

JAERI-M

8 5 7 2

天然ゼオライト添加による高レベル廃液  
処理時のセシウムの揮発防止効果

1979年11月

妹尾宗明・田代晋吾・馬場恒孝・三田村久吉  
荒木邦夫・天野 憨

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

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

天然ゼオライト添加による高レベル廃液処理時  
のセシウムの揮発防止効果

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

妹尾宗明・田代晋吾・馬場恒孝・三田村久吉  
荒木邦夫・天野 恕

(1979年10月25日受理)

高レベル廃液固化処理時のセシウムの揮発を防止するため、天然ゼオライトの添加効果を重量法および放射能トレーサー法によって検討した。その結果、廃液にゼオライトを添加した場合、従来から報告されている溶液中のセシウムのイオン交換反応の他に、高温における固相反応によつてもセシウムがゼオライトの構造中に取り込まれ、ゼオライト構造が破壊されるまでの間は安定に保持される事を明らかにした。600°C付近における仮焼に際しては、高レベル廃液1ℓに20g以上のゼオライトを添加することによりセシウムの揮発を防止することが可能である。さらに、高温におけるガラス固化あるいはセラミック固化処理に際しては、より大量のゼオライトの添加が必要であるが、添加物はシリカおよびアルミナの供給源として有効に活用される。

The Effect of Zeolite against Volatility of Cesium  
during Solidification Process of High-level Waste

Muneaki SENOO, Shingo TASHIRO, Tsunetaka BANBA,  
Hisayoshi MITAMURA, Kunio ARAKI and Hiroshi AMANO

Division of Environmental Safety Research, Tokai Research  
Establishment, JAERI

(Received October 25, 1979)

The effect of natural zeolite in prevention of cesium volatilization in the solidification process of HLW was studied by gravimetric method and radioactive tracer technique.

Following are the results: (1) Cesium ion was absorbed in the crystalline structure of zeolite by solid state reaction at high temperature, in addition to the ion exchange reaction in solution. (2) The cesium was retained in the zeolite up to a temperature where the crystalline structure was destroyed. (3) In calcining HLW at ca. 600°C, 20 g of zeolite was effective to suppress the volatilization in 1 l of the HLW. (4) For the vitrification and ceramic solidification process at higher temperatures, larger quantities of zeolite were required, which were effective as silica and alumina used for the solidification matrix.

Keywords; High-Level Waste, Natural Zeolite, Cesium, Volatility, Calcination, Vitrification, Ceramic Solidification, Ion Exchange Reaction, Solid State Reaction.

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 実験方法及び装置 .....	1
2.1 硝酸セシウムの重量変化測定 .....	1
2.2 $^{137}\text{Cs}$ をトレーサとして用いた揮発率測定 .....	2
3. 結果及び考察 .....	3
3.1 硝酸セシウム-ゼオライト混合物の加熱変化 .....	3
3.2 添加比率及び模擬廃棄物の影響 .....	4
4. 結論 .....	4
謝辞 .....	5
引用文献 .....	5
付録 .....	6

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Measurements and Apparatus .....	1
2.1 Measurement of volatility of cesium by gravimetric method .....	1
2.2 Measurement of volatility of cesium by radioactive tracer technique .....	2
3. Results and discussion .....	3
3.1 Weight change with heat test for mixture of natural zeolite and cesium nitrate .....	3
3.2 Additive effect of natural zeolite and effect of HLW constituents for volatility of cesium .....	4
4. Conclusion .....	4
Acknowledgment .....	5
Bibliography .....	5
Appendix .....	6

## 1. はじめに

使用済核燃料再処理工程における一次抽出廃液として発生する高レベル廃液は、多量の放射性物質を含有しており、減容及び固定のための固化処理を行ったのち、数十万年の期間にわたって人間環境から隔離する必要がある。現在、世界各国において高レベル廃液固化処理法の研究開発が行われており、ホウケイ酸ガラス固化及びセラミック固化は、最も有望視されている方法である。<sup>1)</sup>

それらの固化処理の前段階として仮焼、即ち廃液中の水分蒸発と硝酸塩の分解を行い、高レベル廃棄物を酸化物の形に変換する工程がとられることが一般的である。これは、その後に続くガラス固化又はセラミック固化等の固化処理を行うに際しての分解ガスの発生をさけ、固化プロセスの効率化を計ることを目的としたものである。

仮焼を含めた高レベル廃棄物の固化処理は、600～1,200°Cの高温によって行われる。この熱処理時に廃棄物含有放射性核種の揮発という問題が生じる。これは、揮発した放射性核種の捕集、二次廃棄物の増加、揮発物の沈着によるプロセスの閉塞等、固化処理時における安全管理及びプロセス管理上に悪影響をもたらす。この影響を少なくする技術としてオフガス処理技術の開発、溶融方式の開発等のプロセス上の改良と、添加剤による化学的な揮発防止の方法<sup>2)</sup>が考えられている。本報は揮発性核種のうち最も揮発性の高いセシウムについて、その揮発を天然ゼオライトの添加によって防止する方法について検討したものである。

セシウムは、溶液中に存在するイオンをゼオライトが選択的に吸着し、吸着されたセシウム<sup>3)</sup>は約1,000°Cまでの加熱に対して安定に保持されることが報告されている。仮焼、ガラス固化及びセラミック固化処理に際して、廃液にゼオライトを添加して加熱した場合には、蒸発乾固したものの中には吸着量以上のセシウムが、他の廃棄物成分と共に存在する。

本報では、これらの吸着量以上の廃棄物成分が加熱時のセシウムの揮発に及ぼす影響を評価し、高レベル廃棄物処理に際してのセシウム揮発に対してゼオライト添加による防止効果を検討した結果を報告する。

## 2. 実験方法及び装置

### 2.1 硝酸セシウムの重量変化測定

ゼオライト中に混合した硝酸セシウムの重量変化は、次のようにして測定した。即ち、0.752M硝酸セシウム溶液5ml（硝酸セシウム0.733g）を精秤した10gのゼオライトと共に30mlのアルミナルツボに入れ、さらに蒸留水5mlを加えてペースト状に均一に混合する。これを110°Cで15時間以上乾燥させて秤量し、さらに400～1,200°Cの間で順次1時間加熱して秤量した。一方、ゼオライトのみの重量変化の標準として、セシウムを含まないゼ

## 1. はじめに

使用済核燃料再処理工程における一次抽出廃液として発生する高レベル廃液は、多量の放射性物質を含有しており、減容及び固定のための固化処理を行ったのち、数十万年の期間にわたって人間環境から隔離する必要がある。現在、世界各国において高レベル廃液固化処理法の研究開発が行われており、ホウケイ酸ガラス固化及びセラミック固化は、最も有望視されている方法である。<sup>1)</sup>

それらの固化処理の前段階として仮焼、即ち廃液中の水分蒸発と硝酸塩の分解を行い、高レベル廃棄物を酸化物の形に変換する工程がとられることが一般的である。これは、その後に続くガラス固化又はセラミック固化等の固化処理を行うに際しての分解ガスの発生をさけ、固化プロセスの効率化を計ることを目的としたものである。

仮焼を含めた高レベル廃棄物の固化処理は、600～1,200°Cの高温によって行われる。この熱処理時に廃棄物含有放射性核種の揮発という問題が生じる。これは、揮発した放射性核種の捕集、二次廃棄物の増加、揮発物の沈着によるプロセスの閉塞等、固化処理時における安全管理及びプロセス管理上に悪影響をもたらす。この影響を少なくする技術としてオフガス処理技術の開発、溶融方式の開発等のプロセス上の改良と、添加剤による化学的な揮発防止の方法が考えられている。<sup>2)</sup> 本報は揮発性核種のうち最も揮発性の高いセシウムについて、その揮発を天然ゼオライトの添加によって防止する方法について検討したものである。

セシウムは、溶液中に存在するイオンをゼオライトが選択的に吸着し、吸着されたセシウム<sup>3)</sup>は約1,000°Cまでの加熱に対して安定に保持されることが報告されている。仮焼、ガラス固化及びセラミック固化処理に際して、廃液にゼオライトを添加して加熱した場合には、蒸発乾固したものの中には吸着量以上のセシウムが、他の廃棄物成分と共に存在する。

本報では、これらの吸着量以上の廃棄物成分が加熱時のセシウムの揮発に及ぼす影響を評価し、高レベル廃棄物処理に際してのセシウム揮発に対してゼオライト添加による防止効果を検討した結果を報告する。

## 2. 実験方法及び装置

### 2.1 硝酸セシウムの重量変化測定

ゼオライト中に混合した硝酸セシウムの重量変化は、次のようにして測定した。即ち、0.752M硝酸セシウム溶液5ml（硝酸セシウム0.733g）を精秤した10gのゼオライトと共に30mlのアルミナルツボに入れ、さらに蒸留水5mlを加えてペースト状に均一に混合する。これを110°Cで15時間以上乾燥させて秤量し、さらに400～1,200°Cの間で順次1時間加熱して秤量した。一方、ゼオライトのみの重量変化の標準として、セシウムを含まないゼ

オライトのみに水を加えて同様の操作を行い、各温度における両者の重量から、セシウム化合物の重量変化を評価した。

また、粉末の硝酸セシウム 0.733 g をゼオライト 10 g と混合してルツボ内で加熱し、同様に加熱したゼオライトのみの重量変化との比較から、粉体混合におけるゼオライト中のセシウムの重量変化を求めた。硝酸セシウム単独の重量変化は、上記の硝酸セシウム溶液 5 ml を 30 ml アルミナルツボにとり、これを乾燥、加熱して求めた。

なお、実験に使用したゼオライトは、北海道長万部産（有限会社 浜道興産取り扱い）の天然ゼオライトで、その化学成分を Table 1 \* に示す。また、そのイオン交換容量は 139.9 ミリ当量 / 100 g \*\* である。硝酸セシウムは特級試薬を使用した。

## 2.2 $^{137}\text{Cs}$ をトレーサとして用いた揮発率測定

セシウムの揮発率を直接求めるために、 $^{137}\text{Cs}$  をトレーサとして用い、以下の方法によって加熱時の揮発率の測定を行つた。即ち、硝酸セシウム 0.29 g に約 80  $\mu\text{Ci}/\text{ml}$  の $^{137}\text{Cs}$  溶液 ( $^{137}\text{CsNO}_3 + \text{CsNO}_3$  1 mM キャリヤー) 1 ml を加えて溶解し、これを $^{137}\text{Cs}$  原液とした。

$^{137}\text{Cs}$  原液 1 ml に精秤した 0.16 ~ 2.0 g のゼオライトを添加し、ペースト状に均一に混合した後、その 1 部、約 20 mg を 5 mm  $\phi$  × 3 mm の白金製の試料皿にとり、乾燥させ試料とした。各試料毎それを 15 ml 及び 50 ml の磁製ルツボに入れ二重にフタをしたものをお電気炉中で 400, 600, 800 及び 1000 °C でそれぞれ 1 時間加熱した後、試料及びルツボの放射能を測定した。

模擬廃棄物中のセシウムの挙動を見る実験では、第 2 表に示した模擬廃棄物 2.11 g に $^{137}\text{Cs}$  溶液 (80  $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ ) 1 ml を加え、これを模擬廃液とした。この模擬廃液 1 ml に、精秤したゼオライト 0.2 g ~ 4 g を添加し、(ゼオライト / 硝酸セシウム比 1.0 ~ 2.0) ペースト状に均一に混合した後、上記 $^{137}\text{Cs}$  原液の場合と同様な操作を行つて試料及びルツボの放射能を測定した。

放射能の測定には、38 mm  $\phi$  × 38 mm hNaI (Tl) シンチレーションカウンタを用いた。セシウムの揮発率は付録に示す検討の結果に基づき、揮発率 2% 以下の場合には統計誤差の小さいルツボ内の放射能強度から求め、2% 以上では、幾何学的な差異による系統的な誤差の小さい白金皿の試料の放射能強度の変化から求めた。

試料に含まれた $^{137}\text{Cs}$  はおよそ 1 ~ 2  $\mu\text{Ci}$  である。また、放射能測定時には、試料を測定用しゃへい体の最下段（検出器まで距離約 10 cm）に置き、幾何学的な計数条件の差が小さくなるようにした。この場合の計数効率は約 1.3% (IAEA Calibrated-source 10  $\mu\text{Ci}$  使用) であった。

\* 株式会社アグネ技術センター分析結果

\*\* 北海道立工業試験場試験結果

### 3. 結果及び考察

#### 3.1 硝酸セシウムーゼオライト混合物の加熱変化

ゼオライト中で加熱した際のセシウムの挙動を見るため、セシウムに対し十分多量のゼオライトをえたものを加熱して、硝酸セシウムの重量変化及びセシウムの揮発率を測定した。硝酸セシウム／ゼオライト比を1:1 3.6とした場合の重量変化をFig. 1に、揮発率変化をFig. 2に示す。両者には顕著な差異が見られ、重量変化が必ずしもセシウムの揮発量を示していないことが解る。

すなわち、Fig. 1 の重量変化では、硝酸セシウム単独の場合は、400°C付近まではほとんど重量変化が見られないのに対して、硝酸セシウム溶液にゼオライトをえたものでは、100°Cにおける蒸発乾固時及び400°C～600°Cの間で減量が見られる。

比較のため、硝酸セシウムの粉末とゼオライトを乾燥状態で混合したものを加熱した結果、400°Cまでは硝酸セシウムの重量変化はなく、600°Cの加熱で減量が見られた。両者共、800°C以上の温度ではほとんど重量変化はなく、添加量から計算したCs<sub>2</sub>Oの量と良い一致を示した。

一方、Fig. 2 に示す<sup>137</sup>Csをトレーサーとして用いたセシウムの揮発率測定では、硝酸セシウム単独で加熱した場合には800°Cまでの加熱ではほぼ全量が揮発するのに対し、ゼオライト中のセシウムは1000°Cまでの加熱でセシウムの揮発は検出されなかつた。

これらの結果から、100°Cの乾燥時及び400°C～600°Cの間におけるゼオライト中の硝酸セシウムの減量は、分解した硝酸根の揮発によるものであると思われる。

なお、Fig. 2 には、使用したゼオライトの主成分であるシリカ及びアルミナをそれぞれ単独の試薬を用いて混合したものの中におけるセシウムの揮発率の測定結果を併せて示した。この場合には、400°C～600°Cの間で大量の揮発が見られる。これは、ゼオライトの構造が、セシウムの揮発防止に寄与している事を示している。

Fig. 1 における硝酸セシウム溶液ーゼオライト混合物の乾燥時における硝酸根の分解量をセシウム／ゼオライト比との関連で評価したものがFig. 3 である。

硝酸セシウムの比率が低くなると、直線で示す化合物中のN<sub>2</sub>O<sub>5</sub>の量に漸近していく。一方、硝酸セシウムの比率が高くなる従つて、飽和していく様子が示されている。使用したゼオライトのイオン交換容量は13.9.9 meq/100 g ゼオライトであり、これらのことから溶液中で一部のセシウムがゼオライトに吸着され、相当する硝酸根の分解が100°C以下で生じたものと判断できる。Table 2には、セシウム化合物及び関連する金属硝酸塩の物理的性質を示す。100°Cにおける硝酸根の分解、揮発に関係するものは硝酸の沸点のみである。吸着されたセシウムに相当する硝酸根は硝酸蒸気として気化したものと推定される。

これらのことから、多量のゼオライトを添加したとき硝酸セシウムの一部は溶液中でゼオライトに吸着され、残りの部分についても硝酸セシウムの分解時にゼオライト中に取り込まれる

ことが解る。

### 3.2 添加比率及び模擬廃棄物の影響

高レベル廃液の仮焼に際しては、不必要に大量のゼオライトを添加することは、操作性を著しく悪くし、また仮焼効率を劣化させるので望ましくない。一方、廃液中には、Cs以外にも多くの金属イオンが含まれており、これらが、セシウムの揮発に及ぼす影響を評価するため、硝酸セシウムあるいは模擬廃棄物中の硝酸セシウムに1:0.8~1:20の比率でゼオライトを添加し、加熱した場合のセシウム揮発率を<sup>137</sup>Csトレーサーを用いて測定した。この結果をFig. 4に示す。

400°Cまでの加熱においては、実験したいずれの場合にもセシウムの揮発は見られなかつた。600°Cにおける加熱においては模擬廃棄物の有無に関係なく、ゼオライトのイオン交換容量に相当した値を境にして添加比率の低い部分で2%以下のセシウムの揮発が見られた。これは、ゼオライトにセシウムが選択的に吸着され、セシウムの5.8倍存在するNa等、他の金属元素の影響を受けないためと判断できる。800°Cから1000°Cにかけては、模擬廃棄物を含まないものでは添加比率の低い部分で揮発率は増大するが、添加比率1:4以上では顕著な揮発はみられない。

これに対して模擬廃棄物とともに加えたセシウムは、800°C~1000°Cにかけて大きな揮発率の増加が見られる。これは、大量に含まれるアルカリ金属等の影響でゼオライトの構造が破壊された結果、セシウムの揮発率が増大することを示しており、この点からも600°C~800°Cの間のセシウムの揮発防止にゼオライトの構造が有効に寄与していることが解る。

Fig. 5 からTable 3に示す模擬廃液の仮焼に際しては、廃液1ℓに対して約20~30gのゼオライトの添加によりセシウムの揮発が有効に防止されることが解る。

ガラス固化あるいはセラミック固化処理法として、シリカ及びアルミナの原料として、天然ゼオライトを用いる方法を原研において開発している。<sup>4)</sup>これらの固化処理時には、硝酸セシウム/ゼオライトの比率は1:20~1:30の範囲にあり、より高温におけるこれらの工程においても、ゼオライトの添加によってセシウムの揮発が数%以下に低減できることが期待される。

## 4. 結論

高レベル廃液処理時のセシウムの揮発を防止するため、ゼオライトの添加効果について検討した。十分に多量のゼオライトを硝酸セシウム中に添加したとき、一部セシウムは常温でセシウムに吸着され、残りのセシウムについても硝酸セシウムの分解時に、ゼオライト中にとり込まれることが解った。この方法は、従来の固液分離を伴なう吸着法に比べ、一定量のゼオライトで廃液中の放射性セシウムが全量処理できるという特徴を有している。

模擬廃液中の他の金属イオンは、ゼオライトによるセシウムの吸着にはほとんど影響を及ぼさないので、600°C付近の加熱に対しては、セシウムの揮発に影響を及ぼさない。しかし、

ことが解る。

### 3.2 添加比率及び模擬廃棄物の影響

高レベル廃液の仮焼に際しては、不必要に大量のゼオライトを添加することは、操作性を著しく悪くし、また仮焼効率を劣化させるので望ましくない。一方、廃液中には、Cs以外にも多くの金属イオンが含まれており、これらが、セシウムの揮発に及ぼす影響を評価するため、硝酸セシウムあるいは模擬廃棄物中の硝酸セシウムに1:0.8~1:20の比率でゼオライトを添加し、加熱した場合のセシウム揮発率を<sup>137</sup>Csトレーサーを用いて測定した。この結果をFig. 4に示す。

400°Cまでの加熱においては、実験したいずれの場合にもセシウムの揮発は見られなかつた。600°Cにおける加熱においては模擬廃棄物の有無に関係なく、ゼオライトのイオン交換容量に相当した値を境にして添加比率の低い部分で2%以下のセシウムの揮発が見られた。これは、ゼオライトにセシウムが選択的に吸着され、セシウムの5.8倍存在するNa等、他の金属元素の影響を受けないためと判断できる。800°Cから1000°Cにかけては、模擬廃棄物を含まないものでは添加比率の低い部分で揮発率は増大するが、添加比率1:4以上では顕著な揮発はみられない。

これに対して模擬廃棄物とともに加えたセシウムは、800°C~1000°Cにかけて大きな揮発率の増加が見られる。これは、大量に含まれるアルカリ金属等の影響でゼオライトの構造が破壊された結果、セシウムの揮発率が増大することを示しており、この点からも600°C~800°Cの間のセシウムの揮発防止にゼオライトの構造が有効に寄与していることが解る。

Fig. 5 からTable 3に示す模擬廃液の仮焼に際しては、廃液1ℓに対して約20~30gのゼオライトの添加によりセシウムの揮発が有効に防止されることが解る。

ガラス固化あるいはセラミック固化処理法として、シリカ及びアルミナの原料として、天然ゼオライトを用いる方法を原研において開発している。<sup>4)</sup>これらの固化処理時には、硝酸セシウム/ゼオライトの比率は1:20~1:30の範囲にあり、より高温におけるこれらの工程においても、ゼオライトの添加によってセシウムの揮発が数%以下に低減できることが期待される。

## 4. 結論

高レベル廃液処理時のセシウムの揮発を防止するため、ゼオライトの添加効果について検討した。十分に多量のゼオライトを硝酸セシウム中に添加したとき、一部セシウムは常温でセシウムに吸着され、残りのセシウムについても硝酸セシウムの分解時に、ゼオライト中にとり込まれることが解った。この方法は、従来の固液分離を伴なう吸着法に比べ、一定量のゼオライトで廃液中の放射性セシウムが全量処理できるという特徴を有している。

模擬廃液中の他の金属イオンは、ゼオライトによるセシウムの吸着にはほとんど影響を及ぼさないので、600°C付近の加熱に対しては、セシウムの揮発に影響を及ぼさない。しかし、

800°C～1000°Cで加熱した場合には、廃液中の金属酸化物の影響でゼオライトの構造破壊が生じるため、セシウムの揮発率が増大する。

600°C～800°Cにおける仮焼に際しては、1ℓ廃液に20～30gのゼオライトの添加により、セシウムの揮発が防止できることが解った。

さらに、高温におけるガラス固化及びセラミック固化処理時においても、ゼオライトの添加量を増すことにより、セシウムの揮発を数%以下の範囲に低減する事が可能である。

## 謝 辞

本実験の<sup>137</sup>Csを用いたトレーサ試験に際し、施設及び装置はR I 事業部利用開発室のものを借用した。富永洋室長代理及び室員の方々に深く感謝致します。

## 引 用 文 献

- 1) IAEA; "Characteristics of Solidified High-Level Waste Products"  
Technical Report Series No187, IAEA VIENNA (1979)
- 2) IAEA; "Techniques for the Solidification of High-Level Wastes",  
Technical Report Series No176, IAEA VIENNA (1977)
- 3) 三村均, 菅野卓治; "ゼオライトによる放射性廃液処理(IV)", 日本原子力学会誌, 20,  
282, (1978)
- 4) 田代晋吾, 等; 投稿中

800°C～1000°Cで加熱した場合には、廃液中の金属酸化物の影響でゼオライトの構造破壊が生じるため、セシウムの揮発率が増大する。

600°C～800°Cにおける仮焼に際しては、1ℓ廃液に20～30gのゼオライトの添加により、セシウムの揮発が防止できることが解った。

さらに、高温におけるガラス固化及びセラミック固化処理時においても、ゼオライトの添加量を増すことにより、セシウムの揮発を数%以下の範囲に低減する事が可能である。

## 謝 辞

本実験の<sup>137</sup>Csを用いたトレーサ試験に際し、施設及び装置はR I 事業部利用開発室のものを借用した。富永洋室長代理及び室員の方々に深く感謝致します。

## 引 用 文 献

- 1) IAEA; "Characteristics of Solidified High-Level Waste Products"  
Technical Report Series №187, IAEA VIENNA (1979)
- 2) IAEA; "Techniques for the Solidification of High-Level Wastes",  
Technical Report Series №176, IAEA VIENNA (1977)
- 3) 三村均, 菅野卓治; "ゼオライトによる放射性廃液処理(IV)", 日本原子力学会誌, 20,  
282, (1978)
- 4) 田代晋吾, 等; 投稿中

800°C～1000°Cで加熱した場合には、廃液中の金属酸化物の影響でゼオライトの構造破壊が生じるため、セシウムの揮発率が増大する。

600°C～800°Cにおける仮焼に際しては、1ℓ廃液に20～30gのゼオライトの添加により、セシウムの揮発が防止できることが解った。

さらに、高温におけるガラス固化及びセラミック固化処理時においても、ゼオライトの添加量を増すことにより、セシウムの揮発を数%以下の範囲に低減する事が可能である。

## 謝 辞

本実験の<sup>137</sup>Csを用いたトレーサ試験に際し、施設及び装置はR I事業部利用開発室のものを借用した。富永洋室長代理及び室員の方々に深く感謝致します。

## 引 用 文 献

- 1) IAEA; "Characteristics of Solidified High-Level Waste Products"  
Technical Report Series No187, IAEA VIENNA (1979)
- 2) IAEA; "Techniques for the Solidification of High-Level Wastes",  
Technical Report Series No176, IAEA VIENNA (1977)
- 3) 三村均, 菅野卓治; "ゼオライトによる放射性廃液処理(IV)", 日本原子力学会誌, 20,  
282, (1978)
- 4) 田代晋吾, 等; 投稿中

## 付 錄 放射能測定による揮発率評価法の検討

揮発率の評価に際しては、白金皿中の試料の放射能強度の変化から求める方法と、ルツボ中の放射能から評価する二つの方法が可能である。前者は特に揮発率が数%以下のとき、統計的誤差（約0.5%）が相対的に大きくなるのに対して、後者は測定の際のジオメトリの差異による系統的誤差が問題となる。系統的な誤差は、ほぼ揮発率に比例すると考えられるので、揮発率の小さい時にはルツボの測定値を用いる方が有利であることが予測される。

なお、内側ルツボの放射能強度に比べ、外側ルツボ（50ml）の放射能強度は1/30以下であり、電気炉内の汚染も検出されなかつた。

統計的な誤差と系統的な誤差の比較を行なうため、揮発率測定の実験で得られた放射能計数率を15mlの内側ルツボ内の放射能計数率と試料及びルツボの放射能計数率の合計との関係として示したものがFig. 5である。

ルツボ内の放射能計数率比が4%以下の場合には、系統的誤差が統計誤差より低い事が解る。この結果から、本実験においては、統計誤差の1/2の系統的誤差を無視しうるものとして、揮発率が2%以下の場合には内側ルツボの放射能計数率から求め（この場合の統計誤差は約0.1%である）2%以上の場合には、白金皿中の試料の放射能強度測定値を用いて評価した。

Table 1 Composition of natural zeolite

Constituents	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	MgO	CaO	K <sub>2</sub> O	Na <sub>2</sub> O	MnO	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	TiO <sub>2</sub>
Weight-%	76.5	7.05	3.77	2.98	1.92	2.28	2.40	0.11	2.17	0.12

Table 2 Weight loss for related compounds  
with temperature

Compound	Temperature	
HNO <sub>3</sub>	86°C	Boiling point
NaNO <sub>3</sub>	380°C	Decomposition
CsNO <sub>3</sub>	>414°C*	Decomposition
Cs <sub>2</sub> O	360 - 400°C	Decomposition
Cs <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	650°C	- 0
Cs	685°C	Boiling point

\* : Melting point

Table 3 Recipe of the simulated HLW

Component	g/l-HLW	mol. ratio
CsNO <sub>3</sub>	5.234	1
KNO <sub>3</sub>	0.380	0.14
Sr(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	2.696	0.47
Ba(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	2.618	0.37
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	9.944	2.34
CaCO <sub>3</sub>	6.661	2.45
TiO <sub>2</sub>	3.588	1.69
H <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub> · H <sub>2</sub> O	6.557	1.36
MnO <sub>2</sub>	0.766	0.33
CoO	0.319	0.16
NiO	0.742	0.33
TeO <sub>2</sub>	0.574	0.13
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	4.894	0.46
NaNO <sub>3</sub>	13.250	5.80

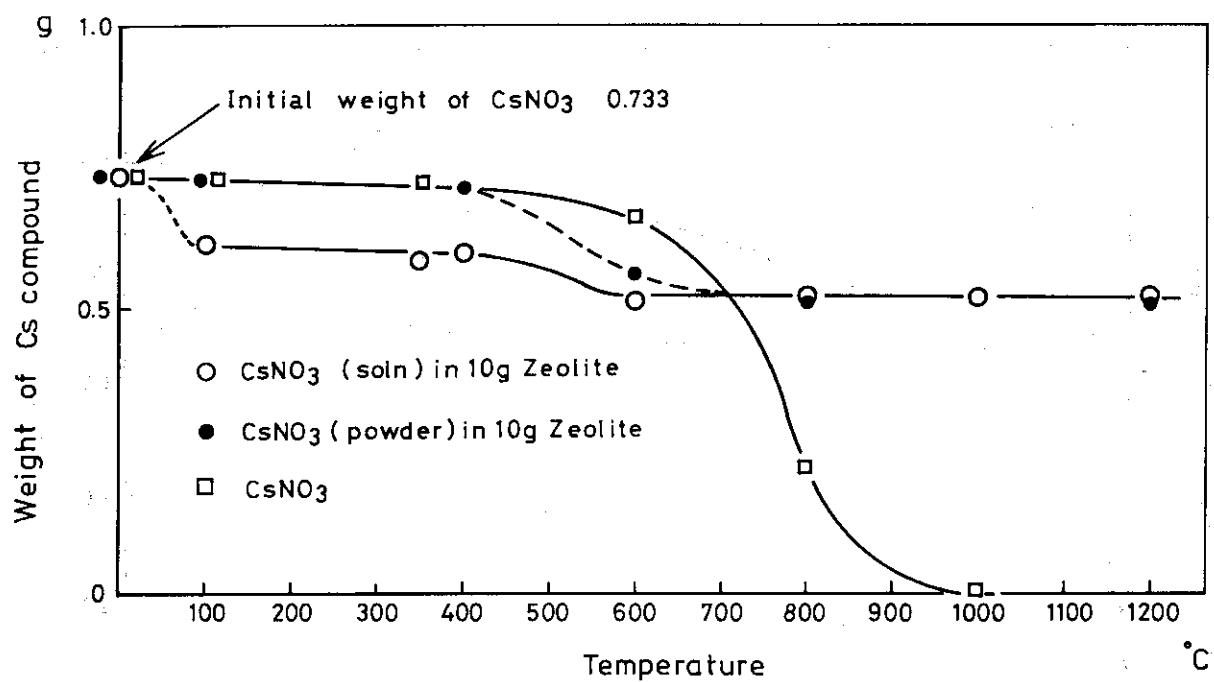


Fig. 1 Weight change of cesium compound with temperature

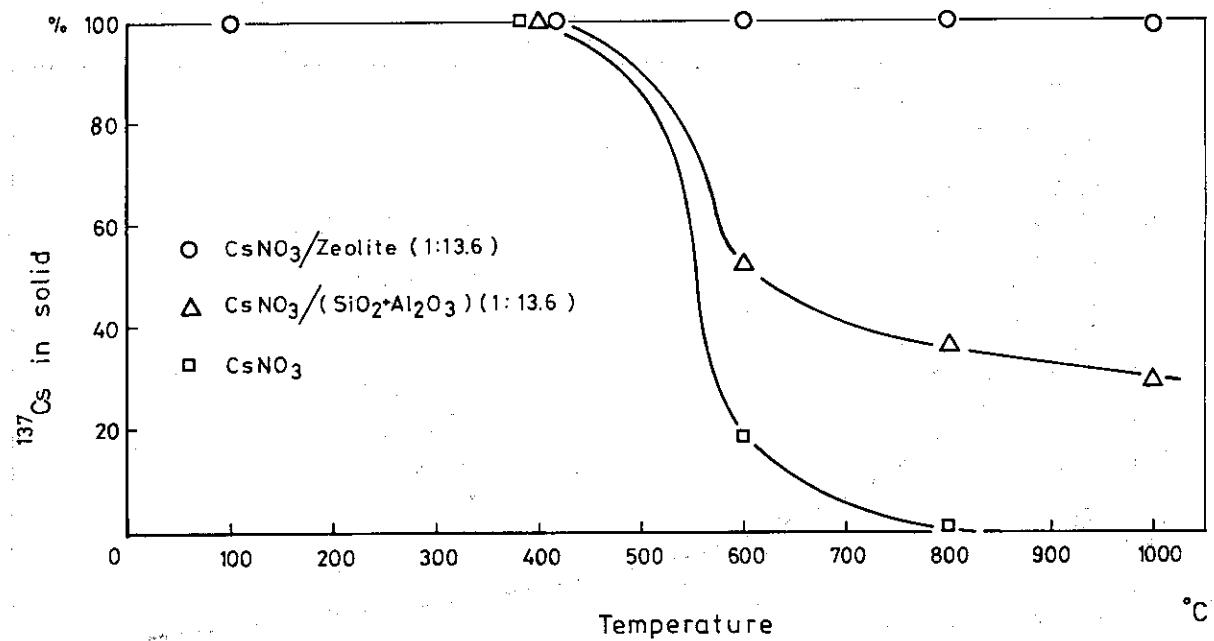


Fig. 2 Variation of volatilization rate with heating temperature

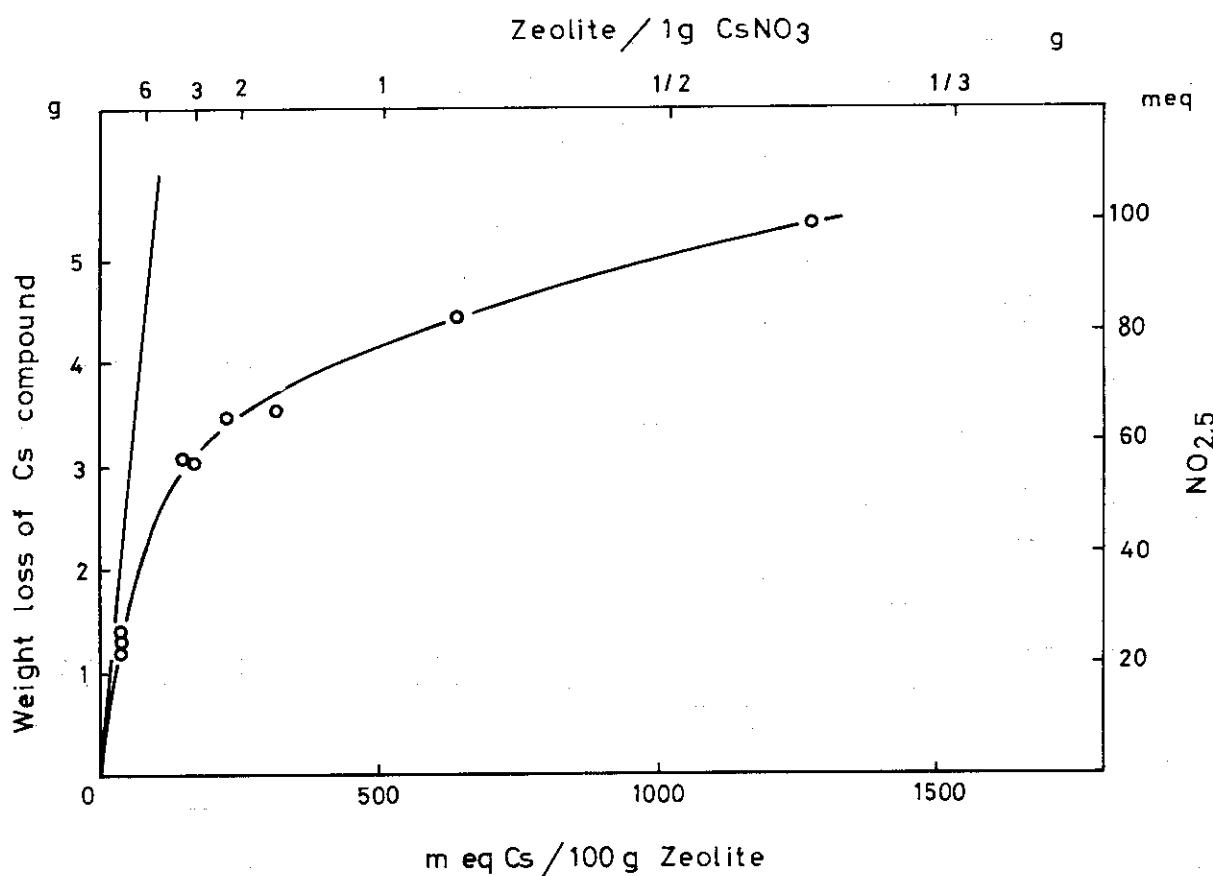


Fig. 3 Weight loss of cesium compound during up at 100°C with various cesium contents in zeolite

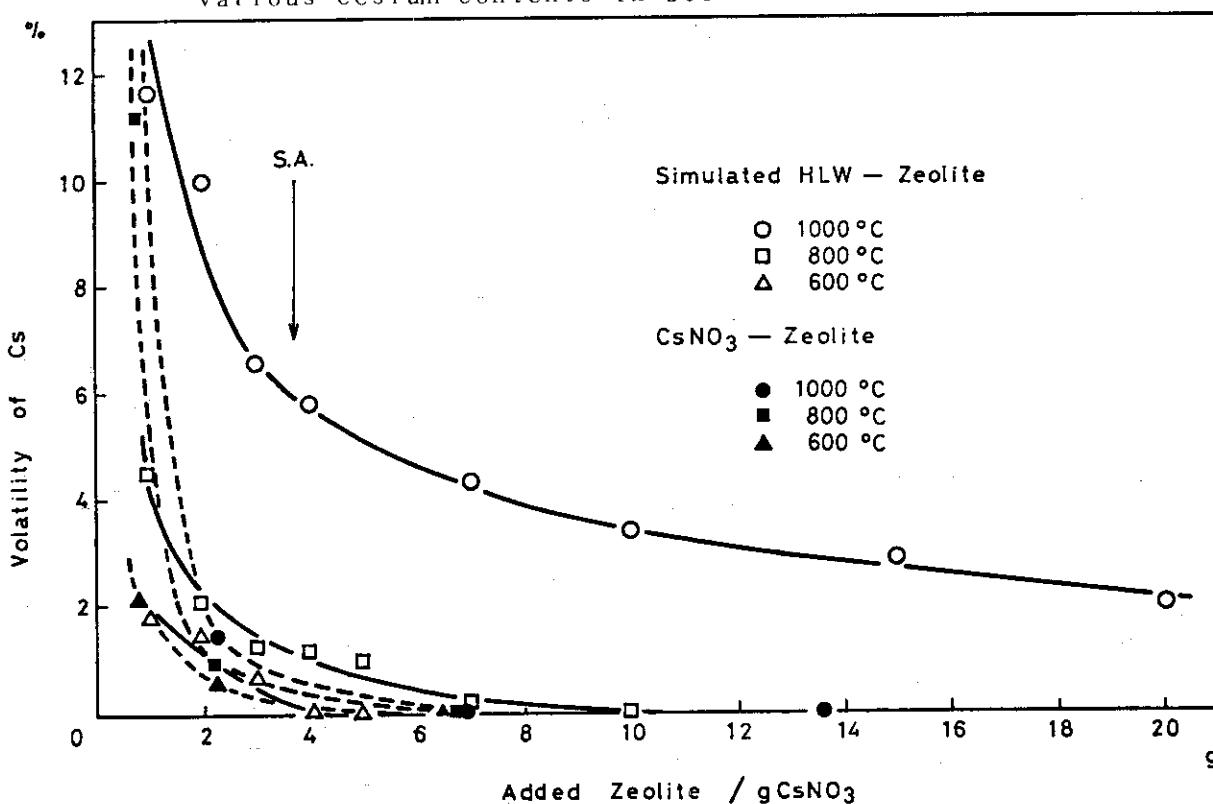


Fig. 4 The effect of zeolite against the volatility of cesium in simulated HLW and pure CsNO<sub>3</sub> solution at various temperature

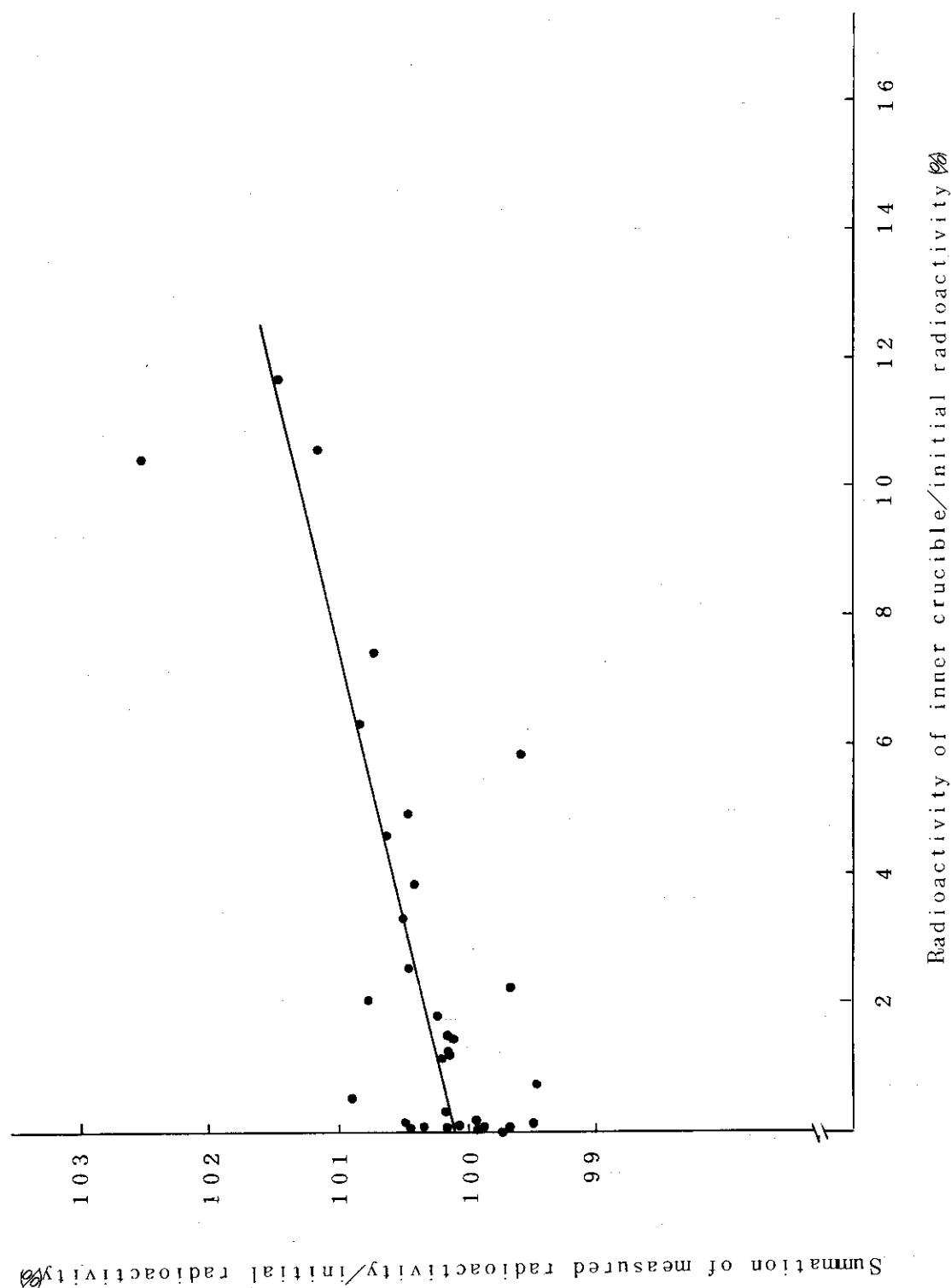


Fig. 5 Relationship between radioactivity of the inner crucible and the summation of measured radioactivity to the initial radioactivity