

JAERI-M

9378

各国の高レベル放射性廃棄物固化処理用  
ホウケイ酸ガラスにおける廃棄物濃度の  
固化体諸物性に及ぼす影響

1981年2月

降矢 喬\*・妹尾 宗明・馬場 恒孝・加藤 修  
三田村久吉・上蘭 裕史・熊田 政弘・村上 隆  
田代 晋吾・荒木 邦夫・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、お申しこしてください。

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.

各国の高レベル放射性廃棄物固化処理用ホウケイ酸ガラスにおける  
廃棄物濃度の固化体諸物性に及ぼす影響

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

降矢 喬\*・妹尾 宗明・馬場 恒孝・加藤 修  
三田村久吉・上蘭 裕史・熊田 政弘・村上 隆  
田代 晋吾・荒木 邦夫・天野 恕

(1981年2月3日受理)

使用済み核燃料の再処理により発生する高レベル放射性廃棄物の固化処理法としては、世界的にホウケイ酸ガラス固化技術を中心として研究開発が進められており、一部の国では実用化に近い技術水準に達している。我が国でもこの方向での開発が進められており、現在、海外に委託している使用済み燃料の再処理に伴ない返還される廃棄物固化体への対応が緊急の問題となっている。

本報では、この固化体の受け入れに対する安全性の検討の一助とするため、前報（ベースガラスおよび14%廃棄物含有ガラス固化体の検討）に引き続き、各国で実用化を前提として開発されている組成の20～30%廃棄物含有ガラス固化体の諸物性（外観、密度、熱伝導率、軟化温度、失透温度および浸出率）を求め、ガラス固化体の廃棄物含有率が諸物性に与える影響を明らかにした。

さらに、得られた物性値を用いて、或る想定した冷却システムにおけるガラス固化体の中心温度と軟化温度との関係および浸出率と最大水中許容濃度（MPC）との関係よりガラス固化体の廃棄物含有率の上限値を推算した。

---

\* 外来研究員；(株)神戸製鋼所

JAERI-M 9378

Effects of Various Waste Contents on Properties of Borosilicate Glasses for High-Level Waste Solidification in Several Countries.

Takashi FURUYA\*, Muneaki SENOO, Tsunetaka BANBA, Osamu KATO,  
Hisayoshi MITAMURA, Hiroshi KAMIZONO, Masahiro KUMATA, Takashi  
MURAKAMI, Singo TASHIRO, Kunio ARAKI, and Hiroshi AMANO

Division of Environmental Safety Research, Tokai Research Establishment,  
JAERI

(Received February 3, 1981)

The Borosilicate glasses have been most developed of the various solidified products of high-level waste (HLW) from the reprocessing of nuclear fuels in several countries. The products have been studied in Japan, too, and there is the possibility of the HLW glasses from overseas fuel reprocessing by entrustment being returned to Japan.

The previous report had been issued the results of examination for the properties of glass frits and 14% waste content glasses with the same chemical composition as developed in several countries.

In this examination, the following HLW glass properties with 20-30% waste contents were obtained for studying the technical problems in receiving HLW; visible observation, density, softening temp. and leach rate etc. Effects of various waste contents on properties of HLW glasses were shown. Using the obtained results, an upper limit of acceptable waste content of HLW glasses was discussed with the relationship between softening temp. and calculated centerline temp. of HLW glasses in a given air cooling system. And then, the time reached to Maximum Permissible Concentration concerned to an assumed accident in a water cooling system was calculated using the obtained leach rate of HLW glasses.

Keywords; Solidification, Borosilicate Glass, High-Level Waste, Overseas Entrusted Reprocessing, Safety Evaluation, Waste Upper Limit, Leach rate, Thermal Characteristic Evaluation.

---

\* On leave from Kobe Steel Ltd.

## 目 次

1. 緒 言 .....	1
2. 実験方法 .....	1
2.1 ガラスフリット組成および模擬廃棄物組成 .....	1
2.2 ガラスフリットおよび模擬廃棄物の作製 .....	2
2.3 ガラス固化体の作製 .....	2
2.4 ガラス固化体の物性測定 .....	2
3. 実験結果および考察 .....	3
3.1 表面性状 .....	3
3.2 物理的性質 .....	4
3.3 化学的耐久性（浸出率） .....	4
4. ガラス固化体の廃棄物含有率上限値に関する評価 .....	5
4.1 ガラス固化体の熱的特性にもとづく評価 .....	6
4.2 ガラス固化体の浸出率にもとづく評価 .....	8
5. 結 言 .....	10
謝 辞 .....	10
参考文献 .....	11

## Contents

1.	Introduction .....	1
2.	Experimental .....	1
	2.1 Composition of glass frits and simulated waste .....	1
	2.2 Preparation of glass frits and simulated waste .....	2
	2.3 Preparation of simulated HLW glass .....	2
	2.4 Characterization of simulated HLW glass .....	2
3.	Results and discussion .....	3
	3.1 Visible observation .....	3
	3.2 Physical characteristics .....	4
	3.3 Chemical durability (Leach rate) .....	4
4.	Evaluation on upper limit of waste contents of HLW glasses....	5
	4.1 Evaluation based on thermal characteristics .....	6
	4.2 Evaluation based on leach rate .....	8
5.	Conclusion .....	10
	Acknowledgement .....	10
	Reference .....	11

## 1. 緒 言

核燃料サイクルの各段階で発生する放射性廃棄物の生活圏に及ぼす影響を、経済性を考慮した上で出来る限り低くすることが望ましい。特に、エネルギー資源の有効利用を目的とした使用済み核燃料の再処理により発生する高レベル放射性廃棄物の処理処分は重要である。高レベル廃棄物の固化処理法としては、世界的にホウケイ酸ガラス固化技術を中心として研究開発が進められており、一部の国では実用化の直前まで技術水準が達している<sup>1)</sup>。我が国でもこの方向での開発が進められており、現在、海外に委託している使用済み燃料の再処理に伴ない返還される廃棄物固化体への対応が緊急の問題となっている。この固化体の受け入れに対する安全性の検討を行うため、前報<sup>2)</sup>では、各国で報告されているガラス固化体について、16種のベースガラスを検討し、そのうち5種を選び組成を統一した模擬廃棄物14wt%含有ガラスの物理的、化学的物性を評価した。

本報では、高レベル放射性廃棄物処理用固化体としての要求性能を満たすガラス組成の範囲を明らかにするための最初の段階として30%までの範囲で廃棄物含有率を変化させ廃棄物含有がガラス固化体物性に及ぼす影響を明らかにした。

また、廃棄物含有ガラス固化体は、最終処分されるまでに、空冷もしくは水冷にて中間貯蔵されることになっている。空冷貯蔵においては、廃棄物の発熱のためガラス固化体が軟化するようになるのでガラス固化体の廃棄物含有率の上限値が設定される。また、水冷貯蔵が実施された場合は、金属容器の破損に際してガラス固化体中の放射性元素が水中に浸出することが起こりうる。貯蔵施設における金属容器の破損の検出から修復までの時間を基にして廃棄物含有率の上限値が設定される。得られた物性値をもとに以上のような観点から廃棄物含有率の上限値についての考察を行った。

## 2. 実験方法

### 2.1 ガラスフリット組成および模擬廃棄物組成

ガラスフリット組成および模擬高レベル廃棄物組成は前報<sup>1)</sup>と同じである。この両者の重量比を変えることによって廃棄物含有率を変化させた。なお、模擬高レベル廃棄物の組成は、原研におけるDCHAINコードによる計算結果をもとに、超ウラン元素および一部高価な元素は安価な同族類似元素に模擬したものである。これらをTable 1およびTable 2に示す。

試薬は、ケイ砂および無水ホウ砂以外はすべて特級あるいは一級（和光純薬製あるいは小宗化学製）を使用し、ケイ砂（日窒工業製）および無水ホウ砂は工業用試薬を使用した。

## 1. 緒 言

核燃料サイクルの各段階で発生する放射性廃棄物の生活圏に及ぼす影響を、経済性を考慮した上で出来る限り低くすることが望ましい。特に、エネルギー資源の有効利用を目的とした使用済み核燃料の再処理により発生する高レベル放射性廃棄物の処理処分は重要である。高レベル廃棄物の固化処理法としては、世界的にホウケイ酸ガラス固化技術を中心として研究開発が進められており、一部の国では実用化の直前まで技術水準が達している<sup>1)</sup>。我が国でもこの方向での開発が進められており、現在、海外に委託している使用済み燃料の再処理に伴ない返還される廃棄物固化体への対応が緊急の問題となっている。この固化体の受け入れに対する安全性の検討を行うため、前報<sup>2)</sup>では、各国で報告されているガラス固化体について、16種のベースガラスを検討し、そのうち5種を選び組成を統一した模擬廃棄物14wt%含有ガラスの物理的、化学的物性を評価した。

本報では、高レベル放射性廃棄物処理用固化体としての要求性能を満たすガラス組成の範囲を明らかにするための最初の段階として30%までの範囲で廃棄物含有率を変化させ廃棄物含有がガラス固化体物性に及ぼす影響を明らかにした。

また、廃棄物含有ガラス固化体は、最終処分されるまでに、空冷もしくは水冷にて中間貯蔵されることになっている。空冷貯蔵においては、廃棄物の発熱のためガラス固化体が軟化するようになるのでガラス固化体の廃棄物含有率の上限値が設定される。また、水冷貯蔵が実施された場合は、金属容器の破損に際してガラス固化体中の放射性元素が水中に浸出することが起こりうる。貯蔵施設における金属容器の破損の検出から修復までの時間を基にして廃棄物含有率の上限値が設定される。得られた物性値をもとに以上のような観点から廃棄物含有率の上限値についての考察を行った。

## 2. 実験方法

### 2.1 ガラスフリット組成および模擬廃棄物組成

ガラスフリット組成および模擬高レベル廃棄物組成は前報<sup>1)</sup>と同じである。この両者の重量比を変えることによって廃棄物含有率を変化させた。なお、模擬高レベル廃棄物の組成は、原研におけるDCHAINコードによる計算結果をもとに、超ウラン元素および一部高価な元素は安価な同族類似元素に模擬したものである。これらをTable 1およびTable 2に示す。

試薬は、ケイ砂および無水ホウ砂以外はすべて特級あるいは一級（和光純薬製あるいは小宗化学製）を使用し、ケイ砂（日窒工業製）および無水ホウ砂は工業用試薬を使用した。



## 2.2 ガラスフリットおよび模擬廃棄物の作製

ガラスフリットの作製は、所定の組成比の試薬をV型ミキサーにて混合した後、抵抗発熱体電気炉を使用して、白金るつぼ（Rh 5%含有）にて熔融した。昇温速度は、すべて400℃/hrであり、熔融温度および保持時間は、原則として、すべて1200℃-2時間で、Hahn Meitner Institute (HMI) のガラスのみは1350℃-2時間である。その後、500℃にて2時間保持したのち、30℃/hrの速度で室温まで徐冷した。さらに、粗砕機で粗砕の後、搗潰機で微粉碎し、次の工程に供試した。なお、微粉後のガラスフリットの粒度は、10μm以下が20%、10~100μmが40%、100~200μmが40%であった。

一方、模擬廃棄物は、高レベル放射性廃液が硝酸溶液であることから、硝酸塩を仮焼して次の工程に供試する方法を採った。仮焼条件は、アルミナるつぼ中で650~700℃の温度にて5~7時間保持した。この時の仮焼率（硝酸塩が酸化物になった割合）は、仮焼前後の重量測定から算出すると90~95%であった。

## 2.3 ガラス固化体の作製

模擬廃棄物含有ガラス固化体の作製方法は、ガラスフリット作製方法と同様である。但し、熔融温度と保持時間は、原則としてすべて1150℃、1.5時間に設定した。HMIのガラスについては1350℃、1.5時間である。その後、熔融したガラスを黒鉛型枠に流し出して成形し、500℃にて2時間保持した後30℃/hrの速度で室温まで徐冷した。なお、一回のガラス溶融量は200gである。

## 2.4 ガラス固化体の物性測定

### (1) 熱伝導度

昭和電工機製のQTM迅速熱伝導率計により室温時の熱伝導率を測定した。

### (2) 比重

アルキメデス法により室温で測定した。なお、温度による校正は行わなかった。

### (3) 浸出率

浸出試験用の試料は、ガラス固化体を1辺が約5mmの立方体に切断して調製した。その表面積はマイクロメーターによる寸法測定から算出した。さらに、試料をエチルアルコールで洗浄し、125℃で1時間乾燥した後重量測定を行い、浸出試験に供試した。

浸出試験装置はSoxhlet型（石英ガラス製）を使用し（Fig. 1）、イオン交換水60mlを用いて100℃にて24時間浸出試験を行った。この時、サイフォンによって試料が洗浄される回数は約4回/hrであった。浸出試験後、エチルアルコールで洗浄し、さらに、125℃で1時間乾燥して重量減を測定すると共に、浸出液の化学分析を行い、浸出率を(1)式により算出した。

$$L = a / A \cdot W / S \cdot 1 / t \quad (1)$$

- L : 浸出率 ( g / cm<sup>2</sup> · day )  
 a : 分析成分の溶出量 ( mg )  
 A : 分析成分の試料ガラス中の量 ( mg )  
 W : 試料ガラス重量 ( g )  
 S : 試料ガラスの表面積 ( cm<sup>2</sup> )  
 t : 溶出処理時間 ( day )

#### (4) 黄色生成物および分相部分の分析

模擬廃棄物を含有したガラスにおいて黄色物の生成が認められたものがあつたが、これについての定性分析をX線回折法で行つた。

また、黄緑色の分相が認められたものについての定性分析を蛍光X線により行つた。

#### (5) 軟化温度および失透温度の測定

示差熱分析装置 ( 理学電機製 ) を用いて測定した。試料容器は白金製で、基準物質として  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  を用いた。

ガラスの軟化点  $T_s$  と失透温度  $T_d$  の評価は M. J. Plodinec および J. R. Willey の同定方法<sup>3)</sup> を参考にした。

### 3. 実験結果および考察

廃棄物含有ガラスについて、表面性状の観察を行い、また、物理的性質として比重、熱伝導度、軟化温度、失透温度および化学的性質として浸出率の測定を行つた。

#### 3.1 表面性状

表面性状の観察結果をまとめて Table 3 に記す。

試験したガラス固化体において 20~30 wt% の廃棄物含有率にて黄色物の生成あるいは分相が認められた。但し、PNC のガラス固化体については見られなかつた。黄色物は、ガラス表面に浮き出て析出した。一例として、JAERI ( J-10 ) のガラス固化体に生成した黄色生成物を写真 1 に示す。分相は、表面あるいは表面近傍に認められた。その分相した部分の色は、大部分のガラス固化体で黄緑色系の色彩であつたが、HMI のガラス固化体は茶褐色であつた。

もっとも多く黄色生成物が認められた JAERI ( J-10 ) のガラス固化体について、ガラス固化体より黄色物を削り取つた後 X 線回折による定性分析を行つた。その回折図形を Fig. 2 に示す。ASTM カードと照合した結果、黄色生成物はモリブデン酸ソーダ (  $\text{Na}_2\text{MoO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  ) であつた。これは、一般に、ストロンチウムやセシウムを取り込み易く、かつ、水溶性であるといわれている<sup>4)</sup> 為、黄色物を生成するガラス組成は、廃棄物含有ガラス固化体の適用には不適確である。

$$L = a/A \cdot W/S \cdot 1/t \quad (1)$$

- L : 浸出率 ( g/cm<sup>2</sup>·day )  
 a : 分析成分の溶出量 ( mg )  
 A : 分析成分の試料ガラス中の量 ( mg )  
 W : 試料ガラス重量 ( g )  
 S : 試料ガラスの表面積 ( cm<sup>2</sup> )  
 t : 溶出処理時間 ( day )

#### (4) 黄色生成物および分相部分の分析

模擬廃棄物を含有したガラスにおいて黄色物の生成が認められたものがあつたが、これについての定性分析をX線回折法で行つた。

また、黄緑色の分相が認められたものについての定性分析を蛍光X線により行つた。

#### (5) 軟化温度および失透温度の測定

示差熱分析装置 ( 理学電機製 ) を用いて測定した。試料容器は白金製で、基準物質として  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  を用いた。

ガラスの軟化点  $T_s$  と失透温度  $T_d$  の評価は M. J. Plodinec および J. R. Willey の同定方法<sup>3)</sup> を参考にした。

### 3. 実験結果および考察

廃棄物含有ガラスについて、表面性状の観察を行い、また、物理的性質として比重、熱伝導度、軟化温度、失透温度および化学的性質として浸出率の測定を行つた。

#### 3.1 表面性状

表面性状の観察結果をまとめて Table 3 に記す。

試験したガラス固化体において 20~30 wt% の廃棄物含有率にて黄色物の生成あるいは分相が認められた。但し、PNC のガラス固化体については見られなかつた。黄色物は、ガラス表面に浮き出て析出した。一例として、JAERI ( J-10 ) のガラス固化体に生成した黄色生成物を写真 1 に示す。分相は、表面あるいは表面近傍に認められた。その分相した部分の色は、大部分のガラス固化体で黄緑色系の色彩であつたが、HMI のガラス固化体は茶褐色であつた。

もっとも多く黄色生成物が認められた JAERI ( J-10 ) のガラス固化体について、ガラス固化体より黄色物を削り取つた後 X 線回折による定性分析を行つた。その回折図形を Fig. 2 に示す。ASTM カードと照合した結果、黄色生成物はモリブデン酸ソーダ (  $\text{Na}_2\text{MoO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  ) であつた。これは、一般に、ストロンチウムやセシウムを取り込み易く、かつ、水溶性であるといわれている<sup>4)</sup> 為、黄色物を生成するガラス組成は、廃棄物含有ガラス固化体の適用には不適確である。

また、分相が認められたガラス固化体のうち、Harwell のガラス固化体（廃棄物含有率 25 wt%）について、分相が認められる黄緑色部分と認められない通常の黒色部分について蛍光 X 線による定性分析を行った。その結果、黒色部分に比較して黄緑色部分において多く含有される成分は、S, Cr, Se, Sr, Na, Ti, Asであったが、Cs についてはやや少なかった。分相した黄緑色部分および前記黄色生成物の成分については今後定量的な検討が必要である。

### 3.2 物理的性質

#### (1) 比重

比重の測定結果を Table 4 および Fig. 3 に示す。

ガラス固化体の比重は、2.4～2.9 で大差なかったが、HMI のガラス固化体は 3.0～3.35 で最も高い値を示した。

また、すべてのガラス固化体において廃棄物含有量を増加するに従って比重は大きくなった。これは、廃棄物中に重金属が多いことによるものである。

#### (2) 熱伝導率

熱伝導率の測定結果を Table 5 および Fig. 4 に示す。

図から明らかな様に、熱伝導率は 0.7～1.0 kcal/m·hr·℃ であったが、最小二乗法にて線を引いたところ廃棄物含有量の増加と共に、全般的に低下する傾向がみられた。

#### (3) 軟化温度および失透温度

示差熱分析によるガラス固化体の軟化温度と失透温度の測定結果を Table 6 および Fig. 5 に示す。また、代表的な DTA チャートを図 6 に示す。

表から明らかな様に軟化温度は 495～625℃、失透温度は 670～850℃ であった。また、廃棄物含有率を増加させるに従って軟化温度および失透温度は低下したが、これはガラス中に廃棄物成分の網目修飾酸化物が追加され網目の切断点が多くなることによるものと考えられる。

### 3.3 化学的耐久性（浸出率）

化学的耐久性として soxhlet 型浸出試験器により、100℃における浸出試験を行った。その結果を Table 7 および Fig. 7 に示す。

#### (1) 廃棄物含有率の影響について

若干のバラツキが見られるものの各ガラス固化体共に廃棄物含有量を増加させても浸出率はほとんど変化は認められなかった。この傾向は、外観観察にて分相を起こしているガラス固化体および黄色物が生成した固化体についても同様で分相に起因した特別な浸出率の変化は認められなかった。しかし、分相を起こしている部分とそれ以外の部分についての浸出率および黄色物を生成した固化体の浸出率については、今後詳細な検討が必要である。

#### (2) ガラス固化体別の浸出性について

前報<sup>1)</sup>においても廃棄物 14% 含有時の浸出性について述べたが、ガラス固化体の廃

棄物含有量を20, 25, 30%と順次増加させたときの浸出率も、ガラスフリットの浸出率の大小と同じ傾向を示した。

すなわち、浸出率の良好な順位をweightlossによる浸出率の大小にて比較すると

i) ガラスフリット

HMI > Karlsruhe > JAERI (J-10) > Harwell > Marcoule (1)

ii) 廃棄物含有ガラス

① 廃棄物含有率20%

HMI > PNC > Harwell > JAERI (J-20) > Karlsruhe > Marcoule (1)

② 廃棄物含有率25%

HMI > PNC > Harwell > Marcoule (2) > Marcoule (1)

③ 廃棄物含有率30%

HMI > PNC > Harwell > Marcoule (2)

であり、順位はほとんど変らなかった。

したがって、廃棄物含有ガラスの浸出機構は、ガラスフリットのものとは大きな変化がなく、ガラスフリットの浸出率の比較のみで、廃棄物含有ガラス固化体の浸出の容易性を比較できるものとする。

(3) 浸出成分について

浸出試験後の液中の化学成分Na, Sr, MoおよびCsの分析を行った。

各ガラス固化体共にアルカリ金属であるCsの浸出が最も多く、この傾向は、ホウケイ酸ガラス固化体に関する他の報告にもみられる<sup>5)</sup>。一方、同じアルカリ金属のNaおよびアルカリ土金属のSrは、Csに比べれば少ない傾向にあった。

#### 4. ガラス固化体の廃棄物含有率上限値に関する評価

プルトニウムおよびウラン回収後の再処理廃液は、仮焼後、ガラスフリットと共に高温熔融したのち金属容器（以下キャニスターと呼ぶ）に注入されるかもしくはキャニスター内で熔融される。その後、廃棄物含有ガラスが充填されたキャニスターは、空冷もしくは水冷にて中間貯蔵される。この時、廃棄物の含有に伴って発生する熱によってガラス固化体は中心部から軟化するようになるが、軟化点付近になると膨張率が大きく変化し、ガラス固化体の表面部およびキャニスターに無理な力が加わることになる。これを避けるため固化体の中心部温度を軟化温度以下にする必要がある。このためガラス固化体への廃棄物含有率は、固化体の熱的特性、キャニスターの形状及び冷却方式との関連で上限値が決定され、安全評価上重要なファクターとなる。また、水冷がなされた場合は、キャニスターの腐食などによってガラス固化体が水中に浸出する事態を想定すると、浸出率からも廃棄物含有率の上限が決められる。

そこで、今回の試験によって得られた各国ガラス固化体の物性値を用いて固化体の熱的特性にもとづく廃棄物含有率の上限値および浸出率にもとづく廃棄物含有率の上限値を評価した。

棄物含有量を20, 25, 30%と順次増加させたときの浸出率も, ガラスフリットの浸出率の大小と同じ傾向を示した。

すなわち, 浸出率の良好な順位をweightlossによる浸出率の大小にて比較すると

i) ガラスフリット

HMI > Karlsruhe > JAERI (J-10) > Harwell > Marcoule (1)

ii) 廃棄物含有ガラス

① 廃棄物含有率20%

HMI > PNC > Harwell > JAERI (J-20) > Karlsruhe > Marcoule (1)

② 廃棄物含有率25%

HMI > PNC > Harwell > Marcoule (2) > Marcoule (1)

③ 廃棄物含有率30%

HMI > PNC > Harwell > Marcoule (2)

であり, 順位はほとんど変らなかった。

したがって, 廃棄物含有ガラスの浸出機構は, ガラスフリットのものとは大きな変化がなく, ガラスフリットの浸出率の比較のみで, 廃棄物含有ガラス固化体の浸出の容易性を比較できるものとする。

(3) 浸出成分について

浸出試験後の液中の化学成分Na, Sr, MoおよびCsの分析を行った。

各ガラス固化体共にアルカリ金属であるCsの浸出が最も多く, この傾向は, ホウケイ酸ガラス固化体に関する他の報告にもみられる<sup>5)</sup>。一方, 同じアルカリ金属のNaおよびアルカリ土金属のSrは, Csに比べれば少ない傾向にあった。

#### 4. ガラス固化体の廃棄物含有率上限値に関する評価

プルトニウムおよびウラン回収後の再処理廃液は, 仮焼後, ガラスフリットと共に高温熔融したのち金属容器(以下キャニスターと呼ぶ)に注入されるかもしくはキャニスター内で熔融される。その後, 廃棄物含有ガラスが充填されたキャニスターは, 空冷もしくは水冷にて中間貯蔵される。この時, 廃棄物の含有に伴って発生する熱によってガラス固化体は中心部から軟化するようになるが, 軟化点付近になると膨張率が大きく変化し, ガラス固化体の表面部およびキャニスターに無理な力が加わることになる。これを避けるため固化体の中心部温度を軟化温度以下にする必要がある。このためガラス固化体への廃棄物含有率は, 固化体の熱的特性, キャニスターの形状及び冷却方式との関連で上限値が決定され, 安全評価上重要なファクターとなる。また, 水冷がなされた場合は, キャニスターの腐食などによってガラス固化体が水中に浸出する事態を想定すると, 浸出率からも廃棄物含有率の上限が決められる。

そこで, 今回の試験によって得られた各国ガラス固化体の物性値を用いて固化体の熱的特性にもとづく廃棄物含有率の上限値および浸出率にもとづく廃棄物含有率の上限値を評価した。

## 4.1 ガラス固化体の熱的特性にもとづく評価

前述のとおり，中間貯蔵時の冷却は，空冷もしくは水冷にて実施される。そこで，今回，空冷時と水冷時に分けてガラス固化体への廃棄物含有率の上限値を評価した。また，上限値は，ガラス固化体の中心温度が軟化点まで上る時の廃棄物含有率とした。

## (1) 空冷時

計算に先立って，前提条件を下記のとおり設定した。

## 〔A〕 廃棄物について (DCHAINコードによる計算)

- i) 原子炉 burn up : 33000MWD/T.UO<sub>2</sub>
- ii) 燃料取出し後経過時間 : 5年
- iii) 廃棄物の発熱量 : 2840W/T.UO<sub>2</sub>
- iv) 廃棄物発生量 : 56.7 kg/T.UO<sub>2</sub>

## 〔B〕 キャニスターについて

- i) 直径 : 外径/内径 0.42/0.40m
- ii) 高さ : 1.5 m
- iii) 配置間隔 : 中心間距離 0.8 m
- iv) 配列 : ごぼん目配列

## 〔C〕 冷却空気について

- i) 温度 : 20℃
- ii) 空気流速 : 3m/sec

## 〔D〕 計算式

- i) ガラス固化体の温度

$$T = \left( \frac{QR_1^2}{2\alpha_m R_2} + T_0 \right) + \frac{QR_1^2}{2} \left( \frac{1}{2\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} \ln \frac{R_2}{R_1} \right) \quad (2)$$

T : 容器の中心温度 (℃)

T<sub>0</sub> : 冷却空気の温度 (℃)

Q : 発熱密度 (kcal/hr·m<sup>3</sup>)

α<sub>m</sub> : 平均熱伝達率 (kcal/hr·m<sup>2</sup>·℃)

R<sub>1</sub> : キャニスター外径 (m)

R<sub>2</sub> : キャニスター内径 (m)

λ<sub>1</sub> : ガラス固化体の熱伝導率 (kcal/hr·m·℃)

λ<sub>2</sub> : キャニスターの熱伝導率 (kcal/hr·m·℃)

## ii)① 平均熱伝達率

$$\alpha_m = \frac{Nu \cdot \lambda_a}{d_e} \quad (3)$$

λ<sub>a</sub> : 空気の熱伝導率 (kcal/hr·m·℃)

Nu : ヌッセルト数  
 $d_e$  : 空気流れの相当直径 (m)

## ② ヌッセルト数

$$Nu = 0.023 Rd^{0.8} Pr^{1/3} \left[ 1 + \left( \frac{d_e}{L} \right)^{0.7} \right] \quad (3)$$

Rd : レイノルズ数  
 Pr : プラントル数  
 L : キャニスター長さ (m)

## ③ レイノルズ数

$$Rd = U_m \cdot d_e / \nu \quad (4)$$

$U_m$  : 冷却空気流速 (m/sec)  
 $\nu$  : 冷却空気動粘性係数 (m<sup>2</sup>/sec)

## ④ プラントル数

$$Pr = \nu / a \quad (5)$$

a : 温度伝導率 (m<sup>2</sup>/sec)

また、冷却空気については、伝熱工学資料に記載の物性値<sup>6)</sup>を採用した。

以上の各条件および各式を使用して、各ガラス固化体についてキャニスターの中心温度と表面温度を求めた。その結果をTable 8に記す。また、中心温度および表面温度とガラス固化体の軟化温度と併せてFig. 8に示す。

## (2) 水冷時

廃棄物およびキャニスターについての諸条件は空冷時の場合と同様である。

## (A) 冷却水について

- i) 温度 : 20℃
- ii) 水流速 : 自然流速

## (B) 計算式

## i) ガラス固化体の温度

空冷時と同様(2)式を適用

## ii)① 平均熱伝達率

$$\alpha_m = \frac{Nu \cdot \lambda_\infty}{L} \quad (6)$$

$\lambda_\infty$  : 20℃のときの水の熱伝導率 (kcal/m·hr·℃)

## ② ヌッセルト数

$$Nu = 170 \left( \frac{Gre \cdot Pr}{10^{10}} \right)^{0.42} \left( \frac{\nu_\infty}{\nu_w} \right)^{0.2} \quad (7)$$

$$2 \times 10^{10} < Gre \cdot Pr < 10^{12}$$



Gre : レイノルズ数

$\nu_{\infty}$  : 20℃のときの水の動粘性係数 (m<sup>2</sup>/s)

$\nu_w$  : 伝熱面温度のときの水の動粘性係数 (m<sup>2</sup>/s)

③ 温度伝導率

$$a = (-8.75 \times 10^{-5})T^2 + (2.30 \times 10^{-2})T + 4.66 \quad (\text{m}^2/\text{h}) \quad (8)$$

④ 水の熱伝導率

$$\lambda = (-6.25 \times 10^{-6})T^2 + (1.6 \times 10^{-3})T + 4.89 \times 10^{-1} \quad (9)$$

(kcal/m·h·℃)

⑤ レイノルズ数

$$Gre = \ell^3 \cdot g \cdot \beta (T_w - T_{\infty}) / \nu_{\infty}^2 \quad (10)$$

⑥ 膨張率

$$\beta = \{ (7.1 \times 10^{-3})T + (8.9 \times 10^{-2}) \} \times 10^{-3} \quad (1/\text{℃}) \quad (11)$$

⑦ プラントル数

$$Pr = (1.3 \times 10^2) / T + 6.1 \times 10^{-1} \quad (12)$$

⑧ 動粘性係数

$$\nu = (17.6 / T + 0.12) \times 10^{-6} \quad (13)$$

以上の各条件および各式を使用してキャニスターの中心温度と表面温度を求めた。その結果をTable 9に示す。

Fig.8より明らかな様に、ガラス固化体の軟化温度とガラス固化体の中心温度の交点は、最も低いHMIのガラス固化体で19%、最も高いPNCで20%であり、ほぼ、20%である。水冷却の場合はTable 9より明らかな様に廃棄物含有25%でも熱的な問題はない。

#### 4.2 ガラス固化体の浸出率にもとづく評価

中間貯蔵時の冷却が水冷で実施された場合、キャニスターの腐食などによってガラス固化体が冷却水に直接曝露され、廃棄物が浸出する事故を想定すると、貯蔵管理の上で問題となる点は、検出から回収、修復等の処置が完了するまでにどの程度の時間が許されるかということである。そこで、今回の浸出試験の結果を用いて、浸出開始から貯蔵時の水中濃度が法令の定める最大水中許容濃度(MPC)に達する時間を算出し、その時間から廃棄物含有率の上限値を評価した。なお、計算に先立つての前提条件は下記のとおりである。

[A] 冷却水について

- i) 冷却水量 : 100m<sup>3</sup>

ii) 許容濃度 (MPC) : 法令に定める最大水中許容濃度<sup>7)</sup> Table 10

(B) キャニスターについて

i) 腐食による露出面積 :  $1 \text{ cm}^2$

(C) 廃棄物について

i) 原子炉 burn up :  $33000 \text{ MWD} / \text{T} \cdot \text{UO}_2$

ii) 燃料取出し後経過時間 : 5 年

iii) 廃棄物発生量 :  $56.7 \text{ kg} / \text{T} \cdot \text{UO}_2$

iv) 廃棄物中の元素の存在量およびその放射エネルギー : Table 10

以上の前提条件を用いて、最大水中許容濃度に至るまでの時間を求める式は下記のとおりである。

$$\sum_j \frac{T \times L_j \times \frac{A_j}{56.7 \times 10^3} \times r}{100 \times 10^6 \times (\text{MPC})_j} = \sum_j \frac{T \times L_j \times r \times \text{H. I.}}{10^8} = 1 \quad (14)$$

T : 最大水中許容濃度に至るまでの時間 (day)

(MPC)<sub>j</sub> : 各核種の最大水中許容濃度 ( $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ )

L<sub>j</sub> : 各核種の浸出率 ( $\text{g}/\text{cm}^2 \cdot \text{day}$ )

r : ガラス固化体の廃棄物含有率

A<sub>j</sub> : 各核種の放射エネルギー ( $\text{Ci}/\text{T} \cdot \text{UO}_2$ )

H. I. : 廃棄物 1 g 当りのハザードインデックス ( $= \frac{A_j}{56.7 \times 10^3 \times (\text{MPC})_j}$ ) ( $\text{cm}^3/\text{g-waste}$ )

Table 10 には、各核種の放射エネルギーと MPC 以外に、各核種毎の MPC に対する各元素の H. I. を示したが、この値が高いほど危険性が高い。Table 10 より明らかなように、H. I. は、そのほとんどがストロンチウム-90 で律せられ、また、セシウム-137、セシウム-134 も多く、3つの核種で H. I. の 96.4% を占める。したがって、先述のストロンチウムおよびセシウムの浸出率のデータをもとに、(14)式より冷却水中の濃度が MPC に至るまでの時間を算出した結果を Table 11 および Fig. 8 に示す。なお、計算にあたっては、セシウムの分析結果がないものについては重量減による値を使用した。

冷却水中の放射能濃度が、MPC に達するまでの時間内に破損固化体の回収処置がとられるならば、貯蔵施設としては十分な安全性が確保される。そのための時間をどの程度に設定するかは今後の課題であるが、ガラス固化体の廃棄物含有率 20% 以下とすれば、すべてのガラス固化体について 10 時間以上の時間が与えられることになる。(Table 11, Fig. 9)

以上の評価は、冷却条件や前提事項を包括的に評価したものであり、今後、評価法をより発展させ種々の条件、性能に対する要求の具体化に資する。

## 5. 結 言

使用済み核燃料の再処理により発生する高レベル放射性廃棄物の処理方法の一つとして、ホウケイ酸ガラス固化体が各国で検討されている。前報のベースガラスおよび14%廃棄物含有率の検討に引き続き本報では各国で報告されているホウケイ酸ガラス固化体について模擬廃棄物を20~30%含有させたときの固化体の物理的、化学的物性を明らかにした。その結果の概要は、下記のとおりである。

- (1) PNCのガラス固化体を除き、他のガラス固化体では20~30wt%の廃棄物含有率に黄色生成物の生成あるいは分相が認められた。
- (2) 黄色生成物の主成物はモリブデン酸ソーダであった。
- (3) 分相部分にはイオウ、クロム、セレン、ストロンチウム、ナトリウム、チタン、ヒ素がリッチな成分として認められた。
- (4) 比重は、廃棄物の含有率とともに直線的に増加した。
- (5) 熱伝導率は、廃棄物含有率の増加にしたがって漸減の傾向を示した。
- (6) 軟化温度、失透温度は、廃棄物含有率の増加にしたがってやや低下した。
- (7) 浸出率は、廃棄物含有率を増加させてもほとんど変化なかった。

以上の得られた物性値をもとに、ガラス固化体が空冷もしくは水冷される場合を想定して、ガラス固化体への廃棄物含有率の上限値を推算した。

- (1) 空冷時のガラス固化体の中心温度が、ガラス固化体の軟化温度を上回ってはならないという条件で廃棄物含有率の上限値を推算すると、19~20%であった。
- (2) 水冷時、何らかの事故によりキャニスターが破損してガラス固化体が水に浸出するようになったとき、浸出開始から最大水中許容濃度になるまでに許される時間は、廃棄物含有率20%のガラス固化体では10時間以上である。

今後は、ガラス固化体中の各成分の物性に与える役割を検討し、返還固化体の受け入れの技術的判断資料作成の一助とする予定である。

## 謝 辞

本試験を進めるに当って、蛍光X線装置をお借りした環境安全研究部環境第2研究室 笠井篤室長に感謝致します。また、浸出液の分析に当って御助力をいただいた分析センター加藤金治氏に感謝致します。

## 5. 結 言

使用済み核燃料の再処理により発生する高レベル放射性廃棄物の処理方法の一つとして、ホウケイ酸ガラス固化体が各国で検討されている。前報のベースガラスおよび14%廃棄物含有率の検討に引き続き本報では各国で報告されているホウケイ酸ガラス固化体について模擬廃棄物を20~30%含有させたときの固化体の物理的、化学的物性を明らかにした。その結果の概要は、下記のとおりである。

- (1) PNCのガラス固化体を除き、他のガラス固化体では20~30wt%の廃棄物含有率に黄色生成物の生成あるいは分相が認められた。
- (2) 黄色生成物の主成物はモリブデン酸ソーダであった。
- (3) 分相部分にはイオウ、クロム、セレン、ストロンチウム、ナトリウム、チタン、ヒ素がリッチな成分として認められた。
- (4) 比重は、廃棄物の含有率とともに直線的に増加した。
- (5) 熱伝導率は、廃棄物含有率の増加にしたがって漸減の傾向を示した。
- (6) 軟化温度、失透温度は、廃棄物含有率の増加にしたがってやや低下した。
- (7) 浸出率は、廃棄物含有率を増加させてもほとんど変化なかった。

以上の得られた物性値をもとに、ガラス固化体が空冷もしくは水冷される場合を想定して、ガラス固化体への廃棄物含有率の上限値を推算した。

- (1) 空冷時のガラス固化体の中心温度が、ガラス固化体の軟化温度を上回ってはならないという条件で廃棄物含有率の上限値を推算すると、19~20%であった。
- (2) 水冷時、何らかの事故によりキャニスターが破損してガラス固化体が水に浸出するようになったとき、浸出開始から最大水中許容濃度になるまでに許される時間は、廃棄物含有率20%のガラス固化体では10時間以上である。

今後は、ガラス固化体中の各成分の物性に与える役割を検討し、返還固化体の受け入れの技術的判断資料作成の一助とする予定である。

## 謝 辞

本試験を進めるに当って、蛍光X線装置をお借りした環境安全研究部環境第2研究室 笠井篤室長に感謝致します。また、浸出液の分析に当って御助力をいただいた分析センター加藤金治氏に感謝致します。

参 考 文 献

1. IAEA Technical Report Series No187 (1979)
2. 桐山, 降矢, 加藤他 JAERI-M 8915 (1980)
3. M.J. Plodinec, J.R. Willey ; Prepared for the USA Department of Energy Under Contract, AT107-21-1, 12 (1979)
4. IAEA Technical Report Series, p.38 No187 (1979)
5. Mendel. J.E. BNWL 1965 p.16 (1973)
6. 日本機械学会編「伝熱工学資料」 (1975)
7. 昭和35年9月30日 科学技術庁 告示第22号 別表第一
8. G.Malow, J.A.C.Marples, et al ; European Atomic Energy Community First Annual Report 17 (1977)
9. N.Jacquet, Francillon, et al ; Rediochimica Acta, 25 233 (1978)
10. 馬場, 田代 JAERI-M 8706 (1980)
11. Karlsruhe Report to be published

Table 1 Chemical composition of base glass frits in several countries

(%)

	France Marcoule		JAPAN			FRG		UK Harwell
	(1)	(2)	PNC	JAERI		Karlsruhe	HMI	
				J-10	J-20			
SiO <sub>2</sub>	60.5	56.0	64.1	44.4*	50.6*	57.6	43.4	68.4
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	26.4	21.9	20.9	15.1	17.3	12.6	5.2	15.0
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>				4.1*	4.7*	1.6	12.9	
Na <sub>2</sub> O	13.1	14.6	1.5	22.0	11.0	10.0	1.4	11.2
K <sub>2</sub> O			3.0	1.3*	1.5*			
Li <sub>2</sub> O			4.5			5.5	1.2	5.4
MgO				1.7*	2.0*	5.4	1.8	
CaO			3.0	7.7	8.8	2.6	4.8	
BaO							18.1	
TiO <sub>2</sub>				0.1*	0.1*	4.7	3.5	
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>				1.3*	1.4*			
As <sub>2</sub> O <sub>3</sub>							0.6	
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		7.5		2.2*	2.5*			
ZnO			3.0				6.1	
MnO				0.1*	0.1*			
SrO							1.0	
Total	100	100	100	100	100	100	100	100
Reference	8)	9)	2)	10)		11)	2)	2)

\* from natural zeolite

Table 2 Chemical composition of simulated HLW

Reagent	Oxide form	composition	
RbNO <sub>3</sub>	Rb <sub>2</sub> O	0.7 %	} fission products and actinides
Sr(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	SrO	1.8	
ZrO(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> · 2H <sub>2</sub> O	ZrO <sub>2</sub>	8.8	
H <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub> · H <sub>2</sub> O	MoO <sub>3</sub>	9.3	
Mn(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> · 6H <sub>2</sub> O	MnO <sub>2</sub>	1.4	
Fe(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> · 9H <sub>2</sub> O	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.1	
Co(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> · 6H <sub>2</sub> O	CoO	0.6	
Ni(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> · 6H <sub>2</sub> O	NiO	1.8	
AgNO <sub>3</sub>	Ag <sub>2</sub> O	0.2	
Cd(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	CdO	0.2	
TeO <sub>2</sub>	TeO <sub>2</sub>	1.2	
CsNO <sub>3</sub>	Cs <sub>2</sub> O	5.3	
Ba(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	BaO	3.4	
RE(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> · 6H <sub>2</sub> O	RE <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	25.2	
Fe(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> · 9H <sub>2</sub> O	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	14.3	} corrosion products
Cr(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> · 9H <sub>2</sub> O	Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.1	
Ni(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> · 6H <sub>2</sub> O	NiO	1.8	} inerts
NaNO <sub>3</sub>	Na <sub>2</sub> O	17.1	
H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub>	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	1.7	

Table 3 Aspects of simulated HLW glasses

glass \ waste	14 wt%	20 wt%	25 wt%	30 wt%
Marcoule (1)	○	○	○	—
Marcoule (2)	○	—	○	phase separation
PNC	○	○	○	○
JAERI (J-20)	○	○	phase separation	phase separation & yellow product
JAERI (J-10)	○	yellow product	yellow product	—
Harwell	○	○	phase separation	phase separation
Karlsruhe	○	○	yellow product	yellow product
HMI	○	phase separation	phase separation	phase separation

○ : non yellow product and non phase separation

Table 4 Density of simulated HLW glasses

( g/cm<sup>3</sup> )

glass \ waste	0 wt%	14	20	25	30
Marcoule (1)	2.40	2.58	2.65	2.74	—
Marcoule (2)	2.53	2.65	—	2.79	2.89
PNC	2.42	2.60	2.69	2.78	2.82
JAERI (J-20)	2.52	2.69	2.76	2.83	2.83
JAERI (J-10)	2.53	2.69	2.80	2.84	—
Harwell	2.47	2.64	2.71	2.77	2.84
Karlsruhe	2.56	2.73	2.79	2.87	2.91
HMI	3.04	3.20	3.24	3.32	3.35



Table 5 Thermal conductivity of simulated HLW glasses at room temperature

( kcal/m·hr·°C )

waste	0 wt%	14	20	25	30
Marcoule (1)	0.894	0.874	0.728	0.733	—
Marcoule (2)	0.810	0.788	—	0.766	0.772
PNC	1.004	0.951	0.873	0.862	0.838
JAERI (J-20)	0.897	0.857	0.830	0.771	0.789
JAERI (J-10)	0.880	0.831	—	0.739	—
Harwell	1.009	0.956	0.815	0.760	0.863
Karlsruhe	0.919	0.966	0.890	0.813	0.896
HMI	0.795	0.839	0.700	0.780	0.799

Table 6 Softening temp. and devitrification temp. of simulated HLW glasses

(°C)

waste glass Ts, Td	0 wt%		14 wt%		20 wt%		25 wt%		30 wt%	
	Ts	Td	Ts	Td	Ts	Td	Ts	Td	Ts	Td
Marcoule (1)	586	765	574	740	566	760	565	759	—	—
Marcoule (2)	571	774	565	754	—	—	557	720	555	732
PNC	—	—	532	722	527	715	528	717	526	736
JAERI (J-20)	592	782	573	764	578	778	570	770	557	750
JAERI (J-10)	546	740	533	740	—	—	514	—	—	—
Harwell	523	776	515	708	504	760	509	696	508	692
Karlsruhe	513	733	511	707	502	670	512	—	495	686
HMI	624	847	603	817	—	—	600	827	596	—

Table 7 Leach rate of simulated HLW glasses

glass	waste	Leach rate ( $\text{g}/\text{cm}^2 \cdot \text{day} \times 10^3$ )				
		wtloss	Na	Sr	Mo	Cs
Marcoule (1)	14 %	6.01	6.64	0.27	—	3.40
	20	5.56	5.45	3.72	5.87	6.87
	25	7.72	10.77	3.26	8.45	7.25
	30	—	—	—	—	—
Marcoule (2)	14	3.08	3.97	1.99	4.52	5.43
	20	—	—	—	—	—
	25	3.14	3.83	2.63	4.36	4.74
	30	3.25	4.30	3.09	5.50	—
PNC	14	0.66	0.70	0.34	0.79	0.98
	20	0.63	—	0.77	0.84	1.15
	25	0.75	0.77	0.47	0.23	0.81
	30	0.75	0.81	0.66	0.87	—
JAERI (J-20)	14	—	—	—	—	—
	20	1.14	1.51	1.79	1.52	—
	25	—	—	—	—	—
	30	1.03	1.69	1.62	1.82	—
JAERI (J-10)	14	1.22	2.42	0.77	—	1.18
	20	1.10	1.31	1.17	1.28	1.65
	25	—	—	—	—	—
	30	—	—	—	—	—
Harwell	14	1.78	4.47	0.50	—	1.13
	20	1.14	1.43	1.13	1.64	2.08
	25	1.23	1.44	0.64	1.74	1.33
	30	0.99	1.33	1.24	1.44	—
Karlsruhe	14	0.93	1.27	0.67	—	1.17
	20	1.51	2.06	1.55	2.23	3.02
	25	0.72	0.57	0.15	0.75	0.58
	30	1.27	2.00	1.82	2.14	—
HMI	14	0.35	0.54	0.77	—	0.48
	20	0.40	0.58	0.60	0.72	1.33
	25	0.56	0.73	0.24	0.83	0.66
	30	0.37	0.42	0.51	0.50	—

Table 8 Surface and centerline temperature of simulated  
HLW glass canisters in cooling air

- cooling air 3m/s, 20°C
- canister height 1.5m
- canister diameter 0.42/0.40m

(°C)

glass	waste 14%		waste 20%		waste 25%		waste 30%	
	Ts	Tc	Ts	Tc	Ts	Tc	Ts	Tc
Marcoule (1)	157	352	233	577	308	749	—	—
Marcoule (2)	161	379	—	—	313	743	399	929
PNC	158	338	237	527	312	692	388	864
JAERI(J-20)	163	370	243	556	318	751	389	896
JAERI(J-10)	163	376	247	—	320	773	—	—
Harwell	160	342	238	551	311	740	391	856
Karlsruhe	166	352	246	541	323	739	402	860
HMI	195	447	288	725	380	882	469	1062

Table 9 Surface and centerline temperature of simulated  
HLW canisters in cooling water

- cooling water 20°C
- canister height 1.5m
- canister diameter 0.42/0.40m

glass	waste 14%		waste 20%		waste 25%		waste 30%	
	Ts	Tc	Ts	Tc	Ts	Tc	Ts	Tc
Marcoule (1)	26	221	28	372	29	470	—	—
Marcoule (2)	26	244	—	—	29	459	31	561
PNC	26	206	28	318	29	409	31	507
JAERI(J-20)	26	233	28	341	29	462	31	538
JAERI(J-10)	26	239	28	—	29	482	—	—
Harwell	26	208	28	341	29	458	31	496
Karlsruhe	26	212	28	323	30	446	31	489
HMI	27	279	29	466	31	533	32	625

Table 10 Activity, MPC and HI of active elements  
in the high-level waste

- burn up : 33,000 MWD/T UO<sub>2</sub>
- cooling time after reprocessing : 5 yr
- activity : DCHAIN code
- HI : Hazard Index ( cm<sup>3</sup>/g·waste )

element	activity (ci/T UO <sub>2</sub> )	MPC (μci/ml)	HI (cm <sup>3</sup> /g·waste)
<sup>87</sup> Rb	$1.845 \times 10^4$	$1 \times 10^{-3}$	$3.25 \times 10^2$
<sup>90</sup> Sr	$6.694 \times 10^4$	$4 \times 10^{-6}$	$2.95 \times 10^5$
<sup>90</sup> Y	$6.696 \times 10^4$	$2 \times 10^{-4}$	$5.90 \times 10^3$
<sup>106</sup> Ru	$1.139 \times 10^4$	$1 \times 10^{-4}$	$2.01 \times 10^3$
<sup>125</sup> Sb	$2.053 \times 10^3$	$1 \times 10^{-3}$	$3.62 \times 10^1$
<sup>125M</sup> Te	$4.578 \times 10^2$	$1 \times 10^{-3}$	$8.07 \times 10^0$
<sup>134</sup> Cs	$2.474 \times 10^4$	$9 \times 10^{-5}$	$4.84 \times 10^3$
<sup>137</sup> Cs	$9.404 \times 10^4$	$2 \times 10^{-4}$	$8.29 \times 10^3$
<sup>144</sup> Ce	$9.531 \times 10^3$	$1 \times 10^{-4}$	$1.68 \times 10^3$
<sup>147</sup> Pm	$4.471 \times 10^4$	$2 \times 10^{-3}$	$3.94 \times 10^2$
<sup>151</sup> Sm	$2.388 \times 10^2$	$4 \times 10^{-3}$	$1.05 \times 10^0$
<sup>154</sup> Eu	$6.493 \times 10^3$	$2 \times 10^{-4}$	$5.72 \times 10^2$
<sup>155</sup> Eu	$3.300 \times 10^3$	$2 \times 10^{-3}$	$2.91 \times 10^1$
<sup>238</sup> Pu	$9.609 \times 10^1$	$5 \times 10^{-5}$	$3.39 \times 10^1$
<sup>241</sup> Pu	$3.285 \times 10^2$	$2 \times 10^{-3}$	$2.90 \times 10^0$
<sup>241</sup> Am	$2.533 \times 10^2$	$4 \times 10^{-5}$	$1.12 \times 10^2$
<sup>242M</sup> Am	$5.959 \times 10^0$	$4 \times 10^{-5}$	$2.63 \times 10^0$
<sup>243</sup> Am	$1.633 \times 10^1$	$4 \times 10^{-5}$	$7.20 \times 10^0$
<sup>242</sup> Cm	$1.277 \times 10^1$	$2 \times 10^{-4}$	$1.13 \times 10^0$
<sup>243</sup> Cm	$1.119 \times 10^1$	$5 \times 10^{-5}$	$3.95 \times 10^0$
<sup>244</sup> Cm	$1.783 \times 10^3$	$7 \times 10^{-5}$	$4.49 \times 10^2$

Table 11 Time to MPC by leaching of Sr and Cs in simulated HLW glass

glass \ waste	14 %	20 %	25 %	30 %
Marcoule (1)	159 hr	10 hr	9 hr	— hr
Marcoule (2)	27	—	12	9
PNC	158	51	66	40
JAERI (J-20)	—	22	—	16
JAERI (J-10)	72	33	—	—
Harwell	109	34	48	21
Karlsruhe	82	25	—	15
HMI	74	64	129	52

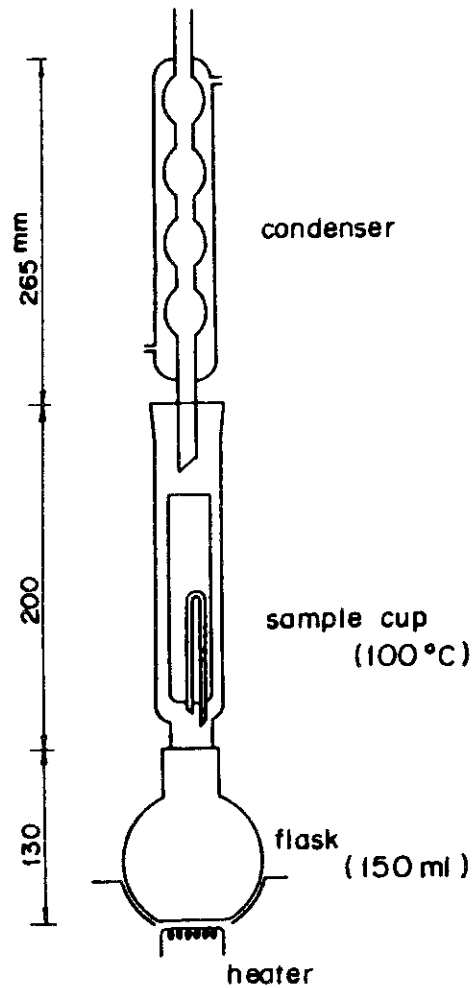


Fig.1 Soxhlet leach test apparatus

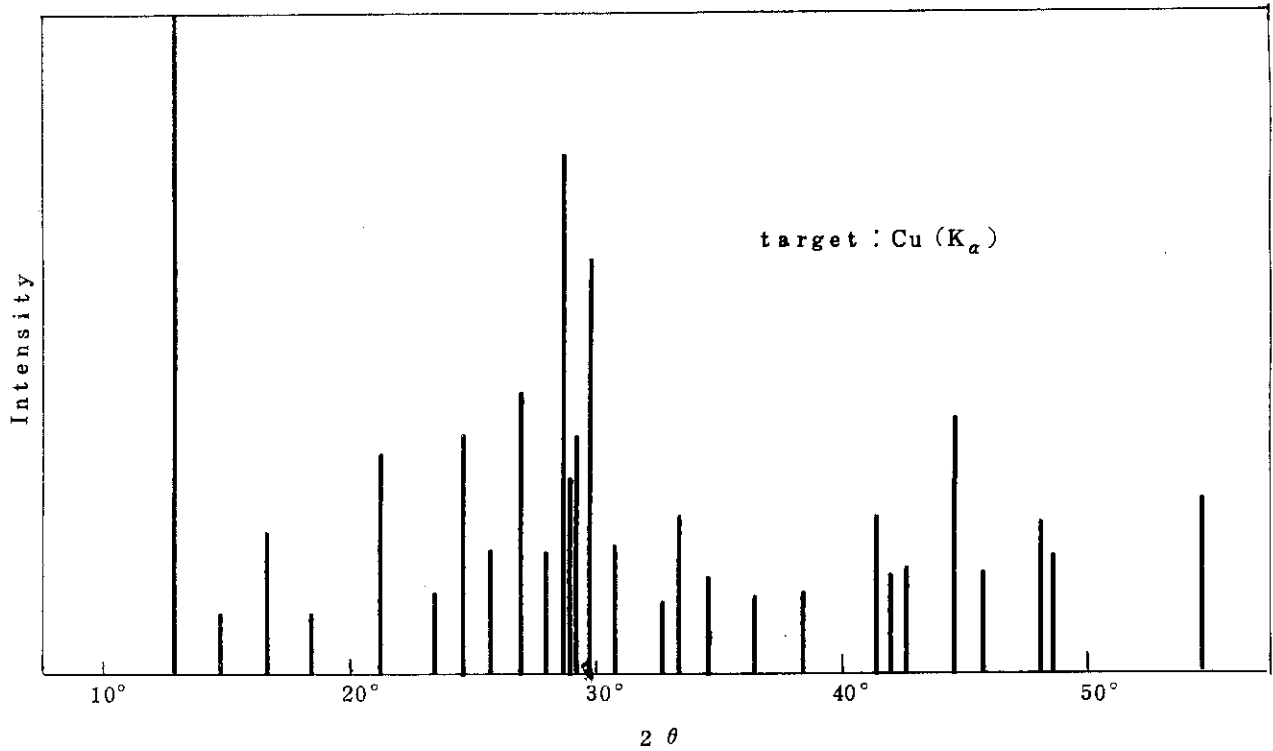


Fig. 2 X-ray diffraction pattern of yellow product(JAERI-10)

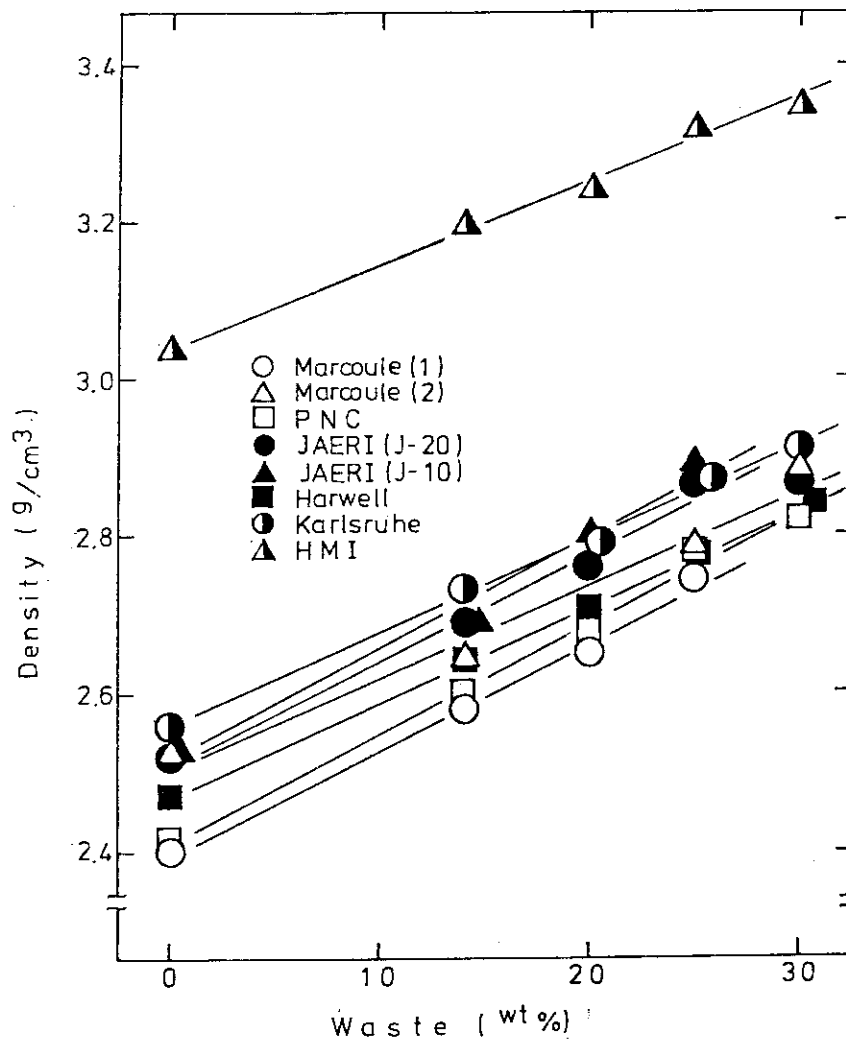


Fig.3 Density of various HLW glasses

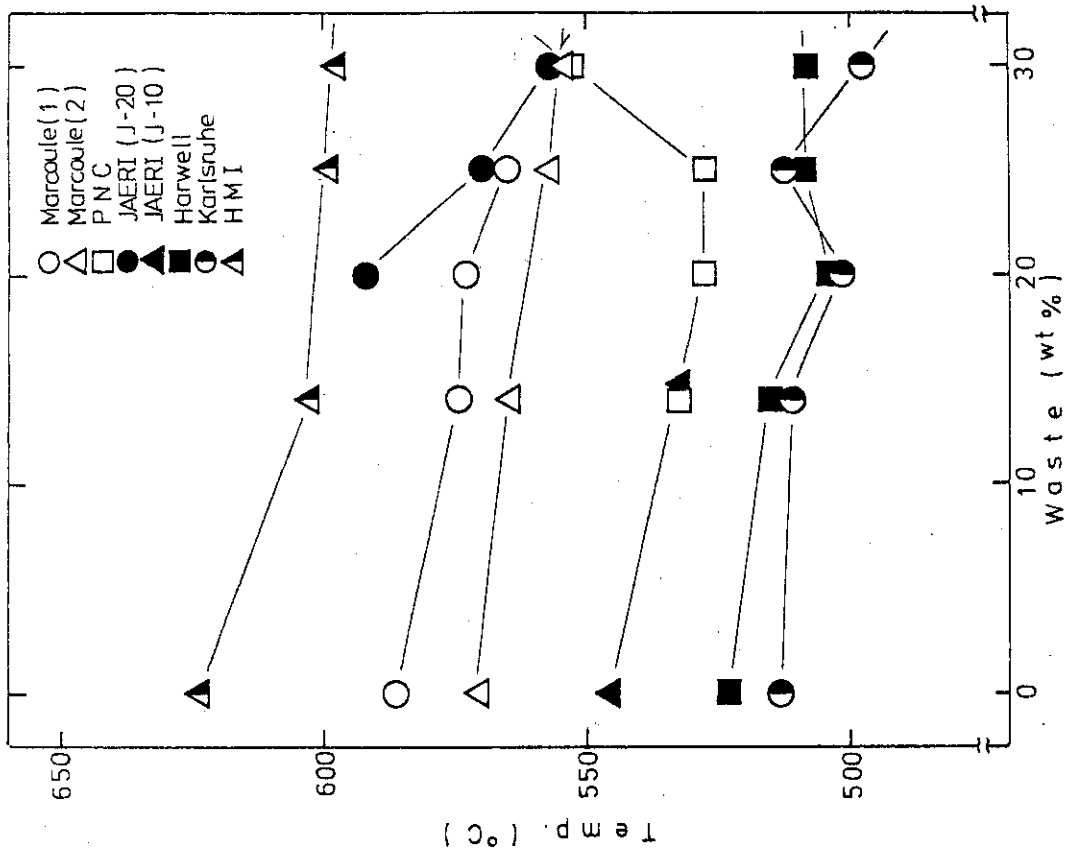


Fig.5 Softening temperature of various HLW glasses

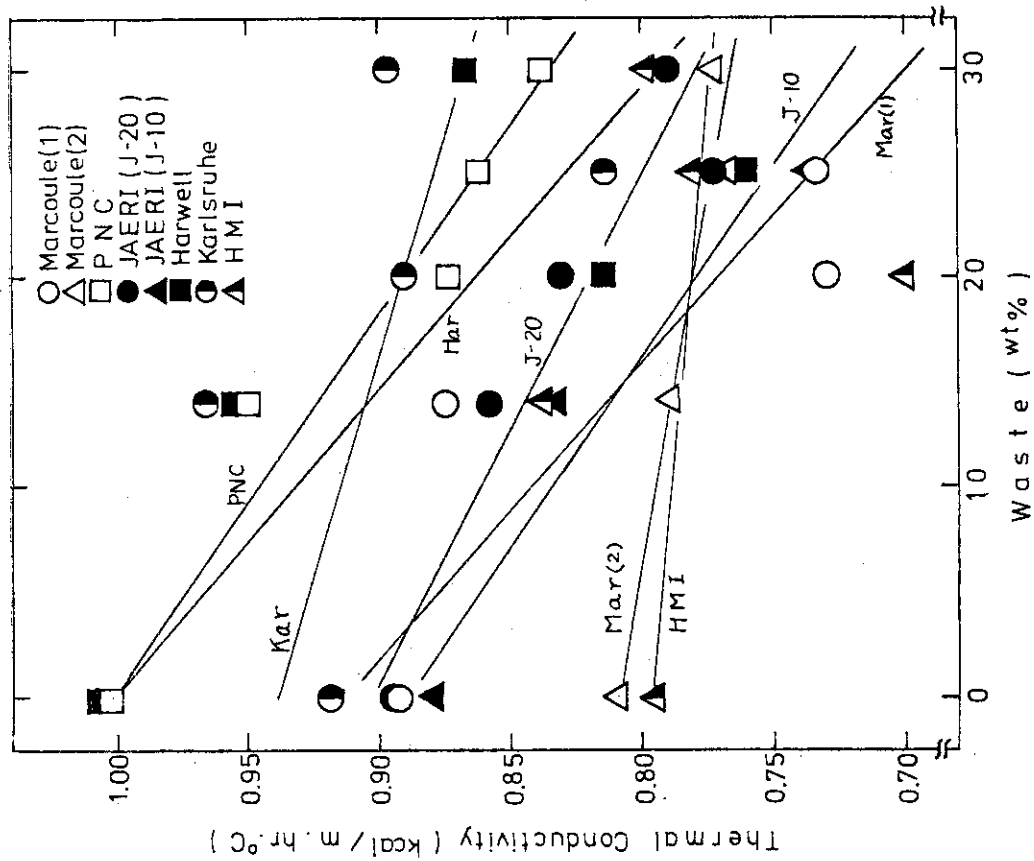


Fig.4 Thermal conductivity of various HLW glasses

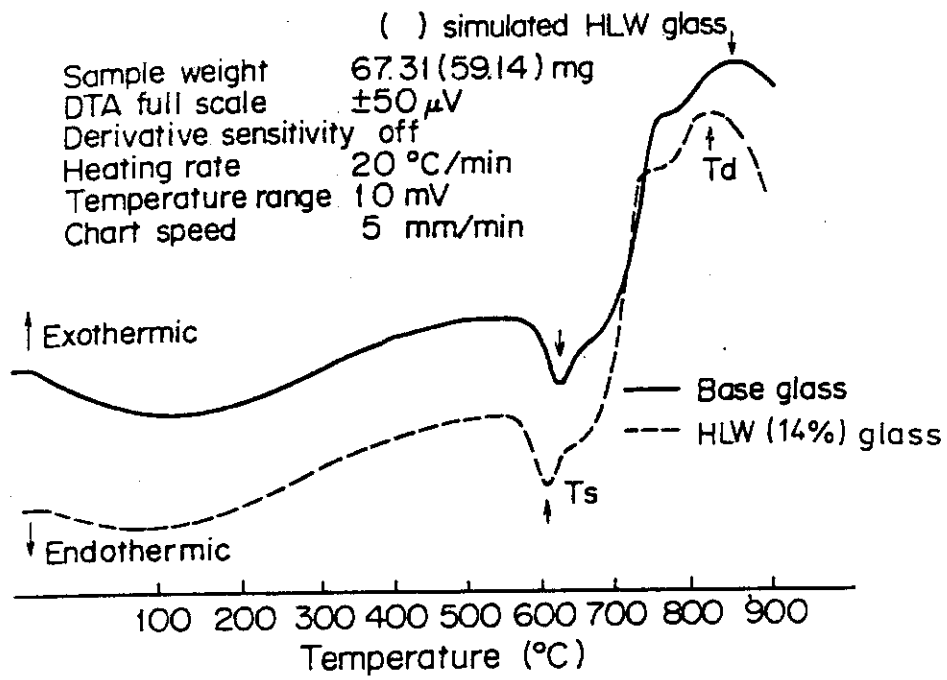


Fig.6-1 DTA-curves of Hahn-Meitner glasses

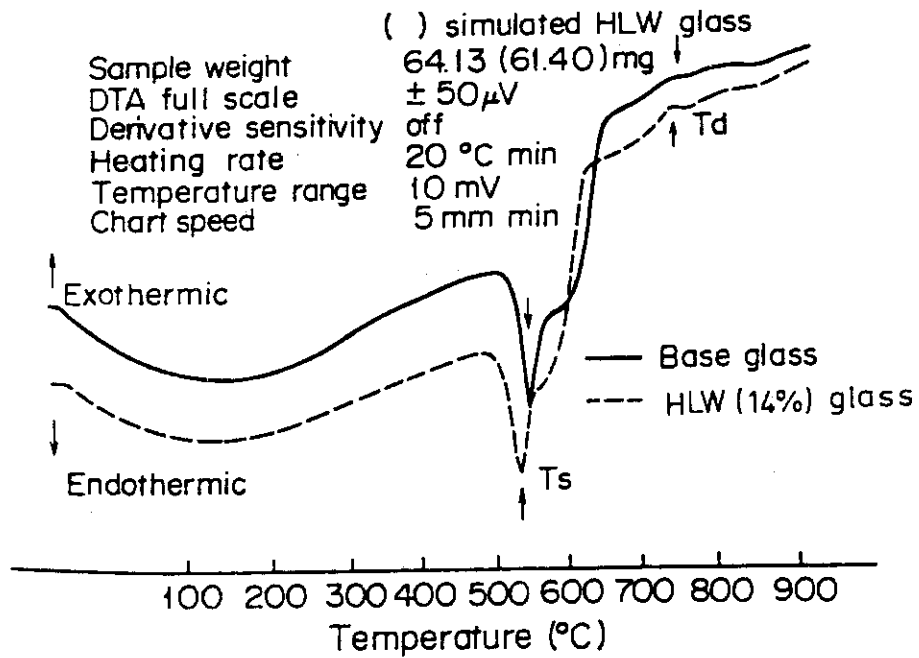


Fig.6-2 DTA-curves of JAERI(J-10) glasses



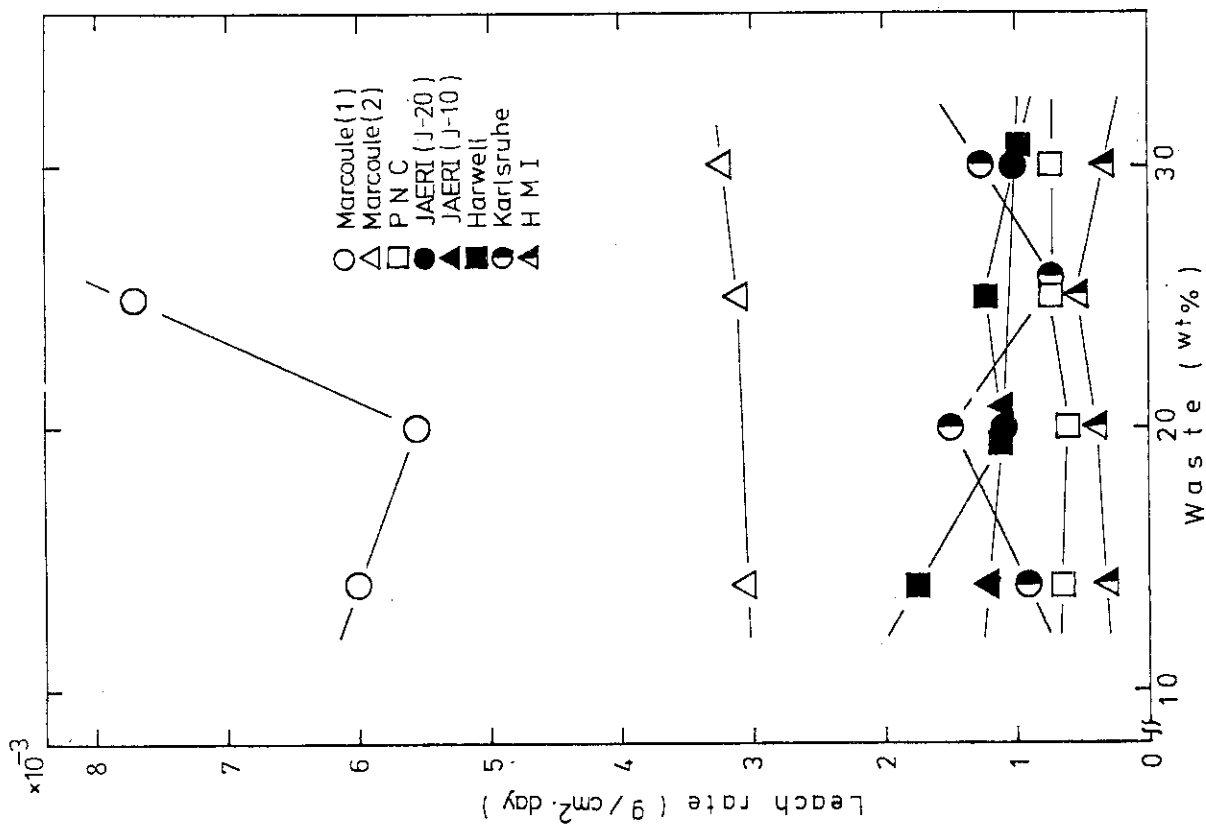


Fig. 7-1 Leach rate (weight loss) of various HLW glasses

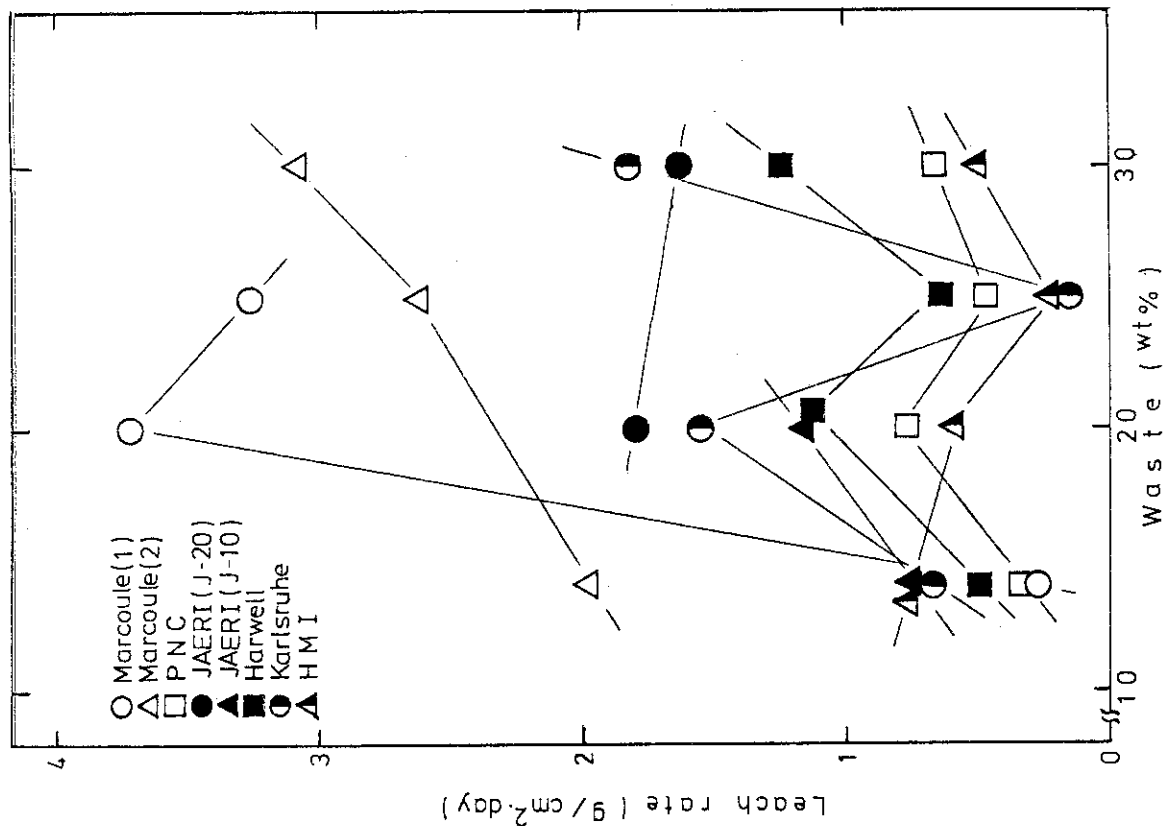


Fig. 7-2 Leach rate (Sr) of various HLW glasses

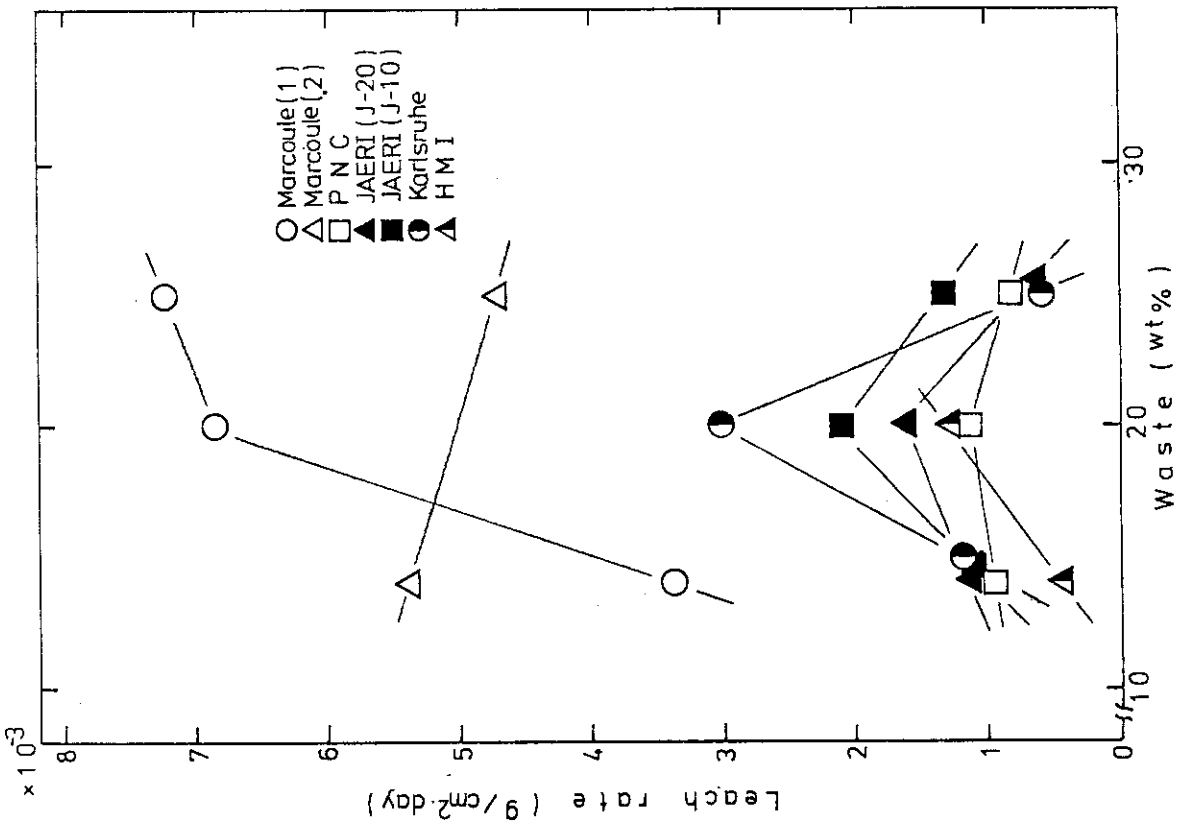


Fig.7-3 Leach rate (Cs) of various HLW glasses

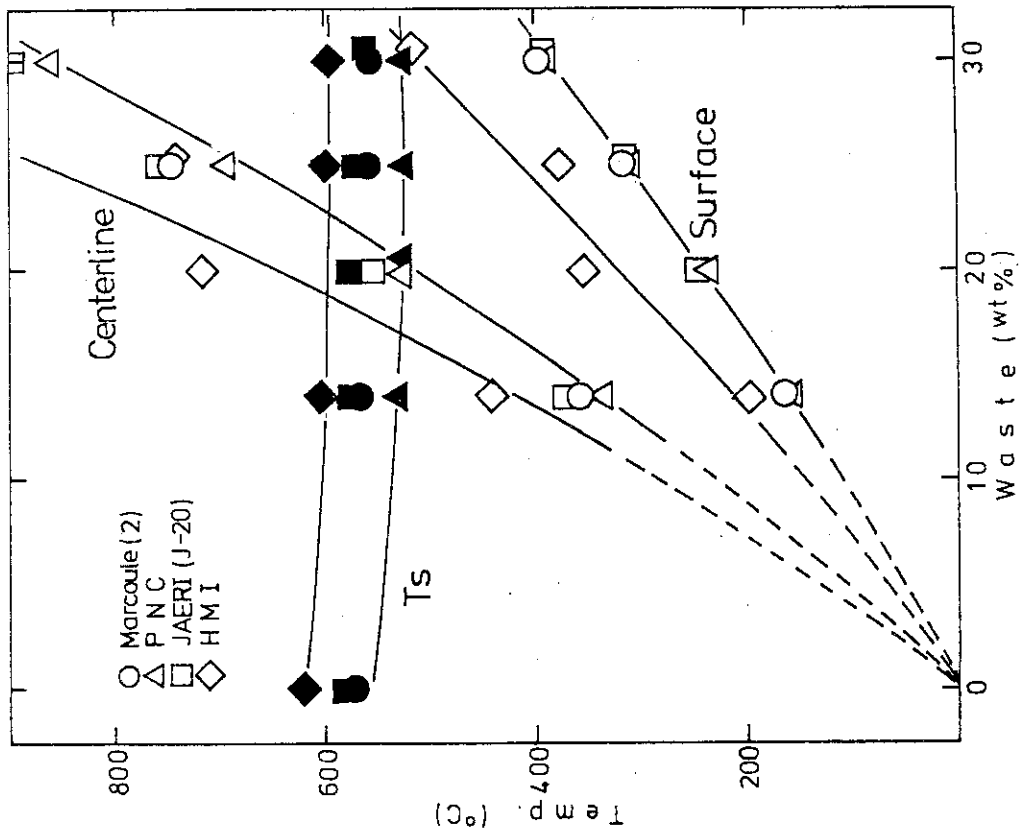


Fig. 8 Estimation of temperature at surface and at centerline of various HLW glasses

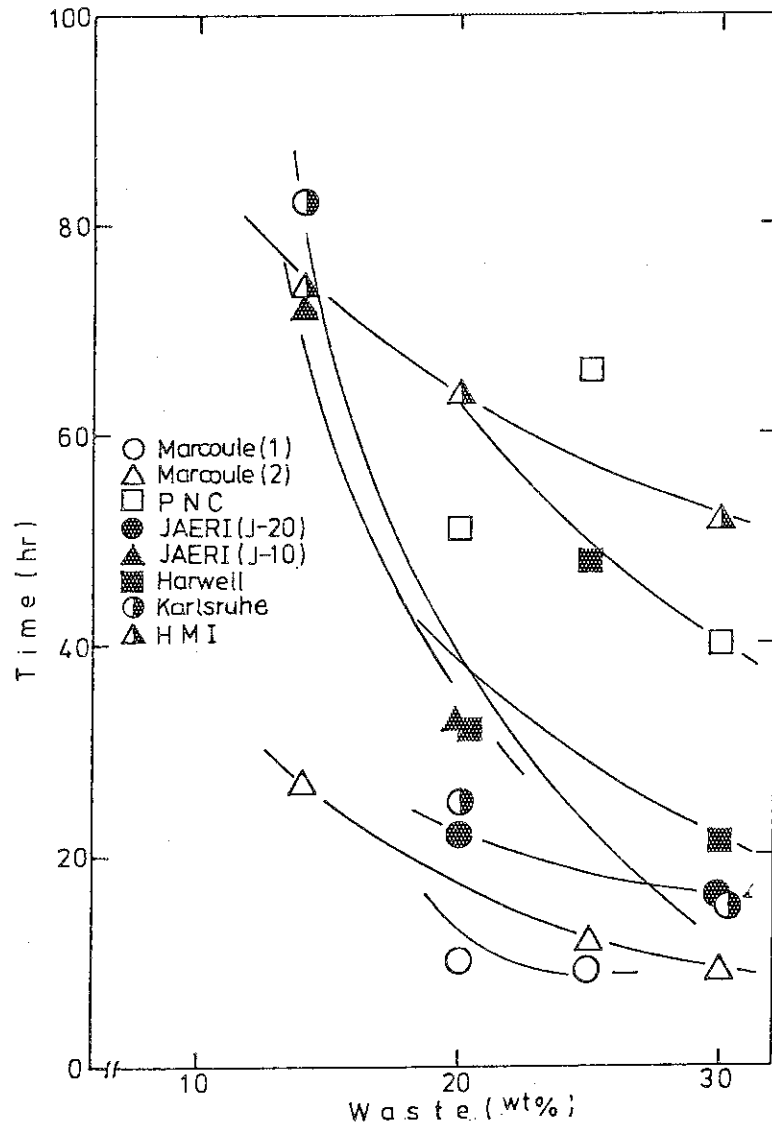
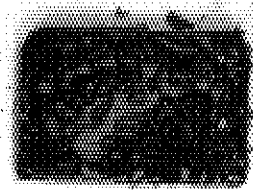


Fig. 9 Time to MPC by leaching of Sr and Cs in simulated HLW glasses



JAERI (J-10)  
waste | 25%

Photo.1 Aspect of HLW glass generated yellow products