Session 2024 Fall Meeting

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials: 505-1 Radioactive Waste Management

**➡** Thu. Sep 12, 2024 2:45 PM - 3:35 PM JST | Thu. Sep 12, 2024 5:45 AM - 6:35 AM UTC **➡** Room K(Recture RoomsB 2F B200)

## [2K09-11] 1F Waste 5

Chair:Akira Tsutsumiguchi(Hitachi)

2:45 PM - 3:00 PM JST | 5:45 AM - 6:00 AM UTC [2K09]

Thermal analysis of ferrocyanide compound in the presence of water vapor and evaluation of various migration behaviors

\*KOKI Nakahara<sup>1</sup>, Yuki Oiwa<sup>1</sup>, Isamu Sato<sup>1</sup>, Yasutomo Tajiri<sup>2</sup>, Tosiro oniki<sup>2</sup>, Haruaki Matsuura<sup>1</sup> (1. tokyo city univercity, 2. IHI Corporation)

3:00 PM - 3:15 PM JST | 6:00 AM - 6:15 AM UTC [2K10]

Behavior of crystalline silicotitanate (CST) sorbent through long time flow

\*Tetsuya Kato<sup>1</sup>, Takatoshi Hijikata<sup>1</sup>, Masafumi Kubota<sup>2</sup>, Yasuhiro Suzuki<sup>2</sup> (1. CRIEPI, 2. TEPCO HD)

3:15 PM - 3:30 PM JST | 6:15 AM - 6:30 AM UTC [2K11]

Neodymium adsorption characteristics on crystalline silicotitanate (CST) sorbent

\*Takatoshi Hijikata<sup>1</sup>, Kenta Inagaki<sup>1</sup>, Masafumi Kubota<sup>2</sup>, Yasuhiro Suzuki<sup>2</sup> (1. CRIEPI, 2. TEPCO)

3:30 PM - 3:35 PM |ST | 6:30 AM - 6:35 AM UTC

Time reserved for Chair

2K09 2024年秋の大会

### フェロシアン化合物の水蒸気共存下熱分析及び核種移行挙動の評価

Thermal analysis of ferrocyanide compound in the presence of steam

and evaluation of migration behavior of cesium

\*中原滉基¹、大岩祐毅¹、佐藤勇¹、田尻康智²、鬼木俊郎²、松浦治明¹¹東京都市大学、²株式会社 IHI

**抄録** 福島第一原子力発電所より発生する水処理二次廃棄物に対し、その構成成分等をもとに各雰囲気下 (Ar, 水蒸気) における熱分解処理時の基礎的な分解挙動と核種の移行挙動を推定した。

キーワード:中間処理技術、水蒸気共存、ガス分析、広域 X 線吸収微細構造、セシウム (Cs)

#### 1. 緒言

中間処理技術は、放射性廃棄物を固化体形状とすることなく、保管時の潜在的リスク低減と保管量の減容化を目的としており、今後決定される処分方法に対して柔軟に対応することが可能と考えられる。そのため、放射性廃棄物を安全に保管しておくために、中間処理を行っておくことも一つの方策であり、処理技術の技術オプションの拡大に繋がるものといえる。そこで、福島第一原子力発電所の滞留水中のセシウム(Cs)吸着に用いられているフェロシアン化合物[1]を対象に、水蒸気共存させた条件下での熱分解技術の適用性を確認するため、熱力学的な基礎データを取得した後の残渣に対してXAFS評価を行った。

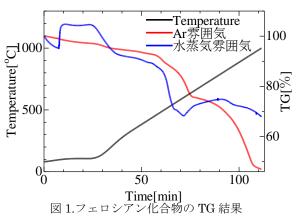
#### 2. 実験内容

フェロシアン化合物は不溶性フェロシアン化コバルト  $(K_2Co[Fe(CN)_6])$ である。 $K_4[Fe(CN)_6]$ 溶液と  $CoCl_2$  を混合して  $K_2Co[Fe(CN)_6]$ の沈殿を作製し用いた。模擬核種の Cs は CsCl 溶液に  $K_2Co[Fe(CN)_6]$ を浸漬させ K と Cs をイオン交換すること で吸着させた。作製試料をあいちシンクロトロン光センター BL5S1 にて Cs-L3 吸収端について蛍光法で XAFS 測定した。 TG-DSC を用いて Ar 雰囲気と水蒸気雰囲気、昇温温度  $10^{\circ}$ C/min、 $1000^{\circ}$ Cの条件で加熱を行い、加熱後試料の XAFS 測定を行った。

#### 3. 結果及び考察

図1にフェロシアン化合物のTG 結果を示す。500℃付近ではAr 雰囲気より水蒸気共存下の方が減重率は約5%高いことが確認できた。また、図2に加熱前後(1000℃)の規格化していないXANESスペクトル(Cs 近傍)を示す。水蒸気雰囲気、Ar 雰囲気共に加熱前よりエッジジャンプが小さくなっていることが確認できる。しかし水蒸気雰囲気の方がAr 雰囲気よりエッジジャンプが大きいことから水蒸気を添加するとCsの揮発が抑制されていると考えられる。

謝辞 本研究は、経済産業省資源エネルギー庁「廃炉・汚染水・処理 水対策事業(固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発)」の成果の一部である。



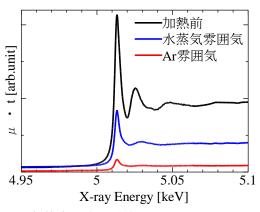


図 2.加熱前後(1000℃)の XANES スペクトル (Cs 近傍)

#### 参考文献

[1] 山岸功、三村均、出光一哉 日本原子力学会誌 Vol.54,No.3(2012)

<sup>\*</sup>Koki Nakahara<sup>1</sup>, Yuki Oiwa<sup>1</sup>, Isamu Sato<sup>1</sup>, Yasutomo Taziri<sup>2</sup>, Toshiro Oniki<sup>2</sup>, Haruaki Matsuura<sup>1</sup>

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Tokyo City University, <sup>2</sup> IHI Corporation

**2K10** 2024年秋の大会

### ケイチタン酸(CST)吸着材の長期通水挙動

Behavior of crystalline silicotitanate (CST) sorbent through long time flow \*加藤 衛也 <sup>1</sup>, 土方 孝敏 <sup>1</sup>, 久保田 将史 <sup>2</sup>, 鈴木 康浩 <sup>2</sup> <sup>1</sup>電中研, <sup>2</sup>東電 HD

福島第一原子力発電所の水処理設備でCs とSr を除去するために用いるCST を充填したカラムの長期通水試験を行い、通水前後のCST をSEM などで分析し、カラム差圧の上昇の要因を調べた。

キーワード:福島第一原子力発電所、吸着材、ケイチタン酸、長期通水、カラム差圧

#### 1. 緒言

福島第一原子力発電所の SARRY-IIなどの水処理設備では、吸着材に CST を用いて Cs と Sr を同時に除去している。用いる吸着材の除去性能の向上により吸着塔の長期運転が可能となったが、破過到達前に吸着塔の差圧が上昇する場合がある。そこで、CST を充填したカラム試験装置を用いて長期通水試験を実施し、カラム出入口の差圧の変化を計測するとともに、通水前後の CST の状態を観察した。

#### 2. 長期通水試験の方法

CST を充填した高さ  $10 \, \mathrm{cm}$ 、内径  $2 \, \mathrm{cm}$  のカラムに、純水あるいは汚染水中の陽イオン濃度を模擬した試験水を、約  $40 \, \mathrm{cm}$ ・ $\mathrm{min}^{-1}$  の線流速で  $50{\sim}60$  日間通水した。通水後の CST をカラムの上部と下部に分けて取出して  $110 \, ^{\circ}\mathrm{C}$ で乾燥した後、ふるいで分級して粒子径の分布を調べた。通水前後の CST を、光学顕微鏡および SEM-EDX で分析し、CST の状態を比較した。

#### 3. 試験結果

純水あるいは模擬試験水を通水した試験におけるカラムの単 位長さ当たりの差圧を通水時間に対して、図1に示す。純水およ び模擬試験水によらず、差圧は上昇した後、一旦低下する傾向が 見られた。さらに通水を継続すると、差圧は再び上昇したが、再 度低下することはなかった。図2に、通水前後のCSTの粒子径 の分布を重量割合で示す。通水後の粒子径の分布は上部と下部で 差がなかった。通水前では 1000 μm 以上の粒子はほとんどない が、通水後では 6~34 wt%の粒子が 1000 μm 以上となり、粒子の 型 凝集(アグロメレーション)が起きたと考えらえる。SEM の観 察では、純水を通水した後の粒子の間隙に CST の微粒子が詰ま って流路を閉塞した様子がみられた。これに加えて、模擬試験水 では、装置配管から溶出した鉄イオンやアクチニド模擬のネオジ ム(Nd) イオンが、それぞれ鉄化合物や Nd 化合物として析出し た様子がみられた。さらに、海水の模擬成分である Ca イオンは 溶存する炭酸イオンと反応して CaCO3 などとして析出した。こ れらの微粒子による間隙の閉塞が差圧上昇の要因と考えられる。

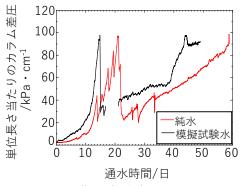


図1 長期通水試験でのカラムの 単位長さ当たりの差圧の変化

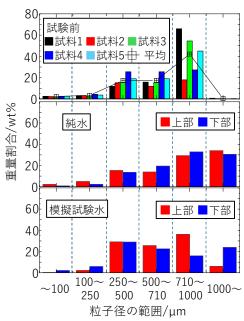


図 2 通水前後の粒子径の分布

<sup>1</sup>CRIEPI., <sup>2</sup>TEPCO HD

<sup>\*</sup>Tetsuya Kato<sup>1</sup>, Takatoshi Hijikata <sup>1</sup>, Masafumi Kubota<sup>2</sup>, and Yasuhiro Suzuki<sup>2</sup>

## ケイチタン酸(CST)吸着材のネオジムの吸着特性

Neodymium adsorption characteristics on crystalline silicotitanate (CST) sorbent

\*土方 孝敏¹, 稲垣 健太¹, 久保田 将史², 鈴木 康浩² ¹電中研, ²東電 HD

福島第一原子力発電所の汚染水は、SARRY などで Cs と Sr を除去しているが、今後、アクチニドイオンの濃度の上昇が予想される。そこで、アクチニド(3 価)の模擬物質としてネオジムのケイチタン酸吸着材の吸着挙動を把握した。

キーワード: 福島第一原子力発電所、アクチニド、ネオジム、吸着材、ケイチタン酸

#### 1. 緒言

福島第一原子力発電所では、ケイチタン酸系吸着材 (CST) を用いて Cs と Sr を同時に除去しているが、今後、アクチニドイオンの上昇が予想される。そこで、SARRY などで用いられている CST のアクチニド (Am などの 3 価) の模擬物質として、ネオジム(Nd)の吸着挙動を把握した。

### 2. 平衡吸着試験

Ca、Mg、K、Naイオンを模擬した模擬汚染水に CsCl、SrCl<sub>2</sub>、NdCl<sub>3</sub>を混合した(Nd、Cs、Sr 濃度:約  $2\sim2000\,\mathrm{ppm}$ )溶液を用いた。試験方法は前報  $^{11}$ と同様な方法を用いた。CST の平衡吸着等温線を求め、汚染水中の  $^{241}$ Am の濃度を  $3.3\times10^{-14}\,\mathrm{mmol\cdot cm^{-3}}$ と想定し、その濃度で等温線から Nd、Cs、Sr の分配係数: $K_d$ =

 $\frac{Nd \cdot Cs \cdot Sr w \# \frac{1}{2}}{Nd \cdot Cs \cdot Sr o$   $\otimes R_d$   $\otimes R_$ 

# 3. カラム試験

試験方法は前報 <sup>1)</sup>と同様なカラム試験方法を用いた。模擬汚染水に Nd、Cs および Sr を約 2 ppm 添加した溶液を内径 2 cm 充填高さ 10 cmに CST を充填したカラムに流速:約 40 cm·min<sup>-1</sup>で流した。Nd、Cs、Sr の破過曲線を図 2 に示す。Bed volume は、通液容量をカラム体積で割ったものと定義した。カラム試験では、Sr、Cs、Nd の順に立ちあがった。Sr は、Cs や Nd より吸着速度の影響を受けて破過曲線が早く立ち上がったと考えられた。また、100~1000 Bed volumeで Nd の相対濃度が変動しているが、初期に

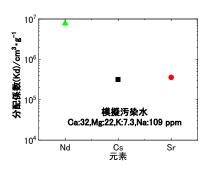


図1 Nd、Cs、Srの分配係数

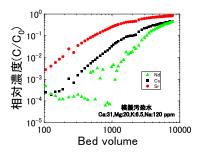


図2 Nd、Sr、Csの破過曲線

Na が多く溶出しており、模擬汚染水より Na 濃度が高くなったことから、カラムの出口水は pH が高くなったと考えられ、 $Nd(OH)_3$  などの沈殿物が生じたと推定された。

#### 参考文献

[1] 土方孝敏他、「ケイチタン酸吸着剤(CST)のセシウムとストロンチウムの吸着特性」,2B15, 日本原子力学会 2019 秋の大会

<sup>\*</sup>Takatoshi Hijikata<sup>1</sup>, Kenta Inagaki<sup>1</sup>, Masafumi Kubota<sup>2</sup>, and Yasuhiro Suzuki<sup>2</sup>

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>CRIEPI., <sup>2</sup>TEPCO HD