

PNC TN160 82-06

本資料は 年 月 日付けで登録区分、
変更する。

2001. 11. 30

[技術情報室]

放射性廃棄物管理の科学的基礎
に関する第5回国際シンポジウム等報告書

—海外出張報告—

JOINT RWMC/CRPPH EXPERT GROUP ON LONG
TERM RADIATION PROTECTION OBJECTIVES FOR
RADIOACTIVE WASTE DISPOSAL PARIS

FIFTH INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON THE
SCIENTIFIC BASIS FOR RADIOACTIVE WASTE
MANAGEMENT BERLIN

THE JSS TECHNICAL ADVISORY GROUP
BERLIN

1982年7月

動力炉・核燃料開発事業団

核燃料部

本資料は、核燃料サイクル開発機構の開発業務を進めるために作成されたものです。したがって、その利用は限られた範囲としており、その取扱には十分な注意を払ってください。この資料の全部または一部を複写・複製・転載あるいは引用する場合、特別の許可を必要としますので、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

刊工物に引用する場合には、事業団の承認が必要です。

放射性廃棄物管理の科学的基礎に関する
第5回 国際シンポジウム等報告書

海外出張報告

Fifth International Symposium on
the Scientific Basis For Radioactive
Waste Management

角田直己* 五十嵐 寛**

要 旨

標記シンポジウムには、16ヶ国から約250人の参加者があり100件ほどの発表があった。高レベル放射性廃棄物の固化体評価、固化体と岩石の相互作用、処分時のバックフィル材、処分場、モデル解析など地層処分に関する発表、討議が主であった。

このシンポジウムとは別に、OECD/NEAによる廃棄物管理と放射線防護に関する専門家会議、日本、スイスおよびスウェーデン三ヶ国によるガラス固化体地層処分時の浸出性評価に関する共同研究の技術顧問会議にも出席した。

これらの概要を報告する。

* 核燃料部廃棄物対策室

** 東海事業所 技術部廃棄物処理開発室

核燃料部廃棄物対策室長 角田直己
東海事業所技術部廃棄処理開発室 五十嵐 寛

下記の通り海外出張を行ったので報告する。

1. JOINT RWMC/CRPPH EXPERT GROUP ON LONGTERM RADIATION
PROTECTION OBJECTIVES FOR RADIOACTIVE WASTE DISPOSAL

6月2日～4日、パリOECD、 出席：角田

標題の通り、廃棄物処分に於ける長期放射線防護に関して、放射性廃棄物管理グループと放射線防護グループ双方の専門家12名程が討議を行った。その第1回目であり、更に9月～10月に第2回目を開催して報告書が発表される。主として廃棄物処分に於ける放射線防護をICRP勧告とどのように整合させてゆくか、更にどのような考え方の整理が必要であるか討議された。

今後わが国に於ても、処分に於ける放射線防護の考え方をつめてゆく必要がある。

2. FIFTH INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON THE SCIENTIFIC BASIS
FOR RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT

6月7日～10日、ベルリン、 出席：角田、五十嵐

過去4回にわたって米国ボストンで開催されていた標記シンポジウムが、初めて米国外で開催された。尚、第6回は、 年 月再びボストンに於て開催される。16ヶ国から約250人の参加者があり、処分面からみた固化体評価を中心に100件近くの報告があった。

3. 高レベルガラス固化体地層処分時の浸出性評価に関する3国共同研究(JSSプロジェクト)第2回技術顧問会議

6月11日、ベルリン、 出席：角田

日本、スウェーデン、スイスの3国間の国際共同研究プロジェクトが56年12月から59年6月までの予定が進められている。フランスで調製した小型固化体(1個約2kg)4個をスウェーデン(Studsvik)およびスイス(EIR)に運んで地層処分時の浸出性評価試験を行なうもので、運営委員会のもとに設置されている技術顧問会議で試験の実際の検討を進めるもので、今回第2回目の会合である。現在廃液の調製が行なわれており、7～8月に固化体が製造される。

4. ハーンマイトナー研究所見学

6月11日、ベルリン 五十嵐

固化体評価のためのHot Cellを中心に施設を見学した。

5. 地層処分地下研究施設見学

6月14日、スウェーデン ストリバ鉾山 角田・五十嵐

スウェーデン中部のストリバ鉾山に於ける花崗石を対象とした、地層処分に関する国際共同研究が1970～1983年をフェーズIとして行なわれている。参加国はカナダ、フィンランド、日本、スウェーデン、スイスおよびアメリカである。-360mに設置されている施設の整備状況、試験の進捗状況を視察した。

目 次

1. Joint RWMC/CRPPH expert group on long term radiation protection objectives for radioactive waste	1
2. Fifth International Symposium on the Scientific Basis for Radioactive Waste management	9
2-1 概 要	9
2-2 要 旨	13
2-3 会議内容(抜すい)	15
3. Hahn-Meitner - Institute の見学	49
4. JSSプロジェクトTAG会議	53

1. OECD RWMC/CRPPH 合同Expert 会議

名称

JOINT RWMC/CRPPH EXPERT GROUP ON LONG TERM
RADIOLOGICAL PROTECTION OBJECTIVES FOR
RADIOACTIVE WASTE

日時

1982年6月2日～4日

場所

OECD会議室

19 rue de Franqueville, Paris 16.

出席者

Mr. F. COULON

France

Departement de Protection

Institut de Protection et

de Sûreté Nucléaire

Centre d'Etudes Nucléaires

Dr. A.G. DUNCAN

United Kingdom

Department of the Environment

Mr. R.M. FRY

Australia

Supervising Scientist

Office of the Supervising Scientist

Dr. H. JAMMET

France

Chef du Département de Protection

Institut de Protection et

de Sûreté Nucléaire

Centre d'Etudes Nucleaires

Mr. J. LIEBERMANN

United States

Nuclear Safety Associates

Dr. R.V. OSBORNE

Canada

Senior Research Scientist

Atomic Energy of Canada Limited

Chalk River Nuclear Laboratories

Dr. H.G. PARETZKE

F.R. of Germany

Institut für Strahlenschutz der

Gesellschaft für Strahlen -

und Umweltforschung

Dr. J.O. SNIHS

Sweden

National Institute of

Radiation Protection

Mr. Y. SOUSSELIER

France

IPSN/CSDR

Centre d'Etudes Nucléaires

Mr. N. TSUNODA

Japan

General Manager

Waste Management Office

P.N.C.

Dr. G.A.M. WEBB
National Radiological
Protection Board

United Kingdom

Secretariat

Mr. J.P. OLIVIER
Head, Division of Radiation Protection
and Waste Management
OECD Nuclear Energy Agency

Dr. O. ILARI
Division of Radiation Protection
and Waste Management
OECD Nuclear Energy Agency

Dr. P.D. JOHNSTON
Division of Radiation Protection
and Waste Management
OECD Nuclear Energy Agency

背景

OECD NEAではRWMC(Radioactive Waste management Committee)に於て今後数年間の新しい活動プログラムが検討され、1981年6月24～25日の委員会で承認された。(これはNuclear EnergyのSteering Committeeでも1981年10月14～15日の会合で承認された。)そのなかで廃棄物処分におけるリスク評価、安全評価が重要と考えられた。そしてリスク評価と放射線防護の強い関連性からCRPPH(Committee on Radiation Protection and Public Health)との協力が検討された。

一方CRPPHは1981年9月23～25日の会合で今後数年の計画の中で、中高レベルの長期対策についてRWMCと一諸にこの問題を検討したいと考えた。この2つの委員会の要請をうけて1981年12月の中旬に少人数のコンサルタントグループが報告書を作った。このなかで第1はdevelopment of long-term radiation protection objectivesで第2はsystem performance assessmentsである。

先づ第1の問題に対しては放射線防護の専門家と廃棄物管理の専門家が半々で10人程度の小グループを作り1982年末迄に報告書を提出させることにし、出来ればOECDから出版することとした。

第2の問題に対しては、処分システムからのリリースシナリオの構築、安全評価の不確実性などが討議されよう。コンサルタントグループはこれら2つのトピックスを国際的に意見交換するため20～30人のワークショップを提案した。

次の段階では、更に10人程度に限定した専門家の会合でリスク評価、安全評価、数学モデルの処分への適用についての解答を2つの委員会に報告する。

ワークショップは1982年秋の予定で、続いて専門家の会合がセットされる。

今回はこのような背景のもとに第1回のRWMC/CRPPH合同Expert会議が開催された。

討議概要

関連した仕事は、主としてIAEAやICRPで行なわれているが、これらのグループとの互の交流が必要である。

報告書はRWMCとCRPPHに出されるのみでなく、NEAによって最終的には発行されることになった。

Applicability of ICRP Recommendation

ICRP の Publication 26 の原則に於て、放射性廃棄物の処分が一般的に適用除外とは ICRP は考えていない。最適化は最も基本的なスキームである。そして次式で示されるように集団線量当量と個人線量当量のレベルで損害を算出する。

$$\text{損害} = \alpha S + \beta f(H)$$

ここで S は全集団線量で、 $f(H)$ は個人線量の分布の関数である。更に将来の線量及び確率的状態の重みづけが最近 ICRP で討議されている。ICRP のフィロソフィーに対する意見は次のようなものがあった。

(a) Justification

これは原子力発電及びそれに伴う核燃料サイクルに一般的に適用される原理で、廃棄物処分に言及したものでない。

(b) Optimization

① 処分の筋書きに於ける ALARA と Optimization ALARA の原理は cost/benefit 解析の数学的方法論よりもブロードな意味を持つ感じである。

cost/benefit 解析はある単純な状態で Optimization の実際的アプローチに部分的な Input を与える。放射線防護に於ける技術的な Optimization は色々なレベルに適用出来る。

- 単一な処分オプションの実際と可能なバリエーションの比較
- 種々なる処分オプションの比較
- 処理、貯蔵、処分の代替法を含む全廃棄物管理技術の研究
- 一方 cost/benefit 解析はおうおうにして政策決定の役割を持つ。

廃棄物処分の筋書きに於て、cost/benefit 解析はむしろ最適化に対する粗っぽい推察手段の如くもある。若し ICRP の最適化が明確な選択を与えても更に追加した考えを加えることが必要である。

- Short term の放射線損害を最少にするためのもの (time discounting に関連)
- 最低個人線量によるもの (ICRP の β に関係)
- 最少の制度上のコントロールの要求
- 地層 disturbance の最少の確率によるもの
- 最少のコストに対するもの

- radiological アセスメントに於ける不確実性に対するもの
- 技術開発状態の考慮
- marginal 又は absolute なコスト算出と関連する他の最近のアクティビティとの関係

② The Role of Collective Dose Assessments ALARA の原理に於て、集団線量評価はオプションや代替法の順位づけに、限定された意味で有効である。

③ Collective Dose as a Measure of Global Detriment 直線の線量-効果の仮説がコンサバティブな仮説として展開された。主原因が低線量（自然バックグラウンドに近いかそれ以下）から来しているとき、集団線量をグローバルな損害の算出に使うのは疑問があり現実的でない。

④ Dose Cut-Offs on Collective Dose

時間及び線量の Cut-Off 或るいは Discounting に主として次の 2 つの意見があった。

- 意志決定に於ては情報の最大が利用されるべきで、Cut-Off 或るいは Discounting は情報の重要な部分を限定してしまう。
- Philosophical な点で、集団線量評価は時間又はスペースに関係なく同じ重みを与えるべきである。

初めの点に関連して、時間の Cut - Off は、その後の集団線量分析を必要としないことを意味するが、特定グループの個人線量当量評価は依然必要である。多くの国がどんな線量やリスクのレベルをささいなこととして考えるかに興味があるとの意見があった。個人ベースへのネグリジブルと考えられる低いレベルがあると言うアイデアは広く受け入れられる。集団線量評価が切りとられるような小さなレベルに関する合意はなかった。

ICRP の見解では、全ての線量が集団線量評価に入れられると考えていることは明白である。

⑤ Time Cut-Offs and Discounting of Collective Dose

線量の生物学的効果を考えるレベルについて near term と far future の間に差別があるべきでないことは合意された。しかし、near term と far future の健康への効果に現時点で異った重みをつけるかどうかは合意されなかった。

いくらかの国には非常に遠い将来（100,000～1,000,000年）にわたって線

量を評価することは合理的でないとする感覚があった。

次の式が提案された。

$$Y(t) = [\alpha \cdot S(t) + \beta f(H \cdot t)] \cdot F(t)$$

ここで集団線量(S)、個人線量の項は処分方法のモデリングから算出された時間の関数、Fは不確実性 and/or 将来の損害に対する科学的、社会的考慮により反映される discounting の関数である。

(c) Consideration of Individual Risk or Dose Equivalent Objectives

限定されたグループに対する個人損害レベルの目標は、Primary な規制の問題とみられる。色々な long term の値(0.5 mR/年や10 mR/年)が通常、異常の状態に提案されようが、しかし重大事故シナリオは、定量的な方法で分配するのが非常に困難である。

確率的な健康影響から年間の死亡リスクがおよそ 10^{-5} の目標はICRPの理論から生涯平均のPopulation 線量限度1 msv/年で誘導され、それには次が含まれている。

- 1 sv/年以上の非確率範囲の除外
- 低Probability/高重要 events の除外

(d) Concepts of Collective Risk

集団損害へのリスクの概念の展開は魅力のあるものではない。

結論として、ALARA レベルに対するTotal リスクの最適化のブロードな目標は追及する価値があるとの感覚だった。しかし、そのメカニズムは更に研究の要がある。

2. Fifth International Symposium on the Scientific Basis for Radioactive Waste Management

2-1 概要

期 日 1968年6月7～10日

場 所 Ernst Reuter Haus

Strasse des 17. Juni 112. Berlin (West)

本シンポジウムの目的

このシンポジウムは廃棄物管理上の問題のうち、以下の主題に関する科学的な事項に焦点を絞り情報交換し、廃棄物管理上科学的立場から寄与しようとするものである。廃棄物としては高レベルと高放射性のものに限っている。

- ・廃棄物形態（ガラス、セラミック、使用済燃料、セメント）
- ・廃棄物隔離（容器材料、バックフィル、処分場）
- ・モデル化、安全評価

特に次のような主題についての報告が期待されている。

- ・廃棄物固化体／岩石の相互作用

浸出の物理化学（例えば反応機構、溶解度、熱力学、動力学等）

固化体から放出された元素の化学形態

処分場運転中の短期的効果

封鎖された処分場の長期的効果

実験データの長期的推定

- ・生物圏への核種の移行（例えばオーバーバックでの放射性核種の固定、粘土への吸着
溶液中の移動分散）

- ・廃棄物固化体の開発及びそのプロセス

出席者 16ヶ国から約250名が出席した。開催地の関係で西ドイツからの参加者が圧倒的で、次にスウェーデン、米国が多い。

各国からの出席者数は以下の通り。

Australia	3
Belgium	7
Brazil	2

Bulgaria	1
Canada	6
Denmark	6
Finland	4
France	8
Germany (西)	108
Israel	2
Italy	4
Japan	8
Netherland	7
Sweden	36
Switzerland	10
United Kingdom	12
USA	29
計	253

プログラム 日程は表1のようになっており、会議は4日間にわたり、以下のように4つの session、2つの special session 及び2つの Poster session に分けられた。総発表件数は103件。

- Session I : Waste Forms (5件)
- Session II : Reaction of Waste Forms with Aqueous Media (15件)
- Session III : Characterization of Repository (14件)
- Session IV : Backfill Materials and Transport Through the Geosphere (13件)
- Session S1 : Research Priorities for Nuclear Waste Isolation (8件)
- S2 : In-situ Solidification of Radioactive Waste Solution (5件)
- Poster Session A : 1. Waste Form Properties

2 : Radiation Effects

3 : Leach Behaviour of Waste Forms

計 24 件 (うち取下げ 1 件含む)

Poster session B : 1 Geosphere Migration

2 Repository

計 20 件

表1 会議日程

1982

	6/7 月	6/8 火	6/9 水	6/10 水
午前	10:00 開会の挨拶 W.Lutze Session I Waste Forms	8:30 Session II (続き) } II/12~II/13 9:50 及び discussion	8:30 Session III (続き) } 及び discussion 10:15	8:30 Session III (続き) } III/11~III/14 10:00 及び discussion
	11:15 I/1~I/5 } discussion 12:20	Session III: Characterization of Repository 10:05 III/1~III/5 } 及び discussion 12:00	Session S1 (招待): Research Priorities for Nuclear Waste Isolation 10:30 } 8人の発表 12:15	Session IV: Backfill Materials and Transport Through the Geosphere 10:15 IV/1~IV/6 } 及び Discussion 12:15
午後	Session II: Reaction of Waste Forms with Aqueous Media 2:00 II/1~II/11 } 及び discussion 6:00	Poster session A 1:30 1. Waste Form Properties 2. Rodiation Effects 3. Leach Behaviour of Waste Forms 4:30 A/1~A/24 } Poster-Discussion 5:30	Session S2 In-Situ Solidification of Radioactive Waste solution 1:45 S1/1 } ~S1/5 3:00	Session IV (続き) 1:45 IV/7~IV/13 } and discussion 4:45 Closing } Address 5:00
			Poster Session B 1. Geosphere Migration 2. Repository 1:45 B/1 } } 4:30 B/20 4:30 Poster-Discussion } Discussion 5:30	

2-2 要 旨

シンポジウム初日、学生風の原子力反対派が会場入口に座り込み、開会時刻が1時間近く遅れるという状況で開始された。このため、初日午前の発表はせわしない調子で若干の時間超過も許されず、内容を省略する発表者も何人か見られた。

4日間にわたるシンポジウムの概略を以下に述べる。廃棄物固化体の特に新しい固化形態に関する報告はなかった。ガラス固化体と代替固化体とを比較評価したものがいくつかあった。代替固化体としてはSYNROC、結晶化ガラス、テイラードセラミックスが対象となっていた。

固化処理技術に関する報告はほとんどなく、ガラスをキャニスターに注入した後のガラスの割れによる表面積増加の定量評価(仏)、マテリアルバランスによるプロセスの品質管理(独)がある程度であった。

廃棄物隔離のための research priority と題したスペシャルセッションでは、高レベル廃棄物処理技術の全体的評価、公衆の被曝まで含めた廃棄物管理シナリオ確立の重要性が議論された。

固化体特性としては組成と物性との関連、失透の長期的評価への試み、機械的強度、耐放射線性、水溶液と固化体との反応等の発表があった。これらはすべて動燃でも実施中の評価試験と密接な関連を持つものであった。CPFでの機械的強度の評価にはVickers Indentation 又はHertion Indatation による方法が有効であると思われる。

又、水溶液との反応においては浸出層の解析に関するものが多く、大半はFe、希土類、アクチニドは表面層に濃縮するという結果であった。又表面層の浸出に対するバリヤ効果については、バリヤ効果はないという報告もあったが、多くはその効果を認めその重要性を述べていた。表面層の解析法は、EPMA(X線マイクロアナライザ)が多く、いくつかの報告ではSIMS(二次イオン質量分析装置)が用いられた。SIMSについては分析技術として、開発途上にあるためか、技術上の議論があった。

固化体長期浸出については、Stagnant phase で長期浸出させ、溶液濃度の時間依存性から溶解度を議論したものが多かった。又、流水による動的条件下での報告もあった。処分条件を模擬したものでは岩石、バックフィル材の共存条件下で浸出試験を行っていた。

耐放射線性では結晶質材料の損傷に関するものが目についた。

バックフィル材の試験では核種の吸収に関する報告があった。

地層環境に関しては、岩石の拡散係数の測定、割れにおける移行に対する実験的及び数

値解析による研究報告があった。岩塩層の評価についても多くの報告があった。

2-3 会議内容(抜粋)

最初に今回の会議の委員長である西独HMIのW. Lutz 氏の挨拶があった。以下に各セッションの発表の一部について簡単に紹介する。

(1) Session I : Waste Forms

Chairman W. Lutz HMI, FRG

Lars B. Nilsson SKBF, Sweden

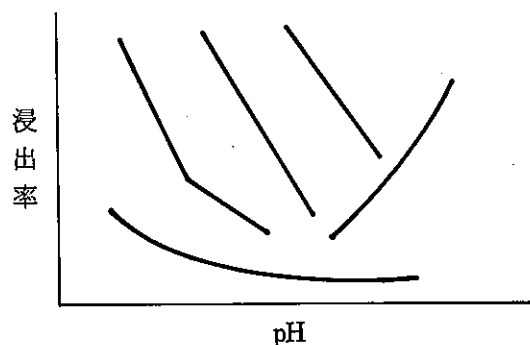
I/1 glass matrix for high level radioactive waste

発表 L.L. Hench Univ of Florida, USA

(概要)

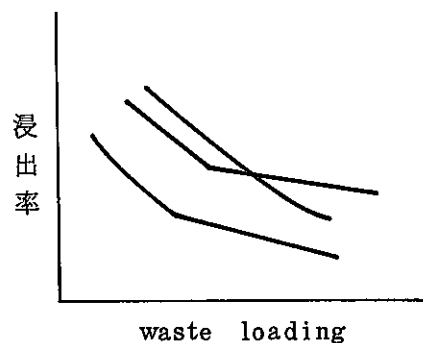
これまで開発されてきたガラス組成を三角図を用いてまとめた。PNCの組成は、多くの組成の中で中間的な位置にある。

浸出率の浸出液 pH 依存性も各種ガラスについて示された。

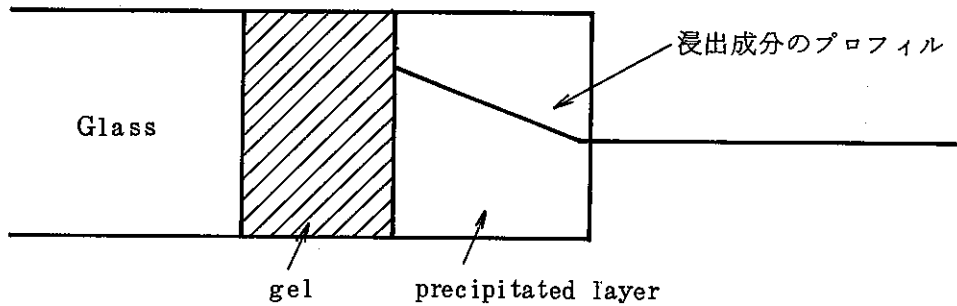


○米国ガラス組成で、waste loading の浸出率への影響が示された。

waste 中の Al 成分がガラス固化体の浸出率低下に役立っている。



- 浸出表面の IRRS による分析結果の紹介
- 浸出表面層のモデルが示された。



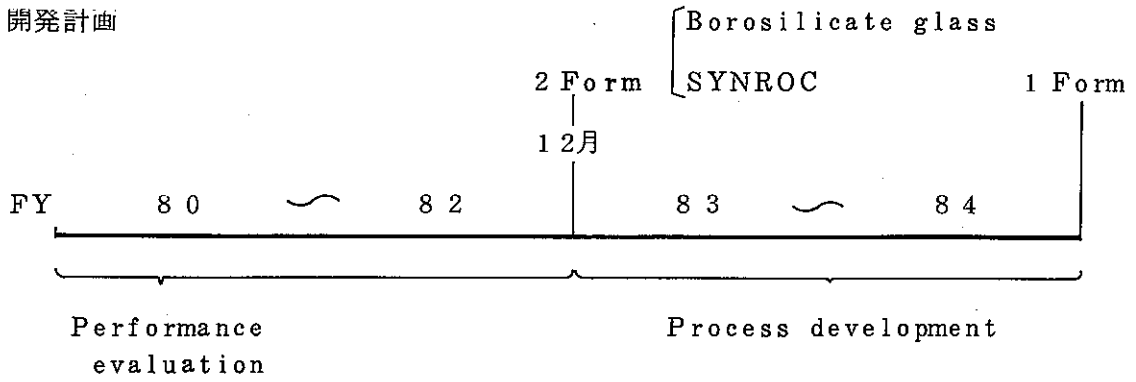
- static 長期試験で浸出液の浸出成分濃度の saturation は SA/V (SV : 試料表面積、 V 浸出液体積) に依存する。
 $SA/V = 0.5 \sim 0.2 \text{ cm}^{-1}$ では時間依存性が小さい。
- SKBF での back fill 材を含めた浸出試験の sample set、及び 20 day、90°C 試験の試料表面の深さ方向のプロファイルの紹介があった。
- 浸出表面では組成の変動が見られるということである。
- IRRS により水のみによる浸出表面の変化と、ベントナイトとの接触表面変化との比較を行った。水のみによる浸出表面の変化の方が大きい。
- オーバーバックメタルとの接触面ではガラスの表面変化はない。
- 浸出においては skin formation が重要な役割を果たす。
- 3×10^5 年程度の評価をどうするかが問題。

I / 2 Incorporation of high level wastes in Synroc :
 Results from Recent Process engineering studies at
 the Lawrence Livermore national Laboratory
 発表 J.H. Cambell L.L.N. Lab. USA

(概要)

- U.S. defense waste 固化体開発上の key points として
 - defense waste に対する glass の good alternative
 - 低コストでより良い、又は同等の performance
 - system economics は waste loading に強く依存

○ 開発計画



○ 3種のSYNROCをサバンナリバーから発生する廃液の固化用に開発。

SYNROC

B (basic)

C

D (ジルコノライト、ペロブスカイトネフェリン、スピネル)

○ SYNROC Process の長所、短所

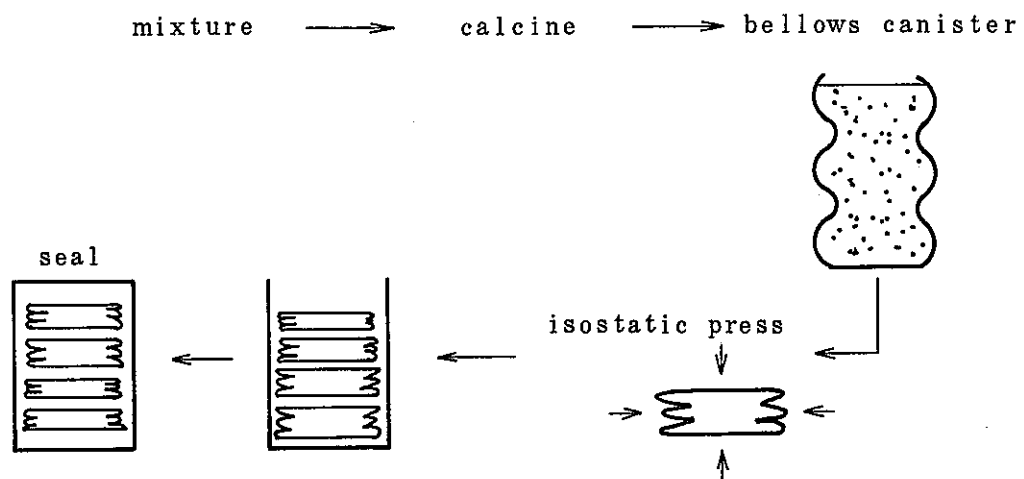
Advantage (ホウケイ酸ガラスに比べ)

- アクチニドの浸出率については3倍改良
- waste loading は3倍
- waste loading 考慮すると、ボロシリケートガラスと同等の性能

Disadvantage (ホウケイ酸ガラスに比べ)

- process が新しく、開発程度が不十分
- 開発に時間が必要

○ 工程



○ calcine 製造法としては次の方法が考えられる

- ロータリー calciner
- スプレー calciner
- 流動床 calciner

以下の理由から流動床を採用

- 20年間の実績
- 運動部なし
- 低温処理(500~1000℃)

○ Densification に対してはペローズキャニスタの変形解析を行っている。

○ Discussion ペローズキャニスターの実物(試験用圧縮前)の紹介があった(Ringwood)

I / 3 The Microstructure of SYNROC

発表 R.L. Segall Griffith Unive. USA

(概要)

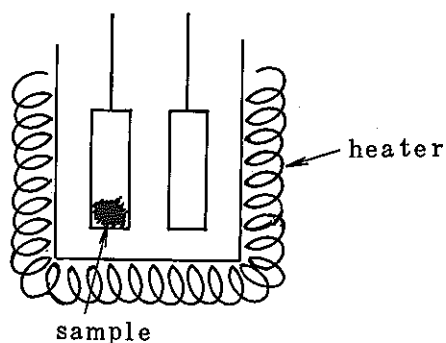
SYNROCの各結晶が電子顕微鏡(SEM, TEM)の写真により説明された。

I / 4 Attempt to assess the long term crystallization rate
of nuclear waste glass

発表 N.J. Francillon CEA, France

(概要)

microcalory meter を用いて失透時の発熱量を測定するもの。

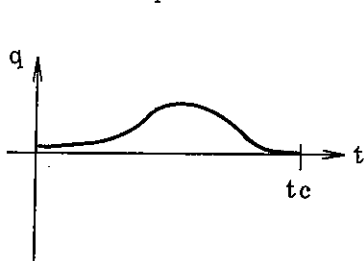


ガラス

SAN 38.32.16F100/

SON 583024U2

感度: 0.81 J/hr



$$Q = \int_0^t q dt = K \int_0^t s dt = Ks$$

s : curve area

K : 校正定数

$$\alpha = \alpha c \left[\frac{Q(t)}{Q(tc)} \right] \quad tc: \text{測定終了(カーブの終了)}$$

$$T: 500^{\circ}\text{C}: Q_{tc} = 2.541 \times 10^3 \text{ J}$$

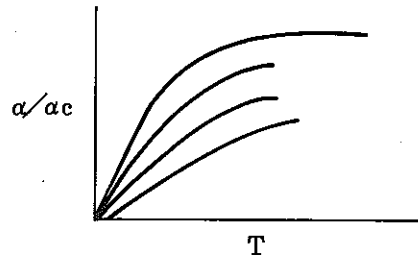
$$532^{\circ}\text{C}: Q_{tc} = 2.597 \times 10^3 \text{ J}$$

$$542^{\circ}\text{C}: Q_{tc} = 2.629 \times 10^3 \text{ J}$$

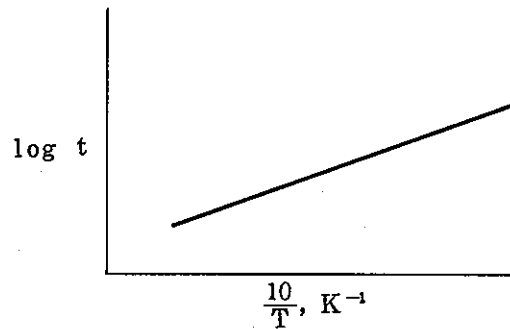
- $2\text{SiO}_2\text{-Li}_2\text{O}$ の $T-t$ の関係から最大失透速度を求める。

見掛の活性化エネルギーは 265 KJ/mol

- $\alpha / \alpha_c - T$ の関係



- $t - T$ の関係



- Volumic heat of Devitrification

$Q \cdot C_v$	J/cm^3
$2\text{SiO}_2 - \text{Li}_2\text{O}$	749
SAN383216F1001	709
SON583024U2	804

- Discussion

Q 実際の貯蔵でどの温度で、どの程度の時間で結晶化するか、その評価方法はどうか？

A 実際の貯蔵条件下での結晶化発熱量は、計算できるより小さいので困難が伴う。

I / 5 Characterization of mechanical properties of nuclear waste glass

発表者：H. Richter Fraunhofer - Institut für Werkstoff
mechanik, Freiburg / FRG

(概要)

曲げ強度、Hertzian Indentation による強度、破壊靱性、静的疲労による亀裂成長速度、弾性率の測定を行ったもの。

○ 機械的強度の重要性

- ・ハンドリング輸送中。
- ・リーチングの過程。表面積増大→浸出量増加

○ 強度、破壊応力について

- ・材料定数ではない。
- ・強度の依存する因子は

specimen size

loading rate

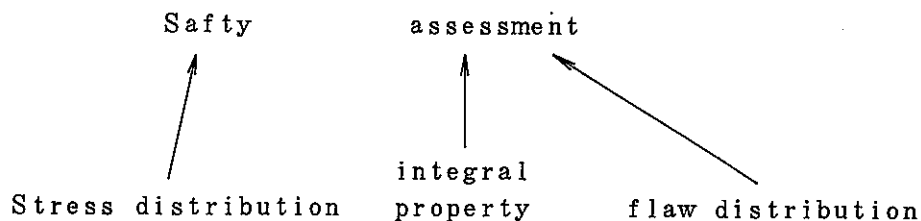
flaw size (surface) distribution

- ・Fracture toughness は材料定数

○ 表面積増加は

$$A = A (K(t))$$

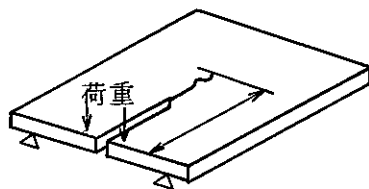
○



○ Fracture toughness

方法はDouble Torsion Technigue を用いた。しかしホットセルでは複雑である。

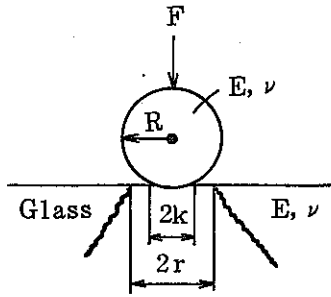
slow crack grow rate : v についても同じ方法を用いた。



$$v = \frac{dc}{dt} \quad \begin{array}{l} c : \text{cracklength.} \\ t : \text{time} \end{array}$$

○ Hertzian indentation による引張強度の評価

操作単純で、試料が小さくて済む。



• ring crack の発生

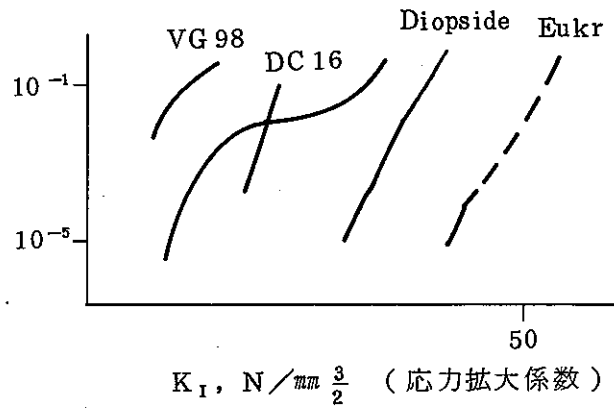
• radial tensile stress

$$\sigma = (1 - 2\nu) F / (2\pi r^2)$$

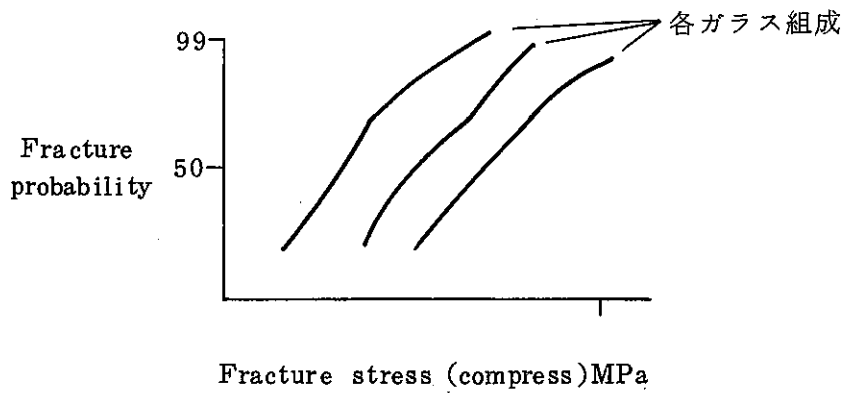
• Radius of contact circle

$$K^3 = 3FR(1 - \nu^2) / (2E)$$

○ slow crackgrowth rate



○ 破壊の分布



○ Hertzian Indentation による破壊応力

VG 98/3 361 MPa

SO 58 427

○ Discussion

報告者と Richter との質疑は以下の通り。

Q. Double Torsion Technique ではき裂の長さの測定法は？

A. 荷重点での試料のたわみ量から計算する。たわみ量は差動トランスで検出する。

分解能は 1 μm 程度で破壊時のたわみ量は数 μm 程度である。

Q. Hertzian Indentation による測定強度と曲げ強度との関係は？

A. 曲げ試験結果と良い相関関係にある。

Q. ホットセルでの強度測定はどのような方法が良いか？

A. Hertzian Indentation が良い。HMI ではこの方法を用いるつもりだ。本来は曲げ試験を行うべきであるが、曲げ強度との相関関係から評価する。将来ホットセルで曲げ試験を行う予定は今のところない。

Q. PNC のホット試験におけるガラスの強度評価に Lawn の提案している Vickers Indentation を検討しているが、Hertzian Indentation とどちらが良いか。

A. コールドとの相対評価にはどちらでも良いと思う。ただ実材料の表面のブリフィスクラックは数 μm で、Vickers Indentation で発生するクラックは百 μm のオーダーなので曲げ強度との対応関係をつけることはむずかしい。

Q. 弾性係数をホットセルで測定する予定はあるか？

A. ない。ヤング率

ポアソン比はアクティブなガラスとノンアクティブなガラスとの間で差はないと考えている。実際に確めた報告はない。

Q. 処分場において、solubility limit に達すれば表面積増加の浸出量増大への寄与は小さくなると考えられるがどうか。

A. そういう考え方に立てば機械的強度は重要でない。

Q. 廃棄物管理上のシナリオのどの段階で強度は重要か？ 輸送、プラントでのハンドリング時に強度が重要となると考えられるがどうか？

A. 特にシナリオは持っていないが、静的疲労も含めて強度は重要と考える。プラントでのハンドリング、輸送時では静的強度より動的強度の方が重要。静的強度と動的強度との間に理論的關係はまだ認められていない。

(2) Session II Reaction of Waste Forms with Aqueous Media

Chairman I/1 ~ 11 { LL.Hench Univ.of Florida.U.S.A R.C. Ewing
Unive of New Mexco.U.S.A

I/12~15 { P.Macedo Catholic Univ. U.S.A.
P.Offerman HMI. Germany

II/1 Effects of Composition and loading on the Chemical durability of borosicate glass

発表: D.E. Clark Univ. of Florida. USA

(概要)

・ SRP からの高 Al_2O_3 、高Fe 及びこれらの組み合わせの模擬廃液をホウケイ酸ガラスに固化。

・ 1150 °C 溶融

試料は t $0.2\text{ cm} \times 1\text{ cm}^2$ で表面は # 600 研磨

・ 浸出試験は modified MCC-1 test による。

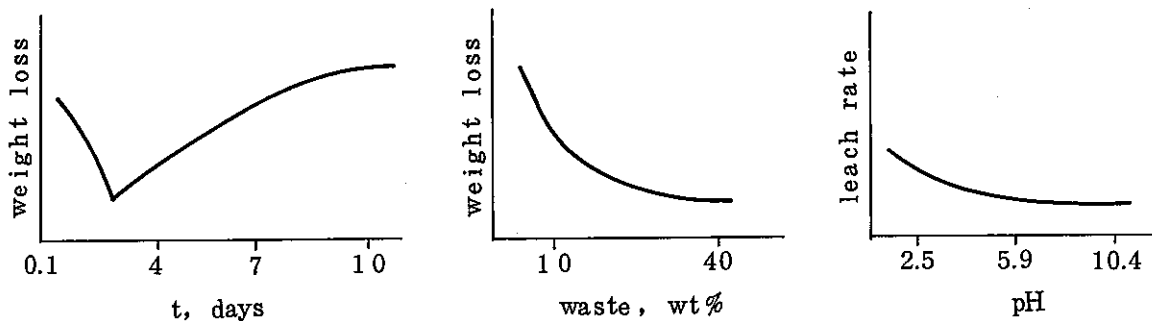
$$SA/V = 0.01 \sim 0.1\text{ cm}^{-1}$$

浸出液 { 脱イオン水
海水
合成地下水

pH は 2.4 , 5.9 , 10.4

温度 25 ~ 90 °C

・ 試験結果の例



・ SRL B1 のガラスでは Surface layer は保護層として働いていない。

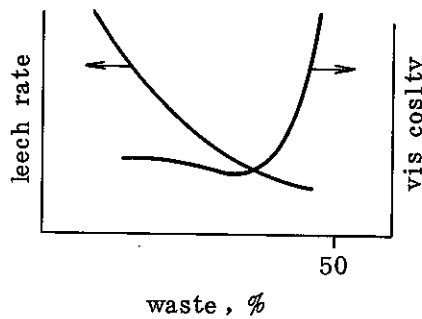
・ 結論としては

- ・ 廃棄物含有率が増加すると浸出率低下
- ・ 脱イオン水では、高アルミナ廃棄物のガラスが最良の性能を示した。

II / 2 Chemical durability of glass containing SRP waste - leachability characteristics, Protective layer formation, and repository system interactions.

発表：G.G. Wiers, E.I. du pont de Nemours, USA

- ・ 保護層は waste content に敏感



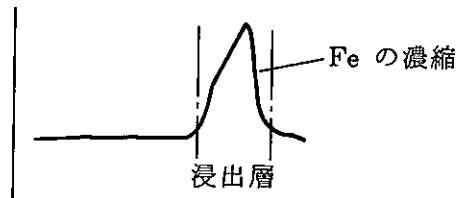
- ・ leaching process のとしては

- I interdiffusion
- II dissolution
- III surface layer formation

さらにゲル層に precipitate する。

- ・ 合成地下水での浸出試験

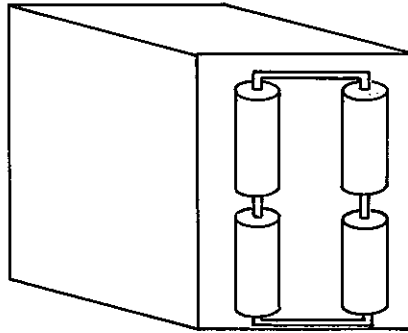
- ・ 合成地下水 — 5種
- ・ 蒸留水中に比べ、地下水の方が浸出率は低い。
- ・ EPMA による表面層のプロファイルが示された。



- ・ バックフィル — 岩石 — ガラス系の浸出装置

- ・ 装置は恒温槽を改造してコラムを配置したようなものであった。

- ・バックフィル材、鉛の存在は
浸出率を下げる。



・ Discussion

Q 表面層が Protective layer とならないのは何故か？

A. Waste glass では SiO_2 の含有率が多くないので Protective に働かない。 SiO_2 , Al_2O_3 が多ければ protective に働くだろう。

II / 4 The mechanism for hydrothermal leaching of nuclear waste glasses :
Properties and evaluation of surface layers

発表 : G.Malow HMI Berlin

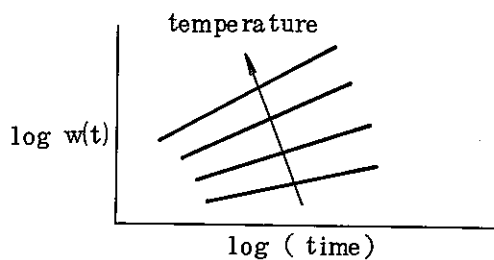
- ・ 模擬高放射性廃棄物のホウケイ酸ガラスの浸出メカニズムを検討。
- ・ 浸出液 ; 蒸留水、岩塩及び $\text{MgCl}_2 - \text{MgSO}_4 - \text{NaCl} - \text{KCl}$ 溶液温度は $200\text{ }^\circ\text{C}$
- ・ 表面層の断面を MPA で解析。 → Si , Al , U , Fe が濃縮
- ・ 結論としては
 - ・ 表面層の組成、成長速度、構造は浸出液の種類に依存
 - ・ SEM 解析によれば、層は均一ではない。少なくとも 2 層から成り、それぞれの化学組成も異なる。
 - ・ 浸出成分で不溶解性のものが表面に沈澱して表面層を形成する。
 - ・ 表面層は保護層として働く。
 - ・ 表面層の長期の機械的安定性が重要であり、次の paper でそれを実証する予定。

II / 5 Long - term radioactivity release from solidified high - level waste

発表：W.Lutze. HMI. Berlin

(概 要)

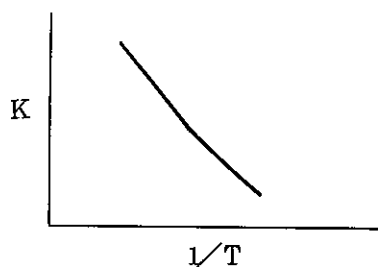
- 重量減少と時間との関係



$$\log w(t) = \log K + \log t$$

K : const

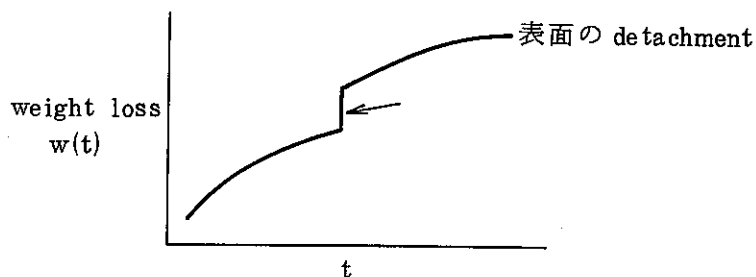
- K と温度との関係を考慮する



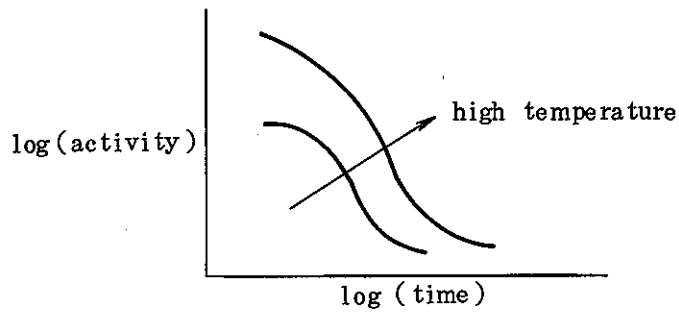
$$w(t) = A \exp\left(-\frac{b}{T}\right) t^n$$

n : saturation system

- 処分後の release rate には F.P. と actinide を考慮する。
- Carnallite 中での activity の経時変化を紹介
- 浸出プロセスのモデル



・放出 - activity の経時変化



・ Discussion

Q ある時刻における浸出率を推定すると言ったが、どのようにやるのか。

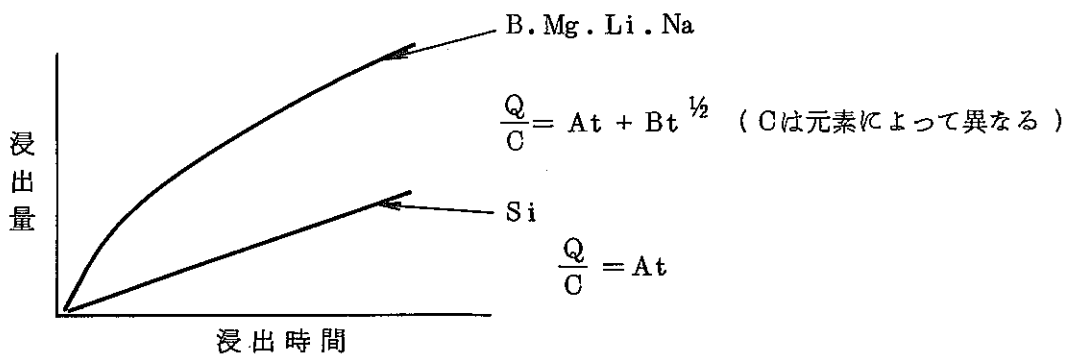
A 処分場の条件で Chemical は変化しないと考えられる。温度、放射線等の条件が時間 共に変化するので、これらを含めて推定する。

II / 8 Leaching of vitrified high - level radioactive waste

発表： J.A.C. Marples

(概 要)

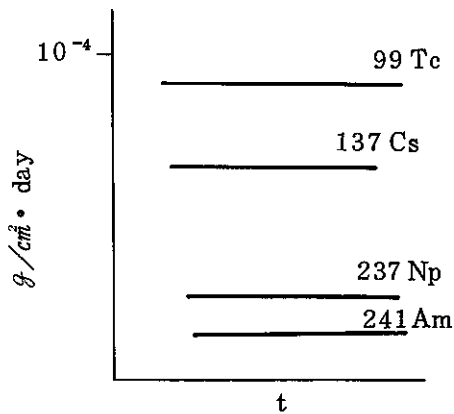
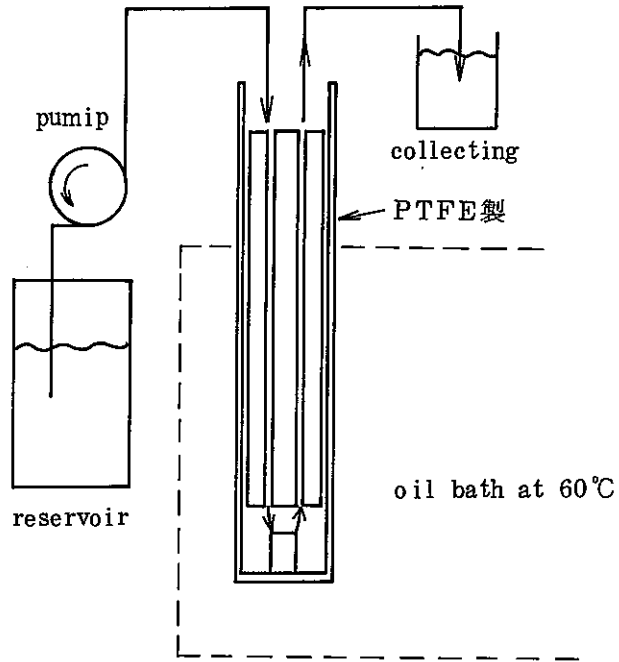
・ Si と他の元素は浸出の時間依存性が異なる。



・ ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{99}Tc , ^{237}Np , ^{239}Pu , ^{241}Am をスパイクしたがガラスにより浸出試験を行った。浸出試験方法は、slnw flow test と処分場模擬 test の2つの方法で行った。

◦ slow flow test

浸出試験装置は、右図のようなものを用いた。浸出液の各元素の濃度は counting technique によった。



Cs . Sr . Tc は重量減少量と同程度

Np は重量減少量の 1/2

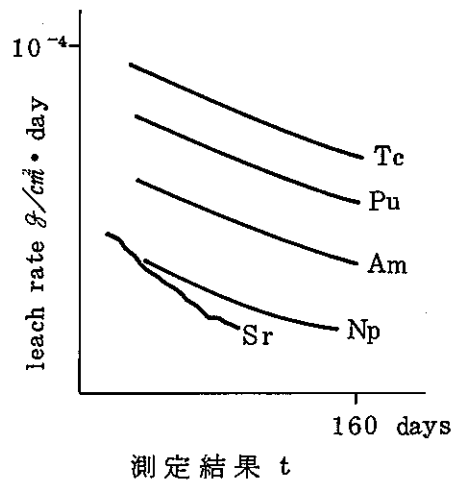
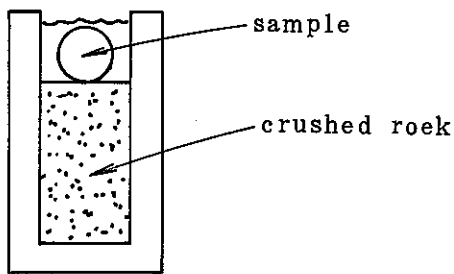
Pu は $\frac{1}{100}$

Am は $\frac{1}{1,000}$ 程度であった。

アクチノイドはゲル層に捉えられたと考えられる。

浸出液の分析に当っては pipe や container 等の装置の洗浄も行った。

◦ 処分場模擬 test



・アイトープの存在形態

浸出液を filter に通したところ Am, Pu がフィルターに残る。これは、これらのアイトープがコロイドか、或いはコロイドに吸着されたことを示唆するものと考えられる。

II / 11 Leaching of actinides from simulated nuclear waste glass

発表 : S. Pickering CEC. FRG

・ガラスの組成 GP 98/12

31-3-EC

B 13

31-3-EC (glass ceramic)

・浸出条件

方 法 : static

温 度 : オートクレーブを用いて 200 °C

時 間 : ~ 30 日

浸 出 液 : 蒸留水, 塩水

・評 価

・浸出液中のアクチニドの濃度

Am · Pu : r-スペクトロメトリ

U : ICP

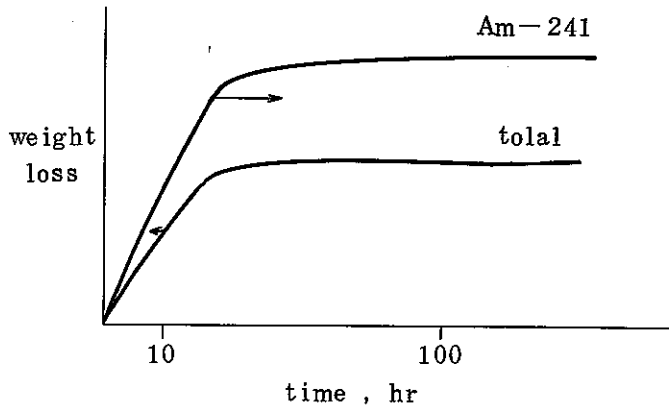
Np : 中性子活性化

Cm : 液体シンチレーションカウンタ

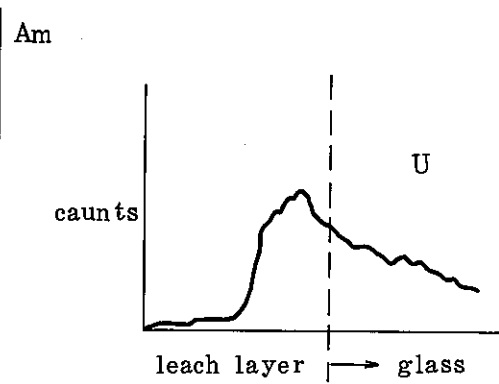
・試料の重量減少量 (ゲル層を取除いて行った。)

・表面層の解析 (electron microprobe analysis)

◦ 結果の例



濃度、重量減少は 10 ~ 50 hr で飽和



表面にはアクチニドが濃縮

(3) Session III : Characterization of Repositories

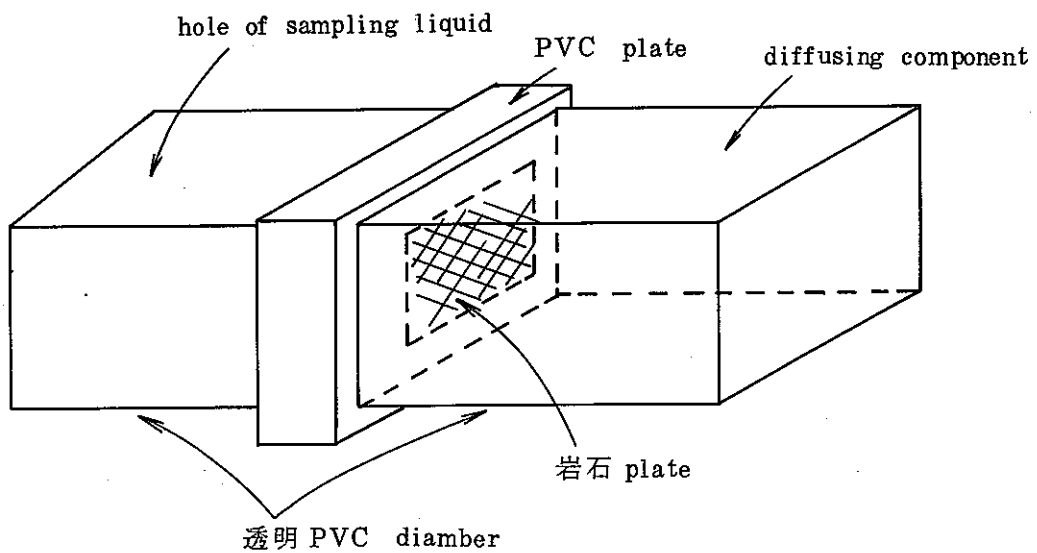
Chairman III / 1 ~ III / 5 J.A. Goedkoop , ECN , The Netherland

III / 6 ~ III / 10 H.C.Burkholder , PNL , USA

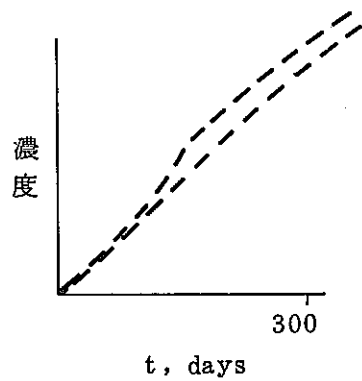
III / 11 ~ III / 14 LB . Nilsson , SKBF , Sweden

III / 6 Diffusion in Crystalline rocks

発表 : Skagius K. Royal Institute of Technology Sweden



- 岩石の拡散係数の測定には上図のようなものを用いている。
- 測定結果の一例として、下図に濃度-時間の関係を示す。



Fick's law から

gneiss に対し

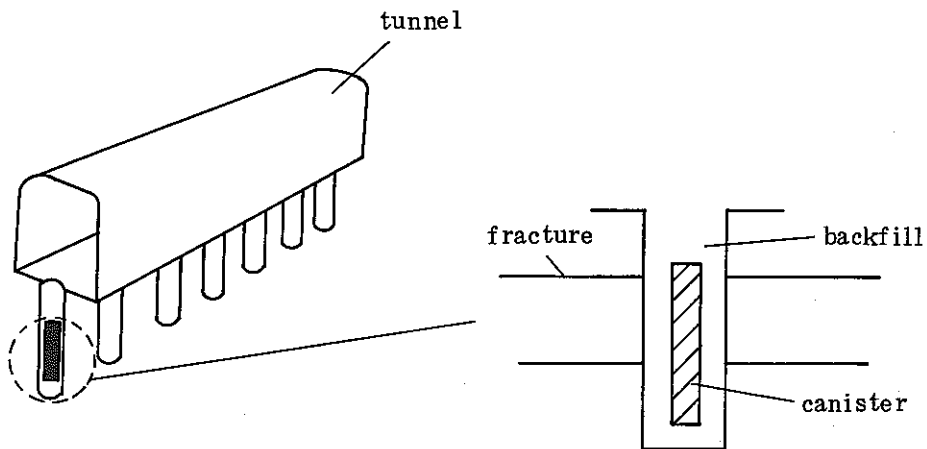
$D = 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ を得た。

III / 8 model for near - field migration

発表 : Andersson. G. Royal Inst. of Tech Sweden

- ・ 計算は、周囲の岩石からキャニスターへの腐食媒体の移動について行った。モデルはバックフィル中の拡散、及び岩石中の拡散、及び slow flow を取り扱ったものである。多孔質の岩石は、キャニスター長手方向に垂直な破壊面を有するものとする。モデルにおける配置は下図のようになる。

Schematic view of the emplacement



- ・ input data としては

- ・ hydraulic conductivity
- ・ fissure spacing
- ・ hydraulic gradient
- ・ pecelet number
- ・ effective diffusivity
- ・ volume equilibrium constant
- ・ canister penetration time : 40, 5000, 10^5 yr
- ・ leach time : 3×10^4 , 5×10^5 yr

- ・ 結果として

- ・ Ru, Tc, Th, Ra の濃度の経時化が示された。
- ・ ^{230}Th , ^{238}U , ^{226}Ra の濃度の経時変化が diffusion, surface sorption 及び volume sorption の場合で比較された。

III / 11 Aqueous diffusion in crystalline Rock

発表 : M.H. Bradbury. Harwell Lab. U.K.

・測定方法

・試料 : $\phi 75 \times t 20 \text{ mm}$ を Perspex (アクリル樹脂の一種) で固定、

岩石 : granite

・試料を Perspex 製の 2 つのセルではさむ。一方のセルは一定濃度の貯槽、
他方は攪拌された測定セル。

・ ^{99}Tc と I の拡散係数を測定した。

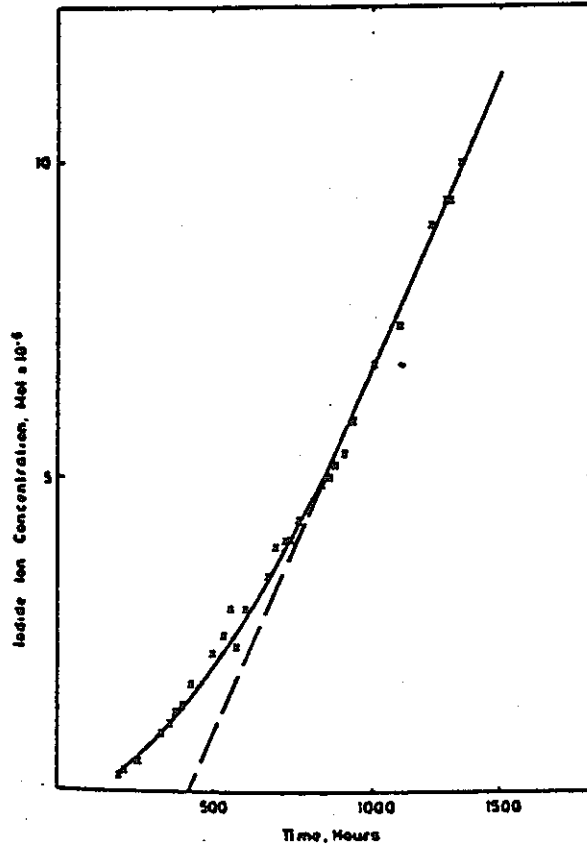
図に I の濃度の経時変化、表に granite の拡散係数 α 、 ϕ を示す。ただし、
rock capacity factor : α

$$\alpha = \text{porosity} (\epsilon) + \text{sorption} (\rho k)$$

ϕ は $D_i = \phi D_0$ で定義される。(D_0 は自由水の拡散係数)

拡散係数と α は図の曲線の直線部の傾きと、直線部延長の時間軸との交点
から求められる。

^{99}Tc に対しては、 $D_i = 7 \times 10^{-12} \text{ m}^2 \text{ S}^{-1}$, $\alpha = 0.15$ 、 porosity
を 7×10^{-3} とすると分配係数は 0.06 l/Kg 。



IODIDE ION DIFFUSION IN CARMENELLIS GRANITE.

TABLE I : Summary of Iodide Ion Diffusion Results in Four United Kingdom Granites

	$D_i, m^2 s^{-1}$	α	ψ
Ossian granite	1.4 E-12	1.2 E-2	7 E-4
	1.4 E-12	1.6 E-2	7 E-4
	1.4 E-12	2.2 E-2	7 E-4
	1.6 E-12	1.2 E-2	8 E-4
	9.4 E-13	7.4 E-3	5 E-4
	7.5 E-13	3.1 E-3	4 E-4
	6.8 E-13	6.5 E-3	3 E-4
	6.4 E-13	5.7 E-3	3 E-4
Scottish	4.0 E-13	2.2 E-3	2 E-4
Low-land granite	3.7 E-13	2.7 E-3	2 E-4
Skene Complex granite	2.8 E-13	1.2 E-3	1 E-4
Cornish	2.5 E-14	7.7 E-4	1.2 E-5
Carmenellis granite	3.2 E-14	8.8 E-4	1.6 E-5

Ⅲ / 14 Engineered components for nuclear waste disposal systems — are they technically justified ?

発表 : H.G Burkholder Battele . PNL . USA (invited)

- 発表された内容は新しいものではないが、既知の情報を summarize したものである。

Engineered component for spent fuel isolation systems — are they technically justified ?

で始まった。

- 全体のシステムとしては

{ 天然のサブシステム
から成り
人工のシステム

それらの機能としては

核種移行の遅延

核種移行のコントロール

天然の遅延効果は、侵入時間の遅延に支配され、人工サブシステムの遅延は容器寿命に支配される。

- 被曝線量として、「各地域の平均的個人に対する複合予想最大人体被曝線量」
“ Composite expected maximum total body dose to average individual in local situation ” を取り上げた。

ここで Composite の意味するものは

- ・ 種々の環境の影響
 - ・ 事故的被曝線量
 - ・ 各地方の状態での最大被曝線量
 - ・ 重み付きの確率
 - ・ バックグラウンドによる被曝線量
- システムの性能と基準
 - ・ 基本的な原理 — 個人の最大被曝線量は、自然のバックグラウンドによる最大被曝線量を超えるべきではない。
- 米国での天然のバックグラウンドは、0.09 ~ 0.25 rem / yr

- ・ 性能に対する重要な問題
 - ・ 地下水から地表への移行
 - ・ 井戸への地下水の動動
 - ・ 破壊箇所での地下水の移動
 - ・ etc
- ・ 考慮すべき値として次のものを挙げている。
 - ・ 事故の確率
 - ・ 吸着係数
 - ・ 核種の溶解度
 - ・ 水力学的な分散係数
 - ・ ^{14}C に対する被曝線量の計算手順
 - ・ etc
- ・ 玄武岩系で人工サブシステムの移行速度の被曝線量への効果を考えた場合、人工サブシステム性能が $10^{-2} \sim 10^{-4} / \text{yr}$ であれば、その影響は敏感となる。

(4) Session IV : Backfill Materials and Transport through the geosphere

chairman IV / 1 ~ IV / 6 B.Grundfelt Kemakta Konsult A B ,
Sweden C.Sombret , CEA . France

IV / 7 ~ IV / 13 J.Hamstra , ECN , The Netherland
D.M.Roy . The Pennsylvania state
Univ. USA

IV / 2 Development of a backfill for containment of high - level
nuclear waste

発表 : F.N. Hodges , PNL . USA

- Na - ベントナイト、Ca - ベントナイトの圧縮特性、熱伝導度、透水率等の特性を測定した。
- 密度 2.1 g/cm^3 まで圧縮された Na - ベントナイト、Ca - ベントナイトの hydraulic conductivity は $10^{-12} \sim 10^{-13} \text{ cm/s}$ である。Na - ベントナイトの約 2 倍、hydraulic conductivity は Na - ベントナイトの方が Ca - ベントナイトに比べ 1 桁低い。
- Sr , Cs , Am , Np , I , I , U , Tc に対し、バックフィル候補材であるベントナイト、チャコール、ゼオライトの distribution ratio が測定された。Sr , Cs , Am はベントナイト、ゼオライトに強く吸収される。Np , U はベントナイト、ウランに中程度吸収される。Am , Np , U , I , Tc はチャコールに強く吸収される。チャコールの結果について言えば、部分的には真の吸収よりも還元、沈澱が見られた。
- 乾燥した高圧縮ベントナイト (乾燥密度 $\div 2.1 \text{ g/cm}^3$) の熱伝導度は $0.7 \sim 1.0 \text{ W/m}^\circ\text{C}$ 。

IV / 4 Transport of actinides through a bentonite backfill

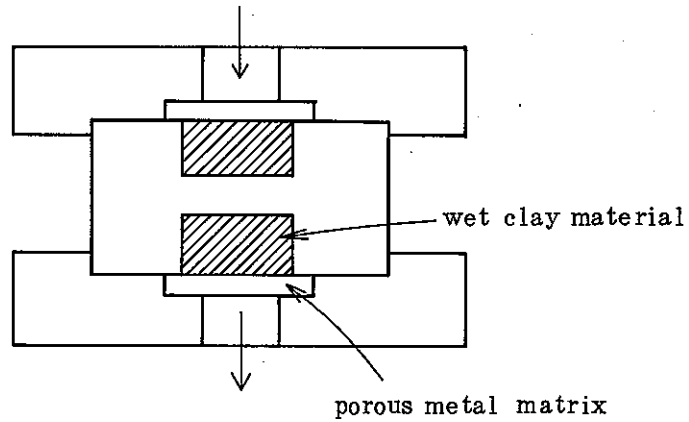
発表 : B. Torstenfelt Chalmers Univ. of Tech. Sweden

- 地下水を含む圧縮ベントナイト中のアクチニドの拡散について調べた。
- 実験の対象となった元素

Th (IV) Np (V)

Pa (V)	Pu (IV)
U (VI)	Am (III)

- ・拡散の実験には右図のような装置を用いた。



- ・地下水は、スウェーデンの深部花崗岩の地下水を使用した。粘土中の濃度勾配を避けるため予め地下水をベントナイトと平衡状態にしておいた。
- ・Am U Pu の吸収は、水中の炭酸濃度によって3桁程度まで変化するので、いくつかの拡散実験は高炭酸濃度で行った。また、拡散速度への錯体形成の影響を調べるため、腐食酸10 ppm をUの実験で添加した。
- 還元剤の拡散への影響も調べた。(金属鉄、磷酸鉄)

・結 果

- ・一般に低い酸化状態では、アクチニドの見掛の拡散係数は低い(III、IVで例えば、Am は $10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ 以下)。
- ・Am では炭酸濃度による移動速度の違いは見られなかった。
- ・高酸化状態(V、VI)では見掛の拡散度は2桁上昇した(高炭酸濃度で)。

(5) Special session S1 Research Priorities for Nuclear Waste Management

演壇で下記の発表者による演説があり、これに関して会議参加者と発表者の間で議論を進めるとい形式で、このセッションは進められた。

発表者： H.C. Burkholder , Battele. PNL USA
F. Feates , Dept of Environment , England
D.E. Gordon , E.I. du pont de Nemours , USA
E. Merz . KFA Julich Germany
T. Papp , Swedish Nuclear Fuel Supply Sweden
T.H. Pigford. Univ. of California. USA
A.E. Ringwood , Australian National Univ , Australia
Y. Sousselier , CEA. France

発表、及び議論では Research priorityとして以下の事が話題となった。

- HLW 処分のリスク解析
- TRU 廃棄物の research priority として、不動化法の開発
(以上 Gordon)

- TRU 固化体とプロセス開発
- 固化体性能試験

処分条件の試験では

静的条件での元素の相互作用

動的な試験がまだ充分になされていない。

- modeling の問題は 2つ
 - waste form の内 → 表面への移動
 - waste form → near - field 環境への移動
- プロセスの品質管理の立証のための重要な項目として
 - 運転状態の関数としての性能データ
 - プロセスの数学的モデル
 - 遠隔試験の実証

(以上 Burkholder)

- まず、公衆が受け入れることのできるシナリオをつくるのが priority 高い。
(Feates)

- ・性能と技術の容易の和で評価すべき
- ・均質性は scientific な問題ではないが重要である。waste management は science ではない。
- ・安全評価が重要

(以上 Mertz)

- ・サイトの調査計画
研究に対する外的なフレームワークとして
 - ・将来世代に負担を残さない
 - ・高度の安全
 - ・限られた原子力計画
 等がある。

(Papps)

- ・高温高压下での安定性
水熱条件下 (200 ℃ - 7 days , 350 ℃ - 4 days) で処理したガラス固化体、SYNROC で比較。また、SYNROC の waste loading がガラスの 3 倍だからコストを下げるができる。
- ・処分方法として peep Drill Hall を提案
その利点として
 - ・生物圏より遠い
 - ・熱応力小さい
 - ・透水性小さい
 - ・damage 最小でシール容易
 - ・可能性のあるサイトがより広い
 - ・社会 — 政治的因子

(以上 Ringwood)

- ・その他
Ringwood の SYNROC の発表に対し、固化技術の評価は total system として扱うべきだというコメント。
- ・個々の研究はなされているが、cost - performance の total analysis が不充分
- ・処分場における放射線分解の影響

(6) Session S 2 (invited) In - situ Solidification of Radioactive Waste Solution

chairman : H.W. Levi , G S F Neuherberg Germany

このセッションの発表はすべて、セメント固化並びに岩塩層処分に関するものであった。

S 1 / 1 In - situ solidification of radioactive waste solution

発表 : R.Kraeme , KFK.Karlsruhe , Germany

岩塩層の処分場サイトに中、低レベルの廃棄物（液体、固体）のセメント固化処理施設を設け、岩塩空洞内に直接投入しようというものである。

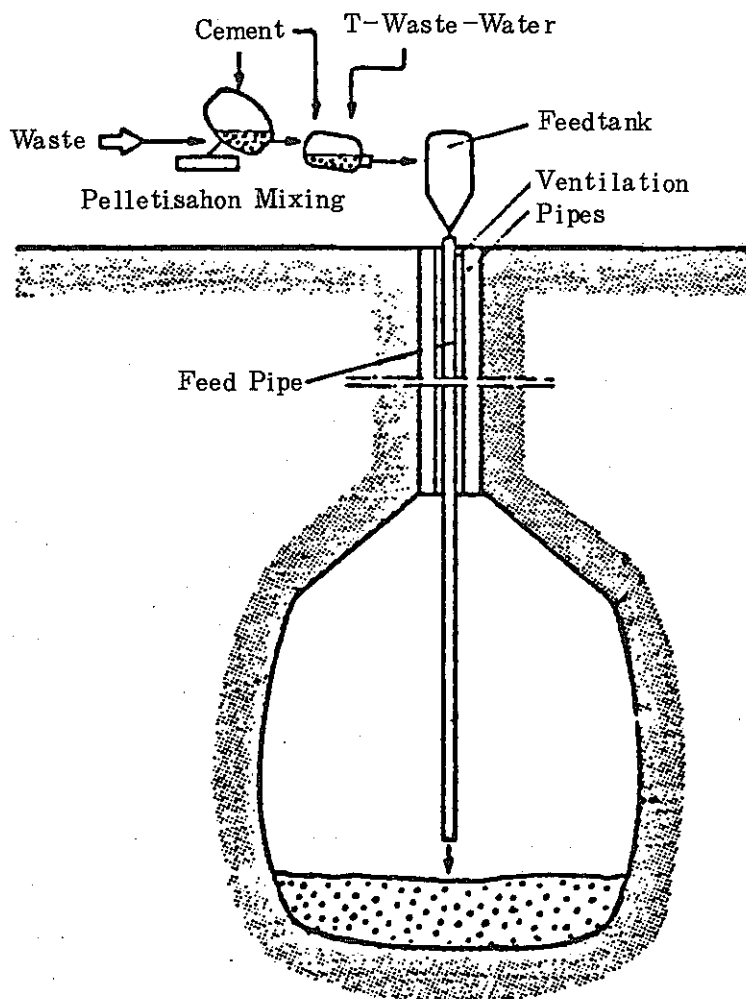


Fig. 1 REFERENCE SYSTEM FOR THE CONTAINER FREE DISPOSAL OF LIQUID MLW/LLW IN A SALT CAVERN

(7) Poster Session A

1. Waste Form properties
2. Radition Effects
3. Leach Behaviour of Waste Forms

Chairman T.Westermark , Royal Inst of Tech , Sweden

J.E. Mendel , Battel , PNL . USA

J.A.C. Marples AERE . UK

G. Malow HMI , Germany

A/1 Quantative determination of crystalline phases in nuclear waste glasses

説明 : R.H. Feld Battele - Inst Frank furt

- ・粉末X線法によりガラス中の結晶相の定量化する方法で、回折ピーク高さの基準となる flushing agent を添加するものである。これによってバックグラウンドの変化の影響を避けることができる。
- ・まず、nuclear waste glass に現れる結晶相と同じ物質 i と、それとピークの重ならない flushing agent C (Feld はタングステンを使った) を混合してX線回折にかける。このとき、それぞれの重量、ピーク高さの関係は次式のように表わされる。

$$K_i = \frac{X_c}{X_i} \cdot \frac{I_i}{I_c}$$

X : 重量%

I : 回折強度

i : 結 相

c : flushing agent

この K_i は重量が変化しても変らない定数ということである。

- ・次に、重量既知の flushing agent を結晶化したガラスとの混合物のX線回折を得ると、次式から結晶相 i の重量% X'_i を知ることができる。

$$X'_i = \frac{X'_c}{K_i} \cdot \frac{I'_i}{I_c}$$

- ・ flushing agent の量はタングステンで2%程度であり、また flushing agent

の種類は、求める結晶相の回折ピークと重ならなければ向でも良いそうである。

A / 2 The material balance - scientific basis for quality assurance of vitrified waste

説明： E. Schiewer , HMI Berlin

- ・プロセスにおけるすべての材料の出入を定量的に把握して、品質保証に役立てようというもの。

次の6つの材料の流れを考慮した。

frit input , waste input , 腐食生成物 , オフガス , リサイクルされたオフガス , ガラスの output

- ・ 4 ton の非放射性ガラス固化運転のマテリアルバランスを議論した。

次の2つの現象により、マテリアルバランスの有用性が実証される。

- ・ ガラスにおける鉄の定常的増加。

- ・ メルターにおける液 — 液相の不混和がしだいに現れる。

これらの現象は定量的に説明され、以下の事と関係づけられる。

- ・ リサイクルされたオフガスの流れにより wet scrubber がより腐食する。

- ・ メルター内の腐食生成物により、溶融物にさらにモリブテンが入る。溶解度を超えれば、つまり溶融物の許容度を超えれば、相分離が生じる。

- ・ ガラス固化体中の yellow phase の展示があつた。

結晶相： $Ba Cr O_4 + Ca Mo O_4$

また、これは今年 5 / 30 ~ 6 / 3 に開催された PNC - KfK 共研ミーティングでも発表された。

A / 4 Investigation of the oxidation state and behaviour of molybdenum in silicate glass

説明 A. Horneber Univ. Erlangen - Nurnberg

- ・ ガラス組成 (wt %)

$$\left\{ \begin{array}{ll} 74 & SiO_2 \\ 20 & Na_2O \\ 6 & CaO \end{array} \right.$$

これに

MoO₃は 2.5 ~ 3.5 wt % 添加

・ ESR , Optical spectroscopy (UV , VIS , NIR) によりシリケートガラス中の Mo の酸化状態を調べた。

・ 還元剤の効果 (溶融ガラスに添加)

tannic acid : 還元効果あり

ギ酸、ホルムアルデヒド : 効果なし

・ 溶融温度の影響

溶融温度上昇 → Mo (V) 減少 (ESR による)

A / 5 Fracture appraisal of large scale glass blocks under various realistic thermal conditions

F. Laude , etc CEA , France

・ ガラスの注入時、除染時 (hydro blasting) 、空冷時に熱応力により割れが発生する。この割れの定量的評価を理論的に行うことは困難で、実験する以外にない。

・ 実 験

φ 30 × 40 cm のグラファイト内張りのステンレスキャニスターにガラスを注入する。冷却後ガラスを取り出して割れを次の式で評価する。

$$\frac{1}{F.R.} = \frac{\text{割れの入ってないガラスの表面積}}{\text{割れの入ったガラスの表面積}}$$

表面積は、R.T. または 100 °C の大型ソックレー浸出試験により浸出率から計算する。

徐冷で F.R. ≈ 2 、急冷 (キャニスターごと水冷) で F.R. ≈ B 、注入時で

F.R. = 5 ~ 10 という値を得ている。

・ 軟化点に近い温度 (750 °C 前後) で短時間保持し、破壊したガラスを再び固着する実験を行った。固着前後の写真が示されていた。

A/10 Near surface leaching studies of Pb - implanted Savannah River
Plant nuclear waste glass

説明 : G.J. Northrup , Jr , Savannah River Lab USA

・ ガ ラ ス

Frit 131 , TDS - 3 A waste : 27 wt %

・ 照 射

Pb イオンを照射、損傷深さは 800 \AA 程度イオンのフルエンスを変化させて照射量を変える。

α 崩壊にして、 3×10^{18} 、 3×10^{19} 、 3×10^{20} α decays / cm^2 に相当。

(予稿では 4×10^{17} 、 4×10^{18} 、 10^{19} となっている)

・ 照射後浸出後の表面層の解析には

Rutherford backscattering spectrometry (RBS)
($Z > 7$ の元素に対し)

Elastic recoildetection (ERD) (H, Li に対し)

の 2 つの手段を用いた。

・ 浸出実験は static な方法で蒸留水中 90°C で行った。浸出液の分析は ICP
によった。照射後の試料は 5 回浸出試験を行った。

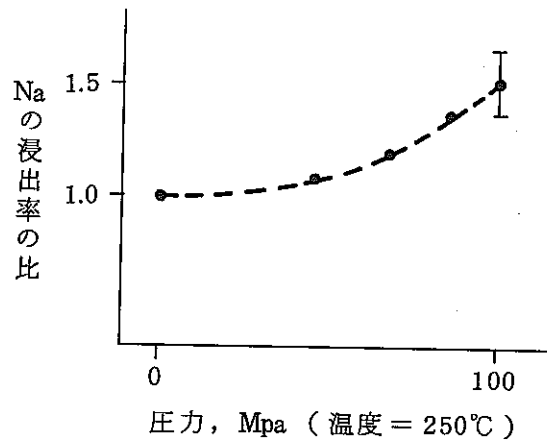
1 回目 (5 hr 浸出) Na > B > Li > Si , 0.5 ~ 2.8
2 " (5 ") $\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{day}$
3 " (6 ")
4 " (6 ")
5 " (6 ") 各元素共 $< 1 \text{ g}/\text{m}^2 \cdot \text{day}$

照射による浸出率の変化、浸出回数による浸出率の変化は特に認められなかつた。

A/14 The chemical durability of some HLW glasses : Effect of
hydrothermal conditions and ionizing radiation

説明 : S. Myhra , Griffith Univ. Australia

・浸出率への圧力効果



・照射の浸出率への影響

- ・粉末ホウケイ酸ガラス (modified Harwell. 189) とウランドープガラスを中性子照射する。
- ・照射量は 10^5 年の貯蔵に相当
- ・蓄積エネルギーは、 10^2 KJ / Kg (300 ~ 900 K で放出)
- ・照射による Si の浸出率の増加は最初は 3 倍、長期的には照射の影響は認め難い。Li , Sr も同様
- ・Zr , Ce の浸出率は低い → 表面層に保持されていると考えられる。
- ・Ru の浸出率はアルカリ元素と同様

(8) Poster session B 1. Geosphere Migration

2. Repository

chairmann H.C. Burkholder , Battelle PNL. USA

J.A. Goedkoop , ECN , The Netherlands

J.D. Mather AERE , England

B/5 A Comparison of in - situ radioduclide migration studies in
the studsvik aren and laboratory measwements

O. Landstrom , Studsvik Energiteknik , Sweden

(概 要)

一連の現位置放射性核種移行試験がスウェーデン東岸の Studsvik で進行中である。片麻岩系の岩床に8つの穴を開けた。岩石は、鉱物組成、風化物、亀裂充填物質、透水性等の特性について評価されている。

3つの明瞭な流路があり、非吸着性のトレーサー (^3H , ^{82}Br , ^{131}I) を用いて調査し、これらのうちのひとつについては吸着性のトレーサー (^{85}Sr) の移行試験に用いた。

実験室の研究では現位置試験場と同じ岩石を用い、バッチ、コラム式で行った。現位置では容易に変えられないようなパラメータ (pH、核種濃度) を変えて行った。

本文ではフィールドテストと実験室の測定を比較し、核種移行モデルを議論している。

(概 要)

予備試験結果が報告された。

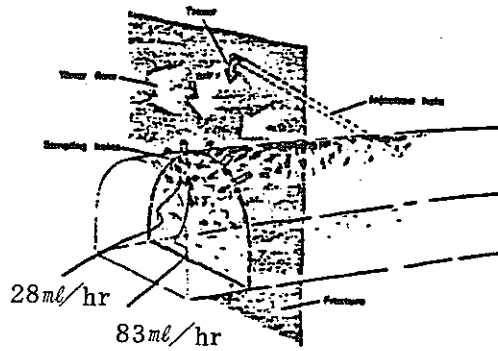


Figure 1. Method of injection and sampling

横坑 (地下 360 m) に交わる岩石 (カコウ岩) の破壊面に図のように injection hole を掘り、トレーサーの水溶液を圧入する。但し、injection hole と破壊面の交叉部はシールする。破壊面に設けたサンプリングホールから溶液を回収する。2つのサンプリングホールからの回収速度は、28 ml/hr 83 ml/hr であった。

計画では非着性、吸着性トレーサーのクラック内の挙動を調べることになっている。

3. Hahn - Meitner - Institut の見学

期 日 1982年6月11日 10:00 ~ 11:30

場 所 Hahn - Meitner - Institut für Kerforshung Berlin 1000
Berlin - 39 , Glienicker Str. 100

(1) この見学は、会議参加者のために特に企画されたもので午前の部と午後の部に分けられた。(報告者は午前の部に参加)参加人員は午前の部で約60人で、4グループに分かれて見学した。材料試験炉、固化体評価のホットセル、サイクロトロン等4ヶ所が見学対象となったが、見学時間が非常に短いため、報告者は固化体評価のホットセルを主に見学した。ホットセルの概要について以下に述べる。

(2) ホットセル

セルは3室有り、それぞれ一つの遮蔽窓が組み込まれており、各室2m四方程度の広さであった。一番左から、固化体の貯蔵セル、試料作製セル、浸出試験用セルとなっている。セル内の配置を図1に示す。床面はすべて人間の腰くらいの高さであった。

a) 貯蔵セル

セルの床面には、固化体貯蔵用のピットが十数個設けてあり、固化体は右図のようなステンレス容器に入れられ、ピットに貯蔵されている。

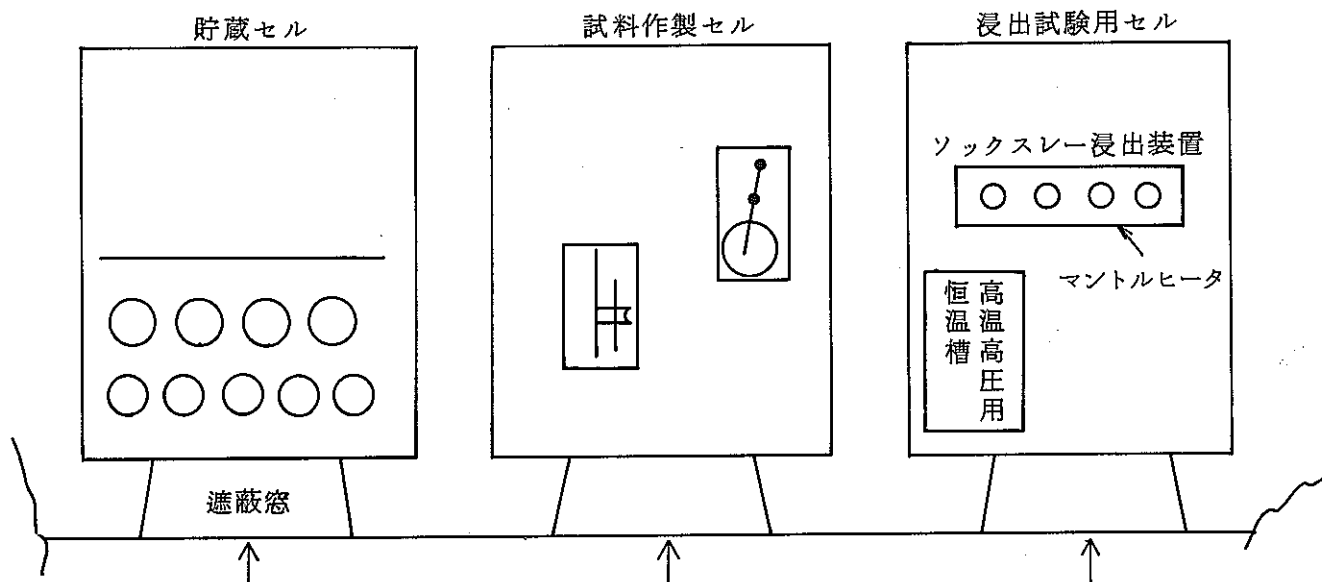
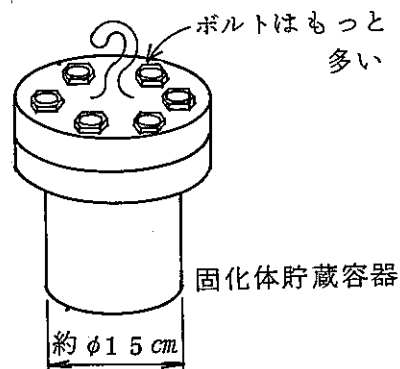


図1 ホットセル内の配置

見学では、固化体が入ったステンレス容器をつり上げ、セル内の空間線量率のレコーダーの指示が上昇するところを見せてくれた。容器に入っているガラス固化体はマルクールからのガラスで、大きさ $\phi 8\text{ cm} \times 10\text{ cm}$ 、廃棄物含有率は15～20 wt%、アクティビティは、 $8 \times 10^5\text{ Ci} / \ell$ 程度ということであった。

b) 試料作製セル

このセルには、切断機と研磨機が配置されていた。共にビューラ社製のもので、切断機は小型の低速切断機で、カバーをはずして使用していた。

c) 浸出試験用セル

テフロン製のソックスレー浸出試験装置と高温高圧浸出試験用恒温槽が置かれてあった。

テフロン製浸出装置は図2に示すようなものであった。すべて、PTFEで製作されている。加熱はマントルヒーターで行い、セル内で水の使用が制限されているために水蒸気の凝縮はテフロン管の空冷により行っている。冷却効率を高めるために、フィンの向いたアルミブロックが根元の所に取り付けられていた。テフロン冷却管の長さは約1.5 mであった。

浸出液槽は上下2つに分離でき、また試料容器(サイフォン式)は槽の横腹に差し込む形になっている。この容器には、浸出液の交換を検知するための白金電極+白金ワイヤが取り付けられてある。試料セル中の浸出液と雰囲気との温度差のために、浸出液の深さに応じて、定電流を流した電極間の電圧が変化する(図3)。この変化により、浸出液の交換を知ることができる。

浸出液量は200 mlで、浸出液の温度は100℃、他の温度では試験していないということである。浸出液の交換頻度は12回/hr(WTLでは通常15回/hr)また、冷却管の冷却能力を示す、浸出液の蒸発飛散量は10日間の試験で2～3 mlということである。高温高圧の浸出試験は、試料を入れたステンレス容器を恒温槽(小型の冷蔵庫程度)に入れて行っている。

静的浸出試験はDINに基づいて行っている。

なお、このセルでは失透試験も行うということである。

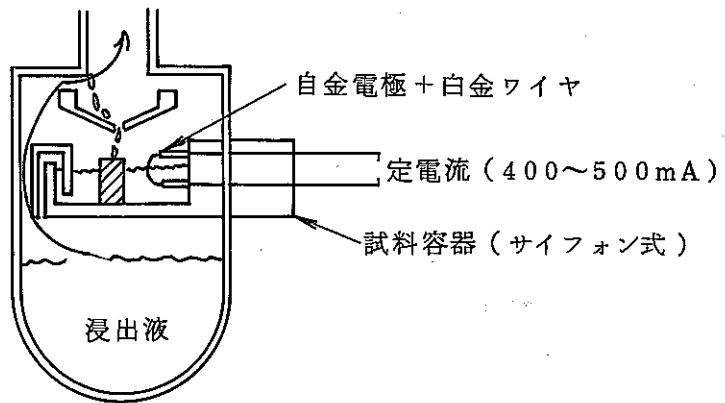
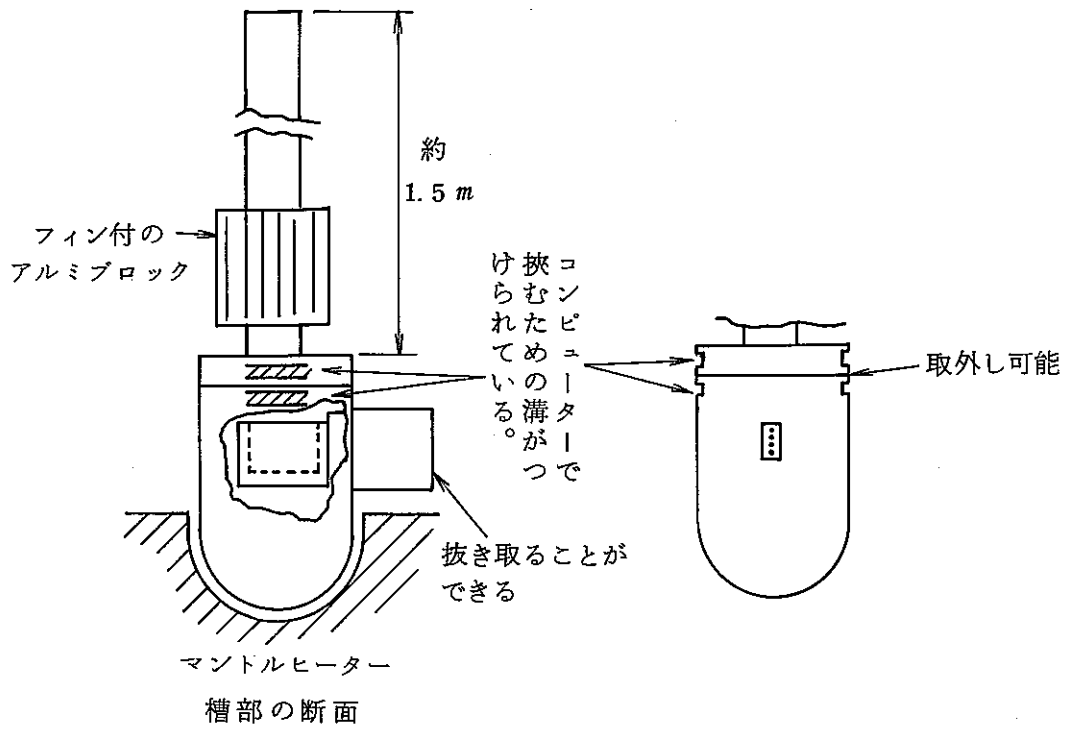


図2 テフロン製浸出試験装置

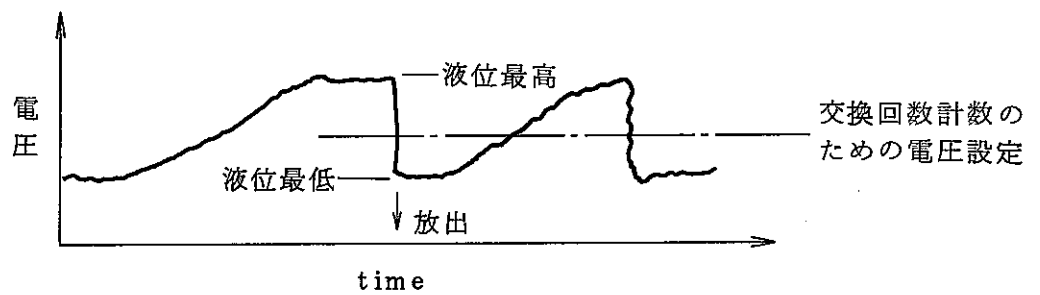


図3 浸出液交換に伴う電極間電圧の変化

・感想

操作区域への出入りは、通常の部屋への出入りと変わらず全く簡単であった。
セル中の配置は、上記の機器と2～3の装置の簡単なものであった。

ここで見られたホットセル用のソックスレー浸出装置は、今後もしCPF
でソックスレーの導入を考える場合参考になると思われる。操作区域の机の上
には、今回のシンポジウムの発表で用いられたHertzian Indenter が、測
定試料と共に置かれてあった。

4. JSS プロジェクト第2回技術顧問会議

出席者

永 倉 正	(電 中 研)	}	SCメンバー
L.B. Nilsson	(SKBF/KBS)		
C. Mc Combie	(NAGRA)		
J.C. Alder	(NAGRA)		
L.L. Hench	(フロリダ大学)		TAG議長
高 木 伸 司	(電 中 研)		
角 田 直 己	(動 燃)		
L. Werme	(SKBF/KBS)		
H.P. Hermansson	(STUDSVIK)		
G. Bart	(EIR)		
W. Lutze	(HMI)		
N.J. Francillon	(CEA)		
布 村 順 一	(三菱商事)		

議 事

報告者および報告事項

- | | |
|---------------------|-----------------|
| ① ガラス固化体製造 | N.J. Francillon |
| ② 輸 送 | L. Werme |
| ③ 試験準備 (Studsvik) | H.P. Hermansson |
| ④ " (EIR) | G. Bart |

討 議

- ① MCC 運営委員会に於て、MCC テストは処分に関するテスト法として妥当であると認められた。MCC-41がWaste Formに対するU.S. Certification Test として提案されている。それはMCC-1の改良法で、Candidate Repository Sample + Grass + Backfill + Simulated Ground Water を含むサンプルテストである。

[JSS Plan + KBS cold glass plan] である。

以上 L. Hench

- ② ガラス製造に関しては、目下廃液の濃縮が終り、来週 Valcan Cell の PIVEL に送られる。固化は7月～8月に4個作られる。1個当り $84\text{ mm } \phi \times 120\text{ mm}$ 、密度約 2.7 で 1.8～1.9 Kg になる。

廃液はフェニックスのものを使い、添加物で調整する。フアインについては、ガラスの中で金属で残っているとは思えない。Zr については、一部はフリットに入れ、一部は Nitrate で入れる。Fe は廃液から、Li はフリットから来る。Pd, Ru, Rh も入れる。詳細については、COGEM が組成を決定次第、7月1日以降決定されよう。

- ③ 固化体の冷却速度は、転位点まで下げられてからは $20\text{ }^\circ\text{C/h}$ である。失透は考えられない。クラック、応力を残さないのが目的で、これで充分である。サイズが異なるので本物に合わせることは意味がない (Francillon)。マルクールでは、コンピュータ計算をしているであろうし、2Kgブロックについても計算してほしい (Hench)。

何とも言えない、自分で出来るのではないか (Francillon)。

- ④ 各固化体とも $\beta \gamma$ 1,000 Ci となる。

30% ^{238}Pu を添加する。

^{238}Pu は輸送規制上 14g 以下にすること。

- ⑤ 輸送の許認可はまだ取得していないが、問題はなからう。マルクール→ベルリン、マルクール→スタズビツクの経験がある。1ヶ月位は遅れても浸出試験には問題ない。輸送容器は RMII-600 が用いられる。

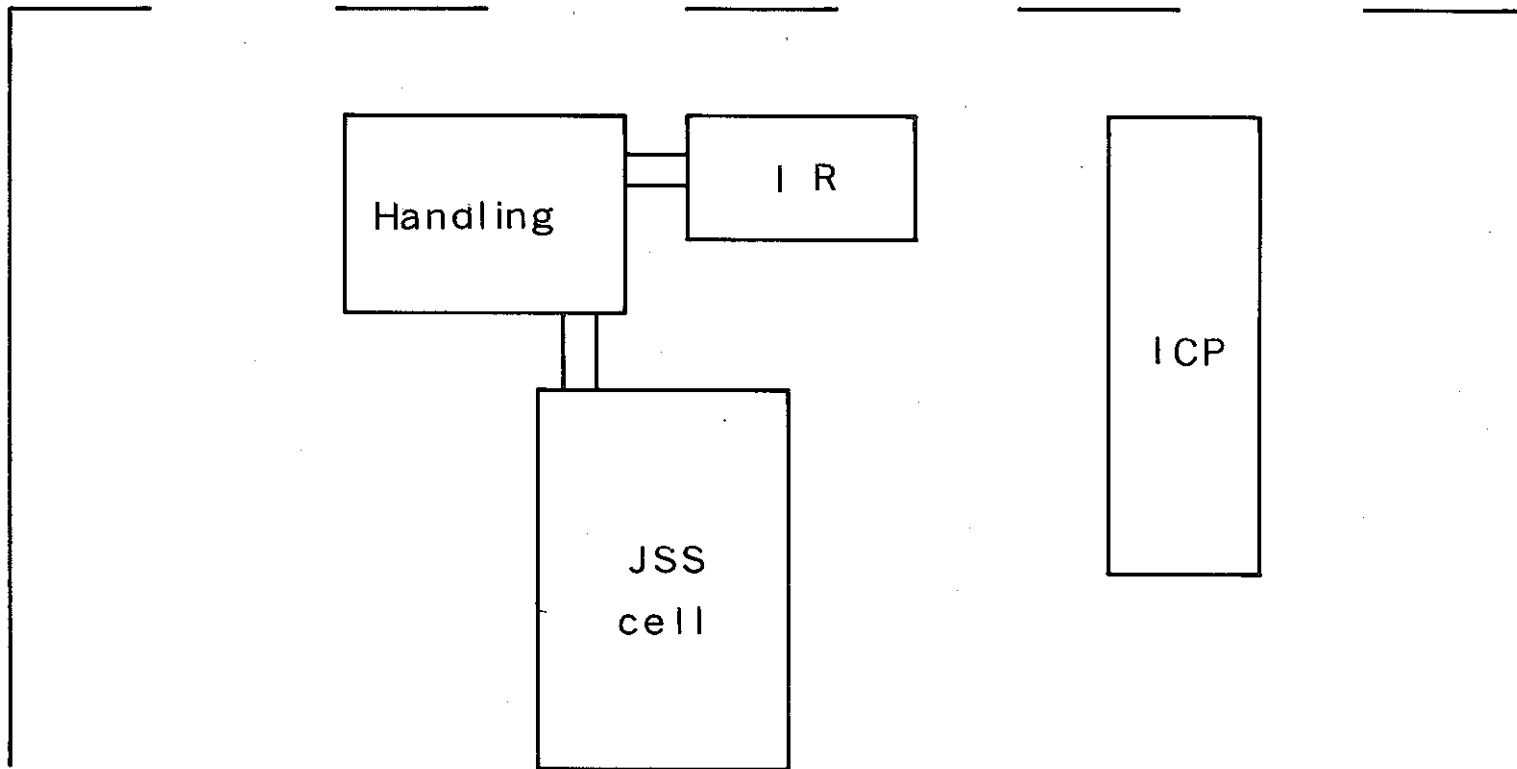
- ⑥ 施設は、添付図の通り準備が進んでいる。

- ⑦ 試験手順は、CPF 等でも参考になると思われるが、添付表の通りである。

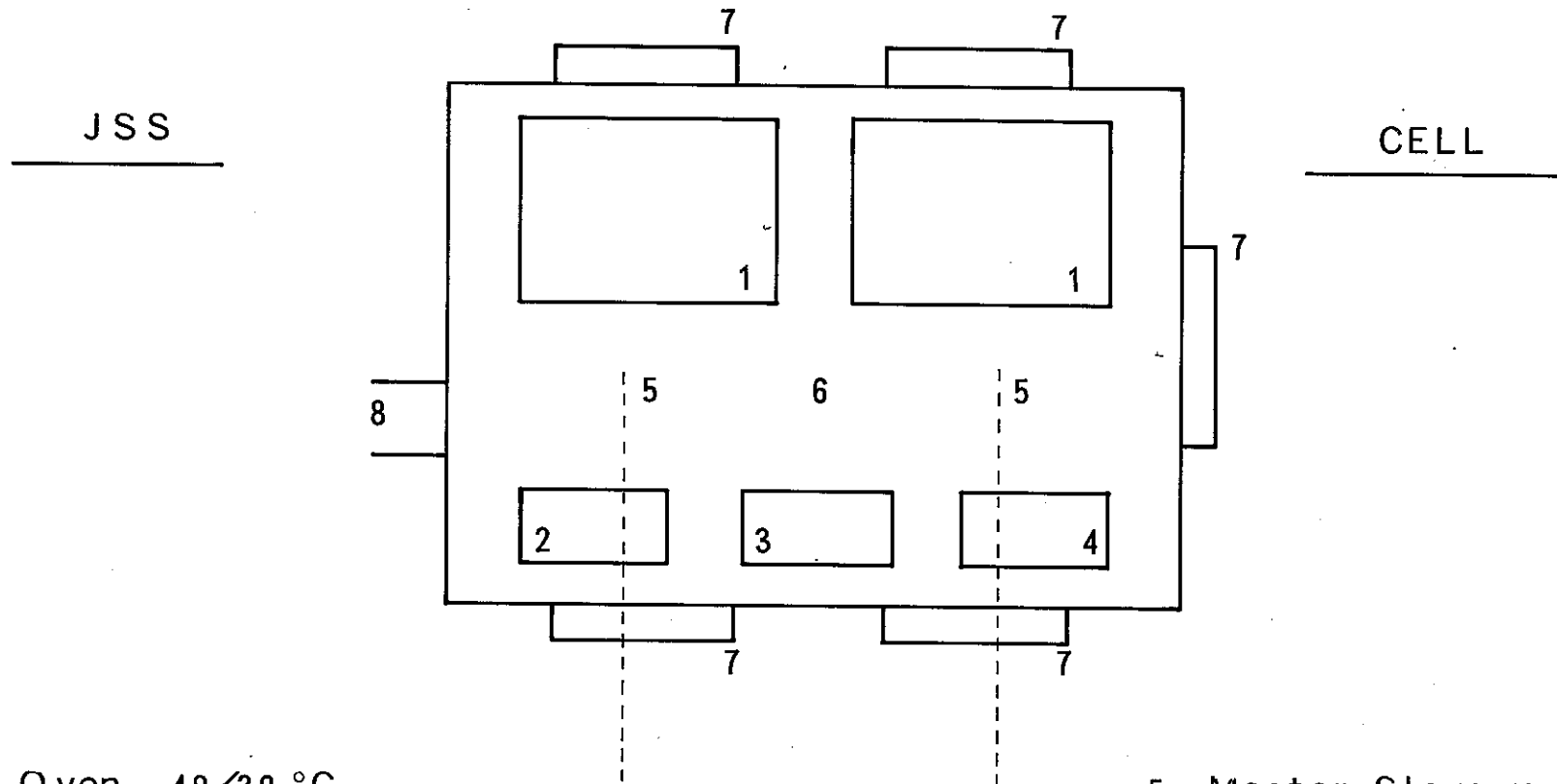
- ⑧ 浸出試験容器

- i) 静的
- ii) 加圧、静的
- iii) 流水法

このうち i) と iii) は同じタイプを使用し、図が提案された。



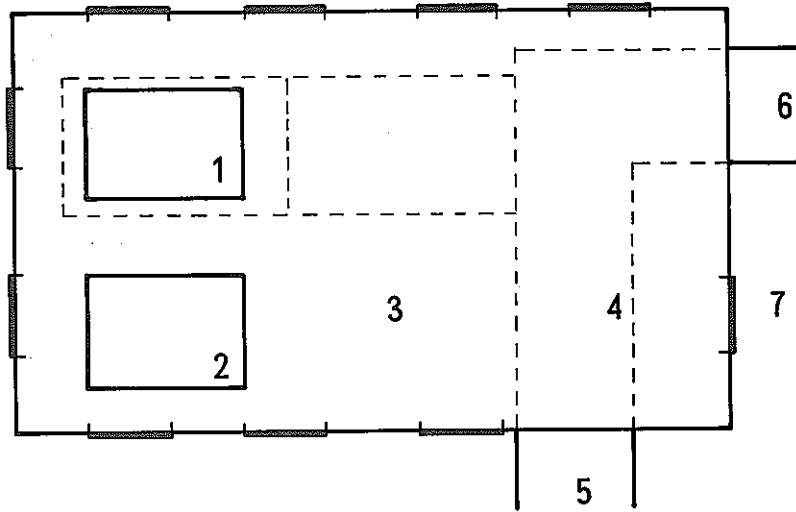
JSS-Lad (13:17)



- 1. Oven 40/30 °C
- 2. Oven 110 °C
- 3. Specimen storage
- 4. Ulfrasonic bath

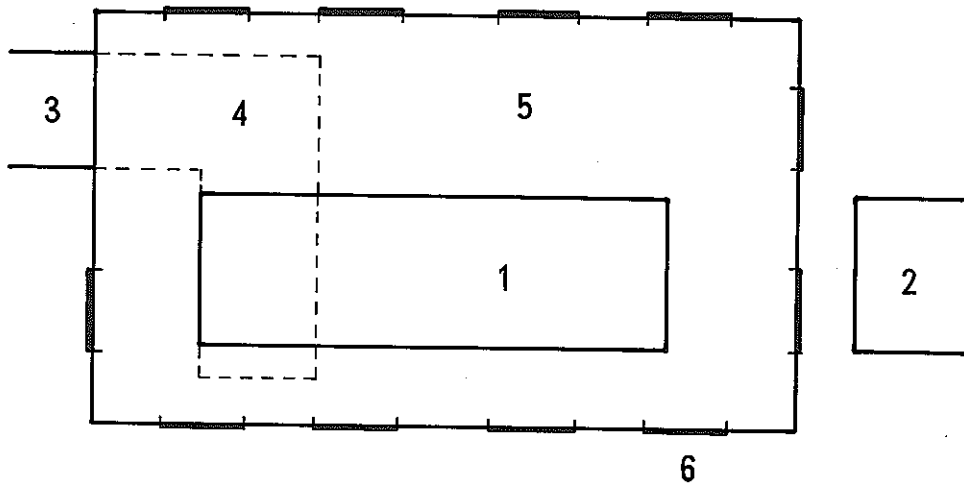
- 5. Master-Slave manipulator
- 6. Handling space
- 7. Windows
- 8. Shielded funnel

Handling box



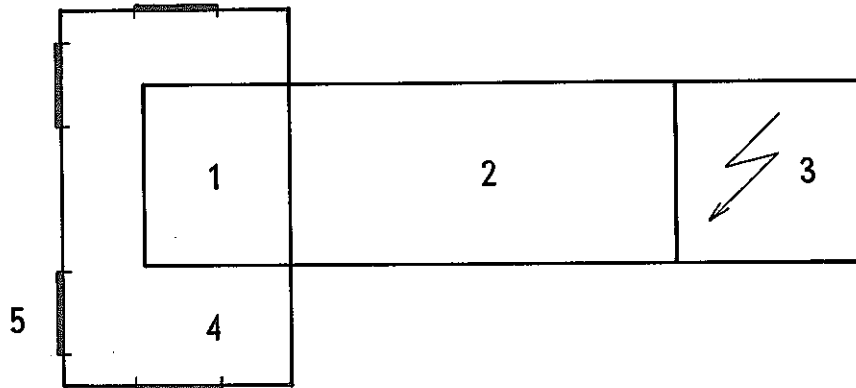
1. Balance
2. pH
3. Handling space and equ.
4. Shielded transp. facility
5. Conn. to cell
6. Conn. to IR box
7. Glove

I R box



1. I R
2. Outer printer
3. Conn. to handling box
4. Shielded transp. facility
5. Handling space and cqu.
6. Glove

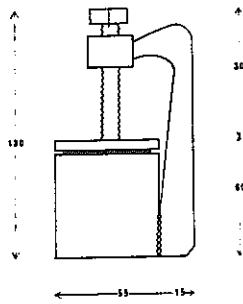
ICP



1. ICP torch part in box
2. ICP spect. part
3. ICP high frequ. suppl.
4. Handling space and equ.
5. Glove
6. Data station not shown

表 1 Operating Procedures
 (Very preliminary)

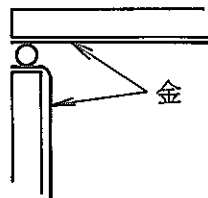
Cutting, grinding, r-sean, surt	HCL
Ultrazonic washing	JSS CELL
Drying 110 °C	- " -
Weighing	Handl. box
Storage	JSS CELL
Loading of container	- " -
Solution handling	Handl. box
Contaiuer to oven	JSS CELL
Container frow oven	- " -
Unloading of container	- " -
Ultragonic washing	- " -
Air drging	- " -
IR	IR box
Drying 110 °C	JSS CELL
Weiging, Storage	H. box/CELL
pH soln →	Handl. box
ICP sol'n	ICP box



材質は安定化ステンレス

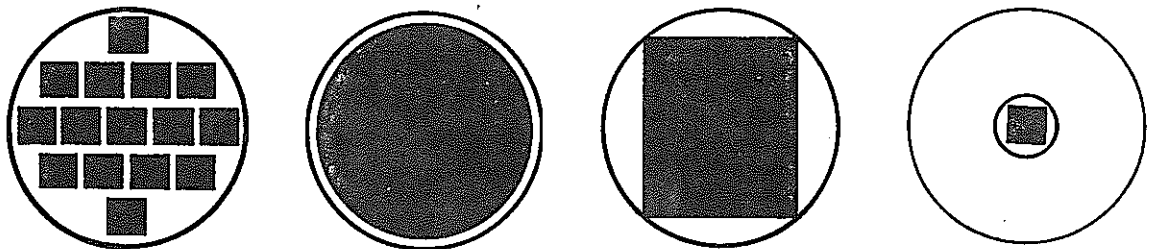
ガスケットはテフロン

内側はガスケット部も含めて金で覆う。



底から10 mm位上ったところに金のメッシュを入れてサンプルを置く。

$SA/V = 3 \text{ cm}^{-1}$ にするため下記4種の検討がなされ、4が良いが、そのためには何か inner device が必要である。次回までにコールドテストをして提案することになったが、Bart 氏よりネジ締めでなく、スプリング式の方が操作性が良いとの意見があった。



⑨ SIMSの試料調整については、金のスパッタリングを施す。

スパッタリングと深さプロファイルの説明などがあつた。

⑩ 試料調整に際し、研磨が必要でない精度良い切断法について各々調査すること

になった。

⑪ 次回会合

第3回 2月の第1週に日本で開催する。

2日間の会議、2日間の見学（電中研、動燃等）

第4回 データが出るので6月第2週に Studsvik 及び EIR を見学を含める。

そ の 他

① 同日開催された S C に於て、電中研から Studsvik への研究者派遣が認められた。プロジェクトから5万クローネ/年が支払われる。

② TAG 議長であるヘンチ教授（米国フロリダ大学）より、JSS プロジェクトの議題とは別に、ガラス固化体に関する国際共同研究について、非公式な提案があった。すなわち、

現在、世界で実験されているガラス固化体（5～6種あり）が、共通性をもち、地層処分をした場合にもこれらが大きな差がないことが確かめられ、国際的評価が行われれば、各国にとっても、その評価に当って非常に好結果を与えると考え、フロリダ大学が中心になって共通試験・解析を行うことを考えている。

対象は、JSS プロジェクトの他、サバンナリバー、フロリダ大学、スウェーデン、西ドイツ、フランス、日本、等が考えられ、それぞれの国で予定される地層を用いての埋設・浸出試験、結果の解析を集中的に行って評価する。