

## 諸外国における使用済燃料直接処分のソースターム評価 - (1) 使用済燃料および構造材からの瞬時放出率の評価

長田正信<sup>\*1</sup> 近沢孝弘<sup>\*1</sup> 赤堀邦晃<sup>\*2</sup> 北村暁<sup>\*1</sup> 館幸男<sup>\*1</sup>

わが国では、使用済燃料の全量を再処理し、そこで発生する高レベル放射性廃液のガラス固化体を深地層中へ埋設することとしている。一方で、将来のエネルギー情勢の変化に柔軟に対応するため、代替処分オプションのひとつとして使用済燃料を直接地層中に埋設処分する手法（以下、直接処分）についても技術的成立性を検討している。直接処分の安全性を評価するためには、処分後のある時期に閉じ込め機能が喪失した際に、使用済燃料から地下環境中へ放出される核種の種類や放出量等（総称してソースタームという）を設定する必要がある。とくに、閉じ込め機能喪失後に速やかに放出される成分の割合（以下、瞬時放出率（IRF））は、直接処分の安全評価に大きな影響を与える可能性がある。しかしながら、IRFを設定するための詳細な検討は国内では未実施である。このことを受け、わが国における直接処分の安全評価に資することを目的として、直接処分を計画している諸外国の安全評価報告書におけるIRFの評価事例を調査した。諸外国における安全評価の内容を比較した結果、引用する試験データは各国でほぼ同様であったが、最終的なソースターム設定は、各国の事情（炉型や想定燃焼度等）を加味した結果として各国間で違いがみられた。また、設定値が含む不確実性の表現も各々異なり、推奨値に加え悲観的値を設けるケースや、中央値と標準偏差を与えるケース等の違いがみられた。本調査内容は、わが国における代替処分オプションのひとつとしての直接処分の安全評価のための基盤情報として有効である。

**Keywords:** 使用済燃料直接処分, 安全評価, ソースターム評価, 瞬時放出率 (IRF), 核分裂生成ガス放出率 (FGR)

Although spent nuclear fuel is planned to be disposed after reprocessing and vitrification of high-level radioactive waste (HLW), feasibility study on direct disposal of spent nuclear fuel (SF) has been started as one of the alternative disposal options to flexibly apply change of future energy situation in Japan. Radionuclide inventories and their release behavior after breaching spent fuel container should be assessed to confirm safety of the SF disposal. Especially, instant release fractions (IRFs), which are fractions of radionuclide released relatively faster than those released with congluent dissolution with SF and construction materials after breaching spent fuel container, may have an impact on safety assessment of the direct disposal of SF. However, detailed studies on evaluation / estimation of IRF have not been performed in Japan. Therefore, we investigated some foreign safety assessment reports on direct disposal of SF by focusing on IRF for the safety assessment of Japanese SF disposal system. As a result of comparison between the safety assessment reports in foreign countries, although some fundamental data have been referred to the reports in common, the final source term dataset was seen differences between countries in the result of taking into account the national circumstances (reactor types and burnups, etc.). We also found the difference of assignment of uncertainties among the investigated reports; a report selected pessimistic values and another report selected mean values and their deviations. It is expected that these findings are useful as fundamental information for the safety assessment of Japanese SF disposal system.

**Keywords:** direct disposal of spent nuclear fuel, safety assessment, source term, instant release fraction (IRF), fission gas release (FGR)

### 1 緒言

#### 1.1 序論

わが国では、使用済燃料の再処理工程で発生する高レベル放射性廃液のガラス固化体や一部のTRU廃棄物を、地下300m以深の深地層中へ埋設することで最終処分を行うことが法律で定められている[1]。一方で現行のエネルギー基本計画[2]および最終処分基本方針[3]では、将来のエネルギー政策や情勢の変化などに応じた幅広い選択肢を確保するために、種々の代替処分オプションについて調査・研究する方針が示されており、そのひとつとして、使用済燃料を再処理することなく直接深地層中に処分（以後、直接処分という）する方法が挙げられている。

代替処分オプションのひとつとして、直接処分システムの技術的成立性を検討するためには、システムの安全評価が必要不可欠である。安全評価においては、処分後のある時期に地中に設置された処分容器が腐食等により破損（閉

じ込め機能が喪失）し、その内容物である使用済燃料と地層中の地下水が直接接触した場合に地下水へ溶出する（地下環境中へ放出される）核種の種類、放出量、放出時期、放出速度、化学形態等（以後、これらを総称してソースタームという）を明確にし、さらには、それらが人間の生活圏まで移行するシナリオを検討する必要がある。しかしながら、使用済燃料のソースタームに関する国内での検討例としては、平成16年に核燃料サイクルのコスト比較のために、一部核種についてスイス放射性廃棄物管理共同組合（NAGRA）の設定値[4]を暫定的に用いたのみである[5]。

そこで、本報では、わが国における最終処分の代替処分オプションの検討としての直接処分の安全評価に資することを目的とし、同分野における諸外国の技術情報や安全評価事例を調査対象とし、使用済燃料のソースタームについて調査および整理した結果を報告する。ここで、使用済燃料のソースタームは、処分容器破損後に速やかに地下環境へ放出される「瞬時放出」（使用済燃料や構造材に取り込まれていない易溶性または揮発性核種の放出）と、長期間をかけて放出される「長期溶解」（使用済燃料や構造材との調和的な溶解に伴う放出）の2つの挙動に大別されることが一般的とされ（詳細は後述）、本報では、上記のうち「瞬時放出」に着目した。

Evaluation of source term parameters for spent fuel disposal in foreign countries –  
(1) Instant release fraction from spent fuel matrices and composition materials for  
fuel assemblies by Masanobu NAGATA (nagata.masanobu@jaea.go.jp), Takahiro  
CHIKAZAWA, Kuniaki AKAHORI, Akira KITAMURA and Yukio TACHI

\*1 独立行政法人日本原子力研究開発機構

Japan Atomic Energy Agency

〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松 4-33

\*2 三菱マテリアル株式会社 Mitsubishi Materials Co.

〒330-8508 埼玉県さいたま市北袋町 1-297

(Received 19 December 2015; accepted 25 April 2016)

## 1.2 代表的な処分概念

諸外国で検討されている直接処分の概念は、細かな点が国によって多少異なるものの、基本的な部分は各国とも類似している。なかでも代表的な処分概念として、KBS-3と呼ばれる処分概念が挙げられる。これは、1983年にスウェーデン核燃料・廃棄物管理会社（SKB 社）が提案した概念であり[6]、スウェーデンおよびフィンランドの直接処分プロジェクトで採用されている。

KBS-3 処分概念図[7]を Fig. 1 に、使用済燃料を封入するためのキャニスター概要[7]を Fig. 2 に示す。使用済燃料集合体は、キャニスターと呼ばれる専用の処分容器の中に封入される。キャニスターは、地層中に垂直あるいは水平に掘られた処分ピット中において、周囲に緩衝材（ベントナイト）を充填するかたちで定置される。さらに、これらの作業を行うための坑道は、キャニスター定置後に適切に埋め戻される。このことで、人工バリア（キャニスター、緩衝材）と天然バリア（岩盤）を組み合わせた多重バリアシステムを構築する。処分容器の閉じ込め機能は少なくとも 1,000 年以上維持できるとされ、その機能喪失後も、周囲の緩衝材や

岩盤によって、放射性核種をさらに長期にわたって人間の生活圏から隔離することを可能にしている。

スウェーデンおよびフィンランド以外の国々においても、使用済燃料を処分容器に封入した後に地層中に定置する点で相違はない。ただし、処分容器の材質や形状、また、処分容器より外郭側のバリア構築の手法は国によって若干の違いがみられる。さらに、将来の情勢変化に応じ、一度処分が完了した処分容器を回収し、処分方法を変更することが可能な、可逆性を持たせた概念構築を計画している国もある。

## 1.3 使用済燃料中の核種分布

諸外国で直接処分の対象とする燃料集合体は、ほとんどの種類が  $\text{UO}_2$  ペレットとジルカロイ被覆管等の金属材料によって構成される。その内部では、照射によって超ウラン元素、核分裂生成物、放射化生成物などの多様な放射性核種が生じることが知られており、この点で各国は、ほぼ共通の認識のもとでソースタームの検討を進めている。

照射前後の  $\text{UO}_2$  燃料ペレットの典型的な微視的構造写真を Fig. 3 に[8]、照射後の  $\text{UO}_2$  燃料ペレットの断面組織を Fig. 4 に示す[8]。Fig. 3 に示すように、燃料ペレット内の  $\text{UO}_2$  結晶は、照射の進行にともなって結晶粒径が成長し、それらの粒界（grain boundary）では気泡や、気泡が連結したトンネルが形成される。これは、燃料マトリクス内で生成した核分裂ガス（Kr, Xe 等）および揮発性核種（I, Cs 等）の一部が、炉内で高温保持される間に粒界に拡散移動するためと考えられている[8]。また、結晶粒界には、気泡やトンネルに加え、Fig. 4 に示すような金属相も生成する。この相は Mo, Ru, Pd 等を含んでおり、合金として結晶粒界に偏

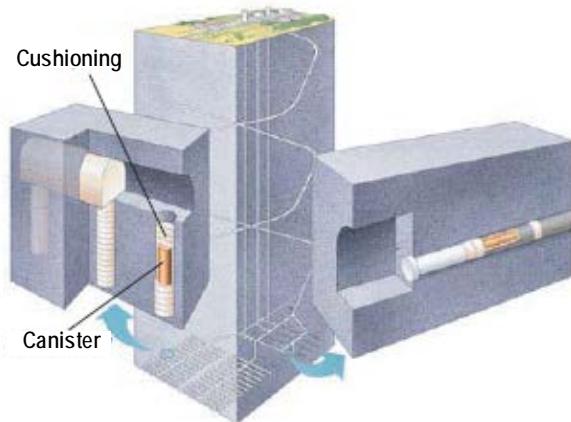


Fig. 1 The Swedish KBS-3 repository concept [7]

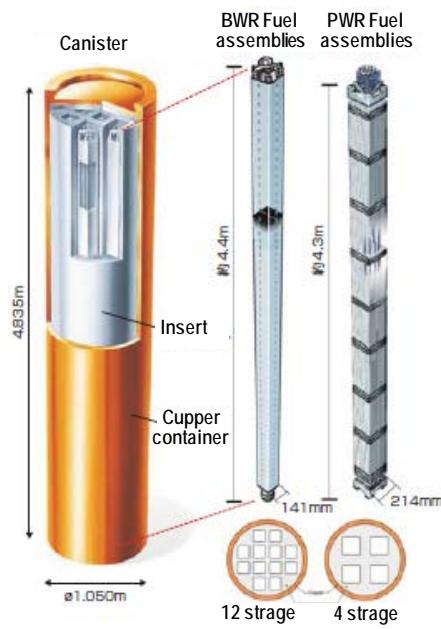
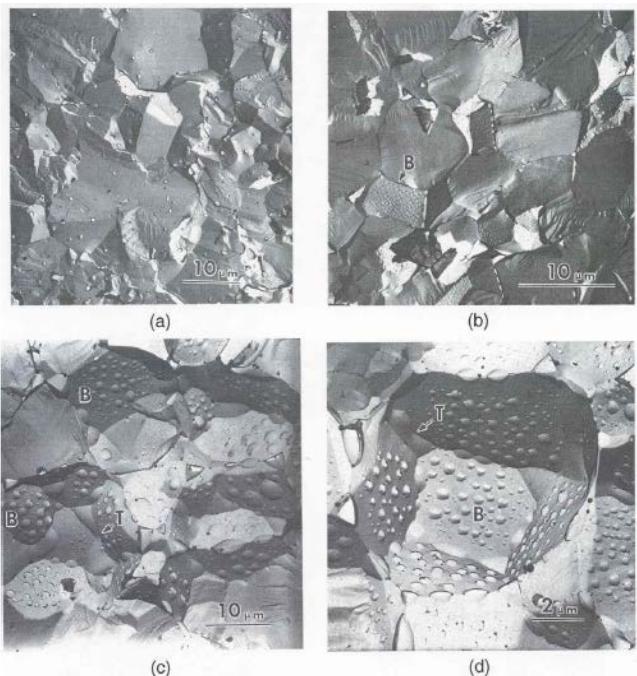
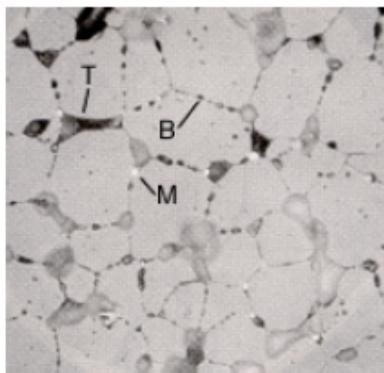


Fig. 2 The reference design of the canister in the KBS-3



(a)Typical microstructure of unirradiated  $\text{UO}_2$ , (b)Irradiated at low power ( $<45\text{kW}/\text{m}$ ), (c)Irradiated at high power ( $>50\text{kW}/\text{m}$ ),  
(d)Magnified view of “(c)” (T: tunnels, B: gas bubbles)

Fig. 3 Typical microstructure of unirradiated and irradiated  $\text{UO}_2$  fuel [8]



(T: tunnels, B: gas bubbles, M: metal alloy)

**Fig. 4 Segregation of metallic fission products from  $\text{UO}_2$  fuel [8]**

在化したものと考えられている[8]。

$\text{UO}_2$ ペレットの外周部と被覆管断面の観察例を Fig. 5 に示す。燃料が高燃焼度化すると、 $\text{UO}_2$ ペレットの外周付近では Pu-239 が高濃度化し、これらがさらに核分裂することで局所的なさらなる高燃焼度化されたリム領域と呼ばれる領域が生成する (Fig. 5(a))。この領域では、 $\text{UO}_2$ の結晶粒が微細化するとともに多くの微細な気孔が生成し、また、放射性核種の濃度も高くなる[9]。

ジルカロイ被覆管等の燃料集合体を構成する金属部材中には、不純物も含めた合金材質に中性子が照射されることで、C-14 等の放射化生成物が生じる。また、ジルカロイ被覆管の表面は高温の 1 次冷却水に晒されるため、その表面には酸化被膜が形成され (Fig. 5(b))、この酸化被膜中にも放射化生成物が含まれることになる[9]。

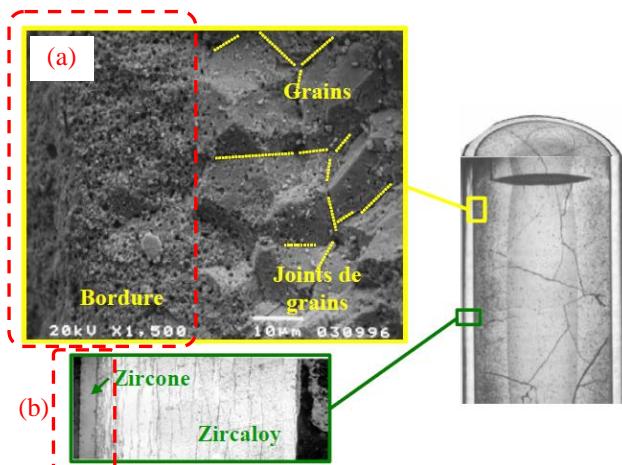
これらの現象を経た使用済燃料中における放射性核種の分布概念を Fig. 6 に示す。照射後の  $\text{UO}_2$ ペレットは、膨張や焼き締まりを起こし、これにともなってペレット内部にひび割れ (crack) が発生する。そのため、粒界に偏在する希ガスおよび揮発性成分の一部は、このひび割れを介して  $\text{UO}_2$ ペレットと被覆管との間の隙間へさらに移行する[4]

(以後、ひび割れと隙間を総じてギャップという)。このように、燃料集合体の内部では、多様な放射性核種が不均質に存在する状態となる。序論で触れた「瞬時放出」や「長期溶解」といった放出挙動は、このような放射性核種の存在状態に起因する。

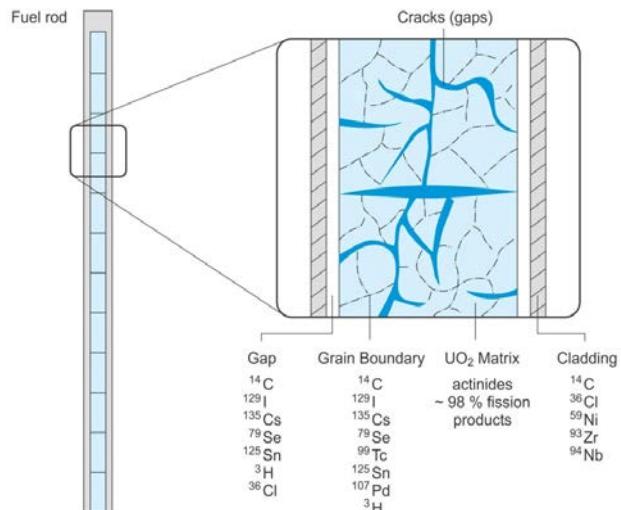
#### 1.4 核種溶出挙動の分類

核種放出挙動を「瞬時放出」および「長期溶解」に大別する点は、各国で概ね共通的に認識されている。

「瞬時放出」とは、ギャップ、結晶粒界 (Fig. 6) およびリム領域 (Fig. 5(a)) に偏って存在する放射性核種や、ジルカロイ被覆管の材料中に生成する放射化生成物のうち、酸化被膜中 (Fig. 5(b)) に不安定な状態で存在する成分が速やかに溶出する挙動であり、「長期溶解」とは、 $\text{UO}_2$ やジルカロイ等のマトリクス中にも存在する放射性核種あるいは放射化生成物が、地下環境中で非常に緩慢に進行するマトリクスの溶解 (腐食) と調和する形で徐々に放出される挙動である。



**Fig. 5 Structure of a  $\text{UO}_x$  type spent fuel pencil: (a)scanning electron microscope image of an area close to the sheath, (b) sectional view of the sheath through an optical microscope [9]**



**Fig. 6 Schematic illustration of the distribution of radionuclides within a fuel rod [4]**

直接処分シナリオのタイムスケールは、先に述べたキャニスターの破損までに 1,000~10,000 年以上（処分概念による）であり、その後、燃料マトリクスの全量溶解に要する期間や放出核種が生物圏に影響を及ぼす期間が数十~数百萬年とされる。安全評価上の瞬時放出とは、上記のような時間スケールに対して、比較的短期的（数時間~数百年）に生じるとされている（例えは[10]）。

また、ある核種の瞬時放出量は、Fig. 6 に示すような部位毎の核種の存在割合に大きく影響されるため、その評価のための指標として瞬時放出率 (IRF) が各国共通で用いられている。これは、ある核種の燃料集合体中の総インベントリに対する、瞬時放出されるインベントリの割合である。

## 2 調査方法

瞬時放出に関する知見について、主に諸外国で実施されている直接処分システムの設計や安全評価に関する報告書

を調査した。それらの結果をもとに、わが国において代替処分オプションのひとつとして直接処分を検討する場合に、どのような知見を参考にすべきかについて考察した。

調査対象とした国と、それぞれの直接処分関連のプロジェクト名称を Table 1 に示す。これらの国々は世界の中でも直接処分に関する先進国とされている。また、EC (欧州連合) においても関連研究が国際プロジェクトとして進行しており、それらも調査対象とした。Table 1 中の各プロジェクトの詳細は、次章の調査結果で説明する。これらのレポートは、種々の参考文献（試験データ等）を引用しているため、それら内容についても出来るだけ遡って調査した。

本調査にあたっては、以下の項目に着目し、国ごとの特徴を整理・比較した。

- ・ 各国における処分概念
- ・ 対象とする使用済燃料の特性

**Table 1 Projects of interest for spent fuel disposal**

country	implementer	name of project (publication year)
Sweden	SKB	SR-Site (2011)
Finland	POSIVA	TURVA-2012 Safety Case (2012)
Canada	NWMO/ AECL	Adaptive Phased Management - Fourth Case Study (2012) -
Switzerland	Nagra	Project Opalinus Clay (EN2002) (2002)
France	ANDRA	Dossier 2005 Argile (2005)
USA	DOE/ OCRWM	Yucca Mountain Project (2008)
EC	EURATOM	<ul style="list-style-type: none"> <li>· SFS (Fuel Stability under Repository conditions.2001-2004)</li> <li>· MICADO (Model Uncertainty for the Mechanism of Dissolution of Spent Fuel in Nuclear Waste Repository.2006-2010)</li> <li>· FIRST-Nuclides (Fast/Instant Release of Safety Relevant Radionuclides from Spent Nuclear Fuel.2012-2014)</li> </ul>

(炉型、燃焼度、冷却期間、集合体部材 等)

- ・ 瞬時放出の評価モデル  
(核種インベントリ、対象核種 等)
- ・ 瞬時放出パラメータ設定の考え方と設定値
- ・ パラメータ設定の不確実性

### 3 調査結果

調査対象のうち、スウェーデン、フィンランドおよびカナダの 3 カ国は、使用済燃料をすべて直接処分することを基本方針とし、最終処分場の建設や操業を見据えた処分システムの安全評価を進めている。スイスおよびアメリカの 2 カ国は、従前は使用済燃料を再処理していたが、近年は直接処分に転換しており、高レベル廃液のガラス固化体等と使用済燃料をともに処分することにしている。フランスは現在、すべての使用済燃料を再処理しているが、将来の代替処分方策として直接処分の予察的な安全評価を行っている。

瞬時放出核種として各国で共通的に取り扱われている核種は、C-14, Cl-36, Se-79, Sr-90, Tc-99, Pd-107, Sn-126, I-129, Cs-135, Cs-137 であった。それらの IRF を整理した結果を Table 2 に示す（国際プロジェクトは安全評価用のパラメータを設定していないため未記載）。IRF 設定における各国の特徴については、表中に記載する燃料の種別や燃焼度等とともに、次節で述べる。

#### 3.1 スウェーデン

使用済燃料の全量を直接処分する方針であり、処分実施主体は、スウェーデン核燃料・廃棄物管理会社（SKB 社）である。最新の安全評価は、フォルスマルク処分場建設予定地を対象とした安全評価報告書（SR-Site）[11]である。処分概念は前述した KBS-3 概念である。使用済燃料は鉄鉄製内容器に収納し、それを銅製のキャニスターに封入する。銅キャニスターの定置方式は、縦置き方式（レファレンス）

**Table 2 Selected IRF values for typical radionuclides in foreign safety assessment reports**

Country & Project	Sweden SR-Site (2011)			Finland TURVA-2012 (2012)	Canada 4th case study (2012)	Switzerland EN2002 (2002)			America Yucca Mountain Project (2008)		France Dossier2005 (2005)	
Container life [year]	1,000 (pin hole) 114,000 (corrosion damage)			1,000	100 (Pessimistically)	1,000 (Pessimistically) 10,000 (Design value)			10,000	10,000 (Pessimistically)		
Types of fuel	BWR-UO <sub>2</sub> <sup>2</sup>	PWR-UO <sub>2</sub> <sup>2</sup>	Average of all	BWR-UO <sub>2</sub> PWR-UO <sub>2</sub>	CANDU-UO <sub>2</sub> (Natural U)	BWR-UO <sub>2</sub>	PWR-UO <sub>2</sub>	BWR-MOX PWR-MOX	BWR-UO <sub>2</sub> PWR-UO <sub>2</sub>	(CU1) BWR-UO <sub>2</sub> PWR-UO <sub>2</sub>	(CU2) BWR-MOX PWR-MOX	
Target burnup	40.4MWd/kgU (Max60)	44.8MWd/kgU (Max60)	—	BWR: 38-39MWd/kgU PWR: 39-47MWd/kgU	220MWh/kgU	48GWd/tHM (Set 65GWd case for MOX)			B:40GWd/MTU (Max75) P:48GWd/MTU (Max80)	33-55GWd/t	48GWd/t	
FGR (%)	1.9 (calculated)	4.3 (calculated)	—	Max11 (From PIE)	no settings (calculated value is present)	5 (From PIE)	1 (From PIE)	8 (From PIE)	no settings	no settings	no settings	
IRF [%] <sup>1</sup>	14C	8.6	11	9.2	5.5	2.7	10	10	—	15	15	
	36Cl	5.7	13	7.6	8.2	6.0	13	10	15	—	7.1	
	79Se	0.29	0.65	0.38	0.4	0.6	9	4	15	—	7.1	
	90Sr	0.25	0.25	0.25	1.0	—	1	1	1	0.09	—	
	99Tc	0.2	0.2	0.2	1.0	—	2	2	2	0.1	6.8	
	107Pd	0.2	0.2	0.2	1.0	—	2	2	2	—	6.8	
	126Sn	0.03	0.03	0.03	0.01	0	9	4	15	—	7.1	
	129I	1.9	4.3	2.5	5.0	4.0	9	4	15	11.24	6.8	
	135Cs	1.9	4.3	2.5	5.0	4.0	5	4	10	—	7.1	
	137Cs	1.9	4.3	2.5	5.0	4.0	5	4	10	3.63	7.1	
Representation of the uncertainty	- Nuclide to correlate with FGR: Mean/Standard deviation (normal) - Other nuclide: Best estimate & Upper/Lower value			- All of the above : Upper/lower value (Log-uniform)			- All of the above (except Sn) : Mean/Standard deviation (normal) - Sn : Upper/lower value (uniform)			- All of the above : Best estimate & Upper value (Log-uniform)		
- Set value for sensitivity analysis. (About 2 times the reference value)												

\* 1 : Including the release from fuel and structural materials

\* 2 : It encompasses the MOX

と横置き方式（代替概念）がある。キャニスタの想定寿命は損傷内容によって異なり、代表的なケースでは、処分後1,000年でピンホール破損が起きるとされ、その他ケースによって100~ $1.14 \times 10^5$ 年が設定されている。2011年に、政府に対して最終処分場（フォルスマルク）の建設許可申請を行っており、現在審査中である。

### 3.1.1 燃料の種類

13基の商用原子炉および研究炉を保有する。炉型はBWRとPWRであり、各炉型についてUO<sub>2</sub>およびMOX燃料を用いている。そのため、燃料集合体の種類はPWR(UO<sub>2</sub>)、PWR(MOX)、BWR(UO<sub>2</sub>)、BWR(MOX)の4つに大別される。なお、MOXの使用済燃料体数は全体の1%以下である。PWR燃料はAg-In-Cd合金を含む制御棒を含んでおり、照射後はAgとCdの放射性同位体が生成するため、ソースターム評価においてこの点も着目されている。

### 3.1.2 核種インベントリ評価

核種インベントリの計算は、計算コードORIGEN-Sを用い、燃料集合体の設計と燃焼度毎に実施している[12]。SR-Siteでは、将来発生分を含めた使用済燃料を、炉型、燃料要素の種類、燃焼度および冷却期間の違いによって、BWR I, BWR II, BWR III, BWR-MOX, PWR I, PWR II, PWR III, PWR-MOXの8つのグループに分けている（BWR-MOXおよびPWR-MOXは、大部分がUO<sub>2</sub>燃料だが少量のMOX燃料を含む）。したがって、これらを封入するキャニスタも、内容物が異なる8種のタイプが発生する（外観は変わらない）。核種インベントリは、このタイプ毎に整理されている。さらに、キャニスタ発生数で重み付けした加重平均をとることで、BWRキャニスタ（4種）、PWRキャニスタ（4種）および全8種のキャニスタに対しての代表値を算出している。また、燃料の構成要素を、燃料要素、燃料集合体の構成材、被覆管表面のCrud、PWRに特有のAg-In-Cd制御棒の4つの領域に分けて、それぞれのインベントリを計算している。Crudの定義は記載されておらず、一次冷却水より移行・析出するクラッド（付着物）なのか、Fig. 5(b)に示すような酸化被膜も含むのかは明確ではない[12]。

### 3.1.3 IRFの設定とその考え方

瞬時放出として取扱う核種は、ギャップおよび結晶粒界に偏在する核種、ジルカロイ被覆管中のC-14、Crudに含まれる核種、PWR制御棒（Ag-In-Cd合金）に含まれる核種の一部とし、IRF設定の考え方方が異なる4群計20核種（17元素）として以下のように選定されている[13]。各々の考え方の詳細は後述する。

- Cl-36, Se-79, I-129, Cs-135, Cs-137
- Sr-90, Tc-99, Pd-107, Sn-126
- Ni-59, Ni-63, Zr-93, Mo-93, Nb-93m, Nb-94
- H-3, C-14, Ag-108m, Cd-113m, Sn-121m

また、核種毎のIRFは、次に示す式(1)を基本として計算される[13]。

$$IRF = \frac{(F_{GGB} \cdot I_{UO_2}) + I_{Crud}}{I_{TOT}} \quad (1)$$

ここで、

$IRF$ ：核種の瞬時放出率(-)

$F_{GGB}$ ：ギャップとGrain boundaryに存在する核種インベントリの割合(-)

$I_{UO_2}$ ：キャニスタ内の燃料中に含まれる核種インベントリ(mol/canister)

$I_{Crud}$ ：Crudの核種インベントリ (mol/canister)

$I_{TOT}$ ：キャニスタに含まれる核種インベントリ (mol/canister)

である。

ただし、PWR制御棒中のAg-108mおよびCd-113m、ジルカロイ被覆管中のC-14については、式(1)の右辺に別途インベントリ項を加える特別なケースとして計算される。

IRF設定の考え方方が異なる4群について、それぞれの考え方を以下に述べる。

#### (1) I-129, Cs-135, Cs-137, Cl-36, Se-79

これらは原子炉内の温度状況下で揮発性が高い核種であることから、ギャップや結晶粒界に偏在化する。SR-Siteでは、そのインベントリ割合( $F_{GGB}$ )を瞬時放出分としている。加えて、照射中のこれら核種の移行挙動は、核分裂生成ガス(Kr, Xe等)が気相放出するインベントリ割合である核分裂性ガス放出率(Fission Gas Release fraction of inventory; FGR)と相関すると考え、IRFとFGRを関連づけて設定している。FGRは、一般的に燃焼度が高くなるとともに増大するものであり、照射中の燃料棒の内圧に直結することから、炉心設計の段階でも頻繁にシミュレーション計算が行われている重要な設計因子でもある。

Johnson and Tait [14], Johnson and McGiness [15]やJohnson et al. [16]は、過去に行われたギャップおよび結晶粒界中インベントリの測定試験の結果を、Table 3に示すとおり、FGRと対応させる形で整理している[16]。これらは主に1980~2000年に、実際の使用済燃料試料を用いて行われた浸出試験の結果[17-26]である。Table 3に示すIおよびCsについて、ギャップおよび結晶粒界のインベントリデータが揃っているものを $F_{GGB}$ とFGRの関係として整理し、Fig. 7に示す。これらより、CsおよびIの $F_{GGB}$ は、FGRと正の相関を持つことが伺え、この場合の $F_{GGB}$ :FGRはCsおよびIについてそれぞれ、約1:3および1:1になっている。SR-Siteではこの知見を支持し、これら核種のIRF( $F_{GGB}$ )を、FGRにある係数を乗じることで設定している。

そのため、先ず、自国の処分対象燃料の特性に応じたFGRを、Westinghouse製の計算コードSTAV7.3によって求め、次に、FGRに乗ずる係数を検討し、最終的にIRFを設定している。本計算コードの使用にあたっては、その計算値と実測値を比較し、FGR計算値が実測値に対して概ね±2%の範囲に収まることを確認している[27]。

安全評価上のFGR計算は、今後の使用済燃料発生分も含め、それらの特性や照射履歴を模擬するものとして、BWRについて6ケース、PWRについて4ケースの合計10ケースを設定し、各々について実施した。FGR計算結果の一例をFig. 8に示す[27]。これは、オスカーシャム3号機(BWR)の燃料を対象とした計算結果である。グラフ中の点は燃料棒単位でのFGRと燃焼度の関係を示し、各燃焼サイクルにおける点綴範囲の広がりは、燃料集合体中の燃料棒の装荷

Table 3 Gap and grain boundary (GB) leaching data for PWR UO<sub>2</sub> fuels [16]

Fuel I.D.	Burnup (GWd/tHM)	FGR (%)	Cs Gap (%)	Cs GB (%)	Sr Gap (%)	Sr GB (%)	Tc Gap (%)	Tc GB (%)	I Gap (%)	I GB (%)	C Gap (%)
PWR (Ringhals)	43	1.05	~1								
ATM-103 (PWR)	30	0.25	0.2	0.48	0.01	0.11					
ATM-104 (PWR)	44	1.1	1.2	0.1							
ATM-106 (PWR)	43	7.4	2	0.5	0.11	0.03	0.13		0.1	8.5	
ATM-106 (PWR)	46	11.0	2.5	1.0	0.02	0.13	0.01	0.01	1.2	8	
ATM-106 (PWR)	50	18.0	6.5	1.0	0.1	0.07	0.05	0.12	15	7.6	
CEA (PWR)	22	0.1	0.3								
CEA (PWR)	37	0.2	0.6								
CEA (PWR)	47	0.5	2.3								
CEA (PWR)	60	2.8	1.0								
PWR-HBR	31	0.2	0.8		0.024		0.03		0.008	0.001	
PWR-TP	27	0.3	0.32		0.012		0.04		0.002		
PWR-HBR	31	0.2							0.284	0.33	
PWR-TP	27	0.3	0.4				<0.01		0.076	3.0	
ATM-101 (PWR)	28	0.2	2						4	2.7	
MOX	12-25	Not reported	10-12						1 to 2		
CEA-MOX	47	7	3.2								

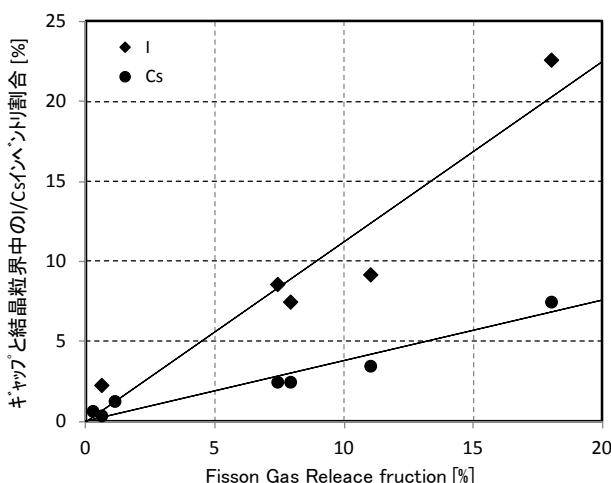


Fig. 7 Gap and grain boundary release of I-129 and Cs-137 as a function of FGR (data from [16])

位置によって、燃焼度と FGR の関係が変化する範囲を表す。この計算ケースでは、将来の高燃焼度化を考慮し、燃焼サイクル 5 回を経て平均燃焼度 54.5MWd/kgU となるものから、7 回を経て 58.6MWd/kgU となるものまでを想定して FGR を計算し、PWR に対する同様の計算では、燃焼度 70

MWd/kgU までを含めて計算している[28]。さらに、各ケースの FGR 計算結果と想定発生体数から、燃料集合体の単位で FGR の分布として整理し (Fig. 9 [12]), そこから BWR における FGR の代表値として、中央値および標準偏差を求めている。また、PWR の場合も同様の手法を用いている。炉型毎に設定された FGR の値は下記のとおりである[12]。

BWR 燃料の FGR 平均値  $(1.9 \pm 1.13)\%$

PWR 燃料の FGR 平均値  $(4.3 \pm 3.11)\%$

これら FGR の設定値および FGR との相関性に基づいて設定された IRF 値の一覧を Table 4 に示す。I および Cs について、Fig. 7 で示したデータ以外に、カナダが保有する CANDU 炉（重水炉）燃料による試験データ[10]（後述）において、ギャップおよび結晶粒界中のインベントリ割合が FGR と同等となったことから、保守的に  $F_{GGB} = FGR \times 1$  としている。Se については、類似挙動を示すと思われる Te についてギャップおよび結晶粒界中のインベントリ割合の実測値が FGR の 10~13% であったことから[29],  $F_{GGB} = FGR \times 0.15$ , Cl については、軽水炉燃料を用いた浸漬試験データが存在せず、これも CANDU 炉燃料を用いた試験結果[30]を参考とし、 $F_{GGB} = FGR \times 3$  としている。

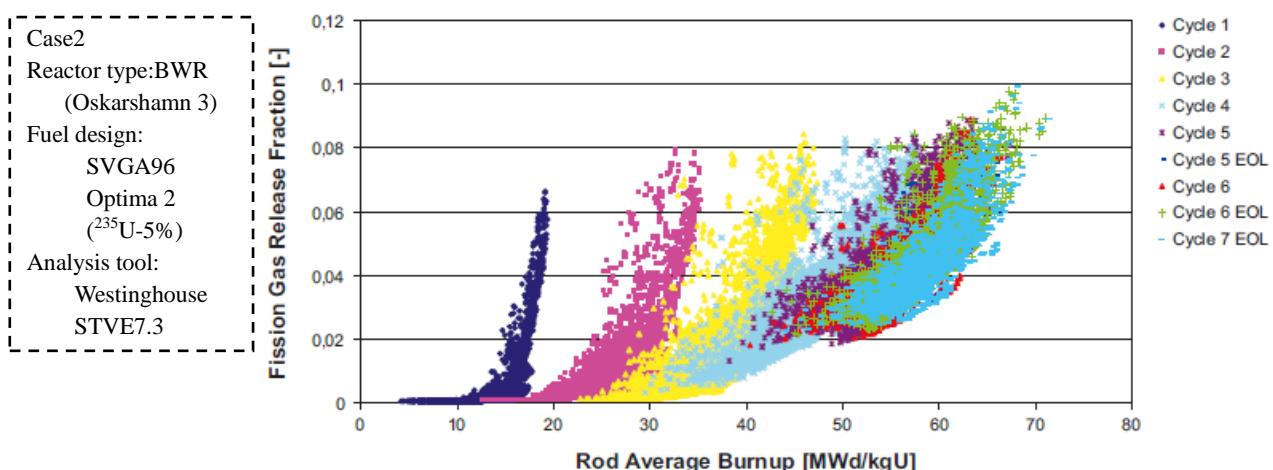


Fig. 8 Example of the fission gas release fraction at the end of each cycle for an equilibrium core [27]

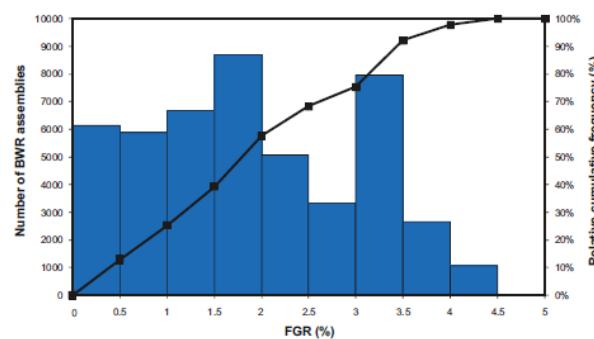


Fig. 9 Example of the number of assemblies in different FGR intervals and relative cumulative frequency of FGR in the assemblies (BWR type) [12]

#### (2) Sr-90, Tc-99, Pd-107, Sn-126

FGR との相関がない核種の IRF 値を全キャニスタ平均だけを抜粋し Table 5 に示す。これらの IRF は、FGR と関連付けることはせず、Table 3 に示すギャップおよび結晶粒界のインベントリ割合の実測値だけを指標として設定されている。Sr および Tc については、Table 3 のギャップおよび結晶粒界のインベントリをもとに 0.25%，悲観的値を 1% としている。また、Tc および Pd は結晶粒界に偏在する傾向があるため、両者を同様に扱っている。Sn-126 については、浸出液への溶出量が少なく検出限界未満の結果が得られている[22]ことから、 $F_{GGB}$  の最大値を、検出限界値の 10 倍としている。

#### (3) Ni-59, Ni-63, Zr-93, Mo-93, Nb-93m, Nb-94

これらの核種は、保守的判断として Crud に含まれるインベントリの全量が瞬時放出すると仮定し、核種インベントリの計算結果[12]のうち、Crud 中のインベントリとして計算された値を基に、IRF の推奨値と上下限値を設定している (Table 5)。

#### (4) Ag-108m, C-14, Cd-113m, Sn-121m, H-3

これらの核種は IRF の設定の際に特別な取り扱いが必要な核種である。Ag-108 については、PWR では全インベントリの大部分が Ag-In-Cd 制御棒に含まれ、この全量が瞬時放出するとし、BWR では微量ながら存在する全インベントリのうちの 44~48% が Crud に、1% 程度がギャップと結晶粒界に存在し、これらが瞬時放出するとしている。しかしながら、各炉型を含む Ag-108 の全インベントリの大部分は Ag-In-Cd 制御棒に由来するものであることから、全 8 種のキャニスタに対しての代表値は 100% としている。C-14

は、燃料マトリクスからの放出の他、ジルカロイ被覆管から放出も考慮している。Yamaguchi et al.[31]が実施した、PWR 使用済燃料 (燃焼度 47.9GWD/t) から採取した被覆管を用いた試験の結果 (Table 6)，被覆管の酸化被膜中のインベントリ割合は、被覆管全体の核種インベントリの約 17% であった。これをもとに Crud のインベントリ割合を 20% と仮定し、瞬時放出とした。また、Table 3 で示される C のインベントリ割合の最大値が 7% であることから、UO<sub>2</sub> ベレットからの瞬時放出を 10% とした。これらは、式(1)右辺の分母に加算され IRF として計算されている。H-3 は、全インベントリのほとんど (> 99.6 %) が燃料マトリクス中に生成し、その移行性が高いことから、燃料マトリクスから放出される全インベントリを瞬時放出と仮定している[13]。Sn-121m は、燃料マトリクスからの瞬時放出分と Crud に含まれるインベントリを瞬時放出として取り扱い、燃料マトリクスからの瞬時放出分を Sn-126 の場合と同じと考え、最良値 0.03%，悲観的値 0.1% を与えている。

### 3.2 フィンランド

スウェーデンと同じく使用済燃料の全量を直接処分することが計画されており、処分実施主体は POSIVA 社である。最新の安全評価報告書は、オルキルオトサイトにおける性能評価書 (TURVA-2012) [32]である。処分概念は、スウェーデンで採用されている KBS-3 概念とほぼ同様である。キャニスタの寿命は 1,000 年と仮定されており、キャニスタ破損時には、キャニスタ内が瞬時に地下水で満たされるとしている。2012 年に、政府に対してオルキルオト処分場の建設許可申請を行っており、2015 年の 11 月に政府による建設許可が発給された。

#### 3.2.1 燃料の種類

建設中、計画中を含む 6 基の商用原子炉を保有する。炉型は BWR、欧州型 PWR (EPR) およびロシア型 PWR (VVER) であり、各炉型では UO<sub>2</sub> 燃料のみを用いている。

#### 3.2.2 核種インベントリ評価

TURVA-2012 のサブレポートによれば、ソースタームの対象核種として 41 核種を選定し、レファレンスインベントリを計算している[33]。

計算コードは燃料集合体の部位や核種によって異なる。燃料中の殆どの核種は ORIGEN-S を用い[34]、Zr, Nb, C 等の主にジルカロイ中に生成する核種は Serpent を用いて計算され[35]、Ag についてはスウェーデン (SR-Site) の計算結

Table 4 Selected IRF values for radionuclides correlated with FGR in SR-Site (data from [13])

radio-nuclides	BWR canisters		PWR canisters		whole canisters	
	average(%)	standard deviation(%)	average(%)	standard deviation(%)	average(%)	standard deviation(%)
(FGR)	1.9	1.1	4.3	3.1	-	-
Cl-36	5.7	3.3	13	9.3	7.6	6.4
Cs-135	1.9	1.1	4.3	3.1	2.5	2.1
Cs-137	1.9	1.1	4.3	3.1	2.5	2.1
I-129	1.9	1.1	4.3	3.1	2.5	2.1
Cd-113m	1.9	1.1	-	-	-	-
Se-79	0.29	0.27	0.65	0.47	0.38	0.32

**Table 5 Selected IRF values for radionuclides uncorrelated with FGR in SR-Site (data from [13])**

radionuclides	average values in whole canisters		
	best estimate (%)	upper value (%)	lower value (%)
Ag-108m	100	-	-
C-14	9.2	11	8.5
Cd-113m	100	-	-
H-3	100	-	-
Mo-93	1.2	1.8	0.51
Nb-93m	1.7	2.6	$6.5 \times 10^{-5}$
Nb-94	1.8	2.7	$6.4 \times 10^{-5}$
Ni-59	1.2	1.7	0.16
Ni-63	1.2	1.7	0.14
Pd-107	0.2	1	0
Sn-121m	0.019	0.087	$3.2 \times 10^{-5}$
Sn-126	0.03	0.1	0
Sr-90	0.25	1	0
Tc-99	0.2	1	0
Zr-93	$9.2 \times 10^{-4}$	0.0014	$6.3 \times 10^{-6}$

**Table 6 Inventory of C-14 in a zircaloy crad [31]**

	Hull specimen	Hull specimen without oxide film	oxide film
C-14 (Bq) <sup>*1</sup>	$1.2 \times 10^5$	$9.9 \times 10^4$	$2.0 \times 10^4$

\*1:Value per 35mm length of hull specimen

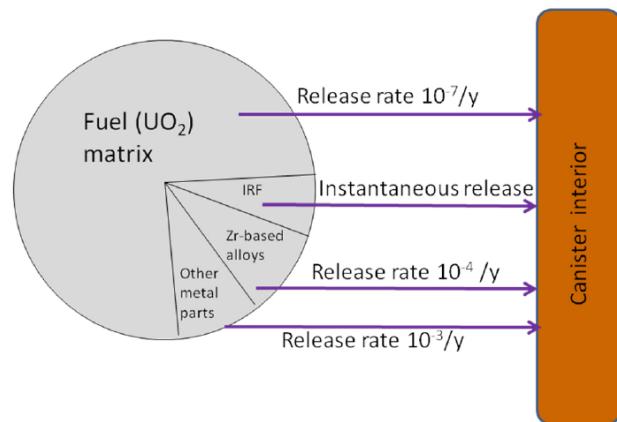
果[13]が踏襲されている。計算は、炉型毎に将来予定されている高燃焼度化を考慮したうえで、それらと燃料設計(<sup>235</sup>U濃縮度、集合体形状等)の組合せ毎に実施され、最終的にウラン 1tonあたりのレファレンスインベントリとして整理している。計算対象とした燃焼度の範囲は BWRについて 45~55MWd/kgU、PWR (EPR, VVER) について 45~57MWd/kgU である。

### 3.2.3 IRF の設定とその考え方

TURVA-2012における使用済燃料のソースタームと核種インベントリ構成の概念を Fig. 10 に示す[33]。本概念によれば、核種インベントリは4つの構成要素からなり、それらは、核種が分散する燃料マトリクス、ジルカロイ、その他金属部材の3要素と、それぞれの領域から瞬時放出されるインベントリを合わせて1つの要素とする合計4つである。

瞬時放出として取扱う核種は、概ねスウェーデンと同じであるが、Crudからの放出は考慮されず、Ag-108m, Be-10, C-14, Cl-36, Cs-135, Cs-137, I-129, Mo-93, Pd-107, Se-79, Sn-126, Sr-90, Tc-99 の13核種(12元素)としている[32]。

上記概念に沿った核種毎のインベントリ構成を Table 7(瞬時放出核種を抜粋。Sn-126は原典の表で記載漏れしておりTable7にも未記載であるが、原典の文中にIRFが0.01%と記載されている。)に示す[33]。TURVA-2012では、IRFに関する事前検討レポートを2008年にRNT-2008[35]として公開しており、大部分の核種のIRFについては、これを踏襲している[32]。ただしRNT-2008は、スウェーデンのSR-Siteの前身プロジェクトであるSR-97やSR-Canにおける



**Fig. 10 Conceptualisation of the source term as inventory components used in the assessment of radionuclide release scenarios [33]**

る検討内容[14, 36]を多分に引用しており、結果的にスウェーデンにおけるIRF設定の考え方を踏襲している。ただし、根拠となる試験データが、リム領域中の微細な気孔からの核種放出を捉えていない可能性があるとの考えから、独自に保守的な判断を加えている核種もある。

TURVA-2012において独自の検討を加えた核種について以下に述べる。

Agについては、PWR制御棒からの放出についてSR-Siteに倣い100%としているが、燃料マトリクスからのIRFについては、SR-97[14]における推奨値3%（悲観値6%）に保守的な判断を加え5%としている。

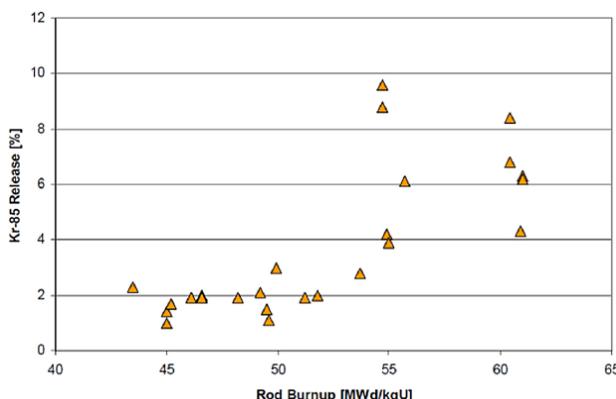
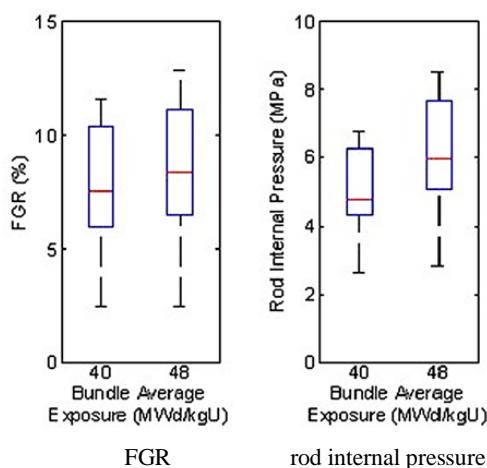
Beは、SR-Site[11]やRNT-2008[35]では瞬時放出の対象としていないが、TURVA-2012では瞬時放出核種としている。しかし、そのIRFの根拠として利用可能な試験データ（文献等）ではなく、燃料マトリクスからのIRFを保守的な仮定値5%とし、ジルカロイ被覆管やその他金属部材中にはBeが存在しないとして、全インベントリに対するIRFを5%としている。MoもTURVA-2012において瞬時放出核種とされるが、根拠データ不足から仮定値5%とし、さらにSR-Site[11]において報告されたCrud中のインベントリ全量を瞬時放出と位置付けている。ただし、自国の核種インベントリ評価においてCrud中のインベントリが特定されていないため、安全評価上は燃料マトリクスからの5%のみを考慮している。

FGRについては、自国の使用済燃料を対象として実測を行っている。オルキルオト2号機(PWR)の使用済燃料(rod燃焼度43~61MWd/kgU)を用い、Kr-85をマーカーとしてFGRを測定した結果[37]をFig. 11に、オルキルオト1号機(BWR)の使用済燃料(rod燃焼度37~55MWd/kgU)を用い、内圧とγ線測定によってFGRを評価した結果[38]をFig. 12に示す。その結果、FGRは1~11%となつたが、これらの結果は、別途実施したシミュレーション計算における最も悲観的な結果と同等であり、スウェーデンSR-Site[11]で報告された軽水炉燃料のFGR(概ね<4.5%)と比較して高いことから、FGR設定値として採用していない[32]。高いFGRが得られた原因としては、照射によって燃料に幾何学的変化が生じた可能性を挙げている。

**Table 7 The reference inventory of the radionuclides released as IRF in one tonne of uranium (tU) at 30 years after discharge from the reactor in TURVA-2012 [33]**

Radio-Nuclide	Half-life [a]	Total inventory at 30 years cooling time [GBq/tU]	Partitioning of activity [%]			
			Fuel matrix	IRF of all components <sup>1)</sup>	Zirconium alloy	Other metal Parts
Ag-108m	$4.38 \times 10^2$	$2.50 \times 10^4$		100.0%		
Be-10	$1.51 \times 10^6$	$1.26 \times 10^2$	95.0%	5.0%		
C-14	$5.70 \times 10^3$	$1.61 \times 10^2$	22.4%	5.5%	12.1%	60.0%
Cl-36	$3.01 \times 10^5$	$2.63 \times 10^0$	73.6%	8.2%	18.2%	
Cs-135	$2.30 \times 10^6$	$3.43 \times 10^1$	95.0%	5.0%		
Cs-137	$3.01 \times 10^1$	$3.46 \times 10^6$	95.0%	5.0%		
I-129	$1.57 \times 10^7$	$1.91 \times 10^0$	95.0%	5.0%		
Mo-93	$4.00 \times 10^3$	$2.26 \times 10^1$	1.4%	0.1%	0.2%	98.3%
Pd-107	$6.50 \times 10^6$	$9.72 \times 10^0$	99.0%	1.0%		
Se-79	$3.27 \times 10^5$	$4.67 \times 10^0$	99.6%	0.4%		
Sr-90	$2.88 \times 10^1$	$2.23 \times 10^6$	99.0%	1.0%		
Tc-99	$2.11 \times 10^5$	$8.48 \times 10^2$	99.0%	1.0%		

1) IRF:instant release fraction. The percentage are calculated as a ratio of the IRF activity and the total activity, whereas, in Table 7-8, the percentages represent the IRF of the activity of the component class in question.

**Fig. 11 FGR measurements on SVEA-96 Optima rods (PWR type) [37]****Fig. 12 FGR measurements on GE14 rods and rod internal pressure (BWR type) [38]**

### 3.3 カナダ

使用済燃料の全量を直接処分する計画であり、処分実施主体はカナダ核燃料廃棄物管理機関（NWMO）である。NWMO とカナダ政府は、直接処分について段階的管理

(Adaptive Phased Management; APM) を行う方針を 2007 年に決定し、約 90 年後の処分完了を目指している。その技術的検討の最新レポートは、Forth Case Study (4CS) [8] であり、直接処分の概念が提唱されている。

使用済燃料は、外層が銅、内層が炭素鋼で構成される処分コンテナと呼ばれる容器に封入され、地下 500 m の花崗岩質岩盤中に垂直または水平に掘削した処分孔に定置される。また、処分コンテナの周囲には 100 % 配合の圧縮ベントナイト層（緩衝材）を設置し、作業用の処分坑道の空間は粘土系およびセメント系の複合材料により埋め戻される。

現在は、Fifth Case Study (5CS) を実施しており、更なる技術的成立性を検討するとともに、処分場の候補となるサイトを選定中である。

#### 3.3.1 燃料の種類

25 基の商用炉を保有する。炉型は全てカナダ型重水炉（CANDU 炉）であり、U-235 の濃縮を経ない天然ウランの酸化物ペレットを用いている。この炉に用いられる燃料集合体は燃料バンドルと呼ばれ、一般的な大きさは、直径 10cm × 長さ 50cm 程のものであり、軽水炉用の燃料集合体と比べると小型である。燃焼度が軽水炉燃料と比べて低く、バンドルの構成材料として制御棒を含まない等の特徴を持つ。

#### 3.3.2 核種インベントリ評価

核種インベントリは、220MWh/kgU ( $\approx 9.2\text{GWd/tU}$ ) を 30 年間冷却したものについて ORIGEN-S を用いて計算されている [39]。

#### 3.3.3 IRF の設定とその考え方

Fourth Case Study における瞬時放出核種の IRF を Table 8 [40] に示す。Table 8 中の PDF Attributes 項に記載される数値が IRF の小数表示であり、正規分布については左が算術平均、右が標準偏差、対数正規分布については左が幾何平均、右が幾何標準偏差、一様分布については下限値と上限値を示している。Fourth Case Study では、ギャップおよび結晶粒界に偏在する核種のみを瞬時放出核種としている。安全

**Table 8 Instant release fractions for CANDU fuel [40]**

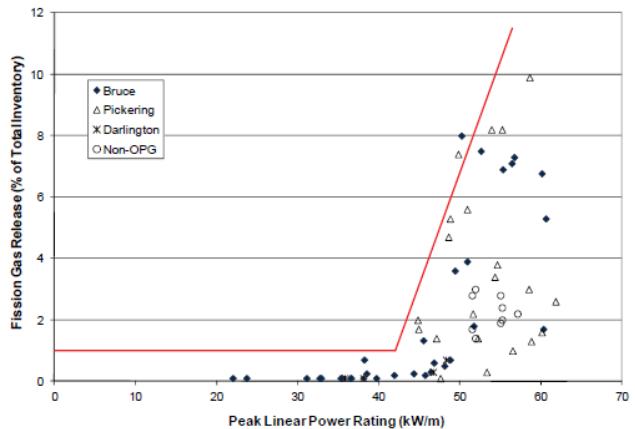
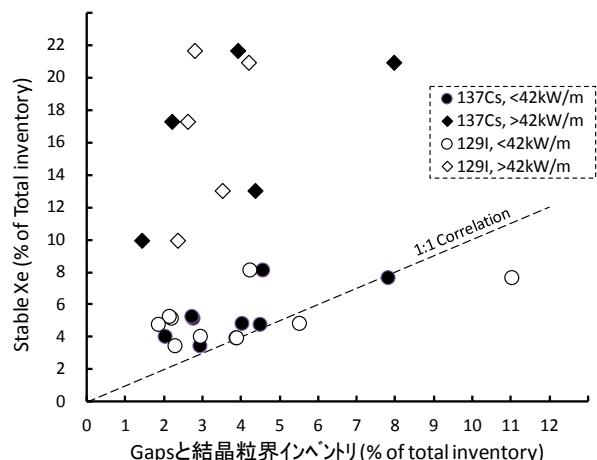
Element	PDF Type	PDF Attributes	PDF Bounds
Ac	constant	0.	n/a
Ag	uniform	(0.0, 0.001)	n/a
Am	constant	0.	n/a
As	normal	(0.006, 0.0015)	0.0023, 0.03
Bi	normal	(0.006, 0.0015)	0.0023, 0.03
C	normal	(0.027, 0.016)	0.0005, 0.075
Ca	constant	0.	n/a
Cd	normal	(0.006, 0.0015)	0.0023, 0.03
Ce	constant	0.	n/a
Cl	normal	(0.06, 0.01)	0.01, 0.2
Co	uniform	(0.0, 0.001)	n/a
Cr	constant	0.0	n/a
Cs	normal	(0.04, 0.01)	0.015, 0.20
Eu	constant	0.	n/a
Hg	normal	(0.04, 0.01)	0.015, 0.20
I	normal	(0.04, 0.01)	0.015, 0.20
La	constant	0.	n/a
Nd	constant	0.	n/a
Ni	uniform	(0.0, 0.001)	n/a
Np	constant	0.	n/a
P	normal	(0.006, 0.0015)	0.0023, 0.03
Pa	constant	0.	n/a
Pb	normal	(0.006, 0.0015)	0.0023, 0.03
Pd	lognormal	(0.01, 2)	0.0005, 0.05
Po	normal	(0.04, 0.01)	0.015, 0.20
Pr	constant	0.	n/a
Pu	constant	0.	n/a
Ra	normal	(0.025, 0.008)	0.001, 0.05
Rn	normal	(0.04, 0.01)	0.015, 0.20
Sb	normal	(0.006, 0.0015)	0.0023, 0.03
Se	normal	(0.006, 0.0015)	0.0023, 0.03
Sn	uniform	(0.0, 0.001)	n/a
Te	normal	(0.006, 0.0015)	0.0023, 0.03
Th	constant	0.	n/a
U	constant	0.	n/a
Y	constant	0.	n/a

\*PDF attribute are (mean, standard deviation) for the normal PDF, and (geometric mean, geometric standard deviation) for the lognormal PDF and (geometric lower limit, upper limit) for the uniform PDF.

評価においては、さらに核種の絞り込みを行い、Cs, I, C, Cl, Tc よびアクチニドを計算対象としている。なお、現状ではアクチニドの IRF はゼロとされており、実質は評価対象外である。

瞬時放出に係る現象理解については、スウェーデン SR-Site で参照された Stroes-Gascoyne [10] や Tait ら [30] による CANDU 炉燃料を用いた試験データに加え、Johnson ら [14-16,41] が整理した軽水炉燃料を対象とした試験データについて調査し、最終的に CANDU 炉燃料を用いた試験結果が最良のデータ源であるとしている。

FGR については、CANDU 炉燃料を用いた測定試験を実施している。CANDU 炉燃料棒のピーク線出力と FGR との関係を Fig. 13 に示す[40]。FGR は、燃料棒のピーク線出力が 42kW/m 以下では 1% 以下であるが、それ以上では急激に増加する特徴を有している。また、ORIGEN-S によるインベントリ計算と FEMAXI による照射燃料のふるまいのシミュレーション結果から IRF を算定する試みの一環として、FGR の計算も実施されている[42]。しかしながら、Stroes-Gascoyne [10] による試験結果 (CANDU 炉燃料、線出力 29~50 kW/m、燃焼度 430~1,100 GJ/kgU) より、I や Cs について、Xe ガスの放出割合とギャップおよび結晶粒界中のインベントリ割合の関係を整理した結果 (Fig. 14)、ピーク線出力が 42kW/m 以下の燃料では、Xe 放出率とギャップと結晶粒界中のインベントリ割合との間に概ね 1:1 の相関がみられるものの、ピーク線出力が 42kW/m 以上では、そのような相関性が薄れること、C および Sr は FGR との

**Fig. 13 FGR as a function of peak linear power rating for CANDU fuels [40]****Fig. 14 Measured gaps and grain boundary inventory of Xe as a function of those of I-129 and Cs-137 (data from [10])**

相関性が無いこと等を理由に、FGR の代表値等を定めていない。そのため、同試験結果[10]から得られたデータに対して統計処理を行い (Fig. 15)，その平均と標準偏差を IRF の設定に用いている[40]。ただし、I や Cs 等の準揮発性核種は、IRF が取り得る幅（上限値および下限値）を考えうえで、FGR 計算値[42]を参考としている。安全評価の対象とされる核種について、IRF の設定の流れを以下に示す。

Cs および I については、Fig. 15 中に示す平均値  $\mu = 3.9(\text{Cs})$ ,  $3.6(\text{I})$  を丸めて  $\text{IRF} = 4\%$  とした。標準偏差については、 $\sigma = 1.9(\text{Cs})$ ,  $2.4(\text{I})$  であるが、これらの根拠となるデータ点数が 14 点と少ない[10]ため、これを 360 体の燃料バンドルを格納する処分コンテナを代表する標準偏差とするために、例えば I の場合  $0.024/(360)^{1/2} = 0.0013$  として  $\sigma = 0.13$  と小さくすると試算 (IRF のばらつきがランダムであると仮定) し、これに実際の測定値分布が偏る可能性を考慮して  $\sigma = 1$  としている。IRF の上限値は、前述[42]の FGR 計算結果の最大値、下限値は Stroes-Gascoyne [10] による測定結果の最小値をもとに設定し 0.015~0.2 の幅を与えている[40]。

C は、燃料の燃焼度と線出力密度に依存しないことから、Fig. 15 に示す平均値  $\mu$  と標準偏差  $\sigma$  を踏襲し、IRF の上限値は、推奨値に対し、標準偏差の 3 倍 ( $3\sigma$ ) の幅を上乗せ

した値としている[40].

CIについては、ギャップおよび結晶粒界中のインベントリ割合とFGRとの相関性[30]を認識しながらも、試料とした使用済燃料のピーク線出力や燃焼度が低いものと高いものに偏っており、中間的なデータが存在しないことから、その相関性に依存せず、同試験の結果を保守的に判断し、平均値0.06、標準偏差0.01の正規分布を設定している[40].

TcはRu,Rh,Pd(白金族)の挙動を想定するための化学アナログとして重要視されている。TcはUO<sub>2</sub>燃料中に金属相(合金)として存在するとの知見[43]や、CANDU燃料を用いた試験[10]および、軽水炉燃料を用いた浸出試験[14, 41]において、その放出率が極めて小さいことから、その合金相は不溶性と考え、Garisto and Gierszewski[44]のレビュー結果を採用し、幾何平均値0.01、幾何標準偏差2の対数正規分布としている[40].

Pu, Am等の全てアクチニド元素(ランタノイド元素を含む)は、UO<sub>2</sub>燃料中に非揮発性酸化物として溶け込んでいるとの知見[41]にもとづき、IRFは0としている[40].

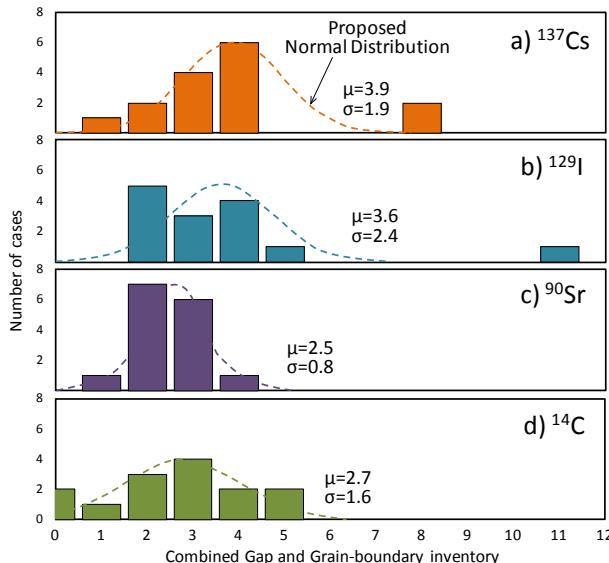


Fig. 15 Distributions of the measured combined gap and grain-boundary inventories of Cs-137, I-129, Sr-90 and C-14 [10]

#### 3.4 スイス

使用済燃料の一部は、過去にイギリスおよびフランスに再処理を委託していたため、その過程で生成する高レベル廃液のガラス固化体(HLW)を保有している。現在は再処理委託を凍結しており、今後発生する使用済燃料(SF)は直接処分する方針である。また、中レベル放射性廃棄物(ILW)との併置処分も計画されている。処分実施主体はスイスの電力会社と連邦政府によって設立された放射性廃棄物管理共同組合(NAGRA)である。最新の安全評価報告書はProject Opalinus Clay(EN2002)[4]である。

ガラス固化体および使用済燃料は、鋼製あるいは銅製のキャニスターに封入され、地下400~900mに水平定置され、定置後の周囲の空間はベントナイトで埋め戻される。鋼製キャニスターの場合の設計上の寿命が10,000年、銅製キャニ

スターの場合の設計上の寿命100,000年であり、最短の場合でも1,000年と想定している。

安全評価報告書は一旦政府へ提出され、2010年以降は、サイト選定計画第2段階(SGT-E2)を開始し、候補サイトの絞り込みを実施中である。

##### 3.4.1 燃料の種類

5基の商用原子炉および研究炉を保有する。炉型はBWRとPWRであり、両炉型でUO<sub>2</sub>およびMOXを用いている。そのため、スウェーデンと同様に燃料集合体の種類としてはPWR-UO<sub>2</sub>, PWR-MOX, BWR-UO<sub>2</sub>, BWR-MOXの4つに大別される。ただし、BWR-MOXの発生体数は少ないため、PWR-MOXに含めて評価されている。

##### 3.4.2 核種インベントリ評価

燃料要素とジルカロイ被覆管についてはスイスPSIによるBOXERコードを、残りの構造材(エンドピース、スペーサー等)についてはORIGEN2を用いて計算している。また、BWR-UO<sub>2</sub>は燃焼度48GWd/tIHM、PWR-UO<sub>2</sub>は48,55,65,75GWd/tIHM、PWR-MOXは48,65GWd/tIHMについて、各ケースともに燃料取出し直後と、取出し後40年後について計算されている[45]。

##### 3.4.3 IRFの設定とその考え方

Project Opalinus Clay[4]では、ギャップ、結晶粒界およびリム領域に含まれる核種を瞬時放出核種として取り扱っている。安全評価に用いられたIRF設定値の一覧をTable 9に示す。

スウェーデンの場合と同様にギャップおよび結晶粒界に含まれる核種を瞬時放出と考え、そのIRFとFGRとの相関性を重視し、必要に応じてIRF設定の参考としている。そのため、PWR-UO<sub>2</sub>, PWR-MOX, BWR-UO<sub>2</sub>について、それぞれに一つのFGRを設定している。また、燃焼度に応じたリム領域の生成挙動と、そこからの核種放出についても独自に評価している。

FGRの設定に際しては、国内外で行われた軽水炉の使用済燃料試料を用いたFGR実測データのなかから、燃料設計や照射履歴が自国の保有燃料と類似するいくつかのケースを参考としている。このため、安全評価レポートに記載されるFGR関連の情報は豊富である。EN2002では先ず、

Table 9 Example of recommended IRF values of key radionuclides for UO<sub>2</sub> fuel in EN2002 [4]

Nuclide	$t^{1/2}$ [a]	IRF Value [%] (from fuel)			
		BWR UO <sub>2</sub> (48GWd/tIHM)	PWR UO <sub>2</sub> (48GWd/tIHM)	BWR UO <sub>2</sub> (75GWd/tIHM)	PWR MOX (48GWd/tIHM)
<sup>3</sup> H <sup>+</sup>	$1.23 \times 10^1$	1	1	1	1
<sup>10</sup> Be	$1.6 \times 10^6$	10	10	10	10
<sup>14</sup> C	$5.73 \times 10^3$	10	10	10	10
<sup>36</sup> Cl	$3.0 \times 10^5$	13	10	25	15
<sup>75</sup> Se	$1.1 \times 10^6$	9	4	25	15
<sup>90</sup> Sr	$2.86 \times 10^1$	1	1	1	1
<sup>99</sup> Tc	$2.1 \times 10^5$	2	2	17	2
<sup>107</sup> Pd	$6.5 \times 10^6$	2	2	17	2
<sup>126</sup> Sn	$2.3 \times 10^5$	9	4	25	15
<sup>129</sup> I	$1.57 \times 10^7$	9	4	25	15
<sup>135</sup> Cs	$2.3 \times 10^6$	5	4	25	10
<sup>137</sup> Cs	$3.02 \times 10^1$	5	4	25	10

\*1: Assessment calculations were performed using an IRF of 2%

Kamimura et.al. [46]が示した燃料の線出力密度とFGRとの相関性 (Fig. 16) を挙げ、核分裂生成ガスの放出挙動は、その燃料棒が経験する温度に大きく影響されることに着目している。PWR-UO<sub>2</sub>燃料については、燃料集合体設計や線出力密度を低くするための照射条件の最適化を行った燃料は、平均燃焼度が40GWd/tHMまでは、FGRが概ね1%以下であること[47]のほか、平均燃焼度が40~50 GWd/tHMでも1~2%，60 GWd/tHM以上でもFGRは3%以下との報告[48]を引用している。BWR-UO<sub>2</sub>燃料については、平均燃焼度が50GWd/tHMにおいてFGRは3~5%であったこと[49]、PWR-MOX燃料については、高燃焼度の燃料を用いた試験データは乏しいものの、最も包括的なデータとしてHallstadius and Grapengiesser [50]による試験結果を挙げ、平均燃焼度45~50GWd/tHMにおいてFGRが約5%であることや、そのFGR上昇カーブを参考にしている。BWR-MOX燃料については、限られた実測データ[51]より、高燃焼度化とともにFGRの上昇傾向がPWR-MOX燃料の場合と比較して明確であることを確認しているが、安全評価上のFGRは定めていない。これらの情報をもとに、EN2002では、炉型、燃料要素および燃焼度毎のFGRを次のように設定している。

- PWR-UO<sub>2</sub> (48GWd/tHM) : 最良値1%，悲観的値2%
- BWR-UO<sub>2</sub> (48GWd/tHM) : 最良値5%，悲観的値10%
- PWR-MOX (48GWd/tHM) : 最良値8%
- PWR-MOX (65GWd/tHM) : 最良値15%

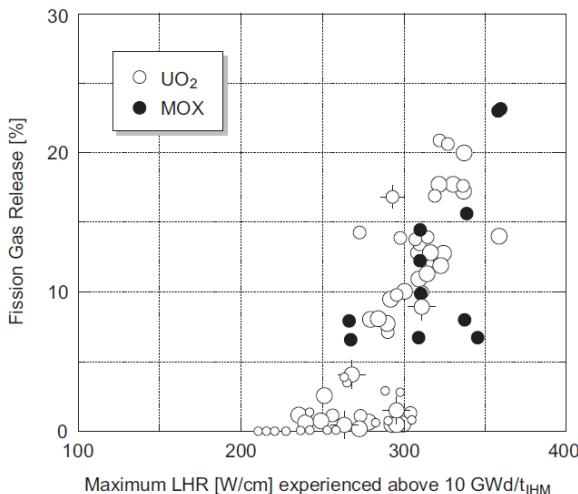


Fig. 16 FGR as a function of linear heat rating (LHR)  
Data take from Kamimura et al. [46]

リム領域の生成挙動については、Kooら[52]によって整理された結果を引用している。リム領域全体の局所的な燃焼度は、その母体である燃料ペレットの平均燃焼度の約1.3倍となり、リム領域の局所的燃焼度と厚みには、Fig.17に示すような線形の相関があること（最良値を示す線Eq.(1)と、悲観的値を示す線Eq.(2)）が示された[52]。それら相関によれば、リム領域厚み（最良値）は、平均燃焼度が50GWd/tHMでは約50μmであり、75GWd/tHMでは約170μmとなる。また、EPMAを用いてリム領域中のXeを定量した結果、リム領域のXeのインベントリ割合と局所的燃焼度にも正の相関があることが示された。

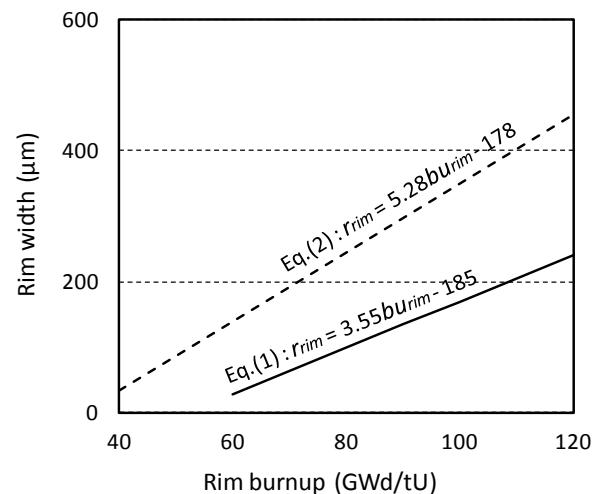


Fig. 17 Rim width as a function of burnup Data take from Koo et al. [52]

これらの情報をもとに、EN2002では、想定燃焼度に応じたリム領域中のインベントリ割合を、Table 10のように設定した[15]。

上記の事前の検討を踏まえた主要な核種のIRF設定の考え方を以下に示す。

Table 10 Fraction of the total gas inventory in a fuel rod that is present in the pores in the rim region of UO<sub>2</sub> fuel [15]

Average burnup (GWd/tIHM)	Rim burnup (GWd/tIHM)	Fraction of total FG produced present in pores in the rim (best estimate)	Fraction of total FG produced present in pores in the rim (bounding)
48	65	2	4
55	72	3	8
65	84	6	13
75	98	8	17

### (1) Cs-135, Cs-137

スウェーデン SR-Site と同様に、ギャップおよび結晶粒界のインベントリ割合とFGRの関係 (IRF:FGR=1:3) の関係を認識している[16]。しかしながら、Poinssot et al.[53]が指摘する以下2点も考慮している。

- FGRが1%以下の領域ではインベントリ割合とFGRが同程度であり、FGRが高くなても結晶粒界のインベントリはそれほど増加しない[20]。これはUO<sub>2</sub>中におけるCsの拡散係数が、核分裂ガスの拡散係数と比べて小さいことと合致する[53]。
- 燃焼度が25から43GWd/tHMまで増加する間はCsのIRFが増加するが、43GWd/tHM以上では減少傾向に転じる[18]。この原因として、燃焼度の増加にともなう燃料と被覆管間ギャップの閉塞が考えられる[53]。

EN2002自体も、CANDU炉燃料による試験結果[10]において、結晶粒界のインベントリがギャップのそれに比べて少ない点に着目し、燃焼度の増加にともなってCsのIRFも増加するという前提を取り入れていない[4]。

このような考えのもと、燃焼度48GWd/tHMの場合にお

いて、BWR-UO<sub>2</sub> の FGR5% に対して IRF3%，PWR-UO<sub>2</sub> の FGR1% に対して IRF2% とし、IRF:FGR=1:3 の関係よりも保守的な設定としている。また、同燃焼度におけるリム領域からの FGR（推奨値は 2% であり BWR と PWR で共通）を IRF として加味し、最終的に、BWR 燃料における IRF を 5%，PWR 燃料における IRF を 4% とした[4]。

### (2) I-129

FGR との相関 (IRF:FGR=1:1) を認識しており、その相関は、I および核分裂ガスの拡散係数の関係と一致している[53]との考えを支持している。また、Cs の場合と異なり、ギャップからの放出よりも結晶粒界からの放出が多いとしている。根拠データとして Fig. 18 に示す相関を挙げ、BWR について FGR5% のときの IRF を 6.5% と見積り、リム領域の寄与を加味して 9%，PWR についても同様の考え方で 4% と設定している[4]。

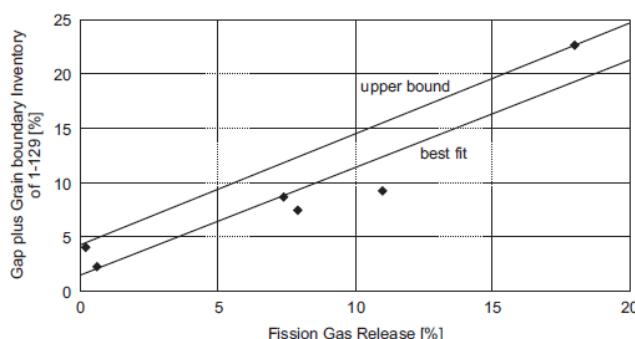


Fig. 18 Gap plus grain boundary release of I-129 as a function of FGR [15]

### (3) Cl-36

軽水炉燃料を用いた Cl の浸出データが存在しないことから、スウェーデン SR-Site と同様に、根拠データとして Tait et al.[30]による CANDU 炉燃料のデータ (IRF:FGR=3:1) を挙げている。ただし、CANDU 炉燃料の線出力は軽水炉燃料に比べて高く、同結果をそのまま採用することが IRF の過大評価につながることを考慮して、Johnson and McGiness [15]が提示した上限値である 48 Gwd/tHM の BWR について 13%，PWR について 10% のを安全評価上の設定値としている[4]。

### (4) C-14

燃料ペレットからの C-14 の瞬時放出に関するデータはスウェーデンの検討[14]以降は報告されていないことから、その結果を踏襲し、炉型を問わず、UO<sub>2</sub> 燃料全般について IRF を 10% としている。

被覆管からの C-14 の瞬時放出は、他の多くの国と同様に Yamaguchi et al.[31]を支持し、酸化被膜中のインベントリ割合である 20% が、金属腐食との調和的放出よりも速やかに放出されると考え、これを IRF としている。放出時の化学形態は、有機と無機を想定している[4]。

### (5) その他核種

その他の核種の IRF については、H-3 を除き Johnson et al. [54]のデータをもとに、Johnson and Tait [14]のアプローチに従い設定している。なお、Johnson and McGiness [15]は、結晶粒界に不溶性合金として存在する Pd と Tc を瞬時放出核種に含めることについては疑わしいことを述べている[4]。

## 3.5 アメリカ

これまでに、自国で使用済燃料の再処理を短期間であるが行った経緯があり、高レベル廃液のガラス固化体を保有しているが、今後発生する使用済燃料については、現在保有する分を含めて全量を直接処分する方針である。これらの処分実施主体は米国エネルギー省 (DOE) である。直接処分の計画は処分場計画地の名称からユッカマウンテン計画 (YMP) と言われ、これまでに安全評価報告書 “Safety Analysis Report (SAR)” [55]が公開されている。

ガラス固化体および使用済燃料は TAD キャニスターと呼ばれる輸送用、保管用、処分用を兼ねる容器に封入され、さらに、内側がステンレス鋼、外側がニッケル基合金で構成される処分（廃棄物）パッケージに封入される。処分パッケージは地下 201~488 m の地層中の坑道に水平定置される。処分場の岩盤は、不飽和な凝灰岩層であり、酸化性条件であるという特徴を有する。坑道内で落下する滴、岩石および地圧に耐えるためのドリップシールドが設置される。基本シナリオではキャニスターの寿命は 10,000 y である。なお、スイスの場合と同様にガラス固化体との併置処分が考えられている。

2008 年にユッカマウンテン最終処分場の建設許可申請 [55]を行ったが、YMP は、その後の政権交代とともに 2009 年に凍結された。現在は、直接処分する方針は変わらないものの、処分サイトの選定を含めた代替案の動向は不透明である。

### 3.5.1 燃料の種類

104 基の商用原子炉を保有する。炉型は BWR と PWR がある。両炉型で UO<sub>2</sub>のみが用いられているが、今後、兵器級 Pu の一部を MOX 燃料化する方針であり、最終的には MOX も処分対象となる。

### 3.5.2 対象核種とインベントリ評価

使用済燃料からの核種放出に関するモデル検討レポート (BSC2004) [56]において、31 核種 (17 元素) についてインベントリの計算を行っている。

### 3.5.3 IRF の設定とその考え方

BSC2004 [56]において、瞬時放出について以下のように考えられている。

- 操業中の炉内において Cs, I, Tc 等の一部の核種が燃料マトリクスからギャップ領域に移行し、ガス状および液体状で蓄積される。
- 結晶粒界に存在する微量の核種 (核種インベントリ全体に対して占める割合は小さい) が早期に放出される可能性がある。
- 上記より、(他の国と同様に) ギャップおよび結晶粒界中のインベントリを IRF として取り扱う。
- 金属部材の放射化物は IRF に含めない。

瞬時放出核種のギャップおよび結晶粒界インベントリのデータは、BSC2004 [56]において Table 11 のように示されている。また、Yucca Mountain 処分場の安全解析報告書[57]では、安全評価の対象とする核種および IRF を Table 12 のとおり設定している。Table 11 に示したデータの根拠資料として、“Gap and Grain Boundary Inventory Data for Commercial Spent Nuclear Fuel (MO040SEPGBID.000)” と

**Table 11 Light water reactor spent nuclear fuel Gaps and grain-boundary inventories [56]**

FGR (%)	<sup>137</sup> Cs		<sup>99</sup> Tc		<sup>90</sup> Sr		<sup>129</sup> I	
	GI(%)	GBI(%)	GI(%)	GBI(%)	GI(%)	GBI(%)	GI(%)	GBI(%)
1.1	1.18	$1.98 \times 10^1$	$-2.30 \times 10^{-2}$	$5.04 \times 10^{-2}$	$3.97 \times 10^{-2}$	$2.14 \times 10^{-2}$		
7.85	$7.21 \times 10^{-1}$	1.17	$3.44 \times 10^{-5}$	$-7.75 \times 10^{-2}$	$8.70 \times 10^{-3}$	$2.38 \times 10^{-2}$		
7.85	$8.02 \times 10^{-1}$	$3.67 \times 10^{-1}$	$-1.85 \times 10^{-2}$	$4.76 \times 10^{-2}$	$3.68 \times 10^{-2}$	$5.75 \times 10^{-2}$		
7.85	2.23						1.52	
7.85	1.55						3.28	
7.85		$6.24 \times 10^{-1}$						5.15
0.59	$2.07 \times 10^{-1}$	$1.88 \times 10^{-1}$		$6.63 \times 10^{-2}$	$1.97 \times 10^{-2}$	$8.00 \times 10^{-2}$	$1.68 \times 10^{-2}$	
0.59	$2.78 \times 10^{-1}$						$1.15 \times 10^{-1}$	
0.59		$7.37 \times 10^{-1}$						2.09
7.4	1.80						$9.37 \times 10^{-2}$	
7.4		$6.96 \times 10^{-1}$						7.98
7.4		$6.48 \times 10^{-1}$						7.53
11.2	2.57	1.00	$1.51 \times 10^{-2}$	$1.54 \times 10^{-2}$	$2.30 \times 10^{-2}$	$1.34 \times 10^{-1}$		
11.2	2.32		$8.22 \times 10^{-3}$		$1.22 \times 10^{-2}$			
11.2	3.21							1.44
11.2	3.00							1.08
11.2		$7.64 \times 10^{-1}$						7.48
11.2		$8.14 \times 10^{-1}$						9.13
18	4.25	$9.34 \times 10^{-1}$	$5.42 \times 10^{-2}$	$1.33 \times 10^{-1}$	$9.70 \times 10^{-2}$	$8.65 \times 10^{-2}$		
18	5.05		$2.55 \times 10^{-2}$		$4.08 \times 10^{-2}$			
18	7.46							$1.82 \times 10^1$
18	$1.05 \times 10^1$							$1.23 \times 10^1$
18		1.10						8.32
18		1.23						8.54

呼ばれるデータセットが引用されているが、その情報は入手できなかったため、インベントリ値測定手法等の詳細は不明である。安全解析報告書[57]における Cs, Tc, Sr, I の 4 核種各々のパラメータは、Table 11 に記載される全データを対象に、FGR ごとのインベントリ合計値を算術平均して Apex 値（ピーク値）を与え、ギャップおよび結晶粒界インベントリ割合の最小値同士を足し合わせた値を Minimum 値、最大値同士を足し合わせた Maximum 値をもつ三角分布としている (Table 12)。

**Table 12 Triangular probability distribution functions of IRF selected in YMP-SAR [57]**

	<sup>137</sup> Cs	<sup>129</sup> I	<sup>88</sup> Tc	<sup>90</sup> Sr
Apex	3.63	11.24	0.10	0.09
Minimum	0.39	2.04	0.01	0.02
Maximum	11.06	26.75	0.26	0.25

### 3.6 フランス

全ての使用済燃料を再処理することを基本方針としているが、将来、再処理事業を停止した場合の処分オプションとして直接処分を採用し、その技術的検討を放射性廃棄物管理機関 (ANDRA) が実施している。フランスにおける最新の安全評価報告書は Dossier 2005 [58] である。

ガラス固化体および使用済燃料は、鋳鉄製の廃棄体パッケージに封入され、地下 500m の粘土層中に水平に設置される。キャニスターの寿命は 10,000 年と設定している。処分場の岩盤は安定な粘土岩層 (Callovo-Oxfordian) である。なお、フランスでは、一度処分が完了した廃棄物を、将来回収することを可能とする可逆性のある地層処分を目指している。

#### 3.6.1 燃料の種類

58 基の商用原子炉を保有する。商用炉は全て PWR であり、UO<sub>2</sub>、回収 U を含む UO<sub>2</sub> および MOX 燃料を用いてい

る。また、現在は停止中の UNGG 炉（黒鉛減速型の炉）および FL4 型重水冷却炉の使用済燃料も保有している。

フランスでは、軽水炉に用いられる UO<sub>2</sub> 燃料を、燃焼度によって 3 つの世代に分け、さらに、回収 U を含む UO<sub>2</sub> 燃料と MOX 燃料も含めることで Table 13 に示すように分類している[59]。UOx1 は再処理され、直接処分の対象となるのは UOx2, UOx3, URE, MOX である。また、FL4 型炉および UNGG 型炉の使用済燃料も直接処分の対象として評価している。

#### 3.6.2 対象核種とインベントリ

Dossier 2005 では、Table 13 に示した直接処分の対象物を、他の廃棄物（高レベル廃液のガラス固化体等）と区別して廃棄物パッケージに封入し、これを CU 廃棄体と呼ぶ。さらに、これらを以下に示す 3 種の廃棄体に振り分け、そのタイプごとにインベントリ評価を行っている[58]。

- ・ CU1 廃棄体 : UOx2, UOx3, URE (UO<sub>x</sub> 全般)
- ・ CU2 廃棄体 : MOX
- ・ CU3 廃棄体 : FL4 炉および UNGG 炉燃料

インベントリ評価対象とした核種は、Be-10, C-14, Cl-36, Ca-41, Ni-59, Se-79, Zr-93, Nb-93m, Nb-94, Mo-93, Tc-99, Pd-107, Sn-126, I-129, Cs-135, Ho-166m の 16 核種 (15 元素) である。なお、インベントリ評価に関するサブレポートが公開されておらず、核種の選定根拠、廃棄体毎の評価モデルおよび計算コードは不明である。

**Table 13 Categorization of fuel type in Dossier 2005**

name	burnup (GWd/t)	remarks
UOx1	33	low burnup UO <sub>2</sub> fuels
UOx2	45	middle burnup UO <sub>2</sub> fuels
UOx3	55	high burnup UO <sub>2</sub> fuels
URE	45	fuels containing recycled U
MOX	48	Mixed fuels with uranium oxide and recycled plutonium oxide

### 3.6.3 IRF の設定とその考え方

安全評価報告書[59]に示される瞬時放出核種と各々のIRFの一覧をTable 14に示す。表中の“Reference calculation”は推奨値であり，“Sensitivity calculation”は感度解析のために使用した値である。原則として、使用済燃料中の不安定な部位に存在する核種を瞬時放出核種として扱っており、その不安定な部位については、以下としている。

- UO<sub>2</sub>燃料マトリクス中の結晶粒界(grain jointsと表記)、クラック、ボイドおよびMOX燃料中のPuクラスター中のインベントリ。これらの部位のインベントリ割合は燃焼度に依存。
- α崩壊の放射線影響により、燃料マトリクス中の放射性核種の5%が不安定となり放出。また、感度解析の観点では15%が不安定となり放出。
- ジルカロイ被覆管の酸化被膜(zirconと表記)に含まれる放射性核種。

Table 14に示される溶出パラメータ(IRF)の設定根拠となるANDRAレポート等の情報は公開されていないため、詳細なIRF設定の考え方は不明であり、本報では、設定値のみを示す。

## 3.7 國際プロジェクト

EC(欧州連合)では、主に欧州の研究機関から参加を募り、直接処分についての研究開発を助成している。これらの中で、瞬時放出に関する研究について抜粋し、それらの概要を以下に述べるとともに、重要な知見を抜き出して紹介する。

### 3.7.1 Spent Fuel Stability

Spent Fuel Stability(SFS;2001~2004)[60]では、いくつかの照射後試験(以下、Post Irradiation Examinationを略しPIE)や燃料浸漬試験の結果に基づき、使用済燃料中の微小構造(ギャップ、結晶粒界、クラック、リム領域等)や、金属部材に含まれる核種の初期の分布状態について研究し、Table 15に示すように整理した。ここでは、燃料集合体中の微小構造に存在する可能性がある核種の初期分布を示し、それらを瞬時放出とするか長期溶解とするかは、本結果を参照するエンドユーザの判断としている。しかしながら、参加機関(CEA,NAGRA)の見解として、各微小領域に対する各国の認識を以下のように纏めている[60]。

Table 14 Percentage of labile activity in the matrix (data from [59])

	CU1 (UOx <sub>2</sub> )		CU1 (UOx <sub>3</sub> , URE)		CU2 (MOX)	
	Reference calculation	Sensitivity calculation	Reference calculation	Sensitivity calculation	Reference calculation	Sensitivity calculation
燃焼度	45	50	55 (UOx3) 45 (URE)	60 (UOx3) —	48	53
C-14	15% (conservative)	25%	15% (conservative)	25%	15% (conservative)	15%
Cl-36						
Se-79						
Sn-126	7.1%	22.8%	12.3%	30.1%	38.9%	77.1%
Cs-135						
Cs-137						
Other radionuclides	6.8%	20.4%	9.9%	25.2%	35.0%	65.0%

- ギャップ：IRFに割り当てることに、各国のコンセンサスが得られている。
- リム空隙と結晶粒界：Heの生成に起因し、結晶内にナノバブルが生成する。これらの領域の長期安定性を実証することは困難である。
- リム領域の結晶粒：結晶粒の直径が～0.1 μmであり比表面積が大きいため、他の領域よりも比較的速く溶解する可能性がある。

この整理結果は、スウェーデンSR-Can[36]において根拠データの一部となっている。

また、処分後の燃料内の核種分布が時間とともに変遷(IRFが変化)する可能性について次のように整理している。Matzke[61]およびFerry et al.[62]は、α線の自己照射が核種拡散性へ与える影響を評価した。その結果によれば、燃料の炉内温度が1,000 °C以下において、核種の拡散係数D<sub>irr</sub>は核分裂率F(分裂数/m<sup>3</sup>s)に比例する(式(2))。さらに、核分裂率Fを体積あたりのα放射能Av(Bq/m<sup>3</sup>)に変換し、核分裂生成物の格子欠陥を考慮した補正を行うことで、α線の自己照射による影響を考慮した拡散係数D<sub>α(t)</sub>を式(3)のように定義した。

$$D_{irr} = 1.2 \times 10^{-39} \times F \quad (2)$$

$$D_{\alpha}(t) = (2 \pm 0.6) \times 10^{-41} \times Av(t) \quad (3)$$

式(3)をレファレンスPWR燃料(55 GWd/tIHM)に適用すると、下記のように使用済燃料取出し後100年未満ではD(t)は10<sup>-25</sup> m<sup>2</sup>/sであり、100年経過後は拡散係数が時間の経過とともに小さくなるとしている(式(4))。

$$D(t) = (1 \pm 0.3) \times 10^{-25} \quad t < 100\text{年} \quad (4)$$

$$D(t) = (3.7 \pm 1.2) \times 10^{-24} t^{-0.77} \quad t > 100\text{年}$$

これらの関係式をもちいて、種々の燃焼度について、結晶粒からの核種放出率の経時変化を計算した結果(Fig. 19)，α線の自己照射の寄与は、処分後1,000年において約3%，10,000年後で約5%であり、核種毎のIRFは、Table 16に示すように処分後の経過時間にともなって増加する可能性があることが示された[62]。

**Table 15 Expected distributions of radionuclides in fuel assemblies and possible modelling approaches [60]**

Components	Key radionuclides	Characteristics and possible modelling approach
Fuel assembly structural materials		
Zirconia	$^{14}\text{C}$ (organic *1)	Oxide film typically about 40 to 80 pm thick is formed in reactor (about 10 % of cladding thickness). The oxide has a low solubility; the outer part is porous and may incorporate nuclides present in Zircaloy as the film grows. Limited data on Zircaloy indicating preferential release; consider $^{14}\text{C}$ as part of IRF. No data on steels.
Zircaloy, Inconel and steel	$^{14}\text{C}$ (organic *1), $^{36}\text{Cl}$ , $^{59}\text{Ni}$ , $^{63}\text{Ni}$	Very low general corrosion rate. Release of all nuclides plus remaining $^{14}\text{C}$ congruent with the slow corrosion rate
Uranium oxide		
Gap	Fission gases, volatiles ( $^{129}\text{I}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{135}\text{Cs}$ , $^{36}\text{Cl}$ , $^{79}\text{Se}$ , $^{126}\text{Sn}$ *1). Also $^{14}\text{C}$ (non-volatile but partially segregated)	Good data for some nuclides. Assessment through fission gas release measurements and correlation with leaching experiments. Part of IRF
Rim porosity	Fission gases, volatiles ( $^{129}\text{I}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{135}\text{Cs}$ , $^{36}\text{Cl}$ , $^{79}\text{Se}$ , $^{126}\text{Sn}$ *1)	Rim width a function of burnup; good data available. Large proportion of nuclides in rim region segregated into pores and secondary phases during restructuring. No experimental data indicating release. Pessimistically could be part of the IRF;
Rim grains	Actinides, FP	Release through dissolution when water arrives. FP may also diffuse to rim pores by aSIED. FP inventory may thus be part
Grain boundaries	Fission gases, volatiles ( $^{129}\text{I}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{135}\text{Cs}$ , $^{36}\text{Cl}$ , $^{79}\text{Se}$ , $^{126}\text{Sn}$ *1) Segregated metals ( $^{99}\text{Tc}$ , $^{107}\text{Pd}$ )	Limited data. As for rim pores, pessimistically considered part of IRF,
Grains	Actinides, remaining FP and activation products	Belongs to MAM, WP4

\*1 shows that the chemical form or isotope is not clear.

### 3.7.2 FIRST Nuclides

FIRST Nuclides (2012～2014) [63]では、使用済燃料の燃焼度や母岩の種類に依存しないセーフティケースに資する瞬時放出モデルを構築することを目的として実施された。調査の時点では最終報告書は公開されておらず、サブレポートの調査結果を整理した。

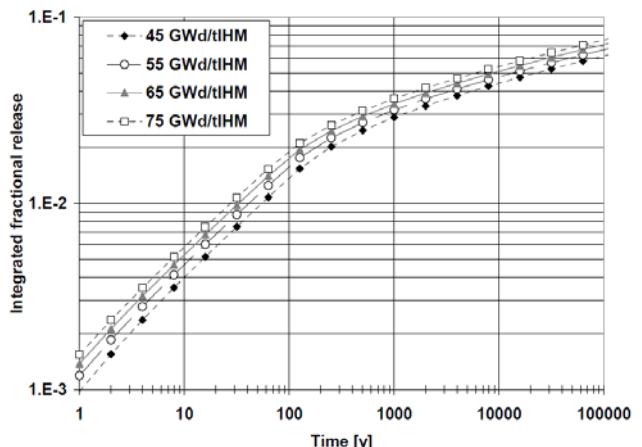
Casas et al. [64]は、 $\text{UO}_2$ 使用済燃料からの核分裂生成物の放出に係る基礎プロセスとして、燃料ペレット内の部位が古典的な溶解速度式に基づき溶解すると仮定した準経験的なモデルを U, Cs, Tc の浸出試験結果に適用した。その結果、Fig. 20 に示すとおり、浸漬開始後の初期に溶解量が多い点、その後徐々に溶解量が一定となる点が良く表現された。

メカニズムにもとづくモデルとしては、FGR の計算に係る概念化について検討している。ここでは、核分裂性ガスの発生と燃料マトリクス内の移行のプロセスが、以下の 9 つの要因に支配されるとし、それぞれのモデル化の実績を整理している[65]。

- ・ U-235 の分裂によるガス発生 ( $\text{Xe}$ ,  $\text{Kr}$ )
- ・ 粒子の recoil(反跳)や knock-out
- ・ (結晶粒の内側の) 格子拡散
- ・ 結晶粒界での拡散
- ・ トランピング
- ・ 照射に起因する分解
- ・ 結晶粒内のバブルの挙動
- ・ 結晶の成長
- ・ 結晶粒界でのバブルの成長

FGR 計算の数学モデルは、核分裂ガスの粒内拡散機構をモデル化した Booth モデルが基本となるが、上記のプロセスの一部が考慮されていない。現状考慮されていないプロセスのモデル化については、次のように検討が進んでいる。

Speight [66]は、結晶粒内のガスの単原子が、同じく粒内に分散するガスバブルにトラップされることや、照射によって再溶解される挙動を考慮し、Booth モデルを改良した。また、Van Uffelen et al. [67]は、結晶粒内におけるガス原子の拡散挙動について、ガスバブルの移動挙動に関する拡散係数の項を付け加えた実効拡散係数を定義した。さらに、Pastore et al. [68]は、結晶粒内および結晶粒界について、ガ



**Fig. 19 Calculated released fraction from grains due to  $\alpha$  self irradiation enhanced diffusion for  $\text{UO}_2$  fuels [62]**

**Table 16 Bounding estimates of the IRF of key radionuclides for a PWR UO<sub>2</sub> fuel with a burnup of 55 GWd/tIHM [62]**

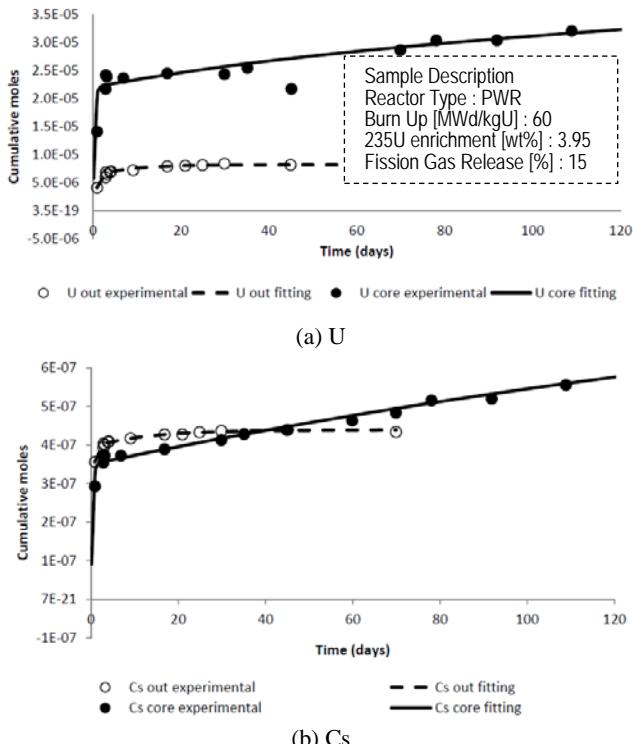
Nucride	Bounding IRF values (%)			
	After irradiation	Container failure time		
		1,000y	10,000y	100,000y
<sup>14</sup> C	10	13	14	16
<sup>36</sup> Cl	11	14	15	17
<sup>79</sup> Se	11	14	15	17
<sup>129</sup> I	11	14	15	17
<sup>135</sup> Cs	11	14	15	17

スパブルの発生数や大きさや形状に起因する幾何学的ファクタを用いたモデルを提案している。

燃焼にともなう結晶粒の成長は、核分裂ガスの拡散距離が変化するため、FGR に影響を与える因子であるが、これを考慮したモデルは非常に複雑になり、解析に加えることは困難である。このため、これまでに、燃料ペレットのスウェーリングのみを考慮した計算例[69]や、結晶粒の成長とともに核種の掃引と移動境界における拡散移動の再現を試みた例[70]などいくつかの検討があるものの、他の多くの解析モデルでは結晶成長（粒径分布）を無視しており、この現状が FGR を過大に見積る要因であると指摘している[65]。

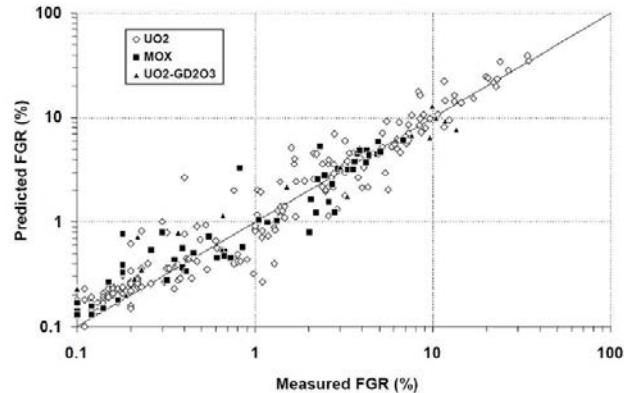
ガスバブルの成長については、White [71]によって、結晶粒内におけるガスバブル成長の計算モデルが提案され、その後、Veshchunov [72]や Pastore [73]によってガスバブル同士の交差や合併にともなうガスバブル表面積の変化が考慮されている。

以上のように、種々の要因が考慮された近年の FGR モデルは、モジュールとして燃料性能評価コードへ組込むこと



**Fig. 20 Example of fitting results of leaching data on U and Cs [64]**

で、様々な炉型、燃焼度、燃料の種類に対応することが可能であるとし、一例として、FRAMATOM-FGR モデルによる計算結果と実測結果が、燃料の種類 (UO<sub>2</sub>, Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 添加, MOX) や燃焼度に係わらず、良い対応を示したことを挙げている (Fig.21)。ただし、一方では、数値モデル化における未解決の課題が存在することや、モデルを簡素化したことによる不確実性をなお含んでおり、さらなる研究が必要とも結論づけている[65]。



**Fig. 21 Validation of the FRAMATOM FGR steady-state model against experimental data [74]**

## 4 各国の比較

諸外国を見渡した全体の傾向、IRF 設定における不確実性、我が国処分ケースへの適用性について以下に述べる。

### 4.1 全体の傾向

#### 4.1.1 瞬時放出核種の選定

燃料要素については、ギャップおよび結晶粒界に偏在する核種 (C-14, Cl-36, Se-79, Tc-99, Pd-107, Sn-126, I-129, Cs-135/137 等) を瞬時放出核種とする点で各国とも概ね共通の認識をもっている (Table 2) が、リム領域に含まれるインベントリについてはフランスおよびスイスのみが明確に瞬時放出分として取り扱っている。

ジルカロイ被覆管や他の金属部材に含まれる放射化生成物の取扱いは国によって大きく異なる。そのなかで、最も共通的に取り扱われる核種は、被覆管の酸化被膜に含まれる C-14 であり、アメリカおよびカナダを除く各国で安全評価上の対象（重要）核種とされている。

また、核種分散状態に応じた核種の取扱いに加え、各国の処分事情によっても瞬時放出核種の選定状況は異なる。スウェーデン、フィンランド、スイスおよびフランスは、主な処分対象が軽水炉の使用済燃料であることから瞬時放出核種の選定結果が比較的類似しているが、カナダでは、CANDU 炉燃料（天然ウラン酸化物）が処分対象であることから、燃料要素中の不純物に由来する放射性核種の選定において他国との違いが見られた。

#### 4.1.2 IRF 設定の考え方

各国が IRF 設定の際に根拠としている主要な試験結果は、概ね共通であった。これらは、軽水炉や CANDU 炉の使用済燃料を用い、ギャップや結晶粒界の核種インベントリを

評価したものである。これらは、前述のとおり、Johnson and McGiness [15]およびJohnson et al.[16]によって集約されているが、さらに原典を遡ると、I, Cs, Tc, Sr、についてはGray et al. [20], Wilson and Gray[24]およびStroes-Gascoyne [10], ClについてはTait et al. [30]による試験結果が、炉型や燃焼度の相違が認識されたうえで引用されている。また、ジルカロイ被覆管中のC-14については、Yamaguchi et al.[31]による被覆管試験片を用いた試験結果が各国で参考とされている。

IRF設定の考え方のひとつとして、FGRとの相関性によって設定することを述べたが、とくにI-129, Cs-135/137およびCl-36におけるIRFとFGRとの相関は、各国共通で認識されており、IRFを検討するためにFGRの評価を行っている国は多い。しかしながら、安全評価上FGRを設定している国はスウェーデンとスイスだけであり、設定されたFGRに係数を乗じることでIRFの設定を行っている国はスウェーデンのみであった。その他の国々では、自国におけるFGR設定値との相関性を指標としながらも、根拠データにおける測定値のばらつきやリム領域の寄与を考慮するなどし、さらに保守側のIRFを設定する傾向がみられた。

C-14を評価対象とする国々は、概ね（カナダを除き）ジルカロイ被覆管の酸化被膜からの放出（例えば[31]）が支配的と考え、これに各々が保守的判断を加えることで設定している。

根拠データが取得された際の試験手法や、各国が設定するFGRが含む不確実性については、次節で述べる。

## 4.2 不確実性

各国のIRF設定が含む不確実性は、主に下記の項目であると考える。

### 4.2.1 根拠文献における評価手法の妥当性

ギャップおよび結晶粒界のインベントリを測定した実験の多くは、使用済燃料をせん断したサンプルをそのまま浸漬液に浸漬することでギャップ中のインベントリを評価し、その後、同サンプルの燃料ペレット部分を粉碎して新たな浸漬液中へ浸漬することで結晶粒界中のインベントリを評価している。この手法の場合、燃料ペレットの粉碎の度合いによって結晶粒界の接液状況が変化する点や、瞬時放出分と燃料マトリクスの溶解分をどのように切り分けるかの点で、評価上の不確実性が発生する。Stroes-Gascoyne[10]は、浸出液中のCs濃度から燃料マトリクスの溶解の寄与を取り除くため、浸出液のU濃度を長期溶解分とし、それとの調和相当分としてCs濃度を計算し、これを全Cs濃度から差し引いて瞬時放出の分を評価している。しかし、Walker and Lassman[75]によれば、結晶粒中のCs濃度は、結晶粒の中心付近で高く結晶粒界に近づくにしたがって低下する不均一な分布を呈することが示されており、上記の補正手法が過大な補正となり得ることを自ら認めている。

また、燃料サンプルの装荷場所やサンプル採取部位の詳細が記載されていない文献が多く、例えば、ある平均燃焼度が付されたサンプルにおいて、その条件に応じた測定結果が得られているのか等、判断が難しいと感じられた。

### 4.2.2 リム領域の取り扱い

リム領域の取り扱いについては、2005年までに、スイスEN2002およびフランスDossier2005において瞬時放出とされた。それ以後（2009年以降）、燃料ペレットの中心付近とリム領域とを切り分けて浸出試験を行った結果が報告され[76,77,78,79]、燃料ペレットの中心部とリム領域の核種放出挙動に顕著な違いがない旨が示された。これらを受けて、スウェーデンSR-SiteやフィンランドTURVA-2012など2012年前後の安全評価では、リム領域の寄与が除かれているようである。しかしながら、リム領域は微細（～ $0.1\mu\text{m}$ ）な結晶粒と気孔に再構築された多孔質な領域であり、通常の浸漬試験によって、これら気孔や結晶粒界からの核種放出が適切に評価されているかは、なお懸念がある。また、燃料マトリクスの比表面積がペレット中心部と比べて大きくなるため、その溶解速度が他の領域よりも速くなる可能性があることから、地層処分のタイムスケールにおける”瞬時”的な捉え方を含め、今後とも継続調査が必要と考えられる。

### 4.2.3 FGR設定における燃料バリエーションの考え方

スウェーデンSR-Siteではシミュレーションコードを用い、将来の高燃焼度化運転を見込んだ照射履歴を模擬するシミュレーションを実施し、それらの個別結果より炉型別や全キャニスター平均（および標準偏差）を算出することで、想定される幅広い燃料バリエーション（炉型、燃料設計、照射履歴、燃焼度等）を包含させている。スイスEN2002では、実際のFGR測定結果を設定根拠とし、サンプルの炉型や燃焼度が自国の処分ケースと類似する実測データを参考とし、炉型と燃焼度の組合せ（4ケース）それぞれに対して個別値を設定している。このように、燃料バリエーションを取込む手法については国毎に様々であり、保守的な評価であることは理解できるものの、どのような取込み方がより現実的であるかは、判断し難い。

評価手法の面では、シミュレーション計算は、燃料の設計、燃焼度、装荷時のロケーション等までを含めた、種々のバリエーションに直接対応する計算結果が得られる点で有用である。しかしながら、シミュレーションであることによる潜在的な不確実性を含んでおり、例えば、STAV7.3[27]やFRAMATOM-FGRモデル[74]によるFGRの計算結果が、実測値とは±数%程度乖離する点は前述のとおりである。一方で、PIE結果を参考とする場合は、実測値を参照できる面で現実的であるが、4.2.1の場合と同様に、サンプルや試験手法の代表性について留意する必要がある。また、今後の燃料設計はFGR低減のための最適化が進むことが想定され、これに対応したFGR設定の見直しも必要となる。実際に、スウェーデンSR-SiteにおけるFGR設定値はBWR(1.9%) < PWR(4.3%)であり、スイスEN2002におけるFGR設定はBWR(7%) > PWR(3%)と逆の傾向を示しており、フィンランドTURVA2012におけるPIEではBWRおよびPWRについてFGRが最大11%と測定されるなどの相違がみられる。これらは、各々の燃焼度、設計世代等が異なることに加え、FGRの評価手法や、不確実性の取り入れ方が異なるためと考えられた。

#### 4.2.4 C-14 放出時の化学形態

C-14 は、主に燃料ペレットや金属部材中に不純物として含まれる N が中性子によって放射化される ( $^{14}\text{N}(\text{n},\text{p})^{14}\text{C}$ ) ことで生じる。その放出については、ジルカロイ被覆管からの放出が支配的と考えられ、その放出量 (IRF) については、各国の認識は概ね一致している。しかし、C-14 の化学形態（無機あるいは有機）は、人工バリアや天然バリアに対する収着性に影響を与えることから、その重要性が認識され、現在も議論が継続している。これまでの研究において、Yamaguchi ら [31] ではジルカロイ被覆管から放出される C-14 は有機形態であるとされ、Sasoh [80] は、照射化されたステンレス鋼中に、炭化物形態の C とカルボン酸、アルデヒド、アルコール等の有機 C が存在しているとした。また、瞬時放出の論点からは若干逸脱するが、野下 [81] は、様々な化学形態の C-14 が地下環境中に放出された場合の、その後の地下水における分解挙動について、放射線影響も含めて検討している。さらには、微生物影響により、有機 C が  $\text{CO}_2$  に酸化されるのか、 $\text{CH}_4$  に還元されるのかという点も重要なとなる。

上記のように、C-14 の化学形態が安全評価に及ぼす影響がいくつか報告されるなかで、公開されている安全評価レポートではスイス EN2002 が有機 C と無機 C を切り分けて評価しているのみであり、その他の国では C-14 の化学形態は明記されていない（各国の安全評価における緩衝材や岩盤中の C-14 の分配係数は、収着性の低い有機形態を想定している可能性が高い）。

C-14 の化学形態は、わが国の TRU 廃棄物処分においても重要であり、第 2 次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ[82]で検討されて以降も、放射化金属中の C-14 インベントリや放出挙動などと共に研究が進められており（例えば [83]）、EU が実施する CAST (CArbon-14 Source Term ; EU, 2013～2018, Available <http://www.projectcast.eu/>) との情報共有も計画されている。本項目については、国内情報を含めた継続調査が必要と考えられた。

#### 4.2.5 使用済燃料の経時変化および地下環境の変化

いくつかの国で、氷河融水が地下処分場へ侵入することによって地下水組成が変化する可能性があることを認めている。しかしながら、カナダ 4th Case Study[8]では、Manitoba の Whiteshell Research Area の地球化学データにおいて地下深部の地下水の年代は数百万年前であること[84]、これまでに氷河融水が地下 350m 以深に侵入していないこと[85,86]、酸素に富む地下水が地下約 50m までしか浸透していないこと[87,88]、地下深部の移行が拡散により支配されていることなどを挙げたうえで、氷河融水の侵入後も地下水の還元性条件は保たれるとしている[8]。

また、スウェーデン SR-Site では、氷河融水の侵入等は極めて長い期間で変動するため、瞬時放出が起こる期間に対する影響は少ないとしている[11]。

このように、安全評価上のシナリオから地下環境の変動を除外する国が多いが、フィンランド TURVA2012 とカナダ 4th Case Study では、確率論的評価を行うことによって、地下環境の変動の要因を特定しないまま、環境条件の変動幅を持たせている。

#### 4.3 わが国における処分ケースとの関連と今後

わが国における代替処分オプションのひとつとしての直接処分の検討の対象となるレファレンス燃料の設定はなく、あえて設定するならば、わが国における TRU 廃棄物処分[82]や高レベル廃棄物処分[89]の安全評価において共通的に用いられている燃焼仕様（モデルガラス固化体）である以下となる。

- ・ 炉型 : PWR
- ・ 濃縮度 : 4.5 wt%
- ・ 比出力 : 38.0 MW MTU<sup>-1</sup>
- ・ 燃焼度 : 45,000 MWD MTU<sup>-1</sup>
- ・ 炉取出しだから処分までの期間 : 50 年

上記に最も近いケースは、スイス EN2002 で評価されたうちの、PWR 48 GWd MTU<sup>-1</sup> (Table 2) である。これに対応する IRF 値は、ギャップと結晶粒界中のインベントリ実測値を参考に保守的判断を加え、さらにリム領域からの瞬時放出が加味されていることから、安全評価における保守側の仮の設定値として適用可能であると考えられる。使用済燃料および構造材からの核種の放出挙動については、現在も国際的なプロジェクトを中心にデータ取得や議論が精力的に継続されている（例えば[63,83,90]）ことから、それらの動向に注目し、調査結果を燃料バリエーションや地下環境などの処分ケースごとに整理してデータベース化することが重要と考えられる。

また、わが国の使用済燃料の特性を把握するためには、現存する国内における PIE のデータと諸外国で行われた PIE のデータの比較検討を継続する必要があるが、国内試験データは少なく、特異的な燃料（開発中試験装荷やリーグ燃料）のデータも混在しており十分とは言えない。このため、今後も継続的な PIE の実施が望ましい。一方で、様々な燃料バリエーションに対して PIE を行うことはコスト的に現実的ではない。高燃焼度化の将来予測を踏まえつつ、PIE で網羅できない想定照射条件については、シミュレーション計算手法を活用することが考えられる。例えば、限られた国内 PIE の結果（照射履歴、物性値等）をインプットとする FEMAXI 等による FGR の計算値と実測値との比較を行いながら、シミュレーション計算手法の適用範囲を広げていくことなどが考えられる。

## 5 結言

使用済燃料からのソースタームのうち、瞬時放出に係る放射性核種およびそれらの瞬時放出割合 (IRF) について、諸外国における直接処分の安全評価レポート等を調査し、各国の処分対象燃料の性状およびソースタームパラメータの設定ならびに設定の際の考え方を整理した。その結果、各国とも概ね同様の根拠データを参照しているものの、各々の炉型や燃焼度等の影響を加味した結果において、各国間で若干の違いがみられた。また、各国のパラメータ設定に含まれる様々な不確実性については、その包含方法が各国で異なっており、今後も継続調査が必要と思われた。

今後は、これらの諸外国の基盤情報に加えて、わが国の使用済燃料の特性を踏まえつつ、わが国の最終処分の代替

オプションの検討のひとつとして、直接処分の安全評価のためのソースタームパラメータを設定していく必要がある。

## 謝辞

本研究の一部は、平成 26 年度経済産業省受託事業「地層処分技術調査等事業－使用済燃料直接処分技術開発」で実施したものである。

## 参考文献

- [1] 日本国政府: 特定放射性廃棄物の最終処分に関する法律, 平成十二年六月七日法律第百十七号 (最終改正: 平成二六年六月十三日法律第六九号), (2014)
- [2] 日本国政府: エネルギー基本計画 .  
<http://www.meti.go.jp/press/2014/04/20140411001/20140411001-1.pdf>, (2014).
- [3] 日本国政府: 特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針, 平成 27 年 5 月 22 日閣議決定  
<http://www.meti.go.jp/press/2015/05/20150522003/20150522003-1.pdf>, (2015).
- [4] Nagra: Project Opalinus Clay Safety Report, Demonstration of disposal feasibility for spent fuel, vitrified high-level waste and long-lived intermediate-level-waste (Enstorgungsnachweis). NTB 02-05, Nagra (2002)
- [5] 原子力委員会新計画策定会議技術検討小委員会: 基本シナリオの核燃料サイクルコスト比較に関する報告書 (2004).
- [6] SKBF/SKB: Final Stage of Spent Nuclear Fuel -KBS-3. SKBF/KBS (1983).
- [7] 経済産業省資源エネルギー庁: 諸外国における高レベル放射性廃棄物の処分について 2015 年版.  
<http://www2.rwmc.or.jp/publications:hlwkj2015> (2015).
- [8] NWMO: Adaptive Phased Management Used Fuel Repository Conceptual Design and Postclosure Safty Assessment in Crystalline Rock Pre-Project Report. TR-2012-16, NWMO (2012).
- [9] ANDRA: Dossier 2005 Argille Tome Phenomenological evolution of a geological repository. ANDRA, (2005).
- [10] Stroes-Gascoyne,S. : Mesurement of instant-release source terms for 137Cs, 90Sr, 99Tc, 129I and 14C in used CANDU fuels. *J. Nucl. Mater.* **238**, 264-277 (1996).
- [11] SKB: Long-term safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark Main report of the SR-Site project (3 volumes). TR-11-01, SKB (2011).
- [12] SKB:Spent nuclear fuel for disposal in the KBS-3 repository. TR-10-13, SKB (2010).
- [13] SKB: Data report for the safety assessment SR-Site. TR-10-52, SKB (2010).
- [14] Johnson,L.H., Tait,J.C. :Release of segregated nuclides from spent fuel. TR-97-18, SKB (1997).
- [15] Johnson,L.H., McGinnes, D.F.: Partitioning of Radionuclides in Swiss Power Reactor Fuels. NTB 02-07, Nagra (2002).
- [16] Johnson,L., Ferry,C., Poinsot,C., Lovera,P. : Spent fuel radionuclide source-term model for assessing spent fuel performance in geological disposal. Part I :Assessment of the instant release fraction. *J. Nucl.Mater.* **346**, 56-65 (2005).
- [17] Forsyth, R.S., Werme,L.O.: Spent fuel corrosion and dissolution. *J. Nucl. Mater.* **190**, 3-19 (1992).
- [18] Forsyth, R.S.,:The SKB Spent Fuel Corrosion Programme. An evaluation of results from the experimental programme performed in the Studsvik Hot Cell Laboratory. TR-97-25, SKB (1997).
- [19] Gray,W.J., Strachan,D.M., Wilson,C.N. : Gap and grain boundary inventories of Cs, Tc, and Sr in spent LWR fuel., *Mat Res Soc. Symp. Proc.* **257**, 353-360 (1992).
- [20] Gray,W.J. : Investigation of Iodine-129 and Cesium-137 in the Gaps and Grain Boundaries of LWR Spent Fuels, *Mat Res Soc. Symp. Proc.* **556**, 487-494 (1999).
- [21] Oversby, V.M. & H.F. Shaw.:Spent fuel performance data: An analysis of data relevant to the NNWSI project. Lawrence Livermore National Laboratory Report UCID-20926, (1987).
- [22] Wilson, C.N., H.F. Shaw.: Experimental study of the dissolution of spent fuel at 85°C in natural groundwater. *Mat Res Soc. Symp. Proc.* **84**, 123-130 (1987).
- [23] Wilson,C.N.:Summary of results from the series 2 and series 3 NNWSI bare fuel dissolution tests. *Mat Res Soc. Symp. Proc.* **112**, 473-484 (1988).
- [24] Wilson, C.N., Gray,W.J.,:Measurement of soluble nuclide dissolution rates from spent fuel. *Mat Res Soc. Symp. Proc.* **176**, 489-498, (1990).
- [25] Neal, W.I., Rawson,S.A., MurphyY, W.M.: Radionuclide release behaviour of light water reactor spent fuel under hydrothermal conditions. *Mat Res Soc. Symp. Proc.* **112**, 505-515, (1988).
- [26] Grambow,B., A.Loida, A Martinez-Esparza, P.Diaz-Arocas, J. De Pablo, J.L. Paul, G Marx, J.P. Glats, K. Lemmens, K. Ollila & H. Christensen.: Source term for performance assessment of spent fuel as a waste form. EC Report EUR 19140 EN. (2000).
- [27] Oldberg,K. : Distribution of fission gas release in 10×10 fuel. TR-09-25. SKB (2009).
- [28] Nordstrom,E. :Fission gas release data for Ringhals PWRs. TR-09-26, SKB (2009).
- [29] Cubicciotti,D, and Sanecki,J. E. : Characterization of deposites on inside of LWR cladding. *J. Nucl.Mater.* **78**, 96-111 (1978).
- [30] Tait,J.C., Cornett,R.J.J, Chant,L.A.,Jirovec,J.,McConnel,J., Wilkin,D.L. :Determination of ClImpurities and Cl36 instant rerelease from used CANDU fuels. *Mat Res Soc. Symp. Proc.* **465**, 503-510, (1997).
- [31] Yamaguchi,I., Tanuma,S., Yasutomi,I., Nakayama,T.,

- Tanabe,H., Katsurai,K., Kawamura,W., Maeda,K., Katao,H. and Saigusa,M.:A study on chemical forms and migration behaviour of radionuclides in hull wastes., Proceedings of the 7th ASME-ICEM, **99**, Nagoya,Japan, September 1999, (1999)
- [32] Posiva Oy : Safety Case for the Disoposal of Spent Fuel at Olkiluoto - Performance assessment 2012. WR 2012-07, Posiva Oy (2013).
- [33] Posiva Oy: Safety Case for the Disoposal of Spent Fuel at Olkiluoto - Models and Data for the Repository System. WR 2013-01, Posiva Oy (2013).
- [34] Anttila,M. : Radioactive characteristics of the spent fuel of the Finnish nuclear power plants. Olkiluoto, Finland. WR 2005-71, 310 p. Posiva Oy (2005).
- [35] Nykyri,M., Nordman,H., Marcos,NH., Poteri,A., Hautojarvi,A.:Radionuclide Release and Transport - RNT-2008. 2008-06, Posiva Oy (2008).
- [36] SKB : Long-term safety for KBS-3 repositories at Forsmark and Laxemar - a first evaluation Main Report of the SR-Can project Spent nuclear fuel for disposal in the KBS-3 repository. TR-06-09, SKB (2006).
- [37] Holcombe, S., Willman, C., Knuutila, A. and Ranta-Puska, K. : Experimental fission gas release determination at high burnup by means of gamma measurements on fuel rods in OL2., Proceedings of Top Fuel 2009., pp. 135-143 (2009).
- [38] Dunavant, R., Jahingir, M., Schneider, R., Doncell, N., Munoz-Reja, C., Knuutila, A. and Ranta-Puska, K. R.-P. : Successful high burnup irradiation campaign of the GE14 LUAS at TVO's OL1 reactor: Inspection results and assessments. Top Fuel 2012, Manchester. 2-6 September 2012 (2012).
- [39] Tait, J.C., Hanna,S :Characteristics and radionuclide inventories of used fuel from OPG Nuclear Generating Stations, Volume 3 - Radionuclide inventory data. Decay times 10 to 300 years. Ontario Power Generation Report 06819-REP-01200-10029-R00. (2001).
- [40] F. Garisto, M. Gobien, E. Kremer and C. Medri :Fourth Case Study: Reference Data and Codes. TR-2012-08, NWMO (2012).
- [41] Johnson, L., C. Poinsot, C. Ferry and P. Lovera : Estimates of the instant release fractions for UO<sub>2</sub> and MOX fuel at t=0 – A report of the Spent Fuel Stability (SFS) Project of the 5th Euratom Framework Program. NTB 04-08, NAGRA (2004).
- [42] Iglesias,F., Kaye,M., Lewis,B. :Estimate of instant Release Fractions Using ORIGEN-S and FEMAXI. TR-2011-19, NWMO (2011).
- [43] Kleykamp,H. :The chemical state of the fission products in oxide fuels. *J.Nucl.Mater.* **131**, 221-246 (1985).
- [44] Garisto,F., Gierszewski,P. :Technetium-99:Review of properties relevant to a Canadian geologic repository. Ontario Power Generation Report 06819-REP-01200-10081-R00. (2002).
- [45] McGinnes: Model Radioactive Waste Inventory for Reprocessing Waste and Spent Fuel. NTB 01-01 (2002).
- [46] Kamimura, K.: FP gas release behaviour of high burnup MOX fuels for thermal reactors, Proc. of Technical Committee Meeting on Fission Gas Release and Fuel Rod Chemistry Related to Extended Burnup, April-1 May 1992, IAEA-TECDOC-697, p. 82. (1992).
- [47] Vesterlund, G. & L.V. Corsetti.: Recent ABB fuel design and performance experience, Proc. International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, West Palm Beach, Florida, April 17-21, p.62, ANS. (1994).
- [48] Guerin, Y., D. Lespiaux, C. Struzik & L. Caillot.:Behaviour of MOX fuel as compared to UO<sub>2</sub> fuel. Physics and Fuel Performance of Reactor-Based Plutonium Disposition, NEA Workshop Proc., pp.28-30, 1998, Sep, Paris (1999).
- [49] Schrire, D., I. Matsson & B. Grapengiesser.: Fission gas release in ABB SVEA 10x10 BWR fuel. Proc. Int. Top. Mtg. LWR Fuel Performance. 104-117, (1997).
- [50] Hallstadius, L. & B. Grapengiesser.: Progress in understanding high burnup phenomena. IAEA Technical Committee Meeting on Fuel Performance at High Burnup for Water Reactors. Studsvik 1990. IAEA, IWGFPT-36, 52-57 (1990).
- [51] Haas, D. & M. Lippens.: MOX fuel fabrication and in-reactor performance. Proceedings Global '97, Oct. 5-19, 1997, Yokohama, pp. 489-494. (1997).
- [52] Koo, Y.-H., Lee, B.-H., Cheon, J.-S. & Sohn, D.-S. 2001: Pore pressure and swelling in the rim region of LWR high burnup UO<sub>2</sub> fuel. *J. Nucl. Materials* **295**, pp. 213-230 (2001).
- [53] Poinsot, C., P. Toulhoat, J. P. Grouiller, J. Pavageau, J. P. Piron, M. Pelletier, P. Dehaut, C. Cappaere, R. Limon, L. Desranges, C. Jegou, C. Corbel, S. Maillard, M. H. Faure, J. C. Cicariello, M. Masson.: Synthesis on the Long Term Behavior of the Spent Nuclear Fuel, Volume 1 & 2." CEA-R-5958(E). Saclay, France: Commissariat A L'Energie Atomique. 2001.16. (2001).
- [54] Johnson L.H., D.M. LeNeveu, F. King, D.W. Shoesmith, M.Kolar, D.W. Oscarson, S. Sunder, C. Onofrei, and J.L. Crosthwaite; The disposal of Canada's nuclear fuel waste: A Study of postclosure safety of in-room emplacement of used CANDU fuel waste: A containers in permeable plutonic rock, Volume 2: Vault model., AECL-11494-2, Pinawa, Canada. (1996).
- [55] U.S. DOE: Yucca Mountain repository license application: Safety analysis report. DOE/RW-0573, US-DOE (2008).
- [56] U.S. DOE :CSNF Waste Form Degradation: Summary Abstraction. U.S. DOE, DOC.20040908.0001, ANL-EBS-MD-000015 (2004).
- [57] U.S. DOE :Yucca Mountain Repository Licence Application ASFETY ANALYSIS REPORT. U.S. DOE DOE/RW-0573 (2008)

- [58] ANDRA:Dossier 2005 Argile – Synthesis: Evaluation of the feasibility of a geological repository in an argillaceous formation, ANDRA (2005).
- [59] ANDRA:Dossier 2005 Argille Tome Safety evaluation of a geological repository. ANDRA, (2005).
- [60] Poinssot, C., Ferry, C., Kelm, M., Grambow, B., Martinez, A., Johnson, L., Andriambololona, Z., Bruno, J., Cachoir, C., Cavedon, J. M., Christensen, H., Corbel, C., Jegou, C., Lemmens, K., Loida, A., Lovera, P., Misserque, F., De Pablo, J., Poulesquen, A., Quinones, J., Rondinella, V., Spahiu, K. and Wegen D. H.: Spent Fuel Stability Under Repository Conditions – Final Report of the European Project, Contract No. FIKW-CT-2001-00192 SFS (2005).
- [61] H.J.Matzke : Radiation enhanced diffusion in UO<sub>2</sub> and (U, Pu)O<sub>2</sub>, *Radiat. Eff.* 75(1-4), 317-325 (1983)
- [62] C. Ferry, P. Lovera, C. Poinssot, and L. Johnson: Quantitative Assessment of the Instant Release Fraction (IRF) for Fission Gases and under Geological Disposal Conditions. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **807**, 35-40 (2004).
- [63] Kienzler, B., Metz, V., Duro, L., Valls, A. (eds) :FIRST Nuclides DELIVERABLE (D-N°:5.4),Final (3rd) Annual Workshop Proceedings. European Commission (2014).
- [64] Casas,I., Espriu, A., Serrano-Purroy, D., Martinez-Esparza, A. and de Pablo, J. : IRF modeling from high burn-up spent fuel leaching experiments. 1st W.S. Proc. of the 7th FP FIRST Nuclides, Budapest, Hungary, October 2012.,31-39 (2012).
- [65] Pekala, M., Riba, O. and Duro, L.. (eds) :FIRST Nuclides DELIVERABLE (D-N°:4.2),Model for fission products release from spent nuclear fuel and their applicability to the FIRST Nuclides project. European Commission (2013).
- [66] Speight M.V. : A calculation on the migration of fission gas in material exhibiting precipitation and re-solution of gas atoms under irradiation. *Nucl. Sci. Eng.* **37**, 180-185 (1969).
- [67] Van Uffelen p., Pastore G., Di Marcello V., and Luzzi L. : Multiscale modeling for the fission gas behaviour in the Transuranus code. *Nucl. Eng Technol* **43**, 477-488. (2011).
- [68] Pastore G., Luzzi L., Di Marcello V. and Van Uffelen P..Physics-based modelling of fission gas swelling and release in UO<sub>2</sub> applied to integral fuel rod analysis. *Nucl. Eng. Des.* **256**, 75-86. (2013).
- [69] Hargreaves R. and Collins D. A. A quantitative model for fission gas release and swelling in irradiated uranium dioxide. *J. Brit. Nucl. Energy Soc.* **15**, 311-318 (1976).
- [70] Ito K., Iwasaki R. and Iwano Y.. Finite element model for analysis of fission gas release from UO<sub>2</sub> fuel. *J. Nucl. Sci. Technol.* **22**, 129-138 (1985).
- [71] White R. J.:The development of grain-face porosity in irradiated oxide fuel. *J. Nucl. Mater.* **325**, 61-77. (2004).
- [72] Veshchunov M. S.:Modelling of grain face bubbles coalescence in irradiated UO<sub>2</sub> fuel. *J. Nucl. Mater.* **374**, 44-53 (2008).
- [73] Pastore, G.:Modelling of Fission Gas Swelling and Release in Oxide Nuclear Fuel and Application to the TRANSURANUS Code. Doctoral Thesis, Politecnico de Milano (2012).
- [74] Bernard L. C., Jacoud J. L. and Vesco P. ;FRAMATOME analysis of fission gas release and related topics. In: Fission gas behaviour in water reactor fuels. Seminar Proceedings, Cadarache, France 26-29 September 2000. Nuclear Science, OECD Publishing, Paris. DOI: <http://dx.doi.org/10.1787/9789264196353-en> (2000).
- [75] Walker, C.T. and Lassman, K. : Fission gas and caesium gradients in single grains of transient tested UO<sub>2</sub> Fuel:Results of an EPMA investigation. *J. Nucl. Mater.* **138**, 155-161 (1986).
- [76] Serrano-Purroy, D., Clarens, F., González-Robles, E., Glatz, J.P., Wegen, D.H., de Pablo, J., Casas, I., Giménez, J. & Martínez-Esparza, A. : Instant release fraction and matrix release of high burn-up UO<sub>2</sub> spent nuclear fuel: Effect of high burn-up structure and leaching solution composition. *J. Nucl. Mater.* **427**(1-3), 249-258 (2012).
- [77] Johnson, L., Günther-Leopold, I., Kobler Waldis, J., Linder, H.P., Low, J., Cui, D., Ekeroth, E., Spahiu, K. & Evins, L.Z. : Rapid aqueous release of fission products from high burn-up LWR fuel: Experimental results and correlations with fission gas release. *J. Nucl. Mater.* **420**(1-3), 54-62 (2012).
- [78] Clarens, F., Gonzales-Robles, E., Gimenez, F.J., Casas, I., de Pablo, J., Serrano, D., Wegen, D., Glatz, J.P. & Martínez-Esparza, A. : Effect of burn-up and high burnup structure on spent nuclear fuel alteration. Madrid, Spain: Enresa. Enresa Report 04/2009. (2009).
- [79] Roudil, D., Jegou, D., Brodlic, V. & Tribet, M. : Rim instant release radionuclide inventory from French high burnup spent UOX fuel., Materials Research Society Symposium Proceedings, vol. **1193**. Warrendale, PA, USA: Materials Research Society, pp. 627-633. (2009).
- [80] M. Sasoh: The Study of the Chemical Forms of C-14 Released from Activated Metal, Proceedings of the workshop on the release and transport of C-14 in repository environments, NAGRA NIB 04-03, pp.21-23 (2004).
- [81] 野下健司 : 照射環境下における C-14 化学形態の基礎研究. In: 金属廃棄物中の放射化物（炭素 14）の挙動等に関する国内外の情報調査, 原環センター技術報告書, RWMC-TRJ-04002-2, pp. 88-93 (2005).
- [82] 核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会 : 第 2 次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ. JNC-TY1400 2005-013(2005).
- [83] 原子力環境整備促進・資金管理センター : 平成 25 年度 地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発報告書（第 2 分冊）－炭素 14 長期放出挙動評価－(2014).

- [84] Gascoyne, M.: Hydrogeochemistry, groundwater ages and sources of salts in a granitic batholith on the Canadian Shield, southeastern Manitoba. *Appl. Geochem.* **19**, 519-560 (2004).
- [85] Zhang, M. and S.K. Frape: Permafrost: Evolution of Shield Groundwater Compositions during Freezing. Ontario Power Generation Report 06819-REP-01200-10098-R00. Toronto, Canada. (2002).
- [86] Blyth, A., S. Frape, R. Blomqvist and P. Nissinen: Assessing the past thermal and chemical history of fluids in crystalline rock by combining fluid inclusion and isotope investigations of fracture calcite. *Appl. Geochem.* **13**, 1417-1437 (2000).
- [87] McMurry, J. and R.B. Ejeckam.: Paleohydrogeological Study of Fracture Mineralogy in the Whiteshell Research Area. Ontario Power Generation Report 06819-REP-01200-10082-R00. Toronto, Canada. (2002).
- [88] Spiessl, S.M., K.U. Mayer and K.T.B. MacQuarrie. 2009. Reactive Transport Modelling in Fractured Rock – Redox Stability Study. Nuclear Waste Management Organization Report NWMO TR-2009-04. Toronto, Canada. (2009).
- [89] 核燃料サイクル機構: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 総論レポート. JNC TN1400 99-020 (1999).
- [90] Yamashita, Y., Tanabe, H., Sakuragi, T., Takahashi, R. and Sasoh, M.:C-14 Release Behavior and chemical Species from Irradiated Hull Waste under Geological Disposal Conditions. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **1665**, 187-40 (2014).

