

II-98 低レベル放射性廃水処理に関する研究

京都大学工学部 正員 大庭 敏樹

正員 〇北尾 高嶺

低レベル放射性廃水の放射能強度を $10^{-4} \sim 10^{-7} \mu\text{C}/\text{ml}$ と仮定し、 ^{137}Cs - Ba , ^{45}Ca , $^{89,90}\text{Sr}$ - ^{90}Y , ^{91}Y , ^{144}Ce - Pr , ^{106}Ru - Rh , ^{32}P , ^{65}Zn , F , P はじめを含む試水と調整し、従来この種の廃水処理に利用されてきた処理法、1) 硫酸第一鉄、塩化第一鉄、硫酸アルミニウム 30~50 ppm 添加の凝集沈殿、2) 全びく通流量の 100~200 ppm とアルカリによる pH 調節を行った凝集沈殿、3) 1) の手法に石灰 200~300 ppm と炭酸ソーダ 300~500 ppm を加え、炭酸カルシウムの沈殿を生成する凝集沈殿、4) 1) の手法と石灰 200~300 ppm とリン酸ソーダ 200~600 ppm を加え、リン酸カルシウムの沈殿を生成する凝集沈殿、5) 4) にグリーンサントの微粉末を 200 ppm 加えた凝集沈殿、6) 砂ろ過、7) 1) の凝集沈殿と無煙炭ろ過、8) 1) の凝集沈殿と無煙炭ろ過、バーミキュライトによるイオン交換処理法と適用し、硫酸種別の除去率を求めるとともに、実験室プラントで実際に放射化学実験室で生じた $6.6 \times 10^{-3} \mu\text{C}/\text{ml}$ の廃水と処理し、除去効果の比較検討を行った。この結果、水酸化物による凝集沈殿では陽イオン性硫酸種の除去率が低い、中程度の弱アルカリ性でフロイド状を形成しやすい硫酸種は 99% 以上除去されること、前者に由来する硫酸種は炭酸カルシウム、リン酸カルシウムの沈殿によりほぼ沈除去されることも明らかとなり、さらに水中の放射性硫酸種の最大許容増分の 1/10 に放射線量がある前提条件から、最も有効、経済的に低レベル廃水と処理するためには、 ^{90}Sr , ^{129}I , F , P は分離して別処理とし、 $^{126,129,131}\text{I}$ は別系統で陰イオン交換処理するのによいという結論を得た。

以上のごとく、低レベル廃水処理においては、凝集沈殿法が最も有力な手段の一つとしており、既に報告された凝集沈殿、ろ過、イオン交換法に因する一連の放射性廃水処理の研究結果をもとめて設計した、京都大学放射性同位元素総合研究室の廃水処理設備と利用し、装置的研究を行った。処理設備の概要は、中、低レベルメタータンク、第1次貯留槽、急速攪拌槽、薬品注入槽、凝集沈殿槽、急速ろ過槽、第2次貯留槽、バーミキュライト交換槽、第3次貯留槽、二酸化イオン交換装置、第4次貯留槽、緩速式イオン交換装置、最終貯留槽からなり、急速ろ過槽までの処理能力は $1 \text{ M}^3/\text{hr}$ である。なお、実験室から排出される放射性廃水の放射能強度は $1.0^{-3} \mu\text{C}/\text{ml}$ 程度と推定、全体で $10^{-4} \sim 10^{-5}$ の除染係数からなるよう設計した。

実験には主としてろ過槽までの施設を利用し、スラッジグラニツト型の上向き硫酸沈殿槽を改造し、底部に汚泥の塊状分離槽をつけた凝集沈殿槽(内容量 2.4 M^3)と砂ろ過槽を軽く、沈降排水がすばやく通過し、ろ過水は急速ろ過槽に流れて試験を行った。まず装置の水理的特性を把握するため、食塩を投入し、流量とろ過水の塩素イオン濃度を求め、時間的特性を調べた。この結果凝集沈殿槽の緩速攪拌速度が速いため、滞留時間がかなり短縮され、短縮をまじえていることがわかった。

ついで低レベルの放射性廃水処理に利用される凝集沈殿法には、使用薬剤によりいくつかの組合せが考えられるが、最も普通に用いられる硫酸と、硫酸第一鉄とをえらび、硫酸ソーダ、苛性ソーダと併用して pH 調節と行い、鉄をトレーサーとして除去効果と比較検討した。 Fe^{3+} と 10~30 ppm 加え、苛性ソーダ、硫酸ソーダで pH を 6.7~8.0 とした場合、1 M³/H の流速では凝集沈殿槽で平均 95.5% 除去され、ろ過後 99.8%、バーミキュライトによるイオン交換処理後 99.88% の除去率とされた。また Fe^{3+} と 50 ppm 加え、当量の硫酸ソーダと併用し除去率を求めると、凝集沈殿後 88.2%、ろ過後 99.8% の値とえらび、硫酸ソーダの量とをえらび除去効果と調べると、pH 5.5 以下では一部沈殿も生成するがフロコット化に近し、pH 6 以上では分離しやすいフロコットを生成し、過剰の硫酸ソーダを加え pH 8 以上にすれば一部凝縮はフロコットを生成し、凝集効果が悪くなる。凝集沈殿法による Fe^{3+} の除去効果は、pH 以外に滞留時間には上昇流速、攪拌回転数、相対汚流量、水温などによるが、流量とあげ、上昇流速が増加するに従ってストリームの濃度が低下し、水通しに遅くなる結果、キヤリオーバーするフロコットの量が徐々に増加する。ろ過処理をいぼろ過機の運転時間を短縮される以外、除去効果に大差はないが、放射性廃水処理の場合、ろ過機の洗浄排水中に放射性物質が移行するので、逆送して再処理する必要がある。無理難のように少ない洗浄水量で洗浄できるようにする方法を利用する一方、少量の洗浄水量で効果的に洗浄する必要がある。このための表面洗浄、逆洗浄装置を用いて、水酸化鉄を固着したろ過機の洗浄試験と行い、排水中の鉄を定量分析し、滞留時間は変化をせらべ、その減衰曲線から最少の水量を計算した。

次に最終処分を自ら行える、他に委託する施設において、凝集沈殿による処理結果は薬剤よりもおもしろ生成する汚泥の量にかゝるので、汚泥脱水式の沈殿槽で汚泥を有効に利用しはから、汚泥を濃縮し排出するのは勿論、汚泥乾燥機の脱水を容易にするための、沈降、ろ過助剤を使用する方法が考えられる。このための沈殿槽の底部を固定した濃縮部から取出した汚泥に水溶性高分子物質のポリアクリルアミドを添加し、沈降曲線を求め、少量の添加で脱水の前処理として有効であることを認めた。

陽イオン性汚染物質とえば ^{45}Ca , ^{90}Sr , ^{137}Cs はほぼ全廃水放射性物による呈現は除去され難いが、2価アルカリ土類金属の例として Ca^{2+} を加え、硫酸第一鉄と凝集剤とし、硫酸ソーダまたはリン酸ソーダとを、過剰に添加して、硫酸カルシウム、リン酸カルシウムを生成させ、 Ca^{2+} の除去率を求めた結果、 Ca^{2+} が 40~50 ppm の場合、pH 10.3~10.7 で 60~80% の値とされた。沈殿、ろ過した処理水をバーミキュライト層に通せば全体で 99% 以上の除去率がえらわれるが、pH が 10.5 以上ではほぼ無残量のバーミキュライトの成分が一部溶出する傾向が認められる。これらの反応は水酸化鉄の生成反応よりも速いので、沈殿効果とあげるためには攪拌速度をあげ、汚土塊間を流す汚泥を押えるためのポリアクリルアミドの如き凝集沈降助剤を 1~2 ppm 加えるのがよい。しかし 50~70 ppm 以下の2価イオン濃度を下げ、放射性汚染の除去効果を期待して過剰の薬剤を添加する方法は、最終の汚泥処理、処分、放流水の pH 調節を考慮すればよりよく、おもしろバーミキュライトのごとき定価は無残交換体に交換吸着させて最終処分するのがよい。