

ガラスと放射性廃棄物処理

1 9 9 7 年 6 月

動力炉・核燃料開発事業団

東 海 事 業 所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4-33

動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所

技術開発推進部・技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :
Technology Management Section Tokai Works Power Reactor and Nuclear
Fuel Development Corporation 4-33, Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development
Corporation) 1997

ガラスと放射性廃棄物処理

報告者 河村 和廣*

要 旨

日本セラミックス協会ガラス部会が主催する「第 29 回ガラス部会夏期若手セミナー（平成 9 年 7 月 31 日～8 月 2 日）」用の講演テキストとして作成した資料である。セミナーの主題は、「20xx 年のガラス研究と開発」であり、本報告では、現在から将来にわたり避けて通れない課題であるエネルギーと環境について、特に原子力及び放射性廃棄物管理との関連を紹介する。また放射性廃棄物のガラス固化技術と材料特性について概要を紹介し、ガラス材料分野の環境技術への展開について将来を展望する。

*環境技術開発部、環境技術第一開発室

目 次

1. はじめに	1
2. エネルギーと環境	1
2.1 エネルギー事情と原子力	1
2.2 環境倫理	1
3. 放射性廃棄物の管理	2
3.1 放射性廃棄物の発生と特徴	2
3.2 放射性廃棄物の処理処分	2
3.3 高レベル放射性廃棄物の処理処分	2
4. 放射性廃棄物のガラス固化	3
4.1 高レベル放射性廃棄物のガラス固化	3
4.1.1 高レベル放射性廃棄物ガラスの組成と構造	3
4.1.2 高レベル放射性廃棄物ガラスの物性	4
4.2 低レベル放射性廃棄物のガラス固化	4
5. ガラス材料分野の環境技術への展開	5
参考文献	6

表 一 覧

表-1 「環境規範」と「指標特性」の変遷 ⁽³⁾	9
表-2 典型的な廃棄物分類ごとの特徴 ⁽¹⁰⁾	9
表-3 高レベル放射性廃棄物ガラス組成 ^{(11) (15)}	9
表-4 ガラス固化体構成元素の一例 ⁽¹⁷⁾	10
表-5 単結合強度によるガラス形成能の分類 ⁽¹⁸⁾	10
表-6 高レベル放射性廃棄物管理に関連する物性 ⁽¹⁷⁾	11
表-7 高レベル放射性廃棄物ガラスの物性の一例 ⁽⁴¹⁾	11
表-8 廃棄物成分のガラスへの溶解度 (1150℃) ⁽²¹⁾	12
表-9 廃棄物含有率変動ガラス中の析出結晶 ⁽²³⁾	12
表-10 廃棄物含有率 40wt%ガラスの熱処理条件による 析出結晶と浸出率の変化 ⁽²³⁾	12
表-11 ガラス固化の適用が検討されている米国原子力施設廃棄物 ⁽³⁸⁾	13
表-12 低レベル放射性廃棄物固化ガラスの組成例 ⁽⁴²⁾	14
表-13 解体核兵器からのPu固化ガラスの組成例 ⁽⁴⁴⁾	14

図 一 覧

図-1 トリレンマの構造 ⁽¹⁾	15
図-2 先進国と途上国の人口とエネルギー消費 ⁽²⁾	15
図-3 世界のエネルギー資源確認埋蔵量 ⁽¹⁾	15
図-4 超長期にみたエネルギー需要と化石燃料の供給曲線 ⁽²⁾	16
図-5 放射性廃棄物とその主な発生源 ⁽⁸⁾	16
図-6 高レベル放射性廃棄物 (ガラス固化体) の放射能減衰 ⁽⁹⁾	17
図-7 高レベル放射性廃棄物 (ガラス固化体) の発熱量減衰 ⁽⁹⁾	17
図-8 高レベル放射性廃棄物処理処分の基本的考え方 ⁽⁸⁾	18
図-9 発電所廃棄物処理処分の基本的考え方 ⁽⁸⁾	18
図-10 TRU核種を含む廃棄物処理処分の基本的考え方 ⁽⁸⁾	18
図-11 ウラン廃棄物処理処分の基本的考え方 ⁽⁸⁾	19

図-12	RI 廃棄物処理処分の基本的考え方 ⁽⁸⁾	19
図-13	TVF メルター ⁽¹¹⁾	20
図-14	処分区画の仕様例と人工バリアの概念図 ⁽⁹⁾	20
図-15	高レベル放射性廃棄物の処分に向けた流れ ⁽⁸⁾	21
図-16	ガラス成分変動による浸出率への影響例 ⁽¹⁶⁾	22
図-17	廃棄物ガラスの構造概念図 ⁽¹⁹⁾	22
図-18	SYNROC 中の結晶相の構造 ⁽¹⁹⁾	22
図-19	SiO ₂ 容積%による密度 (25℃) の変化 ⁽²⁰⁾	23
	廃棄物、Na ₂ O含有率変動ガラス	
	◇ : 0-40、10 wt%	
	▽ : 15、0-30 wt%	
	△ : 0、0-30 wt%	
図-20	廃棄物、Na ₂ O含有率変動ガラスの電気抵抗 ⁽²¹⁾	23
図-21	廃棄物、Na ₂ O含有率変動ガラスの粘度 ⁽²¹⁾	23
図-22	FP 酸化物等の生成自由エネルギー ⁽²²⁾	23
図-23	廃棄物含有率変動ガラスの結晶化範囲 (T-T-T 図) ⁽²³⁾	24
図-24	白金族元素含有率変動ガラスの粘度 ⁽²⁴⁾	24
図-25	白金族元素含有率変動ガラスの電気抵抗 ⁽²⁴⁾	24
図-26	廃棄物ガラス中の元素の拡散係数 ⁽²⁵⁾	24
図-27	廃棄物ガラスからの揮発現象 ⁽²⁶⁾	25
図-28	廃棄物ガラスからの元素浸出/拡散モデル ⁽²⁷⁾	25
図-29	廃棄物ガラス中の結晶成長時間と拡散係数 ⁽²⁸⁾	25
図-30	廃棄物ガラス中のヘリウム拡散モデル ⁽²⁹⁾	25
図-31	廃棄物ガラスの粘度と結晶成長時間 ⁽³⁰⁾	26
図-32	廃棄物ガラスの浸出率と水和自由エネルギーとの関係 ⁽³¹⁾	26
図-33	実規模(Large)と実験室規模(Small)の 模擬廃液固化ガラスの浸出試験結果 ⁽³²⁾	26
図-34	実廃液固化ガラスの浸出試験結果 ⁽³³⁾	27
図-35	244Cm を添加した実廃液固化ガラスの浸出試験結果 ⁽³⁴⁾	27
図-36	低レベル放射性廃棄物固化ガラスの粘度測定例 ⁽⁴²⁾	27
	(組成は表-12参照、P0798 は高レベルガラス)	

ガラスと放射性廃棄物処理

動力炉・核燃料開発事業団

河村和廣

1. はじめに

本報告では、「20xx年のガラス研究と開発」という本セミナーの主題に対し、現在から将来にわたり避けて通れない課題であるエネルギーと環境について、特に原子力及び放射性廃棄物管理との関連を紹介する。また放射性廃棄物のガラス固化技術と材料特性について概要を紹介し、ガラス材料分野の環境技術への展開について将来を展望する。

2. エネルギーと環境

2.1 エネルギー事情と原子力

人類文明の維持・発展を考えると、経済、エネルギー、環境の三要素を同時に達成できない「トリレンマ」(図-1)⁽¹⁾が最大の課題である。人類文明の発展→経済の発展→エネルギー消費の増加→化石燃料の燃焼→大気汚染、地球温暖化等の環境破壊とつながる。エネルギー利用効率の向上、公害防止技術の適用等、各段階での対策がとられているが、先進国と途上国の人口とエネルギー消費の関係(図-2)⁽²⁾の様に、途上国での生活向上と人口増加によりエネルギー消費の増加が予想されている。石油換算で求めた世界のエネルギー資源確認埋蔵量(図-3)⁽¹⁾から資源量としては石炭が多い。一方、ウランはプルトニウムを利用する場合に資源量が最も多くなる。超長期にみたエネルギー需要と化石燃料の供給曲線(図-4)⁽²⁾から22世紀の半ば以降には、エネルギー需要を化石燃料だけでは賄えなくなることが、予想されている。このように超長期に見ると化石燃料の代替エネルギーとして原子力や再生可能エネルギー技術の利用は必須と考えられる。原子力利用に関しては、ウラン資源を有効に利用するために、ウランを燃料として使用した後、そのまま処分するのではなく、使用済燃料から再利用可能なウランと新たに生成したプルトニウムを回収し、利用する核燃料サイクル技術が求められている。また核燃料サイクルの各施設から出る放射性廃棄物を安全に管理(処理処分)する必要がある。

2.2 環境倫理

時代とともに環境への問題意識が、公害防止→生活環境整備→快適環境創造→地球生態系保存と変化しており、対象も個人から社会・人類・自然へと変化している(表-1)⁽³⁾。学問としても環境倫理学として体系化され、次の3原則が提示されている⁽⁴⁾。①現在の

世代は未来の世代の生存と幸福に責任をもつ（世代間倫理）、②単に人格のみならず、自然物もまた最適の生存への権利をもつ（権利アニミズム）、③決定の基本単位は、個人ではなくて地球生態系そのものである（地球全体主義）。

放射性廃棄物に関しても、将来世代に過度の負担を課さないような方法で管理されなければならないという放射性廃棄物管理の原則⁽⁶⁾があり、特に長寿命放射性核種を多く含む廃棄物の場合は、長期にわたり人間が監視、保守、モニタリングなどを行う制度的管理に依存する方法でない方法として、地層処分法が適切な方法とみなされ、各国で研究開発を進めている。今日の原子力利用に伴って発生した廃棄物によって将来の世代に放射能による影響や廃棄物の管理に係るいかなる負担もかけないための責任⁽⁶⁾を果たす必要がある。1995年5月のOECD/NEAの放射性廃棄物管理委員会での集約意見では環境保護及び将来世代への責任等の観点から、地層処分について考察し、これらを踏まえて、放射性廃棄物の地層処分は、世代内及び世代間の公平といった観点及び人間の健康や自然環境の保護といった観点の基本的な要請に適うものであり、その推進を図ることは適当であると結論づけている。^{(7) (8)}

3. 放射性廃棄物の管理

3.1 放射性廃棄物の発生と特徴

核燃料サイクル施設等から発生する放射性廃棄物を図-5⁽⁸⁾に示す。廃棄物は放射性元素として、ウランそのものか、ウランの核分裂の過程で生成する核分裂生成物（Sr、Cs、I、白金族元素等）やアクチノイド元素（Pu、Am等）を含有している。放射性核種は α 線、 β 線、 γ 線を出しながら崩壊し、安定な核種に変化していく。また放射性核種を多く含む高レベル放射性廃棄物の特徴は、高放射能であり、崩壊熱を伴っていることである（図-6、7）⁽⁹⁾。高レベル放射性廃棄物は放射性元素以外の廃棄物成分として再処理施設の工程添加物（Na等）、腐食生成物（Fe等）を含有している。廃棄物中の放射性核種の濃度、半減期により放射性廃棄物が分類され、特徴に応じた適切な処分法が定められる。典型的な廃棄物分類例と特徴を表-2⁽¹⁰⁾に示す。

3.2 放射性廃棄物の処理処分

核燃料サイクル施設等から発生する放射性廃棄物処理処分の基本的考え方を図-8～12⁽⁸⁾に示す。次に、ガラス固化処理する高レベル放射性廃棄物管理の現状を紹介する。

3.3 高レベル放射性廃棄物の処理処分

ガラス固化技術開発施設（Tokai Vitrification Facility：TVF）では、平成7年より東海再処理工場から発生する高レベル放射性廃液を液体供給式直接通電型セラミックメル

ターを使用し、ホウケイ酸ガラスの形態に熔融後、キャニスタへ流下し、固化している（図-13）⁽¹¹⁾。またフランスで固化された高レベル廃棄物（ガラス固化体）が、平成7年より日本へ返還され、六ヶ所村の廃棄物管理施設⁽¹²⁾で貯蔵されている。ガラス固化体は30年から50年間程度冷却のための貯蔵を行い、その後地層処分する計画である⁽¹³⁾。地層処分時には人工バリア（ガラス固化体とその保護容器であるオーバパック及びその周辺岩盤との間に充填する緩衝材からなる）と天然バリア（地層）からなる多重バリアシステムにより長期にわたる安全が確保される（図-14）⁽⁹⁾。現在、2030年代から2040年代半ばの処分場の操業に向けて研究開発及び処分対策を実施している。高レベル放射性廃棄物の処分にに向けた流れを図-15に示す⁽⁸⁾。高レベル放射性廃棄物の処分方策を進めるに当たっては、研究開発を計画的に進めると共に、開かれた議論に基づく国民的合意を形成していくことが重要である。

4. 放射性廃棄物のガラス固化

4.1 高レベル放射性廃棄物のガラス固化

高レベル放射性廃棄物の固化材料としては仮焼体、コンクリート、ガラス（リン酸ガラス、ホウケイ酸ガラス等）、結晶化ガラス、セラミックス（シンロック等）、複合体に大別できる。各国の固化体研究⁽¹⁴⁾の結果、次の諸項目に優れたホウケイ酸ガラスが標準的な固化材料と評価された。①廃液の組成及び量の変動に対し許容幅が広く、廃棄物成分を均一に固化できること。②化学的耐久性、熱的安定性に優れること。③熔融温度を低く（1100～1200℃程度）することが可能であること。昭和59年に原子力委員会が、高レベル放射性廃液をホウケイ酸ガラス固化する方針⁽¹³⁾を定めた。廃棄物管理に求められる機能は、放射性元素の閉じ込めである。ミクロ的なガラス構造中への閉じ込めと共にマクロ的な各種材料による多重の閉じ込めによりその機能を担保する。

4.1.1 高レベル放射性廃棄物ガラスの組成と構造

高レベル放射性廃液は、ホウ素とケイ素とを主成分としたガラス原料とともに約1150℃の高温で熔融される。化学的耐久性等の優れた廃棄物ガラス組成を追及した結果、各国で同様な組成のホウケイ酸ガラスが開発された（表-3）^{(11) (15)}。ガラス成分により、浸出率に与える影響が異なる（図-16）⁽¹⁶⁾。ガラス固化体構成元素を表-4⁽¹⁷⁾の周期律表中に示す。

廃棄物成分は結合強度の大きい網目形成酸化物の構造に閉じ込められている（表-5⁽¹⁸⁾、図-17⁽¹⁹⁾）。結晶材料の場合、廃棄物元素の価数、サイズにより特定の結晶構造に閉じ込められるのに対し（図-18）⁽¹⁹⁾、ガラスの場合は、原子の配列が不規則なため、多様な元素を閉じ込めうるという特徴を持っている。

ガラスの構造と関連する物性としては密度があり、廃棄物含有率、 Na_2O 含有率を変動させたガラスの密度変化 (図-19) ⁽²⁰⁾ は、ガラス構造を反映している。

4.1.2 高レベル放射性廃棄物ガラスの物性

高レベル放射性廃棄物管理に関連する物性及びその一例を表-6、7 ^{(17) (41)} に示す。直接通電法によるガラス溶融、流下時に関連する物性は、電気抵抗、粘度である (図-20、21) ⁽²¹⁾。メルター内へのガラスの閉じ込めは、冷えるとガラスが固まる性質を利用しており、ガラスの流下ノズル部にはフリーズドバルブ方式を採用している ⁽¹¹⁾。

廃棄物成分のガラスへの溶解度、生成自由エネルギー、結晶化試験結果等 (表-8、9、10、図-22、23) ^{(21) - (23)} から廃棄物ガラス中の元素の存在状態、熱的安定性が評価されている。廃棄物ガラス中で白金族元素は、 RuO_2 、Pd-Te の微粒子 (数十 μm 程度) 状態で存在しており、ガラス溶融時に炉底へ沈降し、堆積しないように、炉底部をやや低い温度に保持する運転法や炉底傾斜構造を採用している ⁽¹¹⁾。白金族元素濃度と粘度、電気抵抗との関係を図-24、25 ⁽²⁴⁾ に示す。

溶融時の揮発現象、処分時のガラスからの浸出現象、結晶化、 α 線によるヘリウムバブルの生成といった処理から処分にいたるガラスに関連した現象に共通しているのは元素の拡散である。廃棄物ガラス中の元素の拡散係数と各現象のモデル図を図-26 から図-30 ^{(25) - (29)} に示す。長期にわたる結晶化度は、粘度測定データから拡散係数と粘度との関係を用いて推定されている (図-31) ⁽³⁰⁾。浸出率についてはガラス組成を基に水和自由エネルギーとの関係も研究されている (図-32) ⁽³¹⁾。これらガラスの特性を評価するためには、各種反応に関わる熱力学データ及び元素の拡散に関するデータが基礎データとして重要である。その他、実廃棄物条件及び処分環境条件での長期耐久性を評価するために、実規模と実験室規模の模擬廃液固化ガラスの浸出試験 (図-33) ⁽³²⁾、実廃液固化ガラスの浸出試験 (図-34) ⁽³³⁾、244Cm 添加実廃液固化ガラスの浸出試験 (図-35) ⁽³⁴⁾ を実施している。また天然に存在する玄武岩ガラスがホウケイ酸ガラスと SiO_2 含有率がほぼ同じで浸出挙動が類似していることを利用して、超長期にわたるガラスの耐久性を評価する研究も行われている ⁽³⁵⁾。

4.2 低レベル放射性廃棄物のガラス固化

低レベル放射性廃棄物は発生元により性状が異なるため、固化材料としてセメント、アスファルト、プラスチック、セラミックス、ガラス、金属と多様な材料がある ⁽³⁶⁾。最近、減容性、安定性の観点で優れるガラス固化等の高温溶融処理技術が適用されつつある ^{(37) - (41)}。米国の国防関連の原子力施設から発生する廃棄物でガラス固化の適用が検討されているものを表-11 ⁽³⁸⁾ に示す。原子力発電所、再処理工場から発生するナトリウムを主成分とする低レベル放射性廃棄物をホウケイ酸ガラス等で固化する試験 (表-12、図-36) ⁽⁴²⁾、各種廃棄物を対象としたコールドクルーシブル誘導溶融技術開発等

が実施されている⁽⁴¹⁾。高温溶融技術の進歩により、シンロック等のセラミックス材料の溶融固化試験が始まっている⁽⁴³⁾。また最近、米国を中心として解体核兵器からのPuをランタノイドガラス等で固化する試験を行っている(表-13)⁽⁴⁴⁾。

5. ガラス材料分野の環境技術への展開

廃棄物中に存在する多様な元素をマトリックス中に閉じ込める機能を持つ材料として、ガラスは最適な材料である。高レベル放射性廃棄物の場合のように、材料の原子構造による廃棄物元素の閉じ込め、表面層の形成によるバリアといったミクロの世界での閉じ込め機能から人工バリアと天然バリアで構成されるマクロの世界での閉じ込め機能まで、各種の物性を利用して多重バリアを構築し、超長期にわたり生活環境への影響を防ぐことが可能である。低レベル放射性廃棄物、産業廃棄物へのガラス固化の適用は、処理処分コスト、廃棄物性状、廃棄体としての要件を考慮して判断する必要がある。また、さらに減容、安定化を目指した固化材料開発を進めることにより、コスト低減、リスク低減が可能となる。各種環境における材料の界面での反応、バリア層の形成、吸着等のミクロの現象が解明され、媒体中での拡散、熱力学データ等の基礎データが整備されることにより、元素の状態、挙動、材料の構造、物性が予測評価でき、より閉じ込め機能の優れた新材料を設計し、開発することができると考えられる。

現在の経済性優先で資源を大量消費する社会から、20xx年の社会では、国、世代を越えて地球環境全体を視野にいれ、社会システムとして資源リサイクル、廃棄物発生量低減に取り組む社会へ変化しつつあると思う。社会の中で、経済、エネルギー、環境のバランスが判断され、原子力利用の必要性和それに伴うリスクについても十分認識された上で技術開発を進めることにより、未来の世代への責任が果たせることと思う。

参考文献

- (1) 日本原子力文化振興財団,「原子力」図面集,(1996).
- (2) 内山, 私たちのエネルギー 現在と未来, 化学工学会, 培風館,(1996).
- (3) 内藤,“自然環境の価値は何から導かれるか”, 科学朝日, Dec., 116 (1989).
- (4) 加藤,“環境倫理学からみたエネルギー戦略の未来像”, 日本原子力学会誌, 32 (8), 760 (1990)., 加藤, 環境倫理学のすすめ, 丸善,(1991).
- (5) IAEA, “The Principles of Radioactive Waste Management”, Safety Series No.111-F, (1995).
- (6) IAEA, “ Safety Principles and Technical Criteria for the Underground Disposal of High Level Radioactive Wastes”, Safety Series No.99, (1989).
- (7) OECD/NEA, “The Management of Long-Lived Radioactive Waste The Environmental and Ethical Basis of Geological Disposal An International Collective Opinion by the NEA Radioactive Waste Management Committee”, NEA/RWM/DOC(95)1, (1995).
- (8) 原子力委員会, 原子力白書,(1997).
- (9) 動燃事業団, 高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書, PNCTN 1410 92-081, (1992).
動燃事業団, 動燃技報, No.85, (1993).
- (10) IAEA, “Classification of Radioactive Waste”, Safety Series No.111G-1.1, (1994). 表中 Ref.[4]は IAEA, Safety Series No.111-G-1.5.
- (11) H. Tomikawa, et al., Proc. of 10th Pacific Basin Nuclear Conference, 1273 (1996).
M.Yoshioka, et al., Waste Management, 12, 7 (1992).
吉岡他, 日本原子力学会 1997 年春の年会要旨集第 III 分冊 K56~61, pp.544-549 (1997).
動燃事業団, ガラス固化技術開発施設パンフレット
- (12) 船矢, “高レベル放射性廃棄物貯蔵管理について”, 原子力工業, 41(10), 34 (1995).
- (13) 原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会, 放射性廃棄物処理処分方策について(中間報告) 昭和 59 年 8 月.
原子力開発利用長期計画 昭和 62 年 6 月.
- (14) IAEA, “Chemical Durability and Related Properties of Solidified High-Level Waste Forms”, Technical Report Series No.257, (1985).
W. Lutze, et al., “Radioactive Waste Forms for the Future”, North-Holland, (1988).
- (15) P.M. Saverot, et al., Proc. of SPECTRUM '92, 453 (1992).
P.A. Bonniaud, et al., Proc. of Waste Management '79, (1979).

- J.A.C. Marples, et al., EUR 13389, 302(1991).
E.Ewest, et al., IAEA-CN-48/177, 269(1988).
S.L.Marra, et al.: Proc. of Environmental and Waste Management Issues in the Ceramic Industry, Ceramic Transactions Vol.39, 283(1994).
W.C. Eaton, et al. , Nuclear Waste Management IV, Ceramic Transactions Vol.23, 509(1991).
- (16) S.Torata, et al., Tokai Works Annual Progress Report, PNCT831-81-01, 68 (1981).
- (17) 佐々木, “高レベル放射性廃棄物ガラス固化体の化学的耐久性”, セラミックス, 18(7), 592 (1983)., 佐々木, “高レベル放射性廃棄物のガラス固化処理技術”, NEW GLASS, No.3, (1986).
- (18) K.H. Sun, J. Am. Ceram. Soc., 30, 277 (1947).
- (19) L.L. Hench, et al., Nuclear and Chemical Waste Management, 5, 149 (1984).
- (20) 河村他, 第29回熱測定討論会講演要旨集, M118B, 218(1993).
- (21) K. Kawamura, et al. , Nuclear Waste Management III, Ceramic Transactions Vol.9, 469 (1990).
- (22) D.R. O'boyle, et al. , J. Nuclear Materials, 29, 27(1969) .
- (23) K.Kawamura, et al. , Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol.353, 87(1995).
- (24) H. Igarashi, et al., Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol.257, 169(1992).
- (25) H. Matzke, et al. , J. Nuclear Materials, 201, 295(1993).
- (26) H. Kamizono, et al. , Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol.257, 191(1992).
- (27) Y. Inagaki, et al. , J. Nuclear Materials, 208, 27(1994).
- (28) G. Malow, et al. , Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol.127, 153(1989).
- (29) Y. Inagaki, et al. , Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol.257, 199(1992).
- (30) E.N.Boulos, et al. , J. Am. Ceram. Soc., 63, No.9-10, 496(1980).
- (31) M.J. Plodinec, et al. , Nuclear Waste Management, Advances in Ceramics Vol.8, 491(1984).
- (32) K.Ishiguro, et al., Nuclear Engineering and Design, 116, 61(1989).
K.Ishiguro, et al., Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol.50, 247(1985).
- (33) K.Miyahara, et al , Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol.127, 121 (1989).
K.Miyahara, et al, ISSN0937-4469, Proc. of 2nd International Seminar on Radioactive Waste Products, Requirements for Waste Acceptance and Quality Control, pp.595-608 (1990).
- (34) T.Banba, et al , Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol.353, 1397 (1995).
- (35) 湯佐他, 日本原子力学会誌, 33(9), 890(1991).

- (36) IAEA, "Conditioning of Alpha Bearing Wastes" , Technical Report Series No.326, (1991).
IAEA, "Status of Technology for Volume Reduction and Treatment of Low and Intermediate Level Solid Radioactive Waste" , Technical Report Series No.360, (1994).
- (37) C . Courtois, et al., Nuclear Technology, 115 ,AUG., 198 (1996).
- (38) A.G.Croff, "Identification and Summary Characterization of Materials Potentially Requiring Vitrification" , in "Glass as a Waste Form and Vitrification Technology : Summary of an International Workshop " , National Academy Press, E.10 (1996).
- (39) C.Chapman, Advances in Fusion and Processing of glass, Ceramic Transactions Vol.29, 485 (1993).
- (40) R.C. Eschenbach, et al., Environmental Issues and Waste Management Technologies in the Ceramic and Nuclear Industries, Ceramic Transactions Vol.61, 405 (1995).
- (41) 五十嵐, "放射性廃棄物のガラス固化" , NEW GLASS, 11(3), 11 (1996).
- (42) 例えば、青山他, 日本原子力学会 1997 年春の年会要旨集第 III 分冊 K53, 541 (1997)., 高橋他, 日本原子力学会昭和 58 年秋の分科会予稿集第 II 分冊 K15,223 (1983)., 加藤他, 昭和 60 年秋の分科会予稿集第 II 分冊 K6,230(1985) ., 角屋他, 同 K7,231(1985)., 特開昭 57-30998, 57-30999, 60-25496~25500, 60-42698, 60-145199, 61-99897, 62-24499, 特開平 3-235098, 3-235099.
- (43) I.A. Sobolev, et al., Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol.353, 833 (1995).
A.Oleg, et al., Proc. of SPECTRUM'96, 2130(1996).
- (44) N.E.Bibler, et al., Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol.412, 65 (1996).
T.F. Meaker, et al., Environmental Issues and Waste Management Technologies in the Ceramic and Nuclear Industries II, Ceramic Transactions Vol.72, 409 (1996).
J.K.Bates, et al., Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol.412, 57 (1996).

表-1 「環境規範」と「指標特性」の変遷⁽³⁾

問題	規範	指標特性	
第I期 ● 公害防止	● 個人の生存規範	● 環境基準 ● 複合汚染型指標	} 途上国型
第II期 ● 生活環境整備	● 社会の基本的な生活規範	● 生活質総合指標 ● シビルミニマム	
第III期 ● 快適環境創造	● 住民満足度規範 ● 経済規範 ● 創造・文化・情緒規範	● 住民満足度指標 ● 環境価値の経済評価指標 ● 地域個性指標	} 先進国型
第IV期 ● 地球生態系保全 ● 貴重生物種保護	● 人類の持続的生存規範 (持続性、安定性...) ● 自然との共生規範 (倫理性、希少性、脆弱性...)	● 持続的利用指標 ● 環境資源の賦存量 (ストック) 指標	

表-2 典型的な廃棄物分類ごとの特徴⁽¹⁰⁾

Waste classes	Typical characteristics	Disposal options
1. Exempt waste (EW)	Activity levels at or below clearance levels given in Ref. [4], which are based on an annual dose to members of the public of less than 0.01 mSv	No radiological restrictions
2. Low and intermediate level waste (LILW)	Activity levels above clearance levels given in Ref. [4] and thermal power below about 2kW/m ³	
2.1. Short lived waste (LILW-SL)	Restricted long lived radionuclide concentrations (limitation of long lived alpha emitting radionuclides to 4000 Bq/g in individual waste packages and to an overall average of 400 Bq/g per waste package); see paragraphs 324 and 325	Near surface or geological disposal facility
2.2. Long lived waste (LILW-LL)	Long lived radionuclide concentrations exceeding limitations for short lived waste	Geological disposal facility
3. High level waste (HLW)	Thermal power above about 2kW/m ³ and long lived radionuclide concentrations exceeding limitations for short lived waste	Geological disposal facility

表-3 高レベル放射性廃棄物ガラス組成^{(11) (15)}

固化施設名	TVF	R7/T7	AVM	WVP	PAMELA	DWPF	WVDP	
ガラス組成 (重量%)	SiO ₂	46.7	45.1	40.0	46.3	53.60	51.90	43.43
	B ₂ O ₃	14.3	13.9	16.0	16.4	13.24	8.05	10.28
	Al ₂ O ₃	5.0	4.9	13.0	4.9	4.02	4.16	6.55
	Li ₂ O	3.0	2.0	—	4.0	3.86	4.44	3.15
	CaO	3.0	4.0	—	—	4.69	1.03	0.50
	ZnO	3.0	2.5	—	—	—	—	0.02
	Na ₂ O	10.0	9.8	17.0	8.3	8.62	9.13	11.44
	FP酸化物	9.9	12.8	4.0	11.1	TiO ₂ 4.45	21.29 **** (10.91)	24.63 ***** (12.12)
	その他酸化物	5.1	5.0	10.0	9.0	SO ₃		
						その他		
			** (5.0)	*** (5.4)	7.17			
備考		*Zr酸化物、 金属粒含む	** Fe ₂ O ₃ 分 単用廃液 固化組成	***MgO分 マグノック ス廃液固化 組成	LEWC廃液 固化組成	**** Fe ₂ O ₃ 分 混合廃液 固化組成	***** Fe ₂ O ₃ 分	

表-4 ガラス固化体構成元素の一例⁽¹⁷⁾

I H	金属元素																非金属元素					0
IA	IIA															IIIA	IVA	VIA	VIIA	VIIIA	2 He	
3 Li ○ 3 PC	4 Be															5 B ○ 3 PC	6 C	7 N	8 O ○ 3 PC	9 F	10 Ne	
11 Na ○ 3 PC	12 Mg △ 2															13 Al ○ 3 PC	14 Si ○ 3 PC	15 P ○ 3 PC	16 S	17 Cl	18 Ar	
19 K ○ 3 PC	20 Ca ○ 3 PC	21 Sc	22 Ti △ 2	23 V	24 Cr ○ 3 PC	25 Mn	26 Fe ○ 3 PC	27 Co	28 Ni ○ 3 PC	29 Cu	30 Zn ○ 3 PC	31 Ga	32 Ge	33 As	34 Se	35 Br	36 Kr					
37 Rb ○ 3 PC	38 Sr ○ 3 PC	39 Y ○ 3 PC	40 Zr ○ 3 PC	41 Nb	42 Mo ○ 3 PC	43 Tc ○ 3 PC	44 Ru ○ 3 PC	45 Rh ○ 3 PC	46 Pd ○ 3 PC	47 Ag ○ 3 PC	48 Cd ○ 3 PC	49 In	50 Sn ○ 3 PC	51 Sb ○ 3 PC	52 Te ○ 3 PC	53 I	54 Xe					
55 Cs ○ 3 PC	56 Ba ○ 3 PC	57 La ○ 3 PC	58 Ce ○ 3 PC	59 Pr ○ 3 PC	60 Nd ○ 3 PC	61 Pm ○ 3 PC	62 Sm ○ 3 PC	63 Eu ○ 3 PC	64 Gd ○ 3 PC	65 Tb ○ 3 PC	66 Dy ○ 3 PC	67 Ho	68 Er	69 Tm	70 Yb	71 Lu	87 Fr					
88 Ra	89 Ac	90 Th	91 Pa	92 U ○ 3 PC	93 Np ○ 3 PC	94 Pu ○ 3 PC	95 Am ○ 3 PC	96 Cm ○ 3 PC	97 Bk	98 Cf	99 Es	100 Fm	101 Md	102 No	103 Lr	104 Ku	85 Rn					

- ガラス固化体成分 1 ガラス形成元素 2 中間元素 3 修飾元素 4 陰イオン
- フリット成分 FP 核分裂生成物 AC アクチニド CP 廃食生成物 DP 抽出溶媒劣化物 PC 工程試薬
- △ フリット成分として可能性のある元素 *) 酸化物換算で10⁻³wt%以上含まれる元素
- 高レベル廃棄物

表-5 単結合強度によるガラス形成能の分類⁽¹⁸⁾

	MO _y /x	MO _y /x	MO _y /x	単結合強度 (kcal/mol)
		1モル当りの解離 エネルギー (kcal)	Mの酸素 配位数	
網目形成物	B ₂ O ₃ /2	356	3	119
	SiO ₂	424	4	106
	Al ₂ O ₃ /2	402-317	4	101-79
	B ₂ O ₃ /2	356	4	89
	P ₂ O ₅ /2	442	4	111-88
	ZrO ₂	485	6	81
中間物	ZnO	144	2	72
	Al ₂ O ₃ /2	317-402	6	53-67
	ThO ₂	516	8	64
	ZrO ₂	485	8	61
網目修飾物	La ₂ O ₃ /2	406	7	58
	Y ₂ O ₃ /2	399	8	50
	ThO ₂	516	12	43
	Li ₂ O/2	144	4	36
	ZnO	144	4	36
	CaO	257	8	32
	SrO	256	8	32
	Na ₂ O/2	120	6	20
	K ₂ O/2	115	9	13
	Cs ₂ O/2	114	12	10

表-6 高レベル放射性廃棄物管理に関連する物性⁽¹⁷⁾

工 程		関 連 物 性
ガラス 固化体 の製造	ガラス溶融 ↓	電気抵抗, 揮発性, 高温粘性 液相温度, 酸化物溶解度
	容器への注入 ↓	密度, 高温粘性
	冷 却 ↓	熱伝導率, 比熱, 発熱量 熱膨張係数, 結晶化速度
	保 管 ↓	熱伝導率, 発熱量 結晶化速度
	精 送 ↓	熱伝導率, 発熱量, 結晶化速度,
貯 蔵 ↓	熱伝導率, 発熱量 結晶化速度	
処 分	浸出特性 (温度, 圧力, pH/Eh, 地下水組成, 放射線照射量, 地下水流速, 共存物質 等)	

表-7 高レベル放射性廃棄物ガラスの物性の一例⁽⁴¹⁾

物 性	条 件	測定値
密 度 [kg/m ³]	室温	2.74×10 ³
熱膨張係数 [×10 ⁻⁷ /K]	室温~500℃	88
熱伝導率 [W/mK]	100℃	1.0
比 熱 [kJ/kg·K]	100℃	0.9
転 移 点 [℃]		501
粘 度 [dPa·s]	1150℃	40
浸 出 率 [×10 ⁻⁴ kg/(m ² ·d)]	90℃, static(MCC-1法)	2.3
ヤング率 [GPa]	室温	86
曲 げ 強 度 [MPa]	W ₂₀ ×10×100mm, 室温 表面は切断砥石による切断面	75

表-8 廃棄物成分のガラスへの溶解度 (1150°C) ⁽²¹⁾

Component	Solubility(wt%)	Crystalline Phases
P ₂ O ₅	2	(P,Ca)oxide, (P,Ce,Nd)oxide
Fe ₂ O ₃	16	Fe ₂ O ₃
NiO	7	(Ni,Fe,Zn)oxide
Cr ₂ O ₃	1	(Cr,Fe,Zn)oxide
ZrO ₂	10	ZrSiO ₄ , ZrO ₂
MoO ₃	3	(Mo,Cr)yellow phase
PdO	0.05	Pd-Te
RuO ₂	<0.1	RuO ₂
Gd ₂ O ₃	20	Ca ₂ Gd ₃ (SiO ₄) ₂ O ₂

表-9 廃棄物含有率変動ガラス中の析出結晶 ⁽²³⁾

	Waste Content / wt%								
	25	30	35	40	45	50	55	60	65
XRD				RuO ₂			CeO ₂ , Apatite		
EPMA				Spinel				CeO ₂	
				RuO ₂			Apatite		
				Pd-Te-(Rh)					
	Rh	Ru	Rh	Rh	Rh	Rh	Pd,Rh	Rh	

表-10 廃棄物含有率40wt%ガラスの熱処理条件による析出結晶と浸出率の変化 ⁽²³⁾

Heat treatment	Crystals *1	Normalized leach rate *2 / 10 ⁻⁴ kgm ⁻² d ⁻¹								Weight loss rate*2
		Si	B	Li	Ca	Al	Na	Sr	Mo	
as prepared	None	4.0	10.1	6.4	1.4	2.2	5.3	1.3	7.0	2.4
450°C, 1000h	None	2.7	5.7	6.2	2.5	3.3	7.9	1.1	1.4	2.4
550°C, 1000h	Ap,C	3.2	6.3	6.9	2.6	5.0	7.7	1.0	0.5	2.8
650°C, 1000h	Ap,C	3.1	19.7	20.8	0.3	1.8	15.8	0.2	16.0	4.4
700°C, 1000h	Ac,Ap,C,S	2.7	7.5	8.4	1.3	3.3	8.2	0.8	13.0	2.5
750°C, 1000h	Ac,Ap,C,S	1.3	2.3	3.3	1.1	1.3	3.5	0.4	7.4	1.1
800°C, 1000h	Ac,Ap,C,S	1.7	3.0	4.1	2.0	3.7	4.3	1.5	4.7	1.6
900°C, 1000h	Ap,C,S	2.2	3.8	5.0	2.2	4.8	5.0	1.5	4.3	2.0
950°C, 30h	C,S	2.5	4.3	4.9	0.9	3.4	4.8	1.0	5.5	2.0
1000°C, 30h	S	2.1	3.4	3.8	0.9	3.8	3.7	1.0	3.4	1.6
1050°C, 30h	S	2.6	3.9	4.7	1.0	4.0	4.3	0.9	5.3	2.0
1100°C, 30h	S	2.2	2.8	3.7	1.1	5.5	3.3	1.1	3.4	1.7

* 1: crystals detected by XRD (Ac: acmite, Ap: apatite, C: cerium oxide, S: spinel)

* 2: static leach test: 98°C, 1d, distilled water, SA/V=300m⁻¹

表-11 ガラス固化の適用が検討されている米国原子力施設廃棄物⁽³⁸⁾

Material Type	Volume, m ³ or m ³ /yr ^a	Radioactivity Density, Ci/m ³	Power Density, W/m ³	Material Description	Vitrification Possibilities
1. Spent civilian nuclear fuel	12000	10,000,000	50000	Light-water reactor spent fuel	Unlikely unless required by repository
2. DOE spent fuel	1200	Not quantifiable; Moderate-to-high	Not quantifiable; Moderate-to-high	Variety of spent fuels	Likely for Al-clad fuels, possible for others
3. DOE "tank" wastes	375000	1,000 - 10,000	5 - 50	Alkaline liquid, saltcake, sludge; calcine	Highly likely for essentially all retrieved tank waste
4. Capsules: Cs Sr	3.5 1.1	23,000,000 21,000,000	115,000 140,000	Capsules of CsCl Capsules of SrF ₂	Likely if overpack is unacceptable
5. Transuranic wastes Remotely handled Contact handled	2,500 + 14/yr 70,000 + 1500/yr	1,000 25 - 50	1 - 2 0.5 - 1.5	Wide variety of materials with TRU >100 nCi/g	Likely for only a small fraction unless WIPP-WAC change substantially
6. Low-level radioactive waste DOE Commercial: Class A Commercial: Class B Commercial: Class C Commercial: > Class C	38,000/yr 24,000/yr ^b 63 + 20/yr	9 - 27 0.6 60 0.1 - 7,000 >0.1 - high	0.01 - 0.05 0.03 - 0.1 15 0.003 - 115 >0.003 - high	Extremely wide variety of materials with <100 nCi/g	Likely for LLW from tank waste processing. Unlikely for most other LLW.
7. Low-level mixed waste Commercial DOE	2,100 138,000	Not quantifiable; low	Not quantifiable; low	Extremely wide variety of materials with <100 nCi/g and hazardous chemicals	Likely in selected applications, but extent is unpredictable
8. Surplus plutonium	2	11,000,000	44,000	Plutonium metal shapes	Either vitrification or irradiation will be used
9. Environmental restoration	78,000,000	Not quantifiable; low with small- volume exceptions	Not quantifiable Low with small- volume exceptions	Extremely wide variety of materials and contamination	High-toxicity wastes and some in-situ are likely. Unlikely for the bulk of the waste.

^a Fixed values are existing volumes which are given where production has essentially ceased or where disposal rates are approximately equal to production rates. Rates are given where volumes continue to increase significantly.

^b Sum of annual production rates for Classes A, B, and C.

表-12 低レベル放射性廃棄物固化ガラスの組成例⁽⁴²⁾

(wt%)

		P1225	P1226
ガラス 成分	SiO ₂	47.7	0
	B ₂ O ₃	11.1	3.9
	Al ₂ O ₃	10.5	15.7
	P ₂ O ₅	0	41.1
廃棄物 成分	Na ₂ O	22.6	28.9
	P ₂ O ₅	8.1	10.4

表-13 解体核兵器からのPu 固化ガラスの組成例⁽⁴⁴⁾

Oxide	Weight Percent		
	15 Wt.% ^a	7 Wt.% ^b	
	Pu	Pu	Am/Cm ^b
SiO ₂	26.3	34.6	31.4
B ₂ O ₃	4.3	5.1	3.9
BaO	4.4	3.8	4.9
Al ₂ O ₃	9.5	9.0	11.8
ZrO ₂	0.2	0.1	c
La ₂ O ₃	23.2	9.3	5.5
Sm ₂ O ₃	6.1	18.4	2.7
PbO	11.1	13.0	13.1
PuO	15. ^d	6.9 ^e	0.3
Ce ₂ O ₃	c	c	4.9
Nd ₂ O ₃	c	c	10.9
Gd ₂ O ₃	c	c	1.5
Pr ₂ O ₃	c	c	5.5
Eu ₂ O ₃	c	c	0.6
Cm/Am/Pu	-	-	<0.1

^aAs batched composition^bAs analyzed composition^cNot present^dAdded as PuO₂^eAdded as Pu dissolved in HNO₃

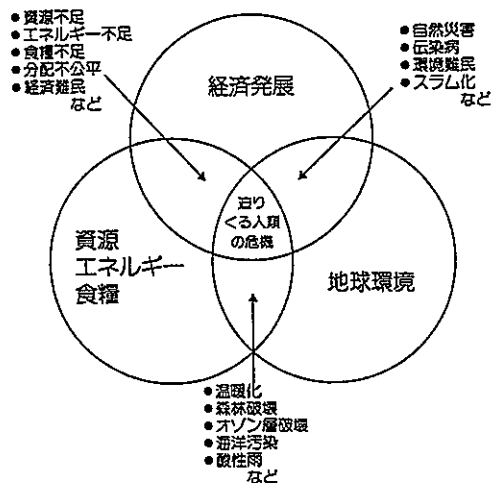


図-1 トリレンマの構造 (1)

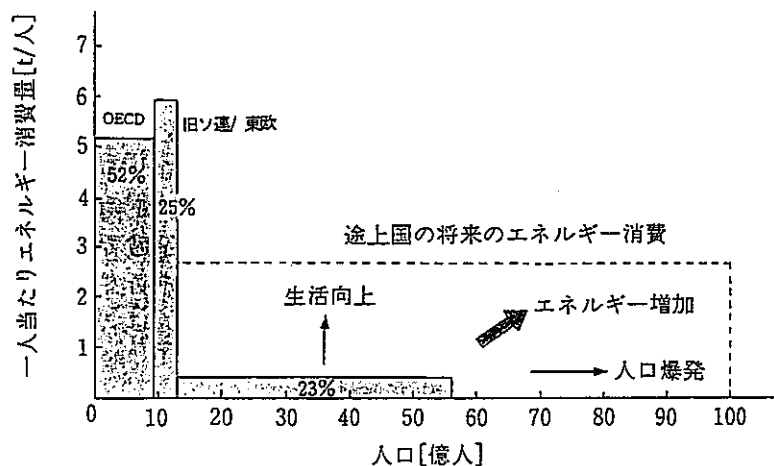


図-2 先進国と途上国の人口とエネルギー消費 (2)

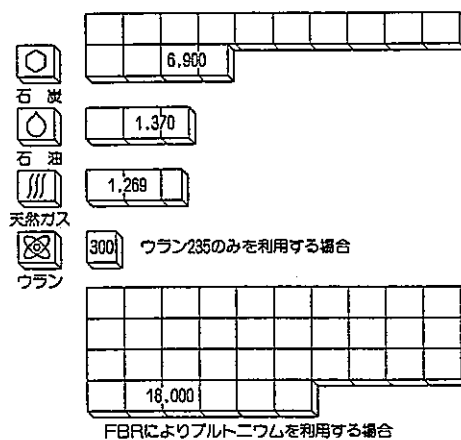


図-3 世界のエネルギー資源確認埋蔵量 (1)

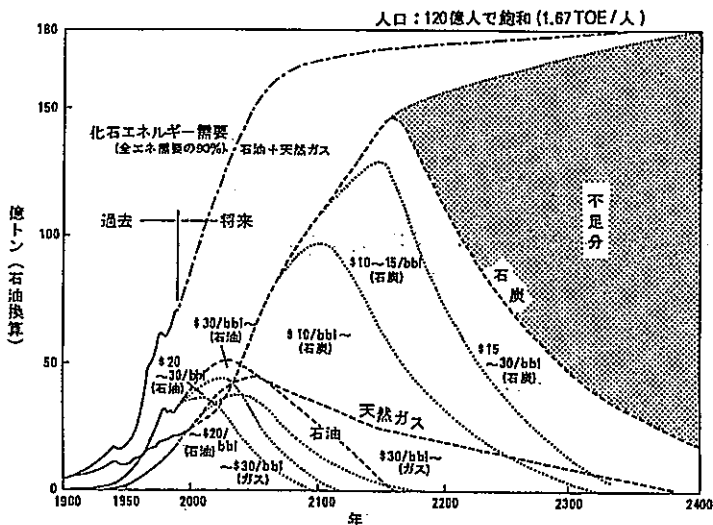


図-4 超長期にみたエネルギー需要と化石燃料の供給曲線 (2)

放射性廃棄物とその発生源

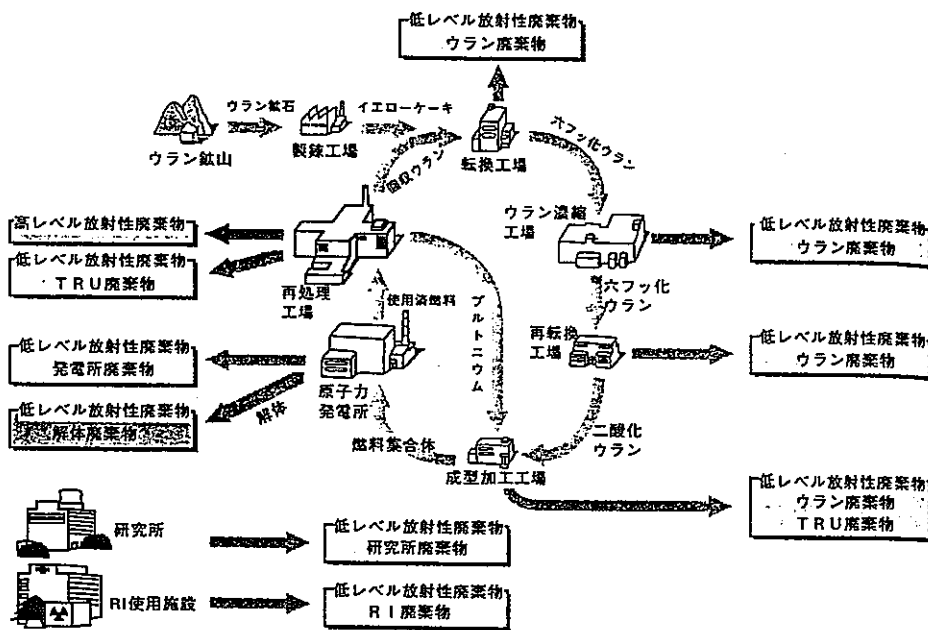


図-5 放射性廃棄物とその主な発生源 (8)

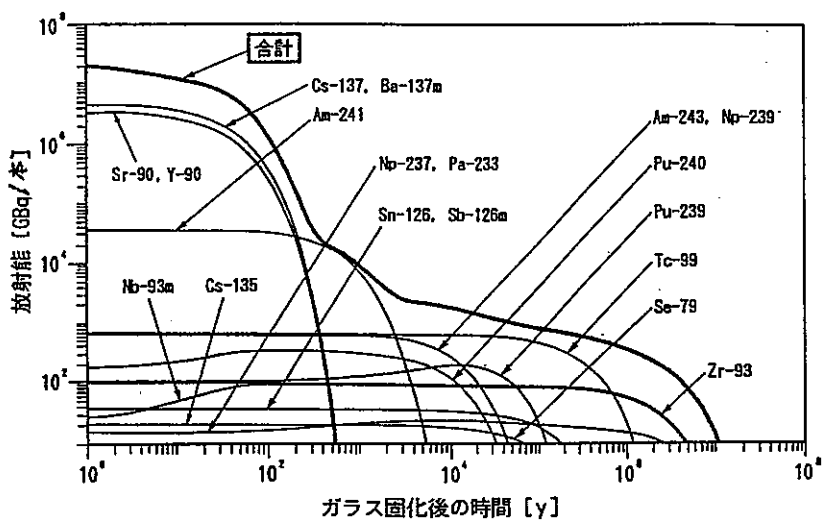


図-6 高レベル放射性廃棄物（ガラス固化体）の放射能減衰⁽⁹⁾

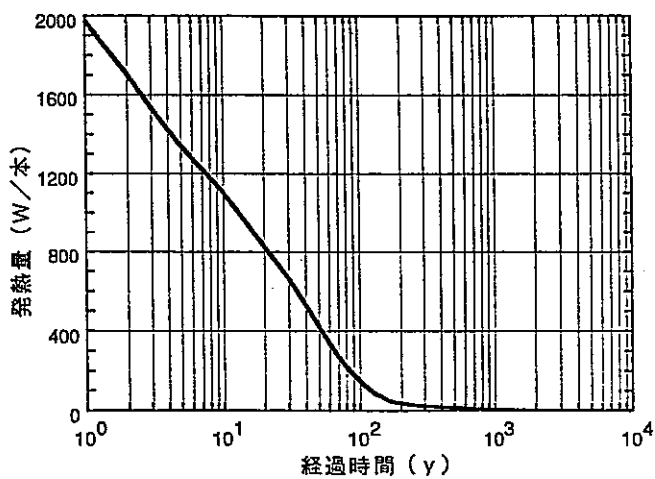


図-7 高レベル放射性廃棄物（ガラス固化体）の発熱量減衰⁽⁹⁾

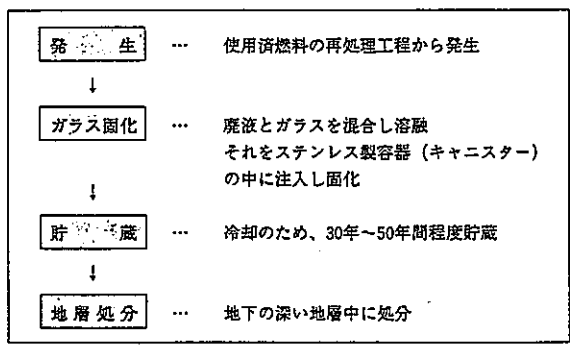


図-8 高レベル放射性廃棄物処理処分の基本的考え方⁽⁸⁾

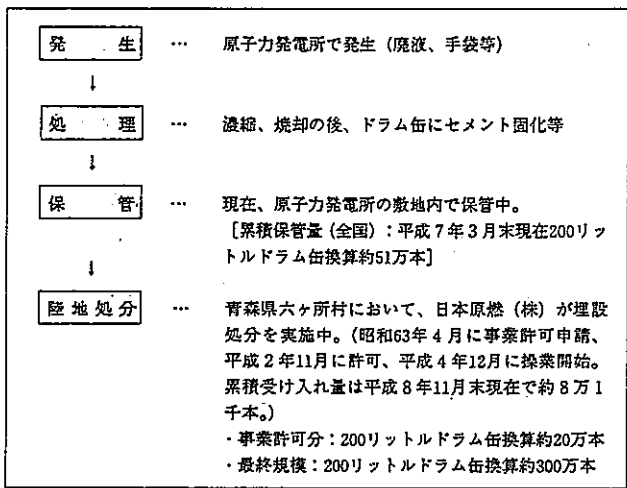


図-9 発電所廃棄物処理処分の基本的考え方⁽⁸⁾

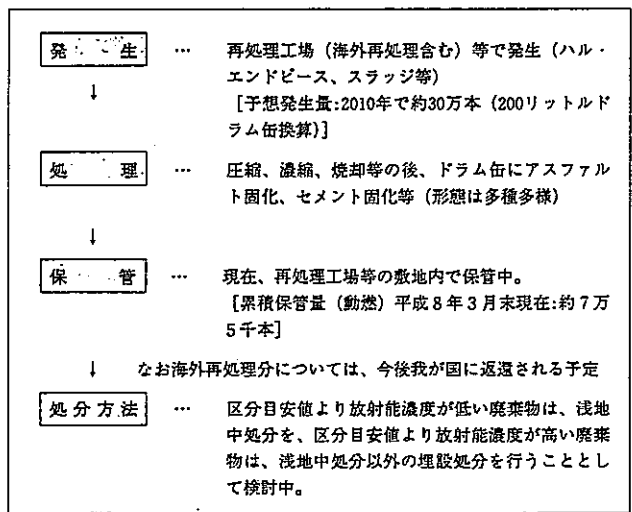


図-10 TRU核種を含む廃棄物処理処分の基本的考え方⁽⁸⁾

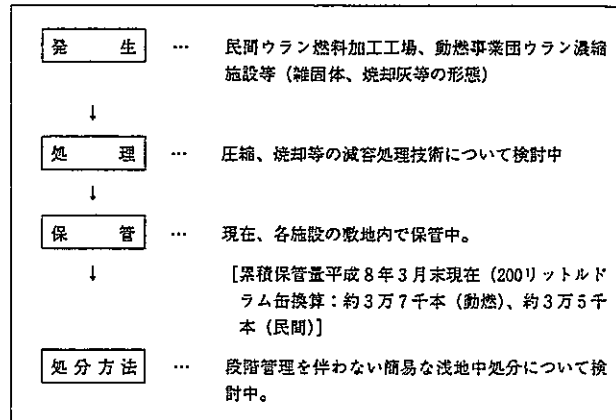


図-11 ウラン廃棄物処理処分の基本的考え方⁽⁸⁾

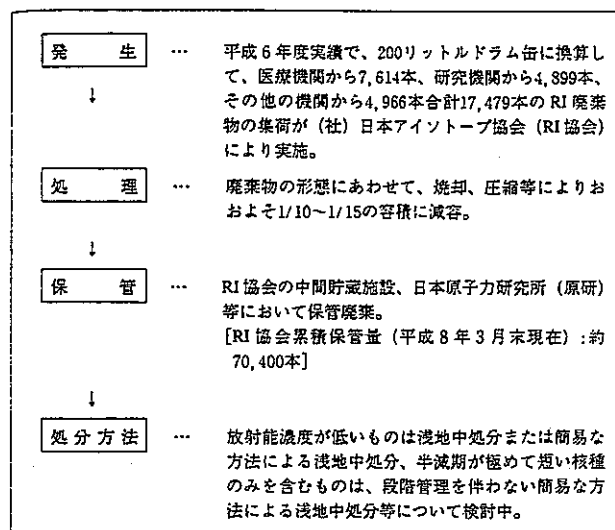


図-12 RI廃棄物処理処分の基本的考え方⁽⁸⁾

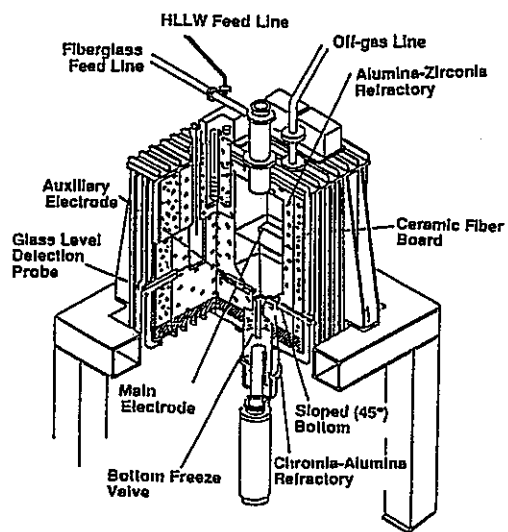


図-13 TVFメルター (11)

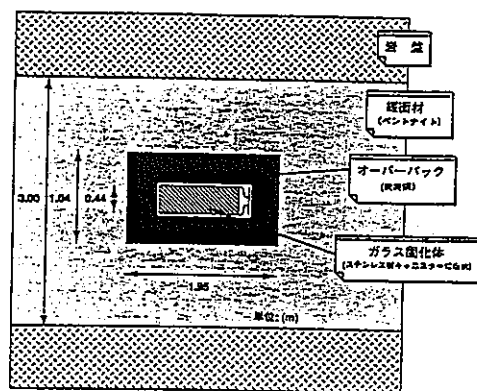
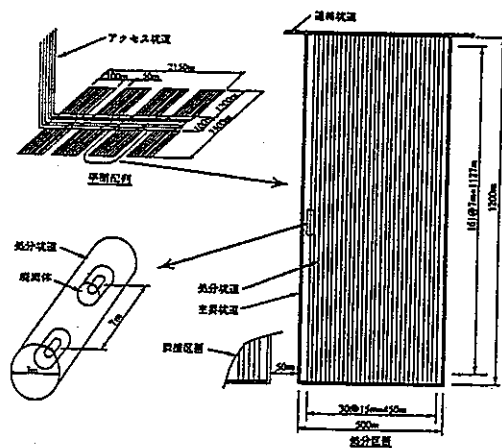


図-14 区分区画の仕様例と人工バリアの概念図 (9)

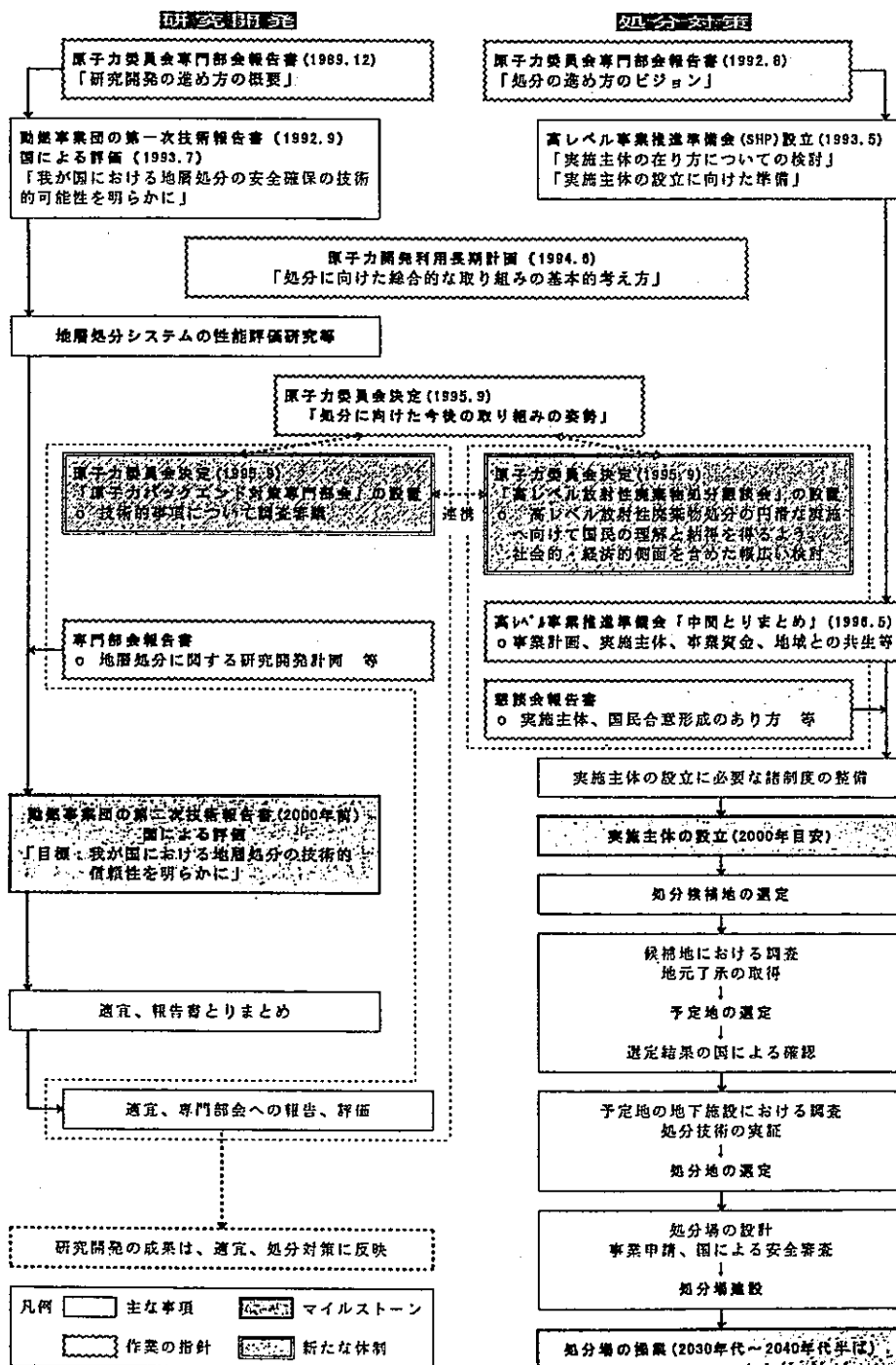


図-15 高レベル放射性廃棄物の処分に向けた流れ⁽⁸⁾

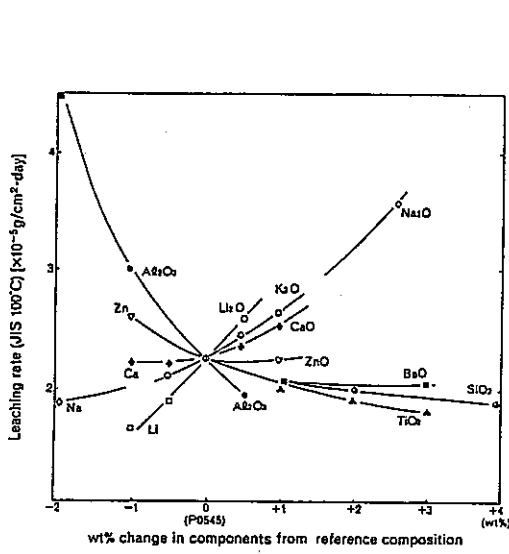


図-16 ガラス成分変動による浸出率への影響例 (16)

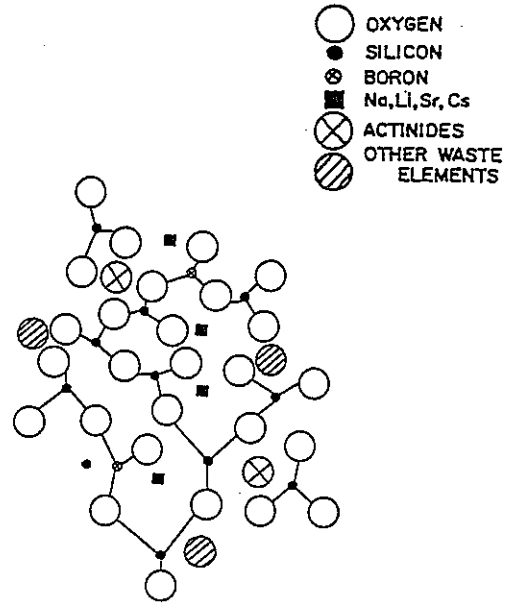


図-17 廃棄物ガラスの構造概念図 (19)

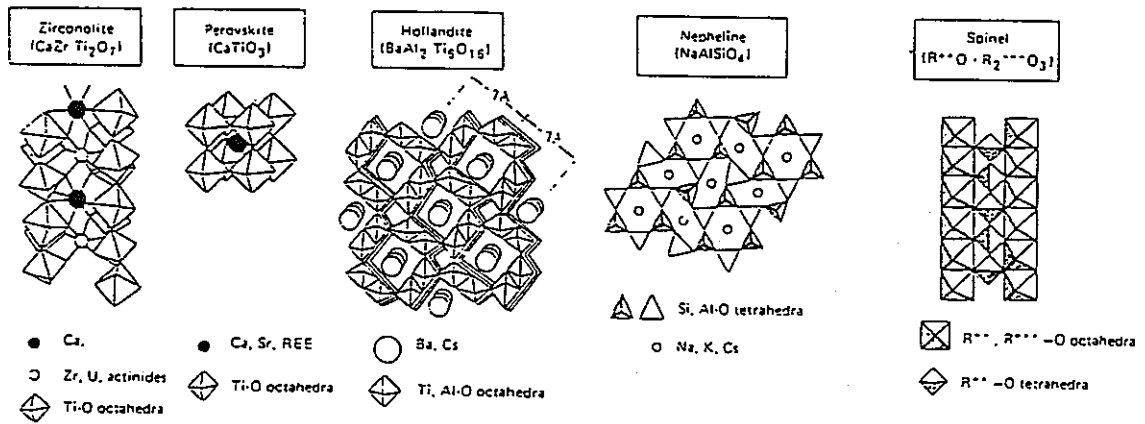


図-18 SYNROC 中の結晶相の構造 (19)

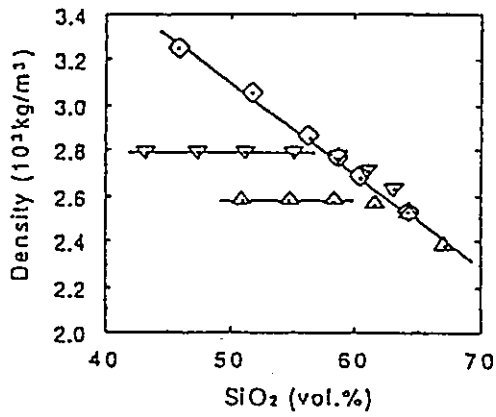


図-19 SiO₂容積%による密度 (25°C) の変化⁽²⁰⁾

廃棄物、Na₂O含有率変動ガラス

◇ : 0-40、10 wt%

▽ : 15、0-30 wt%

△ : 0、0-30 wt%

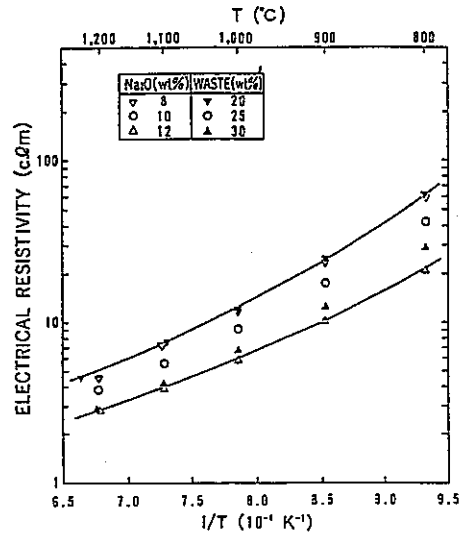


図-20 廃棄物、Na₂O含有率変動ガラスの電気抵抗⁽²¹⁾

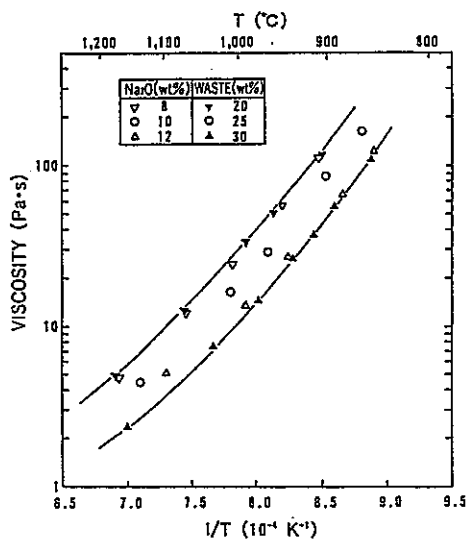


図-21 廃棄物、Na₂O含有率変動ガラスの粘度⁽²¹⁾

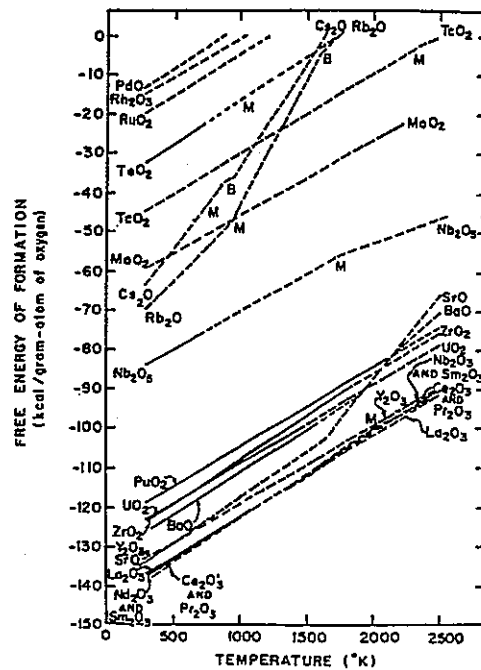


図-22 FP酸化物等の生成自由エネルギー⁽²²⁾

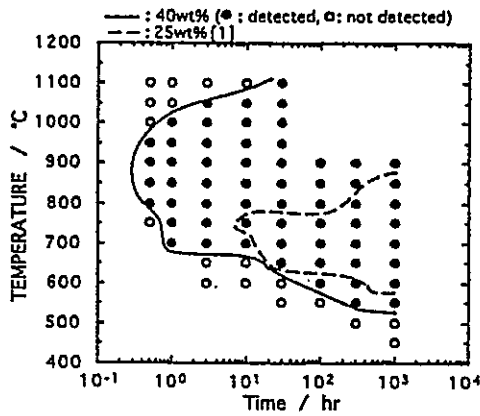


図-23 廃棄物含有率変動ガラスの結晶化範囲 (T-T-T図) ⁽²³⁾

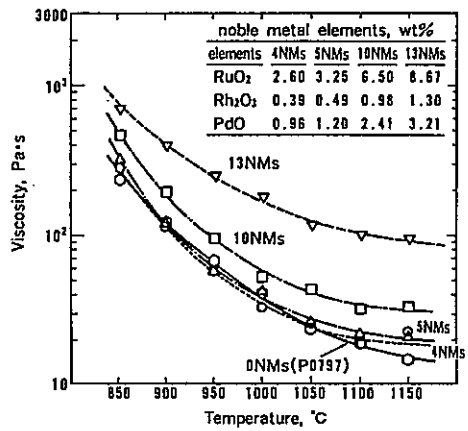


図-24 白金族元素含有率変動ガラスの粘度 ⁽²⁴⁾

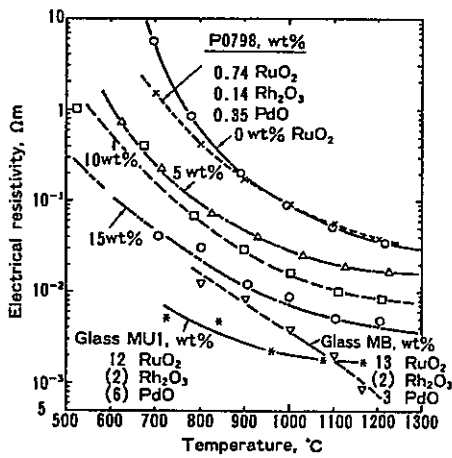


図-25 白金族元素含有率変動ガラスの電気抵抗 ⁽²⁴⁾

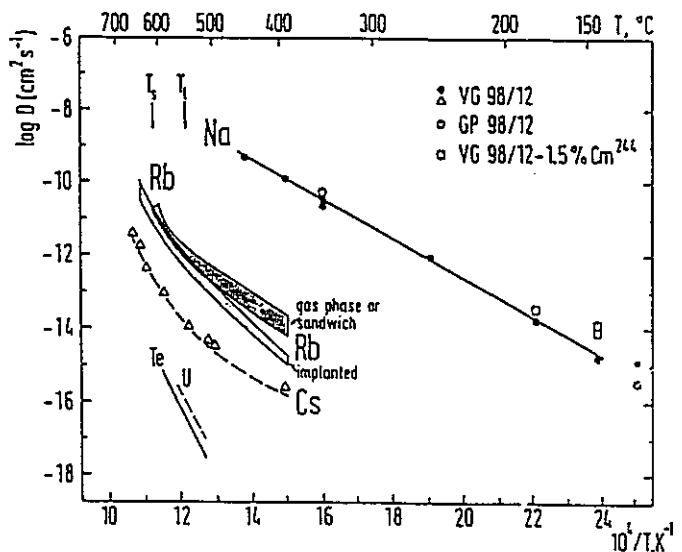


図-26 廃棄物ガラス中の元素の拡散係数 ⁽²⁵⁾

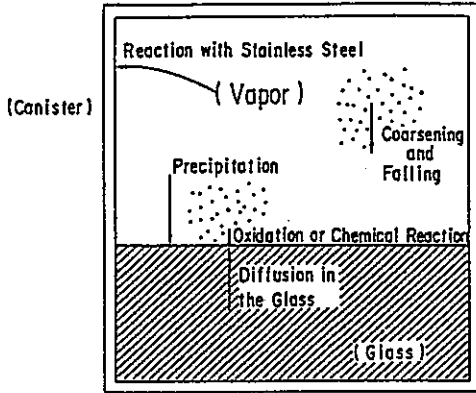


図-27 廃棄物ガラスからの揮発現象 (26)

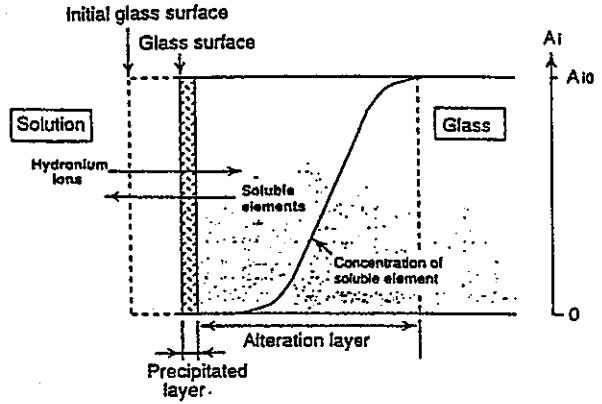


図-28 廃棄物ガラスからの元素浸出/拡散モデル (27)

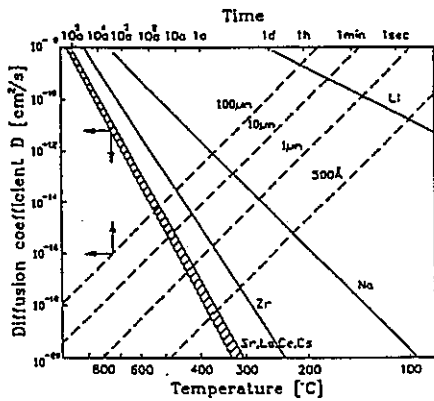


図-29 廃棄物ガラス中の結晶成長時間と拡散係数 (28)

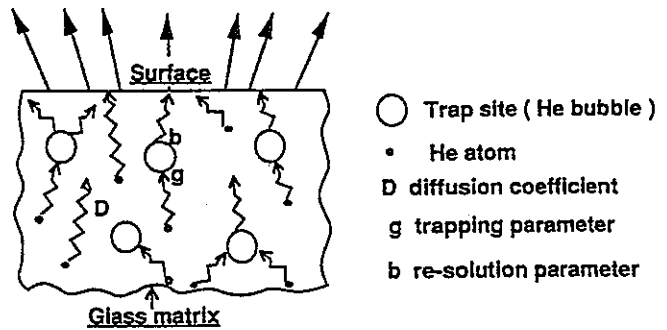


図-30 廃棄物ガラス中のヘリウム拡散モデル (29)

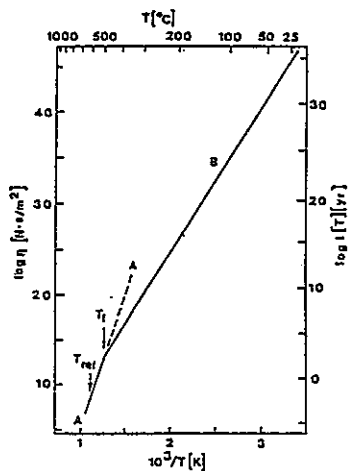


図-31 廃棄物ガラスの粘度と結晶成長時間 (30)

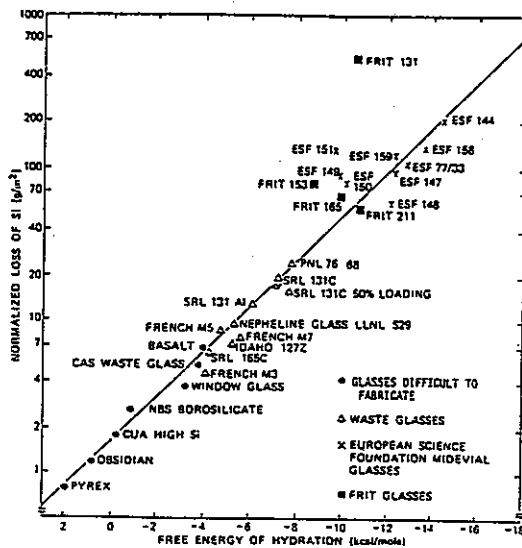


図-32 廃棄物ガラスの浸出率と水和自由エネルギーとの関係 (31)

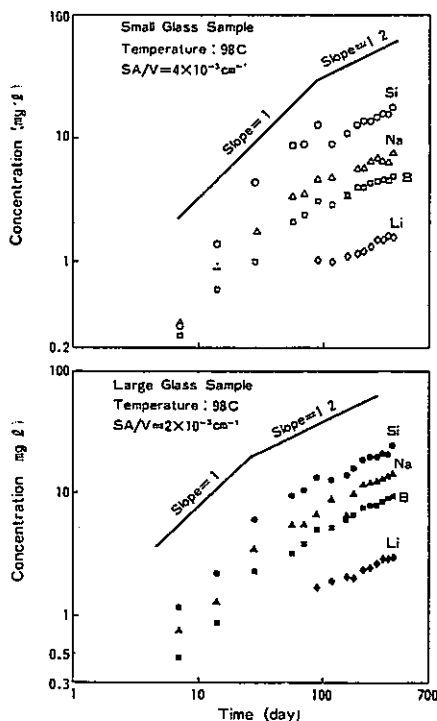


図-33 実規模(Large)と実験室規模(Small)の模擬廃液固化ガラスの浸出試験結果 (32)

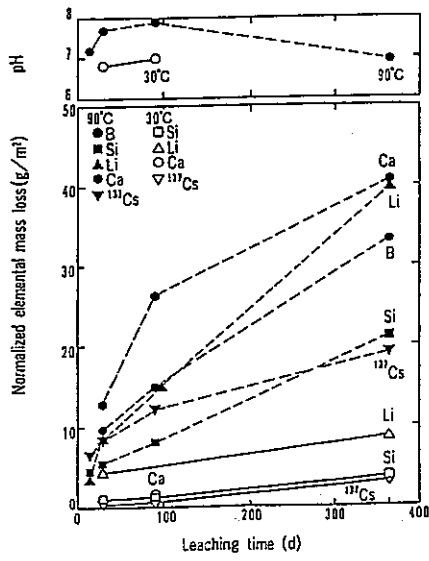


図-34 実廃液固化ガラスの浸出試験結果⁽³³⁾

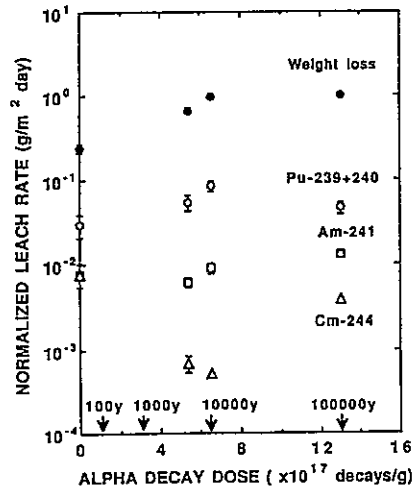


図-35 244Cmを添加した実廃液固化ガラスの浸出試験結果⁽³⁴⁾

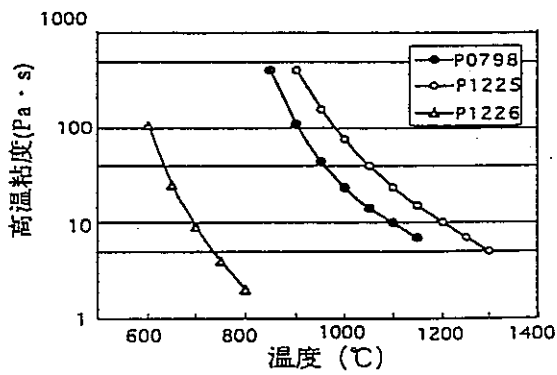


図-36 低レベル放射性廃棄物固化ガラスの粘度測定例⁽⁴²⁾
(組成は表-12参照、P0798は高レベルガラス)