

JAERI-M

84-141

ガラス固化体からの¹³⁷Cs及び⁹⁰Srの揮発

1984年8月

中村 治人・吉川 静雄・佐藤 譲*
上園 裕史・妹尾 宗明・田代 晋吾

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）
あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Section, Division
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1984

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 山田軽印刷所

ガラス固化体からの¹³⁷Cs 及び⁹⁰Sr の揮発

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

*

中村 治人・吉川 静雄・佐藤 譲

上蘭 裕史・妹尾 宗明・田代 晋吾

(1984年7月13日受理)

高レベル放射性廃棄物ガラス固化体の貯蔵時安全性評価試験のひとつとして、廃棄物中の主な放射性核種である¹³⁷Cs 及び⁹⁰Sr の揮発率を測定した。

キャニスターが大破して、ガラス固化体が直接外気に触れる可能性は少ない。最も問題になるのはキャニスターの小さな欠陥部からの漏れである。従って、その状態に近い測定系を用いた。すなわち、2重のるつぼを使い、外側のるつぼに放射能がもれてこないことから、内側のるつぼに全ての揮発物が捕集されたことを確認し、内側のるつぼの放射能を測定することにより揮発率を求めた。

¹³⁷Cs の 800°C の揮発率は、約 2×10^{-2} g/cm² · day であり、磁製るつぼに蓋をした簡単な容器からの漏れ率は、 $\frac{1}{10^5}$ であった。400°Cでの見掛け上の揮発率は、¹³⁷Cs と⁹⁰Sr がほぼ同じであり、粉体による表面汚染の飛散の方が、揮発より空気汚染に寄与することが推察された。

また、揮発物の化学的性状を知る目的で、揮発しステンレス鋼容器に付着した汚染物からの¹³⁷Cs の溶解量を測定した。4日間水につけることにより、約 30 %が溶解し、比較的溶解しやすい状態で付着していることがわかった。

* 東電環境エンジニアリング㈱

Volatileization of ^{137}Cs and ^{90}Sr from simulated high-level waste glass

Haruto NAKAMURA, Shizuo KIKKAWA, Mamoru SATO,^{*}
Hiroshi KAMIZONO, Muneaki SENOO and Shingo TASHIRO

Department of Environmental Safety Research,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received July 13, 1984)

Volatility of ^{137}Cs and ^{90}Sr from simulated high-level waste glass was examined in a closed system. The sample containing ^{137}Cs or ^{90}Sr was placed in a double-crucible, heated at a given temperature for 3 days and cooled to room temperature. Then the activity of ^{137}Cs or ^{90}Sr of the crucible was measured.

Volatility of ^{137}Cs at 800°C was measured to be about $2 \times 10^{-2} \text{ g/cm}^2\text{day}$. The amount of the leakage of ^{137}Cs from the inner crucible to the outer crucible was very small.

Volatility of ^{137}Cs at 400°C was about $1.6 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^2\text{day}$, which was almost the same as that of ^{90}Sr at 400°C . This may indicate that fine particles adhering to the surface of the sample are the main cause of air contamination when the temperature is less than 400°C .

Part of the ^{137}Cs that was deposited on the surface of the outer crucible (stainless steel) dissolved in water at room temperature, which means that ^{137}Cs deposited on a stainless steel surface may be easily removed by a decontamination process.

Keywords; Volatilization, ^{137}Cs , ^{90}Sr , High-level waste, Borosilicate glass, Safety, High Temperature, Radioactive Waste Disposal

* TODEN Environmental Engineering Co, LTD

目 次

1. まえがき	1
2. 実験	1
(1) 試験の概要	1
(2) 試料の作成	2
(3) 振発試験装置及び加熱条件	2
(4) 放射能の測定	3
(5) ステンレス鋼製外側るつぼ及び白金製受け皿に付着した揮発物の浸出試験	3
3. 結果と考察	4
(1) ^{137}Cs 及び ^{90}Sr の揮発率	4
(2) 付着した揮発物の浸出率	4
4. まとめ	5
参考文献	5

CONTENTS

1. Introduction	1
2. Experimental	1
(1) Outline of the Tests	1
(2) Preparation of the Specimens	2
(3) Apparatus and Heating Conditions	2
(4) Measurements of Activity	3
(5) Leach Tests	3
3. Results and Discussion	4
(1) Volatility of ^{137}Cs and ^{90}Sr	4
(2) Leach Rate of Deposited Materials	4
4. Conclusions	5
References	5

1. まえがき

ガラス固化体の貯蔵及び輸送時の事故評価において、固化体が高温にさらされ、放射性物質が揮発し空気が汚染する事故としては火災事故と冷却システムの故障が考えられる。

一方、ガラス固化体からの放射性廃棄物の揮発が問題となるのはこの他にガラス製造時がある。これは製造プラントの安全設計の問題として別途検討されており本研究では直接対象としないこととする。ただ、溶融ガラスをキャニスターに充填する際揮発物がキャニスターの内面及び外面の一部に付着し、それが固化体輸送及び貯蔵時の周辺汚染の原因となる場合が考えられ、この問題は貯蔵及び輸送時の安全性に関与している。

本研究では以上の点を考慮し、貯蔵時の安全性評価試験として種々の温度での揮発挙動を調べ、同時に揮発物の化学的挙動についても調べた。

ガラス固化体の揮発性についてはいくつかの研究があり^{1,2)}、¹³⁷Cs が主な対象核種であることが報告されている。本研究でも¹³⁷Cs をとりあげ、比較として難揮発性の⁹⁰Srについても試験した。

揮発率の測定手法としては、大別して閉鎖系と開放系での測定がある。米国の標準試験法 MCC³⁾には開放系の手法のみが記載されている。

開放系と閉鎖系での違いは、ガラス表面での空気の流れの違いによる境界領域での拡散速度が異ってくる点と飽和現象による揮発の抑制である。安全性評価からみるとキャニスターへの注入時は開放系であり、火災事故及び冷却系停止時はキャニスターは大きく破壊されないと考えられ閉鎖系である。すなわち、製造時以外では閉鎖系が評価の対象と一致する。

一方実験手法からみると、開放系にしてガスを流す方法によると、揮発物の捕集効率、ガス誘導管中の付着等、装置に依存する多くの特性を把握する必要があり、それらの見落しによる誤差を生みやすい、そこで本研究では簡単な装置による閉鎖系の試験手法をとった。

また、揮発物を水及びHFを少量含むHNO₃溶液で溶かし揮発物の浸出特性について考察を加えた。

2. 実験

(1) 試験の概要

¹³⁷Cs 及び⁹⁰Sr を含むガラス固化体を調製し、直径 20 mm × 厚さ 5 mm の小片とする。試料 1コ当りの放射能は約 25mCi である。

この試料を約 30 mL の磁製ルツボの中央に置き、蓋をして、さらに直径 50 mm 高さ 70 mm のステンレス鋼製容器に入れる。

全体を所定の温度で約 3 日間保持し、ガラス試料を取り出したのち、磁製ルツボに付着した

1. まえがき

ガラス固化体の貯蔵及び輸送時の事故評価において、固化体が高温にさらされ、放射性物質が揮発し空気が汚染する事故としては火災事故と冷却システムの故障が考えられる。

一方、ガラス固化体からの放射性廃棄物の揮発が問題となるのはこの他にガラス製造時がある。これは製造プラントの安全設計の問題として別途検討されており本研究では直接対象としないこととする。ただ、溶融ガラスをキャニスターに充填する際揮発物がキャニスターの内面及び外面の一部に付着し、それが固化体輸送及び貯蔵時の周辺汚染の原因となる場合が考えられ、この問題は貯蔵及び輸送時の安全性に関与している。

本研究では以上の点を考慮し、貯蔵時の安全性評価試験として種々の温度での揮発挙動を調べ、同時に揮発物の化学的挙動についても調べた。

ガラス固化体の揮発性についてはいくつかの研究があり^{1,2)}、¹³⁷Cs が主な対象核種であることが報告されている。本研究でも¹³⁷Cs をとりあげ、比較として難揮発性の⁹⁰Srについても試験した。

揮発率の測定手法としては、大別して閉鎖系と開放系での測定がある。米国の標準試験法 MCC³⁾には開放系の手法のみが記載されている。

開放系と閉鎖系での違いは、ガラス表面での空気の流れの違いによる境界領域での拡散速度が異ってくる点と飽和現象による揮発の抑制である。安全性評価からみるとキャニスターへの注入時は開放系であり、火災事故及び冷却系停止時はキャニスターは大きく破壊されないと考えられ閉鎖系である。すなわち、製造時以外では閉鎖系が評価の対象と一致する。

一方実験手法からみると、開放系にしてガスを流す方法によると、揮発物の捕集効率、ガス誘導管中の付着等、装置に依存する多くの特性を把握する必要があり、それらの見落しによる誤差を生みやすい、そこで本研究では簡単な装置による閉鎖系の試験手法をとった。

また、揮発物を水及びHFを少量含むHNO₃溶液で溶かし揮発物の浸出特性について考察を加えた。

2. 実験

(1) 試験の概要

¹³⁷Cs 及び⁹⁰Sr を含むガラス固化体を調製し、直径 20 mm × 厚さ 5 mm の小片とする。試料 1コ当りの放射能は約 25mCi である。

この試料を約 30 mL の磁製ルツボの中央に置き、蓋をして、さらに直径 50 mm 高さ 70 mm のステンレス鋼製容器に入れる。

全体を所定の温度で約 3 日間保持し、ガラス試料を取り出したのち、磁製ルツボに付着した

放射能を測定する。また、ステンレス鋼製容器の放射能を測定することにより磁製ルツボより揮発した放射能が漏れ出していないことを確認する。

各容器に付着した放射能は最初蒸留水で溶出し、その後フッ酸を含む硝酸により溶出した。

(2) 試料の作成

2本の溶融用白金るつぼ（Fig. 1に示す）に約50メッシュから約100メッシュに粉碎調整したガラス（Table 1）を50gづつ加えた。次にCs-137溶液及びSr-90溶液約300mCiをガラス粉を入れた2本の溶融用白金るつぼに別々に添加した。RI溶液とRI容器の洗浄液は合計で約12.5mℓになるよう配慮した。この溶融用白金るつぼをるつぼ台に設置後24時間放置し、RIをガラスに浸透させた。次にこの2本の溶融用白金るつぼを揮発試験装置に設置した。試料ケース内の配置図をFig. 2に示す。

揮発試験装置の温度を130°Cで72時間保持後温度を上げ450°Cで5時間保持して、水分を蒸発させた。この水分蒸発過程終了後温度を650°Cに上げ5時間保持し、RI化合物(Sr(NO₃)₂及びCsCl)から発生する分解ガス(NO_x及びCl₂)を放出させた。この仮焼過程(分解ガス放出過程)終了後ガラスを溶融するため温度を1150°Cで2時間保持した。溶融終了後常温まで冷却し、ガラス試料を作製した。なお試料作製用温度プログラムはFig. 3に示してある。また、昇温速度は100°C/hrとした。

Cs-137含有ガラス試料はWASTEF No.1セル内⁴⁾のアスキャンニング装置⁵⁾で均質性の評価を行った。測定結果をFig. 4に示す。これよりCs-137含有ガラス試料はCs-137が均質に分布しているとみなしてさしつかえない。

Cs-137含有揮発試験用ガラス試料及びSr-90含有揮発試験用ガラス試料とも切断し、20mmφ×約5mmの揮発試験用試験体を作製した。なお作製した試験体は側面が白金でおおわれている。次に揮発試験に使用する面の研磨を行った。試験体の重量、研磨度合い等をTable 2に示す。また、試験体の放射能濃度を測定するため、ガラス小片を採取した。なお揮発試験用試験体作製は、WASTEF No.3セル内で行った。

(3) 挥発試験

試験体を白金試料皿にのせ、内側るつぼ(揮発試験用磁製るつぼ)内の試料台に置き蓋をした。次に内側るつぼを外側るつぼ(揮発試験用ステンレス製るつぼ)に入れ蓋をした後、揮発試験用試料ケースに挿入した。内側るつぼ及び外側るつぼFig. 5に、また揮発試験用試料ケース内配置をFig. 6に示す。試料ケースを揮発試験装置に設置して揮発試験を行った。試験条件をTable 3に、試験温度プログラムをFig. 7に示す。なお揮発試験はWASTEF No.3セル内で行った。

揮発試験終了後装置から試料ケースを取り出し、その中からるつぼ-2を取り出した。次にるつぼ-2内のるつぼ-1から試験体を取り、るつぼ-1及びるつぼ-2は揮発量を測定するためNo.3セルから搬出した。

(4) 放射能の測定

(a) ガラスの放射能の測定

ガラス試料の一部を破碎し、30～100 mg の小片を秤量しセル外に取り出す。白金皿上に移し、濃過塩素酸溶液 5 ml と濃フッ酸 1 ml を加えホットプレート上で加熱し、試料を溶解する。白煙が出始めたらフッ酸を追加する。気泡が出なくなり、黒色の粉体状のもののみが残った時点で中止し、蒸留水 100 ml で希釈する。そのうち 10 ml を分取しポリエチレン製容器に入れ γ 線測定試料とし、1 ml をステンレス鋼製試料皿上で乾燥し β 線測定用試料とする。

溶解しない黒色粉体は極めて微量であり、白金属元素と思われる。白金属元素を含まない模擬ガラス固化体試料を溶解した予備実験では残留物は認められなかった。

(b) 放射能測定器

^{137}Cs の γ 線の測定には $3'' \phi \times 3''$ NaI (Tl) の井戸型シンチレータをつけた CANBERRA 製の波高分析機を使い、 ^{90}Sr (及び Y-90) の β 線の測定にはアロカ製の 2 π ガスフローカウンターを使用した。

(c) 振発物の放射能測定

^{137}Cs 及び ^{90}Sr の揮発試験を行った内側るつぼ及び外側るつぼをそれぞれ γ 線測定器及び β 線測定器で測定した。測定位置は内側るつぼを測定するに適した位置に決め、同じ状態で外側るつぼを測定した。

いづれの外側るつぼも対応する内側るつぼの放射能の $\frac{1}{10^3}$ 以下であったので内側るつぼのみについて揮発物を溶解し放射能を測定した。

すなわち、内側るつぼを 3 N 硝酸につけフッ酸を数滴添加し、1～2 昼夜放置した。溶解後のるつぼの放射能を溶解前のるつぼの放射能の測定条件と同じ条件で測定し、96% 以上除染できたことを確認した。

溶解液について、ガラスの小片の溶解液と同じ条件で放射能の測定を行った。

(5) ステンレス鋼製外側るつぼ及び白金製受け皿に付着した揮発物の浸出試験

^{137}Cs を試験したステンレス鋼製の外側るつぼを 200 ml のポリエチレン製のビーカーに入れ、るつぼの内側と外側に別々に水を張り 4 日間放置し、水を取り出し、No. 5 A の沪紙でろ過し粒子状の放射性物質と溶解した成分にわけて測定する。

次に 3 N 硝酸にフッ酸数滴を入れて一昼夜放置する。

揮発試験のさい、ガラス試料を置いた白金皿についても同じ試験を行った。但し、800°C の試験で用いたものはガラスが軟化し皿に付着したので除いた。

3. 結果と考察

(1) ^{137}Cs 及び ^{90}Sr の揮発率

試験試料の放射能濃度、揮発物の放射能の測定結果から、次式により揮発率を計算し、その結果をTable 4に示した。

$$V_i = v_i / (A_i \times S \times T)$$

ここで V_i : 核種 i の揮発率 ($\text{g}/\text{cm}^2 \cdot \text{day}$)

v_i : " の揮発量 (cpm)

A_i : 試験体の i 核種の放射能濃度 (cpm/g)

S : 試験体の表面積 (cm^2)

T : 試験期間 (day)

この計算式は揮発量が時間の関数になり、飽和現象が起きていない場合を前提としたものである。Walmsley ら²⁾の報告では約10日間までは比較的早く揮発し、その後は遅くなる。したがって本試験で採用した試験期間、3日間では揮発速度の早い段階の値である。

揮発率の対数を温度の逆数に対してプロットする、アレルニウスプロットをFig. 8に示す。アレルニウスプロットは直線を示さなく、通常の揮発現象が関与していると考えられる。

^{90}Sr は揮発性がほとんどないため温度依存性がない。この放射能はガラス表面に付着したガラス粉が脱落飛散する現象によるものと考えられる。

火災事故の評価温度として、輸送規則等では 800°C の温度がとられている。その温度での揮発率はガラス相当量 $2 \times 10^{-2} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$ である。

通常の取扱いでは、ガラスの失透現象を防ぐ目的で、ガラスの温度が 400°C 以上にならないように多くの取扱い施設が設計されている。その場合、 ^{137}Cs の揮発量と ^{90}Sr の揮発量はほぼ同じとなる。 ^{90}Sr は揮発性が低く、 ^{90}Sr の放射能汚染はガラスの微粉によると考えられることから、 400°C 以下では ^{137}Cs 特有の揮発よりもガラスそのものによる粉体汚染の評価を重視すべきと考えられる。この量は約 $1 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$ の桁数であり、浸出率における不溶性核種の浸出量の評価にもほぼ共通する値である⁶⁾。

(2) 附着した揮発物の性状試験

Table 5に水及び $\text{HNO}_3 + \text{HF}$ による浸出水及び各操作における沈殿の放射能の測定結果をガラス相当量に換算した値で示した。なお、浸漬試験後のるつぼの放射能は試験前の放射能の5%以下であった。 800°C のるつぼの表面は酸化が激しく黒色粉体がはげ落ちた。 $800^\circ\text{C}-2$ の内側及び $\text{Sr}-2$ の白金皿は $\text{HNO}_3 + \text{HF}$ の浸漬液の放射能がかけ離れて高いことから、ガラス片による汚染があったことが推定される。

内側るつぼの放射能（揮発全量），外側るつぼの内側及び外側の放射能（Table 5 の各液及び沈殿の合計）をガラス相当量に換算して Table 6 に示す。いづれのるつぼの外側も同程度の汚染をしている。これは同じ電気炉を使って、放射性ガラス試料を調製したため、その汚染がマニプレータで取り扱うさい表面に付着したものと考えられる。

内側るつぼの放射能と外側るつぼの内側の放射能との比を計算し同表に合せて示した。磁製るつぼに蓋をするだけの閉じ込めで放射性物質の移行率は 0.3 % 以下である。特に揮発率が大きい 800°C では $\frac{1}{10^5}$ 以下である。

著者らは、種々の温度で加熱した模擬キャニスター中の空中の Cs 濃度を測定し空中に浮遊している量は少ないと結果を得ている⁶⁾。本実験においても、内側るつぼの放射能はるつぼ壁に付着し、気体状で存在していた割合は低いと推定される。特に高温側でその傾向が強いことがこの結果から推察される。

全体汚染量に対する水に浸出された量の割合を計算し Table 7 に示す。白金皿についてはガラス粉による直接汚染があるためバラツキが大きい。外側るつぼの内側については約 30 % が、外側については 50 % が浸出されることがわかる。このことから揮発して容器に付着したものは比較的よく浸出される。但し、800°C の内側磁製るつぼの場合は水により浸出できる量は数 % 以下であった。その原因としては沈着した Cs がるつぼの上薬と反応したためと考えられる。

4. ま と め

高レベル廃棄物はキャニスターが大破しないかぎり、ガラス表面に接する空気流は遅い。また揮発した Cs はガラス上部の空間に滞留する。そこで閉鎖系で揮発率を測定することとした。

¹³⁷Cs の揮発率は 800°C で約 $2 \times 10^{-2} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$ であり、400°C では $1 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$ となる。400°C では不揮発性の ⁹⁰Sr と同じ値となる。400°C 以下の ¹³⁷Cs による空気汚染は揮発によるよりも、粉体汚染の寄与が大きくなると推察された。

測定手法として、2重るつぼを使い、外側のるつぼにもれる量が充分低いことから、内側るつぼに揮発物が全て収集されることを確認する手法をとった。内側るつぼから外側るつぼに移る量は 0.3 % 以下と低く、800°C では $\frac{1}{10^5}$ と極めて低いことがわかった。このことからキャニスターが破損しても大きく開放されない限りもれ量は極めて低いことが推定された。

また揮発し、ステンレス鋼製るつぼに附着した汚染物からの ¹³⁷Cs の溶解量を測定した結果、水に 4 日間つけることにより約 30 % が溶解し、揮発した ¹³⁷Cs は溶解しやすいことがわかった。

参 考 文 献

- 1) Mendel, J. E. et. al. "MCC a state-of-the-art review of materials properties of nuclear waste forms" PNL-3802 UC 70 (1981)
- 2) Walmsley, D., et. al. "Volatility studies of glasses for the fugal process"

内側るつぼの放射能（揮発全量），外側るつぼの内側及び外側の放射能（Table 5 の各液及び沈殿の合計）をガラス相当量に換算してTable 6 に示す。いづれのるつぼの外側も同程度の汚染をしている。これは同じ電気炉を使って、放射性ガラス試料を調製したため、その汚染がマニプレータで取り扱うさい表面に付着したものと考えられる。

内側るつぼの放射能と外側るつぼの内側の放射能との比を計算し同表に合せて示した。磁製るつぼに蓋をするだけの閉じ込めで放射性物質の移行率は 0.3 % 以下である。特に揮発率が大きい 800°C では $\frac{1}{10^5}$ 以下である。

著者らは、種々の温度で加熱した模擬キャニスター中の空中の Cs 濃度を測定し空中に浮遊している量は少ないと結果を得ている⁶⁾。本実験においても、内側るつぼの放射能はるつぼ壁に付着し、気体状で存在していた割合は低いと推定される。特に高温側でその傾向が強いことがこの結果から推察される。

全体汚染量に対する水に浸出された量の割合を計算し Table 7 に示す。白金皿についてはガラス粉による直接汚染があるためバラツキが大きい。外側るつぼの内側については約 30 % が、外側については 50 % が浸出されることがわかる。このことから揮発して容器に付着したものは比較的よく浸出される。但し、800°C の内側磁製るつぼの場合は水により浸出できる量は数 % 以下であった。その原因としては沈着した Cs がるつぼの上薬と反応したためと考えられる。

4. ま と め

高レベル廃棄物はキャニスターが大破しないかぎり、ガラス表面に接する空気流は遅い。また揮発した Cs はガラス上部の空間に滞留する。そこで閉鎖系で揮発率を測定することとした。

¹³⁷Cs の揮発率は 800°C で約 $2 \times 10^{-2} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$ であり、400°C では $1 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$ となる。400°C では不揮発性の ⁹⁰Sr と同じ値となる。400°C 以下の ¹³⁷Cs による空気汚染は揮発によるよりも、粉体汚染の寄与が大きくなると推察された。

測定手法として、2重るつぼを使い、外側のるつぼにもれる量が充分低いことから、内側るつぼに揮発物が全て収集されることを確認する手法をとった。内側るつぼから外側るつぼに移る量は 0.3 % 以下と低く、800°C では $\frac{1}{10^5}$ と極めて低いことがわかった。このことからキャニスターが破損しても大きく開放されない限りもれ量は極めて低いことが推定された。

また揮発し、ステンレス鋼製るつぼに附着した汚染物からの ¹³⁷Cs の溶解量を測定した結果、水に 4 日間つけることにより約 30 % が溶解し、揮発した ¹³⁷Cs は溶解しやすいことがわかった。

参 考 文 献

- 1) Mendel, J. E. et. al. "MCC a state-of-the-art review of materials properties of nuclear waste forms" PNL - 3802 UC 70 (1981)
- 2) Walmsley, D., et. al. "Volatility studies of glasses for the fugal process"

内側るつぼの放射能（揮発全量）、外側るつぼの内側及び外側の放射能（Table 5 の各液及び沈殿の合計）をガラス相当量に換算してTable 6 に示す。いづれのるつぼの外側も同程度の汚染をしている。これは同じ電気炉を使って、放射性ガラス試料を調製したため、その汚染がマニプレータで取り扱うさい表面に付着したものと考えられる。

内側るつぼの放射能と外側るつぼの内側の放射能との比を計算し同表に合せて示した。磁製るつぼに蓋をするだけの閉じ込めで放射性物質の移行率は 0.3 %以下である。特に揮発率が大きい 800°C では $\frac{1}{10^5}$ 以下である。

著者らは、種々の温度で加熱した模擬キャニスター中の空中の Cs 濃度を測定し空中に浮遊している量は少ないとの結果を得ている⁶⁾。本実験においても、内側るつぼの放射能はるつぼ壁に付着し、気体状で存在していた割合は低いと推定される。特に高温側でその傾向が強いことがこの結果から推察される。

全体汚染量に対する水に浸出された量の割合を計算し Table 7 に示す。白金皿についてはガラス粉による直接汚染があるためバラツキが大きい。外側るつぼの内側については約30%が、外側については 50 %が浸出されることがわかる。このことから揮発して容器に付着したものは比較的よく浸出される。但し、800°C の内側磁製るつぼの場合は水により浸出できる量は数 %以下であった。その原因としては沈着した Cs がるつぼの上薬と反応したためと考えられる。

4. ま と め

高レベル廃棄物はキャニスターが大破しないかぎり、ガラス表面に接する空気流は遅い。また揮発した Cs はガラス上部の空間に滞留する。そこで閉鎖系で揮発率を測定することとした。

¹³⁷Cs の揮発率は 800°C で約 $2 \times 10^{-2} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$ であり、400°C では $1 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$ となる。400°C では不揮発性の ⁹⁰Sr と同じ値となる。400°C 以下の ¹³⁷Cs による空気汚染は揮発によるよりも、粉体汚染の寄与が大きくなると推察された。

測定手法として、2重るつぼを使い、外側のるつぼにもれる量が充分低いことから、内側るつぼに揮発物が全て収集されることを確認する手法をとった。内側るつぼから外側るつぼに移る量は 0.3 %以下と低く、800°C では $\frac{1}{10^5}$ と極めて低いことがわかった。このことからキャニスターが破損しても大きく開放されない限りもれ量は極めて低いことが推定された。

また揮発し、ステンレス鋼製るつぼに附着した汚染物からの ¹³⁷Cs の溶解量を測定した結果、水に 4 日間つけることにより約 30 %が溶解し、揮発した ¹³⁷Cs は溶解しやすいことがわかった。

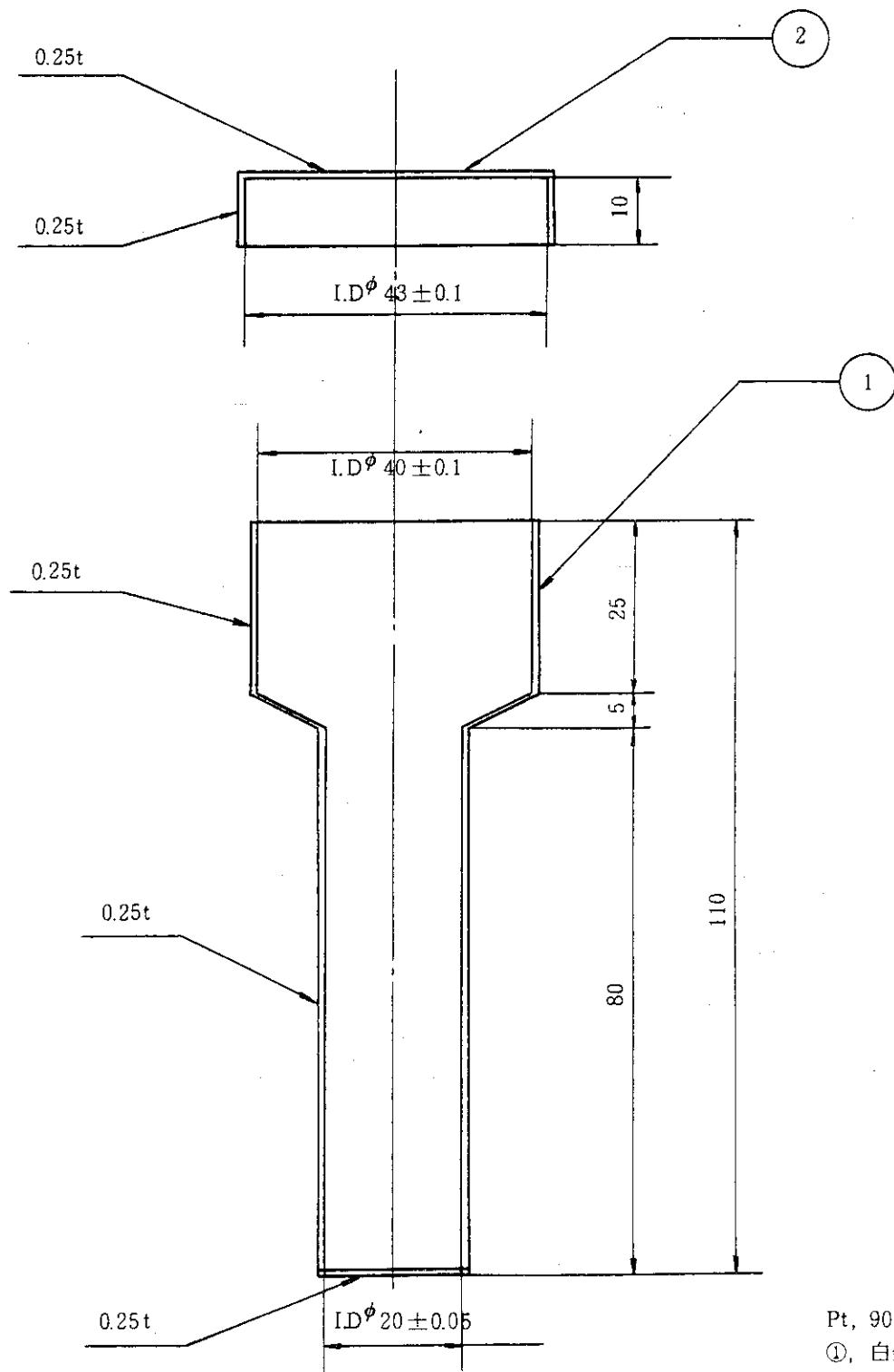
参 考 文 献

- 1) Mendel, J. E. et. al. "MCC a state-of-the-art review of materials properties of nuclear waste forms" PNL-3802 UC 70 (1981)
- 2) Walmsley, D., et. al. "Volatility studies of glasses for the fugal process"

AERE-R 5777 (1969)

- 3) Mendel, J. E. "Materials characterization center test methods. Preliminary Version, MCC-85 high-temperature vaporization test method" PNL 3990 (1981)
- 4) 田代他, "廃棄物安全性試験施設(WASTEF) (建家及びセルの設計と仕様)" JAERI-M 83-175 (1983)
- 5) 大塚他, "ガラス固化体アスキャンニング装置の開発" JAERI-M 84-067 (1984)
- 6) 馬場他, "放射性ガラス固化体の浸出試験" JAERI-M 84-140 (1984)
- 7) 上薦他, "貯蔵時の安全性評価試験—その1 模擬キャニスター中の揮発Cs濃度"

投稿予定



Pt, 90% - Rh, 10%

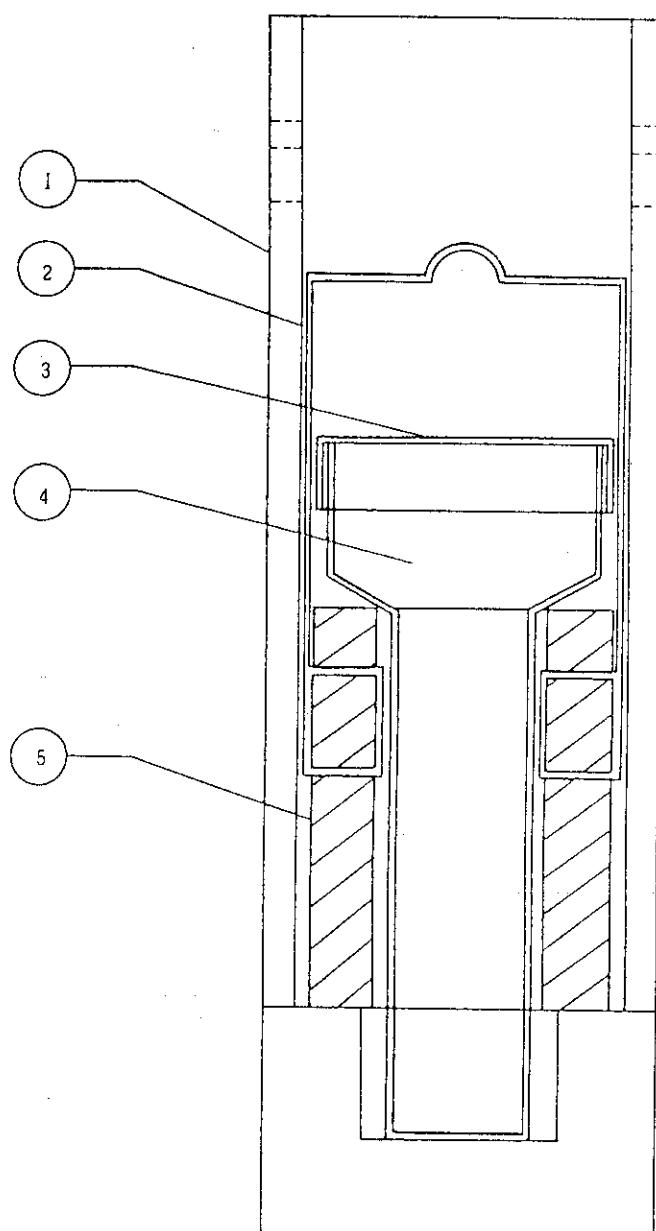
①, 白金るつぼ

②, ①専用上蓋

单位 : (mm)

Fig. 1 溶融用白金るつぼ

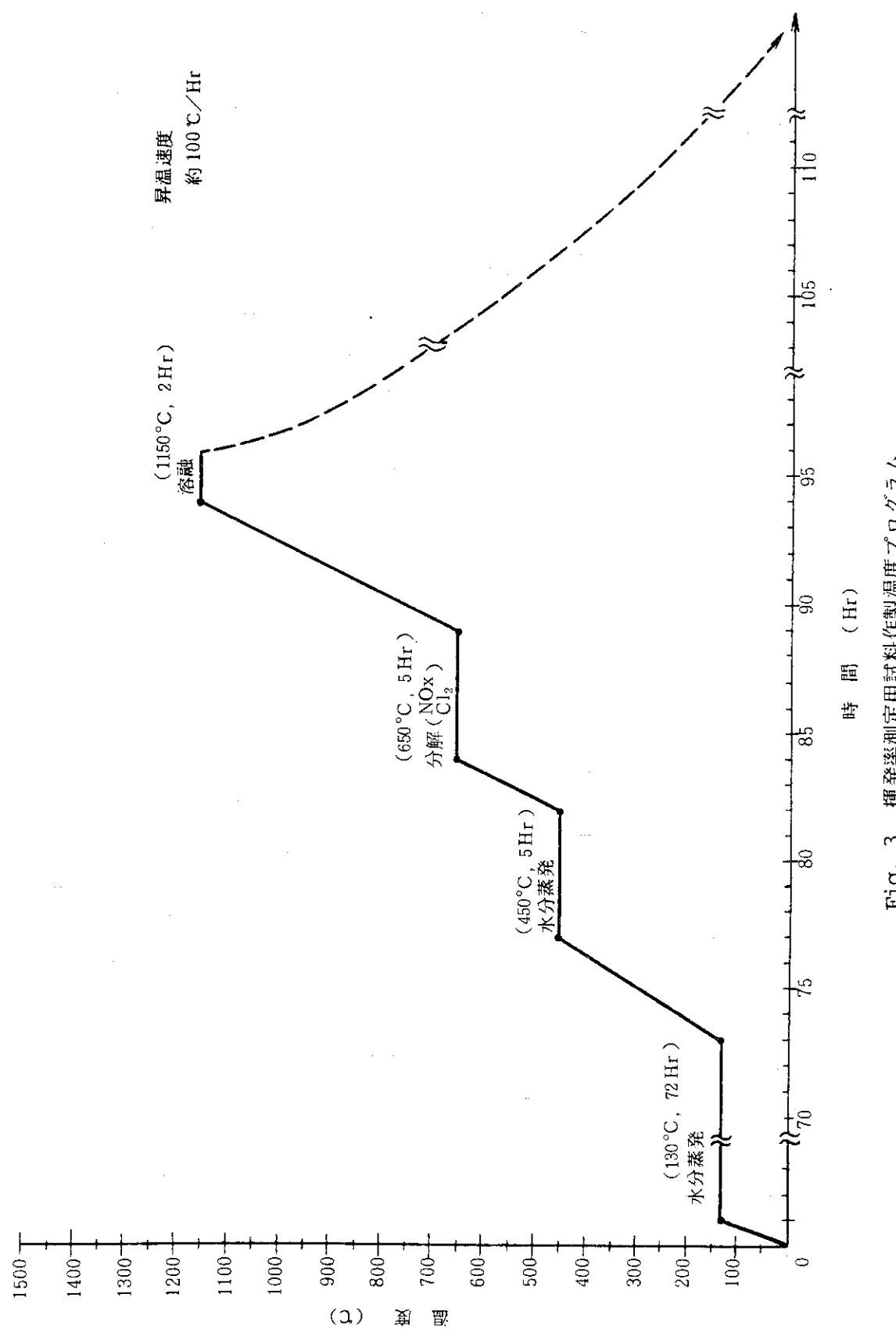
	JW-A
SiO ₂	48.49 %
B ₂ O ₃	18.58
Al ₂ O ₃	2.00
Li ₂ O	1.865
Na ₂ O	11.30
CaO	1.865
Fe ₂ O ₃	2.96
Zr-fine(ZrO ₂ 換算)	1.22
Rb ₂ O	0.115
SrO	0.320
Y ₂ O ₃	0.189
ZrO ₂	1.553
MoO ₃	1.640
MnO ₂	0.244
RuO ₂	0.922
Rh ₂ O ₃	0.192
PdO	0.504
TeO ₂	0.215
Cs ₂ O	0.924
BaO	0.591
La ₂ O ₃	0.480
CeO ₂	1.282
Pr ₆ O ₁₁	0.469
Nd ₂ O ₃	1.560
Sm ₂ O ₃	0.309
SeO ₂	0.020
Ag ₂ O	0.028
CdO	0.029
SnO ₂	0.018
Sb ₂ O ₃	0.005
Eu ₂ O ₃	0.059
Gd ₂ O ₃	0.036
合 計	99.98 %



- ① 試料ケース
- ② 吊り治具
- ③ るつぼ用上蓋
- ④ るつぼ
- ⑤ るつぼ支持台

Fig. 2 撻発試験装置試料ケース内配置図

Table 1 試験試料模擬ガラス固化体目標組成



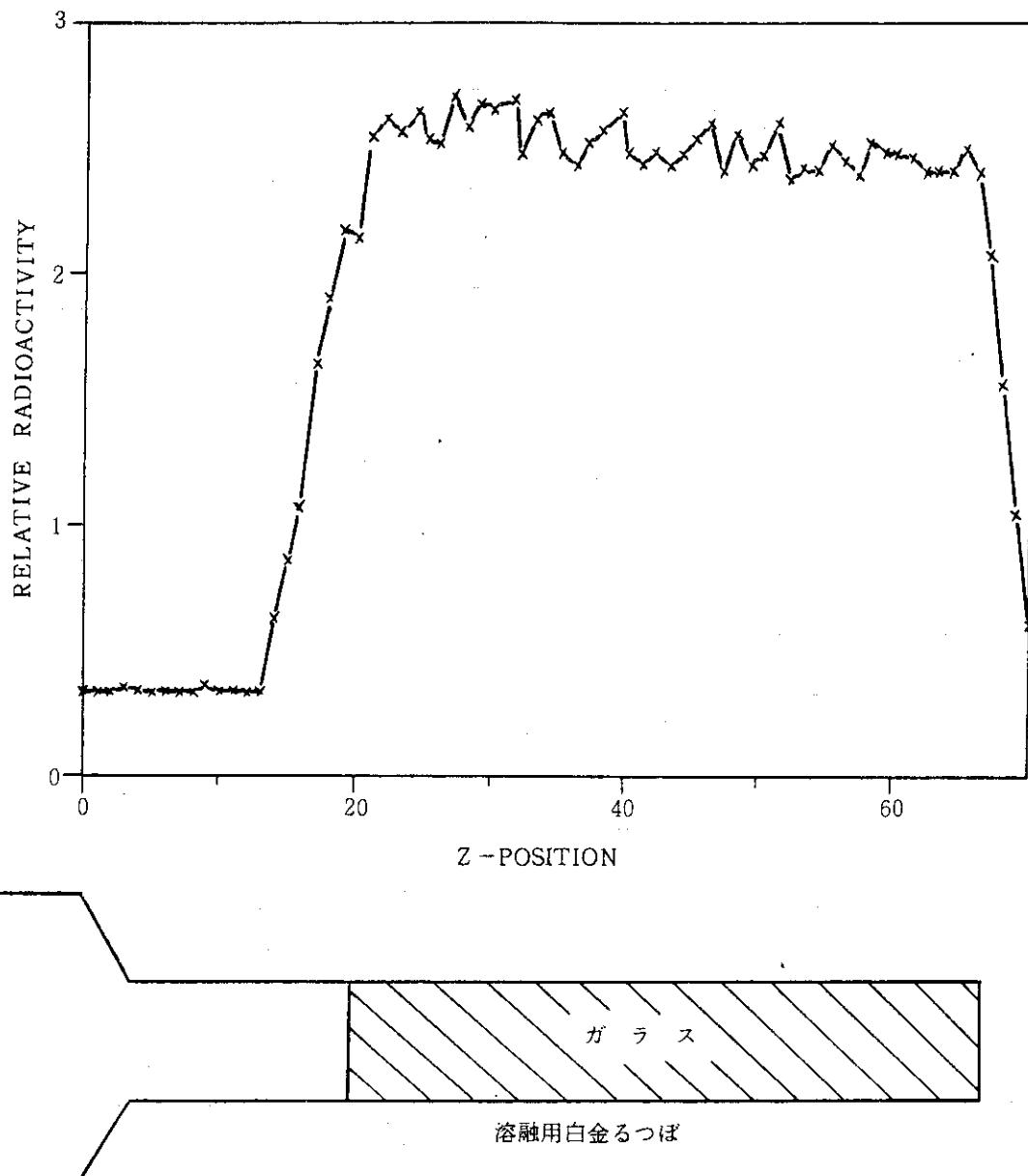
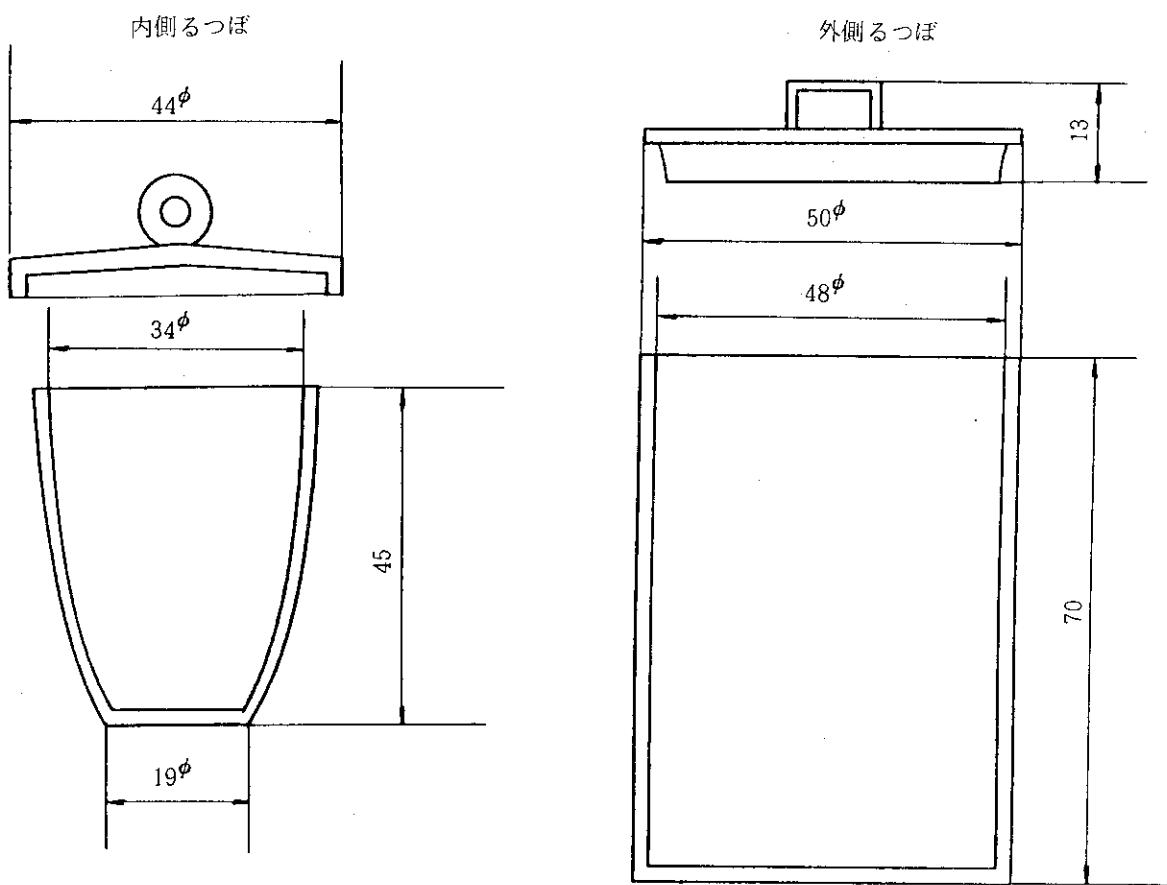
Fig. 4 γ スキャニング装置による Cs-137 濃度分布

Table 2 振発率測定用試験体の重量及び研磨度合

核 種	温度(°C)	400		600		800			
						No. 1		No. 2	
		^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr
試験体の白金 を含む重量(g)		6.3962	6.2453	5.2098	6.1234	5.9979	6.0572	6.0352	6.1315
試験体の厚さ (mm)		5.52	5.38	5.35	5.28	5.17	5.22	5.20	5.29
試験体の重量 (g)		4.6675	4.5767	4.5412	4.4878	4.3863	4.4329	4.4135	4.4884
研磨度合(#)		25 μm (D.P*)	25 μm (D.P*)	400	400	400	400	400	400

* D.P: ダイヤモンドペースト



単位: (mm)

Fig. 5 振発率測定用るつぼ

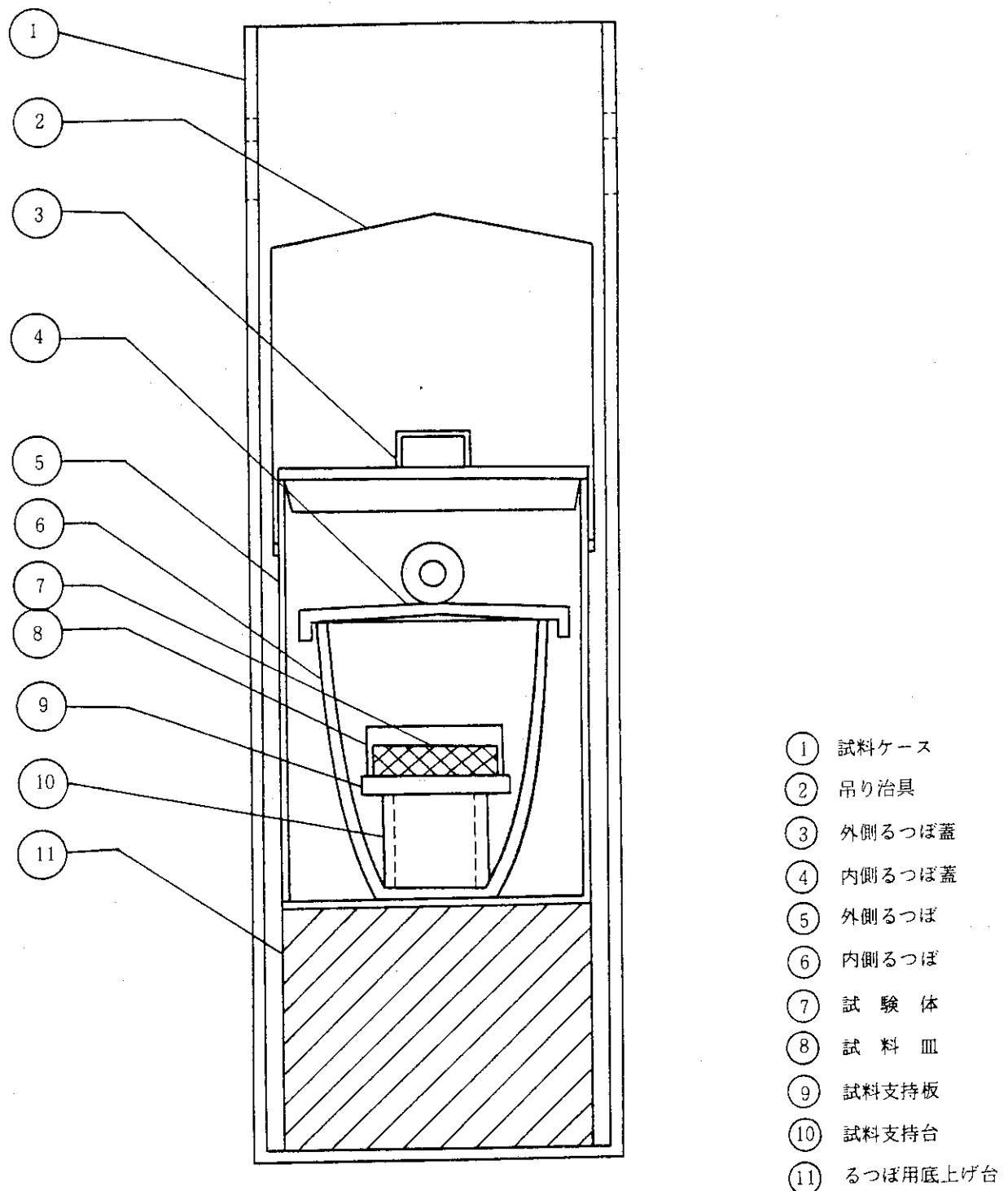


Fig. 6 撃発試験装置撃発試料ケース内配置図

Table 3 撥発率測定試験条件

試験温度(°C)	400	600	800		
			No. 1	No. 2	
試験体	寸法				
	表面積				
	体積				
	重量				
	放射能				
	放射性トレーサー				
試験体数 (個)	^{137}Cs	1	1	2	
	^{90}Sr	1	1	2	
試験期間(day)		3	3	3	

Table 4 Cs-137 及び Sr-90 撥発率測定結果

揮発温度 (°C)	400	600	800	
			No. 1	No. 2
試料の表面積(cm ²)	3.14	3.14	3.14	3.14
試験期間(day)	3	3	3	3
揮発率 (g/cm ² day)	^{137}Cs	1.57×10^{-6}	7.04×10^{-5}	2.27×10^{-2}
	^{90}Sr	1.29×10^{-6}	1.06×10^{-6}	5.12×10^{-7}
				9.34×10^{-7}

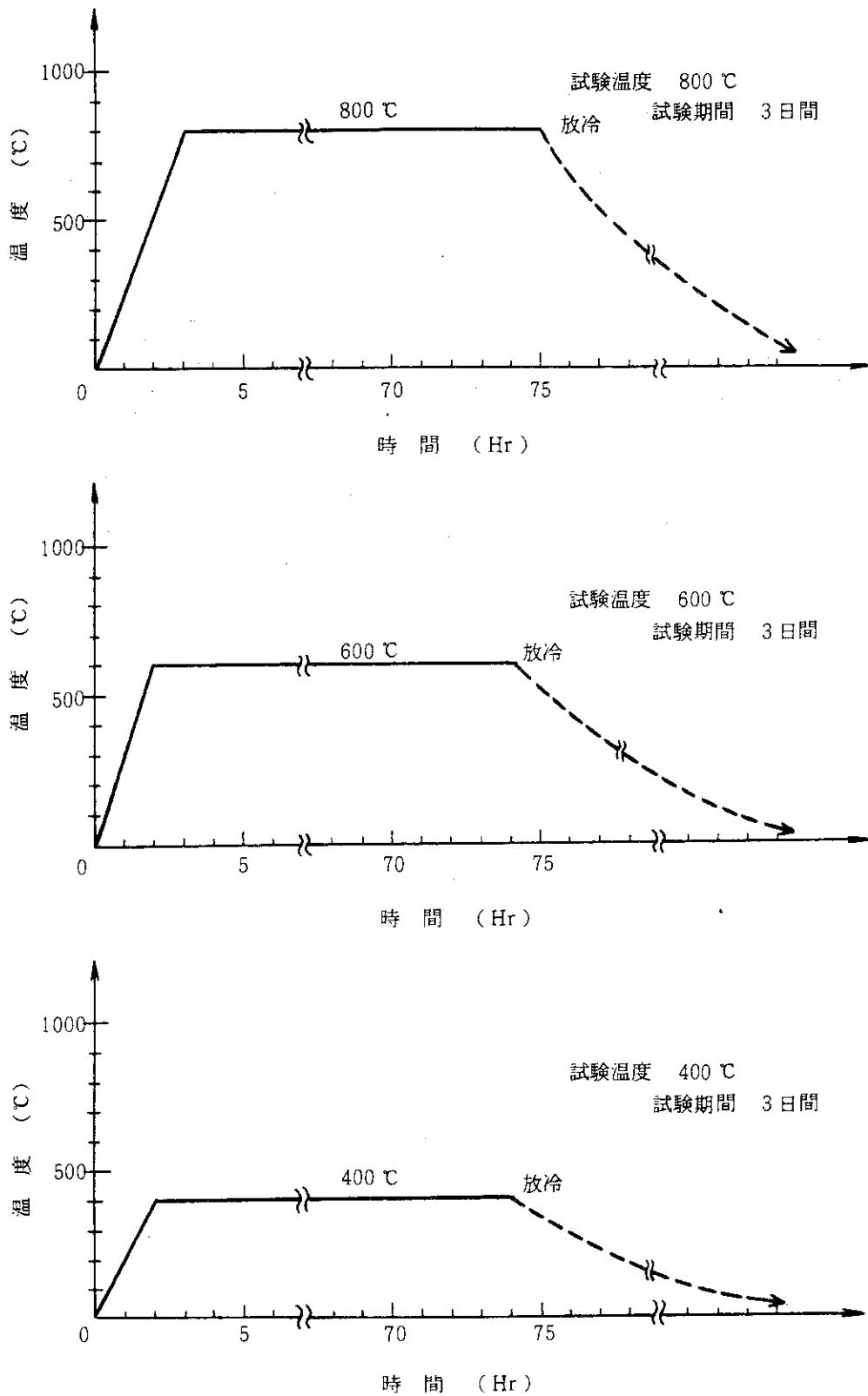


Fig. 7 撃発率測定試験温度プログラム

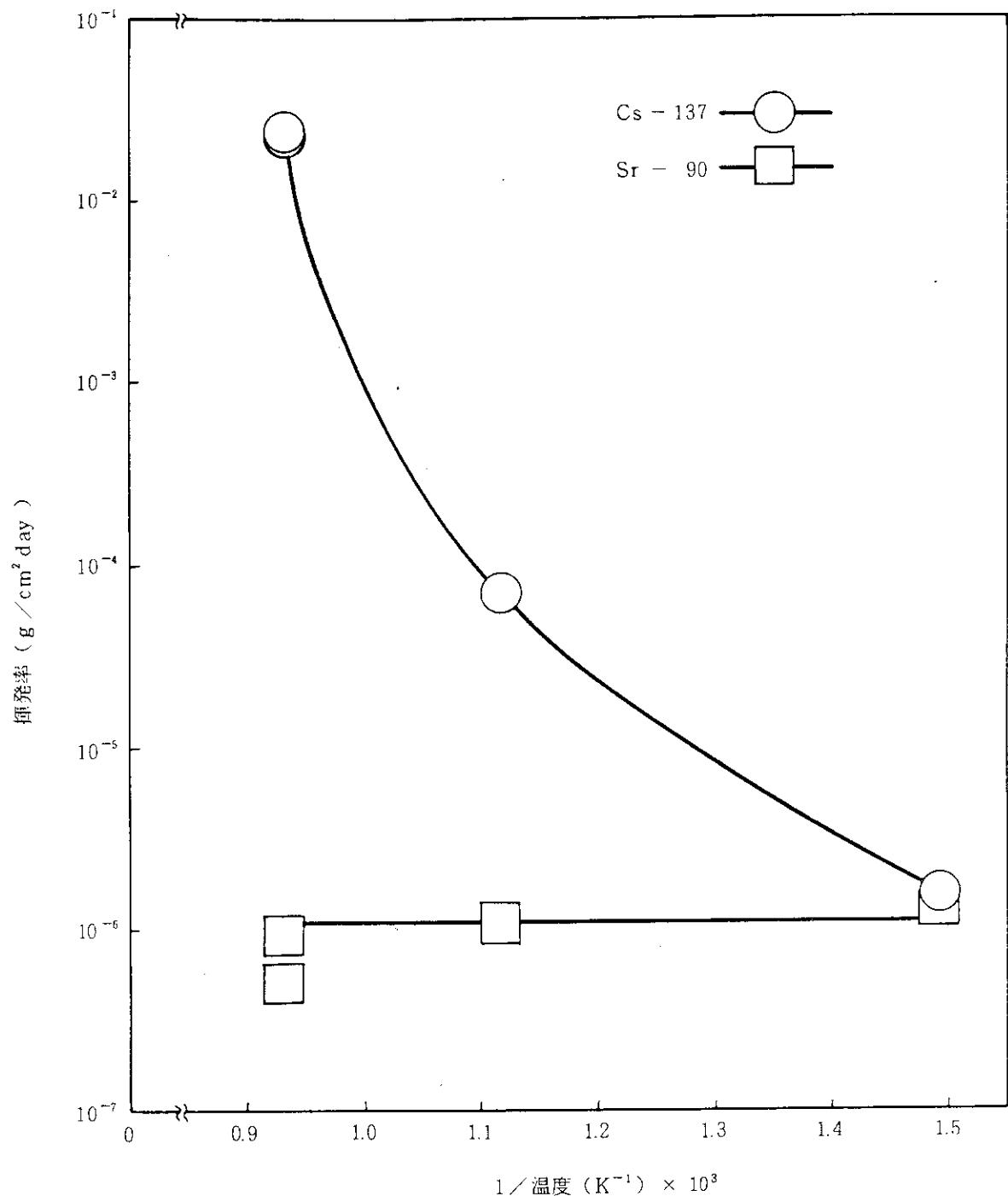


Fig. 8 挥発率と温度との関係

Table 5 振発物の浸出

(ガラス相当量 g)

ステンレス鋼製外側るつば		内側浸出液	内側沈殿	外側浸出液	外側沈殿
800°C - 1	H ₂ O	4.1×10^{-7}	7.3×10^{-7}	2.1×10^{-6}	4.7×10^{-7}
	HNO ₃ +HF	1.9×10^{-7}	0.1×10^{-7}	1.2×10^{-6}	1.8×10^{-7}
800°C - 2	H ₂ O	4.1×10^{-7}	2.3×10^{-6}	7.4×10^{-6}	9.8×10^{-7}
	HNO ₃ +HF	9.9×10^{-6}	1.3×10^{-7}	1.5×10^{-6}	5.1×10^{-7}
600°C	H ₂ O	0.4×10^{-7}	0.7×10^{-7}	2.7×10^{-6}	4.8×10^{-7}
	HNO ₃ +HF	0	0	1.2×10^{-6}	0
400°C	H ₂ O	0.9×10^{-7}	0.9×10^{-7}	3.9×10^{-6}	3.8×10^{-7}
	HNO ₃ +HF	2.3×10^{-7}	0.3×10^{-7}	2.0×10^{-6}	0.3×10^{-7}

白金製皿		浸出液	沈殿
Cs - 1	H ₂ O	2.4×10^{-6}	3.4×10^{-6}
	HNO ₃ +HF	1.9×10^{-6}	0.9×10^{-7}
Cs - 2	H ₂ O	4.9×10^{-7}	6.0×10^{-6}
	HNO ₃ +HF	7.9×10^{-7}	0.1×10^{-7}
Sr - 1	H ₂ O	4.2×10^{-7}	1.3×10^{-6}
	HNO ₃ +HF	1.1×10^{-6}	0.5×10^{-7}
Sr - 2	H ₂ O	5.7×10^{-7}	1.6×10^{-5}
	HNO ₃ +HF	3.0×10^{-4}	3.5×10^{-6}

Table 6 各るつぼの表面汚染量

(ガラス相当量 g)

	(A)内側るつぼ	(B ₁)外側るつぼ内	(B ₂)外側るつぼ外	移行比 (B ₂)/(A)
800°C - 1	2.1×10^{-1}	1.3×10^{-6}	4.0×10^{-6}	6.2×10^{-6}
600°C	6.6×10^{-4}	1.0×10^{-7}	4.4×10^{-6}	1.5×10^{-4}
400°C	1.5×10^{-4}	4.3×10^{-7}	6.3×10^{-6}	2.9×10^{-3}

Table 7 水による表面汚染物からの¹³⁷Cs の浸出割合

浸出期間 4 日 (%)

SUS外側るつぼ	内 側	外 側
800°C - 1	3 2	5 3
600°C	3 5	6 1
400°C	2 0	6 2

白 金 盤	全 面
Cs - 1	3 1
Cs - 2	7
Sr - 1	1 5