

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2015-231610

(P2015-231610A)

(43) 公開日 平成27年12月24日 (2015. 12. 24)

(51) Int. Cl.			F I			テーマコード (参考)	
CO2F	1/00	(2006.01)	CO2F	1/00	Q	4G066	
G21F	9/16	(2006.01)	G21F	9/16	511B		
G21F	9/12	(2006.01)	G21F	9/12	501F		
BO1J	20/18	(2006.01)	G21F	9/12	501D		
BO1J	20/06	(2006.01)	G21F	9/12	501G		

審査請求 有 請求項の数 5 O L (全 13 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2014-119796 (P2014-119796)
 (22) 出願日 平成26年6月10日 (2014. 6. 10)
 (11) 特許番号 特許第5669120号 (P5669120)
 (45) 特許公報発行日 平成27年2月12日 (2015. 2. 12)

(71) 出願人 304020177
 国立大学法人山口大学
 山口県山口市吉田1677-1
 (74) 代理人 110001601
 特許業務法人英和特許事務所
 (72) 発明者 李 柱国
 山口県宇部市常盤台2丁目16-1 国立
 大学法人山口大学工学部内
 (72) 発明者 池田 攻
 山口県宇部市東梶返1丁目5-15-2
 Fターム(参考) 4G066 AA61B AA63B CA12 CA46 DA08

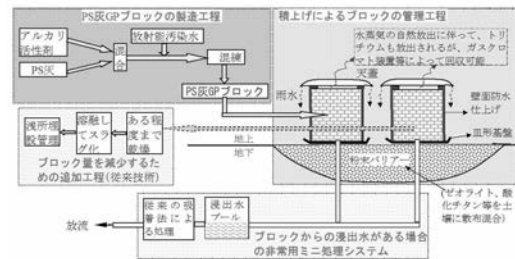
(54) 【発明の名称】 汚染水の処理方法

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】放射能汚染水の処理に適用可能な新たな汚染水の処理方法を提供する。

【解決手段】製紙スラッジ焼却灰と、アルカリ活性剤と、放射能汚染水とを混合して、ジオポリマー固化体とする汚染水の処理方法。前記アルカリ活性剤が、ケイ酸ナトリウム及び水酸化ナトリウムを含み、製紙スラッジ焼却灰にゼオライト、酸化チタン又はベントナイトから選ばれる吸着改質剤を添加してジオポリマー固化体とする汚染水の処理方法。前記汚染水が放射能汚染水、又は、重金属汚染水である汚染水の処理方法。

【選択図】 図3



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

製紙スラッジ焼却灰と、アルカリ活性剤と、汚染水とを混合して、ジオポリマー固化体とする汚染水の処理方法。

【請求項 2】

前記アルカリ活性剤が、ケイ酸ナトリウム及び水酸化ナトリウムを含む、請求項 1 に記載の汚染水の処理方法。

【請求項 3】

前記汚染水が放射能汚染水である、請求項 1 又は 2 に記載の汚染水の処理方法。

【請求項 4】

前記汚染水が重金属汚染水である、請求項 1 又は 2 に記載の汚染水の処理方法。

【請求項 5】

製紙スラッジ焼却灰にゼオライト、酸化チタン又はベントナイトから選ばれる吸着改質剤を添加してジオポリマー固化体とする、請求項 1 又は 2 に記載の汚染水の処理方法。

【発明の詳細な説明】**【技術分野】****【0001】**

本発明は、放射能汚染水等の汚染水の処理方法に関する。

【背景技術】**【0002】**

2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震により、福島第一原子力発電所が甚大な被害を受けた結果、大量の放射能汚染水が発生し、その処理が大きな課題となっている。この放射能汚染水に含まれる主な放射性核種は、セシウム (^{137}Cs)、ストロンチウム (^{85}Sr) 及びトリチウムである。

【0003】

現在、この放射能汚染水の処理は、前処理、中間処理及び吸着処理を含む、いわゆる吸着法によって実施されている。しかし、吸着法による処理システムは設備構成が複雑であり、設備稼働と維持管理に多額の費用を要する。更に、吸着法では、放射能汚染水の処理にゼオライトや活性炭などの吸着材を使用するため、高レベルに汚染された使用後の吸着材の廃棄処理という困難な問題が新たに生じる。

【0004】

一方、特許文献 1 には、セシウム含有廃棄物の処理方法として、アルミノケイ酸塩原料、及びアルカリ活性剤を含む溶液に、セシウム含有廃棄物を添加する工程、及び前記溶液をゲル化させる工程を含む、処理方法が提案されている。すなわち、特許文献 1 の方法は、ジオポリマーを用いてセシウム含有廃棄物を固化してセシウム含有廃棄物中の Cs を不溶化させようとするものである。

【0005】

しかし、特許文献 1 の方法は、主としてセシウムが付着した瓦礫を焼却して生じる飛灰、すなわち粉状物を処理するもので、セシウムの固定率が比較的 low、かつ水分を多く取り込めないため、放射能汚染水の処理には適用できない。

【先行技術文献】**【特許文献】****【0006】**

【特許文献 1】特開 2014 - 32031 号公報

【発明の概要】**【発明が解決しようとする課題】****【0007】**

本発明が解決しようとする課題は、放射能汚染水の処理に適用可能な、従来の吸着法に替わる新たな汚染水の処理方法を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

10

20

30

40

50

【 0 0 0 8 】

上記課題の解決にあたり、本発明者らは、汚染水をジオポリマー化することに着目した。そして、汚染水のジオポリマー化にあたり、製紙スラッジ焼却灰を活性フィラーとすることが適当であることを初めて知見し、本発明を完成するに至った。

【 0 0 0 9 】

すなわち、本発明の汚染水の処理方法は、製紙スラッジ焼却灰と、アルカリ活性剤と、汚染水とを混合して、ジオポリマー固化体とすることを特徴とするものである。

【 発明の効果 】

【 0 0 1 0 】

本発明によれば、放射能汚染水等の汚染水をジオポリマー固化体とすることで、汚染水に含まれる放射性核種等の汚染物質をジオポリマー固化体内に固定して閉じ込めることができる。すなわち本発明によれば、汚染水そのものをジオポリマー化して処理することができる。

10

【 0 0 1 1 】

また、本発明によれば、製紙スラッジ焼却灰と、アルカリ活性剤と、汚染水とを混合するという簡単な工程で汚染水の処理を行うことができるので、従来の吸着法に比べ簡単な設備構成で汚染水の処理を行うことができ、また吸着材の廃棄処理という問題も発生しない。したがって、従来の吸着法に比べ、低コストで効率の高い汚染水の処理を実現できる。

【 図面の簡単な説明 】

20

【 0 0 1 2 】

【 図 1 】 $\text{CaO} - \text{SiO}_2 - \text{Al}_2\text{O}_3$ 三成分系における製紙スラッジ焼却灰 (P S 灰) のプロットを示す。

【 図 2 】 製紙スラッジ焼却灰 (P S 灰) の S E M 写真を示す。

【 図 3 】 本発明を適用した放射能汚染水の処理フローの一例を示す。

【 発明を実施するための形態 】

【 0 0 1 3 】

本発明の汚染水の処理方法は、基本的にはジオポリマー技術を応用したものである。ジオポリマー技術自体は公知であり、可溶性のケイ素及びアルミニウムを含む活性フィラーと、これを活性化させるアルカリ活性剤を含むアルカリ溶液とを混合し縮重合反応させることで、ジオポリマー固化体を得る技術である。

30

【 0 0 1 4 】

従来、活性フィラーとしては、メタカオリンを筆頭に、フライアッシュ、高炉スラグ、下水汚泥溶融スラグ等が知られているが、本発明では製紙スラッジ焼却灰を活性フィラーとして用いる。製紙スラッジ焼却灰とは、パルプ製造工程、紙製造工程、古紙処理工程等から発生する製紙スラッジ (ペーパースラッジ) を焼却処理した際に発生する焼却灰であり、従来、製紙スラッジ焼却灰をジオポリマーの活性フィラーとして用いることは知られていなかった。

【 0 0 1 5 】

詳細は後述するが、本発明者らが製紙スラッジ焼却灰 (以下「 P S 灰」という。) の性状を調査したところ、 P S 灰は SiO_2 と Al_2O_3 を含み、ジオポリマーの活性フィラーとして利用可能であることがわかった。更に、 P S 灰は巣状多孔構造を有し、吸水性が高いため、 P S 灰を活性フィラーとしてジオポリマー固化体を作製するには、従来一般的な活性フィラーを用いる場合に比べ多量の液体が必要であることもわかった。すなわち、従来一般的な活性フィラーを用いた場合の液固比 (アルカリ溶液の質量 / 活性フィラーの質量) は高々 0 . 5 程度であるところ、 P S 灰を活性フィラーとした場合、液固比は 1 . 0 ~ 1 . 2 程度が適正であることがわかった。

40

【 0 0 1 6 】

本発明者らは、 P S 灰を活性フィラーとした場合、液固比を高くする必要があることに着目し、汚染水を溶媒とするアルカリ溶液を大量に混合することにより汚染水をジオポリ

50

マー化して処理するという発想を得、本発明に想到したものである。言い換えれば、本発明は、P S 灰の吸水特性と、ジオポリマー固化体の金属イオン、放射性核種等の汚染物質を固定できるという特性を活かして、汚染水の安価・簡便な処理方法を提供するものである。

【 0 0 1 7 】

このように本発明は、P S 灰を活性フィラーとして用いることを特徴の一つとするが、P S 灰を活性フィラーとすることによる吸水特性を消失させない範囲で、他の活性フィラーを併用することは可能である。また、放射性核種等の汚染物質を吸着できる吸着改質剤をP S 灰と併用しても良い。前記吸着改質剤としては、例えばゼオライト、酸化チタン、ベントナイト等を併用することが好ましい。この併用によって、P S 灰ジオポリマー固化体の放射性核種等の吸着性を更に改善できる。

10

【 0 0 1 8 】

一方、アルカリ溶液中のアルカリ活性剤は、活性フィラーから溶出したケイ素成分、及び金属成分（主としてアルミニウム）の重合を促進させる成分である。アルカリ活性剤としては、水酸化カリウム、水酸化ナトリウム、ケイ酸ナトリウム又はケイ酸カリウムが挙げられ、中でも、より安価なケイ酸ナトリウム及び水酸化ナトリウムを用いることが好ましい。典型的には、汚染水を溶媒として粉末乃至粒状のケイ酸ナトリウム及び苛性ソーダを所定の割合で混合してアルカリ溶液とする。

【 0 0 1 9 】

そして、本発明では上述のとおり、P S 灰と、アルカリ活性剤と、汚染水とを混合して、ジオポリマー固化体とすることで、当該汚染水を処理する。このとき、液固比は1.0 ~ 1.2程度とすることが好ましい。

20

【 0 0 2 0 】

本発明が主に処理対象とする汚染水は、放射性核種を含む放射能汚染水、典型的には福島第一原子力発電所で発生しているセシウム (^{137}Cs 、 ^{134}Cs) 及びストロンチウム (^{90}Sr) 等を含む放射能汚染水であるが、一般の原子力廃棄物処理で排出される低レベル汚染水の処理にも適用できる。ただし、本発明の適用範囲は放射能汚染水には限定されない。ジオポリマー固化体は、放射性核種のほかに重金属イオン等の汚染物質を固定できるという特性を有しているので、メッキ廃液や鉱山廃液等の重金属イオンを含む汚染水の処理にも適用可能である。また、水以外の汚染灰等の固化処理にも適用できる。

30

【 実施例 】**【 0 0 2 1 】**

2箇所の製紙工場からP S 灰のサンプル（それぞれ「O T o 灰」及び「O T s 灰」という。）を採取して、その化学組成、密度、ブレン比表面積及び材料構造の特徴を評価した。

【 0 0 2 2 】

次に、P S 灰とアルカリ活性剤と汚染水の三者を混合することを想定してジオポリマー固化体（以下「P S 灰ジオポリマー」という。）を作製した。型枠寸法は2 x 2 x 8 c m の3個取である。各例におけるP S 灰ジオポリマーの配合を表1に示す。

【 0 0 2 3 】

40

【表 1】

配合の記号		o-0	o-1	s-0	s-1
構成材料	PS 灰	OTo		OTs	
	アルカリ溶液*	0 号液	1 号液	0 号液	1 号液
水 (%)		42.0	41.4	39.4	38.9
アルカリ活性剤 (%)		12.5	13.1	11.8	12.3
小計 (%)		54.5	54.5	51.2	51.2
PS 灰 (%)		45.5	45.5	48.8	48.8
合計 (%、質量百分率)		100	100	100	100
液固比**		1.20	1.20	1.05	1.05
対液活性剤濃度*** (%)		23	24	23	24

10

注：* アルカリ溶液＝水（汚染水）＋アルカリ活性剤

** 模擬放射性核種質量は液固比に含まれない。（詳細は本文参照）。

*** 対液活性剤濃度＝アルカリ活性剤／アルカリ溶液×100

【0024】

アルカリ溶液としては、0号液及び1号液の2種類を用いた。0号液とは、1号水ガラス水溶液（比重1.27、濃度 $\text{Na}_2\text{O} \cdot 2\text{SiO}_2$ として24%）と苛性ソーダ水溶液（比重1.33、濃度32%、モル濃度10M）を3：1の体積比で混合したものである。1号液とは、上記1号水ガラス水溶液のみからなるものである。なお、これらのアルカリ溶液の溶媒は、実際には汚染水とする。

20

【0025】

ジオポリマー固化体（PS灰ジオポリマー）の放射性核種固定率を試験するために、非放射性のストロンチウム（Sr）とセシウム（Cs）の硝酸塩粉末をPS灰100質量部に対してそれぞれ外割で1質量部混合し、表1に示した液固比で上記の0号液及び1号液をそれぞれ加え、十分混練した後に型枠に流し込んだ。このやり方に従えば、液固比が1より大きくなるにつれて、対汚染水の模擬核種濃度は少しずつ低下するが、実汚染水の再現には優に十分過ぎる量であり、模擬核種固定率の計算を単純に行うことができる利点がある。この添加量を原子換算すると、 $\text{Sr} = 0.4140\%$ 、 $\text{Cs} = 0.6819\%$ に相当する。（注：福島第一原発の事故で想定される汚染水の最高放射線量は 10^9Bq のオーダーである。本実施例では 10^{12}Bq オーダーに相当する模擬核種を混合した。）

30

【0026】

本実施例では、OTo灰を用いた例では、Sr、Csを単独で添加し、OTs灰を用いた例では、Sr及びCsを同時に添加した。

【0027】

なお、実操業においては、放射性核種で汚染された汚染水を用いるわけであるから、アルカリ溶液として、前もって上記のような0号液及び1号液を調製して用いると反応沈殿を生ずる恐れがある。それを避けるために、0号液及び1号液に使用するアルカリ活性剤は粉末あるいはペレット（粒状体）の形態で所定量加えることが好ましい。また、アルカリ溶液としては、総合的に0号液の組成がより好ましいが、これに限定されるものではない。

40

【0028】

作製した曲げ試験体を飽和湿度の大気中に20の室温に保持し、一晚経過してから脱型し、その後、材齢28日まで養生を続けた。28日材齢の密度と曲げ強度をそれぞれ測定し、各3本の供試体の平均値を用いて密度と曲げ強度を評価した。

【0029】

また、曲げ試験後の供試体を更に14日間、常温の大気中に放置し養生した。その後、4mmアンダーに粉碎して12.5gの粉粒体を採取し、酸性雨を想定してpH4.01の液を使い、液固比が10の条件で6時間振盪し、ICP-AESによってストロンチウ

50

ムとセシウムの溶出量を評価した。

【 0 0 3 0 】

以下、評価結果を説明する。

【 0 0 3 1 】

(1) P S 灰の物理・化学特性

2 箇所の製紙工場で発生した P S 灰 (O T o 灰及び O T s 灰) の密度、比表面積及び化学組成を表 2 に示す。

【 0 0 3 2 】

【表 2】

PS 灰	密度 (g/cm ³)	比表面積 (cm ² /g)	化学組成 (mass%)											
			SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	MnO	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅	SO ₃	その他*
OTo 灰	2.46	4340	12.04	0.90	33.62	1.55	0.03	37.52	1.42	0.24	0.84	4.73	6.15	0.96(0.03)
OTs 灰	2.29	4660	21.22	1.38	28.92	2.18	0.03	31.88	2.93	0.54	1.01	2.34	6.06	1.51(0.04)

注：* 微量元素の総量：ZnO, CuO, BaO, SrO, NiO, PbO, ZrO₂, CeO₂, Cr₂O₃, Bi₂O₃, Cl 等、() 内の数字は SrO の量で、Cs₂O は未検出。

【 0 0 3 3 】

P S 灰は、密度と粉末度 (プレーン比表面積) が JISII 種フライアッシュと同程度であり、主な成分が S i O₂ , A l₂ O₃ 及び C a O である。すなわち、P S 灰は、ジオポリマー固化体の作製に必須の活性成分 S i O₂ , A l₂ O₃ を有するため、活性フィラーとして使うことができる。P S 灰の主成分を従来一般的に知られている活性フィラーと対比して、C a O - S i O₂ - A l₂ O₃ 三成分系の三角座標で示すと図 1 のようになる。

【 0 0 3 4 】

P S 灰を活性フィラーとしてジオポリマー固化体を作製する場合、一般的な活性フィラーを用いるのに比べ、液固比を高くする必要があった (表 1 参照)。すなわち、P S 灰ジオポリマーを作製するには、従来に比べ多くの液体が必要であった。このメカニズムを解明するために、S E M (走査型電子顕微鏡) によって P S 灰の構造を観察した。P S 灰の S E M 写真を図 2 に示す。P S 灰は巣状多孔構造を有する。この巣状多孔構造のため P S 灰が高い吸水性を示し、結果として、P S 灰ジオポリマーの作製に多くの液体が必要になると推測される。

【 0 0 3 5 】

(2) P S 灰ジオポリマーの力学性能及び放射性核種の添加の影響

表 1 に示した各配合の P S 灰ジオポリマーの 2 8 日材齢における力学性能、及びストロンチウム (S r) とセシウム (C s) の添加有無の影響を表 3 に示す。

【 0 0 3 6 】

【表 3】

配合の記号と 模擬核種の添加有無	曲げ強度 (MPa)	嵩密度 (g/cm ³)	
		28 日材齢供試体	風乾粉粒体
o-0 (模擬核種を無添加)	0.91	1.46	0.97
o-0 (Sr(NO ₃) ₂ , 1% 添加)	1.00	1.47	0.95
o-0 (CsNO ₃ , 1% 添加)	0.85	1.46	1.07
o-1 (模擬核種を無添加)	1.83	1.58	1.11
o-1 (Sr(NO ₃) ₂ , 1% 添加)	1.72	1.58	1.09
o-1 (CsNO ₃ , 1% 添加)	1.78	1.61	1.22
s-0 (模擬核種を無添加)	1.23	1.49	1.08
s-0 (Sr(NO ₃) ₂ , CsNO ₃ 各 1% 添加)	0.91	1.50	1.14
s-1 (模擬核種を無添加)	0.92	1.59	1.11
s-1 (Sr(NO ₃) ₂ , CsNO ₃ 各 1% 添加)	0.67	1.62	1.12

【 0 0 3 7 】

アルカリ溶液として1号液を用いた場合、0号液を用いた場合に比べ強度と嵩密度は高いが、可使時間が約3分であった。可使時間が短いと、成型が難しくなる。ただし、PS灰との混練と成型の作業を機械的に連続して行えるようにすれば、約3分という可使時間は問題とはならない。

【0038】

一方、アルカリ溶液として0号液を用いた場合、可使時間は約15分で、非連続的な作業の場合でも成型は問題なく行える。曲げ強度は1MPa弱（推定圧縮強度は5MPa弱）と、1号液を用いた場合に比べ低下しているが、本発明におけるPS灰ジオポリマーの用途は構造用ではなく汚染水の処理用であるから、汚染水を閉じ込めて固化している状態であればよく、高い強度は必要ではない。また、この0号液を用いた場合のPS灰ジオポリマーの強度は、通常の気泡コンクリート（ALC）と同程度である。PS灰ジオポリマーの密度を 1.6 g/cm^3 とした試算によると、PS灰ジオポリマーのブロックを300mまで積み上げても、自重で最下層のブロックが壊れることはない。

10

【0039】

また、ストロンチウム（Sr）とセシウム（Cs）の硝酸塩を添加した場合の影響であるが、無添加の場合に比べ、セシウムを添加した場合にやや強度が低下する傾向が認められたが、力学性能を損なう程のものではない。また、実際の汚染水濃度は本模擬実験の濃度より遥かに低いので問題にならない。

【0040】

(3) PS灰ジオポリマーから放射性核種の溶出

20

ストロンチウムとセシウムの溶出試験結果を表4に示す。

【0041】

【 表 4 】

配合の記号と 添加した核種	PS 灰 GP 粉粒体 中の PS 灰量(%)	PS 灰 GP 粉粒 体(12.5g)中の PS 灰量(g)	PS 灰 GP 粉粒体(12.5g) 中模擬核種添加量(mg)		溶出量(ppb) Sr ²⁺ (421nm), Cs ⁺ (459nm)	溶出量(対 12.5 g)		溶出量率 (ppm)	固定率 (%)
			硝酸塩	Sr ²⁺ , Cs ⁺		Sr ²⁺ (mg), Cs ⁺ (mg)			
(1) ストロンチウム (Sr ²⁺)									
o-0 (Sr(NO ₃) ₂ , 1%添加)	70.4	8.80	88.0	36.4	12	0.00150	41	99.9959	
o-1 (Sr(NO ₃) ₂ , 1%添加)	66.0	8.25	82.5	34.2	1486	0.18575	5431	99.4569	
s-0 (Sr(NO ₃) ₂ , CsNO ₃ 各 1%添加)	64.2	8.03	80.3	33.2	8	0.00100	30	99.9970	
s-1 (Sr(NO ₃) ₂ , CsNO ₃ 各 1%添加)	70.6	8.83	88.3	36.6	9494	1.18675	32425	96.7575	
(2) セシウム (Cs ⁺)									
o-0 (CsNO ₃ , 1%添加)	62.1	7.76	77.6	52.9	18170	2.27125	42935	95.7065	
o-1 (CsNO ₃ , 1%添加)	60.0	7.50	75.0	51.1	18810	2.35125	46013	95.3987	
s-0 (Sr(NO ₃) ₂ , CsNO ₃ 各 1%添加)	64.2	8.03	80.3	54.8	29560	3.69500	67427	93.2573	
s-1 (Sr(NO ₃) ₂ , CsNO ₃ 各 1%添加)	70.6	8.83	88.3	60.2	14270	1.78375	29630	97.0370	

ストロンチウム (S r) の固定率は、 S r の単独添加、 S r , C s の同時添加を問わず、アルカリ溶液として 0 号液を用いた場合に、 O T o 灰、 O T s 灰双方とも 9 9 . 9 9 % 以上と高く、良好な結果であった。一方、アルカリ溶液として 1 号液を用いた場合、ストロンチウムの固定率は、 O T o 灰は 9 9 . 4 6 % で、 O T S 灰は 9 6 . 7 6 % であった。
【 0 0 4 3 】

セシウム (C s) の固定率は、 C s の単独添加、 S r , C s の同時添加を問わず、 0 号液と 1 号液共に 9 5 % 前後で、ストロンチウムの固定率に比べて低かった。しかし、固定率が 9 5 % であっても、天水や地下水に浸さなければ溶出しないので安全は維持される。

【 0 0 4 4 】

以上の結果をまとめると、以下のとおりである。

- 1) P S 灰を活性フィラーとしてジオポリマーを製造できる。
- 2) P S 灰は多孔質構造を有し、水分吸着量が多い。また、ジオポリマーは金属イオンを固定する特徴がある。このため、 P S 灰と汚染水を溶媒とするアルカリ溶液でジオポリマー固化体を作製することによって放射能汚染水を処理できる。
- 3) 苛性ソーダを使わない低廉な 1 号液を用いた場合、 P S 灰ジオポリマーの可使時間がかなり短くなることから、 P S 灰ジオポリマー化のアルカリ溶液としては苛性ソーダを使う 0 号液が好適である。
- 4) 一般に、 P S 灰ジオポリマーの強度は、ストロンチウムの添加によって低下しないが、セシウムの添加では強度がやや低下する場合がある。しかし、強度を損なうほどではなく問題ではない。
- 5) P S 灰ジオポリマーにおけるストロンチウムとセシウムの固定率は、それぞれ 9 9 % 以上と 9 5 % 以上を達成することができる。 1 号液に比べ、 0 号液を用いた P S 灰ジオポリマーのストロンチウム固定率は高く、ストロンチウムはほとんど溶出しない (固定率は 9 9 . 9 9 % 以上) 。また、同じアルカリ溶液を使う場合、固定率の測定結果は、セシウムよりストロンチウムの方が高い。仮にセシウムは若干溶出して環境基準をクリアできなければ、後述する措置 (非常用ミニ処理システムの稼働) を講じることによって、 P S 灰ジオポリマー化で放射能汚染水を問題なく処理することができる。

【 0 0 4 5 】

図 3 は、本発明を適用した放射能汚染水の処理フローの一例を示す。これは、福島第一原子力発電所で発生している放射能汚染水の処理を想定したものである。

【 0 0 4 6 】

まず、 P S 灰にアルカリ活性剤を加えて混合し、更に汚染水を加え練り混ぜて型枠に流し込み、ジオポリマーブロック (P S 灰 G P ブロック) を作製する。脱型は一晩経過した段階で可能である。

【 0 0 4 7 】

次に、 P S 灰 G P ブロックを積んで、ダム形でブロックを放置・管理する。この P S 灰 G P ブロックによるダムは、半地下管理、地上管理あるいは廃船流用の洋上管理のいずれもできる。風雨に曝されないように、ダムの頂上には天蓋 (キャップ) を設置する。また、水と水蒸気の進入を阻止するために、ダムの壁面には防水仕上げを施す。ダムの頂上からの水蒸気の放出に伴って、トリチウムは放出するが、現在の環境基準はクリアするから問題とならない。なお、ガスクロマト装置等によりトリチウムを安価かつ容易に回収することもできる。

【 0 0 4 8 】

このようなダムによる管理方法では、当該ダムからの水漏れは想定されないが、何らかの原因でダムが浸水した場合、セシウムが少し溶出する恐れがある。そこで、万全を期すために、ダムの底面において浸出水の非常用ミニ処理システムを設置する。収集した浸出水は線量に応じて従来の吸着法で処理して放流する。

【 0 0 4 9 】

また、将来、仮にダム壁に亀裂が生じてダム側面から水が漏出した場合に備えて、ダム

10

20

30

40

50

底面の周囲に粉末バリアーを設けており、これにより放射性核種の拡散を食い止めることができる。

【0050】

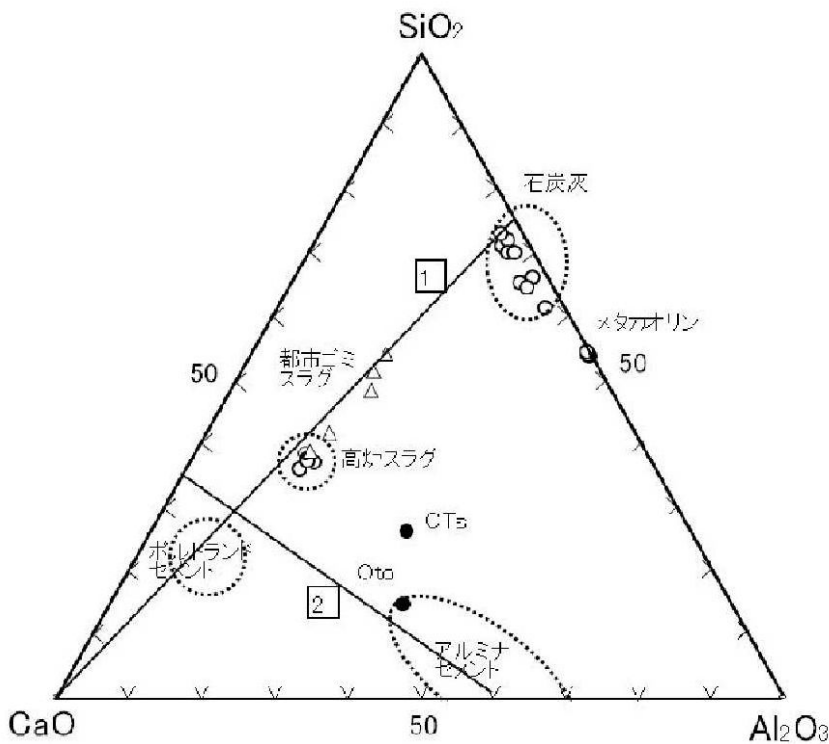
上に述べた方法で液体の汚染水自体をタンク管理するよりは固体で管理した方がはるかに安価かつ安全であるが、汚染水の排出が続く限り、タンク群と同様にダム群も増え続けることに変わりはない。これを打破するために、PS灰GPブロックがある程度乾いた段階で溶融しスラグ化し、いわゆる浅所埋設管理(Shallow burial)を行うのが好ましい。この方法は原発の低レベル廃棄物の処理方法(下記参考文献)と同様である。

【0051】

参考文献

N. G. Vasil'eva, N. N. Anshits, O. M. Sharonova, M. V. Burdin, and A. G. Anshits: Immobilization of cesium and strontium radionuclides in framework aluminosilicates with the use of porous glass-ceramic materials based on coal fly ash cenospheres. Glass Physics and Chemistry, Vol.31, No. 5, pp. 637-647, 2005.

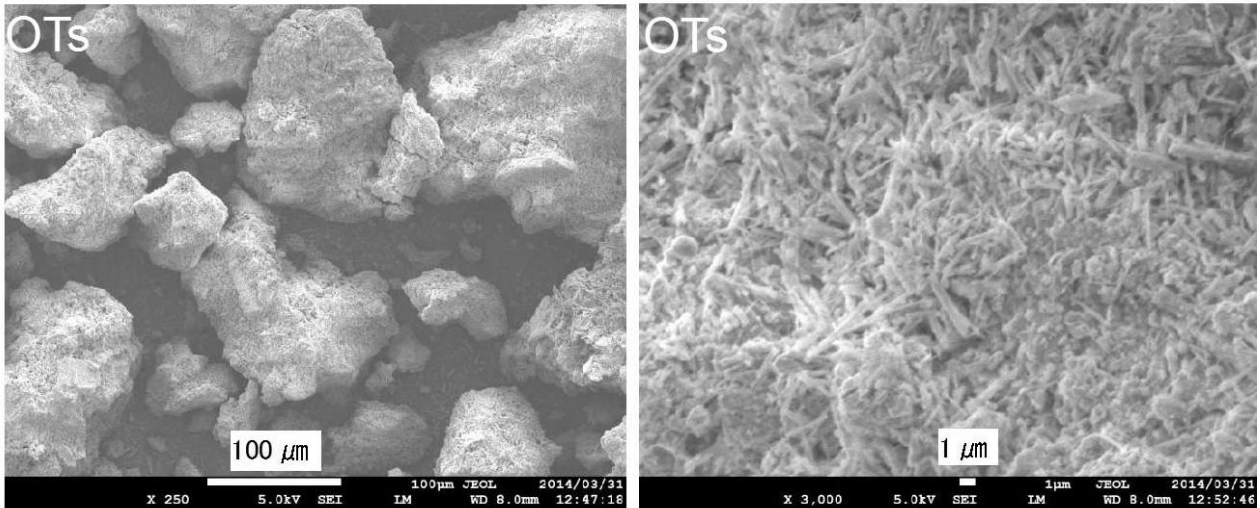
【図1】



線1, 2はそれぞれ第1, 第2水硬線を示す。

● : PS灰

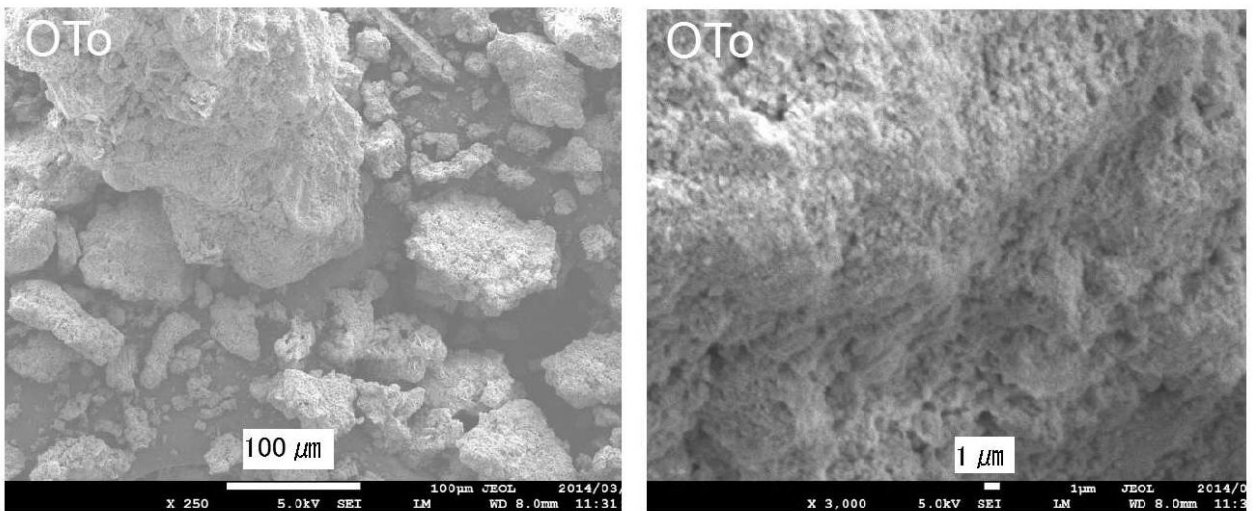
【 図 2 】



左 : 250倍

右 : 3000倍

(a) PS 灰(OTs)

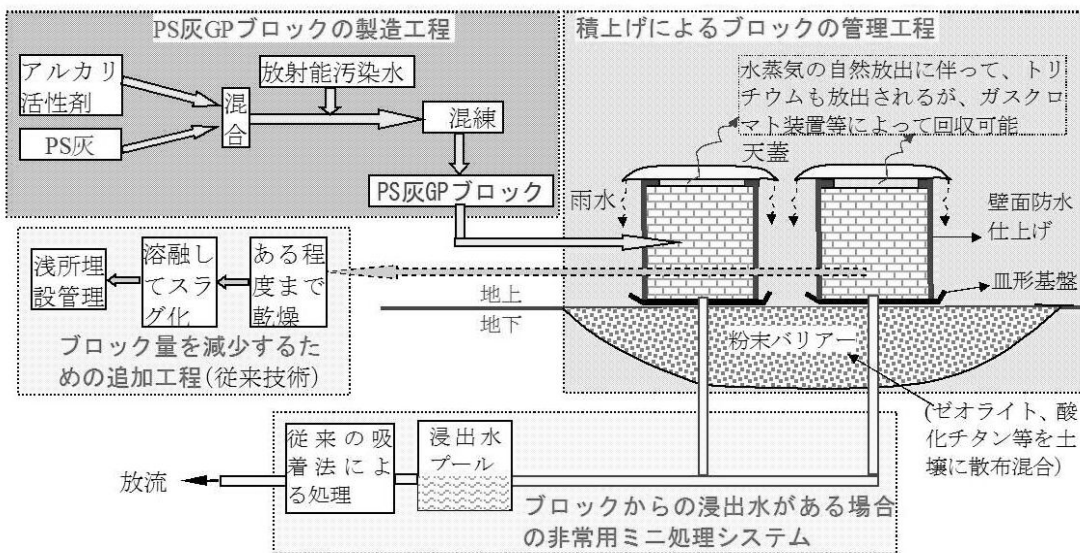


左 : 250倍

右 : 3000倍

(b) PS 灰(OTo)

【 図 3 】



【手続補正書】

【提出日】平成26年10月2日(2014.10.2)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

製紙スラッジ焼却灰と、アルカリ活性剤と、汚染水とを液固比が1.0以上となるように混合して、ジオポリマー固化体とする汚染水の処理方法。

【請求項2】

前記アルカリ活性剤が、ケイ酸ナトリウム及び水酸化ナトリウムを含む、請求項1に記載の汚染水の処理方法。

【請求項3】

前記汚染水が放射能汚染水である、請求項1又は2に記載の汚染水の処理方法。

【請求項4】

前記汚染水が重金属汚染水である、請求項1又は2に記載の汚染水の処理方法。

【請求項5】

製紙スラッジ焼却灰にゼオライト、酸化チタン又はベントナイトから選ばれる吸着改質剤を添加してジオポリマー固化体とする、請求項1又は2に記載の汚染水の処理方法。

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0009

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0009】

すなわち、本発明の汚染水の処理方法は、製紙スラッジ焼却灰と、アルカリ活性剤と、汚染水とを液固比が1.0以上となるように混合して、ジオポリマー固化体とすることを特徴とするものである。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I		テーマコード(参考)	
B 0 1 J	20/12	(2006.01)	B 0 1 J	20/18	E
			B 0 1 J	20/06	A
			B 0 1 J	20/12	A