

セメント固化による放射性 Cs 吸着フェロシアン化銅の廃棄体化处理

Cement solidification/stabilization of ¹³⁷Cs-adsorbed copper ferrocyanide for final disposal

*市川 恒樹^{1,2}、安河内 隆仁¹、山田 一夫²

¹北海道大学, ²国立環境研究所

放射性 Cs を多量に含む飛灰洗浄液のイオンクロマト除染に使用したフェロシアン化銅を熱分解後セメント固化した際の、水中への Cs 漏出挙動を調べた。部分酸化したフェロシアン化銅はセメント中でカチオン吸着能を持つが、完全酸化したものはカチオン吸着能を失った。しかしながらセメントにカチオン交換体を添加すると水中への漏出は抑制された。

キーワード：フェロシアン化銅、放射性セシウム、セメント固化、カチオン交換体、汚染飛灰

1. 緒言

福島第一原発事故で生じた放射性物質汚染廃棄物を焼却処理して生じた飛灰中には放射性 Cs が濃縮されているが、これを水洗して除染し、その水洗液を Cs 吸着剤にフェロシアン化銅(組成式：KCu_{1.5}Fe(CN)₆、CuFeCN と略記)を用いたイオンクロマトグラフィーで除染すると、最終放射性廃棄物の体積を元の廃棄物の 1/10,000 程度にまで減容化できる。使用済み CuFeCN の簡便な最終廃棄体化法としては、これを熱分解後セメント固化する方法がある。この場合、水に浸漬した固化体からの放射性 Cs 漏出速度が問題となるので、漏出速度に対する CuFeCN 熱分解条件やカチオン交換体添加効果を調べた。

2. 実験と結果

使用済み CuFeCN の組成は K_{0.75}Cs_{0.25}Cu_{1.5}Fe(CN)₆ とした。CuFeCN はシアン化合物なのでこれを空気中で熱分解した。酸化を伴う発熱的な熱分解反応は 200℃付近から始まり約 400℃で完了した。粉末状、およびこれをポリビニルアルコール(PVA)で造粒した ¹³⁷Cs ラベル CuFeCN を 350℃あるいは 400℃で各々3時間、あるいは 400℃で3時間加熱後さらに 500℃で24時間加熱した焼成物 1 に対してポルトランドセメント(OPC) 1 を加え、直径 35mm、厚さ 10mm のペトリ皿を型枠として 40℃で4週間養生固化したものを Cs 漏出測定用試料とした。これを 200mL の脱イオン水を満たした密閉容器に入れ、試料中に残存する Cs の量を γ 線測定により求めた。その結果を図 1 に示す。400℃以下で焼成した試料では、固化体が Cs 吸着能を持つため Cs

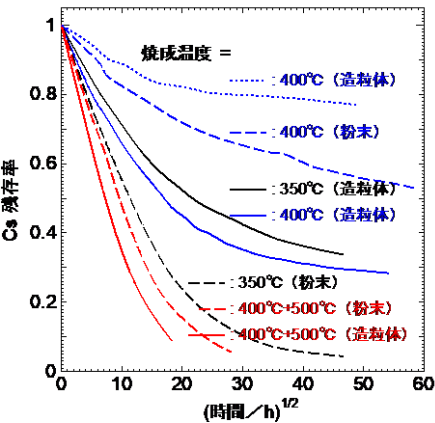


図 1. 焼成 CuFeCN のセメント固化体から水中への Cs 漏出挙動

表 1. 焼成 KCu_{1.5}Fe(CN)₆ の Cs⁺ 吸着容量

造粒剤	焼成条件		容量/(eq/kg)
	温度/℃	時間/h	
無し	350	3	0.48
PVA	350	3	0.29
無し	400	3	0.38
PVA	400	3	0.04
無し	400+500	3+24	0
PVA	400+500	3+24	0

の一部が固化体中に残存するが、残存量と焼成条件の間に明確な関係は無い。400℃で焼成した CuFeCN をさらに 500℃で24時間加熱すると Cs 吸着能は失われた。焼成 CuFeCN がカチオン交換能を有するため Cs 吸着能が出現したと考え、Cs 未吸着 CuFeCN を焼成後 CsCl 溶液に浸漬し、その Cs⁺イオン吸着容量を測定した。その結果を表 1 に示す。400℃以下で焼成したものは、組成式 KCu_{1.5}FeO₃ で与えられるようなイオン交換能を持つ不完全酸化物と交換能を持たない完全酸化物 Cu_{1.5}FeO₃ の混合物となるが、焼成は発熱によって連鎖反応的に進行するので、その混合比は一定しない。これを 500℃で長時間加熱すると完全酸化物だけになり、Cs 吸着能が失われる。

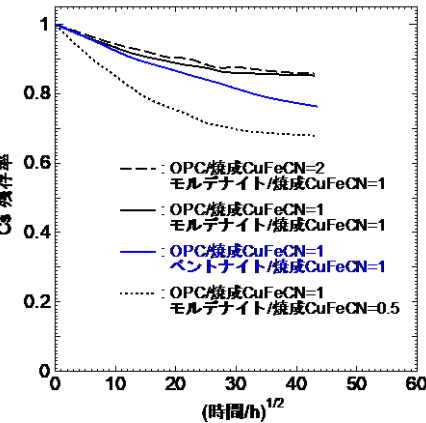


図 2. カチオン交換体を添加した焼成 CuFeCN のセメント固化体から水中への Cs 漏出挙動

鎖反応的に進行するので、その混合比は一定しない。これを 500℃で長時間加熱すると完全酸化物だけになり、Cs 吸着能が失われる。

焼成処理による Cs 漏出速度の変動を避けるため完全酸化した CuFeCN に、Cs 吸着剤としてカチオン交換体のベントナイトあるいはモルデナイトを添加しセメント固化した際の Cs 漏出特性を図 2 に示す。焼成 CuFeCN に等量の交換体を添加すると、漏出が強く抑制されることがわかる。

*Tsuneki Ichikawa^{1,2}, Takahito Yasukochi¹ and Kazuo Yamada²

^{1,2}Hokkaido Univ., ²National Institute for Environmental Studies