

吸着材及びセメント固化体からの水素ガス生成の評価

Study on Hydrogen Generation from Adsorbents and Cement Solidified Samples by Gamma Irradiation.

伊藤 義之 松島 恵達 佐藤 史紀

Yoshiyuki ITOH Ryotatsu MATSUSHIMA Fuminori SATOH

原子力機構

（概要）

東海・再処理施設から発生する低放射性廃液は、低放射性廃棄物処理技術開発施設（LWTF）の液処理（共沈・限外ろ過）工程により、比較的放射能濃度の高いスラリ廃液と低い硝酸塩廃液に分離され、硝酸塩廃液は吸着塔にてCs及びSrを吸着後、硝酸根分解工程により更に炭酸塩廃液とする。スラリ廃液及び炭酸塩廃液は、それぞれその特性に応じたセメント材によりセメント固化される計画であり、現在、セメント固化設備の設計及び新しいCs・Sr吸着材の適用を検討している。本研究では、これらの安全性評価に資するため、セメント固化体及びCs・Sr吸着材のガンマ線照射試験を行い、水素生成G値（G(H₂））を測定した。

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

1. 目的

スラリ廃液は、スーパーセメント（SC）又は高炉水碎スラグ（BFS）と混練することによりスラリ固化体とし、炭酸塩廃液は、高炉セメント（BC）との混練により炭酸塩固化体とする計画である¹⁾。各セメント固化体のG(H₂)は、使用するセメント材及び処理対象廃液の組成等によって異なるため、セメント材及び廃液組成によるG(H₂)の影響を確認する。また、吸着材のG(H₂)は、接する硝酸塩溶液の濃度や吸着材の種類（組成）によって異なり、更に吸着材と共に存する水溶液の割合（液固比）によっても異なることから、実機の使用条件を考慮したG(H₂)を取得するとともに液固比等によるG(H₂)の影響を確認する。

2. 実施方法

照射用のセメント固化試料は、各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する。硬化後、試料をφ11.5 mm×50 mmHに成型しガラス瓶（50 mL）に封入した後、ガンマ線照射する。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、試料の吸収線量からG(H₂)を評価する。廃液充てん量をパラメータとしたセメント試料をガンマ線照射することで、各セメント材及び廃液組成によるG(H₂)の影響を検討する。同様に吸着材のG(H₂)測定は、ガラス瓶に吸着材と硝酸塩溶液（約4.7 mol/L）を封入した状態でガンマ線照射し、気相部に発生した水素の濃度を測定することで行う。吸着材や溶液の種類、吸着材と溶液の固液比をパラメータとした照射試験を行うことによって、溶液中に吸着材が存在した場合のG(H₂)の影響を検討する。

3. 結果及び考察、今後の展開等

スラリ固化体（充てん率10～50wt%）のG(H₂)は、約0.04 (n/100eV)であり、スラリ廃液を充てんしていない場合に比べて、およそ半分に低下した。また、炭酸塩固化体（充てん率10～30wt%）のG(H₂)は、0.02～0.14であり、炭酸塩充てん率の上昇とともに低下する傾向であった。炭酸塩の充てん率が上昇するほど、Na₂CO₃を含んだセメント生成物（Pirssonite）が多くできることで、G(H₂)は小さくなると考えられる。また、炭酸塩固化体試料の比表面積によるG(H₂)の影響を検討した結果、試料の比表面積が大きいほど、G(H₂)はセメント水和物の影響を受け難くなることが分かった。

吸着材と硝酸塩溶液の混合物のG(H₂)は、硝酸塩溶液のみの場合が最も大きく、溶液の一部が吸着材に置き換わると、G(H₂)は小さくなり、置き換わる吸着材量が増えるほどG(H₂)は小さくなる傾向であった。水（又は、海水）と吸着材の混合物（液固比0.5以下）のG(H₂)は、吸着材へのエネルギー付与により水のみの場合よりも上昇すると報告²⁾されているが、本試験は高濃度の硝酸塩溶液下であり、液固比はおよそ1.0～2.2であったため、硝酸塩溶液からの水素ガス発生が支配的となったと考えられる。

4. 引用(参照)文献等

- 1) A. Sugaya, et. Al., 11078, WM2011 Conference (2011).
- 2) 熊谷、永石ほか、Vol. 10、No. 4、p. 235-239、日本原子力学会和文論文誌 (2011).