

福島第一事故廃棄物のインベントリ評価手法の開発

(14) 汚染水水質の変化が核種のゼオライトへの収着に及ぼす影響

Development of inventory evaluation methods for the radioactive wastes of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

(14) Effects of contaminated water quality on radionuclides sorption on zeolite

*石寺孝充, 舘幸男

日本原子力研究開発機構 (JAEA), 国際廃炉研究開発機構 (IRID)

福島第一原子力発電所の汚染水処理に用いられている第二セシウム吸着装置(SARRY)内のゼオライトを対象に、バッチ収着試験結果に基づいたインベントリ評価手法の検討と、溶液組成や pH 等を変化させた条件での収着試験により、ゼオライトへの核種の収着に及ぼす汚染水水質変化の影響について検討を行った。

キーワード: 福島第一事故廃棄物、インベントリ、第二セシウム吸着装置、ゼオライト、収着分配係数

1. 目的

福島第一原子力発電所において汚染水処理に用いられているゼオライト中の核種のインベントリを推定する方法の一つとして、吸着装置に使用されているゼオライトへの核種の収着挙動を把握し、それに基づいてインベントリを推算する方法が考えられる。本研究では、第二セシウム吸着装置(SARRY)に使用されているゼオライト (Chabazite) に対して、バッチ法及びカラム法による核種の収着試験を実施し、試験結果に基づいたインベントリ評価手法を検討するとともに、試験溶液の組成や pH 等を変化させた条件で収着試験を実施し、ゼオライトへの核種の収着に及ぼす汚染水の水質変化等の影響について検討を行った。

2. インベントリ評価手法の検討

インベントリ評価では、まずバッチ収着試験により得られた核種の分配比の時間依存性より、収着分配係数(K_d)とゼオライト粒子内への拡散係数を算出した。その後、実際の吸着装置を想定したカラム収着試験を実施し、核種の破過挙動をバッチ収着試験の結果に基づいて解析した。その結果、カラム試験結果を概ね予測することが可能であったことから、カラム試験の解析と同じ手法を用い、吸着装置からの核種の破過挙動の解析を行った。解析の結果 (図 1)、 K_d の低い Sr, Ni, Se, Np は Cs と比べて大幅に早くゼオライトへの収着が平衡に達することが確認された。吸着装置内のゼオライトが、吸着装置出口での汚染水中の放射性 Cs の濃度上昇等により交換時期が決定されていると考えた場合、Sr, Ni, Se, Np については、ゼオライト交換時には収着が平衡に達していると推測される。そのため、これらの核種のインベントリ[Bq/kg]は、吸着塔入口水中の核種濃度[Bq/m³]と K_d [m³/kg]の積で算出可能と考えられた。

3. ゼオライトへの収着に及ぼす汚染水の水質変化等の影響

核種のゼオライトへの K_d よりインベントリの推算が可能であると考えられたことから、①汚染水の pH 等の変化、②汚染水中の共存陽イオン濃度等の変化、③汚染水中の核種濃度変化の 3 つを抽出し、それらが K_d に及ぼす影響を評価するためのデータをバッチ収着試験により取得した。図 2 に、核種の K_d の pH 依存性を示す。Cs, Ba の K_d は pH 依存性を示さないのに対し、Ni, Co, Se, Eu の K_d は pH に依存して変化することから、汚染水の pH 変化がこれらの核種のインベントリに影響を及ぼすことが示唆される。一方で、共存陽イオン濃度に対しては、Cs, Sr, Ni の K_d に依存性が見られたのに対し、Se, Eu は大きな依存性が見られなかった。また、溶液中の核種濃度変化については、その変化に伴うゼオライト中の核種濃度を指標として、Cs, Sr, Ba は収着量 1×10^{-5} [mol/g]以上で K_d が低下する傾向が見られたのに対し、Ni, Co は収着量 1×10^{-7} [mol/g] 程度から、Eu, Se は 1×10^{-9} [mol/g] 程度から K_d が低下し始める傾向が確認された。これらの結果より、本研究で検討したインベントリ評価手法においては、汚染水水質の変化が各核種の K_d に及ぼす影響の傾向を把握することにより、汚染水の水質分析データに基づいて、インベントリの変化幅について評価することが可能であると考えられる。

※この成果は、経済産業省／平成 28 年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金 (固体廃棄物の処理・処分に係る研究開発)」で得られたものの一部である。

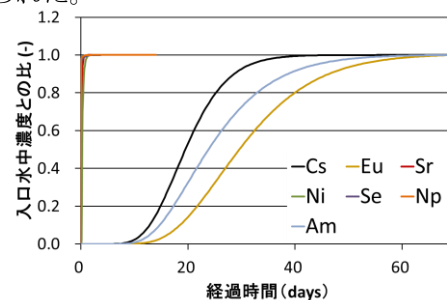


図 1 吸着装置からの核種の破過挙動解析結果

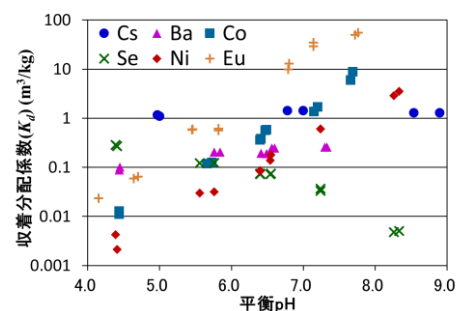


図 2 核種の K_d の pH 依存性

*Takamitsu Ishidera, Yukio Tachi Japan Atomic Energy Agency, International Research Institute for Nuclear Decommissioning