

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

(5) ALPS 沈殿系廃棄物構成主成分のアパタイト・リン酸塩固化

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

(5) Synthesis of apatite and phosphate ceramics from the main components of ALPS sediment wastes

*和田 恵梨子¹, 中瀬 正彦¹, 竹下 健二¹, 金川 俊², 土方 孝敏², 駒 義和³

¹東京工業大学, ²電力中央研究所, ³JAEA

東京電力 HD(株)福島第一原子力発電所の汚染水処理により発生する二次廃棄物のうち、中長期的な安定措置が必要な多核種除去設備 (ALPS) 沈殿系廃棄物(鉄共沈、炭酸塩沈殿)を、既往のガラスやセメント固化体等に対して種々の利点を有する新規アパタイトセラミックスへの固化・安定化減容化を目指している。

キーワード：ALPS 沈殿系廃棄物、アパタイト、リン酸塩化合物、沈殿法、コールドシンタリング

1. 緒言 福島第一原子力発電所の多核種除去設備 (ALPS) から発生する二種類 ALPS 沈殿系廃棄物(鉄共沈、炭酸塩沈殿)の廃棄物の主要元素である Fe、Mg、Ca のアパタイト(HAP)固化実験を行った。先の報告では $\text{FeSr}_3\text{Cs}(\text{PO}_4)_{10}(\text{OH})_2$ 、 $\text{Fe}_2\text{Sr}_6\text{Cs}_2(\text{PO}_4)_{10}(\text{OH})_2$ 、 $\text{FeMg}_3\text{Cs}(\text{PO}_4)_{10}(\text{OH})_2$ 、 $\text{FeCa}_8\text{Cs}(\text{PO}_4)_{10}(\text{OH})_2$ といった HAP の合成検討を、1.固相反応法、2.ゾルゲル法、3.水熱法によって行い、浸出試験等の結果も併せて報告した。しかしながら実際の ALPS 沈殿系廃棄物は Ca、Mg が大部分を占め、Cs、Sr は発熱性が高いものの大変微量である。従ってより現実的な組成かつ工学プロセスを念頭に置いて Ca、Mg、P を基本骨格とした HAP を沈殿法、焼成、一軸圧縮焼成(コールドシンタリング; CSP)による合成検討をお行った。Ca-HAP は沈殿法での合成に及ぼす原料組成、pH、温度に及ぼす影響が詳細に調査されている。これに Mg が混入すると、別のストルバイト相が形成されやすくなる。ここに Fe が加わることで多様な形態をとる。

2. 実験 ALPS 沈殿系廃棄物の主要元素(Ca、Mg、Fe、硝酸塩乃至は炭酸塩)、P 源($\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$)を所定の組成比で酸性溶液(HNO_3 乃至は HCl)に溶解させ、塩基性溶液(NH_4OH 、 NaOH 乃至は Na_2CO_3)の滴下により沈殿させ、沈殿物を濾別後に 70°C で乾燥させた。更に前駆体を各温度、圧力で焼成及び一軸圧縮焼成を行った。粉末 XRD による同定、SEM-EDX による表面観察、熱分析、XAFS 等による構造変化を調査した。

3. 結果 結果の一例として 25°C で Ca/Mg 組成比を変化させた際の沈殿物乾燥帯の XRD 結果を示す(図1)。SEM-EDX も考慮すると、Mg 組成比増加と共に Mg はストルバイト($\text{NH}_4\text{MgPO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$)、Ca は Ca-HAP の前駆体として知られる一水素カルシウム (CaHPO_4)等が形成された。溶液温度を上げると Ca-HAP 構造が多くみられた。一方で Fe が存在すると Fe はアモルファスのリン酸鉄($\text{Fe}_3(\text{PO}_4)_2$)等となって低 pH のうちに沈殿することが分かった。一方で 20MPa、 300°C の CSP により Fe、Mg、Ca が均一に存在する単一相の Whitlockite 骨格に転換されることが分かった。発表では微量 Cs、Sr を含む固化体合成挙動や各種分析結果について述べる。

4. 謝辞 本研究は英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業、「アパタイトセラミックスによる ALPS 沈殿系廃棄物の安定固化技術の開発」の成果である。

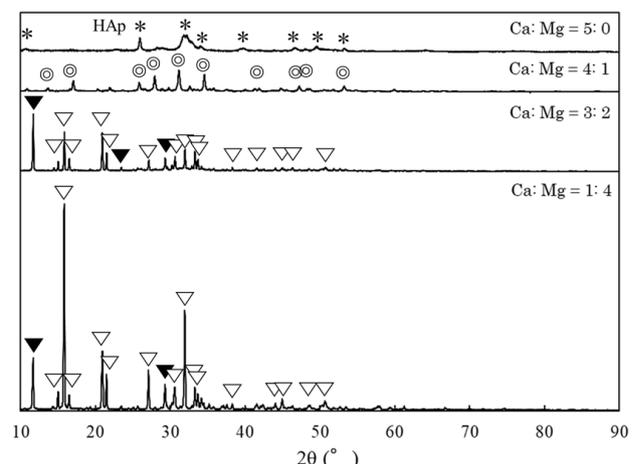


図1. Ca/Mg比の異なる乾燥前駆体の粉末XRD結果、
▲・Brushite ($\text{CaHPO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) ▼・Struvite $\text{NH}_4\text{MgPO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ⊙・Whitlockite

図1 リン酸塩沈殿物合成に及ぼす Ca、Mg 組成比の影響(粉末 XRD)

*Eriko Wada¹, Masahiko Nakase¹, Kenji Takeshita¹, Shun kanagawa², Takatoshi Hijikata², and Yoshikazu Koma³

¹Tokyo Institute of technology, ² Central Research Institute of Electric Power Industry, ³JAEA.