985	6.97
No. 3	10.02	1.23	0.6966	7.18
No. 4	10.02	1.27	0.7065	7.05

表 3.1-3 (U,²⁶Mg) 0₂ 固溶体ペレットの諸元(加熱前)

表 3.1-4 (U, ²⁶Mg) 0₂ 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	8.94	1.16	0.6953	9.55
No. 2	8.92	1.17	0.6949	9.52
No. 3	8.92	1.14	0.6930	9.71
No. 4	8.93	1.16	0.7012	9.63

UO₂の理論密度:10.97 g cm⁻³



図 3.1-6 UO₂ペレット(上段)、 (U, Mg)O₂ 固溶体ペレット(中段)、および(U, ²⁶Mg)O₂ 固溶 体ペレット(下段) 粉砕試料の XRD パターン(上段、中段の XRD パターン(原子力機構,

塩酸洗浄による(U,²⁶Mg)02 固溶体ペレットからの Mg0 相の除去

令和2年度の試験結果を受け、(U,²⁶Mg) 0₂固溶体ペレット中にXRDでは検出されない微量 成分として存在するとみられるMg0相の除去を試みた。図3.1-7および図3.1-8に(U,²⁶Mg) 0₂ペレットを0.1 Mの塩酸中で30日間振とうした際の液相中のU濃度および²⁶Mg濃度の時 間変化の例を示す。試料ナンバー1~4のいずれのペレットにおいても、振とう7日から14日 程度でU濃度、²⁶Mg濃度がほぼ一定となっていることが確認されたことから、この洗浄条件 によってMg0相の除去が完了したと判断した。また、溶出したU濃度から、U溶出量は僅かで ありUO₂マトリクスへの影響は小さいと判断した。



No.1
No.2
No.3
No.4

図 3.1-7 (U,²⁶Mg) 02 固溶体ペレットの塩酸洗浄による U 濃度時間変化



[●] No.1 ● No.2 ● No.3 ● No.4

図 3.1-8 (U,²⁶Mg) 0₂ 固溶体ペレットの塩酸洗浄による²⁶Mg 濃度時間変化

3) (U,²⁶Mg)0₂ 固溶体ペレットの浸漬試験

① 試験方法

前述 2)項で調製、²⁶Mg0 相の除去を行った(U,²⁶Mg) 0₂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。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の 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 011i1a (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。

環境中から混入する Mg の影響を低減するために、実験において使用する浸漬液および pH 調製用の NaOH 溶液や HC1 溶液の容器にはすべて、下記の手順で洗浄操作を行ったフッ素樹脂 製の容器もしくは Digi チューブのみを使用した。

- 1. メルクミリポア社製エキストラン MA01 洗剤を超純水で5%に希釈した洗剤液にて、浸 漬含侵洗浄を1日以上行う。
- 2. 洗剤液を超純水で十分に洗い流す。
- 3. 富士フィルム和光純薬株式会社性電子工業用硝酸を超純水で希釈した 2.0 M 硝酸で浸 漬含侵洗浄を 3 日以上行う。
- 4. 硝酸を廃棄し、超純水で十分に洗い流す。
- 5. 風乾後、チャック付きのビニール袋に入れて保管する。

(U,²⁶Mg) 0₂ 固溶体ペレットは、浸漬に先立ち、MgO 相除去操作(0.1 M 塩酸中に振とうし ながら 30 日間浸漬)によって MgO 相を除去し、No.3 を除き塩酸溶液から取り出したペレット を超純水 30 mL の容器に投入してペレットを洗浄したうえで実験に使用した。No.3 は誤って 塩酸溶液から取り出したあと直接浸漬溶液に投入したため、そのまま浸漬開始とした。なお、 浸漬開始1 日経過後および4 日経過後は浸漬液を全量交換した。

試料	NaHCO₃ [mM]	NaCl [mM]	EPPS [mM]	Na₂S₂O₄ [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				1.58×10^{-4}	2.557×10^{-3}	1.344×10^{-4}	32
No.2	10	90	20	З	5	1.58×10^{-4}	2.556×10^{-3}	1.343×10^{-4}	32
No.3	50	50	20	5	5	1.57×10^{-4}	2.554×10^{-3}	1.342×10^{-4}	32
No.4	100	0				1.58×10^{-4}	2.561×10^{-3}	1.345×10^{-4}	32

表 3.1-5 (U, ²⁶Mg) 0₂ 固溶体ペレット浸漬試験条件

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 雰囲気の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 NaC1、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. それぞれの溶液をフッ素樹脂製容器(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, ²⁶Mg)0₂固溶体ペレットを投入して蓋をし、アルミビーズを約3L 入れ設定温度25 ℃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(Eh)を測定し、pHはNaOH水溶液およびNaC1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 pLの上澄み液をサンプリングし、孔径0.45 pm 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。

これまでの研究により、浸漬溶液に添加した試薬中の不純物や ICP-MS 測定サンプル調製時 に混入したと考えられる塵などの影響により、通常の手順では ICP-MS 測定サンプル中の Mg 濃度が 100 ppt 以下程度になるとペレットから溶出した Mg の定量が困難であることがわか った。そこで、(U, Mg)02固溶体ペレットに用いる MgO 試薬を ²⁶Mg 同位体濃縮試薬とすること でこの問題の解決を図った。天然に存在する Mg の同位体比 (NIST, 2022) と、実験に用いた ²⁶Mg 同位体濃縮試薬の Mg 同位体を表 3.1-6 に示す。通常の ICP-MS 測定では、天然の Mg にお いて存在比のもっとも大きい ²⁴Mg の測定強度から Mg 濃度を算出している。このため存在比 の小さい ²⁶Mg であれば定量下限値はおよそ 7 倍高い値となる。また、 (U, Mg)02 固溶体ペレ ット中の Mg を ²⁶Mg 同位体濃縮試薬起源とすれば、ペレットから溶出する Mg は表 3.1-6 の同 位体組成を持ち、ほぼ全量が ²⁶Mg となる。

	²⁴ Mg	²⁵ Mg	^{26}Mg
天然	0.7899	0.1000	0.1101
同位体濃縮試薬	0.0029	0.0010	$0.9961 \ (\pm \ 0.0006)$

表 3.1-6 Mgの天然存在比と試験に使用した ²⁶Mg 同位体濃縮試薬の存在比

② 結果と考察

a. (U, ²⁶Mg) 0₂ 固溶体ペレットからの U, ²⁶Mg 溶出

(U, ²⁶Mg)0₂固溶体ペレットの浸漬試験を表 3.1-5 に示した溶液条件で実施した。浸漬中の それぞれの液相の pH の時間変化を図 3.1-9 に示す。この図より、pH が 8.36 ± 0.44 の範囲 で収まり、ほとんど変化しないことが確認された。pH が 4 ~ 9.6 の領域で行われた使用済 燃料の試験においても、溶解速度は pH にほとんど依存しないことが示されており (Röllin et al., 2001)、いずれの実験においても UO₂の溶出に及ぼす pH 影響は非常に小さいと考えら れる。続いて、Eh (SHE)の変動を図 3.1-10 に示す。実験開始初期に比べて、Eh (SHE)の上昇 傾向がみられるものの、どの溶液においても浸漬中の全期間を通して-500 mV 前後であり、強 い還元環境が維持されていた。次に、炭酸イオン濃度の変動を図 3.1-11 に示す。いずれの浸 漬実験においても測定値のばらつきはみられるものの、炭酸イオン濃度が大きく低下してい るものはなく、脱ガスした炭酸はわずかであったと考えられる。また、炭酸イオン濃度の測 定値には、測定試料を希釈するための純水中に含まれている炭酸イオンが含まれている。特 に炭酸イオンを添加していない No.1 の測定値ではこの影響が大きく、浸漬試験試料に含まれ ている実際の炭酸イオン濃度は測定値よりも低いと考えられる。



図 3.1-9 各浸漬試験試料における pH の時間変化



図 3.1-10 各浸漬試験試料における液相の Eh の時間変化



図 3.1-11 各試料における液相の炭酸イオン濃度の時間変化

次に ICP-MS 測定結果を示す。U の溶出挙動を図 3.1-12 に示す。浸漬開始1日経過後、4 日経過後に溶液を全量交換しているため、バッチ試験のU 濃度を示しているのは経過日数7 日以降のデータである。この図から、浸漬開始7日経過後までにUの溶出が進むものの溶出 量は顕著ではなく、炭酸イオン共存下においても、U がペレットから一様に溶けだしていく のではなく、10⁻¹¹~10⁻⁸ M の範囲で、見かけの平衡状態に近づいていく傾向が見られた。 No.3のU 濃度が浸漬開始1日経過後において大きくなっているのは、0.1 M 塩酸浸漬後に、 ペレットを超純水で洗浄せず浸漬溶液に投入してしまったため、高濃度のU が含まれる塩酸 がわずかに混入してしまったためだと考えられる。続いて、測定したサンプル中の²⁶Mg、 ²⁴Mg 濃度を図 3.1-13、図 3.1-14 に示す。この ICP-MS 測定では、緩衝剤 EPPS に起因すると 考えられる CN(¹²C+¹⁴N)による、²⁶Mg 強度測定結果への干渉影響を低減させるため、MR(中 分解能測定)の結果を用いている。²⁴Mg は(U, ²⁶Mg) 0₂ 固溶体ペレットにごくわずかにしか 含まれていないため、ほとんど全量が環境中の塵などのバックグラウンド由来の Mg と解釈 される。表 3.1-6 に示した天然の Mg の同位体比を踏まえると、サンプル中の²⁶Mg は、 (U, ²⁶Mg) 0₂ 固溶体ペレット由来の²⁶Mg と、バックグラウンド由来の²⁶Mg が混在しているこ

とから、単純な濃度変化からUO2マトリクスの溶解傾向を直接読み取ることは出来ない。



図 3.1-12 各試料における液相の U 濃度の対数値の時間変化



図 3.1-13 各試料における液相の²⁶Mg 濃度の時間変化



図 3.1-14 各試料における液相の²⁴Mg 濃度の時間変化

b. ²⁶Mgの溶出挙動の評価

(U, ²⁶Mg)0₂ペレットから溶出する Mg の同位体比は ²⁶Mg 同位体濃縮試薬の同位体比とな り、環境中の塵などのバックグラウンド由来の Mg の同位体比は天然の同位体存在比になる と考えられる(表 3.1-6)。そこで、ICP-MS 測定により測定した ²⁴Mg, ²⁶Mg 濃度と、表 3.1-6に示したそれらの存在比の4つの既知量から得られる以下の4式を解くことで、サンプル 中の ²⁶Mg のうち、ペレットから溶出した ²⁶Mg 量を算出した。

> [²⁴Mg_(p)] + [²⁴Mg_(BG)] = [²⁴Mg_(T)] ······ 式 3. 1-1 [²⁶Mg_(p)] + [²⁶Mg_(BG)] = [²⁶Mg_(T)] ····· 式 3. 1-2 ^[²⁴Mg_(p)] = 0.002911 ····· 式 3. 1-3 ^[²⁴Mg_(BG)] = 7.174 ····· 式 3. 1-4
> [²⁴Mg_(BG)] : ペレットから溶出した²⁴Mg量
> [²⁴Mg_(BG)] : バックグラウンドから混入した²⁴Mg量
> [²⁴Mg_(T)] : ICP - MS 測定で測定されたサンプル中²⁴Mgの総量
> [²⁶Mg_(BG)] : バックグラウンドから混入した²⁶Mg量
> [²⁶Mg_(BG)] : バックグラウンドから混入した²⁶Mg量
> [²⁶Mg_(BG)] : バックグラウンドから混入した²⁶Mg量

図 3.1-15 に(U, ²⁶Mg) 0₂ 固溶体ペレットから溶出した ²⁶Mg の時間変化を、図 3.1-16 に バックグラウンド由来の ²⁶Mg の時間変化を示す。ペレットから溶出した ²⁶Mg 濃度には炭酸 イオン濃度に依存した増加傾向が見られた。もしペレット表面に ²⁶Mg0 が残存していた場 合、ペレットから溶出した²⁶Mg は炭酸イオン濃度に依存しないと思われるため、図 3.1-15 に示した²⁶Mg は炭酸イオンの影響により溶出が促進される(U,²⁶Mg)0₂固溶体ペレットの UO₂マトリクスに固溶していた²⁶Mg が、その溶解と調和的に溶出したものであると考えられ る。一方で、バックグラウンド由来の²⁶Mg には、炭酸イオン濃度や浸漬時間に対して特に依 存性は確認されなかった。



図 3.1-15 (U, ²⁶Mg) 0₂ 固溶体ペレットからの ²⁶Mg 溶出濃度の時間変化



図 3.1-16 バックグラウンド由来の²⁶Mg 濃度の時間変化

c. UO2マトリクス溶解速度の評価

図 3.1-15 に示した、ペレットから溶出した²⁶Mgのデータは、本試験において、UO₂の溶解 に及ぼした炭酸イオンの影響を、Uの再沈殿影響を受けることなく可視化したものであると 考えられる。よって、この結果から UO₂マトリクス溶解速度の推定を行うこととした。本試験 で使用した(U,²⁶Mg)O₂ペレットの幾何学的形状は、実際の使用済燃料とは異なるため、ペレ ットの溶解速度と使用済燃料の UO₂ マトリクスの溶解速度を直接比較することは出来ない。 そこで、以下の式 3.1-5 で表される、表面積で規格化したマトリクス溶解速度 DR に換算して 結果の比較を試みる。本評価では、ペレットの幾何学表面積の値を用いて、DR の換算を行っ た。

$$DR\left(\frac{mg}{m^2 \cdot d}\right) = \frac{C \cdot V \cdot M \cdot 10^3}{A \cdot t} \quad \cdots \quad \cdots \quad \overrightarrow{x} 3. 1-5$$

- C: 溶解した U 濃度 (mol L⁻¹)
- V:溶液体積(L)
- M: ²³⁸U 質量数
- A:幾何学的表面積 (m²)
- *t*: 浸漬時間 (day)

図 3.1-15 に示した、(U, ²⁶Mg) 0₂ 固溶体ペレットから溶出した ²⁶Mg 濃度をそれぞれのペレ ットに含まれる ²⁶Mg 量で除した ²⁶Mg の溶出割合を溶出率と定義し、図 3.1-17 に示す。熱力 学計算から、一度溶出した Mg が沈殿を形成することは考えづらく、また、測定上バックグラ ウンドからの混入も無視できないため、浸漬開始 54 日から 84 日にかけて ²⁶Mg 濃度が減少し たのでなく、浸漬開始 54 日のデータは測定時の擾乱による外れ値と判断し、図 3.1-17 から 浸漬開始 54 日経過後のデータは除外した。ペレットの UO₂マトリクス溶解速度が ²⁶Mg のペレ ットからの溶出速度と等しいことを仮定し、浸漬開始 11 日から 124 日までの ²⁶Mg の溶出率 のプロットの線形近似式から 1 日当たりの ²⁶Mg 溶出率を求め、それをそれぞれのペレットの 幾何学的表面積で除することで、DR を導出した。本試験に供したペレットは、30 日間の表面 洗浄を実施しており、ペレット調製時に部分的に酸化された成分等が、浸漬初期に溶出する ことによる影響は浸漬開始 11 日までにある程度落ち着いていると考えられ、時間変化の傾向 から 11 日以降のデータを 1 次式で近似するのが適切だと判断した。

 $D_{U}(d^{-1})$: ペレットからの1日当たりのU溶出率(d^{-1}) $D_{^{26}Mg}(d^{-1})$: ペレットからの1日当たりの ^{26}Mg 溶出率(d^{-1}) m_{U} : ペレット中に含まれるU量(mg) A: ペレット幾何学的表面積(m^{2})



図 3.1-17 (U, ²⁶Mg) 02ペレットからの ²⁶Mg 溶出率の時間変化

図 3.1-18 に導出した DR と炭酸濃度の関係を、図 3.1-19 にそれを先行研究における UO₂マ トリクス溶解速度を DR に換算したものと比較した結果を示す。図 3.1-18 中の赤の点線は炭 酸イオン濃度に対する DR の線形近似式であるが、炭酸イオン濃度測定時の希釈水中の炭酸イ オンの影響等により、評価が適切に出来ていないと思われる、NaHCO₃ 未添加のプロットを除 いている。図中に示した誤差棒は、1 日当たりの ²⁶Mg 溶出率を求める際に用いた線形近似式 の誤差を考慮したものである。この結果から、平成 31 年度(原子力機構, 2020)同様に、還 元条件下での UO₂溶解速度の炭酸濃度依存性が確認された。また、図 3.1-19 中で、本研究の プロットよりも上に位置するデータ群は、主に大気雰囲気または不活性雰囲気で取得された データである。下に位置するデータ群は主に還元条件(不活性雰囲気において還元剤を投入 し、酸化還元電位を-0.2 V 以下とした条件)によって取得されたデータであり、本研究同様 に還元条件下で取得されたデータは下記の 3 データである。

- ① "moroi, -0.5 V, 49 d" (原子力機構, 2020)
- ② "Cachoir et al. (2005) (Eh < -0.16 V)" (Cachoir et al., 2005)
- (3) " REDUPP (no U-233) (Eh < -0.3 V)"
 - " REDUPP (5 % U-233) (Eh < -0.3 V)"
 - " REDUPP (10 % U-233) (Eh < -0.3 V)" (Evins et al., 2014)

このうち①および②の研究では、本来考慮すべき U の再析出影響を考慮していないため、 本研究よりも DR が小さくなったと考えられる。一方③の研究では、同位体希釈法を用いて還 元条件下における U の再析出影響を回避しつつ、溶解速度を評価することを試みた研究であ る。この研究では、UO₂ 固相とは異なる²³⁸U/²³⁵U 比の U をイオン種として液相に添加し、UO₂ 固 相から U が溶出するにつれて変化していく液相中の U の ²³⁸U/²³⁵U 比から、U の溶出量を計算 する方法を用いて DR を算出している。同様に同位体比を用いて U の再析出影響を回避するこ とを試みた③の研究と、本評価との DR の差異の要因として考えられるのは、幾何学的表面積 の評価手法の違いである。③の研究においては、U0₂ 固相に破片状の U0₂(fragment)を用いて おり、この破片全てを一辺の長さが 3 mm 密度 10 g cm⁻³の立方体状の均一な粒子と仮定し幾 何学的表面積を見積もっている(Evins et al., 2014)。このような仮定をした根拠は不明 であるが、幾何学的表面積の実測定は行われておらず、幾何学的表面積を過大評価している 可能性が高い。一方で本評価では、精密なデジタルノギスで測定したペレットの高さ、直径 から算出した幾何学的表面積を用いている。この方法では、ペレット表面の微細なクラック などを評価できないため、表面積を過小評価している可能性があり、溶解速度の最大値的な 評価になると考えられる。これらのどちらか、あるいはその両方によって、本評価と REDUPP の DR に差が生じていると考えられた。

本評価におけるマトリクス溶解速度 DR は、Uの再析出影響を回避したこと、表面積にペレ ットの幾何学的表面積を用いたこと、浸漬期間が最大 124 日間であること等によって、直接 処分第 1 次取りまとめにおける長期溶解速度設定値から導出した DR (図 3.1-19 中青線)と 比較して、2 桁程大きな値が導出された。今後、本手法による UO₂マトリクス溶解速度を長期 溶解速度設定値として適用するために、令和 4 年度は、令和 3 年度に n=1 で取得した試験デ ータの信頼性の検証や、試料表面積の評価手法の違いによる溶解速度の違いについて考察す るために、ペレットの上面のみを露出させた浸漬試験等によるマトリクス溶解速度を導出す ることで、より妥当なマトリクス溶解速度の評価を試みる。また、より処分の実環境に近い 条件(浸漬期間、温度、Eh、H₂O₂濃度)のデータ取得を進め、より現実に即した燃料溶解速度 の評価と長期溶解速度として妥当な設定値の提示に向けた、溶液条件の影響幅の把握を進め ていく必要がある。



図 3.1-18 DR に及ぼす炭酸イオン濃度の影響



 $\log([HCO_3^{-}] + [CO_3^{2-}])$

図 3.1-19 DR の先行研究との比較結果

(3) UO2等ウラン酸化物の表面分析などによる溶解挙動の考察

1) はじめに

使用済燃料の溶解過程では、燃料表面でのウランの溶出と再沈殿が並行して進む可能性が あるため、これらの反応機構を把握し、どういった条件下でどのような反応が生じるかを整 理して、燃料からのウランの溶解速度をより適切に評価することが必要である。これらの反応は燃料表面の化学状態を変化させると考えられることから、表面の状態を分析することにより、これらの反応の痕跡を検知できる可能性がある。表面分析により反応機構を検証し、溶出挙動や再沈殿反応の有無について整理することができれば、UO₂試料からの核種の溶出速度を燃料溶解速度の評価に反映させるための科学的な根拠を得ることができる。そこで、UO₂表面の状態分析に実績のあるラマン分光法を適用して(Ho Mer Lin et al., 2014; Magnin et al., 2015; Maier et al., 2020)、ウラン酸化物の表面分析などの試験を実施し、ウランの溶出と再沈殿の反応過程を調査した。

令和2年度に実施した表面分析試験では、乾式の高温H2還元で調製したU02試料の母材と、 溶解・再沈殿を経て生成する UO2 とを峻別するため、浸漬試験により U308 表面に再沈殿する U02のラマンスペクトルの測定を試みた。再沈殿による U02のスペクトルを明確にできれば、 浸漬試験などに供した試料をラマン分光により分析することで、再沈殿反応の有無を判別す ることが可能になる。しかし、再沈殿を示す有意なデータの取得には至らず、還元雰囲気の 維持に課題を残す結果となった。そこで、令和3年度では、再沈殿UO2のラマンスペクトルを 取得するための実験手法を再検討し、ウラニル塩水溶液の電解還元により再沈殿 UO2 を調製 することとし、「2)電解還元析出物のラマン分析」を実施した。また、還元雰囲気で長期浸 漬に供した UO2ペレットの表面状態分析を令和 2 年度に実施した結果、欠陥に起因するラマ ンバンドの解析から、再沈殿だけではなくウランの溶出によるラマンスペクトルの変化が生 じる可能性が示唆された。溶出によるスペクトルの変化を明確にできれば、溶液分析の結果 が再沈殿に影響される場合にも、ウランの溶出反応を表面分析で検知することが可能になる。 そこで、ウランの溶出がラマンスペクトルに与える影響を調べるため、「3)U02溶解時の insitu ラマン分析試験」を実施し、溶解が進む UO2ペレット表面の状態をその場測定した。こ れらの試験実施に加えて、文献調査により「4) ラマンスペクトルデータの拡充」を行い、UO2 表面の変質相として生じる可能性の考えられるウラン合物を中心に 39 種類のラマンスペク トルデータを収集した。また、アルカリ性条件で生成する可能性の高い重ウラン酸ナトリウ ムについては、ラマンスペクトルを実測した。

以降では、項目 2) および 3) について、それぞれ試験方法と結果を述べる。「4) ラマン スペクトルデータの拡充」については、概要を記述し、取集データおよび文献については付 録1とした。

2) 電解還元析出物のラマン分析

試験方法

再沈殿 UO₂のラマンスペクトルを取得するため、ウラニル塩水溶液の電解還元試験を行った。試験に用いた溶液は過塩素酸ウラニルの水溶液である。試料溶液には支持電解質として 過塩素酸ナトリウムを加え、pH 調製は過塩素酸と水酸化ナトリウムの添加により行った。電 解還元試験はウラニルイオンの溶解度が高く、電解還元反応に有利な pH 2 の条件と、再沈殿 UO₂の電極への集積に有利な pH 4 の条件で、それぞれ実施した。図 3.1-20 に試験条件と試験 に用いた電解還元セルを示した。図 3.1-20 の電解還元セルには金製の作用極と白金線の対極 が取り付けてあり、BAS 社製の電気化学アナライザーALS Model 730C に接続して定電位電解 を行った。また、作用極上に生成した析出物をそのまま分光分析するために光学窓が取り付けてある。これを用いて電解還元によって析出する UO₂を溶液中に保持したまま、ラマンスペクトルの測定を試みた。また pH 2 の条件では、黒色の粒子状析出物が見られたことから、これを捕集し、ラマン分析を行った。加えて、析出物の元素組成を確認するため、SEM-EDX 分析を行った。そのため、導電性カーボンテープを貼付した SEM 観察用の試料台に、捕集した析出物を懸濁液として滴下し、風乾させて粒子状析出物をカーボンテープに固定し、分析を行った。

ラマン分光測定には、令和2年度試験と同様に、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 のレーザー光(0.5 mW)を用いている。顕微光学系は倍率100 までの対物レンズを備えているが、電解還元セル光学窓越しに観察する際には、焦点距離を 長く取る必要があるため、倍率5の対物レンズを使用した。SEM-EDX分析には日本分光製 JCM-7000を用いて、二次電子像の観察と EDX による元素マッピングを行った。



図 3.1-20 電解還元試験の条件(左)と電解還元セル(右)

2 結果と考察

電解還元析出試験では、pH 2 および pH 4 の条件で、それぞれ試験を実施した結果、還元析 出物のラマン活性は小さく、有意に観測されないことが明らかになった。

pH 2 の条件での試験では図 3.1-21 のように黒色の析出物が生成したことを目視で確認したが、溶液中に分散した微粒子状であり、電極から遊離した状態であった。この黒色微粒子のラマン分光分析を試みたが、溶液中に分散した微粒子に焦点を合わせて測定することは困難であった。



図 3.1-21 過塩素酸ウラニル溶液の電解還元で析出した黒色微粒子(pH2 の条件)

pH 4 の条件においては、電解還元によるラマンスペクトルの変化は観測されず、目視による微粒子の生成も認められなかった。図 3.1-22 には pH 4 の条件で電解還元操作の前後で測定したラマンスペクトルを示す。作用極表面のスペクトルには、ラマンシフト 500 cm⁻¹以下の領域に強い信号があるため、U02のT2gバンド位置(440 - 450 cm⁻¹)の分析は困難であった。ラマンシフト 930 cm⁻¹のピークは、電解還元操作の前後で強度が増しているように見えるが、これは溶液に支持電解質として加えた過塩素酸イオンのラマンバンドである。pH 4 ではウラニルイオンの溶解度に制限があるため、1.0 ×10⁻² mol dm⁻³の溶液を用いたが、この溶液条件では電解還元反応の進行が遅く、図 3.1-20 に示したように、電極反応の電気量は pH 2 の条件に比べて 1/40 程度であった。そのため、分析に用いた顕微ラマン分光装置の分解能は垂直方向に約 1.5 μ m であり、測定に十分な厚さの還元析出物還元量が得られなかったと考えられる。



図 3.1-22 pH4 における電解還元前後の作用極表面のラマンスペクトル(左)と 顕微鏡像(右)

そこで、pH 2 の条件で電解還元による析出物を捕集し、ラマン分析を行った。結果を図 3.1-23 に示す。ラマンスペクトルには、試料の固定に用いたカーボンテープの信号(分析点 1) と電解操作時に支持電解質として加えた過塩素酸ナトリウムの信号(分析点 4)が観測された が、それ以外には還元析出物に帰属できるピークは検出されなかった。また得られたスペク トルから、顕微鏡像で観察された樹状組織は、析出した過塩素酸ナトリウムであった。そこ で、ウランを含有する析出物がラマン分析を行った範囲に入っていない可能性も考えられる ため、これを検証するために同一試料の SEM-EDX 分析を行った。結果を図 3.1-24 に示す。過 塩素酸ナトリウムの樹状組織を利用して、分析位置を特定し、ラマン分析と同一の範囲を分 析した。その結果、過塩素酸ナトリウムの下に固体ウランの堆積層が形成されていることが 分かった。この固体ウランの層は電解還元による生成物であることから、再沈殿 UO₂と考えら れる。この結果から、図 3.1-23 に示したラマン分析結果のうち、分析点 2 および 3 は再沈殿 UO₂を捉えており、そのスペクトルに UO₂に帰属できるピークが検出されなかったことから、 本試験条件において再沈殿する UO₂ はラマン活性が低く、明瞭な信号を与えないことが明ら かになった。











以上の結果を踏まえると、UO2の再沈殿によりラマン分析に有意な影響を与え得る厚さを持った変質相が形成されていた場合、母材 UO2はその下に隠れる形となり、そのラマンスペクト

ルは減弱するはずであるが、令和2年度に報告した長期浸漬UO₂ペレットの表面ラマンスペクトルでは、そのような傾向は観測されず、母材のUO₂のスペクトルが明瞭に観測されていたことから、再沈殿UO₂は生じていたとしても微量であったと考えられる。そのため、UO₂表面のラマン分析のみにより再沈殿過程を検証することは困難であると考えられる。

一方で、SEM により高倍率で還元析出物を観察したところ、析出物は粒径 1 μm 以下の非 常に微細な粒子となっており、その堆積物は脆く多くの割れが観測された。これは、高温焼 成により調製した UO₂ ペレットとは大きく異なる組織であり、還元条件での浸漬試験で生じ る微量の再沈殿 UO₂ を電子顕微鏡による観察から判別できる可能性があると考えられる。た だし、本試験での電解析出物の調整は既報に従い酸性条件で行ったため(Ouchi et al., 2017)、 処分環境で想定されるアルカリ性炭酸溶存条件とは析出物の形状や組織が異なることが想定 される。そのため今後の課題としては、SEM 像観察による再沈殿過程の検証について検討する ために、地下水模擬条件における再沈殿 UO₂ の形状や凝集組織に関するデータの取得が挙げ られる。

3) 溶解反応過程における UO2 表面状態の In-situ ラマン分析

① 試験方法

U02の表面状態に対してウランの溶解が与える影響を調べるため、溶解のみが進む条件において、U02表面のラマンスペクトルをその場観測する In-situ ラマン分析試験を行った。U02ペレット試料を光学窓の付いた反応セル内で炭酸塩水溶液と接触させ、溶液中のペレット表面のラマンスペクトルを取得した。

試験に用いた UO₂ ペレット試料は本事業の一環として進めている東北大との共同研究で合成したものである。ペレットの作成では、UO₂粉末 700 mg を計り取り、圧縮成型後に Ar +10% H₂ 雰囲気下で加熱処理を行った。加熱処理では 1700 ℃まで 4 時間で昇温し、さらに 4 時間 1700 ℃で保持し、続いて 600 ℃まで 3.5 時間で降温し、その後室温まで放冷した。この加熱処理で作成した UO₂ペレットの XRD による確認結果を図 3.1-25 に示す。



図 3.1-25 UO2ペレット試料の XRD 測定結果および作成条件

In-situ ラマン分析測定時の溶液条件と試験体系を図 3.1-26 に示す。還元雰囲気下の溶液 中での U0²の再沈殿が生じる場合においても、高炭酸濃度条件での溶解は炭酸ウラニル錯体 の形成によるものと想定され、溶解反応は表面ウランが6価に酸化されることで誘起され、 再沈殿反応は溶液中のウランが還元されることで生じると考えられることから、ウランの溶 解を促進し、再沈殿を生じさせないために、炭酸塩(NaHCO₃)水溶液には酸化剤として過酸化 水素(H₂O₂)を添加し、溶解したウランが溶液中に蓄積しないようにプランジャーポンプによ る連続送液を行った。ラマン分光測定に用いた装置は、「2)電解還元析出物のラマン分析」 と同一であり、本試験でも光学窓越しに溶液中の試料を測定するため、焦点距離の長い倍率 5の対物レンズを使用した。試験ではUO2ペレットを装荷した反応セルに、まずH2O2を含まな い NaHCO₃水溶液を充填し、分析位置の調整と顕微鏡の焦点合わせを行い、一度ラマンスペク トルを測定した。その後、反応セルに接続したポンプより、所定濃度の H₂O₂を含む NaHCO₃溶 液を送液し、送液を維持した状態で、定期的にラマンスペクトルを測定した。送液速度は開 始から 20 分間は 2.0 ml min⁻¹として、反応セル内(容積約 20 ml)の溶液を置換し、その後 は液の流動による擾乱を低減するため、流速を 0.5 ml min⁻¹に変更してラマンスペクトルを 測定した。ラマンスペクトルの測定は送液開始から約 2 時間、分析位置を変更せずに繰り返 し行った。また、反応セルを通過した溶液を回収し、誘導結合プラズマ発光分光法により分 析し、溶出ウラン濃度を定量した。回収液の分析には PerkinElmer 製 Avio 200 を用いた。



|溶液は30分程度Arで脱気し、試験中Ar雰囲気を維持 *溶液調製時のH₂O₂設定濃度、他は測定値

図 3.1-26 In-situ ラマン分析時の溶液条件と試験装置の模式図

2 結果と考察

ウランの溶出のみが進む条件での UO₂表面の変化に着目して、UO₂ペレットを NaHCO₃-H₂O₂水 溶液の液中に保持した状態でラマン分光分析を行った。観測されたラマンスペクトルの 1 例 を図 3.1-27 に示す。UO₂ペレット表面のラマンスペクトルには、H₂O₂を含む水溶液との接触 の前後で有意な変化は観測されなかった。試験を行った溶液条件の範囲(図 3.1-26)では、 いずれの条件においても同様の結果であり、有意なラマンスペクトルの変化は検出されなか った。図 3.1-27 には UO₂に帰属できないピークがラマンシフト 490 cm⁻¹に観測されているが、 UO₂ペレット表面から 5 mm 上方に焦点位置をずらして液中のラマンスペクトルを測定した結 果、同一のピークが観測されたことから、この信号は UO₂表面の化学状態を反映したものでは なく、HCO3⁻等の溶液中の化学種によるものであると考えられる。



図 3.1-27 In-situ 分析で観測された UO₂ペレット表面のラマンスペクトル (NaHCO₃:1.0 ×10⁻² mol dm⁻³ H₂O₂:1.0 ×10⁻² mol dm⁻³)

また、反応セルを通過後の回収液の分析では、 H_2O_2 濃度 1.0 ×10⁻² mol dm⁻³の条件で2 × 10⁻⁶ mol dm⁻³程度の有意なウランの溶出が観測された。それ以外の試験条件では、ウラン濃度の測定結果は 10⁻⁷ ~ 10⁻⁸ mol dm⁻³と低濃度であり、定量下限と同等程度であった。 H_2O_2 濃度 1.0 ×10⁻² mol dm⁻³の条件では、ウランの溶出が有意に観測されていることから、図 3.1-27 に示した結果は溶出反応が進行している状況で、その場測定されたラマンスペクトルである。したがって、この結果から、表面ウランの溶出はラマンスペクトルに有意な変化を与えないことが分かった。

以上を踏まえると、令和2年度に報告した長期浸漬U02表面のラマンスペクトルで観測さ れた、炭酸濃度に依存した欠陥バンドの変化を、ウランの溶出の影響と考えることは難しい。 これに加えて、2) 電解還元析出物のラマン分析の結果を踏まえると、U02の再沈殿が反映さ れたものとも考えにくい。そのため、消去法的な考察ではあるが、U02の酸化状態の変化がラ マンスペクトルに反映されたもの(Elorrieta et al., 2016)と推定される。したがって、 還元条件ではあっても、長期の浸漬試験においては、母材U02が表面から一定程度の深さまで 酸化されたものと考えられる。なお、本試験では非常に酸化的な条件設定において、短時間 の処理で表面の酸化とウランの溶出を行っているため、最表面のみが反応に関与し、酸化反 応が深さ方向に進展せず、ラマンスペクトルの変化が顕著でなかったものと考えられる。

3-26

4) ラマンスペクトルデータの拡充

ラマンスペクトルの参照データについて、文献調査を実施し、39種のウラン化合物について ラマンデータを収集した。収集したデータは付録1にまとめた。さらに、重ウラン酸ナトリ ウムについては、本事業の一環として進めている共同研究として東北大より試料提供を受け、 ラマンスペクトルを実測した。測定結果を図3.1-28に示す。測定に用いた装置は2)項およ び3)項の試験と同じ日本分光製NRS-4500であり、分析光源は532 nmのレーザーである。



図 3.1-28 重ウラン酸ナトリウムのラマンスペクトル

重ウラン酸ナトリウムのスペクトルは、ラマンシフト 780 cm⁻¹付近に最も信号強度の強い ピークが観測された。このピークはウラニル化合物に特徴的なラマンバンドであり、UO₂のス ペクトルとは大きく異なるスペクトル形状である。このため、ウラニル化合物が生成し、試 料表面に固体として蓄積する場合には、ラマンスペクトルの測定により、その反応を検出で きると考えられる。「2)電解還元析出物のラマン分析」の考察で述べた SEM 像観察による再 沈殿 UO₂の検出では、化学状態に関する情報が得られないため、UO₂表面に固体のウラニル化 合物が生成した場合には、再沈殿 UO₂と誤認する可能性がある。そのため、溶解過程の反応機 構を把握するためには、本項で取集したラマンスペクトルデータを活用して、SEM による組織 観察とラマン分光を組み合わせた表面分析を行うことが有効であると期待する。これらの手 法を組み合わせた表面分析の有効性を実験で確認し、マトリクス溶解速度評価に用いた UO₂ペ レットに適用することで、浸漬試験における酸化状態の変化と析出物の有無を峻別し、マト リクス溶解速度評価手法の妥当性を溶解挙動の理解から支持することは、今後の課題である。

(4) 使用済燃料からの核種の瞬時放出挙動に関する調査

1) はじめに

先行事業(平成25年度~平成27年度)開始前には、わが国での直接処分の性能評価を目 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)などの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 ることが理想的である。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 に還元雰囲気の空間を構築することなどが容易ではないことから、まずは既存の試験設備を 用い、特性が明らかになっている使用済燃料を用いて大気雰囲気での浸漬試験を実施し、大 気雰囲気での試験手順や操作等を確立するとともに、参考となるデータとして、溶出核種の 濃度の時間変化に係るデータを取得することとした。平成 31 年度は、試験で使用する使用済 燃料として、照射中のふるまいが 8×8 型 BWR 燃料と類似している新型転換炉 (Adavenced Thermal Reactor: ATR) 原型炉「ふげん」の使用済燃料の中から、照射後試験により、FP ガ ス放出率、燃料ピン内における放射性核種の分布、燃料ペレット内における元素分布等の情 報が既に明らかとなっている燃料集合体 E09 を選定するとともに、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、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、モックアップ試験を通じて部材の改良を実施するとともに、燃料試料周辺に おける水の放射線分解に着目したセル内の空間線量率を測定したした上で、大気雰囲気での 使用済燃料の浸漬試験に着手した。令和3年度は、「2)実燃料を使用した浸漬試験」におい て、令和 2 年度に開始した浸漬試験の核種溶出データの継続取得に加えて、試験終了後のサ ンプルを全溶解させ、浸漬試験における初期インベントリを評価することで、核種ごとの浸 漬試験における溶出割合の導出を試みた。また、使用済燃料の燃焼度が IRF に及ぼす影響を 議論するために、令和2年度とは燃焼度の異なる使用済燃料を用いた浸漬試験を開始した。

「3)瞬時放出率、長期溶解速度に関する最新動向調査」では、欧州共同体(EU)の国際共同 研究(「DisCo」プロジェクト)に関する報告書から抽出した文献を調査した。使用済燃料か らの放射性核種の瞬時放出率(IRF)や、使用済燃料の長期溶解速度を評価する上では、実際 の使用済燃料(以下、実燃料)を使用した試験により得られるデータは重要である。しかし ながら、実燃料を使用した浸漬試験は、報告例が非常に限られている。また、燃料特性の多 様性も考慮して評価を行う必要がある。本調査では、実燃料を使用した浸漬試験について最

3-28

新の動向を調査し、瞬時放出率や長期溶解速度の設定に資する情報を整理した。

「DisCo」プロジェクトでは、使用済燃料の浸漬試験の結果などがそのレポートにより公開 されている。そのため、「DisCo」プロジェクトより得られる最新動向は、わが国の直接処分 における使用済燃料からの放射性核種の瞬時放出率や使用済燃料の長期溶解速度を設定する 上で、非常に有用である可能性がある。

2) 実燃料を使用した浸漬試験

① 試験方法

浸漬試験(令和2年度分、令和3年度分)に係る試験方法と、雰囲気制御下における浸漬 試験に向けた予備試験の方法を示す。

令和2年度より開始している浸漬試験においては、浸漬試験のための試料として、「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 仕様および照射条件を表3.1-7に示す。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5mm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。

令和3年度より開始した浸漬試験においては、ペレット燃焼度の影響に着目する。浸漬試料として、令和2年度と同じ燃料集合体 E09の外層に装荷された燃焼度のより小さい燃料ピンの、ピン上部から2試料を採取した。いずれもペレット端部を含まない試料である。

	ペレット		被覆管		照射条件			
	Pu 富化度	外径	材質	外径	燃焼度	最高	FP ガス	
						線出力	放出率	
	[wt%]	[mm]		[mm]	$[GW d t^{-1}]$	$[kW m^{-1}]$	[%]	
令和2年	2.59	12.4	Zry-2	14.5	47	42.0	約 19	
度試験			(Zr ライナ付)					
令和3年	3.01	12.4	Zry-2	14.5	41	41.9	約 19	
度試験			(Zr ライナ付)					

表 3.1-7 浸漬試験に供する試料の仕様、照射条件

令和2年度分の浸漬試験として、ガラス(パイレックス)製の容器4つに、白金製の籠と ともに実燃料を1つずつ入れた後、20 mM NaClまたは20 mM NaHCO₃(100 mL)を加え、常温 での浸漬を開始している。浸漬試験中の様子を図3.1-29に示す。それぞれの試料の諸元を表 3.1-8に示す。浸漬開始後、1、3、7、15、31、59、90、150、231 日後に溶液を3 mL ずつ採 取し、液性およびバルク溶液中の酸化還元雰囲気を把握するために pH とUマトリクスや白色 金属相の酸化溶解に影響を及ぼす可能性のある H₂O₂ 濃度を測定した。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 測定を実施した。

試料名称	ペレット	試料長	試料重量	浸漬溶液
	端部	[mm]	[g]	種類
試料1	あり	5.3	7.29	NaC1
試料 2	なし	5.0	7.82	NaC1
試料 3	あり	5.6	8.70	NaHCO ₃
試料 4	なし	5.6	7.86	NaHCO ₃

表 3.1-8 浸漬試験のために採取した試料の諸元



図 3.1-29 浸漬試験実施中の様子

浸漬試験終了後、ガラス製容器から、浸漬溶液、白金製の籠、実燃料を取り出した。ガラス 製容器の内壁および白金製の籠に付着/析出した核種を定量するため、ガラス製容器4つに対 応する白金製の籠を戻した後、既往研究(Koyama et al., 2003)と同じように、洗浄液とし て2 M HNO₃(100 mL)を加えて、常温で48 時間静置した。その後、洗浄液の一部を分取し て、ICP-MS 測定を実施し、洗浄液中核種濃度を評価した。

また、実燃料に残存する核種を定量するため、HNO₃による溶解を行った(Koyama et al., 2003)。実燃料をガラス(パイレックス)製の溶解用フラスコ4つに、実燃料を1つずつ入れた後、8 M HNO₃ (30 mL)を添加した後、100 ℃で6 時間加熱した。放冷後、各フラスコから溶け残った被覆管を取出し、conc. HF を1 滴添加した後、再び100 ℃で6 時間加熱した。 放冷後、フラスコにイオン交換水を添加して、50 mL になるよう希釈した。得られた溶解液一部を分取して、ICP-MS 測定を実施し、溶解液中核種濃度を評価した。

令和2年度開始浸漬試験のうち試料4に限りC-14およびC1-36の分析を行った。C-14は、 実燃料溶解時に揮発すると予想されたため、溶解用フラスコの上部の雰囲気を空気フロー(1 L h⁻¹)により追い出しつつ、その後段にトラップを設置することで、C-14の回収を試みた。 既往研究(Momotov et al., 2021)を参考にして、硝酸の凝縮液を捕捉するための空トラッ プ1本と、その後段に C-14 を含む CO₂ガスを捕捉するための1 M NaOH (30 mL)入りトラップ 2 本を直列に接続した。溶解用フラスコとトラップを接続した際の様子を図 3.1-30 に示す。 これらの NaOH 入りの2本のトラップ内のそれぞれの NaOH 溶液(①②)に、③浸漬溶液(230 日経過後)と④実燃料溶解液を加えた計4試料から、それぞれその一部を分取し、C-14 およ び C1-36 の分析を行った。



図 3.1-30 実燃料(試料 4)溶解時の様子

令和3年度に開始した燃焼度の異なるペレットに対する浸漬試験においても、令和2年度 と同じ試験体系で、すなわち、ガラス(パイレックス)製の容器2つに、白金製の籠ととも 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、常温での 浸漬を開始している。浸漬開始後、1、3、7、15、31、59、90、150、231 日後を目安に溶液を 3 mL ずつ採取して、pH と H₂O₂ 濃度を測定し、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 測定を実施する予定である。令和3年 度に開始の試験については、令和4年度に測定データを取得していく。

また令和4年度に開始予定の雰囲気制御下における浸漬試験を実現するための予備的な試 験を実施した。窒素雰囲気下、または、還元剤(亜次チオン酸ナトリウム、Na₂S₂O₄)共存下に おける20 mM NaHCO₃のEhを、ORP 電極を用いて測定した。窒素雰囲気下の試験では、100 mL の容器に、50mL ほどの20 mM NaHCO₃溶液を添加し、窒素バブリングや、窒素置換後に、7時 間ほど静置した際のEhの変動を測定した。空気雰囲気では、Na₂S₂O₄濃度を0、1、5 mM に変 化させ、5日間ほど静置した際のEhの変動を測定した。

2 結果と考察

浸漬試験(令和2年度開始分)の結果と、雰囲気制御下における浸漬試験に向けた予備試験の結果を記載する。

令和2年度開始浸漬試験における pH および H₂O₂濃度の時間変化を図3.1-31 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、NaC1 溶液では時間経過に伴い低下し、 最終的に pH 5.5付近で一定の値に安定する傾向が確認された。大気中に含まれる CO₂が水溶 液に吸収されたことが原因と予想される。事前に、実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、実燃料や U0₂²⁺等の溶存化学種の共存に起因して C0₂の吸収が促進されたと考えられる。H₂O₂については、NaC1 溶液でのみ検出され、試料 2 (ペ レット端部なし)では、15 日目以降は検出されず、試料 1 (ペレット端部あり)でのみ、浸漬 終了時まで H₂O₂が検出された。既往研究 (Cera et al., 2006)では、NaHCO₃溶液中では CO₃²⁻ が OH ラジカルのスカベンジャーとして働き H₂O₂の生成を抑制すること、さらに UO₂表面にお ける H₂O₂の分解を促進することが報告されており、これらに起因して NaHCO₃溶液中で H₂O₂が 検出されなかったと考えられる。また、NaCl 溶液中でも、主に H₂O₂が検出されたのは試料 1 のみであった理由として、試料 2 よりも試料 1 近傍の方でガンマ線量率が高く、放射線分解 が生じやすかったことや、CO₂(aq)や溶出成分の僅かな変動により、H₂O₂のスカベンジャーと なる水和電子 (e⁻aq)や H ラジカル (Gordon et al., 1963)の濃度が低下したことなどが考え られる。



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 の IRF に係る核種を含めて、Rb、Y、Zr、Mo、Tc、Ru、Rh、Pd、Ag、Cd、 Sb、Te、I、Ba、La、Ce、Pr、Nd、Sm、U、Pu など、多数の核種が検出された。代表的な核種 の溶出挙動を図 3.1-32 に示す。

• ウラン (U)

U-238 が ICP-MS により検出された。NaCl 溶液(試料 1 および 2) では、浸漬初期に濃度が 上昇した後、濃度が大幅に低下した。このような濃度の変化は、希土類元素(La、Ce、Nd、 Sm) でも確認されている。U は、水酸化物等の固相として析出し、希土類元素はU とともに共 沈したと考えられる。一方、NaHCO₃ 溶液(試料 3 および 4) では、時間経過に伴い溶出量が増 加する傾向を示しつつも、溶出量は緩やかになりつつある。 UO_2^{2+} が CO_3^{2-} と錯体を形成し、 $UO_2(CO_3)_3^{4-}$ として安定するため、固相として析出しなかったと考えられる。

なお、今回のデータからは、端部の有無による差異は確認されなかった。

• セシウム (Cs)

Cs-133 が ICP-MS により検出された。NaCl 溶液(試料1および2)では、31 日経過時まで 大きく濃度が上昇した後、それ以降の溶出量はわずかであった。初期の濃度上昇は、ギャッ プに蓄積していたものが速やかに溶出したことに起因し、その後は燃料マトリクスの溶解に 伴うものと考えられる。一方、NaHCO₃溶液(試料3および4)では、15 日経過時まで急激に 濃度が上昇した後、単調に濃度が増加しつつも、増加量は緩やかになりつつある。NaCl 溶液 と同じく、ギャップに蓄積していたものが溶出した後、燃料マトリクス溶解に伴う溶出が続 いていると考えられる。NaHCO₃溶液の方が、燃料マトリクスの溶解量が多いため、59 日以降 においても NaCl 溶液と比較して NaHCO₃溶液での濃度上昇が大きくなっていると考えられる。

NaCl 溶液(試料1および2)では、Te、Cd、Ba などのギャップに蓄積している元素の濃度 の上昇が顕著であり、ギャップに存在する物質が速やかに溶出したと考えらえる。一方、 NaHCO₃溶液(試料3および4)では、ギャップ部で局所的に Ba 濃度が上昇したために BaCO₃ 等が析出し、ギャップからの種々の元素の溶出を妨害したと予想される。Cs においても、浸 漬初期で NaHCO₃溶液よりも NaCl 溶液の方で濃度が高いのは、ギャップから、より速やかに溶 出したためと考えられる。

なお、今回のデータからは、端部の有無による差異は確認されなかった。

また、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。

• ストロンチウム (Sr)

Sr-90 が ICP-MS により検出された。同重体である Zr-90 については、ORIGEN2.2 の計算に より求めた FP 中の Zr 同位体比と、実測による Zr-91 濃度から、Zr-90 の濃度を計算して差 引き、Zr-90 による干渉を除外して Sr-90 の濃度を求めた。NaCl 溶液(試料 1 および 2) で は、31 日までに大きく濃度が上昇した後、31 日以降も単調に濃度が上昇しつつも、増加量は 緩やかになりつつある。NaHCO₃ 溶液(試料 3 および 4) では、初期の濃度上昇はわずかであ り、その後単調に濃度が上昇している。Cs と同様に、初期の濃度上昇の差異は、NaCl 溶液の 方がギャップからの溶出のしやすさに起因すると考えられ、ギャップ部で Sr の局所的な濃度 が上昇した後、NaHCO₃ 溶液では SrCO₃ として析出したため、初期の Sr 濃度が、NaHCO₃ 溶液で は NaCl 溶液の半分以下になったと考えられる。一方、31 日以降の単調な濃度の上昇は、燃料 マトリクス溶解に起因するものであり、NaHCO₃溶液で燃料マトリクス溶解が顕著であるため、 それに伴いマトリクスに固溶していた Sr が溶出することで濃度の上昇も大きくなっている と予想される。

なお、今回のデータからは、端部の有無による差異は確認されなかった。

• 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 の濃度か ら予想される Ru-99 の濃度は Tc-99 と比較して 10 分の 1 以下であり、Ru-99 による妨害(過 大評価)は無視できると判断した。NaC1 溶液(試料 1 および 2)、NaHCO₃ 溶液(試料 3 およ び 4)ともに、15 日経過時までに急激に濃度が上昇した後、以降は単調に濃度が上昇してい る。Tc は、燃料中で主に白色金属相に存在している。Tc 以外にも、白色金属相に含まれる元 素として、Mo、Ru、Rh 、Pd が検出されており、Mo、Tc 、Ru 、Rh については、いずれも浸 漬初期において、NaCl 溶液よりも NaHCO₃溶液の方で濃度が高くなっていた。ゆえに浸漬初期 は、NaHCO₃溶液で白色金属相が溶けやすい状態になっていたと予想される。一方、15 日以降 では、NaHCO₃溶液よりも NaCl 溶液での溶出量の方が多くなっている。白色金属相中の Tc は、 酸化溶解により溶出しており、NaCl 溶液では H₂O₂が検出されていることから、NaHCO₃溶液と 比較して相対的に強い酸化雰囲気であったと予想され、Tc の酸化溶解が促進したと考えられ る。



なお、今回のデータからは、端部の有無による差異は確認されなかった。

図 3.1-32 Cs-133、Sr-90、Tc-99 および U-238 の溶出挙動

実燃料を溶解し、溶解液を ICP-MS により測定することで、燃料中に残存する核種の量を評価した。また、浸漬用のガラス製容器の洗浄液を ICP-MS により測定することで、燃料から溶 出後、ガラス製容器に付着/析出した核種の量を評価した。なお、燃料から溶出後、溶液中に 溶存したままの核種の量は、前述の浸漬溶液の分析により、既に得られている。ここで、溶 液中に存在する重量分も、ガラス製容器壁面に存在する重量分も、いずれも一度燃料から放 出されているため、これら 2 つの重量の和を放出量とした。さらに、この放出された分の重 量も、浸漬試験開始前は燃料中に存在していたため、放出量と、浸漬試験後に燃料中に残存 している重量分の、これら 2 つの和を初期インベントリとした。ここで、初期インベントリ に対する放出量の割合を、放出割合とする。ここで求められる放出割合は、核種放出挙動に おける瞬時放出とマトリクス溶解の両方の寄与を含むものである。

各核種において、溶液中に溶存したままの重量と、ガラス製容器に付着/析出した重量の、 割合に着目したところ、いずれの試料、いずれの核種においても、放出された量の大部分が 溶液中に存在したままであった。しかしながら、NaCl 溶液(試料1および2)におけるU-238 のみ、ガラス製容器に付着/析出した量の方が多く、それは溶出した量の10倍以上であった。 これは、NaCl 溶液に浸漬した際に、U-238 濃度が一旦上昇した後に大きく低下したことと対 応している。

代表的な核種に関し、放出割合を求めた結果を図 3.1-33 に示す。U-238 のみ、NaCl 溶液よ りも NaHCO₃ 溶液中でマトリクス溶解が促進されたため、NaCl 溶液に比べて NaHCO₃ 溶液中に おける放出割合が高い結果となった。U-238 において、端部の有無についての影響は確認され なかった。U-238 以外の核種については、溶液組成及び端部の有無の両方とも、影響は確認さ れなかった。また、Cs、Sr、Tc の溶出割合を U の溶出割合で規格化し、現在の IRF 推奨値及 び最大値と比較した結果を図 3.1-34 に示す。この結果からも Sr-90 がウランマトリクスと調 和的に溶解していることが確認できる。また、Cs-133 の溶出割合が IRF 最大値を超過してい るように見えるのは、ふげん使用済燃料の FP ガス放出率の高さに起因すると思われるため、 本試験から導出された放出割合は、IRF の推奨値及び最大値と矛盾しない結果が得られたと 判断した。本試験で得られた結果は空気雰囲気における結果であり、今後、より地層処分環 境に近い条件での放出割合を求め、瞬時放出率の評価に反映していく。





図 3.1-34 U-238の溶出割合で規格化された核種の溶出割合と IRF 設定値との比較

C-14の分析結果を、図 3.1-35 に示す。1 つ目の NaOH トラップでの検出量がもっとも多く、 次いで実燃料溶解液、浸漬溶液の順となり、2 つ目の NaOH トラップで検出量がもっとも少な かった。浸漬溶液に浸出せずに燃料中に残存した C-14 は、燃料溶解時に硝酸で酸化されて CO2 ガスとなって揮発し、NaOH トラップにて回収されたと考えられる。CO2 ガスが2つのトラップ で回収しきれなかった場合、2つのトラップの回収量は同程度になると考えられるが、1つ目 の NaOH トラップでの検出量に対し、2 つ目の NaOH トラップでの検出量は、1.4%以下であっ た。また、1つ目のトラップ検出量を回収可能な最大量と考えると、2つ目のトラップの検出 量は十分に小さいため、これらの2つの NaOH トラップで揮発した CO2のほぼ全量を回収して いると考えられる。これより、これら4つ(浸漬溶液、実燃料溶解液、NaOHトラップ1、NaOH トラップ 2) で検出された C-14 を合計したものが、C-14 の初期インベントリとなる。浸漬溶 液で検出された C-14 を放出量であるとして、C-14 の放出割合を評価すると 3.9%となった。 これは IRF 推奨値 10%、最大値 14%と比較しても矛盾しない。一方、C1-36 の分析を行った結 果、浸漬溶液を除く3つの試料においては検出限界未満となった。また、検出した浸漬溶液 についても、β線の相対計測誤差が約 12%と高い値となった。C-14 と同様の手順で C1-36 の 放出割合を求めると、24%以上となり、IRF 推奨値 6%、最大値 24%と比較して放出割合が高い 結果となったが、これは十分な精度で放出量を求めることが出来なかったことによるものと 思われる。C1-36を精度良く定量するのには加速器質量分析が有効であると思われ、その適用 可能性を検討することが今後の課題である。



図 3.1-35 C-14 分析結果

令和4年度開始浸漬試験に向けて、雰囲気制御手法に関する予備試験を実施した。最も単純な系として、窒素雰囲気下にNaHCO3溶液を静置したのみの条件では、約7時間経過しても、 Ehは300 mV程度のままであり、ほとんど低下しないことを確認した。窒素雰囲気下で、窒素 バブリングをしたところ、溶存酸素が追い出されたことで、3時間経過時点でEhは170 mV程 度まで低下したが、これ以上継続しても低下する傾向は確認されなかった。次に、空気雰囲 気で、還元剤(Na₂S₂O₄)をNaHCO3溶液に添加した場合、還元剤濃度1 mMでは、Ehの変化は ほとんど確認されなかった。一方、濃度5 mMではNa₂S₂O₄により溶存酸素が十分に消費され たためか、Ehは-400 mV程度まで低下した。NaHCO3溶液中のEhは、溶存酸素の影響が支配的 と考えられ、雰囲気制御下で効果的にEhを制御していくため、浸漬開始前に還元剤を用いて 溶存酸素を十分に消費しつつ、その後、溶液周辺の雰囲気を低酸素状態に維持し、酸素の溶 け込みを防ぐことが重要と考える。今後、ホットセル内における雰囲気制御下での浸漬試験 に向けて、条件および手法の具体化を図っていく。

3) 瞬時放出率、長期溶解速度に関する最新動向調査

① 調査結果

2019年と2020年に公開されているDisCoプロジェクトに関する報告書(Herm et al., 2019; Metz et al., 2020)においては、処分後早期に処分容器が破損して地下水と燃料が 接触したことを想定した条件に焦点を当て、使用済燃料を用いた浸出試験の結果に基づいて IRFが算出されている。この浸出試験に用いられた使用済燃料の性状は表3.1-9に示す通りで ある。

炉型	PWR
ペレットの種類	UO _X
燃焼度	73 MWd kgHM $^{-1}$
ウラン濃縮度	3.95 wt%
平均線出力密度	255 W cm^{-1}

表 3.1-9 浸漬試験に使用された使用済燃料の性状

使用済燃料を浸漬した溶液は、処分後早期に処分容器が破損して地下水と燃料が接触した ことを想定し、イオン交換水にセメント粉末を浸漬してセメント成分を浸出させた溶液を作 製し、その溶液にカルシウムを添加したものを使用している(73YCWCa)。浸漬溶液の組成を 表 3.1-10 に示す。表 3.1-10 には、使用済溶液の浸出挙動を比較するために使用した NaHCO₃ を含む NaCl 溶液(73BIC)の組成も併せて示した。

浸漬溶液	рН	Na ⁺	Ca ²⁺	C1-	Si0 ₃ ²⁻	CO3 ²⁻	OH_
		[mol L ⁻¹]	$[mol L^{-1}]$	$[mol L^{-1}]$	$[mol L^{-1}]$	$[mol L^{-1}]$	$[mol L^{-1}]$
73YCWCa	13.4	5. 0×10^{-1}	9.8×10 ⁻⁴	-	2.0×10 ⁻¹	2. 5×10^{-3}	2.5 $\times 10^{-1}$
73BIC	7.4	2. 0×10^{-2}	_	1.9×10^{-2}	_	1. 0×10^{-3}	2.5 $\times 10^{-10}$

表 3.1-10 浸漬溶液の組成(主な元素および pH)

試験では、浸漬溶液の入った容器に試料を入れ、210日間触させた後、浸漬溶液を一定量採 取し、浸出した元素の濃度測定を行っている。元素濃度は、採取した溶液を硝酸または水酸 化テトラメチルアンモニウムで希釈した後、ICP-MSにより測定している。溶液を採取した後、 容器への元素の収着量を調べるため、試料を取り出して容器を硝酸溶液で洗浄し、硝酸溶液 へ脱着した元素の濃度を ICP-MS により測定している。取り出した試料は、新たな浸漬溶液の 入った容器に入れて浸漬を継続させている。

試験結果より算出された IRF は、73BIC と比較して示されている。その結果を表 3.1-11 に示す。

IRF[%]	рН	Cs	Ι	Mo	Тс	Rb	Sr
73YCWCa	13.4	5.3 \pm 0.6	39 ± 6	3.3 ± 0.3	1.7 \pm 0.2	1.0 ± 0.2	検出下限以下
73BIC	7.4	2.7 \pm 0.3	-	<0.005	0.011 ± 0.005	0.3 ± 0.1	0.09 ± 0.01

表 3.1-11 IRF [%] 算出結果

試験の結果からは、Sr と I 以外の核種で 73BIC よりも 73YCWCa で IRF が大きくなることが 報告されている。特に、Mo と Tc の放出量が 73BIC と比べると多くなっている。しかしなが ら、本報告(Herm et al., 2019; Metz et al., 2020)の時点では試験実施中であり、浸漬 溶液の違いによる影響について詳しい分析が行われていない。そのため、現状においてわが 国の評価で参考とできる情報ではないものの、今後も関連する報告についての調査を継続す ることが重要であると考えられる。

本プロジェクトに関する別の報告では、実燃料からの核種の放出量を、浸漬溶液中の核種 の濃度で評価して報告されている(Metz et al., 2020)。STUDSVIK 社によって実施された試 験では、BWR型のUOx燃料(5A2)とBWR型のA1-Crを添加した燃料(C1)の2つで浸漬試験 を実施している。それぞれの使用済燃料の性状を表 3.1-12に示す。

試料名	5A2	C1
炉型	BWR	BWR
ペレットの種類	標準型 UOx	A1-Cr 添加 UO _X
燃焼度	$57 \ \mathrm{MWd} \ \mathrm{t}^{-1}$	$59 \text{ MWd } t^{-1}$
ウラン濃縮度	3.5 wt%	4.1 wt%
FGR	2.4 %	1.4 %

表 3.1-12 浸漬試験に使用された使用済燃料の性状

本試験では、燃料への A1-Cr 添加が放射性核種の瞬時放出率や長期溶解挙動に及ぼす影響 に焦点を当て、浸漬試験による評価が行われている。そのため、燃焼度やウラン濃縮度など の条件が類似している 2 種類の使用済燃料を用いて試験が行われている。

この試験では、燃料の浸漬を行う前に、高濃度の NaHCO₃溶液で洗浄し、表面の酸化層を取 り除く処理が行われている。洗浄に使用した溶液中の核種濃度は、ICP-MS により測定されて いる。浸漬試験では、それぞれ2gの燃料断片を10 mMの NaCl と2 mMの NaHCO₃を含有する 浸漬溶液に入れ、H₂を55 bar となるように容器に封入した。2年間の浸漬試験の期間内に、 気体と溶液の採取を8回行い、それぞれをGC-MS と ICP-MS により測定している。5A2 試料お よび C1 試料の浸漬試験後の各核種の濃度測定結果を表 3.1-13 および表 3.1-14 に示す。ま た、各核種濃度の時間変化を図 3.1-36 から図 3.1-39 に示す。

表 3.1-13 各核種の濃度測定結果(5A2 試料)

time	uranium	plutonium	neptunium	americium	curium
	concentration	concentration	concentration	concentration	concentration
(days)	(mol L ⁻¹)				
0.1	2.2E-08	2.3E-11	2.1E-11	1.6E-12	2.1E-12
1	3.1E-08	8.4E-11	4.5E-11	4.2E-12	6.3E-12
7	3.1E-08	1.2E-10	3.1E-11	2.2E-11	1.4E-11
28	1.9E-08	7.1E-10	1.7E-11	9.5E-11	4.2E-11
91	1.8E-08	3.4E-09	3.5E-11	3.6E-10	2.4E-10
203	2.1E-08	1.0E-08	5.6E-11	9.1E-10	5.6E-10
421	2.6E-08	3.1E-08	1.4E-10	2.2E-09	1.3E-09
642	2.7E-08	4.5E-08	1.8E-10	2.9E-09	1.6E-09

(Metz et al., 2020 table.7)

time	Ba	Gd	Tc	Sr	Мо	Zr	Rb	Cs	I
	conctr.								
(days)	(mol L ⁻¹)								
0.1	6.4E-10	1.2E-11	4.6E-11	0.0E+00	0.0E+00	5.5E-10	0.0E+00	4.4E-10	2.5E-09
1	2.6E-10	1.6E-11	9.4E-11	0.0E+00	1.1E-09	7.7E-10	0.0E+00	2.3E-09	2.8E-08
7	3.1E-08	8.7E-11	4.4E-11	1.6E-09	5.1E-09	8.0E-10	3.7E-09	7.9E-08	-
28	4.4E-08	3.0E-10	1.5E-09	5.1E-09	5.5E-08	1.5E-09	2.0E-08	4.8E-07	2.9E-07
91	4.8E-08	1.4E-09	7.2E-10	5.0E-09	7.3E-08	8.5E-09	3.0E-08	8.3E-07	5.1E-07
203	5.6E-08	3.5E-09	1.4E-09	1.0E-08	1.1E-07	5.8E-08	1.6E-08	8.3E-07	4.7E-07
421	7.0E-08	6.0E-09	3.6E-09	1.3E-08	1.5E-07	1.4E-07	1.7E-08	8.6E-07	4.4E-07
642	7.6E-08	7.0E-09	2.7E-09	1.7E-08	1.4E-07	2.0E-07	1.6E-08	7.8E-07	7.9E-07

表 3.1-14 各核種の濃度測定結果(C1 試料)

(Metz et al., 2020 table.8)

time	uranium	plutonium	neptunium	americium	curium
	concentration	concentration	concentration	concentration	concentration
(days)	(mol L ⁻¹)				
0.1	2.7E-08	8.2E-11	2.3E-11	4.2E-12	3.7E-12
1	6.0E-08	2.2E-10	2.2E-10	9.4E-12	5.3E-12
7	6.8E-08	3.9E-10	1.6E-10	2.7E-11	2.0E-11
28	1.3E-08	2.3E-10	5.5E-11	2.8E-11	1.5E-11
91	1.5E-08	1.8E-09	7.6E-11	2.3E-10	1.8E-10
203	2.4E-08	1.1E-08	1.4E-10	8.0E-10	4.5E-10
421	4.0E-08	3.7E-08	3.6E-10	1.9E-09	1.1E-09
642	4.8E-08	6.6E-08	5.6E-10	3.1E-09	1.5E-09

time	Ba	Gd	Tc	Sr	Mo	Zr	Rb	Cs	I
	conctr.								
(days)	(mol L ⁻¹)								
0.1	1.1E-09	1.5E-11	5.9E-11	n.g.	n.g.	8.2E-10	n.g.	1.0E-09	2.5E-09
1	6.9E-09	4.1E-11	1.3E-10	n.g.	6.5E-10	9.7E-10	4.4E-10	2.6E-09	3.7E-09
7	3.8E-08	8.5E-11	1.0E-10	3.1E-09	8.4E-09	1.1E-09	7.1E-09	5.9E-08	n.g.
28	2.9E-08	1.5E-10	1.1E-09	2.5E-09	9.4E-09	7.8E-10	6.1E-09	1.7E-07	6.7E-08
91	3.8E-08	1.3E-09	8.8E-10	7.5E-09	1.6E-08	9.6E-09	1.1E-08	7.2E-07	1.5E-07
203	5.1E-08	3.5E-09	1.1E-09	1.2E-08	3.3E-08	7.3E-08	n.g.	1.1E-06	2.5E-07
421	7.3E-08	6.4E-09	3.5E-09	1.8E-08	4.4E-08	1.7E-07	n.g.	1.2E-06	2.9E-07
642	9.5E-08	8.5E-09	3.0E-09	2.3E-08	6.6E-08	2.9E-07	n.g.	1.2E-06	3.1E-07



図 3.1-36 5A2 の浸漬試験における各核種濃度の時間変化 (U、Pu、Np、Am、Cm)(表 3.1-13 から作成)



図 3.1-37 5A2 の浸漬試験における各核種濃度の時間変化 (Tc、Sr、Mo、Cs、I)(表 3.1-13 から作成)



(U、Pu、Np、Am、Cm) (表 3.1-14 から作成)



図 3.1-39 C1 の浸漬試験における各核種濃度の時間変化 (Tc、Sr、Mo、Cs、I)(表 3.1-14 から作成)

試験の結果、溶解度の高い I や Cs などの核種は、両試料ともに最初の 1 ヶ月間は安定して 増加し、その後、濃度が一定となっている。Mo、Sr、Tc などは数日で多くの量を放出し、そ の後、徐々に一定値に近づいている。2 種類の使用済燃料の挙動を比較すると、A1-Cr を添加 した燃料(C1)では、粒径が大きいため燃料中の FP ガスの拡散が減少して FGR が低下し、I のような揮発性元素が原子炉運転中に放出されたため、これら揮発性元素の溶液へ放出され たインベントリの割合が少なくなっているという結果が得られたと説明されている。例えば I-129 の割合は 5A2 で 6.7%、C1 で 3.2%と計算されていた。水素雰囲気下での過去の試験と比 較して,核種濃度は予想された範囲内であり、浸出挙動に対する A1-Cr を添加した効果は全 体的に小さいと結論付けられている。

このような A1-Cr を添加した燃料からの瞬時放出や長期溶解については、わが国の評価に 直接適用できる結果ではないものの、燃料組成の多様性による影響等に関する基礎データと して活用できる可能性もある。

KIT-INEにおいて、上記とは異なる燃料を用いて、核種の放出量が評価されている(Metz et al., 2020)。KIT-INEによって実施された浸出試験に用いられた使用済燃料の性状を表 3.1-15に示す。

炉型	PWR		
ペレットの種類	MOX 燃料		
燃焼度	$38~{ m MWd}~{ m t}^{-1}$		
Pu 富化度	3.2 wt%		
線出力密度	$200 \ \mathrm{W} \ \mathrm{cm}^{-1}$		

表 3.1-15 浸漬試験に使用された使用済燃料の性状

本試験では、同じ燃料棒から被覆管付き試料とペレットを粉末にした試料を作製し、試験
を実施している。この試験手法では、粉末試料を使用することにより、使用済燃料ペレット 中の粒界からの核種の放出について知見を得ることができる。

試験は、浸漬溶液に 19 mM の NaCl と 1 mM の NaHCO₃を使用している。また、試験前に、酸 化層を取り除くために表面を洗浄し、この洗浄液中の核種濃度の測定も行っている。試験で は、(230±5) mL の溶液に試料を浸漬し、オートクレーブにより Ar/H₂ で 40 bar の強い還元 性雰囲気として静置した。試験期間中は、定期的に気体を 50 ml と溶液を 10 ml 採取し、核 種濃度を ICP-MS や液体シンチレーションカウンタで測定している。

被覆管付き試料の試験結果を表 3.1-16 に、粉末試料の試験結果を表 3.1-17 に示す。また、 被覆管付き試料および粉末試料の各核種の濃度と浸漬日数の関係について、図 3.1-40 から図 3.1-43 にそれぞれ示す。

- 1				•		
	time	uranium	plutonium	neptunium	americium	curium
		concentration	concentration	concentration	concentration	concentration
	(days)	(mol L ⁻¹)	$(mol L^{-1})$	(mol L ⁻¹)	$(mol L^{-1})$	(mol L ⁻¹)
	1	4.0E-06	4.7E-09	1.1E-09	4.2E-09	1.3E-10
	2	4.0E-07	8.7E-10	1.5E-10	2.3E-10	2.5E-11
	160	4.2E-08	1.6E-09	3.4E-11	5.0E-10	2.8E-11
	370	2.2E-08	4.5E-10	2.2E-11	1.2E-10	2.6E-11

表 3.1-16 被覆管付き試料の浸漬試験結果

time	technetium concentration	strontium concentration	cesium concentration	iodine concentration
(days)	(mol L ⁻¹)	(mol L ⁻¹)	(mol L ⁻¹)	(mol L ⁻¹)
1	n.g.	3.1E-09	6.2E-06	n.g.
2	n.g.	3.1E-10	8.4E-07	n.g.
160	9.8E-09	4.2E-08	4.3E-06	7.6E-06
370	4.5E-09	4.6E-08	4.4E-06	8.8E-06

(Metz et al., 2020 table.4)

表 3.1-17 粉末試料の浸漬試験結果

(Metz et al., 2020 table.5)

time	uranium	plutonium	Neptunium	americium	curium
	concentration	concentration	Concentration	concentration	concentration
(days)	(mol L ⁻¹)	(mol L-1)	(mol L ⁻¹)	(mol L ⁻¹)	(mol L ⁻¹)
1	2.0E-06	2.8E-08	1.7E-09	3.7E-09	1.0E-10
2	1.3E-07	1.6E-09	8.4E-11	7.8E-10	4.6E-11
154	7.2E-08	4.5E-09	6.5E-11	1.1E-09	3.3E-11
364	1.5E-08	4.4E-10	1.7E-11	1.8E-11	1.9E-11

time	technetium concentration	strontium concentration	Cesium Concentration	iodine concentration
(days)	(mol L-1)	(mol L ⁻¹)	(mol L ⁻¹)	(mol L ⁻¹)
1	n.g.	5.3E-09	4.5E-06	n.g.
2	n.g.	8.2E-10	2.6E-07	n.g.
154	7.5E-09	6.1E-09	1.1E-06	3.3E-06
364	4.0E-09	9.3E-09	1.5E-06	5.5E-06



図 3.1-40 被覆管付き試料の浸漬試験における核種濃度と浸漬日数の関係 (アクチニド核種)(表 3.1-16 から作成)



図 3.1-41 被覆管付き試料の浸漬試験における核種濃度と浸漬日数の関係 (Sr、Cs、Tc、I)(表 3.1-16 から作成)



図 3.1-42 粉末試料の浸漬試験における核種濃度と浸漬日数の関係 (アクチニド核種)(表 3.1-17から作成)



図 3.1-43 粉末試料の浸漬試験における核種濃度と浸漬日数の関係 (Sr、Cs、Tc、I)(表 3.1-17 から作成)

試験の結果、ウランの濃度はどちらの試験でも約 10⁻⁷ M まで増加しているが、Np-237 の濃 度は時間とともに 10⁻¹⁰ M 以下に減少している。他のアクチニド核種の濃度は、両実験ともに 浸出初日からほぼ一定である。最初の 2 回の試料採取では、Tc と I の水溶液濃度は検出限界 以下であった。揮発性の核分裂生成物である I と Cs の溶液中の濃度は同程度であり、燃料マ トリクス部に結合した核分裂生成物である Sr、Tc の溶液中の濃度も、それぞれ同程度である と報告されている。本試験の結果は、核種の瞬時放出率や長期溶解に関するメカニズムの知 見を拡充し、わが国でのそれらの設定値の根拠となる情報として活用できる可能性があるも のの、現状では使用済燃料ペレット中の粒界からの核種の放出について考察されていないこ とから、今後も継続して調査を行う予定である。

② まとめ

令和3年度は、欧州共同体(EU)の国際共同研究(「DisCo」プロジェクト)に関する最新の 報告書について調査し、報告内容について整理を行った。調査の結果、核種の瞬時放出につ いて、地下水を模擬した溶液に加え、処分後早期に処分容器が破損して地下水と燃料が接触 したことを想定し、イオン交換水にセメント粉末を浸漬してセメント成分を浸出させた溶液 等でも試験が行われ、瞬時放出率(IRF)が決定され、セメント水の方がIRFが大きいことが 報告されていた。(Metz et al., 2020)。また、燃料の多様性による影響を考慮するため、 A1-Cr が添加された燃料についての浸漬試験が実施されており、A1-Cr が添加された燃料は添 加されていないものと比べて粒径が大きく、そのためギャップ部が少なくなり、結果的に FGR (核分裂ガス放出)が低下するなどの効果が予想されることが報告されていた(Herm et al., 2019)。さらに、粉末試料での浸漬試験では、粒界から放出される核種が IRF へ及ぼす影響 を測定することが可能であり、この結果から核種放出のメカニズムの理解につながる可能性 があることが報告されている(Albert et al., 2017)。

瞬時放出率、溶解速度に関する最新動向調査に関しては、令和4年度も文献調査を継続し、 瞬時放出率や長期溶解速度の設定に資する情報を整理する。また、これまでの文献調査によ り得られている情報を含めて、瞬時放出率や長期溶解速度の設定への反映可能性について検 討を行う予定である。

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 放射性核種の収着能の低下を引き起こす可能性のある銅の腐食に伴う圧縮ベントナイトの変 質(モンモリロナイトの他鉱物への変質および Cu 型化)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、試験条件を低酸素雰囲気下、硫化水素イオン共存条件に限定し、変質挙 動について EPMA 観察により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、銅の腐食に伴う圧縮ベントナイトの変質についてより詳細な 調査を行う。また、この調査においては、わが国の地層処分に特有の条件として以下の 3 点 に着目する。

- わが国の地層処分においてベントナイトとして使用が想定され、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 の変質挙動の評価
- ・わが国では全炭酸濃度(溶存する H₂CO₃、HCO₃⁻、CO₃²⁻の合計濃度)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、全炭酸濃度が高い条件で の圧縮ベントナイトの変質挙動の評価
- ・廃棄体と人工バリアの定置方式のひとつとして想定されている鋼製 PEM (Prefabricated Engineered Barrier System Module) 容器や、処分容器として銅-炭素鋼複合容器を使用 した場合の、容器の腐食に伴い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 及ぼす影響の評価

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。

令和2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)、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することにより変質挙動を観察する試験(以下、銅粉カ ラム変質試験)の3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。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 境とは試験系が異なるものの、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 量を多くす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 試験に比べて有利である。その一方で、これらの試験手法により変質挙動を観察する上での 課題として、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小さく変 質挙動の観察が困難であること、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ることが挙げられる。そのた め、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試験手 法として、令和2年度から図 3.2-1(c)に示す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を実施している。

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	
	実際の処分環境に近い	銅との相互作用による	圧縮系かつ銅とベント	
	条件での銅との相互作	ベントナイトの変質可	ナイトの接触表面積の	
試験の目的	用による圧縮ベントナ	能性の検討、変質メカニ	大きい試験系での変質	
	イトの変質挙動の評価	ズムの理解	挙動の評価、変質メカニ	
			ズムの理解	
	・廃棄体定置直後に残存	する酸素による酸化性の	・左記環境および左記	
	条件でのベントナイト	環境に炭酸を共存さ		
対色しナ7	・残存する酸素が消費さ	せた条件 (酸化性およ		
刈家と9つ	境でのベントナイトの変質(硫化水素イオン共		び低酸素の両方の条	
<u> </u>	存下)		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	・モンモリロナイトの他鉱物への変質			
変質	・モンモリロナイトの Cu 型化			

表 3.2-1 試験手法と目的、対象とする変質環境・現象などのまとめ









(c)銅粉カラム変質試験

凶 3.2-1 炎貨訊駛手法慨略凶

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腐食に関与し(King et al., 2002)、酸化 剤が存在しない環境では硫化水素イオン共存下で腐食が進展することが知られている(谷口 ほか, 2007)ことから、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、 溶存する全炭酸濃度の高い地下水環境が変質挙動に及ぼす影響を想定した炭酸共存下での試 験(ここでは、溶存するH₂CO₃、HCO₃⁻、CO₃⁻を合わせて全炭酸と定義し、以下では溶存する全 炭酸について炭酸と記載する。)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収着することにより起こるモンモリロナイト のCu型化について検討を行った。モンモリロナイトが他鉱物へ変質した場合、放射性核種の 収着能が低下する可能性があり、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 や収着能の低下の可能性も報告されている(たとえば、Madejová et al., 2006)。以上のこ とから、ベントナイトの特性に大きな影響を及ぼすと考えられるこれらの変質現象を調査の 対象とした。

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、試験片カラム変質試験およびバッチ変質試験による調査を行った(原子力機構, 2019; 2020;2021)。試験では、クニゲル V1 と、クニゲル V1 中の随伴鉱物を除去して精製したモ ンモリロナイトであるクニピアFを使用し、試験温度は 80 ℃、試験期間は 1 条件で実施し 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、モンモリロナイトが他鉱物へ変質したことを示す新たな鉱物の生成は確認され なかった。また、令和 2 年度より、炭酸共存下および鉄共存下での変質挙動の調査として、 表 3.2-3 に示す条件で試験を開始した(原子力機構, 2021)。表 3.2-3 に示す試験 A~C に用 いた緩衝材試料はクニゲル V1 であり、試験温度は試験 A および試験 B が 50 ℃、試験 C が 80 ℃とし、試験期間は 1 条件で実施した。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。令和 2 年度までの調査においては、試験 A の試料について、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、試験 C については XRD 測定による鉱物同定も実施した。試験 B については、令和 2 年度は試験の開始のみとした。令和 2 年度の調査において得られた試験結果からは、炭酸 共存および鉄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 が得られている。令和 3 年度の調査では、炭酸共存下および鉄共存下での変質挙動の調査と して、令和 2 年度までに未実施である試験 A~C の分析を実施し、鉱物の変質状況について調 査した。

環境	試験溶液	試験手法	緩衝材	分析手法	
	0.5 mol 1 ⁻¹ NaCl 溶液	試験片	クニゲル V1	EDWA / VDD / CEC 測学	封殿①
酸化性		カラム	クニピアF	EPMA/ AKD/ UEU (別) た	武家山
		バッチ	クニピアF	XRD/CEC 測定/溶液組成分析	試験②
	人工海水+ 0.01 mol 1 ⁻¹ Na ₂ S 溶液	試験片	クニゲル V1	EDWA / VDD / CEC 測学	学校の
低酸素		カラム	クニピアF	EPMA/ AKD/ UEU (別) た	民家の
		バッチ	クニピアF	XRD/CEC 測定/溶液組成分析	試験④

表 3.2-2 基礎的な変質挙動の評価に関する試験条件

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	0.45 mol 1 ⁻¹ NaCl + 0.05 mol 1 ⁻¹ NaHCO ₃ 溶液	EDVA	試験 A
低酸素	炭酸 共存下	0.45 mol 1 ⁻¹ NaCl + 0.05 mol 1 ⁻¹ NaHCO ₃ + 0.001 mol 1 ⁻¹ Na ₂ S 溶液	EFMA XRD(鉱物同定・Cu 型化の分析) CFC測定	試験 B
	鉄共存下	0.5 mol l ⁻¹ NaCl 溶液+ 1×10 ⁻⁴ mol l ⁻¹ FeCl₂溶液		試験 C

(2) 炭酸および鉄共存下での変質挙動の調査

1)酸化性雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験(試験 A)

① 試験手順および条件

本試験では、処分場への廃棄体定置直後に残存する酸素による酸化性の条件で、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。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、フィルター部の形状は直径 25 mm、厚さ 3 mm である。フィルターには、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)をフィルター部の形状に合うように加工した

ものを使用し、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 めに孔径 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。

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 1⁻¹の NaCl 溶液に 0.05 mol 1⁻¹の NaHCO₃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 1⁻¹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、50 °Cの恒温槽内で 21 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、表 3.2-3 に示す EPMA 観察、XRD 測定(鉱物同定・Cu 型化の分 析)、CEC 測定を実施した。

EPMA 観察は、日本電子株式会社製 FE-EPMA (JXA8530F)を使用し、加速電圧 15 kV、照射電流 0.05 μA で実施した。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、ミクロトームを用いて 切断し、金蒸着を行って分析に使用した。

XRD 測定による鉱物同定については、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、めのう乳鉢で粉砕したものを測定用試料とした。また、XRD 測定によるベン トナイトの Cu 型化の分析は、定方位試料を作製して湿度制御下で XRD 測定を行い、モンモリ ロナイト層間イオンの価数を検討することにより調査した。定方位試料は、めのう乳鉢で粉 砕した試料を遠沈管中でイオン交換水に分散させた後、遠沈管を1 分程度静置し、マイクロ ピペットで液面から2 cm 程度の位置から上澄みを採取し、試料板に滴下、自然乾燥させるこ とにより作製した。また、ベントナイトの Cu 型化の分析については、以下に示す CEC 測定に おいて実施したベントナイトへ収着しているイオンの抽出結果からも検討を行った。

CEC の測定には、めのう乳鉢で粉砕した試料をイオン交換水に分散させ、イオン交換水中で ふるい分けによりベントナイト試料から銅粉を取り除いた後、乾燥させて再度めのう乳鉢で 粉砕した試料を使用した。この試料を遠沈管に採取し、1 mol 1⁻¹の NH4Cl 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採取し、上澄み液採取後の残りの上澄み液 は廃棄した。この作業を 3 回実施し、試料中の陽イオン交換サイトを NH4⁺で飽和させた。採 取した上澄み液は、NH4⁺イオンとの置換に伴いベントナイトから溶液中に浸出したイオンを定 量するため、Na、K、Mg、Fe、Ca、Cu の濃度を ICP-AES により測定した。その後、1 mol 1⁻¹の KC1 溶液を添加して 2~3 日振とうした後、遠心分離を行って上澄み液を一部採取し、上澄み 液中に抽出された NH4⁺の濃度をイオンクロマトグラフにより測定し、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 NH4⁺量の合計より CEC を算出し た。

本試験は、令和2年度までに EPMA 観察、XRD 測定による鉱物同定、CEC 測定を実施した。 その結果、これらの分析においては、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。

令和3年度は、湿度制御 XRD 測定による試料の分析を実施し、ベントナイトの Cu 型化の可 能性について調査を行った。

2 試験結果

図 3.2-2 に、湿度制御下での XRD 測定より算出した試料中のモンモリロナイト底面間隔の 変化の相対湿度依存性を示す。図 3.2-2 に示すように、炭酸共存条件と炭酸非共存条件のど ちらの試料についても、モンモリロナイトの層間間隔の変化は1価の陽イオンである Na が層 間に存在する Na 型モンモリロナイトの層間間隔の変化と同じであった。このことから、試験 後の試料のモンモリロナイトの層間にも1価の陽イオンが存在していると考えられる。また、 図 3.2-3 に、CEC 測定時に実施した試験後試料のベントナイト層間からの浸出陽イオン量測 定結果を示す。浸出陽イオン量は、試料中の陽イオン交換サイトを NH4*で飽和させた際に、 NH4*イオンとの置換に伴い溶液中に浸出した陽イオンの濃度から算出した。図 3.2-3 に示す浸 出陽イオン量は、CEC で規格化した値として示す。図 3.2-3 に示すように、Na の浸出陽イオ ン/CEC 比が約 1 となり、この結果から、層間陽イオンはほぼ Na イオンであると推定された。 この結果は、測定した層間間隔の変化と整合する結果であった。なお、浸出陽イオン測定の 結果では、Ca も CEC の 7 割程度検出されているが、これはクニゲル V1 に元々含まれるカル サイトから溶出した Ca と推定される。このことから、酸化性雰囲気・炭酸共存下の条件にお いても、試験後のベントナイトは Na 型のままであり、銅の腐食に伴う Cu 型化は起こらない と推測される。



(酸化性雰囲気・炭酸共存条件)



図 3.2-3 浸出陽イオン量測定結果 (酸化性雰囲気・炭酸共存条件)

2) 低酸素雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験(試験 B)

① 試験手順および条件

本試験では、廃棄体定置直後に残存する酸素が消費され、還元条件になった環境であり、 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 1)項に記載の酸化性雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験と同じ である。

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1ppm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 1⁻¹の NaCl 溶液に 0.05 mol 1⁻¹の NaHCO₃溶液と 0.001 mol 1⁻¹の Na₂S 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 1⁻¹の NaCl 溶液 に 0.001 mol 1⁻¹の Na₂S 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)項に記載の酸化性雰囲気・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、雰囲気制御グロ ーブボックス外でも低酸素雰囲気を維持するため、酸素透過率の低い素材の保存袋に酸素吸 収剤とともに溶着して封入し、それをさらに同様の方法で酸素吸収剤とともに封入して二重 梱包の状態とした。保存袋に封入した試験カラムは、雰囲気制御グローブボックスより搬出 し、50 ℃の恒温槽内で 218 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、表 3.2-3 に示す手法により 分析を行った。

令和3年度の分析では、EPMAによる圧縮ベントナイトの変質状況の調査と、XRD 測定による鉱物同定を行った。EPMA 観察と XRD 測定の手順は、前述の1)項に記載の酸化性雰囲気・炭

酸共存下での銅粉カラム変質試験と同じである。

2 試験結果

図 3.2-4 (a)に、炭酸を含まない 0.5 mol 1⁻¹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 400×400 μ m²であり、BEI が反射電子像、Cu、S、Fe、Si、 A1、Ca、C で示された画像が各元素のマッピング分析結果である。図 3.2-4 (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、銅 粉より周囲のベントナイト中に Cu が移行していることも確認できる。また、図中に白矢印で 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。令和 2 年度までに分析を実 施した酸化性雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験(試験 A)等でも硫化銅の生成が観 察されており、本試験でも同様の現象が観察されたものと考えられる。

図 3. 2-4(b)に、0. 45 mol 1⁻¹の NaCl 溶液に 0. 05 mol 1⁻¹の NaHCO₃ 溶液と 0. 001 mol 1⁻¹の Na₂S 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 験試料においても、図 3. 2-4(a)に示す炭酸を含まない溶液で実施した試験と同様に、銅粉よ り周囲のベントナイト中に Cu が移行していることが確認できるとともに、図中に白矢印で示 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. 2-4(a)と図 3. 2-4(b)を比較しても、観察結果に大きな違いは見られず、EPMA 分析結果から は、低酸素雰囲気においても炭酸の共存による影響は観察されなかった。

図 3.2-5(a)に、炭酸を含まない 0.5 mol 1⁻¹の NaCl 溶液において実施した試験の XRD 測定 結果を、図 3.2-5(b)に 0.45 mol 1⁻¹の NaCl 溶液に 0.05 mol 1⁻¹の NaHCO₃ 溶液と 0.001 mol 1⁻¹の Na₂S 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、銅粉の腐食等により生成し 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 3.2-5(a))と炭酸共存下(図 3.2-5(b))のピークを比較しても大き な相違は見られず、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。



200 μm

図 3.2-4(a) 低酸素雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験試料の EPMA 分析結果(約 400×400 μm²) (0.5 mol 1⁻¹ NaCl 溶液下)



200 μm

図 3.2-4(b) 低酸素雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験試料の EPMA 分析結果(約 400×400 μm²)

 $(0.45 mol 1^{-1} NaC1 + 0.05 mol 1^{-1} NaHCO_3 + 0.001 mol 1^{-1} Na_2S 溶液)$



NaHCO₃ + 0.001 mol 1⁻¹ Na₂S 溶液下

図 3.2-5 低酸素雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験試料の XRD 測定結果

3)低酸素雰囲気・鉄共存下での銅粉カラム変質試験(試験C)

試験手順および条件

本試験では、廃棄体定置直後に残存する酸素が消費され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。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 1)項に記載の酸化性雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験と同じであ る。

試験は、前述の 2)項に記載の低酸素雰囲気・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 1⁻¹ NaCl 溶液に 1×10⁻⁴ mol 1⁻¹ FeCl₂溶液を添加した溶液とし、比較のために FeCl₂溶液を含まない 0.5 mol 1⁻¹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 1⁻¹の亜ジチオン酸ナトリウム (Na₂S₂O₄)を添加した。試験カラムを浸漬したテフロン製容器は、雰囲気制御グローブボックス外でも低酸素雰囲気を維持するため、酸素透過率の低い素材の保存袋に酸素吸収剤とともに溶着して封入し、それをさらに同様の方法で酸素吸収剤とともに封入して二重梱包の状態とし、80 ℃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、表 3.2-3 に示す分析を行った。

本試験については、令和2年度に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、XRD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なかった。

令和3年度においては、EPMA 観察、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調査を行った。EPMA 観察とCEC 測定の手順は、前述の1)項に記載の酸化性雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験と同じである。

2 試験結果

図 3.2-6(a)に、FeCl₂溶液を含まない 0.5 mol 1⁻¹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 400×400 μ m²であり、BEI が反射電子像、Cu、S、Fe、Si、 A1、Ca、C1 で示された画像が各元素のマッピング分析結果である。低酸素雰囲気・炭酸共存 下での銅粉カラム変質試験と同様に、銅粉より周囲のベントナイト中に Cu が移行しているこ と、図中に白矢印で示す黄鉄鉱粒子周辺で Cu が硫化銅として沈殿していることがマッピング 分析より観察できる。一方、図中に赤矢印で示す C1 濃度が高い領域は、溶解度の低い CuCl が沈殿している部分と考えられ、この沈殿はこれまでに実施した試験では観察されておらず、 本試験に特有の現象と考えられる。これまでの低酸素雰囲気下での試験においては、試験溶 液として NaCl 溶液に Na₂S 溶液を添加した溶液を使用しており、黄鉄鉱粒子周辺以外でも、 ベントナイト中に移行した Cu は主に硫化銅として沈殿していることが観察されている。これ に対し、本試験においては、Na₂S 溶液の添加により Fe(II)イオンが FeS として沈殿すること を避けるため、Na₂S を含まない溶液を使用している。そのため、ベントナイト中に移行した Cu は、黄鉄鉱粒子周辺では硫化銅として存在しているものの、銅粉末周辺では硫化銅ではな く CuCl として沈殿したと考えられる。

図 3.2-6(b)に、0.5 mol 1⁻¹の NaCl 溶液に 1×10⁻⁴ mol 1⁻¹ FeCl₂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 FeCl₂ 溶液を含まない溶液で実施した試験と同様に、銅粉より周囲のベントナイト中に Cu が移行していることが確認できるとともに、図中に白矢印で示す部分に、黄鉄鉱粒子周辺で Cu が硫化銅として沈殿していること、赤矢印で示す部分に CuCl が沈殿していることが観察できる。一方、図 3.2-6(a)と図 3.2-6(b)を比較しても、観察結果に大きな違いは見られず、EPMA 分析結果からは、鉄の共存による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 1⁻¹の NaCl 溶液に 1×10⁻⁴ mol 1⁻¹ FeCl₂溶液 を添加した試験溶液において実施した試験試料の CEC は、測定誤差を考慮するとクニゲル V1 の CEC 測定値とほぼ同じであると判断でき、溶液中に含まれる鉄がベントナイトの変質に及 ぼす影響は観察されなかった。



200 µm

図 3.2-6(a) 低酸素雰囲気・鉄共存下での銅粉カラム変質試験試料の EPMA 分析結果 (約 400×400 μm²) (0.5 mol 1⁻¹ NaCl 溶液下)



200 µm

図 3.2-6(b) 低酸素雰囲気・鉄共存下での銅粉カラム変質試験試料の EPMA 分析結果 (約 400×400 μm²) (0.5 mol 1⁻¹ NaCl + 1×10⁻⁴ mol 1⁻¹ FeCl₂溶液下)



図 3.2-7 銅粉カラム変質試験試料の CEC 測定結果

(3) 処分環境での緩衝材変質の可能性の評価

令和2年度までに実施した基礎的な変質挙動の評価に関する試験(表 3.2-2)や、炭酸共存 下および鉄共存下での変質挙動の評価に関する試験(表 3.2-3)においては、各試験条件にお ける変質挙動の評価や変質メカニズムの理解を目的に調査を実施した。これらの調査におい ては、ベントナイト中に移行した銅が硫化銅やCuClなどの形態で存在していることや、実施 した分析の範囲内では銅の腐食に伴うモンモリロナイトの変質が起こっていないことを確認 することができたものの、これらの試験での試験期間は1条件のみであることから、変質挙 動の時間変化については検討を行えていない。一方で、処分環境での緩衝材の変質の可能性 を評価するためには、銅の腐食の時間変化に伴う緩衝材の変質挙動の変化を把握し、変質挙 動の予測を行うことが必要である。特に、使用済燃料の直接処分においては、数千年~数万 年以上の長期間にわたって銅製容器の腐食が継続することが想定される。そのため、このよ うな長期間にわたる銅の腐食を想定した緩衝材の変質の可能性について、実験的に評価する ことが必要である。

室内試験で実施可能な試験期間を大幅に超える長期間の変質挙動を評価するためには、実際の処分場条件とは一部異なる条件を設定して変質を促進させ、長期間への評価に適用可能 な試験結果を取得する必要がある。(2)で実施した試験においては、銅粉を用いたカラム変質 試験により、銅とベントナイトの接触表面積を増加させることで変質を促進しつつ観察可能 な条件での試験を実施してきている。そのため、長期間の変質挙動の評価を目的とする試験 においても銅粉カラム変質試験を試験手法として用いる。評価においては、銅の腐食に伴う 緩衝材の変質挙動について、変質試験により変質量の時間変化を観察するとともに、銅の腐 食量と緩衝材の変質量の両方を定量的に取得し、その関係について検討し、関係式としての 記述を試みる。この関係式に基づいて、処分環境で想定される銅腐食量などに基づき、長期 間での緩衝材の変質の可能性について評価する。

表 3.2-4 に本試験の条件を示す。これまでに実施した炭酸共存下および鉄共存下での変質 挙動の評価に関する試験(表 3.2-3)の結果からは、炭酸および鉄共存が緩衝材の変質挙動に 及ぼす顕著な影響は観察されていない。そのため、本評価では基礎的な変質挙動の評価に関 する試験(表 3.2-2)と同様に、炭酸および鉄が共存しない条件を対象とすることとした。試

3 - 58

験手法は銅粉カラム変質試験とし、緩衝材として乾燥密度 2.1 Mg m⁻³のクニゲル V1 を使用し た。銅粉の混合率は 30%とした。試料の分析は、緩衝材の変質量の分析として、これまでに実 施してきている EPMA 観察、XRD 測定(鉱物同定・Cu 型化の分析)、CEC 測定を実施する。ま た、本評価においては、これまでの分析に加えて、新たに銅腐食量の評価が必要となる。銅 腐食量の評価として、試験前後での銅粉の粒径変化の観察と、緩衝材中への銅移行量の分析 を実施する。銅粉粒径変化の観察は、試験後にクニゲル V1 試料より銅粉を分離し、銅粉の電 子顕微鏡画像を取得した後、その画像解析により粒径分布を取得する。同様の手法で粒径分 布を取得した試験未使用の銅粉と試験後試料より分離した銅粉の粒径の差より、銅の腐食量 を算出する。緩衝材中への銅移行量の分析は、試験後試料の EPMA 画像より緩衝材中へ移行し た銅の濃度を解析し、銅の腐食量を算出する。両手法での腐食量算出結果を比較し、より正 確に評価できていると考えられる手法の結果を採用する。

本試験においては、変質試験により変質量の時間変化を観察し、銅の腐食量と緩衝材の変 質量を定量的に評価することを目的としている。一方で、これまで実施してきた試験におい ては顕著な変質は観察されておらず、本試験においても、十分な変質を観察できない可能性 がある。このことから、本試験においては1年程度の長期にわたって試験を実施し、緩衝材 の変質量を増加させることを試みる。また、緩衝材の変質が確認できなかった場合には、CEC の測定誤差などに起因する緩衝材変質量の評価誤差範囲を元に、緩衝材が変質する可能性の ある量を算出し、処分環境で想定される長期間での変質量について評価を行う。

令和3年度は、表3.2-4の条件で試験試料を作製し、試験を開始した。試料の分析は今後 実施する予定である。

直接	<u>封睑浓游 封驗期問</u>		分析		
	 	武鞅州间	緩衝材変質量	銅腐食量	
酸化性	0.5 mol l ⁻¹ NaCl 溶液	数ヶ月~1年	EPMA XRD(鉱物同定・	銅粉粒径変化の観察	試験⑤
低酸素	人工海水+ 0.01 mol l ⁻¹ Na ₂ S 溶液	程度で、各条 件3点程度	Cu 型化の分析) CEC 測定	緩衝材中銅移行量の 分析	試験⑥

表 3.2-4 処分環境での緩衝材変質の可能性の評価に関する試験条件

3.3 まとめ

(1) 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全炭酸濃度の影響を評価するために、マトリクス溶解指標 物質として²⁶Mg を固溶させた UO₂ペレットの浸漬試験を実施し、²⁶Mg のペレットからの溶出 量からマトリクス溶解速度を導出した。その結果、マトリクス溶解速度は炭酸濃度依存性を 有することが確認された。また、炭酸共存下での UO₂ペレットの溶出挙動を調査するため、UO₂ の電解還元析出物のラマン分析、および UO₂ペレット溶解試験の In-situ ラマン分析を実施 したが、ウランの溶解・再析出を裏付ける有意なラマンスペクトルは取得できなかった。こ れにより、令和 2 年度に観測された UO₂ペレット表面のラマンスペクトルの欠陥バンドの変 化は、UO₂の酸化状態の変化によるものと推察された。また、再析出 UO₂を SEM-EDX から峻別 できる可能性が示唆された。使用済燃料からの核種の瞬時放出挙動の評価に向けては、令和 2 年度に開始したふげん使用済実燃料を用いた浸漬試験の継続実施、並びに燃料全溶解試験 によるインベントリ分析を実施し、大気雰囲気下における評価対象核種の溶出挙動とともに その放出割合を明らかにした。その結果、大気雰囲気下においても、炭酸未添加の場合はウ ランの再沈殿が生じること、Cs、Sr、Tc といった瞬時放出率評価対象核種の放出割合には、 炭酸濃度がほとんど影響しないことが明らかとなった。また、Sr についてはウランと調和的 に溶解している挙動が確認された。

今後、より現実的な燃料溶解速度の評価に向けては、令和3年度実施した試験データの妥当性を確認することに加え、より処分環境に近い条件(浸漬期間、温度、Eh、H₂O₂濃度等)でのデータ取得を進めていく必要がある。また、本手法ではマトリクス溶解指標物質であるMgと燃料マトリクスのUO₂が調和的に溶解することを仮定しているが、この仮定が正しいことを検証するには、浸漬試験に供した(U,²⁶Mg)O₂ペレットの表面分析が有効であると考えられる。これらの試験を通じて、マトリクス溶解速度評価手法の信頼性を向上させることで、燃料集合体の長期溶解速度に炭酸濃度依存性を組み込む形で更新することを試みる。

使用済燃料からの瞬時放出率の評価に向けては、使用済燃料の燃焼度など組成の違いが核 種の放出割合に及ぼす影響を調査するとともに、より処分環境に近い、嫌気性雰囲気での実 燃料を用いた浸漬試験によるデータ取得を進める。瞬時放出率の設定値と、ふげん使用済燃 料を用いた実験値の比較検討を行うことで、現状の設定手法の妥当性を評価するとともに、 設定手法の高度化に向けた課題抽出を行う。

(2) 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、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。銅粉カラム変質試験においては、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条件で試験を実施し、緩衝材の変質(他鉱物 への変質、モンモリロナイトのCu型化)に及ぼす炭酸および鉄共存の影響について調査した。 令和3年度は、酸化性雰囲気・炭酸共存下での試験試料の湿度制御XRD測定によるベントナ イトのCu型化の分析、低酸素雰囲気・炭酸共存下での試験試料のEPMA観察およびXRDによ る鉱物同定、低酸素雰囲気・鉄共存下での試験試料の EPMA観察および CEC 測定を実施した。 分析の結果、いずれの試験においても、モンモリロナイトの他鉱物への変質やCu型化は観察 されておらず、炭酸および鉄共存に起因する緩衝材の変質は起こらないと推測される。また、 使用済燃料の直接処分において想定される長期間の銅との接触に伴う緩衝材の変質について 評価するため、試験期間をパラメータとした変質試験に着手した。本試験では、これまで実 施してきた試験においては顕著な変質は観察されていないことから、1 年程度の長期にわた って変質挙動を観察し、緩衝材の変質量を増加させることを試みるとともに、緩衝材の変質 が確認できなかった場合には、CEC の測定誤差などに起因する緩衝材変質量の評価誤差範囲 を元に、緩衝材が変質する可能性のある量を算出する。今後、本試験により銅の腐食量と緩 衝材の変質量を定量的に評価し、その関係について検討することにより、使用済燃料の直接 処分で想定される長期間にわたる銅との接触に伴う緩衝材の変質について評価を行う。

【参考文献】

- Albert Martínez-Torrents., Daniel Serrano-Purroy., Rosa Sureda., Ignasi Casas, Joan de Pablo. (2017): Instant release fraction corrosion studies of commercial UO₂ BWR spent nuclear fuel, Journal of Nuclear Materials, Journal of Nuclear Materials 488 (2017) 302-313.
- Bruno Jordi, Casas, I., Cera, E., de Pablo, J., GimÉnez, J., Torrero, M. E. (1995): Uranium (IV) Dioxide and Simfuel as Chemical Analogues of Nuclear Spent Fuel Matrix Dissolution. A Comparison of Dissolution Results in a Standard Naci/NaHCO₃ Solution, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 353, pp. 601-608.
- Cachoir, C., Carbol, P., Cobos-Sabate, J., Glatz, J. P., Grambow, B., Lemmens, K., Martínez-Esparza, A., Mennecart, T., Ronchi, C., Rondinella, V. V., Serrano-Purroy, D., Spahiu, K., Wegen D., and Wiss, T. (2005): Effect of Alpha Irradiation Field on Long-Term Corrosion Rates of Spent Fuel, Contract No. FIKW-CT-2001-00192 SFS, European Commission, Deliverable D9.
- Casas, I., de Pablo1, J., Clarens, F., Gimenez, J., Merino, J., Bruno, J., Martinez-Esparza, A. (2009): Combined effect of H₂O₂ and HCO₃- on UO₂(s) dissolution rates .under anoxic conditions, Radiochim. Acta 97, pp. 485-490.
- Cera, E. Bruno, J. Duro, L. Eriksen, T. (2006): Experimental determination and chemical modelling of radiolytic processes at the spent fuel/water interface, Long contact time experiments.
- De Pablo, J., I. Casas, Gimenez, J., Molera, M., Torrero, M. E. (1997): Effect of temperature and bicarbonate concentration on the kinetics of UO_z(s) dissolution under oxidizing Conditions, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 465, pp. 535-542.
- 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.
- Evins, L.Z., Juhola, P. and Vähänen, M. (2014): REDUPP final report, Working Report 2014-12, Posiva Oy.
- 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.
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2021): 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.
- Gordon, S. Hart, E.J. Matheson, M.S. Rabani, J. Thomas, J.K. (1963): Reactions of the hydrated electron, Discuss Faraday Soc. 36 193-205.
- Gray, W. J., Leider, H. R. Steward, S. A. (1992): Parametric study of LWR spent fuel dissolution kinetics, J. Nucl. Mater, 190, pp. 46-52.
- Gray, W. J., Thomas, L. E., Einziger R. E. (1993): Effects of Air Oxidation on the Dissolution Rate of LWR Spent Fuel, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 294, pp. 47-54.
- Herm, M., González-Robles, E., Iglesias, L., Carbol, P., Serrano-Purroy, D., Barreiro, A., Roth, O., Casas, I. (2019): DISCO Grant Agreement: 755443 DELIVERABLE D3.1, DISCO, Ref. Ares (2019)4117760 - 28/06/2019.
- Ho Mer Lin, D., Manara, D., Lindqvist-Reis, P. Fanghänel, T., Mayer, K. (2014): The use of different dispersive Raman spectrometers for the analysis of uranium compounds, Vibrational Spectroscopy, Vol. 73, pp. 102-110.
- King, F., Ahonen, L., Taxén, C., Vuorinen, U. and Werme, L. (2002): Copper corrosion under expected conditions in a deep geologic repository, POSIVA 2002-01.
- Kitamura, A., Doi, R. and Yoshida, Y. (2010): Evaluated and estimated solubility of some elements for performance assessment of geological disposal of high-level radioactive waste using updated version of thermodynamic database, Proc. 13th Int. Conf. Environmental Remediation and Radioactive Waste Management (ICEM2010), October 2010, Tsukuba, Japan, Paper No. ICEM2010-40172.
- Kitamura, A. and Akahori, K. (2017): Effect of carbonate concentration on the dissolution rates of UO₂ and spent fuel - A review, In: Advances in Materials Science for Environmental and Energy Technologies VI, Ohji, T. et al. eds., Wiley, pp. 133-144.

- 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.
- Koyama, S. OSAKA, M. SEKINE, T. MOROZUMI, K. NAMEKAWA, T. ITOH, M. (2003): Measurement of Burnup in FBR MOX Fuel Irradiated to High Burnup, J Nucl Sci Technol. 40 998–1013.
- 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.
- Madejová, J., Pálková, H. and Komadel, P. (2006): Behaviour of Li⁺ and Cu²⁺ in heated montmorillonite: Evidence from far-, mid-, and near-IR regions, Vib. Spectrosc., Vol. 40, pp. 80-88.
- Magnin, M., Jégou, C., Caraballo, R., Broudic, V., Tribet M., Peuget, S., Talip, Z. (2015): Oxidizing dissolution mechanism of an irradiated MOX fuel in underwater aerated conditions at slightly acidic pH, Jounal of Nuclear Materials, Vol. 462, pp. 230-241.
- Maier, A. C., Kegler, P., Klinkenberg, M., Baena, A., Finkeldei, S., Brandt, F., Jonsson, M. (2020): On the change in UO₂ redox reactivity as a function of H₂O₂ exposure, Dalton Transaction, Vol.49, pp.1241-1248.
- 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 UO₂ boiling water reactor spent nuclear fuel, J. Nucl. Mater., Vol. 499, pp. 9-17.
- Metz, V., Herm, M., Clarens, F., Kokinda, J., de Pablo, J., Carbol, P., Serrano-Purroy, D, Barreiro, A., Roth, O. (2020): DISCO Grant Agreement: 755443 DELIVERABLE D3.2, DISCO, Ref. Ares (2020)5064588 - 28/09/2020.
- Momotov, V.N. Erin, E.A. Volkov, A.Yu. Tikhonova, D.E. Kupriyanov, A.S. Shadrin, A.Yu. (2021): Determining the Specific Activity of Carbon-14 in Samples of Irradiated Mixed Nitride Uranium-Plutonium Nuclear Fuel, Radiochemistry+. 63 364-368.
- Nguyen, Son N., Weed, Homer C., Leider, Herman R., Stout, Ray B. (1992): Dissolution Kinetics of UO₂. I. Flow-Through tests on UO_{2.00} Pellets and Polycrystalline Schoepite Samples in Oxygenated, Carbonate/Bicarbonate Buffer Solutions at 25° C, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 257, pp. 339-344.
- NIST (2022): Basic Atomic Spectroscopic Data "Magnesium (Mg)", https://physics.nist.gov/PhysRefData/Handbook/Tables/magnesiumtable1.htm (2022 年1月15日閲覧).
- Ollila, K. (2008): Dissolution of unirradiated UO₂ and UO₂ doped with ²³³U in lowand high-ionic-strength NaCl under anoxic and reducing conditions, Working Report 2008-50, Posiva Oy.

- Ouchi, K., Otobe, H., Kitatsuji, Y., and Yamamoto, M. (2017): Deposition of uranium oxide following the reduction in weak acid solution using electrochemical quartz crystal microbalance (EQCM), ECS Transactions, Vol.75, pp.51-57.
- Röllin, S., Spahiu, K., & Eklund, U. B. (2001). Determination of dissolution rates of spent fuel in carbonate solutions under different redox conditions with a flow-through experiment. Journal of Nuclear Materials, 297(3), 231-243.
- Steward, S A., Gray, W J. (1994); Comparison of uranium dissolution rates from spent fuel and uranium dioxide, Proc. 5th Annual Intl. High-Level Radioactive Waste Management Conference 4, 2602-2608.
- Stroes-Gascoyne, S., Garisto, F., Betteridgea, J.S. (2004): The effects of alpharadiolysis on UO₂ dissolution determined from batch experiments with ²³⁸Pu-doped UO₂, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 824, pp. 175-181.
- Ulrich, K.-U., Ilton, E. S., Veeramani, H., Sharp, J. O., Bernier-Latmani, R., Schofield, E. J., Bargar, J. R. and Giammar, D. E. (2009): Comparative dissolution kinetics of biogenic and chemogenic uraninite under oxidizing conditions in the presence of carbonate, Geochim. Cosmochim. Acta, Vol. 73, pp. 6065-6083.
- 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

その他の代替処分オプションについての調査

4 章詳細目次

4. その他の代替処分オプションについての調査 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-1
(1) 本項目の背景と目的 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-1
(2) 超深孔処分の概念や評価事例の調査・分析	4-2
1) 米国 Deep Isolation 社の超深水平処分の安全評価の検討事例 ・・・・・・・	4-3
2) エストニアにおける Deep Isolation 社の超深水平処分の適合性評価の	
事例 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	4-6
3) ロシア地質学研究所が超深孔処分の課題と展望についてまとめた事例 ・・・・	4-9
4) 超深孔処分の概念や評価事例の調査・分析のまとめ ・・・・・・・・・・・	4-11
(3) 超深孔処分に係る関連技術の調査・分析	4-12
1) 超深孔処分に係る関連技術の調査・分析を効率的に進めるためのアプ	
ローチ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-12
① アプローチの概要 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-13
② 調査・分析の基本手順等の検討 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-13
 掘削技術に関する調査・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-20
① 掘削装置の性能の仮定 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-21
② 地下構造モデルの仮定 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-22
③ 仮定した地下構造モデルについて想定される掘削・ケーシング技術の	
整理 ·····	4-29
④ 仮定した地下構造モデルに対するケーシング計画の検討 ・・・・・・・・	4-30
⑤ 仮定した地下構造モデルに対する掘削計画および掘削の成立性に関する	
検討	4-33
⑥ 掘削技術に関する調査のまとめ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-41
3)地質環境調査技術に関する調査・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-42
 応力場推定のための調査技術 ······ 	4-42
 ⑧ 間隙水圧推定のための調査技術 ······ 	4-45
 第石強度推定のための調査技術・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-47
④ 地質環境調査技術に関する調査のまとめ ・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-49
4) 設計・安全評価に係るデータ取得技術に関する調査 ・・・・・・・・・・・	4-49
 透水係数に係るデータ取得技術 ······ 	4-49
② 熱フラックスに係るデータ取得技術	4-52
③ 設計・安全評価に係るデータ取得技術に関する調査のまとめ ・・・・・・	4-54
5) 超深孔処分の適用性の検討などに向けた関連技術の分析・整理 ・・・・・・	4-54
(4) まとめ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4-57
参考文献 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	4-59

4. 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 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)では、高レベル放射性廃棄物の最終処分方式とし て、現在各国が取り組んでいる地層処分のほかに、代替処分概念として、海洋投棄、海洋 底下処分、沈み込み帯への処分(以上はロンドン条約により禁止)、氷床処分(南極条約 により禁止)、超深孔処分、岩石溶融処分、井戸注入処分、宇宙処分などについての国際 的な評価が示されている。また、地層処分の安全性の不確実性を今後の研究開発などによ り低減していくとともに、今後の技術進捗によって潜在的な課題が克服できれば有用な 手段としての検討の対象となりうると考えられる代替処分オプションについても、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、代替処分オプション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、放射性廃棄物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オプション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オプションとし 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、その他の代替処分オプションについての調査として、先行事業の内容を 発展的に継続し、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 での最新の事例検討や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事例検討や関連情報等の調査については、 令和2年度までに、超深孔処分技術および関連しう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3年度 は、超深孔処分の評価事例や関連分野についての最新の情報・技術の調査・分析の拡充 を図るとともに、超深孔処分の実施に必要な技術や重要な情報等の整理を効率的に行え るようにするために、超深孔処分の実現に向けた事業段階ごとの要求事項とそれを満た すための設計要件等を具体化し、要求事項・設計要件とそれらを実現するために必要な 技術や条件を関連付けることを試みる。さらに、わが国における超深孔処分の現段階で の技術的実現性や課題・留意点をわかりやすい形で提示していくための技術や情報の整 理・取りまとめの方法の具体化と試行を行う。

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、令和2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 の影響に着目した水理・核種移行についての予察的な解析等による定量的知見の蓄積を 進めた。令和3年度は、これらの成果を要求事項や設計要件と関連づけること、また現 段階での技術的実現性や課題・留意点の整理・取りまとめの方法の具体化と試行に反映 していく。

(2) 項以降において、以下の構成で令和3年度の実施内容を示す。

- 超深孔処分の概念や評価事例の調査・分析((2)参照)
- 超深孔処分に係る関連技術の調査・分析((3)参照)
- まとめ((4)参照)

(2) 超深孔処分の概念や評価事例の調査・分析

本節では、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 の検討事例を中心に調査を実施した。米国 Deep Isolation 社では、最新の掘削技術を活 用した超深孔処分の概念として、地下深くの水平掘削孔に放射性廃棄物を処分する概念 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 を処分する概念を提案している(図4-1参照)。



図 4-1 Deep Isolation 社が提案する処分概念のイメージ

令和3年度の超深孔処分についての最新の検討事例の調査内容を以下に示す。

- 米国 Deep Isolation 社の超深孔水平処分の安全評価の検討事例(後述1)参照)
- エストニアにおける Deep Isolation 社の超深孔水平処分の適合性評価の事例 (後述 2) 参照)
- ロシア地質学研究所が超深孔処分の課題と展望についてまとめた事例
 (後述 3)参照)
- 超深孔処分の概念や評価事例の調査・分析のまとめ(後述4)参照)

1) 米国 Deep Isolation 社の超深水平処分の安全評価の検討事例

米国 Deep Isolation 社では、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 安全評価を令和2年度に実施している(Deep Isolation Inc, 2020)。令和2年度に実施 した予備的な閉鎖後安全評価に対して、処分深度やシナリオのバリエーションをアップ デートした報告が実施されており(Finsterle et al., 2021)、この報告に関するウェビ ナーも開催されている(Deep Isolation Inc, 2021a)。本項では、上記の閉鎖後安全評価 事例のアップデートとウェビナーのQ&A について調査した結果を示す。

閉鎖後安全評価事例のアップデートの概要:

- 処分深度を 1,500 mに変更(既報の Deep Isolation Inc (2020)では処分深度 1,000 m)。
- 破壊的シナリオを拡充。以下の条件の組合せを考慮したシナリオを設定
 - 緩衝材および埋戻し材が健全/劣化
 - 1つの断層/2つの断層を考慮

モデル体系やその他の情報:

- 解析コードは、既報の Deep Isolation Inc (2020) と同じ iTOUGH2 を使用。
- PWR 燃料集合体(濃縮度 4.5 wt%、燃焼度 50 GWd Mt⁻¹、冷却期間 30 年)1 体を内 包する 153 個の廃棄物キャニスターを想定
- 人工バリアは、容器、緩衝材、埋め戻し材、ケーシング、セメント、プラグから 構成。
- 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。
- 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。
- 線量の評価ポイントは帯水層としている。

⁽既報の Deep Isolation Inc (2020) では、1つの断層のシナリオや早期の処分容 器破損シナリオについての解析を実施)。

シナリオ・核種移行パラメータ:

- 予備的な閉鎖後安全評価では、基本シナリオの他に、破壊的シナリオを設定。
- 評価対象核種は I-129。
- 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。
- 破壊的シナリオは、緩衝材や埋戻し材の品質(健全性/劣化)と断層の影響(1つの断層の影響/2つの断層の影響)を組み合わせたシナリオを設定している。
 令和3年度の事例で設定された4つの破壊的シナリオを以下に示す。
 - 破壊的シナリオ1:緩衝材および埋め戻し材健全+2つの断層
 - 破壊的シナリオ2:緩衝材および埋め戻し材劣化(低品質)+2つの断層
 - 破壊的シナリオ3:緩衝材および埋め戻し材健全+1つの断層
 - 破壊的シナリオ4:緩衝材および埋め戻し材劣化(低品質)+1つの断層
- 各シナリオにおける透水係数設定を表 4-1 に示す。
- I-129の間隙水中の拡散係数は 2×10⁻⁹ m² s⁻¹を設定している。これはストークス ーアインシュタインの式に従って、深部のより高い温度に対して計算するとして いるが、温度等の具体的な数値についての記述は見当たらなかった。
- I-129の人工バリア内での収着は考慮していない。また、地圏での分配係数は 10⁻⁵ m³ kg⁻¹を仮定している。

領域	基本シナリオに おける透水係数* [m s ⁻¹]		破壊的シナリオにおける透水係数* [m s ⁻¹]			
			緩衝材および埋め戻 し材が健全		緩衝材および が劣化(低品	[、] 埋め戻し材 質)
	水平方向	鉛直方向	水平方向	鉛直方向	水平方向	鉛直方向
帯水層	10^{-5}	10^{-6}	<i>←</i>		←	-
表層	10^{-7}	10^{-8}	\leftarrow		←	
母岩	10^{-10}	10^{-11}	←		←	
塩水層	3×10^{-9}	3×10^{-10}	←		←	
緩衝材	10^{-9}	10^{-10}	←		0.98×10 ⁻⁶	0.98×10 ⁻⁷
プラグ	10^{-9}	10^{-10}	<i>←</i>		0.98×10^{-6}	0.98×10 ⁻⁷
埋め戻し材	10^{-8}	10^{-9}	←		0.98×10^{-6}	0.98×10^{-7}
断層コア**		I		10^{-7}		-7

表 4-1 各シナリオにおける透水係数の設定値

*原文は固有透過係数[m²]で示されており、10⁻¹² m²は透水係数 10⁻⁵ m s⁻¹と等価。

** 原文は透水量係数(transmissivity)で示されており、ここでは同じ値を使用している文献 (Finsterle et al., 2020)に記載の透水係数を引用。

解析結果:

- 基本シナリオの 1-129 の最大線量は 150 万年後で 1.3×10⁻⁴ mSv y⁻¹であった。
- 破壊的シナリオの I-129 の最大線量については、2 つの断層が存在するシナリオ (破壊的シナリオ1と2)の最大線量が最も高く 50 万年後で2.3×10⁻⁴ mSv y⁻¹で あるものの、基本シナリオの約2倍程度の線量となっている。これは、帯水層へ の断層やアクセス坑道に沿った上方向の移行よりも、断層やアクセス坑道から表 層への横方向への核種の移行が支配的であるため、基本シナリオと比較しても最 大線量がそれほど大きくならなかったと考えられる。

ウェビナーでの Q&A:

上述の米国 Deep Isolation 社がアップデートを実施した予備的な閉鎖後安全評価に 関するウェビナーが 2021 年 3 月 30 日/31 日に開催され、本ウェビナーにおける質疑 応答(Q&A)が 2021 年 5 月に公開されている(Deep Isolation Inc, 2021a)。ここで は、主な Q&A を表 4-2 に示す。なお、本ウェビナーにおける質疑応答の調査結果に対 して、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・留意点等を分析・整 理した結果については後述(3)5)項に示す。

No	質問(Q)	回答(A)
13	ケーシング (casing)の 環状部 (annulus)を介し て地層から密封される 場合でも、坑道をシーリ ングおよびプラグする のか。	ケーシングには長期間のバリア機能はない。プラグおよび シーリングの有効性を高めるため、ケーシングは坑道をシ ーリングする前にアクセス坑道から取り外される。ケーシ ングは、(建設段階〜操業段階の)掘削孔およびその周辺 の帯水層を保護し、キャニスターの定置(および回収可能 性)を容易にするために必要である。
18	超深水平処分に適して いないとされた地層は あるか。	比較的透水性の高い岩石があり、母岩や表層が健全でなく、 かつ上方向への流れがある地層(上方向の流れがあること を示す同位体分析による証拠がある)の場合、隔離のため の要件を満たす可能性は低い。また処分場の下部に地下水 や炭化水素、採掘可能な鉱石などの資源が存在する場合も 避ける必要がある。
22	安全評価において、過剰 に加圧された領域を考 慮したか。	考慮した。処分場の機能に影響を及ぼすような過剰な圧力 や過小な圧力に関する感度解析は、文献(Finsterle et al., 2020)の6.2.2節のノミナルケースで述べられてい る。具体的には、処分場下部における塩水の形成は過剰に 加圧され、移動可能な水を無限に供給し、処分場システム 全体を通る全体的な上方向への流れを維持すると想定され る。特に、再活性化された断層に向かって不十分に密閉さ れた廃棄区画内や垂直アクセス坑道に沿って、水を押し出 す力が生じる。異常圧力は明らかなリスクである。

表 4-2 ウェビナーでの主な Q&A (1/2)

表 4-2 ウェビナーでの主な Q&A (2/2)

No	質問(Q)	回答(A)
28	文献(Finsterle etal., 2021)の処分場モデルは、障害が生じてもまだ機能することを示している。しかし、信頼性を構築するためには、高温、高圧などの様々な環境下で母岩と埋め戻し材との間の材料研究を行う必要がある。DeepIsolation 社では、材料試験を実施することを企図しているか?	超深水平処分の概念モデルおよび核種移行パラメータは、 実験的な研究やフィールドにおける観察およびナチュラル アナログから得られた洞察等に基づくべきであり、これら のパラメータが数値的に測定値と異なる可能性があるとい うことを考慮する必要がある。埋め戻し材および周囲の地 層との相互作用は、特に(通常深度の)放射性廃棄物処分 の分野において非常に詳細に研究されてきた。これらの研 究は、理論的研究から実験室における実験および野外試験 に及ぶ。Deep Isolation 社では、このような通常処分の核 種移行パラメータに係る研究の知見にアクセスすることが でき、坑道のプラグ、シーリングおよび緩衝材等の材料や 核種移行パラメータ設定に使用することが可能である。こ れらは母岩の適合性を分析するのに役立つと考える。
36	ー旦貯蔵された使用済 燃料の回収可能性につ いてどのような見通し があるのか。	我々の目標は、頑健で安全なアプローチを用いて回収を実 現可能にすることである。キャニスターには、後端に特殊 なコネクタがあり、配置ケーブルへの固定、固定解除およ び回収のための再固定が可能になっている。このシステム は、石油およびガス産業においてその信頼性が証明されて いるが、最初の固定メカニズムが故障した場合にバックア ップのための冗長性が組み込まれている。Deep Isolation 社は 2019 年に、坑道の水平なセクションにキャニスターを 定置後、ケーブルとキャニスターを切り離してケーブルを 回収するデモンストレーションを行った。このような回 収は、石油およびガス産業において日常的に行われており、 我々の手法で回収に失敗した場合でも回収を可能にするよ うな特別な「釣り(fishing)」技術も存在する。
37	ー旦廃棄された使用済 燃料の回収可能性につ いてのどのような見通 しがあるのか。	我々の目標は、垂直アクセス坑道が密閉されるまで、堅牢 で安全なアプローチを使用して回収を実現可能にすること である。坑道シーリング後の回収は依然として可能である が、これは処分場にある廃棄体と同様である。廃棄された 廃棄体の処分場閉鎖後の回収可能性の場合、アクセス坑道 の埋め戻し材を除去するか、または廃棄体回収用の別の坑 道を新たに掘削する必要がある。
52	水平坑道への処分方法 はHLW (ガラス固化体) の処分に適しているか。	技術的には、坑道内に HLW のキャニスターを廃棄すること が可能である。HLW のキャニスターはより大きい可能性が あり、従ってより大きな直径の坑道を必要とする可能性が あるため、キャニスターの寸法に依存する。オフショア環 境では、資源抽出により適したより大きな直径の拡張坑井 (extended-reach well bore) について多くの事例がある。 掘削技術アドバイザーによる研究では、大深度における水 平坑道(45 cm)は、大陸棚から離れた場所の掘削およびケー シング技術を用いた適切な母岩層で実現可能であることが 示されている。掘削技術アドバイザーは、水平坑道用の特 殊な 57 cm のケーシングがまもなく利用可能になると予想 している。

2) エストニアにおける Deep Isolation 社の超深水平処分の適合性評価の事例

本項では、米国 Deep Isolation 社が実施したエストニア国内における同社の超深水平 処分概念の地質学的適用性に関する机上検討レポート (Deep Isolation Inc, 2021b) に ついて調査した結果を示す。



図 4-2 エストニアの位置(外務省, 2022)

北ヨーロッパのエストニア(図 4-2)では、2030年までに CO₂排出量を 70%削減し、2035 年までにシェールオイルを用いた火力発電を完全に停止するとしている。この目標を背 景として、2019年に民間企業 Fermi Energia 社が設立され、国の気候目標をサポートす る形で電力生産を推進している。Fermi Energia 社は、エストニアで小型モジュール炉 (SMR)を展開することを提案しており、超深孔処分で低コストな手段となりうる Deep Isolation 社の処分概念のエストニアでの潜在的な適合性を評価している。

超深水平処分の処分概念に適用する技術:

現段階において、Deep Isolation 社は、石油ガス開発における以下のような既存技術 を応用することで Deep Isolation 社の処分概念を実現するとしている。

- ・ 傾斜掘り(Directional Drilling):米国では、2007年から2018年の間に12万本以上の水平坑井が掘削されている。これらの坑井のほとんどは、直径25 cm以下の小さなケーシングを用いて建設されているが、メキシコ湾やアラスカのクックインレットなど、資源採掘に適したオフショア環境では、より大きな直径の坑井が掘削される例が多く見られる。Deep Isolation社の研究開発では坑径45 cmの大深度水平ボーリング孔が実現可能としている。ただし、引用は同社の社内レポートであり詳細は現時点では不明である。また、同文献(Deep Isolation Inc, 2021b)や1)項の文献(Finsterle et al., 2021)に関するウェビナーのQ&Aでは、「掘削技術アドバイザーは水平ボーリング孔用の径57 cmの特別なケーシングがまもなく利用可能になると予想している」とあるが、エビデンス情報は見当たらなかった。
- サイト特性評価(site characterization):石油ガス業界のサイト特性評価の際に一般的に用いられる技術には、亀裂ネットワーク分析、局所的な応力場の特性評価、流体試料およびコア試料の収集による分析、局所および地層スケールの力学的・水力学的特性の評価といった技術が含まれ、本処分概念の適地調査・安全評価に対しても応用可能である。

機器の配置と回収:石油ガス開発現場における日常的なオペレーションの1つとして、坑井への計測機器等の設置と回収があり、坑井を閉塞した器具の撤去技術も開発されている。これは廃棄物の回収技術に応用可能である。また、標準的な技術を用いて小型キャニスター(推定 φ 10~15 cm、 長さ約 100 cm)の操業中の回収が可能であることを実証している。

地質学的適合性評価:

Deep Isolation 社の処分概念の潜在的な適合性を評価することを目的として、エスト ニア国内の17の郡を対象とした地質学的適合性評価(Geological Readiness Assessment) を実施した。地質学的適合性評価は大きく安全性評価と実行可能性評価の2つの項目か らなり、その各々においてスクリーニング基準を設定し机上検討によって適合性を評価 している。評価項目およびスクリーニング基準の模式図を図4-3に示す。適合性評価は 各々の項目において「0=不適」から「3=非常に適切である」の4段階で机上検討により評 価している。



図 4-3 エストニアにおける地質学的適合性評価項目およびスクリーニング基準 ((Deep Isolation Inc, 2021b)を基に作成)

予察的安全評価:

予察的安全評価では、エストニアにおける地質をモデル化し予察的な安全評価を実施 した。地質モデルについては、エストニアで見られるものと同様の不均質な亀裂ネットワ ークと、エストニア北部で見られるのと同様の帯水層の深さを持つ地質モデルを構築し た。それの深さ 1.5 km のところに水平坑道(超深水平処分)を設定した核種移行解析モ デルを構築して予察的な核種移行解析を実施した。

解析の結果、放射性核種は生活圏から安全に隔離され、地表での最大線量は 130 万年後に、規制要件を数桁下回る線量(10⁻² mSv y⁻¹未満)になることが示されている。

結論および提言:

本検討の結果、エストニアにおいて、結晶質基盤岩を母岩として広範囲で超深水平処分の実施が可能であると評価された。

また、予察的なコスト評価の結果、地層処分に比較して 69%コストが低いことが示唆さ れた(ただし、エストニア内に配備される原子炉タイプや使用済燃料の物量は未定のた め、原子炉1基を仮定した場合の単位重量当たりの概算で評価している)。

安全性の観点および実行可能性などの総合的な観点から、適地となる可能性が最も高い地域は、エストニア北部に位置する Harju 郡と Ida-Viru 郡であるとしている。なお、評価は既存のデータ、机上研究、エストニアの地質学の専門家との対話とレビューに基づいており、サイト固有の研究などは行われていない。

また、本検討では、エストニアでの超深水平処分の実現にむけた今後のステップについ て提言がなされている。政策・規制の観点では、Deep Isolation 社の概念は IAEA(IAEA, 2011a)および Euratom からの国際的な規制要件と整合しているが、エストニア国内の法 規制については検討範囲外であったため、今後更なる調査が必要であるとしている。ま た、社会合意形成に関する検討(ステークホルダとのパートナーシップ構築、立地プロセ ス、コミュニティの意思決定への関与の方法など)も必要であるとしている。また、本レ ポートはあくまで予察的な適合性評価であることから、候補地に関する定量的な分析、適 地選定の基準設定、セーフティケースの整備など、地質の観点でサイトスペシフィックな 評価が必要であると結論付けている。

3) ロシア地質学研究所が超深孔処分の課題と展望についてまとめた事例

本項では、ロシア地質学研究所が放射性廃棄物の超深孔処分の課題と展望についてま とめられた最新の文献(Kochkin, et al., 2021)について調査した結果を示す。

竪坑型処分施設(SDF)と掘削孔型(超深孔)処分施設(BDF)の特徴の整理:

高レベル放射性廃棄物や使用済燃料は地層処分施設において処分すべきであるという 国際的なコンセンサスがある(Ahn, 2017; IAEA, 2003;2006;2011b)。本事例では、竪坑 型処分施設(SDF: Shaft-type disposal facility)と掘削孔型(超深孔)処分施設(BDF: Borehole-type disposal facility)についてその特徴をまとめている。

- 竪坑型処分施設(SDF)
 - ▶ 固体の放射性廃棄物の処分深度:500~1,000 m
 - 高レベル放射性廃棄物や使用済燃料を隔離するための国際基準として長年 受け入れられている。
- 掘削孔型(超深孔)処分施設(BDF)
 - ▶ 処分深度は、SDFと同様あるいはさらに深い(最大5 km)
 - 密封された廃棄物パッケージ内の比較的少量の高レベル放射性廃棄物を、既存の技術を用いて人間・環境から長期的に隔離可能
 - ▶ 設置面積が小さく、適切な処分深度を選択可能
 - ▶ サイト選定、建設、運転、閉鎖の期間は SDF より短い

 使用されていない密封された放射性同位体線源(DSRS: disused sealed radioactive sources)を含む放射性廃棄物の保管と処分のための方法とし て多くの国で使用されてきた

SDFやBDF以外にも、近年では米国の民間企業において、石油・ガス掘削技術を参考に、 使用済燃料の処分において傾斜・水平掘削技術を用いて、水平掘削孔の部分に廃棄物を処 分する処分施設(HDR: horizontal drillhole repository)での処分方法を提案してい る。水平掘削技術に関しては、ロシア連邦タタルスタン共和国のSirenevskoye油田にお いて1970年代末に当時のソビエト連邦で実験が行われた(Grigoryan, 2017)。本事例で は、水平方向に掘削する技術が、長期的な HLW の隔離技術の安全性に寄与し得ることを 強調するため、HDRについても検討を実施している。

超深孔処分技術の利点と課題の整理:

本レポートでは、超深孔処分(BDF)には以下のような利点があるとしている。

- 技術の安全性は地層深部で予測される科学的知見に基づいて説明できるとしている。また竪坑型処分(SDF)より比較的深い地層に処分するため、生活圏・表層と廃棄物を隔離することが可能であるとしている。
- 処分深度の深さから、閉鎖後の処分施設が与える影響は長期的には低いと想定される。
- 地震による地殻変動の危険性および深部での保管による放射性核種の漏出リスクは、処分施設を安定したプレート上に設置することで最小化することが可能である。
- 深さ約5 kmの結晶質の岩盤は広く存在しているため、超深孔処分(BDF)の処分地 選定が多少容易になる。
- 廃棄コストはKBS-3技術(Hedin, 2016)を適用した竪坑型処分(SDF)の20%以下である。
- 閉鎖後の処分施設がテロ行為にさらされる危険性は実質的に存在しない。

このような利点があるものの、規制や国際勧告(例えば(IAEA, 2011b))に準拠していないため、各国は超深孔処分(BDF)の実施に消極的である。

また、米国、スウェーデン、英国、ドイツなどの放射性廃棄物を管理する組織では、超 深孔処分施設(BDF)において大規模な R&D プログラムを必要とする不確定要素を以下の ようにまとめているとしている。

- 3 km 以深での実際の温度・圧力の範囲における水文学的および化学的条件に関する知見、深度の増加に伴う岩相および破砕頻度の相関に関する知見が不足している。
- 超深部での廃棄体パッケージやシーリング材の安全性、健全性に関するデータが 無い。
- 超深孔処分施設(BDF)の構造やシーリングに技術的課題がある。
- 廃棄体パッケージの定置、検査、回収、運用上の安全性(定置中に廃棄体がスタ ックあるいは破損するリスク)。
- 最終処分前の廃棄体の回収の困難さ。
- 超深孔処分は、例えばスウェーデンの使用済燃料処分技術である KBS-3(Hedin, 2016)の SR-Site と比較して安全に関する信頼性の向上を確約していない。

また、超深水平処分の概念(HDR)は、基本的には超深孔処分施設(BDF)の概念を 踏襲している。主な差異は、母岩とその構成要素である岩石の特性に対する要求事項 であり、HDR では粘土や岩塩層の透水性が低いため水を通しにくく、その可塑性から 割れ目を修復する性質を持つとしている。

超深孔処分の課題と展望についてのまとめ:

各国の研究機関等は、超深孔処分(BDF)における様々な放射性廃棄物管理概念の実現 可能性を報告書や国際会議において検討することがある。放射性廃棄物の地層処分のた めに提案されている技術を適用すれば、結晶質の母岩における3km以上の深さの掘削孔 が、特定の種類の廃棄物を処分するための選択肢になり得る可能性があり、また超深孔処 分オプションを選択するためには国際レベルで承認された勧告や各国の現行法に従い施 設の安全性評価の信頼性を証明するための R&D を実施する必要があるとしている。

超深水平処分(HDR)は粘土層や塩岩層に水平方向に分岐した掘削孔を設置するという ものであり、BDFとSDFの両方の利点を合わせたものである。現代の技術では、水平方向 の掘削孔を短期間で掘削することが可能であり、SDFと比較してHDRのテスト等を早める ことが可能である。一方で、多重バリアシステムの人工的な緩衝材の不在等、超深孔処分 (BDF)に内在するリスクの一部が残されているとしている。

4) 超深孔処分の概念や評価事例の調査・分析のまとめ

令和3年度の調査・分析により、超深孔処分の概念や評価事例の最新動向を把握し た。具体的には、米国 Deep Isolation 社の超深水平処分の検討事例として、処分深度 やシナリオのバリエーションをアップデートした予備的な閉鎖後安全評価の検討結果を 調査・整理した。また、特定の地域(エストニア)を対象とした超深水平処分の適地選 定のための予察的な適合性評価の方法や検討結果を調査・整理した。また、ロシア地質 学研究所の検討事例では、超深孔処分概念と他の処分概念との比較等による超深孔処分 の利点や課題等の検討結果について調査・整理した。

調査・整理の結果、大坑径での超深部までの掘削実績や、高温・高圧環境での核種移 行パラメータの取得等については依然課題があることを確認した。

今後も超深孔処分の概念や評価事例の最新動向の調査・整理を継続し、わが国におけ る超深孔処分の現段階での技術的実現性や課題・留意点の検討に資する情報等を調査・ 分析していく。

(3) 超深孔処分に係る関連技術の調査・分析

わが国での地質環境等の諸条件を考慮した場合における超深孔処分の適用性の検討に 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調査・ 分析を実施する。

- ・ 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坑径(約50 cm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/見通しはあるのか、どのような留意点や課題があるかなど。
- 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など。
- 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など。

一方、超深孔処分の実現に必要な技術や地質環境条件は多岐にわたるため、超深孔処分 の適用性を検討するためには、超深孔処分を実現するうえで重要となる技術的ポイント を具体化したうえで、それに必要な技術や情報を効率的に収集・整理する必要がある。そ こで本節では、調査・分析を効率的に進めるためのアプローチを検討し、このアプローチ を適用して上記の3つの技術の調査・分析を実施する。

さらに、調査・分析した3つの技術や(2)節での超深孔処分の検討事例の調査結果について、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・留意点などの検討に利用 しやすくすることを目的とした、情報の分析・処理や提示の方法などについて検討した。 令和3年度の実施内容を以下に示す。

- 超深孔処分に係る関連技術の調査・分析を効率的に進めるためのアプローチ (後述 1)参照)
- ・ 掘削技術に関する調査(後述 2)参照)
- 地質環境調査技術に関する調査(後述3)参照)
- ・設計・安全評価に係るデータ取得技術に関する調査(後述 4)参照)
- 超深孔処分の適用性の検討などに向けた関連技術の分析・整理(後述 5)参照)

1) 超深孔処分に係る関連技術の調査・分析を効率的に進めるためのアプローチ

超深孔処分がわが国で適用可能なオプションかどうかについての見通しを得るために は、超深孔処分の実現に必要な掘削技術や調査技術、データ取得技術等が存在し、それら がわが国の地質環境条件において適用可能であることを確認する必要がある。一方、超深 孔処分の実現に必要な技術や地質環境条件は多岐にわたるため、超深孔処分の適用性を 検討するためには、超深孔処分を実現するうえで重要となる技術的ポイントを具体化し たうえで、それに必要な技術や情報を効率的に収集・整理する必要がある。本節では、こ のような観点で調査・分析を効率的に行うためのアプローチについて検討した結果について記述する。

① アプローチの概要

超深孔処分の適用性の検討においては、超深孔処分を実現するうえで鍵となる技術的 ポイントを明らかにすることが重要となる。そのためには、超深孔処分の事業段階ごとに 想定される満たされるべき要求事項とは何か、その要求事項を満たすための関連技術や 情報が存在するか、さらにそれらが想定する環境条件で適用可能かどうかなどを明らか にする必要がある。このためには、超深孔処分の事業段階ごとに要求事項とそれに必要な 設計要件を推定・仮定しつつ、それら設計要件を満たすために必要な技術や情報を具体化 し、それらについて重点的に技術や情報の収集・整理あるいは課題の抽出などをしていく というアプローチが効率的であると考えられる。

そこで本アプローチでは、はじめに超深孔処分の事業の段階区分を設定した上で、各事 業段階における要求事項や、各要求事項を達成するために必要な設計要件を推定・仮定し た上で、必要な技術・情報・課題を具体的に検討することとした。要求事項や設計要件の 推定・仮定にあたっては、過年度までに調査・整理した諸外国の事例で示されている超深 孔処分の対象となり得るサイト条件などを参考に、可能な範囲でわが国の地質環境など の条件も考慮する形で推定・仮定した。また、各事業段階の設計要件の実現に必要な技 術・情報・課題についても、過年度までの調査・検討結果などにおいて超深孔処分で必要 になる技術や課題に相当するもの(例えば、米国サンディア国立研究所(以下、SNL)の 超深孔処分の検討事例(Arnold et al., 2011)における、単一の超深孔掘削とそれに関 連する作業や技術に係る条件等)を参考に、わが国の状況も可能な範囲で考慮した上で、 各設計要件の実現に必要な技術・情報・課題を具体的に推定・仮定した。

調査・分析の基本手順等の検討

上記 1)で述べたアプローチの基本的な考え方を踏まえ、超深孔処分の適用性の検討に 向けた調査・分析の効率的なアプローチとして、以下の基本手順を考えた。

a. 事業の段階区分と、各事業段階における要求事項および設計要件の設定

b. 要求事項と設計要件の実現のために必要な技術・情報・課題の対応付け

これらの手順を実施することにより、後述の「(4)超深孔処分に係る関連技術の調査・ 分析」などでの調査・分析の着目点として反映することができると考えられる。本項では、 上述の a. と b. を検討した結果について示す。

a. 事業の段階区分と、各事業段階における要求事項および設計要件の設定

超深孔処分事業のために必要な作業は多岐にわたる。このため、それらの多岐にわたる 作業を、地層処分の場合と同様に、時系列を踏まえて適切に統合・区分して扱うことで、 過不足のない適用性の検討およびそのための効率的な調査・分析につながると考えられ る。本アプローチでは、超深孔処分事業の全体を 5 つの事業段階に分けて考えることと し、事業段階ごとの要求事項とそれに必要な設計要件を推定・仮定しつつ、必要な技術や 情報を具体的し、それらについて重点的に技術や情報の収集・整理あるいは課題の抽出な どを実施することとした。事業段階の区分とそれに応じた要求事項の設定例を図 4-4 に 示す。



図 4-4 超深孔処分において想定される事業段階の区分および要求事項の設定

次に、本アプローチでは、各事業段階における要求事項を達成するために必要な設計要件を設定する。

まず、調査段階における要求事項(処分地が適切に設定できる)に対する設計要件の検 討の参考になり得る情報のひとつとして、先行事業の検討(平成28年度報告書(原子力 機構,2017))において、米国、スウェーデンおよび英国での検討で挙げられている超深 孔処分の対象となり得るサイト条件として以下の項目が整理されている。

- s-① 処分領域および閉塞領域の対象母岩は、均質な結晶質岩(花崗岩)であること
- s-② 結晶質岩の上限面分布深度が2 km 未満であること
- s-③ 地熱流速が 75 mW m⁻² 未満であること
- s-④ 地下深部の応力状態に異方性が認められないこと
- s-⑤ 深部の地下水循環を避けるため、地形の傾斜は1°以上の地点まで、約100 km 以上離れていること
- s-⑥ 処分領域の基盤岩と地表面の間に帯水層が存在しないこと
- s-⑦ 形成年代が古く、高塩分濃度で還元性の地下水が地下深部に分布すること
- s-⑧ 結晶質岩中に規模が大きい鉛直のせん断帯や高透水性を示す構造などが存在 しないこと
- s-⑨ 岩体中に第四紀に形成された著しい変質が生じていないこと
- s-⑩ 対象岩体中に歴史地震の記録がないこと
- s-① 第四紀の断層から10 km 以上離れていること
- s-⑫ 第四紀の火山活動から10 km 以上離れていること
- s-13 経済的に利用可能な天然資源が分布しないこと
- s-④ 石油備蓄基地や市街地から離れていること

これらはいずれも調査段階において把握すべき条件であり、s-①~s-②、s-⑥、s-⑧~ s-⑬は地質条件、s-③は熱(T)条件、s-⑤は水理(H)条件、s-④は力学(M)条件、s-⑦は化学(C)条件、s-⑭はその他の条件に分類される。これらのうち、条件 s-②は、超 深孔の深度を最大 5,000 m とし、その底部 2,000 m 区間に定置区間を、その直上 1,000 m 区間に閉塞区間を、いずれも結晶質岩中に設定するとの SNL の超深孔処分の検討事例 (Arnold et al., 2013)による想定の帰結であるが、わが国の状況に基づいて当該の想定を変更すれば、その想定に連動して変わり得る条件である。また、条件 s-④を、応力の異方性が全くない場所を指すと理解すれば、おそらくわが国にはそのような場所は存在しない(そもそも、テクトニックな応力が作用せず、鉛直に働く岩石荷重だけが応力の源だとしても、力学的な理由によって鉛直応力と水平応力には必ず差が生ずるし(Eaton, 1969)、逆に変動帯に属しテクトニックな応力を常に受けているわが国においては水平応力に異方性を伴う(Vo and Chang, 2020)。さらに、条件 s-⑤に該当する場所はわが国には存在しない(例えば、国土地理院・傾斜量図(国土地理院, 2021))。従って、上述のサイト条件は、今後、わが国の状況に合わせて再検討すべき余地を多く含んだものであり、それにはわが国の地質環境とTHMC条件が大きく関連していると言える。

上述の検討結果を踏まえ、わが国での超深孔処分を適用する際の調査段階における要 求事項「処分地が適切に設定できる」に対する設計要件として、「地質環境確保」と「THMC 条件確保」を設定することとした。

建設段階~閉鎖段階における要求事項に対する設計要件の検討の参考になり得る情報 のひとつとして、SNLの超深孔処分の検討事例(Arnold et al., 2011)において、単一 の超深孔掘削とそれに関連する作業や技術に係る条件として 7 項目を挙げている。ここ では、それらを事業段階と対応付けて列挙した結果を以下に示す。

- d-① 深度 3,000~5,000 mの区間に廃棄体を定置・処分するために、深度約 5,000 m まで超深孔が掘削されること(建設段階)
- d-② 超深孔とそのケーシングが、廃棄体の順調な降下を保証する安定性と耐久性 を有すること(建設段階・操業準備段階・操業段階)
- d-③ 超深孔とそのケーシングが、廃棄体の定置のために十分な坑径を有すること (建設段階・操業準備段階)
- d-④ セメントプラグ、ベントナイト、グラウト等からなる閉塞システムが、坑壁 と直接に接触する仕組みと、設置場所からの取り外しが可能な仕組みとを有 して設置されること(閉鎖段階)
- d-⑤ 廃棄体の定置・処分区間におけるケーシングとベントナイトが、廃棄体を取 り囲む坑井内流体の圧力上昇を防ぐために、坑井内流体の熱膨張と母岩への 流入とを許容する機構を有すること(操業段階・閉鎖段階)
- d-⑥ 超深孔の掘削が、廃棄物の定置に先立って、定置・処分区間の母岩の特性評 価を可能にするように実施されること(建設段階)
- d-⑦ 超深孔とそのケーシングが、操業段階において、必要に応じて廃棄体の回収 を行うために十分な安定性と耐久性を有すること(建設段階・操業段階)

さらに、SNLの超深孔処分の検討事例(Arnold et al., 2011)では、定置作業とシー ル性能に係る条件として、将来において別に検討すべき作業員被ばくや放射能漏れに係 る条件を除いて 8 項目を挙げている。以下に、それらを事業段階と対応付けて列挙した 結果を以下に示す。

e-① 廃棄体の定置作業が、廃棄体の順調な降下を伴って行われること(操業準備段

階・操業段階)

- e-② 閉塞システムが、坑井内流体の流れに対して、透水係数が 1×10⁻¹² m² s⁻¹未 満となる低透水バリアとなること(閉鎖段階)
- e-③ 閉塞システムが、シール材周辺の流体の流れを防ぐために、坑壁との密接な結合(低透水性)を形成すること。また、圧縮ベントナイトなどのシール材が、 亀裂に侵入して坑井近傍の母岩の透水係数を低下させること(この条件を成 立させるために、亀裂密度の高い場所は、サイト特性評価段階で除外される)。 (建設段階・操業準備段階・操業段階・閉鎖段階)
- e-④ 閉塞システムが、坑井内流体の流動性が最も高くなる発熱期(2,000 年以内) における高い耐久性を有すること(閉鎖段階)
- e-⑤ 閉塞システムが、上部からの負荷、ベントナイトシール材の膨潤圧力および下 部からの過圧に耐える強度を有すること(閉鎖段階)
- e-⑥ 閉塞システムが、少なくとも 2,000 年間は、100~200 ℃においても化学的に 安定であること(閉鎖段階)
- e-⑦ 複合的な閉塞システムが機能し、個々のシステムが故障した後でも、全体としては性能が維持されること(閉鎖段階)
- e-⑧ 複合的な閉塞システムが機能し、個々のシステムが経年劣化した後でも、全体 としては機能が維持されること(閉鎖段階)

以上に記述した SNL の検討事例(Arnold et al., 2011)を踏まえてまとめれば、各段 階で重要な設計要件として以下のことが挙げられる。

- 建設段階においては、重要な設計要件として、深度確保(d-①)と坑径確保(d-③)とが要求されるとともに、超深孔自体とケーシングの耐久性確保(d-②、d-⑦)やTHMC条件確保(d-⑥、e-③)も要求される可能性があると言える。
- 操業準備段階においては、重要な設計要件として、坑径維持(d-③)、廃棄体の 順調な降下とシール材~坑壁間の密着性を実現する坑壁維持(d-②、e-①、e ③)とが要求される。
- 操業段階においては、重要な設計要件として、廃棄体の順調な降下を実現するための諸要件(廃棄体降下、廃棄体定置、廃棄体防護等:例えば e-①)が要求される。
- 閉鎖段階においては、重要な設計要件として、閉鎖とシールを実施するために 必要な閉塞システム(坑壁と閉塞システムの密接な接合:d-⑤、閉塞システムの設置場所からの取り外しを可能にする機構:d-④)が要求される。
- その他に、シール性能を維持して核種の移行を制御すること(d-5)、e-2~e ⑧)が要求される。

以上により、超深孔処分における事業段階と、各事業段階における要求事項と設計要件 の検討結果は表 4-3 のようにまとめられる。 表 4-3 超深孔処分における事業段階と 各段階における要求事項および設計要件の検討結果

事業段階	更率率項	設計要件
調査段階	処分地が適切に設定できる	・地質条件の把握 ・THMC条件の把握
建設段階	超深孔が適切に掘削できる	・深度確保 ・坑径確保
操業準備段階	超深孔が健全に維持できる	・坑径維持 ・孔壁維持
操業段階	廃棄体が支障なく定置できる	・廃棄体降下 ・廃棄体定置 ・廃棄体防護
閉鎖段階	超深孔が設計通りに閉鎖できる	・閉鎖の実施 ・シールの実施
その他	処分事業が安全に実施できる	・各段階の作業の安全確保 ・シール性能維持 ・核種移行の抑制

また、表 4-3 のように区分した各事業段階の重要な設計要件は、他の事業段階におけ る要求事項とも関連する。例えば、建設段階における設計要件「坑径確保」は、操業準備 段階での要求事項「超深孔が健全に維持できる」や操業段階での要求事項「廃棄体が支障 なく定置できる」の達成においても重要になると考えられる。従って、超深孔処分の実現 性は、各事業段階における設計要件の実現性を、他の事業段階との関連にも留意して検討 することによって評価することになる。こうした複数の事業段階・要求事項に関連する設 計要件の整理イメージを図 4-5 に示す。



図 4-5 複数の事業段階・要求事項に関連する設計要件の整理イメージ

b. 要求事項と設計要件と、その実現のために必要な技術や課題の対応付け 建設段階の要求事項である「超深孔が適切に掘削できる」に対する設計要件「深度確保」

「坑径確保」を実現するために必要な技術については、令和2年度報告書(原子力機構, 2021)により、岩種(s-①(処分領域および閉塞領域の対象母岩は、均質な結晶質岩(花 協岩)であること))、高温環境(d-①(深度3,000~5,000 mの区間に廃棄体を定置・処 分するために、深度約5,000mまで超深孔が掘削されること)に連動して発生する条件)、 深度(d-①)の3つ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整 理されている。また、国内においても、これらの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も判明している。すなわち、当該仕様による掘削技術は、 坑径が小さくても良いという条件であれば存在すると言える。一方で、一定程度の超深度 を、条件 d-③(超深孔とそのケーシングが、廃棄体の定置のために十分な坑径を有する こと)を満たす(例えば坑底坑径 0.5 m 程度の大坑径)で掘削した実績は、国内外ともほ とんどないことも明らかになっている。このことから、建設段階の設計要件「超深孔が適 切に掘削できる」における設計要件「深度確保」と「坑径確保」については、それを実現 する技術が存在するかどうか、仮に存在する場合に何らかの前提条件が必要となるかど うかについて必ずしも明確ではない。一方で、英国の超深孔処分の検討事例 (Beswick, 2008)では、掘削技術に係る豊富な経験を基にして、坑径(内径)と掘削深度による掘削 の可能性を表 4-4 のようにまとめている。例えば坑底坑径を 0.5 m とした場合、深度 5,000 mまでの掘削を実現するためには、たとえ条件の良い地質環境であったとしても、適切な 機材や掘削技術の開発を必要とするとの判断がなされている。ただし、当該判断の根拠の 詳細は不明である。

表 4-4 坑径(内径)と掘削深度による坑井掘削の技術的可能性

(Beswick (2008)より)

:条件の良い地質環境であれば現存技術による掘削が可能

:適切な機材や掘削技術が開発されれば掘削が可能

:当面は掘削困難

堀削涩度 [m]	内径 [m]				
酒的冰皮 [III]	0.30	0.50	0.75	1.00	
2000					
3000				??	
4000			??		
5000					

以上のことから、建設段階の要求事項および設計要件の実現性については、わが国の状況を踏まえた上で、掘削技術の観点から詳細な検討を行う必要があると言える。

坑井の掘削は、①地層を削り、②掘り屑を地表に運び、③掘削後の坑井を健全に保つ作 業からなる①~③のサイクルを、④それらのために必要な資機材を吊り下げた状態で繰 り返すことによって行われる。これらの技術項目のうち、①の地層を削る作業におけるツ ール(ビット)については、現存仕様のものを適切に選択・使用することであらゆる硬さ の岩石に対応できる。②の掘り屑を運ぶ作業と③の資機材を吊り下げる作業とが実施で きるか否かは、ポンプ性能および最大巻上荷重といったいずれも掘削装置固有の性能に よって決まる。掘削装置の性能については、現存する最高仕様の掘削装置を使用すること を前提とすれば対応できる可能性が高いと考えられる。以上のことから、掘削技術につい ての検討の余地は、もっぱら③の坑井を健全に保つための資機材(ケーシング、掘削泥水 など)に係る技術分野にあると言える。

特にケーシングについては、坑井掘削においてその設置が不可欠であるばかりでなく、 閉塞システムと坑壁との直接接触を要求する条件 d-④(セメントプラグ、ベントナイト、 グラウト等からなる閉塞システムが、坑壁と直接に接触する仕組みと、設置場所からの取 り外しが可能な仕組みとを有して設置されること)によりその撤去(抜管)の可能性につ いても併せて検討する必要があることから、内外径や性能(グレード)および重量等につ いて詳細な検討が必要となる。また、超深孔自体とケーシングを健全に維持することは、 条件 d-②(超深孔とそのケーシングが、廃棄体の順調な降下を保証する安定性と耐久性 を有すること)、d-⑦(超深孔とそのケーシングが、操業段階において、必要に応じて廃 棄体の回収を行うために十分な安定性と耐久性を有すること)、e-①(廃棄体の定置作業 が、廃棄体の順調な降下を伴って行われること)などを満たすために極めて重要であるの で、前述のケーシング仕様とわが国における岩盤の状況(岩盤強度、応力場、間隙水圧) との相互関係などの観点から十分に検討することが必要であると考えられる。

以下では、操業準備段階以降の各事業段階において想定される設計要件を実現するた め必要な技術についての予察的な検討結果を述べる。

操業準備段階の設計要件である「坑径維持」と「坑壁維持」を実現するため必要な技術 については、条件 d-②(超深孔とそのケーシングが、廃棄体の順調な降下を保証する安 定性と耐久性を有すること)、d-③(超深孔とそのケーシングが、廃棄体の定置のために 十分な坑径を有すること)、e-①(廃棄体の定置作業が、廃棄体の順調な降下を伴って行 われること)、e-③(閉塞システムが、シール材周辺の流体の流れを防ぐために、坑壁と 低透水性との密接な結合を形成すること。また、圧縮ベントナイトなどのシール材が、亀 裂に侵入して坑井近傍の母岩の透水係数を低下させること)等を満たすために、特に岩盤 強度が低い地層や透水性が高い地層と交差している深度において、超深孔の坑径を設計 どおりに保つとともに、坑壁を凹凸なく保つことを可能にする回避・緩和技術の検討が必 要である。

操業段階の設計要件である「廃棄体降下」、「廃棄体定置」、「廃棄体防護」を実現するた めに必要な技術については、条件 e-① (廃棄体の定置作業が、廃棄体の順調な降下を伴 って行われること)を満たすために、建設段階や操業準備段階で必要となる技術に加え て、廃棄体の降下・定置・防護に係るシステム(地上設備・坑井内設備等、坑井内流体の 要不要・仕様など)についての詳細な検討が必要である。

閉鎖段階の設計要件である「閉鎖の実施」、「シールの実施」、「シール性能維持」および 「核種移行の制御」を実現するために必要な技術については、まず条件 d-③(超深孔と そのケーシングが、廃棄体の定置のために十分な坑径を有すること)を満たすために、ケ ーシングを回収(抜管)する技術を検討する必要がある(特に、わが国においてはケーシ ングの回収技術は蓄積されておらず、わが国独自で対応可能かどうかの検討が求められ る可能性がある)。また、条件 d-④(セメントプラグ、ベントナイト、グラウトなどから なる閉塞システムが、坑壁と直接に接触する仕組みと、設置場所からの取り外しが可能な 仕組みとを有して設置されること)、d-⑤(廃棄体の定置・処分区間におけるケーシング とベントナイトが、廃棄体を取り囲む坑井内流体の圧力上昇を防ぐために、坑井内流体の 熱膨張と母岩への流入とを許容する機構を有すること)を満たす閉塞システムとして、バ リア材の導入の可否を含めた検討を行う必要がある。さらに、条件 e-②~e-⑧を満たす ための埋め戻し材の設置を含め、多岐にわたる技術を検討することが必要である。なお、 すべての事業段階に係る操業安全性や閉鎖後安全性等については、現段階では「その他」 に区分することとした。

以上の検討結果により、各事業段階における設計要件の実現に必要な技術・情報・課題 については、表 4-5 に示すような形でまとめることができる。これらの技術のうち、操業 準備段階以降の各事業段階において必要な技術は、掘削可能な超深孔の仕様に大きく影 響を受けるため、まずは建設段階の設計要件である「超深孔が適切に掘削できる」に係る 検討を重点的に進めることが肝要と考えられる。

【段階】	【要求事項】	【設計要件】	【実現に必要な技術・情報・課題(現段階での推定)】
油本砂啉	処分地が適切に設定	地質条件の把握	結晶質岩・深成岩分布の把握/弱部の存在の把握/
調直校相	できる。	THMC条件の把握	間隙水圧の把握
2本 記 印 哒	超深孔が適切に掘削	深度確保	ケーシング必要/不要/どの程度必要か(岩盤強度、
建议权怕	できる。	孔径確保	応力場、間隙水圧が関係)
提举准件印成	超深孔が健全に維持	孔径維持	弱部(岩盤強度が弱い、透水性が高い等)の存在に
採耒牛佣权陌	できる。	孔壁維持	対する対応。
		廃棄体降下	原来は小院下ナ汁(に中小県泊 法はっちえ /ち) 第1
操業段階	廃棄体が支障なく定置 できる。	廃棄体定置	焼業体の降下力法(坑内の14流、流体のある/ なし寺)
		廃棄体防護	廃棄体の防護の要否
閉鎖段階	超深孔が設計通りに閉 鎖できる。	閉鎖の実施	ケーシングの回収の可否、バリア材の導入の可否
		シールの実施	埋め戻し材の設置技術
	処分事業が安全に実	各段階の作業の 安全確保	
その他	施できる。	シール性能維持	超深部での埋め戻し材の挙動把握
		核種移行の抑制	超深部での安全評価パラメータの把握

表 4-5 各事業段階における設計要件の実現に必要な技術・情報・課題

2) 掘削技術に関する調査

本項では、建設段階の要求事項「超深孔が適切に掘削できる」を達成するための設計要 件である「深度確保」や「坑径確保」に着目し、深度確保および坑径確保

- 掘削に係る条件 d-①(深度 3,000~5,000 mの区間に廃棄体を定置・処分するために、深度約 5,000 mまで超深孔が掘削されること)
- 掘削に係る条件 d-③(超深孔とそのケーシングが、廃棄体の定置のために十分な

坑径を有すること)

を具体的に検討するための条件として坑底坑径と深度を仮定した上で、その実現に必要な掘削技術やケーシング技術などを調査・分析することにより、現状の技術で建設段階の要求事項および設計要件が達成できるかについての現段階での見通し(掘削の成立性) や超深孔処分相当深度への適用のための課題などを分析・整理するための検討を行った。

坑底坑径と深度については処分概念や廃棄体の設計等により様々な可能性が考えられるものの、現段階では SNLの検討事例を踏まえ「坑底坑径 0.5 mで深度 5,000 mまで掘削できる」を設計要件の条件として仮定して検討を進めることとした。

また、掘削の成立性は地質環境条件に大きく依存すると想定されるため、わが国の地質 環境や THMC 条件を踏まえて複数の地下構造や THMC 分布のパターンを推定・仮定して検 討を進めることとした。

令和3年度の実施内容を以下に示す。

- 掘削装置の性能の仮定(①項参照)
- 地下構造モデルの仮定(②項参照)
- 仮定した地下構造モデルについて想定される掘削・ケーシング技術の整理(③項 参照)
- 仮定した地下構造モデルに対するケーシング計画の検討(④項参照)
- 仮定した地下構造モデルに対する掘削計画および掘削の成立性に関する検討(⑤項 参照)
- 掘削技術に関する調査のまとめ(⑥項参照)

掘削装置の性能の仮定

掘削装置の最大巻上荷重(最大吊り下げ能力)は、特にケーシング設置の可否に直結す る性能であるため、本検討においては、まず掘削装置の性能の調査を実施した。

これまでに結晶質岩を対象として掘削された坑井のうちで、掘削深度で世界第 1 位と 第 2 位を記録しているのは、旧ソ連のコラ半島で掘削された Kola SG-3 孔 (掘削深度: 12,262 m、坑底坑径:0.216 m) とドイツで掘削された KTB-HB 孔 (掘削深度:9,101 m、 坑底坑径:0.14 m) である。これらの坑井の掘削に使用された掘削装置とその性能は表 4-6 に示すとおりである。しかし、Kola SG-3 孔の掘削に使用された Uralmash-15000 も、 KTB-HB 孔の掘削に使用された UTB-1 も、いずれも特設された固定式の構造物である。従 って、これらの装置の性能を、一般的に使用できるものと考えるのは適当ではない。一方 で、超深孔処分の概念をまとめた最新文献 (Fischer et al., 2020)においては、超深孔 処分のための坑井の掘削に使用可能な掘削装置として、表 4-6 に示す Bentec Desert 3000 を推奨しており、同装置が現段階において使用可能な最高仕様の可動式掘削装置である と考えられることから、本検討においては、当該装置の最大巻上荷重 680 トンを仮定し て検討を進めることとした。

表 4-6 超深孔掘削のための掘削装置とその性能

リグ名	Uralmash-15000	UTB-1	Bentec Desert 3000
坑井名	Kola SG-3	KTB-HB	
形式	形式 特設固定 特設固定		可動式
マスト高 [m]	68	83	46
最大巻上荷重 [トン]	400	816	680
泥水ポンプ [HP]	2×1,060	2×1,686/1×843	3×2,200

② 地下構造モデルの仮定

超深孔掘削の可否に影響を与える機材・資材は、掘削装置以外にも数多く存在する。し かしながら、それらの性能の適否は、地質環境や THMC 条件に大きく依存する。従って、 掘削装置以外の機材・資材の検討にあたっては、まず、想定すべき地質環境・THMC 環境 (以下、本項では、まとめて地下構造という)のパターンを適切に推定・仮定する必要が ある。そこで、検討の対象とする地下構造モデルを、わが国で一般的に見られる地質環境 条件などを踏まえて仮定する作業を行った。

令和3年度の実施内容を以下に示す。

- 地質環境:結晶質岩・深成岩の上限面深度と上位層・表層の仮定(a.項参照)
- 応力場(b.項参照)
- 間隙水圧 (c.項参照)
- 岩石強度(d.項参照)
- 地温勾配(e.項参照)
- 地下構造モデル(f.項参照)
- 仮定した地下構造モデルにおける地層破壊圧勾配と間隙水圧勾配(g.項参照)
- 仮定した地下構造モデルにおける温度圧力環境(h.項参照)

a. 地質環境:結晶質岩・深成岩の上限面深度と上位層・表層の仮定

結晶質岩・深成岩の上限面が深くなると、上位の堆積岩層が厚くなり掘削の難易度が増 すことに留意して、はじめに結晶質岩・深成岩の上限面の設定について検討した。まず、 地震調査研究推進本部が公開している全国1次地下構造モデル(地震調査研究推進本部, 2012)における地震基盤を結晶質岩・深成岩とみなし、そのS波速度を2,900 m s⁻¹とす るとともに、その上限面深度の分布を参照して結晶質岩・深成岩の上限面を仮定すること とした。

結晶質岩・深成岩の上限面深度については、サイト条件 s-②(結晶質岩の上限面分布 深度が2 km 未満であること)を考慮して、わが国における地震基盤の上限面深度の頻度 の P90 値(90 パーセンタイル)にあたる 2,250 mと、同深度よりも 500 m 浅い 1,750 m とを比較検討することとした(以下、結晶質岩・深成岩の上限面深度を 2,250 m と想定す る設定を「上限面 2,250 m 設定」、1,750 m と想定する設定を「上限面 1,750 m 設定」と 呼ぶ)。ここで、深い側の設定において P90 値を採用したのは、極端なケースを除いたう えで、一般的な意味において「かなり深い」=「かなり難しい」設定を実現するためであ る。

上限面に関する両設定について、いずれも、結晶質岩・深成岩の上位には堆積岩が分布 し、さらにその上位には、防災科学技術研究所による整理法(防災科学技術研究所, 2020) にならって層厚 30 mの表層が分布することを想定した。また、堆積岩の密度を設定する ために P 波速度・S 波速度を仮定する。これらについては、データが確認できる基礎試錐 3 坑井(馬追(吉田ほか, 2007)、三島(大久保, 1998)、天草(星野・井波, 1975))に おける実測 P 波速度の平均値(2,800 m s⁻¹)を、表層の密度を設定するための P 波速度・ S 波速度については、深度 30 m までの平均 S 波速度の典型値(500 m s⁻¹)を想定した。

各地層に与えた P 波速度、S 波速度を、Ludwig et al. (1970)が示した関係に基づいて 換算することで、各地層の P 波速度 (*V_p*)、S 波速度 (*V_s*) および密度 (*ρ*) を表 4-7 のよ うに仮定した。

	Vp [m s ⁻¹]	Vs [m s⁻¹]	ρ [kg m ⁻³]
表層	1885	500	1881
堆積層	2800	1359	2181
結晶質岩・深成岩	5054	2900	2543

表 4-7 各層の P 波速度(Vp)、S 波速度(Vs) および密度(ρ)の仮定

b. 応力場

平成28年度報告書によって整理されたサイト条件s-④では、地下深部の応力状態に異 方性が認められないことが挙げられている。しかし、わが国が変動帯に位置することを踏 まえると、この条件を満たすのは困難と考えられる。寺川・松浦(2009)が示した日本列 島全域の深度10kmにおける応力パターン図によれば、北東日本においては逆断層型の、 南西日本においては横ずれ断層型の、いずれも明瞭な異方性応力場を示すことが分かる。 従って、わが国における超深孔処分の可能性を検討するためには、他の条件を踏まえた条 件 s-④の相対的な重要度を掘削技術の観点から確認しておく必要がある。そこで、応力 場については、テクトニックな応力が作用しない場と作用する場とを比較検討すること とした。以下、テクトニックな応力が作用しない応力場の設定を「静止堆積盆設定」、作 用する応力場の設定を「異方性応力場設定」と呼ぶ。

両設定について、鉛直主応力(σ_v)はいずれも密度値(ρ :表 4-7)の積算値で与えることとした。各地層におけるポアソン比(v)は、各地層に与えた P 波速度(V_p)、S 波速度(V_s)から次式で表される。

$$\nu = \left(\left(V_p / V_s \right)^2 - 2 \right) / \left(2 \left(\left(V_p / V_s \right)^2 - 1 \right) \right) \cdots \vdots \ddagger 4 - 1$$

静止堆積盆設定における水平主応力 (σ_{hti}) は、鉛直主応力 (σ_v)、間隙水圧 (p_f :次項 参照) およびポアソン比から、Eaton (1969)による次式によって算出した。

$$\sigma_{hti} = \frac{\nu}{1-\nu} (\sigma_{\nu} - p_f) + p_f \quad \cdots \quad \forall \quad 4-2$$

異方性応力場設定については、水平応力の異方性が顕著な横ずれ断層型の応力場にあ り、超深部まで掘削した基礎試錐による情報が豊富な新潟県を対象とすることとし、最大 水平主応力(σ_H)と最小水平主応力(σ_h)とを基礎試錐「新津」における実測値を今村・ 岩田(2004)に基づいて仮定することとした。異方性応力場設定において与えた水平主応 力値(σ_H 、 σ_h)を、静水圧設定における間隙水圧(p_{hs})と比較したものを表 4-8 に示す。

c. 間隙水圧

坑井掘削は、間隙水圧に大きな影響を受ける(例えば、長縄,2006)。間隙水圧の標準 は静水圧であるが、後述する様々な要因が作用すると静水圧を大きく上回る異常高圧を 示す場合があり、地熱地帯のような高温環境では、間隙水の低密度化により静水圧を有意 に下回る低圧となる(長縄,2019)。そこで、間隙水圧については、静水圧と異常高圧と を比較検討することとした。以下、間隙水圧(p_f)を静水圧と想定する設定を「静水圧設 定」、異常高圧と想定する設定を「異常高圧設定」と呼ぶ。異常高圧設定における間隙水 圧は、基礎試錐「三島」(基礎試錐「新津」の南西40 km)における実測値(高畑,2004) で仮定することとした。異常高圧設定において仮定した間隙水圧(p_{af})を、静水圧設定 における間隙水圧(p_{hs})と比較したものを表4-8 に示す。

ेला के	異方性応力場設定	異方性応力場設定	静止堆積盆設定に	異常高圧設定に	静水圧設定に
深度	における最大水平	における最小水平	おける水平主応力	おける間隙水圧	おける間隙水圧
[m]	主応力(σ _H) [MPa]	主応力(σ _h) [MPa]	(σ_{hti}) [MPa]	(p _{af}) [MPa]	(p _{hs}) [MPa]
0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
1170	(38.5)	(19.9)	16.1	11.5	11.5
3000	(98.8)	51.0	42.1	(29.4)	29.4
3160	(104.1)	(55.7)	44.5	31.0	31.0
3430	(112.9)	63.7	48.6	(40.1)	33.6
4270	(140.6)	90.2	61.1	(68.5)	41.8
4390	(144.6)	(92.7)	62.9	72.5	43.0
5000	164.6	105.8	72.1	84.3	49.0

表 4-8 水平主応力と間隙水圧の設定

(括弧内の数値は上下深度の読み取り値を内挿したもの)

d. 岩石強度

坑井掘削が安定して行えるか否かは、岩石強度にも大きな影響を受ける。岩盤が十分な 強度を有するか否かは、岩石強度と坑壁に作用する応力との相対関係によって決まる。

鉛直主応力 (σ_v) 、最大水平主応力 (σ_H) および最小水平応力 (σ_h) が作用する場に鉛 直坑井が掘削された場合、その壁面には、場の応力によって決まる軸方向応力 (σ_a) 、周 方向応力 (σ_{θ}) および動径方向応力 (σ_r) が図 4-6 に示すように作用する。とくに動径方 向応力 (σ_r) は、坑壁が掘削泥水による泥壁で覆われなければ坑井内流体の圧力 (p_m) と 釣り合うため、両者は等しい。また、熱応力を無視すれば、これらの応力と間隙水圧 (p_f) との差が、それぞれに対応する有効応力(σ_a' 、 σ_{θ}' 、 σ_{r}')となる。そして、これらの応力 が岩石強度を上回ると坑壁破壊が発生し、坑井の掘削を困難にする。



図 4-6 坑壁に作用する応力のイメージ

坑壁破壊のメカニズムのうち、主なものを以下に示す(山本, 2000; 2004)。

- 周方向応力(σ_θ)と動径方向応力(σ_r)との差が岩石の圧縮強度を超えたと
 きに発生するせん断破壊(ブレイクアウト)
- 周方向有効応力(σ_θ')が引張強度を超えたときに発生する引張亀裂

これらのうち、坑井掘削に特に影響を与えるのはブレイクアウトである(山田ほか, 2013)。特に、異方性応力場設定について想定することにした横ずれ断層型の応力場にお いて推定されるように、最大の周方向有効応力(σ_{\thetamax})と動径方向有効応力($\sigma_{r'}$)とが、 それぞれ坑壁における最大・最小主応力であると仮定すると、モール・クーロンの破壊基 準に照らして坑壁が安定である条件は、一軸圧縮強度 UCS と内部摩擦角 ϕ とを用いて次式 で表される (Peng and Zhang, 2007)。

$$UCS \ge \sigma_{\theta max}' - \frac{1 + \sin \phi}{1 - \sin \phi} \sigma_r' \cdots \qquad \exists 4 - 3$$

っまり、一軸圧縮強度 UCS が十分に大きい強固な岩盤であれば、坑壁は安定であると いう言い方ができる(ただし、実際のわが国の岩石がこの条件に当てはまる強度を持ち得 るか否かは別途検討する必要がある。後述⑥において考察する)。そこで、結晶質岩・深 成岩の岩石強度については、式 4-3 の条件に当てはまるような強度を有する場合とその ような強度を有しない場合の両方とを比較検討することとし、堆積岩については十分な 強度を有しない場合のみを検討することとした。以下、結晶質岩・深成岩の岩石強度が式 4-3 の条件に当てはまるような強度を有する設定を「高岩盤強度設定」、そうでない場合 を「低岩盤強度設定」と呼ぶ。

e. 地温勾配

日本列島の現在の地温勾配は、地熱地域を除くと 20 ~ 30 \mbox{C} km⁻¹ の範囲にある(田 中ほか, 1999)。そこで、地温勾配については、30 \mbox{C} km⁻¹の場合と、これよりやや高い 35 \mbox{C} km⁻¹とを比較検討することとした。以下、前者の設定を「標準地温勾配設定」、後 者の設定を「やや高地温勾配設定」と呼ぶ。いずれの設定においても、地表面温度は 15 \mbox{C} とすることとした。従って、深度 5,000 mにおける温度は、標準地温勾配設定においては 165 ℃となり、やや高地温勾配設定においては 190 ℃となる。

f. 地下構造モデル

以上に述べた方針に基づいて、地質環境、応力場、間隙水圧、岩石強度および地温勾配 についての各種の設定を組み合わせて、わが国で考えられるさまざまな地質構造のうち、 比較的シンプルかつ典型的な構造となるように地下構造モデルを仮定した。ここでは、ま ず、最深部に結晶質岩を含むシンプルな3層構造を想定し比較的掘削が容易な構造(テ クトニックな水平応力が無視でき、かつ間隙水圧が静水圧となる場)である地下構造1 と、間隙水の異常高圧や異方性応力場を設定した掘削難易度が高くなる地下構造2を仮 定した。さらに、地下構造1において、結晶質岩・深成岩の上限面深度が深い/浅いや、 岩石強度が低岩盤強度/高岩盤強度によっても掘削の難易度が変わってくるため、パタ ーン1の中でこれら設定の組合せを考慮した3つのパターン(構造1a、1b、1c)を仮定 した。仮定した地下構造モデルにおける地質環境とTHMC環境に係る設定を表4-9に、ま た、これら4つのパターンの地下構造モデルのイメージを図4-7に示す。

	構造1a	構造1b	構造1c	構造2
地質環境	上限面 2,250 m 設定	上限面 1,750 m 設定	上限面 1,750 m 設定	上限面 1,750 m 設定
応力場	<mark>静止</mark> 堆積盆設定	<mark>静止</mark> 堆積盆設定	静止 堆積盆設定	<mark>異方性</mark> 応力場設定
間隙水圧	静水 圧 設定	静水 圧 設定	静水 圧 設定	<mark>異常高圧</mark> 設定
岩石強度	<mark>低岩盤強度</mark> 設定	<mark>低岩盤強度</mark> 設定	高岩盤強度 設定	高岩盤強度 設定
地温勾配	<mark>標準</mark> 地温勾配設定	<mark>標準</mark> 地温勾配設定	<mark>標準</mark> 地温勾配設定	やや高 地温勾配設定

表 4-9 仮定した地下構造モデルの地質環境・THMC 環境設定



g. 仮定した地下構造モデルにおける地層破壊圧勾配と間隙水圧勾配

圧力勾配(坑壁に作用する圧力(力÷面積)÷深度)は、力をkgf(キログラム重)な どの重力単位系で表せば重力加速度の項が省略されるので、密度と同じ次元となる。従っ て、密度と(無次元量である)比重とを同一視すれば、圧力勾配はそれに等価な坑井内流 体(掘削泥水)の比重で表現できる(長縄, 2006)。泥水比重で表した圧力勾配の単位を等 価泥水比重という。

逸泥などのトラブルが起きず坑井が安全に掘削できるための坑井内圧力の上限を地層 破壊圧という。地層破壊圧は、オペレーション上の定義による用語であって、力学的に厳 密に定義される圧力ではないが、その目安は最小水平主応力(σ_h)によって概ね推定でき る(山本,2004)。従って、地層破壊圧を深度で割った地層破壊圧勾配は、安全な掘削の ために許容される泥水比重の上限値とみなすことができる。一方で、間隙水圧を深度で割 った間隙水圧勾配(地層圧勾配)は、ブレイクアウトを発生させないための泥水比重の下 限値とみなすことができる。つまり、間隙水圧勾配よりも若干高い値から、地層破壊圧勾 配よりも若干低い値までの間(これを「掘削ウインドウ」と呼ぶ)に掘削泥水の比重を設 定・調整しながら坑井を掘削することが求められる。そして、間隙水圧勾配や地層破壊圧 勾配が深度によって大きく変化し、同一の泥水比重を全深度に適用することができない 場合には、適当な深度にケーシングを設置し、泥水比重のみで支える区間を掘進部を含む 狭い範囲だけにすることが必要になる。

各地下構造モデル(表 4-9 および図 4-7)についての地層破壊圧勾配と間隙水圧勾配の 深度プロファイルを図 4-8に示す。構造1においては、結晶質岩・深成岩の上限面深度の 設定に関わらず、泥水比重線を地層破壊圧勾配曲線にも間隙水圧勾配曲線にも交わらず に直線的に引くことができる。このことは、構造1がケーシングの段数が少なくてすむ、 大きな坑底坑径を実現するためには有利な圧力構造であることを示す。一方で、構造2は ケーシングの段数が多くなる圧力構造を示しており、掘削の難易度は高くなると予想さ れる。

前述のとおり、選択される泥水比重の上限値は地層破壊圧勾配の値で概ね評価できる ので、掘削編成が深度 5,000 m に到達した際の坑井内圧力の上限値は最小水平主応力に ごく近いものとなると考えられる。この考え方により、各地下構造モデルにおける坑井内 圧力の上限値は、構造 1a においては 72.1 MPa、構造 1b と構造 1c においては 72.7 MPa、 構造 2 においては 105.8 MPa となると仮定した。





h. 仮定した地下構造モデルにおける温度圧力環境

地下構造の温度圧力環境については、令和2年度報告書において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た整理(長縄,2013)がまとめられており、特段の注意を必要としない「標準(Standard)環境:温度が150℃以下でかつ圧力が69 MPa以下の環境」と高温・高圧環境の3つの種類、

• 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 ℃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・超高圧環境
 に区分されることが分かっている(図 4-9)。

一方、g.項に述べた各地下構造モデルの深度 5,000 m における坑井内圧力の上限値と e.項に述べた温度の上限値の組み合わせを上述の区分にあてはめてみると、構造 1 およ び構造 2 は HP/HT 環境での機器や素材の耐熱・耐圧性能で掘削可能なモデルであること を示している(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によって、構造 1 および構造 2 の温度・圧力条件下 で掘削可能)。

以上の検討により、超深孔の掘削を HP/HT 環境を超えない環境で行うためには、地温 勾配がやや高地温勾配設定にあたる 35 ℃ km⁻¹を超えない場所を選択することが必要で あると考えられる。



:構造2における坑底での温度圧力

図 4-9 作成した地下構造モデルにおける温度圧力環境

③ 仮定した地下構造モデルについて想定される掘削・ケーシング技術の整理

仮定した地下構造モデルのうち、特に構造2においては、掘削ウインドウが狭く((3) 2) ② g.項)、かつ(標準的なものではあるものの)HP/HT環境であること((3) 2) ② h.項)から、掘削の難易度は高いと考えられる。しかし、本検討の目的が、現状の技術で どの程度の坑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 を得ることであることに鑑み、掘削技術として現存する最高水準のものが適用できるこ とを前提とした。

狭い掘削ウインドウについては、例えば最新の掘削技術である Management Pressure Drilling (以後、MPD)等による現行の最高水準の技術を適用することを想定することと した。また、地温環境については、前述②の h.項で述べた理由と対応方針により、地温 勾配設定のいかんに関わらず現存する技術で対応可能であると想定することとした。す なわち、MPD 技術の限界を超える圧力環境や事前の予想を超える高温環境に直面した場合 における対応技術等、掘削技術に係る検討の余地は大きいと認識しつつ、本検討において は、作成した地下構造モデルのどれに対しても掘削可能な技術は現存すると仮定するこ ととした。この仮定により、掘削の可否に関する結論は、掘削装置の性能(①項)におい て仕様を定めた掘削装置やケーシング仕様の対象地下構造への適用性に応じて得られる ことになる。

以下に、掘削技術として適用を前提とする最新技術の例として、MPDの概要を示す。MPD は、「坑壁と掘管の間(アニュラス)の圧力を正確に制御できる適応性のある掘削プロセ ス」と定義され、「坑井内環境の限界を把握して、それに対応したアニュラスの圧力プロ ファイルを掘削ウインドウ内に収めること」を目的とする(Frink, 2006;伊原, 2009)。 MPDを用いない通常の掘削においては、坑内圧力(等価循環泥水比重:泥水循環中の坑井 アニュラス内の圧力損失を含めた坑内圧力と等価な泥水比重)の制御がポンプのオン/オ フやポンプスピードの調整によって行われる。一方、MPDを用いた掘削では、坑内圧力に 背圧(坑内泥水の水頭圧、坑口のバルブ、チョーク、パイプ等によって付加される間隙水 圧に対抗する圧力)が付加された制御が、地上において坑内状況に合わせて効果的かつ迅 速に行えるため、泥水比重を作泥によって変更するなどの作業を行わずに継続した掘削 が可能となる。

MPDを用いることにより、異常高圧、完全逸泥、非常に狭い掘削ウインドウおよび地層 崩壊等により発生する坑内トラブルに対し、安全で計画通りの掘削が可能となる。

④ 仮定した地下構造モデルに対するケーシング計画の検討

設計要件で仮定した条件「坑底坑径 0.5 mで深度 5,000 mまで掘削できる」の達成の 可能性は、地下構造モデルが要求するケーシング計画の実現可能性によって大きく左右 される。

超深孔の掘削は、各種の地層を連続して掘り抜いて行く作業となる。このような作業を 基本とする石油天然ガス開発における掘削では、坑井が性状や地層圧力が異なる地層を 繋ぎ、地層水の導通経路となることがないように、各地層間を遮断することが行われる。 超深孔処分を目的とした掘削においても、核種の移行を防止するために、地層間の導通を 遮断することは極めて重要な要件となる。ケーシングは、このような理由による地層間遮 断を重要な目的として設置される。また、掘削中の防噴、逸泥および崩壊等を防止し、安 全な掘削を実現する事も、ケーシング設置の主要な目的となる。

高い応力や間隙水圧に曝されるケーシングには、掘削時や掘削後に様々な力学的負荷 がかかる。そのような負荷のうち、ケーシング計画において重要なのは圧潰負荷、内圧負 荷および引張負荷の3種類である(図 4-10)。

ケーシング計画においては、これらの負荷に対して十分安全な強度を有するケーシン グ仕様(管体寸法、スチールのグレード(肉厚・材質)、継手の寸法と形式継手の種類な ど)を選択するとともに、掘削中に発生する可能性がある各種の坑内トラブルを予測し、 それらを回避するために適切なケーシングの設置深度を決定する作業などを行う。



図 4-10 ケーシングに作用する負荷

a. ケーシングの役割

ケーシングは、掘削の進捗によって形成された坑壁を保護することを目的として設置 される鋼管である。ケーシングは、坑井内に挿入されたのち、セメンチング(坑壁との間 隙へのセメント注入)によって固定される。

固定されたケーシングは下記の役割を果たす。

- 坑壁崩壊の防止
- 逸泥や防噴の防止
- 異なる間隙水圧(地層圧)を有する地層間の遮断
- ケーシング頂部に設置されるケーシングヘッド・防噴制御装置等の基礎

ケーシングは、掘削の進捗に伴って順次設置される必要があるため、複数段が設置され るのが通常である。そして、ケーシングは深度とともにしだいに小口径のものが選択され てゆく。また、ケーシングに作用する負荷が設置深度および間隙水圧(地層圧)によって 変化するため、設置深度ごとに安全係数を考慮したケーシング設計が行われる。

各段階のケーシングは、一般に下記の目的で設置される。

- コンダクターパイプ:地表部の軟弱地層保護
- サーフェス/中間ケーシング:逸泥層・高圧層の遮断(地層性状および圧力などに よりケーシング段数は増加する)
- プロダクション/ディスポーザルケーシング:油/ガス生産などの最終ケーシング (本検討においては、超深孔処分を念頭に置いて、ディスポーザルケーシングと呼ぶ)

ケーシングは、管体寸法、スチールのグレード、継手の寸法と形式によって、米国石油 協会(API: American Petroleum Institute)による規格(API, 2005)により仕様が分類 されている。管体寸法は、4-1/2インチ(11.43 cm)から20インチ(50.8 cm)まで14の サイズで分けられる。これより大きな径のものは、ラインパイプの分類に入る。また、こ れより小さい径のものは、チュービングパイプの分類となる(梅津, 2006)。

b. ケーシング設計

ケーシング設計においては、前述した 3 種類の負荷(圧潰、内圧、引張)を独立に扱い、各負荷に対してそれぞれに安全係数を適用して仕様を決定する。

(a) 圧潰設計

ケーシングの外側に掛かる圧力とこれを内側から保持する圧力との差がケーシングの 圧潰強度を超える事によりケーシングが潰れる状態を圧潰といい、圧潰を防ぐように設 計することを圧潰設計という。

圧潰設計は、掘削泥水が何らかの理由によって地層中に散逸(逸泥)してしまうことに より、ケーシング管内の泥水圧が減少し、間隙水圧との差が極度に増大する場合を想定し て、そのような場合の差圧にも耐えられるような圧潰強度を選択する。また、圧潰設計は、 セメンチング作業中の状況も想定して行う。セメンチングに使用するセメントスラリー の比重は泥水比重に比べて高いため、ケーシング内外の差圧が逸泥時よりも大きくなる 場合があるためである。

ケーシングの仕様を決定すると、API 規格(API, 2005; API, 2018)等により圧潰強度C [psi]を知ることができ、それを用いて圧潰安全係数(C_{sf})を次式によって算出すること ができる。圧潰安全係数の妥当性は、後述(d)の推奨値との比較により判断される。

 $C_{sf} = C/(MW \times D \times 0.052) \cdots$ $\ddagger 4-4$

ここで、MWは最大泥水比重 [ppg]、Dは深度 [ft]、係数 0.052 は(lbs×ft×9.8)/(psi×gal) によって算出される単位変換係数である。

(b) 内圧設計

ケーシングの内側に掛かる圧力とこれを外側から保持する圧力との差がケーシングの 内圧強度を超える事により、ケーシングが破裂する状態を破裂といい、破裂を防ぐように 設計することを内圧設計という。

内圧設計は、ケーシング内でのガス充満などによって、ケーシングが破裂破壊する事態 を想定して行う。このような事態は、掘削中に防噴が発生した場合に、BOP (Blow Out Preventer)を密閉し防噴制御作業を実施する通常の対応作業によるガスシャットインの 状況によって起こる。

内圧設計においても、ケーシングの仕様を決定すると、API 規格(API, 2005;2018)等 により内圧強度B [psi]を知ることができ、それを用いて内圧安全係数(B_{sf})を次式によ って算出することができる。内圧安全係数の妥当性は、後述(d)の推奨値との比較により 判断される。

 $B_{sf} = B/(MW \times D \times 0.052) \cdots$ $\ddagger 4-5$

ここで、記号は式 4-4 と同様である。

(c) 引張設計

ケーシング自体の重量によって発生する鉛直方向の引張応力がケーシングの引張強度 を超えることにより、ケーシングが破断することを引張破断といい、引張破断を防ぐよう に設計することを引張設計という。

引張設計は、ケーシングの泥水中での浮力重量を想定して行うことが多いが、ケーシン

グ降下中の抑留や逸泥およびケーシング昇降時における坑壁との摩擦等によって発生す る引張応力を考慮する場合もある。特に、傾斜井や水平坑井では後者による引張応力が重 要となる。

引張設計においても、ケーシングの仕様を決定すると、API 規格((API, 2005; 2018)な どにより引張強度T [1,000 lbs]を知ることができ、それを用いて引張安全係数(T_{sf})を 次式によって算出することができる。引張安全係数の妥当性は、後述(d)の推奨値との比 較により判断される。

 $T_{sf} = T \times 1000 / (Weight \times D \times (65.5 - MW) / 65.5) \cdots$ $\overrightarrow{t} 4-6$

ここで、Weightはケーシングの単位長さ当たりの重量 [ppf]、Dはケーシング長 [ft]、MWは泥水比重 [ppg]、65.5 は鉄の比重 [ppg]である。

(d) ケーシングの安全係数の推奨値

各負荷に対する安全係数として、油井・パイプライン用鋼管ハンドブック(石油技術協 会,1992)では表4-10に示す数値が推奨されている。したがって、ケーシング設計の妥 当性は、算出された各安全係数をこれらの推奨値と比較することによって、概ね評価する ことができる。しかし、掘削編成を回転させながら掘進する掘削作業においては、ケーシ ングが摩耗により損傷・劣化を受け軽量化する。また、ケーシング仕様の決定には、掘削 坑井の耐用年数に関する企業判断が加わるのが通常である。したがって、安全係数の評価 については、企業独自の考え方で基準を定める場合が多い。

ケーシングの管種は、圧潰、内圧および引張強度が坑井の掘削条件に合致することを念 頭に置いて選択する必要がある。

表 4-10 安全係数の推奨値

(油井・パイプライン用鋼管ハンドブック(石油技術協会, 1992)より)

	セメンチング部	セメント頭部上	標準
Csf (圧潰安全係数)	$0.65 \sim 0.85$	$1.00 \sim 1.125$	
Bsf (内圧安全係数)			1.10
Tsf (引張安全係数)			$1.20 \sim 2.00$

⑤ 仮定した地下構造モデルに対する掘削計画および掘削の成立性に関する検討

仮定した各地下構造モデルに対して、主としてケーシング計画の立場から掘削計画を 検討した。そして、設計要件で仮定した条件「坑底坑径 0.5 m、深度 5,000 m まで」で の掘削ができるか、あるいは同条件に最も近づける場合のケーシング計画を選定した。 地下構造モデルに適用可能と考えられるケーシングプログラムの概観を図 4-11 ~ 図 4-14 に、最適なケーシング仕様と安全係数の算出結果を表 4-11 ~ 表 4-14 に示す。安 全係数については、表 4-10 で示した推奨値に達しないものを赤字で示した。



図 4-11 構造 1a に最適なケーシングプログラム

	42" CP	30" CSG	24" CSG	18-5/8" CSG
ケーシングのグレード	X52	X52	X52	N80HC
ケーシングの内径 [cm]	101.6 (40.0 in)	71.12 (28.0 in)	55.88 (22.0 in)	45.097 (17.755 in)
設置深度 [m]	50	500	2500	5000
泥水比重 [-]	Piling	1.10	1.20	1.30
ケーシングの重量 [ton]	-	198.13	773.95	363.60 (Liner Weight)
圧潰安全係数(Csf) (推奨値:0.65 ~ 0.85)	-	2.02	0.57	0.11
内圧安全係数(Bsf) (推奨値:1.10)	-	3.83	0.70	0.38
引張安全係数(Tsf) (推奨値:1.20 ~ 2.00)	-	13.69	2.25	1.65

表 4-11 構造 1a に最適なケーシング仕様と安全係数



図 4-12 構造 1b に最適なケーシングプログラム

	42" CP	30" CSG	24" CSG	18-5/8" CSG
ケーシングのグレード	X52	X52	X52	N80HC
ケーシングの内径 [cm]	101.6 (40.0 in)	71.12 (28.0 in)	55.88 (22.0 in)	45.097 (17.755 in)
設置深度 [m]	50	500	2000	5000
泥水比重 [-]	Piling	1.10	1.20	1.30
ケーシングの重量 [ton]	-	198.13	619.16	363.60 (Liner Weight)
圧潰安全係数(Csf) (推奨値:0.65 ~ 0.85)	-	2.02	0.71	0.11
内圧安全係数(Bsf) (推奨値:1.10)	-	3.83	0.88	0.38
引張安全係数(Tsf) (推奨値:1.20 ~ 2.00)	-	13.69	2.82	1.65

表 4-12 構造 1b に最適なケーシング仕様と安全係数



図 4-13 構造 1c に最適なケーシングプログラム

	42" CP	30" CSG	24" CSG
ケーシングのグレード	X52	X52	X52
ケーシングの内径 [cm]	101.6 (40.0 in)	71.12 (28.0 in)	55.88 (22.0 in)
設置深度 [m]	50	500	2000
泥水比重 [-]	Piling	1.10	1.20
ケーシングの重量 [ton]	-	198.13	619.16
圧潰安全係数(Csf) (推奨値:0.65 ~ 0.85)	-	2.02	0.71
内圧安全係数(Bsf) (推奨値:1.10)	-	3.83	0.88
引張安全係数(Tsf) (推奨値:1.20 ~ 2.00)	-	13.69	2.82

表 4-13 構造 1c に最適なケーシング仕様と安全係数



図 4-14 構造 2 に最適なケーシングプログラム

	46" CP	36" CSG	30" CSG	24" CSG	18-5/8"CSG
ケーシングのグレード	X52	X52	X52	X52	N80HC
ケーシングの内径 [cm]	111.76 (44.0 in)	86.36 (34.0 in)	71.12 (28.0 in)	55.88 (22.0 in)	45.097 (17.755 in)
設置深度 [m]	50	500	1500	2000	3400
泥水比重 [-]	Piling	1.10	1.20	1.50	1.80
ケーシングの重量 [ton]	-	239.15	586.08	591.38	368.66
圧潰安全係数(Csf) (推奨値:0.65 ~ 0.85)	-	1.28	0.62	0.57	0.12
内圧安全係数(Bsf) (推奨値:1.10)	-	3.32	1.17	0.70	0.40
引張安全係数(Tsf) (推奨値:1.20 ~ 2.00)	-	10.91	3.67	2.95	2.63

表 4-14 構造 2 に最適なケーシング仕様と安全係数

以上の検討結果により、設計要件で仮定した条件「坑底坑径 0.5 m、深度 5,000 m まで掘削できる」との比較を踏まえて、以下のようにまとめられる。

- ・構造 1a:低岩盤強度設定に対応するため坑底までディスポーザルケーシング(18-5/8 インチライナーケーシング)を設置する計画が最良と判断されるが、同ケーシ ングは内径が 0.45 m であるため坑底坑径 0.5 m を達成できない。また、同ケーシ ングにおいては、圧潰安全係数と内圧安全係数が推奨値に比べて著しく不足するた め、安全な掘削が期待できない。さらに、24 インチ中間ケーシングの重量が想定掘 削装置の最大巻上荷重を超えているため、吊り下げ設置ができない。
- ・構造 1b: 低岩盤強度設定に対応するため坑底までディスポーザルケーシング(18-5/8 インチライナーケーシング)を設置する計画が最良と判断されるが、同ケーシ ングが内径 0.45 m であるため坑底坑径 0.5 m を達成できない。また、同ケーシン グにおいては、圧潰安全係数と内圧安全係数が推奨値に比べて著しく不足するた め、安全な掘削が期待できない。ただし、24 インチ中間ケーシングの重量は想定掘 削装置の最大巻上荷重を下回っているため、吊り下げ作業は可能である。
- ・構造1c:高岩盤強度設定であるため、ディスポーザルケーシングは設置しない計画 が成立する。その結果、坑底部は裸孔となり、坑底坑径が0.55mとなるため、坑 底坑径0.5mを達成できる。24インチ中間ケーシングの内圧安全係数はやや不足す るが、坑井内にガスが充満する場所を避ければ大きな問題とはならないと考えられ る。また、いずれのケーシングにおいても、重量が想定掘削装置の最大巻上荷重を 下回っているため、吊り下げ作業は可能である。
- ・構造2:高岩盤強度設定であるため、ディスポーザルケーシングは設置しない計画 が成立する。しかし、異方性応力場設定と異常高圧設定の組み合わせ(掘削ウイン ドウが狭い設定)に対応するため、構造1cに比べて2段多いケーシングが必要と なる。その結果、坑底部は裸孔ではあるが、坑底坑径が0.45mとなり、坑底坑径 0.5mを達成できない。また最深部のケーシングとなる18-5/8インチケーシングに おいては、圧潰安全係数と内圧安全係数が推奨値に比べて著しく不足するため、安 全な掘削が期待できない。ただし、いずれのケーシングにおいても、重量が想定掘 削装置の最大巻上荷重を下回っているため、吊り下げ作業は可能である。

以上のまとめにより、設計要件で仮定した条件「坑底坑径 0.5 m、深度 5,000 m まで 掘削できる」に対する 4 パターンの地下構造モデルにおける掘削の可能性は、表 4-15 に示すようにまとめられる。また、超深孔の掘削可能性について、現段階において使用 可能な最高仕様の可動式掘削装置や最新の掘削技術が適用できることを前提として、次 のように考察できる。

- ▶ 設計要件で仮定した条件「坑底坑径0.5 m、深度5,000 mまで掘削できる」については、現段階で設定している地下構造のパターンでは、地下構造1cにおいて掘削が可能であると考えられる。地下構造1cで想定した条件を以下に示す。
 - ✓ 条件1:結晶質岩・深成岩の上限面分布深度が2,000 m未満である(上位の 堆積岩層が薄い)。

- ✓ 条件2:異方性の応力が作用しない。間隙水圧に異常高圧が発生しない (応力場と間隙水圧がケーシングの段数増を必要とするような狭い掘削 ウインドウを構成しない)。
- ✓ 条件3:坑底部の岩盤強度が十分に高い。
- ✓ 条件4:地温勾配が35 ℃ km⁻¹を超えない。
- ▶ 本検討により、超深孔の掘削の可否については、上記で示した様々な条件に依存 することが具体的に示されたと考えられる。
- ▶ 上記の条件は、現段階で設定している地下構造のパターンや設計要件で仮定した 条件に基づくものであるため、今後は地下構造のパターンの拡充や設計要件で仮 定した条件の変更などの検討を拡充する予定である。

	構造1			
	構造1a	構造1b	構造1c	構造2
地質環境	上限面 2,250 m 設定	上限面 1,750 m 設定	上限面 1,750 m 設定	上限面 1,750 m 設定
応力場	<mark>静止</mark> 堆積盆設定	<mark>静止</mark> 堆積盆設定	<mark>静止</mark> 堆積盆設定	<mark>異方性</mark> 応力場設定
間隙水圧	静水圧設定	静水E 設定	静水E 設定	<mark>異常高圧</mark> 設定
岩石強度	<mark>低岩盤強度</mark> 設定	<mark>低岩盤強度</mark> 設定	<mark>高岩盤強度</mark> 設定	高岩盤強度 設定
地温勾配	<mark>標準</mark> 地温勾配設定	<mark>標準</mark> 地温勾配設定	<mark>標準</mark> 地温勾配設定	やや高 地温勾配設定
坑底坑径0.5 m、				
深度5,000 mでの	×	×		×
掘削の可能性				

表 4-15 作成した地下構造モデルにおける目標仕様での掘削の可能性

なお、以上の考察は Beswick (2008)による「坑底坑径 0.5 m、深度 5,000 m まで」の 掘削可能性についての評価「当該仕様での掘削は、適切な機材や掘削技術が開発されれ ば掘削が可能」と、意味合いとしては整合している。

設計要件で仮定した条件「坑底坑径 0.5 m、深度 5,000 m まで掘削できる」が可能と評価された地下構造 1c(地下構造 1cの条件)の場がわが国に分布する可能性について、机上検討による概略推定・整理を実施した。

まず、結晶質岩・深成岩の上限面深度に係る条件1(結晶質岩・深成岩の上限面分布深 度が2,000 m未満である(上位の堆積岩層が薄い))と地温勾配に係る条件4(地温勾配 が35 ℃ km⁻¹を超えない)とを同時に満たす場所については、国立研究開発法人等が公 表しているデータによって概略推定できる。地震調査研究推進本部が公開している全国1 次地下構造モデル(地震調査研究推進本部,2012)における地震基盤を結晶質岩・深成岩 と同一視することにより、わが国において、地震基盤の上限面深度が2,000 m未満であ ってかつ地温勾配が35 ℃ km⁻¹である場所は存在することが分かる。

条件2(異方性の応力が作用しない、間隙水圧に異常高圧が発生しない)については、

わが国においては、結晶質岩・深成岩からなる超深部において間隙水圧を実測した例が少 ないため、その条件を満たす場所の分布について言及することは困難である。一方で、本 検討において行った条件 2 に関連する検討が構造 2 についてのみであり、かつ、参照し た応力場・間隙水圧が堆積岩地層のものであることから、そもそも結晶質岩・深成岩地層 においても異常高圧が発生し得るのか否かについても言及はできない。わが国における 異常間隙水圧は、第三紀~第四紀堆積岩分布地域、特に油田・ガス田地域の地下深部 (1,000~2,000 m程度) などの限られた条件を有する地域に分布するというのが定説で ある (例えば、原子力発電環境整備機構(2010))。したがって、実際に結晶質岩・深成岩 における異常高圧発生の可能性が高くなければ、サイト選定等で避ける等の対策が可能 と考えられる。このため、結晶質岩・深成岩地層における異常高圧の発生の可能性につい て、海外の実例を参考にして調査・整理することとした。

構造2に与えた異常高圧値は、極めて高い間隙水圧環境で掘削された基礎試錐「三島」 における実測値に基づく。基礎試錐「三島」は1991年に新潟県で掘削された坑井で、掘 削深度6,300 m、坑底温度226 ℃、坑底付近の間隙水圧は約116 MPa(静水圧61.7 MPa の1.88倍)に達していた(河合,1993)。

異常高圧が発生するメカニズムは数多くある。特に、①圧密作用に伴う岩石の非排水圧 縮(アンダーコンパクション)、②温度異常や地温勾配に伴う流体の熱膨張、③泥岩等の 脱水作用による流体密度上昇、④有機物の変質による油ガスの生成、⑤テクトニックな水 平応力による岩石の非排水圧縮、⑥帽岩・非透水性断層等による圧力コンパートメンタリ ゼーション(低透水層・低透水帯による間隙水圧の圧力区分)および⑦断層深部や沈み込 み帯からの湧き出しによる流体量増加などが、異常高圧の主要なメカニズムであると考 えられている(Zoback, 2007; Yassir and Addis, 2002; Karthikeyan et al., 2020)。 そして、基礎試錐「三島」においては、深度 3,300~6,000 mに分布する泥岩層(寺泊層) が関与しメカニズム①~④が作用していると考えられている(加藤, 1988)。しかし、メ カニズム⑤~⑦などは結晶質岩地層にも異常高圧を発生させる。

例えば、メカニズム⑤は、カリフォルニアの海岸地方やオーストラリアの Cooper ベー ズンでの異常高圧に寄与していると考えられている (Zoback, 2007)。特に、Cooper ベー ズンにおいて高温岩体発電の研究開発を目的として掘削された Habanero-1 孔においては、 深度 3,668 m で花崗岩層に達し、4,139 m でケーシングを設置した後、さらに坑底(4,421 m) までの 282 m 区間は裸孔で掘削されたが、泥水比重を花崗岩内のケーシング区間にお いては 1.75、裸孔区間においては 1.4 に設定するほどの異常高圧に遭遇している。坑底 温度は 250 ℃であった (Wyborn et al., 2005)。Habanero-1 孔において適用されたケー シング区間の泥水比重 1.75 は、構造 2 についての掘削計画において、深度 2,000 m の異 常高圧層について想定した 1.80 に匹敵している。つまり、花崗岩地層においても、基礎 試錐「三島」で発生した程度の異常高圧は発生し得ると言える。

以上のことから、わが国における条件2(異方性の応力が作用しない、間隙水圧に異常 高圧が発生しない)を満たす場所の有無について明確に言及することはできないものの、 条件2を可能性として想定しておく意義はあるという言い方はできると考えられる。

条件3(坑底部の岩盤強度が十分に高い)については、まず、十分に高い岩石強度((3)

2) ② d.項参照) についての具体的な目安を得る必要がある。そこで、作成した地下構造 モデルの中で、坑壁が安定である条件を一軸圧縮強度や内部摩擦角等から求める式(式 4-3) が成立する条件「最大の周方向有効応力($\sigma_{\theta max}$)と動径方向有効応力(σ_{r})とが、そ れぞれ坑壁における最大・最小主応力となる」唯一のケースである構造 2 を例にして調 べる。

式 4-3 の $\sigma_{\theta max}$ 'と σ_r 'は、最大水平主応力 σ_H 、最小水平主応力 σ_h 、泥水圧 p_m および間隙水 圧 p_p を用いて、次式によって得られる。

各応力値・圧力値に、構造2における深度5,000 m での値を用いれば $\sigma_{\theta max}' = 213.7$ MPa、 $\sigma_r' = 5.7$ MPaを得るので、さらに内部摩擦角 ϕ に平成28 年度報告書においてまとめられて いる深成岩の平均内部摩擦角51.6 度を用いれば、式4-3より、岩盤が有するべき一軸圧 縮強度(UCS)として、次の条件を得る。

UCS ≥ 166.8 MPa · · · · · · · · 式 4-9

式 4-9 による UCS は、平成 28 年度報告書においてまとめられているわが国で実測され た UCS のうちの最も大きな値となっている新第三紀火山岩類の値(平均 95 MPa、標準偏 差 45)と比べると有意に大きいことが分かる(なお、平成 28 年度報告書でまとめた深成 岩の値(平均 20 MPa、標準偏差 9)は、例えば Yesiloglu-Gultekin (2013)によるトルコ 国内 6 か所の花崗岩の値(平均 114 MPa、標準偏差 25)と比べかなり小さく信頼性に欠 けるので今回の比較では使用しなかった)。ただし、新第三紀堆積岩類には式 4-9 の条件 を満たすものもある。

以上のことから、わが国において条件3(坑底部の岩盤強度が十分に高い)を満たす場 所は無いわけではないが一般的ではないということが言える。

以上をまとめると、わが国において、設計要件で仮定した条件「坑底坑径 0.5 m、深度 5,000 mまで」での掘削を可能にする地下構造 1c(地下構造 1c の条件)を満たす場所に ついては、「ないとは言えないが一般的とは言えない」と考えられる。

⑥ 掘削技術に関する調査のまとめ

令和3年度の調査では、建設段階の要求事項「超深孔が適切に掘削できる」を達成する ための設計要件である「深度確保」や「坑径確保」に着目し、それらを具体的に検討する ための条件として坑底坑径0.5mと深度5000mを仮定した上で、その実現に必要な掘削 技術やケーシング技術などを調査・分析することにより、現状の技術で建設段階の要求事 項および設計要件が達成できるかについての現段階での見通し(掘削の成立性)や超深孔 処分相当深度への適用のための課題などを分析・整理するための検討を実施した。検討の 結果、超深孔処分の成立の可能性は、超深孔処分の仕様(深度や坑径)や地質環境条件に 大きく依存されることが示唆されたと考えられる。 今後は、超深孔処分の深度確保や坑径確保の可能性やその条件等についての事例検討 を、いくつかの地質環境条件を対象に行うなどの多様な条件で試行していく。

3) 地質環境調査技術に関する調査

建設段階の設計要件としての「深度確保」や「坑径確保」の実施に必要な技術である「ケ ーシング必要/不要/どの程度必要か(岩盤強度、応力場、間隙水圧が関係)」に着目し、 地下深部の探査手法(坑井内試験、物理検層、コア試験など)を用いて、岩石強度、応力 場および間隙水圧を測定するための手法について調査し、現段階での各手法の推定精度 や超深孔処分相当深度への適用事例等を整理する。

令和3年度の実施内容を以下に示す。

- 応力場推定のための調査技術(①項参照)
- 間隙水圧推定のための調査技術(②項参照)
- 岩石強度推定のための調査技術(③項参照)
- 地質環境調査技術に関する調査のまとめ(④項参照)

① 応力場推定のための調査技術

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、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きた。また、3,000 mを超える深度 での応力場の測定は、ほとんどが物理検層によるブレイクアウト法によって行われて来 た(令和2年度報告書)。

水圧破砕法は水平応力場を直接測定できる方法であるが、最大水平主応力を推定する ためには坑壁の引張強度の情報を必要とするなどの難点がある。深度に対して連続して 情報が得られるブレイクアウト法は、水平主応力の方位については一定の精度の情報を もたらす一方、主応力値(最大水平主応力値)自体を推定するためには、別の主応力値(最 小水平主応力値)に関する情報や、岩石の一軸圧縮強度に関する情報を別途取得すること が必要になる。また、いずれにおいても、鉛直方向の応力に関する情報は得られない。そ こで、一般には、これら 2 つの方法と、鉛直方向の応力が主応力であるとの仮定のもと に、密度検層に基づく鉛直主応力推定とを組み合わせることで、全主応力値を推定する方 法が用いられることが多い(Zoback, 2007)。

本検討では、この方法について調査した。また、超深孔処分相当深度での応力場の推定事例について調査した。

令和3年度の実施内容を以下に示す。

- 坑井内試験による最小水平主応力値の推定(a.項参照)
- 物理検層による水平主応力の方位と最大水平主応力値の推定(b.項参照)
- 物理検層による鉛直主応力値の推定(c.項参照)
- 既往の超深孔における坑井内試験と物理検層の統合による応力場の推定例(d.項 参照)

a. 坑井内試験による最小水平主応力値の推定

水圧破砕法による坑井内試験のうち、最も精度が高い方法は XLOT (Extended Leak-Off Test)である。XLOT は、坑井内の流体圧と岩盤の応力の釣り合い関係によって最小水平主 応力値を測定する方法であり、ケーシングをセットした深度の直下を 3 m ほど掘削した 裸孔部において、坑井内流体を加圧し地層に亀裂を発生させることによって行う(山本, 2007)(図 4-15)。



図 4-15 水圧破砕法 (XLOT) による坑井内試験

XLOT においては、パッカーを用いて測定区間(裸孔部)を周囲から隔離し、その区間 に坑口から繋がるドリルパイプを通じて流体を一定レートで圧入し、地層の亀裂開口・閉 鎖に伴う坑井内圧力を測定する。

流体を圧入し、加圧していくと、圧力が亀裂形成圧に達して既存亀裂が開口し、さらに 地層破壊圧に達すると新規の亀裂進展が始まって減圧し、安定した圧力に至る。この段階 で圧入を停止すると、圧力が閉鎖圧を経て亀裂閉合圧まで低下した時点で亀裂が閉じる。 亀裂閉合圧は岩盤の最小水平主応力と釣り合っている圧力と考えられるため、この圧力 を計測することによって最小水平主応力値が推定できる。一方、最大水平主応力値も関係 式に基づいて理論的には亀裂形成圧によって推定できることになるが、そのためには間 隙水圧と坑壁の引張強度を高い精度で把握しておく必要があるため、最大水平主応力値 の推定精度は高くないと考えられる。

b. 物理検層による水平主応力の方位と最大水平主応力値の推定

異方性応力場において掘削された坑井の内壁には、周方向応力と動径方向応力との差 が岩石の圧縮強度を超えるとせん断破壊(ブレイクアウト)が、周方向有効応力が引張強 度を超えると引張亀裂(Drilling Induced Tensile Fracture)が、それぞれ発生する。 両者の発生方位は岩盤の応力場によって決まり、図4-16のようにブレイクアウトは最小 水平主応力の方位に、引張亀裂は最大水平主応力の方位に、それぞれが対になって現れ る。したがって、物理検層によって内壁をイメージングすれば、最大・最小水平主応力の



掘削流体として泥水を使用した場合、これらの箇所の見かけの電気比抵抗は低下する。 従って坑壁の全周にわたる比抵抗イメージングを行えば、ブレイクアウトと引張亀裂が それぞれ特徴的な像として識別される(山本,2007)。

坑壁の比抵抗イメージングを行う物理検層技術としては、FMI (Formation Micro-Imager; Schlumberger 社の商標)が代表的である。FMI は、水系泥水用の比抵抗イメージ ング検層法である。機器下部に坑壁に密着するように 4 本のアームが取り付けられると ともに、各アームに 48 個、全体で 192 個の直径 5 mm ほどのボタン電極が取り付けられ ており、機器上部の電極からボタン電極に向かって、地層中に 16 kHz の交流電流が送信 される。アームの先端 (パッド)周辺では、等電位面が坑壁に平行になる仕組みとなって いるため、地層には、パッド周辺において電流が垂直になるような電流場が形成され、坑 壁の局所的な比抵抗分布が測定される (物理探査学会, 2016)。

岩石の物性値(一軸圧縮強度と内部摩擦角)について妥当な推定値が得られていれば、 ブレイクアウトの開口幅を測定することによって、最小水平主応力値から最大水平主応 力値を推定することができる。

c. 物理検層による鉛直主応力値の推定

鉛直主応力値は、密度検層によって得られる岩石密度値を積算し、上載荷重を算出する 方法で推定される。

密度検層は、ガンマ線源から放射されたガンマ線光量子が地層中の電子とコンプトン 散乱することで発生する散乱ガンマ線を計測する手法である。散乱ガンマ線の発生量が コンプトン散乱の頻度に、さらには地層の電子密度(≒地層の密度)に比例することから、 計測値は地層の密度の指標となる。

d. 既往の超深孔における坑井内試験と物理検層の統合による応力場の推定例

坑井内試験や物理検層による応力場推定は、多くの既往の超深孔(結晶質岩を掘削)に おいて行われている(令和2年度報告書)。特に、両者の統合による応力場の推定は、例 えば Gravberg-1 孔において行われている。 Gravberg-1 孔は、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 央部で掘削されたものであり、低い温度勾配(16.1 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。

Gravberg-1 孔においては、物理検層(ブレイクアウト法)によって最大水平主応力方 位と最大水平主応力値の推定が行われるとともに、坑井内試験である LOT (XLOT よりも やや簡略な水圧破砕法)による最小水平主応力値の推定が行われ、両者の統合により応力 場が推定された (Lund and Zoback, 1999)。

間隙水圧推定のための調査技術

間隙水圧の推定は、坑井内試験や物理検層によって実施できる。本検討では、これら2 つの探査手法による間隙水圧の推定方法について調査した。また、超深孔処分相当深度で の間隙水圧の推定事例について調査した。

令和3年度の実施内容を以下に示す。

- 坑井内試験による間隙水圧の推定(a.項参照)
- 物理検層による間隙水圧の推定(b.項参照)
- 坑井内試験と物理検層による間隙水圧推定の比較(c.項参照)
- 既往の超深孔における間隙水圧の推定例と超深孔計画における間隙水圧の推定 (d.項参照)

a. 坑井内試験による間隙水圧の推定

超深孔における坑井内試験による間隙水圧推定は、DST (Drill Stem Test) によって行われている (JOGMEC, 2021a)。DST は、ドリルステム (掘削編成) を通じて行う地層試験 法の総称であり、透水係数などの推定目的としても実施される。測定は、掘削中または掘 削後に裸孔で実施されるのが一般的であるが、ケーシングを設置した状態で実施される こともある。

DST 装置はドリルパイプあるいはチュービングに、圧力計、パッカーおよびそれらの上部にバルブを、下部にテール・パイプを設置した編成で降下され、パッカーが対象層の上下でセットされるようにして坑底まで下げられる(Glover, 2001)(図 4-17)。



DST 装置が降下され始めてから、測定が完了し、装置が回収されるまでの圧力変化が計 測される。装置が目標深度に到着するまで、圧力計で坑井内圧力(泥水圧)が測定される。 目標深度に到着した後、パッカーが膨張し、テスト層と他の地層とが遮断される。その後、 アニュラス圧の加圧によってバルブが開き、ドリルステムと遮断区間内の圧力が低下す るとともに、地層内の流体が装置内に流入し始める。5~10分程度の流入の後、アニュラ ス圧の開放によって再びバルブが閉じ、圧力が上昇して、間隙水圧と釣り合う圧力で安定 する。したがって、この時点での計測圧力値が間隙水圧の推定値となる。

b. 物理検層による間隙水圧の推定

超深孔における物理検層による間隙水圧推定は、RFT (Repeat Formation Tester; Schlumberger 社の商標)によって行われている (JOGMEC, 2021a)。また、現在では、そ の後継機種である MDT (Modular Formation Dynamics Tester; Schlumberger 社の商標) も用いられている (JOGMEC, 2021b)。

RFT のプローブは、片側にピストンを含むサンプリングプローブを囲む環状シールから なる圧力測定部とパッカーが設置され、その反対側に坑壁への固定のためのバックシュ ー (ジャッキ)が設置された構成となっている (図 4-18)。



図 4-18 RFT プローブの概観

RFT プローブがバックシューによって目標深度に固定されてから、測定が行われ、バッ クシューが開放されるまでの圧力変化が計測される。目標深度に到達したとき、圧力計は 泥水圧を示す。その後、パッカーが圧着されると、ピストンを含むプローブが泥壁を通し て地層に押し込まれ、圧力が低下する。そして、ピストンが引き抜かれることにより、間 隙水がフローラインを通ってチャンバー内に流入する。チャンバーが満杯になったとき、 フローラインの流体圧は間隙水圧と釣り合い、間隙水圧が推定される。

c. 坑井内試験と物理検層による間隙水圧推定の比較

間隙水圧推定のための坑井内試験(DST)と物理検層(RFT)は、応力場推定を目的とす る場合と違い、互いに同種類の測定を行うものであるが、両者には一長一短がある。例え ば、試験区間が破砕帯や層構造を含む場合には、DSTによる推定値は当該区間を代表する
間隙水圧を示すものの、RFTによる推定値は信頼性に欠ける傾向がある。一方、試験区間の地層が低透水性である場合には、逆に DST による推定値の方が信頼性に欠ける傾向がある。後者の違いの背景には、RFTを用いる場合、浮遊式の物理検層のように深度に対して連続的な推定ができるわけではないものの、DSTに比べてはるかに多数の深度における間隙水圧情報が取得できるという利点も関与している(Gunter, 1987)。

したがって、DST と RFT は、地層の特性を踏まえて適切に適用することにより、間隙水 圧の推定が行えると考えられる。

d. 既往の超深孔における間隙水圧の推定例と超深孔計画における間隙水圧の推定

DST は、多くの既往の超深孔(結晶質岩を掘削)において、透水係数の推定を目的にし て行われている(令和2年度報告書)。したがって、透水試験と並行して、DST による間 隙水圧の推定が行われている場合が多い。

例えば、KTB-HB 孔の坑底(坑底 9,101 m 付近の 70 m 区間(265 ℃;約270 MPa(推定)) で行われた DST においても、透水係数と間隙水圧の推定が行われている。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 ℃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。そして、KTB-HB 孔の坑底において DST が実施され 10⁻¹¹~10⁻¹² m s⁻¹オーダーの透水係数プロファイルが得られるとともに、同じデータを解釈することによって、間隙水圧が 103±3 MPa と推定されている(Huenges et al., 1997)。

また、米国のサンディア国立研究所において計画された超深孔処分のための実験計画 においては、「Open hole testing via tubing-deployed packers」という坑井試験と 「Wireline-Based Downhole Hydraulic Testing」という物理検層とを併用した水理試験 を行い、間隙水圧を推定することが示されている(Kuhlman et al., 2019)。

③ 岩石強度推定のための調査技術

ー軸圧縮強度(UCS)などの岩石強度に係る信頼できるデータはコア試験によってのみ 得られる(Khaksar, 2009)。しかし、岩石コアの採取は非常に高価であるため、コア試験 以外の調査手法と併用することが一般的である。

建設工事を目的とする浅いボーリング孔においては、孔内でゴムチューブに注水した り、剛体載荷板を圧着したりして壁面に力を加えて変形係数を推定する、ボーリング孔内 載荷試験が行われている。変形係数が得られれば、コア試験によって得られる限界ひずみ と組み合わせることによって、UCSを推定することができる(桜井, 1982)。しかし、超 深孔において坑井内試験を行うことは困難である。このため、超深孔においては、コア試 験と物理検層を統合して岩石強度を推定することが行われている。

そこで、本検討においては、UCSを推定することを目的として、コア試験と物理検層を 統合する手法を念頭に置いて調査した。

令和3年度の実施内容を以下に示す。

- コア試験による一軸圧縮強度(UCS)の測定(a.項参照)
- 物理検層による一軸圧縮強度(UCS)の推定(b.項参照)
- 坑井の安全な掘削を目的としたコア試験と物理検層の統合による UCS の推定例 (c.項参照)

a. コア試験による一軸圧縮強度(UCS)の測定

UCSを測定するためのコア試験(一軸圧縮試験)は、岩石コアに拘束圧をかけずに、油 圧などによって軸方向応力を加圧し、岩石コアの軸方向ひずみや周方向ひずみを測定す る(図 4-19)。

ー軸圧縮試験では、試験の進行に伴い、加える軸方向応力がその最大値に達するまで は、軸方向ひずみとの関係が概ね直線的であり、その傾斜からヤング率を知ることができ る。そして、特に、超深孔処分において対象となる硬岩においては、加圧が最大値に達す ると同時に岩石コアは破断する。そして、このときの軸方向応力を一軸圧縮強度(UCS) として測定する(石島, 2021)。



図 4-19 一軸圧縮試験の概念図

b. 物理検層による一軸圧縮強度(UCS)の推定

物理検層による UCS 推定は、種々の検層値からの変換によって行われるのが一般的で ある。ただし、物理検層で取得できる一次データとの関係をサイトスペシフィックに推定 する事前検討が必要となる。

c. 坑井の安全な掘削を目的としたコア試験と物理検層の統合による UCS の推定例

坑井を安全に掘削するためには、パイロット孔で取得したデータに基づいて、応力や間 隙水圧とともに UCS の深度プロファイルが得られていれば有効であると考えられる。そ のための情報として最も正確なものはコア試験によって得られると考えられるが、コア 試験は離散的な情報しかもたらさない。一方、物理検層に基づく方法は、USC と相関があ る様々な物理量からの変換に基づいて連続的な UCS プロファイルを提供するものの、変 換式やそのパラメータが調査場所や岩種によって大きく変化する場合があるため、対象 とする調査場所と岩種に適合した変換式が見いだせていない場合にはその精度は低い。 したがって、物理検層に基づく方法を用いる場合には、まず対象とする調査場所で採取した対象岩種によるコア試験を行って、その結果によってキャリブレーションし適切な変換式を構築することがよく行われる。

④ 地質環境調査技術に関する調査のまとめ

令和3年度の調査により、建設段階の設計要件としての「深度確保」や「坑径確保」の 実施に必要なケーシング技術に関わる情報である「岩盤強度」、「応力場」、「間隙水圧」に 着目し、地下深部の探査手法(坑井内試験、物理検層、コア試験など)を用いて、岩石強 度、応力場および間隙水圧を測定するための手法について調査・整理した。

調査・整理の結果、岩盤強度、応力場、間隙水圧については、各手法(坑井内試験、物 理検層、コア試験等)で測定・推定可能であること、また複数の手法を用いる(調査結果 を統合する)ことにより精度の高い測定・推定が可能になること、超深孔処分相当深度に おいても複数の手法を用いる方法での調査実績があることを確認した。

今後は、超深孔処分の他の事業段階で必要になる地質環境情報を含めた調査技術の調 査等を進めていく。

4) 設計・安全評価に係るデータ取得技術に関する調査

調査段階の設計要件としての「地質環境条件の把握」や「THMC 条件の把握」、あるいは 建設段階の設計要件としての「深度確保」や「坑径確保」の実現に必要な技術である「岩 盤間隙水圧の把握」や「地温勾配の把握」などに着目し、透水係数データや熱フラックス に係るデータの取得技術について超深部の環境下(高温・高圧等)での坑井内透水試験法 などを調査し、現段階での各手法の推定・測定精度や超深部の環境下での適用事例などを 整理する。令和3年度の実施内容を以下に示す。

- 透水係数に係るデータ取得技術(①項参照)
- 熱フラックスに係るデータ取得技術(②項参照)
- 設計・安全評価に係るデータ取得技術に関する調査のまとめ(③項参照)

① 透水係数に係るデータ取得技術

透水係数に係るデータは、「坑井内試験」、「物理検層(検層型坑井内試験を含む)」および「コア試験」によって得られる。これらの手法によって得られる透水性情報は、それぞれが代表するスケールが異なるが、スケールの違いを適切に考慮した作業を行うことによって、各手法による透水性情報が有意に統合され得る。また、統合作業によって、精度の高い透水係数モデルが構築される。

そこで、まずはこれらの手法について個別に調査し、その後各手法を統合した例を調査 した。また、超深孔処分相当深度での透水係数の推定事例について調査した。

令和3年度の実施内容を以下に示す。

- 坑井内試験による透水係数の推定(a.項参照)
- 物理検層による透水係数の推定(b.項参照)
- コア試験による透水係数の推定(c.項参照)

坑井内試験、物理検層、コア試験の統合による透水係数の推定例(d.項参照)

なお、広域的な範囲の透水性情報を取得するための手法として、超深孔の近くに小坑径 のボーリング孔を掘削したうえで「孔間透水試験」を行う可能性も考えられる。ただし、 超深孔処分において孔間透水試験を行う場合、追加で超深部までもう一本ボーリング孔 を掘削する必要がある等、技術面やコスト面での課題が多いと考えられる。

a. 坑井内試験による透水係数の推定

透水係数の推定を目的とする坑井内試験には以下のようなものがある(竹内ほか, 2007; Rosberg, 2010)。

- パルス試験
 パッカーで閉鎖した試験区間に瞬間的に圧力変化(パルス)を与え、平衡水圧に
 回復するまでの圧力変化から透水性を把握する試験
- スラグ試験
 平衡水圧から変化させた状態でパッカーで閉鎖した試験区間を開放し、回復過程における圧力変化から透水性を把握する試験
- DST (Drill Stem Test)
 ドリルステム(掘削編成)を用いて行うスラグ試験で、間隙水圧推定のために行う
 DST ((3) 3) ② a.項参照)と同じ

揚水試験 パッカーで閉鎖した試験区間からポンプによって揚水し、それに伴う圧力変化から 透水性を把握する試験

• 注水試験

パッカーで閉鎖した試験区間にポンプによって注水し、それに伴う圧力変化から 透水性を把握する試験

これらのうち、揚水試験や注水試験は、低透水性岩盤での計測が難しいことや、坑井掘 削に伴う掘り屑の岩盤亀裂への侵入や地下水と坑井内流体との混濁が生じやすいことな どから、超深孔処分のための坑井内透水試験法としての適用性には難があると考えられ る。そして、超深度・高温・高圧環境の結晶質岩において実績のある坑井内透水試験法は、 DSTと注水試験が主である。

DSTは Gravberg-1 孔 (スウェーデン) の 5,443~6,779 m 区間や KTB-HB 孔 (ドイツ) の 9,030~9,101 m 区間において、注水試験は Urach-3 孔 (ドイツ) の 4,400 m (坑底) までの裸孔区間や Soultz GPK-1 孔 (フランス) の断層を含む 2,850~3,400 m 区間にお いて実施されている。これらのうち、Urach-3 孔や Soultz GPK-1 孔での注水試験では 10⁻¹⁰ m s⁻¹オーダーの透水性を推定しているのに対して、Gravberg-1 孔や KTB-HB 孔での DST では、1 桁低い 10⁻¹¹ m s⁻¹オーダーの低い透水性を推定することに成功している。一方、 米国サンディア国立研究所の報告書では、超深孔処分において有効な坑井内透水試験法 として、DST とパルス試験が推奨されている (Brady et al., 2012; Kuhlman et al., 2015; 2019)。以上の既往研究を踏まえて、本検討においては DST による透水係数の推定 について調査した。

DSTの測定装置や圧力データの概要は、(3)3)② a.項に示した間隙水圧推定を目的に する場合と同じである。すなわち、同一のDST データにより、間隙水圧とともに透水係数 が推定できる。DST が透水性を感知できる地層の水平スケール(感知半径: radius of investigation) は 50~1,000 m 程度である (Cantini et al., 2013)。

b. 物理検層による透水係数の推定

透水係数を推定することを目的とした物理検層(物理検層型坑井内試験)としては WFT (Wireline Formation Tester:ワイヤーラインテスター)が有力である。また、いわゆ る物理検層による方法としては、NMR(核磁気共鳴)検層がある。

WFT は、テスターをワイヤーラインによって試験区間まで降下させて行う検層型坑井内 透水試験法であり、プローブ型やデュアルパッカー型がある(図4-20)。プローブ型WFT においては、チャンバーへの少量地下水の引き入れ(ドローダウン)の後の、圧力の自然 回復(ビルドアップ)期における圧力上昇勾配を用いて透水係数を算出する。プローブ型 WFT の感知半径は1 m 程度である。MiniDST あるいは IPTT などとも呼ばれるデュアルパ ッカー型の WFT においては、パッカーによる閉鎖区間により大量のドローダウンが行え るため、低透水岩盤においても高精度で透水係数を推定することができる (Cantini et al., 2013)。デュアルパッカー型 WFT の感知半径 10~40 m 程度である。



右:デュアルパッカー型

図 4-20 WFT 装置の概観

NMR(核磁気共鳴)検層は、静磁場でゼーマン分裂させた水素原子核のスピン群に磁場 パルスを与えて共鳴させたとき、共鳴が緩和される時間(T2)が孔隙径に比例する現象を 利用して、T2のスペクトルから孔隙径の分布を推定し、中性子検層によって推定される 全孔隙率と組み合わせることで透水係数を推定する物理検層法である (Chen et al., 2017)。NMR 検層は、砂岩層に対しては、従来の物理検層による透水係数の推定法であっ

た中性子検層に基づく方法における難点(流動性を有する孔隙と有しない孔隙との区分) を克服し、実用化されている。しかし、基質の透水性と亀裂の透水性とが混在する岩石に 適用するためには、より精緻な技術を必要とする(Lima, 2020)。NMR 検層は、WFT と比べ て、深度に対して連続したデータ取得が可能であるという利点を有するが、超深孔処分の ための設計・安全評価のパラメータ推定を目的として適用するには、さらなる技術の進歩 が必要と考えられる。

c. コア試験による透水係数の推定

透水係数の推定を目的とするコア試験(室内透水試験)には、流量計測に基づく定水位 法および変水位法、水頭差計測に基づくフローポンプ法およびトランジェントパルス法、 岩石コアの一端に与えた間隙圧変動の他端までの減衰や時間差に基づくオシレーション 法などがある(産業技術総合研究所産総研,2012)。例えば、Kola SG-3 孔や KTB-HB 孔に おいては、定水位法による室内透水試験によって、DST で実績のある 10⁻¹¹ m s⁻¹オーダー より5桁低い小スケールの透水試験が行われている(Morrow et al., 1994)。しかし、 原位置での低動水勾配を再現したコア試験には、フローポンプ法だけが対応できるとさ れている(産業技術総合研究所産総研,2012)。フローポンプ法においては、流量を制御 して圧力を計測する方法と、成立までに長時間を要する定常流の仮定を排した解析法と によって、精度の高い計測を実現している(高橋ほか,1998)。

d. 坑井内試験、物理検層、コア試験の統合による透水係数の推定例

石油天然ガス開発を目的として、メキシコ湾の海底下 5,000 m に分布する砂岩層にお いて、DST、WFT、NMR 検層およびコア試験によって透水係数データが取得され、統合され た事例がある(Haddad et al., 2000)。各手法の感知半径(radius of investigation)、 鉛直方向の分解能、原位置応力の反映傾向、および透水係数の動的・静的傾向が異なるこ とから、WFT、NMR 検層およびコア試験による透水係数を用いて DST の圧力応答がシミュ レーションされ、それに基づいて、各手法によって得られる透水係数の不整合を修正する ことが試みられた。このような作業を経て、透水係数の深度プロファイルが、NMR 検層と 同様な連続関数として得られた。また、統合作業の過程で、地層構造と岩種によっては 10 倍以上の差が出てしまうこともある NMR 検層とコア試験による透水係数が、ともに DST による透水係数によりキャリブレーションされ、高精度な透水係数モデルが構築された。

② 熱フラックスに係るデータ取得技術

熱フラックス(地殻熱流量)は、岩石の熱伝導率と地温勾配との積で与えられる。岩石 の熱伝導率はコア試験によって推定される。地温勾配については、海域にあっては高々10 m程度のヒートフロー・プローブでの測定に基づいて推定されることが多いが、陸域にあ っては坑井を利用して、掘削による熱擾乱が消え自然の地層平衡温度が回復するのを待 って温度検層を行うか、熱擾乱を含む温度検層データから計算によって地層平衡温度を 求め、推定する(物理探査学会, 2016)。

本検討では、これら岩石の熱伝導率と地温勾配の推定方法について調査した。また、超

深孔処分相当深度での熱フラックスの推定事例について調査した。

令和3年度の実施内容を以下に示す。

- 岩石の熱伝導率推定(a.項参照)
- 地温勾配の推定(b.項参照)
- コア試験と温度検層の統合による超深部での熱フラックスの推定例(c.項参照)

a. 岩石の熱伝導率推定

岩石の熱伝導率を推定する方法としては、非定常細線加熱法の原理を用いる方法と熱 拡散率を計測して計算により熱伝導率を求める方法とが代表的である(土木学会,2006)。 本検討においては、コア試験に分類される前者の方法について調査した。

岩石の熱伝導率を非定常細線加熱法の原理によって測定する際は、水飽和度や封圧を 原位置での状態と同じにして行うことが望ましい。出口(1991)は、水分飽和状態の試料を 水中においても測定でき、かつ、熱伝導率が大きい試料でも良い精度で測定できるように 改良した、非定常細線加熱法の一つである非定常細線加熱比較法の測定原理に基づく熱 伝導率測定装置を開発している。同装置による測定においては、熱伝導率が既知の断熱材 に発熱線と温度検出用熱電対を取り付けた平板センサーを岩石コアの測定面に密着させ、 発熱線に一定電力を供給して温度を計測する。そして、その温度上昇曲線から見掛けの熱 伝導率λaを求めた後、λaと断熱材の熱伝導率から、岩石コアの熱伝導率λを計算によって 推定する。

b. 地温勾配の推定

地温勾配は、坑井内に高感度温度測定器を降下させて行う温度検層によって推定する。 高感度温度測定器は、4素子抵抗体から成る電気的ブリッジ平衡回路を採用し、抵抗体の 1素子に感熱抵抗体を使用している。感熱抵抗体を露出させて、坑井内流体と直接接触す る構造となっており、0.2 ℃程度の小さな温度変化を測定記録することができる(JOGMEC, 2021c)。

c. コア試験と温度検層の統合による超深部での熱フラックスの推定例

コア試験による熱伝導率推定と温度検層による地温勾配推定とを組み合わせて熱フラ ックスを推定する研究は、Kola SG-3 孔を含む、既往の結晶質岩超深孔においても行われ ている。本検討においては、Kola SG-3 孔での試みについて調査した。

Kola SG-3 孔は、1970~1984年の期間に、ロシア(旧ソ連)北西部のコラ半島に分布す る先カンブリア紀の安定したバルト楯状地において、Conrad 不連続面(大陸地殻上部の 花崗岩質層と下部の玄武岩質層との境界面)に到達することを最終目標にして、結晶質基 盤が露出する場所に掘削された。坑底坑径は 0.216 m、掘削深度 12,262 m であった。Kola SG-3 孔は、研究用の坑井として保存されており、現在も深度 8,578 m まで計測が可能で あるため、様々な研究が行われている(Zhamaletdinov, 2020)。

Vogt et al. (2014)は、SG-3 孔とその近傍の坑井で取得された岩石コア 1,375 個による既往の熱伝導率値と、長く放置されて地層平衡温度に達していると考えられた SG-3 孔

および近傍の 7 坑井における温度検層のデータとを用いて地殻熱モデルを作成し、それ を利用して熱フラックスプロファイルを作成した。

③ 設計・安全評価に係るデータ取得技術に関する調査のまとめ

令和3年度の調査により、調査段階の設計要件としての「地質環境条件の把握」や「THMC 条件の把握」、あるいは建設段階の設計要件としての「深度確保」や「坑径確保」の実現 に必要な技術である「岩盤間隙水圧」や「地温勾配」などに着目し、透水係数データや熱 フラックスに係るデータ取得技術について調査・整理した。

調査・整理の結果、透水係数データや熱フラックスに係るデータについては、各手法 (坑井内試験、物理検層、コア試験等)で調査・推定可能であること(各手法には一長一 短があること)、また複数の手法を用いる(調査結果を統合する)ことにより精度の高い 測定・推定が可能になること、超深孔処分相当深度においても複数の手法を用いる方法で の調査実績があることを確認した。

今後は、超深孔処分の設計・安全評価において必要になる情報を含めたデータ取得技術 の調査等を進めていく。

5) 超深孔処分の適用性の検討などに向けた関連技術の分析・整理

本項では、(3)節での超深孔処分の検討事例の調査結果や、(4)節での超深孔処分に係 る関連技術の調査・分析結果を対象に、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・留意点など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 示の方法などについて検討した結果について示す。

<u>米国 Deep Isolation 社の超深水平処分の予備的安全評価での核種移行パラメータの設定</u> に関する分析・整理:

米国 Deep Isolation 社がアップデートを実施した予備的な閉鎖後安全評価(Finsterle et al, 2021;(3)1)項参照)における核種移行パラメータの超深部の高温・高圧への対応状況について分析・整理した結果を以下に示す。

- 当該文献では、I-129の間隙水中の拡散係数として 2×10⁻⁹ m² s⁻¹を設定している。
 これはストークスーアインシュタインの式に従って、深部のより高い温度に対して計算すると記述されているが、温度などの具体的な数値についての記述は見当たらなかった。
- また当該文献に関するウェビナーの No.28 に関する Q&A において、高温、高圧等の 様々な環境下での母岩や埋戻し材などの材料研究の必要性の問いに対して、従来の地 層処分の研究の知見を活用する旨の回答に留まっており、超深部の高温・高圧を考慮 した具体的な核種移行パラメータ設定についての情報は見当たらなかった。
- これらのことから、Deep Isolation 社の超深水平処分の検討事例においては、高温・ 高圧などを考慮した核種移行パラメータを設定するまでには現段階では至っていない い(情報や知見が揃っていない)可能性が考えられる。
- そのため今後も、Deep Isolation 社の文献調査を継続して、超深部の高温・高圧環

境下での核種移行パラメータの設定の参考となり得る情報などがあるかどうか注視 していく必要があると考えられる。

米国 Deep Isolation 社の超深水平処分での回収可能性に関する分析・整理:

米国 Deep Isolation 社の超深水平処分の検討事例における回収可能性の考え方について分析・整理した結果を以下に示す。

- 超深孔処分の回収可能性については、操業段階(廃棄体を定置している段階)での回 収可能性と、閉鎖後段階(処分場を閉鎖した後)での回収可能性の2つが考えられる。
- 米国 Deep Isolation 社がアップデートを実施した予備的な閉鎖後安全評価の文献に 関するウェビナー(Deep Isolation Inc, 2021a)の No. 36 および No. 37 に関する Q&A において、回収可能性の見通しについての問いに対して、既存の石油およびガス産業 の技術を活用すること、石油およびガス産業(の掘削時)においては、日常的にこれ ら技術を用いた回収が行われていて信頼性が高いこと等を回答している。
- また、Deep Isolation 社の過去の文献(Deep Isolation Inc, 2018)では、同社の超 深水平処分の概念において廃棄体の回収が可能であることを示すために、2018 年 11 月に、実際に地下の水平掘削孔に模擬廃棄体を定置、そして数時間後に回収までの作 業のデモンストレーションを実施した実績があることが報告されている。
- これらのことから、過年度までの調査において Deep Isolation 社が実現可能としている回収可能性については、「操業段階の回収可能性」を指しているものと考えられる。
- 一方、ウェビナーの No. 37 に関する Q&A において、処分場閉鎖後の回収可能性については、「アクセス坑道の埋戻しを除去するか、または新しい(廃棄体回収用の別の) 坑道を掘削する必要がある」との回答に留まっていることから、閉鎖後段階の回収可能性については重視していない(まだ検討が進んでいない)可能性が考えられる。
- 現行の規制で回収可能性を要件としている国(わが国も含む)では、閉鎖後段階の回 収可能性が確保できないと超深水平処分は実施できない可能性が高いと考えられる。
- そのため今後も、Deep Isolation 社の文献調査を継続して、閉鎖後段階の回収技術 の確立に向けた検討を実施するか等を注視していく必要があると考えられる。

米国 Deep Isolation 社の超深水平処分でのケーシング技術に関する分析・整理:

米国 Deep Isolation 社の超深水平処分の検討事例において、ケーシング技術をどのように取り扱っているのか等について分析・整理した結果を以下に示す。

- Deep Isolation 社のエストニアにおける適地選定の評価事例 (Deep Isolation, 2021b)において、超深水平処分を実現するため石油ガス開発における既存技術を応 用するとあり、その具体的な事例としてケーシングを取り上げている。
- また、同社のウェビナーQ&A (No.13、 No.52) においても、ケーシングには長期間の バリア機能はないものの、穿孔中の帯水層を保護し、キャニスターの定置(及び回収 可能性)を容易にするために必要であるとしているが、ケーシングについての具体的 な設計要件や仕様についての情報は見つからなかった。

超深水平処分でのケーシングについての具体的な設計要件や仕様までは確認されなかったが、重要な技術として取り扱っているものと想定されることから、今後も Deep Isolation 社の文献調査を継続して、設計要件や仕様に関する情報等が出てくるか注視していく必要があると考えられる。

個々の技術や情報等のわかりやすい整理や表示の方法などの検討:

超深孔処分の現段階での技術的実現性や課題などの検討で使いやすくするため、個々 の技術や情報の特徴・適用範囲・関連性などのわかりやすい整理や表示(例えば、複数の 情報の一括表示による視覚的なわかりやすさの向上)、調査した複数の情報の内容の関連 付け(例えば、異なる目的でまとめられた情報について、それらの複数の情報を別の目的 で関連付けることで新たな価値を生む)などの方法について検討した。

検討の例として、諸外国での超深度・結晶質岩における透水試験の実績情報(深度、温度、圧力、坑井内透水試験法、得られた透水係数の値)を、令和2年度報告書でまとめた 坑井内で使用する機器や素材の耐熱・耐圧性能による温度圧力環境の区分を当てはめて 整理・一括表示した例を図 4-21 に示す。



図 4-21 諸外国における超深度・結晶質岩中での透水試験の実績および 温度・圧力情報のわかりやすい整理・表示方法の例

図 4-21 により、超深度・高温・高圧環境の結晶質岩において実績のある坑井内透水試 験法は DST と注水試験が主であること、また、これらの実績の多くは高温高圧環境の圧 力区分である HP/HT 環境(温度が 205 ℃以下でかつ圧力が 138 MPa 以下の環境)に区分 されるので、パッカー等を交換して使用する程度の工夫によって掘削可能であること等を確 認・把握することができると考えられる。

(4) まとめ

使用済燃料の直接処分以外の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、米国等の諸外国における検討事例の調査や 国内外の関連技術の調査を通じて、わが国の諸条件を考慮した場合の超深孔処分の適用 性・成立性の検討における留意点と検討方法を整備する。

令和2年度までに、超深孔処分の検討事例の調査・分析(米国サンディア国立研究 所、Deep Isolation社等)、および超深孔処分の実現に必要な関連技術(掘削技術、地 質環境調査技術、データ取得技術)に関わる国内外での技術や情報の調査・分析を実施 した。超深孔処分の検討事例については、Deep Isolation社が超深孔水平処分について の安全評価や熱解析等の検討を進めていることを確認するとともに、一方で、それら検 討で想定されている掘削等の技術や核種移行関係のデータ等については、必ずしも事例 検討で想定している超深孔処分の仕様や環境条件への適用性等が確認されているわけで はなく、先行事例においても課題であることを確認した。またその結果、超深孔処分の 実現の前提となる掘削技術については、資源開発等のための細い径であれば超深部(例 えば米国サンディア国立研究所による検討で想定されている5,000 m以上)までの掘削 の実績が多数確認されるものの、超深孔処分での廃棄体の処分で必要と考えられる径

(例えば50 cm程度以上) での掘削については該当する実績がなくその実現が課題であ ることなどを確認した。その他に、閉鎖後安全性に係る核種移行経路や移行プロセスに ついての予察的な水理・核種移行解析などを通じた検討を進め、主要な移行経路が、最 も早い移行経路となることが懸念される超深孔沿いの移行か、従来の地層処分と同様に 母岩中の移行か、あるいはその組合せかが、地下水流動の方向、母岩の透水性、超深孔 の透水性(含、バリア機能の有無)のバランスによって変わり得ることが明らかとなっ た。これは、掘削技術や地質環境調査技術の調査において、透水性や地下水流動に関す る情報に注目すべきことを示している。

令和3年度は、超深孔処分の実施に必要な技術や重要な情報等の調査・分析を継続し た。ただし、これまでの調査を通じて、超深孔処分に関係する既存の技術や情報につい ての概略は把握できたと考えられるため、より超深孔処分の実施の立場に踏み込んで、 超深孔処分を実施するためにはどのような要件を満たす必要があるか、そのためにはど のような技術や情報が必要になるか、それらは地質環境条件によってどのように異なる か、などの具体化を試みつつ、そこで必要性が挙げられた技術や情報に重点をおいた実 践的な調査・分析を行うことが効果的と考えた。また、そのような調査・分析の結果 を、超深孔処分を実施するため要件や手順等と関係づけて整理することで、情報の使い やすい整理の実現にもつながることが期待される。このような考え方に基づき、超深孔 処分の実施に必要な技術や重要な情報等の調査・分析と整理を効果的に行えるようにす るために、超深孔処分の実現に向けた事業段階(調査段階、建設段階、操業準備段階、 操業段階、閉鎖段階)ごとの要求事項とそれを満たすための設計要件などを具体化し、 さらに設計要件を実現するために必要な技術や条件を調査・整理し、それらを設計要件 と関連付けて整理することを試みた。上記の事業段階のうち、令和3年度は、建設段階 を中心に、その段階の要求事項を「超深孔が適切に掘削できる」とし、この要求事項を

達成するための設計要件として「深度確保」と「坑径確保」を設定したうえで、それら 設計要件の技術的実現性について、ケーシングが実施できるか否かに特に着目した検討 を試行した。具体的には、「坑底坑径0.5 mの超深孔を深度5,000 mまで掘削」を例題と して、まず超深孔を掘削する地質環境条件について、基盤岩の上限面の深度、応力場の 異方性の有無、異常高圧の有無、岩盤強度の高低などの組合せにより特徴づけた4つの パターンを対象とし、そこに既存の最高性能のケーシング機器の適用を想定した場合に ついて、どのようなケーシング計画が考えられるか、またどのような条件でケーシング が成立し得るのかあるいは厳しくなるのかについてのケーススタディを行った。その結 果、超深孔のケーシングの可否、すなわち設計要件を満たす掘削の可否は、超深孔処分 の仕様(深度、坑径等)と地質環境条件に大きく依存することが示された。このこと は、超深孔処分の成立性は、従来の地層処分よりも超深孔処分の仕様や地質環境条件へ の依存性が大きく、成立性の検討に向けてはそれらの依存性を丁寧に検討し整理してお く必要性があることを示唆している。また、こうした検討を通じて、超深孔処分の実施 に必要な事業段階ごとの要求事項とそれを満たすための設計要件を具体化し、それらと 関連付け調査を行うことで、超深孔処分の実施に必要な技術や重要な情報等の整理を効 率的に行える見通しを得た。

なお、令和3年度の諸外国における超深孔処分の検討事例の調査では、米国Deep Isolation社による安全評価や同社によるエストニアにおける適合性評価等の最新の事 例を調査するとともに、大坑径での超深部までの掘削の実績や、高温・高圧環境での核 種移行パラメータの設定については依然として課題となっていることを確認した。

今後は、超深孔処分において最初に満たされるべき設計要件である「深度確保」と 「坑径確保」に着目し、令和3年度に限定的な条件で試行したケーススタディを、想定 される超深孔処分の仕様(深度、坑径等)とわが国で想定される幅広い地質環境条件 (特に、掘削やケーシングに関係する岩盤強度と応力場との可能性のある組合せ等に着 目)を対象に行うことで、想定する超深孔処分の仕様や地質環境条件と超深孔処分の成 立の可能性とがどのように関係するか、どのような技術の実現が鍵になるのか等につい ての見通しを得ることを目指す。あわせて、上記ケーススタディの中で、超深孔処分の 仕様や地質環境条件の想定との関係を踏まえて重点化して調査・整理する掘削技術や地 質環境調査技術等の情報について、超深孔処分の実現に必要な事業段階ごとの要求事項 やそれを満たすための設計要件などと関係付けた整理例を提示する。

これらにより、超深孔処分の適用性・成立性の検討で重要となる留意点や検討方法及 び関連する技術・情報等を、設計要件及び想定する超深孔処分の仕様や地質環境条件な どと関連付けて整備する。

【参考文献】

- Ahn, J., Apted, M.J. (2017): Geological Repository Systems for Safe Disposal of Spent Nuclear Fuels and Radioactive Waste, A volume in Woodhead Publishing Series in Energy, pp. 778.
- American Petroleum Institute (2005) : Specification for Casing and Tubing, API Specification 5CT, pp.306.
- American Petroleum Institute (2018) : Calculating Performance Properties of Pipe Used as Casing or Tubing, API TR 5C3, pp. 402.
- 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, pp. 152.
- Arnold, B.W. (2013): Deep Borehole Disposal Research: Demonstration Site Selection Guidelines, Borehole Seals Design, and RD&D Needs, SANDIA report, SAND2013-9490P, 211p.
- Beswick, J. (2008): Status of technology for deep borehole disposal, Report prepared by EPS International for Nuclear Decommissioning Authority, pp.91.
- 防災科学技術研究所(2020): 地形・地盤分類 250m メッシュマップ, 30m 平均 S 波速度, https://www.j-shis.bosai.go.jp/labs/wm2020/(閲覧日:2022年1月6日).
- Brady, P., Arnold, B., Altman, S., Vaughnet, P. (2012): Deep Borehole Disposal of Nuclear Waste: Final Report, SAND2012-7789, pp.31.
- 物理探査学会(2016): 物理探査ハンドブック 増補改訂版, pp. 1045.
- Cantini, S., Baldini, D., Beretta, E., Loi, D. (2013): Reservoir Permeability from Wireline Formation Testers, EAGE Annual Conference, pp.13.
- Chen, J.H., Altahaus, M., Delshad, M., Zhang, J., Almalki, F., Sun, Q., Shawaf, A., (2017): Optimization of NMR permeability transform and application to middle east tight sand, SPWLA 58th Annual Logging Symposium, pp. 11.
- Deep Isolation Inc (2018): Deep Isolation 公式 HP

https://www.deepisolation.com/ (閲覧日:2019年3月28日).

- 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.
- Deep Isolation Inc (2021a) : Safety in Depth Part 2: Sealing of a Deep Horizontal Borehole Repository for Nuclear Waste Q&A, Webinar Q&A.
- Deep Isolation Inc (2021b) : Qualitative Geological Readiness Assessment of Deep Isolation's borehole solution in Estonia.
- 出口 衛(1991): 細線加熱比較法による岩石の熱伝導率の高精度測定法, 資源・素材学 会誌, Vol. 107, No. 1, pp. 17-22.

土木学会(2006): 岩盤の熱環境に関する研究小委員会, 熱環境下の岩盤施設の開発を

めざして―熱物性と解析―, pp.16.

- Eaton, B.A. (1969): Fracture gradient prediction and its application in oilfield operations, Journal of Petroleum Technology, Vol. 21, pp. 1353-1360.
- Finsterle, S., Richard A. Muller., John, Grimsich., John, Apps., Rod, Baltzer. (2020): Post-Closure Safety Calculations for the Disposal of Spent Nuclear Fuel in a Generic Horizontal Drillhole Repository, Energies , 13, 2599; doi:10.3390/en13102599.
- Finsterle, S., Cooper, C., Muller, R.A., Grimsick, j., Apps, J. (2021): Sealing of a Deep Horizontal Borehole Repository for Nuclear Waste, Energies 2021, 14, 91.
- Fischer, T., Engelhardt, H.J., Wanne, T. (2020): Deep Borehole Disposal Concept, AINS - Civil Engineering, pp. 158.
- Frink, P. (2006): Managed pressure drilling what' s in a name?, Drilling Contractor, pp. 36-39.
- 外務省(2022): バルト三国と日本, 外務省ホームページ,

https://www.mofa.go.jp/mofaj/press/pr/wakaru/topics/vol80/index.html(閲覧 日:2022 年 2 月 28 日).

- 原子力発電環境整備機構(2010): 地層処分事業の安全確保(2010 年度版) 確かな技術による安全な地層処分の実現のために-, NUMO-TR-11-01.
- 原子力機構(日本原子力研究開発機構)(2017): 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): 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)(2021): 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.
- 地震調査研究推進本部(2012): 全国1次地下構造モデル(暫定版), https://www.jishin.go.jp/evaluation/seismic_hazard_map/lpshm/12_choshuki_d at/(閲覧日:2022年1月6日).
- Glover, P. (2001): Petrophysics MSc Course Notes, 7-Fluid Testing and Pressure Logs, pp.11.
- Grigoryan, A.M. (2017): Horizontal boreholes and hydraulic fracturing in improving the efficiency of oil field development. In: Proceedings of the Scientific-Practical Conference Dedicated to the Founder of Horizontal Drilling, September 6-7, Publishing house, Kazan, pp. 320.
- Gunter, J.M. and Moore, C.V. (1987): Improved Use of Wireline Testers for Reservoir Evaluation, Journal of Petroleum Technology, Vol.39, pp.635–644.

Haddad, S., Cribbs, M., Sagar, R., Viro, E., Castelijins, K., Tang, Y. (2000):,

So What is the Reservoir Permeability ?, The 2000 SPE Annual Technical Conference and Exhibition, pp.13.

- Hedin, A., Olsson, O. (2016): Crystalline rock as a repository for Swedish spent nuclear fuel. Elements 12, pp.247-252.
- 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.
- 星野一男・井波和夫(1975): 天草および北西九州における岩石の高圧物性とその石油地 質学的意義,石油技術協会誌, Vol. 40, No. 5, pp. 236-245.
- Huenges, E., Erzinger, J., Kuck, J., Engeser, B., Kessels, W. (1997): The permeable crust: Geohydraulic properties down to 9101m depth, J. Geophysical Research, vol. 102, no. B9, pp. 18255-18265.
- IAEA (2003) : Scientific and Technical Basis for Geological Disposal of Radioactive Wastes. Technical Reports Series 413. IAEA, Vienna.
- IAEA (2006) : Fundamental Safety Principles. In: Safety Standard SF-, vol. 1. IAEA, Vienna.
- IAEA (2011a): Geological Disposal Facilities for Radioactive Waste, Specific Safety Guide No. SSG-14.
- IAEA (2011b) : Disposal of Radioactive Waste. Specific Safety Requirements. IAEA Safety Standards Series No. SSR-5. IAEA, Vienna, pp.83.
- 伊原 賢(2009): 掘削技術の進歩: Managed Pressure Drilling (MPD) 一地層にやさしく、失敗をなくす油・ガス井の掘り方一,石油天然ガス資源情報, JOGMEC, pp.27.
- 石島洋二 (2021): 岩石力学, 北海道大学講義ノート, 北海道大学ホームページ, https://www.eng.hokudai.ac.jp/labo/rml/ishijima/text/kaisetsu.htm (閲覧日: 2022 年 1 月 19 日).
- 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, pp. 155-166.
- JOGMEC(石油天然ガス・金属鉱物資源機構)(2021a): 石油天然ガス情報, 用語辞典 -地 層圧-, JOGMECホームページ,
 - https://oilgas-info.jogmec.go.jp/termlist/1001150/1001250.html (閲覧日: 2022 年 1 月 17 日).
- JOGMEC(石油天然ガス・金属鉱物資源機構)(2021b): 石油天然ガス情報, 用語辞典 -リ ピート・フォーメーション・テスター-, JOGMECホームページ,

https://oilgas-info.jogmec.go.jp/termlist/1001815/1001851.html(閲覧日:2022 年1月17日).

- JOGMEC(石油天然ガス・金属鉱物資源機構)(2021c): 石油天然ガス情報, 用語辞典 -温 度検層-, JOGMEC ホームページ,
 - https://oilgas-info.jogmec.go.jp/termlist/1000297/1000394.html(閲覧日:2022 年1月23日).
- Karthikeyan, G., Jayanta, D., Ashutosh, K., Nitin, B., Neeraj, S. (2020): Fault-

related overpressure in the Krishna-Godavari Basin, India, Interpretation, Vol.8, No.1, pp.T183-T193.

- 加藤進(1988): グリーンタフ鉱床の特徴 —新潟地域グリーンタフ炭化水素鉱床の石油 地質学的研究 その 3-, 石油技術協会誌, Bol. 53, No. 2, pp. 131-143.
- 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, pp.363-370.
- Khaksar, A (2009) : Rock Strength from Core and Logs: Where We Stand and Ways to Go, SPE EUROPEC/EAGE Ann. Conf., pp.16.
- Kochkin, B., Malkovsky , V., Yudintsev, S., Petrov, V., Ojovan, M. (2021): Problems and perspectives of borehole disposal of radioactive waste, Progress in Nuclear Energy 139, 103867.
- 国土地理院(2021):国土地理院・傾斜量図,国土地理院ホームページ,

https://www.gsi.go.jp/bousaichiri/slopemap.html(閲覧日:2022 年 2 月 18 日).

- Kuhlman, K.L., Brady, P.V., MacKinnon, R.J., Gardner, W.P., Heath, J.E., Herrick, C.G., Jensen, R.P., Hadgu, T., Sevougian, S.D., Birkholzer, J., Freifeld, B.M., Daley, T. (2015): Deep Borehole Field Test: Characterization Borehole Science Objectives, SAND2015-4424R, 2015, pp. 54.
- 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, pp.156.
- Lima, M.C.O. (2020): Petrophysical Correlations for the Permeability of Coquinas (Carbonate Rocks), Transport in Porous Media, Vol.135, pp.287-308.
- Ludwig, W.J., Nafe, J.E., Drake, C.L. (1970): Seismic Refraction, The Sea vol. 4, part 1, 1970, Wiley-Interscience, 74.
- 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, 1999, pp.169-190.
- Morrow, C., Lockner, D.A., Hickman, S.H. (1994): Effects of lithology and depth on the permeability of core samples from the Kola and KTB drill holes, Journal of Geophysical Research, Vol.99, No.B4, pp. 7263-7274.

長縄成実(2006): 最新の坑井掘削技術(その3),石油開発時報, No. 150, pp. 3-11.

- 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(2019): 掘削技術 在来型地熱から超臨界地熱まで,地熱発電・熱水活用研究 会,資料 2-3, pp31.
- 大久保進(1998): 基礎試錐「三島」において発見された炭化水素包有物の産状およびマ イクロサーモメトリーの検討,石油技術協会誌, Vol. 63, No. 3, pp. 205-214.
- Peng, S. and Zhang, J. (2007): Engineering Geology for Underground Rocks, Springer, pp. 340.

石油技術協会(1992): 油井・パイプライン用鋼管ハンドブック, pp.288.

- Rosberg, J.E. (2010): Well Testing, Methods and Applicability, Thesis, Lund Univ., pp.165.
- 桜井春輔(1982): 原位置岩盤の試験とその結果の評価,材料, Vol. 31, No. 347, pp. 759-769.
- 産業技術総合研究所(2012): 概要調査の調査・評価項目に関する技術資料, 立地要件 への適合性とその根拠となる調査結果の妥当性-, 地質調査総合センター研究資料 集, No. 56, pp. 299.
- 高橋学,張 銘,江崎 哲郎,坂井 健太郎 (1998): 室内透水試験法について,応用地質, Vol.39, No.3, pp.315-321.
- 高畑伸一(2004):地下の圧力構造の把握と石油地質学的解釈,石油技術協会誌,Vol.69, No.2, pp.167-180.
- 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.
- 田中明子,矢野雄策,笹田政克,大久保泰邦,梅田浩司,中司昇,秋田藤夫(1999): 坑 井の温度データによる日本の地温勾配値のコンパイル,地質調査所月報, Vol.50, No.7, pp.457-487.
- 寺川寿子・松浦充宏(2009): 地震学における応力インバージョンの新展開 CMT デー タインバージョン法による応力場の推定—, 地震 2, Vol. 61, pp. S339-S346.
- 梅津 覚 (2006): 掘削分野の技術革新 —水深 3,000m を克服, 石油天然ガスレビュー, JOGMEC, pp. 47-61.
- Vo, U.D. and Chang, C. (2020): Geomechanical characterization of sedimentary basins using tectonic stress and strain, Geosciences Journal, Vol. 24, pp. 669-678.
- Vogt, C., Mottaghy, D., Rath, V., Marquart, G., Dijkshoorn, L., Wolf, A., Clauser, C. (2014): Vertical variation in heat flow on the Kola Peninsula: palaeoclimate or fluid flow?, Geophysical Journal International, Vol.199, pp. 829-843.
- Wyborn, D., Lambertus de Graaf., Stephen Davidson., Simon Hann (2005): Development of Australia's first Hot Fractured Rock (HFR) underground heat exchanger, Cooper Basin, South Australia, World Geothermal Congress, pp.7.
- 山田康広,柴沼潤,松岡俊文(2013): 坑壁破壊から見た応力場変動と石油鉱業への応用, 石油技術協会誌, Vol. 78, No. 1, pp. 28-35.
- 山本晃司 (2000): 石油開発における坑壁不安定に関する取り組み, 石油技術協会誌, Vol.65, No.5, pp.417-429.
- 山本晃司(2004): 応力・地層圧力・泥水比重一坑壁不安定の現象とメカニズム,石油技術協会誌, Vol. 69, No. 5, pp. 491-500.
- 山本晃司(2007): 坑井取得データによる応力計測の実際 総合的検討の一部として, 物理探査, Vol. 60, No. 2, pp.113-129.

- Yassir, N. and Addis, M. A. (2002): Relationships between pore pressure and stress in different tectonic settings, Pressure regimes in sedimentary basins and their prediction Ch. 8, AAPG Memoir 76, pp. 79-88.
- Yesiloglu-Gultekin, N. (2013): Prediction of uniaxial compressive strength of granitic rocks by various nonlinear tools and comparison of their performances, International Journal of Rock Mechanics & Mining Sciences, Vol. 62, pp. 113-122.
- 吉田邦一,吉見雅行,鈴木晴彦,森野道夫,滝沢文教,関口春子,堀川晴央(2007): 長 周期地震動計算のための石狩平野および勇払平野の3次元堆積盆地構造モデル,活 断層・古地震研究報告, No.7, pp.1-29.
- Zhamaletdinov, A.A. (2020): Fiftieth Anniversary of the Kola SG-3 Superdeep Borehole, Atmospheric and Oceanic Physics, Vol. 56, No. 11, pp.1401-1422.
- 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.88, pp.11703-11728.
- Zoback, M.D. (2007): Reservoir Geomechanics, Cambridge Univ. Press, pp449.

第5章

おわりに

5. おわりに

本報告書は、令和3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)として、資源エネルギー庁から原子力機構が受託し、使用 済燃料の直接処分など代替処分オプションに関する基盤技術を整備することを目的として実 施した調査や技術開発の成果を取りまとめたものである。

本事業では、使用済燃料の直接処分に係る人エバリアの成立性の評価の高度化への対応、 地質環境条件や使用済燃料の多様性への対応などに係る技術開発を重点に行うこと、また、 使用済燃料の直接処分以外のその他代替処分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、試験、解析評価などを実施した。

- ・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)
- ・その他の代替処分オプションについての調査(4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3年度に実施した上記の各事業項目の成果の総括、および各事業項目の今後 の計画の概要を示す。

・処分容器の挙動評価

処分容器の腐食挙動評価

本項では、処分容器の候補材料である純銅、および純銅に長寿命が期待できない条件 等に対応するための代替候補材料について、処分環境条件を想定した各種の腐食試験に よる腐食データの整備を進め、わが国の幅広い地質環境条件に対するこれら候補材料の 処分容器としての適用性や環境条件に応じた寿命などの評価を行う。

令和2年度までに、純銅については、低酸素濃度下で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腐食挙動を把握するため、60日 間までの浸漬試験を実施して腐食速度の経時変化を把握するとともに、定ひずみ試験で あるUベンド試験を60日間実施して応力腐食割れへの硫化物の影響に関する知見を取 得した。その結果、浸漬試験からは、硫化物濃度に応じて腐食速度が上昇することや硫 化水素が腐食挙動に与える影響が緩衝材の有無によって異なることを把握した。Uベン ド試験からは、60日までの試験では応力腐食割れが認められなかったものの、皮膜の 下に粒界腐食とみられる腐食発生しており、長期では粒界腐食割れに進展する可能性が 示唆された。また、純銅の応力腐食割れ感受性に対する環境条件の影響に関する知見を 拡充するため、圧縮ベントナイト中のUベンド試験を80日間実施し、応力腐食割れ挙 動に対する緩衝材乾燥密度の効果に関するデータを取得した。その結果から、圧縮ベン トナイト中で発生した局部腐食が応力腐食割れの起点となる可能性が考えられた。

他の候補材料については、複数の代表的な高耐食性金属等を対象とした酸化性環境での耐食性の比較によりニッケル基合金である C-276 を選定するとともに、高耐食性金属において問題となる酸化性環境での耐食性の評価に資するため、ニッケル基合金 C-276 の定電位法によるすきま腐食試験を実施し、1 M までの塩化物濃度ではすきま腐食が発生しないことを確認した。

令和3年度は、純銅について、硫化物共存下における浸漬試験およびUベンド試験に ついて、令和2年度よりも長期(100日間)の試験を行い、腐食速度の経時変化が生じ るか、また、粒界腐食が割れに進展するかどうかの確認を行うとともに、比較的短期間 で割れ感受性を評価できる低ひずみ速度試験(SSRT 試験)を実施して応力腐食割れに 対する硫化物の影響を調査した。その結果、硫化物共存かつ海水相当の塩化物濃度の条 件での浸漬試験では、腐食速度は経時的に低下しておらず、生成した腐食生成物皮膜に 保護性はないと推察された。低ひずみ速度試験(SSRT 試験)からは、海水相当の塩化物 濃度条件では、硫化物の存在は純銅の応力腐食割れ感受性を高めない可能性が示唆され た。また、浸漬試験から得られた腐食速度との比較から硫化物の定常拡散を考慮した腐 食モデルの妥当性を確認するとともに、その腐食モデルによる腐食寿命の評価から、想 定する地下水中の硫化物濃度の条件によっては、銅外層を40mmに設定した処分容器で も C-14(半減期約 5,700 年)の線量低減に十分な長期の腐食寿命を期待することが困 難となる場合があることが示唆された。さらに、純銅の応力腐食割れ感受性に対する環 境条件の影響に関し、塩化アンモニウム溶液又は人工海水を用いた圧縮ベントナイト中 のUベンド試験について、令和2年度よりも長期(100日間)の試験を行い、応力腐食 割れ挙動に対する溶液条件および緩衝材乾燥密度の効果に関するデータを拡充した。そ の結果、人工海水条件で割れは認められなかった一方で、10 mM NH4C1 水溶液条件では 割れの可能性がある箇所が確認された。

他の候補材料については、ニッケル基合金 C-276 を対象に、酸化性環境での耐食性の 評価を目的として、定電位法を用いたすきま腐食試験を塩化物濃度 3 M までの条件で実 施して、すきま腐食が発生しうる塩化物濃度の境界について見通しを得るとともに、知 見の不足している緩衝材共存下かつ低酸素濃度下での腐食メカニズムを把握すること を目的とした浸漬試験を開始した。

今後、純銅については、硫化物共存下の腐食挙動について、塩化物濃度等の影響も考 慮した条件での腐食速度の経時変化および応力腐食割れ感受性に関するデータを拡充 した上で、硫化物の定常拡散を考慮した腐食モデルの妥当性、ならびに硫化物が共存す る環境で応力腐食割れが発生しうるかどうかの見通しを提示する。また、得られたデー タにもとづき、緩衝材中の硫化物フラックスのより現実的な評価等を考慮した腐食モデ ルの検討を進める。また、長期(最長2年間)の条件で実施した圧縮ベントナイト中の Uベンド試験により、環境条件に応じた純銅の応力腐食割れ感受性の見通しを提示する。 他の候補材料については、ニッケル基合金 C-276 のすきま腐食の発生下限界電位を詳細 に確認するとともに、再不動態化電位との比較により臨界電位を評価し、ニッケル基合 金 C-276 による耐食性向上の効果をより詳細に確認・整理する。また、緩衝材共存下か つ低酸素濃度下での最長1年間の浸漬試験により、処分環境におけるニッケル基合金 C-276 の腐食メカニズムを把握する。これらにより、純銅については、処分環境を想定 した腐食寿命の評価事例を示すとともに、腐食寿命や応力腐食割れに影響を及ぼしうる 環境条件等の要因を整理する。また、他の候補材料については、ニッケル基合金 C-276 について得られた腐食データにもとづき、耐食性向上の効果を、チタン等の従来材と比 較しつつ整理するとともに、処分環境を想定した条件下での適用性の見通しを提示する。

5-2

使用済燃料処分での処分後臨界安全評価

本項では、使用済燃料の処分後の臨界安全について、燃料集合体、燃料被覆管、処分 容器等についての現実的な状態変化や材料配置を想定した評価を行えるように、臨界安 全評価技術の高度化を図る。

令和2年度までに、燃料集合体の燃料被覆管や処分容器等の腐食による状態の長期的 な変化と、それに伴う材料成分の再配置等に着目して臨界解析モデルを構築して解析を 行うことにより、これらが臨界安全性に及ぼす影響の程度や実効増倍率の変化の傾向等 を定量的に示せる見通しを得た。また、より現実的な状態変化や材料配置を想定した評 価としていくために、燃料被覆管や処分容器についての複数の状態変化が個別にではな く複合的に作用する場合の影響の確認、処分容器の変形や破壊により臨界が起こりやす い材料配置となる可能性の把握、などを課題として抽出した。

令和3年度は、燃料被覆管および処分容器のそれぞれの腐食の進展に伴う腐食生成物 の材料組成や密度等の変化について、それらの複数の状態変化が複合的に作用する場合 を想定した臨界解析を行なった。このために、状態変化の実効増倍率への影響の程度や 変化の傾向に関するこれまでの知見を整理したうえで、着目する状態変化の組合せを抽 出し(燃料被覆管の腐食による酸化物や水素化物の生成と処分容器の燃料集合体収容ス ペースでの腐食による腐食生成物の生成との組合せ)、それらを組合せた場合の実効増 倍率を評価した。その結果、組合せた場合の実効増倍率の増加は個別の状態変化につい ての実効増倍率の増加の和と同程度であり、これらの状態変化の組合せが実効増倍率の 増加を顕著に促進するわけではないとの見通しを得た。

また、処分容器の腐食で強度が低下することにより、腐食生成物の体積膨張に伴う応 力が載荷することで処分容器の変形や破壊が起こり、これにより臨界が起こりやすい材 料配置に変化する可能性の把握に向けての力学解析を行った。このような力学解析を行 うために、まず、燃料集合体収容スペースでの鉄の腐食膨張に対する燃料集合体からの 反力を考慮できる力学モデルを構築した。そのモデルを用いた解析により、腐食生成物 の物性値にかかわらず処分容器の破断が発生すること、しかし破断の発生は局所的な部 位に留まることを示す結果が得られた。さらに、それらの知見を踏まえて、臨界が起こ りやすい材料配置パターンを、「燃料集合体収容スペースの間の仕切り部の破断とそれ による崩落」と「処分容器の破断による燃料集合体収容スペースの拡大」の組合せによ り整理するとともに、そのパターンの中で、燃料領域が一か所に集積するような臨界が 起こりやすい材料配置となるような想定については、破断が発生するとしても局所的な 部位に留まると考えられることから回避できる可能性があること等の見通しが得られ た。

今後は、これまでの検討により、燃料被覆管の腐食と処分容器の燃料集合体収容スペ ースでの腐食による状態変遷の実効増倍率への影響の把握が進んできたことを踏まえ、 それらに加え、反射体領域となる処分容器外部で進展する腐食反応による状態変化等が 複合的に作用する場合の影響の把握も必要である。また、あえて処分容器の破壊や変形 の起こりやすい極端な条件を想定した力学解析を行うことなどを通じて、臨界が起こり やすい材料配置が生じる可能性の大小等についての知見を得ることを目指す(例えば、 収容スペースの複数か所の角部が破断する可能性の有無の確認等)。

これらの結果を反映して、現実的な状態変化や材料配置を想定した評価のための臨界 安全評価技術の高度化に向けて、上記で整理する臨界の起こりやすさや起こりにくさに 対応した状態変化や材料配置を対象とした臨界安全評価を行うための解析モデルの候 補を具体的に提案するとともに、各々のモデルを活用した臨界安全評価の手法と事例を 提示する。

・使用済燃料、緩衝材の挙動評価

使用済燃料集合体からの核種溶解挙動評価

使用済燃料の直接処分において、処分容器が破損した後の放射性核種の燃料集合体からの溶出挙動(速やかな放出、ゆっくりした溶解)の核種移行評価上の取扱い(瞬時放出率、長期溶解速度)の設定は、核種移行評価結果に大きく影響するため、より現実的な直接処分の安全評価に向けて、それぞれの設定値の信頼性の向上が重要となる。さらに、わが国で想定される処分環境として、無機炭酸濃度が諸外国より10倍程度高い状況が考えられる。本項では、それらを考慮したわが国での安全評価に適用可能な瞬時放出率および長期溶解速度の設定と信頼性向上を図る。

令和2年度までに、諸外国の設定事例の調査と並行して、無機炭酸濃度に着目した試 験研究を実施してきた。瞬時放出率の設定に向けては、燃焼計算コードにより導出した ガス放出率を用いた設定手法の構築と、わが国における推奨値および最大値を暫定的に 設定した。また、その妥当性を検証するために、ふげん使用済燃料を用いた大気雰囲気 下における核種の溶出データ取得に着手した。長期溶解速度の設定に向けては、諸外国 の設定事例を参考に暫定値を設定するとともに、UO2ペレットを用いた浸漬試験からマ トリクス溶解速度を導出する手法の構築と、溶解挙動把握のためのラマン分光法による 表面分析に着手した。

令和3年度は、瞬時放出率の暫定値の妥当性および設定手法の評価にむけて、ふげん 使用済燃料の大気雰囲気下における核種溶出データの取得および初期インベントリの 評価を実施し、瞬時放出評価の対象として代表的な核種(Cs-133、Sr-90、Tc-99、C-14、 C1-36)について、浸漬230日までのデータから溶出割合を導出した。その結果、浸漬 溶液の炭酸濃度が溶出割合に及ぼす影響が顕著ではない可能性を指摘するとともに、令 和2年度までに設定した瞬時放出率の推奨値および最大値と、本試験で得られた実燃料 からの溶出割合が矛盾しないことを確認した。また、長期溶解速度の暫定値の更新にむ けては、U02ペレットの溶解後のウランの再沈殿による過小評価を避けるために、マト リクス溶解指標物質として²⁶Mgを固溶させた(U,²⁶Mg)02ペレットの浸漬試験を実施し た。その結果から、マトリクス溶解速度が炭酸濃度依存性を有することを確認し、長期 溶解速度に炭酸濃度依存性を組み込む必要性を明らかにした。また、長期溶解速度を適 切に設定するために必要となる、ウラン酸化物の溶解過程での反応機構の理解にむけて、 ラマン分光と SEM による組織観察を組み合わせた表面分析が有効になる可能性が見い だされた。 今後は、瞬時放出率の適切な設定に向けての実燃料を用いた核種溶出データの拡充が 必要であり、使用済燃料の燃焼度の変化等による組成の違いが核種の放出割合に与える 影響を実験的に調査するとともに、より処分環境に近い嫌気性雰囲気での核種溶出デー タの取得と放出割合の評価を進める。これらにより、瞬時放出率の暫定値の更新の要否 や、核種ごとの設定手法の妥当性を示していく。また、マトリクス溶解速度の炭酸濃度 依存性の信頼性の向上にむけて、(U, ²⁶Mg) 02ペレットを用いた浸漬試験によるデータを 拡充するとともに、浸漬ペレットに対してラマン分光と SEM による組織観察を組み合わ せた表面分析を適用し、浸漬試験におけるペレット表面での溶解反応機構を理解するた めのデータを得ることで、炭酸濃度依存性の妥当かつ定量的な評価を進める。これらに より、長期溶解速度を炭酸濃度依存性を組み込んだ形で更新できるようにする。

緩衝材の長期挙動評価

本項では、処分容器の候補材料として検討されている銅を対象に、銅との相互作用に 伴う緩衝材の変質(他鉱物への変質、モンモリロナイトの Cu 型化)について調査を行 い、処分環境での長期にわたる銅製処分容器の腐食に伴う緩衝材の変質の可能性につい て評価する。評価においては、わが国の地層処分に特有の条件として、クニミネ工業製 クニゲル V1 が緩衝材として使用されること、全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、鋼製 PEM 容器等の使用に伴い生成す る鉄腐食生成物が影響を及ぼす可能性があることに着目した検討を行うこととした。

令和2年度までに、銅との相互作用に伴う緩衝材の変質挙動を調査するため、低酸素 雰囲気での変質を想定した硫化水素イオン共存下と、酸化性雰囲気での変質を想定した 塩化物イオン共存下等での試験を実施し、緩衝材の変質状況を調査した。その結果、モ ンモリロナイトの他鉱物への変質は確認されなかった。このことは、わが国の地層処分 において使用が想定されている緩衝材であるクニゲル V1 についても、諸外国で使用が 想定されているベントナイトと同様に、銅との相互作用により容易に変質しないことが 示唆される。また、これらの条件に加えて、わが国特有の地下水条件を想定した高濃度 の炭酸共存条件や、処分場において想定される鉄共存条件の試験に着手し、これらの条 件が緩衝材の変質に及ぼす影響について調査した。令和2年度までに、一部の条件にお いて試料の分析を実施し、炭酸共存条件および鉄共存条件についても、モンモリロナイ トの他鉱物への変質は確認されず、銅との相互作用により容易に変質しないことが示唆 される結果が得られた。

令和3年度は、炭酸共存条件および鉄共存条件での緩衝材の変質状況の調査を継続し て実施した。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条件で試験を実施し、試験試料の湿度制御 XRD 測定によるベントナイトの Cu型化の分析、EPMA 観察および XRD による鉱物同定、CEC 測定等により緩衝材の変質 挙動を調査した結果、令和3年度に分析したいずれの試験条件・試料においても、モン モリロナイトの他鉱物への変質や Cu型化は観察されておらず、このことは、地層処分 の安全評価において、銅との相互作用に伴う緩衝材の変質を評価する上では、地下水中 の炭酸や鉄腐食生成物の共存の影響は大きくないことが示唆される結果である。また、 長期間の銅との接触に伴う緩衝材の変質について定量的な評価としていくため、1年程 度の長期にわたって変質挙動を観察することで、緩衝材の変質量を増加させることを試 みる試験に着手した。なお、この試験においては、上記の結果より炭酸および鉄共存の 影響が小さいと判断し、これらが共存しない条件とした。

今後は、令和3年度に開始した試験期間をパラメータとした変質試験により銅の腐食 量と緩衝材の変質量を定量的に評価し、その関係について検討する。なお、これまで実 施してきた試験においては顕著な変質は観察されていないことから、1年程度の試験で も緩衝材の変質が確認できなかった場合には、例えば、緩衝材が変質する可能性のある 量を、CECの測定誤差などに起因する緩衝材変質量の評価誤差範囲を元に算出すること なども試みる予定である。

これらにより、使用済燃料の直接処分で想定される長期間にわたる銅との接触に伴う 緩衝材の変質を評価するために必要な緩衝材変質量と銅の腐食量の関係式を導出し、処 分環境での長期にわたる銅製処分容器の腐食に伴う緩衝材の変質の可能性について評 価する。

・その他の代替処分オプションについての調査

本項では、その他の代替処分オプションとして、諸外国で現在検討が進められてきて いる超深孔処分を対象として、米国等の諸外国における検討事例の調査や国内外の関連 技術の調査を通じて、わが国の諸条件を考慮した場合の超深孔処分の適用性・成立性の 検討における留意点と検討方法を整備する。

令和2年度までに、超深孔処分の検討事例の調査・分析(米国サンディア国立研究所、 Deep Isolation 社等)、および超深孔処分の実現に必要な関連技術(掘削技術、地質環 境調査技術、データ取得技術)に関わる国内外での技術や情報の調査・分析を実施した。 その結果、超深孔処分の実現の前提となる掘削技術については、資源開発等のための細 い径であれば超深部(例えば米国サンディア国立研究所による検討で想定されている 5,000m 以上)までの掘削の実績が多数確認されるものの、超深孔処分での廃棄体の処 分で必要と考えられる坑径(例えば 50 cm程度以上)での掘削については該当する実績 がなくその実現が課題であることなどを確認した。

令和3年度は、超深孔処分の実施に必要な技術や重要な情報等の調査・分析を継続し た。ただし、これまでの調査を通じて、超深孔処分に関係する既存の技術や情報につい ての概略は把握できたと考えられるため、今後は、より超深孔処分の実施の立場に踏み 込んで、超深孔処分を実施するためにはどのような要件を満たす必要があるか、そのた めにはどのような技術や情報が必要になるか、それらは地質環境条件によってどのよう に異なるか、などの具体化を試みつつ、そこで必要性が挙げられた技術や情報に重点を おいた実践的な調査・分析を行うことが効果的と考えた。また、そのような調査・分析 の結果を、超深孔処分を実施するための要件や手順等と関係づけて整理することで、情 報の使いやすい整理の実現にもつながることが期待される。このような考え方に基づき、 超深孔処分の実施に必要な技術や重要な情報等の調査・分析と整理を効果的に行えるよ うにするために、超深孔処分の実現に向けた事業段階(調査段階、建設段階、操業準備 段階、操業段階、閉鎖段階)ごとの要求事項とそれを満たすための設計要件などを具体 化し、それら設計要件を実現するために必要な技術や条件を重点的に調査し、さらにそ れら調査結果を設計要件と関連付けて整理することを試みた。上記の事業段階のうち、 令和3年度は、建設段階を中心に、その段階の要求事項を「超深孔が適切に掘削できる」 とし、この要求事項を達成するための設計要件として「深度確保」と「坑径確保」を設 定したうえで、それら設計要件の技術的実現性について、ケーシングが実施できるか否 かに特に着目した検討を試行した。具体的には、「坑底坑径 0.5 mの超深孔を深度 5,000 mまで掘削」を例題として、既存の最高性能のケーシング機器の適用を想定した場合に ついて、どのようなケーシング計画が考えられるか、またどのような条件でケーシング が成立し得るのかあるいは厳しくなるのかについてのケーススタディを行った。その結 果、超深孔のケーシングの可否、すなわち設計要件を満たす掘削の可否は、超深孔処分 の仕様(深度、坑径等)と地質環境条件に大きく依存することが示された。このことは、 超深孔処分の成立性は、従来の地層処分よりも超深孔処分の仕様や地質環境条件への依 存性が大きく、成立性の検討に向けてはそれらの依存性を丁寧に検討し整理しておく必 要性があることを示唆している。

今後は、超深孔処分において最初に満たされるべき設計要件である「深度確保」と「坑 径確保」に着目し、令和3年度に限定的な条件で試行したケーススタディを、想定され る超深孔処分の仕様(深度、坑径等)とわが国で想定される幅広い地質環境条件(特に、 掘削やケーシングに関係する岩盤強度と応力場との可能性のある組合せ等に着目)を対 象に行うことで、想定する超深孔処分の仕様や地質環境条件と超深孔処分の成立の可能 性とがどのように関係するか、どのような技術の実現が鍵になるのか等についての見通 しを得ることを目指す。

これらにより、わが国の諸条件を考慮した場合の超深孔処分の適用性・成立性の検討 で重要となる留意点や検討方法および関連する技術・情報等を、設計要件および想定す る超深孔処分の仕様や地質環境条件などと関連付けて整備する。

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と して「処分容器の挙動評価」「臨界安全評価技術」「緩衝材の挙動評価」に係る技術開発を、 また、地質環境条件や使用済燃料の多様性への対応として「処分容器の挙動評価」「使用済 燃料の挙動評価」に係る技術開発を重点に進めた。さらに、「その他の代替処分オプション についての調査」においてその他代替オプション等に係る諸外国の最新の知見の拡充等を進 めた。これらについて、過年度までの進展を踏まえて設定した試験・解析の条件の拡充や調 査範囲の拡充に基づくデータ取得及び情報整理を行うことによって令和3年度の計画を完遂 し、所期の成果を得たと考えている。

本事業の成果が、将来に向けて幅広い選択肢を確保し、柔軟な対応を可能としていくため の代替処分オプションに関する基盤技術として活用されることを期待している。

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、本事業期間(平成30年度~令和4年 度)の成果だけではなく先行事業期間(平成25年度~平成29年度)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全体的な進展がわかるものとするとともに、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。このような目 的に沿った取りまとめ報告書は、本事業および先行事業での広範な実施内容の全体像を俯瞰 できるようにすることを主眼とし、実施内容や成果のポイントを端的に示しつつ、必要に応 じて詳細な情報をたどれるように年度報告書や論文等を適切に引用することに留意する。こ のような取りまとめ報告書の作成は、前段で述べた本事業の成果の代替処分オプションに関 する基盤技術としての活用に資するものになると考える。

付録 1 ウラン化合物のラマンスペクトルデータ (本編 3 章に付す:3.(3)4)項)

本付録では3章で述べた、文献調査により収集したラマンスペクトルデータについてまとめた。

ウラニル化合物を中心に酸化物・塩化物、炭酸塩、硫酸塩、ケイ酸塩についてデータを収 集した。表中 v₁はウラニル構造の対称伸縮振動に対応するラマンバンドであり、スペクトル 中で主要なピークを与える。その他のピークについては v₁とは別の列に、帰属と強度を付記 して記載した。帰属に関する添字は次のとおりである: "sym" 対称伸縮振動、 "as" 非対 称伸縮振動、 "b" 変角振動。ピーク強度については次のとおりである: "s" 強い、 "m" 中程度、 "w" 弱い。

化学式	鉱物名	文献	ν 1	その他のピーク
			(cm ⁻¹)	(cm^{-1})
酸化物・塩化物				
$[(U0_2) (0_2) (H_20)_2] \cdot 2H_20$	Studtite	Mallon et al.,	831	870 (0-0) _b , s
		2012		360 (U-O) _{as} , w
$[(U0_2)_80_2(OH)_{12}] \cdot 12H_20$	Schoepite	Frost et al.,	838	855 (U-O) _{as} , m
		2007c		
$K_{2}[(UO_{2})_{3}O_{2}(OH)_{3}]_{2}$ · 7H ₂ O	Compreignacite	Frost et al.,	848	
		2008b	824	
$Ca[(U0_2)_60_4(0H)_6] \cdot 8H_20$	Becquerelite	Frost et al.,	838	854 (U-O) _{as} , m
		2007c	813	
$K_2Ca[(UO_2)_6O_6(OH)_4] \cdot 6H_2O$	Rameauite	Plášil et al.,	813	453 (U-O) _{as} , w
		2016b		
(Ca, U) 0 ₄	Vorlanite	Galuskin et	683	
		al., 2011		
U0 ₂ C1 ₂		Bullock et	871	960 (U-O) _{as}
		al., 1967		
炭酸塩				
U0 ₂ C0 ₃	Rutherfordine	Frost et al.,	886	
		2009;		
		Kalashnyk et		
		al., 2017		
$Ca[(U0_2)(C0_3)_2(H_20)_2] \cdot 3H_20$	Zellerite	Frost et al.,	834	233 (U-O) _b , m
		2008a		
$Ca_{2}[UO_{2}(CO_{3})_{3}] \cdot 11H_{2}O$	Liebigite	Frost et al.,	822	
		2005b		

付表 1-1 ウラン化合物のラマンスペクトルデータ(1/3)

$Mg_2 [UO_2(CO_3)_3] \cdot 18H_2O$	Bayleyite	Amayri et al.,	822	
		2005		
$Na_{4}[(UO_{2}(CO_{3})_{3}]]$	Cejkaite	Čejka et al.,	805	
		2010		
$Na_2Ca(UO_2)(CO_3)_3 \cdot 6H_2O$	Andersonite	Driscoll et	832	905 (U-O) _{as} , w
		al., 2014		
$K_{3}Na (UO_{2}) (CO_{3})_{3} \cdot H_{2}O$	Grimselite	Biswas et al.,	815	876 (U-O) _{as}
		2016		
$CaU(V)(UO_2)_2(CO_3)O_4(OH)(H_2O)_7$	Wyarite	Frost et al.,	853	
		2004b	837	
Sr ₂ [UO ₂ (CO ₃) ₃] · 8H ₂ O		Amayri et al.,	812	
		2005		
K ₄ UO ₂ (CO ₃) ₃		Anderson et	806	
		al., 1980		
硫酸塩				
$[(U0_2)_6(S0_4)0_2(OH)_6(H_2O)_6] \cdot (H_2O)_8$	Uranopilite	Frost et al.,	843	
		2004a:2007d	835	
(U0 ₂) ₈ (S0 ₄) (0H) ₁₄ · 13H ₂ 0	Jachymovite	Čejka et al.,	839	
		2009	828	
$K_{0.6}(H_{3}0)_{0.4}[(U0_{2})_{6}(S0_{4})_{3}(OH)_{7}]\cdot 8H_{2}0$	Zippeite	Frost et al.,	849	
		2007b	838	
$Na_{4}[(UO_{2})_{6}(SO_{4})_{3}(OH)_{10}] \cdot 4H_{2}O$	Sodium	Frost et al.,	840 841	
	zippeite	2007a	833	
			823	
Na ₅ (UO ₂) ₈ (SO ₄) ₄ O ₅ (OH) ₃ · 8H ₂ O	Natrozippeite	Driscoll et	840	250 (U-O) _b , w
		al., 2014		
$Na_5(UO_2)(SO_4)_3(SO_3OH) \cdot (H_2O)$	Meisserite	Plášil et al.,	847	241 (U-O) _b , m
		2013		
$Na_7 (UO_2) (SO_4) {}_4C1 \cdot (H_2O) {}_2$	Bluelizardite	Plášil et al.,	860	918,912 (U-O) _{as} ,w
		2014		260,252 (U-0) _b ,m
$K(UO_2)$ (SO ₄) (OH) · (H ₂ O)	Adolfpateraite	Plášil et al.,	843	900 (U-0) _{as} , w
		2012		270,264 (U-0) _b ,m
$[(U0_2)(S0_4)(H_20)_2]_2 \cdot H_20$	Shumwayite	Kampf et al.,	865	930 (U-O) _{as} , w
		2017	850	273,255 (U-O) _b ,w
$Na_{6}[(UO_{2})(SO_{4})_{4}] \cdot (H_{2}O)_{4}$		Plasil et al.,	830	220 (U-O) _b , m
		2016a		

付表 1-1 ウラン化合物のラマンスペクトルデータ(2/3)

$U0_2S0_4$ · 2. $5H_20$		Vlček et al.,	863	956,931 (U-O) _{as} ,w
		2009	853	255 (U-0) _b , w
$U0_2S0_4$ · 3. $5H_20$		Faulques et	865	
		al., 1993		
$(H_30)_2[(U0_2)_2(S0_4)_3(H_20)] \cdot 7H_20$		Jouffre et		930 (U-O) _{as}
		al., 2012		
$(H_30)_2[(U0_2)_2(S0_4)_3(H_20)] \cdot 4H_20$		Jouffre et		918,928 (U-0) _{as}
		al., 2012		
ケイ酸塩				
Ca (UO ₂) ₂ (SiO ₃ OH) ₂ · 5H ₂ O	Uranophane	Driscoll et	797	885 (U-O) _{as} , w
		al., 2014;		
		Frost et al.,		
		2006a;		
		Lehman et al.,		
		2008;		
		Wall et al.,		
		2010;		
		Bonales et		
		al., 2015		
$K_{2}[(UO_{2})_{2}(Si_{5}O_{13})] \cdot H_{2}O$	Weeksite	Frost et al.,	814	916, 887 (U-O) _{as} ,w
		2005a	810	266, 264 (U-O) _b ,m
(UO ₂) ₂ SiO ₄ · 2H ₂ O	Soddyite	Bonales et	890	258,268 (U-O) _b ,m
		al., 2015		
		Frost et al.,		
		2005a		
Mg (UO ₂) ₂ (SiO ₃ OH) ₂ · 5H ₂ O	Sklodowskite	Frost et al.,	780	
		2006b		
Na[U0 ₂ SiO ₃ (OH)] · 0.5H ₂ O	Sodium	Lehmann et	767	878 (U-O) _{as} , m
	boltwoodite	al., 2008		
$K[UO_2SiO_3(OH)] \cdot H_2O$	Boltwoodite	Lehmann et	791	881 (U-O) _{as} , m
		al., 2008		
(K, Na)[(UO ₂)(SiO ₃ OH)]·1.5H ₂ O	Boltwoodite	Frost et al.,	800	
		2006b		
$Ca[(U0_2)_2Si_5O_{12}(0H)_2] \cdot (H_2O)_3$	Haiweeite	Frost et al.,	800	264, 260 (U-O) _b , m
		2005a		

付表 1-1 ウラン化合物のラマンスペクトルデータ(3/3)

【参考文献】

- Amayri, S., Reich, T., Arnold, T., Geipel, G., and Bernhard, G. (2005): Spectroscopic characterization of alkaline earth uranyl carbonates, J. Solid State Chem., vol. 178, no. 2 SPEC. ISS., pp. 567-577.
- Anderson, A., Chieh, C., Irish, D. E., and Tong, J. P. K. (1980): An X-ray crystallographic, Raman, and infrared spectral study of crystalline potassium uranyl carbonate, K₄UO₂(CO₃)₃, Can. J. Chem., vol. 58, no. 16, pp. 1651–1658.
- Biswas, S., Steudtner, R., Schmidt, M., McKenna, C., Vintró, L. L., Twamley, B., Baker, R. J. (2016): An investigation of the interactions of Eu³⁺ and Am³⁺ with uranyl minerals: Implications for the storage of spent nuclear fuel, Dalt. Trans., vol. 45, no. 15, pp. 6383–6393.
- Bonales, L. J., Menor-Salván, C., and Cobos, J. (2015): Study of the alteration products of a natural uraninite by Raman spectroscopy, J. Nucl. Mater., vol. 462, pp. 296–303.
- Bullock, J., (1967): Raman and infrared spectroscopic studies of the uranyl ion: the symmetric stretching frequency, force constants, and bond lengths, pp. 1961–1964.
- Čejka, J., Frost, R. L., Sejkora, J., and Keeffe, E. C. (2009): Raman spectroscopic study of the uranyl sulphate mineral jáchymovite (UO₂)₈(SO₄)(OH)₁₄·13H₂O, J. Raman Spectrosc., vol. 40, no. 11, pp. 1464–1468.
- Čejka, J., Sejkora, J., Plášil, J., Bahfenne, S., Palmer, S. J., and Frost, R. L. (2010): Raman spectroscopic study of the uranyl carbonate mineral čejkaite and its comparison with synthetic trigonal Na₄[UO₂(CO₃)₃], J. Raman Spectrosc., vol. 41, no. 4, pp. 459-464.
- Driscoll, R. J. P., Wolverson, D., Mitchels, J. M., Skelton, J. M., Parker, S. C., Molinari, M., Khan, I., Geeson, D. and Allen, G. C. (2014): A Raman spectroscopic study of uranyl minerals from Cornwall, UK, RSC Adv., vol. 4, no. 103, pp. 59137-59149.
- Faulques, E., Russo, R. E., and Perry, D. L. (1993): Raman spectral studies of uranyl sulphate and its urea complex structural isomers, Spectrochim. Acta Part A Mol. Spectrosc., vol. 49, no. 7, pp. 975–983.
- Frost, R. L. and Čejka, J. (2009): A Raman spectroscopic study of the uranyl mineral rutherfordine - revisited, J. Raman Spectrosc., vol. 40, no. 9, pp. 1096–1103.
- Frost, R. L., Čejka, Ayoko, G. A., and Weier, M. L. (2007a): Raman spectroscopic and SEM analysis of sodium-zippeite, J. Raman Spectrosc., vol. 38, no. 10, pp. 1311-1319.
- Frost, R. L., Čejka, J., Bostrom, T., Weier, M., and Martens, W. (2007b): Raman

spectroscopic study of the molecular structure of the uranyl mineral zippeite from Jáchymov (Joachimsthal), Czech Republic, Spectrochim. Acta - Part A Mol. Biomol. Spectrosc., vol. 67, no. 5, pp. 1220–1227.

- Frost , R. L., Carmody, O., Erickson, K. L., Weier, M. L., Henry, D. O., and Čejka, J. (2004a): Molecular structure of the uranyl mineral uranopilite - A Raman spectroscopic study, J. Mol. Struct., vol. 733, no. 1–3, pp. 203–210.
- Frost, R. L., Čejka, J., and Weier, M. (2007c): Raman spectroscopic study of the uranyl oxyhydroxide hydrates: becquerelite, billietite, curite, schoepite and vandendriesscheite, J. Raman Spectrosc., vol. 38, pp. 460-466.
- Frost, R. L., Čejka, J., Weier, M. L., and Martens, W. N. (2006a): Raman spectroscopy study of selected uranophanes, J. Mol. Struct., vol. 788, no. 1-3, pp. 115-125.
- Frost, R. L., Čejka, J., Weier, M. L., and Martens, W. (2006b):Molecular structure of the uranyl silicates - A Raman spectroscopic study, J. Raman Spectrosc., vol. 37, no. 4, pp. 538-551.
- Frost, R. L., Čejka, J., Weier, M. L., and Martens, W. (2005a): A Raman and infrared spectroscopic study of the uranyl silicates - Weeksite, soddyite and haiweeite: Part 2, Spectrochim. Acta - Part A Mol. Biomol. Spectrosc., vol. 63, no. 2, pp. 305-312.
- Frost, R. L., Čcejka, J., Weier, M. L., Martens, W. N., and Ayoko, G. A. (2007d): Raman spectroscopy of uranopilite of different origins - Implications for molecular structure, J. Raman Spectrosc., vol. 38, no. 4, pp. 398-409.
- Frost, R. L., Dickfos, M. J., and Čejka, J. (2008a): Raman spectroscopic study of the uranyl carbonate mineral zellerite, J. Raman Spectrosc., vol. 39, no. 5, pp. 582-586.
- Frost, R. L., Dickfos, M. J., and Čejka, J. (2008b): Raman spectroscopic study of the uranyl mineral, compreignacite, K₂[(UO₂)₃O₂(OH)₃]₂· 7H₂O, J. Raman Spectrosc., vol. 39, no. 9, pp. 1158-1161.
- Frost, R. L., Erickson, K. L., Weier, M. L., Carmody, O., and Čejka, J., (2005b): Raman spectroscopic study of the uranyl tricarbonate mineral liebigite, J. Mol. Struct., vol. 737, no. 2–3, pp. 173–181.
- Frost, R. L., Henry, D. A., and Erickson, K. (2004b): Raman spectroscopic detection of wyartite in the presence of rabejacite, J. Raman Spectrosc., vol. 35, no. 4, pp. 255-260.
- Galuskin, E. V., Armbruster, T., Galuskina, I. O., Lazic, B., Winiarski, A., Gazeev,
 V. M., Dzierzanowski, P., Zadov, A. E., Pertsev, N. N., Wrzalik, R., Gurbanov,
 A. G. and Janeczek, J. (2011): Vorlanite (CaU⁶⁺)O⁴⁻ A new mineral from the Upper Chegem caldera, Kabardino-Balkaria, Northern Caucasus, Russia, Am. Mineral.,

vol. 96, no. 1, pp. 188-196.

- Jouffre, L. J. t, Wylie, E. M., and Burns, P. C. (2012): Influence of the organic species and oxoanion in the synthesis of two uranyl sulfate hydrates, (H₃O)₂[(UO₂)₂(SO₄)₃(H₂O)]·7H₂O and (H₃O)₂[(UO₂)₂(SO₄)₃(H₂O)]·4H₂O, and a Uranyl Selenate-Selenite [C₅H₆N][(UO₂)(SeO₄)(HSeO₃)], Zeitschrift fur Anorg. und Allg. Chemie, vol. 638, no. 11, pp. 1796–1803.
- Kalashnyk, N., Perry, D. L., Massuyeau, F., and Faulques, E. (2017): Spectroscopy and DFT studies of uranyl carbonate, rutherfordine, UO₂CO₃: A model for uranium transport, carbon dioxide sequestration, and seawater species, J. Phys. D. Appl. Phys., vol. 50, no. 50.
- Kampf, A. R., Plášil, J., Kasatkin, Marty, A. V., Čejka, J., and Lapčák, L. (2017): Shumwayite, [(UO₂)(SO₄)(H₂O)2]2·H₂O, a new uranyl sulfate mineral from Red Canyon, San Juan County, Utah, USA, Mineral. Mag., vol. 81, no. 2, pp. 273-285.
- Lehmann, S., Geipel, G., Foerstendorf, H., and Bernhard, G. (2008): Syntheses and spectroscopic characterization of uranium(VI) silicate minerals, J. Radioanal. Nucl. Chem., vol. 275, no. 3, pp. 633-642.
- Mallon, C., Walshe, A., Forster, R. J., Keyes, T. E., and Baker, R. J. (2012): Physical Characterization and Reactivity of the Uranyl Peroxide $[UO_2(\eta^{2}-O_2)(H_2O)_2] \cdot 2H_2O$: Implications for Storage of Spent Nuclear Fuels, vol. 2, no. Ii, 2012.
- Plášil, J., Hloušek, J., Veselovský, F., Fejfarová, K., Dušek, M., Škoda, R., Novák,
 M., Čejka, J., Sejkora, J. and Ondruš, P. (2012): Adolfpateraite,
 K(UO₂) (SO₄) (OH) (H₂O), a new uranyl sulphate mineral from Jáchymov, Czech
 Republic, Am. Mineral., vol. 97, no. January, pp. 447-454.
- Plášil, J., Kampf, A. R., Kasatkin. A. V., Marty. J., Škoda. R., Silva. S. S., Čejka., J. (2013): Meisserite, Na₅ (UO₂) (SO₄)₃ (SO₃OH) (H₂O), a new uranyl sulfate mineral from the Blue Lizard mine, San Juan County, Utah, USA, Mineral. Mag., vol. 77, no. 7, pp. 2975-2988.
- Plášil, J., Kampf, R., Kasatkin, A. V., and Marty, J. (2014): Bluelizardite, Na7(U02)(S04)4C1(H20)2, a new uranyl sulfate mineral from the Blue Lizard mine, San Juan County, Utah, USA, J. Geosci. (Czech Republic), vol. 59, no. 2, pp. 145–158.
- Plasil, J., Meisser, N., and Čejka, J. (2016a): The crystal structure of Na₆[(UO₂)(SO₄)₄](H₂O)₄: X-ray and Raman spectroscopy study, Can. Mineral., vol. 54, no. 1, pp. 5–20.
- Plášil, J., Škoda, R., Čejka, J., Bourgoin, V., and Boulliard, J.-C. (2016b): Crystal structure of the uranyl-oxide mineral rameauite, Eur. J. Mineral., vol. 28,

no. 5, pp. 959-967.

- Vlček, V., Čejka, J., Císařová, I., Goliáš, V., and Plášil, J. (2009): Crystal structure of U0₂SO₄· 2.5H₂O: Full anisotropic refinement and vibration characteristics, J. Mol. Struct., vol. 936, no. 1–3, pp. 75–79.
- Wall, N. A., Clark, S. B., and McHale, J. L. (2010): Synthesis and characterization of 1:1 layered uranyl silicate mineral phases, Chem. Geol., vol. 274, no. 3-4, pp. 149-157, 2010.