

吸着材及びセメント固化体の長期安定性の影響評価 Long-term Stability Evaluation of Adsorbents and Cement Solidified Products

佐藤 史紀 伊藤 義之 松島 怜達
Fuminori Sato Yoshiyuki Ito Ryotatsu Matsushima

日本原子力研究開発機構

(概要)

東海・再処理施設から生じる低レベル放射性廃液の処理に伴い発生するセメント固化体や Cs・Sr 吸着材を長期保管した際の安定性を検討するため、これらの水素生成 G 値($G(H_2)$)を測定した。

キーワード：セメント固化体、硝酸ナトリウム、亜硝酸ナトリウム、炭酸ナトリウム、吸着材

1. 目的

東海・再処理施設から発生する低レベル放射性廃液は、低放射性廃棄物処理技術開発施設(LWTF、現在、コールド試験運転中)にて核種分離(共沈・限外ろ過、Cs・Sr 吸着)を行った後、残った硝酸塩溶液を硝酸根分解処理によって炭酸塩廃液とした上で、セメント固化し廃棄体とする計画である。ここで、セメント固化体の $G(H_2)$ は、使用するセメント材や処理対象廃液の組成等によって変化するとともに、吸着材の $G(H_2)$ についても、接する硝酸塩溶液の濃度や吸着材の種類(組成)、吸着材と共存する水溶液の割合(液固比)によって変化することから、昨年度に引き続き、実機と同様の使用条件を想定したセメント固化体や Cs・Sr 吸着材の水素生成 G 値($G(H_2)$)を測定した。

2. 実施方法

照射用のセメント固化体試料は、硝酸根分解処理後の模擬廃液とセメント材を混練後、円柱容器に封入することで作製した。硬化後、試料を $\phi 11.5 \text{ mm} \times 50 \text{ mmH}$ に成型しガラス瓶(50 mL)に封入した後、ガンマ線照射した。照射後、気相部のガスを採取しガスクロマトグラフで水素ガス濃度を分析して、試料の吸収線量と水素ガス発生量から $G(H_2)$ を評価した。実機と同様の使用条件を想定して、模擬廃液中の塩成分(硝酸ナトリウム、亜硝酸ナトリウム、炭酸ナトリウム)の組成、混練時の水/セメント比をパラメータとすることで、これらの $G(H_2)$ に対する影響を検討した。

照射用の Cs・Sr 吸着材試料は、ガラス瓶に吸着材(5.0 g)と約 4.7 mol/L の硝酸塩溶液(6.0 mL)を密封することで作製し、これをガンマ線照射して、気相部に発生した水素ガスの濃度を測定することで $G(H_2)$ を評価した。今年度は、LWTF の核種分離工程で使用する Cs・Sr 吸着材として有用と見込まれたケイチタン酸塩系の吸着材を対象とした。

3. 結果及び考察、今後の展開等

模擬廃液中の塩成分を炭酸ナトリウムのみとしたセメント固化体試料の $G(H_2)$ は約 0.02~0.16 (n/100eV)であり、混練時の水/セメント比には影響を受けず、塩成分の充填量が大きくなった場合に $G(H_2)$ が低下することが分かった。これについては、昨年度までと同様の傾向であり、炭酸塩の充填量が増えるほど Na_2CO_3 を含んだセメント生成物(Pirssonite)が多く生成することで、 $G(H_2)$ が小さくなったと考えられる。模擬廃液中に硝酸ナトリウム、亜硝酸ナトリウム、炭酸ナトリウムを共存させた場合には、炭酸ナトリウム単独の場合に比べてより小さな $G(H_2)$ が得られることが分かった(0.02~0.06 (n/100eV))。また、硝酸ナトリウムと亜硝酸ナトリウムの比率を変えた場合でも、得られる $G(H_2)$ は大きく変わらないことが分かった。以上から、炭酸ナトリウムに比較して硝酸もしくは亜硝酸ナトリウムは水素生成を抑制する効果が大きいこと、硝酸ナトリウムと亜硝酸ナトリウムは同程度の水素生成の抑制効果を持つことが明らかとなった。

ケイチタン酸塩系の吸着材と硝酸塩溶液の混合物の $G(H_2)$ は、約 0.03 (n/100eV)であり、アルミノケイ酸塩系の吸着材の場合(およそ 0.06~0.11 (n/100eV))に比べて小さかった。吸着材成分の影響を確認するため、各試薬(Al_2O_3 、 TiO_2 、 SiO_2)と水の混合物の $G(H_2)$ を測定した結果、 $G(H_2)$ は、 $\text{Al}_2\text{O}_3 > \text{TiO}_2 > \text{SiO}_2$ の順に大きかった。このため、アルミノケイ酸系吸着材の方が $G(H_2)$ は高くなったと考えられる。

4. 引用(参照)文献等

- 1) 松島, 佐藤, 他, 日本原子力学会 2017 年秋の大会, 1H02 (2017).
- 2) 高野, 伊藤, 他, 日本原子力学会 2016 年秋の大会, 2F17 (2016).