

先進固化技術 “SIAL[®]” による放射性廃棄物処理

Radioactive Waste Treatment Using the Advanced “SIAL[®]” Solidification Technology

関根 伸行 SEKINE, Nobuyuki

見上 寿 MIKAMI, Hisashi

小野崎 公宏 ONOZAKI, Kimihiro

放射性廃棄物処理の固化材として、セメントに比べて物理的、化学的に安定であり、放射性核種や重金属などの閉じ込め性が高いジオポリマーが注目されている。富士電機は、ジオポリマーを用いた先進固化技術 “SIAL[®]” の国内適用に向けて、原子力発電所で発生したフィルタスラッジおよび使用済みイオン交換樹脂を用いた実証試験を国内で初めて実施した。放射性廃棄物を 40 wt% まで充填した固化体の圧縮強度は、埋設処理に要求される値よりも高いことを確認した。また、代表的な放射性核種の分配係数は、埋設施設の設定値を満足する良好な結果であることを確認した。

Geopolymer has been attracting attention as a solidifying agent for radioactive waste treatment because it is physically and chemically more stable than cement and provides better confinement of radionuclides and heavy metals. Fuji Electric conducted the first demonstration test in Japan using the filter sludge and spent ion exchange resin disposed by nuclear power plants to facilitate the application of the geopolymer-based advanced solidification technology “SIAL[®]”. We confirmed that solidified products filled with radioactive waste up to 40 wt% had higher compressive strength than required for geological disposal. In addition, we confirmed that the partition coefficients of representative radionuclides sufficiently satisfied the configuration values for geological disposal facilities.

1 まえがき

原子力発電所は安定して大量の電力を供給する。一方で、運転に伴い濃縮廃液などの液体状廃棄物や、使用済みのイオン交換樹脂などの固体状廃棄物といった放射性廃棄物が発生する。これらの放射性廃棄物は、セメントやアスファルト、プラスチックなどの固化材によってドラム缶内に安定・固化され、廃棄体として青森県六ヶ所村にある日本原燃株式会社の六ヶ所低レベル放射性廃棄物埋設センターに埋設処分される。

放射性廃棄物の固化材としてセメントが主流になりつつある中で、セメントと同じ無機系材料であるジオポリマーが、新しい固化材として近年注目されている。この材料は、セメントに比べて物理的、化学的に安定であり、放射性核種や重金属などの閉じ込め性が高いという特徴を持つ。

国外では、AllDeco Ltd. (現在の Jacobs 社) がジオポリマーを使った先進固化技術 “SIAL[®]” を開発し、2003 年にスロバキア共和国原子力規制局 (UJD SR)、2006 年にチェコ原子力安全局 (SUJB) から放射性廃棄物処理の固化材としてのライセンスを取得し、世界で初めて放射性廃棄物処理に適用した。富士電機は、Jacobs 社が保有する SIAL[®] の国内の放射性廃棄物処理への適用に向けて開発を進めている。本稿では、その技術の特徴と実証試験について述べる。

2 “SIAL[®]” の特徴

ジオポリマーは、アルミナシリカ粉末とアルカリシリカ

溶液から形成される無機系材料の縮合体である。SIAL[®] は、アルミナシリカ粉末としてメタカオリン (SIAL-B 材)、アルカリシリカ溶液として水ガラス (SIAL-A 材) が使用され、セメントと同様に室温で固化する。また、SIAL[®] は、SIAL-A 材、SIAL-B 材および種々の添加材の配合組成を最適化することにより、硫酸塩やほう酸塩などの無機塩が高濃度で含まれる濃縮廃液や有機物を含むイオン交換樹脂、焼却灰やオイルなどの安定・固化において、セメントに比べて、廃棄物の高充填化や前処理を行うことなく直接固化ができるなど優れた特性が期待できる。

3 “SIAL[®]” の基本性能

3.1 セメントとの性能比較

SIAL[®] の基本性能を把握するため、コールド試験^(注2) によってコバルト (Co)、ストロンチウム (Sr)、セシウム (Cs) の分配係数 K_d を評価し^(注3)、セメントとの性能を比較した。表 1 に、SIAL-A 材と SIAL-B 材からなる SIAL[®] とセメ

表 1 分配係数の比較

初期濃度 100 ppm

元 素	分配係数 (m ³ /kg)		
	Co	Sr	Cs
SIAL [®] 固化体	0.28	0.95	0.55
セメント固化体	37	0.004	0.0003

〈注 2〉 コールド試験：放射線または放射性物質を用いないで行う予備試験または模擬試験

〈注 3〉 分配係数：分配係数は分配平衡モデルでの特性を表す指標で、放射性核種などの元素の閉じ込め性を表し、数値が高いほど閉じ込め性が高い。

〈注 1〉 SIAL : Jacobs Slovakia s.r.o の商標または登録商標

ントの分配係数の比較を示す。セメントに比べ、SrやCsの閉じ込め性が高く、Coの閉じ込め性は低いものの、十分な閉じ込め性を基本特性として持っていることを確認した。

$$K_d = (V/W_s) \cdot (C_0 - C_i) / C_i$$

K_d : 分配係数 (m³/kg)

C_0 : 初期の溶液中の元素濃度 (ppm)

C_i : 反応終了時の溶液中の元素濃度 (ppm)

V : 溶液の体積 (m³)

W_s : 固化体の質量 (kg)

3.2 無機塩の固化

放射性廃棄物に含まれる可能性のある炭酸塩やほう酸塩、硫酸塩などの無機塩がジオポリマー固化に及ぼす影響を調査するため、SIAL®の基本的な配合組成で固化試験を行った⁽²⁾。

まず、混練後の粘度の時間変化を確認した。表2に、混練直後の初期粘度を示す。初期粘度は、無機塩の充填率が高くなると上昇する。図1に、無機塩充填率10wt%における、初期粘度を基準とした粘度上昇倍率の時間変化を示す。基準となる未充填時の粘度上昇変化に比べ、炭酸塩は硬化促進、メタほう酸塩は硬化遅延が確認された。硫酸塩はわずかに凝結促進の効果が見られた。硫酸塩では、2時間以降粘度が測定上限値を超えたためデータを表記していない。これらの結果から、ジオポリマー固化における無機塩の影響は、従来のセメントの場合と同様の傾向を示すことを確認した。また、無機塩を充填した固化体の圧縮強度を評価した。充填率40wt%の無機塩が固化できることを確認した。圧縮強度は図2に示すように、10wt%に比べ低下するものの、炭酸塩では32MPa、メタほう酸塩では

表2 初期粘度の比較

無機塩の充填率 (wt%)		0	10	40
初期粘度 (Pa・s)	炭酸塩	3	5	10
	メタほう酸塩		9	10
	硫酸塩		21	23

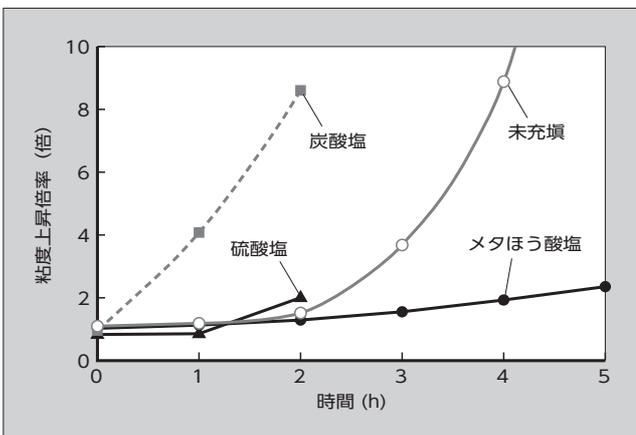


図1 粘度上昇倍率の比較 (充填率 10 wt%)

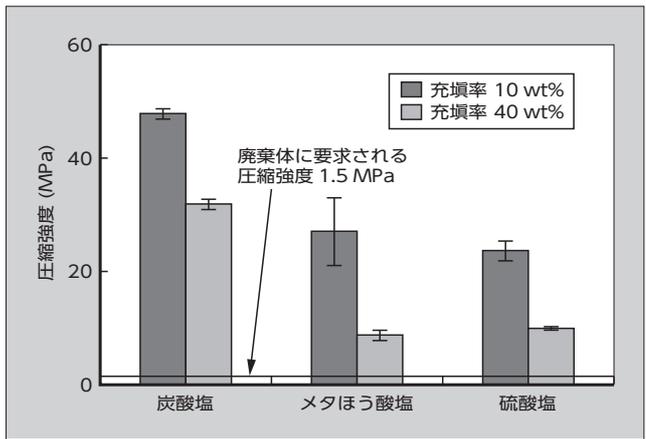


図2 圧縮強度の比較

9 MPa、硫酸塩では10 MPaであり、廃棄体に要求される圧縮強度1.5 MPa以上を満足し、十分な強度を持っていることを確認した。

なお、これら無機塩を含む放射性廃棄物のSIAL®を使った固化の実運用に際して、取扱いやすい粘度や要求値を満たす圧縮強度となるように充填率や配合組成を最適化していく予定である。

4 放射性廃棄物処理の実証試験

SIAL®は国外の放射性廃棄物処理で商業化されているが、国内の評価基準は異なるため、国内の原子力発電所で発生した放射性廃棄物を用いた実証試験が必要である。日本原子力発電株式会社の協力の下、敦賀発電所で発生した放射性廃棄物を用いて国内基準に沿った実証試験を行った。

試験に用いた放射性廃棄物は、フィルタスラッジ (FS: Filter Sludge) と使用済みイオン交換樹脂 (SR: Spent Resin) である。原子炉浄化システムなどでは、ろ過助剤をプリコートしたフィルタが使用されており、FSはフィルタ洗浄により発生したろ過助剤や鉄さびなどを含むスラッジ状の放射性廃棄物である。また、SRは液体中のイオン性不純物を除去するために使用されたイオン交換樹脂の放射性廃棄物である。これらの放射性廃棄物には、さまざまな放射性核種が含まれている。

4.1 コールド試験による配合組成の最適化

放射性廃棄物を固化するためには、放射性廃棄物ごとに固化材の配合組成の最適化が必要となる。そのため、事前に、放射性廃棄物を模擬した試料を使ったコールド試験を実施した⁽³⁾。その結果、FSおよびSRの模擬試料ごとにSIAL®の配合組成を最適化することで、充填率40wt%の固化が可能で、要求される圧縮強度1.5 MPa以上を確認した。

4.2 ホット試験によるSIAL®の実証

実証試験として、表3と図3に示す放射性廃棄物を用いてコールド試験で求めた組成でSIAL®を配合したジオポ

表3 ホット試験に用いた放射性廃棄物

	表面線量当量率 (mSv/h)	含水率 (%)
FS	0.27	74 ~ 75
SR	0.50 ~ 0.60	52 ~ 55

表4 分配係数測定条件

項目	条件
試料	FS固化体、SR固化体 形状：粒状(0.5 ~ 5 mm)
試験溶液	平衡水
固液比	固体 / 液体=1 / 10
ISA初期濃度	ISAなし、10 mM
試験時間	168時間
試験環境	窒素雰囲気下



図3 放射性廃棄物の外観

リマーのホット試験^(注4)を行った。FSに含まれるセルロースの分解物であるイソサッカリン酸 (ISA) はプルトニウムなどの α 核種^(注5)の溶解度を大幅に増加させることが報告されており、分配係数の低下、つまり放射性核種が溶け出しやすくなる懸念される。そこで、FSに含まれるISAの分配係数への影響を調査した。また、実際の埋設後に溶出したISAがSRに影響を及ぼすことも懸念されたので、確認のためSRも調査した。

4.3 ホット試験による実証試験方法

(1) 放射性廃棄物の固化

コールド試験で配合組成を最適化したSIAL®を用いて、放射性廃棄物を固化した。放射性廃棄物の充填率はコールド試験と同様に40 wt%とした。SIAL®と放射性廃棄物を混練した後、養生28日後の固化体について性能評価を実施した。

〈注4〉ホット試験：放射線または放射性物質を用いた試験

〈注5〉 α 核種：核分裂をする際に α 線 (He原子核) を放出する放射性核種

(2) 圧縮強度

作製した固化体について一軸圧縮強度を測定した。

(3) 分配係数測定試験

代表的な放射性核種について分配係数を評価した。表4に分配係数測定条件を示す。ISAは、固化材や廃棄物への収着、核種濃度に対して過剰 (保守側) となるように、初期濃度を10 mM (M=mol/L) に設定した。

4.4 結果と評価

(1) 均一性と圧縮強度

図4に、放射性廃棄物の固化体の断面写真を示す。FS固化体、SR固化体ともに均一に固化していることが確認できた。表5に示すように、圧縮強度はFS固化体で14 MPa、SR固化体で7.7 MPaであった。いずれも埋設処理に要求される圧縮強度1.5 MPa以上であり、十分な圧縮強度があることを確認した。

(2) 分配係数の結果

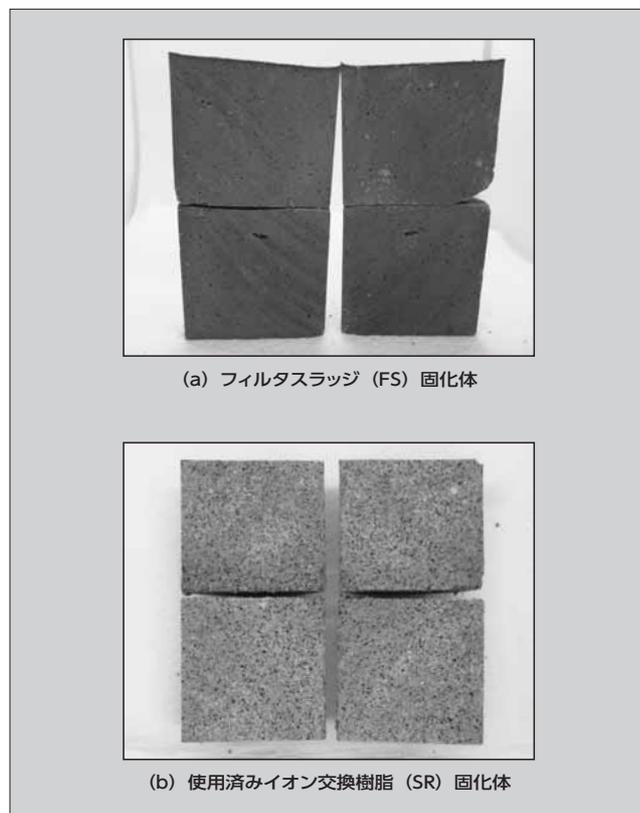


図4 固化体の断面写真 (寸法 ϕ 50 × 100 mm)

表5 固化体の表面線量当量率と圧縮強度

	表面線量当量率 (mSv/h)	圧縮強度 (MPa)
FS固化体	0.12	14
SR固化体	0.08	7.7

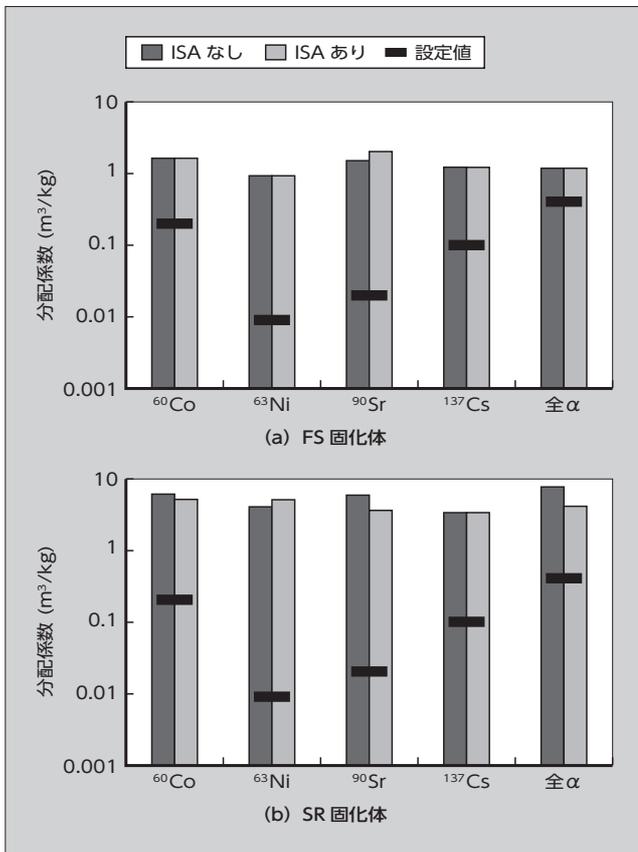


図5 主要核種の分配係数

表6 ISAの影響評価結果

	分配係数の増加率 (倍)				
	⁶⁰ Co	⁶³ Ni	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	全α
FS固化体	1.0	1.0	1.3	1.0	1.0
SR固化体	0.9	1.2	0.6	1.0	0.5

図5に、FS固化体とSR固化体の分配係数を示す。代表的な放射性核種の分配係数は、六ヶ所低レベル放射性廃棄物処理センターの3号廃棄物処理施設の設定値を満足する良好な結果が得られた。また、表6に示すようにISAの分配係数への影響は、SR固化体において、⁹⁰Srと全α(α線を放出する全核種)の分配係数がわずかに低下した

が、全ての核種は3号廃棄物処理施設の分配係数の設定値よりも高い性能を維持している。ISAの影響が最も懸念される全αでも、大きな影響がないことを確認した。

5 あとがき

先進固化技術“SIAL®”による放射性廃棄物処理について述べた。ジオポリマーは国外での実績があるが、国内での適用には中長期的な安定性について合理的な説明が行えるようにすることが課題である。今後、実運用を想定した200Lドラム缶による実規模スケールの実証試験や長期的な性能変化などの評価を進めていく所存である。

放射性廃棄物処理の実証試験は、日本原子力発電株式会社、Jacobs社殿のご協力により実施された。関係各位に謝意を表す。

参考文献

- (1) 須田裕貴ほか.“固化体機能評価”. 2018年春の年会予稿集. 日本原子力学会, 2018, O15.
- (2) 安田昌樹ほか.“SIAL®による固化阻害物質の影響評価”. 2020年春の年会予稿集. 日本原子力学会, 2020, B05.
- (3) 関根伸行ほか.“模擬フィルタスラッジおよびイオン交換樹脂のSIAL®の固化試験”. 2020年春の年会予稿集. 日本原子力学会, 2020, B06.



関根 伸行

有機感光体材料、パワー半導体封止材料の研究開発に従事。現在、富士電機株式会社発電プラント事業本部発電事業部原子力バックエンド技術部。日本原子力学会会員。



見上 寿

放射性廃棄物処理・処分技術、被ばく・遮へい評価技術、廃止措置シナリオ検討に従事。現在、富士電機株式会社発電プラント事業部発電事業部原子力バックエンド技術部主査。日本原子力学会会員、日本保健物理学会会員、環境放射能除染学会会員。



小野崎 公宏

放射性廃棄物処理・処分のエンジニアリング業務に従事。現在、富士電機株式会社発電プラント事業本部営業統括部営業第四部担当課長。



*本誌に記載されている会社名および製品名は、それぞれの会社が所有する
商標または登録商標である場合があります。