

残留応力を有する高レベル放射性廃棄物 処分容器の腐食安定性評価

東京大学 学生員 蒲原 弘二郎
東京大学 正員 井上 純哉

1. はじめに

現在、高レベル放射性廃棄物処分に關して地下およそ 1000m 付近に地層処分することが検討されている。その際、多重バリアシステムの構築が考えられている。本研究では、多重バリアシステムのうちのオーバーパックに着目した。オーバーパックは放射性核種を含むガラス固化体を内包しており、放射能レベルが安全なレベルにまで低下すると考えられている 1000 年間、放射性物質が地下水に到達することを防ぐことが要件項目となっている。

そこで本研究ではオーバーパックが 1000 年間、健全に機能するか否かを評価するために、オーバーパック表面上での腐食挙動についての定式化を行い、腐食が安定であるか否かを評価した。腐食が安定に進行する場合には比較的腐食速度が小さい全面腐食で進行し、オーバーパックの寿命予測が容易に立てられる。逆に腐食が不安定な場合には腐食速度が大きい局部腐食に移行する。そのため寿命予測を立てることは難しいといえる。つまり、腐食の安定不安定を検討することによってオーバーパックの安全性が評価できるのである。

2. 評価方法

オーバーパックに地下水が到達し、腐食反応を起こす際、オーバーパック表面に不動態が生じない場合は局部腐食に移行しないという報告がなされている。そこで本研究では、全面腐食が本当に安定に進行するのかについて応力と表面張力を考慮して定式化し、腐食挙動について評価した。本研究での具体的な安全性の評価方法についてであるが、まず、腐食反応が起こる際のエネルギー変化量を、化学ポテンシャルエネルギー、活性化エネルギー、力学的ポテンシャルエネルギー、表面エネルギー、電位差によるエネルギーについて考えた。次に、オーバーパック表面に接している地下水に溶解した鉄イオン濃度とその拡散速度、そしてオーバーパック表面の腐食速度の 3 つの要素の関係を考え、さらに、腐食が始まる時点での状態（初期状態）を考慮し、表面形状と鉄イオン濃度に関する微分方程式を立てた。この微分方程式から、腐食が進むにつれ表面形状がどのように変化していくのかについて、時間の関数として表現した。そして腐食が進むにつれて表面形状が安定を保ったまま進行するのか、あるいは不安定になるのかについて検討した。特に不安定になると考えられる場合については、さらに検討するために不安定の原因となる力学的ポテンシャルエネ

ルギーと表面エネルギーによる影響を考え、表面凹凸を波長の関数として表し、安定不安定領域を波長の大小により評価した。波長が安定領域にある場合は放射性核種が十分減衰するまで地下水との接触を防ぐことができる。逆に不安定領域にある場合は放射能レベルが高い状態で地下水との接触がなされ、放射性物質が地下水を通り生物圏へ影響を及ぼすこととなる。

これまでの研究では化学的な分析が中心になされ力学的な面を考慮していない報告が数多くなされてきたが、力学的な分析を加えることによりオーバーパックの安全性がこれまでとは異なる角度から評価できると考える。

3. 結果

腐食が進むにつれ表面形状がどのように変化していくのかについて、まず、微分方程式を立てた。その微分方程式は以下のエネルギー変化量を考慮して構築した。

化学ポテンシャルの差

$$\Delta G_1 = \mu^{Fe} - \mu^{Fe^{2+}} \dots\dots\dots$$

電位差によるエネルギー

$$\Delta G_2 = nF\Delta E = 2F(E' + E(0) - 2krb) \dots\dots\dots$$

k : 拡散定数

E' : 金属表面の電位

$E(x)$: 電解液の電位

b : 鉄イオン濃度

力学的ポテンシャルエネルギー

$$\Delta G_3 = \frac{\sigma_0^2}{2M} \Omega \dots\dots\dots$$

M : 定数

Ω : 1molあたりの体積

表面エネルギー

$$\Delta G_4 = \Gamma \kappa \Delta h = \Gamma \kappa \Omega \dots\dots\dots$$

Ω : 単位面積当たりの表面エネルギー

また、表面形状の微小変化量、鉄イオン濃度のそれぞれ

$$\Delta a, \Delta b \dots\dots\dots$$

とすると、以上を考慮したうえでの微分方程式は

キーワード: HLW, オーバーパック, 安定性, 応力腐食, 残留応力

〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1 TEL:03-5841-7455 FAX:03-5841-7496

$$\begin{pmatrix} \Delta \dot{a} \\ \Delta \dot{b} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \Omega X & \Omega Y \\ -X & -(Y+Z) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Delta a \\ \Delta b \end{pmatrix} \dots\dots\dots$$

となる。

ここで、

$$X = \frac{\beta P}{RT} \Omega \left(\frac{(1-\nu)\sigma_0^2}{4\mu} \frac{8\pi}{\lambda} - \Gamma \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right)^2 \right) \dots\dots\dots$$

$$Y = P \cdot 4F\beta k r \dots\dots\dots$$

$$Z = k \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right) \dots\dots\dots$$

である。すなわち

X : 応力と表面張力の項。正負は変化

Y : 電位差の項。常に Y > 0

Z : 拡散の項。常に Z > 0

である。

を解くと

$$\begin{pmatrix} \Delta a \\ \Delta b \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_1 & C_2 \\ C_3 & C_4 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{\Lambda_1 t} \\ e^{\Lambda_2 t} \end{pmatrix} \dots\dots\dots$$

となる。

ここで

C₁~C₄ : 積分定数

Λ₁, Λ₂ : の係数行列の固有値で

$$\Lambda_{1,2} = \frac{1}{2} (\Omega X - Y - Z \pm \sqrt{(\Omega X - Y - Z)^2 + 4\Omega X Z}) \dots\dots\dots$$

となる。

4. 考察

解で得られた式の形から表面形状は固有値に依存することがわかる。従って、固有値について調べると、Λ₂ < 0 が常にいえることがわかる。Λ₁ について調べると、Λ₁ は X の符号に依存することがわかる。

そこで、X の符号について調べると X は以下の関数 g の符号に支配されることがわかる

$$g(\lambda, \sigma_0) = \frac{(1-\nu)\sigma_0}{4\mu} \frac{8\pi}{\lambda} - \Gamma \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right)^2 \dots\dots\dots$$

そこで、まず残留応力 σ₀ を固定し、波長 λ の関数として表すと、以下のようなグラフを得る。

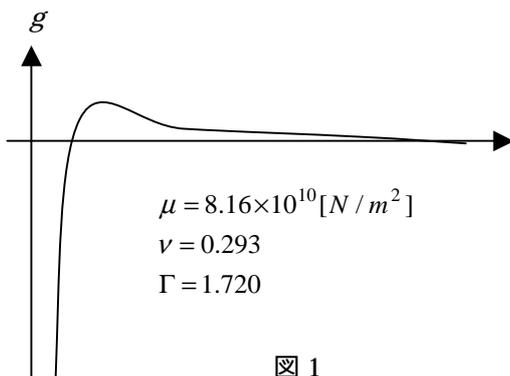


図 1

このグラフから g=0 を満たす波長 λ がただ一つ存在し、この λ を λ_{cr} とすると、

λ_{cr} < 0 …… 安定 (Λ₁ < 0)

λ_{cr} > 0 …… 不安定 (Λ₁ > 0)

である。

次に、残留応力を変化させ、λ_{cr} と σ₀ との関係

$$\lambda_{cr} = \frac{2\pi\Gamma\mu}{(1-\nu)\sigma_0^2}$$

をグラフに表すと図 2 のようになる。

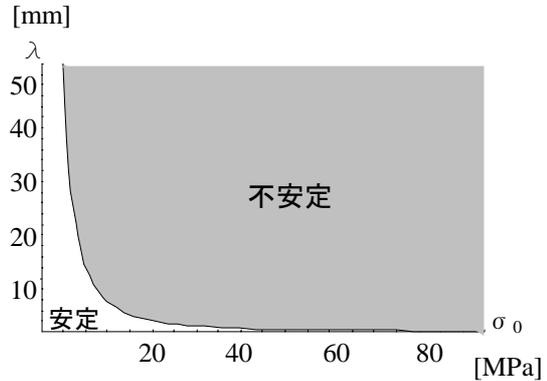


図 2

この図から残留応力が大きい場合、λ_{cr} が非常に小さくなければ腐食の安定性は保証されないため、安全性を保つには残留応力を小さくすることが必要である。

5. まとめ

本研究では、腐食反応の前後でのエネルギー変化量から表面での腐食を定式化し、腐食挙動の評価を行った。そこで

腐食の安定不安定は、応力と表面エネルギーに支配される

腐食の安定性が、残留応力と表面凹凸の波長により評価できる

残留応力が大きいほど、表面凹凸の波長の許容範囲が小さくなり、局部腐食に移行しやすいといえるということがわかる。

今後の課題として、

鉄イオンが飽和状態にある場合を考慮することが必要

本研究ではオーバーパックの表面が平面かつ半無限体を仮定しているが、厳密な評価をするためには形状・寸法を考慮することが必要ということがいえる。

参考文献

核燃料サイクル機構、わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性-地層処分研究開発第 2 時取りまとめ-総論レポート、1999 年

財団法人電力中央研究所 電気事業連合会、高レベル放射性廃棄物地層処分の事業化技術(概要版) 1993 年