

本資料は 年 月 日付けで登録区分、  
2001. 6. 6  
変更する。

[技術情報室]

# 高レベルガラス固化体評価試験 (I)

— OTL 廃液固化体の特性 (中間報告) —

1985年11月

60

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

に配布す  
お、この

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

## 高レベルガラス固化体評価試験 (I)

— OTL 廃液固化体の特性 (中間報告) —



実施責任者 堀江 水明\*  
報告者 大内 仁\* 山田 一夫\*  
上野 勤\* 北野 光昭\*  
吉村 光彦\* 狩野 元信\*\*

### 期 間

1984年4月～1985年8月

### 目 的

高レベル放射性廃液ガラス固化体の物性評価試験を行う。

### 要 旨

第1回ガラス固化試験で作製した高レベル廃液添加ガラス固化体について物性測定機器類の確認を兼ねた固化体評価試験が終了した。また、つづいて作製した第2回～第5回ガラス固化試験固化体の評価試験も一部実施した。

試験の結果、以下の知見が得られた。

- (1) 固化体評価試験は全て遠隔操作で実施できた。
- (2) 第1回固化試験固化体の物性は、SW-7 コールド固化体の物性とほぼ同じだった。
- (3) 固化体軸方向アスキャンの結果 Cs-137, Cs-134, Eu-154 は均一に分布していた。

Rh-106 (Ru-106) は偏在しやすい傾向が見られたが、攪拌流下を行えば均一な分布になる。

---

\* 技術部高レベル放射性物質試験室 (CPR)

\*\* " リサイクル技術開発室 (RTD)

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. ガラス固化体作製 .....	1
3. 固化体物性評価 .....	2
4. ま と め .....	5
5. 謝 辞 .....	5

## 表 目 次

Table 2-1 固化体リスト	6
Table 2-2 模擬廃液組成	7
Table 3-1 物性評価試験従事者	8
Table 3-2 物性評価測定結果	8

## 図 目 次

Fig 3-1 物性評価基本フロー	9
Fig 3-2 第1ラン固化体軸方向 $\gamma$ スキャンニング結果	10
Fig 3-3 第5ラン固化体軸方向 $\gamma$ スキャンニング結果	11
Fig 3-4 押し出しラン(2)固化体軸方向 $\gamma$ スキャンニング結果	12
Fig 3-5 第1ラン固化体密度測定結果	13
Fig 3-6 第5ラン固化体密度測定結果	14
Fig 3-7 第1ラン固化体浸出試験結果(重量減少量)	15
Fig 3-8 第1ラン固化体浸出試験結果(核種分析)	16

## 写 真 目 次

Photo 3-1 第1ラン固化体光顕写真(1)	17
Photo 3-2 第1ラン固化体光顕写真(2)	17
Photo 3-3 第1ラン固化体EPMA写真(二次電子像)	18
Photo 3-4 第1ラン固化体EPMA写真(X線像)	18
Photo 3-5 第1ラン固化体EPMA写真(X線像)	19
Photo 3-6 第1ラン固化体EPMA写真(X線像)	19
Photo 3-7 第1ラン固化体EPMA写真(X線像)	20
Photo 3-8 第1ラン固化体EPMA写真(X線像)	20

## 1. はじめに

高レベル放射性物質研究施設（CPF）ガラス固化試験系列では、昭和57年12月より再処理工場 OTL で調製された高レベル廃液（HLLW）を使用してガラス固化試験を実施しており、現在までに7体のガラス固化体を作製した。

これらのうち第1回ガラス固化試験（第1ラン）で作製したガラス固化体について、物性測定機器類の確認を兼ねた固化体評価試験が終了したのでその結果の報告を行うとともに、つづいて実施した第2回～第5回ガラス固化試験（第2ラン～第5ラン）固化体の非破壊検査並びに第5回ガラス固化試験（第5ラン）固化体の物性評価試験の中間結果を報告する。

## 2. ガラス固化体作製

### 2-1 供試廃液

再処理工場メインプラントで溶解した使用済燃料を OTL で再処理し調製した HLLW に、調製用模擬廃液を加えて供試廃液を調製した。第1ランで使用した HLLW は約 3 Ci、第5ランでは約 300 Ci である。また、調製用模擬廃液は第1ランでは SW-7、第5ランでは SW-11 を使用した。各ランで使用した HLLW の放射エネルギー及び調製用模擬廃液を Table 2-1、2-2 に示す。

### 2-2 固化体作製

組成調製を行った廃液を脱硝濃縮し、ガラスフリットと混合後、セラミックメルタで熔融ステンレス製のキャニスタ（ $\phi 76 \text{ mm}^{\text{OD}} \times 600 \text{ mmH}$ ）に流下した。

### 3. 固化体物性評価

流下したキャニスタを溶接密封し、 $\gamma$ スキャンニング及び発熱量測定の前破壊検査を行った後、切断機、せん孔機により所定の寸法に切断し密度測定、示差熱分析、浸出試験、光学顕微鏡観察及びEPMA観察を行った。物性評価基本フローを Fig.3-1 に、評価試験従事者を Table 3-1 に示す。これらの操作は全てマスタースレーブマニプレータ、インセルクレーンによる遠隔操作で行った。

#### 3-1 $\gamma$ スキャンニング

ガラス固化体をセル内の走査装置にセットし、セル外に設置した Ge 半導体検出器で固化体軸方向の $\gamma$ スキャンニングを行った。

代表例として、第1ラン第5ラン固化体の $\gamma$ スキャンニング結果を Fig.3-2, 3 に示す。 $\gamma$ スキャンニングでは、Cs-137, Cs-134, Eu-154, Rh-106 (Ru-106) の4核種が検出され、Cs-137, Cs-134 及び Eu-154 は、ほぼ均一に分布していたが、Rh-106 (Ru-106) は偏在していた。第2～第4ランについても同様の傾向が見られた。

Rh-106 (Ru-106) の偏在については、押出しラン(2)\* で熔融時にガスを吹き込み攪拌すれば均一な分布になることが確認されており、その固化体の軸方向 $\gamma$ スキャンニング結果を Fig.3-4 に示す。

#### 3-2 発熱量測定

熱量計法により固化体の発熱量測定を行った。第1～第5ランの固化体は、固化体中の HLL-W 量が少ないため発熱量が低く全て検出限界値(1 W)以下であった。

#### 3-3 密度測定

ガラス固化体上部、中部、下部より採取した試料について、アルキメデス法により密度を測定した。第1ラン、第5ラン固化体の測定結果を Fig.3-5, 6 に示す。

第1ラン固化体の密度は、 $2.71 \sim 2.74 \text{ g/cm}^3$  で SW-7 コールド試料とほぼ同じであったが第5ラン固化体は、 $2.73 \sim 2.79 \text{ g/cm}^3$  でやや高かった。これは廃液組成(SW-7 と SW-11)の違い、第5ラン固化体の方が第1ランより比較的ポイドが少ない等の影響によると思われる。

両固化体とも採取位置による違いが見られ、 $\gamma$ スキャンニングで Rh-106 (Ru-106) の計数率が高い部分の密度が高い傾向が見られた。

\* 押出しラン(2) 白金属を含まない模擬廃液 SW-6 のカレットのみを使用してガラス熔融炉炉底堆積物の押出し流下を目的に行ったランで、直接通電で熔融したガラスにガスを約  $2 \text{ l/min}$ 、2時間吹き込み攪拌を行った後流下した。

### 3-4 特性温度

示差熱分析計により第1ラン及び第5ラン固化体の転移点、屈伏点の測定を行った。転移点は486～496℃、屈伏点は510～516℃で、第1ラン、第5ラン固化体の違いは、ほとんどなかった。これらの値は、SW-7コールド試料ともほぼ同じ値であり、転移点が固化体貯蔵時の最高温度目安値450℃よりも高い温度であった。

### 3-5 浸出試験

第1ラン固化体について、MCC-1法に準じた方法で静的浸出試験を行った。

浸出試験条件を以下に示す。

- a. 浸出液 蒸留水
- b. 浸出容器 テフロン
- c. 温度 90℃
- d. 浸出時間 14日間及び28日間
- e. 試料形状  $\phi 20\text{mm} \times 5 \sim 15\text{mmH}$   
未研磨試料

$$f. \frac{\text{試料表面積}}{\text{浸出液量}} = 0.1\text{ cm}^{-1}$$

#### (1) 単位面積あたりの重量減少量<sup>\*1</sup>

第1ラン固化体28日間浸出試料の単位面積あたりの重量減少量は、 $9.8 \times 10^{-4}\text{ g/cm}^2$ で、SW-7コールド試料の $8.8 \times 10^{-4}\text{ g/cm}^2$ とほぼ同じ値だった。結果をFig.3-7に示す。

#### (2) 浸出液中核種

浸出液を採取し、 $\gamma$ スペクトル分析を行った。浸出液からはCs-137、Cs-134が検出された。

両核種間の放射能減少割合<sup>\*2</sup>に差はなく、重量減少量と比較してもほぼ同じ値であった。

#### \*1. 重量減少量

$$WL = (W_o - W) / SA$$

$$WL = \text{単位面積あたりの重量減少量 (g/cm}^2\text{)}$$

$$W_o = \text{浸出前の試料重量 (g)}$$

$$W = \text{浸出後の試料重量 (g)}$$

$$SA = \text{試料の幾何学的表面積 (cm}^2\text{)}$$

#### \*2. 放射能減少割合

$$(NRL)_i = (W_o \times C_i) / (F_i \times SA)$$

$(NRL)_i$  : 核種  $i$  の単位面積あたりの放射能減少割合 ( $g/cm^2$ )

$W_0$  : 浸出前の試料重量 ( $g$ )

$C_i$  : 浸出液中の核種  $i$  の放射エネルギー ( $Ci$ )

$F_i$  : 浸出前試料中の核種  $i$  の放射エネルギー ( $Ci$ )

$SA$  : 試料の幾何学的表面積 ( $cm^2$ )

### 3-6 光学顕微鏡観察及び EPMA 観察

第 1 ランガラス試料を研磨後、光学顕微鏡観察を行った。ガラス試料表面には析出物が点在しており、顕微鏡で見ると金属光沢を有していた。Photo 3-1, 2 に、析出物の観察写真を示す。

EPMA で観察すると析出物は、Pd を主とする白金族元素で、その周辺には微細粒の Ru が存在していた。析出物の二次電子像を Photo 3-3 に、X 線像を Photo 3-4 ~ 8 に示す。

## 4. ま と め

第1ラン固化体評価を中心とした試験で以下の成果を得た。

- (1) 固化体評価試験を全て遠隔操作で実施することができた。
- (2) 第1ラン固化体の物性は、SW-7コールド固化体の物性とほぼ同じであることが確認できた。
- (3) 固化体軸方向 $\gamma$ スキャンの結果、Cs-137, Cs-134, Eu-154は均一に分布していた。Rh-106 (Ru-106)は偏在しやすい傾向が見られたが、攪拌流下を行えば均一な分布になる。

## 5. 謝 辞

軽水炉燃料の再処理実廃液入ガラス固化体の物性評価試験を実施できたことは、関係各位の多大な御協力の結果であり、深く感謝する。

特に、試料の分析を担当した分析技術開発室、ユーティリティを担当した技術管理課、放射線管理の放射線管理第1課及びセル設備関係を担当したCPR設備グループの方々に重ねて御礼申し上げます。

Table2-1 固 化 体 リ ス ト

	固化体No.	放射能量	模擬廃液	備 考
第1ラン	B010	3 Ci	SW-7	切 断
第2ラン	B020	100 Ci	SW-7	
第3ラン	B030	200 Ci	SW-8	
第4ラン	B040	300 Ci	SW-7	
第5ラン	B050	300 Ci	SW-11	切 断
第6ラン	B060	3700 Ci	SW-11	切 断
第7ラン	B070	300 Ci	—	ポットメルターラン OTL 廃液 100%
押出しラン(1)	B041	—	SW-6	
押出しラン(2)	B051	—	SW-6	

Table 2-2 模擬廢液組成

項 目		実 廢 液 (固化P/P詳細設計用)	模 擬 廢 液		
			SW-11	SW-7	SW-8
発生量 [m <sup>3</sup> /MTU]		0.3 ~ 1.0	1.0	1.0	0.5
HNO <sub>3</sub> 濃度 [mol/l]		2.0 ~ 7.0	2.5	3.0	6.0
	プロセスイナート				
	Na <sub>2</sub> O	30.40	30.40	15.5	31.0
	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.90 } 31.30	0.90 } 31.30	- } 15.5	- } 31.0
	腐食生成物				
	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	6.20	6.20	14.36	28.60
	Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.30 } 7.20	0.30 } 7.20	0.19 } 14.83	0.38 } 29.26
	NiO	0.70 }	0.70 }	0.28 }	0.28 }
含有 廢棄物 量	FP				
	Rb <sub>2</sub> O	0.34	0.34	0.34	0.66
	Cs <sub>2</sub> O	2.27	2.27	2.27	4.51
	SrO	0.91	0.91	0.90	1.76
	BaO	1.49	1.49	1.49	2.92
	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.55	0.55	0.55	1.11
	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.29	1.29	2.49	5.04
	Ce <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.62	2.62	2.50	5.08
	Pr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.23	1.63	1.23	2.31
	Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	4.16	4.20(Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	4.16	8.27
	Pm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.04		(La <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	(La <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )
	Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.89	0.89	0.89	1.74
	Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.14	0.14	(La <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	(La <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )
	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.07 } 30.53	0.07 } 30.52	(La <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ) } 30.87	(La <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ) } 61.65
	ZrO <sub>2</sub>	4.45	4.45	4.51	8.74
	MoO <sub>3</sub>	4.41	4.41	5.24	10.90
	Tc <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	1.14	1.14(MnO <sub>3</sub> )	(MoO <sub>3</sub> )	(MnO <sub>3</sub> )
	RuO <sub>2</sub>	2.25	2.25	2.24	4.54
	Rh <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.43	0.43	0.43	0.86
	PdO	1.06	1.06	1.06	2.08
Ag <sub>2</sub> O	0.04	0.04	-	-	
CdO	0.06	0.06	-	-	
SnO <sub>2</sub>	0.05	0.05	-	-	
Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.01	-	-	-	
TeO <sub>2</sub>	0.57	0.57	0.57	1.13	
SeO <sub>2</sub>	0.06	0.06	-	-	
	アクチニド				
	UO <sub>3</sub>	6.97	7.51(CeO <sub>2</sub> )	(La <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	(La <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )
	NpO <sub>2</sub>	0.43			
	PuO <sub>2</sub>	0.03 } 7.51			
	Am <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.01			
	Cm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.01			
total		76.54	76.54	61.20	121.91

Table 3-1 物性評価試験従事者

試験Ⅱグループ		分析グループ	
大内	仁	園部	次男
山田	一夫	大内	隆雄
上野	勤	和田	光二
北野	光昭	鈴木	弘之
吉村	光彦	後藤	浩仁
清宮	弘	石井	清登
富永	節夫	諏訪	登志雄 (1985.4~)
狩野	元信 (~1985.3)	鈴木	真二*
宮原	要 (~1985.2)	柴	正憲**
斉藤	誠美 (1985.4~)		
本田	明 (1985.4~)		
藤田	勝利*		
加藤	公明* (~1985.3)		
斉藤	徹* (1985.4~)		

\* 検査開発(株)

\*\* 原子力技術(株)

Table 3-2 物性評価測定結果

		コールド試料	第1ラン固化体	第5ラン固化体
密度 (g/cm <sup>3</sup> )		2.73 * <sup>1</sup>	2.71~2.74	2.73~2.79
特性温度	転移点 (°C)	483~495	491~496	486~496
	屈伏点 (°C)	507~515	510~516	511~515
浸出量 * <sup>2</sup> (g/cm <sup>2</sup> )		8.8×10 <sup>-4</sup>	9.8×10 <sup>-4</sup>	試験準備中

\* 1 コールド試料の密度は CPF で作製した固化体を RTD で測定した値。

\* 2 浸出量は28日間試料の単位面積あたりの重量減少量。

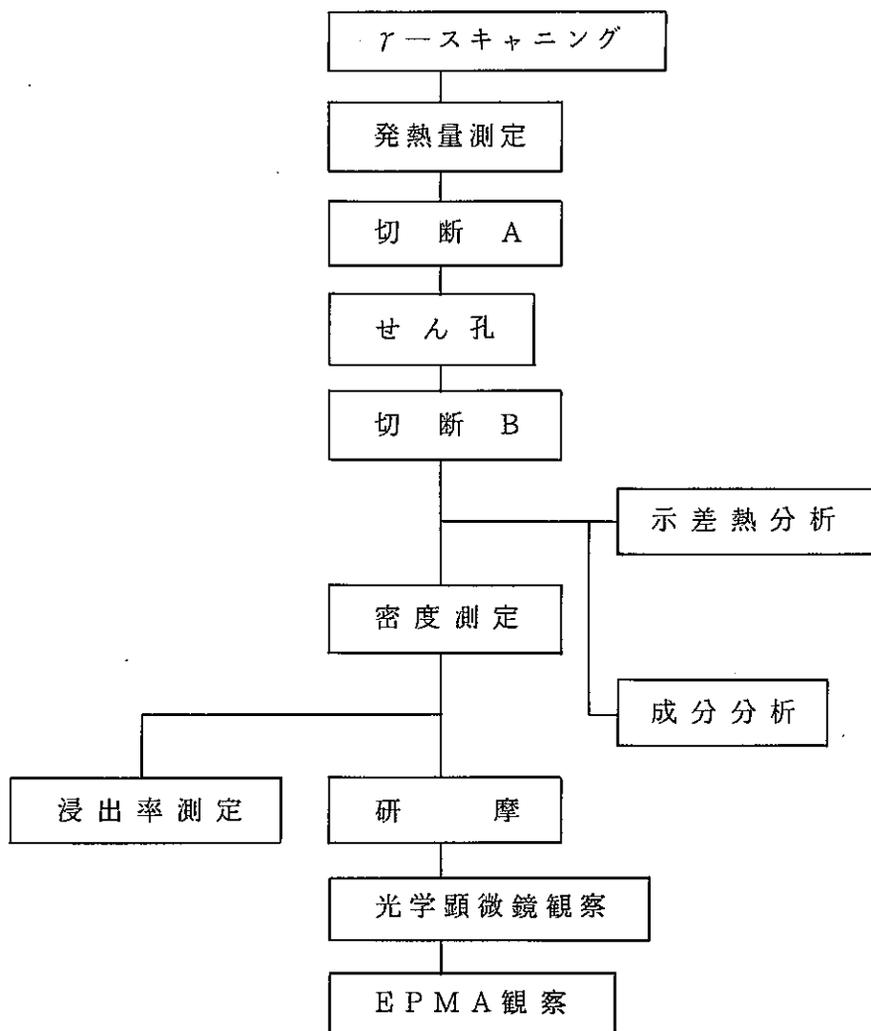
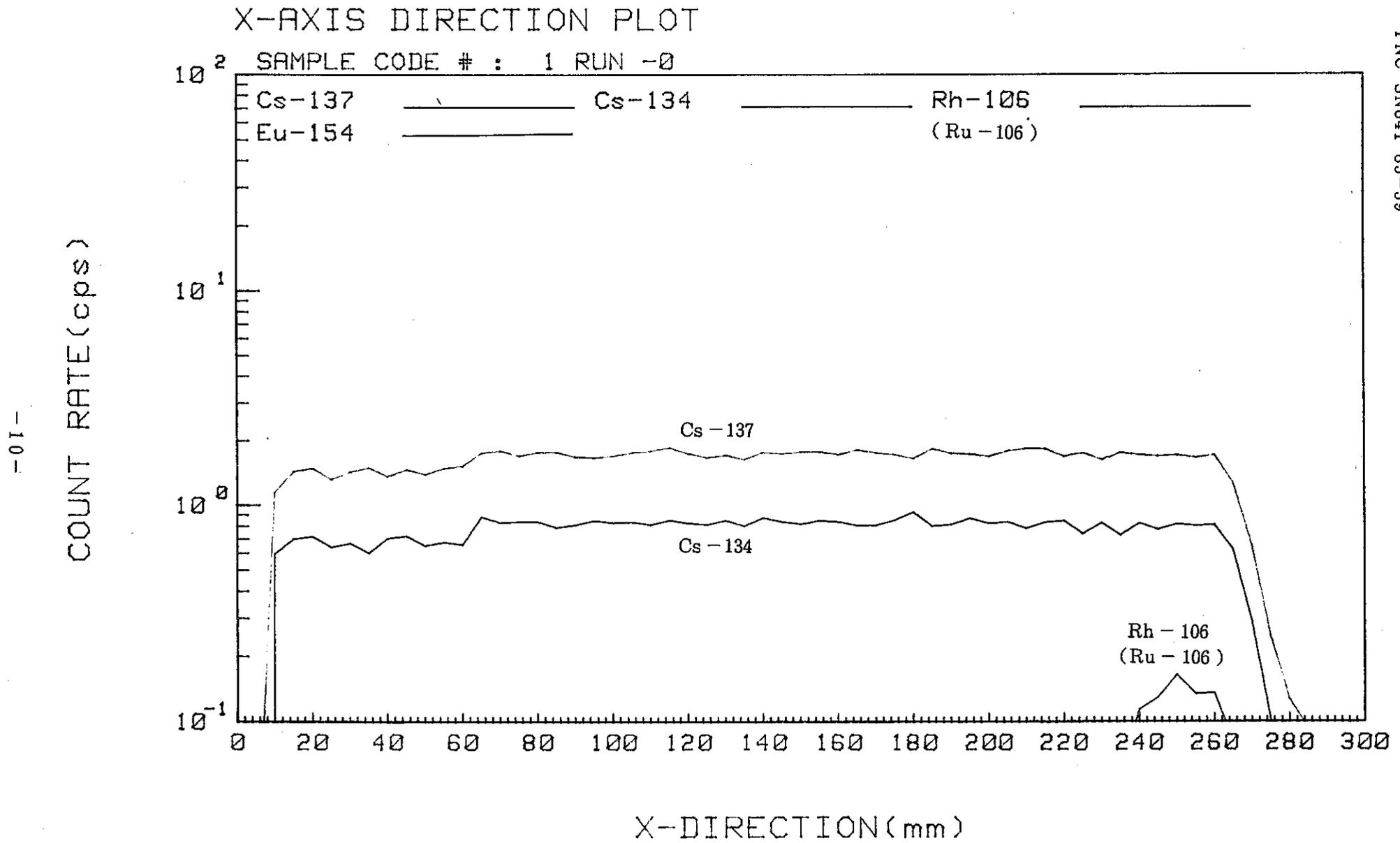


Fig. 3-1 物性評価基本フロー

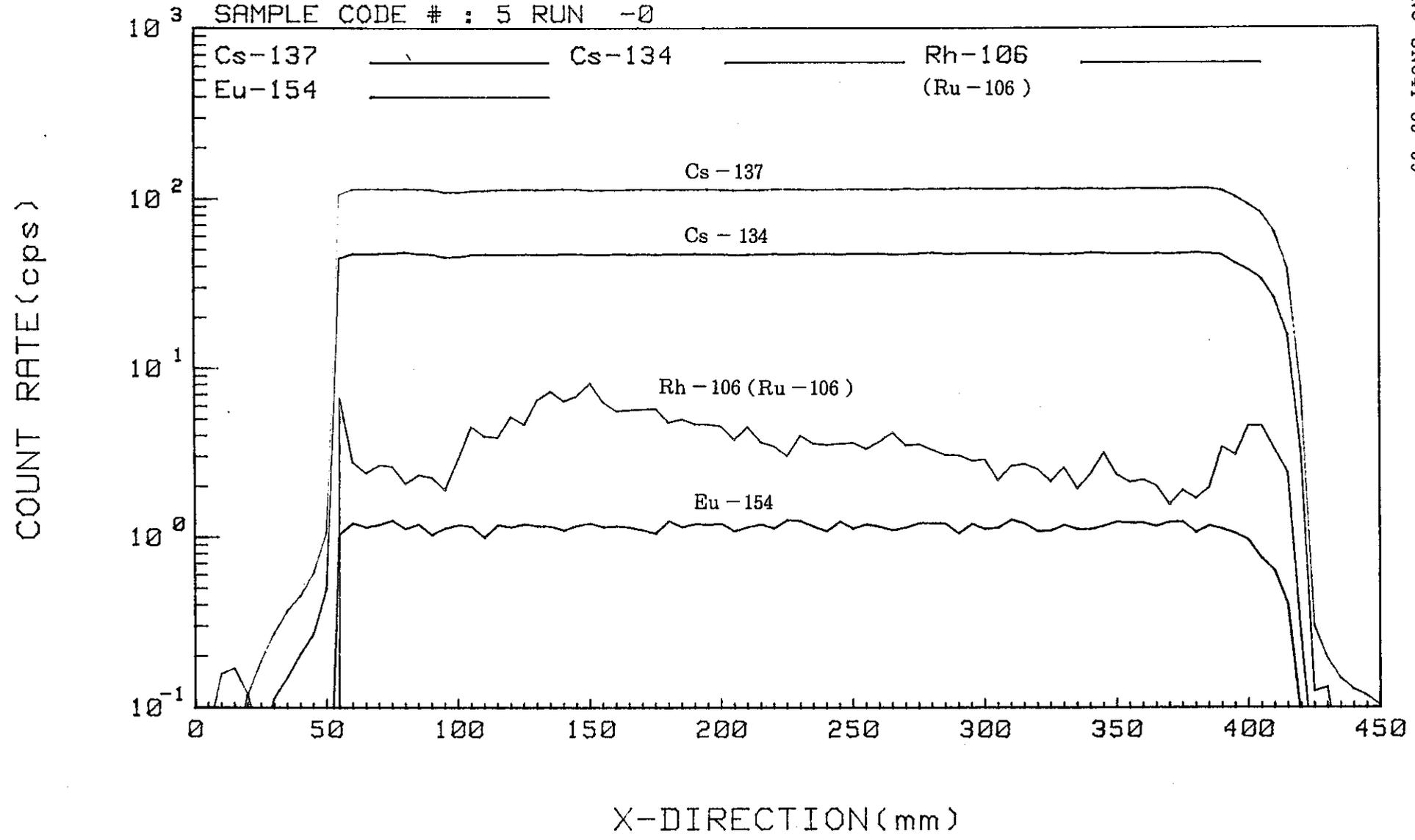


-10-

Fig. 3-2 第1ラン固化体軸方向, アスキャンニング結果

### X-AXIS DIRECTION PLOT

SAMPLE CODE # : 5 RUN -0



-11-

Fig. 3-3 第5ラン固化体軸方向, γスキャン結果

-12-

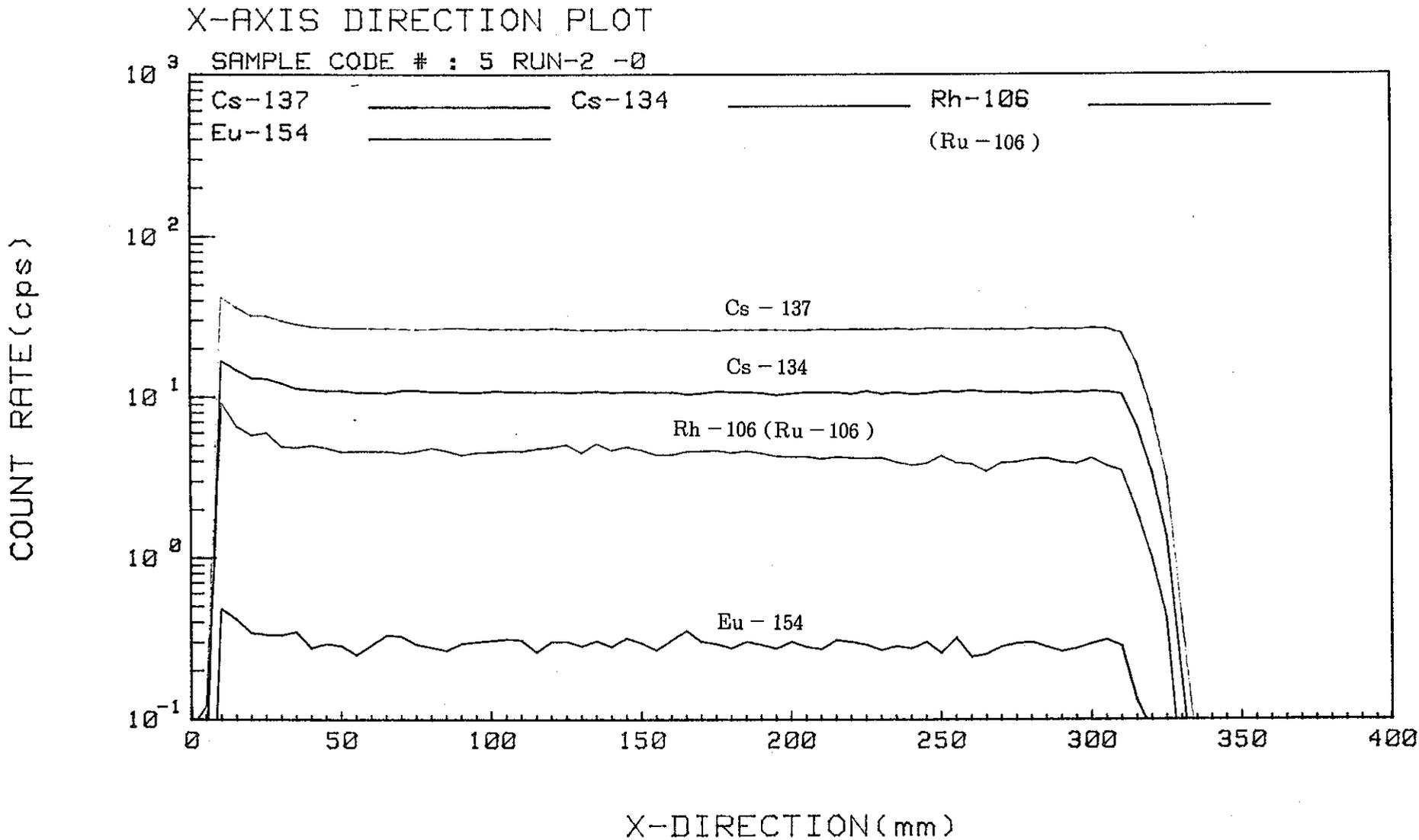


Fig. 3-4 押出しラン(2)固化体軸方向, γスキャン結果



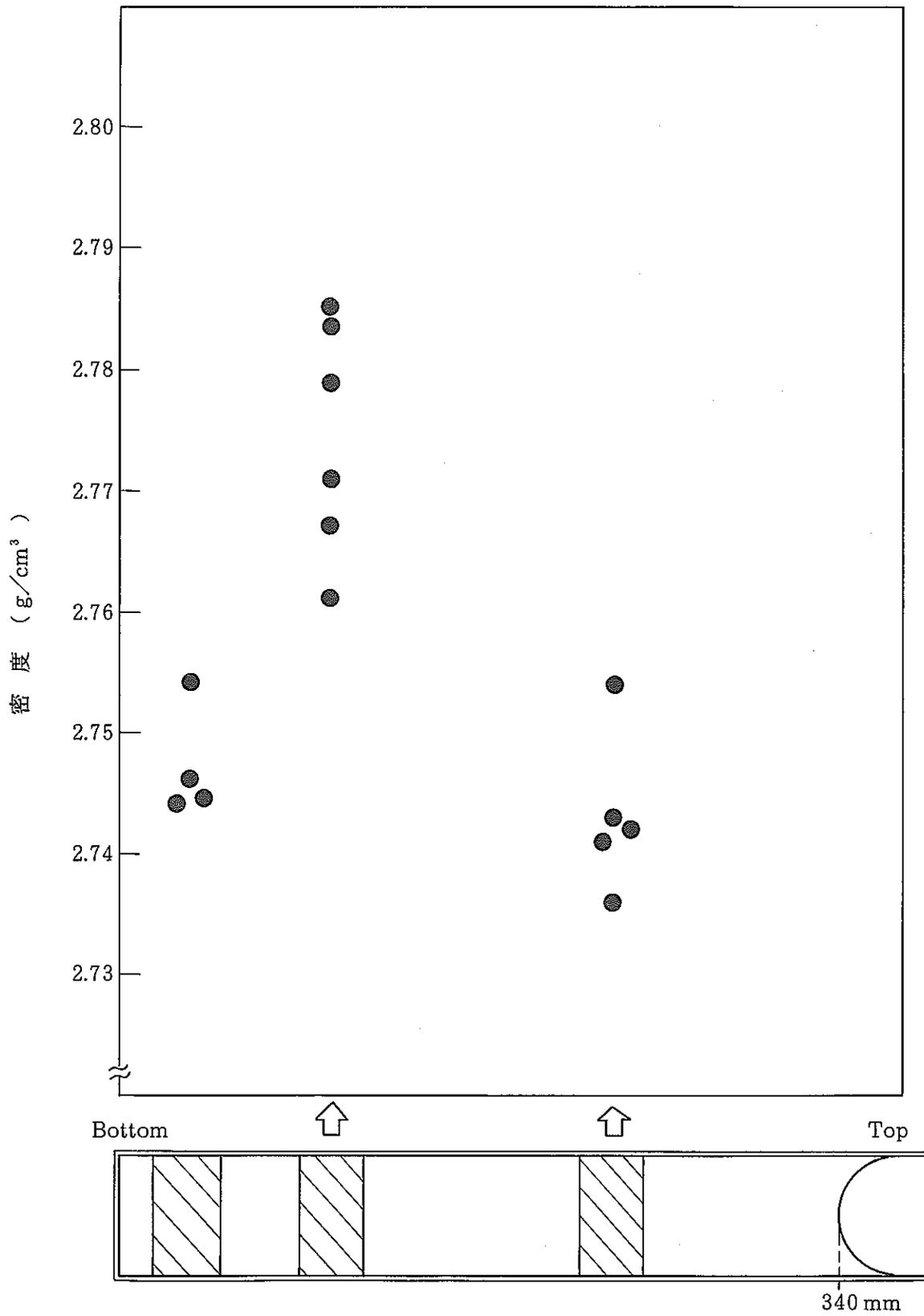


Fig 3 - 6 第5ラン固化体密度測定結果

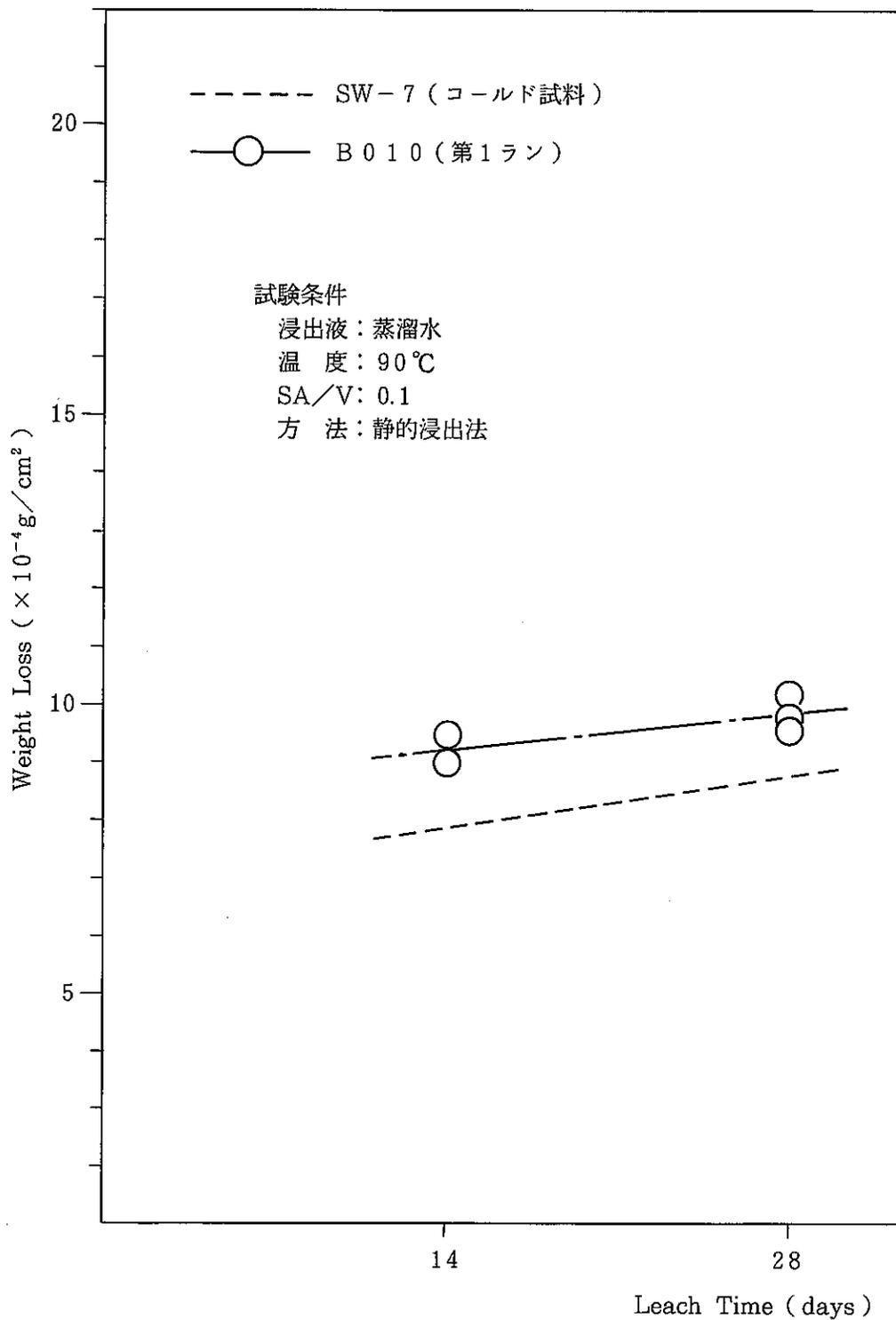


Fig 3 - 7 第1ラン固化体浸出試験結果(重量減少量)

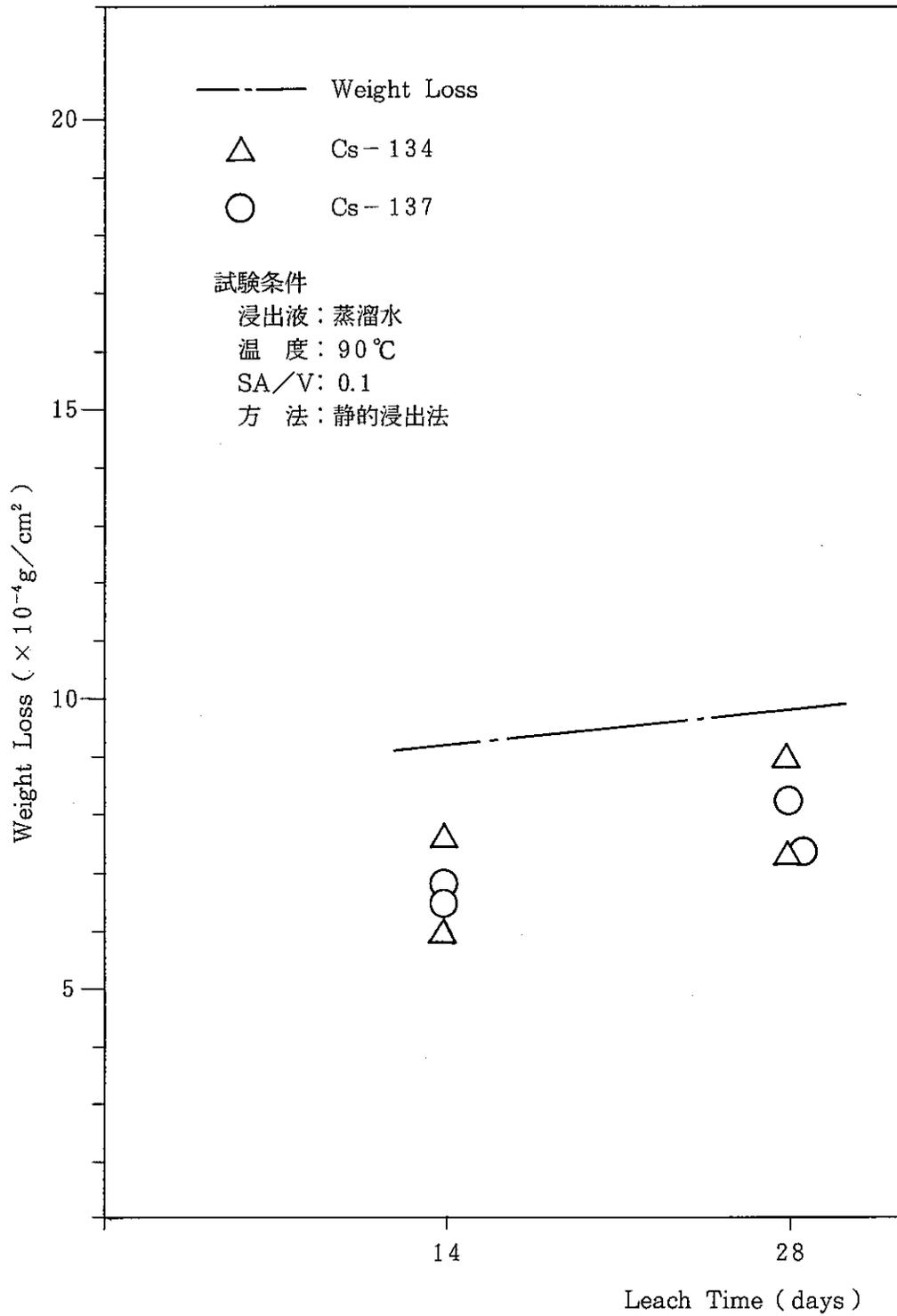
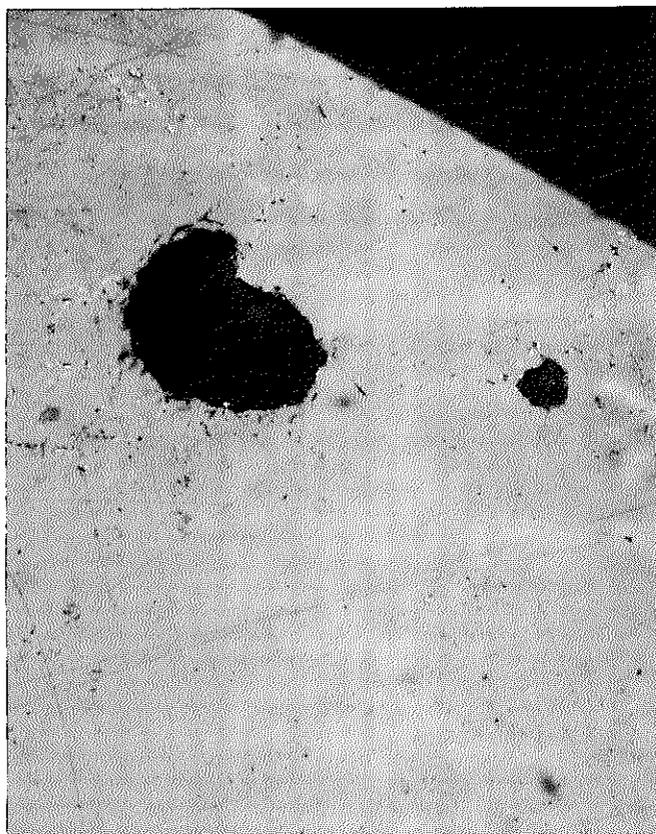


Fig 3-8 第1ラン固化体浸出試験結果(核種分析)

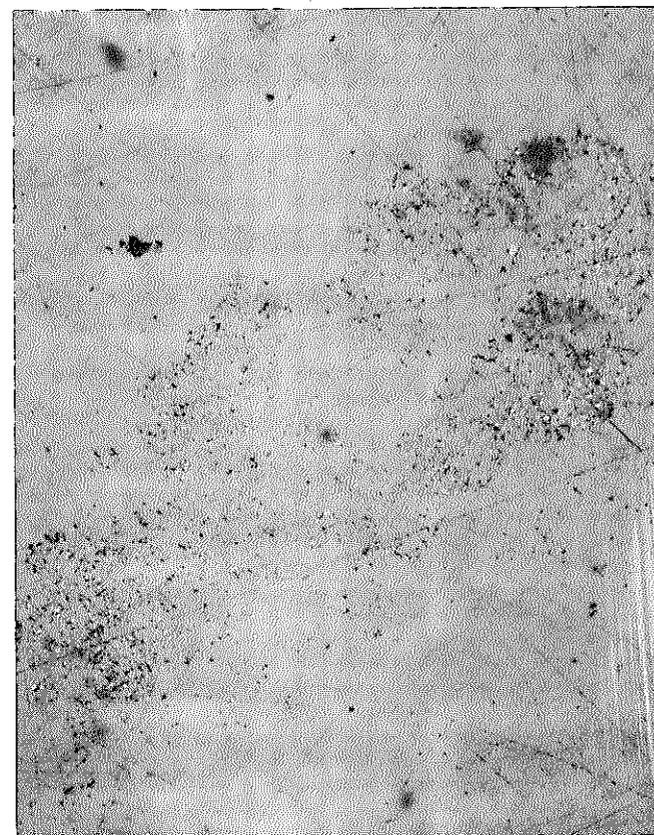
Specimen No. B 010711



OM × 50

400 μm

Photo 3 - 1 第1ラン固化体光顕写真(1)



OM × 50

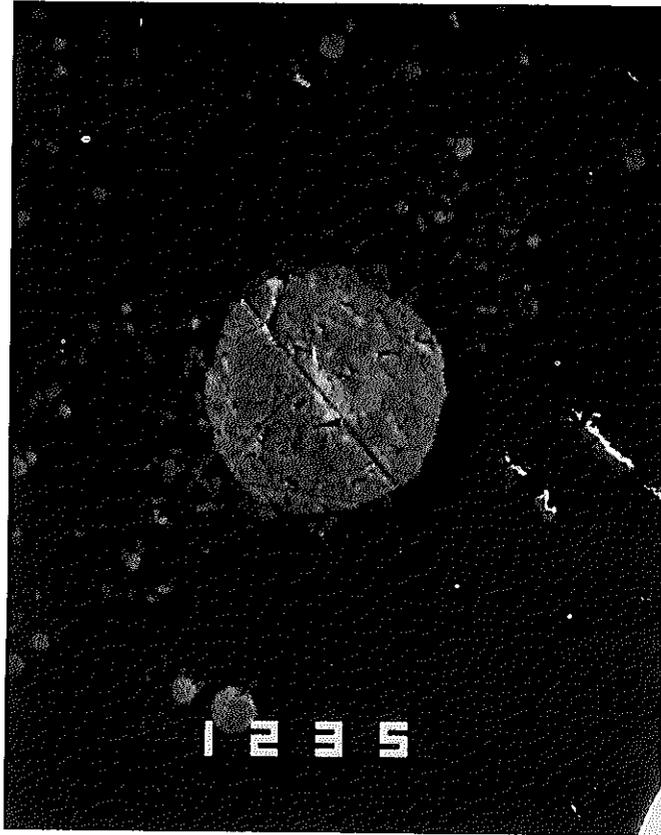
400 μm

Photo 3 - 2 第1ラン固化体光顕写真(2)

Specimen No. B 010711

PNC SN841 85-39

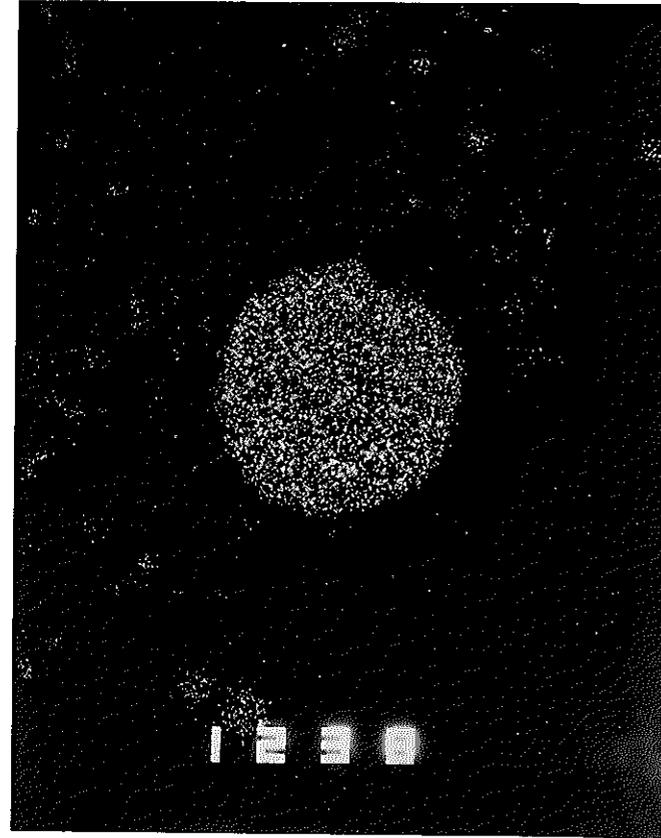
- 18 -



SEI ×1000

20 μm

Photo 3 - 3 第1ラン固化体 EPMA 写真 (二次電子像)



Pd-L $\alpha$  ×1000

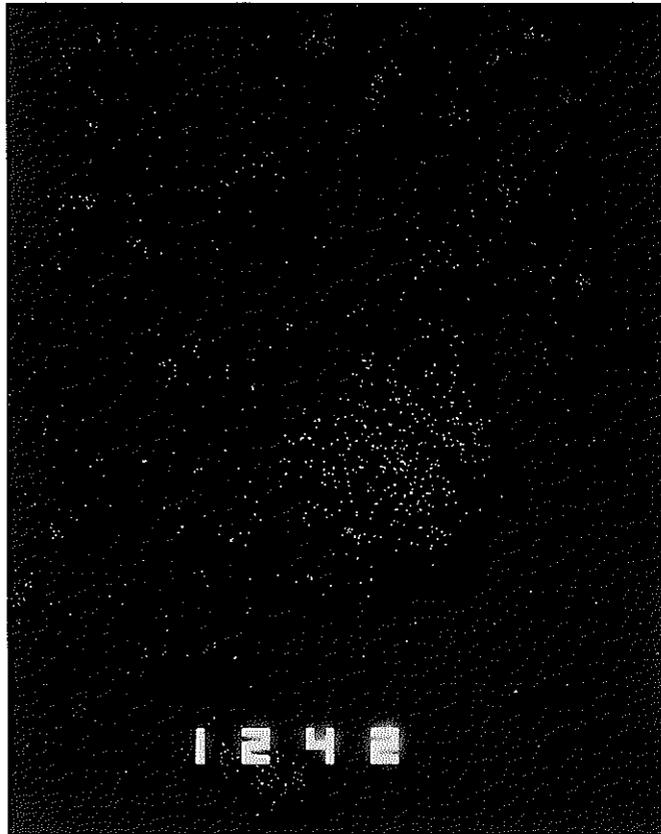
20 μm

Photo 3 - 4 第1ラン固化体 EPMA 写真 (X線像)

Specimen No. B 010711

PNC SN841 85-39

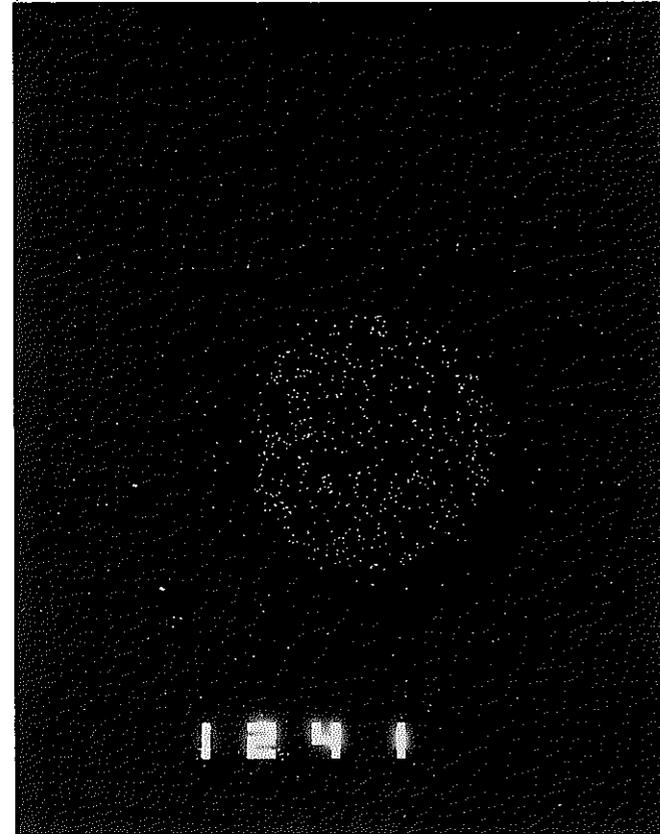
- 19 -



Rh-L $\alpha$        $\times 1000$

20  $\mu$ m

Photo 3 - 5 第1ラン固化体 EPMA 写真 ( X線像 )



Te-L $\alpha$        $\times 1000$

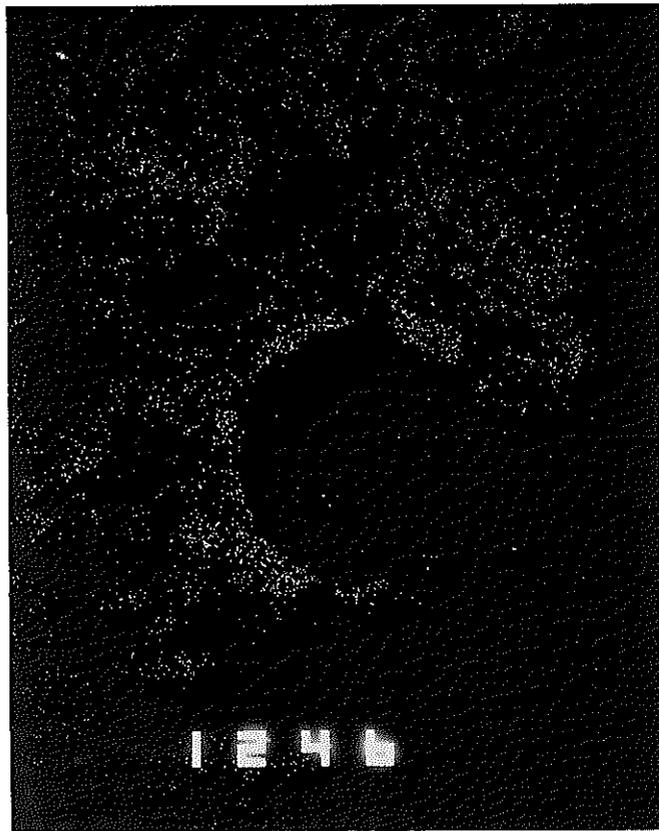
20  $\mu$ m

Photo 3 - 6 第1ラン固化体 EPMA 写真 ( X線像 )

Specimen No. B 010711

PNC SN841 85-39

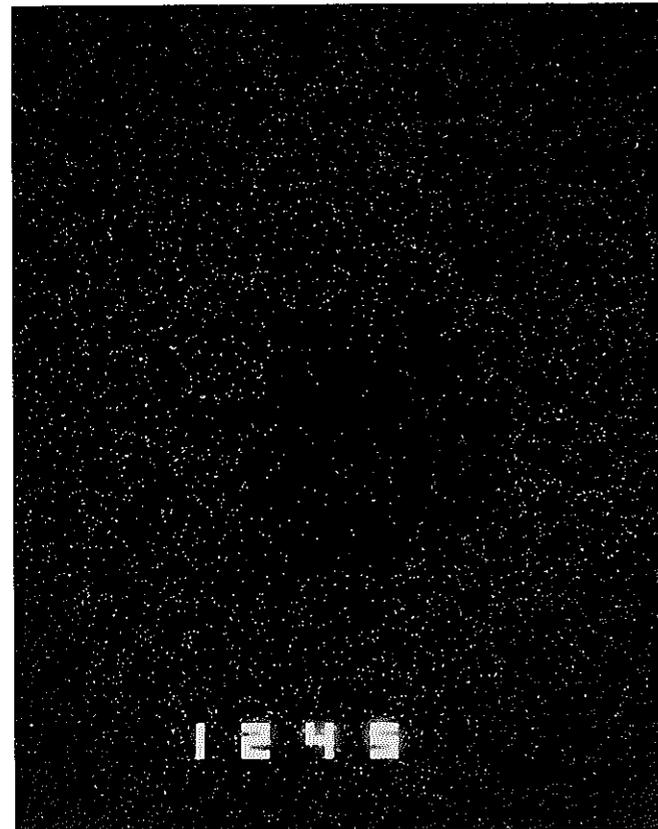
- 20 -



Ru-L $\alpha$        $\times 1000$

20  $\mu$ m

Photo 3-7 第1ラン固化体 EPMA 写真 (X線像)



O-K $\alpha$        $\times 1000$

20  $\mu$ m

Photo 3-8 第1ラン固化体 EPMA 写真 (X線像)