



福島原子力事故関連情報アーカイブ

Fukushima Nuclear Accident Archive

Title	イオン交換クロマトグラフィーによる放射性セシウム除去に用いた使用済みフェロシアン化銅吸着剤の各種固型化处理
Alternative_Title	Solidifications of spent copper ferrocyanide adsorbent used for ion-chromatographic radiocesium decontamination
Author(s)	市川 恒樹(北海道大学), 東條 安匡(北海道大学), 山田 一夫(国立環境研究所) Ichikawa, Tsuneki(Hokkaido Univ.); Tojo, Yasumasa(Hokkaido Univ.); Yamada, Kazuo(National Inst. for Environmental Studies)
Citation	第 11 回環境放射能除染研究発表会要旨集, p.5 The 11th Workshop of Remediation of Radioactive Contamination in Environment
Subject	セッション：減容化技術
Text Version	Publisher
URL	https://f-archive.jaea.go.jp/dspace/handle/faa/251023
Right	© 2022 Author
Notes	禁無断転載 All rights reserved. 「第 11 回環境放射能除染研究発表会要旨集」のデータであり、発表内容に変更がある場合があります。 学会は発表の機会を提供しているもので、内容に含まれる技術や研究の成果について保証しているものではないことをお断りいたします。



イオン交換クロマトグラフィーによる放射性セシウム除去に用いた 使用済みフェロシアン化銅吸着剤の各種固化処理

○市川恒樹^{1,2}、東條安匡¹、山田一夫² (¹北海道大学、²国立環境研究所)

はじめに

我々は、福島第一原発事故後に行われた除染作業で集められた多量の放射性Cs汚染廃棄物の最終処理法の一つとして、これを高温乾式処理してCsを発生飛灰側に移し、次にCs濃縮飛灰を水洗してCsを水洗液側に移し、さらにCs濃縮水洗液をイオンクロマトカラムに通してCsを吸着剤側に移すことによって、最終放射性廃棄物を元の体積の数万分の一にまで圧縮する超減容化処理を研究している。吸着剤としてはフェロシアン化銅をはじめとする遷移金属フェロシアン化物が使用されるが、使用済み吸着剤は飛散しやすいので、最終廃棄するにはこれを熱分解した後、固化・安定化する必要がある。そこで固型化法としてセメント固化、ジオポリマー固化、及びリン酸ガラス固化を使用済み吸着剤に適用し、その特色を比較検討した。

実験と結果

飽和吸着量として0.5mol/kgのCs (¹³⁷Csでラベル)を含む模擬使用済みフェロシアン化銅吸着剤を大気中400°C付近で熱分解し、カチオン組成としてほぼCs_{0.2}K_{0.8}Cu_{1.5}Feを有する酸化鉄、酸化銅、アルカリ金属の炭酸塩及び亜硝酸塩 (Calcined Spent Adsorbent, CSA と略)とした。セメント固化の場合は、これにポルトランドセメント (OPC) および OPC に対して40%程度の水を加えて混合したものを直径35mm、厚さ10mmのプラスチックシャーレに充填し、40°Cにて4週間密閉養生した。CSAをCsClに変えた試料も同様の手法により作成した。ジオポリマー固化の場合は、メタカオリン2に対して水ガラス3と少量の水を加え、さらにCSAを加えて混合したものを同上シャーレに充填し、40°Cにて4週間密閉養生した。リン酸ガラス固化の場合は、アルミナつぼにCSAとリン酸を加えて混合し、1昼夜放置して炭酸ガスを放出させた後、150°Cで3時間加熱して水分を揮発させ、さらに1100°Cで5時間加熱してリン酸銅鉄ガラスとした。これらの試料を30°Cの蒸留水に浸漬し、固化体の¹³⁷Csからのγ線量を測定することによりCs漏出量を算出した。その結果を図1に示す。

セメント固化体にはカチオン吸着能が無いので、CsClを混合した試料ではCsは速やかに水中に拡散漏出してしまいが、CSA添加の場合には80%弱のCsが固化体中に保持される。アルカリ雰囲気下でCSAがカチオン交換体として働き、Cu_{1.5}FeO_{2.6}(OK)_{0.64}(OCs)_{0.16}としてCsを吸着保持したのであろう。OPCと同重量までCSAを増やしても固化体の強度やCs保持能には大きな変化は無かった。

固型化に用いたジオポリマーは組成式NaAlO₂・2SiO₂を有するカチオン交換体であり、Csイオン吸着の選択性が高いため、98%以上のCsがNaに置き換ってジオポリマーに保持される。CSAを固化剤重量の1/5まで増量しても固化体の強度やCs保持能には大きな変化は無いが、1/2.5を越すと固化が困難になると共にCs保持能も減少する。

リン酸ガラス固化体の場合、固化剤に対するCSAの重量比が1/1.53以下ではガラスが水溶性となるためCs保持能が失われるが、1以上では非水溶性のリン酸ガラスとなる結果、Csは溶出しなくなる。しかしながらCSA量を1/0.66以上に増量すると、高温での粘度が増すため容器注入などの操作が困難になる。

セメント固化(A)、ジオポリマー固化(B)、リン酸ガラス固化(C)の3種を比較すると、Cs汚染廃棄物の減容度はC>A>Bの順になりCs保持能はC>B>Aの順になるが、固化操作の容易さやコストではA>B>Cの順になる。

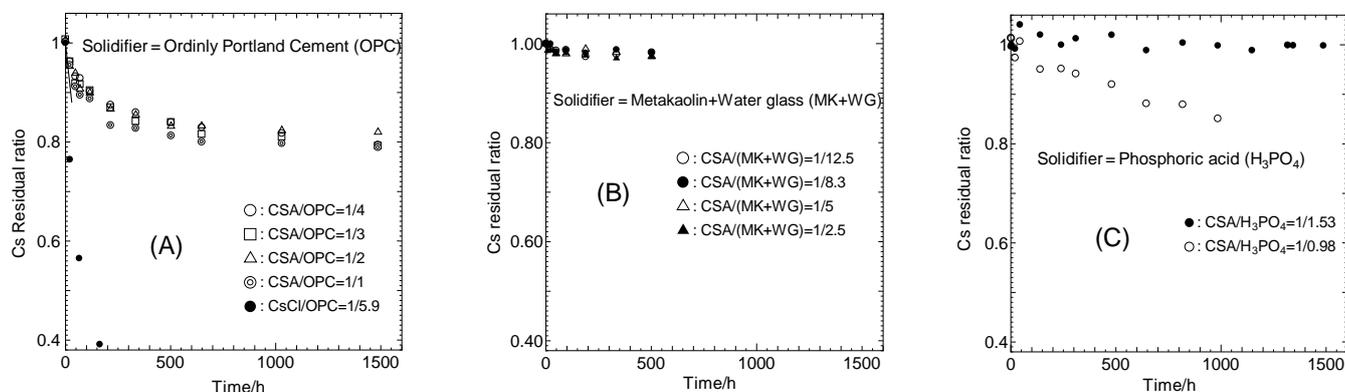


Fig. 1. Cs leaching from (A) cement-, (B) geopolymer- and (C) phosphate-solidified calcined copper ferrocyanide used for ion-chromatographic decontamination of radiocesium.

Solidifications of spent copper ferrocyanide adsorbent used for ion-chromatographic radiocesium decontamination

Tsuneki Ichikawa^{1,2}, Yasumasa Tojo¹, Kazuo Yamada² (¹Hokkaido University, ²National Institute for Environmental Studies)