

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
(7) アパタイト・リン酸塩固化体による Cs、Sr、ランタノイドの固定化と物性評価

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

(7) Characteristics of apatite and phosphate waste forms with doped Cs, Sr and lanthanide

*中瀬 正彦¹, 針貝 美樹¹, 和田 恵梨子¹, 内海 和夫¹, 竹下 健二¹,

金川 俊², 土方 孝敏², 駒義和³

東京工業大学¹, 電力中央研究所², 原子力機構³

ALPS 沈殿廃棄物組成のアパタイト、リン酸塩固化体の物性評価を実施した。

キーワード：ALPS 沈殿物系廃棄物、アパタイト、リン酸塩固化体、焼成、一軸圧縮焼成、物性評価

1. 緒言 多核種除去設備(ALPS)による汚染水処理で発生する鉄共沈系廃棄物(主成分；Fe)と炭酸塩沈殿(主成分；Ca、Mg)を対象とし、アパタイト、リン酸塩固化による安定化・減容化、工学適用を検討している。主要元素の Mg、Ca は量論比により形成されるリン酸塩形態が異なることをシリーズ(5)で報告している。更に Fe を系に加えた際のリン酸塩形成挙動、ドーブした Cs、Sr、Eu、Ce(4 価,Pu の模擬)、基本骨格を形成する P の状態を理解することは、元素浸出性や廃棄体の安定性について議論する上で重要である。

2. 実験方法 Ca、Mg、Fe、P、といった構成元素の量論比を変化させ、更に Cs、Sr、Eu、Ce(4 価)をドーブした固化体を合成した。原料のカチオンを酸に完全に溶解させ、リン酸二水素アンモニウムを最低限の蒸留水に溶解させて滴下した。その後 28wt%アンモニア水を滴下して pH を 10 まで上昇させ、リン酸塩の沈殿物を得た。これを固液分離、乾燥後に、焼成や一軸圧縮焼成を行い、各手法で分析した。

3. 結果と考察 図 1 に試薬の量論比(モル)、安定化処理条件が合成物に及ぼす影響をまとめた。前報の Ca、Mg 系では、Ca の量論比が大きく沈殿形成時の温度が高いほど Ca アパタイトが主生成物として得られること

図 1 Ca、Mg、Fe のリン酸塩固化条件と得られたリン酸塩化合物

	試薬				安定化処理			合成物
	Ca	Mg	Fe	P	圧力 [MPa]	温度 [°C]	時間 [h]	
(1)	3	2	1	5	沈殿前駆体			アモルファス
(2)	3	2	1	5	20	300	3	ウィットロックait
(3)	10	1	1	10	沈殿前駆体			ブラッシャイト
(4)	10	1	1	10	20	100	1	ブラッシャイト + ストルバイト
(5)	10	1	1	10	20	300	3	ウィットロックait
(6)	10	1	1	10	40	300	3	ウィットロックait
(7)	10	1	1	10	20	400	2	ウィットロックait
(8)	10	1	1	10	0	1200	6	ウィットロックait

がわかっている。Fe が共存しても安定化処理により安定なウィットロックait相が形成された。Fe が混入すると非晶質な FePO₄ 沈殿が形成され、Ca 成分(Ca アパタイトやブラッシャイト)も晶質性は低い状態となった。XAFS により安定化処理前後で Fe の価数や局所構造は変化しないことから、ウィットロックaitと FePO₄ との多相系と推察される。P も安定化処理により XAFS で構

造変化がみられた。ドーブした各元素はその吸収端エネルギーから価数変化していないことが分かった。

4. 結論 鉄共沈と炭酸塩沈殿の二つの ALPS 沈殿系廃棄物のリン酸塩固化体合成挙動とその構造を明らかにした。知見は廃棄体の健全性、処分後の挙動の理解につながる。発表では多様な手法での分析結果を示す。

5. 謝辞 ・JAEA 英知事業 JPJA19P19210371 の助成を受けている。放射光実験は SPring-8 は 2019A 期(2019A-E10、2019A3740、JPMXP09A19AE0010)、2019B 期(2019B-E08、2019B3737、JPMXP09A19AE0028)、2020A(2020A-E09、2020A3738、JPMXP09A20AE0009)、2021A(2021A-E12、2021A3741、JPMXP09A21AE0011)、Photon Factory は 2020G062 で実施された。

*Masahiko Nakase¹, Miki Harigai¹, Eriko Wada¹, Kazuo Utsumi¹, Kenji Takashita¹, Shun Kanagawa², Takatoshi Hijikata², Yoshikazu Koma

¹ Tokyo Institute of Technology, ²Central Research Institute of Electric Power Industry, Japan Atomic Energy Agency³