

令和4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5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4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4年度の実施内容	1-4
2. 処分容器の挙動評価	2-1
2.1 処分容器の腐食挙動評価	2-1
2.2 使用済燃料処分での処分後臨界安全評価	2-54
2.3 まとめ	2-86
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	3-54
3.3 まとめ	3-72
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 腐食生成物皮膜 (Cu_2S) および緩衝材を拡散層として考慮する場合の銅表面における硫化物フラックスの評価式の導出過程	付 1-1

目 次

図 1.1-1	本事業での実施項目と先行事業での実施項目の対応	1-4
図 2.1-1	試験カラムの模式図	2-4
図 2.1-2	腐食試験の試験状況	2-4
図 2.1-3	硫化水素吹込み下での緩衝材中の浸漬試験後試験片の外観	2-5
図 2.1-4	質量減少量から算出した腐食速度と硫化水素濃度の関係	2-6
図 2.1-5	Cu 接触試料を対象とした SEM 画像および元素マッピング	2-8
図 2.1-6	Cu 接触試料を対象とした SEM 画像（高倍率画像）	2-9
図 2.1-7	腐食生成物皮膜の成長に伴う硫化物フラックスの変化を考慮した腐食モデルの概念図	2-11
図 2.1-8	拡散層を緩衝材および腐食生成物皮膜（Cu ₂ S）とした硫化物輸送の概念図（円筒壁モデル）	2-12
図 2.1-9	皮膜の成長を考慮した腐食深さの評価	2-12
図 2.1-10	U ベンド試験片の模式図	2-15
図 2.1-11	U ベンド試験の試験状況	2-15
図 2.1-12	U ベンド試験の試験後試験片の外観	2-16
図 2.1-13	U ベンド試験片の断面観察の結果（10% H ₂ S）	2-17
図 2.1-14	U ベンド試験片の断面観察の結果（100% H ₂ S）	2-18
図 2.1-15	U ベンド試験片の皮膜成長速度	2-19
図 2.1-16	緩衝材中の硫化物濃度分布の推移の例（イメージ）	2-23
図 2.1-17	応力腐食割れの機構	2-25
図 2.1-18	U ベンド試験片の模式図	2-26
図 2.1-19	試験のイメージ図	2-27
図 2.1-20	U ベンド試験片の EPMA 分析箇所マイクロ観察	2-28
図 2.1-21	EPMA 元素マッピング結果	2-29
図 2.1-22	すきま腐食試験片の模式図	2-32
図 2.1-23	電気化学試験模式図	2-33
図 2.1-24	90 °C の NaCl 水溶液環境における腐食すきま再不働態化電位に及ぼす塩化物イオン濃度の影響	2-36
図 2.1-25	試験に用いたチタン製カラムのイメージ図	2-38
図 2.1-26	試料採取位置概要図	2-40
図 2.1-27	浸漬試料中の濃度分布（H, O）	2-43
図 2.1-28	試験後試料（3 か月）の GD-OES 分析結果	2-44
図 2.1-29	試験後試料（1 年）の GD-OES 分析結果	2-44
図 2.1-30	STEM 観察結果（HAADF）（左）、および EDX マッピング、電子回折画像（右）	2-45
図 2.1-31	硫化物濃度に応じた腐食深さの評価	2-48
図 2.1-32	本事業の成果および文献調査を踏まえた応力腐食割れ感受性の整理例	

	(パターン 1: 縦軸: 硫化物フラックス, 横軸: 硫化物濃度) ……	2-49
図 2.1-33	文献および本事業の成果にもとづく応力腐食割れ感受性の整理例 (パターン 2: 縦軸: 硫化物フラックス, 横軸: 塩化物濃度) ……	2-49
図 2.1-34	長寿命を達成可能な環境条件の総合的な整理例 ……	2-50
図 2.1-35	浸漬試験試料の断面画像 (純銅, 炭素鋼) ……	2-52
図 2.1-36	浸漬試験での腐食量の推移 (純銅, 炭素鋼) ……	2-53
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 ……	2-55
図 2.2-2	処分後の臨界の起こり易さに影響を及ぼす可能性がある材料等の状態の変化に関する現象間の相関関係の整理結果 ……	2-60
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合せ候補の概念図 ……	2-61
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 ……	2-62
図 2.2-5	水密度の変化と実効増倍率の関係 ……	2-63
図 2.2-6	状態変化①と③の複合的状态変化のパラメータと概念図 ……	2-65
図 2.2-7	燃料被覆管の腐食の進展における ZrO_2 中の間隙率変化による反応度影響 ……	2-67
図 2.2-8	収容スペースでの腐食の進展における溶存水素変化による反応度影響 ……	2-68
図 2.2-9	処分容器外表面および燃料被覆管での腐食の進展の複合的現象を考慮した実効増倍率 ……	2-69
図 2.2-10	処分容器外表面および燃料被覆管、収容スペースでの腐食の進展の複合的現象を考慮した実効増倍率 ……	2-71
図 2.2-11	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 ……	2-72
図 2.2-12	力学解析における解析体系 ……	2-74
図 2.2-13	力学解析における解析モデル ……	2-75
図 2.2-14	解析結果の例 (相当応力の時間変化) ……	2-77
図 2.2-15	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 ……	2-79
図 2.2-16	材料の現実的な状態と配置の変化を考慮した臨界安全解析モデルの解析結果 ……	2-83
図 3.1-1	使用済燃料中の核種分布および核種放出の概念 ……	3-2
図 3.1-2	燃料溶解速度の全炭酸濃度依存性に関する文献情報 ……	3-4
図 3.1-3	先行事業で得られた二酸化ウラン溶解速度の全炭酸濃度依存性 ……	3-5
図 3.1-4	ウランの溶出に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響の例 (SA/V=5、平成 31 年度実施) ……	3-5
図 3.1-5	UO_2 の溶解速度に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響における REDUPP 文献値との比較 ……	3-6
図 3.1-6	DR に及ぼす炭酸イオン濃度の影響 ……	3-6
図 3.1-7	UO_2 ペレット (上段)、(U, ^{26}Mg) O_2 固溶体ペレット (下段) 粉砕試料 XRD パターン ……	3-8
図 3.1-8	樹脂埋めペレットの観察結果 ……	3-9
図 3.1-9	研磨前後のペレット表面観察結果 ……	3-9
図 3.1-10	(U, ^{26}Mg) O_2 固溶体ペレットの塩酸洗浄による U 濃度時間変化 ……	3-10

図 3.1-11	(U, ²⁶ Mg) O ₂ 固溶体ペレットの塩酸洗浄による ²⁶ Mg 濃度時間変化	3-10
図 3.1-12	各浸漬試験試料における pH の時間変化	3-13
図 3.1-13	各浸漬試験試料における液相の Eh の時間変化	3-13
図 3.1-14	各試料における液相の炭酸イオン濃度の時間変化	3-14
図 3.1-15	各試料における液相の U 濃度の対数値の時間変化	3-15
図 3.1-16	各試料における液相の ²⁶ Mg 濃度の時間変化	3-15
図 3.1-17	各試料における液相の ²⁴ Mg 濃度の時間変化	3-16
図 3.1-18	(U, ²⁶ Mg) O ₂ 固溶体ペレットからの ²⁶ Mg 溶出濃度の時間変化	3-17
図 3.1-19	バックグラウンド由来の ²⁶ Mg 濃度の時間変化	3-17
図 3.1-20	添加[NaHCO ₃] = 50 mM における ²⁶ Mg 溶出濃度比較	3-18
図 3.1-21	(U, ²⁶ Mg) O ₂ ペレットからの ²⁶ Mg 溶出率の時間変化	3-19
図 3.1-22	DR に及ぼす炭酸イオン濃度の影響年度比較	3-21
図 3.1-23	UO ₂ 再沈殿試験の試料調製・分析フロー図	3-23
図 3.1-24	反応前後の試料外観 (試料番号: L1)	3-24
図 3.1-25	試験で得られた沈殿の外観	3-27
図 3.1-26	試料 L1 の二次電子像と元素マッピング像	3-28
図 3.1-27	試験で取得した沈殿のラマンスペクトル (a) Na ₂ S ₂ O ₄ 濃度が 4 mmol dm ⁻³ の試料 L1 から L5 の分析結果 (b) Na ₂ S ₂ O ₄ 濃度が 30 mmol dm ⁻³ の試料 H1 から H7 の分析結果	3-29
図 3.1-28	浸漬済み UO ₂ ペレット表面の SEM 観察像	3-32
図 3.1-29	未浸漬および浸漬済み(U, Mg) O ₂ ペレットのラマンスペクトル	3-33
図 3.1-30	未浸漬および浸漬済み(U, Mg) O ₂ ペレットの SEM 像	3-33
図 3.1-31	浸漬試験実施中の様子	3-37
図 3.1-32	pH および H ₂ O ₂ 濃度の時間変化	3-38
図 3.1-33	Cs-133, Sr-90, Tc-99, Pd-107 および U-238 の溶出挙動	3-40
図 3.1-34	Cs-133, Sr-90, Tc-99, Pd-107 および U-238 の放出割合	3-41
図 3.1-35	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	3-42
図 3.1-36	C-14, Cl-36 分析結果	3-43
図 3.1-37	雰囲気制御下浸漬試験における pH および Eh の時間変化	3-44
図 3.1-38	各試験のテクネチウム濃度の時間変化	3-48
図 3.1-39	ウラン濃度とセシウム濃度の関係	3-48
図 3.1-40	ウラン濃度とストロンチウム濃度の関係	3-48
図 3.1-41	ウラン濃度とテクネチウム濃度の関係	3-49
図 3.1-42	長期溶解速度 (DR) に及ぼす全炭酸濃度の影響	3-50
図 3.1-43	燃料溶解速度 (DR) の全炭酸濃度依存性に関する先行研究との比較結果	3-51
図 3.1-44	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 (図 3.1-35 の再掲)	3-53
図 3.2-1	変質試験手法概略図	3-55
図 3.2-2	浸出陽イオン量測定結果 (低酸素雰囲気・炭酸共存条件)	3-59

図 3.2-3	CEC 測定結果 (酸化性雰囲気・炭酸共存条件)	3-59
図 3.2-4	浸出陽イオン量測定結果 (低酸素雰囲気・鉄共存条件)	3-61
図 3.2-5	炭酸を含む Cu 溶存化学種解析結果 (炭酸濃度 0.05 mol dm^{-3})	3-63
図 3.2-6(a)	酸化性雰囲気での銅粉カラム変質試験試料 EPMA 分析結果 (約 $400 \times 400 \mu\text{m}^2$) (試験期間 273 日・ 0.5 mol l^{-1} NaCl 溶液下)	3-66
図 3.2-6(b)	低酸素雰囲気での銅粉カラム変質試験試料の EPMA 分析結果 (約 $400 \times 400 \mu\text{m}^2$) (試験期間 266 日・ 0.5 mol l^{-1} NaCl + 0.001 mol l^{-1} Na_2S 溶液)	3-67
図 3.2-7	銅粉カラム変質試験試料の XRD 測定結果	3-67
図 3.2-8	浸出陽イオン量測定結果	3-68
図 3.2-9	CEC 測定結果	3-68
図 3.2-10	EPMA 画像解析より算出したベントナイト中の Cu の濃度変化	3-69
図 3.2-11	本評価に用いた銅粉カラム試験系及び処分体系の概念図	3-70
図 3.2-12	緩衝材変質厚さ評価結果	3-71
図 4-1	超深孔処分のバリエーション	4-3
図 4-2	ノルウェーにおける斜孔による超深孔処分概念のイメージ	4-6
図 4-3	超深孔処分概念における各因子の相互依存関係の樹状図の例	4-10
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	4-20
図 4-5	掘削可能性に影響を与える地下条件のロジックツリー	4-23
図 4-6	日本列島の規格化応力分布データに基づく水平応力の異方性係数と周方向 応力の最大値の整理結果	4-26
図 4-7	地震基盤の上面深度のヒストグラム	4-27
図 4-8	各段階で必要となる地下および坑井情報の調査分類の関係性のイメージ	4-28
図 4-9	坑壁に作用する応力のイメージ	4-34
図 4-10	日本列島の規格化応力分布データに基づく水平応力の異方性係数と周方向 応力の最大値の関係性および設定した近似式	4-39
図 4-11	均質な地下構造での裸孔の各深度における周方向応力の超過分の算出結果	4-40
図 4-12	均質な地下構造での裸孔の掘削可能深度の検討結果	4-41
図 4-13	ケーシングに作用する負荷	4-42
図 4-14	ケーシング設置を前提条件とした場合の掘削可能深度	4-46
図 4-15	ケーシング設置と裸孔の組み合わせを想定した場合におけるわが国での超 深孔の掘削可能深度 (掘削装置の最大巻上荷重 680 トンの場合)	4-47
図 4-16	ケーシング設置と裸孔の組み合わせを想定した場合における超深孔の掘削 可能深度 (掘削装置の最大巻上荷重 816 トンの場合)	4-48
図 4-17	超深孔処分の実現のために各段階で検討すべき因子と候補となる技術オ プション等の整理結果	4-50
図 4-18	国内外における超深孔処分の技術動向のとりまとめ	4-54
付図 1-1	拡散層を緩衝材および腐食生成物皮膜 (Cu_2S) とした硫化物輸送の概念 図 (円筒壁モデル)	付 1-1

表 目 次

表 1. 1-1	本事業で利用・引用する主な過去の研究開発成果	1-2
表 2. 1-1	浸漬試験の試験条件	2-4
表 2. 1-2	浸漬試験の結果	2-6
表 2. 1-3	試料作製条件	2-7
表 2. 1-4	SEM 観察条件	2-7
表 2. 1-5	U ベンド試験の試験条件	2-15
表 2. 1-6	断面写真から計測した皮膜厚さ	2-19
表 2. 1-7	応力腐食割れの発生有無に関する情報整理の対象とした試験および本件 で硫化物フラックスを推定する際に適用した条件	2-21
表 2. 1-8	U ベンド試験条件	2-26
表 2. 1-9	試験片の材質と成分分析値	2-32
表 2. 1-10	Alloy C-276 の塩化物イオン濃度と腐食すきま再不動態化電位 $E_{R, CREV}$ の 関係	2-35
表 2. 1-11	Alloy C-276 と Alloy C-22 の人工海水中での腐食すきま再不動態化電 位 $E_{R, CREV}$	2-35
表 2. 1-12	Alloy C-276 の塩化物イオン濃度と腐食すきま再不動態化電位 $E_{R, CREV}$ の 関係（試験溶液 pH8 に調整）	2-36
表 2. 1-13	浸漬試験の試験条件	2-38
表 2. 1-14	水素吸収試験の試験条件	2-38
表 2. 1-15	水素吸収試験用試験片一覧	2-39
表 2. 1-16	浸漬試験片一覧	2-39
表 2. 1-17	全水素濃度の分析結果	2-43
表 2. 2-1	状態変化を考慮する必要性が高い組合せの候補の評価結果のまとめ	2-61
表 2. 2-2	燃料集合体、処分容器および緩衝材の解析条件	2-63
表 2. 2-3	燃料被覆管の腐食の進展による ZrO_2 中の間隙率の影響を把握するための 解析ケース	2-65
表 2. 2-4	収容スペースでの腐食の進展による溶存水素の影響を把握するための解 析ケース	2-65
表 2. 2-5	状態変化の組合せによる影響を評価するための解析ケース	2-66
表 2. 2-6	状態変化が実効増倍率に与える影響の整理結果	2-71
表 2. 2-7	力学解析の解析条件（物性値）	2-76
表 2. 2-8	状態変化を考慮する必要性が高い組合せの候補の評価結果のまとめ	2-78
表 2. 2-9	材料の状態変化および配置パターンを考慮した臨界安全解析モデルの候 補	2-81
表 2. 2-10	臨界の起こりやすさと現実的な材料の状態および配置の変化の起こりや すさの整理	2-85
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) O ₂ 固溶体ペレットの諸元 (加熱前)	3-7
表 3.1-4	(U, ²⁶ Mg) O ₂ 固溶体ペレットの諸元 (加熱後)	3-7
表 3.1-5	(U, ²⁶ Mg) O ₂ 固溶体ペレット浸漬試験条件	3-11
表 3.1-6	Mg の天然存在比と試験に使用した ²⁶ Mg 同位体濃縮試薬の存在比	3-12
表 3.1-7	(U, ²⁶ Mg) O ₂ ペレット浸漬実験による 1 日当たりの ²⁶ Mg 溶出率	3-19
表 3.1-8	UO ₂ 再沈殿試験条件	3-23
表 3.1-9	反応条件と沈殿観察結果、反応後の溶液分析結果および比表面積測定結果	3-26
表 3.1-10	EDX 分析で測定した元素組成	3-29
表 3.1-11	再分析を行った浸漬済み UO ₂ ペレット試料	3-31
表 3.1-12	(U, Mg) O ₂ 固溶体ペレット浸漬試験条件	3-32
表 3.1-13	浸漬試験に供する試料の仕様、照射条件	3-36
表 3.1-14	浸漬試験のために採取した試料の諸元	3-37
表 3.1-15	試験で使用された燃料の性状	3-44
表 3.1-16	浸漬溶液の組成 (主な元素および pH)	3-44
表 3.1-17	各核種の濃度測定結果 (MOX-H 試料)	3-45
表 3.1-18	各核種の濃度測定結果 (MOX-L 試料)	3-45
表 3.1-19	試験で使用された燃料の性状	3-46
表 3.1-20	各核種の濃度測定結果 (MOX-KWU seg 試料)	3-46
表 3.2-1	試験手法と目的、対象とする変質環境・現象などのまとめ	3-55
表 3.2-2	基礎的な変質挙動の評価に関する試験条件	3-57
表 3.2-3	炭酸および鉄共存下での変質挙動の評価に関する試験条件	3-57
表 3.2-4	熱力学データからの銅の溶存化学種の抽出結果	3-62
表 3.2-5	熱力学データからの銅腐食生成物固相の抽出結果	3-62
表 3.2-6	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	3-65
表 3.2-7	ベントナイト中の Cu の濃度より算出した銅粉腐食速度	3-69
表 3.2-8	緩衝材変質速度算出結果	3-70
表 4-1	放射性廃棄物処分のための超深孔の各仕様のプラス面とマイナス面	4-7
表 4-2	オーストリアにおける放射性廃棄物のインベントリに基づく超深孔処分の適合性の評価結果	4-12
表 4-3	スロベニアにおける放射性廃棄物のインベントリに基づく超深孔処分の適合性の評価結果	4-13
表 4-4	クロアチアにおける放射性廃棄物のインベントリに基づく超深孔処分の適合性の評価結果	4-13
表 4-5	デンマークにおける放射性廃棄物のインベントリに基づく超深孔処分の適合性の評価結果	4-13
表 4-6	オランダにおける放射性廃棄物のインベントリに基づく超深孔処分の適合性の評価結果	4-15

表 4-7	ノルウェーにおける廃棄物と超深孔処分概念との適合性	4-15
表 4-8	多国間のインベントリを考慮した超深孔処分概念のコスト試算	4-16
表 4-9	オーストラリアにおける放射性廃棄物のインベントリ	4-18
表 4-10	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	4-21
表 4-11	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	4-22
表 4-12	わが国における結晶質岩（酸性岩）の岩盤での設定値	4-25
表 4-13	調査分類Ⅱ（設計情報検証のための坑井情報）の各項目の情報を調査する ためのツールの整理結果	4-29
表 4-14	ベースライン環境情報（調査分類Ⅲ）の各項目の分類・整理結果	4-30
表 4-15	超深孔処分における要件と調査対象に寄与する調査手法	4-30
表 4-16	裸孔による掘削可能深度のケーススタディで設定した力学的条件	4-37
表 4-17	周方向応力の最大値の算出結果	4-39
表 4-18	安全係数の推奨値	4-44
表 4-19	結晶質岩上面深度を設定した各地下構造モデルに対して最適なケーシング 仕様と安全係数	4-45

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4年度の実施内容	1-4
参考文献	1-7

1. はじめに

1.1 背景と目的

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

使用済燃料の直接処分に関する研究開発については、平成25年度から進められ、平成27年には「わが国における使用済燃料の地層処分システムに関する概括的評価－直接処分第1次取りまとめ－」（日本原子力研究開発機構，2015a）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。これを受け、「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、平成30年度からの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およ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、平成30年度から令和4年度までの5か年で、使用済燃料の直接処分に係る人工バリアの成立性の評価の高度化への対応、地質環境条件や使用済燃料の多様性への対応などに係る技術開発を重点に行う。また、その他代替オプションのわが国における成立性に関する検討を行う。

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

表 1.1-1 本事業で利用・引用する主な過去の研究開発成果

過去の研究開発成果	略称
わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性－地層処分研究開発第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構，1999a;1999b;1999c;1999d）	H12 レポート
TRU 廃棄物処分技術検討書－第2次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ－（電気事業連合会，核燃料サイクル開発機構，2005）	第2次 TRU レポート
わが国における使用済燃料の地層処分システムに関する概括的評価－直接処分第1次取りまとめ－（日本原子力研究開発機構，2015a）	直接処分第1次取りまとめ
平成25年度地層処分技術調査等事業「使用済燃料直接処分技術開発」報告書（日本原子力研究開発機構，2014）	平成25年度報告書
平成26年度地層処分技術調査等事業「使用済燃料直接処分技術開発」報告書（日本原子力研究開発機構，2015b）	平成26年度報告書
平成27年度地層処分技術調査等事業「直接処分等代替処分技術開発」報告書（日本原子力研究開発機構，2016）	平成27年度報告書
平成28年度地層処分技術調査等事業「直接処分等代替処分技術開発」報告書（日本原子力研究開発機構，2017）	平成28年度報告書
平成29年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に 関する技術開発事業「直接処分等代替処分技術開発」報告書（日本原子力研究開発機構，2018a）	平成29年度報告書
高レベル放射性廃棄物等の地層処分に 関する技術開発事業 「直接処分等代替処分技術開発」5か年取りまとめ報告書（日本原子力研究開発機構，2018b）	5 か年取りまとめ報告書
平成30年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に 関する技術開発事業 「直接処分等代替処分技術高度化開発」報告書（日本原子力研究開発機構，2019）	平成30年度報告書
平成31年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に 関する技術開発事業 「直接処分等代替処分技術高度化開発」報告書（日本原子力研究開発機構，2020）	平成31年度報告書
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（日本原子力研究開発機構，2021）	令和2年度報告書
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（日本原子力研究開発機構，2022）	令和3年度報告書

1.2 本事業の全体計画

本事業では、わが国の地質環境条件や使用済燃料の特性を踏まえ、直接処分などの代替処分技術についての調査、検討、技術開発を実施する。代替処分技術のうち、直接処分技術については、諸外国の事例調査を通じて最新の技術動向や技術的課題などを把握したうえで、使用済燃料の直接処分に係る人工バリア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、チタンなどについて、長寿命化の見通し、適用条件など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などを行う。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・保障措置などについて、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などを進める。

(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などの調査・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などの分析を行う。

(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などとの連携を行い最新の知見を入手する。また、外部の専門家などで構成される委員会を設置し、研究計画・実施方法・結果の評価に関する審議を行う。

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。

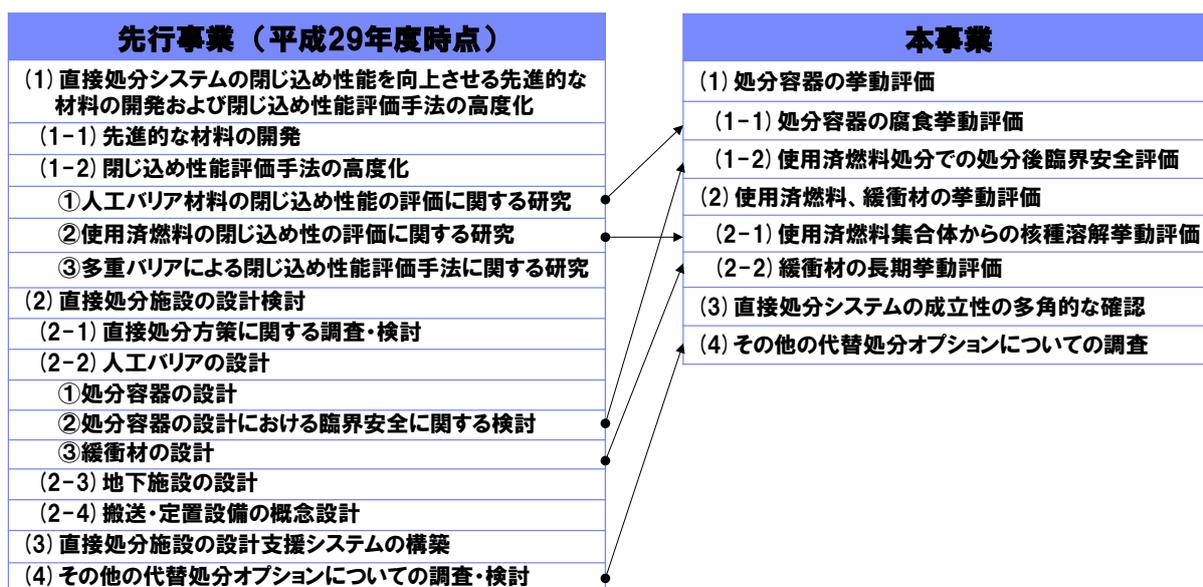


図 1.1-1 本事業での実施項目と先行事業での実施項目の対応

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など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 年度以降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、令和 4 年度においては、本事業成果の取りまとめを行う項目として「(4)代替処分オプションの成立性の検討に資する情報の整理」が追加されている（後述）。

1.3 令和 4 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 4 年度の実施内容を示す。

なお、1.2 項で述べたように、令和 4 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。また、「代替処分オプションの成立性の検討に資する情報の整理」が追加されている。令和 4 年度の実施内容として、以下の 4 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
- (4) 代替処分オプションの成立性の検討に資する情報の整理

(1) 処分容器の挙動評価（2章参照）

純銅処分容器のわが国の地質環境への適用の検討について、令和4年度は、純銅については、硫化物や共存化学種による腐食への影響に関する令和3年度までの試験データなどに基づいて、純銅の局部腐食や応力腐食割れなどの短期破損原因になりうる環境因子（水質等）を抽出し、それら因子の種々の条件の組合せに対して圧縮緩衝材中での腐食データを取得して、わが国での純銅の長寿命化の見通し、適用条件などの提示を行った。純銅以外の候補材料については、既往の知見や令和3年度までの試験データなどに基づいて、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など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などに関する腐食データを拡充し、長寿命化の見通し、条件等の提示を行った。

使用済燃料の処分後の臨界安全評価技術の高度化について、令和4年度は、処分容器などの変形・破壊について、状態変化の不確実性も考慮した力学解析を行い、令和3年度に整理した臨界が起り易い材料の配置の概略的なパターンについて、さらに細分化したパターンに分類することの可否を確認した。さらに、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の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、現実的な臨界の起りやすさと起りにくさを反映した評価手法を例示した。

(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、令和4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など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などを含めた実験的調査等を継続し、炭酸濃度に依存した長期溶解速度の暫定的な設定を試みた。また、実燃料を用いた浸漬試験について、低酸素雰囲気下での浸漬試験に着手するとともに、大気雰囲気下のデータから瞬時放出率を評価した。緩衝材の挙動評価について、令和4年度は、令和3年度に着手した変質試験の分析を実施し、緩衝材変質量と銅の腐食量の関係式を導出した。その結果に基づいて、処分環境を想定した長期間の銅との相互作用に伴う緩衝材の変質量について評価を行った。

(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）

令和4年度は、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などに着目し、それら設計要件に直結する掘削技術や地質環境調査技術等に重点をおいて最新の情報・技術の調査・分析の拡充を進めた。さらに、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（岩盤強度と応力場との組合せなどに基づき設定）を対象に行った。これら調査や事例検討の結果を踏まえてわが国における超深孔処分の現段階での技術的実現性の見通しや課題・留意点等を提示した。

(4) 代替処分オプションの成立性の検討に資する情報の整理

本事業においては、使用済燃料の直接処分を中心とする代替処分オプションに関する調査研究を進めてきている。その内容は、使用済燃料の直接処分については、先行事業である平

成 25 年度～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）、平成 27 年度～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）、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）とあわせて、直接処分第 1 次取りまとめにて抽出された使用済燃料の直接処分に特有の課題の解決に向けた研究開発と位置付けられ、直接処分第 1 次取りまとめ以降の研究開発の進展を示すものとなる。また、使用済燃料の直接処分以外の代替処分オプションについても、平成 27 年度～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）、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）とあわせて、その他代替処分オプションについてのわが国の諸条件を考慮した場合の適用性・成立性の検討に向けた調査研究と位置づけられる。

令和 4 年度は、先行事業（平成 25 年度～平成 29 年度）と本事業（平成 30 年度～令和 4 年度）での使用済燃料の直接処分およびその他代替処分オプションについての研究・調査の成果を、代替処分オプションの成立性の検討に資する最新の技術情報として「代替処分オプションに係る調査研究に関する取りまとめ報告書」（以降、「取りまとめ報告書」と記載）に取りまとめた。本項目の成果については、上記の取りまとめ報告書として別途まとめられているため、本報告書の記載からは除外する。

上記 4 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：7 月 13 日、第 2 回：12 月 6 日、第 3 回：3 月 7 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。

なお、本報告書においては、上記に示した「処分容器の挙動評価（2 章）」「使用済燃料、緩衝材の挙動評価（3 章）」「その他の代替処分オプションについての調査（4 章）」の各項目について、本事業で得られた 5 か年の成果の取りまとめを示す項目を「本事業のまとめ」として設けた（4 章については、「現段階における超深孔処分の技術的実現性の見通しや課題・留意点の整理」において本事業のまとめを示した）。

【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（2023年3月27日閲覧）。
- 原子力機構（日本原子力研究開発機構）（2015a）：わが国における使用済燃料の地層処分システムに関する概括的評価－直接処分第1次取りまとめ－，JAEA-Research-2015-016.
- 原子力機構（日本原子力研究開発機構）（2015b）：平成26年度地層処分技術調査等事業「使用済燃料直接処分技術開発」報告書，
https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2014/26fy_sf.pdf（2023年3月27日閲覧）。
- 原子力機構（日本原子力研究開発機構）（2016）：平成27年度地層処分技術調査等事業「直接処分等代替処分技術開発」報告書，
https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2015/27fy_sf.pdf（2023年3月27日閲覧）。
- 原子力機構（日本原子力研究開発機構）（2017）：平成28年度地層処分技術調査等事業「直接処分等代替処分技術開発」報告書，
https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2016/28fy_sf.pdf（2023年3月27日閲覧）。
- 原子力機構（日本原子力研究開発機構）（2018a）：平成29年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に 関する技術開発事業「直接処分等代替処分技術開発」報告書，
https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2017/29fy_sf.pdf（2023年3月27日閲覧）。
- 原子力機構（日本原子力研究開発機構）（2018b）：高レベル放射性廃棄物等の地層処分に 関する技術開発事業「直接処分等代替処分技術開発」5か年取りまとめ報告書，
https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2017/25-29fy_sf_torimatome.pdf（2023年3月27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（2023年3月27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（2023年3月27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 (2023年3月27日閲覧)。

原子力機構 (日本原子力研究開発機構) (2022): 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,

https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2021/3fy_spent-fuel.pdf (2023年3月27日閲覧)。

核燃料サイクル開発機構 (1999a): わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—総論レポート、JNC TN1400 99-020.

核燃料サイクル開発機構 (1999b): わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—分冊1, 核燃料サイクル開発機構 技術報告書. JNC TN1400 99-021.

核燃料サイクル開発機構 (1999c): わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—分冊2. 核燃料サイクル開発機構 技術報告書. JNC TN1400 99-022.

核燃料サイクル開発機構 (1999d): わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—分冊3. 核燃料サイクル開発機構 技術報告書. JNC TN1400 99-023.

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

https://www.meti.go.jp/shingikai/enecho/denryoku_gas/genshiryoku/pdf/012_s03_00.pdf (2023年3月27日閲覧)。

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

https://www.meti.go.jp/report/whitepaper/data/pdf/20180329001_01.pdf (2023年3月27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 (2023年3月27日閲覧)

第 2 章

処分容器の挙動評価

2 章詳細目次

2. 処分容器の挙動評価	2-1
2.1 処分容器の腐食挙動評価	2-1
(1) 本項目の背景と目的	2-1
(2) 純銅の腐食挙動評価	2-2
1) 硫化物の影響に着目した浸漬試験	2-3
① 試験方法	2-3
② 試験結果と考察	2-4
③ 腐食挙動評価モデルの検討	2-13
2) 硫化物の影響に着目した応力腐食割れ試験 (U ベンド試験)	2-14
① 試験方法	2-14
② 試験結果と考察	2-15
③ 応力腐食割れ試験に関する文献調査	2-20
3) 硫化物以外の因子の影響に着目した応力腐食割れ試験 (U ベンド試験)	2-24
① 試験方法	2-26
② 分析方法	2-27
③ 試験結果と考察	2-27
(3) 他の候補材料を対象とした腐食挙動評価	2-30
1) 高耐食性金属を対象としたすきま腐食試験	2-31
① 試験方法	2-31
② 分析方法	2-33
③ 試験結果と考察	2-33
2) 高耐食性金属を対象とした低酸素条件での浸漬試験・水素吸収試験	2-37
① 試験方法	2-37
② 分析方法	2-38
③ 試験結果と考察	2-42
(4) 本事業のまとめ	2-47
1) 純銅の長寿命化の見直しおよび適用条件	2-47
2) 他の候補材料の長寿命化の見直しおよび適用条件	2-51
3) 候補材料の腐食挙動の特徴比較	2-52
2.2 使用済燃料処分での処分後臨界安全評価	2-54
(1) 本項目の背景と目的	2-54
(2) 材料の組成や密度等の状態変化の影響に関する情報の整理	2-57
1) 処分環境に存在しうる構成材料による状態変化の組合せの整理	2-57
2) 解析ケースおよび解析パラメータの設定	2-61
① 臨界解析の基本条件の設定	2-61
② 解析ケースおよび解析条件等の設定	2-63
3) 解析結果	2-67

(3) 材料の変形や破壊による配置の変化の影響に関する情報の整理	2-71
1) 力学解析で対象とする処分容器の状態の変化	2-73
2) 力学解析のモデル・パラメータの設定	2-73
① 解析手法・ツール	2-73
② 解析体系・解析条件	2-74
3) 解析結果	2-76
(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検討	2-77
1) 解析で対象とした材料・燃料の状態および配置の変化	2-77
① 材料の状態および配置の変化	2-77
② 燃料の状態および配置の変化	2-79
2) 解析ケース・解析条件等の設定	2-79
3) 解析結果	2-82
(5) 本事業のまとめ	2-83
2.3 まとめ	2-86
(1) 処分容器の腐食挙動評価	2-86
(2) 使用済燃料処分での処分後臨界安全評価	2-87
参考文献	2-89

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。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。諸外国では純銅により $10^5 \sim 10^6$ 年以上の閉じ込めを期待する国もあり、環境条件によっては極めて長い寿命を期待できる材料といえる。一方、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は、純銅以外の候補材料の適用性について検討を進めることも重要である。

純銅については、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が共存する環境における腐食挙動を検討した。具体的には、硫化物共存環境下での純銅の腐食挙動を把握するための浸漬試験、ならびに処分容器の短期破損要因となりうる現象である応力腐食割れについて、硫化物共存環境下での応力腐食割れ感受性を把握するための試験を実施し、それらの結果、ならびに既往の研究に関する文献調査も踏まえ、純銅による処分容器の長寿命化の見通しや適用条件を提示した。以上について、「(2) 純銅の腐食挙動評価」として以下に示す。

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基づき、ニッケル基合金 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塩化物イオン等による局部腐食挙動を把握するためのすきま腐食試験や、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等を実施し、これらの結果を踏まえ、ニッケル基合金 C-276 による処分容器の長寿命化の見通しや適用条件を提示した。以上について「(3) 他の候補材料を対象とした腐食挙動評価」として以下に

示す。

(2) 純銅の腐食挙動評価

純銅は、硫化物を含む環境では熱力学的な安定性を失い、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。

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、純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て腐食速度を評価し、その結果から、硫化水素濃度が高いほど腐食速度が大きくなることが分かった。また、応力腐食割れへの硫化物の影響を把握することを目的として、硫化水素濃度をパラメータとした60日間の定ひずみ試験(Uバンド試験)を実施して、その結果、腐食生成物の皮膜下に、局部腐食の一種である粒界腐食が見られること、また、その粒界腐食の深さは硫化水素濃度が高いほど深いことを確認した。さらに、応力腐食割れに対する緩衝材乾燥密度の効果を確認するためのUバンド試験を、純水中で80日間実施し、孔食状の局部腐食が観察されたものの明瞭な割れは生じないことを確認した。

令和3年度は、硫化水素濃度をパラメータとして100日間までの浸漬試験およびUバ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、浸漬試験で取得した腐食速度のデータに基づき、硫化物の定常拡散を考慮した腐食モデルの適用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処分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硫化物以外の共存化学種の影響を確認することを目的として、塩化アンモニウム溶液中などで、圧縮ベントナイト中のUバンド試験を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。

令和4年度は、銅の溶解を促進する塩化物イオンが腐食生成物皮膜の特性や腐食速度などに及ぼす影響に着目し、塩化物濃度を令和3年度の条件(海水レベル)よりも低く設定し、硫化水素濃度をパラメータとした浸漬試験を実施した。さらに、令和4年度までに得られた腐食速度およびその経時変化に基づき、純銅による長寿命化の見通しや適用可能な環境条件

を整理するための腐食挙動評価モデルの検討を行った。これらの成果を「1) 硫化物の影響に着目した浸漬試験」に示す。

また、銅の溶解を促進する塩化物イオンが、硫化物共存下での応力腐食割れ感受性に及ぼす影響を把握することを目的として、塩化物濃度を令和3年度の条件（海水レベル）よりも低く設定し、硫化水素濃度をパラメータとしてUバンド試験を実施した。さらに、応力腐食割れに影響を及ぼしうる環境条件の整理に向けて、国内外の既往の研究についての文献調査を実施し、室内試験で確認された応力腐食割れの発生有無を環境条件と関連付けて整理した。これらの成果を「2) 硫化物の影響に着目した応力腐食割れ試験（Uバンド試験）」に示す。

さらに、アンモニア、アンモニウムイオンなどの影響に着目した応力腐食割れ試験（Uバンド試験）を、令和3年度よりも長期間（2年間）実施して、溶液条件が応力腐食割れ感受性に及ぼす影響を確認した。以上の成果を「3) 硫化物以外の因子の影響に着目した応力腐食割れ試験（Uバンド試験）」に示す。

1) 硫化物の影響に着目した浸漬試験

純銅は、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。

令和3年度は、人工海水（ $[Cl^-]=0.56\text{ M}$ ）、 H_2S ガス吹込み条件で、最長100日程度の浸漬試験を実施して、腐食速度の経時変化を評価した。腐食速度は硫化物濃度が高いほど大きく、また、腐食速度の経時変化はほとんど認められなかったことから、生成した腐食生成物皮膜（ Cu_2S 等）の保護性は低いと推察された。

令和4年度は、腐食速度への塩化物濃度の影響を把握することを目的として、塩化物濃度を令和3年度の条件よりも低い条件に設定して浸漬試験を行い、腐食生成物皮膜の性状や腐食速度、また腐食速度の経時変化（低下）が生じるかどうかを確認した。浸漬試験の試験方法、および試験結果と考察をそれぞれ、以下の①および②に示す。また、令和4年度までの浸漬試験の成果に基づく、長寿命を達成可能な環境条件の評価のための腐食挙動評価モデルの検討を③に示す。

① 試験方法

純銅試験片には大きさが $30\times 30\times 2\text{ mm}$ 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 $NaCl$ 溶液（ $[Cl^-]=0.1\text{ M}$ ）を用いた。あらかじめ脱気した試験溶液に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た試験カラムの模式図を図2.1-1に示す。試験の実施状況を図2.1-2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 2.1-1 に示す。浸漬中の温度は 80 °C、浸漬期間は 30、60、90 日間とした。なお、H₂S ガス濃度 10%および100%での、溶液中の硫化水素イオン濃度はそれぞれ 0.004 mol L⁻¹、0.04 mol L⁻¹ 程度と推定される。

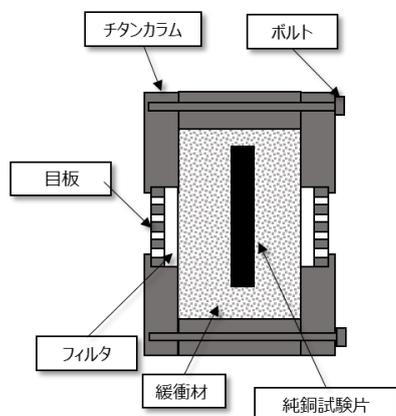


図 2.1-1 試験カラムの模式図



図 2.1-2 腐食試験の試験状況

表 2.1-1 浸漬試験の試験条件

試験溶液	温度(°C)	浸漬期間(days)	緩衝材	吹込みガス
NaCl 溶液 ([Cl ⁻]=0.1 M)	80	30,60,90	無し	90%N ₂ +10%H ₂ S
				100%H ₂ S
			あり	90%N ₂ +10%H ₂ S
				100%H ₂ S

② 試験結果と考察

浸漬試験後試験片の外観分析、質量減少量測定、銅に接触した緩衝材の走査型電子顕微鏡 (SEM) 分析の結果、試験結果に基づく考察を以下の a. ~d. に示す。

a. 試験片外観

浸漬試験後試験片の外観を図 2.1-3 に示す。緩衝材なしの試験片の表面は黒から灰色であり表面全面が皮膜で覆われていることが観察される。一方、緩衝材ありの試験片の表面は部分的に茶褐色となっており、緩衝材なしの場合より腐食の影響が緩和されている、あるいは皮膜が剥がれやすく下地の銅が見えている可能性がある。

試験片の外観は、緩衝材あり・なし両方について、皮膜の色が浸漬時間の経過にともない、変化しているように見えるものの、際立った外観の変化は見受けられない。

緩衝材	浸漬期間 (days)	吹込みガス	
		90%N ₂ +10%H ₂ S	100%H ₂ S
無し	30		
	60		
	90		
あり	30		
	60		
	90		

図 2.1-3 硫化水素吹込み下での緩衝材中の浸漬試験後試験片の外観

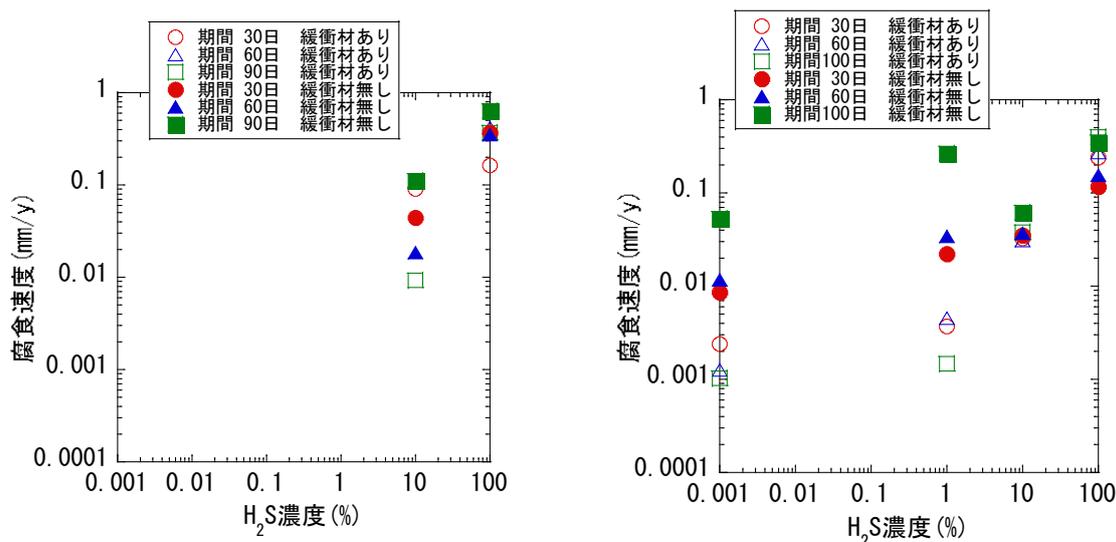
b. 試験片の質量減少量測定

試験前後の質量測定から算出した平均腐食深さおよび腐食速度を表 2.1-2 に、試験ガスの硫化水素濃度に対する腐食速度のプロットを図 2.1-4 に示す。

浸漬期間 90 日または 100 日の腐食速度を、人工海水かつ緩衝材ありの条件と、0.1 M NaCl 溶液かつ緩衝材ありの条件で比較すると、いずれも 0.3~0.4 mm y⁻¹ 程度であり、塩化物濃度の違いによる腐食速度の違いは大きくない。

表 2.1-2 浸漬試験の結果

期間 (days)	緩衝材	ガス	腐食速度 (mm y ⁻¹)	腐食深さ (mm)
30	あり	90%N ₂ +10%H ₂ S	0.0437	0.0036
		100%H ₂ S	0.3703	0.0304
	無し	90%N ₂ +10%H ₂ S	0.0915	0.0075
		100%H ₂ S	0.1621	0.0133
60	あり	90%N ₂ +10%H ₂ S	0.0186	0.0031
		100%H ₂ S	0.3526	0.0580
	無し	90%N ₂ +10%H ₂ S	0.1090	0.0179
		100%H ₂ S	0.4235	0.0696
90	あり	90%N ₂ +10%H ₂ S	0.0092	0.0023
		100%H ₂ S	0.3668	0.0904
	無し	90%N ₂ +10%H ₂ S	0.1108	0.0273
		100%H ₂ S	0.6364	0.1569



(a)0.1M NaCl

(b)人工海水(原子力機構, 2022a)

図 2.1-4 質量減少量から算出した腐食速度と硫化水素濃度の関係

c. 走査型電子顕微鏡分析

試験片に接触していた緩衝材から作製した断面試料（以下、Cu 接触試料）を対象に、走査型電子顕微鏡（SEM）、及び付帯のエネルギー分散型 X 線分光分析装置（EDS）による分析を行った。分析面については、ブロードイオンビーム加工による表面処理を行った。試料作製条件および SEM 観察条件をそれぞれ表 2.1-3 および表 2.1-4 に示す。

表 2.1-3 試料作製条件

イオンミリング装置	日立ハイテクノロジー社製 IM-3000
加速電圧	6 kV

表 2.1-4 SEM 観察条件

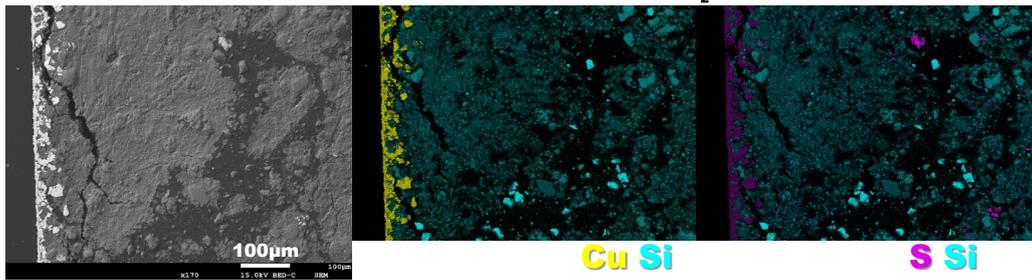
装置 (SEM)	日本電子株式会社製 JSM-7200F
装置 (EDS)	Oxford Instruments 株式会社製 X-Max ^N 80 mm ²
加速電圧	15 kV
検出信号	反射電子、二次電子
取得データ	反射電子像、二次電子像、元素マッピング分析

Cu 接触試料の SEM 画像および EDS による元素マッピングを図 2.1-5 に示す。以下の条件の試料については、図 2.1-5 中に赤枠で高倍率の SEM 画像を撮影した視野を示すとともに、該当する箇所の高倍率 SEM 画像を図 2.1-6 に示す。

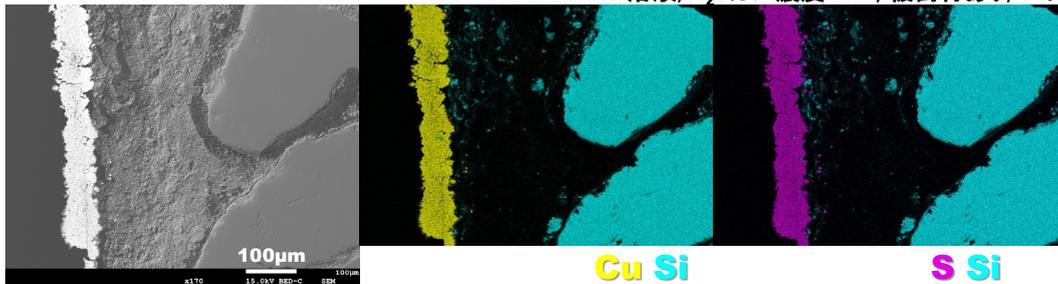
- ・ 0.1 M NaCl 溶液, H₂S ガス濃度 100%, 緩衝材あり, 90 日
- ・ 人工海水, H₂S ガス濃度 100%, 緩衝材あり, 100 日

図 2.1-6 に示した点線枠内の画像を分析することにより、腐食生成物皮膜の間隙率を推定した。その結果、0.1 M NaCl 溶液, H₂S ガス濃度 100%, 緩衝材あり, 90 日の条件、および人工海水, H₂S ガス濃度 100%, 緩衝材あり, 100 日の条件それぞれについて、間隙率は 27%、および 41%と評価された。以上の分析に基づき、塩化物濃度が、銅表面に生成する腐食生成物皮膜の多孔質性に影響を及ぼし、塩化物濃度が低いほど間隙率は小さいことが分かった。なお、銅腐食生成物の蓄積は、いずれの条件においても銅試料と緩衝材の界面にほぼ留まっており、緩衝材中への移行は多くなかった。

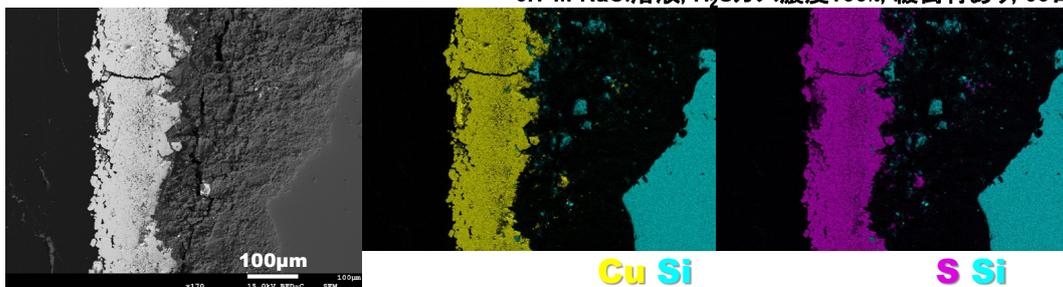
0.1 M NaCl溶液, H₂Sガス濃度10%, 緩衝材あり, 30日



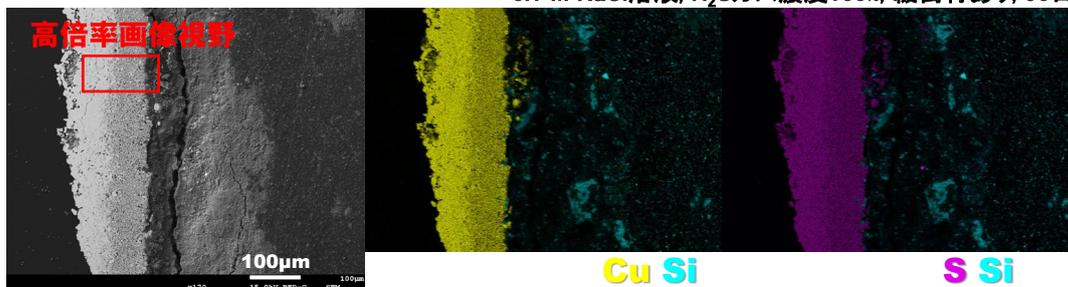
0.1 M NaCl溶液, H₂Sガス濃度100%, 緩衝材あり, 30日



0.1 M NaCl溶液, H₂Sガス濃度100%, 緩衝材あり, 60日



0.1 M NaCl溶液, H₂Sガス濃度100%, 緩衝材あり, 90日



人工海水, H₂Sガス濃度100%, 緩衝材あり, 100日(令和3年度試験試料)

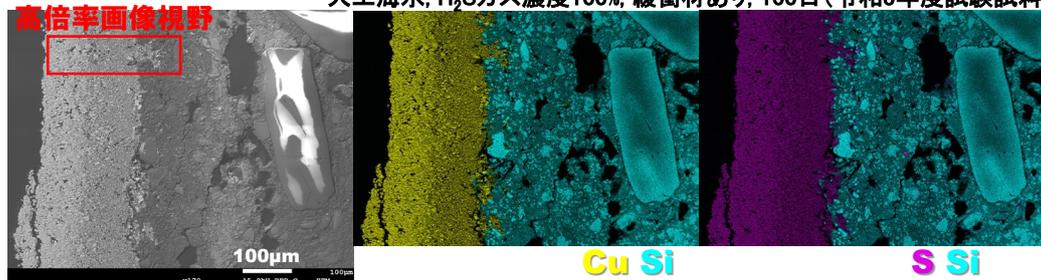
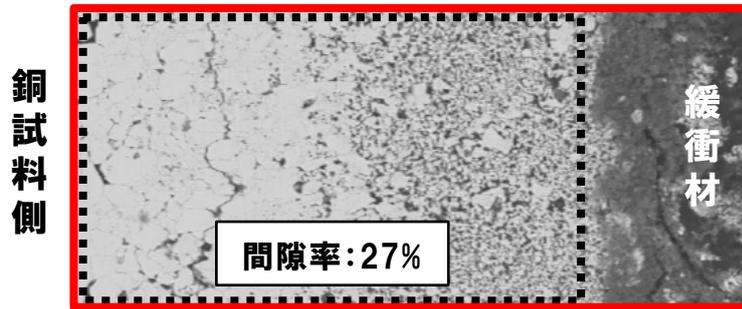


図 2.1-5 Cu 接触試料を対象とした SEM 画像および元素マッピング

0.1 M NaCl 溶液, H₂S ガス濃度 100%, 緩衝材あり, 90 日



人工海水, H₂S ガス濃度 100%, 緩衝材あり, 100 日 (令和 3 年度試験試料)

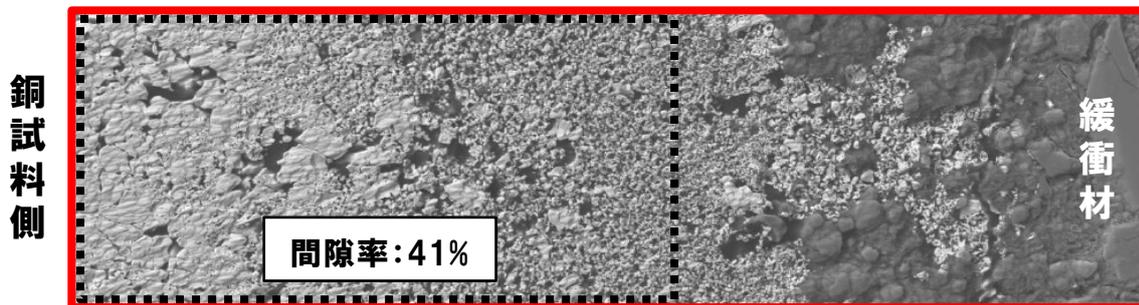


図 2.1-6 Cu 接触試料を対象とした SEM 画像 (高倍率画像)

d. 考察

上記 c. において腐食生成物皮膜の間隙率は、NaCl 溶液 ($[Cl^-]=0.1 \text{ M}$) が 27%、人工海水 ($[Cl^-]=0.56 \text{ M}$) が 41%であり、塩化物濃度の違いによる差が認められることから、塩化物濃度が低い条件では間隙率の小さい腐食生成物が長期的に銅表面に蓄積することで、硫化物フラックスが低下し、腐食速度が低下する可能性がある。

そこで、間隙を有する腐食生成物皮膜の成長を硫化物フラックスの評価に反映できる腐食モデルを設定して、間隙率を 1~40%の範囲で変化させ、評価期間を 5 万年として腐食深さを評価し、間隙率による腐食深さの違いを評価した。

本項目で設定した腐食モデルにおいては、図 2.1-7 の i. ~ iv. に示す腐食進展プロセスを設定し、皮膜が生成していない評価開始初期は i. → ii. → iii. のプロセスが進行し、それに続く過程（腐食生成物皮膜が成長する過程）では iv. → ii. → iii. のプロセスが逐次的に繰り返されることで腐食が進展すると仮定した。

- i. 緩衝材外側の地下水から供給される硫化物イオン (HS^-) が拡散場（緩衝材）を移行して処分容器表面に到達後、直ちに銅と反応して硫化銅 Cu_2S が生成する。
- ii. 銅表面が腐食によって減肉する。
- iii. 腐食生成物皮膜 (Cu_2S) が生成し、銅との密度差に伴う膨張により緩衝材が圧密される。

- iv. 緩衝材外側の地下水から供給される硫化物イオン (HS⁻) が拡散場 (緩衝材および腐食生成物皮膜) を移行して処分容器表面に到達後、直ちに銅と反応して硫化銅 Cu₂S が生成する。

上記の腐食進展プロセスを踏まえ、時間 $t_i (t_i=0; i=1, 2, \dots, N)$ について、定常拡散に基づく銅表面 $r_{a,i}$ での硫化物フラックス J_i 、硫化物フラックス J_i に基づく銅の腐食量 (減肉深さ)、銅の腐食量に基づく腐食生成物皮膜 (Cu₂S) の厚さ、腐食生成物皮膜 (Cu₂S) が成長することによる緩衝材厚さの減少およびそれにともなう緩衝材間隙率の減少の一連の計算をひとつのセットとして、逐次的に N 回繰り返す、評価期間終了時点の腐食深さを評価した。評価体系は、処分容器および人工バリアの形状を考慮して、円筒壁モデル (図 2.1-8) とした。

銅表面 $r_{a,i}$ での硫化物フラックス J_i の評価式を式 2.1-1 に示す。式 2.1-1 の導出過程については付録 1 に示す。

$$J_i = \frac{C_1 - C_{a,i}}{r_{a,i} (\alpha + \beta)}, \quad \alpha = \frac{\ln\left(\frac{r_1}{r_{b,i}}\right)}{D_{BT,i}}, \quad \beta = \frac{\ln\left(\frac{r_{b,i}}{r_{a,i}}\right)}{D_{CS,i}} \quad \dots\dots\dots \text{式 2.1-1}$$

ここで、 i は時間ステップ、 J_i は銅表面 $r_{a,i}$ での硫化物フラックス (単位時間あたり、単位面積あたりの硫化物の供給量)、 C_1 は緩衝材の外側境界 r_1 の濃度、 $C_{a,i}$ は銅表面 $r_{a,i}$ の濃度、 $r_{b,i}$ は腐食生成物皮膜 (Cu₂S) の外側境界位置、 $D_{BT,i}$ は緩衝材の実効拡散係数、 $D_{CS,i}$ は腐食生成物皮膜 (Cu₂S) の実効拡散係数である。また、 r_0 、 r_1 、 $r_{a,i}$ 、 $r_{b,i}$ は円筒座標系での半径である。 $C_{a,i}$ は、銅/緩衝材 (または腐食生成物皮膜 (Cu₂S)) 境界での銅と硫化物の反応が瞬時に起こることを仮定し、常にゼロとした。なお、 r_0 を銅表面の初期位置として、時間ステップ $i=1$ (すなわち $t_1 = 0$) においては、 $r_{a,1} = r_{b,1} = r_0$ である。

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。

緩衝材と腐食生成物皮膜の領域における温度勾配はないと仮定した上でこれらの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 °C が 1,000 年間、80 °C が 9,000 年間、60 °C が 40,000 年間それぞれ継続するとした。また、初期の緩衝材 (間隙率 40.3 %) 中での実効拡散係数については、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 °C で $4.0 \times 10^{-11} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$) 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することにより、温度 100 °C、80 °C および 60 °C における硫化物の実効拡散係数 ($D_{BT,0}$) を、それぞれ $1.36 \times 10^{-10} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ 、 $1.03 \times 10^{-10} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ および $7.57 \times 10^{-11} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ に設定した。その上で、腐食生成物皮膜 (Cu₂S) の成長によって緩衝材が圧密され、間隙率が時間ステップ i において $\Phi_{BT,i}$ となることの影響を式 2.1-2 により考慮して、時間 t_i の緩衝材の実効拡散係数 $D_{BT,i}$ とした。

$$D_{BT,i} = D_{BT,0} \frac{\Phi_{BT,i}}{\Phi_{BT,0}} \dots\dots\dots \text{式 2.1-2}$$

腐食生成物皮膜 (Cu₂S) の実効拡散係数のデータは確認されていないため、緩衝材の実効拡散係数で代替することとし、上記で示した緩衝材の実効拡散係数の評価方法に基づき、まず、処分環境の温度条件を考慮した、圧密前の緩衝材の実効拡散係数を求め、時間 t₁ の腐食生成物皮膜 (Cu₂S) の間隙率で補正した。その際、本件では腐食生成物皮膜 (Cu₂S) の間隙率について、時間変化を考慮せず、計算開始時点において定数を任意に与えるものとした。

以上で設定した長期の腐食深さの評価方法に基づき、腐食生成物皮膜 (Cu₂S) の間隙率を 1%、10%、30%、40% に設定したケースについてそれぞれ 5 万年の腐食深さを評価した。間隙率を、試験試料の分析 (上記 c.) により確認された範囲に相当する 30% および 40% とした場合の腐食深さは、それぞれ 190 mm および 203 mm であり、腐食生成物皮膜の間隙率の変化が長期の腐食深さに及ぼす影響は 6% 程度と大きくないことが分かった。

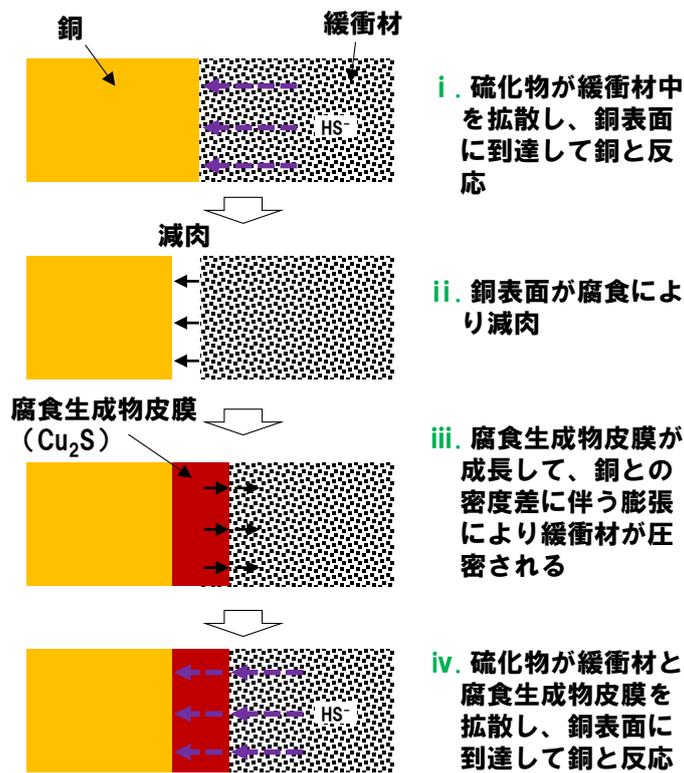


図 2.1-7 腐食生成物皮膜の成長に伴う硫化物フラックスの変化を考慮した腐食モデルの概念図

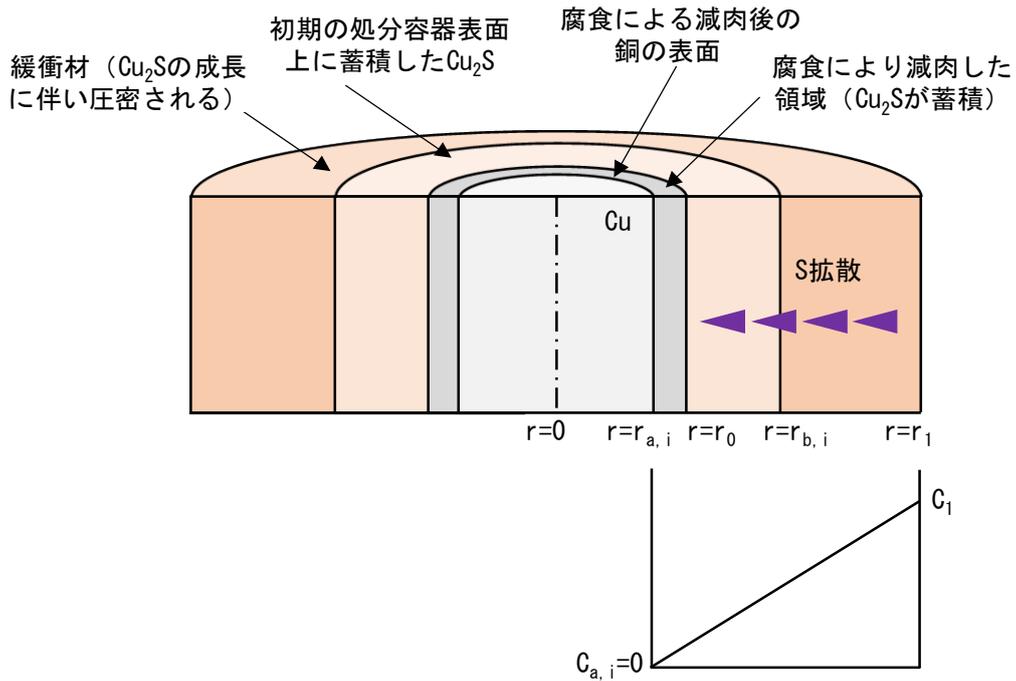


図 2.1-8 拡散層を緩衝材および腐食生成物皮膜 (Cu_2S) とした硫化物輸送の概念図 (円筒壁モデル)

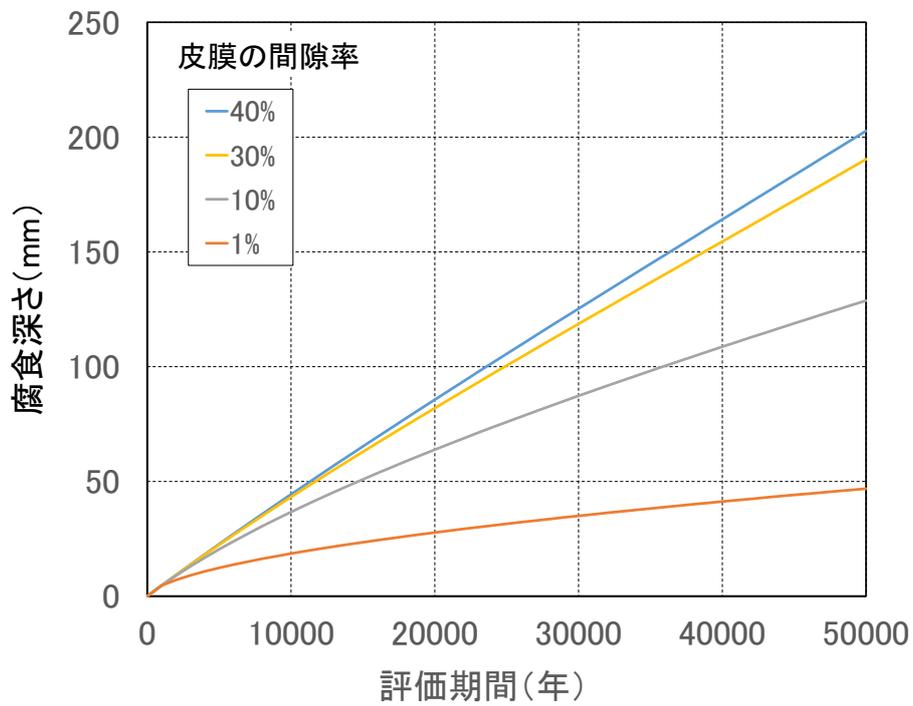


図 2.1-9 皮膜の成長を考慮した腐食深さの評価

③ 腐食挙動評価モデルの検討

塩化物濃度を海水レベル（0.56 M）や0.1 Mとした浸漬試験（令和3年度、上記②）、ならびにこれらの浸漬試験の結果を踏まえた考察（上記②）に基づき、硫化物濃度および塩化物濃度が腐食速度に及ぼす影響について以下の知見を得た。

- ・ 硫化物濃度が高いほど腐食速度は大きい。
- ・ 塩化物濃度が銅表面に生成する皮膜の多孔質性に影響を及ぼし、皮膜の保護性に影響しつつも、皮膜の成長にともなう腐食速度の経時変化（低下）は確認されなかった。
- ・ 塩化物濃度の影響により腐食生成物皮膜の間隙率が30～40%程度の間で変化しても、5万年程度の長期の腐食深さに及ぼす影響は大きくない可能性がある。

以上の結果は、腐食速度を時間的に一定とする腐食モデル（原子力機構，2022a）により、長期の腐食深さを保守的に評価できることを示唆するものである。そこで、長寿命化を達成可能な硫化物濃度の範囲を評価する上では、このモデルに基づき、硫化物濃度に応じた処分後長期の腐食深さを評価し、腐食深さが処分容器の銅外層厚さ以下となる硫化物濃度の範囲を整理した。銅の厚さが40 mmの条件では、地下水中の硫化物濃度が $3 \times 10^{-3} \text{ mol L}^{-1}$ 程度以下の条件で、5万年程度の長寿命化が達成できる見込みである。

以上の詳細を、以降の(4)に示す。

2) 硫化物の影響に着目した応力腐食割れ試験 (U ベンド試験)

純銅は、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、全面腐食等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、低酸素濃度条件での硫化物共存下における純銅の応力腐食割れに関する知見は少ない。

令和2年度は、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、Uベンド試験を実施した。

令和3年度は、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。令和2年度および令和3年度の U ベンド試験の結果として、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、100 日間までの試験では明瞭な割れは発生しないことがわかった。

令和4年度は、塩化物濃度を令和3年度の条件 (海水レベル) よりも低く 0.1 M に設定し、硫化水素濃度をパラメータとして U ベンド試験を実施し、応力腐食割れの有無を確認するとともに、緩衝材共存系の試験で緩衝材の影響を確認した。試験方法、分析方法、試験結果と考察をそれぞれ以下の①～③に示す。また、応力腐食割れが生じうる環境条件の整理および処分環境における応力腐食割れ生起可能性の推定に向けた応力腐食割れ試験に関する文献調査を④に示す。

① 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 75×10×1 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 2.1-10 のように、A の部分の銅板と B の部分の銅板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 NaCl ($[Cl^-]=0.1$ M) 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。試験条件および試験状況をそれぞれ表 2.1-5 および図 2.1-11 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。

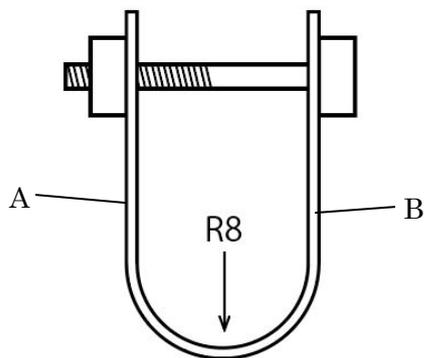


図 2.1-10 U ベンド試験片の模式図



図 2.1-11 U ベンド試験の試験状況

表 2.1-5 U ベンド試験の試験条件

試験溶液	温度(°C)	浸漬期間(days)	緩衝材	吹込みガス
NaCl 溶液 ([Cl ⁻]=0.1 M)	80	30,60,90	無し	90%N ₂ +10%H ₂ S
				100%H ₂ S
			あり	90%N ₂ +10%H ₂ S
				100%H ₂ S

② 試験結果と考察

試験後試験片の外観観察および皮膜成長速度の評価をそれぞれ以下のa. およびb. に示す。なお、今回および令和3年度の試験結果ならびに海外等での研究成果を踏まえ、応力腐食割れが発生しやすい硫化物濃度等ならびに塩化物濃度の条件を整理した。以上については、(4)1)②に示した。

a. 外観観察

試験後の試験片の外観を図2.1-12に示す。いずれの試験片にも目視では割れは観察されなかった。また、いずれの試験片にも黒色または灰色の皮膜が観察された。なお、これらの皮膜は、試験容器からの取り出し、洗浄、乾燥や緩衝材を表面から除去する際に一部が脱落することがあった。試験後の光学顕微鏡による断面の観察の結果を図2.1-13および図2.1-14に示す。マイクロ観察の倍率は×100とし、曲げ頂点部付近および左右の肩付近を観察した。試験片の上にある皮膜は必ずしも緻密ではなく、剥がれや割れが観察された。また、一部の条件については、皮膜の下に粒界腐食が観察されたが、粒界腐食と全体的な腐食の程度は必ずしも同じ傾向ではなかった。例えば、100% H₂Sの条件で90日間試験を行った後の試験片は、緩衝材無しの方が緩衝材ありよりもマクロ写真においては残肉厚が小さく、腐食量が大きい様相であったが、緩衝材ありの方が粒界腐食の形態は明瞭に観察された(図2.1-14)。

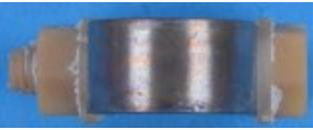
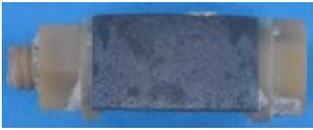
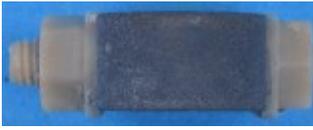
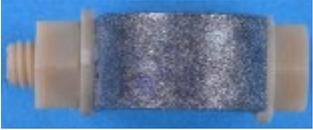
試験日数 (days)	緩衝材	ガス	
		10% H ₂ S	100% H ₂ S
30	あり		
	無し		
60	あり		
	無し		
90	あり		
	無し		

図 2.1-12 U ベンド試験の試験後試験片の外観

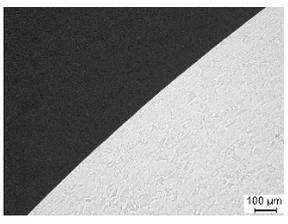
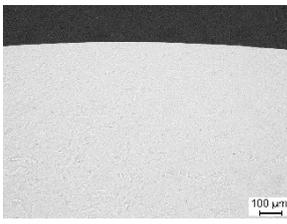
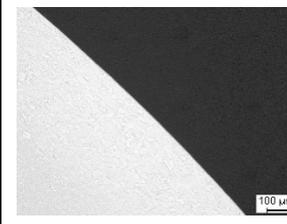
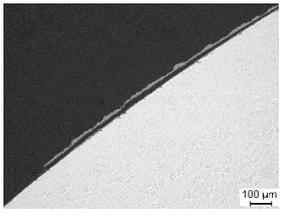
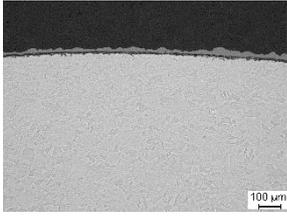
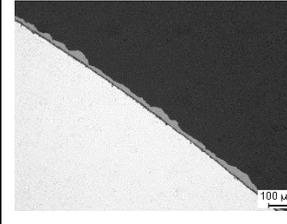
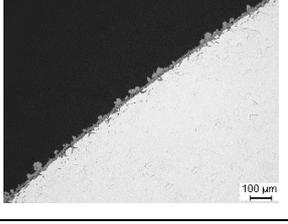
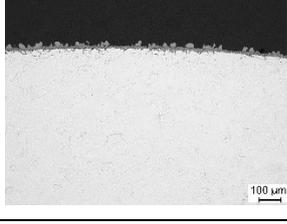
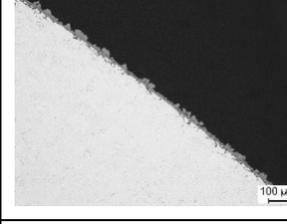
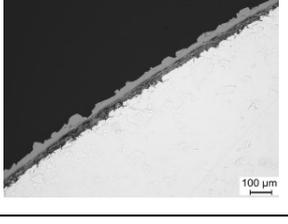
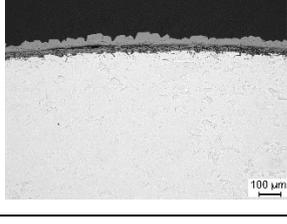
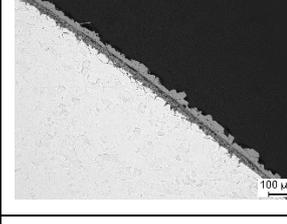
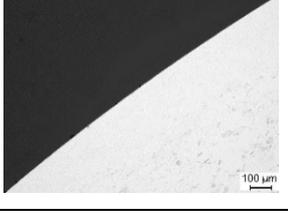
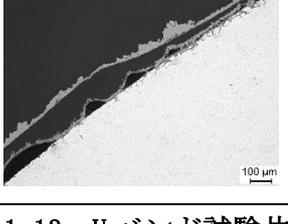
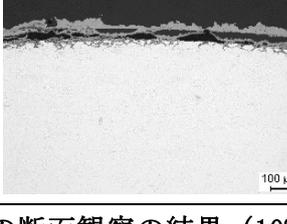
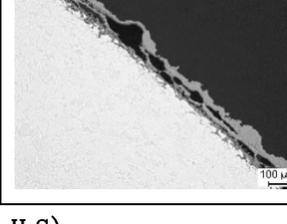
試験日数 (days)	緩衝材	観察箇所		
		左肩付近	曲げ頂点部付近	右肩付近
30	あり			
	無し			
60	あり			
	無し			
90	あり			
	無し			

図 2.1-13 U ベンド試験片の断面観察の結果 (10% H₂S)

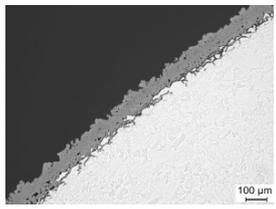
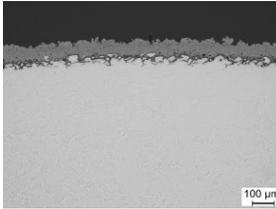
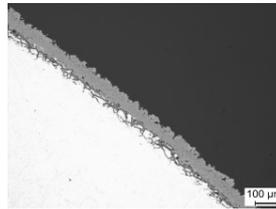
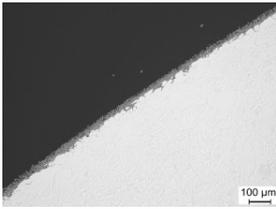
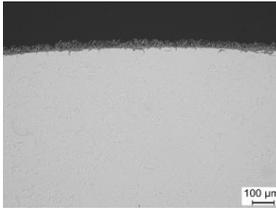
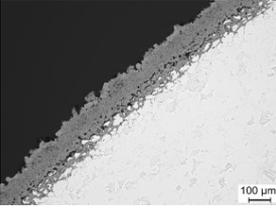
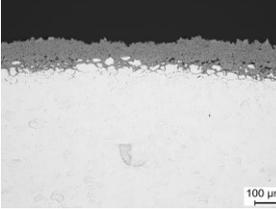
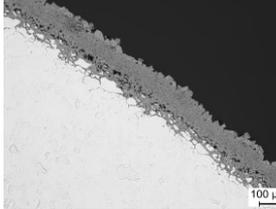
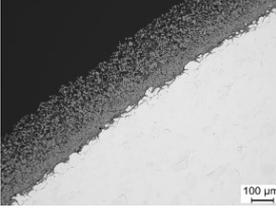
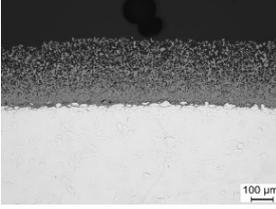
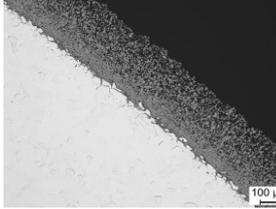
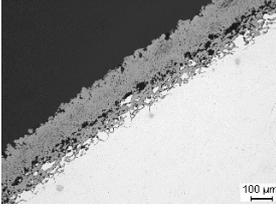
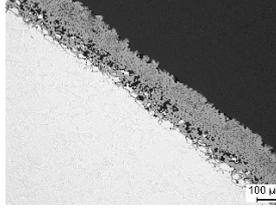
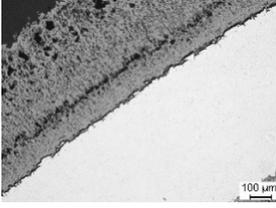
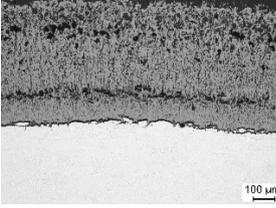
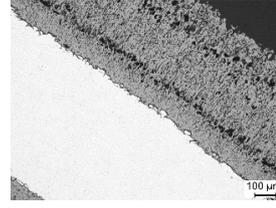
試験日数 (days)	緩衝材	観察箇所		
		左肩付近	曲げ頂点部付近	右肩付近
30	あり			
	無し			
60	あり			
	無し			
90	あり			
	無し			

図 2.1-14 U ベンド試験片の断面観察の結果 (100% H₂S)

b. 皮膜成長速度

試験試料の断面写真から計測した皮膜厚さの評価を表2.1-6に示す。また、皮膜厚さに基づく皮膜成長速度を図2.1-15に示す。なお、図2.1-15には、令和3年度に実施した人工海水中でのUバンド試験の結果も掲載した。

0.1 M NaCl溶液中（緩衝材あり，90日）では、人工海水（緩衝材あり，100日）の場合と比べて皮膜の成長速度が遅かったことから、より緻密な皮膜が生成したと考えられる。また、皮膜の成長速度は時間が経過しても低下していない。したがって、今回の試験条件下では、皮膜の保護性は人工海水の場合と比べて大きく変わらず、選択的な腐食等が生じて応力腐食割れ感受性を変化させるほどの、皮膜の緻密さの違いが生じなかったものと考えられる。

表 2.1-6 断面写真から計測した皮膜厚さ

吹込みガス	皮膜厚さ (μm)					
	30日 緩衝材 なし	30日 緩衝材 あり	60日 緩衝材 なし	60日 緩衝材 あり	90日 緩衝材 なし	90日 緩衝材 あり
90%N ₂ + 10%H ₂ S	15.1	0.0	71.2	27.8	45.4	0.0
	19.5	0.0	64.5	25.0	54.9	0.0
	19.6	0.0	57.3	25.3	66.3	0.0
100%H ₂ S	24.2	81.5	274.8	138.8	464.0	192.7
	39.2	67.2	289.9	114.8	482.2	179.4
	29.6	67.1	255.8	121.8	508.4	190.7

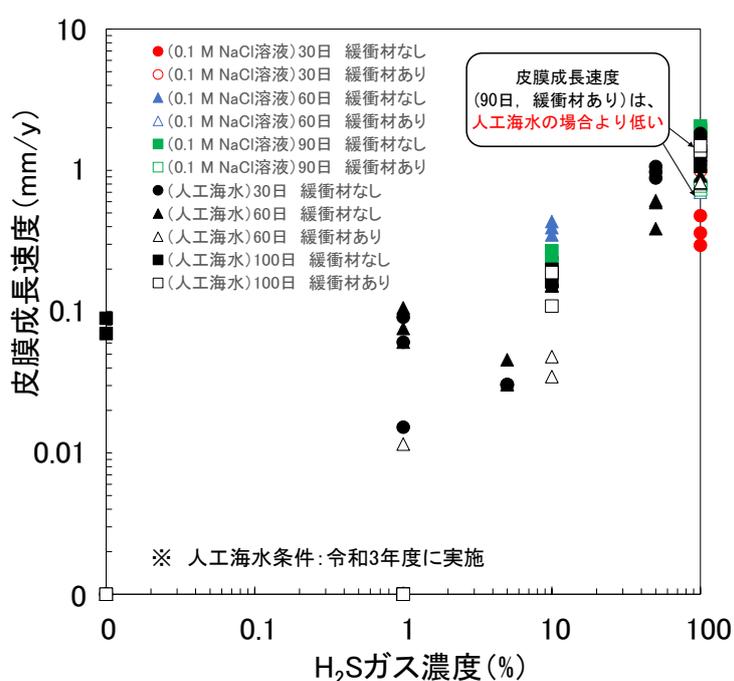


図 2.1-15 Uバンド試験片の皮膜成長速度

③ 応力腐食割れ試験に関する文献調査

応力腐食割れが生じうる環境条件の整理を目的として、本事業で実施した応力腐食割れ試験の結果や国内外の応力腐食割れに関する研究を対象とした文献調査に基づき、応力腐食割れ試験で確認された割れの有無を、試験条件と関連付けて整理した。なお、硫化物共存下での応力腐食割れの形態として粒界割れが観察されており (Taniguchi and Kawasaki, 2008)、金属組織など材料側の因子も影響する可能性があるが、本項では、環境側の因子に着目することとし、以下の知見を踏まえ、硫化物濃度、塩化物濃度、ならびに銅表面での硫化物のフラックス（以降、硫化物フラックス）に着目した。

- ・ 一般的に純銅の応力腐食割れは、銅表面に生成した保護性の高い緻密な皮膜が、引張応力などによって割れ、割れた経路に沿って腐食剤が浸入して保護性の高い緻密な皮膜が形成するというプロセスが繰り返されることで、選択的な経路に沿った割れが進展するというメカニズム（変色皮膜割れ）が考えられることから、応力腐食割れの発生の有無には、銅表面に生成する皮膜の保護性が大きな影響を及ぼすと考えられる。
- ・ 低酸素条件での銅の腐食挙動においては、硫化物の影響を考えることが重要であり、銅表面には硫化銅 (Cu_2S) 皮膜が形成する。Salonen ら (2021) は、銅表面への硫化物フラックスが硫化銅 (Cu_2S) 皮膜の保護性に影響を及ぼす (Chen et al., 2011 ; 2014a ; 2014b, Martino et al. 2017) という報告を踏まえ、既往の電気化学試験や浸漬試験の結果を整理して、硫化物フラックスに依存して形成される皮膜の構造的な特徴を多孔質性や不動態化の観点から分類した。一方、硫化銅 (Cu_2S) 皮膜の構造と成長速度は、硫化物濃度、塩化物濃度、銅表面への硫化物イオン (HS^-) の供給量に依存することが報告されている (Chen et al., 2014a ; 2017)。
- ・ 処分環境における容器表面の硫化物のフラックスは、緩衝材などの影響により、室内試験で観察されるフラックスよりも何桁も低いため、室内試験の結果に基づき処分環境の容器の腐食挙動を推測する際は留意が必要であることが指摘されている (Salonen et al., 2021)。

以上により、硫化物の影響による銅の応力腐食割れ感受性が銅表面に形成する硫化銅皮膜の特性の影響を受けうること、皮膜の特性は硫化物フラックスおよび塩化物濃度の影響を受けること、硫化物フラックスは硫化物濃度が同じでも拡散層の条件（緩衝材厚さなど）によって変わること踏まえ、既往の試験で確認された応力腐食割れ発生の有無を以下のパターンで整理した。

パターン 1: 硫化物フラックス、硫化物濃度

パターン 2: 硫化物フラックス、塩化物濃度

上記のパターンでの整理の対象とした応力腐食割れ試験は、今回実施した U ベンド試験（上記①②）、平成 3 年度に実施した SSRT 試験および U ベンド試験（原子力機構, 2022a）、ならびに国内外で実施された SSRT 試験とした。調査の対象とした応力腐食割れ試験に関する文献を表 2.1-7 に示す。

上記のパターンで、応力腐食割れ試験での割れの発生有無を整理した結果については、以降の(4)に示す。なお、上記のパターンでの整理において必要となる室内試験および処分環境で想定される硫化物フラックスは、それぞれ以下の考え方にに基づき推定した。

- ・ SSRT 試験および U ベンド試験（緩衝材ありの場合含む）で想定される硫化物フラックスを評価する際は、平板モデル（原子力機構，2022a）に基づく定常値を求めた。なお、U ベンド試験（緩衝材あり）について推定された硫化物フラックスは、平板モデルに基づく暫定値であり、より正確な硫化物フラックスを推定するためには、硫化物濃度の境界条件や緩衝材の実際の形状を踏まえたモデル化に基づく評価が必要になると考えられる。
- ・ 処分環境で想定される硫化物フラックスについては、一例として、緩衝材が初期に低硫化物濃度の地下水で飽和し、その後、緩衝材中に外側から硫化物が拡散により供給されるケースを想定し、現時点の人工バリアの形状を踏まえ円筒壁モデル（原子力機構，2022a）に基づく定常値を求めた。

硫化物フラックスを評価する際に必要となる拡散層の厚さおよび拡散係数は、溶液中の試験については、拡散層を 1 mm (Salonen et al., 2021)、拡散係数を純水の拡散係数（温度依存性を考慮）とし、拡散層が緩衝材の場合は、緩衝材厚さを拡散層厚さ、拡散係数を緩衝材の実効拡散係数（温度依存性を考慮）とした。

表 2.1-7 応力腐食割れの発生有無に関する情報整理の対象とした試験および本件で硫化物フラックスを推定する際に適用した条件

応力腐食割れの発生有無に関する情報整理の対象とした試験など		試験条件 (拡散層, 温度)	本件で硫化物フラックスを推定する際に適用した条件
SSRT 試験	Taniguchi and Kawasaki (2008)	溶液: 80 °C	<ul style="list-style-type: none"> ・ 定常拡散, 平板モデル ・ 拡散層 (溶液) 1 mm (Salonen et al., 2021) ・ 拡散係数: 純水の自己拡散係数 (温度依存性を考慮) (早水, 2020) で代替; 20 °C ($2. \times 10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$), 80~90 °C ($7. \times 10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$)
	Bhaskaran et al. (2013)	溶液: 室温※	
	Becker and Öijerholm (2017)	溶液: 90 °C	
	Taxén et al. (2018)	溶液: 80 °C	
	Taxén et al. (2019)	溶液: 90 °C	
	Forsström et al. (2021)	溶液: 90 °C	
	原子力機構 (2022a)	溶液: 80 °C	
U ベンド試験	原子力機構 (2022a)	溶液: 80 °C	
	本文献 (上記①②)	溶液: 80 °C	
U ベンド試験 (緩衝材あり)	原子力機構 (2022a)	緩衝材: 80 °C	<ul style="list-style-type: none"> ・ 定常拡散, 平板モデル ・ 拡散層 (緩衝材) 6 mm ・ 実効拡散係数: $1.03 \times 10^{-10} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ (上記②d. 参照)
	本文献 (上記①②)	緩衝材: 80 °C	
処分環境		緩衝材: 80 °C	<ul style="list-style-type: none"> ・ 定常拡散, 円筒壁モデル ・ 拡散層 (緩衝材) 70 cm ・ 実効拡散係数: $1.03 \times 10^{-10} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ (上記②d. 参照)

➤ 硫化物フラックスを推定する際は 20 °C を仮定。

なお、先述のとおり、処分環境で想定される硫化物フラックスを求める際は、人工バリアの形状を踏まえ円筒壁モデルでの定常値を求めた。ここで定常値を適用することとした理由を以下に述べる。

地下水の硫化物濃度について、H12 レポートでは、地球化学計算による評価に基づき地下水の最大の硫化物濃度を 0.03 mol L^{-1} と仮定し、銅オーバーパックの硫化物による腐食量の評価を行っている。Yui et al. (1999) は、実際の地下水中の硫化物濃度はこれより低く、油田等に付随する地下水を除くと現実的な硫化物濃度は $10^{-4} \text{ mol L}^{-1}$ のオーダーであるとしている。一方、地下水中の硫酸イオン濃度については、硫化物と較べて高い値が報告されている。産業技術総合研究所ほか (2020) は、沿岸部の地下環境を想定した地下水組成に関する調査を行い、地下水組成等に基づき氷期降水、現降水、化石海水、現海水の4つに区分するとともに、各区分での主要溶存イオン濃度を報告している。この報告によると、最大の硫酸イオン濃度は氷期降水及び現降水が $1,600 \text{ mg L}^{-1}$ (0.016 mol L^{-1})、化石海水が $1,200 \text{ mg L}^{-1}$ (0.016 mol L^{-1})、現海水が $2,600 \text{ mg L}^{-1}$ (0.027 mol L^{-1}) である。地下水中に存在する硫酸イオンが硫酸塩還元菌により、すべて可溶性の硫化物 (H_2S 、 HS^- 及び S^{2-}) に還元されると仮定すると、H12 レポートの最大の硫化物濃度に近い値となる。

以上を踏まえ、緩衝材中の硫化物濃度分布の推移および硫化物による処分容器の腐食のシナリオを以下の a. ～c. のように想定することができる。

- a. 硫化物濃度の低い地下水で緩衝材が飽和し、処分容器の腐食が開始する。このとき、緩衝材中の硫化物濃度分布は、図 2.1-16 の t_0 時点として示される状態 ($C=C'$) となる。
- b. 緩衝材外側の掘削影響領域等の領域において、硫酸塩還元菌により硫酸イオンが硫化物に還元され、地下水中の硫化物濃度が次第に増加し (図 2.1-16 の $C' \rightarrow C''$ への推移)、処分環境で想定される最大濃度 (図 2.1-16 の C_{max}) に達する。
- c. 緩衝材中の硫化物濃度分布は定常状態 (図 2.1-16 の t_{∞} 時の状態; 緩衝材外側境界の硫化物濃度 C_{max}) となる。それ以降は、定常状態の濃度分布のもとで腐食が進行する。
なお、処分容器表面における純銅と硫化物の反応が十分に早いことを想定して、処分容器表面の硫化物濃度をゼロと仮定する。

図 2.1-16 に示す硫化物の濃度分布の推移に基づき、上記の腐食のシナリオでは、定常拡散に基づく硫化物フラックスの評価 (定常値) が最も高くなると見做すことは妥当であると考えた。ただし、硫酸塩還元菌が活性となる時期は必ずしも緩衝材が初期の地下水で飽和した後とは限らないことから、今後、高硫化物濃度の地下水が緩衝材に浸潤した場合のフラックスについても検討が必要である。

なお、この硫化物フラックスの評価では、硫酸イオンが全て可溶性の硫化物に還元されると仮定しているが、一部の硫酸イオンは還元される際に地下水中に存在する Fe イオン等と化合し、 FeS や FeS_2 等といった固相として沈殿する可能性がある。したがって、硫酸イオンが全て可溶性の硫化物に還元されるという仮定は保守的な取り扱いといえる。現時点では、どの程度の割合が固相として沈殿するかは不明であることから、より現実的な評価に向け、硫酸塩還元菌の挙動に関する知見の拡充が求められる。

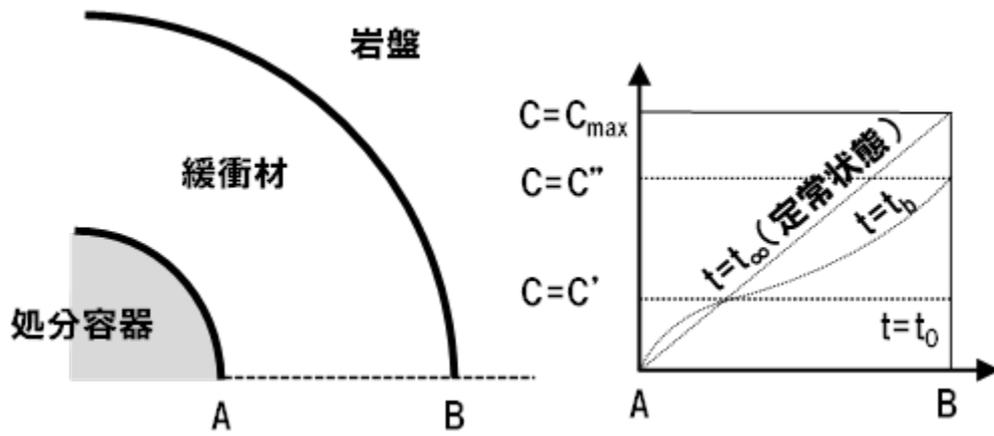


図 2.1-16 緩衝材中の硫化物濃度分布の推移の例 (イメージ)

3) 硫化物以外の因子の影響に着目した応力腐食割れ試験 (U ベンド試験)

純銅の応力腐食割れは、硫化物以外の溶存化学種によっても発生しうることから、本項目では、硫化物以外の溶存化学種に着目した応力腐食割れ試験などを実施して、それらの化学種による応力腐食割れ感受性を調査した。硫化物以外の溶存化学種による応力腐食割れ感受性に関する知見を以下に示す。

- ・ 銅の腐食生成物は比較的保護性に優れており、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。
- ・ 銅は歴史的にはアンモニアの存在する環境にて季節割れ (Season crack) と呼ばれる応力腐食割れを生じることが知られている (Pugh et al., 1966; Uhlig and Duquette, 1969; Suzuki, 1981; Moore et al., 1921)。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 2.1-17 (a)) とともに、酸化物皮膜の成長速度が速い Cu などでは、図 2.1-17 (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メカニズム (変色皮膜破壊型応力腐食) が考えられる。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。酸化性の処分環境における応力腐食割れ挙動については、谷口ほか (2010a) や Fujimoto et al. (2021) などの先行研究があり、アンモニウムイオンを含む溶液中で応力腐食割れが生じることなどの知見が得られている。

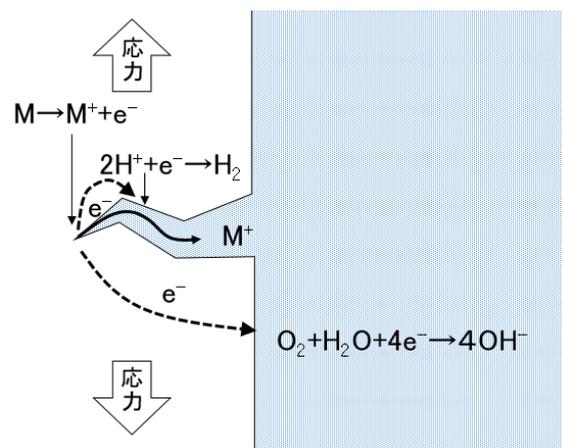
上記の知見を踏まえ、平成 30 年度は、脱気した条件 (低酸素濃度) での純銅の皮膜形成挙動および応力腐食割れ発生挙動を検討するとともに、応力腐食割れ感受性に対するアンモニウムイオンの影響を調査した。脱気した条件下でも応力腐食割れが発生し、アンモニウムイオンの存在は SSRT 試験での変色皮膜破壊型応力腐食割れの発生頻度を増大させることがわかった。また、平成 31 年度は、種々の酸素濃度下での、純銅の皮膜形成過程および応力腐食割れ発生挙動ならびに応力腐食割れ発生に及ぼすアンモニウムイオンの影響を調査した。酸素濃度が高いほど皮膜は厚く、脱気条件では皮膜中の硫化物の割合が大きくなることがわかった。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。

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。

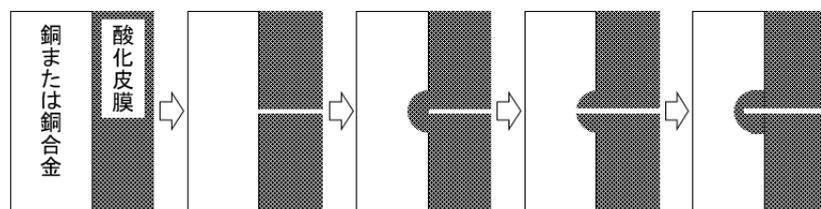
そこで、令和2年度は、圧縮ベントナイト中でUベンド試験（試験期間：80日間，溶液：純水）を行い、応力腐食割れ挙動に対するベントナイトの乾燥密度の効果を検討した。

令和3年度は、令和2年度と異なる試験期間および溶液中でUベンド試験を行い（試験期間：1年間，溶液：10 mM NH₄Cl 溶液，人工海水）、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に関するデータを拡充した。

令和4年度は、令和3年度より長い2年間で試験期間として、令和3年度と同じ溶液条件でUベンド試験を行い、応力腐食割れ挙動を令和3年度の結果と比較した。また、淡水に炭酸水素イオンが含まれる場合は、銅において顕著な腐食が進行する可能性が指摘されていること（永田，1987；山内・佐藤，1981）、また、溶液中の炭酸水素イオン濃度は、炭酸イオン濃度（および pH）に依存して変わることから、ここでは炭酸イオン濃度を規定した溶液（0.1 M CO₃²⁻溶液）条件下でのUベンド試験も実施した。以上の試験についての試験方法、分析方法、試験結果と考察をそれぞれ①～③に示す。また、令和4年度までの応力腐食割れ試験の成果を踏まえた、応力腐食割れに影響を及ぼしうる環境条件の整理については、(4)1)②に示す。



(a)活性経路機構(APC)



(b)変色皮膜破壊機構(TR)

図 2.1-17 応力腐食割れの機構

① 試験方法

試験片には、無酸素銅を使用した。試験条件を表 2.1-8 に示す。試験溶液には、人工海水、10 mM NH₄Cl 溶液および 0.1 M CO₃²⁻ 溶液を用いた。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 2.1-18 のように締め付け、図 2.1-19 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、2 年間、80 °C で保持した。

表 2.1-8 U ベンド試験条件

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	人工海水, 10 mM NH ₄ Cl 水溶液, 0.1 M CO ₃ ²⁻ 水溶液
浸漬期間	2 年

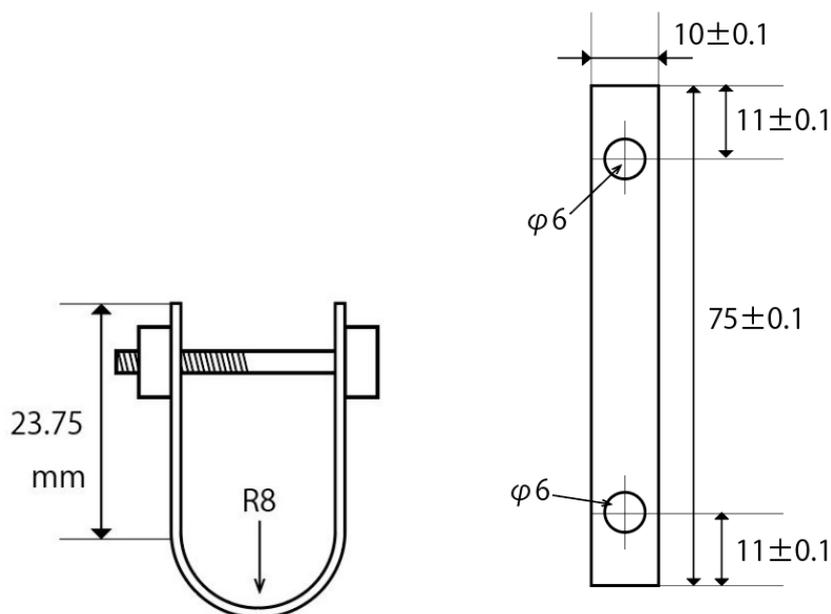


図 2.1-18 U ベンド試験片の模式図

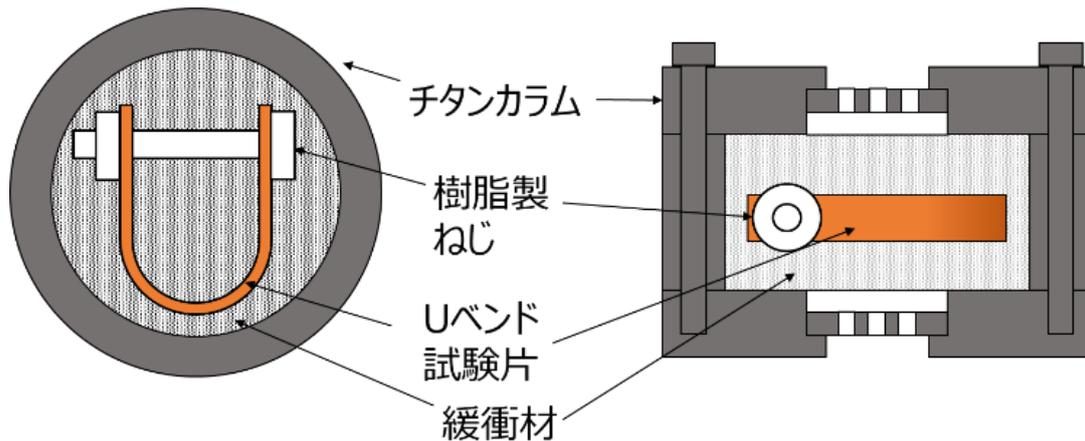


図 2.1-19 試験のイメージ図

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

試験後のUバンド試験片のEPMA分析箇所のマクロ観察結果を図2.1-20に示す。またEPMAによる元素マッピング分析を実施した結果を図2.1-21に示す。これらの観察からは明瞭な割れは観察されなかった。

試験後試験片のEPMA元素マッピングの結果 (図2.1-21) から、0.1 M CO_3^{2-} 溶液の条件において、局部腐食とみられる表面の凹凸が見られ、また局部腐食の底部には硫黄元素が確認されることから、今後このような局部腐食が経路選択的な腐食に進展することがないかについて確認が必要である。

なお、本試験で設定したいずれの溶液条件についても、試験後試験片のEPMA元素マッピングの結果 (図2.1-21) から、酸化物皮膜が存在していることが確認された。このような酸化物皮膜が存在する原因は明確ではないが、浸漬前における試料調整時の酸化、あるいは、浸漬開始時において緩衝材に含まれていた酸素の影響が考えられる。処分後初期の処分容器表面には酸化物被膜が存在すると考えられることから、本試験の結果はこのような処分後初期の腐食挙動を模擬していると考えられるものの、今後は、処分後の超長期にわたりこのような酸化物皮膜が安定的に存在しうるかどうかの確認が必要である。

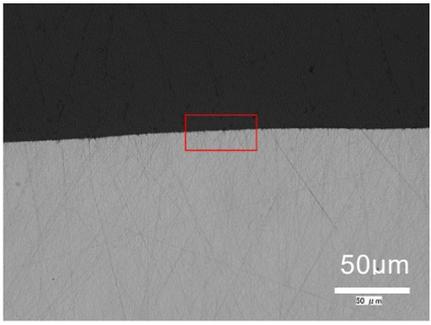
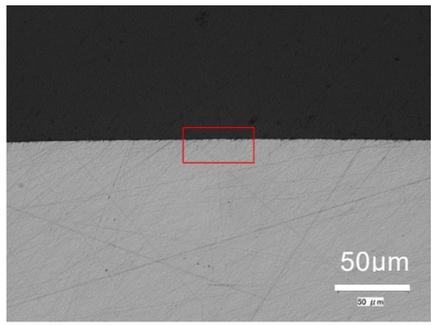
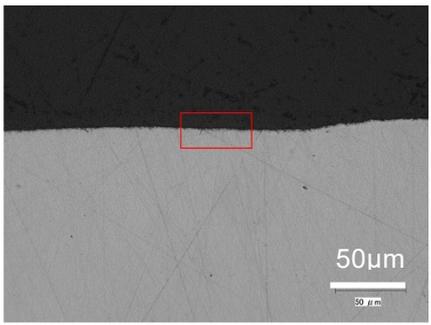
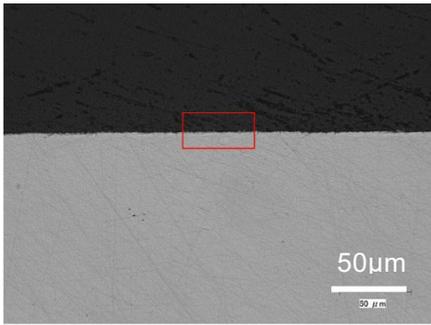
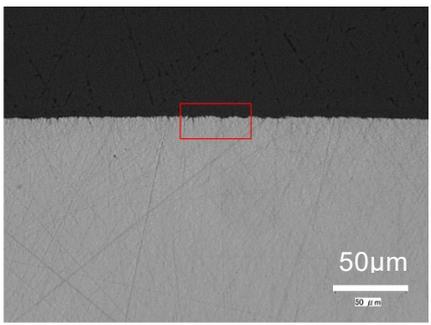
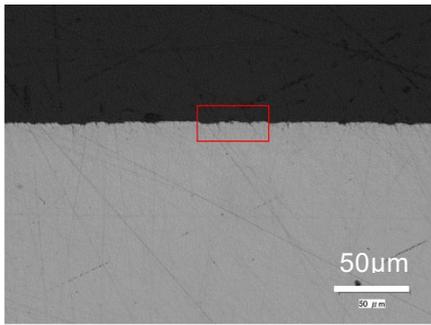
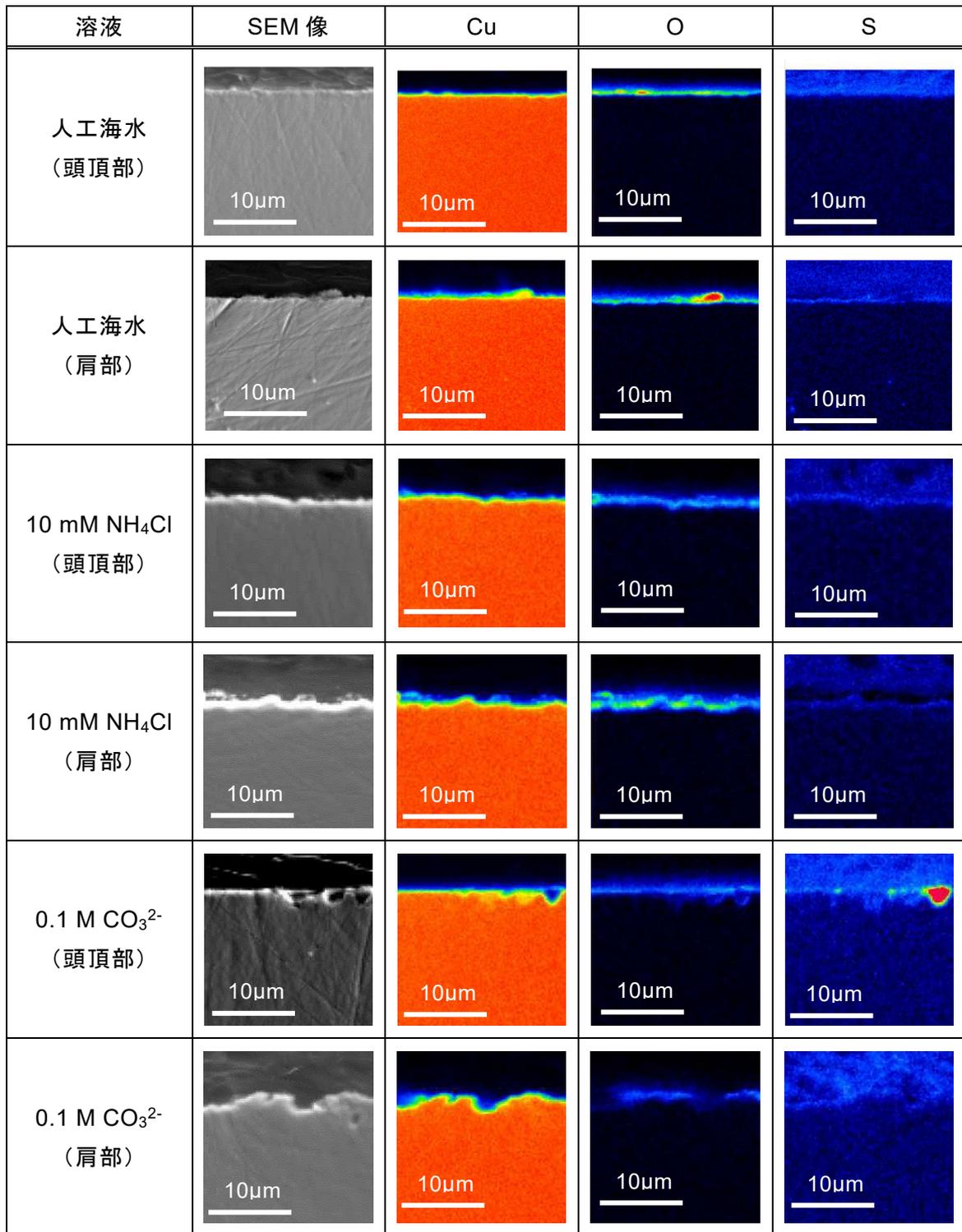
溶液	頭頂部	肩部
人工海水		
10 mM NH ₄ Cl		
0.1 M CO ₃ ²⁻		

図 2.1-20 U ベンド試験片の EPMA 分析箇所マイクロ観察



高 ← 元素濃度 → 低

図 2.1-21 EPMA 元素マッピング結果

(3) 他の候補材料を対象とした腐食挙動評価

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、高耐食性金属を含めより幅広い材料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を生じる可能性がある。

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（Alloy C-276）、ステンレス鋼（Type 316L）および金属ガラス（Ni₆₅-Cr₁₃-Nb₂-P₁₆-B₄）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。また、ニッケル基合金の中でも耐食性が高い Ni-Cr-Mo 合金のうち、検討対象とした Alloy C-276 は比較的使用実績も豊富であることから、他の Ni-Cr-Mo 合金を検討対象とする場合も、基本的な比較対象として Alloy C-276 の耐すきま腐食に関するデータを整備することが重要と考えられる。すきま腐食の発生限界を定量的に評価する手法として、一旦発生・進展したすきま腐食が停止する電位である再不動態電位 $E_{R, CREV}$ を求める方法（再不動態化法）が有効と考えられる。

令和 2 年度は、Alloy C-276 について、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，2001）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 と比較して定電位法では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、令和 2 年度より高い塩化物濃度 3 M までの条件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浸漬試験を開始した。

令和 4 年度は、Alloy C-276 の腐食すきま再不動態化電位を試験により把握するとともに、純チタンなどの腐食すきま再不動態化電位を文献調査により取得して、これらの材料の耐食性を比較、整理した。また、令和 3 年度から開始した浸漬試験について、最長 1 年間の浸漬試料を分析することで、処分環境における Alloy C-276 の腐食メカニズムを確認した。以上

について、「1) 高耐食性金属を対象としたすきま腐食試験」および「2) 高耐食性金属を対象とした低酸素条件での浸漬試験・水素吸収試験」として以下に示す。

1) 高耐食性金属を対象としたすきま腐食試験

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な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。これらの条件ではAlloy 22には定電位保持によりすきま腐食が発生し、再不動態化電位も得られていることから（深谷ほか，2007）、定電位法ではAlloy C-276のほうがすきま腐食が発生しにくいことが示唆された。

令和3年度は、令和2年度より高い塩化物イオン濃度3 Mでの定電位試験を実施し、1.5 M以上ですきま腐食に対応する電流値の増加が観察されたものの、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ことから、すきま腐食の発生領域の境界を求めるにはさらにデータを増やす必要があることが示唆された。

令和4年度は、令和3年度に把握したすきま腐食の発生条件を対象に、再不動態化法による定電位試験を実施し、腐食すきま再不動態化電位 $E_{R, CREV}$ を把握し、すきま腐食の発生限界のより詳細な確認を行った。すきま腐食試験の試験方法、分析方法ならびに試験結果と考察をそれぞれ、以下の①~③に示す。

① 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2.1-9に示す。30×15×2 mmの試験片にφ6 mmの穴を空け、表面をエメリー#800にて研磨した。カーボンテープでリード線を取り付け、その部分を信越シリコーンでマスキングした。露出した試験片の表面はエタノールにより脱脂した。すきま形成材にはテフロンを用い、試験を両面からステンレスのボルトナットで挟んだ。すきま腐食試験片の模式図を図2.1-22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

すきま腐食試験片を試験溶液に浸漬させ、窒素ガスにて 3 時間以上脱気したのち、90 °C まで加熱した。試験中も脱気 (20 cc min⁻¹) を継続した。試験片の電位を-1.2 V vs. SSE にて 120 秒間保持してカソード処理したのち、自然状態に戻し、自然電位が安定したことを確認したのち、所定の電位で 48 時間の定電位試験を行った。深谷ら (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 2.1-23 に示す。

表 2.1-9 試験片の材質と成分分析値

材料	成分分析値 [%]
ニッケル基合金 Alloy C-276 ASME UNS N10276	C: 0.004, Si: 0.05, Mn: 0.6, P: 0.01, S: 0.00, Cr: 16.2, Mo: 15.6, Co: 0.2, W: 3.2, Fe: 6.8, V: 0.03
ニッケル基合金 Alloy C-22 ASME UNS N06022	C: 0.001, Si: 0.03, Mn: 0.39, P: 0.01, S: 0.00, Cr: 21.4, Mo: 13.2, Co: 0.1, W: 2.6, Fe: 5.7, V: 0.03

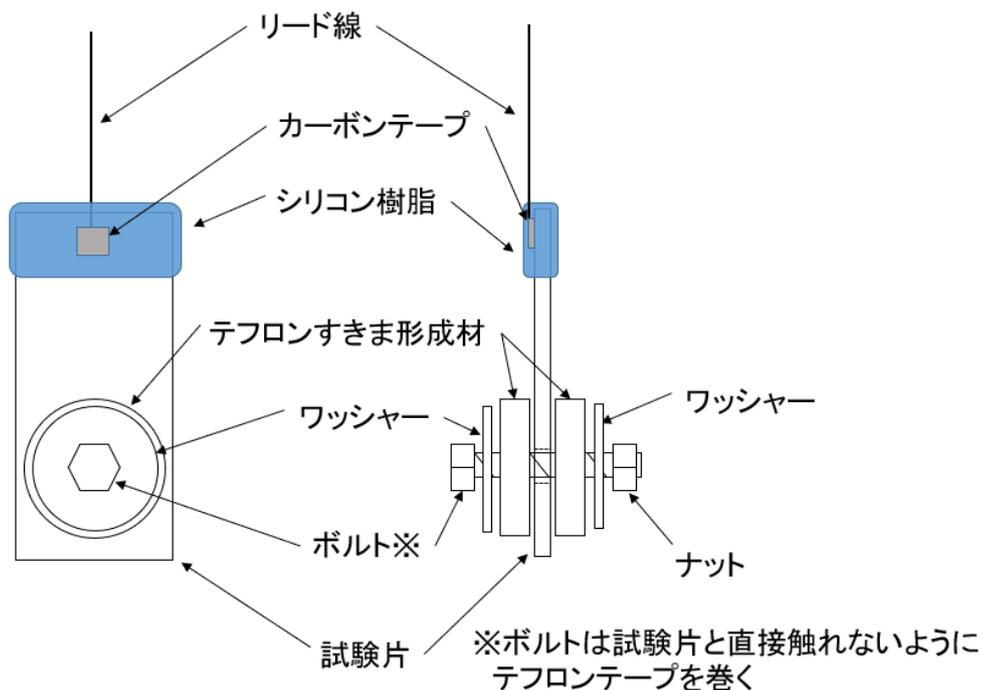


図 2.1-22 すきま腐食試験片の模式図

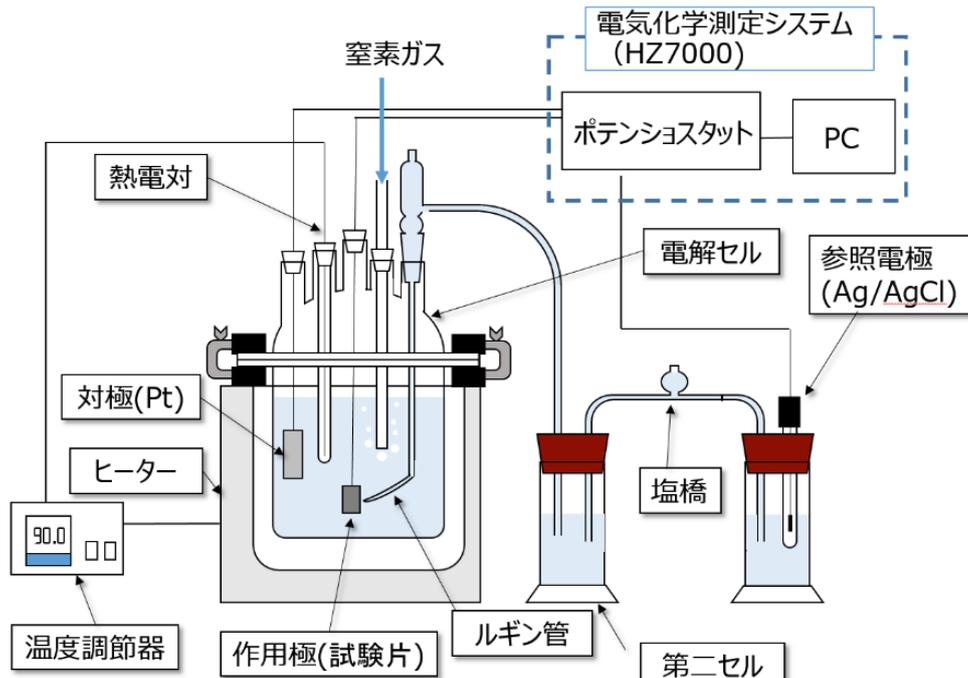


図 2.1-23 電気化学試験模式図

② 分析方法

試験後試験片のすきま部の浸食深さの計測には、デジタルマイクロスコープ（KEYENCE VHX-5000）を用いた。

③ 試験結果と考察

令和 3 年度に把握したすきま腐食の発生条件を対象に、再不動態化法による試験を実施し、腐食すきま再不動態化電位 $E_{R, CREV}$ を求めた。Alloy C-276 の塩化物イオン濃度と腐食すきま再不動態化電位 $E_{R, CREV}$ の関係を表 2.1-10 に示す。 $E_{R, CREV}$ を正確に測定するためにはすきま部における最大浸食深さが臨界浸食深さを超える測定条件の設定が必要であるため、すきま腐食の成長時間を変えて $E_{R, CREV}$ を求めるとともに、すきま部の最大浸食深さを求めた。400 μ A-4h 以上のすきま腐食成長で概ね一定の $E_{R, CREV}$ が得られているとともに、従来報告されている Ni-Cr-Mo 合金の臨界浸食深さ（65 μ m）以上であることを確認した。Alloy C-276 は塩化物濃度 1.5 M 以上の条件で、すきま腐食が発生した。

Alloy C-276 と Alloy C-22 の人工海水中での腐食すきま再不動態化電位 $E_{R, CREV}$ を測定した。結果を表 2.1-11 に示す。その結果、人工海水中で Alloy C-276 にはすきま腐食が発生したが、Alloy C-22 では、180 時間が経過してもすきま腐食が発生しなかった。また、すきま腐食の発生した Alloy C-276 について、人工海水を半分の濃度に希釈して腐食すきま再不動態化電位 $E_{R, CREV}$ を測定した。その結果、180 時間が経過してもすきま腐食が発生しなかった。すきま腐食の発生しなかった条件で定電位試験（+360 mV で 180 h 保持）を実施したが、すきま腐食の発生に伴うような電流の上昇は観察されなかった。

試験溶液の pH を 8 にした条件での、Alloy C-276 の塩化物イオン濃度と腐食すきま再不動態化電位 $E_{R, CREV}$ の関係を表 2.1-12 に示す。試験溶液の pH を 8 に調整した条件では pH 未調整の条件よりも低い塩化物濃度ですきま腐食が発生した。

図 2.1-24 に示すように、Alloy C-276 は実施したすべての条件で純 Ti、Grade12Ti (Ti-0.8Ni-0.3Mo)、Alloy 22 の $E_{R, CREV}$ と比較すると、純 Ti、Grade12Ti より耐すきま腐食性が高く、Alloy 22 より低いという結果となった。Alloy C-276 を用いた試験では、NaCl 溶液 pH 未調整 ($[Cl^-]=1.5$ M)、NaCl 溶液 pH8 調整 ($[Cl^-]=1.0$ M) および人工海水中 ($[Cl^-]=0.56$ M) ですきま腐食が発生した。また、 $E_{R, CREV}$ は不動態が健全な状態での定常腐食電位 E_{sp} を下回っていることから、これらの水質の地下水条件ではすきま腐食が発生する可能性があることが分かった。Alloy C-276 は実施したすべての条件で、純 Ti、Grade12Ti より $E_{R, CREV}$ は高く、Alloy 22 よりは低いという判定となった。なお、図 2.1-24 に示す純 Ti、Grade12Ti (Ti-0.8Ni-0.3Mo)、Alloy 22 の $E_{R, CREV}$ の値は、文献調査 (Akashi et al., 1998; 深谷ほか, 2007) により取得したものである。

人工海水中では塩化物イオン濃度に換算すると 0.56 M の条件であり、NaCl 水溶液では発生しなかった条件にも関わらずすきま腐食が発生していることから、人工海水中に含有される Na、Cl 以外の成分など塩化物イオン以外の要因がすきま腐食を促進した可能性が考えられる。また、Alloy C-276 を用いた試験では、塩化物濃度が同じでもより pH の高い条件がすきま腐食を発生しやすいことから、pH もすきま腐食の発生のしやすさに関与している可能性があることが分かった。

本試験では海水相当未満の塩化物イオン濃度での $E_{R, CREV}$ が得られておらず、 E_{sp} との交点としての限界塩化物イオン濃度は不明であるが、人工海水相当以上の塩化物イオン濃度以上では材料としての適用が困難となる可能性がある。ただし、pH や塩化物イオン以外の成分の影響を把握するとともに、過渡状態での緩衝材中での E_{sp} に関するデータの取得など更にデータを拡充する必要がある。

表 2.1-10 Alloy C-276 の塩化物イオン濃度と腐食すきま再不動態化電位 $E_{R.CREV}$ の関係

塩化物イオン濃度 (M)		すきま成長時間 (定電流 400 μ A 保持)		
		4h	8h	12h
1.0	$E_{R.CREV}$ mV vs/SSE	すきま腐食発生せず※	すきま腐食発生せず※	すきま腐食発生せず※
	最大腐食深さ μ m			
1.5	$E_{R.CREV}$ mV vs/SSE	すきま腐食発生せず※	-181	-176
	最大腐食深さ μ m		70	95
1.75	$E_{R.CREV}$ mV vs/SSE	-179	-185	-188
	最大腐食深さ μ m	70	80	90
2.0	$E_{R.CREV}$ mV vs/SSE	-185	-189	-179
	最大腐食深さ μ m	170	70	130
3.0	$E_{R.CREV}$ mV vs/SSE	-189	-196	
	最大腐食深さ μ m	65	70	

※定電位+360 mV で 180 h 保持してもすきま腐食に対応する電流の上昇は見られなかった。

表 2.1-11 Alloy C-276 と Alloy C-22 の人工海水中での腐食すきま再不動態化電位 $E_{R.CREV}$

		Alloy C-276 すきま成長時間 (定電流 400 μ A、4 h 保持)	Alloy C-22 すきま成長時間 (定電流 400 μ A、4 h 保持)
		人工海水希釈 (塩化物濃度 0.28M)	$E_{R.CREV}$ mV vs/SSE
最大腐食深さ μ m			
人工海水 (塩化物濃度 0.56M)	$E_{R.CREV}$ mV vs/SSE	-140 -150	すきま腐食発生せず※
最大腐食深さ μ m	85 75		

※定電位+360 mV で 180 h 保持してもすきま腐食に対応する電流の上昇は見られなかった。

表 2.1-12 Alloy C-276 の塩化物イオン濃度と腐食すきま再不動態化電位 $E_{R,CREV}$ の関係
(試験溶液 pH8 に調整)

塩化物イオン濃度 (M)		すきま成長時間 (定電流 400 μ A、4 h 保持)
0.5	$E_{R,CREV}$ mV vs/SSE	すきま腐食発生せず※
	最大腐食深さ μ m	
1.0	$E_{R,CREV}$ mV vs/SSE	-161
	最大腐食深さ μ m	150
1.5	$E_{R,CREV}$ mV vs/SSE	-176
	最大腐食深さ μ m	130
1.75	$E_{R,CREV}$ mV vs/SSE	-179
	最大腐食深さ μ m	170
2.0	$E_{R,CREV}$ mV vs/SSE	-191
	最大腐食深さ μ m	140
3.0	$E_{R,CREV}$ mV vs/SSE	-186
	最大腐食深さ μ m	110

※定電位+360 mV で 180 h 保持してもすきま腐食に対応する電流の上昇は見られなかった。

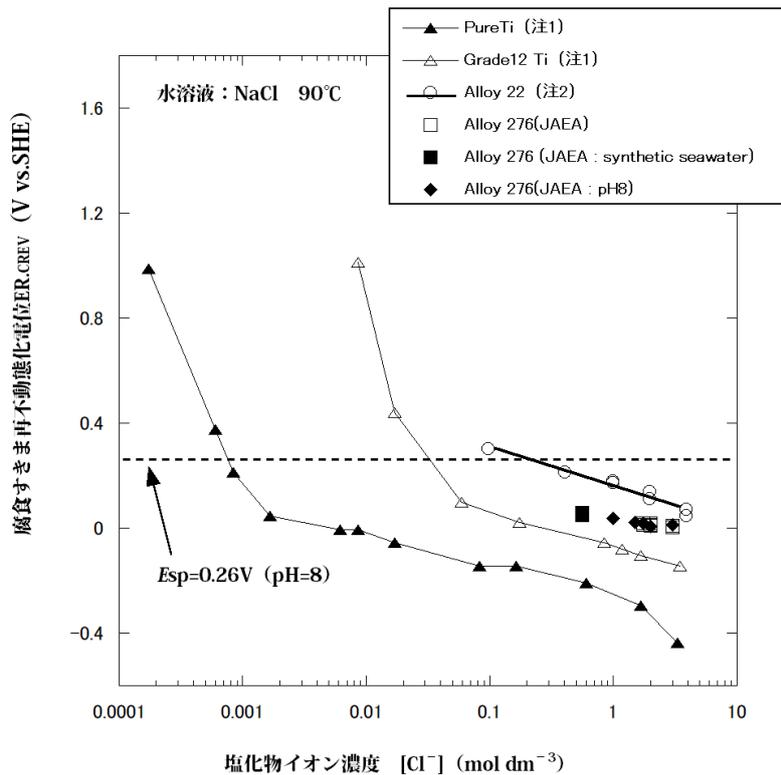


図 2.1-24 90 °C の NaCl 水溶液環境における腐食すきま再不動態化電位に及ぼす塩化物イオン濃度の影響

注 1) 図中の Pure Ti 及び Grade12 Ti は、Akashi et al. (1998) より引用。

注 2) 図中の Alloy22 は深谷ら (2007) より引用。

2) 高耐食性金属を対象とした低酸素条件下での浸漬試験・水素吸収試験

令和3年度は、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・水素吸収試験を開始するとともに、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。

令和4年度は、浸漬試験・水素吸収試験後の試験片の分析を行い、令和3年度に実施した試験前の試料の分析結果を踏まえつつ、皮膜厚さや水素浸入量の経時変化を確認した。また、処分環境における水素脆化の可能性を評価することを目的として、水素脆化を生じない臨界水素濃度の確認を試みた。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

浸漬試験に供した試験片、試験溶液、試験手順を、以下のa.～c.に示す。

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

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(図2.1-25)。試験溶液は、窒素雰囲気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2.1-13および表2.1-14に示す。

表2.1-13 浸漬試験の試験条件

溶液	材質	温度(°C)	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

表2.1-14 水素吸収試験の試験条件

溶液	材質	温度(°C)	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

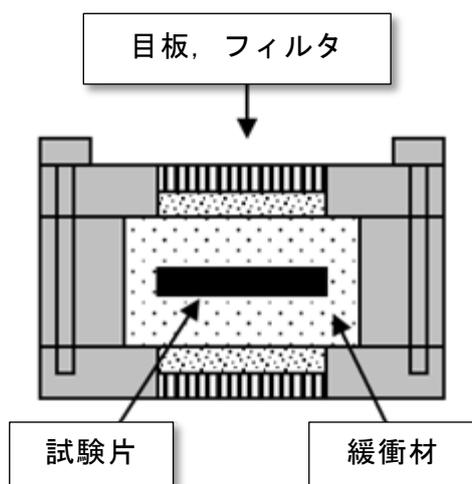


図 2.1-25 試験に用いたチタン製カラムのイメージ図

② 分析方法

試験片初期試料の水素濃度の分析方法を以下の a. に示す。また、試験後試料の水素濃度などの分析方法を b. に示す。

a. 試験片初期試料の水素濃度の分析方法

不活性ガス融解-熱伝導度法により濃度の異なる 2 種類以上の標準物質を分析し検量線を作成した。作成した 2 種類の検量線を利用し、2 枚の試験片を対象に以下の条件で全水素濃度の分析を実施した。手順を以下の i. ~iv. に示す。

- i. 試験片を切断し、 $5 \times 10 \times 2$ mm 程度の大きさの分析用試験片を試験片 1 枚当たり 3 枚作製する。※砥石切断、大気中、水冷、切断は約 5 分
- ii. 分析試験片のうち、試験片 1 枚あたり 2 枚 (計 4 枚) の全面を湿式研磨紙#800 で研磨し、表面の腐食生成物を除去した。
- iii. 研磨した分析用試験片をアセトンで洗浄し、乾燥させた。
- iv. 研磨乾燥後の分析用試験片の全水素濃度を分析した。

b. 試験後試料の水素濃度などの分析方法

試験後試験片試料のサイズおよび枚数を以下に示す。また、試験後試験片試料の名称、分析方法、試験片の刻印 No、試験期間、溶液条件、温度の一覧を、水素吸収試験および浸漬試験それぞれについて、表 2.1-15 および表 2.1-16 に示す。

- ・ 水素吸収試験用試験片 A (30×10×2 mm) : 2 枚
- ・ 水素吸収試験用試験片 B (30×10×2 mm) : 2 枚
- ・ 水素吸収試験用試験片 C (30×10×2 mm) : 2 枚
- ・ 浸漬試験片 (30×30×2 mm) : 2 枚

表 2.1-15 水素吸収試験用試験片一覧

No.	試験後試験片試料の名称	分析	刻印No.	期間	溶液	温度[°C]
1	水素吸収試験用試験片 A-1	不活性ガス溶解-熱伝導度法 ※二次イオン質量分析法	H01	3 か月	人工海水	80
2	水素吸収試験用試験片 B-1	二次イオン質量分析法	H02	3 か月	人工海水	80
3	水素吸収試験用試験片 C-1	透過型電子顕微鏡	H03	3 か月	人工海水	80
4	水素吸収試験用試験片 A-2	不活性ガス溶解-熱伝導度法 ※二次イオン質量分析法	H05	1 年	人工海水	80
5	水素吸収試験用試験片 B-2	二次イオン質量分析法	H06	1 年	人工海水	80
6	水素吸収試験用試験片 C-2	透過型電子顕微鏡	H07	1 年	人工海水	80

表 2.1-16 浸漬試験片一覧

No.	支給品名	分析	刻印No.	期間	溶液	温度[°C]
1	浸漬試験片-1	グロー放電発光分析法	C04	3 か月	人工海水	80
2	浸漬試験片-2	グロー放電発光分析法	C08	1 年	人工海水	80

なお、試験片の受け取りから分析までの間、切断・研磨等の前処理や分析に必要な場合を除き、低温条件（冷凍庫（-80 °C）、ドライアイス、液体窒素など）で保管した。

試験後試験片の分析には、不活性ガス融解-熱電導度法、二次イオン質量分析法（SIMS）、グロー放電発光分析法（GD-OES）、透過型電子顕微鏡（TEM）を用いた。これらによる分析方法や手順を以下に示す。

不活性ガス融解-熱電導度法を用いた分析

水素吸収試験用試験片 A（2 枚）を対象に、以下に示す手順 i. ~ vi.、試料、装置および測定条件で、全水素濃度の分析を行った。

・ 手 順

- i. 水素吸収試験用試験片を切断※し、5×10×2 mm 程度の大きさの分析用試験片を水素吸収試験用試験片 1 枚あたり 4 枚作製した。

※ 砥石切断、大気中、水冷で切断時間は約 5 分。

- ii. 分析用試験片のうち、水素吸収試験用試験片 1 枚あたり 2 枚（計 4 枚）の全面（6 面）を研磨（#800 の表面仕上げ）し、表面の腐食生成物を除去した。

- iii. 分析用試験片のうち、水素吸収試験用試験片 1 枚あたり 1 枚（計 2 枚）の 1 面（5×10 mm 面）を研磨（#800 の表面仕上げ）し、表面の腐食生成物を除去した。
- iv. 分析用試験片のうち、水素吸収試験用試験片 1 枚あたり 1 枚（計 2 枚）は分析が完了するまで予備試料（再分析用）として低温環境で保管した。
- v. 上記 ii. iii. で研磨した分析用試験片（6 枚）をアセトンで洗浄し、乾燥させた。
- vi. 乾燥後、全面を研磨した分析用試験片（4 枚）の全水素濃度を分析した。
1 面を研磨した分析用試験片（2 枚）は、二次イオン質量分析法（SIMS）を用いた分析に供した。試料採取位置概要図を図 2.1-26 に示す。

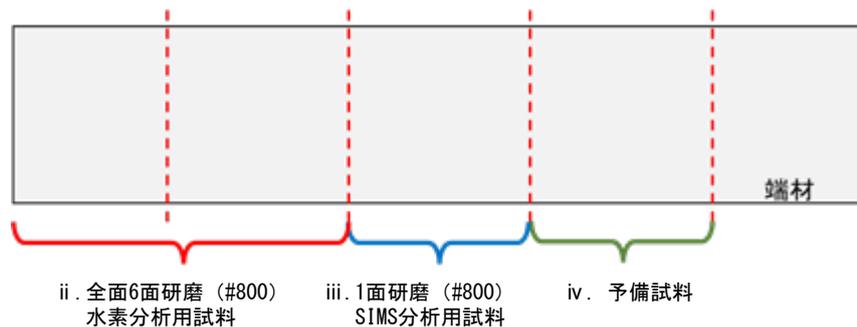


図 2.1-26 試料採取位置概要図

- ・ 試料
 - H01（水素吸収試験用試験片 A-1） 2 枚 （H01-1、H01-2）
 - H05（水素吸収試験用試験片 A-2） 2 枚 （H05-1、H05-2）
- ・ 装置および測定条件
 - 装置 : LECO 製 RHEN602
 - 測定方法：不活性ガス融解法

二次イオン質量分析法（SIMS）を用いた分析

水素吸収試験用試験片 B（2 枚）と、不活性ガス融解-熱電導度法を用いた分析（上記）で作製した分析用試験片（2 枚）を対象に、二次イオン質量分析法を用いて試験片（計 4 枚）の表面から深さ方向の分析を行い、結果から深さ方向の元素濃度プロファイルを作成した。測定元素は、Ni、Cr、Mo、O および H とした。分析箇所は試験片 1 枚あたり 1 箇所（合計 4 箇所）とした。なお、試料表面は一様であったため、分析は任意の位置で実施した。

試料、分析対象元素、装置および測定条件を以下に示す。

- ・ 試料
 - H01（水素吸収試験用試験片 A-1） : 1 枚
 - H02（水素吸収試験用試験片 B-1） : 1 枚
 - H05（水素吸収試験用試験片 A-2） : 1 枚
 - H06（水素吸収試験用試験片 B-2） : 1 枚

- 分析対象元素： H、O、Cr、Ni、Mo
- 装置および測定条件
 - 装置： AMETEK CAMECA 製 IMS-7F 型 二次イオン質量分析器
 - 一次イオン条件： Cs⁺、15 kV
 - 分析領域： 150×150 μm
 - 二次イオン極性： 負

グロー放電発光分析法 (GD-OES) を用いた分析

浸漬試験片 (2 枚) を対象に、グロー放電発光分析法 (GD-OES) を用いて浸漬試験片の表面から深さ方向の分析を行い、結果から深さ方向の元素濃度プロファイルを作成した。測定元素は、Ni、Cr、Mo、O および H とした。分析箇所は試験片 1 枚あたり 1 箇所 (合計 2 箇所) とした。なお、試料表面は一様であったため、分析は任意の位置で実施した。

試料、分析対象元素、装置および測定条件を以下に示す。

- 試料
 - ・ C04 (浸漬試験片-1)： 1 枚
 - ・ C08 (浸漬試験片-2)： 1 枚
- 分析対象元素： H、O、Cr、Ni、Mo
- 装置および測定条件
 - 使用装置： 堀場製作所製 マーカス型高周波グロー放電発光表面分析装置 (rf-GD-OES) GD-Profiler2
 - スパッタ方式： パルススパッタ
 - 測定範囲： φ4 mm
 - ガスの種類： Ar

透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いた分析

Cryo-FIB 加工による切片試料の作製、TEM 像の撮影、EDS 分析、電子回折分析について、以下の i. ~ iv. に示す。

i. Cryo-FIB 加工による切片試料の作製

水素吸収試験用試験片 C (2 枚) を対象に、クライオ集束イオンビーム (Cryo-FIB : Cryo Focused Ion Beam) 加工により、切片試料を浸漬試験片毎に 1 点ずつ、合計 2 点を作製した。なお、試料表面は一様であったため、試料採取位置は任意の位置とした。

試料最表面保護のため、高真空蒸着装置にてカーボン膜と FIB にてタングステン膜をコーティングした後、FIB マイクロサンプリングにて試料小片を摘出した。その後、摘出した小片をクライオ FIB 加工により TEM 観察可能な厚さまで薄片化を行った。

ii. TEM 像の撮影

上記 i. で作製した切片試料 2 点について、TEM 像を撮影した。

- ・ 低倍率観察 : 切片試料 1 点あたり 1 領域
- ・ 高倍率観察 : 切片試料 1 点あたり 5 領域程度

iii. EDS 分析

上記 i. で作製した切片試料 2 点について、エネルギー分散型 X 線分光法 (EDS) によるマッピング分析を行った。

- ・ EDS マッピング : 切片試料 1 点あたり 1 箇所
- ・ 対象元素 H03 : C、Cr、Fe、Mo、Ni、O
H07 : C、Al、Cr、Fe、Mg、Mo、Ni、O、Si

iv. 電子回折分析

上記 i. で作製した切片試料 2 点について、電子回折分析 (微小部電子回折及び制限視野電子回折) を行った。

- ・ 電子回折分析 : 切片試料 1 点あたり 5 箇所
- ・ 試料 H03 (水素吸収試験用試験片 C-1) : 1 枚
H07 (水素吸収試験用試験片 C-2) : 1 枚
- ・ FIB 加工装置および条件
 - 作製装置 : 日立製作所製 集束イオンビーム加工観察装置 FB-2000A
日立ハイテクノロジーズ製
集束イオン/電子ビーム加工観察装置 nanoDUE' T NB5000
 - 加速電圧 : 30 kV、5 kV
 - イオン源 : Ga
- ・ 装置および観察条件
 - TEM 観察装置 : 日本電子製 電界放出形透過電子顕微鏡 2100F
 - EDS 分析装置 : 日本電子製 JED-2300T SSD (JEM-2100F 付属)
 - 加速電圧 : 200 kV

③ 試験結果と考察

二次イオン質量分析法 (SIMS)、グロー放電発光分析法 (GD-OES)、透過型電子顕微鏡 (TEM) による試験後試験片の分析結果をそれぞれ以下の a. ~c. に示す。試験結果に基づく考察を d. に示す。

a. 二次イオン質量分析法 (SIMS) による分析結果

初期試料についての全水素濃度分析結果および試験後試料の SIMS による分析結果をそれぞれ以下の a) および b) に示す。

a) 初期試料についての全水素濃度分析結果

全水素濃度の分析結果を表 2.1-17 に示す。

表 2.1-17 全水素濃度の分析結果

分析試料	試験期間	分析結果 (wt%)
H18-1	3 か月	0.0002
H18-2		0.0001
H20-1	1 年	0.0001
H20-2		0.0002

b) 試験後試料の SIMS 分析結果

試験期間 3 か月と 1 年についての、浸漬試料中の濃度分布（水素、酸素）を図 2.1-27 に示す。試験期間 3 か月と 1 年のいずれについても水素の浸入深さは 400 nm 程度であり、浸漬期間の違いによる大きな差は見られない。

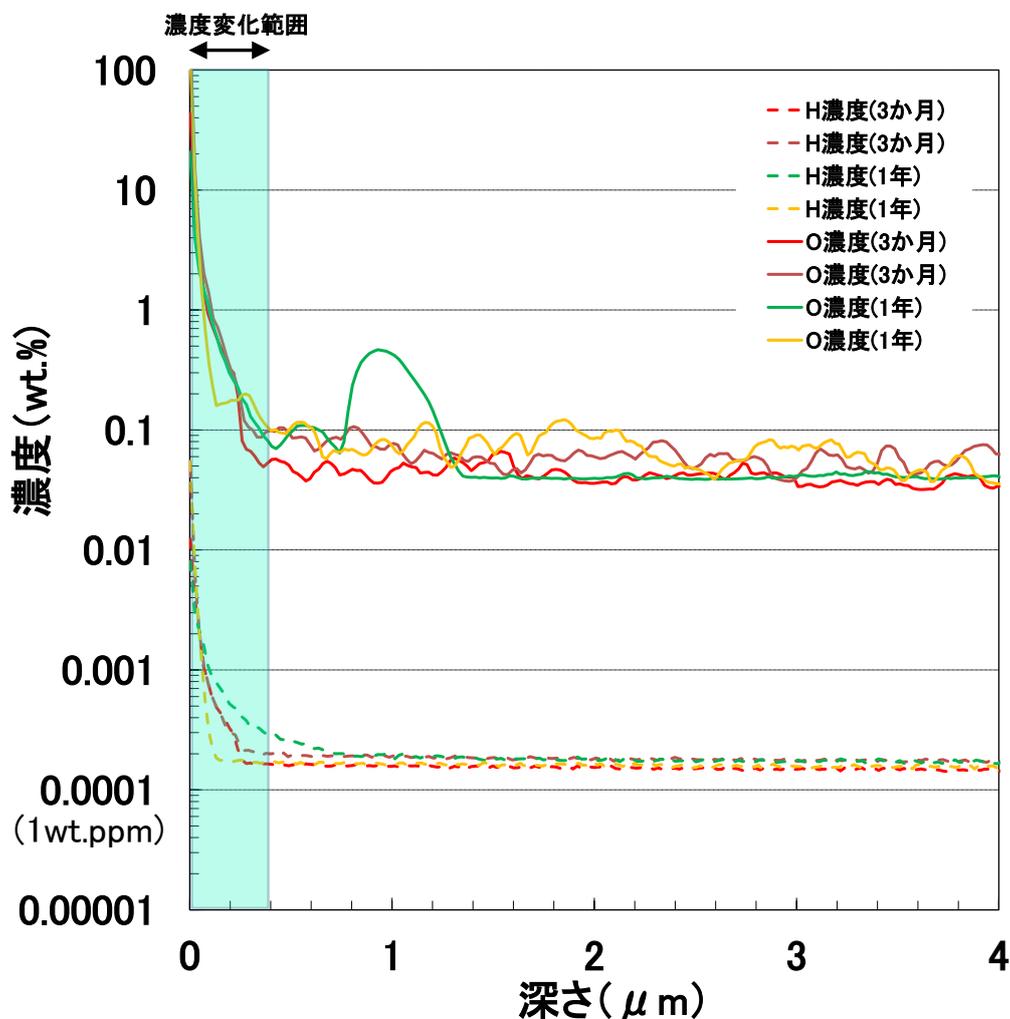


図 2.1-27 浸漬試料中の濃度分布 (H, O)

b. グロー放電発光分析法(GD-OES)による分析結果

浸漬試料中の水素、酸素、クロム、ニッケル、モリブデンの濃度分布を、試験期間 3 か月および 1 年それぞれについて、図 2.1-28 および図 2.1-29 に示す。試験期間 3 か月と 1 年のいずれについても水素の浸入深さは 20 nm 程度であり、浸漬期間の違いによる大きな差は見られなかった。ここで評価された水素の浸入深さの値は、SIMS 分析の結果 (図 2.1-27) よりも小さい。水素の浸入深さの評価にこのような差が生じた原因は不明である。

なお、試験期間 3 か月と 1 年の両方について、Cr が表面に濃集していることが確認された。

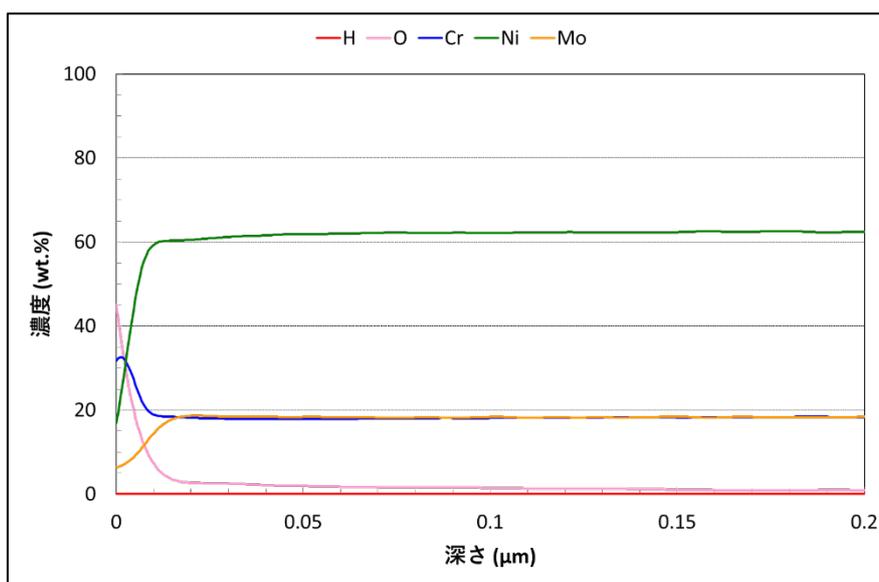


図 2.1-28 試験後試料 (3 か月) の GD-OES 分析結果

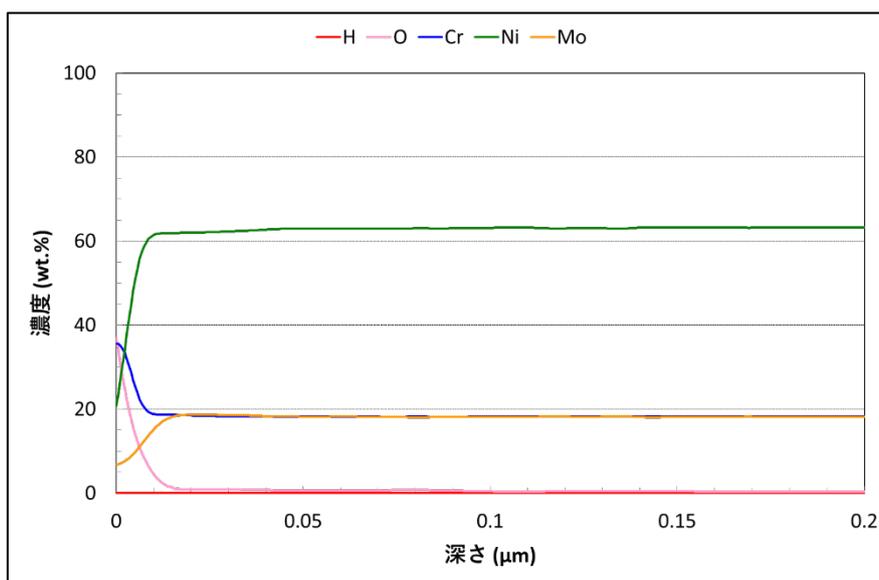
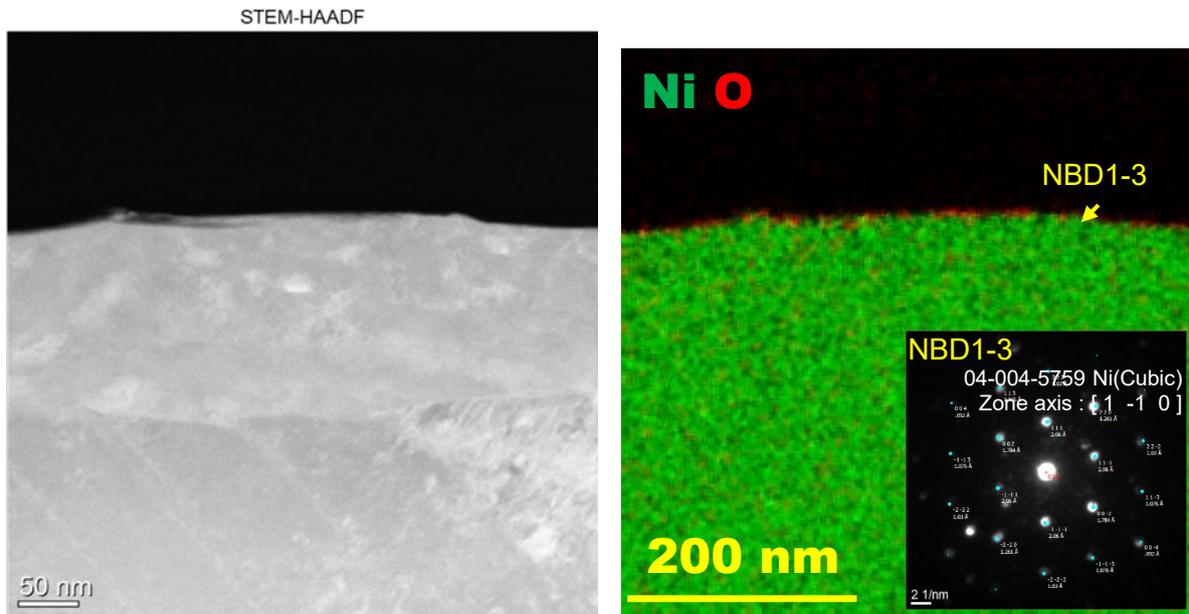


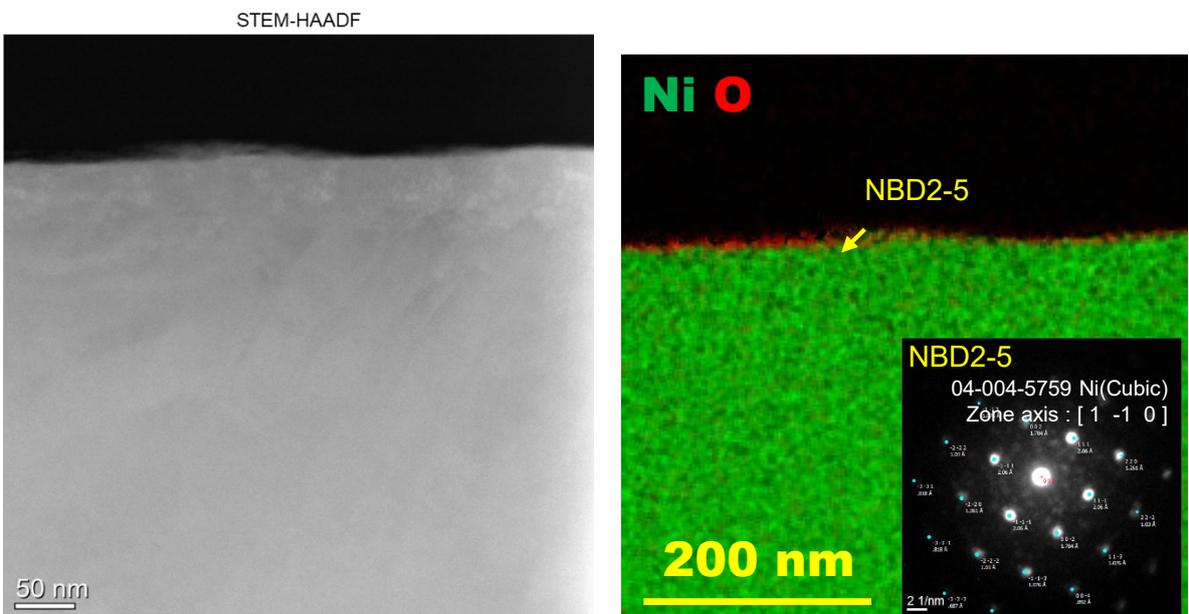
図 2.1-29 試験後試料 (1 年) の GD-OES 分析結果

c. 透過型電子顕微鏡(TEM)による分析結果

TEM 分析による STEM 観察結果 (HAADF) (左)、および EDX マッピング、電子回折画像を図 2.1-30 に示す。図中の赤い部分は酸素であり、試料表面に酸化被膜が生じていることが確認された。また、酸化被膜の直下 (図 2.1-30 中において NBD1-3、NBD2-5 と示した位置) における電子回折において、Ni 金属が観察された。皮膜の厚さは 20 nm 程度であり、3 か月と 1 年の浸漬期間の違いによる大きな差は見られない。このことは、低酸素条件では不動態化した皮膜の影響により、腐食が進展しなかったためと考えられる。



(3 か月)



(1 年)

図 2.1-30 STEM 観察結果 (HAADF) (左)、および EDX マッピング、電子回折画像 (右)

d. 考察

本件では、二次イオン質量分析法（SIMS）、グロー放電発光分析法（GD-OES）、透過型電子顕微鏡（TEM）により、試験後試験片の腐食速度や水素の吸収深さの評価を試みた。

水素の吸収深さは、SIMS による分析結果のほうが、GD-OES による分析結果よりも深く、1年間の試験での深さは 400 nm であった。水素の吸収深さの評価において、分析方法によりこのような違いが生じた原因は不明である。なお、今回の水素吸収深さの評価は、1年間の試験に基づくものであり、長期的な水素の移行と分布、それによる脆化の程度等についてはメカニズムの理解を含め、今後、実験等による確認が必要である。

(4) 本事業のまとめ

本事業での成果を踏まえた、純銅ならびに他の候補材料についての長寿命化の見通し及び適用条件のまとめ、さらに炭素鋼と純銅の腐食挙動に関する特徴比較を以下の構成で示す。

- 1) 純銅の長寿命化の見通し及び適用条件
- 2) 他の候補材料の長寿命化の見通し及び適用条件
- 3) 候補材料の腐食挙動に関する知見の整理

1) 純銅の長寿命化の見通し及び適用条件

純銅を対象として、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一つである硫化物が共存する環境に着目し、全面腐食を想定して長寿命化が見込める環境条件の整理のための試験などを行うとともに、局部腐食の一種である応力腐食割れ試験を行い、応力腐食割れが発生しうる環境条件を整理した。硫化物の影響による全面腐食の観点から長寿命化が見込める環境条件、また、応力腐食割れが生じやすい環境条件、さらにこれらの両方の観点から長寿命化が見込める環境条件の整理、長寿命化の達成において留意すべきその他の環境条件をそれぞれ以下の①～④に示す。

① 硫化物の影響による全面腐食の観点から長寿命化が見込める環境条件の整理

全面腐食を想定した腐食深さは、腐食量に基づき評価されるものであり、例えば、スウェーデンでは、想定している処分場付近の地下水組成の計測に基づき、処分環境の硫化物濃度を 10^{-5} mol L⁻¹ 以下に設定し、100 万年を評価期間としたときの腐食深さは、最大でも数 mm 程度になるとしている (SKB, 2006a ; 2006b)。

本件では、わが国の地質環境条件を踏まえ、処分場で想定される硫化物濃度を最大で 10^{-2} mol L⁻¹ 程度に設定し、幅広い酸化還元状態に対応した電気化学試験や硫化水素ガスを吹き込んだ溶液を用いた浸漬試験などを実施して、硫化物濃度に応じた腐食速度やその時間的な変化、また、共存する塩化物や緩衝材が腐食速度等に及ぼす影響を把握した。これらの試験結果から、硫化物濃度に比例して腐食速度が変化すること、共存する塩化物の濃度が銅腐食生成物で構成される皮膜の保護性に影響しつつも、皮膜が薄い段階では腐食速度に影響を及ぼしにくい可能性があること、緩衝材が共存することで硫化物による腐食への影響が緩和されることなどが明らかとなった。これらの結果を踏まえ、評価期間において腐食速度を一定とする保守的なモデル (原子力機構, 2022a) を設定して、処分後 5 万年の腐食深さを評価した。硫化物濃度に応じた腐食深さの評価を図 2.1-31 に示す。

処分容器の銅厚さを 40 mm に設定し、処分後初期の溶存酸素等による腐食深さを H12 レポートの最大値相当と仮定 (最大 3.6 mm 程度) すれば、低酸素条件に移行した段階で残存する厚さは 36.4 mm 程度となる。一方、5 万年の腐食深さが 36.4 mm 程度となる硫化物濃度の条件は図 2.1-31 より 3×10^{-3} mol L⁻¹ であることから、硫化物濃度が 3×10^{-3} mol L⁻¹ 程度以下の条件であれば、5 万年程度の長寿命化が達成できると考えられる。

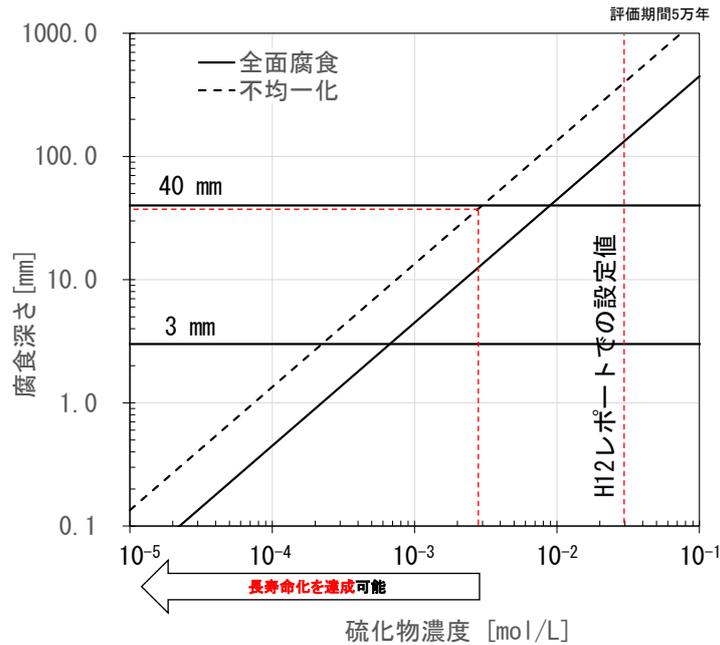


図 2.1-31 硫化物濃度に応じた腐食深さの評価（（原子力機構，2022a）に加筆）

② 硫化物の影響による応力腐食割れが生じやすい環境条件の整理

応力腐食割れが生じやすい環境条件の整理に向けて、先述の(2)3)④において実施した応力腐食割れ試験に関する情報整理に基づき、応力腐食割れ試験での割れの発生有無を、硫化物濃度および硫化物フラックスの組み合わせと関連付けたパターン（パターン1）、また、硫化物濃度および塩化物濃度の組み合わせと関連づけたパターン（パターン2）で整理した（図 2.1-32，図 2.1-33）。

なお、応力腐食割れが生じやすい硫化物フラックスの下限値については、Salonen et al. (2021) が、Taniguchi and Kawasaki(2008)およびBecker et al., (2017)の結果を踏まえ、 $10^{-10} \text{ mol cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ である可能性があることを報告しており、本件では、これらの研究者による試験の結果以外の試験結果も踏まえ、応力腐食割れが生じやすい硫化物フラックスの下限値の確認を行った。

図 2.1-32 に基づき、応力腐食割れが生じやすい硫化物フラックスの下限値は、既往の報告（Salonen et al., 2021）と変わらず $10^{-10} \text{ mol cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ であることが示唆される。以上を踏まえると、H12 レポートで想定している最大の硫化物濃度 30 mM を想定した場合の処分環境（緩衝材 70 cm，温度 80 °C）での硫化物フラックスの定常値は $7.5 \times 10^{-13} \text{ mol cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 程度でありこの値は 2 オーダー以上低いことから、処分環境において応力腐食割れが発生する可能性が低いことが示唆される。ここで提示した処分環境で想定される硫化物フラックスについては、一例として緩衝材が初期に低硫化物濃度の地下水で飽和し、その後、緩衝材中に外側から硫化物が拡散により供給されるケースを想定して評価されたものであり、今後、緩衝材が初期に高硫化物濃度の地下水で飽和するケースについても検討が必要である。

なお、硫化物の影響による応力腐食割れの発生メカニズムについて、海外では、銅への水素の浸入とそれによる空孔形成の影響にも着目した調査が継続して実施されている（Szakálos and Leygraf, 2019; Zhang et al., 2021, Forsström et al., 2021）ことから、

このような海外の調査動向やその成果も踏まえつつ試験による調査を継続し、今回設定した応力腐食割れが生じやすい条件の適切性を確認していくことが重要であると考えられる。

図 2.1-33 に基づき、応力腐食割れは塩化物濃度が高いほど起こり難くなることが示唆される。なお、皮膜が比較的緻密になりやすいと想定される塩化物濃度の条件 (0.1 M) で割れが確認されなかった (図 2.1-33 の[10]) 一方で、既往の研究ではより低い硫化物濃度条件でも割れが観察されている (図 2.1-33 の[3], [6])。この原因としては、試験方法の違いや、今回着目した因子以外の条件等が関係している可能性があることから、今後は、これらの違いにも着目し、割れが生じるメカニズムやより詳細な発生条件を明らかにしていく必要がある。

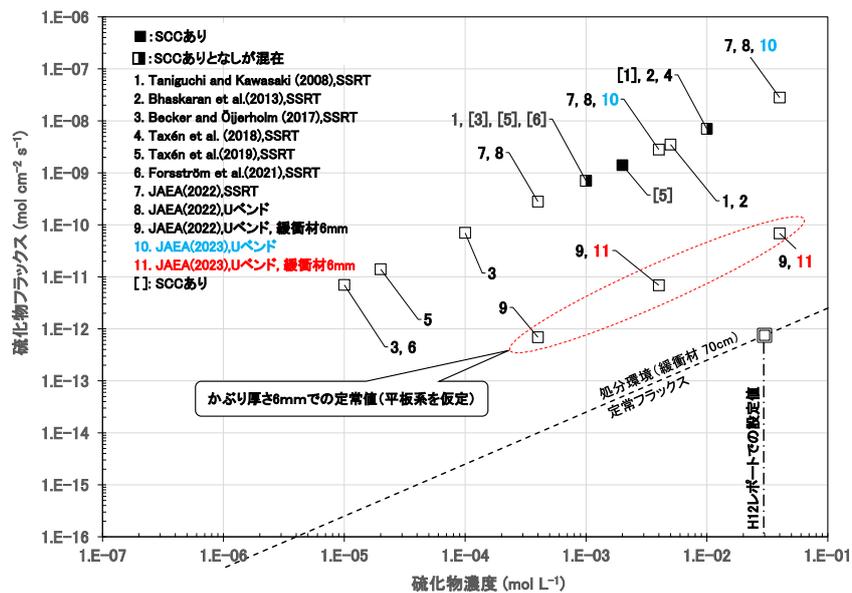


図 2.1-32 本事業の成果および文献調査を踏まえた応力腐食割れ感受性の整理例 (パターン 1: 縦軸: 硫化物フラックス, 横軸: 硫化物濃度)

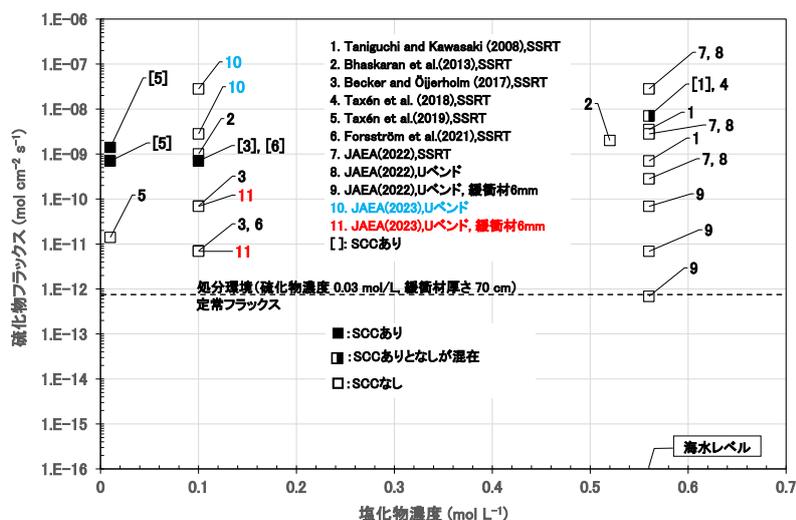


図 2.1-33 文献および本事業の成果に基づく応力腐食割れ感受性の整理例 (パターン 2: 縦軸: 硫化物フラックス, 横軸: 塩化物濃度)

③ 硫化物の影響による全面腐食および応力腐食割れの両方の観点から長寿命化が見込める環境条件の整理

長寿命を達成可能な条件を、銅の腐食量に関わる硫化物フラックス、ならびに、硫化銅皮膜の保護性に影響する塩化物濃度の両方の観点から評価した。

全面腐食については、塩化物濃度の低下により腐食生成物の間隙率の減少（保護性の増加）が観察されるものの、長期腐食深さへの影響は小さいことを確認した。緩衝材中の硫化物の拡散を考慮したモデルにより、地下水中の硫化物濃度と処分容器の腐食寿命を評価した結果、銅の厚さ 40 mm の条件において 5 万年程度の腐食寿命が期待できる環境は硫化物濃度が 3 mM 以下であると推定した。なお、硫化物濃度 3mM の条件では、硫化物フラックスは $7.5 \times 10^{-14} \text{ mol cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ に相当する。

一方、応力腐食割れについては、U ベンド試験を実施した結果、塩化物濃度 0.1~0.56 M の範囲では観察されなかった。応力腐食割れが生じやすい硫化物フラックスの閾値 ($10^{-10} \text{ mol cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 程度、文献調査により把握) に比べ、厚さ 700 mm の緩衝材を使用する処分環境条件における定常の硫化物フラックスは 2 桁以上低いことから、処分環境における応力腐食割れの可能性は小さいと推定した。

以上に示した、全面腐食および応力腐食割れそれぞれの観点から長寿命化の前提となる硫化物フラックスの条件を総合的に整理して、銅厚さ 40 mm の条件下で長寿命化が達成可能となる硫化物フラックスの条件を図 2.1-34 に示した。深部地下水中の NaCl 濃度の範囲（産総研, 2020）では、銅厚さを 40 mm と設定した場合に、硫化物フラックスが $7.5 \times 10^{-14} \text{ mol cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 以下の条件で、全面腐食（不均一化考慮）および応力腐食割れの観点から、5 万年程度の長寿命化が達成可能である。換言すると、銅厚さ 40 mm、緩衝材厚さを 700 mm の条件では、緩衝材外側の境界での硫化物濃度が 3 mM 以下の条件で 5 万年程度の長寿命化が達成可能となる見通しである。なお、例えば、銅厚さを 1 オーダー薄い 4 mm とした場合は、長寿命化が見込める硫化物フラックスの上限値も 1 オーダー低くなる。

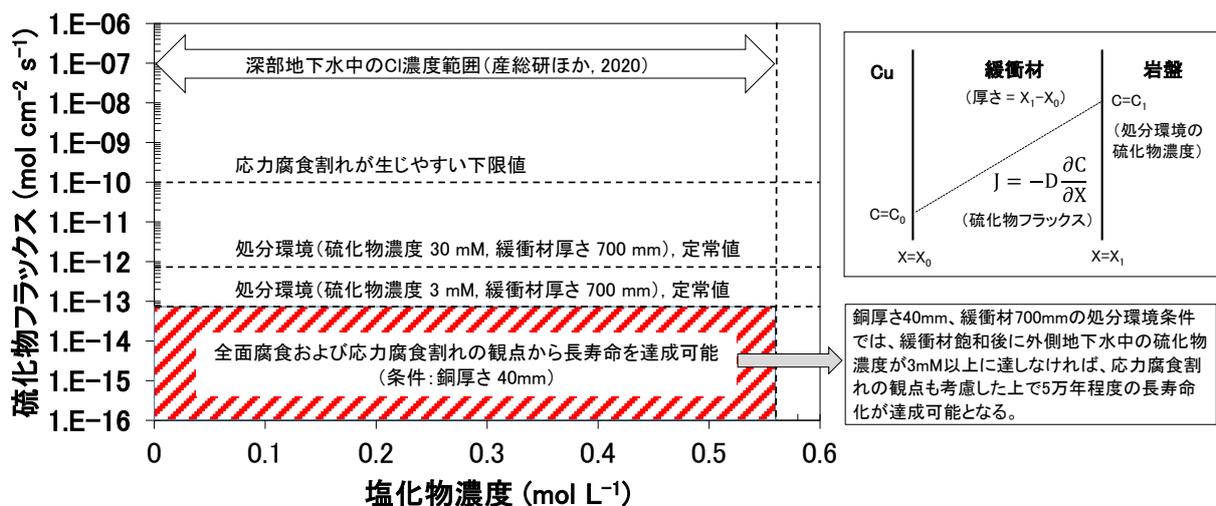


図 2.1-34 長寿命を達成可能な環境条件の総合的な整理例

④ 長寿命化の達成において留意すべきその他の環境条件

アンモニア、アンモニウムイオンが存在する条件下では、低酸素条件かつ膨潤ベントナイト中での SSRT 試験において割れが確認された（原子力機構，2019；2020）ものの、圧縮ベントナイト中の U ベンド試験では割れが確認されなかった（上記(2)3）ことから、処分環境では応力腐食割れが起こりにくい可能性がある。ただし、緩衝材密度が低下しやすい条件（緩衝材の流出など）では、応力腐食割れが生じやすくなる可能性がある。

低酸素濃度下で、炭酸イオンが存在する条件では、2 年間の浸漬試験において局部腐食が確認されたことから、長寿命化の達成に向けては、このような局部腐食が短期破損の原因になることがないかを、今後実験等により明らかにしていく必要がある。

2) 他の候補材料の長寿命化の見通し及び適用条件

銅以外の候補材料として、ニッケル基合金 C-276 について、酸化性環境および低酸素環境それぞれについて、長寿命化の見通しを得るための調査を実施した。

ニッケル基合金 C-276 について、酸化性環境を対象として、90 °C の NaCl 水溶液環境における腐食すきま再不動態化電位 ($E_{R, CREV}$) の測定を行い、Cl⁻濃度 1.5 M 以上の NaCl 溶液及び人工海水 (Cl⁻濃度 0.56 M) を用いた条件でデータを得た。得られた値は不動態が健全な状態での自然電位 (E_{sp}) の既往のデータよりも卑であり、海水相当の塩化物イオン濃度では材料としての適用は困難となる可能性がある。一方、低酸素環境については、試験期間 90 日、1 年の試験後試料の腐食状態を比較した結果、水素吸収を含め、腐食の進展が著しく遅いことが確認されたことから、低酸素条件では長寿命化が達成できる可能性があるものの、腐食速度に影響を及ぼすと考えられる皮膜の安定性、ならびに長期的な水素の移行と分布、それによる脆化の程度等については、メカニズムの理解を含め、今後、実験等による確認が必要である。

炭素鋼については、合金元素として Si や Ni を添加することによる腐食抑制効果を把握するための電気化学試験を実施し、Ni の添加は腐食を抑制する可能性があることが示された（原子力機構，2019；2020）。今後は、合金元素を添加した材料について、圧縮ベントナイト中での腐食挙動などを明らかにする必要がある。

チタンについては、純チタンやその他の候補材料（ニッケル基合金 C-276 など）を対象として、塩化物イオンを含む水溶液中でアノード分極測定を実施し、耐食性を比較した（原子力機構，2020）。また、純チタンの耐すきま腐食性のデータを文献調査で取得した上で、試験で取得したニッケル基合金 C-276 のデータと比較し、その結果に基づき、純チタンの耐すきま腐食性がニッケル基合金 C-276 より低いことが示された（先述(3)1）。以上に基づき、純チタンについては、材料としての適用性がニッケル基合金 C-276 より低い可能性があることが示唆された。

3) 候補材料の腐食挙動に関する知見の整理

炭素鋼での知見ならびに本事業での純銅の浸漬試験（先述(2)1)）を踏まえ、材料表面に生じる腐食生成物皮膜の保護性が、材料の腐食速度に影響を及ぼしうることについて、純銅については硫化水素が存在する条件下の挙動、また炭素鋼については硫化水素が存在しない条件下の挙動を例として、これまでに得られた知見を整理した。

純銅について、硫化物が存在する条件下での緩衝材中での浸漬試験に基づき、銅腐食生成物は Cu_2S （カルコサイト）であり、 Cu_2S は緩衝材と純銅の間に蓄積することが確認された（図 2.1-35 上図）。また、このような腐食生成物（ Cu_2S ）が生成する状態での腐食速度は、腐食が進展しても低下しないことが確認されたことから（図 2.1-36）、腐食生成物（ Cu_2S ）皮膜の保護性は低いことが分かった。

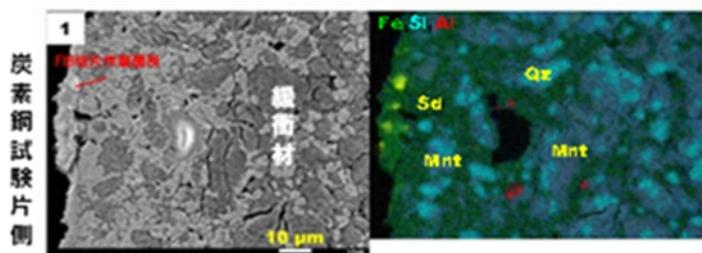
一方、炭素鋼の場合は、低酸素条件下において、緩衝材中でシデライト（腐食生成物）が生成する（図 2.1-35 下図）。シデライトは腐食の抑制効果が高く、シデライトが生成するような環境であれば腐食速度は時間とともに低下する（図 2.1-36）。

以上の知見は、長期の腐食速度を評価する際には、材料表面に形成する皮膜の保護性および安定性に着目することが重要であることを示唆している。



純銅：期間 100 日， H_2S ガス濃度 100%，人工海水， 90°C
（原子力機構，2022a）

- 腐食生成物として、硫化銅（カルコサイト）が緩衝材と銅の界面に生成。
- 試験期間 100 日程度では、腐食速度の低下は認められない。



炭素鋼：試験期間 1825 日（5 年）， N_2 ガス濃度 100%，人工海水， 80°C
（原子力機構，2022b）

- 腐食生成物として、シデライトが緩衝材中に生成。
- 比較的短期間で腐食速度の低下が認められる。

Cct:カルコサイト, MnT:モンモリロナイト, Qz:石英(またはシリカ鉱物), Sd:シデライト

図 2.1-35 浸漬試験試料の断面画像（純銅，炭素鋼）

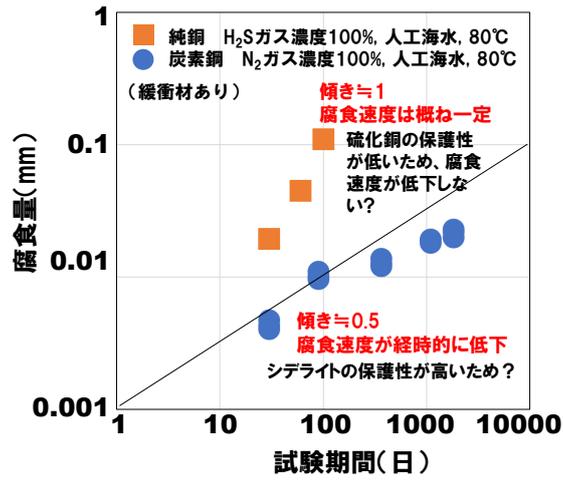


図 2.1-36 浸漬試験での腐食量の推移 (純銅, 炭素鋼)

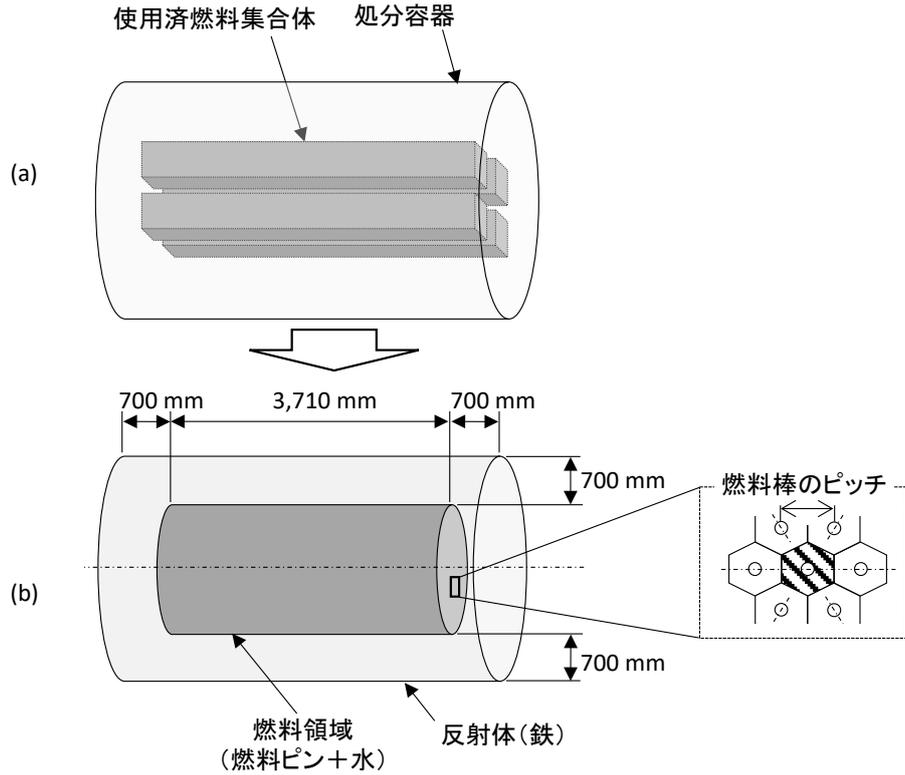
2.2 使用済燃料処分での処分後臨界安全評価

(1) 本項目の背景と目的

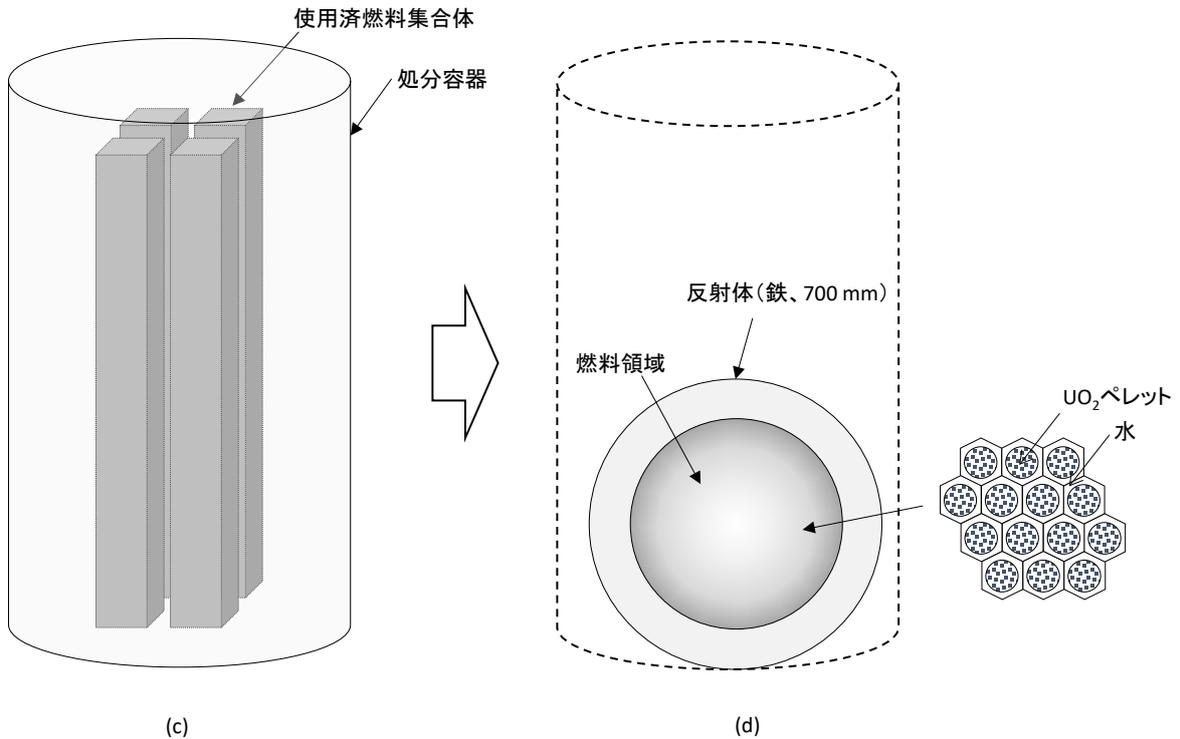
使用済燃料を直接処分する場合、相当量の核分裂性のウランおよびプルトニウムが含まれることから、わが国において、従来、地層処分の対象廃棄物として調査・研究が進められてきたガラス固化体や超ウラン元素を含む TRU 廃棄物の場合とは異なり、処分場への廃棄体の導入によって再臨界が起こる可能性を無視出来ない。処分場において臨界が起こると、多重バリアシステムに期待される安全機能の劣化・喪失や、周辺岩盤における地下水流動および放射性核種の移行挙動が変化して安全評価の不確実性が增大するなどの影響が生じる可能性が考えられることから、このような可能性を最小限に抑えるために、処分場の地下施設において長期間に渡って未臨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

臨界安全管理対象施設での臨界安全管理では、施設の設計において臨界安全性を担保するとともに、製作、施工において設計条件が満たされていることを確認し、さらに運転において設計通り臨界安全を維持できるように管理することが必要とされている（日本原子力研究所，1999）。このような臨界安全管理では、燃料やその周辺の材料が把握出来ていることとともに、幾何形状や組成などが想定以上に変化しないことが前提とされている。これに対して、使用済燃料の直接処分における処分場閉鎖後の地下の処分システムでは、処分容器や使用済燃料の構造材材料などの腐食の進展、強度低下による変形・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縦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。



横置き (a) 処分直後の状態、(b) 臨界安全評価モデル：円筒体系)



縦置き (c) 処分直後の状態、(d) 臨界安全評価モデル：球体系)

図2.2-1 保守的な想定に基づく臨界安全評価モデルの概念
(原子力機構, 2015b ; 2016aに加筆)

このような体系で解析を行うと、実効増倍率が未臨界判定基準値を下回るための設計要件として、特に堅置きの場合では、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3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、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影響（これらをまとめて「材料の組成や密度等の状態変化の影響」と呼ぶ）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；2022a）。
- ・ 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（これを「材料の変形や破壊による配置の変化の影響」と呼ぶ）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を実施し、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可能性があることなどを明らかにした（原子力機構，2021；2022a）。

- ・ 上記の臨界解析および力学解析の結果から、臨界が起りやすい材料配置パターンを整理し、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や、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を明らかにした（原子力機構，2022a）。

上記に示した過年度の検討結果を踏まえて、令和4年度においては以下を行った。

- ✓ 「材料の組成や密度等の状態変化の影響」について、過年度の検討で評価されていない、燃料被覆管の腐食生成物である ZrO_2 の間隙水の影響および地下水の溶存水素による影響の評価を行った。また、複数の現象の複合的な影響について、過年度に実施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合せに加えて、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と上記の状態変化が複合的に起こる場合の影響について臨界解析を行い、個別の影響やその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。
- ✓ 「材料の変形や破壊による配置の変化の影響」について、過年度に実施した材料配置パターンの成立性を把握するための力学解析よりも、処分容器の変形や破壊が起りやすい極端な条件を想定した上で、より臨界が起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力学解析を行い、過年度の検討結果を補足する情報として整理した。
- ✓ 上記に示した2つの整理結果を元に、現実的に起り得る材料の状態や配置の変化を適切に反映して臨界安全評価を行うための手法を検討した。
- ✓ さらに、過年度の成果も含めた事業全体の成果の取りまとめとして、上記の検討結果に基づき、材料の状態や配置の変化の起りやすさと臨界の起りにくさを対応付けて整理し、現実的な状態や配置の変化を反映した臨界安全評価手法を例示した。

これらの検討の成果を「(2)材料の組成や密度等の状態変化の影響に関する情報の整理」、
「(3)材料の変形や破壊による配置の変化の影響に関する情報の整理」、「(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検討」および「(5)本事業のまとめ」にそれぞれ示す。

(2) 材料の組成や密度等の状態変化の影響に関する情報の整理

1) 処分環境に存在しうる構成材料による状態変化の組合せの整理

平成 30 年度の検討（原子力機構，2019）で抽出された、処分後の臨界の起り易さに影響を及ぼす可能性がある材料など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、腐食など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燃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など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 など）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）など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% $\Delta k/k$ の影響（実効増倍率が最大 1.3%増加）が確認された。このことから、反射体となる処分容器が鉄から腐食生成物に、さらには緩衝材の圧密が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 年度の検討（原子力機構，2022a）では、図 2.2-2 で示した状態変化のうち、処分容器の燃料集合体収容スペース（以下、「収容スペース」という。）内で地下水との反応による腐食の進展を対象とした臨界解析を実施し、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のピークとなる SKB の評価（Agrenius and Spahiu, 2016）の傾向とほぼ一致する結果を得た。ここで、図 2.2-2 で示した状態変化に基づき、臨界評価で対象とした個別の状態変化を、以下に示す 3 つのカテゴリーに分類した概念図を図 2.2-3 に示す。

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

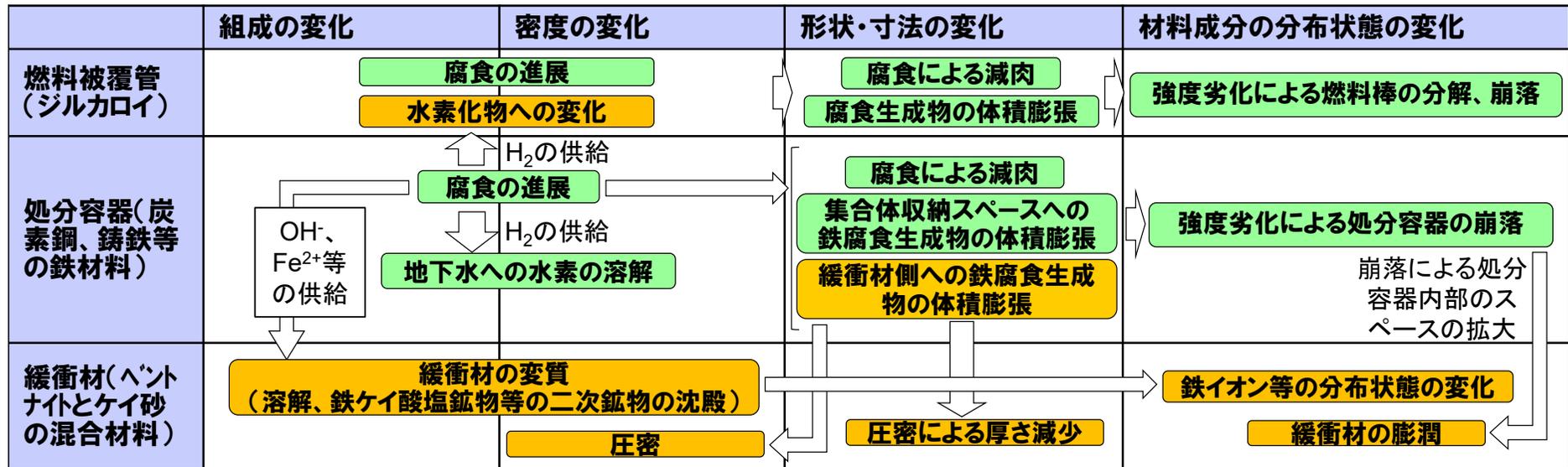
状態変化③：処分容器の燃料集合体収容スペースでの腐食の進展

この状態変化のうち、臨界安全評価モデルでの燃料領域にあたる状態変化②と状態変化③の組合せ、すなわち令和 3 年度と令和 2 年度に検討した状態変化が複合的に起こることを想定した臨界解析を実施し、最大 2.7% $\Delta k/k$ の影響があることを確認した。その影響は、個別の状態変化の影響の合計と一致することから、状態変化間の中性子の相互作用は生じていないことが推測された。

令和 4 年度では、令和 3 年度にまとめた表 2.2-1 に示す状態変化を考慮する必要性が高い組合せの候補となる評価結果のまとめのうち、未実施となっているケース 7 およびケース 9 の燃料被覆管の腐食の進展により生成する ZrO_2 中の間隙水の影響について臨界解析を実施し、影響評価による確認を行った。また、ケース 12 および 15 の SKB の評価において実効増倍率

に影響を及ぼす評価となっている、収容スペースでの腐食反応による H₂ ガスが地下水中に溶解水素として取り込まれる影響についても臨界解析を実施し、影響の度合いを確認した。

さらに、図 2.2-3 のうち、臨界安全評価モデルでは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と複合的に起こることにより実効増倍率に与える影響についても臨界解析を実施し、中性子の相互作用により影響が変化しないかを確認した。



- ・ 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 など) 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など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)

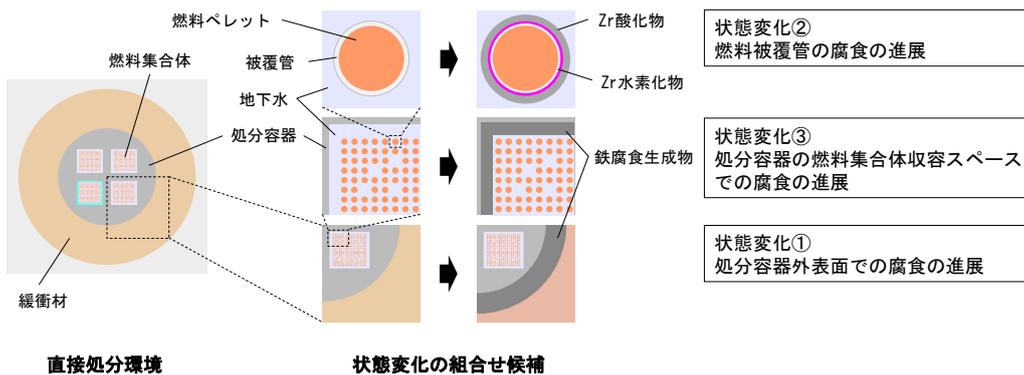


図 2.2-3 直接処分環境において起こりうる状態変化の組合せ候補の概念図
(原子力機構, 2022a)

表 2.2-1 状態変化を考慮する必要性が高い組合せの候補の評価結果のまとめ
(原子力機構(2022a)を一部改訂)

対象とする状態変化		解析ケース			Δk/k の最大値 ^{※1}	
状態変化① 処分容器外表面での腐食の進展	腐食生成物の体積膨張と緩衝材の圧密	1	Fe ₃ O ₄ が生成	間隙水未考慮	1.3%	
		2		間隙水考慮	-1.6%	
		3	FeCO ₃ が生成	間隙水未考慮	1.1%	
		4		間隙水考慮	-1.0%	
	5	緩衝材へ鉄イオンの移行	鉄イオンの移行距離が0~0.7 m	0.1%		
状態変化② 燃料被覆管の腐食の進展		6	ZrO ₂ が生成	間隙水未考慮	-1.9%	
		7		間隙水考慮	未確認 ^{※2}	
		8	ZrO ₂ とZrH ₂ が生成	間隙水未考慮	1.9%	
		9		間隙水考慮	未確認 ^{※2}	
状態変化③ 燃料集合体収容スペースで処分容器の腐食が進展し、燃料集合体周囲の隙間が鉄腐食生成物で充填		10	Fe ₃ O ₄ が生成	間隙水未考慮	溶存水素未考慮	0.6%
		11		間隙水考慮	溶存水素未考慮	対象外 ^{※3}
		12		間隙水未考慮	溶存水素考慮	未確認 ^{※2}
		13	FeCO ₃ が生成	間隙水未考慮	溶存水素未考慮	0.8%
		14		間隙水考慮	溶存水素未考慮	対象外 ^{※3}
		15		間隙水未考慮	溶存水素考慮	未確認 ^{※2}

※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)に記載の文献値を元に算出した値

※2: 本検討の対象。

※3: SKBの文献より、臨界を起こりにくくする方向であることから本検討の対象から除外

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 2.2-2 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。計算ヒストリ等は令和 3 年度と同様とし、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 2.2-2 に示す PWR 燃料の条件 (U-235 濃縮度 4.5%、燃焼度 45 GWd MTU⁻¹) において燃焼計算コード ORIGEN2.0 (Croff, 1983) を用いた燃焼計算から得た、表 2.2-2 に示す燃焼度クレジットの対象核種の組成データを設定した。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）と同様に、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。

処分容器の収容スペース内の減速材については、地下環境において減速材となり得る材料の候補から、厳しめの減速材として令和 3 年度に選定した地下水（ H_2O ）とした。なお、地下水の密度としては、過年度の設定と同様に 1.0 g cm^{-3} を設定した。水密度をパラメータとした予備解析の結果、密度が上昇するに従い実効増倍率も上昇する傾向が得られ、水密度を 1.0 g cm^{-3} とすると、処分深度 500 m での温度と体積弾性係数を想定した密度（ 0.9943 g cm^{-3} ）より保守側の設定となることが確認できた。実効増倍率の水密度に対する依存性を図 2.2-5 に示す。

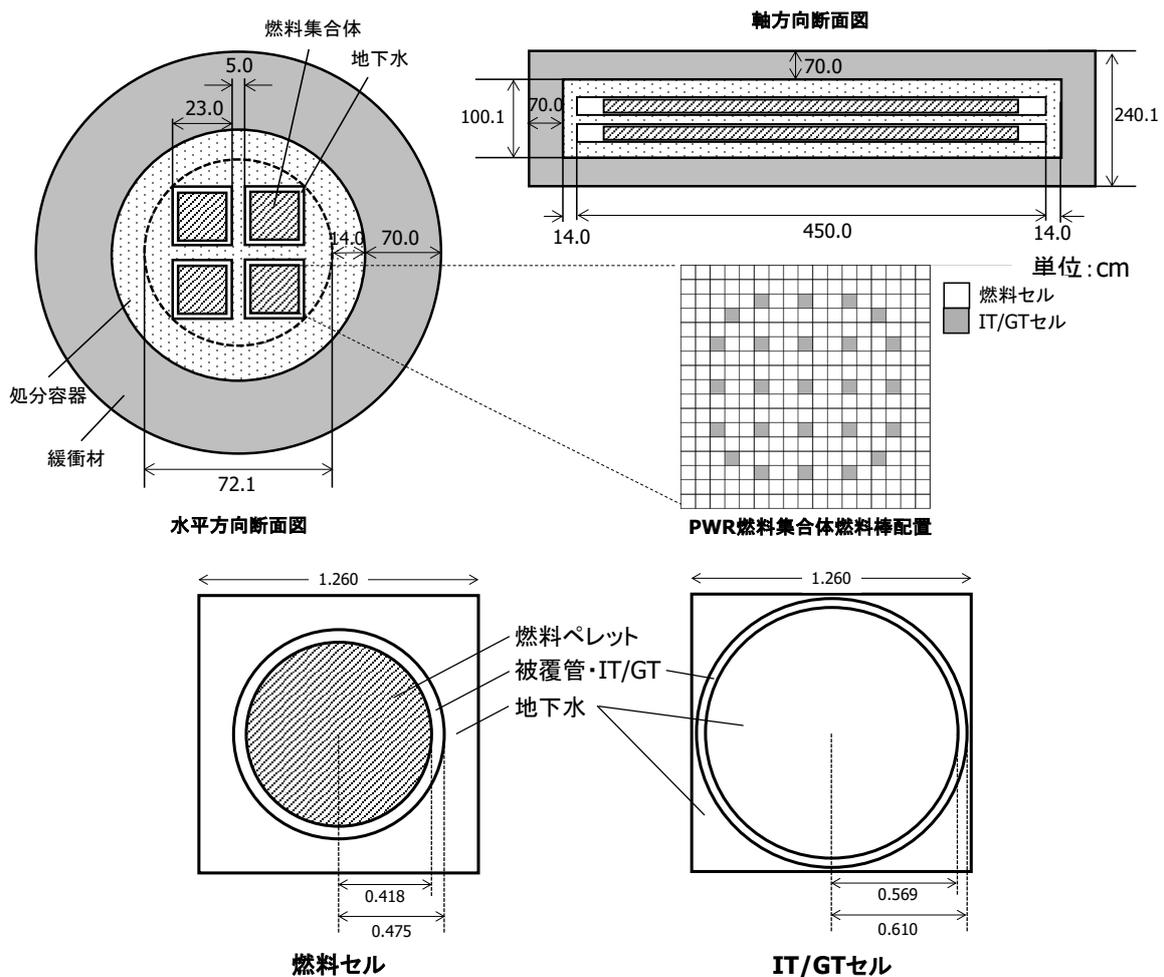


図 2.2-4 臨界解析で対象とする燃料集合体、処分容器および緩衝材の幾何形状

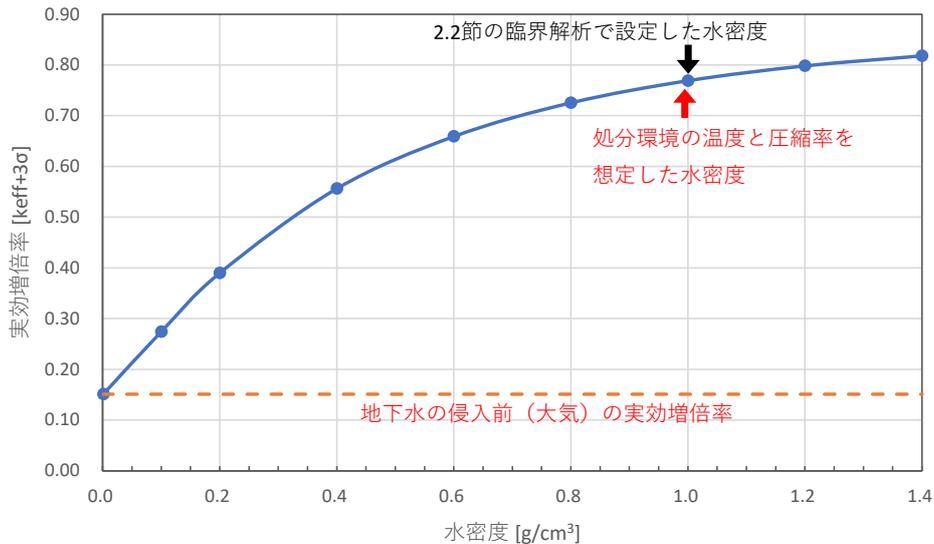


図 2.2-5 水密度と実効増倍率の関係

表 2.2-2 燃料集合体、処分容器および緩衝材の解析条件

使用済燃料組成	<ul style="list-style-type: none"> ・ PWR 燃料 (UO₂ 使用済燃料)、17×17 燃料集合体 ・ U-235 濃縮度 4.5%、燃焼度 45 GWd MTU⁻¹ ・ 燃料冷却期間 50 年 ・ 処分後経過年数：18,000 年
燃料集合体の仕様	<ul style="list-style-type: none"> ・ 寸法：図 2.2-4 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	<ul style="list-style-type: none"> ・ 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	<ul style="list-style-type: none"> ・ 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}	<ul style="list-style-type: none"> ・ アクチノイド核種；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

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

※2：「燃料サイクル安全研究委員会，燃焼度クレジット導入ガイド原案，JAERI-Tech 2001-055」（日本原子力研究所，2001）の推奨核種に 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などの設定

前項 1) で示したように、表 2.2-1 において未実施となっている燃料被覆管の腐食の進展により生成する ZrO₂ 中の間隙水の影響について、表 2.2-3 のとおり解析ケースを設定した。パラメータとなる間隙率は、間隙水のスペースとなる ZrO₂ 中の間隙を指しており、令和 2 年度に検討した Pilling-Bedworth ratio（ピリングベッドワース比：R_{pb}）より腐食膨張させた

ZrO₂ に対し、間隙率分の体積を足したものを考慮している。腐食の状態は、燃料被覆管および IT/GT 管が完全腐食した状態とした。なお、ZrO₂ のみが生成するケースでは、間隙率 0.3 を与えると燃料集合体のセルピッチである 1.26 cm を超えてしまうため、0.2 までをパラメータとして与えた。

収容スペースでの腐食反応による H₂ ガスが地下水中に溶存水素として取り込まれる影響については、表 2.2-4 のとおり解析ケースを設定した。パラメータとなる溶存水素量は、SKB の評価 (Agrenius and Spahiu, 2016) と同様の深度 500 m と、深度 1,000 m を想定した値の 2 種類を設定した。ここで、溶存水素量は SKB の評価において地下水中に 50 bar の圧力で 40 mmol の水素が溶存すると仮定している。水は、深度 10 m ごとに水圧が 1 気圧ずつ上昇するため、1 bar は約 1 気圧とすると、水素分子は水中に最大 0.8 mmol L⁻¹ 溶存する。処分環境の深度 500 m に対する水圧が 50 気圧とするとき、水素が水に溶ける溶存水素量は、50 気圧 × 0.8 mmol = 40 mmol として算出した。

図 2.2-3 のうち、反射体領域となる状態変化①が、燃料領域となる状態変化②や状態変化③と複合的に起こる影響については、表 2.2-5 のとおり解析ケースを設定した。

はじめに、反射体領域と燃料領域の中性子の相互作用を確認するために状態変化①と状態変化②の組合せについて解析ケースを設定した。状態変化①については、平成 31 年度の検討と同様に腐食生成物としてマグネタイトとシデライトが生成するものとし、処分容器の外表面をなす腐食代 14 cm が減肉する深さをパラメータとした。状態変化②については、令和 2 年度の検討において最大の影響となった、燃料被覆管および IT/GT 管が完全腐食し、かつ、ZrO₂ と ZrH₂ が生成する状態を設定した。

次に、状態変化①、②および③の全ての組合せによる影響を把握するための解析ケースを設定した。3) に後述する解析結果より、上記に示す、状態変化①と状態変化②の組合せでは、処分容器の腐食代と燃料被覆管が全て腐食した状態において最大の影響となることが確認されたため、この状態変化の設定と状態変化③の組合せを、図 2.2-3 の全ての状態変化が複合的に起こる解析ケースとした。また、収容スペース内部の膨張深さをパラメータとした。ここで、状態変化①で腐食代が完全に腐食すると、状態変化①で生成した腐食生成物と状態変化③で生成した腐食生成物が重なり合うため、状態変化③の減肉深さに合わせて状態変化①の減肉深さを調整した。図 2.2-6 に状態変化①と③の複合的状态変化のパラメータと概念図を示す。図 2.2-6 に示す状態変化③の収容スペース内壁の減肉深さ x から収容スペース内壁の減肉半径増分 δ' を算出し、さらに、腐食代から除した値を処分容器外表面減肉深さ δ_0 とした。

収容スペース内部では、令和 3 年度の検討と同様にマグネタイトとシデライトが生成するものとし、状態変化①の腐食生成物との組合せで 4 通りの解析ケースを設定し、それぞれ令和 3 年度の検討と同様に状態変化③の膨張深さのパラメータ 5 点を設定した。

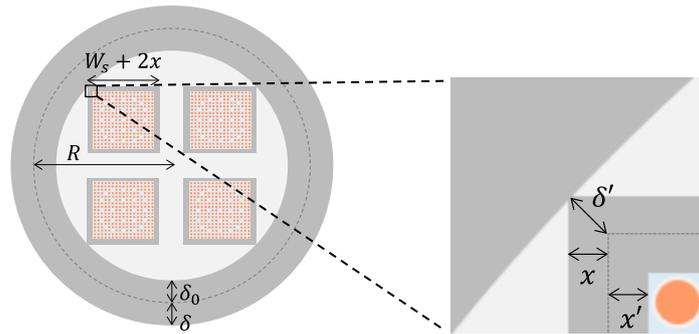


図 2.2-6 状態変化①と③の複合的状态変化のパラメータと概念図

表 2.2-3 燃料被覆管の腐食の進展による ZrO_2 中の間隙率の影響を把握するための解析ケース

腐食生成物	燃料被覆管				IT/GT 管				
	間隙率 [-]	被覆管 腐食量 [cm]	腐食生成物厚さ		IT/GT 管 腐食量 [cm]	腐食生成物厚さ			
			ZrO_2 [cm]	ZrH_2 [cm]		外側		内側	
						ZrO_2 [cm]	ZrH_2 [cm]	ZrO_2 [cm]	ZrH_2 [cm]
酸化ジルコニウム (ZrO_2)	0.1	0.057	0.095	-	0.041	0.035	-	0.036	-
	0.2	0.057	0.105	-	0.041	0.039	-	0.041	-
酸化ジルコニウム (ZrO_2) + 水素化ジルコニウム (ZrH_2)	0.1	0.057	0.031	0.046	0.041	0.012	0.016	0.012	0.016
	0.2	0.057	0.039	0.046	0.041	0.015	0.016	0.016	0.016
	0.3	0.057	0.039	0.046	0.041	0.015	0.016	0.016	0.016
	0.4	0.057	0.045	0.046	0.041	0.017	0.016	0.018	0.016

表 2.2-4 収容スペースでの腐食の進展による溶存水素の影響を把握するための解析ケース

収容スペース内部 (状態変化③)			
腐食生成物	腐食膨張厚さ [cm]	地下水	溶存水素量 [mmol L ⁻¹]
マグネタイト	0.6	H_2O	40
			80
シデライト	0.6	H_2O	40
			80

表 2.2-5 状態変化の組合せによる影響を評価するための解析ケース

個別の状態変化の組合せ	①処分容器外表面		②燃料被覆管		③収容スペース内部			
	腐食生成物	減肉深さ δ_0 [cm]	腐食生成物	減肉深さ [cm]	腐食生成物	減肉深さ x [cm]	膨張厚さ x' [cm]	
①処分容器外表面での腐食の進展 + ②燃料被覆管の腐食の進展による酸化物と水素化物の生成	マグネタイト	1	ZrO ₂ + ZrH ₂	0.057 ^{※3}	/	/	/	
		2						
		4						
		6						
		14						
	シデライト	1						
		2						
		4						
		6						
		14						
①処分容器外表面での腐食の進展 + ②燃料被覆管の腐食の進展による酸化物と水素化物の生成 + ③処分容器の燃料集合体収容スペース内壁での腐食生成物の体積膨張	マグネタイト	13.747	ZrO ₂ + ZrH ₂	0.057 ^{※3}	/	/	0.1786	0.2
		13.503					0.3511	0.4
		13.268					0.5177	0.6
		13.051					0.6707	0.79 ^{※1}
		12.302					1.2005	2.05 ^{※2}
	シデライト	13.913					0.0617	0.2
		13.827					0.1220	0.4
		13.744					0.1807	0.6
		13.667					0.2352	0.79 ^{※1}
		13.396					0.4274	2.05 ^{※2}
	マグネタイト	13.913					0.0617	0.2
		13.827					0.1220	0.4
		13.744					0.1807	0.6
		13.667					0.2352	0.79 ^{※1}
		13.396					0.4274	2.05 ^{※2}
	シデライト	13.747					0.1786	0.2
		13.503					0.3511	0.4
		13.268					0.5177	0.6
		13.051					0.6707	0.79 ^{※1}
		12.302					1.2005	2.05 ^{※2}

※1：燃料集合体表面と処分容器の内壁との隙間が完全に充填されている状態

※2：※1の状態からさらに、燃料集合体の外側境界から1セル分(1.26 cm)まで腐食生成物で充填されている状態

※3：燃料被覆管が全て腐食した状態

3) 解析結果

表 2.2-3 の燃料被覆管の腐食の進展により生成する ZrO_2 中の間隙水の解析結果を図 2.2-7 に示す。ここで、実効増倍率へ与える影響（反応度効果）である $\Delta k/k$ については、以下の式で評価した。

$$\Delta k/k = (k_{corr+pore} - k_{corr})/k_{corr} \dots\dots\dots \text{式 2.2-1}$$

ここで、 $\Delta k/k$ は実効増倍率への影響を示しており、 k_{corr} は燃料被覆管が腐食する状態変化のうち Zr 腐食生成物に間隙率を与えない場合の実効増倍率を、 $k_{corr+pore}$ は腐食する状態変化のうち、Zr 腐食生成物となる ZrO_2 に間隙率を与える場合の実効増倍率である。

腐食生成物として ZrO_2 および ZrO_2+ZrH_2 が生成するいずれのケースにおいても、間隙率の増加に伴い反応度効果もやや低下する結果となった。また、この反応度効果は 0.1% $\Delta k/k$ 以内と軽微な影響であることがわかった。この理由として、 ZrO_2 に間隙水を含む方が、含まない場合と比べて ZrO_2 の体積が大きく、燃料集合体の収容スペース内の水の占める体積は減少するものの、間隙水とそれ以外の水に含まれる水素原子（H-1）の総量は変わらない、すなわち、中性子の減速条件となる水/燃料比（ V_m/V_f ）がほぼ変わらないことが考えられる。

この結果から、現実的な臨界安全評価モデルを検討する際に、燃料被覆管および IT/GT 管の腐食による状態変化において、 ZrO_2 に間隙水を考慮する必要はないことを確認した。

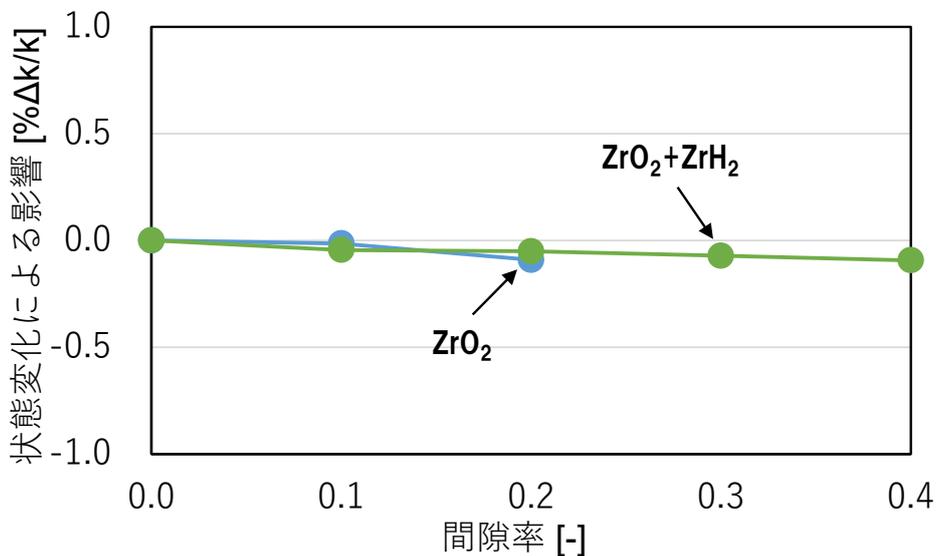


図 2.2-7 燃料被覆管の腐食の進展における ZrO_2 中の間隙率変化による反応度影響

表 2.2-4 の収容スペースでの腐食の進展による溶存水素影響の解析結果を図 2.2-8 に示す。ここで、実効増倍率へ与える影響（反応度効果）である $\Delta k/k$ については、以下の式で評価した。

$$\Delta k/k = (k_{corr+hyd} - k_{corr})/k_{corr} \dots\dots\dots \text{式 2.2-2}$$

ここで、 $\Delta k/k$ は実効増倍率への影響を示しており、 k_{corr} は収容スペースが腐食した状態変化（腐食膨張厚さ 0.6 cm）での実効増倍率を、 $k_{corr+hyd}$ は腐食した状態変化の地下水に溶存水素を与えた実効増倍率である。

収容スペース内に生成する腐食生成物であるマグネタイトおよびシデライトのいずれのケースにおいても、反応度効果は微増する結果となった。これは、中性子の減速効果のある水素（H-1）が減速材となる地下水中に溶存水素として増加したためと考えられる。また、マグネタイトよりシデライトの反応度効果が若干高い傾向がみられるが、これは令和 3 年度の検討での考察と同様に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であり、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ためと考えられる。さらに、SKB の評価（Agrenius and Spahiu, 2016）における溶存水素 40 mmol の結果との差異は 0.05%程度であり、ほぼ一致する結果となった。

この結果から反応度効果は軽微な影響と判断でき、現実的な臨界安全評価モデルを検討する際に、収容スペースでの腐食反応により地下水に溶存する水素の影響は考慮する必要はないことを確認した。

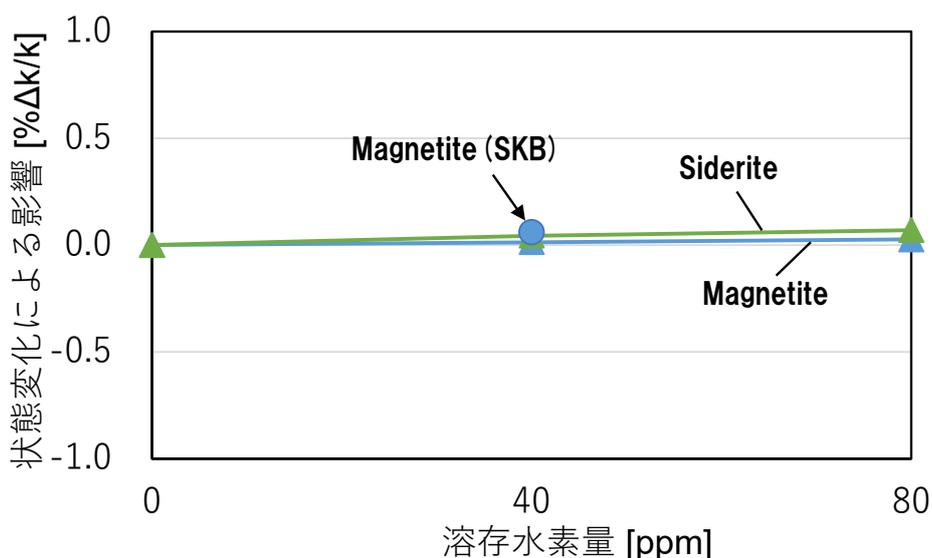


図 2.2-8 収容スペースでの腐食の進展における溶存水素変化による反応度影響

表 2.2-5 の状態変化①（処分容器外表面での腐食の進展）と状態変化②（燃料被覆管の腐食の進展）の複合的現象を考慮した解析結果を図 2.2-9 に示す。ここで、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 $k_{\text{eff}}+3\sigma$ とし、横軸は図 2.2-6 に示す処分容器外表面減肉深さ δ_0 とした。マグネタイトおよびシデライトが生成するどちらのケースにおいても、処分容器外表面の減肉深さ 14 cm での実効増倍率が最も高くなる結果となった。これは、腐食生成物として最大の反射体効果を得る厚さが 14 cm 以上であることを示している。さらに、減肉深さ 1 cm から 6 cm ではシデライトの実効増倍率の方が高い傾向を示していたが、減肉深さ 14 cm では逆にマグネタイトの実効増倍率の方が若干高くなっていることがわかる。これは、実効増倍率が最大となる反射体効果の厚さが、マグネタイトとシデライトで異なるためと考えられる。また、本解析結果は平成 31 年度に検討した状態変化①の解析結果と同じ傾向を示している。すなわち、減肉深さに対する変化の傾向が概ね一致したことから、中性子の相互作用による影響は軽微であると考えられる。

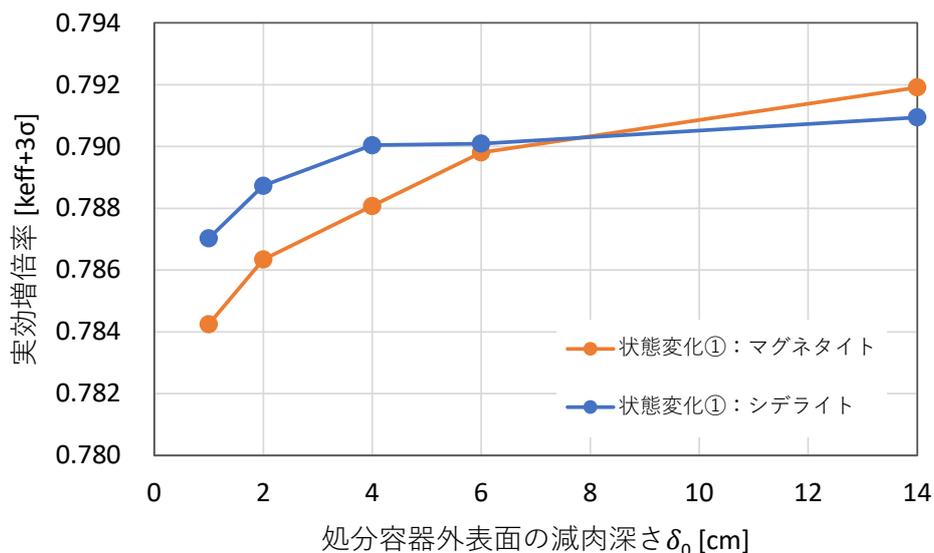


図 2.2-9 処分容器外表面および燃料被覆管での腐食の進展の複合的現象を考慮した実効増倍率

表 2.2-5 の状態変化①（処分容器外表面での腐食の進展）と状態変化②（燃料被覆管の腐食の進展）および状態変化③（処分容器の燃料集合体収容スペースでの腐食の進展）の複合的現象を考慮した実効増倍率の結果を図 2.2-10 に示す。ここで、縦軸の実効増倍率は、解析結果の実効増倍率（ k_{eff} ）に計算誤差として解析結果の統計誤差の 3 倍（ 3σ ）を足した $k_{eff}+3\sigma$ とし、横軸は図 2.2-6 に示す収容スペース腐食膨張厚さ x' とした。

本検討の複合的現象を考慮した解析結果は、過年度の検討と同様に未臨界判定基準値を 0.95 とすると（原子力機構，2020；2021；2022a）、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。すなわち、処分環境の構成材料による状態変化が臨界に及ぼす影響は、臨界安全評価上大きな影響は与えないことがわかった。

図 2.2-10 をみると、実効増倍率は腐食膨張深さ 0.6 cm 付近まで上昇し、その後低下していることがわかる。この傾向は、令和 3 年度に検討した状態変化③の解析結果と同様である。また、実効増倍率が最大となる腐食生成物の組合せは、状態変化①でマグネタイトが、状態変化③でシデライトが生成するケースであった。状態変化①と状態変化③ともに、過年度の評価（原子力機構，2020；2022a）で最大となった腐食生成物と整合する。すなわち、個別の状態変化の最大となる影響と一致する条件となることがわかった。なお、後述する(4)項では、この最大となった状態変化の組合せを解析モデルに適用することとした。

以上を踏まえて、過年度までに実施した個別の状態変化が実効増倍率に与える影響と本検討で得られた複合的な状態変化が実効増倍率に与える影響の整理結果を表 2.2-6 に示す。ここで、実効増倍率へ与える影響（反応度効果）である $\Delta k/k$ については、以下の式で評価した。

$$\Delta k/k = (k_{corr} - k_{ref})/k_{ref} \quad \dots\dots\dots \text{式 2.2-3}$$

ここで、 $\Delta k/k$ は実効増倍率への影響を示しており、 k_{ref} は処分後の健全状態の実効増倍率を、 k_{corr} は腐食の進展による状態変化後の実効増倍率である。

本検討において最大となった複合的な状態変化による反応度効果は、上述のとおり状態変化①がマグネタイト、状態変化②が ZrO_2+ZrH_2 、状態変化③がシデライトとして生成する条件であり、4.1% $\Delta k/k$ の評価結果となった。これら状態変化の個別の反応度効果は、過年度の評価（原子力機構，2020；2021；2022a）において状態変化①が 1.3% $\Delta k/k$ 、状態変化②が 1.9% $\Delta k/k$ 、状態変化③が 0.8% $\Delta k/k$ と求められており、その総和は 4.0% $\Delta k/k$ である。これらの状態変化を同じ解析モデル上に反映した複合的な状態変化による影響（4.1%）が、個別の状態変化の影響の単純総和とほぼ一致したことから、令和 3 年度に確認した、状態変化②と状態変化③の複合的現象による影響（原子力機構，2022a）と同様に、反射体領域をなす状態変化①と燃料領域をなす状態変化②および状態変化③の間には中性子の相互作用はほぼ生じないと考えられる。このため、状態変化によって実効増倍率に与える影響は、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。

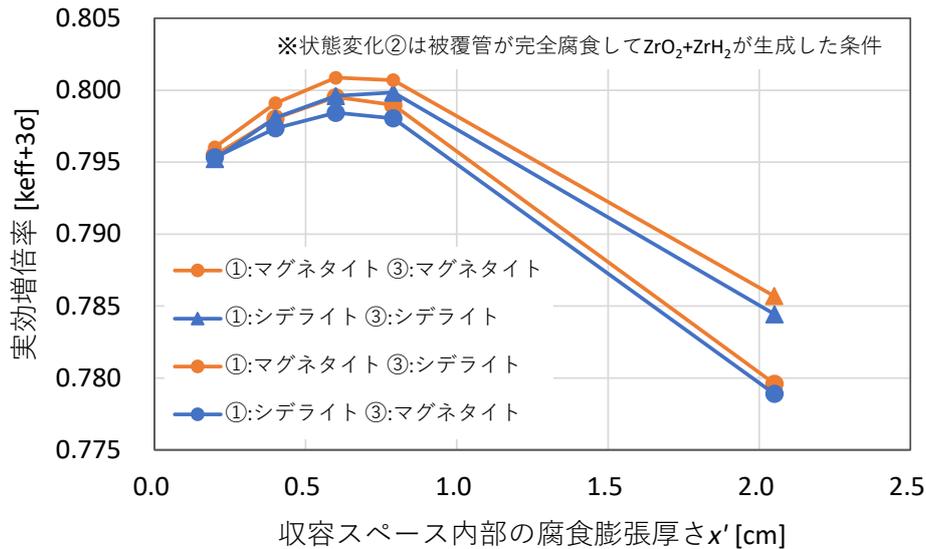


図 2.2-10 処分容器外表面および燃料被覆管、収容スペースでの腐食の進展の複合的現象を考慮した実効増倍率

表 2.2-6 状態変化が実効増倍率に与える影響の整理結果

	状態変化①	状態変化②	状態変化③
状態変化	処分容器外表面での腐食の進展 (平成 31 年度)	燃料被覆管の腐食の進展 (令和 2 年度)	処分容器の燃料集合体収容スペースでの腐食の進展 (令和 3 年度)
腐食生成物	マグネタイト	ZrO ₂ +ZrH ₂	シデライト
個別の影響 [% Δ k/k]	1.3%	1.9%	0.8%
複合的影響 [% Δ k/k]	4.0% (個別の影響の合計値)		
複合的影響 [% Δ k/k]	4.1% (最大となる組合せの評価値)		

(3) 材料の変形や破壊による配置の変化の影響に関する情報の整理

(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・密度の変化等に注目するだけでは、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、内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。

令和 3 年度までは、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を考慮することが重要と考えられたことから、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た、現実的な物性値として想定し得る複数のパラメータを組合せることにより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、解析結果より、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。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を図 2.2-11 に示す。本解析の結果からは、仕切り部の破断・崩落が起こることで4つの收容スペースが集まって一つの燃料領域を形成することで臨界が起こりやすくなる可能性は低いと考えられたが、物性値やその他の条件をより幅広く想定することで、このような状況に至る可能性が無いか確認が必要と考えられた。

そこで本検討では、図 2.2-11 で示される材料配置パターンのうち、パターン3およびパターン4が成立する可能性が高まる条件がないかを確認するための補足的な力学解析を行った。さらに、この解析結果から新たな材料配置パターンが生起するか確認した上で、ロジックツリーによる分類の更新が必要かの確認を行い、現実的な臨界安全評価モデルを検討するための材料配置パターンを決定した。

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3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。

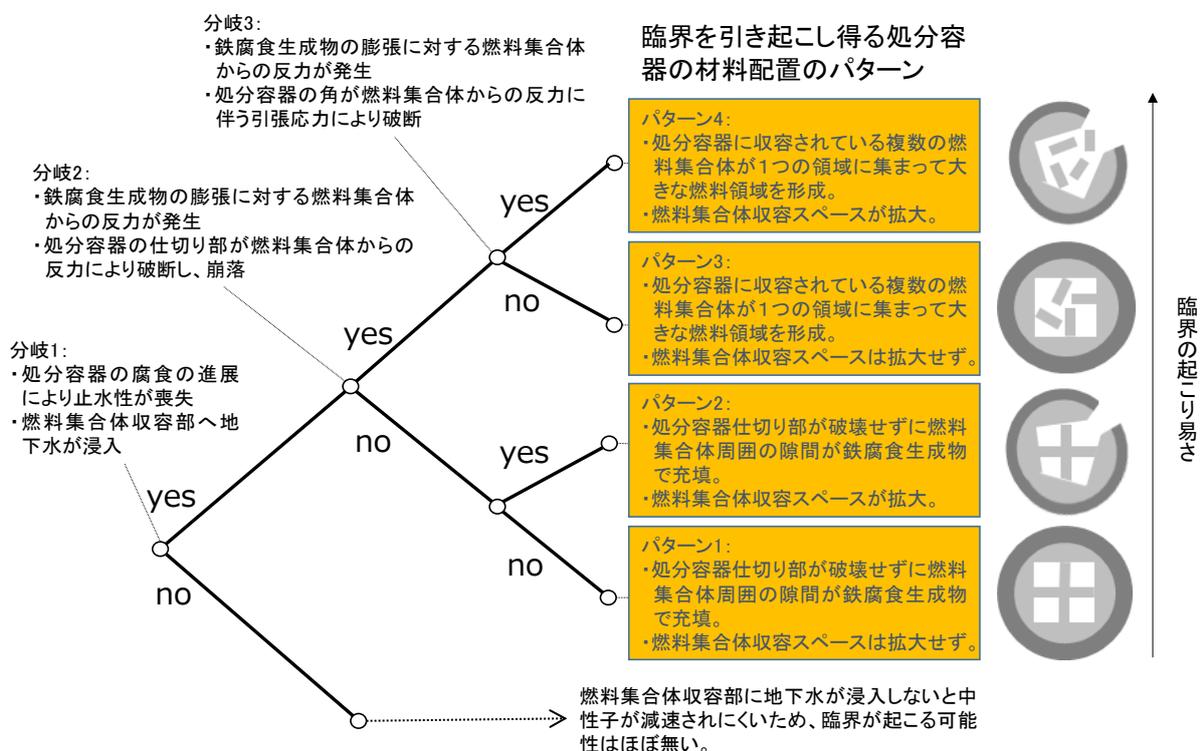


図 2.2-11 臨界が発生しうる材料配置パターンのロジックツリーによる整理例
 (原子力機構, 2022a に加筆)

1) 力学解析で対象とする処分容器の状態の変化

材料配置パターンについては、令和 2 年度に臨界が起こる可能性を高める処分容器の材料配置パターンをもたらす変形・破壊現象として、以下を抽出している。

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

令和 3 年度では、上記の現象について、燃料集合体からの反力の大きさが収容スペースごとに異なる場合では、応力分布が非対称となり仕切り部などでの破損がより起こりやすくなる可能性があると考え、収容スペースごとに 1,000 年ずつ遅れて腐食が進展していくことを想定した力学解析を行った。しかしながら、収容スペースごとに腐食開始時期を異なる設定とすることに現象論的な観点からの根拠がないことや、4 か所の収容スペースで同時に腐食が進展する場合には、上記(イ)の変形・破壊現象については全ての収容スペースで発生し、むしろインパクトが大きな変形・破壊現象となる可能性があること等を考慮して、本検討においては、各々の収容スペースでの腐食の開始時期と腐食生成物の体積膨張による応力の発生時期に「ずれが生じる／生じない」に関する極端な状況として、以下に示す 2 つの状況を想定するものとした。

- (i) 4 か所の収容スペースで同時に腐食が進展し破断が起こる状況。
- (ii) 一部の収容スペースでは腐食することで反力が発生し、それ以外の収容スペースでは腐食が起こらずに燃料集合体からの反力が生じない状況。

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、変形・破壊現象を引き起こす可能性があるモデル・パラメータの組合せを、過年度の解析結果を踏まえて検討を行った。なお、解析体系においては、令和 3 年度の検討と同様に、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（原子力機構，2022a）。

① 解析手法・ツール

令和 3 年度に実施した力学解析と同様に、炭素鋼製の処分容器を弾塑性体として扱い、応力およびひずみを評価するものとした。炭素鋼は延性材料であるため、ひずみ硬化および軟化を含む von Mises モデル（弾塑性体）を用いて解析を実施するものとし、ひずみ硬化により塑性変形を、ひずみ軟化により破断ひずみ到達後の破断をそれぞれ評価するものとした（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 3 年度と同様に、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) を使用した。

② 解析体系・解析条件

令和 3 年度に実施した力学解析と同様に、PWR 使用済燃料を 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、令和 3 年度に設定したモデルにおいて、処分容器の腐食膨張によって生じる燃料集合体からの反力による影響が大きくなるように、全てのケースで均一な特性を持つ剛体モデルとした。本検討では、1) 項で述べた (i) の状況を想定した力学解析では、令和 3 年度と同様に剛体モデルとした。また、(ii) の条件を想定した力学解析では、腐食が生じる収容スペース (2 か所設定) では、令和 3 年度と同様に燃料集合体を剛体モデルとし、それ以外の収容スペース (2 か所設定) では変形しやすい圧縮性流体としてモデル化した。圧縮性流体モデルには圧力などによる密度変化が極めて小さい水の物性値を適用した。また、腐食が生じる 2 か所の収容スペースが隣り合うと、各々の燃料集合体からの反力が釣り合い、変形や破壊が生じにくくなる可能性があると考えられたため、これらを対角線上に配置した。境界条件については、令和 3 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。

1) 項で抽出した (i) と (ii) の極端な状況に対応する解析ケースをそれぞれ解析ケース 1 および解析ケース 2 とした。これら解析ケースに対応する力学解析モデルを図 2.2-13 に示す。力学解析の解析条件を表 2.2-7 に示す。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ため、令和 3 年度の力学解析においては、腐食生成物の物性値の不確実性を考慮して複数の解析ケースを設定したが、腐食生成物の物性により結果に大きな違いは認められなかったため、本検討では代表値を設定した。

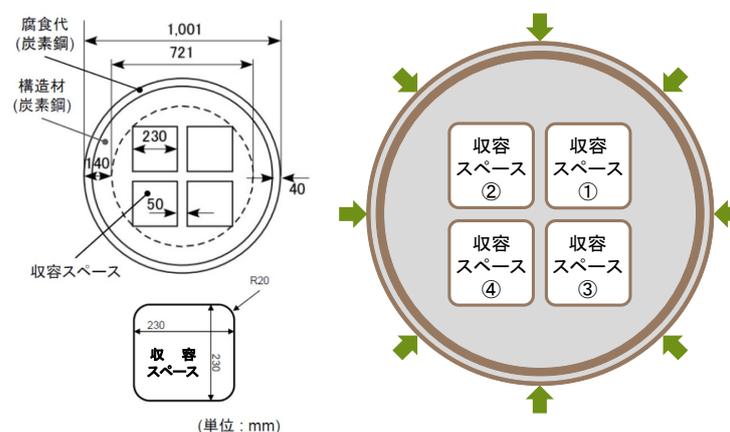


図 2.2-12 力学解析における解析体系 (原子力機構, 2021)

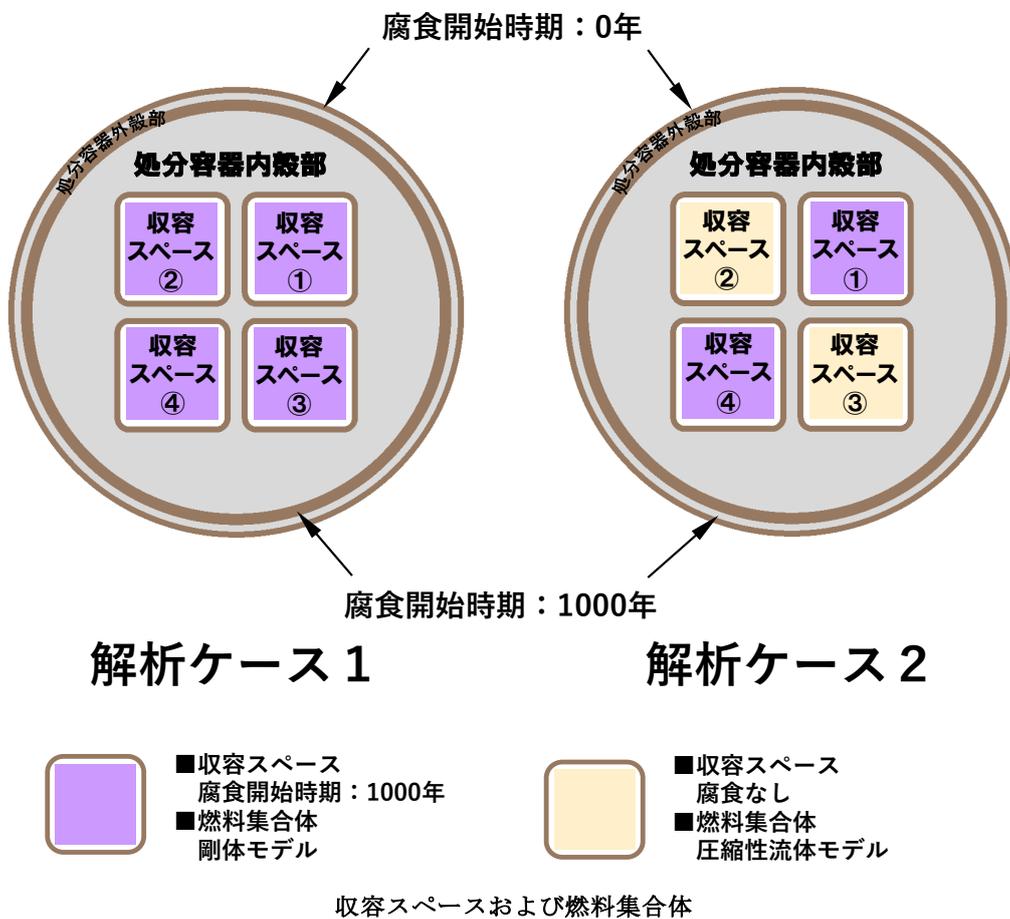


図 2.2-13 力学解析における解析モデル

表 2.2-7 力学解析の解析条件（物性値）

項目	腐食代部材・処分容器構造材（炭素鋼）	腐食生成物
ヤング率[MPa]	210,000* ¹	105,000* ⁶
ポアソン比[-]	0.30* ¹	0.48* ⁷
降伏応力[MPa]	315.00* ²	279.00* ⁸
引張強さ[MPa]	538* ²	—
破断ひずみ[-]	0.19* ²	—
密度[kg m ⁻³]	7860* ³	2620* ⁵
腐食速度[μm y ⁻¹]	1.0* ⁴	—
腐食膨張率	—	炭素鋼の3倍* ⁵

*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: 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。
 *6: 本間ほか(2002)より設定。
 *7: Balafasら(2011)から算出したポアソン比が、*6のヤング率にも適用できると仮定。
 *8: 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*6のヤング率から設定。

3) 解析結果

本検討における相当応力分布の時間変化を図 2.2-14 に示す。解析ケース 1 では、10,000 年後に図 2.2-14 の 4 か所で仕切り部の破断が発生し、11,500 年で収容スペース隅角部の破断が対角線上に 2 か所破断する結果となった。隅角部が破断した後は、令和 3 年度の解析結果と同様に処分容器内の相当応力が緩和されたことにより、20,000 年以降でも更なる大きな変形や破断は確認できなかった。

解析ケース 2 では、図 2.2-14 をみると、腐食膨張により収容スペースの変形が顕著に表れたものの、解析ケース 1 と同様に、隅角部の破断は 15,500 年で対角線上に 2 か所の破断となり、隅角部および仕切り部のいずれにおいても局所的な破断にとどまる結果となった。隅角部が破断した後は、解析ケース 1 と同様に処分容器内の相当応力が緩和されたことにより、20,000 年以降でも更なる大きな変形や破断は確認できなかった。

以上の力学解析の結果より示された、処分容器の仕切り部の破断・崩落や、隅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、上項(2)の材料の状態変化が臨界に与える影響の情報も加味し、臨界が発生しうる材料配置パターンの分類について再検討した上で、現実起こり得る材料配置と状態変化を取り入れた臨界安全評価に用いる解析モデルの候補を構築した。この検討結果については、次項(4)で述べる。

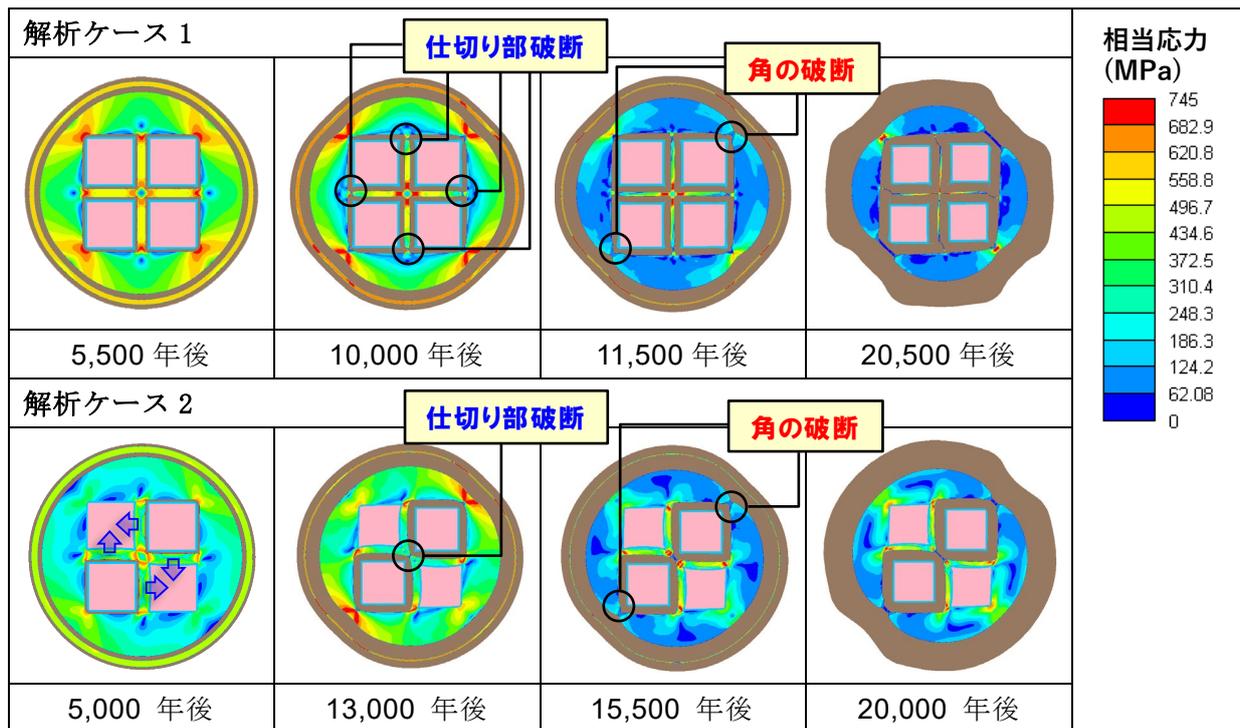


図 2.2-14 解析結果の例（相当応力の時間変化）

(4) 過度に保守側ではない現実的で合理的な臨界安全評価手法の検討

(2)項で示した「材料の組成や密度などの状態変化の影響」および(3)項で示した「材料の変形や破壊による配置の変化の影響」の整理結果を元に、現実的に起こり得る材料などの状態や配置の変化を適切に反映して臨界安全評価を行うための手法を検討した。まず(2)項および(3)項の結果から、臨界安全評価に反映すべき状態と配置の変化を整理した。さらに、この結果に基づき、解析ケースおよび解析条件の設定などを行い、解析を実施した。これらの成果をそれぞれ、1)解析で対象とした材料の状態および配置の変化、2)解析ケースおよび解析パラメータの設定、3)解析結果の順に示す。

1) 解析で対象とした材料・燃料の状態および配置の変化

① 材料の状態および配置の変化

材料の状態および配置の変化については、(2)項で示した「材料の組成や密度等の状態変化の影響」と(3)項で示した「材料の変形や破壊による配置の変化の影響」との組合せから、臨界安全評価において考慮すべき状態および配置の変化を整理した。

(2)項で示した解析結果を反映した「材料の組成や密度等の状態変化の影響」の整理結果を表 2.2-8 に示す。状態変化①、状態変化②および状態変化③のそれぞれで実効増倍率の変化が最大となった状態変化を臨界安全評価モデルに反映することとした。これらの状態変化は以下のとおりである。

- ✓ 状態変化①：腐食代の鉄が全て腐食してマグネタイト (Fe_3O_4) に変化して緩衝材が圧密するケース

- ✓ 状態変化②：燃料被覆管の金属 Zr が腐食して全て ZrO_2 と ZrH_2 に変化するケース
- ✓ 状態変化③：燃料集合体収容スペースの内壁の鉄がシデライト ($FeCO_3$) に変化して燃料集合体との隙間をほぼ充填するケース

上記のいずれの場合においても、腐食生成物等には間隙を考慮しない状態とした。また、状態変化③における溶存水素の影響については、図 2.2-8 に示したように極めて軽微な影響に留まることから、解析モデルの簡略化のため、ここでは対象としなかった。

表 2.2-8 状態変化を考慮する必要性が高い組合せの候補の評価結果のまとめ
(表 2.2-1 を一部改訂)

対象とする状態変化		解析ケース			$\Delta k/k$ の 最大値 ^{※1}		
状態変化① 処分容器外 表面での腐 食の進展	腐食生成物の体積膨張と緩 衝材の圧密	1	Fe_3O_4 が 生成	間隙水未考慮	1.3%		
		2		間隙水考慮	-1.6%		
		3	$FeCO_3$ が 生成	間隙水未考慮	1.1%		
		4		間隙水考慮	-1.0%		
	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%		
状態変化② 燃料被覆管の腐食の進展		6	ZrO_2 が生 成	間隙水未考慮	-1.9%		
		7		間隙水考慮	-0.1% ^{※2}		
		8	ZrO_2 と ZrH_2 が生 成	間隙水未考慮	1.9%		
		9		間隙水考慮	-0.1% ^{※2}		
状態変化③ 燃料集合体収容スペースで処分容器の腐 食が進展し、燃料集合体周囲の隙間が鉄 腐食生成物で充填		10	Fe_3O_4 が 生成	間隙水未考慮	溶存水素未考慮	0.6%	
		11		間隙水考慮		溶存水素未考慮	対象外 ^{※3}
		12		間隙水未考慮	溶存水素考慮	0.0% ^{※2}	
			13	$FeCO_3$ が 生成	間隙水未考慮	溶存水素未考慮	0.8%
			14		間隙水考慮		溶存水素未考慮
			15		間隙水未考慮	溶存水素考慮	0.1% ^{※2}

※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)に記載の文献値を元に算出した値

※2：(2)項の結果を追記、 $\Delta k/k$ の基点(k)については、ケース7はケース6、ケース9はケース8、ケース12はケース10、ケース15はケース13を基点とした数値

※3：SKBの文献より、臨界を起りにくくする方向であることから本検討の対象から除外

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を図 2.2-15 に示す。令和3年度の力学解析では、燃料集合体収容スペース間の仕切り部の破断や構造体の破断により、パターン3あるいはパターン4に分類される「臨界が起りやすい材料配置」に至る可能性を否定できなかったものの、解析では仕切り部あるいは処分容器の角の各々1か所で破断が発生すると、応力が緩和されてそれ以上の破断が発生しなかったため、パターン2が生じる可能性が高いと考えられた。このことは、腐食生成物の物性値について現実的な範囲で不確実性を考慮しても同様であった。また、(3)項で示した力学解析の結果から、燃料集合体収容スペースでの腐食生成物の体積膨張による応力の発生の仕方について極端な場合を想定しても、上記に示した仕切り部の破断や処分容器の角が破断する程度や部位が、令和3年度の解析結果と比べて大きな違いが認められず、図 2.2-15 で示したロジックツリーに含まれる4つの材料配置パターンのいずれについても、成立する可能性を否定できなかった。このため、現実的な材料の状態と配置の変化を反映した臨界安全評価モデルでは、これらの4つの材料配置パターンを全て解析ケースに反映するものとした。ただし、パターン2につ

いては、(3)項の力学解析結果を踏まえて、対角線上の2か所で収容スペースが拡大するものとした。

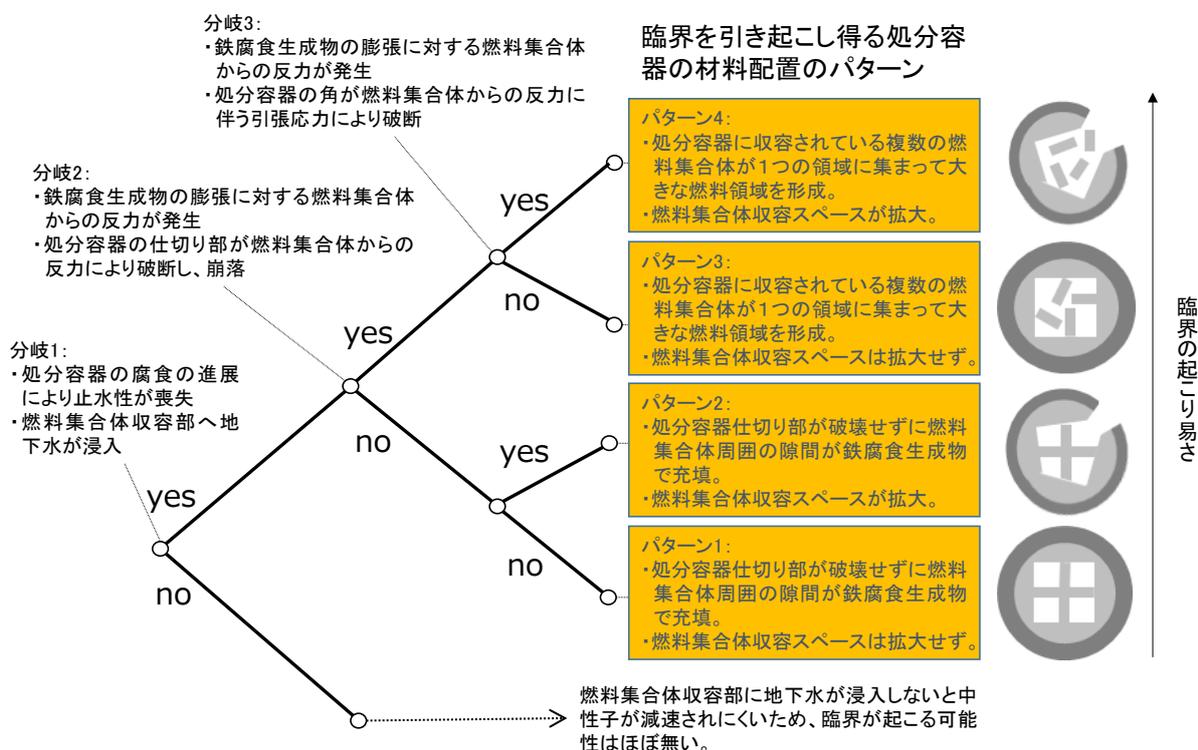


図 2.2-15 臨界が発生しうる材料配置パターンのロジックツリーによる整理例
 (図 2.2-11 の再掲)

② 燃料の状態および配置の変化

燃料の状態および配置の変化については、地下水への長期的な溶解や再沈殿などにより、配置が変わることで臨界が起こりやすくなる可能性は否定できないものの（例えば、Agrenius and Spahiu(2016)）、そのような知見が十分ではないことから、本項の臨界安全評価では、燃料については、臨界の起こりやすさが異なると思われる、以下の三種類の状態と配置の変化を考慮するものとした。

- ✓ 燃料集合体の形状が維持され、燃料集合体の燃料棒の配列が維持されるケース
- ✓ 燃料集合体の支持格子が破損して燃料棒が離散し、減速材である地下水の中に、臨界が起こりやすい配置に燃料棒が並ぶケース
- ✓ 燃料被覆管が破損して燃料ペレットが離散し、減速材である地下水の中に、臨界が起こりやすい配置に燃料ペレットが並ぶケース

2) 解析ケース・解析条件等の設定

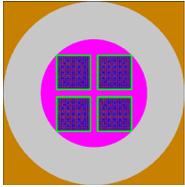
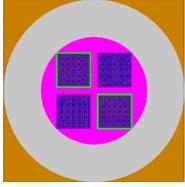
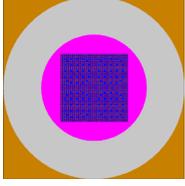
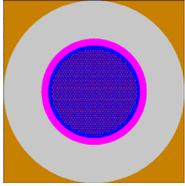
前項 1) の状態および配置の変化の整理結果に基づき、臨界安全評価の解析ケースを設定した。設定された解析ケースを表 2.2-9 に示す。

表 2.2-9 のケース 2~4 のうち、燃料集合体が破損して、燃料棒あるいは燃料ペレットが

離散するケースでは、予備解析を行い、その結果に基づきこれらの燃料要素が最適減速状態になるように要素間のピッチを設定した。このとき、ケース 2 においては、状態変化③を考慮すると、燃料と地下水が存在する領域の体積が小さく、最適減速状態となるピッチが確保できないことから、状態変化③は考慮しないものとした。ケース 3 およびケース 4 においては、仕切り部が破断・崩落する想定であることから、全ての解析において状態変化③を考慮しなかった。

燃料ペレットが離散する場合については、燃料ペレットと体積が同一となる燃料球としてモデル化した。このとき、燃料ペレットが離散することで燃料被覆管も離散することを想定し、状態変化②による影響は考慮しないものとした。燃料の配置については、燃料要素が地下水中に格子上に配列する場合と、ランダムに配置する場合では、水-燃料体積比が等しくても実効増倍率が変化する可能性があることから、格子モデルとランダムモデルの双方のモデルによる解析を実施した。ここで、格子モデルに対しては、(2)項と同様に MVP コード (Nagaya et al., 2005) を使用し、ランダムモデルに対しては、SERPENT コード (Leppänen et al., 2015) のランダムモデルを使用した。

表 2.2-9 材料の状態変化および配置パターンを考慮した臨界安全解析モデルの候補

解析ケース	燃料の状態および配置の変化		処分容器および燃料被覆管の材料の状態変化			処分容器の 材料配置の変化	解析体系の 概念図
	燃料状態	燃料配置 モデル	処分容器外表面 での状態変化① の考慮の有無	燃料被覆管で の状態変化② の考慮の有無	燃料集合体収容ス ペースでの状態変 化③の考慮の有無		
ケース 1	燃料集合体の形状が維持	格子状に配列	○	○	○	埋め戻し直後の配置 から変化なし	
ケース 2	① 燃料集合体の形状が維持	格子状に配列	○	○	○/× ^{※1}	対角線上の 2 つの収 容スペースの大きさを 拡大させる ^{※3}	
	② 燃料棒が離散	格子状に配列	○	○	×		
	③ 燃料ペレットが離散	格子状に配列	○	×	×		
		ランダムに配列	○	×	×		
ケース 3	① 燃料集合体の形状が維持	格子状に配列	○	○	×	4 つの収容スペース を統合させる。収容 スペースの大きさは 変わらず ^{※2}	
	② 燃料棒が離散	格子状に配列	○	○	×		
	③ 燃料ペレットが離散	格子状に配列	○	×	×		
		ランダムに配列	○	×	×		
ケース 4	① 燃料集合体の形状が維持	格子状に配列	○	○	×	4 つの収容スペース を統合させ、かつ、 収容スペースを拡大 させる ^{※3}	
	② 燃料棒が離散	格子状に配列	○	○	×		
	③ 燃料ペレットが離散	格子状に配列	○	×	×		
		ランダムに配列	○	×	×		

※1：燃料棒や燃料ペレットを最適減速ピッチで配置させる対角線上の 2 つの収容スペースでは状態変化③を考慮しない

※2：燃料棒や燃料ペレットを離散させるケースでは、各々の状態で中性子が最も減速されやすい状態となるように燃料棒や燃料ペレットを配列。

※3：燃料棒や燃料ペレットを離散させるケースでは、拡大する収容スペースについて燃料棒や燃料ペレットが最適減速ピッチに配列するように収容スペースの大きさを設定。燃料集合体の形状が維持されるケースにもその大きさを適用。

3) 解析結果

表 2.2-9 に示した臨界安全解析モデルによる解析結果を図 2.2-16 に示す。比較のため、直接処分第 1 次取りまとめにおける保守的な臨界安全評価モデルによる計算結果（図中では「SF-1 体系」と記載）も示す。

処分容器の材料配置の違いによる実効増倍率への影響については、概ね 2 種類に分類できる結果となった。具体的には、埋め戻し直後の配置が維持されていることを想定した「ケース 1」と、4 つのうち 2 つの収容スペースで燃料棒やペレットが最適減速ピッチになるようにスペースを拡大することを想定した「ケース 2」では、 $k_{eff}+3\sigma$ は 0.81~0.82 となった。他方、4 つの収容スペースが結合することを想定した「ケース 3」と、4 つの収容スペースが結合し、かつ、収容スペースが拡大することを想定した「ケース 4」では、 $k_{eff}+3\sigma$ は 0.88~0.93 となった。両者の材料配置パターンの違いは、処分容器の仕切り部が破断・崩落して、4 つの燃料集合体収容スペースが一つに結合するかであり、これを考慮するかによって、実効増倍率が大きく異なることが明らかとなった。これは、燃料領域が結合せずに分断されたままである場合、燃料領域の表面積が大きくなるため、中性子の漏れが多くなり実効増倍率が低下するためと考えられる。

なお、仕切り部の破断・崩落によって収容スペースが結合することを想定した「ケース 3」および「ケース 4」においても、燃料の状態や配置の想定によって臨界の起こりやすさが左右されることに留意が必要である。例えば、表 2.2-9 の「ケース 3」と「ケース 4」の①の場合のように燃料集合体の形状が維持される場合では、 $k_{eff}+3\sigma$ はやや低い値となった（0.88~0.90）。燃料集合体を構成する支持格子や燃料被覆管に使用されるジルコニウムは、処分環境における腐食速度が処分容器を構成する鉄と比較して極めて小さいとの報告もあり（例えば、Agrenius and Spahiu(2016)）、処分容器の腐食が進展しても、燃料集合体については腐食の進展が緩やかで、臨界が起こりやすい処分後 1 万年後程度まで形状が維持される場合には、このような想定モデルによる評価ができる可能性がある。また、燃料は水より比重が大きいため、「ケース 3」と「ケース 4」の②~④の場合のように燃料棒や燃料ペレットが離散する場合でも、実際には燃料領域の底部に堆積する可能性が高い。このような配置になる影響を把握するため、処分容器を横置きに定置する場合を想定し、「ケース 4」の解析体系をベースに燃料領域の下部に燃料球が最密充填し、上部には地下水のみが存在する状態に変更したモデルを構築して補足的な臨界解析を行ったところ、 $k_{eff}+3\sigma$ は 0.62 となり臨界の起こりやすさが著しく低下する結果となった。

以上を示した解析結果を未臨界判定基準値である 0.95 と比較すると、現実的な材料の状態と配置の変化を想定した全ての解析ケースにおいて、 $k_{eff}+3\sigma$ は 0.95 を下回る結果となった。また、直接処分第 1 次取りまとめにおける保守的な臨界安全評価モデルによる結果よりも低い値となった。この理由については、「ケース 1」と「ケース 2」では、上で示したように、仕切り部の破断・崩落による収容スペースの結合を想定しなかったことなどが考えられる。また、「ケース 3」と「ケース 4」では、処分容器と緩衝材の相互作用による現実的な状態の変化を反映して反射体の厚さや材料組成などを設定したことなどが考えられる（直接処分第 1 次取りまとめのモデルでは、反射体を厚さ 70 cm の鉄として設定）。なお、本解析では限定的な燃料（PWR 使用済燃料、燃焼度 45 GWd MTU⁻¹、初期濃縮度 4.5%）を対象として

おり、わが国に存在する多様な使用済燃料を対象としても未臨界判定基準値を下回るかについては、今後確認が必要である。

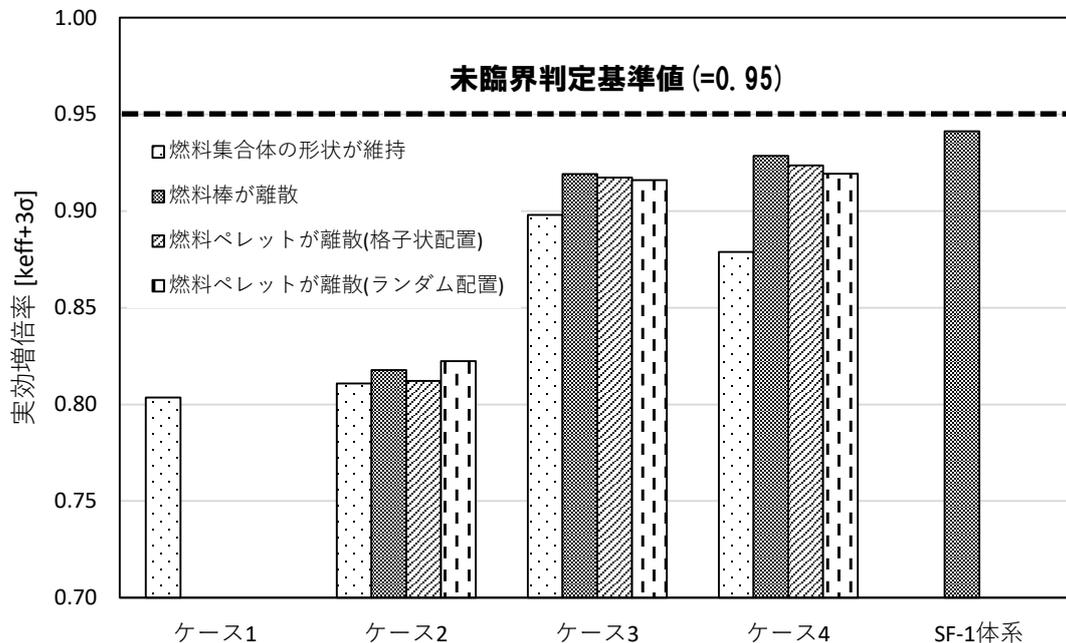


図 2.2-16 材料の現実的な状態と配置の変化を考慮した臨界安全評価モデルの解析結果

(5) 本事業のまとめ

過年度の成果も含めた事業全体の成果の取りまとめとして、(2)～(4)項の検討結果に基づき、解析モデルの候補と、材料の状態や配置の変化の起こりやすさと臨界の起こりにくさを対応付けて整理した。整理された結果を表 2.2-10 に示す。解析モデルの候補については、(4)項の解析ケース 1～4 で対象としたモデルをそのまま候補として選定した。

処分容器の破断は起こらず、燃料集合体の形状も維持されることを想定した解析モデルでは((4)項のケース 1 に相当)、(3)項および昨年度に実施した力学解析の結果から、処分後 1 万年程度が経過すると、処分容器のいずれかの部位で破断が生じており、破断が全く起こらない状況は想定しにくいと考えられるが、このような状態が成立することを仮定すると、(4)項で示したように、燃料集合体収容スペースの間の仕切り部が維持されているため、臨界に至る可能性は極めて低いと考えられる。

燃料集合体の収容スペースの 2 カ所で破断・拡張が起こり、燃料棒が最適減速ピッチに配列することを想定した解析モデルでは((4)項のケース 2 に相当)、(3)項および昨年度に実施した力学解析の結果から、処分後 1 万年程度が経過すると、腐食が早く進展した収容スペースの角において破断が生じており、このような状況が生じることは十分に想定できると考えられる。このような状態が成立することを仮定すると、(4)項で示したように、上記に示した、処分容器の破断が起こらない場合と同様に、収容スペースの間の仕切り部が維持されているため、臨界に至る可能性は極めて低いと考えられる。

複数の仕切り部が破断・崩落し、燃料領域が 1 か所に集まることを想定した解析モデルでは（(4)項のケース 3 に相当）、(3)項および昨年度に実施した力学解析の結果から、処分後 1 万年程度が経過すると仕切り部の破断が生じており、このような状況が生じる可能性は否定できない。ただし、破断の発生は局所的であるため、全体的に崩落しかつ燃料が 1 か所に集まる可能性は高くないと考えられるが、このような状態が成立することを仮定すると、(4)項で示したように、仕切り部がなくなることにより臨界が起りやすい状態に変化するものの、本検討で対象としている限定的な使用済燃料の条件（PWR 使用済燃料、燃焼度 45 GWd MTU⁻¹、初期濃縮度 4.5%）では臨界には至らないと考えられる。

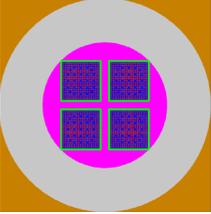
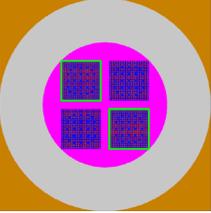
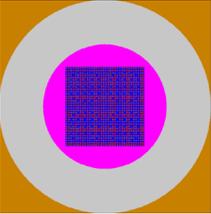
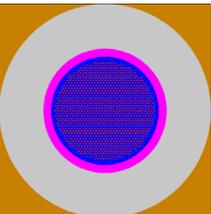
燃料領域が拡張し、燃料要素（燃料棒 or ペレット）が最適減速ピッチに配列することを想定した解析モデルにおいても（(4)項のケース 4 に相当）、上記のケース 3 の場合と同様に、本検討で対象とした限定的な使用済燃料の条件では臨界には至らないと考えられる。

以上より、現実には起こり得る材料の状態や燃料の配置を反映したモデルで臨界安全評価を行うことで、従来の保守的なモデルと比べて、処分容器により多くの使用済燃料を収容できる可能性があると考えられる。

さらに、上記の整理結果を踏まえて、今後の検討で重要となる可能性が高い課題の候補を整理した結果を以下に示す。

- ・ 上記で示したように、本検討では限定的な使用済燃料の条件を対象としていることから、処分後の未臨界確保の確実性の向上に向けて、現実的な範囲で想定される燃料組成のバリエーション（対象核種の種類、使用済燃料の種類、使用済燃料中の燃料組成の分布のパターンなど）を加味するなど、対象範囲を拡張する場合の未臨界の確保への影響の有無などの確認および未臨界確保のための対処方策の整理とその有効性の確認などが必要である。対処方策としては、(4)項で示したように、燃料集合体収容スペースの間の仕切り部の破断・崩落により燃料領域が結合するかが、臨界の起りやすさを左右する大きな要素であると考えられることから、例えば、仕切り部の厚さを増加させて（本検討では 5 cm）、臨界が問題とならない時期まで仕切り部の破断が生じる時期を遅らせること等が考えられる。また、燃料集合体に予めガドリニウムなどの中性子吸収材を含めて処分することも考えられるが（例えば、原子力機構（2018b）など）、処分後の長期にわたって燃料と中性子吸収材が共存する必要があることに留意が必要である。
- ・ 腐食などによる材料の状態や配置の変化が生じる前の初期状態の体系を対象として、使用済燃料における燃焼計算に由来する核種組成の不確かさ、軽水炉炉心での燃焼履歴および燃焼度分布の 3 つの不確かさについて、各々が実効増倍率に与える影響のデータがまとめられている（山本ほか，2015；原子力機構，2018b）が、本項で対象とした限定的な使用済燃料の条件以外の不確かさのデータが整備されていない。今後、これらの不確かさの低減に向けて、現実的な材料配置を想定したモデルも踏まえた上記の不確かさのデータを整備し、これらを反映した評価を行うことが必要となる可能性がある。

表 2.2-10 臨界の起こりにくさと現実的な材料の状態および配置の変化の起こりやすさの整理

解析モデル候補	力学解析結果等に基づく 材料配置の現実的な起こりやすさ	左記の状態になった後の 臨界の起こりにくさ
 <p>処分容器の破断は起こらず、燃料集合体の形状も維持される ((4)項のケース1)</p>	<p>処分後1万年程度が経過すると、処分容器のいずれかの部位で破断が生じており、破断が全く起こらない状況は想定しにくい</p>	<p>仕切り部が維持されているため、臨界に至る可能性は極めて低い</p>
 <p>収容スペース2カ所で破断・拡張が起こり、燃料棒が最適減速ピッチに配列 ((4)項のケース2)</p>	<p>処分後1万年程度が経過すると、腐食が早く進展した収容スペースの角においてのみ破断が生じており、このような状況が生じることは十分想定し得る</p>	<p>仕切り部が維持されているため、臨界に至る可能性は極めて低い</p>
 <p>複数の仕切り部が破断・崩落し、燃料領域が1か所に集まる ((4)項のケース3)</p>	<p>処分後1万年程度が経過すると、仕切り部の破断が生じており、このような状況が生じる可能性は否定できない。ただし、破断の発生は局所的であり、全体的に崩落しかつ1か所に集まる可能性は高くない</p>	<p>仕切り部がなくなることにより臨界性は上がるが、0.95には至らない</p>
 <p>燃料領域が拡張し、燃料要素（燃料棒 or ペレット）が最適減速ピッチに配列 ((4)項のケース4)</p>	<p>処分後1万年程度が経過すると、仕切り部の破断が生じており、このような状況が生じる可能性は否定できない。ただし、破断の発生は局所的であり、全体的に崩落しかつ1か所に集まる可能性は高くない</p>	<p>仕切り部がなくなり、燃料領域形状の変化により臨界性は上がるが、0.95には至らない</p>

2.3 まとめ

(1) 処分容器の腐食挙動評価

処分容器の挙動評価として、純銅処分容器の我が国の地質環境への適用の検討に向けた取り組みを行った。また、銅以外の候補材料について、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った。

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バンド試験を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バンド試験を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バ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バンド試験を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3M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。

令和4年度は、純銅については、硫化物による腐食挙動について、令和3年度までの試験データや海外での研究成果等に基づき、共存する塩化物が銅表面に生成する皮膜の保護性を低下させ、純銅の腐食速度や応力腐食割れ感受性に影響を及ぼす可能性が示唆されたことから、令和3年度の条件よりも皮膜の保護性が高くなると考えられる塩化物濃度の条件(0.1M)下で、硫化物共存下かつ圧縮緩衝材中の浸漬試験およびUバンド試験を実施して、その結果に基づき、試験期間90日までは腐食速度が低下しにくいことや応力腐食割れが発生しないことを確認した。また、硫化物以外の因子が応力腐食割れ感受性に及ぼす影響に関する調査として、アンモニア、アンモニウムイオンが存在する条件下では、低酸素条件かつ膨潤ベントナイト中でのSSRT試験において割れが確認されたものの、圧縮ベントナイト中のUバンド試験では割れが確認されなかったことから、処分環境では応力腐食割れが起こりにくい可能性が示唆される。さらに、令和4年度までに実施した試験の結果等を踏まえ、評価期間において腐食速度を一定とする保守的なモデルによる腐食深さの評価に基づき、5万年程度

の長寿命が達成可能な硫化物濃度の条件を提示するとともに、処分環境において応力腐食割れが起こりうる注意すべき硫化物フラックスの条件を、海外文献の調査も踏まえ整理した。

他の候補材料については、ニッケル基合金 C-276 を対象として、再不動態化法による定電位試験を実施して、すきま腐食の発生条件を令和 3 年度より詳細に調査するとともに、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試験期間 1 年間として実施し、腐食速度に関するデータを取得した。以上の試験により、低酸素条件では不動態皮膜が生じて腐食速度が極めて低くなることが確認されたことから、低酸素条件では長寿命化が達成できる可能性があるものの、腐食速度に影響を及ぼすと考えられる皮膜の安定性、ならびに長期的な水素脆化の程度等については、メカニズムの理解を含め、今後、実験等による確認が必要である。また、酸化性条件では Cl^- 濃度 1.5 M 以上の NaCl 溶液及び人工海水 ($[\text{Cl}^-]=0.56 \text{ M}$) の条件ですきま腐食の生起臨界条件に関するデータを取得し、海水相当以上の塩化物イオン濃度ではすきま腐食が発生しうることが確認されたことから、酸化性条件では長寿命化が困難となる可能性が示された。なお、すきま腐食が発生する Cl^- 濃度の下限値は今後の課題である。

(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など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、処分容器外表面での腐食の進展による状態変化と、燃料被覆管の腐食の進展による状態変化、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を組み合わせた複合的な状態変化と、これらの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、これらを組合せたことによる実効増倍率への影響は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力学モデルを構築するとともに、収容スペース 4 か所の腐食が同時に進展する状況や、一部の収容スペースでのみ腐食生成物の体積膨張が起こり、反力が発生する状況を想定した力学解析を行った。その結果、このような極端な状況を想定しても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。

これらを受けて、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検討を行った。材料の状態変化については、変化が最大となった状態変化を、材料配置については臨界が発生しうる材料配置パターンをロジックツリーによる整理から 4 つの材料配置パターンを反映した臨界安全評価モデルを構築して解析を行った。その結果、最も臨界性が高いモデルにおいても、実効増倍率の値は未臨界判定基準値である 0.95 以下であり、現実になり得る材料の状態や燃料の配置を反映したモデルで臨界安全評価を行うことで、従来の保守的なモデルと比べて、処分容器により多くの使用済燃料を収容できる見通しを示すことができた。

今後は、現実的で合理的な臨界安全評価手法を高度化する上で、現実的な範囲で想定される燃料組成のバリエーションなど対象範囲を拡張した場合の未臨界確保への影響の有無の確

認、ならびに、その対処方策の整理と有効性の確認が必要と考えられる。また、臨界の起こりやすさを左右する処分容器の仕切り部厚さの再検討や、臨界安全評価において必須となる不確実性の低減に向けて、多様な燃料組成での不確かさのデータを整備し、これらを反映した評価を行うことが必要となる可能性がある。

【参考文献】

- Agrenius, L., Spahiu, K. (2016): Criticality effects of long-term changes in material compositions and geometry in disposal canisters, SKB, TR-16-06.
- Akashi, M., Nakayama, G. and Fukuda, T. (1998): CORROSION/98, NACE International, Paper No. 158.
- Balafas, I. and Burgoyne, C. J. (2011): Modeling the Structural Effects of Rust in Concrete Cover, JOURNAL OF ENGINEERING MECHANICS, ASCE.
- Becker, R., Öijerholm, J. (2017): Slow strain rate testing of copper in sulfide rich chloride containing deoxygenated water at 90 ° C, SSM report 2017:02, Swedish Radiation Safety Authority.
- 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, VOL. 52, NO. S1, 40-44.
- Chen, J., Qin, Z., Shoesmith, D.W. (2011): Electrochim. Acta, 56, 7854.
- Chen, J., Qin, Z., Shoesmith, D. W. (2014a): Corros. Eng., Sci. Technol., 49, 415.
- Chen, J., Qin, Z., Wu, L., Noël, J. J., Shoesmith, D. W. (2014b): Corros. Sci., 87, 233.
- 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) (2001): Yucca Mountain Science and Engineering Report, Technical Information Supporting Site Recommendation Consideration, DOE/RW-0539, May 2001.
- Forsström, A., Becker, R., Hänninen, H., Yagodzinskyy, Y., Heikkilä, M. (2021): Sulphide-induced stress corrosion cracking and hydrogen absorption of copper in deoxygenated water at 90 ° C, Mater. Corros., No. 72, c. 317.
- 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 合金の腐食すきま再不働態化電位測定方法の最適化, Zairyo-to-Kankyo, 56, 406-413.
- 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—, 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）(2022a)：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.

原子力機構（日本原子力研究開発機構）(2022b)：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ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書, 令和4年3月.

早水紀久子（2020）：PGSE-NMR 法による拡散現象測定の手引書（第5版）, <https://diffusion-nmr.jp/wordpress/wp-content/uploads/2020/01/Solution-PFG-NMR.pdf> (2023年3月31日閲覧).

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.

礪本良則, 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.

核燃料サイクル開発機構（1999）：わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的

- 信頼性—地層処分研究開発第 2 次取りまとめ—, 分冊 2 地層処分の工学技術, JNCTN1400 99-022.
- 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.
- 小玉俊明 (1980): 腐食百科—緑青, 銅の I 型および II 型孔食, 防食技術 29, pp. 361-362.
- 桑原仁史, 高瀬博康, 千葉保, 藤井直樹 (2007): 現実的性能評価の開発 (その 3) —オーバーパックからの応力によるガラス固化体破碎解析—, 日本原子力学会 2007 年秋の大会.
- Leppänen, J., Pusa, J., Viitanen, T., Valtavirta, V., Kaltiaisenaho, T. (2015): The Serpent Monte Carlo code: Status, development and applications in 2013, *Annals of Nuclear Energy* 82 (2015) 142-150.
- Martino, T., Chen, J., Qin, Z., and Shoesmith, D. W. (2017): The kinetics of film growth and their influence on the susceptibility to pitting of copper in aqueous sulphide solutions,” *Corros. Eng. Sci. Technol.*, 52, 61.
- 松田武, 山本修一, 米澤健次, 佐藤伸 (2010): 有限個別要素法による鉄筋コンクリート構造物の破壊シミュレーション, 土木学会第 65 回年次学術講演会(平成 22 年 9 月), V-574.
- McConn, R. J., Jr, Gesh, C. J., Pagh, R. T., Rucher, R. A., Williams, R. G., III. (2011): *Compendium of Material Composition Data for Radiation Transport Modeling (PNNL-15870)*, Pacific Northwest National Laboratory.
- Moore, H., Beckinsale, S., Mallinson, C.E. (1921): The Season Cracking of Brass and other Copper Alloys, *Journal of the Institute of Metals*, 25, pp. 59-125.
- 永田公二 (1987): 耐食材料としての銅および銅合金, *軽金属*, Vol. 37, No.1, pp.89-99.
- 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.
- Salonen, T., Lamminmäki, T., King, F., Pastina, B. (2021): Status report of the Finnish spent fuel geologic repository programme and ongoing corrosion studies. *Mater. Corros*, 72, 14-24.
- 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.
- 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.
- 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).
- SKB(2006a) : Long-term safety for KBS-3 repositories at Forsmark and Laxemar a first evaluation. Main report of the SR-Can project., SKB TR-06-09.
- SKB(2006b) : Fuel and canister process report for the safety assessment of SR-Can., SKB TR 06-22.
- Suzuki, Y. (1981): Stress Corrosion Cracking of pure Copper in Dilute Ammonical Solutions, Corrosion Science, Vol. 21, pp.353-368.
- Szakálos P., Leygraf C. (2019): Review Assignment for the Swedish Radiation Safety Authority: Corrosion of Copper Canister, In: SSM' s external experts' reviews of SKB' s report on supplementary information on canister integrity issues, Technical Note 2019:22, Strålsäkerhetsmyndighet.
- Taniguchi, N., Kawasaki, M. (2008): Influence of Sulfide Concentration on the Corrosion Behavior of Pure Copper in Synthetic Seawater. Journal of Nuclear Materials, 379(2008), 154-161.
- 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.
- Taxén, C., Flyg, J. and Bergqvist, H. (2019). Stress corrosion testing of copper in near neutral sulphide solutions. SKB TR-19-13, Svensk Kärnbränslehantering AB.
- Taxén, C., Flyg, J., Bergqvist, H. (2018): Stress corrosion testing of copper in sulfide solutions, SKB TR-17-16, Svensk Kärnbränslehantering AB.
- Uhlig, H.H., Duquette, D.J. (1969): Alleged stress-corrosion cracking of pure Cu, Corrosion Science, Vol. 9, pp.557-560.
- 山本健土, 秋江拓志, 須山賢也, 細山田龍二 (2015): 使用済燃料直接処分の臨界安全評価—燃焼度クレジット評価のためのデータの整備— (受託研究), JAEA-Technology 2015-019.

- 山内重徳, 佐藤史郎 (1981) : 淡水中における銅管の腐食について, 防食技術 30, pp. 469-477.
- Yui, M., Sasamoto, H. and Arthur, R.C. (1999): Groundwater Evolution Modeling for the Second Progress Performance Assessment (PA) Report, JNC TN8400 99-030.
- Zhang, F., Örnek, C., Liu, M., Müller, T., Lienert, U., Ratia-Hanby, V., Carpén, L., Isotahdon, E., Pan, J. (2021): Corrosion-induced microstructure degradation of copper in sulfide-containing simulated anoxic groundwater studied by synchrotron highenergy X-ray diffraction and ab-initio density functional theory calculation, Corros. Sci., 184, 1-10.

第 3 章

使用済燃料、緩衝材の挙動評価

3 章詳細目次

3. 使用済燃料、緩衝材の挙動評価	3-1
3.1 使用済燃料集合体からの核種溶解挙動評価	3-1
(1) 本項目の背景と目的	3-1
(2) 使用済燃料の溶解速度に及ぼす全炭酸濃度の影響評価	3-3
1) はじめに	3-3
2) 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樹脂埋めおよび前処理	3-6
① (U, ²⁶ Mg)O ₂ 固溶体ペレットの調製	3-6
② (U, ²⁶ Mg)O ₂ 固溶体ペレットの樹脂埋め手法の評価	3-8
③ 塩酸洗浄による (U, ²⁶ Mg)O ₂ 固溶体ペレットからの MgO 相の除去	3-9
3) (U, ²⁶ Mg)O ₂ 固溶体ペレットの浸漬試験	3-10
① 試験方法	3-10
② 結果と考察	3-12
(3) UO ₂ 等ウラン酸化物の表面分析などによる溶解挙動の考察	3-22
1) はじめに	3-22
2) UO ₂ 再沈殿試験	3-23
① 試験方法	3-23
② 結果と考察	3-25
3) 浸漬済み UO ₂ 試料の再分析	3-31
① 試験方法	3-31
② 結果と考察	3-31
4) 浸漬済み (U, Mg)O ₂ 試料のラマン分析	3-32
① 試験方法	3-32
② 結果と考察	3-32
(4) 使用済燃料からの核種の瞬時放出挙動に関する調査	3-35
1) はじめに	3-35
2) 実燃料を使用した浸漬試験	3-36
① 試験方法	3-36
② 結果と考察	3-38
3) 瞬時放出率、長期溶解速度に関する最新動向調査	3-44
① 調査結果	3-44
② まとめ	3-49
(5) 成果のまとめ	3-49
3.2 緩衝材の長期挙動評価	3-54
(1) 本項目の背景と目的	3-54
1) 試験の目的、手法、対象とする変質環境・現象	3-54
2) 調査内容	3-56

(2) 炭酸および鉄共存下での変質挙動の調査	3-57
1) 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）	3-57
① 試験条件および手順	3-57
② 試験結果	3-59
2) 低酸素雰囲気・鉄共存下での銅粉カラム変質試験（試験 C）	3-60
① 試験手順および条件	3-60
② 試験結果	3-60
3) 炭酸および鉄共存下での変質挙動の評価に関するまとめ	3-61
(3) 処分環境での緩衝材変質の可能性の評価	3-63
1) 試験の目的と手法	3-63
2) 処分環境での緩衝材変質の可能性の評価を目的とした変質試験	3-64
① 試験条件および手順	3-64
② 試験結果	3-65
③ 長期間後の処分環境での緩衝材変質量の評価	3-69
(4) 本事業のまとめ	3-71
3.3 まとめ	3-72
(1) 使用済燃料集合体からの核種溶解挙動評価	3-72
(2) 緩衝材の長期挙動評価	3-72
参考文献	3-73

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、以下ではこれらを実評価することを総称して「ソースターム評価」と呼ぶ。

使用済燃料中の核種分布および核種放出の概念を図 3.1-1 に示す。燃焼・照射によって燃料中に生じる超ウラン元素、核分裂生成物などの多様な放射性核種の一部は、二酸化ウラン (UO_2) の結晶粒界に遍在化し、さらに、燃料ペレット内部に生じるガス気泡やひび割れなどの気相を介して、燃料と被覆管とのギャップ（隙間）にまで移行する。これらは、燃料と地下水が接触した場合に比較的速やかに放出される（瞬時放出）と考えられている。瞬時放出に関する核種放出現象については、燃料ペレット片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 UO_2 格子内の欠陥の体積拡散により移行する途中で UO_2 と固溶体を生成する元素、酸化物もしくは金属析出物として析出する元素、もしくはガス状のまま燃料ペレット内から放出され燃料棒内のギャップに蓄積する元素などが挙げられる。一方、その他の核種は、燃料マトリクス中に分散して存在し、燃料マトリクスが地下水へ長期にわたってゆっくりと溶解することと調和的に放出される（長期溶解）と考えられている。加えて、ジルカロイ被覆管の放射化で生成する核種（主に C-14）は、酸化膜中に存在する場合は比較的速やかに放出され（瞬時放出）、母材中に存在する場合は母材の腐食溶解にともなって比較的緩慢に放出される（長期溶解）と考えられている。

瞬時放出の程度を示すパラメータは、使用済燃料中の核種毎の総インベントリのうち瞬時放出されるインベントリの割合が用いられ、気体として放出されるものは核分裂生成ガス放出率（FGR）、地下水等に溶出するものは瞬時放出率（IRF）で表される。FGR で評価される核種はクリプトン（Kr）およびキセノン（Xe）の同位体であるが、これらの核種の半減期は短いため、直接処分の安全評価には影響を及ぼさない。したがって、直接処分の安全評価に重要となるのは、地下水などに溶出する 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 UO_2 ペレットあるいはジルカロイ被覆管が溶解や腐食によって消失するまでの期間の逆数が用いられる。

わが国における直接処分を対象としたソースターム評価の事例としては、直接処分第 1 次取りまとめにおいて予備的な安全評価を試行した際の設定が最初である。当時はスイスで検討されたソースタームパラメータをそのまま採用しており、各々のパラメータの設定値および設定根拠などについての詳細な検討は行われなかった。このことから、先行事業（原子力機構、2015；2016；2017；2018）において、直接処分を検討している諸外国におけるソースターム評価の考え方や、それらの根拠となっている文献情報（試験データ）を調査・整理するとともに、最近行われた、あるいは現在も進行中のソースターム評価に関する試験研究の

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

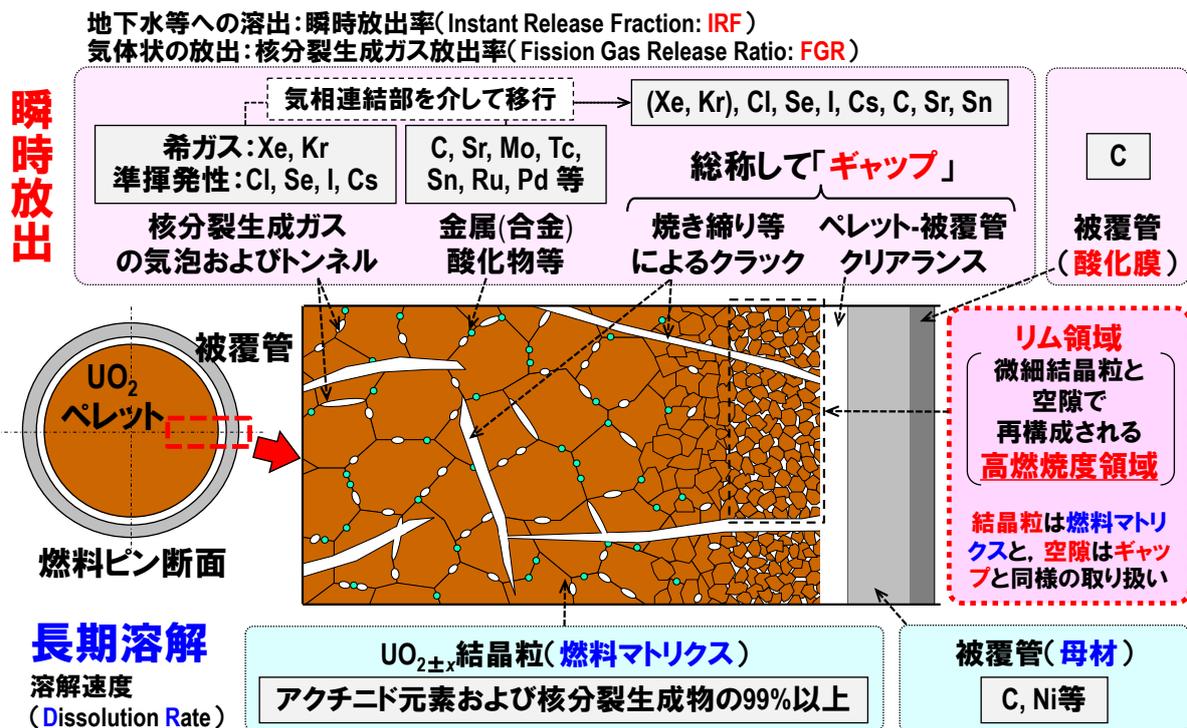


図 3. 1-1 使用済燃料中の核種分布および核種放出の概念

先行事業で設定した瞬時放出および長期溶解のパラメータ（原子力機構，2018；北村ほか，2020）を、それぞれ表 3. 1-1 および表 3. 1-2 に示す。これらは、直接処分第 1 次取りまとめで想定した使用済燃料（加圧水型軽水炉（PWR）；燃焼度 45 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 CO₃²⁻の各濃度の合計) が高くなると 6 価の炭酸錯体 (UO₂(CO₃)₃⁴⁻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 4 年度の成果を以下に示す。

表 3.1-1 先行事業における国内向け瞬時放出率 (IRF) の設定値
(原子力機構, 2018 ; 北村ほか, 2020)

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

*FGR との相関関係から算出。

表 3.1-2 先行事業における国内向け長期溶解速度の設定値
(原子力機構, 2018)

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

(2) 使用済燃料の溶解速度に及ぼす全炭酸濃度の影響評価

1) はじめに

先行事業では、文献情報に基づき二酸化ウランや使用済燃料の溶解速度に及ぼす炭酸影響を調査した (原子力機構, 2016 ; Kitamura and Akahori, 2017)。調査結果を図 3.1-2 に示す。全体的には、溶解速度が全炭酸濃度の上昇とともに高くなっている傾向が見られる。しかしながら、地層処分環境に近い酸化還元電位で取得されたデータが 2 文献のみ (図 3.1-2 の Cachoir et al. (2005) と REDUPP (Evins et al., 2014)) であるうえ、いずれも炭酸成分の影響の有無に着目したデータではないことから、より詳細にデータを取得することが必要であると判断した。先行事業では、UO₂ の粉末試料を用いて炭酸濃度の影響に着目した溶解速度測定試験を行い、図 3.1-3 に示すような結果が得られた (原子力機構, 2016)。得られた

結果のうち、還元剤に鉄片を用いて十分に還元された条件における試料については、表 3.1-2 に示した燃料溶解速度 (10^{-7} y^{-1}) を概ね支持するものと思われるものの、溶解速度に及ぼす表面積の影響など、より詳細なデータを取得することで設定値の信頼性を向上させることが必要と考えられた。このことを受けて、試験による調査を継続することとし、平成 30~31 年度には、ペレット状に成型した UO_2 の溶解速度の測定を実施した (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、試験期間の経過とともに溶存ウラン濃度が低下する傾向が見られたことから、一旦 UO_2 ペレットから溶解したウランが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される。このことから、令和 2 年度は、再沈殿の可能性がないマトリクス溶解指標物質として Mg を UO_2 ペレットに固溶させ、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。その結果、ペレット表面に残存していた MgO 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、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導出し、炭酸濃度依存性を確認した (図 3.1-6)。しかしながら、図 3.1-5 に示す、同様の条件でマトリクス溶解速度を測定している REDUPP (Evins et al., 2014) の文献値 ($\log \text{DR} = -2 \sim -3$) と比較して、マトリクス溶解速度が一桁程度高く評価された。これは、浸漬 UO_2 ペレットの幾何学的表面積の評価手法の違いが主要因であると考えられた。これらの結果を踏まえ、令和 4 年度は、より厳密に表面積を規定した浸漬試験を実施することに加え、令和 3 年度の試験結果の再現性確認を行い、本試験により測定したマトリクス溶解速度評価値の妥当性を検証するとともに、長期溶解速度の暫定値の設定を試みた。

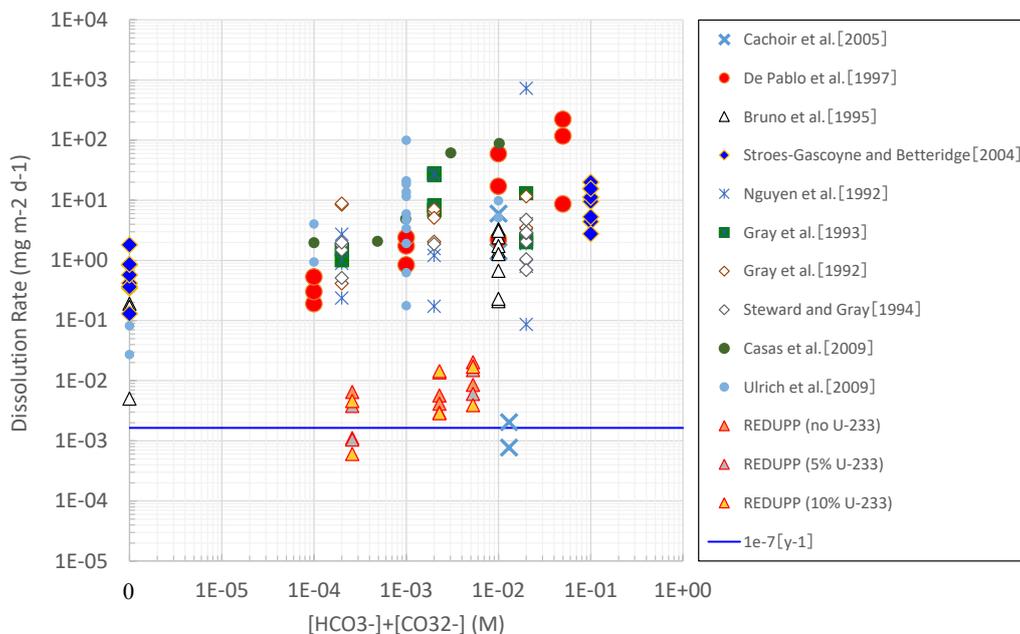


図 3.1-2 燃料溶解速度の全炭酸濃度依存性に関する文献情報
(原子力機構, 2016)

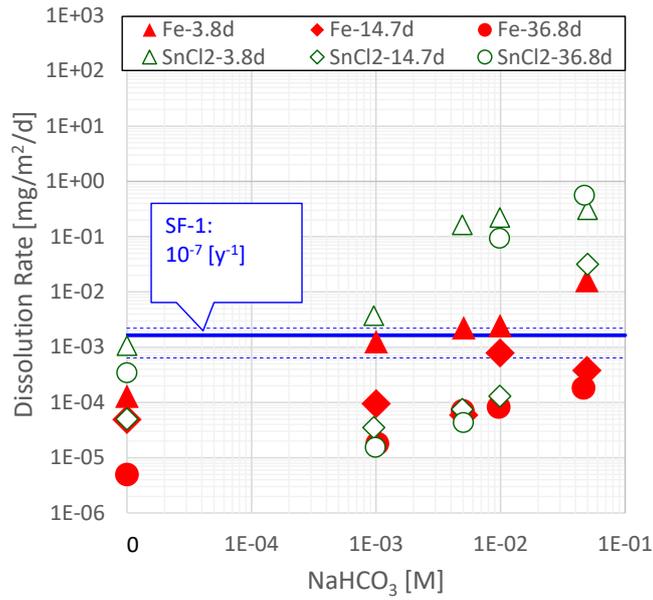


図 3.1-3 先行事業で得られた二酸化ウラン溶解速度の全炭酸濃度依存性
(原子力機構, 2016)

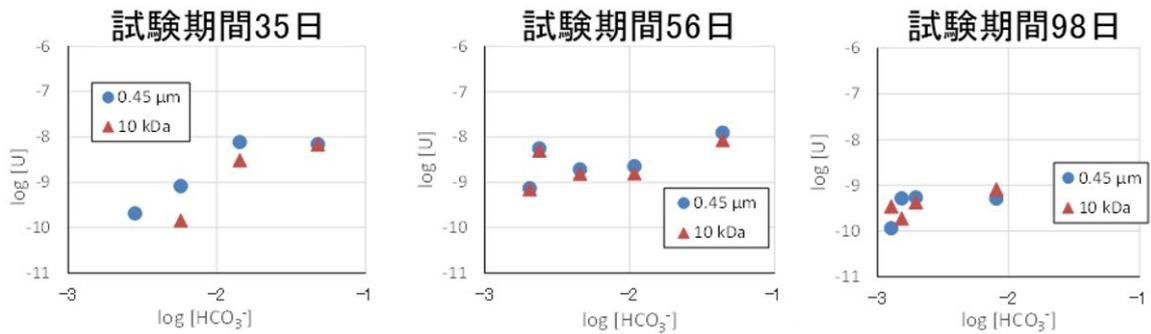


図 3.1-4 ウランの溶出に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響の例
(● : 固液分離 0.45 μm フィルター ▲ : 同分画分子量 10000 限外ろ過フィルター)
(SA/V=5、平成 31 年度実施) (原子力機構, 2020)

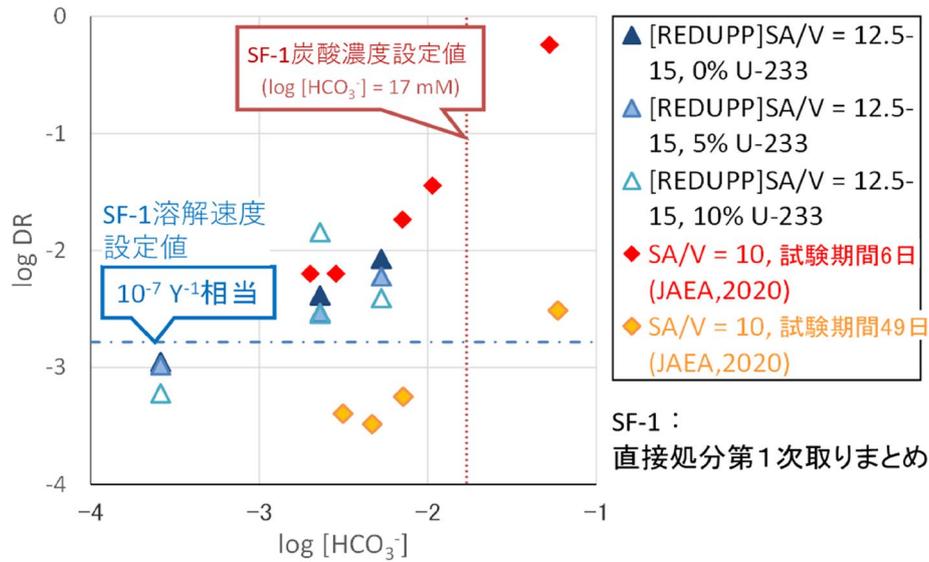


図 3.1-5 UO_2 の溶解速度に及ぼす炭酸水素イオン濃度の影響における REDUPP (Evins et al., 2014) 文献値との比較 (原子力機構, 2020)

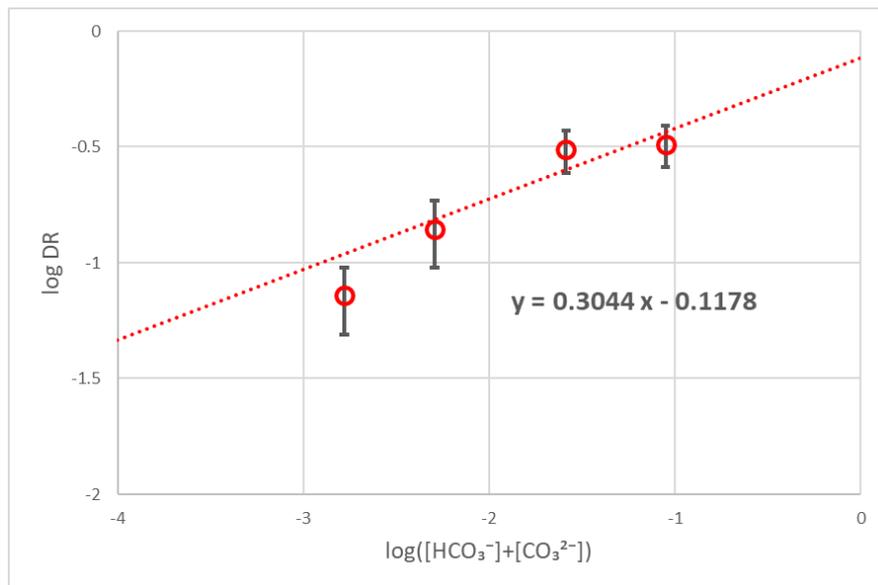


図 3.1-6 DR に及ぼす炭酸イオン濃度の影響 (原子力機構, 2022)

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樹脂埋めおよび前処理

① (U, ^{26}Mg) O_2 固溶体ペレットの調製

浸漬試験を実施するにあたって、 UO_2 に固溶させるマトリクス溶解指標物質は、令和 3 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、ISOFLEX USA 社製 ^{26}Mg 同位体濃縮 MgO (同位体純度 $99.61 \pm 0.06\%$) (以下、 ^{26}MgO) を使用し、モル分率 $UO_2:MgO(^{26}MgO)=95:5$ となるように秤量し混合した。

二酸化ウラン (UO₂) 粉末の調製、および (U, ²⁶Mg) O₂ 固溶体ペレットの調製は、令和 3 年度 (原子力機構, 2022) 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、UO₂ 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 (No. 6) を粉砕し、XRD パターン測定および UO₂ 構造の格子定数の決定を行った。その XRD 測定結果を純粋な UO₂ ペレットと比較した結果を図 3.1-7 に示す。純粋な UO₂ ペレットの格子定数は 5.4701 Å であった。(U, ²⁶Mg) O₂ 固溶体ペレットの格子定数は 5.4357 Å であり、令和 3 年度に調製した (U, ²⁶Mg) O₂ 固溶体ペレットの格子定数は 5.4410 Å よりも多少低い値となった。

表 3.1-3 (U, ²⁶Mg) O₂ 固溶体ペレットの諸元 (加熱前)

試料	直径 [mm]	高さ [mm]	重量 [g]	密度 [g cm ⁻³]
No. 1	10.04	1.25	0.6998	7.07
No. 2	10.03	1.26	0.6989	7.02
No. 3	10.05	1.26	0.6996	7.00
No. 4	10.03	1.27	0.6993	7.00
No. 5	10.06	1.26	0.7000	6.99
No. 6	10.02	1.27	0.7008	7.00
No. 7	10.05	1.26	0.6984	7.00

表 3.1-4 (U, ²⁶Mg) O₂ 固溶体ペレットの諸元 (加熱後)

試料	直径 [mm]	高さ [mm]	重量 [g]	密度 [g cm ⁻³]
No. 1	8.81	1.19	0.6939	9.57
No. 2	8.77	1.20	0.6928	9.56
No. 3	8.76	1.20	0.6940	9.60
No. 4	8.86	1.19	0.6943	9.46
No. 5	8.80	1.20	0.6946	9.52
No. 6	8.81	1.17	0.6961	9.76
No. 7	8.80	1.18	0.6937	9.67

UO₂ の理論密度 : 10.97 g cm⁻³

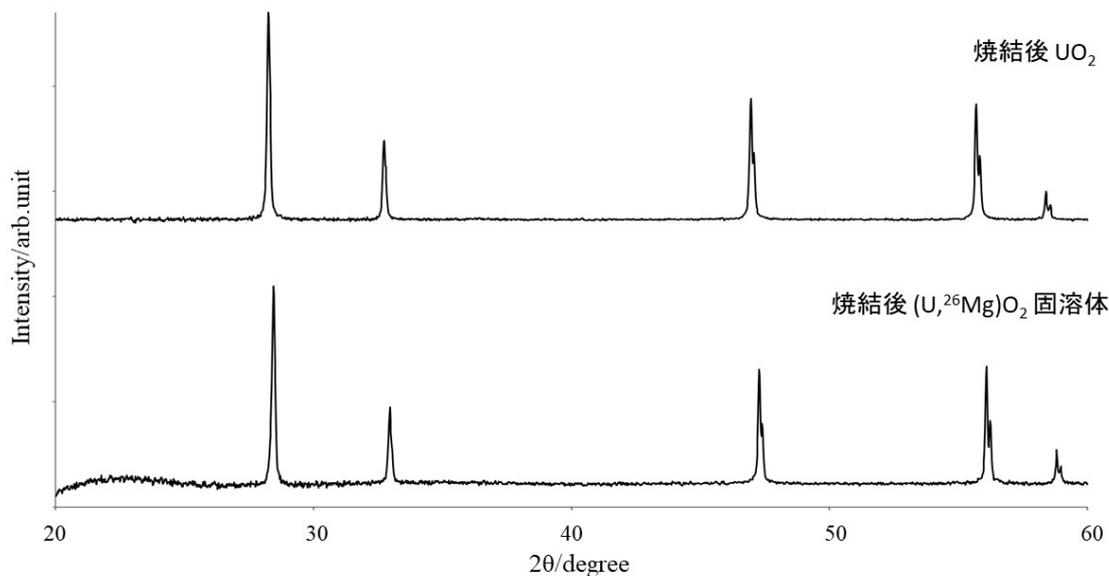


図 3.1-7 UO₂ペレット(上段)、(U, ²⁶Mg)O₂固溶体ペレット(下段) 粉碎試料 XRD パターン

② (U, ²⁶Mg) O₂ 固溶体ペレットの樹脂埋め手法の評価

先行研究 (REDUPP (Evins et al., 2014)) では、UO₂ペレットを粉碎した後、粒径が 1.4 ~ 4 mm の範囲の試料を使用し、一辺の長さが 3 mm の立方体上の均一な粒子と仮定して、表面積を見積もっている。本事業では、令和 3 年度まで実測したペレットの高さ、直径から算出した幾何学表面積を、溶出に寄与する表面積として用いており、ペレットの微細なボイドやクラック等の影響は考慮できていないため、表面積を過少に評価している可能性がある。よって令和 4 年度は、より厳密に溶出に寄与する表面積を規定するため、(U, ²⁶Mg) O₂ 固溶体ペレットを調製した後にアクリル樹脂に埋め込み、クラック内部まで樹脂を浸透させ閉塞させた。その後大気雰囲気下で樹脂研磨を行い、ペレット表面を露出させ、最後に不活性雰囲気グローブボックス内で仕上げ研磨を行った。これにより、液相と接触する面を微細ボイド、クラックを閉塞させた上面のみに限定することで、表面積をより厳密に規定できると考えた。

アクリル樹脂として、HERZOG 製エポキシ樹脂を用いた。エポキシ樹脂の主剤と硬化剤を良く混ぜてペレットの入った型に流し入れ、空気を抜いた後、真空デシケータ中で真空度 -0.1 MPa で 1 時間脱気し、大気雰囲気に戻して 1 晩静置して硬化させた。大気雰囲気下での研磨は、#600 番研磨紙でペレット表面全体を露出させ、#2000 番研磨紙で研磨した後、表面をエタノールで洗浄して乾燥させた。その後、不活性雰囲気グローブボックス内にて、脱気した超純水と #2000 番研磨紙で表面研磨を行い、超純水で洗浄して乾燥させた。また、ペレットのクラックが閉塞していることを確認するため、一部の樹脂埋めペレット (No. 7) を、型切断機 (MICRACUT-152) を用いて縦半分に切断し、断面を SEM で観察した。

樹脂埋めしたペレットの写真および、切断面の SEM 画像を図 3.1-8 に示す。樹脂表面や側面に気泡は確認されず、クラック内部まで樹脂が浸透していることが SEM 画像から確認でき

た（図中青矢印）。また、樹脂埋めペレットの研磨前後の観察写真および研磨後 SEM 画像を図 3.1-9 に示す。ここでも、ペレット表面のボイドやクラックが樹脂によって閉塞していることが確認できたため、本樹脂埋め手法により、より厳密に表面積を規定した浸漬試験が実施可能であると判断した。また、調整した (U, ²⁶Mg) O₂ ペレットの内、No. 4 のペレットについては、令和 3 年度の溶解速度評価値の再現性確認のため、樹脂埋めをせずに浸漬試験に供した。

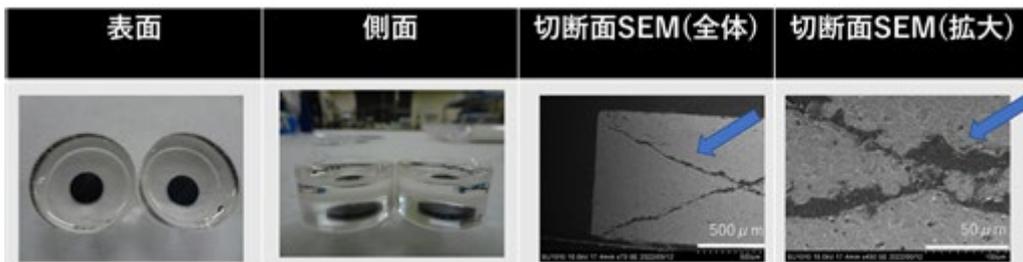


図 3.1-8 樹脂埋めペレットの観察結果

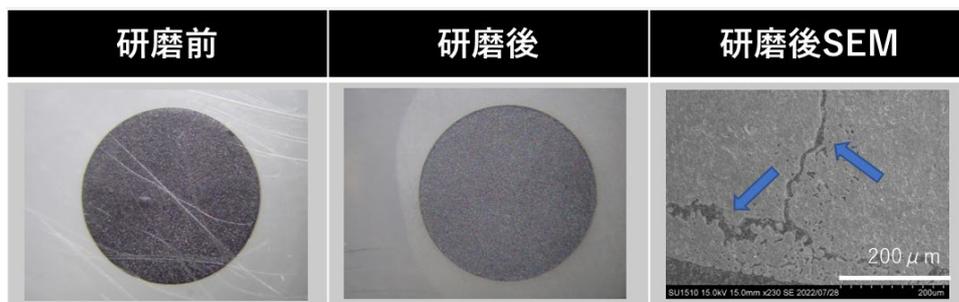


図 3.1-9 研磨前後のペレット表面観察結果

③ 塩酸洗浄による (U, ²⁶Mg) O₂ 固溶体ペレットからの MgO 相の除去

令和 3 年度と同様に、(U, ²⁶Mg) O₂ 固溶体ペレット中に存在する微量成分 MgO 相の除去のために、0.1 M 塩酸洗浄を行った。図 3.1-10 および図 3.1-11 に、(U, ²⁶Mg) O₂ 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。ウラン濃度については、令和 3 年度の時間変化も比較のために示した。試料 No. 1～5 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。No. 4 のペレットは樹脂埋めを実施していないため、表面積が樹脂埋めペレットより大きいことから溶出濃度が高くなったと考えられる。U、²⁶Mg 濃度ともに時間経過しても濃度の増減は見られず、平衡状態に達していると考えられたため、洗浄によって MgO 相の除去が完了したと判断した。

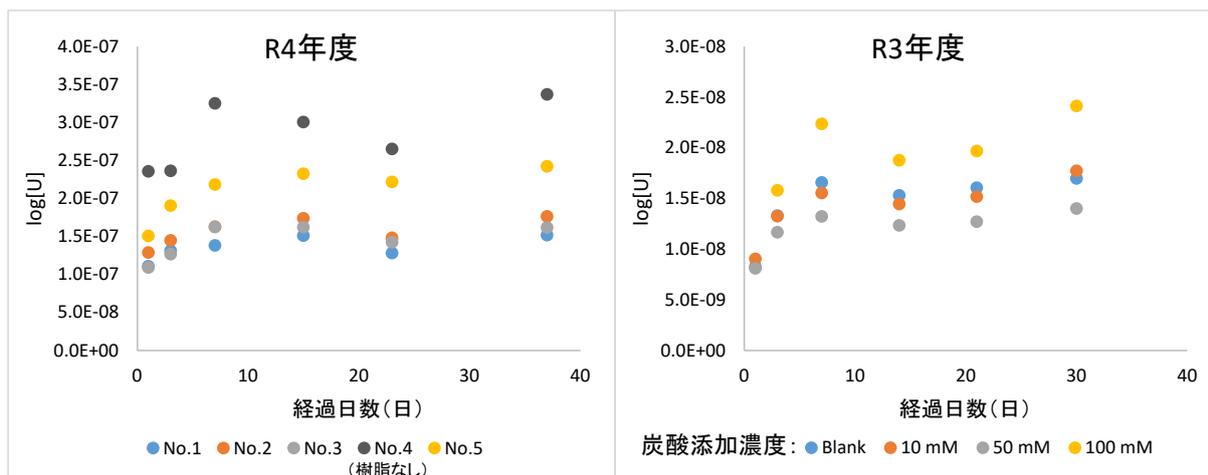


図 3.1-10 (U, ²⁶Mg) O₂ 固溶体ペレットの塩酸洗浄による U 濃度時間変化

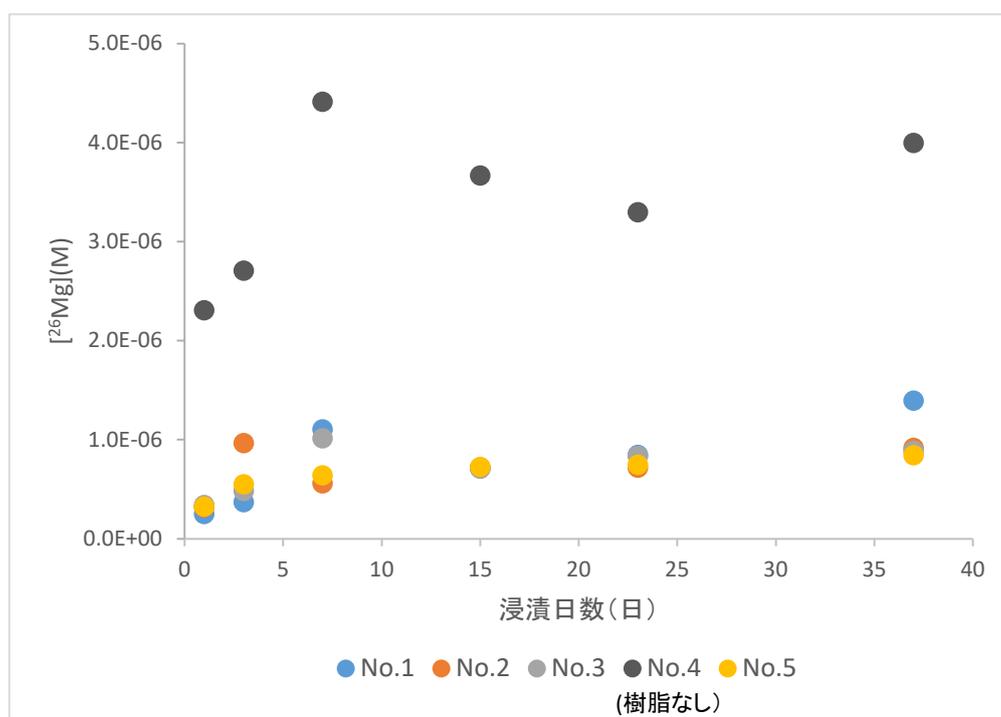


図 3.1-11 (U, ²⁶Mg) O₂ 固溶体ペレットの塩酸洗浄による ²⁶Mg 濃度時間変化

3) (U, ²⁶Mg) O₂ 固溶体ペレットの浸漬試験

① 試験方法

前述の項で調製、樹脂埋め、²⁶MgO 相の除去を行った (U, ²⁶Mg) O₂ 固溶体ペレットを用いて、U と Mg の溶出挙動を評価するためのバッチ式浸漬試験を行った。浸漬試験は、深部地下の低酸素・還元環境を模擬した環境下で行うために、酸素濃度 100 ppm 以下を保持したアルゴン雰囲気グローブボックス中で行った。浸漬液中の炭酸水素イオン (HCO₃⁻) 濃度は、樹脂埋めペレットについて 0、10、50、100 mM (mM: 10⁻³ mol dm⁻³) の 4 条件、樹脂埋めをしないペレットについて 50 mM の 1 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 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ ）をそれぞれ同濃度となるよう添加した。溶液相の体積は、接液しているペレット面の幾何学的表面積 SA [m^2]と溶液体積 V [m^3]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 HCl 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 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製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。

浸漬に先立ち、2)③項の手順で 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、取り出した試料を超純水 30 mL の容器に投入して洗浄したうえで実験に使用した。

表 3.1-5 (U, ^{26}Mg) O_2 固溶体ペレット浸漬試験条件

試料		NaHCO_3	NaCl	EPPS	$\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$	SA/V	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]
番号	状態	[mM]	[mM]	[mM]	[mM]	[m^{-1}]				
No. 1	樹脂埋	0	100	20	3	5	6.10×10^{-5}	2.44×10^{-3}	8.26×10^{-4}	12.19
No. 2	樹脂埋	10	90				6.04×10^{-5}	2.44×10^{-3}	8.25×10^{-4}	12.08
No. 3	樹脂埋	50	50				6.03×10^{-5}	2.44×10^{-3}	8.27×10^{-4}	12.05
No. 4	ペレット	50	50				1.56×10^{-4}	2.44×10^{-3}	8.27×10^{-4}	31.29
No. 5	樹脂埋	100	0				6.08×10^{-5}	2.44×10^{-3}	8.27×10^{-4}	12.16

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

1. 超純水に $\text{Ar}+10\% \text{H}_2$ ガスを通気させ、溶存酸素を低減させた。
2. 超純水に秤量した NaCl 、EPPS、 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 、 NaHCO_3 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 $SA/V = 5 \text{ m}^{-1}$ となる量を取り分けた。
5. それぞれの容器に浸漬試料を投入して蓋をし、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 NaCl 水溶液を添加することで浸漬期間中を通して 7.5~9.0 の範囲内となるように適宜調整した。

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 5 日経過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 5 日経過以降がバッチ試験となる。液相に溶出した U および Mg の濃度を測定するために、バッチ試験開始から 1、14、40、80、120 日経過後のそれぞれの試料溶液から 650 μ L の上澄み液をサンプリングし、孔径 0.45 μ m のフィルターカップに入れて遠心ろ過した。ろ液に含まれる U 濃度および Mg 濃度は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)O₂ 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, ²⁶Mg)O₂ 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。

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

	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 (±0.0006)

② 結果と考察

a. 樹脂埋め (U, ²⁶Mg) O₂ 固溶体ペレットからの U, ²⁶Mg 溶出

樹脂埋め (U, ²⁶Mg) O₂ 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 3.1-12 に示す。この図より、pH が 8.65±0.49 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 3.1-13 に示す。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 3.1-14 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。

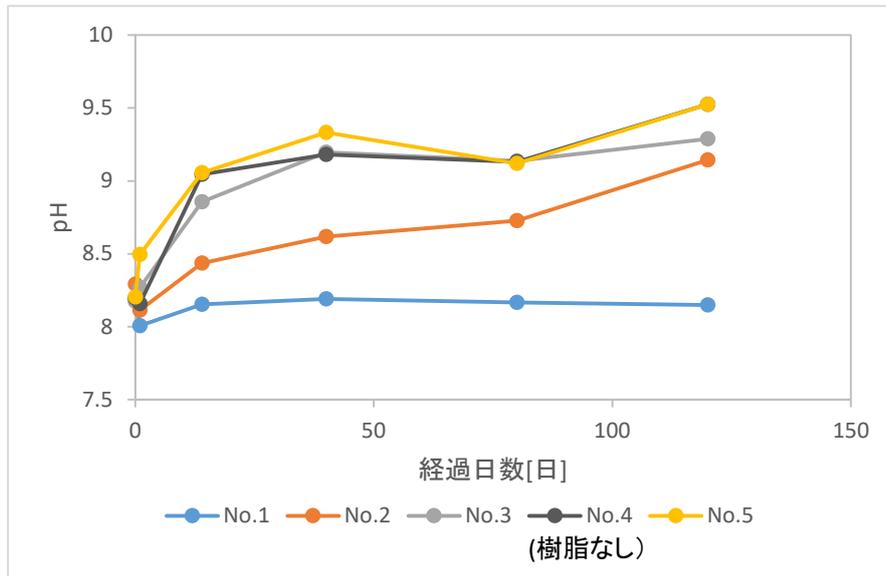


図 3.1-12 各浸漬試験試料における pH の時間変化

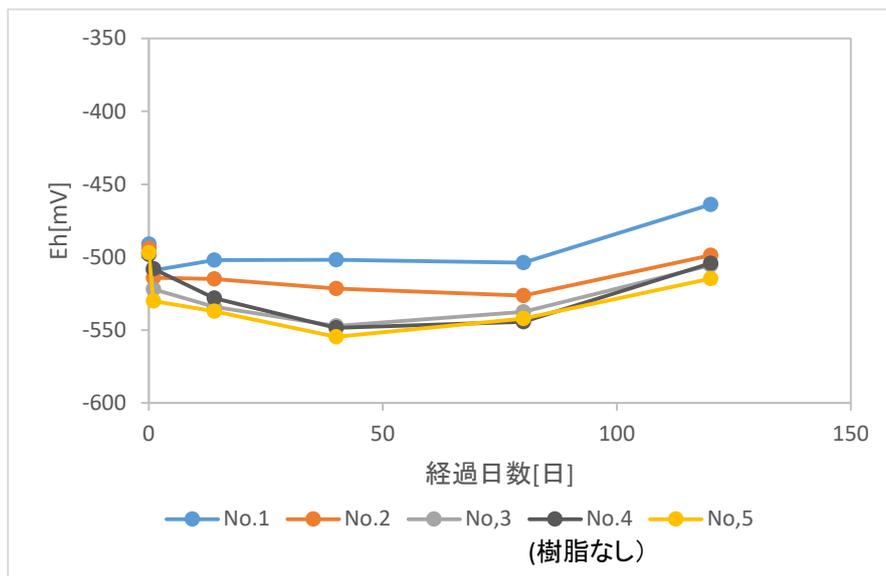


図 3.1-13 各浸漬試験試料における液相の Eh の時間変化

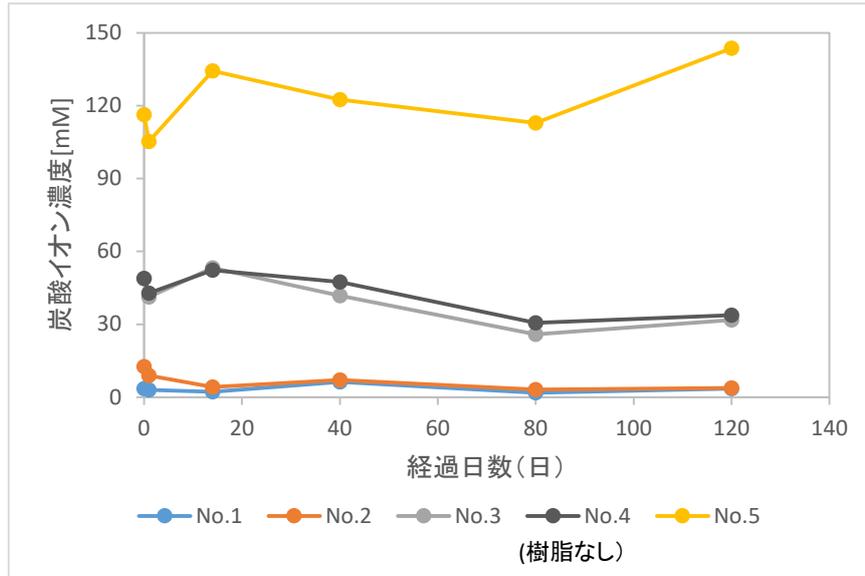


図 3.1-14 各試料における液相の炭酸イオン濃度の時間変化

次に ICP-MS 測定結果を示す。溶出したウラン濃度（対数値）の時間変化を、令和 3 年度の結果と合わせて図 3.1-15 に示す。令和 3 年度結果では、浸漬 40 日付近からウランが見かけの平衡状態に近づいていく傾向が見られたのに対して、令和 4 年度の結果では、浸漬 40 日後もウラン濃度の上昇が続いているため、平衡状態に達していないと考えられる。さらに、浸漬 80 日目には溶出ウラン濃度が顕著に上昇した。この要因についての考察は後述する。続いて、測定したサンプル中の ^{26}Mg 、 ^{24}Mg 濃度を図 3.1-16、図 3.1-17 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 ($^{12}\text{C}+^{14}\text{N}$) による、 ^{26}Mg 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。 ^{24}Mg は (U, ^{26}Mg) O_2 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 ^{26}Mg は、(U, ^{26}Mg) O_2 固溶体ペレット由来の ^{26}Mg と、バックグラウンド由来の ^{26}Mg が混在していることから、単純な濃度変化から UO_2 マトリクスの溶解傾向を直接読み取ることが出来ない。

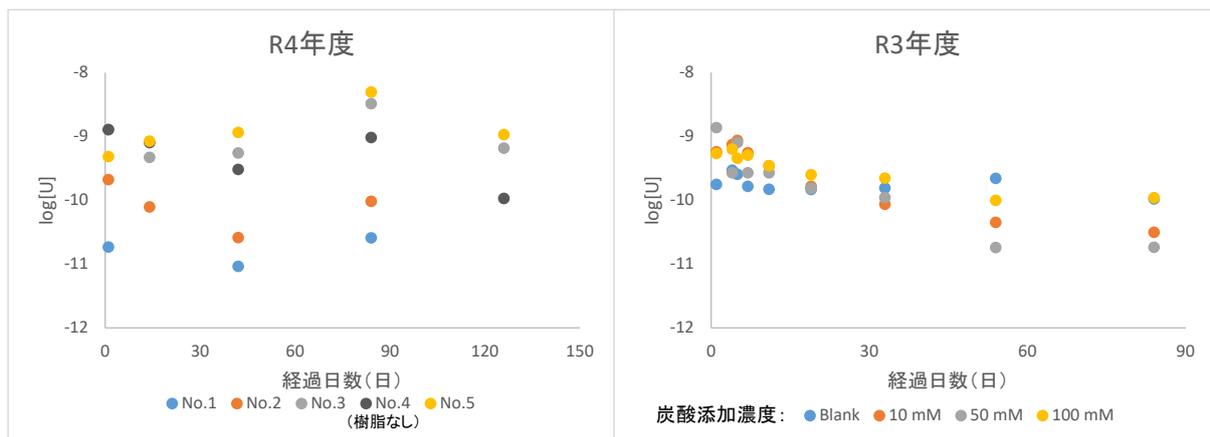


図 3.1-15 各試料における液相の U 濃度の対数値の時間変化

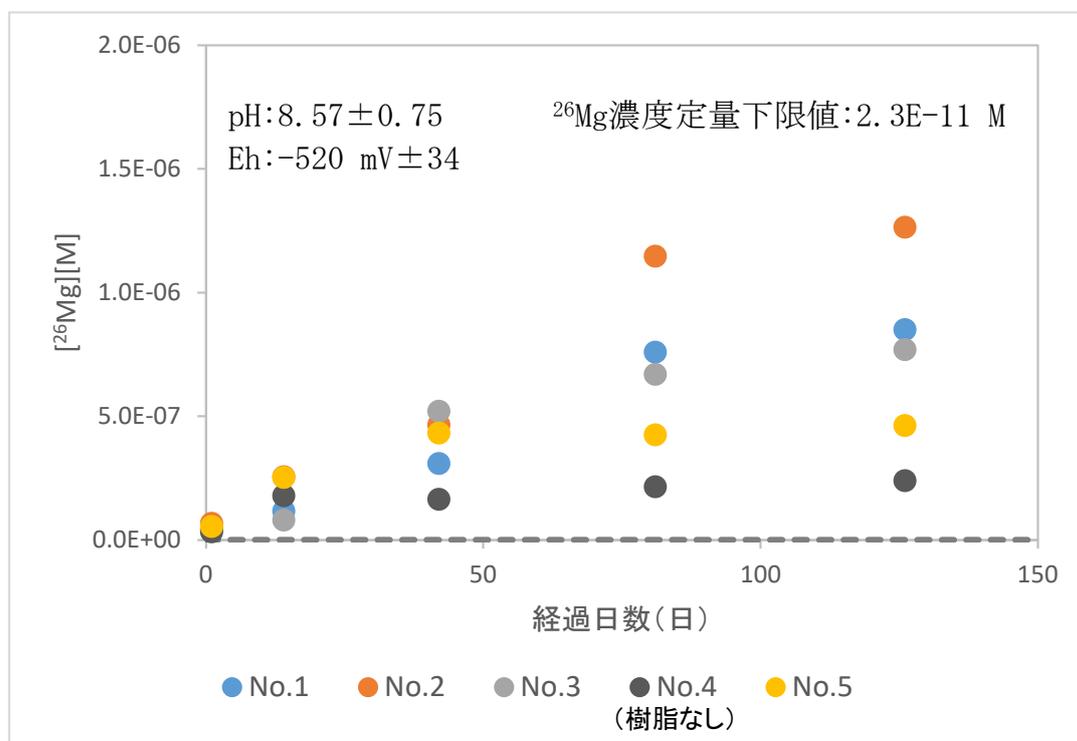


図 3.1-16 各試料における液相の ^{26}Mg 濃度の時間変化

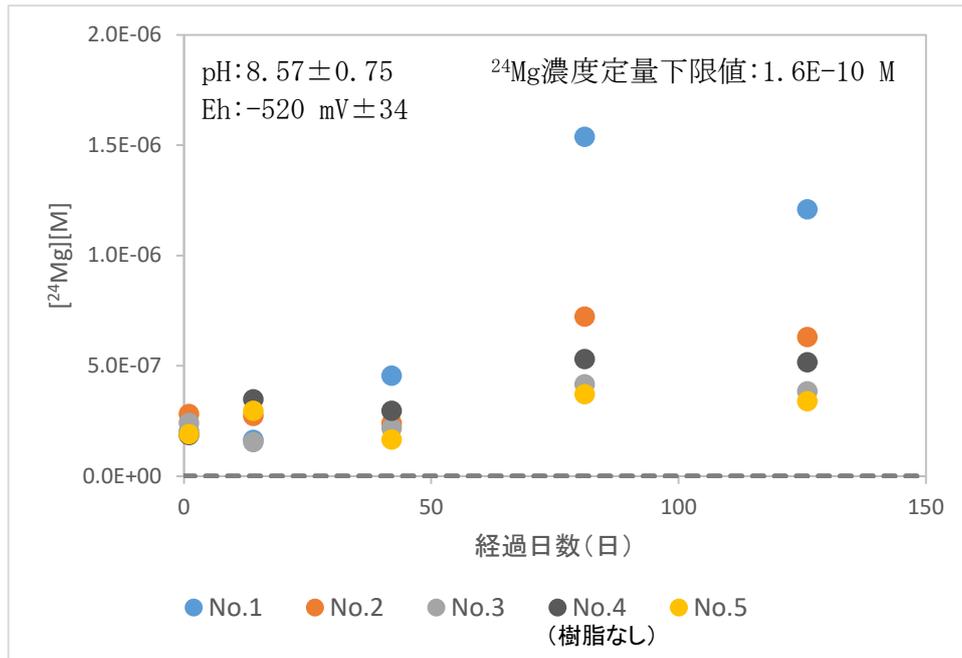


図 3.1-17 各試料における液相の ^{24}Mg 濃度の時間変化

b. ^{26}Mg の溶出挙動の評価

(U, ^{26}Mg) O_2 ペレットから溶出する Mg の同位体比は ^{26}Mg 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 ^{24}Mg , ^{26}Mg 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 ^{26}Mg のうち、ペレットから溶出した ^{26}Mg 量を算出した。

$$[^{24}\text{Mg}_{(p)}] + [^{24}\text{Mg}_{(BG)}] = [^{24}\text{Mg}_{(T)}] \dots\dots\dots \text{式 3.1-1}$$

$$[^{26}\text{Mg}_{(p)}] + [^{26}\text{Mg}_{(BG)}] = [^{26}\text{Mg}_{(T)}] \dots\dots\dots \text{式 3.1-2}$$

$$\frac{[^{24}\text{Mg}_{(p)}]}{[^{26}\text{Mg}_{(p)}]} = 0.002911 \dots\dots\dots \text{式 3.1-3}$$

$$\frac{[^{24}\text{Mg}_{(BG)}]}{[^{26}\text{Mg}_{(BG)}]} = 7.174 \dots\dots\dots \text{式 3.1-4}$$

- $[^{24}\text{Mg}_{(p)}]$: ペレットから溶出した ^{24}Mg 量
- $[^{24}\text{Mg}_{(BG)}]$: バックグラウンドから混入した ^{24}Mg 量
- $[^{24}\text{Mg}_{(T)}]$: ICP-MS 測定で測定されたサンプル中 ^{24}Mg の総量
- $[^{26}\text{Mg}_{(p)}]$: ペレットから溶出した ^{26}Mg 量
- $[^{26}\text{Mg}_{(BG)}]$: バックグラウンドから混入した ^{26}Mg 量
- $[^{26}\text{Mg}_{(T)}]$: ICP-MS 測定で測定されたサンプル中 ^{26}Mg の総量

図 3.1-18 に (U, ^{26}Mg) O_2 固溶体ペレットから溶出した ^{26}Mg の時間変化と令和 3 年度との比較を、図 3.1-19 にバックグラウンド由来の ^{26}Mg の時間変化を示す。バックグラウンド由来の ^{26}Mg の経時変化を見ると、浸漬 40 日目までは値が小さく、バックグラウンドからの混入を抑

えられている。しかしながら、浸漬 80 日目では、ペレット No. 1 が突出して値が大きくなっているため、何らかの原因でバックグラウンドからの混入が発生したと思われる。また、ペレットから溶出した ^{26}Mg の推移をみると、浸漬日数に伴い増加傾向にあり、令和 3 年度と比較して明らかに値が高く、日数に伴う増加速度も速い。ただし、ペレット No. 4（樹脂埋めしていないペレット）については、他のペレットと比較して ^{26}Mg 溶出濃度が低い。令和 3 年度よりも ^{26}Mg の溶出が促進されている理由が、樹脂埋めをしたことによるものかを検討するため、樹脂埋めをしていないペレットからの溶出濃度と令和 3 年度に同条件で実施した溶出濃度との比較を図 3.1-20 に示す。この結果より、令和 3 年度とほぼ同条件で調製・浸漬した試料に関しても、(U, ^{26}Mg) O_2 ペレットからの ^{26}Mg 溶出挙動には差が見られ、令和 3 年度に調製したペレットよりも ^{26}Mg の溶出が顕著であった。よって、樹脂埋めによるペレットの性状の変化等により ^{26}Mg の溶出が促進された可能性に加えて、調整したペレットの初期酸化状態の違いによって、令和 3 年度よりも ^{26}Mg の溶出が顕著だったと考えられる。

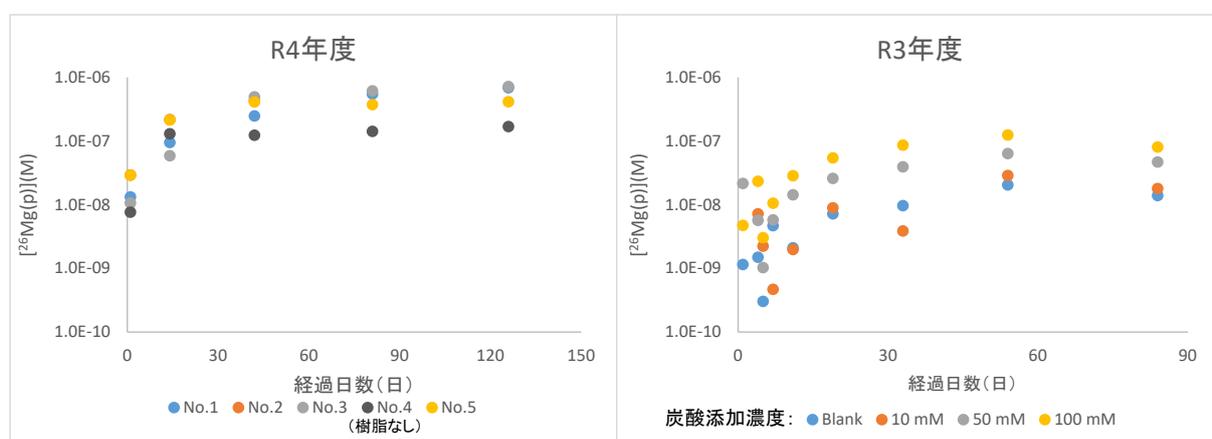


図 3.1-18 (U, ^{26}Mg) O_2 固溶体ペレットからの ^{26}Mg 溶出濃度の時間変化

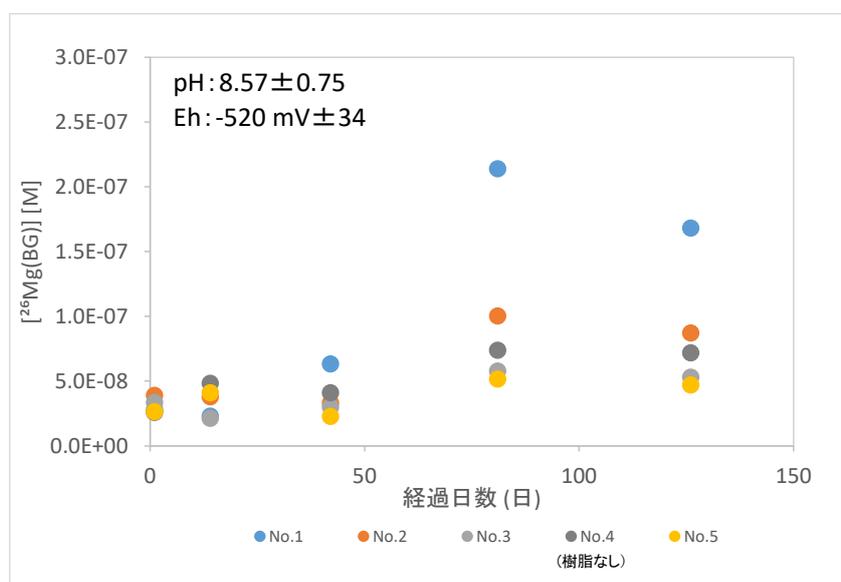


図 3.1-19 バックグラウンド由来の ^{26}Mg 濃度の時間変化

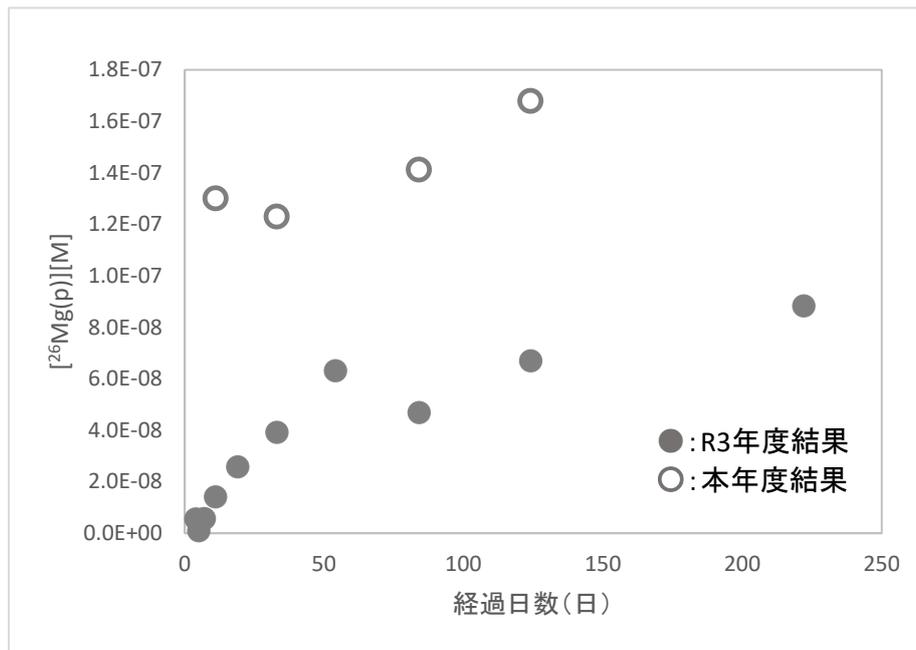


図 3.1-20 添加[NaHCO₃]=50 mMにおける²⁶Mg 溶出濃度比較

c. UO₂ マトリクス溶解速度の評価

図 3.1-18 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。

$$DR \left(\frac{\text{mg}}{\text{m}^2 \cdot \text{d}} \right) = \frac{C \cdot V \cdot M \cdot 10^3}{A \cdot t} \dots\dots\dots \text{式 3.1-5}$$

- 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 3.1-18 に示した、(U, ²⁶Mg) O₂ 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 3.1-21 に示す。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 14 日から 126 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。この際に用いた²⁶Mg 溶出率 D_{26Mg} (d⁻¹) を表 3.1-7 に示した。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バッチ試験開始前の浸漬溶液全量交換と、バッチ試験開始 14 日までにある程度落ち着いていると考え、14 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。

仮定より、

$$D_U(d^{-1}) = D_{^{26}\text{Mg}}(d^{-1}) \dots\dots\dots \text{式 3.1-6}$$

$$\therefore \text{DR} \left(\frac{\text{mg}}{\text{m}^2 \cdot \text{d}} \right) = \frac{m_U \cdot D_U(d^{-1})}{A} = \frac{m_U \cdot D_{^{26}\text{Mg}}(d^{-1})}{A} \dots\dots\dots \text{式 3.1-7}$$

$D_U(d^{-1})$: ペレットからの 1 日当たりの U 溶出率 (d^{-1})

$D_{^{26}\text{Mg}}(d^{-1})$: 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)

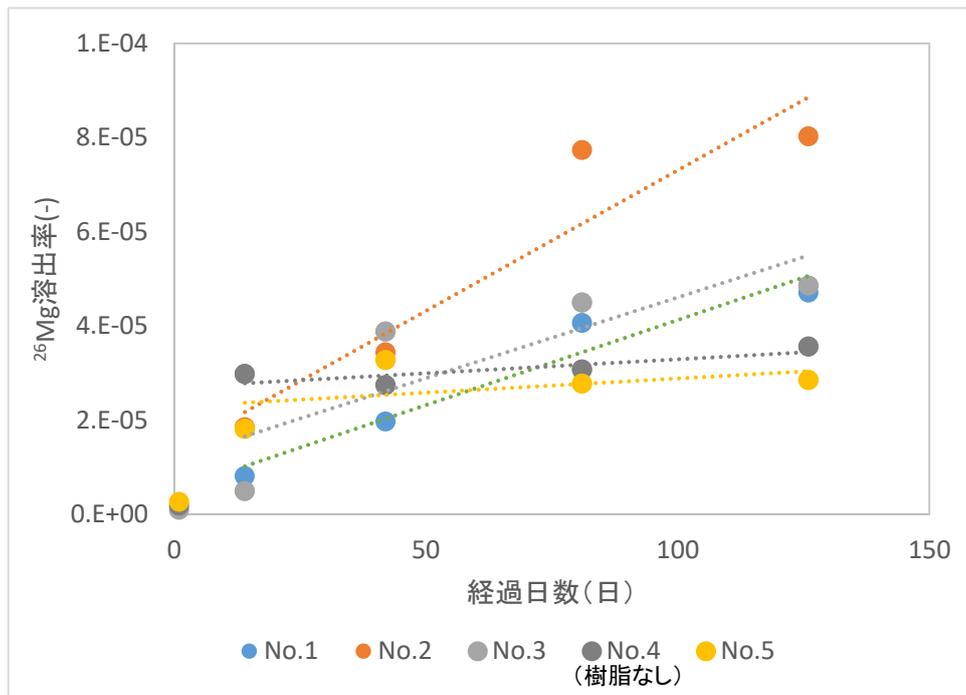


図 3.1-21 (U, ^{26}Mg) O_2 ペレットからの ^{26}Mg 溶出率の時間変化

表 3.1-7 (U, ^{26}Mg) O_2 ペレット浸漬実験による 1 日当たりの ^{26}Mg 溶出率

ペレット	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4	No. 5
$D_{^{26}\text{Mg}} (d^{-1})$	3.61×10^{-7}	5.96×10^{-7}	3.42×10^{-7}	5.91×10^{-8}	5.94×10^{-8}
標準偏差 σ	6.30×10^{-8}	1.55×10^{-7}	1.60×10^{-7}	2.69×10^{-8}	7.91×10^{-8}

図 3.1-22 に導出した DR と炭酸濃度の関係と、令和 3 年度との比較を示す。図中に示した誤差棒は、1 日当たりの ^{26}Mg 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。令和 3 年度は先行研究と同様に還元条件下でのマトリクス溶解速度に炭酸イオン濃度依存性(正の相関)が確認されていたが、本年度は相関が確認できない。昨年度と異なる溶解挙動を示した理由を考察するため、浸漬溶液中のウラン濃度の経時変化に着目した。

図 3.1-15 を見ると、令和 4 年度の試験では、ウラン濃度は時間とともに増加する傾向にある。令和 3 年度までの知見では、炭酸イオン共存下で還元剤を用いた還元環境での UO_2 溶出試験では、 $\text{U}^{\text{IV}}\text{O}_2$ より酸化溶解反応により $\text{U}(\text{VI})$ 炭酸錯体として溶出したウラニル(VI)イオンは、還元剤の作用により $\text{U}(\text{IV})$ に還元され、 $\text{U}^{\text{IV}}(\text{OH})_4(\text{am})$ を形成して再沈殿するため、溶存ウラン濃度は図 3.1-15 の右側に示したような傾向(初期に増加した後、経時的に減少する)を取ることが知られている。

これに対して、令和 4 年度の傾向は、酸化ウラニル $\text{U}^{\text{VI}}\text{O}_2(\text{OH})_{2x}\text{H}_2\text{O}(\text{am})$ のような VI 価ウラニル沈殿からの U の溶出傾向に類似している。このような溶出傾向になった理由として、試験に用いた $(\text{U}, ^{26}\text{Mg})\text{O}_2$ 固溶体ペレット中の一部の U が $\text{U}(\text{VI})$ へ酸化されていた事が考えられる。今年度合成した $(\text{U}, ^{26}\text{Mg})\text{O}_2$ 固溶体ペレットから残存する MgO 相を除去するために実施した塩酸洗浄時の溶出 U 濃度と、令和 3 年度実施した同じ操作時の溶出 U 濃度と比較した図 3.1-10 を見ると、令和 4 年度の $(\text{U}, ^{26}\text{Mg})\text{O}_2$ 固溶体ペレットからの U 溶出濃度が令和 3 年度の同じ試料に比べ 10 倍以上高いことが分かる。酸化力を有する硝酸と異なり、0.1M 塩酸には $\text{U}(\text{IV})$ を酸化する酸化力は無く、もともと $\text{U}(\text{V})$ や $\text{U}(\text{VI})$ となっている固相を酸溶解する能力のみ有する。このため、図 3.1-10 に見られた令和 3 年度に比べ 10 倍以上多く溶出した U は、もともと $\text{U}(\text{V})$ または $\text{U}(\text{VI})$ として $(\text{U}, ^{26}\text{Mg})\text{O}_2$ 固溶体ペレット中に存在していたものと推察される。

2)①項で記述したように、合成した $(\text{U}, ^{26}\text{Mg})\text{O}_2$ 固溶体ペレットの格子定数は 5.4357 Å であり、令和 3 年度に合成したペレット格子定数 5.4410 Å より低い値となった。どちらも添加した ^{26}Mg が完全に UO_2 相へ固溶していたと仮定すると、令和 4 年度のペレットの格子定数が令和 3 年度のペレットよりも低い値となった理由は、ペレット調製時に電気炉のアルミナ反応管内部へ僅かな大気の混入があり、ペレット表面の U の一部が酸化され UO_{2+x} となったためと考えられる。添加した Mg が、100% UO_2 マトリクスに完全固溶したと仮定して、純粋な UO_2 から固溶による格子定数の減少分を計算し、それ以上に減少した分を UO_{2+x} にハイパー化した影響と仮定して計算を行うと、 $x=0.05$ となる。この x についての検証および平衡濃度の妥当性確認等は、現状の測定手法やデータからは難しいものの、X 線電子分光法(XPS)分析を適用すれば、より厳密な酸化影響の検討が可能となると思われる。

また、図 3.1-22 中に樹脂埋めをしなかったペレット (No. 4) について、浸漬期間 14 日から 126 日までの期間の溶出割合から求めたマトリクス溶解速度を灰色の実線プロットで、浸漬期間 14 日から 81 日までの期間の溶出割合から求めたものを灰色の点線プロットで示した。これにより、浸漬期間が延びることで、マトリクス溶解速度の評価値が大きく変化しうることがわかる。よって、マトリクス溶解速度を長期溶解速度の根拠データとするためには、初期溶解の影響を排除できる試験期間を設定することが重要である。

本評価におけるマトリクス溶解速度 DR は、樹脂埋めによる表面積を規定した評価手法の有用性を確認するためには、前述した $(\text{U}, ^{26}\text{Mg})\text{O}_2$ 固溶体ペレットの初期の酸化状態の確認が重要

であることが分かった。また、ペレット表面の微細なボイドやクラックの影響を排除した評価手法の確立は、より現実的な長期溶解速度の設定には必要不可欠であると考えられる。よって、ペレットを加工せず、初期状態の浸漬ペレットの比表面積を測定することが可能な BET (Brunauer, Emmet and Teller' s equation) 法から測定するなど、表面積評価手法については今後も検討を重ねていく必要がある。また、調製した (U, ²⁶Mg)O₂ 固溶体ペレットの酸化を避けるためには、固溶体ペレット調製前に標準サンプルを Ar 雰囲気中で焼結し、格子定数の変化より電気炉反応管のリーク状態を確認することが有効であると思われる。同時に、浸漬試験終了後の固溶体ペレットの表面分析から、ウランの酸化数や析出物の有無の判定を行い、マトリクス溶解速度の評価値の妥当性を検証する必要があると考えられる。令和 4 年度までに実施してきた浸漬試験は、浸漬日数が最大でも 4 か月程度であり、数万年オーダーの長期溶解速度を設定するための根拠データとするには、時間依存性について更なる検討が必要である。溶出速度の安定化のためには、年単位の浸漬日数を確保したバッチ試験の実施も不可欠であると考えられる。

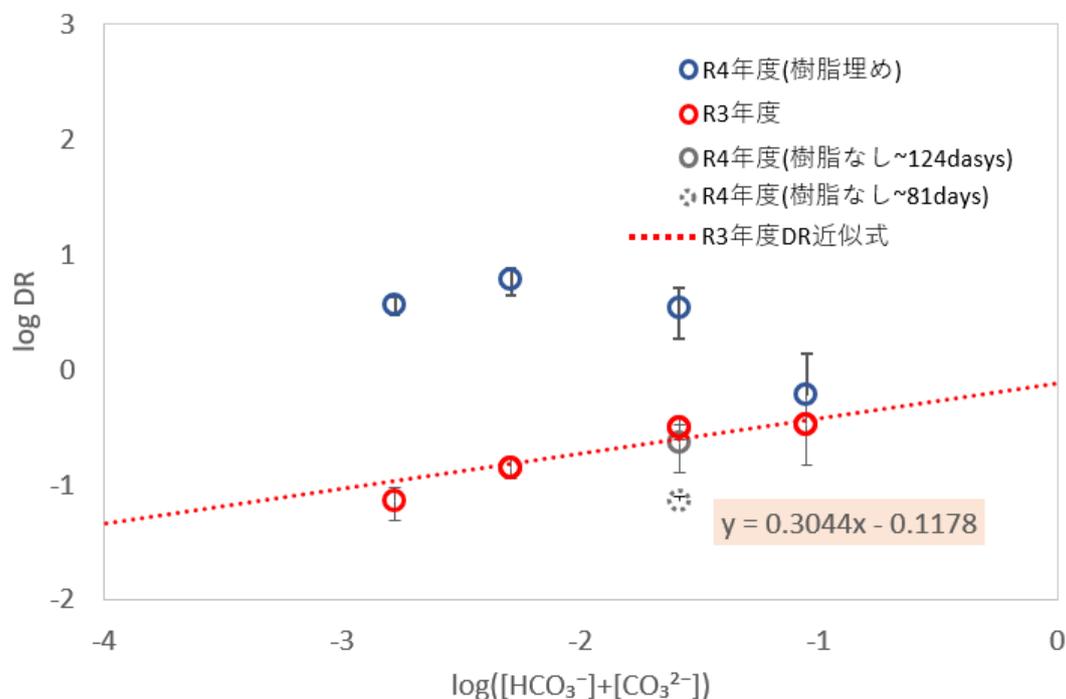


図 3.1-22 DR に及ぼす炭酸イオン濃度の影響年度比較

(3) UO_2 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

ウランは4価($U(IV)$)から6価($U(VI)$)に酸化されることで水溶性が高まる性質があるため、使用済核燃料の溶解の基礎過程に関する研究においても、酸化を伴うウランの溶出反応が注目されてきた。一方で、実際の処分となる深地層では、還元的な雰囲気が維持されると考えられており、一度溶出したウランが $U(IV)$ に再び還元され、固体として沈殿する可能性がある。この再沈殿過程の反応様式を明らかにし、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ため、溶解や再沈殿による UO_2 等ウラン酸化物の表面の状態変化を調べてきた。

令和3年度までに、還元性炭酸塩水溶液に浸漬した UO_2 ペレットのラマン分析や、電解還元法により析出させた $U(IV)$ 粒子の表面分析を実施した。その結果、還元性水溶液への浸漬では、ラマン分析で検出可能な表面の状態変化が起きないこと、電解還元で析出させた $U(IV)$ 粒子はSEM-EDX分析で確認できるものの、ラマン活性は低く、有意なラマンスペクトルを与えないことが分かった。また、溶解過程に関しては、 UO_2 や U_3O_8 を試料として、過酸化水素添加により酸化性条件とした溶液中で溶解反応を行い、ラマン分析により表面状態の変化を調べた。その結果、表面のラマンスペクトルに有意な変化は観測されなかった。これは、炭酸塩水溶液中では $U(VI)$ の溶解度が高く、酸化によって生じた $U(VI)$ が表面に残存しないためと考えられる。これらの結果から、これまでの UO_2 ペレット浸漬試験では観察されていないものの、SEM観察で粒子状の析出物が観測され、有意なラマンスペクトルの変化を示さない場合には、ウランの再沈殿が生じていると推定できると考えられる。

令和4年度は、これまでの結果を踏まえて、SEM観察とラマン分析により再沈殿反応を検出できることを確認するため、還元性炭酸塩水溶液中で再沈殿させた UO_2 の特性把握のために「2) UO_2 再沈殿試験」を実施した。具体的には、表3.1-8に示す溶液条件において、ウラニルイオン(UO_2^{2+})の亜ジチオン酸イオン($S_2O_4^{2-}$)による還元反応を用いて $U(IV)$ 粒子を沈殿させ、生じた沈殿のラマン分析およびSEM-EDX分析を行い、沈殿の性状に対する液性の影響を調べた。さらに、これまでの浸漬試験の結果を表面分析から考察するため、「3) 浸漬済み UO_2 試料の再分析」、および「4) 浸漬済み $(U, Mg)O_2$ 試料のラマン分析」を行い、表面での再沈殿の痕跡を検出することを試みた。「3) 浸漬済み UO_2 試料の再分析」では、令和2年度に実施した(原子力機構, 2021)ラマン分析の結果を確認するとともに、SEMによる表面の観察を行った。「4) 浸漬済み $(U, Mg)O_2$ 試料のラマン分析」では、令和3年度に浸漬試験の結果を報告した $(U, Mg)O_2$ ペレット試料のラマン分析およびSEM観察を行った。

表 3.1-8 UO₂再沈殿試験条件

番号	液量 / ml	UO ₂ Cl ₂	NaHCO ₃	Na ₂ S ₂ O ₄ / 10 ⁻³ mol dm ⁻³	EPPS	NaOH	NaCl
L1	40	1.0	10	4	20	13	90
L2	40	1.0	50	4	20	10	50
L3	40	1.0	100	4	20	3	0
L4	250	0.2	1	4	20	15	99
L5	250	0.2	10	4	20	13	90
L6	250	0.2	50	4	20	10	50
L7	250	0.2	100	4	20	3	0
H1	40	1.0	10	30	150	97.5	90
H2	40	1.0	50	30	150	85	50
H3	40	1.0	100	30	150	80	0
H4	250	0.2	1	30	150	97.5	99
H5	250	0.2	10	30	150	97.5	90
H6	250	0.2	50	30	150	85	50
H7	250	0.2	100	30	150	80	0

2) UO₂再沈殿試験

① 試験方法

還元性炭酸塩水溶液中で生じる再沈殿 UO₂ の特性を把握するため、溶液中の UO₂²⁺ から還元反応により沈殿を取得した。試料調製から固液分離、溶液分析、固体分析までの試験全体の流れを図 3.1-23 に示す。

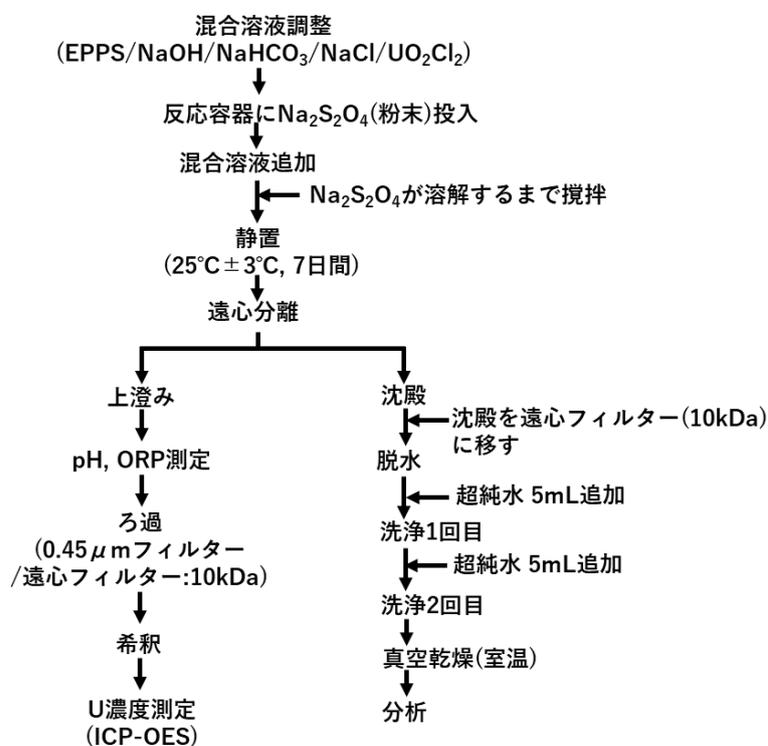


図 3.1-23 UO₂再沈殿試験の試料調製・分析フロー図

試験溶液は炭酸水素ナトリウム (NaHCO_3)、塩化ナトリウム (NaCl)、3-[4-(2-Hydroxyethyl)-1-piperazinyl]propanesulfonic acid (EPPS)、塩化ウラニル (UO_2Cl_2) の水溶液を混合して調製した。溶液調製の際には、pH 調整のため、コールドの予備実験により求めた所定量の水酸化ナトリウム (NaOH) を加えた。また、還元剤として添加した $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ の濃度が 30 mM の条件では、溶液が酸性化する傾向が観測され、pH を 8 程度に調製するために緩衝剤として添加する EPPS 濃度を 150 mM まで高める必要があった。亜ジチオン酸ナトリウム ($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$) は、水溶液の状態では空気中の酸素によって徐々に消費されるため、固体粉末の状態を取り扱った。反応容器として用いる樹脂製バイアル瓶に所定量の $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ を計り取り、そこに上述の混合溶液を加えた後、空気中の酸素の反応を抑制するため速やかに密栓し、溶液を振り混ぜて $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ を溶解させた。この溶液を恒温槽中で 25 ± 3 °C に保持し、7 日間反応させた。図 3.1-24 は調製直後および 7 日間反応後の試料 L1 の外観である。反応により沈殿が生じたことが目視で確認できた。いずれの試験も同条件で 3 試料を調製し、繰り返しを行った。



図 3.1-24 反応前後の試料外観 (試料番号 : L1)

恒温槽中で 7 日間反応させた後、反応容器を開封し、固液分離操作を行った。固液分離では、遠心分離により沈殿を沈降させ、上澄み液を 3 mL 程度残して静かに取り出した。取り出した上澄み液は速やかに少量分取して pH および ORP の測定を行った。その後 0.3 mol dm^{-3} 硝酸酸性に調製し、Perkin Elmer 製誘導結合プラズマ発光分析 (ICP-OES) 装置 Avio-200 により、残存するウラン濃度を測定した。

上澄み液を取り除いた後の沈殿は、分画分子量 10 kDa の遠心フィルターでろ過し、残存する溶液を除去した。溶液を取り除いた後の沈殿は超純水による洗浄を行った。沈殿を保持した遠心フィルターに超純水を 5 mL 加え、遠心ろ過により洗浄水を除去する操作を 2 回行った。その後、遠心フィルターごと真空デシケータで一晩乾燥させた。真空乾燥を行った沈殿を少量分取して、SEM 観察用のアルミニウム製試料台にカーボンシールを用いて固定した。

この試料をラムダビジョン製ラマン分光分析装置 MicroRAM-300Z/633A により分析した。ラマン分析では分析対象に選定した箇所にも焦点を合わせ、 $10 \mu\text{m}$ 間隔で点分析によるラマンスペクトルを取得した。分析には少なくとも 40 点の分析が可能な箇所を選定し、最大 100 点のデータを取得した。

ラマン分析の後、日本電子製 JCM-7000 を用いて同一試料の SEM-EDX 分析を行った。SEM-EDX 分析では、ラマン分析時に取得した光学顕微鏡像を参照して、同一箇所の分析を行い、二次電子像を取得するとともに EDX による元素組成の分析を行った。

さらにこれらの分析に加えて、沈殿の粒径について評価するため、沈殿試料の一部を用いて Brunauer-Emmett-Teller (BET) 法による比表面積測定を行った。測定には Micromeritics 製の TriStar II 3020 を用いた。

② 結果と考察

ウランの再沈殿反応は、溶液調製から数時間で進行し、試料中に微細な懸濁物が生じることが観察された。1～3 日間の反応により図 3.1-25 のように反応容器底部に沈殿が生じたが、溶液の反応条件により沈殿生成挙動に顕著な違いが観測された。まず、図 3.1-25 に示したように、反応条件によって、得られた沈殿の色が異なった。また、一部の反応条件では一度生成した沈殿が、その後数日で再溶解する挙動が観察された。これらの結果を溶液分析の結果 (pH・ORP 測定値、溶液中のウラン残存率) とあわせて表 3.1-9 にまとめた。

表 3.1-9 反応条件と沈殿観察結果、反応後の溶液分析結果および比表面積測定結果

試料番号 (試験数)	沈殿観察結果		反応後の溶液分析結果* ¹			比表面積* ² / m ² g ⁻¹	
	色	観察時点	pH	ORP / mV	残存 U / %		
L1 (n=3)	黒	24h	7.84	+211.7	10.4	-	
L2 (n=3)	黒	24h	7.97	+197.0	40.5	-	
L3 (n=3)	黒	24h	8.05	+199.8	49.3	7~10	
L4 (n=3)	黒	24h	7.93	+210.3	20.7	-	
L5 (n=3)	黒	48h	7.83	+206.9	92.1	-	
L6 (n=3)	黒→溶解	48h→ 144h	7.99	+207.6	94.8	-	
L7 (n=3)	黒→溶解	48h→ 144h	8.15	+202.6	77.5	-	
H1 (n=3)	黄緑	24h	7.99	-467.9	0.1	-	
H2 (n=3)	黄緑	24h	7.98	-471.3	0.2	-	
H3 (n=3)	黄緑	24h	8.03	-475.0	0.1	1.1	
H4* ³	(n=2)	黄緑	24h	7.87	-440.5	0.5	-
	(n=1)	黄緑→黒	24h→96h	7.82	+190.3	31.9	-
H5 (n=3)	黄緑→黒	24h→ 144h	7.88	+173.4	19.4	-	
H6* ³	(n=2)	黄緑	72h	7.95	-476.3	0.4	-
	(n=1)	黄緑→黒	72h→ 144h	7.77	+143.5	2.3	-
H7 (n=3)	黄緑	72h	7.99	-480.4	0.8	1.5	

*¹ 同条件の試験 3 回の平均値を示す。

*² 3 回の試験で取得した沈殿を混合し、比表面積測定試料とした。測定結果が定量下限値未満の試験および沈殿が得られなかった試験については「-」と記載した。

*³ 反応後の酸化還元電位の測定値が大きく異なる試験があったため、酸化還元電位が同等程度の試験 2 回分の平均値を示し、結果が異なった 1 回の試験については別に示した。

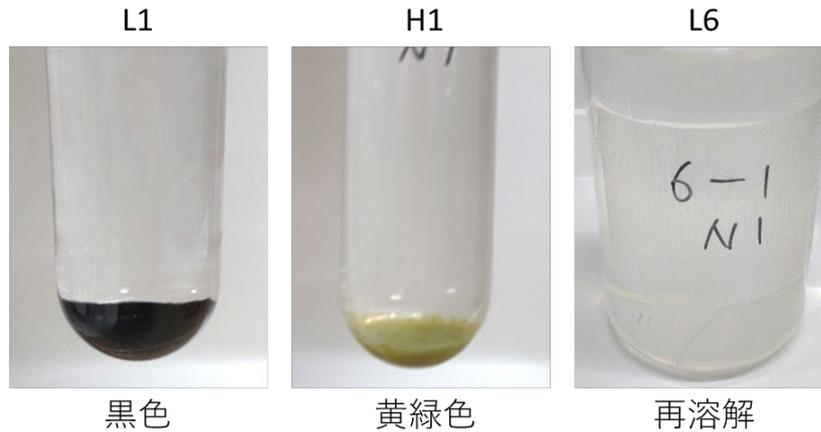


図 3.1-25 試験で得られた沈殿の外観

各反応条件での結果を比較すると、反応終了時の酸化還元電位に応じて次のような傾向にあることが分かる。

- ・ 酸化還元電位が+200 mV 程度の場合、黒色沈殿が得られるがウランの溶解度は高く、初期のウラン濃度が低い場合には再溶解が起きる。
- ・ 酸化還元電位が-450 mV 程度の場合には、沈殿生成の収率は高いが、ウラン酸化物/水酸化物とは異なる黄緑色の沈殿が生成する。

反応終了時の酸化還元電位が+200 mV 付近となった試料 L1~L7 の試験では、炭酸塩濃度に依存して、ウランの溶液中残存率が高くなる傾向が観測された。酸化還元電位が+200 mV と高いため、ウランの溶存形態は 6 価の U(VI) であり、観測されたウランの溶液中残存率の炭酸濃度依存性は、ウラニル炭酸錯体の形成による溶解度の上昇によるものと考えられる。一方で、反応終了時の酸化還元電位-450 mV 付近となった試料で観測された黄緑色沈殿については、U(IV) 化合物と考えられるが、同定には至らなかった。分析のため溶液中から分離し空気に曝露されると速やかに黒色に変色するため、不安定で酸化されやすい性質を持っていると考えられる。また、炭酸塩濃度が最も低い試料 H4 でも観測されたことから、炭酸塩の反応によるものではなく、 $S_2O_4^{2-}$ やその分解で生じる亜硫酸イオン (SO_3^{2-}) 等の含硫黄化合物と U(IV) との反応や、pH 調整のために高濃度に添加した EPPS が関与する沈殿生成と推察される。

試験で得られた沈殿の SEM 観察では沈殿粒子の形状に反応条件による明瞭な違いは観測されなかった。1 例として試料 L1 の沈殿について取得した SEM 像を図 3.1-26 に示す。沈殿は微細な粒子の堆積物であった。割れた部分の断面を高倍率で観察したところ、断面は平滑で 1 万倍の観察でも粒子の形状は判然とせず、粒径が 1 μm 未満の微粒子が生成したことが分かった。

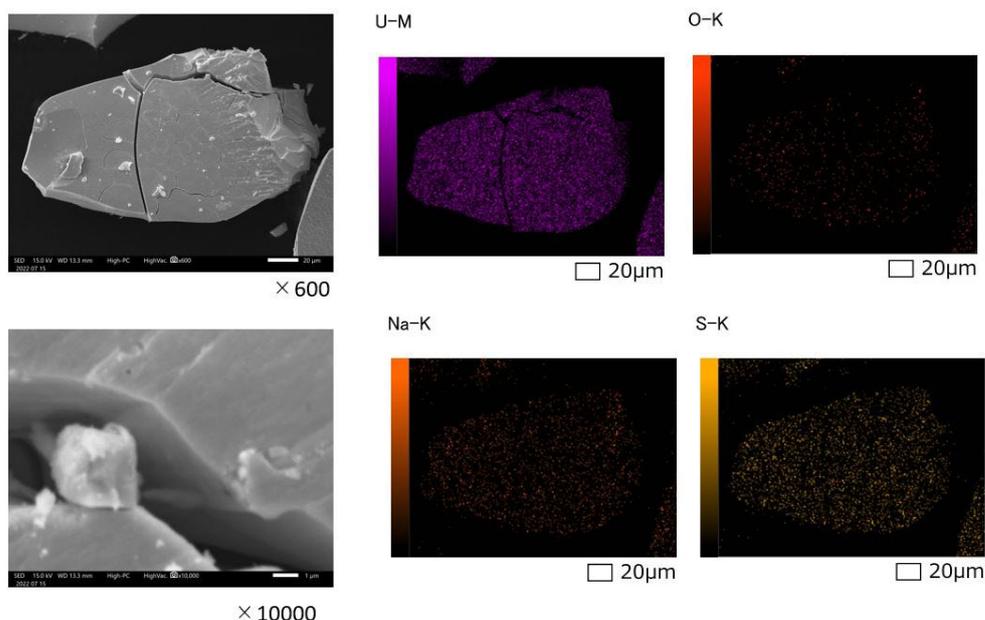


図 3.1-26 試料 L1 の二次電子像と元素マッピング像

そこで、粒径について評価するため、得られた沈殿の一部を分取して BET 法による比表面積の測定を行ったが、多くの試料で定量下限値を下回る結果となった。比表面積の測定結果を表 3.1-9 に示す。有意な比表面積が観測された L3、H3、および H7 は、いずれも NaHCO_3 濃度が 100 mmol dm^{-3} の条件であり、高炭酸塩濃度ではより微細な粒子が析出することが示唆される。それ以外の条件については、装置の定量下限を参考に見積もった粒径の最小値は約 100 nm であり、SEM 観察の結果と併せて考えると、溶液中での還元反応で生成する粒子のサイズは $100 \text{ nm} \sim 1 \mu\text{m}$ と推定される。一般論になるが、 100 nm を超えるサイズの粒子はナノ粒子には分類されず、水溶液中では一時的に懸濁状態を作るものの、コロイド状の分散状態とはならず経時的に沈降する傾向を示す。これは試験時に観察された沈殿挙動と整合しており、粒径の評価は妥当であると考えられる。

SEM 観察時に行った EDX による元素分析では、いずれの試料でもウランと酸素が主要な元素であった (図 3.1-26)。それ以外の元素では、炭素、ナトリウム、硫黄が検出された。表 3.1-10 に EDX 分析の結果をまとめた。炭素の含有量は多くの試料で 10%程度であり、ナトリウムと硫黄は高くとも 5%程度であった。試料溶液に含まれる元素のうち、塩素はいずれの試料でも検出されなかった。カーボンテープ上の粒子を分析した結果であるため、定量性は低く、特に炭素の分析値は信頼性が低い。試験で取得した沈殿はウラン酸化物/水酸化物が主要な成分であることが分かる。また、一部炭酸や含硫黄化合物を随伴した固相が生成したと推察される。ただし、上述のとおり、沈殿は分析前処理として超純水による洗浄を行っているため、その際に炭酸塩や亜ジチオン酸塩は除去された可能性がある。

表 3.1-10 EDX 分析で測定した元素組成

試料名	元素組成 / at% * ¹				
	U	O	C	Na	S
L1	46.66	40.24	10.60	1.74	0.76
L2	48.72	39.84	10.03	0.69	0.72
L3	47.32	41.49	9.40	1.33	0.46
L4	48.70	37.22	8.07	3.89	2.12
L5	43.90	40.99	11.77	1.53	0.44
L6* ²	-	-	-	-	-
L7* ²	-	-	-	-	-
H1	43.52	41.30	7.85	2.86	4.47
H2	44.06	42.67	8.29	2.32	2.65
H3	45.10	42.87	8.77	1.79	1.48
H4*	39.35	43.81	8.47	3.22	4.75
H5	45.90	40.33	10.86	1.68	1.23
H6	45.29	37.84	11.96	2.30	2.60
H7	49.11	35.29	12.42	1.52	1.65

*¹ いずれの試料でも組成比 1%未満であった不純物元素(A1 等) については記載していない。

*² 沈殿が再溶解したため、分析を実施していない。

一方で、ラマン分析では試料の反応条件の違いがスペクトルに見られた。各試料で観測されたラマンスペクトルを図 3.1-27 に示す。図示したスペクトルは、いずれも 42~100 点の分析を平均したスペクトルである。

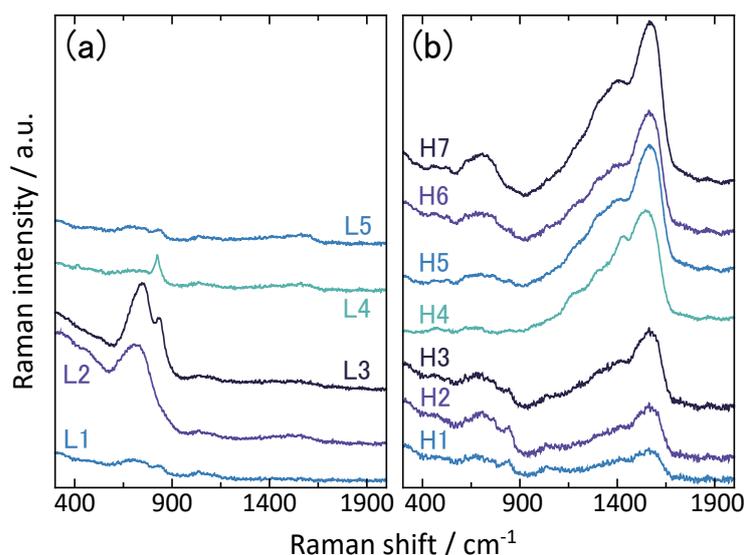


図 3.1-27 試験で取得した沈殿のラマンスペクトル

(a) $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 濃度が 4 mmol dm^{-3} の試料 L1 から L5 の分析結果、 (b) $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 濃度が 30 mmol dm^{-3} の試料 H1 から H7 の分析結果

$\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 添加濃度が 4 mmol dm^{-3} の試験のうち、沈殿が再溶解した L6 および L7 を除いて、L1 から L5 のラマンスペクトルでは、いずれも同様の位置にラマンバンドが観測されたが、各バンドの相対強度には NaHCO_3 濃度による変化が観測された (図 3.1-27(a))。 NaHCO_3 濃度が 1 mmol dm^{-3} (L4) および 10 mmol dm^{-3} (L1 および L5) の条件で生成した沈殿では、波数 700 cm^{-1} 、 840 cm^{-1} および 1550 cm^{-1} 付近に強度の弱いラマンバンドが見られた。この分光特性は UO_2 のラマンスペクトルとは明確に異なるため、沈殿は結晶質の UO_2 ではないことが分かる。これらのうち、波数 700 cm^{-1} 付近のラマンバンドは、 NaHCO_3 濃度が 50 mmol dm^{-3} (L2) および 100 mmol dm^{-3} (L3) の条件では強度が高くなり、明瞭なピークとして観測された。

令和 3 年度の文献調査の結果を踏まえると、ウラニル化合物の特徴的なラマンバンドは概ね波数 $800\sim 900 \text{ cm}^{-1}$ に現れるため、 840 cm^{-1} に観測されたラマンバンドは、沈殿がウラニル化合物を一部含有することを示唆するが、波数 700 cm^{-1} 付近のピークはウラニル化合物には帰属されない。また、無機炭酸塩固体の特徴的なラマンバンドは波数 $1050\sim 1100 \text{ cm}^{-1}$ に観測されるため、炭酸塩の析出は考えにくい。EDX 分析で検出された主要な元素はウランと酸素であったことも踏まえると、波数 700 cm^{-1} 付近のラマンバンドは炭酸塩水溶液中で沈殿した非晶質のウラン酸化物/水酸化物の信号を検出したものと考えられる。 NaHCO_3 濃度に依存してラマンスペクトルが変化することから、非晶質相の割合や水酸基の濃度などの性状が、沈殿生成時の溶液条件によって変化する可能性が示唆される。この炭酸塩濃度依存性は、令和 3 年度に炭酸塩を含まない溶液中から電解還元によって調製した沈殿で、ラマン活性がほとんど観測されなかった結果とも整合している。

$\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 添加濃度を 30 mmol dm^{-3} とした H1 から H7 の試験においても、波数 700 cm^{-1} 付近のラマンバンドの強度が炭酸塩濃度の増加とともに高くなることが観測された (図 3.1-27(b))。一方で、これらの試料のラマンスペクトルでは、波数 1550 cm^{-1} 付近のラマンバンドが強くなり、波数 1400 cm^{-1} 付近にブロードな別のバンドが存在することも観測された。この波数 1550 cm^{-1} 付近のラマンバンドは NaHCO_3 濃度が 1 mmol dm^{-3} の条件 (H4) でも、明瞭に観測されていることから、 NaHCO_3 濃度の影響を受けて強度が高くなったとは考えにくい。また、反応終了時の酸化還元電位が $+200 \text{ mV}$ 程度となった条件 H5 の試験でも、 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 添加濃度が 30 mmol dm^{-3} であれば同様のスペクトルが得られているため、酸化還元電位を反映したものではなく、 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ もしくは EPPS の影響であると考えられる。 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 添加濃度が 30 mmol dm^{-3} の条件 (H1～H7) では、いずれの試験でも黄緑色の沈殿が一度形成され、反応時間の経過もしくは固液分離操作の際に黒色の沈殿に変化する過程を経ている。

EDX による元素分析では、 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 添加濃度が 30 mmol dm^{-3} の試料も、沈殿の主な構成元素はウランと酸素であったため、黒色に変化した後の沈殿はウラン酸化物/水酸化物であると考えられる。しかし、そのラマン分光特性は $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 添加濃度が 4 mmol dm^{-3} の試料 (L1～L5) で生成した黒色沈殿とは異なるものであった。したがって、 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 添加濃度によるラマンスペクトルの違いは、溶液中で生成する黒色沈殿/黄緑色沈殿の違いと対応するものであり、 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 添加濃度が高い場合には、溶解度制限固相がウラン酸化物/水酸化物とは異なる反応条件となる可能性があることが分かった。

以上の試験結果から、ウラニルイオンやその炭酸錯体として溶存する U(VI) が、溶液中での還元反応により形成した沈殿は以下のような特徴をもつと考えられる。

- ・ 粒径 1 μm 以下の微細な粒子として沈殿する。
- ・ 化学形は結晶質の UO_2 とは異なる状態を取り、ウラン酸化物/水酸化物と推定される。
- ・ 沈殿の化学状態は炭酸塩濃度の影響を受け、高炭酸塩濃度では波数 700 cm^{-1} のラマンバンドが強く観測される。

また、 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ を還元剤として使用する場合は、 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 添加濃度の増加と、それに伴う EPPS 緩衝剤濃度の増加により、溶解度制限固相が炭酸塩水溶液中とは異なる条件となる可能性があることに留意が必要である。

3) 浸漬済み UO_2 試料の再分析

① 試験方法

令和 2 年度にラマン分析の結果を報告した浸漬済み UO_2 試料について、測定したラマンスペクトルの再解析を行い、「2) UO_2 再沈殿試験」で観測されたラマンバンドの有無を確認した。さらに、ペレット表面の SEM 観察を行い、微粒子状の析出物を探した。再解析を行った UO_2 の試料番号および浸漬条件は表 3.1-11 の通りである。SEM 観察には日本電子製 JCM-7000 を用いた。

表 3.1-11 再解析を行った浸漬済み UO_2 ペレット試料 (原子力機構, 2021)

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

a: ペレット表面積 (SA/m^2) と水溶液体積 (V/m^3) の比

② 結果と考察

令和 2 年度に測定したラマンスペクトルのデータを再解析したが、「2) UO_2 再沈殿試験」で観測された波数 700 cm^{-1} 、 840 cm^{-1} 、 1400 cm^{-1} 、 1550 cm^{-1} には有意なラマンバンドは確認できなかった。この結果は、約 300 日の還元性炭酸水溶液への浸漬では、ラマン分析で検出可能な量の再沈殿は生成しないことを示唆する。

ペレット試料の SEM 観察の結果を図 3.1-28 に示す。表面では粒界部分が浸食されており、溶出が起きたと考えられる形状であった。ペレット表面は、粒径 $2\ \mu\text{m}$ 程度の粒子で覆われており、これは焼結時に形成されたものと考えられるが、浸食が著しいため、再沈殿による微粒子が形成されていたとしても、元素組成にも違いが期待できないため、判別は難しいと考えられる。

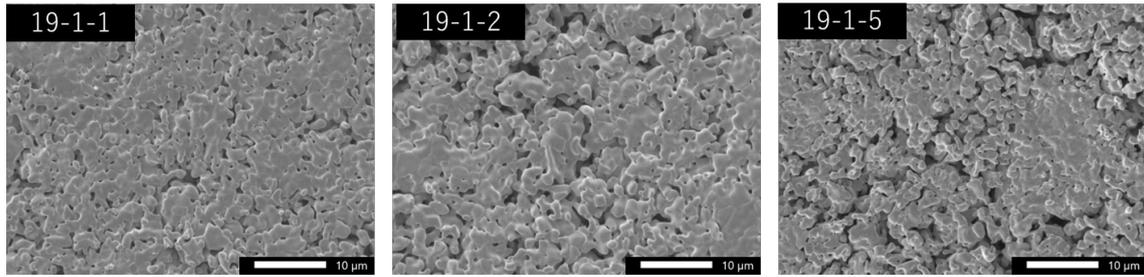


図 3.1-28 浸漬済み UO₂ペレット表面の SEM 観察像

4) 浸漬済み (U, Mg)O₂ 試料のラマン分析

① 試験方法

令和 3 年度に浸漬試験を実施した (U, Mg)O₂ ペレットのラマン分析を行った。分析を行った試料は、令和 3 年度報告書の試料番号で No. 1 と No. 4 および未浸漬の (U, Mg)O₂ ペレットである。No. 1 は炭酸塩を含まない 100 mmol dm⁻³ NaCl 水溶液に浸漬した試料であり、No. 4 は最も炭酸塩濃度の高い 100 mmol dm⁻³ NaHCO₃ 水溶液に浸漬した試料である。試料の浸漬条件を令和 3 年度報告書より、表 3.1-12 に再掲する。UO₂ 再沈殿試験でのラマン分析と同様に、試料ペレット表面の任意の分析箇所を選定し、20 μm 間隔で 100 点のラマンスペクトル測定を行った。また、任意の 5 点については、深さ方向分析を行った。深さ方向分析では 0.2 μm 間隔で最表面から 10 μm の深さまで、装置の試料ステージの高さを制御して測定を行った。また、ラマン分析後に (U, Mg)O₂ ペレット表面の SEM 観察を行った。ラマン分析と SEM 観察には、「2) UO₂ 再沈殿試験」と同様に、それぞれラムダビジョン製 MicroRAM-300Z/633A および日本電子製 JCM-7000 を用いた。

表 3.1-12 (U, Mg) O₂ 固溶体ペレット浸漬試験条件

試料	NaHCO ₃ [mM]	NaCl [mM]	EPPS [mM]	Na ₂ S ₂ O ₄ [mM]	SA/V	ペレット 幾何学的表面 積 [m ²]	溶液体 積 [mL]
No. 1	0	100	20	3	5	1.58×10 ⁻⁴	32
No. 4	100	0					

② 結果と考察

(U, Mg)O₂ ペレットで観測されたラマンスペクトルを図 3.1-29 に示す。図示したスペクトルはペレット表面の平均スペクトルである。深さ方向分析では、いずれの試料でもスペクトルに深さに対する有意な依存性は観測されなかった。まず、未浸漬の試料のスペクトルを見ると、UO₂ に特徴的な波数 450 cm⁻¹ と 1150 cm⁻¹ のラマンバンドに加えて、欠陥由来のバンドがある 500~600 cm⁻¹ の領域に明瞭なピークが存在することが分かる。(U, Zr)O₂ 等のウランの酸化物固溶体でも同様の波数領域にラマンバンドが観測されることから、波数 560 cm⁻¹ のラマンバンドはマグネシウムとの固溶体形成に由来するものと類推される。

浸漬済みの試料 No. 1 と No. 4 のラマンスペクトルを未浸漬試料の結果と比較すると、波数 450 cm^{-1} と 1150 cm^{-1} のバンド強度が低下し、波数 560 cm^{-1} のバンドが相対的に強く観測されていることから、表面の化学状態が異なることが分かる。ただし、未浸漬試料は、浸漬試験の前処理として実施した塩酸水溶液による処理も行っていないため、このラマンスペクトルの変化は塩酸前処理の影響である可能性もある。また、浸漬済みの No. 1 と No. 4 の結果の間には有意な差異はなく、ペレット表面のラマンスペクトルには炭酸塩の影響は認められなかった。「2) UO_2 再沈殿試験」の結果を踏まえると、 100 mmol dm^{-3} の NaHCO_3 を含む試料 No. 4 の浸漬条件では、有意量の再沈殿があれば波数 700 cm^{-1} の位置にピークが観測されると期待される。測定結果には該当ピークは観測されなかったことから、ウランの溶解と再沈殿は遅く、ラマン分光では検出不可能な微量の沈殿しか、ペレット表面に集積しなかったと考えられる。

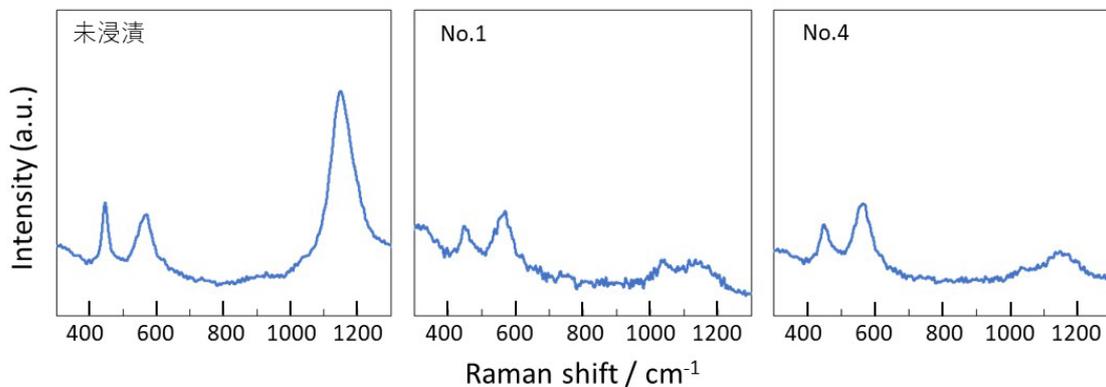


図 3.1-29 未浸漬および浸漬済み (U, Mg) O_2 ペレットのラマンスペクトル

SEM 観察の結果を図 3.1-30 に示す。(U, Mg) O_2 ペレットの粒径は大きく $10\sim 20\ \mu\text{m}$ 程度であった。いずれの試料も、粒界周辺に SEM 像で明るく見える領域が散見され、EDX で分析すると粒の中心よりも Mg 濃度が高く、一部 Mg が濃集していることが分かった。試料 No. 4 には極少量ではあるが、ペレット母材の粒よりも小さな微粒子状の形状が観察され、再沈殿した UO_2 の可能性が考えられる。しかし、未浸漬試料にも微粒子状の形状が表面に観察されたため、No. 4 で観察された微粒子を再沈殿 UO_2 であると結論することはできなかった。

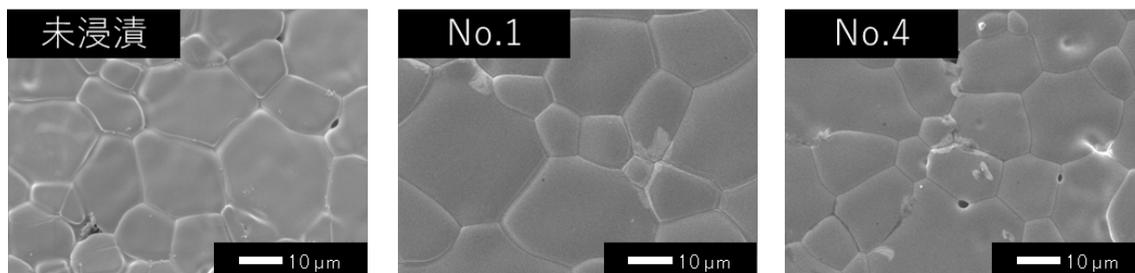


図 3.1-30 未浸漬および浸漬済み (U, Mg) O_2 ペレットの SEM 像

Mg 濃集部や微粒子状の構造は、試料表面の一部で観察されたものであるため、図 3.1-29 に示したラマンスペクトルの変化と対応すると考えるのは難しい。ラマン分析では点分析を 20 μm の間隔を取って繰り返しているため、図 3.1-29 のスペクトルは試料表面の平均的なデータと考えてよい。また、各点分析の結果にも著しいスペクトルの変化はなく、試料の不均一性を示す結果は認められなかった。そのため、観測されたラマンスペクトル形状の違いは、局所的な変化を捉えたものではなく、還元性炭酸塩溶液への浸漬もしくは、塩酸処理によるペレット表面の化学的な性状の変化によるものと考えられる。

(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 Cl の IRF 設定に活用した。

しかしながら、FGR は、I、Cs および Cl 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（Advanced 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上、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令和 4 年度にかけて試みた。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。

令和4年度は、令和3年度に開始した浸漬試験の核種溶出データを継続して取得し、令和2年度に開始した浸漬試験と同様に、試験終了後のサンプルの全溶解、初期インベントリの評価及び溶出割合の導出を行った。また、不活性雰囲気における浸漬試験に着手した。「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

大気雰囲気での浸漬試験(令和3年度開始)に係る試験方法と、雰囲気制御下における浸漬試験(令和4年度開始)の方法を示す。

令和3年度より開始している浸漬試験においては、ペレット燃焼度の影響に着目している。浸漬試験のための試料として、令和2年度開始浸漬試験に供した試料と同じように、「ふげん」燃料集合体E09の外層に装荷された燃料ピンから1試料を採取した。令和2年度は燃料ピン下部から試料を採取しており、令和3年度は燃料ピン上部から採取することで、燃焼度の異なる試料を採取した。ペレットの仕様および照射条件を表3.1-13に示す。

表 3.1-13 浸漬試験に供する試料の仕様、照射条件

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

令和3年度分の浸漬試験として、令和2年度分と同様に、ガラス(パイレックス)製の容器に、白金製の籠とともに実燃料を入れた後、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3.1-31に示す。試料の諸元を表3.1-14に示す。浸

漬開始後、1、3、7、15、31、63、91、122、151 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 H_2O_2 濃度を測定した。また、分画分子量 10^4 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。

表 3.1-14 浸漬試験のために採取した試料の諸元

浸漬開始時期	試料名称	ペレット 端部	試料長 [mm]	試料重量 [g]	浸漬溶液組成 種類
令和 2 年度	試料 1	あり	5.3	7.29	20 mM NaCl
令和 2 年度	試料 2	なし	5.0	7.82	20 mM NaCl
令和 2 年度	試料 3	あり	5.6	8.70	20 mM NaHCO_3
令和 2 年度	試料 4	なし	5.6	7.86	20 mM NaHCO_3
令和 3 年度		なし	5.0	6.86	20 mM NaHCO_3



図 3.1-31 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、ガラス製容器に白金製の籠を戻した後、既往研究 (Roth et al., 2019) と同じように、洗浄液として 2 M HNO_3 (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、 HNO_3 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に実燃料を入れ、8 M HNO_3 (30 mL) を添加した後、100 °C 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 °C 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。

ガンマ線スペクトル測定および ICP-MS 測定では検出が困難な核種の溶出挙動を評価するため、令和 2 年度開始浸漬試験の試料 4 の浸漬溶液のうち、1, 7, 31, 90 日経過後に採取したのに対し、C-14 および C1-36 の分析を行った。

令和 4 年度に開始した雰囲気制御下での浸漬試験においては、不活性雰囲気を維持するために窒素ガスで満たされたチャンバー内にガラス（パイレックス）製の浸漬容器を設置し、浸漬を開始している。浸漬容器内は、白金製の籠とともに燃料を入れた後、還元剤（5 mM 亜ジチオン酸ナトリウム ($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$)) を含む 20 mM NaHCO_3 (100 mL) を添加している。燃料には、未照射の MOX 燃料を使用しており、使用済燃料と同程度のアルファ放射能を有している。還元剤を酸化させる要因となる過酸化水素は、主にアルファ放射線に起因して発生するため、本試験で浸漬溶液の還元雰囲気が維持できた場合、使用済燃料を用いて浸漬試験を行った場合においても還元雰囲気を維持できることが期待される。浸漬開始から、1, 4, 8, 14 日後に浸漬溶液を 2 mL ずつ採取して、pH 及び ORP を測定した。浸漬溶液の採取においては、チャンバーに設置された膜に針を刺し込んで浸漬溶液にアクセスし、針の内部を通じて浸漬溶液を回収するため、チャンバー内の浸漬溶液が大気と接触することはない。

② 結果と考察

大気雰囲気での浸漬試験（令和 3 年度開始分）の結果と、雰囲気制御下における浸漬試験（令和 4 年度開始分）の結果を記載する。

令和 3 年度開始浸漬試験における pH および H_2O_2 濃度の時間変化を図 3.1-32 に示す。pH については、7~9 の範囲での試験を目標としており、浸漬期間全体を通じて 9 前後で安定していたことが確認された。 H_2O_2 については、1 日目に僅かに検出された後、3 日目以降は検出されなかった。既往研究 (Cera et al., 2006) では、 NaHCO_3 溶液中では CO_3^{2-} が OH ラジカルのスカベンジャーとして働き H_2O_2 の生成を抑制すること、さらに UO_2 表面における H_2O_2 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 NaHCO_3 溶液中で H_2O_2 が検出されなかったと考えられる。

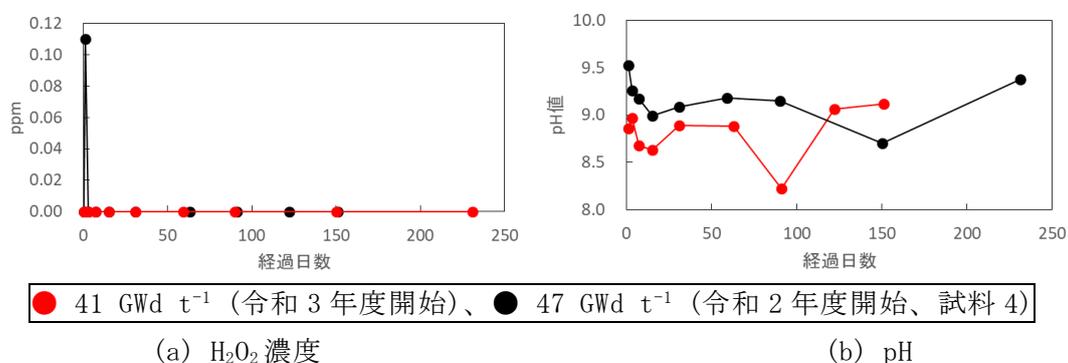


図 3.1-32 pH および H_2O_2 濃度の時間変化

限外経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 3.1-33 に示す。

- ウラン (U)

U-238 が ICP-MS により検出された。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。燃焼度の増加に伴い、溶出速度が増加しているように見える。燃焼度の増加に伴い MA 核種が増加しアルファ放射能が増加したこと、同じく燃焼度の増加に伴い白色金属相が増加したことにより、UO₂マトリクス of 酸化が促進されたと考えられる。

- セシウム (Cs)

Cs-133 が ICP-MS により検出された。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。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。燃焼度の増加に伴い、被覆管とペレットの間のギャップが閉塞することが知られており、ギャップの大きい 41 GWd t⁻¹の方が、Cs が溶出しやすかったと考えられる。

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。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、初期の濃度上昇は、ギャップからの溶出に起因すると考えられ、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と考えられる。燃焼度の増加に伴い、UO₂マトリクス of 溶解量が増加しているため、それに伴い燃焼度と共に Sr の溶解量も増加していると考えられる。

- 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。15 日経過時まで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 が検出されている。燃焼度の増加に伴い、白色金属相の元素組成は変化し、より酸化しにくい元素である Ru や Pd の割合が増加することが知られている。燃焼度の増加に伴い、Tc の溶出量は低下しているが、これは白色金属相それ自体が酸化されにくくなり溶解されにくくなったためと考えられる。

- パラジウム (Pd)

Pd-107 が ICP-MS により検出された。同重体として Ag-107 が考えられるが、Ag-109 の濃度から予想される Ag-107 の濃度は極めて低く、他の Pd 同位体と Pd-107 の経時変化が同様であるため、Ag-107 による妨害（過大評価）は無視できると判断した。15 日経過時まで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。Pd は、Tc と同様に燃料中で主に白色金属相に存在している。燃焼度の増加に伴い、Pd の溶出量は低下しているが、Tc と同様に、白色金属相それ自体が酸化されにくくなり溶解されにくくなったためと考えられる。

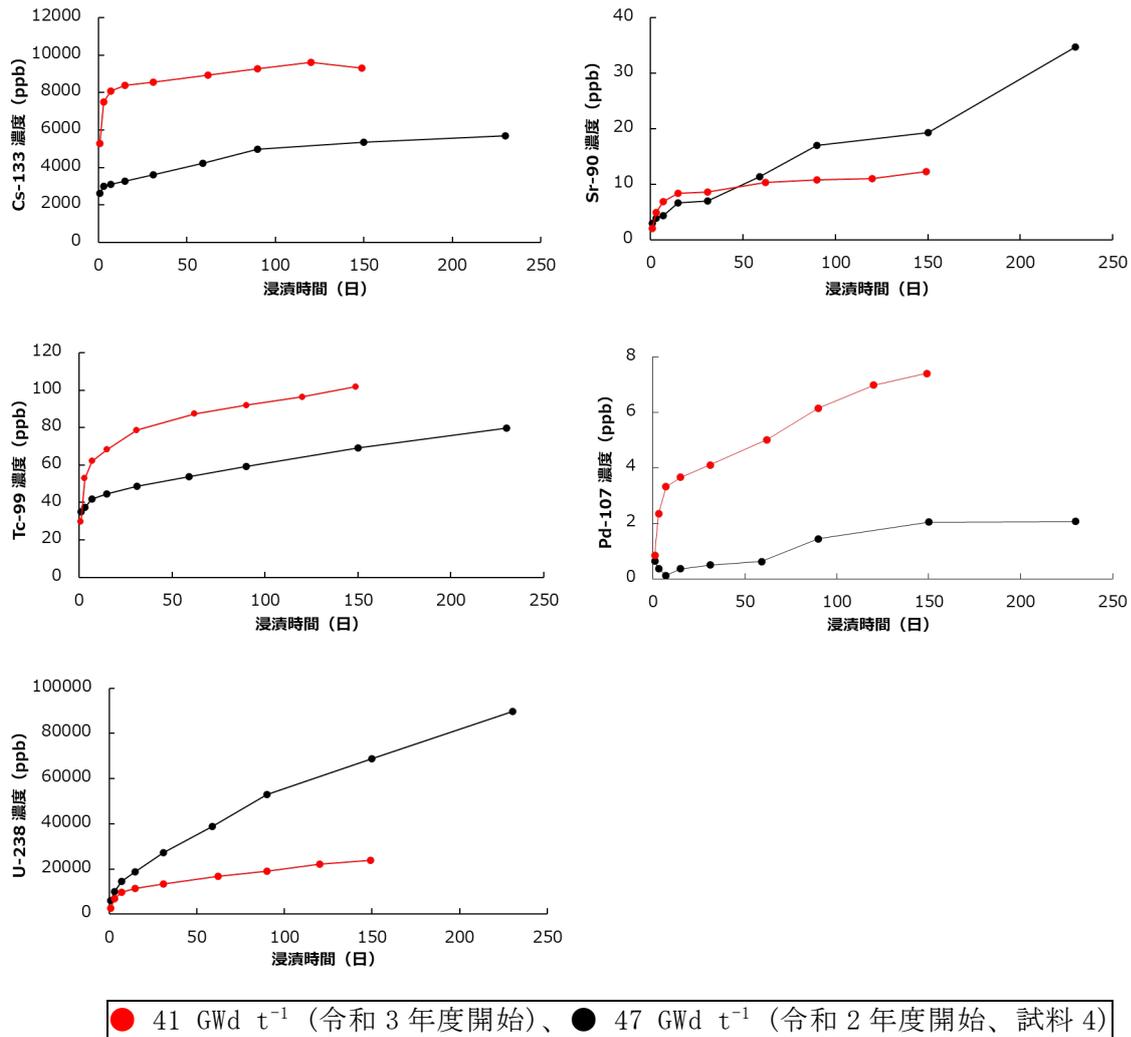


図 3.1-33 Cs-133、Sr-90、Tc-99、Pd-107 および U-238 の溶出挙動

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。

Cs, Sr, Tc, Pd 及び U の放出割合を図 3.1-34 に示す。ギャップに存在する Cs のみが高めの値を示し、その他の元素はいずれも同程度の値を示した。ガラス製容器壁面に存在する分は含めず、溶液中に溶出した分の割合のみを U と比較した結果を図 3.1-35 に示す。Sr, Tc, Pd は、U と同程度の値を示した。Sr については、U との溶出割合が比例関係にあることから、U のマトリクス溶解の指標となりうることが示唆された。Cs の溶出割合が高めの値となったが、FP ガス放出割合が高い試料を用いているため、妥当な結果である。

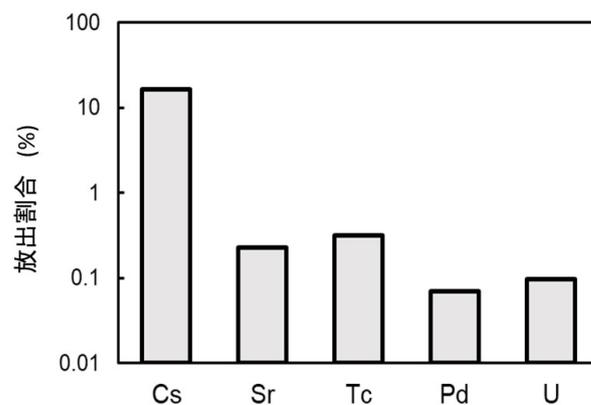


図 3.1-34 Cs-133、Sr-90、Tc-99、Pd-107 および U-238 の放出割合

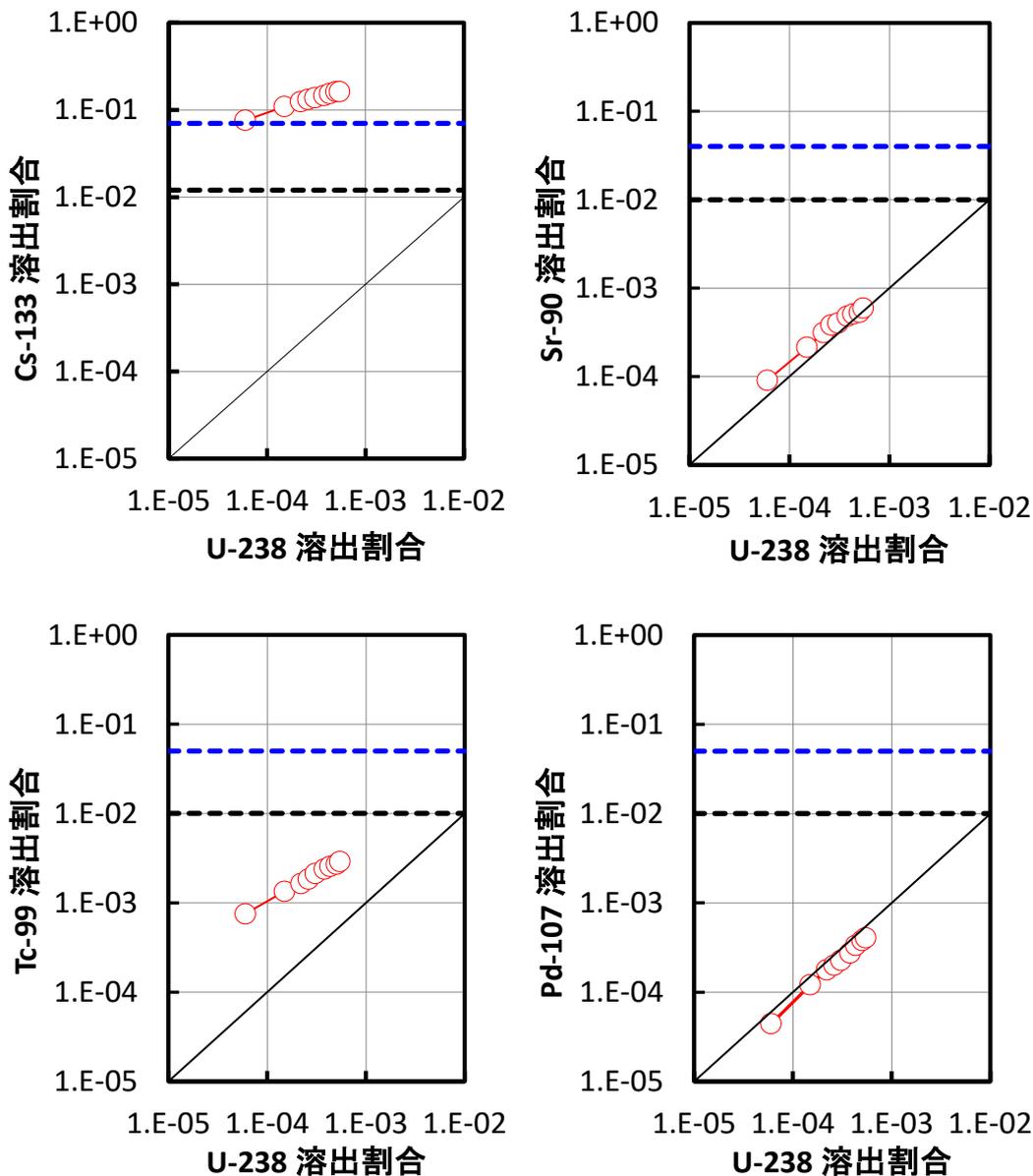


図 3. 1-35 U-238 の溶出割合で規格化された核種の溶出割合と IRF 設定値との比較
(青破線 IRF 設定値(最大値)、黒破線 IRF 設定値(推奨値))

浸漬溶液中に含まれる C-14 及び C1-36 を加速器質量分析によって定量した結果を、図 3. 1-36 に示す。C-14 の経時変化については、下に凸の曲線となった。C-14 の一部は有機物として存在しており、浸漬溶液の採取から分析までの間に、揮発した可能性が考えられる。C1-36 については、上述の Cs 等と類似の挙動を示した。実験により得られた C1-36 放出割合は、FP ガス放出割合から予想される放出割合と同程度の値になることを確認した。

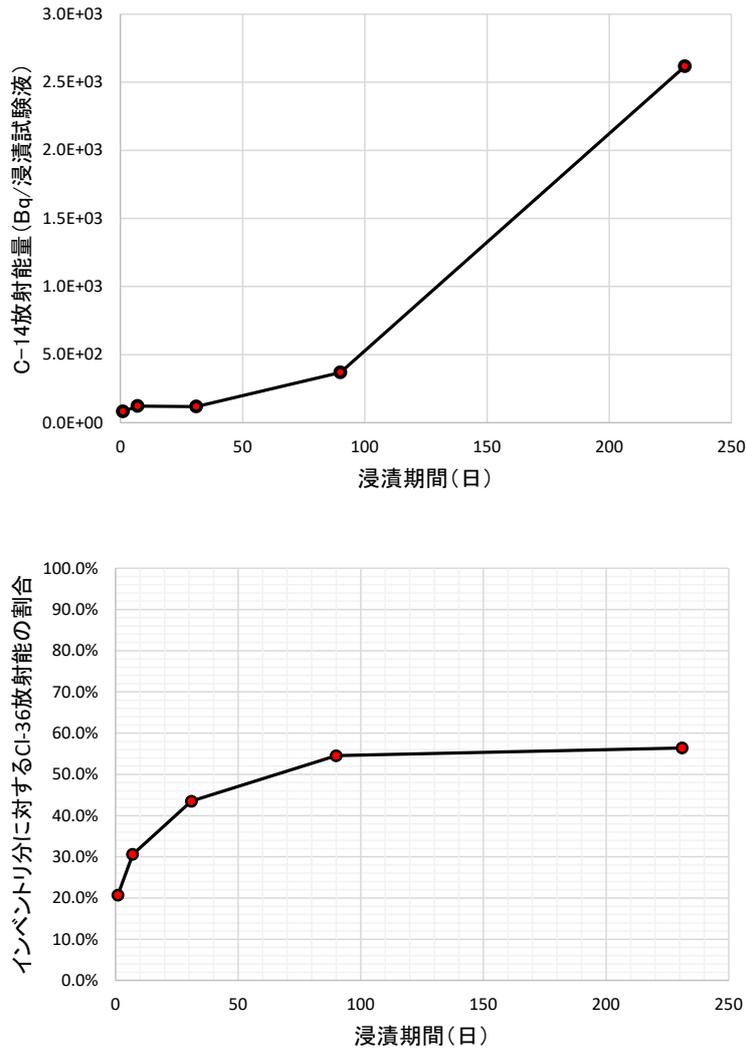


図 3.1-36 C-14、Cl-36 分析結果

IRF 評価対象核種のうち、I-129 については、浸漬溶液中の濃度が AgI の飽和濃度に到達しており、本試験結果からは放出割合の評価が困難であることを確認した。また、Se-79 は難分析核種として知られており、本試験における分析方法が確立されていない。Sn-126 については、本試験で得られた浸漬溶液の ICP-MS 分析により検出出来ている可能性があるが、定量値を示すには至っていない。これらの核種については、今後検討が必要である。

雰囲気制御下における浸漬試験について、令和 4 年度開始浸漬試験における pH 及び Eh の測定結果を図 3.1-37 に示す。pH については、8 前後を示しており、目標とする pH 7~9 の範囲内に収まっている。Eh においては、浸漬開始時に約-300 mV を示した後、酸化雰囲気へと値が変化した後-220 mV 程度で安定しつつある。燃料を用いないコールドでのモックアップ試験では、より還元雰囲気側の電位を示しており、かつ、2 週間程度では電位の変動は見られなかった。既往の研究では、燃料ペレットの周辺に酸化膜が生成しており、浸漬試験の結果がそれらの影響を受けていることを示すものもある。本試験においても、燃料ペレット周辺の酸化膜の影響で、電位がやや酸化側の値になっていると考えられる。

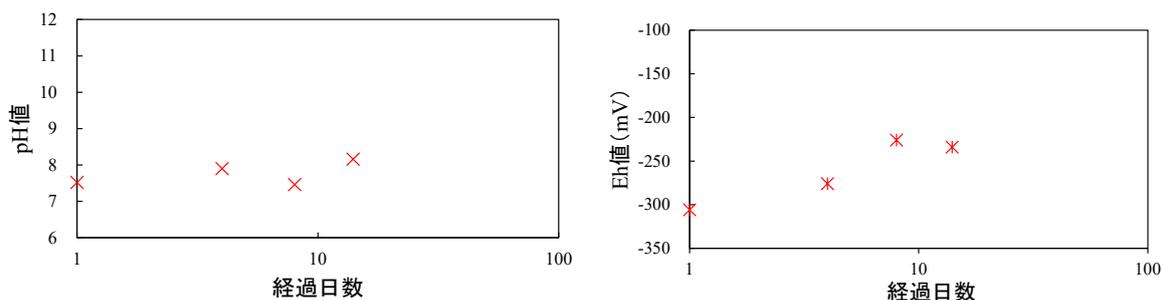


図 3.1-37 雰囲気制御下浸漬試験における pH および Eh の時間変化

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

2021年に公開されたDisCoの最終報告書(Metz, 2021)には、処分後早期に処分容器が破損し、地下水と燃料が接触したことを想定した条件での使用済燃料を使った浸出試験の結果が報告されている。DisCoで行われた試験(Metz, 2021)に使用された燃料の性状を表3.1-15に示す。この試料は1990年代に使用されていた実燃料であり、試料の酸化を最小限にするために真空中で切断されている。2つの切断片に対して試験が行われ、それぞれの切断片はMOX-H seg、MOX-L segと呼ばれている。試験に使用された溶液は、地下水を模擬したNaHCO₃を含むNaCl溶液(NaCl-BIC)である。組成を表3.1-16示す。

表 3.1-15 試験で使用された燃料の性状

炉型	PWR
ペレットの種類	MOX
燃焼度	54 MWd kgHM ⁻¹
濃縮度	5.54%Pu
平均線出力密度	180 W cm ⁻¹

表 3.1-16 浸漬溶液の組成(主な元素および pH)

浸漬溶液	pH	Na ⁺ [mol l ⁻¹]	Cl ⁻ [mol l ⁻¹]	CO ₃ ²⁻ [mol l ⁻¹]	OH ⁻ [mol l ⁻¹]
NaCl-BIC	7.4	2.0×10 ⁻²	1.9×10 ⁻²	1.0×10 ⁻³	2.5×10 ⁻¹⁰

試験は、切断片を浸漬して Ar を 32 bar 充填したオートクレーブと、これに接続されている溶液や気体を充填するためのオートクレーブをセル内に設置し、大気雰囲気下で実施されている。試験容器への溶液や気体の充填は、この2つのオートクレーブ間の気圧差で行うことができる構造となっている。実験開始時には、切断片表面の酸化層を取り除くため、初期に溶液を全て交換する作業を2回実施している。切断片の入ったオートクレーブ容器から浸漬溶液を一定量採取し、1 mol l⁻¹の硝酸で希釈した後に、浸出した元素の濃度測定を ICP-MS に

より行っている。表 3.1-17 と表 3.1-18 に測定結果を示す。

表 3.1-17 各核種の濃度測定結果 (MOX-H 試料)

(Metz, 2021 Appendix)

経過日数	U [mol l ⁻¹]	Tc [mol l ⁻¹]	Sr [mol l ⁻¹]	Cs [mol l ⁻¹]
0.2	4.3×10^{-7}	3.6×10^{-9}	–	3.5×10^{-6}
1.0	1.6×10^{-7}	2.0×10^{-9}	–	1.50×10^{-7}
3.0	2.6×10^{-7}	2.3×10^{-9}	–	7.90×10^{-8}
13.0	5.9×10^{-7}	6.7×10^{-9}	2.8×10^{-11}	1.60×10^{-7}
48.1	1.6×10^{-7}	1.9×10^{-8}	5.3×10^{-9}	2.50×10^{-7}
150.0	4.1×10^{-7}	5.7×10^{-8}	2.2×10^{-8}	3.90×10^{-7}
289.0	7.9×10^{-6}	1.3×10^{-7}	2.9×10^{-8}	5.40×10^{-7}
623.0	1.3×10^{-5}	3.3×10^{-7}	7.6×10^{-8}	1.1×10^{-6}

表 3.1-18 各核種の濃度測定結果 (MOX-L 試料)

(Metz, 2021 Appendix)

経過日数	U [mol l ⁻¹]	Tc [mol l ⁻¹]	Sr [mol l ⁻¹]	Cs [mol l ⁻¹]
0.2	6.9×10^{-7}	7.9×10^{-9}	2.1×10^{-8}	4.10×10^{-6}
1.0	1.3×10^{-6}	1.7×10^{-8}	3.7×10^{-8}	7.10×10^{-6}
1.95	1.7×10^{-6}	3.0×10^{-8}	5.2×10^{-8}	9.80×10^{-6}
1.97	3.5×10^{-7}	3.3×10^{-8}	5.8×10^{-8}	1.00×10^{-5}
2.1	3.5×10^{-7}	2.9×10^{-9}	6.4×10^{-9}	5.00×10^{-7}
5.2	7.1×10^{-7}	1.3×10^{-8}	1.7×10^{-8}	1.20×10^{-6}
6.9	1.1×10^{-6}	3.0×10^{-8}	2.9×10^{-8}	2.00×10^{-6}
7.0	1.4×10^{-6}	3.5×10^{-8}	3.3×10^{-8}	2.20×10^{-6}
7.0	1.0×10^{-6}	3.4×10^{-9}	6.5×10^{-9}	1.70×10^{-7}
8.9	2.5×10^{-6}	1.2×10^{-8}	1.7×10^{-8}	4.60×10^{-7}
16.0	3.4×10^{-6}	4.7×10^{-8}	3.0×10^{-8}	1.10×10^{-6}
29.0	4.5×10^{-6}	1.4×10^{-7}	6.0×10^{-8}	2.10×10^{-6}
64.2	7.6×10^{-6}	4.1×10^{-7}	1.2×10^{-7}	3.50×10^{-6}
147.0	1.1×10^{-5}	9.5×10^{-7}	2.0×10^{-7}	5.40×10^{-6}
348.0	2.1×10^{-5}	1.4×10^{-6}	3.0×10^{-7}	6.60×10^{-6}

DisCo においては、別の試験 (Metz, 2021) も行われており、その試験で使用された燃料の性状を表 3.1-19 示す。この試料は 1980 年代に使用されていた実燃料であり、32 年の冷却期間後に試験に使用するために切断し、切断片は MOX-KWU seg と呼ばれている。

表 3.1-19 試験で使用された燃料の性状

炉型	PWR
ペレットの種類	MOX
燃焼度	38 MWd kgHM ⁻¹
濃縮度	3.2%Pu
平均線出力密度	200 W cm ⁻¹

試験溶液は 19 mM の NaCl と 1 mM の NaHCO₃ を含んだ溶液であり、pH は 7.9±0.1 である。試験は、切断片を浸漬して Ar/H₂ を 40 bar 充填したオートクレーブを使用することにより還元雰囲気を実施した。試験試料の入ったオートクレーブから浸漬溶液を一定量採取し、浸出した元素のうち Tc は ICP-MS、Sr は液体シンチレーションカウンタ、Cs はガンマ線スペクトロメトリーをそれぞれ用いて濃度測定を行っている。表 3.1-20 に測定結果を示す。

表 3.1-20 各核種の濃度測定結果 (MOX-KWU seg 試料)

(Metz, 2021 Appendix)

経過日数	U [mol l ⁻¹]	Tc [mol l ⁻¹]	Sr [mol l ⁻¹]	Cs [mol l ⁻¹]
1.0	4.0×10 ⁻⁶	–	3.1×10 ⁻⁹	6.2×10 ⁻⁶
2.0	4.0×10 ⁻⁷	–	3.1×10 ⁻¹⁰	8.4×10 ⁻⁷
160.0	4.2×10 ⁻⁸	9.8×10 ⁻⁹	4.2×10 ⁻⁸	4.3×10 ⁻⁶
370.0	2.2×10 ⁻⁸	4.5×10 ⁻⁹	4.6×10 ⁻⁸	4.4×10 ⁻⁶
721	3.5×10 ⁻⁸	6.0×10 ⁻⁹	5.1×10 ⁻⁸	4.7×10 ⁻⁶
988	9.5×10 ⁻⁹	2.5×10 ⁻⁸	5.8×10 ⁻⁸	4.6×10 ⁻⁶

前述の各試験のテクネチウム濃度の時間変化を図 3.1-38 に示す。また、ウラン濃度と各核種の濃度の関係を図 3.1-39 から図 3.1-41 に示す。以下に、DisCo において報告されている各核種の挙動について、本事業での試験結果を含めてまとめる。

・ウラン

ウランは大気雰囲気や低酸素雰囲気では溶解が進みやすく、還元雰囲気では溶解が進みづらいことが知られている。これらの試験では、MOX-H と MOX-L がアルゴン雰囲気、MOX-KWU は還元雰囲気で行われており、上記の知見と同様の結果が観察された。MOX-H と MOX-L を使った試験では、623 日後でも濃度が増加する傾向を示している。なお、還元性雰囲気での長期試験では測定されるウラン濃度が 10⁻⁸ mol l⁻¹ 付近で一定となることが知られ、MOX-KWU での試験でもこの濃度に到達していると考えられる。令和 3 年度に本事業で実施した実燃料を使用した浸漬試験においても、炭酸を含む溶液を使用した試験で同様の傾向がみられており、大気雰囲気と低酸素雰囲気でのウラン溶解に大きな差はないと考えられる。

・セシウム

DisCo 報告書 (Metz, 2021) によると、セシウムの放出は水素の存在によって部分的に抑制されるとの記述がある。使用済燃料からのセシウムの放出挙動は、初期の濃度上昇は燃料と被覆管の隙間等のギャップに蓄積していたセシウムの溶出により、その後の濃度上昇は燃料マトリクスに溶解に伴うものであると考察されている。このことから、水素によってウランの溶解が抑制され、それに伴い後者に関係するセシウムの溶出が減少する可能性が示唆される。図 3.1-39 に示すウラン濃度とセシウム濃度の関係からは、測定されたウラン濃度が 10^{-6} mol l⁻¹ 付近から、特に MOX-H の試料についてウランとセシウムの溶出速度に相関が見られる。

・ストロンチウム

令和 3 年度に本事業において実施した浸漬試験の結果からは、マトリクスに溶解に伴ってマトリクスに固溶していたストロンチウムが調和的に溶出すると予想されている (原子力機構, 2022)。また、DisCo の報告書 (Metz, 2021) においても、低酸素雰囲気での試験ではストロンチウム濃度が早期に増加し、濃度が 10^{-7} mol l⁻¹ 以上になる一方で、還元雰囲気では測定された試験は、ストロンチウム濃度が 10^{-8} mol l⁻¹ 付近で一定になると示されている。ウラン濃度とストロンチウム濃度の関係を整理した図 3.1-40 から、両者の濃度に相関関係が見られる。これらのことから、ストロンチウムはマトリクスと調和溶解することが確認できる。

・テクネチウム

テクネチウム濃度の時間変化を図 3.1-38 に示す。還元雰囲気では得られた濃度は、低酸素雰囲気の濃度より低い傾向であった。これは低酸素雰囲気の試験と比較して、テクネチウムの酸化が進まないためと考えられる。また、図 3.1-41 からはウラン濃度とテクネチウム濃度に相関があるのに対し、令和 3 年度に本事業で実施した試験からは、マトリクス溶解との関連は明確に見られていない。本事業での試験は大気雰囲気であり、DisCo において報告されている試験は低酸素雰囲気で行われており、一概に比較は難しいものの、この結果の相違については今後検討が必要である。

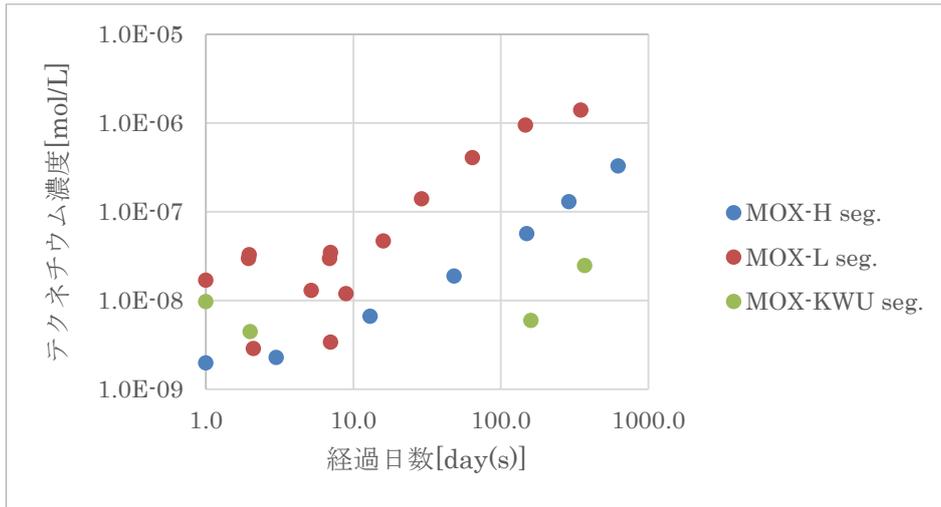


図 3.1-38 各試験のテクネチウム濃度の時間変化

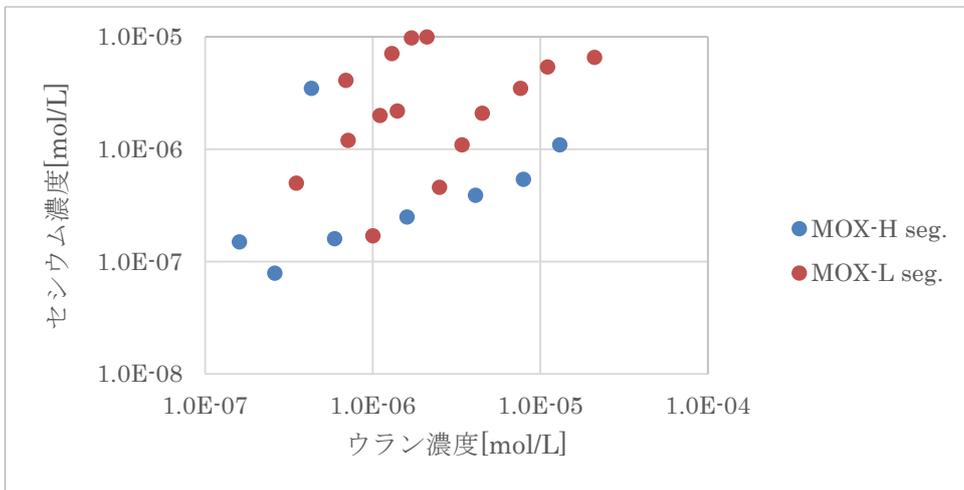


図 3.1-39 ウラン濃度とセシウム濃度の関係

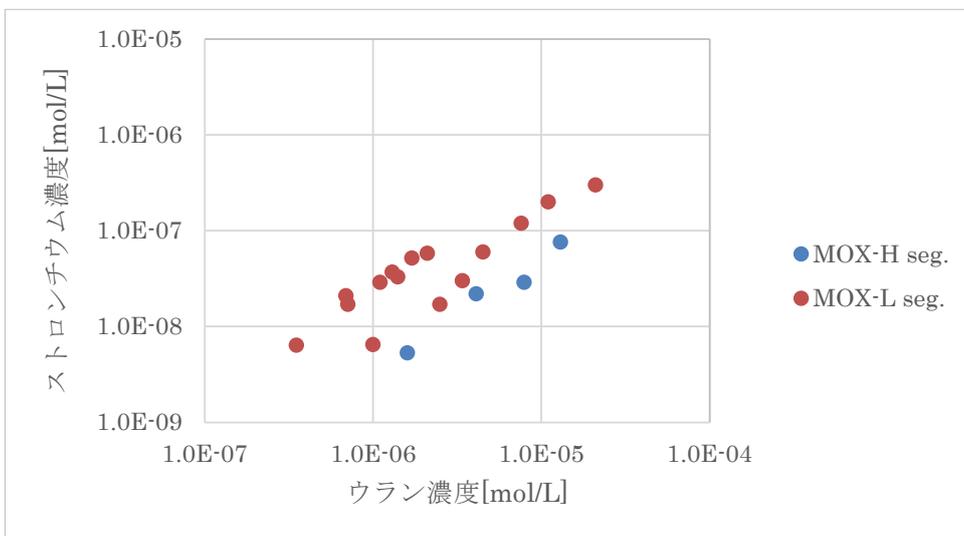


図 3.1-40 ウラン濃度とストロンチウム濃度の関係

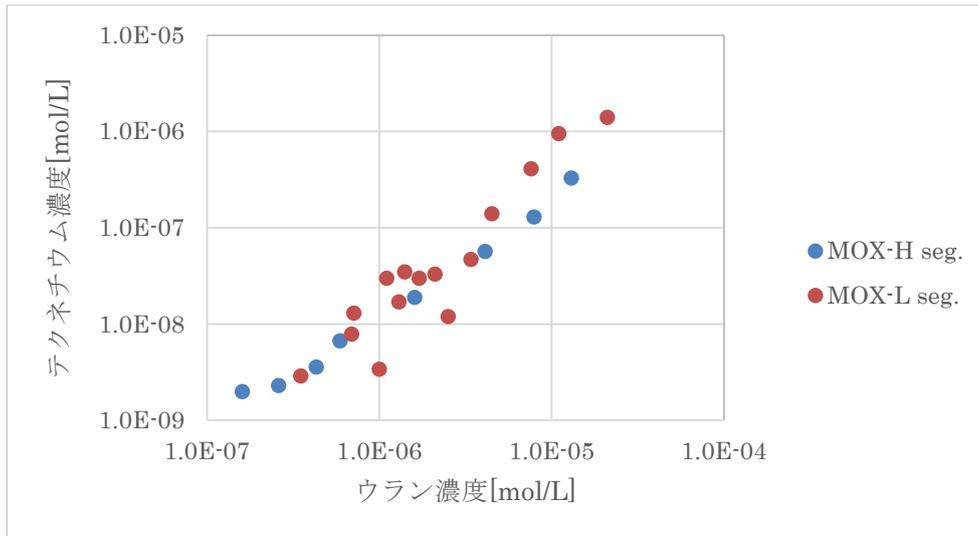


図 3.1-41 ウラン濃度とテクネチウム濃度の関係

② まとめ

令和 3 年度に引き続き、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を調査して報告内容を整理し、主な核種の溶解挙動について知見を得ることができた。MOX 燃料を対象とした還元雰囲気とアルゴン雰囲気での長期試験結果を令和 3 年度の試験結果と共に考察した。ウランについては還元雰囲気での溶解が進みづらいことが確認できた。セシウムについては、試験開始後の初期ではギャップからの溶出が起これ、それ以降ではマトリクスとの調和溶解となる可能性が示唆された。ストロンチウムについては令和 3 年度の結果と同様にマトリクスとの調和溶解が確認された。テクネチウムについては試験条件の違いなどから令和 3 年度と異なる結果が得られた。瞬時放出率、溶解速度に関する最新動向調査に関しては、今後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わが国の環境に適した視点で整理する必要がある。

(5) 成果のまとめ

本事業では、使用済燃料からの核種放出を表すパラメータである瞬時放出率と長期溶解速度について、安全評価における設定値をより信頼性の高い値とするため、試験研究等によりわが国の直接処分に適した設定値への更新を試みた。以下に、本事業により得られた知見に基づく長期溶解速度及び瞬時放出率の設定値に関する成果を示す。

使用済燃料の長期溶解速度については、わが国の処分場環境において想定される全炭酸濃度の高い条件での長期溶解速度を評価するため、炭酸共存下でのペレット状の二酸化ウラン (UO₂ペレット) の溶解速度を測定した。本事業開始当初の試験では、溶存ウラン濃度が全炭酸濃度の増加とともに高くなる傾向が確認されたが、溶存ウラン濃度の経時変化からは、UO₂ペレットより溶解したウランが再沈殿することが示唆された。そのため、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 の溶出量から UO₂ペレットの溶解速度を評価した。その結果、再沈殿の影響を排した長期溶解速度を測定することが可能となり、長期溶解速度の炭酸濃度依存性を確認した。得られた結果から、炭酸濃度と

長期溶解速度の関係を線形と想定し、図 3.1-42 に示す関係式が求められた。なお、図 3.1-42 に示す長期溶解速度の炭酸濃度依存性は、令和 3 年度に取得した値であり、本年度に測定した UO_2 ペレットの溶解速度は、(2)3)②c で示したように、 $(U, {}^{26}Mg)O_2$ 固溶体ペレットの初期酸化状態の影響が排除できないため、長期溶解速度の算出には使用しないこととした。

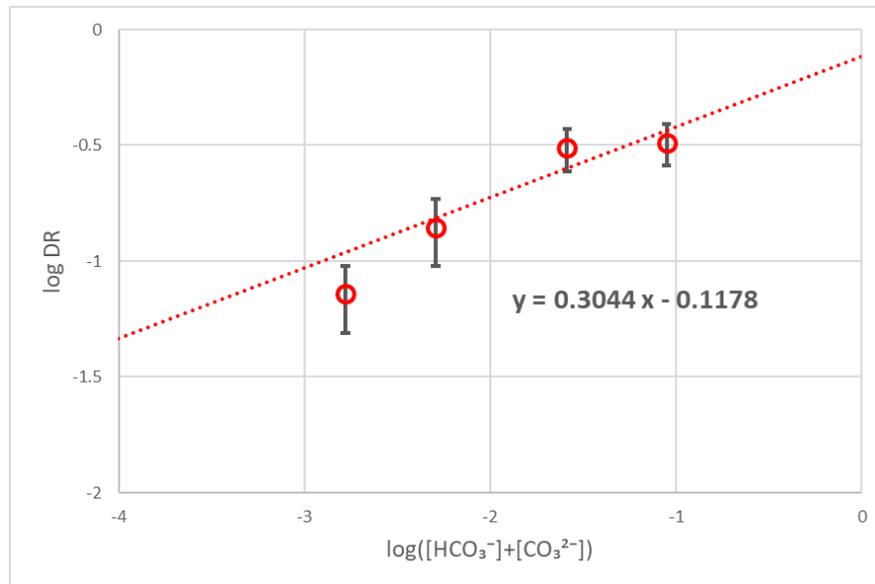


図 3.1-42 長期溶解速度 (DR) に及ぼす全炭酸濃度の影響

本事業で得られた長期溶解速度を先行研究の文献値と比較すると (図 3.1-43)、同様に還元条件下で取得されている REDUPP 等の文献値に比べて、本事業では一桁程度高い長期溶解速度が測定されている。この要因として、浸漬試験に供した UO_2 ペレット等の試料の表面積評価手法の違いと、試験期間の影響が考えられる。本事業では、 UO_2 ペレットの幾何学的表面積を長期溶解速度の算出に使用しているものの、実際の UO_2 ペレットには微細なボイドやクラックが存在しており、 UO_2 ペレットの溶出に寄与する表面積が過小評価されていると考えられる。また、本事業の長期溶解速度は 1 年程度の試験で得られたものであり、溶解速度が十分に低下していない段階で評価した値であることも考慮する必要がある。このことから、本事業においては、ウランの再沈殿の影響を排除した長期溶解速度を評価することができたものの、測定精度には改善の余地があることが示唆される結果となった。

上記の結果より、本事業においては、使用済燃料の長期溶解速度の炭酸濃度依存性として、式 3.1-8 に示す値を暫定値として提示する。

$$DR = 0.3 (\log([HCO_3^- + CO_3^{2-}])) - 0.12 \dots \dots \dots \text{式 3.1-8}$$

式 3.1-8 に示す長期溶解速度の炭酸濃度依存性は、上記に示した表面積の評価手法や試験期間の影響から、高い値が得られていると推測される。そのため、式 (3.1-8) は今後改善の余地があるものの、保守性を考慮した上で、安全評価における炭酸共存下での長期溶解速度の暫定値として提示できると考えられる。

今後の課題として、より正確な UO_2 ペレット表面積評価手法の検討と、より長期の試験に基づいた信頼性の高い長期溶解速度の測定があげられる。これらの改善を通して、より精度の高い長期溶解速度を提示することが必要である。

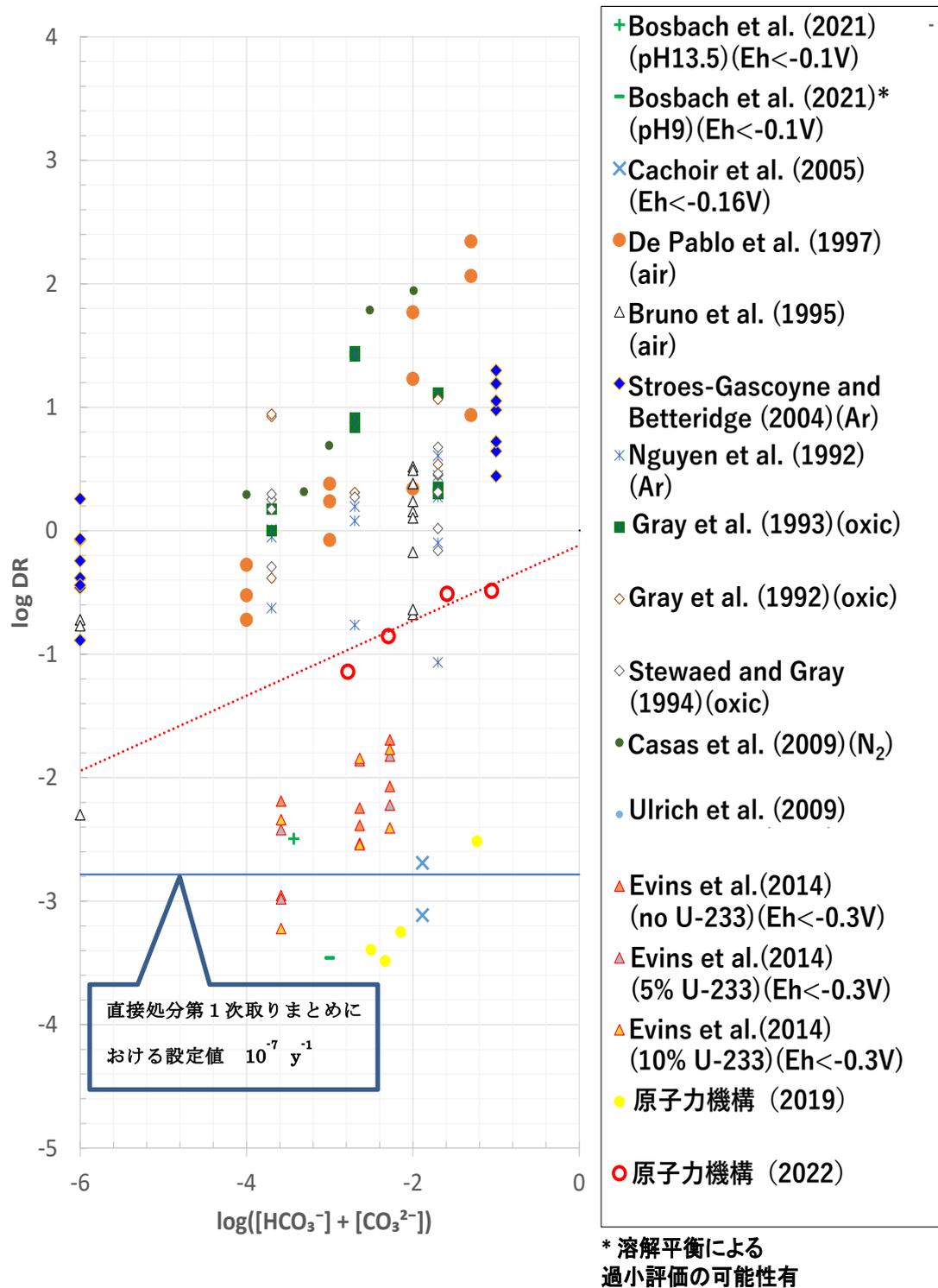


図 3.1-43 燃料溶解速度 (DR) の全炭酸濃度依存性に関する先行研究との比較結果

使用済燃料からの放射性核種の瞬時放出率については、これまでにわが国での使用済燃料の直接処分の安全評価を目的とした試験研究がほとんど行われていないことから、わが国の使用済燃料を用いた試験手法を確立するとともに、瞬時放出率の実測値を取得することを目的として、ふげん使用済燃料を使用して大気下での浸漬試験を行った。浸漬試験では、核種溶出挙動の観察に加えて、試験終了後の使用済燃料試料を全溶解させ、初期の放射性核種のインベントリを評価することで、核種ごとの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、燃焼度の異なる使用済燃料を用いた浸漬試験を行った。

図 3.1-44 に、Cs-133, Sr-90, Tc-99 の溶出割合と、U-238 の溶出割合との関係を示す。図に示す IRF 推奨値と IRF 最大値は、国内の使用済燃料の核分裂生成ガス放出率等の調査に基づいて、先行事業において設定したわが国の安全評価における瞬時放出率の推奨値と最大値である。図中の実線は、各核種の溶出割合と U-238 溶出割合とが一致する位置であり、これまでに報告されている通り、Sr-90 は U-238 と溶出割合が一致しており、ウランマトリクス の溶解に伴って Sr-90 が放出されていることが確認できる。一方、Cs-133 と Tc-99 は、瞬時放出挙動を示す核種であり、U-238 の溶出割合と傾向が異なっている。これらの核種の溶出割合を、IRF 推奨値及び最大値と比較すると、Cs-133 はおおむね推奨値と最大値の間の値を示し、Tc-99 は IRF 推奨値よりも低い値が得られている。

上記の結果より、本事業において実施した浸漬試験より得られた瞬時放出率は、先行事業において設定したわが国の直接処分における瞬時放出率と同程度かそれを下回る値であり、先行事業にて設定した値が保守性の観点から妥当な値であることを示唆する結果と言える。一方、本事業での試験は大気雰囲気下で行われていることから、より処分環境に近い還元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、瞬時放出率の設定値と実測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していくことが必要である。

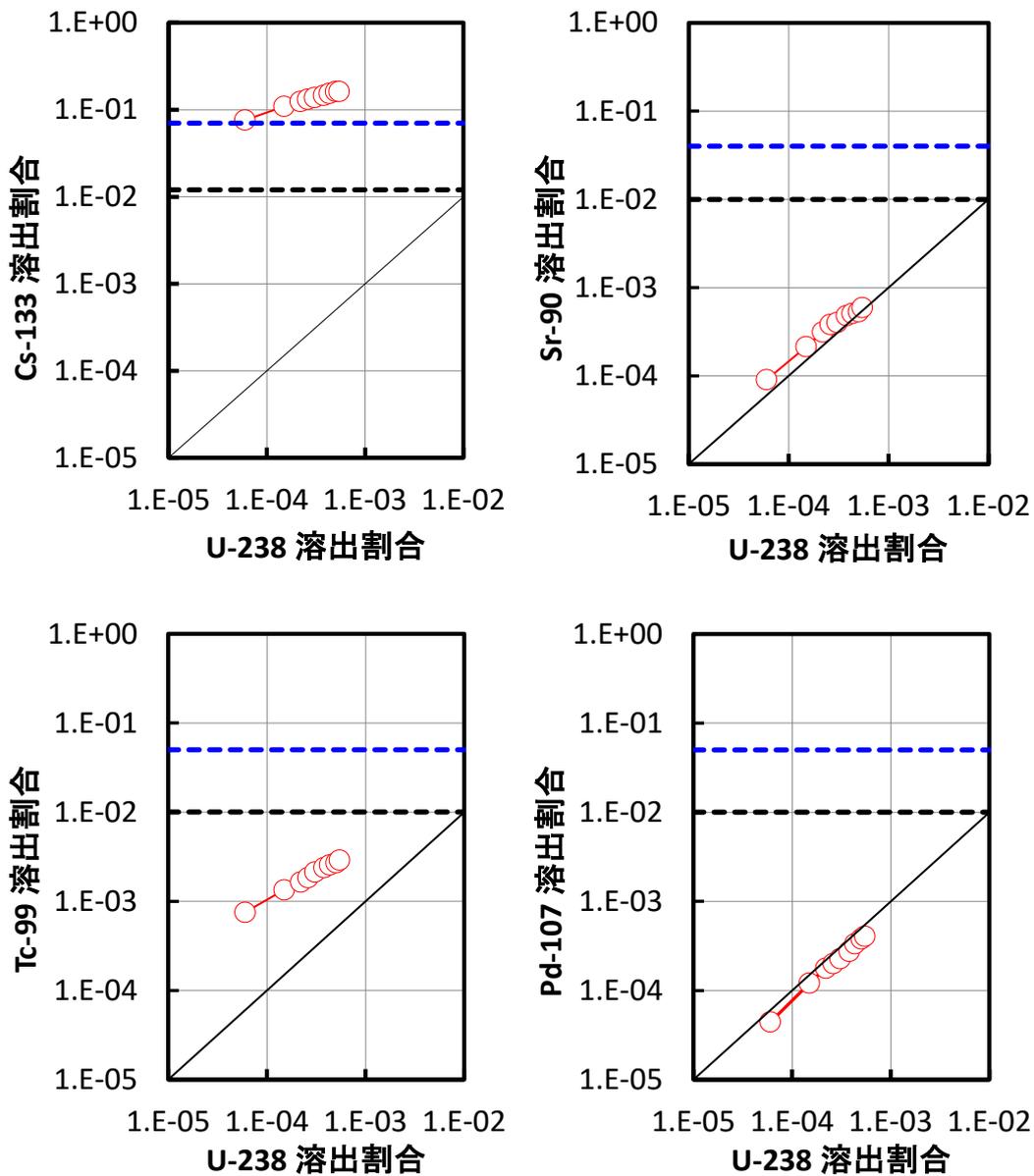


図 3. 1-44 U-238 の溶出割合で規格化された核種の溶出割合と IRF 設定値との比較 (青破線 IRF 設定値(最大値)、黒破線 IRF 設定値(推奨値))(図 3. 1-35 の再掲)

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 H_2CO_3 、 HCO_3^- 、 CO_3^{2-} 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銅製 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。

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

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

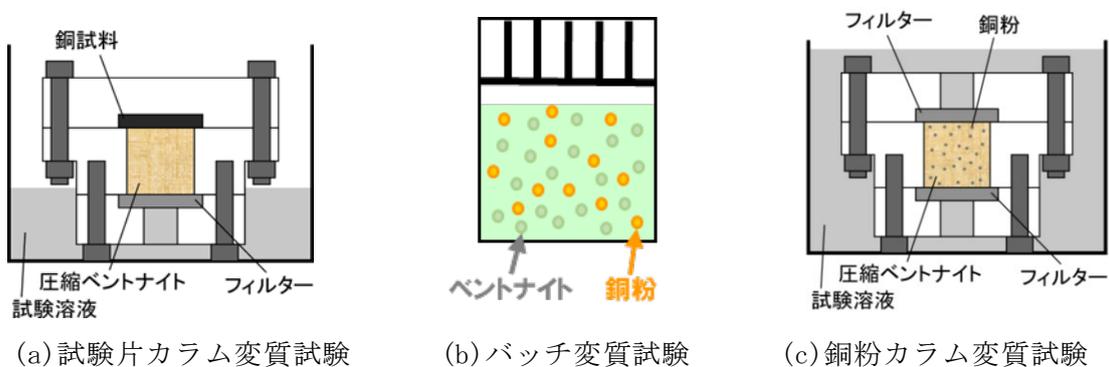


図 3.2-1 変質試験手法概略図

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 H_2CO_3 、 HCO_3^- 、 CO_3^{2-} 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吸着することにより起こるモンモリロナイトの Cu 型化について検討を行った。モンモリロナイトが他鉱物へ変質した場合、放射性核種の吸着能が低下する可能性があり、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、膨潤性や吸着能の低下の可能性も報告されている (たとえば、Madejová et al., 2006)。以上のことから、ベントナイトの特性に大きな影響を及ぼすと考えられるこれらの変質現象を調査の対象とした。

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 °C、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 °C、試験 C が 80 °C 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、全ての分析を終了し、試験 B の試料について、CEC 測定及び XRD 測定による Cu 型化の分析を除く分析 (EPMA 観察、XRD 測定による鉱物同定) を実施した。試験 C については、XRD 測定による Cu 型化の分析を除く全ての分析 (EPMA 観察、XRD 測定による鉱物同定、CEC 測定) を実施した。令和 3 年度まで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。

このため、令和 4 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 3 年度までに未実施である試験 B 及び C の分析を実施し、鉱物の変質状況について調査するとともに、これまでの試験結果を取りまとめ、銅の腐食に伴う圧縮ベントナイトの変質に炭酸及び鉄の共存が影響を及ぼす可能性について検討した。

表 3.2-2 基礎的な変質挙動の評価に関する試験条件

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

表 3.2-3 炭酸および鉄共存下での変質挙動の評価に関する試験条件

環境		試験溶液	分析手法	
酸化性	炭酸 共存下	0.45 mol l ⁻¹ NaCl + 0.05 mol l ⁻¹ NaHCO ₃ 溶液	EPMA XRD (鉱物同定・Cu 型化の分析) CEC 測定	試験 A
低酸素	炭酸 共存下	0.45 mol l ⁻¹ NaCl + 0.05 mol l ⁻¹ NaHCO ₃ + 0.001 mol l ⁻¹ Na ₂ S 溶液		試験 B
	鉄共存下	0.5 mol l ⁻¹ NaCl 溶液 + 1×10 ⁻⁴ mol l ⁻¹ FeCl ₂ 溶液		試験 C

(2) 炭酸および鉄共存下での変質挙動の調査

1) 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 試験条件および手順

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。

低酸素雰囲気・炭酸共存下での銅粉カラム変質試験は、銅粉を混合比 30% でベントナイトと混合して試験カラムに圧縮充填した後、酸素濃度 1 ppm 以下の窒素雰囲気グローブボックス内に搬入し、テフロン製容器中で図 3.2-1(c)の状態となるように試験溶液に浸漬した。試験溶液は、表 3.2-3 の試験 B に示す 0.45 mol l^{-1} の NaCl 溶液に 0.05 mol l^{-1} の NaHCO_3 溶液と 0.001 mol l^{-1} の Na_2S 溶液を添加した溶液とし、比較のために炭酸を含まない 0.5 mol l^{-1} の NaCl 溶液に 0.001 mol l^{-1} の Na_2S 溶液を添加した溶液でも試験を実施した。銅粉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、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 $^{\circ}\text{C}$ 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 に示すベントナイトの Cu 型化の分析、CEC 測定を実施した。なお、令和 3 年度までの試験では、ベントナイトの Cu 型化の分析について、湿度制御 XRD を用いて実施していたが、CEC 測定時に実施する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からベントナイトのイオン型が分析可能であることから、令和 4 年度の試験においては、湿度制御 XRD 測定は行わず、浸出陽イオン量測定結果からベントナイトの Cu 型化の可能性を分析した。

ベントナイトの Cu 型化の分析及び CEC の測定には、めのう乳鉢で粉碎した試料を 80% エタノール中に分散させ、80% エタノール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碎した試料を使用した。この試料を遠沈管に採取し、1 mol l^{-1} の $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ 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 NH_4^+ で飽和させた。採取した上澄み液は、 NH_4^+ 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、Mg、Fe、Ca、Cu の濃度を ICP-AES により測定した。その後、1 mol l^{-1} の KCl 溶液を添加して 2~3 日振とうした後、遠心分離を行って上澄み液を一部採取し、上澄み液中に抽出された NH_4^+ の濃度をイオンクロマトグラフにより測定し、残った上澄み液は廃棄した。この作業を 3 回実施し、3 回の作業により抽出された NH_4^+ 量の合計より CEC を算出した。

② 試験結果

図 3.2-2 に、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。図 3.2-2 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 3.2-2 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。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、低酸素雰囲気・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。

図 3.2-3 に、CEC 測定の結果を示す。0.45 mol l⁻¹ の NaCl 溶液に 0.05 mol l⁻¹ の NaHCO₃ 溶液と 0.001 mol l⁻¹ の Na₂S 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た。このことから、低酸素雰囲気においても、溶液中に含まれる炭酸がベントナイトの変質に影響を及ぼしていないと示唆される。

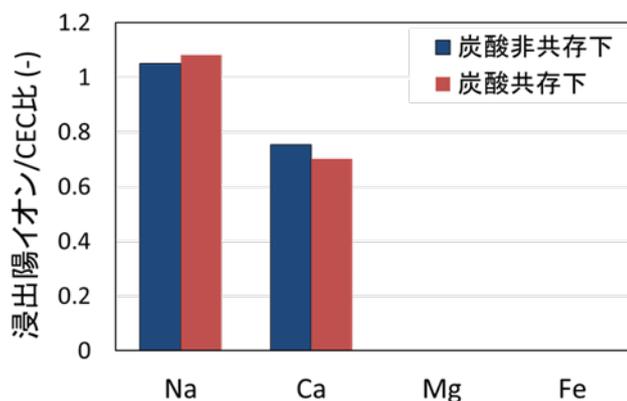


図 3.2-2 浸出陽イオン量測定結果
(低酸素雰囲気・炭酸共存条件)

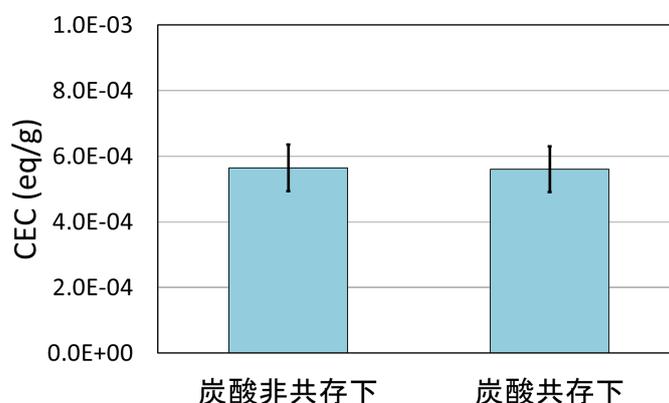


図 3.2-3 CEC 測定結果
(酸化性雰囲気・炭酸共存条件)

2) 低酸素雰囲気・鉄共存下での銅粉カラム変質試験（試験 C）

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である。

試験は、前述の 1)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 l^{-1} NaCl 溶液に $1 \times 10^{-4} \text{ mol l}^{-1}$ 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 l^{-1} の NaCl 溶液でも試験を実施した。試験溶液には、溶存している Fe(II)イオンの酸化を防ぐため、還元剤として 0.005 mol l^{-1} の亜ジチオン酸ナトリウム (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 °C の恒温槽内で 30 日間加熱した。加熱後、試験カラムを容器から取り出して解体し、表 3.2-3 に示すベントナイトの Cu 型化の分析を行った。ベントナイトの Cu 型化の分析は、前述の 1)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で実施した浸出陽イオン量の測定と同じ手順で実施した。

② 試験結果

図 3.2-4 に、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。図 3.2-4 に示す浸出陽イオン量は、CEC で規格化した値である。図 3.2-4 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。なお、検出された Ca は、クニゲル V1 に元々含まれるカルサイトから溶出によるものである。このことから、低酸素雰囲気・鉄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。

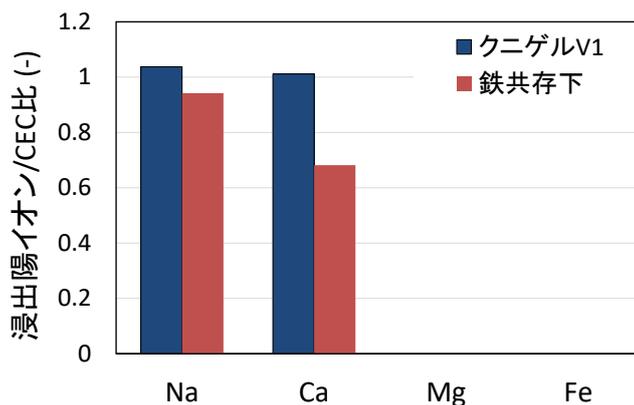


図 3.2-4 浸出陽イオン量測定結果
(低酸素雰囲気・鉄共存条件)

3) 炭酸および鉄共存下での変質挙動の評価に関するまとめ

令和 2 年度から令和 4 年度にかけて実施した炭酸及び鉄共存下での変質試験においては、表 3.2-3 に示す試験 A、B、C の条件で試験を実施し、ベントナイトの Cu 型化とベントナイトの他鉱物への変質について調査を行った。その結果、いずれの条件においても、ベントナイトの Cu 型や他鉱物への変質を示唆する結果は得られず、炭酸及び鉄が共存しても、ベントナイトの変質を促進する可能性は低いことが示された。一方で、本事業において実施した試験はいずれも 1 年未満であり、地層処分において想定される長期間において、炭酸及び鉄の共存が影響を及ぼさないことを結論付けるには、試験結果のみからの考察では十分ではない。そのため、炭酸及び鉄共存下での変質挙動について熱力学データをもとに解釈を行い、炭酸及び鉄が長期的に変質挙動に及ぼす可能性について検討する。

試験溶液中に炭酸が共存する場合、銅の腐食に伴う緩衝材の変質に影響を及ぼす可能性のある現象として、炭酸錯体の形成による溶存化学種の変化と、生成する銅腐食生成物固相の変化が挙げられる。溶存化学種が変化した場合、銅の腐食に関わる試験溶液中の銅の溶存化学種が変化する可能性があり、その結果、銅の腐食反応が変化し、銅の腐食に伴う緩衝材の変質挙動にも影響を及ぼす可能性がある。また、銅腐食生成物固相の変化は、銅の溶存濃度を変化させる可能性があるとともに、銅の腐食反応を変化させ、緩衝材の変質挙動に影響を及ぼす可能性があると考えられる。そのため、炭酸及び鉄の共存に伴う溶存化学種と銅腐食生成物の固相について検討した。

溶液中に炭酸が共存する場合、銅が炭酸錯体を形成することにより、銅の溶存化学種が変化する可能性がある。銅の炭酸錯体の形成の可能性について確認するため、主要な熱力学データベースとして、原子力機構、ローレンス・リバモア国立研究所、フランスにおける地層処分実施主体 ANDRA が公開している熱力学データベース（以下、それぞれ JAEA-TDB、LLNL、Thermochimie と表記）を使用し、銅の炭酸錯体を抽出した (Kitamura a., 2021; Giffaut et al., 2014)。その結果を、表 3.2-4 に示す。抽出した結果、JAEA-TDB、LLNL には炭酸錯体を選定されていないものの、Thermochimie において Cu(II) の炭酸錯体の溶存化学種が選定されていた。一方、Fe を含む銅の溶存化学種は選定されていなかった。

炭酸を含む銅腐食生成物固相は、JAEA-TDB と Thermochemie において設定されており、選定されている固相種や熱力学データが一部異なっている。これらの熱力学データベースにより選定されている銅腐食生成物固相を表 3.2-5 に示す。また、各データベースにおいて Fe を含む銅腐食生成物固相が選定されており、表 3.2-5 に示すように、鉄が共存すると FeCuS_2 が銅腐食生成物固相となる可能性が考えられた。

表 3.2-4 及び表 3.2-5 で抽出した銅の溶存化学種、銅腐食生成物固相について、処分場環境での生成可能性を整理すると、酸化性条件で想定される銅腐食生成物である Cu_2O あるいは CuO といった酸化物や、硫化物共存下で想定される Cu_2S や CuS といった固相に対し、炭酸を含む固相は溶解度が十分高く、銅腐食生成物固相として支配的とならないことが示唆される。本事業での試験結果においても、炭酸を含む固相の存在は示唆されておらず、熱力学データに基づく推定結果と整合する結果である。このことから、炭酸が固相に及ぼす影響は無視できると考えられる。一方、溶存化学種としての炭酸錯体は、 Cu(II) のみで設定されており、 Cu(I) の炭酸錯体は報告されていない。図 3.2-5 に、炭酸が共存する場合の溶存化学種の存在比の酸化還元電位依存性を示す。図 3.2-5 より、 E_h が概ね 200 mV より低い条件では、炭酸錯体を形成しない Cu(I) が支配的となることがわかる。このことから、処分場閉鎖後一定時間経過後に、処分場が低酸素になった状態では、溶存化学種として炭酸錯体は存在せず、炭酸の影響は無視できるものと考えられるものの、初期の酸化性雰囲気が残存した状態では、炭酸錯体が共存して緩衝材の変質挙動に影響を及ぼす可能性は否定できず、この評価は今後の課題である。

鉄共存下の銅腐食生成物固相については、 CuFeS_2 が銅腐食生成物固相となる可能性が考えられる。ただし、鉄が共存しない場合に支配的となる Cu_2S 等の固相と比較すると、 CuFeS_2 は Cu_2S 等と同様に硫化物鉱物のため、影響は顕在化しないと考えられる結果となった。

表 3.2-4 熱力学データからの銅の溶存化学種の抽出結果

炭酸共存	鉄共存
$\text{Cu}(\text{CO}_3)^{2-}$, CuCO_3 , CuHCO_3^+	なし

表 3.2-5 熱力学データからの銅腐食生成物固相の抽出結果

	非共存	炭酸共存	鉄共存
酸化性	Cu_2O , CuO	CuCO_3 , $\text{Cu}_2\text{CO}_3(\text{OH})_2$, $\text{Cu}_3(\text{CO}_3)_2(\text{OH})_2$	-
低酸素	Cu_2S , CuS	-	CuFeS_2

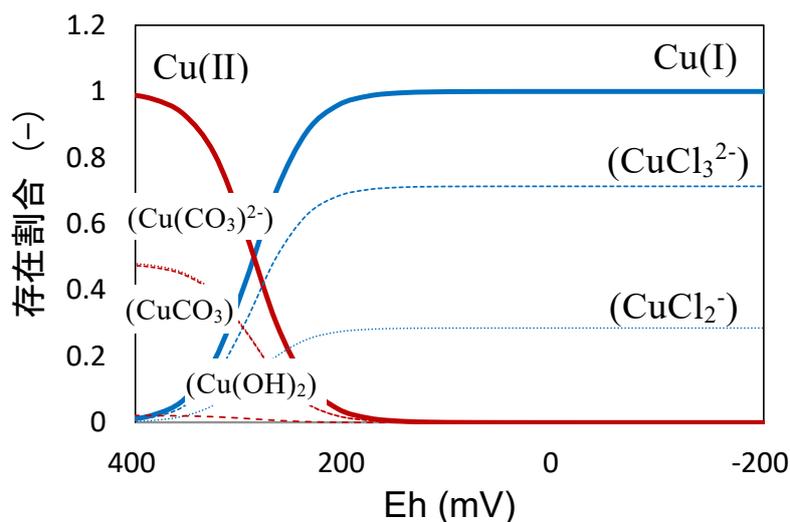


図 3.2-5 炭酸を含む Cu 溶存化学種解析結果
(炭酸濃度 0.05 mol dm^{-3})

(3) 処分環境での緩衝材変質の可能性の評価

1) 試験の目的と手法

これまでに実施してき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等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うことができなかった。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、変質挙動の評価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た。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てその関係について検討した。本試験において、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した。

2) 処分環境での緩衝材変質の可能性の評価を目的とした変質試験

① 試験条件および手順

表 3.2-6 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した。試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。試験溶液は、表 3.2-6 に示すように、酸化性雰囲気試験では 0.5 mol l^{-1} NaCl 溶液、低酸素雰囲気試験では 0.5 mol l^{-1} NaCl 溶液に 0.001 mol l^{-1} Na_2S 溶液を添加した溶液とした。試験期間は 4 条件とし、最長 270 日程度とした。

試験試料は、前述の(2)1)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作製した。ただし、酸化性雰囲気試験については、全ての作業を大気下で実施した。試験カラムを浸漬したテフロン製容器は、 $80 \text{ }^\circ\text{C}$ の恒温槽内で表 3.2-6 に示す試験期間加熱した。加熱後、試験カラムを容器から取り出して解体し、表 3.2-6 に示す緩衝材変質量の分析（EPMA 観察、XRD 測定（鉱物同定）、CEC 測定、Cu 型化の分析）と銅腐食量の分析を実施した。以下に、EPMA 観察、XRD 測定（鉱物同定）及び銅腐食量分析の手順を示す。CEC 測定及び Cu 型化の分析は、前述の(2)1)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。

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 $0.05 \text{ } \mu\text{A}$ 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、マイクロームを用いて切断し、金蒸着を行って分析に使用した。XRD 測定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、めのう乳鉢で粉碎したものを測定用試料とした。

銅腐食量の分析は、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した。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し、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、銅の腐食量を算出した。緩衝材中への銅移行量の分析は、試験後試料の EPMA 画像（Cu マッピング像）の Cu のカウント値を確認し、銅粉と緩衝材の境界値を設定して両者を分離した後、緩衝材中の Cu の平均カウント値を算出した。平均カウント値の算出は、同じ試験試料中から EPMA 画像を 10 箇所以上取得し、その平均値を用いた。ただし、低酸素雰囲気試験試料については、適切な画像が十分得られなかったことから、1 箇所の EPMA 画像のみから平均カウント値を取得した。算出した平均カウント値は、検量線試料として作製した 10% の Cu を添加した緩衝材試料の EPMA 画像解析結果のカウント値を元に、Cu 含有濃度に換算した。銅腐食量の分析については、銅粉の粒径変化の観察と緩衝材中への銅移行量の分析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、銅腐食量として採用した。

表 3.2-6 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

環境	試験溶液	試験期間	分析手法		
			緩衝材変質量	銅腐食量	
酸化性	0.5 mol l ⁻¹ NaCl 溶液	56, 147, 205 , 273 日	EPMA XRD (鉱物同定) CEC 測定 Cu 型化の分析	銅粉粒径変化の観察 緩衝材中銅移行量の 分析	試験⑤*
低酸素	0.5 mol l ⁻¹ NaCl 溶液 + 0.001 mol l ⁻¹ Na ₂ S 溶液	49, 140, 198 , 266 日			試験⑥*

*試験番号は、表 3.2-2 からの連番である。

② 試験結果

図 3.2-6(a) に、酸化性雰囲気において 0.5 mol l⁻¹ の NaCl 溶液に浸漬した試験期間 273 日の試験試料の EPMA 分析結果を示す。画像の視野は約 400×400 μm² であり、BEI が反射電子像、Cu、S、Fe、Si、Al、Na、Cl で示された画像が各元素のマッピング分析結果である。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。Cu のマッピング画像では、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が確認できる。この Cu 濃度が高い部分では、S 濃度の上昇は見られず、酸化銅や水酸化銅等の形態で Cu が存在していると推測される。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。これまでに本事業で実施した酸化性雰囲気の試験においても、黄鉄鉱粒子周辺で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。これらの観察結果より、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で、それ以外の部分では酸化銅または水酸化銅として存在していると考えられる。

図 3.2-6(b) に、低酸素雰囲気において 0.5 mol l⁻¹ の NaCl 溶液に 0.001 mol l⁻¹ の Na₂S 溶液を添加した溶液に 266 日浸漬した試験試料の 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 3.2-6(a) に示す酸化性雰囲気で行った試験と同様に、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、本試験試料では銅粉周辺に S 濃度の高い部分が見られ、銅粉の腐食によりベントナイト中に移行した銅が、溶液に Na₂S として添加した S とともに硫化銅として沈殿したことが示唆される。このことから、低酸素雰囲気では Na₂S を溶液に添加した条件では、ベントナイト中に移行した Cu は硫化銅として存在していると考えられる。

図 3.2-7(a) に、酸化性雰囲気において 273 日浸漬した試料の XRD 測定結果を、図 3.2-7(b) に低酸素雰囲気において 266 日浸漬した試料の 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。低酸素雰囲気での試験試料で観察されている CuO のピークは、試験前から銅粉表面に生成していた CuO に由来すると考えられる。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。

図 3.2-8 に、酸化性雰囲気において 273 日浸漬した試料と低酸素雰囲気において 266 日浸漬した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。図 3.2-8 に示す浸出陽イオン量は、CEC で規格化した値である。図 3.2-8 に示すように、酸化性雰囲気、低酸素雰囲気の試験試料ともに Na の浸出陽イオン/CEC 比が約 1 であり、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。なお、Ca も CEC の 6~7 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、270 日程度経過した試験試料においても、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。

図 3.2-9 に、酸化性雰囲気において 273 日浸漬した試料と低酸素雰囲気において 266 日浸漬した試料の CEC 測定の結果を示す。どちらの試験試料の CEC についても、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た。このことから、270 日程度経過した酸化性雰囲気、低酸素雰囲気のどちらの試験試料においても、ベントナイトの CEC は変化しておらず、ベントナイトの他鉱物への変質は起こっていないことが示唆される。

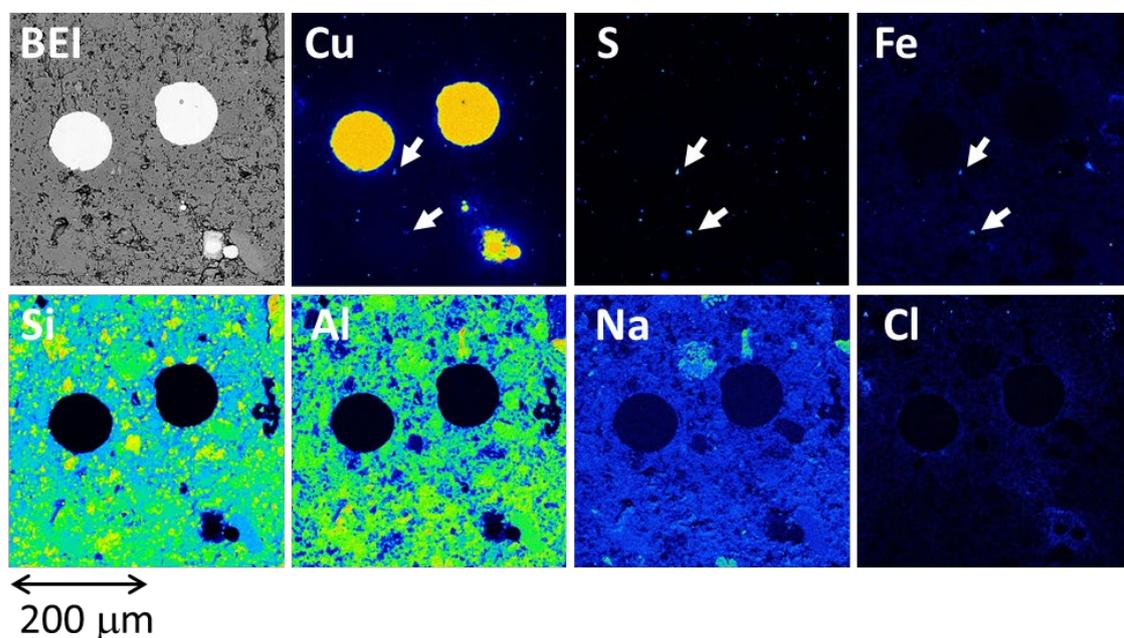


図 3.2-6(a) 酸化性雰囲気での銅粉カラム変質試験試料 EPMA 分析結果
(約 $400 \times 400 \mu\text{m}^2$)
(試験期間 273 日・ 0.5 mol l^{-1} NaCl 溶液下)

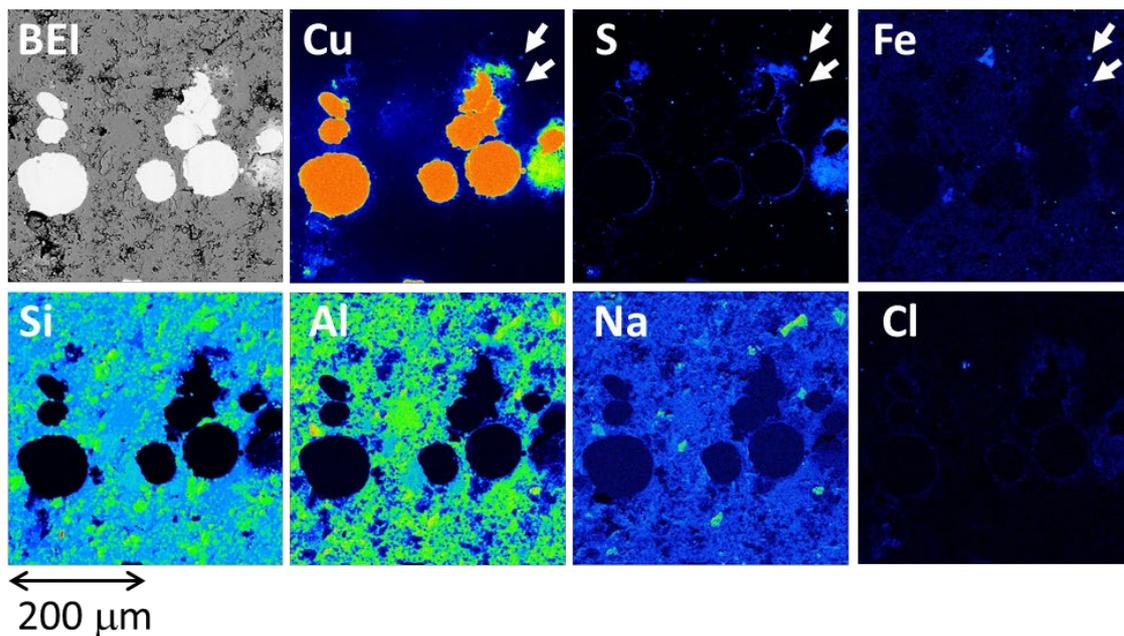
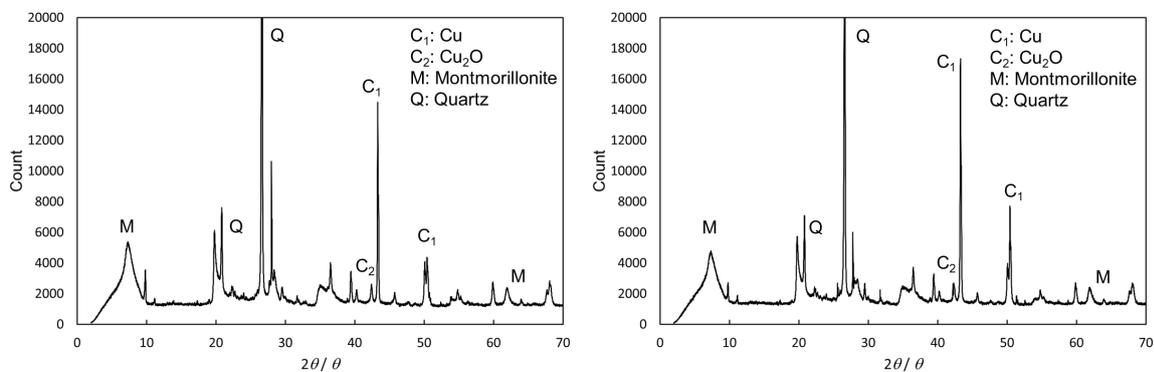


図 3.2-6 (b) 低酸素雰囲気での銅粉カラム変質試験試料の EPMA 分析結果
 (約 $400 \times 400 \mu\text{m}^2$)
 (試験期間 266 日 $\cdot 0.5 \text{ mol l}^{-1} \text{ NaCl} + 0.001 \text{ mol l}^{-1} \text{ Na}_2\text{S}$ 溶液)



(a) 酸化性雰囲気 (試験期間 273 日)

(b) 低酸素雰囲気 (試験期間 266 日)

図 3.2-7 銅粉カラム変質試験試料の XRD 測定結果

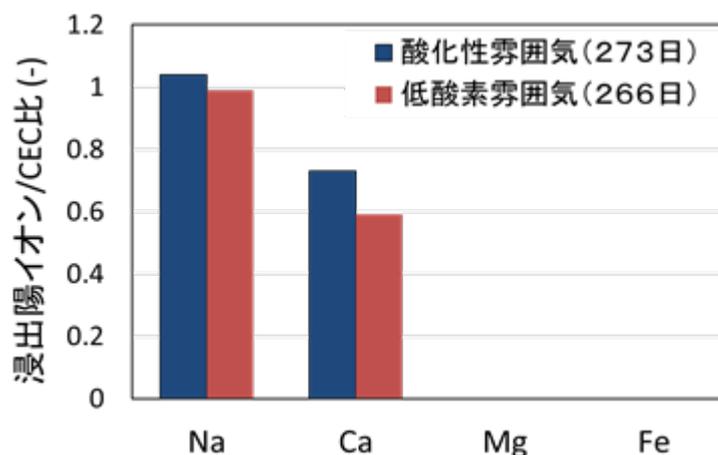


図 3.2-8 浸出陽イオン量測定結果

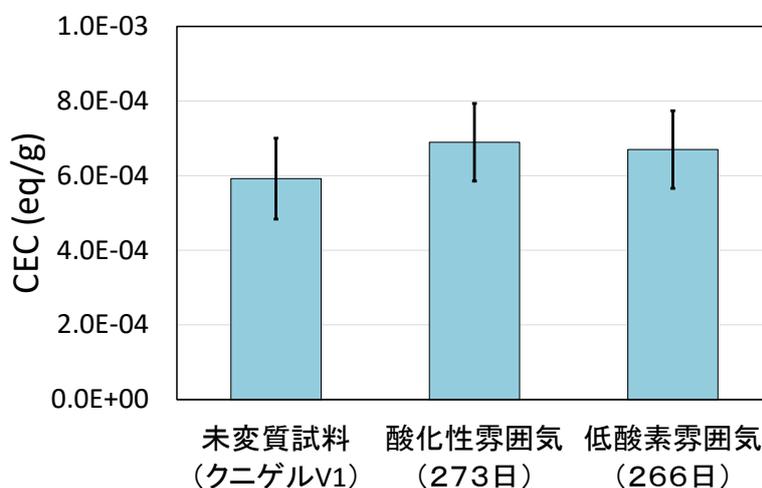


図 3.2-9 CEC 測定結果

銅腐食量の分析結果について、図 3.2-10 に、EPMA 画像から算出した緩衝材中の Cu の濃度変化を示す。試験期間 0 日の値は、銅粉を添加していない試料の分析から算出した値である。緩衝材中の Cu 濃度算出の結果、試験期間 270 日程度の試料中の Cu 濃度が 1~2%程度上昇していることが確認できた。しかしながら、酸化性雰囲気の試験においては、試験時間に伴う Cu 濃度の明瞭な増加は見られなかった。また、低酸素雰囲気の試験については、試験期間 200 日程度までの試料については、図 3.2-6 (b) に示すような銅粉周辺に硫化銅が生成している EPMA 画像が得られなかった。この要因は、試験カラムの中心近くの試料を採取して EPMA 分析を行ったため、浸漬溶液に添加した Na_2S がベントナイト試料の内部まで十分に拡散しておらず、S の供給量が少なかったためと考えられる。そのため、銅粉周辺に硫化銅の生成が確認できる試験期間 266 日の試験試料のみ、緩衝材中の Cu の濃度の算出を行った。このベントナイト中に移行した Cu 濃度から銅の腐食量を算出し、銅粉の表面積等を元に腐食速度を算出した結果を表 3.2-7 に示す。本試験で得られた銅腐食速度は、概ね $1\sim 2 \mu\text{m}/\text{年}$ であった。なお、低酸素雰囲気において銅はほとんど腐食しないが、本試験試料では酸化性雰囲気と同等

の腐食速度が得られている。この要因は、銅の腐食を加速させるために試験溶液に添加した比較的高い濃度の Na_2S 溶液によるものである。また、銅粉の粒径変化の観察から銅腐食量の算出を試みたものの、粒径解析の精度が低く、予測される銅腐食量から計算される粒径変化を観察するには十分でないことから、本手法による銅腐食量の算出は行わなかった。

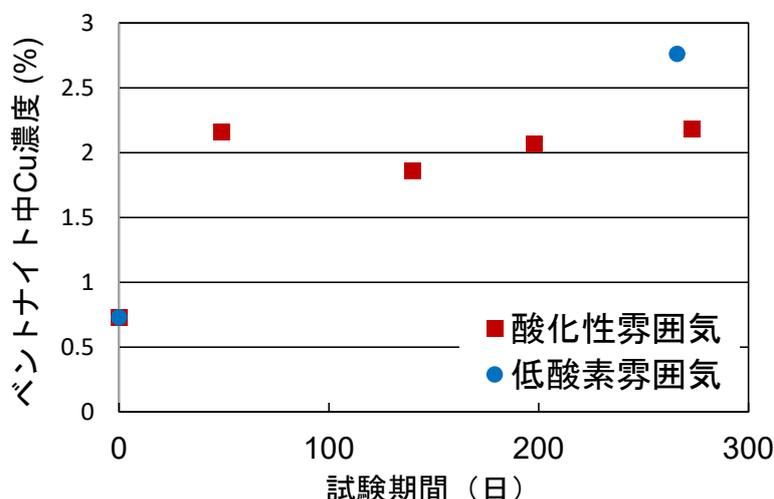


図 3.2-10 EPMA 画像解析より算出したベントナイト中の Cu の濃度変化

表 3.2-7 ベントナイト中の Cu の濃度より算出した銅粉腐食速度

	銅粉腐食速度
酸化性雰囲気	1.0 $\mu\text{m}/273$ 日 (1.4 $\mu\text{m}/\text{年}$)
低酸素雰囲気	1.4 $\mu\text{m}/266$ 日 (2.0 $\mu\text{m}/\text{年}$)

③ 長期間後の処分環境での緩衝材変質量の評価

上記②において算出した銅腐食速度より、処分場における緩衝材変質速度について評価を行った。評価においては、図 3.2-11 に示すように銅粉カラム変質試験の試験系を実際の処分場のレイアウト（処分体系）に変換し、銅粉カラム試験により得られた銅腐食速度と緩衝材変質量から、実際の処分場における緩衝材変質速度を算出した。銅粉カラム試験系から処分体系への変換は、銅粉カラム試験の単位表面積あたりのベントナイト変質量を元に、処分体系での変質厚さに換算することにより行った。また、ベントナイトの変質量は、本試験において有意な変質量が観察されなかったことから、図 3.2-9 のグラフに示す CEC の測定誤差を変質量と仮定した。

緩衝材変質速度の算出結果を表 3.2-8 に示す。緩衝材変質速度は、酸化性雰囲気では $15\% / \mu\text{m-Cu}$ 、低酸素雰囲気では $11\% / \mu\text{m-Cu}$ であった。変質速度は、銅粉粒径を $90 \mu\text{m}$ とし、銅比重を 8.9 Mg m^{-3} として算出した。なお、ここで緩衝材変質速度は、銅粉の腐食深さ ($\mu\text{m-Cu}$) に対する緩衝材変質量として示した。また、この変質速度より計算された処分場における緩衝材変質速度は、銅製容器の腐食深さ ($\mu\text{m-Cu}$) に対するベントナイトの変質厚さ ($\mu\text{m-Bent}$) として、酸化性雰囲気では $29 \mu\text{m-Bent} / \mu\text{m-Cu}$ 、低酸素雰囲気では $21 \mu\text{m-Bent} / \mu\text{m-Cu}$

m -Cu と見積もられた。

図 3.2-12 に、表 3.2-8 で算出した値より計算した処分後の経過年数に対する緩衝材変質厚さを示す。緩衝材変質厚さの評価結果は、想定される銅製容器の腐食速度に応じた値として示した。図 3.2-12 に示すように、本事業で実施した銅粉カラム変質試験より、数千～数万年後の緩衝材変質量を銅製処分容器の腐食速度に応じた値として評価することができた。評価の結果、腐食速度 $0.1 \mu\text{m}/\text{年}$ 程度の低い腐食速度であれば、処分後数万年でも緩衝材の変質は顕著とはならないと推定される結果が得られた。

本評価では、試験手法として銅粉カラム試験を用いた加速試験により、処分において想定される長期間後の緩衝材の変質量について、室内試験から評価した。一方、本評価では CEC の測定誤差を緩衝材変質量と仮定したが、試験前後での CEC の変化や XRD 測定等からは緩衝材の変質を示す結果は得られておらず、緩衝材変質量の見積もりは保守的であると考えられる。また、EPMA 画像の解析によるベントナイト中の Cu の濃度の算出精度も、算出に供した画像点数が少ないこと等から、その算出精度についてはさらなる検討が必要である。そのため、本評価により長期間後の緩衝材変質量の見通しを示すことができたものの、評価に含まれる保守性や不確実性については、今後検討が必要であると考えられる。

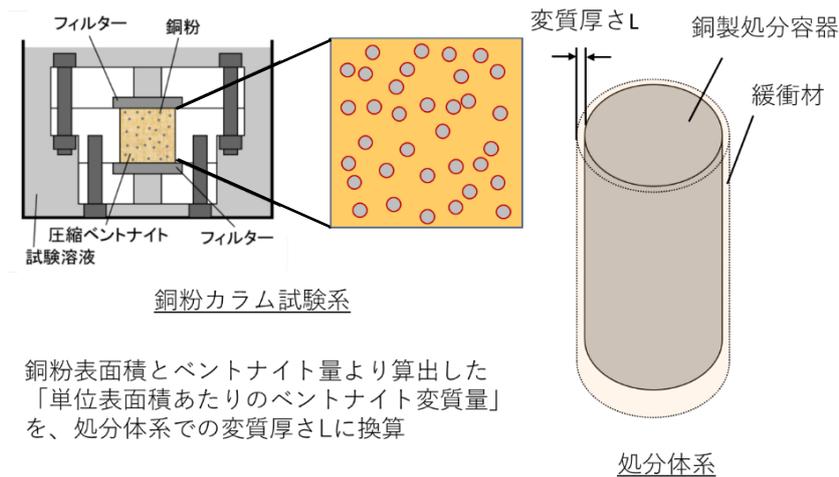


図 3.2-11 本評価に用いた銅粉カラム試験系及び処分体系の概念図

表 3.2-8 緩衝材変質速度算出結果

	銅粉カラム試験測定値	処分体系での評価値 (変質厚さ)
酸化性雰囲気	15 %/273 日 ($15 \%/ \mu\text{m} -\text{Cu}$)	$29 \mu\text{m} -\text{Bent}/ \mu\text{m} -\text{Cu}$
低酸素雰囲気	16 %/266 日 ($11 \%/ \mu\text{m} -\text{Cu}$)	$21 \mu\text{m} -\text{Bent}/ \mu\text{m} -\text{Cu}$

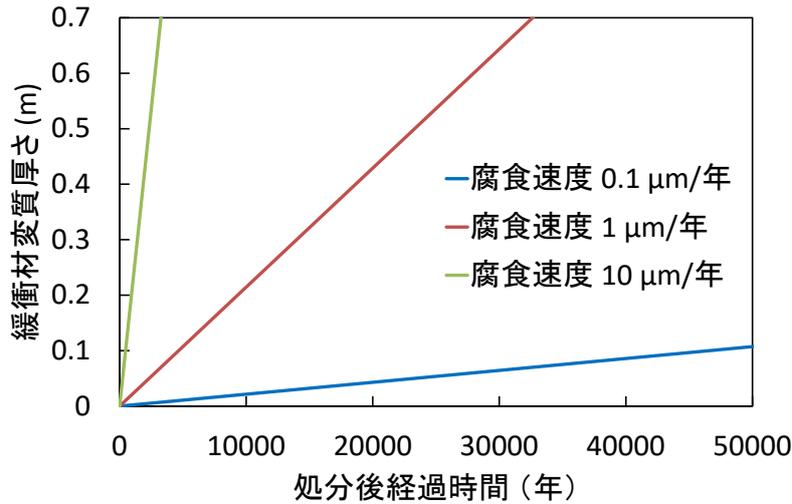


図 3.2-12 緩衝材変質厚さ評価結果

(4) 本事業のまとめ

本事業ではこれまでに、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、炭酸共存下および鉄共存下での変質挙動の調査、処分環境での緩衝材変質の可能性の評価の調査を実施した。これらの調査により得られた結果を以下に示す。

炭酸及び鉄共存下での変質挙動の調査の結果、変質試験の結果からは、炭酸及び鉄共存条件のいずれにおいても、ベントナイトの変質(モンモリロナイトの Cu 型化、他鉱物への変質)は示唆されなかった。また、炭酸及び鉄共存の影響メカニズムについて、熱力学データからの検討を行った結果、処分場閉鎖直後の酸化性条件で炭酸が影響する可能性があるものの、それ以外の条件では、炭酸及び鉄が共存しても、両者が共存しない場合と比べて変質挙動に変化はないと結論づけられた。

処分環境での緩衝材変質の可能性の評価においては、酸化性雰囲気、低酸素雰囲気での最長 270 日程度まで変質試験の結果からは、ベントナイトの変質(モンモリロナイトの Cu 型化、他鉱物への変質)は確認されなかった。また、変質試験の結果を実際の処分体系に適用し、処分環境での長期間後の緩衝材の変質量について評価した。その結果、銅粉カラム変質試験の結果より、処分環境で想定される長期間後の緩衝材の変質量について評価することが可能であった。この評価からは、数千～数万年後の緩衝材変質量を銅製処分容器の腐食速度に応じた値として評価し、特に、腐食速度 0.1 μm/年程度の低い腐食速度であれば、処分後数万年でも緩衝材の変質は顕著とはならないと推定される結果が得られた。

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

令和4年度は、燃料マトリクス中の長期溶解挙動を検討するため、溶解指標物質として²⁶Mgを固溶させたUO₂ペレットの浸出試験について、樹脂により液相とペレットの接触面積を限定した試料を作製し、マトリクス溶解速度を取得した。また、ラマン分光法による表面分析から、溶解に伴うUO₂ペレットの表面状態の変化を示唆する結果が得られた。

長期溶解速度に関する本事業の取りまとめとして、長期溶解速度に対する炭酸濃度の依存性を定式化した。UO₂ペレット表面積の評価手法や試験期間の影響から、処分環境で想定されるよりも高い溶解速度が得られていると推測される。そのような保守性を考慮した上で、長期溶解速度の暫定値として提示できると考えられる。

燃料集合体からの放射性核種の瞬時放出挙動を検討するため、大気雰囲気下において、燃焼度の異なるふげん使用済燃料を用いた浸漬試験を実施し、核種の溶出挙動を取得した。その結果、わが国の安全評価における瞬時放出率の設定値として、先行事業において提示した値が妥当な値、もしくは十分に保守的な値であることが示唆された。また、低酸素雰囲気下で一定期間還元条件を維持できる試験手法を構築した。

(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4年度の調査の結果、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型化は観察されなかった。また、炭酸及び鉄共存の影響メカニズムについて、熱力学データからの検討を行った結果、処分場閉鎖直後の酸化性条件で炭酸が影響する可能性があるものの、それ以外の条件では、炭酸及び鉄が共存しても、両者が共存しない場合と比べて変質挙動に変化はないと考えられた。

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を実施した。その結果、最長270日程度まで試験を実施したものの、ベントナイトの変質（モンモリロナイトのCu型化、他鉱物への変質）は確認されなかった。また、銅粉カラム変質試験の結果を実際の処分体系に適用し、処分環境での長期間後の緩衝材の変質量について評価した。その結果、処分環境で想定される長期間後の緩衝材の変質量について評価することが可能であり、腐食速度0.1 μm/年程度の低い腐食速度であれば、処分後数万年でも緩衝材の変質は顕著とはならないと推定される結果が得られた。

【参考文献】

- Bosbach, D., Christelle, C., Myllykylä, E., Jegout, C., Cobos, J., Farnan, I., Corkhill, C. (2021): DISCO Grant Agreement: 755443 DELIVERABLE D4.3, DISCO, Ref. Ares(2021)7264355
- 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 Pablo, 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 UO₂(s) dissolution under oxidizing Conditions, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 465, pp. 535-542.
- 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.
- 原子力機構 (日本原子力研究開発機構) (2022): 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.
- Giffaut E, Grivé M, Blanc P, Vieillard P., Colàs E., Gailhanou H., Gaboreau S., Marty N., Madé B., Duro L., (2014): Andra thermodynamic database for performance assessment: thermoChimie. *Appl Geochem.* 49, pp. 225-236.
- 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.
- 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. (2021): JAEA-TDB-RN in 2020: Update of JAEA's Thermodynamic Database for Solubility and Speciation of Radionuclides for Performance Assessment of Geological Disposal of High-level and TRU Wastes, JAEA-Data/Code 2020-020.
- Kitamura, A., Doi, R. and Yoshida, Y. (2010): Evaluated and estimated solubility of some elements for performance assessment of geological disposal of high-level radioactive waste using updated version of thermodynamic database, *Proc. 13th Int. Conf. Environmental Remediation and Radioactive Waste Management (ICEM2010)*, October 2010, Tsukuba, Japan, Paper No. ICEM2010-40172.
- Kitamura, A. and Akahori, K. (2017): Effect of carbonate concentration on the dissolution rates of UO_2 and spent fuel - A review, In: *Advances in Materials Science for Environmental and Energy Technologies VI*, Ohji, T. et al. eds., Wiley, pp. 133-144.
- 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.
- Madejová, J., Pálková, H. and Komadel, P. (2006): Behaviour of Li^+ and Cu^{2+} in heated montmorillonite: Evidence from far-, mid-, and near-IR regions, Vib. Spectrosc., Vol. 40, pp. 80-88.
- Metz, V. (2021): DISCO Grant Agreement: 755443 DELIVERABLE D3.3, DISCO, Ref. Ares(2021)7386153 - 30/11/2021
- Nguyen, Son N., Weed, Homer C., Leider, Herman R., Stout, Ray B. (1992): Dissolution Kinetics of UO_2 . I. Flow-Through tests on $\text{UO}_{2.00}$ 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> (2023年3月22日閲覧).
- Roth, O., Cui, D., Askeljung, C., Puranen, A., Evins, L.Z., Spahiu, K. (2019): Leaching of spent nuclear fuels in aerated conditions: Influences of sample preparation on radionuclide release patterns, J. Nucl. Mater, 527, 151789.
- 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 alpha-radiolysis on UO_2 dissolution determined from batch experiments with ^{238}Pu -doped UO_2 , 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検討事例	4-4
2) ノルウェーにおける斜孔による超深孔処分の検討事例	4-5
3) 欧州各国の放射性廃棄物のインベントリから超深孔処分の適用性について 検討した事例	4-10
4) 国際機関・その他の諸外国での超深孔処分の検討の最新動向	4-16
5) 超深孔処分の概念や評価事例の調査・分析のまとめ	4-18
(3) 超深孔処分に係る関連技術の調査・分析	4-18
1) 超深孔処分に係る関連技術の調査・分析の進め方	4-19
2) 超深孔処分のための掘削技術に関する調査・分析	4-22
① 超深孔の掘削可能性に影響を与える条件の検討・整理	4-22
② わが国における地温勾配の調査	4-24
③ わが国における間隙水圧の調査	4-24
④ わが国における岩盤強度の調査	4-25
⑤ わが国における異方性応力場の調査	4-25
⑥ わが国における結晶質岩上面深度の調査	4-27
3) 超深孔処分のための地質環境調査技術・データ取得技術に関する調査・ 分析	4-27
4) 超深孔処分に係る関連技術の調査・分析のまとめ	4-31
(4) 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	4-32
1) 掘削段階における超深孔の孔壁の維持に着目したケーススタディ	4-32
① ケーススタディを実施するにあたっての前提条件・仮定した条件	4-33
② 坑井掘削の安定性（応力場の仮定・設定）	4-34
③ 裸孔による掘削可能深度の検討	4-36
④ ケーシング設置による掘削可能深度の検討	4-41
⑤ わが国における超深孔の掘削可能深度についての考察	4-48
2) 超深孔処分の各事業段階で考慮すべき因子や候補となる技術オプション等 の分析・整理	4-49
3) 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・整理のまとめ	4-52
(5) 現段階における超深孔処分の技術的実現性の見通しや課題・留意点の整理	4-53
(6) まとめ	4-55
参考文献	4-57

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、岩石熔融処分、井戸注入処分、宇宙処分などについての国際的な評価が示されている。また、地層処分の安全性の不確実性を今後の研究開発などにより低減していくとともに、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）」（原子力機構, 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。このうち、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 3 年度までに、超深孔処分技術および関連する地質環境条件や工学技術等についての国内外での検討動向・事例などの調査と情報・技術の整理を継続するとともに、超深孔処分の実現のための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

等の具体化を試み、それらと関連付けることで、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。わが国における超深孔処分の成立性などに影響を与える因子については、令和2年度までに、超深孔処分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4年度は、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等に着目し、それら設計要件に直結する掘削技術や地質環境調査技術等に重点において最新の情報・技術の調査・分析の拡充を進めるとともに、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（岩盤強度と応力場との組合せ等に基づき設定）を対象に行った。さらに、これら調査や事例検討の結果や、過年度に実施した超深孔処分の成立性などに影響を与える因子の検討結果も踏まえて、わが国における超深孔処分の現段階での技術的実現性の見通しや課題・留意点の整理等を行った。

(2)項以降において、以下の構成で令和4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）
- 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)参照）
- 現段階における超深孔処分の技術的実現性の見通しや課題・留意点の整理（(5)参照）
- まとめ（(6)参照）

(2) 超深孔処分の概念や評価事例の調査・分析

超深孔処分は掘削技術の進展に伴って、米国（Brady et al., 2009 ; MIT, 2003）やスウェーデン（Juhlin et al, 1998）、英国（Beswick, 2008 ; Chapman and Gibb, 2003 ; Nirex, 2004）を中心に、地層処分以外のオプションとして、研究開発が行われるようになった。その後、2012年1月に公表された「米国の原子力の将来に関するブルーリボン委員会」の最終報告書（Blue Ribbon Commission, 2012）において、超深孔処分の潜在的な利点を評価することの必要性が明記され、サンディア国立研究所（以後、SNL）が中心となって、米国エネルギー省のファンドによるHLW（高レベル放射性廃液から分離・封入されたSr/Csカプセル等）を対象とした超深孔処分の研究開発が本格的に開始された（たとえば、Arnold et al., 2013）。このSNLを中心とした一連の研究開発では、実規模のフィールド試験も計画されていたが、2017年に米国エネルギー省によるファンドが凍結され、実規模フィールド試験も中止された。一方、その後もSNLにおける内部検討（たとえば、Freeze et al, 2019）や、英国シェフィールド大学等による研究開発（たとえば、Beswick et al, 2014 ; Collier, 2019 ; Gibb and Beswick, 2022）が継続的に進められている。一方で、最近の新たな動きとして、米国で2016年に設立されたDeep Isolation社が油田掘削技術を応用して考案した超深水平処分に係る一連の検討（たとえば、Deep Isolation, 2021 ; Baltzer, 2022）や、ノルウェーやデンマーク等の欧州の廃棄物インベ

ントリの小さい 5 か国が共同で進める欧州放射性廃棄物処分場開発機構（ERDO）における研究プロジェクト(ERDO, 2022)、さらにオーストラリア連邦科学産業研究機構(CSIRO)がオーストラリア原子力科学技術機構（ANSTO）や米国 SNL と共同で進める超深孔処分の実証に向けたプロジェクト（たとえば、Mallants et al., 2022 ; Fischer et al, 2022）が特筆される。さらに、IAEA においても、少数の原子力発電所や研究炉を有する廃棄物インベントリの小さい加盟国における処分の選択肢の一つとしてその特徴などが分析・整理されている（IAEA, 2020）。このように、最近の動きの特徴として、これまで米国や英国以外の国（オーストラリアや欧州の欧州放射性廃棄物処分場開発機構（ERDO）加盟国）、および IAEA などの国際機関においても検討が行われるようになったこと、さらに、超深水平処分などの新たな処分概念が検討されるようになったこと、対象深度もこれまでの 4,000～5,000 m（Very Deep Borehole Disposal）から比較的浅い 2,000 m 程度のものまで含めて Deep Borehole Disposal（DBD）として検討されるようになったこと（たとえば IFNEC, 2020 ; Chapman, 2019）が挙げられる（図 4-1 参照）。

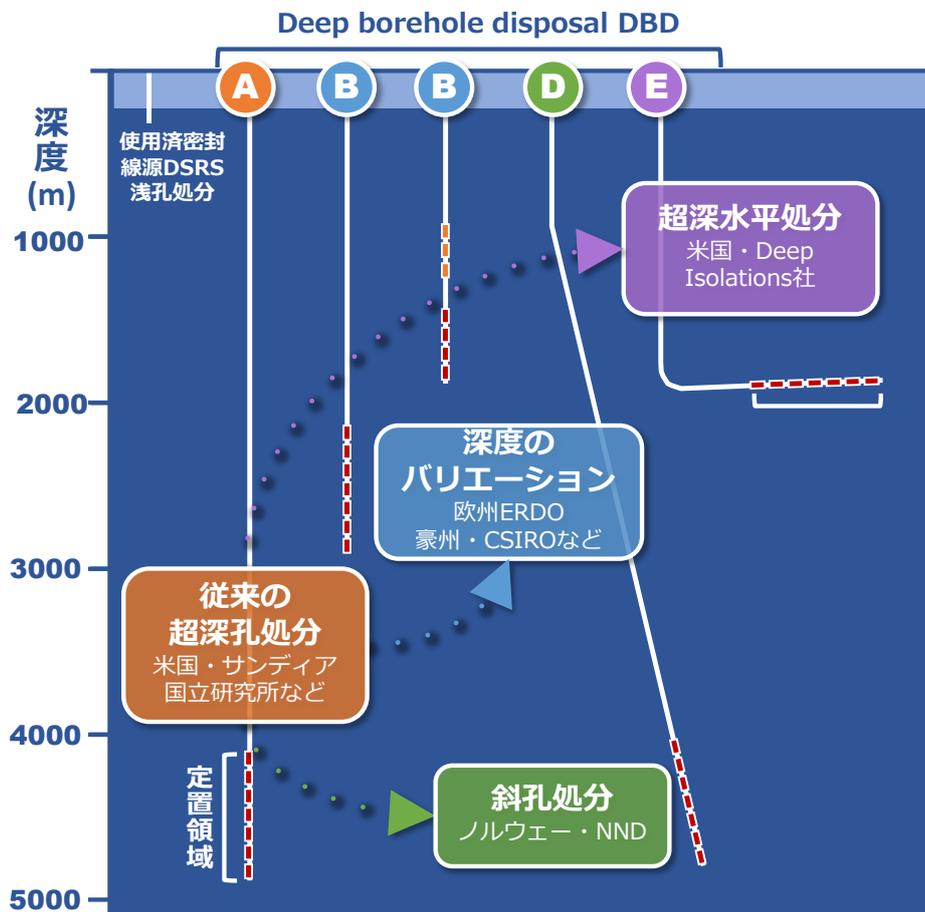


図 4-1 超深孔処分のバリエーション
 (IFNEC, 2020 Fischer et al., 2020 を基に作成)

そこで本節では、Deep Isolation 社、ERDO、ノルウェー、オーストラリア、および国際機関における最近の動向を調査・整理することとした。なお、本検討では上述の処分概

念をすべて超深孔処分と呼ぶこととする。

令和4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検討事例 (1) 参照)
- ノルウェーにおける斜孔による超深孔処分の検討事例 (2) 参照)
- 欧州各国における放射性廃棄物の量から超深孔処分の適用性について検討した事例 (3) 参照)
- 国際機関・その他の諸外国での超深孔処分の検討の最新動向 (4) 参照)
- 超深孔処分の概念や評価事例の調査・分析のまとめ (5) 参照)

1) 米国 Deep Isolation 社の超深水平処分の検討事例

米国で 2016 年に設立された Deep Isolation 社では、油田掘削技術を応用して考案した超深水平処分に係る一連の検討(たとえば Deep Isolation Inc, 2021; Baltzer, 2022)が行われ、2021 年には同社が提案している超深水平処分の概要とそれを実証するエビデンスを取りまとめたホワイトペーパーを公開している (Deep Isolation Inc, 2021)。本項では、上記のホワイトペーパーおよび参照している超深水平処分の閉鎖後安全評価に関する文献 (Deep Isolation Inc, 2020) について調査した結果を示す。

ホワイトペーパーの概要：

超深水平処分について、地域社会の同意を得て実施するための段階的な導入方法やコスト低減のメリットなどについて記載されている。コスト低減については、米国ネバダ州のユッカマウンテン計画における地層処分と Deep Isolation 社による超深水平処分に係るコスト比較が実施されており、超深水平処分のコストはユッカマウンテン計画の 58% (820 億ドル) と見積もられている。このコスト低減の主な要因として以下の 5 点が挙げられている。

- 建設コストの低減：Deep Isolation 社の坑井の坑径は地層処分の処分場に設けられる立坑の 8%以下であり、また掘削の際は石油・ガス業界において過去 20 年間で蓄積されてきたコントロールボーリングなどの掘削技術により安価に掘削することが可能である。
- 操業コストの低減：Deep Isolation 社が特許を取得している定置技術およびモニタリング技術により、地下施設での作業が不要となるため、操業コストの低減と安全性のリスク要因の除去を同時に達成可能である。
- 輸送コストの低減：超深水平処分では大規模集中型の地層処分場に対して、小規模な施設を分散して立地させることが可能であり、放射性廃棄物の長距離輸送を回避することが可能である。
- 迅速な実施：通常の地層処分場の計画や建設に係る期間は数十年単位であるが、Deep Isolation 社が提案する超深水平処分は施設を分散して地域毎に立地させることが考えられているため、より短い期間で実施することが可能である。
- 保管コストの低減：処分場の計画や建設に係る期間を大幅に短縮することにより、放射性廃棄物の一時保管によって発生するコストを低減することが可能である。

超深水平処分の仕様など：

- 処分深度は1,000 m以上、坑径は0.30～0.50 mを想定している。具体的な設計としては、深度約1,600 mに長さ約3,200 mの水平孔を掘削し、放射性廃棄物を定置することを想定している。また、水平孔の坑径は0.44 mを想定している。
- キャニスターは使用済燃料やその他の高レベル放射性廃棄物を収容できるよう設計されており、材質はNi-Cr-Mo合金である。
- 炭素鋼のケーシングの使用を想定している。処分場閉鎖段階で垂直坑道からケーシングを取り外したうえで、ベントナイト、セメント、アスファルトなどから成るシーリング材で鉛直孔を充填するとしている。

地質環境条件：

掘削で考慮する地質環境条件について、ホワイトペーパーには明確な記載はないものの、ホワイトペーパーが参照している超深水平処分の閉鎖後安全評価に関する文献(Deep Isolation Inc, 2020)から、処分場閉鎖後の安全評価において設定している地質環境条件に関する情報を抽出した。

- 母岩は粘土質堆積岩である頁岩が考慮されている。頁岩はシルトや粘土サイズの鉱物粒子が圧縮された亀裂性の細粒層状堆積岩であり、空隙容積は比較的大きいものの間隙自体は非常に小さく、透水性は一般的に非常に低い。
- 米国における一般的な地質環境条件が考慮されており、表層付近の帯水層は第四紀または第三紀の堆積岩で構成され、頁岩からなる母岩の上位は炭酸塩(例：石灰岩、ドロマイト)、泥岩、砂岩、シルト岩、頁岩、泥岩または粘土で構成されている。

掘削技術に関する検討：

- 石油・ガス業界で適用されてきたコントロールボーリング技術の飛躍的な進歩により、この掘削技術を活用することで、地下深部において水平孔を掘削することが可能であるとしている。ただし、掘削技術に関する内容の詳細については記述されていない。

閉鎖後安全性について：

処分場閉鎖後のセーフティケースでは次の2点が求められるとされている。

- 10万年間生活圏から放射性核種を隔離し、かつその濃度は放射線学的影響の観点から十分に低くなること。
- 最も過酷な事象(例えば、断層の影響など)を考慮した場合でも、最大被ばく線量の計算値は安全規制において求められる被ばく線量の基準値(100 $\mu\text{Sv y}^{-1}$)の1/1000以下であること。

2) ノルウェーにおける斜孔による超深孔処分の検討事例

ノルウェー原子力廃止措置機関(Norwegian Nuclear Decommissioning (NND))がドイ

ツ BGE Technology 社、フィンランド AINS Group 社などに依頼して進めているノルウェーにおける超深孔処分の検討事例 (Fischer et al., 2020) について調査した結果を示す。

ノルウェーは高レベル放射性廃棄物の発生量が少ないため、超深孔処分は地層処分の代替オプションとなり得るとしている。少量の放射性廃棄物を対象とした超深孔処分は、通常の地層処分よりも費用対効果ははるかに高い可能性があるため、本検討においては、ノルウェーにおける廃棄物量や地質環境条件などを考慮し、ノルウェーでの超深孔掘削に関する実現可能性とその課題や留意点などについて検討・分析を実施している。

超深孔処分概念の仕様など：

- ノルウェーの検討事例では、超深孔を斜孔で掘削することが想定されている。この処分概念は、一定の深度まで垂直に坑井を掘削後、斜めに処分孔を掘削するものである (図 4-2 参照)。
- ノルウェーの検討事例では、掘削孔を斜孔とした方がより多くの利点があるとしている。放射性廃棄物処分のための超深孔の各仕様についてのプラス面とマイナス面が表 4-1 のようにまとめられている。
- この検討事例における超深孔処分概念の主要部分は米国 SNL の超深孔処分の検討事例に基づいている。

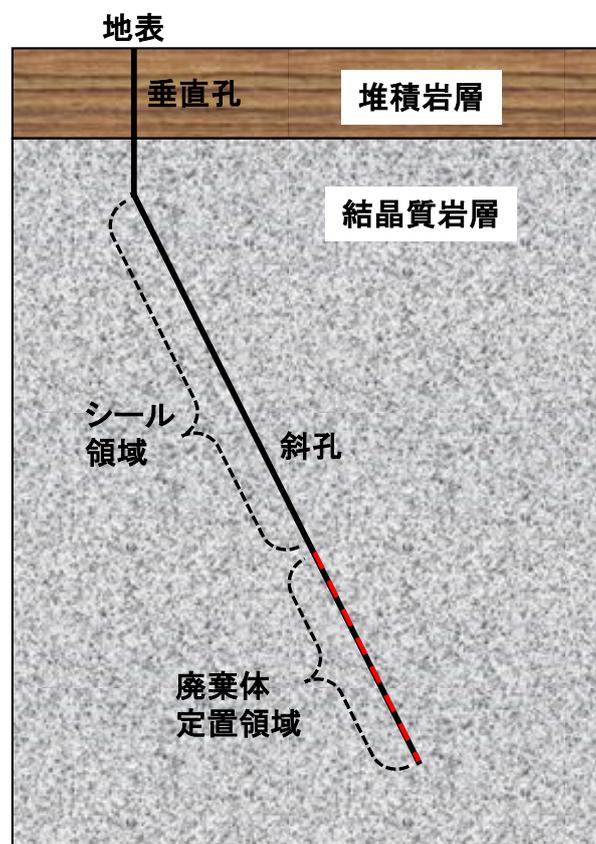


図 4-2 ノルウェーにおける斜孔による超深孔処分概念のイメージ

表 4-1 放射性廃棄物処分のための超深孔の各仕様のプラス面とマイナス面
(Fischer et al., 2020 を基に作成)

	鉛直孔 (一般的な超深孔処分 例えば、米国 SNL の事例)	斜孔 (例えば、本検討 (ノルウェーNND))	水平孔 (例えば、米国 Deep Isolation 社の超深水平処分)
プラス面	<ul style="list-style-type: none"> ➢ 掘削と仕上げが最も容易。 ➢ ケーシング・プログラムが最小化できる可能性。 ➢ 廃棄体の定置や回収が比較的容易。 ➢ シーリングおよび埋戻し作業が比較的容易。 	<ul style="list-style-type: none"> ➢ 地表の1つの掘削孔から複数の超深孔を掘削可能(異なる対象母岩に向けて複数の超深孔を掘削することが可能)。 ➢ 処分容器への(他の処分容器からの)圧力を軽減。 	<ul style="list-style-type: none"> ➢ 廃棄体定置領域が最も長い(定置領域を長くすることが可能)。 ➢ 掘削孔を通じての地表への潜在的な水みちの発生が少ない(水平坑井がわずかに上向きの場合)。 ➢ 他の処分容器からの圧力がかからない。
マイナス面	<ul style="list-style-type: none"> ➢ 廃棄体定置領域が短くなる可能性がある。 ➢ 掘削孔を通じた地表への潜在的な水みちが発生する可能性がある。 ➢ 処分容器を上下に重ねて定置することにより、最下段の処分容器に大きな圧力がかかる。 ➢ 地表の1本掘削孔から掘削できる超深孔は1本のみ。 	<ul style="list-style-type: none"> ➢ 掘削孔を通じての地表への地下水の潜在的な水みちが発生する可能性がある。 ➢ 掘削作業中のトルク等が増加する可能性がある。 	<ul style="list-style-type: none"> ➢ 複雑な掘削作業(コントロールボーリング技術等)が必要になる可能性がある。 ➢ 水平掘削部のセメント結合や、均一なセメント作業等の技術開発をする必要がある。 ➢ 廃棄体の定置や回収が困難。 ➢ 水平掘削孔の直径は制約をうける可能性がある。

地質環境条件：

ノルウェーの地質環境については、地表近傍から(一般的に岩盤強度が高い)結晶質岩が広く分布し、(一般的に岩盤強度が低い)堆積層の分布は限定的であり、超深孔の掘削に有利な条件を備えている。ノルウェーでは、結晶質岩が海成粘土層やその他の第四紀堆積物で覆われている地域においても、岩盤強度が高い結晶質岩が比較的浅い深度に存在する。また、陸域の大部分が結晶質岩からなるものの、粘板岩、砂岩、石灰岩も多く、また標高の低い場所には海成堆積物の分布があるが、大きく先カンブリア基盤、オスロ地溝帯、カレドニア造山帯の3つに分けられる。

- 先カンブリア基盤：結晶質基盤は、スヴェコノルウェー州のバルト楕状地に位置する。この造山帯は、11億4千万年前から9億8千万年前までの間に、伸長と圧縮の両方により変位した5つのセグメントから構成され、各セグメントはせん断帯によって互いに独立している。またノルウェー西部のベルゲンからトロンハイム一帯は先カンブリア基盤の一部であるが、西部は片麻岩地域帯となっており、様々に変形した先カンブリア時代の基盤から構成されている。
- オスロ地溝帯：ノルウェー南部は、結晶質基盤がオスロ・リフト(the Oslo Rift)とオスロ地溝帯(Oslo Graben)の2地域に分かれている。この地溝帯の起源は先カンブリア紀とされ、現在の地溝帯の大部分は石炭紀からペルム紀に形成されたものである。火成活動に伴う岩石圏の伸張により形成されたため、火山性の地溝

帯である。この地溝沿いでは、マグニチュード 2.0～3.8 (軽微) の地震が発生し、時にはそれ以上の規模の地震も発生することがある。

- スカンジナビア半島カレドニア造山帯：1,800 km に及ぶこの造山帯は、オルドビス紀から始まり、シルル紀中期からデボン紀初期にかけての大陸衝突によって形成されたものである。カレドニア造山帯の岩石は褶曲に加え、断層に沿って変位しており、多数のせん断帯が見られる。

また、地質環境条件として、応力と温度勾配が示されている。応力については、原位置応力データの収集により、ノルウェーの大部分で水平応力が鉛直応力よりも大きいことが示されている (Simonsen, 2018)。これは大西洋中部のリッジプッシュ (ridge push: 海嶺周辺のプレートは、流動性を有するアセノスフェア上部を重力の影響で滑り落ち海嶺から押し出されるが、このプレート運動の推進力のこと) が原因である可能性が高い。また局所的には最終氷期以降の地殻変動や地盤の隆起に影響を与えたことが分かっている。温度勾配については、ノルウェーでは 14～27 °C/km が観測されている (Midttømme et al., 2012)。また深度 1,000 m までのボーリング孔の測定結果を考慮し、熱流の地域分布に関する情報についても示されており、深度 5,000 m までの温度は 75 °C から 140 °C の間になるとしている。また、今後の課題として、容器設計に関わる塩分濃度等についてはほとんど情報がないため、更なる調査が必要であるとしている。

掘削技術に関する検討：

超深孔の深さや坑径は多くの因子の影響を受けるが、特に掘削装置の性能、掘削技術、地質環境条件に依存する。また、ケーシングの設計は坑底坑径に依存する。超深孔の場合は、処分容器の直径がケーシングの坑径を決定する因子となり、必要な内径のサイズが決まればそれを覆うケーシングの坑径を順に決定することができる。ノルウェーの検討事例では、想定する処分容器を設定したうえで、個々の影響因子は評価せず、簡略化した手順で必要な長さ・坑径の坑井の掘削可能性について検討している。

- 結晶質岩での掘削を想定している。
- ノルウェーの超深孔処分の検討においては、処分容器として BSK-R コンテナの使用を想定している。BSK-R コンテナは外径 520 mm、内径 350 mm、長さ 5,060 mm のやや円錐形の形状をしており、下部は上部よりも直径が小さくなっており坑道への下降がスムーズに行えるよう配慮された設計がなされている (GRS, 2012)。BSK-R コンテナを使用する場合の超深孔の坑径は 0.775 m、廃棄体定置領域の長さは、ノルウェーでの放射性廃棄物の全量を BSK-R コンテナに入れたときのコンテナ長さの合計から換算して最大で 1,500 m と評価されている。
- ノルウェーでの超深孔掘削におけるケーシング設置について簡略的な検討が行われており、深度 3,500 m までのケーシング設計 (ケーシングの外形、設置深度等量) の検討結果が示されている。ただし、これは大まかな見積りであることに留意する必要がある
 - コンダクターパイプ (外形：1,500 mm、深度：～15 m)

- 浅部ケーシング（外径：1,250 mm、設置深度：15 ～ 400 m）
- 中間ケーシング（外径 900 mm、設置深度：400 ～1,800 m）
- 処分ケーシング（外径：700 mm、設置深度：1,800 ～ 3,500 m）
- ケーシングの重量については、深さ 3,500 m でのケーシングの重量が計算例として示されているが（692.74 トン）、ノルウェーでは大きな荷重に耐えられるようにするために、より大きな外径や厚みがケーシングに要求される可能性があるため、その総重量は計算例よりはるかに大きくなる可能性があるとしている。また、ケーシングの重量は大きな課題であり、ケーシングの重量を考慮した掘削機器の入手可能性、掘削業界ではこのような大規模な掘削実績がほとんどないこと、掘削および（孔壁などの）仕上げ作業の全体的な実現可能性にも影響を与えることなどが課題になるとしている。
- なお、ノルウェーの検討事例では、裸孔による超深孔掘削については検討されていない。

廃棄体定置技術：

廃棄体の定置技術については、米国 SNL の検討事例やイギリスの検討事例（Beswick, 2008）を参照してまとめている。超深孔処分では石油・ガス業界とは異なり、廃棄体の重量が大きいことや処分容器の大きさ（定置用の装置の設計に影響を与える可能性がある）等を考慮する必要がある。本事例では5つの技術（自由落下、ワイヤーライン、ドリルパイプ／ドリルストリング、コイル・チュービングシステム、コンベヤライナー）の概要について調査したうえで、超深孔処分での適用性について評価した結果、ワイヤーラインとドリルパイプ／ドリルストリングの2つのオプションが、ノルウェーでの超深孔処分において廃棄体を定置できる可能性があると評価されている。

超深孔処分概念の各因子の相互依存関係とその影響などの整理について：

- 超深孔処分概念を構築するためには、各因子について設定や仮定を行う必要があるが、各因子は相互に関連・依存しているため、因子の設定や仮定が他の因子の設定や仮定に大きな影響を与えることになる（図 4-3 参照）。
- 超深孔の設計、処分容器の設計、地質環境条件が各因子に影響を与える主要な因子であるとしている。
- 超深孔処分概念の各項目は相互に関連・影響しているため、さらなる調査・検討が必要であるとしている。このため、ノルウェーの検討事例においては、超深孔の直径や深度などの詳細は設定されていない。

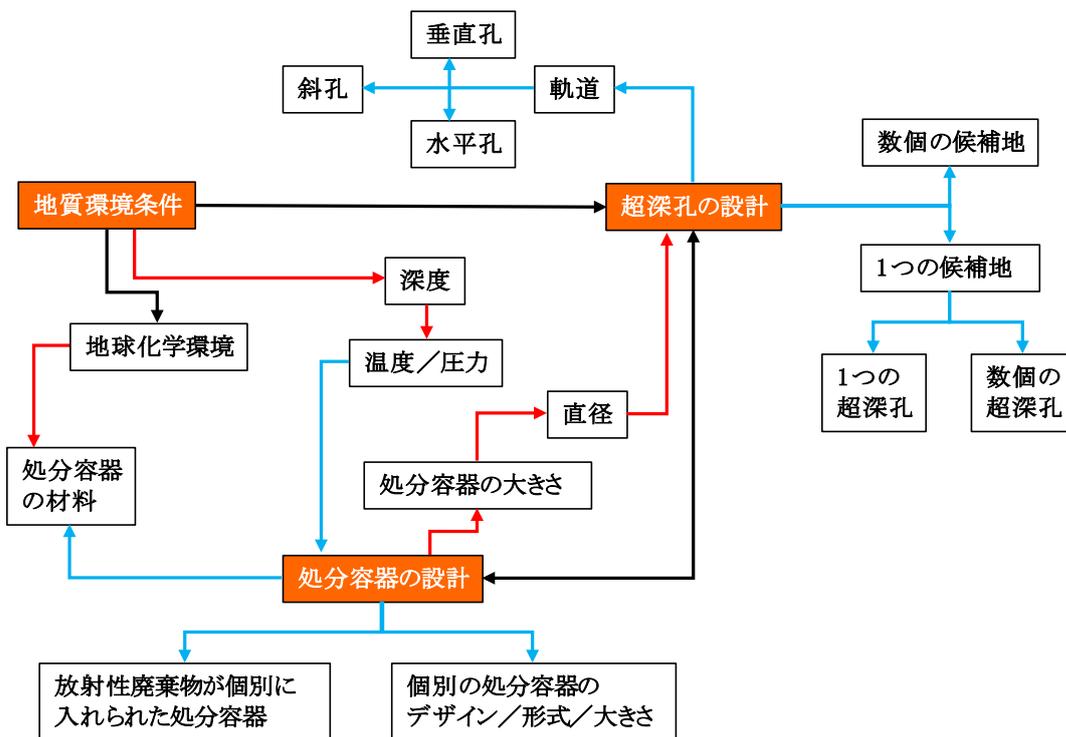


図 4-3 超深孔処分概念における各因子の相互依存関係の樹状図の例
(Fischer et al., 2020 を基に作成)

3) 欧州各国の放射性廃棄物のインベントリから超深孔処分の適用性について検討した事例

本項では、ノルウェー原子力廃止措置機関（NND）が欧州放射性廃棄物処分場開発機構（ERDO）に依頼して実施した、欧州各国の放射性廃棄物のインベントリから超深孔処分の適用性について検討した事例（ERDO, 2022）について調査した結果を示す。欧州放射性廃棄物処分場開発機構（ERDO）は、2021年に1月にデンマーク、ノルウェー、およびオランダの原子力関係機関によって設立され、各国が有する放射性廃棄物を安全に管理するという共通の課題解決に向け、それぞれの知識を共有し、放射性廃棄物の共有処分場を設置する共同プロジェクトが進められている。2023年3月現在、ERDOにはスロベニア、オランダ、デンマーク、イタリア、クロアチア、ノルウェー、ベルギーの7か国8機関が参加している。

本事例では、オーストリア、クロアチア、デンマーク、オランダ、ノルウェー、スロベニアにおいて超深孔処分が地層処分に対する実行可能な代替案となり得るかどうかを確認するために、各国の放射性廃棄物のインベントリ（廃棄物の総量や、処分容器の体積）から超深孔処分の適用可能性について検討した結果が報告されている。検討では、2) 項のノルウェーにおける斜孔による超深孔処分の検討事例の処分概念を基に超深孔の仕様等を設定し、その仕様に対して、各国の放射性廃棄物のインベントリに基づいた以下の試算を実施することで、各国での放射性廃棄物に対する超深孔処分の適用可能性について

検討している。

- 放射性廃棄物のインベントリに基づいて、超深孔処分で処分できる可能性があるのかについての評価
 - ✓ 廃棄物が超深孔に入るかどうか(小さい断片に切断する等、加工が必要か等)。
 - ✓ 廃棄物のインベントリが超深孔に入るかどうか、入るとしたときに超深孔1本～数本程度で済むか(総量が多すぎないかどうか)。
- 超深孔処分で処分できると評価された放射性廃棄物に対する超深孔処分のコスト評価

なお、本検討では低・中レベル放射性廃棄物(LILW)についても検討を実施しているが、LILWに関して設定された超深孔処分の仕様は深度500m(地層処分と同程度の深度)であることに留意する必要がある。本検討では、多くのLILWについては、その総量が多すぎるため超深孔処分に不向きであるとの結論になっている。

なお、本検討では、各国の放射性廃棄物のインベントリ(廃棄物の総量や、処分容器の体積)のみで検討をしているため、欧州各国の地質環境条件の調査や、該当する超深孔が掘削可能かどうか等の技術的な検討は行われていないことに留意する必要がある。

超深孔処分概念の仕様など：

本事例では、超深孔については2)項のノルウェーにおける斜孔による超深孔処分の検討事例の処分概念に基づき、ノルウェーでの超深孔掘削におけるケーシング設置についての簡略的な検討における超深孔の仕様(深度3,500m、超深孔の外径0.775m)を設定している。また、キャニスターについては文献(Wunderlich et al., 2021)に基づいて外径0.6mを設定している。ケーシングについては岩盤の安定性が高く間隙水圧の低い母岩を選択すれば超深孔最下部でのケーシングは不要となる可能性があるとしている。また、処分容器について、廃棄物の種類に関係なく同じ仕様(以後、「DBD処分容器」)を設定している。これは、多様な廃棄物を単一の超深孔処分の設計で取り扱えるという利点があるからである。

また、LILWに関する検討では、高レベル放射性廃棄物(HLW)と異なる設計が設定されている(200Lドラム缶をオーバーパックに収納し、深度500m、直径0.7mの坑道の100m以深に処分する)。使用されるオーバーパックはドラム缶4本を縦に収納することが可能である。このオーバーパックについて、1個当たり15,000ユーロとして処分費用が推計されている。

地質環境条件：

本事例では、2)項のノルウェーにおける斜孔による超深孔処分の検討事例の処分概念に基づいているため、地質環境条件等は結晶質岩を想定している。ただし頁岩や岩塩のような岩盤もあり得るとし、レファレンスとして設定した処分概念が他の種類の母岩に適應される可能性を排除するものではないと述べられている。岩種以外の地質環境条件については記載されていない。

掘削技術に関する検討：

本検討では、各国の放射性廃棄物のインベントリ（廃棄物の総量や、処分容器の体積）のみで検討をしているため、各国の地質環境条件において超深孔が掘削可能かどうか等の技術的な検討は行われていない。

欧州各国の放射性廃棄物インベントリに基づく超深孔処分の適用可能性に関する検討：

オーストリア、クロアチア、スロベニア、デンマーク、オランダ、ノルウェーの6か国について、放射性廃棄物のインベントリに基づいて評価された超深孔処分の適用性に係る検討結果を以下に示す。

- オーストリア：オーストリアでは使用済燃料（SNF）は米国に返還されるため、オーストリア国内でHLW及びSNFは処分されない。LILWは2016年末時点で2,300 m³が一時保管されており、そのうちの2,240 m³が短寿命（LILW-SL）で、60 m³が長寿命（LILW-LL）である。ここで廃棄物に含まれる核種の半減期が30年以上である場合を長寿命としている。LILW-LLの体積60 m³は75個のオーバーパックを必要とするため、ボーリング孔を1～3本建設することが考えられる。この場合ボーリング孔（1本当たり2百万ユーロ）に係る費用は2～6百万ユーロ、75個のオーバーパックについては約110万ユーロが必要になるとしている。オーストリアにおける上記の放射性廃棄物のインベントリに基づく超深孔処分の適合性の評価結果を表4-2に示す。

表4-2 オーストリアにおける放射性廃棄物のインベントリに基づく超深孔処分の適合性の評価結果

廃棄物の種類	処分容器	超深孔処分との適合性	体積[m ³]
施設廃棄物 (LILW-SL)	ドラム缶 (200 L)	不適合 (廃棄物量が多すぎる)	2,215
廃炉廃棄物 (LILW-SL)	Mosaik (キャスク)	不適合 (処分容器が大きすぎる)	7
廃炉廃棄物 (LILW-SL)	コンラッド タイプ II	不適合 (処分容器が大きすぎる)	23
LILW-LL	ドラム缶 (200 L)	適合	60

- スロベニア、クロアチア：スロベニアおよびクロアチアは、スロベニアのクルシェコにある原子力発電所を共同で所有・管理している。同発電所では稼働を終了する2043年までに2,282体のSNFが生成される見込みである。発電所の廃炉と使用済燃料の貯蔵施設の稼働により、HLWに分類される廃棄物が82トン（237 m³）発生するとされ、これらは直径2.5 mのHI-SAFEコンテナに保管される。LILWについては様々な多様な処分容器に封入されており、最も大きな容器は200 Lドラム缶である。スロベニアおよびクロアチアにおける上記の放射性廃棄物のインベントリに基づく超深孔処分の適合性の評価結果を表4-3、表4-4に示す。

表 4-3 スロベニアにおける放射性廃棄物のインベントリに基づく
超深孔処分の適合性の評価結果

廃棄物の種類	処分容器	超深孔処分との適合性	体積[m ³]
SNF (HLW)	DBD 処分容器	適合	162.5
廃炉廃棄物 (HLW)	HI-SAFE (直径 2.5m)	小さく加工された場合にのみ 適合	118.5

表 4-4 クロアチアにおける放射性廃棄物のインベントリに基づく
超深孔処分の適合性の評価結果

廃棄物の種類	処分容器	超深孔処分との適合性	体積[m ³]
LILW	SS シリンダー またはドラム缶 (200 L)	適合	2.9
Krško 原子力発電所 の運転廃棄物 (LILW)	鉄筋コンクリート 容器	不適合 (処分容器が大きすぎ る、廃棄物量が多すぎる)	1,503
Krško 原子力発電所 の廃炉廃棄物	鉄筋コンクリート 容器	不適合 (処分容器が大きすぎ る、廃棄物量が多すぎる)	1,421
SNF (HLW)	DBD 処分容器	適合	162.5
廃炉廃棄物 (HLW)	HI-SAFE (直径 2.5m)	小さく加工された場合にのみ 適合	118.5

- デンマーク：デンマークでは 3 基の研究用原子炉が過去に稼働しており、現在すべて停止している。SNF は 233 kg であり、いずれも中レベル放射性廃棄物 (ILW) に分類される。この SNF 残渣に加え、Risø の原子力施設の廃止に伴い 17,500 m³ の LILW が発生するとしている。デンマークにおける放射性廃棄物のインベントリに基づく超深孔処分の適合性の評価を表 4-5 に示す。

表 4-5 デンマークにおける放射性廃棄物のインベントリに基づく
超深孔処分の適合性の評価結果

廃棄物の種類	処分容器	超深孔処分との適合性	体積[m ³]
SNF 残渣 (LL-ILW)	ステンレス製 シリンダー	適合	1
他の LILW	各種容器	不適合 (廃棄物量が多すぎる)	17,500

- オランダ：オランダでは、ボルセルで1基の原子力発電所（485 MWe）が運転中である。またドデワールにある原子力発電所（60 MWe）は1969年から1997年まで運転され、現在は閉鎖されている。研究用原子炉は2基が運転中であるがそのうち1基は廃炉予定である。オランダ政府の慣例では、原則として、SNFを再処理するかどうかの選択は原子力施設の運営者に委ねられている。実際には、原子力発電所からのSNFは再処理されているが、研究炉の燃料は再処理されていない。燃料は、セラフィールド（英国）またはラ・アーグ（フランス）で再処理されている。再処理後の残渣はオランダに戻され、放射性廃棄物中央機構（COVRA）の施設に保管されている。返還される残渣は次の2種類である。

- CSD-v (Colis Standard Déchet-vitrified)：核分裂生成物とアクチニドをガラス固化したもの。
- CSD-c (Colis Standard Déchet-compacted)：SNFのハル・エンドピース。

COVRAはCSD-vを発熱性HLW、CSD-cを非発熱性HLWに分類している。両者ともに直径0.43 m、高さ1.335 mのステンレス鋼製円筒の容器に収容される。

またオランダの研究炉からのSNFとその他のHLWは、直径0.846 m、長さ1.236 mの円筒形のECN容器に保管される。オランダの廃棄物管理戦略では2130年までCOVRAで保管することになっているが、2130年時点での廃棄体パッケージの推定量は、CSD-vが478パッケージ、CSD-cが600パッケージ、ECNが350パッケージである。また、オランダの放射性廃棄物インベントリには40,000 m³以上のLILWが含まれているが、その総量が膨大であることから超深孔処分に適合しないものと考えられる。オランダにおける上記の放射性廃棄物のインベントリに基づく超深孔処分の適合性の評価結果を表4-6に示す。

表 4-6 オランダにおける放射性廃棄物のインベントリに基づく
超深孔処分の適合性の評価結果

廃棄物の種類	処分容器	超深孔処分との適合性	体積[m ³]
ガラス固化体 (発熱性 HLW)	CSD-v	適合	93
ハル・エンドピース (非発熱性 HLW)	CSD-c	適合	116
ECN コンテナ内の HEU (高濃縮ウラン) - SNF (HLW)	ECN	ECN が超深孔に入らないの で、再パッケージ化が必要	21
LEU (低濃縮ウラン) -SNF を ECN 容器に入 れたもの (HLW)	ECN	ECN が超深孔に入らないの で、再パッケージ化が必要	83
その他の HLW	ECN	ECN が超深孔に入らないの で、再パッケージ化が必要	116
圧縮された廃棄物 (LILW)	ドラム缶 (200 L)	不適合 (廃棄物量が多すぎる)	28,000
樹脂・固定化液 (LILW)	コンクリート容器 (1000 L)	不適合 (廃棄物量が多すぎる)	800
固定化液体 I・II (LILW)	コンクリート容器 (1000 L)	不適合 (廃棄物量が多すぎる)	1,600
劣化ウラン (LILW)	コンラッドタイプ II	不適合 (廃棄物量が多すぎる)	11,024

- ノルウェー: ノルウェーは 1951 年から 2019 年まで合計 4 基の研究用原子炉を稼働させていたが、現在はすべての運転を終了している。ノルウェーにおける放射性廃棄物のインベントリに基づく超深孔処分の適合性の評価結果を表 4-7 に示す。ノルウェーの SNF はすべて 1 つの超深孔に収まる可能性があるため、同評価では、超深孔処分は最も妥当な選択肢であるとされた。

表 4-7 ノルウェーにおける廃棄物と超深孔処分概念との適合性

廃棄物の種類	処分容器	超深孔処分との適合性	体積[m ³]
SNF (HLW)	DBD 処分容器	適合	6
廃炉等 (LILW)	ドラム缶 (200 L)	不適合 (廃棄物量が多すぎる)	10,100

超深孔処分のコスト試算について：

Deep Isolation 社は上述のクロアチア、スロベニア、デンマーク、オランダ、ノルウ

ューのインベントリを統合し、多国間のインベントリを考慮した超深孔処分のコストを試算している。なお、このコスト試算においては、上述の各国の超深孔処分概念とは異なるキャニスターが使用されていることに留意する必要がある。コスト試算結果を表 4-8 に示す。多国間のインベントリを考慮した超深孔処分に係るコストは、地層処分の場合より 56～65%低く、また各国の処分コストの約 3 分の 2 となる可能性があるとしている（Deep Isolation and ERDO, 2021）。

表 4-8 多国間のインベントリを考慮した超深孔処分概念のコスト試算

	コスト（地質：花崗岩） （単位：百万ユーロ）	コスト（地質：頁岩） （単位：百万ユーロ）
サイト選定・許可	89.1	89.1
建設	329.7	200.1
操業	199.6	199.6
処分場閉鎖	30.7	18.0
閉鎖後のモニタリング	34.9	34.9
合計	683.9	541.7

超深孔処分の適合性評価とコスト試算結果の整理

クロアチア、スロベニア、デンマーク、オランダ、ノルウェーにおいて、放射性廃棄物のインベントリが比較的少ない高レベル放射性廃棄物や長寿命の中レベル放射性廃棄物に対して、超深孔処分は技術的に実現する可能性があり、またコスト効率の良い選択肢となる可能性があるとしている。

4) 国際機関・その他の諸外国での超深孔処分の検討の最新動向

本項では、IAEA などの国際機関およびその他の国での超深孔処分の検討の最新動向として見つかった最新情報の概要を示す。これらについては、IAEA 等での検討が継続的に進められているため、今後詳細調査を実施する必要があると考えられる。

国際機関における動向：

IAEA では、独自に安全、効果的かつ経済的な処分を実施することが困難な廃棄物インベントリの小さい加盟国に対して、有効な処分概念の特徴を分析・提示する目的でケーススタディが行われ、2020 年 12 月に報告書が公表されている（IAEA, 2020）。このケーススタディでは、中レベル放射性廃棄物（ILW）および高レベル放射性廃棄物（HLW）、および使用済燃料（SF）を対象に、すでに計画・運用の実績のある処分概念や、概念検討段階のものを含む、さまざまな処分概念について、利点と欠点、処分概念の技術開発の成熟度等の観点から評価されている。本報告書のケーススタディでは、サイロ型施設、地下空洞、旧鉱山の転用、中深度ボーリング孔、超深孔の 5 つの処分概念が対象となっており、使用済密封放射線源（DSRS）を対象とした中深度ボーリング孔処分（深度数十 m～数百 m）と

は別の処分概念として超深孔処分 (very deep borehole disposal) が取り上げられ、最も放射能レベルの高い廃棄物に対して、高い隔離・閉じ込め性能を潜在的に有することや、サイト調査の簡略化などの利点が示されている。さらに、IAEA では 2019 年に 15 か国が参加して IAEA のボーリング孔処分に関する国際共同研究プロジェクト (CRP) が 2019 年に開始されている (IAEA, 2019)。このプロジェクトは、主として使用済密封放射線源 (DSRS) の処分を対象としたものであるものの、米国 (SNL)、ノルウェー (NND)、ドイツ (BGE)、オーストラリア (ANSTO および CSIRO) など、中レベルや高レベルの超深孔処分を検討している国・機関も参加している。2020 年 12 月にはこの CRP のウェビナーにおいて後述するオーストラリアにおける実証プロジェクトに関する報告が行われている (Mallants, et al., 2020)。

OECD-NEA では、超深孔処分を対象としたセーフティケースの検討に反映することを目的に、LLW、HLW および使用済燃料を対象に、OECD-NEA、欧州委員会 (EC)、IAEA における最近の取組み状況を 2017 年に報告書にまとめているほか (OECD-NEA, 2017)、2018 年 10 月にロッテルダムで開催された RWMC のセーフティケースシンポジウム 2018 (OECD-NEA, 2018) において、米国 SNL における超深孔処分におけるセーフティケースの検討例についての報告 (Freeze and MacKinnon, 2018) が行われている。また、2020 年 11 月に開催された国際原子力エネルギー協力フレームワーク IFNEC のウェビナーにける OECD-NEA からの報告においても、2021 年 6 月の NEA ワークショップにおいて超深孔処分に係る最初の議論が行われること、および翌年の 2022 年に開催される RWMC のワークショップにおいては、セーフティケースに係る NEA の知見を超深孔処分の他の処分概念にも適用していくための取組みが提案され、決定される見込みであることが示されている。RWMC のワークショップにおける議論の状況や、その後開催される可能性のある IGSC のアドホックの会合の状況など、OECD-NEA の最新動向についても継続的に情報収集を行う必要がある。

オーストラリアにおける動向：

オーストラリアでは、オーストラリア連邦科学産業研究機構 (CSIRO)、オーストラリア原子力科学技術機構 (ANSTO)、および米国 SNL が共同で、本格的なボーリング孔掘削の研究、開発、実証 (RD&D) プロジェクトが開始されている (Mallants, et al. 2020; 2021; 2022)。このプロジェクトは、鉛直ボーリング孔処分の技術的実現可能性と長期的な安全性を実証することを目的に実施されている。技術開発・実証においては、直径 0.7 m、深さ 2,000 m のデモンストレーションボーリング孔での孔壁処理のデモンストレーションと、廃棄体やシーリングの定置・設置技術の本格的なフィールド試験、閉鎖後安全評価、およびセーフティケースの構築が含まれる。また、このプロジェクトには、ドイツの BGE テクノロジー社等もコンソーシアムに加わっており、主に掘削技術や定置技術等の開発で協力している模様である (Fischer et al., 2022)。オーストラリアにおいて対象となる廃棄物は、長半減期の中レベル放射性廃棄物等である (表 4-9)。

表 4-9 オーストラリアにおける放射性廃棄物のインベントリ
(Mallants et al., 2020 を基に作成)

タイプ	容量 (m ³)	放射能 (TBq)
使用済燃料 (HIFARおよびOPAL研究炉-LEU) - ガラス固化体	20 (< 1%)	54000
シンロック (Mo-99)	150 (5%)	1300
使用済ウランフィルタカップ (Mo-99 production)	10 (<1%)	60
使用済密封線源DSRS (cat I & II)	-	-
その他	3000	-

5) 超深孔処分の概念や評価事例の調査・分析のまとめ

令和4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、同社が提案している超深水平処分の概要などを取りまとめたホワイトペーパーを調査・整理した。また、ノルウェー原子力廃止措置機関が進めている斜孔による超深孔処分の検討事例と、欧州各国の放射性廃棄物のインベントリから超深孔処分の適用性について検討した事例について調査・整理した。さらに、国際機関およびその他の諸外国での超深孔処分の検討の最新動向について調査・整理した。

調査・整理の結果、放射性廃棄物のインベントリが比較的少量の場合については超深孔処分の適用性が高い可能性がある（超深孔が1本～数本で済むなど、コスト効果が高い可能性がある）とされていることを確認した。また、ノルウェーでの斜孔による超深孔処分の検討事例においては、放射性廃棄物のインベントリが少量であることに加えて、岩盤強度や均質性の高い良好な岩盤が検討の対象となっている。一方、岩盤の強度や異方性などの不確実性が大きいわが国において、掘削技術や定置技術が成立し得るかどうかについては、慎重な検討が必要になることが示唆された。また、大坑径での超深部までの掘削技術については、ノルウェーの検討事例においても簡略的な検討に留まっているため、大坑径の超深孔掘削の技術開発などの最新動向については、今後も引き続き調査していく必要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・分析していくことが重要である。特に、IAEAなどの国際機関での超深孔処分の検討の最新動向については、詳しく調査していくことが今後の課題になると考えられる。

(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など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・分析を実施した。

- 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 0.50 m 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・取得できるか、どのような留意点や課題があるかなど。

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・分析の効率的な進め方（アプローチ）を検討し、この進め方に基づいて上記の3つの技術の調査・分析を実施した。なお、これらの調査・分析結果については、後述「(4) 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」における条件設定などに反映する。令和4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・分析の進め方 (1)参照)
- 超深孔処分のための掘削技術に関する調査・分析 (2)参照)
- 超深孔処分のための地質環境調査技術・データ取得技術に関する調査・分析 (3)参照)
- 超深孔処分に係る関連技術の調査・分析のまとめ (4)参照)

1) 超深孔処分に係る関連技術の調査・分析の進め方

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調査・分析の進め方が効率的であると考えられる。

そこで、令和3年度に検討した調査・分析の進め方（原子力機構, 2022）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。本年度の超深孔処分に係る関連技術の調査・分析については、令和3年度の調査・分析の進め方を踏襲して調査・分析を実施した。ここでは、令和3年度に検討した調査・分析の進め方の概要について説明する。

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。調査・分析の進め方では、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に、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。

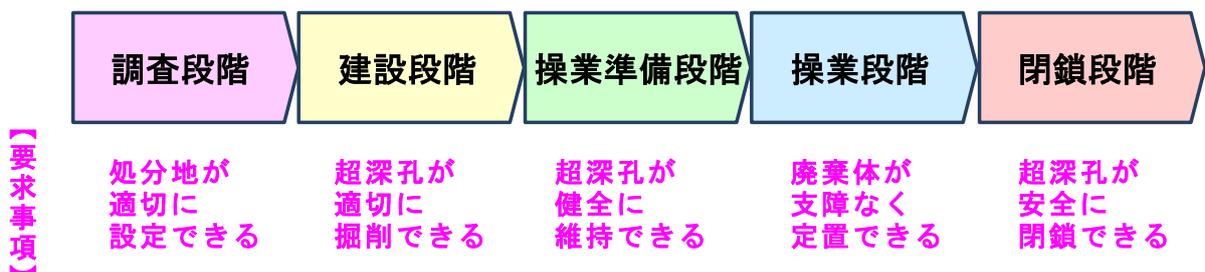


図 4-4 超深孔処分において想定される事業段階の区分および要求事項の設定
(原子力機構，2022 より)

また、それぞれの区分の特徴を以下に示す。

- 調査段階：広域スケールからサイトスケールにいたる地質環境や THMC 環境を、超深孔を掘削することなく調査する段階。
- 建設段階：超深孔を必要な坑径と深度で掘削する段階。超深孔を掘削しながら、あるいは掘削した直後に、超深孔を利用して行う各種のデータ取得作業（坑井利用型物理探査、坑井内試験、物理検層およびコア試験など）が行われる。
- 操業準備段階：超深孔が掘削された直後から定置作業の開始直前までの各種作業を行う段階。廃棄体の降下のために坑壁状況を適切化する作業、必要に応じて坑井内を適切な流体で満たす作業及び廃棄体を降下させるための設備の建設作業などが行われる。
- 操業段階：廃棄体（キャニスターストリング）を個々のキャニスターの順次降下によって降下する作業。降下した廃棄体の定置作業および定置した廃棄体を次の廃棄体の降下に向けてブリッジプラグやセメントプラグによって防護するとともにベントナイトによってシールする作業などを含む一連のサイクルを基本とし、同サイクルを必要な回数だけ繰り返す段階。
- 閉鎖段階：所定の数量の廃棄体を定置した直後から始まる作業の全てを行う段階。超深孔掘削と廃棄体降下に使用したケーシングを抜管する作業や、抜管した深度区間をベントナイトによってシールする作業が行われる。

次に、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（例えば、諸外国のサイト選定要件（平成 28 年度報告書（原子力機構, 2017））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。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 4-10 のようにまとめられる。

表 4-10 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
(原子力機構, 2022 より)

事業段階	要求事項	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、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 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など）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。超深孔処分の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 4-11 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。

表 4-11 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
(原子力機構, 2022 より)

【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)】
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	結晶質岩・深成岩分布の把握/弱部の存在の把握/ 地温勾配の把握/動水勾配の把握/応力場・岩盤 間隙水圧の把握
建設段階	超深孔が適切に掘削できる。	深度確保 孔径確保	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)
操業準備段階	超深孔が健全に維持できる。	孔径維持 孔壁維持	弱部(岩盤強度が弱い、透水性が高い等)の存在に 対する対応。
操業段階	廃棄体が支障なく配置できる。	廃棄体降下	廃棄体の降下方法(坑内の状況、流体のある/なし等)
		廃棄体定置	
		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
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	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

2) 超深孔処分のための掘削技術に関する調査・分析

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「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、始めに、超深孔の掘削可能性に影響を与える条件を、その相互関係等を踏まえて整理したうえで、重要となる条件について、わが国での分布状況等を調査・整理した。

具体的な実施内容を以下に示す。

- 超深孔の掘削可能性に影響を与える条件の検討・整理 (①項参照)
- わが国における地温勾配の調査 (②項参照)
- わが国における間隙水圧の調査 (③項参照)
- わが国における岩盤強度の調査 (④項参照)
- わが国における異方性応力場の調査 (⑤項参照)
- わが国における結晶質岩上面深度の調査 (⑥項参照)

① 超深孔の掘削可能性に影響を与える条件の検討・整理

ここでは、超深孔の掘削可能性に影響を与える条件について検討整理した。超深孔の掘削可能性に影響を与える可能性のある条件については、専門家へのヒヤリングやロジックツリーによる原因分析を通じて、その条件を抽出した。超深孔での掘削の可否に影響を与える地質環境条件等の抽出・整理結果を図 4-5 に示す。その結果、最新の掘削技術を用いても超深孔の掘削が困難になる条件として、以下の条件①～条件⑤を抽出した。

- 条件① 異常高温の存在：
ビット、泥水、セメント等への熱負荷により掘削装置が稼働しない。

- 条件② 異常高圧の存在：

高圧の間隙水圧を支えられる程度に大きく、かつ坑壁を崩壊させない程度に小さいことが求められる坑井内流体(泥水)の密度を適切に設定するのが難しくなり、流体密度をわずかに大きくするだけで坑壁に作用する圧力が破壊圧より高くなるため、坑壁が崩壊する。また、坑井内流体の密度を適切に設定するためには掘削ウインドウを深度区間で区分することが必要になるが、そのために必要になるケーシングの段数が多くなり、結果として深部ケーシングほどケーシング径が小さくなるため、超深部での坑径確保が難しくなる。
- 条件③ 岩盤強度が低い：

高強度部の坑壁を崩壊させない程度に小さく調整した坑井内流体の密度では周囲の岩盤を支えきれず、坑井が崩壊する。
- 条件④ 応力場の異方性が大きい：

坑壁に作用する応力が特定の方角（最小主応力方角）で局部的に高くなるため、坑壁が崩壊する。
- 条件⑤ 結晶質岩の上面深度が大きい（堆積岩が厚い）：

結晶質岩の上面深度が深くなるとケーシングの重量が増加し、吊り下げることが不可能になる。また、堆積層が高透水性または亀裂の存在によって坑井から周辺の岩盤への逸水が発生すると、より厚い（重い）ケーシングを設置することが必要になるので、ケーシング重量の増加がより顕著になる。

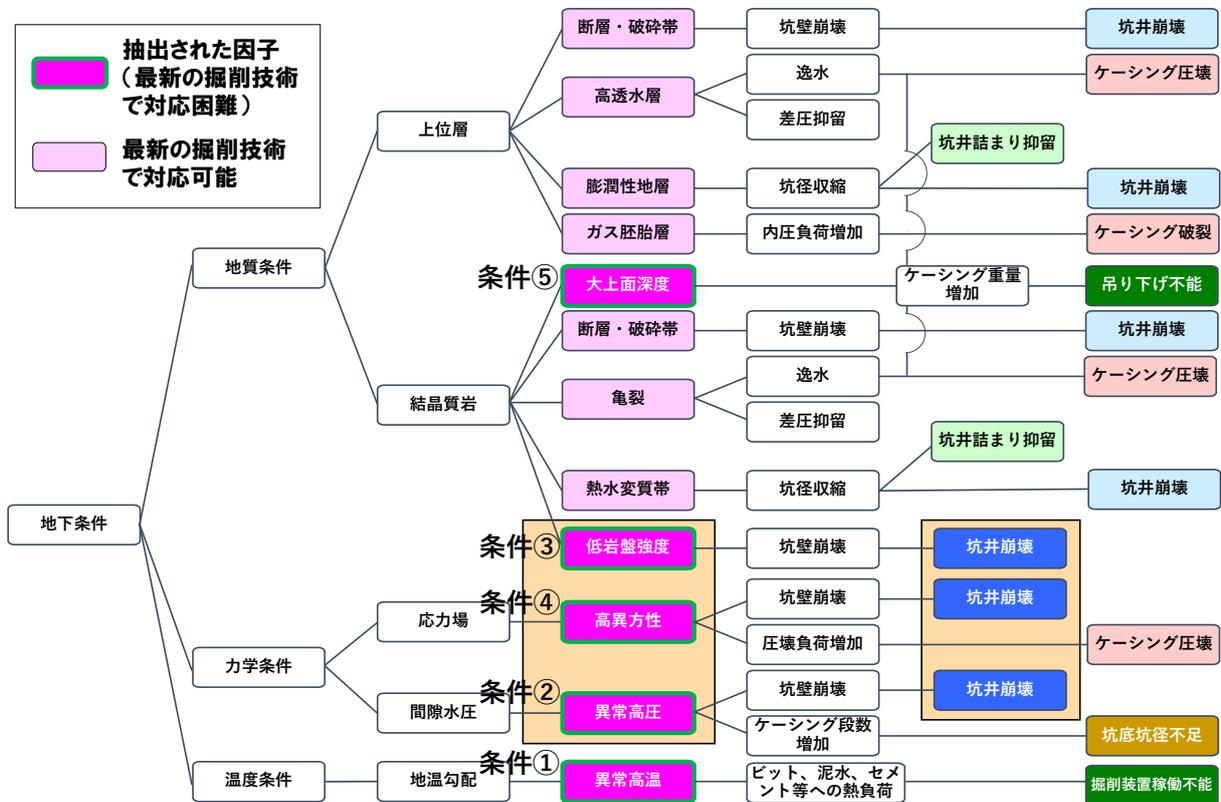


図 4-5 掘削可能性に影響を与える地下条件のロジックツリー

上記の検討結果を踏まえたうえで、超深孔の掘削可能性への影響が大きいと考えられる条件①～条件⑤について、わが国における一般的な条件等を把握するための文献調査を実施した。なお、条件①～条件⑤については、いずれも坑壁崩壊のリスクを高める可能性があるが、条件③（岩盤強度が低い）と条件④（応力場の異方性が大きい）については、後述（4）の坑井のせん断破壊の有無を確認するための計算式に基づき、条件③と④を一体化して取り扱うことが可能であるため、2つの条件をまとめて取り扱うこととした。

② わが国における地温勾配の調査

わが国における地温勾配については、坑井による温度データから、平均的には $20\text{ }^{\circ}\text{C km}^{-1}$ という報告がなされている（田中ほか、1999）。田中ほか（1999）では、日本全国各地における地熱・石油・金属資源探査、防災および温泉開発を目的として掘削された坑井から取得した温度データ（合計 1,829 点）がまとめられており、日本の平野のみではなく、火山フロント付近の高温地帯における温度データおよび地温勾配が示されている。地下 2,000 m より浅い領域では、火山フロント付近の高温地域や、熱水対流の影響により地温勾配にばらつきがみられるものの、それより深い領域のうち、特に 4,000 m を超える深部では概ね $30\text{ }^{\circ}\text{C km}^{-1}$ に達しないことがわかる。また、非火山地域に分布する 2 か所（山口県防府、大分県国東）の花崗岩地層で実測がなされており（江原ら、1989）、非火山地域に分布する結晶質岩（花崗岩）の地温勾配の特徴についてもわが国の平均的な地温勾配と同様であることが示唆されている（山口県防府： $14.5\text{ }^{\circ}\text{C km}^{-1}$ 、大分県国東： $30.3\text{ }^{\circ}\text{C km}^{-1}$ ）。

上記の調査結果を踏まえると、わが国での標準的な地温については、「条件①：異常高温の存在は想定しない」取り扱いが一般的な条件になると考えられる。

③ わが国における間隙水圧の調査

坑井掘削では、間隙水圧に大きな影響を受ける（長縄、2006）。間隙水圧は基本的には静水圧と同等であると仮定されるが、上位層の堆積による地層の圧密の進行や粘土鉱物からの層間水の排出及び油ガスの生成によって、地層の内部の圧力が上昇し、異常高圧となる可能性があると考えられている。令和 3 年度の検討（原子力機構、2022）では、油田における異常圧力の例として、基礎試錐「三島」における実測値について調査した（今村・岩田、2004）。基礎試錐「三島」は、新潟県の油田系列である西山-中央油帯と南長岡ガス田が位置する深部グリーンタフ構造系列の間の沈降域における掘削事例である。本年度の調査では「三島」の例に加えて、新たに基礎試錐「馬追」における事例（国安ら（2004））について調査した。

基礎試錐「馬追」は道央地域での掘削事例であり各深度における間隙水圧が計測されている。これによると、上面深度 4,746 m の白亜紀の塩基性火成岩類地層において異常高圧が存在していることが報告されている。これらは、上部の 3,000 m の堆積層の蓄積により異常高圧が発生しているものと考えられているため、「馬追」における異常高圧についても、わが国での一般的な堆積層の厚さ（結晶質岩・深成岩の上面分布深度）が 2,000 m 未満であることを踏まえると、わが国における間隙水圧の標準的な事例として取り扱う

ことは適切ではないものと考えられる。なお、日本列島における異常高圧は、特に油ガス田地域の地下深部などの限られた条件を有する地域に分布していると考えられている（原子力発電環境整備機構，2011）。

以上の調査結果を踏まえると、わが国での標準的な間隙水圧については、静水圧を想定することが適切であるものと考えられるため、「条件②：異常高圧の存在は想定しない」取り扱いが一般的な条件になると考えられる。

④ わが国における岩盤強度の調査

わが国では多様な物理特性を有する岩盤が存在している。坑井における岩盤の強度を把握するために、わが国に存在する多様な岩石に関する分類に基づき適切な物理特性を整理したうえで、同じ岩石で構成された地盤が坑井周辺に広がっていると仮定して岩盤強度を設定することとした。

本検討では佐藤ほか（1999）の岩種の分類および代表的な物性値について調査した。佐藤ほか（1999）では、岩種を以下の6種類に分類している。

- 酸性（珪長質）の結晶質岩（火成岩・変成岩）
- 塩基性（苦鉄質）の結晶質岩（火成岩・変成岩）
- 先新第三紀（古第三紀以前）の堆積岩（砂質岩）
- 先新第三紀（古第三紀以前）の堆積岩（泥岩・凝灰質岩）
- 新第三紀以降の堆積岩（砂質岩）
- 新第三紀以降の堆積岩（泥岩・凝灰質岩）

わが国における代表的な岩石として、結晶質岩（酸性岩）では花崗岩、花崗閃緑岩といった岩種が整理されている。また、それぞれの岩種に対して統計学的検討を行い、代表的な岩石の物性値（熱、空隙・水、弾性係数、密度、強度など）をまとめている。この中にある一軸圧縮強度などの岩石強度の物性値を、わが国における（各岩種が分布した）岩盤での一般的な値として設定することとする。

わが国における結晶質岩（酸性岩）の岩盤での設定値を表 4-12 に示す。

表 4-12 わが国における結晶質岩（酸性岩）の岩盤での設定値

	一軸圧縮強度	内部摩擦角
平均値	115.8 MPa	38.5 °
標準偏差	70.5 MPa	11.8 °
16 パーセントイル	45.3 MPa	26.7 °
50 パーセントイル	115.8 MPa	38.5 °
84 パーセントイル	186.3 MPa	50.3 °

⑤ わが国における異方性応力場の調査

わが国では産業技術総合研究所地質調査総合センターにより、微小地震の発震機構解

に基づく日本全国の地殻応力場の推定および応力マップの整備が行われている。また、近年では内出ほか（2022）により、深層学習を活用した微小地震の発震機構解を求める手法が開発されており、これにより日本列島内部及び沿岸海域の 20 km 以浅の微小地震の発震機構解が求められるとともに、地殻応力場が推定されている。そこで、内出ほか（2022）により公開された、Uchide et al.（2022）による日本列島の応力分布に基づいて、水平主応力の異方性の大きさの分布を推定することを試みた。

Uchide ほか（2022）で公開された日本列島の応力値データは、平均応力が 0 になるように規格化されている。そこで本検討においては、令和 3 年度の掘削検討において、テクトニックな応力が作用しない「静止堆積盆」との比較のために異方性応力場を設定した際に参照した、基礎試錐「新津」（新潟県）での深度 5,000 m における実測応力値によって校正する方法によって、絶対値化を行った。ただし、このようにして推定した深度 5,000 m での絶対応力値については、そのまま用いるよりも、水平主応力の異方性係数として用いる方がより妥当であると考えられる。水平応力の異方性係数（ k ）は次式で表すこととした。

$$k = 1 - \sigma_h / \sigma_H \dots\dots\dots \text{式 4-1}$$

- k : 水平応力の異方性係数 [-]
- σ_h : 水平最小主応力 [MPa]
- σ_H : 水平最大主応力 [MPa]

日本列島の規格化応力分布データに基づく水平応力の異方性係数と、掘削後長時間経過後の周方向応力の最大値（ $\sigma_{\theta_{max}}$ ）との間には相関性が観察される（図 4-6）。そこで、本検討においては、わが国における異方性応力場を、水平応力の異方性係数（ k ）を基本として整理することとした。

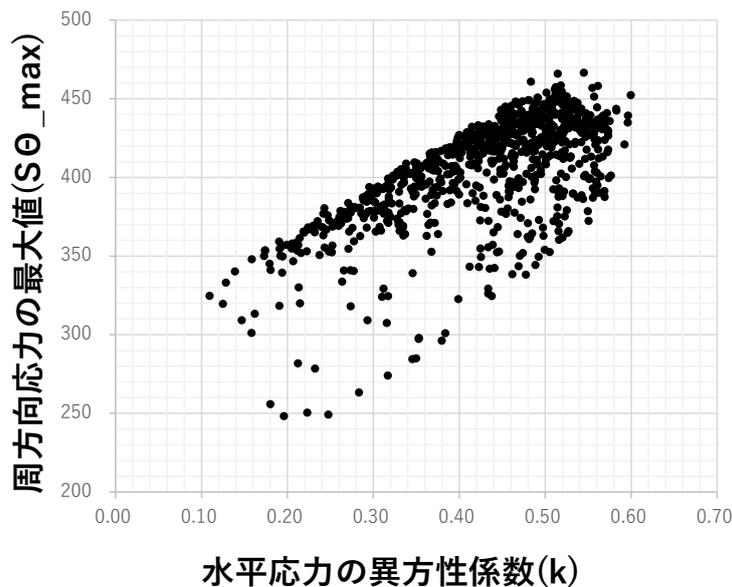


図 4-6 日本列島の規格化応力分布データ（内出ほか, 2022）に基づく水平応力の異方性係数と周方向応力の最大値の整理結果

⑥ わが国における結晶質岩上面深度の調査

結晶質岩（および深成岩）の上面深度が深くなると、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、わが国における結晶質岩上面深度の設定について検討した。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 $2,900\text{ m s}^{-1}$ とするとともに、その上面深度の頻度分布を参照して結晶質岩上面深度を仮定することとした。地震基盤の上面深度のヒストグラムを図4-7に示す。

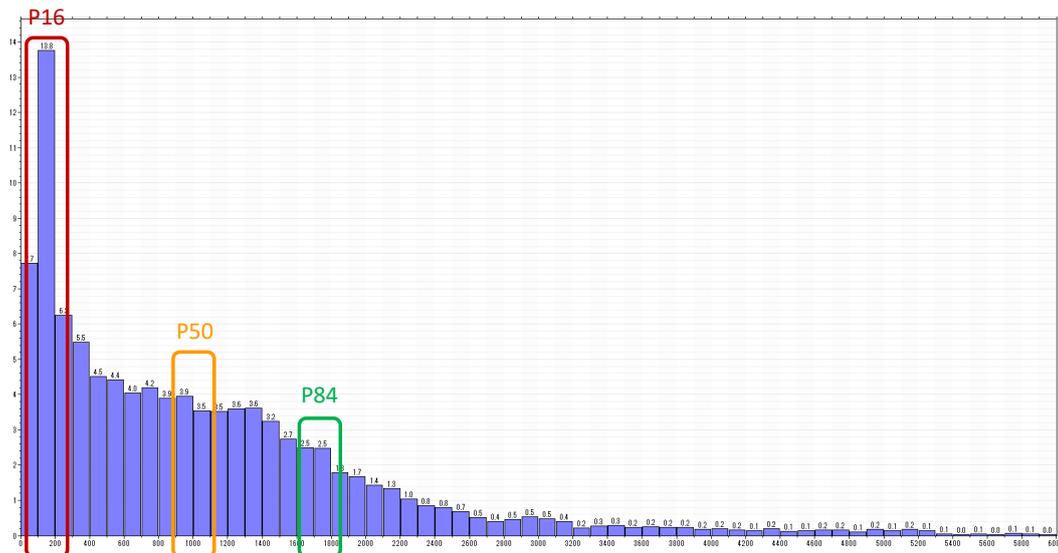


図4-7 地震基盤の上面深度のヒストグラム
(地震調査研究推進本部（2012）に基づき作成)

地震基盤の上面深度のヒストグラムを参照して仮定した、わが国における結晶質岩上面深度の一般的な設定値を以下に示す。

- P16 値（16 パーセントイル）：150 m
- P50 値（50 パーセントイル）：1,000 m
- P84 値（84 パーセントイル）：1,750 m

3) 超深孔処分のための地質環境調査技術・データ取得技術に関する調査・分析

地質環境調査技術・データ取得技術の調査・分析では、超深孔処分の各事業段階の検討において必要になると考えられる地下情報および坑井情報の分類・整理を、諸外国における検討事例（Finch et al., 2016 など）を参照しつつ調査・分析した。地下情報および坑井情報については、以下3つの分類に区分した。

- 建設段階における掘削可能性に係る地下情報（調査分類 I）：
建設段階における坑井の安全かつ円滑な掘削のために必要になる情報。
- 設計情報検証のための坑井情報（調査分類 II）：
操業段階及び閉鎖段階の事業を安全かつ円滑に実施するためには、継続的に設計情報検証（DIV：Design Information Verification）を行う必要がある。特に操業準備段階においては、坑井情報を取得して坑井のDIVを行う必要がある。

- ベースライン環境情報（調査分類 III）
設置物・ニアフィールドの安全性・健全性の確保のための情報。操業段階及び閉鎖段階の事業においては、各ステークホルダーに受け入れられるために、文書化による知見の継続（CoK：Continuity of Knowledge）に努める必要がある。特に、閉鎖段階においては、設置物とニアフィールドの安全性・健全性を、長期にわたって監視することが重要となる。

超深孔処分の各事業段階の区分と、調査分類 I～III の関係性を図 4-8 に示す。

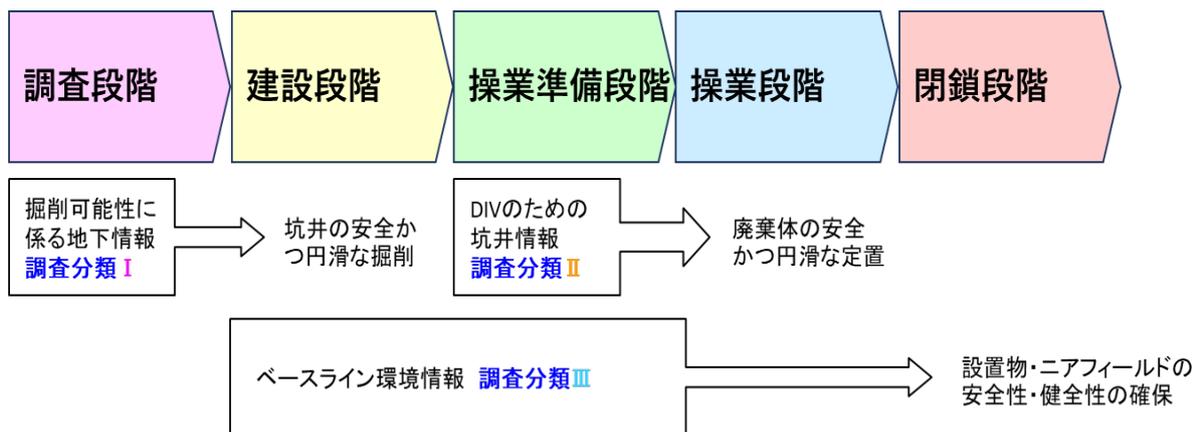


図 4-8 各段階で必要となる地下および坑井情報の調査分類の関係性のイメージ

このうち調査分類 II（設計情報検証（DIV）のための坑井情報）については、Finch ほか（2018）では下記の項目を調査する必要があるとしている。

- 坑壁状況：坑壁の健全性
- ケーシングの内径と肉厚：挿入されたケーシングの内径・肉厚に関する健全性
- ケーシングとセメントの結合状態：ケーシングと岩盤間のセメントの結合状態
- 坑跡：掘削した坑井の経路情報（計画通りに、鉛直に掘削されているか等）

また、各項目の情報を、建設段階等において掘削孔を維持するために泥水で満たされている坑井内で取得するためのツールをまとめている（表 4-13）。これらのツールについては、マルチフィンガーキャリパーを除き、超深孔処分において想定される坑井（坑底坑径 0.50 m、深度 5,000 m）に対して適用できる性能で商品化されていることを確認した。

表 4-13 調査分類Ⅱ（設計情報検証のための坑井情報）の各項目の情報を
調査するためのツールの整理結果

項目	取得するためのツール
坑壁状況	<ul style="list-style-type: none"> 音響式ボアホールテレビュアー トランスデューサーを回転させながら坑壁を 250～500 KHz の指向性音波で走査し、坑壁からの反射波の強度によって坑壁を画像化する。同時に測定される反射波の到達走時を坑壁までの距離に変換することにより、坑径を計測することができる（原子力発電環境整備機構，2021；物理探査学会，2016；Gaillot et al., 2007；Schlumberger, 2002）。
ケーシングの内径と肉厚	<ul style="list-style-type: none"> 超音波スキヤニング 200～700 KHz の超音波を高いサンプリングレートで照射することによって、ケーシング内径及びケーシングの肉厚を測定する。高密度泥水で満たされた内径 50 cm 以上のケーシングにも対応できる機種が開発されている（Frisch and Mandal, 2001）。 マルチフィンガーキャリパー 検層器の外周に均一に配置された多数の変位センサー（フィンガー）によって、ケーシングの内径を高精度に測定するツールである（Ahmed et al., 2021）。ただし、計測可能な径はそれほど大きくなく、例えば SLB 社の PMIT ツールの中で最も大型の C 型機（フィンガー 60 本）においても、内径 33 cm 程度が計測限界である（Schlumberger, 2008）。
ケーシングとセメントの状態	<ul style="list-style-type: none"> 超音波セメントボンドログ ケーシングとケーシング背面に注入したセメントの状態を検証する目的で用いられる検層種目の総称である。特に超音波セメントボンドログは最も一般的な手法である（Khalifeh, M. et al., 2017）。 SLB 社の超音波セメントボンドログ・ツール USIT においては、ツール底面に取り付けられたトランスデューサーから 200～700 kHz の超音波パルス照射し、ケーシングの内面と外面からの反射波を測定する方法によって、受信波形の減衰率からセメント結合の質に関する情報が、共振周波数からケーシング肉厚に関する情報が取得でき、内径 53 cm 程度までのケーシングに適用できる（Schlumberger 2007；2016）。 磁束漏洩計測ツール ケーシング内に磁束を誘導し、ケーシング欠陥によって漏洩する磁束の量を測定することにより、ケーシングとケーシング背面に注入したセメントの状態を検証するツールである（Sharar, 2008）。
坑跡	<ul style="list-style-type: none"> 光ファイバー型ジャイロスコープ 光ファイバー型坑井内ジャイロスコープは、3 方向の回転速度を測定する 3 軸光ファイバージャイロスコープと 3 方向の変位を測定する 3 軸加速度センサーとを組み込んだ測定器を降下させることによって、坑軸の天頂角、方位角、深度を測定し、計算によって坑跡を計測するツールである。高温環境を含む深度 6,400 m 孔の計測事例がある（Liu et al., 2020）

また、調査分類 III（ベースライン環境情報）については、処分容器やシールなどの設置物の状態・環境に関する項目と、ニアフィールド母岩の環境に関する項目に大別される（表 4-14）。これらの項目の多くは、調査分類 I（建設段階における掘削可能性に係る地下情報）において把握すべきものと重複する。一方で、例えば、化学環境に属するガス成分・濃度等の項目など、調査分類 I とは重複しないもの（建設段階における重要度が高くないもの）もある。

また、ベースライン環境の把握のために特に必要な調査技術についても、超深孔処分において想定される坑井（坑底坑径 0.50 m、深度 5,000 m）に対して適用できる性能で商品

化されていることを確認した。

表 4-14 ベースライン環境情報（調査分類 III）の各項目の分類・整理結果

項目	対象物・環境	対象情報
設置物の状態・環境	キャニスター	健全性、定置環境
	シール	健全性、シール環境
ニアフィールド母岩の環境	温度環境	温度
	水理・水質環境	間隙水圧、成分、pH、酸化還元電位
	力学環境	応力場
	化学環境	ガス成分・濃度、核種濃度（天然に存在するもの）

さらに、上述した調査分類 II および調査分類 III の技術・ツールについての調査結果について、令和 2 年度報告書（原子力機構, 2021）において作成した「超深孔処分における要件と調査対象に寄与する調査手法」の整理表に対して、本検討における調査分類（調査分類 I～III）を追加する形で再整理を実施した（表 4-15）。また、文献調査の結果を踏まえ、該当技術が「地表・空中物理探査」、「坑井利用型物理探査」、「坑井内試験」、「物理検層」、「コア・サンプル試験」に対して有用かという点について分析・整理した。

表 4-15 超深孔処分における要件と調査対象に寄与する調査手法（1/2）

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

濃色の塗りつぶし：非常に有効、淡色の塗りつぶしは：ある程度有効

表 4-15 超深孔処分における要件と調査対象に寄与する調査手法 (2/2)

要件種別	評価項目 (条件)	調査対象	調査分類	地表・空中 物理探査	坑井利用型 物理探査	坑井内試験	物理検層	コア・サン プル試験
力学的環境 (M)	場の力学特性	応力場	I + III					
		岩盤強度	I					
		泥岩の塑性	I					
		力学定数	I					
		岩石密度	I					
	調査坑井及びその近傍の力学的環境	孔跡の実現性	I + II					
		孔径の均質性・安定性	I + II					
		水平応力の異方性	I					
		ブレイクアウトの発生	I + II					
		孔壁の無拘束性	I + II					
	ケーシングとセメントの状態	掘削影響領域の状態 (広がり、割れ目分布)	I + II					
		ケーシング内径の安定性	II					
		ケーシング肉厚の健全性	II					
セメンチングの実現性		II						
化学環境 (C)	核種移行環境、核種濃度	セメントの健全性、密着度	II					
		核種移行環境、核種濃度	I					
		分配係数	I					
	地下水の化学特性	核種濃度	III					
		地下水の塩分濃度	I + III					
		地下水の炭酸濃度	I + III					
		地下水のpH	I + III					
		酸化還元状態	I + III					
	ガスの化学特性	地下水年代	I					
		ガス成分・濃度	III					

濃色の塗りつぶし：非常に有効、淡色の塗りつぶしは：ある程度有効、赤枠：本年度追加した項目

4) 超深孔処分に係る関連技術の調査・分析のまとめ

超深孔処分に係る関連技術について、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やり方で調査・分析を進めた。

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について「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、始めに、超深孔の掘削可能性に影響を与える条件を、その相互関係等を踏まえて整理したうえで、重要となる条件についてわが国における一般的な取り扱いや設定値などについて調査・分析した。また、地質環境調査技術・データ取得技術については、超深孔処分の各事業段階の検討において必要になると考えられる地下情報および坑井情報を3つの分類 (調査分類Ⅰ～調査分類Ⅲ) に区分したうえで、調査する必要がある項目とそれを調査するためのツール・技術などについて調査・分析した。

その結果、掘削技術については、わが国における地温勾配や間隙水圧などについて、わが国における一般的な条件などの調査結果に基づいて設定した。これらの設定については、後述 (4) での掘削のケーススタディなどに反映した。また、地質環境調査技術・データ取得技術については、調査分類Ⅱ (設計情報検証のための坑井情報) や調査分類Ⅲ (設置物・ニアフィールドの安全性・健全性確保のためのベースライン情報) について、具体的な調査項目とそれを取得するための各種ツールや技術などについて調査・整理した。

本項で調査・整理した調査・データ取得技術は、いずれも超深孔処分における廃棄体の定置で想定される長期間の操業を想定したものではないため、今後は、超深孔処分で想定される長期間（たとえば10年程度）の操業や、その間の孔壁の安定性などを長期間モニタリングできるよう、遠隔で測定できる技術なども求められると想定される。今後も、上述の調査・分析の進め方に基づいて、超深孔処分の各事業段階のうち、後半の事業段階（操業準備段階、操業段階、閉鎖段階）に重点を置いた関連技術の調査・分析などを進めていくことが重要である。

(4) 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

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）のうち、令和4年度は前半の事業段階（特に「建設段階」）を対象に、わが国における超深孔処分の現段階での技術的実現性の見通しや課題・留意点を検討して取りまとめた。ここではまず、(2)節での諸外国の超深孔処分の検討事例の調査結果や(3)節での超深孔処分の技術的実現性に密接に関係する3つの関連技術の調査結果を横断的な観点で分析・整理した。さらに、わが国において、建設段階の要求事項「超深孔が適切に掘削できる」について現段階での見通しを得るために、わが国での条件などを考慮した机上検討によるケーススタディを実施し、その可能性について検討した。令和4年度の実施内容を以下に示す。

- 掘削段階等における超深孔の孔壁の維持に着目したケーススタディ（1）参照）
- 超深孔処分の各事業段階で考慮すべき因子や候補となる技術オプションなどの分析・整理（2）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・整理のまとめ（3）参照）

1) 掘削段階等における超深孔の孔壁の維持に着目したケーススタディ

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、一定程度の超深度を大坑径で掘削した実績やフィールド試験は国内外とも事例は確認できていないことが明らかになっている（原子力機構、2022）。このことから、建設段階の要求事項「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」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なんらかの前提条件が必要になるか等について、わが国での地質環境条件などを可能な範囲で設定・仮定したうえで詳細な検討を行う必要があると考えられる。また、操業準備段階や操業段階において、超深孔の孔壁が適切に維持されているかどうかは、廃棄体の定置やシーリングなどの作業に影響を及ぼす可能性があると考えられる。

そこで、わが国での条件等を可能な限り考慮したうえで、超深孔の孔壁の維持に着目したケーススタディ（机上検討）を実施し、わが国における現段階での超深孔の掘削の可能性や、課題や留意点などについて検討・整理した。

令和4年度の実施内容を以下に示す。

- ケーススタディを実施するにあたっての前提条件・仮定した条件（①項参照）
- 坑井掘削の安定性（応力場の仮定・設定）（②項参照）
- 裸孔による掘削可能深度の検討（③項参照）
- ケーシング設置による掘削可能深度の検討（④項参照）
- わが国での超深孔の掘削可能深度についての考察（⑤項参照）

① ケーススタディを実施するにあたっての前提条件・仮定した条件

掘削段階における超深孔の坑壁の維持に着目したケーススタディで設定あるいは仮定した条件を示す。

a. 超深孔処分の仕様

超深孔の坑底坑径と深度については、処分概念や廃棄体の設計などにより様々な可能性が考えられる。現段階においては、比較的技術的ハードルの高い、米国 SNL の検討事例の仕様である「坑底坑径 0.50 m で深度 5,000 m」を参考に、以下の仕様を設定した。

- 坑底坑径は 0.50 m で固定する。
- 掘削深度については、最大で 5,000 m の掘削を想定したうえで、本ケーススタディにより、どの条件でどの深度まで掘削可能なのかについて検討する。

b. 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になる。令和 3 年度の検討（原子力機構，2022）においては、掘削装置の性能として、現段階において使用可能な最高仕様の可動式掘削装置であると考えられる Bentec Desert 3000 の使用を想定し、当該装置の最大巻上荷重 680 トンを仮定して検討を実施した。なお、Bentec Desert 3000 の詳細スペックは、ノルウェーにおける斜孔による超深孔処分の検討事例（Fischer et al., 2020）に掲載されている。

本年度の検討においては、可動式掘削装置と固定式掘削装置の 2 パターンについて性能を仮定して検討を進めることとした。最高仕様の可動式掘削装置の最大巻上荷重としては、昨年度と同様に、Bentec Desert 3000 の使用を想定し、当該装置の最大巻上荷重 680 トンを仮定した。また、最高仕様の固定式掘削装置の最大巻上荷重としては、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）の掘削で使用された UTB-1 の使用を想定し、当該装置の最大巻上荷重である 816 トンを仮定した。

c. ケーススタディにおけるわが国の地質環境条件の設定・区分

わが国での一般的な地質環境条件については、想定する場に応じて様々な物性値が考えられる。本検討で着目する地質環境条件のうち、一つの代表値での設定・仮定が難しいものについては、掘削の観点に基づいて以下に示す 3 つの条件に区分したうえで設定・仮定を行い、それら 3 つの条件についてケーススタディを実施することとした。

- 難条件：超深孔の掘削が比較的困難な条件。例えば、岩盤強度が低い、異方性応力が大きいなど。
- 最頻条件：わが国において、一般的・標準的な条件。例えば、わが国での一般的な平均値や中央値などを設定する等。
- 良条件：超深孔の掘削が比較的容易な条件。例えば、岩盤強度が高い、異方性応力が小さいなど。

d. その他の設定条件あるいは仮定した条件

- 掘削中の圧力制御、耐熱性能などについては、現段階における最高水準のものを使用を想定する。
- 諸条件の設定にあたっては、日本列島における標準的な物性値の分布を踏まえる。特に、日本列島の結晶質岩地域においては、一般的でない地下条件を検討対象とはしない。
- 異方性応力場による影響のうち、異方性応力によるケーシング破損については、そのような障害が発生する可能性が、主として本検討で対象としていない膨潤性泥岩層や高温地層等において高いことを踏まえ、本年度の検討では取り扱わないこととし、今後の課題とする。

② 坑井掘削の安定性（応力場の仮定・設定）

建設段階において坑井掘削が安定して行えるか否か、および長時間経過後（操業段階等）において孔壁が維持されるか否かについては、岩盤強度と坑井の坑壁に作用する応力との相対関係によって決まる。坑壁に作用する応力には、代表的なものとして軸方向応力（ σ_a ）、周方向応力（ σ_θ ）と動径方向応力（ σ_r ）がある（図 4-9）。

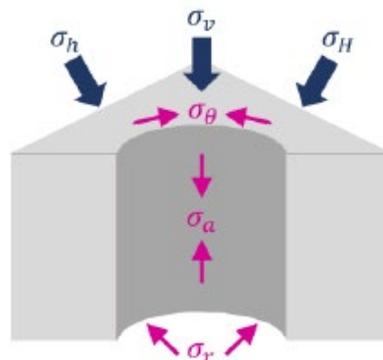


図 4-9 坑壁に作用する応力のイメージ

坑井内流体（泥水）の圧力を動径方向応力（ σ_r ）と平衡させることを基本とする坑井においては、上述した応力のうち、とくに周方向応力（ σ_θ ）が岩盤の破壊強度（圧縮強度）を上回る場合に、周囲の岩盤に対して力学的に不安定な状態となるため、掘削ができない可能性や、孔壁が維持できない可能性が高くなるものと考えられる。ただし、ただちに掘削が不可能になるほどの坑井崩壊に至ることを意味するわけではない点に留意する必要

がある (Zoback, 2007)。

周方向応力の最大値 ($\sigma_{\theta max}$) が、岩盤の一軸圧縮強度 (UCS) と、坑井内を圧力 (p_m) の泥水で満たし岩盤の間隙水圧 (p_p) との差圧を生じさせることによって付加される強度 (MAS) との和 (有効一軸圧縮強度: $EUCS$) を超える時、すなわち次式が示す条件を満たす時、坑井はせん断破壊 (ブレイクアウト) を起こすものと考えられている (Ashena et al., 2020)。本検討では、Ashena ほか (2020) の考え方等に基づいて、以下に示す簡略的な式を作成したうえで、この式に基づいて坑井掘削ができるか (坑井が崩壊しないか) を評価することとした。なお、坑井崩壊には、せん断破壊の他に引張応力による引張破壊も考えられるが、引張破壊はアンダーバランス掘削 (泥水圧力が地層圧力 (間隙水圧) よりも低い条件) で発生する可能性があり、本検討で設定しているオーバーバランス掘削 (泥水圧力が地層圧力 (間隙水圧) よりも高い条件) では発生する可能性が低いことから (山本, 2004)、本検討では坑井崩壊はせん断破壊のみを考慮することとした。

$$\sigma_{\theta max} \geq UCS + MAS = EUCS \dots\dots\dots \text{式 4-2}$$

式 4-2 の条件を満たすことが、直ちに掘削が不可能になるほどの坑井崩壊に至ることを意味するわけではないが、式 4-2 の条件は掘削障害に係る一定の指標になる。

坑井崩壊による掘削障害を検討するにあたり、本検討では、周方向応力の超過分 (周方向応力の最大値と有効一軸圧縮強度の差) に着目することにより、岩盤強度条件、応力場条件、間隙水圧条件を一体化して取り扱うこととした。周方向応力の超過分 ($\sigma_{\theta eff}$) は次式で表される。

$$\sigma_{\theta eff} = \sigma_{\theta max} - EUCS \dots\dots\dots \text{式 4-3}$$

掘削段階においては、坑井内泥水と岩盤中の間隙水とが泥壁によって遮断されているため、弾性論による考察が可能であるものと考えられる。しかし、長時間経過後の坑井の健全性 (孔壁の維持) について検討するためには、周方向応力 (σ_{θ}) の最大値 ($\sigma_{\theta max}$) 及び付加強度 (MAS) を多孔質弾性論によって以下のように取り扱う必要があると考えられる。

多孔質弾性論によれば、 $\sigma_{\theta max}$ は掘削直後 ($t=0+$) から長時間の経過 ($t=\infty$) によって変化するが、 MAS は坑井内の泥水圧 (p_m) を保つ限り変化しない。一方で、掘削後長時間が経過すると、坑壁に形成された泥壁が消滅して泥水圧と間隙水圧が平衡になり付加強度 (MAS) がなくなることで坑壁のせん断応力が増加し、破壊規準に達してしまうこともあるが、岩石強度が大きければ破壊を免れる。掘削直後および長時間経過後の周方向応力の最大値 (σ_{θ}) および付加強度 (MAS) については、佐藤ほか (1999) により提示された種々の岩石強度の諸パラメータのうち、乾燥状態および非排水状態でのポアソン比としてウエスターリー花崗岩についての値である $\nu=0.25$ 及び $\nu_u=0.34$ (Jaeger et al., 2007) を用いると、以下の式で表される (Detournay and Cheng., 1993 ; Gao et al., 2016)。

● 周方向応力の最大値 ($\sigma_{\theta max}$ [MPa])

$$\sigma_{\theta max} = H\sigma_H - h\sigma_h \dots\dots\dots \text{式 4-4}$$

σ_H : 水平最大主応力 [MPa]

σ_h : 水平最小主応力 [MPa]

➤ 掘削直後 (0+) の場合 :

$$H_{0+} = (1 + 2(1 - \nu_u)/(1 - \nu)) = 2.76$$

$$h_{0+} = (2(1 - \nu_u)/(1 - \nu) - 1) = 0.76$$

$$\sigma_{\theta max} = 2.76\sigma_H - 0.76\sigma_h \dots\dots\dots \text{式 4-5}$$

➤ 長時間経過後 (∞) の場合 :

$$H_{\infty} = 3$$

$$h_{\infty} = 1$$

$$\sigma_{\theta max} = 3\sigma_H - \sigma_h \dots\dots\dots \text{式 4-6}$$

● 付加強度 (MAS [MPa])

$$MAS = (2/(1 - \sin \phi))(Ap_m - B\alpha p_p) \dots\dots\dots \text{式 4-7}$$

$$A = 1 - (\alpha(1 - 2\nu))/(2(1 - \nu))(1 - \sin \phi) = 1 - (\alpha/3)(1 - \sin \phi)$$

$$B = (1 + \sin \phi)/2 - ((1 - 2\nu)/(2(1 - \nu))(1 - \sin \phi) = (1 + 5 \sin \phi)/6$$

ϕ : 内部摩擦角 [°]

α : ビオ係数 [-]

p_m : 泥水圧 [MPa]

p_p : 岩盤の間隙水圧 [MPa]

③ 裸孔による掘削可能深度の検討

諸外国に比べて岩盤の強度や異方性等の不確実性が大きく、また新第三紀堆積岩等の軟岩が広く分布するわが国においては、地表から地下深部に至る全区間を裸孔で掘削することは考えにくい。ここでは、後述④項で検討するケーシングの設置を想定したケーススタディとの比較のため、結晶質岩のみを想定した均質な地下構造モデルを対象に、超深孔を裸孔でどの深度まで掘削可能なのかについてのケーススタディを実施した。

裸孔による掘削可能深度の検討では、水平応力の異方性係数や岩盤強度（一軸圧縮強度）などの力学的条件に対して、「わが国での地質環境条件などを可能な範囲で設定・仮定する際に設定した区分（①項参照）」を用いて、掘削が比較的困難な「難条件」、わが国での平均的な条件である「最頻条件」、掘削が比較的容易な「良条件」の3つの条件をそれぞれ設定し、各条件における裸孔掘削の可能性についてケーススタディによる机上検討を実施した。3つの条件設定を表 4-16 に示す。

表 4-16 裸孔による掘削可能深度のケーススタディで設定した力学的条件

	難条件	最頻条件	良条件
地温勾配	30 °C km ⁻¹		
間隙水圧* (p_p)	静水圧 (0.0098×Z MPa)		
泥水圧* (p_m)	0.01274×Z MPa (静水圧の 130%)		
一軸圧縮強度 (UCS)	45.3 MPa	115.8 MPa	186.3 MPa
内部摩擦角 (ϕ)	26.7°	38.5°	50.3°
ポア係数 (α)	0.47		
水平応力の異方性係数 (k)	0.52	0.45	0.31
水平最大主応力* (σ_H)	0.0341×Z MPa	0.0335×Z MPa	0.0312×Z MPa
水平最小主応力* (σ_h)	0.0164×Z MPa	0.0184×Z MPa	0.0215×Z MPa
鉛直主応力* (σ_v)	0.0230×Z MPa		

*表中の Z : 深度 [m]

本ケーススタディで設定・仮定した力学的条件の設定根拠などを以下に記載する。

a. 地温勾配

(3)節の 2)②項で述べた、わが国における地温勾配の調査結果により、わが国では異常高温の存在が想定される地域はサイト選定において除外される可能性が高いため、本ケーススタディでは異常高温は想定しないこととした。また、わが国での地下深部での地温勾配は概ね 30 °C km⁻¹程度であると考えられるため、「難条件」、「最頻条件」、「良条件」の区分に関係なく、一律で地温勾配として 30 °C km⁻¹を設定することとした。

b. 間隙水圧

(3)節の 2)③項で述べた、わが国における間隙水圧の調査結果により、わが国での一般的な間隙水圧については静水圧を想定することが適切であるものと考えられるため、本ケーススタディでは「難条件」、「最頻条件」、「良条件」の区分に関係なく、一律で間隙水圧として静水圧を設定した。なお、静水圧については、令和 3 年度報告書(原子力機構, 2022)における掘削技術の検討と同様に、深度 5,000 m において 49 MPa となるよう、深さ方向の変化を考慮している (令和 3 年度報告書 表 4-8 参照)。

c. 泥水圧

泥水圧については、「難条件」、「最頻条件」、「良条件」の区分に関係なく、各深度における静水圧の 1.3 倍になるように設定した。なお、この設定は、石油天然ガス開発等における標準設定である。

d. 一軸圧縮強度

(3)節の2)④項で述べた、わが国における岩盤強度の調査結果に基づき、佐藤ほか(1999)でまとめられている結晶質岩(酸性岩)での一軸圧縮強度を設定した(表4-9参照)。「最頻条件」における一軸圧縮強度については、平均値(115.8 MPa)を設定した。また、「難条件」については16パーセンタイルの値(45.3 MPa)を、「良条件」については84パーセンタイルの値(186.3 MPa)をそれぞれ設定した。

e. 内部摩擦角

(3)節の2)④項で述べた、わが国における岩盤強度の調査結果に基づき、佐藤ほか(1999)でまとめられている結晶質岩(酸性岩)での内部摩擦角を設定した(表4-9参照)。「最頻条件」における内部摩擦角については、平均値(38.5°)を設定した。また、「難条件」については16パーセンタイルの値(26.7°)を、「良条件」については84パーセンタイルの値(50.3°)をそれぞれ設定した。

f. ビオ係数

ビオ係数については、わが国の地下深部での値がないため、スイス・グリムゼルの花崗岩における参考値(0.47)(Detournay and Cheng, 1993)を仮定することとした。「難条件」、「最頻条件」、「良条件」の区分に関係なく0.47を設定している。

g. 水平応力の異方性係数

(3)節の2)⑤項で述べた、わが国における異方性応力場の調査結果に基づき、水平応力の異方性係数については、内出ほか(2022)による規格化応力から換算される値の分布に基づいた値を設定した。「最頻条件」における水平応力の異方性係数については50パーセンタイルの値(0.45)を設定した。また、「難条件」については84パーセンタイルの値(0.52)を、「良条件」については16パーセンタイルの値(0.31)をそれぞれ設定した。

h. 周方向応力の最大値、水平最大主応力、水平最小主応力

(3)節の2)⑤項で述べた、わが国における異方性応力場の調査結果では、水平応力の異方性係数(k)と、掘削後長時間経過後の周方向応力の最大値($\sigma_{\theta_{max\infty}}$)との間には相関性が観察される(図4-10参照)。そこで、近似式を作成することにより、水平応力の異方性係数(k)の設定値から周方向応力の最大値を算出して設定する。

水平応力の異方性係数(k)と周方向応力の最大値($\sigma_{\theta_{max\infty}}$)の関係性に基づく近似式は次式で表される。

$$\sigma_{\theta_{max\infty}} = 342.38k + 255 \dots\dots\dots \text{式 4-8}$$

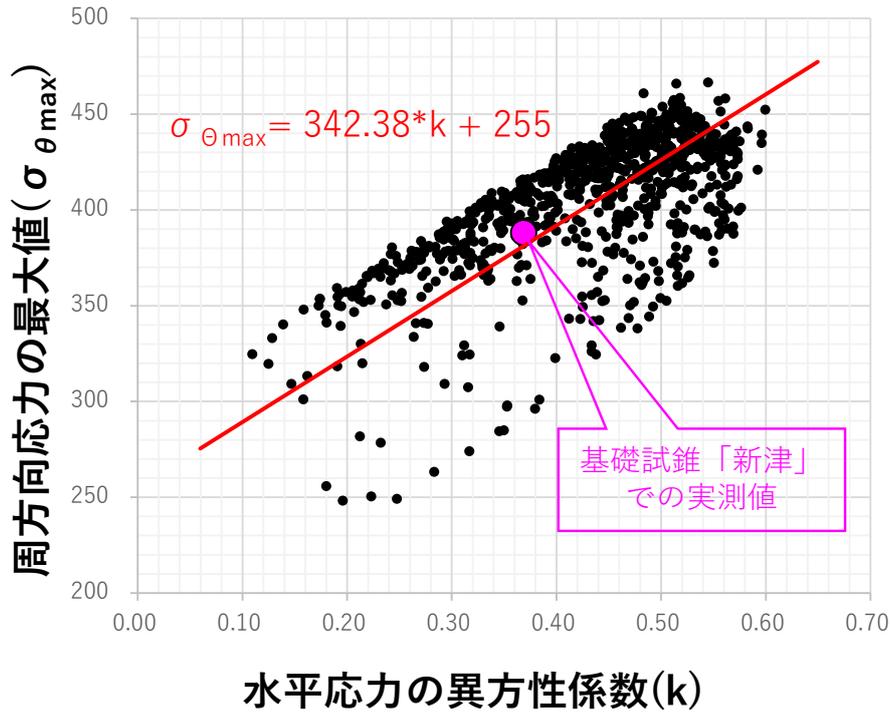


図 4-10 日本列島の規格化応力分布データ（内出ほか，2022）に基づく
水平応力の異方性係数と周方向応力の最大値の関係性および設定した近似式

水平最大主応力および水平最小主応力については、前述した水平応力の異方性係数と周方向応力の最大値との相関性（図 4-10）を用いて、まずは深度 5,000 m での値を算出し、それに対して、Ito and Zoback (2000) にならい、水平最大主応力および水平最小主応力が深度に比例すると仮定して、各深度での値を算出した。算出した周方向応力の最大値、水平最大主応力、水平最小主応力を表 4-17 に示す。

表 4-17 周方向応力の最大値の算出結果

	水平応力の 異方性係数 [-]	周方向応力の 最大値 [MPa]	水平最大 主応力 [MPa]	水平最小 主応力 [MPa]
良条件	0.31	361	0.0312*Z	0.0215*Z
最頻条件	0.45	409	0.0335*Z	0.0184*Z
難条件	0.52	433	0.0341*Z	0.0164*Z

表中の Z : 深度 [m]

i. 鉛直主応力

鉛直主応力 (σ_v) は、斎藤ほか (1988) での推定式を用いて設定する。鉛直主応力は次式で表される。

$$\sigma_v = 0.023Z \dots\dots\dots \text{式 4-9}$$

σ_v : 鉛直主応力 [MPa]

Z : 深度 [m]

j. 裸孔による掘削可能深度のケーススタディの結果

a～i 項で設定・仮定した力学的条件に基づいて、結晶質岩のみを想定した均質な地下構造モデルを対象に、超深孔を裸孔でどの深度まで掘削可能なのかについてのケーススタディを3つの条件（難条件、最頻条件、良条件）で実施した。ケーススタディでは、超深孔処分事業の作業段階も考慮し、掘削した後に廃棄体定置が完了する期間まで掘削孔が健全に保てるかについても確認するために、掘削直後と、掘削後長期間経過後の2つのパターンでケーススタディを実施した。

ケーススタディでは、坑井の周方向応力の超過分（周方向応力の最大値と有効一軸圧縮強度の差、式4-3参照）を坑井の深度毎に算出し、坑井の周方向応力の最大値が周囲の岩盤強度を上回るかどうか（坑井崩壊を起こす可能性があるかどうか）について検討した。ケーススタディの結果を図4-11および図4-12に示す。

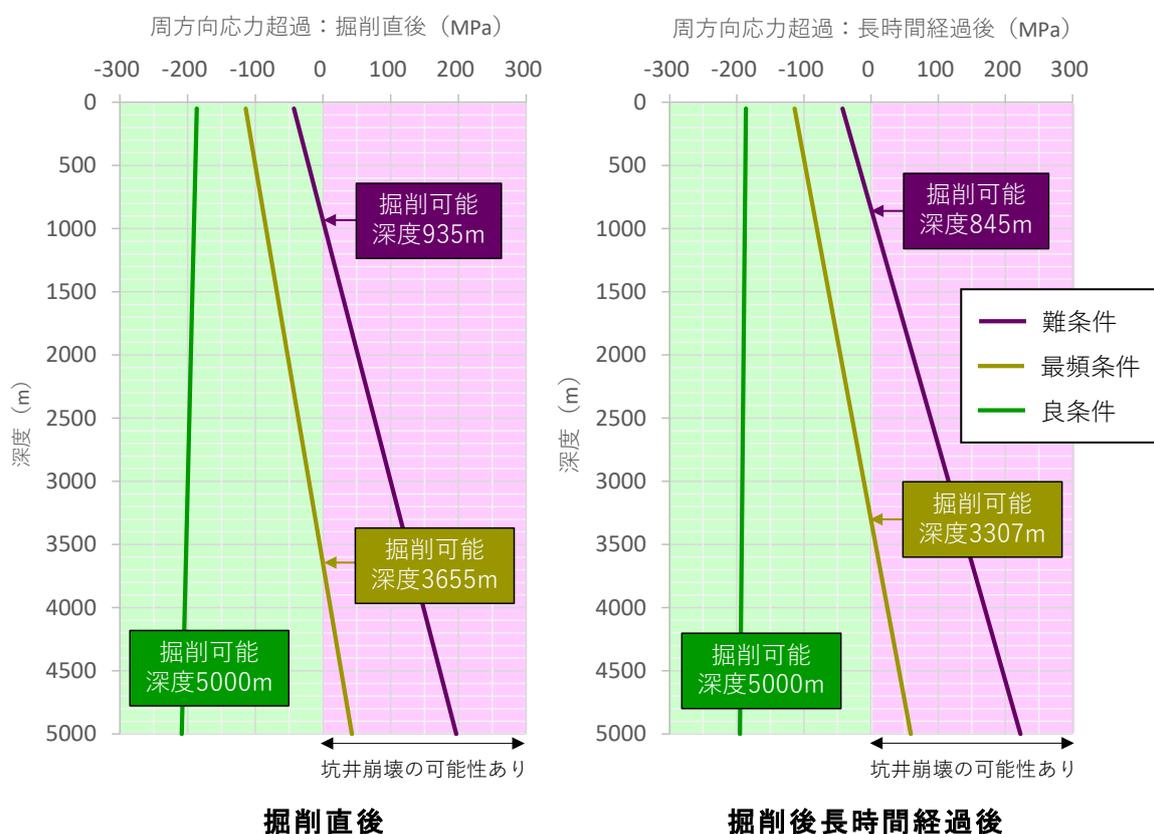


図4-11 均質な地下構造での裸孔の各深度における周方向応力の超過分の算出結果

図4-11では、「難条件」、「最頻条件」、「良条件」における周方向応力の超過分を坑井の深度毎に示している。紫色で示す領域は、周方向応力の最大値が周囲の岩盤強度を上回るため坑井崩壊による掘削障害の可能性のある領域である。また、緑色の領域は、周方向応力の最大値が周囲の岩盤強度を下回るため坑井崩壊が起こらない領域である。

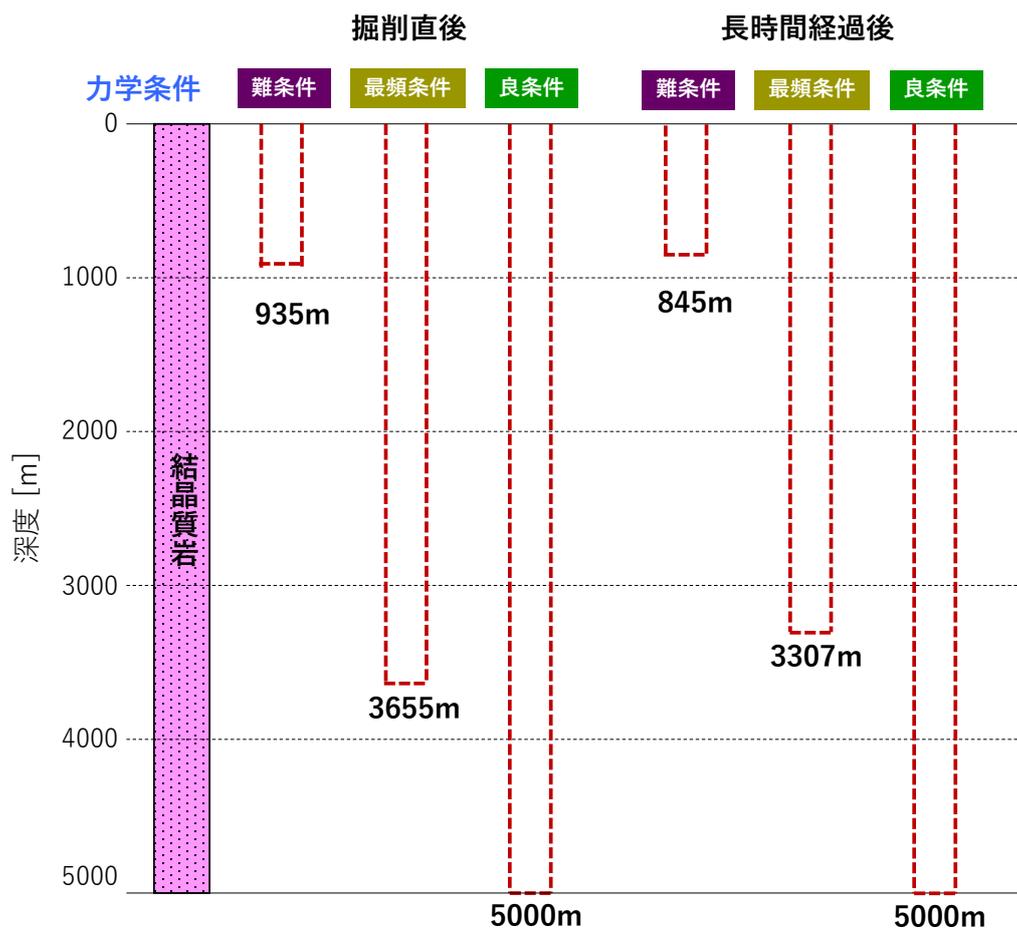


図 4-12 均質な地下構造での裸孔の掘削可能深度の検討結果

ケーススタディ（机上検討）の結果により、結晶質岩のみを仮定した均質な地下構造での裸孔掘削について、以下の見通しが得られた。

- 掘削が比較的容易な「良条件」を仮定した場合、深度 5,000 m まで裸孔で掘削でき、長時間裸孔が維持できる可能性が示された。
- 一方、わが国で想定される低い岩盤強度や異方性等を考慮すると、これらの力学的条件が悪くなるにつれて、裸孔での掘削可能深度が顕著に浅くなる傾向が認められた。（長時間経過後において、わが国での平均的な条件である「最頻条件」では深度 3,307 m まで裸孔で掘削できる可能性が示された一方、掘削が比較的困難な「難条件」では、裸孔での掘削は深度 845 m に留まる可能性が示された。
- このことは、わが国に広く分布する比較的強度の低い岩盤や異方性のある岩盤等を対象とする場合、ケーシングを設置できることが不可欠となることが示唆された。

④ ケーシング設置による掘削可能深度の検討

本項では、わが国における結晶質岩上面深度を設定した地下構造モデルを対象に、ケーシングを設置した場合の超深孔の掘削可能深度や、掘削・孔壁維持の可否に影響を及ぼす条件を把握するためのケーススタディを実施した。本検討では、わが国における結晶質岩上面深度に対して、「ケーススタディにおけるわが国の地質環境条件の設定・区分（①項

参照)」を用いて、掘削が比較的困難な「難条件」、わが国での平均的な条件である「最頻条件」、掘削が比較的容易な「良条件」の3つの条件をそれぞれ設定し、各条件の場合におけるケーシング設置による超深孔の掘削可能性についてケーススタディによる机上検討を実施した。なお、ケーシング設置ができるかどうかの判断は、ケーシングが吊り下げられるか否かという観点と、吊り下げて設置したケーシングが圧壊することがないかという観点で行うこととした。

a. 結晶質岩上面深度の設定

(3)節の2)⑥項で述べた、わが国における結晶質岩上面深度の調査結果に基づき、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 $2,900 \text{ m s}^{-1}$ とするとともに、その上面深度の頻度分布を参照して結晶質岩上面深度を仮定することとした。「最頻条件」における結晶質岩上面深度については、50パーセンタイルの値(1,000 m)を設定した。また、「難条件」については84パーセンタイルの値(1,750 m)を、「良条件」については16パーセンタイルの値(150 m)をそれぞれ設定した。

b. 掘削装置の性能の設定

「ケーススタディを実施するにあたっての前提条件・仮定した条件(①項参照)」で記載したように、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になるため、本検討においては、世界最高水準の掘削装置の使用を想定し、可動式掘削装置の最大巻上荷重として680トンを、固定式掘削装置の最大巻上荷重として816トンの2つのパターンを設定した。

c. 異方性応力場および岩盤強度の設定

わが国における異方性応力場や岩盤強度などの力学的条件については、「裸孔による掘削可能深度の検討(③項)」と同じ取り扱い・設定とする。

d. ケーシング設計

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4-13)。

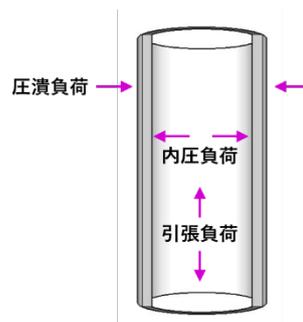


図 4-13 ケーシングに作用する負荷

ケーシング設計においては、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。

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。これは、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) などにより圧潰強度 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。

$$C_{sf} = C / (MW \times D \times 0.052) \cdots \cdots \text{式 4-10}$$

ここで、 MW は最大泥水比重 [ppg]、 D は深度 [ft]、係数 0.052 は $(\text{lbs} \times \text{ft} \times 9.8) / (\text{psi} \times \text{gal})$ 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、掘削中に暴噴（坑井内圧力よりも地層圧力が高くなり、地層流体が坑井内に流入して坑口から噴き上がること）が発生した場合に、BOP (Blow Out Preventer (防噴装置)) を密閉し防噴制御作業を実施する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) などにより内圧強度 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。

$$B_{sf} = B / (MW \times D \times 0.052) \cdots \cdots \text{式 4-11}$$

ここで、MW と D の意味は式 4-10 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など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摩擦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。

$$T_{sf} = T \times 1000 / (W \times L \times (65.5 - MW) / 65.5) \dots\dots\dots \text{式 4-12}$$

ここで、Wはケーシングの単位長さ当たりの重量 [ppf]、L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 4-18 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。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等の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。

ケーシングの種類やグレードは、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 4-18 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 ~ 0.85	1.00 ~ 1.125	
Bsf (内圧安全係数)			1.10
Tsf (引張安全係数)			1.20 ~ 2.00

e. ケーシング設置を前提条件としたときの掘削可能深度のケーススタディ

a. ～c. 項で設定・仮定した条件に基づき、結晶質岩上面深度を設定した各地下構造モデルを対象に、ケーシングを設置しながら超深孔をどの深度まで掘削可能なのかについてのケーススタディを実施した。ケーススタディでは、結晶質岩上面深度については3つの条件（難条件、最頻条件、良条件）を、掘削装置の最大巻上荷重（最大吊り下げ能力）については2つの条件を設定し、それらの組み合わせた6ケースについて、主としてケーシング計画の立場から掘削可能深度について検討した。ケーススタディにおいては、掘削中の逸泥による水頭低下が上位層の厚さと中間ケーシングの設置長さの短い方の深度分だけ発生すると仮定し、それを踏まえた圧潰安全係数が基準値を満たすことを必要条件としている。また、内圧安全係数については、基準を満たさない場合に内圧によるケーシングの破裂が起きうる可能性があるものの、内圧増大の主要因は、地下水に溶解していたガスの掘削に伴う圧力低下による遊離膨張・流入であるので、ガスを胚胎することが少ない結晶質岩に設置しているケーシングについては内圧破裂のリスクは少ないと考えられ、内圧安全係数が基準値を厳密に満たしていなくても問題はないと判断している。ケーススタディの結果を表 4-19 および図 4-14 に示す。

表 4-19 結晶質岩上面深度を設定した各地下構造モデルに対して
最適なケーシング仕様と安全係数

地質条件 結晶質岩上面深度		1750m (難条件)				1000m (最頻条件)				150m (良条件)			
巻上荷重 (トン)		680		816		680		816		680		816	
ケーシング径 (in/cm)	外径	30/76.2	24/61.0	30/76.2	24/61.0	30/76.2	24/61.0	30/76.2	24/61.0	30/76.2	24/61.0	30/76.2	24/61.0
	内径	28/71.1	22/55.9	28/71.1	22/55.9	28/71.1	22/55.9	28/71.1	22/55.9	28/71.1	22/55.9	28/71.1	22/55.9
ケーシンググレード		X52											
設置区間長 (m)		1300	2000	1300	2000	1550	2000	1900	2000	1700	2000	2050	2000
水頭低下 (m)		1300	0	1300	0	1000	0	1000	0	150	0	150	0
空中重量 (トン)		600	731	600	731	715	731	877	731	784	731	946	731
泥水比重 (kg/m ³)		1300											
泥水中重量 (トン)		600	610	600	610	673	610	800	610	666	610	801	610
圧潰安全係数 (Csf)	0.65以上	0.66	0.66	0.66	0.66	0.85	0.66	0.85	0.66	5.69	0.66	5.69	0.66
内圧安全係数 (Bsf)	1.10以上	1.25	0.81	1.25	0.81	1.62	0.81	1.62	0.81	10.81	0.81	10.81	0.81
引張安全係数 (Tsf)	1.20以上	5.42	2.86	5.42	2.86	7.05	2.86	7.05	2.86	46.99	2.86	46.99	2.86

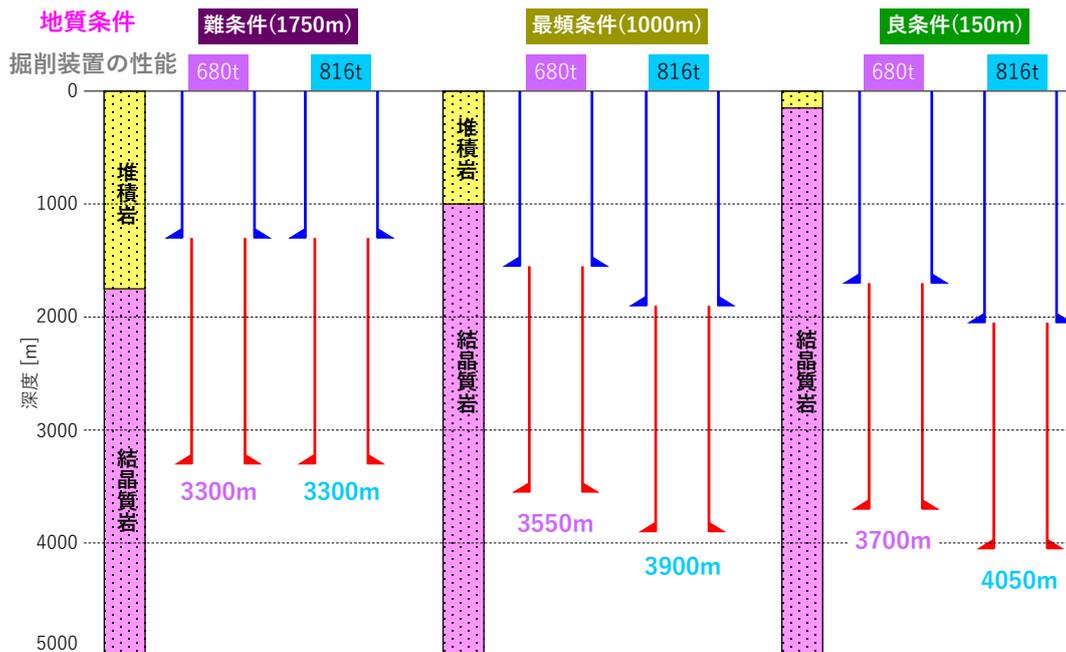


図 4-14 ケーシング設置を前提条件とした場合の掘削可能深度

ケーススタディ（机上検討）の結果により、ケーシング設置を前提条件とした掘削については、以下の見通しが得られた。

- 坑底坑径 0.50 m の超深孔を深度約 4,000 m までケーシングを設置して掘削できる可能性がある。
- 掘削が比較的困難な地質条件（難条件）においても、坑底坑径 0.50 m の超深孔を深度約 3,300 m までケーシングを設置して掘削できる可能性がある。

f. ケーシング設置と裸孔の組み合わせを想定した超深孔の掘削可能深度のケーススタディ

ケーシングを設置した超深孔を掘削する場合、オプションの方法として、ケーシング設置可能深度までケーシングを設置したうえで、それ以深が結晶質岩などの岩盤強度が高い良好な岩盤の場合には、ケーシング設置可能深度以深において裸孔による掘削を実施して、より深く超深孔を掘削する方法が考えられる。

本項では、前述のケーススタディにおいて設定した地質条件（結晶質岩上面深度）と力学条件（水平応力の異方性係数等）の組み合わせに基づいて、わが国においてケーシング設置と裸孔の組み合わせを想定した超深孔の掘削可能深度についてのケーススタディを実施した。

本ケーススタディでは、地質条件である結晶質岩上面深度については、「ケーシング設置を前提条件としたときの掘削可能深度のケーススタディ（e. 項参照）」での設定に基づき、良条件（150 m）、最頻条件（1,000 m）、難条件（1,750 m）を設定した。また、掘削装置の最大巻上荷重（最大吊り下げ能力）については、「ケーススタディを実施するにあたっての前提条件・仮定した条件（①節 b. 項参照）」での設定に基づき、可動式掘削装置の最大巻上荷重として 680 トンを、固定式掘削装置の最大巻上荷重として 816 トンを設定

した。また、力学的条件（水平応力の異方性係数など）については、ケーシング設置可能深度以深の結晶質岩を裸孔掘削する際に「裸孔による掘削可能深度の検討（③項参照）」での設定に基づいて、良条件、最頻条件、難条件を設定した（表 4-13 参照）。

わが国においてケーシング設置と裸孔の組み合わせを想定した場合における超深孔の掘削可能深度についてのケーススタディの結果を図 4-15 および図 4-16 に示す。

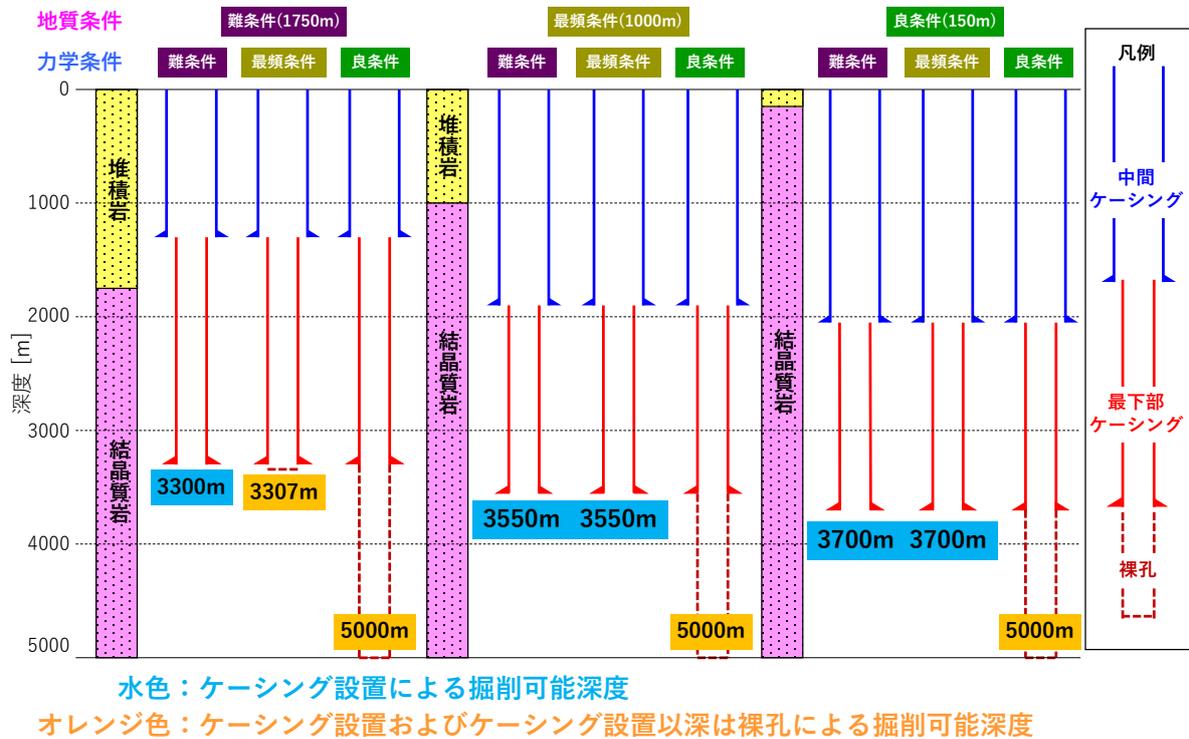
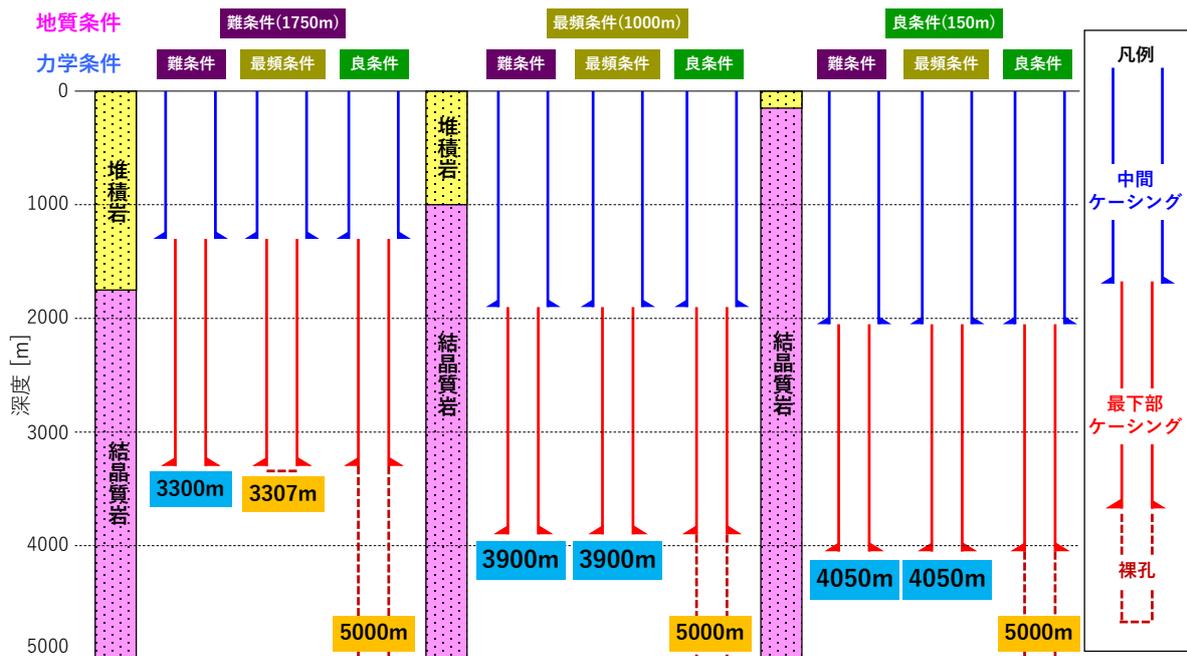


図 4-15 ケーシング設置と裸孔の組み合わせを想定した場合におけるわが国での超深孔の掘削可能深度（掘削装置の最大巻上荷重 680 トンの場合）



水色：ケーシング設置による掘削可能深度

オレンジ色：ケーシング設置およびケーシング設置以深は裸孔による掘削可能深度

図 4-16 ケーシング設置と裸孔の組み合わせを想定した場合における超深孔の掘削可能深度（掘削装置の最大巻上荷重 816 トンの場合）

ケーススタディの結果により、ケーシング設置と裸孔の組み合わせを想定した場合におけるわが国での超深孔の掘削可能深度については、以下の見通しが得られた。

- 力学的条件（水平応力の異方性係数等）が、掘削が比較的容易な「良条件」の場合には、ケーシング設置可能深度までケーシングを設置した掘削を実施し、それ以深は裸孔による掘削により坑底坑径 0.50 m の超深孔を深度約 5,000 m まで掘削できる可能性がある。

⑤ わが国における超深孔の掘削可能深度についての考察

③項および④項で実施した掘削可能深度に関するケーススタディの結果に基づき、わが国で想定する超深孔（坑底坑径 0.50 m）の掘削可能深度については、以下に示す技術的実現性の見通しや課題・留意点が得られたと考えられる。

- 現段階での世界最高水準の性能の掘削関連技術の適用により掘削とケーシングが実現できることを仮定すれば、理論的にはかなりの深度（深度約 4,000 m～5,000 m）まで掘削できる可能性がある。なお、力学条件（異方性応力場・岩盤強度）の違いは掘削深度にはあまり影響せず、むしろ地質条件（結晶質岩上面深度）のほうが掘削深度に影響する可能性がある。
- ただし、本ケーススタディ（机上検討）の結果は、検討するために仮定した情報や考え方により結果が大きく変わり得ることに留意する必要がある。例えば、地質的難条件や、力学的難条件による掘削可能深度の違いが顕著にみられていないが、これは現段階での世界最高水準の性能の掘削関連技術を適用することにより、

これらの難条件の各種の困難については基本的に克服が可能であると仮定しているためであり、これらの地質的難条件および力学的難条件による掘削可能性への影響をより詳細に把握するためには、目標とする深度までの掘削及びケーシング補強について、該当する影響因子を抽出・整理しつつ、わが国の地下条件を踏まえた具体的なパラメータを設定した詳細検討を行う必要があると考える。

2) 超深孔処分の各事業段階で考慮すべき因子や候補となる技術オプション等の分析・整理

本項では、本検討で実施したケーススタディの結果を踏まえ、超深孔処分全体における技術的実現性の見通しや課題・留意点を整理する。

超深孔処分全体における技術的実現性への見通しを得るためには超深孔処分事業の各段階（「調査段階」、「建設段階」、「操業準備段階」、「操業段階」、「閉鎖段階」）における要求事項に影響を与える因子を明確にし、各因子あるいは複数の因子の相互影響などを踏まえた技術オプションなどの調査・分析が必要になると考えられる。

本検討におけるケーススタディにより、裸孔での掘削を想定した場合は力学条件（異方性および岩盤強度）が良条件である場合に、建設段階の要求事項（「超深孔が適切に掘削できる」）を達成できる可能性が示唆された。また、ケーシングを伴う掘削を想定した場合についても 4,000 m 程度までの掘削可能性が示唆された。一方で、「建設段階」における掘削形式（裸孔、あるいはケーシング設置）は、その後の段階（「操業準備段階」、「操業段階」、「閉鎖段階」）での要求事項の構成因子や要求事項を満たすための技術オプションにも影響を及ぼすものと考えられる。

そこで本検討では、「建設段階」で選択した裸孔掘削やケーシングを伴う掘削などの掘削形式毎に、その後の段階において検討すべき因子と候補となる技術オプション・分岐条件について検討・整理した（図 4-17）。

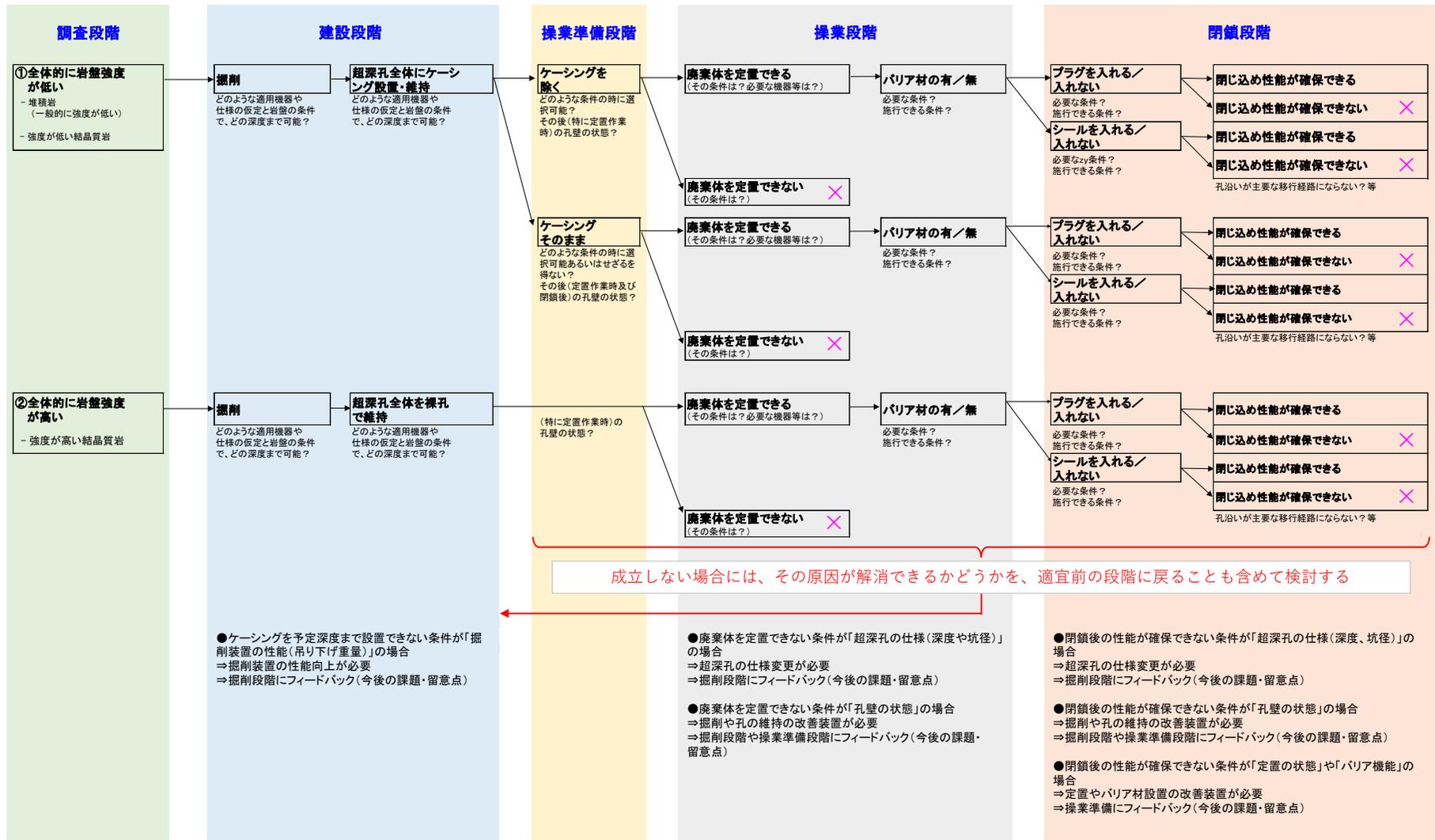


図 4-17 超深孔処分の実現のために各段階で検討すべき因子と候補となる技術オプション等の整理結果

ここでは、図 4-17 のフロー図に示す通り調査段階および建設段階では仮に全体的に岩盤強度の低いサイトを選択した場合と、対照的に岩盤強度が高いサイトを選択した場合の 2 通りを想定し、「建設段階」にてそれぞれ超深孔全体にケーシングの設置する場合と、しない場合について、「操業準備段階」以降で検討すべき因子の抽出を行った。

以下には、岩盤強度の高い場合（裸孔のみでの掘削を選択した場合）、岩盤強度の低い場合（ケーシングを伴う場合）のそれぞれについて、「操業準備段階」以降で検討すべき因子を記載する。

裸孔での掘削を選択した場合の各段階の検討事項

- 操業準備段階：
 - 力学的条件が良条件のサイトにおいて裸孔での掘削が実現した場合においては、操業準備段階の要求事項「超深孔が健全に維持できる」も同時に満たされるものと思われる。
- 操業段階：
 - 「坑壁の状態」が定置できるかできないかに影響を及ぼす条件となる可能性がある。掘削段階や操業準備段階においては、操業段階における掘削や孔の維持の改善のための技術的対策を検討することが有用であるものと考えられる。例えば、ケーシングには廃棄体定置をスムーズにする効果があるため、岩盤強度が理想的に高い処分場でも廃棄体定置のためだけにケーシングを設置し、定置後に抜管することも考えられる。また、ガイド管等の別オプションも検討対象となりうる。
 - 「超深孔の仕様（深度や坑径）」が理由で定置できない場合は、掘削段階や操業準備段階での超深孔の仕様を見直す（坑径を大きくする、掘削深度を浅くする）ことが有用となるものと考えられる。
- 閉鎖段階：
 - 閉鎖段階においては、超深孔が地下から地表への水みちとなることを避けるため、バリア材や埋め戻し材等の設置を検討した方が良いものと考えられる。一方で、超深孔の場合は地層処分の場合とは異なり、クラウド充填等の対策により周囲の岩盤の亀裂からの地下水への対策を取ることが難しいことが想定される。

ケーシングを伴う掘削を選択した場合の各段階の検討事項

- 操業準備段階：
 - 諸外国ではケーシング（タイバック・ケーシング）を抜くことを検討しているが（例えば、Kuhlman, 2019）、わが国のように比較的やわらかい岩盤で構成されるサイトでの掘削が行われた場合は、ケーシングが変形により抜き出しが困難になることや、ケーシングを抜いた後に超深孔が崩壊する可能性もある。また、セメントを充てんして固定した場合には、ケーシングを抜くことができなくなる。

- したがって、わが国における超深孔の操業準備段階では、どのような場合にケーシングを抜く必要があるのか、技術的なオプションがあるのかといった条件面の調査・整理に加えて、そもそも超深孔処分においてケーシングを抜くという選択肢が実施可能かについても検討することが有用と考えられる。
- 操業段階：
 - 操業準備段階においてケーシングを抜かない場合は廃棄体定置がスムーズになるものと予想される。一方で、ケーシングを抜く場合は、裸孔と同様に「坑壁の状態」が重要因子となりうる。
- 閉鎖段階：
 - 裸坑の場合と同様に超深孔が地下から地表への水みちとなることを避けるため、バリア材等を設置した方が良いものと考えられるが、この際にはケーシングが抜かれていることが理想的と考えられる。
 - ケーシングを抜くことの必要性を含め、ケーシング自体のバリア性能の有無や、処分場閉鎖後にケーシング周辺の隙間が核種移行経路になるかを調査・分析する必要があるものと考えられる。
 - ケーシングを抜くことができない場合については、ケーシングを想定した上で性能をどのように維持できるのか等を代替案として考えることが必要となる。また、地層処分で想定されているようなセメントと地下水との反応により、埋め戻し材が変質・劣化する可能性もある。このような場合には水理解析・反応輸送解析などを用いた影響評価を行うとともに、工学的対策（予防策・影響緩和策）の検討が必要となるが、超深孔処分の対象となる深度までの地質環境については大きな不確実性を伴うことが予想される。このため、「建設段階」まで遡り、安全性を確保しうる超深孔の仕様および地質環境調査技術・データ取得技術などへのフィードバックを検討する必要性が生じる可能性がある。

3) 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・整理のまとめ

本項では、これまでの調査・分析を踏まえて、わが国における超深孔処分の各段階のうち、特に「建設段階」に着目して、超深孔処分の関連技術の分析・整理を行った。このうち、(4)節1)項の「掘削段階における超深孔の孔壁の維持に着目したケーススタディ」では、わが国における多様な地下条件の下で、裸孔およびケーシングを用いた掘削を想定した掘削可能性の検討を行い、世界最高水準の性能の掘削関連技術の適用により掘削とケーシングが実現できることを仮定すれば、理論的にはかなりの深度まで掘削できる可能性があること、その一方で、岩盤強度の不確実性が大きく、異方性などが想定されるわが国では、掘削技術や定置技術の成立性について慎重な検討が必要になる可能性が示唆された。また、(4)節2)項の「超深孔処分の各事業段階で満たすべき因子や候補となる技術オプションなどの分析・整理」では、本検討におけるケーススタディや海外事例の調査・分析などを踏まえ、超深孔処分の各段階のうち「建設段階」以降の段階で考慮すべき点を整理した。

(5) 現段階における超深孔処分の技術的実現性の見通しや課題・留意点の整理

本項では、上述の(2)節で調査した諸外国の先行検討事例における考え方、背景、特徴、および(3)節で実施した超深孔処分の適用性の検討に向けた関連技術の調査結果やケーススタディの結果を踏まえ、わが国における超深孔処分の成立に向けた留意点や課題を整理した。

上述の(2)節で示したように、それまで超深孔処分に係る検討を行ってきた米国 SNL や英国シェフィールド大に加え、米国 Deep Isolation 社や欧州 ERDO、豪州 CSIRO 等、近年さまざまな国・機関で多様な超深孔の処分概念が提案・検討されていることが確認された。こうした検討では、これまでの深度 5,000 m 程度の鉛直孔の超深孔処分に加え、2,000 m 程度の比較的浅い深度のものを含むさまざまな処分概念が検討されていることが確認された。また、地質環境条件については、岩盤強度や均質性の高い良好な岩盤を対象とする諸外国の検討に対し、わが国では岩盤強度の不確実性が大きいことや異方性などが想定され、掘削技術や定置技術の成立性について慎重な検討が必要になる可能性が示唆された。このように、超深孔処分が成立するために必要となる技術の難易度（以下、「技術的なハードル」）は、深度や坑径などの超深孔の仕様や、岩盤の条件によって異なることが想定される。

そこで、本検討で想定される超深孔処分の関連技術において想定される技術的なハードルの組合せに応じて、国内外における技術的なハードルの有無やそれらの技術的な成熟度を整理することを試みた（図 4-18）。整理にあたっては、(3)節 1)項で述べた超深孔処分の事業段階ごとに想定される要求事項と設計要件に対して必要な技術を挙げた上で、各技術について、技術の動向を整理した。ここでは関連技術の有無と、技術がある場合には、「実証されている技術」、「机上検討・設計において実現可能性が検討されている技術」、「文献により実績が確認されている技術」、「既存技術や今後の技術開発により実現可能と想定されている技術」の 4 段階で示した。

その結果、比較的岩盤強度や均質性の高い良好な岩盤を対象とする諸外国の検討においても、大坑径かつ大深度のボーリング孔の掘削や維持、廃棄体の定置、閉鎖技術が実証されているわけではないことを確認した。さらに、わが国で想定される岩盤強度の不確実性が大きいことや異方性などが想定される条件においては、大坑径かつ大深度のボーリング孔の掘削や維持、廃棄体の定置、閉鎖技術の検討は、国内外で例がないことを確認した。

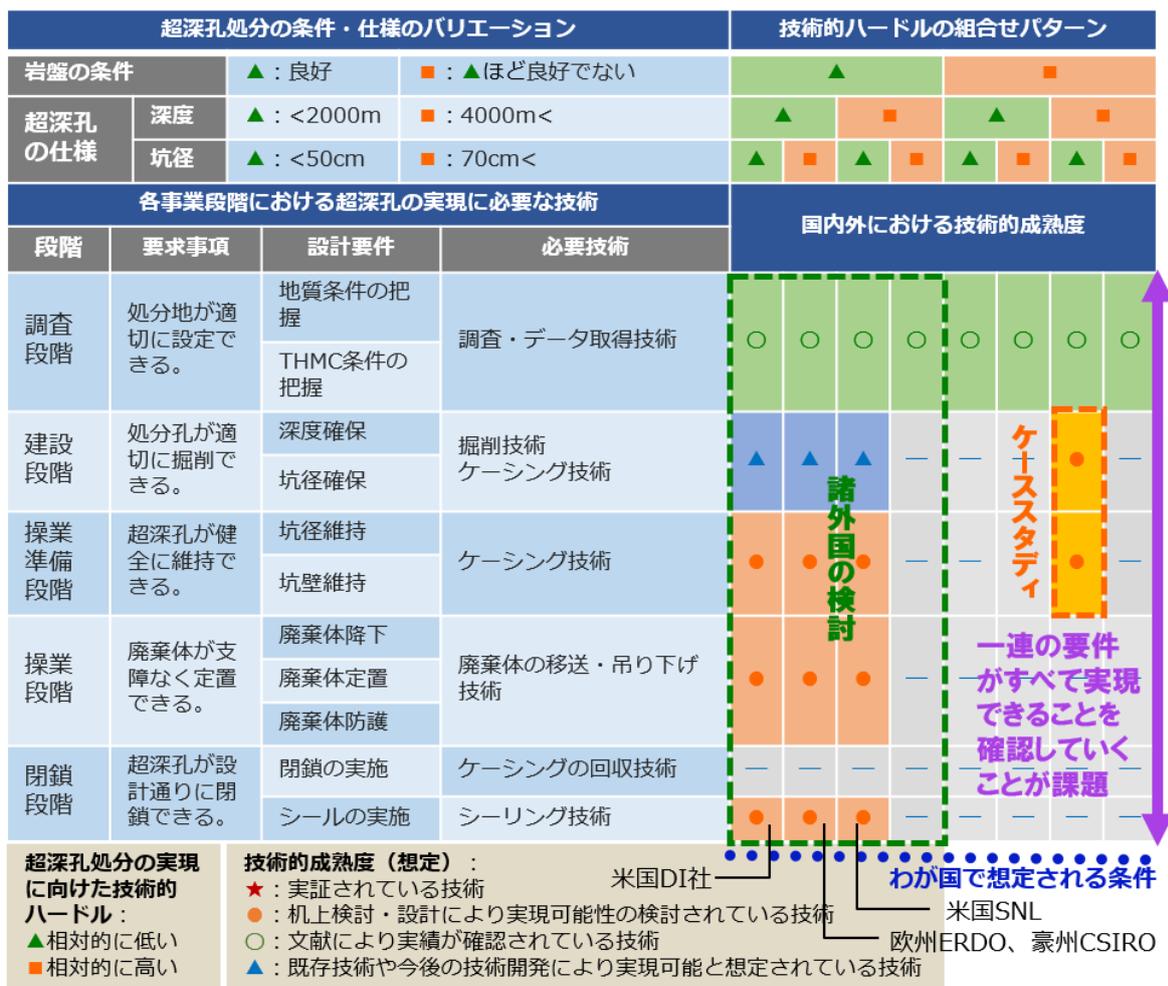


図 4-18 国内外における超深孔処分の技術動向のとりまとめ

そこで、(4)節 1)項の「掘削段階における超深孔の孔壁の維持に着目したケーススタディ」では、超深孔処分の実現に向けた事業段階のうち、建設段階の要求事項である掘削可能性を達成するための設計要件である「深度確保」や「坑径確保」に重点を置いて、裸孔およびケーシングを伴う場合のケーススタディを行った。これにより、「坑底坑径 0.5 m、深度 5,000 m まで」の掘削可能性について、以下の点が示された。

- 地質条件・力学条件（異方性および岩盤強度）が好ましい地域であれば、裸孔によって深度 5,000 m までの掘削が成立する可能性があることが示唆された。また、現段階での世界最高水準の掘削関連技術（最高性能の掘削装置やケーシングを使用。また、地質学的・力学的難条件で発生し得る各種の困難については、現段階での世界最高水準の掘削技術の適用により、基本的に克服できると仮定しているなど）を用いてケーシングにより坑壁を補強できた場合には、力学条件が難化しても深度 3,000 m～4,000 m までの掘削が可能であるものと考えられた。一方で、本検討におけるケーススタディでは地質条件（例えば結晶質岩の上面深度など）による掘削可能性への影響が顕著にみられなかった。
- 今後、目標とする深度までのケーシングが種々の地質条件において物理的に可能か

という点について、該当する影響因子を抽出・整理しつつ、種々の掘削・ケーシング技術を対象とした裕度の検討を行うことで、地質条件による掘削可能性への影響をより詳細に把握できるものと考えられる。

さらに「建設段階」の掘削可能性のケーススタディの結果を踏まえ、本検討では、それ以降の「操業準備段階」、「操業段階」、「閉鎖段階」での検討項目を整理した。下記に、今後の超深孔処分の技術的実現性に対する主な論点を記載する。

- 「建設段階」におけるケーシングの設置の有無により、その後の各段階での検討事項が大きく変わることが予想される。ケーシングを伴う場合は「操業段階」における廃棄体の定置がスムーズに行えるものと考えられる。一方で、わが国の場合では米国などと比べ比較的やわらかいサイトでの掘削が行われる可能性もあるため、ケーシングが変形しやすい等の理由で一度設置したケーシングを引き抜くことは困難なことが予想される。そのためケーシングの設置については、幅広い技術的オプションやケーシングを抜く必要性があるのかといった点についての調査・分析が必要となる。
- 超深孔処分の実現のためには、バリア材の設置などにより、「閉鎖段階」において超深孔が地下から地表への水みちとなることを避ける必要がある。この際はケーシングが引き抜かれていることが理想的であるが、仮にケーシングを引き抜けない場合は、ケーシング自体のバリア性能の有無や、処分場閉鎖後にケーシング周辺の隙間が核種移行経路になりうるか、といった点を調査・分析する必要がある。また、ケーシングの機能を維持するための代替案なども検討する必要がある。

また留意点として、わが国では地質環境条件に左右されるケーシングの有無や仕様が、掘削後の超深孔の維持の観点から達成可能な深度に大きく関わる重要な因子となる可能性が示された。一方、超深孔処分の成立の可否は、建設段階～操業準備段階で重要となる「深度確保」、「坑径確保」、「坑壁確保」だけでなく廃棄物の定置や閉鎖に係る要件（廃棄体降下、廃棄体定置、廃棄体防護、閉鎖の実施、シールの実施など）までが問題なく満たされることが不可欠となることから、今後は建設～操業～閉鎖での一連の要件がすべて実現できることを確認していくことが重要である。

(6) 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した。

超深孔処分の実現に向けた事業段階のうち、建設段階の要求事項である掘削可能性を達成するための設計要件である「深度確保」や「坑径確保」に重点を置いて、超深孔処分に係る関連技術のうち、掘削技術および地質環境調査技術および設計・安全評価に係るデータ取得技術に関する調査・分析などを実施した。

- 掘削技術

本年度の検討では、わが国における地下条件のうち、特に超深孔の掘削可能性に影響を与える可能性のある因子に着目した事例検討を行った。その結果、

- 現段階での世界最高水準の性能の掘削関連技術の適用により掘削とケーシングによる孔壁の補強が実現できることを仮定すれば、理論的には深度 3,000 m～4,000 m まで掘削できる可能性があることが示唆された。
- 超深孔処分の成立の可否は、建設段階～操業準備段階で重要となる「深度確保」、「坑径確保」、「坑壁確保」だけでなく廃棄物の定置や閉鎖に係る要件（廃棄体降下、廃棄体定置、廃棄体防護、閉鎖の実施、シールの実施など）までが問題なく実現できることが不可欠と考えられる。このため、建設段階～操業段階～閉鎖段階での一連の要件がすべて実現できることを確認していくことが今後の課題になる。

- 地質環境調査技術および設計・安全評価に係るデータ取得技術

地質環境調査技術・データ取得技術については、超深孔処分の各事業段階の検討において必要になると考えられる地下情報および坑井情報を 3 つの分類（調査分類Ⅰ～調査分類Ⅲ）に区分したうえで、調査する必要がある項目とそれを調査するためのツール・技術などについて調査・分析した。

その結果、調査分類Ⅱ（設計情報検証のための坑井情報）や調査分類Ⅲ（設置物・ニアフィールドの安全性・健全性確保のためのベースライン情報）について、具体的な調査項目とそれを取得するための各種ツールや技術などについて整理することができた。なお、本年度調査・整理した地質環境調査・データ取得技術については、いずれも超深孔処分における廃棄体の定置で想定される長期間の操業を想定したものではないため、今後は、超深孔処分で想定される長期間の操業や、その間の坑壁の安定性などを長期間モニタリングできるよう、遠隔で測定できる技術等も求められると想定される。また、超深孔処分の後半の事業段階（操業準備段階、操業段階、閉鎖段階）に重点を置いた関連技術の調査・分析などを進めていくことも重要である。

【参考文献】

- Ahmed, H., Khan, M., Rashid, K., Bari, A., Ail, S., Zubair, T., Tanveer, M., Anjum, U. (2021) : Evaluating Casing Condition Through Integration of Multi-Finger Calipers and Ultrasonic Imaging with Casing Wear Analysis - A Hybrid Approach, SPE/ICoTA Well Intervention Conf. and Exhib, 2021, 17p.
- American Petroleum Institute (API) (2005) : Specification for Casing and Tubing, API Specification 5CT, pp.306.
- American Petroleum Institute (API) (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.
- Ashena, R., Elmgerbi, A., Rasouli, V., Ghalambor, A. (2020) : Severe wellbore instability in a complex lithology formation necessitating casing while drilling and continuous circulation system, Journal of Petroleum Exploration and Production Technology, vol. 10, 2020, pp.1511-1532.
- Baltzer, R., Frei, M., Garrido, D., Sisley, S. (2022) : Canister for Radioactive Waste Transport, Storage and Disposal in Boreholes, WM2022 Conference, March 6 - 10, Phoenix, Arizona, USA.
- Beswick, J. (2008) : Status of technology for deep borehole disposal, Report prepared by EPS International for Nuclear Decommissioning Authority, pp.91.
- Beswick, A.J., Gibb, G.F., Travis, K.P. (2014) : Deep borehole disposal of nuclear waste: engineering challenges, Energy, vol. 167, no. 2, pp.47-66.
- Blue Ribbon Commission on America's Nuclear Future (2012) : Report to the Secretary of Energy.
- Brady, P.V., Arnold, B.W., Freeze, G.A., Swift, P.N., Bauer, S.J., Kanney, J.L., Rechar, R.P., and Stein, J.S. (2009) : Deep Borehole Disposal of High-Level Radioactive Waste. Sandia National Laboratory, Albuquerque, USA. Report No: SAND2009-4401. 75 pp.
- 物理探査学会 (2016) : 物理探査ハンドブック, 第13章 物理検層, p.701-810.
- Chapman, N. (2019) : Who Might Be Interested in a Deep Borehole Disposal Facility for Their Radioactive Waste?, Energies, 12.
- Chapman, N. and Gibb, F. (2003) : A truly final waste management solution : is very deep borehole disposal a realistic option for HLW or fissile material? Radwaste Solutions 10(4) : 26-35.

- Collier, N.C., Milestone, N.B., Travis, K.P. (2019): A Review of Potential Cementing Systems for Sealing and Support Matrices in Deep Borehole Disposal of Radioactive Waste, *Energies* 2019, 12, 2393.
- 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 (2021): Deep Isolation - An introduction for policy-makers, WHITE PAPER.
- Deep Isolation and ERDO (2021): Preliminary assessment of Deep Isolation borehole repository as disposal option for nuclear waste in ERDO countries, NND.
- Detournay and Cheng(1993): Fundamentals of Poroelasticity, *Comprehensive Rock Engineering: Principles, Practice and Projects, Analysis and Design Method*, vol. 2, Pergamon Press, pp.113-171.
- 江原幸雄, 金旭, 湯原浩三 (1989): 2つの花崗岩地域での地殻熱流量の決定 - 山口県防府及び大分県国東地域 -, *日本地熱学会誌*, vol. 11, no. 4, pp.269-283.
- ERDO (2022): Boreholes as a permanent solution for national inventories of radioactive waste.
- Finch, R.J., Haddal, R., Baldwin, G.T. (2016): Safeguards Implications for Deep Borehole Disposal of Spent Fuel, Sandia National Lab., SAND2016-4591, 50p.
- Finch, R.J., Smartt, H.A., Haddal, R. (2018): Design Verification of Deep Boreholes: A Review of Available Inspection Tools, Proposed for presentation at the Institute for Nuclear Materials Management annual meeting, SAND2018-6099C, 5p.
- Fischer, T., Engelhardt, H.J., Wanne, T. (2020): Deep Borehole Disposal Concept, *AINS - Civil Engineering*, pp.158.
- Fischer, T., Engelhardt, H.J., Mallants, D. (2022): Methodology for Designing Deep Boreholes for Disposal of Radioactive Waste, WM2022 Conference, March 6 - 10, Phoenix, Arizona, USA.
- Freeze, A. Stain, E., Brady, P.V., Lopez, C., Sessani, D., Travis, K., Gibb, F., Beswick, J. (2019): Deep Borehole Disposal Safety Case, *Energies* 2019, 12, 2141.
- Freeze, G., and MacKinnon, R. (2018): Safety case for deep borehole disposal of spent nuclear fuel and high-level waste, IGSC Safety Case Symposium 2018, Current Understanding and Future Direction for the Geological Disposal of Radioactive Waste.
- Frisch, G.J. and Mandal, B. (2001): Advanced ultrasonic scanning tool and evaluation methods improve and standardize casing inspection, SPWLA 42nd annual logging sympos, 14p.
- Gaillot, P., Pezard, T., Yeh, E. (2007): Borehole Imaging Tools - Principles

- and Applications, Scientific Drilling, no. 5, 4p. :
http://publications.iodp.org/sd/05/suppl/borehole_imaging_tools.pdf (閲覧日 : 2023 年 3 月 14 日).
- Gao, Y., Liu, Z., Zhuang, Z., Hwang, K. C., Wang, Y., Yang, L., Yang, H. (2016): Cylindrical Borehole Failure in a Poroelastic Medium, J. Appl. Mech., vol. 83, 2016, 061005-2.
- 原子力発電環境整備機構 (2011): 地層処分事業の安全確保 (2010 年度版) - 確かな技術による安全な地層処分の実現のために -, NUMO-TR-11-01, 770p.
- 原子力発電環境整備機構 (2021): 包括的技術報告: わが国における安全な地層処分の実現, NUMO-TR-20-03, 付属書, 第 3 章調査シート, 31-物理検層 (孔壁画像解析), 5p.
- 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.
- 原子力機構 (日本原子力研究開発機構) (2022): 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.
- Gibb, F.G.F and Beswick (2022) : A deep borehole disposal solution for the UK' s high-level radioactive waste, Energy, vol. 175, no. 1, 11-29.
- GRS (2012) : Endlagerauslegung und - optimierung. Bericht zum Arbeitspaket 6, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben, GRS-281, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH.
- 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.
- IAEA (2019) : New CRP: Developing a Framework for the Effective Implementation of a Borehole Disposal System (T22002),
<https://www.iaea.org/newscenter/news/new-crp-developing-a-framework-for-the-effective-implementation-of-a-borehole-disposal-system-t22002> (閲覧日 : 2023 年 3 月 14 日).
- IAEA (2020) : Underground Disposal Concepts for Small Inventories of Intermediate and High Level Radioactive Waste, IAEA-TECDOC-1934.
- IFNEC (2020) : Understanding Deep Borehole Disposal Technology in the context of Spent Fuel and High-Level Radioactive Waste Disposal: History, Status, Opportunities and Challenges. webinar,
https://www.ifnec.org/ifnec/jcms/g_13596/webinar-understanding-deep-

- borehole-disposal-technology-in-the-context-of-spent-fuel-and-high-level-radioactive-waste-disposal-history-status-opportunities-and-challenges-november-4-and-5-2020 (閲覧日：2023年3月14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.
- Ito, T. and Zoback, M.D. (2000) :Fracture permeability and in situ stress to 7 km depth in the KTB Scientific Drillhole , Geophysical Research Letters, vol. 27, No. 7, 1045-1048.
- Jaeger, J.C., Cook, G.W., Zimmerman, R. (2007) : Fundamentals of Rock Mechanics, 4th ed., Blackwell Publishing, 488p.
- 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_data/ (閲覧日：2023年3月14日).
- Juhlin, C., Wallroth, T., Smellie, J., Eliasson, T., Ljunggren, C., Leijon, B., Beswick, J. (1998) The Very Deep Hole Concept - Geoscientific Appraisal of Conditions at Great Depth. SKB Technical Report 98-05, Stockholm, Sweden.
- Khalifeh, M., Gardner, D., Haddad, M. (2017) : Technology Trends in Cement Job Evaluation Using Logging Tools, Abu Dhabi Internat. Petroleum Exhib. Conf., 16p.
- 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.
- 国安稔, 山田泰広 (2004) : 中央北海道南部地域の深部構造, 石油技術協会誌, vol. 69, no.2, pp.131-144.
- Liu, Y., Wang, C., Luo, G., Ji, W. (2020) : Design and applications of drilling trajectory measurement instrumentation in an ultra-deep borehole based on a fiber-optic gyro, Geosci. Instrum. Method. Data Syst., vol. 9, 79-104, <https://gi.copernicus.org/articles/9/79/2020/> (閲覧日：2023年3月14日).
- Mallants, D., Bonano, E., Freeze, G., Brady, P., Sassani, D. (2020): Borehole Disposal Demonstration Project: Overview & Collaboration Opportunities, IAEA Coordinated Research Project "Standardised framework for borehole disposal", Webinar, Abstract from CSIRO <https://publications.csiro.au/publications/publication/PIcsiro:EP208729/RI15/RT68> (閲覧日：2023年3月14日).
- Mallants, D., Aghbelagh, Y., Doblin, C. (2021) : Deep borehole disposal of intermediate-level waste: progress from Australia's RD&D project, Proceedings of the INMM & ESARDA Joint Virtual Annual Meeting.
- Mallants, D., Piane, C., Dewhurst, D., Doblin, C., Engelhardt, J., Esteban, L., Josh, M., Kelka, U., Khanal, M., Schaub, P., Shen, B., Shi, J., Tilman,

- F., Wilske, C. (2022) : A Framework for Streamlining RD&D Activities for Deep Borehole Disposal, WM2022 Conference, March 6 - 10, Phoenix, Arizona, USA
- MIT (Massachusetts Institute of Technology) (2003) : The Future of Nuclear Power: An Interdisciplinary MIT Study, MIT, Cambridge, MA, USA.
- Midttømme, K., Berre, I., Olesen, O. (2012) : Geothermal Resources in Norway. EGEC GEOLEC Workshop, January 24th, Utrecht.
- 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.
- Nirex (UK Nirex Ltd) (2004) : A Review of the Deep Borehole Disposal Concept for Radioactive Waste. Nirex report no. N/108, Nirex, UK.
- OECD-NEA (2017) : Sourcebook of International Activities Related to the Development of Safety Cases for Deep Geological Repositories, Radioactive Waste Management, OECD 2017, NEA No.7341.
- OECD-NEA (2018) : IGSC Safety Case Symposium 2018: Current Understanding and Future Direction for the Geological Disposal of Radioactive Waste, Radioactive Waste Management and Decommissioning, NEA/RWM/R(2018)7.
- 斎藤敏明, 石田 毅, 寺田 孚, 田中 豊 (1988) : 実測結果に基づくわが国の地下岩盤内の初期地圧状態の検討, 土木学会論文集, no. 394/III-9198, 1988, pp.71-78.
- 佐藤稔紀, 谷口航, 藤田朝雄, 長谷川宏 (1999) : 文献調査によるわが国の岩石の物理的特性に関するデータの収集(その2), 核燃料サイクル開発機構, JNC TN7400 99-011
- Schlumberger (2002) : Advanced borehole imaging independent of mud type, <https://www.slb.com/-/media/files/fe/brochure/ubi-br.ashx> (閲覧日 : 2023年3月14日).
- Schlumberger (2007) : Cement Bond Logging Tools, <https://www.slb.com/-/media/files/production/product-sheet/cement-bond-logging-tools-ps.ashx> (閲覧日 : 2023年3月14日).
- Schlumberger (2008) : PS Platform Multifinger Imaging Tool, <https://www.slb.com/-/media/files/production/product-sheet/ps-platform-multifinger-imaging-tool-ps.ashx> (閲覧日 : 2023年3月14日).
- Schlumberger (2016) : LLOG Evaluates Cement and Casing Integrity for Multiple Casings in a Single Descent, Deepwater GOM, <https://www.slb.com/-/media/files/fe/case-study/cement-evaluation-logged-multiple-casings-onerun-deepwater-gom.ashx> (閲覧日 : 2023年3月14日).
- 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.
- Sharar, M.A. (2008) : High resolution Casing imaging utilizing Magnetic Flux Leakage measurements, SPWLA ann. Logging Sympos., 10p.
- Simonsen, A.L.L. (2018) : Updated Norwegian In Situ Rock Stress Database. Norwegian University of Science and Technology (NTNU), Geotechnology, 2018.

- 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, 1999, vol. 50, no. 7, p. 457-487.
- 内出崇彦, 椎名高裕, 今西和俊 (2022) : 日本全国内陸部の地殻内応力マップと微小地震の発震機構解のデジタルデータ, 地質調査総合センター研究資料集, no. 738, 産業技術総合研究所地質調査総合センター, 6p.
<https://www.gsj.jp/publications/pub/openfile/openfile0738.html> (閲覧日:2023年3月14日).
- Uchide, T., Shiina, T., Imanishi, K. (2022) : Stress Map of Japan: Detailed Nationwide Crustal Stress Field Inferred From Focal Mechanism Solutions of Numerous Microearthquakes, JGR Solid Earth, vol. 127, no.6, e2022JB024036.
- Wunderlich, A., Seidel, D., Herold, P., Wanne, T. (2021) : Deep Borehole Disposal Canister, AINS - Civil Engineering.
- 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.
- Zoback, M.D. (2007) : Reservoir Geomechanics, Cambridge Univ. Press, pp449.

第 5 章

おわりに

5. おわりに

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4年度までに実施した上記の各実施項目の成果の総括、および各実施項目の今後の課題を示す。なお、令和4年度は、平成30年度から開始した本事業の最終年度にあたり、2章～4章の各章においては、本事業全体の成果を取りまとめていることから、本章においても、本事業全体の成果の総括と今後に向けた課題を示すものとする。また、第1章で示したように「代替処分オプションの成立性の検討に資する情報の整理」の成果については、「代替処分オプションに係る調査研究に関する取りまとめ報告書」として別途まとめられている。

5.1 本事業の各実施項目の成果

(1) 処分容器の挙動評価

1) 腐食挙動評価

直接処分の安全評価上の重要核種である C-14 の処分容器での閉じ込め性の向上を目指して、耐食性材料として有望な純銅について、純銅の寿命を評価する上で重要となる地下水中の硫化物や塩化物などの影響を把握するための腐食試験や、試験結果を踏まえた腐食寿命評価のためのモデル計算を行い、5万年程度の長寿命が期待できる状況を具体的に示すことができた（純銅の耐食層厚さ40mmで硫化物濃度3mM以下など）。また、硫化物環境下での影響として従来から懸念されていた応力腐食割れについては処分環境では起こりにくい可能性があることを示唆する結果などが得られた。これにより、諸外国と比較して地下水中の硫化物濃度が高いわが国においても、銅製処分容器を適用できる条件が存在することが期待される。また、純銅以外の候補材料として、ニッケル基合金 C-276 を対象として、高耐食性金属で問題となる、酸化性条件でのすきま腐食の発生の可能性を把握するため再不動態化法による定電位試験を行い、少なくとも海水相当以上の塩化物イオン濃度ではすきま腐食が発生しうるとの結果を得た。ただし、低酸素環境での浸漬試験の結果にもとづく腐食速度は非常に低く、長寿命が期待できる可能性があることが分かった。

2) 臨界安全評価

処分後の未臨界を確保するには処分容器に収められる使用済燃料の本数が制約を受ける。従来の保守的なモデルで臨界安全評価を行うと、その本数を著しく制限することが必要となるため、これを緩和することを目指して、処分容器の腐食などによる現実的な変化を反映した臨界安全評価モデルを検討した。腐食による強度劣化が生じて材料の破断が起きることで

臨界が起りやすい材料配置に至る可能性を把握するための力学解析の結果などを踏まえて、PWR 使用済燃料を 4 体収容する処分容器の仕様を想定した評価モデルの候補を複数提示した。これらを用いた解析の結果、実効増倍率の値はいずれも未臨界判定基準値である 0.95 以下となり、現実起り得る材料の状態や燃料の配置を反映したモデルで臨界安全評価を行うことで、従来の保守的なモデルと比べて、処分容器により多くの使用済燃料を収容できる見通しを示すことができた。

(2) 使用済燃料、緩衝材の挙動評価

1) 使用済燃料集合体からの核種溶解挙動評価

閉鎖後長期の安全性の評価で重要となる燃料マトリクス中の長期溶解挙動について、わが国では地下水中の炭酸濃度が高いことに着目し、この影響を把握するための試験手法の検討や溶解速度の暫定値の提示などを行った。本検討では、溶解したウランの再沈殿による影響を排除するため、溶解指標物質として ^{26}Mg を固溶させた UO_2 ペレットの浸出試験により燃料マトリクスの溶解速度を評価し、長期溶解速度の炭酸濃度依存性を暫定的に定式化できた。ただし、得られた値は処分環境で想定される既往の評価値より一桁程度高かった。この原因として、溶解速度の評価で重要となる UO_2 ペレットと溶液の接触面積の評価精度が不十分であったことなどが挙げられ、 UO_2 ペレット表面のクラック等の存在を適切に反映することが必要であるなど、課題も明らかにすることができた。

燃料ペレット中のクラックや燃料ペレットと燃料被覆管との隙間などに蓄積する核種の瞬時放出挙動については、BWR 使用済燃料と類似している原子力機構が保有する新型転換炉「ふげん」の実使用済燃料を用いた浸漬試験を実施することで、実験的手法により大気雰囲気下で Cs-133 や Tc-99 などの瞬時放出率のデータを取得することができた。先行事業において設定した、わが国の安全評価における瞬時放出率の推奨値と最大値は、これらの試験で得られた値と同程度かそれを上回る値であり、これらの評価値が保守性の観点から妥当なものであることを示唆する結果と言える。さらに、今後必要となる、低酸素雰囲気での浸漬試験を行うために還元条件を維持できる試験手法を構築することができた。

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可能性のあ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。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 条件で試験を最長 270 日程度まで実施し、いずれの条件においても、モンモリロナイトの他鉱物への変質や Cu 型化は観察されなかった。また、炭酸および鉄共存の影響メカニズムについて、熱力学データからの検討を行った結果、処分場閉鎖直後の酸化性条件で炭酸が影響する可能性があるものの、低酸素条件では、炭酸および鉄が共存しても、両者が共存しない場合と比べて変質挙動に変化はないと考えられた。さらに、銅粉カラム試験での単位表面積あたりのベントナイト変質量を元に、実際の処分場での銅製容器の腐食深さに対する緩衝材変質厚さを算出し、処分環境での長期間後の緩衝材の変質量を評価した結果、腐食速度 $0.1 \mu\text{m y}^{-1}$ 程度の低い腐食速度であれば、処分後数万年でも緩衝材の変

質は顕著とはならないと推定された。

(3) その他の代替処分オプションについての調査

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、諸外国の動向や関連技術の調査等を行い、深度 4,000～5,000 m 程度の鉛直孔での超深孔処分に加えて、1,000～2,000 m 程度の比較的深度が浅い処分や、水平孔や斜孔および多段定置で超深孔処分についての検討の実施例があることを確認した。ただし、これらの処分の実施で必要となる技術（たとえば、大坑径かつ大深度のボーリング孔を掘削するための技術）などについては、先行する諸外国においても実証まではされておらず、事業化レベルまで進んでいる事例はないことが確認された。また、これらの諸外国における検討事例では、岩盤強度が高く均質であるなどの良好な岩盤を対象としていることが特徴としてあげられ、一方、わが国では岩盤強度の幅が大きいことや異方性などが想定されることから、掘削技術や定置技術の成立性について諸外国の検討事例に比してより慎重な検討が必要になる可能性が示唆された。

その検討の一環として、諸外国の検討事例および国内外の関連技術の調査結果を踏まえ、さらにわが国特有の岩盤条件などを想定することで、建設段階での掘削や孔の維持の実現性に着目したケーススタディを行った。その結果、ケーシングにより坑壁を補強しつつ掘削を行う場合には、岩盤強度が低く応力の異方性が高いなどの掘削に不利な力学条件でも、深度 3,000～4,000 m までの掘削が可能であることを示唆する結果が得られた。ただし、達成可能な深度や孔壁の状態はその検討で想定する条件などにより異なることから、適用する技術の実証や対象とする地質環境条件への対応性が重要であり、地質環境条件が複雑なわが国では特に慎重な検討が重要になることが示唆された。

5.2 本事業を終えての今後の研究課題

使用済燃料の直接処分については、本事業を終えて以下のような研究課題があげられる。

処分容器の挙動評価に関する検討では、耐食層に純銅やニッケル基合金などを使用することにより数万年程度の長寿命が期待でき、閉鎖後長期の安全性の評価において C-14 の線量への寄与を大幅に低減できる可能性が示唆された。また、その期間においては、処分容器内部への地下水の進入が抑制され、未臨界状態の確保の観点でも有利となるものの、MOX 使用済燃料を想定する場合などは数万年以降に実効増倍率のピークが生じることや、地下水中の硫化物濃度が 3 mM 以上であるなど長寿命が期待できない可能性のあるサイトに処分することも想定して、燃料組成のバリエーションや PWR 使用済燃料以外の処分容器仕様なども対象として、引き続き、燃料や処分容器などの現実的な変化を反映した臨界安全評価手法の検討を進め、使用済燃料の収容体数の合理化を図ることが重要である。また、処分容器の長寿命化については、応力腐食割れなどの局部腐食を含む腐食の進展や抑制のメカニズムをより深く理解することで短期試験の結果を長期挙動の評価に活用することの妥当性を示す知見を拡充していくことが重要である。なお、処分容器の寿命を評価する際の前提となる、地下水中の硫化物濃度などについて、硫酸イオンを硫化物に還元する硫酸還元菌の挙動とその影響などに関する知見を拡充し、過度に保守的な硫化物濃度の設定とならないようにしていくことも重

要である。

燃料からの核種溶出に関する検討では、燃料マトリクス溶解速度評価に使用する UO_2 ペレットと溶液の接触面積の測定精度が向上するように試験手法を見直すことや、瞬時放出率の測定について低酸素雰囲気でのデータを拡充することなどにより、これらの評価値の信頼性向上を図ることが重要である。また、燃料からの核種溶出のメカニズムをより深く理解することで、短期試験の結果を長期挙動の評価に活用することの妥当性を示す知見を拡充していくことが重要である。特に、浸漬試験後の UO_2 ペレットの表面分析などを行い、浸漬に伴い発生する UO_2 ペレット表面のウランの化学状態の変化や、再沈殿したウラン化合物等についての知見を得るとともに、これらと溶解試験の結果を組み合わせ、溶解メカニズムを理解するための知見として整理していくことが重要である。

緩衝材に関する検討では、銅粉カラム変質試験などにより、処分環境での緩衝材変質の可能性について、低い腐食速度であれば数万年後でも緩衝材の変質は顕著とはならない見通しを示すことができたが、今後は、地下水中の硫化物濃度が高い場合など腐食速度が数百 $\mu m y^{-1}$ 程度の高い値が想定される場合の処分環境での変質可能性を把握していくことや、銅と緩衝材の相互作用に関する天然の類似事例の調査など（例えば、長期間土壌中に埋蔵されていた銅遺物周辺の土壌の変質状況の分析など）により、室内試験などでは実施不可能なより長期にわたる銅と緩衝材の相互作用により起こりえる現象の確認やそのメカニズムの解明を進めていくことが重要である。

わが国における直接処分の成立性の確認に向けて、今後は、わが国での直接処分特有の課題への取り組みとして前述の記載への対応を適宜進めていくとともに、課題間の相関関係にも着目した、より俯瞰的な視点で全体に留意しつつ進めていくことが重要となる。この際に着目する設計・工学技術や核種移行評価のそれぞれの全体像およびそれらをつなげた全体像としては、海外の先行事例および NUMO 包括的技術報告書でのセーフティケースの考え方や構造を参考としていくことが効率的と考えられる。

その他代替処分オプションについては、わが国の諸条件等を考慮した場合の超深孔処分の成立性の可否や難易度についての具体的な見通しを得ることが重要になる。それに向けては、超深孔処分の仕様（深さや坑径等）、適用可能性のある技術（既存技術、新規技術等）、わが国での超深孔処分の対象となりえる地質環境条件等についてのバリエーションを適切に考慮しながら、建設段階だけでなく、後半の操業段階～閉鎖段階までを含めて、それぞれの段階での要件が満たされる可能性のある因子の条件や組み合わせ等を具体化していくことが重要である。

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「臨界安全評価技術」「緩衝材の挙動評価」に係る技術開発を、地質環境条件や使用済燃料の多様性への対応として「処分容器の腐食挙動評価」「使用済燃料の挙動評価」に係る技術開発を重点に進めた。また、「その他の代替処分オプションについての調査」において、その他代替処分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。これらの結果に基づき、わが国での直接処分の成立性に向けた知見および今後の課題や、超深孔処分のわが国での適用性などの検討に向けた留意点や課題の取りまとめを行うことによって平成30年度か

ら令和4年度までの各年度の計画を完遂し、所期の成果を得たと考えている。

さらに、先行事業（平成25年度～平成29年度）と、上記に示した本事業（平成30年度～令和4年度）での使用済燃料の直接処分及びその他代替処分オプションについての研究・調査の成果を、代替処分オプションの成立性の検討に資する最新の技術情報として「代替処分オプションに係る調査研究に関する取りまとめ報告書」に取りまとめた。

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。

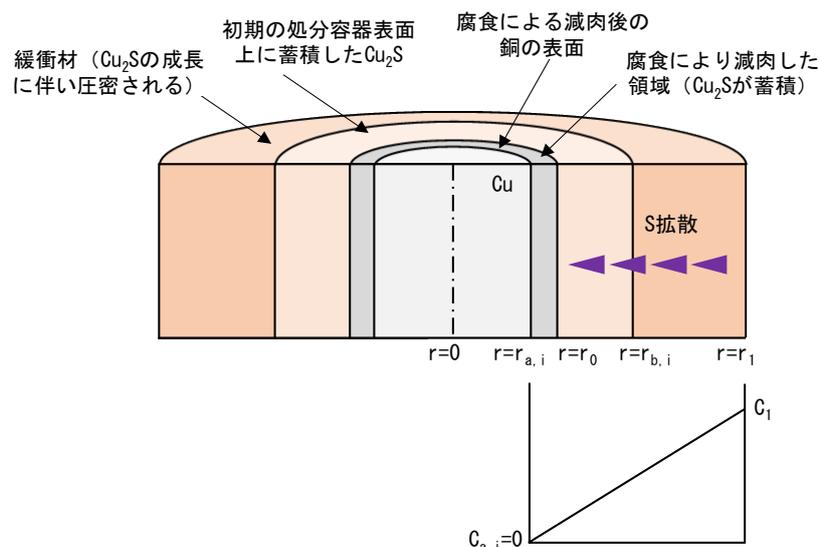
付録 1

腐食生成物皮膜 (Cu_2S) および緩衝材を拡散層として考慮する場合の銅表面における硫化物フラックスの評価式の導出過程
(本編 2 章に付す : 2.1(2)1) 項)

硫化物が存在する処分環境における銅の腐食量および腐食深さを評価するためには、拡散層（緩衝材など）を介して岩盤から供給される地下水に含まれる硫化物のフラックスを評価する必要がある。

令和 3 年度は、緩衝材のみを硫化物輸送の拡散層として評価される硫化物フラックスに基づき腐食深さを評価した（原子力機構，2022）。本編 2 章 2.1(2)1)②d. では、間隙を有する腐食生成物皮膜（ Cu_2S ）が、腐食の進展にともなって銅と緩衝材の界面で成長することが長期の腐食深さに及ぼす影響を評価することとしたため、緩衝材および腐食生成物皮膜（ Cu_2S ）を拡散層として考慮する場合の硫化物フラックスの評価式を導出した。導出過程を以下に示す。

本編 2 章 2.1(2)1)②d. において長期の腐食深さを評価する際は、評価期間を時間ステップ t_i ($t_1=0; i=1, 2, \dots, N$) に分割し、それぞれの時間ステップでの硫化物フラックスならびに腐食量を逐次的に評価した。以下に示される i は、この時間ステップを示す。また、以下において、 J_i は銅表面 $r_{a,i}$ での硫化物フラックス（単位時間あたり、単位面積あたりの硫化物の供給量）、 C_1 は緩衝材の外側境界 r_1 の濃度、 $C_{a,i}$ は銅表面 $r_{a,i}$ の濃度、 $r_{b,i}$ は腐食生成物皮膜（ Cu_2S ）の外側境界位置、 $D_{BT,i}$ は緩衝材の実効拡散係数、 $D_{CS,i}$ は腐食生成物皮膜（ Cu_2S ）の実効拡散係数である。また、 r_0 、 r_1 、 $r_{a,i}$ 、 $r_{b,i}$ は円筒座標系での半径である。



付図 1-1 拡散層を緩衝材および腐食生成物皮膜（ Cu_2S ）とした硫化物輸送の概念図（円筒壁モデル）

腐食生成物皮膜（ Cu_2S ）と緩衝材の界面 $r_{b,i}$ における、単位時間あたりの硫化物の供給量 $Q_{BT,i}$ は、腐食生成物皮膜（ Cu_2S ）と緩衝材の界面の硫化物濃度を $C_{b,i}$ 、円筒の高さを L として、次式（付式 1-1）で与えられる（Crank, 1975）。

$$Q_{BT,i} = \frac{2 \pi L D_{BT,i} (C_1 - C_{b,i})}{\ln(r_1/r_{b,i})} \dots\dots\dots \text{付式 1-1}$$

また、腐食生成物皮膜 (Cu₂S) と銅の界面 r_{a,i} における、単位時間あたりの硫化物の供給量 Q_{CS,i} は、腐食生成物皮膜 (Cu₂S) と銅の界面の硫化物濃度を C_{a,i}、円筒の高さを L として、次式 (付式 1-2) で与えられる (Crank, 1975)。

$$Q_{CS,i} = \frac{2 \pi L D_{CS,i} (C_{b,i} - C_{a,i})}{\ln(r_{b,i}/r_{a,i})} \dots\dots\dots \text{付式 1-2}$$

付式 1-1 および付式 1-2 を変形することで、それぞれ以下の付式 1-3 および付式 1-4 を得る。

$$C_1 - C_{b,i} = \frac{Q_{BT,i} \ln(r_1/r_{b,i})}{2\pi L D_{BT,i}} \dots\dots\dots \text{付式 1-3}$$

$$C_{b,i} - C_{a,i} = \frac{Q_{CS,i} \ln(r_{b,i}/r_{a,i})}{2\pi L D_{CS,i}} \dots\dots\dots \text{付式 1-4}$$

付式 1-3 と付式 1-4 の左辺および右辺それぞれを合算し、また Q_{BT,i} = Q_{CS,i} = Q_i とすることで付式 1-5 を得る。

$$Q_i = \frac{2 \pi L (C_1 - C_{a,i})}{\frac{\ln\left(\frac{r_1}{r_{b,i}}\right)}{D_{BT,i}} + \frac{\ln\left(\frac{r_{b,i}}{r_{a,i}}\right)}{D_{CS,i}}} \dots\dots\dots \text{付式 1-5}$$

したがって、銅表面 r_{a,i} での硫化物のフラックス (単位時間あたり、単位面積あたりの硫化物の供給量) J_i は、付式 1-5 を、銅表面の面積 2π r_{a,i} L で除することで付式 1-6 となる。

$$J_i = \frac{C_1 - C_{a,i}}{r_{a,i} \left\{ \frac{\ln\left(\frac{r_1}{r_{b,i}}\right)}{D_{BT,i}} + \frac{\ln\left(\frac{r_{b,i}}{r_{a,i}}\right)}{D_{CS,i}} \right\}} \dots\dots\dots \text{付式 1-6}$$

【参考文献】

Crank, J., (1975) : The Mathematics of Diffusion. Clarendon Press, Oxford, Brunel University, Uxbridge.

原子力機構 (日本原子力研究開発機構) (2022) : 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.