

本資料は 年 月 日付けで登録区分、
変更する。 2001. 6. 20

[技術情報室]

高レベル放射性廃棄物の固化

Solidification of High-Level Radioactive Wastes

1980年7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

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

高レベル放射性廃棄物の固化

Solidification of High-Level Radioactive Wastes



実施責任者 角 田 直 己

要 旨

これは、高放射性廃液固化体の性能基準化を進めようとする米国原子力規制委員会（U. S. NRC）が、国家研究評議会（National Research Council）を通じ、輸送、処理の観点から固化の現状のレビュー、問題点等を整理させたものの報告書である "Solidification of High-Level Radioactive Wastes — NUREG/CR-0895" の全訳である。内容的に必ずしも目新しいものではないが、固化プロジェクト全般が一通り整理されており、廃棄物対策室の勧めもあり、担当者の勉強も兼ねて邦訳したものである。関係者の参考となれば幸いである。

訳者	大場 正昭	小西 恵三
	財津 知久	関 和幸
	虎田真一郎	稲田 栄一
	林 浩一	池田 諭志
	立花 茂雄	五十嵐 寛
	川西 宣男	佐々木憲明

目 次

まえがき	1
概 要	2
I 部 放射性廃棄物の固化	4
1章 問題の本質	4
2章 各々の固化形態の解析結果の概要	12
3章 固化体の選択	22
4章 放射性廃棄物固化研究報告	40
5章 調査内容, 結果, および勧告	50
II 部 技術解析	55
6章 仮焼体, スーパーカルサイン, スーパーセラミック	55
7章 セラミック	70
8章 ガラス	81
9章 セメントおよびコンクリート混合物	97
10章 金属マトリックス複合体と収納金属容器	114
11章 使用済燃料集合体	123
12章 放射線の影響	135
13章 廃棄物固化体と岩石との相互作用	144
14章 地質学的考察	149
APPENDIX A	
ハンフォード指定保留地, サバンナリバープラントおよびアイダホ国立工学研究所 における代替廃棄物処分戦略に対するコストとリスクの評価要約	158
APPENDIX B	
廃棄物固化に関する, ヨーロッパにおける R & D の要約	165
APPENDIX C	
第 1 次封じ込め形態	168
APPENDIX D	
使用済 BWR 及び PWR 燃料の崩壊特性表	169

SOLIDIFICATION OF HIGH-LEVEL RADIOACTIVE WASTES

Final Report

**National Academy of Engineering
National Academy of Sciences
2101 Constitution Ave., N.W.
Washington, D.C. 20418**

**Manuscript Completed: June 1979
Date Published: July 1979**

**Prepared for
Division of Waste Management
Office of Nuclear Material Safety and Safeguards
U. S. Nuclear Regulatory Commission
Washington, D.C. 20555
NRC FIN No. B1523-7**

NOTICE

This report was prepared as an account of work sponsored by an agency of the United States Government. Neither the United States Government nor any agency thereof, or any of their employees, makes any warranty, expressed or implied, or assumes any legal liability or responsibility for any third party's use, or the results of such use, of any information, apparatus product or process disclosed in this report, or represents that its use by such third party would not infringe privately owned rights.

FIGURES

1.1	High-Level Wastes from Light-Water Reactors (LWR)	5
1.2	The Solid Waste Form Showing Three Levels of Containment	8
1.3	Multiple Barrier Concept for Disposal of Nuclear Wastes	10
3.1	The Radioactive Waste Management System	23
3.2	The Radioactive Waste Management System Showing Options at Each Stage	24
3.3	Tri-Component Management System	29
4.1	Department of Energy R&D Expenditures on Waste Solidification Categorized According to Waste Form	47
4.2	Breakdown of R&D Expenditures for Different Waste Forms	48
6.1	Five Calcination Processes	62
7.1	Conceptual Sintered Glass-Ceramic Process	74
7.2	Sandia Solidification Process	77
8.1	Diagram of Operations at the Marcoule Vitrification Facility (AVM)	84
8.2	Simplified Flowsheet and Illustration of Refractory-Lined Melter (VERA)	88
9.1	Shale Fracturing and Group Concept	100
9.2	Conceptual Waste Solidification Process	103
9.3	Process Flow Diagram for the Fixation of Radioactive Wastes in Polymer Impregnated Concrete (PIC)	106
10.1	Eurochemic Metal-Matrix Process and Cross Section of Resulting Products	115
11.1	Structure and Size of Light-Water Reactor Fuel Assemblies	125
11.2	Thermal Power of Power-Water Reactor and Boiling-Water Reactor Spent Fuel Assemblies	127

11.3	Activities of Power-Water Reactor and Boiling-Water Reactor Spent Fuel Assemblies	128
11.4	Comparison of the Characteristic Parameters of Unreprocessed and Reprocessed Spent Fuel	129
13.1	Thermal Effects of Solid Waste on Host Rock	144
13.2	Chemical Effects of Waste-Rock Interaction on a Macroscopic Level	145
13.3	Chemical Effects of Waste-Rock Interaction on a Microscopic Level	146

TABLES

1.1	Total Inventory of Spent Fuel and High-Level Wastes in the United States	7
1.2	Solid Form Containment Options	9
3.1	System Demands on the Solid Waste Form	25
3.2	Rates of Heat Generation from Radioactive Decay of Typical LWR Spent Fuel	30
3.3	Cost and Risk Data for Several Radioactive Waste Disposal Plans at the Hanford Reservation and the Savannah River Plant	32
3.4	Relative Desirability of Solid Waste Forms During Processing, Transportation, and Emplacement and Relative Costs of Processing	35
4.1	Major Conferences Involving Nuclear Waste Management	45
4.2	Department of Energy R&D Expenditures (in Thousands of Dollars) on Waste Solidification Categories According to Waste Form	46
6.1	Weight Percent Composition of High-Level Waste Calcine Produced at the Idaho National Engineering Laboratory, Idaho Falls	57
6.2	Weight Percent Composition of Potential Commercial Reprocessing High-Level Waste Calcines	58

6.3	Calcine as a Precursor for Glass and Composites	60
6.4	Status of R&D on Calcine	61
6.5	Primary Containment Phases for Principal HLW Radionuclides in Supercalcine	66
7.1	Studies on Ceramic High-Level Waste Forms	71
7.2	Crystalline Phases Resulting from Calcine-Glass Reactors	75
7.3	Process-Property Matrix	79
8.1	Frit and Solid Waste Compositions	86
8.2	Frit Composition	88
9.1	Typical Concrete Properties	98
9.2	Advantages, Disadvantages, and Status for NFS Waste Management Alternatives Based on U.S. ERDA Processes	101
9.3	Average Chemical Composition of Fresh SRP High-Level Waste	102
9.4	Process-Property Matrix	111
9.5	Possibilities of Using Concrete for Radioactive Waste Solidification	113
10.1	Some Characteristics of Metals for Waste Containment	118
11.1	Physical Characteristics of Typical Unirradiated Light-Water Reactor Fuel Assemblies	124
11.2	Typical Irradiation Parameters of Light-Water Reactor Fuels, Equilibrium Core	126
13.1	Qualitative Relative Indication of Waste-Rock Interaction	148
A.1	Summary of Cost and Risk for 27 Alternative Radioactive Disposal Plans at Hanford with Numerical Ranking	159
A.2	Summary of Costs and Risks for 23 Alternative Radioactive Waste Disposal Plans at the Savannah River Plant	161

A.3	Summary of Costs and Risks for Alternative Radioactive Waste Disposal Plans at INEL (1977 Dollars)	164
D.1	Decay Characteristics of Spent BWR Fuel	169
D.2	Decay Characteristics of Spent PWR Fuel	171

ま え が き

1976年9月、高レベル放射性固化廃棄物の性能仕様の開発に責任を有する米国原子力規制委員会(U. S. NRC)は、国家研究評議会(NRC)に対し、液体或るいは半液体の高レベル放射性廃棄物を、輸送や処理に適する安定な形態に変換するにともなう科学的、技術的研究を指揮する様要請した。それを請けて、NRCは放射性廃棄物対策委員会のもとに審議会を設けた。審議会の構成員は、主な無機固化技術即ちガラス、セラミック、金属、及びセメントやコンクリートの専門家、また材料科学、固体の照射効果、鉱物の安定性やウエザーリング、及び原子力技術の各々専門家から成っている。1977年4月7日のカーター大統領の決定、即ち米国は全ての商用再処理の無期限延期の方針により、審議会の対象は使用済燃料も潜在的に廃棄物固化形とする様に拡大された。

1977年に於ける審議会の初期の審議は、合衆国エネルギー開発局(ERDA)員からの書類によって行われた。ERDAの様々な書類、報告書で一杯となったこれらの資料は、合衆国がとりしきっている廃棄物固化の研究開発を審議会委員に解らせた。委員が海外の研究開発状況を知るために、議長と3人の委員がソ連、フランス、西ドイツ、英国、ベルギー、スウェーデン及びデンマークの固化施設を訪問し、担当者と討議した。委員たちのこの訪問に於ける情報交換は非常に有益であった。

これらの情報源から得られた情報を用いて、委員は次のような仕事を行った。

- 全体的な放射性廃棄物管理(RWM)に適切な固化形態の選定に役立つ、色々な固化体の性状の役割の解析。
- 種々の固化体開発の基礎に用いられる最近の情報の評価、そしてこの情報と廃棄物固化に用いられると考えられる材料の情報との比較。
- 放射性廃棄物固化研究開発方策の評価、解析。
- 行われた研究開発の評価と将来への助言。
- 最近の固化体オプション或るいは全体RWMの一部として潜在的な適用可能性について、連邦機関への助言の報告。

以下の項目については、この報告書の範囲を越えている。

- 廃棄物固化に関する定量的なリスク解析。なぜならば、これらの解析は完全なRWMシステムが試されなくては価値のないものである。
- 隔離或るいは emplacement 案に対する選択。
- 輸送技術。
- 気体放射性廃棄物の固化形態へのとじ込め。
- 使用済燃料を永久処分することに対する経済的、社会的、政治的解析。

概 要

燃料再処理工場からの高放射性廃液の固化は最も懸案の放射性廃棄物処理システムの鍵である。固化の第一の機能は廃棄物から人間環境への放射性核種の移行を最少にすることである。そこで固化形態の先ず第一の要求はその移行に対する主な障壁を形成する能力である。加えて、固化形態は廃棄物処理の全てのフェーズに対して適切でなければならない。即ち、固化形態を作り出すプロセス、一時貯蔵、輸送、及び処分場へのセットが含まれる。

様々なシステムが可能であり、また異ったシステムは固化形態に種々の要求をするために、最適な固化形態の選択には固化形態がその内の一部となる特別な放射性廃棄物処理システムを考慮しなければならない。更に、1つのシステムに用いられるべく選ばれた固化形態は必ずしも他のシステムに対する最適な選択でないが如しである。廃棄物の経過年数、どの様な輸送がなされるか、そして貯蔵所の建設にどの様な地層が選定されるかなどが、固化形態の選定に重要である。更に安全性、信頼性、コストなどが固化プロセスに考慮されなければならない。

高レベル放射性廃液固化体に対する定量的な性能範囲が最近 U.S. NRC によって確立されつつある。これが確立するまでには、審議会としてはこの報告書に記されているどの方法が“受入れ可能”であるか判定することは出来ない。しかし、使用済燃料(SFAs)の貯蔵、取扱い、輸送に関する合衆国政府の規則の存在は、固形化された廃棄物の容認性を決定する方針決定者を助けることになるであろう。

各固化形態の長所、短所についての詳細な検討の基礎に関して、審議会は次に要約する結論と勧告をまとめた。更に詳細は、本報告書の I 部 5 章に高レベル放射性廃液固化に関する問題の I 部の結論とし示されている。審議会の報告書を補足する技術的資料は II 部に記されている。

1. この報告書に記された多くの固化形態は、使用燃料に対する最近の取扱い、貯蔵、輸送に対する嚴重さと同様な規準に適合しうることが判った。
2. 固化形態は、放射性廃棄物対策全体との関連で選定されなければならないと結論づけた。この選定に関連してくると考えられるものは、廃棄物の経過年数、処理プロセスに含まれる危険性、輸送の程度、及びその固化体が処分される地層の性質などである。
3. 多くの固化形態が適切に設計されたシステムに於て満足に用いられそうなことが判った(第 3 章の放射性廃棄物対策システムに関する章を参照)。更に、巾広い開発努力により 1 つの形態 — ガラスが固化、輸送、処分からなる最初の実証システムに適用出来よう。大規模な固化計画の実行に対して、ガラスが恐らく適用出来るであろうが、我々の解析では特に DOE の廃棄物に対しては最適な選択としては推せん出来ない。事実、ひかえ目な R & D が長期安定性や処理プロセスでガラス以上の第 1, 第 2 世代の固化代替案を生み出すであろう。

4. 商用炉燃料の再処理延期という合衆国の政策により、この種の廃棄物に対する固化技術に関するR&Dに更に余分な時間が出来た。この期間に、ガラス以外の今日までに不適当な注意を集めた固化形態に特別の注意が払われるべきである。この様な更に追加された情報は、DOE 廃棄物にも適用可能であろう。
5. 比較的放射能が低く、発熱密度も低い軍事用の廃棄物は、セメントマトリックスやある種のセラミックの様な低温処理プロセスで処理されるのが良からう。
6. 放射能も発熱密度も高い、発生間もない商用廃棄物に対しては、ガラスに加えて、全体の結晶化したセラミックやメタルマトリックスが積極的に検討されるよう勧告する。
7. 使用済燃料ピンの特性に関する手はじめの解析では、廃棄物形態の1つとして考える価値がありそうである。しかし処分に先立って更に詳細に特性を調べ、またこれらを収納する容器のシステムが開発されなければならない。
8. 種々の固化体の使用や処分法での公衆への健康障害への差異は小さいと思われるので、経済性、信頼性、作業員の健康障害が方法選択に際して主として考慮されなければならない。
9. 全ての放射性廃棄物対策（固化研究開発を含めて）に対する責任は一本化されるべきである。産業界、大学、非営利研究所等の専門家は過去に無視されて来たように感じられるが、技術シンポジウム、学会、R&D契約者などをもっと活用すべきである。研究開発のための予算は、安定した長期間の研究維持のために安定化させる必要がある（例えば、10年間以上の期間で）。放射性廃棄物対策に関する主な研究契約者間では、規則的な情報交換や協力が行われるべきである。

I 部 放射性廃棄物の固化

1 章 問題の本質

1. エネルギー情勢

この報告書は、先進諸国並びに発展途上諸国の経済事情においてエネルギーの重要性が切実に感じられる折に書かれたものである。石油や天然ガス資源の削減ないし枯渇は、そう遠くない将来、現実として認識されるであろう。各国では、政府関係首脳陣並びに技術顧問らが代替エネルギー源を求め、思案に暮れている最中である。原子力エネルギーは、石油や天然ガスに取って替る代替エネルギー技術の1つである。

幾つかの国々では、すでに原子力エネルギー主体の経済へ移行するための決議を行っている。アメリカ合衆国においては、原子力産業拡大への賛否決議は未だ宙に浮いた状態となっている。

アメリカで原子力反対派が重視する考えの1つに、核燃料サイクルが未だ確立されていないとの事実が掲げられている。すなわち、商業規模発電に伴ない発生する使用済み燃料棒は年々増加しているにもかかわらず、それらの究極的処分については何等決定がなされていないという状況による。原子力反対派はこのような事態を、開発に必要な技術が欠除している証拠であると解釈する。一方支持派は、技術上問題はなく、確立するためには政治的決定が必要なのであると返答する。政治家は双方の考えにある種の利害関係が含まれていると感じとる。一方国民は生命に何等かの危険を及ぼさないものは、この世に存在しないと感ずるようになってきており、特に親しみのない技術には疑念をいただく傾向がある。

放射性廃棄物の安全管理をとり巻く技術書が完璧であると評価され得るならば、政治家の仕事はより一層し易くなるであろう。これらの技術書の主要なものは、使用済み燃料棒の管理と再処理に伴ない発生する高レベル放射性廃棄物の管理である。廃棄物管理の目的は、廃棄物中の放射性元素の周囲への飛散を防止する事を保証することである。この目的を達成するため、再処理、固化（又は使用済み燃料棒の処理）、輸送、および放射性廃棄物の最終処分のための安全で広範囲なシステムが開発されなければならない。このシステムで最も重要なのが固化である。審議会（Panel）の基本思想では、全てのHLLWが最終的には固化されるであろうということである。この報告書では有用な代替固化形態について述べることにする。

2. 固化の理由

(1) 廃棄物の性質

研究、発電、核兵器の原料生産の目的に使用される原子炉は必然的に放射性の廃棄物を作り出す。核燃料はある所定時間照射された後（原子力発電では3年ないし4年）、使用済燃料集合体（SFAs）と呼ばれる固化体として原子炉から取り出される。このSFAsは、金属製の被覆管とおよそ大きさ1cmのセラミックのペレットから構成された使用済燃料棒の集りから成り立っている（Fig 1.1 参照）。これらのペレットには未燃焼のウランと照射中に生成した物質（例えばプルトニウム、その他のアクチノイド、並びに高放射性の核分裂生成物）が含有されている。

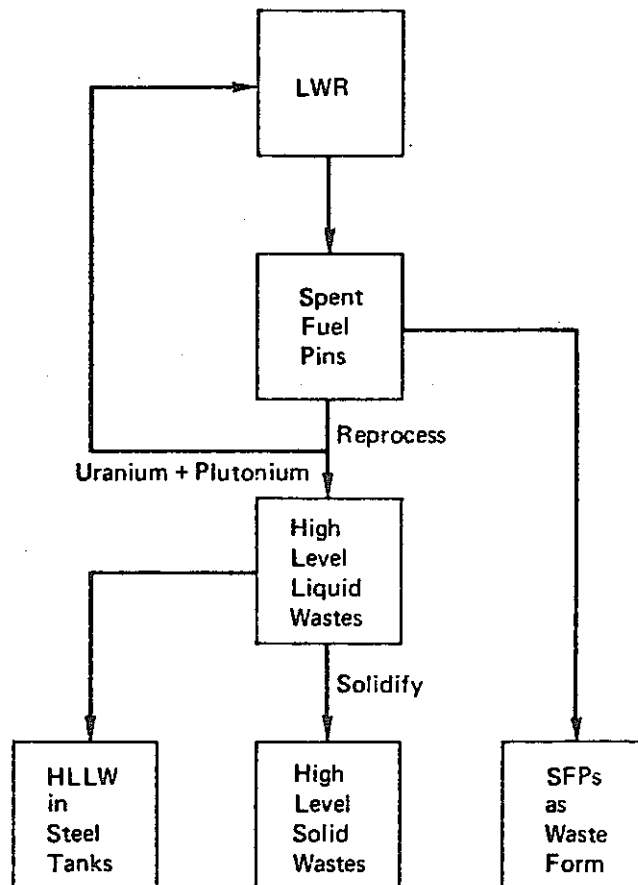


FIGURE 1.1 High-level wastes from light-water reactors (LWR).

使用済燃料の再処理は必然的に、核兵器に使用されるプルトニウムを作り出す。それゆえ軍事計画に従って発生したSFAsを溶解しウランとプルトニウムを回収する。

残留液は核分裂生成物と微量のプルトニウムを含んでいる。一方民間の原子力産業から

発生した使用済燃料に対して、アメリカ政府は再処理を是認していない。そのため商業炉から発生した放射性核分裂生成物並びにプルトニウムは SFPs 自体に含有されている。現在、アメリカ政府が再処理を拒否しているので審議会 (Panel) は SFPs を最終処分のための固化体の 1 つと考えることにした。

現在、軍事用ないし研究用再処理で多量の放射性廃棄物 (通常 DOE Wastes と呼ばれている) が発生しており、これらは塩類混合液、スラッジ、および salt cake (半液状) の形態でタンクに貯蔵されている。アメリカ政府が商業炉の廃棄物の再処理を許可するよう政策を変更するならば、廃棄物は膨大な量になるであろう。さらに商業炉から発生するであろう液体状態の廃棄物は多相の軍事廃液よりも比放射能が高くなるであろう (単位体積 (ℓ) 当たり数百ないし数千 Ci になるであろう)。

液体ないし半液状の放射性廃棄物の貯蔵は、現時点では容認出来る量かもしれないが長期的には容認できないであろう。なぜなら、放射性の廃棄物は長寿命の放射線源であり、その形態から飛散し易く化学的反応性に富んでいるからであるからである。核燃料サイクルの管理との見地より、研究ないし軍事を目的として発生した HLLW は 固化する必要がある。又商業用の廃棄物^(注1) の固化のための管理方法を開発する必要性もある。

(2) 廃棄物の貯蔵量

軍事用、民間用原子炉から発生した膨大な放射性廃棄物は、HLLW^(注2) ないし SFPs として存在している。アメリカでは 265,000 m³ の HLLW が大きなステンレスタンクに貯蔵されている。これらのタンクは、大きさで最大 5,000 m³ までの範囲にある。これらのタンクは所定のサイト (ハンフォード, サバンナリバー, アイダホフォール) に設置されており、軍事用ないし研究用の廃液を目的として公的に設計されたものである。このサイト内の液体量は、仮焼体 — 水分を含まない酸化粉末 (2章参照) — としての固体廃棄物 1,480 m³ を一緒にすると、既存の非商業用の HLLW の総合計と匹敵する。

(注1) 放射性気体核種で関心のあるもの (例えば, ⁸⁵Kr, ³H, ¹⁴C) は、燃料再処理における燃料要素の切断および溶解時に放出されるであろう。これらの核種は希釈されて大気中に放出されるか最終処分のため回収されるであろう。多くのプロセスは、この問題を処理するため開発されてきたか現在開発中かのいずれかである (ERDA 1976 b 参照)。

(注2) DOE Wastes 一般には液体と称しているが様々の固体を含有している (前(1)参照)。

TABLE 1.1

Total Inventory of Spent Fuel and High-Level Wastes in the United States

	DOE		Commercial	
	Amount	Activity (curies X 10 ⁶)	Amount	Activity (curies X 10 ⁶)
High-Level Liquid Wastes in Tanks	265,000 m ^{3a}	450 ^b	2,300 m ^{3c}	31 ^d
Unreprocessed Spent Fuel			2,268 tons ^e (2,000 m ³) ^f	3,400 ^e
High-Level Solidified Wastes	1,480m ^{3g}	51.8 ^g		

^a About half of this volume is in the form of salt cake and sludge (U.S. DOE 1978).

^b Quantity of ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs (F.P. Baranowski, U.S. Energy Research and Development Administration, personal communication to M. Willrich, Massachusetts Institute of Technology Energy Laboratory, October 27, 1976).

^c Waste is estimated to be 5 percent sludge, by volume (U.S. NRC 1976).

^d Quantity of ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs as of 1973 (U.S. NRC 1976).

^e Alexander et al. (1977).

^f Projected amount of HLLW produced from reprocessing current inventory of commercial SFPs. Based on an estimate of 850 liters/MTU (U.S. ERDA 1976b).

^g These wastes are in the form of calcine (U.S. ERDA 1977b).

原子炉内ないし近くの貯水池に貯蔵されている発電用の使用済燃料集合体の合計量は1977年8月現在で2,268 MTになる。現在の技術で処理されるならば2,000 m³のHLLW^(注3)を発生することになるだろう。現存発電用のSFAsの全放射エネルギーは、DOE Wasteを凌いでいる。しかし、SFAsの幾らかは最近になって原子炉から取り出されている。これらの放射能レベルは急速に減衰するであろう(II部, 11章, LWR燃料集合体の項参照)。これらのSFAsに加えて発電用の使用済燃料の再処理による、かなり少量のHLLW (Table 1.1 参照)がニューヨークのウェストバレーに現在貯蔵されている。

Table 1.1 に示すように、現在貯蔵されている軍事廃棄物の量は商業廃棄物の量をはる

(注3) HLLWはPurex再処理から約5,000 l/MTU発生すると予想されているが、暫定貯蔵間に600~1,000 l/MTUに減少するであろう(U.S. ERDA 1976 b)。

2,000 m³(現在のSFPsインベントリーから)と52,000 m³(1995年インベントリー)の評価は、850 l/MTUの選択値に基づくものである。

かに上回っているが、アメリカの原子力の成長率を考慮するならば将来事態は逆転するであろう。現在 DOE が推進している計画（1978）では、1995年までに60,800トンの使用済燃料が商業用原子炉から発生する。現存の技術（Purex processes）で処理するならば52,000 m³のHLLWが生じることになるが、この値は現在の軍事廃棄物量と比較すれば依然少ない値である。がしかし、このように処理された商業廃棄物は軍事廃棄物に比べ、高放射性であり発生熱出力が高いことを記憶しておかなければならない。

3. 固化処理の役割

HLLWの固化は放射性廃棄物の輸送ないし処分中に、放射性核種が環境へ放出する危険性を最少限におさえるための本質的要因である。固化廃棄物形態は本報告書の目的に沿い、永久貯蔵ないし回収可能な貯蔵所に輸送され定置されるであろう固化プロセスの廃棄物として定義される。固化形態は廃棄物の放射性核種の封じ込めの1段階ないし2段階となるものである。

Fig1. 2 と Table 1. 2 にこの2段階の封じ込めと固化廃棄物形態の本質を図式的に示す。Fig1. 2 からわかるように、固化廃棄物形態自体が放射性核種の放出を防ぐため付加バリエー — 例えば、廃棄物コンテナや廃棄物が定置される地質層 — によって被われている。

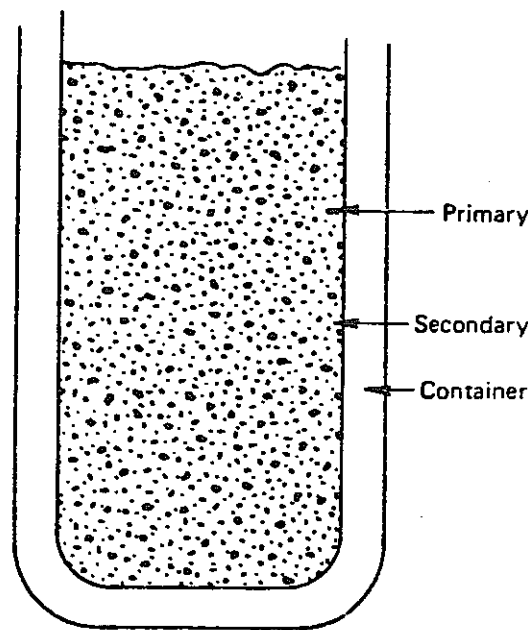


FIGURE 1.2 The solid waste form showing three levels of containment: (1) a primary phase, which contains the radionuclides at the atomic and molecular level; (2) a secondary phase, which binds the primary phase particles in a matrix of a second material (see Figure 10.1 for an actual example); and (3) a tertiary level, the container.

(1) 第1次封じ込め

いかなる固化廃棄物形態においても、放射性核種はまず原子ないし分子段階で包含される。この段階で放射性核種を封じ込める物質はセラミック — 高温非金属無機物 — である。Table 1.2 に示すように、放射性核種を封じ込めるセラミックには、結晶質（ないし一部分結晶質）の4つの異なったタイプと1つの非結晶質形態があるが、この非結晶質形態は、学術用語上セラミックと区別され“ガラス”と呼ばれている。ワシントン州ハンフォード地区に貯蔵されている乾燥状態のふつ化ストロンテウム (SrF_2) と塩化セシウム (CsCl) は別として、全ての結晶形態はよく知られた結晶構造をもつ酸化物相の混合物である。酸化物ガラスは、単なる変形にすぎないが単相の母体は理想的には全てのイオンを収容することが可能である。実際、高含有廃棄物ガラスではしばしば数パーセントの結晶相が存在し、微少範囲で2つのガラス相に分離する。

TABLE 1.2

Solid Form Containment Options

Primary	Secondary	Container
Ceramic materials	Metals	Mild steel
Supercalcine		
Low-temperature ceramics	Cement	Stainless steel
High-temperature ceramics	Glass	Titanium
Fuel pellets		Copper
Glass		Concrete
		Alumina or other ceramics

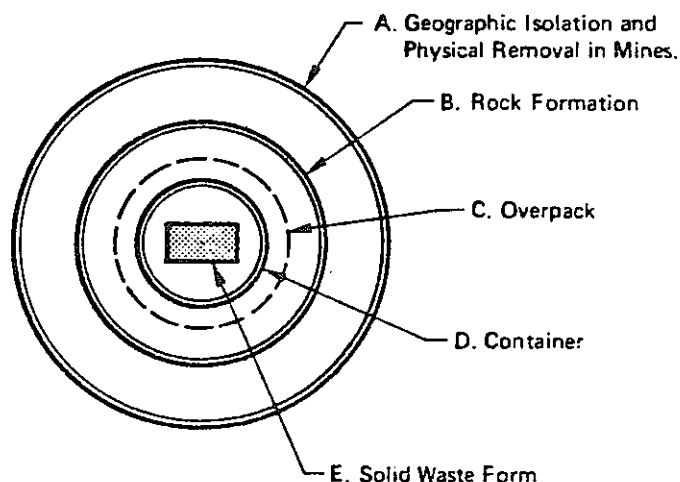
(2) 第2次封じ込め

提案された廃棄物形態の全てではないが多くの場合、第1次封じ込め形態を2次物質 (Fig 1.2 参照) のマトリックス中に封じ込める複合物形態を伴う。このマトリックスとしては低温溶融金属 (鉛)、高温溶融金属 (チタン)、コンクリートが考えられる。マトリックスは、液体が放射性核種に達するのを防護する物理的ないし化学的バリアを提供するが、金属製の2次収納物質はそれらの構造に廃棄物イオンを取り入れることは不可能である。又、他の2次収納物質においては、特定のイオンを少量だけ取り入れることが可能である

にすぎない。

4. 特別の防護形態

放射性核種の環境への放出の危険性の防護は上述の2段階の封じ込めによる固化形態の域をはるかに越えている。HLLWを処分するための好ましい方法は、多重防護法によるであろう（Fig 1.3 参照）。



- A. The outermost protection is provided by geographic isolation and physical removal in mines or excavated vaults.
- B. The rock formation will, in most cases, react chemically and physically with the waste to form the long-term container.
- C. The waste is separated from the rock by an optional overpack, which can be a metallic cylinder or a mineral powder that adsorbs radionuclides.
- D. The container provides protection, particularly during shipping and during the retrievable phase after emplacement.
- E. The solid waste form is a major barrier during transportation, after emplacement, and also after reaction with the host rock.

FIGURE 1.3 Multiple barrier concept for disposal of nuclear wastes.

最外防護は地層深く封じ込める物理的隔離である。周囲への放射性核種の放出を防ぐ第1バリアは地層自身であり、事実上コンテナの役割をする。地層ないし固化形態を注意深く選定するならば、放射性核種の放出は岩層と HLLSW の相互作用によるものに限定される。第2のバリアは、キャニスタであり第1のバリアに比較してずっと1時的なものである。金属ないしセラミックで作られるキャニスタは従来輸送中の機械的性質の便益ないし安全性を供することを考慮して設計されてきたが、現在では、キャニスタの役割は、5年から100年の期間に及んで化学的に有効なバリアを与えることである。化学的バリアはオーバーパックにより

補足される。オーバーパックは、放射性核種のイオンを吸着する粉末状の鉱物とキャニスタが岩と接触することを防護する金属容器ないし包装物からなる。

最内バリヤは固化形態自体である。最終処分以前、特に輸送中において固化形態の物理的ないし化学的諸性質は公共への不必要な放射線照射を防護する最も重要な要素である。

2 章 各々の固化形態の解析結果の概要

審議会（Panel）の技術研究の主旨は、様々の固化形態ないし固化方法を研究し評価することである。これらの詳細な解析結果はⅡ部の技術解析の項を参照されたい。1章で多重防護システムの仕様に影響を及ぼす固化形態の一般的特性の概略を述べたので、この章では各形態の技術解析について概略的に述べることにする。

1. 固化体の特性

廃棄物管理プロセスの各段階での必要性に応じて、固化体の個々の性質の重要性は相対的に変化するであろう。例えば、飛散ないし浸出性は地層処分以前の処理および輸送中において最も重要な特性である。放射性廃棄物の処理、ハンドリングないし輸送中に万一事故が生じた場合、公共の健全性と安全性への危険度を最小限におさえる固化形態は、最も飛散しにくい形態であるだろう。また万一廃棄物が水と接触するならば、耐浸出性の高い固化体が最も好ましいであろう。なぜなら廃棄物に含まれる放射性核種の溶解速度は固化体の浸出性によって決定されるからである。一方処分後においては、固化体と周囲の岩層との化学的および熱的相互作用が初期の形態の飛散ないし浸出性よりもはるかに重要になってくる。仮に、100年後に貯蔵室が浸水し、水が廃棄物と接触するならば、有害な放射性核種の溶解は初期の固化体の浸出性によってではなくむしろ廃棄物と岩との相互作用で形成された固体生成物の浸出性によって支配されるであろう。この生成物の性質は化学的組成、結晶構造ないし熱特性が岩と両立するような固化体を選択することによって決定される。

幾つかの放射性廃棄物は発熱率が高いため、固化体選択にあたっては熱的安定性を考慮しなければならない。幾つかの固化体は高温状態ではその形態が変化する；ガラスは結晶化し他のものは機械的強度が失なわれるであろう。さらに、高温により生じた化学変化の結果として物性、例えば浸出性が変化するであろう。

熱的安定性に加えて、固化体選択上重要な因子として熱伝導性がある。固化体の熱伝導性は — 発熱率に依存する — 固化体を収納したキャニスタの中心と表面の温度を決定するであろう。このことは、コンテナ、オーバーパッキング等のスペースに依存する貯蔵所を設計する上でたいへん重要なことである。

多くの固化体は α 粒子、 β 粒子、 γ 線ないし廃棄物の放射性核種により放射された中性子による照射の影響を受けているのであろうとの懸念がある（12章 放射線の影響に関する詳細な考察 参照）。一般に5つのタイプの影響を及ぼすことが知られている。

これらの影響のうち放射化学的作用が最も重要である。 β ないし γ 線により、励起したイオンおよび水や硝酸塩の分解は気体の生成（水素や二酸化窒素）を促進し、キャニスタの内

圧上昇を招く結果となる。(この件に関して特に重要なのがコンクリートである。なぜならコンクリートは必然的に水を含有しており、この水が密封されたキャニスタの内圧上昇の潜在的危険性を有しているからである。これに関してはより詳細に検討する必要がある。)

第2の影響は格子膨張と寸法変化である。これらは、格子ないし網目欠陥に関連した原子状態での蓄積したひずみによって引き起こされる(7, 8章 ガラスとセラミック参照)。しかし廃棄物中の放射性核種から期待される放射線束では、このような放射線損傷は無視出来るかまたはたいへん僅かであろう。

第3の影響それは、蓄積されたエネルギーが突発的に放出され急激な温度上昇を生じることである。がしかし現在考慮されている固化体において、蓄積エネルギーおよび蓄積エネルギー放出に要する時間の両面から考え合せても、このような事態は起こり得ない。

放射線損傷の結果として生じた内部エネルギーの増加は第4の影響すなわち化学的活性を高めるであろう。しかし含有されるエネルギー量がたいへん少ないのでこの現象によって反応速度の測定可能な増加を生じることはないであろう。

廃棄物中の放射性核種は崩壊し、固化体の結晶構造と両立するかまたはしない娘核種になる。娘核種の化学的構造への影響は、放射線損傷とは別に重大な結果を生じるであろうとの結果を示す証拠は何等存在しないが、調査し評価する必要があるであろう。これまでずっと無視されてきている。

2. 第1次封じ込め形態

第1次封じ込め形態とは、放射性廃棄物内の潜在的に有害な放射性核種を原子ないし分子レベルで含有する固化形態のことである。幾つかの固化形態はすぐれた性質を有している；耐浸出性，耐飛散性，良好な熱伝導性等。一般にこれらは他の固化形態に処理又は転換することなく，輸送および処分するのに適していると思われる。これらの形態を最終形態として可能性あるものと表示することにする。これらをより好ましい最終形態に転換することは可能である。審議会(Panel)の意見によれば，他の固化形態はそれらを最終形態として可能性あるものとみなす十分良好な性質を有していない。言い換えすならば，それらをより好ましい形態に転換するためにさらに処理する必要があるということである。これらを中間形態と表示する。

(1) 中間形態

① 仮焼体

HLLWを固体に転換する最も簡単な方法の1つは500°C以上の温度で，廃液を蒸発ないし1部を分解させることである。この代表的プロセスでは，微細な粉末を作り出す。この粉末は一般に仮焼体と呼ばれている。スプレー，流動床ないしロータリーキルン仮焼

を含む幾つかの異なるプロセスが開発されてきた。これらは皆本質的には同じプロダクト — 粒径範囲が $10 \mu\text{m} \sim 100 \mu\text{m}$ (又は, $\sim 2,3 \text{ mm}$ の細粒) で未だ分解していない残留硝酸塩と溶解しにくい酸化物から成る非結晶質ないし結晶性に乏しい粉末 — を作り出す。1963年以來 INELでの固化計画で作られた仮焼体約 $1,500 \text{ m}^3$ が現在貯蔵されている。この仮焼体はアメリカに存在する処理された高レベル固化廃棄物として意味ある唯一の量である。

現在、仮焼体は最終廃棄物形態として適しているとは考えられていない。なぜならば仮焼体は水に溶け易く、飛散し易い。その上熱的安定性に乏しく様々の放射性核種の揮発 (Cs と Ruを含む) を導くからである。それゆえ、仮焼体を複合物に封じ込めるか他の固化形態に転換するための幾つかのプロセスが考えられてきている。現在まで仮焼体から得られたガラスが最も注目を集めてきた (詳細な考察は、6章 仮焼体 参照)。

② Supercalcine

簡素な仮焼体の性質を改善するため、HLLWの組成を仮焼する以前に選択された物質 — 硝酸カルシウムや硝酸アルミニウム — を添加することにより修正することが可能である。このような混合液を仮焼すると、物性の著しくすぐれた Supercalcine と呼ばれる粉末ができる。Supercalcine の可溶性は、仮焼体に比べ5から6桁低くなる。その上特定の元素の揮発は2ないし4桁低くなる。このような特質をもつにもかかわらず審議会 (Panel) は、Supercalcine が飛散し易いとの理由で Supercalcine を好ましい最終形態と考えずガラス、セラミック等の最終形態に転換ないし封じ込める中間媒体とみなした。Supercalcine を他の物質と組み合わせることにより、例えばポルトランドセメントないし低熔融金属、飛散しにくいプロダクトを作ることができる。すなわち、Supercalcine はこの点で依然として中間廃棄物形態であると考えられる。(詳細な考察は、6章 Supercalcine 参照)

③ Supersludge

サバンナリバーとハンフォード地区に貯蔵されている DOE Wastes は、貯蔵タンクの底に放射性的 "sludge" (すなわち HLLW と HLSW の混合物) をある量含有している。このタイプの廃棄物を処理するために考えられている方法は、仮焼体を Supersludge に転換する方法に幾分類似しており、耐浸出性を高めるプロダクトすなわち "Supersludge" を作るために選択された物質 (粘土やケイ酸アルミニウムなど) をスラリーに添加することである。仮焼体や Supercalcine と同様に審議会 (Panel) は、Supersludge を中間形態と考える。なぜならそれは低温セラミックへの処理ないしは、grouting (地表から数百メートル地下の破碎した地質にポンプで注入する) 又は、ドラムで処分するためセメント/コンクリートマトリックスに封じ込めるなどの処理がされるからである。

(詳細な考察は、6章 Supersludge 参照)

④ ^{137}Cs と ^{90}Sr の封入

ハンフォードにある廃棄物の発熱率を減少させ、HLW貯蔵タンクの寿命を高めるため、主要な熱発生同位体である ^{137}Cs と ^{90}Sr を分離することが1960年代の中期に決議された。(AECは、ひところ Hanford Wastes 内に存在する放射性同位体の利用法を見出すことに望みをいただいていた。) 今日では ^{137}Cs の80%と ^{90}Sr の65%が廃棄物から分離されている(NRC 1978)。これらの分離された廃棄物のうち、約90%が現在冷却コイル装備のステンレス製タンクに液体状態で貯蔵されている。残りの10%は CsCl と SrF_2 の固体に転換され、冷却水盤中のステンレスと非鉄ニッケル合金カプセル中に貯蔵されている。これらのカプセルは、玄武岩をくり抜いた貯蔵所内に定置されるならば付近の岩を溶かしてしまうであろう程の強力な熱源である。また、地層貯蔵所に永久隔離するためにはカプセルを化学的ないし熱的抵抗性のすぐれた金属マトリックス—チタン—内に封入することは可能である。各廃棄物キャニスタ内に収められるカプセルの数は、キャニスタの熱負荷が岩を過剰加熱しないように制限する必要がある。

^{137}Cs と ^{90}Sr の液体廃棄物を安定なセラミックないしコンクリート形態に転換する技術を開発するための研究が必要である。そのような技術は、現在おこなわれている、液体を CsCl や SrF_2 のような固体に転換する方法に取って代わる可能性がある。安定な固化形態、それらの負荷およびキャニスタの大きさと形状は、処分後の周辺の岩を過剰加熱しないように選択しなければならない。

(2) 最終形態として可能性あるもの

① セラミック

セラミックは不溶解性の高い、非金属性の無機物質である。固化廃棄物形態としては、それらは主に結晶質の酸化物を構成し、大きさでは小さなタドン状(数センチメートル)から静圧的(isostatic)にプレスされた一体物(0.5m×1m)までの範囲に及んでいる。

セラミックは熱力学的に安定な結晶相中に全ての有害な放射性核種(例えば ^{137}Cs や ^{90}Sr)を含有することが可能なために廃棄物形態としてたいへん重要である。さらにその上、その結晶質の性質から正確に決められたある核種を構造的に取り込むことができる。すなわち、与えられた核種は特定の結晶中か構成物中に残存されるかあるいは、より好ましい相を作り出すように処理法が変わってゆく。

セラミックの廃棄物形態を作る幾つかの方法が研究されてきたがこれらの物質に関する研究は今まで、たいへん限定されていた。よって、工学的に必要なプロセスは未だ開発されていない。セラミック廃棄物形態を容易にかつ効率良く作り出すために必要な情報が得られてはじめて、セラミックの生産は他の廃棄物形態(例えばガラス)と比較で

きるであろう。

現在セラミック固化体を作るためには五つの主な技術を利用することが可能である。

- (1) Hot pressing ; Supercalcine ないし、それとガラス形成素材の混合物を高温 (1000°C) 高圧 (130 ~ 260 kg/cm²) の条件下で固定すること。

この技術の変形として Hot isostatic pressing がある。これは Supercalcine を満たした金属コンテナを圧縮されたアルゴンガスで静力学的に圧縮し高密度の一体物を作り出す技術である。

- (2) Sintering ; 純粋の Supercalcine 又は仮焼体と添加剤の混合物を高温 (1200°C) 下で固定することである。

- (3) Fusion casting ; 仮焼体と異なる添加剤を約 1400°C で溶融し結晶化を促進する速度で冷却して、強く凝集した固体を作るものである。

- (4) Glass-ceramic ; Supercalcine 又は仮焼体 + ガラス粉末 + 結晶化剤の混合物を溶融し、ガラスを得るため急冷しそれから結晶化を促進する速度で昇温して固体を得る。

- (5) Adsorption/densification ; HLLW を直接、無機イオン交換樹脂から成るセラミックの“レンガ”に吸収させた後、レンガを 1000°C まで加熱し安定な結晶相中に問題の放射性核種を固定すること。

全ての固化廃棄物形態の中でセラミックが最も熱的安定性が良く、耐放射線性および耐浸出性が高い。さらに幾つかのセラミック形態では仮焼体を除く他のいかなる形態よりも(単位体積当り)廃棄物を多量に含有しうる特徴をもっている。

廃棄物形態としてのセラミックの欠点はこれらの諸性質から派生するのではなく、むしろ審議会 (Panel) の考えによれば、セラミックは他の形態に比較して多くの点ですぐれているが、要求される方法が高温プロセスであるため相当複雑になることによる。調査されたプロセスのうち、adsorption/densification プロセスは特に期待がもたれるプロセスである。なぜなら比較的簡単で操作温度が低いからである。又コストもかなり低くなる。Hot isostatic pressing は、幾つかの長所をもつ最近の商業技術である。基本的には低温シールとバッチプロセスでの大きな分離ユニットから成る。(詳細な考察は、7章 セラミック 参照)

② ガラス

ガラスは結晶化することのない厳正な条件下で冷却することにより得られる無機質の

融合生成物として定義される。一般にガラス形態で放射性廃棄物は非結晶の一体化相から成る。幾つかの場合には、これは $3m^{\text{長さ}} \times 0.5m^{\text{径}}$ であり、他の場合にはセンチメートルサイズのペレットである。実際には、ガラス中の放射性廃棄物はケイ酸塩またはリン酸塩の網目構造を基本としている。これらの構造は廃棄物イオン(かなり不安定である)を高含有するが、大きさがミリメートル以下の不純物が分散している結晶相が含まれていることがしばしばみうけられる。

放射性廃棄物を含有するガラスは通常仮焼体とガラス形成素材の混合物を溶融炉へ供給することにより作られる。幾つかの場合では、溶融炉自体が最終廃棄物コンテナの役割をも果している(In-Can Melting : HARVEST Process …… 第8章 参照)；他の場合には、溶融ガラスは溶融炉から金属キャニスタへ流し出される。最近、直接通電方式のメルタが好んで使用されている。このような溶融炉はいかなるガラス化プロセスにおいても取り入れることが可能であろう。電気溶融炉の設計ないし操作において、現存する工学規模の経験から得られた知識は、この方面の発展に多いに貢献するであろう。

ガラスは、放射性廃棄物を好ましい形態に固化する上で多くの特徴をもっている。要望する濃度でほとんど全ての金属酸化物を単相に溶融することが可能であり、さらにその上、均一なケイ酸塩ガラスは実験室規模での様々の雰囲気条件下で、不溶解性の傾向を示すと共に高い熱伝導性(仮焼体と比較すると)ないし放射線損傷に対して、すぐれた抵抗性を示す。このような長所をもつにもかかわらず、ガラスは多くの欠点も有しているため HLLW の固化形態の選択にあたって、ガラスがなぜ世界的に注目されるにいたったか審議会(Panel)は明らかにしていない。この選択は、おそらく固化形態の基準の1つである低浸出性という考えから発したものであると思われる。高ケイ素含有ガラスは従来の試験方法に従うならば非常に低い溶解速度を示すが、この点に関してガラスが最良の形態でないことは明らかである。ガラスの準安定性は相分離、失透、および熱水分解による物理的・化学的変化を招く。

処理の点からすると、ガラスは恐らく固化廃棄物形態として最も好ましくないであろう。液体廃棄物をガラスに転換する際には、気体、蒸気、ダストおよび高温(1050°C)、腐食性ないし揮発性の流体としてのガラスのハンドリングを含んでいるからである。全体を密閉状態にする必要性、遠隔操作並びにメンテナンスを最少限におさえることはガラスプラントを非常に困難なものにしている。(詳細な考察は、8章 ガラス 参照)

③ 使用済燃料集合体

LWR 燃料は3年ないし4年間照射された後、使用済燃料棒の形態で原子炉から取り出される。この使用済燃料^(注1)は、アクチノイド(ウラン、プルトニウム、ネプツニウム、

(注1) LWR燃料は初期にはウランのみを含有している。使用済燃料中に存在するプルトニウムは照射中に生成される。商業用使用済燃料が最終的にアメリカで処理されるならばプルトニウムは回収され、混合酸化物燃料としてウランと共に使用されるであろう。

アメリカシウム、キュリウム)核分裂生成物およびチタンを含有している。LWR 使用済燃料棒は、ジルカロイ被覆管の縦断面に主に二酸化ウラニウムと他の放射性核種と一緒に含有する二酸化プルトニウムの固容体からなるセラミックペレットが充填されている。端栓とスペーサにより幾何学的配置に基づいて束ねられた使用済燃料棒は使用済燃料集合体として知られている。

現在のアメリカ政府の政策は商業規模使用済燃料の再処理を延期している。この政策のため、審議会(Panel)は使用済燃料集合体を地下貯蔵所に定置する廃棄物形態として可能性あるものとして考えることに決定した。もちろん SFAs は HLLW を含有する固化プロセスの生産物でないとの点で他の固化廃棄物形態とは異なっている。他の廃棄物形態の適正を決定する要因は同様に廃棄物形態としての SFAs の適正にも影響を及ぼすであろう。

予備解析の結果では、使用済燃料集合体は好ましい廃棄物形態であるが回収を考慮した貯蔵ないし最終処分準備方法を明らかにし、確固たるフィージビリティを確立する上で、より一層の研究並びに試験が必要であることを示唆している。様々の岩石との熱水反応の結果として生じるであろう相または現存する相についてはほとんど何も明らかにされていない。とにかく貯蔵所のハンドリングを容易にし、安全性を高める金属で使用済燃料集合体を包むことが本質的であろう。

使用済燃料は処分形態として3つの長所をもっている。コストを他の形態よりも低くおさえることができる。他の形態ほど表面処理をする必要がなく、それゆえ周囲への危険性が少ない。そして、種々雑多な低レベルないし中レベルの廃棄物の処理およびハンドリングの必要性を削減することができる。

固化廃棄物からの発熱は地層処分所の固化廃棄物コンテナのスペースを決定する上で基本的要因である。使用済燃料のより長期間に渡る熱出力(11章 Fig11.4 参照)は、処分形態としての使用済燃料の主要な欠点の1つであり、処分所内での最大熱負荷がより低くなる。DOE(1978)の評価では、再処理プラントから発生した HLLW 100~150 kW/エーカに対して使用済燃料は 66~99 kW/エーカで貯蔵されるとしている。第2の欠点は使用済燃料は他の形態によって取り入れられるよりもずっと多量のプルトニウムとウランが貯蔵所に持ち込まれることになる点である。それゆえ使用済燃料は他の形態に比べ、より長期間に渡って潜在的危険性をもっていると判断しなければならない。また岩塩貯蔵では、プルトニウムとウランの存在は臨界の可能性の心配がある。仮に貯蔵所が破損したならば水が岩塩に浸透し核分裂性物質が偶然にも適正な形状に配列される可能性がある。使用済燃料中のウランとプルトニウムによって代表されるエネルギー源の永久処分に関連する欠点は本書の意図する所ではない(詳細な考察は11章 使用済燃

料集合体 参照)。

3. 第2次封じ込め形態

第2次封じ込め形態は、様々の第1次廃棄物形態を封入するマトリックスの役割をする固体物質である。

(1) 金属マトリックス複合体と金属コンテナ

固化プロセスでは、金属は2通りに使用されている。

(1) 全ての第1次形態に対して2次的封じ込めマトリックスとして(特に Supercalcine とガラスに対して)

(2) 固化形態の輸送を目的とした外部容器として

マトリック物質としての金属の基本的長所は、熱伝導性が高いということ(定常状態での中心温度を低くするため)、と外部溶液の浸入を阻止することである。外部コンテナとしての金属の使用は輸送中に重要である機械的強度および回収可能な処分場で特に重要な耐腐蝕性を得ることが出来るからである。地質年代規模において貴金属以外の全ての金属がセラミック例えばアルミナほど安定でないにもかかわらず、上述の理由のために金属が外部コンテナとして利用される最良の物質と考えられている。鉛ないしアルミナを含有する大きな金属製のシリンダから成る金属マトリック形態が現在設計されている。一例として、長さが1 m程で径が10 ~ 20 cmで、均一に分布したビーズ又は第1次封じ込め形態の粒子(ガラスないし Supercalcine^(注2))をマトリックスに含有している。第1次封じ込め形態は、金属マトリックスの全体積の25 ~ 50%を占めている。

金属を低温溶融技術を通して導入するための選択は、鉛を用いて広範囲の研究が行われてきたがアルミニウムやチタンを用いてはほとんど行われてきていない。可能なマトリックス物質として、鉛がたいへん注目を集めてきた。チタンへの期待はたいへん大きく今後より一層の研究を行う必要があるだろう。(10章 参照)

金属マトリックス複合体に処理するために現在3つの方法が利用されている。

- (1) 溶融金属中に廃棄物粒子を埋め込む。
- (2) ガラスないし Supercalcine を金属粉末と混合して焼結する。
- (3) ビーズと金属粉末の混合物をぎっしり詰めそれから焼結する。

比較的注目を集めているかなり異った技術として、cold isostatic compactionがある。これは、金属粉末を空の金属コンテナの中でガラスビーズと混合させ溶接して密封し、アルゴン雰囲気 chamber の中におき、アルゴンを圧縮することによって圧搾的に加圧

(注2) 現在の金属マトリックスの設計は、Supercalcine とガラスを用いているが、他の固体も同様に用いられ得る。

する方法である。

熔融金属マトリックス複合体の技術開発はヨーロッパの諸国に負う所が大きい。ベルギーのユーロケミックでは今日これらの複合体とパイロットプラント段階まで実証してきている。

(詳細な考察は、10章 金属マトリックス複合体 参照)

(2) セメント/コンクリート複合体

コンクリートは、砂、砂礫、碎石をセメント（主にケイ酸カルシウムとアルミニウム塩）と水からなる強化剤で固めた無機複合体として広範囲に良く知られているものである。

HLSWの研究では、廃棄物イオンを含有する Supersludge ないし Supercalcine を砂ないし砂礫の代りに用いるものである。セメントの水和作用で（常温および常圧で行える処理上の利点をもっている）コンクリートは、多くのタイプの天然の岩石と、強度、固さ、ないし耐浸出性で匹敵するようになる。

セメントを基本とした複合体は放射性廃棄物を含有する有望な媒体である。液体廃棄物を直接セメントないしコンクリートに添加することは可能である（それによって、新しいほとんど研究されていない第1次封じ込め相を形成する）が、現在考えられているセメント基本の複合体の多くはセメントに碎石として、第1次固化廃棄物形態例えば Supercalcine ないし Supersludge の粒子又は粉末を添加したものから構成されている。生成した可塑性廃棄物形態は独特の利点をもっている。即ち好しい地質内の薄い層（10～40 cm）内にポンプで送り込むことができる又は、最終処分のための大きなシリンダ（1 m^{高さ} × 1 m^径）内に注入することができる。

セメント/コンクリート形態は、低温で処理が簡単であるとの大きな利点と共に驚くべき程に適正な性質をもっている。例えば、Supercalcine-concrete 複合体の浸出性ないし飛散性は、ガラスのそれに匹敵するであろう。加えて、セメント基本の複合体に含有される廃棄物の量はガラスないし金属マトリック廃棄物形態に含有される量と同程度である。コンクリートの熱的安定性は温度が 300 °C 以下なら容認できるが、500～900 °C の範囲に達すると強度はほとんど完全に失ってしまうと予想される。それゆえセメント複合体はかなり古い希釈された DOE Wastes には有望であると思われるが発熱率の高い新たな商業廃棄物に対しては、幾分魅力がうすらくであろう。

セメント基本の複合体をキャニスタに密封することに関して、明らかにされていない最も重要な事は、水と硝酸塩の放射線分解又は水が蒸気へ転換する結果生じる圧力上昇である。よってシールされたキャニスタにセメント複合体を用いる場合には、より詳細に研究をしておく必要がある。放射線分解が重要な問題でないと証明されるならば、セメント基本の複合体は、DOE Wastes の固化の選択された廃棄物形態であるように思われる。この分野の初期研究が現在行われている (Bibler and Orebaugh 1977, Tingey and Felix

1977)。詳細なコスト解析は行なわれているが, Supersludge および “SupergROUT” 複合体と良く開発された grouting technology と結びつけて用いるなら, 廃棄物固化にとってコスト的に十分有効な形態ないし方法を提供するであろう。(詳細な考察は, 9章セメントおよびコンクリート複合体 参照)

3章 固化体の選択

放射性廃棄物の処分に対して適当な固化体を選択するためには、放射性廃棄物管理システム全体の関係の中で、前章で概説した個々の固化体の特性を考えねばならない。各段階での操作モードの選択は固化体の選択に影響を与え、また固化体の選択は操作モードの選択に影響を与える。更に各段階での選択は、それ以降の段階へ影響を与える。十分なデータが利用できるのなら、明らかに常識的な取捨選択が要求される。たとえば、固化体の要求に適應させるためには操作が最も良く改良されるかもしれないし、操作上の要求から固化体の選択が強いらられるかもしれない。十分な安全性という与えられた目標を達成するために多くの違った選択要素が利用できるのが、安全基準に適合しておればプロセスのコスト、信頼性及び単純性がプロセスの選択において重要な因子となる。

本章においては、固化体とシステムの相互作用およびコストの双方に与える影響に関して選択プロセスを論議する。

1. 放射性廃棄物管理システム

(1) システムを操作している間の相対的リスク

放射性廃棄物管理（RWM）システムは、使用済燃料ピン（SFPs）を原子炉から取り出すことで始まり、SFPsあるいは高レベル固体廃棄物の永久的な定置で終る操作範囲を含むものと定義される。システムの主な構成成分はFig.3.1に示すように、貯蔵、再処理、固化、輸送、隔離である。固化体と隔離媒体の両方に利用できる選択がFig.3.2に示されている。原理的にシステムには、使用済燃料ピン自体の貯蔵と最終処分、あるいは使用済燃料ピンの再処理、固化および高レベル固化廃棄物（HLSW）の処分のどちらかに利用できる5つの施設と4つの輸送ステップが必要とされる。

このレポートの焦点は“固化体の選択要素”をグループに分類する事である。しかし図に示されるある選択要素とその他の選択要素のグループが相互に関係づけられるので、固化体の選択に影響を与える程度を決定するためには全構成成分の考察を行う必要がある。さらに種々の構成成分 — 燃料取出し、再処理、固化、定置 — の間の時間間隔が全放射性廃棄物管理戦略において重要な因子となる。議論を単純化するために我々はシステムを3つの基本ステップに分割した。つまり処理、輸送、定置である。Table 3.1には各ステップでの固化体への要求とこれらの要求を満足するために必要な固化体の物理的、化学的性質を示してある。

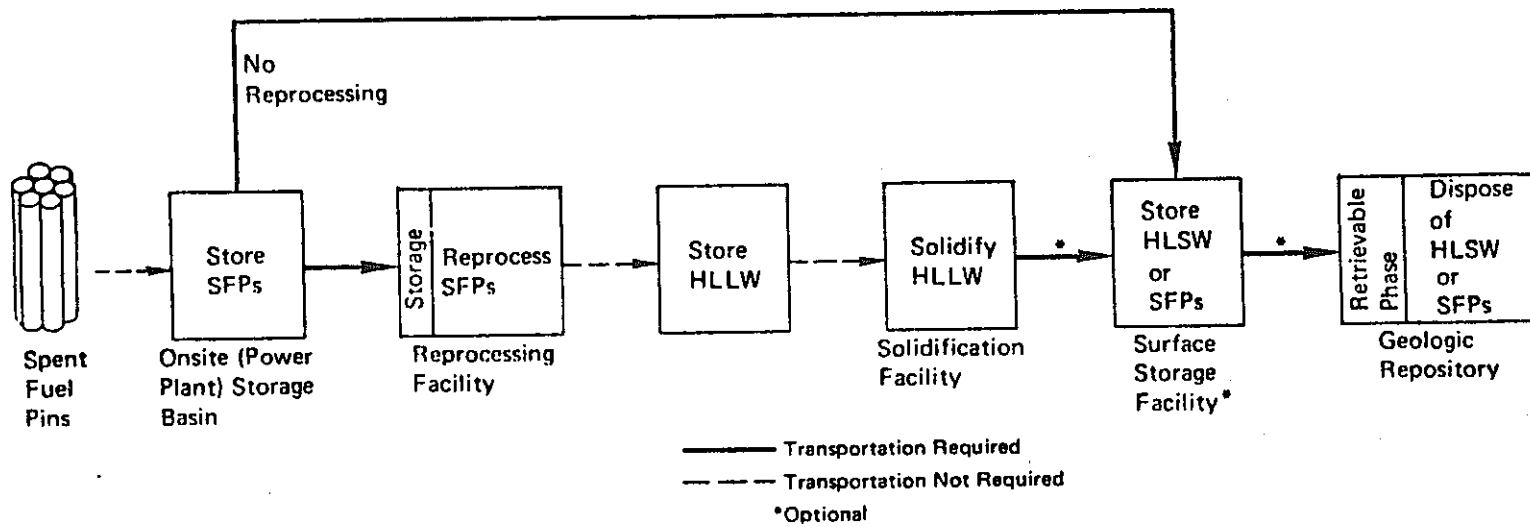


FIGURE 3.1 The radioactive waste management system.

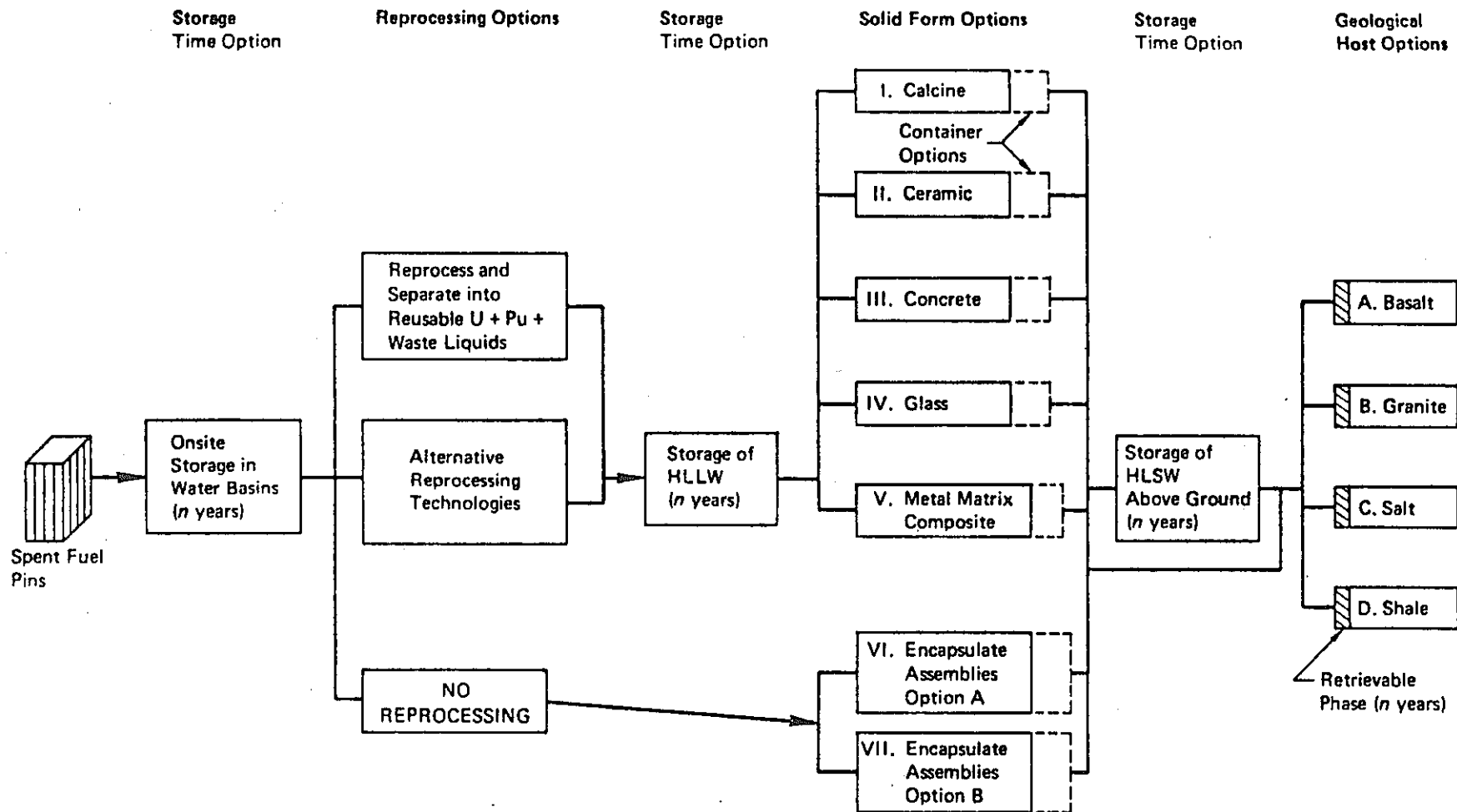


FIGURE 3.2 The radioactive waste management system showing options at each stage. The system is defined by (1) selecting the amount of time that the waste will be stored at different stages in the system, and (2) selecting among the various options for reprocessing, solidification, and emplacement.

TABLE 3.1
System Demands on the Solid Waste Form

	Processing	Transportation	Emplacement	
			Retrievable	Nonretrievable
Objectives	Minimize hazard to worker Minimize hazard during storage	Minimize hazard during transportation	Maximize stability in canister for possible retrievability Maximize stability versus rock and groundwater attack	Maximize stability in equilibrium with host rock
Properties of Solid or Process Characteristics	Process should be simple, adaptable for remote operation Solid not too dispersible	Low solubility, low dispersibility, good thermal conductivity, good mechanical properties against accident, minimized volume	Low solubility, good thermal conductivity, low reactivity with rock and water	Yields phases with minimum solubility in equilibrium with host rock
Demand on Solid Properties	Solid properties unimportant	Maximum demand on solid properties	Container properties important; knowledge of thermal properties significant	Physical properties no longer important; insolubility of post reaction phases important

① 処 理

液体廃棄物から固体廃棄物への処理は、放射性物質による作業者の被曝を最小限にする方法で行わなければならない、それと同時に放射性物質が偶然にも環境に放出されるということのない事を保証しなければならない。我々は、できるだけ単純に操作でき、高温操作や離散性の高い物質の生成を避け、遠隔操作および遠隔保守に適応でき、さらに品質管理の検査を備えているプロセスを使うことによって、上記の目的にかなうものと信ずる。離散性を除いて、処理している間の固化体の特性はそれほど重要な問題ではない。またSavannah River Plantにおける研究(U.S. ERDA 1977c)によれば、高レベル廃棄物のコンクリート化処理、ガラス化処理あるいは乾燥粉末化処理の間では、公共へのリスクの差異はそれほど重要にはならない。さらに処理に関連したリスクは輸送に関連したリスクと比較して小さいようである。

② 輸 送

輸送している間廃棄物は多くの人々に接近し、処理あるいは定置中よりも不安全な状態にある。それゆえ輸送に対しての安全評価はRWMシステムにおける他の安全評価よりも重要である。(Dryoff et al. 1977, U. S. ERDA 1977c, U. S. NRC 1977を参照)。破壊行為のリスクならびにこれは実際的な見地では少ないがテロ行為のリスクのような放射性物質が偶然に離散するリスクは、処理中あるいは定置中よりも輸送中に大きい。それゆえある特定のシステム(Fig.3.1, 3.2)に伴う輸送ステップの数は、固化体に対する要求を決定する上で重要であろう。固化体が典型的な地表水中で低溶解度を有ししかも非離散性である事がもっとも重要なのは輸送中である。

しかしながら輸送中に要求される予防措置を増してもそれは一時的なものである事に気づくべきである。さらに幾種かのRWM計画、特にDOE廃棄物に対するRWM計画では、廃棄物のon-site処分を呼びかけており、これによって輸送の必要が除去される。かりに輸送ステップがなくなれば、固化体への要求はかなり削減するかもしれない。

輸送のリスクは2通りの点で固化体の選択に影響を与える。まず第一に、リスクはどの位の量の物質が輸送されるかに依存する。それゆえ与えられた固化体(廃棄物負荷)に組み入れられる廃棄物の量は、その固化体を選択するかあるいは拒絶する上で考慮すべき事柄である。2番目に、浸出、離散、揮発のような固化体の物理的性質は、輸送事故の後では多かれ少なかれ固化体を危険なものにする。3つの固体廃棄物形態に対する輸送のリスクが、Analytic Sciences Corporationによる最近の研究の中で計算され比較されている。その結果によれば、メタルマトリックス固化体がガラスよりもすぐれ、ガラスは仮焼体よりもすぐれている。さらにガラスあるいはメタルマトリックスを輸送する上で計算されたリスクは、LWR燃料サイクルの他の段階で招くリスクと比較

して小さいようである (Nuclear Energy Policy Study Group 1977)。メタル、ガラスおよび仮焼体に対して行われたリスク解析は、このレポートで議論されているあらゆる固化体についても行う必要がある。なぜならこのような解析は種々の固化体の適合を決定する上で基本となるからである。

ある特殊なシステムで、ある特定の廃棄物形態を作るということを国民に認めさせる政策を推進することに関係している政策作製者に対して、我々はある比較論を提示して助けとなることができる。使用済燃料ピンの性質を調べ、ハンドリングと輸送中のその脆弱性を調べる事によつて、高レベル固体廃棄物より生ずる将来のリスクを現在のリスクと比較することができる。

③ 定 置

核廃棄物の永久処分に対して提唱されている種々の方法の中でも、地質層への固化体の定置が現在アメリカ合衆国において好まれている。このような層の学名については混乱が生じている。学術的には地質層は岩床タイプのものである。よつて“host rock”と“地質層 (geological formation)”という専門用語が交互に使われるかもしれない。しばしばまぎらわしい区別が、岩塩、頁岩、および“結晶質”岩の間でなされている。RWMに対して考えられている候補岩 (candidate host rocks) はどれも結晶物質より成っている。それゆゑこのレポートで使われる用語は、その岩に固有の名称、例えば岩塩 (地層をなしているかあるいはドーム)、頁岩、花崗岩、玄武岩などである。

最近の解析 (Dryoff et al. 1977, U. S. NRC 1977) によると次のことがわかつた。定置後のリスクは輸送あるいは処理中よりも小さく固化体の溶解性と言つた性質は既存の比較的小さなリスクと大差がない。他方、APSの研究 (1978) では、浸出率 10^{-7} g/cm²/day 以下が“確実に達成できる”のならば、固体廃棄物自体が放射性物質の放出に対しての重要な障壁を与える事を示している。上記の研究では、ここで考えられている範囲の廃棄物固化体を調査していない事に気付くべきである。また、適当な水地質学的条件下での廃棄物と岩の特定の相互作用は望ましく、それゆゑ固化体を選択するにあつて考慮すべき重要な事であるかもしれないけれども、この廃棄物と岩の相互作用の重要性についての詳細な考察は行っていない。

地層処分中は、廃棄物が回収できる比較的短かな段階 (phase) があり、その間は収納容器の健全性が重要で、固化体自身は比較的重要ではない。最終的な“地質学年代”段階は固体廃棄物とそれをとりまく岩石との実質的相互作用の機会を与えるであろう。100年経過した後では、初期の固化体の物理的性質はさほど重要ではなくなり、むしろ相互作用によつて生ずる化学的性質の方が重要である。この相互作用は、好ましいことがわかるかもしれないが、水の存在あるいは廃棄物の有する高温によつて強く影響されるであろう。

プルトニウム（1半減期＝24,360年）の2～3半減期間、廃棄物の隔離を保証するように貯蔵施設が設計されている限りにおいては、高温でしかも放射性的な廃棄物が岩と反応した後の収納システムの性質について考察を行わなければならない。適当な貯蔵施設は、その内で貯蔵されている廃棄物の性質にかかわらず、フェイルセーフの役割を果たすものと期待できるが、“多重防護”という概念では最終の固化体が最少限の溶解度を有し、しかも最小限のイオンの放出速度を有する事が必要である。

廃棄物/岩の相互作用の研究にはちょうど資金が与えられたばかり（Pennsylvania State University 1977）で、これに関する直接的なデータはまだ利用できない状況にある。しかしながら、それに関し、かなり広範囲にわたる地質学の文献を基本としての概括はすることができた。

1. 地質学貯蔵施設内の廃棄物キャニスター近辺で予想される温度200～800℃、圧力1～300気圧、水の存在（穴から侵入した水あるいは水和鉱物としての水）のような条件下では、初期の廃棄物の広範囲な相互作用ならびに変質がたしかに存在する。
2. このような相互作用はどの結晶質形態のものよりもガラスに影響を与えるであろう。
3. （自由エネルギーの差により）花崗岩、頁岩よりも岩塩の方が酸化物廃棄物と反応しやすい。
4. 廃棄物とそれを取りまく岩の間の相互作用によって生み出された生成物がすべて、廃棄物の形で最初に存在しているものよりも劣るという事はない。しかし各特殊な場合に何が起りやすいかという事を決定するために、広範囲の研究が必要である。
5. 土壌の一般的鉱物、頁岩あるいは花崗岩は吸収を通して放射性核種を固定化するので、反応と同様にこのプロセスに関しても焦点を合せるべきである。

高レベル固体廃棄物の長期安定性を実験的に確かめるために、1,000年以上も待つことは実行できる事ではないが、25万年あるいはそれ以上経過している種々の天然鉱物（特に放射性廃棄物中に見られるイオンを含んでいる鉱物）を調査する事は有益である。例えばある天然鉱物はその結晶構造および風化挙動に影響を与える放射性核種を含んでいる。こうしてmetamictization現象（照射あるいは分子の衝撃による鉱物中の構造損傷）の研究は、各固体廃棄物の結晶構造とその安定性に及ぼす照射効果あるいは変質効果の大きさの示度を与える。鉱物の安定性に関して自然は、地表近くの条件下で溶解、変質、風化に最も良く耐える特殊な結晶構造のあることの良い例を示してくれる。変化していく地質の歴史の中で100万年の間存在し続けたこれらの相は、100万年間の鉱物あるいは相の“安定性”がかなり一般的であることを保証している。かくして各beach sandsの鉱物は、原子レベルでの廃棄物のカプセル封入に対して、すぐれた原型構造を形成している。またそれらは、特定のシステムの条件（乾燥、低温）のもとでは適当な廃棄物形態であるガラスがもっとも良い物質の仲間でない事を実証している。

(2) システムの最適化

廃棄物管理システムの各点における放射性廃棄物の危険からの防護は、監視隔離および固定化の組合せによって規定される。Fig 3.3は高レベル廃棄物の通路を図示したもので、それはシステムの5つの異なるステップを移動する。原点付近の斜線で示された部分は容認できないリスクが存在する状態を示している。システムの最適化は、放射性物質の通路を最小限のコストでできるだけ原点から遠ざけておく事を要求している。

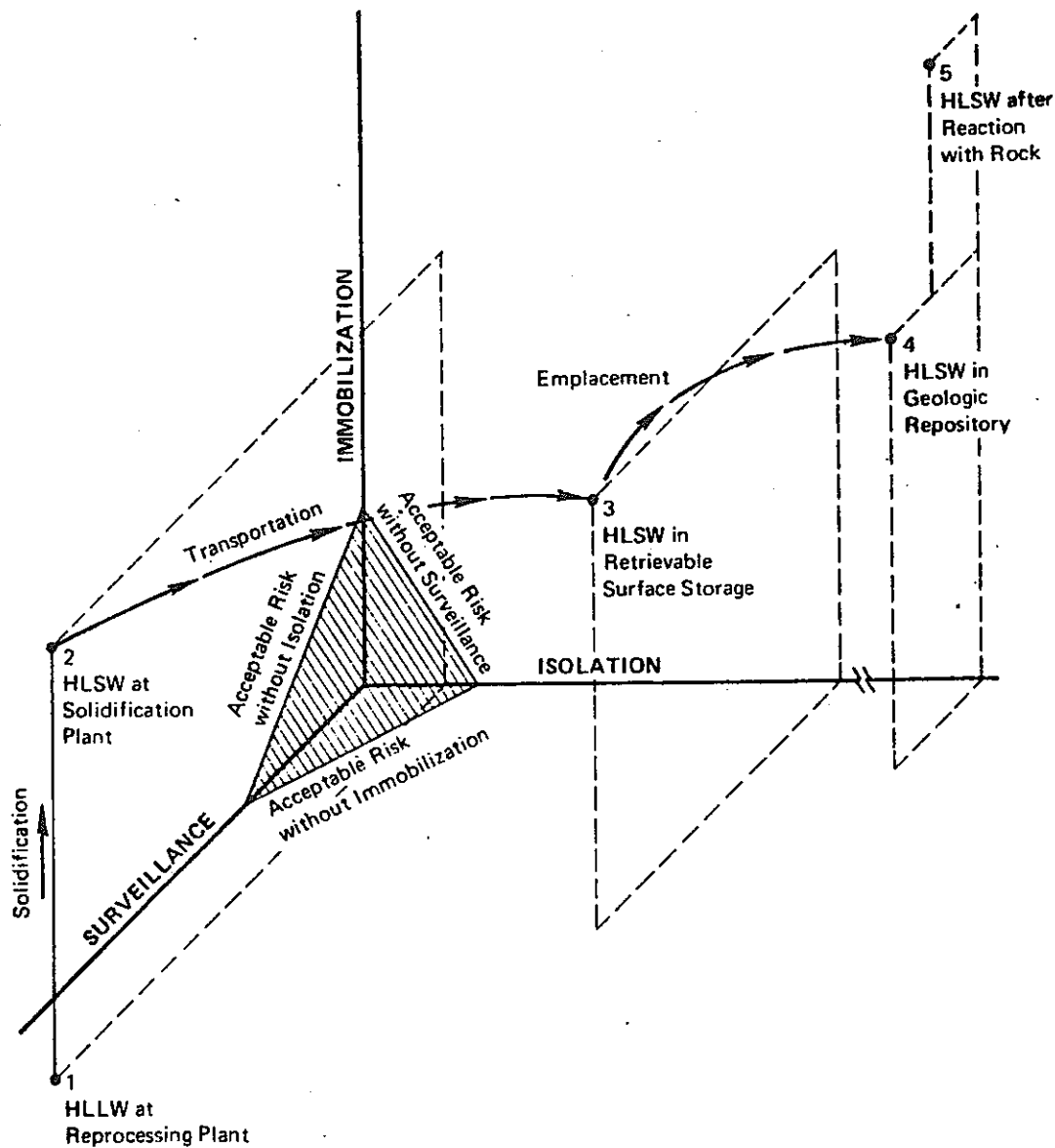


FIGURE 3.3 Tri-component management system showing the system's reliance on isolation, surveillance, and immobilization. Initially, protection is provided by isolation and surveillance of the HLLW. Immobilization is greatly increased by solidifying the HLLW. Emplacement of HLSW greatly increases the reliance on isolation and decreases the need for surveillance.

この通路に従えば、再処理プラントではHLLWは可動性が高く、相当の監視を必要とすることがわかる。HLLWの固化は固定化をかなり増加させる。地表面貯蔵施設への輸送は監視の必要性を減少させるが廃棄物の隔離はかなり増加する。地質学貯蔵施設への定置は廃棄物の隔離をさらに増加させる一方監視に対する必要性および可能性に限界がある。十分な計画がたてられれば、数十年経過した後の廃棄物とそれを取りまく岩との相互作用は固定化を増加させ、監視の必要性をさらに減少させる。

1章で説明したように、全RWMシステムは放射性物質の放出に対して多重障壁を提唱している。各障壁はできるかぎり多くの防護を備えているように設計されるであろう。各個々の障壁の効能を最大限にすることによってシステムの効率を最大限にできる。

例えば、実際的にどの固化体も満足のいくように輸送キャスクを設計したりあるいは地質形態を選択したりできる。しかしながら決定者によってあるシステムが選択される以上、防護のレベルと防護のコストの間で取捨選択が行われるのは明らかである。このレポートの解析によると、合理的な選択をするための不可欠な情報を決定者に与えるために、全範囲の選択要素を挙げている。

いくつかの例によれば利用可能な選択要素を決定する際に、種々の取捨選択が行われていることがわかるであろう。

輸送事故の数はざっと積荷の数に比例しているものと期待できる。この仮定を基礎とすれば“もっとも良い”形態は、単位体積あたりの廃棄物の含有量をもっとも大きいものである。他方、処分のための敷地と固化プラントを一緒に設置することによって輸送の手間はおけるのなら、コストのかからない、high-volumeな科学技術が望ましいかもしれない。

TABLE 3.2

Rates of Heat Generation from Radioactive Decay of Typical LWR Spent Fuel^a

Time Out of Reactor	kW/MTU
160 days	18.5
1 year	9.2
10 years	0.86

^a The values shown are for fuel irradiated at 35 MW/MTU to a total burn up of 25,000 MWd/MTU.

Source: U.S. ERDA (1976b).

放射性廃棄物の発熱率は廃棄物の年数（貯蔵水槽での時間）に強く依存する（Table 3.2を参照）。新しい（10～20年）廃棄物に適応した固化体は20～30年経過した廃棄物（例えばDOE廃棄物の大部分）に適応した固化体とは違うであろう。さらに貯蔵施設で許容できる熱負荷は地質層の性質で変わり、それゆえ違った固化体の使用を示唆している。

2. 廃棄物形態とシステムの選択における一因子としてのコスト

各種の固化とシステムの選択要素から生ずるリスクの差異は比較的小さいようである。なるほど多くの場合には、安全を基本として2つの科学技術のどちらかの選択を行う事はむずかしいかもしれない。このような場合には、プロセスの単純性、信頼性ととも各選択要素のコストが、選択を行う上で最も良い基準となる。コストの問題は最近公共の注意を引いているが（例えばU. S. Congress, Hovse〔1977〕）、それはたしかに放射性廃棄物の将来の決定において重要な因子となるであろう。

どの程度の安全に対してどの位の金額を支払う用意があるかの決定は政治的判断であり、審議会が行うには不適當なことである。にもかかわらずこのような決定を行う責任のある政策製作者の手助けをするためには、選ぶべき廃棄物管理戦略のコストに関する正確な情報を提供しなければならない。審議会では、この情報が合理的な政治計画に対してたいへん重要であるものと信ずる。

① ERDAコスト評価

最近主な3つの研究所（Hanford, INEL, SRP）の各々から公表された文書（U. S. ERDA 1977 c）が利用できるようになった。これらの文書は軍事廃棄物の固化および処分に対して選ぶべき戦略の全コストの予備的な評価を与えている。これらのコストはさらに、固化を含む与えられた戦略の中で要求される各ステップのコストの成分に分割されている。Table 3.3には、全コスト評価のいくらかが実例として載せられてある。（すべての選ぶべき戦略の全コストはこれらの研究で考察されているが、このコストをAppendix Aに示す。興味ある読者は各戦略リストに関する詳細な関連記事を調べるべきである。）コスト数値を引き出すこれらの試みは非常に推薦できる事であるが、審議会では、現在の数値は近似値とみなすべきであると信ずる。それゆえ合理的な政策作製をする上で基本となるコスト数値を絶えず最新のものにする試みがなされるべきである。

審議会が新しい詳細な評価の正確さを査定するには、あまりにも多くの不確定な要素が含まれている。（著者自身明快にその限界を述べている。）各研究所ではコスト評価を引出すための基礎として一貫した仮定を使ったという事実は、合理的な比較により、広範囲のalternativeな計画をたてる事を可能なものにする。さらにこれらの評価は、固化、輸送、隔離を履行するための全コストが300億ドル以上にもなる事を示している。ハンフォード

TABLE 3.3

Cost and Risk Data for Several Radioactive Waste Disposal Plans at the Hanford Reservation and the Savannah River Plant

Site	Plan Number	Plan Description	Total Cost (million 1976 dollars)	Integrated Population Dose Risk, (man-rem)
Hanford	4	Glass w/RR* in Canisters Disposed of in Off-site Geologic Repository and Bulk Decontaminated Salt Disposed of in On-site Surface Trench.	1,500	2×10^2
Hanford	6	Concrete w/RR* in Canisters Disposed of in On-site Geologic Repository and Bulk Decontaminated Salt Disposed of in On-site Surface Trench.	1,400	2×10^{-2}
Hanford	17	Clay wo/RR+ in Canisters Disposed of in Off-site Geologic Repository.	6,000	3×10^3
SRP	1	Glass Disposed of in Off-site Geologic Storage and Canned Decontaminated Salt Cake Stored in Outside Surface Storage Facility.	2,700	9×10^2
SRP	2	Concrete Disposed of in Off-site Geologic Storage and Canned Decontaminated Salt Cake Stored in On-site Surface Storage Facility.	2,400	9×10^2
SRP	12	Concrete Stored in Off-site Surface Storage Facility and Canned Decontaminated Salt Cake Stored in On-site Surface Storage Facility.	3,000	7.3×10^2
SRP	14	Dry Powder Disposed of in Off-site Geologic Storage and Canned Decontaminated Salt Cake Stored in On-site Surface Storage Facility.	2,300	9.3×10^2
SRP	22	Unprocessed Waste Slurry Disposed of in SRP Bedrock.	180	6.2×10^4

NOTE: It is assumed (ERDA 1977c) that the SRP plans listed above will dispose of 60 million gallons (230,000 m³) of reconstituted wastes having an average activity level of 5 curies per gallon (1,300 curies per cubic meter). It is also assumed (ERDA 1977a) that the Hanford plans listed above will dispose of: 25 million gallons (95,000 m³) of damp salt cake, containing 7 million curies of radioactive fission products; 11 million gallons (42,000 m³) of sludge containing about 50 million curies of fission products; and 11 million gallons (42,000 m³) of residual liquids containing 20 million curies of fission products.

* w/RR means with radionuclide removal.

+ wo/RR means without radionuclide removal.

の廃棄物に関するコストだけで272億ドルにものぼる(U.S. ERDA 1977a: 2-4)。
そのコストの大きさとコスト効率(コスト/危険の減少度)に1桁又は2桁の違いがあ
るといふ事実を考えても初期(第1期)廃棄物管理システムを引き続き改良し、より経済

的に効果的な第2期のシステムを開発することが、比較的危険度が少なくなる点を考えて、結果的に国民にとっての助けとなるであろう。

3. 固化体の適合のランキング

以上述べた基準を用いて、審議会では最も代表的であると考えられる3つのタイプの廃棄物に対する各固化体の適合性について解析した。この解析はシステムの各段階（処理、輸送、定置）に対する固化体の適合に従って固化体をランク順に位置づけし、またコストに関して固化体をランク付けしている。そのランキングはTable 3.4に要約されており、廃棄物固化の科学および工学に関する審議会の最も重要な調査結果を備えている。ある範囲内では、我々の知識は特定のシステムにおいて最も適合した固化体を合理的に選ぶ上で十分に正確なものではない。大規模の商業用廃棄物の固化が必要とされる前に経過すると思われる5～10年の間に我々の意見ではこの状態を改善するために必要なR & D 適切に行われるであろう。考えられる廃棄物の種類は次のとおりである。

種類A, DOEあるいは“軍事”廃棄物（20年以上経過した廃棄物の大部分）

種類B, 10年経過した商業用廃棄物

種類C, 2年経過した商業用廃棄物

多くの目的に対しBとCの区別は比較的少なく、それゆえ表ではそれらを“商業用”として分類している。

A. およそ265,000 m^3 のDOE廃棄物が現在3つの主要連邦施設において、結晶塩（例えば $NaNO_3$ ）、放射性核種の大部分を含んだ酸化物スラッジ、および ^{137}Cs を多量に含んだ上澄み溶液の混合物として貯蔵されている。DOE廃棄物の大部分は20年以上経過しているため、初めの全放射能の大部分（90%）が崩壊し、その結果発熱率はかなり低い。商業用SFPsの再処理は不明確に延期されているため、DOE廃棄物は必然的に固化されねばならない唯一の主なクラスである。

B. 再処理および商業用廃棄物の固化を延期するという現在の国の政策のために、使用済燃料はSFPsの形で現在地上に貯蔵されている。再処理政策に変更が生じ、これらの廃棄物固化の見込みがたつまでには、10年経過した使用済燃料のインベントリーがかなり蓄積されるであろう。さらに再処理が始まった場合には、利用できるプール貯蔵所の増加により使用済燃料の将来のインベントリーのいくらかは数年間冷却される事が可能である。このような冷却により使用済燃料の熱出力および放射能は徹底的に減らされ、その結果固化体への要求は減り適当な選択要素の数は増える。さらに再処理後のHLLWの冷却は政策の選択要素でもある。ただしそれはこのような廃棄物が生じてそれから5年以内に固化され

るという原子力規制委員会の要求によって限定されている。それゆえ、俗に“10年経過した商業用”と呼んでいる廃棄物のクラスが存在しうるであろう。しかしながら政策決定はこのような廃棄物が種類Aに等しくなるまで固化を延期する方向になるかもしれない。

C. 原子力利用の増加は、燃料の throughput を大きくするのでその結果2年経過した廃棄物が処理されねばならないという立場を造り出す可能性が将来あるであろう。

(2) ランキングに使われた主な基準。

Table 3.4 から明らかなように、廃棄物の年数は固化プロセスの審議会のランキングにおける主な決定要素である。これらのランキングを理解するためには、DOE 廃棄物に対して推薦できる固化体と将来発生するであろう新しい商業用廃棄物に対して推薦できる固化体との間の基本的な区別を明確に理解しなければならない。前者は中和された塩、および放射能が低く発熱率の低いスラッジと液体より成っている。それゆえ DOE 廃棄物から作られ 20 ~ 40 wt % の廃棄物を含んでいる固化体は、典型的な大きさのキャニスター内ではおよそ 250℃ 以上の温度は発生させないであろう。こうして例えばコンクリート合成物、低温セラミックのように、このような温度範囲で安定な固化体で十分であり、これらはプロセスの単純さという理由で好まれている。オークリッジナショナル研究所の注入プロセスの使用によればさらに平易化およびコストの節約となる。他方 2年経過した商業用廃棄物は同様の形状において 500 ~ 800℃ の中心温度を発生させる。このため熱力学的および熱的安定性を有するセラミック固化体が明らかに望ましい。特にメタルマトリックス固化体という形でのガラスは選択要素として残っている。しかし次の世代の解決策としては、審議会 (Panel) ではガラスはコストあるいは安定性に関して望ましくないものであると感じている。

固化体の選択要素をランキング付けする上で、審議会では次のように考えている。処理に対して選択された形態は装置の高温への露出を最少限にすべきであると。なぜなら高温システムの長期の工学的安定性と信頼性に対する恐れを増加させ、廃棄物成分の揮発を増加させ、設備を取り替える必要性を増加させるからである。

輸送の見出し (heading) において、固化体は相対的脆弱性、分散性および固化体を取り巻く温度における表面水での溶解性に関しとランク付けされている。

定置の見出し (heading) において、重要な基準は、貯蔵所において予想される物理的・化学的条件下で岩塩と水とに接触している不溶性固化体の安定性である。永久的定置に関する使用済燃料のランキングは、将来使用済燃料からウランとプルトニウムを取り除く試みがなされるかもしれないという可能性によって影響される。

TABLE 3.4

Relative Desirability of Solid Waste Forms During Processing, Transportation, and Emplacement and Relative Costs of Processing^a

	DOE: Category A	Commercial: Categories B & C
<u>Processing</u> (simplicity, efficiency, and reliability of process)	Supersludge/Cement Matrix Supersludge/Ceramic Supercalcine/Metal Matrix (cold) Supercalcine/Cement Matrix Supercalcine/Ceramic Supercalcine/Metal Matrix (hot) Glass Supercalcine/Glass Glass/Metal Matrix (hot)	SFPs (?) Supercalcine/Metal Matrix (cold) Supercalcine/Metal Matrix (hot) Supercalcine/Ceramic Supercalcine/Cement Matrix (?) Glass Supercalcine/Glass (?) Glass/Metal Matrix (hot)
<u>Transportation</u>	Metal Matrix Ceramic (high temp) Glass Cement Matrix Supercalcine	Metal Matrix Ceramic (high temp) Cement Matrix (?) Glass SFPs Supercalcine
<u>Emplacement</u>		
A. Retrievable	No differences in form. Containers of titanium, copper to be studied.	Metal Matrix, Ceramic, Glass, Cement, SFPs, Supercalcine, Supersludge/Cement
B. Permanent (different ordering in different rock formations)	Ceramic (low temp) Ceramic (high temp) Ceramic/Metal Matrix Cement Matrix Glass	Ceramic (low temp) Ceramic (high temp) Ceramic/Metal Matrix Glass/Metal Matrix Cement Matrix (?) Glass SFPs (especially in presence of O ₂)

<u>Process Costs</u>		
(Estimates based on complexity)	Supersludge/Cement-grouted ("Super Grout") Supersludge/Cement in containers Ceramic (low temp) Supercalcine/Ceramic Glass Supercalcine/Glass Metal Matrix	SFPs (?) Supercalcine/Glass Glass Supercalcine/Ceramic Metal Matrix

NOTE: (?) designates insufficient data.

^a The order of the forms within any box implies a qualitative ranking (top-best, bottom-worst). However, the resolution is such that not too much weight should be attached to minor differences in ranking.

TABLE 3.4 (continued)

Legend

Supersludge/Cement Matrix:	A mixture of tank sludge with clays, zeolites, and inorganic gels (supersludge), bound together with cement. This could be grouted or cast into containers or caverns.
Supersludge/Ceramic:	Supersludge fired to a low-temperature ceramic.
Supercalcine/Metal Matrix (cold):	Supercalcine granules dispersed in a cold pressed titanium or similar monolithic billet.
Supercalcine/Cement Matrix:	Supercalcine bound together in cement.
Supercalcine/Ceramic:	Supercalcine sintered to a high-temperature ceramic.
Supercalcine/Metal Matrix (hot):	Supercalcine embedded as granules in molten metal.
Supercalcine/Glass:	Glass made by adding glassification components into liquid stream.
Glass/Metal Matrix (hot):	Glass beads embedded in molten metal.
Ceramic/Metal Matrix:	Ceramic granules embedded in metal.
Ceramic (low temp):	Ceramic forms made by low temperature processes. Includes supersludge/ceramic, aqueous silicate, ceramic sponge (see Chapter 7).
Ceramic (high temp):	Ceramic forms made by high temperature processes. Includes supercalcine/ceramic, fusion cast ceramic, glass ceramic (see Chapter 7).
Ceramic:	All ceramic forms.
Metal Matrix:	All metal matrix forms including supercalcine/metal matrix, glass/metal matrix, ceramic/metal matrix.
Cement Matrix:	All cement matrix forms including supersludge/cement matrix, supercalcine/cement matrix.

(3) コスト基準と考察

Table 3.4 に示すランキングを得るにあたって審議会が使った主要な基準はプロセスの複雑さと、放射性廃棄物管理とは無関係な種々の科学技術生産品を生み出す工業的経験に基づいた知識である。輸送および定置のコストは特定の処分計画に依存するので、それらの考察は行わなかった。

新しいERDAのデータのいくつかは審議会の調査結果を支持している。例えば INEL での研究 (U. S. ERDA 1977 b) ではメタルマトリックスを処理するコストはガラスセ

ラミックを処理するコストよりも高いと評価している。他にはSRPでの研究(U. S. ERDA 1977 c)によれば、ガラスを処理するコストはセメントと比較した場合におよそ3倍であると評価している。しかしながら“収納容器および貯蔵施設のコストは高いので、全プラントコストにおいて体積の比較的小さなガラス廃棄物プロダクトは体積の大きなコンクリートプロダクトに比べてコスト的にずっと高くつくということはない……。”とつづいている。審議会ではその声明と一致せず、セメント合成物は合理的に不溶性のガラスと比べて単位体積あたり同程度の廃棄物含有量を有し得る事を見いだしている。(9章技術開発状況の調査参照)

最終的にINELの研究(U. S. ERDA 1977 b)で認められている様に、ガラスおよび仮焼体生産に関する科学技術はR & D資金においてかなりの割合(1950年以来90%, 4章Table 4.2を参照)を受けているので、これらの科学技術に対するコスト評価は他のものよりもずっと信頼できる事に気付く事は重要である。

4. パネルにより選択された固化プラン

章の始めで明らかにされた原理では、普遍的に推薦されうる最も良い固化体はない事を示している。代りに、一つのシステムにおいて使用のために選ばれた廃棄物固化体は他のシステムにおいて最も適当な選択とならない。以下に4つの固化計画が考案されている。これらはTable 3.4に示されたランキングを基礎としており、より見込みのある選択要素のいくつかを説明しようとして工夫されてきたものである。述べられた各処理はある特定の種類の廃棄物に対して適当であり、又特定の岩石タイプおよび輸送の要求に適するものである。

(1) DOE廃棄物

計画 I.

1. タンクから取り出し、スラッジを上澄液(DOE廃棄物のアルカリ液体分留)から分離する。スラッジを洗浄し、洗浄液体と上澄液を混合する。 ^{137}Cs , ^{90}Sr および他の放射性核種を抽出するために上澄液をゼオライト-粘度-ゲル層 (bed) に通す。
2. 層に吸着したものとスラッジを一緒にし、それと同時に“スーパースラッジ — コンクリート”の全組成を与えるために必要な成分を添加する。
3. 一方法 (Either) : 直径 1 m, 高さ 1 ~ 3 m, 厚さ 6 mm のチタン容器あるいはステンレス容器にコンクリートをシリンダー状に鑄造する。コンクリートがセットされた後, 150 °C に加熱し, 脱ガスし, 密閉するために溶接する。

あるいは (Alternatively) : スーパースラッジ — コンクリートを例えば ORNL のセメント注入技術を使い, サイト内の岩石層あるいは洞窟内に注入する。

4. 回収可能な貯蔵を目的とする場合には容器の積み重ねを行う。回収可能な間は防護

層となり、永久隔離の間は付加的な障害となるように特別製のオーバーパック材を付加する。

5. 輸送を最小限にするためにはサイト内に貯蔵施設を設置する。例えばハンフォードでは、水平抗道がRattlesnake Hillsで使われている。

計画 II.

1. 遠心分離し、上澄液とスラッジ中の固体を分離する。
2. これらの固体でスーパースラッジを作製し、それをシリンダー内でグラウト化するかあるいは鑄造してセメント合成物を作製する。
3. 上澄液の放射性核種を特に吸収するために、特別製ゼオライトとおよび関連相(related phases)から作られた多孔質セラミックを用意する。
4. この多孔質セラミックによるろ過をくり返し行うことにより上澄液からほとんどのイオンを除去する。
5. 1000℃以下の温度で焼結する事によりセラミックスを強化する。そうすれば適度の強度を有した結晶質のレンガができる。
6. キャニスタ内に反応生成物質を充填する。

(2) 新しい商業用廃棄物

1. 輸送を最小限にするために、固化プラントを再処理施設プラントおよび貯蔵施設に隣接して設置する。
2. 放射性核種を安定なセラミック相に固定するために、HLLWを固化してスーパー仮焼体ペレットを作る。
3. 充填量の20体積パーセントのペレットと80%の商業用純度のアルミニウム粉を混合して、アルミニウム容器へ充填する。密閉するため溶接する。300℃の温度で100%密度近くまでコンパクト化する。コンパクト化されたシリンダーの寸法は直径30 cm、長さ70 cmである。

— ここで選ばれた体積パーセントは、ペレットでなくアルミニウムマトリックスの連続状態をうるためのものである。

— 低処理温度は処理設備との反応度を減少させ、揮発問題をなくす。

— アルミニウムは処理している間の変形しやすさ、熱伝導度、コスト、限られた反応性および腐食抵抗により選ばれた。

— シリンダーの大きさは処理設備の大きさを制限するように選択された。

4. 上記のシリンダーを厚さ3 mmのチタン製円筒容器内に入れ、チタン製容器を溶接する。

— チタンは腐食抵抗があり、反応性に富んでいないので選択された。

5. 回収可能な貯蔵あるいは最終処分のためチタン製円筒容器を岩塩、頁岩、あるいは花

崗岩中に入れる。

(3) 古い商業用廃棄物

1. 輸送問題を避けるため、固化プラントを再処理プラントに隣接して設置する。
2. HLLWを仮焼体に固化し、適当に選択されたガラスフリットと混合し、Pochet タイプ（8章R&Dの評価を参照）のジュール加熱セラミックメタル内で連続的にガラスに変換する。
3. 溶融プロダクトをチタン製キャニスタ内で固める。
4. 回収可能な貯蔵あるいは最終処分のためキャニスタを岩塩、頁岩、あるいは花崗岩中に入れる。

(4) 審議会（Panel）計画のコスト

審議会（Panel）によって作製され、上述したシステムの選択は三つのERDA文書（付録Aを参照）で説明されている選択と同様のものであり、固化計画のコストの比較を行う事ができる。例えばDOE廃棄物に対して審議会で考察されたコンクリートを使う典型的な計画は、SRP計画No 9およびHanford計画No 6とはそれほど違ったものではない。同様に“乾燥粉末”を用いた計画（SRP No 14～17）がスーパースラッジおよび低温セラミックの選択要素と比較可能である。さらにスーパージェットのPumpingは将来の研究として審議会で推薦された選択要素の一つであるが、これはERDA文書の中で議論されている最も低コストの選択要素の一つ、すなわちSRP床岩洞窟内に容器なしで液体廃棄物を処分することを要求しているSRP計画No 22と比較可能である。しかしORNLではグラウティングプロセスで実際の試験を行いこのコスト数値が利用できるにもかかわらず、審議会によって述べたものの一つであるグラウティング計画が明快に議論されていないということはおどろくべきことである。

5. 要 約

全放射性廃棄物管理システムは多重障壁のセットによる防護に強く頼っているため、固体廃棄物を含む各障壁を考察する事が重要である。与えられたシステムに対して固化体を選択する上では、処理、輸送、定置段階でのその役割について考察しなければならない。これら三つの段階の中では、輸送中の公共への全危険性が一番高いけれども、その危険はなお、比較的小さく、各固化体の中でのリスクの相異は良く知られていない。それゆえ固化体を選択する上では、起りそうもない輸送事故においてどの固化体が最も良いかばかりでなく、コストおよびエンジニアリングの単純性と信頼性についても考察することが重要である。固化体の性質よりもむしろコストが、選択の決定要素となる。コストと安全性に対する比重は、この審議会がするには不適當な価値判断である。

（注） 廃棄物中の放射性核種が減衰するにつれて、廃棄物の危険性は少なくなり、従って必要とされる防護の数は減少する。これが起る時間規模は主な核分裂物質（ ^{137}Cs と ^{90}Sr ）に対しては数100年のオーダーであり、 ^{239}Pu に対しては数十万年のオーダーである。

4章 放射性廃棄物固化研究開発

1. 背景

高レベル廃棄物を、液状で金属製タンクに貯蔵する方式は戦時下の便宜的なもので、一時的には十分なものだった。この方法が、戦後も長く続けられるにつれ固化方式の開発や実施の遅れは許されないものとなって来た。(Kubo & Rose〔1973〕, Nucl. Energy Policy Study Group〔1977〕) この遅れの原因は、我々の勧告の背景となっているものであるため以下に述べておく。

1950年および60年代の新しいビックサイエンスの時代に各国の科学政策上、核エネルギーの領域が最も強く拡張発展を強調されたと思われる。この結果、その期間中のAEC予算にみられるように、放射性廃棄物の管理を含めた核燃料サイクルの“back end”が相対的に軽視される結果となった。Harvey Brooksは、1976年デンバー会議においてこのような状況を以下のように総括している；

“戦後2～3年は廃棄物処分問題は、現実上さし迫った問題として取り上げられなかった。R&Dの予算は少なく、新しく核エネルギーの分野に接した科学者・技術者にとって魅力の少ないものであった。この分野の仕事についての少数の者の努力に対する認識もうすく、例えば私の記憶する限りエンリコフェルミ賞もE.O. ローレンス賞も、廃棄物管理に貢献した科学者に贈られたことはない。”(Brooks 1976)

この時代の、科学技術政策上支配的であった項目に焦点を絞ってみると、HLLWの管理は技術上問題が少なく、放置しても差し支えないものとして受けとられていたこと、またその結果、この分野の専門家も強いて問題を探究しなかったことが解るであろう。このような情勢と政策のため、根拠が薄弱ながらガラスを固化体の代表と容認する結果となった。

我々の知る限り、フランス、英国、米国というこの問題の当事国のいかなる研究も、一般のガラスが自然の環境において“安定”であるという、ガラスを選択する上での前提を実証していない。ガラスの安定性を示すデータも非常に誤って解釈されている。事実、一般のガラスは、特に水の存在下で非常に風化しやすい物質で、高シリカのものだけが比較的長期にわたり安定なだけである。このような制約を明確にする、専門分野での証拠が無かったために、HLLWの固化のための努力の大部分は、種々のガラスを有望な固化形態として開発することに集約されて来た。

ガラスに関する過大な評価の結果として、1975年までには他の多くの固化形態についての研究規模は小さく、散発的でガラスと同等に扱われていなかった。仮焼体は、ガラスの前段階とみなされたため、コンクリートやセラミックスなどの他の代替品よりも有望視され、様々の複合体が考えられた。

しかしながら、コンクリートの研究についての例外を除いて、他のほとんどの代替法はここ数年の開発であり、その開発努力は決して高いものではない。さらに、一般に科学的な分野で廃棄物問題が扱われることが少なかった。

我々の当面の評価は、特殊なガラスはそれなりの廃棄物管理システムには適した固化形態であるが、最良万能の選択ではないというものである。さらに、要求されるHLWの管理システムの様態が異なることを考慮すれば、すべてのR & Dを1つの固化形態に絞ることは長期的な観点からは、非常に無駄でコストがかかることになるだろう。1つの技術に集中して行うのが最良であるという議論は、説得性がない。

ガラスが当初発生する廃液には適切であるとしても代替法の並行した技術を、しかるべきレベルまで進展させるべきである。現時点で、これら代替法の多くが有望であるが、どれを選択するかについて十分な基礎データが無い。我々審議会は、固化形態に要求される性能に関して科学的な取り決めが為されていないと考えている。固化に関連した材料科学に対するR & Dに対して、適切な計画さえ無い。

このような計画が無かったために、最近10～20年間は個々の研究所によって、それぞれの廃液に都合の良いように研究が提唱され、技術開発、管理が行われて来たと言える。これらの研究の中で、我国ではたった2例の固化プログラムが成功しただけであった。

INELの仮焼プログラムは何年にもわたって、さしたる困難もなく運転、貯蔵を行って来た。仮焼体は、Supercalcineとして改善の余地があるが、プロセスは順調に管理されている。ORNLのプログラムは、中低レベル廃棄物を対象としており限られたR & Dだけに基礎をおいているが、有効なシステムを造り上げて来ている。これらのプログラムは廃棄物問題が取り組み易いものであることを示している。ただ不幸なことは、固化プログラム相互の協力や応答がほとんど無かったことである。

1950年60年代の、放射性廃棄物管理を無視しようという風潮は近年改まって来ている。この問題に対する公的な関心の高まりが、専門家の集まりや政府によって為される対応策に反映されて来ている。一例として、米国物理学会は核燃料サイクルの主たる検討を、廃棄物管理も含めて終了したところである。材料学会、化学会、窯業学会は近い将来廃棄物管理について会議を開催の予定である。政府内でも、エネルギー庁が最近廃棄物管理に関する基礎研究に大きな権限を持って設置された。(US. DOE 1978)

一般的にこれまでの技術データは、放射性廃棄物に関する将来にわたる決定や、規制の参考には適当でないという認識が強まっている。本章では、過去の研究開発の不充分さと、現在の情報の欠陥について述べ、その結果として将来の研究についてさらに適切な議論が為され、この問題について決定を下す際の要求に答えられるようにした。

2. 固化についての認識と研究の不完全さ

この調査を行うに当って、審議会はこれまで重要な判断が行われるに必要とされた情報の有効性の見直しを行った。(Appendix C ヨーロッパの廃棄物固化R&D)

多くの場合、これらの情報は有効であった、それはコンピュータ情報サービスがあり、加えてDOEや契約者から多くのレポートが提供された結果である。しかしながら、一部情報の基礎として不適切なものもあった。

今後拡大してゆく研究が方向づけられなくてはならない情報上の欠陥点は、次のようなものである。

- ① 材料科学あるいは材料工学上の問題としては、廃棄物固化は、最も進歩した材料産業において、“材料の選択”に応用されるような計画的なアプローチが有効であろう。このようなアプローチを応用し開発する努力が必要である。
- ② 使用済燃料の、現実の化学形態の詳細な情報が欠けている。現在の米政府の再処理と燃料体の処分についての政策を考慮すると、前記の情報は不可欠である。
- ③ 固化体の放射線損傷について多くの基礎研究があるが、放射線レベルで発生する化学変化(原子当たり0.1~1の置換)を解明出来るバルクな効果を示したものは少なく、多くの情報の集積も廃棄物固化の上からは、価値の低いものとなっている。

信頼のおけるデータに基づけば、固体状態での放射線損傷はさほど大きな問題ではない。ところが一方で、誤って解釈された放射線効果が問題となり固化に関する決定に影響を与えている。その一例が、大表面積の固化体の場合や高温時の水和相の放射線分解であり、他の一例が構造安定性への原子壊変の影響で、多量の⁹⁰Srや¹³⁷Csを含む固化体では、25から35年間は影響があるだろうとされている。

- ④ 1950年から大きく取り上げられるようになった地球化学上の知識を固化技術の開発に利用すべきである。実験設備が開発され(高温、高圧容器)、地表下100キロメートル以内の地球化学上の条件を模擬出来るようになった。実験時間を変え、適当な理論を応用し鉱物学データと比較した結果、何百万年という時間での自然の機構を予測し解明出来る。このように、岩石中の廃棄物を模擬する技術は定型のものになっている。固化形態を変え岩石を変えて、熱水下の条件を模擬した実験により処分後の放射性核種の挙動を予測する手段となる。
- ⑤ 原子、分子レベルでセラミック材を解析することは現在多くの企業や大学の研究室で充分進歩した段階にあるが、その材料の形態は放射性廃棄物固化を目的としたそれとはかなりの隔りがある。

特に考えられる主要な一形態であるセメント-スーパーラッジ複合物は、粘土やゼオライトもしくは非結晶質のゲルが、イオンの複合混合物と相互作用し、放射性核種

を固定化する。これらの反応は、水酸化珪酸カルシウムやセメントを系に添加した場合と同様、充分解明されていない。

しかし、地層に埋められた固化体は最終的にこれらの反応が起こる条件下に置かれることはほとんど確実と思われる。

- ⑥ 低温での天然珪酸塩の単体又は、複合混合物へのイオン吸着をクロマトグラフ分離の可能性も含めて、基礎データを加える必要がある。この場合も地層中に埋められた固化体は、ある時点でこのような相互作用が起こる条件下に置かれることは確実であろう。
- ⑦ 容器と固化体、容器と岩石との反応を起こりうる条件下を模擬して検討された例が少ない。容器金属の反応や腐食を処分条件下で研究する必要があるだろう。
- ⑧ 放射性廃棄物の処理に関する研究の基盤がせまく、主としてガラス化プラントの開発に限られている。最終目標は、簡潔で遠隔操作可能なプロセス設計で、第1又は第2段階程度の固定化のための最低必要温度とすれば良い。これらのプロセスは、セラミックペレットのホットプレスから金属マトリックス複合体の大きなブロックの製造までを考慮すべきである。
- ⑨ 放射性廃棄物には、40種の異なる元素を含むのでかなり複雑な基礎研究が必要である。一般的な研究結果は容易に見出せないが、この複雑な系についての基礎的な知見は必ず廃棄物固化に関連したものとなると言える。

長年、AECが多額の総予算をR & Dに費したにもかかわらず、放射性廃棄物固化に関連した技術的情報に関してこのような大きな欠点があり、これは目標となる基礎科学が次の2つの興味ある点に集中するという成りゆきによるものである。1点は、AEC(後の ERDA)のマネジメントグループが明らかに、ある固化計画で多少とも予測される廃液を第1に考え、技術開発しようとしていることが見受けられること。もう1点は、Division of Physical Research が現時点で為されるべきことを恐らく理解しているのではあろうが、一般的な目標に方向づけられた基礎研究を支援し、特別な AEC の目標に関連したものは特に配慮されず、そのような仕事は廃棄物管理部門が支援すべきだとして重要視しなかったことである。このように、最近 20 年間は AEC の要求に高度に関連した基礎研究は無視されて来た。上述したような情報収集上の欠点を考えると、研究政策上何らかの転換が必要である。

廃棄物管理部門もしくは基礎エネルギー科学部門が、当面の基礎研究に必要な責任と資金を受け持つべきである。本審議会は、DOE(1978)が、廃棄物管理に大きな権限を持つことを示した最近のレポートに、勇気づけられる思いである。

3. 科学技術者

放射性廃棄物対策と同程度に重要な問題は、企業や大学から有用な人材や専門家を集めることである。これには、いくつかの方法がある。一例として、Commerce Business Dailyの“Sources sought”を利用して、適格者を識別することが出来る。事実、この草稿を書き終えた後に、Commerce Business Dailyの1977年12月2日版 P. 3に固化研究に関する“Sources sought”が掲載された。特に大学に関しては、適当なシンポジウムを開催し専門家を招くことが良いだろう。専門家グループもまた適当な話題でミーティングを持ち、論文を出版し普及させることで活気づけられることになる。プロジェクトの推進者は、廃棄物関係の問題について国内の一流専門家を招いて提案やそれに関する回答を得ることが出来るだろう。ここ2～3年前までは、R&Dの管理において上に述べたような機構がうまく利用されていなかった。廃棄物固化を扱う主要な会議の多くは、もっと一般的な会議に分れていて（Table 4.1）ごく最近まで既にこの問題を研究しているグループや個人の間だけで開かれていたものだった。廃棄物固化技術に関連した専門家の集まりは少なかった。同様に、R&Dの推進者や助言者としてこの問題に関係している同僚と話してみると、廃棄物固化のR&Dに広い分野の科学者が参加するよう奨励され始めた1975年までは、固化研究に関する相互の接触がほとんどなかったと感じられた。R&Dに関するこの簡単な調査において、最も驚くべきことには、この作業を行うに適格な専門の科学者を認識できていなかったことである。材料学、特にセラミックか金属学者と、経験豊かな地球化学もしくは岩石学者を含めておけば、R&Dについて立案する助力になったであろうと思われる。これらの識者を含めることはAECのみならず専門家会議やNational Research Councilの程度までは有効であると思われる。

TABLE 4.1

Major Conferences Involving Nuclear Waste Management

First United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy. Held in Geneva, Switzerland, 1955. Geneva: United Nations.

Report of Working Meeting on Fixation of Radioactivity in Stable Solid Media at the John Hopkins University, June 19-21, 1957.

Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, held in Geneva, Switzerland, 1958. Geneva: United Nations.

Report of Second Working Meeting on Fixation of Radioactivity in Stable, Solid Media at Idaho Falls, Idaho, September 27-29, 1960.

Proceedings of the Symposium on Treatment and Storage of High Level Radioactive Wastes held by the IAEA in Vienna, October 8-12, 1962.

Third United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy held in Geneva, Switzerland, 1964. Geneva: United Nations.

Proceedings of the Symposium on the Solidification and Long Term Storage of Highly Radioactive Wastes, February 14-18, 1966. Richland, Washington.

Fourth United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Jointly sponsored by IAEA, held in Geneva, Switzerland, 1971. Geneva: United Nations.

Symposium on the Management of Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing, OECD/IAEA, Paris, November 1972.

Symposium on the Management of Radioactive Wastes from the Nuclear Fuel Cycle, IAEA/OECD, Vienna, 22-26 March, 1976.

Proceedings of the International Symposium on the Management of Wastes from the LWR Fuel Cycle, Denver, Colorado, July 11-16, 1976.

Proceedings of the First Pacific Basin Conference on Nuclear Power Development and the Fuel Cycle, Honolulu, Hawaii, October 11-14, 1976 (edited by Ruth Farmakes, ANS, Hinsdale, Ill.).

IAEA Conference on Nuclear Power and Its Fuel Cycle, Salzburg, Austria, May 1977.

4. R & D への援助の程度

廃棄物固化のR & Dの管理に欠けていた点は、資金の制約によるものが全てではなかった（多くは、ほとんどコストがかからなかったであろう）；しかし、1974年以前は廃棄物対策に年500万～1000万ドルが使われるだけで、望みのプロジェクトを開始するのは困難であった。1976年から予算が年3000万ドルになり、多くのプロジェクトが開始された。

本審議会は、ハンフォード施設、サバンナリバープラント、アイダホ国立工学研究所から、廃棄物の形態で分類した研究に対する援助の程度についてデータを得た。

同時にこれら DOE 関連の 3 研究所の研究規模は、米国全体の固化研究の 90 % を占めるものである。本審議会はこのデータが必ずしも正確なものではなく、基礎研究、応用研究、工学試験という分類をすべきだと認識している。しながら Table 4.2, Fig 4.1, Fig 4.2 に示されたデータから、固化体としてのガラスの開発に必要以上に力を入れ廃棄物固化の基礎研究は実質的にはほとんど計画、実施されなかったことがわかる。

TABLE 4.2

Department of Energy R&D Expenditures (in Thousands of Dollars) on Waste Solidification Categorized According to Waste Form

	GLASS	CALCINE	CEMENT	CERAMIC CLAY	ADVANCED FORM ^a	TOTAL
1955-56	200	600				800
1957-58	200	600				800
1959-60	300	1,530	100		20	1,950
1961-62	270	1,400	100		40	1,810
1963-64	440	970	100	500	10	2,020
1965-66	1,620	2,530	100	200	350	4,800
1967-68	2,800	4,400	200	200	700	8,300
1969-70	2,650	4,400	200	360	700	8,310
1971-72	660	1,000	200	90	130	2,080
1973-74	2,480	1,670	1,090	90	290	5,620
1975-76	6,190	3,700	2,320	550	890	13,650
1977-78	<u>41,350</u>	<u>5,620</u>	<u>830</u>	<u>1,220</u>	<u>1,280</u>	<u>50,300</u>
TOTAL:	59,160	28,420	5,240	3,210	4,410	100,440

^a Includes metal-matrix, supercalcine.

Source: Data provided by the Savannah River Plant, the Hanford Reservation, the Idaho National Engineering Laboratory, the Oak Ridge National Laboratory, and the Division of Basic Energy Sciences.

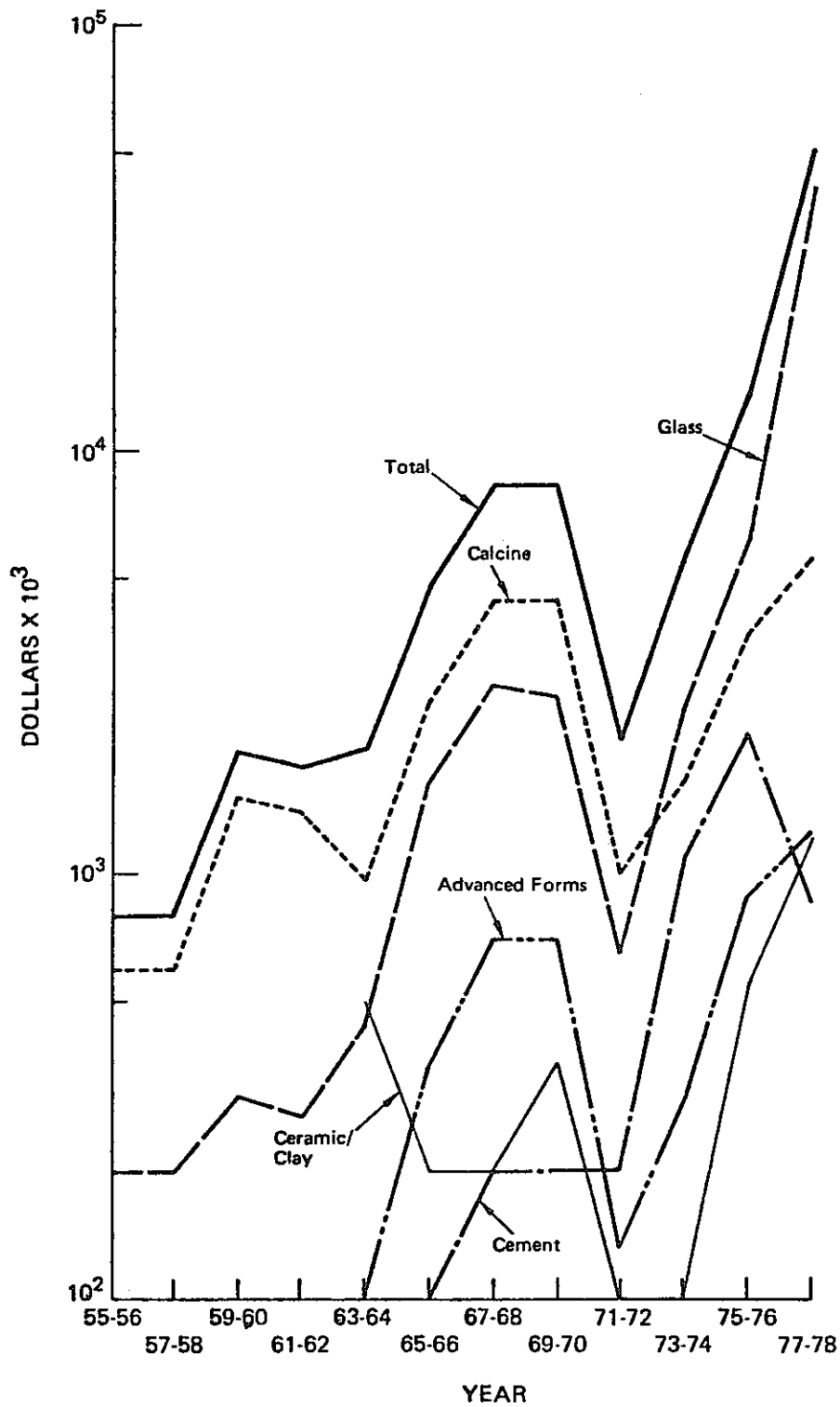
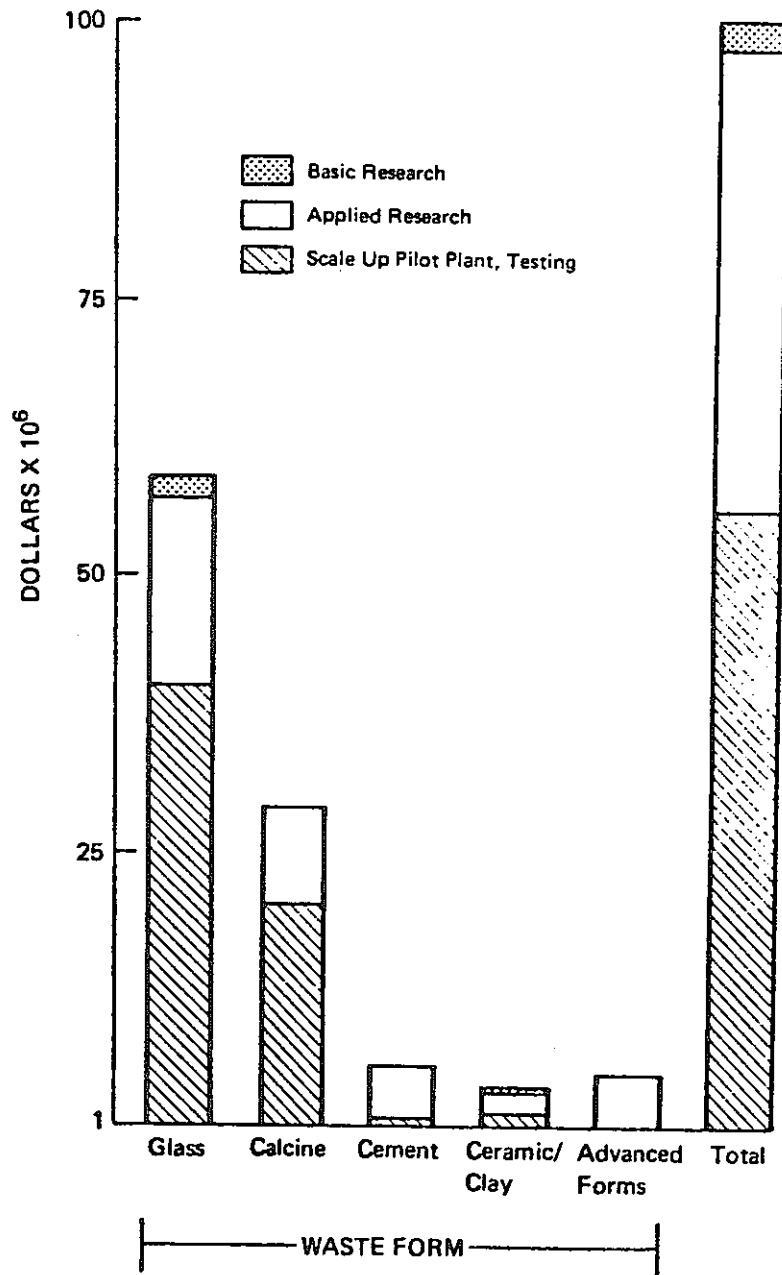


FIGURE 4.1 Department of Energy R&D expenditures on waste solidification categorized according to waste form.

Source: Data taken from Table 4.2.



Source: Data taken from Table 4.2.

FIGURE 4.2 Breakdown of R&D expenditures for different waste forms.

さらにこのデータは、廃棄物固化のR & Dに対する援助の程度が、明らかに増減変動していることを示している；1965～66年の2倍もの増加がある反面、6年後に4分の1に減少している。(1971～72)

このような資金援助の変動や、全体的なR & Dに対する財源の不均衡は、Joint Committee of Atomic Energy やAEC がこの問題を軽視していたということを示している。事実、この廃棄物問題の明確な概念が欠けているため、AECの管理部門がR & Dの活動を支援するだけの価値のある技術上の大問題ではないと判断をして来たのだと思われる。

5. 奨励されるべきR & D水準

過去の不十分な点を修正し、廃棄物固化と処分技術のこれからの開発を進める上でR & Dに、より以上に援助が必要である。これらの援助のためのコストは、全体の廃棄物管理のコストからすれば小さな割合である。軍事用の廃棄物だけの固化と隔離のコストを評価すると、300億ドルにのぼる(US. ERDA 1977a 1977b 1977c)。将来の商業用原子力の使用計画に不確実な要素が大きいため、ここから発生する廃棄物の固化と隔離に要するコストの評価は除外した。R & Dに要する資金の大ざっぱな評価という限られた目的だけのために、我々は商業用の目的から発生する廃棄物を、2000年までは軍事用と同じ量と仮定した。(Dance (1975) Rowe & Holcomb (1974) U.S. Congress, House (1976), U.S. General Accounting Office (1974))。従って、さらに300億ドルが今世紀末までに必要となり、全ての廃棄物を管理するのに600億ドルを要することになるだろう。高度な技術を要する産業において総財源の5%をR & Dに費すのは、ごく普通のことである。同様に、我々は米国が廃棄物管理のための600億ドルのうち5%(30億ドル)をR & Dに使って当然であると考ええる。これは毎年の予算にして1億5000万ドルで1974年までの500万～1000万ドル程度の予算に比べて著しい相違で、1978年2月に計画された予算のレベルとほぼ一致する。この1億5000万ドルのうち10%に相当する1500万ドルが毎年基礎研究に費され、おそらく何10億ドルの節約になるであろう更に効率的な技術を開発する基礎となるであろう。

(注)

1. Division of Basic Energy Science は一般には Division of Physical Research として知られている。
2. ガラスと仮焼体は、他の全ての廃棄物を合わせたよりも多くのR & Dに裏づけられて来た。仮焼体は、ガラスの前段階になるもので、仮焼体についての研究はガラスの研究として見るべきである。

5章 調査内容，結果，および勧告

1. 技術的な問題点

(1) 調査内容

放射性廃棄物の処分に向けての選択も含めた技術的な問題点の調査の結果，次のような一般的な事項と結果が明らかになった。

① 高レベル廃液は，幾つかの固化形態にすることが出来る。

- a. スーパーカルサイン又は仮焼体
- b. ガラス
- c. 低温セラミック化
- d. 高温セラミック化又はガラスセラミック
- e. セメント又はコンクリート複合体
- f. 金属マトリックス複合体
- g. 上記のものの複合物

我々（審議会）は，上記の形態の多くは，ほぼ計画された固化システムの中で満足出来るものと考えており，ただ一つガラスだけが，現在の状態で実規模で固化処分を実証する形で固化システムに導入出来ると考えている。

現在の政策では，使用済燃料棒は処分を考慮した上で要求されるもう1つの固化形態であると言える。

② 固化廃棄物の有効性は，その廃棄物が取り扱われる処理システムとの関係において決定される。（3章 放射性廃棄物管理システム）

このシステムの主要な要素として，

処理（固化体の製造）

貯蔵

輸送

処分（回収と永久処分の両者を含む）

- a. セメント複合体や低温セラミック化のような低温プロセスは，技術的に高温プロセスよりも望ましいものである。
- b. 輸送に際しては，固まっていない仮焼体やスーパーカルサインは分散の危険性があり望ましい形態ではない。
- c. 十分に選定された大陸地層に設置されたのちは，処分システムの有効性は固化体と周囲岩石の化学的熱的相互作用に最も依存し，特に岩石に含まれる揮発成分との作用が重要であり，これらに製造時の固化体の特性はあまり影響しない。

- ③ 現在の DOE 関係の廃棄物と、将来の商業用から発生するもので、熱出力の密度が大きく異なり、単一の固化技術が両方に関して最善であるとはいえない。

以下の結論は、特別な事例の場合について有望な固化形態の選択のガイドとなり、また研究への有用な指導を与えるものである。

- a. 固化形態としてガラスを選択することは、低浸出性が固化体の有効性に最も重要であるという設定や、ガラスの処分時の条件における“安定性”を誤って認識しているといえる。それにもかかわらず現在2つのガラス固化技術が完成され、実規模の高レベル固化と、処分システムとして実証されようとしている。(2章 第1次封じ込め形態)
- b. 処分システムにおいて採用すべき固化形態を(安全性と総コストを考慮して)研究開発し実証することが必要である。(4章)
- c. DOE の廃棄物は現在は比較的放射能レベルが低く熱出力密度も低い; よって最初に発生した放射性廃棄物では固化体の選択の範囲が広い。(3章)

現在の研究から、DOE 廃棄物の放射能レベルを温度において残留水と硝酸根の放射線分解による圧力の蓄積に対して制限が加えられなければ、低温で生成するセメント複合体やセラミック固化体が非常に有望となる。(2章 第1次および第2次封じ込め形態)

- d. 我々(審議会)は、地層処分以前には放射線損傷の影響は(水や硝酸根の分解は含まない)大きな問題とならないことを見出した。

地層処分後は、変質や放射線損傷は廃棄物と岩石の相互作用に影響して来る。この可能性について更に研究して評価することが必要である。(2章 固化体の特性)

- e. 商業用の使用済燃料再処理は、現在の政策には入っていないが将来これが再開された場合、廃液を高い比放射能と熱出力密度を持った形で処分することが必要になるだろう。このような処分形態上の特性のゆえに、固化体の選択範囲が狭くなり、高い熱的安定性を持つものに絞られるだろう。(3章 固化体の適合のランキング)
- f. 使用済燃料中の多量のウランとプルトニウムの存在は、他の廃棄物の固化体よりも長期にわたる潜在的な危険性を持っている。しかしながら予備的な調査では、問題となる放射性核種(アクチニド、核分裂生成物を含む)は、使用済燃料の中でも比較的不溶性の相に含有されていることが判った。もし、R&Dの結果がこの調査結果を確証出来るものであれば、使用済燃料自体を廃棄物固化体と考えても良いであろう。

- 処理の簡便さ(そして、恐らく危険性とコストも低いであろう)を考慮すれば、セメントをベースの複合体か低温セラミックスを、DOE 廃棄物の固化の第一候

補として研究に力を入れるべきである。

特に、このような廃棄物を適当な地層に注入する（“SupergROUT”として適当に調製して）可能性について再度実験する必要がある。（3章 固化体の適合のランキング）

- 使用済燃料の回収可能な貯蔵又は処分の可能性を確かめ、燃料集合体の準備方法を決定するため、実証的な解析と実験研究が必要である。少なくとも、使用済燃料集合体は金属容器に収容し、施設における安全な取り扱いが出来ることが望ましい。（2章 第1次封じ込め形態）
- 比放射能が高く、熱出力密度が大きい廃棄物について、ガラス以外の固化形態のR & Dを推進すべきである。ガラス又はスーパーカルサインを含んだ金属マトリックス複合体、あるいは高温型セラミックスが主な候補に挙げられるだろう。セメントベースの複合体は除外はしないが放射線作用に対する適切なデータに欠けるため、ここでは十分に評価は出来ない。（3章 固化体の適合のランキング）
- 高レベル廃棄物ガラス固化で継続されているR & Dは、インカンメルターよりもセラミック製メルターの開発に努力すべきである。（2章 第1次封じ込め形態）
- 我々（審議会）は、ハンフォード貯蔵施設の ^{90}Sr と ^{137}Cs をセラミック又はコンクリート固化する技術開発を推奨する。

この技術は現在行われている廃液を $^{137}\text{CsCl}$ 又は $^{90}\text{SrF}_2$ に変換して、ステンレス鋼のカプセル中に貯蔵する方式にとってかわるであろう。（2章 第1次封じ込め形態）

- CsCl や SrF_2 を収容したステンレス鋼カプセルは、現在ハンフォード貯蔵設備にあるがこれをチタンのような化学的に安定で耐熱性の金属マトリックス中に入れて、地層中に永久処分すべきである。（2章 第1次封じ込め形態）

廃棄物固化の研究開発計画に対する要求を、このレポートを通じて明らかにしているが、特に以下のところに研究の主題を置くべきである。

- 水と硝酸根の分解の結果、廃棄物—セメント複合体の密封容器の圧力変化の影響度。（2章 第2次封じ込め形態）
- 予想される温度圧力下での、典型的な周辺岩石に関するHLLWのクロマトグラフィ的保持係数。（4章 認識の不完全さ）
- 想定される温度条件下でのキャニスタ材と、固化体と周辺岩石との相互作用を解析し、回収可能な貯蔵の間のキャニスタ材の有効性を決定する。（4章 認識の不完全さ）

以下のものについても、R & Dを必要とする。

- 放射性核種の受け入れ母体として、結晶形、非結晶形の最適安定条件を分子セラミック化学を用いて求める。
- 放射性核種を周辺岩石と水による熱水反応後も、不溶性の結晶中に保持しておくガラス組成。
- セメント／コンクリート固化体に特殊な添加物を加え、放射性核種を低溶出性結晶相に固定する方法。（4章）
- 採用される可能性がある固化技術について遠隔操作技術の開発。
- HLWイオンを最大限に固定出来る容量を持つ、適当なオーバーパック材（吸着層）

2. 管理上の問題点

(1) 調査結果（4章 参照）

高レベル廃棄物の固化処理処分技術は、原子炉技術と同じペースでは進んでいない。この原因は、技術的困難さではなく、この問題に重要性が与えられていないからにはかならない。

しかしながら我々(審議会)は、廃棄物固化技術の開発がWIPP計画と呼ばれる、第1段階の実証と商業用廃棄物の地中処分のパイロットプラントに関するDOEの計画を進めるのに十分なものであることを見出している。

DOEのタイムテーブルは、推進されたR&Dの結果さらに長期の計画となることを許容するのに十分な柔軟性を持っている。

(2) 調査により見出された管理上不十分な事項

① 廃棄物のR&Dに関して総合的に調整された計画が欠如していた。固化技術の中の特別な分野は関心を持たれ、資金援助があつたけれども、巾広い固化形態の候補についての要求を理解し、技術開発を行うためのバランスのとれたR&D計画がなかったと言える。

② 廃棄物固化計画を継続的かつ協力的に行うため、種々の研究機関から招かれた科学者技術者のチームを調整する努力がなかった事。

材料科学と実験地質学という2つの関連する科学分野を含めていなかったという誤りと、固化研究の計画と指導において関連企業を考慮しなかったこと。

③ 多くの固化処理処分システムにおいて、他の固化体ほど望ましいものではないガラスにR&Dを集中的に行って来たこと。

④ つい先頃より、資金が限定されていることと、適当な廃液固化を早急に実証する必要からガラス固化技術を工学規模さらにパイロットプラント段階に推進するのに反し、代替技術を軽視する傾向にあること。代替技術のR&Dに対する確実なサポートと、2次

的な技術が軽視されて来たこと。

- ⑤ 様々のタイプの高放射性廃液の固化に、最適化されたあるいは2次的な方式が有効であるかどうかの確認や選択に必要なR & Dが要求されていないこと。

比較的短期間でも、確実なサポートがあれば充分でありDOE廃棄物に対しては、恐らく5年で技術的に最適な方法の選択を行うことが出来るであろう。

- ⑥ 米国は、欧州共同体の委員会によって行われているような、多国間の協同によるR & D計画を開始することもなければ十分に利用することもなかった。

(2) 勧告

今、明らかにしたような管理上の問題を踏まえて、次のような勧告を行う。

- 放射性廃棄物管理（固化のR & Dを含む）にかかわるすべての責任と権限を集中すべきである。基礎、並びに応用研究を最も直接的に工学技術と製造面に反映する。さらに、単一の機関が米国政府に代わり国際的な場で廃棄物の取り扱い、処理、固化等について交渉の指揮をとる事。

2次的な廃棄物管理技術について、期間を限定して総合的なR & Dと実証計画を立てるべきである。我々（審議会）は、この計画を資金的に援助して成功させるのに、毎年1億5千万ドルの予算で10年を必要とすると評価している。

- 将来の全ての研究計画は、政府や企業が経営する施設や国立研究所だけでなく、国立の企業や大学、さらに利益を目的としない研究所も含めた幅広い分野から、実験研究上有能な人材を継続的に引き出してこれるようにすべきである。
- 米国の放射性廃棄物管理に責任ある権威機関は、国際的な研究計画の調整を行い、情報交換システムを整備して、不必要な研究努力が重複して行われるのを避けることを考えるべきで、また国家間の技術と廃棄物処分の基準の収束を急いで行うべきである。
- 米国の使用済燃料貯蔵、処分に関する計画は、全て新しいものであるため国際的研究集会や会合、合同開発計画を通じて、前項で推奨した新しい開発目的を援助出来る有用な人材を動員するため利用されるべきである。

Ⅱ部 技術解析

6章 仮焼体, スーパーカルサイン, スパースラッジ

1. 序

(1) 定義

仮焼体 (Calcine) は高レベル廃液の蒸発と部分分解の一段プロセスで作られる固化処理されていない粉末と細粒の一般名称である。仮焼体はしばしば最終的な固体廃棄物の形態として認められていたが、現在では主に、他の形態に固化、混合される前の中間的な形態と考えられている。仮焼体は比較的作るのが容易であり、ガラスの前段階としての役を果たし、もしやろうと思えば利用可能な放射性核種をリサイクルして取り出す事ができる。世界中で、処理済の高レベル固体化は多量に、唯一の廃棄物形態 — 仮焼体 — として存在している。

Supercalcine は、他物質と接触した際の溶解度や熱力学的な安定性が望ましい性質にする為に特別に作られた結晶状の集合体である。仮焼 (必要あれば焼屯) により作られるので、Supercalcine は外観は仮焼体と似ているが重要な違いが一つある；それは、溶解度が 5 - 6 分の 1 で、揮発度が 2 ~ 4 分の 1 であるという事である。この違いは廃液が蒸発、分解する前に特殊な混合液を HLLW に添加する事に左右される。熱力学的に相互に両立可能な非常に不溶解性の結晶相で成る最終固化体を作るには、結晶化学が適用される。原子力廃棄物研究の分野の多くで、HLLW は添加物で改良されているがそれは生成物を改良する事ではなく、プロセスを改良する事が目的である。現在、ペンシルベニア州立大学 / Battelle Pacific Northwest Laboratories (PSU / PNL) と、わずかに、ユーロケミック / LOTES (低温固化) が Supercalcine なる品質の物を生成している。

Supersludge は、本稿では「スラッジ」(高レベル廃液の固液スラリー) を改良した生成物の事を指す。というのは DOE の廃棄物の一部がスラッジとして存在するからである。Supersludge は浸出率を最少にする為にスラッジに特別の添加物 (液体、固体もしくは両方) を加える事によって得られる組成的に特別製の形態である。Supersludge は低温 (500℃未満) で乾燥・加熱して低温セラミックを作る事が可能であり、また 2 相スラリーとして扱ってもよい。後者の場合 "Supersludge" は単にオークリッジで使用されているような化学的・構造的に安全なセメント混合物という意味になる。この "Super" なる物質は極難溶性のはっきりとした相の中に、有害な放射性核種を含んでいる。このような相の集合体は、その物質が永久にさらされるであろう圧力・温度条件で適当な熱力学的平衡を保つように設計されている。

(2) 背 景

固体仮焼物を作る明らかなメリットは、1プロセスで直接生成可能である事と、科学と工学面で技術革新が全く必要ない点である。仮焼体は大きな欠点が2つある。その物理的形態は典型的な微粒子であり、比較的分散しやすく、またその化学組成の為に非常に水に溶けやすい。これは諸々の性質が仮焼体を最終固化体として認め難い物となっているようである。

2番目の欠点は Supercalcine では改良されてなくなり、ユーロケミックで開発された造粒プロセスの技術革新で初期の分散度を著しく減少させている。ある種の条件下で、ガラスの溶解度と浸出率に近い3 mmから10 mmの Supercalcine の粒が最終的な固化体として許容できるかどうかは将来決定されるべき事柄である。

Table 6.1 と 6.2 にアメリカに於けるいくつかの典型的な実際の仮焼体の組成をリストする。2つの組成のグループに分ける事ができる。1つは、大部分が難溶性の酸化物（フッ化物）で構成されておりわずかのFPしか含まないグループ（例として、Table 6.1.と Mol LOTES の仮焼体）と、もう1つは商業用燃料から再処理した廃棄物で、大部分がFPが主成分であるグループ（Table 6.2）である。“clean”な商業廃棄物は、FP, 処理された化学成分、装置のさび、わずかの未分離のウランとプルトニウムで構成されている。“dirty”な商業廃棄物は中レベル廃液（ILLW）をHLLWに添加する為にNaとリン酸が多く含まれている。

仮焼体の化学組成がほぼ知られている一方、“phase（相）”の組成を報告した物が少ないのは驚くべき事である。この情報は重要である、というのは有害な放射性核種の溶解度と浸出率という重要な問題が、その核種が組込まれている相によって主に決定されるからである。たとえばSrは、 SrCl_2 中では $\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ 中より浸出率100万倍になる。いくつかの仮焼体のX線による研究（McCarthyとDavidson 1975）によると典型的な仮焼体は2,3の相の混合体であり、各相はわずかに結晶しているか全く結晶化していないかであり、McCarthyとDavidson（1975）によると結晶相は900℃よりわずかに高い温度で形成可能である。しかし仮焼体中のCs, Rb, Na, Mo, Ru, Teのほとんどが、加熱中に揮発する。もっともそれは通常の仮焼体のハンドリングには危険な性質ではないが、輸送中に火災事故が起れば重大な問題となる。

固化状でない仮焼体の浸出率を明確に測定する事は難しいが、いくつかのデータが報告されている。Idaho Fall の INEL で貯蔵されている仮焼体については、60%の ^{137}Cs と40%の ^{90}Sr が25℃の水で2000時間連続で浸出後流出した事が発見された（U. S. ERDA 1976b）。MendelとMcElroy（1972）の報告では、25℃の浸出試験で典型的な商業用仮焼体の20%~25%が即座に溶けてしまった。ユーロケミックの酸化物の仮焼体はIAEAの標準テスト（1976）でFPの浸出率が $10^{-1} \text{ g/cm}^2/\text{day}$ と測定された。

TABLE 6.1 (INELに於ける高レベル廃液仮焼体の重量組成)

Weight Percent Composition of High-Level Waste Calcine Produced at the Idaho National Engineering Laboratory, Idaho Falls^a

Oxide	Wt% Aluminum Waste (Nonfluoride Waste)	Wt% Zirconium Waste (Fluoride Waste)
ZrO ₂	-	21
Al ₂ O ₃	89	22
CaF ₂	-	54
N ₂ O ₅	4	2
H ₂ O	2	1
Na ₂ O	2	-
HgO	3	-
Fission Product Oxides	0.6	?
Cs ¹³⁷	0.017 (0.015 Ci/g)	0.005 (0.0044 Ci/g)
SR ⁹⁰	0.009 (0.013 Ci/g)	0.002 (0.0035 Ci/g)

^aAs of January 1974, 42,500 ft³ (approximately 1,600 metric tons).
Source: Slansky (1976).

TABLE 6.2 (商業用燃料を再処理した高レベル廃液の仮焼体の重要組成)

Weight Percent Compositions of Potential Commercial Reprocessing High-Level Waste Calcines

Oxide	PW-4b (Clean) ^a	PW-7a (Dirty) ^b
Na ₂ O	-	9.1
P ₂ O ₅	1.6	8.3
RE ₂ O ₃	31.8	30.5
ZrO ₂	12.1	6.5
MoO ₃	12.6	6.8
Tc ₂ O ₇	3.2	1.7
RuO ₂	7.3	3.9
PdO	3.6	2.0
Cs ₂ O	7.0	3.8
Rb ₂ O	0.9	0.5
SrO	2.6	1.4
BaO	3.8	2.1
U ₃ O ₈	2.9	15.4
PuO ₂	0.2	0.1
Others	10.4	7.9

^a J.E. Mendel, Pacific Northwest Laboratories, personal communication. Several tons of PW-4b-like calcine were produced (as an intermediate step to glass or phosphate ceramic products) during the period 1966-1970 at Hanford, Wash. as part of the Waste Solidification Engineering Prototypes program (Blasewitz et al. 1973). PW = Purex Process Waste; "Clean": fission products, residual U and P and some equipment and fuel pin assembly corrosion products (Fe, Ni, Cr).

^b Adapted from McElroy (1975). "Dirty": a waste to which high sodium and phosphate intermediate-level waste has been added to the HLW; PW-7a is typical of the projected Allied General Nuclear Services, Barnwell, S.C. flow sheet.

この事は、特殊成分の大部分が典型的な $100 \text{ cm}^2/\text{g}$ 細粒から15分で浸出する可能性があるという事を意味している。アルミナ燐酸塩粒のユーロケミックの仮焼体は酸化物の仮焼体に比べ浸出率が 10^3 低く、 $10^{-4} \text{ g}/\text{cm}^2/\text{day}$ である。PSU/PNL で作られた DOE の Supercalcines 粒の浸出率は測定されていないが、沸騰蒸留水を用いた厳密な試験で、固化状の Supercalcines (他の形態とより対照的) はバルクと Cs の浸出率が、ユーロケミックの模擬仮焼体に比べ Cs が 30 倍も含まれているにもかかわらず、 $10^{-5} \sim 10^{-6} \text{ g}/\text{cm}^2/\text{day}$ (Mc Carthy 1977) となっている。

単純な粉末仮焼体を商業用 HLLW 固化体として使用する際には他に2つの問題がある。熱伝導度が低く、放射性分解によってガスを形成する可能性のある H_2O や NO_x のような揮発性物質を含んでいる。熱伝導度が低いという事は、仮焼体の容器が、中央が許容以上の高温にならない様に、径を小さくしなくてはいけないだろう事を意味する。残りの揮発性物質を除去するのに、キャニスタに密封する前に $800 \sim 900^\circ\text{C}$ で余加熱する必要がある。

(U. S. ERDA 1976)

(3) 現在の仮焼体の在庫

14年間、ERDAはずっと米国海軍の原子力船や、実験炉からの廃棄物を固化してきている。2000 ton 程の仮焼体 (現在の固体高レベル廃棄物では最大級の量である) が Idaho Falls の地下倉庫に貯蔵されている。ベルギーのモルのユーロケミックの貯蔵分は 40 ton 程のアルミ成分の多い仮焼体である。また、HLLW から分離した SrF_2 、 CsCl 塩が多少の量 Hanford に貯蔵され金属容器中に密封されている。生の仮焼体の廃棄物の形態としての欠点 (たとえば分散性と溶解性が高い) は CsCl と SrF_2 と同じである。

(4) ガラスと合成物の前段階としての仮焼体

ここしばらくの間仮焼体は HLW の固化体としての理想からは程遠い物であると認識されている。そこで、20年間世界中の研究所では、仮焼体をガラス状の固体に転化するかより不活性な組織中に閉じ込める開発をしている。Table 6.3 は仮焼体を中間段階の物質として含む典型的なプロセスと生成物をまとめたものである。中間物として仮焼体を使用するガラス固化プロセスは本稿では他の章で述べている。現在では全く仮焼プロセスのない固化プロセスを研究中である。

TABLE 6.3 (ガラスや合成物質の前段階としての仮焼体)

Calcine as a Precursor for Glass and Composites

Product	Process	Site
Borosilicate Glass	Rotary-kiln calcination Glass production (Metallic melter)	Marcoule (van Geel and Eschrich 1975)
Borosilicate Glass	Spray calcination Glass production (In-can melting)	Pacific Northwest Laboratory (U.S. ERDA 1976a), Larson and Bonner 1976)
Borosilicate Glass	Spray calcination Glass production (Metallic melter)	Karlsruhe (Blasewitz et al. 1973)
Borosilicate Glass	Pot calcination Glass production (In-can melting)	Windscale (Clelland 1973)
Phosphate Glass (beads in metal matrix)	Fluidized-bed calcination ^a Glass production (Metallic melter) Metal matrix production (casting)	Mol (Clelland et al. 1976)
Calcine/Glass Composite	Press and fire blocks of calcine-glass mix	Idaho National Engineering Laboratory (Berreth et al. 1975)
Calcine/Ceramic Composite	Hot press calcine/crystalline ceramic mix	Pennsylvania State University (McCarthy and Davidson 1976)
Calcine/Metal Composite	Granulate or pelletize calcine, cast in metal matrix	Mol (van Geel and Eschrich 1975, Clelland et al. 1976) Idaho National Engineering Laboratory (Clelland et al. 1976)

^aAlso uses direct feed of slurry into melter as an alternative to calcining.

2. 技術の現状

ガラス固化と多くの問題を研究する為の実証プラントは仮焼プロセス（8章参照）を使用しており、結果として仮焼プロセスは一般的プロセスとなっている。INELで実現模のホットセル中の仮焼プロセスが可能性がある事をはっきり示した。フランスはマルクールで、ドイツはカールスルーエで、またハンフォードのパイロットプラントで1966年から1970年間に仮焼を研究室レベル及びパイロットプラントレベルで効果的に実行している。後者の場合、粉末仮焼体の運搬を、ガラス溶融炉に直接仮焼体を移送する事によって最少にした。一方INELでは、通常粉体を扱い、貯蔵タンクに直接ブローしている。このプロセスにより比較的溶解しやすい超微粒子でさえ安全に運搬できる事を証明した。ユーロケミックでは、粒状の仮焼体をガラス固化の為に供給するが、また直接鉛マトリック中に閉じ込めることもしてきた。Table 6.4 に仮焼体に関する現状をまとめる。

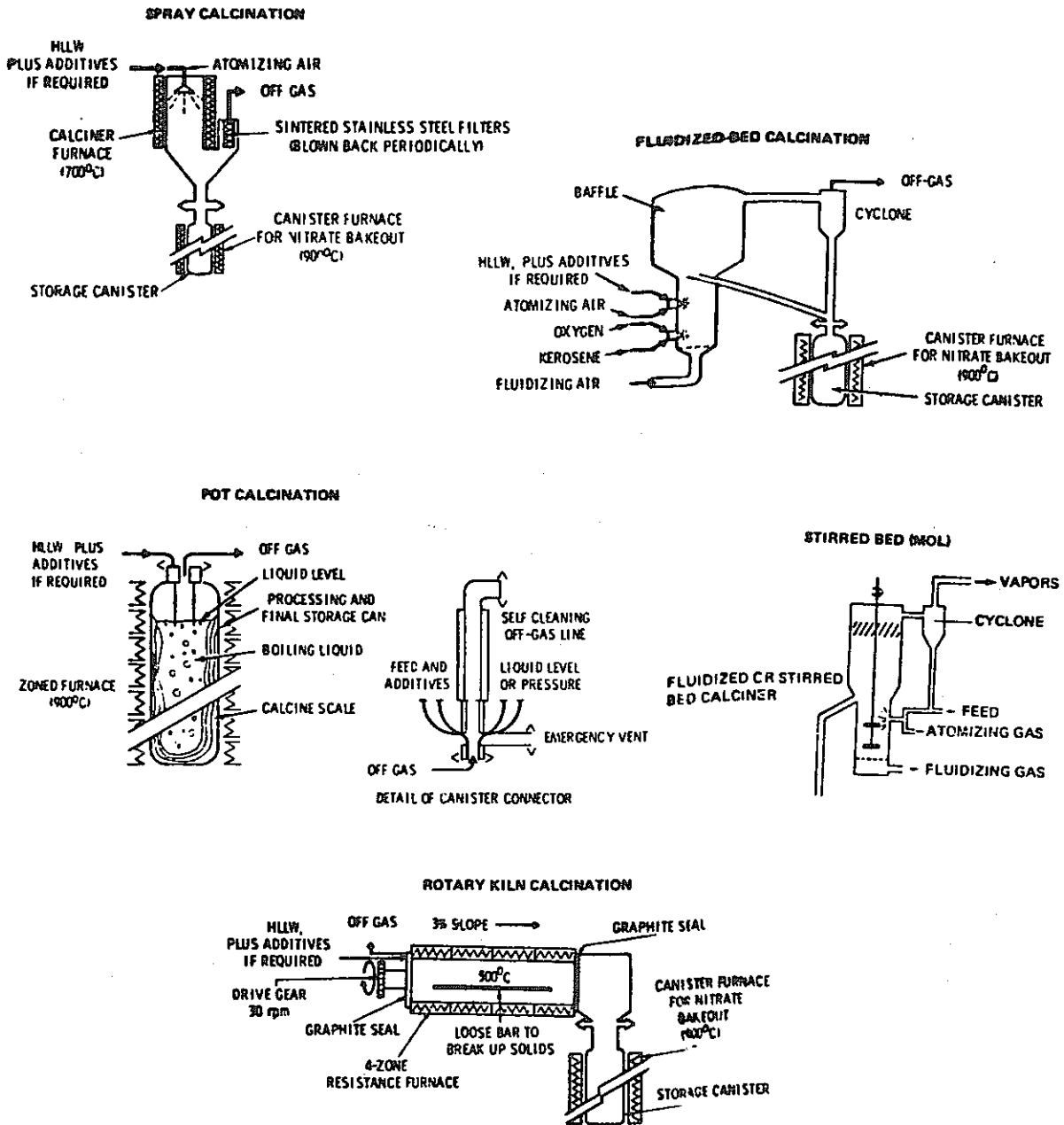
TABLE 6.4 （仮焼体のR & Dの現状）

Status of R&D on Calcine

Site and Process	Lab-Scale Research	Pilot Plant		Routine Production	Storage
		Cold	Hot		
Idaho National Engineering Laboratory - Fluidized Bed					
Defense HLW	X	X	X	X	X
Commercial HLW	X	X			
Pacific Northwest Laboratory - Spray Calcination	X	X	X		
Pacific Northwest Laboratory - Fluidized Bed	X	X			
Marcoule - Rotary Kiln	X	X			
Windscale - Pot Calcination	X	X			
Karlsruhe - Spray Calcination	X	X			
Eurochemic - Stirred Bed	X	X			X
Eurochemic - LOTES	X	X			

(1) プロセスについて

アメリカでは種々の仮焼体生成方法について技術研究が多く行われてきた。2つの技術分野が浮きぼりにされた。スプレー仮焼と流動床仮焼である。両方とも日常的技術となっており、Fig 6.1 にそれを示す。流動床にはもう1つ基本的な問題点がある。初期充填



Source: U.S. ERDA (1976a), van Geel et al. (1976).

FIGURE 6.1 Five calcination processes.

(5つの仮焼プロセス)

材の性質と初期充填材と仮焼体との相互反応が考えられる事である。モルのユーロケミックで開発された攪拌床仮焼装置は、スプレー仮焼装置の改良型で簡単に造粒できる（Fig 6.1 参照）。もう1つの仮焼方法、ポット仮焼は沸騰分解の手順の為に貯蔵容器が重要な意味を持つバッチプロセスである。それはアメリカ（U. S. ERDA 1976 b）の考えから生まれたが、レベルの高いイギリス（Clelland 1973）ポット式ガラス固化プロセスの初期段階にすぎない。ERDA（1976 b）には、現在のアメリカの2つの仮焼プロセスとフランスのローターリーキルンプロセスについて簡単に概要が記述してある。

① スプレー仮焼

最終生成物：超微粒子。ほとんどの粒子は直径 $2\ \mu\text{m}$ から $5\ \mu\text{m}$ である。

プロセスについて：HLLWは 700°C （壁温）に加熱されたスプレー 仮焼装置胴体上部にポンプアップされ、空気と混合されたノズルから噴霧される。噴霧された小滴（通常 $70\ \mu\text{m}$ 以下の径）は高温の本体を通る間に乾燥及び仮焼される。オフガス中の極微粒子は焼結ステンレスフィルターで分離される。

応用可能な廃棄物：蒸発乾燥もしくは仮焼によって酸化物に変える事ができるすべての水性の廃棄物（Hgを除外する）。ポンプで輸送可能な廃棄物は仮焼可能である。2規定のNaを含む廃棄物でも簡単に仮焼できる。

開発状況：PNLでこのプロセスを15年間に亘り開発中である。廃棄物固化工学試験プログラム（WSEP）では、13回にわたる各50時間ずつのホットスケールでのスプレー仮焼を行った。スプレー仮焼が簡単な信頼できる操作である事が、模擬廃液を使って $75\ \text{l/hr}$ で1000時間以上の試験で証明された。現在では供給速度の大きい場合のスプレー仮焼を実験する為に大規模の仮焼装置が製造中である。

② 流動床仮焼

最終生成物： $0.5\ \text{mm}$ から $0.5\ \text{mm}$ の大きさの粗と細粒の混合物で $40\ \text{l/hr}$ /MTU 生産速度で作られたものである。この生成物は貯蔵の為に安定化（脱硝・濃縮）が可能であり、また仮焼体はガラス溶融炉への供給媒体として適当である。

プロセスについて：廃棄物は不活性酸化物の流動床中に噴霧され、流動床温度を 500°C から 600°C に制御しながら炉床中で燃焼する。初期流動媒体表面で蒸発が起り、結果として生成物には仮焼装置から除去すべき粗粒流動媒体と細粒仮焼体が含まれる。安定化された仮焼生成物はキャニスタに貯蔵可能であり、もしくは仮焼体は他の廃棄物形態（例えば、ガラス、メタルマトリックス、焼結ガラスセラミック）に転化できる。

適用可能な廃棄物：HLLW, HLLWとILLWの混合物、蒸発プロセスで発生した放射性物質、再処理からの有機廃溶媒等を含む廃液

開発状況：コールドのパイロットプラントでは $2\ \text{l/hr}$ の供給速度にプロセスのフロー

シートを改革してきた。また同じようなプロセスと機器の操作性の実験が、ERDA 廃液を使用して通常 400 l/hr から 500 l/hr の処理速度で、フルスケールのホットレベルが行われている。これは 5 MTU/day プラントからの予定量の 2～3 倍に相当する。この速い処理速度で処理された廃液は商業用燃料からのもので主成分は硝酸アルミと硝酸ジルコニウムである。HLLW は主に FP の硝酸溶液である。

③ ロータリーキルン仮焼

最終生成物：比較的さらさらした細粒の酸化物

プロセスについて：ロータリーキルン仮焼はわずかの角度のついた回転胴を外部加熱（500℃）するもので、上部より酸性の HLLW を入れると、下部から出てくるまでに乾燥され、完全に脱硝される。一本の自由な棒（loose bar）が仮焼体を自由に流動させ、壁面に沈殿するのを防止する。飛散してきた微粒子を除去する為にオフガスを水洗浄しており、洗浄液と入ってくる HLLW と混合して再循環している。仮焼体は硝酸根の分解を促進する為に熱処理される。

適用可能な廃棄物：蒸発乾燥もしくは仮焼により酸化物に変えられる（Hg 等は除く）廃液。アルカリ金属の含有量はイオウや燐酸などの安定な陰イオンを適当な化学量添加する事により安定させるべきである。

開発状況：フランスで 10 年間に亘り HLLW 連続ガラス固化プロセスでこのプロセスの開発が行われてきた。大部分は工学試験装置で模擬廃液が使用された。放射性物質に関してはなにも行われていない。（U. S. ERDA 1976 b）

(2) 仮焼の限界と難点

仮焼プロセスでよく起る問題点をいくつか掲げる。

① 仮焼中に硝酸根を分解する為にプロセス中の最高温度（500～1000℃）が必要である。モルヤカールスルーエ等のヨーロッパの研究所では、仮焼の前にギ酸やホルムアルデヒドを使って脱硝を行っている。

② 特に Cs, Ru の揮発は根本的な問題である。Cs の多量の揮発は、ポット仮焼の欠点の 1 つであるが、イオウや燐酸などのような安定な陰イオンを添加する事で抑えてきた。

仮焼前の HLLW の濃縮中には硝酸溶液の仮焼の際と同様に Ru の多価酸化物がどこかへ飛んでいく可能性がある。反応温度を注意深く制御すれば Ru の揮発を減らす事ができる。仮焼体が自己発熱して温度が 800℃ を超えるという異常状態が仮焼装置中で発生すれば廃液の揮発という重大な事態が起こる。Gray (1976) は、模擬の商業用燃料の仮焼体（PW-4b）を色々な温度で 12 時間加熱して揮発重量を測定した。

800℃ …… 0.5wt%	1100℃ …… 7.0wt%
1000℃ …… 2.8wt%	1200℃ …… 12.8wt%

主な揮発物質はCs, Ru, Rb, MoとTeであった。

- ③ 最近までは、Na濃度の高い硝酸廃液を流動床で仮焼する事が難しかった。というのは溶融硝酸ナトリウムの分解が遅い為である。結論として、金属イオンを添加して分解を促進する必要があった。現在ではこの問題は解決されている様であり、INEL(Slansky 1977)とPNL(Bjorkland 1976)がNa濃度の高い“dirty”なHLLWの流動床仮焼に成功している。ここで再び言える事は前もって脱硝しておく事がこの問題を解決する。
- ④ スプレー仮焼の生成物が超微粒子である為、オフガスのフィルターは重要な装置である。PNLは15年間併行して焼結ステンレスフィルタの研究を重ねてきたが、そのフィルタを通過する仮焼微分は0.1%以下である。パルス状のブローバック空気がフィルタを清掃する(Bonher et al. 1976)

3. 現在の研究の状況

(1) Standard Calcine

現在迄にかなりの量の研究が新しい仮焼体や流動床について行われてきた一方、仮焼についての基本的な研究と呼べる物が実質的になにもない。結果として仮焼体を構成している個々の相の組成や構造の知識が欠けている。さらに、セラミックの分野で細粒に興味があるのに、仮焼体を作る貴重な方法を開発する努力を怠っている。

(2) Supercalcines

ここ数年間Supercalcinesの概念の導入に従ってSupercalcinesについて多大の研究努力が払われ、成果をたくさんもたらした。以下に述べる各グループは類似点が少ないが、最終的には同一の物を目標としている。

◎ Pennsylvania State University / Battelle Pacific Northwest Laboratories.

McCarthyとそのグループ(Chapman 1976)らによりペンシルベニア州立大学でSupercalcineについて最も明確な概念が確立された。最初に基本的な結晶化学に基づいて、1種類以上の望ましくない放射性核種を含む特別な難溶性の相を選んだ。Supercalcineを生成する為に、このような相を形成する液体の流れに添加物を加えて全体の組成を調整する事が必要である。もう1つの条件としてこれらの相を互いに熱力学的平衡中に閉じ込めて置く必要がある。25から30の構成組織で、この事は相平衡の研究中困難な仕事であるが、現在の分子工学の範囲内の物である。

PSU/PNLは“clean”及び“dirty”なHLLW(Table. 6.2参照)を難溶性で耐浸出性の相と熱力学的に両立できる集合体に転化する効果的な方法の開発に成功した。

TABLE 6.5 Supercalcine 中の主な HLW の放射性核種を含んだ相

Primary Containment Phases for Principal HLW Radionuclides in Supercalcine

Constituent	Fixation Phase	Structure Type
Cs, Rb	$(\text{Cs, Rb})\text{AlSi}_2\text{O}_6$	Pollucite
Sr, Na, Mo	$(\text{Ca, Sr})_2[\text{NaAlSiO}_4]_6(\text{MoO}_4)_2$	Sodalite
Sr, Ba, Mo	$(\text{Ca, Sr, Ba})\text{MoO}_4$	Scheelite
Sr, RE* $[\text{PO}_4]$	REPO_4	Monazite
	$(\text{Ca, Sr})_2\text{RE}_8[\text{SiO}_4]_6\text{O}_2$	Apatite
Ce, U, Zr	$(\text{Ce, U, Zr})\text{O}_{2+x}$	Fluorite
	$(\text{Zr, Ce})\text{O}_2$	
Fe, Ni, Cr	$(\text{Fe, Ni})(\text{Fe, Cr})_2\text{O}_4$	Spinel
	$(\text{Fe, Cr})_2\text{O}_3$	Corundum
Ru	RuO_2	Rutile

*RE=rare earths, particularly La, Pr, Nd, Sm, Gd (and probably Am, Cm).

Table 6.5 にこれらの種々の相と構造を記す。相の集合体は廃液組成が大きく変わればいくらか変化する。Ca と Al の硝酸溶液とシリカの溶融シリカを HLLW に添加する。この添加によっての生の HLLW 仮焼体の 20～40 wt % が希釈される。現在まで、スプレー仮焼で Supercalcine を生成する工学規模の実証試験が 3 回 PNL で行われた。Supercalcine は X 線的に非結晶質であり、結晶質の集合体に改善する為に 950℃ 以上少しの間加熱する必要がある。ERDA (1976 b) によると、「もし固化処理されていない仮焼体が廃棄物の形態として認められつけられたなら、放射性廃棄物の成分の安定性と不溶性を改良できる Supercalcine の概念が即座にフローシートに導入されたであろう」と述べられている。この言はプロセスの最少の可能性を要約したものである。

◎ ユーロケミック

ユーロケミックで開発された LOTES の工学プロセスは、HLLW にリン酸を加えた結果副産物として金属リン酸と少量のリン酸アルミナが生成される。これによって多くの有害なイオンの固定化を助長し、酸化物の仮焼体に比べ浸出率が $1/1000$ の物質を

を生成する (Geel 1976)。相の分析が詳細に行われていない為、どのイオンがどの相と関連があるのか明確でない。しかし生成物が PSU プロセスの適切な科学を基礎とした設計なしで作られた Supercalcine である事は明確である。

(3) 前処理としての Supercalcine

(ガラスとガラスセラミックに対して)

Supercalcine の組成が無制限に調整可能である事と、多くの仮焼体がガラス固化の前処理物質として考えられている為に、今後の重要な課題は、適当な Supercalcine を、ガラス、ガラスセラミック、熔融状態の結晶セラミック等に直接転化する事である。

この分野に於ける研究は 1978 年 PSU/PNL にて PNL の高温セラミックメルターを使用して行う予定である (Chapman 1976)。この研究はガラス製造プロセスに直接関係がある、というのはフリットの添加を止め、均質なガラスを作るにはそれがより速い方法だからである。

(セラミックに対して)

McCarthy のグループによって現在まで行われてきた研究の大部分は極難溶性の相を製造する事であった。その相とは加熱し、熱間プレス、焼結、もしくは他のプロセスでより大きなセラミック体にしてしまう事で十分に結晶可能な物である。このプロセスで今まで研究室で生成された最も濃密な熱力学的に安定な固体廃棄物を製造してきた。(7章参照)

(合成物に対して)

仮焼体や Supercalcine に関する現在のいくつかの R & D は最終生成物質としてペレットや細粒の混合廃棄物を、金属、セメント、ガラスの各マトリックスに閉じ込める事に目標を置いていた。PSU/PNL の Supercalcine は PNL で開発中の特に外へ多重防護の廃棄物形態の核を形成する。Eurochemic/LOTES の Supercalcine の粒は金属マトリックスに閉じ込められた。この2つの合成生成物は9章と10章に詳細に記述してある。

(Supersludge に対して)

Hanford と Savannah River のタンクに貯蔵されている膨大な量の DOE の廃液中の放射性核種は主にタンクの底の固液 "Sludge" 中に含まれている。タンクからその物質を取り出して処理するにはこの Sludges を直接処理する事になる。

Hanford (Wodrich 1976) でこの Sludge の処理として非常に細かいスラリーと他のアルミナシリカ (Table 6.5 参照) を添加するという研究をわずかながら行った。この研究の目的は低温セラミックを作る事であった。しかしこの混合の液状スラリーは Supercalcine プロセスの混合液と多くの点で類似している。粘土と他のアルミナシリカを添加して全組成は調整可能であり (これはある程度実現している) その調整の結果、低温乾燥と仮焼した後希望通りの相が得られる。この特別製のスラリーを乾燥しているかどうか関

係なしに“Supersludge”と呼ぶ。もし副含有物としてのセメントを、最終生成物が“SupergROUT”として、もしくは単一ブロックを作る為に使っているとすれば、Sludgeを再反応させたり焼く事は好ましくない。一方、最終生成物質がセラミックとすれば他の製造プロセスが必要である(7章参照)。このSupersludgeは2.3の他の混合廃棄物形態の前処理物質でもある。

(4) 固化技術

仮焼体とSupercalcineの大きな物理的欠点はその分散性にあるので、この細粒をペレットか粗粒に固化する努力がますます払われている。何トンもの細粒をペレットに転化する方法論としてはセラミックや薬学の分野で充分確立されている。しかし装置が複雑で、水溶性の液体が不安定すぎて遠隔自動もしくは半自動の高放射線環境下での操作がHLWプロセスに十分対応できるものかどうか難しい。一方一般的なdisc pelletizerはこの障害を克服する能力があり、PNLとINEL(Slansky 1977)はこの点について工学的な評価を行っている。Garrett(1976)もこの分野でdisc pelletizerを使用する際の操作を記述している。

流動床仮焼はミリサイズの細粒を生成する様に調整可能である事は何年間も認められてきた事であるが、依然として残っている問題は“細粒”もしくは不十分な微粉を同時に生成する事である。ベルギーのモルのユーロケミックでは流動床装置を改良し、アルミナ成分の高い廃液を化学的に改良して“大きな”粉末を生成する事ができた。このLOTESの上学プロセスについては、van Geel et al.(1976)に記述してある。

“HLW溶液に金属イオン量と関連した化学当量の磷酸を十分な磷酸アルミナといっしょに添加すると最終生成物は最初の廃液成分の30wt%を含有する。150℃から500℃に電気加熱された直径3mmの磷酸アルミナを初期充填してある攪拌床に、熔融液はスプレーされる。適切な温度がHLW溶液の成分決定に一役買う。硝酸ナトリウムが多い場合500℃以上に加熱する必要がある、一方少ない場合は比較的通常の床温度でよい。平衡条件では、微粉の成長は新しい微粉の形成とオーバーフローで生成物が除去される事でバランスがとれている。固い濃密な細粒状の結晶生成物を得る事ができた。回転速度を調整する事によって粒の大きさを3mmから15mmに変える事もできた。”

4. R & Dの可能性

(1) プロセスの研究

一般的に生の仮焼体の研究を続けるかどうかの研究・技術面での判断がほとんど行われていない様である。代わりに、これからは上に定義したSupercalcineの範疇に仮焼体のすべての研究開発の焦点が絞られてきている。一般的なプロセスの技術分野では、細粒を生成する。脱硝を含んだより低温の反応が生じるあらゆる新技術を開発する事に価値があるであろう。これは、ReynenとBastius(1976)のケロシンの小点滴法や、凍結乾燥法、マイク

口波加熱等がある。このプロセスは皆できるだけ低温で均質な細粒を得る可能性がある。

(2) Supercalcine の研究

Supercalcine の基本的研究はすべての最終セラミック形態の開発に不可欠である。現在では下記の知識に大きなギャップがある。(a)種々の仮焼体中の各イオン (0.1%から1.0%以上存在する) が含まれる各相, (b)各イオンに最も望ましい (例えば浸出しにくい) 相の連続体。後者についてはMcCarthyグループによって研究が始められ, 貴重なデータが小さな投資で即座に得られる。このデータが, 結晶相を生成する固化プログラムの指針となる。他の似ている相と両立可能な集合体中の30から40の放射性核種のイオンを含有する2.3の改良された相のマスターリストを作るのが望ましい。特別な組成のHLLWに対して, 許容できる総組成と望ましい相の集合体を生成する為に, 添加物を自動的に作る事が可能であった。これは非常に難しい事の様に思われるが, 酸化物の結晶構造にイオンをできるだけ密に閉じ込めるという物理的な制約からほんの一握りの相しか候補として考えられない。その相とは, 螢石, 燐灰石, 灰チタン石, 黄緑石, 重石, モナズ石, 尖晶石, コランダムや, 2,3のポルサイト, 霞石, 方ソーダ石のようなアルミナシリカの組成である。廃液組成を変える必要がある場合は, 適当な相の混合物を最終生成物として作る為に添加物の組成を適当に調整する事ができる。各相とも結晶溶液中に様々な種類のイオンを混ぜる事ができるので, 望ましい相だけ現われるように全集合体を設計する事ができた。

(3) Supercalcine と Supersludge の混合物

Supercalcine とか Supersludge を様々な合成物質にする事は, 秀れた性質を持った物質ができるように思えるが, アメリカや他の西欧諸国では, この改良がはっきりとは行われていない。コンクリートマトリックス合成物, 金属マトリックス合成物, graphite — 仮焼体があり, 後の2つは金属粉末と高温の均衡質が単軸形態で作られているが, 非常に有望に思われる。grout状態のコンクリートマトリックス Supersludge は, 基本及び応用研究を拡張するに充分価値がある特別な廃棄物形態である。この研究は望ましい相の合成物の決定とその製造方法に焦点が当てられている。

(4) Supersludge の合成物

すでに Supercalcine で作られた特別製の合成物は Supersludge についても実施されるべきである。無機イオンのシーブ — 結晶質の粘土, ゼオライト, 非結晶質のゲル — がイオンの吸収能力が高いので浸出に対して非常に安定な合成物を容易に開発できる。これは不溶性相を形成する反応が考えられる最低温度で起るように設計する必要がある。

(注) 1. 接頭語の "Super" はすべての放射性核種が既知の比較的不溶性の相中に順応した形で入り込む様に化学成分を変えた廃棄物形態を意味する。

2. 現在では全 ^{137}Cs の80%と ^{90}Sr の65%がHanford廃棄物から分離された。閉じ込めプログラムは10%も完成していない, しかし3500の容器中240が既に処理されている。

(NRC 1978)

7 章 セ ラ ミ ッ ク

1. 序

セラミックは高温で形成される無機非金属物質と定義されている。本書では「セラミック」という語句の使用はガラスとは異なった現存している主要な結晶構造をもつ物質に限定する。多くの生成物のタイプは磁器や陶磁器から人工的な固体状電気機械部品まで分類される。

セラミックは、焼結あるいはホットプレスによる（液相状態を含む場合と含まない場合がある）、固体粒子の固化を含む幾つかのプロセスによって生成される。焼結プロセスは、粒子ゆ着による粒子表面の減少、間隙の減少による収縮という特徴をもっており、温度がこれらの推進力である。焼結プロセスは、一般に主構成物質が溶融するより低い温度で行われる；したがって形状のゆがみや微細構造の大きな変化は避けられる。

セラミックはまた、溶融・固化プロセスによっても生成される；要求される微細構造と特性が現われるように、固化速度をコントロールしている間に原料は溶解し、反応する。このプロセスによる生成物には、ガラス工業や金属工業における溶融鑄造の耐火物、宝石や光学用の単結晶塊（boules）、および間接的にはガラス・セラミックも含まれる。

セラミックは、熱力学的に最も安定な原子レベル（primary）の封入構造を潜在的にもっているため、核廃棄物固化形態の1つとして真剣に検討されてきている。セラミックは、また他の“primary”な廃棄物固化形態よりも低レベル放射線損傷に対してより抵抗性があり、最も高い熱伝導性と耐浸出性を示し、容積当りの廃棄物含有量を最大にできる。さらにセラミックは、ガラスとは異なり結晶体なのでX線と電子回析を走査電子顕微鏡と組み合わせて用いることによって、いかなる核種の結晶構造の状態をも正確に指摘することが可能である。このため、特定の結晶面に核種を残すか、あるいは新しいより望ましい相を造るために組成およびプロセスを修正するか否かを判断することができる。もしそのような相についてデータが不十分であればそれらの適切な特性（浸出性、熱的安定性、放射線損傷に対する感受性等）についてそれらの相を個々に合成し、評価することができる。

セラミックとセラミックプロセスには廃棄物固化についていくつかの欠点がある。高温プロセスのため現存の施設の安定性と寿命について問題がある。プロセス、特に焼結あるいはホットプレス操作中の粒体のコントロールと封入はなお一層プロセスを複雑なものにしている。またセラミックは変成効果に敏感である。

2. 技術開發現状の調査

廃棄物形態としての結晶質セラミックの研究には、ガラスの研究に与えられた資金援助のごくわずか（おそらく0.1～1%）しか与えられていない。この極端な相異はおそらくガラ

ス形成プロセスが多くのセラミック形成プロセスより複雑でなく処理しやすいと思われることによるものであろう。しかし第8章で述べるように、ガラス形成プロセスはそれ自身の複雑さを有している。さらに生成物の安定性についての問題がある。

理由が何であろうとも、研究活動は従来限定されてきており、HLWのセラミックあるいはガラスセラミック固化形態への処理に関しての開発は事実上行われてきていない。セラミックに関する研究の要約を Table 7.1 に示す。

TABLE 7.1

高レベル廃棄物のセラミック固化体の研究

Product	Site	Reference
Fusion-Cast Ceramic	PNL (WSEP)	Mendel and McElroy (1972)
Ceramic Sponge	LASL, Sweden	Christenson et al. (1964) and Hultgren (1977)
Low-Temperature Silicate	PNL, INEL, SRP	U.S. NRC (1976)
Stable Hot Pressed Ceramic	Penn State	McCarthy (1973) and McCarthy and Davidson (1976)
Sintered Calcine-Glass	PNL & INEL	Ross (1975) and Berreth et al. (1977)
Glass-Ceramic	HMI (Berlin)	De et al. (1976)
Titanate Ceramic	SLA	Schwoebel (1975)

(1) 溶融鑄造セラミック

溶融鑄造セラミックは、WSEP (Waste Solidification Engineering Prototypes) で評価された高レベル廃棄物固化体の1つであった。結晶質セラミックは貯蔵容器中へオルトリン酸塩からなる溶融物を入れることにより作られた。生成物は800°C以下に冷却したときに結晶化した。水中におけるその浸出性は高レベル廃棄物ホウケイ酸ガラスの10~1000倍もあり、不十分であることが判明した。しかし、それはWSEPにおいて評価された分散の最も少ない高レベル廃棄物固化体であった。浸出性を減少させるためにセラミック組成を最適化する努力は、定常的作業であると思われるが、全くなされなかったようである。

(2) セラミックスポンジプロセス

セラミックスポンジプロセスでは、高レベル廃液を多孔性の素焼き粘土体に吸入さ

せ、ついで乾燥し、1200～1300℃で焼き、部分的に粘土体をガラス化させ高レベル廃棄物核種を固定する。ロス・アラモス科学研究所(LASL)の研究による生成物では、灼熱中のPuの気化損失が多かったがCsは非常に少なかった。CsとSrの浸出性は低かった。セラミックスポンジに関する研究はLASLにおいて1960年代初期に行われた。それ以後継続されることはなかったが、最近高レベル廃棄物プログラム、たとえばスウェーデンの放射性廃棄物処理国際協議会(PRAV)において再び取り上げられているだけである。

スウェーデンにおけるプログラムの目的は、廃棄物核種、たとえばCs、Srや半減期の長いアクチノイド、を選択的に除去する無機イオン交換物質や技術を開発することである。熱処理プロセスを経て、引き続き安定なセラミックやガラス物質に変えることのできるイオン交換物質の開発が行われている。非常に長寿命のアクチノイドの回収が可能ならば、残留廃棄物の自然崩壊のために必要な貯蔵期間をたいへん短かくすることが可能である。検討中のイオン交換物質は、ゼオライト(結晶質のケイ酸アルミニウム水和物)、非ゼオライト物質(たとえばピオクロールと第4族のリン酸塩)およびカチオン吸着に適当な網目状空間をもつ構造のヒ酸塩である。安定な結晶中に高レベル廃棄物を吸着させるこのプロセスは、最も簡単で安価になりうるセラミックプロセスと考えられている。

(3) 低温ケイ酸塩

考えられる最も低い低温プロセスの1つの形態は、種々の名前では呼ばれている。その1つが水成ケイ酸塩(aqueous silicate)である。この概念の変形として、高レベル廃液のイオンをケイ酸塩の混合物に吸着させるものがある；この混合物は反応し、かなり不溶性の相と幾つかの水和物および無水物を形成する。Na濃度の高いDOE廃棄物^(注1)は、この方法で研究された。粘土とゼオライトの混合物をDOE廃棄物中のオキシ水酸化スラッジ(oxy-hydroxide sludges)と混合することも可能である。そのようにして得られた混合物は練炭のようにし、低温(約500℃付近)で反応させることが可能である。この反応温度は、生成物の密度と結晶性の増加に対応して上昇させることになるであろう。

上述したような技術で生成されたセラミックは、詳細に検討され特徴づけられていないが、非常に多孔性であるにもかかわらず耐浸出性はおそらく他のセラミック形態の多くの場合と同じ程度に良好であろう。それらの物理的性質は当然ガラスやホットプレス成形されたセラミックに比較して非常に貧弱であろうが、しかしセラミックスポンジのそれらとは同程度であろう。

(注1 訳者注)： DOE廃棄物：アメリカの軍事計画によって生じた放射性廃棄物。これらの廃棄物の大部分は、水酸化ナトリウムで中和され、液状塩類のケーキとスラッジの混合物として貯蔵されている。

(4) 仮焼体からのセラミック

スーパーカルサインからつくられたセラミックは、これまでほとんど研究されなかった。スーパーカルサインに関するペンシルバニア州立大学 (PSU) の基本開発目標は、スーパーカルサインをセラミック単一体 (ceramic monolith) 中に 4 ~ 5 の結晶質相をもつ熱力学的に安定な集合体に、添加物を加えずにホットプレスないし焼結することによって変換させることであった。

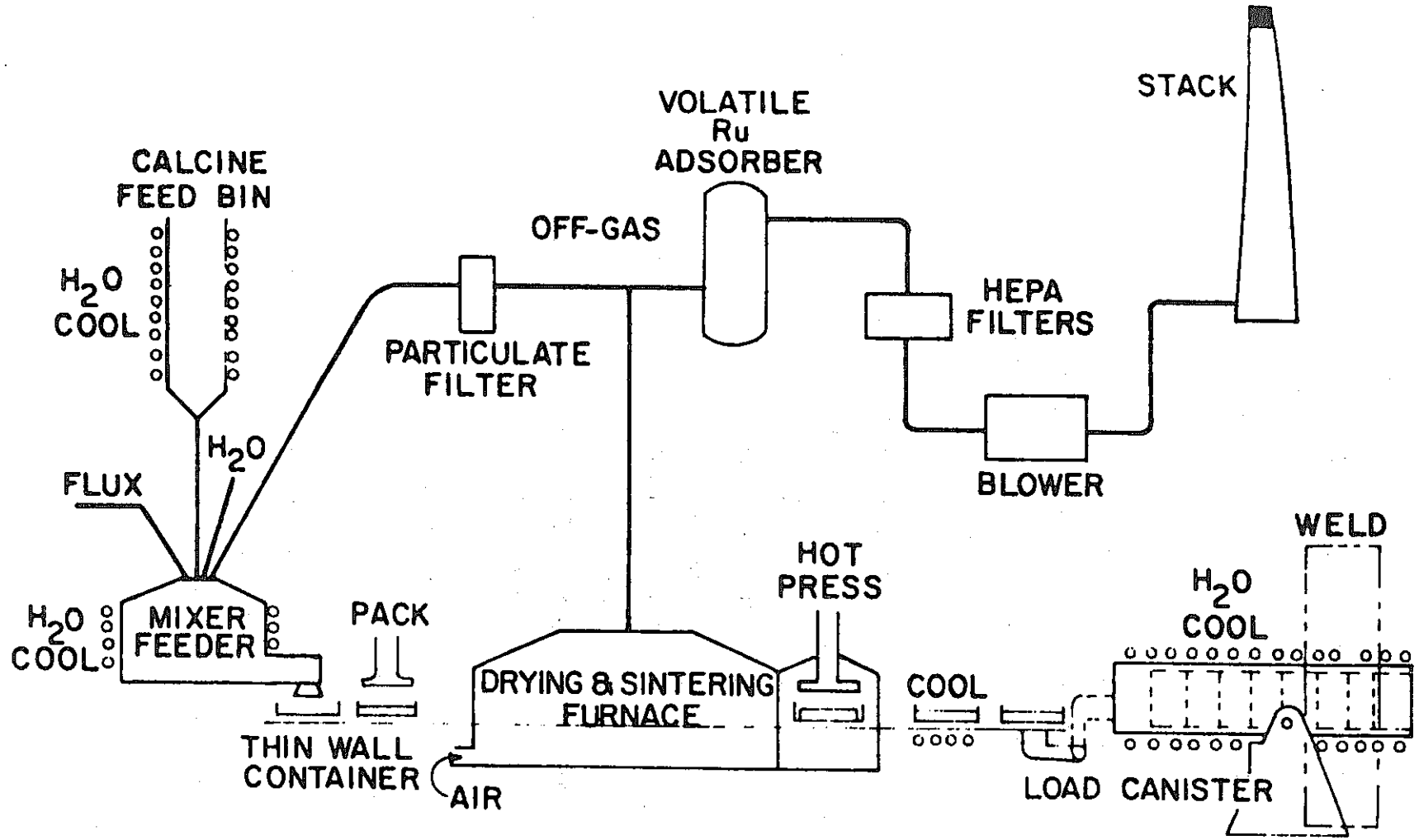
仮焼体あるいはスーパーカルサインを含む他の3つの生成物、ホットプレスされたセラミックマトリックス、焼結された仮焼体—ガラス、ガラス—セラミックは、高レベル廃棄物仮焼体—これは強度、耐浸出性が劣っているが—を良好なガラスないしセラミックマトリックス中に封じ込めるか又は反応させることによって防護するよう設計されたセラミックスポンジと類似している。生成物の部分的なガラス化は焼結化を促進させるために用いられる。

ホットプレスセラミックマトリックス生成物中では、約 30^{wt}% の高レベル廃棄物仮焼体が石英粉末と少量の低浸出性ガラスフリットと混合され、1100 ~ 1200 °C、2000 ~ 4000 psi でホットプレスされる。同程度の廃棄物含有のガラスと比較すると生成物は、同程度の浸出性を示すが、熱的安定性はより大きい。実験室規模の証明が、コールドの、しかしその他は完全な組成のクリーン廃棄物 (PW-4b) を用いて 1975 年に行われた。それ以上の研究は計画されなかった。なぜなら、高放射線状態での連続的なホットプレスの遠隔操作は不可能と信じられたからである。

焼結された仮焼体—ガラス生成物は、適当なガラスフリットかあるいはガラスで作られた原料の混合物と高レベル廃棄物仮焼体 (50 ~ 70 wt%) との混合物である。以下の引用は、エネルギー研究開発庁 (ERDA) のプロセス説明書によった：

「仮焼体はフラックスおよび潤滑性の結合剤 (水でも可能) と混合される。もし大きな円板形状が必要ならば低く薄い鋼で囲まれた鋼製容器 (disk) に混合物を圧入する。もしより小さなペレットを形成するのなら、粉末をペレタイザーに供給する。成形された混合物は、次に生成物と容器を適合させるため加熱中に低加圧が必要で、大きなデスクに焼結される。冷却後、ディスクは収納容器中に直接装填可能であろう。ペレットはマトリックスが必要であり、コーティングされるであろう。」

このプロセスに関するアイダホ国立工学研究所 (INEL) の説明を Fig 7.1 に図解した。



Source: Berreth et al. (1976).

FIGURE 7.1 ガラスセラミック焼結プロセスの概念

仮焼体とガラスとの反応によって得られた結晶状態のいくつかは報告されており、Table 7.2 にまとめた。

TABLE 7.2

仮焼体-ガラス反応によって得られた結晶相

PW-4b + Zinc Borosilicate Glass (PNL)	PW-7 + Ba-Zn-Ti-Aluminosilicate (INEL)
[(Ce, RE, Zr) O ₂ x]	[RE ₂ Zr ₂ O ₇]
[(Sr, Ba, Ca) MoO ₄]	[Fe ₃ O ₄]
[(Ni, Zn, Mg, Co) (Fe, Cr) ₂ O ₄]	[CeO ₂]
[REBSiO ₅]	[Gd ₂ O ₃]
	[GdFeO ₃]

注) RE は希土類カチオンを示す。

INEL相は、表に示された単一化合物としてよりもむしろ複雑な結晶質の液相を代表する構造上の型として考えるべきである。生成物は比較的密で硬く、実験室で用いるホウケイ酸ガラスの浸出率の数倍の値を示した。アメリカにおいては、高レベル廃棄物に対する古典的な(たとえばPYROCERAM)ガラスセラミック法はそれ以上使用されなかった。その方法は、西ドイツ、主としてベルリンのHahn-Meitner Institute (HMI)において熱心に研究中である。アメリカのERDA (1976b)では、そのプロセスを以下のように述べている:

「高レベル廃液は仮焼され、添加したガラス形成素材と共に熔融される。熔融物は小さなブロックあるいは板状に鑄造される。それらのブロックを完全にガラス質状に保つため、急速に冷却し、次にコントロールされた結晶核形成と結晶化を促進させるために、慎重にプログラムされた熱処理を行う。ブロックは容器中に積み重ねられ、その間隙には高い熱伝達を得るため金属が満されている。」

同報告書は、さらに「もし高い貯蔵温度下でのコントロールされない失透化に影響されにくければ、そしてガラスと同程度の耐浸出性を持てばガラスセラミックはガラスよりも強いであろう」と記述している。

HMIのコールドの実験室規模の高レベル廃棄物ガラスセラミック研究結果は最近出版された。以下にその重要点をリストした。

- プロセス温度は、熔融が1100~1400°C、核形成は530~700°C、結晶化は630~960°C
- 廃棄物組成は、PW-7aと同じである。

PW-7a: アルカリあるいはアルカリ土類のケイ酸アルミニウム塩型のガラス

- Bulk leachability は、もとのガラス中よりも結晶生成物の方が極くわずかに大きい。
- 重要な核種（たとえば ^{90}Sr , ^{137}Cs ）は、特別な母相（host phase）中に結晶化する。

HMI グループは、高レベル廃棄物ガラスセラミックを作ることの当初の目標はポルサイト（pollucite）中に Cs を $\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$ として固定することであったと指摘している。この理由からそのグループは、常にケイ酸アルミニウム塩をもとにした固化形態を採用している。彼らの報告書では、電子線回析によりポルサイトの結晶化（そして周囲の残存ガラス中の Cs 減少が一致したことを）を証明している。ポルサイトは天然における最も一般的な Cs（と Rb や他の高レベル廃イオン）の母材（host）である。それは高レベル廃棄物と同じような複雑な化学作用によって溶岩のような組成物から結晶化するので、自然は我々にその偉大な安定性についての指摘を与えてくれた。それは水への Cs の浸出に対して高い抵抗性があり（Barrer and McCallum 1951）、またすぐれた熱安定性をもっている（Gallagher et al. 1976）。（ポルサイトの結晶化学、相の関連性、浸出性、熱安定性の最終的な研究は PSU において進行中である。） 3 種の特別に作った廃棄物形態、すなわちガラスセラミック、チタン酸塩セラミックおよびスーパーカルサインにおいて、ポルサイトが Cs-固定相であるかは、何らはっきりしていない。

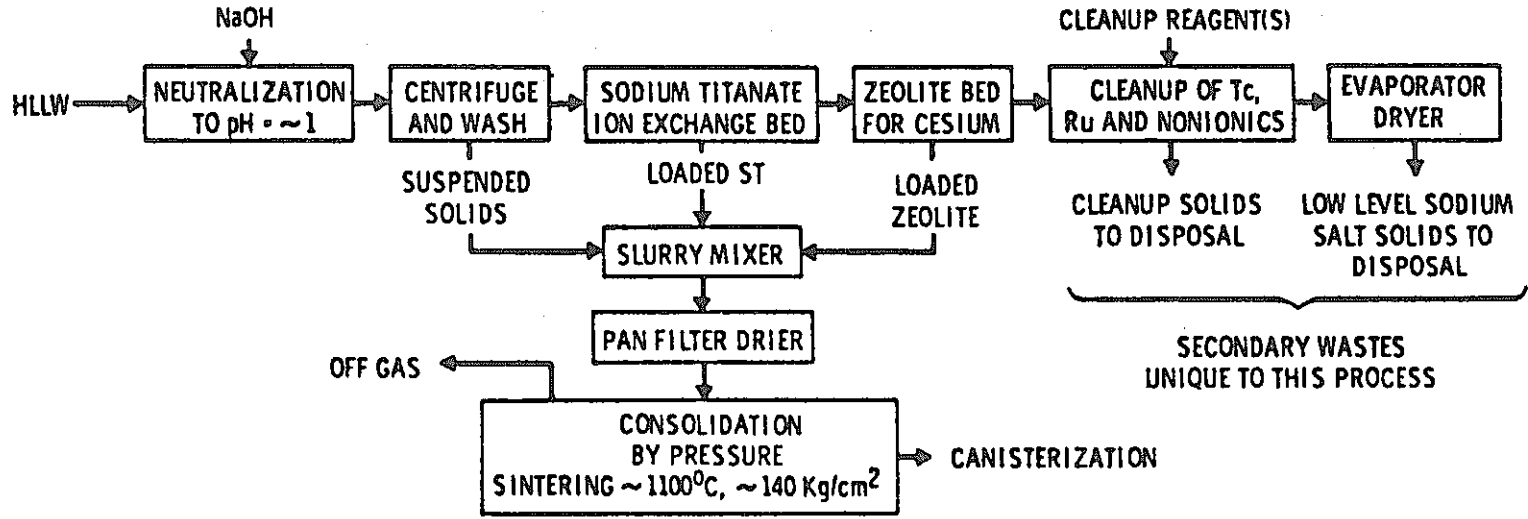
ガラスセラミックの研究における 1 つの問題点は、適当な温度で溶ける基本となるガラスを作るために B_2O_3 のような融剤をケイ酸アルミニウム化合物に添加しなければならないことである。これを加えることにより、結晶化したあとに残るガラスは、比較的浸出性の高いホウ酸の多いガラスとなり、バルクの浸出率はもとのガラスよりも高くなってしまふ。結晶化されたイオン（Cs, Sr 等）の浸出性は報告されていないが、これらはガラス全体からの浸出に比べ非常に低いレベルであろう。

HMI ガラスセラミックプロセスは研究室規模でコールドとホットの両方の実証を行い、目下ホットパイロットスケール段階である。

(5) チタン酸塩セラミック

チタン酸塩セラミック高レベル廃棄物形態は、サンディア固化プロセスにおけるホットプレス固化生成物である。このより複雑なプロセスは軍事上の廃棄物について実際的である。ERDA (1976 b) は、民間廃棄物のためのプロセスを以下のように述べている（Fig 7.2 参照）：

「高レベル廃液を NaOH で pH=1.0 までに中和し、遠心分離により固液分離する。分離された廃液は、チタン酸ナトリウム (ST) を用いたイオン交換によりほとんど完全に除染される。（研究室規模で全アクティビティ 10^{-5}Ci/ml 、大



Source: U.S. ERDA (1976b).

FIGURE 7.2 サンディア固化プロセス

部分はルテニウム、セシウムとテクネチウム、 α 放射線は 10^{-10}Ci/ml であることが実証された。) 続いてセシウムはゼオライトを用いたイオン交換により除去され、ルテニウムやパーテクネイト (pertechnetate) イオンのような残留微量廃棄物はアニオン交換物質や他の活性剤によって除去される。交換の終了した ST やゼオライトはスラリーとして取り出され、固液分離段階で除去されたスラリーといっしょにされる。このスラリーの混合物は脱水され、パンフィルターで乾燥され、このプロセスで唯一の高温段階である加圧焼結により固化される。」

ホットプレスされたチタン酸塩セラミック生成物は巨大結晶である。ただゼオライトに含まれる少量のアルミナシリカとケイ素金属添加物の酸化による少量のケイ素のみが非結晶質である。生成物の約半数が金紅石 TiO_2 である。ケイ素金属が還元雰囲気を維持するために添加された。このようにして多くの廃棄物成分は金属 (Mo, Pd, Rh とおそらく Te と Fe) となり、アルカリ土類と希土類は安定な溶解しにくい (耐火性の) チタン酸塩を形成する。初期の研究段階において、固化中にアルカリ (Cs, Pb, Na) チタン酸塩が形成されることが発見されたが、これらは耐浸出性や熱安定性に乏しい。それゆえ、ゼオライト交換段階が追加され、結果としてポルサイト中への Cs と Rb の固定が行われた。他の酸化物 (CeO_2 , UO_{2+x} , CeO_2) はチタニアと結合しない。これら各相の存在は、微少部分電子線回折と透過型走査電顕を用いて、同定ないし確認された。

現在までに知られている事実をもとにすると、チタン酸セラミックは高レベル廃棄物貯蔵状態下ないし密閉系 (たとえば密封されたキャニスタ) において、熱力学的平衡状態にかなり近いようである。しかしながらスーパーカルサインに適用したような組成設計 (Compositional design) は、その組成 (Composition) を最適化するために未だなされていない。PSU によって得られたデータを用いるならば、この修正はたやすく行える。スウェーデンでは、この方面への研究が押し進められている。個々の相 — TiO_2 , チタン酸塩, ケイ酸アルミニウム, 酸化物や金属 — は明らかに適合する。

ハンフォードにて DOE 廃棄物に対してサンディア固化プロセスを適用するためにプログラムが現在進められている。

3. 要約と勧告

研究開発活動は高レベル廃棄物固化のための種々のセラミックプロセス法の潜在的優位性を実証した。安定な結晶質形態は、母構造 (host structures) と同一である。用いられたプロセスの複雑さは、操作性ならびに生成物の特性と共に変化する。セラミック形成プロセスの評価を Table 7.3 に示す。

現在までの研究成果は、範囲は限られているがかなりの可能性を示した；しかし、それら

TABLE 7.3

プロセス特色のマトリックス

	Fusion Casting	Glass Ceramics	Sintering		Hot Pressing	Adsorption/ Reaction
			Low Temperature	High Temperature		
A. Process Parameters						
Complexity	Slurry/Particulates to Melter; composition and temperature control	Slurry/Particulates to Melter; composition and temperature control	Mix super-sludge as slurry; can as blocks; sinter	Particulates to Consolidation to Sinter-Densification; composition and temperature control	Particulates to Densification; composition and temperature control	Inorganic exchange reaction relatively simple for Cs, Sr. Fluid to solid; completeness of reaction; composition and temperature control
Maximum Temperature	≈1,400°C but composition dependent	≈1,400°C	500-1,000°C	1,200°C	1,000°C	1,000°C
Characteristics of Remote Operation	Difficult: high potential for malfunction; refractories longevity	Difficult: high potential for malfunction; refractories longevity	Simple scrap potential	Difficult: numerous steps; high scrap potential	Difficult: mold longevity; equipment malfunction	Relatively less difficult process control
Contamination Potential	Considerable	Considerable	Considerable	High	High	Considerable
B. Property Characteristics						
Leachability	Low if micro-cracks and pore clusters contained	Very low	Low	Potentially low	Extremely low	Marginally higher (because of residual porosity)
Thermal Conductivity	High	Can be high; depends on phase content	Low	High for fully dense	High	Lower because of residual porosity
Thermal Stability	Good (>1,000°C)	Good (>1,000°C)	Fair	Very good (>1,000°C)	Very good (>1,000°C)	Lower (≈500°C)
Dispersibility Resistance	Potentially good	Good	Fair	Good	Good	Poorer

の多くは保留されているようである。

セラミックは高度の特性をもっているが、それら进行处理するためのフィージビリティを評価するためにより一層のR & Dが必要である。たとえこの評価が有利性を実証したとしても、プロセスはコストと施設操作員に対するリスクが考慮されたのちにはじめて選択される。

特に「セラミック・スポンジ」吸着溶融プロセスを注目すべきである。なぜならそれはもともと簡単で、安価であり安定な生成物を生ずるからである。

プロセスをより簡単にかつ操作性をより容易にし、封入と鑄型材質の寿命を長くするためのプロセスの改良がまた強調されるべきである。加うるに適度の自由度をもった操作パラメータ、たとえば温度と圧力範囲の拡大は特定の組成に対して確立されるべきである。このようにすれば、効率は高まり厳正なプロセスコントロールは必要でなくなるであろう。たとえばあるホウケイ酸ガラス組成は、溶融温度約 1400 °C を必要とする。しかしながら、粒子形状であればそのような組成のものでも、ホットプレスを用い、簡単な鑄型圧縮相互作用により約 2000 psi, 700 °C の低温の領域から製造することができる。

注

金属トマリックス複合体中の金属は、廃棄物の第2次封じ込め形態である(10章 参照)。

8 章 ガラス

1. 定義及び概要

ASTMによると、ガラスは次のように定義されている。『ガラスとは結晶化することなしに、熔融状態から強固な物体に冷却することのできる無機物質である。』

この定義は科学的にはいささか限定されすぎのきらいもあるが、本章で論じる廃棄物形態を特徴づけるには適当なものである。

ガラスは非晶質構造をもつ。これは液体のもっている乱雑な構造が冷却過程中でも本質的に失なわれることなしに強固な状態になるまで持続したものである。結晶性の固体ができるか、ガラスができるかは完全に力学の問題である。というのは、結晶相が生成する温度（液相温度）に達したとき、融液のもっている本質的な結晶化傾向を避けるために、冷却速度は十分に速くなくてはならない。結晶化することなしに、その粘性がほぼ 10^{14} ポイズ（転移領域）に達したときに、始めてガラスの生成が保証される。換言すれば、非晶質構造が実質上凍結されたので、これ以上更に速い冷却は重要でなくなるということになる。

しかし、ガラス状態は結晶化という点に関して永久に準安定状態にあるということを確認しておく必要がある。ガラスを液相温度以下で転移域以上の温度に長時間保持すると、1つ又はそれ以上の結晶相への変化が起るのは通常よく見られる現象である。この変化は失透現象として知られている。均質なガラスにあっては、失透は例外なく表面から始まり内部へと進行する。（これは表面が核化のサイトとして働らくからである。）気泡のような内部の界面は普通失透の引き金にはならない。未熔融成分や、非溶解成分のような結晶性の介在物を含むガラスでは、結晶化はその界面から始まる。もし、これらの内在する結晶化核が細分化され、均等に分散するような組成になったり、熱履歴を経たりすると、結晶化は規則正しく起こり、ガラスは微小結晶粒子からなるガラスセラミックになるだろう。他方、もしこの核化相が粗大な粒子であったり、不均等に分布していると、結晶化に伴う体積変化は恐らく内部での破壊現象の原因となり、物質全体の機械的強度を損う結果になるだろう。

ガラスは放射性廃棄物固化のためには多くの魅力的な特徴を有している。無機ガラスはほとんどすべての金属酸化物にとって恰好の溶媒である。このことは、ガラス融液が高温で形成されることと、その構造が限定されたものでなく無定形というガラス状構造を有していることによっている。更に、ケイ酸塩ガラスの一般的性質として、比較的水などに溶け難い性質を有していることが挙げられる。この性質はケイ素/酸素の3次元網目構造の性質からきている。2価と3価の陽イオンも静電的に網目構造の一部を形成するような構造をとるので、溶出しにくくなる。1価の陽イオンは強固な結合をしているとは言えないが、これらのイオンを取り囲んでいる網目の骨組によって、通常の温度では水による溶出速度はかなり制限さ

れる。その証拠としての意義が過大に評価されすぎているきらいはあるが、黒曜石のような天然ガラスが地質時代を通じての高ケイ酸ガラスの化学的安定性を示す証拠となっている。最近になって、現存している天然ガラスは地質学的な起源をもち、乾燥した環境下に恵まれてきたという事が判ってきた。(事実、天然〔鉱物〕ガラスは前最新生の地層からは発見されていない — 例え低温環境であっても、水が存在するときは) また、ガラスはうまく作るとノンポーラスにできる。このことにより、無駄な容積を少なくでき、熱伝導性をよくし、化学的に侵食される面積を最小にできる。ガラスは電離及び変位放射線のいずれに対しても比較的大きな抵抗性を有する。そして、ヘリウム (α 崩壊による) はケイ酸塩ガラスの開放的な構造中を比較的速く拡散することができる。

しかし、同時にガラスは廃棄物固化のためには、いくつかの欠点も有している。ある温度で物性変化の結果を伴う失透傾向を有することは既に述べた。ガラスの製造に必要な高温がプロセス上に問題を生ずる。特に、高温度が設備を腐食し、歪ませるという問題がある。ホットの運転時に発生するガスと蒸気をコントロールすることもやっかいな問題である。

もし、化学的耐久性を維持しようと思えば、ガラス中に封じ込みうる廃棄物の濃度は制限される。市販ガラスでは、網目形成酸化物 (SiO_2 , Al_2O_3 , B_2O_3) の含有量が 70 % を割ることはまずない。しかも、これら酸化物の中でも SiO_2 が大部分を占める。網目形成酸化物の含有量の低いガラスを採用すると、化学的耐久性の劣化を招く。; SiO_2 の含有量が 50 % 以下のガラスは通常酸に可溶である。更に、ガラスはもろい物質で衝撃によって粉碎されてしまう。これは熱勾配によってクラックを生ずることになる。また、熱伝導率は金属の約 $1/10$ にすぎない。

2. 開発進捗状況調査

放射性廃棄物のマネージメントに関して実施された最近の調査 (IAEA 1976; U.S. ERDA 1976b, 1976c) によると、いくつかの点で世界的なコンセンサスが得られつつある。まず、HLLW は固化されるべきであり、そしてガラス固化技術が最も進んだ固化法であるという点である。U.S.S.R. はこの調査の対象外である。; ソ連の固化研究は、液体廃棄物を地下のポーラスな地層へ直接注ぎ込むプログラムであるという補足がなされている。(W. Bishop, U.S. Nuclear Regulatory Commission, personal communication, 1977)

フランスとイギリスは完全にガラスに委ねている。; 他のHLW固化体は実廃液固化体としての考慮外にある。実廃液を処理する実証規模のガラス固化設備がMarcouleで1977年後半、稼動に入る予定である(1978年6月稼動開始……訳者注)。他の国々では依然として、いくつかの代替固化法を検討しているが、他のすべての方法を合せた以上の金額がガラス固化開発のために費されてきたし、現在も続けられている。その結果として、ガラス中に廃棄

物を固定化するという概念は、このような勢いをはぐくまれ、また多くの既得権も得てきたので、その効能に関して客観的な批評を加えることはあまり歓迎されない雰囲気にある。

このような批評を行なうための予備段階は、現在実施されているガラス固化プログラムの実態を調査することから始まる。幸い、廃棄物マネジメント分野におけるコミュニケーションはかなり良い方で、情報は自由に利用できる。しかし、この情報は主として概念的且つ、略図的なレベルにとどまり、技術の詳細は普通公表されていない。技術設計が絶えず進歩するという性質をもっていることや、運転システムの適切な記述のために必要とする文書量を考えると、この技術的詳細の脱落は理解し難いものである。しかし、勝れた技術設計によって、しばしばほとんど見込みがないと考えられていた概念を極めてうまく機能するハードウェアに変えられるという事実を知る必要がある。同じ理由から、不適切なエンジニアリングによって、そのしっかりした基本概念にもかかわらず実際の遂行において失敗することがありうるのである。

(1) フランスの計画

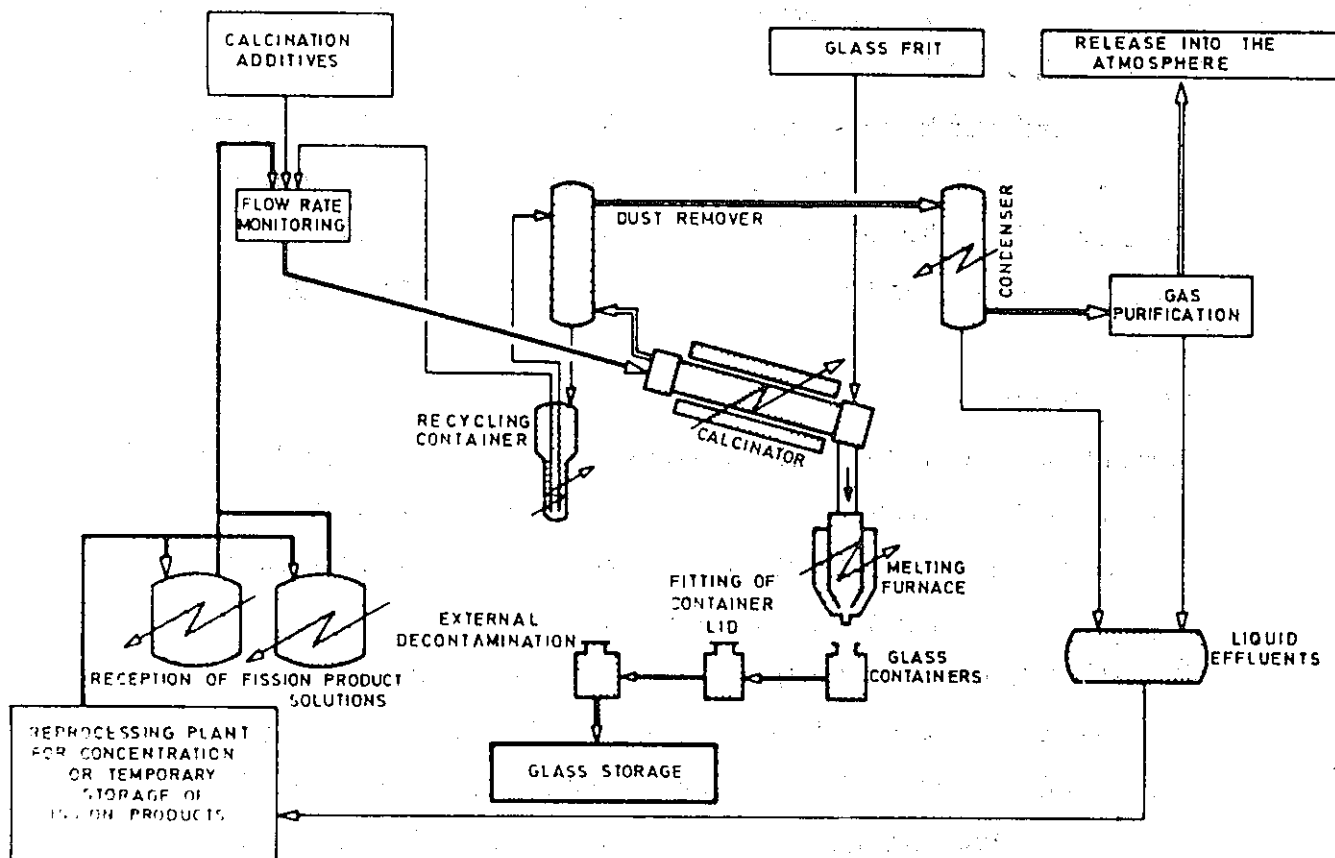
Marcouleにおいて、間もなく操業に入る連続ガラス固化プロセス(AVM)は1959年に始まった主プログラムの成果である。このプラントは1時間当たり30ℓのHLLWを処理できるように設計されている。この処理量は、"Sicral G"燃料を1ton/Hrの速度で再処理したときに発生する液体廃棄物の量に相当する。

ガラス生産量は1日当たり約430kgで、これらは直径50cm、高さ100cmの金属製容器中にシールされる。このような容器10本が貯蔵場所に設けられたスチール内張りの垂直ピットに積み上げられる。現在のところ、最初の10年間の操業で発生する量を貯蔵するのに十分な数のピット(220)が準備されている。これらのピットが満杯になるまでには、国立の貯蔵所ができていだろう。もし、そうでなければ、貯蔵エリアを拡張せざるを得なくなる。

ガラス固化プラントのオペレーションダイアグラムをFig 8.1に示す。HLLWの脱硝及び濃縮は約400~500°Cのロータリーキルン型の仮焼炉により行われる。自由に回転できるインターナルバーが仮焼炉内壁に紛砕された固体が付着しないようにかき落す役目をする。有機物の添加剤により、仮焼体を適当な粒度に調整できる。特別な組成のガラスフリットが仮焼炉の排出口付近で、決められた配合比に従って連続的に供給される。フレック状のフリットと仮焼体粉末の混合物がメルター中へ投入され、F.P. 酸化物は溶融したフリットによって溶解される。8時間毎にメルター底部のフリーズバルブを加熱して、ガラスを流下させる。サイフォン装置によりメルター内部のすべてのガラスが完全に流下し尽してしまうことを防止している。流下作業の進行状況はガラスの充填されるキャニスターの重量を測定することによって監視される。流下作業中も、メルターへの原料投入は

続けられる。

このプロセスは比較的単純なものであるにもかかわらず、遠隔操作、遠隔保守、及び放射性物質の完全な密閉化が要求されるために設備は恐しく複雑なものになっている。ここで、いくつかの特殊な、且つ極めて重要な問題と、それを取扱う規準にふれておくことは意義があろう。



Source: IAEA (1977).

FIGURE 8.1 Diagram of operations at the Marcoule Vitrification Facility (AVM).

メルターは比較的薄い器壁の金属製シリンダーで、通常は1050℃で運転される。将来、不注意な操作によって容器に穴があいて、溶融ガラスが漏れるということもありうる。メルターの周囲に、比較的ぴったりとフィットさせたシュラウドが設けられており、もしこのような事故が発生したとき、漏れ出たガラスが直ちに固結するように設計されている。このシュラウドは Fig 8.1 にその概略を示すもので、比較的低温に保たれている。これはメルターが輻射熱によって加熱されるのではなく、シュラウドの周囲に配置された水冷コイルによる10 KHzの高周波誘導によって加熱されることになっている。

仮焼炉からは大量のガス（水蒸気，NO_x，揮発性 F. P. 化合物）と粉塵が発生する。ダイアグラムにはこれらのオフガス処理と汚染した凝縮物を再処理プラントへリサイクルする機構が備わっている。粉塵はスラリーとして，仮焼原料に戻される。

仮焼炉は回転しているので，設備の固定部との接合部分では完全なシールはできない。この部分からガスやダストがもれないように，仮焼炉とメルターは負圧が保たれねばならない。

システム内の不必要な空気の流れは，注意深くフィットさせたグラファイト製の回転シールによって最小限度に抑えられている。

これらの特別に設計された設備は適切なものであるように思われる。しかし，最も苛酷な試験は長時間の操業に耐えうるかどうかであり，このプラントの成否はこの複雑な設備がどの位長く稼働できるか，そしてシステムが操業不可能な状態になるまでに，どの位の量の廃棄物を処理できるかにかかっている。

フリットの組成も極めて重要な問題である。いくつもの相矛盾する要求を同時に満足させるためには，その組成範囲は極めて狭いものに限られる。；即ち，

1. フリットは 1050 °C で溶け，流動し，仮焼体を溶解させ，そして均質化させなければならない。
2. F.P. 酸化物の含有量はある程度まで高くなくてはならない。
3. 化学的耐久性に勝れていること。
4. アルカリ・モリブデン酸の相分離が生じないこと。

フリット組成は極めて重要な微妙な問題であるので，Marcoule で処理される 3 種の廃棄物の夫々について特別のタイプのものが用意されている。Sicral G 廃棄物用に使われるフリット組成と，それから作られるガラス組成を Table 8.1 に示す。この特別のタイプの HLLW では F. P. に付随して多量の非活性な Al₂O₃，MgO が混入しているので，F. P. 酸化物の濃度が全く低くなる点に注意を要する。減容率（HLLW 容積 / ガラス容積）もまた低く，わずかに 5.4 にすぎない。

すべてのガラス化計画にとって，モリブデン酸塩が析出するというやっかいな問題が生ずる。F. P. 元素中に最も多量に存在するモリブデンは，ガラス中でモリブデン酸の陰イオンを形成する。これはガラスの網目構造形成には極めてなじみ難いものである。したがって，低粘性の溶融したアルカリ・モリブデン酸塩相が，たとえ溶融温度域であっても，しばしばガラスから分離してくる。B₂O₃ の含有量が高いと（24 %），融液中にモリブデン酸塩を溶かし込み易い。だが，このように B₂O₃ を多量に入れると，他の点で問題が起こる。中程度の B₂O₃ の含有量（14 %）は，製品ガラス中に球状の結晶性のアルカリ・モリブデン酸塩の節を生ずることがある。これらの節は水に溶けるので，基本的な問題を生ず

TABLE 8.1

Frit and Solid Waste Compositions

Chemical Component	Frit (wt%)	Solid Waste (wt%)
SiO ₂	57.5	48.8
B ₂ O ₃	25	14.2
Na ₂ O	17.5	15.0
Al ₂ O ₃		8.4
Fe ₂ O ₃		2.6
MgO		6.3
Ni/Cr		0.2
Fission products		4.5

Source: Bonniaud et al. (1976).

るが、これらの大部分はガラスマトリックスによって完全に取り囲まれるので、実際上はほとんど問題にならないことが証明できる。

Marcoule のガラス固化プラントの能力は、そこで処理される軍事用廃棄物には十分な能力をもっているが、La Hague の再処理プラントから発生する多量の商用軽水炉の廃棄物を処理するにはあまり小さすぎる。

AVM プラントの限界を作っている要素は、壁加熱メルター特有の低熱伝導性にある。これは高粘性のメルター内容物によって更に悪化される。また、装置のスケールアップを計ると、メルター（表面／容積）の比が更に小さくなるので、熱伝導はよけいに悪くなる。

この問題を解決する有効な方法は、ガラス内部に直接熱を発生させることである。この方法は融液中に電極を挿入することにより商用ガラスプラントでは既に実施されている。しかし、フランスは高周波溶融法を捨て切れず、高周波によるプロトタイプメルターを研究する道を選んだ。このメルターは非電導性のセラミック容器を 100 ~ 200KHz の高周波で作動する誘導コイルが取り囲んだものである。；これらのコイルにより、溶融ガラス

中に渦電流を誘導させるように設計されている。

(2) イギリスの計画

イギリスのガラス固化計画は約20年前のHarwellにおけるFINGALパイロットプラントからスタートした。単純化の究極を目指して、設計者達は多くのプロセス容器をたった1つに集中することにした。このシリンダーは脱硝・濃縮、ガラス化及び貯蔵の各機能を備えたものである。液体廃棄物とシリカを懸濁させた硼砂溶液が同時にシリンダー中へ投入される。溶融ガラスが蓄積されてレベルが上昇するにつれ、シリンダー外部に設けられた加熱ゾーンもそれにつれて上昇する。FINGALプラントは72 Runの操業の後、1966年閉鎖された。この中には、8回の実廃液の処理試験が含まれる。シリンダー材料としてはステンレススチールが使われ、操業温度は約1050℃であった。

1972年に、ルーチンの稼動を目的としたガラス化プロセスを設置することが決定された。このプラントにはHARVESTプロセスが採用されるだろう。これはFINGALの概念を改良し、1歩押し進めたもので、このパイロットプラントがHarwellで試験されている。

HARVESTの単純性は魅力的なものであるが、反面溶融が始まるまでに水の蒸発によって多量の熱を消費してしまうので、恐らく処理能力が低くなるだろうことが懸念される。外部ヒータを使用するので、フランスのAVMプロセスで採用されているメルター周囲に冷却したシュラウドを設けるといったような安全対策はもっていない。

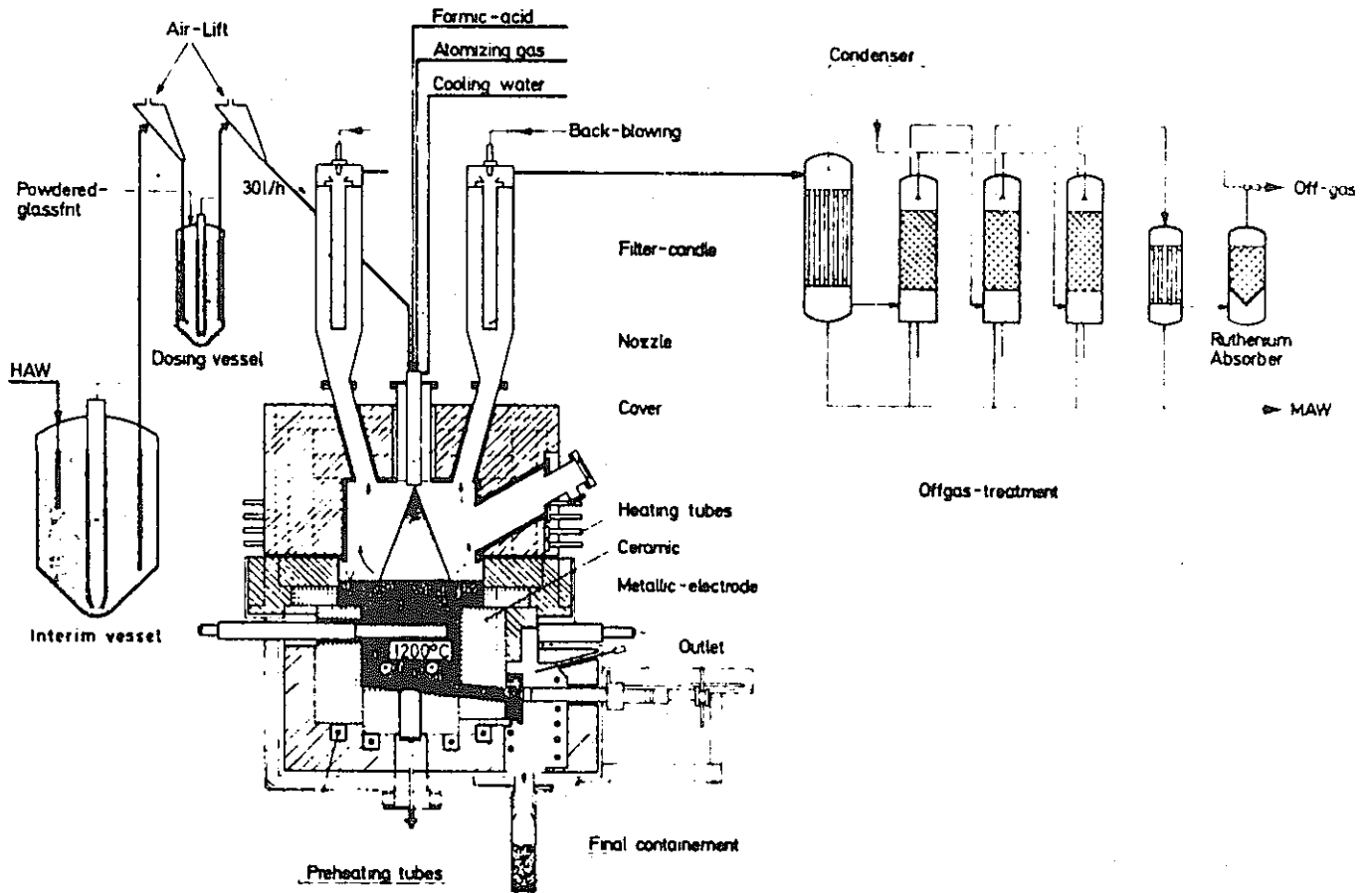
(3) ドイツの計画

ドイツのガラス固化に関するR&Dはここ約10年程の間に進められてきた。研究は3ヶ所で進められ、いくつかの概念が競合して研究されている。その中でも、Karlsruhe Nuclear Research CenterでのVERAの開発程度が高い。

VARAプロセスはスプレー仮焼を使用する。これは600℃の過熱スチームを注入することによって加熱される。フランスのプロセスとほとんど同じく、仮焼体は1150℃の金属メルター中でガラスフリットと結合する。そして、メルターの内容物は周期的に金属製の貯蔵容器中へ流下される。

VERAプロセスの重要な特徴は、仮焼炉に入る前に液体廃棄物を脱硝・脱酸するために、ギ酸を使用しているところにある。これにより、酸化物としてRuが揮発することを大巾に引き下げている。このRuの揮発は酸化雰囲気中で仮焼を行うプロセスにとってやっかいな問題となっている。この前段階脱硝の更に大きい利点は、仮焼中の非凝縮性のオフガスを事実上取り除けるところにある。

最近の情報(IAEA 1977)によると、VERAは耐火物内張りメルターの利点を生かすべく変更されている。(Fig 8.2)。熱は溶融ガラス中へモリブデン電極を直接挿入する



Source: IAEA (1977).

FIGURE 8.2 Simplified flowsheet and illustration of refractory-lined melter (VERA).

ことよって供給される。脱硝・濃縮は溶融ガラス表面にHLLWとフリットパウダーのスラリーを直接スプレーすることによってメルター内で行われる。良好と考えられるフリット組成を Table 8.2 に示す。

TABLE 8.2
Frit Composition

Chemical Component	Frit (wt%)
SiO ₂	51.87
TiO ₂	8.82
Al ₂ O ₃	1.31
B ₂ O ₃	14.02
CaO	2.62
Na ₂ O	21.36

Source: Personal communication from R.E. Blanco, Oak Ridge National Laboratory, to D.E. Ferguson, 1977.

この特異な組成を選んだ根拠は、ガラス固化体に対して有効であるからではなくて、適量の TiO_2 を加えると化学的耐久性をそれほど悪化させることなしにガラスの高温粘性を低下できるという点にある。

ドイツにおける他のガラス固化法としては、次のようなものがある。(1) テルミット反応、酸化剤として MnO_2 、燃料としてアルミニウム、ガラス形成剤としてシリカと石灰を加える。(Karlsruhe) (2) ガラスセラミック (Hahn-Meitner Institute) (3) 脱硝された F.P. とシリカ、石灰のスラリーをドラム乾燥機で乾燥し、貯蔵用キャニスタ中で直接溶融する方法 (Julich) (4) PAMELA プロセス。脱硝された廃棄物をリン酸と混合し、白金ルツボを使用して約 1000°C で低粘性ガラスに溶融してガラスビーズを作る (Gelsenberg and Eurochemic)。これらのビーズはその後、化学的耐久性と熱伝導率向上のため、メタルマトリックス中に分散される。

(4) アメリカの計画

アメリカにおける廃棄物固化の問題は、欧州のものとはいくつかの点で異なっている。欧州の廃棄物の大部分は原発プラントの燃料要素を再処理することによって発生する比較的フレッシュな単一相の酸溶液である。アメリカにおいても、商用燃料を再処理すれば同様の組成を含むであろうし、研究の大半もこのような廃棄物を目標としている。しかし、商用の再処理は一般的に延期されがちであるし、New York の West Valley で短期間操業された例を除いて、現存する液体廃棄物の大部分は米国核兵器プログラムの副産物である。この廃棄物の大半は相当古いもので、それに応じて発熱率も低い。使用された再処理技術が次々と変化するのを反映して、廃液の化学組成も種々雑多である。更に Idaho の再処理プラントを除いて、軍の廃棄物は水酸化ナトリウムによって中和されてきたし、現在もこの方法が続けられている。中和は本質的に Cs 以外のすべての F.P. 元素を沈殿させる原因となる。このようにして、アメリカの大部分の廃棄物はスラッジと上澄みから構成される 2 相の混合物となっている。

すべての軍用再処理センターには、いろいろの代替固化法とともに、ガラス固化が含まれている。商用廃棄物ガラス固化に関する開発の大部分は Battelle Pacific Northwest Laboratories で行われてきたし現在もそうである。一方、ERDA 主導の廃棄物ガラス固化開発研究が現在も Savannah River Plant で続けられている。PNL の研究はほとんど酸性廃液に関するものであるが、プロセスをモデファイして、他の種々様々な液体廃棄物に適用する研究も行われている。

PNL のプログラムは 2 つの概念を並行して開発してゆこうというものである。即ち、“インキャンメルター”と“連続溶融セラミックメルター”の 2 つである。インキャンメルターはイギリスのプロセスと同様に、長期貯蔵用の容器を兼用して溶融も行おうという

ものである。連続溶融セラミックメルターは貯蔵容器とは別の耐火物製電気加熱のメルターから、溶融ガラスを貯蔵用キャニスター中へ流下させるものである。

これらメルターへの種々の原料供給法が考案されているが、酸廃液のスプレー仮焼が勝れた方法であるように考えられる。ガラス形成剤は仮焼炉の出口で、別途に計量されたフリット流れとして添加される。比較的低い処理温度（1050℃）の必要性からフリット組成は厳密に規制される。；かつては亜鉛ホウケイ酸ガラスが選ばれたが、最近ではZnO含有量は低くなっている。

3. R & Dの評価

前節で主要な国々のプログラムの特徴について論評を加えてきた。本節では、すべてのガラス固化計画にほとんど共通する問題について論ずることにする。

(1) 処理技術

完全な密閉構造で、遠隔操作、遠隔保守のシステムにより、HLLWをガラス固化するプロセスを設計するのは容易なことではない。最もやっかいな点は高温を取扱う点にある。どのような材料を選ぶかという問題は、ガラスが侵食性であり、且つ液体であるという点にからんでくる。；ガラスの素地漏れの可能性はこれからも絶えず考慮に入れておく必要がある。高温は又、幾種かの放射性核種、特にRuとCsの揮発を助長する。ガラス化工程に先行する乾燥・脱硝は多量のガスと蒸気を発生させる。これらは多少とも放射性的の粉塵と蒸気によって汚染されている。

既に指摘してきた問題点とは異なって、はっきりと認識されていないように思われるが、小規模のガラス溶融の場合には、もう1つの固有の問題が付随している。それは必要とする適切な熱伝達の問題である。ガラスは小さな容器中で、約100ポイズの粘性で溶融せねばならないので、対流による伝熱はほとんど期待できない。その上、これらのガラスは近赤外線をほとんど透過させないので輻射伝熱は無視される。このように、商用のガラス製造で利用されている主要な伝熱メカニズムのいずれもが役に立たないという結果になり、わずかに伝導伝熱が残っているだけである。

熱伝達がうまくゆかない結果として、壁加熱メルターの溶融速度は絶望的なほど小さい。単位量の物質を処理するに余計な時間を食うことになり、これはプラントの真の利点係数値(Merit Index)即ち、設備の大修理と大修理の間に製造できたガラスのトン数が小さいことを意味している。

ドイツとアメリカの両者のプログラムは、明らかに電極挿入型メルターへ移行する傾向を示している。この傾向は称賛してよい。溶融ガラス自身が熱を発生する抵抗素子になるので、印加した電氣的エネルギーの大部分が、それを必要とする場所で解放される。耐火

物内張りメルターと挿入電極を組合せて、電極にモリブデンを使用するとガラス化温度という高温の制約は実質上取り除くことができる。

このタイプのメルターのもう1つの重要な利点は“コールドトップ”の状態で作業できるところにある。；コールドトップというのは溶融ガラス表面に冷い未溶融のバッチ原料が浮遊している状態をいう。商用のガラス炉においても、この状態はガラス中の揮発し易い成分の蒸発を効果的に抑制することがよく知られている。溶融ガラス上の冷い物質はコンデンサとフィルタとしての働きを同時に行い、揮発成分を融液中へ連続的にリターンさせる。

しかし、アメリカ、ドイツの両国とも耐火物内張り電気炉の設計に当って、HLLWのガラス化技術に極めて密接な関係にある開発程度の高い商用ガラス炉技術があるにもかかわらず、明らかに別の考え方で進められているのは理解に苦しむ。利用できそうな商用技術の一例として、Ferro Corporation と Babcock & Wilcox Company の耐火物部門で採用されている Pochetメルター（米国特許番号；3,143,328；3,429,972；3,580,976）がある。後者は純粹のカオリン粘土の溶融にこの Pochet 炉を使用しており、このことはこの技術が並はずれの高温能力を有していることを示している。このように、商用技術を完全に引き出して利用することに失敗したので、放射性廃棄物固化用の耐火物内張りメルターの開発をある程度遅らせることになってしまった。

意外な見落としであるが、ガラスと接触する材料にグラファイトを使用した例が見当たらない。グラファイトは従来のガラス接触材料とは化学的にかなり異なっているので、それを使用することは想像だにされなかったようである。しかし、グラファイトは推奨されるべきものである。というのは、温度的な制約は極めて少ないし、製造は容易で、電気の良導体で、安価でその上非戦略的な物質でもある。また、グラファイトは燃焼による廃棄が可能である。もう1つの有用な特性として、ガラスはグラファイトを濡らさないということがある（Swartz 1965）。グラファイトの遷移金属イオンに対する還元効果は試験する必要がある。モリブデンとルテニウムの場合は、この還元作用は夫々が有している非混和と揮発という問題を解決する方向に作用する。

メルター内部のガラス接触材料としての鉄系超合金はいくらよく見ても限界であり、あまり推められるものではない。これら材料の上限使用温度は約 1100 °C であり、一方、この温度はフリットを溶融し F.P. 酸化物を溶解するのに必要なほぼ下限の温度に当る。このような自由度に欠けるプロセスは望ましいものではない。

処理技術に関して一般的に言えることは、残念なことにもガラス工業界で既に確立している技術や情報をほとんど有効に活用していないことである。政府機関も委託側も、ガラスの科学、技術に関する専門家を雇い入れなかったし、この分野の助言を有効に活用もし

なかった。専門学会ですら、最近になるまでこれらの活力に気がつかなかった始末である。廃棄物ガラス固化の活動は米国では1950年代の後半にスタートした；一方, Waste Solidification Engineering Prototypeの工学規模, インキャンメルターのプログラムは1966から1970年にかけてPNLで完了した。にもかかわらず, American Ceramic Societyの核部門は1974年になるまで, 核廃棄物マネージメントに関して, わずか半日のセッションすら開催しなかったのである。

(2) 品質管理

通常の製造工程では, 品質は製品を検査することによって維持される。もしも製品の品質が極めて重要な場合は製品の100%が検査される。しかしケイ酸ガラスの場合は, 最終の梱包作業を含めてすべてのプロセスが密閉した状態でオペレートされるように設計されている。したがって, その品質がクリティカルであると考えられる製品を検査するようなシステムは通常のガラス製造工程には考慮されていない。

検査を省略すると, インキャン型メルターで特に問題が大きい。この場合には, 実質上の未溶融層が知らない間に混ってしまう可能性がある。事実, 検査をしないと, オペレーターは操業温度をできるだけ下げ, 製造量を増加したいと望んでいるので, しばしば品質の悪いガラスを作る遠因になることがある。

他方, 別個に溶融槽を設けたプロセスでは, その本来の性質上溶融状態にまで達したガラス化反応が得られる；メルターの内容物を抜き出して検査することはできないが, ある量のガラスを流下させるに要した時間から粘性を大まかに算定できる。もし, 覗き穴が設けられていると未溶融解物や, 不均質な塊の存在を観察によって検出することができ, またガラスの流れを解析することができる。これらの検査は不十分なものではあるが, 恐らくある程度はその目的には役に立つであろう。

現存のガラス化プロセスの中で完全に検査が可能である唯一のものはガラスビーズ製造法である。このプロセスはPAMELAリン酸ガラスプロセスの一部を構成する。もし, ビーズ化に必要とする低粘性(約10ポイズ)でガラスを流出できるメルターができるなら, ケイ酸塩ガラスのビーズ化も行われるだろう。

高粘性のガラス流下体(1,000~10,000ポイズ)は機械的に“ゴブ”としてカットされ, 通常の機械類を用いて球形のマーブルに成形できる。しかし, このような作業を経験した人達は, 遠隔操作で同様の作業をすることには反対の意見をもっている。シェアーに絶えずきわどい方法で注油する必要があるし, また度々それを取りはずして鋭利に研ぎ直す必要があるからである。(Richard Hunter, Johns Manville Corporation, personal communication, 1977; William Shuler, PPG Industries, personal communication, 1977)

(3) 浸出性

核廃棄物を封じ込める固化体として、世界中がガラスに熱中しているのはいささか当惑気味である。というのは、固化体を選択するに当ってその理論的な基礎研究はどこも明確にはスタートしていないからである。にもかかわらず、組成研究に関連して報告されたデータから判断すると、浸出性が固化体の性質の中で最も重要であると認識されているのは明白な事実である。このことは恐らく、裸の固化体を取り返しのつかない状態で流水中に暴露されるという「最悪ケース」の筋書からきている。この条件下では確かに放射性核種の水中への消散速度ができるだけ低い方が望ましいのは言うまでもない。 $10^{-7} \text{ g/cm}^2/\text{day}$ という値が受容されうる値となっている。これは同一条件のもとでの理化学用パイレックスガラス（コーニングガラス，Code 7740）の溶解速度と比較して得られたものである。

浸出性に関して、更に突っ込んだコメントを出す前に水溶液とガラスの相互作用の本性について、その基礎的な情報を得ることが必要である。問題はその反応が単純な溶解でないところにある。このテーマに関して公表された情報の大部分が有効なものである。というのは、あらゆる種類のガラスと水溶液との反応は実用上多年にわたって熱心に論議されてきたからである。

ケイ酸塩ガラスと水との相互作用は加水分解反応である。；即ち、その本質的な反応は水分子による Si-O-Si 結合の分断であって、結果として1対の SiOH基が生成する。組成はこの加水分解の速度と程度に影響を与える最も基本的な変数である。純粋な熔融石英は、その完全なクロスリンクの構造ゆえに加水分解に対してはかなりの抵抗性を有している。温度と水蒸気圧の条件が極端に過激なものでなければ、純粋の石英ガラスに関する加水分解反応は極めて表面に、恐らくは単分子層に限られるであろう。

ガラスが形成される過程で、低原子価の陽イオンがシリカ中に溶解するとクロスリンク構造が徐々に破壊され、加水分解がより起こり易くなる。事実、ソーダケイ酸ガラスは、シリカの含有量が約 70 wt% まで下ると、水に対してかなり溶解性を示すようになる。

2価イオン（Ca, Mg, Sr）の酸化物は加水分解性質にこのような大きな効果はもっていない。1価の陽イオン酸化物に加えて、これらの酸化物を同時に適当量添加すると、化学的耐久性に勝れ、且比較的低温で溶融が可能なガラス組成を得ることができる。市販のガラスはおおむねこの方法で設計されている。ソーダ石灰シリカ系での有用な組成は、ほぼ $\text{Na}_2\text{O} \cdot \text{CaO} \cdot 6\text{SiO}_2$ である。市販ガラスは通常約 70 wt% のシリカを含有する。

ガラス中に、これらの低原子価の陽イオンが存在すると、水-ガラス反応の化学を複雑にする。陽イオンが加水分解されるに従って、これらは水に可溶性水酸化物となって、周囲の流動的な水溶液中へ溶出され、持ち運びさらわれてしまう。しかし、市販ガラスの規準でいう“耐久性のある”ガラスを形成するまで、シリカ含有量を増加してゆくと、シリカ

の3次元的な網目構造は確保される。水に暴露された表面は水和したシリカの薄層で覆われ、この層は極めて不浸透性であるので加水分解速度はだんだん低下してゆき、終には実質的に0になる。

ガラス中のシリカ含有量が70%を割ると、ガラスの挙動はますます複雑になる。表面に残ったシリカフィルムの重合度が低下するにつれて、水に溶け易くなり特に酸に対して溶け易くなる。このように純粋な化合物の溶解性に関する比較的単純なプロセスを参考にして、ガラス中のすべての成分の溶出速度がほぼ等しくなるような条件を確立することができるかもしれない。何種類かのF.P.含有ガラスは見掛上、このような挙動をする。シリカが50%以下のガラスは通常、pHが4及びそれ以下の希酸に可溶であることが知られている。

もし、貯蔵環境中に水溶液が存在すると、アルカリの加水分解生成物が蓄積することになり、ガラスに対する化学的侵食作用は自触作用の傾向をもつことになる。このような条件下では、シリカの水和層は強アルカリの侵食作用に耐えられなくなって、浸出率が時間とともに増加するようなことが起こるかもしれない。

ケイ酸ガラスに B_2O_3 を加えると、もう1つ重要な問題が発生する。それは分相の生成である。ホウケイ酸ガラスは不安定なものである。ホウケイ酸ガラスはシリカリッチなガラス相とホウ酸リッチなガラス相に相分離することがよく知られている。実験室用の高ケイ酸ガラスの製造において、このプロセスが応用されている。ガラスとしてのホウケイ酸が相分離の研究課題となっていることはあまりよく知られていない。有名なパイレックスガラスでさえ、その市販製品中に相分離があると信じられている。(Charles 1964)。パイレックスを長時間、高温で徐冷すると分相組織が粗大化して化学的耐久性は「優秀」から「使用不可」へ極端に悪化する。(Volf 1961)

もし、多くのパラメーターを任意に単純化しなければ、水又は水溶液とガラスの相互作用は複雑すぎて簡単な図式では記述できないということは今までに充分すぎるほど書かれてきた。この単純化は固体廃棄物を評価する上でよく使われる手段である。；即ち、蒸留水のみを使用した試験、時には蒸留水に再生して行う試験が習慣的によく使われる。ある特殊な組成を選んで、より手の込んだ試験も行われている。(Mendel et al. 1977)

現在の放射性廃棄物マネージメントのプログラム下では、高温高圧の水蒸気の存在下で(即ち、熱水条件下)、ガラスの安定性を評価しようとする努力はほとんどなされていない。反面、より安定と考えられる“玄武岩的”組成のガラスですら、約300°C、1 Kbarの状態におくと、数日で完全に劣化するという豊富な証拠を示す文献がある。同じ条件下でも、結晶化したガラスは何の変化も示さない。(Hawkins and Roy 1963)

実際の貯蔵条件を考えると、冷い流水に出くわすよりも、高温である圧力をもった状態

がより起こりそうである。ガラス化された廃棄物が、地層処分後に、熱水状態に暴露されるということは十分に起こりうることである。地下数 100メートルの処分は、高圧を生じうる(1 フィート当り 1 psi)。そして、周囲の岩石の熱伝導率等に影響を受けるが、核の自己発熱は高温状態を発生させるであろう。水は頁岩や塩の環境中に存在することが考えられるし、火成岩中すら、地下水の浸透によって生じた亀裂にそって侵入するかもしれない。熱水状態のもとでは、市販のガラスですら砕け易い結晶質や無定形の水和物の集合体へと急速に変化する。Charles (1958)は直径 0.1 インチのソーダ石灰ガラス棒を 250 °Cの飽和水蒸気で数時間暴露すると完全に劣化することを見つけた。この分解の間に、ナトリウムの大部分とカルシウムの一部は恐らく水に可溶性形態をとってガラスから解放されたものと考えられる。

現在提案されている放射性廃棄物固化ガラスの代表的なものは、市販のソーダ石灰ガラスに比してかなり不安定であるので、もし熱水状態下に置かれるとこれらのガラスは疑いもなく急激な変性作用を受ける。その結果生じた物質の浸出率は実験室で 25 °C又は 100 °Cの温度でガラスに対してテストした浸出率とは異なったものになるであろう。変質したガラスは、もとのガラスとは全く異なった浸出率をもつ水化した(非水和物も可)結晶相の集合体になるものと考えられる。ということは、もし熱水作用を受けると仮定すると、廃棄物をガラス固化しても、廃棄物をセメント中に封じ込めた場合に比して得るものはほとんどないということになる。

廃棄物を固定するガラス組成は、将来受けるであろう熱水反応を考慮に入れて設計することも可能である。適当な組成を選ぶと、熱水の変性作用を受けて粘土やゼオライトの様な相を生じ、この相がFPイオンを固定する役割を果たすようにすることも可能かもしれない。ガラス固化に関するこのような意見は注目に値する。

固化体から溶液中へのイオンの移動速度は、温度、E、pH及び系がオープンかクローズかによって大きく左右される。もし、これらのパラメーターを明確にしない限り、どのような浸出率測定を行ってもその意味を失ってしまう。それ故に「浸出率」という術語に関する我々の結論は以下のようなものである。即ち「浸出率とは、貯蔵中に遭遇するであろう条件にはしばしば適合しない漠然とした量」。というのは、試験に使用される代表的な温度が非現実的なほど低だけでなく、試験内容そのものに熱水作用、失透、周囲の母岩石と固化体との相互作用といった要素が考慮されていないからである。

この母岩石との反応はシステムにとっては重要なファクターである。水及び岩石と廃棄物固化体の反応によって生成した結晶相からのイオンの溶出が、固化体単体の浸出率よりはるかに意義のあるパラメーターとなる。

従来の限定された浸出率は廃棄物マネジメントにおける輸送及び一時貯蔵に対して特

に有用であると考えられる。例えば、固化体が不注意にも輸送途中の事故によって、川の中へ落下してしまった場面を想定すると、いままでの代表的な浸出率測定は廃棄物の分解速度に関してよい指標となるだろう。廃棄物固化体が適切な地層処分サイトに据付けられた後では、現在行われている浸出率測定はほとんど意味のないものになる。システムのこの段階に適した評価法にするためには、浸出率は廃棄物／岩石の相互作用によって生成した集合体相（溶液相を含めて）へ変化した後に、残っている物質を特徴づけるものでなくてはならない。

注 冷い流水中でのカナダのフィールドテストは 1958 年にスタートした。ガラスは 85% のネフェリンサイアナイトとトレーサー量の F.P. を含む 15% の石灰からできている。これらのガラスのブロックが、ウォーターテーブルより下位の沖積土中に埋められた。溶出した ^{90}Sr が定期的にモニターされ、その結果、溶出速度は最初の数年で急激に低下し、10 年以内に無視できるレベルに達することが判った。

9 章 セメントおよびコンクリート混合物

1. 序

最も広く建築物に使用されているコンクリートは、砂、砂利、粉碎岩石、あるいは、他の集合物から成っており、水成セメントと水で強固に保たれている。これらを混合し、適当に調合すると、あらかじめ決められた大きさや、形状に鑄込む事の出来る流動体が造られる。

一旦、セメントが水和されると、コンクリートとなり、種々の自然岩と同等の強度になる。セメントペーストとコンクリートの最も有益な工学的特性は、その作業能率性、耐久性（天候、化学的損傷に対し）、耐水性、そして、容積的に安定（施工後の増減）であると言える。

放射性廃棄物と結合させる物質として、有用であるコンクリートの重要な特性は、比重又は、密度であり、浸出率、熱的安定性及び熱伝導度、放射線安定性である。強度開発は、充分であり、その重要性は、主に移送中のものに対してである。容積の安定性については、多分クリティカルなものではないが、（容積的に安全でなければ）小さなクラックが生じ、よって、強度の減少、浸出率の増加が起こる可能性があるため、（容積の安定性は）必要なものである。セメントペースト、コンクリートの数多い特性、例えば、密度、耐久性、強度、収縮度等は、セメントペーストのマトリックスにおける多孔性に強く依存しており、それは、そのプロセスについて使用される水の量に依存しているとも言える。この水の量は、通常 water - to - cement 比 (w/c) と表現されている。一般的に、低 w/c は、高品質が得られる。

2. 定義と背景

水成セメント内の異なった2種類の存在は、そのいずれもが、一次包蔵性に対するマトリックスとして用いる事が出来、これらは、「ポルトランドセメント」、「ハイアルミナ」セメントである。

ポルトランドセメント

ポルトランドセメントは、 Ca_3SiO_5 、 βCa_2SiO_4 、 $Ca_3Al_2O_6$ 、 $CaAl_2O_4$ 、 $CaFe_2O_4$ の固容体等の無機物質を含有している。これら組成の比は、定義によりある範囲内になければならない。上記各組成を含有しているセメントクリンカーは、定められた石膏 ($CaSO_4 \cdot 2H_2O$) の量とともに微粉化され、大きい表面積（例えば $3500 \text{ cm}^2/g$ ）とをもってセメントを形成する。

アメリカ材料試験協会 (ASTM) は、鉱物組成と、その性能特性とから5つの型に、ポルトランドセメントを分類している。種々の添加物（例えば、fly-ash、送風炉スラッジ）

と混合物（例えば、水砕、空気移送時の化合物）が、製品の決められた工学的性質に影響を与えるため添加される。Table 9.1は、ポルトランドセメントを基本とする基礎的性質を持つコンクリートに関する代表的な値である。

TABLE 9.1

Typical Concrete Properties^a

Density	2,200 - 2,300	kg/m ³
Compressive Strength	150 - 1,000	kg/cm ²
Tensile Strength	15 - 100	kg/cm ²
Modulus of Elasticity	250,000 - 400,000	kg/cm ²
Average Thermal Coefficient of Expansion		
Cement paste	0.000013	(°C) ⁻¹
Limestone aggregate	0.000006	(°C) ⁻¹
Quartz aggregate	0.000097	(°C) ⁻¹
Concrete	0.0000056-0.0000104	(°C) ⁻¹
Thermal Conductivity	1.2 - 1.6	kcal/m hr°C
Drying Shrinkage	0.06 - 0.08% over 1-year period for w/c = 0.45	

^a All values are dependent on the materials and proportions used, and upon the conditions under which concrete was made and has hardened.

ハイアルミナセメント

ハイアルミナセメントは、主にCaAl₂O₄を包含している。水反応における初期の段階での強度開発について、ポルトランドセメントの強度開発よりも、より高いものである。海水、溶融硫酸塩、高アルカリ土壌によるケミカルアタックに対し、セメントが高い耐食性を持つ様に、主として開発されているものである。

通常の固化温度では、主たる水和物（products of hydration）は、準安定なカルシウム、アルミニウム水和物である。25°C以上及び、高湿度で、その密度が2.1 g/cm³以下から、2.5 g/cm³に増加するので、その結果として、安全な水和物に転換される。この変化は、マトリックスの内部多孔性の増加を導き、通常、透過率の増加を伴って起こる。圧縮強度の減少と、硫酸塩水に対する耐食性の減少、そして、他の場合については、以下に述べる。低w/cは、化学的耐食に関して設計された他の混合物同様、ポルトランドセメントにおいて、望ましいものである。

コンクリート混合材 (Aggregates)

構造、環境、経済的要求により、自然石、人造石の多くのタイプがセメントに添加され、コンクリートを形成している。密度の高いコンパクトなコンクリート混合材は、低透過率、高耐久性が要求される構造物に対し、望ましいものと信じられている。全てのHLSW利用に於いて、グラウト (grout) を含む固化廃棄物は、混合材として挙動するであろう。他の廃棄物処分利用において、混合材は、コンクリート容器又は、サイロとして形成する様に使用されるかも知れない。

3. 技術開発状況の調査

低温度セメントプロセスの勝れている点を考えるに、この廃棄物形状における実験が、きわめて不足している。審議会の見解では、セメントが高い浸出性があると言われている事 (メタルマトリックスや、ガラスと比較して) のみを基にして、中レベル用のものとして考えられている事は、時に、正当性を欠くものである。

(1) アメリカ合衆国の状況

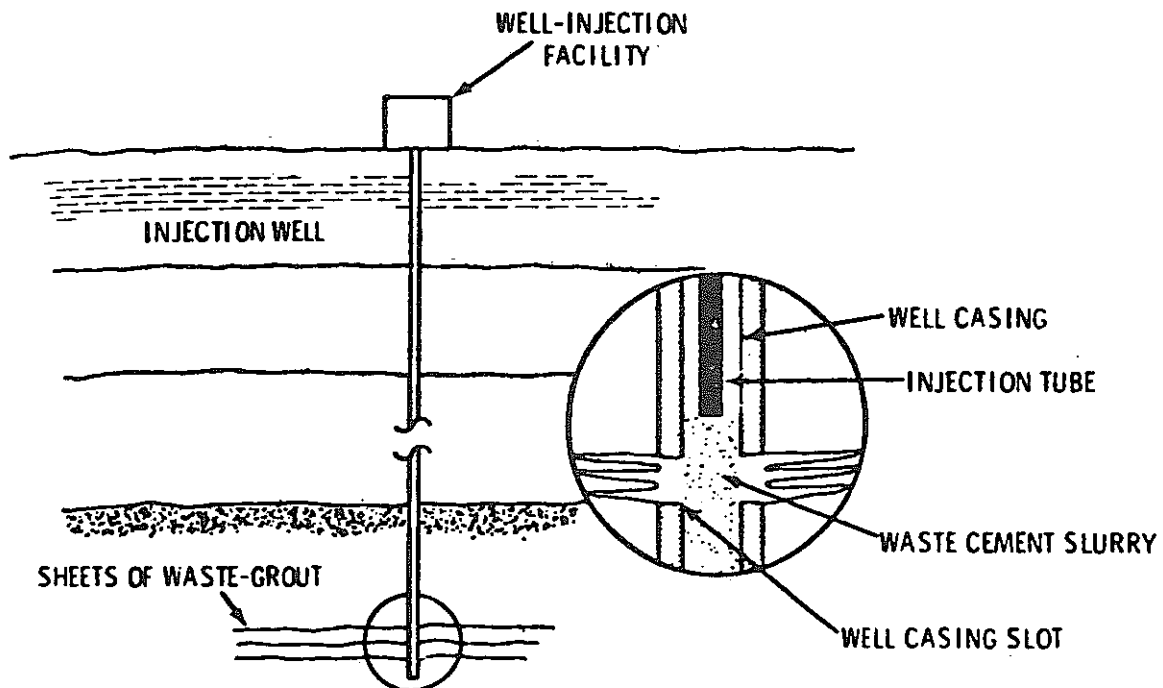
① 現存する商業用高レベル廃棄物

現在、合衆国で存在する唯一の商業放射性廃棄物が、Nuclear Fuel Service のニューヨーク州 West Valley のプラントで保管されており、この廃棄物を固化するための代案が考慮されている (U. S. ERDA 1976 b, U. S. NRC 1976) 中で、セメントとコンクリートを用いるものが三種類あり、(1)セメントと残渣の塩類への変換、(2)頁岩への破碎注入、(3)シェールセメントである。これら三種類の全て、廃棄物は、NFS サイト、連邦政府の貯蔵所又は、その両方で貯蔵されるであろう。

コンクリートへの変換；このプロセスは、スラッジと上澄液 (supernote) はまず遠心分離される。スラッジは、セメントに混合材として最終的に混ぜられる前に、乾燥、洗浄の各工程に付され、鋼製キャニスターに入れられる。遠心分離から分離された液体は、Cs を取り去るため、イオン交換処理が行われる。Cs を吸着したイオン交換ゼオライトは、乾燥スラッジと間欠的に結合され、セメントマトリックスに入れられる。代案として、スラッジ、又はゼオライトは、ガラスに包含されるかも知れない。この方法は、DOE の中和廃棄物に対する利用法として、現在開発を鋭意進めている。

Shale fracturing；この手法は、低温セラミック廃棄物から成るグラウト (grout) が、セメントと、他の添化物の混合物で混合され、井戸にポンプで流下し、頁岩の層に放射されるものである。頁岩は、まず少量の水で圧力をかけ破碎され、そこで、最初の破碎部にグラウトを注入する。クラックは伝播するので、それに伴いグラウトがクラックを満たしていく。廃棄物を含有するグラウトは、連続的に注入され、完全に空

になるまで続けられる。注入後数時間でグラウトは固化し、頁岩内の岩のようになったコンクリートシートで、放射性廃棄物は永久に固定される。注入の結果として理想的な格好は、最初に注入した所から平行で数フィート上部にシート状に注入する事である。頁岩破碎手法は、Fig. 9.1 に示している。頁岩破碎による派生技術は、地域的発生



Source: U.S. NRC (1976).

FIGURE 9.1 Shale fracturing and grout concept.

ILW (中レベル廃棄物溶融物)の永久処分に関し、Oak Ridge National Laboratoryで使用され、廃棄物処分に成功している。

シエルセメント法；このプロセスは、頁岩破碎法の副産物である。プロセスは、自然のままの温度で行われ、Conasauga 頁岩を含む固体鉍物添加物と適量のセメントと液体廃棄物が結合されたグラウトを形成する。グラウトは、ドラム缶にポンプにより入れられそこで固化する。そのドラム缶は再取出し可能な状態で貯蔵される。現在、頁岩セメント法は、研究室試験のみで行われているプロセスである。代案の各々は、それぞれ優位性もあり、問題点もある (Table 9.2 参照)。そして、なお、開発研究を必要としている。

Savannah River Plant の軍用HLWの長期間管理についての対案に関する最近刊行された報告書で (U. S. ERAD 1977 c), 23種の代案の内、9種類のプランが、廃棄

TABLE 9.2

Advantages, Disadvantages, and Status for NFS Waste Management Alternatives Based on U.S. ERDA Processes

Alternative	Advantages	Disadvantages	Current Technological Status
Conversion to Cement	<p>Low-leaching solid product</p> <p>Good retrievability</p> <p>Easily transported</p>	<p>Difficult to change to alternative form if necessary</p> <p>Technology has not been demonstrated</p> <p>Need to store large volume of residual salt</p> <p>Potential for container to pressurize</p> <p>Salt product would contain significant quantities of water (up to 20 percent)</p>	<p>Process is under active laboratory development, and conceptual design of facilities for application to U.S. ERDA neutralized high-level radioactive wastes</p>

物マトリックスとしてコンクリートの使用を考慮して討論されている。(Savannah River PlantからのHLWの平均的化學組成をTable 9.3に示している。)9種の全てにおいて、セメント、Csゼオライト、乾燥スラッジは、水と、コンクリートミキサーで混合され、直径2フィート、高さ10フィートの炭素鋼製キャニスターに注入される。溶接、検査、除染されたキャニスターは、その地区或るいは地区外の処分地域で処分される。各キャニスターは、200ガロンのコンクリートと、209ワットの発熱を伴う36.4 KCiの ^{90}Sr - ^{137}Cs を内蔵している。この廃棄物固化プロセスの概要は、Fig 9.2に示される。

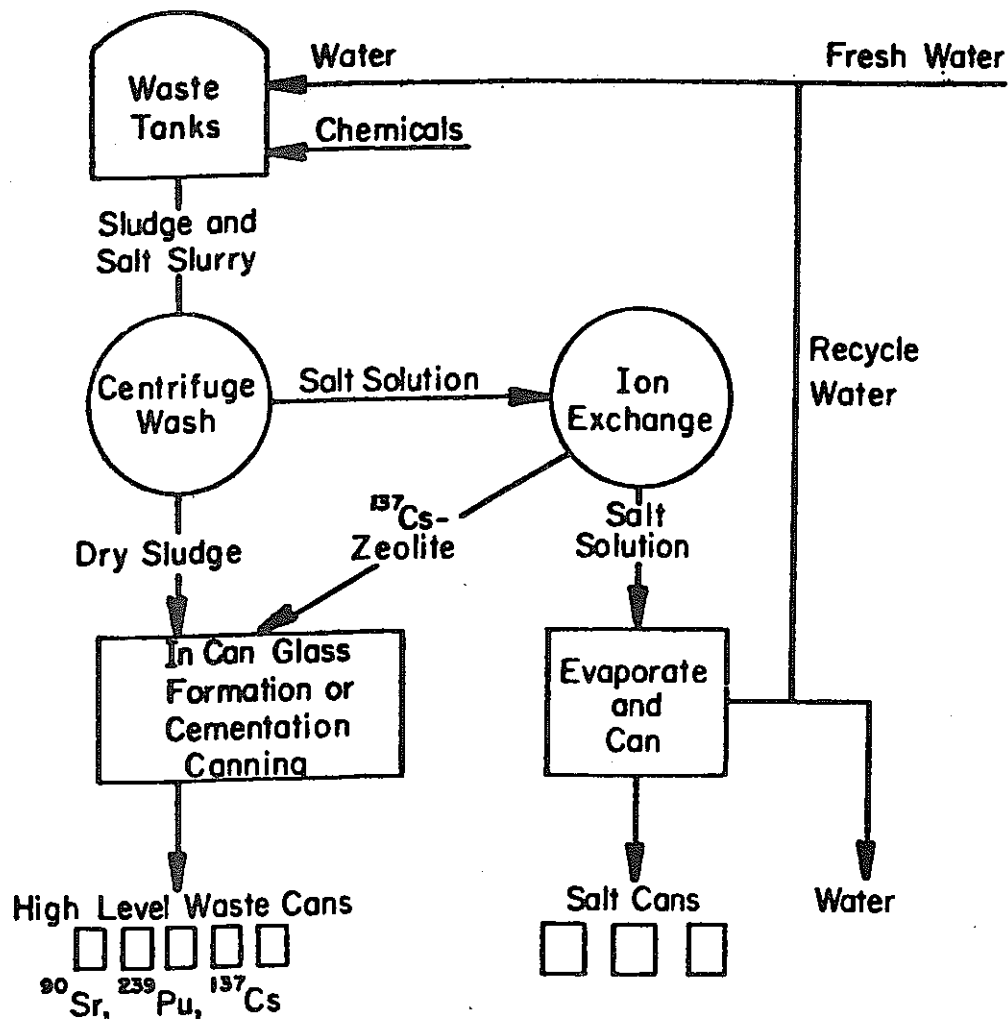
TABLE 9.3

Average Chemical Composition of Fresh SRP High-Level Waste

Constituent	Molar concentration
NaNO_3	3.3
NaNO_2	<0.2
NaAl(OH)_4	0.5
NaOH	1
Na_2CO_3	0.1
Na_2SO_4	0.3
Fe(OH)_3	0.07
MnO_2	0.02
Hg(OH)_2	0.002
Other Solids	0.13 ^a

^a Assuming an average molecular weight of 60.

Source: U.S. ERDA (1977c).



Source: U.S. ERDA (1977c).

FIGURE 9.2 Conceptual waste solidification process.

② Oak Ridge National Laboratory

2種類の放射性廃棄物固化プロセスが、ORNLで追及されている。(1)頁岩破碎プロセス、(2)ドラム貯蔵のための廃棄物セメント固定(R. A. Robinson, ORNL, 廃棄物固化のパネルペーパー, 1977, Weerenら, 1976)である。ILWのために開発されたが、更に研究してもHLWへの適用には結びつかないとは言い切れない。頁岩破碎プロセスは、水平に生成されたred shale層の水注入による破碎、廃棄物を含有するセメントグラウトの注入、そして地下でのグラウトの硬化から成っている。この珪酸塩 Waste と岩の相互作用により問題が生ずるであろうと示唆する事は、ORNLによって見出されていない。グラウトは、代表的に、ポルトランドセメント、ILW溶液、および種々の添加物から成っている。この特別な場合として、添加物は、fly-ash, Attapulgite-

150 (a palygorskite-type 粘土で鉱物質), Grundite (a illite-type 粘土で鉱物質) であり, かつ, セメントの固化を調節させるための化学的混合物であり, 他の組合せも可能である。この報告書に用いられている用語において, 放射性核種は, これらの解放構造の珪酸塩による第1の固定相に固定され, その珪酸塩自体固化マトリックスに結合されている。IAEA手法を用いると, 浸出率は, ILWグラウト (Doerr et al, 1974, Moove et al. 1975) に関して得られたホウケイ酸ガラスに組み込まれた廃棄物と同等である。Cs に関する浸出率は, Grundite, 陶土又は, グラウトに対する Corasauga Shale を添加する事により, 本質的に減少させられる。放射性の Sr についての浸出率における本質的減少は, 廃棄物に対する安定 Sr 又は Ca (例えば, 塩化物の形として) を添加する事により, 達成できる。水砕グラウトから浸出してくる Sr と Cs の量は, 硬化の“品質”に依存している (相対温度の高い場合で固化されているグラウトよりも低い) もので, それは, 逆に, 硬化時間に比例している。⁽²⁾ その浸出性は又, 浸出媒体の組成に依存しており, 蒸留水が最も高い値を与えるものである。(Moore 1976)

同様のグラウトは, ドラム缶中に放射性核種を含む廃棄物を貯蔵するために使用可能である。このプロセスは技術的に単純であるが, 主な欠点は, 放射線分解による圧力上昇の可能性がある事である。

種々のヨウ素酸塩を含み, 照射されたタイプ I のポルトランドセメント試料の浸出に関する研究は, もし, CO₂ を脱気した蒸留水により, コンクリートからヨウ素の浸出性に対する ⁶⁰Co 照射による影響があったとしても小さい事を示している。ヨウ素酸塩のヨウ化物への変換は取るに足らないものである。水の放射線分解とガス生成物は, 研究されていない。(J.G. Moore, Oak Ridge National Laboratory, Personal Communication, 1977)

③ Idaho National Engineering Laboratory

海軍の原子炉から出る Idaho Chemical Processing Plant (ICPP) の廃棄物固化に対する代替案が, INEL で研究されている。調査による可能性の一つは, ICPP 仮焼体を, カルシウム—アルミニウム—セメントをベースとしたコンクリートに結合させる事である。約 30~60 wt% の仮焼体を含むコンクリートは, 3000 psi 以上の強度を示している。Na と Cr の最も浸出しやすいイオンの浸出率を減少させるための幾種かの添加物の能力が研究されている。Na の浸出率は, CaCl₂ 又は砂を加える事により明確に減少可能である。ハイアルミナセメントを使用し, 30 W/sec/m³ の発熱源 (これは, 仮焼体 50 wt% であるが) を想定し, 0.2 J/k·m·sec の熱伝導度とすると, ハイアルミナコンクリートが熱的安定であると見なされる温度 (250 °C) よりも十分に

低い80℃に中心温度がなると計算される。最適なプロセス手法の開発は残されているが、ICPP廃棄物をコンクリート中に結合させることは、実際的と思われる。

④ Brookhaven National Laboratory

放射性廃棄物を結合させるためのコンクリート使用を含む数種の手法についての結果は、Brookhaven National Laboratory (Colombo and Neilson 1977a, 1977b) によって報告されている。

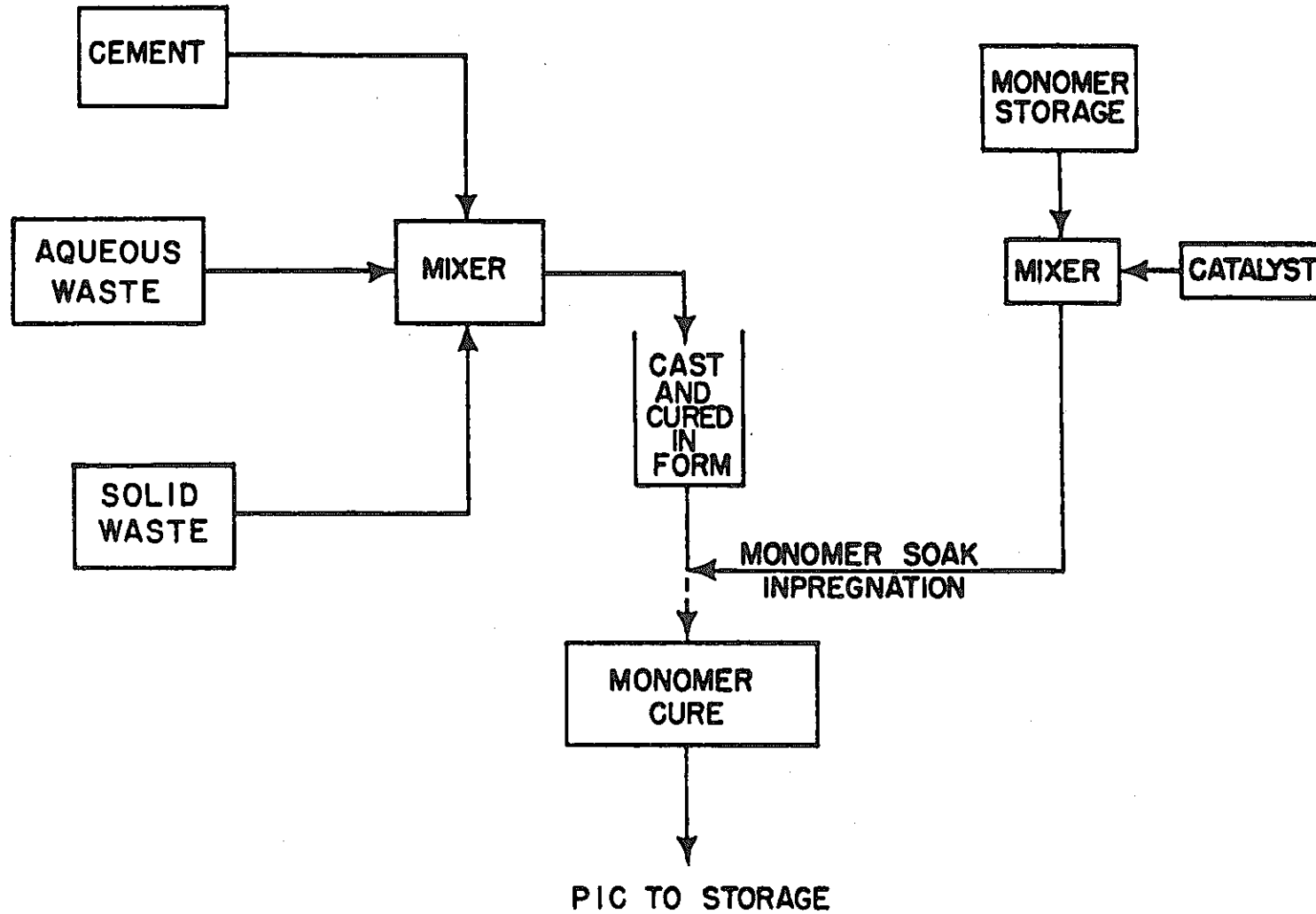
まず、強化コンクリートキャスクが低レベル廃棄物(LLW)用に造られた。これは汚染機械と可燃性固体を圧縮したものである。主に、 β と γ を含む液体放射性廃棄物は、ポルトランドセメント、バーミキュライト、廃棄物を含むスラリーの形で、強化コンクリートキャスクに貯蔵される。

次に、模擬SRP廃棄物の組成を基にしたセメントからの浸出率が研究されている。この合成物は、廃棄物のスラッジ、ポルトランドセメント、ハイアルミナセメント、ゼオライトの結合体から造られている。IAEA浸出試験方法を変更して用い、SrとCsのバルクの浸出率の範囲が $10^{-3} \sim 10^{-6} \text{ g/cm}^2/\text{day}$ である事を得た。

浸出率の改良は、しみ込み現象を利用し、有機重合体によって、セメントと廃棄物の合成による重合体とする事により得られる。ポリマー重合体のコンクリート(PIC)を主題とする豊富な検討が最近刊行されている(Clifton and Frohnsdorff 1976)。Manowitzとその協力者(1972～1975)は、重合触媒を含むスチレンモノマーによる50～70℃加熱した重合体、及び、本質的に強度、耐久性、及び化学的アタックと浸出性能が非常に改善された不浸透性の合成物である事を示している。例えば、CsとSrのバルク浸出率は、2オーダー、即ち $10^{-7} - 10^{-8} \text{ g/cm}^2/\text{day}$ 位に、その浸出率が改善されている。ポリマー重合セメント生成物に於ける放射性廃棄物の固化フローダイアグラムをFig 9.3に示している。

一般的な或いは特別なwasteに対するコンクリート生成物ポリマー重合体を造る技術は、まだ完全には開発されていない。モノマーの注入、続く重合(熱処理或いは放射線処理)の効果を最適にし、実証することを大規模コンクリート固化について行う多くの研究が望まれる。(U. S. ERDA 1976b)

Brookhavenの研究は、セメント生成物の放射安定性が卓越している事を実証している。(Manowitzら, 1972～1975)。強度低下又は、浸出性能の劣化は、セメント生成物に、 NaNO_3 を30wt%まで包含させて 10^9 rads (^{60}Co の γ 線を使用している)の照射で見出せなかった。



Source: Columbo and Neilson (1977a).

FIGURE 9.3 Process flow diagram for the fixation of radioactive wastes in polymer impregnated concrete (PIC).

⑤ Savannah River Laboratory

Savannah River Plant から出る中和HLWは、種々の金属の水酸化物を含む固体部分（スラッジ）と、 NaNO_3 の様な可溶性の塩から成っている水溶液部分を含んでいる。 ^{90}Sr を含むFPの大部分はスラッジと結合している。しかしながら、 ^{137}Cs は、上澄み液で代表的に存在する。これらの廃棄物をセメントペーストに入れる可能性を調べるために、浸出能力、熱安定性、耐放射線性、取り扱い等の研究が行われている。(Stone 1975, 1977 ; Wallace et al. 1973)。比較的低コストである事、SRP廃棄物との両立性が期待出来る事、低温度で簡単な取り扱いが出来る等の理由から、セメント生成物が非常に有望視されている。

40%の洗浄されたwasteを含むセメントペーストの試験は、生成物の圧縮度が2000～3000 psiである事を示している。2000～5000 psiの強度は、コンクリートを商業ベースで適用するには十分なものである。ハイアルミナセメントは、ポルトランドセメントと廃棄物の混合物よりも恒常的に高い強度を有している。100℃での加熱は、どちらのセメントに対しても強度に対する影響はない。初めに触れた様に、ハイアルミナセメントの強度は、多分変換の結果として、加熱時間を延長すると強度が減少する。ポルトランドセメントは、300℃までは影響を受けない事が判かっている。しかしながら、500℃で長時間貯蔵されると75%の強度減少となる。

一般的に、ほとんどの調製コンクリートは、 γ 線に非常に強い。ポルトランドセメントから構成されている原子炉の遮蔽壁は、 3×10^8 ラドで照射した後でも、圧縮強度は50%しか低下していない。

弱いと思われる相の組成の特別な浸出試験では、Srの浸出性について、最初 $10^{-2} \text{ g/cm}^2/\text{day}$ であったものが、6週間で $10^{-5} \text{ g/cm}^2/\text{day}$ に減少している事を示している (Stone 1975)。Wallaceら(1973)によると、可溶性塩を含まないセメントの浸出性は、塩を含むセメントのそれよりも、はるかに低いものであるとしている。 MnO_2 はSrの追出しとして働くきざしのあることが示された。ハイアルミナセメントは、ポルトランドセメントよりも、Srの浸出性が低い事を示している。Srの浸出性は、 γ 線照射により一般的に低いものとなる。Ceの浸出性は、最初の $10^{-1} \text{ g/cm}^2/\text{day}$ から $10^{-6} \text{ g/cm}^2/\text{day}$ の範囲である。Puの浸出性は、全ての場合に渡って、極端に低い(最初が $10^{-4} \text{ g/cm}^2/\text{day}$ で、12週間後で $10^{-8} \text{ g/cm}^2/\text{day}$ になる)。

一般的に、SRLにより得られたデータ、これは先づ浸出性を基にしているが、このデータではハイアルミナセメントがポルトランドセメントを基にするコンクリートよりも優れているとしている様である。コンクリートの基礎材としてのポルトランドセメントは、溶岩性の添加物⁽³⁾を含んでいるが、これは含有物の SiO_2 と反応する事に

よりCa (OH)₂を減少させ、浸出性を改善している。これらの添加物を含むコンクリートの初期浸出性は、 $7 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^2/\text{day}$ である。この値は119日後に、 $2.6 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^2/\text{day}$ に低下する。

密閉され固化された放射性廃棄物が放射線分解する事により発生するガスは、考えられる所では、その長期貯蔵中に包含性を破って出てくる様である。それ故、有力な候補として上がっている廃棄物形態（模擬放射性廃棄物を含むマトリックス）には、⁶⁰Coの γ 線、²⁴⁴Cmの β 線の照射が行われる。これらの形態は、；模擬FPスラッジを含むセメント、有機液体を含むパーミキュライト、そして、 α 線を照射した超ウラン同位元素を含むセルローズである。 γ 線の放射線分解にさらされたセメント廃棄物形態について、平衡水素分圧は、6～7 psiに達し、それは添加率に依存している。限られたデータを基にしているが、酸素は完全に消費され、窒素は影響を受けない様である（Bibler 1976, Bibler, Ovebaugh 1977）。

約200年後から支配的になる α 崩壊で、10⁵年後最終の水素分圧は1600 psi程度になると計算されている（Bibler 1976, Bibler and Orebaugh 1977）。酸素分圧は300 psiに達するであろう。しかしながら、最初の数百年間、コンクリートにSRP廃棄物を加えた密閉体中での放射線分解による圧力上昇は低いものである。尚その上に、これらの高圧現象は・高温度と γ 崩壊領域に決して到達し得ない。

⑥ Atlantic Richfield Hanford Company

セメント固化プロセスにおける研究が、ほとんどSavannah RiverとBrookhavenで行われ、その広範なデータが得られているため、Atlantic Richfield Hanford Companyでは限定された実験データのみが得られている。セメント/コンクリート中に結合させる事によるHanford廃棄物の固定化は、過去においてその優先順位は低いものであった（D.R. Gustovson and W.W. Schulz, Atlantic Richfield Hanford Co., personal Communication to Panel on Waste Solidification, 1977）。

⑦ Portland Cement Association

Battelle Pacific Northwest Laboratoriesとの契約で、Portland Cement Associationは、室温、177℃、232℃におけるHanfordコンクリート混合体の膨張、強度特性を評価している。種々の研究は、温度と、昇温に対する暴露長さ、そして、昇温前の貯蔵期間である。データは、縦弾性係数、ポアソン比、強度等に変換して求められている（Abrams 1975）。コンクリート混合体がバッチからバッチへの変化のため、又、試験片が小さいことから、データによる結論は出ていない。

縦弾性係数とポアソン比は温度上昇と共に減少する。一般的に、試験した混合物の

縦弾性係数は、室温（21℃）で約 $0.42 \times 10^6 \text{ kg/cm}^2$ 、177℃で約 $0.28 \times 10^6 \text{ kg/cm}^2$ 、232℃で、約 $0.155 \times 10^6 \text{ kg/cm}^2$ となっている。高温にさらされる前の水分含有期間はその結果に影響を与えない。一般的に、端部（境界部）は温度上昇に伴い圧縮強さが増加している。

⑧ Pennsylvania State University

探索研究は、混合物に対し「熱間圧縮」（温度を上げての圧縮）と、セメントとFPの結合についての利用の可能性について行われている（Roy and Gouda 1974）。

ハイアルミナセメントとポルトランドセメントの両方でもって、固体の模擬放射性廃棄物の10から50%について熱間圧縮による固化を実際に行っている。この手法は、製作されるべき非常に高密度の試料（2.80から2.94 g/cm^3 ）を可能としている。そして、その廃棄物は、(a)セメントマトリックスに十分に散らばらず、(b)前もって熱間圧縮されたセメントペーストシリンダーの中心として詰める。又は(c)圧縮する前にペレット状にするか、焼結の集合体としてセメントマトリックスへ添加するかの3つである。幾らか良好な結果がハイアルミナセメントで得られているが、両方のセメントのタイプは熱的安定性（あるセメント廃棄物の形態では、750℃まで安定）、熱水に対する浸出性そして、非常に強度がある（1400～4200 kg/cm^2 ）という特質を持っている。

(2) 外国での研究

可能な放射性廃棄物マトリックスとしてのセメント/コンクリートの使用に於ける非常に限られた説明のみが、海外でなされている。合衆国と同様ヨーロッパに於いて、コンクリート内にHLWを結合させる事は高い優先順位であるとは考えられていない。原子力発電プラントの放射線シールドに対して重コンクリートが使われているが、実際の廃棄物処分にコンクリートを使用する事を示唆するものはまれである。

ソ連では、セメントはコンクリートの一枚岩の形でLLWの処分に用いられている。しかし、セメントの大きさ、重量、移送から考えて、経済的ではないとしている（Belitzky 1977）。

セメント/コンクリート製LLWとILWの固化は、西ドイツで考慮されている（I. Odler, Technical University, Clausthal - Zellerfeld, West Germany, Personal Communication, 1977）。廃棄物は、安定な岩塩層にグラウトの形で沈積可能としている。これらの廃棄物の再取出しについては報告されていない。

廃棄物セメント生成物の浸出性と他の特性についての限られた試験が、日本（八多ら、1975、松鶴ら 1977）、イタリア（LazzariniとTognon 1967）、フランス（BonniaudとCohen 1960）そして他の国々で遂行されている。西ドイツと同様に、これらの国家はセメントとコンクリート中のHLW固化の計画を現在持っていない。

4. セメントR & Dの評価

前述した実地研究の結果で、特に、Oak Ridge, INEL, SRP, Brookhaven, そして、Pennsylvania State University等全てが、HLSW結合に関して、セメントを基礎とした混合物⁽⁴⁾が、有用であり、簡単であり、試験すべき選択の1つであると示唆している。今なお、この廃棄物形態は公にやっとな受け入れられる様になったが、支持はあまりなく一般的には否定されている。下記の各項目を含む廃棄物形態としてのコンクリートの利点は、(a)固化プロセス中最低温度である (b) 簡便な遠隔制御プロセスが可能である (c) 選ばれた土中に圧入加能である (d) セメントと廃棄物の混合物は、金属又はコンクリート製容器に入れる事が可能である (e) コストが低いという事である。

しかしながら、不利な点もある。例えば、高い強度が要求されるならば、コンクリートの温度は、350～500℃以下に保持しなければならない。さらにその上、ある状態下ではコンクリートの浸出性が他の廃棄物形態に比べ高いという事である。最も不利な点は、最小限度の研究しか行われていない事でありコンクリート内に存在する水の放射線分解である（12章参照）が、Burns（1971）の結果によると、それ程重大な問題ではないとしている。KarlsruheやOak Ridgeで進展している付加的研究がこれら初期の結果を確立するならば、セメントを基礎とする混合物は、これからのHLSW工学に非常に高い可能性を持つ事になる。

セメント合成物の浸出性は、うまく造られるならば問題とするべきでなく、安定性と土中環境の水文学的健全性に直面するべきである。珪酸岩層とコンクリートの化学反応性は、他の多くの固化状態よりも小さいと予想される。

コンクリートの熱伝導度は、ほとんどの自然岩石と同じオーダーである。廃棄物は熱を出し、コンクリートの水和作用性のため、水和生成物のあるものの内、乾燥温度を越える温度になるかも知れない。この事象が起ると、ほとんど瞬間的にクリティカルなものではないが、部分的に強度減少につながるかも知れない。この温度上昇は、岩に囲まれて250℃の温度限界を越える事はないと思われるので、花崗岩や泥板岩の共通鉱物（例えば、雲母又は粘土）の何ものも、そのOH⁻が失なわれないであろう。

コンクリートの強度は、移送中のみがクリティカルであり、その時は事故の場合の固化体飛散を考慮しなければならない。ポリマーを浸透させた廃棄物生成物を含むコンクリートは強度を増し、強度が要求される時、使用に耐えるものと考えべきである。コンテナ内のコンクリートに入れられた廃棄物の熱伝導度（そして、安全性）は、外形がハニカムのコンテナ又は、他の同様な構造物を使う事により増大可能である。コンクリート廃棄物のマトリックスの全重量は、実際の移送で制限を受けるものと見なされる。しかしながら、コンクリート中に40～50%のスラッジ又は仮焼体を結合させれば、全重量はガラス固化体あるいはメ

タルマトリックスと同程度となる。

廃棄物とセメントの合成物が金属コンテナに貯蔵されるならば、放射線分解によるガス発生のための準備がなされるべきである。コンテナの排気と放射性核種の流動性におけるその効果が研究されるべきである。コンクリートに対する放射線効果を系統的に調査する必要がある。その調査は、熱、圧力、添加率、全添加量、放射線のタイプ、崩壊エネルギースペクトラム、w/cと同様、セメント混合物のタイプ、そして貯蔵状態の様な変数の結合を考慮すべきである。

可能なセメント生成物に関する簡便なプロセスと特性のマトリックスは、Table 9.4 で与えられる。

TABLE 9.4

Process-Property Matrix ^a

Parameters	Grouting	Cast Concrete	Pelletization
<u>Process Parameters</u>			
Complexity	Mixing-Transport/ Injection	Mixing-Transport- Curing; Possibly impregnation by polymer, etc.	Mixing-Pelletization- Transport; Possible impregnation and/or transport in metal containers
Maximum Temperature	Ambient	Ambient or Steam Curing (150- 200°C)	Ambient
Ease of Remote Operation	High	High	Medium
<u>Property Parameters</u>			
Leachability ^{b c}	Medium	Potentially low	Potentially low
Thermal Conductivity	Low	Low	Low
Thermal Stability	Very good up to approximately 300°C; complete loss of strength between 500-900°C		
Dispersibility	Medium to low	Low	Low

^a Comparisons are relative to glass.

^b Depends on the density of cement product (w/c ratio, polymer impregnation, etc.).

^c Some difference between portland and high-alumina cements.

各々の特定廃棄物に関し、化学的組成と放射能レベルは、セメント／コンクリートのマトリックスの良く定義された形態が明確になる事を要求している。セメントに結合されるべき廃棄物は、セメント水和物の方針を変更し、必要な特性の開発を妨げる様な水溶性化合物を含有するべきでない。

セメントマトリックス特性における廃棄物組成で、非溶解性又は少ししか溶けない効果について探究する必要がある。そして、新規に混合したセメント廃棄物の加工性又は、「ポンプが使用出来る」事を改良するために混合物と添加物の開発を行う必要がある。その様な改良は、望まれるセメントを含む構造又は、環境に、コンパクトで高密度、及び、不浸透な配置（もし、温度が200℃にもならなければ）を可能とするであろう。セメントペースト／コンクリートの特性を改善し固化された放射性の試料の浸出性を減少させる添加混合物の結合が、開発されるべきである。

明らかに、多くの研究目的は、廃棄物の限度負荷量と浸出の場合に於ける廃棄物イオンをトラップする添加物でもって、セメントの開発を行っている。特別なマトリックスを持つ特定の廃棄物についての両立性が探究されなければならない。珪酸塩のスーパーカルサイン又は、セラミックがセメントマトリックスで、最少限度にしか相互に作用しないという事に似ている。放射性廃棄物固化のためのセメント／コンクリートの可能な使用は、Table 9.5 に統轄されている。

-
- (注) 1. “Hydraulic” は、水の存在で強度を増加する能力を意味する。この強度増加は、乾燥又は、大気中のCO₂との反応に依存しない。
2. “Curing” は、例えば温度、圧力、そして、相対湿度を充分に考慮した大気状態で固化することを意味している。
3. 珪酸質又は、明礬性の物質は、細かく砕かれ、湿気とカルシウム水酸化物の存在でのみ、それらはセメントの特性が現われる。
4. コンクリート廃棄物形態に関して、一般化されたモデルは、スーパーカルサイン、網目状又は層状珪酸塩に吸着した酸化スラッジの初期の形態の約40%から成り、そして、ハイアルミナ又は、ポルトランドセメントに、混合材として結合される。このペーストは、大きなシリンダー、又は、適合する土中形状にグラウトとして注入する事が可能である。

TABLE 9.5

Possibilities of Using Concrete for Radioactive Waste Solidification

Type of Concrete Products	Examples of Possible Use
Cement Slurries, Grouts, or Gunite	Fixation of waste in fractured shale Storage in concrete and/or other vessels
Concrete Casks, Tanks or other Storage Vessels (with or without reinforcement, special radiation-shielding aggregates, and/or polymer impregnation)	Storage of cement slurry-embedded wastes Storage of solidified powdered or pelletized as-is waste Storage of waste in the form of glass, calcine, etc. Storage of spent fuel pins
Bulk Concrete (with or without metal "honeycomb" reinforcement to increase thermal conductivity)	Deposition and shielding of used equipment, spent fuel pins Retrievable or irretrievable concrete blocks for geological and/or deep-sea deposition of solidified as-is waste As above but use of other waste as "aggregate"
Pelletized Cement Paste (Cold or Hot Pressing)	Storage in concrete or other vessels (metal) Encapsulation of pellets in concrete or other media

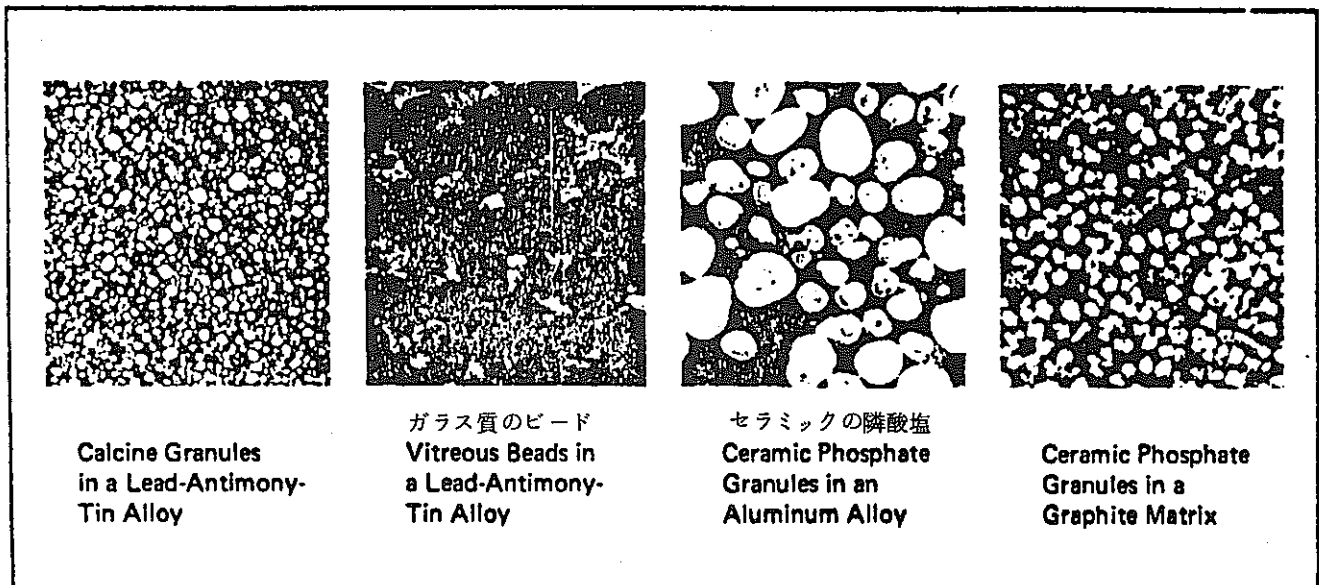
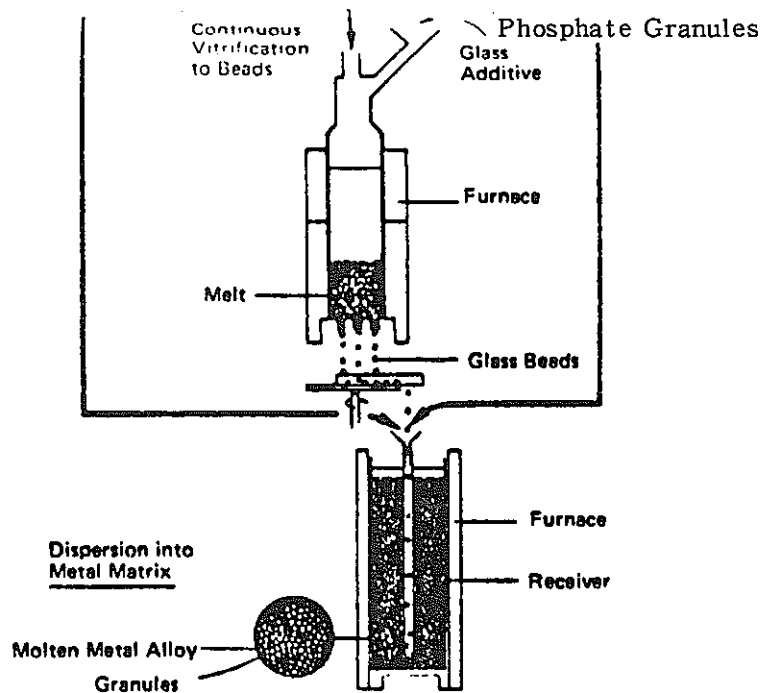
10章 金属マトリックス複合体と収納金属容器

1 序

HLWの処分に適合した固化形態とし提案されたものの中には、第1次封じ込め形態—たとえば仮焼体又はガラス—を金属（あるいはグラファイトやガラス）マトリックスに封入することによって得られるものがある。このようにして得られた大きな円筒状の複合体は一つの金属容器に収納される。この金属容器は短期貯蔵時の回収を可能にすると共に長期貯蔵時には回収は出来ないが複合体を防護する役割を担っている。（Berreth et al. 1975, 1976 : Dan and Williams 1976 : Heimerl et al. 1976a : Rhodes 1969 : Sump 1976 : U. S. ERDA 1976 b : Geel and Eschrich 1975 : J. C. Malaro, U. S. NRC, personal communication, July 1976）。金属は、有望なマトリックス物質であり、多くの研究が行なわれてきているので、本章でもこれらを対象とする。ベルギーのユーロ・ケミックはこの研究に最も精力を注いでいる会社であり、現在金属マトリックスプロセスを開発中である。（Van Geel and Eschrich 1975, Heimerl et al. 1976 b）。ここでのプロセスはパイロット規模のものであるが、ガラス・ビーズを作る PAMELA プロセス、ないし代替法であるスーパー仮焼体を作る LOTES プロセスを備えている（6章参照）。

ガラスビーズおよびスーパーカルサインは重力鑄造法で鉛の中に埋めこまれた後ステンレス容器に入れられる（Dan and Williams 1976 : Heimerl et al. 1976 b : U. S. ERDA 1976 b : van Geel and Eschrich 1975 : J. C. Malaro, U. S. NRC personal communication, July 1976）。初期の開発研究では仮焼体を用いた金属マトリックス法の評価を行なった（Van Geel and Eschrich 1975, Rhodes 1969, Berreth et al. 1975）が、耐浸出性が仮焼体に比べて良好であるとの理由で最近の研究は、主としてガラスを用いる金属マトリックス法に焦点があわされている（Van Geel and Eschrich 1975, Berreth et al. 1976）。マトリックス形成機構の研究は焼結（Berreth et al. 1975, 1976 : Sump 1976 : van Geel and Eschrich 1975）と鑄造（Berreth et al. 1975, 1976 : Rhodes 1969 : Sump 1976 : Van Geel and Eschrich 1975）の双方をも含めて行なわれた。プロセスの概要図と生成物の代表的な断面を Fig. 10.1 に示す。

金属マトリックス法によるHLWの固定化の第1の利点は、熱伝導率が著しく改善される点にある（ガラスに比べて約10倍良好である）。この性質は新しい（2年未満の）放射性廃棄物の輸送と回収可能な貯蔵における基本的設計パラメータでもある。



Calcine Granules
in a Lead-Antimony-
Tin Alloy

ガラス質のビード
Vitreous Beads in
a Lead-Antimony-
Tin Alloy

セラミックの磷酸塩
Ceramic Phosphate
Granules in an
Aluminum Alloy

Ceramic Phosphate
Granules in a
Graphite Matrix

Source: van Geel et al. (1976).

FIGURE 10.1 Eurochemic metal-matrix process and cross section of resulting products.

第二の利点は、耐浸出性が高まると共に耐衝撃性が改善される点である。興味深い金属特性は熱伝導性、熱膨張率、耐食性、ガラス（あるいは仮焼体）との適合性、密度、酸化に関する柔軟性と熱的安定性、およびクリープや溶融のような相変化である。興味深いプロセスパラメータは廃棄物の減容率、マトリックス中の分散粒子の分布、コスト、戦略上の見地からして用いる材料の資源が豊富であること、および輸送性である。

これらの特性の多くはまた金属マトリックス（あるいは他の形態の廃棄物）を収納する材料に要求される諸性質とも適合する。そこで、幾つかの議論がこの話題に向けられる。なぜなら、これらの諸特性の多くは、使用済み燃料棒を金属マトリックスに直接包蔵するためにも適合するであろうから。このプロセスについても簡単に述べることにする。

本章では、金属マトリックス形成プロセスと、選択された金属、仮焼体又はガラスを包蔵する金属マトリックス、使用済み燃料棒（あるいは燃料集合体）を包蔵する金属マトリックス、および収納容器としての金属の諸性質とについて以下に考察することにする。

2 金属マトリックス形成プロセス

現在までの研究の多くはマトリックス-廃棄物複合体を、次の三つのプロセスのうちの一つで形成してきた。そのうちの一つは重力供給による真空鑄造（融点の低いAl, Pb, Znの合金の鑄造）である。このプロセスでは金属が坩堝内で溶融されており、チューブが坩堝の底近くに挿入されガラスビーズ及びスーパー仮焼体のペレットがArキャリアと共に溶融金属中に注入される。ビーズは重力下で溶融金属内を上昇し分散する。第二のプロセスは粉末状もしくはビーズ状の廃棄物と金属粉末を球状パッケージとした場合の代表的密度である約65%まで混合し、その混合物を95%密度まで冷間プレスしそれを融点近くの温度で焼結する方法である。第三の方法はやはり上記のように粉末が混合されるが、冷間圧縮をせず焼結するものである；この場合プロダクトの最終密度は上記二方法で得られたものに比較してかなり低くなるのが特徴である。

審議会により再調査された全研究の目標は複合体中の廃棄物の容積分率を40~60%にすることである。もし金属の特性である衝撃強さおよび腐食抵抗を保持しなければならないとすると、この容積分率でははるかに大きすぎる。容積分率が20~40%を越えると分散相の連続通路が存在し、20%の時にそれが存在する可能性が高いことを連結性の理論（theories of connectivity）（Gurland 1968）は示している。

多くの脆い分散相が連続的に分散している場合、その機械的諸性質（例・耐衝撃性）は分散相それ自体の機械的諸性質より良好であるが、一般に低下するであろうことを、Rhines（1956）の連続相理論は示している。柔軟性のあるマトリックス中に脆い分散相があると、その機械的性質は典型的な金属の性質から連続通路のある容積分率約20%の分散相の性質へこの原理に従って突然変化する。また、分散相が連続しているため、浸出速度はマトリックス体に期待される低浸出速度よりも、むしろ分散相の浸出速度に従う傾向を示すであろう。

金属のマトリックスによって与えられる耐衝撃性と耐浸出性との利点を大いに活用するため分散相の容積分率は20%までに保つべきである。しかしながら、金属相の利点を最大限に活用する必要はないので、分散相の割合を増すことは可能であろう。

従来、多くの研究はプロセスの簡略化を計るため鑄造法および焼結法に集中してきた。しかしながらこれらの方法ははっきりした欠点を持っている。たとえば初期に考案された鑄造法においては、遠隔で操作された挿入管の閉そく、熔融金属と管および坩堝との反応、および分散相の塊や分散相の重力分離これら全ては重大な問題を生ずる潜在的危険性を有している。焼結プロセスは、焼結における密度を高める働きをする拡散速度が遅いため、分散相を隔離し良好な機械的性質を得るのに必要な密度にまで達するのに、長い時間を要するとの欠点がある。

これらの方法にかわって利点のある方法は cold and hot isostatic compaction (Gessinger and Bomford 1974, Johansson and Isaksson 1970) である。ここで、空の金属容器の中に粉末が混ぜられ、その容器は溶接で封をされて Ar チャンバーの中に置かれる。そして Ar を 100~200 MPa に圧縮することによりその容器に圧力を加える。熱間圧縮 (Hot compaction) は絶対融点の 0.5~0.9 倍の温度でなされ、その温度は時間と用いる圧力により変わる。

均質に圧縮するプロセス (isostatic compaction process) の一つの利点は、変形によって急速に密度を大きくできることであり、その値は 100% 密度になる。二つめの利点は廃棄物を詰めた缶を圧縮装置から隔離できることであり、遠隔のプロセス設備の比較的近づきやすい部分に圧縮装置を置くことができる。もう一つは分散相が均一に混ぜられることであり、鑄造法でみられるような分散相の塊や重力分離がみられないことである。さらに作用媒体がガスであるので、装置の規模は従来の圧力装置に比べてかなり小さくなるであろう。

熱間均一圧縮したアルミナ円筒容器中に燃料棒を封じこめるという考え方 (Sweden Now 1977) と同様にスウェーデンで、廃棄物とアルミナ粉末との混合物を直接均一に熱間圧縮する方法が考案されたことは、注目すべきことである。確かに、鑄造プロセスにおける一成分欠乏によっておこるドミノ効果の危険性のいくつかは避けられるであろう。

特に冷間均一圧縮法 (the cold isostatic compaction method) は利点がある。適度の低温で製造されるスーパーカルサインがもしこの方法で使われるなら、廃棄物はプロセス上の高温状態にさらされることは決してないであろう。それゆえ、Cs や Ru の揮発の問題、収納容器の反応の問題、そして材質の消耗および摩耗の問題も最小限にとどめられるであろう。また、適度のプロダクトが必要であるにすぎないならば、バッチ式圧縮方法においても効率が著しく低下することはないであろう。

3 金属の特性

マトリックス隔離用に候補として挙げられるいくつかの金属の性質を Table 10.1 に示

TABLE 10.1

Some Characteristics of Metals for Waste Containment

Metal	Al	Pb	Ti	Ti Sponge
Cost per kg	\$1.05	\$0.69	\$4.42	\$2.21
Cost per cc	0.28¢	0.77¢	2.00¢	1.00¢
Strategic Availability	Abundant	Limited	Abundant	
Thermal Conductivity $\frac{J}{Kms}$	220	35	79 to 99	
Corrosion Resistance	Poor	Excellent with .06 Cu	Excellent (possible problem with crevice corro- sion, hydride embrittlement)	
Impact Resistance (Charpy V-notch J)	High (not standardly cited)	14 (20°C)	15 (-15°C) 34 (90°C)	
Creep Rate (min. temp. for strain rate =10 ⁻⁶ s ⁻¹ at =10 ⁻⁵ x shear modulus)	260°C	20°C	550°C	
Melting Point	660°C	327°C	1820°C	
Temperature Below Which Oxidation Rate is Logarithmic (thin film limited)	200°C	150°C (rate greatly accelerated in presence of ozone, water vapor)	300°C (film 0.44µm in 200 yr 14µm in 200,000 yr)	

Source of Data:

Cost: Al, Pb, current American Metals Market; Ti, (F. Malone, Colt-Industries Crucible, personal communication, May 1977).

Strategic Availability: National Commission on Materials Policy (1973).

General Data: American Society on Metals (19)

Creep: Al, Pb, Mukherjee et al. (1969); Ti, Paton and Mahoney (1976).

Corrosion: Fontana and Green (1977).

Oxidation data: Kubaschewski and Hopkins (1962) and J. Eldridge, IBM, San Jose, Calif., personal communication, May 1977.

す。従来提案されてきた他の金属は、耐食性が低い (Fontana and Green 1977) (鉄、亜鉛) との理由か又は戦略上の資源として不足する可能性がある (例えば銅合金) (National Commission on Material Policy 1973) との理由のため本表では考慮していない。

融点が低いことから発生ガスがなく、廃棄物ペレットが軟化することなく鑄造ができる最もしばしば言及される合金は鉛あるいはアルミ合金である。今までほとんど注意を払わなかったが、下に述べる理由でここで強い支持を受ける金属はチタンである。チタンは融点が高いためプレス工程と焼結工程が必要となるであろう。

(1) 鉛

銅を 0.06% 含む鉛合金はたとえマトリックスを 100°C の水あるいは塩水に浸けたとしても 10⁴ 年に渡って (注²) すぐれた耐蝕性を示すであろう。またその合金は適度の熱伝導性 (多くのガラスおよびセラミックの約 10 倍) とすぐれた耐衝撃性、SiO₂ との低反応性、そして単位重量あたりの単価が他よりも安いという特徴をもっている。しかしながらいくつかの重大な欠点も持っている。

まず第 1 に、重量よりも容積がむしろ重要なのであり、単位重量当りの価格よりも単位容積当りの価格の方がかなり高価である。

第 2 の欠点は、戦略上の資源である鉛の不足が 2000 年までにおとずれると考えられる；このことはより大きなリサイクル計画を持ってしてもコスト高になるだろうということである (National Commission on Materials Policy 1973)。第 3 の欠点は、融点が低いことから分散相との反応による中心部の溶融およびクリープによる機械的不安定さがおこる可能性があることである。仮に収納容器に裂け目ができると回収時に問題が生じるであろう。

最後に鉛は密度が大きいので、他の金属以上に輸送上問題である (鉛は γ 線遮へいができるという利点はあるけれども)。

(2) アルミニウムとチタン

アルミニウムは単位体積あたりのコストの点で最も有望であり、資源も豊富であり、すぐれた熱伝導性と耐衝撃性を持っており、200°C までのクリープ限界を持っており、酸化速度の測定 (Kofstad 1966) に基づけばガラスおよび仮焼体の分散相とかなり適合できるであろう。分散相をとりまくアルミナ層を形成する置換反応は確かに生ずるのであるが、その層の厚さは 200~300 オングストロームに限られたものであるだろう。

金属マトリックスが水溶液および塩水分にさらされないなら、すなわち収納容器それ自体が収納物の亀裂ないし腐食を防止するならば、アルミニウムをマトリックスとして選ぶことは最良の材料選択となるであろう。しかしながら、収納容器が浸透されるならば、ア

ルミニウムマトリックスは耐食性が悪く、分散相が露出し、その結果岩や水と反応するであろう。

チタンはアルミニウムの利点を全て兼ね備えている。幾分熱伝導率が低く、クリープ限界ないし溶融抵抗が大きい。またチタンは耐食性がよく (Fink and Boyd 1970 ; Fontana and Green 1977 ; H. Bomberger, Reactive Metals Industries Niles, Ohio, personal communication, April 1977), 150°Cまでの温度で酸性および塩基性溶液あるいは海水にさらされても10000年単位のオーダーで腐食に対して安定である。チタンは、水の放射線分解で生じる水素の非常に高い分圧によってのみ生じる水素化物の生成により、アタックを受ける；チタンはまた強酸と還元性雰囲気で割れ目腐食を受ける。チタンの欠点はコストが高いこととプロセスの柔軟性に欠けている点である；そのプロセスは圧縮-焼結工程を用いることが必要であるだろう。チタンのガラスとの反応性は酸化速度測定の結果に基づけばアルミニウムの反応性と似ているであろう。しかしながらチタンの価格は確かな価格を持つアルミニウムとか鉛と違って、外国産のスポンジ^(注3)チタンの資源に依存していることと不定な売買によって人為的に高価格になっている (F. Malone, Colt Industries, Pittsburgh, Pennsylvania, personal communication, May 1977)。スポンジチタンは圧縮したマトリックス (電弧融解の消耗電極は室温で冷間プレスされ、高密度のほどよい成品になる) として直接用いられる。そしてそれは粉末チタンよりも安い。Table 10.1 に示すように、単位容積あたりの価格は鉛と同じくらいであるだろう。

4 処理済みの仮焼体およびガラス用の金属マトリックス

上記の分析に基づいて、商業的に純粋なチタンの収納容器に、金属マトリックス材料としてアルミニウムをベースにした合金を鉛に変わって用いる方法がより良いものとして提唱される。両物質の性質に関して最も乏しいデータは、分散相との置換反応に関するものである。50°C~500°Cにおけるこれらの反応の研究が必要である。一方、腐食面においては、置換反応に比べて多くのデータが利用できる。この分野における一層の研究がまた要望される。

5 核燃料集合体用の金属マトリックス

上記したのと同じ理由で、均一に圧縮されたチタンと圧縮した鑄造物またはアルミニウムは使用済燃料集合体を直接包み込む金属マトリックスとして有用である可能性がある。このような方法でひとたび封じ込めると、再処理するために燃料を取り出すことは非常に困難であろう。

(1) 金属収納容器

第1章で述べたが、金属またはセラミックの廃棄物収納容器は移送中の保護となり、保管中には物理的防壁の働きをする。ここで述べたデータはこのような収納容器を選択する際にも適切なものである。収納容器材料として提案された主なものはステンレス鋼、軟鋼、そして金あるいはTiB₂でメッキした鋼である（G. Wranglen, Royal Institute of Technology, Stockholm, personal communication to R. L. Davies, 1977 ; R. L. Davies, The Gold Institute, personal communication to the Committee on Radioactive Waste Management, March 1977）。

これらの金属はすべてなんらかの欠点がある。もしも0°C～150°Cの塩水分を含有する環境にさらされるならば、オーステナイト系ステンレス鋼は応力腐食割れに鋭敏になるだろう。フェライト系ステンレス鋼^(注4)と軟鋼は約10年後に望ましくない高腐食速度に達している。（Fink and Boyd 1970）。一方金そのものは腐食に強いので、金メッキした物はコーティングが完全で欠点のない時だけ完全な防御を果すことができる。もしもコーティングに何らかの裂け目があるか、または（現実的におこる可能性があるのだが）もしも比較的軟らかいコーティングにハンドリング中に穴があいたならば、金メッキは腐食を促進する働きをしてしまう。大部分の領域は分極しないカソードとして作用をして、激しい急速な孔食が金属内でおこるだろう。さらに、金は塩素がある場合や酸化条件下、および放射線分解の結果として生ずる状況下で溶解するであろう。また金は保存状態でも人間の干渉を呼ぶ刺激を与えるものでもある。

チタンはいずれにしても高価なものであるが、収納容器としてはたいへん有効なものであろう。チタンは耐衝撃性とクリープ抵抗という機械的性質が適当であるとともに、長時間の耐食性もよく、また加工性（すなわち溶接性）もよい。鋼とチタンを組み合わせた収納容器もまた可能ではあるが、もっと高価になるだろう。もし侵食されたとしても、この組合せでは金メッキほど好ましくない結果は生じないであろう。なぜならば、表面に生じた薄い酸化皮膜が半導体の働きをし、かなりの程度にまでチタンを分極するからである。さらにチタンは、代替品として考えられているTiB₂あるいは同じようなセラミックコーティングよりも、スポーリングおよびクラッキングによりベース金属を露出させそうになることも少ないであろう。

6 非金属マトリックスと収納容器

ガラスとかグラファイト（Bunnell 1974）といった非金属マトリックスは金属マトリックスよりも劣っており推しよできない。第8章で述べたようにガラスマトリックスは、ガラスの直接製造時と同じように欠陥がある。複合体にガラスを使用する場合には glass monolith production プロセスよりも複雑になる。グラファイト・マトリックスの形

成には化学的な蒸気の沈着過程によるカーボンの沈着をも含まれる (Bunnell 1974) し、発生ガスの取り扱いも必要となるであろう。カーボンマトリックスは、もし適温 (1000°C ~ 1300°C) の反応によりガラス状態で作られるならば、多孔質になるであろうし、~ 3000°C で反応した後においてはグラファイト状態で最適強度および密度をもつに到るであろう。グラファイトの熱伝導率およびクリープと腐食に対する抵抗は金属と同等であるが、衝撃抵抗、伸びやすさ、酸化抵抗の点では金属に劣っている (Bunnell 1974)。

スウェーデンの計画では金属の代りにホット・プレスの十分な密度のアルミナ・コンテナについて試験をしている。アルミナは腐食に関して貴金属以外の他のいかなる物よりも明らかに有利であるが、しかるに一方では高価であると共に封入した容器をシールするのにプロセスが複雑になることがわかっている。

- (注1) 分散相を濃密度 (60~75%容積分率) に合体した金属マトリックス固化体が金属層で囲まれている時の指標としてユーロケミック・プロセスで認められている。
- (注2) すべての腐食抵抗は短時間のテストに基づく。長時間の腐食試験は計画された代表的方法により (腐食雰囲気にとらず) 選択されたすべての金属について行なわれるべきである。
- (注3) "スポンジ" とはチタン製造時の標準的な塩素-還元プロセスから生じるチタンの一つの形態である。スポンジは粗粒子 (直径が製造プロセスにより < 6mm あるいは < 3mm である) として供給される。
- (注4) 26Cr-1Mo フェライト系ステンレス鋼は応力腐蝕の点からみると満足できる。そして 100°C までの温度の塩水中においては、オーステナイト系ステンレス鋼よりもより低い電流密度 (passive current densities) を持ち、穏やかな腐食性雰囲気 (みかげ石 VS. 塩床) においては使用できる見込みがある (チタンよりも安価)。またこのフェライト系ステンレスは低温で 8mm よりも薄い断面を持つ所でぜい性破壊に対して鋭敏であるから、オーステナイト系ステンレスよりも輸送の面で不満足である。

11 章 使用済燃料集合体

1 序

使用済燃料の再処理を延期する最近の政策決定は、地層貯蔵所 (geologic repository) や地表貯蔵施設に設置すべき主要な廃棄物形態として、原子炉から取り出された使用済燃料を考慮しておく必要を示している。使用済燃料集合体の物理的・化学的・放射線特性は、固化された HLW のものと異なるため、固体廃棄物形態として使用済燃料集合体を採用することで、持ち上がる種々の問題も、本質的には異なるだろうと予想するのが妥当である。

この章では、固体処分形態としての可能性についての適切な使用済燃料集合体の特性を述べ、これらの集合体の地層設と関連した潜在的な問題について論じる。使用済燃料集合体の地表貯蔵については、簡単に考察しておく。

2 軽水炉 (LWR) 燃料集合体の説明

(1) 物理的解説

軽水炉 (LWR) から取り出された使用済燃料集合体は、燃料ピンを上下のエンドピース (end pieces) といくつかのスペーサ要素で結合し、幾何学的なクラスタ (cluster) に構成した複合ユニットである。沸騰水形原子炉 (BWR) と加圧水形原子炉 (PWR) の燃料集合体は著しく異なっているが、それぞれ基本構成は燃料ピンである。いずれの燃料ピンも二酸化ウラン又は二酸化ウラン-プルトニウム混合物の焼結ペレットを充填し、両端を封じた長い金属性の管である。

BWR 及び PWR 燃料集合体の代表的寸法と他の特性を Table 11.1 に示す。

廃棄物形態として使用済燃料集合体を考える場合、その適切な特性としては、全体の大きさと重量の二つである。代表的な BWR 燃料集合体は、断面積 $13.9 \times 13.9 \text{ cm}$ 、全長 447 cm 、重量 275 Kg である。1000 MWe の BWR の場合、年間、装荷燃料集合体の内大体 175 体を取り出される。代表的な PWR 燃料集合体 (Fig 11.1) は、断面積 $21.4 \times 21.4 \text{ cm}$ 、全長 406 cm 、重量 658 Kg であり、1000 MWe の PWR で、年間これらの集合体の約 60 体を取り出される。

(2) LWR 燃料の代表的核特性

PWR と BWR 濃縮ウラン燃料の関連する核特性を Table 11.2 に要約している。

集合体を平均出力 $4.75 (17.3) \text{ MW}$ の BWR (PWR) で照射し、全出力照射と等価な $1062 (880)$ 日後に燃料を取り出す。この時、燃料中には $0.69 (0.84) \text{ wt} \%$ の濃縮ウラン (^{235}U) と $1.57 (4.32) \text{ Kg}$ の Pu が含まれている。この使用済燃料中には、核分裂生

Table 11.1

Physical Characteristics of Typical Unirradiated Light-Water Reactor Fuel Assemblies

	BWR	PWR
Overall assembly length (m)	4.470	4.059
Cross section (cm)	13.9 x 13.9	21.4 x 21.4
Fuel Pin length (m)	4.064	3.851
Active fuel height (m)	3.759	3.658
Fuel pin O.D. (cm)	1.252	0.950
Fuel pin array	8 x 8	17 x 17
Fuel pins per assembly	63	264
Assembly total weight (kg)	275.7	657.9
Uranium per assembly (kg)	183.3	461.4
Uranium dioxide per assembly (kg)	208.0	523.4
Zircaloy per assembly (kg)	56.9 ^a	108.4 ^b
Hardware per assembly (kg)	9.77 ^c	26.1 ^d
Total structural metal per assembly (kg)	67.7	134.5

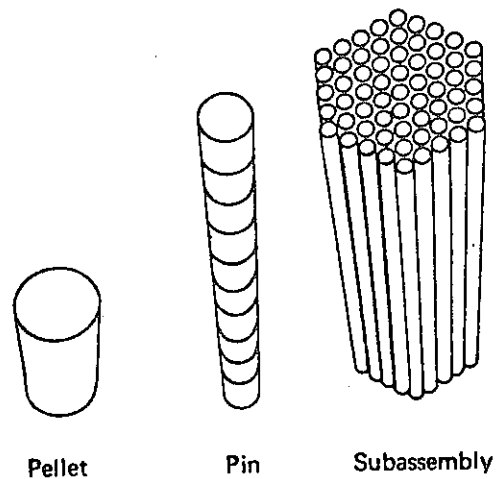
^a Includes Zircaloy fuel pin spacers.

^b Includes Zircaloy control-rod guide thimbles.

^c Includes Stainless Steel tie-plates and Inconel springs.

^d Includes Stainless Steel nozzles and Inconel-718 grids.

Source: BWR, General Electric Company (1972); PWR, Westinghouse Corporation (1975).



Source: U.S. ERDA (1976a)



FIGURE 11.1 Structure and size of light-water reactor fuel assemblies.

The diagram shows the internal structure of the fuel assembly. It consists of a geometric cluster of fuel pins held together by end pieces and element spacers. The pins themselves are made up of small ceramic pellets stacked inside a long section of zircaloy tubing.

The photograph gives some idea of the size of typical fuel assemblies.

Source: U.S. ERDA (1976a); photograph courtesy of Westinghouse Corporation.

Table 11.2

Typical Irradiation Parameters of Light-Water Reactor Fuels, Equilibrium Core

Parameter	BWR	PWR
Uranium per assembly, kg		
Initial	183.3	461.4
Discharge	176.3	440.7
Enrichment, wt% ²³⁵ U		
Initial	2.75	3.20
Discharge	0.69	0.84
Plutonium per assembly at discharge, kg	1.57	4.32
Average power, MW/assembly	4.75	17.3
Average specific power, kW/kg initial uranium	25.9	37.5
Average discharge burnup, MWd/tonne initial uranium	27,500	33,000
Irradiation duration, full-power days	1,062	880

成物 (FP) やアイソトープである Np, Am, Cm も含まれている。使用済燃料の性質について、更に詳細な議論を以下に示す。

(3) LWR 使用済燃料集合体の特性

BWR および PWR 燃料集合体の特性を予想するために、上記の入力データを使用して ORIGEN コード (1973 年 Bell で開発) により計算を行なった。

使用済未再処理 LWR 燃料の最も関連する三つの特性は、熱出力と放射能と減衰時間をパラメータにした燃料集合体要素の潜在的危険指数^(注1) (potential hazard index) である。三つの主な燃料を構成するカテゴリーは、被覆管やグリッドスペーサーなどの構成部材、アクチノイドと核分裂生成物となる。

BWR と PWR 両炉の使用済燃料集合体について、熱出力と放射能の変化を Fig 11.2, 11.3 に示している。

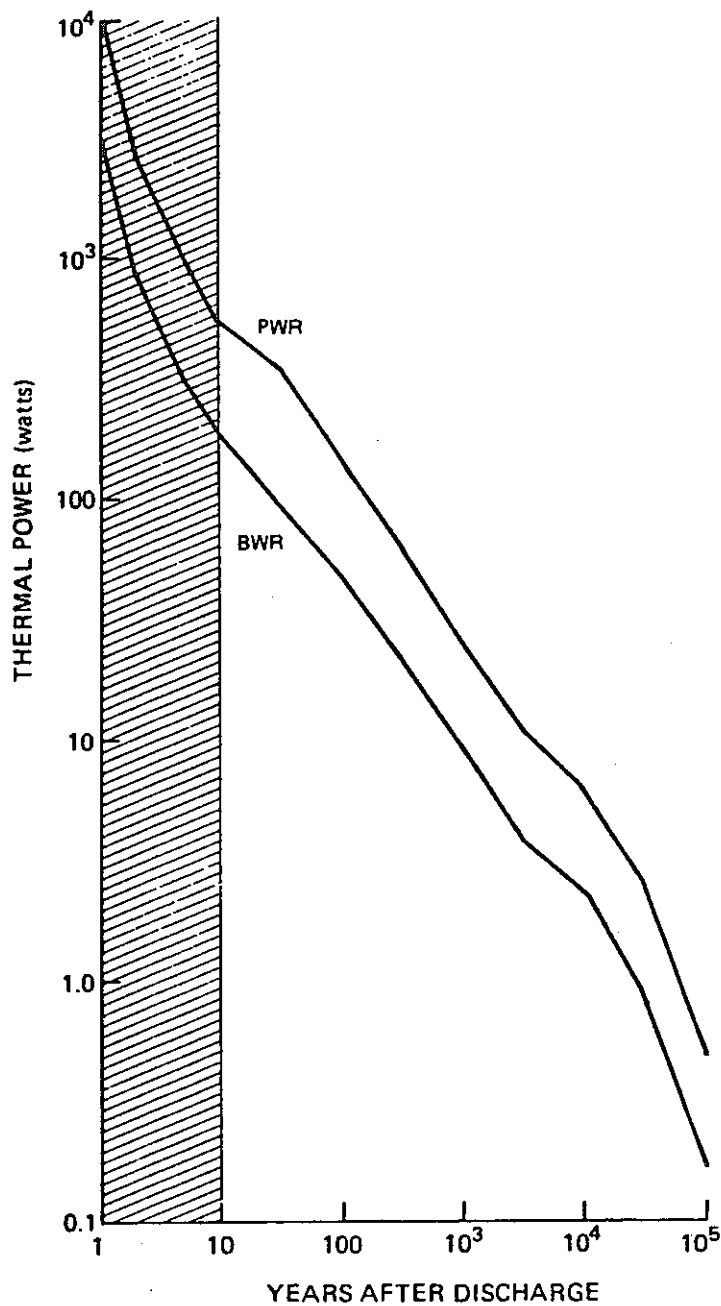


FIGURE 11.2 Thermal power of power-water reactor and boiling-water reactor spent fuel assemblies. The shaded area indicates that between the first and tenth year after discharge, the thermal power of spent light-water reactor fuel decreases by an order of magnitude.

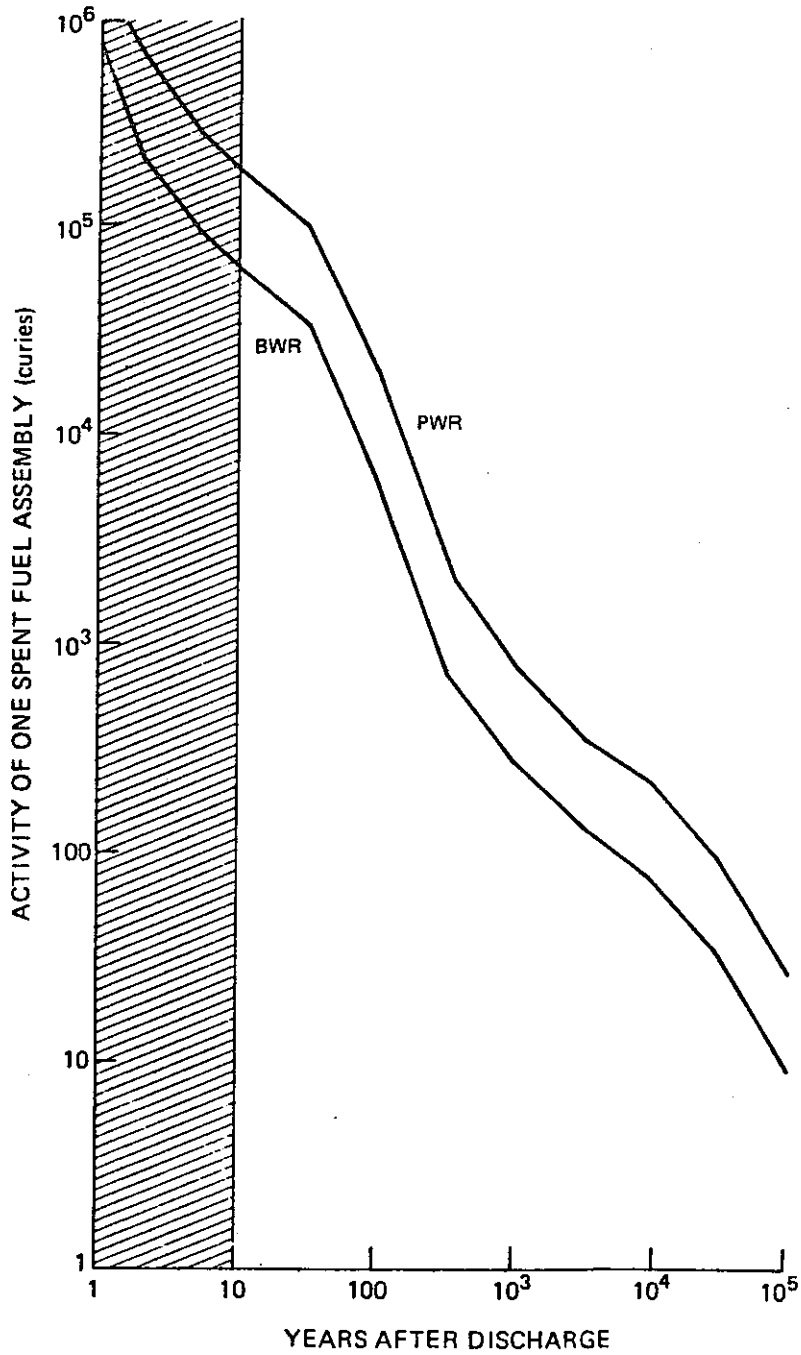


FIGURE 11.3 Activities of power-water reactor and boiling-water reactor spent fuel assemblies. The shaded area indicates that between the first and tenth year after discharge, the activity of spent light-water reactor fuel decreased by an order of magnitude.

燃料集合体の構成部材は、全減衰時間に対して熱出力や放射能や集合体の毒性にほとんど寄与しない。核分裂生成物は、減衰期間 100 年以下の短期では三つの特性を支配するが、300 年以上の長期に於いてはアクチノイドが全ての特性を支配する。100 年から 300 年の減衰期間では、核分裂生成物とアクチノイドが本質的には全体の特性に寄与している。

Fig 11.2, 11.3 には、廃棄物形態として要求される使用済燃料集合特性の情報を含んでいるが、処理済固体廃棄物形態に代る使用済燃料集合体の使用効果については示されていない。そこで Fig 11.4 にこの効果をグラフィカルに示している。ここでは、使用済の

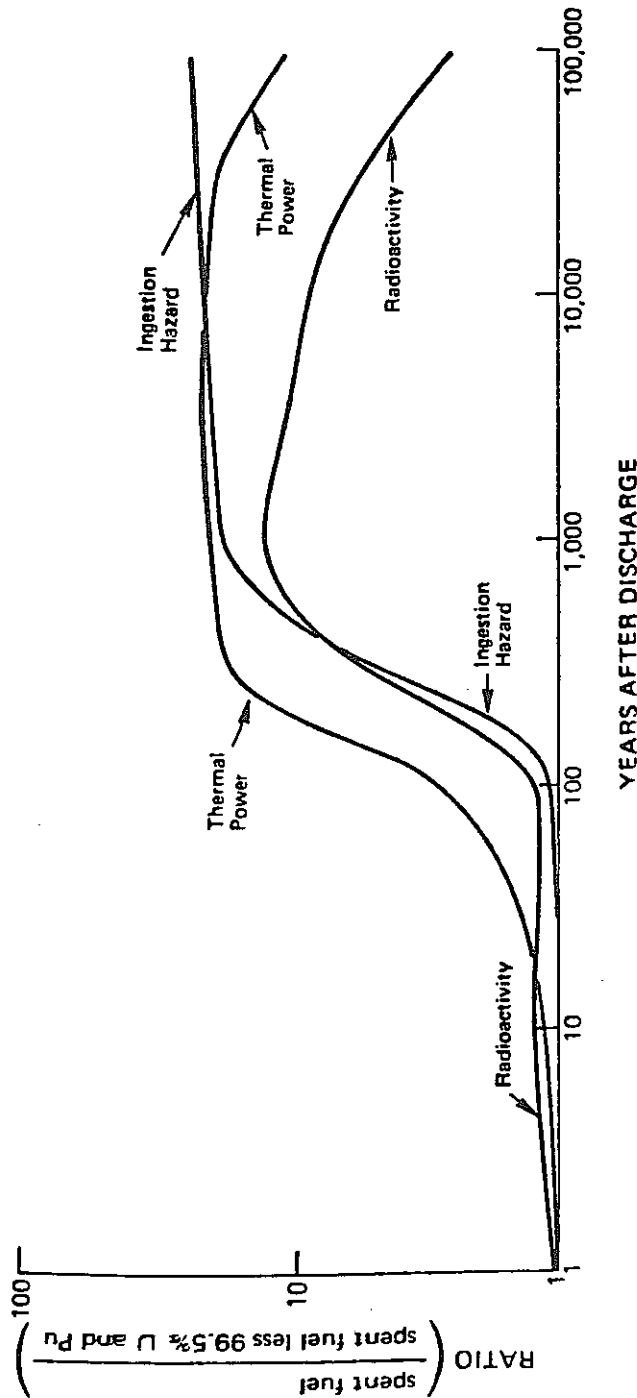


FIGURE 11.4 Comparison of the characteristic parameters of unprocessed and reprocessed spent fuel showing that while they are essentially equal up to 100 years, thereafter the spent fuel assemblies are relatively more hazardous by a factor of about 20.

PWR燃料集合体の特性を、再処理してUとPuを99.5%取り除くと仮定した場合に、この集合体を再処理して発生するHLWと構造材廃棄物の特性とを比較している。BWR使用済燃料の場合の比率は、Fig 11.4に示すPWRのものと同様であり、解りやすくするために省略している。

使用済燃料を再処理しない場合に起こる三つの特性パラメータの増大は、100年以下の短い減衰期間では小さく、その理由は、核分裂生成物の支配が使用済燃料とHLWの両者に於いて等価であることを意味している。しかしながら、使用済燃料集合体の特性パラメータは、長期間側でHLWの10～30倍大きくなっている。最も重要な事は、長期に渡る熱出力が大きいことであり、その事が地層貯蔵所での固体廃棄物容器の間隔を決定する主要な基準となる。この点については、以下に詳しく述べている。

Fig 11.2, 11.3, 11.4を編集する上でベースになったものを、BWR, PWRの両者についてAppendix Dに示している。照射後燃料ペレットの物理化学的特性は、1969年Robertsonにより十分に確認されており、その特性は、燃料要素内における構造変化及び寸法変化、XeやKrの様な核分裂生成ガスの放出、Csの様な他の核分裂生成物の分離などが燃料要素内に起る。

3 議 論

(1) 技術水準の調査

使用済燃料集合体を最終の固体廃棄物形態とする場合、まず貯蔵や処分する前に発熱率(heat generation rate)を減少させるため、貯蔵プール(water-filled storage basins)で数年間貯蔵すると予想するのが適当である。例えば、Fig 11.2, 11.3を見ると、10年でその値は1桁以上も減少している。全体の廃棄物管理システムの解析の中で、地層貯蔵所や地表貯蔵施設に使用済燃料を輸送する以前の最適冷却期間を決める必要がある。しかし、貯蔵プールでの短期貯蔵は、貯蔵所で保管するのと比べて安価であり、発熱率が比較的高い場合には、冷却期間を延長することが適当な手段であろう。このような処置は、最大熱負荷限界を持つ貯蔵所や地表貯蔵施設の必要面積を小さくすることができる。他の目的は、地層処分前の燃料集合体に要求される処理を最小限に保つことにあり、将来選択できるようUとPuの回収(分離)処理を困難にしないよう保つことである。その理由として、燃料ピンを破壊することは好ましくないけれども、使用済燃料の貯蔵所内での取扱いを少しでも容易にすると云う点で、集合体の長さを短くするために両端部分(end fittings)を取り去ることは有効であろう。更に、経済性や安全性解析が処分に先立って少なくとも何らかの処理を行なう上で評価しておく必要がある。

三段階の選択は、初期の中間貯蔵後の使用済燃料集合体を取り扱うのに役立つ。一つ目

の選択は、再処理をしてUとPuを回収するかあるいは最終処分に着手するかを決定するまで貯蔵プールに引継ぎ貯蔵しておく。二つ目の選択は、恐らく50年～100年もしくはそれ以上の間、多少長期間用に設計された地表貯蔵施設を建設し操業すること。三つ目の選択は、貯蔵プールで中間貯蔵した後、およそ25年間の再取出し性をもつように設計された深地層貯蔵所に集合体を設置する。この選択は、処理や最終処分に対する今後の決定により許可されるであろう。固体廃棄物形態としての使用済燃料集合体の使用は、固化されたHLWを使用するかぎり遭遇しないようないくつかの問題を提起するでしょう。

使用済燃料集合体はすでに固体であるけれども、保護なしで取扱うには、こわれやすい為、貯蔵所で安全にかつ容易に取扱えるような、例えば金属容器といった二重に保護する固体バリアーを必要とするであろう。このような燃料ピンの“キャニング”効果を調べるために岩塩の貯蔵所で、燃料集合体の10年後に相当する最大温度で評価を行なった。(W.R. Gambill, ORNL, personal communication, May 1977)この時の温度は240℃(450°F)とした。この温度は、燃料ピンが炉内で受ける最高温度(約425℃)に比較して、再取り出し可能な貯蔵時に容認できる被覆温度である。BWR燃料集合体の最大温度は、PWR集合体に比べて大きき、熱焼度が小さいため、温度も低いと推定できる。残念ながら、このような簡単な評価は花崗岩(granite)や頁岩(shale)のような他の地質構造には役立たないし、再取り出し可能な地表貯蔵施設にも役立たない。岩塩中への処分に対する上記の結果を基に、燃料集合体を入れる容器に熱をにがす目的で、低融点金属のような熱伝導物質を入れる必要はない。鉛の様な金属を使用すると貯蔵所内での汚染の拡大防止に役立つが、一方では、以後の処理を困難で且つ高価なものにしてしまう。

固体廃棄物形態として使用済燃料集合体を使用することにより提起される他の問題点を以下に示す。

1. 燃料要素は、破損の原因となり且つ放射性物質を放出させることが可能なガス圧を持っている。
2. 使用済酸化燃料ペレットは、炉から取り出された時には典型的なクラックが発生しており、その一部分は偶発的に分散(飛散)する可能性がある。
3. 使用済燃料は、再処理により発生するHLWよりも長寿命核種であるPuを約100倍多く含んでいる。この事が今まで述べたように貯蔵所内での長期に渡る潜在的危険指数や発熱率を大きく増大させている。
4. PuやUの存在により、貯蔵所が水の進入により破られたらどうなるのかという批判の可能性を持っているため、核分裂性物質を適当な配置に整理しておく。

使用済燃料は、処分形態として三つの利点を持っている。

1. 他の形態より安価である。

2. 他の形態に比べて地上での処理が少なく済み、当面危険性は少ない。
3. 種々の低・中レベル廃棄物の処理やハンドリングの必要がないことである。

(2) 実施計画の現状

固体廃棄物形態としての使用済燃料集合体の解析は比較的少量の作業であった。しかしながら、使用済燃料集合体の地層処分に関するDOE廃棄物隔離事務所(OWI)とスウェーデンのASEA AB社のもの及び使用済燃料集合体の貯蔵のための使用済未再処理原子炉燃料施設(SURFF)に関するロックウェル(RIC)のものについては、その実施努力は注目すべき点がある。

OWIの努力は、岩塩層貯蔵所への使用済燃料集合体の処分と再取り出し可能な貯蔵の両方の調査である。予備結果では、使用済燃料の処分に対する貯蔵所の最大熱負荷(maximum heat loading)をHLWで勧告した値150KW/エーカーから60KW/エーカーに減少させる必要があることを示している。(DOEでは、使用済燃料について66~99KW/エーカー、再処理プラントからのHLWについて100~150KW/エーカー貯蔵できると評価している)この減少処置は、使用済燃料中に含まれているPu量が、HLWに含まれている量より多いために多量の熱を放出する事からも必要である。(使用済LWR燃料集合体の特性の項参照)もし使用済燃料集合体を再取り出し可能な状態で貯蔵するとすれば、最大熱負荷は将来30~36KW/エーカーに減らす必要がある。この減少処置は、使用済燃料集合体を貯蔵所内で大きな支持構造なしに25年間回収できるようにしておくためである。

OWIで調査したその他の予備結果について下記に示す。

1. 使用済燃料集合体の解体は好ましくない。
2. 中間貯蔵期間の1年から10年への延長は、使用済燃料の集合密度を20%増加させるのみである。
3. 使用済燃料集合体処分容器として、PWR集合体1体BWR集合体2体保有できる、充填剤として砂をつめた標準の14インチ管が評価されている。
4. 2000エーカーの岩塩貯蔵所に、2000年までに発生する使用済燃料集合体を全て収納することができるであろう。

OWIプログラムは、現在継続中であり、1978年度中には、使用済燃料集合体の処理について炉に始まって、貯蔵所に設置されるまでのシステム解析が行なわれるであろう。

スウェーデンのASEA AB社では、使用済燃料をばね構造の金属容器に封じ込め、直径約50cm、長さ3mの成型アルミナ容器に入れるプロセスを開発した。一杯になった容器は、アルミナカバーでシールして、容器自体を一体化する。

初期の計画段階として、1985年までに地表貯蔵施設を提供する目的で、使用済未再処

理原子炉燃料施設の開発をリッチランドのロックウェルインターナショナルで、ERDAで制定されたプログラムによって進められている。その方法は、動力を用いない(Passive)空冷方式のみを使用し、初期概念としては25フィート間隔に配置した浅い縦穴(wells)を使用することで、その縦穴は耐蝕性材料で囲まれている。使用済燃料集合体を1体あるいは数体その縦穴に設置した後、穴を密閉し必要に応じて保護(shielding)を行なう。縦穴1つに対してPWR集合体で1体、BWR集合体で2体貯蔵できる。

ERDAプログラムでは、概念設計を実施すると同時に必要なR&Dを行うことを提案している。開発の第一段階として、温度分布を測定するため、縦穴に電氣的に加熱できる模擬燃料集合体を挿入するだろう。この研究は、集合体をサイト内で封じ込むと仮定して、温度制御、機械的強度あるいは封じ込め(containment)の増大に対して、どんな充填材が必要であるか決定するために行われる。

計画中のプログラムは、R&Dの妥当性を評価できる所まではまだ発展していない。

4 現在の状況とR&Dの可能性の解析

スウェーデンでの1年たらず、アメリカでの半年以下の使用済燃料ピンの最終処分における重要な考察を行なった結果、2、3のR&D成果が得られる。前述の概念は、唯一の知られた研究である。

これらのきわめて予備的な解析は、処分可能な固体廃棄物形態として考える場合、使用済燃料集合体が適していることを示している。しかしながら、再取り出し可能な貯蔵や最終処分に合った集合体の可能性の決定や調整方法の規定には、今後の研究や試験が必要である。

以下の研究は、再処理固体廃棄物が到達したレベルに最終処分形態としての使用済燃料の知識を提供するには最小限必要であろう。

1. 相当量以上の情報が、アクチノイドや核分裂生成物の主な封じ込めに役立つ酸化物の様な、使用済燃料中に現に存在しているあらゆる段階に必要なである。
2. 貯蔵所での取扱いを容易にし、且つ安全性を高めるために使用済燃料集合体を金属容器に入れたことが望ましいと思われるので、これらの容器の候補材料を挙げ、研究を行なわなければならない。
3. 何か酸化物の充填剤が燃料ピンと容器の隙間に用いられることは確実である。これらの材料の分子工学(molecular engineering)は、直ぐに開始されるであろう。
4. 使用済燃料ピンについても、他の廃棄物形態と類似の浸出性、安定性、廃棄物と岩盤との相互作用といった研究を実施しなければならないであろう。

予備計算によれば、岩塩貯蔵所で許容される熱負荷は使用済燃料の崩壊により200~300年過ぎから熱出力が高くなるためHLWの場合の許容熱負荷より下げなければならないだろう。

処分形態として使用済燃料の主な欠点は、(1)最大許容熱負荷が低い、(2)貯蔵所内に多量の Pu と U を含んでいるため長期に渡って潜在的危険性 (potential hazard) が增大する、(3)貯蔵所が破られた場合に臨界になる可能性がある。

主な長所は、使用済燃料を処理することによって発生する廃棄物の量を最小限に出きる点で、(1)低コストであり、(2)短期間の安全性を増大させることである。また、種々の LLW や ILW を処理することや取り扱うこともなくなる。

使用済燃料の地層貯蔵や地層処分について OWI で着手した研究プログラムと地表貯蔵に対するロックウェルのプログラムは継続されるであろう。そして、これらの研究プログラムの指示通りに試験研究が着手された。

注. 1) 連邦規制コード Title 10, part 20 に明記されているように、自由に使用できる所まで各同位体を希釈するのに必要な水の総量

12章 放射線の影響

放射性廃棄物を含有するのに用いられる固化体への放射線の影響に関して集中的な研究はこれまでに行なわれていないが、研究機関ではしばしばその可能性について関心を示している。そこで、考えられる種々の固化体への各種放射線の影響の可能性全てについて評価することが重要である。固化体の遭遇する放射線レベルで起こるそれらの影響のみが考えられるのではなくて、固化体が処理、輸送、保管の際に経験するあらゆる出来事や変化の前後関係についてその影響を調べるべきである。

1 種々の固化体の安定性に及ぼす放射線の影響

放射性廃棄物の一次および二次封じ込め物質を選択する場合に考慮すべき重要な点は、封じ込めている廃棄物から発生する放射線の連続照射下におけるその安定性である。安定性とは、放射化学的分解、過剰の寸法変化、脆性の増大、物理的強度の低下に対する抵抗力を意味する。

一般的タイプの固化体の物理的特性に及ぼす放射線の影響についての知識の大部分は既に存在し（レビューとしてBillington and Crawford〔1960〕参照）、ガラスについての最近の研究（Hall et al. 1976, Mendel et al. 1976, Primak 1977）では、特殊な廃棄物形態での放射線の影響問題のデイメンジョンについての洞察を行っている。

放射線不安定性が重要な問題である期間は、廃棄物が（使用済燃料の形で）炉から取り出された後、最初の10年間である。最初の10年間を強調する理論的根拠は、全放射性崩壊の相当重要な部分がこの期間に起こることによる。

本質的な構造的損傷の原因となるのに必要な放射線レベルに関する我々の知識から、この最初の高速（high-flux）期間以降の構造的損傷は取るに足りないであろうということが明らかである。最初の10年間の主な不利となる放射線の影響はガス状生成物の発生を促進する化学的反応性であり、そのような増加の影響は第二期においては微々たるものであると予想される。それ故、最初の10年間にわたる放射線に対する集積照射は最も重要であり、より長期間に渡っての照射はさほど重要ではない。

我々はまず、放射線のタイプと結晶格子やガラスの網目構造に生ずる損傷の性質について考えた。HLWにおいて、核分裂生成物が主な初期の強力な放射線源である。アクチニド（Pu, AmおよびCm）の寄与は、核分裂生成物が一般にアクチニドより短い半減期で崩壊するので、もっとあとで比較的重要性を増してくる。それで、固化体は強い γ 線および β 線束と、アクチニドからのより低い α 粒子に耐えることができなければならない。各タイプの放射線の結果については別々に考慮されている。

(1) γ 放射線および β 放射線

γ 放射線および β 放射線は主に原子やイオンを電離することによって固体と反応する。ここで主な影響は放射化学的である。即ち、共有結合の切断（ガラスにおいてはストレス緩和に寄与するので最も重要）、水素の転移（relocation）を伴う OH^- および H_2O 分解、金属イオンの原子価変化、それに例えば NO_3^- のような不安定分子イオンの分解である。例えばアルカリ金属ハロゲン化物やアルカリ土類金属ハロゲン化物のようなある物質においては、イオン化それ自体が固有の格子欠陥を引き起こす。即ち空格子位置(vacancies)や、非化学量論的位置への侵入(interstitials)。種々の電荷状態で起こるこれらの欠陥は一般的な着色中心の原因となり、又重要な化学分解（アルカリのコロイド状粒子、ボイド、あるいはハロゲンガスを含む気泡）を引き起こし得る。 γ 線はコンプトンや光電子の媒介で作用するし、 β 線は直接に弾性衝突の際の運動量移行による格子原子の置換を起こす。しかし、この直接の“たたき出し(knock-on)”プロセスに対する断面積はかなり小さいので、そういう γ 線や β 線に起因する直接置換効果はほとんど期待できない。

(2) α 粒子

α 粒子は固体中で非常に短い範囲においてそのエネルギーを失う (10^{-3}cm)。エネルギーの大部分はイオン化で失われるけれども、ある割合 (1~2%) は周囲の固体の原子と弾性衝突を起こし、それによって置換連鎖(displacement cascades)を開始する。即ち、衝突による一次、二次、三次反跳により原子が置換される。結果は結晶性固体における格子欠陥の領域であり、あるいは α 粒子の飛跡範囲でのガラスにおける網状組織の損傷(即ち、共有部分の切断と SiO_4 四面体の破壊)である。物質によっては一次の衝突で100~1000の置換が起こり、衝突後直ちに実質的復帰が起こっても、 α 粒子に従って高濃度の空孔と侵入原子が予期される。 α 粒子を放出する反跳原子核も実際に損傷を引き起こすことができる。

再処理された使用済燃料廃棄物に対し、累積線量は最初の100年間に 1cm^3 当り 2×10^{16} α 粒子(Mendel 1975)であり、最初の10年間にそのうちの約1/4であると予想されている。そこで、 α 粒子束に影響される範囲において、実質的な格子および(あるいは)網状組織の乱れが予想され得る。考えられる種々の廃棄物形態に対する結果については以下の関連したセクションで述べる。

包蔵マトリックス中の α 粒子損傷の量を制限する最も重要な因子はおそらくアクチニドの寄与の仕方である。短い α 範囲はまず仮焼体粒子の大きさより大きくはない。それ故、もし廃棄物が仮焼体粒子の形態の中に存在していれば、大部分の置換損傷は α 核種を封じ込めている仮焼体に制限される。仮焼体はまず第一に結晶性に乏しく、置換損傷によって

一層影響されやすい。しかし、 α 核種が原子的に廃棄物中に分散していれば固化体全体は何らかの損傷を受けるだろう。この損傷の大きさは、蓄積エネルギーの見地からせいぜい1グラム当り数カロリー程度であることが明らかにされている (Mendel 1975)。

上に述べた点は再処理された商業用廃棄物にあてはまる。もし未処理の使用済み燃料ピンが処分されるとするとそれはキャニスター中に包蔵される。この場合、 α 粒子はピン内に封じ込められているので、燃料ピンの外側では α 損傷は起こらないであろう。しかし、燃料酸化物内部ではこの構造損傷は最大となるであろう。事実、照射燃料の研究では予想される損傷の大部分が示されるであろう。

(3) 中性子

高速中性子は超ウラン元素の自発核分裂や(α , n)反応により生成することが既に言われている。しかしながら自発核分裂の割合は極めて小さく、(α , n)反応の断面積が小さいという観点から、この発生源からの中性子は無視できる。

要するに、 α 範囲にある廃棄物固化体の範囲を除いて最も重要な放射線の影響は性質において放射化学的であり、核分裂生成物から放出される高束の β 放射線および γ 放射線に関連していることが明らかである。

2 固化体特性への影響：廃棄物形態に対する潜在的悪影響

(1) 放射化学的影響

先に述べたように電離放射線は、分子種や分子イオンの放射化学的分解(放射線分解)の原因となる。これらのうち最も一般的なものは H_2O と OH^- の分解であり、これは固体の空げき(interstices)への原子状水素(H)放出の原因となる。その小さなサイズのためにHはほとんどの物質を簡単に拡散し他の格子位置に結びつく。それが固定化される最も普通の形はあるポケットあるいは孔における H_2 としてである。先に示したようにアルカリ金属ハロゲン化物やある種のアルカリ土類金属ハロゲン化物は放射線分解を起こし、高いレベルの照射によって金属粒子のコロイド状分散および気泡の原因となる。

他の良く知られている例は硝酸イオンであり、これは比較的化学的に不安定である。電離放射線の存在下で NO_3^- は酸素ガスと窒素酸化物とに分解する。この後者の放射線分解プロセスは、高い硝酸塩濃度である軍用廃棄物の場合にかかなり重要である。こういう放射線分解の影響はスエリングの原因となり、極端な場合には廃棄物形態の物理的特性に不利な影響を与える。これらの影響については実験的に確められてはいない。コンクリートにおける水素発生に関する現在の研究がこの問題を解決するであろうと期待されている。

(2) 膨張および寸法変化

極度の膨張は回収可能な期間内に廃棄物容器を破裂させるかもしれないので、それは放

射線の悪影響であると考えなければならない。膨張は2つのカテゴリーに分類される。(1)格子や網状組織の欠陥に関連した蓄積された原子スケールの応力による結晶格子やガラスの網状組織の膨張によるもの、(2)ボイドや気泡の形成によるもの。

欠陥によって生じる膨張は主として、通常の格子位置にある原子やイオンの間に入る侵入物質により起こる。Henderson と Bowen (1971) は中性子照射したマグネシウム酸化物において酸素空孔/酸素侵入物、当りの膨張は約9分子容というかなり大きな変化であることを観察している。これらの影響は、欠陥間の分離が数格子距離であり侵入一空孔の再結合の起こる可能性が高くなった時飽和する。SiO₂のような網状形成剤において、侵入のまわりでの簡単な膨張(dilatation)は事実格子崩壊を起こし無秩序なガラス状構造となる。通常はその際に比容(specific volume)の増加を伴う。しかしながらこれらはむしろ特異なケースであって、廃棄物形態に蓄積されたフルエンスはどの場合もけっして完全に飽和するに十分な大きさは期待できない。

ボイド形成は格子空孔の合併により起こる。 α 粒子や陽子の存在下ではこれらボイドはヘリウムや水素を気泡の形で蓄積する。この事態は高束原子炉内の構成合金内の重大なスエリング問題として存在する。一方、これらのプロセスが起こるフルエンスは廃棄物固化体マトリックスにおいて予想されるよりもかなり高い。しかしながら、放射線分解の気体(H₂, O₂, NO etc)の蓄積によって小さな孔や割れ目がマトリックス内に生じることによってスエリングの状態に近づくこともあるということも考えられる。明らかに、そのような蓄積から来る膨張の程度が、廃棄物の組成、廃棄物固化体の構造、包蔵された放射線の強さに敏感に依存するものである。これらの因子のいずれかが好ましくない特殊な場合においてのみ膨張は重大な問題となることが予想される。

(3) 蓄積エネルギーの起こり得る急激な放出

侵入物の導入、電子および孔のトラップ、および共有結合の切断、全てが結晶やガラスの内部エネルギーを増加させる。この増加が蓄積エネルギーと言われている。高くした温度での熱処理によりほとんどの格子欠陥が取り除かれる。空孔は侵入と再結合し、電子と孔はトラップから放れ再結合する。これら回復プロセスは熱として表われる蓄積エネルギーの放出を伴って起こる。もし多大の蓄積エネルギーが狭い温度範囲で放出されれば温度の遷移が起こる。

急激な放出に合うような蓄積エネルギーの放出スペクトルをもった物質はグラファイトであり、200°Cでシャープな放出ピークを示す。約20年前、ウィンズケールの炉内で燃料金属片の破損をもたらしたのは、明らかにこのピークにおいての大量の蓄積エネルギーとシャープな温度変移との関連効果であった。決定要素はエネルギー放出スペクトルの性質、即ち放出スペクトルの初期でのシャープな放出ピークが必要だという性質であると思

える。(その放出スペクトルは昇温サイクル中のある温度に対する単位温度上昇当りの増加エネルギーである。) ガラスやほとんどのセラミックに対しては、この放出スペクトルは見られず、そのエネルギー放出は広い温度範囲にわたってより均一に分布している。それで、蓄積エネルギー放出の結果生じるコントロールできない温度変移は、現在考えられている廃棄物固化体にとっては起こらないであろうと思われる。

(4) 高められた化学反応性および溶解性

格子(網目構造)および電子組織に対する放射線損傷により内部エネルギーが高められるので、化学反応性および溶解性(浸出率)の増加が予想される。そのような効果についての明らかな証拠はほとんどないけれども、特別なシステムにおいてはこの可能性に注意すべきである。

しかしながら、含有エネルギーの大きさからすると(前節を参照のこと)、廃棄物の環境で起こりそうな ΔG の寄与は無視できそうに見える。

(5) 核変換

核分裂生成物の放射性崩壊による別の結果は、異なった化学挙動をする他の元素への核変換である。これら娘核種は元の核種が封じ込まれていた特殊な相において安定であったり不安定であったりする。一方、そういう影響はガラスマトリックスにとって重要なものとして現われないが、セラミック相の安定性や強度が減少するかもしれないという状況を考えることは可能である。例えば ^{90}Sr は崩壊して ^{90}Y に変わるが、これは不安定で、更に64 hrの半減期で崩壊して安定な ^{90}Zr に変わる。このような SrTiO_3 相において、 ^{90}Sr はその大部分が ^{90}Sr の半減期(28年)の数倍の間に ^{90}Zr に置き換わるであろう。又、興味あるのは ^{137}Cs から ^{137}Ba (安定)への半減期30年の崩壊である。ポルサイト($\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$)の安定性にとってのこの崩壊の結果、即ち ^{137}Cs の固定化に対する潜在的可能性、についてはまだ確められていない。これら2つの場合(^{90}Zr および ^{137}Ba)その崩壊生成物は安定核種でありそれ自身についてはあまり関心がないけれども、その置換の構造的化学的影響によって選ばれたセラミック相を不安定にするかもしれない。それで、そのような核変換による化学的影響がいかなる重要な結果をもたらすかは明らかでないが、その影響は少なくとも放射線損傷の影響と同程度に重要であるので、この種の問題は更に広範囲に調べなければならない。

3 特別な廃棄物固化体に対する放射線の影響の結果

(1) スーパーカルサインおよび仮焼体

固められていない仮焼体粒子では、放射線の影響は重大な結果をもたらさであろうと思われる。それが比較的開放的で結晶性に乏しい構造であるので、 α 粒子の衝突による膨

張は最終貯蔵以前に予想される膨張の数十%であっても重大ではないであろう。膨張は更に破片への分裂に結びつき、平均粒子がより小さくなる影響が生じるであろう。放射線の影響の大部分は金属イオンの原子価の変化およびアニオンラジカルの分解、あるいはもしあれば蓄積エネルギーの蓄積に限られるであろう。ほとんどの物質において、電荷の再分布および放射化学的分解の影響は300°C以上の温度への加熱によって取り除かれ得るので、貯蔵されたキャニスター内で予想される温度上昇により放射線の影響は極小化されるであろう。熱処理しなくても、蓄積エネルギーは過剰ではないであろう。定位置からはずれた各電子に対し5 eV、室温で影響を及ぼす格子点に対する飽和度を0.5%と仮定すると全蓄積エネルギーは2~3 cal/gであると予想される。蓄積エネルギーは定位置からはずれた原子にもよるがその量はイオン化によるものと比べてさほど大きくない。そこで、室温における飽和蓄積エネルギーはほとんどの物質に対して10 cal/gを越えないはずである（しかし、Roberts et al. 1976 参照）。ほとんどの場合、置換損傷は上昇温度で蓄積されるので、その蓄積エネルギーの量はこの値よりも小さな割合になると考えられる。そこで、たとえ“瞬時放出（triggered）”されても温度変移は取るに足りない程度であろう。

(2) セメント複合体

α 粒子の損傷はどのようにアクチニドが第一次封じ込め相内に分散しているかによる。もし、スーパーカルサインやセラミック相の粒子が本質的に不溶性であり、その大きさが α 粒子範囲に比べて大きければ、比較的損傷は蓄積しないであろう。この不均一相内にアクチニドが均一に分布していても、多相廃棄物固化体は重大な結果をもたらさないと予想される。置換損傷は、主に石英（砂）のような“充填（filler）”粒子および仮焼体自身の内部で膨張を起こし、最大1%の体積増を起こすであろう。大部分のコンクリートは多孔性なので、例えば過度の破碎等の重大な結果を生じたりせずにこの膨張は調整される。 α 粒子による別の結果は、普通、小さな気泡としてのマトリックス中へのヘリウムの取り込みである。高い貯蔵温度ではヘリウムはコンクリートマトリックス中を容易に拡散すると予想される。即ち重大な内部歪の増加は避けられるであろう。

電離の影響には H_2O や他の分子状イオンの放射化学的分解が含まれ、種々のイオン種の原子価変化により明白なトラップされた電子や孔も同様に含まれる。仮焼体だけの場合には、ガス状の放射線分解生成物である気泡による内部応力による影響の場合を除き、こういうプロセスからの不利な結果は何ら予期されない。蓄積エネルギーは仮焼体にとって過剰でないと思われる。しかし、あるソビエトの研究者（Sakharov et al. 1967, Spitsyn et al. 1967）によって、水の分解により生じた放射線分解ガスは、もしコンクリートが用いられれば危険性を示すであろうと発表されている。水素はコンクリートか

ら拡散するので、キャニスター内の H_2 のトラップが確かに保留の源である。コンクリートの放射線分解の範囲に関する更に良い情報は、その興味が失われる以前に必要なである。加速器のビーム中で α 粒子に照射された薄いコンクリートスラグ内に蓄積された水素の実験は、この可能性を評価するのに適当な情報を提供するはずである。

ここで、照射環境下でのコンクリートの有効期間は非常に良好であることを指摘されるべきである。初期の原子炉の生体遮蔽のほとんどはコンクリートによる建設であり、これら原子炉は依然として操業中である。この遮蔽体およびコンクリートプラグの内部表面は依然効果的であり、可能性のある廃棄物形態に関する全有効期間に予期されるより以上の線量が積算されているということは重要である。

コンクリートは低レベルおよび中レベル DOE 廃棄物に対し魅力的な廃棄物形態であるし、硝酸塩はこの廃棄物の主要な構成要素であるので、コンクリート内部での硝酸塩の放射線分解の結果も又当然注目される。 NO_3^- イオンは比較的不安定であり γ 照射により容易にガス状生成物（酸素および窒素酸化物）に分解される。コンクリート内のボイド空間は大量の気体を収容すると予想されるが、貯蔵条件下での廃棄物の放射エネルギーの関数としての NO_3^- 放射線分解の影響についての実験的評価が行なわれる必要がある事は明らかである。

(8) ガラス

熔融状態において、ガラスはほとんどの放射性核種を溶解するので、原子スケールでのアクチニドの分散がコンクリートに比べてより一層起こるはずである。それ故ガラスマトリックス中で α 損傷が認められる。室温あるいはそれに近い温度での、種々のエネルギーの照射粒子を用いたこれまでの研究 (Hall et al. 1976, Mendel et al. 1975, Mendel et al. 1976, Primak 1975) で、種々の物理的特性における変化が示されている。これらの影響の性質はガラス組成に敏感である。即ち膨張と収縮の両方が観察されている。熔融シリカは室温で速中性子に照射されると収縮が 4% にも達する。

真の影響はいくつかの相反するプロセスの大きさに依存することが指摘されている (Primak 1975)。即ち、シリカ網状構造の電離および分裂では収縮が起こる。その収縮とは即ちシリケートガラス中での SiO_4 四面体のより無秩序な配列である。気泡の形態としてのガスの保持 (我々の場合はヘリウム) は膨張の原因となり、それはある特別なガラス形成剤の組成変化と同様である。多くのガラスはヘリウムに対し浸透性があるが、アルカリあるいはアルカリ土類イオン濃度の増加はヘリウムの拡散速度を著しく弱める。こうして、外部から α 粒子を照射されたカルシウム含有ガラスでは膨張が支配的であるし、同様の影響が α 粒子の内部照射についても予想される。廃棄物中のアクチニドにより生ずる α 粒子照射の予想される影響は、あるガラス組成では ^{244}Cm および ^{238}Pu のような短

半減期の α 核種の添加によって模擬されている (Hall et al. 1976, Mendel et al. 1976)。即ちこれら核種の使用はプロセスの加速を起こしている。体積膨張と収縮の両方が観察されており、2000年にわたって貯蔵されたHLWから発生するのと等価な照射に対し、 25 cal/g に及ぶ蓄積エネルギーが記録されている。決まった照射時間に対する蓄積エネルギーの量はその試験片が保持された温度と逆の関連性のあることがわかった。350°Cあるいはそれ以上で保持されたサンプルについては蓄積エネルギーの放出は観察されなかった。

β 放射線および γ 放射線に起因する電離は、 α 粒子飛跡につれてと同様にガラス特性に多少の影響を与えることができる。しかし一方、これまでの研究の大部分は溶融シリカに向けられており、我々の目的にとって一般的でない場合であり不十分なモデルである。電離プロセスを伴う共有結合の切断によってガラスの網状組織に与えられる融通性のために、応力の緩和および負荷時のクリープが予想される。しかしこの点に向けられている研究はあまりない。網状組織欠陥(ぶらさがり共有結合(dangling covalent bond))でトラップされた電子および正孔と金属イオンとによりある種のイオン、特にアルカリ金属イオンの移動が促進され、それらの化学的安定な位置での密度を減少させる。特定の成分の安定性において明らかにこの減少に関連している影響がPrimak (1975)によって報告された。彼は陽子衝突後のいろいろなガラス組成の表面で水分の小滴を観察した。これら水滴は、放射線の影響を受けた層を通して Li^+ および Na^+ が外部へ拡散した結果として表面上で形成した Li_2O および(または) Na_2O の潮解性によるものである。洗浄後数週間でそれらは再びできる。電離に加えて原子置換が、この化学的不安定性を生じるのに必要かどうかはまだ明らかではない。

ガラスは放射性廃棄物にとって適当な固化体であろうということが明らかになるであろうが、放射線の場合における化学的、機械的、形状的安定性についての知識は、ガラスを“満足できる(comfortable)”選択物として決めるのに完全に十分というわけではない。事実、施設の条件下で到達する温度に相当する高い照射温度でのガラス安定性については何も知られていない。そういう情報は、廃棄物固化体としてのガラス組成の安定性が決定される前に必要となるであろう。施設の条件下で期待されるのと同様な熱勾配の影響も評価されなければならない。そういう勾配はいろいろな成分を分離する化学的な起動力として加わり、化学的安定性に影響を及ぼすかもしれない。放射線は失透プロセスを助け、ガラスの強度に影響を与えると、長い間予想されてきたけれども、この点に関する定量的データはほとんどない。化学的安定性を弱める種々のプロセスが浸出性や、再結合性と断片に関しどの程度その割合を増加するかということに何ら確信をもって述べられていない。それ故、放射線の影響の見直しから、廃棄物固化体としてのガラスの性能はどこか不確実

である。しかし、これらの影響全ての大きさにより最初の十年間あるいは二十年間の貯蔵、更にはそれ以後も、大した変化は予想されないことが示されている。

(4) 金属マトリックス

放射線の影響に関し、この廃棄物形態は競争相手が無い。廃棄物は第二層物質に包蔵されているので、金属における永続的な電離の影響はないし、置換損傷中最少限保たれるであろう。たとえば、第二層のかなりの膨張が起こったとしても、金属はそれに適応できるだけ十分に柔軟性があると期待されている。

(5) セラミックス

特に調整されたセラミック廃棄物固化体にとって、核分裂成分およびアクチニドが直接に取り込まれた構造の化学的安定性の点ですぐれた場合も起こり得るけれども、 α 粒子に起因する格子損傷 (metamictization) はガラスにおいてと同様セラミックスにおいてもかなり大きい。極端な例としての水晶は室温で 15% の飽和体積増大を示し、大部分のペロブスカイト、スピネル、ルチル構造では 5% が最も一般的である (Crawford and Wittels 1956)。しかしながら、これらの膨張レベルはわずかに中性子フルエンス $> 10^{19} \text{ cm}^{-2}$ に相当した。先に示したように、最初の十年間に予想される α 粒子フルエンスはわずかに $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-2}$ であろう。ここで約 0.5% の膨張が期待できるであろう。さらに貯蔵中の廃棄物固化体に相当する高い温度では格子損傷が熱処理によってある程度減少することは疑いないことなので、これらの値は減少するし、したがって最初の十年間での重大な要因とはならないであろう。作成した廃棄物に十分な多孔性を与えておくことによって適当な膨張に対応することは可能であるにちがいない。しかし、必要とされる多孔性の量は、多分模擬した施設の条件下で、問題のセラミック構造について決定されなければならない。

13章 廃棄物固化体と岩石との相互作用

一旦、廃棄物固化体が地質構造中に置かれれば、廃棄物固化体とその周囲の岩石との間には相互作用が存在する可能性がある。ある固化体においてはこのような相互作用は必然的なものであるが、又、ある固化体においてはこのような相互作用は、再取出し可能な期間では無視できる。 $10^3 \sim 10^6$ 年の期間と、 $200 \sim 800^\circ\text{C}$ の温度でいくらかの水が存在する条件下では、おそらく固化体容器は実際に考えられるすべての場合に、浸食されるであろう。その結果としては、廃棄物固化体、飽和水溶液、周囲の岩石の3つの要素間の直接的相互作用となる。

この相互作用は避けることができないので、貯蔵、処分を考慮した廃棄物固化体を選択する際には、この廃棄物-水-岩石の相互作用の影響を、廃棄物固化体の種類と岩石の種類とのそれぞれの組み合わせに対して考慮せねばならない。廃棄物固化体と周囲の岩石との相互作用の領域は Fig 13.1 に示してある。

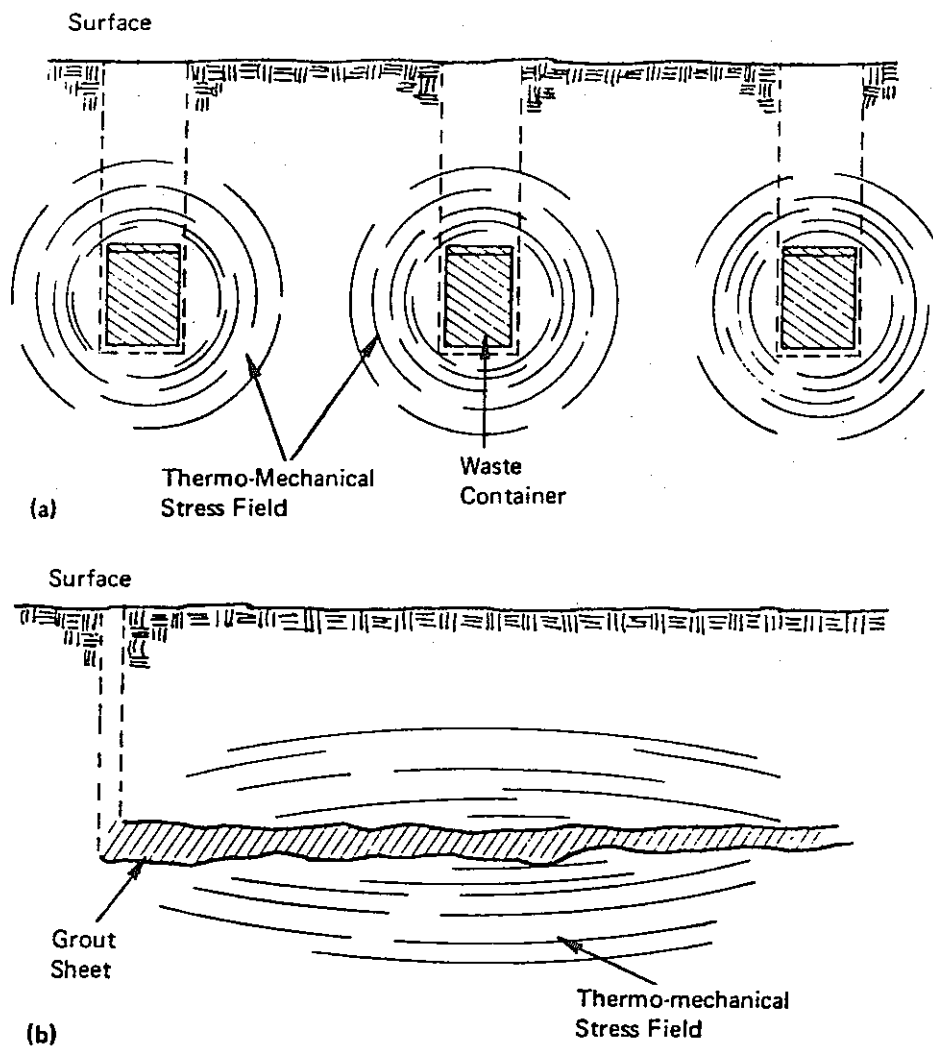


FIGURE 13.1 Thermal effects of solid waste on host rock. Emplacement of (a) waste canisters and (b) grout are shown.

1 物理的相互作用

廃棄物／岩石の相互作用の主たる物理的効果は、廃棄物の熱出力から生じてくる（Fig 13.1を参照）。この熱出力と岩石の熱拡散率によって、廃棄物の表面温度、岩石自身の温度を決定できる。その効果は、岩石の熱的、機械的性質に依存する熱応力と力学的な応力によって構成される。廃棄物と岩石の性質を組み合わせれば、特定の地質構造におけるキャニスターの数量と配置を決定できるであろう。この問題は14章で考慮されている。

2 化学的相互作用

固化体と岩石との相互作用の及ぼす構造的化学的影響はこの章における我々の根本的関心事である。Fig 13.2及びFig 13.3はこれらの影響をそれぞれ巨視的、及び微視的に図示したものである。

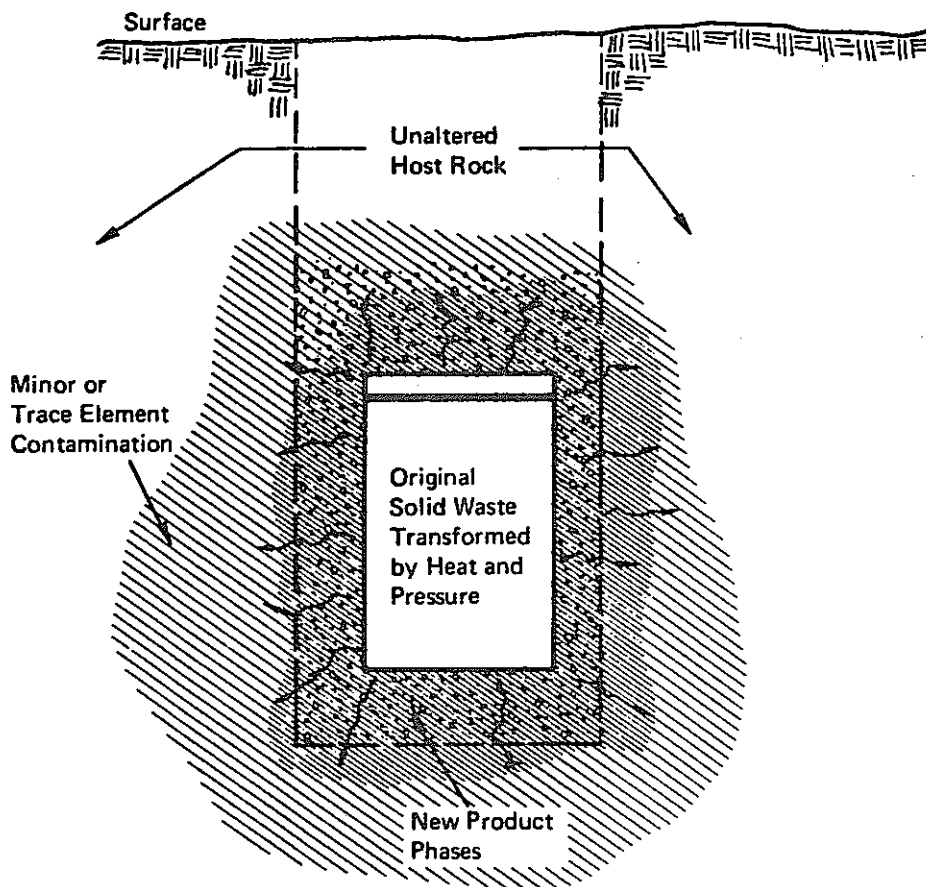


FIGURE 13.2 Chemical effects of waste-rock interaction on a macroscopic level.

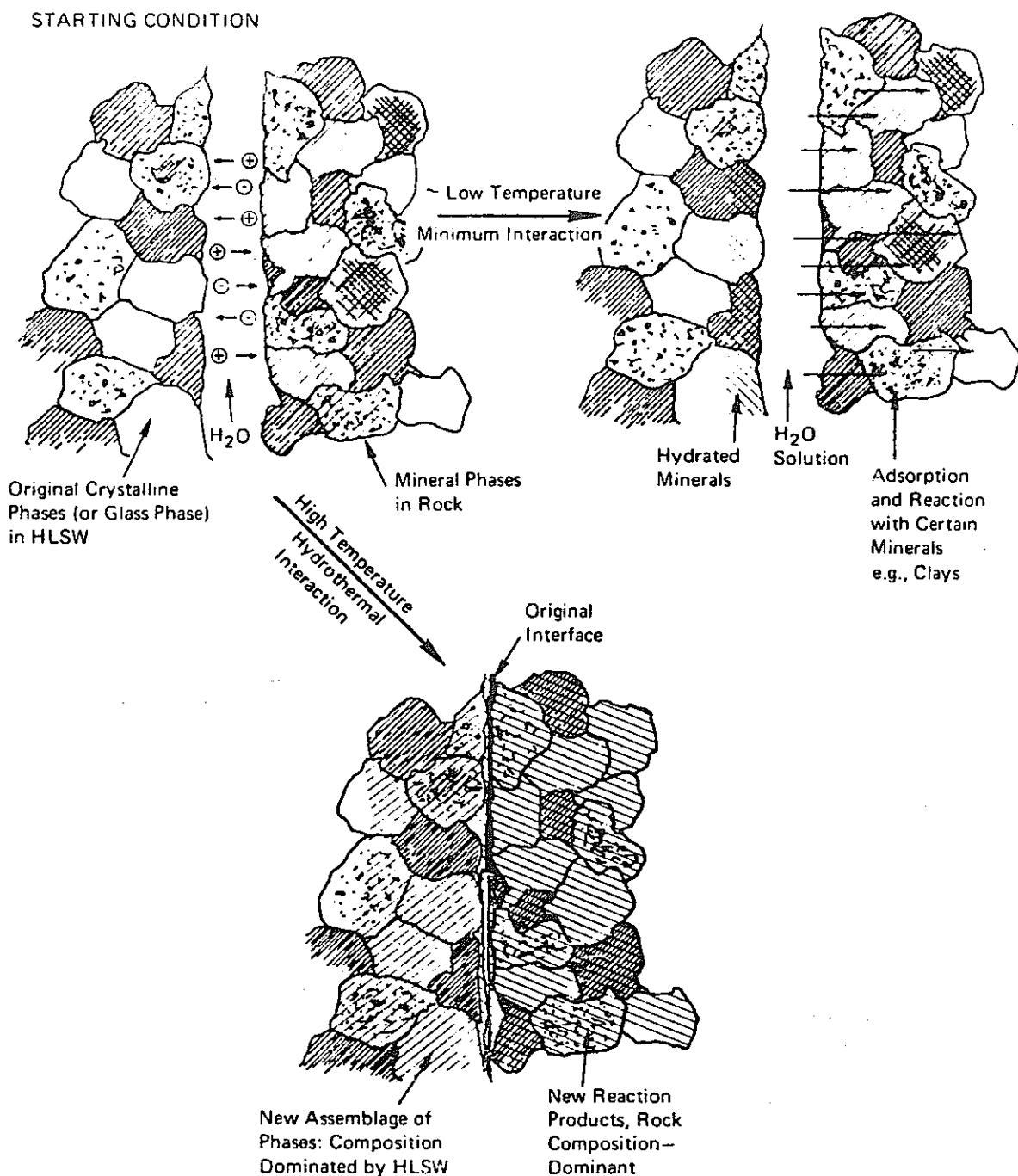


FIGURE 13.3 Chemical effects of waste-rock interaction on a microscopic level.

巨視的には廃棄物は岩石と反応し、反応生成物の領域を形成する。その反応の範囲と生成物は、廃棄物と岩石の組成、周囲の温度と圧力、水の有無によって決まってくる。最初の廃棄物固化体がゆっくり浸出し、地下水にイオンを連続する点源として放出するモデルは、単純で正しくない。遭遇するであろう温度と圧力（乾燥状態で 200℃, 100bar からの水蒸気

中での 800 °C, 500 bar までの間), そして特に塩の中の泡から出た水分や, 岩石中の水和無機物, 及び地下水が存在すれば, 一度キャニスタが侵食されれば数日或いは数週間で確実に反応が進行する。

酸化還元電位, E , も又重要な変数である。この反応に対する driving-force は, もはや水中での溶解度ではなく, 平衡状態にある相と準安定な集合体: 廃棄物相と岩石中の鉱物相, との間の ΔG である。イオンは廃棄物からだけでなく岩石からも浸出される。イオンは粘土のような特別な鉱物によって吸着されるだけでなく, 粘土と反応し新しい相を形成する。

Fig 13.1 に示されているような低温でのモデルは, 廃棄物の熱出力が低い:(a), 或いは廃棄物キャニスタから離れている場合:(b), にのみ起こるのであろう。より高温でのモデルが一般的であらう。

熱水反応についての刊行物が実験岩石学の分野における戦後の文献の大部分を構成している。この研究では, 種々の組成の岩石を地球に存在するような熱水 (高温+高水圧) 条件下で反応させている。変成岩石学の分野, 特に接触変成は我々が考えているような条件と非常に類似した条件に関係している: それは化学的に異った高温物体をあらかじめ存在する地質構造に侵入させる。数千編にもものぼる論文の結論によれば, 上記条件の範囲で反応はいっそう急速に進むことが明らかに確立されている。実際その時間的な尺度は, 数百年ではなく, 数ヶ月, 数日のオーダーである。ただし, それは勿論温度と組成に強く依存する。ここでの我々の議論に最も直接関連する研究は, Hawkins と Roy (1963) のものである。彼らはガラス質及び結晶質の同じ組成の材料を目下関心のある圧力温度条件下で比較した。そして玄武岩組成のガラスが数日間で急速に侵食され, 一方結晶質の方はほとんど変化しなかったということが示された。しかし核分裂生成物を含むガラス及び結晶質の物質についての実験的データはまだ得られていない。

ただ過去数ヶ月間においてのみ, その問題が研究され始めた。その論題の範囲は, 1977年6月に, ペンシルバニア州立大学で開かれた最初の会議 (ペンシルバニア州立大学 1977) に概要が述べられており, その時には予備的なデータが, 国立研究所からの数人の研究者達, 米国地質調査所及び幹事大学により報告された。これら X線, 走査型電子顕微鏡, X線-マイクロアナライザのデータによれば, 模擬廃棄物含有のガラスが, 250°C~300°C の岩塩或いは限定された量の水との接触により急速に (数日間) 変質していることが明らかになった (Roy 1977)。一方新しくできた相が何であるのか, すべて解ったわけではないが, Cs が Pollucite に変化することを述べているのは興味深い。この観点に立てば, 反応生成物中の Cs は, 反応前の廃棄物固化体よりは浸出され難いことになる。当然, 我々は, 問題としている放射性核種のすべてに何が起こるのか決定しなければならない。

相平衡と関係元素の組成と量を考慮することにより, うまく計画された実験計画によって, 合理的閉鎖系の中での有望な最終的集合体について十分な評価を得ることができるだろう。

これらの本質的なものが事実上新しい廃棄物の型になるであろうし、浸出或いは、放射性核種の地下水への移行を長期的な立場で考慮しながら関心をこれらに対して向けねばならない。

廃棄物/岩石の相互作用の熱力学を考慮に入れていない以下の地下水モデルは、イオンの移行という点でおそらく数桁程度、控え目に考えている。例えば、10フィートの粘土質頁岩床は廃棄物から浸出されるかも知れないような廃棄物放射性核種のすべてを保持する。頁岩は低温においてイオン交換樹脂として機能するし、高温高圧下においては新しい相を生成する。

Table 13.1 は種々の固化体と周囲の岩石との相互作用の傾向と程度を示したものである。

TABLE 13.1

Qualitative Relative Indication of Waste-Rock Interaction

	Salt	Shale	Basalt	Granite
Supercalcine	Very high	Moderate (Self-crystallization)	Moderate (Self-crystallization)	Moderate (self-crystallization)
Glass	Very high	Very high (500° C) High (300° C)	Moderate	Moderate
Ceramics	High	Very low at HT Very, very low at LT	Very low	Very low
Metal Matrix Forms	Depends on dispersed phase - Matrix nucleate effects noted above			
Cement Matrix Forms		Substantial at HT (500°C) Low - Very low (300°C)	Low - Very low	Low - Very low

HT = high temperature
LT = low temperature

14章 地質学的考察

1 序

中期的将来において、高放射性廃棄物の隔離に対しては深部陸地層隔離を選択することが好ましいと一般的に合意されている。さらにDOEは、永久処分の概念は原型プラントを用いて試験されなければならないし、予期しない漏れ、或いは将来の漏れが指摘された際には廃棄物は修復され得なければならないという立場を維持している(Pittman 1972)。この再取り出し性の規準には事実上廃棄物を地質構造に置く適当な手段として、詳細が明らかになっている一般の鉱坑がある。他に提案されている設置方法は永久処分を複雑にするし、その場合には廃棄物の再取り出しが既存の技術では不可能で、断念せざるを得ない程に費用がかさみ、設置そのものより相当困難である。

一旦、放射性廃棄物が地層処分地に置かれ、処分地が永久的隔離の為に密封されれば、廃棄物中の放射性核種が生物圏に再び入って来るのは、廃棄物含有岩石塊の物理的移動に依るか、固体状態拡散に依るか、或いは地下水による核種の溶解及び移送に依ることが原因となろう。自然の過程、或いは人類発生の頃から存在する放射線は考えられるところでは、放射性核種が生物圏へ移行し、生物圏に対して被爆させたと結論できるであろう。The American Physical Society (APS) の Study Group (1977) はこの両方の型式の破壊的事件の可能性のある発生と結果を評価した。結論としては、もし適地選定基準によるならば、現在の知識と技術は通常型式の鉱坑から造った適当な廃棄物処分場を設計し、その場所を決めるのに適している。

そしてその鉱坑は地表で核爆発或いは隕石が衝突した途端、瞬時に侵食されないだろうし、腐食によって損傷されないだろう。さらに、適当な基準を用いれば処分場が地殻変動と火山活動によって損傷を受けることはかなり非現実的なものとなろう。APS報告は、地層処分場に置かれた放射性廃棄物から予想される最も重要な可能性のある危険は地下水による移送である、ということを描している。

この章に主として関係している事は、提案されている処分地岩石の特性と、岩石と相互作用し得る廃棄物及び廃棄物形態の特性である。これら相互作用により、考えるところ処分地の長期隔離の完全性が影響されるであろう。廃棄物と岩石との間の可能性のある化学的相互作用は前章で議論された。

深く埋られた高放射性廃棄物を移送させる可能性のある重要な媒体は地下水だけである。結局、このような廃棄物の満足のゆく隔離は、適切な水理地質を持った処分地の選択にかかっている。好ましい水理地質条件下では、埋められた廃棄物から浸出された放射性核種の移動はかなり遅く、又問題となる期間で、核種は生物圏に到達しないような長い行程をとるで

あろう。それで、廃棄物の設置とその結果としての廃棄物／岩石の相互作用が、水理地質に不利な影響を与えないということが本質的である。

地層処分媒体のある特性によって、その水力学的移送特性の他に、HLWの隔離の安全性をさらに高める。たとえば頁岩は、これらの岩石を通して放射性核種が移動する速度を地下水移動速度より数オーダー減少させるような非常に好ましい吸着特性を持っている。ある化学的な影響については13章で議論された。それに対して、処分媒体の他の特性によって、放射能によって発生される熱に対し吸着特性が敏感になる。その結果、地下水や溶解された核種の移動がより急になるような変化（つまり破壊）を伴うかも知れない。

このようなわけで、高レベル放射性廃棄物の存在によりこれらの岩石の関連物性や性質が及ぼされるかも知れない影響や、これらの影響が廃棄物の隔離の完全性を支持するかそれとも次第に損ってゆくのか考慮することは重要である。深部地層処分場に放射性廃棄物を設置、存続させておけば、設置された廃棄物の極めて近傍の岩石において引き起された熱的効果、応力効果の結果として、自然環境が局部的に物理的変更を受けるであろう。

米国では、今まで開発されて来た貯蔵処分場に対する考察は通常の鉱坑に関してであり、岩塩床、岩塩坑、頁岩、石灰岩のような局地的な沖積層の岩石単位には、ほとんど排他的に制限されて来た。それはその性質に理由があり、外部から何の作用も受けていない沖積層の岩石は、水平に、又はほとんど水平に層を形成しているということ、空隙率の高い孔が流体（原則的には水）で満たされているということでその性質が説明されている。層状構造は非等方性であり、その為に、間隙に侵入した流体の通る可能性のある道筋が存在するだけでなく、固有の単位及び沖積層全体の結果としての破壊や層間すべりのような変形特性に強く響く。岩塩坑はそれ自身層構造ではなく、連なった沖積層として生じている。

一連の沖積層とは対照的に、花崗岩のような火成岩塊が存在する。それはおそらくはるかに均一で等方性を持っており、地殻の広い領域にわたって深部まで広がっている。これらはその上か堆積岩で覆われている。しかしそれらは沖積層と特別に関係しているわけではない。さらに花崗岩の空隙率（本来は破壊に起因する）は一般には連続した堆積層に比べて非常に低く、ほとんどの堆積岩が10%以上あるのに対し典型的な花崗岩は2、3%或いはそれ以下である。

一連の沖積層、或いは破壊空隙のある花崗岩塊において、空隙は地下水に満たされる傾向にある。その地下水は地下水層（飽和領域の最上部は一般に地表下数 m ～数 $10m$ である）から数千 m の深さまで広がってくる。岩石の形成に関った流体はさらに深い所に依然存在し得るであろう。これらの地下水は放射性核種が生物圏に到達するかも知れない媒体である。そして、移動の予測と、流体を含んだ岩石と含有廃棄物との相互作用が放射性廃物の管理に対する計画の根本的目的なのである。

地下水の移動は主として、処分地からある距離だけ離れたところに影響する遠方領域効果に係る。欠陥や破壊及び他から影響を受けていない岩石に存在する他の不連続性のような潜在的な水の通路が最小であるということが重要である。さらに、一度処分地が永久隔離の為に廃棄されれば、探査や工学的活動によって生じる潜在的な水路は効果的に密閉されなければならない。通常の鉱坑にとっては、これらの工学的な潜在的な水路は原理的には試掘坑と縦坑である。

上述されたように、深部大陸地層隔離は高レベル放射性廃棄物処分に対して現在容認されている唯一の方法である。現在の計画ではこの方法を選択し採用する場合は、廃棄物固化体型式を考慮しない予定である。選択された特別の廃棄物の種類や深部の地質媒体への設置方法は隔離の安全性に影響してくる。そしてこの影響の特定の側面がこの章で後ほど述べられている。

2 関係する廃棄物の性質

深部陸地地層隔離、廃棄物／岩石相互作用という観点に立った放射性廃棄物の重要な性質は、廃棄物によって発生する熱出力と放射線である。廃棄物自身に及ぼす放射線の影響は12章で議論された。ほとんどの場合、設置された廃棄物の影響は熱、放射線、熱で引き起こされる応力による、岩石の廃棄物近傍領域の変化であろう。つまりそれは処分地の大きさに限られた影響である。しかしながら、ある種の影響によって、処分媒体及びその近接岩石の移動特性が変化し、より遠方に迄到達するような影響が出て来得る。設置された廃棄物の再取り出し性に影響するかも知れない廃棄物／岩石相互作用はさらに関心を呼ぶ。ここで言う再取り出し性は、設置した時と同じ装置と技術を以て、処分地から廃棄物を取り出し得るということに関するものである。

(1) 熱的影響

LWRの高レベル廃棄物の熱出力は1年以内での $200 \text{ kW}/\text{m}^3$ の値から1000年後の $0.02 \text{ kW}/\text{m}^3$ に変化する。10年経過した廃棄物は約 $10 \text{ kW}/\text{m}^3$ の熱を発生し、その熱量は、もし廃棄物が直径1mの空間に入れられたら、まわりの典型的ケイ酸岩及び岩塩を融かすのに十分である。それで再取り出し性が実現可能な為には次の事が必要である。①周囲の地質媒体が局部的にでも融解領域に達しないように廃棄物固化体の熱負荷を十分に下げること、②廃棄物固化体（たとえばガラス）が不利な方向に影響されないように、或いは揮発性の放射性核種が廃棄物の発生する熱によって放出されないように熱負荷を十分に低く維持しておくこと、③設置媒体（つまり掘削された処分地の岩石）とその上を覆っている地質単位に及ぼす熱負荷の影響。最初の2つを考慮することにより製造された容器の廃棄物含有率と容器の寸法を決定する。ガラスに対しては、代表的なDOE設計での廃棄物含有

率は25%、ガラスが75%であり、円柱状容器の直径は0.3 m、長さは3 mであった。これらの仕様では、キャニスタの中心最大温度は600°Cで表面温度は400°C近くになるであろう。3番目を考慮することによって、1本当りの望ましい熱負荷によりその空間が決定されるような幾何学的配置で廃棄物キャニスタの設置が要求される。(150kW/エーカーの望まれた熱負荷に対して7~10 mの空間)。

廃棄物隔離の安全性について重要な他の可能性のある熱的影響は処分地内及び近接した地域での熱的勾配のある地下水の流れへの影響であり、又、加熱された岩石単位の熱膨張或いは空孔内流体圧増加に伴う岩石の応力解放によって引き起こされた、熱的に誘起された割れであり、又、揮発成分(たとえばCO₂や水)の欠如に伴う鉱物、岩石の分解である。亀裂の進展により影響を受けた岩石の通水性は2ケタ或いはそれ以上増加する、揮発成分が出てゆくことにより、核種の潜在的移送媒体としての流体に影響を与える。

岩石に与える熱-機械的な影響の特別な側面は以下の関連岩石性質のセクションで議論されている。

(2) 岩石に及ぼす放射線の影響

可能性のある放射線効果は論理的に2つの期間に分かれるであろう。廃棄物固化体が元のままでいる期間と、それ自身が分解してしまった後の期間である。廃棄物固化体が分解してしまう前は、周囲の媒体に到達する放射線はガンマ線だけであろう。

廃棄物固化体の究極的な分解の結果、周囲の岩石鉱物とアクチノイド、核分裂生成物が十分混合される。この点において、アルファ粒子による原子レベルでの転位損傷が、ごく近傍において生じるかも知れない。しかし、いくつかの地質上の出来事(たとえば、地下水による侵食)が起こってアルファ放射能を分散させるようなことがなければ、予想される影響はそれ以上大きくはない。拡散は、作用を受けた岩石塊が10⁴~10⁵年後にさえも小さいままでいるようなゆっくりした速度で起こる。

放射線に影響される可能性のある3種の特定の岩石、花崗岩、頁岩、岩塩について考えられて来ている。岩石に作用する放射線の流率は、廃棄物固化体に作用するそれに比べ、1~2ケタ低い。含まれている相は本質的に類似しているので、多少の自信を以て、岩石に対する放射線の影響は無視できると言われている。

3 関連した岩石の性質

廃棄物/岩石相互作用にとって重要な岩石の性質は、それらの機械的性質(特に温度によって影響される機械的性質)であり、又化学的相互作用に対する可能性(13章参照)である。2つに分類された性質は遠方の領域の地下水移動に影響を与えるにもかかわらず、それらの直接的な影響のほとんどは処分地のすぐ近くにおけるものである。

(1) 熱－機械的影響

設置された放射性廃棄物の発生熱により、熱－機械的影響が生じ得ると予想されている。これらの影響の特定の性質は処分地の岩石及び関係した地質的単位の物理的性質、その他の性質によって決定されるであろう。熱的分布に影響する基本的な物理的性質、又その熱的分布が影響するものは、熱伝導性である。熱伝導率の値は異った種類の岩石の間では変動する。しかし通常の岩石の間ではそれらの値は2～3倍異なる。この性質は本来、廃棄物と処分地の熱負荷に関係している。熱－機械的影響にとって重要な岩石の第2の物理的性質は熱膨張である。坑内の形状と工学的因子に関係した、応力集中によって生じるであろう破壊に加えて、加熱された岩石の熱膨張によってこれらの岩石やその上にある地層の破壊がもたらされる。岩石の引張り強度は一般には極めて低く、ほとんどの岩石は破壊するまでの非常に限られた引っ張り歪にのみ耐え得る。このようなわけで、熱膨張している岩石塊の上を覆っている岩石層のわずかな伸びさえも岩石を破壊させ、透水率を増加させる可能性がある。熱膨張によって引き起こされた変位の影響は岩石単位の変形特性に非常によく依存する。それに対し、これらの影響は固有の岩石単位の強度と延性及び断面でそれらの分布を反映する。熱膨張によって生じた変位は地下水系を動かす可能性のある領域を変化させもするかも知れない。熱膨張による可能性のある影響はかなり複雑で、関連地質学の特定の詳細な特性に依存するので、それらはたぶんコンピューターモデルによって最もうまく評価することができるであろう。現在は熱－機械的影響の準備的な模式化の途中である。

破壊は、流体の加熱、或いは岩石の熱膨張の為に流体で満たされていた空孔が閉じられていたことによって空孔体積が減少し、そのことによって流体圧が生じ、その結果として起こり得る。すべての通常の岩石の圧縮強度は正味圧縮静水圧が増加すると共にほとんど直線的に増加する（例えば深さが増すにつれて）。空孔内の流体の圧力が増加すれば正味圧縮静水圧も減少するし、岩石の強度も減少する。岩石内に存在する応力差が影響されていないにもかかわらずである。圧縮以外のすべての永久変形が、加えられた応力差から生じたものであるから、増加した空孔内圧力はしばしばその結果岩石の破壊をもたらす。さらに破壊の方向は最小主応力の方向に垂直であるということに注意すべきである。もし表土の圧力が最小主応力方向であれば、破壊は水平方向になろう（放射性廃棄物を含む粘土層に対してだいたいの方向というだけだが）、もし最小主応力方向が水平であれば、破壊は垂直に起ころう（廃棄物管理問題に関して言えば非常に望ましくない）。

ほとんどの岩石は100℃以下、圧縮静水圧が100 bar以下では脆く、脆性応答の程度は変形速度に強く依存する。圧縮静水圧と温度が上昇すれば岩石の延性は増加する。そして変形の破壊様式（凝集力の損失を伴う）から流動（凝集力の損失のない変形）への遷移を

促進する。最も代表的な岩石に対して、125 bar に相当する 500m から 250 bar に相当する 1000m にまで処分地の深さを増加させることによって実現されるかも知れない増大する圧縮静水圧は、もし空隙圧力によって引き起こされる延性の減少が考慮されれば、これらの岩石がこのような圧力下で破壊によって変形する傾向を顕著に抑制するわけではなかった。このようなわけで、増大する圧力は既存のき裂の閉鎖に寄与はするが、この程度深さが増加してもほとんどの岩石の破壊特性を何ら向上させることはない。放射性廃棄物が設置され、そこから発生する熱によって引き起こされた熱膨張が又き裂閉鎖に役立つかも知れない。空孔とき裂の閉鎖から生じるであろう空隙率と透水率の減少は、もちろん地下水移動という点で相当重要である。

工学的設計と処分鉱坑へ近づくことができるようにしておく（修復できるようにするために）ことに対し重要な熱-機械的影響として、その高温のために強度が損われ、岩石内のクリープが増大する可能性がある。この影響は鉱物で組織されている岩石（例えば岩塩や方解石）においてしばしば言われているもので、そのような岩石では結晶内すべりが重要な変形機構となっている。温度が増大すると、結晶内すべりが起こるに必要な臨界解放剪断応力が減少する。予想される温度（200°C～300°C）と圧力（125 bar～250 bar）においては、温度の増加に伴う強度の顕著な減少はおそらく花崗岩に対しては起こらない。それに対して、石灰岩、頁岩及び岩塩は影響を受ける。しかし予想される強度の低下が厳しい工学的な再設計に結びつくのはおそらく岩塩中の処分に対してのみであろう。

高温による岩塩の強度低下と延性増加によって、修復期間における鉱坑の安定性と作業員の作業に対してのみならず、処分地の床の設置用の穴から廃棄物キャニスタが出ていくということに対しても厳しい問題が生じる可能性がある。もし未再処理使用済燃料ピンが処分地に置かれれば、これは処分地の近辺にさらに広い長期間続く温度場を生じさせるので、問題はさらに悪い状態となる。コンピューターコードがあり、活発な研究が現在、熱の時間的空間的分布とそれに伴うこれらの分布による、処分地内の異なった熱負荷に対する異なった空洞寸法の安定性に及ぼす影響の両方についてモデル化する為に実行されている。

熱-機械的影響についての最後の2つの所見は、まずこれらは近辺領域での性質であろう（地下水移動に影響を与える場合は遠方の領域であるかも知れないが）ということと、それらの影響が存続している期間には限界がある……つまり核分裂生成物に原理的に起因する高温も2、3百年後には大きく減衰するであろう。

(2) 岩石に及ぼす他の影響

① 揮発物の放出

多く頁岩は20%の空隙率を持っている。そして空孔の空間は溶液で満たされている。加えてこれらの岩石のある鉱物成分は高温では分解し、気体状態で放出される。このよ

うに放出された流体は廃棄物固化体と相互作用すると予想される。そしてそれは放射性核種の移動を引き起こすような廃棄物組成や固化体形成材に依存すると考えられる。処分地の近辺での温度はおそらく石灰岩の解離を引き起こすに十分なレベルには達しそうもない（およそ 700°C）。しかし粘土鉱物、或いは炭酸塩化した岩石の中の他の不純物が鉱物としての変化或いは化学的分解に従うかも知れない。HLW及び使用済燃料ピンが設置された処分地に存在しそうな条件下で、顕著な鉱物学的及び化学的变化は花崗岩のような結晶質ケイ酸岩石には起こらないと予想される。

岩塩の特別な場合には、岩塩はDOE計画で現在選ばれている地質的媒体であるが、2つの可能性のある効果は根本的に重要である。

①岩塩中の海水成分の熱源への移行、②高温での岩塩の加速されたクリープ変形。

Jenks の評価（1972）によれば次のようになる。単位体積当り 0.5%の海水含有量を仮定し、十分に発展した海水移行理論に基づけば、約 30ℓの海水が50年間に岩塩床に置かれた1本のHLWキャニスターの場所に集積されるであろう。この体積はキャニスター表面積 1cm²当り約 1cm³に相当する。この海水集積の結果キャニスターが腐食される可能性があり、そのことが、再取り出し性の完全性に、及び H₂、その他のガスの発生に厳しく影響する。Jenks（1972）は、処分地における通常の換気によって、再取り出し可能な期間 H₂と空気との爆発性混合ガスの集積を防ぐことができるであろうと推定している。最終処分に移った後は気体集積の影響が重要ではないらしいにもかかわらず、それらはさらに研究するように要求されている。腐食を防ぐ為の現在の計画によれば、廃棄物キャニスターを塩との接触から隔離する為、又再取り出し可能な期間にキャニスターを容易に取り出し、検査できるように、炭素鋼被覆を用いることが要求されている。このように被覆すれば、廃棄物キャニスターが、クリープ状態の岩塩によって覆われることを防ぐのに役立つ。

② 放射性核種の移行

製造された収納体から一旦放出されると、廃棄物固化体の分解が続き、地質環境の中での放射性核種の移動は本来地下水の対流による移動である。核種と多孔質媒体との相互作用が起こらなければ、核種は流れと同じ速度で、移動流体と同じ方向で移動するだろう。しかし、典型的に吸収は起こり、地下水の流速に比べ核種のそれは吸着作用により減少する。

汚染核種イオンと多孔質媒体固相との間に交換反応が起こり、溶液のイオン濃度が減少する。もし溶液がイオン交換領域は飽和されない程、十分に希薄であれば、汚染核種イオンの平均流速は空孔内容液の速度と溶液中のイオン濃度との積にまで減少する。

溶液中濃度は $1/(1+Kp)$ である。ただし p はその正味空隙率で割った固体の体積

密度であり、 K は分布係数である。岩石に対する K の値はしばしば 10^3 或いはそれ以上にさえなる（たとえば頁岩等）、処分媒体の好ましい吸着特性は、平均汚染核種の平均速度を数桁減少させる。

岩石の吸収、固定特性を評価する為にさらに進展した研究が現在進行中であるにもかかわらず、得られた K 値、それらを測定する方法、特に自然環境に存在するかも知れない条件にそれらがどのように関るのかについて、かなり不確定なところがある。西アフリカのガボン共和国のOKLO現象によって、地質媒体における放射性核種の移行について、ある見通しが得られた（IAEA 1975）、そこでは約1800万年前に、原子炉内と同様な天然の核反応が起こったという、信頼性が高く情報量も多い証拠がある。

OKLOでのイオンの移動性についての情報が特に廃棄物管理の問題に関連するであろう。少くとも約30種の核分裂生成元素が動かないままでいた。Rb, Cs, Sr, BaそしておそらくCd, さらに原子炉で生じるすべてが、たぶん放射能崩壊によってほとんど消滅した。 ^{90}Sr の崩壊によって生じた ^{90}Zr によって、 ^{90}Sr は反応のあったところの近辺からほとんど移動しなかったことが示されたと説明されている。WaltonとCowan（1975）は次のように結論した。核反応時に相当量生物圏に放出された基本的な放射性生成物質は ^{85}Kr とおそらくいくらかの ^{137}Cs と ^{90}Sr である、プルトニウムは十分に閉じ込められていた。

(3) 廃棄物固化体の安定性と化学的な考察

現在の廃棄物管理方針は可能な限り安定な廃棄物固化体を開発することを支持している。それで、万一地下水が侵入して廃棄物と接触しても、それに含まれている放射性核種は予定の隔離期間は浸出率は許容し難いものではないだろう。適切なガラスを開発する為に廃棄物固化技術において相当な努力が成されている。先に指摘したように、処分時に存在すると考えられる条件に支配されるガラスの安定性については、強い保留点がある。さらに、標準浸出試験法による結果はこのような条件下に対して推定するには不適当であると考えられている。もしガラスが望ましい廃棄物固化体であるとするなら、目的としている組成を注意深く変更して固化体を安定な結晶質固化体（7章参照）にするか、或いは処分地質を低い透水性と高い吸着性を持った粘土や他の材料にした方が、性質と安定性に疑問のあるガラス（8章参照）よりも確実である。

放射性廃棄物管理が、永久処分の技術が採用可能な点に達する程、十分なものにならないければ究極的な廃棄物固化技術においては、放射性核種が周囲の岩石自身の安定な結晶相に直接固定化されるかも知れない。これは放射性廃棄物と適当な添加物を融けた岩石に閉じ込めることによって達成できるであろう。液体、固体両廃棄物の熱出力は十分に高く、周囲の処分地層を局部的に融かすことができる程である。この章の始めに述べたように、

もし直径 1 m の坑内置けば 10 kW/m^3 の熱出力を持った廃棄物はほとんどの代表的な岩石を融かすであろうし、ある種の HLW の容器は 200 kW/m^3 を発生する。融解関係を適切に理解し、加熱、冷却履歴を正確に予測するための研究が要求されている。冷却中の結晶化プロセスによってもし透水性の低い一様な微粒子の岩石から成る境界面明確に形成されれば、さらに重要な保護層が、廃棄物と結果的に設置位置に到達するかも知れない地下水との間に形成されるであろう。深く穴を掘ることは、岩石融解概念と結びついた、廃棄物設置の非常に適切な方法であるように思えるにも拘らず、この概念を発展させる為の最初の実験は通常の鉱山の坑内で実行された。岩塩、頁岩、石灰岩を含むある種の岩石は、ガス発生、移動、放出するのでたぶん適当ではないであろう。花崗岩塊のような結晶質の岩石は理想的には適しているように思える。この考えは我々がこの分野の研究を強く促進するというを十分に約束するものである。

注 1) この本は廃棄物隔離思想と設置技術を述べた技術的選択報告 (U.S. ERDA, 1976 b) に関連し、又これらの全般的評価のアメリカ物理学会報告 (1977) に関するものである。

APPENDIX A

ハンフォード指定保留地，サバンナリバープラントおよびアイダホ国立工学研究所における代替廃棄物処分戦略に対するコストとリスクの評価要約

ハンフォード指定保留地，アイダホ国立工業研究所およびサバンナリバープラントで貯蔵されている放射性廃棄物の長期管理の可能な代替法に関する情報を供給するために，3つの文章（各サイトについて1つ）を用意し，1977年7月（U.S. ERDA 1977a, 1977b, 1977c）公表した。

各文章では，実行に必要な技術も含め，高レベル廃棄物の処理，貯蔵および処分について考えられるいろいろな代替法が記述されている。さらに，これらの記述の中には公衆に対するリスク解析と予備的なコスト評価も含まれている。特定の計画が選定されているわけではなくて，また解析で社会的及び公共的政策問題を考慮しているわけでもない。

(1) ハンフォード指定保留地

ハンフォード指定保留地では，約 173,000 m^3 の HLW が現在スラッジ，ソールトケーキ及び残留液の形で地下タンクに貯蔵されている（DOE, 1978）。これらの廃棄物の長期管理について，27の代替案が ERDA（1977a）で考えられて来た。これはすべて，最終処分サイトの位置に基づく次の4つの主要代替案の変形である。

1. 現存する廃棄物タンク
2. サイト内工学的地表施設
3. サイト内地層貯蔵所
4. サイト外地層貯蔵所

4つの主要な代替法は，廃棄物を2つの部分，つまり少量の高放射性部分と，6 nCi/gより少ない除染された塩とに分けるために放射性核種の除去が使われるかどうかを含め，いくつかのオプションを付け加えて27の代替案へ広げられてきた。その他のオプションには，使用される固化体のタイプ，封入された廃棄物の処理やハンドリングが含まれている。Table A.1 は，ハンフォード文書で考察された27の代替案のコストとリストをまとめたものである。

ERDA（1977a）によると，

“どの代替案もそれを実行するために，何年かにわたって予算を組まなければならない。

実際の金ドル額は，一定の1976年ドル額の約2～5倍である。”

従って，ハンフォード廃棄物の処分実施コストは，272億ドルになるであろう。（U.S. ERDA 1977a）

TABLE A.1

Summary of Cost and Risk for 27 Alternative Radioactive Waste Disposal Plans at Hanford with Numerical Ranking^a

Plan Number	Plan Description	Total Cost, million 1976 dollars		Discounted Cost, million dollars		Integrated Population Dose Risk, man-rem	
1	Storage and Disposal of Salt Cake, Sludge, and Residual Liquor in Existing Waste Tanks.	500	(1) ^b	60	(1)	1×10^{-3}	(1)
2	Glass w/RR in Canisters Disposed of in Onsite Engineered Surface Facility and Bulk Decontaminated Salt Disposed of in Onsite Surface Trench.	1,300	(6)	260	(10)	7×10^{-2}	(10)
3	Glass w/RR in Canisters Disposed of in Onsite Geologic Repository and Bulk Decontaminated Salt Disposed of in Onsite Surface Trench.	1,400	(8)	250	(7)	7×10^{-2}	(10)
4	Glass w/RR in Canisters Disposed of in Offsite Geologic Repository and Bulk Decontaminated Salt Disposed of in Onsite Surface Trench.	1,500	(11)	260	(10)	2×10^1	(17)
5	Concrete w/RR in Canisters Disposed of in Onsite Engineered Surface Facility and Bulk Decontaminated Salt Disposed of in Onsite Surface Trench.	1,300	(6)	250	(7)	2×10^{-2}	(8)
6	Concrete w/RR in Canisters Disposed of in Onsite Geologic Repository and Bulk Decontaminated Salt Disposed of in Onsite Surface Trench.	1,400	(8)	240	(6)	2×10^{-2}	(8)
7	Concrete w/RR in Canisters Disposed of in Offsite Geologic Repository and Bulk Decontaminated Salt Disposed of in Onsite Surface Trench.	1,500	(11)	250	(7)	3×10^1	(18)
8	Powder w/RR in Canisters Disposed of in Onsite Engineered Surface Facility and Bulk Decontaminated Salt Disposed of in Onsite Surface Trench.	1,000	(2)	200	(3)	1×10^{-2}	(2)
9	Powder w/RR in Canisters Disposed of in Onsite Geologic Repository and Bulk Decontaminated Salt Disposed of in Onsite Surface Trench.	1,100	(4)	200	(3)	1×10^{-2}	(2)
10	Powder w/RR in Canisters Disposed of in Offsite Geologic Repository and Bulk Decontaminated Salt Disposed of in Onsite Surface Trench.	1,100	(4)	200	(3)	9×10^1	(16)
11	Powder w/RR in Bulk Containers Disposed of in Onsite Geologic Repository and Bulk Decontaminated Salt Disposed of in Onsite Surface Trench.	1,000	(2)	190	(2)	1×10^{-2}	(2)

TABLE A.1 (continued)

Plan Number	Plan Description	Total Cost, million 1976 dollars	Discounted Cost, million dollars	Integrated Population Dose Risk, man-rem
12	Glass wo/RR in Canisters Disposed of in Onsite Engineered Surface Facility.	2,700 (12)	490 (15)	7×10^{-2} (10)
13	Glass wo/RR in Canisters Disposed of in Onsite Geologic Repository.	2,900 (14)	400 (13)	7×10^{-2} (10)
14	Glass wo/RR in Canisters Disposed of in Offsite Geologic Repository.	3,700 (16)	490 (15)	1×10^3 (19)
15	Clay wo/RR in Canisters Disposed of in Onsite Engineered Surface Facility.	3,900 (18)	730 (20)	7×10^{-2} (10)
16	Clay wo/RR in Canisters Disposed of in Onsite Geologic Repository.	4,200 (19)	540 (17)	7×10^{-2} (10)
17	Clay wo/RR in Canisters Disposed of in Offsite Geologic Repository.	6,000 (21)	730 (21)	3×10^3 (21)
18	Powder wo/RR in Canisters Disposed of in Onsite Engineered Surface Facility.	3,500 (15)	660 (18)	1×10^{-2} (2)
19	Powder wo/RR in Canisters Disposed of in Onsite Geologic Repository.	3,800 (17)	480 (14)	1×10^{-2} (2)
20	Powder wo/RR in Canisters Disposed of in Offsite Geologic Repository.	5,500 (20)	660 (18)	3×10^{-2} (20)
21	Powder wo/RR in Bulk Containers Disposed of in Onsite Geologic Repository.	2,800 (13)	260 (10)	1×10^{-2} (2)
22	Capsules Packaged in Overpacked Canisters Disposed of in Onsite Engineered Surface Facility.	43 (b)	5 (a)	7×10^{-5} (b)
23	Capsules Packaged in Canisters Disposed of in Onsite Geologic Repository.	26 (a)	5 (a)	2×10^{-9} (a)
24	Capsules Packaged in Canisters Disposed of in Offsite Geologic Repository.	47 (c)	10 (c)	1×10^1 (e)
25	Capsules Converted to Glass in Overpacked Canisters Disposed of in Onsite Engineered Surface Facility.	76 (e)	10 (c)	1×10^{-3} (c)
26	Capsules Converted to Glass in Canisters Disposed of in Onsite Geologic Repository.	59 (d)	15 (e)	1×10^{-3} (c)
27	Capsules Converted to Glass in Canisters Disposed of in Offsite Geologic Repository.	79 (f)	20 (f)	1×10^1 (f)

^aTotals have been rounded.

^bParentheses indicate numerical ranking.

Source: U.S. ERDA (1977a).

(2) サバンナリバープラント

サバンナリバープラントでは、約 82,000 m³ の HLW が現在スラッジ、ソールトケーキ及び残留液の形で地下のスチールタンクに貯蔵されている。(DOE 1978)

1985年に、原子炉の操業が停止すると仮定すれば、1300 Ci/m³ の放射能レベルの、再構成された廃棄物⁽¹⁾ が約 230,000 m³ 処分されなければならないだろう。これらの廃棄物の長期管理と処分について、23 の代替案が SRP 文書 (U.S. ERDA 1977c) で、考察されてきた。ハンフォード文章と同様、これらの代替案は第 1 に最終処分サイトの位置に基づく次の 4 つの主要代替案の変形である。

1. タンク内貯蔵の継続
2. SRP サイト下の床岩洞窟内への再構成廃棄物スラリーの処分
3. SRP での工学的地表施設への固化廃棄物の処分
4. サイト外の連邦貯蔵所への固化廃棄物の処分

これらの 4 つの主要な代替法を、23 の代替案へ拡大させる追加オプションには、廃棄物を分離して、高放射能部分と除染された塩にするために、放射性核種の除去が用いられるかどうか、最終廃棄物の形態 (ガラス、コンクリート、乾燥粉末又は熔融塩) 最終貯蔵及び処分のモード……例えば、SRP 床岩洞窟への HLW の処分……などが含まれる。

Table A. 2 には、考察した 23 の代替案について、評価したコストとリスクをまとめた。

TABLE A.2
Summary of Costs and Risks for 23 Alternative Radioactive Waste Disposal Plans at the Savannah River Plant

Plan Number	Description	Budgetary Cost, billion 1976 dollars ^a	Population Dose Risk, thousand man-rem ^b	Total Effective Cost, billion 1976 dollars ^c	Incremental Cost/Risk, \$/man-rem ^d
1	Glass Disposed of in Offsite Geologic Storage and Canned Decontaminated Salt Cake Stored in Outside Surface Storage Facility	2.7	.90	2.7	41,000
2	Concrete Disposed of in Offsite Geologic Storage and Canned Decontaminated Salt Cake Stored in Onsite Surface Storage Facility	2.4	.90	2.4	36,000
3	Concrete Disposed of in Offsite Geologic Storage and Decontaminated Salt Cake Stored in Onsite Underground Waste Tanks	1.2	.90	1.2	17,000

TABLE A.2 (continued)

Plan Number	Description	Budgetary Cost, billion 1976 dollars ^a	Population Dose Risk, thousand man-rem ^b	Total Effective Cost, billion 1976 dollars ^c	Incremental Cost/Risk, \$/man-rem ^d
4	Concrete and Canned Decontaminated Salt Cake Disposed of in Offsite Geologic Storage	1.9	.90	1.9	28,000
5	Glass and Canned Decontaminated Salt Cake Stored in Onsite Surface Storage Facility	2.9	.22	2.9	44,000
6	Concrete and Canned Decontaminated Salt Cake Stored in Onsite Surface Storage Facility	2.8	.22	2.8	42,000
7	Concrete Stored in Onsite Surface Storage Facility and Decontaminated Salt Cake Returned to Onsite Waste Tanks	1.7	.22	1.7	25,000
8	Glass and Canned Decontaminated Salt Cake Disposed of in SRP Bedrock	2.0	.34	2.0	30,000
9	Concrete and Canned Decontaminated Salt Cake Disposed of in SRP Bedrock	1.8	.34	1.8	26,000
10	Concrete and Decontaminated Salt Solution Disposed of in SRP Bedrock	1.3	.34	1.3	18,000
11	Glass Stored in Offsite Surface Storage Facility and Decontaminated Canned Salt Cake Stored in Onsite Surface Storage Facility	3.0	.53	3.0	46,000
12	Concrete Stored in Offsite Surface Storage Facility and Canned Decontaminated Salt Cake Stored in Onsite Surface Storage Facility	3.0	.73	3.0	46,000
13	Concrete and Decontaminated Salt Cake Stored in Offsite Surface Storage Facility	3.4	.73	3.4	53,000
14	Dry Powder Disposed of in Offsite Geologic Storage and Canned Decontaminated Salt Cake Stored in Onsite Surface Storage Facility	2.3	.93	2.3	35,000
15	Dry Powder and Canned Decontaminated Salt Cake Stored in Onsite Surface Storage Facility	2.5	.38	2.5	38,000
16	Dry Powder and Canned Decontaminated Salt Cake Disposed of in SRP Bedrock	1.8	8.6	1.8	30,000
17	Dry Powder Stored in Offsite Surface Storage Facility and Canned Decontaminated Salt Cake Stored in Onsite Storage Facility	2.6	.89	2.6	40,000
18	Fused Salt Disposed of in Offsite Geologic Storage - No Separation of Radioactivity	1.1	1.0	1.1	15,000
19	Fused Salt Stored in Onsite Surface Storage Facility - No Separation of Radioactivity	3.0	.22	3.0	46,000
20	Fused Salt Disposed of in Bedrock - No Separation of Radioactivity	.90	8.6	.91	14,000

TABLE A.2 (continued)

Plan Number	Description	Budgetary Cost, billion 1976 dollars ^a	Population Dose Risk, thousand man-rem ^b	Total Effective Cost, billion 1976 dollars ^c	Incremental Cost/Risk, \$/man-rem ^d
21	Fused Salt Stored in Offsite Surface Storage Facility - No Separation of Radioactivity	3.5	1.0	3.5	\$4,000
22	Unprocessed Waste Slurry Disposed of in SRP Bedrock	.18	62	.24	Base
23	Storage of Waste as Sludge and Damp Salt Cake in Onsite Waste Tanks (Present SRP Waste Management Technique)	.24 ^e	1.4	.24	1,000

a. Undiscounted.

b. Integrated for 300 years. Assumes population grows by a factor of 5 by 2140, then remains constant. No corrective action.

c. Radiation doses were evaluated at \$1000/man-rem.

d. Cost per man-rem reduction in risk, using the least expensive alternative plan as a base (Plan 22, Unprocessed Waste Slurry Stored in Bedrock).

e. Includes undiscounted costs for one generation of new tanks, starting about year 2040. This investment is more than that required to create a trust fund to rebuild tanks into the indefinite future. Such a trust fund would require new legislation for its creation.

Source: U.S. ERDA (1977c).

(8) アイダホ国立工学研究所

ハンフォード指定保留地やサバンナリバープラントに貯蔵されている高レベル廃棄物と異なり、INELでは廃棄物は定常的に仮焼体に変換され、地下のステンレススチール製のビンに貯蔵される。これらの廃棄物の長期管理について、INEL文書では、13の代替案が考えられて来ており(U.S. ERDA 1977b)、これは廃棄物形(仮焼体ペレット、金属マトリックス、焼結ガラス、セラミックス)と、処分地(再取り出し可能な地表貯蔵施設、連邦貯蔵所)によって分けられている。もう1つの追加オプションは、アクチノイドを分離して連邦貯蔵所へ輸送することである。残った廃棄物は、サイト内で貯蔵されるであろう。Table A. 3は、考察した13の案について評価したコストとリスクをまとめたものである。

TABLE A.3

Summary of Costs and Risks for Alternative Radioactive Waste Disposal Plans at INEL (1977 dollars)

Alternative	Total Budgetary ^(a) Cost Above Base, \$ million		Total Population ^(c) Dose Risk, man-rem	Risk Value, \$ million	Total Effective Cost, \$ million
	Base				
Calcine at ICPP	Base		0.01	Negligible	Negligible
Pellet, SGC, MM—at INEL	140 (d) 190 (e) 375 (f)		140	0.15	140 (d) 190 (e) 375 (f)
Remove Actinides ^(b) Pellet, SGC, MM—at INEL	290 (d) 340 (e) 525 (f)		780	0.8	290 (d) 340 (e) 525 (f)
Pellets, SGC, MM—Ship By Rail to Federal Repository	315 (d) 335 (e) 550 (f)		820	0.8	315 (d) 335 (e) 550 (f)
Pellets, SGC, MM—Ship By Truck to Federal Repository	315 (d) 335 (e) 550 (f)		4,900	4.9	320 (d) 340 (e) 555 (f)

(a) Capital plus 10-yr operating costs.

(b) Costs for shipment of actinides to and deposition at a federal repository are included.

(c) Comparable 10-yr dose, from natural background, is 200,000 man-rem for 120,000 population within 80 km (50 mi.) of INEL.

(d) Pellets.

(e) SGC-sintered glass ceramic.

(f) MM-metal matrix.

Source: U.S. ERDA (1977b).

注

1) 廃棄物の固化が始まる前に、湿ったソールトケーキを溶解したり、廃棄物タンクのスラッジをスラリーにするために、その溶液が使われて再構成されると仮定する。

APPENDIX B

廃棄物固化に関する、ヨーロッパにおけるR & Dの要約

米国のいかなる廃棄物管理システムも結局は、全世界のシステムの1部であろう。従って、米国のシステムをデザインするに当っては、廃棄物管理における外国の経験を考察することが不可欠である。さらに、大抵の放射性廃棄物管理システムが固有化され、結果的に経済的興未や闘争が減少するので、廃棄物ハンドリング技術の分担が可能であり、又、各国にも利益になるであろう。次のセクションでは、我々の研究に関連していくつかの外国における開発の特別な状況を特に明らかにする。フランスの開発は、すでに第8章で論じた。

(1) ヨーロッパ共同体の委員会

ブリュッセルから運営されている、このプログラムは有名な共同国際研究プログラムで、放射性廃棄物の管理と隔離を扱っている。それは、燃料ピン被覆管の処理、廃棄物固化、貯蔵および隔離のような放射性廃棄物管理における異った副次的な研究に関し、よく統合のとれたR & D計画から成り立っている。プロジェクトは、いろいろの国立研究所へ割り当てられており結果は、共存され将来の戦略が計画される。実質的には、研究されている唯一の固化体はガラスである。浸出速度、結晶化の影響および ^{238}Pu をドーピングした試料を用いての照射の影響のようなガラスの物体評価に特に注意が向けられている。被覆管廃棄物や α -廃棄物の高温焼却についての研究は、この仕事に付け足し程度に述べられているが、その技術に対し、いくらかの新しい寄与をしたように思われる。

(2) ユーロケミック

これは、もう1つの多国資本ヨーロッパ組織で、この場合R & Dセンターはベルギーのモデルである。ここでの固化の研究は、世界のどれにも負けず劣らず多様で進んでいる。研究所は固化技術に対し、次の3つの実質的な寄与をした。

1. 彼らの攪拌反応炉は、HLLWから直接に仮焼体粒子(粒径1~10 mm)を作るのに効果的に機能するようであり、従って、微粉の処理問題をいくらかさけることができる。
2. リン酸ガラスを鉛金属マトリックスに封入する彼らのパイロットプラントは定常的に動いている。セラミックスや仮焼体粉子の取り扱いが可能であり、新しく発生した廃棄物に対して、特に興味深い。
3. 被覆管ハルを封入するために開発された地下水 $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-ポリマー}$ “コンクリート”は、他の廃棄物形にうまく普及されるかもしれない。

(3) 西ドイツ

西ドイツ内のプログラムは大きく中央で管理され、うまく組織的に関係をもっている。米

国のプログラムにとって特に重要なのは、全体システムについての彼らの評価である。レポート“Systems Studies, Radioactive Waste in the Federal Republic of Germany”は、パネル自身の仕事と同時に6冊に完了している。Nukem社によって行われたこの研究は、西ドイツにおけるあらゆる主要な原子力機関の仕事を整合しており、特に放射性廃棄物管理システムのリスク解析に力を入れている。

これらの研究の最も著しい成果の1つは、放射性廃棄物からの主要なリスクは輸送中に起こるという発見である。従って、Nukem社は、再処理、固化および、深地層への隔離を同一サイトで行なうシステムを推奨している。

西ドイツの固化研究は、多くの種類の固化体を行って来ている、ガラスのみならずガラスセラミックやコンクリート(ILW用)に、かなり注意が向けられている。Gelsenburg社とベルギーのEurochemic社とで行われた金属マトリックス複合体の研究は、他の国の類似の研究より進んでいる。

(4) スウェーデン

スウェーデンのプログラムは、特にパブリックアクセプタンスの点で米国と非常に類似した圧迫下で進められている。スウェーデンで制定された新しい法律のために使用済燃料ピンの貯蔵システムの著しい開発がなされ、これは米国の研究よりはるかに進んでいる。そのシステムは、一組の切断しないロッドを約100 cm²程度の断面積を持つ密封したマイルドスチールキャニスタに挿入することから成り立っている。これらのキャニスタはそれから、平たい時計のスプリング状の形に巻かれ、均等にプレスしたAl₂O₃から成る肉厚の大きいコンテナ中に積み重ねられる。このコンテナは、2つのAl₂O₃表面を合わせて、外部の薄い複層スチールシートを溶接して密封される。アルミナのコンテナは粘度で周辺がオーバーパックされた花崗岩中に設置されるように設計されている。これは、明らかに荷やっかいな第1世代の解決策であるが非常に短時間(1年以内)の内に廃棄物固化について、根本的に異なる技術の開発をかなり明確に示している。より長期に及ぶスウェーデンのプログラムも、またよく調整されており、2つのその他の点で注目すべきである。スウェーデン人は、固化の物質科学の面により多くの注意を払っており、他の国よりもずっとその研究に大学組織をまき込んで来た。新しい技術的示唆の中には、Eを低く保つために重い銅のキャニスタを使うことや、放射性核種の吸着の第1レベルのバリアーとして、キャニスタの回りに反応性の高い粘土や砂のオーバーパックを使うことが挙げられている。安定なセラミック固化体への変換のために、ゼオライトへの吸着から特別製のゲルに及ぶ無機物質に関する基礎的な研究は、それに相当する米国のプログラムにおけるよりも、彼らの戦略の中ではより顕著な位置を占めているように思われる。

(5) 英 国

ハーウェルにおける英国の固化プログラムは、はるかに進んでいる。実際、フィンガルプロセスは多量のフルアクティブな放射性廃棄物をガラス固化した最初のものであった。現在では10年以上も古いだが、これらのサンプルは極めて貴重な研究資源である。英国では、現在の研究はHarvest ガラスプロセスに集中しており、これは工学的見地からはおそらく今までに工夫されたプロセスの中で最もシンプルであろう。

(6) ソ 連

廃棄物固化のソ連の研究はユニークであり、データの詳細な交換によりたとえ放射性廃棄物管理について国の政策が非常に異っていても、米国のR & D努力に大きな衝撃を与えるだろう。名目上の研究努力は、低濃度の廃棄物イオンを含むガラスに対して行われている。15年間、ソ連の科学者は注意深く選定した地層に放射性核種を注入する研究について報告している(Kondrat'ev et al. 1976)。データは、低レベル及び中レベル廃棄物についてのみ出されている。この2～3ヶ月の間に、HLW(あるレポートでは10Ci オ-ダ/ℓとしている)と同様な方法で注入することを示している情報が開放された(W Bishop, U.S. NRC 私信 1977)。

廃棄物/岩石の相互作用が、この廃棄物の固化に使われている。地層の鉱物……主に石英と粘土が穏やかな熱水条件下で液体廃棄物と反応して、新しい比較的不溶性の相が生成する。処分する放射性核種の量と濃度を選定する指導原理は、温度が、選定した深さで水の沸点を越えてはならないということのようである。上下に保護的な粘土質の層を持つ地表下数1000 mの地層中での固化は、一連の井戸でモニタされたように、放射性核種イオンの移動を防ぐようである。このプロセスへの最近のアプローチは、地表下約600 mの所を粘土-セメント-放射性核種の混合物でグラウティングするオークリッジの経験である。

米国のプログラムに地層中での直接固化のアプローチ即ち、代表的な砂状頁岩又は粘土質の砂岩とのHLLWの反応を研究室においてでも研究することが無いということは、ソ連においてこの方法でMCi量のHLWが見掛上成功裡に処分されているのに照らしてみると妙である。現在米国では、フルスケールの実験を行う許可を得ることは極めて困難なので、ソ連と詳細なデータを交換する努力が非常に重要である。

APPENDIX C

第1次封じ込め形態

(1) 結 晶

Table 1.2 に示すように、問題としている放射性核種を封入するためには、セラミックが主となる4種類の結晶又は、一部が結晶したものである。つまり、スーパーカルサイン、低温度セラミックス、高温セラミックス及び燃料ペレットである。ハンフォード指定保留地で貯蔵中の SrF_2 と CsCl を除けば、これらはすべて知られた結晶構造を持つ酸化物相の混合物である。例えば、 ^{137}Cs は $^{137}\text{CsAl}_2\text{Si}_2\text{O}_6$ (pollucite)¹ 中に ^{90}Sr は $^{90}\text{SrMoO}_4$ (Scheelite)¹ 又は、 $^{90}\text{SrTiO}_3$ (perovskite)¹ 中に Ru は RuO_2 (rutile)¹ 中に封入されるだろう。

アクチノイドと多くのランタニド核分裂生成物イオンは、使用済燃料ペレット中の $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$ (fluorite) 相にとどまる、ある低温度セラミックではこのイオンは層状シリケート(粘土)又は、ネットワークシリケート(ゼオライト)の“交換”サイトに比較的ゆるく結合しているであろう。幸運にも、これらの結晶型酸化物のほとんどは高融性で非常に大きい結合エネルギーを持つ非常に不溶性の相である。固化するとき代表的な廃棄物組成中の30～40元素には、封入のために6～7のこのような結晶相の混合物が必要とされる。このシステムは組成の変化に対して、極めて融通がある。というのは、固化体中の各々の結晶相の比率が熱力学を変えないで変わることができるからである。さらに、大抵の相のものがまた、広範囲の組成変化を許容するからである。

これと関係がありよく知られた類似例が結晶岩に見られる。つまり2ダース元素が、岩石を作っている3又は4ケの主要な鉱物相の中に適合している花崗岩である。

(2) 非結晶

酸化物ガラスは、上述のテーマの変形にすぎない。現想的には単一主相が、長い範囲の規則性の必要性が無くなるのですべてのイオンを適合できる。実際には廃棄物の高含有率のガラスには、しばしば少量のパーセントの結晶相があり、またあるいは2つのガラス相に相分離している。

注 1) これらは、理想的で単純的な式である。実際の例については第6章参照。

TABLE D.1

Decay Characteristics of Spent BWR Fuel

Parameter	Time elapsed after spent fuel discharge							
	2Y	5Y	10Y	30Y	100Y	1000Y	10 ⁴ Y	10 ⁵ Y
Thermal power, watts/assembly								
Structural materials	1.79E+01 ^a	1.12E+01	5.56E+00	4.02E-01	1.46E-02	2.51E-03	2.31E-03	1.07E-03
Actinides								
Spent fuel	3.52E+01	3.11E+01	3.28E+01	3.54E+01	3.11E+01	9.19E+00	2.36E+00	1.72E-01
Less (U + Pu) ^b	1.66E+01	1.01E+01	8.66E+00	5.00E+00	1.83E+00	4.41E-01	7.81E-02	9.19E-03
Fission products	8.22E+02	2.70E+02	1.47E+02	7.48E+01	1.45E+01	3.06E-03	2.91E-03	1.93E-03
Total								
Spent fuel	8.75E+02	3.12E+02	1.85E+02	1.11E+02	4.56E+01	9.20E+00	2.37E+00	1.75E-01
Spent fuel less (U + Pu) ^b	8.57E+02	2.91E+02	1.61E+02	8.02E+01	1.63E+01	4.47E-01	8.33E-02	1.22E-02
Activity, curies/assembly								
Structural materials	2.50E+03	1.23E+03	5.18E+02	7.45E+01	3.04E+01	4.69E-01	4.06E-01	2.08E-01
Actinides								
Spent fuel	1.94E+04	1.69E+04	1.36E+04	5.94E+03	1.12E+03	2.87E+02	7.71E+01	6.40E+00
Less U + Pu ^b	5.67E+02	3.78E+02	3.19E+02	1.75E+02	6.01E+01	1.56E+01	3.44E+00	3.89E-01
Fission products	1.88E+05	7.37E+04	4.87E+04	2.79E+04	5.34E+03	3.51E+00	3.32E+00	2.60E+00
Total								
Spent fuel	2.10E+05	9.18E+04	6.28E+04	3.39E+04	6.49E+03	2.91E+02	8.08E+01	9.21E+00
Spent fuel less (U + Pu) ^b	1.91E+05	7.53E+04	4.95E+04	2.81E+04	5.43E+03	1.96E+01	7.17E+00	3.20E+00

Potential Hazard Index^c m³ water/assembly

Structural materials	1.33E+08	2.86E+07	1.30E+07	2.48E+06	1.03E+06	3.17E+03	1.89E+03	9.07E+02
Actinides								
Spent fuel	2.62E+08	2.58E+08	2.60E+08	2.58E+08	2.20E+08	6.43E+07	1.59E+07	7.57E+06
Less (U + Pu) ^b	5.91E+07	4.76E+07	4.17E+07	2.64E+07	1.27E+07	3.21E+06	5.51E+05	2.45E+05
Fission products	4.57E+10	3.67E+10	3.15E+10	1.91E+10	3.41E+09	1.88E+04	1.82E+04	1.53E+04
Total								
Spent fuel	4.61E+10	3.70E+10	3.18E+10	1.94E+10	3.63E+09	6.43E+07	1.59E+07	7.59E+06
Spent fuel less (U + Pu) ^b	4.59E+10	3.68E+10	3.16E+10	1.91E+10	3.42E+09	3.23E+06	5.71E+05	2.61E+05

^aRead as 1.79×10^1

^b99.5% removal of uranium and plutonium assumed.

^cSum of the amount of water required to dilute each isotope to the point that it is acceptable for unrestricted consumption as specified in Title 10, Part 20 of the Code of Federal Regulations.

TABLE D.2

Decay Characteristics of Spent PWR Fuel

Parameter	Time elapsed after spent fuel discharge							
	2Y	5Y	10Y	30Y	100Y	1000Y	10 ⁴ Y	10 ⁵ Y
Thermal power, watts/assembly								
Structural materials	1.00E+01 ^a	4.86E+00	1.98E+00	2.06E-01	7.44E-02	1.88E-02	1.59E-02	5.08E-03
Actinides								
Spent fuel	1.06E+02	9.14E+01	9.57E+01	1.02E+02	8.89E+01	2.56E+01	6.37E+00	4.89E-01
Less (U + Pu) ^b	5.30E+01	3.15E+01	2.67E+01	1.49E+01	4.74E+00	1.12E+00	2.26E-01	2.80E-02
Fission products								
Total	2.47E+03	8.65E+02	4.54E+02	2.39E+02	4.44E+01	9.10E-03	8.68E-03	5.73E-03
Total								
Spent fuel	2.59E+03	9.61E+02	5.52E+02	3.41E+02	1.33E+02	2.56E+01	6.39E+00	5.00E-01
Spent fuel less (U + Pu) ^b	2.53E+03	9.01E+02	4.83E+02	2.54E+02	4.92E+01	1.15E+00	2.51E-01	3.88E-02
Activity, curies/assembly								
Structural materials	4.08E+03	1.72E+03	6.87E+02	2.44E+02	1.41E+02	2.72E+00	2.20E+00	8.66E-01
Actinides								
Spent fuel	5.66E+04	4.91E+04	3.95E+04	1.72E+04	3.21E+03	7.98E+02	2.08E+02	1.83E+01
Less (U + Pu) ^b	1.77E+03	1.15E+03	9.66E+02	5.15E+02	1.54E+02	4.04E+01	9.98E+00	1.18E+00
Fission products								
Total	6.11E+05	2.27E+05	1.47E+05	8.45E+04	1.62E+04	1.05E+01	9.94E+00	7.77E+00
Total								
Spent fuel	6.72E+05	2.78E+05	1.87E+05	1.02E+05	1.96E+04	8.11E+02	2.20E+02	2.69E+01
Spent fuel less (U + Pu) ^b	6.17E+05	2.30E+05	1.49E+05	8.53E+04	1.65E+04	5.36E+01	2.21E+01	9.82E+00

Potential Hazard Index^c m³ water/assembly

Structural materials	2.46E+08	2.85E+07	1.29E+07	8.30E+06	4.87E+06	2.17E+05	1.53E+05	1.03E+04
Actinides								
Spent fuel	7.66E+08	7.48E+08	7.53E+08	7.43E+08	6.29E+08	1.80E+08	6.33E+07	2.27E+07
Less (U + Pu) ^b	1.82E+08	1.44E+08	1.25E+08	7.56E+07	3.21E+07	8.10E+06	1.58E+06	7.36E+05
Fission products	1.44E+11	1.14E+11	9.73E+10	5.91E+10	1.05E+10	4.40E+04	3.86E+04	3.00E+04
Total								
Spent fuel	1.45E+11	1.15E+11	9.81E+10	5.99E+10	1.11E+10	1.80E+08	4.35E+07	2.27E+07
Spent fuel less (U + Pu) ^b	1.44E+11	1.14E+11	9.74E+10	5.92E+10	1.05E+10	8.36E+06	1.77E+06	7.76E+05

^aRead 1.0×10^1

^b99.5% removal of uranium and plutonium assumed.

^cSum of the amount of waste required to dilute each isotope to the point that it is acceptable for unrestricted consumption as specified in Title 10, Part 20 of the Code of Federal Regulation.

LIST OF ACRONYMS

BWR	Boiling-Water Reactor
ERDA	Energy Research and Development Administration
HLW	High-Level Wastes
HLLW	High-Level Liquid Wastes
HLSW	High-Level Solid Wastes
HMI	Hans Meitner Institute
IAEA	International Atomic Energy Agency
ICPP	Idaho Chemical Processing Plant
ILLW	Intermediate Level Liquid Wastes
ILW	Intermediate Level Wastes
INEL	Idaho National Engineering Laboratory
kw	Kilowatt
LASL	Los Alamos Scientific Laboratory
LLLW	Low-Level Liquid Wastes
LLW	Low-Level Wastes
LOTES	Low-Temperature Solidification
LWR	Light-Water Reactor
MCi	Million Curies
MW	Megawatt
MWd	Megawatt-days
NFS	Nuclear Fuel Services
PNL	Battelle Pacific Northwest Laboratories
PSU	Pennsylvania State University
PWR	Pressurized-Water Reactor
R&D	Research and Development
SFA	Spent Fuel Assembly
SFP	Spent Fuel Pin
SRL	Savannah River Laboratory
SRP	Savannah River Plant
SSP	Sandia Solidification Process
WSEP	Waste Solidification Engineering Prototypes