

JAERI - M
84-140

放射性ガラス固化体の浸出試験

1984年8月

馬場恒孝・松本征一郎・田代晋吾・中村治人

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公開している研究報告書です。
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Section, Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1984

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 熱高野高速印刷

放射性ガラス固化体の浸出試験

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部
馬場 恒孝・松本征一郎・田代 晋吾・中村 治人

(1984年7月13日受理)

WASTEF (Waste Safety Testing Facility)における、合成廃液ガラス固化体の特性試験の一環として、最近の代表的な組成のガラス固化体からの ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 及び ^{238}Pu の浸出率をソックスレー型浸出試験装置を使用して測定した。その結果、 ^{137}Cs 及び ^{90}Sr の浸出率はそれぞれ、 $4.28 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$ 、 $1.92 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$ であって、これらの値はコールド試験結果とほとんど差がなかった。 ^{238}Pu の浸出率は、 $1.82 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$ であった。

また、浸出試験の過程で検知された現象から、浸出した放射性物質の挙動について考察した。その結果、Puの浸出液中の濃度はPuの溶解度に依存することがわかった。

Leaching Test of the Radioactive Glass Waste Form

Tsunetaka BANBA, Seiichiro MATSUMOTO, Shingo TASHIRO
and Haruto NAKAMURA

Department of Environmental Safety Research,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received July 13 , 1984)

As a part of the safety evaluation tests of simulated radioactive glass waste forms, the leaching experiments were carried out at 100°C by using the Soxhlet leach test apparatus in hot cell of the Waste Safety Testing Facility(WASTE-F). The composition of the glass waste form used for this study is typical of the latest composition. The leach rates of ^{137}Cs and ^{90}Sr were 4.28×10^{-4} g/cm²day and 1.92×10^{-4} g/cm²day, respectively. There was little difference between these values and the results of the previous cold tests. The leach rate of ^{238}Pu was 1.82×10^{-6} g/cm²day.

The behavior of leached radionuclides was examined on the basis of the phenomena observed during the leaching experiment. The result implied that the concentration of Pu in the leaching solution was dependent upon the solubility of Pu.

Keywords: Glass Waste Form, Leach Rate, Soxhlet Leach Test Apparatus, Cesium-137, Strontium-90, Plutonium-238, Solubility
Radioactive Waste Processing

目 次

1. まえがき	1
2. 実 験	1
2.1 実験の概要	1
2.2 放射性ガラス固化体の調製	2
2.3 ソックスレー型浸出試験装置	2
2.4 放射能の測定	2
2.5 浸出核種の挙動の検討	2
3. 結果と考察	3
3.1 ^{137}Cs , ^{90}Sr 及び ^{238}Pu の浸出率	3
3.2 浸出核種の挙動の検討	3
4. まとめ	4
謝 辞	5
参考文献	5

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental	1
2.1 Outline of experiment	1
2.2 Radioactive glass preparation	2
2.3 Soxhlet leach test apparatus	2
2.4 Radioactivity measurement methods	2
2.5 Examination of leached radionuclides	2
3. Results and Discussion	3
3.1 Leach rates of ^{137}Cs , ^{90}Sr and ^{238}Pu	3
3.2 Behavior of leached radionuclides	3
4. Conclusions	4
Acknowledgements	5
References	5

1. ま え が き

高レベル廃棄物ガラス固化体の耐浸出性は、固化体が持つ廃棄物閉じ込め性能の一つとして最も重要な性質と考えられている。特に、処分段階では、核種移行の媒体が地下水であり、キャニスターが破損した場合、閉じ込め性を主として固化体に頼らなければならないと考えられる。

これまで浸出率の測定は、その目的に応じ多くの方法が使われている¹⁾。それには主に2つの目的があり、1つは固化体組成のスクリーニング、即ち固化体性能を簡易的に求めるために浸出率を測定する方法が取られている。もう1つは、固化体処分時のソースタームを明確にするため、処分環境条件下で浸出試験をする方法である。前者の方法として、高温蒸留水に常に接触するソックスレー型浸出試験装置による方法が代表的である。後者の処分時の安全性評価のためには、種々の程度に処分を模擬した試験が行なわれている。

本試験では最近の代表的な組成のガラス固化体を取りあげ、以前に行った各国のガラス固化体についてのコールド試験の結果と比較することとした。そこで、WASTE F No.4 セル²⁾に設置したソックスレー型浸出試験装置を使用した。

WASTE Fにおいては、実廃液を使う前に安全性評価の目的に応じ、重要な放射性核種を添加して合成廃棄物固化体を作り、それぞれの核種ごとに詳しく挙動を調べて精度の高い安全性評価用のデータを得ることとしている。ここでは、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 及び ^{238}Pu について試験した結果をまとめた。

また、浸出挙動及び浸出核種の化学形を考察するため、浸出率の測定を行った際、付加的に実施した α 核種の浸出液中での存在状態の検討、及び容器の洗浄試験の結果についても述べる。

著者らは浸出したガラス表面の成分分布についてのコールド試験から、既に浸出過程について種々の研究を進めてきた³⁾。今回のホット試験における、機器の除染あるいは測定値のバラツキについての試験結果は、浸出後の放射性核種の存在状態について、いくつかの示唆が与えられているように思われる。この情報は今後の地層処分の安全性評価の研究に役立つと思われる。

2. 実 験

2.1 実験の概要

(a) ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 及び ^{238}Pu の浸出率の測定

模擬ガラス固化体の粉体に、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 及び ^{238}Pu の溶液を含有させ、それぞれ約50gづつ調製した。それを切断し、約 $2\text{ cm}\phi \times 0.5\text{ cm}^t$ の円板状の試料3個づつを作成し、ソックスレー型浸出試験装置で7日間浸出した。浸出液は1、3、7日の各期間毎に交換し放射能を測定した。

(b) 浸出核種の挙動の検討

^{244}Cm と ^{238}Pu を多量に含む固化体の浸出液に酸を加えないで浸出液を採取し、放射能の測定を行い測定値のバラツキの原因を種々検討し、両核種の浸出過程における挙動について考察した。

1. ま え が き

高レベル廃棄物ガラス固化体の耐浸出性は、固化体が持つ廃棄物閉じ込め性能の一つとして最も重要な性質と考えられている。特に、処分段階では、核種移行の媒体が地下水であり、キャニスターが破損した場合、閉じ込め性を主として固化体に頼らなければならないと考えられる。

これまで浸出率の測定は、その目的に応じ多くの方法が使われている¹⁾。それには主に2つの目的があり、1つは固化体組成のスクリーニング、即ち固化体性能を簡易的に求めるために浸出率を測定する方法が取られている。もう1つは、固化体処分時のソースタームを明確にするため、処分環境条件下で浸出試験をする方法である。前者の方法として、高温蒸留水に常に接触するソックスレー型浸出試験装置による方法が代表的である。後者の処分時の安全性評価のためには、種々の程度に処分を模擬した試験が行なわれている。

本試験では最近の代表的な組成のガラス固化体を取りあげ、以前に行った各国のガラス固化体についてのコールド試験の結果と比較することとした。そこで、WASTE F No.4 セル²⁾に設置したソックスレー型浸出試験装置を使用した。

WASTE Fにおいては、実廃液を使う前に安全性評価の目的に応じ、重要な放射性核種を添加して合成廃棄物固化体を作り、それぞれの核種ごとに詳しく挙動を調べて精度の高い安全性評価用のデータを得ることとしている。ここでは、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 及び ^{238}Pu について試験した結果をまとめた。

また、浸出挙動及び浸出核種の化学形を考察するため、浸出率の測定を行った際、付加的に実施した α 核種の浸出液中での存在状態の検討、及び容器の洗浄試験の結果についても述べる。

著者らは浸出したガラス表面の成分分布についてのコールド試験から、既に浸出過程について種々の研究を進めてきた³⁾。今回のホット試験における、機器の除染あるいは測定値のバラツキについての試験結果は、浸出後の放射性核種の存在状態について、いくつかの示唆が与えられているように思われる。この情報は今後の地層処分の安全性評価の研究に役立つと思われる。

2. 実 験

2.1 実験の概要

(a) ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 及び ^{238}Pu の浸出率の測定

模擬ガラス固化体の粉体に、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 及び ^{238}Pu の溶液を含有させ、それぞれ約50gづつ調製した。それを切断し、約 $2\text{ cm}^{\phi} \times 0.5\text{ cm}^{\text{t}}$ の円板状の試料3個づつを作成し、ソックスレー型浸出試験装置で7日間浸出した。浸出液は1、3、7日の各期間毎に交換し放射能を測定した。

(b) 浸出核種の挙動の検討

^{244}Cm と ^{238}Pu を多量に含む固化体の浸出液に酸を加えないで浸出液を採取し、放射能の測定を行い測定値のバラツキの原因を種々検討し、両核種の浸出過程における挙動について考察した。

2.2 放射性ガラス固化体の調製

(a) ^{137}Cs 及び ^{90}Sr を含むガラス固化体

Table 1 に示す組成の酸化物混合物をコールド実験室において 1150°C で2時間溶融し、模擬ガラス固化体を作成した。このガラスを $50\sim 100$ mesh に粉碎し、Fig. 1 に示す白金製ルツボに充填した。それをセル内に入れ、約 24 mCi/ml の ^{90}Sr 及び ^{137}Cs の溶液 1.25 ml を含有させ、 130°C で72時間乾燥後 650°C で5時間仮焼し、 1150°C で2時間溶融した。この液量及び乾燥条件はあらかじめ、コールド試験により吹きこぼれない最適条件として決めた。

出来上がったガラス固化体は厚さ 0.5 cm に切断し、 $25\ \mu\text{m}$ のダイヤモンドペーストで研磨した。 γ スキャンニング装置⁴⁾により放射能を測定し個々の試料の放射能のバラツキが5%以内であることから均一性を確認した。

(b) ^{238}Pu を含むガラス固化体

前節と同様コールド実験室で調製した模擬ガラス固化体に 0.6477 g の酸化プルトニウムを加えボールミルで攪拌し溶融した。ただし、Table 1 で示される廃棄物元素のうち希土類元素を PuO_2 添加分減らした。溶融条件及び切断・研磨の条件は前記ガラス固化体と同じである。

(c) ^{244}Cm 及び ^{238}Pu を多量に含むガラス固化体

^{238}Pu 含有ガラス固化体を調製した場合と同様の方法で、 $^{244}\text{Cm}_2\text{O}_3$ 2.0509 g と $^{238}\text{PuO}_2$ 0.6477 g を混合し、溶融した。この TRU 含有ガラス固化体の調製は α 加速試験用の機器を用いて実施した⁵⁾。

2.3 ソックスレー型浸出試験装置

浸出試験装置の構造は Fig. 2 に示す通りであり、容器の接液部は石英製である。浸出液容器の容量は約 38 cm^3 であり、液の交換回数は約7回/時である。

浸出液は装置下部のサンプリング用バルブを開くことにより全量ポリエチレン製容器に取り出し、上部の液注入口より新しい液を注入し交換する。

2.4 放射能の測定

浸出試験装置からポリエチレン容器に取り出した浸出液をセル背面のグローブボックスに移し、浸出液量の1%の濃硝酸を加え十分攪拌した後 20 ml づつ小分けする。さらに、そのうちの 0.1 ml をステンレス鋼製試料皿にとり赤外線ランプ下で乾燥する。

^{137}Cs については CANBERRA 製井戸型 NaI シンチレーションカウンターで測定し、 ^{238}Pu はアロカ社製ガスフロー型プロポーショナルカウンター、 ^{90}Sr は GM カウンターで測定した。

2.5 浸出核種の挙動の検討

(a) ^{244}Cm 及び ^{238}Pu を含むガラス固化体の浸出液を前記と同じ方法でとり出し、硝酸を加えないで、そのままの溶液 0.1 ml を採取し、プロポーショナルカウンターで α 線を測定した。また、

α 線スペクトルの測定には ORTEC 社製 SSB 検出器を使用した。

(b) ^{134}Cs を約 20 mCi/g 含むガラス固化体の浸出試験を行った後、次の除染操作を行い、除染の様子を調べた。

通常の浸出試験操作をガラス試料を入れない状態で4回繰り返し、次に 0.2 N 硝酸を浸出容器内に入れ、2日間保時後取り出し、さらに5回の浸出試験操作による洗浄運転を行った。各洗浄液はポリエチレン容器にとり、それらの表面線量率を GM サーベーターで測定した。最初と最後の2回の洗浄液については Ge 半導体検出器による ^{134}Cs の放射エネルギーの測定もあわせて行った。

3. 結果と考察

3.1 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 及び ^{238}Pu の浸出率

^{137}Cs 、 ^{90}Sr 及び ^{238}Pu の浸出率の測定結果を Table 2 及び Fig. 3 に示す。Table 2 にはコールド試験による結果を対比しながら示した。Cs については、コールド試験結果の約 $\frac{1}{3}$ 、Sr については約 $\frac{1}{4}$ の値が得られた。

また、コールド試験で各国で開発された組成のガラス固化体について測定した結果を Table 3 に示す⁶⁾。この結果から、本試験試料は各国のガラス固化体と比較して遜色のないものであることがわかった。

3.2 浸出核種の挙動検討

(a) ^{238}Pu の浸出

コールド試験では、Fe、Zr、希土類元素等の加水分解しやすい多価金属元素は、浸出液中濃度が誘導プラズマ発光分光分析装置の検出限界以下で、それらの浸出量を定量化できなかった³⁾。多価金属元素の1つである ^{238}Pu の浸出率についての本試験の結果は、 $1.82 \times 10^{-6}\text{ g/cm}^2\cdot\text{day}$ であり、 ^{137}Cs の浸出率の約 $\frac{1}{200}$ であった。この浸出率は時間と共に減少すると同時に、特に長時間の浸出によってバラツキが大きくなった。

浸出初期での1日間で浸出した ^{238}Pu の量は $0.94\ \mu\text{Ci}$ で、ガラス重量に換算すると、 $5.6\ \mu\text{g}$ となる。ところで、ほとんど揮発しないと考えられる ^{90}Sr の揮発試験⁷⁾で試験容器の放射能測定から得られた ^{90}Sr の量をガラス重量に換算すると、 $3.1\ \mu\text{g}$ となる。これらの値は非常によく一致している。このことより、 ^{238}Pu の初期浸出の値、及び ^{90}Sr の揮発試験結果の意味は、浸出あるいは揮発現象によるものと考えより、ガラス表面に付着しているガラス微粉が、水中あるいは空中に分散すると考えてよいように思われる。

(b) ^{244}Cm 及び ^{238}Pu を含むガラス固化体の浸出

^{244}Cm 及び ^{238}Pu を含むガラス固化体の重量減少から求めた浸出率を Table 4 に示す。3つの試料の結果にほとんど差がない。次に、これらの浸出液の α 線測定結果を Table 5 に示す。試料によって浸出液に含まれる α 核種の量に大きな違いのあることがわかる。試料No.3の計数値が他の2つに比べ、約2桁大きい値を得た。

α 線スペクトルの測定には ORTEC 社製 SS B 検出器を使用した。

(b) ^{134}Cs を約 20 mCi/g 含むガラス固化体の浸出試験を行った後、次の除染操作を行い、除染の様子を調べた。

通常の浸出試験操作をガラス試料を入れない状態で4回繰り返し、次に0.2 N 硝酸を浸出容器内に入れ、2日間保時後取り出し、さらに5回の浸出試験操作による洗浄運転を行った。各洗浄液はポリエチレン容器にとり、それらの表面線量率を GM サーベーターで測定した。最初と最後の2回の洗浄液については Ge 半導体検出器による ^{134}Cs の放射エネルギーの測定もあわせて行った。

3. 結果と考察

3.1 ^{137}Cs , ^{90}Sr 及び ^{238}Pu の浸出率

^{137}Cs , ^{90}Sr 及び ^{238}Pu の浸出率の測定結果を Table 2 及び Fig. 3 に示す。Table 2 にはコールド試験による結果を対比しながら示した。Cs については、コールド試験結果の約 $\frac{1}{3}$, Sr については約 $\frac{1}{4}$ の値が得られた。

また、コールド試験で各国で開発された組成のガラス固化体について測定した結果を Table 3 に示す。⁶⁾ この結果から、本試験試料は各国のガラス固化体と比較して遜色のないものであることがわかった。

3.2 浸出核種の挙動検討

(a) ^{238}Pu の浸出

コールド試験では、Fe, Zr, 希土類元素等の加水分解しやすい多価金属元素は、浸出液中濃度が誘導プラズマ発光分光分析装置の検出限界以下で、それらの浸出量を定量化できなかった。³⁾ 多価金属元素の1つである ^{238}Pu の浸出率についての本試験の結果は、 $1.82 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$ であり、 ^{137}Cs の浸出率の約 $\frac{1}{200}$ であった。この浸出率は時間と共に減少すると同時に、特に長時間の浸出によってバラツキが大きくなった。

浸出初期での1日間で浸出した ^{238}Pu の量は $0.94 \mu\text{Ci}$ で、ガラス重量に換算すると、 $5.6 \mu\text{g}$ となる。ところで、ほとんど揮発しないと考えられる ^{90}Sr の揮発試験⁷⁾ で試験容器の放射能測定から得られた ^{90}Sr の量をガラス重量に換算すると、 $3.1 \mu\text{g}$ となる。これらの値は非常によく一致している。このことより、 ^{238}Pu の初期浸出の値、及び ^{90}Sr の揮発試験結果の意味は、浸出あるいは揮発現象によるものと考えより、ガラス表面に付着しているガラス微粉が、水中あるいは空中に分散すると考えてよいように思われる。

(b) ^{244}Cm 及び ^{238}Pu を含むガラス固化体の浸出

^{244}Cm 及び ^{238}Pu を含むガラス固化体の重量減少から求めた浸出率を Table 4 に示す。3つの試料の結果にほとんど差がない。次に、これらの浸出液の α 線測定結果を Table 5 に示す。試料によって浸出液中に含まれる α 核種の量に大きな違いのあることがわかる。試料 No. 3 の計数値が他の2つに比べ、約2桁大きい値を得た。

これらの測定試料のSSB測定器で得た、 α 線スペクトルをFig. 4に示す。 α 線計数値の小さい試料No. 1, 試料No. 2では ^{238}Pu の割合が大きく、試料No. 3では ^{244}Cm の割合が極端に大きいことがわかる。 ^{238}Pu の量は3つの測定試料間で比較的差が小さいが、 ^{244}Cm の量は試料No. 1, No. 2に比べ試料No. 3では約4桁大きくなっている。

以上の結果から、 ^{244}Cm 及び ^{238}Pu を含むガラス固化体の浸出は、重量減少で表わされるようなマクロ的にみた場合には試料間の差は比較的少なく、その固化体特有の浸出率としての意味を持たせられるであろう。しかし、 ^{244}Cm のように試料間で浸出量に大きな違いのある元素については、注意を要する。

このような違いの生ずる原因としては、一般に、(1) 固化体内での注目元素の不均一性、(2) 浸出液中での注目元素の化学形、たとえば、液性変化に伴う沈殿等の生成、(3) 注目元素の浸出表面層形成への参加及び、表面層の脱離等があげられる。このうち、(3)に関しては本試験においては浸出液に特別な処理を行っていないので、脱離した表面層が浸出液中で完全に溶解するとは考えにくい。それゆえ、この機構で本試験結果のような試料間差が生ずるとは考えられない。(2)に関しては、本試験では各試料とも同一条件、同一装置で浸出試験を行っており、しかも重量減少に大きな差がなく、それぞれの浸出液の組成はほぼ同じと考えられる。それゆえ、 ^{244}Cm の浸出率の試料間の差の原因となっている可能性は少ない。もっとも可能性の高い理由は、(1)の不均一性に関係するものであろう。即ち、固化体中に ^{244}Cm が何らかの原因で偏在し、それが浸出試料の研磨面に露出し、浸出時に水中に溶け出したと推定できる。この推論を確かめるためには、固化体切断面の核種の分布状態を測定する必要がある。

(c) 容器に付着したCsの除去

^{134}Cs を約20 mCi/g含む固化体の浸出試験を行ったのち蒸留水を使った浸出操作のくり返し、及び硝酸溶液での洗浄により得られた各回の洗浄液の表面線量率及び濃度測定の結果をTable 6に示す。

コールド試験のさい、浸出を長く続けると浸出液容器の壁に白色の晶出物ができ、水や酸による洗浄によっては除去できなかった経験がある。今回の実験によっても除去し難いことが示されている。

浸出したケイ酸が濃縮され、さらに重合して、水ガラスのような状態になっているものと思われる。Csはそこに閉じ込められるためと思われる。また、熱水反応実験あるいはガラス浸出表面のゲル層の構成物質の同定で明らかとされているような粘土鉱物の生成も考えられる。

4. ま と め

最近の代表的組成のガラス固化体について、放射性トレーサーを使った浸出試験を行い、以前にコールド試験として実施した各国のガラス固化体の浸出率と比較した。

本試験で使用したガラス固化体は、比較した固化体の中では浸出率の低い固化体であった。また、コールド試験と今回実施したホット試験の結果では、ホット試験で測定した浸出率の方が低い値を示した。

浸出した放射性核種の挙動についても、実験途中で偶然得られた現象から種々考察した。Pu及びCmはガラス自身の浸出とは異なった挙動を示し、ガラス中及び浸出液中での存在状態によると考え

これらの測定試料のSSB測定器で得た、 α 線スペクトルをFig. 4に示す。 α 線計数値の小さい試料No. 1, 試料No. 2では ^{238}Pu の割合が大きく、試料No. 3では ^{244}Cm の割合が極端に大きいことがわかる。 ^{238}Pu の量は3つの測定試料間で比較的差が小さいが、 ^{244}Cm の量は試料No. 1, No. 2に比べ試料No. 3では約4桁大きくなっている。

以上の結果から、 ^{244}Cm 及び ^{238}Pu を含むガラス固化体の浸出は、重量減少で表わされるようなマクロ的にみた場合には試料間の差は比較的少なく、その固化体特有の浸出率としての意味を持たせられるであろう。しかし、 ^{244}Cm のように試料間で浸出量に大きな違いのある元素については、注意を要する。

このような違いの生ずる原因としては、一般に、(1) 固化体内での注目元素の不均一性、(2) 浸出液中での注目元素の化学形、たとえば、液性変化に伴う沈殿等の生成、(3) 注目元素の浸出表面層形成への参加及び、表面層の脱離等があげられる。このうち、(3)に関しては本試験においては浸出液に特別な処理を行っていないので、脱離した表面層が浸出液中で完全に溶解するとは考えにくい。それゆえ、この機構で本試験結果のような試料間差が生ずるとは考えられない。(2)に関しては、本試験では各試料とも同一条件、同一装置で浸出試験を行っており、しかも重量減少に大きな差がなく、それぞれの浸出液の組成はほぼ同じと考えられる。それゆえ、 ^{244}Cm の浸出率の試料間の差の原因となっている可能性は少ない。もっとも可能性の高い理由は、(1)の不均一性に関係するものであろう。即ち、固化体中に ^{244}Cm が何らかの原因で偏在し、それが浸出試料の研磨面に露出し、浸出時に水中に溶け出したと推定できる。この推論を確かめるためには、固化体切断面の核種の分布状態を測定する必要がある。

(c) 容器に付着したCsの除去

^{134}Cs を約20 mCi/g含む固化体の浸出試験を行ったのち蒸留水を使った浸出操作のくり返し、及び硝酸溶液での洗浄により得られた各回の洗浄液の表面線量率及び濃度測定の結果をTable 6に示す。

コールド試験のさい、浸出を長く続けると浸出液容器の壁に白色の晶出物ができ、水や酸による洗浄によっては除去できなかった経験がある。今回の実験によっても除去し難いことが示されている。

浸出したケイ酸が濃縮され、さらに重合して、水ガラスのような状態になっているものと思われる。Csはそこに閉じ込められるためと思われる。また、熱水反応実験あるいはガラス浸出表面のゲル層の構成物質の同定で明らかとされているような粘土鉱物の生成も考えられる。

4. ま と め

最近の代表的組成のガラス固化体について、放射性トレーサーを使った浸出試験を行い、以前にコールド試験として実施した各国のガラス固化体の浸出率と比較した。

本試験で使用したガラス固化体は、比較した固化体の中では浸出率の低い固化体であった。また、コールド試験と今回実施したホット試験の結果では、ホット試験で測定した浸出率の方が低い値を示した。

浸出した放射性核種の挙動についても、実験途中で偶然得られた現象から種々考察した。Pu及びCmはガラス自身の浸出とは異なった挙動を示し、ガラス中及び浸出液中での存在状態によると考え

られる。これらの現象については、浸出試験において注意しなければならないと同時に処分の安全性試験の際にも考慮しておく必要がある。

謝 辞

本研究の遂行に当り、御助言と御協力を戴いた WASTE管理室 田村行人氏、吉川静雄氏、塩田得浩氏に感謝致します。また、 α 線スペクトルの測定に御協力戴いた、群分離研究室 森田泰治氏に感謝致します。

参 考 文 献

- 1) "Nuclear Waste Materials Handbook Waste Form Test Methods", DOE/TIC-11400, Prepared by J. E. Mendel (1981).
- 2) 田代他：“廃棄物安全試験施設の概念設計”，JAERI-M 8485 (1979).
- 3) T. Banba and T. Murakami：“The Leaching Behavior of a Glass Waste Form. II：The Leaching Mechanisms”，submitted to Nucl. Technol.
- 4) 大塚他：“ガラス固化体 γ スキャンニング装置の開発”，JAERI-M 84-067 (1984).
- 5) 田代他：“ α 加速試験，その1 試験目的と装置” 準備中.
- 6) 桐山他：“各国における高レベル廃棄物固化処理用ホウケイ酸ガラスの物性比較評価” JAERI-M 8915 (1980)
- 7) 中村他：“ガラス固化体からの ^{137}Cs 及び ^{90}Sr の揮発” JAERI-M 84-141 (1984).

られる。これらの現象については、浸出試験において注意しなければならないと同時に処分の安全性試験の際にも考慮しておく必要がある。

謝 辞

本研究の遂行に当り、御助言と御協力を戴いた WASTE管理室 田村行人氏、吉川静雄氏、塩田得浩氏に感謝致します。また、 α 線スペクトルの測定に御協力戴いた、群分離研究室 森田泰治氏に感謝致します。

参 考 文 献

- 1) "Nuclear Waste Materials Handbook Waste Form Test Methods", DOE/TIC-11400, Prepared by J. E. Mendel (1981).
- 2) 田代他：“廃棄物安全試験施設の概念設計”，JAERI-M 8485 (1979).
- 3) T. Banba and T. Murakami：“The Leaching Behavior of a Glass Waste Form. II：The Leaching Mechanisms”，submitted to Nucl. Technol.
- 4) 大塚他：“ガラス固化体アスキャニング装置の開発”，JAERI-M 84-067 (1984).
- 5) 田代他：“ α 加速試験，その1 試験目的と装置” 準備中.
- 6) 桐山他：“各国における高レベル廃棄物固化処理用ホウケイ酸ガラスの物性比較評価” JAERI-M 8915 (1980)
- 7) 中村他：“ガラス固化体からの ^{137}Cs 及び ^{90}Sr の揮発” JAERI-M 84-141 (1984).

られる。これらの現象については、浸出試験において注意しなければならないと同時に処分の安全性試験の際にも考慮しておく必要がある。

謝 辞

本研究の遂行に当り、御助言と御協力を戴いた WASTE管理室 田村行人氏、吉川静雄氏、塩田得浩氏に感謝致します。また、 α 線スペクトルの測定に御協力戴いた、群分離研究室 森田泰治氏に感謝致します。

参 考 文 献

- 1) "Nuclear Waste Materials Handbook Waste Form Test Methods", DOE/TIC-11400, Prepared by J. E. Mendel (1981).
- 2) 田代他：“廃棄物安全試験施設の概念設計”，JAERI-M 8485 (1979).
- 3) T. Banba and T. Murakami：“The Leaching Behavior of a Glass Waste Form. II：The Leaching Mechanisms”，submitted to Nucl. Technol.
- 4) 大塚他：“ガラス固化体 γ スキャンニング装置の開発”，JAERI-M 84-067 (1984).
- 5) 田代他：“ α 加速試験，その1 試験目的と装置” 準備中.
- 6) 桐山他：“各国における高レベル廃棄物固化処理用ホウケイ酸ガラスの物性比較評価” JAERI-M 8915 (1980)
- 7) 中村他：“ガラス固化体からの ^{137}Cs 及び ^{90}Sr の揮発” JAERI-M 84-141 (1984).

Table 1 試験用模擬廃棄物固化体組成

成分	フリット	廃棄物	計 (wt %)
SiO ₂	45.2		45.2
B ₂ O ₃	13.9		13.9
Al ₂ O ₃	3.2	1.7	4.9
CaO	4.0		4.0
Na ₂ O	6.1	3.7	9.8
ZnO	2.5		2.5
Li ₂ O	2.0		2.0
Fe ₂ O ₃		2.9	2.9
NiO		0.4	0.4
Cr ₂ O ₃		0.5	0.5
P ₂ O ₅		0.3	0.3
ZrO ₂	zircalloy filings	1.0	1.0
小計	76.9	10.5	87.4
Rb ₂ O	以下FP酸化物	0.122	0.122
SrO		0.339	0.339
Y ₂ O ₃		0.200	0.200
ZrO ₂		1.640	1.640
MoO ₃		1.731	1.731
MnO ₂		0.257	0.257
Ag ₂ O		0.029	0.029
CdO		0.031	0.031
SnO ₂		0.018	0.018
Sb ₂ O ₃		0.004	0.004
TeO ₂		0.227	0.227
Cs ₂ O		0.975	0.975
BaO		0.624	0.624
La ₂ O ₃		0.506	0.506
CeO ₂		1.008	1.008
Pr ₆ O ₁₁		0.494	0.494
Nd ₂ O ₃		1.648	1.648
Sm ₂ O ₃		0.327	0.327
Eu ₂ O ₃		0.061	0.061
Gd ₂ O ₃		0.037	0.037
SeO ₂		0.021	0.021
RuO ₂		0.801	0.801
小計		11.100	11.100
アクテノイド酸化物	(CeO ₂ で模擬)	0.9	0.9
小計		0.9	0.9
不溶解金属粒子			
Ru		0.120	0.120
Rh		0.152	0.152
Pd		0.428	0.428
小計		0.700	0.700
合計	76.9	23.200	100.100

Table 2 コールド試験結果との比較

単位：g/cm²・day

核種 浸出 時間(日)	Pu-238	Cs-137	Sr-90	コールド Cs	コールド Sr
1	$(1.82 \pm 0.14) \times 10^{-6}$	$(4.28 \pm 0.16) \times 10^{-4}$	$(1.92 \pm 0.02) \times 10^{-4}$	$(1.2 \pm 0.2) \times 10^{-3}$	$(9.0 \pm 0.6) \times 10^{-4}$
3	$(5.68 \pm 0.38) \times 10^{-7}$	$(5.12 \pm 0.28) \times 10^{-4}$	$(1.38 \pm 0.03) \times 10^{-4}$	$(1.12 \pm 0.02) \times 10^{-3}$	$(6.1 \pm 0.4) \times 10^{-4}$
7	$(4.69 \pm 2.36) \times 10^{-7}$	$(4.00 \pm 0.12) \times 10^{-4}$	$(1.02 \pm 0.08) \times 10^{-4}$	$(1.0 \pm 0.1) \times 10^{-3}$	$(4.0 \pm 1.0) \times 10^{-4}$

Table 3 各国のガラス固化体⁶⁾との浸出率の比較単位：g/cm²・day

固化体の種類	Cs	Sr
This work	4.3×10^{-4}	1.9×10^{-4}
Harwell	1.13×10^{-3}	5.03×10^{-4}
Karlsruhe	1.17×10^{-3}	6.70×10^{-4}
Marcoule	3.40×10^{-3}	2.74×10^{-4}
H M I	4.81×10^{-4}	5.51×10^{-4}
JAERI (J-10)	1.18×10^{-3}	7.71×10^{-4}
P N C	9.8×10^{-4}	3.4×10^{-4}

Table 4 ²⁴⁴Cm, ²³⁸Pu 含有ガラス固化体の
重量減少から求めた浸出率

試料No	浸出率 (g/cm ² ・day)
No. 1	1.81×10^{-4}
No. 2	1.21×10^{-4}
No. 3	1.16×10^{-4}

Table 5 ^{244}Cm , ^{238}Pu 含有ガラス固化体の
浸出液の α 線計数値 (cpm)

試料No.	計 数 率
No. 1	3 0.4 \pm 2.1
No. 2	7 3.6 \pm 1 0.2
No. 3	3 0 4 8.5 \pm 4 9.1

Table 6 浸出試験装置の洗浄操作で回収した溶
液中の ^{134}Cs 濃度

洗 淨 液 No.	表面線量率 (mR / hr)	^{134}Cs 濃度 ($\mu\text{Ci} / \text{ml}$)
1	7 0	8.3×10^{-1}
2	3 5	—
3	2 0	—
4	1 5	—
5*	1 0	—
6	2.5	—
7	2.3	—
8	1.9	—
9	1.6	2.1×10^{-2}
1 0	0.9 3	1.5×10^{-2}

* 0.2 N 硝酸溶液による洗浄

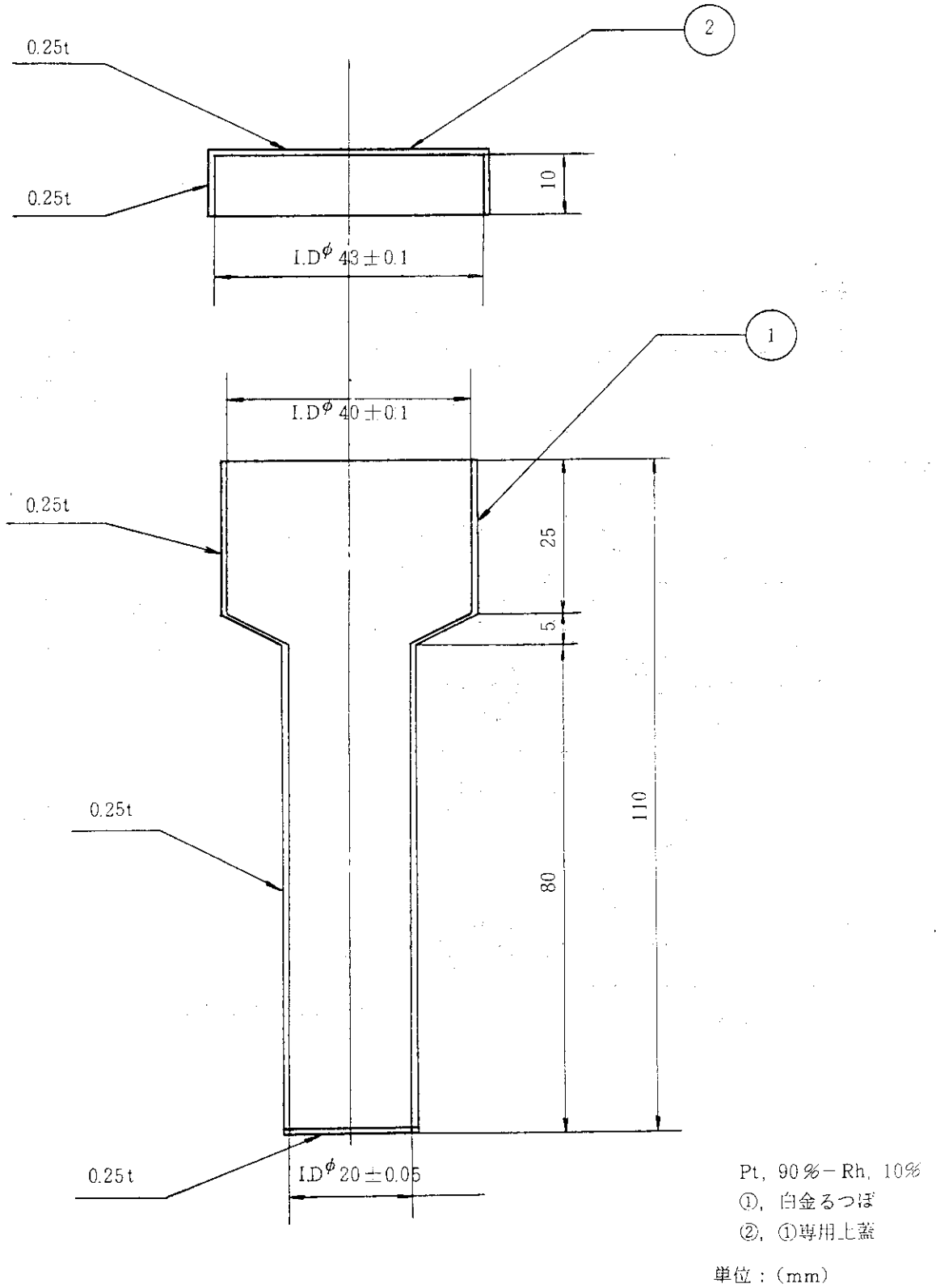


Fig. 1 熔融用白金るつぼ

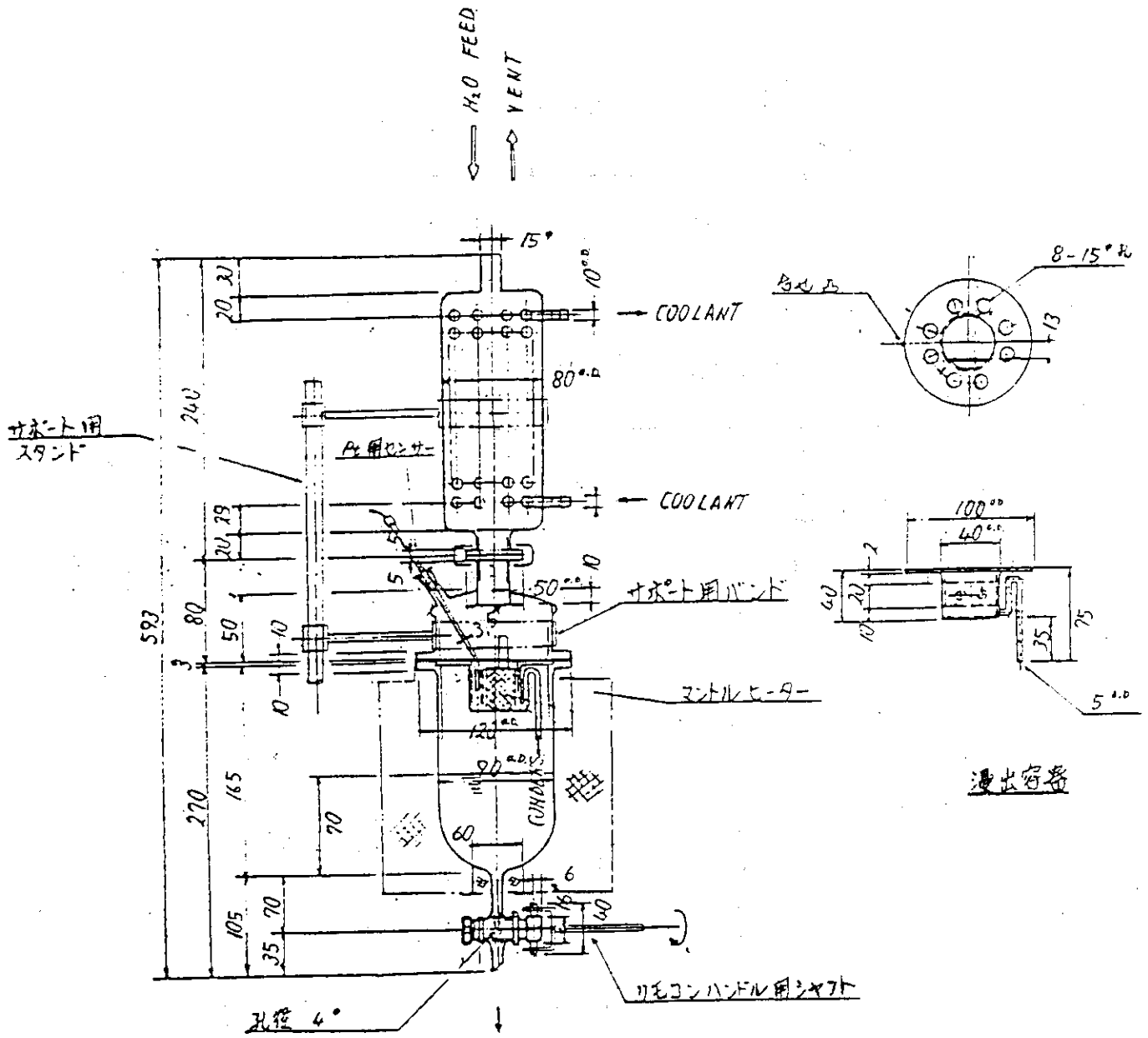


Fig. 2 ソックスレー浸出試験装置

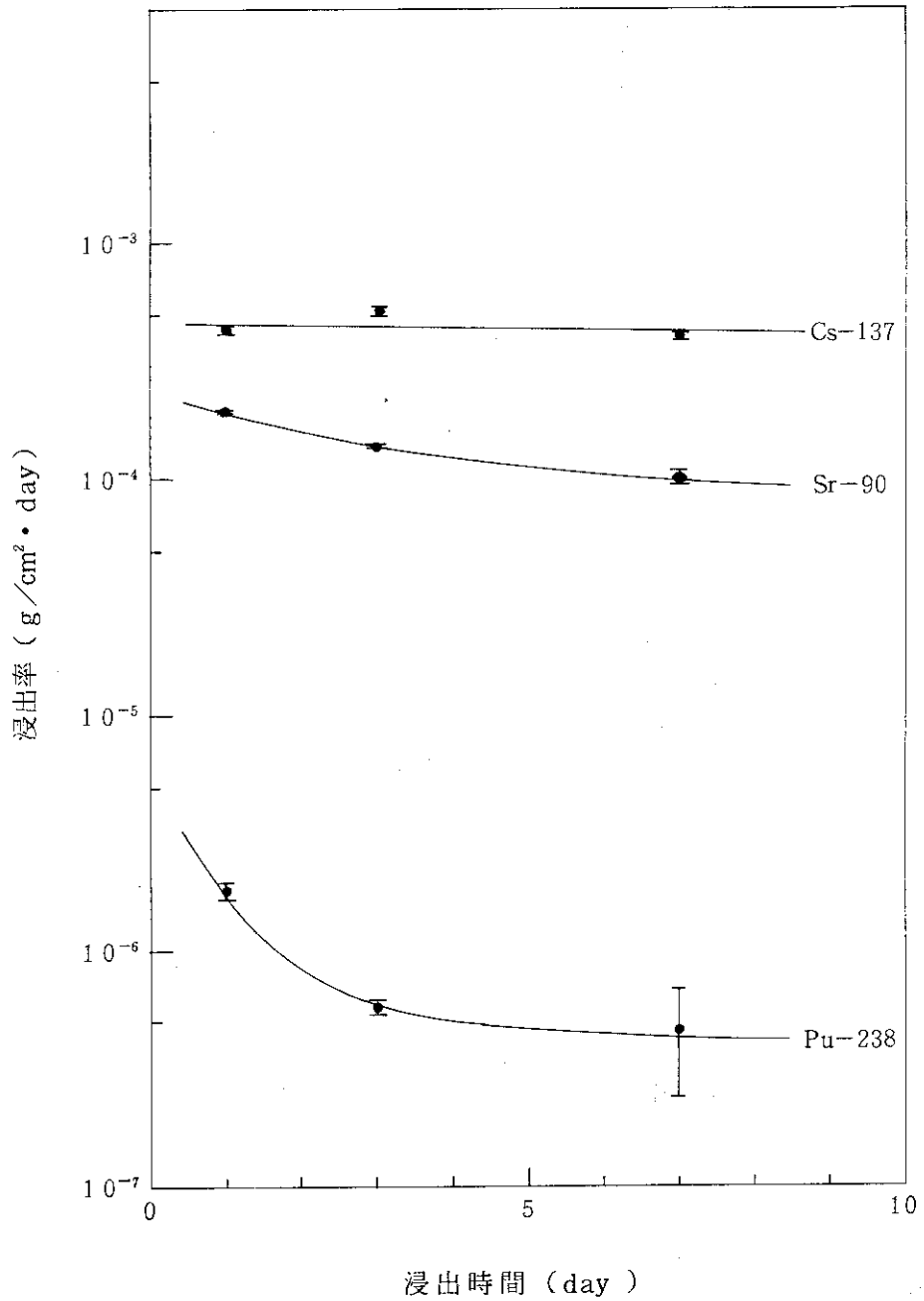


Fig. 3 ガラス固化体の Pu-238, Cs-137, Sr-90 の浸出率

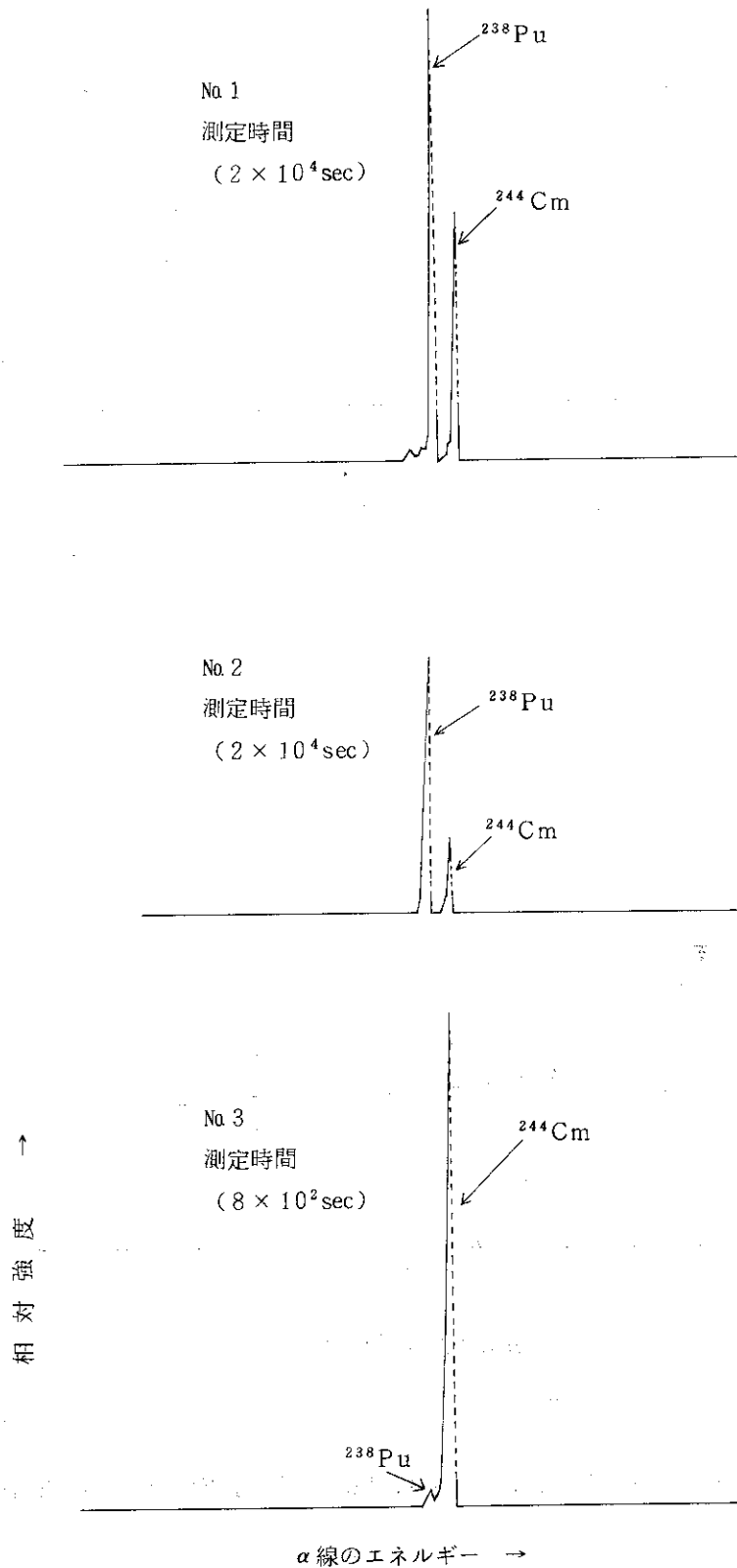


Fig. 4 各浸出液の α 線スペクトル