

ホウ酸塩ガラスを用いた無機吸着材のガラス固化処理に関する基礎研究

Basic study on the vitrification method of a spent zeolite using the borate glass

*薄井 茜¹, 鈴木 孝哉¹, 新井 剛²
¹ 芝浦工業大学大学院, ² 芝浦工業大学

東京電力福島第一原子力発電所の放射性物質を含む水（汚染水）の処理に伴い発生する使用済ゼオライトの処理方法として、ホウ酸塩ガラスによる固化処理法の適用性について検討した。本研究では、ガラス固化処理時における、ゼオライトに吸着した Cs の揮発やガラス固化体からの Cs の水への浸出挙動について詳細に検討し、Cs を吸着した使用済ゼオライトの最適な固化処理条件の策定を目指した。

キーワード：東京電力福島第一原子力発電所，ホウ酸塩ガラス，ゼオライト，セシウム

1. 緒言 東京電力福島第一原子力発電所では、汚染水の処理に伴い放射性核種を吸着した使用済ゼオライトが発生している。筆者らは、使用済ゼオライトの処理方法としてホウ酸塩ガラスによる固化処理法を提案した。Cs を吸着した一部のゼオライトは、焼結により Cs と強固な化合物を形成することが報告されている[1]。しかし、ホウ酸塩ガラス熔融過程においてゼオライトはガラス相へ溶解することが明らかとなっており、Cs 保持能の低下が懸念される[2]。そこで本研究では、ガラス熔融過程における Cs を吸着したゼオライトのホウ酸塩ガラスへの溶解挙動について詳細に検討を加え、Cs を吸着した使用済ゼオライトの最適な固化処理条件の策定を目指した。

2. 実験方法 模擬使用済ゼオライトは、X 型ゼオライトに Cs(I) を飽和吸着させ十分に乾燥させることで得た（以後、Cs-13x と略記）。また、本試験では Cs-13x を電気炉内で 1100 °C で 1 時間焼結し、ポルサイト（CsAlSi₂O₆）を形成した Cs-13x（以後、Cs-13x-P と略記）も用いた。これらとホウ酸塩ガラス（B-0.5Na-0.5Zn : mol 比）をそれぞれ重量比 1 : 1 になるようアルミナ坩堝に投入し、電気炉内で 1100 °C で 1 時間熔融後、急冷・徐冷することで固化体試料を作製した。得られた各固化体試料は、走査型電子顕微鏡（SEM）による表面観察、エネルギー分散型 X 線分析装置（EDS）による元素分布測定を行い、固化体試料中におけるゼオライトのガラス相への溶解挙動について検討した。

3. 結果及び考察 図 1 に Cs-13x 及び Cs-13x-P を用いて作製した固化体試料の断面写真を示す。図 1 より、Cs-13x の固化体試料においてゼオライトの溶解が顕著に確認されたが、Cs-13x-P の固化体試料ではほぼ溶解せずにゼオライトの形状が保持されていることが観察された。このことから、ポルサイトが形成することでホウ酸塩ガラスへのゼオライトの溶解が抑制されることが明らかとなった。ポルサイトは水中での Cs 保持能が優れていることが報告されている[1]。そのため、使用済ゼオライトをポルサイトとしてガラス固化体に残存させることで、Cs 保持能に優れたガラス固化体の作製が期待される。図 2 に各ガラス固化体の SEM 像、Cs 及び X 型ゼオライトの構成元素である Al, Si の元素分布像を示す。図 2 より、何れの固化体試料においてもゼオライト相とガラス相の界面が確認された。また、Cs-13x の固化体試料においては、Al 及び Si の元素分布像から Cs-13x の溶解が観察されたが、Cs はゼオライト相に固定化されていることが確認された。筆者らのこれまでの研究成果より、Cs-13x をホウ酸塩ガラスと熔融する過程においてポルサイトの形成が確認されていることから、Cs はポルサイトを形成してゼオライト相に保持されたと考えられる。しかし、Al 及び Si もポルサイトの構成元素であるにも関わらず溶解が確認されたことから、ホウ酸塩ガラスの熔融過程ではポルサイト形成が不十分と考えられる。また、ゼオライト相に空孔が多数確認されたことから、ポルサイトが均一に形成されなかったと考えられる。一方、Cs-13x-P の固化体試料においては、何れの元素もゼオライト相とガラス相の界面が明瞭に観察された。このことから、Cs-13x-P はホウ酸塩ガラスに殆ど溶解せずに保持されることが明らかとなった。即ち、ポルサイトを形成した後にホウ酸塩ガラスと熔融することでゼオライト相が保持でき、良好な Cs 保持能を有するガラス固化体が得られると考えられる。本会では、ゼオライトのホウ酸塩ガラスへの溶解挙動を調査し、ガラス固化体の作製条件と Cs 保持能の関係を検討したので報告する。

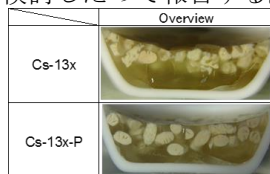


図 1 Cs-13x 及び Cs-13x-P を用いた固化体試料の断面写真

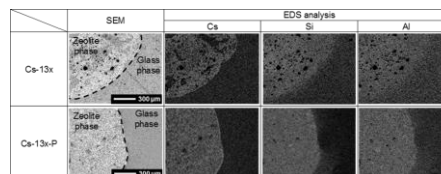


図 2 Cs-13x 及び Cs-13x-P の固化体試料の SEM 像及び元素分布像

参考文献

[1] 菅野卓治ら：日本原子力学会誌, 19[2], pp.113-118, (1977)

[2] 薄井茜ら：日本原子力学会 第 9 回 学生研究発表会 予稿集 B11, 2016

本研究は、文部科学省廃止措置等基盤研究・人材育成プログラム委託費により実施された「廃止措置工学高度人材育成と基盤研究の深化」の成果の一部である。

* Akane Usui¹, Takaya Suzuki², and Tsuyoshi Arai¹

¹Shibaura Institute of Technology, ²Shibaura Institute of Technology Graduate School