

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]

高レベル廃液固化・貯蔵技術に関する海外調査

— 海外出張報告 —

1979年2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

N860-79-01

1979年2月

高レベル廃液固化・貯蔵技術に関する海外調査



— 海外出張報告 —

報告者 角田直己*

要 旨

我国に於ける高放射性廃液固化・貯蔵・パイロットプラントについては、原子力委員会の策定した計画に従って、昭和60年代初期の運開を目標として、関連するR&Dを鋭意推進しているところである。

この目標を達成するためには、設計、許認可、建設、試運転などに必要となるリードタイムを考慮すると、昭和55年度には予備設計に着手しなければならないであろう。このため、パイロットプラントに採用するプロセス決定に寄与するR&Dは、今年度を含め2年以内に集中させ、また海外技術についてもこの期間に十分な評価を行なっておかなければならない。諸外国でも1985年～1990年（昭和60年～65年）の運開を目標とした開発スケジュールが進められている。これらについては、その概要は報告されているものの、いずれも開発が急ピッチで進められているところから、技術的詳細にわたっての最新の情報としては、我国においては不明確な点が多々ある。

そこで、この時期に於て、既に得られつつある我国のR&Dの成果をふまえ、先進諸国の技術内容、動向について十分な調査を行ない、今後の我国のR&Dに効果的に反映させ、効果的な計画の推進を計るため、専門的見地から討議、視察を含む海外調査を実施する。

* 技術部 廃棄物処理開発室長

目 次

1. まえがき	1
2. 調査の目的	1
3. 調査団メンバー	2
4. 日程および訪門先	2
5. 各国の高レベル廃液固化・貯蔵に関する現状	12
—訪門先調査内容—	
5.1 西ドイツ	12
5.1.1 西ドイツの核燃料サイクルおよびHLLW固化処分に関する方針	12
5.1.2 西ドイツに於ける研究の分担とセンター建設の時期	15
5.1.3 KfKに於ける試験・研究の現状	16
5.1.4 HMIに於ける試験・研究の現状	24
5.1.5 DWKの現状	31
5.1.6 西ドイツのまとめ	33
5.2 フランス	34
5.2.1 フランスの固化・貯蔵に関する政策	34
5.2.2 フランスの固化処理・貯蔵の現状	35
5.2.3 固化処理・中間貯蔵プラント	43
5.2.4 情報交換	44
5.2.5 フランスのまとめ	45
5.3 スウェーデン	46
5.3.1 スウェーデンの核燃料サイクルに対する方針	46
5.3.2 スウェーデンの固化処理・貯蔵の現状	46
5.3.3 PSP法	54
5.3.4 スウェーデンのまとめ	54
5.4 英国	55
5.4.1 英国の固化貯蔵に関する方針	55
5.4.2 Harwellに於ける研究開発	55
5.4.3 BNFLに於ける研究の現状	63
5.4.4 英国のまとめ	66
5.5 ヨーロッパ各国の固化・貯蔵に関する現状のまとめ	67

6. HLLW固化・貯蔵に関するデンバー会議	69
6.1 Plenary Session	69
6.1.1 Vitreous Forms	69
6.1.2 Encapsulation Techniques and Failure Modes	80
6.1.3 Spent Fuel, Crystalline and Other Forms	83
6.2 グループ別討論	88
6.2.1 Workshop No 1	88
6.2.2 Workshop No 2	91
6.2.3 Workshop No 3	91
6.3. 会議のまとめ	93
6.4 特別講演	94
7. 欧米のHLLW処理・貯蔵の現状についての考案	95
8. 入手資料, 文献	98
9. あとがき	

1. ま え が き

1963年(昭和38年)10月, 我国で初めて, 日本原子力研究所JPDRが2,000kwで原子力発電を開始してから15年後の今日, いま我国の原子力発電規模は, 営業運転中のものが18基, 総出力1,000万kwを越えており, さらに「ふげん」を含む試運転中のものを含めると1,400万kwに達する。この1,400万kwがフル稼動した場合, その使用済燃料を再処理すると, 年間200㎡を越える量の高放射性廃液が発生する。

この高放射性廃液を安全に管理するために, いかに安定な固化体とするかが世界的なテーマとなっているが, そのための研究開発が各国で, 精力的に行なわれている。我国でそのR&Dが予算規模上からも本格的にとりあげられるようになったのは, 1977年(昭和52年)からである。以来約2年間R&Dは急ピッチで進行し, 工学規模で既に10トン以上の模擬廃棄物を含むガラス固化体を得るとともに, 物性面からの評価も進められている。また固化体の種類とともに装置面での技術開発も進められている。

一方諸外国では, 米, 英, 仏が既に1950年代には, ガラス固化のR&Dに着手しており, 西独でも1960年代半ばには, R&Dが開始されている。そして仏では, 1978年6月マルクールに建設中であった固化プラント(AVM)が運開になって, 世界の注目を集めている。

この時期に於て, 今回ドイツ, フランス, イギリス, スウェーデンの関係機関を訪門して, 調査討論, 及び施設の視察を行なう機会が得られた。既に2年余り, 実際にR&Dを実施して問題点もある程度明確になった今日, 先進グループの技術開発状況を充分調査して, 今後余り充分とは言えない残された期間に, より効果的なR&D推進に反映させることは非常に有益と考えられる。また引続いて米国NRC主催による, コロラド州デンバーに於けるConference on High Level Radioactive Solid Waste Formsにも出席する機会が得られた。これら一連の海外調査の結果を報告する。

2. 調 査 の 目 的

我国に於ける高放射性廃液固化・貯蔵・パイロットプラントについては, 原子力委員会の策定した計画に従って, 昭和60年代初期の運開を目標として, 関連するR&Dを鋭意推進しているところである。

この目標を達成するためには, 設計, 許認可, 建設, 試運転などに必要となるリードタイムを考慮すると, 昭和55年度には予備設計に着手しなければならないであろう。このため, パイロ

ットプラントに採用するプロセス決定に寄与するR & Dは、今年度を含め2年以内に集中させ、また海外技術についてもこの期間に十分な評価を行なっておかなければならない。諸外国でも1985年～1990年（昭和60年～65年）の運開を目標とした開発スケジュールが進められている。これらについては、その概要は報告されているものの、いずれも開発が急ピッチで進められているところから、技術的詳細にわたっての最新の情報としては、我国においては不明確な点が多々ある。

そこで、この時期に於て、既に得られつつある我国のR & Dの成果をふまえ、先進諸国の技術内容、動向について十分な調査を行ない、今後の我国のR & Dに効果的に反映させ、効果的な計画の推進を計るため、専門的見地から討議、視察を含む海外調査を実施する。

3. 調査団メンバー

角田 直己	東海事業所 技術部 廃棄物処理開発室長
寺井 良平	大阪工業技術試験所 主任研究官
鈴木 由郎	旭硝子株式会社 中央研究所 主席研究員
大岡 一夫	東京芝浦電気株式会社 総合研究所 金属セラミック材料研究所 研究主幹
石川 憲也	株式会社神戸製鋼所 機械研究所 原子力グループ

4. 日程および訪問先

4.1 日程

12月 2日(土)	成田発
12月 3日(日)	Frankfurt 経由 Karlsruhe 着
12月 4日(月)	KfK Frankfurt 経由 West Berlin 着
12月 5日(火)	HMI Hannover 着
12月 6日(水)	DWK
12月 7日(木)	Marseille 着

12月 8日(金)	COGEMA
12月 9日(土)	Paris 着
12月10日(日)	Brussels 着
12月11日(月)	Mol 訪門不能
12月12日(火)	Stockholm 着
12月13日(水)	Studusvik
12月14日(木)	London 着(角田, 寺井) Manchester 着(大岡, 鈴木, 石川)
12月15日(金)	UKAEA Harwell (角田, 寺井) UKAEA Risley (大岡, 鈴木, 石川)
12月16日(土)	New York 經由 New Orleans 着
12月17日(日)	
12月18日(月)	Denver 着 Conference 受付
12月19日(火)	Conference on High Level Radioactive Solid Waste Forms
12月20日(水)	同 上
12月21日(木)	同 上
12月22日(金)	San Francisco 着
12月23日(土)	San Francisco 発
12月24日(日)	成田着

4.2 訪門先概要

訪門先, 面会者及び主な議題について, Table 4-2-1~8 にまとめる。

また, 各施設への訪門経路についても簡単にふれる。

Table 4-2-1 KfK

訪問先	Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH	期日	1978年12月4日(月) 9:00 ~ 14:15
所在地 Weberstrasse 5 D 7500 Karlsruhe 1 Postfach 3640 Phone : Linkenheim (07247) 821 内82	経路 Karlsruheへは, Frankfurtからドイツ国鉄にて南へ約1.5~2.0時間 Karlsruhe中央駅からタクシーで約20分(25 DM程度) または, KfKに依頼して, ピックアップしてもらうことが可能		
面会者	所属・担当	備考	
Dr. H. Krause Dr. Grünwald Mr. Meier Dr. Guber Dr. Saidl Dr. Siemel Dr. L. Kahl	Manager セラミックメルター担当 ガラス固化プラント遠隔操作技術開発担当 ガラス担当 # 遠隔操作技術担当 ガラス担当	12月3日予備打合せに参加	
<u>主題</u> <ol style="list-style-type: none"> 1. General Policy (Dr. Krause) 2. Ceramic Melter (Dr. Grünwald) 3. Remote Handling (Mr. Meier) 4. 日本における開発状況 (角田) 5. ガラス固化体, 特性 (Dr. Saidl & Dr. Guber) 6. 試験設備の視察 			

Table 4-2-2 HMI

訪 門 先	Hahn Meitner Institut für Kernforschung Berlin GmbH	期 日	1978年12月5日(火) 10:00 ~ 16:00
<u>所在地</u> 1 Berlin 39 (Wannsee) Glienicker Strasse 100 Phone : 80091		<u>経路</u> 西ベルリン市中心地より南西約20km, タクシ-にて, アウトバーンE6 → Köning Str. 經由にて約20分(25DM)近くに Wannsee湖をひかえたしょうしゃな研究所 (約500人)	
面 会 者	所 属 ・ 担 当		備 考
Dr. G. M. Lutze Dr. E. Schiewer (Dr. H. W. Levi)	ガラス固化処理総括責任者 ガラス固化体担当 (Science Director)		
<u>主題</u> 1. H. M. I. におけるガラス及び結晶化ガラス固化体の特性 (Dr. Lutze, Dr. Schiewer)			
2. 日本の開発状況, 討議を含む (角田, 大岡)			
3. 実験室視察			
i) セラミックメルタ			
ii) 特性試験装置			
iii) ホットセル			

Table 4-2-3 DWK

訪 門 先	Deutsche Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen mbH	期 日	1978年12月6日(水) 11:00 ~ 16:00	
<u>所在地</u>		<u>経路</u>		
Bünteweg 2 3000 Hannover 71 tel (0511) 8071-435		Hannover 中心街よりタクシーにて約10 分(10 DM程度) 中央駅から歩いても20分程度 Hildesheimer Strasse に沿った事務所 である。		
<u>面会者</u>		<u>所属・担当</u>		<u>備考</u>
Dr. Proske		Leader of Working Group " Interface, Condition, Disposal "		4ヶ月程前ア ッセから 転勤
Dr. Heimerl		Leader of HLW-Solidification Test Shop		
<u>主題</u>				
1. 西独における全般的な現状, DWKの役割の説明 (Dr. Proske) 2. ガラス固化に関する西独の方針および技術開発の現状 (Dr. Heimerl) 3. 日本における研究開発状況 (角田, 大岡) 4. 質疑応答				

Table 4-2-4 AVM

訪問先	COGEMA Etablissement de Marcoule (AVM: Atliér Vitrification de Marcoule)	期日	1978年12月8日(金) 10:00 ~ 14:00
所在地	経路		
30200 Bagnols - sur - Ceze Boite Postale n° 170	Marseille から Avinion 経由で Marcoule まで Merlin 氏運転のレンタカーで, 約1時間 20分		
面会者	所属・担当	備考	
Porteau Merlin P. Meffre Papault	Manager of SGN team in Marcoule (In charge of the construction and start up of AVM) Project Engineer Vitrification Bureau des Relations Extérieures Documentation In charge of Routine Operation of AVM	SGN SGN COGEMA CEA	
<u>主題</u> 1. AVM 視察 (Porteau, Papault 他) 2. 日本の開発状況 (角田) 3. AVM についての質疑			

Table 4-2-5 Studsvik

訪 門 先	Studsvik Energiteknik AB	期 日	1978年12月13日(水) 9:00 ~ 16:00	
<u>所在地</u> S-61182 NYKÖPING SWEDEN Phone : 46 155 80000 Teler : 64013		<u>経路</u> StockholmからStudsvik手配による リムジンにて1時間半		
<u>面会者</u>		<u>所属・担当</u>		<u>備考</u>
Stig O.W. Bergström Rolf Bodh Bo Berlin Per Linder Göran Blomgvist Olof Hindbech Ake Hultgren		Acting Manager Marketing Manager : Div. of Nuclear Technology Manager : Dept. of Radiation Protection and Waste Management Deputy Head : " Analytical Laboratory Metalogist Advisor to Waste Management Council to Nuclear Power Inspectorate		
<u>主題</u>				
1. Studavik の概要説明 (Per Linder) 2. 日本に於ける開発状況 (角田, 大岡) 3. スウェーデンに於ける固化体貯蔵の方針と現状 (Berlin) 4. ガラス固化体の特性 (Blomgvist Hultgren) 5. Powder Sintering Process の説明および装置見学 (Berlin, Hindbech)				

Table 4-2-6 Harwell

訪 門 先	United Kingdom Atomic Energy Authority		期	1978年12月15日(金)
	Harwell Laboratory		日	10:00 ~ 14:00
<u>所在地</u> Didcot, Oxon Ox 11 ORA Phone: Abingdon (0235) 2-4141		<u>経路</u> 列車: London (Paddington) → Didcot (約1時間) Didcot から UKAEA が車を手配して くれる (約20分)		
<u>面会者</u>		<u>所属・担当</u>		<u>備考</u>
Dr. J. B. Morris Mr. J. A. C. Marples		Chemical Technology Division Chemical Division		
<u>主題</u>				
<ol style="list-style-type: none"> 1. Harvest Process および英国の現状 (Dr. Morris) 2. ガラス固化体の物性 (Dr. Marples) 3. Harvest 設備の視察 (Dr. Morris) 4. 日本の開発状況 (角田) 				

Table 4-2-7 BNFL Risley

訪 門 先	British Nuclear Fuels Limited Head Office, Risley	期 日	1978年12月15日(金) 9:30~15:30
<u>所在地</u> Risley, Warrington, WA 3 6 AS Phone: Warrington 35953 Telex: 627581		<u>経路</u> Manchester から車 (BNFL手配) で約45分	
面 会 者	所 属 担 当		備 考
Mr. A. D. W. Corbet Mr. W. Heafield Dr. G. R. Plumb Mr. A. D. Elsdon Mr. C. E. Crook Dr. J. E. Antill Mr. G. M. Jones	Assistant Chief Process Engineer, Reprocessing Division Principal Process Engineer, Reprocessing Division Principal Engineer, Safety and Technical Section, Reprocessing Division R&D Program for The Reprocessing Senior Group Manager, Materials Group Materials Development Division Overseas Sales and Services, Technical Secretariat		BNFL // // // R&D BNFL Windscale UKAEA Harwell UKAEA Risley
<u>主題</u> 1. 英国の現状 (Mr. Corbet) 2. 日本の開発状況 (大岡) 3. 貯蔵方式およびキャニスター (Dr. Antill, Mr. Crook)			

Table 4-2-8 Conference

訪 門 先	Conference on High - Level Radioactive Solid Waste Forms	期 日	1978年12月19日(火) 20日(水) 21日(木)	
<u>開催地</u> Denver Hilton Hotel 1550 Court Place Denver Colorado		<u>経路</u> 空港よりタクシーで約30分 5.5ドル		
出 席 者		所 属 ・ 担 当		備 考
添付資料 参照				
<u>プログラム</u> 1. Plenary Session i) Vitrious Forms ii) Encapsulations Techniques and Failure Modes iii) Spent Fuel, Crystalline, and Other Forms iv) Assessment 2. Workshop i) Criteria for Solid Waste Forms ii) Stabilities of Alternate Waste Forms iii) Limitations in Predicting Long-Term Performance 3. 特別講演 i) Nuclear Waste : Politics and Potential (Senator Schmitt) ii) The Saga of Naturé's Reactor at Oklo (Dr. Roth)				

5. 各国の高レベル廃液固化・貯蔵に関する現状

5.1. 西ドイツ

西ドイツでは次の3ヶ所の施設を訪門し、現状および将来計画について調査した。

- KfK (Kernforschungszentrum Karlsruhe)
- HMI (Hahn Meitner Institute für Kernforschung Berlin GmbH)
- DWK (Deutsche Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen GmbH)

5.1.1. 西ドイツの核燃料サイクルおよびHLLW固化処分に関する方針

西ドイツでは、1960年代から核燃料サイクルのダウンストリームの重要性に着目して、再処理、固化、貯蔵に関する研究開発を進め、そして1977年に核燃料サイクルに関する西ドイツの基本方針を確立した。現在は、その基本方針に従って工学的な各種試験が進められている。

西ドイツの具体方針は次のように要約できる。

使用済燃料の貯蔵、再処理、固化処理、中間および永久貯蔵はすべて一貫して「Entsorgungszentrum」(Integrated Nuclear Fuel Cycle Center 以下センターと呼ぶ)にて行なう。

(Fig 5-1-1)

一方永久貯蔵は、再処理廃液を固化処理し貯蔵容器中に封入した状態で岩塩層中に入れて行なうことに定めた。一方、上記センターは永久貯蔵場所の上に建設する方針がとられ、岩塩層(Salt-dome)が多数ある Gorleben (Fig 5-1-2)に建設することとなっている。

Gorleben のセンターの運営は全て DWK の責任に於て進められるが、永久貯蔵は連邦政府 PTB (Federal Technical Bureau) 監括下にある。

使用済燃料は、Table 5-1-1 に示す貯蔵期間をへて約10年後に永久貯蔵される。Gorleben の再処理工場の処理能力は1400 MTU/年と設定されているので、Table 5-1-1の各工程はこの能力を基礎として設計、建設される予定である。

HLLWの固化処理は、従来から研究を進めて来たPAMELA* (ガラス材質をリン酸ガラスから

* PAMELA : Phosphateglasverfestigung mit anschliessender Metal einbettung Zur Schliessen Einladung hochradioactive Abfälle (Phosphate Glass solidification With additional imbedding in metal for safe disposal of highly radioactive Waste)

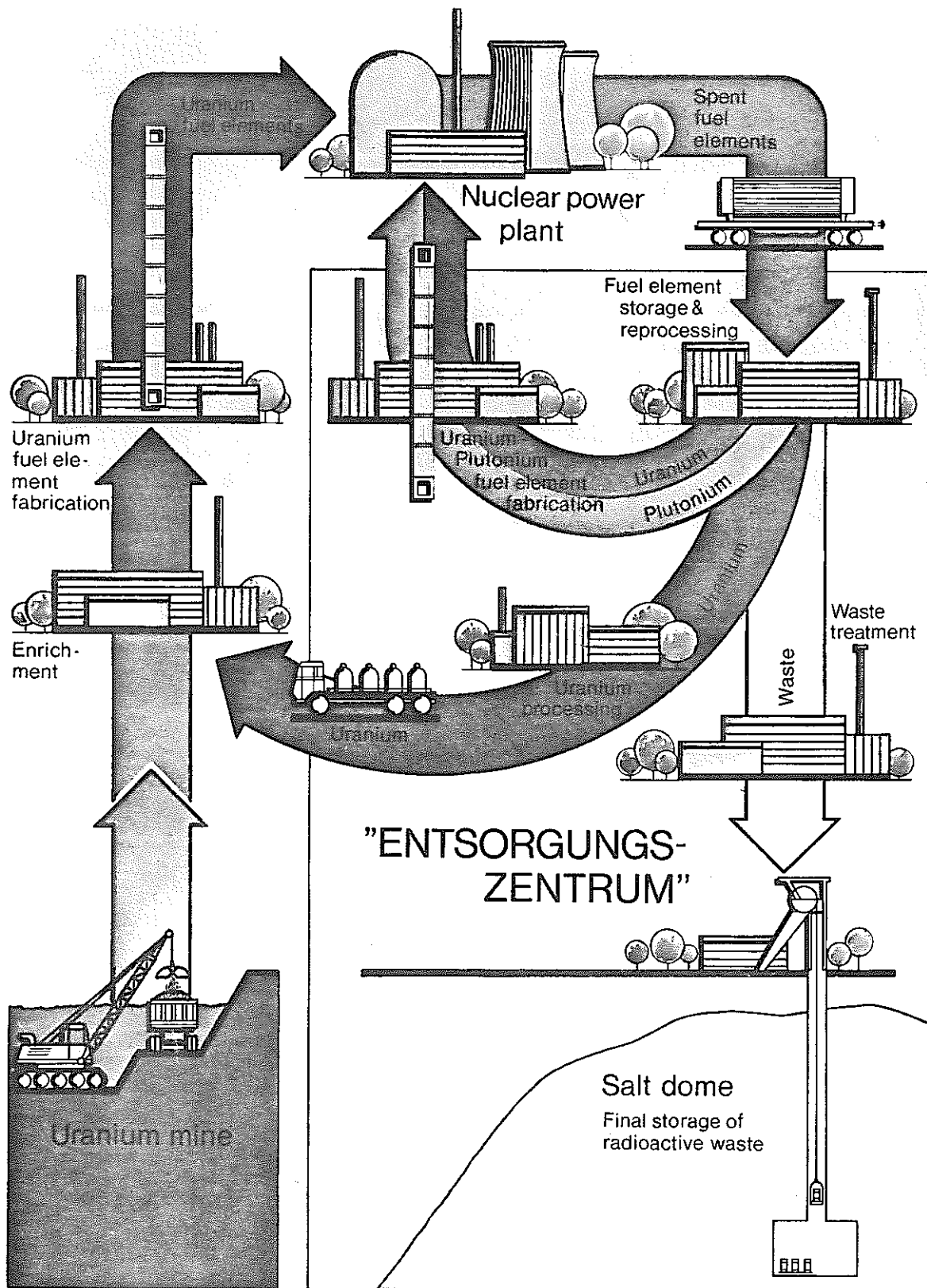


Fig.5-1-1 Nuclear Fuel Cycle and role of Entsorgungszentrum

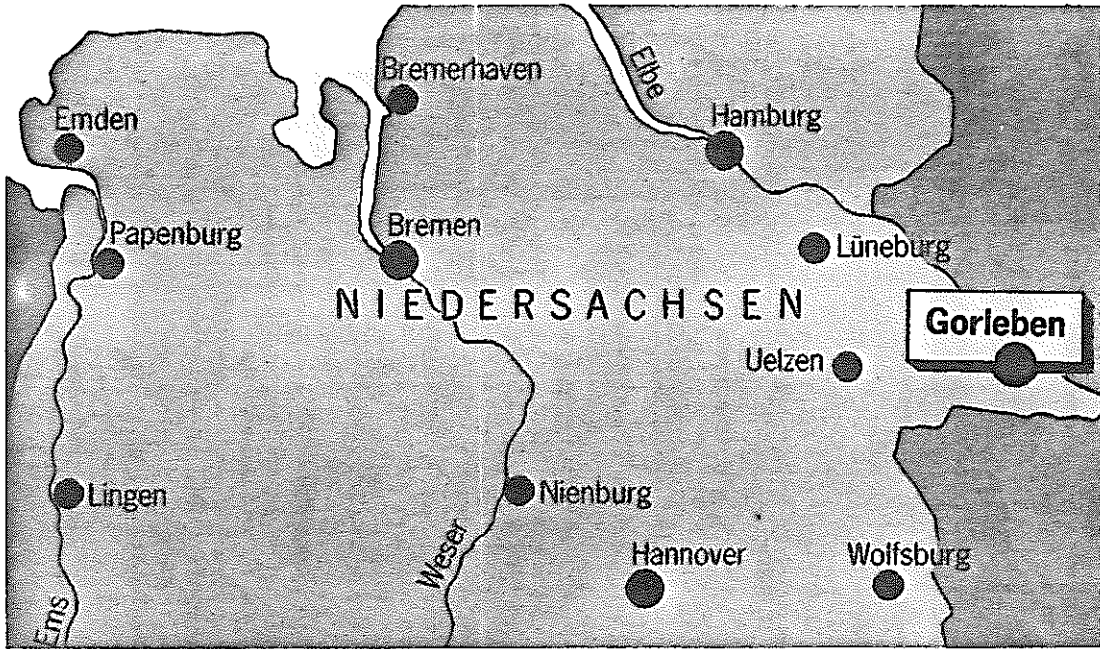


Fig.5-1-2 Location of Gorleben

Table 5-1-1 使用済燃料の処理・処分スケジュール

工 程	貯 蔵			
	場 所	冷 却 方 式	形 態	期 間 (年)
1. 炉内より取出し	原子炉施設	水 中	燃 料	0.5 ~ 1.0
2. 輸 送	センター	水 中	燃 料	3
3. 再 処 理	センター	空 冷		3
4. 固 化 処 理	センター (工学貯蔵)	空 冷	容器入り ガラス固化体	4
5. 永 久 貯 蔵			"	

ホウケイ酸ガラスに変更)によるガラスブロック固化およびガラスビーズの金属マトリックス固定化の研究は継続的に進めるが、同時にAVM方式のガラス固化の研究を進め、1987年迄に、その両者の優劣を評価した上で最終固化プラントを建設する予定との事であった。

いいかえれば、固化処理はホウケイ酸ガラス固化とするが研究開発は、セラミックメルトーにより溶解し、ガラスブロックに固化するかまたは4～5mmのガラスビーズに成形し、これを金属マトリックス固化-Vitromet 固化に最重点がおかれる。

上記2つのプロセスを進めるため、DWKはGelsenbergからPAMERAのノーハウを購入し、一方フランスよりAVMガラス固化パイロットプラント購入の準備を進めている。

これら2つのプロセスは、AVMに関してはKarlsruheに、PAMERA プロセスについてはMolにそれぞれパイロットプラントを建設する予定との事であった。

5.1.2 西ドイツに於ける研究の分担とセンター建設の時期

上記方針に沿って西ドイツでは、HLLWの固化貯蔵に関して次のような分担で進めることとしている。

- a. ガラスの組成開発および代替固化技術である結晶化ガラス固化法の開発…… HMI
- b. セラミックメルトーによるガラス固化コールド工学試験…… KfK
- c. AVM プロセスのホットパイロット試験 (HOVA) (準備中)…… KfK
- d. PAMERA プロセスのホットパイロット試験…… Mol
- e. フルスケールホットプラント …… DWK (センター)

センターは現在の予定では、1980年より、燃料棒受入貯蔵プラントから建設を開始し、全ての設備の完成は1990年代中頃と考えられる。

従って固化プラントも、HOVAかPAMERAかの決定を1987年迄に行ない、ホットプラントがセンターに建設されるのは、1990年代に入るであろうとのことであった。

上記分担による研究は、自主的な研究を除いて、DWKとの研究契約の中で進められていることが明らかになった。

西ドイツでは1960年代にリン酸ガラスブロック化についてのR&Dを開始したが、その後リン酸ガラスからホウケイ酸ガラスに変更した。今ではリン酸ガラスはソ連だけかも知れない。またリン酸ガラスの欠点を補うため金属マトリックス法を開発し、1975～1976年の2年間稼動した。

尚、VERA計画は中止した。理由はスプレー仮焼のダストの問題である、FIPSはユーリッヒで、ナトリウム燃料サイクルからのHLLWの固化(Hot Cell)およびドラムドライヤーの開発の研究だけが残っているとのことであった。

5.1.3 KfK に於ける研究・試験の現状

—セラミックメルターによるガラス固化を中心にして—

(1) ガラス固化設備

KfKでは、PAMERAプロセスの開発のため、セラミックメルターによるガラス固化処理のための一連のプロセス試験を進めていた。

KfKは過去に、2~3000 Ci/lのHLLWを実際にガラス固化し、2年以上に亘る10,000 Psiでの貯蔵試験も進めている。一方、誘導加熱炉およびジュール加熱セラミックメルターの稼動、運転試験の経験をそれぞれ2ケ年有し、かつ、セラミックメルターでは、液体原料供給の試験も行なっていた。

KfKの現在もつ役割は、一連のプロセスの開発であり、特に模擬廃液の濃縮、脱硝、ガラスフリットとの混合、炉への供給、炉の操業、オフガス設備など一連の設備を備え工学試験を進めていた。

— ガラス固化プロセス —

ガラス固化プロセスは、Fig.5-1-3に示す一連の設備により行なわれた。本プラントはすでに2年2ヶ月（一時中断したが）稼動し、1979年1月に停止する予定である。

1978年に5トン、それ以前のもの合わせて12~15トン溶融した。

模擬廃液は中間槽から空気輸送により、供給槽に入れられ、ここでガラスフリット（100 μ 以下）と混合、再びエアリストで溶融室内に35 ℓ /hrの割合で、連続的にチューブから（ノズルではない）供給される。

セラミックメルターは外側1.3 \times 1.4 \times 1.7m、内側0.6 \times 0.6 \times 0.4m ZAC製（フランス製耐火物）でつくられた角柱形で下部に2対のモリブデン電極棒が直角に配置された構成である。（Mo電極は空冷）

オフガス系は特長的な構成である。Fig.5-1-3に示すように、主としてダストのコレクタに主眼を置いた試験が進められているが、オフガス系への、入口としてメルターと同材のセルフクリーニング式セラミックフィルターがメルター内に設置され、これに水スクラバー、コンデンサー、タンクが接続されている。

Table5-1-2は上のガラス固化設備の操業データである。セラミックメルターは1200 $^{\circ}$ Cでガラス溶融を行なったが、起動はSiCによって天井加熱で行なわれた。

炉内への液体原料の供給は安定に行なうことができた。しかし原料の供給量を42 ℓ /hrまで増加させると表面にcakeを生じ溶融が制御できないことがわかった。また電極は、熱衝撃に弱いSnO₂電極より、Mo電極の方が信頼性が高いが、問題は、Mo電極の消耗速度が0.5 mm/dayと比較的早いことで、電極をゆっくりとかつ円滑に炉内に押入れる設備を設置した。メルター上部のノズルの交換も必要である。

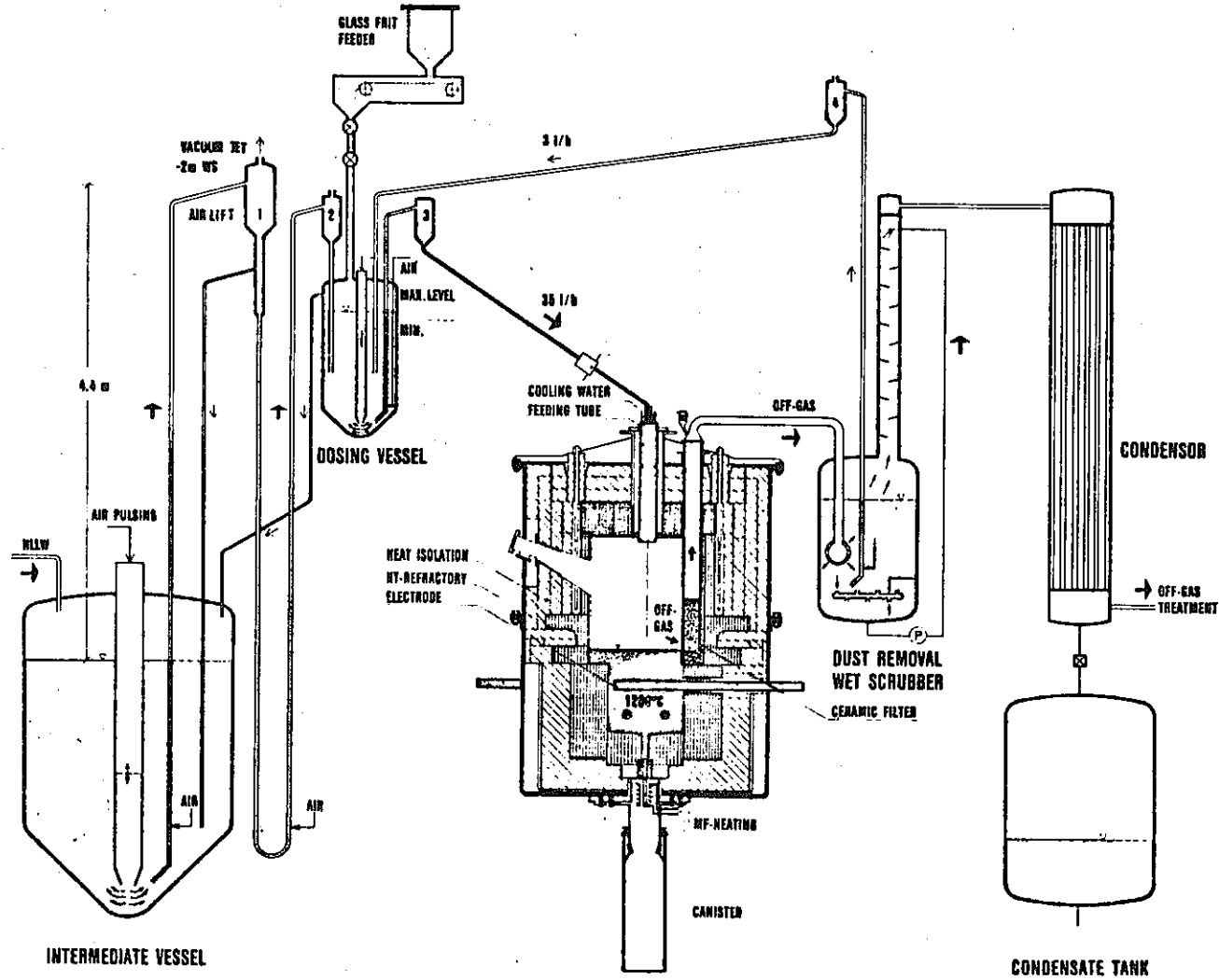


Fig. 5-1-3 Schematic illustration of the vitrification unit at KfK

炉の寿命については現在未だ明確ではない。それは、過去の操業が必ずしも連続的な原料供給ではなかったことによる。しかし一応2年の寿命は保証できるのではないかとの意見であった。

Table 5-1-2 に示すように、チューブによる液体供給と、スプレーノズルによる供給では共に大量のダストと生ずるので、セルフクリーニングフィルターが必要であったが、チューブではオフガス中のダスト量が0.6%であるのに対して、スプレーでは6.8%を高い値を示した。

Table 5-1-2 : Data concerning the vitrification unit

MELTER	Outside dimensions	: 1.3m × 1.4m × 1.7m high
	Melting cavity dimension	: 0.6m × 0.6m × 0.4m deep
	Melter held at temperature	: 15,300 hours
	Throughput	: 35 l/h average, liquid feeding
	Refractory corrosion	: 1-2 mm/month (melting cavity)
	Electrode corrosion	: 0.5 mm/day (Molybdenum)
	Pressure level	: ~ 20 mm WS
	Flooding with liquid	: Up to 90% of the total bath surface
	Energy input	: 40 kw
	Melting Temperature	: 1,200°C
FILTER	Filter efficiency	: 70-90%
	Filter bed temperature	: 1,000°C, required for self-cleaning
	Filter bed pressure loss	: 20-40 mm WS
	Off-gas dust content (after leaving the melter)	: 0.6% liquid feeding, 6-8% spraying
	Off-gas temperature	: 530°C after leaving the melter
	Off-gas composition	: 73% N ₂ , 19% O ₂ , 0.5% N ₂ O, 5% NO ₂
LONG TERM RUNS	4 long term runs (100 h)	: 400 h, liquid feeding
	Vitrified solution	: 9.8m ³ , concentration level 426 l/to
	Waste glass	: 2,930 kg
	1 long term run	: 400 h, feeding via nozzle
	Vitrified solution	: 6.8m ³ , concentration level 800 l/to
	Waste glass	: 1,400 kg

現在は、脱硝設備を附加したが、脱硝設備をつけない試験では、溶融槽からの Ru の揮発は最高13%に達した。

従来の試験は別にして最近2ケ年の試験は、PAMERA 計画の変更をうけて、ホウケイ酸ガラスとし、かつHLLWの量は15%としている。このガラスの密度は2.8~3.0 g/cm³で

ある。溶融の実績は、1978年度5t、これまで約15tとの事であった。

一連の試験は大変よい結果であったので、1979年には、大型でかつ底部に2つの流出口を設けたセラミックメルター稼動試験に入りたい意向であった。

この場合、遠隔操作性を特に重視し、配管・配線の脱着、キャニスターへのガラスの注入法（フリーズバルブの操作）およびMo電極の挿入法に遠隔操作をとり入れる計画との事であった。配管の脱着自動化の構想はすでにできているとの事であった。尚2年ほどで炉寿命が来たら、耐火材等を切断して廃棄する計画で、この操作はホットでも可能であるとの見解であった。

(2) キャニスター

西ドイツでは、Fig 5-1-4に示すように2種類のキャニスターを候補として研究開発を進めている。

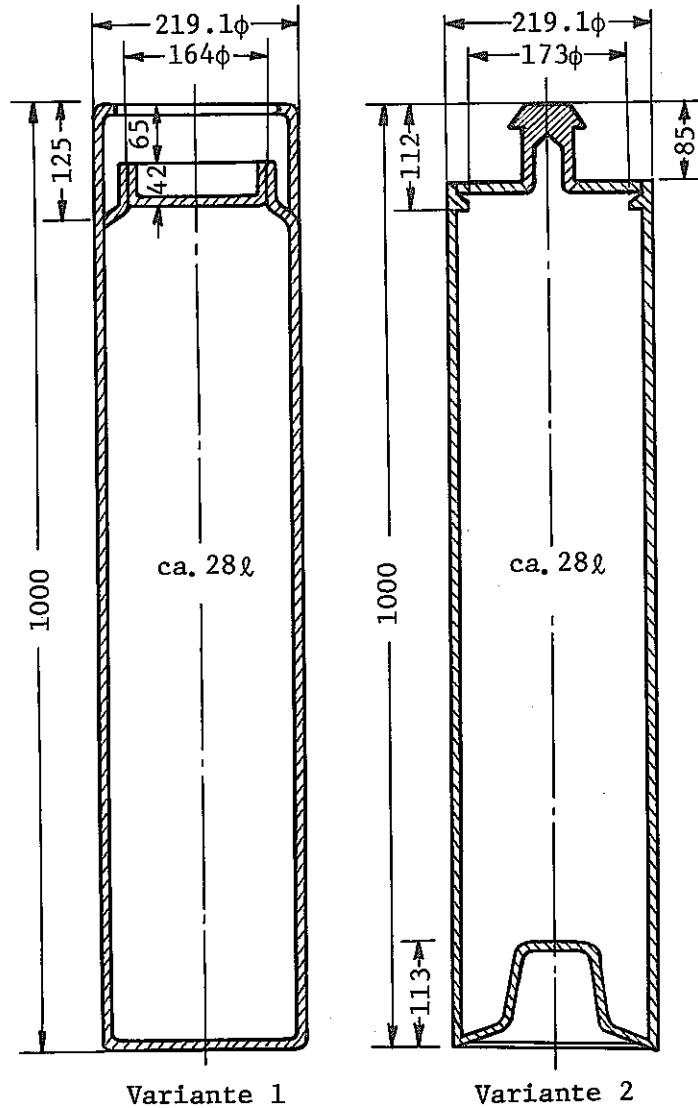


Fig.5-1-4 Alternative shapes of canisters

候補1の形状は、溶接部に対する負荷を考慮しなくても良い利点があるが、内部溶接時に見にくいこと、貯蔵時に持手がないため搬送が厄介であるなどの欠点もある。

一方、候補2は、溶接が見やすく、搬送も便利であるが、溶接部に負荷がかかる欠点もある。この両者の比較試験を充分に行なって最終形状と決定する。

尚、両形状ともその内容量はほぼ一致しており約28ℓ、ガラス量として80kg ($\rho = 2.85 \text{ g/cm}^3$)となる。

キャニスター移送の流れをFig 5-1-5に示した。

キャニスター中にガラスを注入した後、自動溶接機によってプラズマ溶接され、徐冷後、ヘリウムリークテストおよびGO-NOGO ゲージによる変形テストののち、除染作業が行なわれる。

ヘリウムリークテストの自動化の研究を進めFig 5-1-6に示す構想が得られた。また、キャニスターの変形の測定は、Fig 5-1-7に示すように、チューブまたはリングを使用する方法が検討されていた。

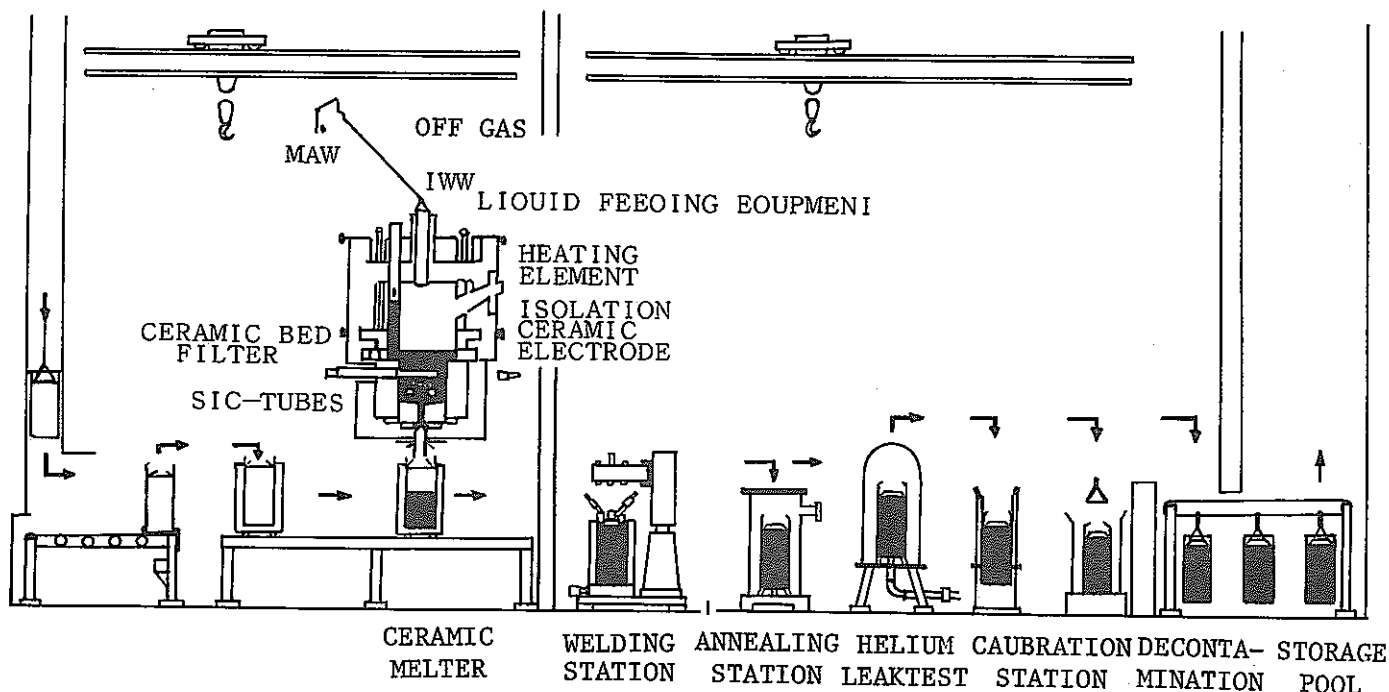


Fig.5-1-5 Schematic diagram of canister handling

(3) ガラス組成

西ドイツの政府決定に従って Table 5-1-3 示すDWKの廃液組成を用い、コールド試験用として同表中の模擬組成溶液を用いて、廃棄物含有量15%を十分に固定化するガラス組成を開発した。

開発されたガラスGP-98シリーズの組成および物性をTable 5-1-4に示した。

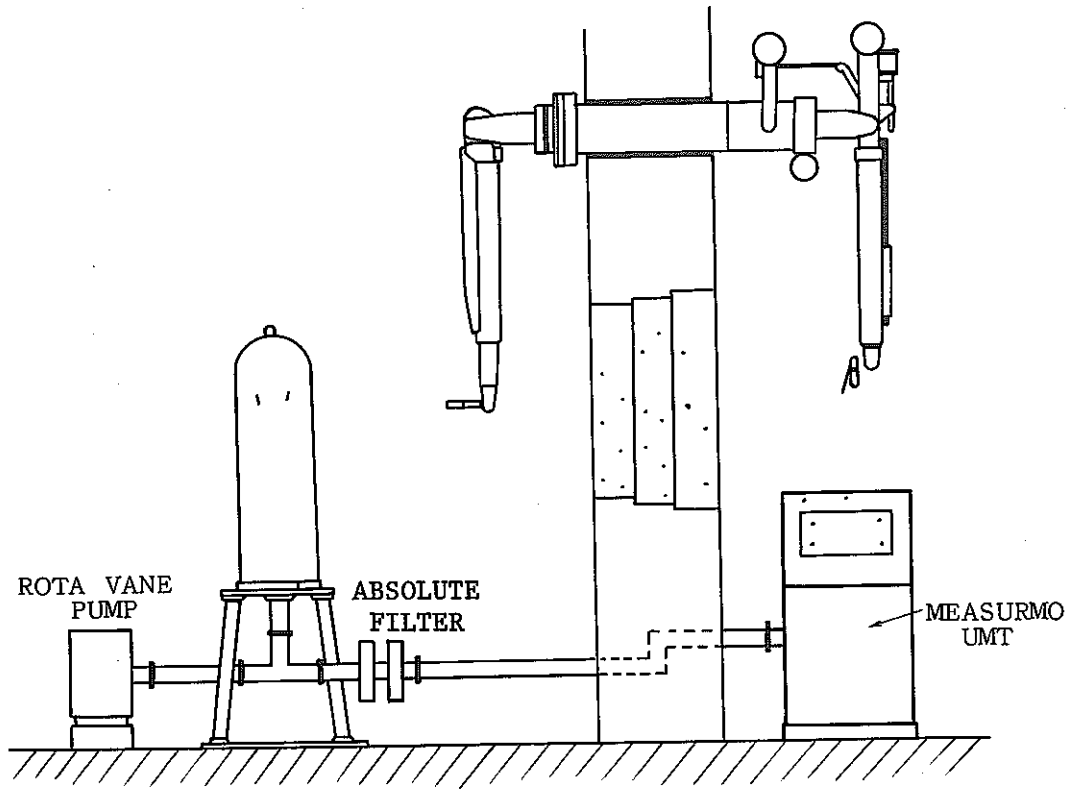


Fig.5-1-6 : Design principle of the leak test system

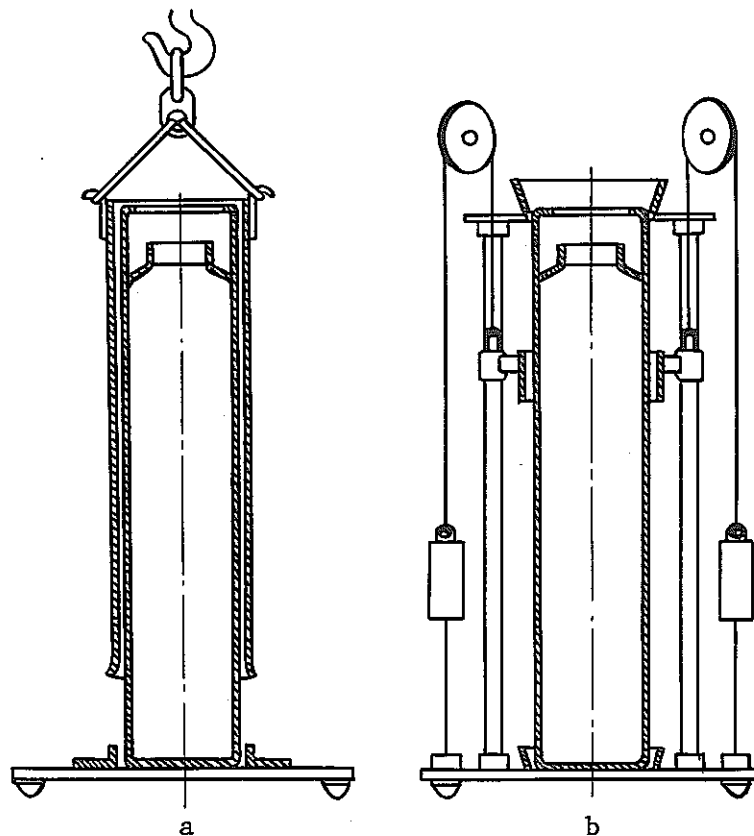


Fig.5-1-7 : Schematic diagram of the deformation test rig

Table 5-1-3 : Compositions of HLLW and Simulated HLLW for inactive test

		DWK-HLLW		Simulated HLLW			
Spaltprodukte							
32 Ge	Ge ₂ O ₃	0.002 g/l	Ge ₂ O ₃	0.002 g/l	.	.	.
33 As	As ₂ O ₃	0.004	As ₂ O ₃	0.004	.	.	.
34 Se	SeO ₂	0.186	SeO ₂	0.186	.	.	.
37 Rb	RbNO ₃	0.175	Rb ₂ O	0.111	NaNO ₃	0.11 g/l	Na ₂ O 0.04 g/l
38 Sr	Sr(NO ₃) ₂	5.14	SrO	2.52	Ca(NO ₃) ₂	4.01	CaO 1.37
39 Y	Y(NO ₃) ₃	3.66	Y ₂ O ₃	1.50	Al(NO ₃) ₃	2.85	Al ₂ O ₃ 0.68
40 Zr	ZrO ₂	12.79	ZrO ₂	12.79	ZrO ₂	12.79	ZrO ₂ 12.79
42 Mo	MoO ₃	13.20	MoO ₃	13.20	(NH ₄) ₆ Mo ₇ O ₂₄	15.37	MoO ₃ 13.30
43 Tc	Tc ₂ O ₇	3.35	Tc ₂ O ₇	3.35	Mn(NO ₃) ₂	3.85	MnO ₂ 1.87
44 Ru	RuNO(NO ₃) ₃	17.18	Ru	5.50	RuNO(NO ₃) ₃	3.12	Ru 1.0
45 Rh	Rh(NO ₃) ₃	2.70	Rh	0.97	Co(NO ₃) ₂	1.72	CoO 0.70
46 Pd	Pd(NO ₃) ₂	7.80	Pd	3.60	Ni(NO ₃) ₂	6.22	NiO 2.54
43 Ag	AgNO ₃	0.24	Ag	0.15	.	.	.
48 Cd	Cd(NO ₃) ₂	0.47	CdO	0.25	.	.	.
49 In	In ₂ O ₃	0.004	In ₂ O ₃	0.004	.	.	.
50 Sn	SnO	0.13	SnO	0.13	.	.	.
51 Sb	Sb ₂ O ₃	0.05	Sb ₂ O ₃	0.05	.	.	.
52 Te	TeO ₂	1.63	TeO ₂	1.63	TeO ₂	1.63	TeO ₂ 1.63
53 J	J	0.69
55 Cs	CsNO ₃	9.08	Cs ₂ O	6.57	CsNO ₃	1.47	Cs ₂ O 1.06
56 Ba	Ba(NO ₃) ₂	7.97	BaO	4.68	Ca(NO ₃)	5.03	CaO 1.72
57 La	La(NO ₃) ₂	7.54	La ₂ O ₃	3.78	Al(NO ₃) ₃	4.97	Al ₂ O ₃ 1.19
58 Ce	Ce(NO ₃) ₃	14.69	CeO ₂	7.75	Al(NO ₃) ₂	9.64	Al ₂ O ₃ 2.31
59 Pr	Pr(NO ₂) ₃	7.05	Pr ₆ O ₁₁	3.67	Al(NO ₃) ₃	4.61	Al ₂ O ₃ 1.10
60 Nd	Nd(NO ₃) ₃	24.06	Nd ₂ O ₃	12.25	Al(NO ₃) ₃	15.59	Al ₂ O ₃ 3.73
61 Pm	Pm ₂ O ₃	0.09	Pm ₂ O ₃	0.09	Al(NO ₃) ₃	0.11	Al ₂ O ₃ 0.03
62 Sm	Sm(NO ₃) ₃	5.39	Sm ₂ O ₃	2.80	Al(NO ₃) ₃	3.43	Al ₂ O ₃ 0.82
63 Eu	Eu ₂ O ₃	0.52	Eu ₂ O ₃	0.52	Al(NO ₃) ₃	0.63	Al ₂ O ₃ 0.15
64 Gd	Gd(NO ₃) ₃	0.74	Gd ₂ O ₃	0.39	Al(NO ₃) ₃	0.46	Al ₂ O ₃ 0.11
65 Th	Tb ₂ O ₃	0.005	Tb ₂ O ₃	0.005	.	.	.
66 Dy	Dy ₂ O ₃	0.003	Dy ₂ O ₃	0.003	.	.	.
				Σ 88.455	Σ 48.14		
Aktiniden							
92 U	UO ₂ (NO ₃) ₂	7.43	U ₃ O ₈	5.31	Pb(NO ₃) ₂	6.26	PbO 4.22
93 Np	NpO ₂	1.45	NpO ₂	1.45	Pb(NO ₃) ₂	1.71	PbO 1.15
94 Pu	PuO ₂	0.095	PuO ₂	0.095	Pb(NO ₃) ₂	0.11	PbO 0.076
95 Am	Am ₂ O ₃	0.95	Am ₂ O ₃	0.95	Pb(NO ₃) ₂	1.13	PbO 0.76
96 Cm	CmO ₂	0.095	CmO ₂	0.095	Pb(NO ₃) ₂	0.11	PbO 0.076
				Σ 7.90	Σ 6.282		
Korrosionsprodukte							
24 Cr	Cr(NO ₃) ₃	3.62	Cr ₂ O ₃	0.69	Cr(NO ₃) ₃	3.62	Cr ₂ O ₃ 0.69
26 Fe	Fe(NO ₃) ₃	9.38	Fe ₂ O ₃	1.85	Fe(NO ₃) ₃	9.38	Fe ₂ O ₃ 1.85
28 Ni	Ni(NO ₃) ₂	2.84	NiO	0.73	Ni(NO ₃) ₂	2.84	NiO 0.73
				Σ 3.27	Σ 3.27		
Neutronengift							
64 Gd	Gd(NO ₃) ₃	50.0	Gd ₂ O ₃	26.4	Ballastoxide (Na ₂ O, Fe ₂ O ₃)		4.5
				Σ 26.4	Σ 4.5		

Table 5-1-4 COMPOSITIONS AND PROPERTIES OF SELECTED GLASS PRODUCTS

COMPOSITION (WEIGHT %)	GLASS PRODUCT		
	GP 98/12	GP 98/18	GP 98/26
SiO ₂	48.20	45.60	46.09
TiO ₂	3.91	3.70	3.74
Al ₂ O ₃	2.21	2.10	2.11
B ₂ O ₃	10.54	10.00	10.08
MgO	1.80	1.70	1.71
CaO	3.48	3.30	3.33
Na ₂ O	14.88	14.10	14.23
Gd ₂ O ₃	-	4.50	3.71
HAW-Ox. ¹⁾	15.00	15.00	15.00
PRODUCT DATA			
SPECIFIC GRAVITY (G/cm ³)	2.83	2.86	
VISCOSITY at 1,150°C (Poise)	125	75	
THERMAL EXPANSION (100-400°C) (K ⁻¹ .10 ⁻⁶)	9.5	9.7	
EL. CONDUCTIVITY at 1,150°C (⁻¹ .cm ⁻¹)	2.56	2.37	
THERMAL CONDUCTIVITY at 1,150°C (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)	1.10	1.36	
EVAPORATION VELOCITY at 1,150°C (m.s. ⁻¹ .10 ⁻⁹)	2.60	3.30	
IMPACT RESISTANCE (cm ² .J ⁻¹)	6.6	9.33	
SOXHLET LEACH RATE in 21st day at 70°C (g.cm ⁻² .d.10 ⁻⁴)	0.87	0.46	
CRYSTALLIZATION after 360 h at 800°C	none	part.	
FORMATION of yellow phase	none	none	
SPECIFIC HEAT (J.kg ⁻¹ .K ⁻¹ .10 ⁻³)	1.13	1.30	

¹⁾ 15 weight % of HAW oxides contain 0.91 weight % of phoshate

GP 98/12は Gd_2O_3 を含まない組成であり、GP98/18, 26は Gd_2O_3 を含む組成である。

一方、LWR, LMFBR(burn-up 28,600~60,000 MWd/t) の燃料再処理から得られたHLLWのガラス固化体について、均質性、浸出性などを調査した。その結果、 α -放射体は均質に分散されていたが、 β -、 γ -放射体はやゝ不均質分散の傾向であった。

浸出率はtotal β について 1.4×10^{-7} 、total α について $3.3 \times 10^{-8} \text{ g/cm}^2, \text{ day}$ の結果が得られた。

(4) KfKの固化処理試験室

約 $15\text{m} \times 20\text{m}$ の一室に、一方の壁面に沿ってFig 5-1-3の設備が設置され、試験稼動を行っていた。前記の操作条件によって全ての操作が進められていた。

ガラス流出口は、インコネル製で、10 KHzの高周波によって加熱されており、熔融ガラス流出時にはこのパワーを上げるとの事であった。

訪問時には、炉内で通常の熔融が進められており、脱硝廃液にガラスフリットを混合して、炉内に供給していた。

通常は、鉄板製水槽中に流出ガラスをうけ、キャニスターの試験時にのみ本格的にキャニスターにうけるとのことであった。

試験室の一部には、自動溶接機がおかれ、簡単なツイ立てをへだて、マニピレーターによる遠隔操作試験を進めていた。

5.1.4. HMIに於ける研究・試験の現状

HMIは、ガラス固化のためのガラス組成の検討、ガラス固化の評価、および代替固化技術としての結晶化ガラス固化法の基礎試験を進めている国立の研究所である。

(1) ガラス組成の検討

ガラスの基礎組成として、 $4SiO_2 - 2B_2O_3 - 1Al_2O_3 - 2CaO - (1 \sim 3) Na_2O$ を選び、これに模擬廃棄物を15~30% (酸化物として)加えて、熔融条件、徐冷法、特性解析を行ない、有力な組成を見出しKfKの工学試験に移行した。Molの工学試験用組成もすでに決定した。

当初は、HLW量を酸化物として20~25%としていたが、固化体の長期的安定性を保持するため、現在では15%としている。熔融温度 $1130 \sim 1330^\circ\text{C}$ (平均 1200°C)で2時間の熔融によって均質な融液が得られる。F.P量を増加させるためには、 Li_2O の添加および B_2O_3 の増量がのぞましい。

HLWの含有量の高い場合、 MnO_3 のアルカリおよびアルカリ土類酸化物の複合結晶がガラスから分離する。また $680^\circ \sim 900^\circ\text{C}$ の範囲で、結晶化が進む。この系では、diopsideまたはNephelineが晶出することも見出している。

また、浸出率の測定を行なったが、この系のガラスの場合、 $10^{-5} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$ の値が得られた。

なお、当研究所で用いた模擬廃棄物の組成をTable 5-1-5に示す。現在、LWR燃料のHLLWには Na_2O が含まれるが近々、Na-freeになるとのことであった。

Table 5-1-5 Composition of fission product oxide mixture

(^x) replacing TcO_2)

Constituents	Weight %	Constituents	Weight %
Cs_2O	10.91	CeO_2	8.40
Rb_2O	1.01	ZrO_2	16.12
BaO	4.43	MnO_2 (^x)	2.21
SrO	3.81	TeO_2	1.65
Y_2O_3	2.16	MoO_3	15.12
La_2O_3	4.25	UO_2	2.45
Pr_2O_3	3.83	PdO	0.73
Nd_2O_3	15.45	RuO_2	5.90
		Rh_2O_3	1.56

(2) 結晶化ガラス固化に関する基礎試験

結晶化ガラスは熱力学的に安定であり、かつその特性が優れていると予測されるのでこの研究を進めている。

この基礎研究は、より長期的な研究テーマとして、関係者に見守られながら進めているとの事であった。

結晶化ガラスとして研究を進めているのは、Celsian, Pollucite, Diopside, Eucryptite系などで固化体の性状から考えて、特に大容量熔融では、最も望ましい結晶化ガラスはCelsian系であることが現在までの研究の結果明らかになった。

試験された結晶化ガラス系の組成および特性を表示したのがTable 5-1-6である。

Table 5-1-6(a) Compositions of Parent Glasses and Crystal Phases
of Glass Ceramics

		Glass ceramics					
Glass composition (wt%)*	SiO ₂	Celsian		Diopside		Eucryptite	Perovskite
	Al ₂ O ₃	32-37		45-52		41-60	32-50
	B ₂ O ₃	10-17		10-18		14-24	12-15
	CaO	5-8		1-5		4-11	5-10
	BaO	6-10		10-15		2-9	12-14
	Na ₂ O	18-23	MgO	5-10	BaO	0-5	
	Li ₂ O	2-6		0-10		0-3	5-8
	TiO ₂	0-2		0-3		5-10	0-3
	ZnO	5-11		3-5	(+ZrO)	5-8	10-14
	Ca ₂ O	4-6		0-3		4-13	0-5
		0-2	Fe ₂ O ₃	0-5			0-2
Crystal phases	h-celsian (BaAl ₂ Si ₂ O ₈)	diopside [CaMg(SiO ₃) ₂]	β-eucryptite (LiAlSiO ₄)	perovskite CaMoO ₄ or Mo-nosean (Ce,Zr)O ₂	pollucite [(Cs,Na)AlSi ₂ O ₆]	pollucite [Na ₈ (AlSiO ₄) ₈ Na ₈] (AlSiO ₄) · MoO ₄]	pollucite Ca ₄ La ₆ (SiO ₄) ₆ (OH) ₂ Li-Zn-silicates pollucite

*Excluding 20 wt% fission product oxides.

(b) Conditions for Preparation of Glass Ceramics

Properties		Celsian	Diopside	Eucryptite	Perovskite
Melting temp. (°K)		1470-1570	1470-1570	1370-1670	1520-1620
Transformation temp. (°K)		830-860	880-930	740-830	860-890
Nucleation temp. (°K)			925-970	800-850	900-940
time (h)			5	3-5	3-5
Crystallization temp. (°K)		1040-1130	1130-1230	900-1020	1070-1140
time (h)		6-15	10	10-24	12-24
Leaching rates (g/cm ² d) × 10 ⁶	glass	8-10	8-10	3-6	6-10
	ceramic	8-12	11-12	8-12	8-11
Thermal expansion α × 10 ⁷		90-110	70-100	50-75	90-110

結晶化ガラスの熔融は、現在小型炉（後述）で行なっているが、将来は Ceramic Melter で SnO_2 電極を用いて行なう希望である。結晶化はガラスを成形後、核形成熱処理（700～950℃で3時間）および結晶化熱処理（1000～1200℃で10～20時間）の2段階熱処理によって行なわれる。

また、ある結晶化ガラスはセラミックメルターで熔融後ビーズ化し、金属マトリックス中で均質で小粒径の結晶化をすることも可能で、特許提案中とのことであつた。

結晶化ガラスは HLW を酸化物として20%含んだ系について試験しているが、結晶粒径は1～10 μ 、密度 2.7～2.9 g/cm^3 であり、Table 5-1-6 (b) に示すように、浸出率は、もとのガラスに比して特に向上することはないが、 $8\sim 12 \times 10^{-6} \text{ g}/\text{cm}^2 \cdot \text{day}$ の値を示している。

結晶化ガラスの場合も、ガラスと同様 MoO_3 および Sulphate の固定が問題となる。実験の結果、 MoO_3 は $\text{BaO} \cdot \text{MoO}_3$ (Barium Molybdate), $\text{CaO} \cdot \text{MoO}_3$ (Calcium-Molybdate) として固定化するのがよいこと。

結晶化ガラスの場合、その特性をきめる極めて重要な因子に結晶化度がある。これは結晶粒径分布のひろがりなどのため、測定は困難であるが、電子顕微鏡での測定から概算 50～80% であることがわかつている。（たまたま机上にあつた結晶化ガラス固化体試料の結晶化度は50%であるとの事である。）

結晶化処理後、原ガラスに対して結晶化ガラスは約5%の体積収縮があるのでキャニスターに対する応力が軽減される。

(3) ガラスおよび結晶化ガラス固化体の特性評価

Active なガラス固化体はすでにAVMでつくられているし、Active な結晶化ガラス固化体（100 Ci/l）もAVMで約100ℓつくつてもらつた。

ヨーロッパ3ヶ国の共同研究としてこれらガラスは、フランス、英国、西独（HMI）に配布されて各種特性の評価を進めている。対象とする性質は放射線効果、浸出性、機械的強度（結晶化度との関連に於て）、および熱伝導率などである。

HMI では1979年から稼動する Hot Cell 中でガラスの構造と健全性に及ぼす結晶化の効果の測定を行なう。

浸出率の測定はHMIでも、粉碎したガラス粉をソックスレータイプの測定器で測定する方法（短時間測定 100℃×1時間）およびガラスブロックを用いた長時間測定（100℃×24時間）重量減少法などを試みた。

また、200℃、200Barの高温高圧下で各種の溶液を用いた試験も行なっている。

ガラス及び結晶化ガラス固化体の結晶への変化、結晶化度の変化などは、200℃～500℃の小型電気炉中に長時間固化体を入れ、一定時間後にとり出して他の性質の変化とともに調査している。

結晶化ガラス固化体はガラスより高温下では安定なように見える。しかし200℃までは全く

変化はないが、500℃程度になると、結晶が大きくなり、機械的強度が低くなる現象がみられる。

熱伝導度の測定は各種の方法ですでに Inactive-固化体については行なつたが、Active な大型固化体についてマルツールと共同で取組むとの事であつた。

現在 HMI では、波長分散型およびエネルギー分散型 XMA, および EM (高温ヘッド付) (全て日本電子製) をもち、核種の存在場所のつきとめ、各成分の微小範囲内での濃度分布の測定および生じている結晶の同定およびその熱的变化の調査を進めていた。

(4) DR・Lutzeとの議論

セラミックメルターに関してDR・Lutzeは、セラミックメルターの現在の問題点はMo電極の消耗にあり、結晶化ガラス溶融炉としてはより高温になるので、 SnO_2 電極の方が優れていると考えている。日本では SnO_2 電極の使用経験が深いと聞いており教えてほしいとの事であつた。

これに対し、 SnO_2 はガラスの耐食性がすぐれているし、硼珪酸ガラスを含めて多くのガラス用電極として使われているが、熱衝撃に弱い脆性材料なので、取付、熱上げに注意し、1400℃が最高使用温度と考えられることなどを話した。

固化体の長期的安全性を評価する特性について

長期的安全性を評価するに最も大切な特性は何かについて議論があつた。DR・Lutzeは、質問をしたが、日本側は、現段階で最も重要な特性を一つにしぼるのは、危険であり、むしろあらゆる因子を総合して評価すべきと主張した。

一方DR・Lutzeは安全性を評価する場合、あまり起り得ないCaseを想定した試験は無駄でむしろ比較的確率の高い条件について考えればよいとする立場をとった。日立側はその意見は必ずしも否定しないが、やはりより安全サイドの条件で試験する必要を強調した。

Alternatives

DR・Lutzeは、Alternativesとして、ガラスセラックス、スーパーカルサイン、シンロックなどがあり熱力学的に考えれば、結晶体の方がより安定と考える。

また、スーパーカルサイン、シンロックは共に結晶化度100%との事であるが、(疑問がある)組成の自由度が低く、かつ実際の製造プロセスとしては種々の困難が考えられる。スーパーカルサインの高圧の使用は問題があるし、シンロックは実験室の域を出ていないとの見解であつた。

日本側もほぼ同じ見解であつた。

DR・Lutzeはしかし、ガラスは先行していて、現状では受容できる固化体であるが長期的にはAlternativeを考える必要のあることを主張した。

金属複合合体について

メタルマトリックス固化体は品質管理しやすいし、安全性については優れているように思う

がどうかと質問，日本側は長期的試験の必要性を述べた。

(5) 実験室

実験室は，ガラス溶融および評価実験室，測定室，ホットセルから成っていた。

ガラス溶融および評価試験室は，約10×20mの広さをもつ長方形の部屋で中央に，小型セラミック・メルター（Fig 5-1-8 a），内容積約5ℓ，電極は軟鋼板）があり，下部にフリーズバルブ（Fig 5-1-8 b）が設置されていた。電源トランスは，2次側10V 200Aであつた。

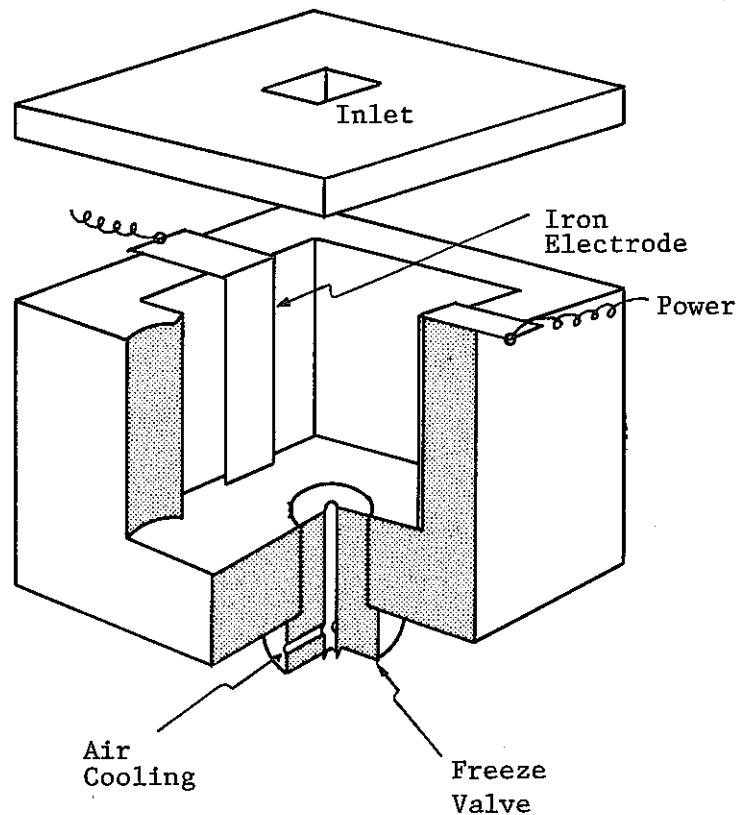


Fig.5-1-8(a) Small Ceramic Melter

同実験室内には，簡単な“電気伝導度測定装置”，熱膨脹係数測定装置がおかれていたし，

2台の200℃，200 barオートクレーブおよび，約20台の小型電気炉（円筒型）で，ガラスおよび結晶化ガラスの200～600℃での径時変化的変化が調査されていた。

測定室は6m×6mの3つの部屋から成っており，それぞれに，2台のXMAおよびEMがそれぞれ設置され主として結晶化ガラス固化体の解析が進められていた。（前記）

尚，1台のXMAにはイギリス製データー処理装置がつけられ，結晶の同定，濃度分析が進められていた。

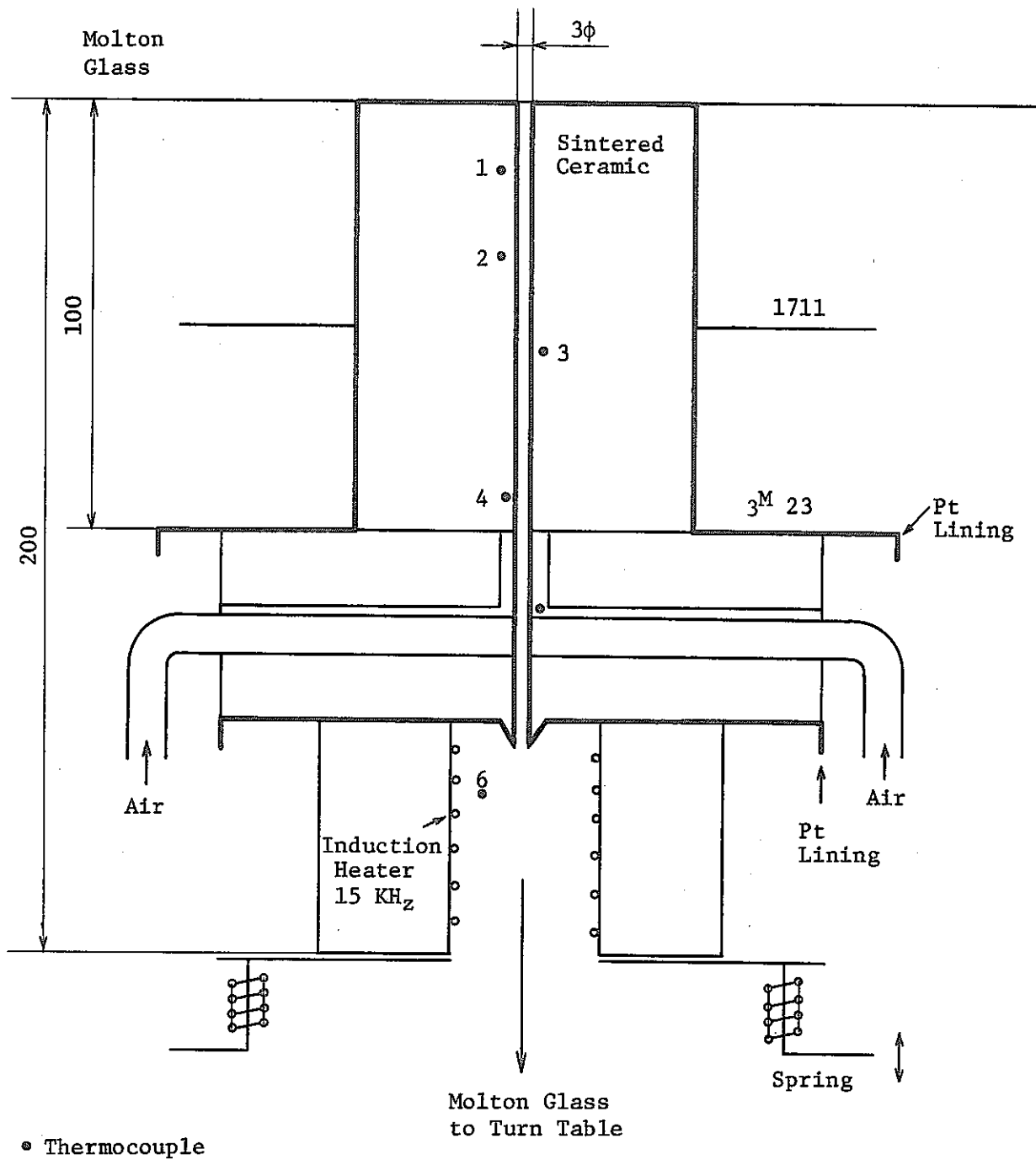


Fig.5-1-8(b) Structure of Freeze Valve

ホットセルは高い屋根をもつ建家内に構築されており、 β, γ 用1000Ciセル3室、隣接して、 α セルが2室設置されていた。

これらのセルの建設は10年前に着工されたが、重コンクリートが発見されておくれ、1979年に稼動する予定である。しかし既に10年前に固化体評価のためにHot Cellの必要性を認識し、着工したのは計画の周至さが感じられ印象的であった。

一般実験室にも、鉛ブロックが積重ねられ、近々、手作りで、Pbセル(100Ci)を組立て試験を進める予定との事であった。

1979年にこれらのセルが稼動すると、威力を発揮するものと想像された。

5.1.5. DWKの現状

DWKは西ドイツに於ける核燃料サイクルの実際の運営に当るため、西ドイツの政策、方針について明確な解答をしてくれた。5-1-1に述べた方針は抱括的にDWKで述べられたものである。またDWKは試験設備をもっていないので、会議室での意見交換に終止したが得るところは大きかった。

(1) DWKの役割、人員

DWKは、西ドイツに於ける12の電力会社の共同出資によつて1977年に設立された会社で、既に述べたように、使用済燃料の貯蔵以降永久貯蔵を除く全ての処理、貯蔵に関する責任をもつ。

DWKはすでに始まつたセンター計画(“Entsorgungszentrum”)の運営のために、200人の従業員をもつが、固化処理に関しては、最終的に24名(現在は8名)になる予定である。

(2) 再処理以降の技術的方針

基礎的方針は既に述べたので、基礎的方針を定めるに至った検討の結果あるいは、技術上の考え方についてDWKの意見をまとめておく。

HLLW

西ドイツはすでに65 m³の再処理廃液をもつが、さらに固化処理以降のActiveな試験を行なうため、小さな再処理施設を建設する予定である。HLLWは、蒸発法によつて濃縮し、蟻酸によつて脱硝した後、ガラスフリットと混合して熔融炉に供給する予定である。磷酸ガラスの場合には、磷酸によつて脱硝が可能であったが、PAMERAのガラスをホウケイ酸に変えたために、脱硝設備を附加する必要が生じた。HLLWとしては、再処理の第1段廃液のみとし、不溶性残渣は分離して、MLWとしてコンクリート固化する予定

固化処理

固化処理は既に述べたように、パイロットプラントまではAVM方式とPAMERAの方式を併行して進めるが、固化体としても、モノリシックブロックとビーズのメタルマトリックス固化を

併行して研究する。(方式の最終決定は1987年に行なう)

PAMERA方式の試験には、セラミックメルトで進める。電極棒としてMoおよび SnO_2 を比較検討する。(Moは比較的消耗が早く、消耗に応じて挿入してゆく機構がやつかいなので SnO_2 の方がよいかも知れない。)炉材として Cr_2O_3 入りEQUIVSを選ぶ予定。

原料スラリーは、炉上部よりチューブで供給し、表面を 800°C 以下のコールド・トップで稼動し成分の揮発を抑制する。

炉からの熔融ガラスの抽出は炉底部ノズルからを基本とするが、オーバーフロー方式も流量の制御ができるので魅力があるので試験を進める。キャニスターへの注入は $1\sim 200\text{kg/hr}$ で、ビーズの場合は、 $5\sim 6\text{kg/hr}$ で白金の底部に孔のある容器に導いて造粒する。

抽出時にチルト方式を使うことは、全ての接続をベローズ方式としなければならない等不利が多く考えない。

抽出機構は炉の故障対策としても絶体に必要で、2重の安全策をとるとともに、最悪の場合に備えてガラスを真空で吸上げる装置まで附加することを考えている。これはガラスが炉内で固化することは絶体さけなければならないからで、その意味で、電力の停止が絶体ないようにしなければならない。

ガラス固化装置は、廃液として 30L/hr 、ガラスとして 15kg/hr の能力をもつよう設計するつもりとの由であつた。

PAMERA計画のガラス種類を変更したのは、リン酸ガラスは、熔融炉の浸食が著しく、結晶化しやすい、ガラスとして耐久性に劣るなどの理由によるとのことであつた。

モノリシックブロックかビーズのメタルマトリックスかは両者にそれぞれ次のような利点があるので、当分比較検討をする。

ガラスブロックは、製造容易であるが、クラックが入りやすく、機械的強度に不安があり、かつ品質管理がしにくい。

ガラスビーズは、品質管理をしやすく、クラックを生ずることもなく、強度的にも不安はないが、製造が複雑である欠点がある。

固化体の品質管理、保証は、フランスと同じように、厳密なプロセス管理で、品質保証を行なうことにするようである。

セラミックメルトの炉寿命は、遠隔操作が入るにせよ約2ケ年はあるとの見解であつた。

メルトの開発にあつては、一般のガラス会社では大型炉の経験しかなく、小型、遠隔操作型のは結局自分達で開発しなければならない。

一方、キャニスターについては、多くの議論はなかつたが、基本的にはKfKでの進展をまつ由、キャニスターの健全性も、熱履歴を考慮した開発がより必要との見解であつた。

中間および永久貯蔵

固化体の中間貯蔵は空冷方式表面温度は 200℃で行なう。

永久貯蔵は Sald-dome に行なうが、HLLW 固化体では発熱の問題があるので、今後、さらに多くの Sald-dome を探査し、最も適切なものを見出すとの見解であつた。Gorleben 地帯には数百の Sald-dome があり、永久貯蔵場所としての Sald-dome は、新しい Sald-dome でかつ地表 300 m 以下から始まり 1000 m 程度で終るものになるであろうとの事であつた。また廃有機溶媒は、KfK に送り、MLW として固化するとのことであつた。

代替溶融法および固化技術等

我国で開発中の直接誘導溶融は、るつぽ内にガラスを満した時、上下の温度差がついてよくないのではないかとの見解を示したが、大変興味を示した。

また、代替固化技術は長期の題目として結晶化ガラスがあればよく、多くの代替固化技術を併行して研究していただけないとのことであつた。

5.1.6. 西ドイツのまとめ

西ドイツは、KfK 約 40 名、HMI 約 10 名、DWK 24 名（現在は 8 名）の陣容で、極めて、明確な方針の下に固化処理を進めていた。1987 年迄にフルスケール（1400 トン/年再処理施設用）のものについてのプロセスが決定される。日本に対して、どの研究者、技術者も友好的で素直な意見交換ができた。

今後、西ドイツとは情報交換を続け、よりよい協力関係を保ち、発展させることがのぞましい。

5.2 フランス

フランスは使用済燃料の再処理工場に付設して実 HLLW をガラス固化するプラントをもつ世界の唯一の国である。そのプラント AVM が 1978 年 6 月より稼動を開始して世界の注目を集めている。

この核燃料サイクル先進国の施設を Marcoule に訪問することができた。

5.2.1. フランスの固化・貯蔵に関する政策

フランスは Active な HLLW をバッチ式にガラス固化する工学試験設備 PIVER での試験を 1969 年から数年間行ない、その経験と蓄積された技術資料を基礎として、Active HLLW をガラス固化する設備、AVM を完成し、1978 年 6 月より運転を開始した。AVM は 1972 年設計を開始しているので、運開まで約 6 年間に要したことになる。

フランスでは、再処理 (Purex 法) からガラス固化処理に至る方針を早くから決定しており、固化処理に関してはすでに 1969 年より PIVER の名で開発されている。貯蔵に関しては、固化処理工場のとなりに建設された中間貯蔵設備に貯蔵容器に入れられたガラス固化体を 30 年間貯蔵する計画で、最終の永久貯蔵場所は現在研究中で未だ成案はない。多分岩盤中への貯蔵になると考えられる。

AVM の実績を見て、次期ガラス固化処理プラント (AVH) は、La Hague Nuclear Center に建設され 1983/1984 年に運開となる計画である。AVH は LWR 使用済燃料 800 t/y の再処理廃液の固化処理プラントとなる予定である。

AVH のガラス溶融方式は、当初 IAEA よりの報告に記されているように、高周波直接溶融法に変わると考えていたが、SGN の MR・MERLIN 氏の見解によると、AVM と同じロータリーキルン仮焼高周波間接溶融になるだろうとの由であった。

5.2.2 フランスの固化処理・貯蔵の現状

フランスに於ける再処理の予定量は年度別に Table 5-2-1 のように、1980 年で 670 ton/年が 1990 年には 1840 T/年と飛躍的に増加する。

Table 5-2-1 : EXPECTED REPROCESSING NEEDS
IN FRANCE

(in tons of fuel)

Reactor system	1980	1985	1990
LWR	650	1,350	1,750
FBR	10	35	90

再処理高レベル廃液の性状は Table 5-2-2 に示すように主体である LWR 使用済燃料の再処理廃液には、比較的 Na 量が少ないのが特長である。

ガラス固化のためのガラスの組成は、Table 5-2-3 に示すように使用済燃料の種類によって異なるが、LWR に関しては、 $49 \text{ SiO}_2 - 13.3 \text{ B}_2\text{O}_3 - 8.2 \text{ Na}_2\text{O} - 5.0 \text{ Al}_2\text{O}_3 - 24.5 \text{ FP}$ を用いるようである。しかし、最近は、F・P の量を 15 % 附近まで下げた試験も行なっているとの事であった。

一般には、仮焼体 1 に対しガラスフリット 2 を混合している。

Table 5-2-2 : CHARACTERISTICS OF HIGH LEVEL WASTE SOLUTIONS

Reactor System	Type of fuel	Burn up	Concentration rate	Acidity (N)	APPROXIMATIVE CHEMICAL COMPOSITION (g.l ⁻¹)										
					Al	Na	Mg	Fe	Ni	Cr	F	P	Cd	Acti-nide	F.F. oxides
MTR	U.A1/ Pu.A1	500 MWj.kg ⁻¹	¹² m ³ .t ⁻¹	- 1.8	81	2/3		1/2			10/12				Light
GRAPHITE/GAS	Sicral	1,000 MWj.t ⁻¹	30 l.t ⁻¹	1.5/2	30/35	19/23	4/5	15/17	1/2	2/3	8	1		3	15
	(Natu- ral U- ranium)	4,000 MWj.t ⁻¹	100 l.t ⁻¹	1.5	10/2	3/6	1/3	4/8	1/2	2/3	5	1		1/2	45
LWR	UO ₂	33,000 MWj.t ⁻¹	500 l.t ⁻¹	1.5	< 1	1		1/40	< 1	< 1			15/24 or 0	4/6	75
FBR	UO ₂ / PuO ₂	60,000 MWj.t ⁻¹ (mean value)	2,000 l.t ⁻¹	1/1.5		20		15/20	1/2	2/3			20/30	2/3	25

TYPE OF REACTOR		GLASS COMPOSITION (WEIGHT %)								Reduct. Volume coeffic.	Glass volume per ton of spent fuel
		SiO ₂	Na ₂ O	B ₂ O ₃	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	MgO	NiO +Cr ₂ O ₃	P.F oxides		
GRAPHI-TE/CAZ	Military	48.8	15.0	14.2	8.4	2.6	6.3	0.2	4.5	5.4	5.6 liters
	Commercial	42.7	14.2	17.8	8.6	1.6	1.0	1.4	12.7	7.0	14.0 liters
MTR		35.0	19.4	14.4	23.2	1.7	-	-	1.3	3.5	3.4 m ³
LWR		49.0	8.2	13.3	5.0	-	-	-	24.5	7.5	67 liters
FBR*		40.0	18.2	18.2	13.9	0.7	-	0.3	7.8	7.5	160 liters

Table 5-2-3 : EXAMPLES OF GLASS COMPOSITIONS

* : This example is especially devoted to a former spent fuel batch from Phenix reactor :

- mean burn up (core + blanket) = 32,000 MWj,t⁻¹
- concentration rate = 1,000 l.t⁻¹

ガラス固化は当初、PIVERと呼ばれるパッチプロセスでコールド工学試験が行なわれた。PIVERプロセスを図示したのが、Fig 5-2-1である。

金属容器中にHLLWにガラスフリットを添加して蒸発、仮焼を、高周波間接誘導加熱によって行ない、次いで、同じ炉中で高周波出力を増加して(コイルのターン数を下げて)加熱、熔融、均質化し、最後にポット底部のノズル部をも高周波で加熱、ポット中の熔融ガラスを下部に設置されたキャニスター中に注入する方式である。

AVMはPIVERを基礎として1972設計を開始し、1978年運転開始に入った。AVMのガラス固化プラントは、Fig 5-2-2に示すような構成である。

このプロセスは、HLLWを供給容器中に入れ、ロータリーキルンタイプの仮焼装置に一定量連続的に投入され、仮焼後、金属製熔融槽中に投下される。熔融槽上部からは別に所定の割合で、ガラスフリットが投入され、外部の高周波コイルによって仮焼体およびガラスフリットが熔融される。

ロータリー仮焼装置は、外径27 cm、肉厚12 cm、長さ3.6 mのURANUS 65(現在はインコネル)製円筒を約3°の傾斜で取りつけ回転する。加熱は外部に設けられた4段ヒーター(70 kw抵抗発熱)によって行なわれ、仮焼体のケーキングを防ぐ為にキルン内部に、かきとり用棒が設けられており、又特別の試薬を添加している。

ロータリー仮焼装置の最大処理能力は40 l/hrである。

ガラス熔融用ポットは、1.7 m高さで内径350 mm肉厚6.35 mmの金属容器で下部はコーン状になりドレインチューブが取り付けられている。加熱は10 KHzの高周波によって行なわれるが、コイルは円筒状および円錐状コイル、および小さな円筒コイルの三つが成り立ち、前二個のコイルは熔融用、小さな円筒コイルは、ガラス流出用に用いられる。

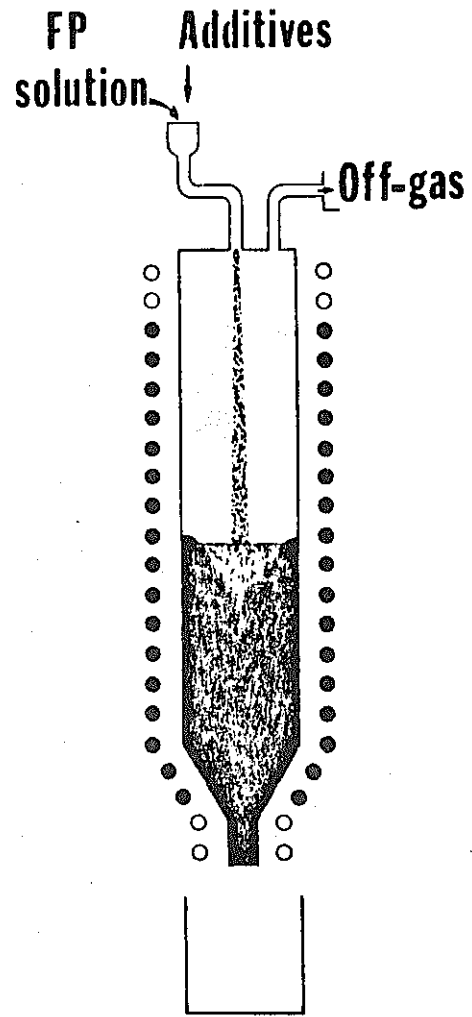
ガラス添加物は、フレーク状のガラスで、仮焼体と混合して熔融槽に入り、約1150°Cで熔融される。熔融時の炉内は10 mm H₂Oの負担で、熔融後は、槽内のガラスは、下に置かれたキャニスター中に注入してしまう。但し、ドレインチューブの上部にサイフォンを設置し、注入後ガラスが熔融槽下部に残り、次の熔融に支障のないようになっている。廃液の処理能力は、1時間30 l、1日700 lである。(ガラス固化体とここの量は150 l/日)

オフガス装置は、現在処理しているHLLWに対しては、次の4段の処理で完全である。

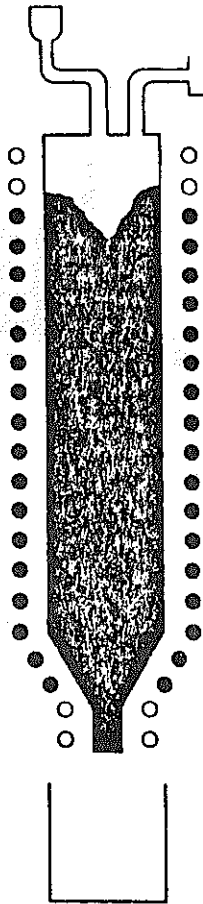
Duster, Condenser, Absorption Column 2段である。

熔融槽で熔融されたガラスは、50 cm直径で1 m高さのキャニスター中に注入される。キャニスター容量は熔融槽の3倍のガラス量に相当し、3回の注入でキャニスターは満量となる。設備能力は、1日キャニスター1体の量に相当する。尚、注入前にキャニスターは予熱しておくが、特に徐冷はしない。

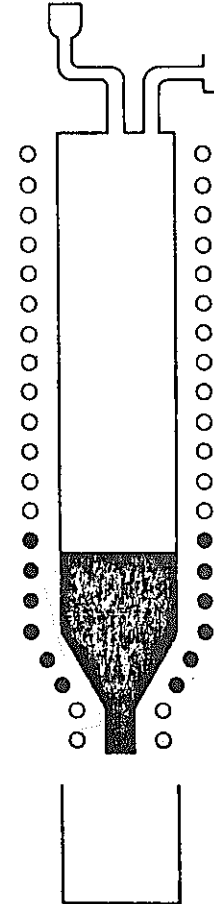
こうしてガラス固化体を注入したキャニスターはプラズマ溶接によって封入し、常温の高圧水



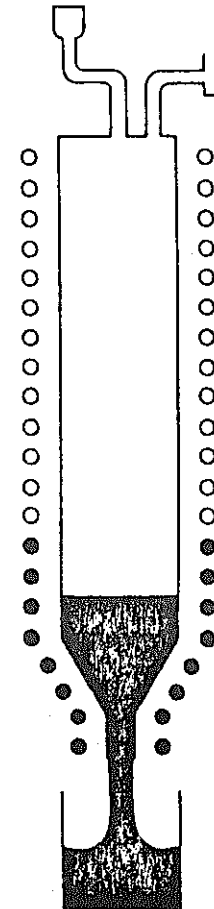
1 - FEEDING/EVAPORATION



2 - CALCINATION



3 - MELTING/REFINING



4 - POURING

Fig. 5-2-1

POT VITRIFICATION PROCESS

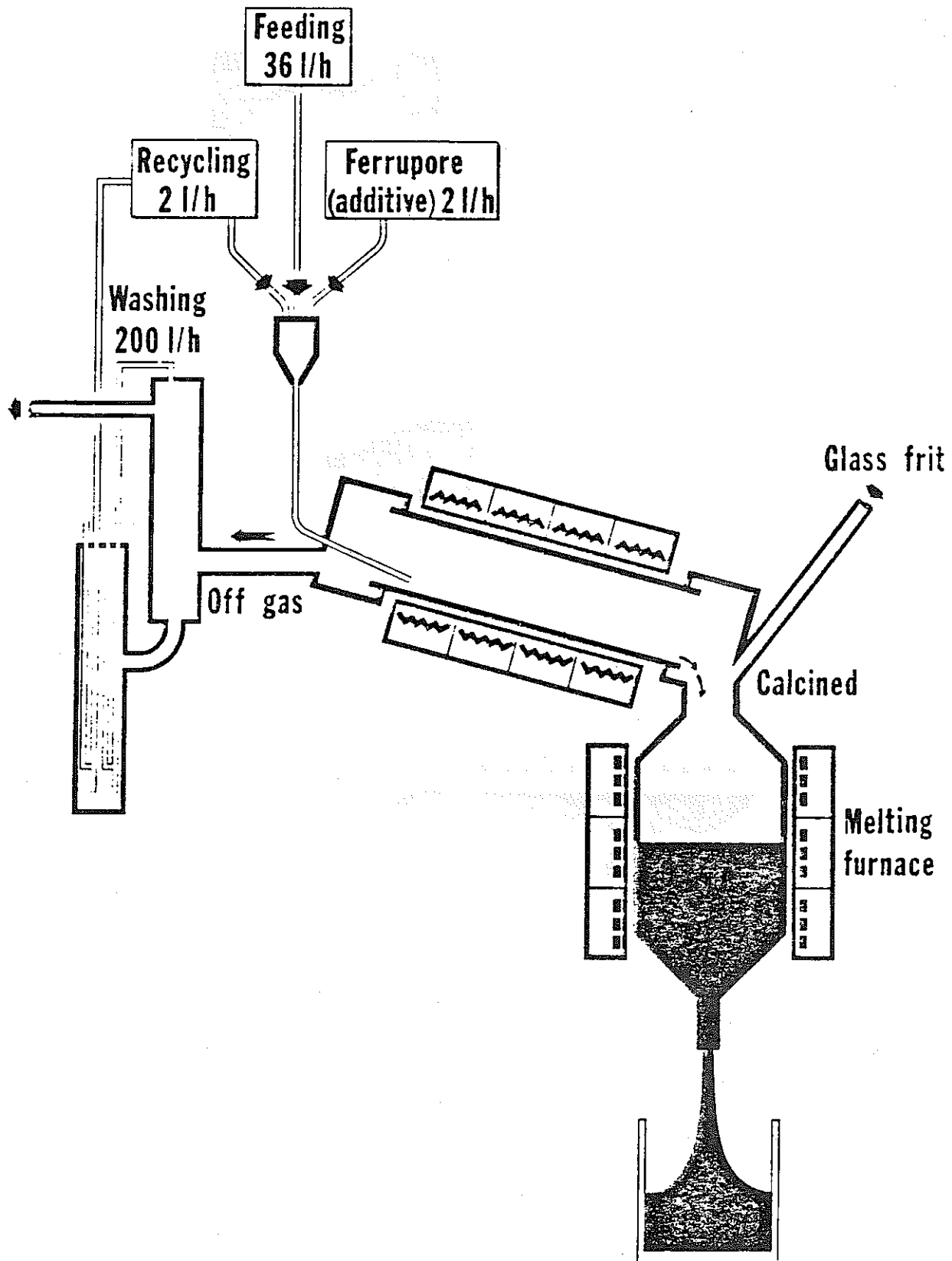


Fig. 5-2-2 **CONTINUOUS VITRIFICATION PROCESS (AVM)**

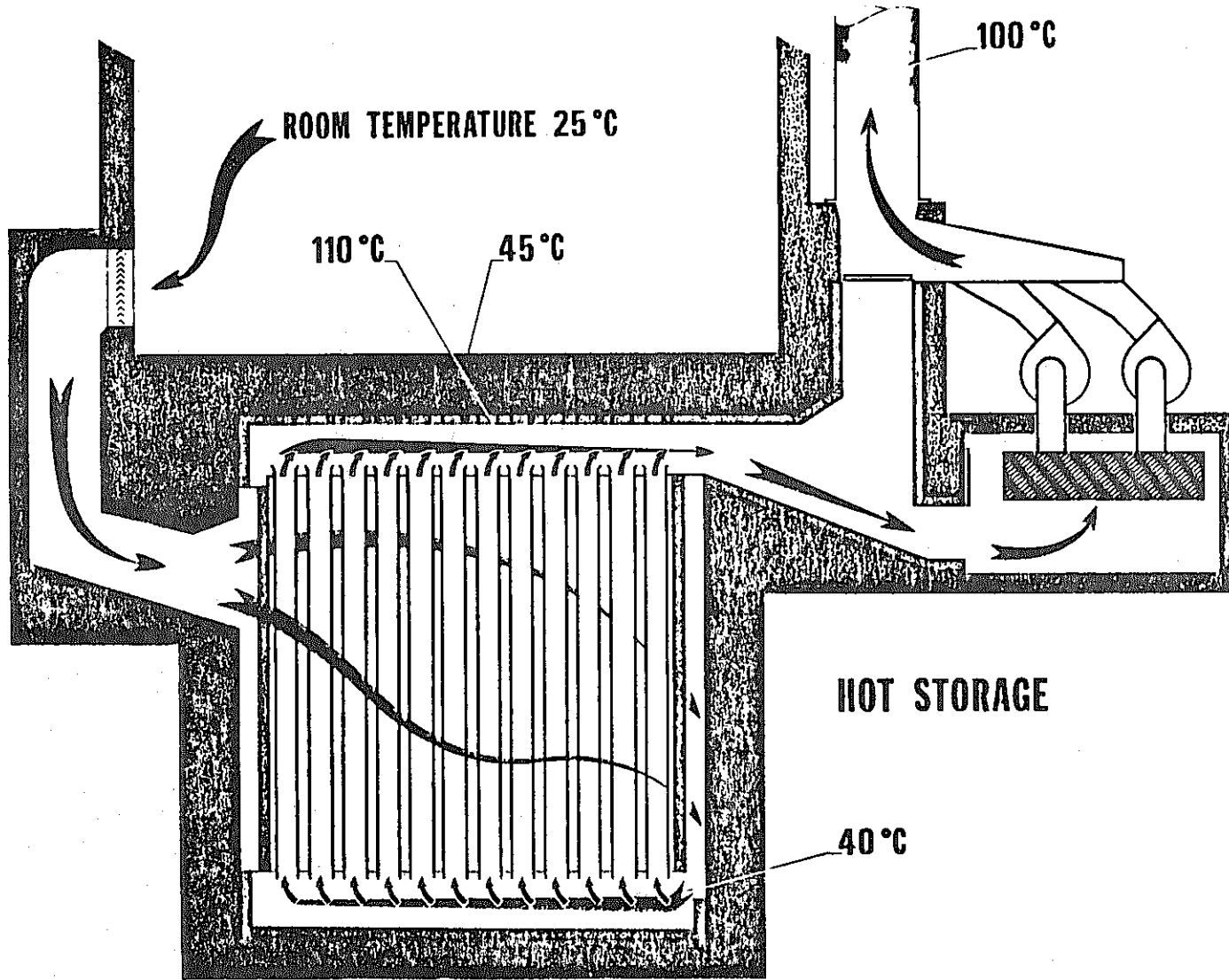


Fig. 5-2-3 RADIOACTIVE GLASS DISPOSAL
FORCED AIR COOLING

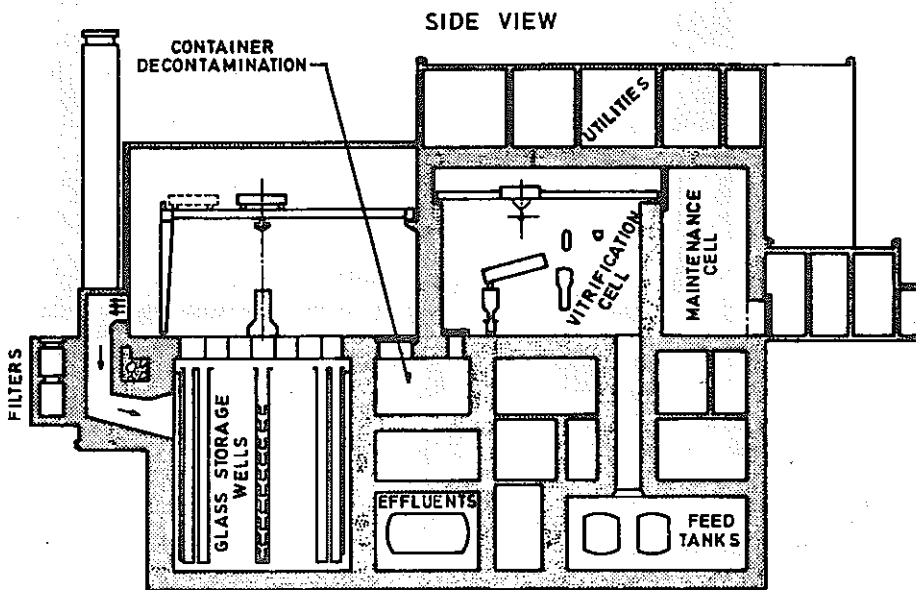
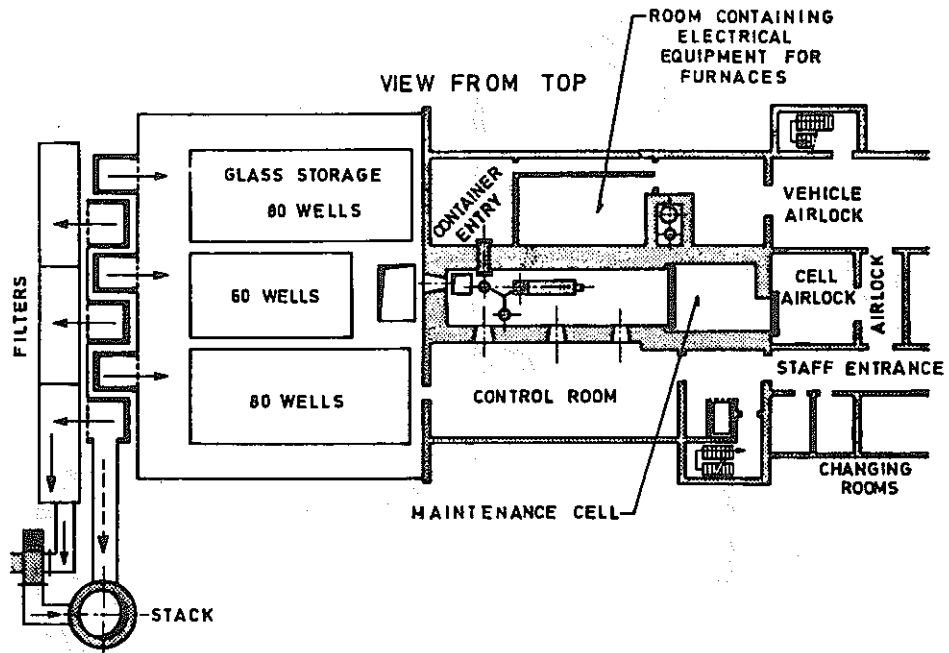


Fig.5-2-4 : Plan and elevation of vitrification plant at Marcoule (AVM).

により徐染後、中間貯蔵の施設内に貯蔵される。

中間貯蔵用として地表から 0.6 m の直径で長さ 10 m の鉄製チューブが強化コンクリート構造体中に設置され、この中に 10 本のキャニスターが詰め込まれる。このチューブの入口、つまり地表の部分は、1.5 m のコンクリートを内部につめた SS 金属製ケースによって閉塞される。

中間貯蔵時の貯蔵チューブは、Fig 5-2-3 に示されるように強制空気冷却される。排風煙突の入口で 150 °C 程度で問題はない。しかし、一定時間後自然対流冷却に切り替えられる

例へば PIVER で固化したもの（1969～1973）は、2 年前に既に自然冷却に切換えられているとのことであった。

中間貯蔵の期間はフランスではほぼ 10 年と考えているが、永久貯蔵に関する確定的な方針はない。

ガラス固化処理及び中間貯蔵プラントは Fig 5-2-4 に示すように一つの建家内に作られている。

5.2.3. 固化処理，中間貯蔵プラント

AVM は 1978 年 6 月より Active な運転を開始したが一旦 8 月から 9 月にストップした。9 月に再びスタートしたが、工場を見学した 12 月 8 日には、ガラスフリットの供給系のトラブルでストップしていた。

現在まで、75 日稼働し、72 本のキャニスターが充填されたとの由で、稼働率は充分高い。

本プラントの建家は、大別すると固化セル部分、貯蔵部分、貯蔵用空気ファン排風設備のある動力部および簡単なオフィスから成っており、Fig 5-2-4 に示す通りであった。固化貯蔵部分は約 22 m x 18 m であった。

入室すると、すぐに操作パネルが目につくが、間口 5 m、高さ 2 m 程度で、記録計の類は少なく、操作ボタンの多いものであった。

ガラス固化のホットセルは内部を見ることが許されなかった。

固化処理プラントは、前記のように 50 cm ϕ x 1 m（150 l 容量）のキャニスターが 1 本/日の能力であるが、1000 MW の原子力発電相当からは、HLLW 15 m³/年が発生し、ガラス固化体として 25 m³に相当する。これは 16 キャニスターに相当し、10 本入りの貯蔵チューブ 1.6 本を占有するにすぎない。

ロータリー仮焼装置の付着の問題は前述のロッドばかりでなく、特別な添加剤も工夫している。メタルメターは、現在 3000 時間で交換することになっており、すでに 1 回 Active な状況で交換した。

取外したメタルメターはセル内で切断し、特別な（ふたの部分が異なる）キャニスターに入れられる。

充填されたキャニスターは、蓋の溶接後徐染され、充填機に引き上げられ、所定のピットに入れられる。その前にピットのコンクリート製ふたは、コンパクトな金属性ふたに換えておく、キャニスターをピット中に挿入後はまたコンクリート製ふたで閉じる。尚ピットにはガイドがありキャニスター充填時センター合せができるようになっていた。

キャニスター充填前の貯蔵チューブのふたは緑、充填されたところは赤のふたに変えられている。

貯蔵室にあるピットは、80 cm程度の大きさのふたが、間隔10 cm程度で並んでおり、5×16列=80、5×12列=60の合計140本の貯蔵場所が完成し、あと5×16列=80本分の床が準備されており合計で本建家内では、220本の貯蔵チューブがあり、30年の長期に亘って(過去20年、今後10年分)固化体の貯蔵ができる。

キャニスターに充填されたガラス固化体の品質管理は行なっていなかった。また現在特別に規格または基準はないとの事であった。但し、ガラス固化体は、熱い中に常温の高圧水で除染されるため、そのときにクラックが入るとの事であった。またキャニスターの封入溶接はITVで監視して行なうが、その後はHeリークなどの検査はしない(不要とのこと)。

貯蔵室の一部には、来客用に、切断したキャニスターの表面はザラザラであったが、これは、ガラスがついたためサンドブラストをしたためとの事であった。

5.2.4. 情報交換

各種固化法(Alternative)について意見交換を行なったが、PAMERAのメタルマトリックス固化は好まない、現在のガラスブロック方式で充分であると明確に述べた。

また、高周波直接溶融法は、フランスでも研究が続けられており、色々なサイズのポットで試験を進めたとのことで、最高は50 lのポットサイズまで行なったとのことであった。

この場合の高周波周波数は、200 KHz、コイルは銅製コイルで水冷している。スタートは原料中にAl粉入り原料で行ない、るつぼ容量の1/10~2/10でスタートした後、直接誘導溶融に切りかえるとのことであった。直接誘導時、原料は連続的に供給され、溶融ガラスは炉下部よりドレンホールを通して行なわれる。

IAEAのReportなどにはAVHには、直接高周波溶融を考えると書かれているが、これはReportの筆者の主張であり、AVH-1はAVMとほぼ同じプロセスになるとう言うのがMelrin氏らの見解であった。

またAVMの運転開始が当初発表されていた予定より相当に遅れたのは、遠隔保守などの面より完璧を期したためであるとのことであった。

AVMを日本に建設する場合、設計から運転開始まで、5ケ年が一つの目安であるとのことであった。

5.2.5. フランスのまとめ

フランスは、すでに10年前から、ガラス固化法によって固化処理することを定め、かなり明確な方針、スケジュールの下に、AVMの完成と操業を一つの目標に進めてきたように思える。この為、結果として膨大な設備を必要とする品質管理などは極端に管略化し、むしろ工場を操業するに必要な遠隔操作性、交換機能などを重視した結果、AVMを完成したと考えられる。

しかし、AVMが低燃焼度燃料再処理廃液および貯蔵冷却期間の極めて長い廃液を対象としており、真の軽水炉燃料を対象としたプラントはラーク再処理工場に建設されるAVHとなる。そのAVHに対しては、更に安定なガラスの得られる高温溶融を目指して、セラミック系の溶融炉の開発も進めており、今後の動向を注目する必要がある。

また、永久貯蔵については、時間をかけて研究することとし、ひとまず、中間貯蔵設備を十分に大きく建設したやり方も注目される。

5.3 スウェーデン

スウェーデンでは Studsvik Energitechnik AB を訪問、調査した。スウェーデンは、使用済燃料の再処理およびガラス固化処理をフランスに委託し、固化された HLW を受入れて中間貯蔵および永久貯蔵を行なうという方針を決定し、その方針に沿って研究開発を進めているユニークな国である。

よくアレンジされた会議予定に従って、十分な情報交換を行なうことができた。

5.3.1 スウェーデンの核燃料サイクルに対する方針

核燃料サイクルのダウンストリームに関しては KBS (Nuclear Fuel Safety Project) が結成され、原子力局 (Swedish Nuclear Power Inspectorate) の管轄の下に研究が進められている。スウェーデン国内では政府機関として、 Swedish Nuclear Power Inspectorate, 各種国立研究所、スウェーデン、エネルギー開発庁 (National Swedish Board for Energy Development) などが参画し、民間側として、電力会社、および Studsvik が研究を分担している。

スウェーデンは、使用済燃料を一定期間原子炉サイトで保存したのち、これをフランスに送り、再処理および発生した HLLW のガラス固化処理をフランスに委託する。ガラス固化体はキャニスターに入った状態でうけ入れ約 30 年の中間貯蔵をフランス方式で行う。中間貯蔵の後、各キャニスターを Ti-Pb 製のケーシング中にパッキングし、その後、各キャニスターを独立に貯蔵する貯蔵ホール中に収容し、さらにバッファ粉をホールにつめて永久貯蔵を行なう。Fig5-3-1 にスウェーデンで計画されている貯蔵の期間的スケジュールを示す。

尚スウェーデンでは、現在操業中の原子炉が 6 基 (BWR 5 基, PWR 1 基), 建設中のものが 6 基 (BWR 4 基, PWR 2 基) である。

5.3.2 スウェーデンの固化処理・貯蔵の現状

スウェーデンでは固化処理は行わないが、ガラス固化体が長期の貯蔵に対して充分安全か否かを知るため、多くの検討がなされた。その概要については、4 分冊に及ぶ KBS レポート (Handling of Spent Nuclear Fuel and Final Storage of Vitrified High Level Reprocessing Waste) に詳しく述べられており、又各々の詳細については KBS Technical Report 等で報告されている。

特に注意が払われたのは、ガラス中でのクラックの発生、モリブデン相の分離、貯蔵中の結晶化、ガラス組成の不均質、ガラス中での He の発生などであった。

このため、表面積、浸水性、結晶化などに着目して各種、実環境下での試験および放射線の照射効果に関する加速試験などを行ない、これにはフランスマルクールで調製したガラス固化体を

用いた浸水試験も Studsvik で実施して、フランスのデータとの一致性の確認なども行なっている。そして、LWR の再処理廃液の固化体として、ガラス固化体は充分許容できる固化体であること、少くとも後に述べる貯蔵法によって、長期にわたる、安全性を確保でき、かつ生活圏に与えるであろう放射線量は、自然放射線量の 1/10 以下となると結論された。

但し、熱負荷をへらし、ガラス固化体の表面温度を 100℃(計算では 60℃) に抑えるため、ガラス固化体中の F・P 量を 9% とすることとした。

現在、考えているガラス固化体の組成は $40 \text{ SiO}_2 - 15 \text{ Al}_2\text{O}_3 - 10 \text{ Na}_2\text{O} - 20 \text{ B}_2\text{O}_3 - 9 \text{ F} \cdot \text{P}$ oxides - bal Fe, Cr, oxide である。

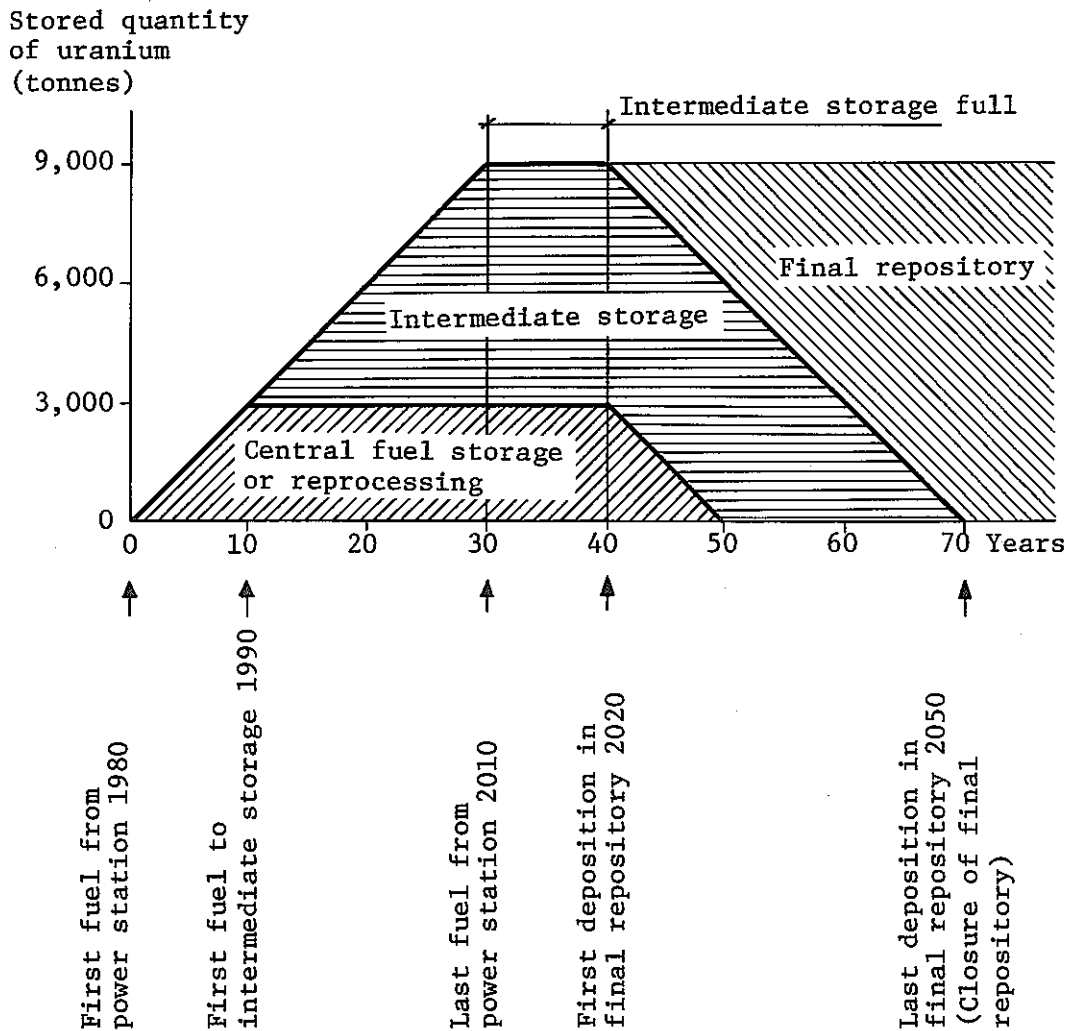


Figure 5-3-1: Diagram showing capacity requirements for the central fuel storage facility and final repository at different points in time. (KBS REPORT, 1977)

F.P量と9%とすることは、コスト増を招くしガラス工場の負担も増やすが、熱発生減少、組成の自由度増大、相分離の減少などの面から決定した。

尚、ガラスの浸出性の測定は、各貯蔵サイトの地下水の組成でも進めたとのことであった。

キャニスターは Fig 5-3-2 に示すように、直径 400mm、高さ 1500mm の耐熱性ステンレス (Z 15 CN24-12, 24Cr-12~13Ni, 0.15C) 製と定めた。肉厚は側面 3mm、底面 4mm とする。このときガラスの量は 150ℓ(420kg) 入りで、ガラス固化体と充填したキャニスターの重量は 470kg となる。

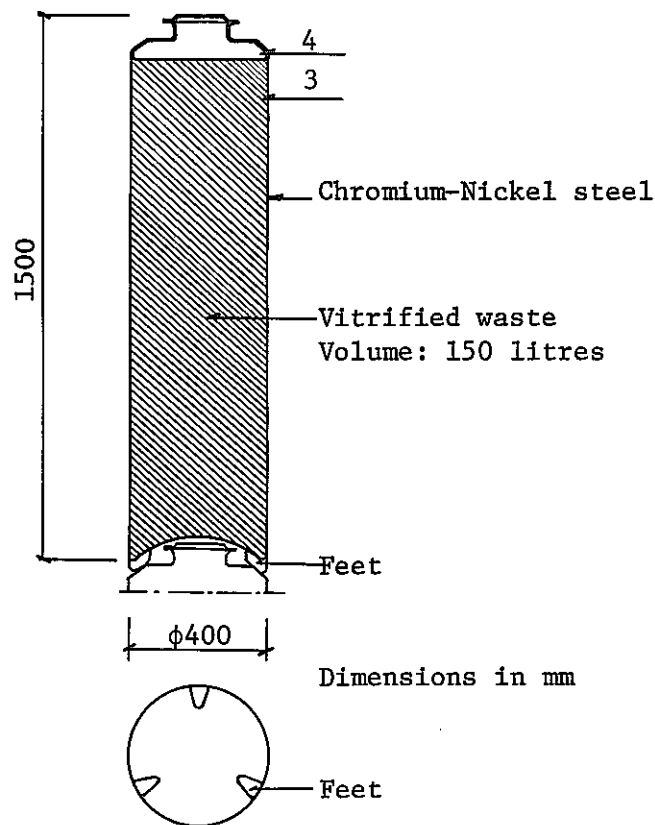


Figure5-3-2: Waste cylinder. The vitrified waste is cast in a container made of chromium-nickel steel. The container is sealed with a welded-on lid. The feet enable the waste cylinders to be stacked on top of each other.

中間貯蔵は、Fig 5-3-3(a) に示すように、受入室で受入れ、輸送キャスクに入れられて、フランスの場合と同じようにキャニスター 10 本を収容できるピットの配列された中間貯蔵設備中 (Fig 5-3-3(b)) に入れられて貯蔵される。中間貯蔵期間 30 年を経た後、キャニスターは、貯蔵場所から取り出され、パッキングされた後、永久貯蔵設備に入れられる。

(Fig 5-3-3(c))

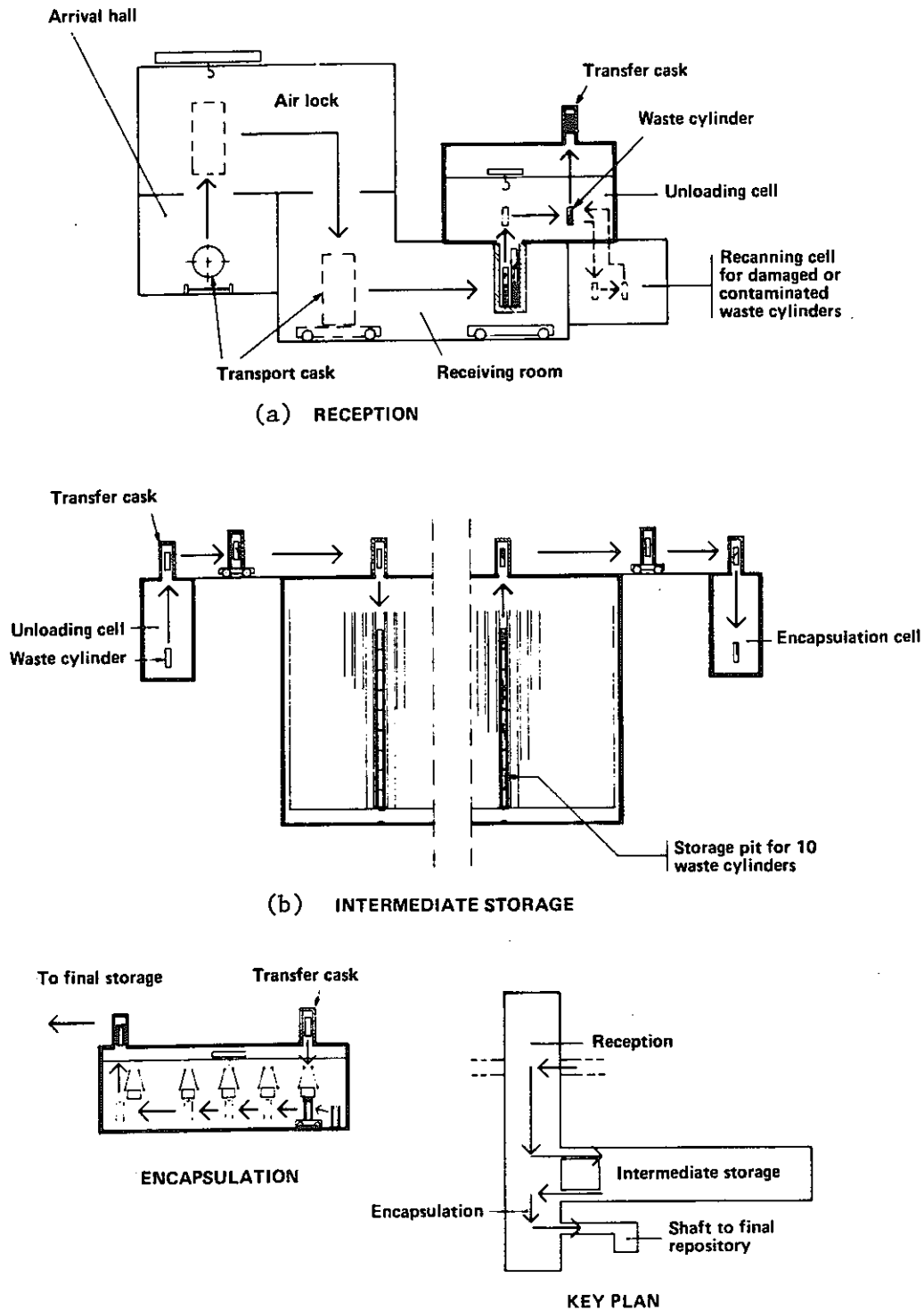


Fig.5-3-3 : Reception and intermediate storage. The transport casks arrive in the reception section and the waste cylinders are unloaded. Damaged or contaminated cylinders are encased in an outer container of chromium-nickel steel. The waste cylinders are transferred to intermediate storage inside a transfer cask. After storage for at least 30 years, the cylinders are transferred to the encapsulation cell.

キャニスターのパッキングは、Fig5-3-4 に示すように、予めチタン（外径 612 mm，内径 420 mm，高さ 1800 mm，肉厚 6 mm）のケース内に鉛をつめたパッキング容器中に、キャニスターとパッキング容器の間には鉛をキャストして行なわれる。

パッキングを施すと、全重量は 3900 kg にもなる。

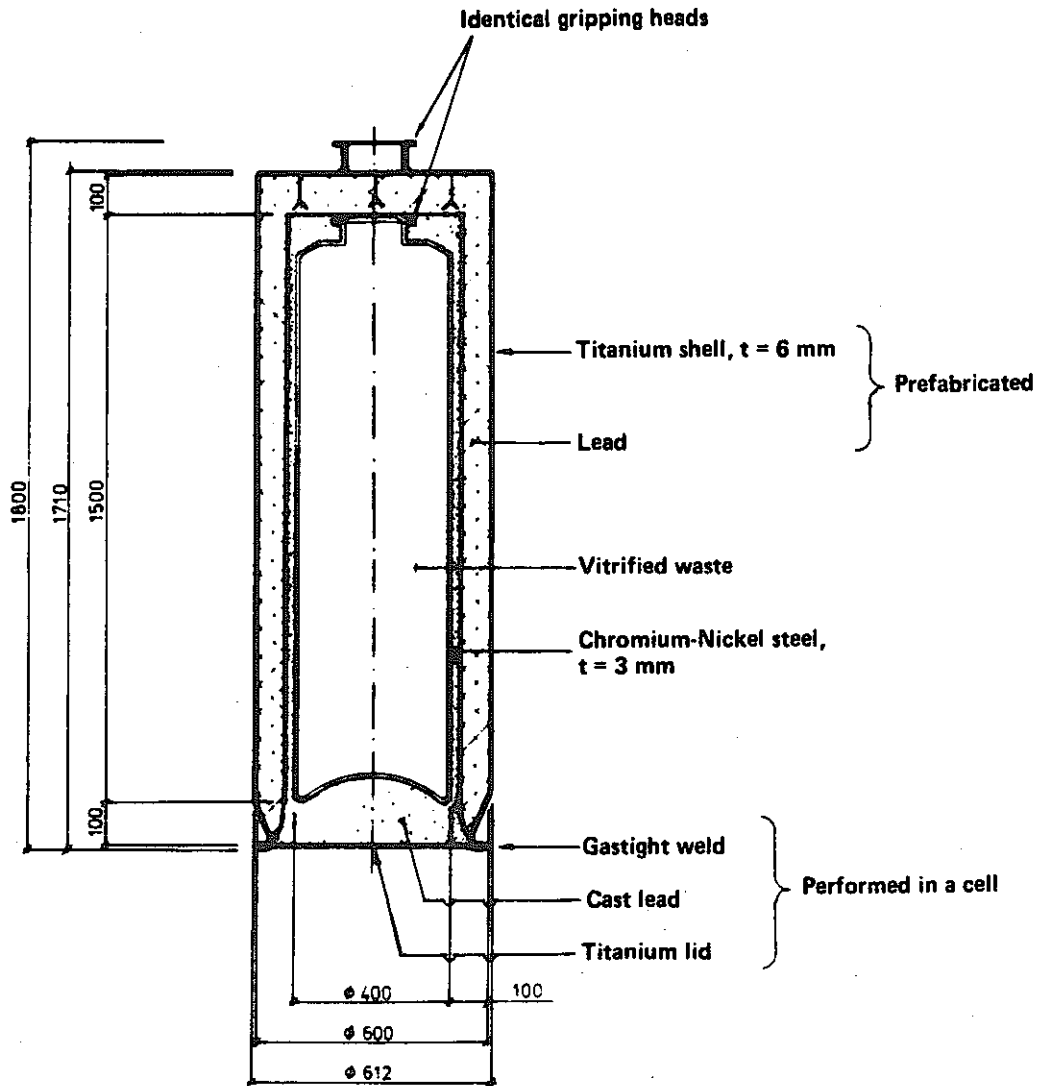
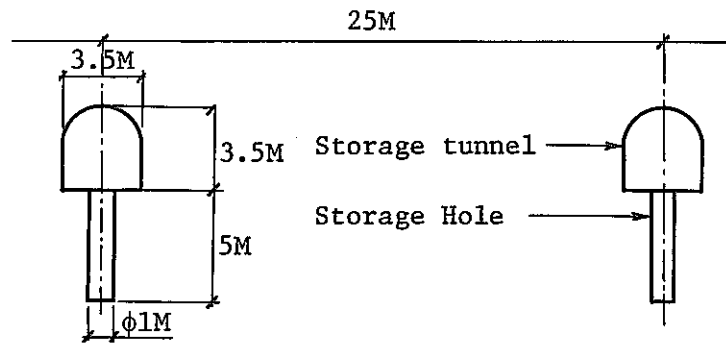
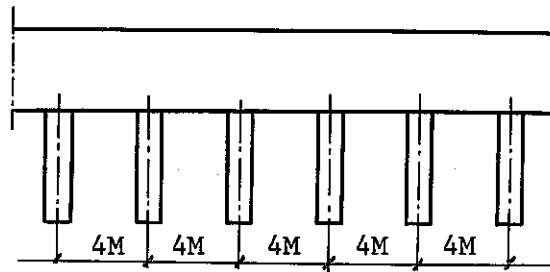


Fig.5-3-4 : Lead-titanium canister. Waste cylinder with vitrified high-level waste in a canister of lead and titanium. Total weight approx. 3,900 kg.

パッキングされたキャニスターは、Fig 5-3-5 に示す構造の貯蔵トンネル中に入れられ、1本1本が貯蔵ホールに落とし込まれる。従って1本1本のキャニスターは他のキャニスターと1辺4 m，1辺25 m ずつ離れて貯蔵されることになる。



CROSS-SECTION



LONGITUDINAL SECTION

Fig.5-3-5: Cross-section and longitudinal section of storage tunnels in the final repository. Each storage hole is designed for one canister.

さらに、この貯蔵ホール中底部には、予かじめ 300 mm のバッファー（ベントナイト粉 15%、シリカ 85%）を入れておきキャニスターを投入後、さらにホール全体に、そのバッファーをつめ、トンネル全体にキャスターが入るとトンネル中に、バッファーをつめて封じてしまう計画である。この様子を Fig 5-3-6 に示す。

スウェーデンでは、永久貯蔵施設は、30m 以上の厚さをもった岩盤中に建設する予定であり、かつ中間貯蔵およびキャニスターパッキングの設備は永久貯蔵場所の上に建設される計画である。

スウェーデンで計画されている中間貯蔵およびキャニスターパッキング、（永久貯蔵）の施設の構想図を Fig 5-3-7 に示す。

これらの計画は中間貯蔵を空冷とした場合であり、それを水冷にするにはキャニスター材を変更する必要があり、また使用済燃料のまま銅製の容器に収納して貯蔵することも評価対象となっている。

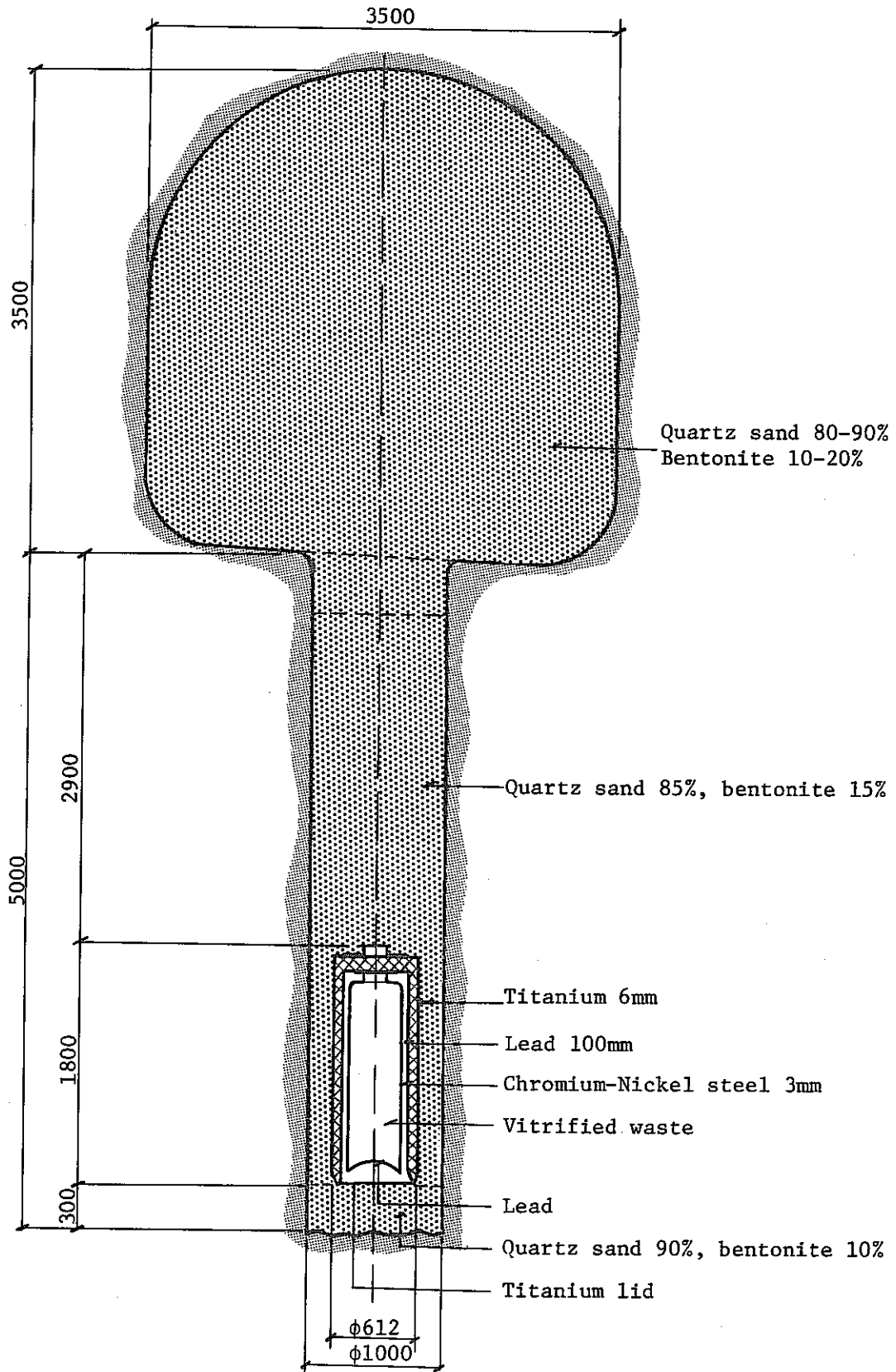


Fig.5-3-6 : The sealed final repository. Tunnels and storage holes are completely filled with a buffer material consisting of quartz sand and bentonite.

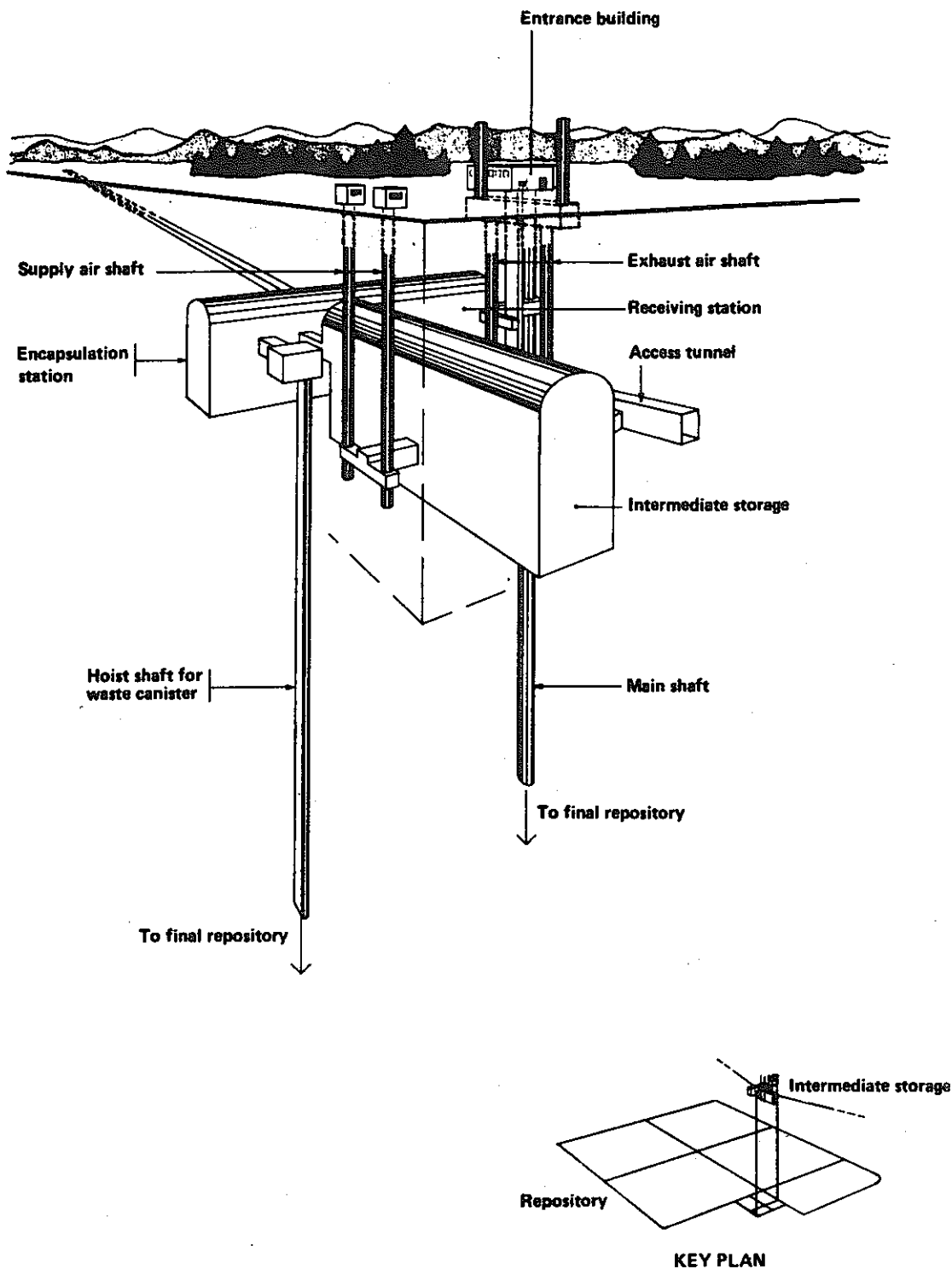


Fig.5-3-7 : Perspective drawing of plant for intermediate storage and encapsulation. It is located underground with a rock cover approximately 30 metres thick. The plant is located above the final repository.

5.3.3. PSP

スウェーデンは上記のように固化処理そのものは行わないので、工学的研究は行っていない。しかし、PSP (Powder-Sintering - Process) によって HLW の固化処理が可能ではないかと考え、試験を Studsvik で行なった。この方法は一つの Alternative とも考えられるし、また L, MLW の固化法としても有用と考えられるので、日本と共同で研究を進めたいとの提案がなされた。

Studsvik で行なわれたこれまでの PSP に関する試験は次の通りである。

すなわち、HLLW をロータリー仮焼炉 (小型実験炉) で仮焼し、この仮焼体 10~30 wt% にホウケイ酸ガラス粉 (150 μ 以下) 70~90 % を混合し、グラファイト容器中で 700 $^{\circ}$ C 以下でホットプレスする方法である。

グラファイト容器の大きさは、外径 75 mm, 内径 40 mm, 高さ 120 mm 程度の円筒のものまで試験しており、加圧力 50 kg/cm², 保持時間 ~ 2 時間程度で、グラファイト容器と、仮焼体を含むガラスとはよく結合し、これにグラファイト製のふたをかけると、それ自身で、グラファイトを貯蔵容器とした固化体となるというアイディアである。

グラファイトは滑りやすい材料であり、積み上げて貯蔵する事も問題であろうし、未だ実験的にも未成熟の段階であるといえよう。中、低レベルの廃棄物処理技術として電力界などで注目されているようである。

PSP 法の実験室に案内され、装置を見たが、電気炉を抱いた簡単な uniaxial hot-press があるのみで、数個のサンプルを見せられた。

5.3.4. スウェーデンのまとめ

スウェーデンは、再処理、固化処理は委託するという明確な方針をもつ国で、その意味で、研究の方向も絞られていた。

しかし、ガラス固化体の Se の浸出など特性評価はよく行なっているようであったし、フランスに対して、ガラス組成や、HLW 量を指示できる契約上のチャンネルも確立していた。

しかし現在は、フランスからのガラス固化体をスウェーデンでどのように評価し受入れるか、受入基準は明確に定まっていない段階で、今後の大きな問題であろう。

また当面ガラス固化体以外の、例えば岩石固化などあまり考慮の対象にしていないう様である。

Studsvik で会議中、6 人の白い聖衣をまとった少女が手に手に Candle をもって来て、聖歌を 3 曲歌って次室へと移動した。中央の少女は、月桂樹の葉でつくられた王冠に 6 本の Candle をたてゝかぶっており、その清らかな歌声とともに印象的な光景であった。移動のときの聖歌隊の歌はサンタルチアであった。

これは 12 月 14 日にスウェーデン中で行なわれるクリスマス行事の一つとのことであった。

5.4 英国

英国では、角田および寺井がHarwellを訪門し、大岡、石川、鈴木がBNFLを訪門した。原子力の先進国である英国も、ことHLLWの固化貯蔵に関しては多くの迷いを抱えているようであった。

5.4.1. 英国の固化・貯蔵の基本方針

英国の原子力関係の事業の最高管理機関は、UKAEA (United Kingdom Atomic Energy Authority) である。

HarwellはこのUKAEAの下にある政府の研究機関であり、BNFL (British Nuclear Fuel Limited) は100%政府出資による企業体である。

英国は、約2000 t/年の能力のある再処理工場をもち、再処理後のHLLWは、ガラス固化して貯蔵するという方針の下にすでに1960年からFINGAL つづいてHARVESTプロセスの開発をHarwell およびBNFLで進めている。ガラス固化のため現在進めているHarvestプロセスは、従来から開発を進めてきたFINGALプロセスを大型化したもので、基本的には変化はない。

しかし、AVMをガラス固化プラントとして採用する計画もあり、フランスと接渉をはじめたとの情報もある。Harwellの担当者(Dr. Morris)もHarvestかAVMかは18ヶ月後に結論を出すことになると述べている。

ガラス固化され、キャニスター中に入っている固化体は、水中で中間貯蔵される。但し、Harvestプロセスは、Pot 溶融プロセスであり、溶融時のCanがそのままキャニスターになることもあり、かつ水中貯蔵であることも考慮して、中間貯蔵の前にオーバーバックがかけられる。この中間貯蔵の期間は20~25年が予想される。

永久貯蔵方式は英国では未だ決定されていない。しかし、英国地質協会 (Institute of Geological Science) と共同で、地層処分についての検討を進めている。

一方、海底貯蔵についての検討も、多くの研究機関と協力して進めている。

Table 5-4-1 は英国に於ける使用済燃料と再処理廃液およびガラス固化体の発生予想量である。

5.4.2. Harwell に於ける研究開発

Harwell 研究所の規模は、従業員約4000名、内研究者は1000名、業務の約50%は、原子力の関係であるが、他の50%は材料を含む他の一般的研究とのことであった。

訪門したのはChemical Technology and Engineering Science Div. で約100人の人員で固化技術開発のほかに、Na 技術開発も行なっている。

Harwell に於ては、20年前に固化処理に関するR&Dがスタートした。当初はFingal と呼ばれる小型ポケット中でガラスを溶融する方法であった。

FINGAL プロセスを Fig 5-4-1 に示す

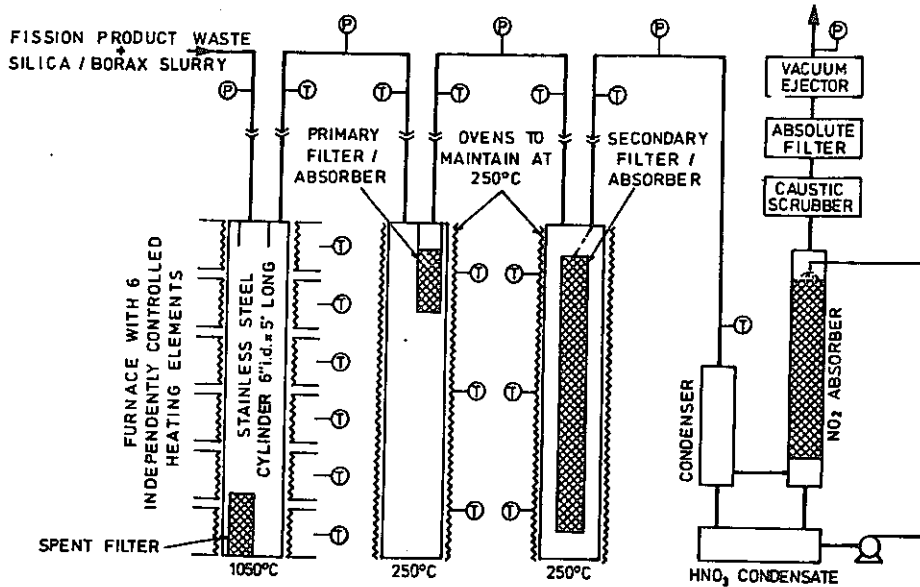


Fig.5-4-1 : Simplified flowsheet of FINGAL process.

HARVEST プロセスは、FINGAL プロセスと基本的に同一で、ただ処理能力を増加するために、ポットサイズをFINGALの直径15 cm、高さ150 cmから直径45～60 cm、高さ300～350 cmに変え、それに併って、原料供給系、オフガス系の能力を増大したシステムとなっている。

現在、英国の固化処理技術、特にガラス固化プロセスの開発は、実証規模での Inactive-Test を Harwell で、小規模の Active Test を Windscale で行なっている。これは Active HLLW の輸送に関係しており、約10年前までは、Active HLLW を再処理工場のある Windscale から Harwell に輸送することが可能であったが、現在はそれができなくなった結果である。

英国では、固化処理の対象とする HLLW は、再処理工場の第1段の抽出廃液のみを考えている。再処理廃液は、発生当初 5000 l/MTU の量であるが、これを蒸発法によって濃縮し、100～200 l/MTU とするが更にタンク中での自然濃縮によって約 70 l/MTU になる。

しかし、これは 4000 MWD/T 程度のマグノックス燃料の場合であり、軽水炉燃料では 100 l～200 l 止まりにしなければならないであろう。

HLLW 中に 1.8～2.0% の TBP 分解生成物が混入し、モリブデン、リン酸塩、ジルコニウムの沈澱が生ずる場合もあるという。

HLLW の組成は、原子炉の種類、バーンアップによって異なるが、Magnox Waste は 40% FP, 25% MgO, 20% Al₂O₃, 15% CP (CP=Corrosion Products, Oxide Base) である。この

TABLE 5-4-1

United Kingdom nuclear power and reprocessing programme

	Year	1975	1980	1985	1990	1995	2000
Installed nuclear generating capacity	GW(e)	5	11	15	30	60	100
Cumulative electrical energy sent out (UK)	GW(e) a	35	80	140	220	385	710
Cumulative amount of spent fuel reprocessed	t	18,000	27,000	40,000	55,000	66,000	88,000
Cumulative fission product decay heat	MW	2.5	7.5	18	35	60	90
Cumulative volume of HLLW concentrate	m ³	650	1,150	1,800	2,300	Nil	Nil
					Operation of Harvest		
Cumulative volume of vitrified HLW	m ³	-	-	-	250	1,500	2,900

HLWのガラス固化体の組成および特性をTable 5-4-2に示した。

HARVESTプロセスでは、ポットは前述のサイズで、初期にはインコネル800が用いられたが現在ではHK-40ステンレス(25Cr-20Ni-0.4C)製ポット中で、ホウケイ酸ガラス固化が行なわれる。

現在の研究テーマは、可能なかぎり低温(950~1000℃)で熔融でき、かつ浸出率の低いガラスを開発することである。このため、ガラス組成の検討が進められ、例えばLiイオンを添加し、混合アルカリ効果によって熔融温度を下げるなどが研究されている。(Table 5-4-2参照)

一方、Mo₂O₃の相分離については、現在のガラス組成で硫酸塩が存在しなければHLW量35%以下では発生しないとの結論であるが、現在の添加量は25%としている。

HARVESTでの熔融は、ポット内でスラリーが乾燥、仮焼体化、ガラス化される速度に合わせてスラリーを供給し、ガラス化を進行させる。ポット内に充分熔融ガラスが入った時点で、炉内徐冷され、その後専用の炉で徐冷される。

ポットはその後、除染、密封溶接を経て、SUS 310または316製容器でオーバーバックされ、水中で中間貯蔵される。

英国で水中での中間貯蔵を選んだ理由は、比較的熱負荷が高く、空冷では十分な冷却効果をあげ得ないと考えていることに基づく。

固化されたガラスは、各部分からサンプルを採取し、その浸出率を測定することによって均質性をチェックしているとのことであった。

HARVESTプロセスの現場(Chemical Technology and Engineering Science Div, Harwell)を視察したが、丁度、直径60cm、高さ300cmのポット内での熔融を行っており、プラットフォームの上から見て見学をすることができた。現場はFig. 5-4-2に示される構成であった。

ポット上部ふた(直径1.5m)には多数の孔がけられており、スラリー供給用、熱電対用(2個)、のぞき孔(2個)オフガスパイプなどとのことであった。

尙のぞき孔にはシャッターが取り付けられ、必要な時以外は閉じておく。また原料供給用ノズルは予備がとりつけられ、オフガスパイプは外径が20cmはある太いものであった。

加熱は8段に分割された抵抗加熱ヒーターによって行なわれるが、各段に90V、40Aの電源が取り付けられていた。

熔融温度は1050℃(max)であるが、系の内圧は、6ヶ所でcheckされ、炉内圧の逃げのため、水封された安全弁がとりつけられていた。

HLLWの脱硝は行なわない。Ruの減少に効果があっても、硝酸と有機系脱硝試薬の制御しにくい反応をきらうためである。

Table 5-4-2 Composition and Physical Properties of Vitrified Solid of "Magnox Waste"

(wt%)	SiO ₂	B ₂ O ₇	Na ₂ O	Li ₂ O	Waste	Formation Temperature
#189	41.5	21.8	7.7	3.7	25.3	950°C
#209	50.9	11.1	8.3	4.0	25.7	1,000°C

(a) Chemical Composition

		#189	#209
Thermal Expansion coefficient	(°C ⁻¹)	7.9×10 ⁻⁶	8.4×10 ⁻⁶
Tg	(°C)	443	466
Thermal Conductivity (at 25°C)	(Wm ⁻¹ .°C ⁻¹)	1.42	1.49
Specific Heat	(J°K ⁻¹ .g ⁻¹)		
at 150°C		1.01	
230		1.25	
325		1.33	
420		1.46	
Liquid		1.55	
Elastic Moduli	(Kbar)		
at 20°C		695	
200°C		662	
Electrical Resistivity	(log ρ in, Ω-m)		
at 300°C		4.80	5.50
400°C		3.55	3.80
600°C		0.70	1.10
900°C		-0.70	-0.65

(b) Physical Properties

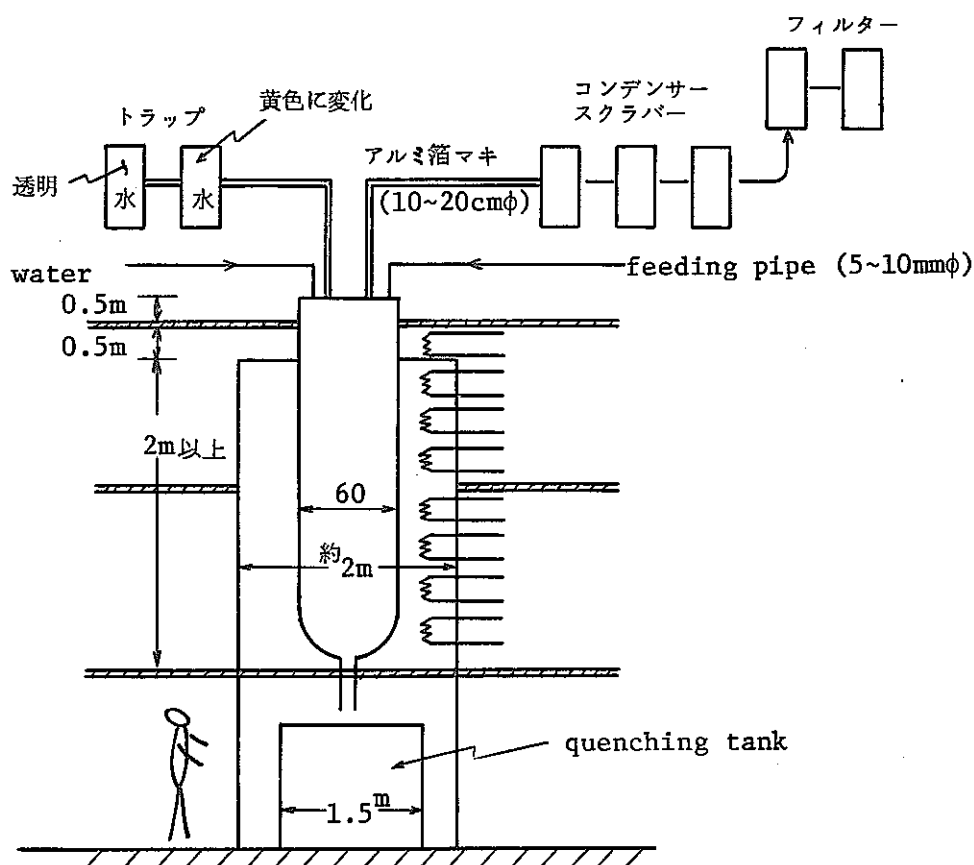


Fig.5-4-2 HARVEST Vitrification Plant at Harwell

スラリーをつくるためのガラス形成用薬品は、良く選択し、分離しないよう注意する必要があるとのことで、 SiO_2 原料として、数ミクロンの粒子径の Neosyl, Gasil などが好ましいとのことであった。スラリーは原料タンクから重力落下させる方法で供給していた。

熔融ポットは通常の試験時には、底部にパイプをつけておき、満量時にこのパイプを切断して下部に設けた水槽（クエンチャーと呼ぶ）中に流し込んでた。本式のものには底部にはパイプはない。

今回のプラントの操業は、月曜に加熱をはじめ、夜は温度を保持する（ $1050^\circ\text{C} \rightarrow 700^\circ\text{C}$ ）のみとし昼間原料供給、熔融を行ない、金曜に終るとのことであった。

しかし、カレットの残材はあまりなく、横に同サイズのガラス固化体を入れたポットが置いてあるのみで、実験回数がそれほど多いとは思えなかった。

一般情報として次のような点を知ることができた。

Windscale では、Magnarox 及び LWR Fuel の再処理設備の他に、現在は、FBR Fuel の小型再

処理設備ももち、この再処理廃液の固化についても研究をはじめているとのことであった。また Windscale の小型ガラス固化設備で、Active HLLWを固化体と製作し、試験をしているが、このサンプルサイズは直径 10 cm、高さ 30 cmとのことであった。

さらに Windscale は、ガラス固化装置の遠隔操作化をも分担している。

一方、ガラス固化体の特性測定は Harwell でも Windscale でも行なっているが、Harwell での熱伝導率の測定は、室温では、Disc 法、高温では、輻射熱伝導法で測定している。一方 Windscale では、レーザーフラッシュ法および、スペクトラムアブソープション法による測定を行なっているとのことであった。

また、ガラスの品質測定に用いる浸出率の測定は Harwell では、10 mm角で 1 mm厚の板試料をダイヤモンドパウダーで研磨した試料を用いるとのことであった。

HARVEST プロセスでの問題はオフガスへの仮焼粉の飛び出で、オフガス装置の改良が進められている。

キャニスターは主として BNFL (後述) で研究されているが、かつて使用すると発表されていた環状キャニスターは、製作が困難であること、現在の Windscale の HLLW はあまり Activity が高くないとの理由で現在は中止しているとのことであった。(但し FBR の固化体には使う可能性がある)

固化体充填、溶接後のキャニスターは検査のため He リーク試験が必要であろうとのことであった。

永久貯蔵場所は、現在英国では決定していない。それは住民のコンセンサスを得る上で種々の困難があるためとのことであった。英国には永久貯蔵場所に適した岩塩層がなく、岩盤、粘土層、グラナイト層などを考えているが、それらはいずれもスコットランド地方にあり住民の承認が得られにくい。イングランドには、粘土層があるのみなので、時間をかけて決めてゆく必要があるとのことであった。ただし、現在までの検討の結果では、岩盤への貯蔵は、100℃以上の温度上昇は好ましくないため、中間貯蔵期間が長くなり熱負荷の問題をより検討する必要があるとの意見であった。

ガラス固化体の長期的安定性については、種々の条件で処理して、浸出率の変化を調べた試験報告書を受領した。

Table 5-4-3 は、1,050℃で溶融した 209 ガラス (HLW=20 wt%) を 750℃および 850℃で処理した測定結果である。

Table 5-4-4 は 189 ガラス中に 5.1 wt% の 233 Pu を添加し、表に示す温度で 3 ケ年間保持した試材の浸出率の測定結果である。

Table 5-4-3 Soxhlet tests at 100°C in Highly Active Glass 209 (20 wt% waste)

	Glass as made At 1,050°C g.cm ⁻² d ⁻¹	Glass treated 7 days at 750°C g.cm ⁻² d ⁻¹	Glass treated 7 days at 850°C g.cm ⁻² d ⁻¹
Simulated	0.37 × 10 ⁻³	0.27 × 10 ⁻³	0.25 × 10 ⁻³
Highly Active	0.31 × 10 ⁻³	0.24 × 10 ⁻³	0.28 × 10 ⁻³

Table 5-4-4 Soxhlet Test at 100°C in 189 Glass containing ²³⁸Pu

Holding temperature		Total dose (disintegration per gram)	Leach rates (g/cm ² /day) at 100°C after		
First Year	Subsequent years		1 year	2 years	3 years
50°C	20°C	2.7 × 10 ¹⁸	1.6 × 10 ⁻³	2.3 × 10 ⁻³ 2.4 × 10 ⁻³	2.3 × 10 ⁻³
170°C	20°C	2.7 × 10 ¹⁸	1.5 × 10 ⁻³	2.3 × 10 ⁻³ 2.2 × 10 ⁻³	2.6 × 10 ⁻³

Table 5-4-4 に示した Total dose から貯蔵時間を求めることができる。貯蔵期間は、使用済み燃料として冷却貯蔵された時間に深い関係があり、冷却期間を 2 年、10 年と変えると必要な貯蔵時間は $> 10^5$ 年、 $\sim 10^5$ 年 - 5×10^3 年のように変る。

Harwell の関係者は、ホウケイ酸ガラス固化が最もよい方法で、他の Alternative にはあまり関心がないようであった。

Glass Ceramics は、プロセスにより高温を必要とするので、メタルメルターでは出来ず Ceramic Melter などの開発が必要となるが、しかし Ceramic Melter も 5 年後位には使えるようになるであろうとの見解であった。

また SYNROC は現在 Uniaxial Press によっているが、実工程では Isostatic Press にする必要があろうし、可能性としてはあるが、未だ何の証明もないとの見解であった。

5.4.3. BNFL の研究の現状

BNFL は、従来の UKAEA の現業部分を切りはなして 1971 年設立（会長は、現 UKAEA の会長と同じ Mr. John Hill）された。核燃料部分を担当する企業体であり、株式は全て UKAEA が保有している。従業員数は、11,000 人を超え、主要な業務は、核燃料の濃縮製造、ウランブルトニウム燃料の製造、照射後試験、使用済み燃料の再処理、廃液の貯蔵など核燃料サイクル全般に及び、また原子炉および燃料棒に関する材料、構造に関する広いサービスを行なっている。

訪問したのは、BNFL の本社の Risley であり、ここでは、固化体キャニスターに関する研究開発が進められており、英国に於ける核燃料サイクルダウンストリームに関する調査のほかは、キャニスターに関するディスカッションを行なった。

一般情報はすでに前に述べたことと重複するので、ここでは、キャニスターに関する討議の内容を記す。

英国では、AVM を導入する計画があり、その場合キャニスターは貯蔵容器として、材質、形状は再検討することになるが、現在は、HARVEST 方式での検討を進めている。HARVEST プロセスでは、熔融ポットがそのままキャニスターになるので、材料は熔融プロセスおよび貯蔵用として適切な材料であることが必要で、このため電算機による熔融時、貯蔵時の温度計算と熱応力歪の検討を行なった。

一方、現実的な試験から高温での酸化抵抗を調査し、25 Cr-20 Ni-0.4 C の組成を有する Hk-40 が最も望ましい材料であることを見出している。（Table 5-4-5）

Table 5-4-5 Depth of oxidation after 300 h at 1,050°C in air

Material	Composition	Stress p.s.i.	Broad Front in.	Intergranular in.
AISI 316	17Cr/12Ni/2.5Mo	400	0.016	0.001
AISI 310	25Cr/20Ni	400	0.002	0.005
INCONEL 600	15Cr/76Ni	400	0.006	0.009
INCOLOY 800	21Cr/32Ni	400	0.001	0.005
Centrifugally Cast HK 40	25Cr/20Ni/0.4C	800	< 0.001	0.004

Table 5-4-5 の結果は、定温保持の結果であるが、室温 - 1050°C の温度サイクルをかけても同様な結果であったという。

Table 5-4-6 は選ばれた HK-40 のクリープ試験前後の輻射係数である。

Table 5-4-6 Emissivity data on machined centrifugally-cast type HK 40 Steel before and after creep-testing

Test temperature °C	Emissivity of untested material	Emissivity of material creep tested at 1,050°C for 300 h
400	0.86	0.93
700	0.88	0.95
950	0.94	1.00

一方、高温でのクリープ特性は、重要な性質であるので、1050°Cでのクリープ特性を次式のように示したときの全歪量 E を求めるための、種々の材料の係数、 K 、 n 、 m 、を求めたのが

Table 5-4-7 である。

$$E = K \cdot \sigma^n \cdot t^m$$

ただし E : total strain, σ : stress (lb·f/in²), t : time (hour) である。

Table 5-4-7 1,050°C-Creep law constants determined over 300 h

Material	Creep coefficient K	Stress exponent n	Time exponent m
AISI 316	1.04×10^{-12}	3.12	0.79
AISI 310	1.60×10^{-9}	2.04	0.85
INCONEL 600	2.55×10^{-13}	3.31	0.60
INCOLOY 800	1.23×10^{-10}	2.28	0.68
Centrifugally Cast HK 40	4.70×10^{-10}	1.60	0.67

ここでも HK-40 は優れた材料であることがわかる。

一方、ガラス溶融プロセスに於けるガラスと HK-40 との両立性について検討され、SiO₂-B₂O₃-Na₂O-Li₂O 系ガラスは、HK-40 をほとんど浸食しない好ましいガラスであると判断している。

キャニスターの寸法は必ずしも明確に決定されていない。英国の場合、溶融ポットがそのままキャニスターになるので、固化する HLLW の量が増加するにつれて大型化する必要性があるためである。

現在まで、試験および計算がほぼ完了しているのは直径 450 mm、高さ 2 m のポットであるが、さらに直径 60 cm、高さ 3 m まで試験の対象にしているので、この場合はさらに熱負荷を含めて再検討が必要である。

英国では、中間貯蔵として水中貯蔵を考えている。これは、上述のように、キャニスター容量が大型であること、およびガラス固化体中の HLW の量が 25 % (FP=10 %) と比較的高くそのためキャニスターの熱負荷が大きくなり、空冷によって十分な冷却ができない危険があるためと考えられる。

水中での中間貯蔵を行なう前に、HK-40 キャニスター周囲に SUS 310 または SUS 316 材料によってオーバーパックがかけられる。

貯蔵が水中で行なわれるため、水中での耐食性の高い材料によって長期の貯蔵に耐えるように計画された。ただし、この場合、“Retreuvability”を最も重視しての計画とのことであった。

永久貯蔵のサイトは未だ決定していないのが、Risleyの研究者達は、海底貯蔵（この方法はpublic consensusが得られにくい。実現はかなり困難と承知しながら）について研究をしていた。

彼等の材料に対する見解は、不銹鋼（ニッケル銅，ニッケルクロム）はいずれも平均的には海水に対して充分耐食性はあるが、ピットの発生の懸念が大きい。反面、鉛，ニッケルクロム－モリブデン鋼はピット発生に対する抵抗が大きいので、海底貯蔵の場合にはキャニスターをさらに耐食性のよい金属容器に入れ、その金属容器とキャニスターの間に鉛を鑄込んでしまうキャニスターパッキングがよいのではないかと考えていた。

キャニスター，特にHK-40ポットの製造および溶接性については，BNFL技術者も研究を続けてきたようであった。

HK-40は遠心鑄造法でも作れるが，熱履歴によって結晶が粗大化し，溶接しにくくなるとのことであった。そこで，現在は圧延板の溶接による製造法をとっており，これでほぼ目的を達することができたという。低コスト化のため“Reverse extrusion”法も検討されている。

5.4.4. 英国のまとめ

核燃料サイクルのダウンストリームに関する重要性に着目して早くから固化処理技術の開発に着手した英国も，実廃液の輸送の困難さから，Active full-scale Operationには未だ到っていないし，先行したAVMのプラントを導入することすら考えはじめている。これは，研究のサイトが分散し，単独のプロセスの開発を別々に進めて来たためとも考えられるし，Active-Operationに，専心進めてしまったフランスより慎重に配慮して進めて来た考え方によるとも考えられる。

しかし英国は，ガラス固化に関して1986年にFull-scale Active Plantを操業する計画をもっていたし，AVMとの関連でその時期が若干おくれるにせよ，1990年までに固化プラントが稼動されることになろう。

筆者らは，AVMの影響が非常に大きいという印象であった。

5.5 ヨーロッパ各国の固化、貯蔵に関する現状のまとめ

ヨーロッパの各国はすでに、10～20年に亘って固化・貯蔵に関する研究・開発を進めて来た先進国ばかりであり、その基礎の上に、各国独自の固化・貯蔵に対する方針をもち、かつ独自のプロセスをもって来た。

フランスは、ロータリー仮焼間接高周波溶融の2段プロセスであるAVMを作り上げていたしドイツでは、HLLWにガラスフリットを添加しセラミックメルターに供給する1段のPAMERAプロセス、英国はHLLW+ガラス化剤の混合スラリーをメタルポットで溶融する1段のHARVEST計画を進めている。どの国でも溶融されたガラス固化体は貯蔵容器となるキャニスターに入れて中間貯蔵し、放射能レベルの低下を待つて永久貯蔵を行なうこととなる。

スウェーデンは、再処理および固化処理をCOGEMAに委託するという方針で貯蔵方法をのみ研究している唯一の国であるが、現状ではむしろ使用済み燃料の再処理から永久貯蔵に到る一連のプロセスに関して確固とした方針をもつ唯一の国であるといえよう。

最も印象的であったのは、フランスのAVMであり、約10年の研究を経て完成したAVMプラントは1978年6月にはActive-operationに入り、すでに実廃液の固化体を約70キャニスターもつという。

このAVMの稼動はヨーロッパ諸国に少なからぬ衝撃を与えていた。西ドイツでは、すでにAVMをフランスから導入してKfKで試験する方針をきめていたし、英国でも、導入を計画していた。フランスの担当者も述べていたが、AVMプラントは主として遠隔操作性や、消耗部品の交換性に力点をおいて開発が進められたとのことで、ガラス固化体の均質性、あるいは安定性については必ずしも充分な検討がすすんでいるとは思えない部分もある。また、商用軽水炉燃料に対する適用性も判然としないものがある。従ってフランスでの今後の進展を見守る(イギリスの研究者の言うwatch-closely)必要があるが、いずれにせよ、完成されたプラントの威力を感じないわけにはいかなかった。

調査団はヨーロッパで4ヶ国、7研究機関を訪門し、いずれの研究でも日本での固化・貯蔵の研究開発の現状を説明し、PNCに於ける1977年度活動報告を代表者に手渡して来た。この報告に対する反応は極めて旺盛で、素直について日本も核燃料サイクルの開発先進国の仲間入りをしつつあるということに多少とも認識を深めてもらえたであろう。一方、冷静に考えて日本はその開発のスタートこそ遅れたが、方針、技術蓄積の度合からいって第1級の先進国となりつつあるといえるように感じている。一方、代替固化技術に関しては、ヨーロッパではHMIが結晶化ガラス固化を研究していることを除いては当面全てガラス固化法で進むことが明らかとなった。

(PAMERAのガラスビーズ-金属マトリックス固化もガラス固化の一変形であるので)各国はむしろ、ガラス固化で充分であまり分散した研究はしない方針をとっており、このことがアメ

リカよりも少ない費用で、効率の高い研究を進められた原動力となっているように思えた。

スエーデンは、フランスのガラス固化体を実際に評価試験して情報交換も相当行なわれているのは前述のとおりであるが、ドイツ、フランスも研究協力場があり、また、英、仏、独では、Table 5-5 に示すような協同研究が実施されており、各々の国で開発しているガラス組成も出し合って評価が進められている。

Table 5-5 TIME SCHEDULE FOR THE PROGRAMME

Programme Item	Task	YEAR		
		1977	1978	1979
1. Development of common test equipment	Joint	Equipment already available		
2. <u>Study of temperature effects</u> 2.1.1. Leach test A Base line (coupons, various test temperatures), (inactive, simulated waste) 2.1.2. Leach test B 5-6 waste blocks (incl. making all blocks) 2.2.1. Effects of devitrification on leaching rate 2.2.2. Effects of devitrification on structure and integrity of glass Acquisition and testing of instruments	UKAEA 1 CEA UKAEA 2 HMI	At 100°C Make samples Leaching Annealing	Various temp. leaching	
3. <u>Study of α-radiation effects</u> Leach rate, helium release, stored energy, microstructure and production of samples	UKAEA 3	Make samples	Irradiation	Tests
4. Production of specimens for 2.1.1., 2.2.1., 2.2.2.	UKAEA 4			

6. HLLW固化・貯蔵に関するデンバー会議

1978年12月19日より12月21日までの3日間、Denver に於て掲題の会議が開催された。会議は「Conference on High-Level-Radioactive Solid Waste Forms」と題し、NRC (Nuclear Regulatory Committee) によって、主として安全面からの基準作りを行なうことを目標として現状を認識するために開催された。

参加者は約200名、大部分を占める米国の学者の他に、日本、フランス、西独、スウェーデンからの参加もあった。会議のプログラムをTable 6-1に示す。第1日、第2日前半は、Plenary Session として、I, Vitreous Forms, II, Encapsulations Techniques and Failure Modes, III, Spent Fuel, Crystalline, and other Forms に分けて、それぞれのSession で6報の現状報告がなされた。第2日後半は、Workshop として参加者が次の3つのグループにわかれてグループ討論会が行なわれた。

Workshop No. 1 Criteria for Solid Forms

Workshop No. 2 Stability of Alternate Waste Forms

Workshop No. 3 Limitations in Predicting Long Term Performance

第3日は、上記 Workshop の討論内容のまとめおよび、Plenary Session のまとめの報告があった。また、第1日には夕食会、第2日には昼食会がそれぞれ開催され、夕食会では上院議員シュミット氏 (Senator, Dr. Schmidt) の講演、昼食会では Dr. Etienne Roth (Centre d'études nucléaires de Saclay) のウラン資源に関する講演があった。夕食会には日本を代表して角田がメーンテーブルに招待された。

6.1. Plenary Session

上述のようにI, II, IIIの主題に従ってそれぞれの主題について6報、合計18の報文が発表された。それぞれの報文の概要は次の通りであった。

6.1.1.

Plenary Session I, Vitreous Forms

Conference on High-Level Radioactive Solid Waste Forms

Sponsored by the Nuclear Regulatory Commission

TUESDAY MORNING, 19 DECEMBER 1978

8:30 Plenary Session I, Vitreous Forms;

Dr. Robert B. Leachman, Chairperson, U.S. Nuclear Regulatory Commission

1. Welcome—*Conference Information*
2. Relation of Solids to Waste Management—*Dr. Fred A. Donath, University of Illinois*
3. Physical Properties of Waste Glass—*Mr. John Mendel, Battelle Pacific Northwest Laboratory*

Break

4. Microscopic Properties of Glasses—*Dr. Pedro B. Macedo, Catholic University of America*
5. Large-Scale Waste Glass Production—*Dr. Claude Sombret, Centre de Marcoule, France*
6. Surface Leaching—*Dr. Lawrence L. Hench, University of Florida*

12:00-

1:00 Lunch Break

TUESDAY AFTERNOON, 19 DECEMBER 1978

1:00 Plenary Session II, Encapsulations Techniques and Failure Modes;

Dr. Annie Sugier, Chairperson, Commissariat à l'Énergie Atomique, France

1. Corrosion in Canisters and Claddings of Various Metals—*Dr. Martin Molecke, Sandia Laboratories*
2. Ceramic & Pure-Metal Canisters in Buffer Material—*Mr. Per-Erick A. Ahlström, Kärnbränslesäkerhet, Sweden*
3. Interface Interactions Between Solids—*Dr. Robert N. Anderson, San Jose State University*

3:00 Break

4. Matrices of Wastes and Inert Media—*Dr. J. Van Geel, Gelsenberg AG, Federal Republic of Germany*
5. Thermal Stresses and Cracking—*Mr. Steven C. Slate, Battelle Pacific Northwest Laboratory*
6. Surface Loss by Exfoliation—*Dr. Thomas Tombrello, California Institute of Technology*

5:00-

6:00 Cash Bar

6:00-

7:30 Banquet

Nuclear Waste: Politics and Potential;
The Honorable Harrison H. Schmitt, Senator, New Mexico (Ph.D. in Geology from Harvard, Apollo 17 geologist on the moon)

WEDNESDAY MORNING, 20 DECEMBER 1978

8:30 Plenary Session III, Spent Fuel, Crystalline, and Other Forms;

Mr. William Holcomb, Chairperson, U.S. Environmental Protection Agency

1. Containment in Cement Forms—*Dr. Della Roy, Pennsylvania State University*
2. Calcine Production, Storage and Conversion—*Dr. Bill R. Dickey, Allied Chemical Corporation, Idaho Falls*
3. Properties of Spent Fuel Pellets—*Mr. M. Dean Houston, U.S. Nuclear Regulatory Commission*

Break

4. Uranium Oxides in Ores & Fuels—*Dr. Heinrich D. Holland, Harvard University*
5. Crystalline and Coated Forms—*Dr. Gregory McCarthy, Pennsylvania State University*
6. Metamict Degradation of Crystals—*Dr. Rodney C. Ewing, University of New Mexico*

12:00-

1:30 Luncheon

The Saga of Nature's Reactor at Oklo;
Dr. Etienne Roth, Director, Chemistry & Material Sciences Division, Centre d'études nucléaires de Saclay (among original researchers who confirmed the Oklo effect)

WEDNESDAY AFTERNOON, 20 DECEMBER 1978 AND THE BEGINNING OF THURSDAY MORNING, 21 DECEMBER 1978

Three concurrent workshops for open discussions: To initiate each, two short talks will present suggested issues from distinctly different points of view. The chairperson and a rapporteur will write the results for presentation to their workshop at the beginning of Thursday morning, 21 December.

1:30 Workshop #1, Criteria for Solid Waste Forms

3:30 Break *Chairperson:* Mr. Robert Bernero, U. S. Nuclear Regulatory Commission

Issue Presenter—Optimistic: Ms. Karen Adelson, Westinghouse Electric Corp.
Issue Presenter—Cautious: Dr. Thomas B. Cochran, Natural Resources Defense Council

A discussion of the ability of regulators to establish and to adhere to sufficiently meaningful criteria of solids to achieve safe regulation in high-level waste disposal.

Workshop #2, Stabilities of Alternate Waste Forms

Chairperson: Ms. Leslie A. Casey, U.S. Nuclear Regulatory Commission

Issue Presenter—Optimistic: Dr. Rustom Roy, Pennsylvania State University
Issue Presenter—Cautious: Dr. Robert O. Pohl, Cornell University

A discussion of the ability and likelihood of learning the characteristics of alternative waste forms and utilizing these in the choice of the optimum form for actual disposal. Included are: results of the National Academy of Sciences Panel on Waste Solidification; scientific and engineering properties; present knowledge and abilities; schedules; and costs.

Workshop #3, Limitations in Predicting Long-Term Performance

Chairperson: Dr. Richard Wilson, Harvard University

Issue Presenter—Optimistic: Dr. Bernard Cohen, University of Pittsburgh
Issue Presenter—Cautious: Dr. Terry Lash, Natural Resources Defense Council

Systems analyses which are used to predict long-term performance in waste disposal have led to a dominant reliance upon geologic retention, but an insignificant reliance upon the post-emplacement durability of the waste solids. These predictions are pertinent to the extent that all effects have been anticipated and that the data are measured and accurate. The discussion is whether basic reliance is wisely placed upon such predictions or whether, alternatively, the durability of solids has importance beyond transportation and retrievability.

5:00-

7:00 Cash Bar

7:30 Presently Unscheduled Discussion Groups

THURSDAY MORNING, 21 DECEMBER 1978

8:30 Workshops (3 concurrent sessions) continued for amending reports

9:30 Plenary Session IV, Assessments;

Dr. Harry Landon, Chairperson, U.S. Nuclear Regulatory Commission

1. Workshop Summaries by Workshop Chairpersons

2. Details of Forthcoming Disposals—*Dr. Goetz K. H. Oertel, Division of Waste Products, U.S. Department of Energy*

3. Conference Summary—*Dr. Hans Fraunfelder, University of Illinois (Chairman of the Review Committee, American Physical Society study of Nuclear Fuel Cycles and Waste Management)*

1:00 p.m. Adjournment

GPO 935-276

CONFERENCE ON HIGH-LEVEL RADIOACTIVE SOLID WASTE FORMS, DENVER, CO.

LIST OF ATTENDEES

Ron Chickering
Westinghouse ARD

Lawrence Cranbert
Peragmon Press

James Melaro
NRC

John M. Rusin
Battelle

Dr. Fred Schmidt
University of Washington

Joseph Simmons
Catholic University

Martin Waks
University of Arizona

C. J. Weedon
Nuclear Installations Inspectorate

Eugene N. Cramer
Southern California Editor

Stanley Logan
Los Alamos Technical Associates, Inc.

Jody Danielson
American Friends Service Committee

Denise Knapp

Alexis Parks

Harry Lawroski
Allied Chemical

Andrew J. Johnson
Rockwell International

Goldie Watkins
NYS Department of Health

Noel Becir
Kaman Sciences Corporation

John C. Guibert
NRC

Cornelia W. Seifert
NRC

Harry Pearlman
Rockwell International

David L. Dye
Boeing Computer Services

Michael J. Kupfer
Rockwell Hanford

Richard G. Johnston
Rockwell

Thomas Lynch
Nuclear Controls Corporation

Veryl Eschen
Science Applications, Inc.

James N. Siltanen
General Atomic Co.

Raymond E. Blanco
Oakridge National Laboratory

Jeff Stokes
IRT Corporation

Robert N. Wilson
New Millennium

B.C. Musgrave
Allied Chemical

Colin S. Caldwell
Babcock and Wilcox

Craig Lebo
NRC

Dr. M. K. Murthy
Ontario Research Foundation

Robert A. Watrous
Rockwell Hanford

Mike Raudenbush
S.M. Stoller Corporation

I. C. Roberts
NRC

D. Vojn Joksimovic
General Atomics Co.

Tom Lindblom
Hampshire College

H. P. Smith
Department of Energy

Jackie Burns
NRC

Brant Calkin
Sierra Club

Pat Nickell
KLBK TV

Pat Bruno
KLBK TV

Victor Palit
KLBK TV

Marianne Thaeler
League of Woman Voters of
New Mexico

John C. Cobb
University of Colorado

Roy G. Post
Nuclear Technology
The University of Arizona

Rod Melgard
LFE Environmental

Roy Young

Alexander E. Aikens, Jr.
Dames & Moore

Jane A. Axelrad
NRC

Harry Babad
Rockwell Hanford Operations

William Baer
Westinghouse

Dr. Anthony D. Baranyi
Ontario Research Foundation

William Barnard
Office of Technology Assessment

Arthur A. Bauer
Battelle

Julius Berreth
Allied Chemical

Charles R. Bolmgren
Westinghouse

William F. Bonner
Battelle

Don J. Bradley
Battelle

Thomas T. Bradshaw
Atomation Industries

Jerry W. Braithwaite
Sandio Laboratories

Wayne Freeby
Allied Chemical

Ernest A. Bryant
Los Alamos Scientific Laboratory

James L. Buelte
Battelle

Donald J. Cameron
Atomic Energy of Canada

Chris C. Chapman
Battelle

Thomas D. Chikalla
Battelle

Tan Chyessler
Sweden

Peter G. Cleary
Citizens for a Better Environment

Bernard L. Cohen
Argonne National Laboratory

R. DeBatist
Belgium

Donald S. Duncon
Bechtel, Inc.

James W. Duskas
DuPont, Co.

Gene H. Dyer
Bechtel National, Inc.

Jean Louis Fensch
France

Dr. Robert L. Folger
Savannah River Laboratory

Peter Forschner
Germany

Kenneth A. Gablin
Protective Packaging, Inc.

Dr. Ed Gaffney
Pacific Technology

Robert G. Garvin
DuPont

Richard Haaker

Michael Hamilton
Washington Cathedral

Zia Haq
University of Western Ontario

James E. Hard
Nuclear Regulatory Commission

Roy V. Harrington
National Academy of Sciences

Orville F. Hill
Battelle

G. A. Huff
Rockwell Hanford Operations

Donald Jackson
Lawrence Livermore Laboratory

Leslie J. Jardine
Argonne National Laboratory

James H. Jarrett
Battelle

Antonie Jouan
France

Chauncy Kepford
Environmental Coalition on Nuclear Power

Kenneth D. Kok
Battelle

Dr. Stanley T. Kosiewicz
Los Alamos Scientific Laboratory

Madonna E. Krug
Nuclear Regulatory Commission

Alan K. Kuhn
Westinghouse

D. E. Larson
Battelle

Dr. Ira S. Levy
Battelle

Vincent F. Likar
Westinghouse

Ronnie D. Lipschutz
Union of Concerned Scientists

Donald K. Lorenzo
Oakridge National Laboratory

Martin G. Malsh
NRC

Tadashi Mano
University of New Mexico

David M. Martin
Iowa State University

Dr. James G. McCray
University of Arizona

Jack L. McElroy
Battelle

Thomas E. McKone
UCLA

Toshiichi Meguro
Overseas Reprocessing Committee

Victor E. Mello
DuPont

Neil E. Miller
Battelle

Donald P. Moak
Battelle

William Mouser
Battelle

Dr. Barry N. Naft
NUS Corporation

Robert L. Nebeker
Allied Chemical

Sigurd O. Nielsen
Symplexor, Inc.

Hilliard W. Paige
International Energy Association, Ltd.

Cal R. Palmer
Battelle

U. Young Park
Battelle

Larry Penberthy
Penberthy Electromelt, Co.

Dr. Edward E. Pilat
Energy Research Group

I. Eugene Reep
Rockwell Hanford Operations

Frank P. Roberts
Battelle

Wayne A. Ross
Battelle

James H. Saling
Westinghouse

Dr. George D. Sauter
NRC

Wallace W. Schulz
Rockwell Hanford Operations

John W. Shade
University of Toledo

John J. Shefcik
General Atomic Co.

R. Dale Smith
Nuclear Regulatory Commission

John P. Soko
Westinghouse

James Stevens
Arthur D. Little, Inc.

Denis M. Strachan
Rockwell Hanford Operations

Graeme G. Strathdee
Atomic Energy of Canada

Jeff E. Thiemann
Community College of Denver

Richard A. Wallen
Minnesota Energy Agency

Ray D. Walton, Jr.
Department of Energy

Bob E. Watt

Robert H. Weeks
International Energy Associates, Inc.

R. E. Westerman
Battelle

Allan K. Williams
Allied General Nuclear Services

Edward R. Wiot
NUS Corporation

George Wu
NRC

Andrew F. Yaros
Virginia Electric and Power Co.

Kenneth R. Yates
Battelle

Robert Baker
NRC

Chuck E. Bladwin
Atomics International

David M. Berick
Environmental Policy Institute

Malcolm Boyle
Atomics International

C. J. Weedon
United Kingdom

Richard Bradshaw
Combustion Engineering

Bob Brazeal
Rockwell International

Wan Y. Chon
State University of New York

J. J. Clifton
United Kingdom

Dr. Jess M. Cleveland
U.S. Geological Survey

George Cowan
Los Alamos Scientific Laboratory

Udo Fehn
Harvard University

Dr. Ron Fleck
Ontario Hydro

Donald C. Fulmer
Department of Energy

J. R. Griffin
United Kingdom

Dr. Alan S. Hanson
Yankee Atomic Electric

Michael J. Hauf
TERA Corporation

Claude Herrick
Los Alamos Scientific Laboratory

H. D. Holland
Harvard University

Tokuya Ishikawa
Kobe Steel Co.

Dr. P.W.M. Jacobs
University of Western Ontario

Ralph Johnson
Rockwell Hanford Operations

Richard Kennedy
Nuclear Regulatory Commission

Dr. Anne Kiremidjian
Stanford University

B. G. Kniazewyca
TERA Corporation

Dr. Paul Kruger
Stanford University

Richard Laskiewicz
Argonne National Laboratory

Richard Lefebvre
NPD Nuclear Systems

Richard Lodwick
Battelle

Richard W. Lynch
Dandia Laboratories

James Malaro
Nuclear Regulatory Commission

Dr. D. E. McKenzie
Rockwell International

R. N. Mason
Committee on Mining and the
Environment

Erich R. Merz
Germany

Dr. Kazuo Ooka
Toshiba Corporation

Terry F. Rees
U.S. Geological Survey

Roger P. Shaw
Rockwell Hanford Operations

James L. Siltanen
General Atomics

Steven Sontage
Atomics International

John P. Spath
New York State Energy Committee

Yoshiro Suzuki
Asahi Glass Co.

Dr. Ryohei Terai
Government Industrial Institute
of Osaka

S. V. Topp
DuPont

Naomi Tsundoa
Power Reactor and Fuel Development Corp.

Gary Waymire
Exxon Nuclear

I - 2 核廃棄物隔離と固化との関係

Dr. F. A. Donath

(Unv. Ill.)

埋没核種からの潜在的な危険性は、①例えば地下水への核種の容出量とその速度、②地下水移動の道筋とその速度、③地中での化学反応による核種移動速度の遅れの程度に依存している。廃棄物形態は上記の三要素に大きい影響を与える。貯蔵所での廃棄物形態は、地質的・工学的両側面を反映した化学的・物理的条件の要求に従わせられるが、選ばれた地質的環境下でのその挙動は、かなりの長期に亘って予想がたてられねばならない。廃棄物隔離系と廃棄物形態の両方から地層処分の発熱期間が最も問題であり、数百年間は地層処分の内容物や周辺は大きな熱的・機械的・化学的ストレスに出合い、大抵の物理的・化学的変化もこの期間中にかなりの速度で進行すると思われる。特に過剰の熱は廃棄物の隔離とは逆の効果を生ずる。発熱量は調節できるけれども、隔離系を壊さない範囲での最大の熱を保持することが望まれる。というのはその方が廃棄物形態や処分場の容積を減少させられるからである。たゞしそれによって温度が上れば廃棄物・岩石・流体（地下水）の相互反応の速度を早めることになる。したがって、廃棄物の固化形態は、主たる周辺媒体、含有流体、および隔離のために選ばれた特別の地質系の各種の特性と十分に適合するように工夫されねばならない。

I - 3 廃棄物ガラスの物理的性質

J. E. Mendel, W. A. Ross, R. P. Turcotte, & J. L. Mcelroy

(Battelle)

ホウケイ酸ガラスの物理的性質は、高レベル放射性廃棄物の貯蔵と処分のための廃棄物形態に適合している。廃棄物ガラスはいろいろな方法で作られ、それらの適合性が、組成、溶融プロセス容器などについて検討され、また熱的・耐放射線安定性も調べられている。廃棄物ガラスはすぐれた放射線安定性を示す。開発過程での10年以上の経験では、ガラスの物性は内蔵した放射能によって殆んど影響されない。キャニスター内のガラスの自己発熱の影響も比較的少ない。結晶化に伴う浸出率の増加は認められるが、ガラス以外の固化体（例えば Supercalcine）にくらべて放射線照射による密度変化も少なく、核変換の影響もない。浸出率は周辺事情に合わせて25°~330°C、脱イオン水や塩水中で調べられており、また固化体が割れた場合の粒の大きさの浸出率に対する影響も検討されている。貯蔵・処分の全体を通して、自己発熱期間とそれ以降とに分けて考えるべきで、前者の段階では温度調節、工学的障壁、廃棄物形態の改良などが検討要因であり、後者の段階では元の廃棄物の形態そのもの、補助的な吸着剤、天然の条件などが検討要因となる。いずれにしてもここでは、廃棄物の出所、廃棄物の処理法、廃棄物ガラスの性質が取扱われ、ガラスが多数ある廃棄物固化形態の一つではあるが、既にフランスにおいて実作業段

階に入るところまで開発された点が他の形態のものと違っていることを述べた。

1-4 ガラスの微視的性質

P. B. Macedo, C. T. Moynihan, J. H. Simmons,

R. P. Depanla, & E. N. Boulos

(Catholic Univ. Am)

核廃棄物からの生物圏の汚染は固化したガラスの表面にある地下水の浸出作用によって生ずる核廃棄物固定材料は容積に対する表面の比率が最小になることが肝心である。ガラスやセラミックス中での相転換の大抵のものは容積変化を含んでおり、生じたストレスは破壊の原因となる。ガラスは次の3つの相転移を示す。①液-液分相、これはアクチノイドを分離してホットスポットを形成する。②結晶化、これは分離とストレス形成を導く。③ガラス転移、これは膨張係数の急激な変化を伴う。ガラス転移点を越える時に試料に温度勾配があると大きな内部ストレスが発生する。このような容積変化、再結晶化及び放射線照射によるメタミクトの発生などの相転換は一般にガラスの浸出性を増大させる。しかしガラスと結晶の安定性を比較してみると、ガラスは熱力学的には不安定であって、ある温度範囲で結晶化が進み、浸出力にその影響が現われるが、放射線照射や核変換の影響は殆んど受けない。結晶の場合、核反跳や β 崩壊によって構造自体が不安定化したり、メタミクトによっても新たな内部界面が生じて劣化するが、ガラスにはそれが少ないといえる。その他、組成と貯蔵条件によるガラスの相転移速度の変化、ストレス発生メカニズムの解析、及び割れによる表面と容積の比の予想についても検討された。

1-5 大規模での廃棄物ガラスの製造

R. Bonniaud, A. Jouan, & C. Sombret

(Marcoule)

AVMは1978年6月に運開した。このプロセスはフランスでの連続した技術開発に基礎があり、当初のバッチ方式のPIVERから出発して、現在の2段式のガラス製造方式となった。その第1段はロータリ・キルンによる仮焼工程であり、第2段はメタリック・ポットによる溶融工程である。プラントはF. P. 溶液を最大36 l/hの流速で処理できるように作られており、これでガラスとして15~18 kg/hを作ることができる。毎日約360 kgのガラスの入ったキャニスター1ヶが封じられ、その外部が除染され、近くの空冷式の貯蔵施設中に貯蔵される。もれ出る放射性物質の量は非常に少なく、液体は濃縮されてフィードバックされる。固体の廃棄物は切断され、後に溶融するために容器に入れられる。

26 日間続けられた第 1 回の実廃液運転では 30 Ci/l の HLLW を用いて 8.4 ton のガラス、つまり 18 m³ の F. P. 溶液、530 ton の使用済み燃料に相当するものが処理された。ポットは 2,000 時間の使用に耐えるはずで、1 回の溶融は加熱 6 時間、冷却 3 時間、含有放射エネルギーは、10⁶ Ci 以上である。

排気処理装置の流れの中では全く放射能は検出されなかった。揮発しやすいものは Ru, Cs であるが、Ru の揮発には砂糖添加の効果も検討された。La Hague での再処理プラントに続く同じ固化処理プラントが最近設計され、1985 年には運開されるであろう。

用いたガラスはホウケイ酸であり、3 種類ある。ガラス、SUS 容器、コンクリート施設による三重の障壁で管理される。強制空冷された後の空気温度は 100~150°C である。

I - 6 ガラス及びガラスセラミックスの表面浸出

L. L. Hench, D. E. Clark, & E. L. Bower

(Univ. Florida)

長期間の廃棄物含有ガラスやガラスセラミックスの安定性を予想するための実験方法、試料処理法、ガラス表面の観測法が示された。「Hench の 5 つの浸食モデル」にしたがえば、Al₂O₃-SiO₂ 表面浸出膜が生ずると、浸出率は低下する。各種のソーダ石灰ケイ酸ガラスについての浸出実験で Na の減少、Ca の若干の減少、Si の増大、H の増大が表面層に見られ、これらの挙動が①拡散律速、②表面反応律速の 2 つの運動論的立場から考察された。また浸出層の厚さの変化を溶液の容積 (V) と接触したガラスの表面積 (SA) との比に対してプロットする方法を開発し、これが HLW 含有ガラスの浸出率測定に有効であることを示した。この方法は、SiO₂/M₂O + MO 比を変えたある組成範囲のケイ酸塩ガラスの結果を長期間埋蔵されていたガラスや各種のケイ酸塩鉱物についての測定と比較することを可能にした。浸出性に及ぼす結晶化の影響は、Li₂O-SiO₂ 系の同一組成のガラスと結晶体について浸食速度を測定比較することで分かる。

また浸出機構をスロー・ダウンさせる表面不活性剤の効果は、キャニスターのオーバーバックのデザインや貯蔵所の選択に関係があり、これらのいろいろな変数の影響をバッチル研究所の垂鉛・ホウケイ酸ガラスについて調べた。表面からの脱アルカリやプロトンの侵入、拡散律速と表面反応の重畳、Sr, Cs の溶出速度の変化、PH の影響が、その (SA/V) 比との関係で調べられた。

6.1.2 Plenary Session II Encapsulation Techniques and Failure Modes

II-1 地質的隔離に適合する高レベル廃棄物用キャニスターの侵食研究

J. W. Braithwaite & M. A. Molecke

(Sandia Lab.)

地層隔離 (geologic isolation) という環境下で、高レベル廃棄物用キャニスター材料を選ぶ場合の適合性の研究が行われた。それらの結果は岩塩床や岩塩ドーム (bedded and domed salt), 海洋底 (sub-seabed sediment), 及び各種の岩石層 (hardrock) 処分地や試験施設に対して当てはめられた。機械的・熱的性質, コスト削減, 特定材料の消耗なども検討対象であり, 各種の変数, 主に温度, 静水圧, 溶液の性質 (PH, 塩分, 溶解酸素, 組成), 水分 (乾燥, 湿気, 浸水量), 照射, 放射化学分解生成物, ストレス, 鋭敏化, 溶接などが材料の侵食に対する感度やその速度に及ぼす影響について検討されている。侵食テストには NaCl, Na₂O, 海水などの溶液が用いられ, 酸素の有無の影響も検討された。また寿命の面からの設計には, ①輸送と一時貯蔵 (0~2年), ②取出し可能期間 (5~25年), ③発熱期間 (100~500年), ④最終工学的障壁の期間 (> 10⁵年) が考慮された。

II-2 バッファ材料中でのセラミックと純金属キャニスター

P.-E. A. Ahlström

(Kärnbranslesäkerhet)

スウェーデンのKBSのプロジェクトでは、使用済み未再処理の燃料や高レベルガラス廃棄物を包蔵するためのキャニスターの開発に多くの努力が払われている。これは地層処分の際に地下水への放射性核種の分散に対する工学的障壁となる。全般的な研究が2種の純金属キャニスターについて行われた。つまり高レベルガラス廃棄物に対しては鉛・チタン系が、使用済み燃料に対しては純銅が用いられた。最終処分は岩石層 (hard crystalline rock) 中とされ、包蔵されたキャニスターがバッファ材料、つまり長期間の安定性をもつ粘土中に埋めこまれた。鉛・チタン系には石英砂とベントナイトの混合物が、銅にはベントナイトがよい。注意深い評価は、前者が少くとも1000年、おそらくは実際の環境下ではその10倍の寿命を、また後者は数十万年の寿命を期待できることを予想させる。

全般的な研究は、またアルミナのセラミック質キャニスターについても行われ、HIPによれば完全に緻密でつぎ目のないアルミナ容器の作れる可能性がある。アルミナは長期間の非常に高い化学的・機械的抵抗性をもっている。更にまた予備的な研究としてβ・スポジューメン系のガラスセラミックスからなるものも検討された。

II-3 固体間の界面相互作用

R. N. Anderson & G. S. Selvaduray

(San Jose State Univ.)

固体廃棄物／キャニスター／岩石の界面を通しての F. P. の輸送現象が、1800, 2000, 及び 2200 フィートの深さの処分地における岩石過荷重に相当する圧力下で研究された。固体-固体界面を通しての材料の輸送速度は、濃度、温度、反応生成物の形成によって影響される。数桁の大きさで速度が変化するような圧力敏感性の反応が、固体-液体界面の系では数多くある。また圧力応答に関する情報は、物質の輸送を支配する運動論的な機構を解明するのに役立っているがそれは拡散が圧力増加によって低下する反面、反応速度は圧力とともに増大するという理論的根拠を与える。これらの理由から、この研究は圧力下にある金属キャニスターとガラス、セラミックス、金属の各種の廃棄物固定マトリックスとの界面反応の重要性を指摘したものであり、これによって F. P. の逃散に対する工学的障壁の有効性を比較することができる。

II-4 金属及びその他のマトリックスへの固体高レベル廃棄物の収納

Van Geel. Eschnch. Dobbels. Favre. and Sterner

(Gelsenberg AG)

固化された高レベル廃棄物を適当なマトリックス材料中へ収納することの主な目的は、生成物に安定な host 相を与えることである。化学的及び機械的抵抗性、更に熱的及び放射線安定性が各種のマトリックス材料について検討されたが、特に、鉛及びアルミ合金にその力点がおかれた。

長期・短期の貯蔵中での、また“冷材損失”の条件下での金属マトリックスへ埋めこまれたガラス質ビーズ (Vitromets) の熱的な安定性が注目された。廃棄物量当りのキャニスターの数は、高レベル廃棄物がガラス質ブロックにされるよりも Vitromets に変えられるとかなり減少する。蒸留水、乾燥塩、塩水などの溶液中における鉛及びアルミ合金の浸食が調べられたが、それには電位差のあるキャニスター材料によって生ずる電池効果も含まれている。

外部からの衝撃に対する安定性、圧縮強度が他の廃棄物形態のものと比較された。そして Vitromets 製造技術の完成度が、ホットラボスケールやコールドでの半工業規模でのプロセスデータによって、最終的に示された。

II - 5 高レベル廃棄物ガラス中でのストレスと割れ

S. C. Slate, L. R. Bunnell, W. A. Ross,

F. A. Simonen, & J. H. Westsik, Jr.

(Battelle)

ガラスは化学的侵食に強く、機械的にも強い。また低揮発性であり、時間的变化に対しても安定である。それで固化形態としては第1の障壁として有効に働く。しかし割れが生ずる。これには①ガラス製造、②内部欠陥、③ストレス(残留ひずみ)、④衝撃などの原因が考えられるが、いずれにしてもクラックは表面積を増大し、浸出率を悪化、また細い粉末を作り、空中への分散の危険性を増す。まず①のガラス製造では、バッチ方式、連続方式などがあるが、例えばインキャン溶融ではガラスと容器の反応が大きく、単純キャストのものとは異なり、割れの原因となる。②内部欠陥では、工程中での空洞(気孔)の発生や結晶化が考えられ、貯蔵中では失透や放射線照射の影響があり、微小クラックが生ずる。③熱的(残留)ストレスでは、充填や冷却、及び崩壊熱や表面積などがパラメータとなる。冷却速度が早ければ割れによる表面積の増加の程度も増す(双曲線)。④衝撃の場合は、取扱いや輸送中の事故が考えられ、表面積、粒度分布などがパラメータとなる。コンクリートに落下させる試験で、衝撃速度と表面積の関係が調べられた。そして廃棄物ガラス中でのクラックの量は、許容限度内にコントロールすることができるという結論を得た。

II - 6 剥離による表面の損失

T. A. Tombrello

(CIT)

天然ガラスのウェザリング(weathering)は、入工ガラスの長期安定性に及ぼす変数を理解する上で有力な情報を与えてくれる。黒隕石の研究は、廃棄物処分用ガラスと関連性が多い。ウェザリングは主にガラス表面の水和に原因している。これはアルカリの損失とバルクと密度の異なる層が水和表面に成形される過程である。この層は厚さを増すにつれ、界面における蓄積ひずみがクラックを発生し、水和層の剥離が生ずる。残った表面はより荒くなり、表面積を増し、一層水和が進む。この剥離、組成変化、割れなどは水和過程に関係しており、その速度で支配されている。すなわち厚さの変化は t に比例し、その速度の活性化エネルギーは 18.9 kcal/mole で、水和層形成が拡散過程であることを示している。水和速度を増大させる2つの変数は、バルク中でのアルカリ量と intrinsic な H_2O 量である。一方 Ca と Fe は逆の関係がある。

もう一つの天然材料で、少し組成の異なる tektite glass は、アルカリ量が少なく、水を全く含まない。これは低水和速度をもつと思われるので、その挙動の詳しい研究は、廃棄物処分問題にアイデアを提供する可能性があるのではないか。

6.1.3 Plenary Session III Spent Fuel Crystalline and Other Forms

III - 1 セメントを基本にした核廃棄物の固化形態

D. M. Roy

(Penn. State Univ.)

セメントは低・中レベル及び軍用高レベル廃棄物を固化する場合の主要な材料であり、その処理の容易さ、低温処理でよいこと、安価な材料であること、固化体としての特性をもっていることなどが選択の理由になっている。崩壊熱で高温になる廃棄物を含む場合には、特別に工夫されたセメント処理法が考えられる。その廃棄物含有固化体の物理的、機械的、熱的特性、その安定性や溶解度についてのいろいろの研究が、放射性廃棄物核種を固定するという場合から検討された。特に各種セメントスラジの組合せとその圧縮強度の関係、セメント固化体の浸出性(Sr, Cs, α -放射体)の変化などが検討され、キャンへの収納、金属マトリックスへの含入の可能性についてもふれられた。

III - 2 仮焼体の製造、貯蔵と変換

B. R. Dickey, G. W. Hogg, & J. R. Berreth

(Allied Chem. Co.)

高レベル廃液を仮焼する技術の現状、仮焼体の中間・長期貯蔵、各種固化プロセスとの接続、仮焼体の特性などが概括された。仮焼工程の主要ステップが全般的に検討された。すなわち、フィード速度、調節と計量、フィード・噴霧と造粒、プロセス熱収支、仮焼化学、固体取出しと輸送、揮発物取出しを含むオフガス洗浄、冷却とモニタリングに力点が置かれた。中間または長期貯蔵、熱発生速度、仮焼体安定性、廃棄物形態としての仮焼体、最終処分のための別の形態の固化体へ変換する場合の、仮焼体の適合性などが検討された。また輸送や貯蔵に重要な仮焼体の性質が明確にされた。主要な仮焼プロセス(ロータリ・キルン、スプレー仮焼、流動床仮焼)についての経験がまとめられ、信頼性、安全性、経済性に重大な影響を及ぼす仮焼技術上の主なギャップが明らかにされた。仮焼技術は動力炉核燃料再処理プラントから生ずる高レベル廃棄物を固化化する施設の設計や建設に役立っている。

Ⅲ - 3 使用済み燃料の性質

M. D. Houston

(NRC)

最近の商用核動力プラントからの使用済み燃料の性質が検討された。燃料棒の構造はジルカロイ被覆管に UO_2 ペレットを入れたものである。炉の運動中に様々な化学的・物理的变化が燃料や被覆管の中で、中性子や熱によって生ずる。例えば F. P. の生成、F. P. の再配置と放出、ペレットの割れと再配置、燃料と被覆管の相互作用、ジルカロイの結晶成長と脆性化などがある。設計された照射被曝量に達した後の炉の燃料の物理的・化学的性質、つまり機械的強度、柔軟性、結晶成長、浸食(酸化による ZrO_2 層の生成)、脆弱性と水素化物相の関係、ストレス浸食と割れ寿命などが検討された。また短・長期貯蔵の立場から、使用済み燃料棒の強靱性が考察された。

Ⅲ - 4 鉱石と燃料中の酸化ウラン

H. D. Holland

(Harvard Univ.)

水熱ウラン鉱石中の酸化ウランは、 UO_{2+x} ($0.67 \geq x \geq 0$) に近い組成をもつ。グラニットやペグマタイト中では、通常 Th 又は希土類元素のかなりの量が、Uraninite 構造中の U を置換する。水熱溶液中の U の輸送は U^{+6} の複塩の形で大抵生ずると思われ、水熱系中での UO_{2+x} の析出は通常は U^{+6} から U^{+4} への還元を伴う。というのは UO_{2+x} の溶解度は、 $UO_3 \cdot H_2O$ のそれよりもかなり小さいからである。

水溶液に接触する使用済み核燃料中の UO_2 の挙動は、液体の組成とその温度に依存している。 UO_2 の溶解速度は $0 \sim 23^\circ C$ の間では既存のデータから大体推定できる。このような液体中での飽和状態における U 濃度は、主に液体中にとけた酸素濃度に依存している。pH と NaCl 濃度の関数としての $UO_3 \cdot H_2O$ の溶解度が $90^\circ C$ で測定された。しかしいろいろな溶液と接触した時の使用済み核燃料の元素の挙動を明確に予言するためには、更に追加の実験が必要である。

Ⅲ - 5 結晶形態とコートされた形態

G. J. McCarthy

(Penn. State Univ)

今日、任意の与えられた地質的環境の下で厳密に安定である廃棄物形態は設計できないが、い
 くらか注意を集めている結晶形態とコートされた形態のものに、ホウケイ酸ガラスにくらべてnon-
 salt の環境下で大きい耐久性をもつものがある。super-calcine-ceramics, SYNROCK,
 及び coated supercalcine-ceramics はかなり高い貯蔵温度においても、良好な耐久性を
 もつと考えられている3つの結晶性廃棄物固化形態である。次の別の2つの結晶形態のものは、
 その性質がそのプロセスによって大いにコントロールされることを示している。

① Titanate ceramics: HLLWは titanate/zeolite イオン交換剤を通され、乾燥後
 ホットプレスされる。② Cermet: 溶けた urea から廃棄物と添加物を供沈させ、結晶相は水素中
 の焼結で金属マトリックスに形成される。この両方の製品が実廃液を用いて実験室規模で作られ
 た。Titanate結晶では、Csは Aluminosilicate, Srは Perovskite 型の Titanate へ、
 Anは Fluonide 型や Pyrochlor 型の ZrO_4^{-4} や TiO_4^{-4} の結晶に入り、Rutileも析出する。
 Cermets では、金属の酸化物、及び安定化剤として加えた Aluminosilicateが Cs, Sr を組
 入れ、Fe-Ni合金がマトリックスとなる。Supercalcine-ceramicsの場合、Csは Pollu-
 cite, Srは Apatite など、Anは Apatite, Monazite, Fluorite が主結晶である。また、
 "Dirty" supercalcineとして Napheliteが主結晶のものもある。

これらの結晶質固化体は、高レベル廃液から、適当な添加剤を加えて仮焼工程で作られ、その
 後ペレット化や結晶成長が行われ、ホットプレスされるか、またはコーティング処理後金属マトリ
 ックスに入れられ、貯蔵キャニスターに収納される。コーティング処理には、金属 (Fe, Ni, Cr),
 非金属 (Si, SiC, C) 及び多孔性または緻密性アルミナやシリカが利用できる。またコートには
 CVD 法が援用できる。

最近オーストラリアで話題の SYNROCKも結晶形態の一つである。これは Cs を Hollan-
 dite, SrとAnを Perovskite 及び Zirconolite に固定するため、1100~1350°C の白金
 炉 (高周波溶融炉) で一旦溶融物としてから結晶形態にするもので、まだ開発中のものである。

発熱期間は 100~400°C, 100 bar, 100年と考え、水熱下の反応について検討されねばなら
 ない。またHLLWの群分離はこの問題の compatibilityを容易にするが、更にプロセスの単純
 化や製造工程の連続化、製品の形態についての consolidation機構、放射線照射などについて
 R & Dが必要である。

Ⅲ - 6 メタミクト状態，結晶相での放射線損傷

R. C. Ewing

(Unv. New Mexico)

廃棄物処分材料としてのガラスや結晶に対する長期間の放射線損傷の効果は，廃棄物用材料の強靱性を評価する上で重要な要因となる。天然にある例えばメタミクト鉱物は，放射線損傷効果の評価に一つの基礎を与える。メタミクト鉱物は元々結晶だったものが放射線で一部非晶質化した特別のものである。酸化物やケイ酸塩での放射線損傷はなお充分明確ではないが， α -粒子と反跳核種による損傷がメタミクト化プロセス確かに重要である。メタミクト鉱物の研究は長期間の放射線損傷の評価を可能にし，特に微小クラック，水熱変化，溶解度のような物理的・化学的性質の変化を評価するのに役立つ。メタミクトと非メタミクト(例えば thorite と huttonite)の比較は，放射線損傷に対する各種の結合や構造の感度 (susceptibility) の評価の基礎を与える。これらの相の短期間の放射線損傷実験は，鉱物(例えば huttonite, thorite, zircon) 中に見られる長期間放射線損傷の結果と比較することによって，有効なことがわかった。

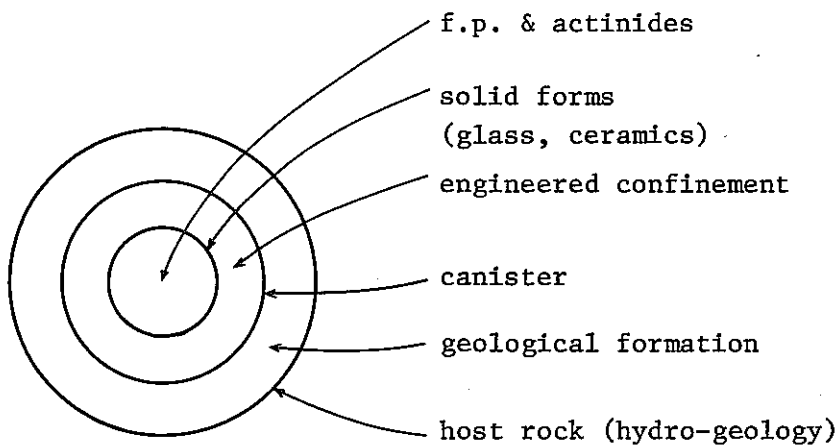
Ⅳ - 2 近い将来の処分の詳細

G. K. H. Oertel

(DOE)

アメリカにおける HLW の現状を述べ，次いでこの HLW を固定するシステムの制約事項，たとえば廃液の型の多様性，濃度の差，遠隔処理法，輸送問題，貯蔵予定地，それらの基準について論じた。中間貯蔵，永久処分と固化形態の関連，及び環境に対する障壁の意義が論じられた。

下図は環境障壁のモデル図である。



固化形態とそのプロセスについては、いろいろ選択すべき要素、例えば破壊、浸出性、揮発、安定性などがあり、いずれも充分考慮されねばならない。アメリカでは、今までに仮焼体、ガラス、サーメット、結晶性セラミックス、Supercalcine、金属マトリックスなどが検討されて来たし、外国においても様々な固化形態が開発されている。それらのスケジュールやコストも示されているものもある。現時点では、廃棄物形態として技術的にガラス中心となっているが、その他のもの、たとえば合成鉱物なども検討すべきであろう。その他、処分地や評価についても戦略目標を立てる必要がある。

6.2 グループ別討論

前述の Workshop (No. 1, No. 2, No. 3) は次のような形で進められた。各グループに、座長 (chairman) と二人の論点提供者 (Issue presenter) をおき、論点提供者の一人は、楽観的に、他の一人は警械的な立場に立って意見を述べ、論点を提供する。これらの意見発表後、座長の指示で自由な討論を進めるという形であった。

それぞれのグループでの論点提供者の意見および討論の内容を以下に記す。

6.2.1. Workshop No 1

固化廃棄物形態に対する基準 (Criteria for solid waste forms)

座長	R. Bernero. (NRC)
論点提供者	Ms. K. Adelson (Westinghouse Electric Co) — 楽観説
論点提供者	Dr. T. B. Cochran (NRDC) — 慎重説

① Adelson による楽観説

われわれは高レベル廃棄物を処分する方法を確かにもっており、決定を下し、進行させるべきである。高レベル廃棄物の処分に対する特別な科学的・技術的基準を確立するためには

- 合理的な長・短期間における環境上の影響
- 未来の世代に対する危険性を最小とすることについての公衆衛生と安全性に関する許容できる効果
- 資源保全の拡大化
- 広い資源配分の拡大化
- 社会の基礎経済的、政治的、道徳的、倫理的目標との両立性

が含まれている。

技術社会 (technical community) では、コンセンサスが存在しており、そこでは、規制者、科学者、技術者、消費者、環境関係者は高レベル放射性廃棄物の安全な処分に対して最新の知識を適用すべきことに同意している。

② Cochran による慎重説

論点として次の3点があるが、宗教や倫理は別にして意見を述べた。

- radiation protection standard の開発に関する公衆の態度
- 公式の判断決定 (formal decision-making)

- 宗教や倫理上の考慮

radiation protection program に対する大衆の態度の歴史的経過をみると、その過程で見かけの上で大衆は懐疑的であると言わざるを得ない。

また判断決定のプロセスについて考えると、Arrow Impossibility Theorem に行きつく。われわれは未来の世代の考え方を考えねばならないが、彼らとは相談することができないからである。それでたゞ一つ受け入れうる基準として「妥協のない基準」(non-degradation)がある。われわれは non-degradation に達し得る、つまり廃棄物処分に含まれる核放射能の危険性は、もし案ずるべきでないとしたら、元の鉱石体からのものよりも大きくなるべきではないと思う。

また System Approach(SA) と Defence-in Depth(D, D) とを比べると、SAは余り用心深くない。それは長期にわたる問題に単に採算の合う範囲の保証を与えているにすぎない。それで長期的な安全性確立のためには、長期に亘る各エレメントの危険度を明らかにすることが重要である。

Workshop 討論の目標

廃棄物形態の性能の基準を決めるための方法を確立すること。もし可能ならば特別の基準又はそのような基準のエレメントを定めること。

討 論

討論はコンセンサスと、考察の基礎的な構造を提示した。

① 見かけのコンセンサス

われわれは廃棄物形態単独の基準を決定することができないということに一般的に同意した。われわれは廃棄物管理の全体目標を考えねばならない。そこには最初に処分系に対する一つの受け入れうる目標性能がなければならぬし、次いでその全体目標をそれと一致する固化体基準にまで還元できるよく考えつくされた解析手法が存在しなければならない。

② 考え方の範囲

考え方としては、次のような諸点、すなわち長期的安全性の要素、解析手法及び固化体の基準を含む。

a 長期的安全性の要素

4つの可能な要素が考えられた。すべては危険性に関する。それらはその危険性が次のものから大きくなるべきではないということである。すなわち

- 天然の鉱物
- 自然放射能
- エネルギーと放射能
- 全ての人を作り出すリスク

天然鉱物を限界とする提案（Cochranの妥協のない基準）は、処分した廃棄物からの危険性が一般に天然鉱物のそれに類似すべきであるということを示唆する。このようなアプローチは、われわれが未来世代に残すであろう危険性を彼らが受入れるかどうかについて討論する必要性を未然にはぶくことになる。それが技術的に可能か、ということを含めて、この基準の使用の詳細には疑問があったが、時間的制約のため検討できなかった。

自然放射能を限界とすることも討論された。これも未来世代がその危険性を受入れうるかどうかの議論をはぶくためである。

エネルギー量との関連できめる放射線限界は、エネルギー系の risk-benefit 解析をやる上での一つの方法として提案された。何人かは、たとえ不可能でないとしても、その処分場は変更が困難であることから、未来世代が同レベルの危険性を受入れるかどうか疑問があるとした。また他の人は、われわれの規制システムがこの目的の risk-benefit 試験を全エネルギー技術に対して応用しうるかどうか疑問をもった。何人かは、あらゆる人工的な危険性にその長期的安全性の目標を関係させること、及びこの世代が受入れうる基準を用いるべきであると提案した。同じ議論が受容しうる危険の限界が変化することも議論された。

b 解析法

ここで討論は2つのアプローチの選択について行われた。SAまたはDD 多くの人はSAがあらゆる条件の解析に用いられて来たこと、そして変化に対する対応も可能にするといった。SAによって廃棄物形態を処分地の媒体に適合させる条件を明らかにすると思うし、条件を落すこともないと主張した。

廃棄物形態の経済的コストは、SAの考察から除外されるべきであること、あるいはそれが二次的な要因にしかすぎないことが議論された。というのは廃棄物形態についての2~3倍のコスト変化がエネルギーのコストに殆んど影響しないからである。何人かは良いSAはそれを大切にすべきことを警告した。

DDの提案者は、DDがSAを除けなかったが、そのシステムの各エレメントに対する実行要求を重ね合わせることによって、問題解析の中の未確実性は除きうると発言した。この方法では1つのエレメントの誤りが直接には全システムの失敗を惹起することがないであろう。逆の立場の議論はDDの選択が良いSAを追放することになるとした。

c 廃棄物形態の性能

この性能は2つのスケールで考えるべきであるということが示された。すなわち0～1,000年と1,000～1,000,000年である。廃棄物形態の高温度は深刻な問題を提示することが認められたがそのアプローチの別の要素を考えずに、ある温度の限界を単純に選ぶことはできないことも認められた。何人かは廃棄物形態についての温度とその他の仕様が基準として採用されないということを示唆した。また廃棄物形態実行基準は、その形態からの放射能のもれや、その形態の周辺との相互作用に基礎をおくべきであるということを示唆した。

6.2.2. Workshop No.2

座長	Ms. L. A. Casey (NRC)
論点提供者	Dr. Rustum Roy (Penn. State Univ.)
論点提供者	Dr. R. O. Pohl (Cornel Univ.)

討論は次のようにまとめられる

- ① 社会的、政治的について、安全基準の確立は急がなければならない（10年も15年もまっちはいられない）ので、それがいつ可能かの問題が提起された。明確な結論ではないが、安全基準は、固化体の貯蔵される環境下での放射性核種の浸出について考えればよく、しかも現在の材料科学で、その問題を明らかにすることが可能といえるようであった。
- ② 論議のための一つの案として「200℃で、水と珪石質と接していて核種の浸出率が $<10^{-8}$ /年の固化体ができれば、安全基準の種となる」との考えが提案され、固化体の種類によってはかなり問題があるが、概ね賛同を得た。
- ③ 一般的に、米国は再処理を再開すべきという全体の合意が得られた。また、再処理は再開されると信じられるので、固化体の安全性とともに、その第1次のバリアーとなるキャニスターについても、殊に、使用済燃料をそのまま貯蔵するケースも考えると、安全性が確かめられることがのぞましいとの議論が多かった。
- ④ HLWと同時に、またはそれ以上に、長期間の安全性の確立のためには加工くずの問題で、これは、深い地層中に埋めれば、自然の鉱床と同程度の安全性が得られるであろうとの意見があったが、確かな結論は得られなかった。加工屑の処分法として、それを粘土か灰を敷いた谷底に入れ、その上に岩石層を3 m以上の厚さに入れ、それをアスファルトで被覆するのがよいとの意見があった。

6.2.3. Workshop No.3

座長	Mr. J. Malaro (NRC)
論点提供者	Dr. B. Cohen (Univ. pittsburg)

論点提供者 Dr. J. Lash (NRDC)

本グループの討論は次のようにまとめられる。まず危険の許容基準について幾つかの論点について討議があった。

- ① 第1は、危険を許容する基準決定の基礎は、天然の放射性岩石、あるいは石灰または燐鉱石のレベルにすべきとの点であった。
- ② 第2は、人類の生命とあり得る危険を防止するために投じられる資金とのかね合いの問題であった。もし他の部分に資金が投じられ、より多くの生命が救えるなら、固化処理、貯蔵により多くの資金を投ずるのは無駄といえよう。
- ③ 第3の問題は、将来の世代に対する我々の責任についてであった。放射性核種は次第に減衰するので、現世代に、もし天然放射線より小さい放射能レベルであれば充分で、現在が最も危険が大きいといえる。

次いで、HLW の地層処分からの危険度を長期に亘ってある確かさで予測することができるかという問題である。不確かさがまだ残っているといえるようである。現在、多くの予測モデルの開発が進められており、これらのモデルはすべて地下水による核種の輸送を基本的な輸送モデルとしているが、現在は予測できない出来事の予測をしようとしている。しかしいずれにせよ、モデル計算の確度はデータの確かさで決まるので、一段の努力が必要であるとの一般的合意が得られた。また一般に、隔離の障壁は1段では不確かなので独立数段の障壁が必要とのことであった。また、短時間の環境テストあるいは加速テストで、長期の予測が可能かどうかについて議論されたが、結論は得られなかった。また、不確かさをおぎなうため、控え目な数字をとることについても論議された。一般的にはそれがよいが、NRC は控え目にすぎるとの意見が多かった。

6.3 会議のまとめ

Planary Session および Workshop をまとめて、イリノイ大学の Dr. H. Frauenfelder の
綜括講演があった。要旨は次の通り

エネルギー需要は将来ますます増加することが考えられるが、この為、エネルギー生産量の増
加に伴ってますます解決すべき問題の量は大きく、困難さも増大する。HLW の処理の問題も同
じで全ての技術分野の研究者、技術者が、同じ目的意識に従って問題に当らなければならないし、
必ずしも、ベストな解答でなくても、よりよい解答を求める努力を続けなければならない。

一方、HLW の問題は大衆支持が何より必要であるので、技術的な太い筋を通して、支持を得
る努力が必要である。そのためには、語りかけよく説明する息の長い努力が必要である。

アメリカは現在、核不拡散の立場から、再処理を行なわない方針としているが、エネルギーの
立場から必ず近い将来再処理が再開されると信じている。従ってあまり技葉末節にとらわれて進
まないのではなく、固化処理処分については、前進する必要がある。むしろ、今が前進の時であ
ると言えよう。第1近似でよいので、信ずる方向に研究、技術を進めてほしい。その意味で、フ
ランス、スウェーデンの研究発表は合目的に鋭意技術を開発していて印象的であった。

6.4 特別講演，その他

a) Dr. Schmidt の講演

Dr. Schmidtは現在，上院議員であるが1972年 Appolo 計画で月面に着陸した経験をもつ地質学者で，迫力のある印象的な講演であった。要旨は次の通り，

「HLW の固化処理といった問題は，多くの科学者の協力が必要で，一同に会して話合うことは誠に意義が深い。この問題は，政治とのかゝわりが多く，皆さんの意見，研究が政治の中で生かされるよう努力してほしい。現在の再処理中断の当否はともかくとして，それが再開されるかどうかは，多くの人々の同意と働きかけが必要で科学者も大衆の賛同を得る努力をしてほしい」と述べた。講演後，約1時間に亘って，参加者からの質問をうけ，再処理問題，外国との技術協力の問題，研究費用の問題，エネルギーの長期対策など素直に話し合った。

b) 情 報

会議に出席している多くの研究者，技術者から得た情報は次の通り，

- ① アメリカの研究開発は，現在固化の形態だけでも多岐に亘り不必要に拡散してしまっている。これは，現在の「再処理をしない政策」それに伴う，長期計画の欠如によると思う。
- ② しかしアメリカは，固化処理プラントの稼動を1990年代中葉と考えており，それまでは研究を進めて行く。
- ③ アメリカでは，ガラス固化体はうけ入れられる固化体と考えており，しかもガラス固化が他の固化法より，より進んでいることも承知している。
- ④ アメリカに於けるガラス固化の研究は，工学的には主としてBNWL, BPNL で進められており，その内容はスプレー仮焼-In-Can-Melt, およびセラミックメルターであった。
- ⑤ ガラス固化体の特性評価および，貯蔵法の基礎研究はワシントン大学 (Dr. Macels), イリノイ大学, San Jose 大学 などでも進められていた。一方，ペンシルバニア大学ではセラミック固化体の研究が進められている。
- ⑥ BPNL のセラミックメルターは，Mo 電極棒を用いた単槽型で，外形約1 m×1.5 m 程度とのものであった。

7. 欧米のHLLW処理・貯蔵の現状についての考案

欧米諸国・調査の結果は、次のようにまとめられる。(Table 7-1, 7-2)

- (1) ヨーロッパ諸国は、10年以上前から、各国それぞれ独自の固化・貯蔵に関する方針を定めその方針に従って研究開発を続けてきた。
- (2) AVMの稼動は各国に少なからぬ衝撃を与えた。これは、ヨーロッパ諸国が基本的にもつタイムスケジュールに合わせるためには、各国の処理技術開発のテンポではおそいと感じていることによるようであるが、ドイツ、英国では、AVMプラントの導入をはかろうとしている。
- (3) 従ってヨーロッパ諸国は、自国の方式とAVMとをこれから比較検討していくことになる。これは各国が、技術レベルの向上が不可決と感じていること。またAVM方式で必ずしも充分安全な固化体が得られない危惧をもつことにもよる。
- (4) スウェーデンは、再処理、固化処理は行わないとする特殊な方針をもつ国で、貯蔵技術にのみ注力しているため、その貯蔵方式は安全面での検討とともに一番具体的に進んでいるように見られた。
- (5) ヨーロッパ諸国での固化・貯蔵プロセスは、独自に進展したこともあって、統一的ではなく例えば、キャスターサイズ、中間貯蔵方式など個々の技術面でかなり差がある。
- (6) しかし、ヨーロッパ諸国は、AVMの導入をするかどうかは別にして、いずれも、固化プラントとして一連の設備を整え、プロセスとしての試験を進めていた。
- (7) アメリカは、ヨーロッパ諸国と異なり、再処理中止のためもあって、固化・貯蔵に関して一貫した方針、タイムスケジュールともになく、研究者の者にも、混迷が見られた。また、むしろ研究資金を得るための宣伝合戦(わるく言えば中傷)が横行していた。これは資源大国にのみ許される姿勢ともうけとられた。
- (8) こうした情勢をふまえて、日本はどのように進むべきであろうか。現在の日本の技術開発のレベルは、ヨーロッパ諸国の中でも中位に属し、ここ何年かの努力で、そのポテンシャルがかなり高まっているといえる。
 - ① 動燃再処理工場に計画されている我国初の固化プラントはガラス固化法でよい。
 - ② 上記プラントを建設するため、1979年度(昭和54年度)は、一連のシステムとしての工学的研究に入るべきである。
 - ③ 日本は、ヨーロッパ諸国と同じように、独自の固化処理技術の開発を進め、その進歩をWatchしながら、自主技術プラントを作り上げるか、技術導入をすべきかを選択すべきである。

Table 7-1 核燃料サイクル・ダウンストリームの現状

	再 処 理	H L L W	固 化 処 理	キャニスター	中 間 貯 蔵	永 久 貯 蔵	建 設 (予 定)
西ドイツ	<ul style="list-style-type: none"> 再処理工場建設予定 (1400MTU/Y) E・Z (Gorleben) 	<ul style="list-style-type: none"> 貯蔵期間 3年 タンク貯蔵 	ガラス固化 (HOVA) (=AVM) or ガラス固化 (PAMELA) ガラスビーズメタルマトリックス (PAMELA)	220 × 1000 mm ²	<ul style="list-style-type: none"> 空冷貯蔵施設 4年 	<ul style="list-style-type: none"> 岩塩層 	<ul style="list-style-type: none"> E・Z (Gorleben) Active Plant (固化) 1990年
フランス	<ul style="list-style-type: none"> 再処理工場能力 2000MTU/Y MARCOULE LA HAGUE 	<ul style="list-style-type: none"> タンク貯蔵 	<ul style="list-style-type: none"> ガラス固化 (AVM) (AVH) 	<ul style="list-style-type: none"> URANUS 500 × 1000 	<ul style="list-style-type: none"> 空冷貯蔵ピット (10m深) 30年 	<ul style="list-style-type: none"> 未定 	<ul style="list-style-type: none"> AVM稼動 AVH (1987)
スウェーデン	<ul style="list-style-type: none"> 再処理は委託 	—	—	<ul style="list-style-type: none"> ZISCN (20Cr - 12Ni) 400 × 1500 	<ul style="list-style-type: none"> 空冷施設 (フランス方式) 30年 	<ul style="list-style-type: none"> キャニスターパッキング (Ti - Pb) 岩石層施設 バッファ材 	<ul style="list-style-type: none"> 貯蔵施設 1980年代
英 国	<ul style="list-style-type: none"> 再処理能力 2000MTU/Y BNFL-Windscale 	<ul style="list-style-type: none"> タンク貯蔵 	ガラス固化 (HARVEST) or ガラス固化 (AVM)	<ul style="list-style-type: none"> HK - 40 (25Cr - 20Ni) 450 ~ 600 × 3000 ~ 3600 	<ul style="list-style-type: none"> 水冷施設 SUS 310 オーバーパック 25 ~ 50年 	<ul style="list-style-type: none"> 未定 	<ul style="list-style-type: none"> 固化プラント 1986 ~ 1990
日 本	<ul style="list-style-type: none"> 再処理能力 210MTU/Y PNC-Tokai 	<ul style="list-style-type: none"> タンク貯蔵 	ガラス固化 (?)	<ul style="list-style-type: none"> SUS - 304 300 × 1500 		<ul style="list-style-type: none"> 未定 	<ul style="list-style-type: none"> 固化プラント 貯蔵施設 1987
米 国	<ul style="list-style-type: none"> 商用燃料の再処理は現在中止中 		ガラス固化, セラミック固化等全ゆる固化法を研究中				<ul style="list-style-type: none"> 固化プラント以降 1990年代

Table 7-2 ガラス固化技術の現状

	原 料	仮 焼	供 給	溶 融	流 出	キャニスター	溶 接
西 ド イ ツ	<ul style="list-style-type: none"> • PAMERA HLLW+ガラスフリット • HOVA=AVM 	_____	メタルチューブ エア- AVM	セラミックメルタ Mo(SnO ₂)電極 AVM	フリーズバルブ (メタル, HF) AVM	注 入 ビーズ+メタル AVM	溶接プラズマ
フ ラ ンス	HLLW ガラスフリット	メタルチューブ ロータリ-カルサイ ナー	} 落 下	メタルメルタ- 間接誘導加熱 (10KHZ)	底部ノズル (HF)	注 入 3回/日 450kg/日	プラズマ溶接
ス ェ - デ ン							
英 国	<ul style="list-style-type: none"> • HARVEST HLLW-ガラス化済 • AVM 	スラリ- AVM	メタルチューブ エア- AVM	メタルメルタ- 抵抗加熱 AVM	冷 却 AVM	取り出し	プラズマ溶接 オーバーパック
日 本							
米 国							

8. 入手資料, 文献

各研究所, 施設訪問時に次の資料を受領した。

(A) 西ドイツ

A-1. KfK

(1) "Non-Radioactive Operation with a Joule-heated Ceramic Melter"

by S. Weisenburger KfK 所内報

- KfK に於て試験を進めたHLLWガラス固化のためのセラミックメルターの試験結果について述べた。直接通電セラミックメルターの詳細および操業条件が記述されている。試験結果は極めて成功的であった。

(2) "Preparation and Characterization of an improved borosilicate glass Matrix for the incorporation of High Level Radioactive Waste (HAW)"

by W. Guber, M. Hussain, L. Kahl, J. Saidl KfK所内報, presented to ACS, Boston (Nov. 28~Dec. 1, 1978)

- GP98シリーズのガラス ($\text{SiO}_2 - \text{B}_2\text{O}_3 - \text{Na}_2\text{O} - \text{TiO}_2 - \text{CaO} - \text{MgO} - \text{Al}_2\text{O}_3 - (\text{Gd}_2\text{O}_3)$) 固化体を調整し, この熔融性, 特性を調整して最終的に Gd_2O_3 なし, および Gd_2O_3 入りの組成を開発し, これを試験稼動用ガラスとした。

(3) "Handling Canisters in a High Level Vitrification Plant"

by D. Sienel

Preprint for 5th International Fair and Technical Meetings of Nuclear Industries, (Switzerland, Oct. 1978)

- 熔融されたガラス固化体の注入, 冷却, 溶接, ヘリウムリークテスト, 徐染など一連の工程についての試験結果および遠隔操作に対する考え方と示した。

A-2. HMI

(4) "Fission Products in Glasses Part I"

"Borosilicate Glasses containing Fission Products"

by G. Malow and E. Sehiewer

HMI-B217 p1~32 (Sept. 1977)

- HLLW を 18%~26% 含む $4\text{SiO}_2 - 2\text{B}_2\text{O}_3 - 1\text{Al}_2\text{O}_3 - 2\text{CaO} (1\sim3) \text{Na}_2\text{O}$ 組成につい

て溶融し、溶融性、特性と調べた。

調査した特性は結晶化の有無、機械的強度、浸出率などであり、かつ MoO_3 と含む相分離についても検討している。

(5) "Fission Products in Glasses Part II "

Development of Glass Ceramics

by A. K. De', B. Luchscheiter, G. Malow, E. Schiewer.

HMI-B218 p1~16 (Sept. 1977)

- SiO_2 - Al_2O_3 - B_2O_3 - Li_2O - ZnO ・ MeO -20wt% HLWのガラスを溶融し、Celsian, Diopside, Eucryptite Perovskite をそれぞれ主結晶相とする結晶化ガラスセラミックスを作成し、その特性を調査した。結晶化ガラスによって、特に浸出性の向上は認められなかった。

(6) "Studies on the behavior of radioactive waste glasses"

by W. Heimerl, H. Heine, L. Kahl, H. W. Levi,

W. Lutze, G. Malow, E. Schiewer, P. Schubert

Preprint of Symposium on the Management of Radioactive Waste from Fuel Reprocessing. (Nov. 1972, Paris)

- HLLWのガラス固化のためのガラス組成の開発およびその挙動の調査のため、 SiO_2 - Al_2O_3 - Fe_2O_3 - MgO - CaO - K_2O - Na_2O - TiO_2 -(B_2O_3)系について調べた。そしてその特性一主として結晶化および浸出性について調査した。また浸出の機構も調査した。

(7) "A Collection of Results and Methods on Leachability of Solidified High Level Radioactive Waste Forms"

by : S. Tymochowicz

HMI-B241 (Apr. 1977)

- HLLW含有ガラスの浸出率、測定法、詳細な測定条件について文献調査し、これらの結果を全て網羅した資料を作成した。

(8) "Untersuchungen zur Kriticalization von Borosilikatgläsern in Hinblick auf die Fixierung Radioactive Spalt Products"

by, H. Heine

- 二種のホウケイ酸ガラス中に、模擬廃棄物を添加し、その結晶化におよぼす挙動を調べた。FPの酸化物としての添加量は20, 25および30wt%とした。そして結晶化処理前後の特性および結晶化ガラス中の結晶粒径、割合、結晶の同定などを行なった。

(9) "Research on Glasses for Fission Products Fixation"

by, W. Heimerl, H. Heine, L. Kahl, H. L. Levi,

W. Lutze, G. Malow, E. Schiewer, P. Schubert

HMI-B109 (Sept. 1971)

- 1968~1971年にかけてのガラス組成開発研究のまとめで、組成は、 $(4+X)SiO_2 - (1-X)Al_2O_3 - (2-X)B_2O_3 - (3\sim 1)Na_2O - 2CaO$ のホウケイ酸ガラスである。

これらのガラスを熔融し、核種の拡散および浸出性に及ぼす、各成5の量的効果を調べた。

(10) "Neue Möglichkeiten Zur Herstellung spaltproduktthaltiger Gläser"

und GlasKeramiken

by W. Heimerl and E. Schiewer

Atomwirtschaft vol 22, Nr 4. p223~224 (1977)

- ホウケイ酸ガラスおよびリン酸ガラスに、HLWを酸化物として添加し、ガラス化の可能性について調査した。尚、熔融は、実験用の直接通電炉で行ない、熔融性、分相性、結晶性などを調べた。

(11) "Studies on the Fixation of Fission Products in ceramic Materials"

by K. De. B. Luckscheiter, W. dutzc, G. Malow E. Schiewer.

Preprint of "The European Nuclear Committee" (Paris, 1977)

Transactions of the American Nuclear Atomic Society Vol. 3

No. 8 p668~669 (1975)

- $SiO_2 - Al_2O_3 - B_2O_3 - Na_2O - Li_2O - MeO$ 系について結晶化ガラスを調整し、その特性を調査した。得られた結晶は Eucryptite, Nephelite, perovskite, pollucite 等であった。

A-3. D W K

(12) "The Nuclear "Entsorgungs-Zentrum""

DWK 発行 (1978)

- DWK 発行の今后西ドイツが建設する "Entsorgungs-Zentrum" (核燃料サイクルの中、再処理以降を担当するセンター) についてのパンフレット

(13) "Das Entsorgungszentrum im nuklearen Brennstoff Kreislauf"

DWK 発行 (1978)

- D W K 発行の上記(12)センターについての小型パンフレット
- (14) "Brennelement-Zwischen lager"

DWK 発行 (1977)

- 核燃料サイクルおよび燃料貯蔵に関する解説書
- (15) "Behandlung Hochradioactiver Abfalle"

by W. Heimerl

Chemie in unser Zeit, vol 12, No. 3, p65~100 (1978)

- 使用済燃料の再処理以降の技術的諸問題に関する解説論文で、ガラス固化について幾つかのガラス種類があるが、ホウケイ酸ガラス固化がよいことを述べている。
- (16) "Zur Verfestung von hochradioaktiven Abfalle in Glasmetall-Verbund-
löcken hat Gelsenberg das PAMELA-Verfahren entwickelt"

DWK 発行

- D W K 発行の金属複合体固化プロセスのパンフレット

(B) フランス

- (17) "MARCOULE, Nuclear Industrial Center"

CEA (Commission à l'énergie Atomique)

- C E A 発行の「フランスに於ける原子力センターである MARCOULE」の活動に関するパンフレットで、原子炉、再処理、原子力関連技術、プラントなどと記述している。

この解説書の中で、C E A の工業的活動は全て COGEMA (COMPAGNIE GENERALE DES MATIERES NUCLEAIRES) に引きつがれたがパイロットプラントの一部(放射性物質技術に関するパイロットプラント)は、C E A の直接の管かつ下にあると述べている。

- (18) "Vitrification of concentrated fission productsolutions"

CEA 発行

- ガラス固化法について MARCOULE で研究された P I V E R, A V M および現在も研究が進められている。高周波直接熔融法などが記述されている解説書 :

- (19) "Encapsulation of High Level Radioactive Materials"

C. Sombret :

Preprint of IAEA Conference (Stockholm, 1977)

- H L W ガラス固化のためのガラス組成、その浸出性、工学試験のための A V M プラントの説明などを含む論文。

(C) スウェーデン

(20) KBS Report :

"KÄRN-Bränsle-Sakerhat, 1977)

"Handling of Spent Nuclear Fuel and Final Storage of Vitrified High Level Reprocessing Waste"

- KBS (Nuclear Fuel Safety Project) が、スウェーデンの国家プロジェクトとして生まれ、核燃料サイクルのための評価ならびに研究開発が進められている。

本論文はその成果報告書で4分冊からなる。

(21) "Research Programm on the Conditioning of Nuclear Power Waste"

by F. L. Hultgren, D. R. Arnek, T. S. Forberg, F. D. L. Fålh, D. J. O. Liljenzen,

The National Council for Radioactive Waste (Prav.)

(July, 1978)

- 高放射性廃棄物の管理に関する年報(1978)で、Zeolite, Titanateを用いる方法に関しての報告である。これは核種をZeoliteまたはTitanateに吸収せしめ、最終的に固化する方法に関するものである。HLLWでは必ずしもなく、むしろLLWあるいはMLWに関する。

(22) "Management of Radioactive Waste and Plutonium in Swedish Perspective"

A Larsson, A. Hultgren, J. Lind,

IAEA-CN-36/554 p447~454 (1977)

- スウェーデンの再処理以降の政策として、再処理、固化処理は海外に委託し、ガラス固化体として受け入れ、中間および永久貯蔵を行なうことを記述した。

(23) "Leaching Experiments with Highly Radioactive French Glass at Studsvik"

by G. Blomqvist : KBSへの提出資料

- フランスより送られて来た実廃液のガラス固化体について浸出性を測定した。

Puの浸出率は常温で $4 \times 10^{-7} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$ で、温度依存性はPuについては小さいがSr, Csについては温度が60℃になると、25℃の浸出率の約10倍になった。尚HLW量は9%である。

(24) "Durability of Borosilicate Glass"

T. Lakatos : KBSへの提出資料

- フランス製のホウケイ酸ガラス固化体は、各種放射線の照射に対して安定で圧縮力に対してよい機械的強度を示す。また600~800℃で、失透が生ずるなどがわかった。

(25) "Powder-Sintering Process"

Studsvik 社より提出された日本との共同研究プロポーザ (1978)

- L, MLWのために開発された粉末焼結の技術を用いて, HLW仮焼体にガラス粉末を加え, これをグラフアイトモールド中で加圧焼結することによって, 固化体を得ようとする提案で, 固化体としては, グラフアイト容器に包まれたガラス固化体となる。

(D) 英 国

(26) "The Leaching of Radioactive Waste Storage Glasses"

by K. A. Boulton, J. T. Dalton, A. R. Hall, A. Hough, J. A. C. Marples.
AERE R-9188 HAWSWP/p177 (August, 1978)

- Magnox 燃料の再処理から得られたHLWのガラス固化体の浸出率を測定した。
浸出率は, 0℃と100℃の間で, 高温になると2桁も低下する。また測定法によっても異なる。また, 酸性, アルカリ性液共に浸出率を高める。Pu入りガラスは, Puの浸出は少ない, また, β 放射の浸出率に及ぼす効果は少ない。

(27) "Status Report of Radioactive Waste Storage Glasses"

by J. A. C. Marples :

今回の会議用に作られた資料

- 2種のホウケイ酸ガラス189および209 (HLWを約25%含有)について組成, 物性浸出率の測定を行なった結果を示した。また, Pu, Amを含む同じガラス固化体の浸出率も測定した。

(28) J. A. C. Marples et al :

EEC Cooperative Programme on Waste Storage Glasses CA 4.64.50 and 4.64.51

EECの部分的な資金援助によってHahn-Meitner Institute, CEA Marcoule UKAEA Harwellの共同研究の現在までの成果報告。Soxhlet 浸出試験, 室温における浸出率, 再ガラス化の影響, 耐放射線安定性等について報告している。

BNFL 受取資料

(29) A. D. W. Corbet et al :

Problems in the Design and Specification of Containers for Vitriified High-Level Liquid Waste IAEA-SM-207/3

本レポートでは, まずHARVEST固化プロセスの概要を述べ, コンテナとしての必要な機能について述べられている。伝熱・応力解析を行い, その実験的評価を行なっている。又, 純水および海水における長時間腐食について検討し, 海洋底処分用のコンテナ

の概念についても述べられている。

これ等の論議を通して、HK-40または Incoloy 800L が適した材質であると結論づけている。

(30) BNFL :

Seabed Disposal 3rd International Workshop ; High-Level Nuclear Waste Canister UK Progress Report.

海洋底処分第三回国際ワークショップにおける英国の現状報告書であり、キャニスターの材料特性、HARVESTガラスの物性、熱的・機械的条件のモデル化、機能、製造等についての英国の開発状況の報告である。

(E) Conference on High-Level Radioactive Solid Waste Forms

(31) NRC "Solidification of High-Level Radioactive Wastes" - Panel on Waste Solidification Committee on Radioactive Waste Management Commission on Natural Resources -

高レベル廃液の固化は、放射性廃棄物処理システムの鍵となる要素であり、現在種々の方法が提案されている。処理システムの多様性の故に、必ずしも一つの方法が最善の方法とは限らない。そこで、U.S. NRCにおいては、現在その評価基準を設定するよう作業が進められている。このレポートでは、この作業を通じて得られた結果に基づいて、廃棄物処理に対する結論と提言とを行なっている。

(一部分のみ入手)

(32) W. A. Ross et al

Annual Report on the Characterization of High-Level Waste Glasses.
Pacific Northwest Laboratory, PNL-2625

(PNL)における廃棄物固化プログラムの目標は、各種固化体の特性及び高レベル廃棄物の固化プロセスを確立することである。このため、水溶液、熱的、放射性雰囲気下におけるプロセス特徴と廃棄物ガラスの長期的挙動を調べることに重点が置かれている。これは、PNLの研究成果の年次報告書である。

(要旨及び目次のみ入手)

(33) W. A. Ross :

Development of Glass Formulations Containing High-Level Nuclear Wastes.

Battelle Pacific Northwest Laboratory, PNL-2481

Na_2O , K_2O , B_2O_3 , TiO_2 , CaO , ZnO の含有量が、現在考えられている高レベル廃棄物ガラスの浸出率と均質性に及ぼす影響を調べたところ、これ等の組成によって、コントロールできることがわかった。

(要旨及び結論のみ入手)

(34) H. D. Shay Edited :

Developing Criteria for the Management of Nuclear Wastes.
Lawrence Livermore Laboratory, UCRL-52000-77-10

N R Cの基準設定作業の一環として、放射性廃棄物処分に関する概念的かつ組織的な数学モデルを開発した。一般に広く受け入れられている深地層処分に関していえば、その処分地への輸送中が最も危険であることがわかった。さらにリスクを軽減するための様々な基準についても提示している。

(35) J. R. Grover :

The Solidification of High-Level Radioactive Wastes. IAEA Bulletin
Vol. 20, No. 4

本レポートは、IAEAのTechnical Reports Series No.176 "Techniques for the Solidification of High-Level Radioactive Wastes"の要約である。

(36) J. J. Cohen, et al :

Determination of Performance Criteria for High-Level Solidified Nuclear Waste
Lawrence Livermore Laboratory, NUREG-0279

N R Cの基準設定をサポートするために、Lawrence Livermore LaboratoryがN R Cの委託により研究を行なったもののレポートである。レポートは2部に分かれており、第1部では、アプローチの方法、計算モデル、検討要因等についてふれ、第2部では、推薦される基準の技術的な基盤についてふれている。

(Executive Summaryのみ入手)

(37) TERA Corporation :

A Cost Comparison of Solidification Processes

高レベル廃棄物の評価基準の環境に対する影響を検討するにあたって、プロセスフローシートの開発、設備投資および運転費、リスク解析等が必要である。このレポートでは、各種の固化体の中で、ほうけい酸ガラスによる方法が、最もコストの低いものであることが述べられている。

(Executive Summaryのみ入手)

9. あ と が き

現在各国ともこの問題が大きく動き始めた時期にあり、我々も過去2年余りのR&Dの成果を踏まえ、熱心な討議を進めることが出来た。今回の調査の総括的結論としては、次のように要約される。

- (1) 西ドイツ、英国では、1980年代中頃から終りにかけて固化プラント完成の目標を置いて研究開発を進めている。
- (2) この場合固化処理方式は硼硅酸ガラス固化となる。
- (3) 第2次以降に対して、結晶化ガラス固化、メタルマトリックス固化などの研究開発を行なっている。
- (4) フランスに於けるAVMの順調な稼動は、各国に大きな影響を与えつつあるが、英国、西ドイツ共、独自の技術開発は精力的に継続しながら、AVMとの比較、評価を慎重に行なう姿勢である。
- (5) 西ドイツ、スウェーデンなどでは、基本方式が徹底しており、プロジェクトの推進の上から見習うべきところが多い。
- (6) 米国に於ける商用再処理中止の方針は、国内に於て全くコンセンサスが得られておらず、混迷の影を固化プロジェクトの上にも落している。そして現状打破の声は相当に強い。
- (7) これらの状況から考えて、我国の1980年代後半に計画している固化プラントでは、固化形体はガラスとし、早急にプロセス全体としてのシステム化された試験を進める必要がある。

詳細については、各項毎にまとめを行なったので、ここでは省略するが、以上のような点が指摘出来る。更に感想を交えて気の付いた点を述べる。

この流動的な時期にあって、各研究所、研究者は着実に各々のプロジェクトを推進させており、西ドイツに於てはAVMのパイロットプラントがカールスルーエに設置されようとしているにもかかわらず、PAMERA法に関し工学試験が続けられ、大型メルターに依る溶融が行なわれていた。そして場合によっては2つのパイロットプラントを建設して評価する構えを示している。また英国では、やはりAVM導入機運のなかで、HARVEST法の大型工学試験はやはりガラスを溶融中であった。

いずれもAVM導入のケースを認めながら、独自プロセスの開発に余念がない。即ち当面のプラントが出来れば全て完了と言うことでなく、固化体形体に対する評価も必ずしも合意が得られたとも言い切れない現在逐次改良を要求されるものであり、またひとつのプロジェクトの技術開発が、関連して周辺の広範な技術開発をもたらすことも考慮すると当然な姿勢であろう。

技術導入方針とともに、独自研究開発を大きくスローダウンさせるようなことなく、また常に代替法、alternative、の開発を続けることが必要である。

再処理を国内で実施しないことを決定しているスウェーデンに於て、固化体評価、岩石層処分についての研究が進められているが、同じようにフランス COGEMA などに再処理委託契約の出来ている我国に於て、返還固化体に関して具体的動きのみられないのは、対照的である。

欧米諸国間では、研究者の交流、ひんばんな技術討議が行なわれている中で、我国がひとり沈黙に近いのも、不思議に思われているようである。世界第2の原発大国の責任に於ても、積極的に技術交流を広げる必要があるのではなからうか。今回デンプー会議にも日本の考え方が出せず本年4月のシンシナティー討論会にも招待論文のないのは、発表すべきほどのものはないと言った謙遜とは必ずしも受取られないように思われる。

廃棄物対策室発行の「High Level Waste Management Program R&D Activities Progress Report FY 1977 (Oct. 1978)」を訪門先で紹介したが、いずこも初めて我国のR&Dの現状に接したようであったし、同時にそれによって先方のレポートを受取ることが出来た。まさに give and take の必要性を痛感した。

今回の海外調査は、大阪工業技術試験所寺井良平氏はじめ、実際に研究開発にたづさわっておられる方の参加を頂き、それぞれ専門的見地から調査を深めることが出来て大変効果があがったと信じる。また報告書作成に際して、大岡、石川、寺井各氏に非常に御尽力頂き感謝する次第である。