

特集

核燃料サイクル技術の開発動向と将来

高レベル放射性廃液のガラス固化体への処理技術

Vitrification of High-Level Liquid Waste

坪谷隆夫*・虎田真一郎**

Takao Tsuboya・Shin-ichiro Torata

1. はじめに

核燃料サイクルの工程で発生する放射性廃棄物のうち、高レベル放射性廃液は核燃料物質が原子炉内で核反応して出来た核分裂生成物等を、再処理の過程で液体の形で分離したもので、放射性が著しく強いと同時に長半減期の核種を含んでいる。現在のPUREX再処理工程からは、硝酸を含む高レベル廃液として分離され、タンクに貯蔵されている。高レベル放射性廃液も他の放射性廃液と同様、取り扱いが容易で安定性の高い固化体に処理したのち、人間の生活環境と十分離れた安全な所に隔離するという管理方法が世界のすう勢である。我が国でも昭和50年代前半から、原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会等によって策定された計画方針に則り、ガラスによる固化処理即ち廃液をガラス化して固形化する技術の開発が行われて来た。現在既に欧米ではプラント規模のガラス固化処理施設が稼働又は建設中であり、我が国では動燃事業団が東海再処理工場に併設するガラス固化施設（Tokai Vitrification Facility—TVF—）が完成を真近にひかえ、また、青森県下北の商業用再処理工場の設計にも、動燃事業団からの移転技術が採用されている¹⁾。

2. ガラス固化処理とガラス固化体

2.1 高レベル放射性廃液の特徴

高レベル放射性廃液には、核分裂で出来た多くの元素の他に少量のウランを始めとするアクチノイド元素、工程の材料が腐食した鉄等の成分や、工程で添加した薬品であるナトリウム、硝酸などを含んでいる。

高レベル放射性廃液は、通常の軽水炉燃料再処理の場合で燃料1トンあたり0.5～1 m³発生する。これを

ガラス化すると廃棄物を含むガラス（このガラスをステンレス製の堅牢な容器で保護・封じ込めたものが「ガラス固化体」）約100ℓ（約300kg）ができる。

これは、一般家庭10万所帯が1年間に電気を消費した結果発生する廃棄物に相当すると試算されるが、別の表現を使えば日本人の国民1人が一生の間に使う電気の半分を原子力でまかなった時、それに使われた核燃料から分離された廃棄物をガラス固化して約80ml（図-1写真に示す大きさ）程度になることを示している。火力発電に比して廃棄物が著しく少ないことが原子力の一つの大きな特徴になっている。

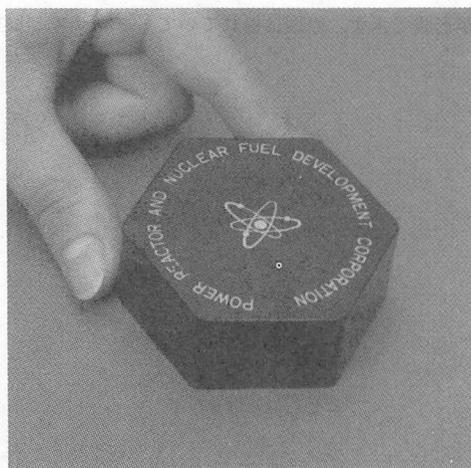
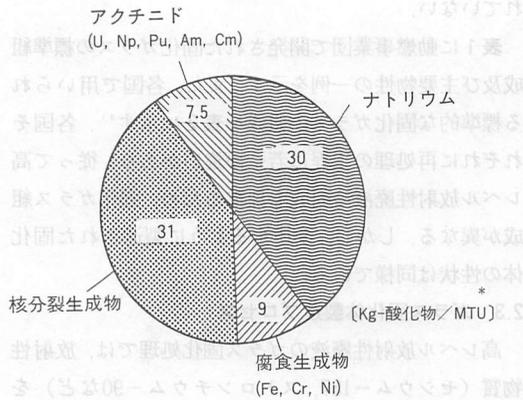


図-1 ガラスサンプル

ガラス固化体の放射能はガラス製造時で概ね 1.5×10^7 GBq（40万Ci）/300kgの高い放射能を有する。しかし、核分裂で生成した元素の持つ放射能の殆どは、初期の数百年で減衰してしまい、固化体の放射能は千年後には約一万分の1程度に減る。これも原子力廃棄物のもう一つの特徴である。図-2に高レベル放射性廃液の組成の例を示す。

* 動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所環境技術開発部長

** 動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所環境技術開発部
副主任研究員



* 高レベル放射性廃液中の成分が、固化体の中で酸化物の化学形をとった場合の重量を核燃料1トン当たりの発生量として示したものを。

図-2 高レベル放射性廃液の組成 (例)

2.2 ガラス固化体の採用とその特徴

高レベル放射性廃液の固化形態として、現在各国ともガラスを選択している。この基本的な理由としては、次のような項目が挙げられる。

- ①高レベル廃液に含まれる何十種もの元素の殆どを均一に固溶或いは分散できる。
- ②物理的・化学的安全性に優れている。(熱的安定性, 耐浸出性, 耐放射線性)
- ③一般産業での長い蓄積のある工業用ガラスの製造方法が応用できる。

ガラス固化に用いられるガラスは、ホウケイ酸ガラスと呼ばれる種類のものである。

一般にガラスは、規則正しく原子が配列したような

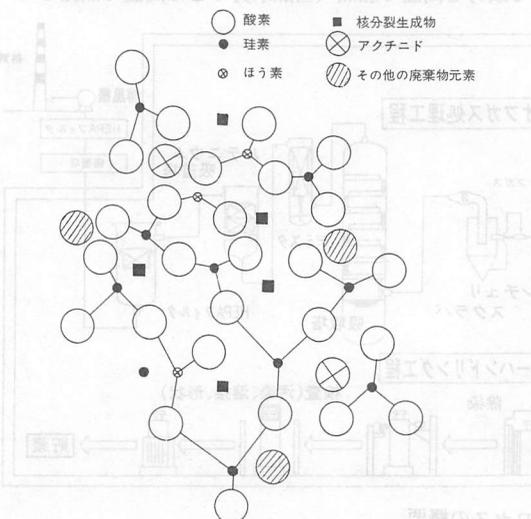


図-3 ガラス固化体構造の2次元的概念図²⁾

構造(結晶構造)はとらず図-3に示すような網目状の中での原子の配置が比較的自由的なので、多種多様の廃棄物元素をその中にとり込める²⁾。

また、ガラスの物理的・化学的安全性については、ピーカー、フラスコ等の理化学用ガラスの例や、古くはエジプトなど数千年以前につくられたガラス製品が現在でもその原型を保って発見されることから理解できる。更に古いものとしては、火山活動により何万年も前に生成したと考えられる天然ガラス(例えば黒耀石を使った古代人の遺跡)が健全な形で多く発見されており、ガラスの長期的に安定な性質を裏付けている。

ガラスをつくる技術についても、産業界の長年の技術蓄積があり、その経験を生かしたガラス固化処理プロセスの技術開発が可能である。

このように、ガラスは廃棄物固化体としての特性と製造プロセス技術の完成度との両面から考え、他の固化体に優る点が多く、主要国間で研究が行われて来た。ガラス以外の固化体としては、同様の物理的・化学的安全性を持つと期待できる、セラミックス素材が主として検討された。アルミナ、ジルコニア等いわゆる焼き物の素材となる化学組成のものや、これらを組み合わせた組成が種々試験された。現在もまだ継続して研究が続けられているセラミックス系の固化体としては、チタン酸(TiO₂)を主たる結晶成分とするシロックと呼ばれる合成岩石³⁾が知られる。この固化法としては、廃液にチタン酸等の原料を加えた泥水状の原料を、脱水仮焼し更にプレスしながら加熱して押し固めるプロセスの概念が提案されているが、ガラスに比べプロセスが複雑なことや、アルカリ成分の多い再処理廃液の場合、固化体の耐久性が低下するため廃棄物を多量に含有させられないなどの課題を残している。

表1 TVF仕様ガラス固化体の標準組成と試作模擬ガラスの物性値の一例

成分	組成(wt%)	物性	測定値
ガラス原料成分	75.0	密度 [g/cm ³]	2.74
SiO ₂	46.7	熱膨張係数(×10 ⁻⁷ /°C)	83
B ₂ O ₃	14.3	熱伝導率 [Kcal/(m·h·°C) at 100°C]	0.87
Al ₂ O ₃	5.0	比熱[Kcal/(kg·°C) at 100°C]	0.21
Li ₂ O	3.0	転移点 [°C]	501
CaO	3.0	浸出率 (×10 ⁻⁵ g/(cm ² ·day) at 90°C)	2.3
ZnO	3.0	曲げ強度 [MPa]	57
廃液成分	25.0		
Na ₂ O	9.6		
P ₂ O ₅	0.3		
Fe ₂ O ₃	1.9		
NiO	0.5		
Cr ₂ O ₃	0.5		
核分裂生成物	9.8		
アクチニド	2.4		

表2 各国のガラス固化体の組成 (例)

[COMMERCIAL HLW GLASSES FROM THE USA AND OTHER COUNTRIES (wt%) (10)]

	USA 76-78	USA 77-260	France LWR	Sweden ABS-39	Germany 98-20	UK 209
Glass						
SiO ₂	40.0	36.0	47.5	48.5	40.2	50.9
B ₂ O ₃	9.5	9.0	15.0	19.1	10.8	11.1
Na ₂ O	7.5(12.5)*	8.0(11.1)*	7.4(12.0)*	12.9	21.9	8.3
ZnO	5.0	-	-	-	-	-
CaO	2.0	1.0	4.0	-	2.2	-
K ₂ O	-	2.0	-	-	-	-
TiO ₂	3.0	6.0	-	-	3.3	-
Al ₂ O ₃	-	2.0	3.0	3.1	1.1	5.1
CuO	-	3.0	-	-	-	-
Li ₂ O	-	-	-	-	-	4.0
Wastes						
Fe ₂ O ₃	9.64	-	5.7	5.7	1.87	2.7
Na ₂ O	4.98	3.13	4.6	-	-	-
Gd ₂ O ₃	-	9.84	-	-	-	-
Other						
Inerts	1.08	3.97	0.5	-	0.82	7.2
Fission Products	12.71	10.99	13.0	9.0	16.64	10.0
Actinides	4.59	5.25	-	1.66	1.07	0.6

* Total

ガラスの中でもホウケイ酸ガラスは以下のような特徴を備えている。①ピーカー等、理化学用ガラスに使われるように、化学薬品等に対する耐食性に優れる。②化学組成の調整により、ガラスを溶融する温度を比較的低くすることができ、溶融炉に使う耐火物、金属などの材料の負担を軽減できる。③廃棄物成分の許含有量が比較的高い。④熱的安定性、強度、耐放射線性などの点でも満足しうる特性を持つ。

ホウケイ酸ガラスの他には、リン酸塩ガラス等がガラス固化の素材として研究され、1960～70年代に多くの研究が行われた。しかし、プロセス材料に対する腐食性が高く、比較的低温で結晶化し物性が変わる可能性があることなどの問題点のため、現在は殆ど研究さ

れていない。

表1に動燃事業団で開発された固化ガラスの標準組成及び主要物性の一例を示す。また、各国で用いられる標準的な固化ガラスの組成を表2に示す⁴⁾。各国それぞれに再処理の工程に若干の違いがあり、従って高レベル放射性廃液の組成も異なるため、固化ガラス組成が異なる。しかし、後述するように製造された固化体の性状は同様である。

2.3 ガラス固化体製造プロセス

高レベル放射性廃液のガラス固化処理では、放射性物質（セシウム-137、ストロンチウム-90など）を含む硝酸廃液を、ガラスをつくる化学成分（ケイ素、ホウ素）と混ぜて、1000℃以上の高温に加熱する。加熱に伴い廃液中の水分は硝酸成分とともに取り除かれるが、このような高い温度では、ガラスは溶融状態、つまり粘りのある蜂蜜や油のような状態であり、放射性物質は溶融したガラスと混じりながら溶け込んでゆく。一般に見られる着色ガラスは、透明なガラスに色素となる鉄やコバルトなどの元素を、一緒に溶融しながら溶け込ませたもので、その作り方は類似したものである。但し、高レベル廃液のなかには多種類の廃棄物成分を含むので、多くの色が全て混じり合い真黒いガラスになる。

放射性物質を溶け込ませた溶融状態のガラスは、専用の金属容器（キャニスタ）に流し込まれ、冷え固まると固体のガラスになる。放射性物質はガラス中に均質に固化される。

このように、高レベル放射性廃液と、ガラスをつくる成分を高温で加熱（当然水分などは高温で蒸発して

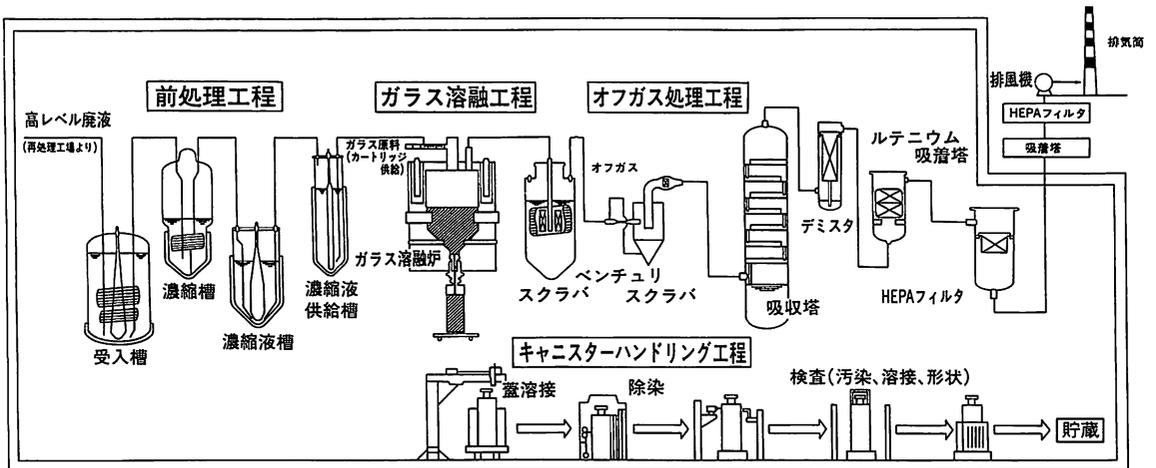


図-4 ガラス固化プロセスの概要

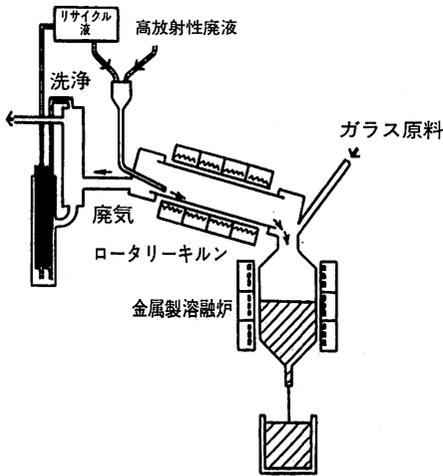


図-5 AVFのガラス溶融法の概念

しまう)し、一旦均質に融解させたあと、キャニスタに流し込む一連の処理を行う工程を、ガラス固化プロセスと呼ぶ。

ガラス固化プロセスを、更に要素技術に分けると次のような工程から成り立っている。

- (1) 高レベル放射性廃液を取り扱う工程で、ガラス固化プロセスへの受入れ、廃液の性状や含有成分の濃度を調節する“前処理工程”。
- (2) 廃液とガラスをつくる成分を高温に加熱溶融する“ガラス溶融工程”。
- (3) 溶融されたガラスをキャニスタに注入後、蓋を溶接したのちキャニスタの異常の有無を検査し、貯蔵へと送り出す“キャニスタハンドリング工程”。
- (4) 上記の各工程で発生する排気ガスを浄化処理して環境に放出できるようにする“オフガス処理工程”。

全体工程のフローシートを図-4に示す。

前処理工程

この工程では、高レベル放射性廃液の貯蔵タンクから受け入れた廃液を次のガラス溶融工程で処理できるよう組成、濃度等を調整する。受け入れた廃液は、サンプリングを行い、組成や放射能濃度を測定し、これに基づき次の濃縮処理のパラメータやガラス溶融工程でのガラス原料との混合割合を設定する。

次に、濃縮器に廃液を移送し、ここで蒸気を通したコイルにより加熱し、廃液中の水分を蒸発させ減容する。これは、ガラス溶融炉の負担を軽くするためのものである。また、廃液の組成が標準的なものと大幅に異なる場合には、ガラスの品質を保つために、ナトリウム等を添加して組成調整を行う。

濃縮後の廃液は、定量をガラス溶融炉へ連続的に供給する。廃液の供給量を精度良く制御することは、ガラスの組成を目標値に収めるために重要である。廃液の供給は、エアリフトポンプにより行う。

ガラス溶融工程

この工程では、前処理を経た廃液をガラス原料とともに高温に加熱し、ガラスと放射性物質を溶融状態で混合する。

加熱方法としては、多量の放射性物質を取り扱う工程であることから、電気による加熱を採用し、火災等の恐れのある石油やガスは用いない。電気によるガラス溶融は、ガラス産業でも高品質のガラスを生産するために使われる技術である。

現在、世界的には前述のようにプラント規模で連続的にガラスを溶融する固化施設が運転中又は建設中であるが、溶融方式として二つの方法に大別される。特に、高周波加熱金属溶融炉方式(AVF方式と呼ばれる)と耐火レンガ(セラミック)製の溶融炉の中で、溶融ガラスに直接電気を流してガラス自体を発熱させ溶融を行う、直接通電型セラミックメルター方式の二方式が現在の主流となっている。

AVF方式は、図-5にその概念を示すように、金属円筒状の溶融炉の外側に加熱用コイルを巻いて高周波によって容器を加熱し内部のガラスを溶かす。

底部には溶融したガラスをキャニスタに注入する抜き出し口を備えている。本方式は、フランスで開発された技術で、フランスでは南仏マルクルの処理プラントが既に10年以上の運転経験を持つほか、改良型のプラントが仏シェルブル及び英国北イングランドで運転を開始した¹⁾。

一方、直接通電型セラミックメルター方式は日本、米国、西独、ソ連での開発が進んでおり、1984～5年から米国ハンフォードでの研究用施設、及び西独がベルギーと共同でモルに建設した固化施設(PAMELA)が、本方式に基づくガラス固化の運転を行ってきたほか、米国内の他の2カ所の原子力施設でも施設の建設がほぼ終了している¹⁾。

動燃事業団が東海村に建設中のTVFもこの方式に基づいており、1992年には試運転を開始する予定である。

TVFで運転されるガラス溶融炉は、図-6のような構造を持つ。外側は金属の箱(ケーシング)で囲い、構造材には金属よりも高温での耐久性に優れた耐火レンガを使用している。ガラスに電気を流すための電極

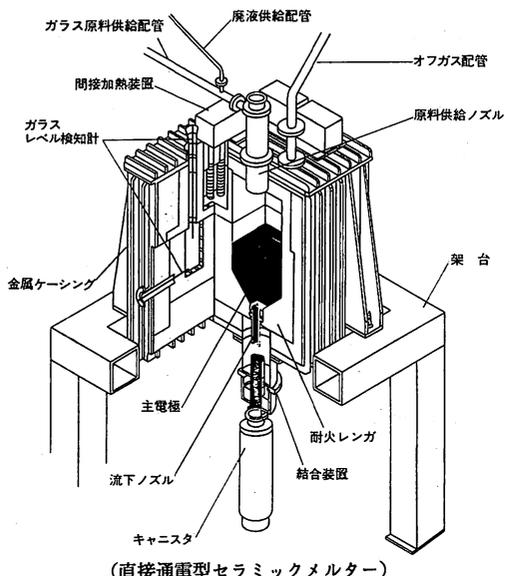


図-6 TVFで運転されるガラス溶融炉

には、耐熱金属を用いている。

このような原理の溶融炉は、一般ガラス工業でも使われ、より大規模な装置の実績があること、主要構造に耐火レンガを使うことに加えガラス自体が発熱し、それを保持するレンガや電極はガラスより低い温度になるので炉材料の寿命が長いこと、外側のケーシングは、外気で冷え温度が更に低いので、ガラスの漏れに対する安全性も高いことが特徴として挙げられる。更に内部発熱を利用するため、外部発熱方式に比べ熱を有効に利用することができる。

これらの特徴を生かして、セラミックメルターでは高レベル廃液を直接溶融炉に供給し液の蒸発乾燥とガラスへの溶融を行うことが出来る。この方法を液体供給セラミックメルター法(LFCM法)と呼んでいるが、AVM法が高周波による外部加熱の制約上、金属溶融炉の大きさをあまり大きくできず、処理能力を確保するために前段に廃液の水分の蒸発と仮焼を行う加熱器(ロータリーキルン)を組み合わせ、且つ複数の系統で能力を確保しているのと対照的である。

ガラス溶融工程の技術上の特徴としては上記のような炉の方式選定の他に、運転技術として廃液とともに炉内に供給するガラス原料形態の開発があり、各国で工夫されてきた。主なものに微粉末のガラスを予め廃液の中に混合したり、溶融炉への投入口のところで廃液と合流する粒状(ビーズ)やフレック状のものがあ

る。動燃事業団では、これらに代わり細いガラス繊維を

円柱型に押し固めた供給原料(カートリッジ)を開発してガラス固化に用いている。カートリッジに廃液をしみ込ませ、これをガラス溶融炉に投入すると、繊維の中にしみ込んだ廃液が熱を受けて徐々に蒸発し乾燥後、繊維のガラスと廃液物の成分が溶融される⁶⁾。

この方法は、廃液を数百度を超す炉内に流し込んで沸騰蒸発させていた従来の供給法に比べ反応はより穏やかで、沸騰時に放射性物質を含んで飛散する微粒子の量も少なく、安定な運転に効果があった。

製造された溶融ガラスを、溶融炉の底部から金属キャニスタに流し出す部分は、貫通孔に流下ノズルと呼ばれる金属パイプが通されている。キャニスタにガラスを流し出す時にこのノズルをガラスが流動する温度まで加熱すると、ガラスが連続的に流れ出てくる。キャニスタが一杯に注入され、次のキャニスタと交換する時にガラスの流れを一旦停止するため、流下ノズルの加熱を停止し冷却すれば、ノズルの中のガラスが冷え固まって栓の役目となり流出は止まる。流下ノズルの加熱システムには、高周波加熱が用いられている。

炉の構造材料には、主として高温の溶融ガラスに接する耐火物と電極の材質について、廃棄物元素を含むガラスとの反応性と耐久性の観点から検討した結果、クロムを含む耐火レンガや耐熱合金を採用した。

溶融炉には、炉内各部の温度計測のために、1000℃以上の高温を長期にわたって監視できる熱電対を備えている他、溶融炉内のガラス液面を電氣的に検知し必要量以上の原料供給が行われぬようにする液面計の開発及び高温、高放射線下での炉内観察用TVシステムなど各種の計測機器が配置されている。

このように、ガラス固化プロセスにおいて、ガラス溶融炉の開発はその大きな部分を占めているが、炉の開発と併行して、関連する運転技術や監視技術を総合的に開発してきた。

また各国それぞれに、溶融性能をはじめとする性能についての開発競争や、一方で共通の技術開発課題についての国際協力を通じてその技術の向上がはかられた結果、現在のようなプラント規模での技術実証の段階に至っているといえる。

キャニスタハンドリング工程

ガラス溶融炉で溶融されたガラスは、炉底部の流下ノズルから、キャニスタに所定量が注入される。各国のキャニスタの大きさは、ガラス固化体の発熱量や貯蔵の考え方がそれぞれ異なるため、大きさもさまざまであるが形状はよく似ている。TVFのキャニスタの仕様

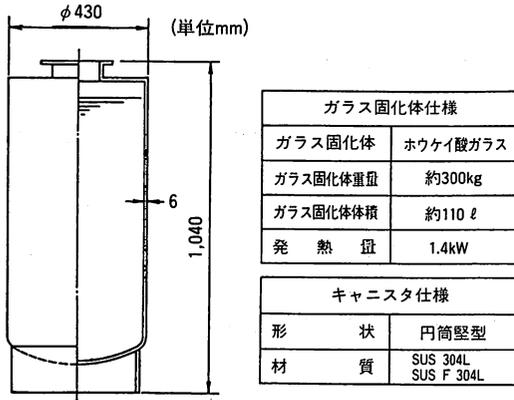


図-7 TVFで用いられるキャニスタ

は、図-7のとおりであり、使用済燃料約1トンから分離された廃棄物を含むガラスを1本のキャニスタに収納する。

高い放射能を有するガラスの入ったキャニスタの取扱いは、全て遠隔操作で行われる。本工程における主な技術開発の要素としては、キャニスタへのガラスの注入量管理法、注入口への蓋の溶接とその検査法及び冷却保管技術等である。

キャニスタにガラスを定量注入することは、過剰注入に対する安全性確保に加え、固化体の品質を一定にする上でも重要であり、現在は、TVFを含め概ねガラス固化体の重量を測定して管理を行っている。

注入後の蓋の溶接については、各国でさまざまな方法が行われている。TVFでは、溶接装置の構造が簡単で条件管理が容易なTIGノンフィラ（溶加材を使わない）溶接法を採用している。フランス、米国などではアーク溶接や注入口と蓋との接触面に大電流を流して溶着するアセット溶接が使われている。

放射線により発熱する固化体を、多数貯蔵保管する場合には、除熱冷却を行う必要がある。これはガラスが高い温度（ガラス固化体の場合は約500℃程度以上）に保持され続けると、ガラス構造の変化が起こり、部分的に結晶が発生し固化体の性質が変化することが考えられるからである。

TVFにおいては、冷却ピット（孔）にキャニスタを数個たて積みし、強制的に空気を送り冷却している。他の施設でもそれぞれキャニスタの貯蔵密度、空冷方法など冷却能力に配慮した設計上の工夫がなされている⁷⁾。

オフガス処理工程

ガラス固化プロセスで発生する排気（オフガス）としては、高レベル廃液をガラス原料とともに溶融する

際にガラス溶融炉から発生するものが主要なものであり、放射能レベルや温度、化学成分などにも特徴がある。その他には、前処理工程で廃液を濃縮の際に発生するガスや、貯蔵、保管庫の換気によるものがある。

ここでは、ガラス固化に特有のガラス溶融炉オフガスの処理に絞って紹介する。

ガラス溶融炉から発生するオフガスは、高レベル廃液に含まれていた放射性物質、酸、及び水分等や供給したガラス原料が、1000℃以上の高温で溶融する際に発生するものである。従って、このオフガスは、放射性物質を含むミストや粉塵、揮発性放射性物質及びNO_x等を含む約200～500℃の混合気体である。オフガス処理工程では、このオフガスから核分裂生成物やNO_x等を、水による洗浄、フィルタによるろ過、それに吸着剤による吸着等の処理により、環境に放出しても全く問題ない程度まで除去する。オフガス処理を行うに当たっては、そのオフガスの成分、粉塵の粒径分布や放射性物質の挙動を調べ、効率良く除去する方法を開発しなければならない。

動燃事業団ではガラス固化プロセスの開発に当たり、高レベル廃液と同じ化学組成の模擬廃液を、実際のプラントと同じ運転条件でガラス溶融炉へ供給し、発生するオフガスの性質を調べたり、処理工程でのオフガス中の各成分の除去率を明らかにするとともに、放射性物質を用いた試験も行ってきた。これらの試験の結果、TVFのオフガス処理工程ではオフガス中のミスト及び粉塵は、スクラップ、ベンチュリスクラップ、吸収塔、デミスタ及び高性能フィルタで除去し、揮発性のルテニウムは、スクラップ、吸収塔、及びルテニウム吸着塔で、また、NO_xは主に吸収塔で、各々除去される。

ガラス固化のオフガス処理工程の構成で特徴的なことは、サブミクロン粒子や揮発性ルテニウムを除去するために、高性能の機器が導入されていることである。粒径が1ミクロン以下のサブミクロン粒子は、オフガス中に存在する割合が多く、また、洗浄だけでは除去が難しいため、ガラス繊維フィルタを用いたデミスタによって除去している。

また、高温の溶融工程で発生する揮発性ルテニウムは、放射性であり、加えて化学挙動が複雑であるため、特にその除去性能に注目して重点的に研究を行った。その結果TVFではNO_xを含み温度の高いガス中で酸化、ニトロシル化したルテニウムを洗浄・冷却による吸収除去とシリカゲルによる吸着除去を組み合わせる

方法を採用した⁸⁾。

2.4 ガラス固化体の特性

ガラス固化処理を行うことによって、高レベル廃液中に存在した放射性物質は網目状のガラス構造の中に固定される。ガラス固化体は、製造された後放射性物質の放射能が減衰するまで30年～50年程度、監視しながら貯蔵されたのち、深い安定な地層中に適切な安全対策を施して隔離（処分）されることになっている。

このように、固化体の製造後も長期間放射性物質を固定化するために、ガラス固化体の物理的・化学的性質とその変化の程度を知ることが重要である。

標準的なガラス固化体の物性値は、既に表1に示したが、その中で放射性物質を固定化する性能を示すめやすとして、一般に水に対する溶け出し（浸出率）をもとに評価を行っている。これは、ガラスの中の放射性元素が放出される過程として、長期間水と接触することにより、ガラスとともに放射性物質が溶出するという過程を想定していることによる。

通常感覚では、水槽やコップ、瓶に使われるようにガラスは水と触れて溶けてしまうという事は無い。しかし、厳密にはガラスを水と接触させておくと非常に微量であるがガラスの成分が水に溶け出す。ガラス固化体も同じような意味で殆ど溶けないが、長期間にわたって水に浸漬しておくとも微量の溶出がある。どのくらいの量が溶けるかは、ガラスの種類や水の条件（水質、溶存成分、温度）および試験法により異なる。通常の試験では、蒸留水を沸騰に近い温度条件にしてガラスを浸漬する加速試験で、ガラスの耐久性の比較や反応機構について研究を行っている。更に、より実際に固化体が置かれる条件に近づけて行く、何年にもわたる長期間の試験も行われている。但し、処分後何万年にもわたる変化を直接的な手段で検べることは出来ないため、長期安定性についての一つの推定手段として、地層中で似たような環境に置かれた火山起源の天然ガラスの長期間の変化を調査する方法もとられている。現在までの研究では、200万年前に生成した粘土中にあった天然ガラスの表面の変化が、数ミクロン以下であるとの結果がある⁹⁾。

また、近年地層処分のための研究が進み、深部の地下水は酸素や炭酸ガスの含有率が低いことが見出されている。かような地下水に対して、ガラスの溶出がどう影響されるかを、実験的に地下と同様の環境をつくり試験している。

ガラスにはいろいろな成分が含まれているが、それら

の成分が全て同じように溶け出すわけではない。例えば廃棄物に含まれる希土類成分、ウラン・プルトニウムなどアクチノイドと呼ばれる成分は溶出しにくい成分であり、一方ナトリウムやセシウムのように比較的溶出しやすい成分もあり、各成分が実際に処分された地下の環境でどのように挙動するかを明らかにすることが、現在大きな研究テーマとなっている¹⁰⁾。

また、ガラス固化体は前述のように自ら発熱する。ガラスへの熱や放射線の影響として一般に知られているのは、ガラスの構造をつくる原子がその影響を受けて動き、ガラスの内部に特定の原子の集った部分を形成したり、あるいは原子同志の結合を切って別の場所にはじき出されたりする現象である。これらの原子レベルのミクロな影響が多数重なると、より大きな結晶の生成や体積の変化等のマクロな影響を引き起こすことも考えられる。このようにガラスが変化した場合、浸出率にどの程度の影響があるかについても多くの研究が行われている¹¹⁾。

熱の影響については、実験的に電気炉でガラスの温度を数百度以上の温度に保ち結晶の生成を促進させ浸出率の変化の程度を測定した。この結果結晶の生成によって、最高5倍程度浸出率が変化することもあるが、より詳細に元素ごとの浸出を求めてみると殆ど変化の無いものや逆に浸出が少なくなるものもある。ガラス固化体は、冷却して熱の影響を受けないようにするが、もし結晶の生成等があっても、放射性物質を固定化する性能に大きな変化は無いと考えられている。

またガラス固化体は、放射性物質の放出する各種の放射線にさらされることになる。これらの影響を評価するため模擬のガラス固化体に対し、 α 線、 β 線、 γ 線、中性子を照射したり、放射性物質を固化体中に実際よりも多量に溶解したりする方法で、何千年間にもわたる照射量をより短期間で得る試験（加速試験）が行われている。

これらの照射による固化体への影響の程度も、浸出率を指標に評価が行われており、その変化は元の値と同程度から数倍程度とされ、大きな影響では無いと評価されている¹⁰⁾。

3. ガラス固化技術の高度化

高レベル放射性廃液を固化する方法として選択されたホウケイ酸ガラスは、地下水に著しく難溶性でありこれは地層処分の安全性にとって極めて好ましい特性の一つである。但し、より耐久性に優れ、減容性の高

い固化体の開発を目指した研究も続けられている。

低アルカリガラスや鉛リン酸ガラスなどのガラスや、各種の鉱物を人工的に生成させ放射性元素を鉱物結晶の成分として固定してしまう方法等である。

いずれも、理想的に固化体が生成されれば、優れた特性を持つと考えられるが、高レベル廃液の元素組成の変動に対する裕度や、現状よりも複雑で高度なプロセス技術を必要とすることなどまだ開発課題が残されている。一方、近年進捗しつつある地層処分研究の技術情報を固化処理技術にフィードバックすることが可能になってきており、その結果、処理処分の全期間を通じて一層優れた性能を持つガラス固化体の開発が進められることになるものと考えている。

例えば、固化プロセスの中心となる熔融技術に関しては、耐用年数がきた熔融炉の交換に伴う廃棄物発生量を低減するため、

a) より小型軽量で且つ十分な熔融処理能力を持つようにする

b) より運転寿命を長くすることを目標としている。

a) に関しては、熔融炉の側面全体を一方の電極とし、炉の中央に入れた電極との間に通電加熱し発熱効率を高めた直接通電方式や、補助的な加熱を併用し、例えば家庭で使われる電子レンジと同じ原理のマイクロ波を、直接通電と併用して能力を高める方法についても試験を実施して来ている。

b) の運転寿命の延長の課題は、高温で熔融するガラスと接する熔融炉材料が徐々に損耗して使えなくなるまでの期間を出来るだけ延ばして、放射能を含むガラスで汚染された炉すなわち、二次的に発生する廃棄物である廃炉の数を減らすことである。このため耐火レンガや耐熱合金などの、より良い材料の開発も進められている⁶⁾。

一方、ガラスの性能を損わず廃棄物成分を一層多く含有させることのできるガラスの開発も動燃事業団で着手されている。

また、より先進的な熔融技術の検討も進められている。その一つとして、金属の熔融容器兼高周波加熱コイルに冷却剤を通しながら、内部にあるガラス等の熔融物に直接磁場をかけ励起して加熱するコールドクルーシブル法が仏や動燃事業団で検討されている¹²⁾。

4. おわりに

高レベル放射性廃液のガラス固化処理技術は、世界

の原子力開発利用国において、1970年～80年代にかけて精力的に技術開発が行われた結果、現在プラント規模の技術実証が行われる段階に至っている。我国においても、十数年の技術開発の成果を集大成し、TVFにおける固化処理の開始が真近に迫っている。更に、ガラス固化された廃棄物は、深地層に隔離（処分）するという管理シナリオに沿って、その技術的裏付けとなる各種データが整えられつつある。ホウケイ酸ガラスによる固化処理はこのような処理処分の管理シナリオの中で、十分な安全性を確保できる技術として推進されているものである。

今後の展開としては、プラント規模の運転技術の実証と並行して、次世代のプロセスの開発に不断の努力が続けられるものと考えられる。

参 考 文 献

- 1) 例えば、国際会議報文集, 1989 Joint International Waste Management Conference, ASME (1989京都), The Third International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management "RECOD'91", 原産会議主催 (1991仙台)
- 2) Hench L.L. et al., ; Nuclear and Chemical Waste Management 5 (1984)
- 3) Mellinger G.B. (Ed), Ceramic Transactions Vol. 9, Nuclear Waste Management - III Sec. - 1 Ceramic Waste Forms, American Ceramic Society (1990)
- 4) IAEA ; Technical Report Series No.257, Chemical Durability and Related Properties of Solidified High Level Waste Forms (1985)
- 5) Moncouyoux J.P. et al., ; Present Status of the French Continuous Fission Product Vitrification Process, Advances in Ceramics Vol.20 : Nuclear Waste Management II, American Ceramic Society (1986)
- 6) Torata S. et al., ; 動燃事業団公開資料PNC-TN 8440 88-016 "Development of Glass Melter for the PNC Tokai Vitrification Facility" (1988)
- 7) IAEA, Technical Report Series No.229, Handling and Storage of Conditioned High-Level Wastes (1983)
- 8) Yoshioka M. et al., ; "Glass Melter and Process Development for the PNC Tokai Vitrification Facility" Proceedings of the 1989 Joint International Waste Management Conference Vol. 2 p13~19
- 9) 亀井他, 日本原子力学会 1991秋の大会 予稿集, p591
- 10) 地層処分研究開発の現状 (平成元年度), 動燃事業団公開資料PNC TN1410 91-009, (1991)
- 11) IAEA ; Technical Report Series No. 187, Characteristics of Solidified High-Level Waste Products (1979)
- 12) Moncouyoux J.P. et al., ; "New Vitrification Techniques" Proceedings of the Third International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management "RECOD'91" p307~311, (1991)