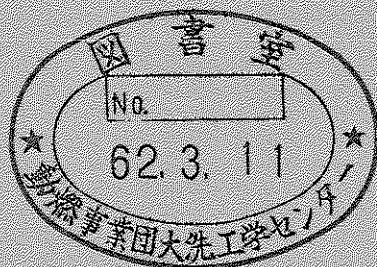


13 = 7 = 31

ハル・ハードウェアの管理(仮訳)

IAEA Technical Reports Series No.258

Management of Cladding Hulls and Fuel Hardware



1986年10月

| 技術資料コード | |
|-------------------------------------|--------------|
| 開示区分 | レポートNo. |
| | N9510 86-002 |
| この資料は 図書室保存資料です 閲覧には技術資料閲覧票が必要です | |
| 動力炉・核燃料開発事業団大洗工学センター技術管理室 | |

動力炉・核燃料開発事業団

大洗工学センター

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)



ハル・ハードウェアの管理 (仮訳)

IAEA Technical Reports Series No.258
Management of Cladding Hulls and Fuel Hardware

間野 正* 塩月 正雄*

要 旨

再処理工場の溶解工程から発生する被覆管、集合体部材(ハル・ハードウェア)は、未溶解燃料やFPで汚染され、さらに軽水炉用ジルカロイハルについてはトリチウムを吸蔵し、高速炉用ステンレスハルの場合には放射化された高線量のTRU廃棄物である。

現在、これらは未処理の状態ではハル缶と呼ばれるステンレス容器に収納され、高放射性固体廃棄物貯蔵庫(HASWS)に保管されている。しかしながら、昭和65年頃にはHASWSの容量限界に到達すること(第2HASWSは昭和74年頃)およびTRU廃棄物対策の観点から、これらを減容し、安定な固化体に転換するための技術の開発が必要である。

事業団においては、昭和55年から調査および基礎研究を続けてきたが、本格的な研究開発を始めるに当たり、各国の研究開発の現状調査の一環として、先頃発行された標記のIAEAレポートを翻訳したものである。

* 管理部廃棄物処理課

目 次

| | |
|---|----|
| 1. 緒 言 | 1 |
| 2. 使用済ハル・ハードウェアの特性 | 2 |
| 2.1 ハル・ハードウェアの組成 | 2 |
| 2.2 ハル・ハードウェアの量及び重量 | 2 |
| 2.3 放射線レベル及び汚染レベル | 3 |
| 2.4 ハル・ハードウェアの発熱 | 5 |
| 2.5 照射による物性の変化 | 5 |
| 2.5.1 化学的効果 | 5 |
| 2.5.2 照射効果：物理的，機械的性質 | 6 |
| 2.6 モニタリング方法 | 7 |
| 3. ハル・ハードウェアの処理 | 11 |
| 3.1 概 論 | 11 |
| 3.2 実際の運転方法 | 12 |
| 3.3 建設中あるいは計画中の施設 | 14 |
| 3.4 開発中の概念 | 14 |
| 3.4.1 改良セメントマトリックス | 15 |
| 3.4.1.1 回転圧縮－セメント中への埋め込み | 15 |
| 3.4.1.2 低含水セラミックセメント中への埋め込み | 15 |
| 3.4.2 他の固化マトリックス | 16 |
| 3.4.2.1 プレス圧縮によるグラファイト中への埋め込み | 16 |
| 3.4.2.2 鉛片入れあるいはなしでのプレス圧縮 | 16 |
| 3.4.2.3 プレス圧縮－鉛合金中への埋め込みによる被覆材廃棄物の処理 | 16 |
| 3.4.2.4 粉末冶金法による金属合金中への埋め込み | 17 |
| 3.4.2.5 ガラス中への埋め込み | 17 |
| 3.4.2.6 セラミックアルミナへの封入 | 18 |
| 3.4.2.7 低温処理法 | 18 |
| 3.4.3 転換プロセス | 18 |
| 3.4.3.1 ジルコン酸塩への転換 | 19 |
| 3.4.3.2 酸化によるジルコニアへの変換及びセメント又はビチューメンへの埋め込み | 19 |
| 3.4.3.3 フッ化アンモニウムによるジルカロイ・ハルの含水ジルコニアへの転換とそれに 続くセメント又はホットプレスによる固化 | 19 |

| | | |
|---------|------------------------------|----|
| 3.4.3.4 | ジルカロイ・ハルのケイ酸ジルコニウムへの転換 | 20 |
| 3.4.3.5 | ジルカロイ・ハル溶融プロセス（誘導スラグ溶融） | 20 |
| 3.4.3.6 | 添加剤を入れたジルカロイ・ハル溶融プロセス | 21 |
| 3.4.3.7 | 酸化あるいは塩素化によるジルコニアへの転換 | 21 |
| 3.4.3.8 | 熱間静水圧加工（HIPOW）処理 | 21 |
| 3.4.3.9 | セラミック固化法 | 22 |
| 3.5 | プロセスの評価 | 22 |
| 3.6 | 除染プロセス | 23 |
| 3.6.1 | 高温処理法 | 23 |
| 3.6.2 | 機械的処理法 | 24 |
| 3.6.3 | 電気的処理法 | 24 |
| 3.6.4 | 化学的処理法 | 24 |
| 4 | 処理された廃棄物固化体の特性 | 30 |
| 4.1 | 概 論 | 30 |
| 4.2 | セメントグラフト中に埋め込まれた圧縮ハルの特性 | 30 |
| 4.3 | グラファイト／硫黄中に埋め込まれた圧縮，非圧縮ハルの特性 | 32 |
| 4.4 | 鉛合金中に埋め込まれさ圧縮ハルの特性 | 32 |
| 4.5 | 金属又は合金中に埋め込まれた圧縮，非ハルの特性 | 33 |
| 4.6 | 品質保証 | 33 |
| 4.7 | 廃棄物固化体の評価 | 34 |
| 5 | 貯蔵・処理： 概括的検討 | 37 |
| 5.1 | 処理の概念 | 37 |
| 5.2 | 処理・処分方策の特徴 | 39 |
| 5.2.1 | 単純処理 | 39 |
| 5.2.2 | 複合処理 | 39 |
| 5.2.3 | 中間ケース | 39 |
| 5.2.4 | 処理・貯蔵及び処分方法の選択に影響を与える因子 | 39 |
| 5.2.5 | 二次廃棄物 | 40 |
| 5.3 | 処理パッケージの品質と安定性の要件 | 40 |
| 5.3.1 | 廃棄物固化体の品質 | 40 |
| 5.3.2 | 最終的な廃棄物固化体の量 | 42 |
| 5.3.3 | 輸送の要件 | 42 |
| 5.4 | 保障措置，安全性及び環境 | 42 |
| 5.4.1 | 保障措置 | 42 |

| | | |
|---------|--------------------|----|
| 5.4.2 | 放射線防護 | 43 |
| 5.4.2.1 | 職業上の被曝 | 43 |
| 5.4.2.2 | 公衆の放射線被曝 | 43 |
| 6. | 結論及び勧告 | 45 |
| 6.1 | 結論 | 45 |
| 6.2 | 勧告 | 45 |
| | 参加者リスト | 46 |
| | 本報告書で使用されている基本的な用語 | 47 |

1. 緒 言

核燃料及び燃料ハードウェアは、熱中性子炉と高速炉の2種類の典型的なタイプに類別できる。今日稼動している多くの熱中性子炉は軽水冷却型（LWR）であり、ジルカロイ製被覆管に装荷された酸化物燃料を使用しており、ガス冷却型（AGR）および高速炉（FBR）では酸化物燃料及び被覆管材としてステンレススチールを使用している。初期の熱中性子炉の多くはマグネシウム合金の被覆管を使用しており、それらの炉の大半はまだ商用で運転されている。

再処理に先だって、この被覆管材は機械的あるいは化学的方法で燃料から分離、回収され、前者は乾式又は湿式の間貯蔵のためサイロ内に保管され、後者の場合は廃液を処理して放射能を除く。これらの特殊な廃棄物は材料試験内炉（MTR）の燃料（これらの多くもまた溶解処理の対象である）の処理から発生する残渣と同様に、本報告の中では検討を行わない。ここでは主にLWR、AGR、FBR燃料について報告する。

照射後燃料再処理のチェップ・リーチ法において、被覆管材はハルと呼ばれる残渣として溶解後に残る。又そのほか処分すべき廃棄物には燃料構造材（ハードウェア）として用いられるグリッドスペーサー及びエンドピース等の他の金属残渣も含む。

短期間であれば、特別な処理を施さずともハルをサイロ内に保管することは可能であるが、核分裂生成物質、さらに α 放射体の存在がある故に、最終的な処分に際しては適切な廃棄物形態に調整することが必要であると考えられる。

α 線放出核種（主にU、Pu、Am及びCm）は、ハル中に様々な理由で存在している。例えば(a)酸の溶解で処理できなかった未溶解の照射後燃料として、(b)核分裂の反跳により被覆管材中にたたき込まれた核種として、(c)燃料からの拡散として、また、(d)燃料の溶解工程における表面汚染としてである。

本報告書では、燃料被覆管材ハル及びハードウェアの管理の現状について記述している。情報は廃棄物の組成と放射化物及び燃料の汚染による発熱について示している。どの国においても、最終処分法あるいはそれに替わる貯蔵技術を確立していないので本報告書では可能性ある処分方法並びに現在考えられている処分の種々のオプションについても考察している。

2. 使用済ハル・ハードウェアの特性

中性子照射は燃料被覆管及びそれに伴うハードウェアの性質に多くの変化を引き起こす。最も顕著なものは、原子炉から取り出した時燃料集合体は大量の熱と放射線を放出することである。これらの効果の大きさは集合体の照射履歴から算出することが可能であるが、実験的な手法により評価することもできる。ハル及びハードウェアの発熱量については2.4章で、ハル中の放射エネルギーのモニタリング法については2.6章に記述する。

2.1 ハル及びハードウェアの組成

燃料構造材は、エンドピース、グリッドスペーサー等から構成され、それらのうちいくつかは溶解槽に入れられる。例えばイギリス・セラフィールドの英国燃料公社（BNFL）のプラント、そしてフランス・ラ・アーグのコジェマプラントは、前工程なしに、燃料集合体全体をせん断する。しかしながら他のプラント、例えばカールスルーエのWAKプラントにおいては、燃料要素は燃料ピンせん断工程の前に分離される。FIG. 1, 2はラ・アーグのコジェマプラントの溶解槽から取り出したハル廃棄物である。燃料集合体のヘッド・エンド工程の違いは、溶解槽中に移行する金属部材の量の差を生じ、又、これらの処分方法の選択にあたり、重要な影響を与える。すなわち、比較的低い放射エネルギーあるいは汚染量の構成材の処分をハル等を分離して可能とも考えられる。

ヨーロッパ経済共同体（EEC）における原子炉の個々の燃料集合体の組成の評価については最近文献〔2, 3〕に報告された。これらの原子炉の主要構成材の重量をTABLE Iに要約して記述する。この表にはアメリカにおける典型的なBWRとPWRの値も報告する。

燃料要素の種々の構成材の化学組成範囲をTable II (4)に記述する。多くの材料はトレース量の ^{60}Co （熱中性子照射により ^{60}Co に変換する）しか含まないかもしれないが、いくつかのもの例えば重量1%に達するコバルトを含有し、廃棄物中の ^{60}Co の放射エネルギーを増加させる。

2.2 ハル及びハードウェアの容積及び重量

文献2に示された燃料被覆管材とそれに伴う廃棄物量の概算は、EECにおいて2000年迄に増加すると予測される再処理計画が不確定であるため、以下に記述する値は過大評価であるかもしれない。

| | t |
|------|------|
| フランス | 7000 |
| イギリス | 2000 |
| 西ドイツ | 1500 |
| イタリア | 800 |
| ベルギー | 300 |

ソ連の原子力計画では、ハルの発生量は年間1000 m³にも達する。(文献〔5〕)インドの原子力計画では、2000年迄に年内1000 m³の未処理のハルを発生する。

現在までアメリカにおいて、再処理された燃料の多くは化学的に脱被覆をされていたので、比較的少量のハルを発生していた。再処理工程をチョップアンドリーチ法に転換することによって、軽水炉燃料4トンウラン当り、およそ1トンのジルカロイが発生している。(文献〔6〕)

1000 MWeの軽水炉燃料の再処理からは、ハル廃棄物は年間15 m³発生すると見積られている。(文献〔7〕)

廃棄物の生発生量は処理される燃料量及びハードウェアの残余から分離したハル量に大きく依存する。

平均的な未処理ハル廃棄物の量はおよそ0.3 m³/MTHMであるが、その値は大きな幅を持つ(例えば0.2～0.6 m³/MTHM(文献〔8〕)。これは燃料集合体のせん断の方法に起因する。

ハル発生時の高密度はおよそ1.1 t/m³であるが、一方この値は個々のハルの仕様に依ると考えられ、ソ連の研究では1.8～2.5 t/m³の値が示されている。

BWRとPWRハルの比表面積はステンレス鋼エンドピースは0.8 cm²/g、インコネルは5.7 cm²/g、BWRジルカロイハルは3.7 cm²/g、そしてPWRジルカロイハルについては4.9 cm²/gと報告されている。〔文献4〕

2.3 線量及び汚染レベル

1300 MW (e) の典型的なPWR燃料の炉内での種々構成部材の放射化の量をTABLE IIIに示した。〔文献2〕

燃料が1000日間の照射により34 GW・d/tHMに達したと仮定し、構造材を1トンウランあたり以下の値に仮定する。

| | | |
|-------------------|--------|--------|
| ジルカロイ 4 | 288 kg | 72 wt% |
| ステンレス鋼 (AISI 321) | 88 | 22 |
| インコネル 718 | 16 | 4 |
| インコネル 750 | 8 | 2 |

PMR (33 GW・d/tHM) と BMR (27.5 GW・d/tHM) のハル及びハードウェアの全体的な放射エネルギーと冷却時間との関係を FIG. 3 に示す〔文献9〕。比較的短半減期のトリチウムの崩壊が明確に示されており、約500年の冷却期間の後のハル中の放射能の大部分はアクチナイドによるものである。尚、このカーブは廃棄物中に0.1%の燃料が付着しているものと仮定している。

ジルカロイ被覆管材中に含まれる不純物の中性子照射により生じたアクチナイドの量がORIGENコードを用いて〔文献4〕に算出されている。中性子照射により²³⁸Uは²³⁹Puや²³²Th、²³³Uに転換し、さらに中子と吸収することによって、より高次のアクチナイドを生成する。

アメリカでの研究でジルカロイ4製被覆管材中に生じるアクチナイドの予測量が示されている。〔文献10, 11〕

TABLE. IVは2つのハルの“ベースメタル”について記述している。これはジルカロイ中に生じたアクチナイドを表面汚染量を無視して比較したものである。表面汚染のアクチナイドは、従来の除染法で達成し得る最低のレベルまで溶解されている。

アメリカ〔文献12〕及び英国〔文献13〕の研究によると、ジルカロイハルには α 線放出核種が内面にも外面にも汚染しているが、核分裂性核種は主に内面に存在し、種々の形態で分散している。熱中性子炉（AGR）や高速炉（FBR）からのステンレス鋼ハルも大むね似かよった分散形態であった。

ジルカロイとステンレス鋼のハルの主に異なる点は、(a) 核分裂性核種（元々不純物として含まれるもの、Thやそれらが中性子照射によりアクチナイドに変わったもの）はジルカロイ中に検出されることに対して、ステンレス鋼ハル（AGR, FBR）では1~2 μm 以上の深さからは核分裂性核種は検出されない。(b) 高速炉のハルは軽水炉ハルよりも常に汚染量が多い。これは高速炉燃料中には核分裂性核種がより高く濃縮されていることに起因する。

英国で得られた軽水炉及び高速炉ハルに同伴したアクチナイドの実験データをTABLE Vに示す。〔文献13〕このハウエルでの研究において、典型的な燃料の溶解と洗浄工程とを行った後にハル中に存在する放射エネルギーが調査された。

ハル試料は(a) 実験的、バッチ、小規模の燃料溶解、(b) プラント規模溶解（カールスルーエのWAKプラント）から採取した。両ケースともハルは損傷がなく、目視による燃料の付着は認められなかった。

これらの結果は、おそらく計測され得る最小の汚染を表わしており、ラージスケールの商業再処理からのハルはより多くの放射能（又は燃料）を伴っているであろう。

又、この評価結果はアルファ核種の多くは溶解工程でのハルへの付着の結果によるものということを確認した。その付着物は未溶解燃料と溶解工程において形成された加水分解物とに分類することができる。

ここでの評価は検知された放射能に寄与する装荷燃料量を基に行われた。但し、 ^3H 、 ^{106}Ru 及び ^{125}Sb は除いており、これらの核種については計算値と測定された量との範囲の許容されうる推定であった。TABLE. VIにハル中に残存する装荷燃料の比率を表わす。

すなわちこの値は、測定される放射能に寄与する核種の燃料中の含有量に対する百分率を示している。

TABLE. Vにおけるトリチウムの高含有量は、ジルカロイ金属中のトリチウムの保持によるものである。この値は非常にバラツキが大きく、ベルギーからの報告では〔文献14〕、ハル中に保持されるトリチウムのインベントリーは燃料から生じる量の約60%であり、同様の結果が西独からも報告されている〔文献15〕

異なるデータの相関性を説明するのは困難である。なぜならトリチウムの吸蔵は、燃料棒の直線出力比に大きく依存し、その値は多くの場合正確には把握していないからである。

ステンレス製ハル中のトリチウムの吸蔵量は、ジルカロイに比べて2～3桁低い〔文献13〕。これは、高温環境下における、鋼中の水素及びトリチウムの拡散速度が高いことによると考えられる。

揮発性核分裂生成物によるハルの汚染に関する最近の調査では、照射により生じた⁸⁵Krの0.1%に余りがジルカロイハル中に存在することが報告されている。

ハルの腐食酸化層の測定では、燃料と接触していたハル表面から約2 μmのところには⁸⁵Krの分散ピークが認められ〔文献19〕、10 μm以上の深さには認められていない（FIG.4）。

種々のハル表面における全α核種の平均濃度をTABLE.VIIに示す〔文献13〕、この値は少量の試料のみで評価したものであり、又、表面での物質の分散挙動は、種々の条件により非常に変化しやすいことが知られている。このことは、FIG.5においてステンレスハル並びにジルカロイハル中の核分裂性物質の分布に示されている（FIG.5）。ジルカロイハル表面での付着の不均一性はFIG.6に明確に現われている〔文献20〕。

2.4 ハル及びハードウェアの発熱

ハル及びハードウェアの種々の構成材料からの熱発生はTABLE.IIIに示した。全ての構造材（ジルカロイ、ステンレス鋼及びインコネル）において、発熱の大部分は⁶⁰Coの崩壊によるものである。この⁶⁰Coは比較的短い半減期（5.3年）であるため、被覆管材ハルの初期の発熱は（放射化生成物のため）時が経つにつれ急激に減少する。

PWR（33 GW・d/tHM）及びBWR（27.5 GW・d/tHM）からのハル及びハードウェアの発熱量の推移をFIG.7に示す〔文献9〕。

全体的な発熱量曲線は、初めの50年で二桁減少し、その後1000年間に渡り少しずつ減少していく。この曲線は燃料付着料を0.1%として算出している。

西独において実験的に求められた冷却期間7.7年のPWRとBWRのハル及びハードウェアの熱発生率は、以下に示す通りである〔文献21〕。

| | W/tHM |
|----------------|-------|
| ハル | 11 |
| スペーサー，一般ハードウェア | 29 |
| エンドピース | 5 |

2.5 照射による特性変化

以下に示すハル及びハードウェアの特性については、元来ジルカロイ等の材料固有の特性に関するものが多く、照射に関するものは比較的少ない。

2.5.1 化学的効果

温度上昇に伴い、一般的に金属表面に酸化物が形成される。ジルカロイハルの場合には、内

外面にジルコニアの薄い酸化皮膜が形成される。このうち表面の酸化層は燃料と相互に作用し、外表面の酸化層は、空気、水、又は蒸気につつまれ相互作用を起こしたものである。一般的に、ジルコニア酸化層の厚さは5～50 μm 程度である。この酸化層は脆性を高め、かつ硬度を上昇させることが分かっているが、これらに関する情報は非常に少ない。

酸化層に関するもう一つの効果は、ジルコニア層中へのアクチナイド及びFPの保持である。これらの除染、特にアクチナイドについては、非常に困難である。

水素化物の生成もまた脆性を高めるが、化学的效果における重要な因子ではない〔文献3〕。

ステンレス鋼被覆管燃料の場合、水素とトリチウムは被覆管を通して拡散し、冷却材中で検知されることが考えられる。

水素化物の生成については燃料中のトリチウムを吸蔵するジルカロイ被覆管の場合は影響が大きい。すなわち、PWR及びBWRハル中には $1.6 \times 10^3 \sim 4.4 \times 10^{13} \text{Bq/t}$ (450～1200 Ci/t)ものトリチウムが認められるが、AGR及びFBR中のハルからは $2.2 \times 10^{10} \sim 1.7 \times 10^{12} \text{Bq/t}$ (0.6～46 Ci/t)のトリチウムしか検知されない〔文献13〕。

ハルの加熱を考慮した場合、この挙動は重要性を増す。例えばジルカロイハルの溶融においてトリチウムは放出される。

2.5.2 照射効果：物理的、機械的特性

ジルカロイのヤング率、延性及び硬度に及ぼす照射の影響に関する研究が文献3に報告されている。

広範囲にわたる研究がベルギーにおいて、BR2及びBR3原子炉等のジルカロイハル、ドンレイ(DFR)及びマルクール(Phenix)のステンレス製ハルを対象として行われた。

ステンレスハルのクリープ及びスウェリングに関する研究は文献22中に報告されており、その中にはジルカロイハルに関する詳細なデータも示されている。

ジルカロイの諸特性に対する照射の効果をTABLE.VIII中に示す〔文献23〕。ここでは腐食以外のデータが、環境条件で収集されている。この研究によれば、温度上昇(測定値による)により諸特性の変化の度合いが低下する傾向が明らかになった。

又、TABLE中のデータと実際のデータの評価により、典型的な軽水炉の場合およそ 10^{21}n/cm^2 の中性子にさらされていることが判明した。

ベルギーの研究〔文献24〕での熱処理と照射がフェライト鋼の物理的性質の変化に及ぼす影響の評価結果によれば、熱処理(410℃～480℃の間)は、曲げ及び引張り応力を増加させるが、照射の結果さらにそれらが大きく増加することが確認された。又、熱処理は合金の延性を低下させ、照射ではさらに低下させる。しかしながら未照射及び照射後のジルカロイ被覆管を理論密度の約60%までするのに必要な圧縮力の差は比較的小さい(FIG.8)。

尚、ベルギーにおいてはさらにこれらの研究を行っている。

2.6 モニタリング

工程管理において、ハル及びハードウェアに同伴する燃料及び核分裂性物質質量を知ることは非常に重要である。

この情報を得るために用いられる手法を以下に示す。

測定技術は、大きくパッシブ又はアクティブに区分される。

前者は以下の対象物に対して適用される。

- (a) 照射後燃料の自発核分裂中性子。
- (b) ハルに付着した軽元素（例えば酸素等）の (α, n) 反応により生じる中性子。
- (c) 核分裂生成物からの γ 線

アクティブ法は、ハルに熱中性子を照射し、そのときに生じた即発及び遅発中性子を計測する技術である。即発中性子を計測する方法について研究が行われてきているが〔文献25〕、工業的規模にはなっていない。これら中性子計測法のほとんどは遅発中性子を計測している。

アクティブ中性子測定法は、一般的に次の2つの欠点を持っている。ひとつは大規模な装置化が困難なこと、もうひとつは、ハルに付着している水の影響を受けやすいこと、である。

パッシブ中性子測定法は、ハルに付着している核分裂性物質が燃料組成と同一のものであると仮定しているために、これも又、次の欠点を有している。非常に低い燃焼度の場合、あるいは非常に長い冷却時間を経たものに限って、プルトニウムからの自発核分裂中性子が優勢になる。他の条件では、主な中性子源は ^{244}Cm であり、燃料の付着量を評価するためには、U、Puと ^{244}Cm との相関性について明確にする必要がある。

ハル中には、 (α, n) 反応により中性子が生じるが、燃料付着量と測定が困難な水の存在から生じる中性子との相関関係を得ることは非常に困難である。

非常に良く使われるモニタリング方法は、 $^{144}\text{Ce} \rightarrow ^{144}\text{Pr} \rightarrow ^{144}\text{Nd}$ 系列により生じる放射線を計測するものである。 ^{144}Pr は短い半減期（17.3 min）を持ち、 ^{144}Ce との放射平衡が効果的を呈する。 ^{144}Ce の崩壊から生じる1.133 MeVの γ 線を計測することは可能ではあるが、他の γ 線放出核種の存在により影響を受けやすく測定が困難になる。一方、 $^{144}\text{Pr} \rightarrow ^{144}\text{Nd}$ の崩壊からは非常に強い γ 線（2.18 MeV）が生じ、これは測定が容易である。結果的にはこの γ 線計測による測定方法は全体的に好ましく、広く使用されている。

TABLE. IXに主なモニタリング方法の概要を示す。

参 考 文 献

- [1] HUGHES, T.G., KEMP, E.F., Reprocessing of Oxide Fuel at Windscale, British Nuclear Fuels Ltd Booklet No. 17 (1973).
- [2] COTTONE, G., Arisings of Cladding Wastes from Nuclear Fuel in the European Community, Commission of the European Communities Rep. EUR-5969 EN (1978).
- [3] BOEHME, G., SPENK, G., SOMBRET, C., "Study of methods for conditioning and storage of spent fuel element hulls", Chapter in Conditioning and Storage of Spent Fuel Element Hulls (HEBEL, W., COTTONE, G., Eds), Commission of the European Communities Rep. EUR-8250 (1982).
- [4] GRIGGS, B., Feasibility Studies for Decontamination and Densification of Chop-Leach Cladding Residues, Battelle Pacific Northwest Labs, Richland, WA, Rep. BNWL-1820 (1974).
- [5] NOVOSELOV, G.P., "High-temperature methods for treating spent fuel cladding", Treatment, Conditioning and Storage of Solid Alpha-Bearing Waste and Cladding Hulls (Proc. NEA/IAEA Technical Seminar Paris, 1977), OECD, Paris (1978) 323.
- [6] LEVITZ, N.M., KULLEN, B.J., STEINDLER, M.J., Management of Waste Cladding Hulls - Part 1 : Pyrophoricity and Compaction, ANL-8139 (1975).
- [7] KRAUSE, H., SCHEFFLER, K., in Treatment, Conditioning and Storage of Solid Alpha-Bearing Waste and Cladding Hulls (Proc. NEA/IAEA Technical Seminar Paris, 1977), OECD, Paris (1978) 115.
- [8] CLELLAND, D.W., Evidence for "Windscale Planning Application", July 1977, Whitehaven, Cumbria, UK.
- [9] HAUG, H.O., Zerfallsrechnungen verschiedener mittelaktiver Und actinidenhaltiger Abfalle des LWR-Brennstoffkreislaufes, Part 1, Kernforschungszentrum Karlsruhe Rep. KFK-3221 (1981).
- [10] DILLON, R.L., KEMPER, R.S., Section in Nuclear Waste Management and Transportation, Quarterly Progress Report, October through December 1974, Battelle Pacific Northwest Labs, Richland, WA, Rep. BNWL-1899 (1975).
- [11] GRIGGS, B., BRYAN, G.E., Cladding Hulls Decontamination Process- Preliminary Development Studies, Battelle Pacific Northwest Labs, Richland, WA, Rep. PNL-2985 (1979).
- [12] DILLON, R.L., "Decontamination and melt densification of fuel hull wastes", Treatment, Conditioning and Storage of Solid Alpha-Bearing Waste and Cladding Hulls (Proc. NEA/IAEA Technical Seminar Paris, 1977), OECD, Paris (1978) 299.

- [13] JENKINS, I.L., et al., The Characterization of Activities Associated with Irradiated Fuel Element Cladding, Commission of the European Communities Rep. EUR-7671 EN (1982).
- [14] BROOThAERTS, J., VANDERSTEENE, J., DE REGGE, P., MONSECOUR, M., VAN DE VELDE, J., Axial Distribution of Tritium in Zircaloy-Clad Fuel Rods, Commission of the European Communities Rep. EUR-7830 (1982).
- [15] BLEIER, A., KROEBEL, R., NEEB, K.H., SCHNEIDER, E., "Tritium inventories and behaviour in Zircaloy cladding of spent light water reactor fuel rods", Proc. Int. Topical Mtg. on Fuel Reprocessing and Waste Management, Jackson Hole, WY, 1984.
- [16] GROSSMAN, L.N., HEGLAND, J.O., General Electric Co. Rep. GEAP-12205 (1971).
- [17] GOODE, J.H., COX, C.M., Oak Ridge Natl Lab., TN, Rep. ORNL-TM-2994 (1970).
- [18] FROTSCHER, H., GRABNER, H., KAPULLA, H., Konditionierung von Hüllen bestrahlter Brennelemente durch Walzen und Einbetten in Beton, Commission of the European Communities Rep. EUR-7728 DE (1982).
- [19] VEHLow, G., "Controlled corrosion for measuring the range of fission products in fuel hulls", Proc. 9th Int. Congr. on Metallic Corrosion, Toronto, 1984, Vol. 3.
- [20] BROOThAERTS, J., et al., Conditioning of Cladding Waste by Press Compaction and Encapsulation in Low-Melting Metal Alloys, Commission of the European Communities Rep. EUR-9670 (1985).
- [21] KAPULLA, H., Kalorimeter zur Bestimmung unklearer Wärmequellen in Abfallfässern mit zementierten Hülse n und Strukturteilen aus der Wiederaufarbeitung, Kernforschungszentrum Karlsruhe Rep. KFK-3785 (1984).
- [22] STUDIECENTRUM VOOR KERNENERGIE, Annual Report 1982, BLG 558, SCK/CEN Mol, Belgium.
- [23] LEUITZ, J.M., KULLEN, B.J., STEINDLER, M.J., Argonne Natl Lab., IL, Rep. ANL-8139 (1975).
- [24] STUDIECENTRUM VOOR KERNENERGIE, Annual Report 1980, BLG 551, SCK/CEN, Mol, Belgium.
- [25] CRANE, T.W., CLOSE, D.A., KRUK, M.S., MENLOVE, H.D., "Neutron methods for assay of fissionable material in the presence of fission products", Proc. 21st Annual Conf. on Analytical Chemistry in Energy Technology, Gatlinburg, TN, 1977, p. 285.

- [26] WOGMAN, N.A., BORDZINSKI, R.L., BROWN, D.P., "Instrument for monitoring the transuranic content of chopped leached hulls from spent nuclear fuel elements", Am. Nucl. Soc. Topical Mtg on Analytical Methods for Safeguards and Accountability Measurements of Special Nuclear Material, Williamsburg, 1978.
- [27] McDONALD B.J., FOX, H.G. BREMNER, W.B., "Non-destructive measurement of plutonium and uranium in process wastes and residues", Safeguarding Nuclear Materials, (Proc. Symp. Vienna, 1975), Vol. 2, IAEA, Vienna (1976) 589.
- [28] CONSTANT, J., HEBERT, D., MACAREZ, J.P., MALET, G., REGNIER, J., "Expérience acquise à La Hague sur le contrôle des coques", Nuclear Safeguards Technology 1978 (Proc. Symp. Vienna, 1978), Vol. 2, IAEA, Vienna (1979) 669.
- [29] FREJAVILLE, G., HEBERT, D., PASQUALI, R., ROUILLY, D., "Le contrôle des coques dans les usines de retraitement", Management of Alpha-Contaminated Wastes (Proc. Symp. Vienna, 1980), IAEA, Vienna (1981).
- [30] FOX, G.H., McDONALD, B.J., A Leached Hull Monitor for Use in Reprocessing of Oxide Fuels, British Nuclear Fuels Ltd. Rep. BNFL-213W (Windscale) (1975).
- [31] BAUMUNG, K., BÖHNEL, K., Hülßenmonitor, in Kernforschungszentrum Karlsruhe Rep. KFK-1852 (1972).
- [32] KOLZUMI, T., TAREDA, K., YOKOYAMA, K., IWATA, N., "A demonstration hull monitoring system", referred to in Conditioning and Storage of Spent Fuel Element Hulls (HEBEL, W., COTTONE, G., Eds), Commission of the European Communities Rep. EUR-8250 (1982).

3. ハル・ハードウェアの処理

3.1 概 論

どの処理プロセスであってもその設備の設計や操業に際し、適切な安全策がとられない限り、運転員や一般の人が許容範囲を超える放射線を浴びる可能性がある。放射線防護のための最低の基準は国際放射線防護委員会（ICRP）の勧告に規定されており、その目的は一般に、被曝をこれらの許容限度より十分に低く制限することによってなければならない。このような観点から、ジルコニウムやステンレス鋼のハルが γ 線放出核種に汚染されており、従って、そのような物質に適した取り扱いをしなければならないということに留意すべきである。

LWRからの被覆材ハルを管理する際に、主に考慮しなければならないのは、細かく分割されたジルカロイの自然発火性である。（この問題はステンレス鋼では起らない。）被覆材ハルの火災は、米国のニューヨーク州、ウエストバレーにある Nuclear Fuel Services（NFS）プラントで報告されているが〔1〕、その状況は例外的なものであった。即ち、火災のほとんどは溶解槽内で起こり、ジルカロイ被覆のウラン金属燃料を再処理している時に生じたハルに限定されている。異常は溶解しようとしている時に起こり、ハルが苛性ソーダ溶液に浸された後は、それ以上の問題は生じなかった。ジルカロイ被覆酸化燃料の再処理については、NFSでもその他のところでも火災が起ったという報告はない。

種々のジルコニウム金属の空気中での発火温度は金属ジルコニウムと同様である〔2〕。発火温度と比表面積との関係（即ち粒子サイズとの関係）をFIG. 9に示す〔3〕。比表面積 $10^4 \text{ cm}^2/\text{g}$ （ $\sim 1 \mu\text{m}$ ）の場合の空気中あるいは酸素中におけるジルコニウムの発火温度が約 200°C であるのに対して、比表面積 $10 \text{ cm}^2/\text{g}$ （ $1000 \mu\text{m}$ ）の場合は $800 - 900^\circ\text{C}$ である。

ジルカロイ微粒子の発火し易さは、また、存在する物質の量にも関係しており、個々の（球状）粒子の大きさ、塊の大きさ及び発火温度の関係を評価しようという試みがなされてきた。ジルコニウムの「臨界質量」即ち任意の条件下で発火する最低量が計算されており、発火温度 60°C のときの臨界質量は平均 $25 \mu\text{m}$ の粒子の場合には 20800 kg であり、 $1 \mu\text{m}$ の粒子の場合には 1.33 kg である〔4〕。

ジルカロイの微粒子が生ずるのは主に次の2つの場合である。即ち、せん断による機械的圧力による場合、殊に照射中に被覆材がもろくなった時と、移動や輸送時の機械的摩擦による場合である。せん断によって生じた微粒子は溶解槽の溶液と共に残るが、処理をするためにそこからは分離することができる。

実際にやったという報告はまだないが、ハルと一緒に残存している微粒子を分離することができるかもしれない。その場合は、微粒子を空気中で酸化したり溶解することによって化学的に不活性な形に変えることが出来る。

従って貯蔵や処理プロセスにおいてジルカロイ微粒子が存在する場合は、次のことを考慮しなければならない。

- ハルを十分にぬれた状態に保ち、乾燥や中間的な湿潤状態（蒸気）は避けること。
- 微粒子が集まるのを避けること。
- 発火源になりそうなものを除去すること。
- 不活性な物質を使うこと。
- 処理温度を出来るだけ低くすること。
- 別々に処理するために微粒子を除去すること。

ジルカロイハルに関する別の問題は約 600℃ 以上の温度でトリチウムを放出する可能性があるということである。この温度以上で操作する処理プロセスではオフガス処理のための設備を設ける必要があるだろう。もっと高温（約 800℃ 以上）では残留燃料を含むいずれの被覆材廃棄物からも揮発性セシウムも一緒に放出される可能性がある。

処分するのに適した廃棄物形態が決まるまでは、ハル・ハードウェアの管理は次の方法のうちいずれかにもとずいて行われるべきである。即ち、ハルもハードウェアも回収可能な貯蔵施設一場合によっては固化されて一に置くべきか、照射燃料をそのまま貯蔵することによりハル・ハードウェアの発生を遅らせるべきである。

ハル・ハードウェアを処分に適した形態に処理するための多くの処理方法がいくつかの国で真剣に考えられてきたし、現在もなお考えられている。FIG. 10 はこの章で記述しているプロセスを、機械的、熱—機械的、および化学的な処理プロセスに分けて大まかに図示したものである。太い線の四角で囲んであるのは現在使われている方法を示している。マトリックスを使わずに貯蔵されている廃棄物は処分する前にあらためて処理のために最終的には取り出すことが意図されている。ハル・ハードウェアはセメントをベースにしたマトリックス中に固定することができる。しかしこの廃棄物固化体が処分に適しているかどうかはまだ確かめられていない。が、このプロセスに関する研究は続けられており、これまでに一つの施設でこの方法が採用されている。

FIG. 10 には又、ハルの除染や燃料ハードウェアのハルからの分離などの付加的な処理プロセスがどこで行われるかも示している。再処理プラントによっては、ハードウェアの大部分が燃料をせん断する前に分離され、溶解槽に入らないものもある。

3.2 実際の運転方法

フランス、ラ・アークの UP 2 プラントに於ける LWR 燃料再処理工程から生ずるジルカロイ・ハルは、容量 1500 m³ のステンレス鋼で内張りし水で満たしたコンクリートサイロの中にばらのままで貯蔵されている。この施設は 1976 年以来酸化燃料の再処理を行っており、再処理した燃料の総量は 1984 年 5 月までで約 900 tHM に達している。燃料集合体のエンドピースは溶解槽を通らないけれど、これらもハル、スベーター、グリッドなどと共にサイロへ運ばれる。サ

イロには、将来回収作業が容易にできるように直接監視できる設備がとりつけられている。同じ様に英国のセラフィールドでは、最初の酸化物燃料再処理で生じたジルカロイ・ハルが10年以上も何事もなく水を満たしたコンクリートのサイロの中にばらのままで貯蔵されている。

ジルカロイ・ハルは水を満たし、密封されたステンレス製の容器の中に入れ、水中に保管する方法でも貯蔵されている。この方法はベルギーのモルで採用されており、ここではLWRグリッドとエンドプラグが高さ3m、直径0.3mの水を満たしたステンレス製の容器の中に入れられている。82体の容器は、蓋にガasketをつけて閉められ、18.5m³の廃棄物が収納されている。さらに被覆材が完全に溶解しなかったために残された7.2m³のLWRハルは直径0.23mの容器56体に同様の方法で置かれている。全ての容器は、1974年に再処理が中止されて以来水中のラックに並べられている。日本の東海村では、93m³のハルが400ℓ容器に入れられてステンレス鋼で内張りされたコンクリート・タンクに保管されている。このハルは1983年12月までに行った再処理によって発生したものである。その後、再処理は行われていないが1985年には運転を再開する計画である。

英国セラフィールドでは、ステンレス・ハルがステンレス鋼で内張りされたコンクリートサイロの中に乾燥状態でばらのまま10年以上も貯蔵されている。容器の中での乾燥貯蔵法は、英国ドーンレイの高速炉ハルに対して使われている。ここでは200ℓのステンレスの高性能容器が用いられている。フランスのマルクールでは容器の容量は220ℓである。米国、ニューヨーク州ウエスト・バレーのNuclear Fuel Servicesプラントの運転で生じたジルカロイ・ハルは約190m³に達し、これらは110ℓの鋼製容器に入れられて深さ10～15mの土の中に埋められている。

イタリアのサルジアではCANDU燃料再処理から生じたジルカロイ・ハルは、容量2m³各重量約14tの容器中にセメントで固められている。この一次的な作業は今中止されているが、結果的には6体のコンテナが工学的な地上の施設に乾燥状態で貯蔵されて残っている。

インドで現在行われている廃棄物処理の方法は、セメントをマトリックスとして200ℓの炭素鋼円筒容器の中にハードウェアと一緒にジルカロイ・ハルを固化するものである。その容器は地表近くの特設設備を施した孔の中に貯蔵されている。

西独カールスルーエのWAKプラントの再処理プロセスから発生したジルカロイ・ハルは、エポキシ樹脂を塗布しポリエチレンの袋で内張りをした170ℓのスチールのドラムの中にセメント固化されている。はじめに、貯蔵能力にいくらかのバッファを確保するために容器は水を満たしておき、15～20のドラム缶単位でバッチ的にセメントグラウチングをすることができるようになっている。エンドピースはせん断する前にのこぎりで燃料から除去し、生じた金属微粒子（水中の細かいふるいの中に集められている）と一緒にしてハルと共にセメントで固める。170ℓドラム缶は次に、200ℓの標準のスチールドラムの中に入れ、工学的地上施設の中に乾燥状態で保管される。1971年以来WAKプラントは150tHMを処理しているが、重大な問題は何ら報告されていない。

上述の方法はいずれも減容処理は行われていない。

3.3 建設中あるいは計画中の施設

年間処理能力 800 tHM の新しい LWR 燃料用処理プラント (UP3) がフランスのラ・アーグに建設されており、1988 年には放射性物質を用いたテストが行われる予定である。エンドピースは燃料集合体から除かれ、溶接槽は通らずに別の洗浄を行うことになる。切断した燃料棒は連続回転溶解槽の中へ導入され、そこからハルが連続洗浄システムを経て取り出される。ハルもエンドピースも共に 800 ℓ のステンレスの容器の内部に設置された穴のあいたバスケットの中に詰められる。モニタリングを行った後、セメントのグラウトを容器に流して固める。工学的地上貯蔵施設へ運ぶ前に容器にフタをかぶせ固定する。このタイプのセメント固化施設は UP2 が 1990 年に拡張が完成した後に生じるハルを受け入れて処理することができそうである。この処理方法は、放射性物質を用いた操業の少くとも最初の 5 年間は採用されることが考えられる。この間にセメント固化廃棄物に関する研究、あるいは代替処理プロセスに関する研究が進められるものと考えられる。

セメントをベースにしたマトリックス内に封入する方法は、最近英国のセラフィールドに建設中の酸化燃料再処理プラント、THORP から生ずるジルコニア合金ハルやステンレスのハルにも使用することが考えられている。

西独に於て LWR 再処理用として建設が計画されている 350 tHM/a プラントでも、現在の計画に従えば、ジルカロイ・ハルを封入するのにセメントグラウトを使用することになっている。この計画は国の許認可機関が審査している。

FBR 燃料用に 5 tHM/a 再処理原型プラント (TOR) がフランスのマルクールに建設されている。この施設では、ハル処理として冷るつぼ (cold crucible) 溶融技術が考えられている。TOR 施設の重要な目的は、50 tHM/a の設計容量をもつ MAR 600 FBR 再処理プロジェクトのために情報と経験を供することである。

3.4 開発中の概念

この節では、使用済燃料ハルとハードウェアの取扱いと処理に関するパイロット規模あるいは実験室的規模の運転について述べており、また、まだ詳細な研究が行われていない新しい概念についても紹介している。いろいろな国で研究中の、又は研究されてきた方法は TABLE X-XII にまとめられ、三つのカテゴリー、即ち改良セメントマトリックス、他の固化マトリックス、転換プロセスに分類されている。

3.4.1 改良セメントマトリックス (Improved cement matrices)

この項に述べられている処理技術はセメントあるいは改良セメントのマトリックスを使うも

のである (TABLE X 参照)。これらはいずれも比較的単純で操作し易い。セメントによる固化は比較的低温 ($\leq 100^{\circ}\text{C}$) で、ハルからのトリチウムの放出のないことが確かめられている。

3.4.1.1 回転圧縮 - セメント中への埋め込み (Roll compaction and embedding in cement)

ハードウェアを含まないハルは、振動シュートを通して一方向から回転ミルの中へ供給される。ローラによる圧縮で平らにされたハルはドラムの中に集められる。セメントを (注入パイプを経てドラムの中へ) 供給する前及び供給中にテーブルを振動し、中を真空にすることによって生成物は最大の密度が得られる。一定時間固化した後、ドラムは二重ふたシステムによって表面汚染を防止できる 400 ℓ の廃棄容器の中に収納する。燃料ハードウェアは別に処理され、圧縮せずにセメント固化する。FIG. 11 はカールスルーエの原子力研究センター (KfK) に於けるこのプロセス用の処理セルである。

ロール・プロセスは主として、マトリックスにセメントをマトリックスとした上で十分に確立された技術を用いて、より体積減少を図るために開発されたものである。ロール・ミルを使用することによってハルの体積は 1/2.4 に減少するが、そのミルには供給装置があり、それが埋め込みプロセス全般の信頼度を低下させることになっている。また、このプロセスには不活性ガス雰囲気も必要である。

現在の状況：このプロセスは、工学的規模でそのフィージビリティが放射能なしの条件下で実証されている。大規模の装置も難なく作ることができる。計画した試験は完了し、このプロセスに関してはこれ以上の研究計画はない。

3.4.1.2 低含水セラミックセメント中への埋め込み (Embedding in low water cement)

このプロセス (FIG. 12) は、ハルを化学的に固化するセメント中に埋め、約 100°C で乾燥して水の含有量を 1% 以下に減らすものである。次に、廃棄物コンテナを二重ふたのシステムで表面汚染を防止できる 400 ℓ のドラム缶の中に収納する。燃料ハードウェアはハルと一緒に処理するか、又は同じマトリックスを使って別に処理する。

Al^{3+} を有するアルカリケイ酸塩は高分子量の非結晶性のケイ酸塩を生じ、それが飽和塩溶液に対する耐食性の高い生成物になる。含水量が少ないので放射線分解によるガスの発生は少ない。主な処理工程は水和固化のセメントを用いた埋め込み法と同じであり、これらは、すでに、西独に於ける WAK プラントに於て 170 ℓ 規模のものが放射性物質を用いて実証されている。イン・ドラム乾燥法については、まだ、当面問題となっている規模 (330 ℓ ドラム) での実証はされていないが、表面/体積の比が小さいことから乾燥時間が長いことが予測される。

現在の状況：このプロセスは 125 ℓ 規模まで開発されており、乾燥工程の改良が続けられている。このプロセスは CEC の計画「Radioactive Waste Management and Storage」の一環として開発が行われている。

3.4.2 他の固化マトリックス

この節で述べる方法は全て、セメントをベースとしないものである。普通、ハル・ハードウェアの物理的、化学的性質は適用される処理プロセスによって変化することはない。これらの方法については TABLE XI にまとめている。

3.4.2.1 プレス圧縮によるグラファイト中への埋め込み (Embedding in graphite by press compaction)

マトリックス材は、主としてグラファイト 80 wt% と粉末硫黄 20 wt% で構成されている。埋め込みは次の一連の操作で行われる。まず、ハル廃棄物とグラファイト-硫黄の鑄造用粉末をあらかじめ成形したグラファイト殻に入れ 3 MN/m^2 でプレスする。次に、それを真空中引いてから 150°C 、 20 MN/m^2 でプレスし、この状態で 15 分間放置する。その後冷却して、 80°C で成形された固化体を取り出す。次にその生成物を薄厚のステール缶の中に収納し、溶接で密封する。そのプロセスを FIG. 13 に示す。

廃棄物パッケージの最終的な寸法は決まっていないが、200 ℓ 規模で何ら問題ないと考えられている。生成物は物理的性質、耐食性、耐浸出性に優れている。廃棄物充填量を高く (58%) するには固化する前にハルを圧縮しておかなければならない。

現在の状況：この方法は実験室規模で放射性物質を使わずに実証されている。

3.4.2.2 鉛片入りあるいはなしでのプレス圧縮 (Press compaction without lead cuttings)

ハルは鉛片と一緒にあるいは鉛片無しで簡単な薄厚の缶 (鉛、錫あるいは他の金属) の中に入れてプレスする。(プロセスを FIG. 14 に示す。) 入れる鉛の量にもよるが、圧縮力 150 MPa ~ 200 MPa で、2 ~ 6 の減容比が達成できる。圧縮は不活性ガス雰囲気で行われる。出来上がった成形体はステンレスの容器に入れられて溶接ステーションに運ばれ、蓋が溶接される。必要に応じて汚染除去が施される。エンドピースを含む燃料ハードウェアは別に処理する。

このハル処理プロセスは処理技術が簡単なこと、室温で処理できること、処理中にトリチウムを放出しないことという特徴を有している。生成物は熱伝導性、耐放射性が高く、貯蔵中に放射線分解ガスを生じることもない。不活性ガス雰囲気は装荷する時と圧縮する時に必要である。必要な圧縮圧は商業的にも利用可能である。

現在の状況：このプロセスは実験室規模で開発中である。直径 100 mm、高さ 100 mm の円筒型のサンプルが生成され、結果は満足できるものであった。この方法に関する研究が進められている。

3.4.2.3 プレス圧縮 - 鉛合金中への埋め込みによる被覆材廃棄物の処理 (Conditioning cladding waste by press compaction and embedding in lead alloy)

ハルはホッパーでスペーサーグリッドから分離された後、穴のあいたうすい厚の圧縮缶 (直径 330 mm、高さ 300 mm) に供給される。15 MN で下向きにプレスに装荷し、168 MPa を加えると、減容比 4.6 が達成できる。取り出された圧縮体は載荷バスケットに積み

重ねて貯蔵用キャニスタ中に降ろされ、溶接ステーションへ運び蓋をしっかりと取りつける。そのキャニスタを抵抗加熱炉に入れ、蓋の頂部にある配管を鉛供給ラインと真空系とに接続する。脱気をしたあと、キャニスタは450℃まで加熱され、セルの外側に設置されているつぼから鉛合金が注ぎ込まれる。FIG. 15にはこのプロセスが示されている。最後に冷却した貯蔵用キャニスタは密閉され、必要に応じて除染が行われる。エンドピースを含む燃料ハードウェアは別に処理される。

このプロセスの利点は、減容比が大きいこと(4.6)、処理温度が余り高くないこと、生成物が化学的、機械的に安定しており、放射線分解も起こさないことである。欠点は鉛を470 kg/tHMも消費すること、鉛合金マトリックスによるハルのぬれが少なく、鉛マトリックスに機械的欠損があった場合に核分裂生成物(たとえばCs同位体など)がいくらか放出される可能性があることである。

現在の状況: この方法は実験室規模で、放射性のハルを使って実証されてきた。1バッチ10~20 kgの遠隔操作設備が建設されており、1984年以降放射性の条件で実証される予定である。このプロセスはCEC計画「Radioactive Waste Management and Storage」の一環として開発されたもので、ベルギーのSCK/CENモルに於て続けられる予定である。

3.4.2.4 粉末冶金法による金属合金中への埋め込み (Embedding in metal alloys using powder metallurgy)

このプロセス(FIG. 16)は粉末冶金、つまり適切な温度に於る粉末の圧縮あるいは粉末の焼結による固型化を利用する方法である。加工圧縮は等方的あるいは軸方向で行うことができる。最近のR&Dではマトリックス材としてAl又はAl合金を用いているが、その目的は燃焼温度、圧力、時間を減らすことである。このプロセスではハルの予備圧縮が必要である。エンドピースを含む燃料ハードウェアは別に処理される。

成形された廃棄物固化体は低質量である。余り高い圧力や温度は必要でなく、450℃ではトリチウムはほとんどあるいは全く放出されない。生成物は放射線分解ガスを生じず優れた耐浸出性を示す。AlやAl合金は塩水に対する耐食性については満足できるものである。ハルの弾性圧縮による内部応力のために廃棄物固化体にひび割れを生ずるかもしれない。

現在の状況: このプロジェクトに関するR&Dは初期の段階である。小さなサンプル(直径100 mm, 高さ100 mm)が作られている。このプロジェクトは西独のKfKとNUKEMによって続けられる予定である。

3.4.2.5 ガラス中への埋め込み (Embedding in glass)

このプロセス(FIG. 17)は特殊な金属キャニスタ中で予熱されたハルに熔融ガラスを注入するものである。ハルとキャニスタは乾燥後まず50 KW, 5000 HZの誘導炉で900℃まで加熱される。使用するガラスは、中周波誘導で加熱される金属ポットで構成される熔融炉の中で作られる。ガラスの温度は1150℃である。エンドピースを含むハードウェアは別に処理する。

ガラスはハルを効果的にぬらすことができず、ガラスとハルの膨張係数が違うということと合わさって生成物は一体構造になりにくい、すなわち、ひび割れを生ずる。生成物は又、機械的、熱的安定性にも乏しい。トリチウム、セシウムは高温状態の時に蒸発してしまう。

現在の状況：このプロセスについてはフランスと米国でR&Dが進められてきた。このプロセスは工学的規模での開発が行われることはなかった。

3.4.2.6 セラミックアルミナ中への封入 (Encapsulation in ceramic alumina)

このプロセスでは、被覆材廃棄物の体積が展伸又は圧延によって減少される。つぶされたハルは静水圧加圧によって Al_2O_3 粉末の中に埋め込まれ、円筒状のコアになる。このコアはきわめて反応性に富んだ Al_2O_3 粉末中に静水圧加圧によって封入され、 $1200^{\circ}C$ 程度の温度で焼結される。エンドピースを含む燃料ハードウェアは別に処理する。このプロセスのフローをFIG. 18に示す。

このプロセスは非放射性的の物質を使って実験室規模で研究され直径120mm高さ300mmの生成物がつくられている。ASEAプロセスと類似した点がいくつか挙げられる (TABLE XII参照)。このプロセスは高温高压で工程の多いことが特徴である。処理中にトリチウムが放出されることが懸念される。生成物は耐放射性、耐熱性にすぐれていると同時に高い耐化学性を示す。

現在の状況：このプロセスの研究は技術的に困難であるため中止されている。

3.4.2.7 低温処理法 (Cryogenic temperature methods)

ジルカロイ・ハルは、水素を吸収して脆くなるが、液体窒素で冷却するとその脆さが増加する。引張、圧縮及び衝撃試験が、液体窒素で $-100^{\circ}C$ 以下に冷却された模擬ジルカロイ・ハルを使って行われた。二重ロール式粉砕機を使って次の粉砕パラメータの効果が調べられた。

- ロールの周速度
- ロールの圧縮力
- ロールのすきま
- ロールの周速度の同期

FIG. 19はこの方法のフローである。エンドピースを含む燃料ハードウェアは別に処理する。このプロセスでは、トリチウムの放出やハルに含まれている放射性核種の蒸発はみられない。

現在の状況：実際のシステムに対する概念図ができています。

3.4.3 転換プロセス (Conversion process)

この節ではハル・ハードウェアを化学的、物理的に別の状態に転換する全てのプロセスや方法を取り扱っている (TABLE XII参照)。このプロセスのほとんどは比較的高温を用いるのでハル内

のトリチウムのすべてが高温工程で放出されると考えられる。

3.4.3.1 ジルコン酸塩 への転換 (Conversion to zirconate)

ハルをジルコン酸に転換することにより無機のイオン交換体をつくることができ、これは、使用済燃料の再処理から生じる高レベル廃棄物 (HLW) の安定化に使用することができる。この転換プロセスの主な工程は次のとおりである (FIG. 20 参照)。

- 約 400°C で溶融 $\text{AlCl}_3 \cdot \text{NH}_4\text{Cl}$ と反応させると同時に溶融塩中から ZrCl_4 を蒸溜する。
- NH_3 存在下で ZrCl_4 をイソプロピルアルコールと反応させてイソプロポキサイドを生成する。
- アルコール性水酸化ナトリウムと反応させてジルコン酸塩を作りそれを加水分解する。
- 次の処理のために溶融塩の蒸溜によって $\text{AlCl}_3 \cdot \text{NH}_4\text{Cl}$ を回収する。

洗浄、乾燥し、ホットプレスすることにより処分に適した難溶のセラミックが得られる。

ハードウェアは別に処理する。

ジルカロイ燃料ハルのジルコン酸塩への転換は HLW の安定化の可能性を示している。理論的には HLW の全ての核分裂生成物を安定するのに十分なジルコン酸塩が生成される。転換によって新しい廃棄物の流れができないように全ての試薬はリサイクルさせている。

高温プロセスには多くの工程、反応性に富んだ化学薬品の使用が伴っている。トリチウムを放出し他の揮発性生成物を形成することもこのプロセスの難点である。

現在の状況：知られていない。

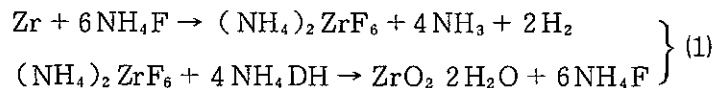
3.4.3.2 酸化によるジルコニア (酸化ジルコニウム) への転換及びセメント又はビチューメンへの埋め込み (Conversion to zirconia by oxidation and embedding in cement or bitumen)

ジルコニアは化学的に安定しているので長期貯蔵に適した形態であるかもしれない。ジルカロイ・ハルを (不活性な) ジルコニアに換える種々のプロセスが研究されているが、そのうちの一つが 800°C ~ 1500°C に於る酸素又は空気によるハルの酸化である。ジルコニアはセメントやビチューメンの中に固定することができる。このプロセスの主な目的は、ジルカロイを長期貯蔵に適した不燃性で化学的にも安定した形に変えることである。高温であり、トリチウムや、他の揮発性溶融物を放出することがこのプロセスの欠点である。

現在の状況：実験室規模の予備試験が行われているにすぎない。西独の WAK によるこのプロジェクトに関する研究は終り、これ以上の研究がなされる予定はない。

3.4.3.3 フッ化アンモニウムによるジルカロイ・ハルの含水ジルコニアへの転換とそれに続くセメント又はホットプレスによる固化 (Conversion of Zircaloy huls to hydrous Zirconia by ammonium fluoride followed by solidification with cement or by hot pressing)

UKAEA によった示された水性プロセス (FIG. 21) はジルカロイをフッ化アンモニウム溶液中に溶かすこと、続いてアンモニアを用いて含水ジルコニウム酸化物として沈澱させることの二つから成っている (式(1))。フッ化アンモニウムは濃縮した後にリサイクルさせる。含水ジルコニアは貯蔵又は処分をする前に固体に変えなければならない。それには次の二つの方法がある。(a) ホットプレスによる密度の高いセラミックスの形成 (b)セメントによる固化



ハードウェアは別に処理する。

このプロセスの主な目的はジルカロイを酸化された不燃性の形に変えることである。たくさんの工程があり、溶融する間にトリチウムが放出される可能性がある。

現在の状況：このプロセスの研究は実験室規模に限られており、それ以上の研究は計画されていない。

3.4.3.4 ジルカロイ・ハルのケイ酸ジルコニウムへの転換 (Conversion of Zircalloy hulls to Zirconium silicate)

酸化したジルカロイ・ハルの別の固化プロセスとしてはケイ酸ガラス中に封入 (FIG. 22) する方法がある。前に述べた HFO_2 処理で生じたジルコニアは $1200^\circ\text{C} \sim 1400^\circ\text{C}$ でガラス形成試薬と共に溶融すると高密度のケイ酸生成物を生ずる。ガラスとしては 15 wt % までの ZrO_2 を含むものが、ガラス様の生成物としては 30 wt % までの ZrO_2 を含むものが得られた。ハードウェアはハルと一緒に処理される。

このプロセスではケイ酸ジルコニウムが生ずるが、これは化学的に安定した形である。高温であること、反応性の高い試薬 (HFO_2) が必要なこと、トリチウムの放出があることがこのプロセスの難点である。

現在の状況：知られていない。

3.4.3.5 ジルカロイ・ハル溶融プロセス (誘導スラグ溶融) (Zircalloy hull melting process - inductoslay melting)

誘導スラグ処理は仕切りのある水冷式の銅のつぼの中での誘導溶融することである。ジルカロイのように融点が約 1850°C で、化学的に活性な金属を融かすにはフッ化カルシウムのような高純度スラグとヘリウム又はアルゴン雰囲気が必要である。ステンレス・ハードウェアと微粒子はジルカロイ・ハルから分離して別に処理する。今までに作られたインゴットは直径 130 mm, 長さ 1070 mm である。

$\text{CaF}_2 + \text{MgF}_2$, ガラスあるいは他の除染試薬を用いることによりプロセスに除染効果を持たせることも可能である。その際、廃棄物の流れが別に生ずる。インゴットの寸法は多分さしたる問題もなく大きくすることができるだろう。溶融工程は FIG. 23 に示す。

日本における熱力学的研究によると、適当なスラグがあれば溶融ステンレスハルは超ウラン (TRU) 化合物をスラグ中に抽出できることが示されている。スラグ金属間の分散比

を測定するために CeO_2 (これらは熱力学的特性が TRU 酸化物と似ている) を用いての熔融テストが行われた。エレクトロスラグ熔融炉の構造と代表的なエレクトロスラグー 熔融ステンレススチールインゴット断面をそれぞれ FIG. 24, 25 に示す。熔融工程でのトリチウムの放出がこのプロセスの難点である。

現在の状況：誘導スラグ処理は米国ではまだ考慮中である。フランスのマルクールではこのプロセスは、建設される TOR 設備のプロセスとなるであろう。フランス、ラ・アーグでも UP2-800 プラントと UP3 プラントから生ずるジルカロイ処理のため、その安定性を調べるためにホット及びコールドでの実験が行われた。日本では (FBR ハルのためのエレクトロスラグ熔融処理に関する研究が (動力炉核燃料開発事業団：PNC) で行われている。

3.4.3.6 添加剤を入れたジルカロイ・ハル熔融プロセス (Zircalloy hull melting process with additives)

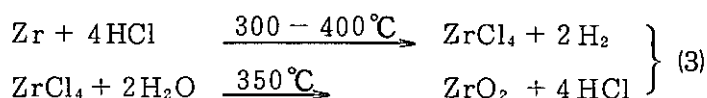
ジルカロイ・ハルの熔融温度 (1850°C) は銅、鉄、その他の金属を加えることによって約 1100°C まで低下する。グラファイトるつぼが用いられ、誘導スラグ熔融プロセスに於ては $\text{CaF}_2 + \text{MgF}_2$ あるいはガラスを除染剤として使うことにより除染工程を導入することができる。これは別の (スラグの) 廃棄物の流れを生ずる。FIG. 26 にこのプロセスを示す。このプロセスの特徴は 3.4.3.5 節に述べられているものとほぼ同じである。

現在の状況：フランスでホット及びコールドで試験が行われている。このプロセスは将来のプラントでの代替方法として考えられている。コールドでの実験室規模の試験が日本でされていたが、このプログラムは終了している。

3.4.3.7 酸化あるいは塩素化によるジルコニアへの転換 (Conversion to Zirconia by oxidation or chlorination)

ZrO_2 は、温度 550°C で流動層反応容器内でジルカロイを HFO_2 と反応させることによって得られる (式 (2))。FIG. 27 にこのプロセスのフロー図を示す。

ジルカロイ・ハルに 300°C ~ 400°C で塩酸を作用させて ZrCl_4 に変えた後、約 350°C の蒸気で ZrCl_4 を熱加水分解してジルコニアを生成する (式 (3))。生成物はホットプレス又はセメント固化によって固化あるいは封入される。



ハードウェア (エンドピースを除く) も Fe, Ni, Cr などの酸化物に変えられ、それらは ZrO_2 と同じ方法で取り扱うことができる。

このプロセスの主な目的はジルカロイを火災の心配のない酸化された安定形に変えることである。比較的高い温度での処理と相まって反応性の高い化学薬品を使う必要もある。トリチウムを放出し、他の揮発性物質を生成することもこのプロセスの難点である。

現在の状況：このプロセスは詳細には開発されていない。米国ではこれ以上の研究はな

れていない。

3.4.3.8 熱間静水圧加圧（HIPOW）処理（Hot isostatic pressing process）

ハルは水中でエンドピースから分離して、ローラで平にした後、容器に載せて水から取り出してポンプで水を抜く。容器は、5 mm 厚のチタン製内容器と 5 mm 厚のステンレス製外容器で出来ている。容器は、軸方向に圧縮しやすいように波形の壁となっている。次に内側の蓋を溶接し、コンテナを真空に引くと同時に 150 °C に熱する。溶接し、除染をした後、容器を約 1000 °C にまで加熱し、圧力媒体のアルゴンガスの圧力を 150 MPa にセットする。この条件下で、最終生成物を得るには 3 時間の保持時間が必要である。冷却後、容器は輸送、貯蔵することができる。エンドピースは別に処理しなければならない。

HIPOW プロセスは、理論密度 100 % の生成物を生じ、そのため減容比として 7.、表面積減少として 300 以上が得られる。このプロセスの難点は高温高圧を必要とすることである。しかし、トリチウムはこのプロセスに於るガスの量が制限されるのでジルカロイ・ハルと共に残存する。得られた生成物は高密度、高熱伝導性をもち、放射線にも機械的にも安定している。

スウェーデンの ASEA 法に似たプロセスが日本の PNC でも試験されている。ハルは圧縮して固まりとし、軟鋼又はステンレスのコンテナに入れる。脱気、密封後コンテナに静水圧による熱間静水圧を加え、1000 °C 100 MPa で 1 時間放置した後、完全に密度を高めた廃棄物固化体を得られる。

圧力媒体として粉末を用いた方法（Semi HIP）も日本で試験されている。1000 °C、300 MPa で 5 分間放置するとほぼ完全に密度が高められた生成物を得られる。

現在の状況：この方法の性能を実証するために、広範囲にわたる実験室規模の実験がスウェーデンで行われた。仕事は完了し受託者からの最終報告が刊行された〔24〕。日本では概念図が作成され、このプロセスに関する研究開発は PNC によってなされている。

3.4.3.9 セラミック固化方法（Ceramic solidification method）

セラミック固化処理に関する研究開発が行われてきた。これは、ジルカロイ・ハルを処分するのに適した、安定したジルコニアベースのセラミックに酸化、固化するプロセスである。固化は単軸ホットプレス、静水圧熱加圧あるいは圧力を加えない焼結法によって行われ、高温高圧が用いられる。酸化工程でトリチウムが放出される。

現在の状況：日本の PNC に於て研究開発中である。

3.5 プロセスの評価

3.4 節では、燃料ハルとハードウェアを取り扱い、処理するための方法として種々の開発段階にある 18 の方法について記述してきた。記述された全てあるいはほとんど全ての方法を、例えば工学的規模にまで完全に開発することはどの国にとってもどの組織にとっても明らかに不経済であ

り、また、不必要なことである。そこまで開発する有望なプロセスの選択は、種々の規準の定量化に基づき、多くの特性を分析するような技術を使って行われる。この技術は例えば米国に於ては高レベル核分裂生成物溶液の固化処理法の評価に用いられている〔26〕。

TABLE XIIには、プロセスを評価する場合に考慮すべき基準のいくつかが列挙されている。これが絶対というわけではなく、他にも考えに入れなければならないことがあるかもしれない。コストに関しては列挙された基準の多くに含まれている。

最終的にプロセスを選ぶ場合には、廃棄物の取り扱い全てにわたって、即ち、処理工程、廃棄物固化体の特徴、貯蔵、輸送、処分の要件について、の考慮がなされていなければならないということも認識すべきである。

3.6 除染プロセス

ハル・ハードウェアの除染は、処理プロセスを適用する前の重要な前処理工程である場合がある。被覆材ハルとハードウェアに関する放射能はいろいろな原因によって生ずる。例えば、

- どちらも溶解槽からの溶液で汚染される可能性がある。
- 燃料を溶解する間にハル・ハードウェアの表面に放射性物質が沈着することがある。
- どちらの材質中にも放射化生成物が存在する。(ジルカロイ中の微量の不純物UとThに中性子が照射されて生じたアクチニド類を含む)。
- せん断中に燃料が被覆材の中へ(機械的に)入り込む可能性がある。
- 放射性核種が核分裂反跳の結果として被覆材の中へ入り込むことがある。
- 核種がハルの腐蝕あるいはRuやCsのような易動性の核種の拡散の結果としてハルに浸透する可能性がある。

未照射の材質中にある微量のUやThが中性子を吸収して、アクチニド類が材料全体に生ずるので、ジルカロイから全ての放射能を除去することは事実上不可能である。回収された合金の再使用又はTRUを含まない廃棄物として処分することを目的として、ジルカロイを除染する可能性を調べる研究が米国で行われた。水溶液および非水溶液による高温での方法が試験されたが、考えられたどの方法についても超ウラン元素による汚染レベルを、要求される非常に低いレベルまで減らすことはできないことが結論された〔27〕。ジルカロイ・ハルの除染 — 熔融高密度化に関する研究が続けられている〔19〕が、完全な除染は非常に難しい目標である。

最も現実的な目標は、比較的簡単な技術を用いて表面の汚染を出来る限り除去することである。表面汚染の除去は処理されるべき表面の性質に著しく依存している。通常、ジルカロイの被覆材には内側と外側の表面に(5~50 μmの厚さの)きわめて密着したジルコニアのコーティングが施してある。この酸化物層は格子内に放射能をトラップし易く、又、試薬が金属表面に到達するのを妨げるのでステンレスの場合よりさらに除染が困難になる。

3.6.1 高温処理法 (High temperature method)

ジルカロイ被覆材の除染に関する研究が米国とフランスで行われてきた。米国・ワシントン州のハンフォードでは二段階のプロセスが開発された〔19〕。これは照射されたジルカロイ・ハルを600℃でHFで前処理し、(ハルの切断端に於て)金属をアタックしてZrO₂コーティングの下をくりぬいて金属とZrO₂との間にジルコニウムフッ素酸化物の層を形成するものである。そしてフッ化物の層は次の組成の混合物中で溶解(90℃, 2時間)される〔28〕。

| | |
|--------|------------|
| 0.4 M | シュウ酸アンモニウム |
| 0.16 M | クエン酸アンモニウム |
| 0.1 M | フッ素酸アンモニウム |
| 0.3 M | 過酸化水素 |

このプロセスによって、照射されたハルの除染が行われ、残存 α 放射能は $1 \times 10^4 \sim 3 \times 10^5$ Bq/cm² ($3 \sim 8 \times 10^{-7}$ Ci/cm²)であった。

ジルカロイ・ハル及びステンレスハルの溶融・除染の高温プロセスはフランスのマルクールで研究されてきたが〔29〕放射性のハルについてはまだうまく実証されていない。

3.6.2 機械的処理法 (Mechanical methods)

表面を研磨することは多量の微粒子を生ずるので実際的な方法ではないが、PWRハルの α 線放出核種の分布状態を示すために米国のハンフォードでこの方法が用いられた〔19〕。

超音波洗浄では、変換器表面の動きによって衝撃波が迅速に連続して生じることからキャビテーションができる。この効果が洗浄作用を生じ、同時に生じる乱流が除染液を処理中の表面に新しく供給する。英国に於る研究〔30〕では、高速炉(ステンレス)ハルの α 汚染のうち、79～98%が超音波で攪拌された溶液槽(3 MHNO₃, 22℃)中で除去されたことが示されている。残溜の放射能は $0.04 \times 10^4 - 2.2 \times 10^4$ Bq/g ($0.01 - 0.6 \mu$ Ci/g)の範囲(ハルの場合)であり、同じ条件で実験したジルカロイ・ハルの場合、残溜 α 放射能は $1 \times 10^4 \sim 2 \times 10^4$ Bq/g ($0.3 \sim 0.5 \mu$ Ci/g)の範囲であった。英国の研究は、初めは全て個々のハル断片を用いて行われたが洗浄工程のスケールアップの試みは不成功に終わった。試験の規模が大きくなるとシステムの動力損失が余りにも高すぎ、従って超音波洗浄は小規模の除染には使えるが工業的規模に対しては実用的ではないと結論された〔31〕。

3.6.3 電気的処理法 (Electrical methods)

電気分解によるエッチングは、金相試験の試験片を作るのに用いられるよく確立した技術であり、米国では燃料の被覆を除く方法として照射された燃料のステンレス被覆材を完全に溶融する方法が用いられた〔32, 33〕。完全溶融技術の変形として電解量を制限してハル外表面を、例えば10 μ mまで除去することが考えられるが、除染方法としては使われなかった。

3.6.4 化学的処理法 (Chemical methods)

これらは主として二つのタイプに分けられる。即ち、鉍酸を使用する場合と、もっと複雑な試薬あるいは試薬の混合物を用いる場合である。一般的な法則として、除染に用いる試薬は、出来た液がアクチニド類を除去するか回収するかあるいはその両方ともできるように、あるいは簡単な処分方法が使えるように、取扱い易いものでなければならない。

ほとんどの除染技術は水冷却原子炉の部材を取扱うように工夫を加えており、可能な方法に関してはIAEA Technical Report [34, 35]をはじめとする論文に詳述されている。ハル表面の ZrO_2 コーディングは放射能をトラップし易く、また、除染試薬が金属に近づくのを妨げるために、ステンレスハルの方がジルカロイ・ハルよりも除染が簡単である。

(a) 鉍酸

次の酸が使える

| | |
|-----------|--------------------------|
| HNO_3 | ベースの金属に対して比較的腐蝕性がない |
| H_2SO_4 | ステンレスとジルカロイに対して高度に腐蝕性がある |
| H_3PO_4 | ステンレスとジルカロイに対して高度に腐蝕性がある |
| HF | ステンレスに対してきわめて腐蝕性がある |
| HCl | ステンレスに対してきわめて腐蝕性がある |

鉍酸の混合物、例えば希薄な王水 ($5 M HNO_3 / 2 M HCl$) も使用できるが高度に腐蝕性がある。この試薬は、ステンレス被覆材と酸化物燃料を完全に溶解させるためのDAREXプロセスで用いられた[36]。他の混合物、例えば HNO_3 / HF もきわめて腐蝕性があり、ジルカロイ被覆材の溶解に用いることができる。たった数ミクロンの深さまでの選択溶解は困難である。このような混合物による腐蝕はフッ素イオンをアルミニウムとの錯体にする事で最少限に留めることができる。フリーのフッ素イオンは極めて低濃度しか要らない。

鉍酸のうち、硝酸は再処理プラントで一般に使用されており、 $3 M HNO_3$ で単純に環流させると、高速炉ハルについて、 α 汚染のほとんどが除かれる[37]。溶解槽の腐蝕も考慮に入れねばならず、 $3 M - HNO_3$ でも数時間環流するとハルの約1%を溶かすことができるので適切な鋼を選ばなければならない。高速炉ハルの除染は HNO_3 濃度の増加とハルの腐蝕の進行につれて増進される[30]。ジルカロイ・ハルでは汚染はより強固に付着している。

硝酸とCe(IV)との混合物もハードウエア(おそらくハルも)の除染に使うことができるが、沸とうした $4 M HNO_3 + 0.1 M Ce(IV)$ ではある種のステンレスは迅速に侵される。従ってこのような試薬を使う場合には、例えばチタンやタンタルのような特別な溶解槽が必要である。

(b) 有機酸

酸、クエン酸、酒石酸、蟻酸は高速炉ハルの除染に有効な試薬であることがわかっている[30]。 $0.5 M$ の酸で6時間環流すると全 α 放射能の96.6%、 ^{106}Ru 、 ^{125}Sb の100%、 ^{137}Cs の81.9%が除去されるが、一方、ハルには7.9%の重量損失を生ずる。他の試薬はこれ

に比べて腐蝕性も少ないが、除染効果も少ない。酸の腐蝕性は1 M H₂O₂を加えることにより減少し、重量損失1.3%のみで同じ除染効果が得られる。酸アンモニウム(3 M) - 過酸化水素(1 M)の混合物も良好な除染効果をもつ。

(c) アルカリ類

英国の研究によればステンレスのハルからの α 放射能の除去について0.1 M炭酸ナトリウムでは効果が乏しく(6時間環流で0.9%の除去)10%水酸化ナトリウム-2.5%Na-D-酒石酸塩では54%しか除去されない[30]。過マンガン酸アルカリは、特にクエン酸アンモニウムによる二段階工程で用いた場合には、きわめて効果的である。その工程[34]はまず2.5 M NaOH - 0.2 M KMnO₄で環流し次に別に10%クエン酸2アンモニウムで環流する。ほとんどの除染は過マンガン酸アルカリの段階で行われる。

(d) 複雑な混合物

酸アンモニウム、クエン酸アンモニウム、フッ化アンモニウム、過酸化水素の混合物、(Meservey 試薬) がハルの除染の第二段階として米国の研究者達に使用されてきた[19]。このような混合物と環流することで高速炉ハルの全 α 放射能の92~99%および¹⁰⁶Ruと¹²⁵Sbのほぼ100%が除去される。しかし¹³⁷Csの除去効果は乏しい(13~31%)。

クエン酸およびクエン酸塩はステンレスの容器のZr/Nb, Ce/Pr, Ba/Laによる汚染を除去するのに有効である。そしてpH6~8でエチレンジアミン4-酢酸(EDTA)との混合物を用いると汚染されたステンレス鋼から高温フィルムを除去することができる。

ステンレスには比較的腐蝕性の少ない一連の錯体(LOMI)試薬が英国のBarkley Nuclear Laboratoriesで開発されている[38]。鋼製反応容器部材の酸化物層の溶解速度は適当な還元剤を選べば制御することができる。最近使われているものとしてはピコリン酸バナジウムが挙げられる。ステンレス上の酸化物層に関する代表的な浸透速度は溶液のpHが4.5の時AISI 410鋼に対して0.5 $\mu\text{m}/\text{h}$ である。同様なpH(4.7)でのジルカロイ-2の上の酸化物の浸透速度はそれに比べて非常に遅い(0.005 $\mu\text{m}/\text{h}$)。従ってこれらの試薬は鋼の除染には良好な効果を示すがジルカロイ・ハルの除染に役立つかどうかは今後の問題である。他の錯体試薬に関しては汚染廃棄物ストリームの処分が硝酸のような簡単な試薬に比べてかなり難かしそうである。

参 考 文 献

- [1] SCHULZ, W.W., Shear Leach Processing of N-Reactor Fuel-Cladding Fires, Atlantic Richfield Hanford Co., Richland, WA, Rep. ARH-2351 (1972).
- [2] SCHNITZLEIN, J.G. et al., Ignition Behaviour and Kinetics of Oxidation of the Reactor Metals, Uranium, Zirconium, Plutonium and Thorium and Binary Alloys Each, Argonne Natl Lab., IL, Rep. ANL-5974 (1959).
- [3] HEBEL, W., COTTONE, G. (Eds), Conditioning and Storage of Spent Fuel Element Hulls, Commission of the European Communities Rep. EUR-8250 (1982) 42.
- [4] DeHOLLANDER, W.R., An Evaluation of the Zirconium Hazard, General Electric Co., Richland, WA, Rep. HW-44989 (1956).
- [5] SCHMIDT-HANSBERG, T., HUSCHKA, H., Konditionierung von Brennstoffhüllen durch Einbettung in Metallische Werkstoffe und Graphit-Matrix, Commission of the European Communities Rep. EUR-8991 (1984)
- [6] HACKSTEIN, K.G., et al., Konditionierung verschiedenartiger radioaktiver Abfälle in hochdichter Graphit-Matrix, Jahrestagung Kerntechnik "82, NUKEN, Hanau (1982) 451
- [7] BAEHR, W., BAUMGAERTEL, W., Systemstudie Andere Entsorgungstechniken, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Technischer Anhang 14 (1984).
- [8] KRAUSE, H., Deutsches Patent DE 2944720 (1981).
- [9] HEBEL, W., COTTONE, G. (Eds), Conditioning and Storage of Spent Fuel Element Hulls, Commission of the European Communities Rep. EUR-8250 (1982) 221.
- [10] Ibid., pp. 235-241.
- [11] MANESS, R.F., Cladding Hulls in Glass, Battelle Pacific Northwest Labs, Richland, WA, Rep. BNWL-1994 (1975).
- [12] BATTTELLE PACIFIC NORTHWEST LABS, Annual Report, Richland Washington, USA, 1984.
- [13] LEVINE, H.S. An Assessment of Procedures for Conversion of Waste Zircaloy Hulls to Zirconate Ion Exchange Materials, Sandia Labs, Albuquerque, NM, Rep. SAND-75-0643 (1976).
- [14] LEVINE, H.S., "Conversion of fuel hulls to zirconate ion exchange for stabilization of waste from the thorium cycle", Proc. Conf. Waste Management Fuel Cycles, Tucson, 1978, Conf. 780.316 (1978).

- [15] HUPPERT, K.L., FANG, D., Verfahren zur Konditionierung von metallischen, aus Zirkonium oder Zirkoniumlegierungen bestehenden Hülsenabfällen aus der Aufarbeitung bestrahlter Kernreaktor-Brennelemente zur umweltschützenden Englagerung, Deutsche Offenlegungsschrift 2613537 (1974).
- [16] SCHULZ, W.W., et al., Immobilization of Spent Cladding Hulls by Conversion to Silicate Forms, Atlantic Richfield Hanford Co., Richland, WA, Rep. ARH-SA-193 (1974).
- [17] PLATT, A.M., Nuclear Waste Management and Transportation Quarterly Progress Report BNWL-1913, BNWL-1952, Richland WA (1975).
- [18] COMMISSION OF THE EUROPEAN COMMUNITIES, Nuclear Science and Technology: The Community's R&D Programme on Radioactive Waste Management and Storage, Rep. EUR-6650-EN (1980).
- [19] DILLON, R.L., "Decontamination and melt densification of fuel hull wastes", Treatment, Conditioning and Storage of Solid Alpha-Bearing Waste and Cladding Hulls (Proc. NEA/IAEA Technical Seminar Paris, 1977, OECD, Paris (1978).
- [20] WYMER, R.G., Oxidation of Zirconium, Oak Ridge Natl Lab., TN, Rep. ORNL-2182 (1956).
- [21] LEVITZ, N.M., KULLEN, B.J., STEINDLER, M.J., The Management of Waste Cladding Hulls - Part II : An Assessment of Zirconium Pyrophoricity and Recommendations for Handling Waste Hulls, Argonne Natl Lab., IL, Rep. ANL-77-63 (1977).
- [22] WHATLEY, M.E., et al., Unit Operations Section, Quarterly Progress Report, Oak Ridge Natl Lab., IL, Rep. 4094 (1966).
- [23] LARKER, H.T., "Treatment of cladding hulls by the HIPOW process", Proc. 3rd Annual Mtg Materials Research Society, Boston USA, Nov. 1980.
- [24] TEGMAN, R., BURSTRÖM, M., Treatment of Zircaloy Cladding Hulls by Hot Isostatic Pressing, SKB, Sweden, SKB/KBS Technical Report 84-14 (1984).
- [25] KOBE STEEL LTD, Japanese Patent 55085299.
- [26] JOHNSON, E.R., Preliminary Evaluation of Alternative Waste Form Solidification Process, Battelle Pacific Northwest Labs, Richland, WA, Rep. PNL-3477 (1980).
- [27] GRIGGS, B., Feasibility Studies for Decontamination and Densification of Chop-Leach Cladding Residues, Battelle Pacific Northwest Labs, Richland, WA, Rep. BNWL-1820 (1974).
- [28] MESERVEY, A.B., "Decontamination and film removal", Decontamination of Nuclear Reactors and Equipment (AYRES, J.A., Ed.) Ronald Press, New York (1970).

- [29] JACQUET-FRANCILLON, N., MONCOUYOUX, J.-P., RABOT, G.,
Conditionnement et décontamination des déchets de gaine
d'éléments combustibles nucléaires par fusion, Commission
of the European Communities Rep. EUR-7369 (1981).
- [30] BIDDLE, P., United Kingdom Atomic Energy Authority, Harwell
private communication.
- [31] KEARSEY, H.A., UKAERE, Harwell, unpublished information.
- [32] MENDEL, J.E., SCHULZ, W.W., General Electric Co. Richland
WA HW-59033 (1959).
- [33] BJORKLUND, W.J., OFFULT, G.F., DENNEY, R.D., First Electrolytic
Dissolution Campaign of EBR-II Fuel at ICPP, Allied Chemical
Corp., Idaho Falls, Rep. ICP-1028 (1974).
- [34] AYRES, J.A. (Ed.), Decontamination of Nuclear Reactors and
Equipment, Ronald Press, New York (1970).
- [35] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Decommissioning of
Nuclear Facilities : Decontamination, Disassembly and Waste
Management, Technical Reports Series No. 230, IAEA, Vienna
(1983).
- [36] BLANCO, R.E., et al., in US Department of Energy, Oak Ridge,
TN, Rep. TID-7583 (1960).
- [37] JENKINS, I.L., et al., The Characterization of Activities
Associated with Irradiated Fuel Element Cladding, Commission
of the European Communities Rep. EUR-7671-EN (1982).
- [38] SWAN, T., BRADBURY, D., SEGAL, M.G., SELLERS, R.M., WOOD, C.J.,
Chemical Decontamination of Water-Reactor Circuits : The
Development of LOMI Reagents, Central Electricity
Generating Board, London, Rep. CEGB Research (1982).

4. 処理された廃棄物固化体の特性

4.1 概 論

3.4 節に述べたプロセスで処理された被覆材の品質は、処理プロセスの制御あるいは廃棄物固化体に関して詳細に研究することによって保証されねばならない。

放射性廃棄物固化体の物性に関して情報が必要性なのは、貯蔵又は処分時の安全性の確保のためである。廃棄物固化体から放射性核種が放出される経路として最も可能性あるものの一つは、地下水たとえば高温の飽和塩水による浸出である。廃棄物固化体とパッケージングに関して次の性質が重要である。

(a) 化学的性質

- 浸出性
- 腐蝕性
- 気体発生

(b) 物理的性質

- 圧縮強度
- 密度
- 熱伝導度
- 空隙率
- ひび割れの形成

(c) 熱安定性

- 耐火性

(d) 放射能安定性

- 放射線分解ガスの発生

3.4 節に述べたプロセスのほとんどは、現在ではもう研究されていない。又、その多くについての研究は初期の段階で中止されている。従って、種々のプロセスで出てくる固化体の特性に関してはほとんど情報がない。4.2 - 4.5 の節では詳細に研究された廃棄物固化体についてのみの述べられている。

4.2 セメントグラウト中に埋め込まれた圧縮ハルの特性

廃棄物固化体：可塑剤を加えたポルトランドセメント PZ 450 F と PZ 350 F，水／セメント比
0.4（図 28 参照）

廃棄物充填量：圧延した場合；2400 kg ハル／m³ 廃棄物固化体
圧縮しない場合；1000 kg ハル／m³ 廃棄物固化体

セメントグラウトで固定された圧縮被覆材の特性を調べるため広範な研究が行われてきた。これらのうちいくつかを下に示す。〔1〕

(a) 化学的性質

セメント中のハルの浸出性を調べた結果をTABLE XIV-VIIにまとめた。ハルがセメントマトリックスにより腐食されるため、ハルをそのままにしておいた場合よりもトリチウムの浸出割合が数桁大きくなる。TABLE VIIIは、セメントで固めていないジルカロイの蒸溜水による浸出データを示している。トリチウムの浸出率約 $1.6 \times 10^{-13} \text{ cm} \cdot \text{d}^{-1}$ をTABLE XIV-VIに示された種々の浸出液に対する平均値 $2 \times 10^{-7} \text{ cm} \cdot \text{d}^{-1}$ と比較されたい。後者の値が種々の浸出液を用いて得られたものであるということはトリチウムの浸出率が浸出液の性質とは無関係であることを示している。

セメント固化されたジルカロイ・ハルからの気体トリチウムの放出に関する研究は、キャリアガスとしてアルゴンを用いて 25°C から 100°C で行われている。時間および温度の関数としてのトリチウム放出をFIG. 29に示す。〔1〕

(b) 物理的性質

ハルを圧縮してセメントに埋め込んだ固化体の圧縮強度はハルを圧縮しない場合に比べて低い、それはセメントマトリックスの量が多いためである。これをTABLE XIXに示す。〔2〕

(c) 熱的性質

ジルカロイ・ハル/セメント固化体の熱伝導性は非圧縮、圧縮ハルについてカーlsruエ原子力研究センタで測定されている。非圧縮、圧縮ハル/セメント固化体の熱伝導度はそれぞれ $0.019 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ および $0.035 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ であった〔3〕。

(d) 放射線安定性

セメントマトリックスに対する累積放射線量は約 10^{10} rad に達し、セメントグラウトに埋め込まれたジルカロイ・ハルの放射線安定性に関する研究によれば、(a)ジルカロイ/セメント固化体中に於る放射線分解水素の生成は約 $0.14 \text{ mLH}_2/\text{g}$ per 108 rad であり、(b)セメントグラウトによる水素の保持は1-10%と低いことが示されている〔3〕。

(e) 廃棄物パッケージ

パッケージの寸法：400ℓ廃棄物ドラム

直径 775 mm

高さ 1140 mm

廃棄物容器：330ℓの内ドラムをもった400ℓ薄板金ドラム

4.3 グラファイト／硫黄中に埋め込まれた圧縮、非圧縮ハルの特性

廃棄物固化体：グラファイト 80wt% と硫黄 20wt%

廃棄物充填量：200kg ハル/m³ 廃棄物固化体予備圧縮の程度に依存する

(a) 化学的性質

固化体の耐浸出性、耐食性が 90℃ の飽和塩水中で調べられている。270 日後で次の浸出率が得られた。

Cs : $3 \times 10^{-7} \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ (480 日後)

Cr : $6 \times 10^{-5} \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ (90 日後)

480 日後のマトリックス材の腐蝕速度は $2 \times 10^{-5} \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ である [5]。

(b) 物理的性質

グラファイト／硫黄マトリックス材の物理的性質を表 XX にまとめている [5]。FIG. 30 に圧縮ハルを埋めたマトリックスを示している。

廃棄物パッケージ：固化体は鋼製の缶に封入されている。

パッケージの寸法：圧縮体二つを充填した直径 500mm のスチール缶

廃棄物容器：壁厚 30mm のグラファイト／硫黄モールド

直径 500mm

高さ／直径 1 - 1.5

4.4 鉛合金中に埋め込まれた圧縮ハルの特性

廃棄物固化体：ハル圧縮体はバスケットに入れて固め、金属容器に充填され、鉛合金中に埋め込まれる。

廃棄物充填量：3680kg ハル/m³

種々の鉛合金と廃棄物固化体の浸出試験と腐蝕性についての研究がベルギーの SCK/CEN で行われてきた。その試験には充填合金と被覆材ハルや容器材との相互作用も含まれている。詳細には参考資料 [6] に示されている。

(a) 化学的性質

鉛又は鉛合金の埋め込み材を種々の媒体に 4 - 18 ケ月さらした場合の厚さ変化テストの結果を TABLE XXI に示す。多くの場合、水からの析出のために厚みが増すが、塩水にさらしたサンプルは全て厚みが減っている [6]。鉛合金中に埋め込まれた放射性のジルカロイ・ハルから放出された放射能を TABLE XXII に示す。

(b) 物理的性質

鉛は次の性質を持っている

引 張 り 強 さ : 10 - 20 N/mm²

密 度 11.34 kg/cm³

融 点 327℃

廃棄物パッケージ：埋め込まれたハルを入れた金属容器がもっと大きい缶の中に封入される。

パッケージの寸法：直径 360 mm；高さ 1400 mm

廃 棄 物 容 器：溶接によって接合したステンレス製の容器

4.5 金属又は合金中に埋め込まれた圧縮、非圧縮ハルの特性

廃棄物固化体：ハルは図 31 に示すように A 又は A 合金（例えば AlSi 12）のような焼結金属中に埋め込まれている。

廃棄物充填量：～ 2000 kg ハル / m³ 廃棄物（予備圧縮の程度に依存する。）

(a) 化学的性質

アルミニウムに埋め込まれたハルについて次の浸出率が得られている（90℃の飽和塩水中に 270 日）〔5〕

$$\text{Cs} : 3 \times 10^{-5} \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$$

$$\text{Cr} : 5 \times 10^{-5} \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$$

同じ条件下でのサンプルの腐蝕速度は 1.5 から $6.1 \times 10^{-4} \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ の間である。

(b) 物理的性質

ハル・アルミニウム固化体は次の物理的性質を示す〔5〕。

| | |
|---------|--|
| 密 度 | 2.67 g/cm ³ |
| 理 論 密 度 | 98.9% |
| 熱 伝 導 度 | 1.26 W · cm ⁻¹ · K ⁻¹ |
| 熱膨張係数 | 23.1 μm · cm ⁻¹ · K ⁻¹ |
| 引 張 強 さ | 95.0 MN/m ² |
| 曲 げ 強 さ | 170 MN/m ² |
| E - 係 数 | 66.4 kN/mm ² |

廃棄物パッケージ：規定なし

4.6 品質保証

如何なる廃棄処理計画にも廃棄物固化体が満足すべき仕様がある。品質保証の目的は、廃棄物固化体が選択された基準や性質を有していることを保証し、その結果、関係当局に認められる固化体にあることである。品質保証は、「廃棄物処理システム全体が定められた基準を履行しているという必要な保証を与える、計画的かつ系統的な行為の良心的な運用」と規定してよいであろう〔7〕。一般に品質保証という語は、廃棄物の組成や放射能などがたとえば監視（モニタリング）によって直接確認され、得られた情報から最終的な廃棄物の品質を確認できるような、プロセスコントロールに適用される。

廃棄物処理者は、この保証に加えて関係当局にその固化体が規定された要件を満足することを納得させなければならない。処理された廃棄物が基準廃棄物固化体と同質であることを実証するためには品質検査が必要となる。この報告の前の節で論じたように、測定、特に廃棄物中の放射性核種のインベントリーの測定は固化された廃棄物については難しい。

4.7 廃棄物固化体の評価

処理された廃棄物固化体を評価するには、貯蔵、輸送、処分をも含めた廃棄物管理システム全体に関係した種々の多くの特性を考慮する必要がある。このような評価技術は実用化されており、(3.6節) TABLE XXIIIに示されているものを含めた広範なパラメータの評価も行うことになる。

FIG. 及び TABLE のタイトル

- FIG. 9 比表面積の関数としてのジルコニウムとジルコン合金の発火温度
- FIG. 10 ハルとハードウェアに関する処理の選択、太線は現在使われているものを示す
- TABLE X 改良型セメントマトリックス
- TABLE XI 他の固化マトリックス
- TABLE XII 燃料ハルの転換のための概念
- FIG. 11 被覆材廃棄物のための処理セル、ローラー圧縮とセメントへの埋め込み
- FIG. 12 低含水セラミックセメントへの埋め込み
- FIG. 13 圧縮充填によるグラファイトブロック中の使用済燃料ハルの埋め込み
- FIG. 14 薄板缶へのハルの充填と特別の容器圧縮体の収納
- FIG. 15 圧縮充填と鉛合金への埋め込みによる被覆材廃棄物のための処理用セル
- FIG. 16 粉末冶金を用いた金属合金への埋め込み
- FIG. 17 ハルのガラスへの埋め込み
- FIG. 18 セラミックアルミナへの封入
- FIG. 19 低温粉砕法
- FIG. 20 ジルコン酸塩への燃料ハルの転換
- FIG. 21 フッ化アンモニウムによるジルコン合金の含水ジルコニアへの転換とそれに続くセメント固化
- FIG. 22 ジルコン合金ハルのケイ酸ジルコニウムへの転換
- FIG. 23 ジルコン合金ハルの溶融プロセス(誘導スラグ溶融) Clites and Beal Abbony metallurgical Research Center, US Bureau of Mines, Albany, Osegon, USA からの図
- FIG. 24 エレクトロスラグ溶融炉の基本構造
- FIG. 25 エレクトロスラグ炉で溶融したステンレス鋼の代表的な断面図

- FIG. 26 添加剤を加えたジルコン合金ハル溶融プロセス（共融）
- FIG. 27 酸化によるジルコニアの転換
- TABLEXIII 処理工程評価の基準
- TABLEXIV セメント固化ジルコン合金ハルの 20℃蒸溜水中での平均浸出速度〔1〕
- TABLEXV 20℃での飽和 NaCl 溶液中のセメント固化ジルコン合金ハルの平均浸出率〔1〕
- TABLEXVI 20℃の飽和塩水中でのセメント固化ジルコン合金ハルの平均浸出率〔1〕
- TABLEXVII α 放出核種の割合と種々の浸出液に2年間おいた後の平均浸出率〔1〕
- TABLEXVIII 放射性ジルコン合金ハルの蒸溜水中での浸出性〔1〕
- FIG. 29 種々な温度に於てアルゴンをキャリアガスとして使用した場合のジルコン合金セメントサンプルからのトリチウム放出〔1〕
- TABLEXIX セメントに埋め込まれたハルの圧縮強さ〔2〕
- TABLEXX グラファイト／硫黄マトリックス材の性質〔5〕
- FIG. 30 グラファイト／硫黄中に埋め込まれた圧縮ハル（マトリックス中の58wt%がハル）NUKEM, 西ドイツ
- TABLEXXI 鉛合金の腐蝕度テスト, 照射されたサンプルの厚さの変化 (in μm)
- TABLEXXII 鉛合金 Pb 4 Sn 12 Pb 中に埋め込まれたジルコン合金ハルから放出された放射能
- FIG. 31 アルミニウムに埋め込まれた圧縮ハル（マトリックス中63wt%がハル）NUKEM 西ドイツ
- TABLEXXIII 処理された廃棄物固体化の基準

参 考 文 献

- [1] GRÄBNER, H., et al., Hülsenkonditionierung, Untersuchungen zur Charakterisierung des Hülsen-Betonproduktes, Commission of the European Communities Rep. EUR-9108-DE (1984)
- [2] HEBEL, W., COTTONE, G. (Eds), Conditioning and Storage of Spent Fuel Element Hulls, Commission of the European Communities Rep. EUR-8250 (1982).
- [3] FROTSCHER, H., GRÄBNER, H., KAPULLA, H., Konditionierung von Hüllen bestrahlter Brennelemente durch Walzen und Einbetten in Beton, Commission of the European Communities Rep. EUR-7728-DE (1982) 106.
- [4] FROTSCHER, H., Kernforschungszentrum Karlsruhe Report in preparation.
- [5] SCHMIDT-HANSBERG, T., HUSCHKA, H., Konditionierung von Brennstoffhüllen durch Einbettung in metallische Werkstoffe und Graphit-Matrix, Commission of the European Communities Rep. EUR-8991 (1984).
- [6] BROOThAERTS, J., et al., Conditioning of Cladding Waste by Press Compaction and Encapsulation in Low-Melting Metal Alloys, Commission of the European Communities Rep. EUR-9670 (1985).
- [7] UNITED KINGDOM DEPARTMENT OF THE ENVIRONMENT, Quality Assurance in Processing Radioactive Waste for Land Disposal, Radioactive Waste Management Information Note No. 2 (1984).

5. 貯蔵・処分：概括的検討

5.1 処分の概念

処分の概念には、廃棄物固化体の特性、パッケージの方法、貯蔵の要件、輸送の要件及び選ばれた処分サイトの特性が考慮されてなければならない。これらについては、安定化材（マトリックス）の選定も一緒に、最近発行された IAEA レポート〔1〕で検討されている。ほとんどの国では、ハル・ハードウェアのような廃棄物は、陸地処分場に埋設することが考えられており、処分場は、廃棄物に含まれる放射能レベルや発熱率等の因子に応じて選ばれる。どのような処分計画においても重要なことは、放射性核種が廃棄物固化体から周辺の地層へ移行するのを防ぐために複数のバリア（多重バリア）を使用することである。これらのバリアがどれだけ有効であるかは多くの因子に関係しており、例えば、マトリックスが非常に高い健全性を有していれば、それだけ必要なバリアは少なくなる。処分概念の代表的な例では、次のバリアが必要とされている。即ち (a) 放射性物質をある程度保持できるマトリックスを有する廃棄物固化体 (b) 廃棄物固化体の容器 - 強固で耐久性のある容器はまた、廃棄物固化体を真近の環境からアタックされるのをかなりの期間、恐らく数百年は防いでくれるであろう。(c) 廃棄物に水が接近する際に還元性にする、あるいは、廃棄物から放出される放射性核種を吸着する工学バリア (d) 激しい地殻変動を起したり、廃棄物固化体に物理的な損傷を与えたりすることのないような地層。実際は、容器や埋戻材は、地層の特性によって決ってくる。例えば、花崗岩中の環境条件は、岩塩ドームのそれとは全く異っている。従って、処分概念は、できるだけ全体のシステムとして考えるべきで個々の問題のつながりとして考えるべきではない。

英国における放射性廃棄物計画についてレビューされており〔2〕、様々な廃棄物について、考えられる処分方策の例が述べられている。このようなプログラムは常に修正されるものであり、決定的なものと考えてはならない。英国の再処理プラントから生じる放射性廃棄物の管理についてもっと詳しい情報が必要であれば、1983年の IAEA 会議の会議録〔3〕を参照するとよい。各国で現在ハル・ハードウェアの処分として考えられている概念を以下に示す。

ベルギー

外国との契約に基づいて再処理することにより生じるハル・ハードウェアは、コンクリート・ブロックに収納されている。これは、高レベル γ 廃棄物に区分されている。このように処理した固化体と検討中の処分サイト - 深さ 250 m の粘度層との両立性については、まだ、研究中である。コンクリート・ブロックの取扱いとこれらの廃棄物の量は、処分場の概念設計において操作上の問題を生じている。そのため、圧縮法などの代替処理法の開発が進められている。

フランス

ハル処分のための標準的な処理法は、ハル・ハードウェアを適切な容器にセメント固化することである。これらの廃棄物は、地層処分されることが考えられている。

西 独

処分場は、Lower Saxony 州 Gorleben の岩塩層であろう。サイトでは、深さ 800 m のところにトンネルが設けられ、トンネルは、廃棄物ドラムを充填された後、密封される。岩塩層は、現在、高レベル廃棄物、 γ 廃棄物 - ハル・ハードウェアを含む - の処分場としての適性を判断するために調査が進められている。

インド

ハル・ハードウェアは、安定化処理され、地下に処分されることになるであろう。

イタリア

現在作成中の技術指針によれば、ハル・ハードウェアは、 γ 含有量が $3.7 \times 10^2 \text{ Bq/g}$ (10 nCi/g) を超えるので γ 含有廃棄物と考えられる、 γ 含有廃棄物の処分方法はまだ決っていないが、このような廃棄物は深地層処分される可能性が高い。

日 本

ハル・ハードウェアは、安定化処理され、地層処分されることになるであろう。

スウェーデン

フランスのラ・アーグ UP 3 プラントで再処理されるスウェーデンの燃料からでてくるハル・ハードウェアは、スウェーデンに送り返されて処分される。この廃棄物は、一時貯蔵後、深地層 (500 m) に処分することが考えられている。

英 国

ハル廃棄物を含む中レベル廃棄物の処分計画は、まだ決っていない。新しい THORP プラントからのハル廃棄物はセメント固化することが考えられている。

米 国

米国における再処理の計画では、ハルは近い将来には発生しないようである。再処理が始まれば、ハルは処理して深地層処分されるであろう。

5.2 処理・処分方策の特徴

ハル及びそれに付随する廃棄物の処分に適用できる処理法は、大きく3つに分類できる。すなわち、単純処理法、複合処理法及びこれらの中間である。各処理法は、ある面では長所があるが、対応する短所とはかりにかけの必要がある。ジルカロイ・ハルには通用できるが、ハードウェアやステンレスには適用できないプロセスの一つのオプションとしてジルコニアに化学的に変換する方法がある。このような処理法については 3.4.3 で議論されている。

残留しているアクチノイド元素やガンマ放出体の測定が処分する前に必要となる可能性があり、2.6 で議論したように、これらの放射エネルギーを評価できるように研究が行われつつある。

5.2.1 単純処理 (Simple treatment)

最少限の処理しか行わなければ、廃棄物は大きな容積となるであろう。単純な方策として考えられるのは、例えば硝酸などで洗浄した後、固体廃棄物を乾燥し、高健全性容器に収納し、密封する方法である。(strowy box 概念)。必要に応じてセメントグラフトなどの安定化剤を注入することもある。処理が単純だと、現状では定量できないある量の未溶解燃料や他の汚染物がハルにくっついて残り、この量は求められなければならない。処理を単純にすることにより、多量バリアの他の部分により高い信頼性が要求されることとなる。

5.2.2 複合処理 (Complex treatment)

処理前に複合処理するのは、(a) 処分に持っていくアクチノイドや F.P. の量を減らす、(b) 長期安定性のある高品質の廃棄物固化体とする、(c) 処分する廃棄物の量を減らすためである。

5.2.3 中間ケース (Intermediate cases)

中間ケースとしては、広い範囲のオプションがある。比較的単純な処理法としては、通常の薬品 (例えば HNO_3) で除染する方法 - 恐らくは 2 次溶解槽を使う方法 - がある。もし硝酸を使うのであれば、除染液を次のバッチの溶解に使うことにより二次廃棄物の発生がなくなる。単純な電解液 (再び HNO_3) を使った電気化学的な除染も可能であり、この方法であれば、複雑な化学薬品を使うよりは二次廃棄物の発生が少なそうである。

5.2.4 処理、貯蔵及び処分方法の選択に影響を与える因子

処理は処分の選択を支配し、また、その逆もあるので、処理と処分とは、独立して扱うことはできない。しかし、安全性の観点などから、処分法が決まる前に安全化する必要があるかも知れない。そのような場合、廃棄物は、長期間安全に貯蔵できる形態にして、パッケージは、必要に応じて、取扱いや輸送 (必要があればオーバパックして) ができるような大きさにすべ

きである。

貯蔵中の安全性は、水が廃棄物へ接近するのを防げる高健全性容器に依存しているので、パッケージされた廃棄物の貯蔵中の物理的、化学的安定性は、廃棄物固化体の浸出特性よりも重要である。容器の健全性は、岩塩層などでは母岩の移動により変形が生じるため、処分後も依然重要であるかも知れないが、安定化した廃棄物の浸出特性は、処分後、非常に重要であり、容器やマトリックスがあまりよいバリアとして働かない場合には特にそうである。

永久に貯蔵し続けることは、望しいことでも、実際のでもないが、適切にパッケージされた廃棄物の貯蔵は、数百年にわたって許容レベルの安全性を示すことは可能である。これは、開発に十分な時間をかけ、皆に受け入れられる処分施設を導き出すことである。

最も単純な処理では、いくつかのハードウェア、特に溶解槽に入らないものを選別できるかも知れない。これらは、嵩は比較的大きいが燃料による汚染の可能性は少い。従って、選別された、燃料で汚染していないハードウェアは除染して低レベル廃棄物として処分できるかも知れない（誘導放射能が十分に低レベルまで下った後）。このように、処分ルートは、ハルの汚染の程度だけでなく、燃料集合体の処理によっても変わってくる。ここでは、個々のプラントについて議論するのは実際的ではないが、処理、処分ルートを選ぶに当たっては、これらすべての因子を心しておかなければならない。

5.2.5 二次廃棄物

どんな処理法でも、環境に放出される前に処理あるいは安定化されなければならない二次廃棄物が生じる。従って、処理プロセスでは、発生する二次廃棄物の量を低く抑え、どの二次廃棄物も安全に処分できるようにすべきである。

5.3 処理パッケージの品質と安定性の要件

5.3.1 廃棄物固化体の品質

ハル・ハードウェアのような廃棄物のための処分施設（例えば、工学的な処分施設や自然の岩盤空洞）は、まだできていない。このような施設や、その中に埋設される廃棄物固化体の開発が現在並行して進められている。技術的、科学的、あるいは政治的問題により、どちらの作業も遅れぎみであるが、廃棄物固化体の開発の方が処分施設の設計、建設、土地取得より進んでいると言える。従って、どの廃棄物固化体も処分施設ができるまでは安全に貯蔵できなければならない。

貯蔵の要件と処分の要件とは必ずしも同じではない。例えば、被覆材の発熱率は最初の50年間に大きく減衰し、放射線レベルもほぼ同じパターンである。放射線分解ガスの発生は、貯蔵中に非常に重要であり、パッケージの設計では、圧力上昇や放射線分解で生じた水素の拡散を考慮に入れなければならない。

安定化した廃棄物からの⁸⁵Krの放出は、貯蔵中にも、処分施設での取扱い時にも重要であるかも知れないが、半減期が短い（10.76年）ので、処分に際しては問題とならない。処理廃棄物の貯蔵、処分を考慮した重要な性質をいくつか以下に示す。

(a) 機械的、熱的性質

廃棄物は、安全に輸送できるようにパッケージされなければならない。従って、パッケージあるいは、外の容器は関連する輸送規則に適合しなければならない。貯蔵したパッケージ（段積みされていることもある）も検査のために移動する必要があるかも知れず、そのため、機械的強度が長期間確保されなければならない。輸送規則には、衝撃、すなわち事故時の衝撃に対してパッケージの健全性を確保するような機械的強度の要件が含まれている。パッケージの機械的強度は、貯蔵中に大きく劣下してはならず、処分施設が利用できるようになるまで維持されなければならない。

処理廃棄物の熱的性質も少なからず重要である。例えば、熱伝導率の低い環境では、局部的な熱の発生により、多重バリアシステムを構成するバリアの効率の低下をまねくこともあり得る。

(b) 火災

輸送規則では、耐火災について最少限の規定をしている。水（コンクリート中の）あるいは有機マトリックスの放射線分解により生じる水素による火災や爆発事故に注意しなければならない。貯蔵中の爆発の危険性は、貯蔵庫を十分に換気することにより減らすことができる。（処分のために）一旦処分施設に設置されれば、パッケージはセメントあるいは粘土などの他の物質中に埋設される。水素は放射線分解により徐々に発生し、拡散性が高いので、処分施設に水素が存在する可能性について十分に検討し、調達する必要がある。

前にもふれたように、ジルカロイハルは火災の危険はなさそうであり、微粉も、安定化されれば安全である。

(c) 化学的安定性と耐浸出性

国の種々の規制当局が行う計算では、どんな容器でも最終的には全部溶けてしまうことを考慮の上、廃棄物固化体は、浸透した水にさらされることを想定している。廃棄物固化体の性能は、処理の方法や安定化剤の有無によって違って来る。基本的には、マトリックスは放射性核種の廃棄物からの浸出や移動のバリアとなる。たとえば、PHの高いセメントは、アクチニド元素の沈殿を起しやすいが、ヨウ素、トリチウム、セシウム等の易動性の核種に対しては何の影響も与えない。容器や処分施設が放射性核種を安全に閉じ込めておける期間が300～500年はある、あるいは見込まれるため、⁹⁰Sr、¹³⁷Cs等（地質学的に見れば）比較的短い半減期をもつ核種は、問題とならない。他の核種の浸出とそれに続く核種移行については、世界各国で研究が行われている。核種の浸出率や移行についての理論的な研究や実験が、色々な浸出液に対して、また、埋戻材や岩石との組み合わせを変えて種々の条件（例えば高温）で行われている。

このような研究により、最終的なパッケージや多重バリアシステムの他の要素に対する要件がより明白になり、処分条件を決めるのに役立つであろう。

5.3.2 最終的な廃棄物固化体の量

廃棄物の量が少なければ、多いより取扱いが容易であり、輸送、貯蔵及び処分するのに経済的である。工学的な貯蔵施設や処分施設は高価であり、廃棄物の量を減らすことは非常に重要である。しかしながら、最終的に処分の方法を決めるのは、廃棄物の量ではなく、プロセスの容易性やコストについての評価である。ハル・ハードウェアの場合には、次の二つの基本的な方法がある。すなわち、機械的な減容と溶解してインゴットにする方法である。燃料で汚染されていない集合体部材などの低放射能、多容積の廃棄物は、分割し、違った方法で処分することが望しい。槽挺ハルを使って精力的に試験を行った結果、ジルカロイハルやステンレスハルの場合、グロットスペーサ等を含めた場合でも、減容率5が保られた〔6〕。利用可能な減容技術については、3.4章に詳細に述べている。

5.3.3 輸送の要件

輸送の要件は、次の二つに分けられる。すなわち、公共の地域を通過する場合と、再処理工場、処理工場、廃棄物パッケージング工場等サイト内の場合とである。後者の場合は、サイトの要件が、国の規則当局から工場に出される運転、認可によって定められており、サイトごとに異っている。公共の地域を通過する輸送は、「放射性物質の安全輸送規則」1985年版、IAEA Safety Series No.6に示されている。

5.4 保障装置、安全性及び環境

5.4.1 保障措置

処分に先立つ廃棄物の取扱いに際しては関連する保障措置の要件に適合しなければならない。

処分する廃棄物パッケージに含まれている核分裂性物質の量は比較的少ない（使用済燃料中の存在する量の0.05～0.1%のオーダー）。さらに除染したり、残っている未溶解燃料を取り除くことにより、廃棄物中の核分裂性物質の量はさらに少なくなる。国の規制当局は、処分しようとしている核分裂性物質の全量を知りたがるであろう。この量は、サンプリングして例えば、（安定固化体からコアを抜き取る）直接に化学的方法で求めるか、あるいは非破壊法によって求めることが考えられる。どの方法でも、セメント等のマトリックスが存在すると測定が困難になり、現状では適当な方法がない。化学的方法は均質な廃棄物に対しては適用できるがハル・ハードウェアのような不均質な廃棄物には適用できない。核分裂性物質の非破壊測定法は、原理的には、2.6章で述べたアクティブあるいはパッシブ中性子法により行えるが、廃棄物が減容されていたり、中性子を吸収するマトリックス中にある場合には、非常に難しい。

封入され、安定化されたハルの中の核分裂性物質の量は、例えば、 ^{144}Pr の 2.18 MeV のガンマ後の特性を使って、パッシブガンマ法で測定できるかも知れない。この方法は、フランスのラ・アークでパッケージする前のハルに対して使っており、さらに開発も可能である。しかし、中性子法としては、マトリックスの存在は問題であり、この方法は、廃棄物の履歴（照射履歴、燃焼度、冷卸期間等）のよくわかっている場合にのみ使えるようである。英国の研究者は、次のように結論づけている。すなわち、a) ^{144}Pr の γ 線の測定は、詳細な照射履歴が明らかでない PFR のハルに残っているプルトニウムの測定には通用できない。b) この方法は、照射条件が一定である商用 FBR には適用できるかも知れない。この場合には、中性子調査法あるいは他の方法によって補正グラフを作ることができ、これによって、燃料の条件が変わった時に実際のプルトニウムの量をチェックできるからである。

5.4.2 放射線防護

放射性廃棄物の処理、処分に係る放射線防護に関しては、国際放射線防護委員会が出した ICRP 26〔9〕に示される一般原則に適合しなければならない。そして、あらゆる被曝線量は、「As Low As Reasonably Achievable (ALARA の原則)」にのっとり経済的、社会的要因を加味した上でできるだけ低く押えなければならない。個人の線量当量は、ICRP で勧告された限界性を越えてはならない。

5.4.2.1 職業上の被曝

職業上の被曝の管理は、a) 処理方法、取扱方法を適切に選ぶこと b) プラントや装置の設計により行える。一般的な法則として、単純な装置を使った単純な作業は、複雑な製作に較べて保守や装置の入れ替えが少なく済み、作業者の被曝は少ない傾向がある。同様に、製作の〇は、廃棄物パッケージの品質を確保する上で必要最少限にすべきである。

5.4.2.2 公衆の放射線被曝

このケースは、事故時、例えば、安定化廃棄物の輸送時や廃棄物を処分した後のリークなどにより生じるものである。多重バリアシステムのバリアは、放射性核種の生物圏への移行を十分に遅らせなければならない。輸送用の容器の設計は、輸送中、則ち施設内のいかなる間わずどのような事故に対しても、作業員や公衆の被曝が低くなるようになっていなければならない。

参 考 文 献

- [1] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Conditioning of Low- and Intermediate-Level Radioactive Wastes, Technical Report No. 222, IAEA, Vienna (1983).
- [2] KEEN, N.J., DUNCAN, A.G., "A review of radioactive waste management programmes in the United Kingdom", Proc. Am. Nucl. Soc. Topical Mtg. on Treatment and Handling of Radioactive Wastes, Richland, WA, 1982.
- [3] TAYLOR, H.A., KENNEDY, J.W., "The management of radioactive wastes arising from fuel reprocessing plants in the United Kingdom", Radioactive Waste Management (Proc. Int. Conf. Seattle, 1983), Vol. 2 IAEA, Vienna (1984) 249.
- [4] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Regulations for the Safe Transport of Radioactive Materials, 1985 Edition, Safety Series No. 6, IAEA, Vienna (1985).
- [5] RYDBERG, J., Ground water Chemistry of a Nuclear Waste Repository in Granite Bedrock, University of California Rep. UCRL-53155 (1981).
- [6] BROOThAERTS, J., et al., Conditioning of Cladding Waste by Press Compaction and Encapsulation in Low-Melting Alloys, Commission of the European Communities Rep. EUR-7876 (1982).
- [7] CONSTANT, J., HEBERT, D., MACAREZ, J.P., MALET, G., REGNIER, J., "Expérience acquise à La Hague sur le contrôle des coques", Nuclear Safeguards Technology 1978 (Proc. Symp. Vienna, 1978), Vol. 2, IAEA, Vienna (1979) 669.
- [8] YATES, A., BREMNER, W.B., Investigation of ^{144}Pr Measurements for Determination of Residual Pu in FBR Leached Hulls, UKAEA Atomic Energy Research Establishment, Harwell, Rep. SRDP-R106 (1983).
- [9] INTERNATIONAL COMMITTEE ON RADIOLOGICAL PROTECTION, ICRP Publication 26, Recommendations of the ICRP, Pergamon Press, Oxford (1977).

6. 結論及び勧告

6.1 結論

- (1) 酸化物燃料の再処理により生じた未処理のハル・ハードウェアは多くの国で貯蓄施設に保管されている。これらの貯蔵に係る事故は何ら報告されていない。ほとんどの場合、廃棄物は、処分に先立って処理するために再取出しする必要がある。
- (2) 多くの処理プロセスが開発中であるが、定常的に稼働しているのは、減容のないセメント固化の1つだけである。この方法は、処分の廃棄物固化体としての適性にまだ課題は残るが、現在建設中あるいは計画中のプラントで選ばれている。
- (3) 処理プロセスや廃棄物固化体を最終的に決める際には、廃棄物管理システム全体、即ち、処理プロセス、廃棄物固化体の特性と関連する貯蔵、輸送、処分の要件を考慮しなければならない。
- (4) 処理後の廃棄物に含まれる放射性核種の量は、処理前のハル・ハードウェアで測定することによりわかるが、現状の技術では、処理後の廃棄物に対しては、ほとんどの場合、適用できない。
- (5) 酸化物燃料の導断、溶解の際に発生するジルカロイの微粉に起因する火災は、これまで起きていない。しかし、活性ジルカロイの自然発火に関する情報は少なく、処理プロセスを評価する際に、この危険性を完全に評価するには不十分である。

6.2 勧告

- (1) 処理プロセス、廃棄物固化体の特性、輸送や処分の要件に関する情報は、処分方法を最終的に選ぶにはまだ不十分である。この分野では、さらに研究が必要である。
- (2) 処理後の廃棄物固化体について含まれている放射性核種の量や、他の貯蔵、輸送及び処分に関連した特性を測る技術の開発にも留意すべきである。
- (3) 活性なジルカロイ微粉の自然発火に関する実験データをさらにとるための要件について検討し、研究が適切なプログラムに従って進むようにしなければならない。

出席者リスト

Technical Committee Meeting
on Management of Cladding Hulls and Fuel Hardware
2-6 July 1984
Vienna

| | |
|--------------------------------------|--|
| Baehr, W. (Consultant) | Institute for Nuclear Waste Technology, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, P.O. Box 3640, D-7500 Karlsruhe 1, Federal Republic of Germany |
| Bergman, K. | National Institute of Radiation Protection, P.O. Box 60204, S-104 01 Stockholm, Sweden |
| De Crescenzo, V. | ENEA, Via Vitaliano Brancati 48, I-00144 Rome, Italy |
| De Regge, P. | CEN/SCK Mol, Boeretang 200, B-2400 Mol, Belgium |
| Heafield, W. | British Nuclear Fuels Plc, Risley, Warrington, Cheshire WA3 6AS, United Kingdom |
| Hebel, W. | Commission of the European Communities, Rue de la Loi 200, B-1049 Brussels, Belgium |
| Jenkins, I.L. (Consultant) | 52 Norman Avenue, Abingdon, Oxfordshire OX14 2HL, United Kingdom |
| Kraemer, R. | R&D Project for Reprocessing and Waste Management, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, P.O. Box 3640, D-7500 Karlsruhe 1, Federal Republic of Germany |
| Levain, J. | CEA/CRD, Centre d'études nucléaires de Fontenay- aux-Roses, B.P. 6, F-92260 Fontenay-aux-Roses, France |
| Otsuka, K. | Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corp., Oarai Engineering Centre, Oari-machi, Ibaraki-gun 311-13, Japan |
| D.E. Saire (Scientific Secretary) | Division of Nuclear Fuel Cycle, International Atomic Energy Agency, P.O. Box 100, A-1400 Vienna, Austria |

本報告書で使用されている基本的な用語

actinide：アクチナイド

原子番号 89 から 103 までの元素の総称。すべて、放射性元素である。

activation product, neutron：中性子放射化生成物

中性子の衝撃により放射性となった元素。

adsorption：吸着

イオン，分子，粒子が固体表面に接触し，付着すること。

alpha-bearing waste：アルファ廃棄物

許容限度以上の量のアルファ放出放射性核種 - たいていはアクチノイド - を 1 つあるいはそれ以上含む廃棄物。その許容限度は，国の規制機関により決められる。

backfill：充填材

廃棄物を設置した後，たて穴（borehole）あるいは処分場の空洞部分を再充填するために使う物質。

buffer zone：緩衝区域

原子力施設と使用あるいは公衆の接近しやすい場所との間に十分な距離を確保するために設けられた原子力施設（例えば廃棄物処理場）の周囲の管理された領域。

canister：キャニスター

固体放射性廃棄物の容器（たいてい円筒型）キャニスターは物理的封じ込めを与える。遮蔽は，キャスクにより成されるが，さらに遮蔽が必要になるかも知れない。

cementation：セメント固化

不動化の手段としてコンクリートマトリックス中に廃棄物を混合するプロセス。

chop and leach（fuel reprocessing）：チョップアンドリーチ法（燃料再処理）

燃料集合体を小片に剪断し，引き続き酸浸出により燃料物質を選択的に溶解する再処理のために照射済燃料要素を準備するための方法。

cladding（material）：クラディング（被覆材）

合成物の照射期間中に生じた放射性物質の封じ込めおよび化学的に反応しやすい環境からの防護を与える核燃料あるいは他の物質のまわりを直接とりまく外層。それはまた構造支持ともなる。（→ can）

cladding waste：被覆廃材

核燃料要素であるクラディングハルと集合体格子スペーサから成る放射性廃棄物。再処理期間中に使用済燃料を解体し，燃料を溶解した時に生ずる。（→ hulls, spacers）

compressive strength：圧縮強度

固体ブロックが剪断あるいは分裂により弱められる間の単位面積当りの載荷。

conditioning of waste：廃棄物の調整

輸送および／または貯蔵および／または処分に適した形状に廃棄物を転換する操作。この操作は、廃棄物を他の形状に変換すること、容器に廃棄物をとじこめること、および付加的なパッケージをつけることをいう。

cost-benefit analysis：原価－利益解析

行動を企てた場合の正の効果（利益）と負の効果（原価）の系統的錯誤。例えば、原価－利益解析は、放射線防護作業における最適化研究に用いられる。

criteria：クライテリア

決定または判断のもととなる原則あるいは基準。それらは定量的あるいは定性的である。受諾できるクライテリアは規制当局により決められる。[いくつかの加盟国では“受諾できるクライテリア（acceptability criteria）”の代わりに“防護目標（protection goals）”というような語を使う。]

decontamination：除染

放射能汚染の除去あるいは縮小。

decontamination factor：除染係数

除染プロセスの結果としての汚染する放射性物質の初期量と最終量との比。（この語は、全体の放射線量あるいは個々の放射性核種に關与する。）

embedding：埋め込み

マトリックス中に固体あるいは流体廃棄物を入れ、不均一廃棄物形にするプロセス。

engineered storage：工学的貯蔵

たいてい適当な密封容器に入れ、それらを守るため、かつ事故あるいはサボタージュにより環境にそれらが漏れることを防ぐために特に設計された種々の構造物中に放射性廃棄物を貯蔵すること。それらは廃棄物からの放射性崩壊熱を引き出すためにも用意される。

environment：環境

- (i) 設備の周囲。（中間の周囲は近郊と称する。）
- (ii) 有機体、人間、あるいはその他を取り巻き、かつその生活、残存および進化に影響を与えるすべての条件と影響の全合計。

fissile material：核分裂性物質

1つまたはそれ以上の核分裂性核種を含む（放射性）物質。

fissile nuclide：核分裂性核種

中性子と反応し核分裂をおこす可能性のある核種。原子炉では、主要核種は ^{235}U と ^{239}Pu である。

fission product：核分裂生成物

核分裂あるいはそれによって生成した放射性核種の引続く放射性崩壊によって生ずる核種。

fuel, nuclear reactor：原子炉燃料

原子炉に臨界配置した時，エネルギー源として使われる核分裂性の燃料親物質。

fuel assembly：燃料集合体

操作と物質会計管理目的のために通常ユニットとして取り扱われる燃料要素と支持構造材の組み合わせ。

fuel element (or fuel pin)：燃料要素(燃料ピン)

主要構成物としての燃料を有する原子炉燃料集合体の最も小さい構造上分離した部分。

fuel reprocessing plant (FRP)：燃料再処理工場

使用済燃料要素の溶解，廃棄物の除去，および再利用可能物質の分離する施設。

geological disposal：地層処分(→ Underground disposal)

grid spacers：グリッドスペーサ

燃料集合体中の燃料要素を区分するために使われる金属装置。

half-life, biological：生物学的半減期

除去率がほぼ指数関数的である場合，生物系における特定の物質の量について，生物学的プロセスによりその値を半分にするのに要する時間。

half-life, effective：実効半減期

系中の特定の放射性核種の量について，放射性崩壊およびすべて他のプロセスによりその値が半分に減ずるのに要する時間。

half-life, radioactive：放射性半減期

1つの放射性崩壊プロセスにおいて，放射能がこのプロセスにより半分に減ずるのに要する時間。(10半減期に等しい期間後，放射能は，その最初の値の約0.1%に減ずる。)

heavy metal fuel (HM)：重金属燃料(HM)

原子炉燃料成分としてのトリウム，ウラン，プルトニウム。

high-level waste：高レベル廃棄物

- (i) 照射済燃料の化学的再処理中に分離されるアクチニドはもちろん，主に核分裂生成物を含む高放射性液体。
- (ii) もし廃棄物を言明されるならば使用済原子炉燃料。
- (iii) (i)あるいは(ii)に匹敵する放射能レベルを有する他の廃棄物。

(これらの定義は，ロンドン条約で使われている“海洋に投棄するのに適さない高レベル放射性廃棄物”には関連しない。→ IAEA INF/CIRC/205/Add.1/Rev.1)

host rock (or host medium)：母岩

処分場が位置する地質環境。

hulls and spacers：ハルとスペーサ

使用済燃料集合体を解体し、燃料を溶解する再処理において発生する被覆ハルと集合体格子スペーサからなる放射性廃棄物。

immobilization of waste：廃棄物の不動化

貯蔵、輸送、および処分中に自然現象により放射性核種の移行あるいは分散の可能性を減ずるために廃棄物を固体状に転換すること。

inspection：検査

試験、観察あるいは測定により、プロセスと手順と同様に、道具、部品、成分、システム、構造が先に決めた品質要件に見合うかどうか決める品質制御活動。

interim storage (storage)：一時貯蔵

(a) モニタリングと人間管理が用意されかつ (b) 処理輸送、および最終処分を含む次の行動が期待される貯蔵操作。

irradiated fuel：照射済燃料

原子炉中で照射された核燃料、照射済燃料はかなりの量の放射性核分裂生成物を含む。(使用済燃料とも呼ばれる。)

leachability：浸出性

水あるいは他の液体の溶解あるいは侵食作用によって除かれる可能性、収着しかつ／あるいは懸濁した成分をもつ固体の磁化率。

leaching：浸出

- (i) 固体に接触する溶媒により固体から可溶性物質を抽出すること。
- (ii) 廃棄物管理においてはしばしば使われる語で、設置した固体廃棄物あるいは化学製品のゆっくりにした溶解／侵食あるいは固体ないしは多孔性層の表面から収着した物質の除去を表わす。

leach rate：浸出率

固体からの物質の溶解あるいは侵食の割り合い。この語句は、設置された固体廃棄物のゆっくりにした溶解／侵食の割り合いあるいは固体ないしは多孔性層の表面からの収着した物質の除去の割り合いを示すのに使われる。

long-lived nuclide：長寿命核種

廃棄物管理目的について、半減期が約 30 年以上の放射性同位体。

long-lived waste：長寿命廃棄物

行政上の管理が続くと期待される間に受容できる放射能レベルまで減衰しない廃棄物。

low-level waste：低レベル廃棄物

その低い放射性核種容量のために通常のハンドリングおよび輸送中に遮蔽を必要としない廃棄物。(→ alpha-bearing waste, long-lived waste)

Magnox：マグノクス

マグノクス炉に使われるマグネシウム合金の燃料被覆管。

matrix：マトリックス

廃棄物管理においては、単一的構造中に放射性廃棄物を固縛するのに用いられる非放射性物質。マトリックスの例としてはビチューメン、セメント、種々の高分子などがある。

multibarrier：多重バリア

人間環境から廃棄物を隔離するために2つないしはそれ以上の独立した障壁を使った系。

nuclear fuel：核燃料

原子炉中で燃料として使用される核分裂性物質および／あるいは燃料親物質。

nuclear installation (on nuclear facility)：原子力施設

核安全性の考えを必要とするような規模で、放射性物質あるいは核分裂性物質を生産、処理および取り扱う施設。

nucler power plant：原子力発電所

熱あるいは電気のようなエネルギーの生産および安全のために必要なすべての構造物システムおよび構成物を含む原子炉。

nuclide：核種

質量数、原子番号および核エネルギー状態により特徴づけられた原子。

(→ radionuclide)

operation：操業

保守、運転中検査および他の関連した活動を含み、施設が建設された目的を安全な方法で達成するためになされるすべての活動。

operations, waste management：廃棄物管理における操業。

廃棄物管理活動のその基本的な機能に関してのおおまかな分類。(例、廃棄物貯蔵、処理、輸送あるいは処分)

primary waste：一次廃棄物

廃棄物の発生形態と量。

quality assurance：品質保証

条項、施設あるいは人が思う通りに現役で行うという十分な自信を用意するのに必要な計画された系統だった行動。

quality control：品質管理

品質保証要件により項目、プロセス、施設あるいは人の特性を測定し、制御する方法を用意する行動。

radioactive material：放射性物質

1つまたはそれ以上の成分が放射能を示す物質。

注意：規則のような特別な目的においては、この語は、明記されている値より大きい放射能レベルあるいは比放射能をもつ放射性物質に限定される。

radioactive source term：放射性線源

原子力施設から出、環境あるいは環境構成要素に入る放射性核種の単位時間当りの放射エネルギー

radioactive waste：放射性廃棄物

所管官庁により規定された“許容量 (exempt quantities)”より大きい濃度あるいは放射能レベルの放射性核種を含むかあるいはそれらによって汚染された物質で将来使用しないもの。

radioactivity：放射能

粒子あるいはガンマ線を自発的に放出するか、軌道電子捕獲に引続き X 線を放出するか、自発核分裂を行うような核種の性質。

radiodecay heat：放射崩壊熱

放射性核種の崩壊により放出される放射線エネルギーの吸収により生ずる熱。

repository：処分場

廃棄物を処分のために定置しておく地下の施設。

注意：加盟国のいくつかは同義語として“vault”（地下空洞）という語を使う。

reprocessing, fuel：燃料再処理

核燃料を炉で使用した後に、核分裂生成物を除き、核分裂性物質と燃料親物質を回収するための核燃料の処理。

secondary waste：二次廃棄物

一次廃棄物に廃棄物処理技術を適用することで生ずる廃棄物の形状と量。

shallow-ground disposal (e.g. shallow-ground burial)：浅層地中処分（例、浅層地中埋設）

工学バリア付きかあるいはなしで、地表上あるいは地表下に放射性廃棄物を処分すること。

short-lived nuclide：短寿命核種

廃棄物管理が目的の場合、約 30 年より短い半減期をもつ放射性同位体。例えば ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{85}Kr , ^3H 。

short-lived waste：短寿命廃棄物

行政上のコントロールが続くことが期待される期間において、放射線学的見地からささいであると考えるレベルまで減衰する廃棄物。このような廃棄物は選択された貯蔵あるいは処分システムの放射線学的評価により決められる。(→ long-lived waste)

solidification：固化

液体あるいは液状物質を固体に転換すること。

specific activity：比放射能

(i) 純粋な放射性核種の単位体積当りの放射エネルギー

(ii) 物質中に存在する元素の単位体積当りに含まれるその放射性同位体の放射エネルギー。

(iii) 放射性物質試料の単位体積あるいは容積当りの放射能量。

注意：比放射能は、よく種々の単位で表現される。

定義した単位で行使することに注意すべきである。

spent fuel：使用済燃料

原子炉で照射され、かつそれらのそれ以上の使用がもはや有効でないくらいまで使用した原子炉燃料要素。

storage (or interim storage)：貯蔵（一時貯蔵）

後で取り出すであろうという意志をもって施設内に廃棄物を設置すること。

transuranic (TRU) waste：TRU 廃棄物

原子番号 92 以上の核種を容認された限界量以上含む廃棄物。この量は、国家機関によって定められる。→ alpha-bearing waste

treatment of waste：廃棄物処理

廃棄物の特性を変えることによって、安全性あるいは経済性を得ようとする操作。

3つの基本的な処理概念は次の通りである。

- (a) 減容
- (b) 廃棄物からの放射性核種の除去
- (c) 組成の変化→ conditioning

underground disposal：地中処分

地表面下の任意の深さにおける廃棄物の処分。

vault：処分場

いくつかの加盟国において repository と同義語として使われる語句。→ repository

vitriification：ガラス固化

物質をガラスあるいはガラス様形に転換するプロセス。

vitriified：ガラス固化した

- (a) ガラスあるいはガラス様物質に変換すること。
- (b) ガラスあるいはガラス様マトリックスに固定化した廃棄物。

volume reduction factor (VRF)：減容係数

処理の前後における放射性廃棄物の容積の比。濃縮工程では VRF は 1 より大きく、希薄システムでは VRF は 1 より小さい。

waste arisings：廃棄物の発生

核燃料サイクルの各段階で発生する放射性廃棄物。

waste form：廃棄物形態

パッケージ化していない廃棄物の物理的、化学的形状。(例えば、液体、コンクリート、ガラスなど。)

waste management：廃棄物管理

廃棄物の取扱い，処理，調製，輸送，貯蔵および処分に含まれる行政上および運転上のすべての活動。

waste package：廃棄物パッケージ

取扱い，輸送，貯蔵および／あるいは処分のために準備された廃棄物形と容器。キャスクあるいはオーバーパックは恒久的な廃棄物パッケージであるかも知れないし，あるいは，廃棄物管理段階で再利用されるかも知れない。廃棄物パッケージは，廃棄物管理の種々の段階で変わるかも知れない。

zircaloy：ジルカロイ

ある型の原子炉の燃料集合体として使われるジルコニウム合金。



FIG. 1 Samples of Zircaloy hulls, Cogéma plant, La Hague, France.



FIG. 2. Zircaloy cladding scraps from fuel dissolution at Cogéma plant, La Hague, France.

TABLE I. SUMMARY OF WEIGHTS OF FUEL ASSEMBLY COMPONENTS
(in kg per tonne of heavy metal (U or Pu))

| Materials | BWR USA | PWR Fed. Rep. Germany | PWR USA | PWR Belgium | PWR Fed. Rep. Germany | PWR France | PWR Italy | SGHWR ^a | AGR | FBR UK | FBR Italy |
|-----------------|------------|-----------------------------|------------|----------------|-----------------------------|---------------|--------------|--------------------|-----|-----------|--------------|
| Zircaloy (2&4) | 263 | 322 | 227 | 271 | 294 | 236 | | 218 | | | |
| Stainless steel | 44 | 38 | 66 | 47 | 90 | 20 | 341 | | 146 | 1422 | 1660 |
| Inconel | 27 | 35 | 27 | 13 | 17 | 22 | | | | | |
| Special steel | | 5 | | | | | 9 | 1.4 | | | 34 |

Other materials:
 AGR : 8kg alumina.
 FBR (Italy) : 52kg boron carbide.

^aSteam-generating heavy-water reactor.

TABLE II. PROPERTIES OF ZIRCALOY, STAINLESS STEEL AND INCONEL ALLOYS USED IN FUEL ELEMENTS [4]

| | ASTM-B-353 Gr Ra-1 (Zr-2) | ASTM-B-353 Gr Ra-2 (Zr-4) | 304 stainless steel | Inconel 718 | Inconel 600 |
|----------------|---------------------------------|---------------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|
| Chemical : | Sn : 1.2-1.7% | Sn : 1.2-1.7% | Cr : 18-20% | Ni : 50-55% | Ni : 72% min. |
| | Fe : 0.07-0.20% | Fe : 0.18-0.24% | Ni : 8-10% | Cr : 17-21% | Cr : 14-17% |
| | Cr : 0.05-0.15% | Cr : 0.07-0.13% | Mn : 2% | Mo : 2.8-3.3% | Fe : 6-10% |
| | Ni : 0.03-0.08% | Ni : 0.007% max. | Si : 1% | Nb+Ta : 4.7-5.5% | Mn : 1% max. |
| | Zr : Remainder | Zr : Remainder | Fe : Remainder | Co : 1% max. | Si : 0.5% max. |
| | | | | Ti : 0.65-1.15% | Cu : 0.5% max. |
| | | | | Al : 0.2-0.8% | S : 0.015% max. |
| | | | | Si : 0.35% | C : 0.15% max. |
| | | | | Mn : 0.35% | |
| | | | | Cu : 0.3% | |
| | | | | Fe : Remainder | |
| Density : | 6.55 g/cm ³ | 6.55 g/cm ³ | 8.0 g/cm ³ | 8.21 g/cm ³ | 8.43 g/cm ³ |
| Melting range: | 1800-1850°C | 1800-1850°C | 1400-1450°C | 1260-1335°C | 1354-1413°C |

TABLE III. NUCLIDE SPECIFIC ACTIVATION (kCi/t ALLOY) AND HEAT GENERATION (W/t ALLOY) IN REFERENCE LWR WASTE MATERIALS AT DIFFERENT COOLING TIMES [2]

| | Nuclide | Cooling time (years) | | | | | | | | | | | | | |
|-----------------------------|---------|----------------------|------|--------|------|---------|-----|--------|-----|--------|-----|-------|-------|-------|-----|
| | | 1 | | 3 | | 10 | | 25 | | 100 | | 500 | | 1000 | |
| | | kCi/t ^a | W/t | kCi/t | W/t | kCi/t | W/t | kCi/t | W/t | kCi/t | W/t | kCi/t | W/t | kCi/t | W/t |
| Zircaloy 4 | Zr-95 | 2.7 | 14 | <0.001 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | |
| | Nb-95 | 5.5 | 27 | <0.001 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | |
| | Mn-54 | 0.05 | 0.5 | 0.02 | - | <0.0001 | - | - | - | - | - | - | - | - | |
| | Fe-55 | 0.44 | 0.6 | 0.26 | 0.3 | 0.04 | - | <0.001 | - | - | - | - | - | - | |
| | Sb-125 | 0.14 | 0.6 | 0.08 | 0.3 | 0.01 | - | <0.001 | - | - | - | - | - | - | |
| | Te-125m | 0.06 | - | 0.04 | - | 0.01 | - | <0.001 | - | - | - | - | - | - | |
| | Co-60 | 2.2 | 34 | 1.69 | 26 | 0.68 | 11 | 0.09 | 1.5 | - | - | - | - | - | |
| | Totals | 11.1 | 77 | 2.09 | 27 | 0.74 | 11 | 0.09 | 1.5 | - | - | - | - | - | |
| Stainless steel AISI 321 | Mn-54 | 23 | 187 | 4.6 | 37 | 0.02 | - | - | - | - | - | - | - | - | |
| | Fe-55 | 298 | 389 | 78 | 232 | 30 | 39 | 0.63 | 0.8 | - | - | - | - | - | |
| | Co-60 | 110 | 1723 | 85 | 1331 | 34 | 532 | 4.7 | 74 | 0.001 | - | - | - | - | |
| | Ni-63 | 6.2 | 1 | 6.1 | 1 | 5.8 | 0.9 | 5.3 | 0.8 | 3.1 | 0.5 | 0.19 | 0.006 | - | |
| | Ni-59 | 0.04 | - | 0.04 | - | 0.04 | - | 0.04 | - | 0.04 | - | 0.04 | 0.04 | 0.04 | |
| | Totals | 437 | 2300 | 173 | 1601 | 69.86 | 572 | 10.67 | 75 | 3.14 | 0.5 | 0.23 | 0.05 | - | |
| Inconel 718 | Co-58 | 25 | 342 | 0.02 | 0.3 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | |
| | Ta-182 | 268 | 1913 | 3.3 | 24 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | |
| | Mn-54 | 5.5 | 44 | 1.1 | 9 | <0.004 | - | - | - | - | - | - | - | - | |
| | Fe-55 | 79 | 103 | 47 | 61 | 7.8 | 10 | 0.17 | 0.2 | - | - | - | - | - | |
| | Co-60 | 110 | 1723 | 85 | 1331 | 34 | 532 | 4.7 | 74 | 0.0002 | - | - | - | - | |
| | Ni-63 | 33 | 5 | 33 | 5 | 31 | 5 | 28 | 4 | 17 | 3 | 1.0 | 0.03 | - | |
| | Ni-59 | 0.2 | - | 0.2 | - | 0.2 | - | 0.2 | - | 0.2 | - | 0.2 | 0.2 | 0.2 | |
| | Totals | 521 | 4130 | 170 | 1430 | 73 | 547 | 33 | 78 | 17.2 | 3 | 1.2 | 0.23 | - | |
| Inconel 750 | Co-58 | 35 | 479 | 0.03 | 0.4 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | |
| | Ta-182 | 48 | 343 | 0.59 | 4 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | |
| | Mn-54 | 2.1 | 17 | 0.41 | 3 | 0.001 | - | - | - | - | - | - | - | - | |
| | Fe-55 | 31 | 40 | 19 | 25 | 3.1 | 4 | 0.07 | - | - | - | - | - | - | |
| | Co-60 | 110 | 1723 | 85 | 1331 | 34 | 532 | 4.7 | 74 | 0.0002 | - | - | - | - | |
| | Ni-63 | 45 | 7 | 44 | 7 | 42 | 7 | 38 | 6 | 23 | 4 | 1.4 | 0.04 | - | |
| | Ni-59 | 0.3 | - | 0.3 | - | 0.3 | - | 0.3 | - | 0.3 | - | 0.3 | 0.3 | 0.3 | |
| | Totals | 271 | 2609 | 149 | 1370 | 79 | 543 | 43 | 80 | 23.3 | 4 | 1.7 | 0.34 | - | |

^a 1 Ci = 3.70 x 10¹⁰ Bq.

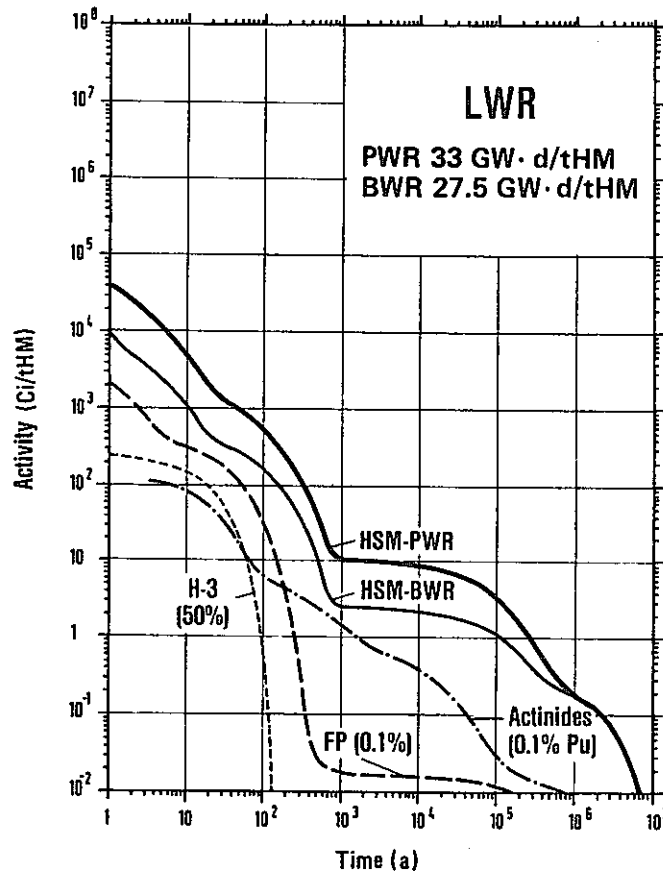


FIG. 3. Activities in hull and structure materials (HSM) associated with a PWR and a BWR reactor [9] (FP : fission products; 1 Ci = 3.70×10^{10} Bq.)

TABLE IV. CALCULATED (ORIGEN CODE) AND ANALYSED SIGNIFICANT TRU ELEMENTS IN BASE METAL OF TWO PWR FUEL HULLS

| | PWR - 1 | | PWR - 2 | |
|----------|--------------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| | Predicted (nCi/g) ^a | Found (nCi/g) | Predicted (nCi/g) | Found (nCi/g) |
| Pu - 238 | 2.5 | 2.7 | 0.46 | 0.63 |
| Pu - 239 | 0.35 | 0.49 | 2.6 | 2.8 |
| Pu - 240 | 0.44 | 0.69 | 0.94 | 1.4 |
| Pu - 241 | 167 | 250 | 104 | 200 |
| Pu - 242 | 5.7×10^{-3} | 6.5×10^{-3} | 4.5×10^{-4} | 7.1×10^{-4} |
| Am - 241 | 0.6 | 1.0 | 2.6 | 3.0 |
| Am - 243 | 0.16 | 0.064 | 0.002 | - |
| Cm - 242 | 16 | 9.4 | 0.013 | 0.019 |
| Cm - 244 | 49 | 10 | 0.058 | 0.079 |

^a 1 Ci = 3.70×10^{10} Bq.

TABLE V. PERCENTAGES OF INVENTORY OF VARIOUS NUCLIDES
IN FUEL REQUIRED TO BE ASSOCIATED WITH CLAD-
DING TO ACCOUNT FOR OBSERVED ACTIVITIES
(Assuming no diffusion of any nuclide out of
the fuel)

| | Nuclide | PWR | | | BWR |
|-----------------------------|-----------------------|--------------------|--------------------|--------------------|-------------------|
| | | KWO ^a | KWO 2 ^a | KWO 3 ^a | KRB ^b |
| Zircaloy hulls | H - 3 | 32.5 | 43.3 | 29.7 | 23.0 |
| | Co - 60 | 0.56 | 0.087 | 0.021 | 0.18 |
| | Sr - 90 | 0.14 | 0.12 | 0.066 | 0.072 |
| | Ru - 106 | 1.10 | 0.41 | 0.42 | 0.36 |
| | Sb - 125 | 3.94 | 8.2 | 4.05 | 0.93 |
| | Cs - 134 | 0.13 | 0.11 | 0.021 | 0.063 |
| | Cs - 137 | 0.19 | 0.17 | 0.073 | 0.11 |
| | Ce - 144 | 0.18 | 0.10 | 0.039 | 0.047 |
| | Pu - 239 ^c | 0.016 | 0.025 | 0.0032 | 0.0085 |
| Pu - 239 ^d | 0.044 | 0.061 | 0.0042 | 0.023 | |
| | | Fast reactor | | | Thermal |
| | | SCOF2 ^e | SCOF3 ^e | DFR ^f | WAGR ^g |
| Stainless steel hulls | Sr - 90 | 0.19 | 0.20 | - | 0.33 |
| | Ru - 106 | 0.11 | - | 0.88 | 0.01 |
| | Sb - 125 | 0.19 | - | 0.46 | 0.01 |
| | Cs - 137 | 0.076 | 0.059 | 0.048 | 0.19 |
| | Ce - 144 | 0.012 | 0.013 | 0.055 | 0.12 |
| | Pu - 239 | 0.030 | 0.020 | 0.009 | 0.065 |
| | Pu - 239 ^c | 0.20 | 0.091 | 0.003 | 0.33 |
| | U - 235 | - | - | 0.036 0.14 | - |

a Hull sample, Kernkraftwerk Obrigheim.

b Hull sample, Kernkraftwerk RWE Bayernwerk Grundremmingen.

c Assuming fissile material is U-235 + Pu-239 present in the same ratio as in irradiated fuel.

d Assuming fissile material is all Pu-239.

e Steel clad oxide fuel samples.

f Hull sample, Dounreay Fast Reactor.

g Hull sample, Windscale Advanced Gas Cooled Reactor.

TABLE VI. PERCENTAGES OF INITIAL AMOUNTS OF FUEL REQUIRED TO BE ASSOCIATED WITH THE HULLS TO ACCOUNT FOR OBSERVED ACTIVITIES

| Basis of calculation | Zircaloy hulls range | Stainless steel hulls range |
|----------------------------|----------------------|-----------------------------|
| Fission product activities | 0.02 - 0.19 | 0.01 - 0.36 |
| Total fissile content | 0.0042 - 0.061 | 0.033 - 0.33 |
| Pu - 239 content | 0.0032 - 0.025 | 0.009 - 0.065 |

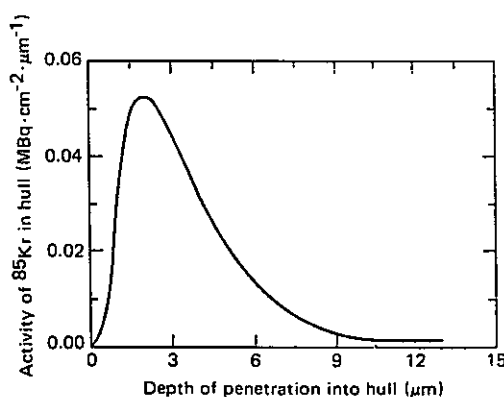


FIG. 4. Distribution of ⁸⁵Kr in fuel hulls.

TABLE VII. MEAN CONCENTRATION LEVELS OF HULLS FROM SURFACE SPECTROMETRY RESULTS [13]

| Type of hull | Burnup (%) | Average total contamination on both surfaces Gross alpha activity | |
|------------------|------------|--|--------|
| | | (mCi/m ²) ^a | (Ci/t) |
| Fast reactor | 4.1 - 5.8 | 9.02 | 2.79 |
| Fast reactor | 5.2 | 3.16 | 0.98 |
| AGR | 2.2 | 7.64 | 2.36 |
| PWR* | 2.45 | 7.3 | 3.74 |
| PWR ^b | 2.45 | 8.32 | 4.27 |
| PWR | 3.75 | 29.7 | 15.23 |
| PWR | 3.04 | 5.79 | 2.97 |
| BWR | 1.87 | 9.91 | 3.81 |
| SGHWR | 2.3 | 10.26 | 5.05 |

^a 1 Ci = 3.70 x 10¹⁰ Bq.

^b This hull was a separate specimen from the same batch as the hull labelled PWR* but it had been cleaned in dilute nitric acid. Note the variability in contamination levels.

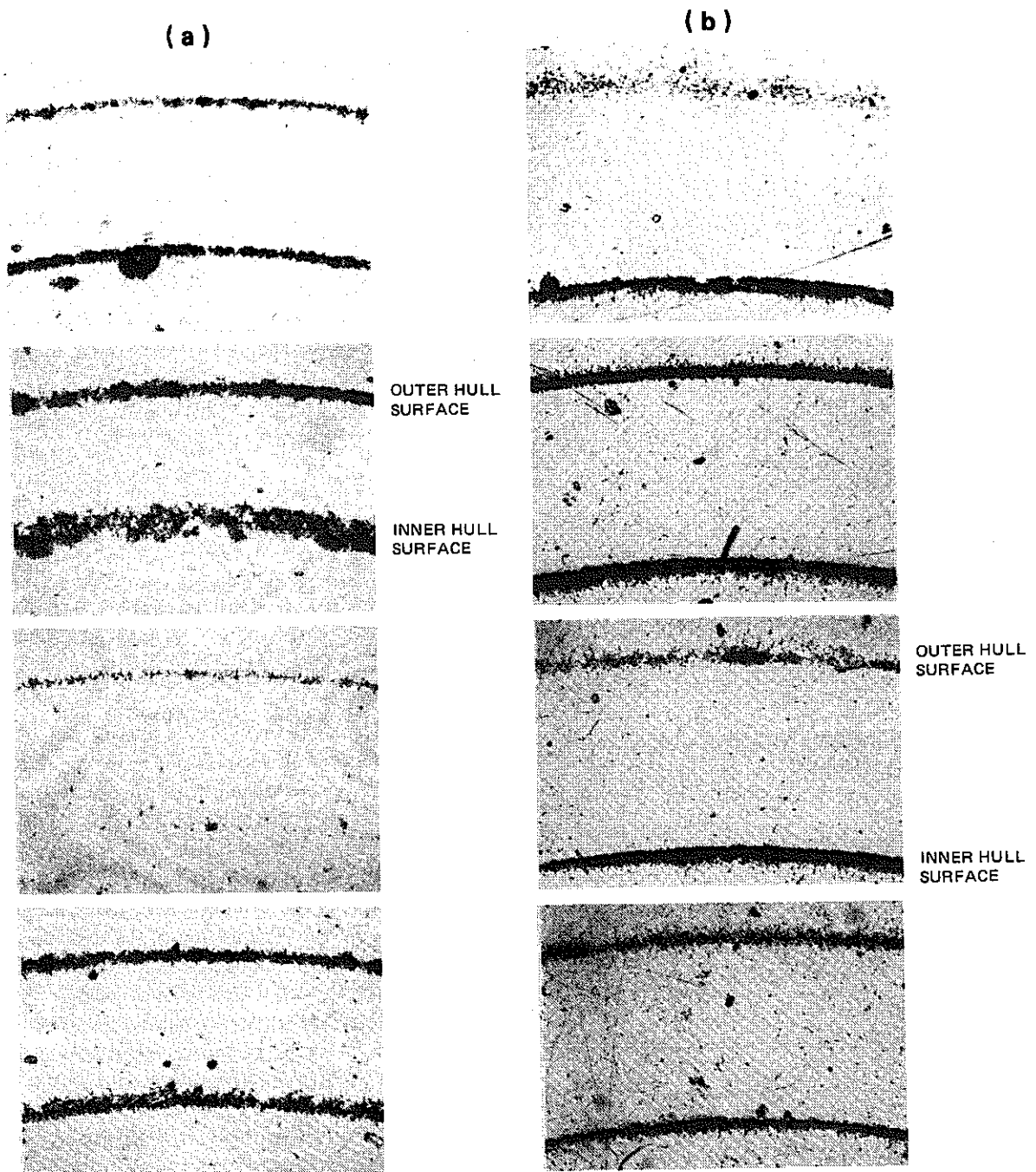


FIG. 5. (a) Autoradiographs of second batch of Dounreay Fast Reactor stainless steel hulls before cleaning. (b) Autoradiographs of PWR Zircaloy: four hulls.

The concentration of fissile material is proportional to the density (note uneven distribution of density).

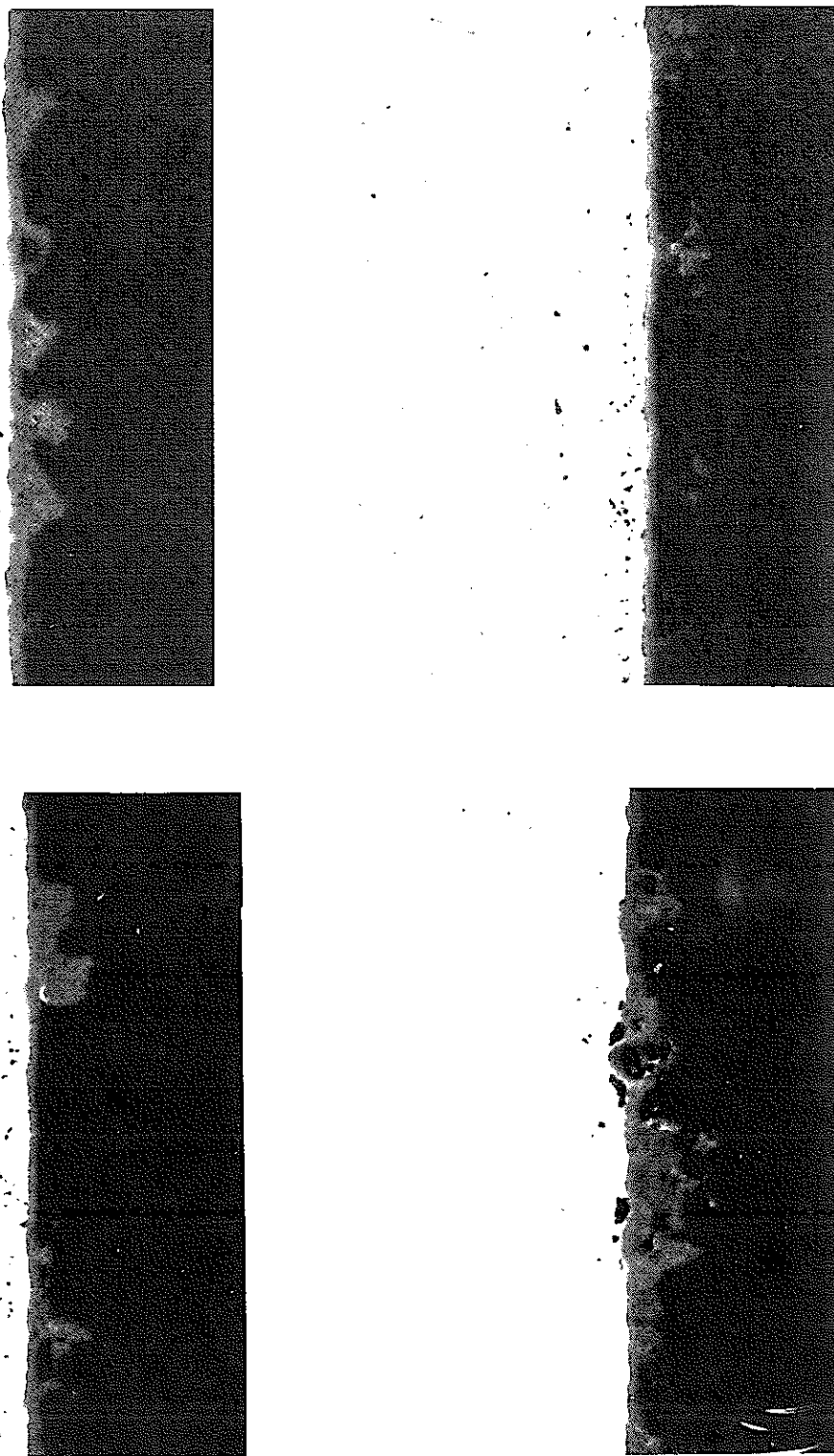


FIG. 6. Zircaloy hulls from irradiated fuel rods. Typical deposits present on the inner surface after a HNO_3 leach. Magnification $\times 500$. Note uneven distribution of density.

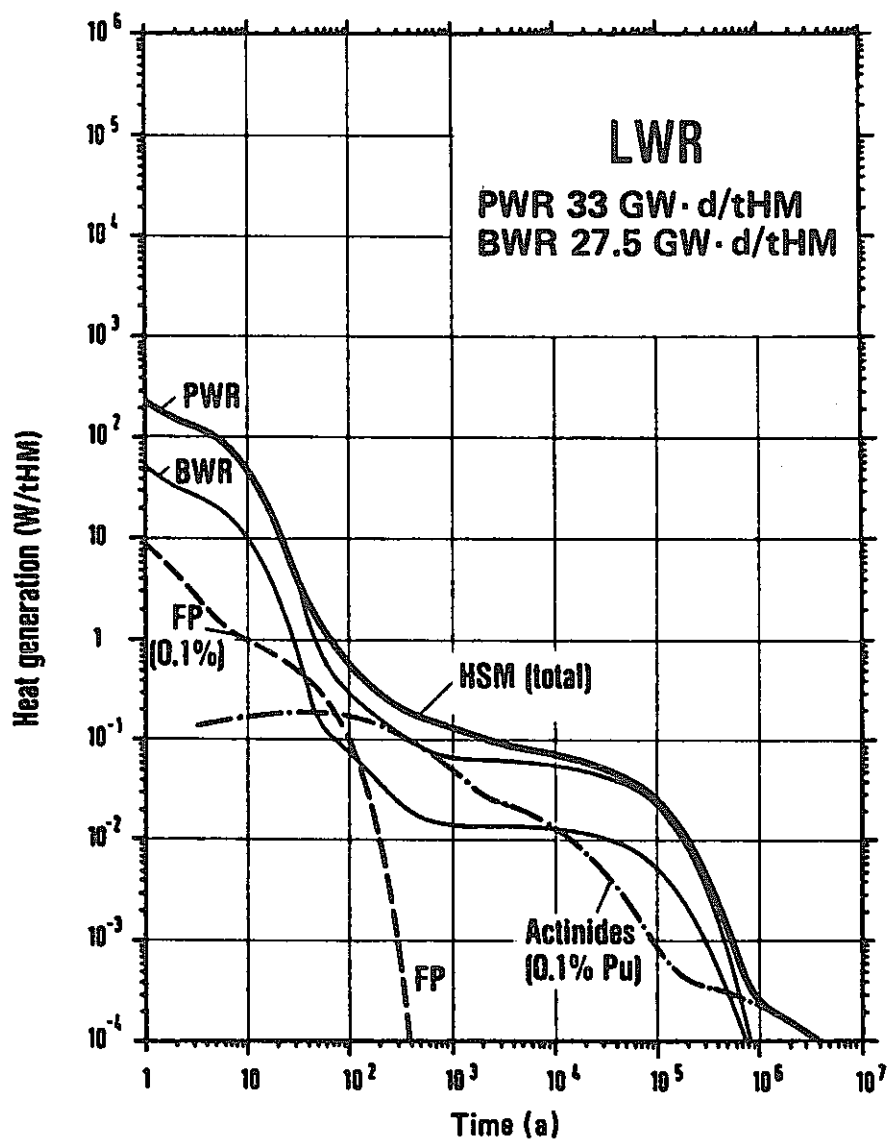


FIG. 7. Heat generation in hull and structure materials (HSM) associated with a PWR and a BWR reactor [9] (FP ; fission products).

TABLE VIII. EFFECTS OF REACTOR IRRADIATION ON PROPERTIES OF ZIRCALOY

| Property | Effects of irradiation in reactor |
|-------------------------------|---|
| Tensile and yield strength | Experimental increase with exposure : 30% increase for $10^{21} \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}$ at 250 - 300°C. |
| Impact and fracture toughness | Stress fracture strength increases with exposure : 10% increase for $3 \times 10^{20} \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}$ at 250 - 300°C. |
| Ductility | Decreases with exposure : 12% decrease for $5 \times 10^{20} \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}$ and 15% decrease for $2 \times 10^{21} \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}$ at 280°C. |
| Surface hardness | Increases with exposure : 20% increase for $5 \times 10^{19} \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}$ and 30% increase for $10^{21} \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}$ at 50°C. |
| Embrittlement | Increases as a result of the other physical property changes. The increase is further enhanced by oxide film formation and hydrogen adsorption. |
| Corrosion | Increases with exposure : Weight increase of $300 \text{ mg}\cdot\text{dm}^{-2}$ for $10^{21} \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}$ and $1200 \text{ mg}\cdot\text{dm}^{-2}$ for $5 \times 10^{21} \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}$ at 280°C. Involves oxide and hydroxide formation. |

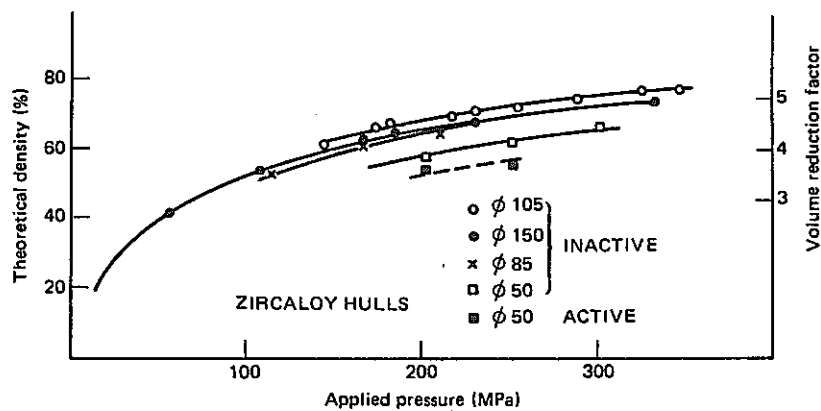


FIG. 8. Density as a function of pressure : Zircaloy. φ = diameter of press (mm).

TABLE IX. METHODS FOR MONITORING HULLS

| Method | Advantages | Disadvantages | Detection limits | Comments | Refs. |
|--|---|---|---|---|---------|
| Passive neutron measurement of neutrons from spontaneous fission or from α , n reactions. | Can be used for long cooled fuel. | Assumes fuel remaining on the hulls has the same composition as original fuel; calibration difficult | | Not used in industrial plants | [26] |
| Active neutron. | Gives direct measure of fissile content. | Neutron generator required; difficult to apply to industrial scale plants. | 0.05% of fissile material in hulls. | Used at Dounreay, UK, and in the ATI prototype post-reprocessing facility, La Hague, France. | [27-29] |
| γ -emission based on the 2.18 MeV Pr-144 energy. | High energy γ -ray easy to detect. | Limited to fuels cooled <5 years (NaI detector); calibration needed either by reference to a standard irradiated fuel element or by analysis of dissolver solution. | Pr-144/U ratio, 0.1% of original fuel in dissolver; Pr-144/Co-60 or Pr-144/Mn-54 ratio, about 0.2% of fuel charge to dissolver. | Used at Windscale, UK, the WAK plant, FRG, La Hague (for thermal hulls) and in the ATI facility for post-reactor hulls. | [28-31] |
| γ -emission based on Ce-144-Pr-144 0.133 MeV. | Can be used for longer cooled fuel (up to 8 years). | Relatively low energy; γ emission from induced activities can interfere. | | Not generally useful unless structural materials are segregated. | [30] |
| γ -emission based on Cs-137 and Ru-106. | | Relatively low energy emissions; Ru-106 has a short half-life (1 year), therefore not viable for long cooled fuel. | | Used at Tokai Mura, Japan | [32] |

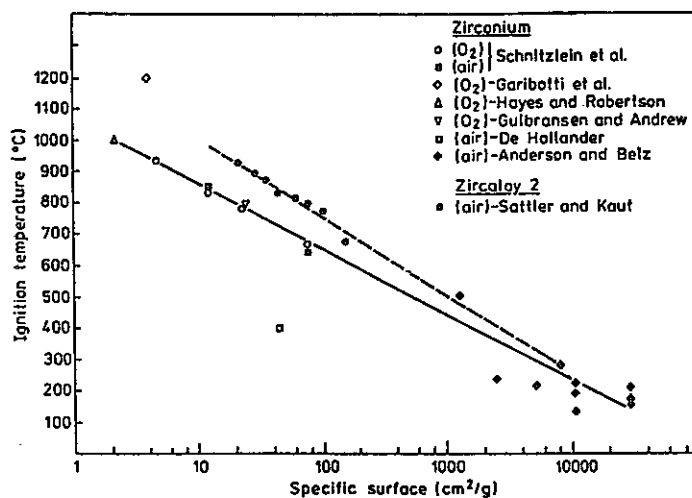


FIG. 9. Ignition temperature of zirconium and Zircaloy as a function of specific surface [3].

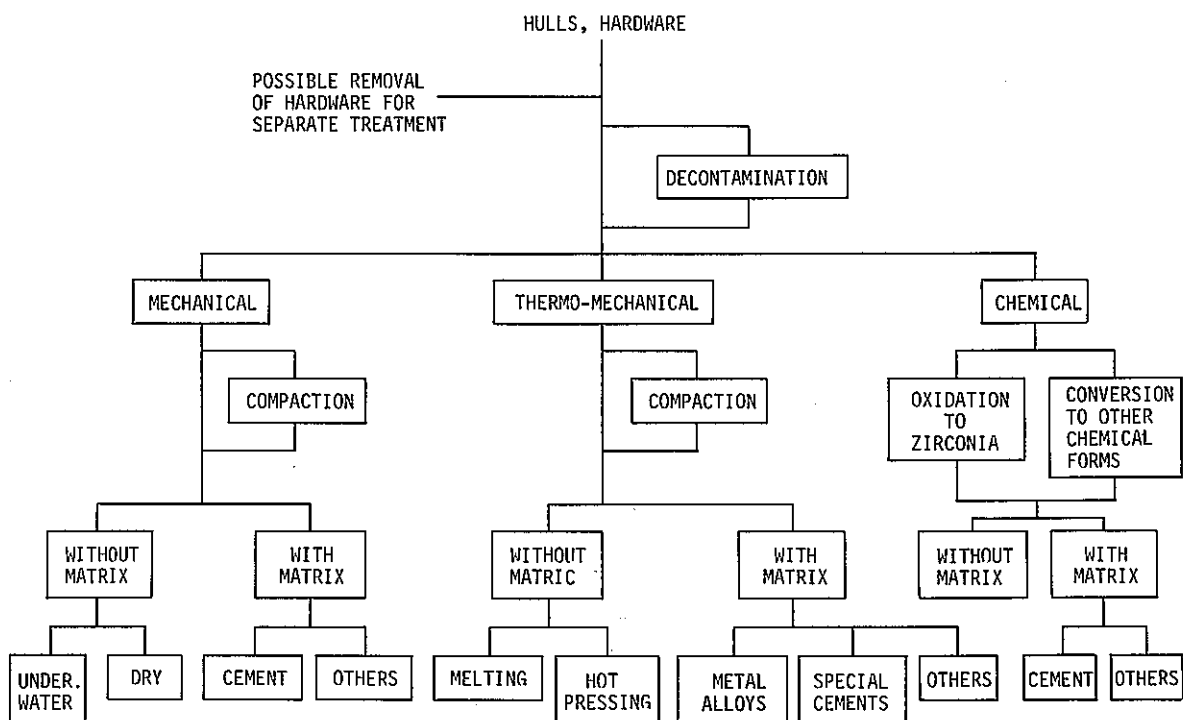


FIG. 10. Process options for hulls and hardware. Heavy outlines indicate practices currently in use.

TABLE X. IMPROVED CEMENT MATRICES

| Concepts | Temp. (°C) | Where developed | Refs. |
|--|---------------|--------------------|-------|
| Roll compaction and embedding in cement | Ambient | FRG (KfK) | [3] |
| Embedding in low water ceramic cement | 100 | FRG (KfK) | (a) |

^a R&D work performed at Kernforschungszentrum, Karlsruhe, for CEC; no publications available.

TABLE XI. OTHER IMMOBILIZATION MATRICES

| Concepts | Temp. (°C) | Where developed | Refs. |
|---|---------------|--------------------------------------|----------|
| Embedding in graphite blocks by press compaction | 150 | FRG (NUKEM) | [5, 6] |
| Press compaction with or without lead cuttings | Ambient | FRG (KfK) | [7, 8] |
| Press compaction and embedding in lead alloy | 450 | Belgium (SCK/CEN) | [9] |
| Embedding in metal alloys using powder metallurgy | 450 | FRG (KfK, NUKEM) | [7] |
| Embedding in glass | 900-1150 | France (CEA, Marcoule) USA (BNWL) | [10, 11] |
| Encapsulation in ceramic alumina | 1200 | France (Fontenay-aux- Roses) | (a) |
| Oryogenic temperature methods | -100 | Japan (JNFS) USA (BNWL) | [12] |

^a R&D work supported by CEC; no published reports available.

TABLE XII. CONCEPTS FOR CONVERSION OF FUEL HULLS

| Concepts | Temp. (°C) | Where developed | Refs. |
|--|---------------|---|----------|
| Conversion to zirconate | 400-800 | USA (Sandia) | [13, 14] |
| Conversion to zirconia by oxidation and embedding in cement or bitumen. | 800-1500 | FRG (WAK) | [15] |
| Conversion to hydrous zirconia by ammonium fluoride and solid- ification of the precipitate in cement | 100 | UK (Harwell) | (a) |
| Conversion to zirconium silicate | 1400 | USA | [16] |
| Melting process | 1850 | USA (BNWL) Japan (PNC and Kobe Steel Ltd.) | [17] |
| Melting process involving additives (eutectic melting) | 1100-1200 | France USA Japan | [18, 19] |
| Conversion to zirconia by oxidation | 300-550 | USA (ORNL) | [20-22] |
| Hot isostatic pressing process for hulls | 1000 | Sweden (ASEA) Japan (PNC and Kobe Steel Ltd.) | [23, 24] |
| Ceramics solidification | 1300-1500 | Japan (PNC and Kobe Steel Ltd.) | [25] |

^a MACAULY, K.M.C., unpublished work, and UKAEA.

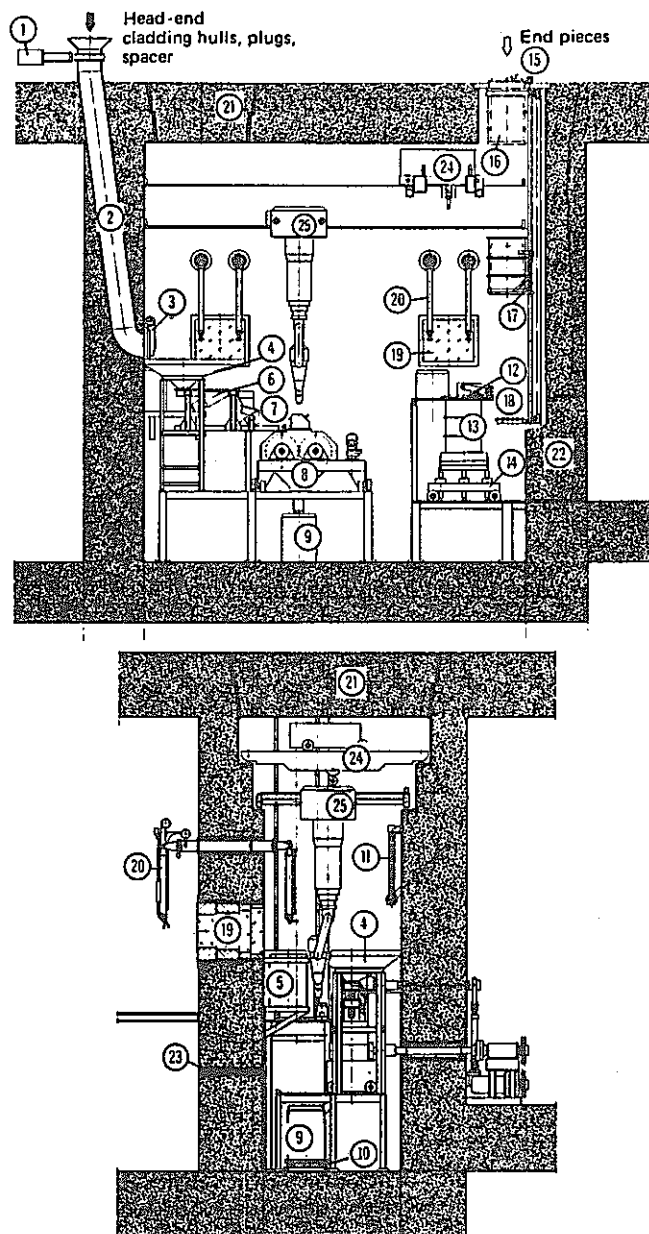


FIG. 11 Conditioning cell for cladding waste; roller compaction and embedding in cement. (1) Slide plate; (2) Waste silo; (3) Hinged valve; (4) Sorting trough; (5) Inset drum for spacers; (6) (7) Vibration chutes; (8) Rolling mill; (9) Inset drum; (10) Vibration table; (11) Pipe for mortar supply; (12) Double door system; (13) 400-L waste darrel; (14) Lifting car; (15) Cover plate; (16) 400-L waste barrel; (17) Elevator; (18) Roller-conveyor; (19) Window; (20) Manipulator; (21) Ceiling door; (22) Shielding door; (23) Blind plug; (24) Crane; (25) Heavy duty manipulator.

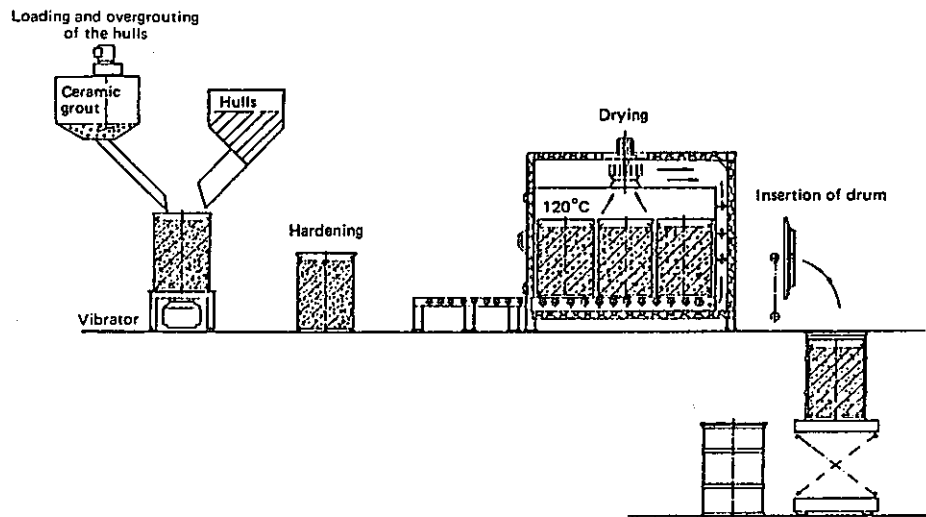


FIG. 12. Embedding in low water ceramic cement.

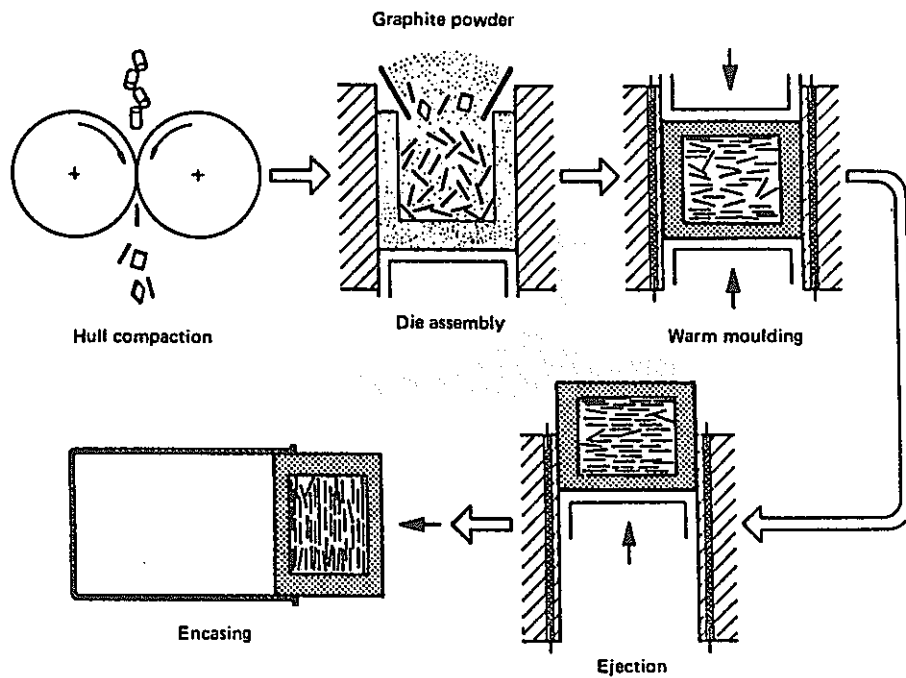


FIG. 13. Embedding of spent fuel hulls in graphite blocks by press compaction.

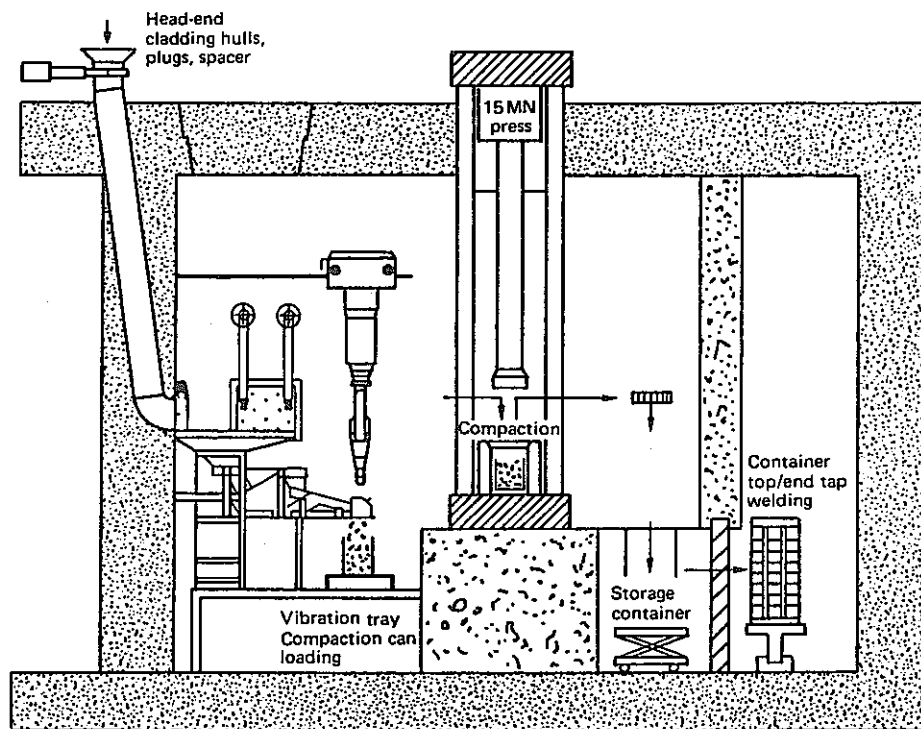


FIG. 14. Compaction of hulls in thin-walled cans and packaging of the compacts in special containers.

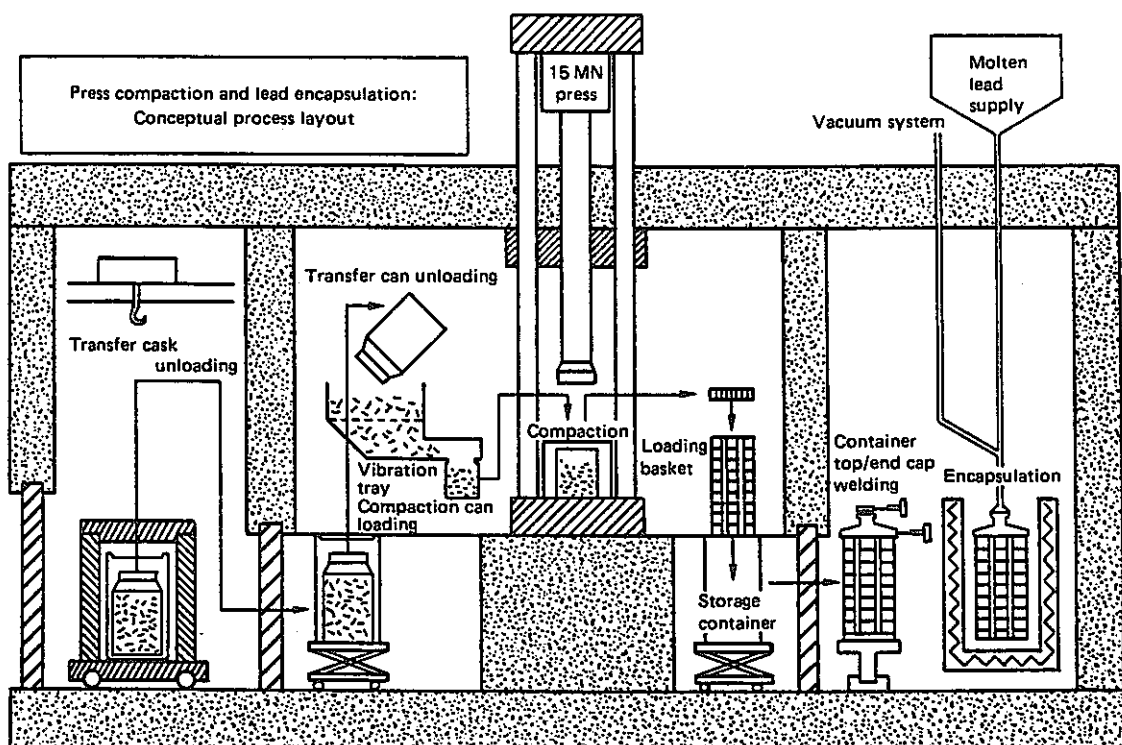


FIG. 15. Conditioning cell for cladding waste by press compaction and embedding in lead alloy.

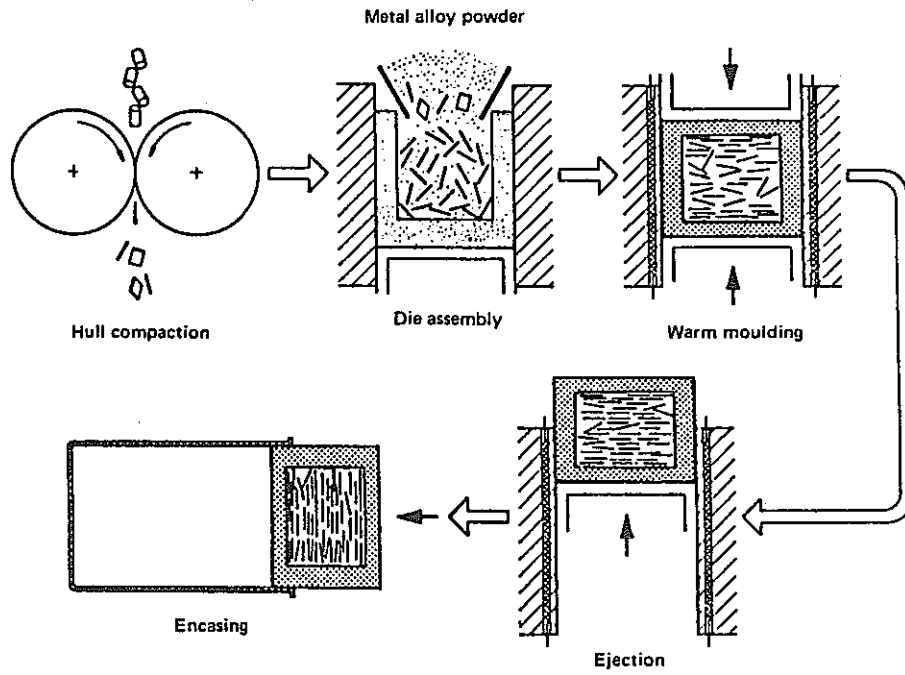


FIG. 16. Embedding in metal alloys using powder metallurgy.

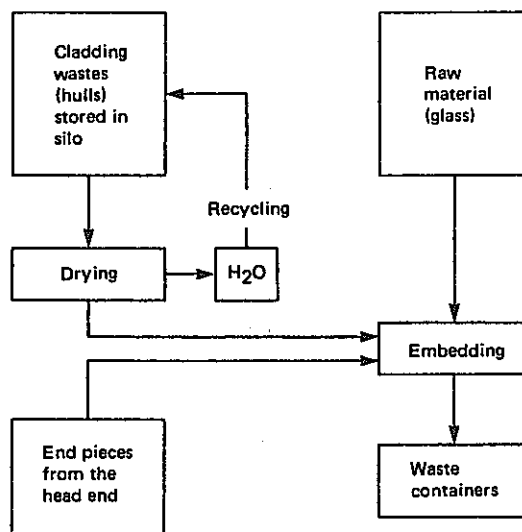


FIG. 17. Embedding hulls in glass.

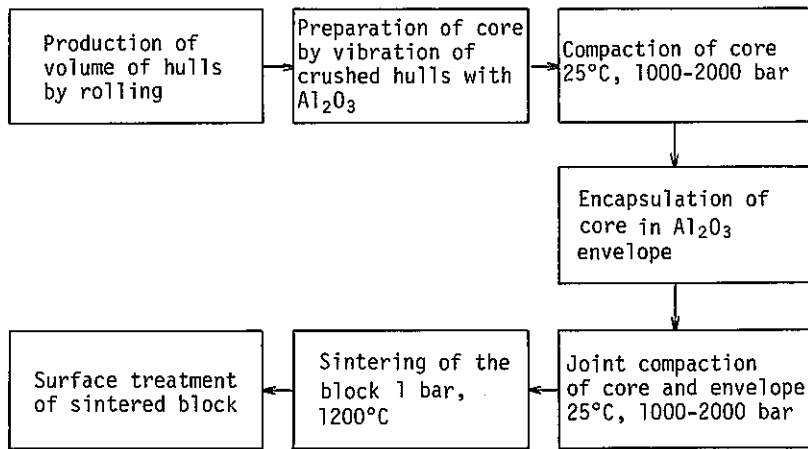


FIG. 18. Encapsulation in ceramic alumina.

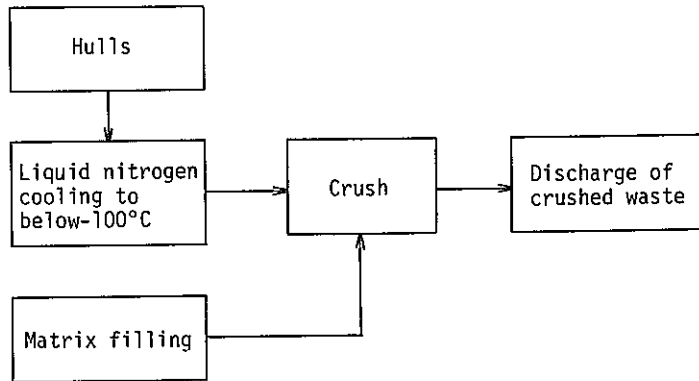


FIG. 19. Cryogenic temperature crushing method.

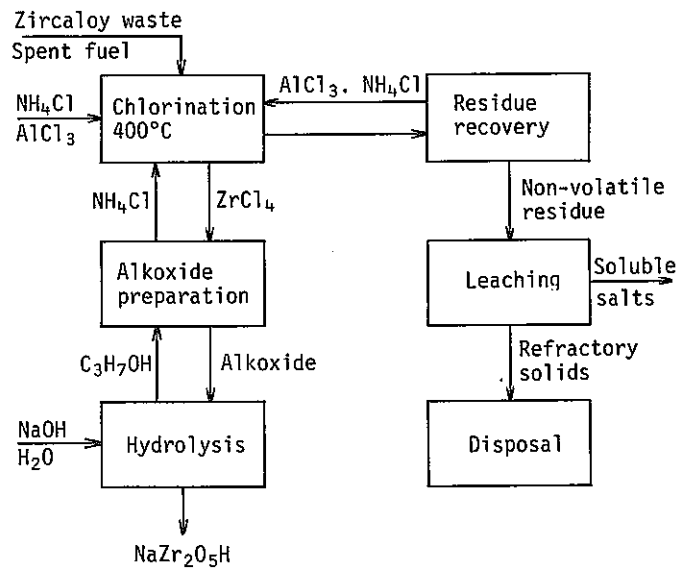


FIG. 20. Conversion of fuel hulls to zirconate.

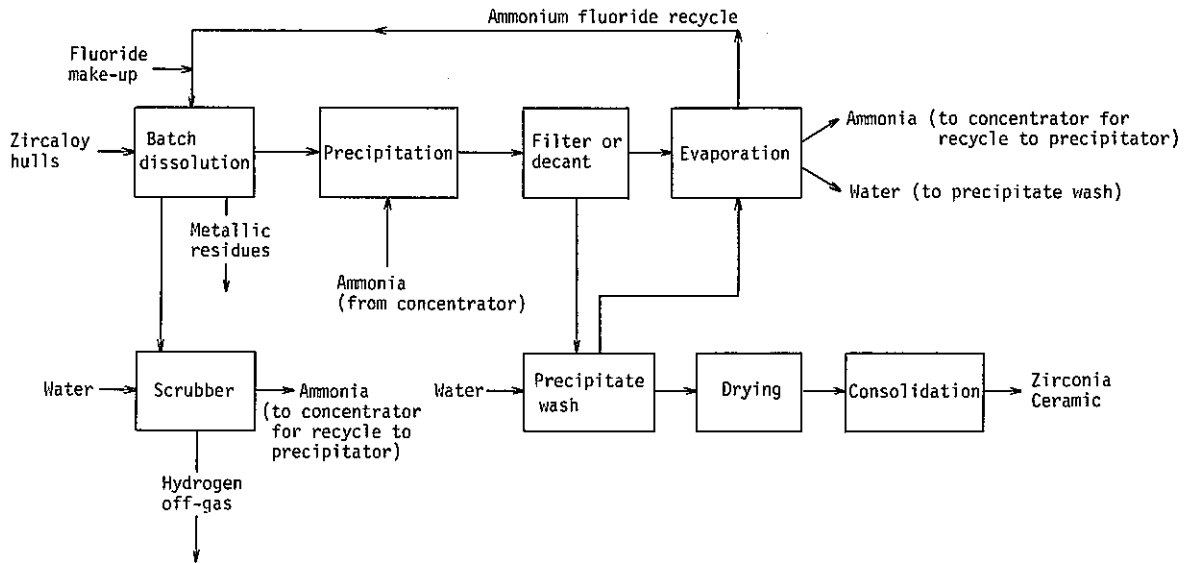


FIG. 21. Conversion of Zircaloy hulls to hydrous zirconia by ammonium fluoride followed by solidification with cement.

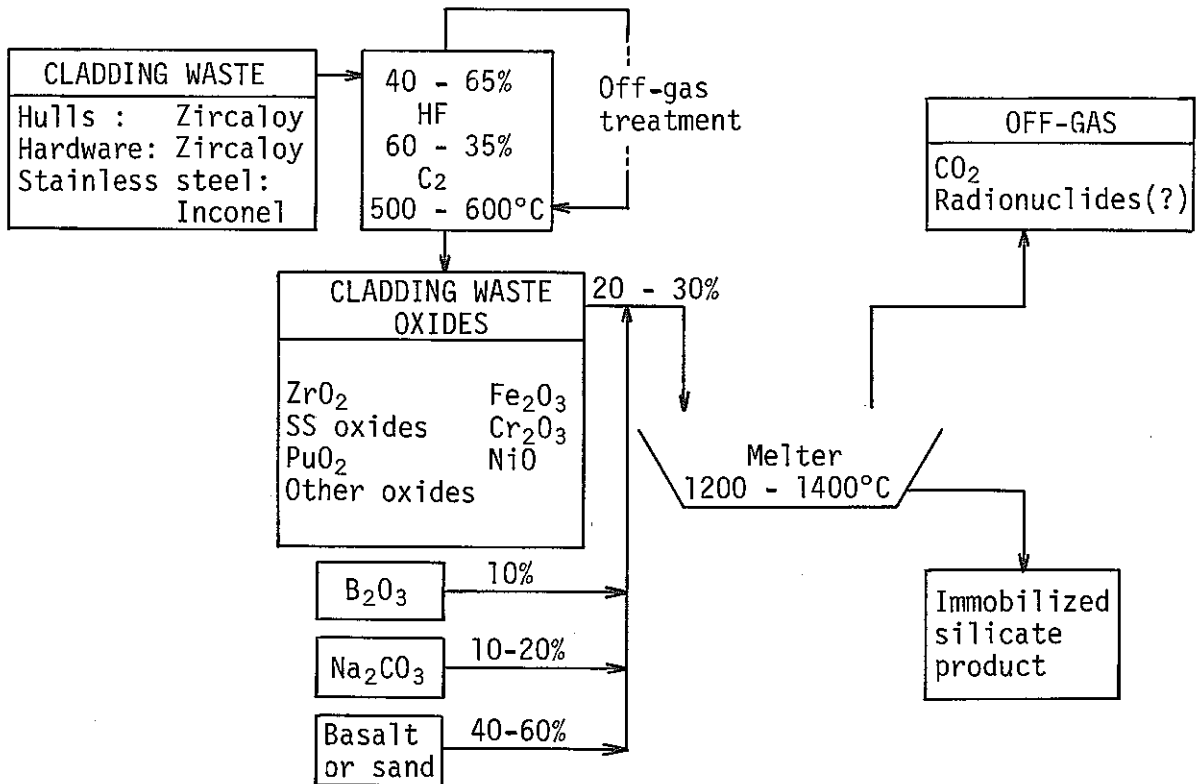


FIG. 22. Conversion of Zircaloy hulls to zirconium silicate.

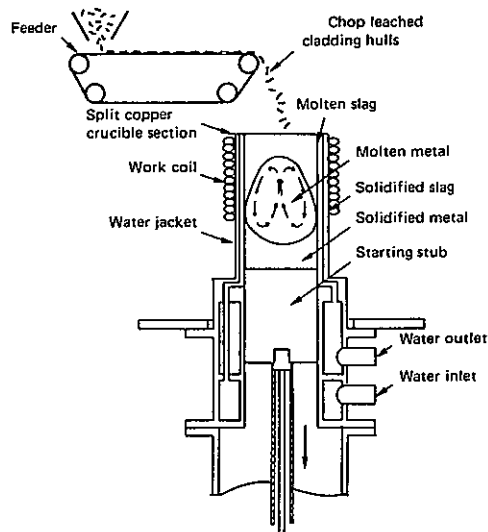


FIG. 23. Zircaloy hull melting process (inductoslag melting). Drawing from Clites and Beal Albany Metallurgical Research Center, US Bureau of Mines, Albany, Oregon, USA.

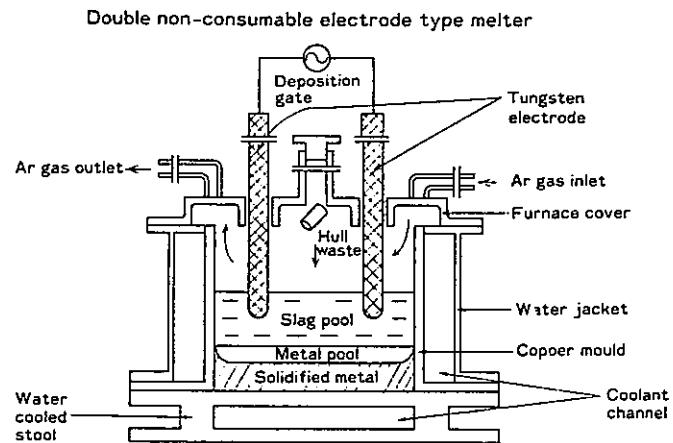


FIG. 24. Fundamental constitution of electroslag melting furnace.

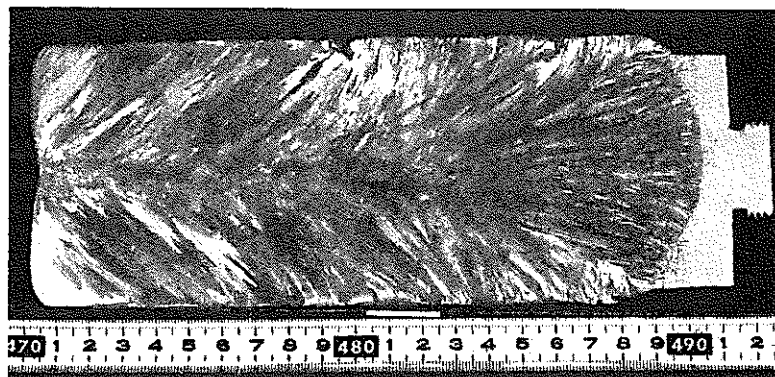


FIG. 25. Typical cross-section of electroslag-melted stainless steel.

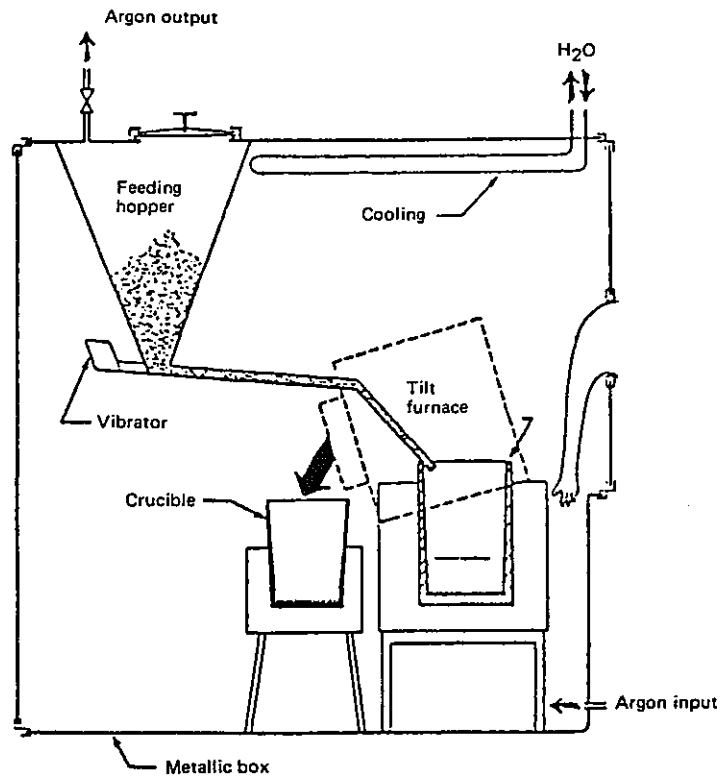


Fig. 26 Zircaloy hull melting process with additives (eutectic melting).

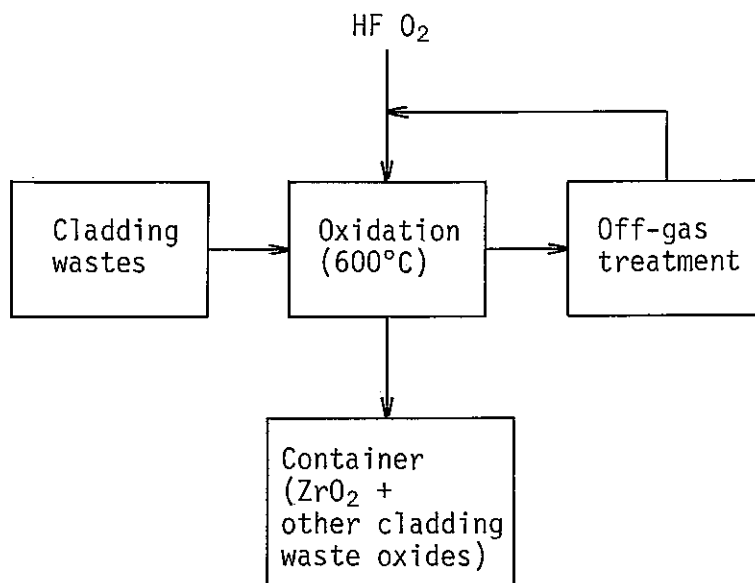


Fig. 27. Conversion to zirconia by oxidation.

TABLE XIII. CRITERIA FOR EVALUATING TREATMENT PROCESSES

-
1. Complexity of process :
 - Number of process steps.
 - Process control requirements (nature of control system, tolerance of process to variations in operating parameters)
 - Materials handling (within or outside the process system)
 - Adaptability of equipment to remote operation (previous experience, complexity)
 - Maintenance requirements (reliability, complexity, decontamination)
 - Internal recycle (product implications)
 - Assessment of feasibility for production use (probability of success of development programme)
 2. State of development :
 - Process (scale of operations, e.g. laboratory, pilot plant)
 - Equipment (e.g. whether demonstrated, at design stage)
 3. Safety considerations :
 - Dispersion driving forces (temperature, pressure, chemical stability)
 - Personnel exposures (design, maintenance)
 - Hazardous materials (toxicity, stability)
 4. Process requirements :
 - Final waste volume
 - Process additives and auxiliary materials
 - Secondary wastes (gaseous, liquid, solid)
 - Process latitudes (tolerance to variations in feed materials, process conditions)
 - Quality assurance (operation, measurement, sampling)
 5. Development work required :
 - Type of development (laboratory, pilot plant, full scale, active, non-active)
 - Scale of development (availability and size of facilities)
 - Time required
 6. Facility requirements :
 - Radioactive facilities
 - Non-radioactive facilities
-

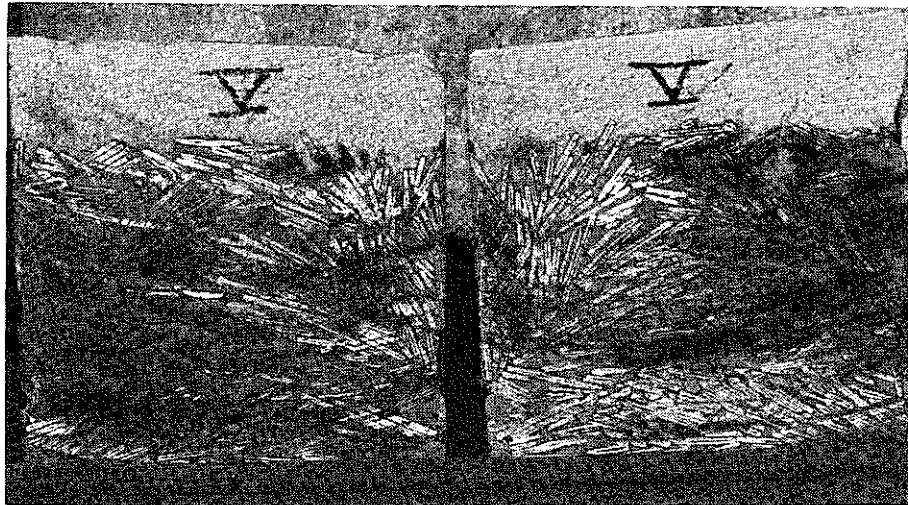


Fig. 28. Compacted hulls embedded in cement grout.

TABLE XIV. AVERAGE LEACH RATE OF CEMENTED ZIRCALOY HULLS IN DISTILLED WATER AT 20°C [1]

| Leached nuclide | \bar{R}_L (365 d) | % | \bar{R}_L (730 d) | % |
|------------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| Ru - 106 | 3.2×10^{-5} | 0.12 | 2.7×10^{-5} | 0.19 |
| Sb - 125 | Not measured | | Not measured | |
| Cs - 134 | 7×10^{-3} | 25.1 | 4.5×10^{-3} | 30.8 |
| Cs - 137 | 6.1×10^{-3} | 20.6 | 3.7×10^{-3} | 25.2 |
| Eu - 154 | Not measured | | Not measured | |
| H-3 (HTO) | 1.9×10^{-7} | 7×10^{-4} | 1.5×10^{-7} | 1.0×10^{-3} |
| Actinides (U, Pu, Am, Cm) | 1.1×10^{-7} | 3.5×10^{-4} | 7.5×10^{-8} | 5.6×10^{-4} |

Note : Average leach rate R_L is defined by :

$$\bar{R}_L = \frac{A_n}{A_0} \frac{V}{S} \frac{1}{\sum t_n} \text{ (cm/d)}$$

where A_n is activity after time n
 A_0 is initial activity
 V is volume (cm^3)
 S is surface area (cm^2)
 t is time (d)

TABLE XV. AVERAGE LEACH RATE OF CEMENTED ZIRCALOY HULLS IN SATURATED NaCl AT 20°C [1]

| Leached nuclide | \bar{R}_L (365 d) | % | \bar{R}_L (730 d) | % |
|------------------------------|----------------------|--------------------|----------------------|----------------------|
| Ru - 106 | 7.5×10^{-4} | 2.57 | 3.9×10^{-4} | 2.76 |
| Sb - 125 | 2.5×10^{-5} | 0.085 | 1.2×10^{-5} | 0.087 |
| Cs - 134 | 6.7×10^{-3} | 23 | 3.9×10^{-3} | 27.6 |
| Cs - 137 | 5.5×10^{-3} | 19 | 3.2×10^{-3} | 22.8 |
| Eu - 154 | Not measured | | Not measured | |
| H - 3 | 1.6×10^{-7} | 6×10^{-4} | 1.9×10^{-7} | 1.3×10^{-3} |
| Actinides (U, Pu, Am, Cm) | 9.8×10^{-5} | 0.34 | 5.8×10^{-5} | 0.41 |

TABLE XVI. AVERAGE LEACH RATE OF CEMENTED ZIRCALOY HULLS IN SALT BRINE AT 20°C [1]

| Leached nuclide | \bar{R}_L (365 d) | % | \bar{R}_L (730 d) | % |
|------------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| Ru - 106 | 3.4×10^{-4} | 1.17 | 1.7×10^{-4} | 1.18 |
| Sb - 125 | 2.2×10^{-5} | 0.08 | 1.1×10^{-5} | 0.08 |
| Cs - 134 | 1.9×10^{-3} | 6.6 | 1.0×10^{-3} | 7.3 |
| Cs - 137 | 1.6×10^{-3} | 5.6 | 8.6×10^{-5} | 6.1 |
| Eu - 154 | 3.0×10^{-5} | 0.11 | 1.8×10^{-5} | 0.13 |
| H - 3 | 2.5×10^{-7} | 8.6×10^{-4} | 2.5×10^{-7} | 1.8×10^{-3} |
| Actinides (U, Pu, Am, Cm) | 2.3×10^{-5} | 0.08 | 1.6×10^{-5} | 0.11 |

TABLE XVII. PERCENTAGE OF ALPHA NUCLIDE AND AVERAGE LEACH RATE AFTER TWO YEARS IN DIFFERENT LEACHANTS [1]

| | | Pu - 239 Pu - 240 | Pu - 238 | Am - 241 | Cm - 243 Cm - 244 |
|--|---|------------------------------|------------------------------|------------------------------|------------------------------|
| Zircaloy cement grout in H ₂ O | Hull inventory A ₀ (% activity) | 15.6 | 31.1 | 31.8 | 21.5 |
| | % total activity \bar{R}_L (730 d) | 17.8 9.2×10^{-8} | 25.0 6.4×10^{-8} | 30.0 7.6×10^{-8} | 21.4 8.0×10^{-8} |
| Zircaloy cement grout in saturated NaCl solution | % total activity \bar{R}_L (730 d) | 6.7 2.5×10^{-5} | 8.1 1.5×10^{-5} | 41.5 7.5×10^{-5} | 41.3 1.1×10^{-4} |
| Zircaloy cement grout in salt brine | % total activity \bar{R}_L (730 d) | 4.6 4.7×10^{-6} | 6.5 3.3×10^{-6} | 40.0 2×10^{-5} | 48.2 3.5×10^{-5} |

TABLE XVIII. LEACHABILITY OF RADIOACTIVE ZIRCALOY HULLS IN DISTILLED WATER [1]

| Nuclide | \bar{R}_L (365 d) | % | \bar{R}_L (730 d) | % |
|---------------|-----------------------|-------------------|-----------------------|-------------------|
| Ru - 106 | 9.1×10^{-6} | 9.0 | 4.6×10^{-6} | 9.1 |
| Sb - 125 | 2.5×10^{-6} | 2.5 | 1.6×10^{-6} | 3.2 |
| Cs - 134 | 2.8×10^{-5} | 28.0 | 1.6×10^{-5} | 31.0 |
| Cs - 137 | 2.1×10^{-5} | 20.4 | 1.2×10^{-5} | 22.7 |
| Eu - 154 | 1.1×10^{-5} | 10.8 | 5.5×10^{-6} | 10.8 |
| Co - 60 | 3.9×10^{-5} | 0.14 | 1.9×10^{-5} | 0.14 |
| U, Pu, Am, Cm | 5.4×10^{-7} | 0.50 | 3.5×10^{-7} | 0.68 |
| T | 1.6×10^{-13} | <10 ⁻⁶ | 1.2×10^{-13} | <10 ⁻⁶ |

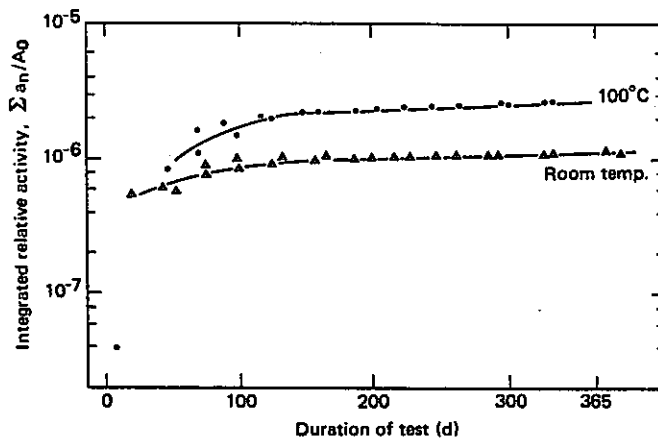


Fig. 29. Tritium release from Zircaloy cement samples with argon as carrier gas at different temperatures [1].

TABLE XIX. COMPRESSIVE STRENGTH OF HULLS EMBEDDED IN CEMENT [2]

| Specimen | Average strength (N/cm ²) | Relative strength related to concrete without claddings (%) | Volume fraction of concrete matrix (%) |
|-------------------------|---------------------------------------|---|--|
| Non-compacted claddings | 4215 | 100 | 87 |
| Compacted claddings | 2880 | 70 | 76 |

TABLE XX. PROPERTIES OF GRAPHITE/SULPHUR MATRIX MATERIAL [5]

| | |
|---|------|
| Density (g/cm ³) | 2.17 |
| Theoretical density (%) | 97.7 |
| Heat conductivity (W/cm·K), radial | 0.72 |
| Heat conductivity (W/cm·K), axial | 0.21 |
| Compressive strength (MN/m ²), radial | 54.2 |
| Compressive strength (MN/m ²), axial | 59.1 |
| Bending strength (MN/m ²), radial | 42.5 |
| Bending strength (MN/m ²), axial | 23.3 |
| Young's modulus (kN/mm ²), radial | 58.7 |
| Young's modulus (kN/mm ²), axial | 22.2 |

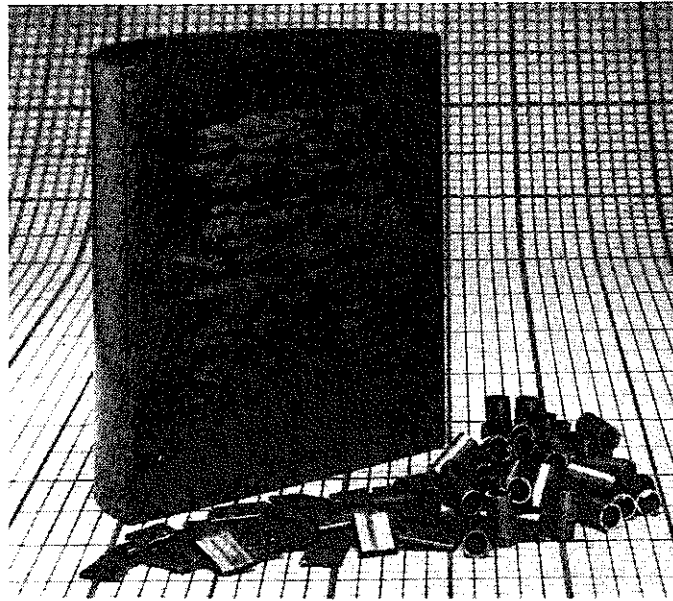


Fig. 30. Compacted hulls embedded in graphite/sulphur (58 wt% hulls in the matrix), NUKEM, Federal Republic of Germany.

TABLE XXI. CORROSION TESTING OF LEAD ALLOYS : VARIATIONS IN THICKNESS OF SAMPLES EXPOSED (in μm)

| Alloy | | Temp. 298 K | | | Temp. 323 K | | |
|--|--------------|-------------|----------|-----------|-------------|----------|-----------|
| | | 4 months | 9 months | 16 months | 4 months | 9 months | 16 months |
| Interstitial clay-water (Mol, Belgium) | Pb 1.5 Sn | +0.21 | -0.02 | +2.16 | -0.29 | -0.62 | +1.31 |
| | Pb 1.5 Sb | +0.48 | +0.19 | +0.33 | +0.68 | -1.38 | -1.73 |
| | Pb | +0.36 | +0.32 | +0.31 | -0.10 | -0.86 | +0.79 |
| | Pb 2Sn 0.6Ca | +0.44 | +0.13 | +0.74 | -0.02 | +0.02 | -0.74 |
| | Pb 4 Ag | +0.55 | +0.91 | +1.45 | +0.19 | +0.19 | +0.75 |
| Asse brine solution (Asse, Fed. Rep. Germany) | Pb 1.5 Sn | -0.42 | -0.78 | -1.01 | -4.49 | -7.13 | -5.63 |
| | Pb 1.5 Sb | -0.28 | -0.43 | -0.67 | -4.22 | -2.61 | -2.18 |
| | Pb | -0.92 | -1.12 | -1.36 | -6.16 | -9.15 | -9.83 |
| | Pb 2Sn 0.6Ca | -0.50 | -0.30 | -0.35 | -4.00 | -6.10 | -4.09 |
| | Pb 4 Ag | -0.95 | -1.56 | -1.74 | -6.11 | -8.54 | -7.73 |
| Clay (Boom, Belgium) | Pb 1.5 Sn | -0.13 | -0.29 | -0.45 | | | |
| | Pb 1.5 Sb | -0.34 | -0.39 | -0.35 | | | |
| | Pb | -0.19 | -0.52 | -0.25 | | | |
| | Pb 2Sn 0.6Ca | -0.22 | -0.31 | -0.50 | | | |
| | Pb 4 Ag | -0.01 | -0.10 | -0.36 | | | |

TABLE XXII. ACTIVITIES RELEASED FROM ZIRCALOY HULLS EMBEDDED IN LEAD ALLOY Pb 4Sn 12Pb

| Time (d) | Fraction of activity content leached (cumulative data) | | | |
|----------|--|---------------------------------------|-----------------------------|---------------------------------------|
| | Sample I | | Sample II | |
| | α -emitting isotopes | β - γ -emitting isotopes | α -emitting isotopes | β - γ -emitting isotopes |
| 1 | 3.6×10^{-6} | 4.1×10^{-8} | 3.1×10^{-7} | 8.9×10^{-8} |
| 2 | - | 5.1×10^{-7} | - | 1.4×10^{-7} |
| 3 | 6.3×10^{-6} | 6.4×10^{-7} | 1.6×10^{-6} | 1.6×10^{-7} |
| 4 | 1.2×10^{-5} | 7.4×10^{-7} | 2.9×10^{-6} | 1.7×10^{-7} |
| 7 | 1.4×10^{-5} | 8.0×10^{-7} | 4.1×10^{-6} | 1.7×10^{-7} |
| 10 | 4.5×10^{-5} | 1.0×10^{-6} | 5.3×10^{-6} | 1.8×10^{-7} |
| 17 | 4.6×10^{-5} | 1.1×10^{-6} | 5.7×10^{-6} | 1.9×10^{-7} |
| 24 | 4.7×10^{-5} | 1.2×10^{-6} | 5.9×10^{-6} | 2.2×10^{-7} |
| 31 | 4.7×10^{-5} | 1.3×10^{-6} | 6.2×10^{-6} | 2.3×10^{-7} |
| 38 | 4.9×10^{-5} | 1.5×10^{-6} | 6.5×10^{-6} | 2.5×10^{-7} |
| 66 | 5.0×10^{-5} | 1.6×10^{-6} | 6.8×10^{-6} | 2.6×10^{-7} |
| 94 | 5.0×10^{-5} | 1.6×10^{-6} | 7.2×10^{-6} | 2.7×10^{-7} |
| 121 | 5.1×10^{-5} | 1.7×10^{-6} | 7.6×10^{-6} | 3.4×10^{-7} |

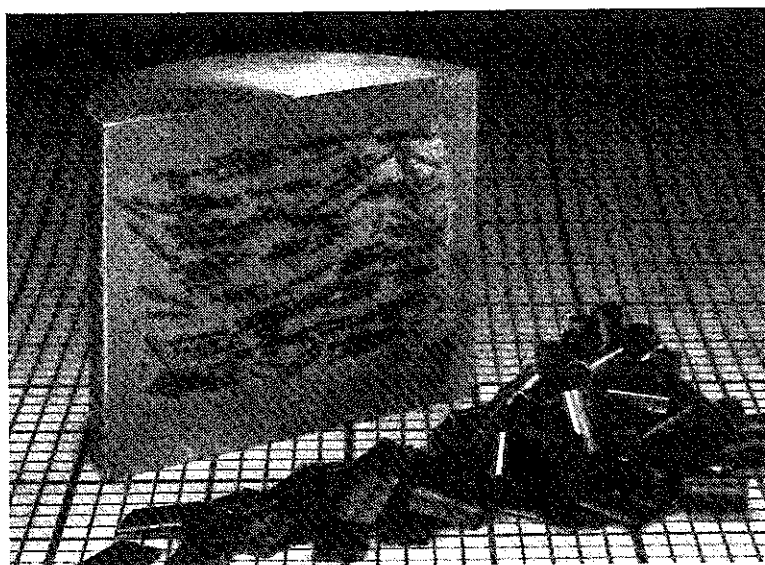


Fig. 31. Compacted hulls embedded in aluminium (63 wt% hulls in the matrix), NUKEM, Federal Republic of Germany.

TABLE XXIII. CRITERIA FOR EVALUATION OF CONDITIONED
WASTE FORMS

-
1. Mechanical stability (compressive strength, tensile strength, susceptibility to cracking, ageing).
 2. Thermal stability (thermal cycling, temperature gradients).
 3. Chemical stability (gas release, oxidation, geological compatibility).
 4. Radiation stability (radiolysis).
 5. Leach resistance (permeability, porosity, effect of different groundwaters).
 6. Biological stability (effect of microorganisms).
 7. Accident behaviour (fire, dropping, flood).
-