

JAERI-M

9193

天然ゼオライトによる高レベル廃棄物セラミック  
固化試験（Ⅰ）  
(処理条件と添加剤の影響)

1980年11月

馬場 恒孝・田代 晋吾・妹尾 宗明・荒木 邦夫

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.

天然ゼオライトによる高レベル廃棄物セラミック固化試験（Ⅰ）  
(処理条件と添加剤の影響)

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部  
馬場恒孝・田代晋吾・妹尾宗明・荒木邦夫

(1980年10月22日受理)

高レベル放射性廃棄物の代替固化法の1つとして、天然ゼオライト粉末を固化原料として用いたホットプレス法によるセラミック固化試験を実施し、次の結果を得た。

- (1) 天然ゼオライトと模擬高レベル廃棄物仮焼体の混合粉体をホットプレスを用いて固化する際の条件として、処理温度 950°C, 処理圧力 150kg/cm<sup>2</sup>, 廃棄物配合比 30wt% の条件で、密度 2.80 g/cm<sup>3</sup>, 熱伝導率 1.22kcal/mh°C, Cs浸出率 0.059wt%/hr の緻密なセラミック固化体の得られることがわかった。
- (2) 物性改良を目的とした添加剤の検討の結果、SiO<sub>2</sub>についてはほとんど効果がなく、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>は 5.0wt% を添加すると固化体の性能を向上させることができた。その固化体の密度は 2.87g/cm<sup>3</sup>, 熱伝導率は 1.43kcal/mh°C, Cs 浸出率は 0.027wt%/h である。

Ceramic Solidification Tests of High Level Wastes  
with Natural Zeolite (I)  
(Effects of Treatment Procedures and Additives)

Tsunetaka BANBA, Shingo TASHIRO, Muneaki SENOO and  
Kunio ARAKI

(Received October 22, 1980)

As a alternative candidate for vitrification methods of high-level wastes, a ceramic solidification system with natural zeolite was experimentally tested on the treatment procedure and the influence of additives using a hot-press apparatus.

It was found that a treatment procedure at 950°C and 150 kg/cm<sup>2</sup> produced a ceramic product containing 30 wt% waste of favorable properties ; density of 2.80 g/cm<sup>3</sup>, thermal conductivity of 1.22 kcal/mh°C and Cs leaching rate of 0.059 wt%/h.

It was also found that the 5% addition of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> had effectiveness to modify the product properties resulting the ceramic product of 2.87 g/cm<sup>3</sup> (density), 1.43 kcal/mh°C (thermal conductivity) and 0.027 wt%/h (Cs leaching rate) as the best one.

Keywords; High-Level Waste, Natural Zeolite, Ceramic Solidification, Hot-Press, Additives, Leachability, Thermal Conductivity, Porosity.

## 目 次

1. 諸 言 .....	1
2. 実験方法 .....	1
2.1 試料調製 .....	1
2.2 固化方法 .....	2
2.3 物性測定法 .....	2
3. 実験結果と考察 .....	3
3.1 加熱、加圧条件の密度に及ぼす影響 .....	3
3.2 $\text{SiO}_2$ および $\text{Al}_2\text{O}_3$ の添加による物性値の変化 .....	3
3.3 セラミック固化体の構造 .....	5
3.4 ガラス固化体との物性値比較 .....	5
4. 結 語 .....	6
謝 辞 .....	6
参考文献 .....	7

**Contents**

1. Introduction .....	1
2. Experimental methods .....	1
2.1 Preparation of samples .....	1
2.2 Solidification technique .....	2
2.3 Methods of measurements .....	2
3. Results and discussion .....	3
3.1 Influence of treatment condition on density .....	3
3.2 Effects of SiO <sub>2</sub> and Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> additives .....	3
3.3 Structure of ceramic product .....	5
3.4 Comparison with properties of glass product .....	5
4. Conclusion .....	6
Acknowledgement .....	6
References .....	7

## 1. 緒 言

高レベル廃棄物の固化方法としては、ガラス固化法が技術的にもっとも開発の進んだ段階にある。<sup>1)</sup> この固化法は、ガラス組成配合比の原料に高レベル廃液の仮焼体を加え、約1200°Cに加熱、溶融し、ガラス化するものである。しかし、この溶融温度においては技術的にも、Cs揮発などプロセスの安全性の上からもかなりの問題がある。また、固化体の長期的安全性からみた場合、ガラスは一般的に熱力学的に不安定で部分的に結晶化する可能性があり、その結果、性能の劣化のおそれがある。さらに、熱伝導率等、固化体の性能から廃棄物含有率を20%以下にしなければならないことなどがガラス固化法の欠点としてあげられる。これまでにも、均一な結晶を含む固化法として、glass-ceramics<sup>2),3)</sup>, supercalcine<sup>4)</sup>, metallic matrix<sup>5)</sup>, synroc<sup>6),7)</sup>等の固化原料、固化条件を含む新技術の開発が各国で実施されている。しかし、1000°C以上の高温にするという問題がある。一方、ホットプレスによる低温焼結固化する方式としては、固化原料として、ガラス粉末<sup>8)</sup>, パイレックスガラス粉末と多孔性高ケイ酸ガラス粉末<sup>9)</sup>, シリカ粉末と鉛ホウケイ酸ガラス粉末<sup>10)</sup>を用いた試験等が試みられている。

前報において、高レベル廃棄物の仮焼プロセスに天然ゼオライトを添加することによってCsの揮発が防止できることを報告した。<sup>11),12)</sup> 本報告では、この技術を発展させ、ゼオライトの構造をこわさない1000°C以下で廃棄物を固化する方法として、ホットプレスによるセラミック固化を試みたので報告する。

試験は、次の2段階で進めた。すなわち第1段階として模擬廃棄物に天然ゼオライト粉末のみを加え、ホットプレスし作製した固化体の密度を指標として、温度、圧力等のホットプレス条件を決定した。第2段階として、決定した条件のもとで固化体物性の改良を目的として、SiO<sub>2</sub>または、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を添加した固化体を作製し、各種の物性を測定し、ガラス固化体の物性値と比較検討した。

## 2. 実 験 方 法

### 2.1 試料調製

#### 2.1.1 固化原料

実験に使用した固化原料は、北海道、長万部産の天然ゼオライト、アルミナ( $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)および沈降性シリカ(SiO<sub>2</sub>)である。天然ゼオライトは、クリノプチロライトを主とするゼオライトおよびモンモリロナイト、石英などより構成されており、その化学成分組成をTable 1に示す。本試験ではあらかじめ600°C、1時間で加熱処理したもの(粒度分布はFig. 1に示す。)を使用した。アルミナは関東化学社製、特級酸化アルミニウム(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)を使用し、シリカは小宗化学薬品社製、一級無水ケイ酸、沈降性を使用した。それぞれの原料の使用時における粒度分布をFig. 1

に示した。この粒度分布の測定は、<sup>238</sup>PuULX線を用いたX線透過法で行った。<sup>13)</sup>

### 2.1.2 模擬高レベル廃棄物

実験に使用した模擬高レベル廃棄物は、燃焼率28,000MWD/MTの軽水炉使用済核燃料の再処理工程で発生する高レベル放射性廃液の推定計算値<sup>14), 15)</sup>をもとにして、市販の薬品を使用して調製した模擬廃棄物である。その模擬廃棄物組成をTable 2に示す。使用した試薬の化学形もTable中に示す。この模擬廃棄物を電気炉により、650°C. 2時間で仮焼し、らいかい機で粉碎し、200mesh以下の粉体に調製後、ホットプレス固化用試料とした。

固化原料と模擬廃棄物の混合にはボールミルを使用した。

## 2.2 固化方法

### 2.2.1 ホットプレス装置

Fig. 2にこの実験に使用したホットプレス装置の概容を示す。本装置の加熱部は、最高使用温度1250°Cのカンタル発熱体を用いた電気炉で、炉内は95mm<sup>ID</sup>×780<sup>L</sup>mmのアルミナ製炉芯管が備えられている。加圧部は油圧により最高全加圧力10tonの能力を有する。さらに昇降温度自動制御器、圧縮変位測定器、各種安全装置を備えている。炉芯管内は気密に保持できる構造をもつて真空中、および不活性ガス雰囲気中での加圧焼結試験が可能である。

本装置は、1977年日本原子力研究所、高レベル廃棄物処理処分研究室に整備した高レベル廃棄物固化試験装置<sup>11)</sup>(Fig. 3)内の1つの工程として組込まれているため、ホットプレス操作時のオフガス処理はこの固化試験装置のオフガス浄化系を使用して行われる。

### 2.2.2 ホットプレスによる固化処理方法

模擬高レベル廃棄物仮焼体と固化原料の混合粉体、約100gを内径50mm<sup>Ø</sup>、高さ200mmの黒鉛製型枠内に充填し、電気炉内の中央部にセットする。予備加圧の後、200°C/hの昇温速度で所定温度まで上げて、1時間保持し、その後、所定圧力で30分間加圧処理して、室温まで冷却する手順で試料を作製した。

電気炉の温度制御は、炉芯管に接する位置に配置したPR熱電対による測温を基準にして行い、試料温度は黒鉛型枠内に取り付けた熱電対によって測定した。800°Cから1100°Cの温度域において、試料温度は電気炉温度に比べ、50°C低い値を示した。本報告書で処理温度として表現したものは、この試料温度である。

## 2.3 物性測定法

試作したセラミック固化体について測定した物性値は以下のものである。すなわち、密度、気孔率、熱伝導率および浸出率である。

密度の測定は水によるアルキメデス法で行った。

気孔率の測定は水銀圧入式による気孔率測定装置を用いて行った。

熱伝導率の測定には、熱線法による測定装置、熱伝導率計を使用した。測定試料の寸法は、直径 50mm、厚さ 10mmとした。

浸出率の測定は、粉末煮沸法を用いて行った。<sup>16)</sup>この方法はガラス固化体の浸出試験のための、JIS-R-3502に準拠したものであるが、本実験でもそのままセラミック固化体に適用した。その操作法は、試料固化体を粉碎し、250~420 μ(60~35 mesh)の粒体を筋分け、エチルアルコールで洗浄、乾燥後、約1gをとり、フラスコ内の50mlの蒸溜水に入れ、沸騰水浴中に1時間保持するもので、この間に浸出したCsの量を原子吸光分析で定量した。浸出率は、固化体中に含有するCsの重量に対する浸出したCsの重量の百分率として表示した。

固化体の構造解析に使用した測定器機は、光学顕微鏡、EPMA、X線回析装置であり、光学顕微鏡、及びEPMA用の試料は、表面を研磨したものを、X線回析には粉末試料を使用した。

### 3. 実験結果と考察

#### 3.1 加熱、加圧条件の密度に及ぼす影響

天然ゼオライトを固化原料として模擬廃棄物仮焼体を固化した試料の密度測定結果をFig. 4, Fig. 5に示す。Fig. 4は、処理温度と密度の関係を示すもので、800 °Cから900 °Cの温度域で試料の緻密化が急激に進み、900 °C以上の処理温度では、ほとんど変化のないことを示している。Fig. 5は、処理圧力と密度の関係を表わしたものである。この試験で検討した圧力範囲、150kg/cm<sup>2</sup>から250kg/cm<sup>2</sup>では、処理圧力の変化が試料の密度にほとんど影響しないことがわかる。

以上の結果から、以下の実験では固化条件として、950 °C、150kg/cm<sup>2</sup>、1.5時間持保の条件をえらんだ

#### 3.2 SiO<sub>2</sub>およびAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の添加による物性値の変化

##### 3.2.1 SiO<sub>2</sub>添加

模擬高レベル廃棄物の配合比を30wt%に固定し、天然ゼオライトに置き換える形でSiO<sub>2</sub>を添加した。SiO<sub>2</sub>の配合比を0wt%から52.5wt%まで変化させてホットプレスしたセラミック固化体の密度、気孔率、熱伝導率およびセシウム浸出率の変化をFig. 6に示す。

密度の測定結果では、模擬廃棄物と天然ゼオライトのみをホットプレスして作製した試料の密度2.80g/cm<sup>3</sup>がもっとも高く、SiO<sub>2</sub>を17.5wt%添加すると、2.49g/cm<sup>3</sup>まで低下する。さらにSiO<sub>2</sub>の添加量を増していくと、それに従って徐々に増加する傾向を示している。

気孔率については、17.5wt%SiO<sub>2</sub>添加まで急激に増加し、その後、52.5wt%SiO<sub>2</sub>添加までは2.6vol%程度でほぼ一定の値である。

熱伝導率は、17.5wt%SiO<sub>2</sub>添加までほぼ一定で、SiO<sub>2</sub>添加量を増していくと、SiO<sub>2</sub>52.5wt%添加試料の値、1.94kcal/mh°Cまでほぼ直線的に大きくなる。

Cs元素の浸出率の結果では、SiO<sub>2</sub>添加率を50wt%程度まで変化させても、0.05wt%/hr前

後の値でほとんど変化がない。

以上の諸物性の測定結果を総合すると、天然ゼオライトを固化原料とした固化体では、気孔率の小さい緻密な構造を持つことがわかる。これは、天然ゼオライトの粒度が小さく(Fig.1参照)比較的低温で溶融することによる。これに、かさ密度の小さい( $0.91\text{g/cm}^3$ ) $\text{SiO}_2$ を小量添加すると、気孔率の大きい試料ができる。このために、密度が急激に低下したものと推定できる。さらに $\text{SiO}_2$ の添加量が増加すると、Fig.7のX線回析結果が示すように試料内で $\text{SiO}_2$ が $\alpha$ -quartzに変化し、その存在量が徐々に増加していく。このため、試料の密度は再び上昇の傾向を示し、 $\alpha$ -quartzの密度 $2.65\text{g/cm}^3$ <sup>17)</sup>に近い値(重金属を多量に含む模擬廃棄物を含有するため、これよりやや高い値)まで増加していくものと思われる。この場合、添加した $\text{SiO}_2$ は他の成分とほとんど反応していないと考えられるので、一定量以上の $\text{SiO}_2$ 添加量の増大によって気孔率に大きな変化は生じない。一方、 $\text{SiO}_2$ 添加率、17.5wt%以上における熱伝導率の増加傾向は、密度の増加および結晶( $\alpha$ -quartz)生成の増加に起因するものと推定される。このように、添加した $\text{SiO}_2$ は模擬廃棄物構成成分および固化原料である天然ゼオライトとほとんど反応せず、添加物としての効果を発揮していないと言える。これは、粉末煮沸法によるCsの浸出率の結果が、 $\text{SiO}_2$ 添加率にほとんど影響されていないことからも明らかである。

### 3.2.2 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 添加

$\text{SiO}_2$ 添加の場合と同様に、模擬高レベル廃棄物の配合比を30wt%に固定し、天然ゼオライトに置き換える形で $\text{Al}_2\text{O}_3$ を添加した。 $\text{Al}_2\text{O}_3$ の添加率を0wt%から10.0wt%まで変化させ、ホットプレスしたセラミック固化体の密度、空隙率、熱伝導率およびセシウム浸出率の変化をFig.8に示す。

密度の測定結果では、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  5.0wt%添加した試料の $2.87\text{g/cm}^3$ を極大値とする滑らかな曲線に沿った変化を示し、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  10wt%の添加で $2.75\text{g/cm}^3$ まで低下する。

空隙率については、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ の添加量の増加とともに、わずかながら増加の傾向を示し、添加量のもっとも多い $\text{Al}_2\text{O}_3$  10wt%の試料で1.6vol%となった。

熱伝導率に関しては、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ の添加量の増加に従って、ほぼ直線的に増加し、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  10wt%添加の試料で $1.49\text{kcal/mh}\text{ }^\circ\text{C}$ になる。

Cs元素の浸出率の測定結果では、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ を5.0wt%添加した試料で極小値、0.027wt%/hrを示した。

また、Fig.9に示すX線回析結果では、天然ゼオライトによるセラミック固化体に $\text{Al}_2\text{O}_3$ を添加することにより、 $\text{SiO}_2$ の添加の場合にはみられなかった添加物と模擬廃棄成分および天然ゼオライト成分の一部との反応が見られた。すなわち、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ を添加することによって、kalsilite( $\text{KAlSiO}_4$ )、nepheline( $\text{NaAlSiO}_4$ )などのアルミニシリケイトの生成が多くなっている。特に、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 添加量5.0~7.0wt%の試料で結晶生成が顕著であることは、密度における極大値、浸出率における極小値を与える添加量の存在することと付合する。これらの諸物性の測定結果を総合すると、固化体内にアルミニシリケイトの結晶が形成され、それにより固化体の緻密化が助長され熱伝導率の増加を生み、同時に浸出率の低下を生じさせたものと推定できる。kalsiliteの生成に限れば、その構成元素であるカリウムの固化体中の存在量が約2.5%( $\text{K}_2\text{O}$ の酸化物形)である。

るため、結晶形成に関与する  $\text{Al}_2\text{O}_3$  も同量でよいわけで、添加した  $\text{Al}_2\text{O}_3$  が全くむだなく kalsilite の生成に寄与するとすれば 2.5% の  $\text{Al}_2\text{O}_3$  添加でよい。しかし、これは理想的な反応であって実際には過剰に加えることによって始めて反応が促進される。しかも、他の結晶に関与するものもあるため、最適な添加量として、5wt% になったものと推定できる。

### 3.3 セラミック固化体の構造

Photo. 1 に天然ゼオライトを固化原料とした試料の EPMA による反射電子線像と Mo の面分析結果を示す。模擬廃棄物の主要成分である Mo の分布状態から、廃棄物が固化体内で粒子状に分布していることがわかる。Photo. 2 の反射顕微鏡写真から、この廃棄物粒子は中央に存在する暗い部分で、その周りを 2 つの相が取り巻いていることがわかる。偏光顕微鏡による観察の結果、結晶の少ない非晶質部分と比較的結晶の多い広い部分が存在することが確認された。それゆえ、Photo. 2 で廃棄物粒子を取り巻く白い部分が結晶の少ないガラス質に対応し、その外側は比較的結晶の多い相であると推定できる。

同一の配合にさらに  $\text{Al}_2\text{O}_3$  を 5 w/o を添加し焼結固化して得られた固化体は、Photo. 2 の下の写真が示すように、固化体の大部分をしめる結晶の多い相が気孔の少ない緻密な相に変わっている。前節で考察したアルミニノシリケイトの形成は、この結晶の多い相でおこり、この相の安定性を増加させているものと推定される。

このように天然ゼオライトを固化原料としたセラミック固化体は、それ自身が複合固化体としての構造を持つと推定される。

### 3.4 ガラス固化体との物性値比較

Table. 3 に、本実験で得られた天然ゼオライトによるセラミック固化体を、天然ゼオライトによるガラス固化体と比較して示した。<sup>18)</sup>

処理温度では、ガラス固化が 1200°C という高温を必要とするにもかかわらず、ホットプレス固化法によれば、950°C で十分ということになり、これは、高温での廃棄物成分の揮発によるオフガス処理の困難さを考えれば、非常に有利である。さらに、プロセス材料の面からも、1000°C 以下の処理温度は大きなメリットであろう。

固化体物性における比較では、密度で約 1.1 倍、熱伝導率で約 2 倍、セラミック固化体が大きくなっている、これらは、廃棄物の含有率とも関連して、廃棄物の減容の観点からみて、セラミック固化体の有利さを強調するものである。セシウム浸出率についても、ガラス固化体の 0.068 wt% / h に比べ、約 1% の 0.027 wt% / h という値が得られ、固化体の安定性の上からもセラミック固化体は優れている。

以上のように、固化体自身、複合固化体としての構造を持つゼオライトをマトリックスとするセラミック固化体は、処理における温度条件、物性、固化体の安定性、すべてにおいてガラス固化体よりも優れていることがわかった。この固化法には、今後の問題として、固化プロセスのスケールアップおよび連続化に伴う技術的に開発を必要とする課題がある。

## 4. 結 語

天然ゼオライト粉末を固化原料として用いた模擬高レベル廃棄物のホットプレス法によるセラミック固化試験を行い、緻密で、耐浸出性に富む固化体を得ることができた。すなわち、

- (1) 天然ゼオライトと模擬高レベル廃棄物の混合粉体を処理条件を変化させてホットプレス固化した試験から、処理温度として 950 °C、又、処理圧力  $150\text{kg}/\text{cm}^2$  が適当であり、この条件で廃棄物配合比 30 wt% 入りのゼオライト粉末を焼結すると、密度  $2.80\text{g}/\text{cm}^3$  の緻密なセラミック固化体の得られることがわかった。
- (2) 処理条件、廃棄物配合比を固定しての添加剤による物性改良を目的とした試験の結果、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  は固化体の性能を向上させることができた。一方、 $\text{SiO}_2$  についてはほとんど効果のないことがわかった。
- (3)  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の添加効果は、5.0 wt%  $\text{Al}_2\text{O}_3$  でもっとも大きくなった。その固化体の密度は  $2.87\text{g}/\text{cm}^3$ 、熱伝導率は  $1.43\text{kcal}/\text{mh°C}$ 、Cs 浸出率は  $0.027\text{wt\%}/\text{h}$  である。これらの値は、ガラス固化体に比べ、優れており、特に熱伝導率では約 2 倍、Cs 浸出率で約  $\frac{1}{2}$  の値である。

## 謝 辞

本試験において、空隙率の測定に協力いただいた秩父セメント、石崎寛治郎氏、EPMA による観察および分析に協力いただいた燃料安全第三研究室、大友隆氏、測定試料の調製に関して指導くださった日本製鋼所、岡本雅道氏に感謝いたします。また、本報告書をまとめるにあたり、多くの御教示をいただいた安全性試験研究センター長、天野恕博士に感謝いたします。

## 参 考 文 献

- 1) "Techniques for the solidification of high-level wastes", IAEA (1977)
- 2) De, A.K., et al.: "Development of glass ceramics for the incorporation of fission products", Ceram. Bull. 55 (1976) 500
- 3) De, A.K., et al.: "Fission products in glasses : II - Development of glass ceramics", HMI-B218 (1977)
- 4) McCarthy, G.J.: "High-level waste ceramics : Materials considerations, process simulation, and product characterization", Nucl. Technol. 32 (1977) 92
- 5) Van Geel, J., et al.: "Solidification of high-level liquid wastes to phosphate glass-metal matrix blocks", Management of Radioactive Wastes from the Nuclear Fuel Cycle (Proc. Symp. Vienna, 1976) 1, IAEA, Vienna (1976) 341
- 6) Ringwood, A.E.: "Safe disposal of high level nuclear reactor wastes : A new strategy", Australian National University Press, Canberra (1978)
- 7) Ringwood, A.E., et al.: "Immobilisation of high level nuclear reactor wastes in SYNROC", Nature, 278, 15 March (1979) 219
- 8) Ross, W.A.: "Sintering of radioactive wastes into a glass matrix", BNWL-SA-5362 (1975)
- 9) 寺井良平, 木下 実, 江口清久; "ガラス粉末による高レベル放射性廃棄物(模擬)の加圧焼結" 大工試季報, 29 (1978) 36
- 10) McCarthy, G.J. and Davidson, M.T.: "Ceramic nuclear waste forms : II, A ceramic-waste composite prepared by hot pressing", Ceram. Bull. 55 (1976) 190
- 11) 妹尾宗明, 田代晋吾, 馬場恒孝他; "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" JAERI-M 8572 (1979)
- 12) 田代晋吾他; 投稿予定
- 13) 妹尾宗明他; "沈降法による粒度測定における<sup>238</sup>Pu X線源の利用" Radioisotopes, 24 (1975) 455
- 14) Krause, H.: KFK-1500 (1972) 41-52
- 15) Krause, H.: KFK-2000 (1974) 36-47
- 16) "Characteristics of solidified high-level waste products" Tech. Rep. Ser. No.187, IAEA, Vienna (1979) 61
- 17) 片山信夫他・編; 地学辞典: II, 古今書院 (1970)
- 18) 馬場恒孝, 田代晋吾; "模擬高レベル廃棄物ガラス固化体の安全性試験(I)(固化体の熱的安定性)" JAERI-M 8706 (1980)

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

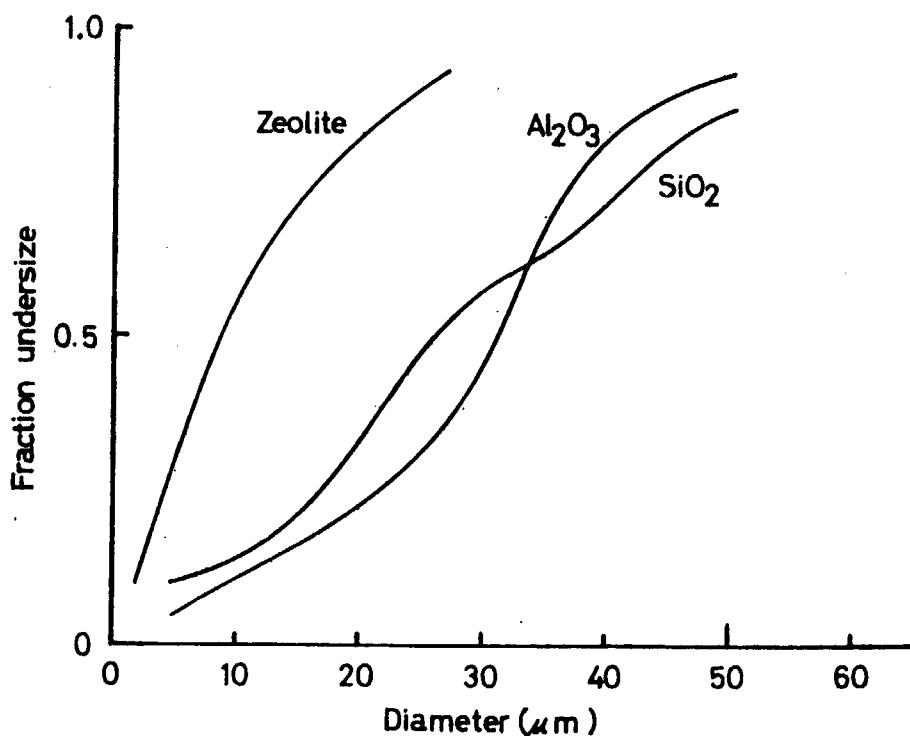
Table 2 Composition of Simulated High-level Wastes

Oxides	Weight-%	Raw material
Na <sub>2</sub> O	15.02	NaNO <sub>3</sub>
Cs <sub>2</sub> O	11.77	CsNO <sub>3</sub>
NiO	2.08	Ni(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> ·6H <sub>2</sub> O
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.89	Cr(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·9H <sub>2</sub> O
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	15.61	Fe(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·9H <sub>2</sub> O
CaO	11.49	CaCO <sub>3</sub>
TiO <sub>2</sub>	10.22	TiO <sub>2</sub>
BaO	4.78	Ba(OH) <sub>2</sub> ·8H <sub>2</sub> O
SrO	4.11	Sr(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
K <sub>2</sub> O	0.55	KNO <sub>3</sub>
MoO <sub>3</sub>	16.32	H <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub> ·H <sub>2</sub> O
MnO	2.38	Mn(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> ·6H <sub>2</sub> O
CoO	0.99	Co(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> ·6H <sub>2</sub> O
TeO <sub>2</sub>	1.79	TeO <sub>2</sub>

Total oxides weight ; 31.81 g/l

Table 3 Comparison between Ceramic Product and Glass Product

	Ceramic product	Glass <sup>18)</sup> product
Composition	Waste; 30.0% Zeolite; 65.0 $\text{Al}_2\text{O}_3$ ; 5.0	Waste; 18.8% Zeolite; 47.0 $\text{B}_2\text{O}_3$ ; 12.2 $\text{Na}_2\text{O}$ ; 16.6 $\text{CaO}$ ; 5.3
Treatment Temperature	950°C	1200°C
Density ( $\text{g/cm}^3$ )	2.87	2.75
Thermal conductivity (kcal/mh°C)	1.43	0.76
Cs leach rate (wt%/h)	0.027	0.068

Fig. 1 Particle Size Distribution of Zeolite,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  and  $\text{SiO}_2$

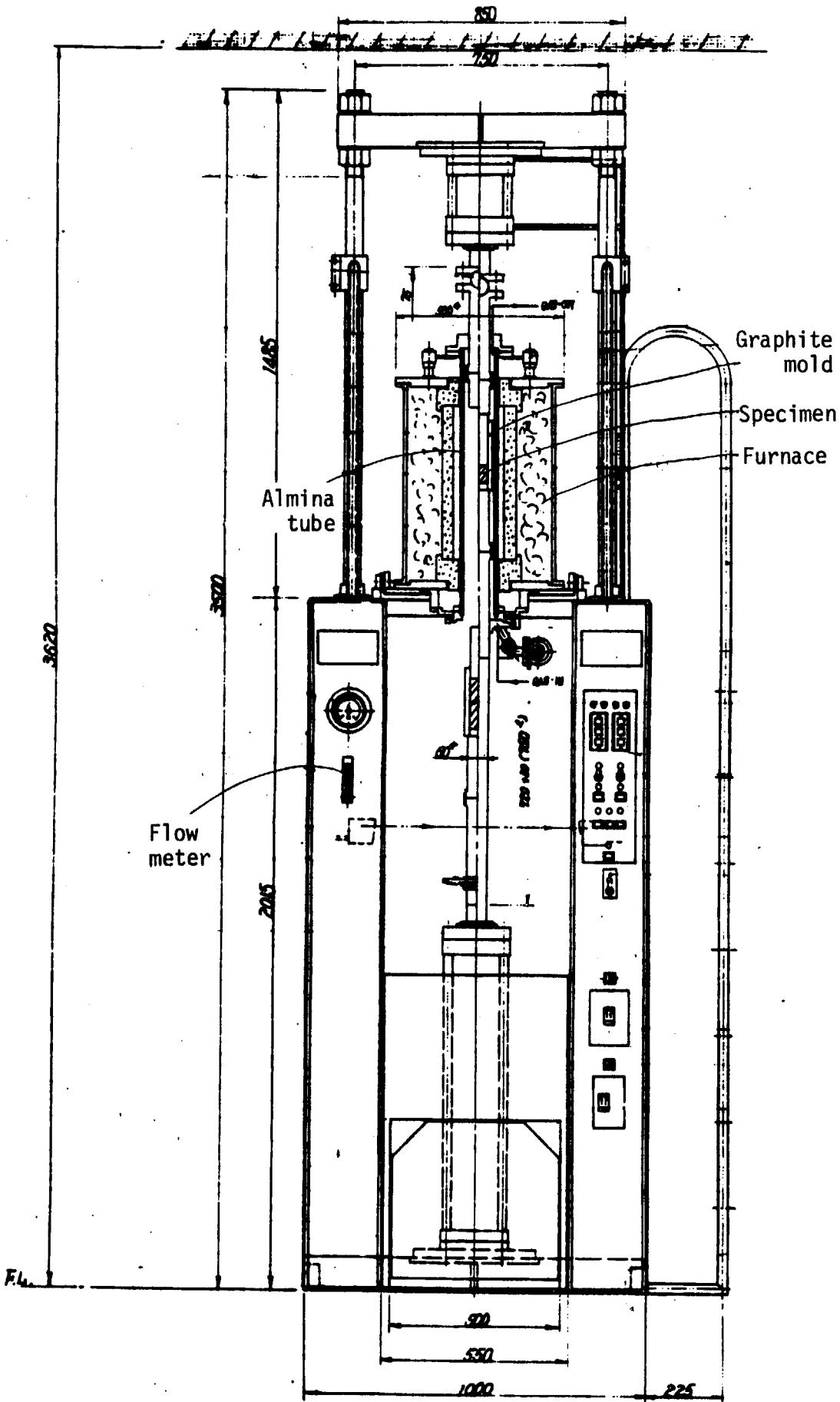


Fig. 2 Schematic View of Hot-Pressing Apparatus

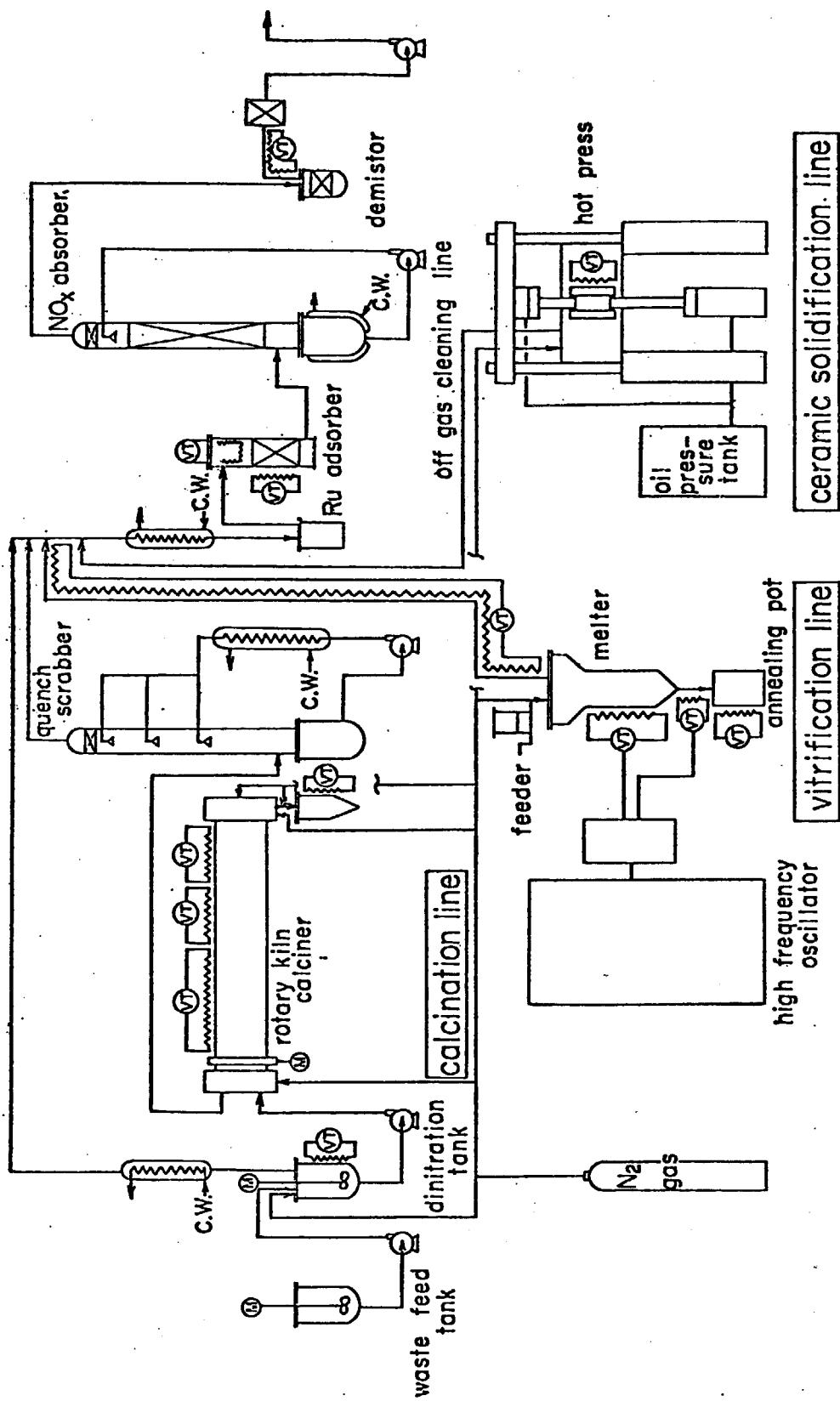


Fig. 3 Flowsheet of JAERI Solidification Test Apparatus

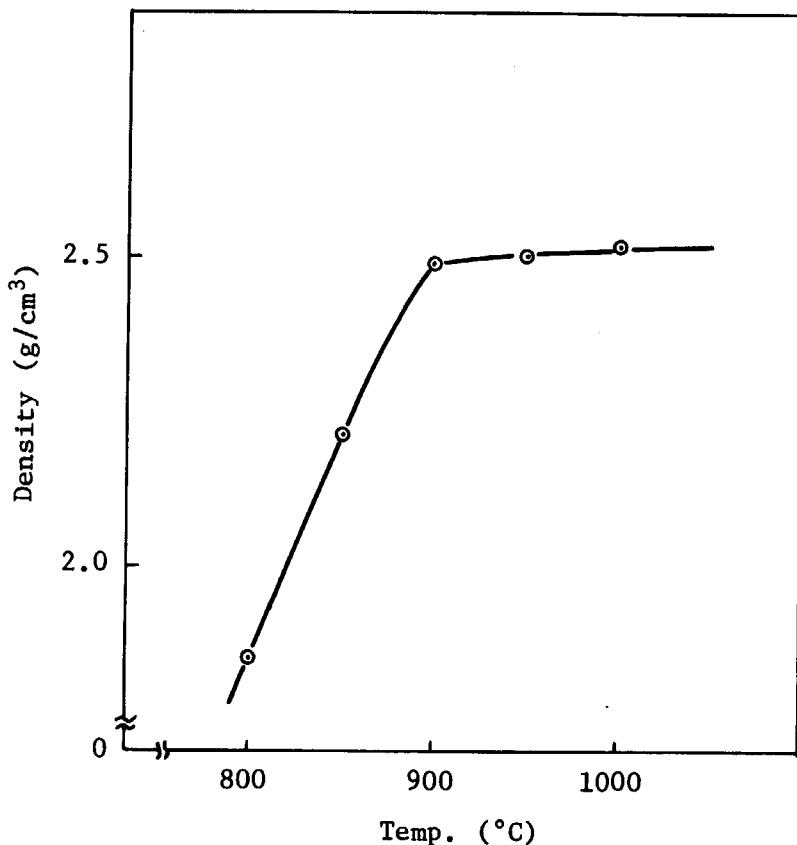


Fig. 4 Density of compacts vs. hot-pressed temperatures for the system of natural zeobite-wastes. (Waste; 23.2 wt%, Press.; 150 kg/cm<sup>2</sup>, Hold time; 1.5 hr)

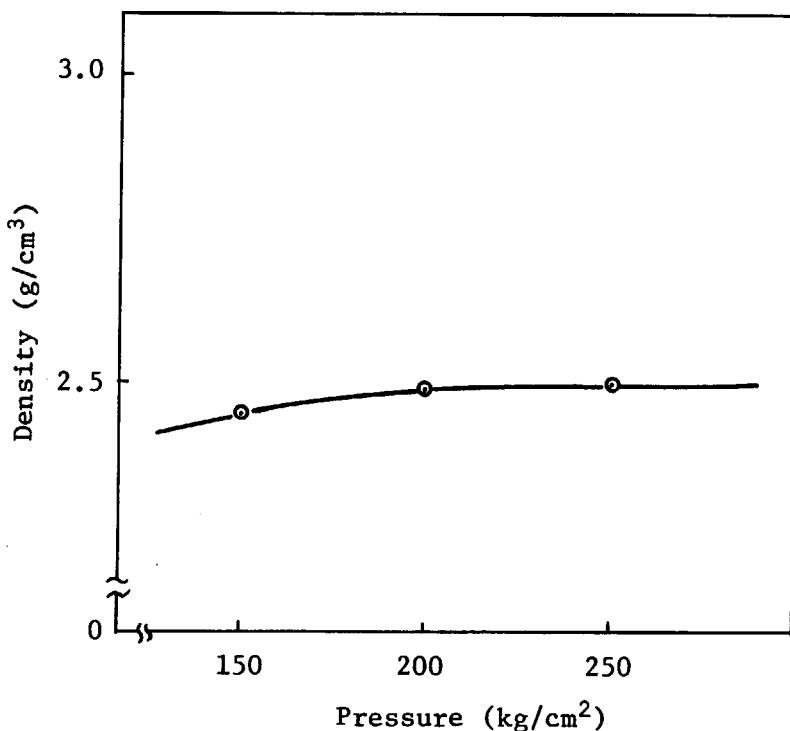


Fig. 5 Density of compacts vs. hot-pressed pressures for the system of natural zeobite-wastes. (Waste; 23.2 wt%, Temp.; 900°C, Hold time; 1.5 hr)

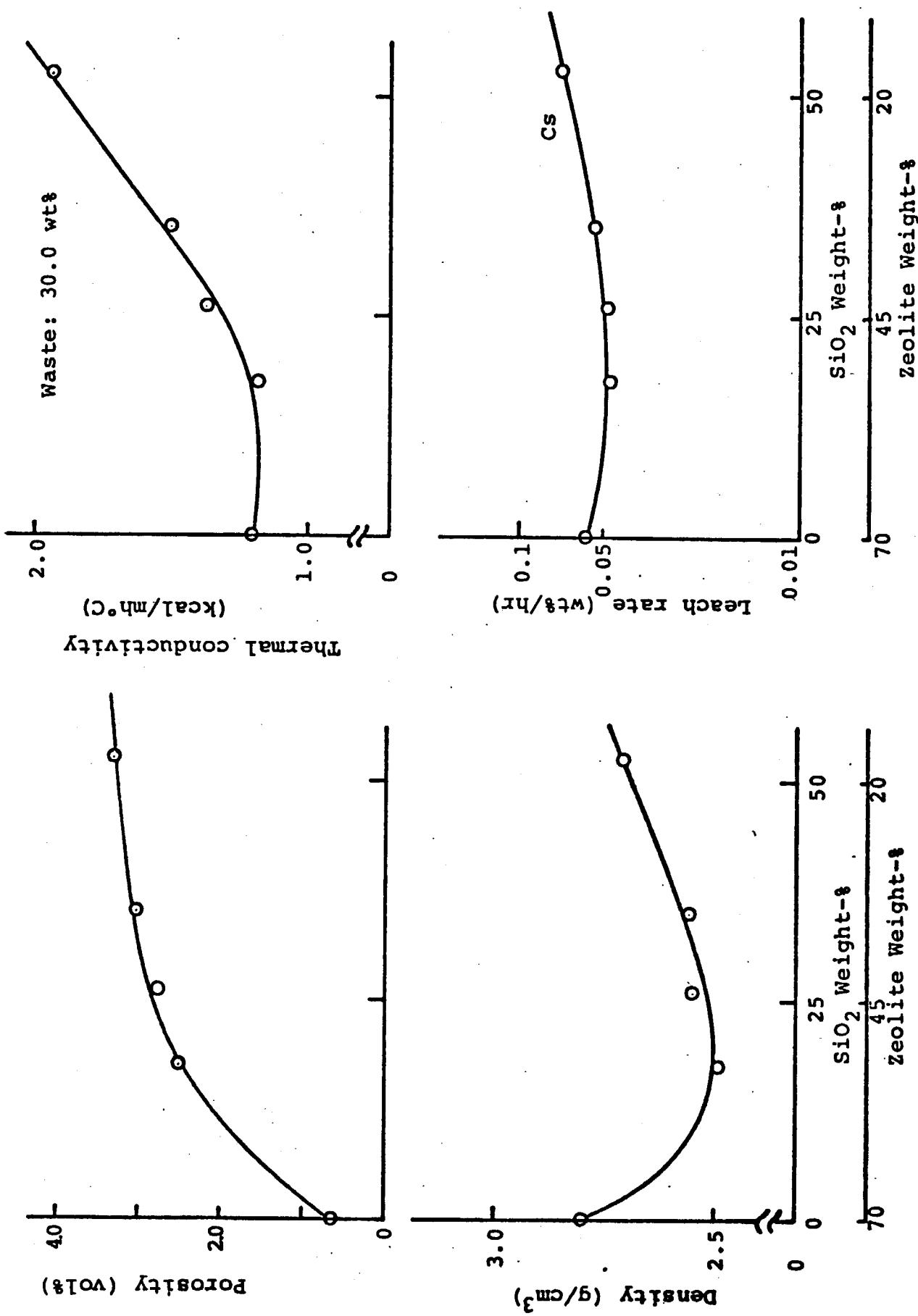


Fig. 6 Dependence of Density, Porosity, Thermal Conductivity and  $\text{Cs}$ -leach rate of Ceramic Products on Additive ( $\text{SiO}_2$ ) Content

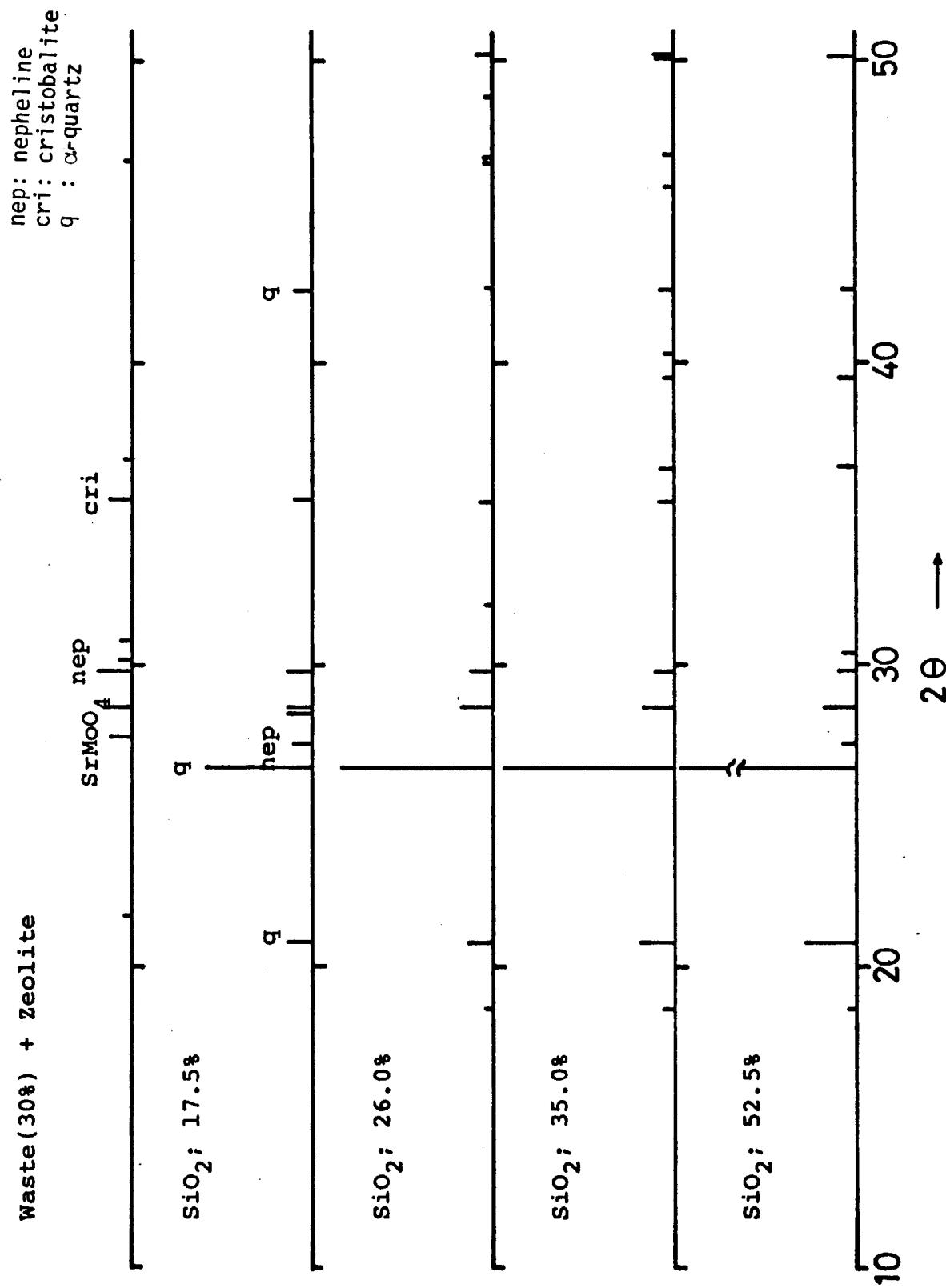


Fig. 7 X-ray diffraction Patterns of Ceramic Products

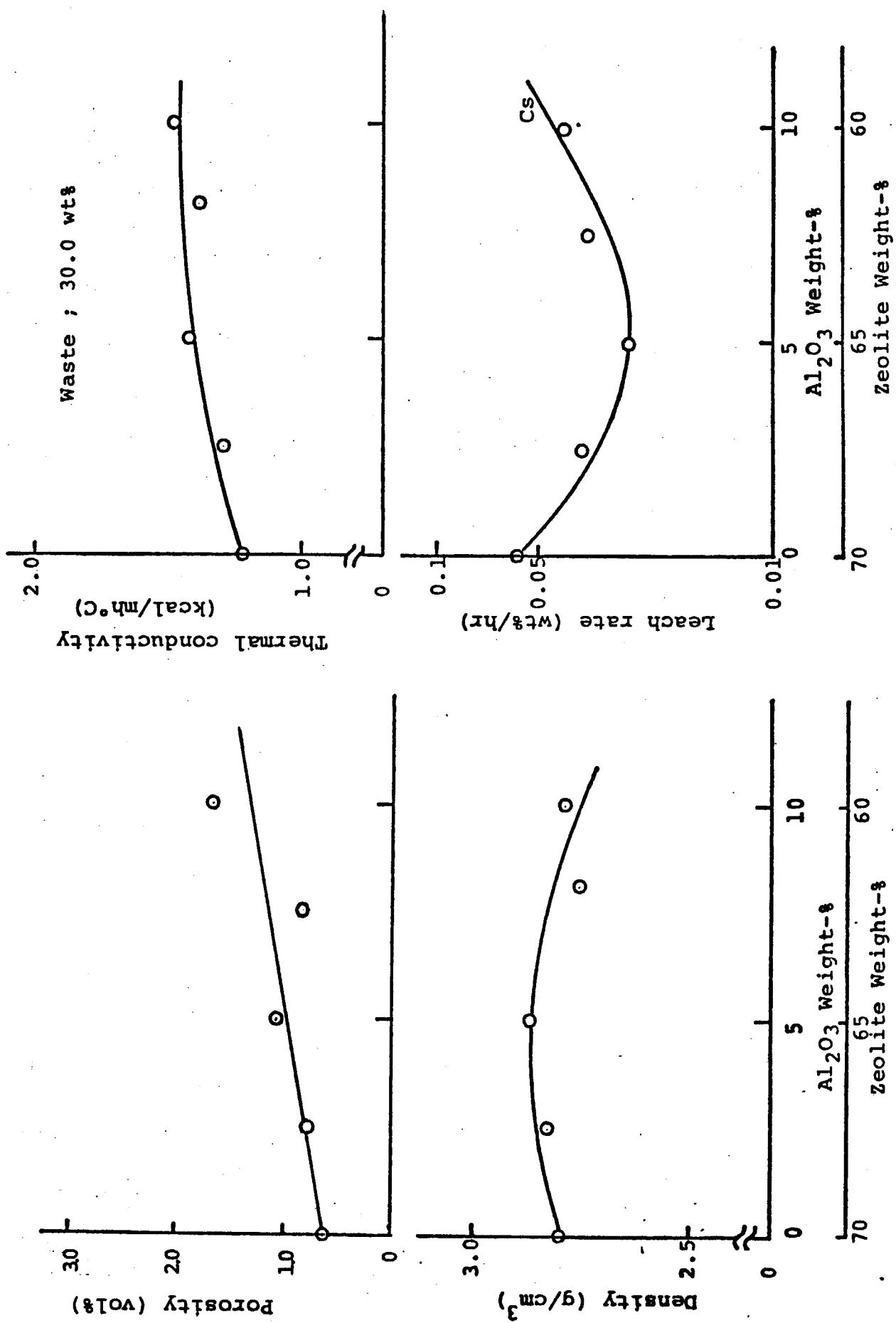


Fig. 8 Dependence of Density, Porosity, Thermal Conductivity and Cs-leach rate of Ceramic Products on Additive ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) Content

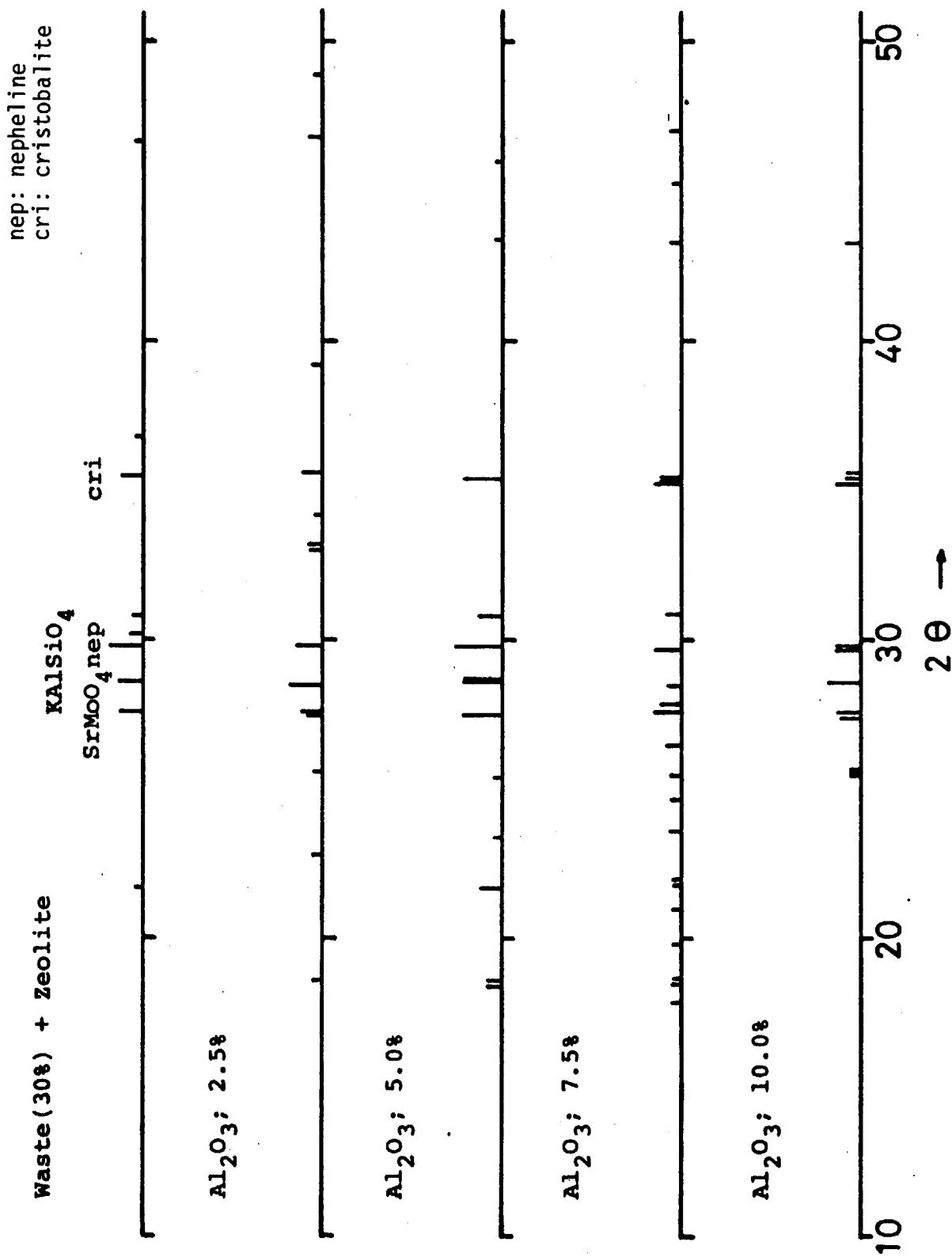


Fig. 9 X-ray Diffraction Patterns of Ceramic Products

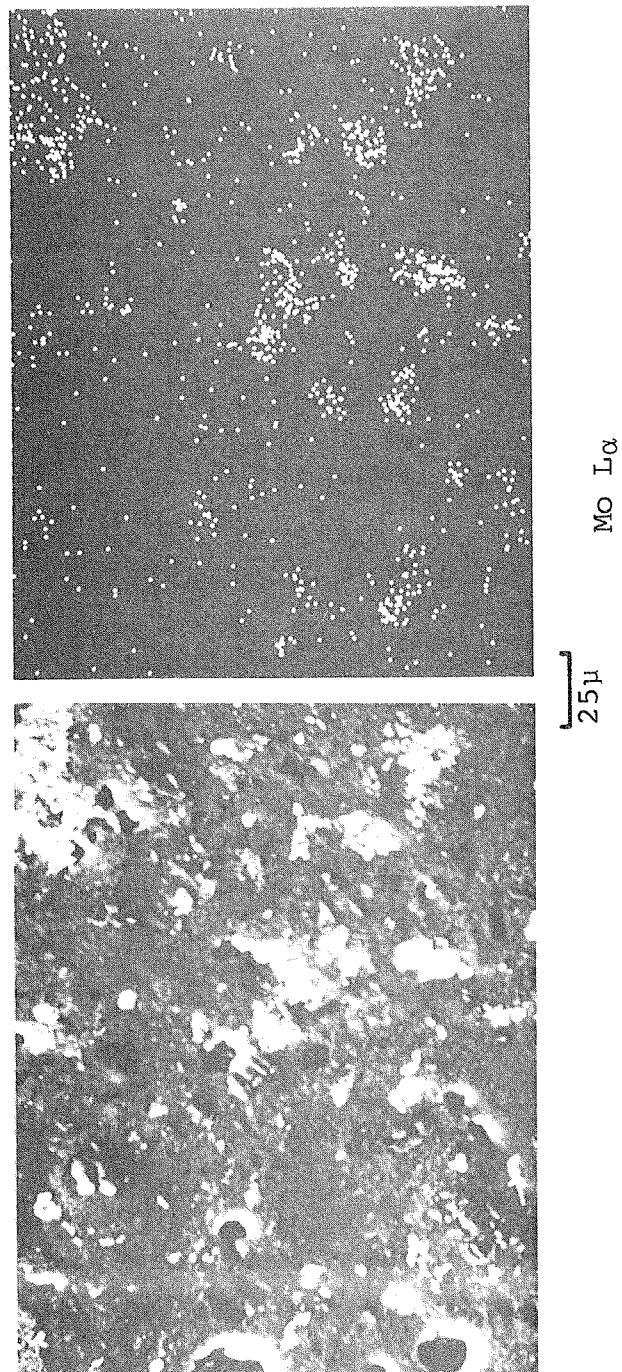
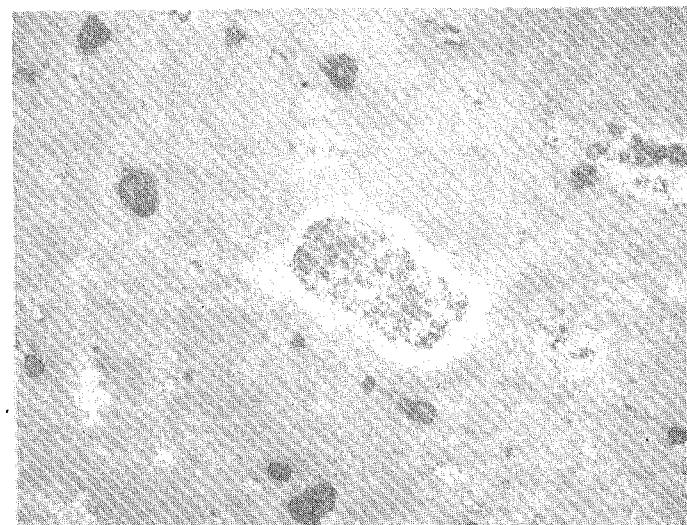
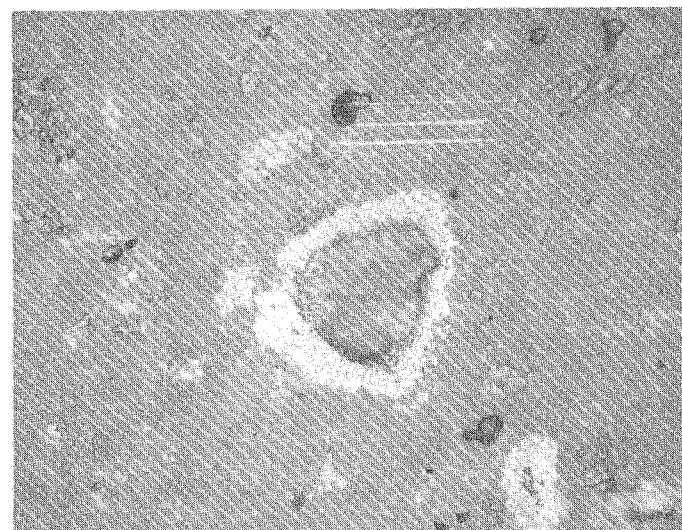


Photo. 1 BEI-picture and Mo-distribution Picture of the Ceramic Product  
(30.0 % Waste, 70.0 % Zeolite)



Waste(30.0%), Zeolite(70.0%)



Waste(30.0%), Zeolite(65.0%)

$\text{Al}_2\text{O}_3$  ( 5.0%)

25μ

Photo.2 Microphotographs of Ceramic Products