

大分工業大学 正員 古屋伸芳男
大分工業大学 正員 辻村智隆

1. 緒言

本研究テーマは、オーストラリア原子力学会論文賞(1971年)の受賞テーマであるが、その時期までに実験室的規模での基礎的研究として、フェロシアン金属塩および金属水酸化物沈殿による長寿命FPの共沈、化学沈殿の浮上性についての理論的および実験的検討、フェロシアン金属塩沈殿を用いる ^{137}Cs の共沈浮上除去、水酸化オニウム鉄およびリン酸カルシウム沈殿を用いる ^{144}Ce , ^{106}Ru , ^{95}Zr , ^{90}Sr の共沈浮上除去、廃水処理容量0.8ℓのバッチ式浮上試験機による実際の弱レベル放射性廃水の処理実験、多段浮上法による高塩分中レベル放射性廃水の処理、選択共沈浮上法による核燃料再処理廃水処理の検討ならびに共沈浮上法の実施によって生じる放射性スラッジの性状とその脱水減容処理などの諸点についての段階を終了していた。しかしながら、その後の工業化の過程で、(1) ^{90}Sr が良好な共沈性を示す高pH領域(pH 10.5~11.0)における水酸化オニウム鉄沈殿およびリン酸カルシウム沈殿の浮上除去が不完全であったこと、および(2)共沈浮上法に通じた大型浮上装置の開発が重要な課題として残されていた。今回の研究発表では、その後の技術開発によって、以上2つの課題が解決され、共沈浮上法の工業化を達成したことについて述べ、これをもって、本研究テーマについての最終の報告としたい。

2. 高pH領域における共沈浮上実験とその結果

実験装置には、容量0.8ℓのバッチ式MS型浮選試験機を使用した。模擬廃水としては、水道水にイオン濃度10 ppm相当の非放射性Srと溶解させたものを用いた。浮上試薬には共沈剤として試薬特級塩化オニウム鉄、塩化カルシウムおよびリン酸ナトリウムを用いた。捕収剤としては工業用ナフテン酸ナトリウム液(NAS)と純水を用いて10倍に希釈して用いた。浮上助剤として陽イオン性有機凝集剤FC-80を用いた。また、pH調節剤として、1N水酸化ナトリウム水溶液を用いた。模擬廃水0.8ℓをビーカーに採取し、共沈剤およびpH調節剤を加えて30 mg/ℓ相当の水酸化オニウム鉄沈殿あるいはリン酸カルシウム沈殿を生成させると同時に、廃水のpHを10.5~11.0に調節した。つぎに、捕収剤として工業用ナフテン酸ナトリウム液の10倍濃度の適量を添加した後、1~2 ppm相当のFC-80を加えた。以上の予備処理を終えた廃水を浮上セルに移して浮上処理し、沈殿浮上率とSr除去率を求めた。

Fig. 1は、水酸化オニウム鉄沈殿を浮上分離した場合の沈殿の浮上速度に関する実験結果である。同図曲線(1)から明らかのように、pH 10.5のもとでは、浮上助剤FC-80を使用しない従来の浮上法では、

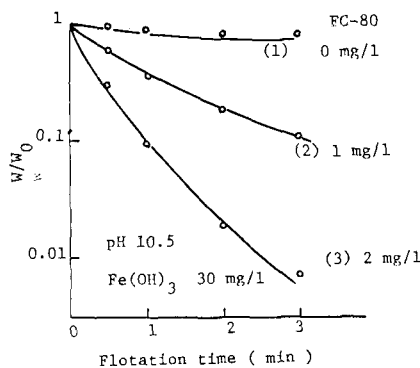


Fig. 1 Floating rate of $\text{Fe}(\text{OH})_3$

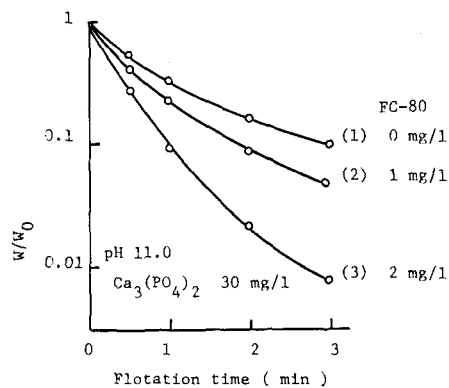


Fig. 2 Floating rate of $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$

浮上処理時間3分後でも、沈殿は、ほとんど浮上せず、浮選機中の残留沈殿量(W)と全沈殿量(W_0)との比(W/W_0)は全く低下しないが、曲線(3)からわかるように、FC-80添加濃度1.5 mg/ℓとすると、急激に気泡に付着するようになり、浮上処理時間3分後には、沈殿の99%以上が浮上除去される。

Fig. 2は、同様な浮上実験をリン酸カルシウム沈殿について試みた結果である。リン酸カルシウム沈殿の場合には曲線(1)から明らかのように、FC-80の添加濃度が0でも90%程度の沈殿率が得られる

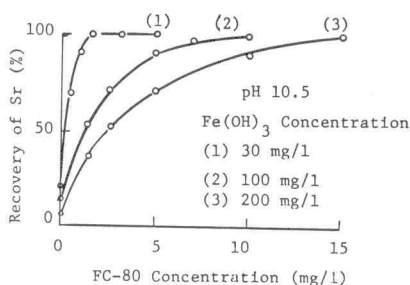


Fig. 3 Effect of FC-80 Concentration on Recovery of $\text{Fe}(\text{OH})_3$

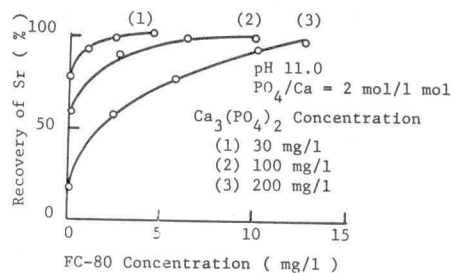


Fig. 4 Effect of FC-80 Concentration on Recovery of $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$

が、FC-80の添加濃度が2mg/lになると、急激に泡に付着し浮上するようになり、沈殿浮上率は99%に達する。Fig. 3は、pH 10.5の下における添加濃度30~200 mg/lの水酸化オ2鉄沈殿によるSrの共沈浮上除去率とFC-80添加濃度との関係をプロットしたものである。水酸化オ2鉄沈殿濃度が大きくなると完全浮上除去率を得るためのFC-80添加濃度は増大することがわかる。また、通常の共沈浮上法での水酸化オ2鉄濃度は、30 mg/l程度であるから、曲線(1)から明らかのように、2mg/l相当のFC-80の使用が最適である。

Fig. 4は、共沈剤添加モル比 $\text{PO}_4/\text{Ca} = 2/1$ の PO_4 添加量過剰のもとでリン酸カルシウム沈殿を生成させ、pH 11.0に調節した後、浮上分離した場合の同様な結果である。リン酸カルシウム生成量の増大と共に、FC-80の必要量も増加することがわかる。曲線(1)から明らかのように、実験時のFC-80の必要添加濃度は2mg/l以下である。

以上の結果から、添加濃度2mg/l相当のFC-80を使用することによって、従来、不完全とされていた高pH領域における水酸化オ2鉄あるいはリン酸カルシウム沈殿によるSrの浮上分離が可能となり、緒言において指通した工業化の際の第1の課題が解決されることがわかる。

3. 連続処理試験とその結果

以上のバッチ試験と同様な試験条件（水酸化オ2鉄あるいはリン酸カルシウム添加濃度30 mg/l、ナフテン酸ナトリウム添加濃度20 mg/l、FC-80 2 mg/l、pH 10.5あるいは11.0、浮上時間3分）で、RN-300-3B型連続浮上処理装置（廃水処理能力1.0 m³/時）を用いて、約300 lの模擬廃水を連続処理を行なった結果、水酸化オ2鉄の場合95.5%のSr除去率が得られた。また、リン酸カルシウムの場合には、99%以上の、きわめて良好なSr除去率が得られた。

4. 大型浮上装置の開発

RN-1200-12B型（廃水処理能力400 m³/時）およびその改良型を開発した。Photo. 1は、完成したRN-1200-12Bの同型機を示したものである。また、さらに大型でRN-1800型も開発できることを確認した。このRN-1800型では、廃水処理能力700~900 m³/時が期待できる。

生成するスラッジは、廃水1 m³当り200~300 gであるが、ナフテン酸ナトリウムの吸着によって疎水性となるため、きわめて脱水性が良好で、全自動フィルタープレスで処理し、ケーキとすることができた。

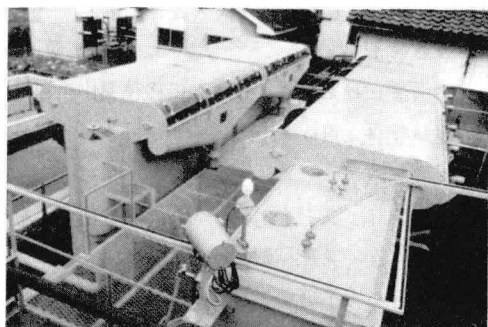


photo. 1 完成したRN-1200-12B型浮上装置（廃水処理能力400 m³/時）