

B-64 最終処分場の浸出液中の放射性物質除去に関する基礎研究

○石川 奈緒^{1*}・伊藤 歩²・海田 輝之¹

¹岩手大学工学部社会環境工学科 (〒020-8551 岩手県盛岡市上田4-3-5)

²岩手大学大学院工学研究科フロンティア材料機能工学専攻 (〒020-8551 岩手県盛岡市上田4-3-5)

* E-mail: naoki@iwate-u.ac.jp

1. はじめに

2011年3月11日の東北地方太平洋沖地震に伴い発生した福島第一原子力発電所の事故により、環境中に¹³⁴Cs、¹³⁷Cs、¹³¹Iなどの放射性物質が環境中へ拡散した^{1,2)}。放射性物質の一部は生活ごみや下水汚泥の焼却灰から検出されており、それらの焼却灰は放射性物質を含む廃棄物として国により定められた方法で処分される。処分方法は放射性Cs濃度のレベルに応じて3段階に区分され、最も濃度の低い8,000 Bq/kg以下の焼却灰においては既存の管理型最終処分場において埋立処分することが認められている³⁾。現在その基準に従い処分が進められている。

管理型処分場に設けられている浸出水処理施設は、複数の処理過程を経て、浸出水中の有機物質、アルカリ物質、重金属など主に排水基準に係る物質を除去することを目的としている。しかしながら、既存の最終処分場における浸出水処理は放射性物質の除去を想定しておらず、放射性物質が浸出水中に溶出した場合、既存の処理設備の処理可能性を明らかにする必要がある。

本研究では、既存の浸出水処理過程で放射性物質が除去できる可能性について評価するため、浸出水処理施設でモニタリング調査を行った。対象とした元素は、原子力事故に伴って環境中から検出された放射性核種、およ

び環境に放出される可能性がある放射性核種を持つ6元素 (Co, Cs, Mn, Ni, Se, Sr) である。これらの安定同位体を分析することで、上記にある放射性核種の各処理過程での除去効率について推測した。

2. 実験方法

(1) 試料採取

岩手県内のA最終処分場で試料採取を行った。本最終処分場は二区画に分かれており、区画IIは既に閉鎖し、区画IIは現在半分ほどが使用済みである。浸出水処理施設は区画Iと区画IIの浸出水を合わせて1つの処理施設で処理している。

浸出水処理施設の処理過程と試料採取箇所を図-1に示す。試料として、浸出液(RL)、炭酸ナトリウムを用いたアルカリ除去処理後(AR)、曝気処理後(BT)、膜処理後(MF)、活性炭処理後(AC)、キレート樹脂とゼオライトによる吸着処理を経た放流水(EW)を採取した。各処理過程前後にはpH調整が行われている。試料採取は2012年7月、9月、12月に行った。7月にACのみ採取していない他は、全ての地点で試料を採取した。また、12月には、アルカリ除去処理により発生する沈殿物も採取した。

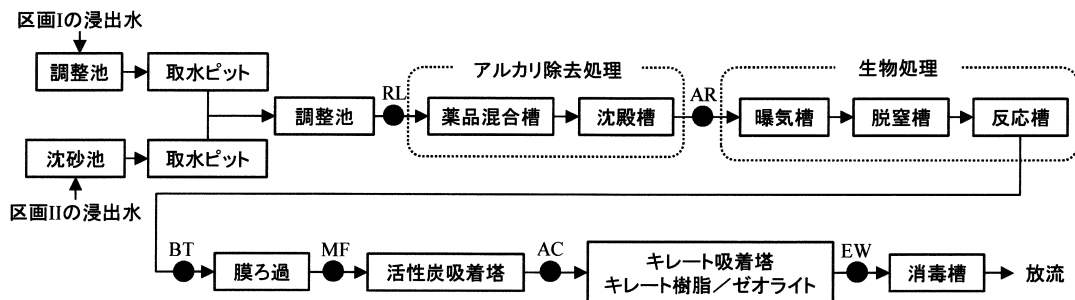


図-1 浸出水処理過程と試料採取地点 (●)

(2) 分析方法

理化学特性として、試料のpHをpHメーター(TOADKK, HM-25R)、懸濁物質量(SS)を下水試験方法⁴⁾に従い測定した。加えて、全有機体炭素(TOC)をTOC計(島津, TOC-V)を用いて測定した。

各試料の元素分析は3連で行った。まず、下水試験方法の硝酸と塩酸による煮沸溶出法⁴⁾を基に前処理を行った。試料100 mLに硝酸1 mLと塩酸0.5 mLを加え、約120℃で加熱した。液量を30 mL程度まで濃縮し、100 mLのメスラスコに定容した後、0.45 μmのメンブレンフィルターで試料をろ過した。ろ液は適当な倍率で希釈し、誘導結合プラズマ質量分析装置(Thermo, iCAP Qs)および誘導結合プラズマ発光分析装置(Shimadzu, ICPE-9000)を用いて元素濃度を測定した。測定した元素は研究対象とする6元素(Co, Cs, Mn, Ni, Se, Sr)の他、それらの同族元素および浸出水の主要な金属元素とした。

12月に採取した沈殿物の分析については、下水試験方法⁴⁾に基づき、沈殿物10 gに硝酸10 mLと塩酸10 mLを加えた後、上記と同様に加熱濃縮、定容、ろ過を行った後、ろ液中の元素濃度を測定した。

3. 結果と考察

(1) 理化学特性

図2～図4に、各処理過程でのpH, SS, TOCの変化を示す。プロットは採取した3回分の平均値、エラーバーはその標準偏差を示している。浸出水のpHは7.2 - 7.4と弱アルカリ性であった。ARではNa₂CO₃を添加しているためpHが上昇しているが、その他の処理ではpH 6.8 - 7.7と変動が少なかった。SSは浸出水で変動幅が大きくなっているが、これは7月と9月の試料採取の間で区画Iの取水ピットに沈殿していた汚泥を区画IIの取水ピットに移動したため、濁度が一時的に高くなったためである。浸出水のSSはARによって平均94.0%が除去されており、放流時には平均99.4%まで除去された。また、TOCはMFで減少していることが示された。

(2) 各処理過程での元素の除去効果

表-1に、各処理過程での元素濃度を示す。Co, Mn, Ni, Srは浸出水中に存在する85%以上がARで除去されていた。特にMnはARで99.4%と高い除去率を示した。一方、SeはARで53.1%が除去され、最終的な放流水では浸出水中の67.5%まで除去が進んでいた。

最も除去されにくい元素はCsであり、ARでは13.6%程度しか除去できず、他の処理過程を経てもほとんど濃度は変化しなかった。特に、ACとEWの間には、Cs吸着に有効なゼオライトを入れているものの、その効果がほとんど見られなかった。これは、Csの同族元素であるKとNaがCsと比較して多量に含まれていることに起因すると思われる。つまり、AC試料中では、Cs濃度が2.24

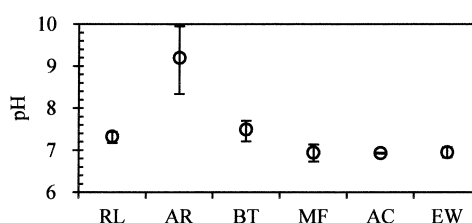


図-2 各処理過程でのpHの変化

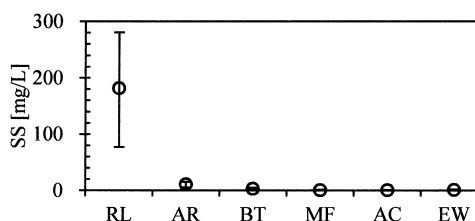


図-3 各処理過程でのSSの変化

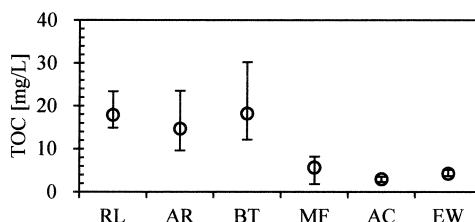


図-4 各処理過程でのTOCの変化

表-1 各処理過程での元素濃度

	Co [μg/L]	Cs [μg/L]	Mn [μg/L]	Ni [μg/L]	Se [μg/L]	Sr [μg/L]
RL	15.07 ± 4.63	2.78 ± 0.56	2610.6 ± 746.8	82.4 ± 5.9	1.79 ± 0.72	4113 ± 1788
AR	1.92 ± 0.75	2.40 ± 0.33	17.0 ± 12.7	11.3 ± 7.5	0.84 ± 0.20	292 ± 382
BT	1.81 ± 0.66	2.44 ± 0.30	5.2 ± 4.6	14.1 ± 7.5	0.84 ± 0.26	358 ± 271
MF	1.44 ± 0.35	2.50 ± 0.36	3.4 ± 2.8	10.9 ± 5.1	0.63 ± 0.19	356 ± 239
AC	1.46 ± 0.05	2.24 ± 0.15	1.7 ± 0.1	14.9 ± 7.6	0.65 ± 0.12	332 ± 326
EW	1.26 ± 0.30	2.51 ± 0.20	3.7 ± 4.1	12.4 ± 7.3	0.58 ± 0.21	388 ± 249

μg/Lであるのに対し、K濃度は343.5 mg/L、Na濃度は2.2 g/Lであり（表-2）、これらの同族元素がゼオライトへのCsの吸着を妨げていると考えられる。

以上のことから、浸出水中に含まれる本研究対象元素の除去に関して、図-1に示されている処理過程の中ではアルカリ除去処理が最も有効な除去方法であり、特に金属元素およびアルカリ土類金属においてその除去効果が高いことが示された。

(3) ARで生成される沈殿物中の元素の分配

表-3に、ARで採取した沈殿物中の元素濃度を示す。Mnの濃度が比較的高く、SeとCsが最も低い。この結果は、ARでの元素の除去率と対応している。

アルカリ除去処理での各元素の沈殿特性を見るため、ARでの沈殿物—処理水分分配係数(K_d)を次式より求めた。

表-2 各処理過程での主要元素濃度

	Ca [mg/L]	K [mg/L]	Na [g/L]
RL	647 ± 479	423 ± 172	1.5 ± 0.5
AR	32 ± 41	401 ± 129	2.2 ± 0.3
BT	28 ± 29	408 ± 132	2.1 ± 0.4
MF	26 ± 24	412 ± 137	2.1 ± 0.4
AC	36 ± 17	343 ± 70	2.2 ± 0.4
EW	26 ± 22	419 ± 127	2.1 ± 0.3

表-3 アルカリ除去処理で生じた沈殿物中の元素濃度

	沈殿物中元素濃度 [μg/kg-dry]	
Co	4.0×10^3	$\pm 3.1 \times 10^2$
Cs	1.8×10^2	$\pm 1.1 \times 10^1$
Mn	6.2×10^5	$\pm 1.0 \times 10^5$
Ni	2.3×10^4	$\pm 1.4 \times 10^3$
Se	1.8×10^2	$\pm 9.2 \times 10^0$
Sr	1.1×10^6	$\pm 7.4 \times 10^1$

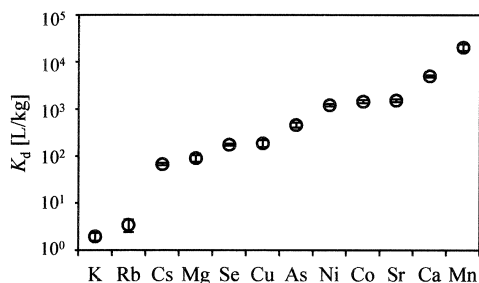
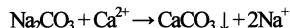


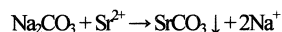
図-5 アルカリ除去処理で生成された沈殿物の各元素における K_d 値

$$K_d \text{ [L/kg]} = \frac{\text{沈殿物中元素濃度(固相) [mg/kg]}}{\text{AR試料中元素濃度(液相) [mg/L]}}$$

図-5に、求めた K_d 値を数値順に示した。CaとSrの K_d 値は 10^3 L/kgオーダーと高かった。アルカリ除去処理では、浸出水中に Na_2CO_3 を注入することによって以下の化学反応が生じる。



RLからARでのNa濃度の上昇とCa濃度の減少（表-2）は、この反応の結果に起因すると考えられる。Caと同族元素であるSrも、以下のような同様の化学反応により沈殿すると考えられる。



最も K_d 値が高い元素はMnであり、 2.1×10^4 L/kgであった。浸出水のSS成分は茶色を呈しており、Mnは浸出水中で酸化マンガン(Mn_2O_3)として存在し、それらが上記CaやSrの反応に応じた共沈により沈殿すると考えられる。比較的 K_d 値が高いCo、Niのような金属元素も、Mnと同様に共沈により沈殿している可能性がある。

一方でK、Rb、Csのアルカリ金属元素は K_d 値が小さかった。これらの元素はアルカリ除去時の共沈等への反応性が低く、沈殿しにくいことが示唆された。したがって、Csに関しては既存の処理過程では十分な除去が期待できないため、新たな処理プロセスを導入する必要がある。

4. まとめ

本研究では、最終処分場において、既存の浸出水処理設備で原子力事故由来の放射性核種を除去できる可能性をその安定同位体を分析することにより検討した。その結果、Co、Mn、Ni、Srについては、アルカリ除去処理によって浸出水中の85%以上を除去することができたことから、アルカリ除去処理が有効であることを示した。一方、Csは、最も除去率が高いアルカリ除去処理であっても13.6%しか除去されなかった。今後は、Csの除去処理について新しい処理の導入を検討する必要がある。

参考文献

- 1) 農林水産省：農地土壌の放射性物質濃度分布マップ関連調査研究報告書（第3編），2012。
- 2) 文部科学省：文部科学省によるプルトニウム、ストロンチウムの核種分析の結果について，2012。
- 3) 環境省：一般廃棄物焼却施設における焼却灰の測定及び当面の取扱いについて，2012。
- 4) 日本下水道協会：下水試験方法 上巻，日本下水道協会，2012。

謝辞

本研究はJSPS 科研費 12014030 の助成を受けたものです。