



福島原子力事故関連情報アーカイブ

FNA

Fukushima Nuclear Accident Archive

Title	亜鉛含有汚染飛灰のセメント固型化に対するアルミン酸ナトリウムの添加効果
Alternative_Title	Effect of sodium aluminate on the solidification of contaminated zinc-rich fly ash
Author(s)	市川 恒樹(北海道大学), 山田 一夫(国立環境研究所), 東條 安匡(北海道大学) Ichikawa, Tsuneki(Hokkaido Univ.); Yamada, Kazuo(National Inst. for Environmental Studies); Tojo, Yasumasa(Hokkaido Univ.)
Citation	第12回環境放射能除染研究発表会要旨集, p.10 The 12th Workshop of Remediation of Radioactive Contamination in Environment
Subject	セッション2: 除染技術と最終処分
Text Version	Publisher
URL	https://f-archive.jaea.go.jp/handle/faa/277781
Right	© 2023 Author
Notes	禁無断転載 All rights reserved. 「第12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。



亜鉛含有汚染飛灰のセメント固型化に対するアルミン酸ナトリウムの添加効果

○市川恒樹^{1,2}、山田一夫²、東條安匡¹ (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、これを熔融炉で高温加熱して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。この方法で得られる最終廃棄物の比放射能は元の飛灰の数千倍となるので、比放射能の上昇を抑えたい場合には、減容度は犠牲になるが、飛灰をそのままセメント固型化して最終廃棄体とする方法も考えられる。熔融炉で生じる飛灰には、酸化亜鉛などの亜鉛化合物が含まれるので、これがしばしばセメントの硬化を妨害する。強アルカリ性であるセメント中では、亜鉛は水酸化亜鉛アニオンとして溶解するが、セメントに硫化ナトリウム(Na₂S)などを添加すると硫化亜鉛となって沈殿するので、硬化が進行することが知られている。しかしながらNa₂Sを添加すると有毒な硫化水素が発生する恐れがあるので、これ以外の添加剤が望ましい。添加剤は、①セメントの硬化を妨害せず、②アルカリ溶液に可溶で、③水酸化亜鉛アニオンを不活性化する必要がある。これらの条件を満足する添加剤候補としてアルミン酸ナトリウム(NaAlO₂)を選び、亜鉛化合物を含むセメントの硬化を試みたところ、その有効性が実証されたので報告する。

実験と結果

セメントには一般のポルトランドセメント(OPC)を、亜鉛化合物にはアルカリ性雰囲気中で溶解しやすい水酸化亜鉛[Zn(OH)₂]を用いた。OPCにZn(OH)₂およびNaAlO₂を適量加えて攪拌混合したものに水をOPCの40~50%加えて練り混ぜ、これを内径35mm、深さ10mmのプラスチックシャーレに入れて40°Cで最長4週間密閉養生した。爪で引っ掻いても試料の表面が削れず、型枠であるシャーレから取り出して水に浸漬しても型崩れが生じなくなった日数をもって硬化に必要な日数とした。

セメントが硬化するのに必要な時間とZn(OH)₂の添加量との関係を表1に示す。添加量がOPCの0.3%を越すと遅延が始まり、2%を越すと1か月近く40°Cに保っても硬化しなくなる。亜鉛化合物による硬化遅延メカニズムは不明だが、少量のZn(OH)₂から溶け出した微量の水酸化亜鉛アニオンが硬化反応を効果的に抑制することから、これがセメント硬化反応の律速過程に割り込んで硬化を遅延させていることが推察される。

Zn(OH)₂をOPCの10%添加することにより硬化しなくなったセメントに対するNaAlO₂の硬化促進効果を表2に示す。Zn(OH)₂は溶液のpHが高くなると溶解度が上昇するが、その溶解は遅い。これに対してNaAlO₂はアルカリ性水溶液に可溶なので、セメント中の溶液内の両者のモル比は添加量とは大きく異なるが、添加量ベースで見ると、NaAlO₂をZn(OH)₂と等モル加えると硬化の遅延は認められなくなり、0.28程度加えると4日程度の遅延で収まる。OPCと等量のZn(OH)₂を加えた試料でもZn(OH)₂に対して0.26程度のNaAlO₂を添加すれば遅延は2日程度に収まるので、遅延防止に必要なNaAlO₂の添加量は含有Zn(OH)₂量にほぼ比例するものと推定される。NaAlO₂の硬化遅延防止メカニズムは不明だが、①OPC中のカルシウムとNaAlO₂との反応で生じる hidroカルマイトが水酸化亜鉛アニオンを吸着し不溶化するか、あるいは②多量に存在するAlO₂⁻アニオンがセメント硬化反応への水酸化亜鉛アニオンの割り込みを妨害することによって硬化遅延を防止するかのいずれかであろう。

以上、セメント固型化が困難な亜鉛含有熔融飛灰も毒性の無いアルミン酸ナトリウムを添加すれば容易に固型化できることが明らかとなった。

表1. Zn(OH)₂のセメント硬化遅延効果

Zn(OH) ₂ /OPC 重量比	硬化日数
0	1
0.0027	1
0.0033	2
0.005	3
0.01	9
0.02	24 (軟弱硬化体)
0.022	硬化せず
0.1	硬化せず

表2. Zn(OH)₂含有セメントに対するNaAlO₂の硬化促進効果

Zn(OH) ₂ /OPC 重量比	NaAlO ₂ /Zn(OH) ₂ モル比	硬化日数
0.1	0.042	硬化せず
0.1	0.085	25 (軟弱硬化体)
0.1	0.141	11
0.1	0.283	5
0.1	0.495	3
0.1	1.06	1
0.1	1.766	1
1	0.265	3

Effect of sodium aluminate on the solidification of contaminated zinc-rich fly ash

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