

JAERI-M

5615

高レベル廃液固化体と安全評価

1974年3月

田代 晋吾

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

高レベル廃液固化体と安全評価

日本原子力研究所東海研究所保健物理安全管理部

田代晋吾

(1974年2月12日受理)

使用済核燃料の再処理によって発生する高レベル廃液の処理は、固形化して貯蔵するというのが世界の趨勢である。わが国においても、この問題に対する関心が急速に高まり、その本格的な技術開発が開始されようとしている。

わが国の国情に合致した処理方式を確立するために、固化体の安全評価に関する情報は必要不可欠のものと考えられる。この報告は、その観点から、将来の研究開発に役立てるため、次の項目について文献調査を行ない、まとめたものである。それは高レベル廃液固化の背景、固化体の種類と性質、安全評価、固化体の安全評価各論について述べている。

Solidified Products of High Level Radioactive Wastes  
and the Safety Evaluation

Shingo TASHIRO

Division of Health Physics and Safety, Tokai, JAERI

( Received February 12, 1974 )

It is a recent world trend to solidify the high-level radioactive wastes generated by the fuel reprocessing and store them in solid forms. In Japan also, the concern with this subject has been raised rapidly, and the full-scale development project will start in the near future. In order to establish some specific management system of the wastes, which is suitable to the situation of the nuclear industry, it seems that the safety evaluation of the solidified product is essentially important. This report describes the following issues to contribute the future development of the waste management in the country; the background for the high-level radioactive waste solidification, the types and properties of products, and safety evaluation.

## 目 次

1. ま え が き	1
2. 高レベル廃液固化の背景	3
2.1 高レベル廃液の性質	3
2.2 処理処分技術の開発状況	5
3. 固化プロセスと固化体の種類	7
3.1 固化処理技術	7
3.2 仮焼法と仮焼体	8
3.2.1 ポット仮焼	8
3.2.2 スプレィ仮焼	8
3.2.3 流動層仮焼	8
3.3 固化体の性質	9
3.3.1 仮焼体	9
3.3.2 ガラス固化体	10
3.3.3 セラミック固化体	13
4. 安全評価	15
4.1 概 論	15
4.2 処理時の安全評価	17
4.3 処分時の安全評価	17
5. 安全性試験各論	19
5.1 浸 出 性	19
5.1.1 浸出性と安全評価	19
5.1.2 浸出機構と測定法	21
5.1.3 各固化体の浸出性	23
5.2 熱的特性	24
5.2.1 熱的特性と安全評価	24
5.2.2 各固化体の熱的特性	27
5.3 化学的安定性と耐放射線性	27
5.3.1 化学的性質と安全評価	27
5.3.2 試験方法	28
5.4 機械的強度と容器	30
5.4.1 機械的強度	30
5.4.2 容器との両立性	30
5.4.3 そ の 他	30
6. あ と が き	31
6.1 今後に残された問題	31
6.2 原研における研究開発	31
7. 参考文献	34

## 1. ま え が き

使用済核燃料の再処理によって発生する高レベル廃液の処理処分に関して、最近数年間に、重要な報告と会議が行なわれた。1972年6月には、アメリカ、BNWにおいて1966年から実施されていた高レベル廃液処理技術開発の大型プロジェクト(WSEP)の最終報告書<sup>(1)</sup>が出版された。また1972年11月には、ウィーンでIAEA主催の“高レベルおよび $\alpha$ 廃棄物の国際貯蔵地の設立の可能性に関するパネル”<sup>(2)(3)</sup>が開かれ、さらに続いて、パリでOECD主催の“燃料再処理からの放射性廃棄物の管理に関するシンポジウム”<sup>(4)(5)</sup>が開催された。これらは、この問題の解決を目指す各方面に大きな影響を与えている。

わが国においても、1975年の操業開始を目標に、軸・燃事業団再処理工場の建設が進んでおり、1973年7月にまとめられた原子力委員会、環境・安全専門部会の中間報告書<sup>(6)</sup>のなかで、高レベル廃液の処理処分に関する技術開発の促進が述べられ、通産省の核燃料研究委員会でも最近、再処理事業と関連して高レベル廃液処理処分技術の研究開発の必要を述べている。<sup>(10)</sup>また、1973年5月にまとめられた日本原子力産業会議、核分裂生成物等総合対策懇談会報告書<sup>(7)</sup>では、この問題の長期的研究開発に関する提言がなされている。

このような状況のもとに、1973年度から日本原子力研究所においても、高レベル廃液の固化処理および処分について、わが国の国情に即応した研究開発に着手した。それは、安全かつ経済的な固化体を開発し、固化体の安全で確実な運搬、貯蔵および処分のための安全評価を行ない、わが国で発生する高レベル廃液の処理処分に寄与することを目的としている。国情に合致した処理処分の体系を確立するには、固化体の安全評価に関する知識は不可欠であるが、この報告書は、研究開発計画を立案する段階で行なった文献調査のうち、特に固化体の安全評価を中心にまとめたものである。

わが国の原子力発電は今後急速に伸びることが予想され、1985年には六千万kWhの発電能力となり、総電力需要の25%を賄うといわれている。この原子力発電に見合う燃料再処理需要は年間二千百トンであり、これより発生する高レベル廃液は二千四百 $m^3$ となり、10年冷却後でも $6.3 \times 10^8$  Ciの放射能を持つと予想される。この放射能は原子力発電によって発生する放射能の99%以上にあたり、量の大きさ、寿命の長さ、それに潜在的危険性の大きさのために、何らかの形で長期間安全に人間環境から隔離されなければならない。そのためには、長期間(核分裂生成物については数百年、超ウラン元素については数百万年)の貯蔵に耐える形態に変換する必要があり、高レベル廃棄物の管理の体系を確立する必要がある。

アメリカ、イギリス、フランス、ソ連などの原子力先発国では、この目的にそった色々な固化法および技術が開発されている。また、西ドイツ、イタリア、インド、日本などでも、それぞれの国情に合致した処理処分法の開発が進められている。現在までに開発された主な方式を分類すると、最終固化体の形態としては、仮焼体、ガラス質、セラミック質、鉱物など、固化技術(主に仮焼技術)としては、ポット仮焼法、スプレイ仮焼法、流動層仮焼法、薄膜蒸発法、テルミット法など、貯蔵および処分法として、液貯蔵、岩坑貯蔵、工学的施設貯蔵、地中処分などが実施されたり、検討されたりしている。高レベル廃液処理処分法はけっきょくこれら

の方式の組合せによって決められるものと考えられ、廃液の組成などでそれぞれの国の事情は若干異なるが、次の3国の考え方が現在の代表的なものである。すなわち、この数十年間は廃液のままタンク貯蔵し、その後固化処理を考慮するというイギリス、廃液発生後なるべく早い時期に固化して連邦政府の貯蔵所に数百年間貯蔵するというアメリカ、3～5年液貯蔵し、その後ガラス固化して岩塩坑に埋蔵するというドイツである。

わが国においても、このような諸外国の開発成果の上に立って、国情にかなった処理処分法を確立する必要がある。特に人間環境からの隔離が確実かつ安全に行なえるかどうかは重要な問題である。すなわち、高レベル廃液が発生された時点から、そのなかに含まれている放射能の潜在的危険性が無視できるほど小さくなるまでの間、処理時、運搬時、貯蔵・処分時の全時点で、人間環境への影響を考慮して評価しなければならない。このためには、原子力分野のみならず、多くの関連分野の協力なしには達成できないと考えられる。

今日まで、この問題に関して各分野から色々と検討され、多くの優れた総説<sup>(8)~(16)</sup>があり、また多くの会議<sup>(17)~(19)</sup>が開催された。本報告の多くはそれらを参考にしている。

## 2. 高レベル廃液固化の背景

### 2.1 高レベル廃液の性質

使用済核燃料の再処理によって発生する高レベル廃液（高放射性廃液または再処理高レベル廃液とも云う）の処理処分を実施することには多くの問題が関連を持っている。技術的には、原子炉、再処理方式に起因する廃液の性質、処理技術、処分方法などの問題であり、経済的には核燃料サイクル中の位置付けの問題、また安全性については、処理処分全段階にわたる、含有放射能の大きさと寿命の長さ、潜在的危険性の大きさが問題となる。このような問題は、当事者のみでなく、国全体、引いては国際社会にかゝわりを持っており、このことがこの問題を非常に複雑にしている。

第1表 わが国の原子力発電の伸び<sup>(20)</sup>

年	1971	1975	1980	1985	1990
原子力発電規模 (万kW)	132	944	3,200	6,000	10,000
核燃料需要量 (万t SWU/年)	-	0.3	0.5	0.8	1.1
燃料再処理量 (t/年)	-	-	600	1,600	3,300

第2表 動・燃事業団再処理工場発生廃液の推定値<sup>(21)</sup>

	高レベル廃液蒸発装置への供給液				蒸発装置からの濃縮液
	第1サイクル 高レベル廃液	第1サイクル 溶媒洗浄廃液	酸回収工程から の濃縮液	計	
液量 (l/d)	500	420	950	1,870	350
放射能濃度 (Ci/d)	$3.3 \times 10^6$	$2.1 \times 10^3$	$3.6 \times 10^3$	$3.3 \times 10^6$	$3.3 \times 10^6$
液性	3N-HNO <sub>3</sub>	0.5N-NaOH (Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> ) (15%/l含有)	8N-HNO <sub>3</sub>	-	2N-HNO <sub>3</sub>

わが国の原子力発電の伸びは、第1表のように予想されている。<sup>(20)</sup>このような発展に伴って1975年から本格的な燃料再処理が、動・燃事業団東海処理工場で開始されることになっている。<sup>(21)</sup>この工場で発生する高レベル廃液の量は第2表のように予想されている。

一般に、高レベル廃液の性質を決定する因子は、燃料の種類、ウランの濃縮度、照射履歴、燃焼度、冷却期間、再処理方式、廃液の蒸発濃縮率であり、その相違によって多様な高レベル廃液が発生する。しかし、こゝ当分の間の代表的な高レベル廃液は、軽水炉用のジルカロイ被



機燃料の再処理から発生したものであり、その燃焼度は20,000～33,000 MWd/MT、90～180日冷却したのち湿式法（主にピュレックス法）で再処理した第1サイクル溶媒抽出系から発生した廃液を、蒸発濃縮したものである。

軽水炉用の低濃縮ウラン燃料であること、再処理方式がピュレックス法によることは、その数10年は変わらないと考えられているが、<sup>(22)</sup>発生過程の細部の違いによって高レベル廃液の性質は異なってくる。例えば、ウラン燃料1トンあたりの発生量を取っても、動・燃事業団の予想値は500 l/t（第2表参照）をはじめとして、イギリスの32～96 l/t<sup>(23)</sup>から、アメリカの1,250 l/t<sup>(13)</sup>まで数十倍の違いがある。再処理方式の歴史的な発展による高レベル廃液の発生量の変化を示したのが第3表である。また、西ドイツKarlsruheで計算された高レベル廃液の諸性質を第4表に示すが、この値は、処理処分を考えるときの目安として妥当なものと思われる。また、この高レベル廃液に含まれる核分裂生成物とアクチノイド元素の時間変化を第5表に示す。

第3表 アメリカ、AEC使用済ウラン燃料1トンから発生する高レベル廃液の平均量 (l)<sup>(24)</sup>

分類	処理方法と期間	抽 残 液	脱被覆廃液	廃液合計
化学脱被覆法 —アルカリ性 廃液	リン酸ピスマス法 1944～1955			40,000 ～20,000
	レドックス法 1952～1967	1,500	1,500	3,000
	ピュレックス法 1956～			
	アルミ被覆 ジルコニウム被覆	550 950	1,500 2,300	2,050 3,250
改良ピュレックス法	チョップ・リーチ	550		550
	+ 酸性廃液	190		190
	+ U-N	110		110
	最適処理条件	35～40		35～40

第4表 高レベル廃液の諸性質の一例<sup>(25)</sup>

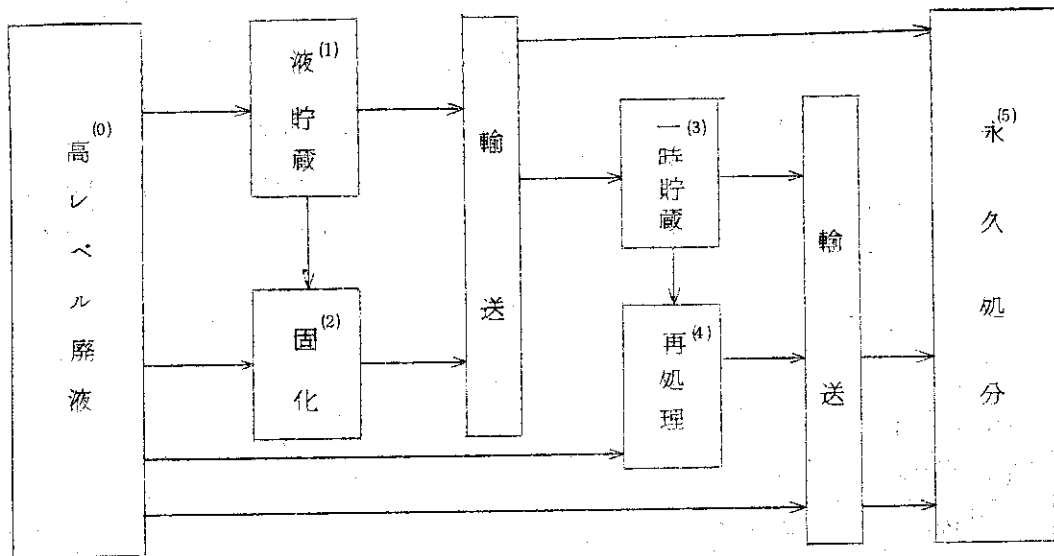
発生量 (l/MTU)	900
含有放射能 (Ci/l)	1,280
含有固形物 (硝酸塩換算) (g/l)	85.8
含有固形物 (酸化物換算) (g/l)	44.9
核分裂生成物	34.1
アクチノイド元素	1.4
非放射性元素	9.4
発熱量 (W/l)	4.4

第5表 再処理高レベル廃液に含まれる放射性核種の時間変化  
(33,000MWD/t 燃焼の軽水炉燃料1トンあたりの量)

	核種	半減期	10年後	100年後	1000年後
核分裂生成物	$^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$	28.8年	$1.2 \times 10^5 \text{Ci}$	$1.32 \times 10^4 \text{Ci}$	$3 \times 10^{-6} \text{Ci}$
	$^{99}\text{Tc}$	$2.1 \times 10^5$ 年	14	14	14
	$^{106}\text{Ru} - ^{106}\text{Rh}$	1年	$1.1 \times 10^3$	0	0
	$^{125}\text{Sb} - ^{125\text{m}}\text{Te}$	2.7年	$9.8 \times 10^2$	0	0
	$^{134}\text{Cs}$	2.1年	$8.3 \times 10^5$	0	0
	$^{137}\text{Cs} - ^{137\text{m}}\text{Ba}$	30年	$1.65 \times 10^5$	$2.1 \times 10^4$	$1.9 \times 10^{-6} \text{Ci}$
	$^{144}\text{Ce} - ^{144}\text{Pr}$	285日	$3 \times 10^2$	0	0
	$^{147}\text{Pm}$	2.6年	$7.6 \times 10^3$	$3.6 \times 10^{-7}$	0
	$^{151}\text{Sm}$	90年	$1.1 \times 10^3$	$5.2 \times 10^2$	0.4
	$^{155}\text{Eu}$	1.8年	$1.6 \times 10^2$	0	0
小計			$\approx 3 \times 10^5 \text{Ci}$	$3.5 \times 10^4 \text{Ci}$	15Ci
アクチニド元素	$^{237}\text{Np}$	$2.1 \times 10^6$ 年	760g	770g	810g
	$^{238}\text{Pu}$	89年	6	3	$7 \times 10^{-3}$
	$^{239}\text{Pu}$	$2.4 \times 10^4$ 年	27	28	34
	$^{240}\text{Pu}$	$6.8 \times 10^3$ 年	20	40	37
	$^{241}\text{Pu}$	13年	3	$2.5 \times 10^{-2}$	0
	$^{242}\text{Pu}$	$3.8 \times 10^5$ 年	1.8	1.8	1.8
	$^{241}\text{Am}$	458年	54	50	13
	$^{243}\text{Am}$	$7.6 \times 10^3$ 年	90	90	83
	$^{244}\text{Cm}$	18.1年	21	0.7	0
小計		983g ( $\approx 1 \times 10^4 \text{Ci}$ )	983g ( $\approx 2.2 \times 10^3 \text{Ci}$ )	979g ( $\approx 6 \times 10^2 \text{Ci}$ )	

## 2.2 処理処分技術の開発状況

大きな潜在的危険性を持つ高レベル廃液を長期間にわたって安全なように処理処分するために、各国で多くの方法が考えられている。その方法を、廃棄物の形態によって分類すれば、液体のままか、仮焼体、ガラスなどの固化体によるかの2通りであり、隔離の方法は、常に人間の検査監視を必要とする貯蔵か、回収不可能な状態で放置する処分か、の2通りである。さらに貯蔵および処分をどのような地域で行なうかによって、種々の処理処分法が可能である。



第1図 高レベル廃液処理処分スキーム

現在、アメリカで考えられている最も有力な方法のひとつは、<sup>(27)</sup>再処理工場より発生した高レベル廃液は、長期間のタンク貯蔵なしに、流動層によって仮焼体とし、容器詰めして連邦政府で用意した工学的貯蔵施設へ運び込み、 $\beta$ 崩壊による放射能の減衰を待ち、数百年後にさらに再処理減容して永久処分しようとするシステムである。これと対照的なイギリスの方式は、<sup>(23)</sup>現在すでに発生した廃液はすべてタンク貯蔵しており、この方法の技術は確かなものなので、2,000年頃まではこの方法のみでも運用可能であるとしている。西ドイツの場合は、再処理工場自体が未だ試験工場の段階であるが、高レベル廃液は3~5年間タンク貯蔵して放射能の減衰を待ったのち、ガラス固化して岩塩坑に貯蔵処分することを考えている。<sup>(29)</sup>

それらの方式を第1図のスキームに対応して示せば、アメリカは $\boxed{0} \rightarrow \boxed{2} \rightarrow \boxed{3}$ となり $\boxed{4} \rightarrow \boxed{5}$ をつぎたすかどうかを考慮中、イギリスは $\boxed{0} \rightarrow \boxed{1}$ 、ドイツは $\boxed{0} \rightarrow \boxed{1} \rightarrow \boxed{2} \rightarrow \boxed{5}$ ということになる。この他に廃液を直接地中処分する $\boxed{0} \rightarrow \boxed{1} \rightarrow \boxed{5}$ の方法、<sup>(28)</sup>一部分離して核変換をはかるいわゆる消滅処理の $\boxed{0} \rightarrow \boxed{4} \rightarrow \boxed{5}$ <sup>(30)</sup>なども提案されている。

このように、各国の国情を反映してそれぞれ処理処分法は異なっているが、タンク貯蔵のみで運用可能とし、すでに $560 \text{ m}^3$  ( $10^7 \text{ Ci}$ )の高レベル廃液を貯蔵しているイギリスでも、すでに固化技術の開発は行なっており、タンク貯蔵と固化処理処分の比較検討を行なっている。固化することは、放射性物質の不働化、不溶化、堅牢化、減容などによって貯蔵時、運搬時の安全性は数段高くなり、タンク貯蔵時には問題となる水素ガスの発生が、固化した後では無視できるなどの利点を考慮すれば、固化して貯蔵するというのが世界的趨勢と思われる。

### 3. 固化プロセスと固化体の種類

#### 3.1 固化処理技術

固化体の性質と、その長期間の貯蔵・処分中に起る性質の変化は、一時貯蔵、輸送、長期間貯蔵・処分などの方法と計画に影響する。このことは、各国の国内事情に合った処理処分法を計画する際に、その方法に最も適した固化体を選ぶ必要があることを意味している。

現在、各国で開発した、または開発中の主な処理法について、固化体の種類と固化処理（主に乾燥工程）の方法を対比させて進捗状況をまとめたのが第6表である。

第6表 高レベル廃液固化処理技術の開発状況

主な 処理方式	固化体の 種類	仮焼体	リン酸ガラス	ホウケイ酸 ガラス	セラミック
ポット		アメリカ	アメリカ イギリス 日本 イタリア ユーロケミック インド	フランス アメリカ イギリス カナダ イタリア 西ドイツ インド 日本	アメリカ ソ連
スプレイ		アメリカ	アメリカ	西ドイツ アメリカ	アメリカ
流動層		アメリカ	-	アメリカ ソ連	-
テルミット		-	-	-	西ドイツ アメリカ ソ連

□ : 実用規模プラント

— : ホットパイロットプラント

その他 : 実験室および小規模試験

これらのなかで有力な組合せとしては、アメリカで開発された流動層仮焼を基本としたホウケイ酸ガラス固化、イギリスのポット仮焼・ホウケイ酸ガラス固化、フランスで開発されたロータリ仮焼・アルミノホウケイ酸ガラス固化である。これらの開発を概観すると、アメリカはどちらと云えば仮焼プロセスの技術開発に重点が置かれ、ヨーロッパでは固化マトリックスの改良に開発の重点が置かれて来たようである。

## 3.2 仮焼法と仮焼体

### 3.2.1 ポット仮焼

アメリカ、ORNLにおいて開発された方式で、<sup>(31)</sup>高レベル廃液の蒸発、乾固、仮焼および仮焼体の容器を同一のポットで行なう方式であり、乾燥後は850~900°Cに加熱して仮焼する。その後、冷却して密封をし、貯蔵するというもので、この時の仮焼体は多孔質生成物となっている。

このポット仮焼によって生成された仮焼体は、ポットの内壁に付着してケーキ状になっているが、ほとんどの塩は酸化物になっている。その時の減容比は1/8~10である。

この方式の利点は、工程が単純なことで、広範囲の種類の高レベル廃液に適している点である。欠点としてはステンレス鋼のポットが必要であり、バッチ式で行なわれるので複数のポットが必要などである。<sup>(32)</sup>

また、この方式によれば、仮焼体にするだけではなくリン酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、さらにセラミックまですることが可能であり、WSEP計画においても、ホウケイ酸ガラスにするために、固化素材を加えて950~1015°Cに加熱し、ガラス化する方式(Rising-level glass process)が開発されている。<sup>(32)</sup>イギリスのFINGAL,<sup>(33)</sup>フランスのPIVER計画<sup>(34)</sup>では基本的にはポット式の処理工程を採用し、最終的にはガラス固化とする方式を開発している。

### 3.2.2 スプレイ仮焼

加熱された塔中にノズルを通して溶液を噴霧し、溶媒を気化させて乾燥し、溶質を粉体として分離するというスプレイ乾燥器を利用した高レベル廃液の固化は、アメリカ Battelle-Northwest で開発され、<sup>(35)</sup>WSEP計画でホット試験が行われた。<sup>(36)</sup>

このスプレイ仮焼方式の利点は、乾燥処理に要する時間が短かく、連続操作が可能であること、比較的広範な組成の廃液に適応すること、処理中および処理後に添加物の混合が容易である、などである。一方、処理系が複雑で、スプレイ技術とか供給廃液のコントロールなどに問題がある。

この方法による仮焼体は粉体として取出されるわけであるが、西ドイツ、Karlsruhe 研究所の資料によると、30~45 $\mu$ 径であり、2.5 wt%の水を含み、約70%の硝酸塩は分解している。<sup>(37)</sup>

この生成物は、いわゆる仮焼体であるが、現在のところスプレイ仮焼による仮焼体をそのまま貯蔵するという計画は考えられておらず、アメリカのWSEP計画ではSpray-in-melt法としてガラス固化素材を加えてガラス質にする方法を開発中であり、<sup>(37)</sup>また Karlsruhe 研究所でも仮焼はスプレイ法のパイロットプラントを持っているが、シリカ、アルミナなどを添加してアルミノホウケイ酸ガラスにする方法を開発中である。<sup>(38)</sup>

### 3.2.3 流動層仮焼

流動層による乾燥法を高レベル廃液の処理に、最初に応用して開発したのはアメリカのANLであり、<sup>(39)</sup>その後 Idaho Nuclear Corp. で発展させ、すでに1963年からIOPPとして300 $\ell$ /hrの処理能力を持ち、実際の高レベル廃液の処理をこの方法で実施している。<sup>(40)</sup>

この方法の特長は、比較的大容量の連続工程の処理が可能であり、低温処理のために処理に

必要な熱量が少なくすむし、また減容比が大きく、生成物を気送手段で輸送できるという点である。ただ、多少複雑な処理系になる欠点はある。

また、この方法によって生成された粉体は、シリカとかアルミナを核として、その周囲に廃棄物が凝固した形で得られる。この粉体は比重が小さく、取扱いが比較的簡単である一方、浸出性が非常に高く、熱伝導率が低いので、そのままの仮焼体で貯蔵するには、より厳重な監視下で行なう必要がある。

前述のアメリカ NRTS ではすでに  $9 \times 10^6 \ell$  の高レベル廃液 (3~11 Ci/ $\ell$ ) を処理して、鉄製の容器に入れて貯蔵している<sup>(41)</sup>、商業再処理プラントでも、最近の GE 工場でも、さらに AGNS、NEI 工場でもこの流動層による仮焼処理をするようである<sup>(42)</sup>。これらの仮焼体は、廃液発生後 10 年以内に固化して、アメリカ連邦政府の貯蔵所に運び込むという連邦政府の考え方をうけて、この仮焼体をガラス固化、セラミック固化も行なえるように配慮している<sup>(43)</sup>。

流動層仮焼と熔融ガラス固化の組合せは、すでに Allied Chemical Corp. とか Battelle 研究所などで、流動層仮焼と連続熔融系のパイロットプラントを作り検討している<sup>(44)</sup>。

その他、歴史的にはボールミル<sup>(45)</sup>、スクリュートルータ<sup>(46)</sup>などによる仮焼法もあり、最近、回転乾燥器 (薄膜蒸発器)<sup>(47)</sup>などを用いた仮焼法も、フランス、ドイツで開発されつつある。

### 3.3 固化体の性質

#### 3.3.1 仮焼体

仮焼体をいわゆる高レベル廃液固化体として見るかどうかは議論があるところであり、ガラスとかセラミックなどの固化マトリックスと同列に議論できないかもしれない。しかし、最終処理形態であれ、一時貯蔵の形態であれ、仮焼体の形態で運搬、貯蔵を行なう考えがアメリカを中心にあるので、仮焼体の性質は処理処分法を選択するには必要な情報である。

ポット法、スプレイ法、流動層法などによって仮焼された高レベル廃液中の放射性核種は、硝酸塩で残っているものもあるが、ほとんど酸化物になっている。例えば  $^{90}\text{Sr}$  は廃液中では  $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  であり、蒸発乾固されるにつれて  $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$  となり、さらに  $\text{Sr}(\text{OH})_2$  となり、水に対して 0.8 の溶解度を持っている。また、 $^{144}\text{Ce}$  は  $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  から  $100^\circ\text{C}$  附近で脱水し、 $200^\circ\text{C}$  で分解して  $\text{Ce}_2\text{O}_3$ 、さらに  $\text{Ce}_2\text{O}_2$  となると考えられ、これは難溶性である。

このように仮焼体中の放射性物質は、ガラス質化されたものやセラミック化されたものと異なり、各化合物形の性質を保持していると考えられる。この理由から、浸出率は大きく、また熱伝導率は小さい。これは固形化物の性質としては好ましくない結果となる。ORNL の資料によると浸出率が  $5 \times 10^{-1} \text{g}/\text{cm}^2/\text{day}$ 、熱伝導率が  $0.62 \sim 1.03 \times 10^{-3} \text{cal}/\text{sec}/\text{cm}/^\circ\text{C}$ 、密度が  $1.0 \sim 1.7 \text{g}/\text{cm}^3$  となっている<sup>(48)</sup>。

高レベル廃液を固化する工程において、現在一般的に採用されている方式では、仮焼体がプロセスの中間体として取扱われる場合が多く、仮焼体自体の性質よりも処理工程における安全性、経済性などが重要な問題となっている。

仮焼体自身の性質は、それがどのような工程で生成されようが、大きな相違はなく、結局、

焼成温度とその温度によって得られた廃液中の各成分の化学形の性質に依存すると思われる。この点では、今後さらに有効な添加剤によって安定な形態に変換できるような研究が進められる必要がある。

第7表 仮焼体の性質 <sup>(1)</sup> <sup>(48)</sup> <sup>(2)</sup>

性質 仮焼法	形状	特徴	FP含有率 (%)	密度 (g/cm <sup>3</sup> )	熱伝導率 (W/m <sup>2</sup> °C)	浸出率 (g/cm <sup>2</sup> ·d)	NO <sub>3</sub> の残 存率 <sup>(4)</sup>	最高処理 温度(°C)
ポット	ケーキ	うろこ状	15~80	1.2~1.4	0.3~0.5	10 <sup>-1</sup> ~10 <sup>-2</sup>	≤ 0.05	900
スプレイ	極微粉	30~45 <sup>(4)</sup>	10~30	-	-	1.0~10 <sup>-1</sup>	≈ 20	450
スプレイ 溶解	ブロック状	結晶体	~ 25	2.7~3.5	1.0~2.0	10 <sup>-3</sup> ~10 <sup>-5</sup>	≤ 0.005	1,200
流動層	粉末	500 <sup>(4)</sup>	5~50	1.0~1.7	0.2~0.5	1.0~10 <sup>-1</sup>	≤ 4.0	600

### 3.3.2 ガラス固化体

ガラスは非結晶性で、一般に高熱に耐え、化学的耐久性がよく、風化抵抗が大きく、硬くて金属のように重くないという性質を持ち、溶解、成形が困難でなく、化学的に安定で物理的性質がよく、さらに原料も入手しやすく、安価なものを得ることができる。

ガラス状になる無機物には、リン化合物 (P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>)、ケイ素化合物 (SiO<sub>2</sub>)、ホウ素化合物 (B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)、ヒ素化合物 (As<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)、ゲルマニウム化合物 (GeO<sub>2</sub>) などがあり、これらはガラス形成酸化物と呼ばれ、ガラス組成中に必ず含まなければならない成分である。そのほかに、それだけではガラスにならないが、ガラス形成酸化物と化学結合する酸化物があり、アルカリ金属、アルカリ土類金属がこれに属し、Na<sub>2</sub>O、K<sub>2</sub>O、CaO が含まれ、さらに色々な酸化物 PbO、ZnO、BaO、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> などが含まれ、これらは総称して修飾酸化物と呼ばれている<sup>(49)</sup>。これらのガラス成分の配合比によって種々様々のガラスが作られ、色々な名称で呼ばれており、その性質も多種多様である。

高レベル廃液を固形化する目的で、ガラスを利用した研究は、1950年代からカナダの J.M.White<sup>(49)</sup>、アメリカの R. Eliassen<sup>(51)</sup> らによって始められ、ORNL<sup>(52)</sup>、BNL<sup>(53)</sup>、Harwell<sup>(54)</sup>、フランス<sup>(54)</sup>、などで発展し、現在、Hanford<sup>(55)</sup>、Marcoule<sup>(56)</sup>、Karlsruhe<sup>(57)</sup>、HMI<sup>(58)</sup> などで盛んに行なわれている。第8表は、これまでに開発された各国の高レベル廃液固化用ガラスマトリックスの主なものをまとめたものである。開発の初期では、アメリカでリン酸ガラス系が、カナダ、ヨーロッパでホウケイ酸ガラス系が盛んに開発されたが、ホウケイ酸ガラス系も、さらにアルミナなどを混合したアルミノホウケイ酸ガラスの開発がフランスを中心に盛んになり、現在では、リン酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、アルミノホウケイ酸ガラスが主なマトリックスであるが、その区別は必ずしも明確でなく、リン酸とケイ酸を混合したものも試験されたり、ホウケイ酸ガラスに種々の添加剤を加えて、より秀れたマトリックスにする研究や、そのような成分を含んでいる鉱物を原料としてガラス固化する研究なども進んでいる<sup>(59)</sup>。

これらのガラスは、ガラス形成酸化物の種類によって、リン酸を主体としたリン酸ガラス、ケイ酸とホウ素酸化物を主体としたホウケイ酸ガラスに大別できる。

第8表 主な高レベル廃液固化用ガラスマトリックス

分類	ガラスの種類	主添加素材	固化体の主成分	開発機関	開発計画名
リン酸ガラス	リン酸	-	$P_2O_5, Al_2O_3, Fe_2O_3, Na_2O$	BNL (米)	
	リン酸	$H_3PO_3, NaOH, Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$	-	ORNL (米)	
	リン酸	$Ca(PO_3)_2F, Ba(OH)_2, PbO, Ca(OH)_2$	-	BNW (米)	WSEF
	アルミノリン酸	-	-	ユーロケミック	LOTES
	ケイリン酸	-	$SiO_2, Al_2O_3, B_2O_3, MoO_3, Na_2O, P_2O_5$	CEA (仏)	
	リン酸	-	$P_2O_5, Na_2O, Li_2O$	CNEN (伊)	ESTER
	アルミノホウケイリン酸	-	$SiO_2, Al_2O_3, B_2O_3, Na_2O, P_2O_5$	CEA (仏)	PIVEL
	ホウケイ酸	Nepheline Syenite, $Ca(OH)_2$	$SiO_2, Al_2O_3, Na_2O, K_2O, CaO$	Chalk River (加)	
	ホウケイ酸	$SiO_2, CaSO_4, Al_2(SO_4)_3, Na_2SO_4, \dots$	$SiO_2, CaO, Na_2O, Al_2O_3, B_2O_3, MgO, \dots$	DAEC (デ)	
	ホウケイ酸	$SiO_2, Na_2B_4O_7$	$SiO_2, Na_2O, B_2O_3$	Harwell (英)	FINGAL
ホウケイ酸ガラス	アルミノホウケイ酸	-	$SiO_2, Na_2O, B_2O_3, Al_2O_3, MgO$	CEA (仏)	PIVEL
	アルミノホウケイ酸	Filtrolit, $Na_2CO_3, MoO_3, H_2RO_3$	$SiO_2, Na_2O, TiO_2, Al_2O_3, B_2O_3$	GfK (独)	VERA
	黒鉛ホウケイ酸	-	$SiO_2, ZnO, B_2O_3, Na_2O, K_2O, \dots$	BNW (米)	WSEF



第9表 リン酸ガラスとホウケイ酸ガラスの性質比較

(1) イタリア, CNEN<sup>(6)</sup>

ガラスの種類	主成分	熔融温度 (°C)	密度 (g/cm <sup>3</sup> )	減容比*	揮発損失 (%)	固化体の浸出率 (g/cm <sup>2</sup> ·d)
リン酸	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> : 55, PbO : 14, Na <sub>2</sub> O : 12, FP oxide : 8.3	650 ~ 350	3.40	243	Ru : 0.7, Fe : 1.0 Cs : 1.5	10 <sup>-5</sup>
ホウケイ酸	SiO <sub>2</sub> : 53, Na <sub>2</sub> B <sub>4</sub> O <sub>7</sub> : 14, FP oxide : 16.3	650 ~ 1,050	3.10	205	Ru : 0.12, Fe : 0.13, Cs : -	10 <sup>-4</sup> ~ 10 <sup>-7</sup>

(2) アメリカ, BNW<sup>(1)</sup>

ガラスの種類	主成分	熔融温度 (°C)	密度 (g/cm <sup>3</sup> )	最高FP含有率(%)	熱伝導率 (W/m °C)	浸出率 (g/cm <sup>2</sup> ·d)
リン酸	PO <sub>3</sub> : 50, Na : 17, Fe + Al : 17, FP : 16	1,150	2.7 ~ 3.0	25	0.8 ~ 1.2	10 <sup>-4</sup> ~ 10 <sup>-6</sup>
ホウケイ酸	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : 21, SiO <sub>2</sub> : 17, Na <sub>2</sub> O : 13, FP : 47	950	3.0 ~ 3.5	50	1.0 ~ 1.4	10 <sup>-4</sup> ~ 10 <sup>-5</sup>

(3) ドイツ, GfK<sup>(6)</sup>

ガラスの種類	主成分	熔融温度 (°C)	密度 (g/cm <sup>3</sup> )	軟化度 (°C)	耐水性 (mg/g)	
					SiO <sub>2</sub>	Na <sub>2</sub> O
ホウケイ酸	SiO <sub>2</sub> : 42, TiO <sub>2</sub> : 8, Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : 2, B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : 8, CaO : 4, Na <sub>2</sub> O : 16, FP : 20	1,200	2.77	760	0.12	0.27
ホウケイ酸	SiO <sub>2</sub> : 44.0, TiO <sub>2</sub> : 8.1, Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : 5.4, B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : 7.3, Na <sub>2</sub> O : 10.8, Li <sub>2</sub> O : 5.4, FP : 19.0	1,200	2.59	641	0.21	0.34

\* 非濃縮高レベル廃液からの計算値, 通常は濃縮高レベル廃液から計算し, ホウケイ酸ガラス固化で10ぐらいである。

第9表に、リン酸ガラスとホウケイ酸ガラスの性質を比較するために、アメリカのWESP計画とイタリアのESTER計画、それにドイツのVERA計画中のアルミノホウケイ酸ガラスの測定結果をまとめた。

処分時の安全性という観点からは、ホウケイ酸ガラス、特にアルミナを加えたアルミノホウケイ酸系のガラスが明らかに優れた性質を持っている。ガラスの諸性質の劣化の原因となる失透現象は、リン酸ガラスの方が発生し易く、それが浸出性の増加をもたらすことが分っている<sup>(62)</sup>。また、容器の腐食もリン酸ガラスが大きいとされ、最近の開発は、アルミノホウケイ酸を含めたホウケイ酸ガラスの研究がやゝ盛んなようである。ただ、リン酸ガラスの方が、アルミノホウケイ酸ガラスより低温で溶融処理が可能であり、放射性核種の揮発を低く押えられるという利点があることから、完全には放棄されていない。

### 3.3.3 セラミック固化体

セラミックという言葉を広義に用いたときは、いわゆる窯業製品全般を指すが、狭義で使用したときは、ガラス質と区別して結晶体を含んでいるものを指す。しかし、その境界は必ずしも厳密ではないようである。ここでは、狭義の意味で使用し、放射性廃液に粘土とか鋳土を混合し、それを熱してスラグ、またはそれを焼結してレンガ状としたものをセラミック固化体と呼ぶことにする。

鋳物を利用して高レベル廃液を処理しようという研究は、1950年代から1960年代にかけてアメリカを中心に精力的に行なわれた。例えば、R.G. Thomas<sup>(63)</sup>らによるセラミックスポンジ化、J.F. Honstead<sup>(64)</sup>らによる mineral bed process、D.G. Jacobs<sup>(64)</sup>らによるクリノプロチル石、パーミキュライト、ベントナイトへの放射性セシウム、ストロンチウムのイオン交換の研究<sup>(65)</sup>、L.P. Hatch<sup>(66)</sup>らによるモンモリロナイトへのFPの吸着、セラミック化<sup>(66)</sup>などがあり、<sup>(67)</sup>その他人工長石、人工雲母、green sandなどの利用も研究された。

この研究は最近でも、いわゆる clay reaction process<sup>(68)</sup>として進められており、玄武岩溶融法、Thermalit法などと呼ばれている。

この方法によって得られる固体化の性質は、仮焼体に類似していると考えられ固化体としては、今後さらに開発される必要があるが、CsとかSrを固化素材に吸着させ、高温処理時の揮発を減少させるという利点がある。

一方、Fe, Mn, Al, Siなどの酸化還元反応による発熱を利用してセラミック固化体にする、いわゆるテルミット法<sup>(69)(70)</sup>が開発された。<sup>(71)</sup>この方法は、さらにHanford<sup>(71)</sup>, Karlsruhe<sup>(72)</sup>において開発が進められている。例えば、23% FP酸化物、15.5% SiO<sub>2</sub>, 21.5% Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 21.5% MnO<sub>2</sub>を混合、発火させ、MnO<sub>2</sub>とAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の反応熱によって2,000°C以上に加熱して、セラミック質とするものである。この固化体は、ガラス固化体に比べて浸出性で10倍、熱伝導性でも2倍ほど優れているといわれている。<sup>(61)</sup>

ただ、この方法の問題点は、高熱に耐える、るつぼ、装置の材質、放射性核種の揮発の防止などであるが、今後さらにパイロットプラントで試験され開発される必要がある。

これら西欧における研究以外に、東欧においてもセラミック固化には関心が高く、チェコのG. Sachse<sup>(73)</sup>らが玄武岩固化の研究を行なっているし、最近のソ連の発表では、NaF, AlF<sub>3</sub>, CaF<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>などと焼結して氷晶石質にし、良い結果を得ているようである。<sup>(74)</sup>

焼結法、テルミット法いずれにしてもセラミック固化は今後の開発の発展によってはガラス固化に換る有力な高レベル廃液処理法となる可能性がある。<sup>(73)</sup>

以上のように高レベル廃液処理のために多くの固化体が開発されているが、第10表はその主なものをまとめたものである。

第10表 高レベル廃液固化体の種類と性状<sup>(76)</sup>

処 理 法	固化体の形態、	浸 出 率 ( $\text{g}/\text{cm}^2 \cdot \text{d}$ )	溶 解 度 ( $\text{g}/100\text{ml}$ )
塩化セシウム	塩	$> 10$	186
ITS (Hanford)	塩ケーキ	$> 1$	$\sim 30 \sim 50$
ポット仮焼	仮焼体	$5 \times 10^{-1}$	10~20
流動層	粒 体	$5 \times 10^{-1}$	10~20
スプレイ溶融	セラミックまたはガラス	$1 \times 10^{-4}$	$< 1$
リン酸ガラス (ポット溶融)	リン酸ガラス	$1 \times 10^{-4}$ (600°C 貯蔵) $\sim 5 \times 10^{-6}$	$< 1$
FINGAL その他 (ポット溶融)	ホウケイ酸ガラス	$5 \times 10^{-6}$	難 溶 性
PIVER (ポット溶融)	ケイ酸, ホウ酸, リン酸 モリブデン酸ガラス	$5 \times 10^{-6}$	"
カナダ (ポット溶融)	Nepheline-Syenite ガラス	$5 \times 10^{-7}$	"
チェコまたはHanford (ポット溶融)	玄武岩溶融	$1 \times 10^{-6}$ $\sim 1 \times 10^{-7}$	"
氷 晶 石	フッ化物の焼結体	$1 \times 10^{-4}$ $\sim 1 \times 10^{-6}$	"
セラミック焼結	アルミノケイ酸塩	$5 \times 10^{-7}$	"
テルミット	フェロケイ酸塩	$5 \times 10^{-7}$	"
STOPPER	結晶, アルミノケイ酸塩	$\sim 5 \times 10^{-8}$	"
セシウム鉍	"	$2.9 \times 10^{-8}$	"
灰 長 石	"	$\sim 5 \times 10^{-8}$	"
ジルコン	結晶, ケイ酸塩	$< 1 \times 10^{-8}$	"

## 4. 安全評価

### 4.1 概論

原子炉において発生する放射性物質のうち、98.02%が崩壊消滅し、0.003%が $^{85}\text{Kr}$ のような気体廃棄物、1.98%が $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ などのように使用済燃料再処理工場から発生する高レベル廃液中に含まれることになる。

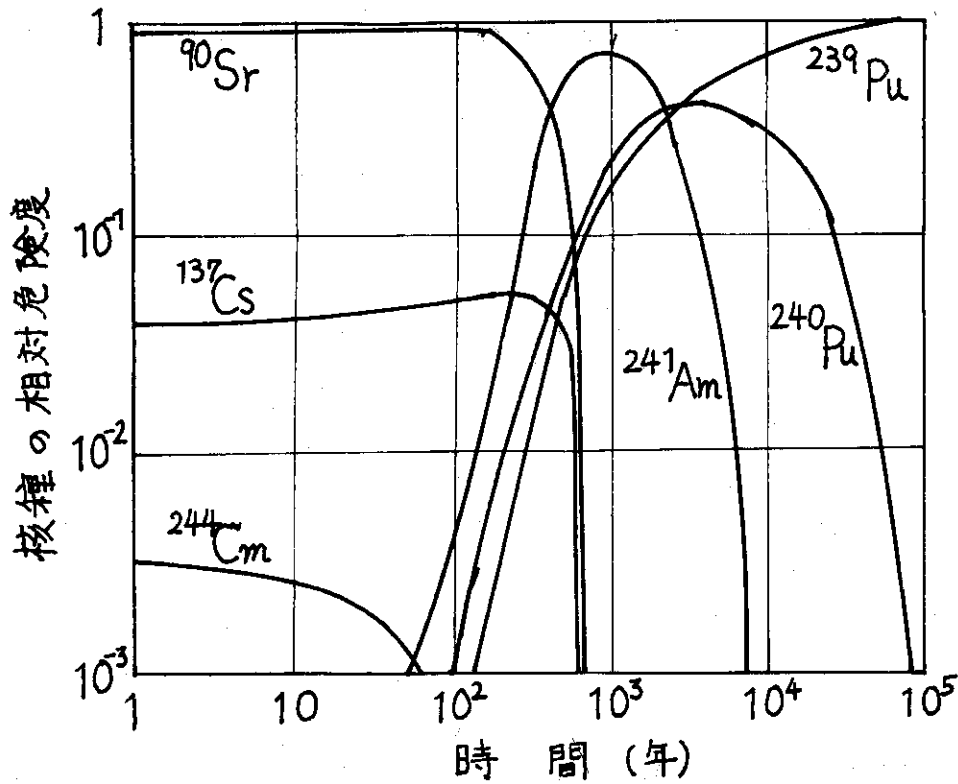
高レベル廃液中の放射能濃度、化学組成は、燃料の種類、 $^{235}\text{U}$ の濃縮度、照射履歴、燃焼度、冷却期間、再処理方式、廃液の濃縮率などによって大きく違ってくる(第2.1章参照)。

33,000 MWd/tの使用済軽水炉燃料に含まれるFPの比放射能は、90日冷却で約175 Ci/g、150日で125 Ci/gである。また、一般的なデュレックス法による再処理によって排出され、数年冷却した高レベル廃液(いわゆる1 WW)の放射能濃度は100~1,000 Ci/l、全固形成分は10~100 g/lというのが普通である。

この廃液に含まれる放射性核種をその寿命から分けると、前述の短時間(日の単位)で減衰してしまふ核種( $^{99}\text{Mo}$ など)、中程度、すなわち年の単位で減衰する主に $\beta$ 崩壊核種( $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ など)、それに超長寿命(万年の単位)の超ウラン元素の3種類であり、それぞれ環境へ出たときの危険性も異なる。その観点から高レベル廃液の放射能が減衰する過程において、その廃液の危険性に、含まれているどの核種がどのくらい寄与しているかを、各核種の含有量を年間許容摂取量で割って比較し、相対危険度を示したのが第2図である。この図から、約700年までは $^{90}\text{Sr}$ などの $\beta$ 崩壊核種が主な管理の対象であり、それ以上経たものは、超ウラン元素が主な対象となることがわかる。

高レベル廃液処理処分法を含有核種の相対危険度の変化にどのように対応させるかということ、処理法処分法の全体的スキームが変り、多くの案が提案されている。すなわち、高レベル廃液含有の放射性核種をすべてその寿命の長さに応じて、群分離して処分するという考えから、全放射能をまとめて固化処分しようとする考えまで幅広い。このような長期にわたる貯蔵・処分法を適確に見通し、選択することは非常に困難であるが、技術の進歩、社会的要求の変化、地域の特異性などを考慮し、さらに原子力全般にかかわる経済性と安全性の上に立って決定されるべきものであろう。ともあれ、処理処分法を決める柱の一つは安全性であり、この点が不明解であれば、長期にわたる処理処分法は決められない。この安全性の問題は、高レベル廃液が再処理工場から発生した時点から、人間および環境に全く危険性がなくなるまでの全過程で考慮されなければならないものである。

第11表に処理処分の各段階に対応する安全評価の重要な項目をまとめた。便宜的には、処理時の安全性と、処分時の安全性とに大別することができる。処理時の安全性は短期間な意味から主に加工、処理、貯蔵時の化学工学的問題であり、処分時の安全性は長期的な考慮を必要とすることから主に固化体の物性の問題となる。しかし、これら両者は経済性とからんでお互いに関連のあることが多い。



第2図 発生後経過時間による高レベル廃液に含まれる放射性核種の相対危険度の変化<sup>(78)</sup>

第11表 高レベル廃液処理処分の安全性に関連した項目

処理処分の各段階	関 連 項 目
液 貯 蔵	貯蔵地の環境条件, 貯蔵技術
↓	
固 化 処 理	処理方法および技術
↓	
輸 送	輸送手段および技術
↓	
貯蔵および 処 分	貯蔵・処分地の環境 条件, 方法および技術

} 含有放射性核種の性質および潜在的危険性

} 容器への収納技術,  
固化体の性質

## 4.2 処理時の安全評価

高レベル廃液を固化体に変換する処理時に発生する安全問題の多くは、高放射性物質を取扱うこと、高温度下で処理すること、腐食性物質を取扱うことに起因する。特に、放射能濃度の高い溶液を蒸発乾固し、数百度に加熱して仮焼する工程と、さらに高熱にして固化体にする技術は、原子力工業の中でも高レベル廃液処理に特に必要なものである。

しかし、高温処理に伴い、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{106}\text{Ru}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{144}\text{Ce}$ などの揮発性核種の補集とか、機器の腐食とかは、化学工業上の問題として、例えば、非放射性有毒ガスも含めたオフガスの浄化装置の開発、溶融炉用の特殊金属の開発などによって解決される場合が多い。

一方、放射性核種の揮発を低く押えるための開発もなされている。すなわち、低温処理で良質な固化体を得る努力が、ガラス固化では、リン酸ガラスを中心に行われており、<sup>(80)(81)</sup>またセラミック固化では、clay reaction processがこれに相当する。<sup>(68)</sup>さらに、廃液に添加物を加えたり、前処理することで放射性核種の揮発を減少させる研究もされている。 $\text{TiO}_2$ の添加が溶融時の $^{137}\text{Cs}$ の揮発を減少させ、前処理による酸性度の低下が $^{106}\text{Ru}$ の揮発を低減させることが分っている。<sup>(82)</sup>

処理時の安全評価は、安全性の高い固化体を作る技術と処理プロセスにおける揮発放射性物質の低減化をはかる技術を中心とした技術上の問題と、その固化体の処理および処分コストの経済性の両者に密接な関係があり、技術水準の向上と社会の要求の推移によってその妥当性は変化すると思われる。

## 4.3 処分時の安全評価

高レベル廃液固化体の貯蔵・処分法として、現在提案されているもので、有力な方法は、岩塩坑および岩塩層貯蔵と工学的貯蔵である。

アメリカは1971年に高レベル廃棄物処分に関する連邦政府の基準を発表し、廃液発生後5年以内に固化し、さらに5年以内に連邦政府の貯蔵所へ搬入することになっている。<sup>(83)</sup>連邦政府の貯蔵所の候補と考えて、1965年から実施していたKansasの岩塩坑の貯蔵試験が、<sup>(84)</sup>否定的な結果を出したことから、急遽、工学的貯蔵施設への貯蔵が有力となってきている。この場合、ここに保管するのは、一応百年の単位を考えており、その後は、さらに処理するかして永久処分をするという考えのようである。<sup>(85)</sup>

一方、岩塩坑貯蔵を明確に打出しているのは西ドイツ国であるが、この西ドイツでも、まだ中レベル（ピチュメン固化体）による試験貯蔵を行なっている段階である。実際に、高レベル廃液固化体を貯蔵開始するのは、1977年以後になるとと思われる。<sup>(86)</sup>

この二つの貯蔵処分法では、その期間を数百年とするか、永久とするかが最も異なる点であり、この違いによって、その安全評価も異なってくる。

工学的貯蔵の場合は、管理の対象となる核種は、主に $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ などの $\beta$ 放射体であり、固化体そのものも、その後の処理とか輸送を考慮した形態を取る必要がある。さらに、この貯蔵は常時人間の管理下におかれることから、収納容器もそれに応じた、詰替が可能なものにすることができる。この意味で、地震などの天災とか戦争などの大事件を仮定しないかぎり、固化体自身の物性よりむしろ容器とか、貯蔵施設の構造、管理などに重点を置いた安全評価が必

要となる。

一方、岩塩坑貯蔵は、岩塩のビットに固化体を封じ込め、永久に貯蔵するという考えである。その安全評価には、 $10^5$ 年の半減期を持つ超プルトニウム核種をも考慮する必要があり、非常に長期にわたる期間で発生する種々の現象を予想して対応しなければならない。さらに、岩塩坑貯蔵に特有な問題もあり、固化体の発熱による熱伝播とその影響、放射性核種の岩塩内拡散、岩塩の放射線影響などが試験されている<sup>(87)</sup>。

このような貯蔵処分時の安全評価をするための、最も重要な基礎資料は、貯蔵処分しようとしている固形質化廃棄物の適合性、すなわち固化体の物性である。

その試験項目としては、(1) 浸出性、(2) 機械的強度、(3) 耐放射線性、(4) 耐熱性、(5) 熱伝導性、(6) 化学的安定性、(7) 収納容器との両立性、などである。一般的には、浸出性と熱伝導性が、高レベル廃液固化体の安全評価の目安として特に重視され試験されている。

浸出性は、固化体が冠水したとき、固化体中の放射性物質の水への移行し易さを見るもので、固化体がそのような状況下に置かれた場合の安全評価の直接的情報となる。

機械的強度は、被衝撃時の固化体の堅牢さを計るもので、輸送時、貯蔵時または処分時に、固化体が破損すれば放射性物質の飛散を招くことになるが、その目安となるものである。

耐放射線性は、高放射線下の固化体の劣化の問題であり、固化体の諸物性への放射線の影響を見るものである。

耐熱性は、放射性核種の崩壊熱による固化体内部の温度上昇にどのくらい耐えるか、また、固化体が火災事故に遭遇した時の固化体内の放射性核種の挙動を含めた、高熱加熱時の固化体の耐久性である。

熱伝導性は、固化体内部の局部的温度上昇を知る目安となるものであり、耐熱性と関連して議論されるもので、次章には両者を合せて固化体の熱的特性として検討している。

化学的安定性は、固化体に望まれている諸性質の耐久性であり、固化体自身が持っている放射能、発熱などの内的原因と、環境による外的原因とによって、長期的に起る固化体劣化の目安である。

収納容器との両立性は、固化体による容器の腐食が主な現象である。容器の耐久性が、固化体の管理必要期間に比べて著るしく悪いので、この両立性は長期処分よりむしろ短期の数百年の貯蔵期に問題となる。

その他、壊変娘核種の影響、電気伝導性、エネルギー蓄積の問題、 $\alpha$ 粒子の放射線影響などもあり、今後の研究によって解明されなければならないことも多い。

## 5. 安全性試験各論

### 5.1 浸出性

#### 5.1.1 浸出性と安全評価

高レベル廃液固化体を輸送、一時貯蔵、または長期貯蔵・処分するときは、通常容器に完全に封入して行なわれる。しかし、現在考えられている容器の材質では、とても放射能が減衰してしまふまでの耐久性はなく、例えば岩塩坑内では、鉄鋼とかステンレス鋼製で数ヶ月、軟鋼でも数年の寿命しかないといわれている。<sup>(15)</sup>

数10万年を考慮して処分する場合には、容器の耐久性をはるかに越える期間の問題であり、固化体はその処分された周囲の物質に直接接触すると考える必要がある。この点から、固化体からの放射性物質の浸出性、特に冠水時の水に対する浸出性が重要となる。

第3図は、頁岩 (Conasanga shale) 中、60 m の深さで高レベル廃液または固化体を埋蔵し、連続的に地下水で浸出させたときの地表に達する  $^{241}\text{Am}$  の蓄積量比の推定値である。

また、第4図は、ガラス固化体から  $10^{-4} \text{ cm}^2/\text{sec}$  の拡散係数で浸出した  $^{241}\text{Am}$  の地中における移動速度を計算したものである。この移動は土壌の性質によって異なるが、移動水の速度より放射性核種の移動速度がかなり遅い。

通常の粘土質の土壌における放射性核種の移動は、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$  が速く、しかも  $^{90}\text{Sr}$  が  $^{137}\text{Cs}$  より速く移動すると考えられている。それは、 $^{137}\text{Cs}$  のイオンが土壌中の立体構造への親和性を持っていることと、 $^{90}\text{Sr}$  は土壌中に安定に存在する Ca と化学的に類似しており、相互のイオン交換によって移動が促進されるため、と理解されている。Pu、Amなどはコロイド形成の理由から、移動は非常に遅い。しかし、長寿命であるため、長期間にわたって浸出が行なわれることとなり、結果として、 $^{137}\text{Cs}$  や  $^{90}\text{Sr}$  より、かなり大量に移動することになる。<sup>(15)</sup>

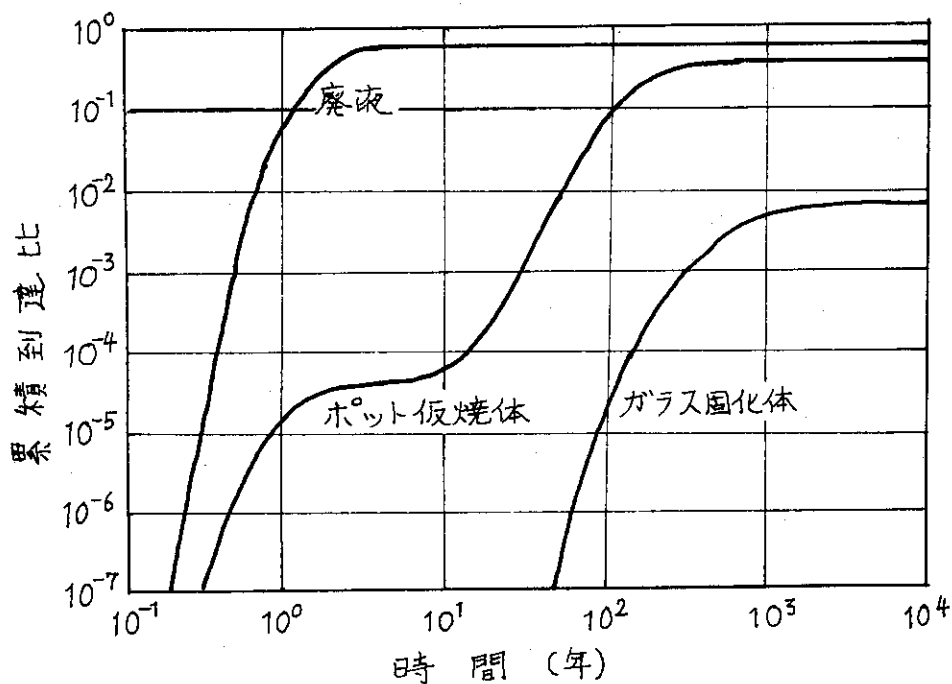
放射性物質の浸出性が低いガラス固化体においても、場合によっては水質汚染の問題が生じる可能性がある。例えば、直径30 cm、長さ183 cmの数百万 Ci を含んだガラス固化体が、その容積と等しい水 (約130ℓ) で毎日浸出を受けると仮定すれば、その浸出液中の放射性物質は、飲料水の許容限度をはるかに越えている。<sup>(16)</sup>

このように固化体の浸出率は、その中に含まれている放射性核種の環境への移行をどれだけ遅らせることができるかという意味で非常に重要である。どのような固化体にするかの重要な決定因子になっている。

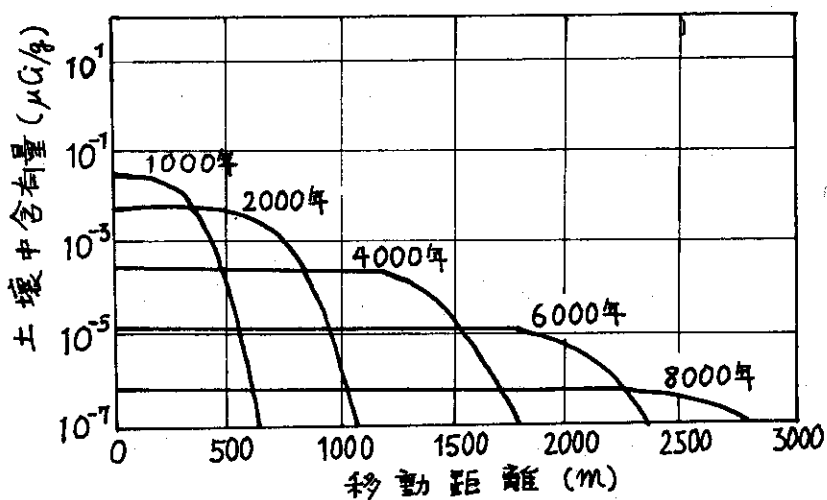
放射性廃液固化体に固定された放射性核種は、それぞれ個有の性質にもとづいて種々な浸出性を示す。CsはSrより浸出しやすく、両方ともCaより非常に高い浸出性を持っていることは明白である。プルトニウムなどの超プルトニウム核種の浸出率については、まだ明確な結果は得られていない。

また、固化体の形状による浸出性の違いについて Heimerl らの実験によれば、3.0日間のCsの浸出試験では、ブロック状で  $10^{-4}\%$  であったのに対して粉末からは3%であり、表面積を考慮しても、粉体からの方がブロックより約100倍浸出しやすいことを示している。また、熱水による浸出では、核種の化学的性質の影響は小さくなり、むしろ固化体表面の腐食率の増





第3図 地下60mに埋蔵した高レベル廃棄物から、地下水によって浸出され地表に達する<sup>241</sup>Amの比率<sup>(15)</sup>



第4図 ガラス固化体 (拡散係数  $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{sec}$ ) から浸出した<sup>241</sup>Amの移動の予想<sup>(15)</sup>

加によって支配され、核種間の浸出性の差は小さくなる傾向にあるといわれる。<sup>(89)</sup>この2つの事実は高温(約300°C)に保持されている固化体の表面に水が接したときの浸出機構、すなわち実際に起ると思われる浸出の条件を考えるとときには、考慮しなければならぬだろう。

### 5.1.2 浸出機構と測定法

放射性核種のガラス固化体からの浸出性は、多くの条件によって影響を受ける。多孔性や割目の存在が浸出面積の増加によって固化体の全浸出速度に影響する。固化体の冷却速度も浸出性に影響し、徐冷されたガラスは、急冷されたものより溶けやすいといわれる。<sup>(90)</sup>実際に、高レベル廃液を固化したガラスは、表面では1°C/分より速く冷却されるが、内部では放射性核種の崩壊熱によって非常にゆっくり冷却されると考えられる。この場合、容器の壁で急冷される部分と、徐冷される中心部ではかなり違った性質の固化体となる、と考えられる。また、含有の化学成分によっても大きな影響を受ける。一般的にアルカリ含量が大きいガラスほど溶解度も大きい。

浸出温度の影響も大きい。浸出液の温度を25°Cから95~100°Cにすると浸出率は約10~100倍以上増加する。一般に常温下の浸出試験では、初期の段階で高い浸出率が得られ、その後漸減して安定値になるのに1年以上もかかるが、熱水による浸出試験では、浸出率は経過時間に関係なく一定となる。<sup>(91)</sup>

浸出開始時の固化体の履歴と貯蔵状態も、浸出率にいくらか影響する。ガラス固化体の場合古いガラスほど高い浸出率である。また、100%の相対湿度の空気中に貯蔵したガラスは、乾燥状態や水中で保管されたガラスより非常に高い浸出性を示している。<sup>(92)</sup>

浸出液の成分の影響は明白でない。Harwellでは、蒸留水と模擬海水による相違はなかったという結果を得ている。<sup>(93)</sup>また、岩本らはリン酸ガラスによる実験で、<sup>137</sup>Csについては水道水による浸出性が海水より高く、<sup>32</sup>Pでは両者に対してほとんど同じ結果を得た。また浸出温度による浸出率の変化について第5図のような結果を得ている。<sup>(94)</sup>

浸出試験の結果の表示は、その試験の目的、手段の違いによって色々な方法で行なわれている。その主なものをまとめたのが第12表である。<sup>(95)</sup>

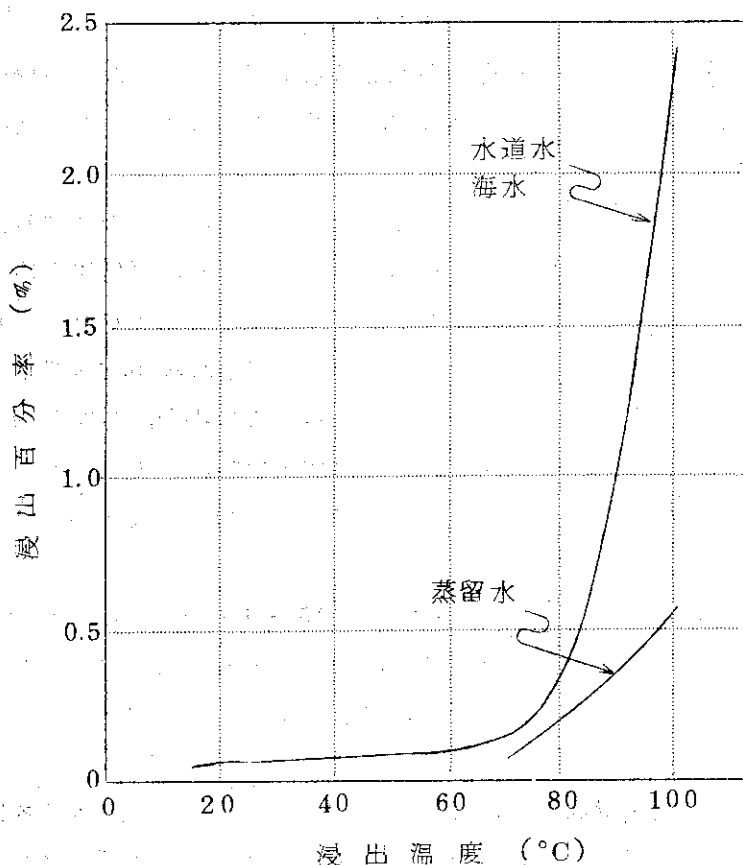
この表示方法のなかで一般に広く用いられているのが、ORNLで提唱された浸出率である。<sup>(96)</sup>この方法は、固化体の形状を考慮に入れて算出するという利点がある一方、出て来た数値が直接浸出量を意味しない欠点がある。

拡散係数は円筒の固化体からの浸出量によって計るもので、これは廃棄物固化体の浸出試験のみならず、他の分野特に化学の分野でも用いられているので、その値の比較検討に便利である。<sup>(97)</sup>

浸出係数、腐食率はお互に逆数の関係にある単位であり、イギリスで多く用いられている。

また、耐水性と浸出百分率は、浸出対象物と浸出量との比率のみに着目したもので、浸出量が比較的大きいものに簡易的に使用される。特に耐水性は、伝統的ガラス試験法として、工業規格試験に規定されているものである。

固化体の浸出試験を実施するにあたって、決めなければならない条件は、固化体の種類(セメント、ピッチェメン、ガラスなど)、履歴、形状(粉体ブロックなど)浸出温度、浸出時間、浸出液の種類および量、浸出方法、サンプリング方法などである。IAEAが1969年に勧告



第5図 リン酸ガラス固化体からのCsの浸出(5,000分間)に対する浸出液と温度の影響<sup>(92)</sup>

第12表 浸出試験結果の表示方法

表示名	算出方法	単位	備考
浸出率 (Leaching Rate)	$\frac{\text{浸出量}}{\frac{\text{試料中の初期量} \cdot \text{時間}}{\text{試料の表面積}} \cdot \text{試料の質量}}$	g/cm <sup>2</sup> ·day	ORNL方式
拡散係数 (Diffusion Factor)	$\frac{\pi \cdot \text{半径}^2 \left( \frac{\text{浸出量}}{\text{試料中の全量}} \right)^2}{4 \times \text{時間}}$	cm <sup>2</sup> /day	
浸出係数 (Leach Factor)	$\frac{\text{試料中の初期量} \cdot \text{試料の表面積}}{\text{試料の容量} \cdot \text{時間}} \cdot \frac{\text{浸出量}}{\text{試料中の全量}}$	Week/cm	イギリスで多用されている
浸出百分率 (Leaching Percent) または Fractional Release	$\frac{\text{浸出量}}{\text{試料中の全量}} \times 100$	%	比較的少量に浸出する場合に使用する
腐蝕率 (Corrosion Rate)	$\frac{\text{試料の容量} \cdot \text{浸出量}}{\text{時間} \cdot \text{試料の表面積} \cdot \text{試料中の初期量}}$	cm/Week	
耐水性または溶出率	粉末試料の比重量から100°C 1時間で浸出した量	mg/g	JIS-R 5102 DIN-12111

した標準の方法では、多くの条件を細かく規定し、しかも得られた結果はすべて図示し、その図形を参考にしながら値を比較することを推奨している。<sup>(65)</sup>

固化体からの放射性物質の浸出は、溶解と拡散の現象によって説明される。実際には、この2つの現象が同時に進行し、浸出が進むので、浸出機構は非常に複雑となる。W. Heimerlらは、浸出液を常に取り替えた場合の浸出量を時間の関数として次のように表わしている。

$$F = a \cdot \sqrt{t} + b \cdot t$$

すなわち、浸出現象は時間に直線的に比例する項と $\sqrt{t}$ に比例する項によって表現し、2項の係数の $a/b$ を、ある時点の浸出現象を特徴付けるものとしている。また、浸出試験を図示したとき、長時間経た浸出は固化体内の放射性核種の拡散が律速となり、 $\sqrt{t}$ に比例することになることから、浸出試験初期における結果がその核種の浸出性全体を特徴付けることになると指摘している。<sup>(66)</sup>

浸出試験を行なうときの試料の形状もその表面積との関連で大きな問題である。前述の IAEA法はブロック状の試料のみを使用することになっているが、粉体を用いる方法も広く採用されている。カナダとフランスでブロック状試料による試験が行なわれたのに対して、イギリス、ドイツの一部では粉体による試験を行なっている。これは、高レベル廃液固化体が水による浸せき状態になったときは、数百度の表面温度によって、ブロック状よりむしろ粉体になっているだろうという理由のほか、粉体による試験によって比較的短期間のうちに浸出の傾向を知ることができるためと思われる。

粉体によって得られた結果とブロック状による結果との関係はまだ不明確である。

### 5.1.3 各種固化体の浸出性

数多くの固化体、それに多くの浸出試験法が存在するので、文献に出ている数値のみを引用して固化体の浸出性を比較することは、大した意味をもたない。さらに、リン酸ガラス、ホウケイ酸ガラスという名前でもその組成は多種多様であり、またその製造工程によっても浸出性が異なる固化体となる。第13表には、3種の固化体の代表例としてアメリカとイギリスの結果を上げた。ここに引用したホウケイ酸ガラスは、比較的単純な組成の固化体であり、フランス、ドイツなどで開発されている複雑な組成のものでない。例えばフランスで開発されたホウケイ酸ガラスでは $10^{-6} \sim 10^{-7} \text{ g/cm}^2/\text{day}$ という結果が得られている。<sup>(64)</sup>

セラミック固化体の浸出性は、通常の焼結固化体が、仮焼体とリン酸ガラスの間、テルミット固化体が改良されたホウケイ酸ガラスと同等かやゝすぐれているものと思われる。

第13表 各固化体の浸出試験結果

表示方法 固化体	浸出率 <sup>(62)</sup> (g/cm <sup>2</sup> /day)	浸出率 <sup>(63)</sup> (g/cm <sup>2</sup> /day)	浸出係数(Week/cm) <sup>(66)</sup>		
			Cs	Sr	Ce
仮焼体	$5 \times 10^{-1}$	$10^{-1} \sim 10^{-2}$	-	-	-
リン酸ガラス	$5 \times 10^{-6}$	$10^{-4} \sim 10^{-6}$	$6 \times 10^5$	$5 \times 10^5$	$5 \times 10^7$
ホウケイ酸ガラス	$1 \times 10^{-6}$	$10^{-4} \sim 10^{-5}$	$7 \times 10^5$	$4 \times 10^5$	$2 \times 10^7$

## 5.2 熱的特性

### 5.2.1 熱的特性と安全評価

使用済核燃料の再処理によって生じる高レベル廃液には多量の核分裂生成物が含まれている。その廃液の固化体を貯蔵または処分するには、不安定な放射性核種の崩壊によって発生する熱の分散を考慮しなければならない。また、その固化体が発生する熱によって、固化体自身、収納容器、さらに環境への悪影響を与えないように配慮する必要がある。その意味で固化体自身の耐熱性と固化体から放出する熱量が安全評価の対象となる。

貯蔵された固化体内部の温度を決定する因子としては、固化体の熱伝導率が最大であり、密度、比熱、それに単位体積あたりの熱発生率である。例えば、ガラス固化体を容器に入れて貯蔵する場合、容器の大きさは、熱発生率とガラスの熱伝導率を考慮して決められる。

固化体の熱発生量は、含有している核分裂生成物などの初期条件がわかれば、あとは時間の関数として求められる。このことはガラスの熱特性によって廃棄物の含有量が決まることを意味する。30 MW/tonの比出力で、33,000 MWd/tonの燃焼度の軽水炉燃料からのきょう雑物の少ない廃液の場合で440 kgの酸化物がガラス固化体1 m<sup>3</sup>に封入可能と思われる。このガラスの密度を2.8 g/cm<sup>3</sup>とすれば、酸化物の含有量は16%である。これは10.7 ton以上の使用済燃料に相当する。この場合、固化体の耐熱性、熱伝導率から、固化体内部の熱発生量の限界を $5 \times 10^{-2}$  cal/sec/cm<sup>3</sup>とすれば、原子炉から発生後5~6ヶ月になってはじめて固化可能となる。<sup>(15)</sup> 第6図は、上記の条件の固化体内の熱発生率を計算によって求めたものである。また、第14表に固化体の中心と表面の温度分布の時間変化を示す。

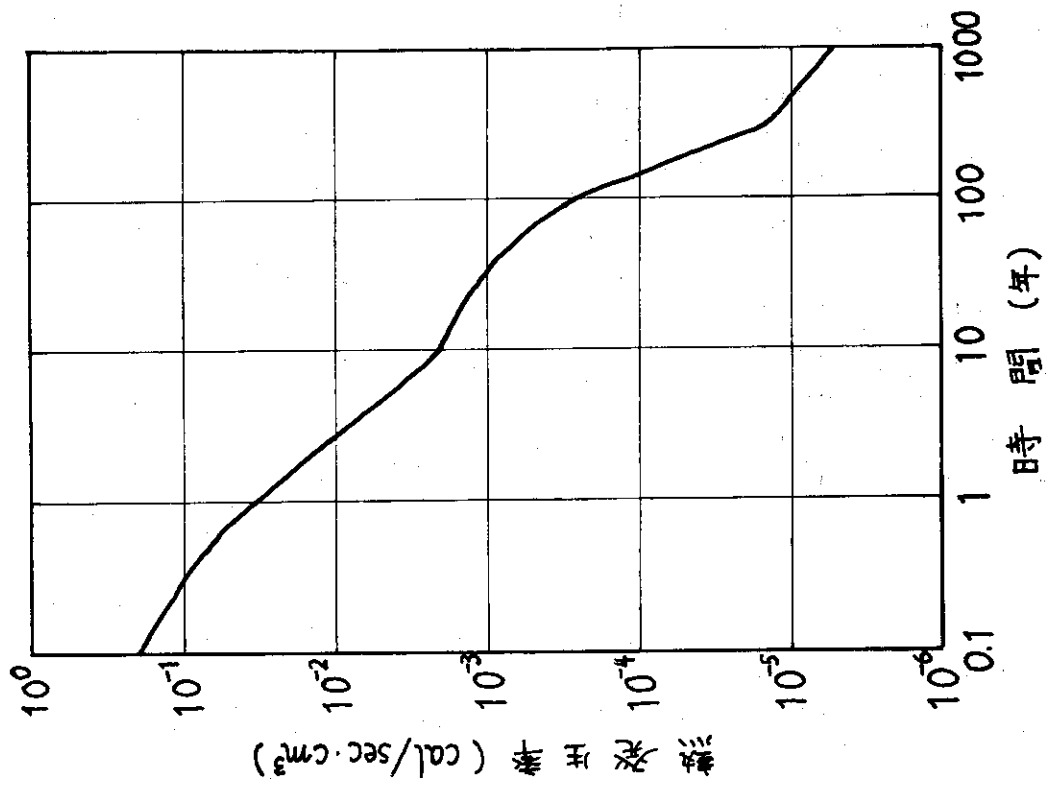
W. Guberらによれば、ガラス固化体を岩塩中に貯蔵した場合、300~400°Cにおけるガラスと岩塩の熱伝導率を1.2と2.8 W/m°Cとすれば、約20%のFP酸化物を含有したガラスの熱発生率40 W/lによって約20 cmが最高許容の直径になる。<sup>(25)</sup>

一方、D.G. Jacobsらの計算によれば、平均熱伝導率を $5 \times 10^{-3}$  cal/sec/cm/°Cとし、比熱を $2 \times 10^{-1}$  cal/g/°Cとすれば、3 mの長さの固化体円筒体において、筒の中心温度を900°Cを越えないようにするには、水冷で直径28 cm以下、空冷で21 cm以下にする必要があるとしている。この時の揮発性核種の含有量は21 cm径で<sup>106</sup>Ru:  $3.3 \times 10^{-5}$ , <sup>134</sup>Cs:  $1.4 \times 10^4$ , <sup>137</sup>Cs:  $8.0 \times 10^4$  Ci, 2.8 cm径でそれぞれ $6.1 \times 10^5$ ,  $2.5 \times 10^5$ ,  $1.5 \times 10^5$ となっている。<sup>(15)</sup>

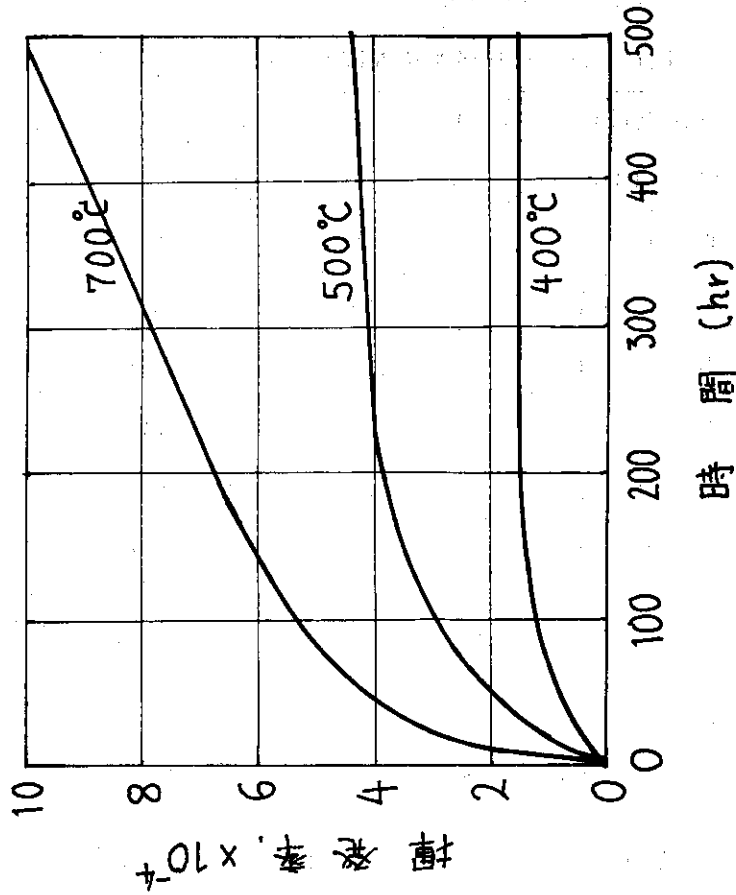
このような放射性核種は、冷却装置が故障して固化体の温度が上昇すれば、固化体から揮発しはじめる。

第15表はHarwellで行なわれた固化体から核分裂生成物の揮発試験の結果である。さらに、最も揮発しやすいCsについて、ホウケイ酸ガラスからの長期間にわたる揮発試験を流動雰囲気で行なった結果が第7図である。固化体からの放射性物質の漏洩という観点から、セシウムの浸出係数 $5 \times 10^5$ を越えない揮発率にするためには、固化体の表面温度を400°C以下にして貯蔵する必要があると計算している。<sup>(26)</sup>

さらに火災などによって温度が上昇した場合には、含有放射性物質の揮発は勿論、固化体の構成成分の揮発も生じる。ホウケイ酸ガラスの場合は、B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>とNaOが揮発し始め、1,400°Cで85時間後には、これらの成分はほとんど揮発するといわれる。また、リン酸ガラスの場合は、1,400°Cで400時間加熱するとP<sub>2</sub>O<sub>5</sub>成分の70%、N<sub>2</sub>O成分の20%が揮発し、1,600°C



第6図 原子炉照射後の経過時間による高レベル廃液固化体内の熱発生率<sup>(4)</sup>



第7図 流動雰囲気中のホウケイ酸ガラスからのCsの揮発<sup>(4)</sup>

以上の融点を持つガラスになるといわれる。<sup>(96)</sup>

第14表 高レベル廃液固化体中の温度分布<sup>(97)</sup>

原子炉照射後経過時間(年)		1	2	3	4	5	7	10
固化体中の崩壊熱 (kW)		36	21	14	10	8	6	5
固化体容器表面 近くの温度勾配 (°C/cm)	$K = 10^{-3}$ (***)	**	**	**	105	84	63	55
	$K = 2 \times 10^{-3}$	**	110	75	53	42	32	27
	$K = 3.5 \times 10^{-3}$	108	63	21	15	12	9	2
固化体容器の中 心と表面の温度 差 (°C)	$K = 10^{-3}$	**	**	**	830	660	500	410
	$K = 2 \times 10^{-3}$	**	870	580	410	330	250	210
	$K = 3.5 \times 10^{-3}$	850	500	330	240	190	140	120

\* : 固化体の条件として、直径 30 cm、原子炉照射後 10 年で 5 kW の崩壊を仮定して  
いる。

\*\*\* : 固化体中心部の温度が許容温度と考えられている 900 °C を越える。

\*\*\* : 固化体の熱伝導率 (cal/sec/cm/°C)。

第15表 高温加熱時のFP元素の揮発性<sup>(98)</sup>

元 素	温 度 (°C)	6 時間加熱による揮発量 <sup>(98)</sup>	
		ホウケイ酸ガラス	リン酸ガラス
セシウム	600	$1.4 \times 10^{-2}$	$5.8 \times 10^{-2}$
	800	$4.8 \times 10^{-1}$	1.3
	1000	25.2	4.1
	1200	63.2	18.9
ストロンチウム	800	$3.6 \times 10^{-5}$	$4.2 \times 10^{-5}$
	1000	$1.5 \times 10^{-5}$	$5.1 \times 10^{-5}$
	1200	$1.3 \times 10^{-4}$	$3.3 \times 10^{-4}$
セリウム	600~1200	$< 1 \times 10^{-7}$	$< 1 \times 10^{-7}$
ルテニウム	800	$2 \times 10^{-7}$	
	1000	$4 \times 10^{-4}$	
	1200	8.7	

第16表 各種固化体の熱伝導率

表示単位 固化体	$10^3$ cal/sec/cm/°C <sup>(99)</sup>	Btu/hr·ft·°F <sup>(99)</sup>	cal/sec/cm/°C <sup>(99)</sup> at 500°C
仮 焼 体	0.63 ~ 1.03	0.3 ~ 0.4	-
リン酸ガラス	2.07 ~ 4.13	0.8 ~ 1.2	0.0030
ホウケイ酸ガラス	2.4 ~ 3.2	1.0 ~ 1.4	0.0032

## 5.2.2 各固化体の熱的特性

ガラス中の熱伝達は、一般に元素の熱伝導と熱輻射に依存する。熱伝導はほとんど一定であるが、熱輻射は温度の上昇で大きく変化し、ガラスにおける実効熱伝導率の上昇をもたらす。FP含有のガラスの場合、熱伝達に対する輻射伝導率の比率は、通常のガラスに比べてかなり小さいといわれている。このことからガラス固化体の実効熱伝導率は、温度変化に対して比較的平たい曲線を与える。

熱的特性のなかで最も重要な熱伝導率について各固化体の値を第1.6表にまとめた。

仮焼体の熱伝導率は、ガラス固化体ではリン酸ガラスよりホウケイ酸ガラスがわずかに優れている程度であるが、仮焼体は非常に悪く、この理由が仮焼体による貯蔵の条件を悪くしている。セラミック固化体の熱伝導率はガラスとほぼ同程度と考えられる。

## 5.3 化学的安定性と耐放射線性

### 5.3.1 化学的性質と安全評価

固化体の安定性を決定する化学的性質は、固化体の組成と構造に依存する。この問題に関係して、固化体の安全評価の対象となる現象は、ガスの発生、容器への腐食性、固化体の劣化である。

ガスの発生は、収容容器を变形したり、場合によっては爆発の危険があるが、処理温度近くまで貯蔵温度が上昇しないかぎり、ほとんど無視できるといわれる。また、放射線による水素ガスの発生も固化体の場合は、無視できる。しかし、硝酸ナトリウムを大量に含んだ仮焼体や、ある種のリン酸ガラスからのガス発生が指摘されている。<sup>(1)</sup>さらに、前章でのべたように、処理温度以上になるとCsなどの放射性核種の揮発、さらに高温では固化体構成物質の揮発も発生する。

容器への腐食性は容器の寿命を左右する。現在までのところ大きな問題はなさそうであるが、長期間貯蔵時の影響については不明な点が多い。ホウケイ酸ガラスとリン酸ガラスではリン酸ガラスの方が腐食性は高いといわれている。<sup>(2)</sup>しかし、容器の内部からの腐食より、外側から、すなわち環境による腐食の影響が大きいかも知れない。

固化体の劣化の問題は非常に複雑であり、安全評価との関連を明確にすることは困難であるが、現在各国においてその説明が急がれている。

固化体の化学的性質を変える要因は、温度、放射線、化学反応、構造変化、それに放射線崩壊による娘核種への変化などが考えられる。これらは相互に関連を持ちながら固化体の性質に影響し、浸出性の増大、揮発ガスの発生、機械的強度の減少、容器への腐食性の増大をもたらす。

固化体内に存在する放射性核種の15%が放射線崩壊による娘核種への衰変すると、固化体の基本構造と化学的性質に変化が表われることがわかっている。<sup>(3)</sup>この数字は仮焼体では、酸化物の10%、ガラス固化体では5%を意味する。この変化とその影響は未だはっきりと説明されていないが、ガラス固化体の失透、仮焼体における無定形から結晶質への変化に影響するかもしれない。

ガラス固化体の失透の問題は、ガラス固化体の耐久性との関連で比較的良く調べられて来た。



ガラス質に固化された固化体は早かれ遅かれ失透を起し、不均一な状態となり、それが固化体の性質をかえる。すなわち、ある種の核分裂生成核種が結晶化した部分に集中し、全体の分布が不均一になることがある。この現象はホットスポットの発生をもたらし、結果として浸出しやすい結晶質中に集中した核種が選択的に浸出するということになると考えられる。さらに、固化体全体の成分分布が変ることによって固化体の浸出性も変化する。そして、W. Heimerlらは、核分裂生成核種のうちCsはポルサイト状結晶質体中に濃縮され、別の結晶質体には稀土類元素がともなっていて、Srのみは例外的にガラス質体に残っている、と報告している。さらに、アルカリ含有率と結晶化の関係について、高含有ガラスほど結晶化しやすいこともわかっている。<sup>(89)</sup>

固化体の組成間の化学的結合状態、言換れば同化マトリックスと含有放射性元素間の化学的結合状態も同化体の化学的性質を決める大きな要素である。Cs, Srなどの核分裂生成物の固化体中の状態は、既存のガラス、セラミックなどマトリックスの研究の成果に負うことができず、超プルトニウム元素に関しては未だ良く分っていない。J.R. Groverらはウランを12~15%含有したホウケイ酸ガラスを作り、その浸出係数は $10^{-6}$ と報告している。<sup>(89)</sup>

さらに、ガラス固化体に種々の化合物を混入することで、より優れた特性を持った固化体にする研究も、フランス、ドイツを中心に進められている。第8図はCsの揮発をなるべく低くおさえるために、 $\text{MoO}_3$ ,  $\text{TiO}_2$ を混入する実験の結果である。<sup>(89)</sup>このような結果にもとづいて両国のホウケイ酸ガラスには $\text{MoO}_3$ か $\text{TiO}_2$ が混合されている。

含有放射性核種からの放射線は、直接および間接に固化体の物質に影響すると考えられる。その影響は、ガスの発生、浸出性の増大、機械的強度の減少をもたらし、さらに、ガラス固化体の場合は、反跳粒子などにより失透の増進、エネルギーの局部的蓄積による脆性破壊も考えられる。

廃棄物の放射能が減衰してしまいうまで固化体が受ける線量は $10^{10} \sim 10^{12}$  radと考えられており、これまで色々な方法で固化体を放射線で照射してその影響が調べられているが、これまでのところ顕著な結果は得られていない。

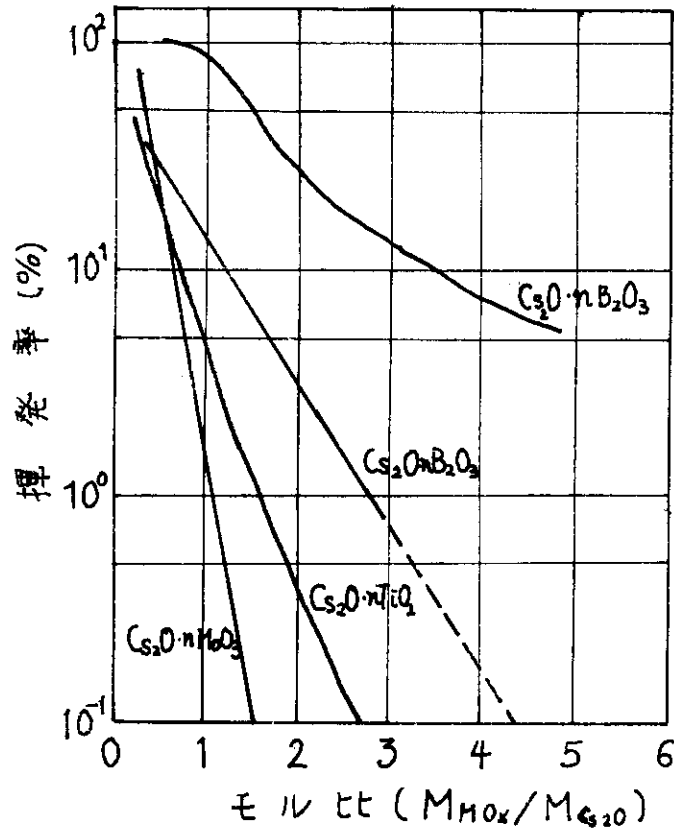
### 5.3.2 試験方法

化学的性質の試験は、固化体の物性試験でありその方法は多岐にわたる。通常行なわれる試験方法は、融点、軟化点、電気伝導度、熱伝導度、比熱、密度などの測定その他、示差熱分析器、X線回析装置、電子走査顕微鏡、高温顕微鏡、などによる観察も行なわれる。

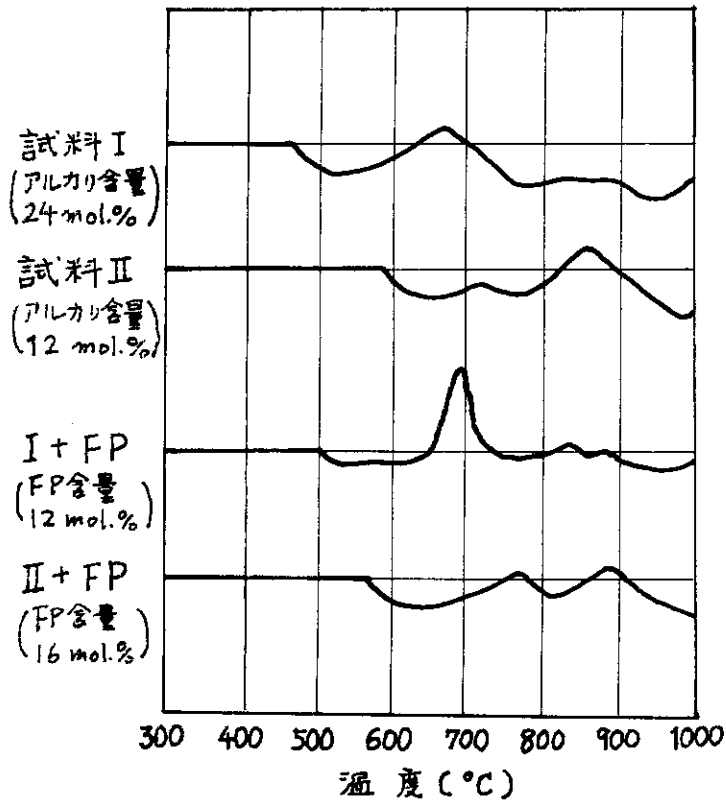
第9図は、ホウケイ酸ガラスの示差熱分析結果であるが、このグラフから、失透温度について、 $670^\circ\text{C}$  (試料I),  $860^\circ\text{C}$  (試料II),  $690^\circ\text{C}$  (試料I+FP),  $880^\circ\text{C}$  (試料II+FP)、軟化点について、 $550^\circ\text{C}$  (I),  $770^\circ\text{C}$  (II)、転位点について、 $460^\circ\text{C}$  (I),  $570^\circ\text{C}$  (II),  $500^\circ\text{C}$  (I+EP),  $570^\circ\text{C}$  (II+EP)、ということがわかる。<sup>(89)</sup>また、第10図はセラミック(テルミット)固化体のX線回析の結果であるが、 $10^{10}$  radの照射でも結晶構造に変化がないことが分る。<sup>(89)</sup>

このような固化体の試験方法は、物性測定装置の改良、進歩によって、さらに正確な情報を得るようになると思われる。

放射線の影響は、通常放射線照射の前後の物性を測定することで知ることができるが、放射



第8図 含有成分量とCsの揮発<sup>(82)</sup>



第9図 ホウケイ酸ガラス固化体の示差熱分析<sup>(89)</sup>

線は、 $\gamma$ 線、電子線、あるいは中性子照射による $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ 反応の利用によって行なわれる。この問題は今後の研究を待たなければならない点が多い。

## 5.4 機械的強度と容器

### 5.4.1 機械的強度

固化体の機械的強度は、主に固化体の移動時に問題となる。通常は密封された状態で運搬されるので、その容器が正常であれば、固化体の強度は問題ないが、容器が破損したときには、放射性物質の飛散を招くという意味で、固化体の機械的強度が問題となる。例えば、固化体が非常に低い浸出性を持っていても、脆い性質を持っていれば、周囲に飛散し、結果として高い浸出性の固化体と同じことになる場合も考えられる。

しかし、固化体の機械的強度を定量的に表示し、比較検討することは困難であり、現在のところ統一した測定法は提示されていないようである。常識的に判断すれば、仮焼体、リン酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、テルミット固化体の順に堅牢さは増すと思われる。

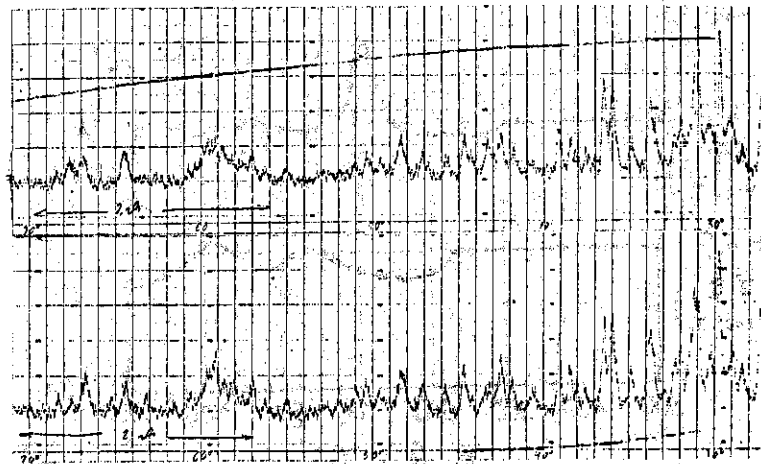
### 5.4.2 容器との両立性

容器の問題は固化体の機械的強度との関連で議論されるが、輸送時、一時貯蔵時の安全評価の対象となる。すなわち、通常の容器は、固化体による影響が全くないとしても数十年の寿命であり、固化体内の放射性核種、特に超プルトニウム元素の寿命に比べれば、比較にならないほど短い。このことは、長期貯蔵・処分を考える場合には容器との両立性は無視できることを意味している。

しかし、数十年、数百年の1時貯蔵、すなわち、工学的貯蔵のような場合には、当然容器の話換方法も合せて固化体と容器との両立性を考慮する必要がある、研究もなされている。<sup>(9)</sup>

### 5.4.3 その他

固化体内に含有されている放射線核種から放出されるエネルギーが、どれだけ固化体外に発散し、どれだけ内部に蓄積するか、またそれが固化体の性質にどのように影響するかも、特に長期貯蔵の場合には説明する必要があると思われる。この問題は熱的挙動を中心に説明されつつあるが、 $\alpha$ 放射体の影響、固化体の電気伝導度と関連して今後の問題である。



第10図  $10^{10}$  rad 電子線を照射したテルミット固化体(上)と未照射試料(下)のX線回折チャートの一部<sup>(9)</sup>

## 6. あとがき

### 6.1 今後に残された問題

高レベル廃液固化体の貯蔵・処分時の安全評価は、得られた固化体を種々な方法によって試験し、その結果をもとに行なわれる。既存の仮焼体、ガラス固化体に関する安全試験は、すでに10年以上にわたって各国で実施されており、その重要な項目はほとんど解明されたと見てよい。その安全評価の中心は発熱の問題、浸出性、化学的安定性、耐放射線性であり、特に、高レベル廃棄物特有の問題である発熱の問題は、かなり詳しく調べられてきた。しかし、このような重要な項目のなかでも、まだ未解明の部分もあり、高温、高放射線下の浸出性、 $\alpha$ 放射体の影響、放射性核種の壊変によって生じた娘核種の影響、それに固化体内のエネルギー蓄積の問題などは、さらに今後の研究を待つところが多いと思われる。また、比較的最近開発が進んでいるセラミックなどの新しい固化体の安全評価は当然、今後解明されることになるだろう。

このような固化体自身の問題の他に、高レベル廃液の処理処分体系に関連して、貯蔵の前後に想定される、特殊核種の分離を含めた処理の問題や、最近提唱されている宇宙投棄<sup>(10)</sup>、南極投棄<sup>(11)</sup>、消滅処理<sup>(6)</sup>などの永久処分法と固化体の安全評価の関係も今後の研究課題と思われる。

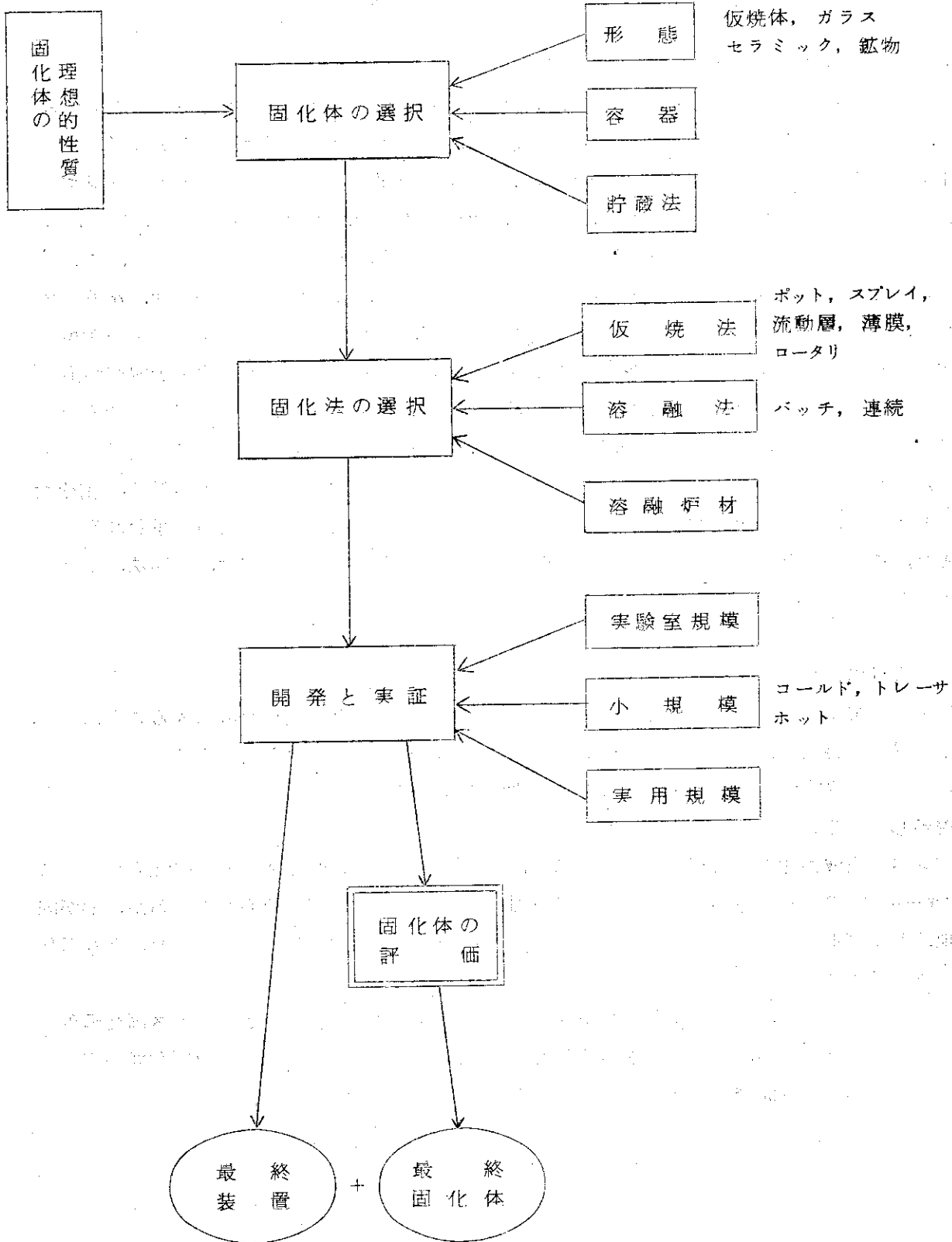
また、このような研究を効率よく進めて行くために、国際的な情報の交換、試験法、結果の表示法の統一などは早急に実施する必要があると思われる。

### 6.2 原研における研究開発

動・燃事業団の再処理工場の建設によって、わが国も本格的な再処理態勢に入ることになり、さらに将来の再処理工場の増設に備えて高レベル廃液処理処分体系を確立する必要がある。この処理法の世界的傾向は、固化処理であり、原研でも昭和48年度から、この問題の研究開発に着手している。

高レベル廃液固化処理技術を確立するには、第11図のような開発スキームが考えられる。このスキームの中の多くの開発項目は、すでに外国における研究開発で埋められているが、わが国の地理および地質的問題、社会情勢に合致した貯蔵・処分法に適した固化体の開発、それに伴う安全評価は、独自に研究開発する必要がある。

この観点に立って、まず、比較的安全性の高いと云われているホウケイ酸ガラス固化に着目し、新固化素材の開発、安全試験を開始した。今後、第17表に上げたような固化体の安全評価を中心とした研究開発を実施する予定である。



第1.1図 高レベル廃液固化技術開発スキーム

第17表 原研におけるガラス固化試験<sup>(102)</sup>

製造試験	予備試験	小規模試験	ホット試験
	硝酸分解方法	オフガスの分析 捕集方法	—
	新固化素材	仮焼形式 揮発核種の挙動 捕集方法	セル内固化プロセス試験
	熔融特性 添加剤 減容比	熔融炉の形式 加熱方式 炉材の耐久性 連続熔融方法 総合プロセス試験	—
	浸出性(コールド) 熱的特性 熱伝導性 耐放射線性 機械的強度 耐久性	浸出性(トレーサ)	総合安全評価 経済性評価
	—	収納方法 容器の材質 耐久性	貯蔵方法

謝 辞

この報告書をまとめるにあたり、多くの資料と御教示を賜わった、日本原子力研究所保健物理安全管理部廃棄物処理処分開発室、副主任研究員 江村 悟氏と、保健物理安全管理部長 宮永一郎博士に感謝する。

## 7. 参 考 文 献

- (1) J.L. McElroy, K.J. Schneider, et al : Waste Solidification Program Summary Report Vol. 11, Evaluation of WSEP high-level waste solidification processes, BNWL-1667 (1972).
- (2) IAEA Panel of Experts to Examine the Possibility of Establishing International Storage Sites for High-Level and Alpha Bearing Radioactive Wastes, Vienna, 20-24 Nov. 1972, IAEA.
- (3) 阪田貞弘：高レベルおよびアルファ放射性廃棄物の管理に関する国際情勢，保健物理，8 (1)，P39 (1973)。
- (4) Symposium on the Management of Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing, Paris, 27 Nov.-1 Dec. 1972, OECD.
- (5) 核燃料研究委員会報告書，47年度その2，通商産業省鉱山石炭局 (1973)。
- (6) 環境・安全専門部会中間報告書，原子力委員会 (1973)。
- (7) 核分裂生成物等総合対策懇談会報告書，日本原子力産業会議 (1973)。
- (8) 石原健彦：再処理廃液とその処理及び処分，水処理技術，2，45 (1961)。
- (9) C.A. Mawson: Processing of Radioactive Wastes, IAEA Review Series No. 18, p 16 (1961)。
- (10) 阪田貞弘：使用済核燃料の再処理；廃液の処理，原子力工業，8 (12) 16 (1962)。
- (11) 岩井重久，寺島 泰：高放射性廃液の固化処理(1)(2)，水処理技術，4 (10) 1, (11) 1 (1963)。
- (12) 菊地輝男，岩本多実：高放射性廃液のガラス質化処理 - 各国における研究状況 - JAERI-memo 2181 (1966)。
- (13) Siting of Fuel Reprocessing Plants and Waste Management Facilities, ORNL-4451 (1970)。
- (14) 石原健彦他：特集・放射性廃棄物の処理処分，日本原子力学会誌 14 (6) 38 (1973)。
- (15) F. Gera, D.G. Jacobs: Consideration in the Long-Term Management of High-Level Radioactive Wastes, ORNL-4762 (1972)。
- (16) 星野忠也，都築清次：放射性廃棄物のガラス固化処理，原子力工業，19 (6) 38 (1973)。
- (17) Second Working Meeting on Fixation of Radioactivity in Stable, Solid Media, Idaho Falls, 27-29 Sept. 1960. T1D-7613 (1960)。
- (18) Treatment and Storage of High-Level Radioactive Wastes, Vienna, 8-12 Oct. 1962, ST1/PUB/63 (1963)。

- (19) Proceedings of the Symposium on the Solidification and Long-Term Storage of Highly Radioactive Wastes, Richland, 14-18 Feb. 1966, CONF-660108 (1966).
- (20) 原子力開発利用長期計画, 原子力委員会(1972).
- (21) 中島健太郎: 再処理高レベル廃液の処理処分, 日本原子力学会化学工学分科会予稿集, p83(1973).
- (22) 青地哲男: 燃料再処理, 原子炉工学講座4, p114, 培風館(1972).
- (23) D.W. Clelland: High-Level Radioactive Waste Management in the United Kingdom, 文献(4), p 233 (1972).
- (24) Wn.L. Lennemann: Mänge of Radioactive Aqueous Wastes from U.S. AEC's Fuel Reprocessing Operations Experience and Planning, 文献(4), p 357 (1972).
- (25) W. Guber: Fixierung hochaktiver Spaltprodukte in Glas, KFK-1500, Jahresbericht 1970, p 41 (1972).
- (26) The Safety of Nuclear Power Reactor (Light Water-Cooled) and Related Facilities, WASH-1250, p 4-74 (1973).
- (27) A.F. Perge, R.W. Ramsey Jr: Plans for the management of Radioactive Waste from Reprocessing Fuel in Commercial Operations, 文献(4), p 285 (1972).
- (28) H. Kranse: Die Verfestigung hochradioactiver Abfälle, Chemie-Ing-Techn. 45 (10a) 658 (1973).
- (29) A.E. Lewis, J.J. Cohen: Placement and Self-Processing of Nuclear Fuel Reprocessing Wastes in Deep Underground Cavities, 文献(4) p 933 (1972).
- (30) H.C. Claiborne: Neutron-Induced Transmutation of High-Level Radioactive Waste, ORNL-TM-3964 (1973).
- (31) H.W. Godbee: Characterization of Solid Products of Pot Calcination, T1D-7613, p 485 (1960).
- (32) J.L. McElroy, J.N. Hartley et al: Waste Solidification Program, Vol. 9, Pot Solidification Performance during Final Radioactive Tests in Waste Solidification Engineering Prototypes, BNWL-1628 (1972).
- (33) J.R. Grover, W.H. Hardwick et al: The Fingal Process, AERE-R5188 (1966).
- (34) J.P. Giraud, G. Le Blaye: Design of an Industrial Facility for the Incorporation into Glass of Fission Products and the Storage of Highly Radioactive Glass, 文献(4), p 813 (1972).
- (35) B.M. Johnson Jr: Radiant Heat Spray Calcination, T1D-7613, p 27 (1960).
- (36) W.R. Bond, J.N. Hartley et al: Waste Solidification Program, Vol. 8, Spray Solidification Performance during Final Radioactive Tests in WSEP. BNWL-1583 (1971).



- (37) A.G. Blasewitz, G.L. Richardson et al.: The High-Level Waste Solidification Demonstration Program, 文献 (4) p 615 (1972).
- (38) W. Guber, W. Difenbacher et al.: Pilot Plant Experience on High-Level Waste Solidification and Design of the Engineering Prototype "VERA", 文献 (4) p 489 (1972).
- (39) A.A. Jonke, J.W. Loeding et al.: Preliminary Studies on Fluid-Bed Calcination of Purex Process Wastes, T1D-7613, p 6 (1960).
- (40) G.E. Lohse, R.E. Commander : Initial Operation of the Idaho Waste Calcining Facility with Radioactive Feed, CONF-660208, p 388 (1966).
- (41) L.T. Lakey, B.R. Weeler : Solidification of High-Level Radioactive Wastes at the Idaho Chemical Processing Plant, 文献 (4), p 731 (1972)
- (42) J.O. Blomeke, J.P. Nichols: Commercial High-Level Waste Projections, ORNL-TM-4224 (1973).
- (43) F. Pittmann : (Plan for the Management AEC Generated Radioactive Wastes, WASH-1202 (1973).
- (44) A.M. Platt: Research and Development Activities Waste Fixation Program, BNWL-1741 (1973).
- (45) R.F. Domish, E.J. Tutbill et al.: Calcination of High-Level Atomic Wastes as a Step in Ultimate Disposal, ENL-535 (1958).
- (46) S. Zwickler, B. Manowitz: Calcining of Wastes, Progress Report on Waste Process Development, BNL-381 (1956).
- (47) St. Halaszovich, M. Laser et al.: Interim Storage and Solidification for Thorex-Type Fission Product Solutions, 文献 (4), p 705 (1972).
- (48) K. Schneider: Solidification and Disposal of High-Level Radioactive Wastes in the United States, Reactor Technol. 13 (4), p 387 (1971).
- (49) 森谷太郎, 成瀬 少他編: ガラス工学ハンドブック, 朝倉書店 (1963).
- (50) J.M. White, G. Lahaie: Ultimate Fission Product, the Disposal of Curie Quantities of Fission Products in Siliceous Materials, AECL-391 (1955).
- (51) R. Eliassen, M.I. Goldman, Fixation in Vitreous Matrices of High Activity Fission Product Wastes, T1D-7613, p 576 (1960).
- (52) W.E. Clark, H.W. Godbee: Fixation of Simulated Highly Radioactive Wastes in Glassy Solid, ST1/PUB/53, p 411 (1963).
- (53) E.J. Tutbill, G.G. Weth et al.: BNL Process for the Continuous Conversion of High-Level Radioactive Waste to Phosphate Glass, CONF-660209, p 139 (1966).
- (54) F. Laude: Pot Vitrification of Concentrated Fission Product Solutions, CONF-660209, p-222 (1966).
- (55) A.M. Platt: Quarterly Progress Report, Research and Development Activities Waste Fixation Program, July - Sept. 1973, BNWL-1783 (1973).

- (56) R. Bonniaud, F. Laude et al.: Experience Acquisée en France dans le Traitement par Vitrification des Solutions Concentrées de Produits de Fission, 文献 (4), p 555 (1972).
- (57) W. Guber, J. Saidl: Fixierung hochaktiver Spaltprodukte in Glas, KFK-1830, p 26 (1973).
- (58) W. Heimerl, H. Heine et al.: Research on Glasses for Fission Product Fixation, HM1-B109 (1071).
- (59) 田代晋吾: セオライトによる高レベル廃液の溶融固化, 原子力学会, 化学・化学工学分科会予稿集, p 30 (1973).
- (60) W. Bocola, A. Donato et al.: Survey of the Present State of Studies on the Solidification of Fission Product Solutions in Italy, 文献 (4), p 449 (1972).
- (61) G. Rudolph, J. Soidl et al.: Lab-Scale R + D Work on Fission Product Solidification by Vitrification and Thermite-Process, 文献 (4), p 655 (1972).
- (62) J.E. Mendel, J.L. McElroy: Waste Solidification Program Vol. 10, Evaluation of Solidified Waste Products, BNWL-1666 (1972).
- (63) R.G. Thomas, G.D. Kelly: Ceramic Sponges for Radioactive Waste Disposal, T1D-7613, p 590 (1960).
- (64) J.F. Honstead, J.L. Nelson et al.: Waste Fixation on Minerals, T1D-7613, p 623 (1960).
- (65) D.G. Jacobs, T. Tamura: Mineral Reaction Pertinent to the Treatment and Disposal of Radioactive Wastes, T1D-7613, p 691 (1960).
- (66) L.P. Hatch: Congress of the United State on Industrial Radioactive Waste Disposal. Vol. 3, p 1825, U.S. Govt. Printing Office (1959).
- (67) C.A. Mawson: Processing of High-Level Wastes, IAEA, Review Series No. 18, Processing of Radioactive Wastes, p 16 (1961).
- (68) W.W. Schulz, M.J. Kupfer et al.: Immobilization of High-Level Radioactive Wastes-Proposed Laboratory Studies, ARH-2407 (1972).
- (69) V.G. Vereskunov, K.P. Zakharova et al: Utilization of the Heat of Chemical Reactions in Thermal Processing of Liquid Radioactive Wastes, Atomnaya Energiya, 20 (3) p 277 (1966).
- (70) M.L. Spector, E. Suriani: Thermite Process for the Fixation of High-Level Radioactive Wastes, I & EC, Process Design and Dev., 7 (1) 117 (1968).
- (71) M.J. Kupfer, W.W. Schulz: Application of the Hanford Thermite Process to Increase Immobilization of In-Tank Solidified Wastes, ARH-2458 (1972).
- (72) G. Rudolph: Fixierung hochaktiver Spaltprodukte durch Thermitreaktion, KFK-1830, p 52 (1973).
- (73) G. Sachse et al.: Melting of Radioactive Substance in Glass or Ceramic Substances, BNWL-tr-75, Kernenergie, 11 (1) 15 (1968).

- (74) N.V. Krylova, V.V. Kulichenko et al.: Development of Techniques for the Pre-Disposal Treatment of Waste Arising in Nuclear Fuel Reprocessing by the Hexafluoride Method, 文献 (4), p 1045 (1972).
- (75) H.W. Levi, G. Malow et al : Weiterentwicklung von Verfestigungsprodukten für Abfälle aus der Aufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe, Atomwirtschaft, 177 (1973).
- (76) R.E. Isaacson, L.E. Brownell: Ultimate Storage of Radioactive Wastes in Terrestrial Environments, 文献 (4), p 953 (1972).
- (77) C.M. Stansky: Foresight in Waste Management, IAEA Bulletin, 12 (1) 30 (1970).
- (78) A. Martin, H. ApSimon, The Forecasting of Radioactive Wastes Arising from Nuclear Fuel Reprocessing, 文献 (4), p 55 (1972).
- (79) A.F. Rupp: A Radioisotope-Oriented View of Nuclear Waste Management, ORNL-4776 (1972).
- (80) Research and Development Programme Related to the Solidification of Radioactive Wastes at Eurochemic, IDL Report No 63 (1972).
- (81) J.L. McElroy, J.N. Hartley et al : Waste Solidification Program Vol. 7, Phosphate Glass Solidification Performance during Final Radioactive Tests in Waste Solidification Engineering Prototypes, BNWL-1541 (1971).
- (82) W. Guber: Vitrification of High-Level Fission Products, ORNL-tr-2361 (KFK-1030), p 53 (1970).
- (83) Licensing of Production and Utilization Facilities, 10CFR50, Appendix F Policy Relating to the Siting of Fuel Reprocessing Plants and Perated Waste Management Facilities (1970).
- (84) Radioactive Waste Repository Lyons, Kansas, Environmental Statement, WASH-1503 (1971).
- (85) M.J. Szulinski, J.H. Warren et al : Engineered Storage of Radioactive Waste, 文献 (4) p 791 (1972).
- (86) H. Krause: Die Lagerung radioaktiver Abfälle, Naturwissenschaften 59, 412 (1972).
- (87) J. Saidl : Transportvorgänge radioaktiver Spaltprodukte in Polykristallinem Natriumchlorid und an der Phasengrenze Glas/Natriumchlorid, KFK 1500, p 62 (1972).
- (88) A.M. Froke: Some Aspects of the Public Health Hazard Associated with the Storage or Disposal of Glasses Incorporating Highly Active Fission Product Wastes, Health Physics, 12, 1077 (1966).
- (89) W. Heimerl, H. Heine et al : Studies on the Behaviour of Radioactive Waste Glasses, 文献 (4), p 515 (1972).
- (90) J.R. Grover, M.N. Elliot et al.: Long Term Examination of Glasses for the Final Process, CONF 660208, p 585 (1966).

- (91) U.L. Upson: Observed Properties of Some Solidified High-Level Wastes and Their Stability under Simulated Storage Conditions, CONF-660208, p 642 (1966).
- (92) 岩本多実, 菊地輝男: Purex型再処理廃液のガラス化の研究(Ⅳ), 生成ガラスの水による浸出, Radioisotopes 17 (10) 13 (1968).
- (93) H.W. Godbee, W.E. Clark et al.: Physical Property of Solids Incorporating Simulated Radioactive Wastes, CONF-660208, p 566 (1966).
- (94) H.W. Godbee et al.: Diffusion of Radioisotopes through Waste Solids, Trans. Am. Nucl. Soc. 12 (2) 450 (1969).
- (95) E.D. Hespe: Leach Testing of Immobilized Radioactive Waste Solids, Proposal for a Standard Method, Atomic Energy Review, 9 (1) 195 (1971).
- (96) J.R. Grover: Glasses for the Fixation of High-Level Radioactive Wastes, 文献 (4), p 593 (1972).
- (97) G.H. Jenks, C.D. Bopp: Energy Storage in High-Level Radioactive Waste and Simulation and Measurement of Stored Energy with Synthetic Wastes, ORNL-TM-3781 (1973).
- (98) S. Tashiro, G. Rudolph; unpublished data.
- (99) H.T. Fullam: Compatibility Study for the Waste Packaging Program, Preliminary Results, BNWL-B-7 (1970).
- (100) A.M. Platt, R.W. Ramsey: Long-Term Waste Management Methods, 文献 (4), p 409 (1972).
- (101) E.J. Zeller, D.F. Saunders et al.: A Proposal for the Establishment of a Permanent International High-Level Radioactive Waste Depository in Antarctica, 文献 (4), p 431 (1972).
- (102) 放射性廃棄物の処理処分に関する研究, 原子力安全性研究の現状, p 46, 日本原子力研究所 (1973).
- (103) 核燃料研究委員会報告書, わが国における再処理事業の確立, 48年度, 通商産業省 (1974).