

本資料は 年 月 日付けで登録区分、
変更する。 01. 6. 20

[技術情報室]

高放射性廃液固化研究報告 (XXXVII)
ウランを含有する模擬ガラス固化体の評価試験
Characterization of Simulated Waste Glass
Containing Uranium

1983年1月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、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

す
の

©核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001

高放射性廃液固化研究報告 (XXXVII)

2001.6.20

変更表示

ウランを含有する模擬ガラス固化体の評価試験

実施責任者	永木 裕*	岡本 弘信*
報告者	石黒 勝彦*	園部 一志*
	金丸 好行*	五十嵐 寛*
	虎田真一郎*	佐々木憲明*

期 間 1981年3月～1982年9月

目 的 ウランを含有するガラス固化体の特性を評価する。

要 旨 ウランはガラス構造に比較的なじみ易い元素として古くから知られているが、そのガラス固化体に対する溶融性や固化体特性に及ぼす影響等については不明な点が多い。そこで、ウランの含有率を順次高めたガラス固化体を作製し、その溶融性、均質性、密度、化学的耐久性、失透性等の基本的特性について評価試験を行った。

その結果、以下のことが明らかになった。①0.84～10wt% UO_3 のガラス固化体を作製したが、それらの溶融性は良好であり、ウランの溶解度は10wt% UO_3 以上であることがわかった。②オートラジオグラフィによる評価によると、固化体中のウランの分布は均一であることがわかった。③固化体の密度はウランの含有率が増加するに従って、直線的に増加した。④固化体の蒸留水における浸出率はウランの含有率に依存せず、またその値はウランを含まないガラスに対するものと同様であった。⑤固化体の浸出挙動はpH=5.7～9.5では蒸留水中とほぼ同様であったが、pH=2.3ではcongluentな溶出を起した。⑥蒸留水中の固化体の浸出率は時間的に減少し、その傾向はウランを含まないガラスと同様であった。⑦失透化熱処理により、3～4種の結晶析出がみられたが、浸出挙動に有意変化はなかった。



Characterization of Simulated Waste Glass Containing Uranium

Hiroshi NAGAKI*, Hironobu OKAMOTO*
Katsuhiko ISHIGURO*, Hitoshi SONOBE*
Yoshiyuki KANAMARU*, Hiroshi IGARASHI*
Shin-ichiro TORATA*, Noriaki SASAKI*

Abstract

Simulated waste glasses which contained 0.84-10 wt% UO_3 have been characterized and effects of uranium dissolution into glasses on some properties have been examined. Homogeneity of uranium distribution in the glasses was estimated in terms of autoradiography. Density changes of the glasses with uranium concentration were compared with the results from an additive property. Static leaching behavior was examined in several pH ranges and leachabilities of the glass components were discussed based on their solubility in the leachant and mobility in the surface layer. Crystallinity after an isothermal anneal at 700°C for 18 days was characterized and the effect on leachability was studied.

Uranium revealed good solubility into the glasses. The solubility limits appeared to be 10 wt% UO_3 or above for G-2, GB-7 and G-1 glasses, and 6 wt% UO_3 or over for GN-1 and GN-2 glasses.

Distribution of Uranium based on α tracks were homogeneous in the optical microscopic fields for all the glasses.

Density increased linealy with the uranium concentration. Density change with uranium addition showed a good agreement with that expected from an additive property.

Leach rates of the glasses in distilled water did not vary with uranium concentrations and were identical with those for the glasses which did not involve ura-

* Waste Treatment and Disposal Technology Development Section, Chemical Technology Division.

nium. Normalized elemental leach rate of uranium in 1 day leaching at 98°C was at most $2 \times 10^{-5} \text{g(} \text{UO}_3 \text{)/cm}^2 \cdot \text{day}$, which was the value about one order of magnitude below that for SiO_2 . Uranium concentration in the leachate solution seemed to be constant up to 10 day leaching, which suggested uranium dissolution approached to an equilibrium state. The glasses showed similar leaching behavior in the leachant pH range 5.7-9.5. In pH 2.3, however, congruent dissolutions of the glasses were observed, which give rise to significant leach rates.

Several types of devitrified phases were observed after 18 day heat treatment. Their shape and distribution were similar to those for P0500 glass which did not contain uranium. Those phases seemed to be alkaline earth molybdate, cerium oxide and transition metal oxides. Homogeneity of uranium distribution and leaching behavior did not change with the isothermal anneal.

目 次

1. はじめに	1
2. ウラン含有固化体に関する内外の研究動向	2
3. 試験項目	3
4. 試験方法	4
4.1 ガラス固化体の作製	4
4.2 ガラス固化体の組成	4
4.3 組織観察	4
4.4 密度測定	4
4.5 オートラジオグラフィ	4
4.6 浸出試験	5
4.7 失透試験	6
4.8 試験マトリクス	7
4.9 各試験装置とその配置	7
5. 結果及び考察	8
5.1 ウラン含有ガラスの溶融性	8
5.2 オートラジオグラフィ	8
5.3 密 度	8
5.4 浸出挙動	9
5.4.1 ウラン含有量依存性	9
5.4.2 浸出液のpH依存性	10
5.4.3 時間依存性	11
5.5 失透ガラス固化体の評価	12
5.6 高ナトリウム廃液用ガラスの評価	13
6. ま と め	14
7. 謝 辞	15
8. 参考文献	16

ウランを含有する模擬ガラス固化体の評価試験

1. はじめに

動力炉・核燃料開発事業団東海再処理工場から発生する高レベル放射性廃液のウラン濃度はORIG-ENコードを用いた計算⁽¹⁾によると $4.04 \times 10^{-3} \text{ mol}/\ell$ (回収率 99.5%)となる。これは、ガラス固化体 (G-2 ガラス, 30wt% Waste) 中で、0.58 wt% UO_3 に相当し、廃棄物を構成する他の主要成分と比べると比較的低い値となっている。高レベル廃棄物処理処分技術開発室 (WTD) では、一連の模擬ガラス固化体の評価試験において、このウランを他の超ウラン元素成分とともにガラス形成成分 (ガラスフリット) によって置換してきた。これは、ガラス工業での経験上、ウランがガラス構造になじみ易いことを評価した結果であった。しかし、実廃液中のウランの含有量は変動する可能性があるためそのガラス固化体への溶解度を評価しておく必要がある。

ガラス固化体特性に及ぼすウラン含有の影響については浸出特性を中心としていくつかの報告例がある。しかし、その報告例が比較的少ないことや、試験に用いているガラス組成系や試験条件が各々異なることを考えると、ウランの挙動に関して確立した知見が得られた段階ではないと思われる。

このように、高レベル廃液中のウラン含有率にその変動が見込まれ、更にウラン含有の固化体特性に及ぼす影響が不明であることを考慮すると、ある含有率の範囲でウランを含有するガラス固化体の評価試験を行うことが必要となった。

そこで、代表的なガラス固化体組成である G-2 FP (白金族元素入 G-2) 組成を基本として 0.84 ~ 10 wt% の UO_3 を含有する固化体を作製し、熔融性、密度、均質性、化学的耐久性等の基本的な特性について評価試験を行い、ウラン含有の影響について調べた。又、失透化熱処理を行った固化体の均質性、化学的耐久性等々を評価し、結晶化の影響についても調べた。

これらの評価項目の一部は、他のガラス組成系についても行った。すなわち GB-1 FP, GB-7 FP 組成を基本とした、それぞれ 10 wt% UO_3 ガラスを製造し、基本特性の評価を行った。又、高ナトリウム廃液固化用のガラス組成、GN-1, GN-2 についても 6 wt% UO_3 までのウラン含有固化体を作製し、化学的耐久性の評価試験を行った。

以上の試験は昭和 56 年 3 月から昭和 57 年 9 月までの期間に、ウラン以外の原料調合作業を除いては、すべて応用試験棟試験室 3 において行ったものである。ここに、上記試験項目に関する結果を報告する。

2. ウラン含有固化体に関する内外の研究動向

この分野に関して、諸外国では浸出特性を中心にして既に種々の報告がなされている。ここで、それらのうち本報告に関連の深いものについて概観する。

ウラン含有ガラスの溶融性については一般に問題がないものとされており、例えばKfK⁽²⁾では、10 wt%以上の溶解を可能としている。

PNLではオートクレーブによって、50°～350°Cにおける浸出試験を行い、ウランを含む各種成分の溶出量を評価している⁽³⁾。

又、脱イオン水中へのガラス成分の溶解度を調べる試験では3種類のガラスについて、ウランを含む各成分の溶解度を求めている。Sandia研究所のKennd⁽⁴⁾等は、Soxhlet装置による長期浸出試験を行い、浸出率はもとより、浸出層の組成分布に関する情報も得ている。Ispra研究所のLanza⁽⁶⁾等も同様のSoxhlet typeの長期試験を行っているが、ここでは脱イオン水の他に、砂や粘土と接触させた水による浸出の効果も調べている。SKBFでもMCC-1に準じた方法で浸出試験を行い⁽⁸⁾、浸出層の組成分析をSIMS等を用いて行っている。Argonne国立研究所ではガラス中やその浸出層中のウランの結合状態に関する基礎的な研究を行っている。Oak Ridge国立研究所でもラザフォード後方散乱法を用いて、ウランを含むホウケイ酸ガラスの浸出層を解析している⁽¹¹⁾。一方日本では、東京大学の鈴木等が動燃の委託によりG-2F系のウラン含有ガラスの浸出挙動について研究を行っている⁽¹²⁾。

廃棄物固化体とは異なるが、使用済核燃料の貯蔵・処分の点から、酸化ウランに関する浸出率や溶解度測定⁽¹³⁾の報告があり、これらはウランの溶出挙動を考える上で参考となる点が多い。例えば、Ogard⁽¹³⁾等はウランを含むアクチニド及び希土類元素の水に対する溶解度を調べ、更にEh（酸化還元電位）の影響についても考察している。又、Johnson⁽¹⁴⁾等は照射されたUO₂燃料の浸出試験を行ってpHや溶存酸素等の影響を調べている。PNLのWang⁽¹⁵⁾等はUO₂及び使用済核燃料の水への溶出メカニズムを電気化学的な方法を用いて研究している。

以上、浸出試験を中心にウラン含有ガラスに関する報告例を列挙してきたが、これらの内容と本実験結果との関連性については、本文中で検討した。

3. 試 験 項 目

表3-1に試験項目を一覧にし、それぞれの目的・内容について簡単に説明した。

4. 試 験 方 法

4.1 ガラス固化体の作製

固化体作製の手順をフローシートにして図-1に示した。ウランの移動から原料乾燥までの一連のガラス原料へのウラン添加に関する操作を除けば、工学試験棟における非放射性的模擬ガラス固化体作製手順と同様である。ウランは、 UO_2 ペレットより硝酸ウラニル溶液を作製し、これを他のガラス原料に添加した。これは UO_2 の融点が高いので、その均一な溶融をはかるためと、粉体での UO_2 の扱いを避けるためにとった方法である。

4.2 ガラス固化体の組成

G-2FP, GB-7FP, GA-1FP, GN-1P及びGN-2Pの基本ガラス組成にウランを順次添加し、ガラスフリットと他の廃棄物成分を等比率縮小させて、ウランによる増分を相殺するように全体組成を決定した。表-2で作製した固化体についてコード番号とともに簡単に説明した。又、表3~5にそれらの組成を示した。G-2を基本としたガラスは UO_3 を0.84~10 wt%まで含む合計9種類である。GB-7, GA-1を基本とするガラスは10wt%の UO_3 を含有するもののみ作製した。又、GN-1系では、2.47 wt%と6 wt%ガラス、GN-2系では6 wt% UO_3 ガラスを作製した。よって固化体の種類はすべての組成系を合わせると14組成である。

4.3 組織観察

固化体の均質性を調べるため、光学顕微鏡による観察を行った。試料は浸出試験用又は、オートラジオグラフィ用のものを用いた。

4.4 密度測定

蒸留水を使用したアルキメデス法によって、室温（18.5℃）における密度を測定した。試料は浸出試験用の $10 \times 10 \times 10 \text{ cm}^3$ のものを用いた。密度の算出は次式による。

$$\rho = (W_A \cdot \rho_w - W_w \cdot \rho_A) / (W_A - W_w)$$

但し、 ρ : 試料の密度 (g/cm^3)

W_A : 試料の空気中の重量 (g)

W_w : 試料の水中の重量 (g)

ρ_A : 空気の密度 (g/cm^3)

ρ_w : 水の密度 (g/cm^3)

4.5 オートラジオグラフィ

固化体中に固溶しているウランの分布が均一であるかどうかをオートラジオグラフィを用いて評

価した。

- (1) 試料形状 (写真-1)
 - $\phi 30\text{mm} \times t 1 \sim 2\text{mm}$
 - 原子核乾板との接触面は鏡面研磨した。
- (2) 原子核乾板
 - 富士原子核乾板 EM TYPE G-OC15
 - 形 状 : $2.54 \times 7.65\text{ cm}^2$
- (3) 試料取り付け
 - 試料を乾板上に密着させ、テープで固定した。
- (4) 写真過程
 - 試料取り付け後、暗箱に所定期間 (~15日) 放置。
- (5) 現像過程
 - (a) 現 像 : 乾板を現像液 (レンドール) 中に約3分浸漬
 - (b) 停 止 : 水中に数秒間浸漬
 - (c) 定 着 : 定着液に約5分間浸漬
 - (d) 水 洗 い : 流水中で約20分間洗浄
 - (e) 乾 燥 : 乾板表面にほこりなどが付着しないように自然乾燥

4.6 浸出試験

静的試験法により、以下の条件下で試験を行った。

- (1) 試 料 (写真-2)
 - $10 \times 10 \times 10\text{ cm}^3$ (ブロック状試料)
 - 6面鏡面研磨加工 ($\phi 0.3\mu\text{m}$ の Al_2O_3 粉末によるバフ研磨)
 - 徐 冷 : 510°C で2hrs保持後、 $16.7^\circ\text{C}/\text{hr}$ で降温
 - 試 料 数 : 各試験に対し $n = 2 \sim 3$ 。ただし失透熱処理後の浸出試料に対しては $n = 1 \sim 2$ 。
- (2) 装 置
 - 容 器 : 石英ガラス型フラスコ (1日浸出)
密栓式テフロン製フラスコ (3~10日浸出)
 - 恒 温 槽 : 10連式温水槽 (1日浸出)
乾燥器 (3~10日浸出)
 - 試料設置 : ステンレス金網のバスケット中に試料を入れ、液中に吊した。
- (3) 浸 出 液
 - (a) 蒸 留 水 60 cm^3
 - (b) pH依存性試験 (各 60 cm^3)

ISO提案による試薬を用い、以下のようにpHの調整を行った。

- pH = 2.3 : glycine sulphate H_2SO_4 (NH_2CH_2COOH),
- pH = 5.7 : glycine NH_2CH_2COOH
- pH = 9.5 : tris (hydroxymethyl) aminomethane $NH_2C(CH_2OH)_3$

(4) 温 度 98 °C

(5) 浸出時間

- 通常評価 1 日
- 時間依存性試験 1, 3, 7, 10 日

(6) SA/V 比 0.1 cm^{-1} (= $6\text{ cm}^2/60\text{ cm}^3$)

(7) 浸出率の評価方法

(a) 重量減少量の測定

$$\text{浸出率 } R = \frac{W_0 - W_f}{SA \cdot t} \quad \dots\dots\dots (3-1)$$

(b) 浸出液の化学分析

浸出液は試験終了後、技術部分析課にて固化体成分の全元素に対する化学分析に供された。用いられた手法及び検出限界値を表-6に示した。

各固化体成分に対する浸出率の算出は次式を用いて行った。

$$\text{浸出率 } R_i = \left(\frac{A_i}{A_0} \right) \left(\frac{W_0}{SA \cdot t} \right) \quad \dots\dots\dots (3-2)$$

ここに W_0 : 浸出前の試料重量(g)

W_f : 浸出後の試料重量(g)

SA : 試料表面積 (cm²)

t : 浸出時間 (day)

A_i : 時間 t の間に浸出された成分 i の量(g)

A_0 : 浸出前のガラス中成分 i の量(g)

(3-2)式より得られる浸出率は各成分の重量分率を1に規格化したものであり、各成分相互の浸出性の比較を可能とするために用いた。

4.7 失透試験

固化体を熱処理によって失透させ、浸出率、組織等の変化を調べた。

(1) 試 料 : P4004 (2 wt% UO_3), P4006 (6 wt% UO_3)

- ϕ 30mm × 50mmの形状のものを白金で包み、粘土ルツボに入れて熱処理を行った。

(2) 熱 処 理 : 700 °C - 18日間

(3) 評 価

- 光学顕微鏡観察
- オートラジオグラフィ：熱処理前後のウランの変化を調べた。
- 浸出試験：熱処理後の浸出率をpH = 2.3, 5.7, 7 (蒸留水), 9.5 で調べた。

4.8 試験マトリクス

表-7に、以上述べてきた試験項目、試料、試料数等をマトリクスにまとめて示した。

4.9 各試験装置とその配置

表-8に本実験に用いた装置を一覧にして示した。又、写真-4に電気炉、ガラス加工機、浸出試験装置を納めたフードの全景を示した。

5. 結果及び考察

5.1 ウラン含有ガラスの溶融性

ガラス溶融時の粘性を攪拌時の作業性の良否から判断した。その結果、ウランの含有量が増加するに従い、粘性がやや増加する傾向を示した。

固化体の表面及び内部の目視及び顕微鏡観察の結果、分離物や未溶解物の析出はいずれの固化体においても認められなかった。写真-5～8に作製した固化体の顕微鏡組織写真を示した。白金族元素から成るとされる析出結晶（ウランを含まないガラス固化体で同定済み）の他に析出物は観察されず、均一な組織であった。これにより、ウランの固化体への溶解度は10% UO_3 以上であることがわかった。

5.2 オートラジオグラフィ

写真-9～11にP4004 (2wt% UO_3)、P4006 (6wt% UO_3)、P4008 (10wt% UO_3)及びブランクテストとしてのP0500のオートラジオグラフを示した。P0500以外は、いずれも針状の α 飛跡が均一に分布している。P4008ガラスでは図で示したように、固化体の上段、中段、下段より試片を採取したが、 α 飛跡の分布は試料位置に依らず一様であることがわかった。これより、ウランの分布は、顕鏡の範囲では均一なものと考えられる。

5.3 密度

表-9に各ガラスに対する測定結果をまとめた。又、G-2系ガラスに対して密度の UO_3 濃度依存性を図-2に示した。ウラン含有率の増加に従って、密度はほぼ直線的に上昇した。

一方、加成性による密度の推算式は次式⁽¹⁶⁾で与えられる。

$$\rho = 1 / \sum v_M f_M$$

ρ : 密度

v_M : 比容計算のための係数

f_M : 酸化物の重量分率

文献(16)の表より、G-2FP系の各ガラス組成について ρ を概算し、図-2上に Δ 印で示した。絶対値は異なるが、ウラン濃度増加に対する密度の変化率は以下のとおり実測値と良く一致している。

($\Delta\rho / \Delta\text{UO}_3$)

$$\Delta\rho / \Delta\text{UO}_3 \text{ (g/cm}^3\text{/}\%)$$

G-2FP系 : 2.08×10^{-2} (実測)

G-2F系 : 1.61×10^{-2} (実測)

計算値 : 1.64×10^{-2}

5.4 浸出挙動

5.4.1 ウラン含有量依存性

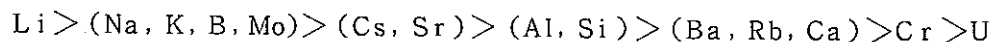
表-10にG-2系0.84~10wt% UO_3 ガラスの浸出率を示した。又、図-3に主要溶出成分の浸出率をウラン含有率に対応して示した。これらはいずれも98℃の蒸留水中で、1日間の浸出試験より求めたものである。得られた結果を総合すると以下のようにまとめられる。

- ① 0.84~10wt% UO_3 ガラスにおいて、浸出率はほとんど変化しなかった。又、その値はウランを含まないガラス(P0500)におけるものと一致した。
- ② 浸出成分の構成はウラン含有量に依らず、すべてのガラスに共通している。すなわち、主たる溶出元素は、Si, B, Li, Na, K, Ca, Al, Cs, Sr, Ba, Mo, Te, Crであった。又、Zn, Zr, Mn, Ni, Rh, Ru, Pd, R. E. は検出限界値以下であった。
- ③ ウランの溶出は、10wt% UO_3 ガラスでのみ観察され、他のガラスでは検出されなかった。このときの浸出率は、Siの浸出率の約1/10であった。

①, ②はウランの含有がウラン以外の固化体成分の浸出挙動にほとんど影響しないことを示したものと考えられる。10wt% UO_3 ガラスでやや浸出率の増加がみられるが、その増加量は実験誤差の範囲内と思われる。

10wt% UO_3 ガラス(P4008)に対するウランの浸出率は、 2.2×10^{-5} g/cm²・dayであったが、これはほぼ同一条件下における文献値⁽¹⁴⁾と良く一致するものであった。

本実験下における浸出率はおよそ



の順であった。その溶出が確認されなかった成分については、P0545ガラスで確認されているような浸出層への堆積⁽¹⁷⁾が予想される。浸出層への各成分元素の濃縮度は、しばしばその電荷やイオン半径、水酸化物の溶解度積によって整理されている。これらの大小から推定される各元素の浸出速度は

$$(Na, Cs) > K > (Ba, Sr) > Mo > Ca > (Mg, U) > (R. E., Zn) > Al > Cr > (Fe, Zr) > Pd$$

⁽⁵⁾の順序であり、観察結果とほぼ一致している。従って、希土類元素、白金族元素、Fe, Zn, Zr, U等は浸出層への濃縮が期待される。浸出層内におけるウランの濃縮はESCAやEDXによる分析例が報告されているが、粘土が共存する条件では逆に枯渇するという報告もある⁽¹⁹⁾ので、浸出層については今後更に解析が必要である。

先に述べたように、今回の実験条件下では、ウランの添加により浸出率の有意な変化は観察されなかった。一方、その添加による浸出率が減少したという報告もなされている⁽¹²⁾。ウランが浸出層内に堆積し他の成分に対する拡散バリアーとして働くならば、それによる浸出の抑制効果も期待できる。しかし、本実験のような短い浸出時間内では浸出層の成長が十分でなく、拡散律速による効果が顕著とならなかったのであろう。

5.4.2 浸出率のpH依存性

表-11にP 4008 (10 wt% UO_3) ガラスのpH = 2.3~9.5における浸出率を示した。又、参考のため同一条件下で行ったP 0500 ガラスの試験結果も表中に付記した。これらの中で、重量減少量より求めた浸出率及び主要成分に関する浸出率をpHに対して図-4, 5に示した。これらの結果よりウラン含有固化体の浸出率pH依存性について以下のことがわかった。

- ① pH=5.7~9.5の領域では10 wt% UO_3 ガラス, P 0500 とともに良く似た浸出挙動を示したが、浸出率はpH = 5.7で最も低い値を示した。
- ② pH=2.3では両ガラスともに著しい浸出率の上昇をみせたが、P 4008 (10 wt% UO_3)のそれはP 0500の約2倍であった。
- ③ pH = 2.3での各成分に対する浸出率は多くの成分について同じような値をとっている。又、ここではpH \geq 5.7ではほとんど浸出されなかったウラン、希土類元素、遷移金属元素も著しく溶出している。
- ④ pH = 2.3においても、BaO, ZrO_2 , 白金族元素の溶出は比較的強く抑えられている。
- ⑤ ウランの浸出率はpH \geq 5.7の領域では比較的強い値であるが、pH = 2.3では他の多くの成分同様に著しく上昇する。

この中で、①②④はP 0500 ガラスと共通した結果であり、これまでのウランを含有しないガラス固化体の一連の評価試験で既に確認した知見である。よって、これらの諸点についてはウラン含有の影響がほとんどないと解釈できる。写真-13に各pHに対応する浸出試験後の顕微鏡写真を示した。

UO_2 の溶解度のpH依存性⁽¹⁴⁾をみると、弱酸性~中性領域に極小値があり、強酸性、強塩基性領域ではその著しい増加が観察されている。しかし、後述するように固化体の試験と同一の条件下で行った UO_2 ペレットの浸出試験(表-13参照)では、pH = 2.3でわずかなウランの溶出が確認されたのみであった。これは、溶出レベルが異なるものの、⑤で述べたウランの溶出傾向をほぼ裏づけている。ただし、②、③で述べたpH = 2.3における10 wt% UO_3 ガラス及びウラン自体の高い浸出率を説明することはできない。pH = 2.3では大部分の固化体成分の浸出率が同じような値をとっていることからcongruentな活性溶解が起ったものと考えられる。よって、支えとなるべき網目形成元素の溶出がウランの溶出を促進したものであろう。また、10 wt% UO_3 ガラスではウランとの置換のため耐酸性に寄与する SiO_2 含有率が低下しているためP 0500よりも高い浸出率を示したものと解釈できる。

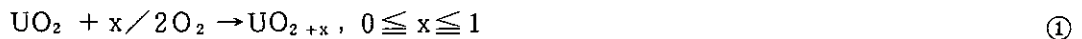
表-12及び図-6, 7にGB-7, GA-1ガラスをそれぞれ基本とした10 wt% UO_3 ガラス, P 4012, P 4013の浸出率pH依存性を示した。一般的挙動はP 4008 ガラスにはほとんど一致している。ただし、総合的な浸出率はP 4008 > P 4013 > P 4012の順に低くなっており、対応するウランを含まないガラス, P 0500, P 0639, P 0606に関する結果⁽²⁰⁾に一致している。

表-13に参考のために行った UO_2 ペレットの浸出試験結果を示した。ウランの溶出はpH =

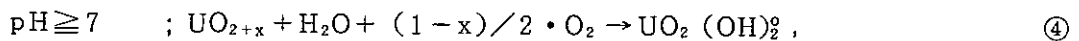
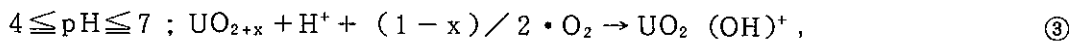
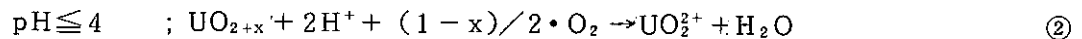
2.3 以外に検出されなかった。先述した UO_2 の溶解度に関する研究⁽¹³⁾⁽¹⁴⁾によると、ウランは $\text{pH}=4\sim 8$ を中心に下に凸の溶解度曲線を持っている。この曲線の極小部は溶液中の Eh (酸化・還元電位) に依存するので溶存酸素濃度の影響を大きく受ける。すなわち、溶存酸素量の増加とともに曲線の極小部は高 pH 側及び高溶解度側へ移行する。本実験における溶存酸素濃度は明らかでないが、 $\text{pH}=5.7\sim 9.5$ で耐食性を示したことから、ある溶存酸素量のもとで溶解度の極小部は中性領域にあるものと考えられる。

Wang と Katayama⁽¹⁵⁾ は UO_2 の溶解機構について次のようなプロセスと反応を提案している。

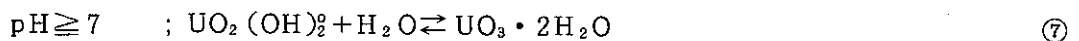
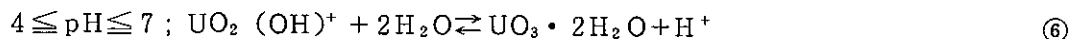
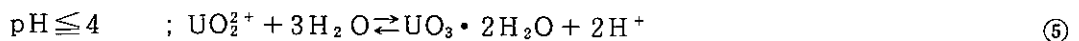
(i) UO_2 表面の酸化



(ii) 酸化及び溶出



(iii) 再結晶



これをガラス中のウランの溶出にそのまま適用することはできないが、その対応を以下に検討する。①あるいは②～④は、溶液中の溶存酸素の役割を改ためて示すものである。又、①は、ガラス中のウランの酸化状態がその浸出速度に影響する可能性を示している。本実験に用いた固化体中のウランの酸化状態は不明であるが、 U^{6+} の状態が多いほど浸出率は増すことが予想される。⑤～⑦における晶出現象は、特に観察された訳ではないが、浸出層の内部又は表面で類似の反応が起こる可能性は否定できない。

現在、浸出溶液の Eh に関する情報は得られていない。しかし、ウランや希土類元素の溶出には、溶存酸素や他の酸化剤となる成分の影響が考えられるので、今後はそれらの評価も必要となろう。

5.4.3 浸出率の時間依存性試験

表-14, 15及び図-8にP 4008 (G-2系, 10wt% UO_3)ガラスの10日までの浸出試験結果を示した。主な浸出成分の種類は1日間の浸出時と時間的に変化しなかった。重量減少量とほとんどの溶出成分量との時間変化曲線はよく対応し、浸出率が序々に減少する傾向を表わしている。なかでも SrO, CaO はその傾向が著しく、3日目で溶出量がほぼ飽和に達している。又 TeO_2 も7日以後に飽和の傾向がみられるように1日間の浸出でもウランが検出される場合があるが、この実験では10日目に同じく0.3 ppm が検出されたただけであった。又このとき、浸出容器の硝酸洗浄液の分析も行ったがウランは検出されなかった。

以上の結果をほぼ同一条件下で浸出試験を行ったP0545ガラスのもの⁽¹⁷⁾と比較したが、重量減少量、化学分析結果ともに傾向的に非常に良く一致した。

PNLはガラス固化体中の各成分の溶解度を35℃～150℃、768～7650hrs⁽⁴⁾、SA/V=0.08～50cm⁻¹の条件下で調べている。この中で、95℃における結果(SA/V=13～50cm⁻¹、1892hrs)を参考にする⁽⁴⁾と、Sr、Ca、Teの平衡濃度はそれぞれ0.02～0.2ppm、0.37～2.0ppm、0.12～1.0ppmであった。これを表-14の結果と比較すると、各成分は3～7日目で既に平衡値に達したと推察されるので、本実験で観察された溶出の飽和傾向と矛盾なく一致するものであった。同じ文献(4)におけるウランの平衡濃度は0.45～3.5ppmであるので、本実験下で観察されている0.2～0.3ppmが平衡値に達しているかどうかは断定できない。一方、UO₂燃料の150℃における浸出試験⁽¹⁴⁾によるとウランの溶出は2～3日後で飽和に達し、その値は約10⁻⁶mol/kg(～0.2ppm)となっており、本実験下で検出された値に近い。従って、(1)における結果もあわせて考えると、ウランは1日の浸出で平衡に達している可能性が強い。溶出が全く観察されなかった希土類元素については、その平衡濃度が～0.02ppm以下であることが知られており、本実験下の検出限界値(～0.2ppm)以下であるので平衡値に達しているのかどうかは不明である。本実験で、比較的溶出量の大きかったSi、B、Li、Na、Mo、Cs等は、文献(4)を参考にする⁽⁴⁾と平衡値には全く達していないと考えられるが、一部で浸出率の時間的減少がみられる。5.4.1項でも述べたように、吸着や溶出平衡によって浸出層に重金属元素を中心とする成分が緻密な層構造を形成するならば、それは時間的に成長するので比較的易動度の高い成分に対しても拡散バリアーとしての効果が期待できる。図-8にみられるMoやアルカリ成分の一部にみられる浸出率の時間的減少はこのような拡散に対するバリアー効果に依るものであろう。

5.5 失透ガラス固化体の評価

写真-14、15にそれぞれP4004(2wt%UO₃)、P4006(6wt%UO₃)ガラスの失透熱処理後(700℃-18日間)の光学顕微鏡写真を示した。析出結晶の形状から判断すると白金族系の析出物を除いても3～4種類の結晶相が観察された。これらの種類や分布密度は両ガラスで差がなく同様であった。

また、P0500ガラスの700℃-20日間の熱処理で観察された結晶と形状、分布状態ともに極めて良く一致した。P0500での解析によるとこれらはCaMoO₄、CeO₂およびFe、Ni、Cr、を主成分とするスピネル酸化物であった。従って、写真上の析出相もほぼ同様の結晶から成るものと考えられる。

失透後のオートラジオグラフを写真-16、17に示した。失透前のα飛跡の分布状態(写真-9,10)との比較により、その有意な変化はないことがわかった。

以上の観察結果から判断すると、今回の処理条件ではウランの含有率は失透性に大きく関与せず、又ウランの分布も失透によって顕著な影響を受けなかったものと思われる。

表-16及び図-9,10に失透ガラスの $\text{pH} = 2.3 \sim 9.5$ における浸出率を示した。両ガラスともに失透前の浸出率(表-10)と比較して、各成分の溶出傾向に際立った変化はないが、全体的に浸出率がやや減少する傾向を示している。ウランの挙動については有意な変化はみられなかったが、失透によってその浸出挙動が著しく悪化することがないことを示している。

5.6 高ナトリウム廃液用ガラスの評価

高ナトリウム廃液用ガラス組成として開発したGN-1, GN-2 ガラスに関してもウラン含有ガラスを作製し、溶融性、化学的耐久性等の評価を行った。

GN-1系のP4020 (2.47 wt% UO_3), P4021 (6 wt% UO_3)及びGN-2系のP4022 (6 wt% UO_3)の三種類のガラスはいずれも良好な溶融性を示した。又、白金族成分以外の分離物、結晶化物の析出は認められなかった(写真-8)。写真-18にP4020ガラスのオートラジオグラフを示した。これらよりG-2系同様均質な組織を持つことを確認した。

表-17にこれらのガラスの蒸留水中 98°C における浸出率を示した。三つのガラスの浸出率にはほとんど差がなく、ウランの含有率、BaO含有率による顕著な浸出挙動の違いは観察されなかった。又、P4020ガラスに関しては、その基本組成であるP0700ガラスの浸出率とはほぼ一致した。これらは一連のG-2系ウラン含有ガラスよりもやや低い浸出率となっている。比較的SA/V比の小さい条件($\text{SA}/\text{V} = 0.1 \text{ cm}^{-1}$)及びSoxhlet試験の場合にGN-1系ガラスのほうがG-2系ガラスよりも一般に低い浸出率を示すことは既に確かめられている。従って、ウランドープガラスについても同様の結果が得られたことになり、工学試験棟において進められている模擬ガラス固化体(UO_3 を CeO_2 で模擬)の試験評価の妥当性を示すものとする。

6. ま と め

ウランを含有する模擬ガラス固化体を作製し、その溶融性及び基本特性を評価した結果、以下の知見を得た。

- (1) ウランの含有率が、0.84～10 wt% UO_3 ガラス固化体を作製したが、いずれのガラスも白金族元素以外の析出物・未溶解物は観察されず、均一な組織であった。又、これより、ガラス固化体へのウランの溶解度は10 wt% UO_3 以上であることがわかった。
- (2) オートラジオグラフィによる評価によると、固化体中のウランの分布は均一であることがわかった。
- (3) 固化体の密度はウランの含有率が増加するに従って直線的に増加し、その変化率は $2 \times 10^{-2}(\text{g}/\text{cm}^2/\text{wt}\% \text{UO}_3)$ であった。
- (4) 固化体の浸出率はウランの含有率に依存せず、またその値はウランを含まないガラスに対するものと同様であった。このときのウランの浸出率は、高々 $2 \times 10^{-5} \text{g}/\text{cm}^2 \cdot \text{day}$ (UO_3 換算)で、 SiO_2 のその約 $1/10$ であった。
- (5) 固化体の浸出挙動は次のようなpH依存性を示した。すなわち、 $\text{pH} = 5.7$ で浸出率の極小値を示したものの、 $\text{pH} = 5.7 \sim 9.5$ では蒸留水中とほぼ同様の挙動であった。しかし、 $\text{pH} = 2.3$ では、ウランを含む大部分の成分がcongruentが溶解を起こした。
- (6) 固化体の浸出率は、時間的に減少し、その傾向はウランを含まないガラスと同様であった。このとき、ウランの溶出量は時間的に大きく変化しないことがわかった。
- (7) $700^\circ\text{C} - 18$ 日間の失透熱処理で、3～4種類の結晶相が析出した。オートラジオグラフィによるとこのとき、ウランの分布に大きな変化は起こらなかった。
- (8) 上記の失透化はガラス固化体の浸出挙動に有意な変化を与えないことがわかった。

7. 謝 辞

本試験を遂行するにあたり、試験室の使用をはじめ数々の御便宜をいただきました高速炉燃料再処理技術開発室の皆様には厚く御礼申し上げます。

また、測定、評価にあたり技術部分析課の皆様には浸出液の全成分分析等、多大の御協力をいただき、ここに深謝いたします。

8. 参 考 文 献

- (1) 佐々木憲明他 N. 841-77-39
- (2) KFK-3251e
- (3) J. H. Westsik et al., "Scientific Basis Nuclear Waste Management" Vol. 3, P239 (Prenum Press, New York and London, 1981)
- (4) PNL-3614.
- (5) B. T. Kenna, Nuclear and Chemical Waste Management, 3 (1982) 69
- (6) F. Lanza and E. Parnisari, *ibid.*, 2(1981) 131
- (7) D. M. Strachan et al., Nuclear Technol., 56(1982) 306.
- (8) L. L. Hench and L. Werme, "Scientific Basis for Nuclear Waste Management" Vol. 5, P153. (North-Holland 1982)
- (9) D. J. Lam et al., "Scientific Basis for Nuclear Waste Management" Vo 2. P97 (Prenum Press, New York and London, 1980)
- (10) D. P. Karim et al., *ibid.*, Vol 3. P397
- (11) B. C. Sales et al., to be published.
- (12) 鈴木篤之他,
- (13) A. E. Ogard and C. J. Duffy, Nuclear and Chemical Waste Management, 2 (1981) 169.
- (14) L. H. Johnson et al., Nuclear Technology, 56(1982) 238.
- (15) R. Wang and Y. B. Katayama, Nuclear and Chemical Waste Management, 3 (1982) 83.
- (16) 森谷太郎; "ガラス工学ハンドブック", 朝倉書店
- (17) K. Ishignro et al. PNCT N841-82-54
- (18) A. Barkatt et al., J. Phys. Chem. Glasses, 22, (1981) 73.
- (19) F. Lanza and C. Ronsecco, "Scientific Basis for Nuclear Waste Management" Vol. 5, P125 (North-Holland. 1982)
- (20) 亀井文夫他, 日本原子力学会 58 年年会予稿集

表 リ ス ト

- 表-1 ウラン含有ガラス固化体の製造評価試験項目一覧
- 表-2 ガラス固化体コード番号
- 表-3 ウラン含有ガラス固化体組成表-I
- 表-4 ウラン含有ガラス固化体組成表-II
- 表-5 ウラン含有ガラス固化体組成表-III
- 表-6 浸出液の化学分析における検出限界値
- 表-7 ウラン含有ガラス固化体試験マトリクス
- 表-8 使用機器一覧
- 表-9 ウラン含有ガラス固化体の密度
- 表-10 G-2系0.84～10 wt% UO_3 ガラスの浸出率
- 表-11 P 4008 (10 wt% UO_3)及びP 0500 ガラスの浸出率 pH依存性
- 表-12 P 4012 (10 wt% UO_3)及びP 4013 (10 wt% UO_3)の浸出率 pH依存性
- 表-13 UO_2 ペレット浸出率の pH依存性
- 表-14 P 4008 (10 wt% UO_3)ガラス時間依存性試験-浸出液分析結果
- 表-15 P 4008 (10 wt% UO_3)の累積浸出量
- 表-16 失透化したP 4004 (2 wt% UO_3), P 4006 (6 wt% UO_3)の浸出率
- 表-17 高ナトリウム廃液用ガラスの浸出率

表-1 ウラン含有ガラス固化体の評価試験項目一覧

試験項目		試験目的・内容
◦ ガラス固化体の溶融性評価試験		◦ UO_3 を 0.84 ~ 10 wt % 含有する固化体を作製し、製造過程における作業性や溶融性について評価する。
固化体の物性評価試験	◦ 均質性評価	<ul style="list-style-type: none"> ◦ 未溶解物、分離物等の有無を確認するため、光学顕微鏡による組織観察を行う。 ◦ オートラジオグラフィにより固化体中のウランの分布状態を調べる。
	◦ 密度評価	◦ UO_3 の含有に伴う固化体の密度変化をアルキメデス法によって測定する。
	◦ 化学的耐久性評価	<p>以下の項目について浸出試験を行い、ウランの挙動を中心に、ウラン含有固化体の浸出特性について調べる。</p> <ul style="list-style-type: none"> ◦ ウラン含有量依存性：0.84 ~ 10 wt % UO_3 の固化体について調べる。 ◦ pH 依存性：pH = 2.3 ~ 9.5 における浸出挙動を評価する。 ◦ 時間依存性：1 ~ 10 日までの浸出において、浸出率の時間的変化について調べる。
	◦ 失透性評価	◦ 固化体を所定の温度に熱処理して失透させ、結晶相の折出状態やウランの分布状態、更に浸出挙動に及ぼす影響について調べる。

表-2 ガラス固化体コード番号

名 称	ガラスコード	UO ₃ 含有率 〔wt%〕	備 考
G-2FP	P 4000	0.84	G-2ガラスにおける基本組成。0.84wt%のうち0.26wt%はActinide模擬分。
	P 4004	2.0	P 4000を基本組成とし、ウラン含有率を2wt%UO ₃ としたもの。
	P 4005	4.0	P 4000を基本組成とし、ウラン含有率を4wt%UO ₃ としたもの。
	P 4006	6.0	P 4000を基本組成とし、ウラン含有率を6wt%UO ₃ としたもの。
	P 4007	8.0	P 4000を基本組成とし、ウラン含有率を8wt%UO ₃ としたもの。
	P 4008	10.0	P 4000を基本組成とし、ウラン含有率を10wt%UO ₃ としたもの。
G-2F	P 4009	2.0	P 4004に準ずるが、白金族元素を含まず、Fe, Ni, Coで置換。
	P 4010	6.0	P 4006に準ずるが、白金族元素を含まず、Fe, Ni, Coで置換。
	P 4011	10.0	P 4008に準ずるが、白金族元素を含まず、Fe, Ni, Coで置換。
GB-7FP	P 4012	10.0	GB-7におけるP 4000相当組成を基本とし、10wt%UO ₃ としたもの。
GA-1FP	P 4013	10.0	GA-1におけるP 4000相当組成を基本とし、10wt%UO ₃ としたもの。
GN-1P	P 4020	2.47	高Na廃液用組成GN-1における基本組成。ただし、2.47wt%中の0.17wt%はActinide模擬分。
	P 4021	6.0	P 4020を基本組成とし、ウラン含有率を6wt%UO ₃ としたもの。
GN-2P	P 4022	6.0	P 4021において、フリット中のBaOを他のフリット成分全体で置換したもの。

注) ガラス名称中のFはFe₂O₃含有量が相対的に高いこと、Pは白金族元素が含まれていることをそれぞれ示す。

表-3 ウラン含有ガラス固化体組成表(I)

(wt%)

Oxide	G - 2 F P 系					
	0.84wt%	2wt%	4wt%	6wt%	8wt%	10wt%
UO ₃ 含有量 ガラスコード	P 4000	P 4004	P 4005	P 4006	P 4007	P 4008
Glass						
SiO ₂	42.71	42.21	41.34	40.49	39.63	38.76
B ₂ O ₃	13.91	13.74	13.46	13.18	12.90	12.62
Li ₂ O	2.98	2.94	2.88	2.82	2.76	2.70
Na ₂ O	0.99	0.98	0.96	0.94	0.92	0.90
K ₂ O	1.99	1.96	1.92	1.88	1.84	1.80
CaO	1.99	1.96	1.92	1.88	1.84	1.80
ZnO	1.99	1.96	1.92	1.88	1.84	1.80
Al ₂ O ₃	3.48	3.44	3.37	3.30	3.23	3.16
BaO	-	-	-	-	-	-
Process inert						
Na ₂ O	7.41	7.32	7.17	7.03	6.88	6.73
Corrosion product						
Fe ₂ O ₃	7.41	7.32	7.17	7.03	6.88	6.73
Cr ₂ O ₃	0.49	0.48	0.47	0.47	0.46	0.45
NiO	0.49	0.48	0.47	0.47	0.46	0.45
F. P oxide						
Rb ₂ O	0.15	0.15	0.15	0.15	0.14	0.14
Cs ₂ O	1.02	1.01	0.99	0.97	0.95	0.93
SrO	0.41	0.41	0.40	0.39	0.38	0.37
BaO	0.68	0.67	0.66	0.65	0.63	0.62
ZrO ₂	2.00	1.98	1.94	1.90	1.86	1.82
MoO ₃	1.99	1.97	1.93	1.89	1.85	1.81
TeO ₂	0.26	0.26	0.25	0.25	0.24	0.24
MnO ₂	0.29	0.29	0.29	0.28	0.27	0.26
RuO ₂	1.02	1.01	0.99	0.97	0.95	0.93
Rh ₂ O ₃	0.20	0.20	0.19	0.19	0.18	0.18
PdO	0.48	0.48	0.47	0.46	0.45	0.44
Y ₂ O ₃	0.25	0.25	0.24	0.24	0.23	0.23
CeO ₂	1.14	1.13	1.11	1.09	1.06	1.04
La ₂ O ₃	0.58	0.57	0.56	0.55	0.54	0.53
Pr ₆ O ₁₁	0.28	0.28	0.27	0.27	0.26	0.25
Nd ₂ O ₃	2.50	2.47	2.42	2.37	2.32	2.27
Sm ₂ O ₃	0.08	0.08	0.08	0.08	0.07	0.07
UO ₃	0.84	2.00	4.00	6.00	8.00	10.00
Corrosion product total	8.39	8.28	8.11	7.97	7.80	7.63
F. P total	14.17	15.21	16.93	18.70	20.38	22.13
Waste total	29.97	30.81	32.21	33.70	35.06	36.49

表-4 ウラン含有ガラス固化体組成表(Ⅱ)

(wt%)

Oxide	G - 2 F 系			GB-7FP系	GA-1FP系	G-2FP系
	2 wt%	6 wt%	10 wt%	10 wt%	10 wt%	0 wt%
	P 4009	P 4010	P 4011	P 4012	P 4013	P 0500
Glass						
SiO ₂	42.27	39.73	38.04	42.36	39.84	43.22
B ₂ O ₃	13.76	12.94	12.39	12.11	11.87	14.07
Li ₂ O	2.95	2.77	2.65	1.73	2.60	3.02
Na ₂ O	0.98	0.92	0.89	1.73	0.84	1.00
K ₂ O	1.97	1.85	1.77	0.86	1.72	2.01
CaO	1.97	1.85	1.77	0.86	1.72	2.01
ZnO	1.97	1.85	1.77	0.86	1.72	2.01
Al ₂ O ₃	3.44	3.23	3.10	2.16	3.25	3.52
BaO	-	-	-	0.86	-	-
Process inert						
Na ₂ O	7.41	6.97	6.67	6.73	6.73	7.41
Corrosion product						
Fe ₂ O ₃	8.03	7.54	7.22	6.73	6.73	7.41
Cr ₂ O ₃	0.49	0.46	0.44	0.45	0.45	0.49
NiO	0.79	0.74	0.71	0.45	0.45	0.49
F. P oxide						
Rb ₂ O	0.15	0.14	0.14	0.14	0.14	0.15
Cs ₂ O	1.02	0.96	0.92	0.93	0.93	1.02
SrO	0.41	0.39	0.37	0.37	0.37	0.41
BaO	0.68	0.64	0.61	0.62	0.62	0.68
ZrO ₂	2.00	1.88	1.80	1.82	1.82	2.00
MoO ₃	1.99	1.87	1.79	1.81	1.81	1.99
TeO ₂	0.26	0.24	0.23	0.24	0.24	0.26
MnO ₂	0.29	0.27	0.26	0.26	0.26	0.29
RuO ₂	(Fe)	(Fe)	(Fe)	0.93	0.93	1.02
Rh ₂ O ₃	0.12 (Co)	0.11 (Co)	0.11 (Co)	0.18	0.18	0.20
PdO	(Ni)	(Ni)	(Ni)	0.44	0.44	0.48
Y ₂ O ₃	} 5.07 ※ R. E. mix	} 4.78 R. E. mix	} 4.56 R. E. mix	0.23	0.23	0.25
CeO ₂				1.04	1.04	1.14
La ₂ O ₃				0.56	0.56	0.58
Pr ₆ O ₁₁				0.25	0.25	0.28
Nd ₂ O ₃				2.27	2.27	2.50
Sm ₂ O ₃	0.07	0.07	0.08			
UO ₃	2.00	6.00	10.00	10.00	10.00	-
Corrosion product total	8.39	7.89	7.55	7.63	7.63	8.39
F. P total	14.91	18.13	21.61	22.16	22.16	13.33
Waste total	30.71	32.99	35.83	36.52	36.52	29.13

表-5 ウラン含有ガラス固化体組成表(Ⅲ)

(wt%)

Oxide UO ₃ 含有量 ガラスコード	G N - 1 系		G N - 2
	2.47 wt%	6 wt%	6 wt%
	P 4020	P 4021	P 4022
Frit			
SiO ₂	43.47	41.90	43.68
B ₂ O ₃	14.15	13.64	14.22
Li ₂ O	3.54	3.41	3.55
BaO	3.03	2.92	—
CaO	3.03	2.92	3.04
ZnO	3.03	2.92	3.04
SnO ₂	1.01	0.97	1.01
Al ₂ O ₃	3.54	3.41	3.55
Process inert			
Na ₂ O	10.00	9.64	
P ₂ O ₅	0.30	0.29	
Corrosion product			
Fe ₂ O ₃	2.04	1.97	
Cr ₂ O ₃	0.10	0.10	
NiO	0.23	0.22	
F. P oxide			
Rb ₂ O	0.11	0.11	
Cs ₂ O	0.75	0.72	
SrO	0.30	0.29	
BaO	0.49	0.47	
ZrO ₃	1.46	1.41	
MoO ₃	1.45	1.40	
TeO ₂	0.19	0.18	
MnO ₂	0.37	0.36	
RuO ₂	0.74	0.71	
Rh ₂ O ₃	0.14	0.13	
PbO	0.35	0.34	
Ag ₂ O	0.02	0.02	
CdO	0.02	0.02	
SnO ₂	0.02	0.02	
SeO ₂	0.02	0.02	
Y ₂ O ₃	0.18	0.17	
La ₂ O ₃	0.42	0.40	
CeO ₂	0.87	0.84	
Pr ₆ O ₁₁	0.42	0.40	
Nd ₂ O ₃	1.38	1.33	
Sm ₂ O ₃	0.29	0.28	
Eu ₂ O ₃	0.05	0.05	
Gd ₂ O ₃	0.02	0.02	
Actinoid			
UO ₃	2.47	6.00	
Corrosion product total	2.37	2.29	
F. P total	10.06	9.75	
Waste total	25.20	27.91	同 左

表-6 浸出液の化学分析における検出限界値

単位 [ppm]

	原子吸光法	I C P
SiO ₂		0.2
B ₂ O ₃		0.2
Li ₂ O	0.01	
Na ₂ O	0.1	
K ₂ O	0.1	
CaO		0.2
Al ₂ O ₃	0.04	
ZnO		1.0
Rb ₂ O	0.01	
Cs ₂ O	0.02	
SrO	0.005	
BaO	0.04	
ZrO ₂	0.05	
MoO ₃		0.4
TeO ₂	0.01	
MnO ₂		0.4
RuO ₂		0.2
Rh ₂ O ₃	0.04	
PdO		0.3
Y ₂ O ₃		0.1
CeO ₂		0.2
La ₂ O ₃		0.2
Pr ₆ O ₁₁		1.0
Nd ₂ O ₃		0.2
Sm ₂ O ₃		0.2
Fe ₂ O ₃	0.03	
Cr ₂ O ₃	0.01	
NiO	0.05	
UO ₃	0.2	
SnO ₂		0.1

表-7 ウラン含有ガラス固化体試験マトリクス

ガラスコード	評価項目 ウラン含有率 (UO ₃ wt%)	均質性 (オートラジオ グラフィ)	密度 評 価	化学的耐久性評価					先透性評価				備 考	
				蒸留水中静的試験	pH			時間 依存性試験	顕 微 鏡 観 察 オ ー ト ラ ジ オ グ ラ フ イ	浸出試験				
					pH					pH				
					2.3	5.7	9.5			2.3	5.7	7		9.5
P 4000	0.84	●	●	3										G-2FP
P 4004	2.0	●	●	3					●	2	1	2	1	"
P 4005	4.0		●	3										"
P 4006	6.0	●	●	3					●	1	1	2	2	"
P 4007	8.0		●	3										"
P 4008	10.0	●	●	3	3	2	3	各2						"
P 4009	2.0	●	●											G-2F
P 4010	6.0		●											"
P 4011	10.0		●											"
P 4012	10.0		●	3	2	2	2							GB-7FP
P 4013	10.0		●	3	2	2	2							GA-1FP
P 4020	2.47	●		2										GN-1FP
P 4021	6.0			2										GN-1FP
P 4022	6.0			2										GN-2FP

* 数字は試料数

表-8 使用機器一覧

装 置	メ ー カ ー	型 式	使 用 目 的	備 考
電 気 炉	本山商会	超高速昇温電気炉 SB-1415	ガラス溶融	
浸出試験装置	イスズ	JIS型	浸出試験 (Static Leaching)	浸出槽：石英ガラス
※ 密 度 天 秤	長計量器製作所	Chyo C ₃	密度測定	アルキメデス法 200 g / 0.1 mg
切 断 機	ビューラー	精密低速切断機 アイソメット 11-1180	ガラス試料切断	
自 動 研 磨 機	ビューラー	ワーリメット アタッチメント 60-1528	ガラス試料研磨	
乾 燥 器	ヤマト科学	MODEL DS-42	ガラス試料乾燥	
超 音 波 洗 浄 器	ヤマト科学	MODEL B 12	ガラス試料洗浄	
電 子 天 秤	ザルトリウス	2004 MP 6	重量減少量測定	166 g / 0.01 mg
※ 偏 向 顕 微 鏡	ニコン	MODEL POH 3	表面観察	
※ 金 属 顕 微 鏡	ニコン	MODEL-S	表面観察	

※は、測定時のみ搬入した。

表-9 ウラン含有ガラス固化体の密度

コード名	UO ₃ 含有率 (wt%)	密度 (g/cm ³)	備考
P 4000	0.84	2.7740	G-2白金族入り
P 4004	2.0	2.7971	"
P 4005	4.0	2.8094	"
P 4006	6.0	2.8824	"
P 4007	8.0	2.9247	"
P 4008	10.0	2.9624	"
P 4009	2.0	2.8246	G-2白金族なし
P 4010	6.0	2.8921	"
P 4011	10.0	2.9533	"

表-10 G-2系 0.84~10wt% UO₃ ガラスの浸出率

($\times 10^{-5} \text{g/cm}^2 \cdot \text{day}$)

コード名 UO ₃ 含有量 浸出核種	P 4000	P 4004	P 4005	P 4006	P 4007	P 4008		P 0500	P 0545
	0.84wt%	2 wt%	4 wt%	6 wt%	8 wt%	10 wt%		0 wt%	0 wt%
重量減少法	14.60	15.37	11.24	13.28	13.37	18.43		14.09	11.63
SiO ₂	12.15	11.67	7.23	8.34	12.40	17.42		24.29	10.06
B ₂ O ₃	17.83	18.44	17.35	18.61	20.78	29.24		22.31	16.20
Li ₂ O	21.21	21.51	18.18	20.63	21.23	45.54		21.80	
Na ₂ O	18.83	18.97	16.47	18.13	20.03	28.35		22.24	15.79
K ₂ O	19.22	19.05	14.66	16.97	19.67	22.74		19.21	
CaO	≤ 10.37	10.03	< 9.98	< 9.77	14.89	19.36		11.95	
Al ₂ O ₃	5.91	8.17	18.62	21.48	13.48	17.19		30.84	
ZnO	< 2.26	< 2.90	< 2.55	-	< 49.62	< 48.39		< 47.59	
Rb ₂ O	9.62	9.92	9.95	12.69	< 6.44	< 6.27		15.63	
Cs ₂ O	15.79	14.20	13.33	14.27	14.19	20.40		14.97	14.49
SrO	16.36	15.50	11.32	13.40	15.16	13.83		18.14	14.24
BaO	9.21	10.15	11.66	8.08	9.19	< 5.66		30.89	
ZrO ₂	< 2.24	< 2.46	< 2.48	< 2.43	< 2.47	< 2.40		12.52	
MoO ₃	≤ 19.61	≤ 23.15	< 19.92	21.10	≤ 21.52	28.97		< 19.13	
TeO ₂	< 3.46	< 3.78	≤ 1.90	< 3.74	< 3.80	< 3.70		10.98	
MnO ₂	< 124.02	< 135.82	< 136.56	< 133.84	< 135.99	< 132.64		< 131.27	
RuO ₂	< 17.63	< 19.34	< 19.44	< 19.03	< 19.33	< 18.83		< 18.66	
Rh ₂ O ₃	< 18.26	< 19.99	< 20.09	< 19.68	< 19.99	< 19.49		< 19.33	
PdO	< 55.85	< 61.29	< 61.50	< 60.27	< 61.24	< 59.73		< 59.11	
Y ₂ O ₃	< 35.97	< 39.45	< 39.64	< 38.82	< 39.42	< 38.42		< 38.07	
CeO ₂	< 15.39	< 17.23	< 17.33	< 16.96	< 17.24	< 16.80		< 16.64	
La ₂ O ₃	< 31.00	< 34.01	< 34.20	< 33.46	< 34.00	< 33.16		< 32.82	
Pr ₆ O ₁₁	< 321.13	< 351.80	< 354.00	< 347.23	< 351.75	< 343.08		< 339.89	
Nd ₂ O ₃	< 7.20	< 7.89	< 7.93	< 7.76	< 7.88	< 7.69		< 7.61	
Sm ₂ O ₃	< 224.80	< 246.71	< 249.18	< 242.14	< 247.17	< 241.08		< 237.92	
Fe ₂ O ₃	< 0.36	< 0.40	< 0.39	< 0.39	≤ 0.45	≤ 5.85		< 0.39	
Cr ₂ O ₃	4.53	3.69	4.12	3.30	18.72	17.57		1.95	
NiO	< 18.35	< 20.14	< 10.12	< 29.68	< 20.10	< 19.60		< 19.42	
UO ₃	< 21.41	< 9.74	< 4.80	< 3.07	< 2.28	≤ 2.20		-	-

表-11 P 4008 (10 wt% UO₃)及びP 0500の浸出率 pH依存性 $(\times 10^{-5} \text{g/cm}^2 \cdot \text{day})$

コード名 pH 浸出核種	P 4008	P 4008	P 4008	P 4008		P 0500	P 0500	P 0500	P 0500
	2.3	5.7	7 ※	9.5		2.3	5.7	7 ※	9.5
重量減少法	555.30	2.30	18.43	12.05		279.45	0.09	14.09	12.35
SiO ₂	521.29	7.42	17.42	31.63		274.56	1.78	24.29	37.96
B ₂ O ₃	598.51	15.26	29.24	19.87		314.01	7.75	22.31	23.26
Li ₂ O	667.56	27.47	45.54	31.29		329.87	5.25	21.80	21.20
Na ₂ O	613.69	18.52	28.35	18.72		307.58	9.74	22.24	21.03
K ₂ O	597.54	14.20	22.74	17.94		318.62	10.79	19.21	26.44
CaO	614.27	22.00	19.36	16.13		284.48	< 9.06	11.95	15.57
Al ₂ O ₃	631.23	17.92	17.19	29.63		414.70	17.12	30.84	37.05
ZnO	690.38	< 39.92	< 48.39	< 48.45		348.88	< 45.30	< 47.59	< 31.14
Rb ₂ O	519.61	12.31	< 6.27	16.80		337.04	5.92	15.63	21.71
Cs ₂ O	543.82	7.10	20.40	6.27		284.73	4.44	14.97	5.09
SrO	12.21	16.19	13.83	13.32		318.99	4.30	18.14	17.21
BaO	92.34	7.59	< 5.66	≤ 11.74		73.19	< 5.33	30.89	7.33
ZrO ₂	36.45	62.14	< 2.40	< 24.05		17.26	≤ 11.54	< 12.52	< 10.38
MoO ₃	566.91	< 15.93	28.97	≤ 20.93		286.24	< 18.21	< 19.13	< 12.52
TeO ₂	83.34	< 3.08	< 3.70	9.88		201.26	3.49	10.98	9.58
MnO ₂	673.47	< 109.40	< 132.64	< 132.77		253.71	< 124.95	< 131.27	< 85.90
RuO ₂	233.01	< 15.54	< 18.83	< 18.85		76.50	< 17.76	< 18.66	< 12.21
Rh ₂ O ₃	< 18.56	< 16.07	< 19.49	< 19.51		< 16.75	< 18.40	< 19.33	< 16.86
PdO	290.65	< 49.27	< 59.73	< 59.80		76.16	< 56.26	< 59.11	< 38.68
Y ₂ O ₃	645.91	< 31.69	< 38.42	< 38.46		279.10	< 36.24	< 38.07	< 24.91
CeO ₂	631.84	< 13.86	< 16.80	< 16.82		307.72	< 15.84	< 16.64	< 10.89
La ₂ O ₃	862.69	< 27.35	< 33.16	< 33.18		367.46	< 31.24	< 32.82	< 21.48
Pr ₆ O ₁₁	708.06	< 283.18	< 343.08	< 343.71		< 294.54	< 323.52	< 339.89	< 222.41
Nd ₂ O ₃	451.23	< 6.34	< 7.69	< 7.70		304.98	< 7.25	< 7.61	< 4.98
Sm ₂ O ₃	796.53	< 197.06	< 241.08	< 239.17		309.27	< 226.47	< 237.92	< 155.69
Fe ₂ O ₃	622.46	≤ 0.65	≤ 5.85	1.97		419.78	≤ 0.56	< 0.39	2.35
Cr ₂ O ₃	619.51	3.23	17.57	5.25		320.28	1.85	1.95	6.78
NiO	< 18.67	≤ 18.61	< 19.60	< 19.62		378.03	< 18.49	< 19.42	< 16.94
UO ₃	492.59	6.57	≤ 2.20	≤ 3.21		-	-	-	-

※ 蒸留水

表-12 P 4012 (10 wt% UO₃)及びP 4013 (10 wt% UO₃)の浸出率 pH依存性 $(\times 10^{-5} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day})$

コード名 PH 浸出核種	P 4012	P 4012	P 4012	P 4012		P 4013	P 4013	P 4013	P 4013
	2.3	5.7	7	9.5		2.3	5.7	7	9.5
浸出率※	286.68	4.12	10.21	11.12		438.86	4.67	11.52	13.96
SiO ₂	291.76	5.87	21.17	41.72		444.68	5.93	18.13	46.70
B ₂ O ₃	363.96	18.86	12.48	30.49		501.03	19.59	16.57	35.04
Li ₂ O	351.32	5.85	11.71	15.84		508.66	6.14	19.77	20.48
Na ₂ O	324.85	8.90	13.83	15.91		478.70	10.98	16.98	18.70
K ₂ O	401.55	< 32.01	< 32.31	< 30.69		526.87	< 15.94	≦ 17.03	≦ 21.75
CaO	360.94	< 21.34	< 21.54	≦ 25.48		509.39	≦ 16.00	9.72	12.39
Al ₂ O ₃	311.34	10.20	17.70	40.76		517.61	3.20	9.58	27.10
ZnO	628.61	< 106.69	< 107.70	< 102.28		643.99	< 53.12	< 48.61	< 61.95
Rb ₂ O	310.65	6.64	8.49	11.86		393.20	≦ 6.55	7.18	22.56
Cs ₂ O	317.43	3.47	11.32	4.30		438.49	3.44	13.08	6.86
SrO	314.11	5.32	11.54	7.93		470.05	5.26	13.58	13.16
BaO	38.29	3.41	5.27	≦ 2.68		125.53	< 5.91	≦ 5.41	≦ 7.73
ZrO ₂	30.70	< 15.24	< 15.38	< 14.61		41.65	< 15.06	< 13.78	< 17.56
MoO ₃	399.61	< 20.42	≦ 22.35	19.58		565.95	< 20.18	26.05	26.54
TeO ₂	212.75	< 3.91	< 3.94	8.41		176.46	< 3.86	< 3.53	9.25
MnO ₂	267.74	< 140.20	< 141.52	< 134.40		388.63	< 138.55	< 126.78	< 161.58
RuO ₂	285.50	25.05	33.39	≦ 19.09		459.51	24.65	36.01	28.55
Rh ₂ O ₃	< 19.08	< 20.60	< 20.79	< 19.75		≦ 19.83	< 20.36	< 18.63	< 23.74
PdO	220.14	< 63.14	< 63.73	< 60.53		339.77	< 62.39	< 57.10	< 72.77
Y ₂ O ₃	376.13	< 40.61	< 40.99	< 38.93		527.04	< 40.13	< 36.72	< 46.80
CeO ₂	361.93	< 17.76	< 17.93	< 17.03		534.16	< 17.56	< 16.06	< 20.47
La ₂ O ₃	454.30	< 32.80	< 33.11	< 31.45		619.65	< 32.42	< 29.67	< 37.81
Pr ₆ O ₁₁	454.63	≦ 400.37	< 366.33	< 347.89		716.83	< 358.63	< 331.20	< 418.26
Nd ₂ O ₃	317.10	< 8.13	< 8.20	< 7.79		460.42	< 8.03	< 7.35	< 9.37
Sm ₂ O ₃	640.44	< 252.55	< 254.93	< 242.10		972.49	< 249.57	< 228.39	< 291.06
Fe ₂ O ₃	336.96	≦ 0.54	≦ 0.41	1.32		495.29	≦ 0.41	< 0.37	5.28
Cr ₂ O ₃	309.66	2.07	< 2.09	2.96		432.49	< 2.05	< 1.87	5.89
NiO	407.89	≦ 10.36	< 10.45	< 9.93		641.07	≦ 11.25	< 9.37	≦ 14.27
UO ₃	334.49	2.77	< 1.86	5.33		504.03	3.17	< 1.67	10.49

※ 重量減少法による。

表-13 UO₂ペレット浸出率のpH依存性

pH	UO ₃ 溶出量 [ppm]	浸出率 [$\times 10^{-5}$ g/cm ² ·day]
2.3	4.3	4.16
5.7	< 0.2	< 0.21
7	< 0.2	< 0.17
9.5	< 0.2	< 0.20

* 98°C-1日浸出, SA/V = 0.1 cm⁻¹

表-14 P4008 (10 wt% UO₃) ガラス時間依存性試験-浸出液分析結果

(単位: ppm)

	1 日	3 日	7 日	10 日
重量減少法	16.33	36.98	68.24	71.01
SiO ₂	9.5	41.2	42.5	46.0
B ₂ O ₃	3.7	13.5	15.0	18.0
Li ₂ O	1.22	3.76	3.63	4.36
Na ₂ O	2.21	8.86	8.93	10.2
K ₂ O	0.5	2.2	2.15	2.5
CaO	0.5	1.2	0.75	0.9
Al ₂ O ₃	1.04	2.41	2.92	3.23
ZnO	< 1.0	≦ 1.0	< 1.0	< 1.0
Rb ₂ O	0.03	0.1	0.13	0.14
Cs ₂ O	0.24	0.88	0.91	1.12
SrO	0.058	0.12	0.098	0.10
BaO	< 0.04	< 0.04	< 0.04	< 0.04
ZrO ₂	< 0.3	≦ 0.31	< 0.3	< 0.3
MoO ₃	0.6	2.4	2.55	2.7
TeO ₂	< 0.01	0.031	0.077	0.056
MnO ₂	< 0.4	< 0.4	< 0.4	< 0.4
RuO ₂	< 0.2	0.76	0.35	< 0.2
Rh ₂ O ₃	< 0.04	< 0.04	< 0.04	< 0.04
PdO			1.2	
Y ₂ O ₃	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1
CeO ₂	< 0.2	0.28	< 0.2	< 0.2
La ₂ O ₃	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2
Pr ₆ O ₁₁	< 1.0	< 1.0	< 1.0	< 1.0
Nd ₂ O ₃	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2
Sm ₂ O ₃	< 0.2	≦ 0.21	< 0.2	< 0.2
Fe ₂ O ₃	< 0.03	≦ 0.04	≦ 0.04	< 0.03
Cr ₂ O ₃	< 0.01	< 0.01	< 0.01	< 0.01
NiO	< 0.05	< 0.05	< 0.05	< 0.05
UO ₃	< 0.2	< 0.2	< 0.2	0.3

表-15 P 4008 (UO₃ 10wt%)の累積浸出量 $(\times 10^{-5} \text{g/cm}^2)$

コード名 浸出核種	日数			
	P 4008 1 日	P 4008 3 日	P 4008 7 日	P 4008 10 日
浸出量※	16.33	36.98	68.24	71.01
SiO ₂	25.18	60.43	106.66	113.25
B ₂ O ₃	30.12	60.48	108.87	136.12
Li ₂ O	46.35	79.01	121.58	153.88
Na ₂ O	29.77	65.90	107.22	127.65
K ₂ O	28.50	69.21	109.09	132.40
CaO	28.50	38.20	39.08	47.66
Al ₂ O ₃	33.86	43.64	86.04	100.43
ZnO	< 57.00	≤ 31.83	≤ 52.74	52.96
Rb ₂ O	22.17	38.94	86.09	96.12
Cs ₂ O	26.62	54.11	90.23	115.43
SrO	16.02	18.03	25.59	25.65
BaO				
ZrO ₂				
MoO ₃	34.13	78.58	129.90	142.68
TeO ₂	< 4.35	7.38	32.45	22.65
MnO ₂	< 156.23	< 87.24	< 144.55	< 145.15
RuO ₂	< 22.19	46.98	36.85	< 00.61
Rh ₂ O ₃				
PdO	< 70.36	< 130.95	260.39	< 65.37
Y ₂ O ₃	< 45.25	< 39.52	< 41.87	< 42.04
CeO ₂	< 19.79	15.26	< 18.32	< 18.39
La ₂ O ₃	< 39.06	< 21.81	< 36.14	< 36.29
Pr ₆ O ₁₁	< 404.42	< 225.81	< 374.18	< 375.72
Nd ₂ O ₃	< 9.05	< 5.06	< 8.38	< 8.41
Sm ₂ O ₃	< 281.43	≤ 160.57	< 260.39	< 261.46
Fe ₂ O ₃	< 0.46	≤ 0.30	≤ 0.54	< 0.43
Cr ₂ O ₃	< 2.31	< 1.29	< 2.14	< 2.14
NiO	< 11.54	< 6.45	< 10.68	< 10.72
UO ₃	< 2.05	< 1.15	< 1.91	2.86

※ 重量減少法による。

表-16 失透化したP 4004 (2wt% UO₃), P 4006 (6wt% UO₃) ガラスの浸出率($\times 10^{-5} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$)

コード名 pH 浸出核種	P 4004				P 4006			
	2.3	5.7	7	9.5	2.3	5.7	7	9.5
浸出率※	269.51	2.95	11.84	13.37	348.92	2.93	12.28	10.31
SiO ₂	282.25	< 0.48	17.67	34.19	358.61	< 0.43	12.78	30.25
B ₂ O ₃	325.96	15.59	18.98	23.11	434.10	14.40	17.77	21.47
Li ₂ O	338.28	14.55	21.44	23.21	450.63	16.81	19.50	22.25
Na ₂ O	328.24	18.67	18.91	37.89	489.97	18.42	18.74	20.81
K ₂ O	355.09	15.59	19.66	30.88	458.11	17.42	17.56	19.63
CaO	303.44	11.43	< 10.63	< 9.80	376.46	11.46	< 9.62	13.51
Al ₂ O ₃	307.97	< 1.19	18.22	21.29	391.40	1.57	14.37	19.35
ZnO	320.42	< 51.97	< 53.14	< 49.02	498.93	< 45.83	< 48.08	< 39.86
Rb ₂ O	416.64	13.51	17.28	31.86	512.45	17.86	15.42	21.88
Cs ₂ O	312.59	8.10	13.46	8.59	400.10	7.14	12.12	8.49
SrO	295.32	12.59	12.88	14.25	364.46	8.87	10.40	13.07
BaO	95.72	28.84	17.85	10.02	184.06	< 6.69	≤ 8.34	≤ 6.72
ZrO ₂	≤ 54.53	38.70	< 15.83	< 14.60	79.83	< 13.66	< 14.33	≤ 20.45
MoO ₃	203.50	< 20.74	< 21.22	< 19.57	262.51	< 18.29	< 19.19	< 15.91
TeO ₂	101.98	< 3.97	< 4.06	71.14	65.97	< 3.51	< 3.68	35.23
MnO ₂	244.07	< 71.09	< 145.38	< 134.11	372.69	546.89	< 131.68	< 54.58
RuO ₂	33.09	< 20.24	20.70	19.09	123.65	< 17.85	23.11	< 15.52
Rh ₂ O ₃	< 14.66	< 15.69	< 16.05	< 14.80	< 13.70	< 13.85	< 14.52	< 12.04
PdO	149.86	< 64.16	< 65.61	< 60.52	167.83	< 56.53	< 59.30	< 49.16
Y ₂ O ₃	318.32	< 41.30	< 42.23	< 38.96	396.41	< 36.41	< 38.20	< 31.67
CeO ₂	96.90	< 18.04	< 18.45	< 17.02	15.74	< 15.91	< 16.69	< 13.83
La ₂ O ₃	424.13	< 35.61	< 36.41	< 33.59	574.56	< 31.38	< 32.92	< 27.29
Pr ₆ O ₁₁	< 344.05	< 368.27	< 376.56	< 347.37	322.29	< 325.67	< 341.63	< 238.18
Nd ₂ O ₃	271.91	< 8.26	< 8.45	< 7.79	335.14	< 7.28	< 7.64	< 6.34
Sm ₂ O ₃	307.61	< 258.25	< 264.07	< 243.60	449.51	< 227.11	< 238.24	< 197.49
Fe ₂ O ₃	234.26	< 0.28	< 0.29	0.79	306.37	< 0.25	< 0.54	0.96
Cr ₂ O ₃	18.71	< 2.11	< 2.16	< 1.99	64.29	< 1.86	< 1.95	< 1.62
NiO	42.34	< 10.54	< 10.78	< 9.94	106.53	< 9.28	< 9.73	< 8.07
UO ₃	331.14	< 10.20	< 10.43	< 9.62	318.86	< 2.88	< 3.02	8.48

※ 重量減少法による。

表-17 高ナトリウム廃液用ガラスの浸出率

 $(\times 10^{-5} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day})$

浸出核種	P 4020	P 4021	P 4022
浸出率**	9.82	8.70	9.37
SiO ₂	11.74	7.58	8.95
B ₂ O ₃	11.52	10.43	10.39
Li ₂ O	13.52	12.51	12.54
Na ₂ O	11.66	10.59	12.42
K ₂ O			
CaO	< 6.53	< 6.96	≤ 5.99
Al ₂ O ₃	9.36	8.48	7.69
ZnO	< 32.64	< 34.79	< 26.99
Rb ₂ O	≤ 13.34	< 9.24	< 7.46
Cs ₂ O	8.55	5.65	5.19
SrO	13.19	10.51	11.60
BaO	10.92	8.10	
ZrO ₂			
MoO ₃	< 27.28	< 29.02	28.31
TeO ₂	< 5.21	< 5.65	< 4.56
MnO ₂			
RuO ₂	< 26.73	≤ 29.30	26.99
Rh ₂ O ₃			
PdO	< 84.76	< 89.63	< 72.40
Y ₂ O ₃			
CeO ₂	< 22.73	< 24.19	< 19.54
La ₂ O ₃	< 47.09	< 50.79	< 41.03
Pr ₆ O ₁₁			
Nd ₂ O ₃	< 14.34	< 15.28	< 12.34
Sm ₂ O ₃			
Fe ₂ O ₃	< 0.97	< 1.04	≤ 1.96
Cr ₂ O ₃	< 9.89	< 10.16	< 8.21
NiO			
UO ₃	< 8.01	< 3.39	< 2.74
SnO ₂	< 9.60	< 10.26	< 7.97

※ 重量減少法による。

図 リ ス ト

- 図-1 ガラス固化体製造のプロシート
- 図-2 密度のウラン含有率依存性
- 図-3 浸出率のウラン含有率依存性
- 図-4 P 4008 (10 wt % UO_3) 浸出率の pH 依存性
- 図-5 P 0500 (10 wt % UO_3) 浸出率の pH 依存性
- 図-6 P 4012 (10 wt % UO_3) 浸出率の pH 依存性
- 図-7 P 4013 (10 wt % UO_3) 浸出率の pH 依存性
- 図-8 P 4008 (10 wt % UO_3) 浸出率の時間依存性
- 図-9 失透化した P 4004 (2 wt % UO_3) の浸出率
- 図-10 失透化した P 4006 (6 wt % UO_3) の浸出率

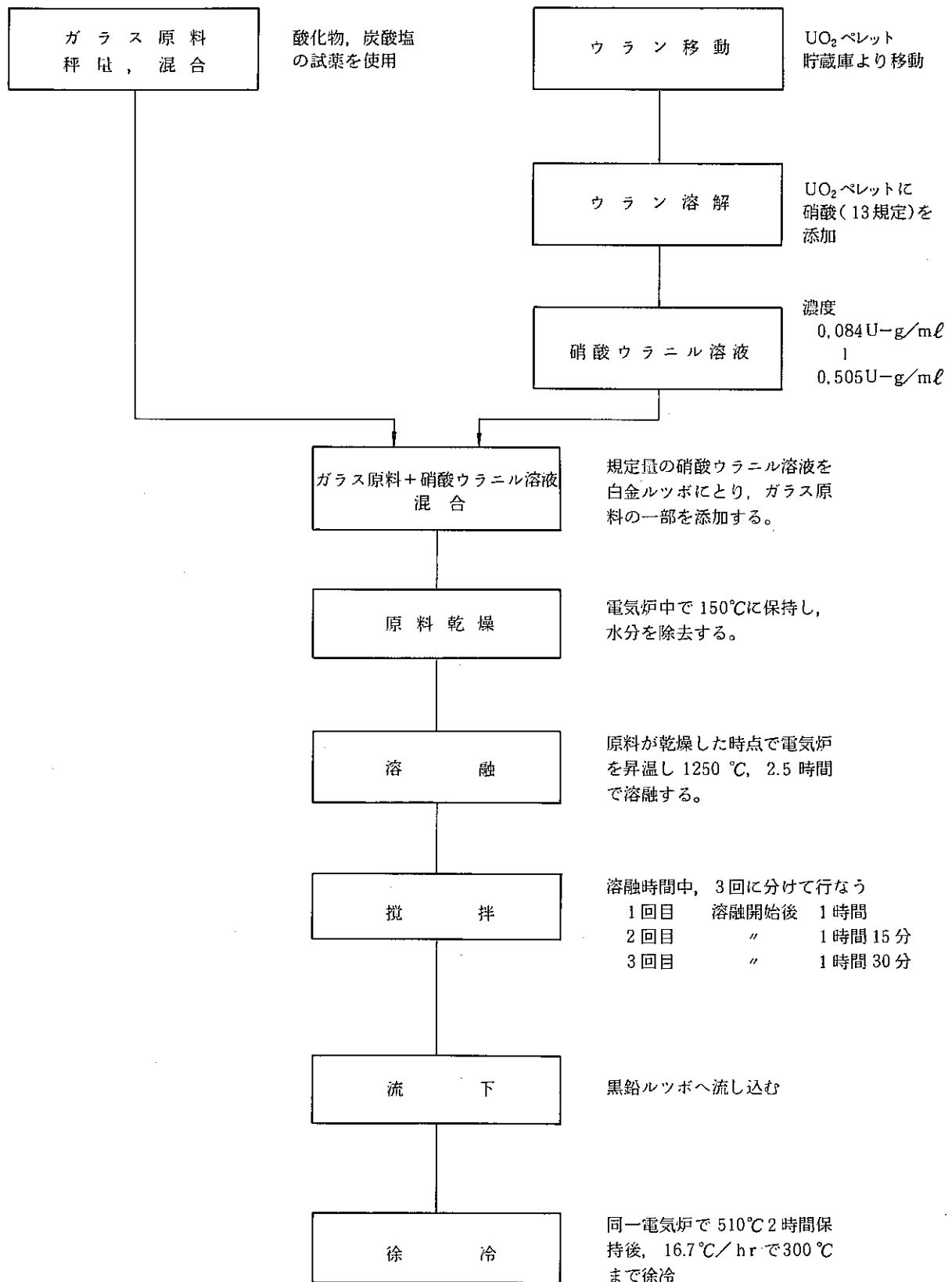


図-1 ガラス作製フローシート

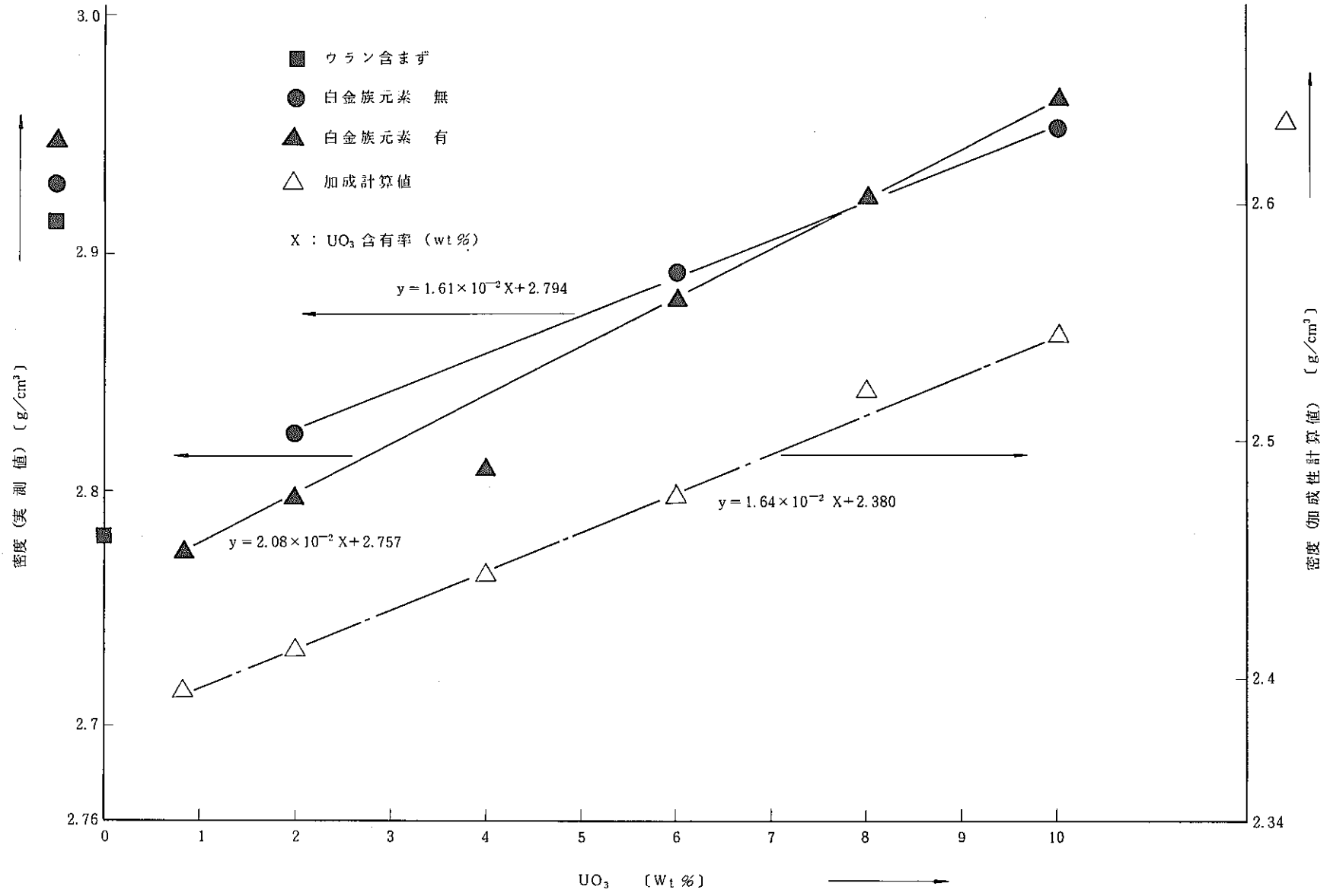


図-2 ウラン含有ガラス固化体の密度

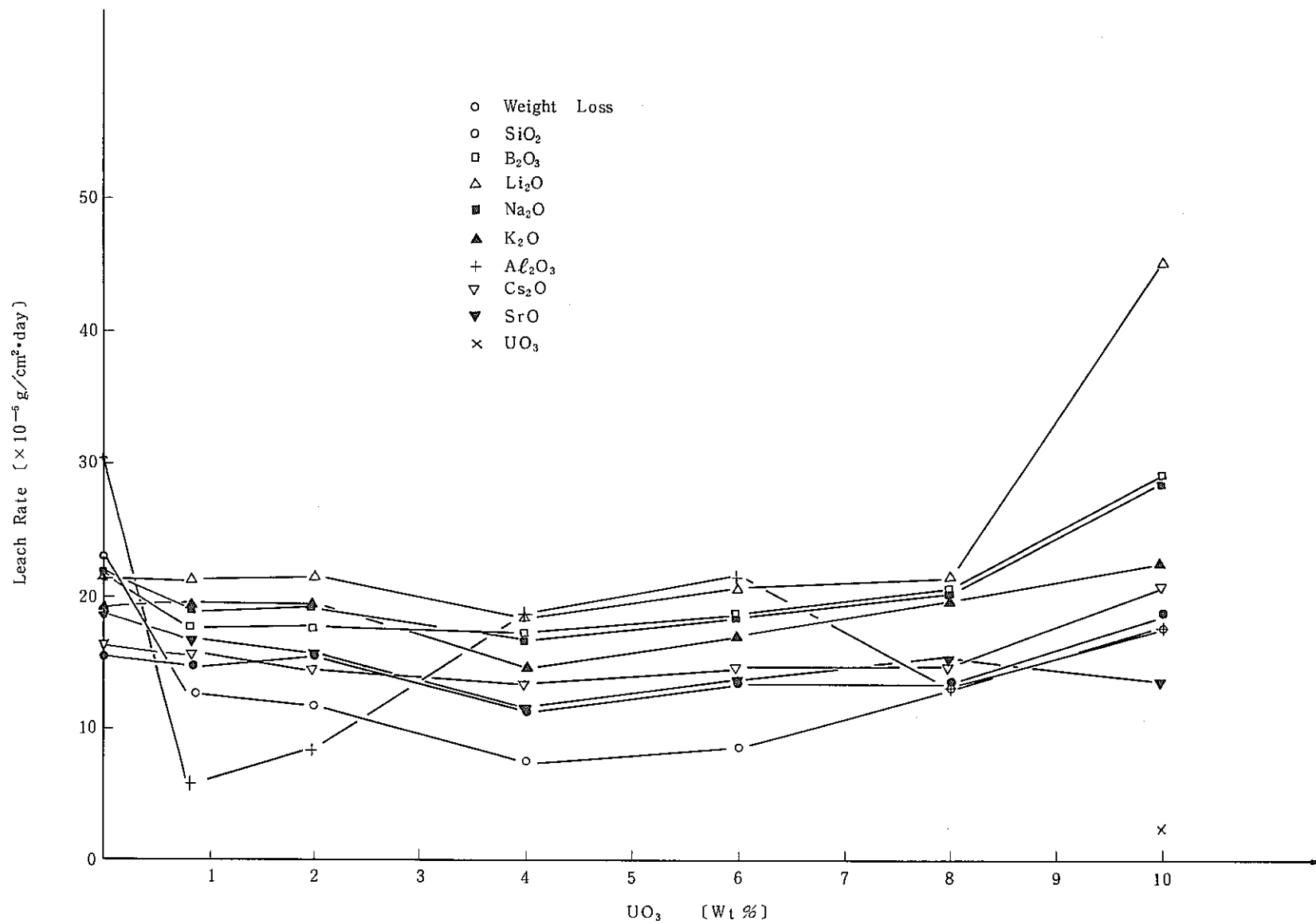


図-3 浸出率のウラン含有量依存性 (蒸留水中, 98°C, SA/V = 0.1 cm⁻¹, 1日浸出)

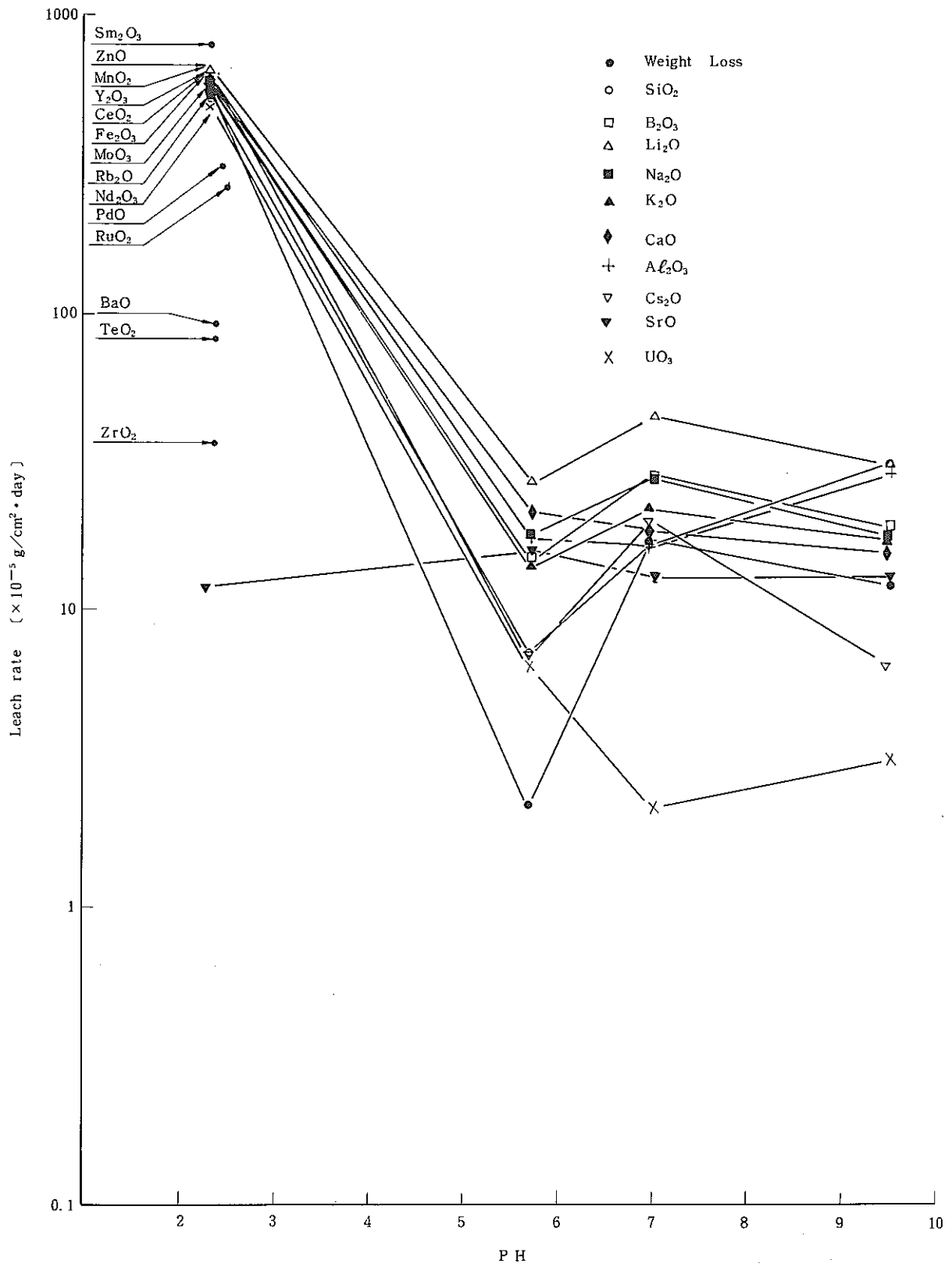


図-4 P 4008 (10 wt % UO₃)の浸出率 pH依存性 (98 °C, SA/V=0.1 cm⁻¹, 1日浸出)

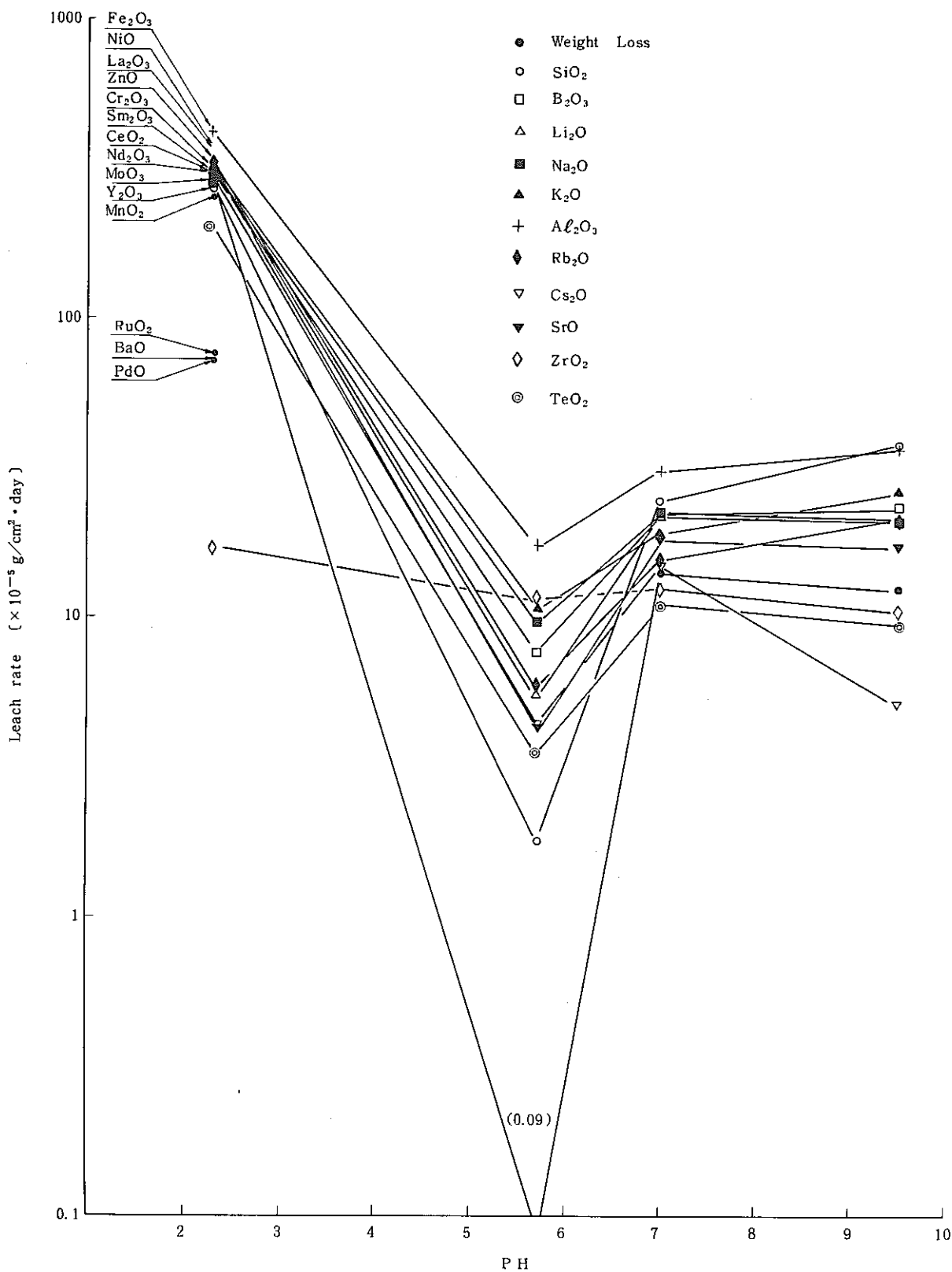


図-5 P 0500 ガラスの浸出率 pH 依存性 (98 °C, SA/V = 0.1 cm⁻¹, 1 日浸出)

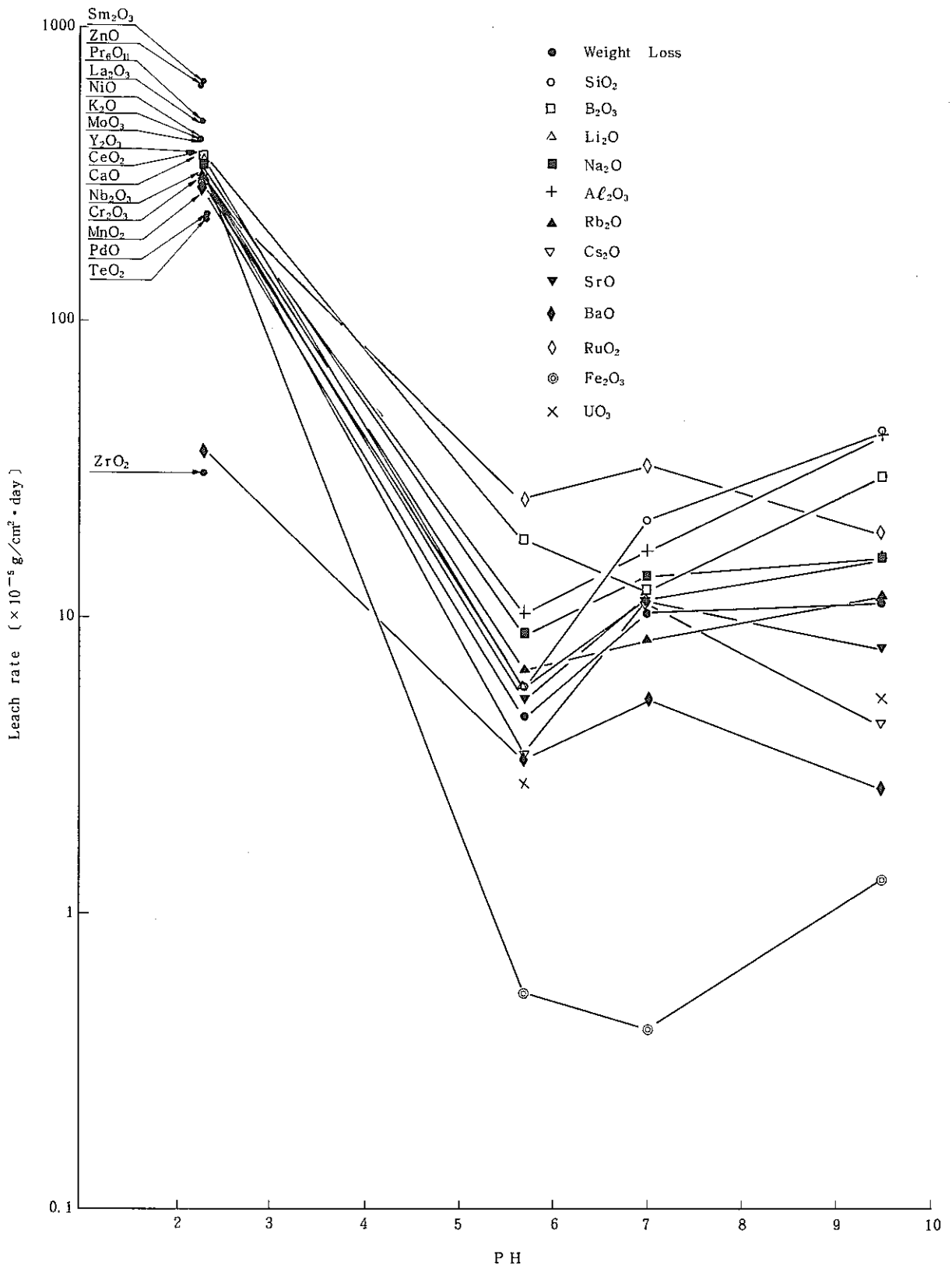


図-6 P 4012 (10 wt% UO₃)の浸出率 pH依存性 (98°C, SA/V=0.1 cm⁻¹, 1日浸出)

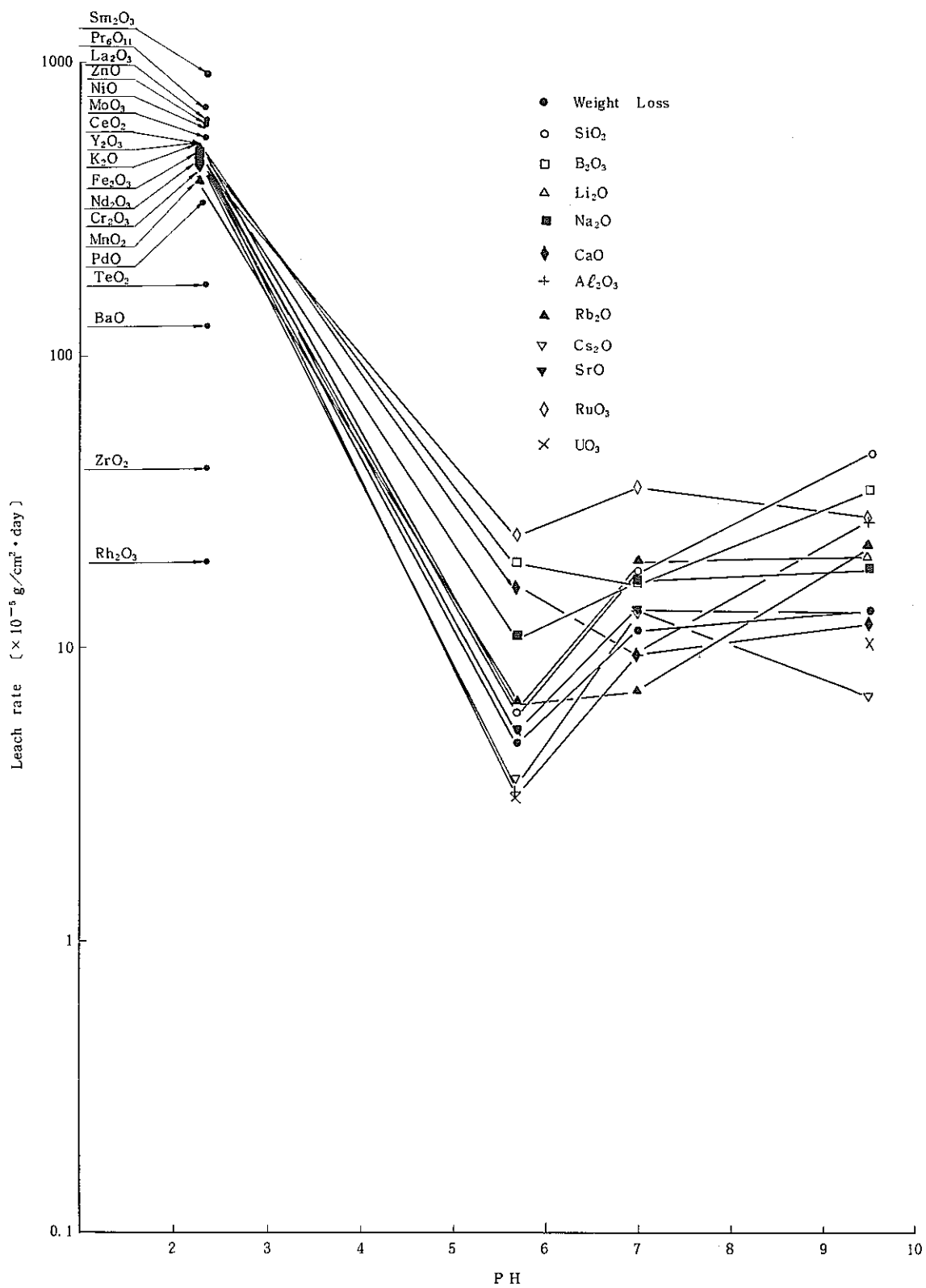


図-7 P 4013 (10 wt% UO_3)の浸出率 pH依存性 (98°C, $\text{SA/V} = 0.1 \text{ cm}^{-1}$, 1日浸出)

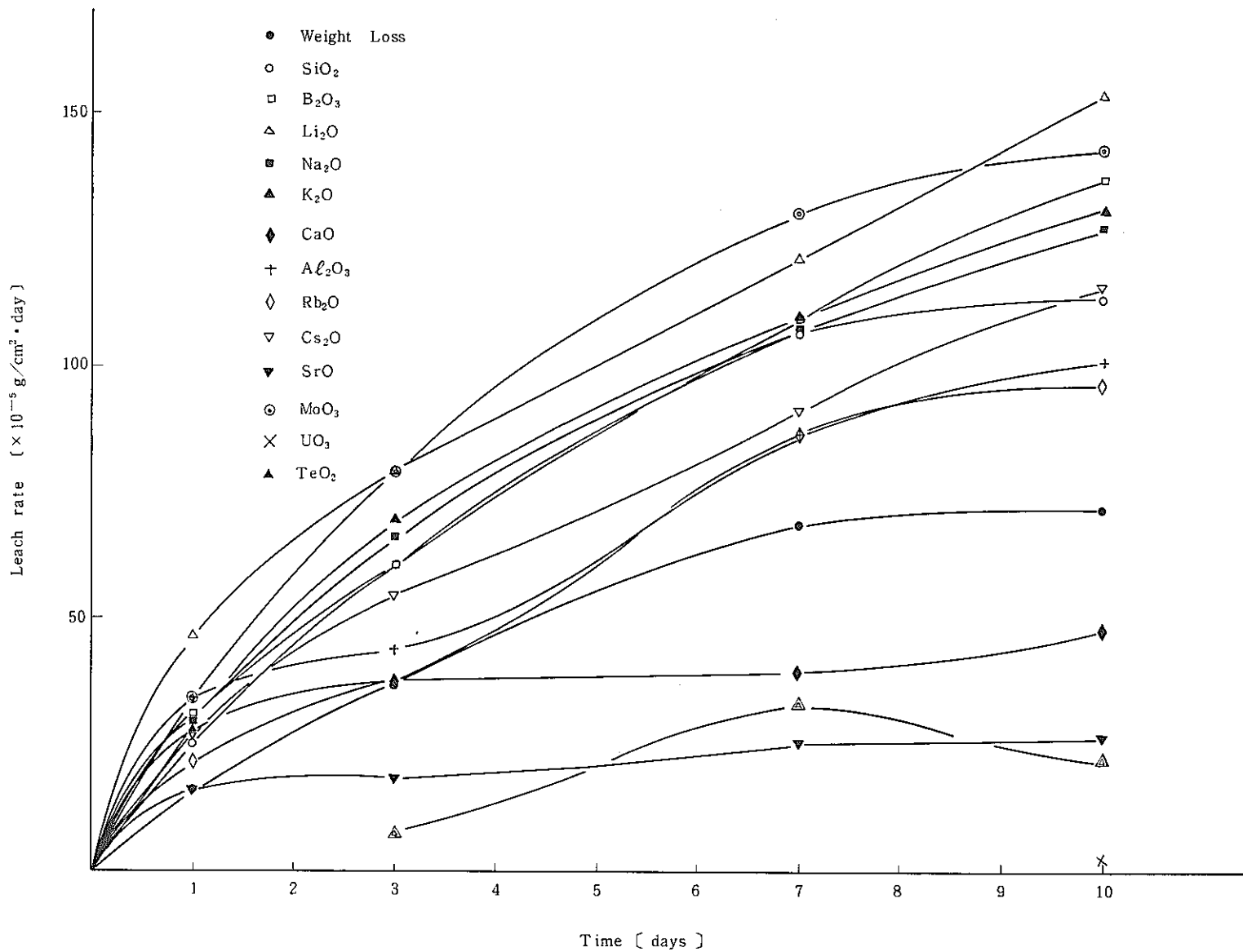


図-8 P 4008 ガラスの浸出率時間依存性 (蒸留水, 98°C, SA/V = 0.1 cm⁻¹)

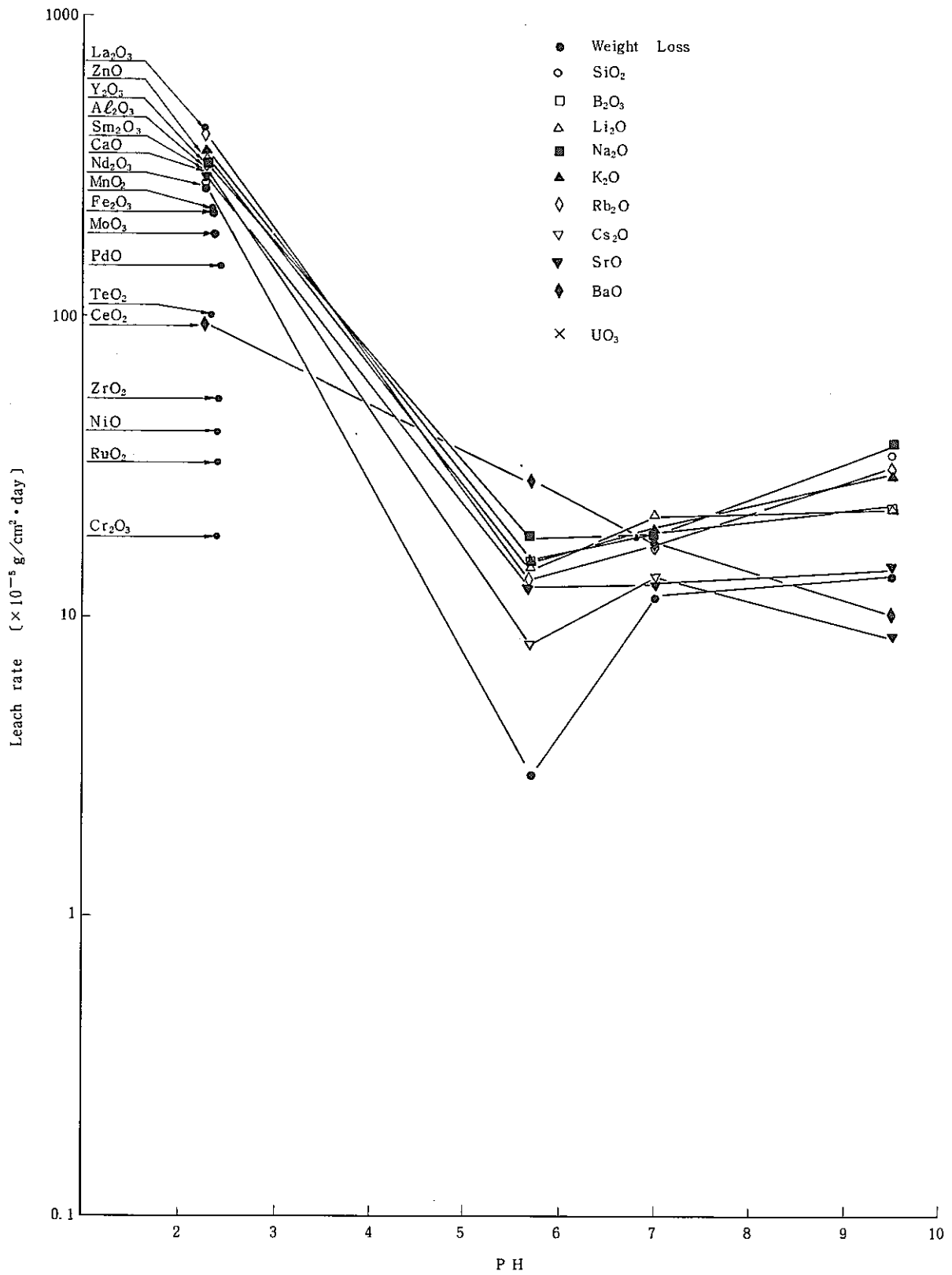


図-9 失透化した P 4004 (2 wt% UO_3) の浸出率 (98°C, $\text{SA}/\text{V} = 0.1 \text{ cm}^{-1}$, 1日浸出)

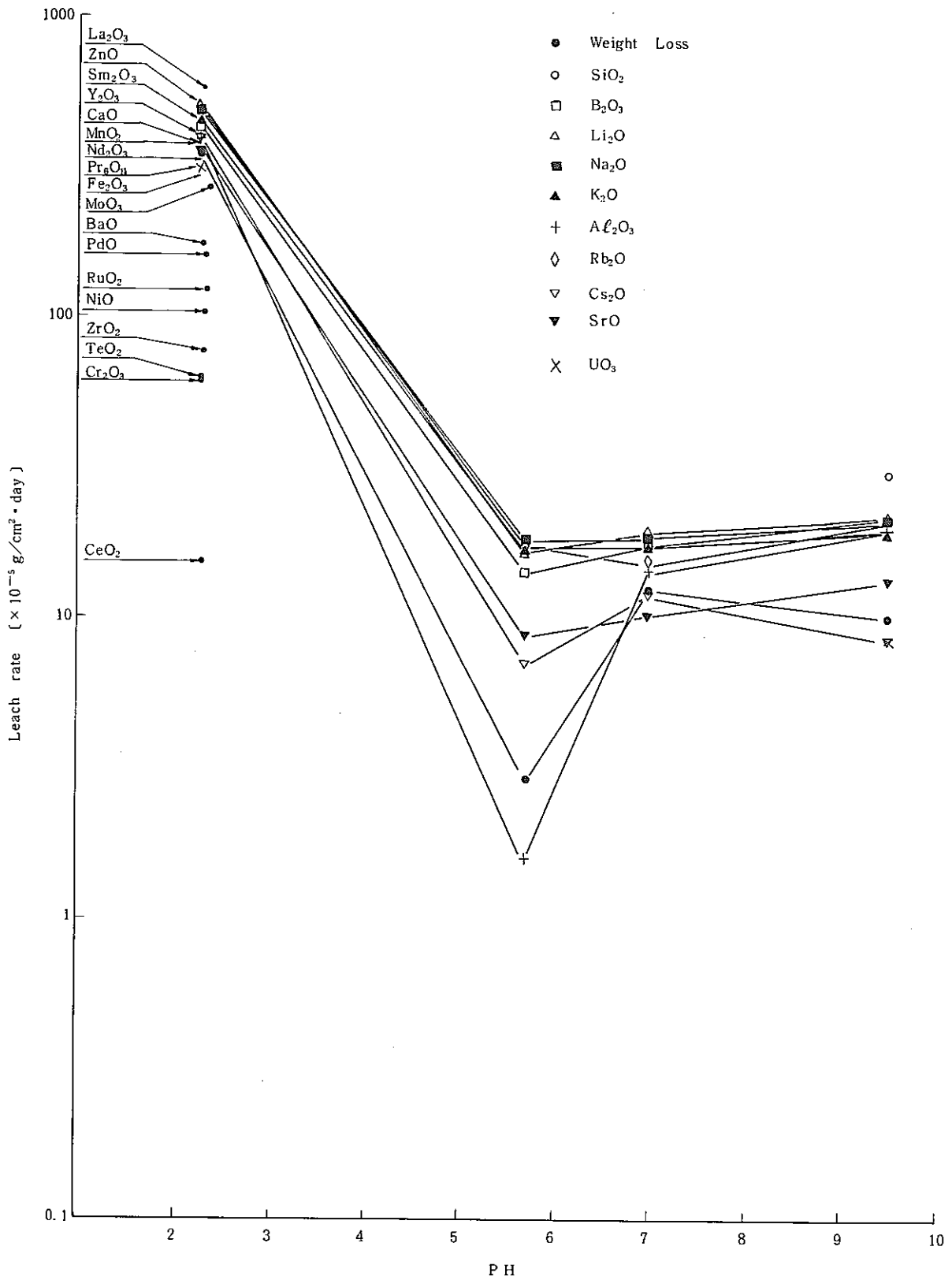


図-10 失透化したP 4006 (6 wt% UO_3)の浸出率(98°C, $\text{SA}/\text{V}=0.1 \text{ cm}^{-1}$, 1日浸出)

写 真 リ ス ト

- 写真 1 オートラジオグラフィ用試料
- 写真 2 浸出試験用試料
- 写真 3 浸出試験容器
- 写真 4 試験フードの全景
- 写真 5 固化体の光学顕微鏡組織写真 (P 4000, P 4004, P 4005)
- 写真 6 固化体の光学顕微鏡組織写真 (P 4006, P 4007, P 4008)
- 写真 7 固化体の光学顕微鏡組織写真 (P 4009, P 4010, P 4011)
- 写真 8 固化体の光学顕微鏡組織写真 (P 4012, P 4013, P 4020)
- 写真 9 P 4004 (2 wt % UO_3)のオートラジオグラフ
- 写真 10 P 4006 (6 wt % UO_3)のオートラジオグラフ
- 写真 11 P 4008 (10 wt % UO_3)のオートラジオグラフ
- 写真 12 P 0500 のオートラジオグラフ
- 写真 13 P 4008 (10 wt % UO_3)浸出表面の光学顕微鏡写真
- 写真 14 失透化したP 4004 (2 wt % UO_3)の光学顕微鏡写真
- 写真 15 失透化したP 4006 (6 wt % UO_3)の光学顕微鏡写真
- 写真 16 失透化したP 4004 (2 wt % UO_3)のオートラジオグラフ
- 写真 17 失透化したP 4006 (6 wt % UO_3)のオートラジオグラフ
- 写真 18 P 4020 (2.47 wt % UO_3)のオートラジオグラフ

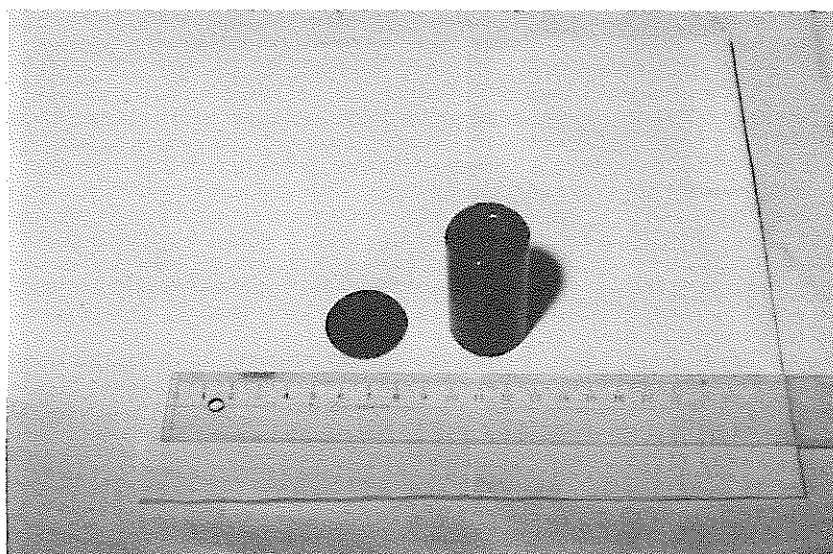


写真-1 オートラジオグラフィ用試料（写真左，右は固化体インゴット）

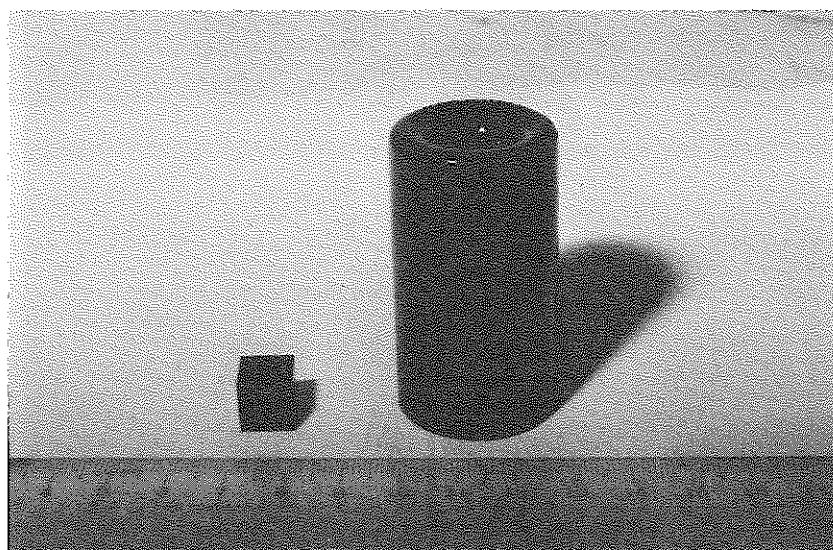
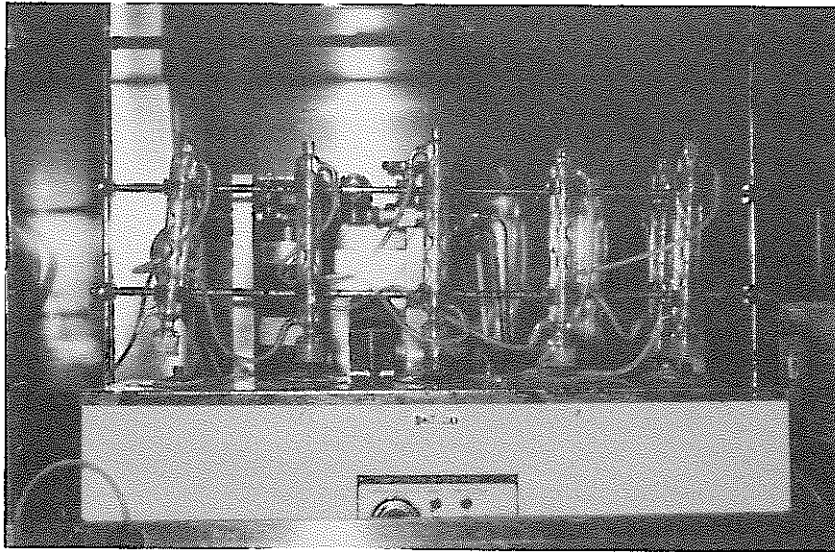
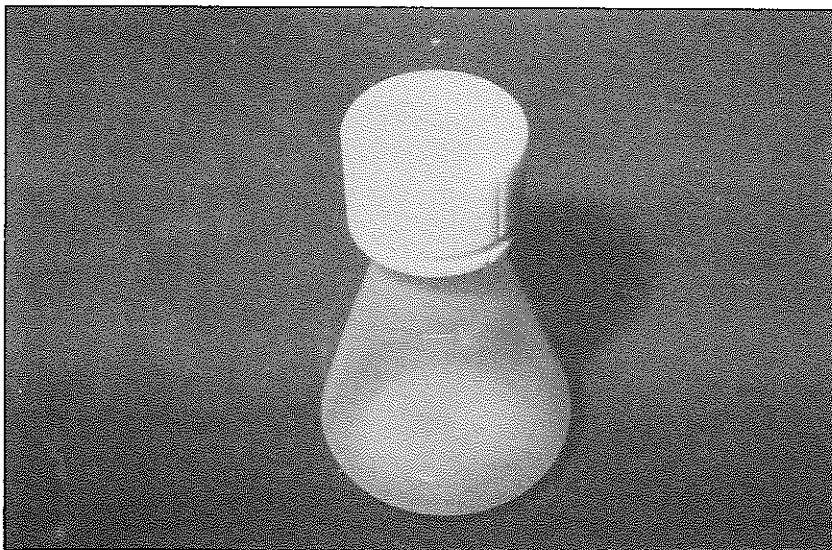


写真-2 浸出試験用試料（写真左，右は固化体インゴット）



(a) 石英製静的浸出試験容器と恒温水槽



(b) テフロン製静的浸出試験容器

写真-3 浸出試験容器

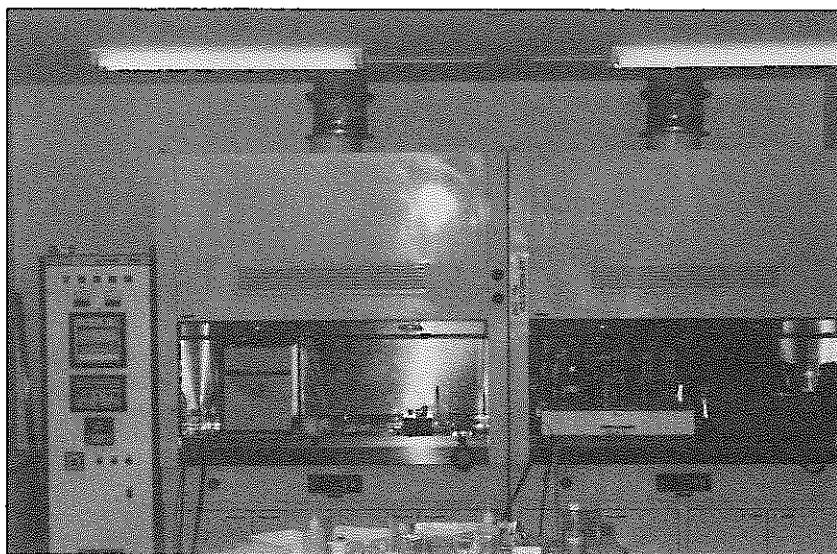


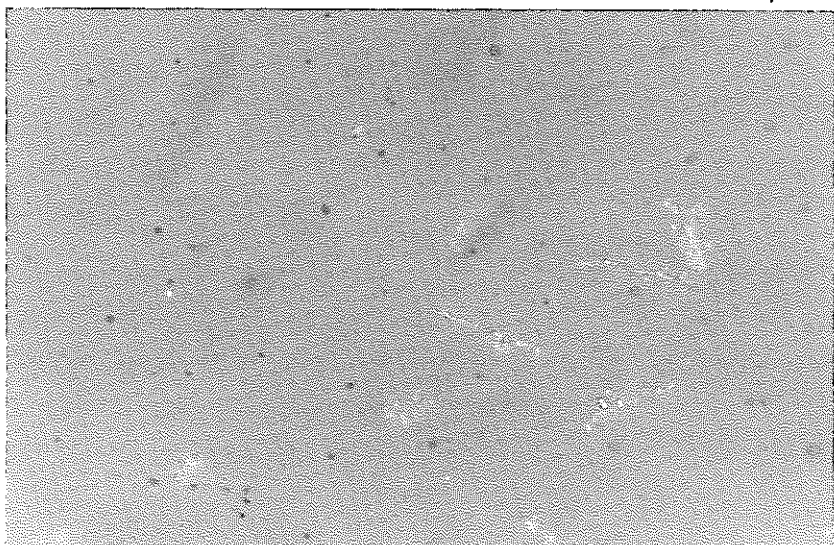
写真-4 試験フード全景



(a) P4000 (0.84 wt% UO_3)

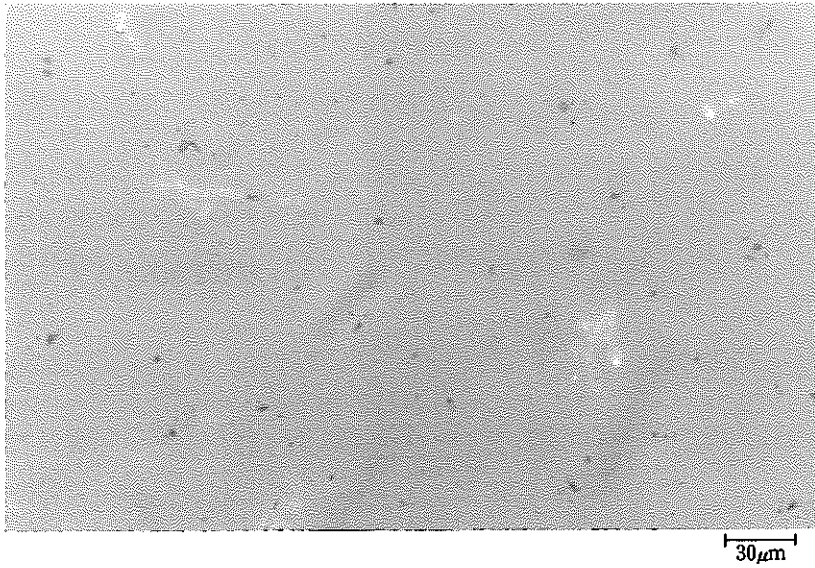


(b) P4004 (2 wt% UO_3)



(c) P4005 (4 wt% UO_3)

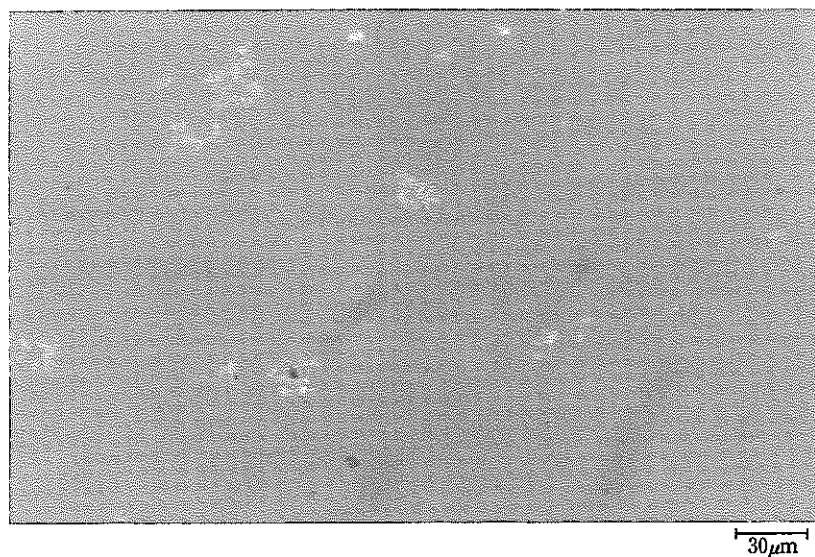
写真-5 固化体の顕微鏡組織写真 (P4000, P4004, P4005,)



(a) P4006 (6 wt%UO₃)



(b) P4007 (8 wt%UO₃)



(c) P4008 (10 wt%UO₃)

写真-6 固化体の顕微鏡組織写真 (P4006, P4007, P4008.)



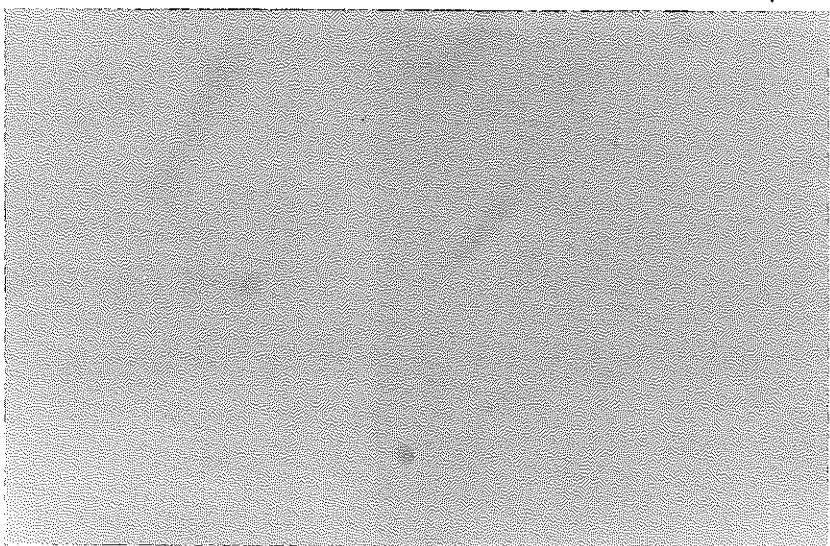
(a) P4009 (2 wt% UO_3)
白金族元素含まず.

30 μm



(b) P4010 (6 wt% UO_3)
白金族元素含まず.

30 μm



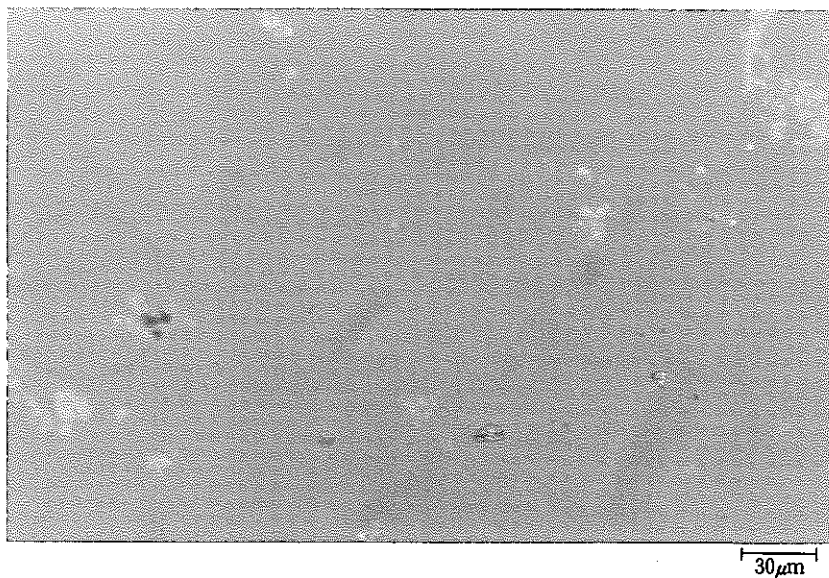
(c) P4011 (10 wt% UO_3)
白金族元素含まず.

30 μm

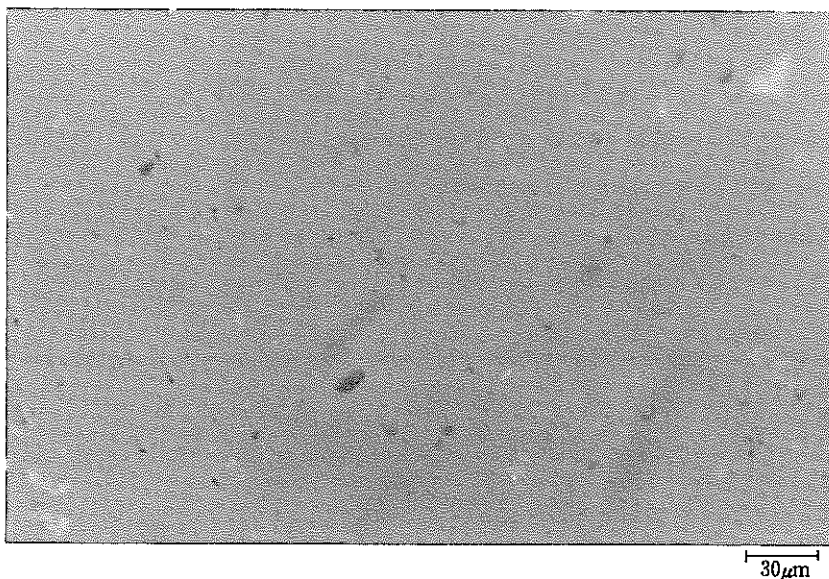
写真-7 固化体の顕微鏡組織写真 (P4009, P4010, P4011.)



(a) P4012 (10 wt% UO_3)



(b) P4013 (10 wt% UO_3)



(c) P4020 (2.47 wt% UO_3)

写真-8 固化体の顕微鏡組織写真 (P4012, P4013, P4014,)

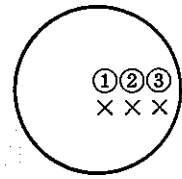
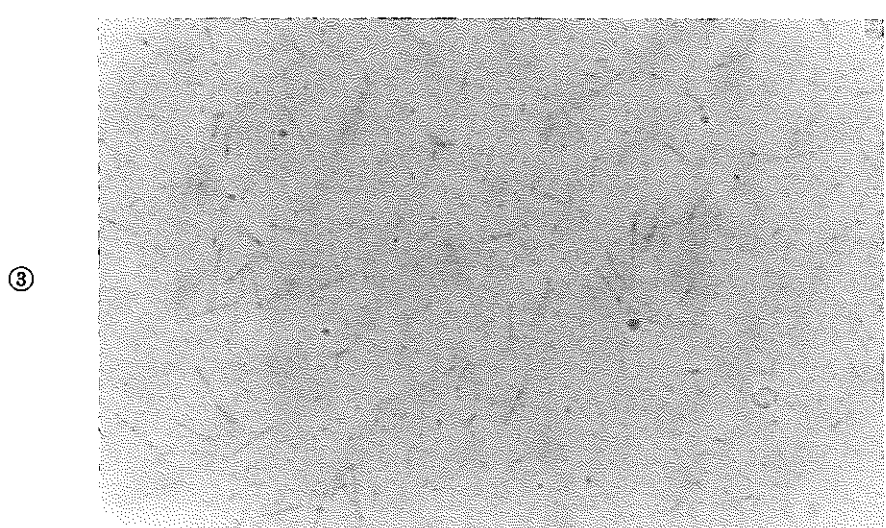
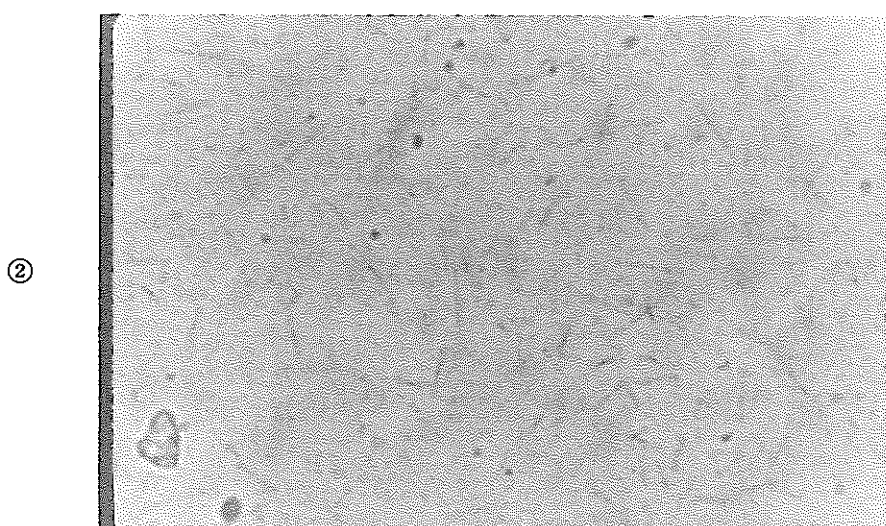


写真-9 P 4004 (2 wt % UO_3) 露出時間 15 日間

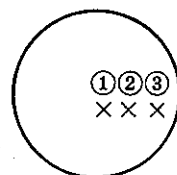
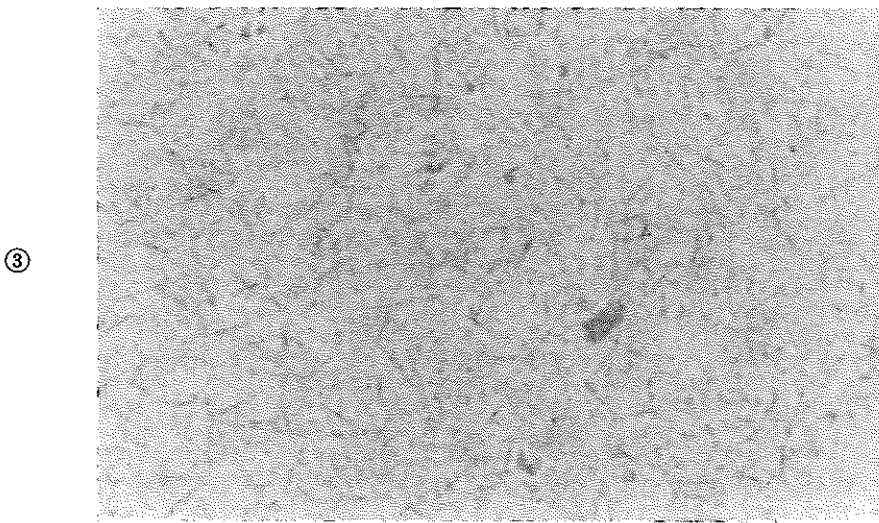
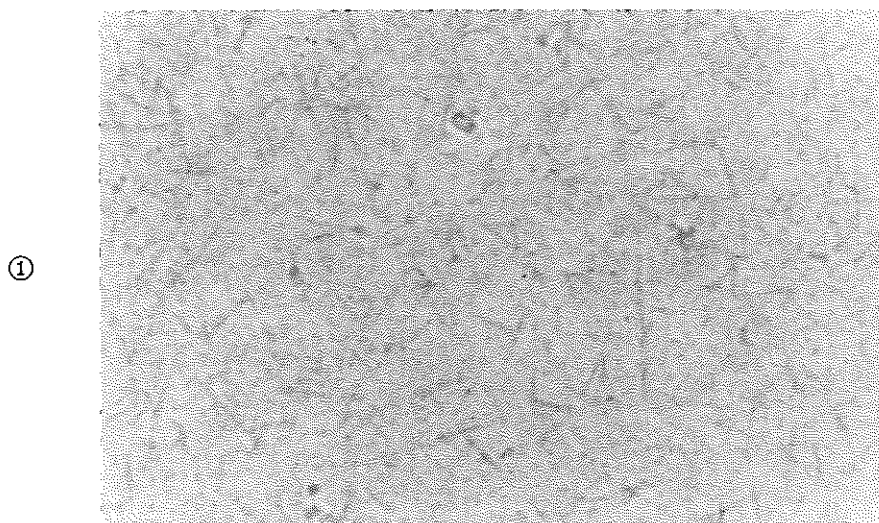
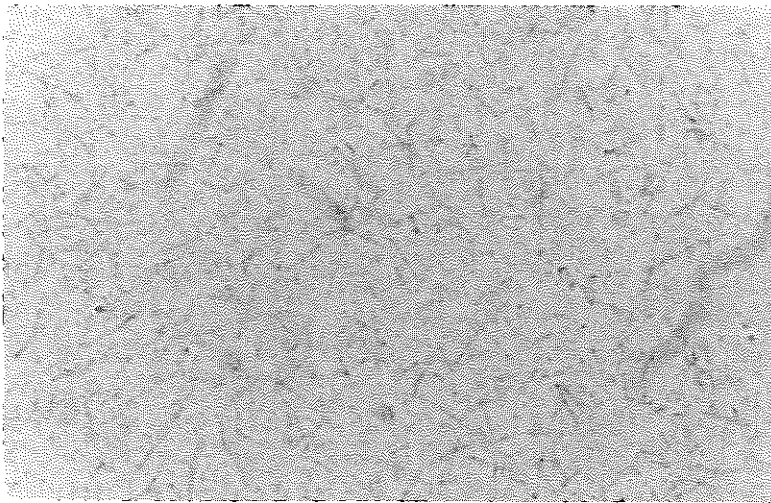
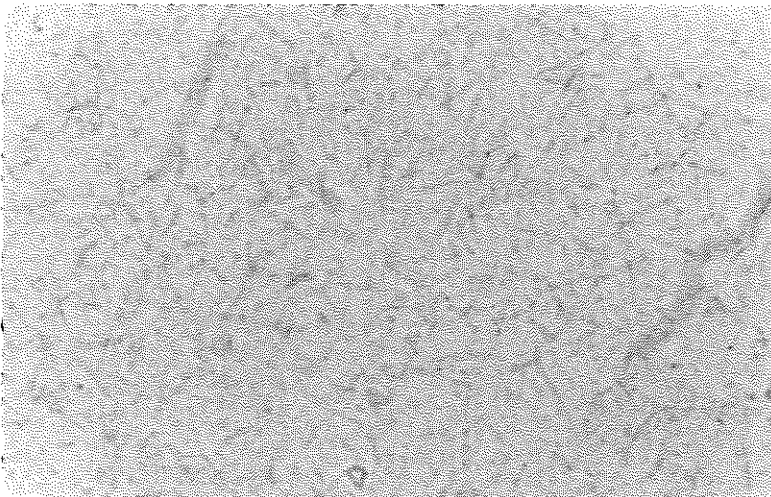


写真-10 P 4006 (6wt% UO_3) 露出時間 15 日間



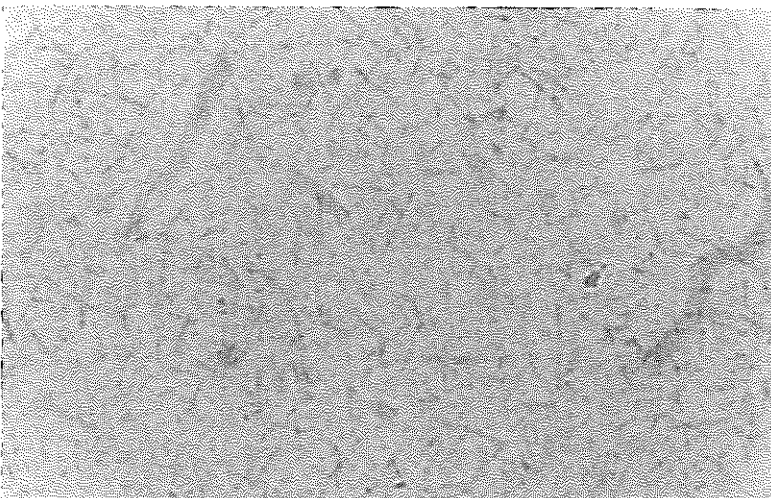
(a) P4008 (10% UO_3), 上段

10 μ m



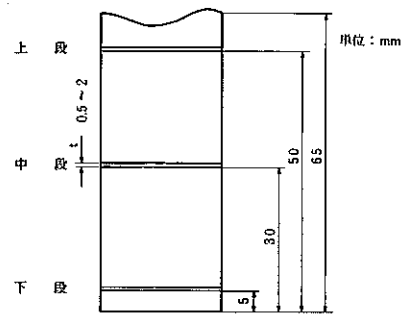
(b) P4008 (10% UO_3), 中段

10 μ m



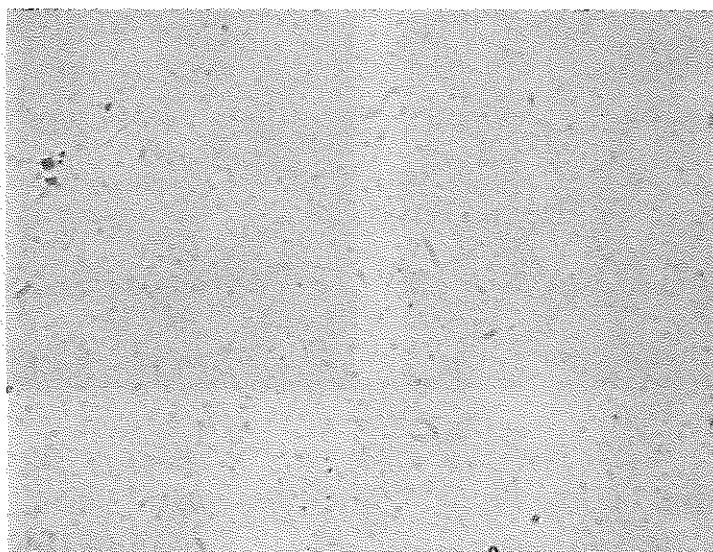
(c) P4008 (10% UO_3), 下段

10 μ m



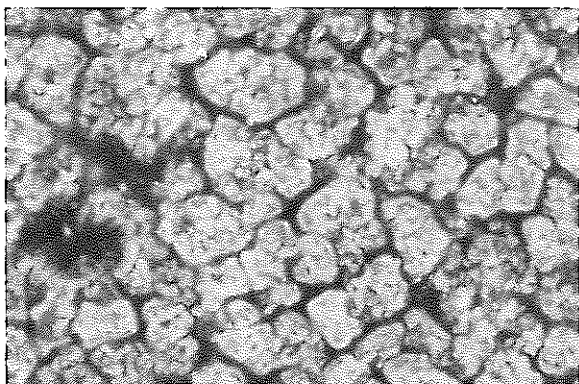
試料採取場所


写真-11 P 4008 (10wt% UO_3)のオートラジオグラフ, 露出時間: 14日間

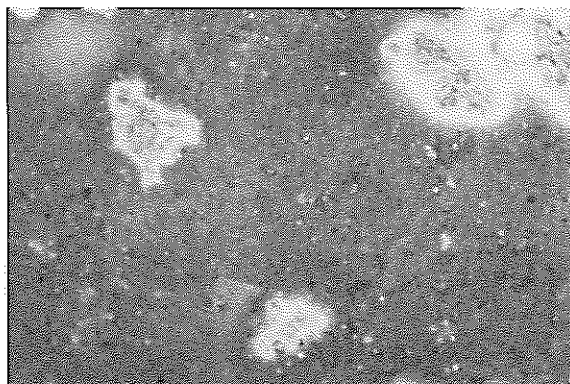



10 μm

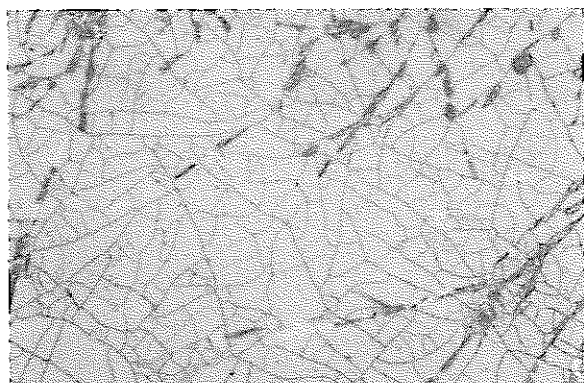
写真-12 P0500 のオートラジオグラフ, 露出時間: 54 日間




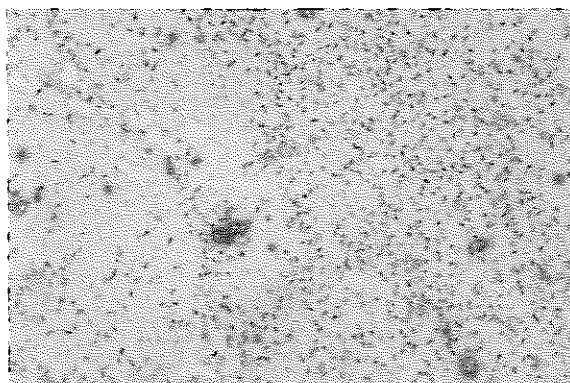
(a) 
pH = 2.3
98 °C, 1日浸出
SA/V = 0.1 cm⁻¹



(b) 
pH = 5.7
98 °C, 1日浸出
SA/V = 0.1 cm⁻¹



(c) 
pH = 9.5
98 °C, 1日浸出
SA/V = 0.1 cm⁻¹




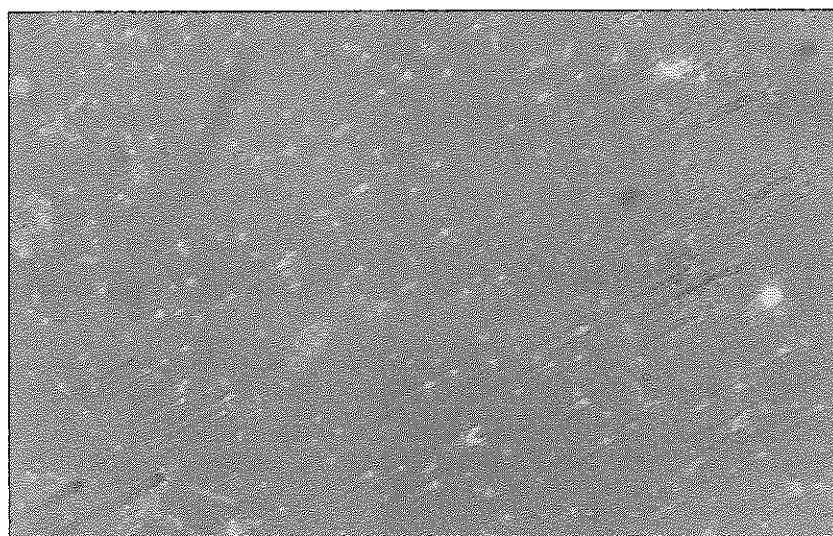
(d) 
pH = 7 (蒸留水)
98 °C, 1日浸出
SA/V = 0.1 cm⁻¹

写真-13 P 4008 (10 wt% UO₃)ガラス浸出表面の顕微鏡写真



(a) P4004 (2 wt% UO_3)

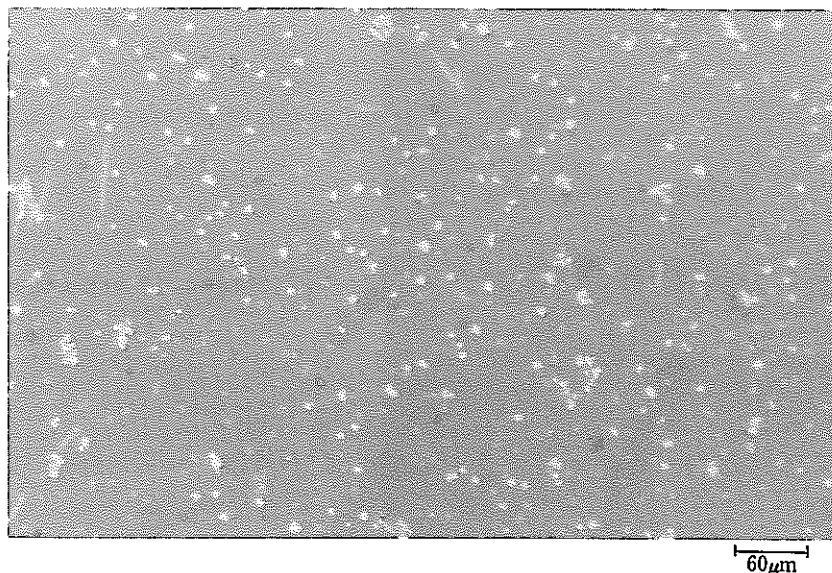


(b) P4004 (2 wt% UO_3)



(c) P4004 (2 wt% UO_3)

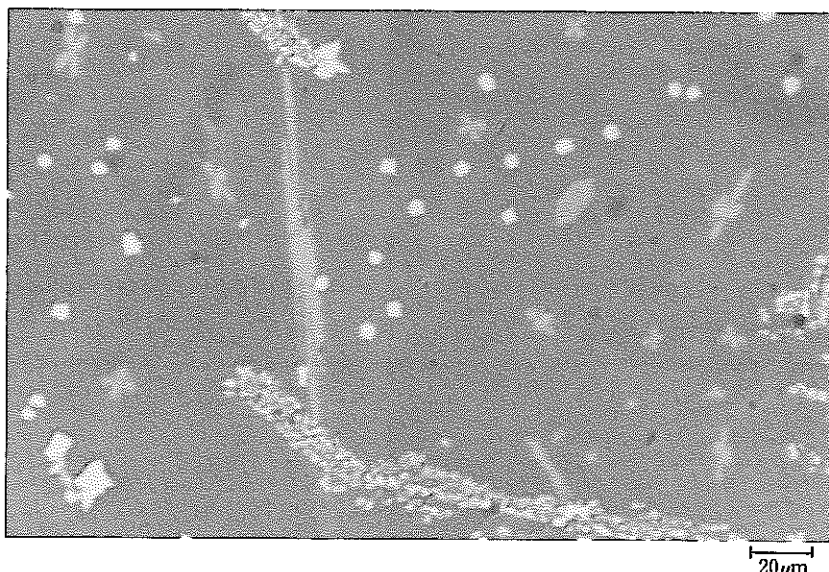
写真-14 失透化したP 4004 (2 wt% UO_3)の光学顕微鏡写真(700 °C - 18日)



(a) P 4006 (6 wt% UO_3)



(b) P 4006 (6 wt% UO_3)



(c) P 4006 (6 wt% UO_3)

写真-15 失透化した P 4006 (6 wt% UO_3) ガラスの光学顕微鏡写真 (700 °C - 18 日)

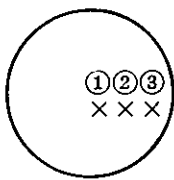
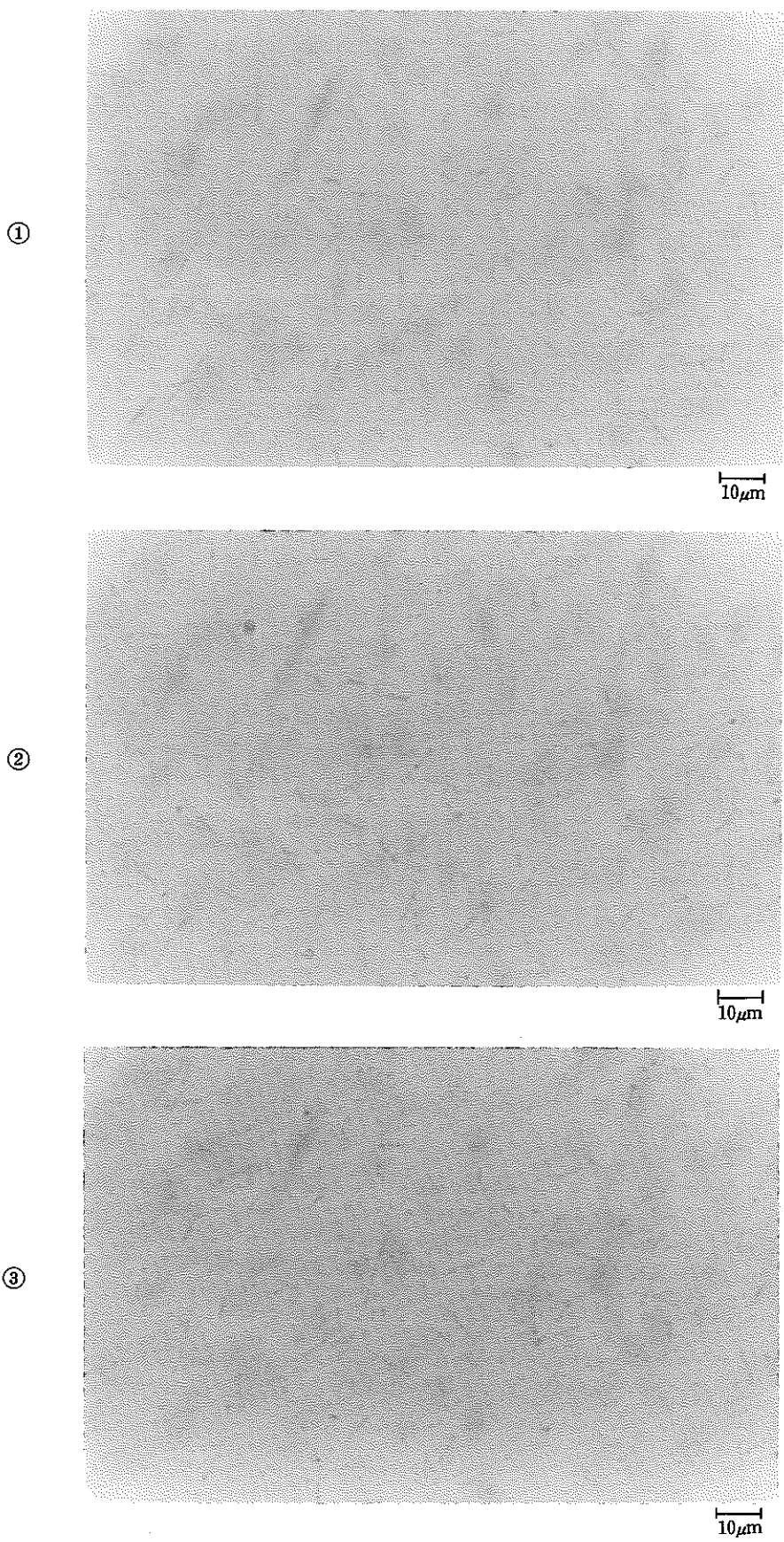


写真-16 失透化したP 4004 (2wt% UO_3)のオートラジオグラフ
P 4004 (2wt% UO_3) 640倍, 露出時間14日間.

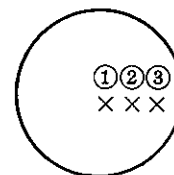
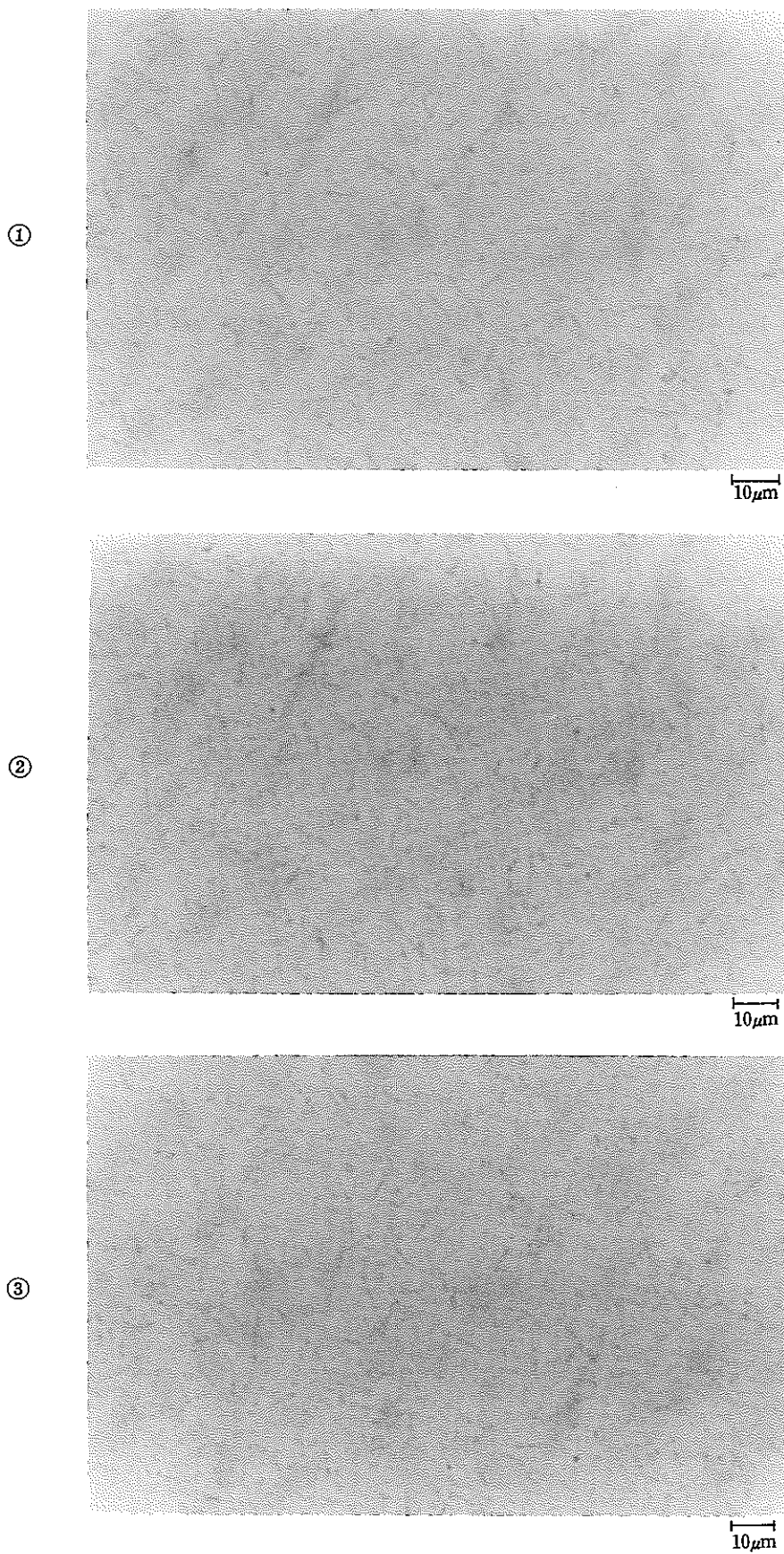


写真-17 失透化したP 4006 (6wt% UO_3)のオートラジオグラフ
露出時間 14 日間

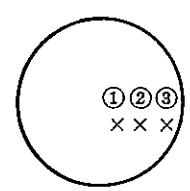
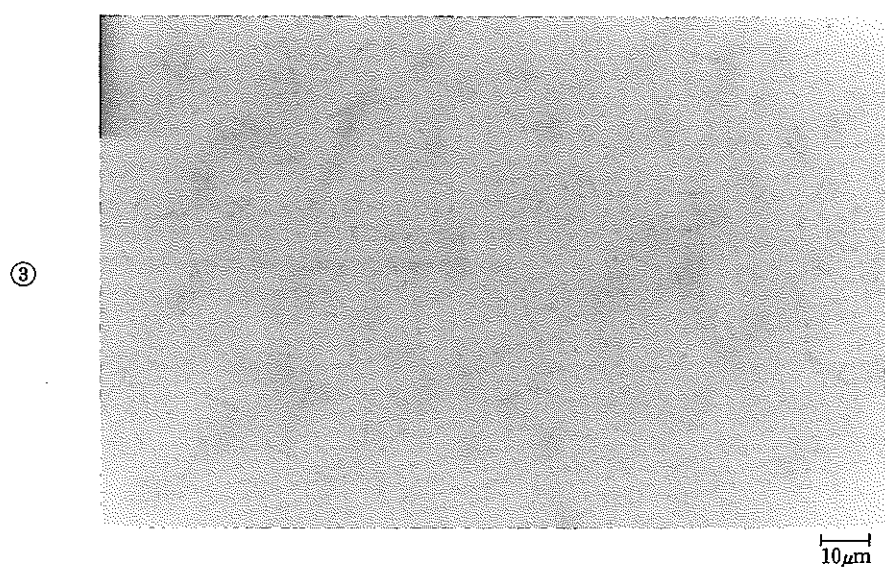
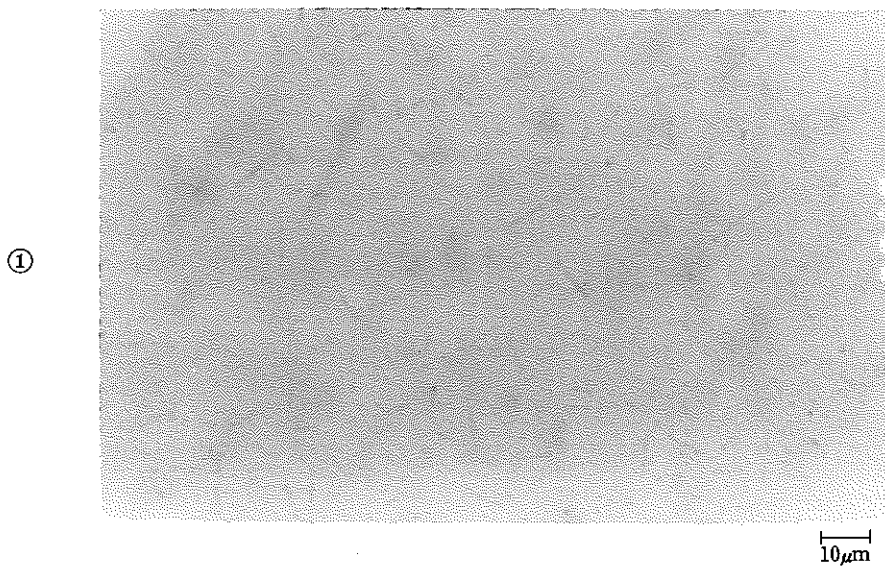


写真-18 P 4020 (2.47 wt% UO_3) ガラスのオートラジオグラフ
露出時間 14 日間