

実践講座 II

ガラス固化体の性能評価

九州大学 稲垣 八穂広

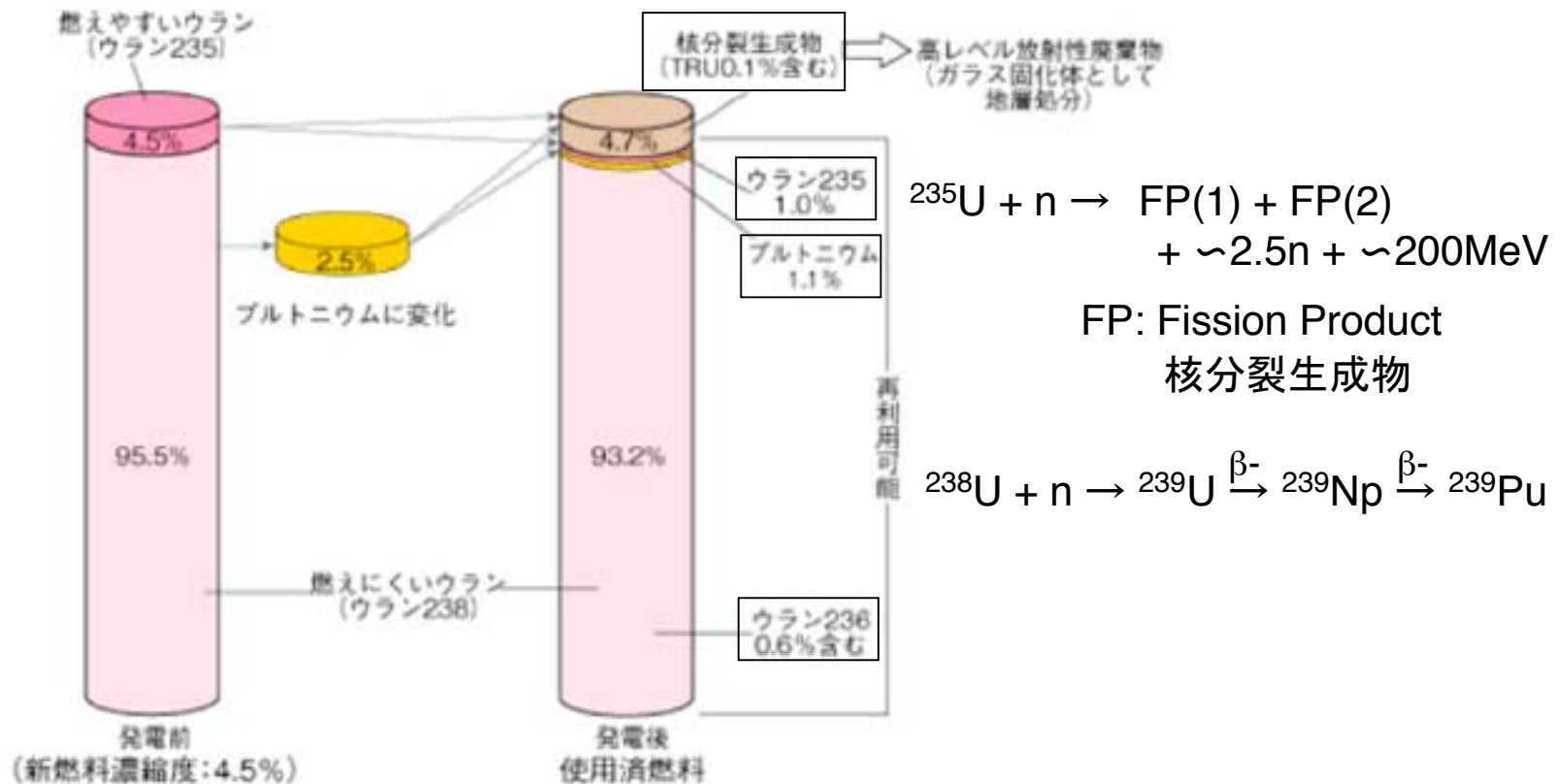
バックエンド週末基礎講座 2010.10.30-31 福井大学

- 1. はじめに — ガラス固化体とは？**
- 2. ガラス固化体の開発と性能評価の歴史**
- 3. 日本の現状と今後の課題**

はじめに ガラス固化体とは？ ①使用済燃料

軽水炉内でのウラン燃料の燃焼による変化

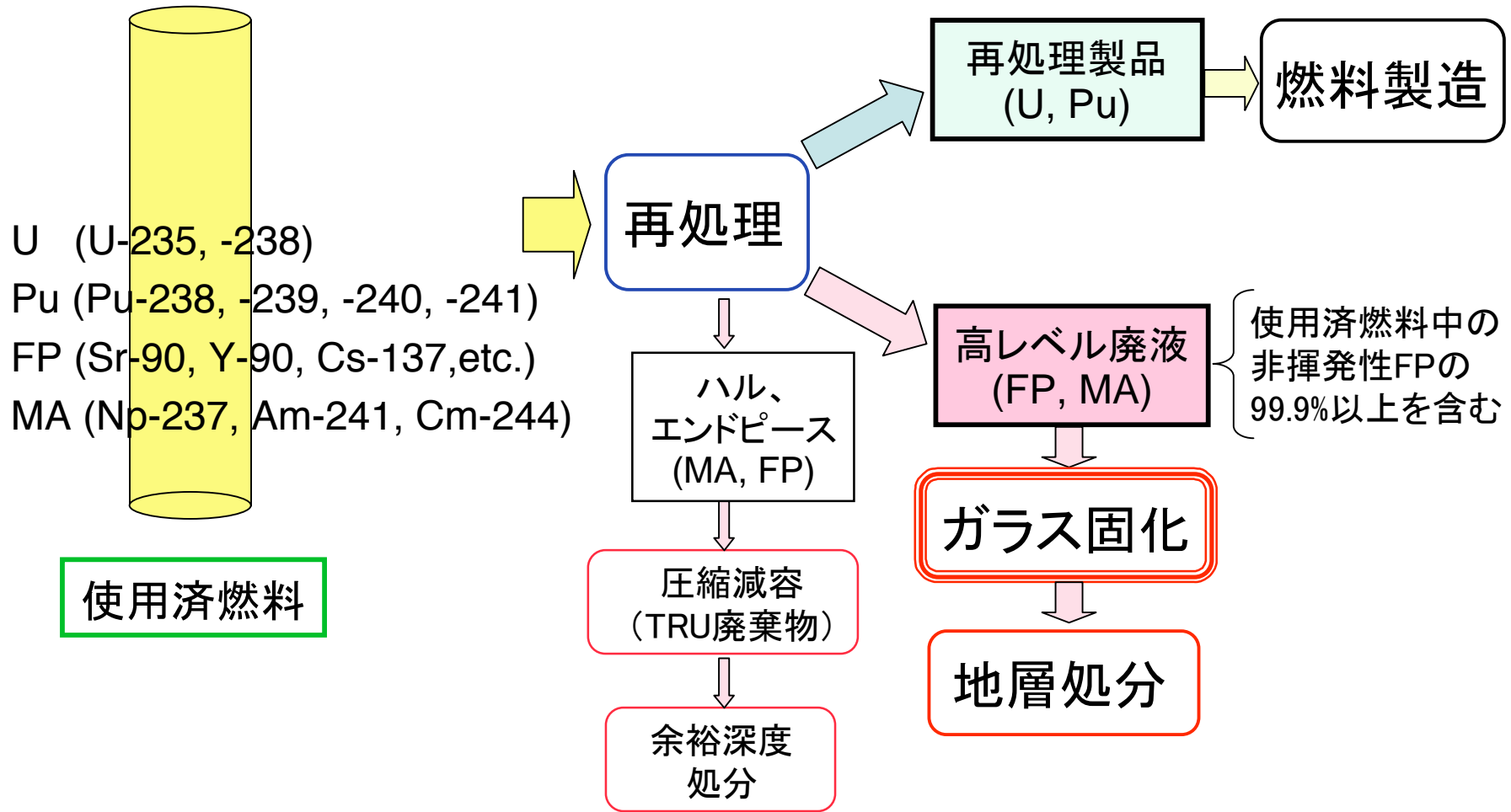
〈エネルギー生産量：燃焼度(平均)45,000MWD/tUの場合〉



使用済燃料の組成

「原子力・エネルギー」図面集 2010

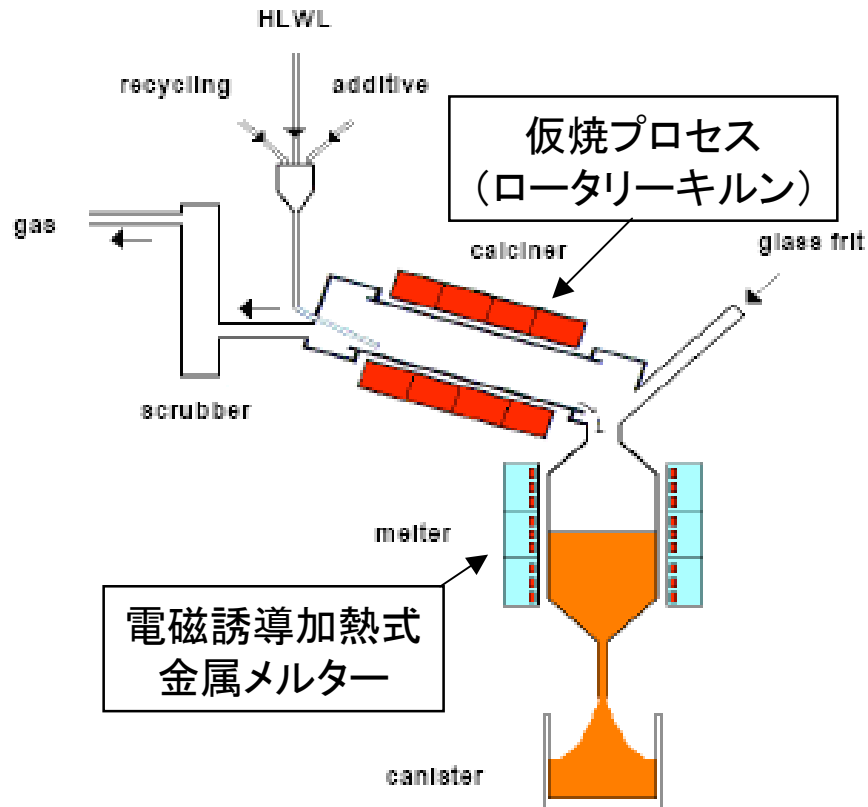
ガラス固化体とは？ ②高レベル廃液



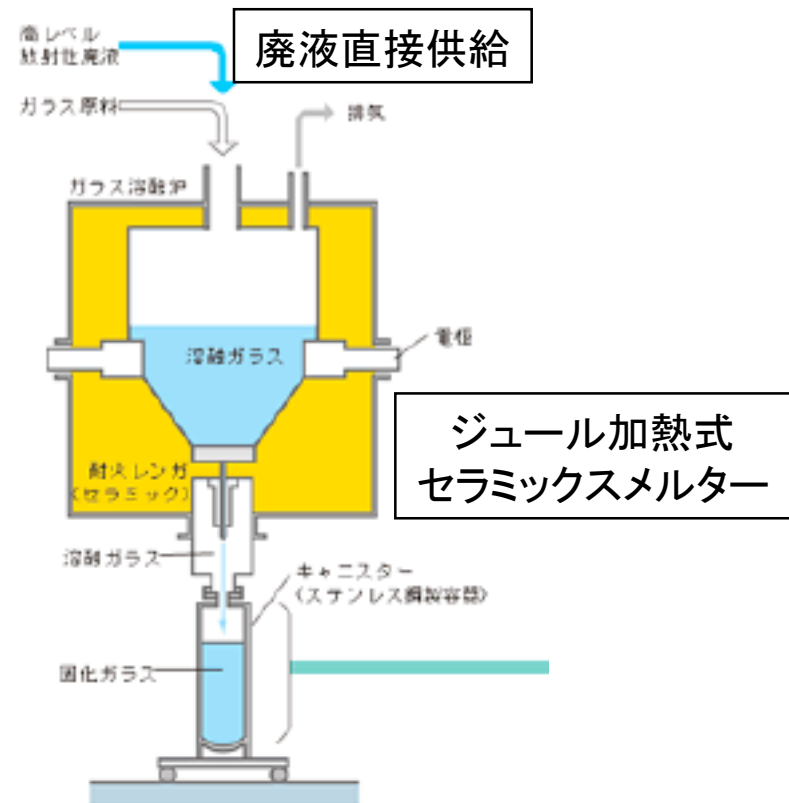
高レベル廃液の安定固化

ガラス固化体とは？ ③ガラス製造法

AVM(Atelier Vitrification de Marcoule)法
(フランス)



LFCM(Liquid Fed Ceramic Melter)法
(日本)



2. ガラス固化体の開発と性能評価の歴史

(1) ～'80年頃 高レベル廃液固化方法の選定

ホウケイ酸ガラス、高シリカガラス、シンロック、セラミクス、コンクリート、ガラス／金属複合体、etc …、製造方法

(2) '80～'90年頃 ガラス固化体基本特性の評価

化学的耐久性、照射効果、評価試験標準化、溶解機構／モデル化、Wallace-Wicksモデル、水和エネルギーモデル、Grambowモデル

(3) '90～'00年頃 ガラス固化体長期性能の評価

長期溶解／核種浸出機構、拡散律速モデル、ナチュラルアナログ、処分環境条件依存性、性能評価モデル、地層処分性能評価への適用

(4) '00年頃～ ガラス固化体性能評価の信頼性向上

長期現象の基礎科学的理解、様々な観点からの評価、現象理解⇔性能評価の整合、各国の処分環境に基づく性能評価、核種の実際の析出／鋳物化、ガラス組成／製造法の改良、新型固化体

(1) 高レベル廃液固化方法の選定（～'80年頃）

ホウケイ酸ガラス、高シリカガラス、シンロック、
セラミクス、コンクリート、ガラス／金属複合体、etc ...
製造方法

高レベル廃液 — 安定固化の必要性

高レベル廃液（硝酸廃液）

- ・ 飛散、分散し易い
- ・ 収納容器を腐食
- ・ 漏洩、散逸の危険性大

長期の保管管理：
危険、不合理

化学的に安定な
固化媒体中への
固化が必要

選定の評価対象となった固化体の種類 (DOE 1982)

- (1) ホウケイ酸ガラス (Borosilicate glass: BSG)
- (2) 高シリカガラス (High-silica glass: HSG)
- (3) シンロック (Synroc: SYN)
- (4) 高温高圧コンクリート (FUETAP concrete: FUE)
- (5) セラミックス (Tailored ceramics: TC)
- (6) ガラス／金属 (Glass marbles in lead matrix: Pb-M)
- (7) 被覆ゾルゲル粒子 (Coated sol-gel particles: CP)

固化体の総合性能評価

固化体総合性能の評価項目と重み付け (DOE 1982)

固化体性能 (Product performance)

廃棄物含有量 : 45%
(Waste loading)

耐衝撃性 : 15%
(Mechanical stability)

浸出特性 : 40%
(Leaching)

製造容易性 (Process factor)

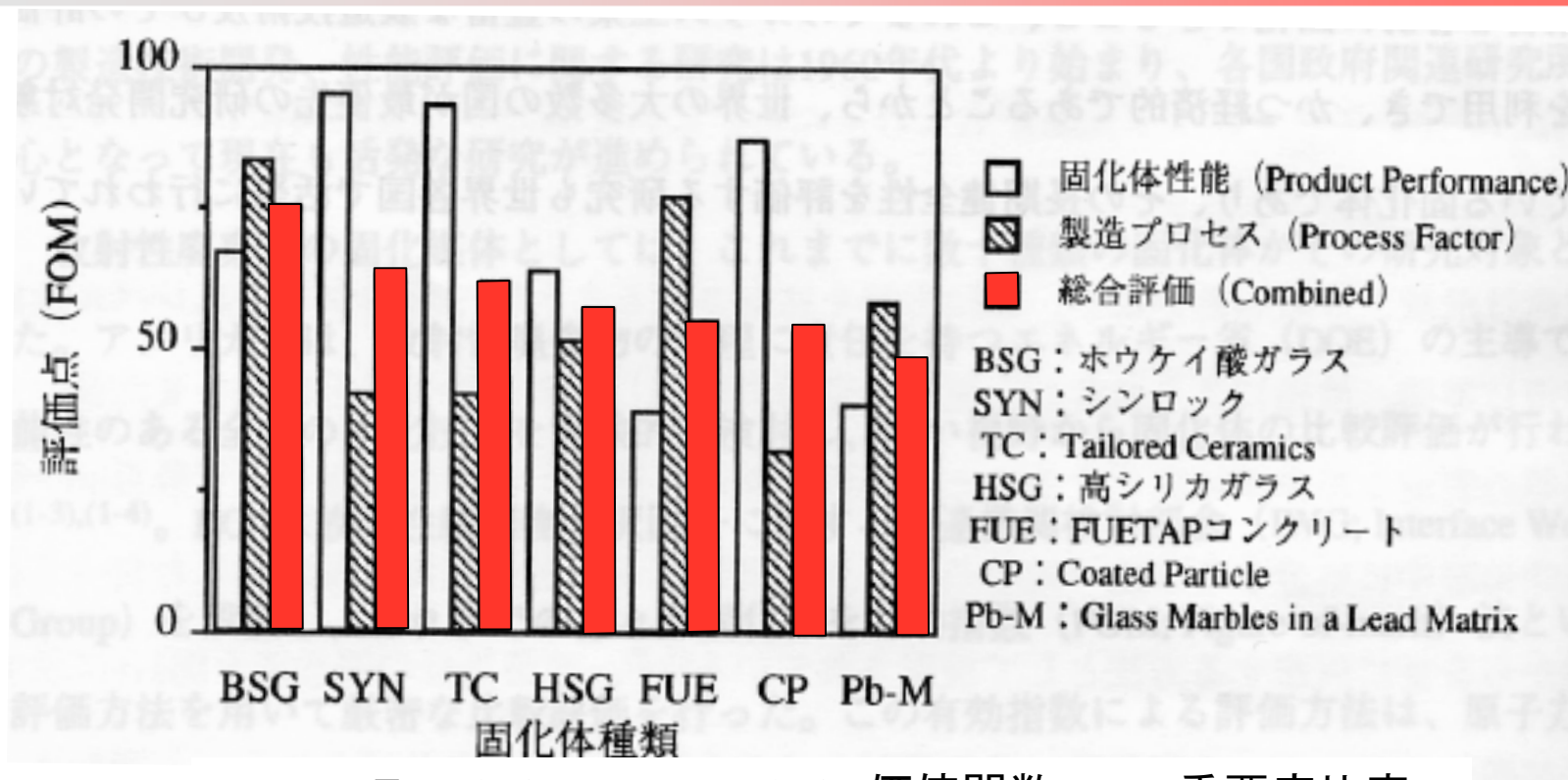
操作の簡易性信頼性 : 40%
(Complexity-reliability)

作業員の安全性 : 20%
(Personal safety)

品質管理 / 品質保証 : 15%
(Quality control & assurance)

経済性 : 25%
(Resource requirement)

固化体の総合性能評価



$$FOM = \sum [V(P_i) W_i] \quad V(P_i) : \text{価値関数}, W_i : \text{重要度比率}$$

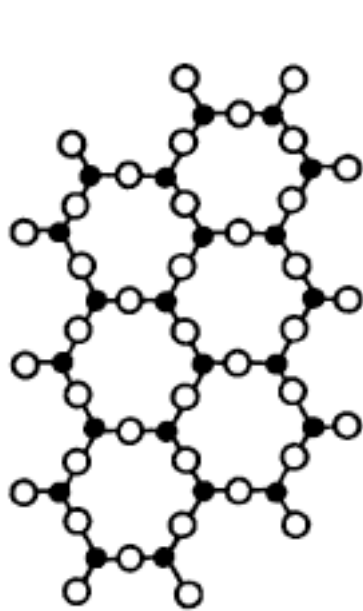
階層分枝体系 (hierarchy) に基づく、有効指数 (Figure-of-merit) による
固化体性能評価結果 (DOE 1982)

- ・ ホウケイ酸ガラスによる固化: 総合性能が最も高い。
- ・ 性能評価は、各国／各年代により異なる。

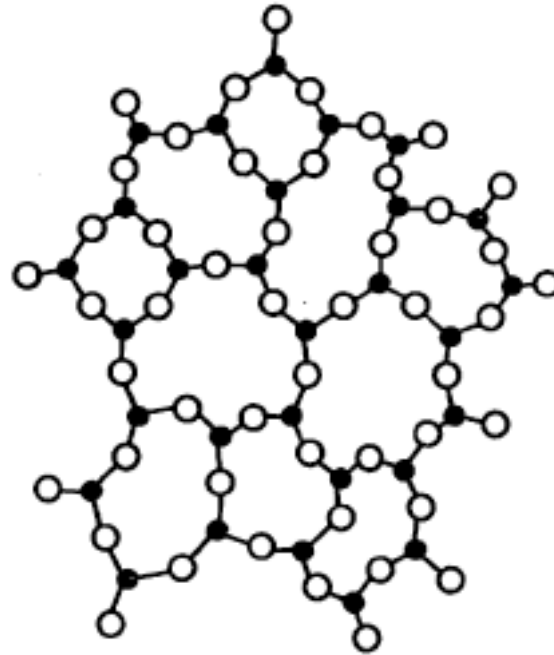
ガラス固化体の構造

二次元構造モデル

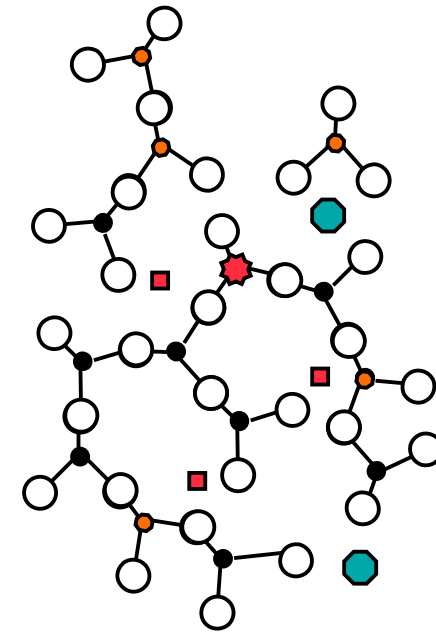
- Si(IV)
- ○
- Na, Li, Ca, Sr, ..(+I, +II)
- B, Al, ..(+III)
- ★ Actinides(+III, +IV)
- Other elements



石英(SiO_2 結晶)



石英ガラス(SiO_2 非晶質)



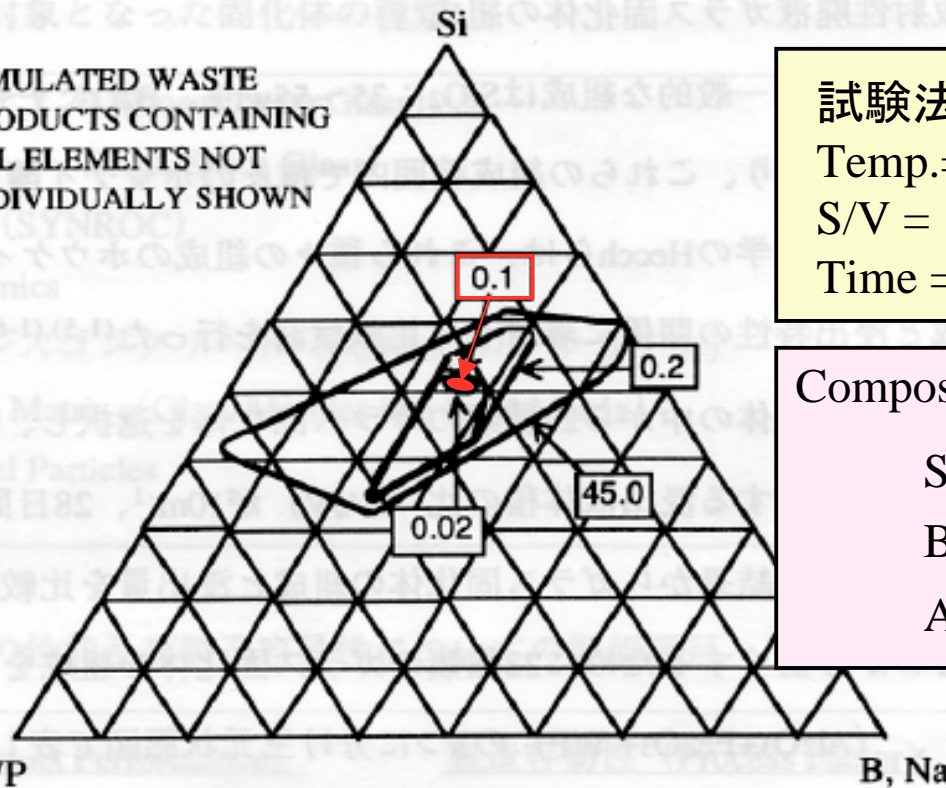
ガラス固化体(ホウケイ酸ガラス)

ガラスの正確な構造はまだ充分に分かっていない。

ホウケイ酸ガラスは、多種多様な元素を広く固溶できる

ガラス固化体の浸出特性評価

WP= SIMULATED WASTE
PRODUCTS CONTAINING
ALL ELEMENTS NOT
INDIVIDUALLY SHOWN



試験法: MCC-1
Temp. = 90°C
S/V = 10 m⁻¹
Time = 28 days

Composition with leach rate < 0.1 g/m²/d

SiO₂: 51-53wt%

B₂O₃+Na₂O: 24-28wt%

Al₂O₃+ Fe₂O₃+WP: 21-25wt%

Glass Composition (weight %) for
Glasses with Leach Rates at 28 Days of
not More Than : 45.0, 0.2, 0.1, 0.02 g / m²
/ day for Element Si at a Temperature of
90 °C and SA/V of 10m⁻¹

ガラス固化体浸出特性の3元状態図 (Hench 1983)

ガラス組成は初期溶解速度 (SiO₂) から評価された。

(1) 高レベル廃液固化方法の選定（～'80年頃）

まとめ

- ・ 高レベル廃液（商用／軍事）を迅速かつ合理的に安定固化することが最重要課題であった。
- ・ 多くの国でホウケイ酸ガラスによる固化が選択されたが、固化方法／条件は、各国の状況により異なる。
- ・ 次段階の課題として、処分地の安全性／合理性に関する具体的評価の必要性が示された。

(2) ガラス固化体基本特性の評価（'80～'90年頃）

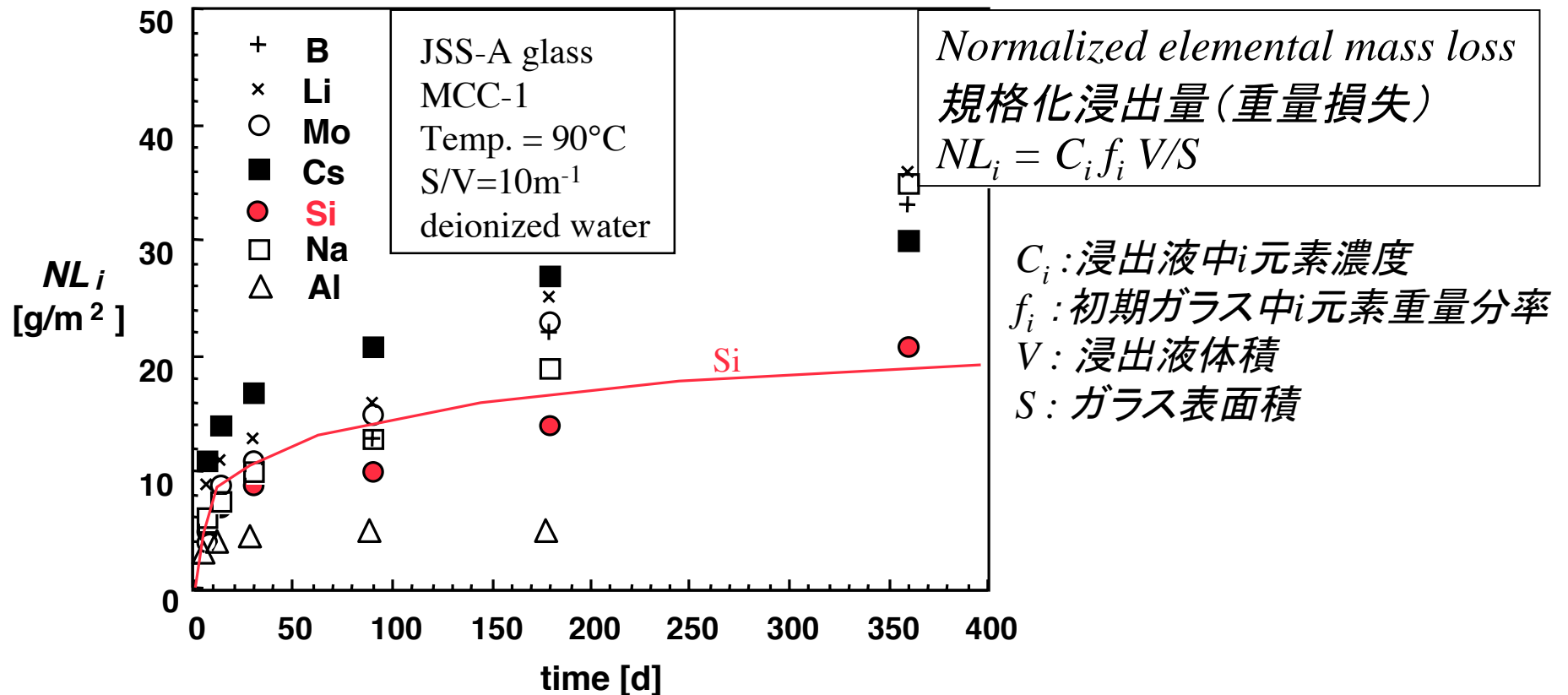
化学的耐久性、照射効果、評価試験標準化、非調和溶解、
溶解機構／モデル化、平衡論／速度論、Wallace-Wicksモデル、
水和エネルギーモデル、Grambowモデル

標準的なガラス固化体試験方法

名称	MCC-1, MCC-2	MCC-3	MCC-4	MCC-5	VHT
特徴	溶液の交換無し	浸出系の攪拌	低速流	Soxhlet	高温高圧水蒸気
浸出液	高純度水, 塩水 処分場の水, ケイ酸水	同左	同左	同左	同左
試験温度	MCC-1: 40,70,90℃ MCC-2: 110,150,190℃	任意	40, 70, 90℃	>100℃	150-300℃
試料形状	バルク 表面積400mm ²	粉末	バルク 表面積400mm ²	バルク 表面積400mm ²	バルク、粉末
流速攪拌	無し	攪拌振とう 12±2回/min	流速: 0.1,0.01,0.001 ml / min	流速: 1±0.2 ml / min	無し
浸出液交換	無し	無し	無し	無し	無し
主な目的	規格化浸出量測定	浸出液 飽和濃度測定	浸出速度の温度、 流速依存性測定	反応加速	反応加速 二次鉱物生成

- ・各研究機関で異なる試験方法 → 標準的試験法を提案(MCC)
- ・MCCは各研究機関データの相互比較のための標準であり、性能評価の絶対的な基準ではない。
→ 目的、条件により各機関独自の方法の開発を継続

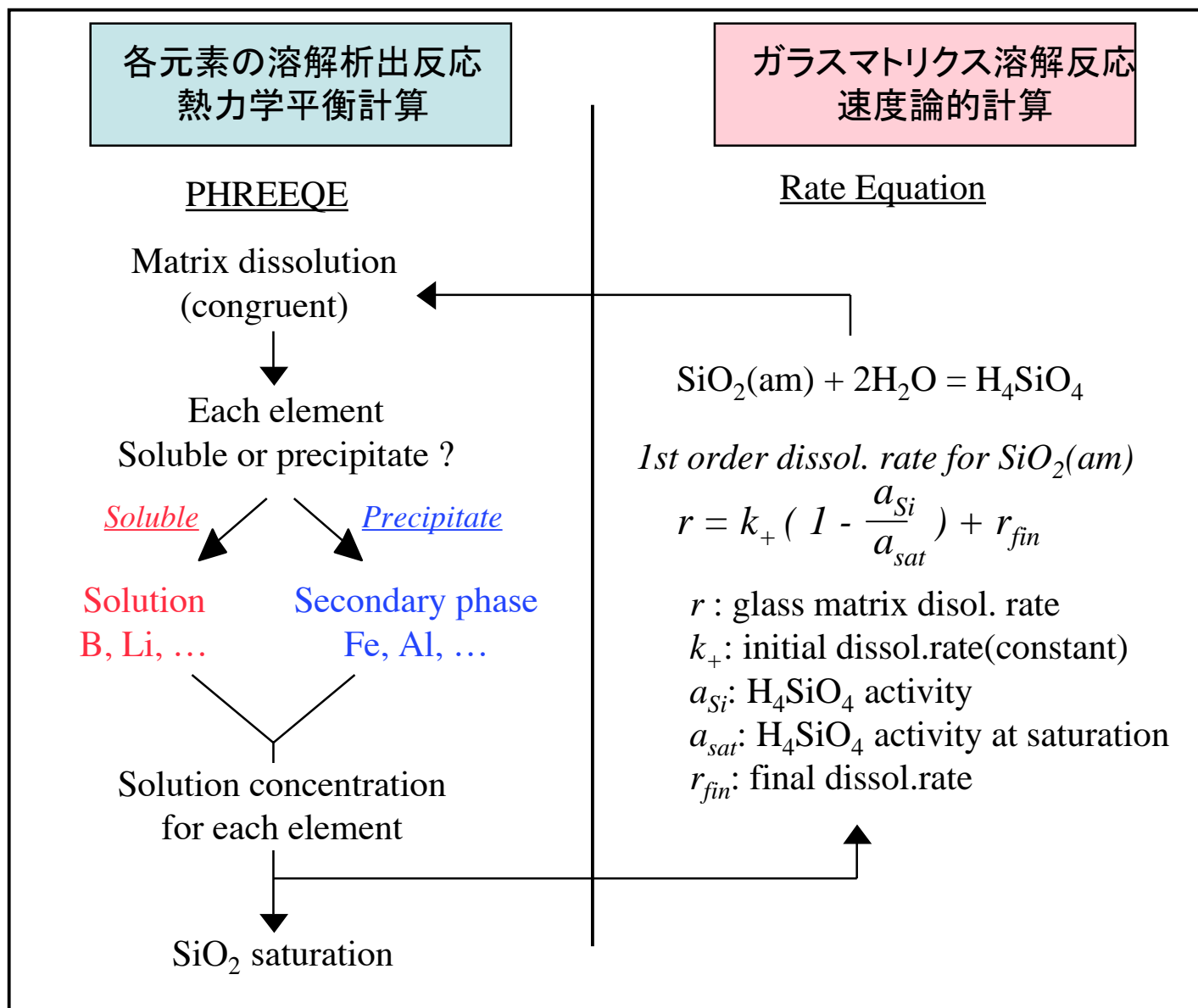
ガラス固化体の非調和溶解



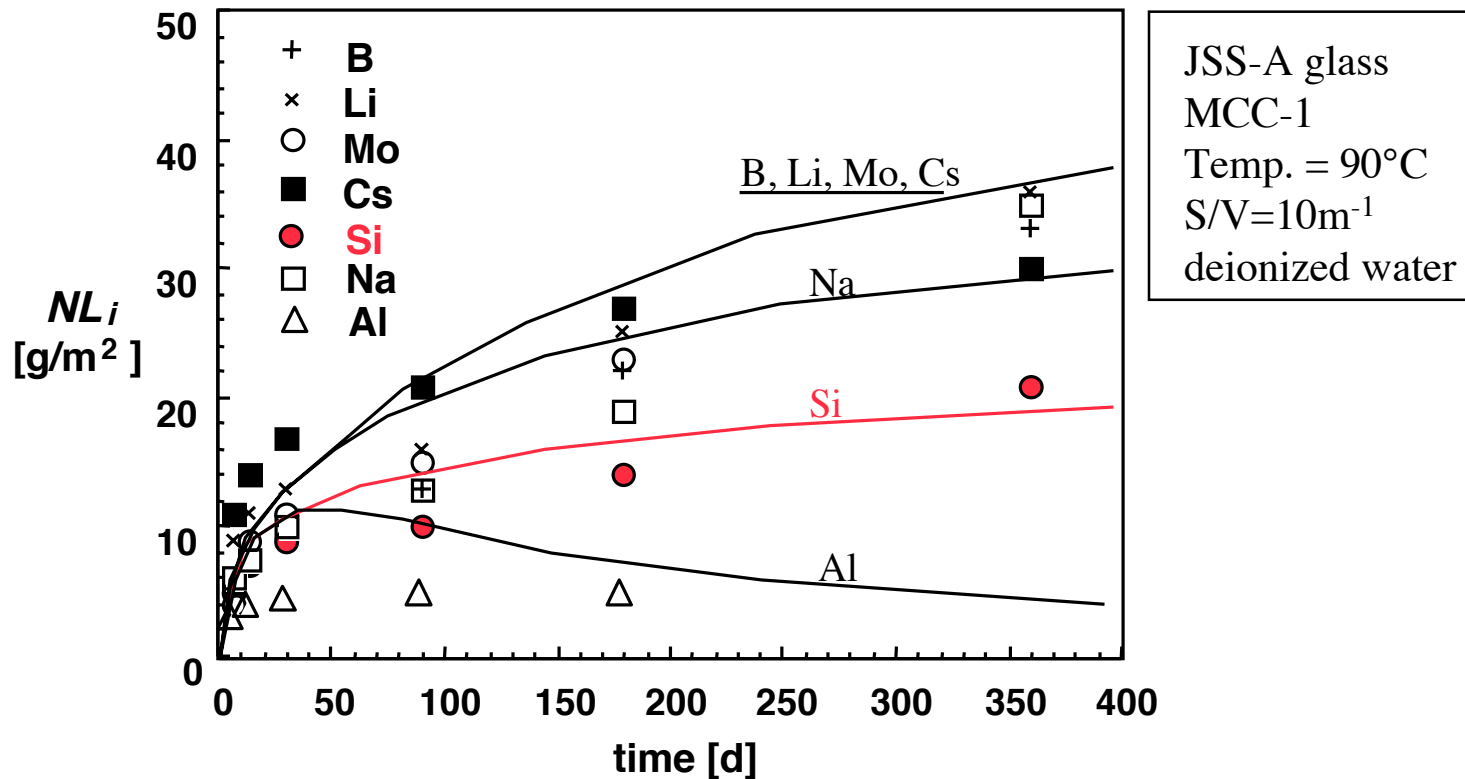
ガラス固化体の非調和溶解 (JSS Project Phase IV, 1987)

各元素の溶解挙動: 溶解進行とともに大きく異なってくる。
【非調和溶解】→現象の基礎科学的理解とモデル化が必要。

溶解モデル — Grambow's reaction path model



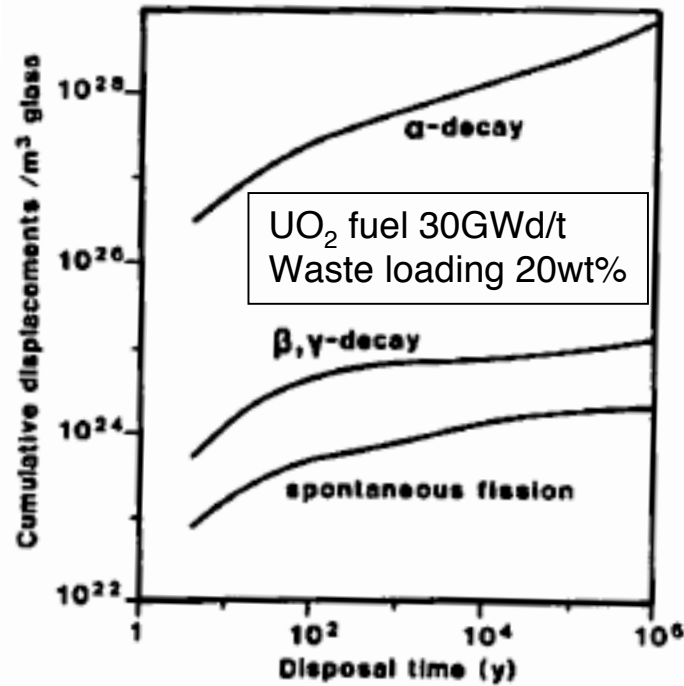
溶解モデル — Grambow's reaction path model



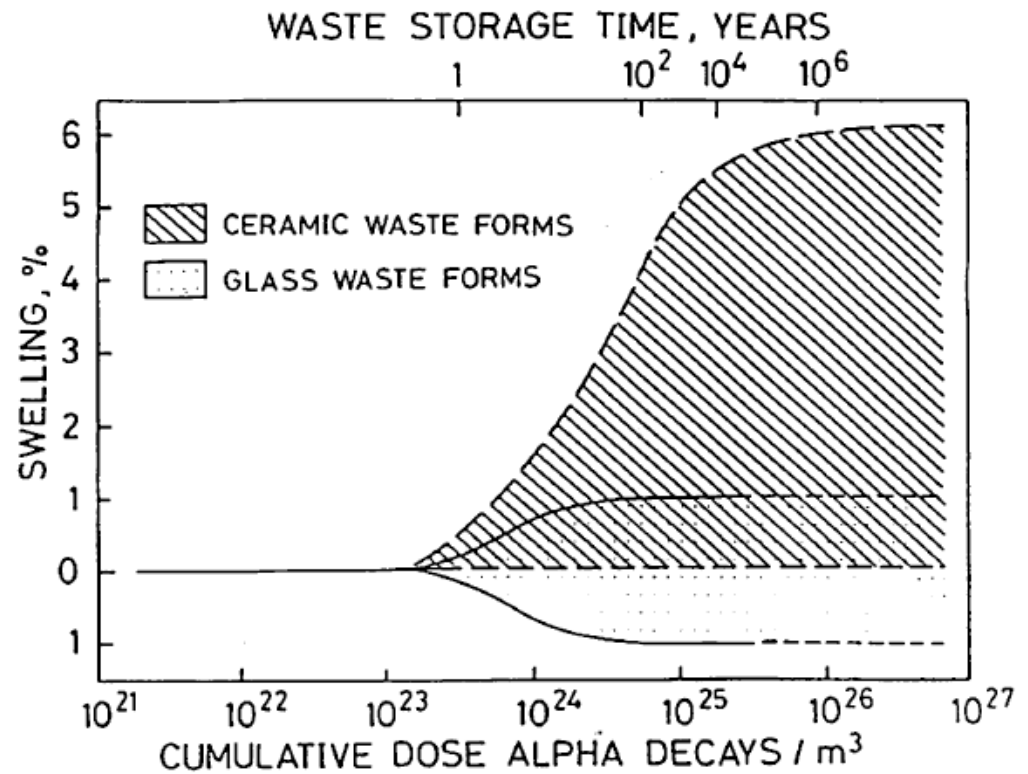
ガラス固化体の非調和溶解—Grambow model による解析結果
(JSS Project Phase IV, 1987)

Grambow model は、これまでの多くの試験結果を極めて良く説明できる画期的な評価モデルであった。(D. Strachan 談)

ガラス固化体の照射効果



Displacements in HLW glass per decay event
 α-decay: 130(α-particle)+ 2000(recoil nuclei)
 β-decay: 0.07



α崩壊による固化体の体積変化(Lutze, 1988)

各種照射によるガラス固化体のはじき出し原子数(Lutze, 1988)

- ・α崩壊(粒子、反跳核)による原子のはじき出し
⇒ 最も大きな照射効果
- ・ガラスはセラミクスに比較し照射効果が小さい

(2) ガラス固化体基本特性の評価（'80～'90年頃）

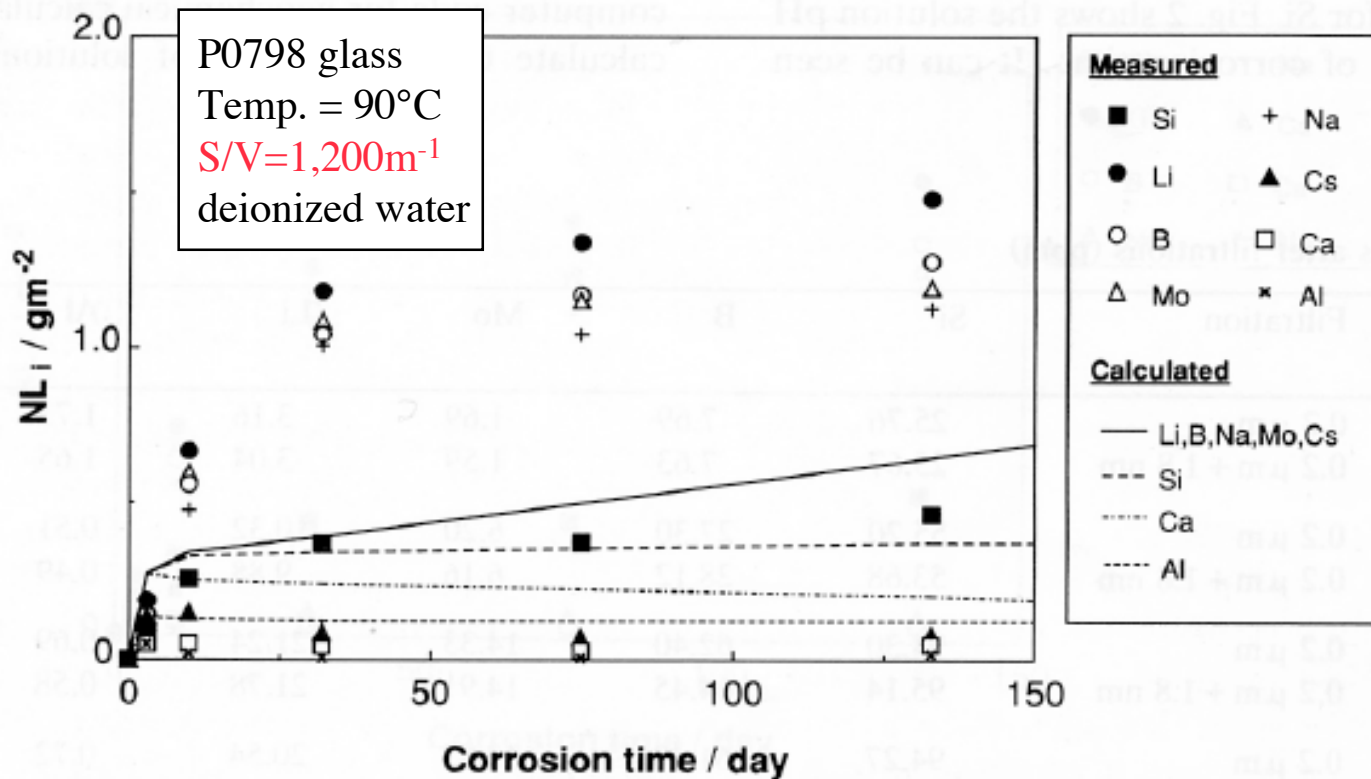
まとめ

- ・ 地層処分時の性能評価のための現象理解研究の実施。
- ・ *Grambow model*等によるガラス溶解現象理解の進展。
- ・ ガラス照射効果の評価。
- ・ 次段階の課題として、長期溶解現象の理解、実処分環境での性能評価、地層処分性能評価への適用の必要性が示された。

(3) ガラス固化体長期性能の評価（'90～'00年頃）

長期溶解／変質／核種浸出機構、溶解の速度論的評価、
拡散律速モデル、ナチュラルアナログ、
処分環境条件依存性、性能評価モデル、
地層処分性能評価への適用

ガラス長期溶解／変質挙動



高S/V条件

↓

溶液中Si濃度が
短期間で飽和

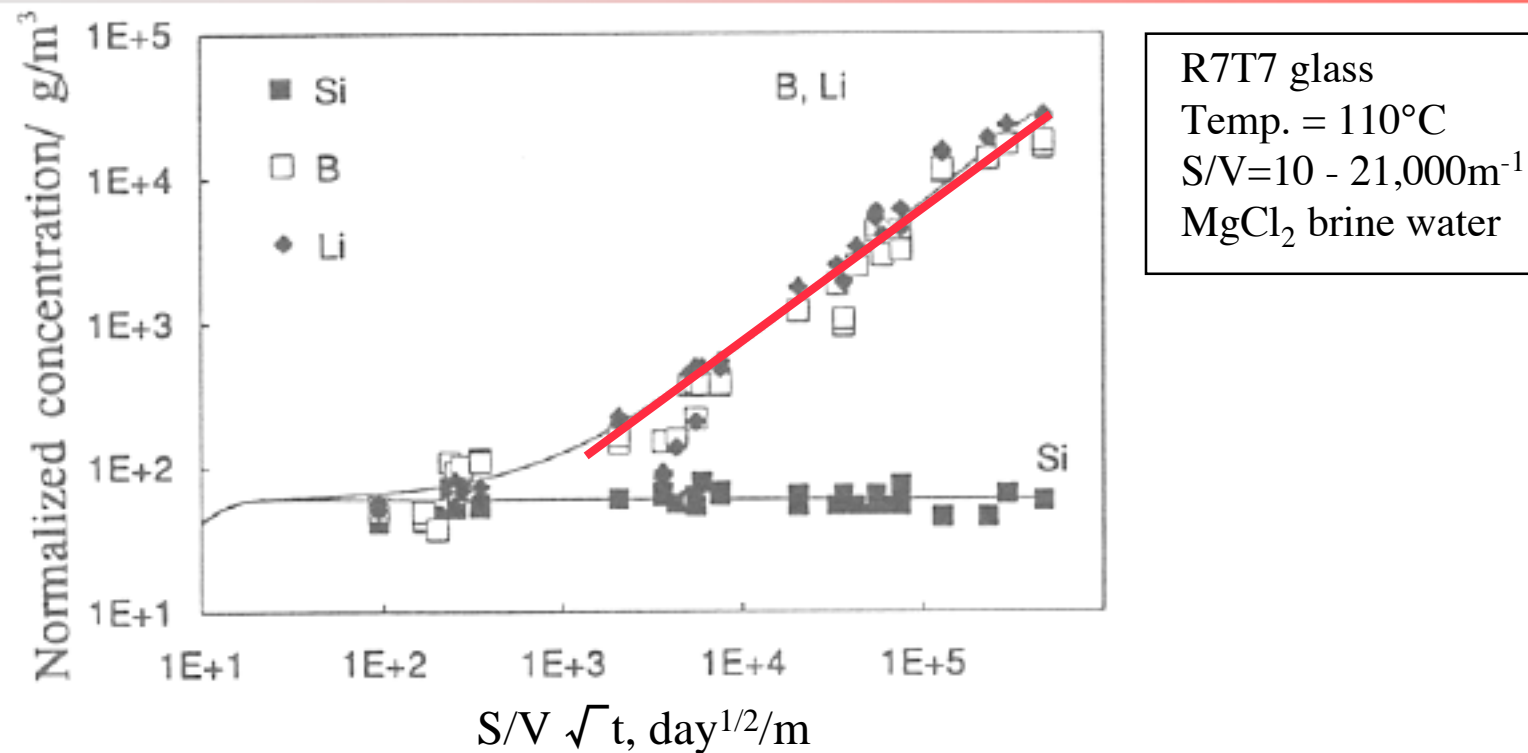
Si飽和後の挙動
が明確に分かる

高S/V条件でのガラス溶解とGrambowモデルとの比較(Inagaki, 1994)

反応を加速させるための高S/V条件での結果は、Grambowモデルのみでは説明できない。

→ 長期反応機構の基礎理解とモデル化が必要。

ガラス長期溶解／変質挙動



ガラス長期溶解／変質の \sqrt{t} 依存性 (Grambow, 1992)

長期溶解(高S/Vによる)は、 \sqrt{t} に比例して進行する。
→ 何らかの拡散過程が長期溶解を律速。
(ガラス表面相中の水または溶存シリカの拡散 ?)

ガラス溶解の速度論的評価 — ガラス溶解速度式

現在のガラス固化体の溶解速度評価式

$$\text{Rate [g/m}^2\text{/d]} = r_o \cdot 10^{\eta \cdot \text{pH}} \cdot \exp(-E_a/RT) \cdot [1 - (Q/K)] + r_f$$

初期溶解速度 pH依存性 温度依存性 化学親和力 残存溶解速度
(長期溶解速度)

r_o : 初期溶解速度 (固有速度定数、ガラス組成に依存) [g/m²/d]

η : 溶解のpH依存性係数

E_a : 活性化エネルギー [kJ/mol]

Q : イオン活量積 (Si or Si+Al)

K : ガラス溶解反応のみかけの平衡定数 (溶解度積) (Si or Si+Al+ etc.)

r_f : シリカ飽和後の残存溶解速度 [g/m²/d] (時間および環境条件依存性あり)

- ・ シリカー一次溶解則に基づく速度式。 $(\text{SiO}_2(am) + 2\text{H}_2\text{O} = \text{H}_4\text{SiO}_4)$
- ・ 環境因子パラメタ(η , E_a , etc...)の測定評価。
- ・ 残存溶解速度 r_f の現象理解・環境依存性評価・モデル化が必要。
- ・ 各因子の重要度は各国の処分環境・条件によって異なる。

各国(EU、米)で研究開発プログラムが継続進行。

ガラス溶解の速度論的評価 — 新たな試験方法

これまでのガラス溶解／変質試験法

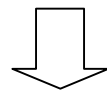
静的試験



ガラス

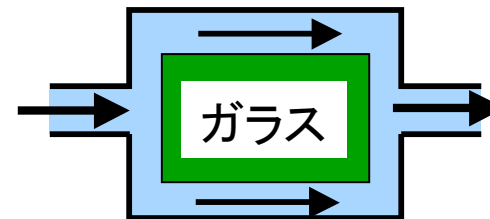
- ① 装置 簡易
- ② 温度 低～高
- ③ S/V 低～高

ガラス溶解



液性変化

流水試験



液性: 一定に保持

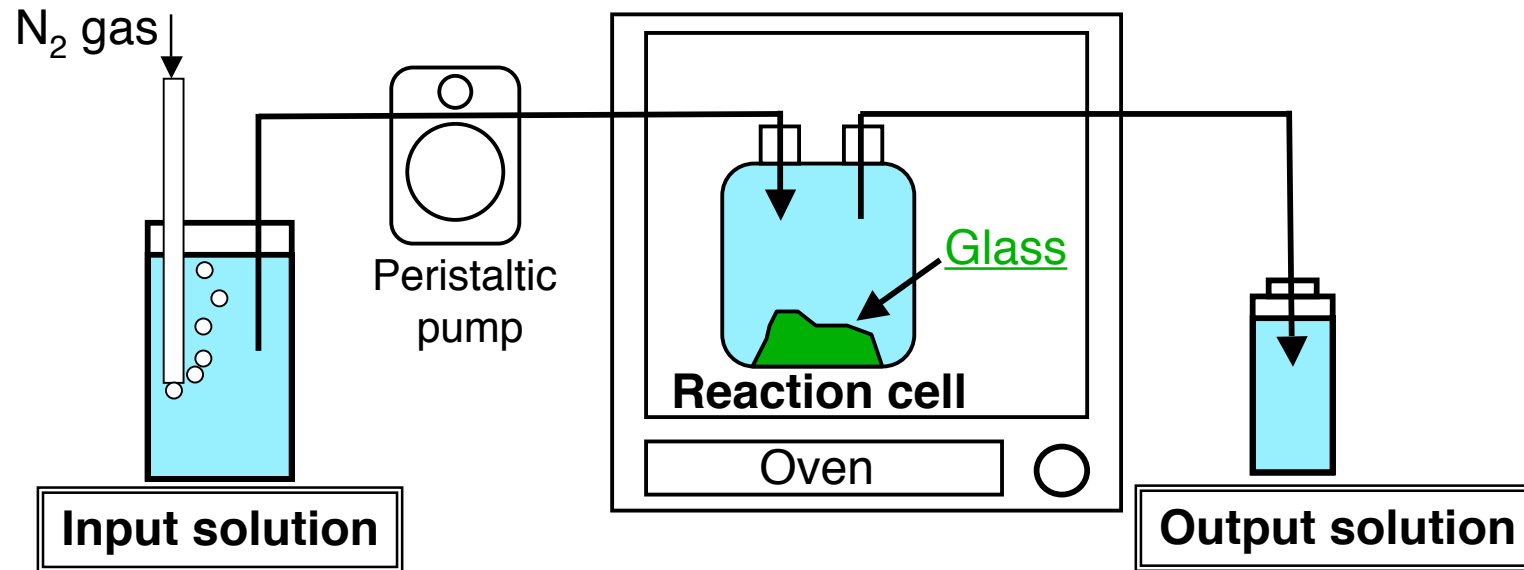
- ① 装置 複雑
- ② 温度 低
- ③ S/V 低

測定精度: 低
研究例少ない

ガラス溶解／変質挙動の液性依存性

- ◎ ガラス溶解／変質挙動は液性 (pH、組成) により大きく変化
⇒ **速度論的評価** には、任意の**液性一定条件** での評価が必要
- ◎ 液性依存性に関する実験データ (特に長期挙動) は極少ない
⇒ **試験手法の開発** および各種条件での**データ取得** が必要

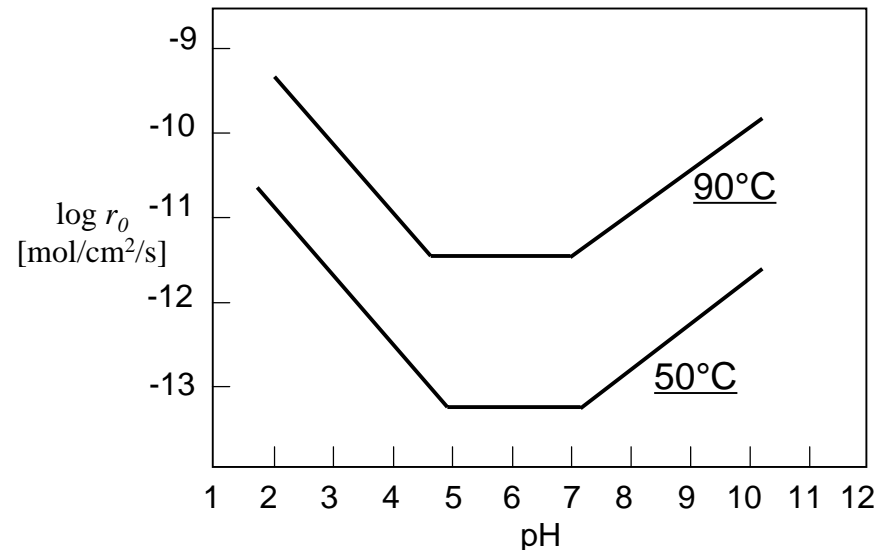
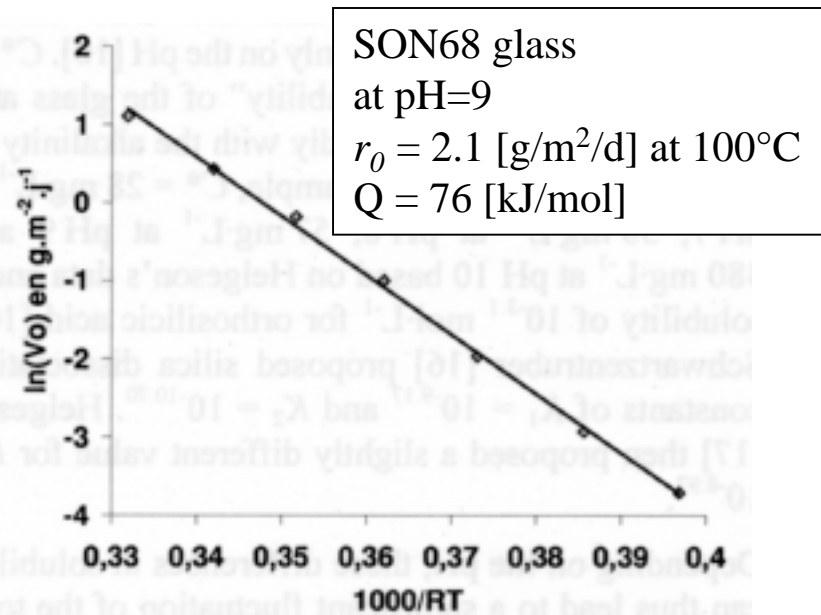
ガラス溶解の速度論的評価 — 新たな試験方法(流水試験)



シングルパス流水試験概要 (SPFT: Single-pass flow-through) (米国PNNL)

任意の液性条件でのガラス溶解挙動／速度評価が可能。
他の様々な方法(高S/N、流水試験等)による評価も継続。

ガラス溶解の速度論的評価 — 環境因子パラメタの評価



ガラス固化体溶解速度環境因子パラメタの評価（フランス SON68 glass）
（初期溶解速度（ r_0 ）の温度、pH依存性）(Advocat, 1991)

- ・ 仏国、米国、ベルギー等において、各国に必要な環境因子パラメタの基礎データ取得、評価が体系的に進められた。
- ・ 長期溶解速度の評価も鋭意進められたが、まだ結論出ず。

(3) ガラス固化体長期性能の評価（'90～'00年頃）

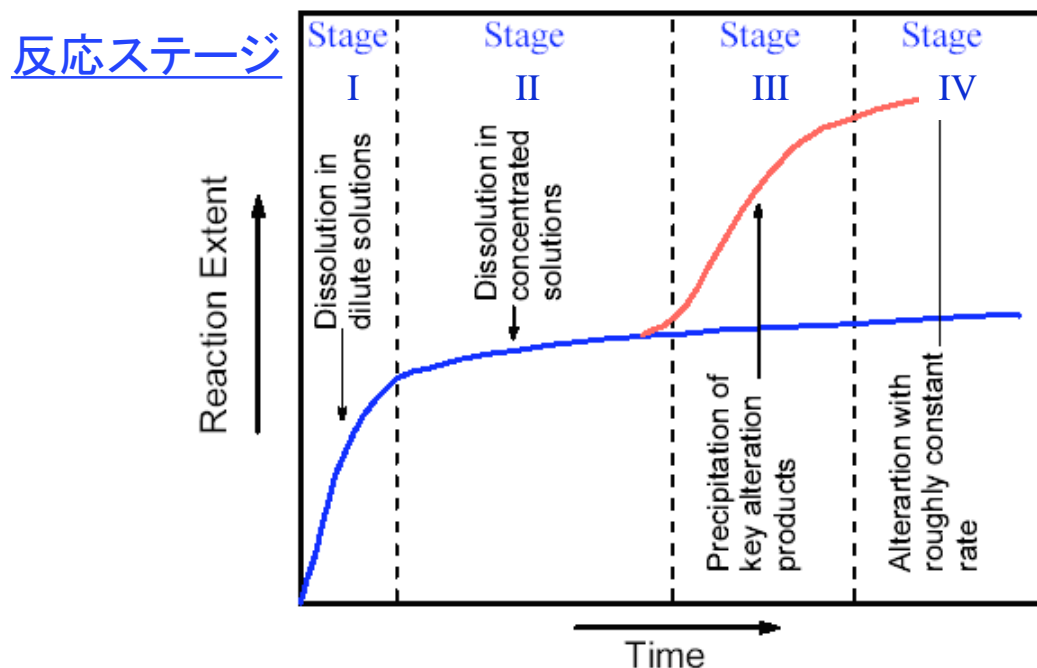
まとめ

- ・ 現象理解に基づく溶解モデルの開発。
- ・ 各国の実際の処分環境に応じた環境因子に関する基礎データの取得とその体系的評価が進められた。
- ・ ガラス性能評価結果の地層処分性能評価への適用第一段階。
- ・ 長期溶解／変質の現象理解／モデル化が進展したが、まだ十分な性能評価には至っていない。
- ・ 長期性能評価について、基礎科学的理解の更なる進展と様々な観点からの評価の必要性が示された。

(4) ガラス固化体性能評価の信頼性向上（'00年頃～）

長期溶解／変質現象の基礎科学的理解、
様々な観点からの評価、現象理解⇔性能評価の整合、
各国の処分環境に基づく性能評価、
核種の析出／鉱物化、
ガラス組成／製造法の改良、新型固化体

ガラス長期溶解／変質の反応ステージ



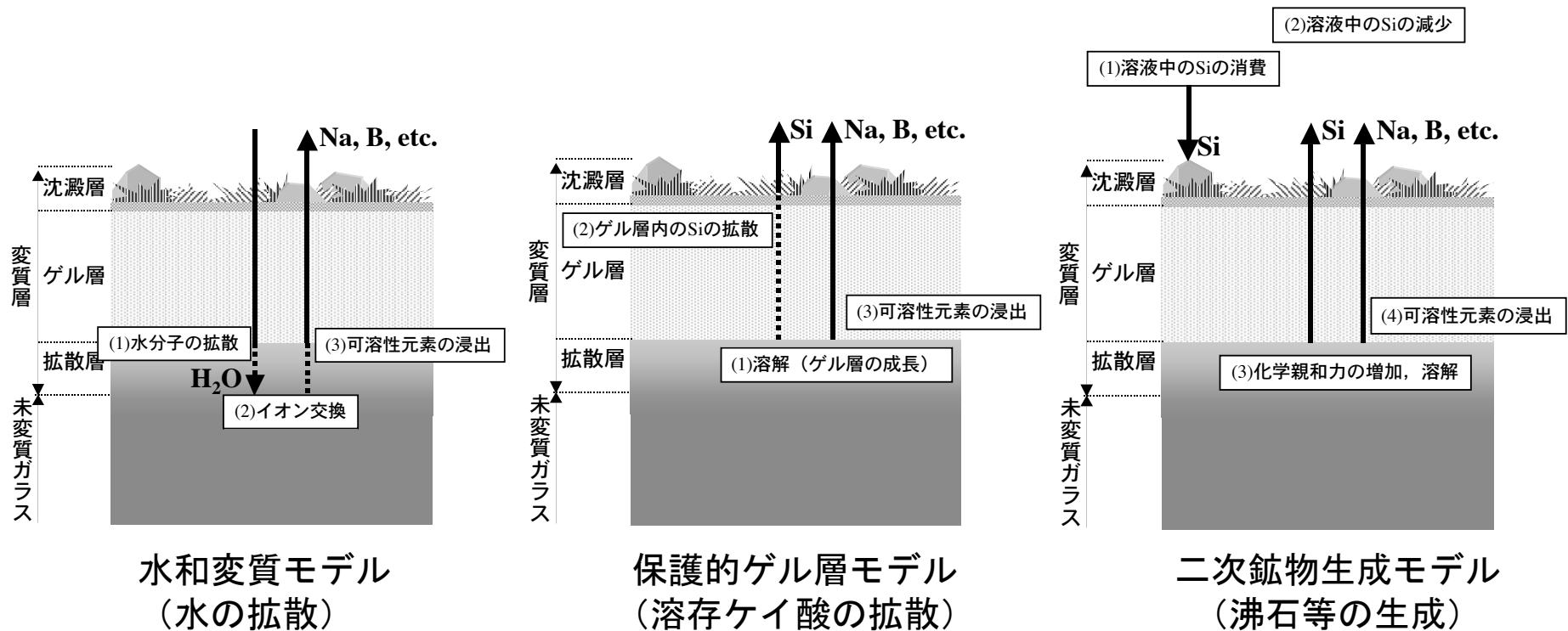
ガラス溶解／変質の反応ステージ (Jiricka, 2001)

Stage I : 溶存ケイ酸低濃度条件での反応 (一次溶解則)

Stage II : 溶存ケイ酸飽和濃度に近い条件での反応 (拡散律速?)

Stage III : 沸石等の二次鉱物生成による反応促進 (環境条件依存性大)

ガラス長期溶解／変質モデル

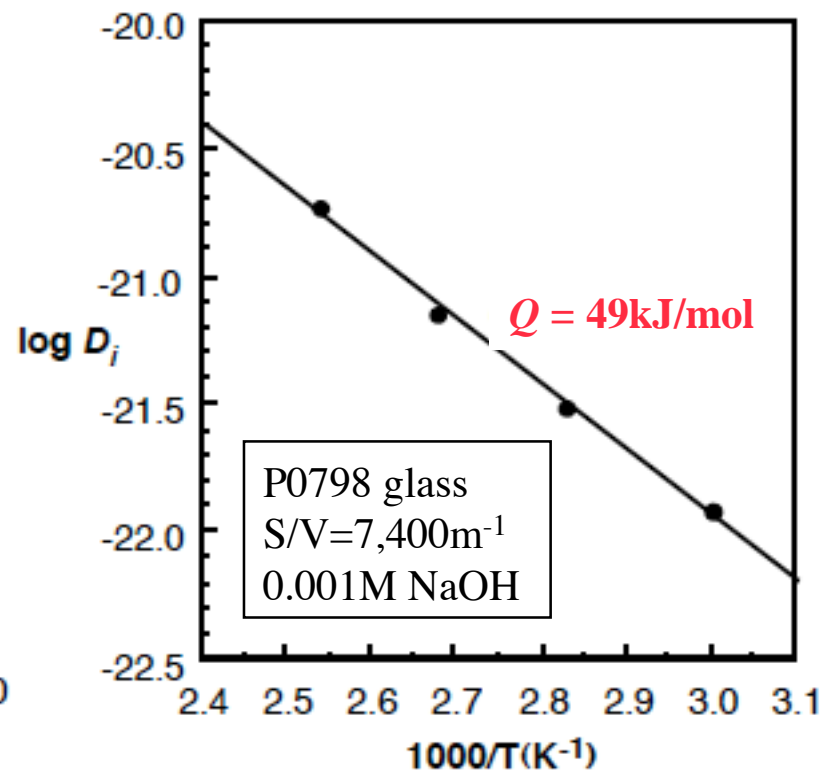
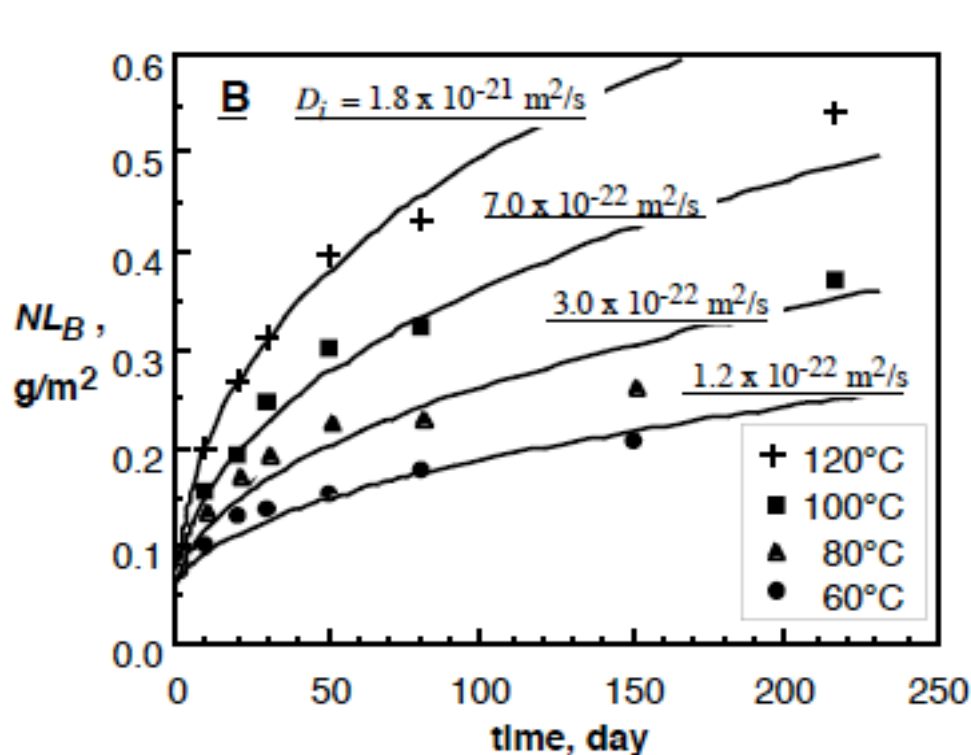


ガラス表面での物質移行過程を考慮した複数の長期溶解モデル(稲垣2004)

ガラス表面での物質移行を律速過程とする複数の速度論的長期モデルが提案された。

→ 律速過程は環境条件により異なる？

ガラス長期溶解／変質の基礎科学的理解 — 拡散律速モデル



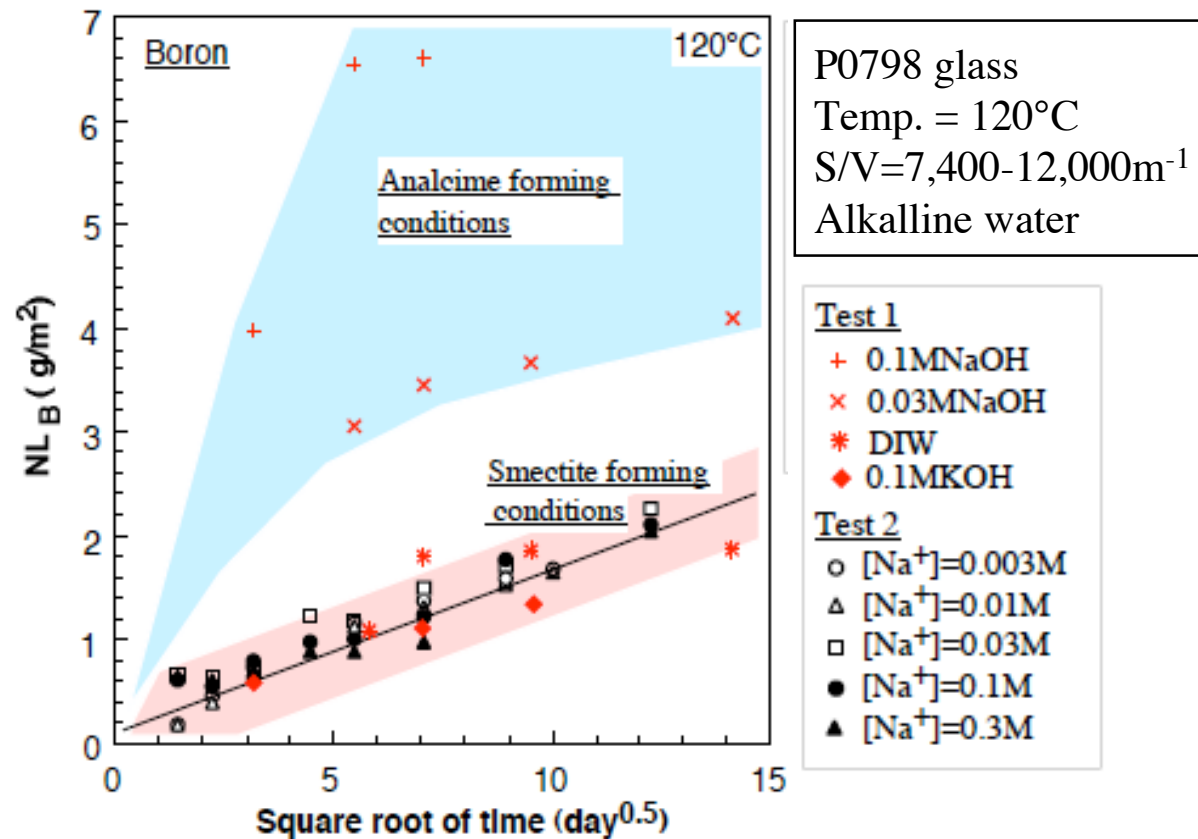
Ref. data for activation energy

- Ion-exchange in Na₂O-Al₂O₃-SiO₂ glass : $Q = 49$ kJ/mol (McGrail, 2001)
- Initial dissolution rate for SON68 glass: $Q = 71$ kJ/mol (Techer, 2000)

水和変質モデルによる解析と温度依存性 (Inagaki, 2006)

・ 長期溶解機構はイオン交換による拡散律速の可能性大

ガラス長期溶解／変質の基礎科学的理解 — 二次鉱物生成の影響

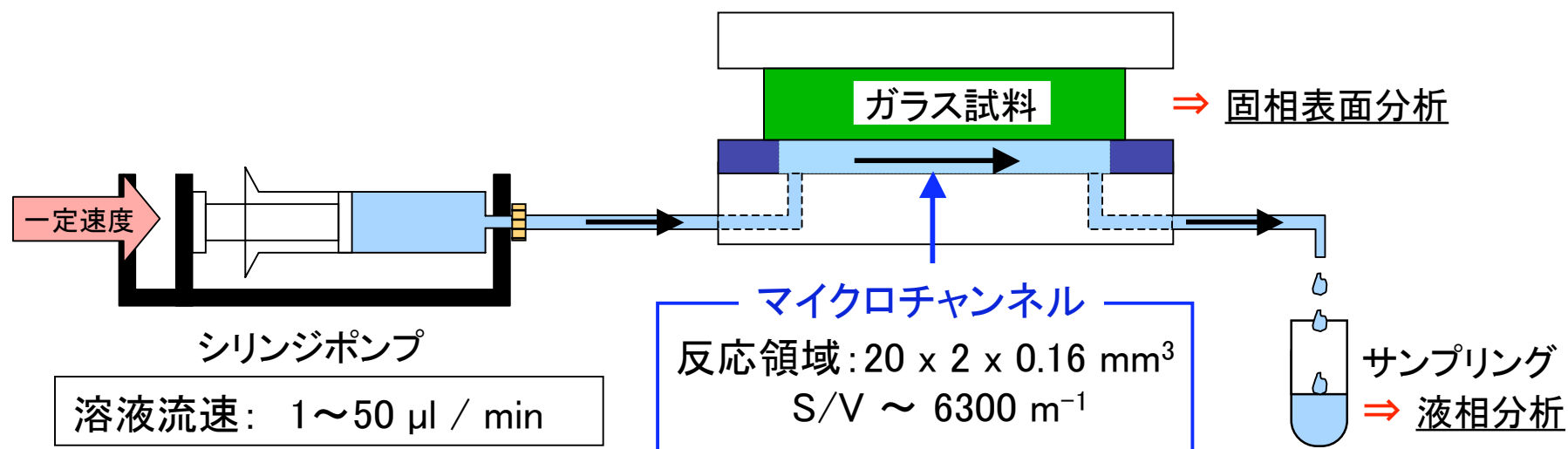


ガラス固化体溶解速度の生成二次鉱物依存性(Inagaki, 2006)

- ・ スメクタイト生成条件：拡散律速による溶解／変質(遅い)
- 方沸石(analcime)生成条件：溶解／変質の促進
- ・ 二次鉱物生成条件の重要性。

ガラス長期溶解／変質の基礎科学的理解 — 新たな試験方法

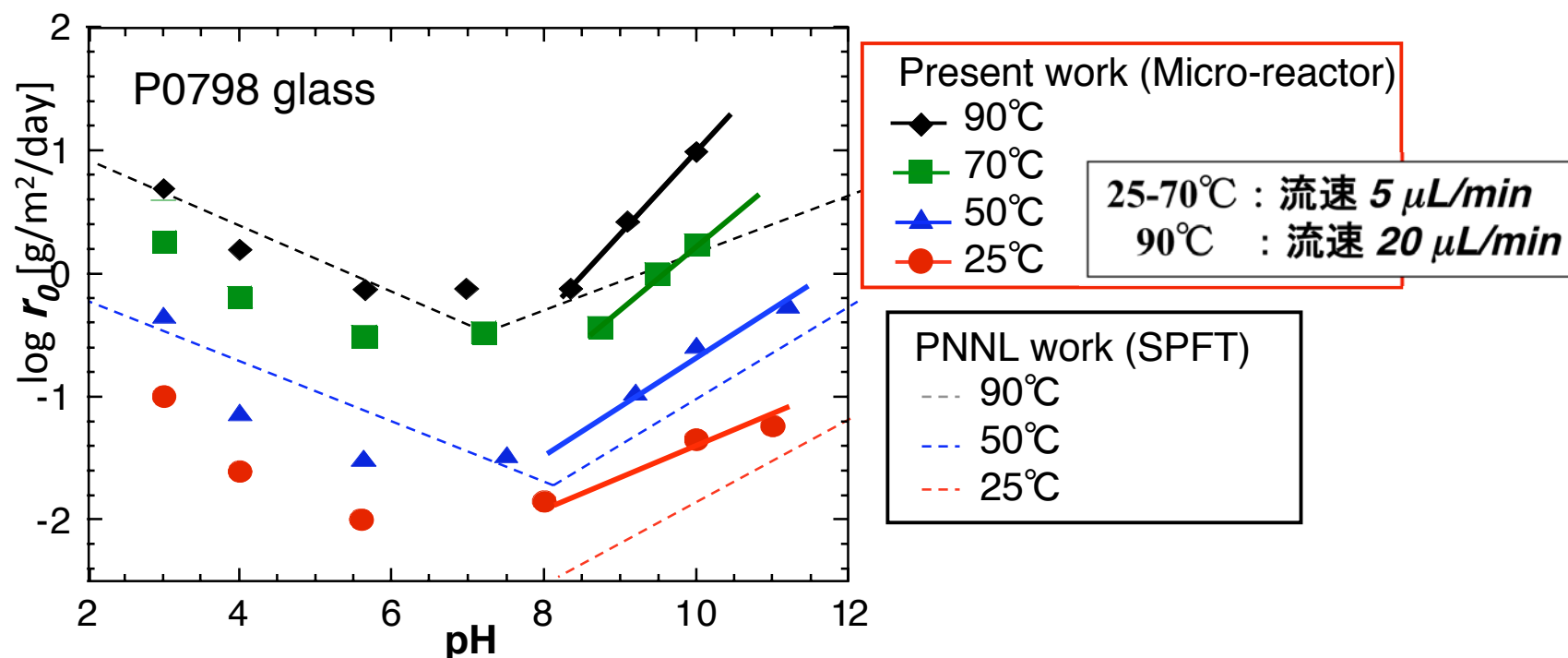
マイクロリアクタ流水試験装置の概要 (Inagaki, 2009)



特徴

- ・ 任意の液性一定条件
- ・ 小型、簡易、フレキシブル
- ・ クーポン状のガラス試料
反応面積、流速の高精度な決定
ガラス表面の直接的、定量的な分析可 → 溶液データとの整合性確認
- ・ マイクロリアクタ
高S/V → 高精度な液相分析可能

ガラス長期溶解／変質の基礎科学的理解 — 正確なデータ



我が国のガラスの初期溶解速度(r_0)の体系的評価
(マイクロリアクタ試験による)(Inagaki, 2010)

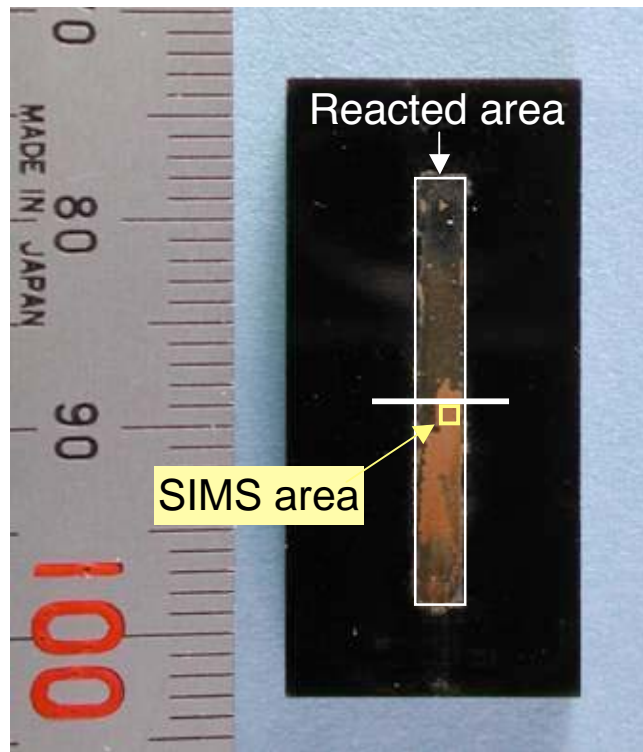
マイクロリアクタ試験による測定結果

- いずれの温度においても“V”型の pH 依存性
- SPFT法による測定結果とほぼ整合
- 高温高pH条件ではSPFT法に比べ少し大きい値 (より正確なデータ)

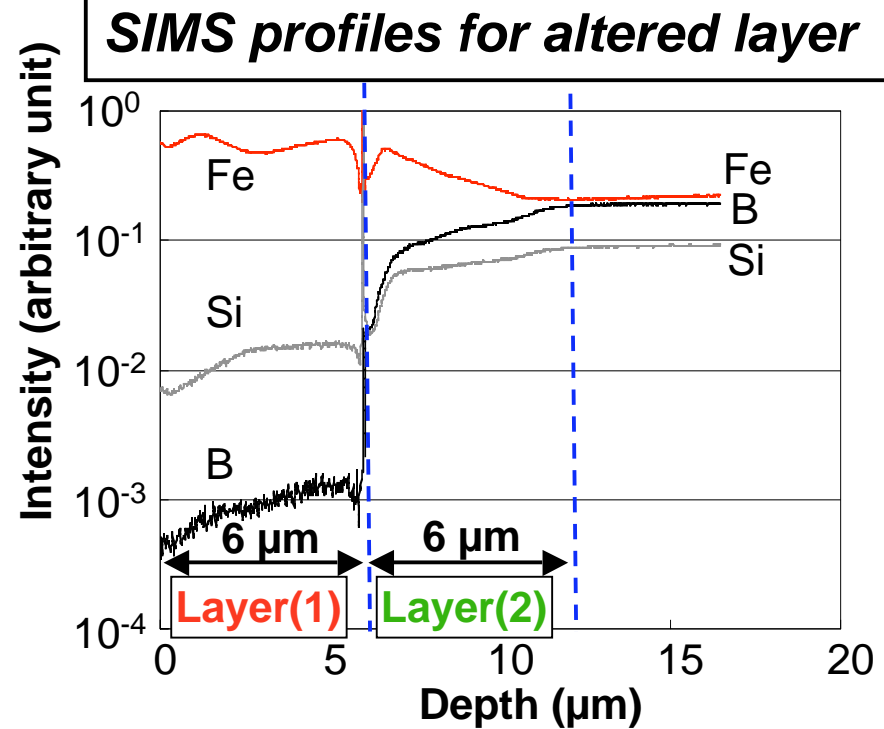
ガラス長期溶解／変質の基礎科学的理解 — ガラス表面分析

ガラス表面変質層の分析（マイクロリアクタ流水試験、SIMS分析）

(Inagaki, 2009)



After test at 90°C, pH5.6 for 1000 h



Layer (1): 外側 6 μm 厚

B: fully depleted, **Fe:** enriched \Rightarrow 析出層？

Layer (2): 内側 6 μm 厚

B: partly depleted \Rightarrow 水和変質層？ 37

我国のガラス固化体性能評価 – JNC-H12レポート

ガラス固化体の溶解速度式

$$Rate = r_0 \cdot [1 - (Q/K)] + r_f \quad (r_0 \gg r_f)$$

H12レポートレファレンスケースにおけるガラス溶解速度の設定(性能評価モデル)

【考え方】

- ・ガラス周辺の溶存シリカ濃度は長期的には飽和する。(化学親和力項を無視)

$$Rate = r_f$$

- ・水和変質(拡散)による長期溶解は保守的に無視し、一定溶解速度とする。



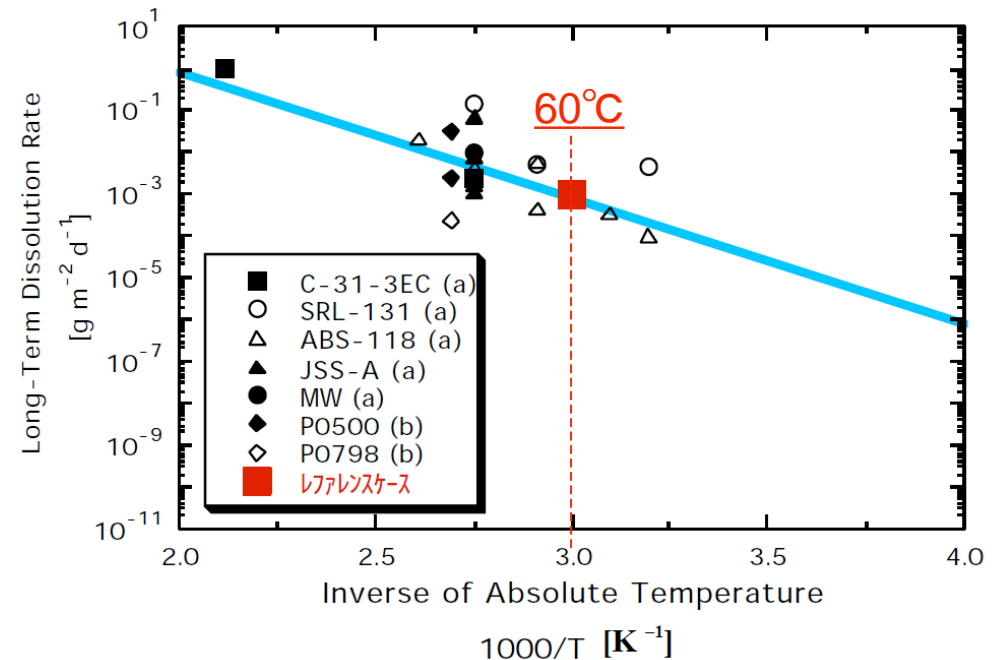
溶存シリカ濃度飽和条件での浸出試験データ(溶解速度の温度依存性)より、 r_{long} (一定値at 60°C)を設定。

$$Rate = r_f = 10^{-3} \text{ [g/m}^2\text{/d]}$$

割れによるガラス表面積増加: 10倍

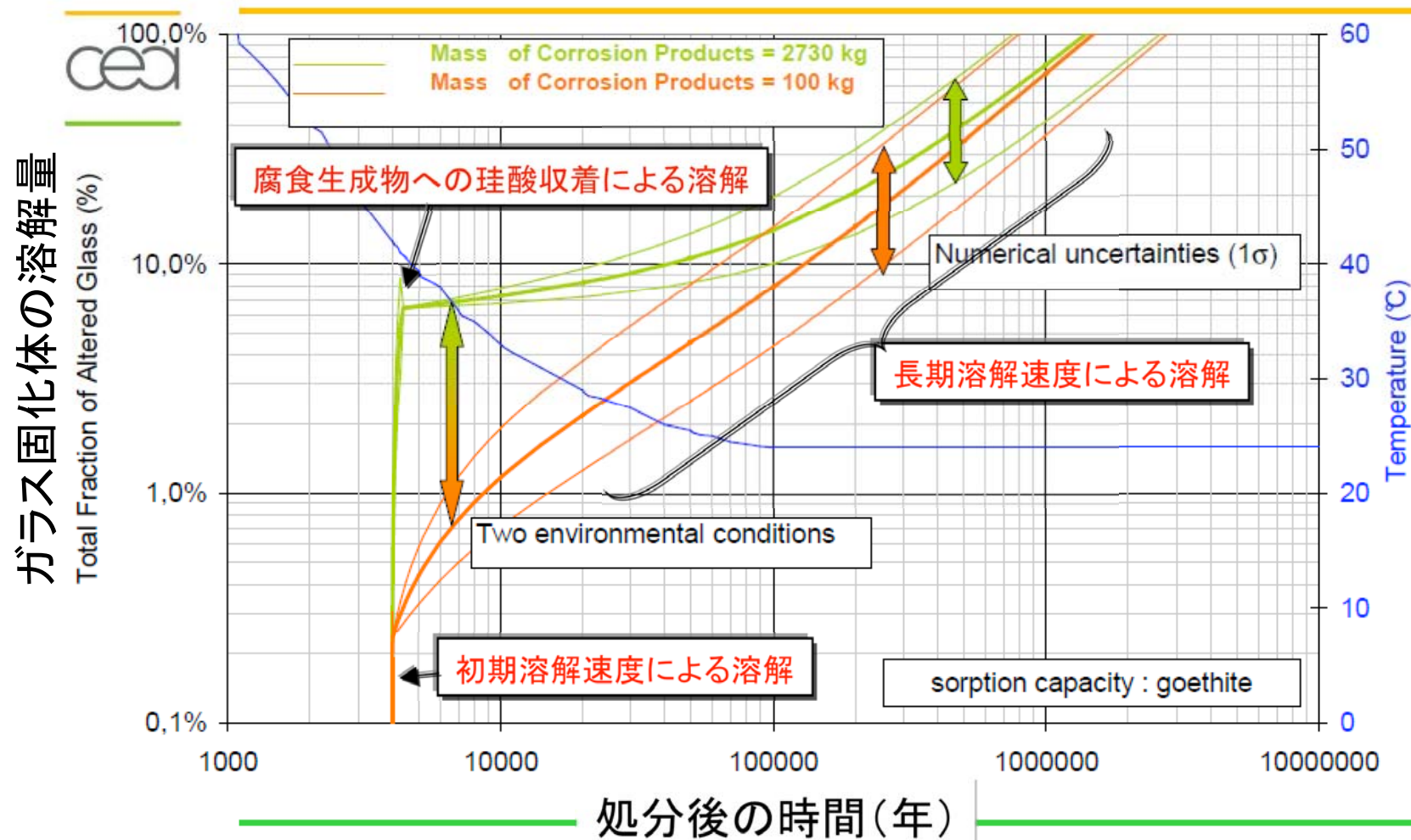


ガラス固化体核種保持性能: 7万年
(全て溶解するまでの期間)



最新の性能評価(フランスの例) (Gin, 2009)

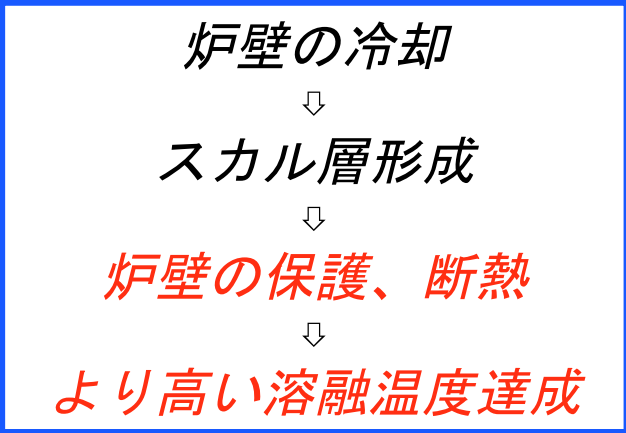
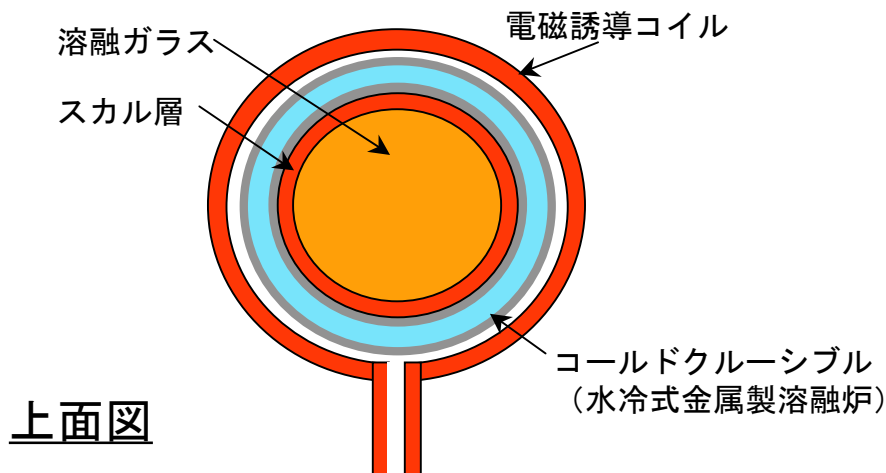
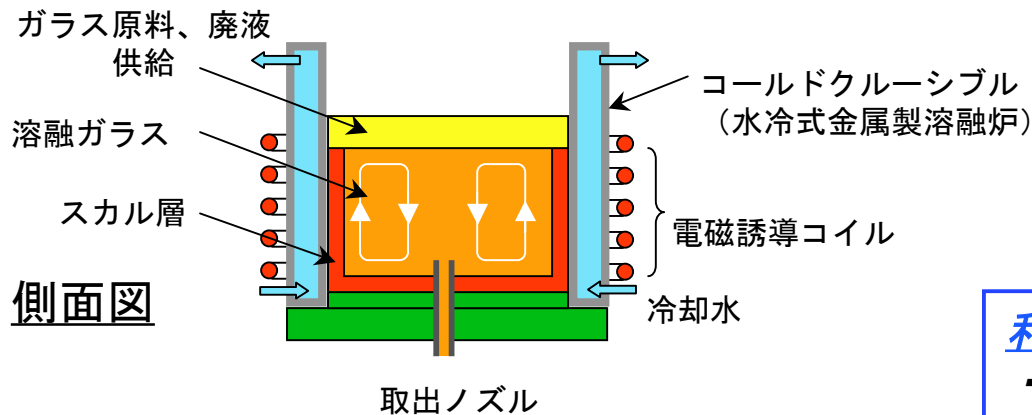
Disposal in argilite, scenario Andra 2005



ガラス製造法の進展

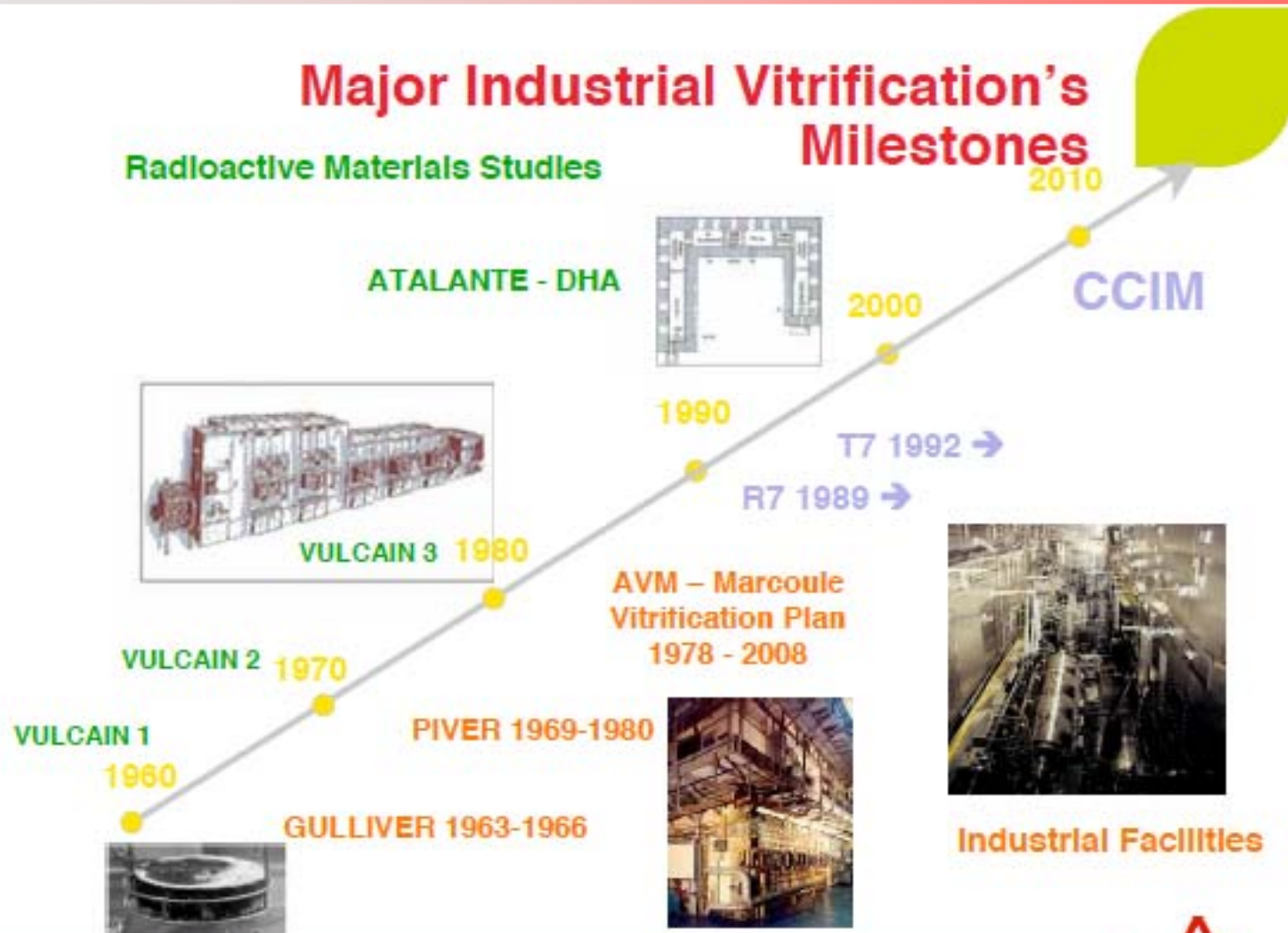
CCIM (コールドクルーシブル誘導加熱溶融炉)

CCIM: Cold Crucible Induction Melter (フランス)



- 利点**
- ・ 高い溶融温度
⇒ 適応可能なガラス組成、廃棄物組成 / 含有量の範囲拡大 (flexibility)
⇒ 燃料サイクルの進展 / 廃棄物の変化に対応できる技術
 - ・ 炉壁冷却
⇒ 溶融炉の長寿命化、硫黄, Mo等による炉材料腐食に対する耐性向上
 - ・ 経済性の向上 (トータルライフサイクルコストの削減)

ガラス製造法の進展 — フランスの例 長期的な展望と計画に基づく継続的な研究開発



長期的な展望と計画、継続的な研究開発が重要

(4) ガラス固化体性能評価の信頼性向上（'00年頃～）

まとめ

- ・ 長期溶解現象の基礎科学的理解のための研究継続。
- ・ 様々な観点からの評価（二次鉱物生成、ガラス-オーバーパック相互作用、考古学ガラスアナログ、MD計算、等）。
- ・ ガラス溶解反応の長期的変遷（反応ステージ）の理解。
- ・ JNC H12レポート（第二次取りまとめ）
- ・ 燃料サイクルの進展に適応するガラス組成／製造法の改良（フランス CCIM）。
- ・ 米国のガラス基礎研究分野への再参入。

3. 日本の現状と今後の課題

現在の我国のガラス固化体性能評価 – JNC-H12レポート

ガラス固化体の溶解速度式

$$Rate = r_0 \cdot [1 - (Q/K)] + r_f \quad (r_0 \gg r_f)$$

H12レポートレファレンスケースにおけるガラス溶解速度の設定(性能評価モデル)

【考え方】

- ・ガラス周辺の溶存シリカ濃度は長期的には飽和する。(化学親和力項を無視)

$$Rate = r_f$$

- ・水和変質(拡散)による長期溶解は保守的に無視し、一定溶解速度とする。



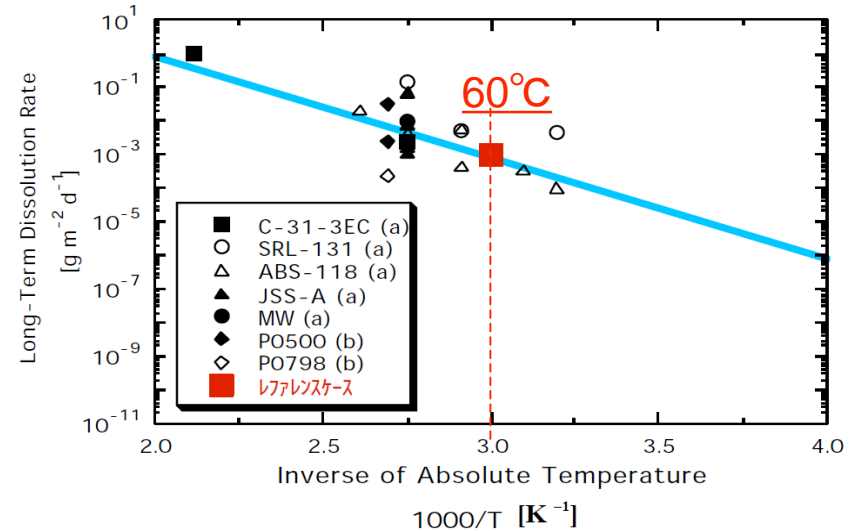
溶存シリカ濃度飽和条件での浸出試験データ(溶解速度の温度依存性)より、 r_{long} (一定値at 60°C)を設定。

$$Rate = r_f = 10^{-3} \text{ [g/m}^2\text{/d]}$$

割れによるガラス表面積増加: 10倍



ガラス固化体核種保持性能: 7万年
(全て溶解するまでの期間)



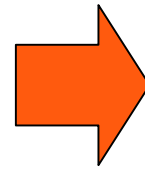
保守的・簡略的ではあるが、現実的・合理的ではない。

→ 実際の処分環境を想定した詳細な速度論的評価の必要性

性能評価の高度化—より現実的な評価に向けて

H12レポート → 現在 → 最終評価(将来)
Generic Specific

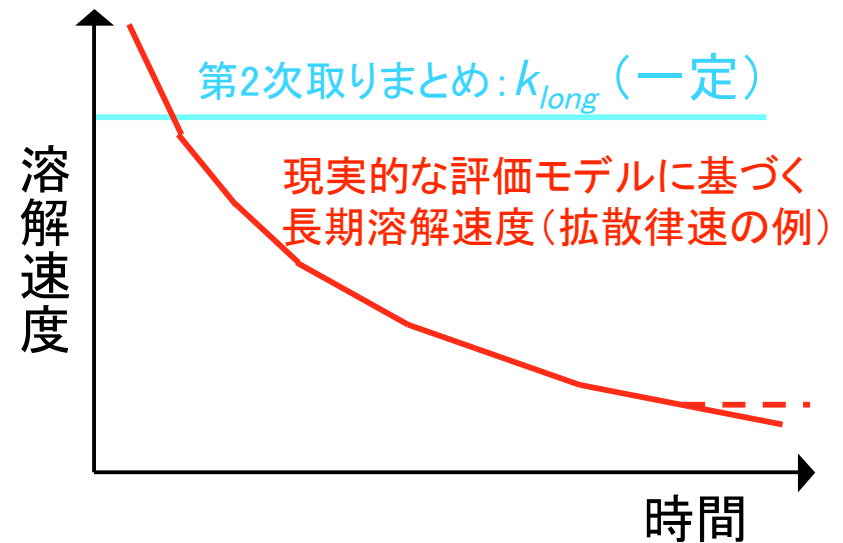
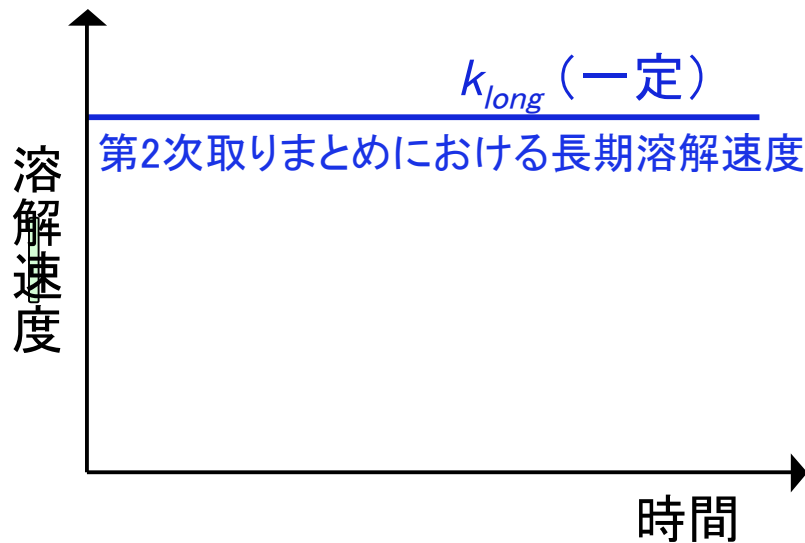
{ 簡略・
保守的



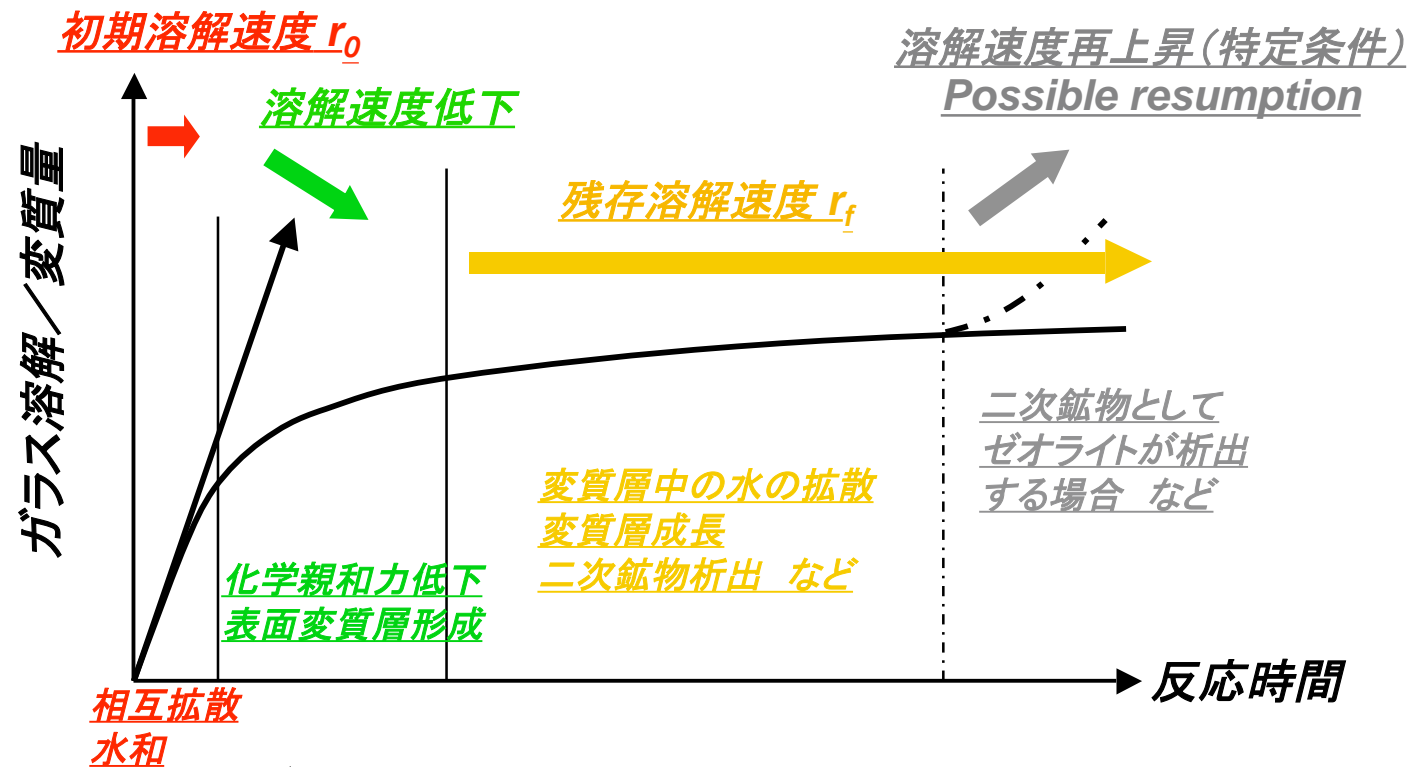
{ 現実的
合理的
体系的

信頼性向上
経済性向上

ガラス固化体の溶解速度評価



ガラス固化体溶解挙動の長期的変遷



ガラス固化体溶解／変質の長期的変遷挙動

ガラス性能評価：信頼性向上のための課題

- ・ 溶解速度低下現象の基礎科学的理解
- ・ 残存溶解速度 r_f (Temp, pH, time...) の速度論的評価とその継続条件
- ・ 実処分環境における性能評価への適応

性能評価の高度化—高度化のための課題

現在のガラス溶解速度式

$$\text{Rate [g/m}^2\text{/d]} = r_o \cdot 10^{\eta \cdot \text{pH}} \cdot \exp(-E_a/RT) \cdot [1 - (Q/K)] + r_f$$

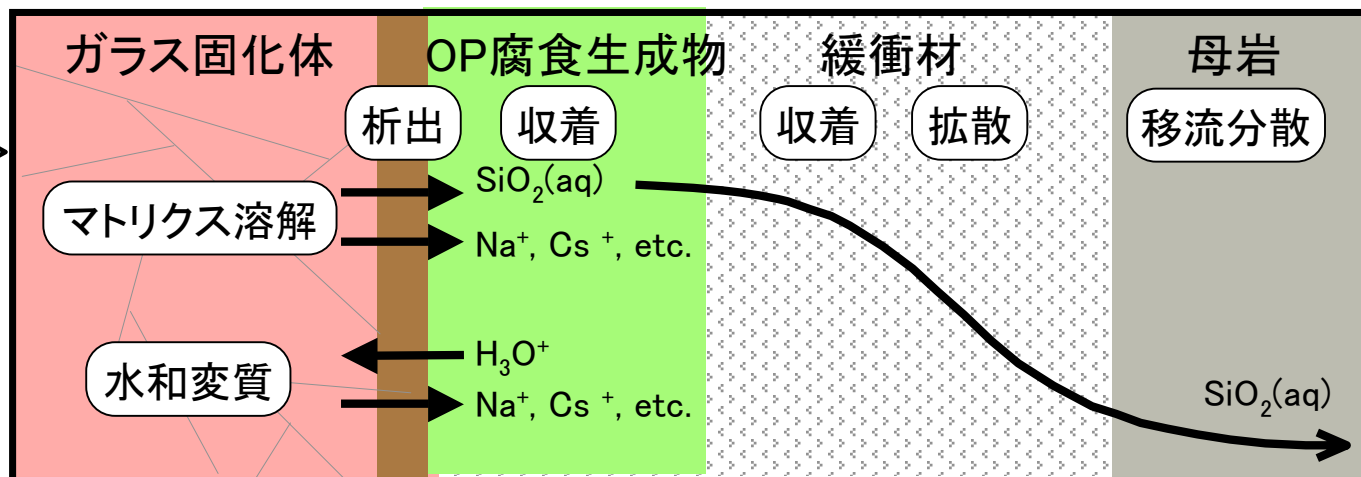
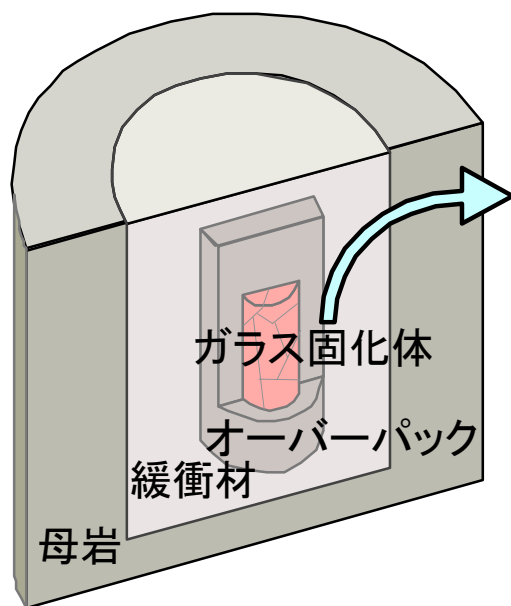
初期溶解速度

pH依存性

温度依存性

化学親和力

残存溶解速度
(長期溶解速度)



溶解・変質に影響すると考えられる処分環境でのプロセス

課題1: 処分システム内でのガラス溶解／変質現象の基礎科学的理解

課題2: 可能性のある各種条件におけるデータ取得と体系的評価

課題3: 速度論的評価に基づく信頼性の高い性能評価モデルの構築

ガラス性能評価研究の構成

(1) 基礎科学的研究

ガラス長期溶解／変質／核種浸出現象の基礎科学的理解とモデル化。
(*Scientific model* : 現象理解モデル)

(2) 工学的研究

我が国の実際の処分環境を想定した各種反応パラメタの取得と評価。

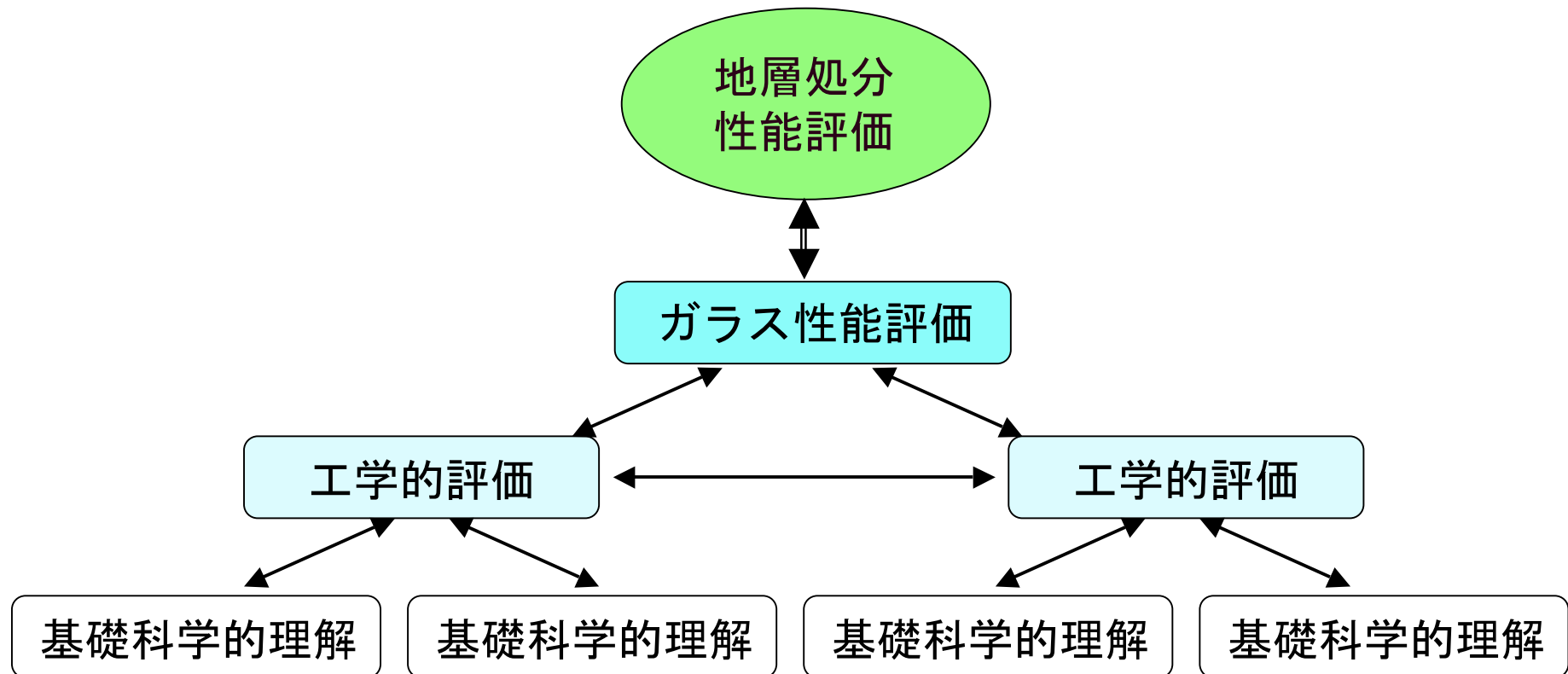
(3) 性能評価研究

上記成果の整理／体系化に基づくガラス性能評価。
我が国の地層処分性能評価（核種移行評価）への適応と整合。
(*Operational model* : 性能評価モデル)

(*) ガラス研究全体の連携統合

- ・ 各研究についての最新情報の共有、共通認識の醸成。
- ・ 各研究成果の合理的な統合、ガラス研究全体としての効果的な進展。
- ・ ガラス研究全体を統括、先導する仕組み。

ガラス性能評価の信頼性向上のための手法



基礎科学的理解から性能評価までの合理的なつながりを体系的に分かり易く示すことが重要。

今後取り組むべき課題、研究手法は？

ガラス構造(ミクロ&マクロ)、変質層構造の理解

- 量子力学/分子動力学的手法
- SIMS等の表面分析手法
- 実測及びシミュレーションによる亀裂評価、等々

長期溶解メカニズムの理解と速度論的評価

- 同位体を用いた試験法
- マイクロリアクタ試験法、等々

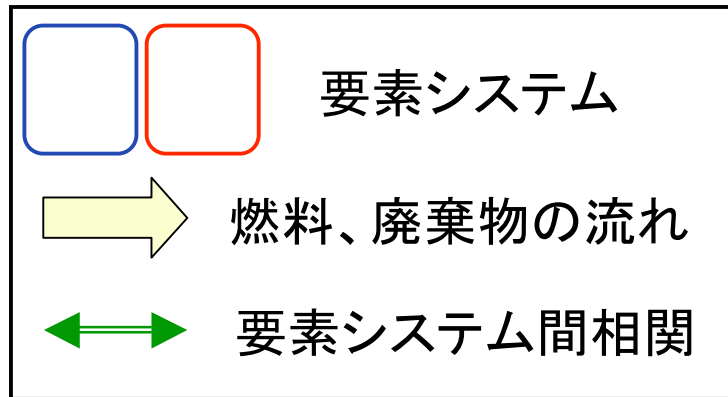
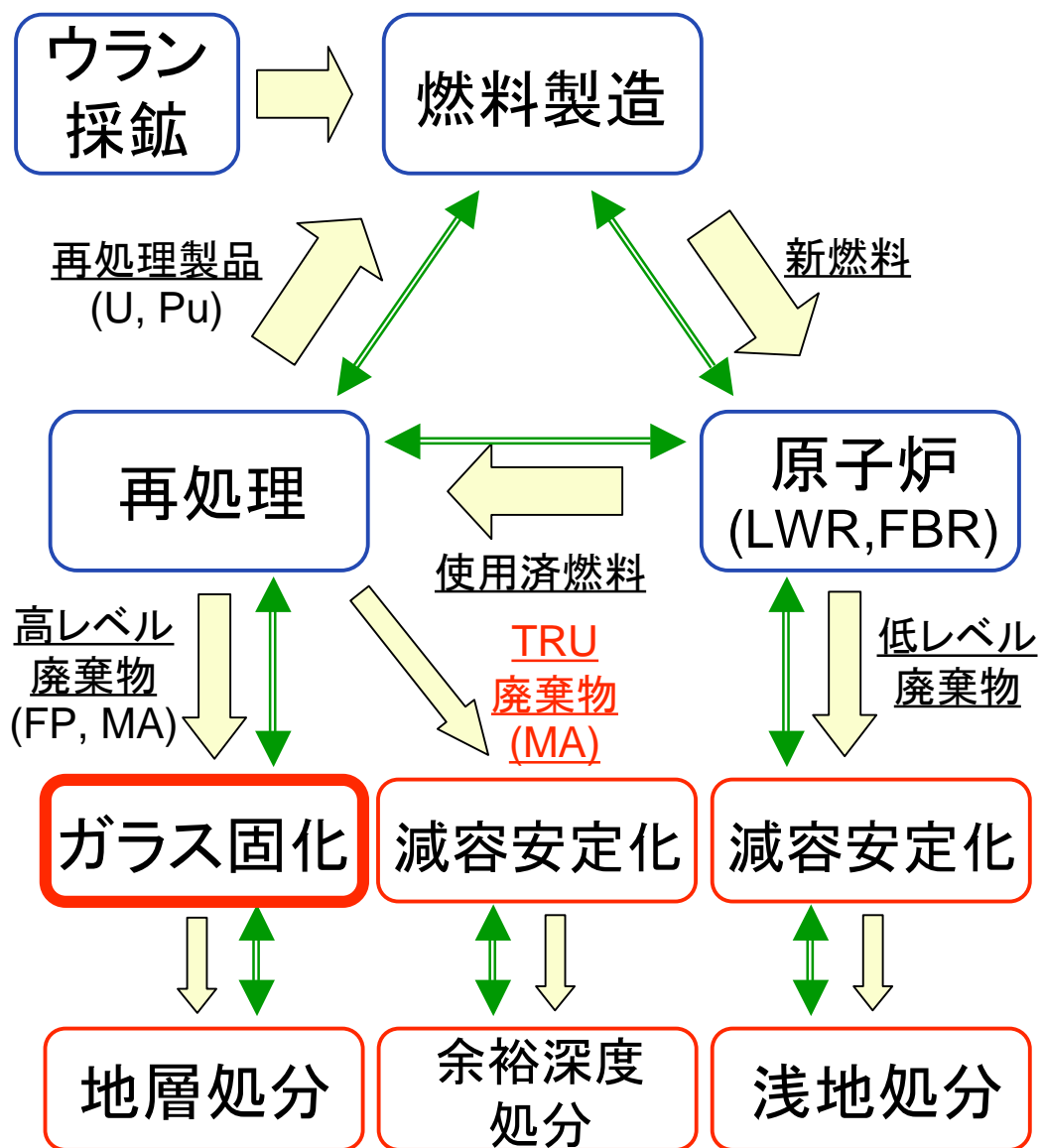
処分環境で起こりうるプロセスとのカップリング

- ニアフィールドの各種プロセスを考慮したモデル開発
- ナチュラルアナログ研究(例 鉄と古代ガラスの相互作用)、等々

体系的な性能評価

- 現象の基礎科学的理解から性能評価までの合理的なつながり

燃料サイクルの進展と廃棄物—サイクルの構成



核燃料サイクル
 多くの要素システム
 高度な組合わせ
 総合システム
 双方向の相関

燃料サイクルの進展と廃棄物—ガラス固化条件

現在のガラス固化制約条件(ホウケイ酸ガラス)

制約項目	現象	影響	現在の制約値
<p>発熱量</p> <p>① 固化、保管時</p> <p>② 処分時</p>	<p>温度上昇による 相分離、結晶化 割れ</p> <p>緩衝材変質</p>	<p>化学的耐久性低下 核種浸出速度増大</p> <p>緩衝材性能低下</p>	<p>ガラス転移点以下に抑制 2.3 kW/glass unit</p> <p>100°C以下に抑制 0.35 kW/glass unit</p>
白金族元素 含有量	メルター中堆積 電気回路短絡 高粘度	メルター出力低下 寿命短縮 ドレイン困難	~ 1.25 wt% メルター構造/運転 条件に依存
モリブデン 含有量	イエローフェイス alkali molybdates	化学的耐久性低下 核種浸出速度増大	~ 1.5 wt% of MoO ₃ メルター構造/運転 条件に依存
短半減期MA 含有量	α-, recoil- 照射 発熱、相分離 スェリング、割れ	化学的耐久性低下 核種浸出速度増大	?

燃料サイクルの進展と廃棄物—廃棄物の特性変化

ガラス固化制約条件と燃料サイクルの進展

ガラス固化制約条件	発熱量 放射能	モリブデン 含有量	白金族元素 含有量	短半減期MA 含有量
高燃焼度化 (UO_2 -LWR)	↑	↑	↑	↑
MOX (LWR)	↑↑	↑	↑↑	↑↑
FBR	↑↑↑	↑	↑↑↑	↑↑↑

廃棄物の観点からのサイクル性能

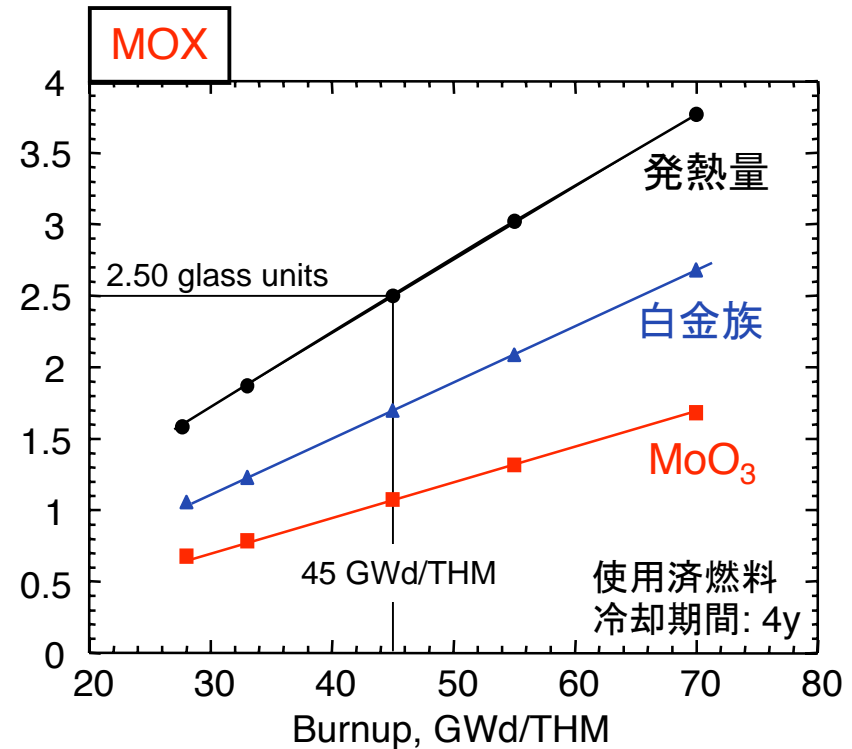
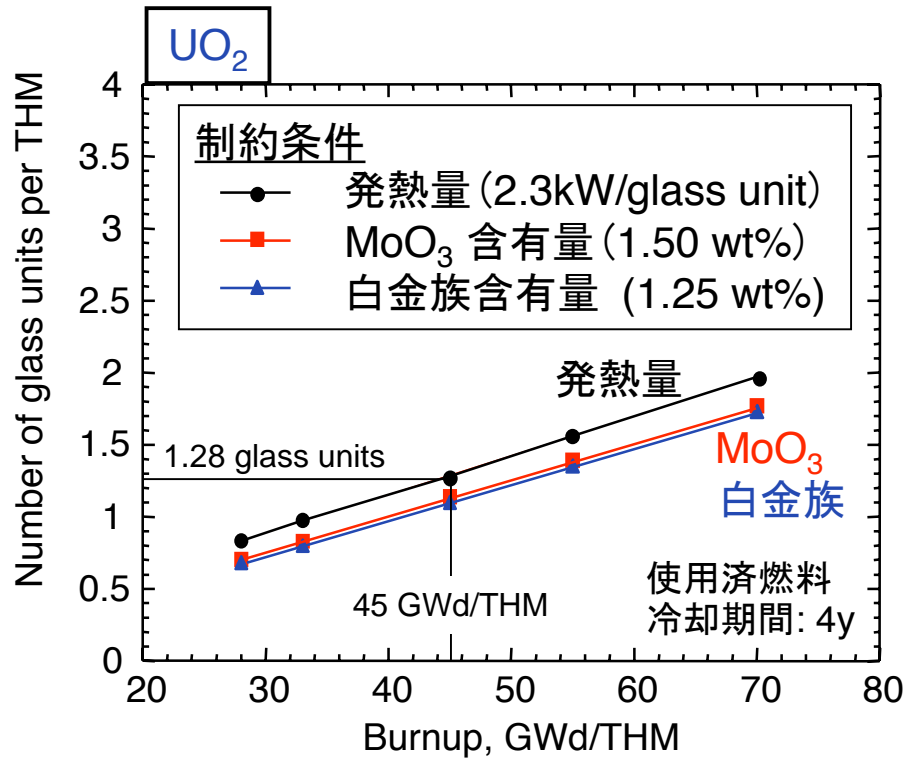
ガラス固化体発生量の増減量は？
現在のガラス固化条件は最適か？



定量的評価が必要

燃料サイクルの進展と廃棄物—ガラス固化体発生量

ガラス固化体発生本数 (THM当り) (Inagaki, 2009)



UO₂

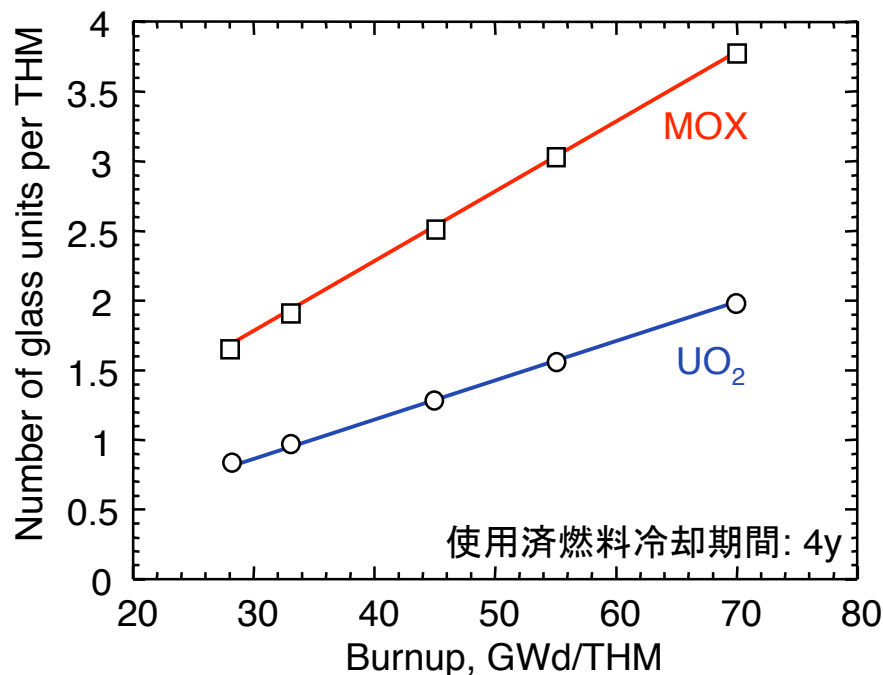
- ・ 全ての燃焼度で発熱量が支配的
- ・ ガラス本数は燃焼度に比例して増加
- ・ 制約条件間の差は小

MOX

- ・ 全ての燃焼度で発熱量が支配的
- ・ ガラス本数はUO₂の約2倍に増加
- ・ 制約条件間の差は大

燃料サイクルの進展と廃棄物—ガラス固化体発生量

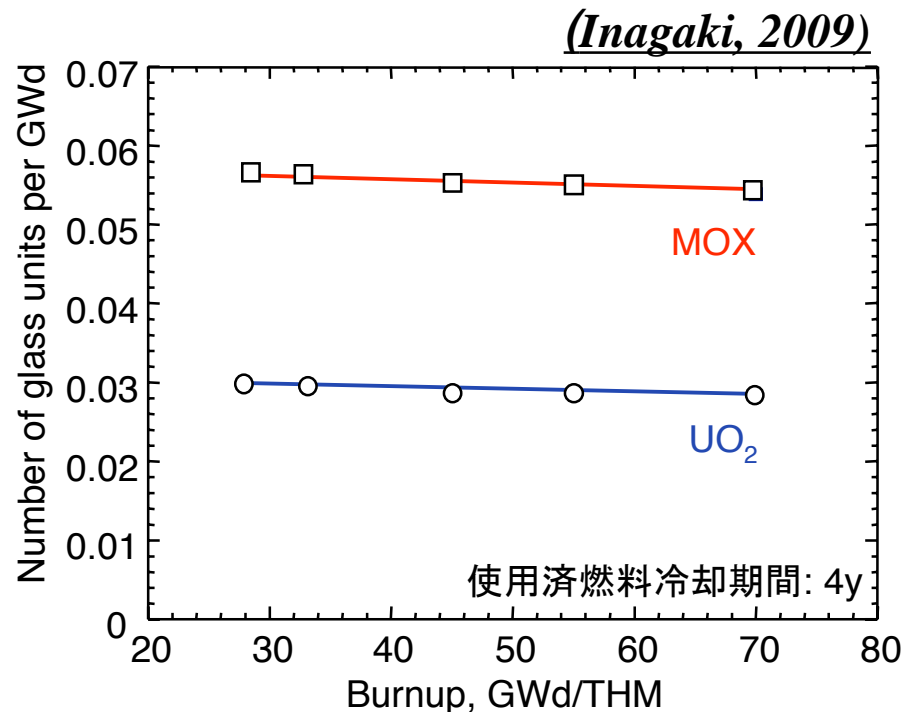
THM当りのガラス固化体発生本数
(制約条件: 発熱量(2.3kW/glass unit))



THM当りの発生本数

- ・ 燃焼度に比例して増加
- ・ MOXはUO₂の約2倍に増加

GWd_{th}当りのガラス固化体発生本数
(制約条件: 発熱量(2.3kW/glass unit))

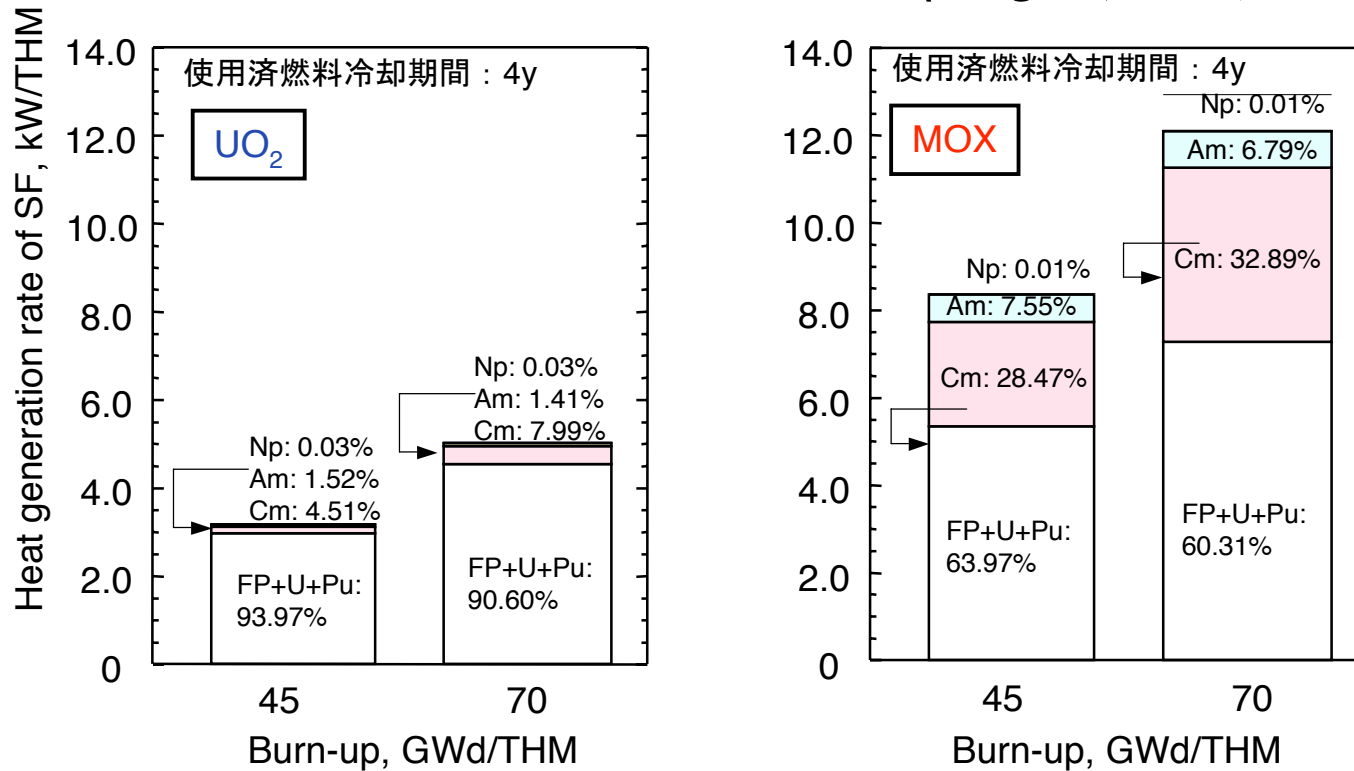


GWd_{th}当りの発生本数

- ・ 燃焼度に依存せずほぼ一定
- ・ MOXはUO₂の約2倍に増加

燃料サイクルの進展と廃棄物—廃棄物の特性変化

使用済燃料の発熱量とMAの寄与(Inagaki, 2009)



MOXの発熱量はMA ($^{244}\text{Cm}[T_{1/2}=18\text{y}]$, $^{241}\text{Am}[T_{1/2}=432\text{y}]$) の寄与大

現在の固化方法／条件は、UO₂燃料(～45GWd/t)を対象として開発
 → サイクル進展に適した固化条件、固化方法の開発が必要

最後に

- ・ 固化体の特性、固化体に求められる性能は、各国の状況により異なり、また、サイクル進展により変化する。
- ・ ガラス固化体は、現在の評価（寿命7万年：JNC H12レポート）よりも高い性能、信頼性を示すことが可能。
- ・ そのためには、
 - ・ 日本独自の基礎データ取得とその体系的評価
 - ・ 日本固有の条件を反映した性能評価
 - ・ サイクル進展に適応できる継続的、組織的、柔軟な研究が必要である。