

炭酸カルシウムとのカラム共晶析法による淡水からの放射性ストロンチウム 連続除去に及ぼす溶液混合法の影響

Effect of solution mixing on continuous removal of radioactive strontium
from fresh water by column co-crystallization with calcium carbonate

*市川 恒樹^{1,2}, 山田 一夫²

¹北海道大学, ²国立環境研究所

放射性 Sr により汚染された Ca イオンを含む淡水に Na_2CO_3 溶液を混合して過飽和 CaCO_3 水溶液とし、 CaCO_3 結晶を充填したカラムに通すと、 CaCO_3 との共晶析により Ca と Sr が除去される。Sr 除染率は CaCO_3 過飽和度と共に上昇するが、過飽和度は混合が完全であるほど高くなる。そこで、従来の噴流混合に加えてスタティックミキサーによる混合を行ったところ、Sr 除染率が 10 倍向上して 2,000 に達し、かつ安定化した。

キーワード：放射性ストロンチウム、共晶析、炭酸カルシウム、除染率、スタティックミキサー

1. 緒言

地下水が混入した破損原子炉冷却水のような多量の Ca を含む ^{90}Sr 汚染水を Sr 吸着剤で除染する場合、共存する Ca が Sr 吸着を阻害する。このため前もって汚染水から Ca を沈殿除去する必要があるが、生じた CaCO_3 スラリーは嵩高く且つ ^{90}Sr を含むため、後処理が厄介である。そこで模擬汚染水に Na_2CO_3 水溶液を注入して CaCO_3 過飽和水溶液とし、 CaCO_3 結晶を充填したカラムに通したところ、沈殿の発生なしに Ca を晶析除去できることに加えて、Sr も共晶析によって除去できた。Sr の除染率は CaCO_3 の過飽和度と共に上昇するが、過飽和度は結晶に達する前の Na_2CO_3 溶液との混合が完全なときに最大となる。そこで高い混合率達成が期待できるスタティックミキサーをカラム前に設置して、Sr 除染率の向上と安定化を試みた。

2. 実験と結果

汚染水には ^{85}Sr でラベルした $1\mu\text{M}$ 程度の Sr を含む模擬地下水を使用した。Ca 濃度は CaCl_2 を加えて調整した。汚染水の流れに対して Na_2CO_3 水溶液を体積流速比 0.1 で噴流注入した混合液を内径 3.4mm、長さ 33mm の 12 段スタティックミキサーに通して CaCO_3 過飽和溶液とし、 CaCO_3 種結晶としてアラゴナイト、カルサイトまたは珊瑚砂を 3g 充填したカラムに通した。スタティックミキサーは、図 1 のように管内に右旋及び左旋羽根を交互に配置したもので、管内を進む流体は 1 段ごとに分割・混合操作を受けるため、12 段からなるミキサーでは出射までに 2^{12} 回の分割混合操作を受けることとなる。カラム流出液の放射線量測定によりストロンチウム除染率を算出した。結果の一例を図 2 に示す。図より、添加 Na_2CO_3 量を増やして CaCO_3 溶液の過飽和度を増大させるほど ^{90}Sr 除染率が上昇すること、およびカルサイトよりも Sr を共晶析しやすいアラゴナイトを種結晶に使うと除染率が向上することが分かる。サンゴ砂はアラゴナイトとカルサイトの混合物なので、除染率は両者の中間となる。アラゴナイト使用時の最大除染率は 2,000 となり、噴流混合だけの場合の 10 倍となる。除去される Sr は CaCO_3 との共晶析によるものであるため、Sr 濃度を変えても除染率に変化は無い。噴流混合だけの場合、混合部のセッティングを変えると除染率が変化した、スタティックミキサーを加えると除染率の再現性が著しく向上した。

過飽和溶液が種結晶に到達する前に CaCO_3 結晶が自然発生すると共晶析の妨げとなる。よって試験管内の汚染水に Na_2CO_3 水溶液を加えて約 15 秒程度攪拌した後の生成種晶核からの散乱光を測定することにより、結晶核発生までの時間を測定した。結晶核発生時間は溶液の過飽和度と共に短くなり、最短 40 秒程度となるが、スタティックミキサー使用時の混合時間約 10 秒に比べて十分長いことが分かった。

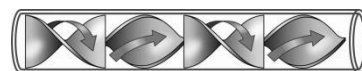


図 1. スタティックミキサーの構造と機能

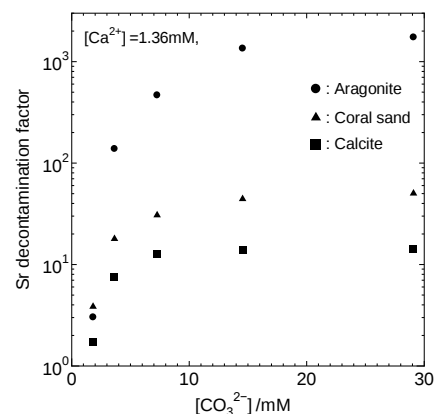


図 2. CaCO_3 過飽和溶液を CaCO_3 充填カラムに流した際の Sr 除去率

*Tsuneki Ichikawa^{1,2} and Kazuo Yamada²

^{1,2}Hokkaido Univ., ²National Institute for Environmental Studies