

新旧対照表

(傍線部分は改正部分)

| 修正後  | 修正前  | 備考 |
|--|--|----|
| <p>平成24年度「地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備」報告書（平成25年3月）<br/>平成25年3月31日</p> <p>1. 序論<br/>（修正無し）</p> <p>1.3 成果概要</p> <p>1.3.1 廃棄体・人工バリア材の性能評価モデルの整備<br/>（修正無し）</p> <p>(2) 放射化金属の腐食モデルの作成<br/>（修正無し）</p> | <p>平成24年度「地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備」報告書（平成25年3月）<br/>平成25年3月31日</p> <p>1. 序論<br/>（記載省略）</p> <p>1.3 成果概要</p> <p>1.3.1 廃棄体・人工バリア材の性能評価モデルの整備<br/>（記載省略）</p> <p>(2) 放射化金属の腐食モデルの作成<br/>（記載省略）</p> |    |

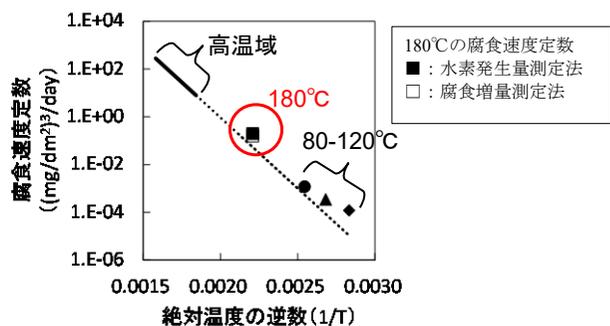


図 1.3-6 三乗則に基づいて算出した 180°C及び 80°C～120°C (H23 年度に取得) のジルカロイの腐食速度定数のアレニウスプロット  
(修正無し)

塩分濃度と酸化還元電位がジルカロイの腐食に及ぼす影響を確認するため、NaCl 溶液中及び大気平衡条件でのジルカロイの腐食試験を行った。その結果、NaCl 成分は、温度ほどはジルカロイの腐食に影響を及ぼさないこと、有意な溶存酸素が存在する大気平衡条件における 80°C～120°Cでの 121 日間までの範囲におけるジルカロイの腐食量の程度は、脱酸素条件とは大きく異なることをそれぞれ確認した。

(修正無し)

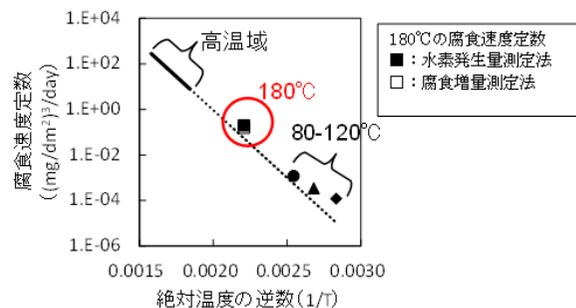


図 1.3-6 三乗則に基づいて算出した 180°C及び 80°C～120°C (H23 年度に取得) のジルカロイの腐食速度定数のアレニウスプロット  
(記載省略)

塩分濃度と酸化還元電位がジルカロイの腐食に及ぼす影響を確認するため、NaCl 溶液中及び大気平衡条件でのジルカロイの腐食試験を行った。その結果、これらの因子は、温度ほどはジルカロイの腐食に影響を及ぼさないことがわかった。

(記載省略)

図の修正

記載の適正化

|  |   |   |
|--|---|---|
| <p>2.3 放射化金属の腐食モデルの作成</p> <p>2.3.1 背景と目的<br/>(修正無し)</p> <p>2.3.2 経験則モデルの検証</p> <p>(1) 試験方法</p> <p>薄片状に成型したジルカロイ-4 試料（以下「ジルカロイ試料」）を用い、水素発生量測定法及び腐食増量測定法によって180°Cにおける腐食量を定量した。試験に用いたジルカロイ試料の組成分析結果及び試料作製手順を表 2.3-1 と表 2.3-2 に、<u>180°Cの脱酸素条件におけるジルカロイの腐食量測定方法の概略図及び写真を図 2.3-3 にそれぞれ示す。</u></p> <p>このうち腐食増量測定法とは、ジルカロイの腐食に伴い生成する酸化皮膜（<math>ZrO_2</math>）の増加重量からジルカロイの腐食深さ分の重量を差し引いた重量（以下「腐食増量」）を測定することによってジルカロイの腐食量を算出する手法である。具体的には、腐食試験前後のジルカロイ試料（<u>1 バッチ分 13 枚：表面積=0.6 dm<sup>2</sup></u>）の重量を電子天秤（測定誤差は<u>±0.1 mg</u>）を用いて測定した。</p> <p>(修正無し)</p> | <p>2.3 放射化金属の腐食モデルの作成</p> <p>2.3.1 背景と目的<br/>(記載省略)</p> <p>2.3.2 経験則モデルの検証</p> <p>(1) 試験方法</p> <p>薄片状に成型したジルカロイ-4 試料（以下「ジルカロイ試料」）を用い、水素発生量測定法及び腐食増量測定法によって180°Cにおける腐食量を定量した。試験に用いたジルカロイ試料の組成と調製条件を表 2.3-1 と表 2.3-2 に、<u>試験方法の概略を図 2.3-3 にそれぞれ示す。</u></p> <p>このうち腐食増量測定法とは、ジルカロイの腐食に伴い生成する酸化皮膜（<math>ZrO_2</math>）の増加重量からジルカロイの腐食深さ分の重量を差し引いた重量（以下「腐食増量」）を測定することによってジルカロイの腐食量を算出する手法である。具体的には、腐食試験前後のジルカロイ試料（<u>1 バッチ分 20 枚</u>）の重量を電子天秤（測定誤差は<u>±0.01mg</u>（最大でも<u>±0.05mg</u>程度））を用いて測定した。</p> <p>(記載省略)</p> | <p>記 載 の<br/>適正化</p> <p>記 載 の<br/>適正化</p> |
|--|---|---|

表 2.3-1 試験に用いたジルカロイ-4 の組成分析結果

単位：wt%

| 元素 | ASTM UNS R60804 |         | 分析値      |
|----|-----------------|---------|----------|
|    | 下限              | 上限      |          |
| Sn | 1.20            | 1.70    | 1.29     |
| Fe | 0.18            | 0.24    | 0.20     |
| Cr | 0.07            | 0.13    | 0.11     |
| O  | -               | -       | 0.12     |
| Al | -               | 0.0075  | <0.005   |
| B  | -               | 0.00005 | <0.00002 |
| Cd | -               | 0.00005 | <0.00005 |
| Ca | -               | 0.0030  | <0.001   |
| C  | -               | 0.027   | 0.014    |
| Co | -               | 0.0020  | <0.002   |
| Cu | -               | 0.0050  | <0.005   |
| Hf | -               | 0.010   | <0.005   |
| H  | -               | 0.0025  | 0.0008   |
| Mg | -               | 0.0020  | <0.001   |
| Mn | -               | 0.0050  | <0.005   |
| Mo | -               | 0.0050  | <0.005   |
| Ni | -               | 0.0070  | <0.005   |
| Nb | -               | 0.0100  | <0.005   |
| N  | -               | 0.0080  | 0.0022   |
| Si | -               | 0.0120  | 0.01     |
| W  | -               | 0.010   | <0.005   |
| Ti | -               | 0.0050  | <0.005   |
| U  | -               | 0.00035 | <0.0001  |

表 2.3-1 試験に用いたジルカロイ-4 の組成

|    | JIS H 4751  | 分析結果   |
|----|-------------|--------|
| Sn | 1.20 - 1.70 | 1.24   |
| Fe | 0.18 - 0.24 | 0.18   |
| Cr | 0.07 - 0.13 | 0.10   |
| Ni | < 0.0070    | <0.006 |
| H  | < 0.0025    | 0.0009 |
| N  | < 0.0080    | 0.002  |

表の修正

表 2.3-2 試験に用いたジルカロイ試料の作成手順

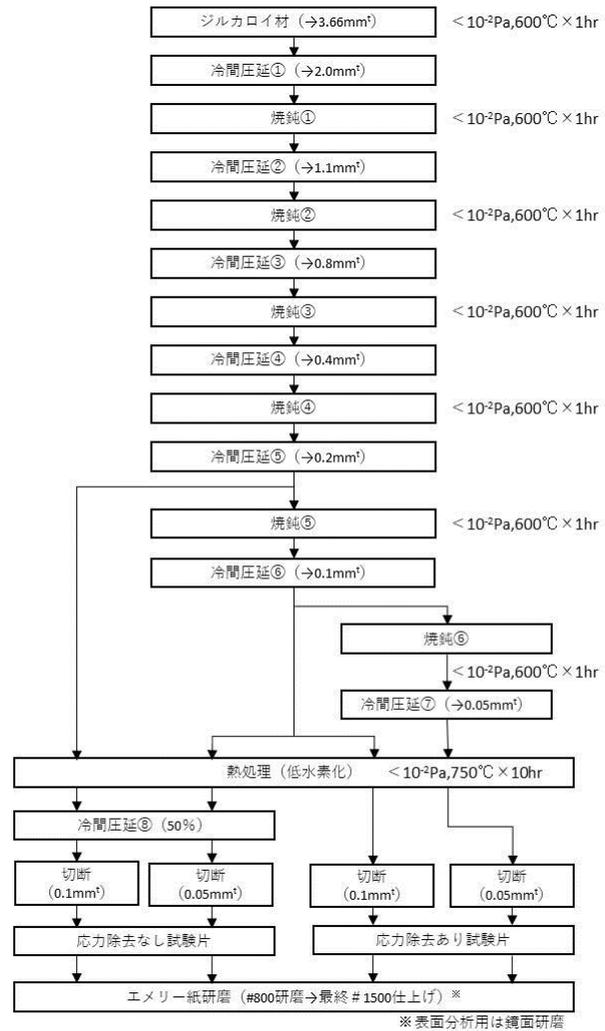
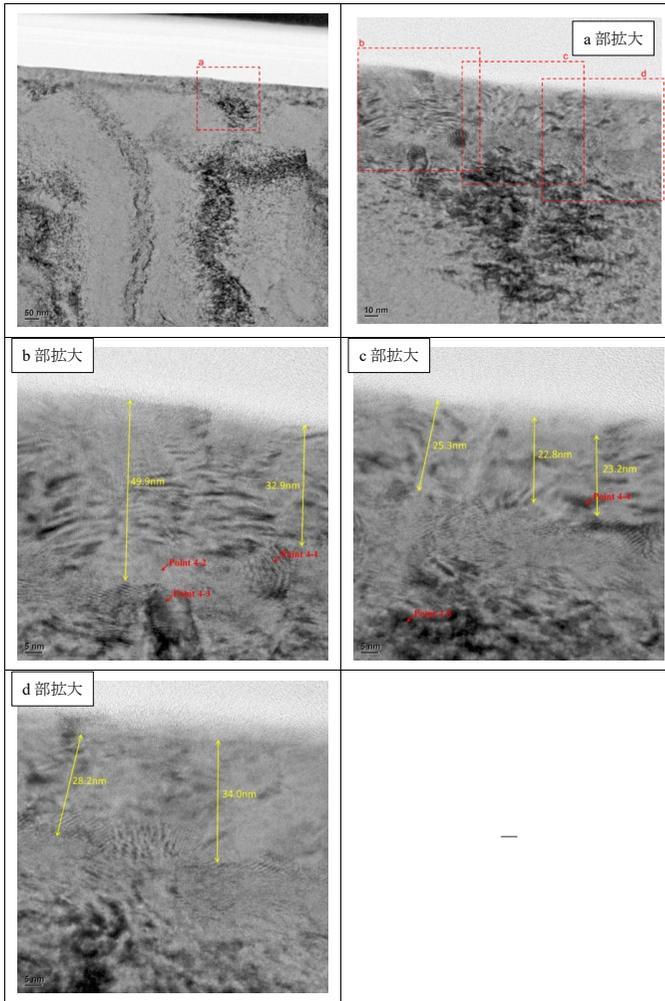


表 2.3-2 試験に用いたジルカロイ試料の調製条件

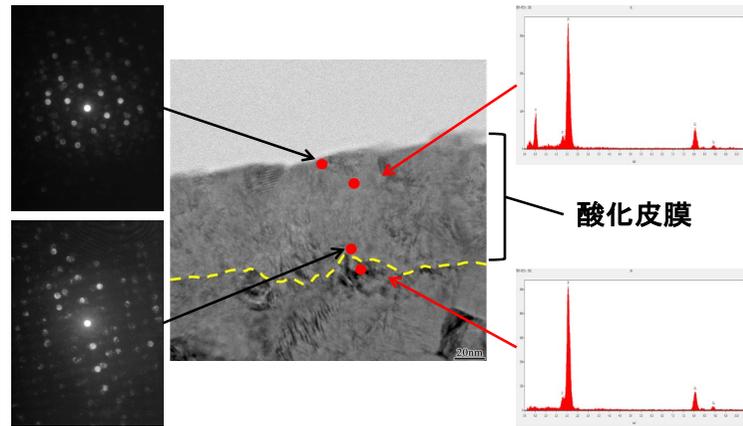
| 項目       | 調製条件  |
|----------|---|
| 1 供試材料   | ジルカロイ-4   |
| 2 加工方法   | 冷間圧延 0.2mmt → 0.1mmt                            |
|          | 研磨 0.1mmt → 0.05mmt                             |
| 3 熱処理    | 真空焼鈍 (<math><10^{-4}</math>Pa, 600°C×10時間) 応力除去 |
| 4 仕上げ厚さ  | 0.1 (表面分析用) 及び 0.05mmt                          |
| 5 表面仕上げ  | #1500 エメリー紙研磨<br>表面分析用は鏡面状態となるまで研磨              |
| 6 目標水素濃度 | 10 mass ppm 未満                                  |

表の修正

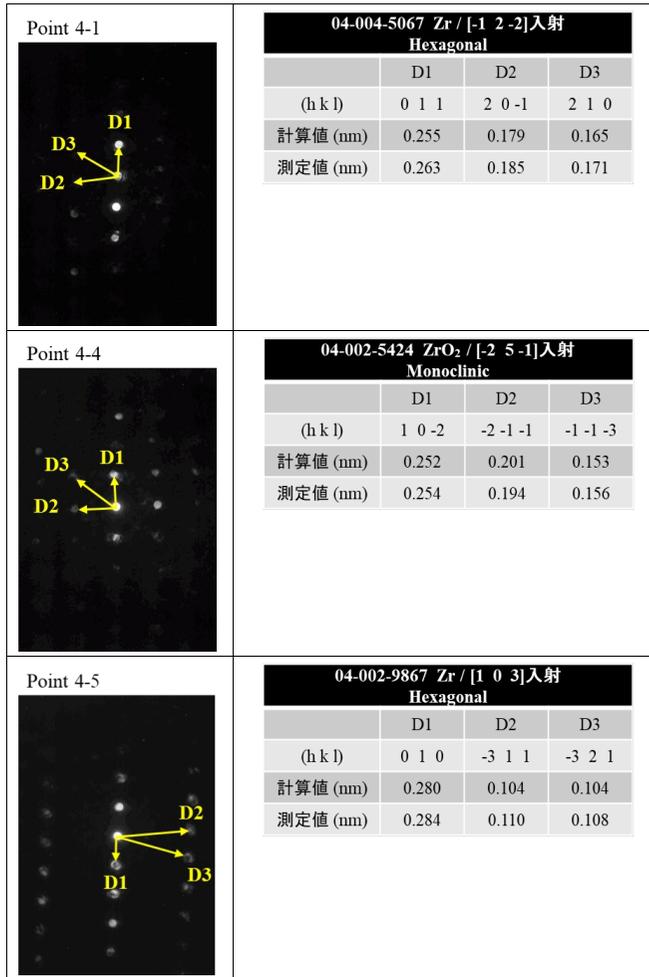
|   |  |                    |
|---|--|--------------------|
| <p>(修正無し)</p> <p>(2) 結果と考察</p> <p>腐食試験終了後のジルカロイ試料表面についての TEM <u>観察結果</u>、TEM-電子線回折結果及び TEM-EDX 分析結果をそれぞれ <u>図 2.3-4(a)~(c)</u>に示す。図 2.3-4 から、高温域や 80°C~120°C の温度域と同様に 180°C の条件においてもジルカロイ表面に酸化皮膜が形成されていること、酸化皮膜は ZrO<sub>2</sub> の結晶構造を有していることが確認できた。</p> | <p>(記載省略)</p> <p>(2) 結果と考察</p> <p>腐食試験終了後のジルカロイ試料表面についての TEM <u>写真及び分析結果</u>を <u>図 2.3-4</u> に示す。図 2.3-4 から、高温域や 80°C~120°C の温度域と同様に 180°C の条件においてもジルカロイ表面に酸化皮膜が形成されていること、酸化皮膜は ZrO<sub>2</sub> の結晶構造を有していることが確認できた。</p> | <p>記載の<br/>適正化</p> |
|---|--|--------------------|



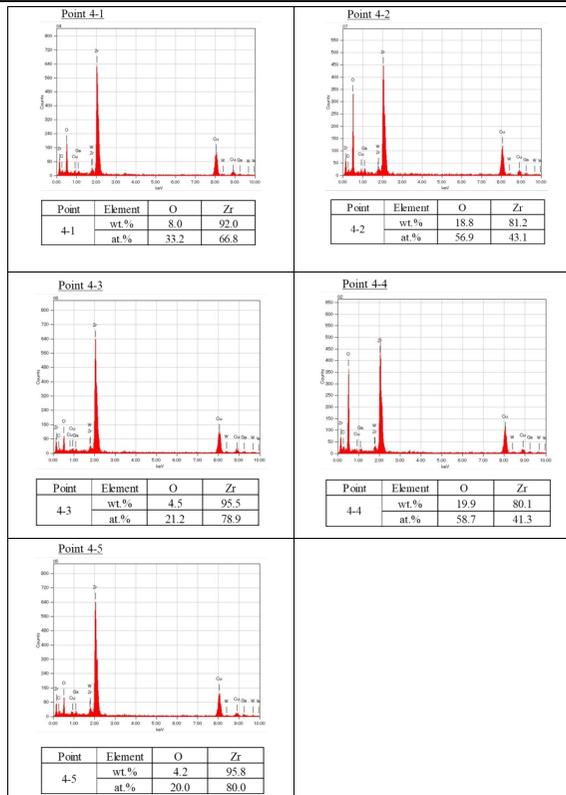
(a) 腐食試験後の Zry-4 試料の TEM 観察結果



図の修正



(b) 腐食試験後の Zry-4 試料の TEM-電子線回折結果



(c) 腐食試験後の Zry-4 試料の TEM-EDX 分析結果

図 2.3-4 180°C脱酸素条件で 121 日間腐食させたジルカロイ試料表面についての TEM 観察結果、TEM-電子線回折結果及び TEM-EDX 分析結果

図 2.3-4 180°C脱酸素条件で 81 日間腐食させたジルカロイ試料表面の写真と元素分析結果及び電子線回折結果 (左上) 酸化皮膜表面側の電子線回折写真、(左下) 酸化皮膜基盤側の電子線回折写真、(右上) 酸化皮膜の元素分析結果 (EDX 定性分析)、(右下) ジルカロイ基盤の元素分析結果 (EDX 定性分析)

水素発生量測定法で定量した水素発生量と、腐食増量測定法で定量した腐食増量から換算したジルカロイ試料の腐食深さと腐食時間の関係を図 2.3-5(a)と(b)にそれぞれ示す。図 2.3-5(a)と(b)より、測定方法による差はほとんど認められない。一般的に、腐食増量測定法は水素発生量測定法に比べて検出下限値が高いため、腐食増量が比較的多い高温域でのジルカロイの腐食量の定量に用いられる方法であるが、今回の結果から、180°Cにおいても比較的信頼性の高い定量が可能であることがわかった。

また、図 2.3-5(a)から、水素発生量の総量のうち吸収水素量の割合は試験期間を通して 34~44% であることがわかる。平成 23 年度に実施した 80°C、100°C及び 120°Cの条件では、水素発生量のうちそれぞれ約 75%、75%、70%の水素がジルカロイに吸収されていた。さらに、既往研究<sup>(5)</sup>における 30°Cでの吸収水素量は約 90%であることから、温度が高いほど吸収水素量の割合が低下する傾向が見られる。

水素発生量測定法で定量した水素発生量と、腐食増量測定法で定量した腐食増量から換算したジルカロイ試料の腐食深さと腐食時間の関係を図 2.3-5(a)と(b)にそれぞれ示す。図 2.3-5(a)と(b)より、測定方法による差はほとんど認められない。一般的に、腐食増量測定法は水素発生量測定法に比べて検出下限値が高いため、腐食増量が比較的多い高温域でのジルカロイの腐食量の定量に用いられる方法であるが、今回の結果から、180°Cにおいても比較的信頼性の高い定量が可能であることがわかった。

また、図 2.3-5(a)から、水素発生量の総量のうち吸収水素量の割合は試験期間を通して 21~27% であることがわかる。平成 23 年度に実施した 80°C、100°C及び 120°Cの条件では、水素発生量のうちそれぞれ約 75%、75%、70%の水素がジルカロイに吸収されていた。さらに、既往研究<sup>(5)</sup>における 30°Cでの吸収水素量は約 90%であることから、温度が高いほど吸収水素量の割合が低下する傾向が見られる。

記 載 の  
適 正 化

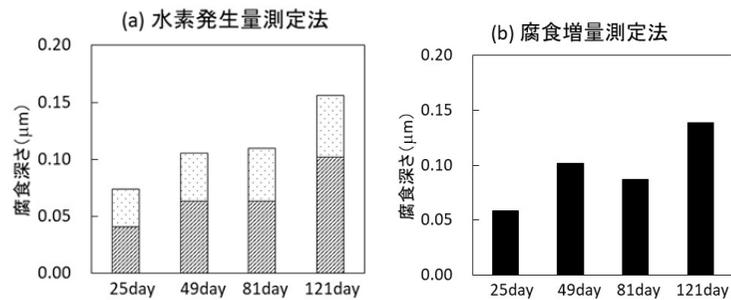


図 2.3-5 (a) 水素発生量測定法と、(b) 腐食増量測定法による180°Cの脱酸素条件でのジルカロイ試料の腐食深さ(腐食量)と時間の関係

図 2.3-5(a),(b)に示した腐食深さと腐食時間の立方根との関係を図 2.3-6 に示す。同図には、各測定法に係る誤差範囲を示す。このうち、水素発生量測定法については水素ガス放出量の定量における水素ガス濃度の誤差に加えてジルカロイ試験片の表面積の誤差を考慮した。また、腐食増量測定法については重量測定における重量差の誤差に加えてジルカロイ試験片の表面積の誤差を考慮した。図 2.3-6 の水素発生量測定法から換算した腐食深さに着目すると、概ね原点を通る直線上に整理できることから、180°Cにおいても三乗則で整理可能であることがわかった。

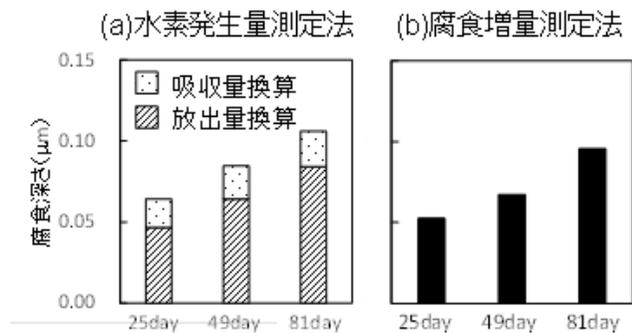


図 2.3-5 (a) 水素発生量測定法と、(b) 腐食増量測定法による180°Cの脱酸素条件でのジルカロイ試料の腐食深さ(腐食量)と時間の関係

図 2.3-5(a),(b)に示した腐食深さと腐食時間の立方根との関係を図 2.3-6 に示す。

図 2.3-6 の水素発生量測定法から換算した腐食深さに着目すると、原点を通る直線上に整理できることから、180°Cにおいても三乗則で整理可能であることがわかった。

図の修正

追加

追加

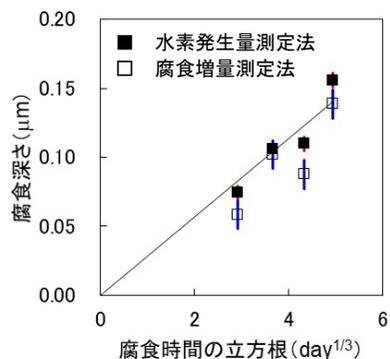


図 2.3-6 180°C脱酸素条件下でのジルカロイ試料の腐食深さと腐食時間の立方根との関係

次に、三乗則に基づいて算出した 180°Cの腐食速度定数をアレニウスプロットした結果を図 2.3-7 に示す。図 2.3-7 より、180°Cの腐食速度定数は高温域での腐食速度定数のほぼ外挿直線上に位置していることから、高温域に比べてより低温域に近い温度である 180°Cの条件においても、ジルカロイの腐食メカニズムは高温域と同じである可能性が示唆された。これにより、今回腐食試験に用いたジルカロイ試料は平成 23 年度に実施した腐食試験に供したジルカロイ試料と同じ組成のものであることをふまえると、1970 年代までのジルカロイの腐食データに基づく高温域の経験則モデルを低温域に外挿するにあたり、その信頼性を確認することができた。

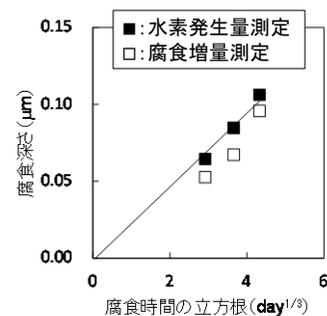


図 2.3-6 180°Cでのジルカロイ試料の腐食深さと腐食時間の立方根との関係

次に、三乗則に基づいて算出した 180°Cの腐食速度定数をアレニウスプロットした結果を図 2.3-7 に示す。図 2.3-7 より、180°Cの腐食速度定数は高温域での腐食速度定数のほぼ外挿直線上に位置していることから、高温域に比べてより低温域に近い温度である 180°Cの条件においても、ジルカロイの腐食メカニズムは高温域と同じである可能性が示唆された。さらに、今回腐食試験に用いたジルカロイ試料は平成 23 年度に実施した腐食試験に供したジルカロイ試料と同じ組成のものであることをふまえると、1970 年代までのジルカロイの腐食データに基づく高温域の経験則モデルを低温域に外挿するにあたり、その信頼性を確認することができた。

図の修正

追加

記載の適正化

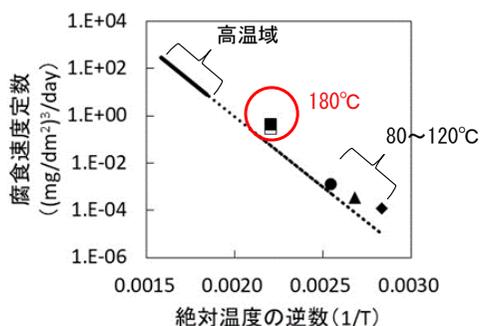


図 2.3-7 三乗則に基づいて算出した 80°C~120°C及び 180°C のジルカロイの腐食速度定数のアレニウスプロット

### 2.3.3 NaCl 溶液中での腐食試験

沿岸立地された処分場におけるシナリオで想定される化学環境のうち、ジルカロイの腐食速度に影響を及ぼす可能性のある因子として塩分濃度に着目し、NaCl 成分がジルカロイの腐食に及ぼす影響の有無やその程度を実験的に確認した。

具体的には、NaCl 溶液を用いて昨年と同様の腐食試験を行い、ジルカロイ腐食への影響の有無を確認した。腐食試験は、低酸素雰囲気下の NaCl 溶液中で最大約 121 日間のガス蓄積型浸漬腐食試験方法を実施した。2.3.2 (1)に示した水素発生量測定法を用いて、1.0 mol/l の NaCl 溶液中でのジルカロイ試料の腐食試験を実施した。

#### (1) 試験方法

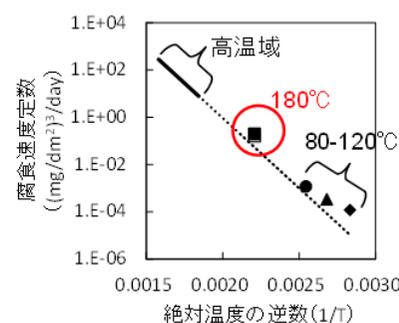


図 2.3-7 三乗則に基づいて算出した 80°C~120°C及び 180°C のジルカロイの腐食速度定数のアレニウスプロット

### 2.3.3 NaCl 溶液中での腐食試験

沿岸立地された処分場におけるシナリオで想定される化学環境のうち、ジルカロイの腐食速度に影響を及ぼす可能性のある因子として塩分濃度に着目し、NaCl 成分がジルカロイの腐食に及ぼす影響の有無やその程度を実験的に確認した。

酸化還元電位を変化させた系でジルカロイの腐食 NaCl 溶液を用いて昨年と同様の腐食試験を行い、ジルカロイ腐食への影響の有無を確認した。腐食試験は、低酸素雰囲気下の NaCl 溶液中で最大約 120 日間のガス蓄積型浸漬腐食試験方法を実施した。2.2.2 (1)に示した水素発生量測定法を用いて、1.0 mol/l の NaCl 溶液中でのジルカロイ試料の腐食試験を実施した。

#### (1) 試験方法

図の修正

記載の適正化

|   |  |                     |
|---|--|---------------------|
| <p>2.3.2(1)に示した水素発生量測定法を用いて、80°Cの脱酸素条件において 1.0 mol/l の NaCl 溶液中でのジルカロイ試料の腐食試験を実施し腐食量を定量した。</p> <p>(2) 結果と考察</p> <p>水素発生量から換算した腐食深さと腐食時間の立方根との関係を図 2.3-8 に示す。<u>同図には、水素ガス放出量及び吸収水素量の定量に係る誤差を考慮した誤差範囲を示す。このうち、水素ガス放出量の定量に係る誤差については、水素ガス濃度の誤差に加えてジルカロイ試験片の表面積の誤差も考慮した。また、図 2.3-8 には、平成 23 年度に得られた脱酸素条件の脱イオン水中での腐食深さも併記している。</u></p> <p>図 2.3-8 より、<u>80°Cの脱酸素条件の脱イオン水中でのジルカロイの腐食量は、同じ温度の脱酸素条件の NaCl 溶液中での腐食量の誤差範囲内であり、塩分濃度 (Na イオン、塩化物イオン) は、温度ほどはジルカロイの腐食に有意な影響を及ぼさないことがわかった。</u></p> | <p>2.3.2(1)に示した水素発生量測定法を用いて、80°Cの脱酸素条件において 1.0 mol/l の NaCl 溶液中でのジルカロイ試料の腐食試験を実施し腐食量を定量した。</p> <p>(2) 結果と考察</p> <p>水素発生量から換算した腐食深さと腐食時間の立方根との関係を図 2.3-8 に示す。</p> <p>図 2.3-8 には、平成 23 年度に得られた脱酸素条件の脱イオン水中での腐食深さも併記している。</p> <p>図 2.3-8 より、塩分濃度 (Na イオン、塩化物イオン) は、温度ほどはジルカロイの腐食に影響を及ぼさないことがわかった。</p> | <p>追加</p> <p>追加</p> |
|---|--|---------------------|

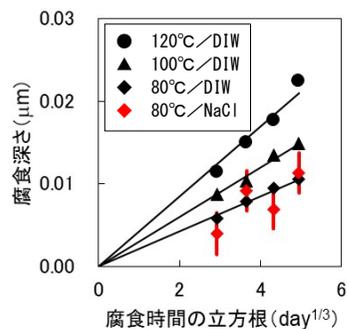


図 2.3-8 80°C～120°Cまでの脱酸素条件での脱イオン水中及び80°Cの脱酸素条件でのNaCl溶液中におけるジルカロイ試料の腐食深さと腐食時間の立方根との関係

#### 2.3.4 大気平衡条件での腐食試験

ジルカロイの腐食速度に影響を及ぼす可能性のある因子として酸化還元電位に着目し、大気平衡条件でのジルカロイの腐食試験を行い、酸素の存在がジルカロイの腐食に及ぼす影響の有無やその程度を確認した。

##### (1) 試験方法及び予備試験

2.3.2(1)に示した水素発生量測定法及び腐食増量測定法を用いて、ジルカロイ試料の腐食試験を実施し、腐食量を定量した。ガラスサンプル中には、ジルカロイ試料と大気平衡の脱イオン水及び空気（酸素濃度20%）を封入し、80°C、100°C及び120°C

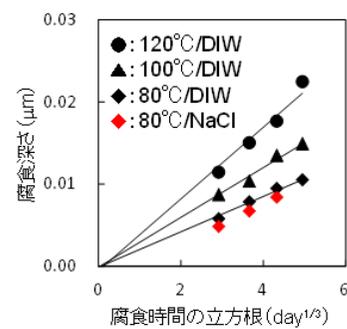


図 2.3-8 80°C～120°Cまでの脱イオン水中と80°CのNaCl溶液中でのジルカロイ試料の腐食深さと腐食時間の立方根との関係

#### 2.3.4 大気平衡条件での腐食試験

ジルカロイの腐食速度に影響を及ぼす可能性のある因子として酸化還元電位に着目し、大気平衡条件でのジルカロイの腐食試験を行い、溶存酸素がジルカロイの腐食に及ぼす影響の有無やその程度を確認した。

##### (1)試験方法

2.3.2(1)に示した水素発生量測定法及び腐食増量測定法を用いて、ジルカロイ試料の腐食試験を実施し、腐食量を定量した。ガラスサンプル中には、ジルカロイ試料と大気平衡の脱イオン水及び空気（酸素濃度20%）を封入し、80°C、100°C及び120°C

図の修正

記載の適正化

追加

|   |   |   |
|---|---|---|
| <p>の恒温器中で静置した。<u>このうち 120°Cのものは、試験期間中に圧力や熱衝撃でガラスサンプルが破損しないように、180°Cにおける試験と同様の SUS 製の耐圧容器内に水を満たし、その中に密封したガラスサンプルを静置した。</u></p> <p>この際、ジルカロイ試料の腐食に伴い溶存酸素が消費されることによって気相中の酸素濃度が低下し、試験期間をとおして溶存酸素濃度条件が変化してしまうことが想定される。一方、ジルカロイ試料の表面積（試験片の枚数）を少なくすれば、溶存酸素の消費量は抑えられるものの、トータルの腐食量も少なくなるため腐食重量の測定が困難となる（電子天秤の測定精度が<u>±0.1 mg</u>であることから重量増加が<u>0.3 mg</u>以上であることが望ましい）。</p> <p>そこで、まず 80°Cと 120°Cの温度条件で短期間の予備試験を実施し、各温度条件における腐食増量から酸素消費量を大まかに把握した。この結果をふまえて、各温度条件に応じて、気相の体積とジルカロイ試料の表面積（試験片の縦×横の長さ×枚数で調整）を調整し、いずれの条件においても試験期間をとおして<u>以下の条件を満たすようにして試験を実施した。</u></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・80°Cにおいて 25 日間の重量増加が測定可能となる試験片枚数（表面積）とする。</li> <li>・120°Cにおいて 121 日間腐食しても、酸素濃度の減少が 10%程度未満となる気相部の体積を確保する。</li> </ul> | <p>の恒温器中で静置した。</p> <p>この際、ジルカロイ試料の腐食に伴い溶存酸素が消費されることによって気相中の酸素濃度が低下し、試験期間をとおして溶存酸素濃度条件が変化してしまうことが想定される。一方、ジルカロイ試料の表面積（試験片の枚数）を少なくすれば、溶存酸素の消費量は抑えられるものの、トータルの腐食量も少なくなるため腐食重量の測定が困難となる（電子天秤の測定精度が<u>0.1 mg</u>（電子天秤の最少目盛は 0.01 mg であるが、<u>0.01 mg のオーダーの重量測定の再現性を確保することは難しい</u>）であることから重量増加が<u>0.3 mg</u>以上であることが望ましい）。</p> <p>そこで、まず 80°Cと 120°Cの温度条件で短期間の予備試験を実施し、各温度条件における腐食増量から酸素消費量を大まかに把握した。この結果をふまえて、各温度条件に応じて、気相の体積とジルカロイ試料の表面積（試験片の縦×横の長さ×枚数で調整）を調整し、いずれの条件においても試験期間をとおして<u>気相中の酸素濃度の低下が 10%未満になるようにした。</u></p> | <p>追加</p> <p>記載の<br/>適正化</p> <p>記載の<br/>適正化</p> |
|---|---|---|

|   |  |   |
|---|--|---|
| <p>(2) 結果と考察</p> <p><u>脱酸素条件 (酸素濃度<math>\leq 0.1</math> ppm) の脱イオン水中においては水素ガスが検出されたが、大気平衡条件 (酸素濃度約 20 vol%) では、80°C、100°C及び 120°Cの温度条件において水素ガス量は定量下限値以下 (<math>\leq 2.1 \times 10^{-3}</math> cm<sup>3</sup>) であった。このため、腐食重量測定法で得られたデータに基づきジルカロイ試料の腐食深さを算出した。</u></p> <p>各温度における大気平衡条件での腐食深さと腐食時間の立方根との関係を図 2.3-9 に示す。<u>同図には、重量測定に係る誤差を考慮した誤差範囲を示す。この重量測定に係る誤差については、重量差の誤差に加えてジルカロイ試験片の表面積の誤差も考慮した。また、図 2.3-9 には、平成 23 年度に水素発生量測定法により得られた脱酸素条件の脱イオン水中での腐食深さも併記している。図 2.3-9 より、いずれの温度においても、大気平衡条件では、脱酸素条件に比べてジルカロイの腐食深さが大きくなる傾向が認められるものの、平成 23 年度に得られた脱酸素条件のような腐食深さの時間依存性は認められない。また、80°C及び 100°Cの条件については温度依存性も認められない。</u></p> | <p>(2) 結果と考察</p> <p><u>いずれの温度においても、気相中への水素ガス発生量とジルカロイ試料への吸収水素量のいずれも検出下限以下であったため、腐食重量測定法で得られたデータに基づきジルカロイ試料の腐食深さを算出した。</u></p> <p>各温度における大気平衡条件での腐食深さと腐食時間の立方根との関係を図 2.3-9 に示す。</p> <p>図 2.3-9 には、平成 23 年度に得られた脱酸素条件の脱イオン水中での腐食深さも併記している。図 2.3-9 より、120°Cでは脱酸素条件に比べて大気平衡条件における腐食量が若干多いものの、80°Cと 100°Cではほぼ同じであることがわかる。</p> | <p>記載の<br/>適正化</p> <p>追加</p> <p>記載の<br/>適正化</p> |
|---|--|---|

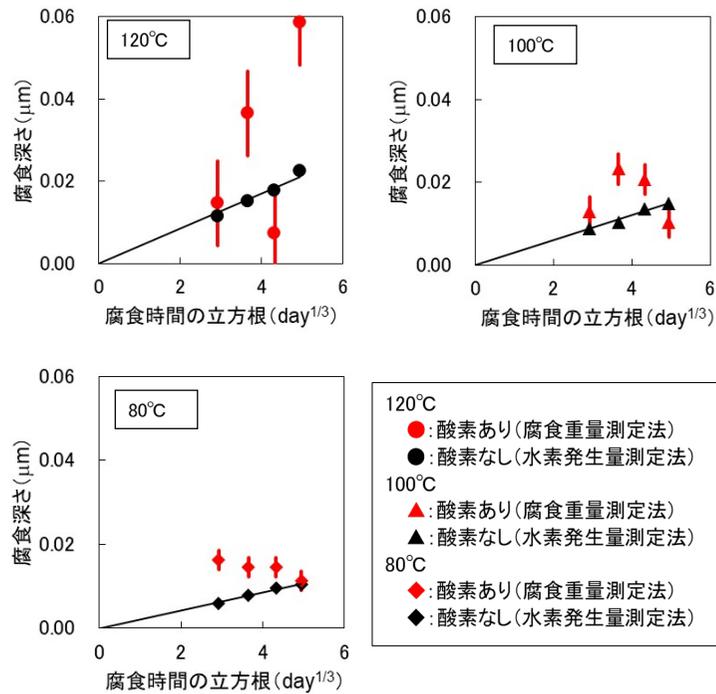


図 2.3-9 80°C～120°Cまでの大気平衡条件（酸素あり）及び脱酸素条件（酸素なし）の脱イオン水中におけるジルカロイ試料の腐食深さと腐食時間の立方根との関係

図 2.3-10 は、脱酸素条件の結果も含めた 80～180°Cまでの温度条件において、腐食重量測定法で得られたデータに基づくジルカロイ試料の腐食深さと、水素発生量測定法で得られたデータに基づく腐食深さとの関係を示す。図より、180°Cの条件にお

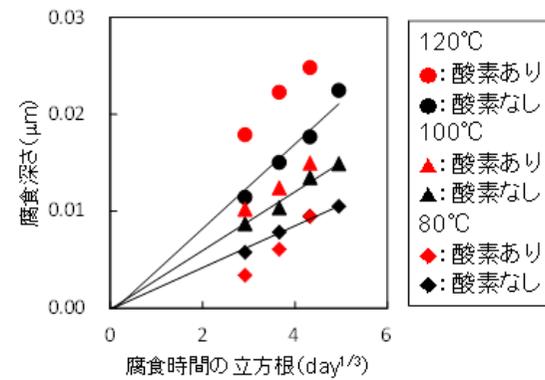


図 2.3-9 80°C～120°Cまでの大気平衡条件（酸素あり）及び脱酸素条件（酸素なし）の脱イオン水中におけるジルカロイ試料の腐食深さと腐食時間の立方根との関係

図 2.3-9 の大気平衡条件での腐食深さを三乗則で整理し、腐食速度定数を算出した結果を、脱酸素条件でのアレニウスプロットに併記したものを図 2.3-10 に示す。脱酸素条件と大気平衡条件とでは腐食メカニズムが異なる可能性があるため、両者の

図の修正

記載の適正化

いては、腐食重量測定法から得られる腐食深さは水素発生量測定法の結果と良い相関性を示し、傾き約1の直線を形成しているが、180℃の条件に比べてジルカロイ試料の腐食量が少ない120℃以下の温度条件においては、腐食重量測定法による腐食深さの値は大きくばらついていることがわかる。このことから、ジルカロイの腐食量が少ない場合には、上述の重量差の誤差及びジルカロイ試験片の表面積の誤差として、ここで評価している以上に誤差が存在していることを示唆するものである。

以上のことから、本試験において腐食重量測定法により得られた結果からは、大気平衡条件におけるジルカロイの腐食メカニズムについての議論を行うことはできないものとする。

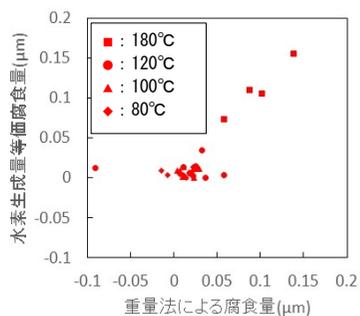


図 2.3-10 80℃、100℃、120℃及び 180℃において、水素発生量測定法及び腐食重量測定法で得られたデータに基づくジルカロイ試料の腐食深さの関係

腐食速度定数を直接的に比較することはできないものの、図 2.3-10 から、溶存酸素がジルカロイの腐食に及ぼす影響は、温度に比べると小さいことが推察される。

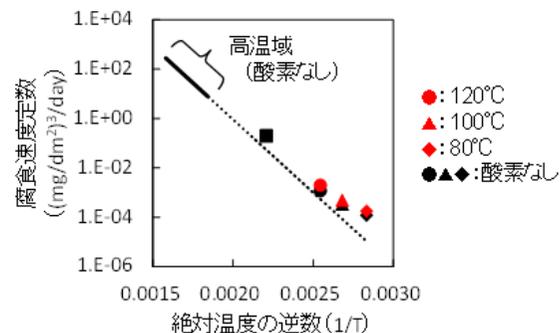


図 2.3-10 三乗則に基づいて算出した 80℃～120℃の大気平衡条件のジルカロイの腐食速度定数と脱酸素条件での腐食速度定数のアレニウスプロット

図の修正

|   |  |           |
|---|--|-----------|
| <p>2.3.5 安全評価に使用可能な腐食速度モデルの検討<br/>(修正無し)</p> <p>(1) ジルカロイの酸化<br/>(修正無し)</p> <p>(2) Oの拡散種</p> <p>(1)に上述したように、Oを含む化学種等としては、<math>H_2O</math>、<math>H_3O^+</math>、<math>OH^-</math>、<math>O^{2-}</math>、<math>O_2</math>などが挙げられる。これらのうち、高温域においては、ジルカロイの酸化皮膜中のOの拡散(伝搬)種は<math>O^{2-}</math>であることが提唱されているが<sup>(7)</sup>、<math>O^{2-}</math>ではなく<math>H_2O</math>としてOが酸化皮膜中を拡散している可能性も考えられる。<math>O^{2-}</math>及び<math>H_2O</math>が拡散種とした場合に類推される種々の事象を表 2.3-3に整理した。ただし、いずれも現時点では仮説の域を脱しておらず、検証を要する。</p> <p>また、図 2.3-6に示した三乗則に基づいて算出した<math>80^{\circ}C \sim 180^{\circ}C</math>の脱酸素条件におけるジルカロイの腐食速度定数のアレニウスプロットは、<u>100°Cと 120°Cを境界に若干傾きが異なっている。</u></p> <p>このことから、例えば、100°Cと 120°Cを境界に、高温側では表 2.3-3の①が、低温側では②のメカニズムが卓越している可能性も考えられる。</p> | <p>2.3.5 安全評価に使用可能な腐食速度モデルの検討<br/>(記載省略)</p> <p>(1) ジルカロイの酸化<br/>(記載省略)</p> <p>(2) Oの拡散種</p> <p>(1)に上述したように、Oを含む化学種等としては、<math>H_2O</math>、<math>H_3O^+</math>、<math>OH^-</math>、<math>O^{2-}</math>、<math>O_2</math>などが挙げられる。これらのうち、高温域においては、ジルカロイの酸化皮膜中のOの拡散(伝搬)種は<math>O^{2-}</math>であることが提唱されているが<sup>(7)</sup>、<math>O^{2-}</math>ではなく<math>H_2O</math>としてOが酸化皮膜中を拡散している可能性も考えられる。<math>O^{2-}</math>及び<math>H_2O</math>が拡散種とした場合に類推される種々の事象を表 2.3-3に整理した。ただし、いずれも現時点では仮説の域を脱しておらず、検証を要する。</p> <p>また、図 2.3-6に示した三乗則に基づいて算出した<math>80^{\circ}C \sim 180^{\circ}C</math>の脱酸素条件におけるジルカロイの腐食速度定数のアレニウスプロットが<u>100°Cと 120°Cを境界に若干傾きが異なっていることや、図 2.3-8に示した大気平衡条件と脱酸素条件でのジルカロイの腐食量が 100°C以下と 120°Cとで若干異なる傾向が見られる。</u></p> <p>このことから、例えば、100°Cと 120°Cを境界に、高温側では表 2.3-3の①が、低温側では②のメカニズムが卓越している可能性も考えられる。</p> | <p>削除</p> |
|---|--|-----------|

|  |  |               |
|--|--|---------------|
| <p>(修正無し)</p> <p>2.3.6 まとめ</p> <p>1970年代までのジルカロイの腐食データに基づく高温域の経験則モデルを低温域に外挿するにあたり、その信頼性を確認するために、平成23年度に実施した腐食試験に供したジルカロイ試料と同じ組成の試料を用いて、やや高温の180℃での腐食速度データを水素発生量測定法及び腐食増量測定法によって取得した。その結果、180℃の腐食速度定数は高温域での腐食速度定数のほぼ外挿直線上に位置していたことから、高温域に比べてより低温域に近い温度である180℃の条件においても、ジルカロイの腐食メカニズムは高温域と同じである可能性が示唆された。これにより、経験則モデルの信頼性を確認することができた。</p> <p>また、沿岸立地された処分場におけるシナリオで想定される化学環境やジルカロイの腐食速度に影響を及ぼす可能性のある因子として塩分濃度と酸化還元電位に着目し、NaCl成分や溶存酸素がジルカロイの腐食に及ぼす影響の有無やその程度を上述の腐食試験法を用いて確認した。その結果、<u>NaCl成分は、温度ほどはジルカロイの腐食に影響を及ぼさないことがわかった。一方、有意な溶存酸素が存在する大気平衡条件における80℃～120℃での121日間までの範囲におけるジルカロイの腐食量の範囲は、脱酸素条件とは大きく異なることが確認で</u></p> | <p>(記載省略)</p> <p>2.3.6 まとめ</p> <p>1970年代までのジルカロイの腐食データに基づく高温域の経験則モデルを低温域に外挿するにあたり、その信頼性を確認するために、平成23年度に実施した腐食試験に供したジルカロイ試料と同じ組成の試料を用いて、やや高温の180℃での腐食速度データを水素発生量測定法及び腐食増量測定法によって取得した。その結果、180℃の腐食速度定数は高温域での腐食速度定数のほぼ外挿直線上に位置していたことから、高温域に比べてより低温域に近い温度である180℃の条件においても、ジルカロイの腐食メカニズムは高温域と同じである可能性が示唆された。これにより、経験則モデルの信頼性を確認することができた。</p> <p>また、沿岸立地された処分場におけるシナリオで想定される化学環境やジルカロイの腐食速度に影響を及ぼす可能性のある因子として塩分濃度と酸化還元電位に着目し、NaCl成分や溶存酸素がジルカロイの腐食に及ぼす影響の有無やその程度を上述の腐食試験法を用いて確認した。その結果、<u>これらの因子は、温度ほどはジルカロイの腐食に影響を及ぼさないことがわ</u></p> | <p>記載の適正化</p> |
|--|--|---------------|

|  |  |           |
|--|--|-----------|
| <p>きた。</p> <p>経験則モデルを安全評価に使用するためには、数千年あるいは数万年といった長期におけるジルカロイ腐食速度の設定が確からしい、あるいは少なくとも保守側であるかどうかを判断することが必要であり、そのためには、腐食速度の律速プロセスを含めた腐食メカニズムを明らかにすることが不可欠である。低温域におけるジルカロイ腐食の律速プロセスとなっている可能性の高い因子としては、ジルカロイ表面に形成される酸化皮膜の構造や酸化皮膜中の酸素の拡散が挙げられるが、現状では明らかになっていない。加えて、地層処分されるハルの腐食速度評価を行うために必要な、炉水中での履歴による腐食への影響についても十分把握されていない。以上のことから、現状では経験則モデルをそのまま安全評価に使用することは不適と考える。</p> <p>今後、酸化皮膜中における O の拡散種の同定や、密度や間隙率といった酸化皮膜の構造分析をすすめ、低温域におけるジルカロイの腐食速度を律速するプロセスを明らかにしていくことが必要である。</p> <p>(修正無し)</p> <p>2.6 まとめ<br/>(修正無し)</p> | <p>一方、経験則モデルを安全評価に使用するためには、数千年あるいは数万年といった長期におけるジルカロイ腐食速度の設定が確からしい、あるいは少なくとも保守側であるかどうかを判断することが必要であり、そのためには、腐食速度の律速プロセスを含めた腐食メカニズムを明らかにすることが不可欠である。低温域におけるジルカロイ腐食の律速プロセスとなっている可能性の高い因子としては、ジルカロイ表面に形成される酸化皮膜の構造や酸化皮膜中の酸素の拡散が挙げられるが、現状では明らかになっていない。加えて、地層処分されるハルの腐食速度評価を行うために必要な、炉水中での履歴による腐食への影響についても十分把握されていない。以上のことから、現状では経験則モデルをそのまま安全評価に使用することは不適と考える。</p> <p>今後、酸化皮膜中における O の拡散種の同定や、密度や間隙率といった酸化皮膜の構造分析をすすめ、低温域におけるジルカロイの腐食速度を律速するプロセスを明らかにしていくことが必要である。</p> <p>(記載省略)</p> <p>2.6 まとめ<br/>(記載省略)</p> | <p>削除</p> |
|--|--|-----------|

放射化金属の腐食モデルの作成については、使用済み燃料被覆管（ハル）の母材であるジルカロイの腐食速度に関する既往の高温域（300℃付近）での経験則モデルを処分環境で想定される100℃以下の低温域に外挿するにあたり、その信頼性を確認するために、最近の組成のジルカロイ試料を用いてやや高温の180℃での腐食速度データを水素発生量測定法及び腐食増量測定法によって取得した。その結果、180℃の腐食速度定数は高温域での腐食速度定数のほぼ外挿直線上に位置していたことから、高温域に比べてより低温域に近い温度である180℃の条件においても、ジルカロイの腐食メカニズムは高温域と同じである可能性が示唆され、経験則モデルの信頼性を確認することができた。また、沿岸立地された処分場におけるシナリオで想定される化学環境やジルカロイの腐食速度に影響を及ぼす可能性のある因子として塩分濃度と酸化還元電位に着目し、海水成分や溶存酸素がジルカロイの腐食に及ぼす影響の有無やその程度を上述の腐食試験法を用いて確認し、NaCl成分は、温度ほどはジルカロイの腐食に影響を及ぼさないこと、有意な溶存酸素が存在する大気平衡条件における80℃～120℃での121日間までの範囲におけるジルカロイの腐食量の程度は、脱酸素条件とは大きく異なることをそれぞれ確認した。

一方、経験則モデルを安全評価に使用するためには、数千年や数万年といった長期におけるジルカロイ腐食速度の設定が確からしい、あるいは少なくとも保守側であるかどうかを判断す

放射化金属の腐食モデルの作成については、使用済み燃料被覆管（ハル）の母材であるジルカロイの腐食速度に関する既往の高温域（300℃付近）での経験則モデルを処分環境で想定される100℃以下の低温域に外挿するにあたり、その信頼性を確認するために、最近の組成のジルカロイ試料を用いてやや高温の180℃での腐食速度データを水素発生量測定法及び腐食増量測定法によって取得した。その結果、180℃の腐食速度定数は高温域での腐食速度定数のほぼ外挿直線上に位置していたことから、高温域に比べてより低温域に近い温度である180℃の条件においても、ジルカロイの腐食メカニズムは高温域と同じである可能性が示唆され、経験則モデルの信頼性を確認することができた。また、沿岸立地された処分場におけるシナリオで想定される化学環境やジルカロイの腐食速度に影響を及ぼす可能性のある因子として塩分濃度と酸化還元電位に着目し、海水成分や溶存酸素がジルカロイの腐食に及ぼす影響の有無やその程度を上述の腐食試験法を用いて確認し、これらの因子は、温度ほどはジルカロイの腐食に影響を及ぼさないことを確認した。

一方、経験則モデルを安全評価に使用するためには、数千年や数万年といった長期におけるジルカロイ腐食速度の設定が確からしい、あるいは少なくとも保守側であるかどうかを判断す

記載の  
適正化

ることが必要であり、その観点では、これまでに解明されていない低温域におけるジルカロイの腐食メカニズムについての理解および地層処分されるハルの腐食速度評価を行うために必要な炉水中での履歴による影響についての理解が不可欠であることを示した。

(修正無し)

ることが必要であり、その観点では、これまでに解明されていない低温域におけるジルカロイの腐食メカニズムについての理解および地層処分されるハルの腐食速度評価を行うために必要な炉水中での履歴による影響についての理解が不可欠であることを示した。

(記載省略)