

彭立园,谢敬礼,曹胜飞,等. 日本高放废物处置容器形状和厚度设计研究进展[J]. 世界核地质科学, 2025, 42(1): 134-145. doi: 10.3969/j.issn.1672-0636.2025.01.011

PENG Liyuan, XIE Jingli, CAO Shengfei, et al. Review on the shape and thickness design of the canister for high-level radioactive waste in Japan[J]. World Nuclear Geoscience, 2025, 42(1): 134-145 (in Chinese).

日本高放废物处置容器形状和厚度设计研究进展

彭立园, 谢敬礼, 曹胜飞, 张奇, 成建峰, 高玉峰

1 核工业北京地质研究院 北京 100029

2 中国国家原子能机构高放废物地质处置创新中心 北京 100029

摘要 国际公认的安全处置高放废物的方法是建造“多重屏障系统”概念设计的深地质处置库。处置容器作为重要的工程屏障之一, 需要满足在设计寿命年限内包容放射性废物并将其与地下水隔离的安全功能要求。这要求处置容器在设计寿命年限内保持完整性, 不发生失效, 因此合理设计处置容器的形状和厚度至关重要。处置容器材料的性质是影响处置容器形状和厚度设计的重要因素。日本选用碳钢为处置容器材料, 并已经完成处置容器样件的试制。由于碳钢也是我国高放废物处置容器的候选材料之一, 因此主要调研日本高放废物处置容器的形状和厚度设计思路, 分析影响处置容器形状和厚度设计的主要因素, 重点关注处置容器厚度设计中的抗压厚度和辐射屏蔽厚度参数的确定, 旨在为我国高放废物处置容器的设计提供参考。

关键词 高放废物; 碳钢; 处置容器设计; 腐蚀厚度; 抗压厚度; 辐射屏蔽厚度

中图分类号 TL79 **文献标志码** A **文章编号** 1672-0636(2025)01-0134-12

Review on the shape and thickness design of the canister for high-level radioactive waste in Japan

PENG Liyuan, XIE Jingli, CAO Shengfei, ZHANG Qi, CHENG Jianfeng, GAO Yufeng

1 Beijing Research Institute of Uranium Geology, Beijing 100029, China

2 CAEA Innovation Center for Geological Disposal of High-level Radioactive Waste, Beijing 100029, China

Abstracts: To appropriate deal the high-level radioactive waste with internationally recognized method, deep geological disposal repository with multibarrier system is being planned to construct in China. As one of the most important engineering barriers, the canister should maintain integrity and avoid any deformation to meet the safety functions of containing radioactive waste and isolating it from groundwater over the design lifetime. Therefore, it is crucial to reasonably design the shape and thickness of the canister. The properties of the canister materials are important factors affecting the shape and thickness design of the canister. Carbon steel is one of the candidate materials for high-level waste canister in China. Since Japan has chosen carbon steel as the canister material and has completed the trial production of the canister, this paper mainly systematically introduced the design concept about basic shape and thickness of the canister for high-level radioactive in Japan, and analyzed the key factors that need to be considered in the design of the shape and thickness for the canister. Also, emphasis was placed on

基金项目: 高放废物地质处置创新中心基金(编号: WDZC-2023-HDYY-102)资助

收稿日期: 2024-11-27 **改回日期:** 2024-12-28

第一作者: 彭立园, 女, 1990年生, 工程师, 博士, 主要从事高放废物处置容器的研发。E-mail: 17824033690@163.com

Supported by CAEA Innovation Center for Geological Disposal of High level Radioactive Waste (No.WDZC-2023-HDYY-102)

Received date: 2024-11-27 **revised date:** 2024-12-28

First author: PENG Liyuan, female, born in 1990, engineer, PhD, focusing on the research of the canister of high-level radioactive waste. E-mail: 17824033690@163.com

the determination of the pressure thickness parameter and radiation shielding thickness parameter to provide guidance for the design of the canister for high-level radioactive in China.

Keywords: high-level radioactive waste; carbon steel; canister design; corrosion resistance thickness; pressure resistance thickness; radiation shielding thickness

目前,国际公认的安全处置高放废物的方法是深地质处置,即将高放废物埋在距地表深约 400~1 000 m 的稳定地质体中,使其与生物圈在一定时间内有效隔离。高放废物处置库通常采用从外向内依次为围岩、缓冲材料、处置容器和玻璃固化体的“多重屏障系统”概念进行设计。处置容器是多重屏障系统的重要组成部分,需满足在设计寿命年限内包容高放废物并将其与地下水隔离的安全功能。这要求处置容器在设计寿命年限内保持完整性,不发生失效,因此合理地设计处置容器形状和厚度至关重要。

当前,日本从材料的腐蚀性能、力学性能、加工性能和经济成本几方面考虑,将核电站压力容器用 SF340A 碳钢作为处置容器材料^[1-4]。由于碳钢主要以均匀腐蚀为主,同时具有良好的力学和抗辐射性能,因此日本的高放废物处置容器采用整体为碳钢的简单结构。目前日本已经完成碳钢处置容器的设计和试制。我国 2020 年发布的核安全导则《放射性废物地质处置设施》中规定,应通过工程屏障和天然屏障组成的“多重屏障系统(包括废物体、废物处置容器、缓冲回填材料和地质体)”对放射性废物进行隔离,确保辐射保持在合理、可行和尽可能低的水平,以实现地质处置设施关闭后的安全。2021 年 6 月 17 日,我国高放废物地质处置地下实验室——北山地下实验室正式开工建设^[5],并预计于 2027 年建成北山地下实验室。但是目前我国高放废物处置容器的相关研究相对滞后,尚未确定其形状和厚度。本文从处置容器的基本功能出发,对日本高放废物处置容器的形状和厚度设计思路,及影响处置容器形状和厚度的因素进行调研和综述,旨在为中国高放废物处置容器的形状和厚度设计提供参考。

1 处置容器的基本要求

日本高放废物处置容器的基本要求^[6]包括安

全功能要求和工程屏障系统技术的可行性要求。

1.1 处置容器的安全功能要求

处置容器的安全功能^[6]是在高放废物衰变周期内包容玻璃固化体并使其与地下水隔离。这一功能要求处置容器在放入处置库之前是一个没有缺陷的密封结构,以避免放射性核素的泄露和对工作人员的辐射暴露。这不仅要求材料在加工过程中具有低的缺陷密度、均匀的微观结构,还应具有良好的焊接性和合理的焊缝设计。玻璃固化体在衰变过程中会产热,这要求处置容器在较高的温度下不会发生相转变和热应力损伤。

处置容器在地下处置库中的腐蚀机制和腐蚀速率是决定处置容器服役寿命的主要因素之一。因此,处置容器候选材料在处置库中的腐蚀行为对处置容器材料的选择非常重要^[7]。此外,为避免处置容器在地下处置库中发生没有预料到的腐蚀而过早失效的情况,处置容器的厚度设计需要考虑一定的腐蚀裕量。

处置容器需具备足够的结构强度和合适的形状,以确保其在处置库中不会由于外力的挤压或剪切(如缓冲材料被地下水饱和后的膨胀压)而过早失效^[8]。处置容器的结构强度可以通过对选定的处置容器材料设定合适的厚度实现。因此,抗压厚度是处置容器在设计过程中需要考虑的因素之一。

玻璃固化体衰变过程中,释放的中子、 γ 射线等高能粒子会与金属的点阵原子发生碰撞,在金属内部产生大量原子尺度的缺陷,发生辐照损伤。因此,为避免缓冲材料孔隙水辐射分解导致处置容器加速腐蚀和失效的情况发生,处置容器还应具有一定的辐射屏蔽厚度。此外,从辐照的角度考虑,应选择具有较低辐照脆化敏感性的材料作为处置容器材料^[7]。

1.2 处置容器的工程屏障系统技术可行性要求

1.2.1 处置容器不对其他工程屏障的性质产生不利影响

由于多重屏障系统是作为一个系统运

行,因此处置容器不能对其他工程屏障(玻璃固化体和缓冲材料)和天然屏障(围岩)的性质产生影响^[6]。首先,外部载荷的作用和玻璃固化体的衰变放热均可能导致处置容器发生变形,这要求处置容器的内腔设计中应充分考虑变形余量。其次,为避免缓冲材料和玻璃固化体发生再结晶转变,多重屏障系统应具有一定的传热性和散热性,尤其是处置容器应具有一定的导热性^[9-11]。此外,处置容器设计过程中应具有一定的辐射屏蔽功能,以防止缓冲材料的渗透性或核素吸附性因辐射而发生恶化^[7]。最后,还原性、微碱性环境可以降低对氧化-还原敏感的放射性核素在缓冲材料孔隙水中的溶解度和扩散溶解速率,因此选择的处置容器材料应能使处置库保持还原性环境为宜(并非所有处置库都要求具有这一策略)。

1.2.2 处置容器制造、安装的技术可行性

处置容器制造、安装的技术可行性包括从处置容器的加工制造、焊接密封到最终放入处置库就位的整个过程中的技术可行性^[12]。

处置容器的本体和顶盖均在机械加工厂中制造,随后转移至处置库地表设施中。处置容器的制造可行性是指:处置容器的每个组件均采用当前较为先进的技术制作(在加工厂中),以确保处置容器的每个组件均具有稳定和较高的质量。

在处置库地表设施中,处置容器完成玻璃固化体的装载和密封焊接后成为“废物包装容器”。随后,废物包装容器完成入库之前的质量控制检查后,会与缓冲材料一起,被转运至地下并放在指定位置。处置容器的装载、废物包装容器的密封焊接、焊缝区的检查和废物包装容器的转运安装过程均在放射性环境中进行,因此这些过程均具有远程控制操作的技术可行性。从玻璃固化体装载的角度讲,处置容器需具有合适的内部尺寸,以确保玻璃固化体远程装载的顺利进行。此外,由于废物包装容器的转运和安装是在相对狭窄的巷道中进行,因此废物包装容器的形状最好是紧凑、简单的。

2 日本高放废物处置容器的基本形状设计

处置容器的设计主要与处置容器的选材有关^[7]。根据处置容器候选材料的性能,目前世界上考虑的处置容器结构主要有两种类型:1)处置容器整体采用碳钢的简单结构;2)内部为碳钢,外面包裹纯铜或钛合金包壳的复合结构(碳钢内嵌体-纯铜包壳和碳钢内嵌体-钛合金包壳),其中内部的碳钢起力学支撑作用,外面的纯铜或钛合金包壳起耐蚀作用。日本从材料的腐蚀性能、力学性能、加工性能和经济成本几方面考虑,当前已经将反应堆压力容器用标准锻造碳钢 SF340A 确定为处置容器材料,因此日本的处置容器采用碳钢的简单结构。

处置容器的形状设计包括外形和内腔设计。处置容器的形状设计首先应满足其功能要求,其次应与其他天然或工程屏障之间具有良好的相容性,最后应考虑容器加工和就位的难易程度。此外,处置容器的形状设计中还应考虑其对传输、安放处置容器的地下设施以及处置库的整体利用率的影响。

2.1 处置容器的外形设计

处置容器的安全功能要求处置容器的外形设计应有利于表面载荷的均匀分布,避免应力分布不均导致的应力促进腐蚀失效发生。从工程屏障系统的稳定性来说,处置容器的形状应有利于外侧缓冲材料的远程安装就位以及使处置容器以及处置容器和缓冲材料之间保持较高紧凑性的能力。从加工制造的角度来说,处置容器形状应具有良好的加工性能,可以进行批量生产,且性能稳定。从安全操作处置容器就位的角度来说,处置容器的形状应易于夹持、具有较高的结构稳定性和具备远程控制其安装就位的能力。同时,考虑到处置库的利用率以及处置容器的传输和就位操作均在空间有限的地下巷道中完成,处置容器的尺寸不宜过大。

日本分别从上述几方面对圆柱形、球形和棱形的处置容器外形进行评估^[13],结果如表 1 所示。与圆柱形和棱形处置容器相比,球形处

置容器的抗压能力更好。但是球形处置容器的夹持就位、缓冲材料的安装就位非常困难,且工程屏障系统的紧凑性很难达到。此外,处置容器一旦做成球形,其尺寸将变得非常大,大大降低处置库的整体利用率。与圆柱形和球形处置容器相比,棱形处置容器更容易夹持,且易于缓

冲材料的安装就位。但棱形处置容器表面的载荷受力不均匀,棱角位置容易发生应力集中,形成薄弱位置而过早失效。虽然圆柱形的处置容器可能会对处置容器和缓冲材料的安装就位带来一定的困难,但是日本进行综合评估,最终将处置容器的外形设计为圆柱形。

表 1 处置容器形状(圆柱形、球形和棱形)评估^[13]

Table 1 Evaluation of the canister shapes(cylindrical, spherical and prismatic)^[13]

处置容器形状	圆柱形	球形	棱形
均匀载荷性能	非常好	非常好	有问题
加工制造性能	非常好	有问题	良好
工程屏障系统紧凑性	非常好	有问题	良好
缓冲材料安装性能	良好	有问题	非常好
处置容器安装性能	良好	有问题	非常好

2.2 处置容器的内腔设计

日本高放废物处置库的处置对象为玻璃固化体。处置容器的安全功能要求处置容器的内腔设计应具备通过远程控制技术将玻璃固化体安装就位的能力。日本的玻璃固化体是直径为 430 mm、高度为 1 340 mm 的圆柱体^[14]。玻璃固化体的热膨胀系数为 $1.0 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ ^[14]。玻璃固化体的软化温度为 700 °C 左右。玻璃固化体的工作温度不高于其软化温度。假设玻璃固化体发生热膨胀的最高温度为 700 °C,且热膨胀分别只发生在玻璃固化体的直径和高度方向。计算发现,玻璃固化体在直径和高度方向的最大热膨胀量分别为 0.29 mm 和 0.90 mm。为使玻璃固化体远程安装就位的顺利进行,日本最终将处置容器的内腔尺寸定为直径 440 mm,高度 1 350 mm。

3 日本高放废物处置容器的厚度设计

根据处置容器的安全功能,日本的处置容器厚度设计主要从耐腐蚀、抗外部载荷和抗辐射三方面考虑。

3.1 处置容器的腐蚀厚度设计

处置容器在处置库中服役时会发生腐蚀。为避免处置容器在处置库中由于腐蚀而过早失效,处置容器的厚度设计中需考虑一定的腐蚀厚度。处置容器的服役环境会影响处置容器的腐蚀类型、腐蚀机制和腐蚀速率。处置库中影响处置容器腐蚀的环境条件主要包括温度、氧化-还原条件和地下水化学成分。根据

处置容器的近场环境演化,日本分析了碳钢处置容器发生点蚀/缝隙腐蚀^[15-18]、氢脆^[19-29]、应力腐蚀开裂^[24, 30-37]、微生物腐蚀^[38-39]和钝化/均匀腐蚀^[17, 26-27, 40-43]的可能性,认为处置容器在近场环境中服役时主要发生均匀腐蚀。为预测碳钢处置容器在 1 000 a 设计寿命年限内的腐蚀深度,日本对碳钢在模拟处置库环境中的均匀腐蚀进行建模。均匀腐蚀模型包括理论数学模型和试验数据模型^[44]。理论数学模型和试验数据模型估算的碳钢处置容器在 1 000 a 服役寿命年限内的腐蚀深度分别为 49.8 和 30.7 mm。日本采用文物类比的方法对上述两个腐蚀模型进行了验证,结果显示试验数据模型的精度更高,因此日本将 30.7 mm 确定为碳钢处置容器在处置库中服役 1 000 a 的最大腐蚀深度。日本为进一步增加处置容器的可靠性,以 10 mm 为最小单位,采用进一近似法将处置容器的腐蚀厚度最终确定为 40 mm。

3.2 处置容器的抗压厚度设计

根据处置容器的安全功能,处置容器在处置库中需具有足够的力学强度,以保证其在服役寿命年限内不被外部载荷破坏而失效。处置容器的抗压厚度取决于其表面受到的外部载荷的大小及分布。日本尚未确定具体的地下处置库场址,因此主要考虑硬岩和软岩两种围岩类型。基于高放废物处置的长期安全性、地质环境特点、当前施工和勘察技术水平、深度对处置库的影响四方面考虑,设定硬岩系统

中处置库的目标深度为 1 000 m, 软岩系统中处置库的目标深度为 500 m。中国将北山确定为高放废物处置库的首选预选区^[45-48]。北山为花岗岩岩体, 属于硬岩类型。因此本部分只调研了处置容器在 1 000 m 深硬岩处置库中的抗压厚度。

3.2.1 处置容器表面受到的外部载荷

处置容器的抗压厚度设计与处置容器表面受到的外部载荷大小及分布有关。通过考虑处置容器与膨润土和周围围岩可能发生的相互作用, 评估处置容器设计过程中需要考虑的外部载荷作用。处置容器在 1 000 m 深的处置库中可能受到的载荷为地下水静水压和缓冲材料的固结应力(包括岩石蠕变对处置容器和缓冲材料产生的作用力、缓冲材料吸水膨胀产生的膨胀压力以及处置容器腐蚀产物的反作用力)。

地下水的静水压与距地表深度之间的公式为:

$$P = \rho gh \quad (1)$$

式(1)中: P —压强, Pa; ρ —液体密度, $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$; g —重力加速度, $\text{N} \cdot \text{kg}^{-1}$; h —水距地表的深度, m。因此, 位于 1 000 m 深的硬岩处置库的静水压为 9.8 MPa。

缓冲材料的固结应力包括岩石蠕变对处置容器和缓冲材料产生的作用力、缓冲材料吸水膨胀产生的膨胀压力以及处置容器腐蚀产物的反作用力。根据 Takaji 等^[49]的研究结果, 在 1 000 a 的时间内, 硬岩系统的岩石蠕变量很小。因此, 日本假设膨润土缓冲材料在硬岩处

置库中产生的岩石蠕变导致的作用力很小, 可以忽略不计, 即假设岩石蠕变对处置容器和缓冲材料产生的作用力为 0 MPa。处置容器生成腐蚀产物导致的固结应力受膨润土缓冲材料的厚度、固结特性和处置容器的尺寸的影响。因此, 膨润土缓冲材料的固结应力取决于处置容器腐蚀后的膨润土缓冲材料孔隙比。Takaji 等^[50-52]和 Suzuki 等^[52]得到的膨润土缓冲材料有效应力(P)和孔隙比(e)之间计算公式为:

$$e = e_0 - C_c \times \log P \quad (2)$$

式(2)中: e_0 为当 $P=1$ 时的膨润土缓冲材料孔隙比; C_c —膨润土缓冲材料的压缩系数, 与膨润土本身的性质相关。膨润土缓冲材料的固结应力与缓冲材料在处置容器周围的分布以及缓冲材料和处置容器的厚度有关。缓冲材料在处置容器周围的分布方式分为两种: 1) 缓冲材料均匀分布在处置容器的轴向和径向方向, 且厚度相同; 2) 缓冲材料分别在处置容器的轴向、径向方向均匀分布, 但轴向和径向的厚度不同。日本假设缓冲材料在处置容器的轴向和径向处于均匀分布, 且缓冲材料的外围为定值。同时, 日本假设碳钢处置容器在 1 000 a 的服役寿命时间内的腐蚀厚度取 40 mm, 腐蚀产物体积膨胀比为 3, 其中腐蚀产物体积膨胀比的假设基于钢筋在混凝土中腐蚀的研究结果^[53]。基于上述假设, 日本获得的膨润土缓冲材料固结应力和缓冲材料厚度之间的关系如图 1 所示。日本拟采用厚度为 0.7 m 的膨润土缓冲材料。根据图 1, 膨润土缓冲材料的固结应力为 0.86 MPa。

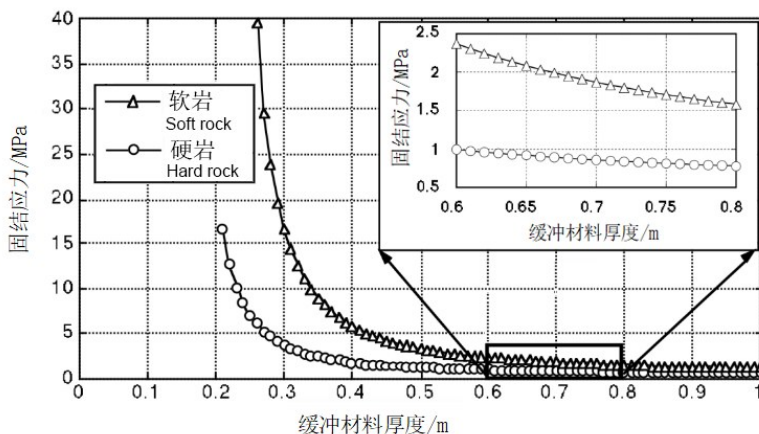


图 1 缓冲材料的厚度和固结应力之间的关系^[14]

Fig. 1 Relationship between buffer material thickness and consolidation stress of buffer material^[14]

3.2.2 处置容器的抗压厚度

处置容器表面受到的外部载荷为地下水静水压和膨润土缓冲材料的固结应力之和,约为 10.7 MPa。日本采用了处置容器表面外部载荷为各向同性这一最简单的假设。根据《核电

站部件制造技术标准》中的二级容器规定^[6],处置容器上下底面和圆筒壁所需的厚度分别为 100.1 和 45.2 mm。以 10 mm 为最小单位,处置容器上下底面和圆筒壁的厚度分别采用进一近似法取 110 和 50 mm,如表 2 所示。

表 2 处置容器抗压所需的厚度

Table 2 The thickness required to resistant the pressure on canister

处置容器组成部分	抗压厚度/mm
上下底面	110
圆筒壁	50

3.3 处置容器的辐射屏蔽厚度设计

处置容器表面较高的辐射剂量,可能会使膨润土中的孔隙水发生辐照分解生成大量氧化性物质(氧化剂),促进处置容器的腐蚀,从而导致失效。同时,处置容器的厚度较薄时,处置容器表面较高的辐射强度,可能会使处置容器发生辐照脆化,劣化处置容器的抗压性能。因此,处置容器在设计的过程中,需考虑一定的辐射屏蔽厚度,以防止处置容器在服役寿命年限内发生辐照促进腐蚀和辐照脆化导致的失效。

3.3.1 处置容器发生辐照促进局部腐蚀所需的厚度

处置容器的厚度小于屏蔽 γ 射线和中子辐射所需的厚度时,处置容器表面较高的辐射剂量率可能会使水发生辐射分解,生成氧化剂,促进处置容器表面发生局部腐蚀。日本的腐蚀试验结果显示^[40],碳钢在压实膨润土中不太可能发生钝化,因此日本认为碳钢在压实膨润土中发生局部腐蚀的可能性很低,但仍存在一定的不确定性。为避免辐照促进局部腐蚀情况的发生,应确定处置容器发生辐照促进局部腐蚀所对应的临界厚度。

日本计算处置容器发生辐照促进局部腐蚀对应的辐射屏蔽厚度思路为:采用 ORIGEN 和 MCNP 程序获得处置容器表面的辐射剂量与其厚度之间的关系。分别根据扩散方程和法拉第定律,计算距处置容器表面不同位置处的氧化剂浓度和阴极电流密度,并最终获得处置容器的厚度和其表面阴极电

流密度之间的关系。当阴极电流密度小于碳钢钝化电流密度时,认为辐照对处置容器的腐蚀几乎没有影响,此时对应的处置容器厚度为临界厚度。

MCNP 程序是由美国 Los Alamos 国家实验室开发的一种大型中子、光子和电子的输运程序^[54-55],可以对上述粒子的输运过程进行跟踪统计,记录粒子的运动信息,真实地模拟实际物理过程,被广泛应用于屏蔽结构的优化设计、辐射防护与医学检测、核设施退役计算等领域^[56]。MCNP 程序的有效性已经通过基准^[57-59]分析、核反应堆周围辐射屏蔽^[60-61]分析和乏燃料容器屏蔽^[62-63]计算得到证实。因此,日本处置容器表面的辐射吸收剂量采用 MCNP-4A 程序^[64]计算,其中的三维模型由玻璃固化体、处置容器、缓冲材料和围岩组成(参数如表 3 所示)。辐射源采用 ORIGEN-2 程序进行分析。对辐射源进行假设:a) 自发裂变引发中子辐射,中子辐射产生 γ 射线;b) (α, n) 引发中子辐射,中子辐射产生 γ 射线;c) 裂变产物的衰变会释放 γ 射线。假设高放废物的燃耗为 45 000 MWD/tU,初始富集度为 4.5%,暂存期为 50 a。缓冲材料为 70 wt% 膨润土和 30 wt% 石英砂的混合物。为确保处置容器表面的水发生最大程度的辐射分解,假设缓冲材料的饱和度为 100%。图 2 为计算的处置容器表面辐射剂量和其厚度之间的关系图。结果显示, γ 射线是处置容器表面辐射剂量的主要来源,且处置容器表面的 γ 射线剂量随其厚度的增加而明显降低。

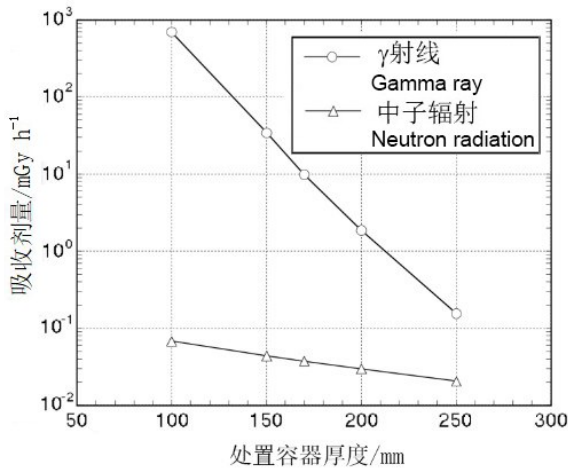


图 2 不同厚度处置容器表面的辐射吸收剂量^[14]

Fig. 2 Absorbed dose on the surface of the canister with different thickness^[14]

表 3 计算吸收辐射剂量采用的参数^[14]

Table 3 Parameters used for calculating absorbed dose^[14]

参数	45 000 MWD
燃耗/tU	45 000 MWD
浓缩度/%	4.5
处置容器材料	碳钢
石英砂和膨润土混合比/%	30
缓冲材料孔隙水饱和度/%	100
凝固后的冷却时间/a	50

与处置容器表面邻近的膨润土缓冲材料孔隙水发生辐射分解,会产生等量的氧化剂和还原性物质(还原剂)。假设辐射产生的所有氧化剂都对处置容器的腐蚀有作用。G 值为吸收 100 eV 能量所产生化学变化的分子数量或分解、生成的物质(分子、原子、离子或原子团)数量,可用于评估辐射对物质的化学效应。为简化计算,假设辐射分解产生的所有氧化剂的化学价均为二价(H₂O₂),则 G 值为 2.13^[65]。假设缓冲材料孔隙水的辐射分解产生的氧化剂均用于处置容器的腐蚀(产生阴极电流),没有被缓冲材料吸收。缓冲材料中氧化剂的生成和迁移可以公式(3)~(4)表示:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_a \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + R_0 \times \exp(-\lambda x) \quad (3)$$

$$R_0 = \frac{p \times G \times E}{100 \times NA} \quad (4)$$

式(3)~(4)中:C—氧化剂的浓度, mol·m⁻³; t—时间, s; D_a—氧化剂的表观扩散系数, 1.2 × 10⁻⁹ m²·s⁻¹^[66]; x—距处置容器表面的距离, m; R₀—氧化剂的生成速率, mol·m⁻³·s⁻¹; λ—吸

收系数, 6.25 m⁻¹^[65]; E—吸收剂量, eV·m⁻³·s⁻¹; p—缓冲材料的孔隙率, 无单位; G—2.13, 无单位; NA—阿伏伽德罗常数, 6.023 × 10²³ mol⁻¹。

根据公式(3), 处置容器表面由水辐射分解产生的氧化剂浓度梯度为:

$$\frac{\partial C}{\partial x} = \frac{R_0}{D_a \times \lambda} \left[1 - \exp(D_a \times \lambda^2 \times t) \times \operatorname{erfc}(\lambda \sqrt{D_a \times t}) \right] \quad (5)$$

达到稳态时, 氧化剂的浓度梯度为 R₀/(D_a·λ)。阴极电流密度 I_{cath} (单位: Am⁻²) 为:

$$I_{\text{cath}} = -nFR_0 p/\lambda \quad (6)$$

式(6)中:n—氧化剂的化合价, -2; F—法拉第常数, 9.65 × 10⁴ C·mol⁻¹。根据公式(6), 当处置容器的厚度分别为 100、150、170、200 和 250 mm 时, 氧化剂产生的阴极电流密度如图 3 所示。Marsh 等^[65]认为当氧化剂产生的阴极电流密度小于碳钢的钝化电流密度时, 碳钢不会发生局部腐蚀。Marsh 等^[67]和 Taniguchi 等^[68]的研究结果显示, 碳钢的钝化电流密度约为 1.0 × 10⁻⁴ Am⁻²。根据图 3, 为抑制处置容器表

面由于辐射导致的局部腐蚀, 处置容器的辐射屏蔽厚度应至少为 130 mm。日本为增加处置

容器的可靠性, 日本将处置容器发生辐射促进局部腐蚀所需的厚度取为 150 mm。

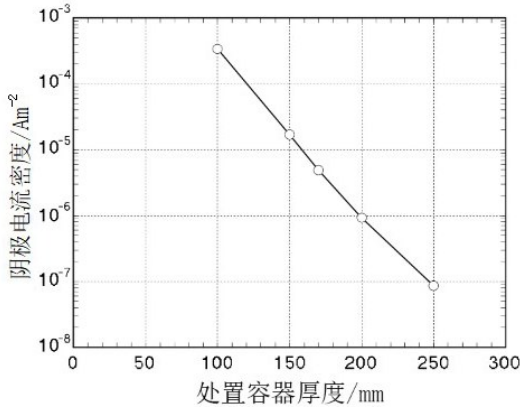


图 3 处置容器厚度和辐射产生的阴极电流密度之间的关系^[14]

Fig. 3 Relationship between the canister thickness and cathodic current density supplied through radiolysis^[14]

3.3.2 辐照对处置容器抗压性能的影响

辐照损伤一般指高能粒子与材料晶格中的原子发生一系列的碰撞, 引起材料内部出现大量原子尺度缺陷的过程, 宏观表现为材料的肿胀、脆化等。处置容器内的高放废物在衰变过程中会释放大量中子、 γ 射线等高能粒子。当处置容器的厚度较薄时, 辐照温度低于熔点一半时, 体心立方晶格的铁素体会发生辐照硬化和脆化, 具体表现为材料的屈服强度、抗拉强度增加, 延伸率、冲击韧性降低。辐照脆化的程度一般用韧脆转变温度(DBTT)的升高进行评价。

为了确认辐照脆化对处置容器抗压性能的影响, 保守计算了碳钢处置容器放入处置库 1 000 a 后由 γ 射线和中子辐照造成的 dpa(原子平均位移), 并将 dpa 值代入钢的中子辐照数据统计分析^[69]引入的公式^[70], 估算 DBTT 的变

化。评估结果显示, 碳钢处置容器在处置库中被 γ 射线和中子辐照 1 000 a 后, DBTT 的升高值小于 10 °C。即使辐照脆化后, 碳钢处置容器的 DBTT 也低于处置容器的工作温度, 因此, 日本认为在处置库中服役 1 000 a 后, 处置容器的辐照损伤不会对抗压强度产生影响。

3.4 处置容器的厚度设计

为合理设计处置容器的厚度, 日本并未将处置容器厚度简单确定为腐蚀厚度、抗压厚度和辐射屏蔽厚度直接相加, 而是在满足处置容器安全功能的前提下, 将处置容器的厚度进行了优化, 计算公式为: 碳钢处置容器厚度 = max(抗压厚度, 辐射屏蔽厚度) + 腐蚀厚度, 如表 4 所示。由于碳钢处置容器的辐射屏蔽厚度大于抗压强度, 因此碳钢处置容器的厚度 (190 mm) = 腐蚀厚度 (40 mm) + 辐射屏障厚度 (150 mm)。硬岩系统的处置容器罐体和顶盖厚度均取 190 mm。

表 4 碳钢处置容器的厚度

Table 4 Thickness of the carbon steel canister

	上下底面	圆筒壁
腐蚀厚度/mm	40	
抗压厚度/mm	110	50
辐射屏蔽厚度/mm	150	
总厚度[① + max(②, ③)]/mm	190	

4 总结与建议

日本从材料的腐蚀性能、力学性能、加工

性能和经济成本几方面考虑, 将碳钢选作处置容器材料, 因此处置容器采用整体为碳钢的简单结构进行设计。日本根据处置容器的

安全功能和工程屏障系统技术可行性的基本要求,对处置容器的基本形状和厚度进行设计。处置容器的基本形状设计包括外形和内腔设计。日本主要从抗压能力、加工制造的难易程度、工程屏障的紧凑程度、处置容器和缓冲材料安装就位的难易程度几方面考虑,最终将处置容器的外形设计为圆柱形;从玻璃固化体的尺寸、热膨胀率和远程控制玻璃固化体就位的能力几方面考虑,将处置容器内腔的设计尺寸确定为内径 440 mm,高度 1 350 mm。日本的处置容器厚度设计中,充分考虑腐蚀、外部载荷和辐射因素的影响,并确定处置容器的腐蚀厚度、抗压厚度和辐射屏蔽厚度。在满足处置容器安全功能的前提下,将处置容器的厚度最终确定为 190 mm。日本的高放废物处置容器形状和厚度设计的整体思路清晰、逻辑严密、考虑的因素较为全面,可以为我国的高放废物处置容器设计提供较高的参考价值。

1) 日本的处置容器抗压厚度设计中,在考虑处置容器表面受到的外部载荷时,未考虑地震等引起的剪切载荷作用。建议中国的处置容器抗压厚度设计中,考虑地震等引起的剪切载荷作用的影响。

2) 日本的处置容器辐射屏蔽厚度设计中,主要考虑处置容器表面的辐射剂量对处置容器本身性质的影响,未考虑其对缓冲材料性质的影响。因此,中国的处置容器辐射屏蔽厚度设计中,除了考虑辐射剂量对处置容器本身性质的影响外,还应考虑其对缓冲材料性质的影响,即处置容器表面的辐射剂量不应引起缓冲材料的性质发生改变。

3) 日本的处置容器辐射屏蔽厚度设计中,主要考虑辐照促进局部腐蚀所需的处置容器厚度。但是有研究显示,辐照也会促进碳钢的均匀腐蚀。因此,建议中国的处置容器辐射屏蔽厚度设计中,除考虑辐照促进局部腐蚀所需的处置容器厚度外,还应考虑辐照对处置容器均匀腐蚀的影响。

4) 辐射促进局部腐蚀所需的处置容器厚度设计中,日本的氧化剂浓度分布和处置容器表面的阴极电流密度均采用理论计算的方式

获得。理论计算的阴极电流密度结果用于估算处置容器的辐射屏蔽厚度。但是日本并没有进行辐照促进腐蚀相关的试验,对理论计算的结果进行验证,因此日本的辐射促进局部腐蚀所对应的处置容器厚度存在一定的问题。建议中国采用试验或试验和理论相结合的方式对辐射促进局部腐蚀所需的处置容器厚度进行估算。

参考文献

- 1 ASANO H, SAWA S, ARITOMI M. Long-term integrity of waste package final closure for HLW geological disposal, (II). Applicability of TIG welding method to overpack final closure[J]. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 2005, 42.
- 2 ASANO H, MAEDA K, ARITOMI M. Long-term integrity of waste package final closure for HLW geological disposal, (III) Applicability of Electron Beam Welding to overpack final closure [J]. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 2006, 43: 206.
- 3 ASANO H, ITO T. Long-term integrity of waste package final closure for HLW geological disposal, (V) Applicability of MAG welding method to overpack final closure[J]. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 2008, 45: 899-909.
- 4 TANIGUCHI N, SUZUKI H, KAWASAKI M, et al. Propagation behaviour of general and localised corrosion of carbon steel in simulated groundwater under aerobic conditions [J]. *Corrosion Engineering Science and Technology*, 2011, 46: 117-123.
- 5 王驹, 陈亮, 周志超, 等. 我国高放废物地质处置新突破[J]. *原子能科学技术(增刊 2)*, 2024, 58(增刊 2): 217-230.
WANG Ju, CHEN Liang, ZHOU Zhichao, et al. Geological disposal of high level radioactive waste in China: progress and breakthrough during 2019-2024 [J]. *World Nuclear Geoscience*, 2024, 58 (Sup.2): 217-230 (in Chinese).
- 6 Nuclear Waste Management Organization of Japan. Supporting Report 3: Safety assessment of the geological disposal system, H12: Project to establish the scientific and technical basis for HLW disposal in Japan: JNC TN 1400 2000-004[R]. Tokyo: Japan Nuclear Cycle Development Institute, 2000b.
- 7 Nuclear Waste Management Organization of Japan. Supporting Report 1: The geological environment of

- Japan, H12: Project to establish the scientific and technical basis for HLW disposal in Japan: JNC TN 1400 2000-002 [R]. Tokyo: Japan Nuclear Cycle Development Institute, 2000a.
- 8 Final Report of Kamaishi In situ Experiment: JNC TN7410 99-001 [R]. Tokyo: Japan Nuclear Cycle Development Institute, 1999.
- 9 TANIGUCHI W, FUJITA T. Thermal analysis in repository design study: PNC TN8410 97-212 [R]. Tokyo: Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation, 1997.
- 10 SHIMADA S, KIYOHASHI H. Review of research on thermophysical properties of rocks and soils [C]. The 1987 Fall Meeting of the Mining and Materials Processing Institute of Japan, 1987.
- 11 TANIGUCHI W, IWASA K. Thermal analysis of the near field: JNC TN 8400 99-051 [R]. Tokyo: Japan Nuclear Cycle Development Institute, 1999.
- 12 WERME L. Design premises for canister for spent nuclear fuel [R]. Sweden, 1998.
- 13 KRISTALLIN-I. Safety assessment report [R]. 1993.
- 14 Nuclear Waste Management Organization of Japan. Supporting report 2: Repository design and engineering technology, H12: Project to establish the scientific and technical basis for HLW disposal in Japan [R]. Japan Nuclear Cycle Development Institute, 2000.
- 15 TANIGUCHI N, KAWASAKI M, HONDA A. The critical condition for the initiation of localized corrosion of carbon steel in $\text{NaCl-NaHCO}_3\text{-Na}_2\text{CO}_3$ [C]. Proceedings of the 40th Japan corrosion conference, 1993: 239.
- 16 HONDA A, TANIGUCHI N, ISHIKAWA H, et al. A modelling study for long-term life prediction of carbon steel overpack for geological isolation of high-level radioactive waste [C]. Proceedings of international symposium on plant aging and life predictions of corrodible structures, 1995: 217-227.
- 17 TANIGUCHI N, HONDA A, KAWASAKI M, et al. A study for localization of corrosion on carbon steel overpack: JNC TN8400 99-067 [R]. 1999a.
- 18 ROMANOFF M. Underground corrosion [M]. 1989: 80.
- 19 MURATA T. Role of hydrogen through APC and HE [C]. 78, 79th Nishiyama Commemorative Technical Seminar, the Iron and Steel Institute of Japan, 1981: 227.
- 20 TANAI K, SATO H, MURAKAMI T, et al. A preliminary assessment of gas diffusion and migration: JNC TN 8400 99-045 [R]. 1999b.
- 21 TANIGUCHI N, ICHIKAWA S. Measurement of hydrogen content in carbon steel exposed to hydrogen gas environment: JNC TN8400 99-056: 1999 [R]. Tokyo: Japan Nuclear Cycle Development Institute.
- 22 QUICK N, JOHNSON H. Hydrogen and deuterium in iron, 49 - 506 °C [J]. Acta Metallurgica, 1978, 26 (6): 903-907.
- 23 NISHIMURA R, YAMAKAWA Y, WATAORI H. Hydrogen storage of carbon steel in carbon dioxide environment [C]. Proceedings of the 44th Japan Conference on Materials and Environments, 1997: 429.
- 24 KOWAKA M. Corrosion damage of metals and corrosion engineering [R]. Kinzoku no Fusyoku Sonsho to Bosyoku Gijutsu, Agune, 1983.
- 25 ODA C, SHIBATA M, YUI M. Calculation of porewater chemistry in compacted bentonite for 2nd progress report: JNC TN8400 99-078 [R]. Tokyo: Japan Nuclear Cycle Development Institution, 1999.
- 26 ODA C, SHIBATA M. Modelling and experimental studies on bentonite-water interaction: JNC TN8400 99-032 [R]. Tokyo: Japan Nuclear Cycle Development Institution, 1999.
- 27 ODA C, SHIBATA M. Modelling of bentonite-water interaction experiments under anaerobic conditions: JNC TN8400 99-032 [R]. Tokyo: Japan Nuclear Cycle Development Institution, 1999.
- 28 IKEDA A. Research on hydrogen induced cracking of steel in wet hydrogen sulfide environment [D]. Kyoto: Kyoto University, 1981.
- 29 OKADA H. Stress corrosion cracking and hydrogen cracking of structural steel [C]. Proceeding of 2nd International Conference on SCC & HE of Iron Base Alloys, 1977.
- 30 YUI M, SASAMOTO H, ARTHUR R. Groundwater evolution modeling for the second progress performance assessment report: JNC TN8400 99-030, [R]. Tokyo: Japan Nuclear Cycle Development Institute, 1999: 201.
- 31 NAITO M, ISHIHARA Y, UMEKI H, et al. Study of radiation impact on near field performance of geological disposal system: JNC TN1400 99-025 [R]. Tokyo: Japan Nuclear Cycle Development Institute, 1999.
- 32 BEAVERS J A, THOMPSON N G, PARKINS R N. Stress corrosion cracking of low strength carbon steels in candidate high-level waste repository environment: NUREG/CR-3861 [R]. 1987.

- 33 HONMA N, CHIBA T, TANAI K. Design of carbon steel overpack: JNC TN8400 99-047 [R]. Tokyo: Japan Nuclear Cycle Development Institute, 1999a.
- 34 HARUNA T, SHU R, SHIBATA T. Environment induced degradation in strength for carbon steel in carbonate/bicarbonate solutions containing chloride ions[J]. *Zairyo to Kankyo*, 1998, 47: 771-776.
- 35 KASAHARA K, SATO T. Environmental factors that influence the susceptibility of line pipe steels to external stress corrosion cracking [J]. *Tetsu-to-Hagane*, 1983, 69 (11): 1463.
- 36 SHU R, SHIBATA T, HARUNA T. Initiation condition of SCC in SM400B carbon steel in HCO_3^- aqueous solution [C]. *Proceedings of 44th Japan Conference on Materials and Environments*, 1997: 429.
- 37 KASAHARA K, ADACHI H. Study on material factors that influence the susceptibility of line pipe steels to external stress corrosion cracking [J]. *Tetsu-to-Hagane*, 1983, 69 (11).
- 38 SHIMODAIRA S. Corrosion of metal by bacteria [J]. *Corrosion Engineering*, 1973, 22 (1): 2-9.
- 39 NISHIMURA T, WADA R, NISHIMOTO H, et al. The effects of bacteria on the corrosion behavior of carbon steel in compacted bentonite [R]. Japan Nuclear Cycle Development Institute, JNC TN8400 99-077, 1999.
- 40 TANIGUCHI N, HONDA A, ISHIKAWA H. Experimental investigation of passivation behavior and corrosion rate of carbon steel in compacted bentonite [C]//*Proceedings of the Materials research society*, 1998: 495-501.
- 41 HONDA A, TANIGUCHI N. A corrosion life assessment of overpack for geological isolation of high level radioactive waste [R]. Japan Nuclear Cycle Development Institute, JNC TN8400 99-082, 1999.
- 42 WIELAND E, WANNER H, ALBINSSON Y, et al. A surface chemical model of the bentonite-water interface and its implications for modelling the near field chemistry in a repository for spent fuel [R]. SKB Technical Report 94-26, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management, Stockholm: SKB, 1994.
- 43 OHBA K, HARA N, SUGIMOTO K, et al. Passivation and depassivation behavior of carbon steel in water in contact with bentonite [J]. *Zairyo-to-Kankyo*, 1996, 45 (4): 209-216.
- 44 彭立园, 谢敬礼, 曹胜飞, 等. 日本高放废物处置容器腐蚀厚度设计研究进展[J]. *中国腐蚀与防护学报*, 2024: 1-20.
- PENG Liyuan, XIE Jingli, CAO Shengfei, et al. Review on the corrosion thickness design of the canister for high-level radioactive waste in Japan [J]. *Journal of Chinese Society for Corrosion and Protection*, 2024: 1-20 (in Chinese).
- 45 田霄, 王驹, 李亚伟, 等. 北山花岗岩裂隙围岩蚀变矿物学及地球化学特征[J]. *世界核地质科学*, 2023, 40 (增刊1): 497-503.
- TIAN Xiao, WANG Ju, LI Yawei, et al. Mineralogy and geochemical characteristics of rock alteration surrounding fractures in Beishan granite [J]. *World Nuclear Geoscience*, 2023, 40 (Sup.1): 497-503 (in Chinese).
- 46 周志超, 赵敬波, 季瑞利, 等. 高放废物地质处置新场候选场址水文地质特征研究[J]. *世界核地质科学*, 2023, 40 (4): 879-888.
- ZHOU Zhichao, ZHAO Jingbo, JI Ruili, et al. Hydrogeological characteristics of Xinchang candidate site for geological disposal of high-level radioactive waste [J]. *World Nuclear Geoscience*, 2023, 40 (4): 879-888 (in Chinese).
- 47 孙健, 陈亮, 马洪素, 等. 完整极硬岩TBM施工辅助破岩方法研究现状及展望[J]. *世界核地质科学*, 2024, 41 (1): 141-163.
- SUN Jian, CHEN Liang, MA Hongsu, et al. Research status and prospect of assisting rock breaking methods for TBM tunneling in extremely hard rocks [J]. *World Nuclear Geoscience*, 2024, 41 (1): 141-163 (in Chinese).
- 48 张海洋, 马利科, 陈亮. 放射性废物治理公众宣传方法初探[J]. *世界核地质科学*, 2023, 40 (增刊1): 660-665.
- ZHANG Haiyang, MA Like, CHEN Liang. Preliminary investigation of method of publicity for radioactive waste management [J]. *World Nuclear Geoscience*, 2023, 40 (Sup.1): 660-665 (in Chinese).
- 49 TAKAJI K, SUGINO H, OKUTU K, et al. Evaluation of long-term mechanical stability of near-fields: JNC TN8400 99-043 [J]. Japan Nuclear Cycle Development Institute, 1999.
- 50 TAKAJI K, ANIGUCHI W. Dynamic mechanical properties of buffer material: JNC TN8400 99-042 [R]. Tokyo: Japan Nuclear Cycle Development Institute, 1999.
- 51 TAKAJI K, SUGINO H, OKUTU K, et al. Evaluation of long-term mechanical stability of near-field: JNC TN8400 99-043 [R]. Japan Nuclear Cycle Develop-

- ment Institute, 1999.
- 52 TAKAJI K, SUZUKI H. Static mechanical properties of buffer material: JNC TN8400 99-041 [R]. Tokyo: Japan Nuclear Cycle Development Institute, 1999.
- 53 SUDA K, MISRA S, MOTOHASHI K. Corrosion products of reinforcing bars embedded in concrete [J]. *Corrosion Science*, 1993, 35 (5/8): 1543-1549.
- 54 张鹏. 高含量铝基碳化硼中子吸收材料的制备及性能研究[D]. 太原: 太原理工大学, 2014.
- ZHANG Peng. Preparation and properties of high content B₄C/Al neutron absorber [D]. Taiyuan: Taiyuan University of Technology, 2014 (in Chinese).
- 55 李奎江, 伦佳琪, 孙瑞瑞, 等. 基于 Al-B₄C 中子吸收材料的 Monte Carlo 模拟 [J]. *河南科技*, 2023, 42 (20): 84-87.
- LI Kuijiang, LUN Jiaqi, SUN Ruirui, et al. Monte carlo simulation based on Al-B₄C neutron absorbing materials [J]. *Henan Science and Technology*, 2023, 42 (20): 84-87 (in Chinese).
- 56 李刚, 简敏, 王美玲, 等. 反应堆乏燃料贮运用中子吸收材料的研究进展 [J]. *材料导报*, 2011, 25 (13): 110-113.
- LI Gang, JIAN Min, WANG Meiling, et al. Research Progress in neutron absorbers materials for reactor spent fuel storage and transportation applications [J]. *Materials Reports*, 2011, 25 (13): 110-113 (in Chinese).
- 57 GANAPOL B D, WEMPLE C A, JAHSHAN S N. An MCNP benchmark for two adjacent half-spaces [J]. *Transactions of the American Nuclear Society*, 1994, 70: 150-152.
- 58 WEMPLE C A, JAHSHAN S N, GANAPOL B D. An analytical two-dimensional neutron transport benchmark of the MCNP code [J]. *Transactions of the American Nuclear Society*, 1992a, 65: 238-240.
- 59 WEMPLE C A, JAHSHAN S N, GANAPOL B D. Analytical infinite medium neutron spectrum benchmark of the MCNP code [J]. *Transactions of the American Nuclear Society*, 1992b, 66: 281-283.
- 60 ESTES G P, URBAN W T, HEATH A R. Photon shielding calculations for a radiation waste facility benchmark [J]. *Transactions of the American Nuclear Society*, 1985, 50: 477-479.
- 61 LU A H, SCHWARZ R A, SIMONS R L. Benchmark calculations for FFTF Inner radial shield damage rates [C]. *Proceedings of Meeting on new horizons in radiation protection and shielding*, WHC-SA-1429, 1991.
- 62 BROADHEAD B L, PARKS C V. Scale-4 shipping cask shielding applications: CONF-9109217-3 [C]. *Proceedings of meeting on new horizons in radiation protection and shielding*, 1991.
- 63 UEK K, NAKAZAWA M, HATTORL S, et al. Experimental and analytical study for demonstration program on shielding of casks for high-level wastes: NIS-JP-018 [C]. *Proceedings of the 10th international symposium on the packaging and transportation of radioactive materials*, 1992: 692-701.
- 64 BRIESMEISTER J F. MCNP-A general monte carlo N-particle transport code Report LA-12625-M [R]. Los Alamos, Los Alamos National Laboratory, USA., 1993.
- 65 MARSH G P, HARKER A H, TAYLOR K J. Corrosion of carbon steel nuclear waste containers in Marine Sediment [J]. *Corrosion*, 1989, 45 (7): 579-589.
- 66 ISHIKAWA H, HONDA A, TSURUDOME K, et al. Selection of candidate materials for overpack and life prediction of Carbon Steel overpack: PNC TN8410 92130 [R]. 1992.
- 67 MARSH G P, TAYLOR K J. An assessment of carbon steel containers for radioactive waste disposal [J]. *Corrosion Science*, 1988, 28 (3): 289-320.
- 68 TANIGUCHI N, HONDA A, ISHIKAWA H, et al. An assessment of critical condition for the initiation of localized corrosion of candidate materials for overpacks [R]. *PNC Technical Review*, 1995.
- 69 HONMA N, CHIBA T, TANAI K. Trial manufacturing of copper-carbon steel composite overpack: JNC TN8400 99-048, [R]. Tokyo: Japan Nuclear Cycle Development Institute, 1999b.
- 70 PORTER L. Radiation effects in steel [C]. *Materials in Nuclear Applications*, American Society for Testing Materials, 1960, 276: 163-174.