

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 (15) ALPS 沈殿廃棄物のリン酸化合物固化体の水素発生特性

Development of stable solidification technique of ALPS sediment wastes by apatite ceramics
(15) Characteristics of hydrogen gas generation in solidified phosphate compounds from ALPS sediment

*加藤 潤¹, 角田 あやか¹, 大杉 武史¹, 黒木 亮一郎¹, 駒 義和¹, 中瀬 正彦²,
内海 和夫², 竹下 健二², 金川 俊^{2,3}, 土方 孝敏³
¹原子力機構, ²東京工業大学, ³電力中央研究所

福島第一原子力発電所で発生する ALPS 沈殿廃棄物をアパタイトに転換して固化する技術を開発している。本研究では ALPS 沈殿廃棄物のリン酸化合物固化体及びその比較対象であるセメント固化体を対象に γ 線照射を行い、水素の収率 (G 値) を求めることで、ALPS 沈殿廃棄物のリン酸化合物固化体の水素発生特性を評価した。

キーワード: 福島第一原子力発電所, ALPS 沈殿物, リン酸化合物, G 値, γ 線照射

1. 緒言

福島第一原子力発電所で発生する多核種除去設備 (ALPS) 沈殿廃棄物 (炭酸塩及び鉄共沈スラリー) にセメント固化などの低温処理技術を適用した場合、固化体に残留する水の放射線分解による水素発生が問題になる。本研究では、水分をほぼ含有しないアパタイト等のリン酸化合物に着目し、水素発生を抑制可能な固化体の開発を目指した。ALPS 沈殿廃棄物を出発物質として合成したリン酸化合物 (以下、ALPS 沈殿固化体)、ALPS 沈殿固化体の前駆体 (以下、固化体前駆体) 及び普通ポルトランドセメント (以下、OPC) に γ 線照射を行い、発生する水素の収率 (G 値) を求めることで水素発生特性を評価した。試料性状の把握のため、未照射試料及び照射済試料について水分率測定及び構造分析を行った。

2. 実験

試験には、炭酸塩スラリー及び鉄共沈スラリー混合物を出発物質とし、①溶解、②中和、③沈殿、④洗浄、⑤加熱 (450~500°C)、⑥加熱圧縮固化 (300°C, 127MPa) のプロセスにより合成し、⑥の工程を経た ALPS 沈殿固化体と、⑤加熱工程後の生成物である固化体前駆体を使用した。OPC は水/セメント比 0.45 で混練後 28 日養生体を使用した。試料サイズは約 $\phi 20 \text{ mm} \times \text{H}13 \text{ mm}$ 円柱状とし、専用の照射セルに封入して照射試験に用いた。照射セルは内部の水素濃度を高めるため空隙容積/試料体積の比が極力小さくなるよう設計・製作した。高崎量子応用研究所の ^{60}Co 照射施設にて積算線量約 45 kGy (1.9 kGy/h \times 24h) の γ 線照射を実施した。照射後はガスクロマトグラフィーで分析した照射セル内の気体の水素濃度から G 値を算出した。試料の水分率測定は示差熱質量分析 (TG-DTA) で試料の重量減少率を求め、温度範囲ごとに常温~105°C を自由水率、105°C~600°C を結合水率、常温~600°C を全水分率と定義して行った。構造分析は X 線回折 (XRD) を行い、試料の照射前後の構造変化の有無を確認した。

3. 結果と考察

各試料の平均 G 値 (n=3) 及び未照射試料の水分率を図 1 に示す。試料の水分率が小さいほど G 値は小さくなる傾向がみられた。ALPS 沈殿固化体の G 値 (1.3×10^{-3} (1/100eV)) は OPC の G 値 (3.6×10^{-2} (1/100eV)) に対して約 30 分の 1 であり、セメントに対し水素発生特性が優れていることが確認された。固化体前駆体の G 値 (1.9×10^{-3} (1/100eV)) は ALPS 沈殿固化体より高いものの OPC の約 20 分の 1 であり、前駆体の時点でかなり水素発生が抑制されることが分かった。ALPS 沈殿固化体は XRD による構造分析において照射前後で構造変化が確認されず、TG-DTA による水分率測定において照射前後で水分率変化がほぼみられなかったことから、放射線による材料変質が起こりにくいと考えられる。これらの結果から ALPS 沈殿固化体は水素発生特性に優れるのみならず耐放射線性も持ち合わせていることが確認された。

謝辞 本研究は、JAEA 英知を結集した原子力科学技術・人材育成事業 JPJA19P19210371 の助成を受けたものです。

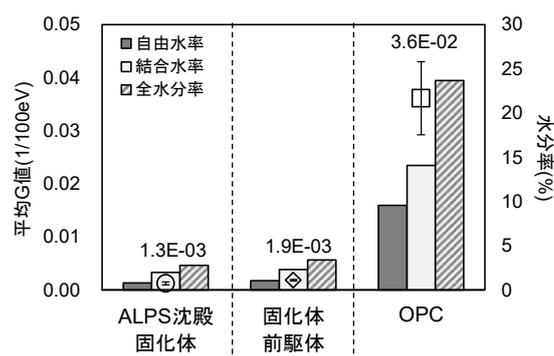


図 1 試料の平均 G 値 (n=3) と水分率

マーカーと数値は平均 G 値 (n=3, エラーバーは標準偏差)
水分率は未照射試料のもの

*Jun Kato¹, Ayaka Kakuda¹, Takeshi Osugi¹, Ryoichiro Kuroki¹, Yoshikazu Koma¹, Masahiko Nakase², Kazuo Utsumi², Kenji Takeshita², Shun Kanagawa^{2,3}, and Takatoshi Hijikata³

¹JAEA, ²Tokyo institute of Technology, ³CRIEPI