

## 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

### - (2) 使用済燃料および構造材の溶解速度評価

北村暁\*1 近沢孝弘\*1 赤堀邦晃\*2 館幸男\*1

わが国では、従前の高レベル放射性廃棄物の地層処分に加えて、使用済燃料を直接深地層中に処分する方策（以下、直接処分）など、代替処分オプションに関する調査・研究が開始されている。このことを受け、直接処分の安全評価に必要となるパラメータのうち、使用済燃料および構造材（ジルカロイ被覆管や制御棒など）の溶解速度の設定に資することを目的として、直接処分の安全評価を進めている欧米各国の設定値を一覧するとともに、設定根拠および不確実性評価について調査した。欧州国については、設定に当たって欧州委員会主催のプロジェクトの成果を踏まえていることから、その内容についても概説した。溶解速度設定の根拠となる実測値については、各国とも共通して用いられているものが多く、得られた設定値についても類似しているものが多く見受けられた。また、不確実性については定量的な評価が難しいことから、各国とも保守的にパラメータを設定している様子が見受けられた。以上の内容は、わが国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おける溶解速度の設定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、燃料マトリクス溶解、溶解速度、構造材、腐食速度

The Japanese geological disposal program has started researching disposal of spent nuclear fuel (SF) in deep geological strata (hereafter "direct disposal of SF") as an alternative management option other reprocessing followed by vitrification and geological disposal of high-level radioactive waste. We conducted literature survey of dissolution rate of SF matrix and constructing materials (e.g. zircaloy cladding and control rods) selected in safety assessment reports for direct disposal of SF in Europe and United States. We also investigated basis of release rate determination and assignment of uncertainties in the safety assessment reports. Furthermore, we summarized major conclusions proposed by some European projects governed by European Commission. It was found that determined release rates are fairly similar to each other due to use of similar literature data in all countries of interest. It was also found that the determined release rates were including conservativeness because it was difficult to assign uncertainties quantitatively. It is expected that these findings are useful as fundamental information for determination of the release rates for the safety assessment of Japanese SF disposal system.

**Keywords:** direct disposal of spent nuclear fuel, safety assessment, source term, fuel matrix dissolution, dissolution rate, construction material, corrosion rate

## 1 緒言

### 1.1 序論

わが国では使用済燃料の全量を再処理し、ウランとプルトニウムを抽出したあとの高レベル放射性廃液をガラス固化した上で、地下300m以深の地層中に処分することが求められている[1]。一方で、使用済燃料を直接深地層中に処分（以下、直接処分）することなどについて、「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などその他の処分方法に関する調査研究を推進する」といったことも明記されている[2-3]。したがって、代替処分オプションの検討のひとつとして、使用済燃料を直接処分するための処分システムの設計と安全性の評価が求められている。

処分システムの安全性を評価する上で、直接処分がガラス固化体の地層処分と大きく異なる内容のひとつとして、廃棄体（使用済燃料もしくはガラス固化体）からの放射性核種の放出挙動の評価が挙げられる。具体的には、放出される核種の種類、放出量、放出時期、放出もしくは溶解速度、化学形態などの評価であり、これらの評価を総称して「ソースターム評価」と呼ぶ。ガラス固化体の場合、放射性核種はガラスと調和的に溶解することが知られている[4]。一方で、直接処分においては①使用済燃料（二酸化ウラ

ン ( $UO_2$ ) マトリクス）の溶解に伴う調和的な核種溶出が支配的であると考えられる。さらに、使用済燃料では、②ガラス固化体には含まれない気体状もしくは揮発性の核分裂生成物（再処理工程などで分別される）や、③燃料被覆管など燃料集合体を構成する金属（以下、構造材金属）に含まれる放射化生成物も、使用済燃料を封入するキャニスターの破損後に放出されると考えられる。使用済燃料と調和的に溶解する成分についても、その溶解速度はガラス固化体からの溶解速度とは大きく異なるものと考えられる。

いくつかの欧米諸国では、すでに直接処分システムの設計や安全性の評価（安全評価）が実施されていることから、それらを参考にするのが適切である。この安全評価の中では、上記①～③の評価のために、それぞれ①使用済燃料マトリクスの長期的な溶解速度、②キャニスター破損後に使用済燃料や構造材から速やかに放出する成分の割合（瞬時放出率 (instant release fraction; IRF)）、そして③構造材の腐食に伴う核種の放出もしくは溶解（腐食）速度（瞬時放出および長期溶解）が評価されている。欧米諸国では、これらの評価のために、実際の使用済燃料や構造材を用いた溶出試験なども実施されている。しかしながら、わが国では使用済燃料の全量を再処理することが前提となっているため、IRF や溶解・放出速度の評価値のみならず、直接処分を目的とした溶出などに関する実測データも存在していない。このことから、代替処分オプションの検討のひとつである直接処分の研究開発第1次取りまとめ[5]では、レファレンスケースとして設定した使用済燃料のタイプおよび燃焼度が類似しているスイス EN2002 プロジェクトの設定値[6]をそのまま採用している。

このことから、諸外国におけるソースターム評価の現状をまとめ、それを一覧することで、わが国におけるソース

Evaluation of source term parameters for spent fuel disposal in foreign countries  
- (2) Dissolution rates of spent fuel matrices and construction materials for fuel assemblies by Akira KITAMURA (kitamura.akira@jaea.go.jp), Takahiro CHIKAZAWA, Kuniaki AKAHORI, Yukio TACHI

\*1 国立研究開発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

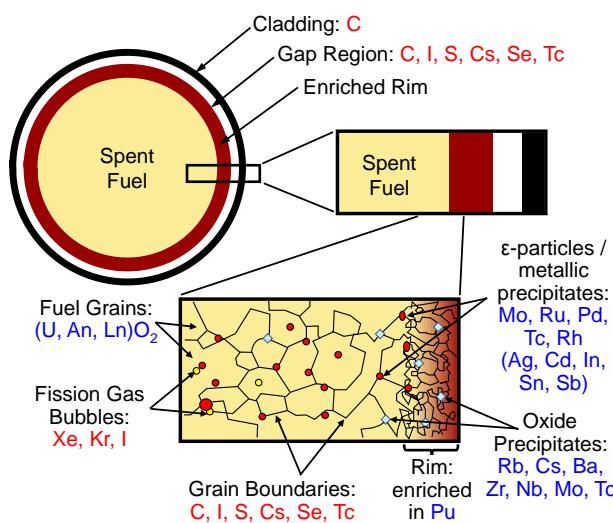
\*2 三菱マテリアル株式会社 Mitsubishi Materials Co.  
〒330-8508 埼玉県さいたま市北袋町 1-297

(Received 19 December 2015; accepted 24 March 2016)

ターム評価の基盤情報が整理できるものと考える。ソースターム評価には大別して、「瞬時放出」である IRF と「長期溶解」である溶解速度の 2 項目がある。本論文では、これらのうち、燃料および構造材の溶解速度（すなわち、上記①および③の一部）に関する諸外国の状況をまとめ、IRF については別稿[7]にまとめる。

## 1.2 使用済燃料および構造材の溶解に伴う核種放出

燃料集合体に含まれる放射性核種とその分布状況を Fig. 1[8] に示す。すべてのアクチニド元素および約 98 % の核分裂生成物は、主に酸化物として  $\text{UO}_2$  マトリクス中に固溶しており[6]、 $\text{UO}_2$  マトリクスと調和的に溶解するものと考えられる (Fig. 1[8] 中に青字で記した各元素)。気体状および揮発性核種や、ギャップおよび粒界に存在する核種 (Fig. 1[8] 中に赤字で記した各元素) は比較的速やかに放出されると考えられ、瞬時放出成分として取り扱われている。使用済燃料の外側に生成するリム部では、酸化物だけでなく金属状の放射性核種も存在すると考えられる[8]。マトリクス + リム部に含まれる放射性核種については、その溶解速度は比較的遅いものと考えられる[8]。



**Fig. 1 Schematic illustration of the microstructure of spent fuel and the distribution of actinides and fission products following burn-up in a reactor [8]**  
Red labels indicate nearly instantaneous release upon contact with water; blue indicates slower release rates. An = actinides and Ln = lanthanides in solid solution in the  $\text{UO}_2$  matrix.

純粹かつ完全に結晶化した  $\text{UO}_2$  ( $\text{UO}_2(\text{cr})$ ) は、閉鎖後の処分環境（開口時に処分場内に侵入した酸素がベントナイト鉱物、岩盤中の鉱物、微生物活動、キャニスターの腐食により消費された還元性環境）では、熱力学的に安定である。しかしながら、熱力学平衡計算によると、 $\text{UO}_2(\text{cr})$  が安定である液相中の最大溶存酸素濃度は  $10^{-65} \text{ atm}$  であり、酸素がこれよりも高い場合には固相の  $\text{UO}_2(\text{cr})$  表面が酸化し  $\text{UO}_{2+x}(\text{cr})$  の形態に変化する[9]。ここで、 $x$  は液相が大気と接触した条件では 0.33 となる可能性があり、すなわち 4 値

ウラン (U(IV)) の一部が 6 価 (U(VI)) もしくは 5 価 (U(V)) に酸化される可能性がある[9]。

処分環境で想定される中性かつ嫌気性条件では、熱力学平衡計算による  $\text{UO}_2(\text{cr})$  の理論的溶解度は極めて低い ( $\sim 10^{-15} \text{ M}$  ( $\text{M}$ : mol  $\text{dm}^{-3}$ )[10])。その一方で、これまでの試験により、 $\text{UO}_2(\text{cr})$  が非晶質  $\text{UO}_2$  ( $\text{UO}_2(\text{am})$ ) に変化し、 $\text{pH} > 4$  かつ炭酸イオン等との錯生成が起こらないという条件では、溶解度が  $\text{pH}$  に依存せず、約  $10^{-9.5} \text{ M}$  という一定値をとることが知られている[11-13]。

二酸化ウランの溶解平衡反応は次式で表され、液相中の U(IV) の濃度は燃料表面での溶解平衡により制限される。



ただし、U(IV) は、たとえ還元条件であっても、ごく微量の酸素の存在によって U(VI) に酸化されやすい[14]。U(VI) の溶解度は U(IV) よりも数桁高く、地下水に溶解しやすいことが知られている[10]。

地下深部の地下水は還元性であると考えられており、キャニスターの欠陥から浸入する地下水も還元性であると考えられているが、燃料ペレット表面近傍の液相中では水の放射線分解により酸化体を生じる。水の放射線分解は  $\alpha$  線、 $\beta$  線、 $\gamma$  線により生じるが、主に短半減期核種の崩壊により生じる  $\beta$  および  $\gamma$  線の表面線量率が高い時期は、キャニスター定置後  $10^3 \text{ y}$  程度までに限定される。その後の長期における水の放射線分解は、 $\alpha$  線によるものである。分解生成物として生じる酸化体の中で、長期的な安全評価において考慮すべき酸化体は、解析的研究結果から  $\text{H}_2\text{O}_2$  であると考えられている[15-18]。

水の放射線分解が直接処分システムに及ぼす影響の詳細については別途まとめている[19-20]ことから、ここでは概略のみを記す。1990 年代半ばには、水の放射線分解に伴って生成する  $\text{H}_2\text{O}_2$  は、 $\text{UO}_2$  マトリクスの溶解速度のみならず、地下水や緩衝材間隙水の酸化還元フロントの移行にまで影響することが懸念されていた（たとえば[21]）。2000 年以降、後述する欧州委員会主催のプロジェクト等で水の放射線分解の影響について詳細に議論された結果、キャニスターの腐食などにより発生する水素ガスが  $\text{H}_2\text{O}_2$  の生成を抑制する効果が確認されていることなどから、水の放射線分解の影響は限定的であり、酸化還元フロントの移行には顕著な影響を及ぼさないという結論が主流となり[19]、諸外国の安全評価報告書もこの結論を支持している[20]。

構造材（燃料被覆管など）からの核種の放出については、比較的速やかに溶出する表面の酸化膜からの C-14 放出を保守的に瞬時放出として取り扱い、それ以外は比較的遅い、構造材の腐食に伴う放出として取り扱われる[6]。

## 1.3 調査対象

本報告では、直接処分を計画している国の、なるべく最新の安全評価報告書の情報を整理することとした。調査対象とした国名およびプロジェクト名を Table 1 にまとめる。

各国の安全評価および欧州委員会 (EC) の SFS プロジェクト[22]の特徴については、別稿[7]に記載する。別稿[7]に

Table 1 Projects of interest for spent fuel disposal

country	implementer	name of project	publication year (project duration)	reference
Sweden	SKB	SR-Site	2011	[23]
Finland	POSIVA	TURVA-2012 Safety Case	2012	[24]
Switzerland	NAGRA	Project Opalinus Clay (EN2002)	2002	[6]
		Preliminary safety assessment (PSA) for SGT-E2	2014	[25]
France	ANDRA	Dossier 2005 Argile	2005	[26]
USA	DOE	Yucca Mountain Project Repository License Application: Safety Analysis Report (SAR)	2008	[27]
Canada	NWMO	APM (Adaptive Phased Management) Fourth Case Study	2012	[28]
EC	EURATOM	SFS: Spent Fuel Stability under Repository Conditions	2001 – 2004	[22]
		NF-PRO: Understanding and Physical and Numerical Modelling of the Key Processes in the Near Field and their Coupling for Different Host Rocks and Repository Strategies	2002 – 2006	[29]
		MICADO: Model Uncertainty for the Mechanism of Dissolution of Spent Fuel in Nuclear Waste Repository	2006 – 2010	[30]
		REDUPP: Reducing Uncertainty in Performance Prediction	2011 – 2014	[31]

記載のないプロジェクトの概要については、本報告にて記載する。

## 2 欧州委員会によるプロジェクトの調査結果

欧州委員会 (EC) では、下部組織である欧州原子力共同体 (EURATOM) が主体となり、欧州の研究機関から参加機関を募って国際共同研究が実施されている。IRF や燃料マトリクスの溶解について、各国の安全評価では EC の国際共同研究の成果を引用している部分が多いことから、諸外国による評価に先立ち概説することとした。本報告では、2000 年以降において直接処分のソースターム評価に関する研究が実施されている 4 つのプロジェクトに注目した (Table 1 を参照)。

### 2.1 SFS (2001 - 2004)

SFS (Spent Fuel Stability) プロジェクト[22]では、5 つのワークパッケージが設けられ、このうち下記 3 つのワークパッケージ (WP) で燃料マトリクス溶解に関する研究を実施し、最終的に WP5 として直接処分における使用済燃料の性能を予測した。

- WP2: 使用済燃料の放射線学的溶解における反応メカニズムに関する研究
- WP3:  $\alpha$  核種をドープ (添加) した  $\text{UO}_2$  および実使用済燃料を用いた主要な実験研究
- WP4: マトリクス溶解モデルの構築

このうち、WP3 では、種々の U-233 添加  $\text{UO}_2$  を用いて溶解速度を実測しており、既往の報告値と併せて溶解速度の  $\alpha$  放射能との関係を調べている (Fig. 2)。諸条件が異なるためにばらつきは大きくなっているものの、 $\alpha$  放射能が高くなると溶解速度も高くなる傾向にあることがわかる。

WP4 では、マトリクス劣化モデル (MAM: The Matrix Alteration Model) の開発が進められた。MAM では、以下のプロセスを考慮している。

- 水の放射線分解による酸化性種と還元性種の生成
- 使用済燃料の酸化
- システムにおける酸化性種の還元
- 燃料マトリクスの溶解

MAM の妥当性確認は、 $\text{H}_2\text{O}_2$  濃度が  $10^{-5}$  M の条件における溶解速度の pH 依存性に対して例示されている (Fig. 3)。

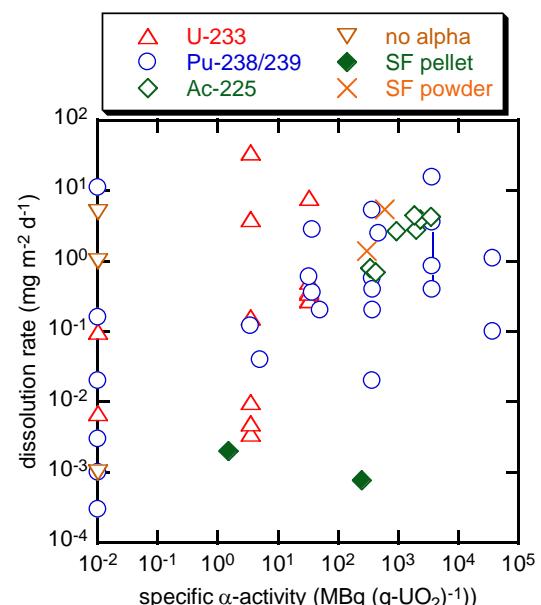
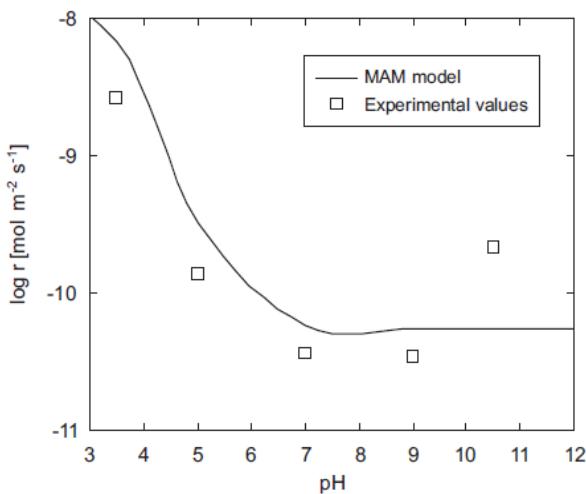


Fig. 2 Corrosion rates of alpha doped  $\text{UO}_2$ , non doped  $\text{UO}_2$  (0.01 MBq/g) and spent fuel and comparison with literature data summarized in the SFS Project (data taken from [32])



**Fig. 3**  $\text{UO}_2$  dissolution rate calculated using the MAM model compared to results from flow-through experiments with unirradiated  $\text{UO}_2$  at various pH values with  $[\text{H}_2\text{O}_2] = 1 \times 10^{-5} \text{ M}$  [33]

See Merino et al.[34] for details

MAM の妥当性確認として、溶解速度の pH 依存性の再現については測定結果と計算結果はおおむね一致した。なお、pH = 10.5 付近の実測値については、 $\text{HO}_2^-$  の寄与 ( $\text{UO}_2(\text{HO}_2)_3^-$  の生成) を考慮することで説明可能としている[34]。

MAM の計算では、欧州の主要な処分概念で対象となる、1) 花崗岩、2) 粘土岩、3) 岩塩の間隙水について、燃料の燃焼度  $41.5 \text{ Gwd (tIHM)}^{-1}$  (tIHM は tons of initial heavy metal, すなわち初期重金属重量を示す) を仮定し、燃料溶解速度の時間依存性を評価した。

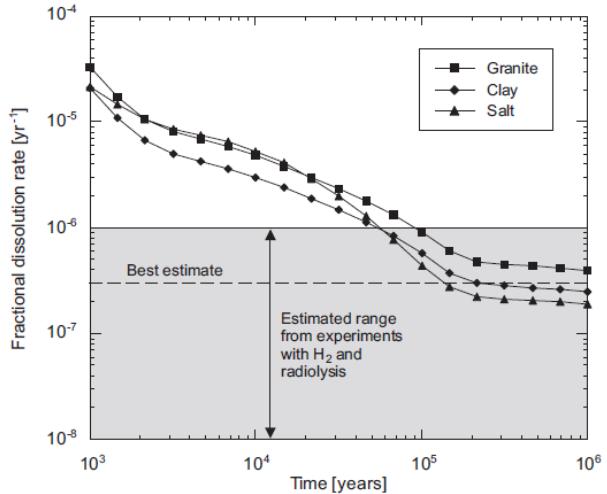
3種類の間隙水を設定したケースの特徴と 1,000 y 経過後の燃料の溶解速度を Table 2 に、燃料の溶解速度の時間変化を Fig. 4 に示す。岩塩については、 $\text{Cl}^-$  種に関連する反応 ( $\text{Cl}_2^-$  と  $\text{UO}_2$  の反応、 $\text{Cl}^-$  に関連する反応等) を考慮している。その一方で、Fig. 4 の結果では、花崗岩が最も溶解速度が大きい結果となっている理由として、粘土岩と岩塩では地下水化学的な詳細な考慮（とくに、pH、炭酸）がなされていないことを挙げている。また、 $\text{H}_2$  共存下で  $\alpha$  核種をドープした  $\text{UO}_2$  試料と実使用済燃料を使用した溶解試験結果から推定される燃料溶解速度の範囲 (Fig. 4 の灰色網掛部分) と比較すると、処分後  $5 \times 10^4 \text{ y}$  程度までの燃料溶解速度の計算値が推定範囲より高くなっていることがわかる。その理由は、 $\text{H}_2$  共存系では時間すなわち線量率の依存性に関する情報が不足しているためで、Fig. 4 の灰色網掛部分で示した燃料溶解速度の範囲が現実的かどうかは「将来解決すべき課題」とされている[33]。

## 2.2 NF-PRO (2002 - 2006)

NF-PRO プロジェクト[29]の正式名称は、Understanding and physical and numerical modelling of the key processes in the near field and their coupling for different host rocks and repository strategies (著者訳：ニアフィールドおよび種々の母岩や処分戦略の組み合わせた条件での主要な過程の理解および物理・数学的モデル化) である。このプロジェクト

**Table 2 Comparison of spent fuel dissolution rates at 1,000 years for granite, clay and salt porewaters [33]**

Medium	Water chemistry	Radiolytic yields	Surface area	$\text{UO}_2$ alteration scheme	$r (\text{mol m}^{-2} \text{ s}^{-1})$
Granite	$2 \times 10^{-3} \text{ M HCO}_3^-$ $0.01 \text{ M Cl}^-$	water	specific ( $70 \text{ cm}^2 \text{ g}^{-1}$ )	no $\text{Cl}_2^-$ reaction	$5.70 \times 10^{-13}$
Clay		water	specific ( $70 \text{ cm}^2 \text{ g}^{-1}$ )	no $\text{Cl}_2^-$ reaction	$3.2 \times 10^{-13}$
Salt	$5 \text{ M Cl}^-$ , no $\text{CO}_3^{2-}$ 's	brines	specific ( $70 \text{ cm}^2 \text{ g}^{-1}$ )	with the $\text{Cl}_2^-$ reaction	$7.70 \times 10^{-13}$



**Fig. 4** Comparison of fractional dissolution rates calculated using the MAM with the range of values estimated from experimental studies of dissolution of alpha-doped  $\text{UO}_2$  and spent fuel in the presence of  $\text{H}_2$  [33]

では 6 つの研究技術開発要素 (RTDC) で構成されており、このうち RTDC 1 が廃棄体の溶解および核種放出となっている。RTDC 1 はさらに 6 つの WP (1.1~1.6) で構成されており、このうち WP 1.5 では、キャニスタ破損後の使用済燃料溶解挙動として、使用済燃料や  $\text{UO}_2$  の溶解に及ぼす  $\alpha$  線影響評価を取り扱っており、8 種の実験研究が実施された結果、キャニスタの腐食により発生する水素ガスが水の放射線分解を抑制することが報告されている。

## 2.3 MICADO (2006 - 2010)

MICADO プロジェクト[30]の正式名称は、Model uncertainty for the mechanism of dissolution of spent fuel in nuclear waste repository (著者訳：放射性廃棄物処分場における使用済燃料の溶解メカニズム解明のためのモデルの不確実性) である。プロジェクトの中では、燃料マトリクス溶解に関する 5 つのモデル (MAM, スウェーデン王立科学アカデミー (KTH), SUBATECH, および CEA の 2 モデル) で評価されている不確実性を抽出している。

不確実性を評価する対象として、以下のようものが挙げられている。

- ・ 境界条件に関する不確実性：

- キャニスター 1 本あたりの燃料集合体収納数 (ひいては鉄含有量), 地下水接触シナリオ, 処分環境の進展, 等.
- ・ 処分場閉鎖後数千年までの初期状態に関する不確実性:
    - 燃焼度範囲, 試料の比表面積, 核種インベントリ, 放射性崩壊に伴う燃料の変化, He ガス影響 (アクセス可能な表面積), 等.
  - ・ 処分場閉鎖後数千年まで, キャニスターの腐食に伴い発生する水素ガスで処分場が飽和した状態での燃料マトリクス溶解の不確実性:
    - 溶解速度および U 濃度実測値, データ解釈 (熱力学対速度論), 粒界へのアクセス性, 放射線学的データベース (G 値等), 水素ガス影響評価モデル (電気化学的モデル等), キャニスター成分および埋め戻し材の影響に伴う燃料溶解, モデル使用者, 等.
  - ・ 処分数千年経過以降, 水素ガスが共存しない還元条件下における燃料マトリクス溶解の不確実性:
    - 放射線学的モデル (Fe<sup>2+</sup>影響等), 水素ガス影響評価モデル (電気化学的モデル等), キャニスター成分および埋め戻し材の影響に伴う燃料溶解, 等.

このうち, 燃料 (ペレット) の比表面積は燃料溶解速度に顕著な影響を及ぼすものとして注目されている. 同じ燃料ペレットについて, Fig. 5 で示すように, BET 法で測定された比表面積と幾何学的な比表面積との相関を調べ, 両者の比 (surface roughness factor) が UO<sub>2</sub> では 3, 使用済燃料では 3.5 が得られたとしている. さらに, 燃料ペレットの比表面積の範囲 (不確実性) について, 最小値を粉体試料および燃料試料の幾何学的比表面積に基づく値である 0.001 m<sup>2</sup> g<sup>-1</sup>, 最大値を BET 試験の平均値である 0.0071 m<sup>2</sup> g<sup>-1</sup> としている. この不確実性に伴い, 燃料溶解速度は 0.02 ~ 5 µg m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup> の範囲になると評価されている. また, 地下水流量が多い場合でも燃料マトリクスの溶解は速やかに平衡に到達する (すなわち溶解速度の影響を受けない) こと, 還元条件下において天然の閃ウラン鉱 (uraninite) の溶解速度がきわめて遅いことから, 使用済燃料の溶解速度も同様に低いと予想されることなどが報告されている. さらに, 種々の実験結果を基に, 原位置 (in-situ) での燃料溶解速度は 0.03 ~ 2.6 µg m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup> の範囲になる (緩衝材等に対する収着の寄与を含まない) と予想されている.

その一方で, キャニスターがベントナイトで包まれていて核種移行挙動が拡散律速となっている場合は, 重要なパラメータは燃料溶解速度ではなく地下水流量であり, 母岩中の収着・沈殿や閉じ込め性能の不確実性も重視されるべきであると指摘している. さらに, 燃料溶解に及ぼす水素ガスの影響や燃料ペレットの比表面積に関して不確実な部分が残っていること, MOX 燃料のデータが不足していること,  $\alpha$  線影響が閾値以下である場合に燃料マトリクスが長期的に熱力学平衡論 (溶解度) と速度論のどちらで支配されているか検討することなどが, 課題として挙げられている.

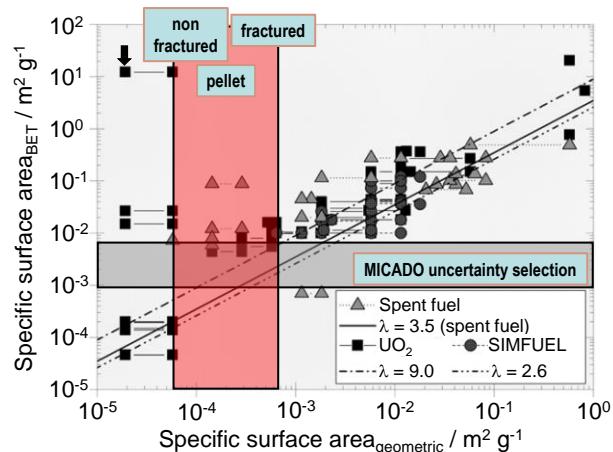


Fig. 5 Roughness factor of uranium oxides [30]

The diagram includes bulk and powdered samples, an average surface roughness factor  $\lambda = 3.5$  (uncertainty 2.6 to 9.0) can be deduced for irradiated fuel.

## 2.4 REDUPP (2011 - 2014)

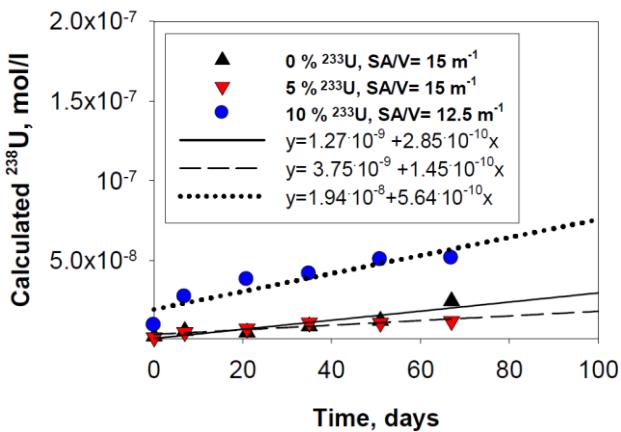
REDUPP (Reducing Uncertainty in Performance Prediction) [31]プロジェクトは, 燃料溶解速度の不確実性の低減を目的として, スウェーデンおよびフィンランドの機関を中心とし, UO<sub>2</sub>のみならず, 類似化合物として二酸化セリウム (CeO<sub>2</sub>) および二酸化トリウム (ThO<sub>2</sub>) の溶解速度を実験的に調べるとともに, 第一原理分子動力学法を用いて燃料表面の構造のモデル化を試みている. 不確実性要因としては, 試料の表面状態および結晶度, そして水溶液組成が取り上げられている.

結果として, CeO<sub>2</sub> を用いた溶解実験からは, CeO<sub>2</sub> の溶解挙動が溶解速度に応じて 4 段階あり, 徐々に溶解速度が低下して最後は一定値になること, ThO<sub>2</sub> の溶解挙動が沈殿生成や容器収着と対応していることなどが確認された. また, U-233 を 0 ~ 10 % 添加した UO<sub>2</sub> の溶解挙動をフィンランドの 3 種の天然地下水 (降水, 塩水および汽水) で調査した結果, 炭酸濃度が高いと溶解速度が高くなること (報告者注: ウラン(VI)炭酸錯体が速やかに生成するため), 水溶液に臭素が含まれていると溶解速度が低くなること (報告者注: 水の放射線分解に伴う酸化体の生成が抑制されるため), 比表面積および U-233 添加量が比較的高い条件では高い溶解速度が得られる場合があること (報告者注:  $\alpha$  線が水の放射線分解を促進するため) (Fig. 6) などが確認された. さらに, 第一原理分子動力学法を用いて固相の表面状態をモデルで再現している. その一方で, 溶解速度が固相の結晶性や粒界の大きさなどに影響されることから, 引き続き詳細な実験研究を必要とするとともに, 直接処分安全評価のための溶解速度設定は慎重に検討されるべきと結論づけている.

## 3 諸外国における燃料溶解速度の設定値と設定根拠

### 3.1 設定値の一覧

諸外国における燃料溶解速度 (y<sup>-1</sup>) の設定値とその設定



**Fig. 6 The evolution of calculated  $[^{238}\text{U}]$  in brackish OL-KR6 groundwater at higher specific surface area ( $12.5 - 15 \text{ m}^{-1}$ ) [31]**  
**The slopes from linear fitting to the initial 67 days are included.**

根拠を Table 3 に示す。国（機関）によって、燃料溶解速度の時間変化を考慮している場合と、保守的に一定値を与えている場合があることがわかる。以下、各国の設定根拠について概説する。

### 3.2 スウェーデン (SR-Site)

SR-Site [23]における燃料溶解速度については、確率論的評価を実施するために、最良値(best estimate)として  $10^{-7} \text{ y}^{-1}$ 、範囲として下限値～上限値として  $10^{-8} \sim 10^{-6} \text{ y}^{-1}$  の常用対数スケールの三角分布関数 (triangular distribution) を与えている[35]。これらの値は、SR-Site のひとつ前の安全評価である SR-Can[36]で設定した、Werme et.al.[9]の最良値  $4 \times 10^{-7}$

$\text{y}^{-1}$  および範囲 ( $10^{-8} \sim 10^{-6} \text{ y}^{-1}$ ) である。この最良値は、Grambow et al.[37]およびLoida et al. [38]が導出した、ストロンチウム (使用済燃料からウランと調和的に溶出することが知られている[39]) の放出速度  $< 1 \times 10^{-9} \text{ day}^{-1}$ [9]、すなわち、 $< 3.65 \times 10^{-7} \text{ y}^{-1}$  の 2 桁目を切り上げたものと思われる (切り上げについては著者らの推測である)。また、範囲については、Table 4 [9]に示した最短寿命の範囲  $10^6 \sim 10^8 \text{ y}$  の逆数から得られる。

SR-Site では、Werme et.al. [9]のほか、SFS プロジェクト [22]の結果も踏まえて、最終的に SR-Can [36]と同じ燃料溶解速度の最良値と幅を設定している。

溶解速度評価にあたって引用されている主な実験研究としては、 $\text{H}_2$  ガス共存下においてさまざまな燃料に対する腐食電位 (corrosion potential:  $E_{\text{CORR}}$ ) の測定結果と電気化学的モデルによる解釈を実施した King and Shoesmith [40]、未照射燃料ペレットおよび  $\text{U}-233$  を添加した  $\text{UO}_2$  に対して実施した浸漬試験結果をまとめた Ollila and Oversby [41]、SFS プロジェクト [22]のうち  $\text{U}-233$  を添加した  $\text{UO}_2(\text{s})$  に対する溶解に及ぼす水素ガスの影響に関する研究をとりまとめた Carbol et al. [42]などがある。このうち、King and Shoesmith [40]では腐食電位から溶解速度を導出しており、Fig. 7 に示すとおり、水素ガス分圧が比較的低い条件でも溶解速度は  $10^{-7} \text{ y}^{-1}$  以下、地下 500 m の処分環境 (水素ガス分圧 5 MPa に相当) では  $10^{-18} \sim 10^{-11} \text{ y}^{-1}$  の範囲であると推定している。

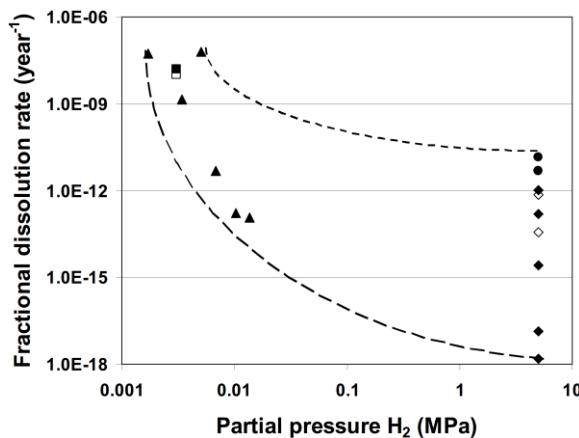
また、カールスルーエ研究センター (FzK; 現在のカールスルーエ技術研究所 (KIT)) で実施された実燃料からのウランの浸出試験結果[42]からは、Fig. 8 に示すとおり、燃料溶解速度が  $10^{-8} \sim 10^{-6} \text{ y}^{-1}$  (有効数字 1 桁) の範囲に含まれていることがわかる。

**Table 3 Selected dissolution rates of spent fuel in various safety assessment reports**

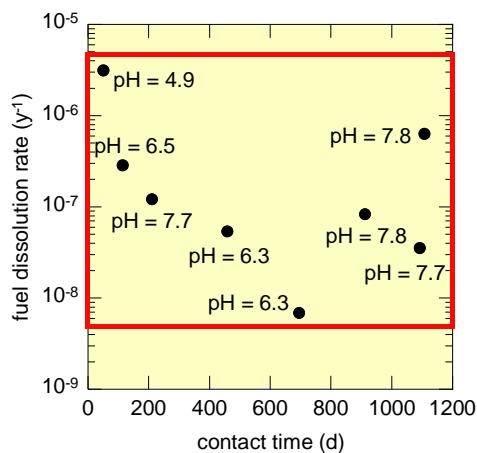
国	スウェーデン (SR-Site) [23]	フィンランド (TURVA-2012) [24]	スイス (EN2002) [6]	スイス (PSA SGT-E2) [25]	フランス (Dossier 2005) [26]	米国 (YMP-SAR) [27]	カナダ (4CS) [28]
設定値	$10^{-7} \text{ y}^{-1}$ (常用対数スケール・三角分布関数, $10^{-8} \sim 10^{-6} \text{ y}^{-1}$ )	$10^{-7} \text{ y}^{-1}$ ( $10^{-8} \sim 10^{-6} \text{ y}^{-1}$ )	処分後の時間経過に応じた設定値、例えば; after $10^3 \text{ y}$ : $2.4 \times 10^{-6} \text{ y}^{-1}$ after $10^4 \text{ y}$ : $5.3 \times 10^{-7} \text{ y}^{-1}$ after $10^5 \text{ y}$ : $4.0 \times 10^{-8} \text{ y}^{-1}$ after $10^6 \text{ y}$ : $1.6 \times 10^{-8} \text{ y}^{-1}$ *燃焼度 48MWh/tHM の $\text{UO}_2$ 燃料	$10^{-7} \text{ y}^{-1}$	$(1\text{-}2}) \times 10^{-5} \text{ y}^{-1}$ (放射線影響有) $10^{-8} \text{ y}^{-1}$ (放射線影響無)	$2.67 \times 10^{-4} \text{ y}^{-1}$ ( $25^\circ \text{C}$ ) $1.13 \times 10^{-3} \text{ y}^{-1}$ ( $85^\circ \text{C}$ )	処分後の時間経過に応じた設定値、例えば; after $10^3 \text{ y}$ : $6.9 \times 10^{-6} \text{ y}^{-1}$ after $10^4 \text{ y}$ : $2.5 \times 10^{-6} \text{ y}^{-1}$ after $10^5 \text{ y}$ : $1.7 \times 10^{-7} \text{ y}^{-1}$ after $10^6 \text{ y}$ : $8.0 \times 10^{-8} \text{ y}^{-1}$ *溶解モデルによる計算値
考え方	<ul style="list-style-type: none"> <li>EC のプロジェクト (Spent Fuel Stability 等)、個別試験結果 (非ドープ試料、<math>\text{U}-233</math> ドープ試料、使用済燃料試料の浸漬試験)</li> <li>SR-Can で文献レビュー</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>EC のプロジェクト (MICADO 等)、個別試験結果 (非ドープ試料、<math>\text{U}-233</math> ドープ試料、使用済燃料試料の浸漬試験)</li> <li>TURVA-2012 で文献レビュー</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>燃料溶解モデル (<math>\text{H}_2\text{O}_2 1 \text{ mol}</math> が <math>\text{U}(\text{IV})</math> を <math>\text{U}(\text{VI})</math> に酸化し <math>\text{U}</math> が溶解すると仮定。G 値を使用)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>SR-Site 0 の記述や Ollila 0 の実験結果を基に、溶解速度を提案</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>リム領域による溶解促進を考慮</li> <li>モデルについて詳細不明</li> <li>文献レビューについて詳細不明</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>燃料溶解モデル (<math>\text{pH}, \text{CO}_2, \text{O}_2, \text{F}</math> の影響を考慮。pH4.8 の上下で異なるモデルを採用)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>燃料溶解モデル (水の放射線分解 (<math>\alpha, \beta, \gamma</math> 線) を考慮し、燃料界面付近の液相の表面線量率に比例し溶解するモデル。表面線量率の計算は、核種の基礎データ (水、<math>\text{UO}_2</math> の阻止能等) を使用)</li> </ul>

**Table 4 Estimates of minimum lifetime for spent fuel in millions of years [9]**

Source of data	Basis of estimate	Minimum lifetime, $10^6$ y
VTT experiments	$\text{UO}_2$ with and without $^{233}\text{U}$	$13 \pm 6$
FzK experiments	Spent fuel long-term rate	2.7
Electrochemistry	Model for dissolution	10 to 100

**Fig. 7 Range of predicted fractional dissolution rates for  $\text{UO}_2$  based on the measured  $E_{\text{CORR}}$  values in  $\text{H}_2$ -containing solution[40]**

Plotted data are ● King et al. (1999) (no gamma), ◆ King et al. (1999) (gamma), ◇ King et al. (1999) (gamma (H<sub>2</sub> stage 2)), □ Stroes-Gascoyne et al. (2004) ( $\alpha$ -activity of 1 Ci kg<sup>-1</sup>), ■ Stroes-Gascoyne et al. (2004) ( $\alpha$ -activity of 10 Ci kg<sup>-1</sup>) and ▲ Broczkowski et al. (2004). See [40] for detail.

**Fig. 8 Fuel dissolution rate taken from uranium fraction of the inventory in the aqueous phase (FIAP) obtained during wash cycles and corrosion of spent fuel pellet K8 under 3.2 bar  $\text{H}_2$  overpressure (FIAP data taken from [42])**

### 3.3 フィンランド (TURVA-2012)

TURVA-2012 [24]では、燃料マトリクスの溶解速度は、SR-Site [23]と同じく  $10^7 \text{ y}^{-1}$  を与えている。燃料溶解速度の時間依存性は考慮されていない。SR-Site [23]に倣って  $10^7$

$\text{y}^{-1}$  を与えているのではなく、Fig. 9 に示す Ollila [43]の実験結果を基に設定されている。Fig. 9 より、低酸素・鉄共存下での燃料溶解速度がほぼ  $10^7 \text{ y}^{-1}$  以下であることがわかる。また、鉄が共存していない場合でも、Cl<sup>-</sup>濃度が比較的高い (0.1 M) とやはり溶解速度が  $10^7 \text{ y}^{-1}$  以下になることがわかる。溶解速度の不確実性として考えられるものには、キャニスター内で使用済燃料を固定するための鉄製インサート等の腐食により生じる水素ガスの過剰圧力の影響、燃料の高燃焼度化、溶解速度の実測値といったものがある。インサート等の腐食により生じる水素ガスの過剰圧力の影響は、SFS プロジェクト報告書[22]などで確認されているが、燃料溶解速度への影響については報告されていない。また、燃料の高燃焼度化については、燃料ペレット内で局所的に燃焼度が高いリム領域と燃料中心部の核種放出挙動に顕著な差がない試験データが得られていることを報告している。燃料マトリクスの溶解速度の測定については、 $\text{UO}_2$  表面の酸化と数層にわたる水の放射線分解による影響があるため、不確実性が高いとしている。この不確実性については、過去に還元性条件で取得された燃料の溶解速度に関するデータのレビュー[44]により、 $10^7 \text{ y}^{-1}$  の設定値が支持されたとしている。

### 3.4 スイス (EN2002 および PSA SGT-E2)

EN2002 [6]では、燃料マトリクスから放出する核種の放出率について、Johnson and Smith [45]が提案したモデルを適用している。このモデルでは、水の放射線分解により生じた 1 mol の  $\text{H}_2\text{O}_2$  が 1 mol の U(IV)を U(VI)に酸化すると仮定する。このモデルには以下の内容が含まれる。

- ・ 燃料被覆管 (ジルカロイ) の破損
- ・ 水の放射線分解
- ・ 使用済燃料の溶解
- ・ 炭素鋼キャニスターの腐食
- ・ 酸化還元フロントの進展

このモデルは比較的簡易なものであり、算術計算のみで結果が得られるという特徴がある。過酸化水素の生成速度  $P_c$  (mol  $\text{y}^{-1} \text{ tHM}^{-1}$ ) および燃料溶解速度  $D$  (mol  $\text{y}^{-1} \text{ tHM}^{-1}$ ) は次式で表現される。

$$P_c = Q G_{\text{eff}} F_f \times \frac{3.156 \times 10^7 (\text{s/a})}{[1.6 \times 10^{-17} (\text{J/100eV})] \times [6.02 \times 10^{23} (\text{n/mol})]} = 0.013 Q G_{\text{eff}} \quad (2)$$

$$D = P_c \times [238 (\text{g mol}^{-1})] \times [10^{-6} (\text{t/g})] \quad (3)$$

ここで、 $Q$  (W  $\text{tHM}^{-1}$ ) は燃料の熱出力であり、燃料の種類 ( $\text{UO}_2$  か MOX か) や燃焼度ごとに与える。また、 $F_f$  は放射線分解を引き起こす燃料の割合 (= 0.004) である。さらに、 $G_{\text{eff}}$  は実効  $G$  値と呼ばれ、水の放射線分解に伴う種々の反応を含めた上で生成する  $\text{H}_2\text{O}_2$  の割合 (molecules (100 eV)<sup>-1</sup>) を示す。Johnson and Smith [45]は、この  $G_{\text{eff}}$  について既往研究のレビューを行っており、高い値だと 1 molecule (100 eV)<sup>-1</sup> という報告値があることも指摘しているが、Fig.

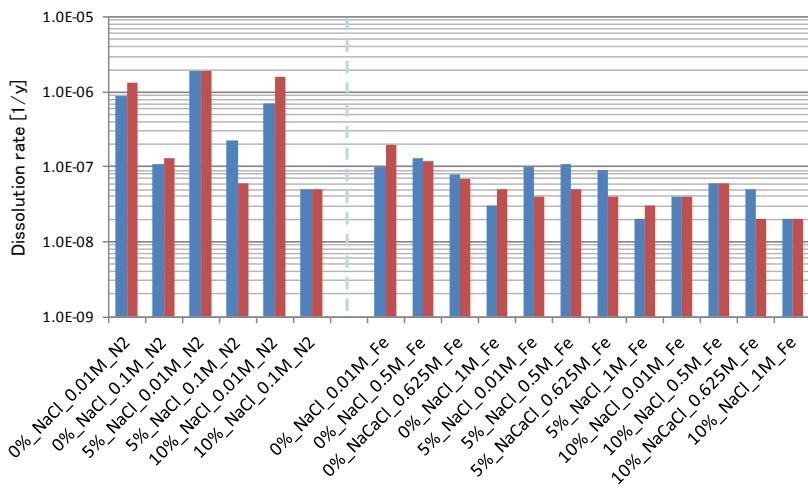


Fig. 9 Dissolution rate of  $^{233}\text{U}$ -doped  $\text{UO}_2$  under various conditions (Data determined by Ollila [43])

Name “a\_b\_c\_d” in x-axis denote (a) content of doped  $^{233}\text{U}$ , (b) electrolyte, (c) electrolyte concentration and (d) nitrogen atmosphere with and without iron (“Fe” and “N2”, respectively). Different color indicates different sample under the same experimental conditions.

10 に示すとおり、燃料溶解速度の実測値と種々の  $G_{\text{eff}}$  を用いたモデル計算値を比較して、 $G_{\text{eff}} = 0.01$  でも十分に保守的な値であると結論づけている。

$G_{\text{eff}} = 0.01$ において計算される燃料の種類( $\text{UO}_2$ もしくはMOX) および燃焼度(33,000, 48,000 および 55,000 MWd (tHM) $^{-1}$ ) ごとの燃料溶解速度の時間変化を Fig. 11 に示す。アルファ線量の多い MOX 燃料の値の方が  $\text{UO}_2$  燃料に比べて全体的に高い値を示すが、燃焼度による影響はあまり顕著ではないことがわかる。

なお、スイスでは、サイト選定計画第 2 段階に向けた予備的安全評価(PSA SGT-E2)のために、ソースタームパラメータの見直しが行われている[25]。燃料溶解速度については、SR-Site [23]の記述や Ollila [43]の実験結果を基に、溶解速度を  $10^{-7} \text{ y}^{-1}$  を提案している[25]。なお、この報告書[25]では、EN2002 [6]で使用したモデル[45]に関する言及はない。

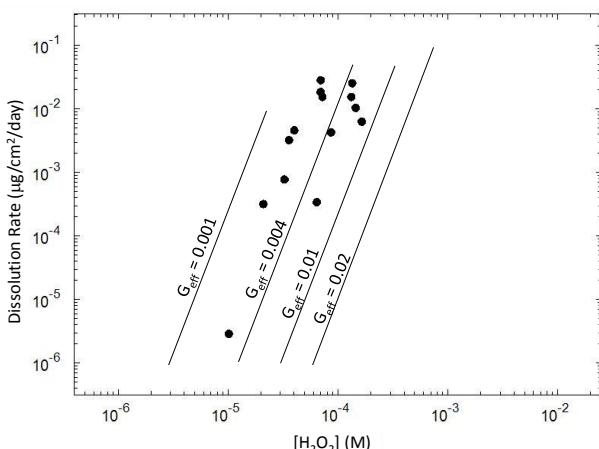


Fig. 10 Dissolution rate of the  $\text{UO}_2$  electrode and estimated values assuming different  $G_{\text{eff}}$  values as a function of  $\text{H}_2\text{O}_2$  concentration in the cell (after [45])

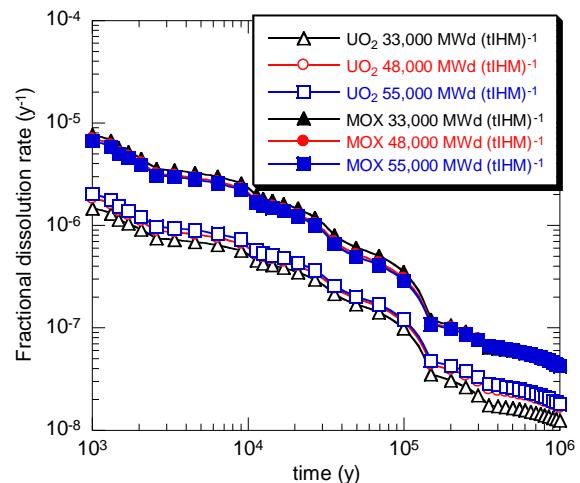


Fig. 11 Fractional dissolution rate as a function of time for a G-value of 0.01 molecules of  $\text{H}_2\text{O}_2$  per 100 eV using the model by Johnson and Smith[45]

### 3.5 フランス (Dossier 2005)

Dossier 2005 [26]では、燃料マトリクスの溶解速度を  $2 \times 10^{-5} \text{ y}^{-1}$  に設定している。この設定根拠については、以下のように説明されている [46]。

キャニスターの破損後、金属腐食に伴う水素ガスの発生により 10,000 年後にキャニスターが飽和し、全体の 90 % を超える燃料集合体に地下水が接触する。この時点では、 $\beta$  線および  $\gamma$  線は急激に弱まることから、その後は  $\alpha$  線の影響を受ける。

放射線分解による溶解メカニズムにより、ペレットがすべて溶解するためには酸化速度に依存して 80,000 年～100,000 年かかる。燃料溶解は  $\alpha$  核種の自己照射によって加速されることを悲観的に考慮すると、燃料ペレット全体は 50,000 年程度経過した後に溶解することになる (Fig. 12)。

以上を踏まえ、50,000 年後に燃料ペレット全体が溶解す

るよう溶解速度を定めた結果が  $2 \times 10^{-5} \text{ y}^{-1}$  となる。

放射線分解による溶解メカニズムが存在しない場合には、ペレットの溶解は従来の溶解度により制限された遅い溶解となる。ペレット全体が溶解するまでは、少なくとも 100 万年が必要である。放射線分解を生じない場合還元性条件であり、液相との接触により 4 倍のウランが溶解したとしても、安定な沈殿相を廃棄体容器の周囲に生じる。

上記の燃料溶解速度の評価では、キャニスターの腐食に伴って生成する水素ガスが水の放射線分解、ひいては使用済燃料の酸化的溶解を抑制するという NF-PRO プロジェクト [29]の成果が考慮されていない。したがって、設定された燃料溶解速度  $2 \times 10^{-5} \text{ y}^{-1}$  は非常に悲観的な設定であると考えられる。

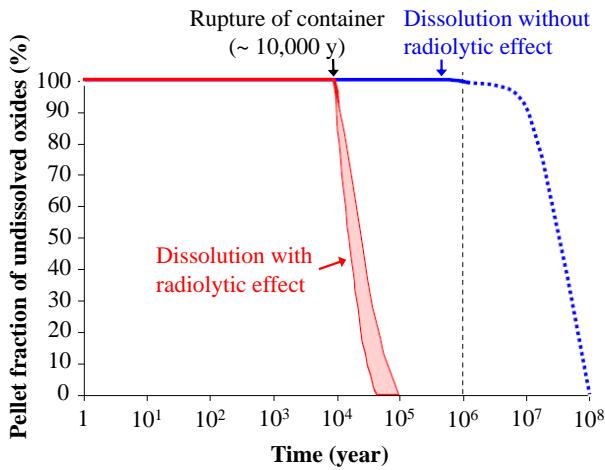


Fig. 12 Simplified representation of the evolution of the dissolution of oxide pellets with time for the long type CU, UOx3 spent fuel [46]

French notes were translated into English and some modifications were made by the authors with permission of ANDRA.

### 3.6 米国 (YMP-SAR)

“Safety Analysis Report (SAR)” [27]では、商用原子炉で発生した種々の使用済燃料に対して、アルカリ性水溶液 (pH 7~10), 温度 20~77 °C, 全炭酸濃度  $2 \times 10^{-4} \sim 2 \times 10^{-2} \text{ M}$  における溶解速度をシングルパスフロースルー法で取得し、その結果を基に燃料溶解速度のモデル化を行っている。

燃料マトリクスからの核種  $i$  の溶解速度  $R_i$  は、次式で表わされる。

$$R_i = I_i^M \times F_i \quad (4)$$

ここで、 $I_i^M$ ,  $F_i$  および  $R_i$  は、それぞれ核種  $i$  の燃料マトリクス中のインベントリ(g), 放出率 (d<sup>-1</sup>), 燃料溶解速度 (g d<sup>-1</sup>) である。 $F_i$  は以下の式から導出される。

アルカリ条件 (pH ≥ 6.8) :

$$\log(F) = \log(A) + a_0 + a_1 \times 1/T + a_2 \times pCO_3 + a_3 \times pO_2 \quad (5)$$

酸性条件 (pH < 6.8) :

$$\log(F) = \log(A) + a_0 + a_1 \times 1/T + a_3 \times pO_2 + a_4 \times pH \quad (6)$$

ここで、 $pCO_3$  は全炭酸濃度の負の対数、 $pO_2$  は酸素分圧の負の対数、 $T$  は絶対温度 (K),  $A$  は燃料の有効比表面積 (m<sup>2</sup> mg<sup>-1</sup>),  $a_0 \sim a_4$  は実験値の回帰分析で得られるパラメータである。

このモデルで得られた 25 および 85 °C における <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs および <sup>99</sup>Tc の放出速度と実測値を比較した結果を Table 5 に示す。Table 5 における放出速度の単位は d<sup>-1</sup> なので、単位を y<sup>-1</sup> に換算すると、放出速度のモデル計算値は 25 °C で  $2.67 \times 10^{-4} \text{ y}^{-1}$ , 85 °C で  $1.13 \times 10^{-3} \text{ y}^{-1}$  となる。ユッカマウンテン処分場は酸化性雰囲気であることから、他国に比べて溶解速度が高いことは妥当である。還元環境を想定するわが国の直接処分システムの設定の際の直接的な参考にはならないと考えられるものの、酸化還元環境の影響の大きさには注目すべきである。

Table 5 Summary of the NNWSI Series 3 fractional release rate (d<sup>-1</sup>) results for last sampling period (data from [47])

Isotope	H. B. Robinson Fuel		Turkey Point
	(25 °C)	(85 °C)	Fuel (85 °C)
<sup>90</sup> Sr	$5.79 \times 10^{-7}$	$4.82 \times 10^{-7}$	$4.79 \times 10^{-7}$
<sup>137</sup> Cs	$9.29 \times 10^{-7}$	$1.07 \times 10^{-6}$	$8.67 \times 10^{-7}$
<sup>99</sup> Tc	$6.87 \times 10^{-7}$	$3.09 \times 10^{-6}$	$1.71 \times 10^{-6}$
Average	$7.32 \times 10^{-7}$	$1.55 \times 10^{-6}$	$1.02 \times 10^{-6}$
Base-case model calculated fractional release rates	$7.32 \times 10^{-7}$	$3.02 \times 10^{-6}$	$3.02 \times 10^{-6}$
Error Metric	0.0	0.3	0.5

### 3.7 カナダ (Fourth Case Study)

Fourth Case Study (4CS) [28]では、放射線分解による燃料溶解モデルとして、 $\alpha$  線,  $\beta$  線,  $\gamma$  線および化学的溶解を含めた全溶解速度 ( $R_{TOT}$ ) を以下の式で定義している[48]。

$$R_{TOT} = R_\alpha + R_\beta + R_\gamma + R_{ch} \times A_{CONT} \quad (7)$$

$$R_r = A_{CONT} \times G_r \times f_r [D_r(t + t_c)]^{a_r} \quad (r: \alpha, \beta, \gamma) \quad (8)$$

ここで、 $R_\alpha$ ,  $R_\beta$  および  $R_\gamma$  はそれぞれ  $\alpha$  線,  $\beta$  線および  $\gamma$  線による水の放射線分解による溶解速度 (mol-U y<sup>-1</sup>),  $R_{ch}$  は化学的な (水の放射線分解が発生しない場合) 溶解速度 (mol-U y<sup>-1</sup>),  $D_\alpha(t + t_c)$ ,  $D_\beta(t + t_c)$  および  $D_\gamma(t + t_c)$  はそれぞれ  $\alpha$  線,  $\beta$  線および  $\gamma$  線の時間依存の線量率 (Gy y<sup>-1</sup>),  $G_\alpha$ ,  $G_\beta$  および  $G_\gamma$  はそれぞれ  $\alpha$  線,  $\beta$  線および  $\gamma$  線についての経験的な溶解速度 (mol-U Gy<sup>-1</sup> m<sup>-2</sup>),  $f_\alpha$ ,  $f_\beta$  および  $f_\gamma$  はそれぞれ  $\alpha$  線,  $\beta$  線および  $\gamma$  線についての変動係数, そして  $A_{CONT}$  はコンテナ 1 体あたりの燃料溶解の有効面積 (m<sup>2</sup>),  $t$  は定置後の経過時間 (y),  $t_c$  は定置前の貯蔵期間 (y),  $a_\alpha$ ,  $a_\beta$  および  $a_\gamma$  はべき乗定数 (4CS では 1 を仮定) である。このパラメータを使用した燃料溶解モデルの結果として、相対溶解速度と累積溶出割合の結果が示されている (Fig. 13)。

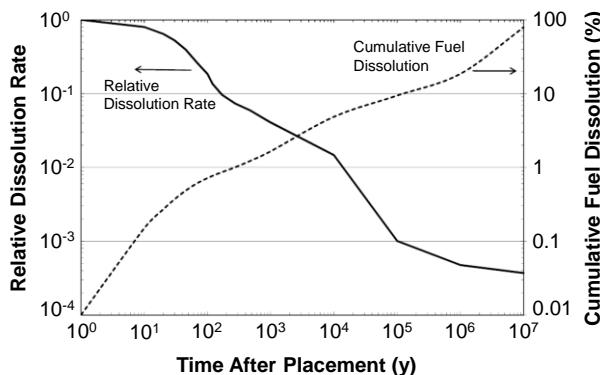


Fig. 13 Fuel Dissolution Rate[28]

Relative Dissolution Rate is the ratio of the time-dependent fuel dissolution rate to the maximum fuel dissolution rate. The maximum dissolution rate is  $3.12 \times 10^{-3}$  [mol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>] where the area is the surface area of the fuel in contact with water. A contact area of 1570 m<sup>2</sup> per container is used in this study which assumes the fuel is highly fragmented. The maximum dissolution rate is therefore 4.9 mol y<sup>-1</sup>.

また、溶解速度と  $\alpha$  放射能との相関について、Fig. 2 に示した SFS プロジェクト[22]の結果に Muzeau et.al.[49]のデータを加えた上で検討した (Fig. 14 [48]). その結果、 $\alpha$  放射能が約 1 MBq g<sup>-1</sup> に  $\alpha$  線による水の放射線分解による影響の閾値があり、それより  $\alpha$  放射能が高い領域では溶解速度と  $\alpha$  放射能に下記の式で表される正の相関があることがわかった。

$$\text{溶解速度 (mg(UO}_2 \text{) m}^{-2} \text{ d}^{-1}) = 4.35 \times 10^{-3} \times \alpha \text{ 放射能 (MBq g(UO}_2)^{-1}) \quad (9)$$

また、Tait et.al.[50]の核種インベントリから計算可能な放射能から燃料表面の  $\alpha$  線の線量率を計算すると以下のようになる。

$$D_\alpha = 4.2 \times 10^{-4} \times \alpha \text{ 放射能 (MBq g(UO}_2)^{-1}) \quad (10)$$

上述の 2 つの式から、溶解速度と燃料表面の  $\alpha$  線の線量率の関係は、

$$R_{\text{TOT}} (\text{mg(UO}_2 \text{) m}^{-2} \text{ d}^{-1}) = 1.4 \times 10^{-10} \times D_\alpha (\text{Gy y}^{-1}) \quad (11)$$

すなわち、 $G_\alpha = 1.4 \times 10^{-10}$  mol m<sup>-2</sup> Gy<sup>-1</sup> を得る。さらに、Fig. 14 に示したデータのばらつきを考慮し、幾何標準偏差 (GSD) 6 (範囲として  $3.5 \times 10^{-12} \sim 2.1 \times 10^{-9}$  mol m<sup>-2</sup> Gy<sup>-1</sup>) の対数確率密度関数を与えていた。

また、化学的溶解速度  $R_{\text{ch}}$  については、Fig. 15 に示した実測値のレビュー[48]を行った上で、中央値  $4.0 \times 10^{-7}$  mol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup> と範囲  $4.0 \times 10^{-8} \sim 4.0 \times 10^{-6}$  mol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup> の対数確率分布を与えた。このレビュー[48]においては、多くの研究では  $R_{\text{ch}}$  の導出のための実験を単に酸素を排除しただけの不

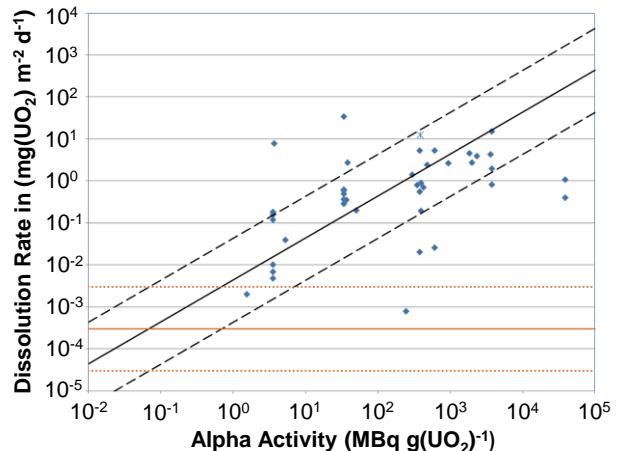
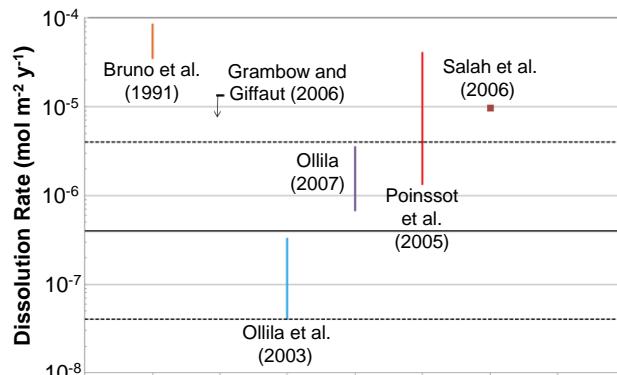


Fig. 14 Corrosion rates measured as a function of specific alpha activity [48] (data compiled mainly by Poinssot et al. [22])

New data are identified using the \* symbol. The red lines show the selected chemical fuel dissolution rate and its bounds.

活性雰囲気（すなわち標準水素電極に対する酸化還元電位の値が正）で行っており、水の放射線分解が生じなくなる還元条件に比べて  $R_{\text{ch}}$  が高くなることが指摘されている。したがって、Fig. 15 においても、還元条件で取得されたデータから  $R_{\text{ch}}$  とその不確実性範囲を設定している。

Fig. 15  $UO_2$  corrosion rates from various literature sources (after [48]).

The literature data likely overestimate the chemical dissolution rate, as explained in the text. The dashed lines are the selected upper and lower bounds and the solid line is the median chemical dissolution rate. See [48] for detail.

#### 4 諸外国における燃料溶解速度の設定値に対する不確実性の評価

##### 4.1 概要

直接処分の場合は、ガラス固化体に比べて、使用済燃料の履歴（燃焼度、照射期間など）による廃棄体仕様のばらつきが大きくなることから、ソースタームパラメータの不確実性評価も重要となってくる。本項では、前項までで紹

介した諸外国の安全評価報告書のうち、とくに不確実性評価について記述されているスウェーデン、フィンランド、イスラエルおよびカナダのものを中心に、その概要をまとめた。取り扱う不確実性については、温度による影響、燃料のバリエーションと処分場の環境条件の変動とした。また、確率論的評価についても概説した。

#### 4.2 確率論的評価

燃料溶解速度において、確率論的安全評価のために設定値の幅を与えていたのが、SR-Site [23]およびTURVA-2012 [51]である。いずれも、 $10^{-7} \text{ y}^{-1}$ の設定値に対して $10^{-8} \sim 10^{-6} \text{ y}^{-1}$ の幅を与えていた。ただし、SR-Site [23]では三角分布関数（対数スケール）と書かれているのに対して、TURVA-2012 [51]では単に対数分布となっている。また、同じ $10^{-7} \text{ y}^{-1}$ を提案しているPSA SGT-E2 [25]では、設定値の幅については言及されていない。

4CSでは、燃料溶解速度に95%の信頼区間を与えていた（Fig. 16）[48]。また、感度解析として燃料溶解速度を設定値の10倍にした計算を実施している（Fig. 17）[28]。その結果、最大線量は約1桁上昇するものの、安全評価上顕著な影響を及ぼすものではないと結論づけられている。

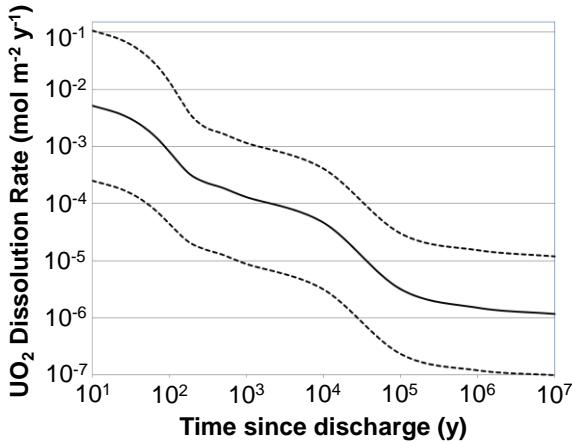


Fig. 16 Calculated total fuel dissolution rate. The solid line gives the best-estimate dissolution rate [48]. The lower and upper dashed lines show the 5th and 95th percentiles of the fuel dissolution rate.

#### 4.3 温度による影響の取り扱い

燃料溶解速度が温度の上昇とともに高くなる傾向については、いくつかの基礎的研究で報告されている[47, 52-54]。しかしながら、本報告の調査対象で燃料溶解速度の温度依存性を明示しているのは、YMP-SAR [47]のみである。

3.6節で述べたとおり、YMP-SAR [47]では、20~77°Cの温度範囲で使用済燃料の溶解速度を実測しており、その結果を基に25°Cおよび85°Cにおける燃料溶解速度をTable 5のとおり設定している。ただし、YMP-SAR [47]を含め、燃料溶解速度の温度依存性を指摘している報告がいずれも不活性雰囲気下（すなわち還元条件ではない）でのデータであることに留意すべきである。

4CS [28]では、 $G_\beta$ および $G_\gamma$ についてのみではあるものの、

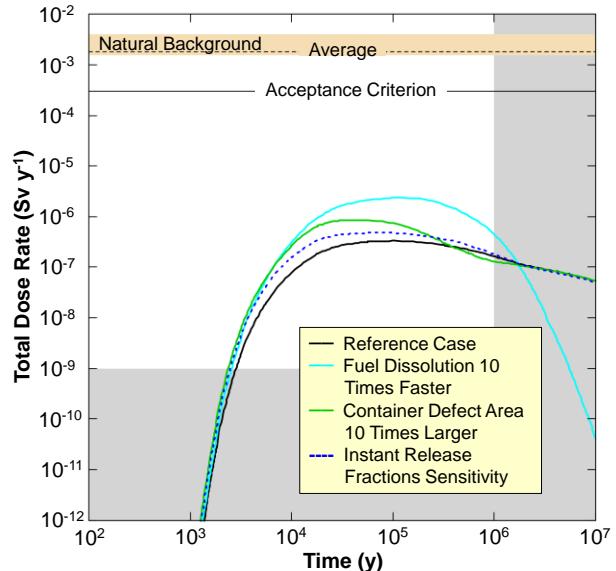


Fig. 17 Result summary for defective physical barrier sensitivity cases [28]

70°Cにおける値を評価上の設定値としている。

SR-Site [23]では、70°Cにおける未照射燃料の溶解速度測定において温度依存性が見られなかったこと、70°Cを超える条件での還元条件における浸出試験の公開データがないことを理由に、燃料溶解速度の設定値 $10^{-7} \text{ y}^{-1}$ は70°C以下では有効であると結論づけている[35]。また、EN2002[6]では、50~60°Cにおける燃料溶解速度は25°Cにおける値の2~3倍になると指摘されているものの、その影響を考慮しても $G_{\text{eff}} = 0.01$ は十分に保守的な値であると結論づけている[45]。Dossier 2005 [26]では、処分後にキャニスターの破損に伴い水が使用済燃料と接触する時点での燃料温度は50°C以下であり、この温度条件での燃料溶解挙動の変化は限定的であると述べられている[46]。

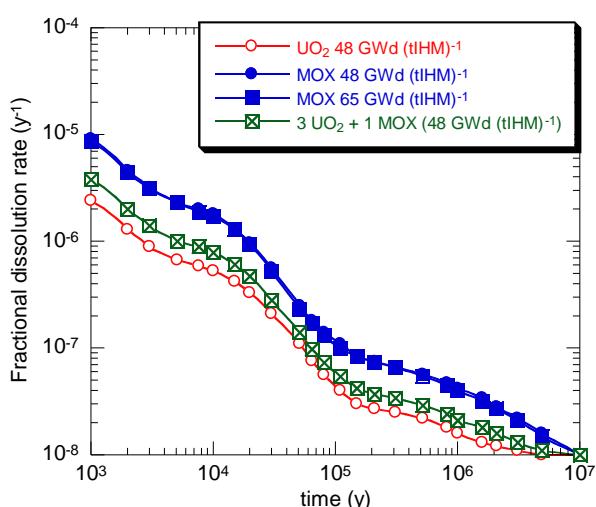
TURVA-2012 [24]では、燃料溶解速度の温度影響について、処分システムの特徴、事象および過程を例挙したFEP[55]では「影響あり」という記述はあるものの、その影響を設定値に反映した形跡はない。また、SGT-E2 [25]では、燃料溶解速度の温度影響については言及がない。

以上のことから、本報告で調査した燃料溶解速度の設定値については、その多くが温度影響を考慮したものであると言える。

#### 4.4 燃料のバリエーションの取り扱い

燃料のバリエーション（種類および燃焼度）を考慮して溶解速度を導出しているのは、Fig. 11で示したJohnson and Smith [45]である。前述のとおり、 $\alpha$ 線量の多いMOX燃料の値の方が $\text{UO}_2$ 燃料に比べて全体的に高い値を示すが、燃焼度による影響はあまり顕著ではないことがわかる。EN2002のメインレポート[6]では、Fig. 18に示す4種の燃料の組み合わせについて評価を行っている。

その他の国の安全評価では、燃料溶解速度に及ぼす燃料のバリエーションは考慮していない。考慮する必要がない理由として、SR-Site [35]では以下のものを挙げている。



**Fig. 18 Fractional dissolution rates of spent  $\text{UO}_2$  and MOX fuel (data taken from Johnson and Smith [45])**

- 使用済燃料（もしくは  $\text{UO}_2$  添加試料）を高温で酸化させた試験結果を燃焼度の関数として分析した結果によれば、燃焼度に伴う核分裂生成物等の微量元素の増加は、燃料を酸化しにくくする。
- 広範囲な燃料燃焼度の浸漬試験結果によれば、燃焼度の相違によって  $\text{UO}_2$  燃料マトリクスの酸化溶解への影響は確認されない。
- 高燃焼度  $\text{UO}_2$  燃料や MOX 燃料を使用した還元性条件の研究では、燃焼度の増加に対して注目すべき影響は確認されていない（著者注：SFS プロジェクトでは、燃料の燃焼度を 33～60  $\text{Gwd (tIHM)}^{-1}$  の範囲で計算したところ、 $10^5$  y 経過後で約 5 % しか差がないという結果が得られている[22]）。
- SR-Site で使用したデータ[9]は 2003 年 4 月の Clab 中間貯蔵施設の使用済燃料のインベントリに基づいており、加えてさまざまな燃料の種類、線出力定格、燃焼度を考慮している。
- 燃料の燃焼度と線出力が増加するに従い、原子力発電所における出力の増加によって、定置期間の後期に設置した SF の燃焼度が、初期に設置したものよりも燃焼度が高くならないとは限らない。しかし、いくつかの試験研究によって、燃焼度の増加によって溶解速度が高くなるような証拠は得られていないことが示されている。このような理由により燃料溶解速度の空間的な影響は無視される。それらは、燃料マトリクスの溶解速度の不確実性の範囲に含まれる。

また、TURVA-2012 [24]では、燃料マトリクスの溶解速度については、燃料ペレットの外縁部（リム領域、燃料の中心部よりも 2～3 倍燃焼度が高い）から採取した試料からの核種放出が、燃料の中心部から採取した試料の核種放出よりも多くないことから、 $10^{-7} \text{ y}^{-1}$  の燃料溶解速度を高燃焼度燃料に適用することが妥当であるとしている[55]。

なお、4CS については、燃料のバリエーションに関する記載は見られなかった。

#### 4.5 処分場の環境条件の変動の取り扱い

SR-Site [23]および TURVA-2012 [24]では、酸化性の氷河融水が処分場に侵入した場合について言及されている。SR-Site [23]では、キャニスター内に浸入した地下水が大気平衡であると仮定した悲観的な燃料溶解速度 ( $10^{-5}$ ～ $10^{-4} \text{ y}^{-1}$ ) が与えられているものの、安全評価には用いられていない。また、TURVA-2012 [24]では  $10^{-6} \text{ y}^{-1}$  を仮定しているが、こちらは確率論的安全評価の範囲内に含まれているため、特別な取り扱いはなされていない[51]。

なお、EN2002、PSA SGT-E2 および 4CS については、燃料溶解速度の環境条件の変動による影響については評価されていなかった。これは、燃料溶解データが放射性核種の溶解度や吸着分配係数のように精緻に取得されているものではないことが原因であると考えられる。

### 5 諸外国における構造材の腐食に伴う溶解速度の評価

#### 5.1 概要

使用済燃料から放出される核種の挙動については、1 章で述べたとおり「瞬時放出」と「長期溶解」がある。遅い放出の大部分はこれまで述べてきた使用済燃料マトリクスとの調和的な溶解挙動であるが、被覆管など構造材の腐食に伴う放出挙動についても評価が必要である。

諸外国における構造材の腐食に伴う溶解速度の設定値とその設定根拠を Table 6 に示す。以下、各国の設定根拠について概説する。

#### 5.2 スウェーデン (SR-Site)

SR-Site [23]では、廃棄物中のすべての構造材からの核種の浸出期間を一定値 (1,000 y、すなわち溶解速度に換算して  $10^{-3} \text{ y}^{-1}$ ) としている。この値は、さまざまな厚さをもつ構造材のうち、最も薄いインコネルスペーサの厚さ (0.3 mm) を用いて導出していることから、悲観的な値であると言える。この 0.3 mm のスペーサの両側から  $0.15 \mu\text{m y}^{-1}$  の速度で腐食（溶解）するとして、腐食寿命 1,000 y が設定されている[35]。腐食速度の幅（不確実性）については、 $0.01$ ～ $1 \mu\text{m y}^{-1}$  を設定しており、この幅から浸出期間の幅が  $1.5 \times 10^2$ ～ $1.5 \times 10^4$  y と与えられる。これを基に、核種の浸出期間の幅を  $10^2$ ～ $10^4$  y、すなわち溶解速度に換算して  $10^{-4}$ ～ $10^{-2} \text{ y}^{-1}$  とし、浸出期間を常用対数スケールの三角分布関数で表現している。

腐食速度の最良値  $0.15 \mu\text{m y}^{-1}$  と、その幅  $0.01$ ～ $1 \mu\text{m y}^{-1}$  の設定については、嫌気性条件であること、および材質について廃棄物中の構造材の中で腐食速度が速いステンレス鋼を想定し、複数の文献の実測値を基に設定したものとなっている[35]。

なお、SR-Site では、ある核種について、全インベントリに対する金属（構造材および制御棒）腐食の寄与分を次式で示す「腐食放出割合（corrosion release fraction; CRF）」として示している[35]。

Table 6 Selected dissolution (corrosion) rates of construction materials in various safety assessment reports

国	スウェーデン (SR-Site) [23]	フィンランド (TURVA-2012) [24]	スイス (EN2002) [6]	スイス (PSA SGT-E2) [25]	フランス (Dossier 2005) [26]	米国 (YMP-SAR) [27]	カナダ (4CS) [28]
設定値	$10^{-3} \text{ y}^{-1}$ , 不確実性: $10^4 \sim 10^{-2} \text{ y}^{-1}$ (対数三角分布)	被覆管: $10^{-4} \text{ y}^{-1}$ (C-14, Cl-36, Nb-91, Nb-92, Nb-93m, Nb-94)  その他金属: $10^{-3} \text{ y}^{-1}$ (C-14, Mo-93, Nb-94, Ni-59, Ni-63)	$3 \times 10^{-5} \text{ y}^{-1}$	$3.3 \times 10^{-5} \text{ y}^{-1}$	被覆管: $3 \times 10^{-5} \text{ y}^{-1}$ ステンレス: $4 \times 10^{-4} \text{ y}^{-1}$ インコネル: $2 \times 10^{-3} \text{ y}^{-1}$	アルミニウム合金: $0.4 \sim 110 \mu\text{m y}^{-1}$  316L ステンレス鋼: $0.0007 \sim 14.8 \mu\text{m y}^{-1}$  304L ステンレス鋼: $0.001 \sim 39.1 \mu\text{m y}^{-1}$	$5 \text{ nm y}^{-1}$ 上限 $20 \text{ nm y}^{-1}$
考え方	核種放出期間は構造材の最小厚さと溶解速度から算定。全核種インベントリのうち燃料溶解分を示す CRF を採用。 核種放出率は、ステンレス鋼の値を設定 (保守的設定)。	核種の放出率は構造材の最小厚さと溶解速度から算定。ジルカロイ被覆管とその他金属に区別。	核種の放出率はジルカロイ被覆管の厚さと溶解速度から算定。ジルカロイ被覆管以外の金属の溶解速度はジルカロイ被覆管と同じと仮定。	ジルカロイ被覆管の値が構造材中最も保守的と判断。選定の根拠とした文献は EN2002 と同様。	核種の放出率は構造材の最小厚さと溶解速度から算定。ジルカロイ被覆管、ステンレス構造材、インコネル構造材に区別。	ジルカロイ、ステンレスとも不動態膜を形成する。放出した核種は酸化鉄に吸着。 キャニスター内の地下水化学的条件は、In-Package model で評価し設定。	ジルカロイ被覆管の溶解速度は、試験結果より設定。ジルカロイ被覆管から放出する核種による線量を事前評価し、線量への寄与が少ないため性能評価の本解析からは除外。

$$CRF = \frac{I_{\text{Constr.Mtl}} + I_{\text{Ctrl.Rods}}}{I_{\text{Tot}}} \quad (12)$$

ここで、 $I_{\text{Tot}}$  は核種の全インベントリ、 $I_{\text{Constr.Mtl}}$  は制御棒以外の構造材中の核種のインベントリ、 $I_{\text{Ctrl.Rods}}$  は制御棒中の核種のインベントリ (Ag-In-Cd 合金を除く) である。

この CRF について、燃料の炉型 (沸騰水型軽水炉 (BWR) もしくは加圧水型軽水炉 (PWR))、燃料の種類 ( $\text{UO}_2$  もしくは MOX) 燃焼度やキャニスター一体あたりの収納本数を種々に設定した 8 通りのキャニスターにおける核種インベントリ計算結果[56]から、各々の CRF を導出するとともに、BWR, PWR ごと、さらに両者の平均をとった総合的な CRF の推奨値と下限・上限値を導出している。各々のキャニスターにおける CRF と総合的な CRF の推奨値を Fig. 19 に示す。Fig. 19 に示されていない核種については、たとえ金属溶解速度を悲観的に見積もったとしても、CRF ではなく IRF で評価されるべきとの結論が得られている[35]。

なお、構造材の溶解速度に及ぼす温度の影響については、影響ありと指摘されてはいるものの、対象としている温度範囲では無視できると結論づけている[57]。

### 5.3 フィンランド (TURVA-2012)

TURVA-2012 [24]では、ジルカロイ被覆管の溶解速度は、被覆管の厚さと想定する溶解速度から設定している。被覆管の厚さは、VVER-400 および EPR の各炉型の被覆管の厚さが、それぞれ 0.65 mm, 0.57 mm であることから 0.5 mm とした。この被覆管が両側から腐食すると仮定し、腐食速度  $1 \sim 20 \mu\text{m y}^{-1}$  (奨励値  $5 \mu\text{m y}^{-1}$ ) から上限値を適用すると溶解速度は  $8 \times 10^{-5} \text{ y}^{-1}$  となる。この値の 1 衡目を切り上げると  $10^{-4} \text{ y}^{-1}$  となる。

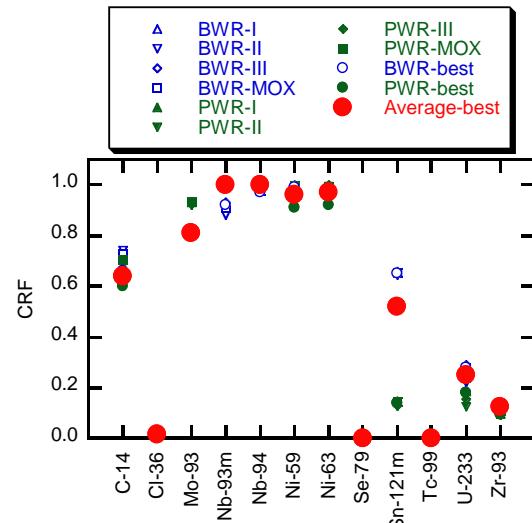


Fig. 19 CRFs of some radionuclides for the type canisters with the best estimate values

Data taken from[35, 56].

その他金属については、代表的にステンレス鋼を対象とし、 $0.01 \sim 1 \mu\text{m y}^{-1}$  の腐食速度で、厚さ 2 mm の部材が腐食すると仮定した場合、溶解速度は  $10^{-5} \sim 10^{-3} \text{ y}^{-1}$  となる。この上限値を適用すると  $10^{-3} \text{ y}^{-1}$  となる。

なお、構造材の溶解速度に及ぼす温度の影響については、影響ありと指摘されてはいる[24]ものの、最終的な取り扱いについては記述がない。

### 5.4 スイス (EN2002 および PSA SGT-E2)

EN2002[6]では、燃料周辺の構造材の腐食に関連した主なプロセスとして以下を挙げている。

- ① ジルカロイ被覆管 (C-14, Cl-36 等の放射化物)

② Ni 合金により構成される燃料集合体のその他金属  
(Ni-59, Ni-63 等の放射化物)

水もしくは水蒸気の存在により、ジルカロイ表面には耐食性の高い薄い酸化被膜を生じる。地下水中のジルカロイの腐食速度は  $< 0.01 \mu\text{m y}^{-1}$  [58] と推定されている。Johnson and Mcginnes [58] は、厚さ約  $600 \mu\text{m}$  のジルカロイ被覆管の両側から腐食すると仮定して、溶解速度を  $3 \times 10^{-5} \text{ y}^{-1}$  としている。

Ni 合金で構成されたその他金属についても、地下水における腐食速度は  $< 0.01 \mu\text{m y}^{-1}$  と推定されている [59] ことから、ジルカロイ被覆管以外の構造材に対してもジルカロイ被覆管と同じ  $3 \times 10^{-5} \text{ y}^{-1}$  の溶解速度が設定されている。

なお、PSA SGT-E2 のための設定値も、同様の値 ( $3.3 \times 10^{-5} \text{ y}^{-1}$ ) となっている [25]。

なお、構造材の溶解速度に及ぼす温度の影響については記述がない。

## 5.5 フランス (Dossier 2005)

Dossier 2005 [60] では、燃料集合体中の金属材料を

- ① インコネル
- ② ステンレス
- ③ ジルカロイ被覆管

に区分し、それぞれの寸法と金属材料の溶解速度から溶解速度を設定している。それぞれの金属材料の溶解速度、溶解速度、浸出期間を Table 7 に示す。それぞれの金属材料で代表的な部材を定めて、浸出期間を設定しているようであるが、詳細は不明である。なお、構造材の溶解速度に及ぼす温度の影響については記述がない。

**Table 7 Corrosion parameters for construction materials proposed in Dossier 2005 [60]**

Metal	Release rate ( $\text{y}^{-1}$ )	Corrosion rate ( $\mu\text{m y}^{-1}$ )	Release lifetime (y)
Inconel	$2 \times 10^{-3}$	ca. $10^{-2}$	$5 \times 10^2$
Stainless steel	$4 \times 10^{-4}$	ca. $10^{-2}$	$2.5 \times 10^3$
Zirconium alloy <sup>*1</sup>	$5 \times 10^{-5}$	ca. $10^{-3}$	$2 \times 10^4$

<sup>\*1</sup> 80 % of the cladding's activity; labile activity for the remaining 20 %.

## 5.6 米国 (YMP-SAR)

商用原子炉の使用済燃料の現在の被覆管はジルカロイであるが、およそ全体の 1 % の古い燃料ではステンレス製の被覆管を使用している。ジルカロイおよびステンレスは、大気中に存在する場合不動態膜が形成され、それ以上の腐食における速度が遅くなり、ジルカロイのフッ素による侵食、ステンレスの応力腐食割れを含む化学的劣化は進まなくなる。核種については、腐食により生じた酸化鉄に収着し蓄積される可能性がある [27]。

構造材の溶解速度に及ぼす温度の影響については明示的に考慮されており、 $25 \sim 100^\circ\text{C}$  における溶解速度の実測値 [61] を基に、温度影響による溶解速度の変化を包含するよう設定値の範囲が定められている。

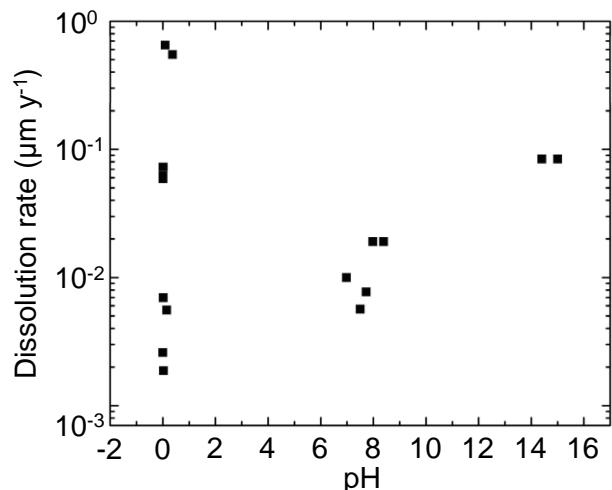
地下水面上にキャニスタを設置する他国のように、金属腐食による核種放出をモデル化したような形跡は確認できていない。

## 5.7 カナダ (Fourth Case Study)

4CS [28]において、ジルカロイ被覆管の腐食速度は、ジルカロイ表面の酸化皮膜の耐腐食性により、水と接触する条件下であっても  $1 \sim 5 \text{ nm y}^{-1}$ 、最大でも  $20 \text{ nm y}^{-1}$  という非常に遅い速度である。

Shoesmith and Zagidulin [62] は、Zr 表面の酸化皮膜は、水酸化物もしくは  $\text{ZrO}_2$  の水和物から成る溶解が速い外殻層と安定な不動態皮膜である内殻層の 2 種類の層から成るとしており、内殻層の酸化物について液相の pH が異なる溶解速度を文献値から Fig. 20 に示すグラフに整理した。同図の中性領域で取得された腐食速度の範囲は  $5 \sim 20 \text{ nm y}^{-1}$  である。このグラフより、腐食速度の最良値が  $5 \text{ nm y}^{-1}$ 、上限値が  $20 \text{ nm y}^{-1}$  になるとしている [62]。なお、構造材の腐食速度に及ぼす温度の影響については記述がない。

ジルカロイ被覆管の溶解速度は示されているものの、4CS における安全評価では、ジルカロイ被覆管に含まれる核種の寄与について、Fig. 21 に示すとおり、線量全体の寄与が少ないと理由に除外している [48]。



**Fig. 20 Dissolution (passive corrosion) rates of anodically grown oxides on zirconium as a function of pH [62]**

## 6 総括とわが国におけるパラメータ設定への提言

### 6.1 燃料溶解速度

Table 3 に示した燃料溶解速度の設定値について、縦軸を累積燃料溶解率としてプロットしたものを Fig. 22 に示す。悲観的設定をしている Dossier 2005 [26] は極端に速く燃料が溶解する結果となっているものの、前述のとおりキャニスターの腐食に伴って発生する水素ガスによって水の放射線分解が抑制される効果が考慮されていないことから、非現実的な設定と考えられる。したがって、近年では  $10^7 \text{ y}$  以上を経て燃料が全量溶解するような値が主流であることがわかる。EN2002 [6] と 4CS [28] については、燃料溶解速度に時間依存性を持たせているが、保守的に一定値をとっている SR-Site [23] や TURVA-2012 [24] に比べ、比較的早い時期の燃料溶解速度が高めに設定されている程度で、長期的には同程度か、むしろ非保守的な設定値となっていることが

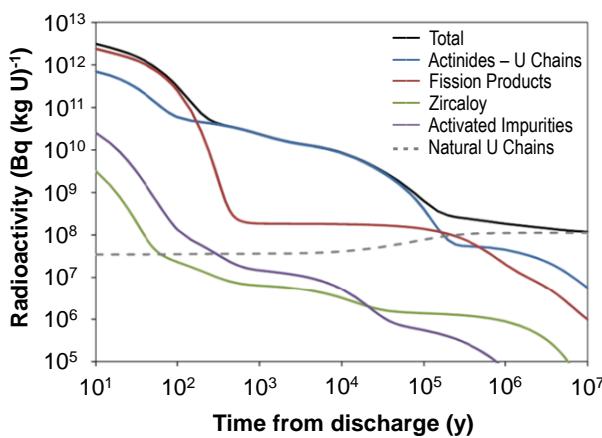


Fig. 21 Radioactivity of used fuel (220 MWh (kgU)<sup>-1</sup> burnup) as a function of time after discharge from reactor [48].

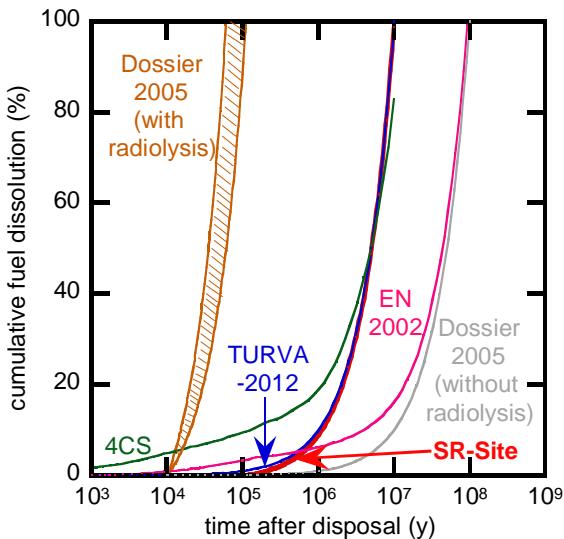


Fig. 22 Time dependence of cumulative fuel dissolution calculated from dissolution rates evaluated in foreign countries listed in Table 3

わかる。

EN2002 [6]では燃料の種類や燃焼度に応じた燃料溶解速度が評価できる特徴的なモデル[45]を用いていたスイスだが、最新の予備的安全評価である PSA SGT-E2 に向けたパラメータ設定では SR-Site [23]の設定値  $10^{-7} \text{ y}^{-1}$  を踏襲している[25]。燃料の多様性に関する各国の安全評価報告書の記述を見ても、燃料溶解速度については精緻に議論できるほどには実験データが充実しておらず、保守性を見込んだ設定にせざるを得ない状況が感じられる。Dossier 2005 [46]が高い燃料溶解速度を設定しているものの、SFS プロジェクト[22]などの動向を踏まえると、SR-Site [23]、TURVA-2012 [24]および PSA SGT-E2 [25]が設定している  $10^{-7} \text{ y}^{-1}$  が主流になりつつあるという印象がある。

わが国の最終処分の代替処分オプションの検討のひとつである直接処分システムでは還元環境を想定しているが、処分地は決定しておらず酸化還元の強弱とその超長期の変化は未確認である。したがって、酸化還元環境の影響につ

いてもその重要性を示した方がよいと考える。また、直接処分の安全評価のために燃料溶解速度を設定する際には、キャニスタあたりのインベントリやキャニスタ寿命などを他国の安全評価と比較検討した上で、最終的な値を提案することが必要である。このためには、燃料溶解速度を評価した実験データについて、試料の種類や試験方法、比  $\alpha$  放射能もしくは燃焼度などを体系的に整理するとともに、わが国の使用済燃料を用いた溶解速度データの取得や燃料表面の特性評価などが重要であると考えられる。さらに、わが国の最終処分の代替処分オプションの検討のひとつである直接処分システムでは、キャニスタ破損時に使用済燃料に接触する水（緩衝材間隙水）中の全炭酸濃度が諸外国に比べて高いことがわかっている。具体的には、燃料溶解速度を  $10^{-7} \text{ y}^{-1}$  に設定している国々の緩衝材間隙水（地下水が緩衝材を通過してから使用済燃料に接触する際の水） $10^{-3} \text{ M}$  程度である[6, 24, 28, 36, 46]のに対して、わが国では  $1.7 \times 10^{-2} \text{ M}$  [5]と 1 衍以上高くなっている。2.4 節でも述べたとおり、炭酸濃度が高いと溶解速度が高くなると指摘されている[31]ことから、燃料溶解速度に及ぼす全炭酸濃度の影響について詳細に調べる必要があると考えられる。

なお、使用済燃料は、ガラス固化体に比べて多様性が高いことから、REDUPP プロジェクト[31]で述べられているとおり、燃料溶解速度にもまだ多くの不確実性が残されている。したがって、燃料溶解速度の不確実性の設定について、諸外国の手法を参考にしつつ詳細かつ慎重に行う必要があると考えられる。

## 6.2 構造材の腐食に伴う核種放出

構造材の腐食に伴う核種放出では、YMP-SAR [27]を除き一定の溶解速度を与えており、SR-Site [23]では、ステンレス鋼等とジルカロイ被覆管を区別せず、保守側の溶解速度が設定されている。TURVA-2012 [24]および Dossier 2005 [26]では、ステンレス鋼等とジルカロイ被覆管の溶解速度が区別されている。EN2002 [6]では逆に、腐食が遅いジルカロイ被覆管の溶解速度が他の部材にも適用されている。また、カナダではジルカロイ合金のみを評価しており、線量に対する寄与が小さいことを理由に、安全評価には構造材の溶解速度は含まれていない。

わが国では、TRU 廃棄物処分技術検討書[63]において、金属の全溶解に要する核種浸出期間が評価されている。その値はジルカロイで 11,400 y、ステンレス鋼およびインコネルで 8,500 y であり、溶解速度に換算するとそれぞれ  $8.77 \times 10^{-5} \text{ y}^{-1}$  および  $1.18 \times 10^{-4} \text{ y}^{-1}$  となる。これらの値は、Table 6 に示した諸外国の設定値や、最新の長期試験結果[64]とおおむね整合していることから、わが国の代替オプションの検討としての直接処分の安全評価にも適用可能であると考えられる。なお、わが国における調査でも、構造材の溶解速度に及ぼす温度の影響が報告されていることから、不確実性の評価において温度の影響も考慮することが必要であると言える。

## 7 結言

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、使用済燃料を直接処分した場合の安全評価のために新たに設定する必要があるソースタームパラメータのうち、燃料溶解速度と金属材料の腐食に伴う溶解速度について、欧米各国の最新の安全評価報告書に記載されている設定値およびその根拠ならびに不確実性評価について概説し、諸外国の情報を一覧できるよう整理した。本報告により、わが国の使用済燃料の特性に応じた燃料溶解速度および構造材の腐食に伴う溶解速度について、信頼性の高い値を設定するための基盤情報の整理や課題の抽出ができたものと考えられる。

## 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：平成二十六年六月十三日法律第六十九号）(2014).
- [2] 日本国政府: エネルギー基本計画。(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。(2015).
- [4] 油井三和、牧野仁史、芦田敬、梅木博之、石黒勝彦、根山敦史: ガラス固化体からの元素の溶出挙動と人工バリア空隙水中の溶解度評価. PNC TN8410 92-161 (1992).
- [5] 天野由記、近沢孝弘、千々和辰訓、江橋健、畠中耕一郎、平野史生、本田明、石寺孝充、石谷和己、亀井玄人、加藤智子、河口達也、北村暁、小尾繁、前川恵輔、牧野仁史、三木晋、長尾郁弥、澤田淳、柴田雅博、塙月正雄、杉田裕、陶山忠宏、鈴木祐二、館幸男、谷口直樹、寺島元基、若杉圭一郎、山口正秋: 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略的評価－直接処分第1次取りまとめ－. JAEA-Research 2015-016 (2015).
- [6] National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste in Switzerland (Nagra): Project Opalinus Clay Safety Report, Demonstration of disposal feasibility for spent fuel, vitrified high-level waste and long-lived intermediate-level waste (Entsorgungsnachweis). Technical Report 02-05 (2002).
- [7] 長田正信、近沢孝弘、赤堀邦晃、北村暁、館幸男: 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. 原子力バックエンド研究 Vol.23-1, pp.31-53 (2016).
- [8] Bruno, J. and Ewing, R. C.: Spent Nuclear Fuel. *Elements* 2, pp.343-349 (2006).
- [9] Werme, L. O., Johnson, L. H., Oversby, V. M., King, F. Spahiu, K., Grambow, B. and Shoesmith, D. W.: Spent fuel performance under repository conditions: A model for use in SR-Can. SKB TR-04-19, Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB) (2004).
- [10] Shoesmith, D. W.: Used Fuel and Uranium Dioxide Dissolution Studies - A Review. NWMO TR-2007-03, Nuclear Waste Management Organization of Canada (NWMO) (2007).
- [11] Parks G. A. and Pohl D. C.: Hydrothermal solubility of uraninite, *Geochim. Cosmochim. Acta* 52, pp.863-875 (1988).
- [12] Yajima, T., Kawamura, Y. and Ueta, S.: Uranium (IV) solubility and hydrolysis constants under reducing conditions. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* 353, pp.1137-1142 (1995).
- [13] Rai, D., Yui, M. and Moore, D. A.: Solubility and solubility product at 22 °C of UO<sub>2</sub>(c) precipitated from aqueous U (IV) solutions. *J. Solution Chem.* 32, pp.1-17 (2003).
- [14] Rai, D., Felmy, A. R., Moore, D. A. and Mason, M. J.: The solubility of Th(IV) and U(IV) hydrous oxides in concentrated NaHCO<sub>3</sub> and Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> solutions. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* 353, pp.1143-1150 (1995).
- [15] Ekeroth, E., Roth, O. and Jonsson, M.: The relative impact of radiolysis products in radiation induced oxidative dissolution of UO<sub>2</sub>. *J. Nucl. Mater.* 355, pp.38-46 (2006).
- [16] Nielsen, F. and Jonsson, M.: Simulations of H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> concentration profiles in the water surrounding spent nuclear fuel taking mixed radiation fields and bulk reactions into account. *J. Nucl. Mater.* 374, pp.281-285 (2008).
- [17] Nielsen, F., Lundahl, K. and Jonsson, M.: Simulations of H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> concentration profiles in the water surrounding spent nuclear fuel. *J. Nucl. Mater.* 372, pp.32-35 (2008).
- [18] Ollila, K.: Influence of radiolysis on UO<sub>2</sub> fuel matrix dissolution under disposal conditions – Literature study. Posiva Working Report 2011-27 (2011).
- [19] Kitamura, A. and Takase H.: Effects of  $\alpha$ -radiation on a direct disposal system for spent nuclear fuel – (1) Review of research into the effects of  $\alpha$ -radiation on the spent nuclear fuel, canisters and outside canisters. *J. Nucl. Sci. Technol.* 53(1), pp.1-18 (2016).
- [20] Kitamura, A., Takase, H., Metcalfe, R. and Penfold, J.: Effects of  $\alpha$ -Radiation on a Direct Disposal System for Spent Nuclear Fuel – (2) Review of Research into Safety Assessments of Direct Disposal of Spent Nuclear Fuel in Europe and North America. *J. Nucl. Sci. Technol.* 53(1), pp.19-33 (2016).
- [21] Swedish Nuclear Power Inspectorate (SKI): SITE-94 – Deep repository performance assessment project. Sweden: Report 96:36 (2 volumes) (1996).
- [22] 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., Miserque, 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).
- [23] 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 (2011).
- [24] Posiva Oy: Safety case for the disposal of spent nuclear fuel at Olkiluoto – Models and data for the repository system 2012, POSIVA 2013-01 (2013).
- [25] Johnson, L.: A model for radionuclide release from spent UO<sub>2</sub> and MOX fuel. Arbeitsbericht NAB 13-37, Nagra (2014).
- [26] Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs (ANDRA): Dossier 2005 Argile – Synthesis: Evaluation of the feasibility of a geological repository in an argillaceous formation (2005).
- [27] U.S. Department of Energy (US-DOE): Yucca Mountain repository license application: Safety analysis report. DOE/RW-0573 (2008).
- [28] NWMO: Pre-project report on adaptive phased management – Used fuel repository conceptual design and postclosure safety assessment in crystalline rock. TR-2012-16 (2012).
- [29] Sneyers, A. (coordinator) et al.: Final report on understanding and physical and numerical modelling of the key processes in the near field and their coupling for different host rocks and repository strategies (NF-PRO). Contract No. FI6W-CT2003-002389, EUR 23730, European Commission (2008).
- [30] Grambow, B. (coordinator) et al.: Final activity report: Project MICADO – Model uncertainty for the mechanism of dissolution of spent fuel in nuclear waste repository. Priority No. NUWASTE-2005/6-3.2.1.1-2, European Commission (2010).
- [31] Evins, L. Z., Juhola, P. and Vähänen, M.: REDUPP final report. Working Report 2014-12, Posiva Oy (2014).
- [32] 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.: Effect of alpha irradiation field on long-term corrosion rates of spent fuel. Work package WP3 Deliverable D9 of the European Project, Contract No. FIKW-CT-2001-00192 SFS (2005).
- [33] Johnson, L. (ed.) et al.: Spent fuel evolution under disposal conditions: Synthesis of results from the EU Spent Fuel Stability (SFS) Project – A report of the Spent Fuel Stability (SFS) Project of the 5th Euratom Framework Program. Technical Report 04-09, Nagra (2005).
- [34] Merino, J., Cera, E., Bruno, J., Quiñones, J., Casas, I., Clarens, F., Giménez, J., De Pablo, J., Rovira, M. and Martínez-Esparza, A.: Radiolytic modelling of spent fuel oxidative dissolution mechanism. Calibration against UO<sub>2</sub> dynamic leaching experiments. *J. Nucl. Mater.* **346**, pp.40-47 (2005).
- [35] SKB: Data report for the safety assessment SR-Site. Technical Report TR-10-52 (2010).
- [36] SKB: Long-term safety for KBS-3 repositories at Forsmark and Laxemar – a first evaluation – Main report of the SR-Can project. Technical Report TR-06-09 (2006).
- [37] Grambow, B., Loida, A., Martínez-Esparza, A., Diaz-Arcoas, P., De Pablo, J., Paul, J.-L., Marx, G., Glatz, J.-P., Lemmens, K., Ollila, K. and Christensen, H: Source term for performance assessment of spent fuel as a waste form. EUR 19140 EN, European Commission, Nuclear Science and Technology (2000).
- [38] Loida, A., Grambow, B. and Geckeis, H: Spent fuel corrosion behavior in salt solution in the presence of hydrogen overpressure. Proc. of ICEM'01: The 8th Internat. Conf. on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation, Bruges, Bergium, September 30 – October 4, 2001 (CD-ROM) (2001).
- [39] Bruno, J., Cera, E., Grivé, M., Eklund, U.-B. and Eriksen, T.: Experimental determination and chemical modelling of radiolytic processes at the spent fuel/water interface. Technical Report TR-99-26, SKB (1999).
- [40] King, F. and Shoesmith, D. W.: Electrochemical studies of the effect of H<sub>2</sub> on UO<sub>2</sub> dissolution. Technical Report TR-04-20, SKB (2004).
- [41] Ollila, K. and Oversby, V. M.: Dissolution of unirradiated UO<sub>2</sub> and UO<sub>2</sub> doped with <sup>233</sup>U under reducing conditions. Technical Report TR-05-07, SKB (2005).
- [42] Carbol, P., Cobos-Sabate, J., Glatz, J.-P., Ronchi, C., Rondinella, V., Wegen, D. H., Wiss, T., Loida, A., Metz, V., Kienzler, B., Spahiu, K., Grambow, B., Quiñones, J. and Martínez-Esparza Valiente, A.: The effect of dissolved hydrogen on the dissolution of <sup>233</sup>U doped UO<sub>2</sub>(s), high burn-up spent fuel and MOX fuel. Technical Report TR-05-09, SKB (2005).
- [43] Ollila, K.: Dissolution of unirradiated UO<sub>2</sub> and UO<sub>2</sub> doped with <sup>233</sup>U in low- and high-ionic-strength NaCl under anoxic and reducing conditions. Working Report 2008-50, Posiva Oy (2008).
- [44] Ollila, K.: Influence of radiolysis on UO<sub>2</sub> fuel matrix dissolution under disposal conditions – Literature study. Working Report 2011-27, Posiva Oy (2011).
- [45] Johnson, L. and Smith, P. A.: The interaction of radiolysis products and canister corrosion products and the implications for spent fuel dissolution and radionuclide transport in a repository for spent fuel. Technical Report 00-04, Nagra (2000).
- [46] ANDRA: Dossier 2005 Argile – Tome: Phenomenological evolution of a geological repository (2005).

- [47] Bechtel SAIC Company (BSC): CSNF Waste Form Degradation: Summary Abstraction. ANL-EBS-MD-000015 REV 02 (2004).
- [48] Garisto, F., Gobien, M., Kremer, E. and Medri, C.: Fourth Case Study: Reference Data and Codes. TR-2012-08, NWMO (2012).
- [49] Muzeau, B., Jégou, C., Delaunay, F., Broudic, V., Brevet, A., Catalette, H., Simoni, E. and Corbel, C.: Radiolytic oxidation of UO<sub>2</sub> pellets doped with alpha-emitters (<sup>238/239</sup>Pu). *J. Alloys Compd.* **467**, pp.578-589 (2009).
- [50] Tait, J. C., Roman, H. and Morrison, C. A.: Characteristics and radionuclide inventories of used fuel from OPG Nuclear Generating Stations: Volume 1-Main report and Volume 2 Rationuclide inventory data. Report 06819-REP-01200-10029-R00., Ontario Power Generation (OPG) (2000).
- [51] Cormenzana, J. L.: Probabilistic sensitivity analysis for the “Initial defect in the canister” reference model. Working Report 2013-25, Posiva Oy (2013).
- [52] Gray, W. J., Leider, H. R. and Steward, S. A.: Parametric study of LWR spent fuel dissolution kinetics. *J. Nucl. Mater.* **190**, pp.46-52 (1992).
- [53] Steward, S. A. and Weed, H. C.: Modeling of UO<sub>2</sub> aqueous dissolution over a wide range of conditions. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **333**, pp.409-416 (1997).
- [54] De Pablo, J., Casas, I., Gimenez, J., Molera, M. and Torrero, M. E.: Effect of temperature and bicarbonate concentration on the kinetics of UO<sub>2</sub>(s) dissolution under oxidizing conditions. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **465**, pp.535-542 (1997).
- [55] Posiva Oy: Safety case for the disposal of spent nuclear fuel at Olkiluoto – Features, Events and Processes 2012, POSIVA 2012-07 (2012).
- [56] SKB: Spent nuclear fuel for disposal in the KBS-3 repository. Technical Report TR-10-13 (2010).
- [57] SKB: Fuel and canister process report for the safety assessment SR-Site. Technical Report TR-10-46 (2010).
- [58] Johnson, L. H. and McGinnes, D. F.: Partitioning of radionuclides in Swiss power reactor fuels. Technical Report 02-07, Nagra (2002).
- [59] Wada, R., Nishimura, T., Fujiwara, K., Tanabe, M. and Mihara, M.: Experimental study on hydrogen gas generation rate from corrosion of zircaloy and stainless steel under anaerobic alkaline condition. *Proceeding of the 7th International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation (ICEM'99)*, Nagoya, Japan, 26-30 September 1999 (1999).
- [60] ANDRA: Dossier 2005 Argile – Tome: safety evaluation of a geological repository (2005).
- [61] BSC: Aqueous corrosion rates for waste package materials. ANL-DSD-MD-000001 REV 01 (2004).
- [62] Shoesmith, D. W. and Zagidulin, D.: The corrosion of zirconium under deep geological repository conditions. NWMO TR-2010-19, NWMO (2010).
- [63] 電気事業連合会, 核燃料サイクル開発機構: 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 (2005).
- [64] (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 26 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—炭素 14 長期放出挙動評価— (2015).