

氏 名	大 塩 敏 樹 おおしおとしき
学位の種類	工 学 博 士
学位記番号	論 工 博 第 193 号
学位授与の日付	昭 和 43 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 5 条 第 2 項 該 当
学位論文題目	イオン交換を中心とした放射性廃水処理の研究

論文調査委員 (主 査)
教授 岩井重久 教授 筒井天尊 教授 合田 健

論 文 内 容 の 要 旨

この論文は、中ないし弱レベルの放射性廃水に対し、各種のイオン交換体を利用して、安全確実でしかも経済的な処理方式を開発するための実験的な研究成果をまとめたものであって、6章からなっている。

第1章では、国内、国外の多数の例について、放射性廃水の発生源と性状とを調査し、最重要な核燃料再処理施設からの廃水を含めて、これらの廃水の処理・処分上の問題点を把握するとともに、中・弱放射性廃水に対してはイオン交換法を中心とする処理方式が有力な手段となり得ることを指摘し、これを究明するために行なった本研究の意義を明らかにした。

第2章では、放射性廃水の処理対象核種として、核分裂生成物の組成や数種の核種の半減期、化学的性質などについての類似性を考慮し、陽イオン性核種として、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 、 ^{144}Ce などを、また陰イオン性核種として ^{106}Ru を重点的に取りあげた。またこれらの対象核種と処理の中心となる陽イオン交換体との関連性から、詳細な実験的研究を実施した。すなわち、陽イオン交換樹脂では交換基の特性、溶液のpH、核種の存在状態などによって除染効果変動するという点を究明し、種々の場合について最適の処理条件を求めた。さらに処理経費の低減をはかるために、瀝青炭と濃硫酸とから炭質交換体を製造し、このイオン交換能がフェノール樹脂のそれにほぼ近く、しかも吸着性を有するために、核分裂生成物に対しては交換樹脂よりも高い除去性能を示すことをたしかめた。また別に天然産粘土鉱物の持つイオン交換能に着目し、グロコナイトは貫流容量は小さいが通水性がよく、安定した選択吸着性能を示し、パーミキュライトは交換樹脂に匹敵する実用貫流容量を備えるので、この両者はいずれも工業的に利用しうることを明らかにした。これらのうちとくに前者は、多くの共存塩の存在下でも、大きい選択係数をもって ^{137}Cs を除去しうることをたしかめ、これを利用して ^{137}Cs を含む中・弱放射性廃水を処理する場合の最適条件を明らかにした。なおこのグロコナイトの特性をいかし、希薄溶液や海水中の ^{137}Cs の分離濃縮にこれを利用する方法を提案した。

第3章では、イオン交換処理のみでは除去しがたい非イオン性ないしコロイド性の核種を、砂ろ過を伴

う凝集沈殿で除去し、こうした前処理と本処理であるイオン交換との組み合わせにより、放射性核種の除染係数と廃水の減容比とを同時に向上させるという方針のもとに、前処理に関する基礎的な実験を行なった。まず水酸化物や炭酸塩による凝集沈殿法を対象核種別に検討し、ついで生成スラッジの減容をはかるための種々の水溶性高分子凝集助剤を合成し、それらのうちのアクリルアミド系高重合体は、水中の放射性核種を粘土鉱物に吸着させたのち、これを少量の多価金属塩とともに加えると、卓越した効果をあげ得ることをたしかめた。また凝集沈殿に際して添加する各種の粘土鉱物の構造特性と種々の核種に対する選択吸着性とを明らかにするとともに、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 、 ^{144}Ce などに対する砂ろ過の除染効果を検討した。

第4章では、前章までの基礎的研究の結果から、これらの諸方法をいかに組み合わせるかの方式について、さらに実験的な検討を進めた。すなわち、共存する放射性以外の塩の濃度によって交換容量が損われるというイオン交換法の根本的な欠かみを補うために、イオン交換体が特異な選択吸着性を示さない核種の除去には、難溶性塩への共沈や混晶生成現象を利用した前処理によって、二価の共存イオンの濃度の低下をはかり、対象核種についてのイオン交換体の交換容量を相対的に増大させ、ひいてはその再生廃液量を減少させるとともに、 ^{137}Cs に対してはこれに特異な選択性を示す無機イオン交換体を用いるといった組み合わせ方式を考究した。その結果、系全体としての除染係数と減容比とを高めるための設計・操作条件を見出し、ひいてはこれによってイオン交換樹脂の閉塞や不可逆吸着などによるその性能の劣化を防ぎ得ることを明らかにし、また除染係数と処理経費との関係についても種々の検討を加えた。

第5章では、上記の実験的研究の結果にもとづいて行なった実際施設の設計例とその機能試験の例とを述べ、除染係数や減容比の測定結果からみて、本研究の成果として得られた処理方式の妥当性が裏付けられたと判断した。

第6章では、全般を総括するとともに、今後に残された問題点について若干の考察を加えている。

論文審査の結果の要旨

原子力の平和利用から生じる放射性廃水のうち、とくに原子力発電所廃水や核燃料再処理工場廃水は、許容濃度のきびしい核種を含む核分裂生成物の除染を余儀なくされるために、こうした廃水の処理に関する学術的研究は、現今の日本にとって最も重要な課題の一つであるといえよう。

この論文は、こうした中・弱レベルの放射性廃水に対して、経済性を考慮しつつ必要な除染係数を確保し、あわせて減容比を大きくするような合理的処理方式を樹立するために、イオン交換法を中心として実験的に行なわれた研究成果をとりまとめたものである。

多数の研究例と実際例とを調査して、これらの既往の成績から、特殊な環境条件にあるわが国の場合、イオン交換法を中心とする処理方式が有望なことに着目した点に本研究の創意がみられる。まず核分裂生成物を対象とする場合には、たとえば放射性セリウムのように多価イオンとなる核種が廃水中に含まれるので、これらを陽イオン交換樹脂で除去するにあたっては、核種の溶存状態と交換基の作用する領域との関連から最適条件があり、pH 2 前後で最も高い効率を発揮することを明らかにした。著者が開発した炭質交換体は、フェノール樹脂と同程度の交換容量を持つほかに、コロイド性核種に対する吸着性ですぐれた性能を示している。また経済性から安価な粘土鉱物のイオン交換能に着目し、とくに天然無機イオン交

換体のパーミキュライトとグロコナイトとがセシウムに対して大きい選択吸着能をもつことを、Harwell 研究所の Burns とほぼ同時に発見し、カラムとしての使用法を開発した。さらに鉱酸処理によってその性能を向上させ得ることを見出し、本邦産の褐色系パーミキュライトは 1.2 meq/g の貫流交換能力を持ち、また 200g/l の食塩再生条件下で、イオン交換樹脂と同程度の能力を発揮することを実証した。

イオン交換法の特徴である全脱塩性能が、対象核種の除去については不利な作用を示すために、これをできるだけ防ぐ意味から非放射性の塩類濃度を低下させ、同時にコロイド性物質を除去して樹脂の閉塞を避け、しかも経済性を高めつつ高い除染係数と大きい減容比とを確保するための全系統方式として、イオン交換に関する上記の成果にもとづき、凝集沈殿処理 - パーミキュライト処理 - イオン交換樹脂処理の方式を提案し、実際施設についてその妥当性を検証し得たことは、今後の放射性廃水処理方式のありかたの一つを示すものとして注目するに足る。これらの研究成果は学術上、實際上寄与するところが少なくない。

よってこの論文は工学博士の学位論文として価値あるものと認める。