



JAERI-Review

JP0150301

2001-001



溶融固化体のバリア性能に関する研究（Ⅰ）
—性能評価研究の現状調査—

2001年2月

前田 敏克・坂本 義昭・中山 真一・山口 徹治・小川 弘道

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

本レポートは、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。

入手の問合せは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、
お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 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。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division,
Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-
gun, Ibarakiken 319-1195, Japan.

溶融固化体のバリア性能に関する研究（Ⅰ）

— 性能評価研究の現状調査 —

日本原子力研究所東海研究所安全性試験研究センター燃料サイクル安全工学部

前田 敏克・坂本 義昭・中山 真一・山口 徹治・小川 弘道

(2001年1月10日受理)

廃棄物の溶融固化処理は減容性、均質性等の観点から優れた処理法であり、一部は実用化されている。溶融固化体は、処分時のバリア性能についても高い能力を持っているとの期待があるが、評価方法は確立しておらず、今後の研究が必要である。このため、公開文献をもとに溶融固化体のバリア性能研究の現状を調査した結果、固化体に含有されるCoやSr等の元素は、母材元素である鉄やシリカの腐食または浸出に伴う浸出挙動をとると推定されていることが分かった。しかし、固化体自体の耐久性については、これまで研究が行われていないことが明らかとなり、今後、バリア性能評価手法を確立するためには、現状で不足している長半減期核種の浸出性データの取得を進めるとともに、長期にわたる固化体の耐久性を明らかにしていくことが必要と考えられた。

Study on the Barrier Performance of Molten Solidified Waste (I)

- Review of the Performance Assessment Research -

Toshikatsu MAEDA, Yoshiaki SAKAMOTO, Shinichi NAKAYAMA, Tetsuji YAMAGUCHI
and Hiromichi OGAWA

Department of Fuel Cycle Safety Research
Nuclear Safety Research Center
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 10, 2001)

Application of melting technique is thought as one of the effective methods to treatment of the waste from the view point of its homogeneity and waste volume reduction. Solidified products by melting are expected as potential candidates of engineered barrier in a repository due to the good properties for their stabilization of radionuclides and hazardous elements. However, the methodology of performance evaluation has not been estimated so far. In this report, a literature survey on the properties of molten solidified waste was performed. It is clarified that the leachability of waste elements such as Co or Sr in molten waste form would be controlled by the corrosion behaviors of iron or silica which are the matrix elements of the waste form. While, no investigations into the durability of waste form have performed so far. Also noticed that the research items on performance evaluation such as the leachability for long-lived radionuclides and durability of waste form would be necessary for the long-term barrier assessment on the disposal.

Keywords : Molten Solidified Waste, Radioactive Waste Disposal, Institutes Waste, Barrier Performance,
Leachability

目 次

1. はじめに	1
2. 溶融固化処理について	2
2. 1 溶融方法	2
2. 2 溶融処理の対象となる廃棄物	2
3. 溶融固化体に含まれる元素について	3
3. 1 元素分布の特徴	3
3. 2 放射性核種の存在状態	3
3. 3 考慮すべき放射性核種	5
4. 溶融固化体の浸出性	6
4. 1 浸出試験方法	6
4. 2 浸出量の計算方法	6
4. 3 金属層の浸出特性	7
4. 4 非金属層の浸出特性	8
4. 5 これまでの知見の整理	10
5. バリア性能評価に必要な検討事項	11
5. 1 溶融固化体の耐久性に関する検討	11
5. 2 溶融固化体の浸出性に関する検討	11
6. まとめ	13
謝辞	14
参考文献	14

Contents

1. Introduction	1
2. The Melting Process	2
2. 1 The Melting Technique	2
2. 2 The Waste for Melting Treatment	2
3. The Elements Included in the Molten Solidified Waste	3
3. 1 The Elemental Behaviors in the Molten Solidified Waste	3
3. 2 The Properties of the Radionuclides in the Molten Solidified Waste	3
3. 3 The Radionuclides which should be Considered	5
4. The Leachability of the Molten Solidified Waste	6
4. 1 The Procedure of the Leaching Tests	6
4. 2 The Calculation Method for Leaching Rate	6
4. 3 The Leachability of the Metal Phase	7
4. 4 The Leachability of the Non-metal Phase	8
4. 5 Information which are Known So Far	10
5. The Items for Barrier Performance Assessment	11
5. 1 The Durability of Molten Waste Form	11
5. 2 The Leachability of Molten Waste Form	11
6. Conclusion	13
Acknowledgement	14
References	14

1. はじめに

原子力発電所で発生する低レベル放射性廃棄物のうち、気体廃棄物は、フィルター等により基準値以下の放射能濃度に浄化された後大気中に放出されている。また、液体廃棄物は濃縮後、セメント、アスファルトなどにより固型化され、均質・均一固化体として保管されるが、その一部については青森県の六ヶ所低レベル放射性廃棄物埋設センターにおける浅地中処分が平成4年度にすでに開始されている。

一方、固体廃棄物の場合、可燃物は焼却処理により減容され焼却灰として、難燃物及び不燃物の多くはそのままドラム缶に入れられて雑固体廃棄物として、原子力発電所の敷地内に保管されている。現在、これらの固体状廃棄物については、ドラム缶内にモルタル充填により固型化した充填固化体として、あるいは溶融処理等により減容化を図った溶融固化体の充填固化体として、均質・均一固化体と同様に、六ヶ所低レベル放射性廃棄物埋設センターに浅地中処分する計画が進められている⁽¹⁾。平成10年10月には、これらの廃棄物を含めた六ヶ所埋設センターの増設を求める事業変更申請が許可されたところである（2号埋設）。2号埋設に対して実施された安全審査においては、溶融固化体の充填固化体は全体のうちごく一部にすぎないことから、特にその性能に着目せずに安全評価が行われた。しかし、溶融固化体は減容性、均質性の他、高いバリア性を有すると考えられ、放射性廃棄物処分の分野のみならず、産業廃棄物の分野などにおいても、溶融固化体への期待は大きい。

日本原子力研究所（以下、「原研」という）等の原子力研究開発機関や、放射性同位元素を利用してい大学、企業の研究所等から発生する廃棄物（以下、「RI・研究所等廃棄物」）についても溶融処理への期待は大きく、原研では溶融固化処理施設の整備が進められている⁽²⁾。RI・研究所等廃棄物には、種々雑多な放射性廃棄物が含まれ⁽³⁾、一般的には核種別濃度評価が困難であるが、溶融固化処理を施すことにより均一性の高い固化体となり、放射能量の定量が容易であるなど、適切な品質管理が可能となる。また、溶融処理することにより高い減容効果も得られ、セメント固化体等と比較すると物理的強度も著しく向上する^(4,5)など、処理側のメリットも多い。

こうした特徴から、溶融固化体は RI・研究所等廃棄物では主要廃棄体となることが想定されるが、現状では処分時の性能評価法が確立されていないため、安全評価上は処分設備のバリア性能は実際よりも低く見積もらざるを得ない。複数の処分施設からの線量の重畠及び経済性等を考慮すると、溶融固化体のバリア性を取り込み、より現実的かつ、合理的な評価を行うことが必要と考えられる。

そこで、本レポートでは溶融固化処理技術の現状と固化体の特性についてレビューを行い、今後必要な溶融固化体の性能評価研究についてまとめた。

2. 溶融固化処理について

溶融固化とは、金属や焼却灰等の廃棄物を加熱し、高温条件下で有機物等を燃焼、ガス化させるとともに、無機物を溶融し、その後冷却して固化体とする技術であり、廃棄物の減容の他、ダイオキシン類等の分解・削減にも有効と考えられている⁽⁶⁾。この項では、一般的な溶融方式と溶融対象廃棄物について述べる。

2. 1 溶融方法

溶融のための加熱方式は一般的にプラズマ加熱方式と誘導加熱方式に大別される。

プラズマ加熱方式とは、高温（3000°C以上）のプラズマアークを被溶融物に直接に当てることにより溶融する方式で、溶融対象物の物理的化学的性状によらず高温の熱を定常的に供給でき、融点の高い廃棄物も容易に溶融することができる。

誘導加熱方式とは、誘導電流によるジュール熱で導電体を加熱する方式で、鋳型内で固化する方法と導電性ルツボ内で固化する方法がある。鋳型内で固化するためには被溶融物に金属等の良導電体が50%以上含まれている必要があるが、導電性ルツボを用いる場合は、ルツボを誘導電流により加熱し被溶融物を間接的に加熱・溶融するため、被溶融物は良導電体である必要はない。

金属等の導電性物質が多く含まれる廃棄物の溶融には、加熱効率の高さから誘導加熱法が適用されることが多いが、高融点で非導電性の廃棄物と金属等を同時に溶融処理するには、プラズマ加熱が適している。このため、プラズマ加熱と誘導加熱の特徴を併せ持つ誘導・プラズマ複合方式（以下、「ハイブリッド方式」という）による加熱・溶融も多く実用されており、導電性の金属廃棄物は誘導電流によって、非導電性の不燃物は溶融炉の上部に配置したプラズマトーチによって加熱溶融される。

実際には廃棄物による加熱効果の差異、排ガス負荷の軽重、再利用等の差異、作業効率等の理由から、廃棄物を可燃物、難燃物、不燃物、金属類等に分別し、各々に適した方法が使われることが多い⁽⁷⁻¹⁰⁾。

2. 2 溶融処理の対象となる廃棄物

上に挙げた溶融方式により、コンクリートや金属をはじめとする不燃物や、ゴム、プラスチック等の難燃物、あるいは可燃物など、様々な成分の廃棄物が溶融される。

溶融固化処理を行う廃棄物の一例として、原研の溶融対象廃棄物の主な成分とその融点を表1に示す。金属としては炭素鋼とステンレスの占める割合が最も多く、次いでアルミ、銅などが含まれる。また、金属以外の廃棄物としては、コンクリートと焼却灰が最も多くガラスやケイ酸カルシウムなども含まれる。溶融中の溶融物（溶融スラグと呼ぶ）の軟化点は廃棄体成分の組み合わせ及び溶融雰囲気によって決まり、ある成分単独では溶融しない温度域においても、他の成分を共存させることにより溶融できることもある。

3. 溶融固化体に含まれる元素について

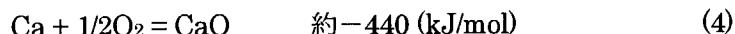
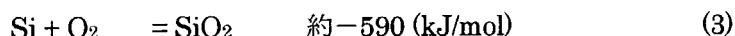
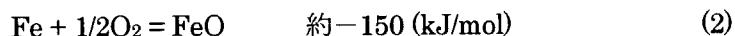
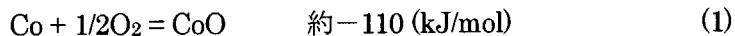
溶融固化体のバリア性能を調べるために、溶融処理によってどのような元素を固化することができるのかを知っておく必要がある。一般的に溶融固化処理後の固化体は金属層及び非金属層の2層で構成される。溶融する主な廃棄物成分がSUS、炭素鋼、焼却灰及びコンクリートである場合、金属層を構成する主要な元素は鉄であり、非金属層についてはシリカ (SiO_2)、アルミナ (Al_2O_3)、カルシア (CaO) 等の元素化合物である。この項では、これらの元素を母材成分とした溶融固化体について、様々な元素の残存状態とそのメカニズムについて述べる。

3. 1 元素分布の特徴

溶融時の元素挙動はその溶融温度と雰囲気によって決まり、加熱方式の違いによる大きな差はない。溶融時に元素が揮発して排ガス系へ移行するか固化体中に残存するかは、元素やその化合物の飽和蒸気圧によって決まる。溶融固化体作製時に投入した元素の全量のうち、金属層と非金属層に残っているものの割合を残存率という。

元素が金属層へ移行するか非金属層へ移行するかは、金属層を構成する主要な元素（鉄）と非金属層を構成する元素化合物 (SiO_2 、 Al_2O_3 、 CaO 、 FeO など) の標準生成自由エネルギーとにより概ね推定が可能であり⁽¹¹⁾、溶湯に金属層（主成分：Fe）と非金属層（主成分：Si, Ca）が形成されるとき、ある元素が溶湯内で還元されれば金属層に分布し、酸化されれば非金属層に分布する。

溶湯中の主成分の酸化反応と 1600°Cにおける生成自由エネルギーはそれぞれ、



であり、これら 4 つの反応のうち Fe を主体とする金属廃棄物の溶融に必要な 1600°C付近では、Co の酸化反応が最も生じにくいくことから、同温度程度では Co は還元され金属層に分布する⁽¹²⁾。

なお、固化体中の CaO の活量と SiO_2 の活量の比を塩基度と呼ぶが、これが 1 以下程度の場合 ($\text{SiO}_2 > \text{CaO}$) には、元素の酸化還元反応に対する Ca の影響は一般的に小さく⁽¹³⁾、溶融固化体中における元素の分布挙動は、Fe と Si に対する相対的な酸化還元傾向によって考えることができるとされている⁽¹²⁾。

3. 2 放射性核種の存在状態

公表されている溶融処理後における放射性核種の存在状態を表 2 にまとめて示す。これらは金属と非金属の共存する廃棄体を、プラズマ加熱方式もしくは誘導加熱方式によって 1500～1600°C程度の運転温度で溶融したときの結果である^(5, 7-10, 12, 14-19)。なお、参考のため各化合物の融点についても示す。

^{137}Cs の分解温度は酸化物、硝酸塩で約 400°C⁽²⁰⁾であるが、ゴム等に含まれる硫黄が存在した場合、硫酸セシウム（分解温度：1700°C以上）が形成される可能性がある⁽²¹⁾。

残存率は炉内雰囲気の影響をうけ、還元条件では溶融スラグ中の Cs_2O が還元され、Cs 金属となり蒸発が促進される⁽⁸⁾。溶融時に表面からの蒸発が継続している過渡状態であるため、溶融温度の保持時間が長くなると残存率が低下する⁽²²⁾。また、塩基度（コンクリート=約 0.28、焼却灰=約 0.45、保温材=約 0.95 など）が大きい場合には残存率が低くなる⁽¹⁰⁾が、金属母材がステンレスの場合には逆に塩基度が大きいほど残存率が高くなる傾向が見られる⁽⁹⁾。0.5~1.0 程度の場合は変わりない^(9, 23, 24)。非金属層／金属層の体積割合による残存率の変化はなく、溶融後の均一性は良好である。溶融の際、スラグ中に存在するケイ酸塩を主とした陰イオン又は酸素イオンに捕捉されたため非金属層に残存する⁽²⁵⁾。

^{60}Co の融点は酸化物で 1795°C、単体の場合は 1490°C⁽²⁰⁾である。残存率は炉内雰囲気、溶融温度の保持時間及び廃棄体の塩基度の影響を受けずほぼ 100%であり、非金属層／金属層の体積割合による残存率の変化はない^(5, 9, 14, 19)。酸化物の生成自由エネルギーが Fe よりも大きい⁽²⁶⁾ので Fe が多く存在する場合は酸化物が生成しても Fe により還元され金属層に移行するが、炉内に空気を積極的に吹き込むと、金属層に分布すべきものが一部酸化され非金属層に移行する。また、銅やステンレスなど炭素鋼以外の金属系廃棄物を添加した場合は、濃度の変動係数が大きく不均一になる。

^{90}Sr (^{85}Sr) の融点は酸化物で 2430°C⁽²⁰⁾である。酸化物の生成自由エネルギーが Fe よりも小さい⁽²⁶⁾ので、酸化物が生成すると Fe により還元されず安定な SrO の状態で非金属層中に存在する⁽⁸⁾。残存率は炉内雰囲気の影響を受けず大部分が非金属層へ移行するが、金属母材が鉄の場合には塩基度の増加とともに非金属層における残存率が減少し、母材がステンレスの場合は逆に塩基度の増加とともに残存率が増加する現象も見られる^(9, 19)。

^{54}Mn は基本的に金属層に移行するが、酸素濃度が高いと酸化物の形で非金属層に移行する^(8, 19)。Mn が金属層に残存するか非金属層に移行するかは、溶湯表面及び溶湯と非金属層との界面での酸化還元反応に依存する。非金属層中での化学形は通常 $(\text{MnO}_2) \cdot \text{SiO}_2$ のような複合化合物を形成しており、非金属層の塩基度が増すにつれて非金属層中に遊離 MnO が増えるといわれている⁽²⁷⁾ことから、非金属層の塩基度が高くなると、非金属層中の遊離 MnO が還元され MnO の発生量を減少させる。また、Mn が酸化して MnO を形成する反応は吸熱反応である⁽²⁸⁾ことから、溶融温度が高いほど Mn の酸化は促進される。また、溶融母材がステンレスの場合は、ステンレス中に存在する Cr が Mn 酸化物の生成を抑制し、金属層中の Mn の残存量を増加させると考えられている⁽¹⁰⁾。

^{65}Zn の大半は金属層と排ガス系へ移行する^(8, 19)。Zn に対する酸化物の生成自由エネルギーは Fe、Si の場合に比べて高いので、ZnO の大部分は金属層と非金属層との界面において溶湯中の Fe、Si により還元され金属 Zn となり金属層に溶解する。ZnO の残りは浮上して非金属層に捕獲されるが、非金属層中の SiO_2 濃度が低く非金属層の還元性が強いと、ZnO は金属 Zn に還元され易い。Zn の沸点は 930°C なので、溶融温度の保持時間が長くなると残存率が低下する。

^{99}Tc の融点は還元状態における Tc 単体及び TcO_2 形態で 2000°C 以上、酸化状態の Tc_2O_7 形態で約 120°C である^(20, 29)。残存率は炉内雰囲気による影響をうけ、還元雰囲気での高周波溶融処理ではほぼ 100%であるが、空気雰囲気のプラズマ溶融では一部が揮発する。一般的に実規模試験ではラボスケール試験と比較して Tc_2O_7 形態で存在する時間が長いことから、ラボスケール試験における残存率の方が実規模試験における残存率よりも高い。残存した Tc は主に金属層に移行する。

^{59}Ni 及び ^{63}Ni の融点は酸化物の形態で 1984°C、単体で 1450°C である⁽²⁰⁾。残存率は炉内雰囲気の影響を受けずほぼ 100%である。酸化物の生成自由エネルギーが Fe よりも大きい⁽²⁶⁾ので、酸化物が生成すると Fe により還元されず非金属層に移行する。

^{94}Nb の融点は酸化物の形態で約 1500°C である⁽²⁰⁾。残存率は炉内雰囲気の影響を受けずほぼ 100%である。酸化物の生成自由エネルギーが Fe よりも小さい⁽²⁶⁾ので、酸化物が生成すると Fe により還元されず非金属層に移行する。

^{14}C はシウ酸（有機）、炭酸ナトリウム（無機）形態であっても、溶融処理温度では燃焼分解し炭酸ガスとして揮発する⁽³⁰⁾。

¹²⁹I はどのような形態であっても 200~300°C 程度で分解昇華⁽²⁰⁾し揮発する。

³H は容易に揮発し、残存率はほぼ 0 である。

Ce は TRU の模擬として使用される。融点は酸化物の場合、通常の金属類などの溶融温度よりも高く⁽¹⁷⁾、残存率は炉内雰囲気による影響をうけずほぼ 100% である。酸化物の生成自由エネルギーが Fe よりも小さい⁽²⁶⁾ので、酸化物が生成すると Fe により還元されずに非金属層に移行する。

Re は Tc の模擬として使用される⁽³¹⁾。融点は還元状態における単体の場合は 2000°C 以上で、酸化状態である Re₂O₇ 形態で約 300°C である⁽¹⁷⁾。Tc と同様に残存率は炉内雰囲気の影響を受ける。酸化物の生成自由エネルギーが Fe よりも大きい⁽²⁶⁾ので、酸化物が生成しても Fe により還元され金属層に移行するが、溶融初期において還元される前に一部が揮発する。

3. 3 考慮すべき放射性核種

以上の結果より、溶融固化体中に残存すると考えられる放射性核種は、金属層については ⁶⁰Co, ⁵⁴Mn, ⁶⁵Zn, ⁹⁹Tc, ^{59,63}Ni であり、非金属層については ¹³⁷Cs, ^{85,90}Sr 及び ⁹⁴Nb であることが分かる。これらは、溶融固化体のバリア性能を評価する上で考慮すべき放射性核種の候補として挙げられるが、表 2 に挙げたもの以外にも、残存性及び半減期等から特性評価の検討が必要な放射性核種が存在する。これらについては後の項目で述べる。

4. 溶融固化体の浸出性

低レベル放射性廃棄物処分の基本的考え方は、廃棄物に含まれる放射能が時間的減衰により、安全上支障のないレベル以下になるまでの間、放射性廃棄物を管理することである⁽³²⁾。処分に際しては、処分場の状態や固化体の性能等に基づき、安全評価が行われるが、固化体のバリア性能を判断する基準項目は、固化体の耐久性と浸出性である。溶融固化体については、耐久性に関する研究成果は報告されていない。浸出性についても一部の研究者による浸出試験を除き、ほとんど実施されていないのが現状である。この項では、溶融固化体のバリア性能について、これまでに行われてきた浸出性に関する試験とその結果についてまとめる。

4. 1 浸出試験方法

溶融固化体の浸出性は、固化体のバリア性能を評価する上で重要な物性である。固化体に含まれる各元素の浸出性はその種類によって異なり、固化体の組成や接触液及び環境によっても影響を受けると考えられる。これまでに報告されている溶融固化体についての浸出試験条件の一覧を表3に示す^(4, 18, 33-35)。

従来の試験では、溶融固化体の金属層、非金属層について、Co、Ni、Sr、Nb、Cs、Ce、Re 等の元素についての浸出性が調べられている。TRU の模擬として Ce 等の希土類元素が用いられ、Tc の模擬としては Re が用いられている。温度については、処分場の地下水温度を想定した 10°C や、短期間で浸出を加速させるため 40°C や 90°C が試験温度として採用されている。処分場で溶融固化体をモルタル等のセメント材で固めた場合、地下水はセメント材を通して固化体に接触することから、接触液については脱イオン水の他にセメント平衡水が使用されることもある。セメント平衡水とは、脱イオン水にコンクリートあるいはモルタルを浸漬し、pH が安定した後の溶液のことである。

4. 2 浸出量の計算方法

一般的に溶融固化体の浸出試験は金属層と非金属層それぞれについて MCC 法⁽³⁶⁾に準拠した静的浸出試験法で行われており、元素の浸出量は(5)式による規格化浸出量 $NLi(g/cm^2)$ で示される。MCC 法とは米国の Material Characterization Center で定められたガラス固化体の浸出性に関する試験方法であり、この方法が溶融固化体にも適用してきた。浸出率 ($g/cm^2/day$) は規格化浸出量を浸出期間で除することにより求める。(以下、特にことわりがない場合、「浸出量」は規格化浸出量のことを示す。また、「金属層」及び「非金属層」は共に溶融固化体のことを示すものとする。)

$$NLI = m_i / (f_i \cdot S) = c_i / (f_i \cdot S / V) \quad (5)$$

c_i : 浸出液中の元素 i の濃度 (g/cm^3)

m_i : 浸出液中の元素 i の質量 (g)

f_i : 固化体試料中の元素 i の質量分率

S : 固化体試料の表面積 (cm^2)

V : 浸出液の体積 (cm^3)

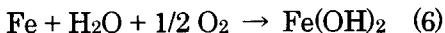
4. 3 金属層の浸出特性

(1) 各元素の浸出率

鉄とステンレスを溶融母材とした固化体の金属層について、天川らは、10°Cの脱イオン水中で364日間までの浸出試験を行った^(33, 34)。金属層には、Feが母材元素として、Co、Ni及びReが添加元素として含まれている。364日目における元素浸出量をまとめたものを図1に示す。Feの浸出量の経時変化を図2に示す。図よりFeの浸出量は浸出期間の経過とともにやや減少傾向を示している。これは、Feの沈殿が生じることが原因と考えられている⁽³³⁾。一方、金属層に含まれる添加元素Co、Ni及びReのうち、最も浸出量の多かったのはReであり、Coは全ての試験条件において浸出液中では検出限界濃度未満であった。Reの浸出量がCo、Niに比較して多い理由は、浸出したReが水中の溶存酸素に酸化され可溶性のレニウム酸が生成されるためであり、溶存酸素濃度の低い浸出液では、これよりも低い値になると天川らは推測している。Co及びNiは浸出後に難溶性の水酸化物を形成しやすく沈殿となるため、Reに比べ浸出率が低くなると考えられている⁽³³⁾。

(2) 金属層の腐食と元素浸出量との比較

金属層の浸出性は主要構成元素であるFeの腐食に支配される。大気平衡水中におけるFeの腐食は以下に示す電気化学的反応によって進行する⁽³⁷⁾。



Fe(OH)_2 はさらに酸化されて Fe(OH)_3 や Fe_2O_3 になる。大気平衡水中のFeの腐食速度はpH4~10の間で約 $10^4 \text{g/cm}^2/\text{day}$ であり⁽³⁷⁾、固化体内に含まれる他の元素の中で、沈殿物を形成しにくいものは水中でのFeの腐食速度と同程度の浸出率になると考えられている。一方、水酸化物等の難溶性沈殿を形成するものに関しては、浸出率がFeの腐食速度よりも小さくなると言われている^(33, 34)。金属層に含まれる元素であるCo、Ni及びReの浸出量を浸出期間で除することによって浸出率に換算すると、それぞれ $\text{Co} = \text{約 } 3.0 \times 10^{-7} \text{ g/cm}^2/\text{day}$ 未満、 $\text{Ni} = \text{約 } 2.2 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^2/\text{day}$ 、 $\text{Re} = \text{約 } 5.2 \times 10^{-5} \text{ g/cm}^2/\text{day}$ となる。換算した各元素の浸出率とFeの腐食速度との比較を図3に示す。いずれの浸出率もFeの腐食速度よりも低い値となっている。この結果から、金属層に含まれるこれらの元素については、選択的な浸出ではなく母材の腐食に律速された浸出挙動をとることが予測されている⁽³⁴⁾。

また、鉄にNi、CrやAlなどを添加すると耐酸化性が増すことはよく知られており、炭素鋼以外にもステンレスやアルミ、銅などを同時に溶融した金属層の腐食速度は、固化体に含まれるこれらの成分により、純粋なFeに比べ小さくなるという結果も報告されている⁽³⁴⁾。

(3) 浸出温度の比較

接触液の温度が金属層の浸出性に及ぼす影響を調べるために、天川らは、10°C及び40°Cにおける浸出試験を行った^(18, 33)。金属層の主要構成元素であるFeの10°Cにおける浸出量は、 $5.4 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^2$ 、40°Cにおける浸出量は $5.2 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^2$ であり、温度によるFeの浸出量への影響はみとめられなかつた。また、10°CにおけるReの浸出量は、 $1.1 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^2$ 、40°Cにおける浸出量は $2.1 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^2$ であり、40°Cにおける浸出量が10°Cに比較して約2倍となっている⁽³³⁾。金属層に含まれる元素については、選択的な浸出ではなく母材であるFeの腐食に律速された浸出挙動をとることが予測されている。10°C及び40°CでのFeの浸出量がほぼ同じにもかかわらず、Reの浸出量に差がみとめられることがから、40°Cの浸出液におけるReの溶解度が10°Cにおける溶解度よりも高いため、液中濃度に差が生じたと考えられる。金属層に含まれる他の元素については浸出液中濃度が検出限界値以下であったため、各温度における浸出データが得られていない。今後は検出限界値の低い測定装置の導入が必要である。

(4) 接触液の組成による浸出性の比較

接触液の組成が金属層の浸出性に及ぼす影響を調べるため、天川らは、鉄とステンレスを母材とした金属層を用いてセメント平衡水中及び脱イオン水中における金属層の浸出試験を行っている⁽³³⁾。浸出液中で検出された元素について、各接触液中における浸出量の比較を表4に示す。表より、セメント平衡水におけるFeの浸出量が脱イオン水中に比較して多いことがわかる。逆に、Niについてはセメント平衡水中に比較して脱イオン水中における浸出量が多い。その他の元素については浸出液中濃度が検出限界以下であったため、データが得られていない。

4. 4 非金属層の浸出特性

(1) 各元素の浸出率

焼却灰及びコンクリートを溶融母材とした固化体の非金属層について、天川らは、364日間までの浸出試験を行った^(33, 34)。それぞれの非金属層の組成を表5に示す。364日目における全元素の浸出量をまとめたものを図4に、また、各元素浸出量の経時変化を図5から図8に示す。

非金属層の主要な構成元素のうち浸出液中で検出された元素はSi、Ca、Naであり、これらの浸出量はいずれも浸出開始後すぐに飽和していることが図からわかる。また、非金属層に含まれる添加元素Sr、Nb、Cs及びCeのうち、浸出溶液中で検出された元素はSrのみであり、Cs、Nb及びCeについてはいずれも検出限界濃度未満であった。検出限界値を用いた浸出量は、NbとCeについては各々約 $1.0 \times 10^{-7} \sim 4.0 \times 10^{-7}$ g/cm²未満、Csについては約 3.0×10^{-5} g/cm²未満であった^(33, 34)。Srの浸出量は約 5.0×10^{-7} g/cm²であり、浸出初期からの浸出量の経時変化が観察されないことから、Srの浸出量は浸出期間の影響をほとんど受けないことが分かる。

(2) 非金属層の組成による浸出性の比較

天川らは、組成の異なる非金属層についての浸出挙動の比較を行っている⁽³⁴⁾。表6に天川らの浸出試験に使用された非金属層の主な成分の組成を示す。これらの非金属層について、10°Cの脱イオン水中で364日間までの浸出試験を行った結果を表7に示す。表7より、非金属層の構成元素であるSi、Ca、Na、Fe及び添加元素の一つであるSrについての浸出量は、Si、Ca、SrについてはNo.1の試料の浸出量が最も多く、No.2、3、4の順に少なくなっている。NaについてはNo.4の試料の浸出量が最も少なく、Feの場合ではNo.1の試料の浸出量が最も多くなっている⁽³⁴⁾。各試料のSiO₂の含有量を比較すると、No.4が最も多く、3、2、1の順に少なくなっており、塩基度(CaO/SiO₂)は以下の通りである。

$$\text{No.1} > \text{No.2} > \text{No.3} > \text{No.4} \quad (7)$$

以上の結果から、非金属層の塩基度が小さいほど、Si等の構成元素の浸出量が少なくなり、それに伴いSr等の含有元素の浸出量も少なくなることが分かる。

ガラス固化体の研究では、固化体中の組成成分それぞれについてのモル分率と水和反応の自由エネルギーとの積の総和が大きいほど、固化体の浸出率が小さくなるとされている⁽³⁸⁾。非金属層中の主な成分についての、水和反応の自由エネルギーの大きさは以下の通りである⁽³⁸⁾。

$$\text{Fe}_2\text{O}_3 > \text{SiO}_2 > \text{Al}_2\text{O}_3 > \text{CaO} \quad (8)$$

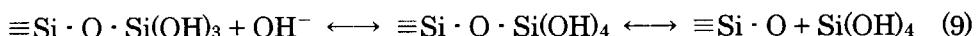
試験結果より、浸出量の多い試料No.1は水和反応の自由エネルギーの小さなCaOの含有量が多く、

自由エネルギーの大きな SiO_2 の含有量が少ないことが分かる。また、浸出量の少ない試料No.4については、 SiO_2 の含有量が多いことが分かる。これより、コンクリートや焼却灰等の非金属廃棄物を母材とする溶融固化体の主な組成である SiO_2 、 CaO 及び Al_2O_3 のうち、水和反応の自由エネルギーの大きい SiO_2 のモル分率が大きく、自由エネルギーの小さい CaO のモル分率が小さいほど、固化体の浸出率が小さくなる傾向があると考えられる。

(3) 浸出温度の比較

接触液の温度が非金属層の浸出性に及ぼす影響を調べるために、天川らは、10°C及び40°Cにおける浸出試験を行った^(18, 34)。浸出液中に検出された元素について、各温度における元素浸出量を表8に示す。表より、いずれの元素についても40°Cにおける浸出量が多くなっていることが分かる。こうした現象は、非金属層の主成分である Si の浸出に密接な関係がある。

Si を主成分とする非金属層は、ガラスと同様に Si を主な構成元素とする連鎖構造（以下、「ネットワーク」という）をもつ。固化体が溶液に接触すると、まず溶液中の H^+ 、 H_3O^+ とのイオン交換反応により固化体表面のアルカリ元素が溶出する。同時に、以下に示す OH^- による固化体のネットワークにおける可逆的な水和反応が生じる⁽³⁹⁾。



これらの反応に支配される Si の浸出率は温度や pH に依存し、温度が高いほど Si の浸出率は高くなる。ネットワーク構成元素の一つである Si の浸出に伴い、固化体内に含有される他の元素も浸出することから、40°Cでの各元素の浸出量が 10°Cに比べ多くなったと考えられる。この様に、接触液の温度は非金属層の浸出性を決定する重要なパラメータの一つといえる。

(4) 接触液の組成による浸出性の比較

接触液の組成が非金属層の浸出性に及ぼす影響を調べるため、天川らは、セメント平衡水中と脱イオン水中における非金属層の浸出試験を行っている⁽³³⁾。種々の塩基度の非金属層を 10°Cの脱イオン水に浸漬した場合と、10°Cのセメント平衡水に浸漬した場合の Sr 浸出量の経時変化を図9から図11に示す。図より、いずれの試料においても、セメント平衡水中における Sr の浸出量は脱イオン水中よりも少ないことが分かる。この理由としては、セメント平衡水中では脱イオン水中に比べ Si 濃度が高く、Si を主成分とする非金属層の母材の溶解が制限されるため、セメント平衡水中における固化体の浸出量が脱イオン水中に比べ小さくなつたためと考えられている⁽²⁴⁾。

(5) 溶融時の雰囲気条件による浸出性の比較

溶融時の炉内雰囲気条件を不活性 (Ar 、 N_2) 及び酸化性 (空気) として作製した溶融固化体の非金属層の浸出性についても、安井らによって調べられている⁽¹⁸⁾。各非金属層についての Sr 浸出量の経時変化を図12に示す。図より、Sr の浸出量は空気雰囲気条件で得た非金属層の場合に多くなっている⁽¹⁸⁾。これについては、炉内雰囲気の違いにより非金属層の組成に差が生じたことが原因とされている⁽¹⁸⁾。炉内雰囲気ガス条件を変化させて溶融処理すると、主に非金属層の酸化鉄の重量が変化することから、空気雰囲気で作製した非金属層は、不活性雰囲気で作製したものと比較して酸化鉄の重量が多い。このため、非金属層中における酸化鉄濃度の増加に伴い、水和反応の自由エネルギーが大きい SiO_2 濃度が低下することにより、非金属層の耐浸出性が低下し、Sr の浸出量が多くなつたと考えられている⁽¹⁸⁾。

4. 5 これまでの知見の整理

これまでの結果をまとめると、溶融固化体の金属層及び非金属層の浸出特性について以下となる。

- ・金属層に分布すると考えられる Co、Ni 及び Re 等の元素は金属層の母材元素である鉄の腐食反応に律速された浸出挙動をとり、選択的な浸出は生じないことが予測される。
- ・焼却灰やコンクリート等を溶融母材とし、Si を主な構成元素とする非金属層の浸出は、Si ネットワークの溶解反応に支配され、非金属層中に分布する元素は Si の浸出に律速された浸出挙動をとると考えられる。従って、接触液中の Si 濃度や温度は、Si の浸出量及びそれに伴い浸出する Sr 等の含有元素の浸出量に影響を及ぼすことが予測される。

5. バリア性能評価に必要な検討事項

溶融固化体のバリア性能を判断する基準項目である耐久性と浸出性のうち、浸出性についてはこれまで固化体組成、温度、接触水組成などをパラメータとしたいくつかの浸出試験が実施してきた。一方、耐久性に関する研究成果は報告されていない。この項では、溶融固化体の長期にわたるバリア性能評価を行うために必要と考えられる耐久性と浸出性についての検討事項について述べる。

5. 1 溶融固化体の耐久性に関する検討

溶融固化体の長期バリア性能を評価するためには、浸出率の経時変化を定量化することが必要である。長期における浸出率に経時変化を生じさせる要因としては、固化体表面積の増減、固化体の変質等が考えられる。これらは溶融固化体の耐久性にかかわる物理化学的変化であり、耐久性の定量的評価無しには、浸出試験で得られた浸出率によって長期のバリア性能を評価することは出来ない。

現在の低レベル放射性廃棄物処分の安全評価に用いられている被ばく線量当量評価においては、セメント固化体の物理的バリア性能は期待されていない。その理由としては、セメント固化体にひび割れなどが生じる可能性があり、その定量的評価が現状では出来ないからである。

溶融固化体はセメント固化体に比較すると化学的物理的耐久性の高い固化体と考えられる。溶融固化体の非金属層の表面あるいは内部にひび割れが生じる可能性としては、溶融後の固化時が考えられる。溶融された廃棄体が容器に入れられると、廃棄体の外部と内部の冷却速度の差による熱応力が生じてひび割れに至る。さらに、高レベル廃棄物ガラス固化体の場合は、固化体に含有される核分裂生成物の崩壊熱による熱応力も発生することから、完全な熱応力の除去、つまりひび割れの抑制は不可能と考えられていたが⁽⁴⁰⁾、崩壊熱を考慮する必要のない廃棄物の溶融固化体に関しては調製時に適切なアニーリング処理等を施すことにより、初期におけるひび割れの除去については技術的に可能であると考えられる⁽⁴¹⁾。しかしながら、処分後、長期において固化体の表面積を増減させうる因子の有無、また、それらの要因による表面積増減の定量化を検討することは、長期浸出率の定量化を行う上で必要である。

溶融固化体の金属層については、腐食性を考慮する必要がある。金属の腐食に関する研究はこれまでに数多く行われ、金属層の主成分である Fe の腐食速度については報告されている⁽³⁷⁾が、数種の金属廃棄物成分が構成成分となる金属層の性能としての腐食性を考える上で、さまざまな金属廃棄物成分の固化体についての腐食性を調べる必要がある。

また、金属層、非金属層ともに想定される処分環境を考慮した長期における変質現象の有無や変質による浸出率変化などを検討する必要がある。

5. 2 溶融固化体の浸出性に関する検討

(1) 組成の多様性に関する検討

含有元素組成の明らかな高レベル廃棄物ガラスとは異なり、溶融固化体は溶融する廃棄物毎にその組成が決定される。固化体の組成は物理的耐久性に加え、浸出性にも影響を及ぼすと考えられることから、現実的に溶融固化体のバリア性能評価を行うには、理にかなった組成の選定が必要となる。

一例としては、非金属層を構成する成分の水和エネルギーと浸出特性との関係に基づいた固化体組

成の選定が挙げられる⁽⁴²⁾。非金属層がガラスで構成される場合、ガラス中における各酸化物成分の水和エネルギーの総和が大きいほど、浸出速度は小さくなる傾向があることから⁽⁴³⁾、実際に有りうる組成の水和エネルギーの変動範囲を網羅した固化体を選択し、それらについての浸出特性試験が実施されている⁽⁴²⁾。

また、非金属層の組成としては、SiO₂、CaO 及び Al₂O₃が主要構成成分であり、固化体の物理化学的特性と含有される元素の酸化還元反応に大きく影響を与えるのが、SiO₂と CaO の割合（塩基度：CaO の活量/SiO₂ の活量）であることから、実際に有りうる組成の塩基度の変動範囲を網羅した固化体を選択し、それらについての浸出特性試験を実施することが必要と考えられる。

（2）放射性核種の選択

長期における溶融固化体のバリア性能を評価するために浸出特性を明らかにすべき放射性核種としては、半減期が長く、溶融固化処理の過程で固化体中に残存するものが挙げられる。長半減期で揮発しにくく固化体中における残存率が高いと考えられる TRU については、取り扱い施設の制限などから、化学的特性の類似した希土類元素などの模擬元素を用いた試験以外は行われていないのが現状である。そこで、TRU を含有する溶融固化体について、各種浸出特性試験データを得る必要がある。

6. まとめ

溶融固化には多種多様な廃棄物の均質化及び減容という処理上のメリットの他に、固化体には、含有する放射性核種や有害重金属の閉じ込めバリアとしての可能性が期待できる。これまでに溶融処理工程における元素の挙動や固化体の特性については多く報告されているが、浸出特性など固化体の核種保持性能に関するデータは少なく、長期における耐久性についての検討がなされていないため、溶融固化体のバリア性能を処分の安全評価へ取り込むための裏づけとしては未だ不十分である。

今後は、現状で不足している長半減期核種の浸出性データの取得を進めるとともに、長期にわたる固化体の耐久性を明らかにし、耐久性及び浸出性をふまえた長期バリア性能評価の検討を行っていくことが必要である。

謝　　辞

本報告書を作成するにあたり、多くの資料を提供していただいたバックエンド技術部の武部慎一氏及び情報を提供していただいたバックエンド技術部の中塩信行氏に感謝いたします。

参考文献

- (1) 日本原燃株式会社：六ヶ所低レベル放射性廃棄物埋設センター 廃棄物埋設事業変更許可申請書(1997).
- (2) 原子力環境整備センター：低レベル放射性廃棄物処分用廃棄体製作技術について(1996).
- (3) 坂井、他：日本原子力研究所 (JAERI-Tech 2000-012) 研究所廃棄物の埋設処分における安全評価上重要核種の選定（その1）－主要放射性廃棄物発生施設別の核種組成比の評価－(2000).
- (4) 足立、他：電力中央研究所報告「低レベル放射性廃棄物のプラズマ溶融技術の開発（その3）」(1993).
- (5) 日本原子力研究所：平成10年度放射性廃棄物安全性実証試験「低レベル放射性廃棄物固化体長期浸出試験」(1999).
- (6) 藤木良規：「猛毒ダイオキシンと廃棄物処理」筑波出版社.
- (7) 日本原子力研究所：平成3年度低レベル放射性廃棄物再利用技術開発成果報告書(1992).
- (8) 日本原子力研究所：平成4年度低レベル放射性廃棄物再利用技術開発成果報告書(1993).
- (9) 日本原子力研究所：平成5年度低レベル放射性廃棄物再利用技術開発成果報告書(1994).
- (10) 日本原子力研究所：平成6年度低レベル放射性廃棄物再利用技術開発成果報告書(1995).
- (11) 天川、他：電力中央研究所報告「TRU廃棄物のプラズマ溶融時における核種挙動」(1999).
- (12) 小畠、他：原子力バックエンド研究 Vol.4 No.2 P21 「高周波誘導加熱方式による溶融体作製時の核種挙動」(1998).
- (13) 大谷：鉄冶金熱力学、日刊工業新聞社、東京 p150 (1971).
- (14) 日本原子力研究所：平成9年度放射性廃棄物安全性実証試験「低レベル放射性廃棄物固化体長期浸出試験」成果報告書(1998).
- (15) 原子力環境整備センター：低レベル放射性廃棄物処分用廃棄体製作技術について(1996).
- (16) 日本原子力研究所：平成8年度放射性廃棄物安全性実証試験「低レベル放射性廃棄物固化体長期浸出試験」成果報告書(1997).
- (17) Sappok, M. : Recycling of materials from the dismantling of nuclear plants. Kerntechnik, 56 (6), p376 (1991).
- (18) 安井、他：低レベル放射性雑固体廃棄物処理へのプラズマ溶融法の適用性評価 日本原子力学会誌 41(1), p39(1999).
- (19) 中村、他：デコミッショニング技報第9号 p41 「放射性金属の溶融基礎試験」(1993).
- (20) 日本化学会編：化学便覧（改訂4版）基礎編 I 、丸善、東京、p23 (1993).
- (21) 足立、他：電力中央研究所報告「ゴムを含む雑固体廃棄物のプラズマ溶融処理」(1999).
- (22) 安井、他：電力中央研究所報告「低レベル放射性雑固体廃棄物のプラズマ溶融時のセシウム蒸発挙動」(1999).

- (2 3) Osaki, M. et al : Behavior of radionuclides during the smelting of noncombustible solid waste. Mat. Res. Soc. Symp. Proc Vol.11 p595 (1982).
- (2 4) Moriyama, N. et al : Volume reduction of non-combustible radioactive solid wastes by plasma melting. Waste Management '86, Tucson, Vol.3, p539 (1986).
- (2 5) 講座・現代の金属学 製錬編4：“金属物理化学” 日本金属学会 p137 (1992).
- (2 6) 日本熱測定学会：熱力学データベース MALT2、科学技術社 (1992).
- (2 7) 日本鉄協会編：「鉄溶解ハンドブック」、丸善、p60 (1983).
- (2 8) 日本鉄鋼協会 : Chemical Properties of Molten Slags, (1991).
- (2 9) Vance, E. R. et al : Volatile losses from sphere glass-ceramic and borosilicate glass melts. L. Am. Ceram. Soc. 71 (7), p318 (1988).
- (3 0) 浅原 他 : 溶剤ハンドブック、講談社サイエンティフィック、東京、p143-883 (1976).
- (3 1) Langowski, M. H. et al : Volatility literature of chlorine, iodine, cesium, strontium, technetium and rhenium; technetium and rhenium volatility testing. PNNL-11052 (1996).
- (3 2) 原子力安全委員会報告書「放射性廃棄物埋設施設の安全審査の基本的考え方」(1988).
- (3 3) 天川、他 : 電力中央研究所報告「低レベル放射性廃棄物のプラズマ溶融技術の開発(その8)」(1996).
- (3 4) 天川、他 : 電力中央研究所報告「低レベル放射性廃棄物のプラズマ溶融技術の開発(その7)」(1995).
- (3 5) 天川、他 : 電力中央研究所報告「プラズマ加熱を用いた低レベル放射性雑固体廃棄物の一括溶融処理技術」(1998).
- (3 6) Materials Characterization Center, Nuclear Waste Materials Handbook, DOE/TIC-11400, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington (1985).
- (3 7) ユーリック, H. H. 他 : 腐食反応とその制御(第3版)、産業図書、(1994).
- (3 8) Jantzen, C. M. et al : Thermodynamic model of natural medieval and nuclear waste glass durability, J. Non-Crystalline solids, 67, 207 (1984).
- (3 9) Bunker, B. C. et al : Mat. Res. Soc. Symp. Proc Vol.32 p41 (1984).
- (4 0) Laude, F. et al : Fracture Appraisal of Large Scale Glass Blocks under Realistic Thermal Conditions. Mat. Res. Soc. Symp. Proc Vol.11 p239 (1982).
- (4 1) 成瀬 : ガラス工学、共立出版、東京、 p201-217 (1958).
- (4 2) 財団法人・産業創造研究所 : 平成11年度再処理技術高度化調査成果報告書(2000)
- (4 3) Plodinec, M. J. : Application of Hydration Thermodynamics to Control of the DWPF Process, US DOE Report, WSRC-MS-90-138-Rev.1, DE92017914 (1990)

表1 原研におけるR I・研究所等廃棄物のうち溶融対象とされる廃棄物成分と融点

廃棄物	主な成分	融点
炭素鋼配管など	炭素鋼	約 1400～1500°C
ボルト、ナットなど	S U S	約 1400～1500°C
アルミ	アルミ	660°C
ケーブル線など	銅	約 1100°C
コンクリート	コンクリート	約 1350°C
フィルタなど	ガラス	約 600～900°C
保温材など	ケイ酸カルシウム	約 700～1500°C
セラミックフィルタ	S i C	>2700°C
土砂	土砂	約 1700°C

表2 溶融処理後における主な放射性核種及び元素の挙動

元素 核種	残存率 ^(注1)	主に移行する 層	融点	報告されて いる溶融方式	文献
¹³⁷ Cs	50~90%	非金属層 一部は排ガス 系	酸化物、硝酸塩=約400°C	プラズマ 誘導	8,10, 21,24
⁶⁰ Co	ほぼ100%	金属層	酸化物=1795°C、 単体=1490°C	プラズマ 誘導	5,9,14, 19,20,26
^{85,90} Sr	ほぼ100%	非金属層	酸化物=2430°C	プラズマ 誘導	8,9,19, 20,26
⁵⁴ Mn	60~80%	金属層 一部は非金属 層	酸化物=1650°C	誘導	8,10,19, 27,28
⁶⁵ Zn	40~70%	金属層 一部は排ガス 系	沸点：単体=930°C	誘導	8,19
⁹⁹ Tc	100% (低酸 素雰囲気の 場合)	金属層	Tc 単体、TcO ₂ 形態 (還元 状態)=2000°C以上、Tc ₂ O ₇ 形態(酸化状態)=約120°C	誘導	20,29
^{59,63} Ni	100%	金属層	酸化物=1984°C、 単体=1450°C	プラズマ 誘導	20,26
⁹⁴ Nb	100%	非金属層	酸化物=約1500°C	プラズマ 誘導	20,26
¹⁴ C	<0.01%	排ガス系へ	揮発	誘導	30
¹²⁹ I	<0.2%	排ガス系へ	揮発	誘導	20
³ H	<0.01%	排ガス系へ	揮発	プラズマ	
Ce	100%	非金属層	酸化物=1950°C	プラズマ 誘導	17,26
Re	50%以上	金属層 一部は排ガス 系	単体(還元状態)=2000°C以 上、Re ₂ O ₇ 形態(酸化状態) =約300°C	プラズマ	17,26,31

(注1) 残存率=溶融固化体中に残っている元素重量／投入した元素全量×100 (%)。

表3 これまでに実施された浸出試験

	元素	試験期間	試験温度	接触液	試験雰囲気	文献
金属層	Co	~365日	10, 40°C	脱イオン水、セメント平衡水	大気中	18, 33
	Ni	~365日	10, 40°C	脱イオン水、セメント平衡水	大気中	18, 33
	Re	~365日	10, 40°C	脱イオン水、セメント平衡水	大気中	18, 33
	Fe	~365日	10, 40°C	脱イオン水、セメント平衡水	大気中	18, 33
	Al	~365日	10°C	脱イオン水、セメント平衡水	大気中	33
	Mn	~365日	10°C	脱イオン水、セメント平衡水	大気中	33
非金属層	Cs	~365日	40°C	脱イオン水、セメント平衡水	大気中	18, 33
	Sr	~365日	10, 40°C	脱イオン水、セメント平衡水	大気中	18, 33
	Ce	~365日	40°C	脱イオン水、セメント平衡水	大気中	18, 33
	Nb	~365日	10, 40°C	脱イオン水、セメント平衡水	大気中	18, 33
	Fe	~365日	10, 90°C	脱イオン水、セメント平衡水	大気中	4, 33, 34
	Si	~365日	10, 90°C	脱イオン水	大気中	4, 33, 35
	Ca	~365日	10, 90°C	脱イオン水	大気中	4, 33, 35
	Al	~365日	10	脱イオン水、セメント平衡水	大気中	33

表4 脱イオン水及びセメント平衡水中における金属層の元素浸出量の比較^(注) (g/cm²)

	Fe	Co	Ni	Re
脱イオン水中	7.39×10^{-7}	$< 6.33 \times 10^{-4}$	7.86×10^{-4}	$< 2.04 \times 10^{-3}$
セメント平衡水中	6.44×10^{-4}	6.44×10^{-4}	9.76×10^{-3}	$< 8.81 \times 10^{-5}$

(注) 文献[33]より引用、改変。

表5 浸出試験に使用した非金属層の組成^(注) (wt%)

母材	SiO ₂	CaO	Al ₂ O ₃	Na ₂ O	FeO	SrO ₂	Nb ₂ O ₅	Cs ₂ O	CeO ₂
焼却灰	19.63	5.46	11.97	0.85	39.44	0.57	0.47	0.17	0.48
コンクリート	26.53	6.39	5.81	1.29	37.51	0.50	0.60	0.26	0.28

(注) 文献[33]より引用、抜粋。

表6 浸出試験に使用した溶融固化体の主な組成^(注) (wt%)

成分	試料No.1	試料No.2	試料No.3	試料No.4
SiO ₂	14.75	19.63	26.53	47.43
CaO	14.18	5.46	6.39	8.11
Al ₂ O ₃	20.68	11.97	5.81	15.47
FeO	39.33	39.44	37.51	11.63

(注) 文献[33]より引用、抜粋。

表7 脱イオン水中における非金属層についての元素浸出量^(注) (g/cm²)

試料No.	1	2	3	4
Si	2.94×10^{-7}	3.08×10^{-7}	2.22×10^{-7}	1.63×10^{-7}
Ca	1.22×10^{-6}	1.10×10^{-6}	7.83×10^{-7}	6.19×10^{-7}
Na	2.63×10^{-6}	2.81×10^{-6}	3.75×10^{-6}	2.09×10^{-6}
Fe	8.41×10^{-9}	6.52×10^{-10}	1.83×10^{-9}	2.21×10^{-9}
Sr	1.10×10^{-6}	1.44×10^{-6}	8.55×10^{-7}	3.79×10^{-7}

(注) 文献[33]より引用、改変。

表8 10°C及び40°Cにおける脱イオン水中での非金属層中元素の浸出量の比較^(注1)

元素	10°Cにおける 浸出量 (g/cm ²)	40°Cにおける 浸出量 (g/cm ²)
Si	1.2×10^{-7}	2.9×10^{-7}
Ca	1.3×10^{-6}	1.7×10^{-6}
Al	< D.L ^(注2)	8.7×10^{-8}
Na	1.2×10^{-6}	2.2×10^{-6}
Fe	2.0×10^{-9}	3.6×10^{-9}
Sr	5.4×10^{-7}	1.1×10^{-6}
Nb,Cs,Ce	< D.L	< D.L

(注1) 文献[18, 33]より引用、改変。

(注2) D.L : Detection Limit.

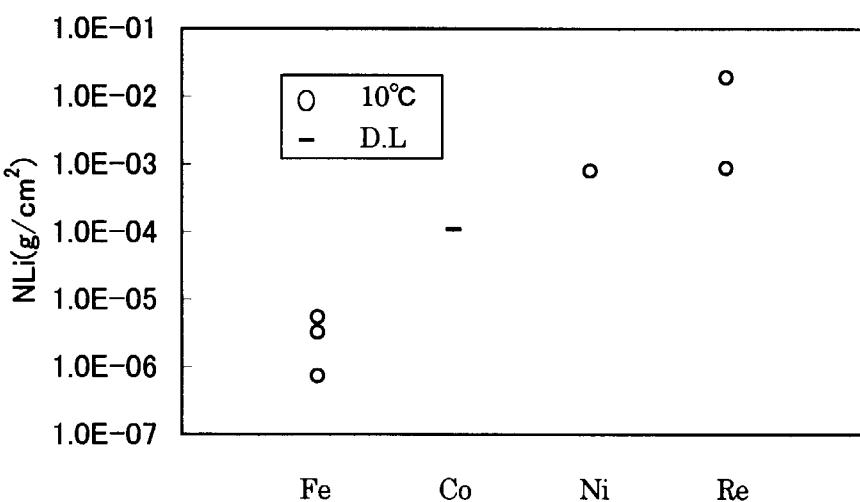


図1 脱イオン水中、364日目における金属層中元素の浸出量（文献[33, 34]より引用、改変）

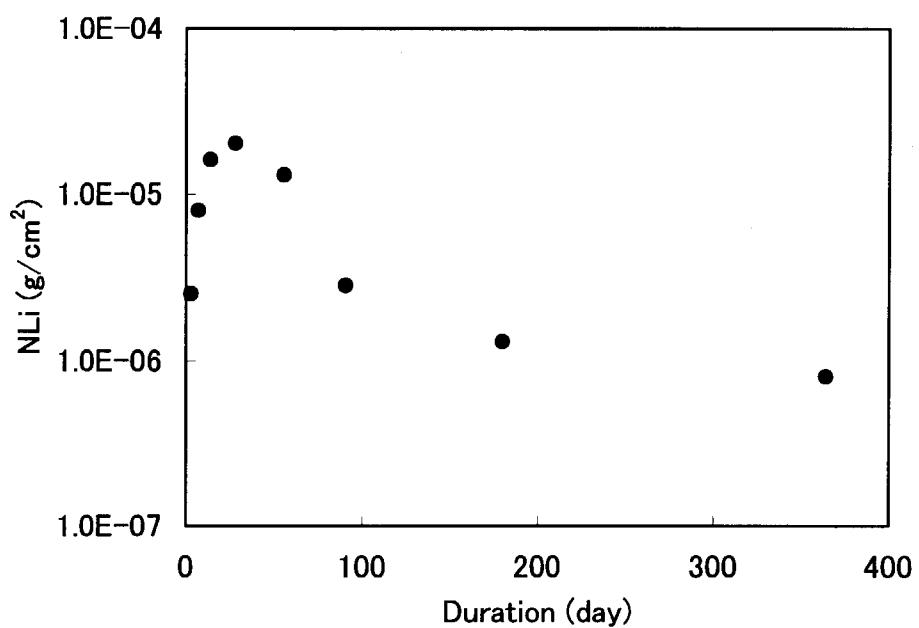


図2 脱イオン水中における金属層中 Fe の浸出量の経時変化（文献[33]より引用、改変）

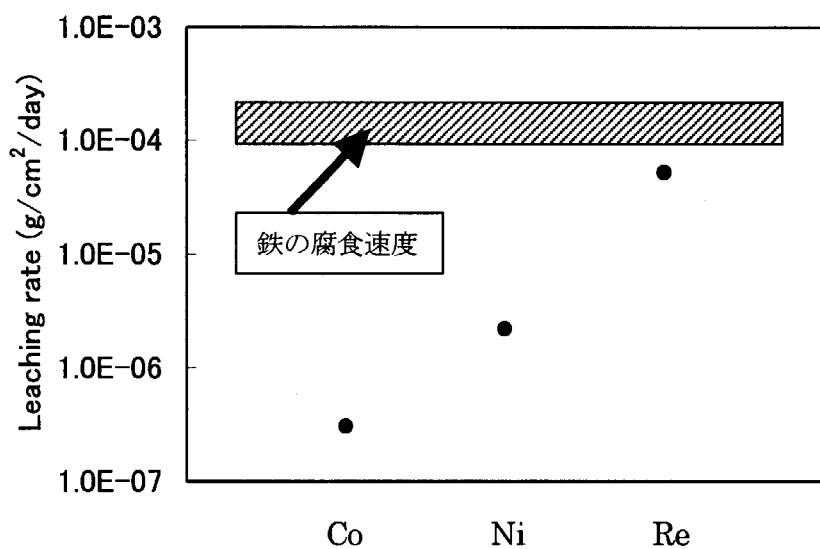


図3 脱イオン水中における金属層中元素の浸出率と鉄の腐食速度との比較
(文献[33,34]より引用、改変)

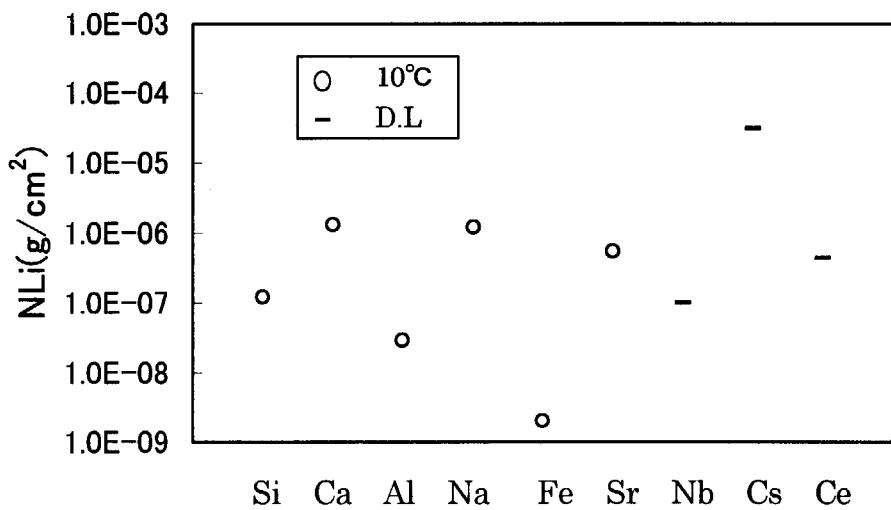


図4 脱イオン水中、364日目における非金属層中元素の浸出量 (文献[33, 34]より引用、改変)

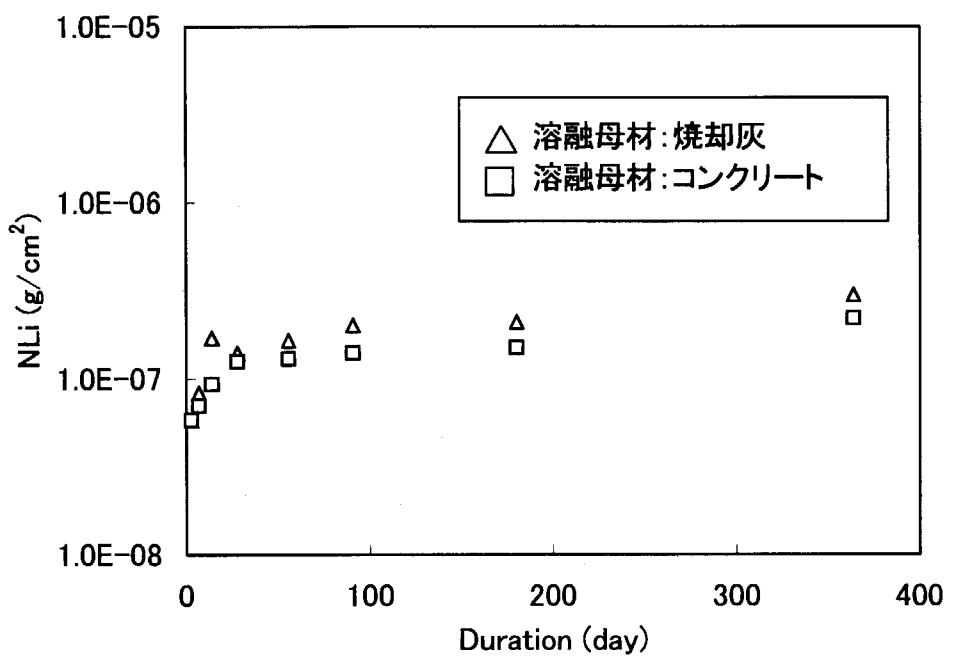


図5 脱イオン水中における非金属層中 Si 浸出量の経時変化（文献[33]より引用、改変）

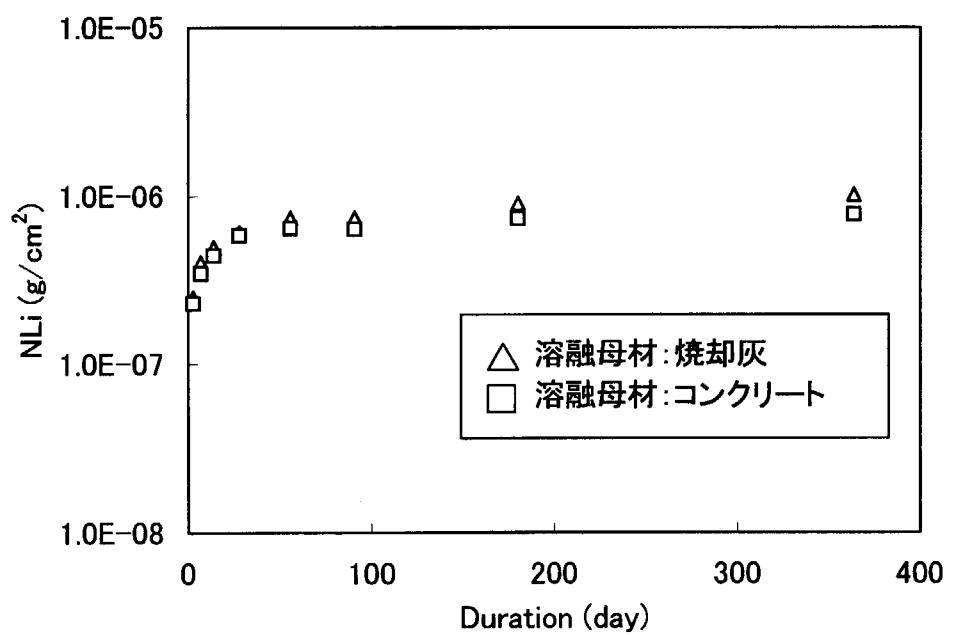


図6 脱イオン水中における非金属層中 Ca 浸出量の経時変化（文献[33]より引用、改変）

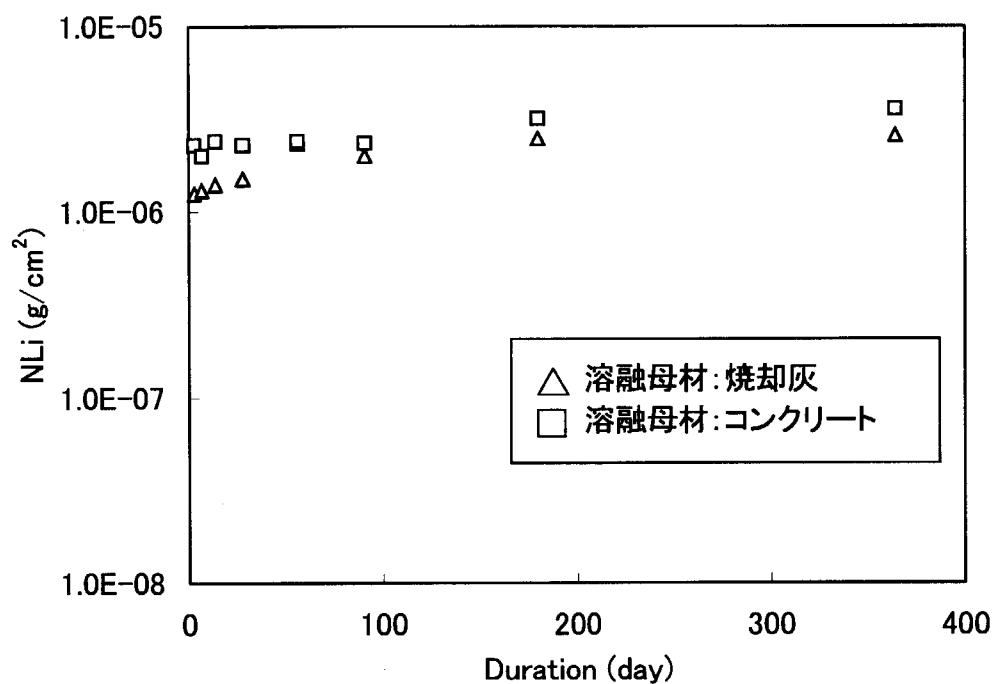


図7 脱イオン水中における非金属層中 Na 浸出量の経時変化（文献[33]より引用、改変）

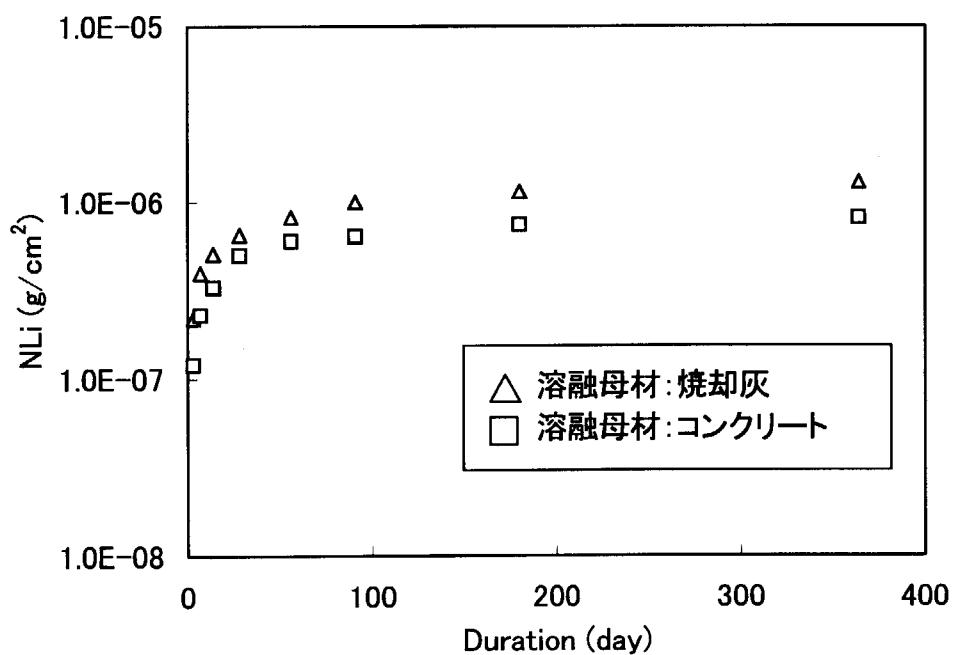


図8 脱イオン水中における非金属層中 Sr 浸出量の経時変化（文献[33]より引用、改変）

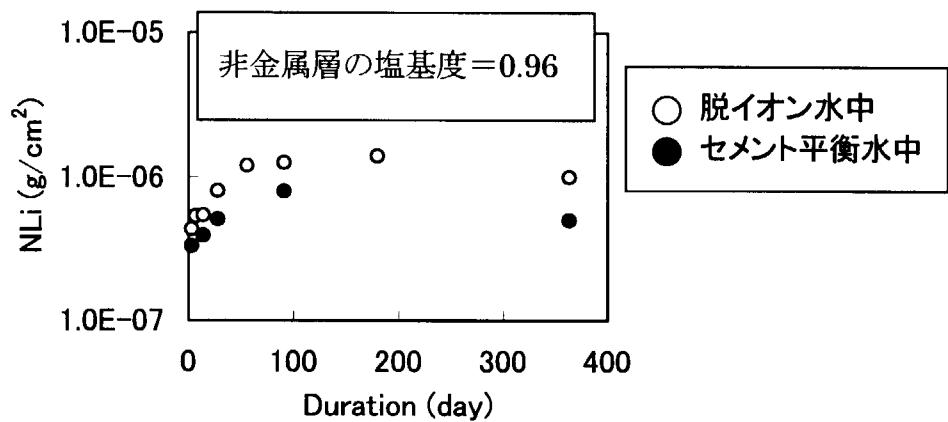


図9 脱イオン水及びセメント平衡水中における非金属層中 Sr 浸出量の経時変化
(文献[33]より引用、改変)

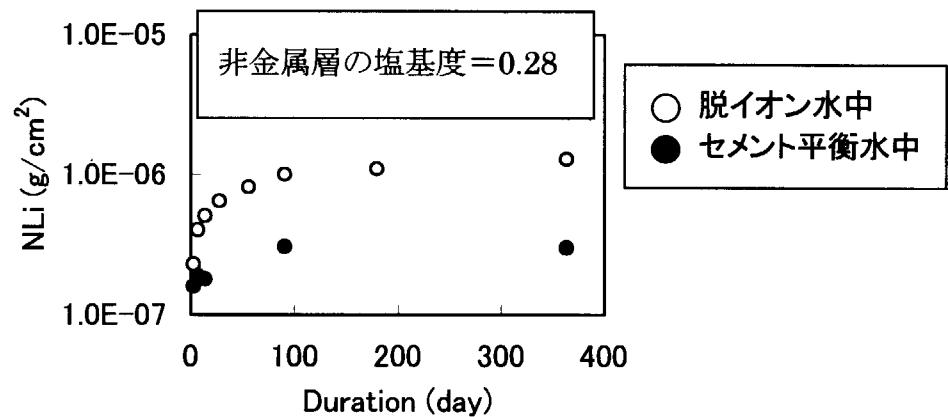


図10 脱イオン水及びセメント平衡水中における非金属層中 Sr 浸出量の経時変化
(文献[33]より引用、改変)

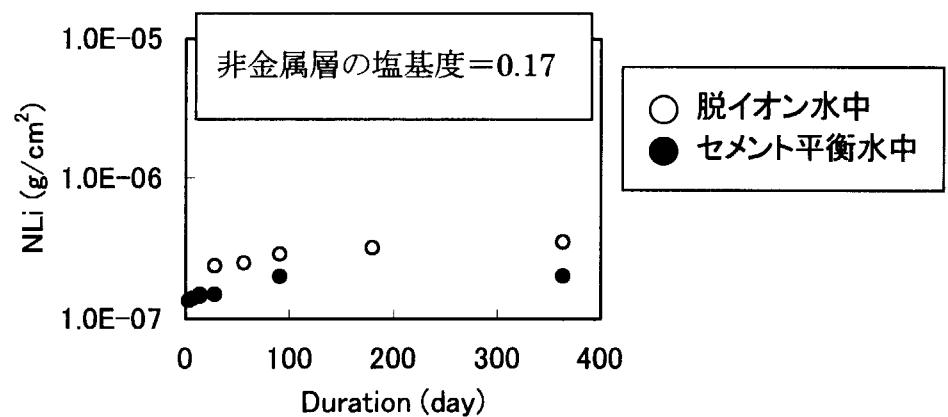


図11 脱イオン水及びセメント平衡水中における非金属層中 Sr 浸出量の経時変化
(文献[33]より引用、改変)

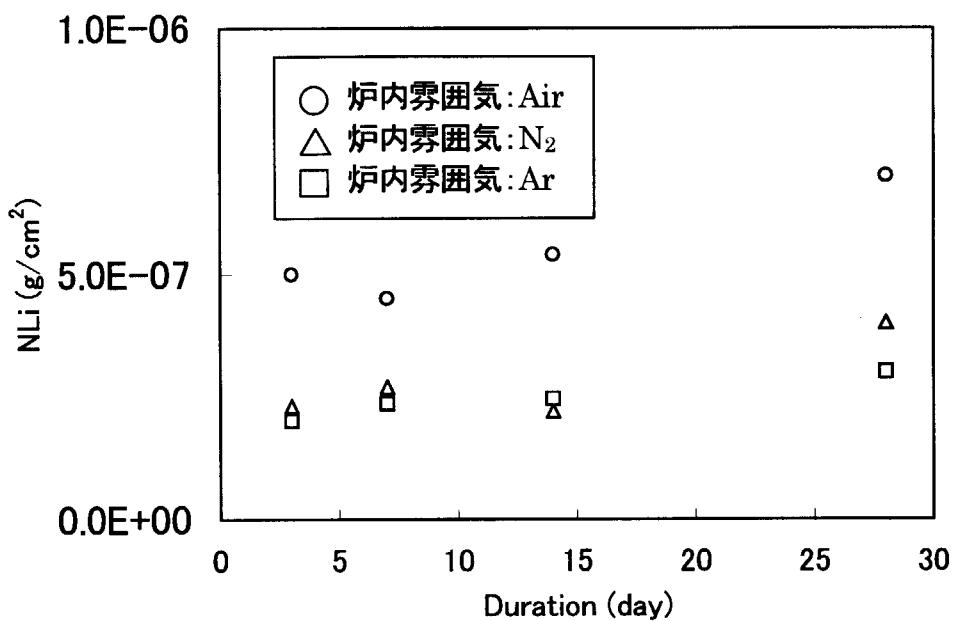


図12 脱イオン水中における非金属層中 Sr 浸出量の経時変化
(文献[18]より引用、改変)

This is a blank page.

国際単位系(SI)と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	N·m
干率、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	A·s
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束密度	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束度	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	l, L
トントン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	アト	a

(注)

- 表1～5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令ではbar、barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バーン	b
バール	bar
ガル	Gal
キュリー	Ci
レンントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

$$1 \text{ Å} = 0.1 \text{ nm} = 10^{-10} \text{ m}$$

$$1 \text{ b} = 100 \text{ fm}^2 = 10^{-28} \text{ m}^2$$

$$1 \text{ bar} = 0.1 \text{ MPa} = 10^5 \text{ Pa}$$

$$1 \text{ Gal} = 1 \text{ cm/s}^2 = 10^{-2} \text{ m/s}^2$$

$$1 \text{ Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ Bq}$$

$$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{ C/kg}$$

$$1 \text{ rad} = 1 \text{ cGy} = 10^{-2} \text{ Gy}$$

$$1 \text{ rem} = 1 \text{ cSv} = 10^{-2} \text{ Sv}$$

換算表

力	N(=10 ³ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa}\cdot\text{s} (\text{N}\cdot\text{s}/\text{m}^2) = 10 \text{ P} (\text{ポアズ}) (\text{g}/(\text{cm}\cdot\text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^4 \text{ St} (\text{ストークス}) (\text{cm}^2/\text{s})$$

圧	MPa(=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 ³	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322 × 10 ⁻⁴	1.35951 × 10 ⁻³	1.31579 × 10 ⁻³	1	1.93368 × 10 ⁻²
	6.89476 × 10 ⁻³	7.03070 × 10 ⁻²	6.80460 × 10 ⁻²	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft · lbf	eV	1 cal = 4.18605 J (計量法)	
								= 4.184 J (熱化学)	
	1	0.101972	2.77778 × 10 ⁻⁷	0.238889	9.47813 × 10 ⁻⁴	0.737562	6.24150 × 10 ¹⁸		
	9.80665	1	2.72407 × 10 ⁻⁶	2.34270	9.29487 × 10 ⁻³	7.23301	6.12082 × 10 ¹⁹		
	3.6 × 10 ⁶	3.67098 × 10 ⁵	1	8.59999 × 10 ⁵	3412.13	2.65522 × 10 ⁶	2.24694 × 10 ²⁵		
	4.18605	0.426858	1.16279 × 10 ⁻⁶	1	3.96759 × 10 ⁻³	3.08747	2.61272 × 10 ¹⁹	仕事率 1 PS (仏馬力)	
	1055.06	107.586	2.93072 × 10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 ²¹	= 75 kgf·m/s	
	1.35582	0.138255	3.76616 × 10 ⁻⁷	0.323890	1.28506 × 10 ⁻³	1	8.46233 × 10 ¹⁸	= 735.499 W	
	1.60218 × 10 ⁻¹⁹	1.63377 × 10 ⁻²⁰	4.45050 × 10 ⁻²⁶	3.82743 × 10 ⁻²⁰	1.51857 × 10 ⁻²²	1.18171 × 10 ⁻¹⁹	1		

放射能	Bq	Ci	吸収線量	Gy	rad
	1	2.70270 × 10 ⁻¹¹		1	100
	3.7 × 10 ¹⁰	1		0.01	1

照射線量	C/kg	R	線量当量	Sv	rem
	1	3876		1	100
	2.58 × 10 ⁻⁴	1		0.01	1

(86年12月26日現在)

溶融固化体のバリア性能に関する研究（I）—性能評価研究の現状調査—

（著者名）
（所属機関）
（研究題名）
（研究目的）
（研究方法）
（研究結果）
（研究意義）
（参考文献）