福島汚染水処理で発生する Cs 吸着ゼオライト廃棄物のガラス固化 (3) ガラス固化条件と固化体特性の相関

Vitrification of Cs-Sorbed Zeolite Waste Generated from Decontamination of Effluents at Fukushima Dai-ichi NPP

(3) Relation between vitrification conditions and vitrified waste properties
*山内 宗治¹, 稲垣 八穂広¹, 有馬 立身¹, 出光 一哉¹, 山門 鋼司¹, 佐藤 修彰², 秋山 大輔², 桐島 陽²

'九州大学工学研究院, '東北大学多元研

福島第一原発の汚染水処理で大量に発生している Cs 吸着ゼオライト廃棄物の合理的な処理方法として溶融ガラス固化が挙げられる。本研究では、ガラス融剤の種類/添加量や溶融温度などの固化条件をパラメータとして、Cs 固定化率、化学的耐久性等の固化体特性を測定・評価し、両者の相関を評価した。

キーワード: セシウム吸着ゼオライト廃棄物、溶融ガラス固化、ガラス固化条件、ガラス固化体特性

1.緒言

福島第一原発の汚染水処理で発生した Cs 吸着ゼオライト廃棄物の合理的な処理方法の一つとして、溶融ガラス固化が検討されている。溶融ガラス固化では、ガラス融剤の種類/添加量や溶融温度などの固化条件が、減容率、Cs 固定化率、化学的耐久性等の固化体の諸特性と大きな相関を持つ。本研究では、ガラス融剤の種類/添加量や溶融温度などの固化条件をパラメータとしてガラス固化体を作製し、固化体特性を測定・評価した。その結果をもとに、固化条件と固化体特性の相関を評価し、最適な固化条件を検討した。

2.実験

Cs (コールド)を 1 wt%吸着させたゼオライト(合成チャバサイト)にガラス融剤として $Na_2B_4O_7(30$ wt%)に Li_2CO_3 (Li_2O 換算で $0\sim12$ wt%)を加え、 $950\sim1150$ ℃で 3 h 溶融し、アニールおよび徐冷によりガラス固化体を作製した。固化体の非晶質化と均質性を確認の後、アルキメデス法による密度測定から減容率を評価した。また、固化体中の Cs 含有量を XRF を用いて測定し、Cs 固定化率を評価した。一部の固化体(融剤 $Na_2B_4O_7$ 30 wt% + Li_2O 0,5,10 wt%)については、レーザーフラッシュ法を用いて熱伝導率を測定し、また、化学的耐久性評価としてマイクロチャネル流水試験法を用いた溶解試験によりガラス初期溶解速度 (r_0) の pH 及び温度依存性を測定・評価した。

3.結果及びまとめ

ガラス固化試験の結果、 Li_2O 添加量 2.5 wt%では溶融温度 1050°C 、5 wt%では 1025°C 、7.5-10 wt%では 1000°C 程度の溶融温度で、 C_8 固定化率 95 %以上の均質な固化体が得られることが分かった。いずれの条件においても熱伝導率は 1.5-1.8 Wm $^\circ$ 1K $^\circ$ 1(300-700K)となり Li_2O 添加量依存性は小さいが気泡等の微 細構造変化が熱伝導率を低下させる主要因であることが分かった。また、溶解試験により求めたガラス初 期溶解速度 (r_0) の pH 依存性評価から、 Li_2O 添加により r_0 が酸性領域でわずかに上昇、アルカリ領域でわずかに低下し、 Li_2O 添加量 5 wt%で r_0 が概ね最小となることが確認された。これらの結果から、 Li_2O を 2.5-5 wt%添加することで、溶融温度を 50- 100°C 下げられ、かつ、化学的耐久性の高い固化体が得られることが分かった。

*Muneharu Yamauchi¹, Yaohiro Inagaki¹, Tatsumi Arima¹, Kazuya Idemitsu¹, Koji Yamakado¹, Nobuaki Sato², Daisuke Akiyama², Akira Kirishima², : ¹Kyushu University, ²Tohoku University.

謝辞:本研究の一部は、「文部科学省英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」により実施された「高汚染吸着材廃棄物の処理処分技術の確立と高度化」の成果である。