

JAERI-M

8 5 7 3

容器入りガラス固化体の安全性試験(I)

(容器入り高レベル模擬ガラス固化体の熱伝導度測定)

1979年11月

三田村久吉・妹尾 宗明・田代 晋吾

馬場 恒孝・天野 恕

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

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、複製などのお問合せは、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.

容器入りガラス固化体の安全性試験（Ⅰ）
（容器入り高レベル模擬ガラス固化体の熱伝導度測定）

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

三田村久吉・妹尾 宗明・田代 晋吾

馬場 恒孝・天野 恕

（1979年10月25日受理）

本試験は、容器入り高レベル模擬ホウケイ酸ガラス固化体について、①容器入り高レベルガラス固化体の熱伝導度測定法を確立し、熱伝導度の温度依存、廃棄物含有率依存を明らかにすること、および、②熱伝導度の実測値を用いて、高レベルガラス固化体の最大許容半径と含有率の関係を求め、総合的安全評価における熱伝導度の位置づけを明確にすることを目的とした。

この結果として、350°Cから750°Cまでの熱伝導度測定から、①熱伝導度が700°C付近より急激な増加を示す、②含有率が6w/o付近に最大値をもつ、③軟化点以上の高温域では、10w/o以上で、含有率が増加するにつれて熱伝導度が低下する、④軟化点以下の低温域では、10w/o以上で、含有率が増加するにつれて熱伝導度が増加することが分った。さらに、これらの実測値を使って、最大許容半径を推定し、総合的安全評価における熱伝導度の位置づけを行なった。

Safety Evaluation of Encapsulated Vitrified Products (I),
Thermal Conductivity of Encapsulated Borosilicate Glass
with Simulated High-Level Waste

Hisayoshi MITAMURA, Muneaki SENOO, Shingo TASHIRO,
Tsunetaka BANBA and Hiroshi AMANO

Division of Environmental Safety Research, Tokai Research
Establishment, JAERI

(Received October 25, 1979)

The steady state heat flow method was studied to establish a thermal conductivity measuring method for vitrified HLW in a canister. Thermal conductivity of encapsulated borosilicate glass with simulated HLW was measured between 350 and 750°C with different contents up to 25 wt%. The thermal conductivity increased abruptly near 700°C. The thermal conductivity had a maximum for about 6 wt% of the waste content. Above 600°C, the thermal conductivity decreased for waste contents beyond 10 wt%. Below 500°C, the thermal conductivity increased for waste contents beyond 10 wt%. Assuming the central and the surface temperature of HLW glass product to be 500 and 350°C respectively, the surface area per gramme waste calculated is smaller as the concentration. The leachability must be high at very high concentration of the waste, so that there will be an optimal concentration for the safety. From the leachability, the thermal conductivity in overall safety evaluation was examined.

Keywords; Steady-State Heat Flow Method, High-Level Waste, Thermal Conductivity, Leachability, Safety Evaluation, Vitrified Product, Encapsulated Borosilicate Glass.

目 次

1. 序 論	1
2. 热伝導度の測定原理	1
3. 実 験	2
3.1 実験の概要	2
3.2 試験試料の調製	2
3.2.1 模擬廃液の調製	2
3.2.2 ガラス固化体の作製	3
3.3 実験装置	3
3.3.1 測定容器	3
3.3.2 外部加熱炉	3
3.4 測定方法	3
3.4.1 密度測定	3
3.4.2 热源用電力測定	4
3.4.3 温度測定	4
3.4.4 測温部位置測定	4
4. 実験結果及び考察	5
4.1 密度の廃棄物含有率依存	5
4.2 热伝導度の温度依存	5
4.3 热伝導度の廃棄物含有率依存	5
4.4 ガラス固化体の最大許容半径	6
4.4.1 固化体モデル	6
4.4.2 最大許容半径の推定	6
4.5 固化体表面積の含有率依存	7
4.6 総合的安全評価における热伝導度の位置づけ	7
5. 結 論	8
謝 辞	8
参考文献	8
付 錄	10

Contents

1. Introduction	1
2. Theory of the measurement method of thermal conductivity	1
3. Experiments	2
3.1 Outline of experiments	2
3.2 Preparation of specimens	2
3.2.1 Preparation of simulated HLW	2
3.2.2 Preparation of encapsulated HLW glass product	3
3.3 Apparatus	3
3.3.1 Canister with an inner heater and P-R thermocouples ...	3
3.3.2 Outer furnace	3
3.4 Measurement methods	3
3.4.1 Density	3
3.4.2 Electric power supply to the inner heater	4
3.4.3 Temperature	4
3.4.4 Detection of positions of the inner heater and P-R thermocouples	4
4. Results and discussion	5
4.1 Variation of the density with waste contents	5
4.2 Dependency of thermal conductivity with temperature	5
4.3 Dependency of thermal conductivity with waste contents	5
4.4 Maximum permissible radius of encapsulated HLW glass product	6
4.4.1 Model	6
4.4.2 Estimation of maximum permissible radius	6
4.5 Dependency for surface area of HLW glass product with maximum permissible radius by waste contents	7
4.6 Role of thermal conductivity for overall safety evaluation of HLW glass product	7
5. Conclusion	8
Acknowledgment	8
Bibliography	8
Appendix	10

1. 序 論

原子力発電に伴う放射性廃棄物は、人間に長期間にわたる放射線被曝をもたらす点で、他の工業廃棄物とは異なった管理が必要とされる。中でも、使用済み燃料の再処理工程で発生する高レベル放射性廃液（HLW）は、放射能濃度が格段に高いため、かなりの崩壊熱が発生する。例えば軽水炉の使用済燃料（平均比出力 30 MW/MT, 燃焼度 33 GWD/MT）を炉取り出し後 150 日で再処理した場合、燃料 1 MT当たりの HLW から、再処理後 1 年で約 10 KW, 10 年後でも約 1 KW の崩壊熱が発生する¹⁾。したがって、放射性核種の長期固定のため、HLW を安定な固化体にして貯蔵、処分するとき、放射性核種の漏洩の他に、崩壊熱に起因した①運搬、貯蔵、処分時の熱除去対策、②温度上昇による固化体物性の変化、③放熱による貯蔵、処分地周辺への影響が問題となってくる。

現在、HLW の固化体としては、化学的安定性が良く、容易に大量の固化体が作製でき、原料の入取し易いホウケイ酸ガラス固化体が世界的な主流となっている²⁾。ガラス固化体は、さらに金属製の円筒容器に封入され、運搬、貯蔵、処分時には水冷又は空冷される。このとき、ガラス固化体中心では、温度がかなり高くなるものと推定される。このような温度分布がガラス固化体内に維持された場合、ガラス固化体の溶融や失透、放射性核種の揮発が問題となってくる。これらの現象が進行したときには、ガラス固化体内での不均一化が起こり、放射性核種が浸出し易くなることも考えられる。したがって、崩壊熱による固化体物性の変化は、安全評価の面から見て特に重要な評価項目となっている。

本報では、固化体物性のうち、固化体内の温度分布を決定する熱伝導度に注目し、容器入り高レベル模擬ホウケイ酸ガラス固化体を取り上げた。このガラス固化体について、①容器入り HLW ガラス固化体の熱伝導度測定法を確立し、熱伝導度の温度依存、廃棄物含有率依存を明らかにすること、及び②実測によって得られた熱伝導度を用いて、ガラス固化体の最大許容半径と含有率の関係を求め、総合的安全評価における熱伝導度の位置づけを明確にすることを目的とした。

2. 熱伝導度の測定原理

固化体の熱伝導度を測定する方法は、定常法と非定常法に大別される。すなわち、試料内の温度分布が時間に依らない定常な状態に保たれたとき、異なる位置での温度差から熱伝導度を求める定常法と、試料内の温度分布が時間とともに変化する非定常の状態において、ある位置での温度の時間変化から温度伝導度を求める非定常法である。両方法は、表 1 に示すように、さらに細かく分類される^{3) 4) 5) 6) 7)}。

本試験の熱伝導度測定は、円筒容器に入ったままのガラス固化体について、溶融状態となる高温域までの測定を必要とした。このため、①容器の対称性が利用でき、②試料の成形の必要が無く、③溶融状態でも測定できて、④HLW ガラス固化体にも応用できる定常法の中の熱源加熱式

1. 序論

原子力発電に伴う放射性廃棄物は、人間に長期間にわたる放射線被曝をもたらす点で、他の工業廃棄物とは異なった管理が必要とされる。中でも、使用済み燃料の再処理工程で発生する高レベル放射性廃液（HLW）は、放射能濃度が格段に高いため、かなりの崩壊熱が発生する。例えば軽水炉の使用済燃料（平均比出力 30 MW/MT, 燃焼度 33 GW/WD/MT）を炉取り出し後 150 日で再処理した場合、燃料 1 MT当たりの HLW から、再処理後 1 年で約 10 KW, 10 年後でも約 1 KW の崩壊熱が発生する¹⁾。したがって、放射性核種の長期固定のため、HLW を安定な固化体にして貯蔵、処分するとき、放射性核種の漏洩の他に、崩壊熱に起因した①運搬、貯蔵、処分時の熱除去対策、②温度上昇による固化体物性の変化、③放熱による貯蔵、処分地周辺への影響が問題となってくる。

現在、HLW の固化体としては、化学的安定性が良く、容易に大量の固化体が作製でき、原料の入取し易いホウケイ酸ガラス固化体が世界的な主流となっている²⁾。ガラス固化体は、さらに金属製の円筒容器に封入され、運搬、貯蔵、処分時には水冷又は空冷される。このとき、ガラス固化体中心では、温度がかなり高くなるものと推定される。このような温度分布がガラス固化体内に維持された場合、ガラス固化体の溶融や失透、放射性核種の揮発が問題となってくる。これらの現象が進行したときには、ガラス固化体内での不均一化が起こり、放射性核種が浸出し易くなることも考えられる。したがって、崩壊熱による固化体物性の変化は、安全評価の面から見て特に重要な評価項目となっている。

本報では、固化体物性のうち、固化体内の温度分布を決定する熱伝導度に注目し、容器入り高レベル模擬ホウケイ酸ガラス固化体を取り上げた。このガラス固化体について、①容器入り HLW ガラス固化体の熱伝導度測定法を確立し、熱伝導度の温度依存、廃棄物含有率依存を明らかにすること、及び②実測によって得られた熱伝導度を用いて、ガラス固化体の最大許容半径と含有率の関係を求め、総合的安全評価における熱伝導度の位置づけを明確にすることを目的とした。

2. 熱伝導度の測定原理

固化体の熱伝導度を測定する方法は、定常法と非定常法に大別される。すなわち、試料内の温度分布が時間に依らない定常な状態に保たれたとき、異なる位置での温度差から熱伝導度を求める定常法と、試料内の温度分布が時間とともに変化する非定常の状態において、ある位置での温度の時間変化から温度伝導度を求める、これに熱容量を乗じることで熱伝導度を求める非定常法である。両方法は、表 1 に示すように、さらに細かく分類される^{3) 4) 5) 6) 7)}。

本試験の熱伝導度測定は、円筒容器に入ったままのガラス固化体について、溶融状態となる高温域までの測定を必要とした。このため、①容器の対称性が利用でき、②試料の成形の必要が無く、③溶融状態でも測定できて、④HLW ガラス固化体にも応用できる定常法の中の熱源加熱式

径方向熱流法（絶対法）を採用した。この測定法の原理は、①無限に長い均一な円筒固化体の円筒中心に、②発熱速度が一定の線熱源をおき、③外表面温度を一定に保って定常的な温度分布を作ったと仮定したとき、半径の異なる位置にできる温度差を利用したものである。これらの仮定のもとでは、固化体内の熱収支式は次式のように表わされる。

$$-(1/r) \cdot \partial(r \cdot q) / \partial r = 0 \quad (2-1)$$

ここで、 q は熱流速、 r は半径を表わしている。 $(2-1)$ 式を解くと、

$$\lambda = (Q_0 / 2\pi) \ell n (r_2 / r_1) / (T_1 - T_2) \quad (2-2)$$

となり、単位長さ当りの発熱速度 Q_0 、各半径 r 、及びそれぞれの径における温度 T を測定すれば熱伝導度 λ が求まることになる。ただし、ここで求めた熱伝導度は、輻射、対流による熱伝達効果を含む実効的な値を示している。

3. 実験

3.1 実験の概要

本試験では、測定系に対して熱を供給しつつ、同時に除熱を行って温度分布の定常状態を作り出している。除熱は放冷で行った。主な測定項目は、図 1 に示すように、①熱源に供給した電力の測定、②過渡期及び定常状態での温度測定、③測温部の位置測定の 3 つである。

3.2 試験試料の調製

3.2.1 模擬廃液の調製

高レベル放射性廃液の中には、大別すると次の 7 つのものが含まれている。つまり、①核分裂生成物、②未回収 U, Pu とアクチニド、③燃料合金成分、④腐蝕生成物、⑤燃料被覆管成分、⑥再処理工程で加える添加物、⑦溶解毒物質が含まれている²⁾。本試験で用いた模擬廃液は、軽水炉使用済燃料（平均出力比 28 MW/t、燃焼度 28 GWD/t）を再処理して、900 ℓ/t の高レベル廃液が発生する場合をもとにした⁸⁾。成分の模擬は、表 2 に示すように 13 成分で行った。模擬方法は、周期律表で第 4 周期以下の成分はそのまま取り入れた（Na, Cr, Mn, Fe, Ni）。第 5 周期以上に配列されている成分のうち、入取可能な成分はそのまま取り入れた（Sr, Mo, Te, Ba）。入取し難い成分について、第 6 周期の希土類元素は Ca で模擬した。第 5 周期の元素は、極力第 4 周期の同族元素で模擬し（Cs, Rb → K, Zr → Ti, Ru → Fe, Rh → Co, Pd → Ni），この第 4 周期の同族元素が入取し難いものは、第 4 周期の他の元素で模擬した（Y → Fe）。第 5 周期以上の b 族成分で、含有量が比較的少ない成分は除いた（As, Cd, Sn, Sb, Pb）。

径方向熱流法（絶対法）を採用した。この測定法の原理は、①無限に長い均一な円筒固化体の円筒中心に、②発熱速度が一定の線熱源をおき、③外表面温度を一定に保つて定常的な温度分布を作ったと仮定したとき、半径の異なる位置にできる温度差を利用したものである。これらの仮定のもとでは、固化体内の熱収支式は次式のように表わされる。

$$-(1/r) \cdot \partial(r \cdot q) / \partial r = 0 \quad (2-1)$$

ここで、 q は熱流速、 r は半径を表わしている。 $(2-1)$ 式を解くと、

$$\lambda = (Q_0 / 2\pi) \ell n (r_2 / r_1) / (T_1 - T_2) \quad (2-2)$$

となり、単位長さ当たりの発熱速度 Q_0 、各半径 r 、及びそれぞれの径における温度 T を測定すれば熱伝導度 λ が求まることになる。ただし、ここで求めた熱伝導度は、輻射、対流による熱伝達効果を含む実効的な値を示している。

3. 実験

3.1 実験の概要

本試験では、測定系に対して熱を供給しつつ、同時に除熱を行つて温度分布の定常状態を作り出している。除熱は放冷で行った。主な測定項目は、図1に示すように、①熱源に供給した電力の測定、②過渡期及び定常状態での温度測定、③測温部の位置測定の3つである。

3.2 試験試料の調製

3.2.1 模擬廃液の調製

高レベル放射性廃液の中には、大別すると次の7つのものが含まれている。つまり、①核分裂生成物、②未回収U、Puとアクチニド、③燃料合金成分、④腐蝕生成物、⑤燃料被覆管成分、⑥再処理工程で加える添加物、⑦溶解毒物質が含まれている²⁾。本試験で用いた模擬廃液は、軽水炉使用済燃料（平均出力比28MW/t、燃焼度28GWD/t）を再処理して、900ℓ/tの高レベル廃液が発生する場合をもとにした⁸⁾。成分の模擬は、表2に示すように13成分で行った。模擬方法は、周期律表で第4周期以下の成分はそのまま取り入れた（Na、Cr、Mn、Fe、Ni）。第5周期以上に配列されている成分のうち、入取可能な成分はそのまま取り入れた（Sr、Mo、Te、Ba）。入取し難い成分について、第6周期の希土類元素はCaで模擬した。第5周期の元素は、極力第4周期の同族元素で模擬し（Cs→Rb→K、Zr→Ti、Ru→Fe、Rh→Co、Pd→Ni），この第4周期の同族元素が入取し難いものは、第4周期の他の元素で模擬した（Y→Fe）。第5周期以上のb族成分で、含有量が比較的少ない成分は除いた（As、Cd、Sn、Sb、Pb）。

3.2.2 ガラス固化体の作製

調製した模擬廃液はまず 650 °C で仮焼し、その後 1200 °C でガラス固化した。仮焼に際してはロータリーキルン方式による高レベル廃液固化装置を使用した。このとき、生成物がキルン内壁に付着するのを防止するため、添加剤としてアゾジカルボンアミド (2 g/l - 廃液) と 74 μm 以下の粉体にした天然ゼオライト (25.26 g/l - 廃液) を加えた。さらに、添加剤混合後の模擬廃液供給を容易にするため、懸濁化剤としてカルボキシメチルセルローズナトリウム (3.5 g/l - 廃液) の水溶液を廃液の 1/10 量加えた。廃液供給速度は 5 l/h で行い、生成した仮焼体は最終的に一つに集め、仮焼度のばらつきを無くすため十分混合した。

ガラス固化は、高レベル廃液固化装置で作製した仮焼体と表 3 に示す粉体の固化素材を混合し、この試料を連続最大出力 20 KW、周波数 300 KHz ± 40 KHz の高周波誘導加熱炉で溶融して行った。ここで、調合の基準となる仮焼体の酸化物重量は、完全に仮焼された試料を基準にするため、一つに集めた仮焼体の一部に 800 °C、2 h の強熱処理を行い、これから求めた減量率を使って秤量値を補正することにより求めた。さらに、ガラス固化体中の廃棄物含有量は、調合試薬の酸化物換算重量を以って代えた。ガラス固化体の溶融は、1200 °C で 2 h 行い、その後フリーズバルブ方式で流し出した。流し出した溶融ガラス固化体は、600 °C に予熱した SUS 304L 製円筒容器 (内容積約 1.2 l) に受け、焼きなまし炉中で徐冷した。

3.3 実験装置

3.3.1 測定容器

測定容器には、図 2 に示すものを用いた。この容器の寸法は、外径 89.1 mm、高さ 245 mm、厚み 5 mm で、材質は SUS 304 L である。底蓋は溶接し、内部ヒーターと一体となった上蓋は、はめ込み式にした。内部ヒーターと熱電対は、800 °C で再溶融した容器入りガラス固化体中に差し込み、熱電対は、内部ヒーターの縦方向の熱流が無視できる高さに設置した。この位置は、空気中に静置した内部ヒーター表面の温度分布 (図 3) から求めた。

3.3.2 外部加熱炉

測定容器外表面の温度を所定の温度に保持するため、図 4 に示す外部加熱炉を使用した。加熱は、8 KW のカンタル製ヒーターで行い、出力の制御にはサイリスタを用いて比例・積分・微分動作で自動調節した。炉内の温度分布が軸と平行になるように、加熱コイルの配置を考慮した。また対流、輻射による放熱を防ぐため、内蓋をもうけ、さらに断熱材で上蓋のすき間を封じた。この結果、炉内の同一半径における上下での温度差は、高温時にはほとんど見られず、300 °C 以下の低温時でも高々 36 °C であった。

3.4 測定方法

3.4.1 密度測定

測定は、水を用いたアルキメデス法で行った。このときの室温及び水温はともに 24.1 °C であつ

た。試料には、約 800 °C に保った容器入りガラス固化体の一部を掬い取って急冷し、これをアルミナルツボ中で再溶融して徐冷したガラス固化体を用いた。

3.4.2 热源用電力測定

热源用の内部ヒーターには、最大出力 300 W のシーズヒーターを使用した。このヒーターの発熱体には、各温度での抵抗増加率が分かっている Fe - Cr - Al 合金を用いた。シーズは外径 12 mm ϕ で、材質には SUS 310 を使用した。内部ヒーターに供給した電力は、発熱体にかけた電圧と発熱体の抵抗から求めた。発熱体にかけた電圧測定に際しては、内部ヒーターの出力制御にサイリスタを用いているため、実効値表示式ディジタル電圧計を用いた。内部ヒーター用電源には、商用 100 V 交流電源を用いた。この電源は 1 日を通じて最高 3 % の電圧変動が見られた。この変動が熱伝導度の値に及ぼす影響は高々 6 % である。一方発熱体の抵抗としては、室温で測定した抵抗値に、発熱時の温度上昇による抵抗増加分を補正した値を用いた。この補正に用いた発熱体の温度としては、異なる 2 点の温度測定から、(2-2) 式で $Q_0 / 2\pi k$ を一定として温度分布を外そうし、ここから求めた内部ヒーターシーズ表面の温度を採用した。

3.4.3 温度測定

温度測定には、位置測定に使用する X 線ラジオグラフィの解像性を高めるため、X 線吸収係数の大きい P R 热電対を使用した。この P R 热電対には、外径 1.6 mm ϕ のインコネル製シーズをつけ、測温位置を設定し易く、再使用を可能にした。热電対からの出力は、レコーダに記録した。定常の確認はレコーダの記録紙上で行い、所定温度に達した後、その温度が 600 °C 以上では 1.5 h 以上、その温度が 600 °C 未満では 3 h 以上変化が無い場合、定常に達したものとみなした。定常に達した後、デジタル温度計で、各測温部の温度を読み取った。

3.4.4 測温部位置測定

ガラス中に設置された P R 热電対測温部の位置測定には、X 線ラジオグラフィを用いた。位置測定は試料冷却後、室温で行った。撮影には、理学電機社製の X 線発生装置を使用し、電圧 160 KV、電流 5 mA で発生させた X 線を用いた。X 線源とフィルム間の距離は約 60 cm で、フィルムを 3 分間露出した。このとき使用したフィルムは、X 線フィルム工業用サイズ #150 で、カセットには、X 線線源側に厚み 0.1 mm、反対側に厚み 0.2 mm の鉛増感紙を同封した。現像は、現像 4 分、停止 1 分、定着 3 分、その後水洗という手順で行った。热電対の位置は、円筒容器を 30 °ずつ回転させて撮影した 3 ~ 4 枚の写真から図 5 で示す作図を行って求めた。こうして求めた热電対位置の精度は、0.1 mm 以上で これが熱伝導度の値に及ぼす影響は高々 3.3 % である。ここで使用した位置測定装置は、室温での測定に限られているため、高温時のガラス固化体、热電対の膨張に伴う位置の変化は無視した。

4. 実験結果及び考察

4.1 密度の廃棄物含有率依存

室温（24.1 °C）におけるガラス固化体の密度と廃棄物含有率との関係を、図6に示した。この図で、例えば、廃棄物を含まないガラス固化体の密度は 2.58 g/cm^3 、含有量が 25 w/o のガラス固化体は 2.76 g/cm^3 であった。図7から明らかなように、廃棄物含有率が増加するにつれて、密度は増加する傾向にある。これは、含有率の増加に伴って、廃棄物中に含まれる重金属の量が増えることによるものと考えられる。また、廃棄物を含まないガラス固化体では、密度の大きな低下が見られる。これは、廃棄物を含まないガラス固化体の中に空隙が多くなったためと思われる。

4.2 热伝導度の温度依存

廃棄物含有率が異なるガラス固化体について、熱伝導度と温度との関係を図7に示した。図7の各点は、供給電力、測定位置の半径比及び測温位置間の温度差から、(2-2)式によって求めたものである。このとき、熱伝導度に対応する温度としては、2点間の平均温度をとった。図7で、例えば、含有率が 12 w/o の場合、700 °C 付近からの急激な立上がりが見られる。この急激な立上がり傾向は、図中の実線で示した J. E. Mendel らの報告（廃棄物含有率 28.5 w/o）¹⁰⁾ と同様な傾向を示している。この急激な立上がりの原因としては、この温度領域内でガラス固化体の軟化や溶融が起こり、これに伴って対流などの熱伝達が付加されてきたためと考えられる。

4.3 热伝導度の廃棄物含有率依存

図7において、廃棄物含有率毎の測定点を、なめらかな線で内そうし、その後、各温度での熱伝導度を読み取り、温度をパラメータにして熱伝導度と廃棄物含有率との関係を求めた。軟化点以上の 600 ~ 750 °C の高温域におけるその関係を図8に、軟化点以下の 350 ~ 500 °C の低温域におけるその関係を図9に示した。両図とも、廃棄物を含まないガラス固化体の熱伝導度の低下が見られる。これは、図6で見られるようなガラス固化体の密度低下が影響し、空隙が多くなって熱伝導度が低下したものと考えられる。また、両図とも、含有率が 6 w/o 付近に熱伝導度の最大値が見られ、高温域では含有率が増加するにつれて、熱伝導度は減少する傾向が見られる。この熱伝導度の減少傾向は、廃棄物の含有率が増加するにつれて、ガラス固化体の透明度が悪くなり、この結果、高温状態での輻射による熱伝達の効果が妨げられるために起こるものと考えられる。一方、低温域では、含有率が 10 w/o 以上で、含有率が増加するにつれて、熱伝導度が増加する傾向が見られる。この傾向は、低温域では熱伝導による熱伝達が支配的で、重金属を多く含む廃棄物の含有率が増えるにつれて、熱伝導度が良くなるために起こるものと考えられる。

4.4 ガラス固化体の最大許容半径

4.4.1 固化体モデル

前節までの結果を利用して、HLW固化体の最大許容半径を推算するために、まず、HLW固化体を円筒容器に詰めた場合を考え、次のようなモデルを取り上げた。つまり、①内部で均一発熱している有限半径をもつ無限に長い円筒固化体が、②定常状態に保たれている場合を考えた。このとき、固化体内の熱収支式は次式のように与えられる。

$$-2\pi r q + \pi r^2 H = 0 \quad (4-1)$$

ここで、 q は熱流速、 r は半径、 H は単位体積当たりの発熱速度を表わしている。熱伝導度の温度変化を考慮して、(4-1)式を解くと

$$R = 2 \left\{ \left(\int_{T_s}^{T_c} \lambda dT \right) / H \right\}^{1/2} \quad (4-2)$$

となり、熱伝導度 λ の温度変化、固化体中心温度 T_c 、固体表面温度 T_s 、単位体積当たりの発熱速度 H の各値を与えれば、最大許容半径 R が求まることがある。今、炉取り出し時から計ったある期間後の HLW 固化体の発熱速度を考える。このとき、発熱速度は、廃棄物量に比例すると考えられる。したがって、単位体積当たりの発熱速度 H は、密度 ρ 、廃棄物含有率 ω を使って

$$H = k \rho \omega \quad (4-3)$$

と表わされる。ここで、 k は比例定数である。この(4-3)式を、(4-2)式に代入すると最大許容半径 R は

$$R = 2 \left\{ \left(\int_{T_s}^{T_c} \lambda dT \right) / k \rho \omega \right\}^{1/2} \quad (4-4)$$

となる。この式において、固化体の中心温度と表面温度を設定し、発熱密度と廃棄物量との比例定数を与えることによって、各含有率におけるガラス固化体の最大許容半径が推定できることになる。

4.4.2 最大許容半径の推定

図 10 に、ガラス固化体の最大許容半径と廃棄物含有率との関係を示した。ここで、ガラス固化体の中心温度は、ガラス固化体の軟化を防ぐために 500 ℃ とし、ガラス固化体表面温度は、容器に使用したステンレス鋼の耐熱性から 350 ℃ とした。また、ここに表示した単位体積当たりの発熱密度は、炉取り出し後からの経過時間が 5 年 ($26 \text{ W}/\ell$ - ガラス固化体) と 10 年 ($15 \text{ W}/\ell$ - ガラス固化体) のガラス固化体の発熱密度に対応する¹⁾。このときの比例定数 k は、それぞれ、 $0.0291 \text{ W}/\text{g} \cdot \text{廃棄物}$ ($26 \text{ W}/\ell$ - ガラス固化体) と、 $0.0168 \text{ W}/\text{g} \cdot \text{廃棄物}$ ($15 \text{ W}/\ell$ - ガラス固化体) となる。また、 $\left(\int_{T_s}^{T_c} \lambda dT \right)$ の値としては、この温度域での熱伝導度の平均値 $\bar{\lambda}$ をとり、 $\bar{\lambda} (T_c - T_s)$ で代用した。図 10 から明らかなように、最大許容半径は、含有率が大きくなるに従って小さくなる。例えば、含有率が 10 w/o のガラス固化体の最大許容半径は、発熱密

度 $26\text{W}/\ell$ と $15\text{W}/\ell$ の場合、それぞれ 30cm と 41cm となり、含有率が 20w/o のガラス固化体の最大許容半径は、それぞれ 21cm と 28cm となった。

4.5 固化体表面積の含有率依存

最大許容半径をもつガラス固化体の単位長さ当たりに収容される廃棄物量は、(4-4)式を使って

$$\pi R^2 \rho \omega = 4 \pi \left(\int_{T_S}^{T_C} \lambda dT \right) / k \quad (4-5)$$

で表わされる。この式から明らかなように、廃棄物収容量は熱伝導度のみで決定される。この関係を、前節のガラス固化体に適用すると、図11に示すような結果となる。ただし、廃棄物を含まないガラス固化体の廃棄物収容量は、含有率を少なくしていったときの漸近値を示している。

さらに、最大許容半径をもつガラス固化体の表面積と収容される廃棄物量との比は、次式で示される。

$$(2\pi R) / (\pi R^2 \rho \omega) = \{k / \rho \omega \left(\int_{T_S}^{T_C} \lambda dT \right)\}^{1/2} \quad (4-6)$$

この関係を、前節のガラス固化体に適用すると、図12に示すような結果となる。この図から明らかなように、含有率が増加するにつれて、単位廃棄物量当たりの固化体の外表面積は減少している。このことは、同一量の廃棄物を処理する場合、成分の漏洩と密接な関係にある外表面積が含有率の増加に伴って低下することになり、放射性核種の漏洩を防止する点からみて有利である。

4.6 総合的安全評価における熱伝導度の位置づけ

前節で見たように、廃棄物含有率の増加は、廃棄物処理量当たりの外表面積低下につながり、有利であるが、他方、含有率の増加に伴って、固化体特性の変化が予想され、廃棄物含有量当たりの外表面積だけで含有率の最適値を議論することはできない。総合的安全評価を行う立場から例えば、単位時間当たりの放射性核種の重みつき浸出量 L を考え、重みつき浸出率と表面積との積から成る次式の最小値を求ることによって、ガラス固化体を第1バリアと考えたときのバリアの性能を示す総合的な基準化が可能となるものと思われる。

$$L = [\sum r_i G(\omega_i)] \cdot [4\pi \left(\int_{T_S}^{T_C} \lambda dT / k \rho \omega \right)^{1/2} \{ \ell + 2 \left(\int_{T_S}^{T_C} \lambda dT / k \rho \omega \right)^{1/2} \} \\ + \delta_I S_I + \delta_T S_T] \quad (4-7)$$

ここで、 r_i は i 成分の重み係数、 ℓ は固化体長さ、 $G(\omega_i)$ は浸出率、 S_I は機械的衝撃による增加表面積、 δ_I は機械的衝撃が加わる確率、 S_T は熱衝撃による增加表面積、 δ_T は熱衝撃が加わる確率を示す。また、(4-7)式で、第2番目の大括弧中の第一項は、固化体の外表面積を示している。この(4-7)式で、外表面積を決める熱伝導度以外に、各要素の値を与えること

によって、総合的安全評価の観点から、含有率の最適値を推定できるものと思われる。

5. 結 論

模擬廃棄物の含有率が異なるホウケイ酸ガラス固化体について、350°Cから750°Cまでの熱伝導度を求めた結果、次のことことが分かった。

- ①熱伝導度は、700°C付近から急激な増加を示した。
- ②熱伝導度は、含有率が6w/o付近に最大値をもった。
- ③軟化点以上の高温域では、含有率が10w/o以上で、含有率の増加に伴って熱伝導度が低下した。
- ④軟化点以下の低温域では、含有率が10w/o以上で、含有率の増加に伴って熱伝導度が増加した。

さらに

- ⑤350°Cから500°Cまでの熱伝導度を用いて、発熱密度が26W/e - ガラス固化体と15W/e - ガラス固化体のガラス固化体の最大許容半径を推定した。
- ⑥総合的安全評価における熱伝導度の位置づけを行った。

今後は、浸出率、機械的衝撃安定性、及び熱衝撃安定性を明らかにし、総合的な安全評価を行って行く。

謝 辞

本研究をまとめるにあたって、有用な指摘を下さった高レベル廃棄物処理処分研究室室長荒木邦夫氏に感謝いたします。

また、本研究を進めるにあたって、心よく装置を貸して頂いた利用開発室室長富永洋氏に深く感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) J. E. Mendel et.al., "Annual report on the characteristics of high - level maste glasses," BNWL - 2252 (1977)
- 2) "Characteristics of solidified high - level waste products," IAEA (1979) No 187
- 3) 高橋洋一、横川晴美、セラミックス[5], p. 404~p. 407 (1976)
- 4) A. M. Ross, "A literature survey on the measurement of thermal conductivity of several solids including uranium dioxides," CRFD - 762 (1958)

によって、総合的安全評価の観点から、含有率の最適値を推定できるものと思われる。

5. 結 論

模擬廃棄物の含有率が異なるホウケイ酸ガラス固化体について、350℃から750℃までの熱伝導度を求めた結果、次のことが分かった。

- ①熱伝導度は、700℃付近から急激な増加を示した。
- ②熱伝導度は、含有率が6w/o付近に最大値をもった。
- ③軟化点以上の高温域では、含有率が10w/o以上で、含有率の増加に伴って熱伝導度が低下した。
- ④軟化点以下の低温域では、含有率が10w/o以上で、含有率の増加に伴って熱伝導度が増加した。

さらに

- ⑤350℃から500℃までの熱伝導度を用いて、発熱密度が26W/ ℓ -ガラス固化体と15W/ ℓ -ガラス固化体のガラス固化体の最大許容半径を推定した。
- ⑥総合的安全評価における熱伝導度の位置づけを行った。

今後は、浸出率、機械的衝撃安定性、及び熱衝撃安定性を明らかにし、総合的な安全評価を行って行く。

謝 辞

本研究をまとめるにあたって、有用な指摘を下さった高レベル廃棄物処理処分研究室室長荒木邦夫氏に感謝いたします。

また、本研究を進めるにあたって、心よく装置を貸して頂いた利用開発室室長富永洋氏に深く感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) J. E. Mendel et.al., "Annual report on the characteristics of high-level waste glasses," BNWL - 2252 (1977)
- 2) "Characteristics of solidified high-level waste products," IAEA (1979) No. 187
- 3) 高橋洋一、横川晴美、セラミックス[5], p. 404~p. 407 (1976)
- 4) A. M. Ross, "A literature survey on the measurement of thermal conductivity of several solids including uranium dioxides," CRFD - 762 (1958)

によって、総合的安全評価の観点から、含有率の最適値を推定できるものと思われる。

5. 結論

模擬廃棄物の含有率が異なるホウケイ酸ガラス固化体について、350°Cから750°Cまでの熱伝導度を求めた結果、次のことことが分かった。

- ①熱伝導度は、700°C付近から急激な増加を示した。
- ②熱伝導度は、含有率が6w/o付近に最大値をもった。
- ③軟化点以上の高温域では、含有率が10w/o以上で、含有率の増加に伴って熱伝導度が低下した。
- ④軟化点以下の低温域では、含有率が10w/o以上で、含有率の増加に伴って熱伝導度が増加した。

さらに

- ⑤350°Cから500°Cまでの熱伝導度を用いて、発熱密度が26W/e - ガラス固化体と15W/e - ガラス固化体のガラス固化体の最大許容半径を推定した。

- ⑥総合的安全評価における熱伝導度の位置づけを行った。

今後は、浸出率、機械的衝撃安定性、及び熱衝撃安定性を明らかにし、総合的な安全評価を行って行く。

謝辞

本研究をまとめるにあたって、有用な指摘を下さった高レベル廃棄物処理処分研究室室長荒木邦夫氏に感謝いたします。

また、本研究を進めるにあたって、心よく装置を貸して頂いた利用開発室室長富永洋氏に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) J. E. Mendel et.al., "Annual report on the characteristics of high - level maste glasses," BNWL - 2252 (1977)
- 2) "Characteristics of solidified high - level waste products," IAEA (1979) No 187
- 3) 高橋洋一、横川晴美、セラミックス[5], p. 404~p. 407 (1976)
- 4) A. M. Ross, "A literature survey on the measurement of thermal conductivity of several solids including uranium dioxides," CRFD - 762 (1958)

によって、総合的安全評価の観点から、含有率の最適値を推定できるものと思われる。

5. 結 論

模擬廃棄物の含有率が異なるホウケイ酸ガラス固化体について、350℃から750℃までの熱伝導度を求めた結果、次のごとが分かった。

- ①熱伝導度は、700℃付近から急激な増加を示した。
- ②熱伝導度は、含有率が6w/o付近に最大値をもった。
- ③軟化点以上の高温域では、含有率が10w/o以上で、含有率の増加に伴って熱伝導度が低下した。
- ④軟化点以下の低温域では、含有率が10w/o以上で、含有率の増加に伴って熱伝導度が増加した。

さらに

- ⑤350℃から500℃までの熱伝導度を用いて、発熱密度が26W/ℓ - ガラス固化体と15W/ℓ - ガラス固化体のガラス固化体の最大許容半径を推定した。

- ⑥総合的安全評価における熱伝導度の位置づけを行った。

今後は、浸出率、機械的衝撃安定性、及び熱衝撃安定性を明らかにし、総合的な安全評価を行って行く。

謝 辞

本研究をまとめるにあたって、有用な指摘を下さった高レベル廃棄物処理処分研究室室長荒木邦夫氏に感謝いたします。

また、本研究を進めるにあたって、心よく装置を貸して頂いた利用開発室室長富永洋氏に深く感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) J. E. Mendel et.al., "Annual report on the characteristics of high - level maste glasses," BNWL - 2252 (1977)
- 2) "Characteristics of solidified high - level waste products," IAEA (1979) No 187
- 3) 高橋洋一、横川晴美、セラミックス[5], p. 404~p. 407 (1976)
- 4) A. M. Ross, "A literature survey on the measurement of thermal conductivity of several solids including uranium dioxides," CRFD - 762 (1958)

- 5) J. M. Davidson, "Thermal conductivity measurements," HW-47063 (1956)
- 6) D. B. Auty, J. R. Grover, "Thermal conductivity of a borosilicate glass suitable for fission product wastes," AERE-R 4685 (1964)
- 7) 林国郎, "耐火断熱煉瓦の熱伝導率測定法主として非定常熱線法," セラミックス11[11] p. 994~p. 1003 (1976)
- 8) H. Krause, KFK-2000, p.37-p.38 (1972)
- 9) G. H. Jenks, "Maximum acceptable temperature of wastes and containers during retrievable geologic storage," Y/OWI/TM-42 (1977)

付 錄

(1) 記号

G , 浸出率 [$ML^{-2}T^{-1}$]
 H , 単位体積当たりの発熱速度 [$ML^{-1}T^{-3}$]
 k , 単位廃棄物量当たりの発熱速度 [L^2T^{-3}]
 L , 単位時間当たりの浸出量 [MT^{-1}]
 ℓ , 固化体長さ [L]
 Q_0 , 線熱源の単位長さ当たりの熱熱速度 [MLT^{-3}]
 q , 熱流速 [MT^{-3}]
 R , 最大許容半径 [L]
 r , 円筒固化体の半径 [L]
 S , 面積 [L^2]
 T , 温度 [θ]
 r_i , 重み係数
 δ , 発生確率
 λ , 热伝導度 [$MLT^{-3}\theta^{-1}$]
 ρ , 密度 [ML^{-3}]
 ω , 廃棄物含有率

(2) 添字

c , 固化体中心を示す。
 I , 機械的衝撃によることを示す。
 i , 異なる成分を示す。
 s , 固化体の外表面積以外に新しく増加した面積を示す。
 T , 热衝撃による事を示す。
 $1, 2$, 異なる地点を示す。

(3) その他

$$\sum r_i = 1$$

$$\sum \omega_i = \omega$$

Table 1 Measurement method of thermal conductivity

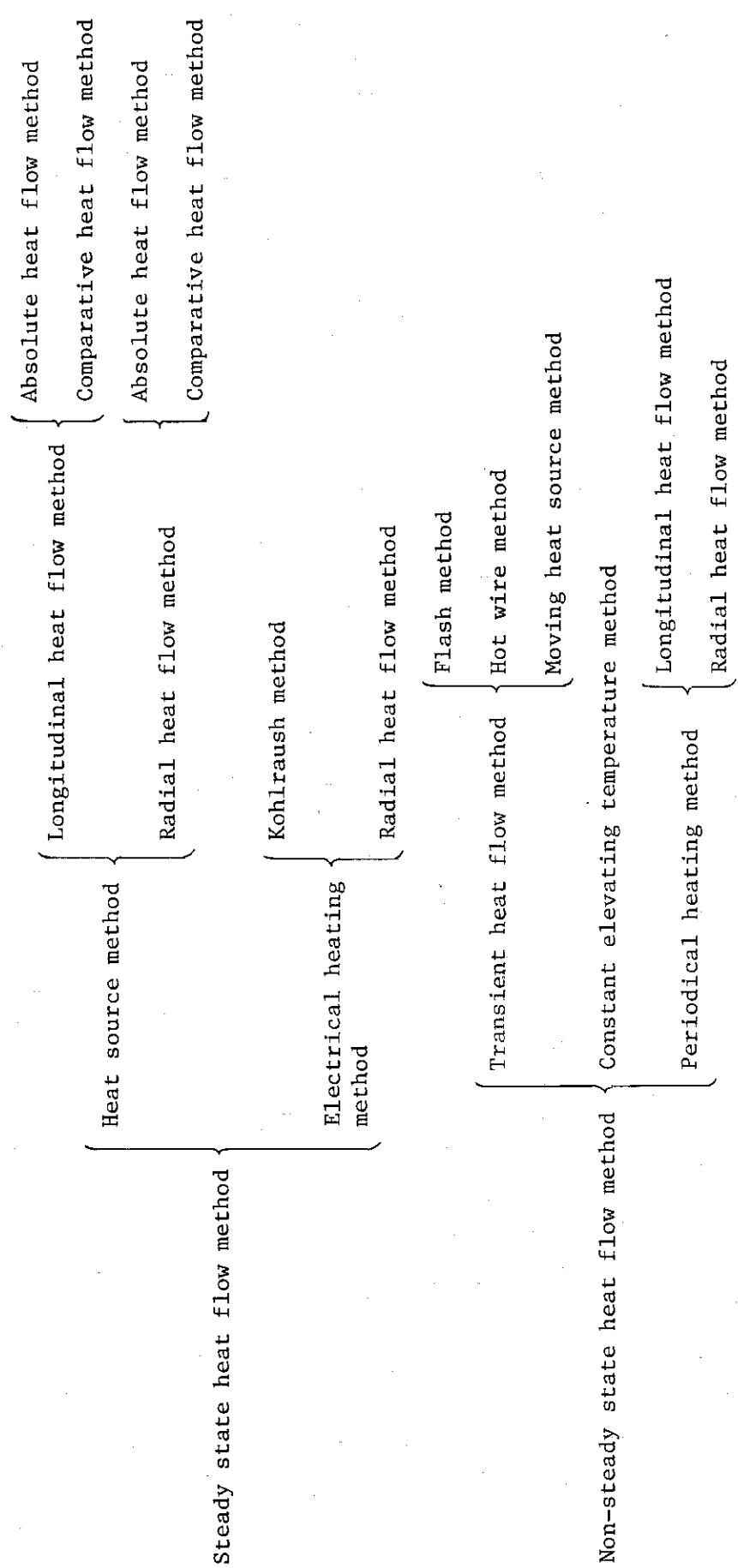


Table 2 Recipe of simulated HLW

Constituents	Concentration (g/l)	Weight percent of constituents (w/o)
K ₂ O	1.427	4.81
SrO	1.307	4.41
BaO	1.521	5.13
Fe ₂ O ₃	4.972	16.76
CaO	3.657	12.33
TiO ₂	3.588	12.09
MoO ₃	5.191	17.50
MnO ₂	0.758	2.56
CoO	0.315	1.06
NiO	0.664	2.24
TeO	0.568	1.91
Cr ₂ O ₃	0.920	3.10
Na ₂ O	4.780	16.11
Total	29.668	Total 100.01

Table 3 Recipe of glass matrix

Constituents	Weight percent of constituents (w/o)
Zeolite *	57.88
Na ₂ O	20.36
B ₂ O ₃	15.25
CaO	6.50
Total	99.99

* after ignition treatment

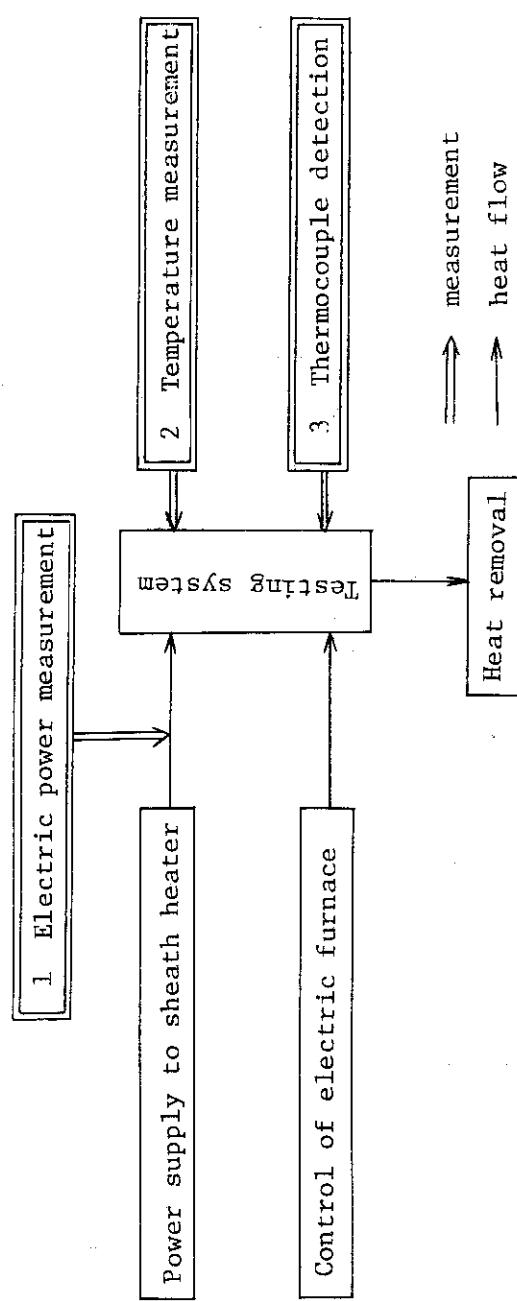


Fig.1 Outline of testing system for measuring the thermal conductivity
of simulated HLW glass product in a canister

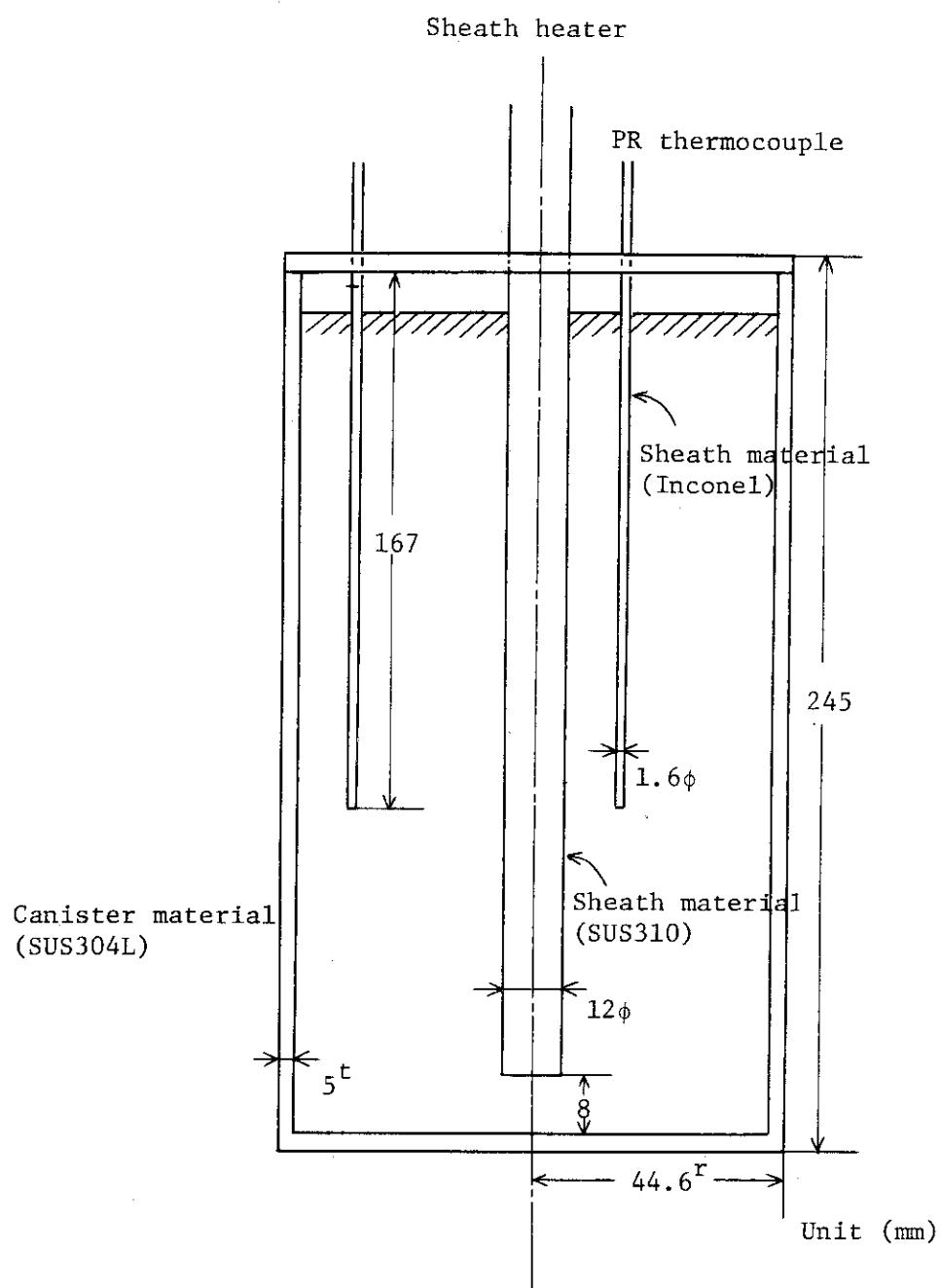


Fig.2 Canister filled with simulated
HLW glass product

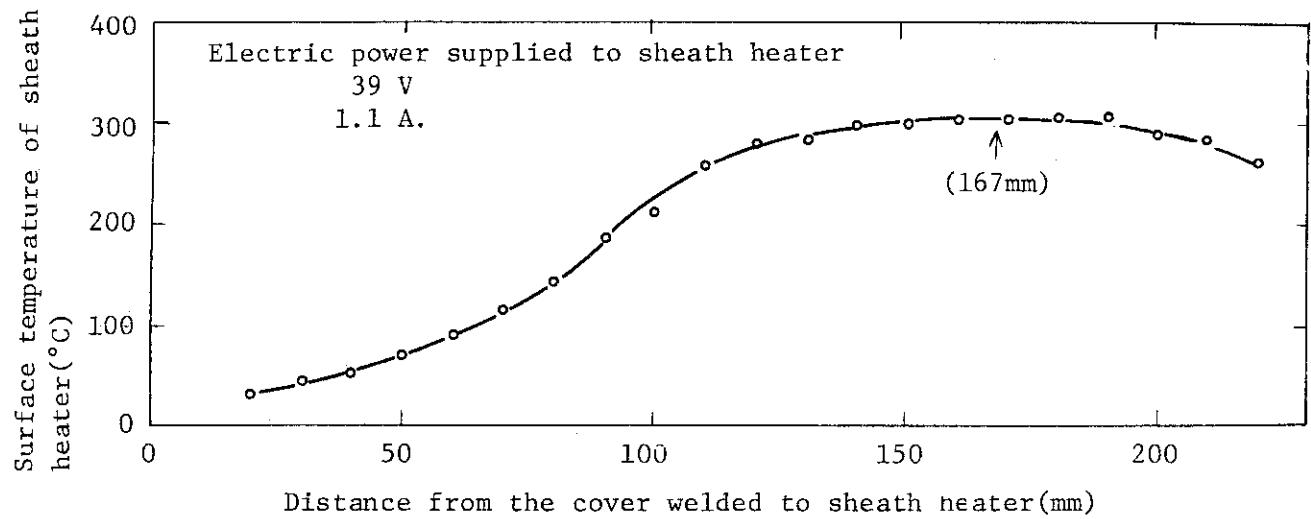


Fig.3 Temperature distribution of surface of sheath heater at laying quietly in a room at 12°C

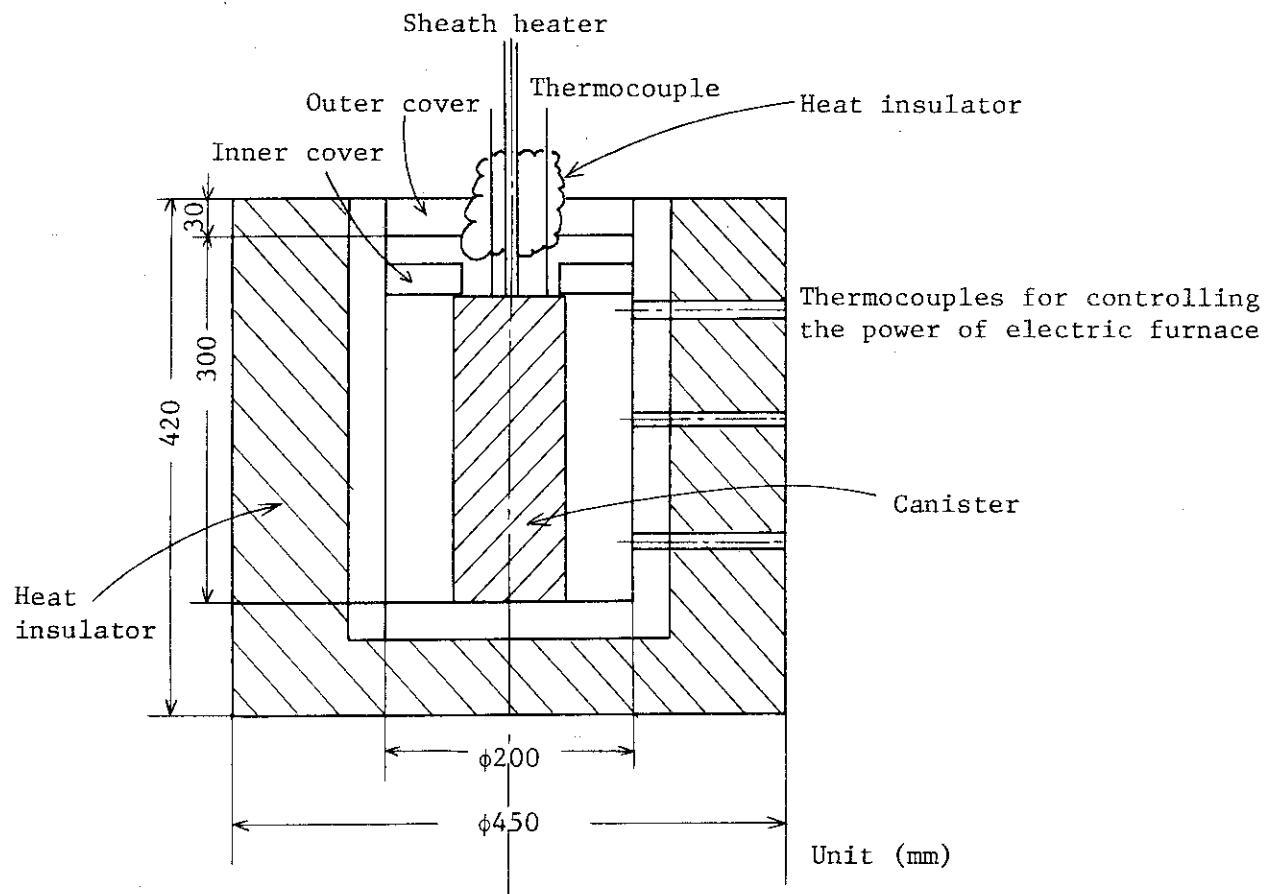
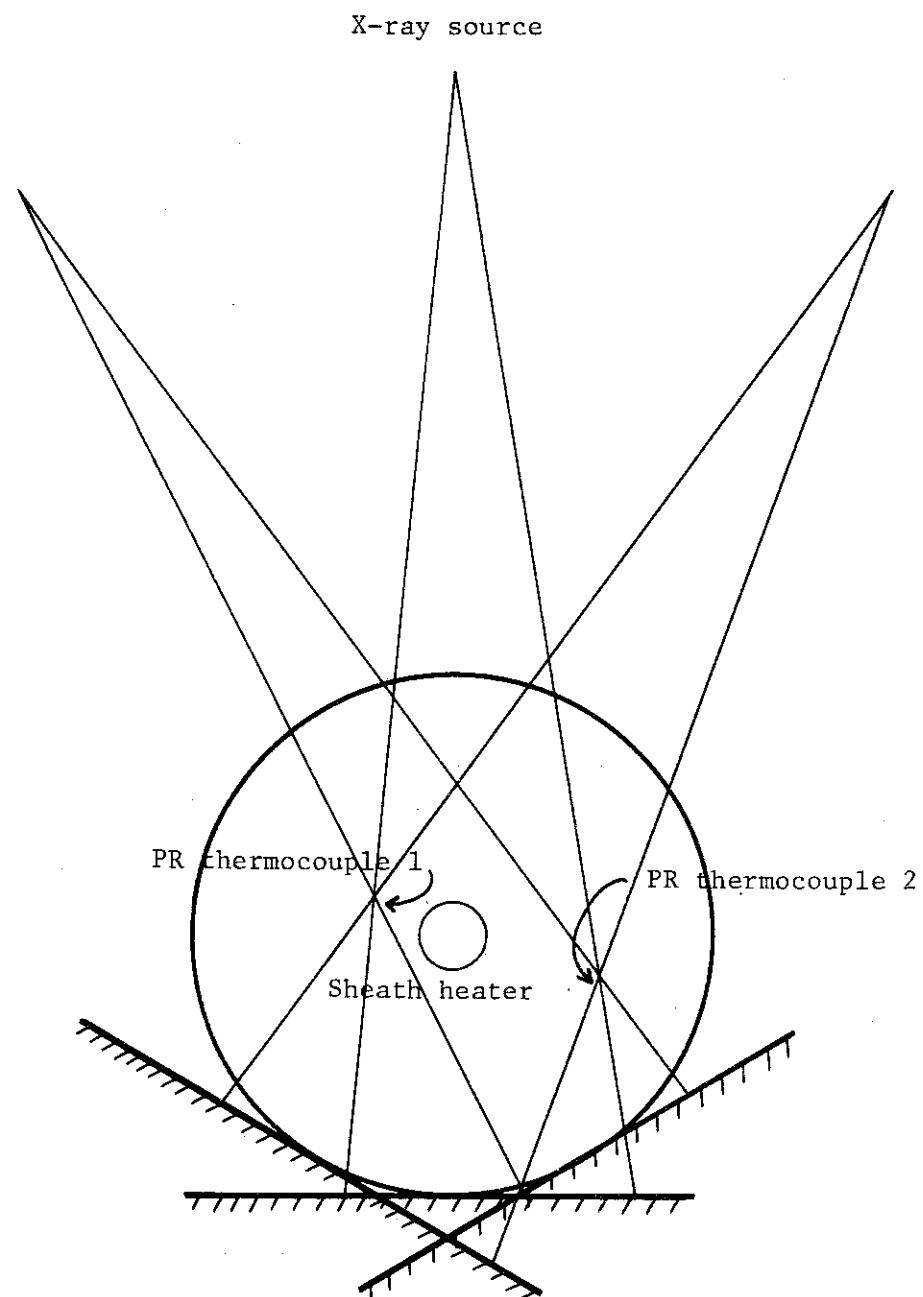


Fig.4 Electric furnace for keeping canister surface temperature constant



- 1) Taking X-ray radiograph of Sample in revolving every 30°
- 2) Measuring the distance from Sheath heater to thermocouples from X-ray radiograph
- 3) Deciding the position of Sheath heater and thermocouples after drawing a figure

Fig.5 Method of deciding the position of Sheath heater and thermocouples

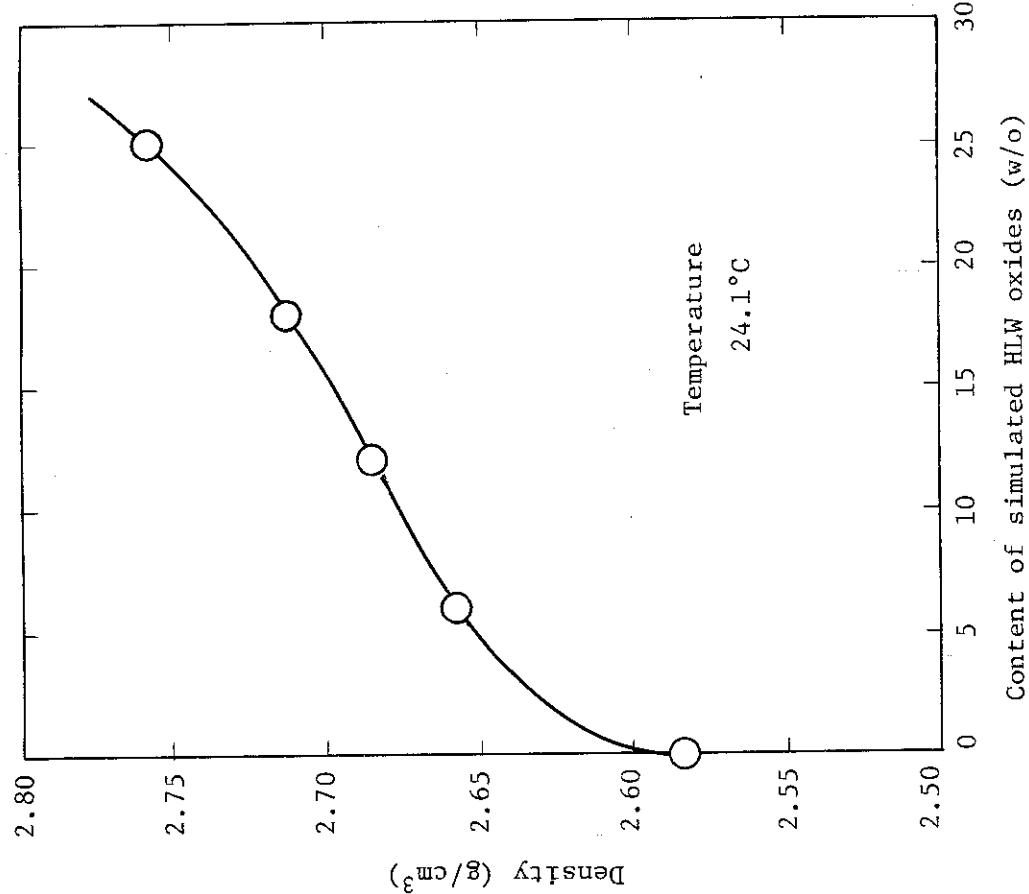


Fig.6 Relationship between the density of simulated HLW glass product and the content of simulated HLW oxides in the glass product

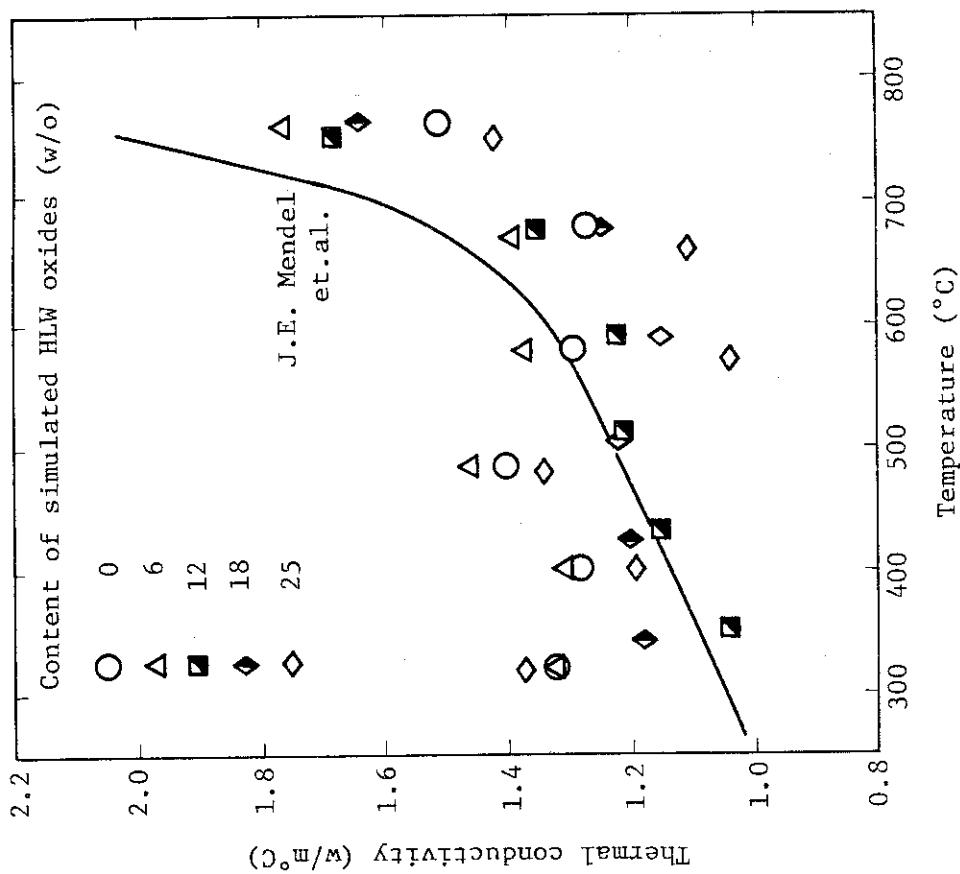


Fig.7 Relationship between the thermal conductivity of simulated HLW glass product and temperature

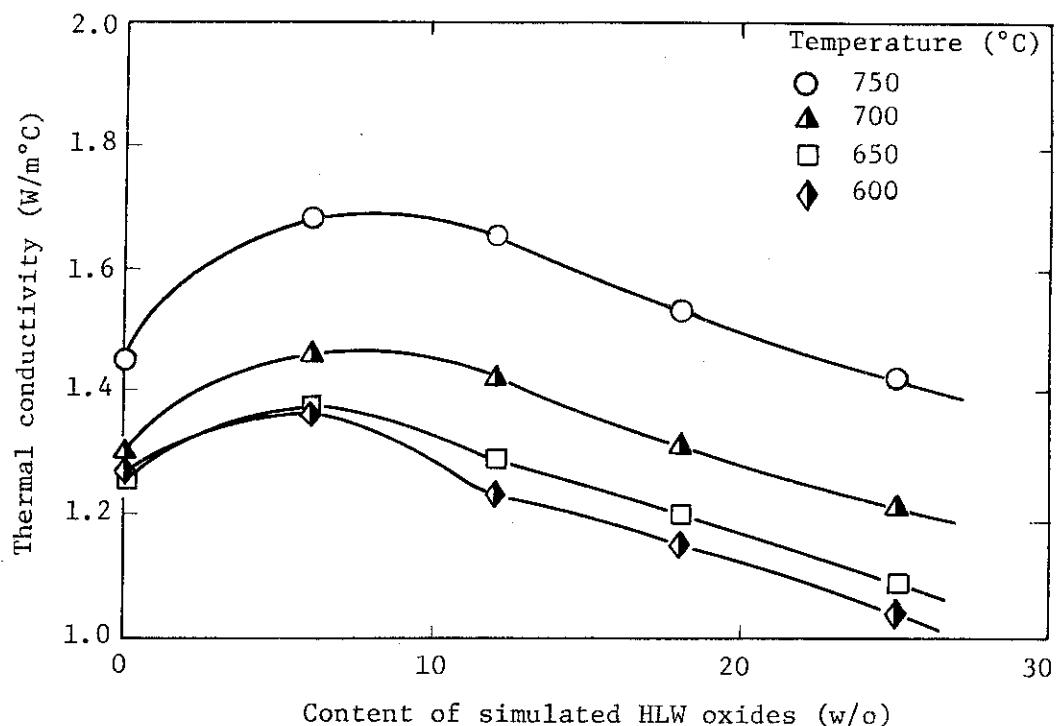


Fig.8 Relationship between the thermal conductivity of simulated HLW glass product and the content of simulated HLW oxides

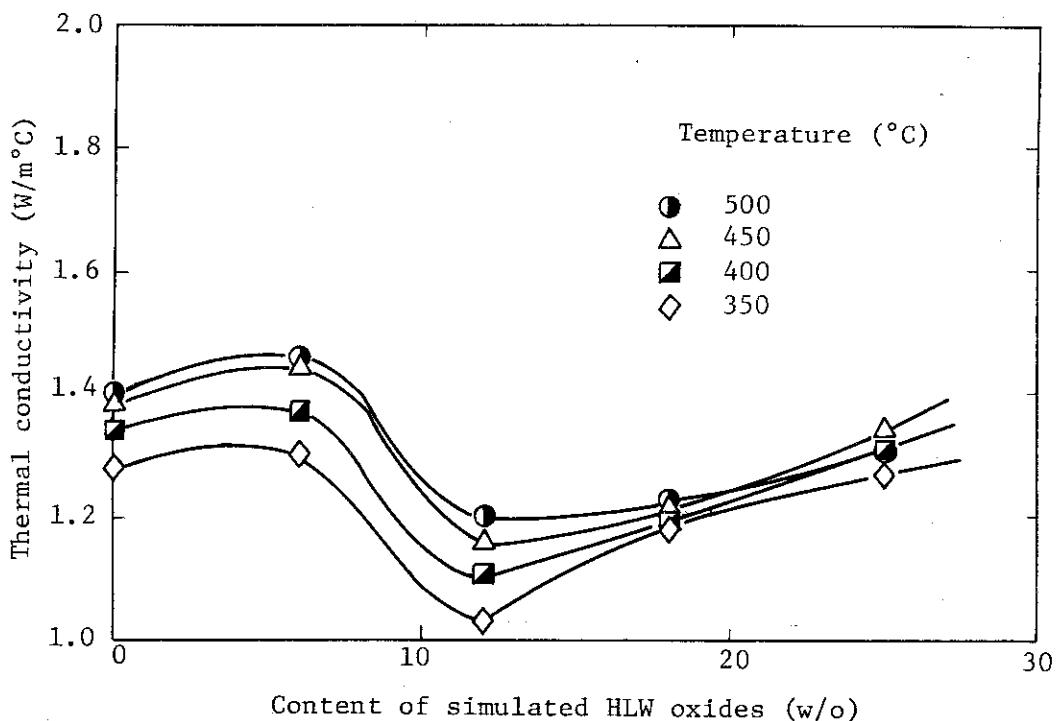


Fig.9 Relationship between the thermal conductivity of simulated HLW glass product and the content of simulated HLW oxides

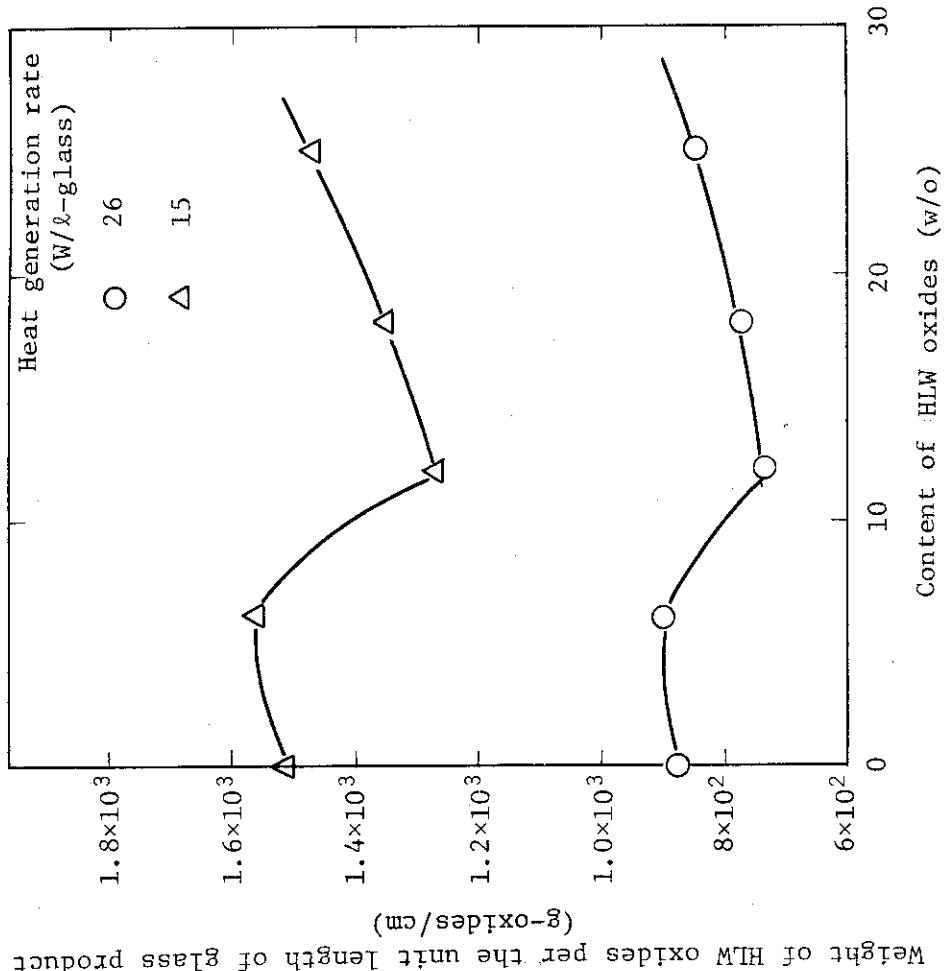


Fig.10 Relationship between the maximum permissible radius of HLW glass product and the content of HLW oxides

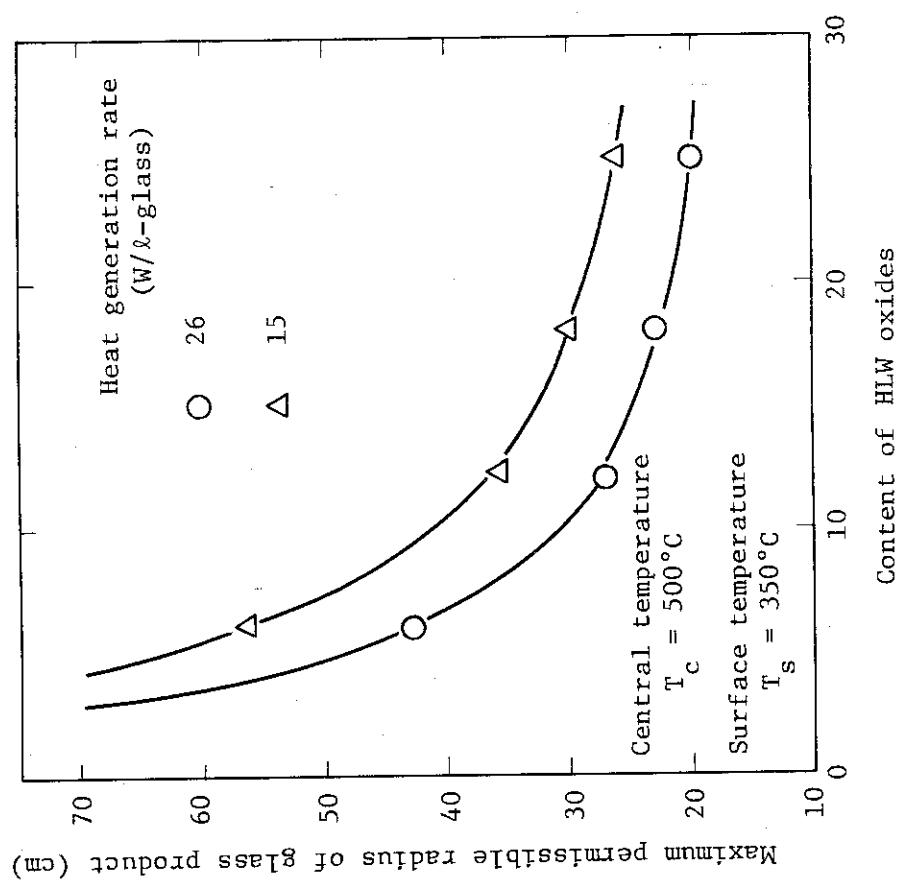


Fig.11 Relationship between the content of HLW oxides per the unit length of HLW glass product with maximum permissible radius and the content of HLW oxides

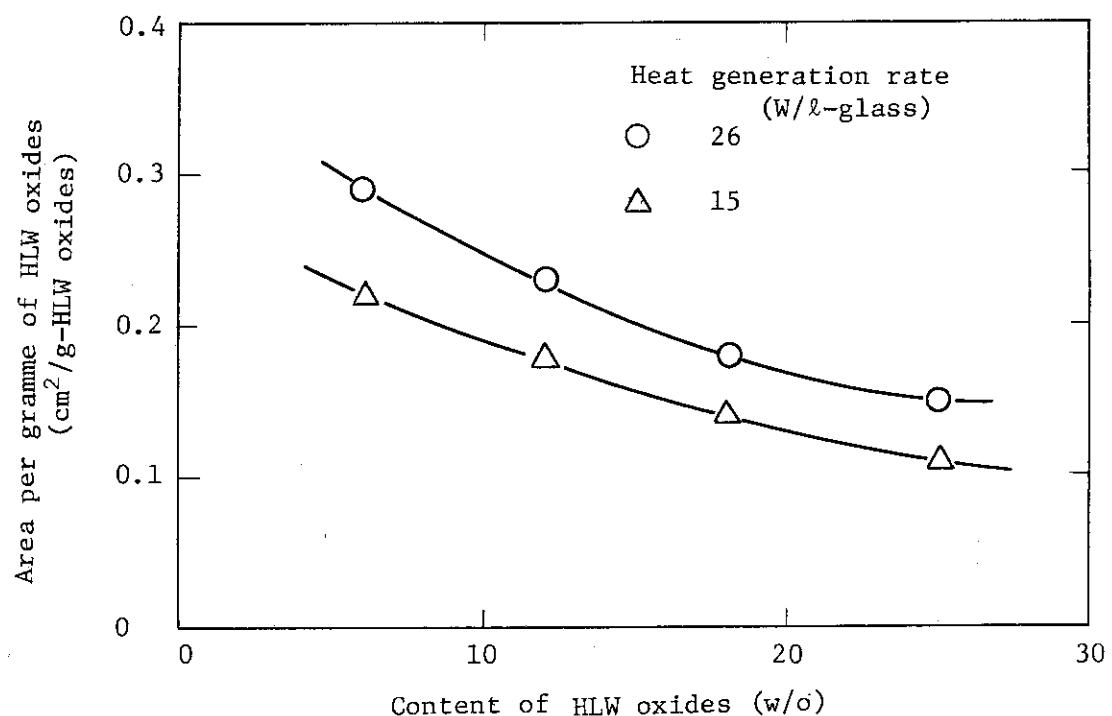


Fig.12 Relationship between the area of HLW glass product with maximum permissible radius per gramme of HLW oxides and the content of HLW oxides.