

# アパタイトセラミックスによる ALPS 沈殿廃棄物の安定固化技術の開発

## (6) 本プロジェクトの目標と進捗

Development of stable solidification technique of ALPS sediment wastes by apatite ceramics

### (6) Project objective and progress

\*竹下 健二<sup>1</sup>, 中瀬 正彦<sup>1</sup>, 針貝 美樹<sup>1</sup>, 内海和夫<sup>1</sup>,  
金川 俊<sup>2</sup>, 土方 孝敏<sup>2</sup>, 駒義和<sup>3</sup>, 森貴宏<sup>4</sup>

<sup>1</sup>東京工業大学, <sup>2</sup>電力中央研究所, <sup>3</sup>原子力機構, <sup>4</sup>日立 GE

**抄録** 本プロジェクトは水処理 2 次廃棄物中の放射性物質を固定化するためにアパタイト及びその類縁体の製造プロセス構築を目標として、固化体の合成法やその構造解析を通して固化体製造の基盤技術を確認し、小規模プロセスフロー試験、工学規模製造試験、固化体の水素発生試験、実規模製造装置の基本設計を実施している。本報告ではプロジェクトの目標とこれまでの主な研究成果、今後の研究の方向性を総括する。

**キーワード** : ALPS 沈殿物系廃棄物、アパタイト、リン酸塩、一軸圧縮焼成、固化体製造、プロセス設計

**1. プロジェクトの目標** 福島第一原子力発電所では、高放射能核種を含む汚染水が様々な処理装置で処理されているため、表 1 のような多様な水処理二次廃棄物が大量に発生している。水処理二次廃棄物は、原子力損害賠償・廃炉等支援機構のリスク評価では、分類Ⅲ（より安定な状態に向けて措置すべきリスク源）にリストアップされており、長期にわたる安定化措置が必要とされている。水処理 2 次廃棄物のうち ALPS 沈殿系廃棄物は、放射性 Sr を多く含むアルカリ土類金属（Ca や Mg）の炭酸塩・水酸化物や鉄水酸化物が主成分である。こうした廃棄物は水和水を含むために、セメントで固化をすると放射線分解による水素発生が問題になり、ガラス固化すると Ca や Mg の高い含有率のためにガラスへの廃棄物含有量を高くできないことや高温処理のために放射性 Cs の揮発という問題が避けられない。従来の固化体製造に伴う問題を解決するために著者らは比較的低温で合成が可能な無水固化体であるアパタイトセラミックスに注目した。本研究では、水処理 2 次廃棄物中で最も発生量の多い炭酸塩スラリーや鉄共沈スラリーなどの ALPS 沈殿系廃棄物を対象にアパタイトセラミックスによるスラリー中の主要放射性物質の安定固化体製造プロセスを構築する。

表 1 1F の水処理二次廃棄物

発生元（別称）	内容物、主要成分	代表的な核種濃度	発生量※	貯蔵形態・保管場所
除染装置 (AREVA)	硫酸バリウム (66 %) フェロシアン化物	<sup>90</sup> Sr : 約 $3 \times 10^8$ Bq/cm <sup>3</sup>	37 m <sup>3</sup>	プロセス主建屋造粒固化体貯槽 D (標高 8.5 m)
既設多核種除去装置 (既設 ALPS)	鉄共沈スラリー : Fe(OH)・H <sub>2</sub> O (75 %)	<sup>90</sup> Sr : 約 $1 \times 10^6$ Bq/cm <sup>3</sup>	HIC386 基 1,008 m <sup>3</sup>	高性能容器 (HIC) セシウム吸着塔一時保管施設 (第二施設、第三施設) (標高 > 30 m)
増設多核種除去装置 (増設 ALPS)	炭酸塩スラリー : CaCO <sub>3</sub> , Mg(OH) <sub>2</sub>	<sup>90</sup> Sr : 約 $4 \times 10^7$ Bq/cm <sup>3</sup>	HIC971 基 2,535 m <sup>3</sup> HIC1,121 基 2,926 m <sup>3</sup>	
蒸発濃縮装置 (エバポ)	炭酸塩スラリー CaMg(CO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	<sup>90</sup> Sr : 約 $1 \times 10^7$ Bq/cm <sup>3</sup>	68 m <sup>3</sup>	横置きタンク (完成型) H2 西 (標高 > 30 m)

**2. これまでの研究の進捗** (1) アパタイトの合成手法の確立、(2) アパタイト固化体の成型体作製と金属溶出挙動、(3) アパタイト合成小規模プロセスフロー試験、(4) アパタイト工学規模製造試験、(5) アパタイト固化体の水素発生試験、(6) アパタイト実規模製造装置の基本設計の 6 課題について 2019 年後半から研究を進めてきた。これまでに以下のような成果が得られ、アパタイト及びその類縁体は ALPS 沈殿系廃棄物の固化処理に適していることが明らかにされつつある。

- ① 大規模スケールに拡張可能なアパタイト固化体製造技術として沈殿法を検討している。スラリー廃棄物中に Ca が多いとアパタイトを形成するが、Mg/Ca 比を大きくすると一軸圧縮焼成によって均質かつ結晶性の高い固化体（ウィットロックアイトなどアパタイト類縁体）を作製することができた。
- ② 小型プロセスフロー試験を行い、炭酸塩、鉄共沈の各スラリー廃棄物からのアパタイト合成プロセス（合成、洗浄、加熱、固化）の物質収支を調べた。模擬炭酸塩スラリーを出発原料とした場合、Sr、Ca、Mg をほぼ 100% アパタイト固化体に固定化することができた。模擬鉄共沈スラリーでは Sr、Ca、Mg は 70 ~ 90 % をアパタイトに固定化できたが、Fe の取り込み条件の最適化が必要とされた。
- ③ アパタイトの γ 線照射による水素発生量を調べたところ、セメントに比べて水素発生量は 60 分の 1 以下であり、水素安全の観点からもアパタイトは有利な材料であることが分かった。

\*Kenji Takeshita<sup>1</sup>, Masahiko Nakase<sup>1</sup>, Miki Harigai<sup>1</sup>, Kazuo Utsumi<sup>1</sup>, Shun Kanagawa<sup>2</sup>, Takatoshi Hijikata<sup>2</sup>, Yoshikazu Koma<sup>3</sup> and Takahiro Mori<sup>4</sup> <sup>1</sup>Tokyo Tech., <sup>2</sup>CRIEPI, <sup>3</sup>JAEA, <sup>4</sup>Hitachi GE..