

人工バリアシステムの設計研究(I)

概 要

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究報告書)

1986年6月

三菱金属株式会社

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団
技術協力部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to: Technical Evaluation and Patent Office, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 9-13, 1-chome, Akasaka, Minato-ku, Tokyo 107, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)

人工バリアシステムの設計研究(1)

打越肇※

要 旨

本研究は、高レベル放射性廃棄物の地層処分システム開発の一環として行われたものであり、人工バリアシステムを構築し、最適な設計を目標とするものである。

本年度の人工バリアシステムの設計研究(Ⅰ)においては、

- (1) 人工バリアシステムの設定
- (2) 人工バリア性能評価試験

を行い、下記の成果が得られた。

人工バリアシステムの設定においては、廃棄物固化体としてホウケイ酸ガラス、キャニスタとしてステンレス鋼、オーバーパックとして厚さ250mmの鋳鉄、緩衝材として厚さ30cmの圧密したベントナイトを設定し、性能評価計算を行った結果、暫定的に定めた地層処分全体の被曝線量：1mrem/y、人工バリアシステムの性能目標：1,000年以上の閉じ込め期間と 10^{-5} /年以下の放出率、を充分満足することが判明した。

人工バリアの性能評価試験においては、オーバーパック材に関する試験として厚膜型金属材料の試験と薄膜型金属材料の試験を行い、緩衝材に関する試験としてベントナイト中におけるAmの核種移行試験と透水性の試験を行った。

厚膜型金属材料の試験においては、長期的な腐食環境の変化要因として腐食生成物の増加に注目し、想定される将来の環境条件で腐食速度の測定を行うことにより、厚膜型金属材料の新たな長期寿命評価を試みた。

薄膜型金属材料の試験においては、想定される処分環境を実験室的に再現した条件下で、ステンレス鋼・チタン合金について、すきま腐食の再動態化電位の測定に成功し、金属とベントナイト間のすきまが、腐食すきまとして作用することが実験的に裏付けられた。

Am核種移行試験においては、Na型ベントナイト中でAmOHCO₃が析出し、H型、Fe型ベントナイト中ではAm³⁺またはAmCl²⁺が拡散していることがわかった。透水性試験からは流速が 10^{-8} cm/s以下であれば、核種移行に対する流速の影響はほとんどないことがわかった。

本報告書は、三菱金属株式会社が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究の成果の概要である。

契約番号：600D239

※ 三菱金属株式会社原子力事業部開発部

JUNE, 1986

Design Study of Engineered Barrier System(I)

Hajime Uchikoshi ※

Abstract

This study has been conducted as part of the R & D on high level waste disposal. The purpose is to design most suitable engineered barrier system in Japan. Presentation and rough determination of specifications of engineered barrier system, and experiments for assessment of engineered barrier performance have been studied in the FY 1985.

Borosilicate glass as waste form, stainless steel as a material of canister, cast iron with a thickness of 250 mm as overpack, and highly compacted bentonite with a thickness of 30 cm as buffer material have been proposed, and calculation of barrier performance of the system have revealed that maximum dose rate of 1 mrem/y, perfect containment of nuclides for 1000 years, and release rate of nuclides of less than 10^{-5} /y after 1000 years later were achieved.

In the test of passivation metal, long term life assessment of the metal was tried by measuring a corrosion rate in the estimated condition of the future.

In the test of passivity metal, the repassivation potential (E_R) for crevice corrosion of stainless steel and titanium alloy under the condition of geologic disposal was successfully measured. And, it was experimentally admitted that crevice between metal and buffer material was acted as corrosive crevice.

Migration test of americium revealed that deposition of americium was occurred as AmOHCO_3 in Na-type bentonite, and that diffusion of americium was occurred as Am^{3+} or AmCl^{2+} in H- and Fe-type bentonite. In permeability test, hydraulic conductivity of less than 10^{-8} cm/s did not practically affect the nuclide migration compared with the effect of diffusion.

Work Performed by Mitsubishi Metal Corporation under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

PNC Liaison ; TOMOHISA ZAITSU (WASTE ISOLATION OFFICE)

※ Mitsubishi Metal Corporation, Nuclear Energy Division, Development Department.

1. まえがき

天然バリアと人工バリアで構成される多重バリアにより安全性を確保するというのが、高レベル放射性廃棄物の地層処分の基本的な概念である。ガラス固化体、キャニスタ、オーバーパック、緩衝材からなる処分孔内の人工バリアシステムを構築し、その最適な設計を行うことが「人工バリアシステムの設計研究」の目標である。

本年度実施した「人工バリアシステムの設計研究(1)」は、2の「人工バリアシステムの設計」と3の「人工バリア性能評価試験」に区分される。

2の「人工バリアシステムの設計」においては、Fig. - 1に示す人工バリアシステムを最終的に構築するための作業フローを念頭におき、人工バリアシステム設計方針と設計基準の検討、性能評価計算による試設計、設計のための性能評価試験に焦点をあてた研究を行った。

3の「人工バリア性能評価試験」においては、これまで動燃事業団殿が実施されてこられた従来の固化体容器の健全性に関する試験、緩衝材に関する試験を継続して行い、固化体容器に関する試験として厚模型金属材料の試験と薄膜型金属材料の試験、緩衝材に関する試験としてベントナイト中のAmの核種移行試験とベントナイトの透水性に関する試験を実施した。

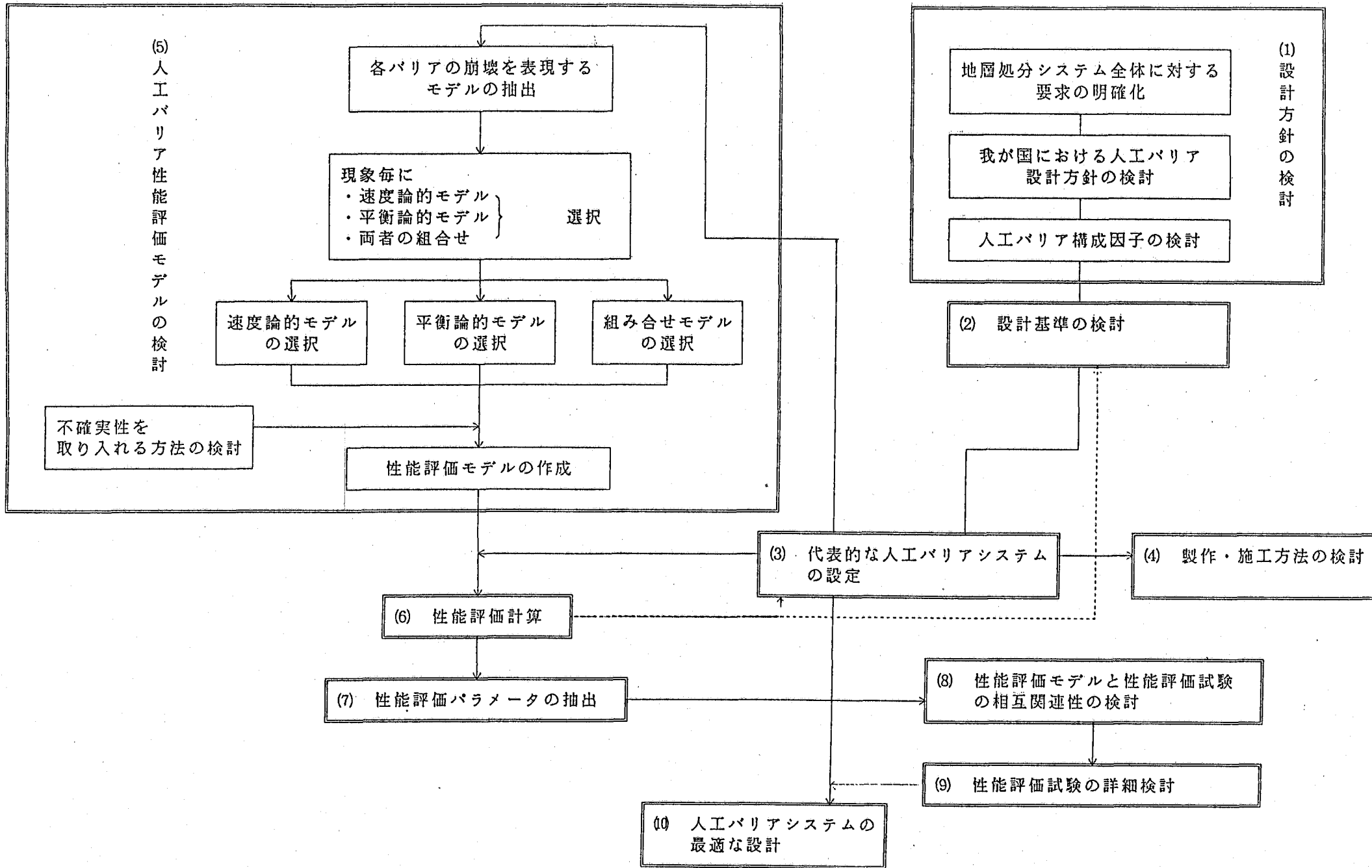


Fig. - 1 Flow Diagram of Design Study of Engineered Barrier System

2. 人工バリアシステムの設定

2.1 人工バリアシステムの設計方針の検討

- (1) 地層処分は、多重バリア、すなわち天然バリアと人工バリアの組み合わせで安全性を確保するのが基本的考え方であり、人工バリアは天然バリア性能の不確実性を補うとともに地層処分システム全体の安全性をより確実なものとするために施されるバリアである。

人工バリアに期待される基本的な性能としては以下の項目が挙げられる。

- ・放射性核種の閉じ込め
- ・放射性核種の漏洩速度の抑制
- ・力学的、化学的緩衝作用など

人工バリアシステムの設計において考慮すべき項目は、

- ① 天然バリアとの組み合わせによる全体性能の確保
- ② 人工バリアシステム性能の確保
- ③ バリア相互の影響
- ④ 多重の安全性
- ⑤ 長期的性能評価
- ⑥ 技術的裏付け
- ⑦ 環境条件の考慮
- ⑧ 経済性
- ⑨ 資源価値の考慮

である。

- (2) 人工バリアシステムの基本構成要素

人工バリアの構成要素は、

- ・固化体
- ・ギャニスタ
- ・オーバーバック
- ・緩衝材
- ・埋戻し材
- ・グラウト
- ・プラグ

・ シール

である。固化体・キャニスタは動燃事業団においてすでに、設計および評価が進められており、本研究の対象外とした。また、埋戻し材・グラウト・プラグ・シールは操業時の坑道や掘削時に生じた亀裂を基の岩盤と同程度以上の性能に回復するためのバリアと位置づけられるものであり、同じく本研究の対象外とした。

本研究においては、残るオーバーパック・緩衝材を検討対象とした。

(3) 人工バリア設計基準の検討

地層処分システム全体の性能目標、人工バリアシステムの性能目標、個々の人工バリアの性能目標の観点でIABA、スイス、米国NRCおよびEPA、スウェーデンの事例を調査し人工バリア設計基準検討のための参考資料とした。

次に放出シナリオと廃棄物特性を検討した。天然バリアおよび人工バリアシステムを急激に破壊する地球物理学のプロセスを除けば、核種の放出は主に地下水と地球化学のプロセスによる。前者は適切なサイト選定によりその可能性を排除することができる。したがって、人工バリアシステムの設計において考慮すべきシナリオは、後者の緩慢かつ長期的なプロセスとなる。

ガラス固化体中の放射能の経年変化を検討すると、再処理後約300年で核分裂生成物とアクチニドの放射能は等しくなり、約1000年で1/1000に減衰する。発熱量は放射能とほぼ同様の減衰を示し、約1000年で1/1000に減衰する。また、ガラス固化体から放出される γ 線による表面線量率も約1000年で1/1000に減衰する。

我が国および海外の線量目標を検討し、さらに地層処分においては長期の予測に伴うある程度の不確実性があることから、また原子力発電所の線量目標とALARAの精神を考慮して、本研究における線量目標を1 mrem/年とする。

さらに考慮すべき項目としては上記の放射能・発熱量・放射線強度の他に再取り出しの可能性および天然バリアに期待する性能の軽減が挙げられる。これらと海外の事例を考慮して、本研究における人工バリアシステムの設計基準として、

・ 1000年以上の閉じ込め期間

・ 10^{-5} /年以下の漏洩率

を設定する。すなわち、1000年の閉じ込めによって、放射性核種の移行の評価における発熱と放射線の影響を排除し、1000年以内の再取り出しを容易にする。さらに、放出率を抑制することにより環境への影響をできる限り低減するものである。

(4) 人工バリア材料の選定

オーバーパック材料の要求される特性として、

- ・耐食性
- ・機械的性質
- ・施工性
- ・経済性
- ・材料の完成度
- ・長期寿命予測の容易性

が重要な項目として挙げられる。これらの観点から25種類の金属・合金を評価した結果、鑄鉄のうちの鑄鋼（JIS G 5102 溶接構造用鑄鋼品）を最も優れたオーバーパック材料として選定した。（Table-1参照）

緩衝材料の機能と要求される特性をTable-2に示す。これらの特性を有するものとして検討された材料は40種類以上に達する。しかしながら、Table-2に示される特性にすぐれた材料として挙げられるのはスメクタイト系粘土鉱物のうちモンモリロナイトを主成分とするベントナイトである。さらに、止水性、膨潤性、加熱時のイオン交換容量の変化などの点を検討して、Na型ベントナイトを緩衝材材料として選定した。

Table-2 Functions and characteristics of Buffer Material.

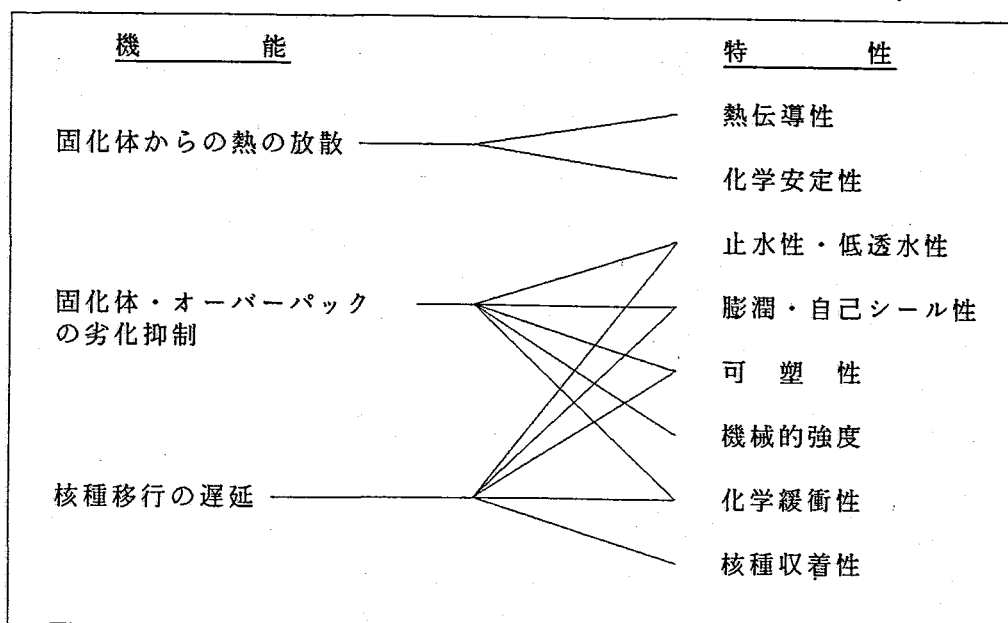


Table-1 Assessment of Metal and Alloy for Overpack Material.

材 料		耐食用	機械的 性 質	施工性	経済性	完成度	長期寿 命予測
Al及びAl合金	純Al	×	○	△	△	○	×
	高力Al合金	×	○	×	△	△	×
Mg及びMg合金	純Mg	×	×	×	△	△	×
	Mg・Al・Zn合金	×	○	×	△	×	×
鉄合金	鑄鉄	△	○	○	○	○	○
	炭素鋼	△	○	○	○	○	○
	低合金鋼	△	○	○	○	○	×
ステンレス鋼	マルテンサイト系	×	○	△	△	△	×
	フェライト系	△	○	△	△	△	×
	2相系	×	○	△	△	△	×
	オーステナイト系	×	○	○	△	○	×
	析出硬化系	×	○	△	△	△	×
Ni合金	インコロイ系	△	○	○	×	△	×
	インコネル系	○	○	○	×	○	×
	ハステロイ系	○	○	○	×	△	×
Co合金	ヘインズ系	○	○	○	×	△	×
Ti及びTi合金	純Ti	○	○	△	△	○	×
	Ti-code 12	○	○	△	△	△	×
	Ti-0.2%Pd	○	○	△	×	△	×
Zr及びZr合金	純Zr	○	○	×	×	○	×
	ジルカロイ	○	○	×	×	△	×
Cu及びCu合金	脱酸銅	△	×	×	○	○	○
	キューロニッケル	△	○	△	△	△	×
	青銅鑄物	△	○	○	△	○	×
鉛	△	×	×	△	○	△	

2.2 性能評価計算による試設計

(1) 性能評価モデルの検討

人工バリアシステムからの核種放出に係わるシナリオとしては、一般に、次の様なものが考えられている。

- ① 処分場閉鎖後、緩衝材周辺から地下水が侵入を開始する。
- ② 緩衝材が地下水により満たされると、次に廃棄物容器（キャニスタ、オーバーパック）が地下水により腐食され始める。
- ③ 腐食により劣化した容器は、全面腐食、あるいは局部腐食による開口部の発生もしくは、応力による割れ、座屈圧潰のためにバリアとしての性能を喪失し、廃棄物固化体と地下水の接触が開始される。（この時点までは、廃棄物中の放射性核種はパッケージ中に閉じ込められており、これを閉じ込め期間と呼ぶことができる。）
- ④ 固化体は地下水の接触が始まると、固化体浸出に伴う核種の地下水への溶出が開始される。
- ⑤ 移動媒体である地下水中に溶出した核種は、緩衝材中を吸着、脱着を繰り返しながら移行し、天然バリア、すなわち処分孔周辺の岩盤へ放出される。（この期間は、通常、放射性核種の制限放出期間と呼ばれる。）

こうした核種放出シナリオにおいて各人工バリアは、Fig. - 2 および Fig. - 3 に示される相互作用を生じると考えられる。

従って、人工バリアシステムの性能評価を行うためには、こうした核種放出シナリオにもとづき、人工バリアシステムからの核種放出を評価することが必要であるが、このためには、次の2つの現象をモデル化することが必要である。

- ① 固化体からの核種漏洩現象
- ② 緩衝材中での核種移行現象

このうち、固化体からの核種漏洩現象は、基本的に次の2つの因子によって支配されると考えられる。

- ① 固化体からの核種の浸出率
- ② 地下水中的での核種の溶解度

従って、本研究においては、固化体からの核種の漏洩率は、この浸出率から計算される漏洩率と溶解度から計算される漏洩率のうち小さい方に支配されると仮定し

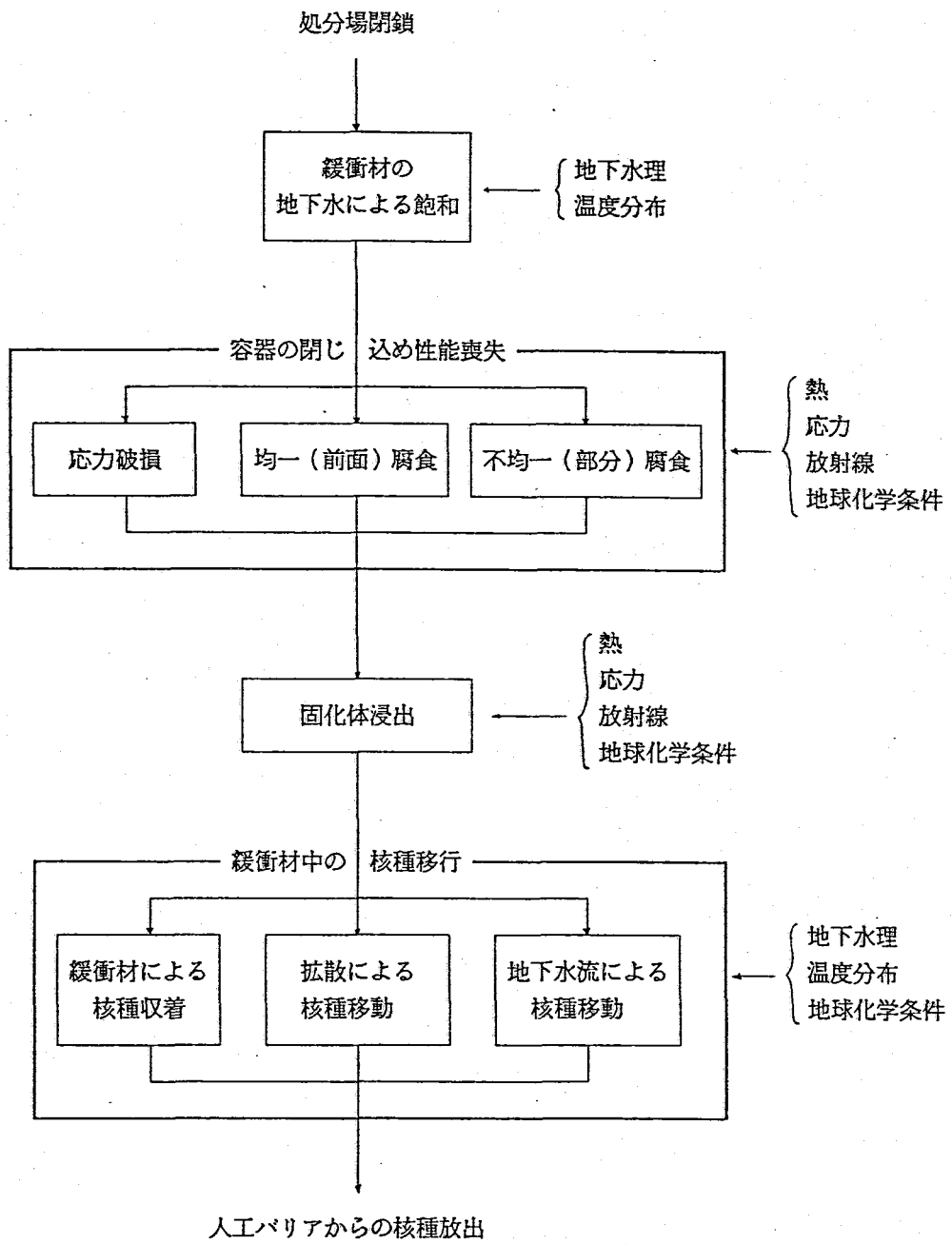


Fig. - 2 Release Scenario from Engineered Barrier System

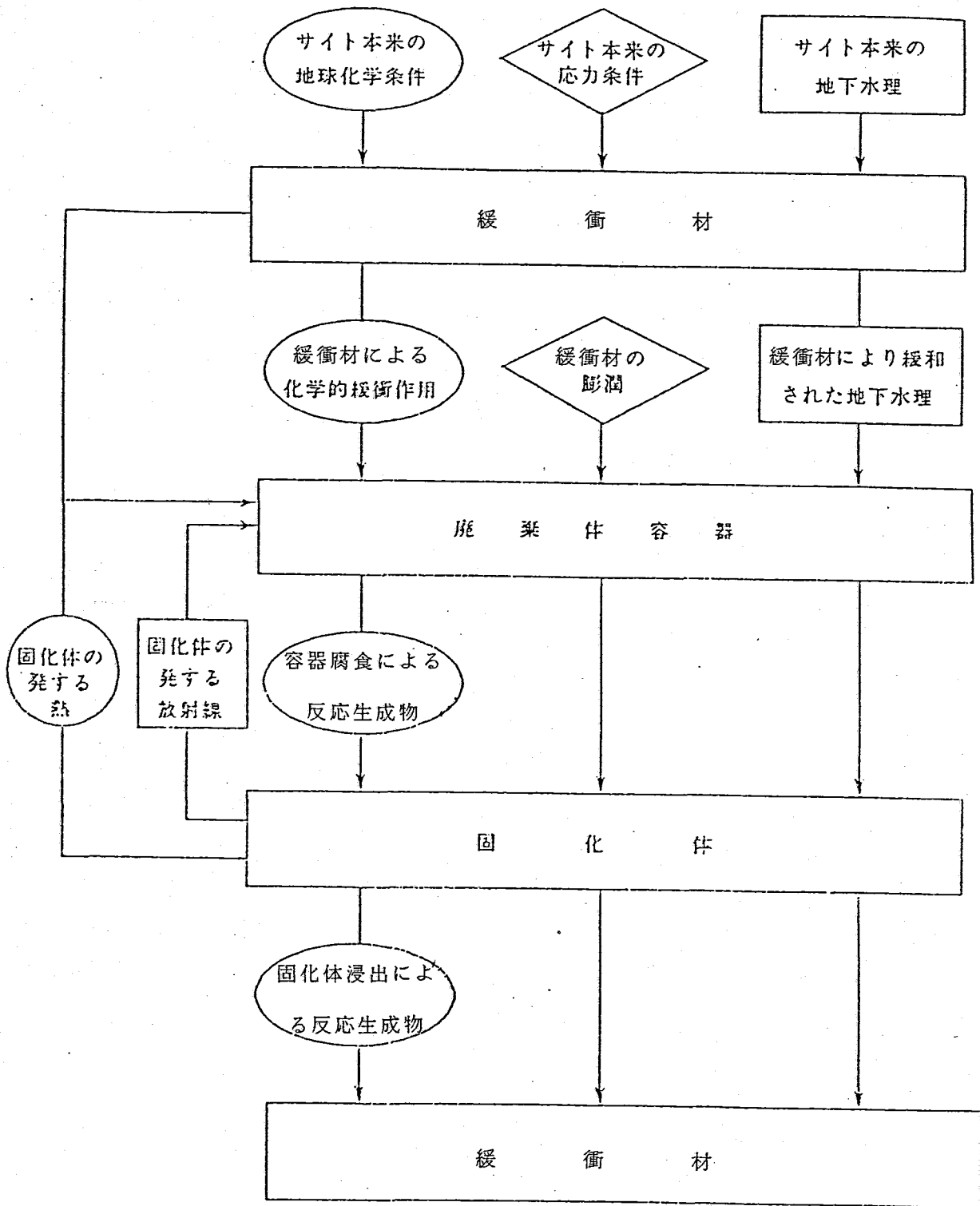


Fig. - 3 Interaction between Each Barrier

たモデルを用いる。

また、緩衝材中での核種移行現象は、基本的に次の現象によって構成されると考えられる。

- ① 地下水流による核種移行現象
- ② 拡散による核種移行現象
- ③ 緩衝材による核種収着現象

従って、緩衝材中での核種移行現象のモデルとしては、これらの現象に関するモデルを用いることが必要である。

以上より、本研究において用いた核種放出モデルの構成Fig. - 4に示す。

(2) 性能評価データの検討

前途の性能評価モデルにより性能評価計算を行うために必要なパラメータは、主に次のパラメータである。

① 核種インベントリーパラメータ

- ・元素名
- ・同位体名
- ・同位体存在比
- ・半減期
- ・固化体中含含有率

② 固化体性能評価パラメータ

- ・固化体の浸出率
- ・核種の飽和溶解度
- ・地下水流速

③ 緩衝材性能評価パラメータ

- ・拡散係数
- ・分配係数
- ・緩衝材厚さ

性能評価計算に用いられるこれらのパラメータの値に関して、既往の諸研究の成果にもとづき、サイト共通かつ最も保守的に設定された値をTable-3に示す。

(3) 性能評価計算の実施

以上の性能評価モデルと性能評価データを用いて実施した性能評価計算の結果、

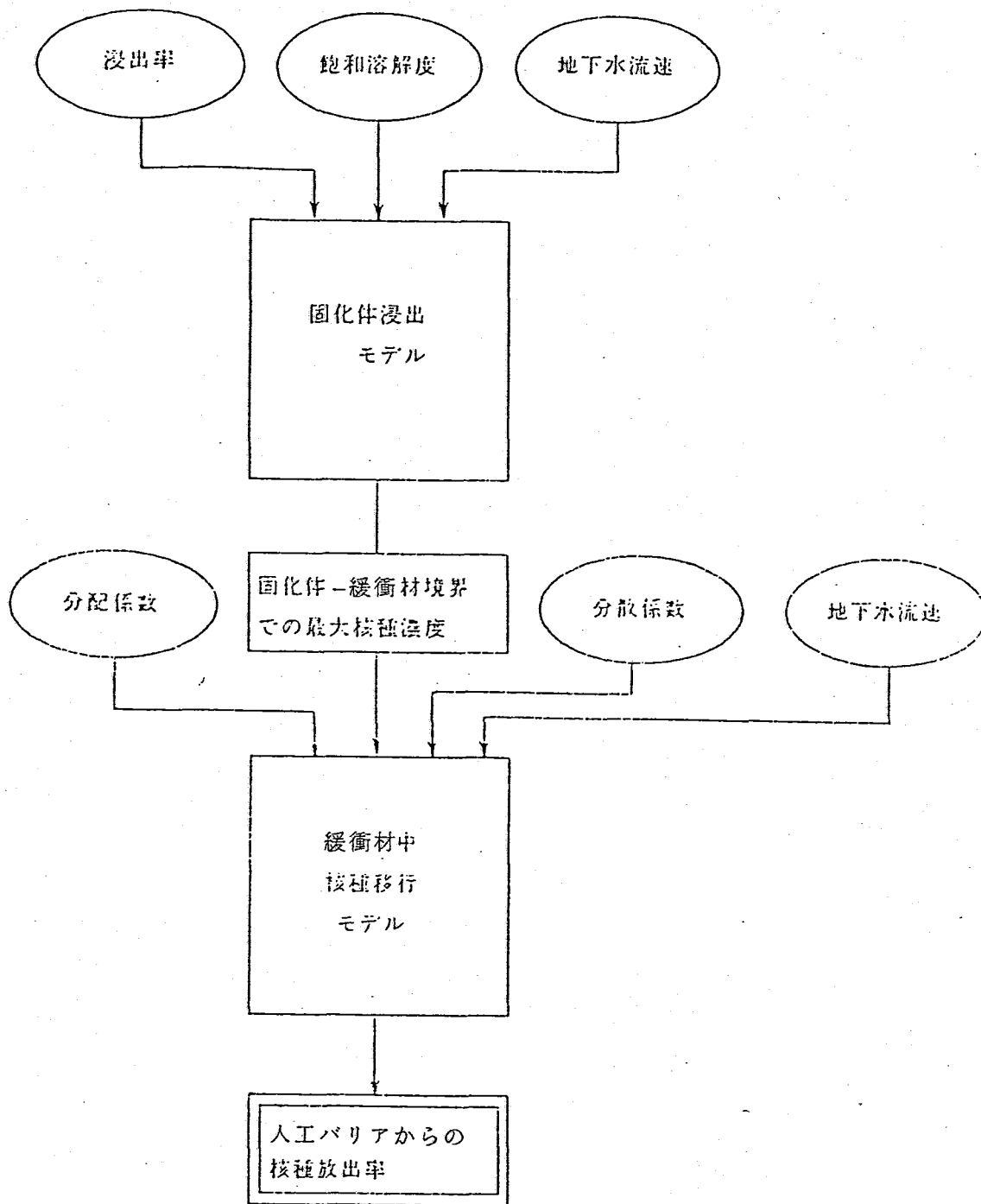


Fig. - 4 Composition of Release Model

高レベル放射性廃棄物に含まれる核種のいずれも，“処分後1000年経過時廃棄体含有量の 10^{-5} /年以下の放出率”という基準に比して小さな放出率（1～6桁下回る）を示した。また，評価計算の結果，Cs-137, Sr-90などの短半減期の核分裂生成物および比較的短半減期のアクチニドであるAm-241については最大放出率が 10^{-13} g/年を下回り，有意な量の放出は生じないことが示された。

この性能評価計算の結果の一例を，Fig. - 5に示す。この図は，Pu-239の放出率を示したものであるが，放出率は，最大でも 10^{-10} g/年以下であり，基準放出率である 3×10^{-4} g/年を5桁以上下回っていることが示されている。

さらに，本研究において採用したもう一つの性能基準，“地層処分に起因する年間被曝線量が1ミリレム以下”については，各核種に対する“最大許容水中濃度（MPC）”を年間被曝線量5レムに相当するものであると仮定し，各核種が人工バリアから放出された後，生物圏に到る間に，MPCの1/5000以下の濃度（年間被曝線量に換算して1ミリレムに相当する濃度）に希釈されるのに必要な水の量を計算し，廃棄体1本当りの必要希釈水量として計算した結果，いずれの核種についても必要希釈水量は，廃棄体1本当り 1 m^3 /年以下となり，この値は，地層に期待する希釈効果としては，かなり軽微な負担であると考えられる。

また，廃棄体から漏洩した核種が緩衝材中で形成する濃度分布についても計算を行ったが，この計算結果のうちPu-239に関するものをFig. - 6に示す。

(4) 人工バリアシステムの試設計

人工バリアシステムの試設計においては，オーバーバックの試設計と緩衝材の試設計を行った。

オーバーバックの試設計においては，候補材料として鋳鉄を選定し，性能評価計算をもとに，次の設計条件を用いて設計を行った。

- ① 厚さは，閉じ込め期間の確保に要する厚さと機械的強度の確保に要する厚さの和として評価する。
- ② 最高外圧は 300 kg/cm^2 とする。
- ③ 最高使用温度は 150°C とする。
- ④ 内側形状は，COGEMAのキャニスタ仕様に準じるものとする。なお，この仕様を用いて設計を行った場合には，動燃事業団の仕様でも若干の寸法変更で対応できると考えられる。

Table - 3 Parameters for Site Generic and Conservative Estimation

核種	同位体	同位体 存在比	半減期 【Y】	拡散係数 【m ² /y】	分配係数 【m ³ /kg】	固体中 含有率	飽和溶解度 【g/m ³ 】	固化体浸出率 【g/m ³ ·y】	充填材厚さ 【m】	地下水流速 【m/Y】
U	²³⁴ U	1.5×10^{-3}	2.5×10^5	4.7×10^{-3}	0.093	4.8100×10^{-3}	1.9×10^{-1}			
	²³⁵ U	1.3×10^{-2}	7.1×10^8							
	²³⁸ U	9.8×10^{-1}	4.4×10^9							
Np	²³⁷ Np	1	2.0×10^6	2.8×10^{-3}	0.12	2.07×10^{-3}	4.7×10^{-5}			
Pu	²³⁹ Pu	5.9×10^{-1}	2.4×10^4	6.6×10^{-3}	3.5	2.4104×10^{-4}	1.2×10^{-6}	547.5	0.3	10^{-3}
	²⁴⁰ Pu	3.8×10^{-1}	6.6×10^3							
Am	²⁴¹ Am	6.0×10^{-1}	458	5.7×10^{-3}	6.6	4.0384×10^{-4}	2.4×10^{-3}			
	²⁴³ Am	4.0×10^{-1}	7.4×10^3							
Sr	⁹⁰ Sr	1.6×10^{-10}	28	2.1	2.9	3.9×10^{-14}	10^6			
Cs	¹³⁷ Cs	1.6×10^{-10}	30	1.8×10^{-1}	1.4	4.3×10^{-13}				
				3.15×10^{-4}	0	4.0×10^{-3}				
Tc	⁹⁹ Tc	—	2.14×10^5	3.15×10^{-4}	0	4.0×10^{-3}	$10^{-8} \sim 10^{-4}$ [mol/l]			

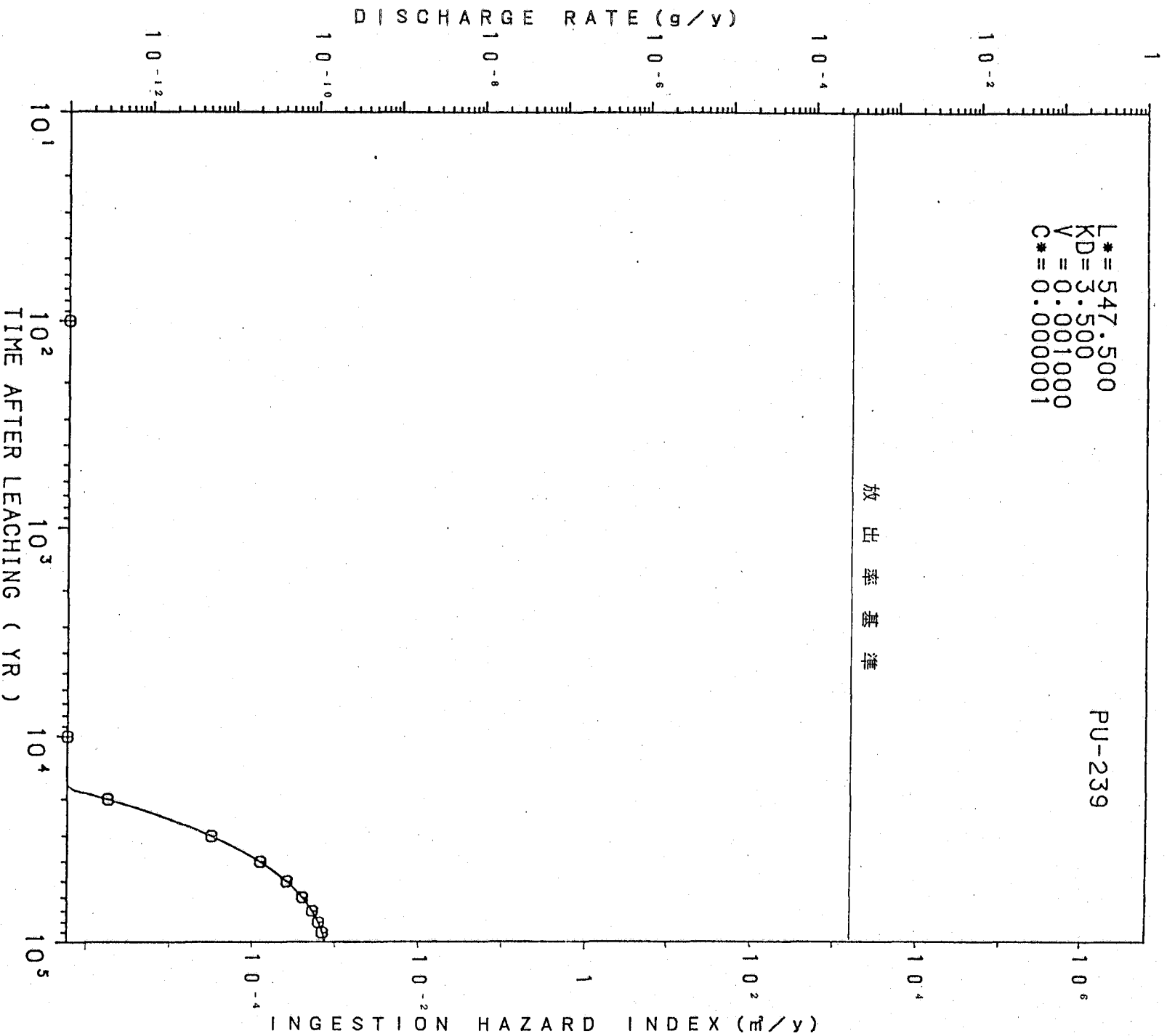


Fig. - 5 Release Rate of Pu-239 (Site Generic and Conservative Estimation)

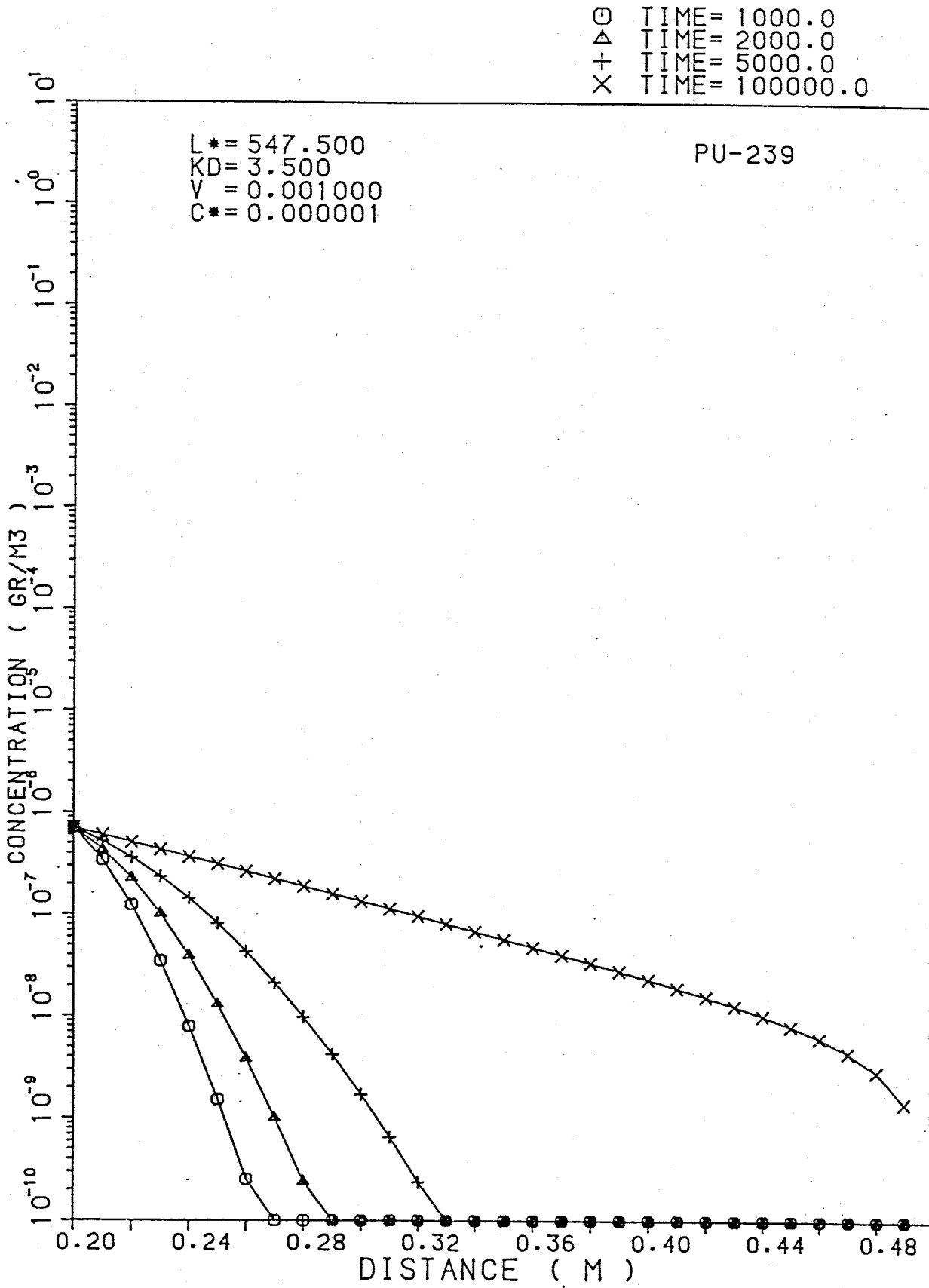


Fig. - 6 Concentration of Pu-239 (Site Generic and Conservative Estimation)

⑤ 耐用年数は最低1000年とする。

この結果、オーバーバックとして、Fig. - 7 に示すものが試設計された。

なお、軟鋼の腐食速度は文献調査と腐食試験の結果から0.1mm/年以下と考えられる。しかし、この試設計においては、最大腐食速度として0.15mm/年の値を採用し、この値から、耐用年数を保証する腐食代として150mmの値を採用した。

また、300kg/cm²の外圧に耐えられるオーバーバック厚さは、強度計算により、100mmとなることから、この試設計においては、オーバーバックの厚さとして、250mm (150mm+100mm) の値を採用した。

さらに、オーバーバックの厚さとして、この250mmを用いた場合の遮蔽性能については、遮蔽計算を行なった結果、表面線量率が約100mR/h となり、十分な遮蔽性能があることが分った。

一方、緩衝材の試設計においては、候補材料としてNa型ベントナイトを選定し、性能評価計算においては、地層処分のサイト条件に依らない一般的に保守側の設計となるように、緩衝材の性能評価データは保守側の値を用いた。

この結果、緩衝材厚さとして30cmの設計値を採用した場合には、いかなるサイト条件、天然バリア条件のもとにおいても、また、固化体の浸出率、核種の溶解度、容器の腐食率、緩衝材中での核種の拡散係数、分配係数、などの人工バリア性能評価データが、好ましくない値を示した場合においても、設定基準“ 10^{-5} /年以下の核種放出率”は十分に達成されるばかりでなく、核種によっては、この設計基準よりも、さらに1～6桁下回る放出率を達成し得ることが示唆された。

従って、この試設計においては、緩衝材厚さとして30cm以上、処分底部は余裕を見て50cm以上とする。

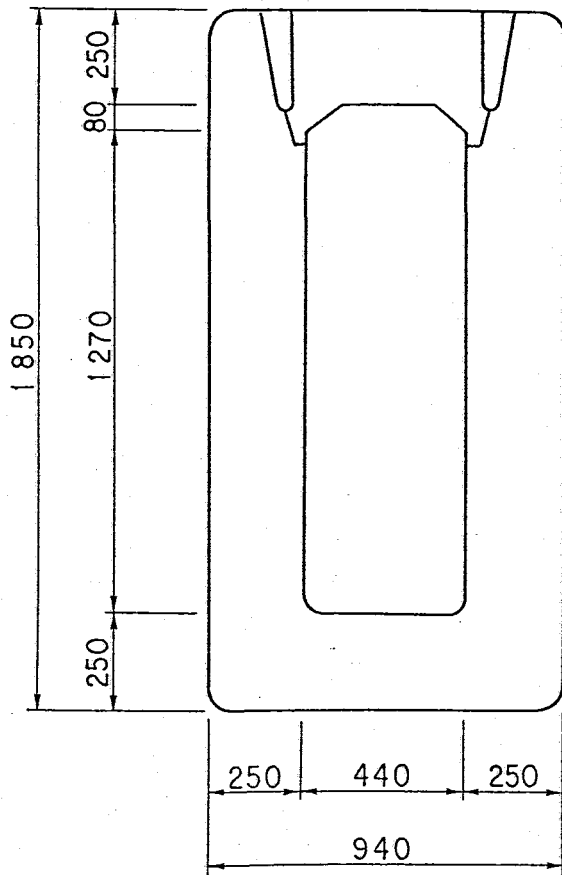
以上のオーバーバックおよび緩衝材の試設計にもとづく人工バリアシステムの概念を、Fig. - 8 に示す。

2.3 本設計のための性能評価研究の実施

人工バリアシステムの本設計を行うためには、次の課題を実施することが必要である。

① 人工バリア要素（固化体、容器、緩衝材、等）の各性能パラメータに関する感度解析を実施し、人工バリアの各性能パラメータが、人工バリアシステムの全体

最高使用压力 (外压)	300 kg/cm ²
最高使用温度	150 °C
材 料	SCW 49
腐 れ 代	150 mm
空 重 量	9000 kg



单 位 : mm

Fig. - 7 Conceptional Design of Overpack

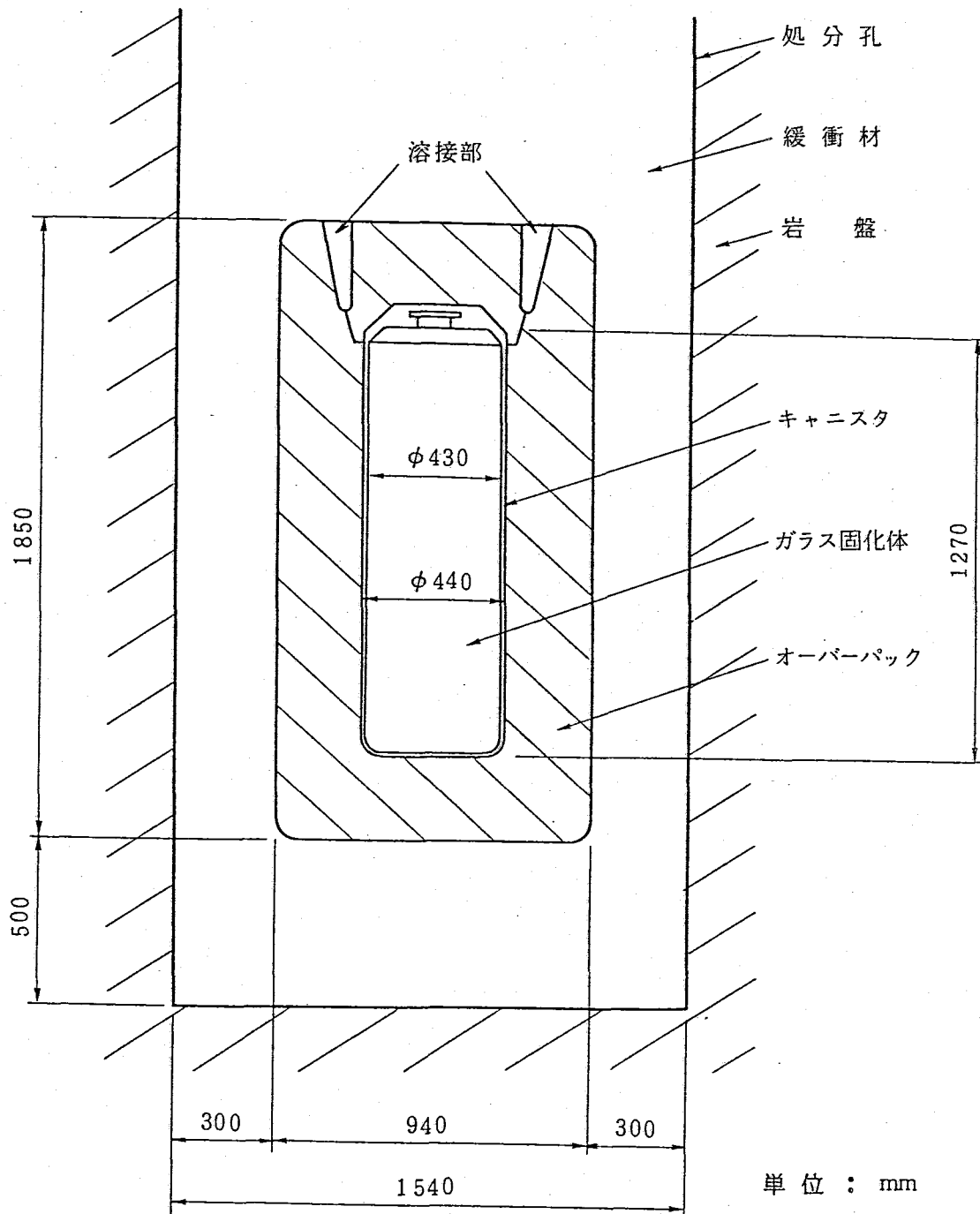


Fig. - 8 Proposed Design of Engineered Barrier System

性能に与える影響を評価し、支配的なパラメータを抽出する。

② 抽出された支配的なパラメータに関して、性能評価研究（性能評価モデルの開発・改良、性能評価試験の実施）を重点的に実施し、性能パラメータに関するより正確な情報を得る。

③ 開発・改良された性能評価モデル、および、性能評価試験によって入手された正確なデータを用いて、より現実的かつ正確な性能評価計算を行い、人工バリアシステムの本設計へ反映させる。

(1) 支配的なパラメータの抽出

人工バリア要素（固化体、容器、緩衝材、等）の各性能パラメータに関する感度解析を実施し、人工バリアの各性能パラメータが、人工バリアシステムの全体性能に与える影響を評価し、支配的なパラメータを抽出した。

この結果、高レベル放射性廃棄物に含まれる放射性核種は、人工バリア内での挙動に関して、次の4つのグループに分類することができることが示された。なお、第2グループと第4グループは安全評価上同一の扱いが可能である。

① 第1グループ…… Sr-90, Cs-137

比較的短半減期の核分裂生成物であり、溶解度限界の適用されない核種である。

② 第2グループ…… U-234, U-235, U-238, Np-237

長半減期のアクチニドであり、溶解度限界の適用される核種である。

③ 第3グループ…… Pu-239, Pu-240, Am-241,

Am-243

比較的短半減期のアクチニドであり、溶解度限界の適用される核種である。

④ 第4グループ…… Tc-99

長半減期のFPであり、溶解度限界に従う核種

そして、感度解析の結果から、それぞれのグループに含まれる核種の挙動に支配的な性能パラメータは、それぞれ次のパラメータであることがわかる。

① 第1グループ…… 容器による完全閉じ込め期間

緩衝材に対する分配係数

固化体の浸出率

- ② 第2グループ………溶解度
- ③ 第3グループ………緩衝材に対する分配係数

溶解度

- ④ 第4グループ………溶解度

以上を整理したものをTable-4に示す。

Table-4 Classification of Nuclides.

	核種	区分	挙動に支配的な因子
第一グループ	Cs-137 Sr-90	比較的短半減期のFPであり、溶解度限界の適用されない核種	容器による完全閉じ込め期間 緩衝材に対する分配係数 固化体浸出率
第二グループ	U-234 U-235 U-238 Np-237	長半減期のアクチニドであり、溶解度限界に従う核種	溶解度
第三グループ	Pu-239 Pu-240 Am-241 Am-243	溶解度限界に従う比較的短半減期のアクチニド	緩衝材に対する分配係数 溶解度
第四グループ	Tc-99	溶解度限界に従う長半減期のFP	溶解度

(2) 性能評価モデルに関する研究方針

人工バリアシステムの性能に影響を与えるパラメータである、容器の腐食率、緩衝材の分配係数、固化体の浸出率、核種の溶解度、等は、いずれも周辺環境の化学的雰囲気によって大きく変化するパラメータであり、性能評価モデルを、より現実的なものとしてゆくためには、処分場周辺環境の化学的雰囲気の長期的変化を予測することが必要となる。

地層環境の化学的雰囲気は、当初、天然の地下水の持つ化学的雰囲気から、処分場を建設し、廃棄体固化体、容器、緩衝材等を搬入することによる影響と変化を受ける。すなわち、処分場近傍の地下水の化学的条件は、次のプロセスによって影響

を受けると予想される。

- ① 緩衝材からの浸出成分
- ② 容器材の腐食生成物
- ③ 固化体の溶出成分
- ④ 廃棄体からの発生熱
- ⑤ 廃棄体からの放射線
- ⑥ 処分場に侵入した微生物の活動

このうち、①、②、③、④に関しては、近年、種々の化学成分の共存する系における熱力学的平衡状態を予測する“地球化学モデル”が開発され適用されている。

従って、性能評価モデルに関する今後の研究方針としては、この“地球化学モデル”を開発し、地下水組成、緩衝材成分、容器材料、固化体成分、核種組成、等を入力データとして、処分場近傍の化学的環境の長期的変化を予測・評価し、核種の溶解度や化学種を予測することが必要である。

(3) 性能評価試験に関する研究方針

人工バリアシステムの性能評価試験の目標は、一般に、次の4つである。

- ① 人工バリアの性能を評価する実験的方法を確立する。
- ② 人工バリアに係わる諸現象を観察し、性能評価モデルの開発に必要なデータを
得る。
- ③ 開発された人工バリアモデルの妥当性を検証する。
- ④ 人工バリアに関する性能評価データを
得る。

そして、これらの目標を達成するために、性能評価試験は通常次の段階を経て進められていく。

- ① 小規模試験から大規模試験へ
- ② 短期試験から長期試験へ
- ③ 非放射性試験から放射性試験へ
- ④ 保守的条件下試験から現実的条件下試験へ
- ⑤ 単独バリア試験から複合バリア試験へ
- ⑥ 単純プロセス試験から複合プロセス試験へ

現在までに実施されてきた人工バリアに関する性能評価試験は、ほとんどが小規模の室内試験であり、しかも、短期の単独のバリア試験および単純プロセス試験で

あった。かつ、一部で放射性試験が実施されたほかは、ほとんどが非放射性の試験であった。また、当面の課題が試験方法の確立におかれ、設定される試験条件も、バリアの性能を安全側に評価するための保守的条件下試験が主であった。

従って、今後の性能評価試験においては、次の様な試験が重要となってくる。

- ① 現実的条件下におけるガラス固化体の溶解度の測定
- ② 現実的な化学的環境条件下におけるアクチニド核種の溶解度の測定
- ③ 現実的な化学的環境条件下における鋳鋼の腐食速度の測定
- ④ 緩衝材中でのアクチニド核種の実効拡散係数の測定
- ⑤ 施工方法に応じた緩衝材の透水係数の測定
- ⑥ オーバーパックの腐食生成物や緩衝材の構成成分による化学的環境条件の変化の測定

(4) 性能評価試験の方法の検討

オーバーパックの性能を評価するためには、少なくとも1000年という長期寿命を短期間の試験データにもとづいて評価しなければならないが、このためには、従来の腐食工学の手法とは全く異なる新しい寿命予測手法を適用することが必要となる。こうした寿命評価試験の方法としては、基本的に次の2つがある。

- ① 臨界条件による評価
- ② 速度論的評価

そして、これらの評価を行う場合には、統計確率論的評価を行うことが必要となる。

本研究においては、オーバーパック容器の材料として、

- ① 炭素鋼
- ② チタン合金

の2つを挙げ、これらに関する試験計画を検討し提案した。

一方、緩衝材の性能を評価するためには、その形状と材料の2つを検討する必要があるが、材料選定は、処分場の化学的条件に強く依存することから、形状と材料の決定作業は当初は独立して進め、処分環境がある程度明らかにされた時点で両者を総合することが必要である。

こうした観点から、本研究においては、緩衝材の形状に関する試験として、

- ① 緩衝材の暫定形状の設定

- ② 施工技術の開発
- ③ 大規模試験
- ④ 緩衝材の形状の決定

を実施し、緩衝材の材料に関する試験として、

- ① 核種収着機構の解明
- ② オーバーパック/固化体との両立性の検討
- ③ 処分環境下での試験
- ④ 緩衝材の材料の決定

を実施することを提案した。また、これらの形状と材料に関する試験結果を踏まえ、大規模試験を実施することを提案した。

This is a blank page.

3. 人工バリア性能評価試験

3.1 廃棄物容器に関する試験

(1) 候補材料に関する文献調査

海外におけるクリーニング試験および材料評価試験に関する文献調査を行った。

対象は、

- ・米国
- ・英国
- ・スイス
- ・西ドイツ

である。調査結果をTable-5に示す。

米国では、玄武岩または凝灰岩に対して鑄鉄（腐食代25～300mm）を、また岩塩層に対してG-12チタン合金（腐食代1mm）を第一の候補としている。その理由として鑄鉄については安価で汎用性があり耐蝕的に可能性があること、またG-12チタン合金は優れた耐蝕性と機械的性質から選択されている。

英国では、花崗岩または粘土質岩に対して炭素鋼（腐食第200mm）を候補として研究が進められている。

スイスでは、花崗岩を想定し、これに対して鑄鉄を候補としている。

西ドイツでは、従来から球状黒鉛鑄鉄製キャスクについて研究されており、地層処分用の容器もこの延長上で検討されている。

このように、いずれの国においても、炭素鋼（鑄鉄）が候補に挙げられており、1000年の腐食代をどの程度に見積るかについて詳細な研究が行われつつある。すなわち、炭素鋼の腐食速度に影響を与える環境因子及び腐食の局所化とその浸食速度について緩衝材との関連で、また腐食生成物が緩衝材内へ蓄積していくことを考慮に入れ、評価試験の精度を上げていく努力がなされている。

また、チタン合金をはじめとする高耐蝕性材料に対しては、孔食や応力腐食割れ、水素脆化等の局部腐食の発生が皆無であることを保証するための評価研究が種々行われている。これらの試験研究においてγ線の影響を見極めることも重要な課題である。

Table-5 Proposed Values of Corrosion Allowance of Carbon Steel Canister.

国 (機関)	基礎実験条件	腐食形態 (速度mm/y)	1000年分の腐食代 (mm)
US (PNL)	玄武岩帯地下水 250℃, 150℃ 6ヵ月	均一腐食 (0.008 - 0.0005)	13
"	"	放射線分解を考慮	25
スイス	地下水, 80℃ 6,000h	均一腐食 (< 0.010)	10
" (NAGRA)	-	均一腐食	30
US (SNL)	脱気BrireA, 50~150℃ 12ヶ月	均一腐食	164
UK	0.1MNaHCO ₃ +1000ppm Cl ⁻ (pH8.4), 90℃ 500~10,000h	局部腐食	200

(2) 金属材料の腐食試験

(a) 厚膜型金属材料の腐食試験

鉄さびとベントナイト混合物中における鉄の腐食速度を測定するため、鉄さび量を変化させた条件で、浸漬試験を実施した。(含水比100%, 温度80℃, 時間30日)

水分の出入や酸素の供給等のない密閉された条件での鉄の腐食量は鉄さび(四三酸化鉄)が増えるに従って低下した。

鉄さびをベントナイトの1/10添加した条件における腐食速度は約0.06mm/Y

であり、添加していない場合の約 3 / 4 に低下した。これらのデータを基にして長期寿命予測を行い、1000年間で40mmが腐食によって減肉すると試算された。

(Fig. - 9 参照)

(b) 薄膜型金属材料の試験

固化体容器材料の腐食損傷形態として、基本的に重要な金属 / 金属、金属 / 緩衝材 - すきまにおけるすきま腐食について、再不動態化電位による臨界条件の評価を試みた。

ステンレス鋼 (Type 444鋼) について金属 / 緩衝材すきまのすきま腐食の臨界条件を再不動態化電位によって評価できることを示した。(Fig. - 10参照)

次にTi合金について金属 / 金属すきまにおける耐すきま腐食性評価を、再不動態化電位 E_R 、再不動態化温度 T_R 、再不動態化NaCl濃度 $C_{NaCl, R}$ - すきま腐食臨界図を作成した。

TiおよびTi合金 (ASTM Grade 12) について、NaCl濃度 - 温度 - すきま腐食臨界図を作成した。(Fig. - 11参照)

この図は処分環境における温度、NaCl濃度条件を重ねることにより、すきま腐食生起の有無を時間の制約なしに予測するのに使える。

3.2 緩衝材に関する試験

(1) 緩衝材に関する文献調査

緩衝材に関する文献調査は主に、その分野の研究が進んでいるスウェーデン、米国を対象に実施した。

検討項目は、

- ・材料
- ・シール性
- ・透水性
- ・応力 / 歪 / 時間特性
- ・ブロック成形
- ・イオン移行遅延
- ・バッファマステスト

である。

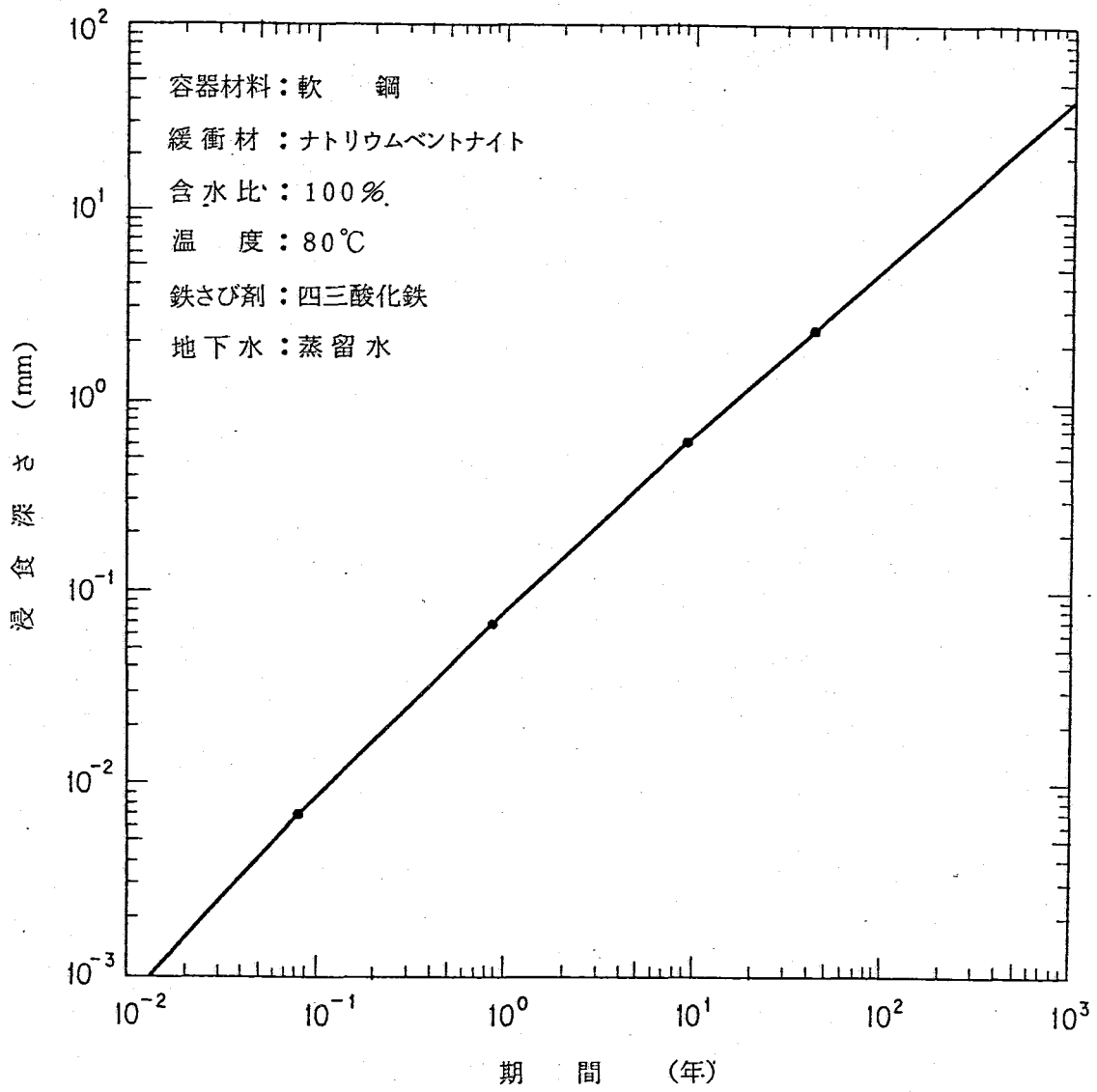


Fig. - 9 Long Term Prediction of Mild Steel Calculated Using Experimentally Measured Corrosion Rate

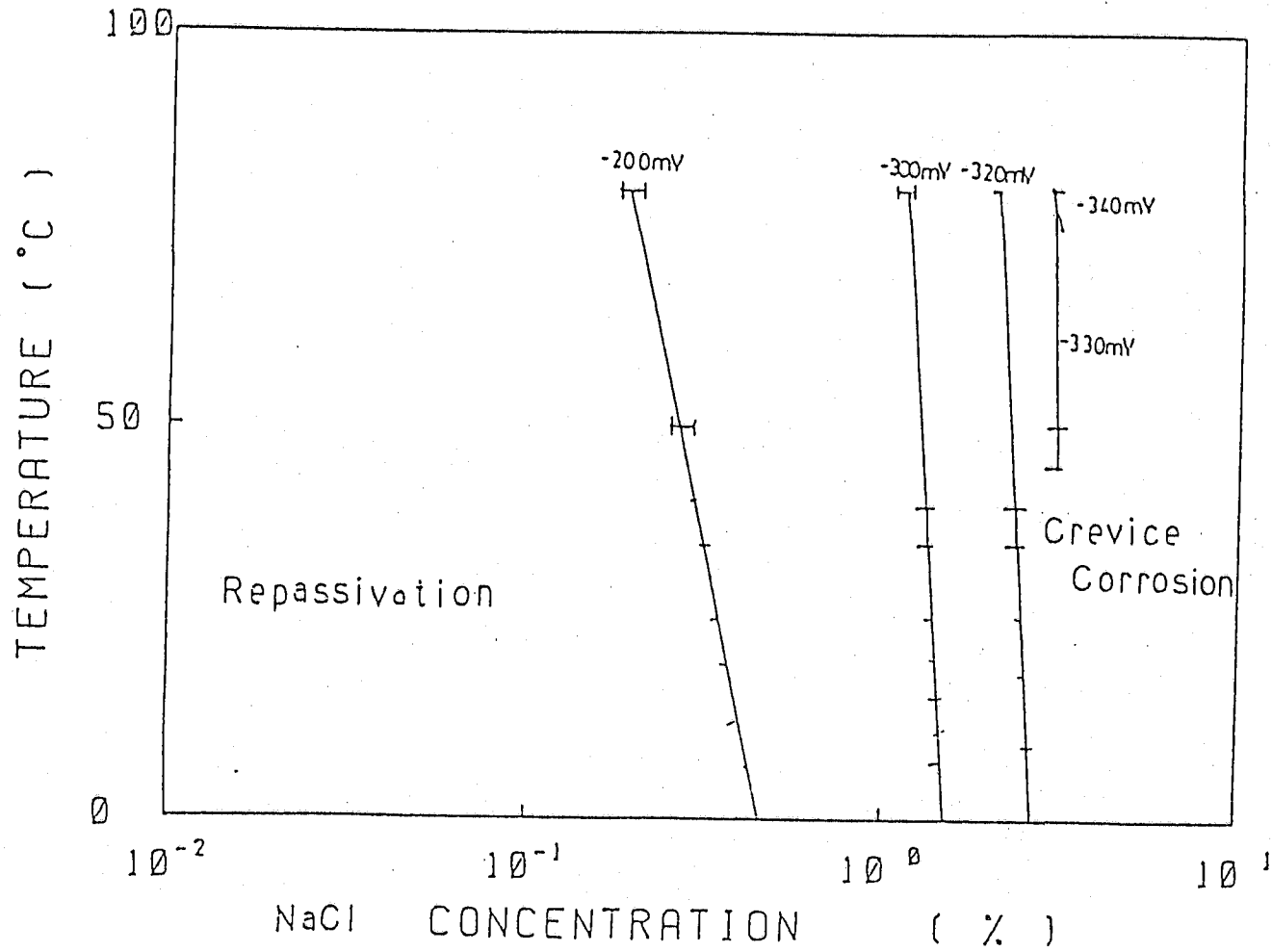


Fig. - 10 444/Ca-Bentonite-Crevice Corrosion Map in terms of NaCl Concentration and Temperature

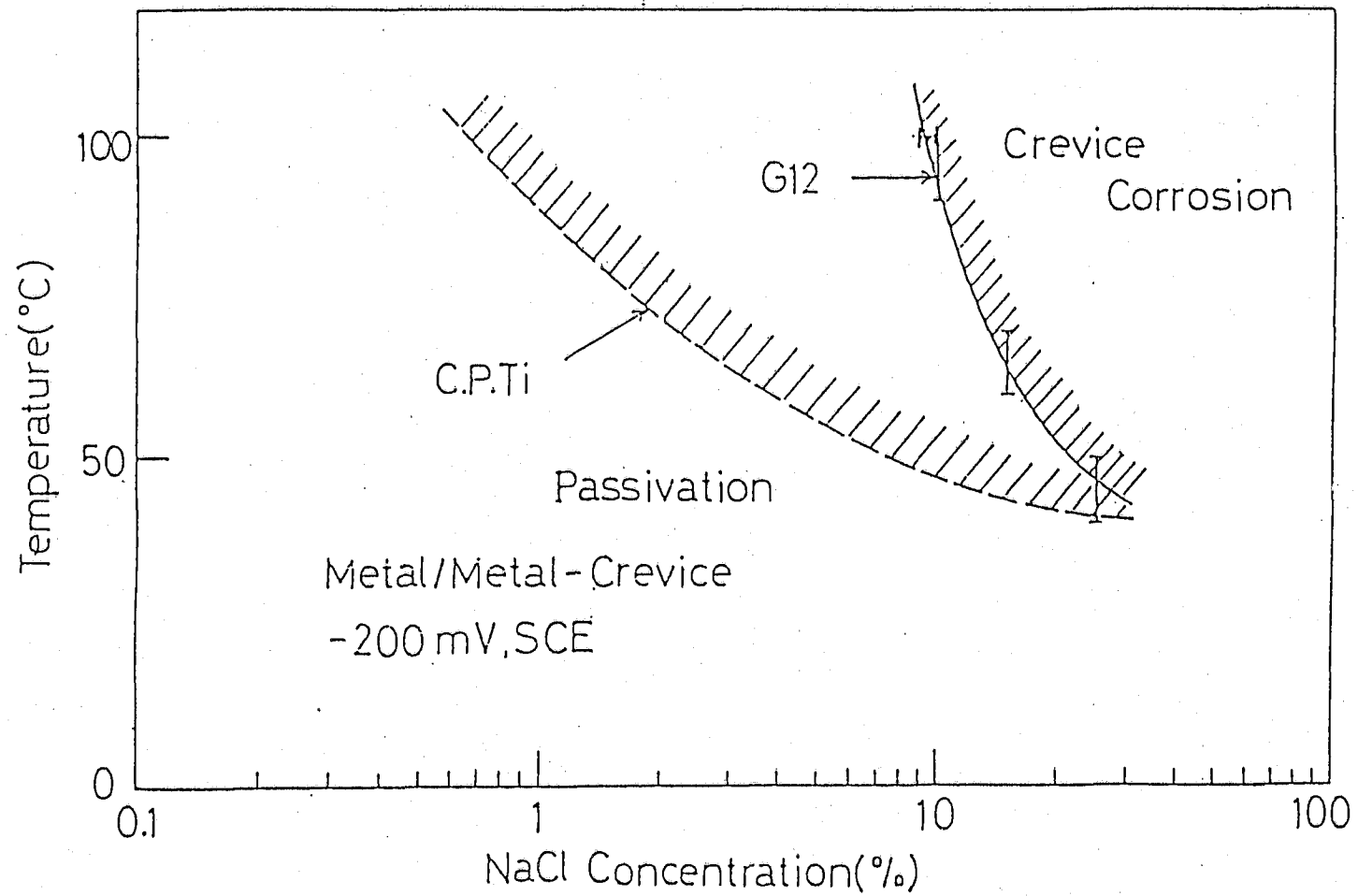


Fig. - 11 Crevice Corrosion Map of G12 in terms of NaCl Concentration and Temperature in Comparison with C. P. Titanium

Table - 6 Bentonite Columns and Am Solutions Used in Migration Tests

No.	Clay type	[Am] (M)	[NHO ₃] (M)	Packing Density (g/cm ³)
1	Na	1.28×10^{-5}	1.50×10^{-3}	0.750
2	Na	3.50×10^{-6}	4.10×10^{-4}	0.872
3	Na	1.28×10^{-6}	1.50×10^{-2}	0.925
4	Na	1.28×10^{-5}	1.50×10^{-3}	0.778
5	Na	3.50×10^{-6}	4.10×10^{-4}	0.856
6	Na	1.28×10^{-6}	1.50×10^{-2}	0.974
7	H	1.28×10^{-5}	1.50×10^{-3}	0.804
8	H	3.50×10^{-6}	4.10×10^{-4}	0.897
9	H	1.28×10^{-6}	1.50×10^{-2}	0.929
10	Fe	1.28×10^{-5}	1.50×10^{-3}	0.881
11	Fe	3.50×10^{-6}	4.10×10^{-4}	1.01
12	Fe	1.28×10^{-6}	1.50×10^{-2}	1.03

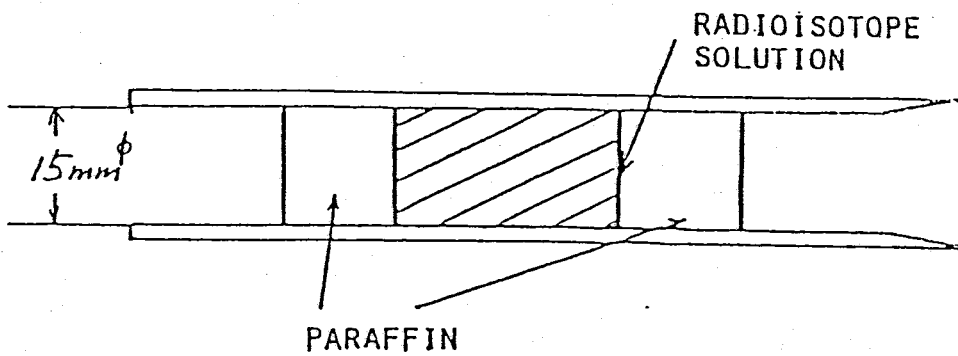


Fig. - 12 Diffusion Cell Containing Diffusion Column of Low Density Bentonite

スウェーデンではreference materialとしてNaベントナイト (Volclay MX-80) を密度 2 g/cm^3 程度に締め固めたものが使用され、最終的には混合系あるいは純度の低い天然粘土の使用もありうるとしている。飽和後、Naベントナイトの成形ブロック (含水率10~13%の粉体を100MPaで圧縮) は完全に結合し、透水係数は $10^{-10} \sim 10^{-11} \text{ cm/s}$ であり、物質移動は拡散で行われる。キャニスタの沈下速度は 1 cm/100万年 以下と予想された。Am-241は30cmの厚さで消滅し、Cs-137, Sr-90, Pu-240, Am-243は同じ厚さで1~3桁減少した。

Sandia National Laboratoriesではバッチ吸着試験、カラム試験を行っており、線形吸着以外の機構を考慮したモデリングを行っている。ベントナイトへの添加物として、Cs⁺にはモルデナイト、Sr²⁺にはソディウムチタナイト (Na_2TiO_3) が有効であり、Puにはベントナイト自身が大きな遅延を与えることを明らかにした。熱伝導性に関する研究においては、熱伝導率が $1 \text{ W/m}^\circ\text{C}$ 以上であれば、処分場に対する熱的影響は少なく、この値は石英を30%以上混合することで達成できることを明らかにした。Pacific Northwest Laboratoryでは、石英砂を50%混合しても充分低い透水性 (10^{-10} cm/s) が得られるが、乾燥材料中への水の拡散係数は $1.7 \times 10^{-6} \text{ cm/s}$ であり、ベントナイトを地下水侵入に対するバリアとは考えにくいこと、乾燥加熱状態ではベントナイトは安定であるが、湿潤加熱では交換カチオンが主にFe、その他Ca、K、Mgに変化し、ゼオライトの生成が見られたことなどを明らかにした。緩衝材の機能として腐食と核種移行を抑制することおよび核種の溶解度を下げることとされ、ベントナイト/玄武岩 (25:75) がreference materialとされている。

(2) 緩衝材の性能評価試験

(a) ベントナイト中でのAmの拡散試験

(i) 試験条件

クニピアFを200メッシュアングラーにふるい分けした試料を試験に供した。これは極く微量の石英を含むほぼ純粋なNaモンモリロナイトである。試料の一覧をTable-6に示す。H型モンモリロナイトは、これを2NHC1に固液比1:200で浸漬し、24時間攪拌したものを乾燥・粉碎し、200メッシュ以下としたものである。

Am溶液はAm-241を硝酸に溶解したもので、Table-6に示すように3段階の

Am濃度とした。

供試体の材料粉末を密度0.8~1.0 g / cm³に充填し，そこへ高圧で蒸留水を送り込み，水で飽和させた。飽和した材料は，ディスポーザルプラスチック製注射器内に移し，片方の面にAm溶液30 μlを添加して両端をパラフィンで密封した (Fig. - 12)。このような状態で約1ヵ月間放置した後，カラムを注射器から押し出し，ピアノ線を用いて導くスライスし，各スライス中の粘土重量，水分量および放射能測定を行った。

(ii) 解析

Amが全量溶解している場合と一部析出している場合を，濃度プロファイルから判断し，それぞれの拡散方程式の解にプロファイルを回帰して，拡散定数を求めた。

全量溶解の場合

$$C(X, t) = \frac{M}{(\pi Dt)^{1/2}} \exp\left(-\frac{X^2}{4Dt}\right)$$

$$M = \int_0^{\infty} C(X, t) dx$$

析出がある場合

$$\frac{C}{C_0} = 1 - \frac{2}{\pi^{1/2}} \int_0^{\eta} \exp(-\xi^2) d\xi$$

$$\eta = \frac{X}{2(DT)^{1/2}}, \quad C_0 \text{は溶解度}$$

(iii) 結果

Na型では添加Amのほぼ全量が析出，H型では全量が拡散，Fe型では一部析出していた。Fe型では鉄酸化物への吸着が起こる。

拡散定数は，H型では10⁻⁷ cm²/s，Fe型では10⁻⁸ cm²/sのオーダーの値であった。

(Table - 7)

Table- 7 Diffusivities of Am in H type and Fe type Bentonite Column

Column	clay type	Mw/Mc	Apparent Diffusivity (cm ² /s)
7	H	0.87	2.1×10^{-7}
8	H	0.74	1.5×10^{-7}
9	H	0.70	(2.7×10^{-8})
10	Fe	0.76	9.2×10^{-8}
11	Fe	0.62	5.4×10^{-8}
12	Fe	0.60	4.9×10^{-8}

(iv) 化学形態の推定

溶解度測定から求めたデータ及び文献値を用いて、カラム中のAmの形態を推定した。Na型では添加量のほとんどがAmOHCO₃として析出し、H型、Fe型ではAm³⁺又はAmCl²⁺で拡散している。Fe型での析出物は不明である。

(b) 透水性試験

Naモンモリロナイトに石英砂を混合(0~70%)した時の透水性に対する影響を核種移行の観点から評価した。

(i) 結果

結果をTable- 8に示した。

Table- 8 Permeability test summary

Mass Fraction of Quartz (Z)	Packing Density (g/cm)	Hydraulic Gradient (mH ₂ O/m)	Hydraulic conductivity (cm/s)
0	2.04	5.0×10^4	1.2×10^{-12}
0	1.88	4.8×10^4	1.6×10^{-12}
0	1.67	4.8×10^4	2.2×10^{-12}
0	1.40	4.9×10^4	3.0×10^{-12}
0	1.19	5.2×10^4	9.3×10^{-12}
0	0.986	4.3×10^4	1.7×10^{-11}
10	1.53	4.6×10^4	1.2×10^{-11}
15	1.5	3.6×10^4	1.1×10^{-11}
20	1.89	6.2×10^4	1.8×10^{-12}
30	1.7	6.1×10^4	2.6×10^{-11}
40	1.6	2.9×10^4	3.7×10^{-11}
50	1.69	2.8×10^4	6.4×10^{-11}
70	1.7	3.0×10^4	2.9×10^{-10}

これらのデータから、ベントナイトマトリックスと石英砂表面の流れに関する透水性を計算した。石英砂が多くなると、その表面を流れる水が多くなる。

(ii) 核種移行に対する影響

2.3での支配的なパラメータの抽出の過程で、核種移行の機構は地下水流速 (V)、固有の拡散定数 (D)、緩衝材厚さ (L)により、次のように変化することが明らかにされた。

$V \cdot L / D \geq 5$ 地下水流による核種移行が支配的

$V \cdot L / D \leq 0.1$ 拡散による核種移行が支配的

Dを 10^{-8} cm²/s, Lを30cmとしたとき、流速が 10^{-8} cm/s以下であれば、その影響はほとんどない。これは混合系においても充分達成できる。

This is a blank page.

4. あとがき

本設計研究においては、我が国の人工バリアシステムを構築し、最適な設計を最終的な目標として開始されたものであるが、本年度は、

- (1) 人工バリアシステムの設定
- (2) 人工バリア性能評価試験

を行った。

人工バリアシステムの設定においては、人工バリアシステム設計方針と設計基準の検討、性能評価計算による試設計、本設計のための性能評価研究の実施を行い、暫定的に人工バリアシステムを設定し、性能評価計算を行ったが、最適な人工バリアシステムを設計するためには、性能評価コードの整備、拡充を行うことが不可欠であることが指摘される。

人工バリアの性能を評価するモデルとして、固化体性能評価モデル、緩衝材評価モデル、容器性能評価モデルを用いたが、性能評価モデルをより現実的なものにしていくためには、処分場周辺環境の化学的雰囲気の長期変化を予測することが必要である。

廃棄物からの発性熱、固化体の溶出成分、容器材の腐食生成物、緩衝材からの浸出成分などの種々の化学成分の共存する系における熱力学的平衡状態を予測する“地球化学的モデル”を適用し、地下水の組成、緩衝材成分、核種組成などを入力データとし、処分場周辺の化学的環境の長期的変化を予測、評価する手法が近年米国を中心とする海外で進められており、本年度の設計研究で課題として残された、処分場周辺環境における化学的雰囲気の長期的変化の予測は、適切な“地球化学的モデル”の導入ないし開発を行うことによって解決されるものと判断される。

人工バリア性能評価試験においては、動燃事業団殿がこれまで行って来られたオーバーパック材に関する試験として厚膜型金属材料と薄膜型金属材料の試験、緩衝材に関する試験としてベントナイトの核種移行試験と透水性試験を行った。これらの試験をとおして着実に成果は得られつつあるが、本報告書中で述べた通り、人工バリアシステムを設計するにあたって取得しなければならないデータは膨大である。従って、時間的、経済的に効率の高いデータを蓄積していくためには、性能評価コードの整備、拡充に合せ、各パラメータによる感度解析を行いつつ、取得するデータの重要性、緊急性などを考慮し、総合的に検討していくことが望まれる。