

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 (12) FP 元素のアパタイトセラミックスへの固定化

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

(12) Solidification of FP elements in apatite ceramics

*竹下 健二¹, 中瀬 正彦¹, 針貝 美樹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, ³原子力機構

本報告では沈殿法により FP 元素 (Sr^{2+} , Cs^+) に加えて Ce^{4+} (Pu 模擬), Eu^{3+} をドーブしたリン酸塩セラミックスを合成し、ドーブした金属イオンに対するリン酸塩セラミックスの固定化性能を評価した。

キーワード: ALPS 沈殿物系廃棄物、アパタイト、リン酸塩、核分裂生成物、固化体製造、プロセス設計

1. 緒言 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系 (リン酸塩) 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。水処理 2 次廃棄物で最も多く発生している炭酸塩スラリーの主成分は $\text{Mg}(\text{OH})_2$ や CaCO_3 であり、 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ を加えて加熱することで、アパタイト $\text{M}_5(\text{PO}_4)_3\text{R}$ ($\text{M}=\text{Ca}$ or Mg , $\text{R}=\text{OH}$, ハロゲン) 等が形成され、 Mg^{2+} や Ca^{2+} のようなアルカリ土類金属イオンはアパタイトを含むリン酸塩構造中に取り込まれる。更に、鉄共沈スラリーは主成分が $\text{FeO}(\text{OH})$ であり、 Mg^{2+} や Ca^{2+} と同様、鉄イオン (Fe^{3+}) をリン酸塩構造中に取り込むことができる。更にスラリー中に高い放射能濃度で存在する放射性 Sr はアルカリ土類金属であり、リン酸塩セラミックのカチオンサイトに閉じ込めることができる。本報告では沈殿法により FP 元素 (Sr^{2+} , Cs^+) に加えて Ce^{4+} (Pu 模擬), Eu^{3+} をドーブしたリン酸塩セラミックスを合成し、ドーブした金属イオンに対するリン酸塩セラミックスの固定化性能を評価した。

2. リン酸塩セラミックスの合成と金属イオンの浸出評価 模擬 FP 元素として Sr^{2+} , Cs^+ を用いて、図 1 のスキームに従って炭酸塩スラリー ($\text{Ca}:\text{Mg}:\text{P}=1:1:2$) からリン酸塩セラミックスを合成し、20MPa、300°C で 1~5 時間圧縮して成型体を作製した。図 2 には XRD 回折の結果を示す。成型体に対してウィットロックイトとリン酸マグネシウム由来の回折ピークが観察され、添加した少量の金属イオンはリン酸塩セラミック合成に大きな影響を与えないことが分かった。実際の廃棄物中の FP やアクチノイド元素の濃度は今回合成したものよりも低いので、FP やアクチノイド元素の添加がリン酸塩セラミック合成に影響は与えないと考えられる。合成した成型体に対して ANSI/ANS16.1-2019 に準拠して動的浸出試験を行い、浸出係数 L 値を評価した。Cs の保持性はよくないものの Ca、Mg、P、Sr に対する L 値はそれぞれ 10、9、10、12 と評価され、低レベル廃棄物として取り扱える L 値 6 を大きく超えた。合成されたリン酸塩セラミックは安定であり、FP 元素として加えた Sr も安定に保持できることが分かった。次いで炭酸塩スラリーと鉄共沈スラリーの混合処理を想定して $\text{Ca}:\text{Mg}:\text{Fe}:\text{P}=2:3:1:5$ として少量の Sr^{2+} , Cs^+ , Ce^{4+} , Eu^{3+} をドーブした Fe 含有リン酸塩沈殿を生成させ、20MPa、400°C で 3 時間低温焼成することでウィットロックイトを主成分とするリン酸塩セラミックスを合成した。得られた粉末 10mg に蒸留水 10mL を加えて 24 時間振盪して、金属イオンの浸出試験を行った。 Eu^{3+} , Ce^{4+} , Sr^{2+} は蒸留水中に検出されず、これらの結果はリン酸塩セラミックは Sr^{2+} だけでなく、 Am^{3+} , Pu^{4+} も安定に保持できる可能性があることを示唆している。



図 1 リン酸塩セラミックス合成スキーム

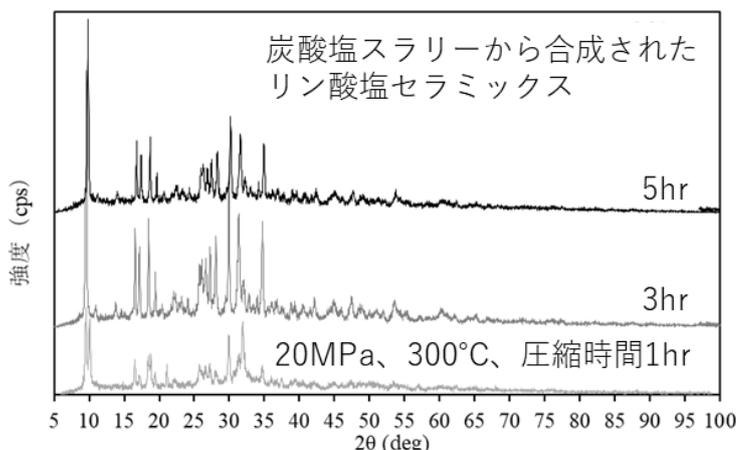


図 2 リン酸塩セラミックス成型体の XRD 分析結果
1 軸圧縮条件: 20MPa、300°C、1~5 時間

*Kenji TAKESHITA¹, Masahiko NAKASE¹, Miki HARIGAI¹, Shun KANAGAWA², Takatoshi HIJIKATA² and Yoshikazu KOMA³

¹Tokyo Tech, ²CRIEPI, ³JAEA