

JAERI - M  
84-146

模擬ガラス固化体の中性子照射試験

1984年8月

中村治人・松本征一郎・額賀 清\*・桐山雄二\*\*

妹尾宗明・村岡 進・田代晋吾

日 本 原 子 力 研 究 所  
Japan Atomic Energy Research Institute

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊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 榎高野高速印刷

模擬ガラス固化体の中性子照射試験

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

中村 治人・松本征一郎・額賀 清\*・桐山 雄二\*\*  
妹尾 宗明・村岡 進・田代 晋吾

(1984年7月25日受理)

高レベル廃棄物中に含まれる放射性核種からの放射線によるガラス固化体の特性への影響を調べるため、JMTR で中性子照射した模擬ガラス固化体の性質の変化を調べた。

最も大きな影響の1つに $\alpha$ 線照射によるものがある。ガラスの中性子照射による $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応からの $\alpha$ 粒子の数は高レベル廃棄物中の全ての放射性核種が崩壊する場合について計算した値の約1.3倍であると推定される。ガラス中の $\gamma$ 線線量率、熱勾配等の照射条件は、処分時の値より厳しい条件であった。浸出率は約3倍であり、密度の変化は1%以下であった。

実験の結果より廃棄物中の放射性核種からの $\alpha$ 粒子による性質の変化はわずかであると予想された。

---

\* 東電環境エンジニアリング株式会社外来研究員

\*\* 旭ガラス株式会社外来研究員

Neutron Irradiation Test of Simulated  
Waste Glass Form

Haruto NAKAMURA, Seiichiro MATSUMOTO, Kiyoshi NUKAGA\*,  
Yuji KIRIYAMA\*\*, Muneaki SENOO, Susumu MURAOKA and  
Shingo TASHIRO

Department of Environmental Safety Research,  
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received July 25, 1984)

Changes of the characteristics of the simulated glass waste form by neutron irradiation in JMTR were investigated to study the effects of radiation from the nuclides contained in the high level waste.

One of the most dominant effect would be induced by radiation. The number of the  $\alpha$  particles from  $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$  reaction by the neutron irradiation of the glass was estimated to be about 1.3 times as the number calculated for the decay out of all radionuclides in high level waste. The irradiation conditions such as  $\gamma$ -radiation dose rate and thermal flux in the glass were more serious than the ones of the disposal condition. The leachability increased 3 times and the changes of the density were less than 1 %.

The results showed that the minor change of the characteristics will be expected by the  $\alpha$  particles from radionuclides in the waste.

Keywords: High level waste, Radiation, Leachability, Density,  
Thermal flux

---

\* Toden Environmental Engineering Co.,Ltd.

\*\* Asahi Glass Co.,Ltd.

## 目 次

1. まえがき .....	1
2. 中性子照射条件及び処分時の条件との比較 .....	1
(1) 試験の概要 .....	1
(2) 中性子照射試験の調製 .....	1
(3) 照射条件 .....	1
(4) 放射性核種の生成量と元素変換量 .....	2
3. 方法, 結果及び考察 .....	6
(1) 外観, 寸法, 重量及び密度 .....	6
(2) 浸出率 .....	8
(3) 粒子トラックに基づく考察 .....	10
4. まとめ .....	11
参考文献 .....	12

CONTENTS

1. Introduction .....	1
2. Conditions on neutron irradiation and comparison with the disposal conditions .....	1
(1) Outline of the experiments .....	1
(2) Preparation of the samples for neutron irradiation .....	1
(3) Irradiation conditions .....	1
(4) The amount of radioactive products and nuclide transformations .....	2
3. Methods, results and discussion .....	6
(1) View of the surface, size, weight and density .....	6
(2) Leach rate .....	8
(3) Discussions based on the particle track .....	10
4. Conclusion .....	11
References .....	12

## 1. ま え が き

高レベル廃棄物中に含まれる放射性壊変によるガラス固化体の特性への影響を調べる方法としては、短寿命の $\alpha$ 放射体を多量に入れて試験する、いわゆる $\alpha$ 加速試験が一般に採用されている。WASTEFにおいても $^{244}\text{Cm}$ を使った $\alpha$ 加速試験を実施している<sup>1)</sup>。本報では、ガラス成分であるBと中性子との反応による $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応で $\alpha$ 粒子と $^7\text{Li}$ 反跳核で $\alpha$ 崩壊を模擬して、固化体の特性への影響を調べた結果について述べる。

中性子照射試験では核反応によって生じる $\alpha$ 線による照射のみでなく、炉内 $\gamma$ 線及び生成核による $\beta$ 及び $\gamma$ 線の照射が同時に起きる。また $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応では高い発熱があるためガラスに大きな温度勾配が生じ、ガラス破損の原因となる。

以上、実ガラス固化体の場合よりも非常に厳しい状態におかれたガラスの特性変化を調べることができる。

照射した試料13本のうち、3本を除いて全て割れてしまった。そのうち2本はセル内の取扱い中に割れた。残った1個も亀裂が生じていた。しかし、明らかに密度の減少及び浸出率の増加が認められた。この変化量について、地球化学における粒子トラックの研究分野で明らかとなっている事実との関係を考察し今後の実験で配慮すべき点を整理した。

## 2. 中性子照射条件及び処分時の条件との比較

### (1) 試験の概要

模擬ガラス固化体試料(10 mm  $\phi$  × 15 mm  $\ell$ )をJMTR(熱中性子束 $1.0^{14}$  n/cm<sup>2</sup>·s)で2時間および222時間照射する。これら試料について、顕微鏡による外観観察、寸法測定、密度測定及び浸出試験を行い照射前の値と比較する。

### (2) 中性子照射試料の調製

模擬ガラス固化体の組成をTable 1に示す。溶融温度は1150℃2時間とした。

JMTRの水カラビットは肉厚10 mmのアルミニウム製であり、試料挿入部は熱伝導をよくするため、ギャップをできるだけ小さくした。全体の構造はFig. 1に示す。

### (3) 照射条件

次の2種類の照射を行った。

- (i) 熱中性子束  $9.95 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>·s      2時間
- (ii) 熱中性子束  $9.95 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>·s      222時間

照射温度は計算により次の温度であったと推定される。

試料の中心温度	223.06℃
〃 表面温度	66.61

## 1. ま え が き

高レベル廃棄物中に含まれる放射性壊変によるガラス固化体の特性への影響を調べる方法としては、短寿命の $\alpha$ 放射体を多量に入れて試験する、いわゆる $\alpha$ 加速試験が一般に採用されている。WASTEFにおいても $^{244}\text{Cm}$ を使った $\alpha$ 加速試験を実施している<sup>1)</sup>。本報では、ガラス成分であるBと中性子との反応による $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応で $\alpha$ 粒子と $^7\text{Li}$ 反跳核で $\alpha$ 崩壊を模擬して、固化体の特性への影響を調べた結果について述べる。

中性子照射試験では核反応によって生じる $\alpha$ 線による照射のみでなく、炉内 $\gamma$ 線及び生成核による $\beta$ 及び $\gamma$ 線の照射が同時に起きる。また $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応では高い発熱があるためガラスに大きな温度勾配が生じ、ガラス破損の原因となる。

以上、実ガラス固化体の場合よりも非常に厳しい状態におかれたガラスの特性変化を調べることができる。

照射した試料13本のうち、3本を除いて全て割れてしまった。そのうち2本はセル内の取扱い中に割れた。残った1個も亀裂が生じていた。しかし、明らかに密度の減少及び浸出率の増加が認められた。この変化量について、地球化学における粒子トラックの研究分野で明らかとなっている事実との関係を考察し今後の実験で配慮すべき点を整理した。

## 2. 中性子照射条件及び処分時の条件との比較

### (1) 試験の概要

模擬ガラス固化体試料(10 mm  $\phi$  × 15 mm  $\ell$ )をJMTR(熱中性子束 $1.0^{14}$  n/cm<sup>2</sup>·s)で2時間および222時間照射する。これら試料について、顕微鏡による外観観察、寸法測定、密度測定及び浸出試験を行い照射前の値と比較する。

### (2) 中性子照射試料の調製

模擬ガラス固化体の組成をTable 1に示す。溶融温度は1150℃2時間とした。

JMTRの水カラビットは肉厚10 mmのアルミニウム製であり、試料挿入部は熱伝導をよくするため、ギャップをできるだけ小さくした。全体の構造はFig. 1に示す。

### (3) 照射条件

次の2種類の照射を行った。

- (i) 熱中性子束  $9.95 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>·s      2時間
- (ii) 熱中性子束  $9.95 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>·s      222時間

照射温度は計算により次の温度であったと推定される。

試料の中心温度	223.06℃
” 表面温度	66.61



水カラビット内面温度	48.33°C
“ 外面温度	45.10

なお、これらの値は一次元熱計算コード GENGTC により次の条件で計算した結果である。

前提条件	ガラス固化体中の B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 含有量 18.5%
密度	$\rho_{24^\circ\text{C}}$ 2.69
	$\rho_{51^\circ\text{C}}$ 2.65
熱膨張率	$8.46 \times 10^{-7} / ^\circ\text{C}$ (室温~300°C)
ガラス固化体の熱伝導率	

温度	熱伝導率 W/m°C
27	1.051
98	1.226
186	1.262
268	1.338
359	1.446
418	1.457

JMTR 冷却水 40°C

水カラビット内径 10.32 mm  $\phi$ , ガラス固化体外径 10.0 mm  $\phi$  でこれを厚さが 17 ミクロンのアルミ箔で包み、ヘリウムガスのガスギャップを考慮して計算した。

試料発熱量計算式

$$Q' = Q_E \times \sigma_a \times \langle \phi_{th} \rangle \times F_z \times \beta \times n_{10} \times f$$

ここで、 $Q_E$  : <sup>10</sup>B の (n,  $\alpha$ ) 反応当りのエネルギー

$$3.68 \times 10^{-13} \text{ (J)}$$

$$\sigma_a : ^{10}\text{B の熱中性子吸収断面積 } 3820 \times 10^{-24} \text{ (cm}^2\text{)}$$

$$\langle \phi_{th} \rangle : \text{熱中性子束 } 9.95 \times 10^{13} \text{ (n/cm}^2\text{ sec)} \text{ (ラビット2号機)}$$

$$F_z : \text{ピーキング係数 } 1.32$$

$$\beta : \text{ディプレッション係数 } 0.1$$

$$f : \text{スペクトル補正係数 } 0.8376$$

$$n_{10} : \text{単位質量当りの } ^{10}\text{B の個数 } 6.50 \times 10^{20} \text{ n/g}$$

$$Q' = 10.05 \text{ (W/g)}$$

試料半径方向 W/cm に換算すると

$$Q = 10.05 \times 2.65 \times 0.5^2 \pi = 20.92 \text{ (W/cm)}$$

アルミ箔部の熱伝導率 (実験式)

$$0.69 \times 10^{-2} + 0.26 \times 10^{-5} T \text{ (W/cm} \cdot ^\circ\text{C)}$$

冷却水温度 40°C

冷却水, ラビット間表面熱伝達率 1.16 W/cm<sup>2</sup>°C

処分時のガラス固化体の発熱量は約 0.002 W/g 以下である。

#### (4) 放射性核種の生成量と元素変換量

照射終了約1年後の試験時における放射能を上記照射条件で計算した結果を Table 2 に示す。主

な生成核種は  $^{152}\text{Eu}$  と  $^{134}\text{Cs}$  であり、222時間照射の場合それぞれ  $3.2\text{ mCi/g}$  及び  $1.9\text{ mCi/g}$  である。

$^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$  反応による  $\alpha$  粒子の放出密度は前記発熱量  $Q'$  を核反応熱  $3.68 \times 10^{-13}\text{ J}$  /個で除することにより求められ、222時間照射の場合  $2.16 \times 10^{19}$  個/g である。この  $\alpha$  粒子の個数は永久年数での  $\alpha$  崩壊個数の 1.3 倍である。2時間の場合は  $1.98 \times 10^{17}$  個/g で 26 年に相当する。

$^{10}\text{B}$  以外の原子も含め全ての原子の変換個数を計算すると 222時間照射の場合  $2.69 \times 10^{19}$  個/g である。これは永久年数での廃棄物中の原子の変換個数  $5.8 \times 10^{19}$  個/g の約  $\frac{1}{2}$  である。また炉内の  $\gamma$  線線量率は  $7.8 \times 10^8\text{ R/hr}$  であり廃棄物の  $\gamma$  線線量率は  $1.43 \times 10^5\text{ R/hr}$  である。

Table 1 試験用模擬廃棄物固化体組成

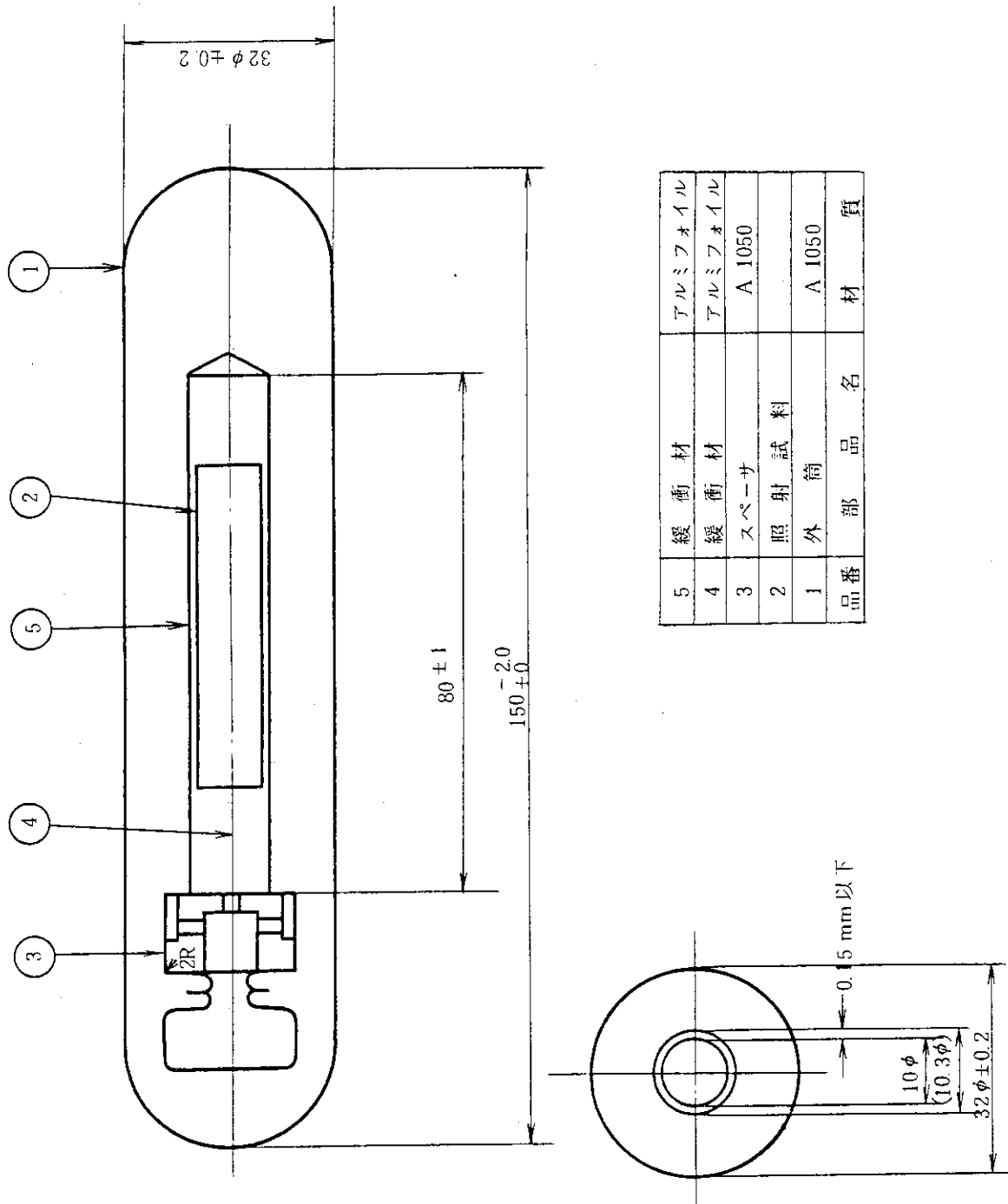
SiO <sub>2</sub>	48.49 %
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	18.58
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.00
Li <sub>2</sub> O	1.865
Na <sub>2</sub> O	11.30
CaO	1.865
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.96
Zr-fine(ZrO <sub>2</sub> 換算)	1.22
Rb <sub>2</sub> O	0.115
SrO	0.320
Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.189
ZrO <sub>2</sub>	1.553
MoO <sub>3</sub>	1.640
MnO <sub>2</sub>	0.244
RuO <sub>2</sub>	0.922
Rh <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.192
PdO	0.504
TeO <sub>2</sub>	0.215
Cs <sub>2</sub> O	0.924
BaO	0.591
La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.480
CeO <sub>2</sub>	1.282
Pr <sub>6</sub> O <sub>11</sub>	0.469
Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.560
Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.309
SeO <sub>2</sub>	0.020
Ag <sub>2</sub> O	0.028
CdO	0.029
SnO <sub>2</sub>	0.018
Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.005
Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.059
Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.036
合計	99.98 %

Table 2 中性子照射模擬ガラス固化体に  
含まれる放射性核種

2時間照射		1.25年経過後	
核種		放射能 (mCi/g)	
Ru-103		$2.57 \times 10^{-6}$	
Te-125m		$2.13 \times 10^{-8}$	
Cs-134		$1.64 \times 10^{-2}$	
Eu-152		$2.87 \times 10^{-2}$	

222時間照射		1.0年経過後	
核種		放射能 (mCi/g)	
Ru-103		$1.32 \times 10^{-3}$	
Te-125m		$6.67 \times 10^{-6}$	
Rb-86		$2.77 \times 10^{-7}$	
Cs-134		$1.91 \times 10^0$	
Eu-152		$3.17 \times 10^0$	



5	緩衝材	アルミファイバー	材質
4	緩衝材	アルミファイバー	材質
3	スペーサ	A 1050	材質
2	照射試料		
1	外筒	A 1050	材質
品番	部品名	材質	

Fig. 1 中性子照射試料用水力ラビット概略図

## 3. 方法、結果及び考察

## (1) 外観、寸法、重量及び密度

## (a) 外観観察

ペリスコープを通して、肉眼及び顕微鏡で観察した。

中性子照射前後の試料についての外観観察の状況を Table 3 に示す。また、それぞれの試料の写真を P10 に示す。照射試料 13 本中 10 本が破損し、割れずに採り出せた試料も微細なクラックが存在し、その後の密度測定など途中で破損し最後まで割れずに残った試料は A007(a)1 本のみであった。

## (b) 寸法測定

照射中に破損せず採り出せた 3 試料についての寸法測定結果を Table 4 に示す。測定にはマイクロメータを使用した。

Table 4 中性子照射ガラス固化体寸法測定結果

試料No (ラビットNo)	照射前後 (照射時間)	外 径 (mm)		長 さ (mm)	
		長 さ	変 化 (%)	長 さ	変 化 (%)
A 0 0 2 (c)	照 射 前	9.98	+0.35	14.90	+0.68
	照射後 (2 時間)	10.01		15.001	
A 0 0 7 (a)	照 射 前	10.17	+0.29	15.55	+0.01
	照射後 (222 時間)	10.194		15.552	
A 0 0 7 (c)	照 射 前	10.14	+0.98	15.45	+0.08
	照射後 (222 時間)	10.24		15.437	

Table 4 に示すように、照射後試料はスウェリングを起し、照射前試料に比較して約 +0.5% 前後の変化を示していた。

## (c) 密度測定

密度測定装置はメトラーPK-300を内蔵した水置換法による測定装置を使用した。空気中での試料の重量測定は110℃で1時間電気炉で乾燥後秤量した。密度測定結果を Table 5 に示す。

Table 5 中性子照射ガラス固化体密度測定結果

試料No	中性子 照射時間	照 射 前		照 射 後		密 度	密 度
		温度℃	密 度	温度℃	密 度	変 化	変 化 率 (%)
A007(a)	222	30	2.655	30	2.634	-0.021	-0.790
A007(c)	222	30	2.658	30	2.635	-0.023	-0.865

Table 5 より、密度変化率は1.0%以下である。中性子照射222時間でのガラス固化体の壊変核種の原子数は計算上  $2.16 \times 10^{19}$  個/g になる。

Table 3 JMTR照射用ガラス固化体の照射前及び照射後の外観状況

(A) 58サイクル (昭和57年3月13日～4月7日) (寸法 単位: mm)

試料 No.	ラビット No.	試料寸法	照射時間	寸法		重量 g	照射前外観検査	照射後外観検査	写真撮影
				外径	長さ				
1	A 001	10φ×50ℓ	2	10.01	10.00	10.41	表面に小さい黄色スジ1本	中央部より4個に割れる最大片15mmℓ採取	ペリスコープ
2	A 002 (a)	10φ×15ℓ	"	10.01	—	3.11	円筒面に小さいピット研磨砂付着	3個に割れている	写真
3	" (b)	"	"	10.00	—	3.10	黄色スジ小さい1本, 薄いヘアクラック1本円筒面に	8個に割れている	写真
4	" (c)	"	"	9.98	—	3.07	円筒面より底面にかけてクラック1本, 砂ピット有	割れずに採取	ペリスコープ側面, 底面
5	A 003	10φ×50ℓ	"	10.00	10.03	10.43	素地ムラ目立つ, 砂ピット有り	4個に割れている。30mm長のところで割れる	ペリスコープ

(B) 59サイクル (昭和57年6月9日～7月4日)

試料 No.	ラビット No.	試料寸法	照射時間	寸法		重量 g	照射前外観検査	照射後外観検査	写真撮影
				外径	長さ				
10	A 006	10φ×15ℓ	222	10.09	10.06	10.75	脈理少し目立つのみ	無数に割れている	写真
11	A 007 (a)	10φ×15ℓ	"	10.17	—	3.32	脈理少々, エッチ部に金属片1個	完全な姿で採取される表面に取扱いキズ少々	ペリスコープ
12	A 007 (b)	10φ×15ℓ	"	10.03	—	3.21	エッチ部にピット1個脈理少し	4個に割れる脈理, クラック目立つ	ペリスコープ
13	A 007 (c)	10φ×15ℓ	"	10.14	—	3.27	きれいで欠点なし	完全な姿で採取されるクラック少々	ペリスコープ

注1) 試料No.6～9に対応するラビットNo.A 004, A 005(a), (b), (c)はJMTR ホットラボ開封時に破損

注2) WASTE 持ち込み時破れずに採取出来た試料

A 002(c), A 007(a), A 007(c)の3本

注3) 測定場所 長さ15ℓ試料では中央部でのX, Y方向, 長さ50ℓ試料では両端より10mmひかえた点での2点X, Y方向測定しての平均値を示す。

(2) 浸出試験

No.4 ホットセル内のソックスレー型浸出試験装置を使用して、イオン交換水による7日間（168時間）の浸出減量率測定を実施した。各試料は浸出率測定前にエチルアルコールで洗浄し、浸出率測定後の試料は110℃、1時間電気炉で乾燥し重量を測定した。その測定結果を Table 6 に示す。

Table 6 中性子照射ガラス固化体浸出試験結果（ソックスレー型）

試料No.	照射前試料浸出試験				照射後試料浸出試験			
	浸出前 重量(g)	浸出後 重量(g)	重量減少		浸出前 重量(g)	浸出後 重量(g)	重量減少	
			(g)	(%)			(g)	(%)
試料(1)	3.2099	3.2044	0.0455	1.400%	1.910 <sup>*1</sup>	1.868	0.042	2.199%
試料(2)	3.2230	3.2260	0.0370	1.134	3.323 <sup>*2</sup>	3.190	0.133	4.002
試料(3)	2.9394	2.9303	0.0391	1.317	1.332 <sup>*3</sup>	1.273	0.095	7.132
平均				1.284				4.444

注 \*1 照射時間2時間 \*2, \*3 照射時間222時間  
 \*1 試料A002(c), \*2 試料A007(a), \*3 試料A007(c)

照射後の浸出試験用試料3個のうち、破損してないのは、\*2 試料(A007(a))のみで、他の2試料は、密度測定段階で破損し、破損ブロックのまま測定した。未破損試料\*2 試料でも浸出試験終了後、外観上ヒビ破れが表面に目立った。

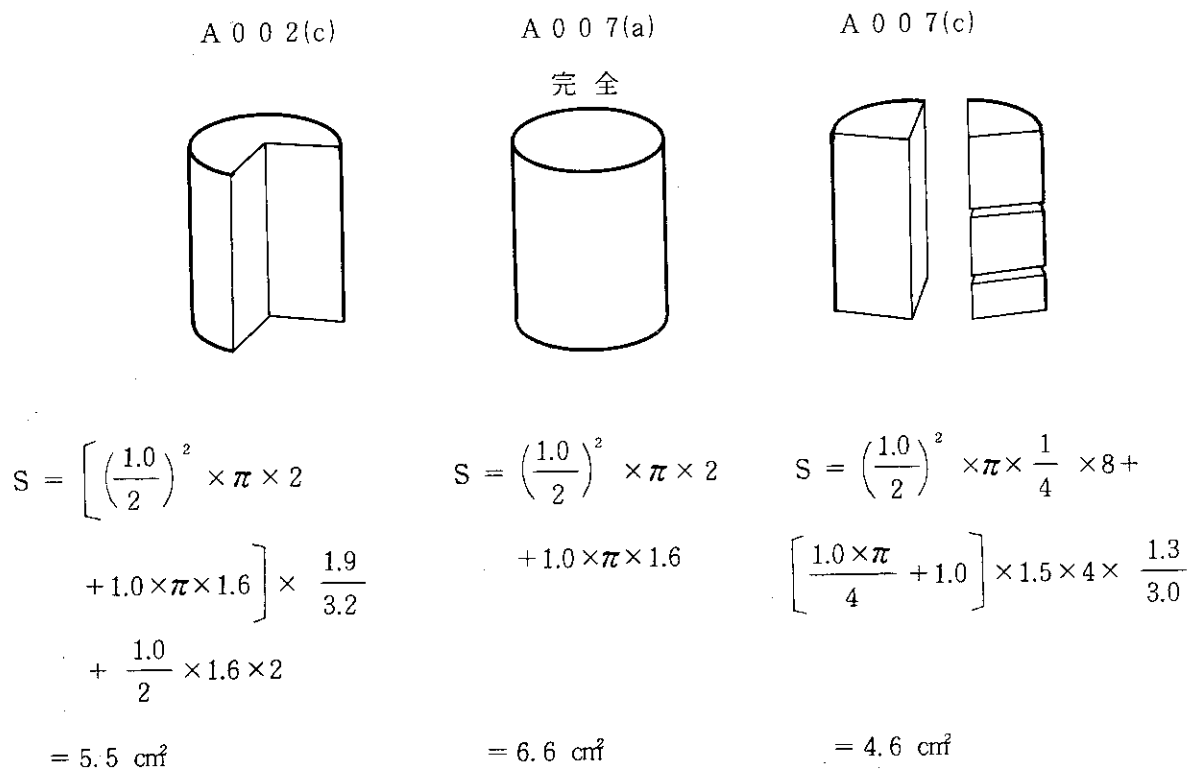
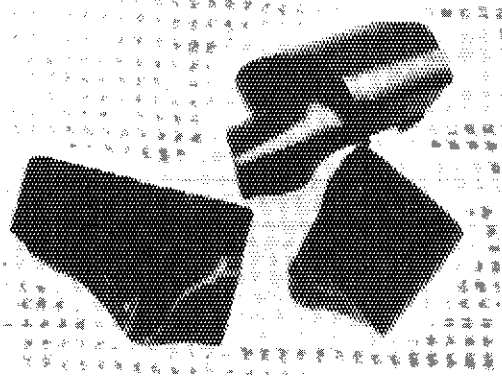
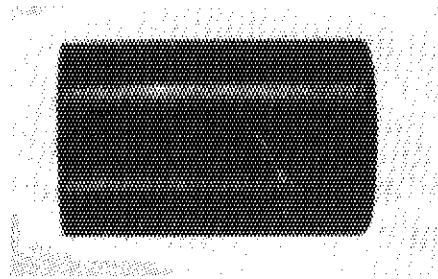


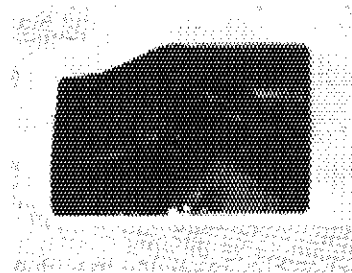
Fig. 2 表面積概算のために仮定した形状



A 0 0 7 ( c )



A 0 0 7 ( a )



A 0 0 2 ( c )

写真 中性子照射後のガラス固化体



馬場ら<sup>2)</sup>の報告によると開いていない亀裂は浸出にはほとんど影響がない。そこで、写真に基づいてそれぞれ Fig. 2 のように形状を仮定して、単位重量当りの表面積を求めた。この表面積を使って単位表面積当りの浸出率を求め Table 7 に示す。2 時間の照射ではほとんど変化しないのに対し、2 2 2 時間照射した場合は約 3 倍の浸出率になることがわかった。

Table 7 形状を仮定し単位表面積当りの  
浸出率に換算した値

照射 (h)	前			後		
	重量減 (g)	表面積 (cm <sup>2</sup> )	浸出率 (g/cm <sup>2</sup> ·d)	重量減 (g)	表面積 (cm <sup>2</sup> )	浸出率 (g/cm <sup>2</sup> ·d)
1 2	0.0455	6.6	$9.8 \times 10^{-4}$	0.042	5.5	$1.1 \times 10^{-3}$
2 2 2	0.0370	6.6	$8.0 \times 10^{-4}$	0.133	6.6	$2.9 \times 10^{-3}$
3 2 2 2	0.0391	6.6	$8.4 \times 10^{-4}$	0.095	4.6	$3.0 \times 10^{-3}$

### (3) 粒子トラックの検出に基づく考察

地球化学の分野では $\alpha$ 粒子あるいは反跳核のトラックは薬品で侵食されやすいことを利用してエッチングによりトラック数を数えることが行われている。この現象に基づき、密度減少及び浸出率の増加についてその機構を考察する。

#### (i) 密度変化

本実験の 2 2 2 時間照射、 $2.2 \times 10^{19}$  個/g の $\alpha$ 粒子の放出の場合約 0.8% の密度減少があった。種々の報告<sup>3)</sup>によるとガラスの種類により密度が増加したり減少したりし、複雑な現象であるが、その変化率は 1% 以下である。Webber らの報告によると約  $1 \times 10^{18}$  個/g では変化率が少なくなる。この報告から考え、本実験では充分多い $\alpha$ 粒子の放出があり、測定値は飽和値を示すと推察される。

$\alpha$ 粒子のトラックの巾は約 20 Å であり、最大飛程は約 5  $\mu$ m といわれている。このトラックの体積を円筒状として計算すると  $3 \times 10^{-17}$  cm<sup>3</sup> となる。お互に重ならないとすると約  $3 \times 10^{16}$  個/cm<sup>2</sup> でガラスの全てが $\alpha$ 線のトラックでおおわれることとなる。密度変化を起す機構として局部的溶融あるいはクラック生成が考えられる。それはトラックの一部に起ると考えられる。仮に  $1 \times 10^{18}$  個/g (比重 3 g/cm<sup>3</sup> とし  $3 \times 10^{18}$  個/cm<sup>3</sup>) が変化領域の飽和値とすると $\alpha$ 粒子 1 個による変化領域は  $3 \times 10^{-19}$  cm<sup>3</sup>/個 となる。すなわち、トラックの約 1% の領域が密度変化に関与することとなる。この仮定で考えると本実験の場合平均約 27 回いづれの領域も変化領域に入ったこととなる。

#### (ii) 浸出率増加

黒よう石を HF によりエッチングした時の侵食状態をモデル的に計算した例を Fig. 3 に示す。トラック周辺の影響領域とその他の領域での侵食速度が異なるため、楔状に侵食が進む。その後周辺の侵食が進むにつれてエッチング部がぼける。このモデルでは影響領域の侵食速度は約 2 倍である。

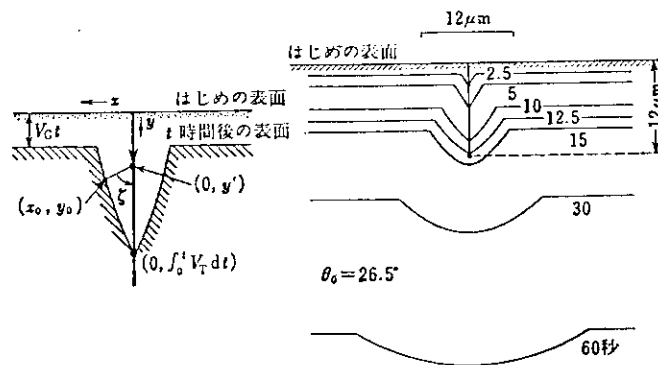


Fig. 3 トラック形状の計算例

黒曜石 [Phys. Rev. 188, 563 (1969)]

浸出試験では侵食剤が蒸留水である。蒸留水の方が HF より侵食性が明らかに劣るが、ここでは影響領域とその他の領域での耐食性の相対比が問題である。もし  $\alpha$  粒子の影響が局部溶融、クラック生成等物理的なものであれば蒸留水の場合も HF の場合と同程度の相対比であることはありうる。すなわち、 $\alpha$  粒子による影響領域で 3 倍程度の浸出率の増加はこのような地球化学的研究の情報からも考えうる数値である。また、2 時間照射の場合 ( $1.98 \times 10^{17}$  個/g) では前節の仮定から考えると飽和値の約  $\frac{1}{5}$  であり浸出率への影響がほとんど検出できないことも納得できる。

#### 4. ま と め

模擬ガラス固化体を JMTR で中性子照射し、物性変化を調べた。この照射条件で  $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$  反応から生ずる  $\alpha$  粒子の数は廃棄物を無限大時間放置したときの  $\alpha$  崩壊による  $\alpha$  粒子の放出量の約 1.3 倍である。

熱条件も温度勾配約  $300^\circ\text{C}/\text{cm}$ 、中心温度約  $200^\circ\text{C}$  である。すなわち、放射線に関連しては実際の場合より極めて厳しい環境にさらされた試料について特性試験を行った。

その結果、浸出率の増加は約 3 倍、密度変化は 1% 以下であるとの結論を得た。

また、 $\alpha$  崩壊の影響について、粒子トラックの影響領域の大きさの見積りの観点から考察を加えた。その結果、本実験の結果はその観点からも不自然な数値ではないとの結論に達した。

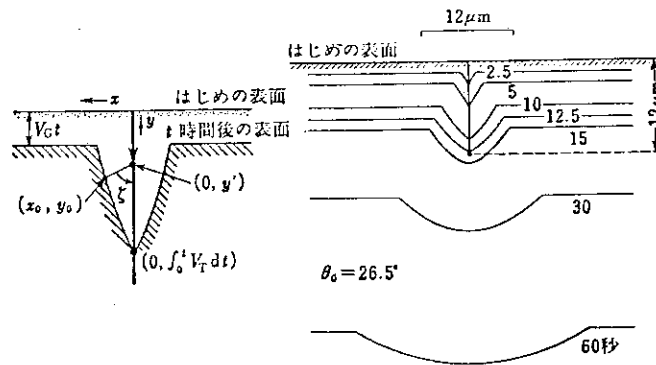


Fig. 3 トラック形状の計算例

黒曜石 [Phys. Rev. 188, 563 (1969)]

浸出試験では侵食剤が蒸留水である。蒸留水の方が HF より侵食性が明らかに劣るが、ここでは影響領域とその他の領域での耐食性の相対比が問題である。もし  $\alpha$  粒子の影響が局部溶融、クラック生成等物理的なものであれば蒸留水の場合も HF の場合と同程度の相対比であることはありうる。すなわち、 $\alpha$  粒子による影響領域で 3 倍程度の浸出率の増加はこのような地球化学的研究の情報から考えうる数値である。また、2 時間照射の場合 ( $1.98 \times 10^{17}$  個/g) では前節の仮定から考えると飽和値の約  $\frac{1}{5}$  であり浸出率への影響がほとんど検出できないことも納得できる。

#### 4. ま と め

模擬ガラス固化体を JMTR で中性子照射し、物性変化を調べた。この照射条件で  $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$  反応から生ずる  $\alpha$  粒子の数は廃棄物を無限大時間放置したときの  $\alpha$  崩壊による  $\alpha$  粒子の放出量の約 1.3 倍である。

熱条件も温度勾配約  $300^\circ\text{C}/\text{cm}$ 、中心温度約  $200^\circ\text{C}$  である。すなわち、放射線に関連しては実際の場合より極めて厳しい環境にさらされた試料について特性試験を行った。

その結果、浸出率の増加は約 3 倍、密度変化は 1% 以下であるとの結論を得た。

また、 $\alpha$  崩壊の影響について、粒子トラックの影響領域の大きさの見積りの観点から考察を加えた。その結果、本実験の結果はその観点からも不自然な数値ではないとの結論に達した。

参 考 文 献

- 1) 田代 他 "α加速試験 その1 試験目的と装置" JAERI-M to be published
- 2) 田代 "Progress report on safety research of high-level waste management for the period April, 1981 to May, 1982" JAERI-M 82-145 (1982)
- 3) Mendel, J. E "High-Level Waste Glass" Nucl. Technol. 32, (1) 84 (1977)