

使用済燃料直接処分のソースターム評価：(2) 二酸化ウランおよび使用済燃料の溶解速度に及ぼす炭酸濃度の影響に関するレビュー

Estimation of source term for spent fuel disposal: (2) Effect of carbonate concentration on dissolution rate of UO_2 and spent fuel – A review

*北村 暁¹, 赤堀 邦晃²

¹ (国研) 日本原子力研究開発機構, ² 三菱マテリアル (株)

二酸化ウランおよび使用済燃料の水溶液に対する溶解速度（燃料溶解速度）について、水溶液中の全炭酸濃度が及ぼす影響を文献調査によりレビューした。溶解速度の値は不活性雰囲気と還元雰囲気で異なり、直接処分環境である還元雰囲気のデータが不足していることが明らかになった。

キーワード：使用済燃料，直接処分，二酸化ウラン，溶解速度，炭酸濃度影響，酸化還元状態

1. 緒言

高レベル放射性廃棄物の地層処分の代替オプションのひとつとして、使用済燃料の直接処分に関する調査研究が進められている。直接処分の性能評価では、使用済燃料（二酸化ウラン（ UO_2 ）マトリクス）の酸化溶解の速度（以下、燃料溶解速度）が重要なパラメータのひとつとなっている。緩衝材を通過した地下水（緩衝材間隙水）中に含まれる全炭酸濃度（ $[\text{C}]_{\text{T}} = [\text{H}_2\text{CO}_3(\text{aq})] + [\text{HCO}_3^-] + [\text{CO}_3^{2-}]$ ）については、わが国の代表ケースの値[1]が $1.7 \times 10^{-2} \text{ M}$ (M: mol dm^{-3}) であり、 10^{-3} M 程度の諸外国の値より約 1 桁高いことから、燃料溶解速度を諸外国の設定値より高く設定すべきではないかとの懸念がある。このことから、 UO_2 および使用済燃料の溶解速度の $[\text{C}]_{\text{T}}$ 依存性について、既往の報告をまとめレビューした。

2. 調査対象

諸外国の燃料溶解速度設定にあたって引用されていた文献を中心に調査を行い、室温における燃料溶解速度の $[\text{C}]_{\text{T}}$ 依存性の実測値を収集した。水溶液の pH が概ね 7~10 の範囲であったことから、炭酸の主成分は HCO_3^- と推察される。実験手法は、 UO_2 粉末をカラムに充填して水溶液を通水するフローズルー法もしくはバッチ法であった。一部のデータに対しては、著者らが単位統一のための換算を行った。

3. 調査結果

燃料溶解速度と $[\text{C}]_{\text{T}}$ との関係を図 1 に示す。比較のため、スウェーデン[2]、フィンランド[3]およびスイス[4]の最新の燃料溶解速度の設定値である 10^{-7} y^{-1} について、わが国の直接処分第 1 次取りまとめ[1]の設計に基づいて単位換算した値を実線で示すとともに、欧州 MICADO プロジェクト[5]の手法に基づいて評価した比表面積の不確実性が及ぼす範囲を破線で示す。全体的には燃料溶解速度が $[\text{C}]_{\text{T}}$ の増加とともに高くなる傾向が見られることから、 $[\text{C}]_{\text{T}}$ が高いほどウラン(VI)の炭酸錯体が速やかに生成することが推察される。また、得られた結果が① $10^{-1} \text{ mg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ 以上のデータ群と② $10^{-3} \sim 10^{-2} \text{ mg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ 程度のデータ群に大別されることがわかる。実験雰囲気を調査したところ、①のデータ群は大気中もしくは不活性雰囲気（すなわち酸化還元状態を制御しない）で、②のデータ群は還元雰囲気で取得されたものであった。また、欧州の最新の燃料溶解速度の設定値 10^{-7} y^{-1} [2-4]は、②のデータ群と概ね一致した。しかしながら、還元雰囲気で取得されたデータが少ない上に、欧州 REDUPP プロジェクト[6]で使用された水溶液が 3 種の天然地下水であり、燃料溶解速度の差異が $[\text{C}]_{\text{T}}$ によるものかどうかは不明確である。したがって、わが国における代替処分オプションのひとつである直接処分の安全評価の信頼性向上のためには、還元雰囲気における燃料溶解速度の $[\text{C}]_{\text{T}}$ 依存性を体系的に取得する必要があると言える。

本研究は、平成 27 年度経済産業省委託事業「直接処分等代替処分技術開発」で実施したものである。

参考文献

- [1] 日本原子力研究開発機構基盤技術研究開発部：JAEA-Research 2015-016 (2015).
- [2] SKB: TR-10-52, SKB (2010). [3] Posiva Oy: POSIVA 2013-01 (2013).
- [3] L. Johnson: Working Report NAB 13-37, Nagra (2014).
- [4] B. Grambow et al.: Final Activity Report: Project MICADO, European Commission (2010).
- [5] L. Z. Evins et al.: Working Report 2014-12, Posiva Oy (2014).

*Akira Kitamura¹ and Kuniaki Akahori²

¹Japan Atomic Energy Agency, ²Mitsubishi Materials Corporation

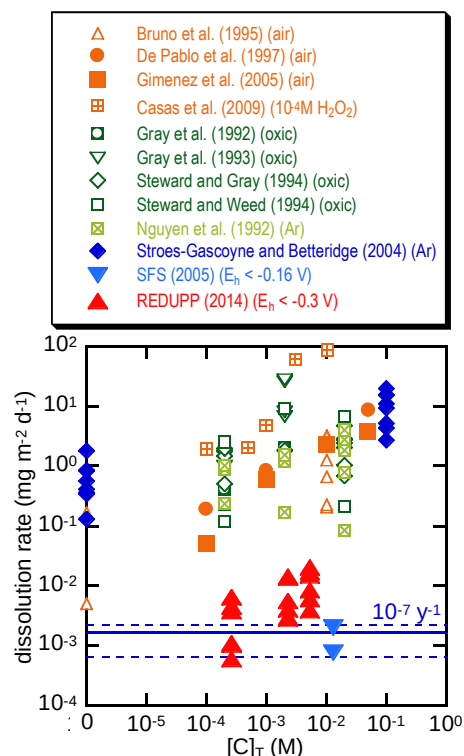


図 1 燃料溶解速度の炭酸濃度依存性の文献調査結果