

福島汚染水処理二次廃棄物のための固定化技術の開発

(5) Sr^{2+} 及び Cl^- の浸出速度

Development of solidification techniques with minimised water content for secondary radioactive aqueous wastes in Fukushima

(5) Leaching rate of Sr^{2+} and Cl^- *入澤 啓太¹, 谷口 拓海¹, 並木 仁宏¹, Garcia-Lodeiro Ines², 大杉 武史¹, 中澤 修¹, 木下 肇²¹日本原子力研究開発機構, ²シェフィールド大学

本研究では、福島汚染水処理二次廃棄物スラリー及び濃縮廃液の漏えい、並びに水素ガス燃焼リスク低減を目的に、リン酸を用い、それらリスクを低減できる技術を開発している。ANSI/ANS16.1に基づく浸出試験を実施し、 Sr^{2+} 及び Cl^- の浸出速度を調べた。本発表は、H28 年度文科省委託業務の成果の一部である。

キーワード：リン酸セメント、浸出試験、脱水、ストロンチウム、塩素

1. 緒言

福島第一原子力発電所における汚染水処理によって、濃縮廃液、鉄共沈スラリー及び炭酸塩スラリー等が二次廃棄物として発生し、そのままの性状で貯蔵されている。それら汚染水処理二次廃棄物の貯蔵量は増大しており、それに伴い漏えい、水の放射線分解による水素ガス燃焼のリスクが増大している。二次廃棄物の長期貯蔵時におけるリスクを低減するため、脱水により水素ガス発生を抑制すると同時に、二次廃棄物中の放射性核種や海水成分を固定できる、リン酸を用いた固定化技術の開発を目指している。これまでの結果から、90 – 100 °C の温度領域が水分量を最も低減でき、且つ Sr^{2+} 及び Cl^- の置換が期待される $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$ 形成の可能性がある条件であると分かった[1,2]。本発表では、 Sr^{2+} 及び Cl^- を含むリン酸セメントの標準浸出試験(ANSI/ANS 16.1)を実施し、その浸出速度を調べた。

2. 実験

濃縮廃液の塩化物イオン濃度を参考に、 5.0×10^4 ppm の Sr^{2+} 及び 4.2×10^4 ppm の Cl^- を含む模擬廃液を作製した。その模擬廃液を用いて、 Sr^{2+} 及び Cl^- を含むリン酸セメント(CAP)を作製した。試料を 90 °C で 7 日間静置し、脱水させた。比較のため、同 CAP を 20 °C で 7 日間封緘養生した。その後、ANSI/ANS 16.1 に基づく標準浸出試験を実施した。浸出液を全量回収し、再度イオン交換水を投入する操作を 91 日目まで実施した。回収した浸出液中の Sr^{2+} 及び Cl^- 濃度を ICP-OES 及び IC を用いて分析した(2 σ , n = 3)。

3. 結果と考察

図 1 に CAP 中の Sr^{2+} 及び Cl^- の浸出速度を示す。浸出速度(NR_x , $x = \text{Sr}, \text{Cl}$)は以下の式を用いて算出した。

$$\text{NR}_x = \frac{w_x}{Sct}$$

w_x は浸出したイオン種 x の量(mg)、 S は試料の表面積(cm^2)、 c は試料中のイオン種 x の濃度、 t は浸漬期間(day)を示す。20 °C 及び 90 °C で作製された CAP における NR_{Sr} はいずれも $< 0.4 \text{ mg/day cm}^2$ であった。また、90 °C で脱水した CAP の NR_{Sr} は 20 °C で封緘養生した CAP の NR_{Sr} と比較して有意な差がみられなかった。脱水の有無に関係なく同様な浸出挙動を示したことは、CAP 中の Sr^{2+} が $\text{Sr}_3(\text{PO}_4)_2$ として不溶化された可能性がある。一方で、90 °C で脱水した CAP の NR_{Cl} は 20 °C で封緘養生した CAP の NR_{Cl} と比べて低下した。XRD 回折の結果から、CAP は 90 °C で脱水した際に微量の $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$ を形成することが確認されており[1]、90 °C で脱水した CAP 中では Cl^- が $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2$ として置換し、 Cl^- の固定化を向上させた可能性がある。 NR_{Sr} は NR_{Cl} と比較して約 100 倍小さかった。リン酸を用いた本技術は、 Sr^{2+} の固定化に加え Cl^- の固定化の向上が見込まれ、脱水させたセメント系材料であることから、汚染水処理二次廃棄物の長期貯蔵時において漏えい・水素ガス燃焼リスクを低減できる可能性がある。

[1] K. Irisawa et al., Proceedings of ICAPP 2017, 17618, 24-28 Apr. (2017)

[2] I. Garcia-Lodeiro et al., 日本原子力学会 2016 年秋の大会, 7-9 Sep. (2016)

*Keita Irisawa¹, Takumi Taniguchi¹, Masahiro Namiki¹, Ines Garcia-Lodeiro², Takeshi Osugi¹, Osamu Nakazawa¹ and Hajime Kinoshita²

¹Japan Atomic Energy Agency, ²The University of Sheffield

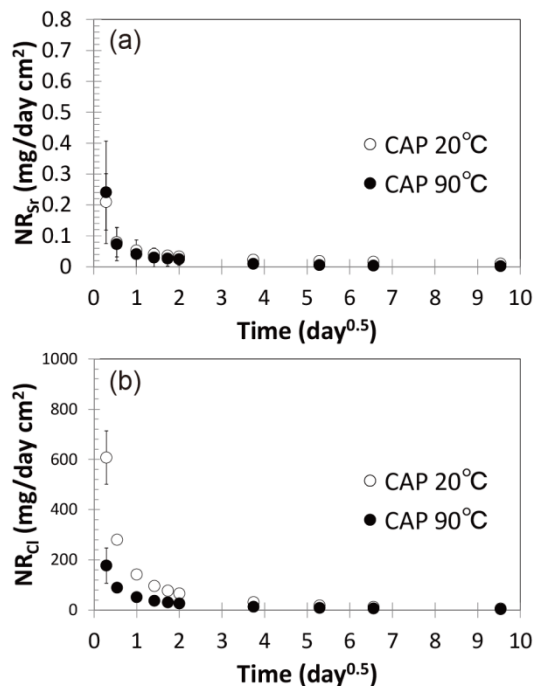


図 1. CAP 中の(a) Sr^{2+} 及び(b) Cl^- の浸出速度。