

Mg セメントによる低レベル放射性廃液固化の遅延剤添加の影響

Effect of retardants addition of the low-level radioactive liquid waste solidification using Mg cement

*山中大樹¹, 新井剛², 佐藤史紀³, 小島順二³

¹ 芝浦工業大学大学院, ² 芝浦工業大学, ³ 日本原子力研究開発機構

筆者らは使用済核燃料再処理で生じるリン酸廃液の固化処理としてリン酸マグネシウムセメント固化に着目した。リン酸マグネシウムセメントは、リンを構造の主骨格とするため、リン酸廃液の高減容化が期待されるが、反応が著しく速いため混練時間の確保等の課題がある。本研究では、混練時間の確保を目的に複数の反応遅延剤を選定し、それらがリン酸マグネシウムセメント形成に及ぼす影響について調査した。

キーワード：セメント固化, 低レベル放射性廃液, リン酸マグネシウムセメント

1. 緒言 使用済核燃料再処理において、廃溶媒処理の際にリン酸二水素ナトリウム(NaH_2PO_4)を多含する低レベル放射性廃液が発生する。この廃液はセメント固化処理の適用が計画されているが、ポルトランド・高炉セメントを用いた場合、廃液成分により水和反応の阻害に伴う減容率の低下が懸念される。そこで筆者らは、リン酸根を主骨格に利用可能なリン酸マグネシウムセメント固化に着目した。リン酸マグネシウムセメントはリンを構造の主骨格とするため、既存のセメントよりも高減容化が期待される。しかし、リン酸マグネシウムセメントは反応速度が極めて速く、混練時間の確保が課題である。そこで本研究では、反応遅延剤として酸化銅(CuO)、酸化亜鉛(ZnO)を選定し、それらの添加による遅延効果やリン酸マグネシウムセメントに及ぼす影響について検討した。

2. 実験 セメント試料は、NEDMAG 社製の酸化マグネシウム(MgO)、 NaH_2PO_4 及び純水を用い、各々を混合比 20 : 30 : 50 wt%となるように調製した。固化体試料は、所定濃度に調製した NaH_2PO_4 水溶液に MgO を添加し、所定時間混練した後、容器に流し込み一日養生することで得た。また、混練開始直前に反応遅延剤として CuO 、 ZnO を各々セメント総重量に対し重量比 1 及び 2 wt % 添加した。混練中のセメントペーストの温度・pH を計測することで反応の進行を観察した。得られた試料は切削・粉砕し全自動多目的 X 線回折装置(Rigaku : SmartLab)により結晶構造解析を行った。

3. 結果・考察 Fig.1, 2 にセメント混練時における温度・pH の経時変化を示す。Fig.1 より、 CuO を添加しても反応遅延剤を添加しなかった場合と差異は確認されず、反応遅延効果が殆ど無いことが明らかとなった。一方、Fig.2 より ZnO を添加した場合は、1 wt%の添加量では pH・温度ともに遅延剤を添加しなかった場合と差異はなかったが、2 wt%添加することで pH・温度ともに抑制効果が確認された。また、1 wt%添加では 103 分経過時点で急結が発現したものの、2 wt%添加では 200 分経過しても急結せず、混練を継続することができた。 ZnO は NaH_2PO_4 水溶液に対して難溶性であり、混練中にセメントペースト内を浮遊していたため、リン酸マグネシウムセメントの形成反応の遅延触媒として作用したと考えられる。次いで、混練試験結果を基に最も遅延効果が得られた ZnO を 2 wt % 添加した試料について、60 分混練した固化体の結晶構造解析を行った。Fig.3 に固化体の上部・中央部・下部の結晶構造解析結果を示す。Fig.3 より、固化体の上部から底部に掛けて MgO のピークが強くなっていることが確認された。これは、セメントペーストの粘性が低く、打設後に固結まで時間を要したため未反応の MgO が沈殿したことに起因すると考えられる。このことから粘性が発現するまで混練時間を長期に設定する必要があると考えられる。また、遅延剤である ZnO は底部のみで検出されたことから、 MgO と同様に沈殿したと考えられる。本会では、より試験条件を詳細に設定し試験を行い、作製した固化体の性状および耐溶出性についても評価したので報告する。

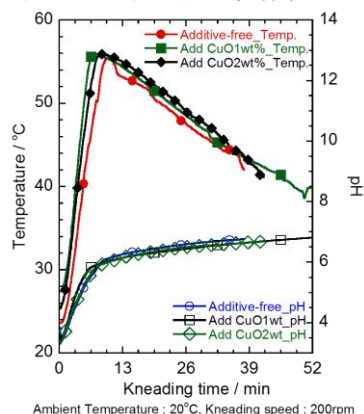


Fig.1 Kneading time as a function of pH and temperature(CuO)

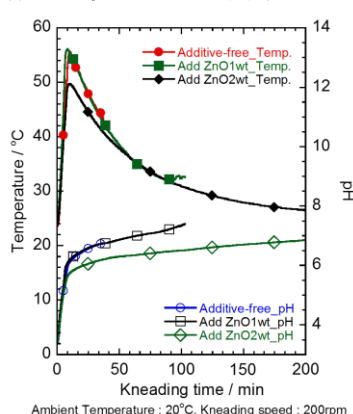


Fig.2 Kneading time as a function of pH and temperature(ZnO)

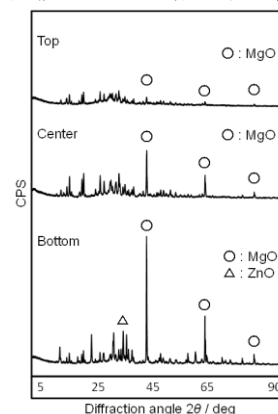


Fig.3 X-ray diffraction results of different sites of MgNaPO_4

*Taiki Yamanaka¹, Tsuyoshi Arai², Huminori Sato³ and Junji Kojima³

¹Shibaura Institute of Technology Graduate School, ²Shibaura Institute of Technology, ³Japan Atomic Energy Agency