

氏 名	松 村 隆 まつ むら たかし
学 位 の 種 類	工 学 博 士
学 位 記 番 号	論 工 博 第 272 号
学位授与の日付	昭 和 44 年 3 月 24 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	低レベル放射性廃水の凝集沈殿処理と生成汚泥の脱水に関する研究

論文調査委員 (主 査)
教 授 岩 井 重 久 教 授 筒 井 天 尊 教 授 高 橋 幹 二

論 文 内 容 の 要 旨

この論文は原子力関連施設から生じる弱放射性廃水の処理のための主要な方法の一つである凝集沈殿法をとりあげ、その処理条件と凝集沈殿の結果生じる含水率の高い汚泥の処理とに関して基礎的研究を行ない、さらにそれらの成果を実際の処理施設に応用した結果について論述したもので、5章からなっている。

第1章緒論では、放射性廃水処理の必要性を述べ、合理的処理のための分別集水法に触れ、多量に生じる弱放射性廃水の処理には凝集沈殿法が有利であることに着目し、廃水中からの除去の対象核種としては、最大許容水中濃度と半減期とから Sr と Cs とに主眼をおき、さらに凝集沈殿法において最も問題となっている含水汚泥処理をとりあげ、これらについて研究を行なうことの必要性を述べている。

第2章では凝集沈殿法の概要を述べ、通常の凝集沈殿処理によっては不可能と思われる Cs の除去のために粘土鉱物を併用することの有効性を、粘土鉱物の特性ならびに多くの実施例から明らかにし、また凝集沈殿処理法改善のための問題点について検討するとともに、これらの問題点のうちのいくつかについての研究成果を述べている。すなわち、リン酸塩凝集法と水酸化鉄凝集法とについての処理条件を詳細に検討し、ビーカーテストのほかに処理量約 100ℓ/hr の小型凝集沈殿処理装置による連続処理実験を行ない、通常の凝集沈殿処理過程による除染作用は、凝集剤の添加および反応液の最終 pH 調整時までの短時間に完了し、pH 調整後のかく拌は除染作用に対してあまり有効でないこと、廃水中のアルカリ土類による Sr 除去率の低下は、アルカリ土類に当量以上の CO_3^{2-} を添加することによって防止しうることなどを明らかにした。さらに Cs 除去のための粘土鉱物の使用については、その水に対する分散性や高分子凝集助剤の添加による汚泥の沈降性、Cs に対するイオン交換性、粘土鉱物の交換基にあらかじめ交換しているカチオンの種類、共存塩の濃度、処理条件などについて検討し、ベントナイトおよびセリサイトの有効性をビーカーテストと小型処理装置実験によって明らかにし、セリサイトによる Cs の固定機構についても若干の考察を加えている。また Ce, Sr, Cs などの核分裂生成物を含む廃水では、水酸化鉄凝集法と、

これについてベントナイト凝集を行なう2段凝集法との有用性を明らかにした。また後者の場合、Ce, Srのほとんどは第1段で、Csの大部分は第2段でそれぞれ除去されること、および廃水中に残留する核種の大部分はRuであることを示し、一方では、こうした2段凝集法によると処理すべき汚泥が増加するので、その対策の研究が特に必要になると述べている。

第3章では凝集沈殿汚泥の各種脱水法についてその得失を述べ、汚泥の脱水減容性が汚泥自身の諸性質と脱水処理法との両者に依存することから、まず汚泥の沈降分離減容性を改善するために高分子凝集助剤の使用を試み、凝集沈殿処理でよく用いられるリン酸カルシウム、水酸化鉄のほかに、Cs除去剤としてのベントナイトを凝集剤として用いた場合の汚泥の沈降減容について実験を行ない、リン酸カルシウムを用いたときは両性の高分子凝集助剤、水酸化鉄のときはカチオン、アニオン、非イオン性のもののいずれもが、またベントナイトのときは非イオン性のものが、それぞれ1.1ないし3倍ていどの減容比増をもたらすことを明らかにした。つぎにこれらの汚泥のろ過脱水方式について検討を加え、高分子凝集助剤を加えた場合、リン酸カルシウム汚泥では減容比とろ速とはともに1.2倍ないし3倍ていどよくなるが、水酸化鉄汚泥では減容比のみが4ないし20倍ていど、ベントナイト汚泥ではろ速のみが3倍ていどだけ向上することを明らかにした。このように真空ろ過法による場合の脱水減容性に対しては、高分子凝集助剤の添加のみでもかなりの効果が認められるが、さらにこれを改善するための諸方法についても検討を加え、諸外国でも開発途上にあった凍結再融解脱水法に着目し、これについてかなり詳細な検討を加えた。すなわち、冷却温度と冷却時間とによって再融解後の汚泥の沈降分離性や減容比が異なり、リン酸カルシウムとベントナイトについては -2 ないし -4°C に比較的速やかに冷却し、水酸化鉄については -10°C 以下までに比較的緩やかに冷却するのが有効であること、また高分子凝集助剤の結果は汚泥の種類によって異なることなどが明らかにされた。またこうした一連の研究により、凍結再融解後の各種汚泥の沈降分離による減容比は1.3ないし2.4から6ないし23に改善され、真空ろ過特性としてのろ過速度は12ないし56倍に、そのさいの減容比は7ないし11から15ないし40と大はばに改善された。さらに、脱水汚泥の顕微鏡像およびX線回折像の観察を含めて、これらの脱水現象に関する若干の定性的考察を加えている。

第4章は、著者の所属する大阪府立放射線中央研究所に設置された中低レベル放射性廃水処理施設に関し、種々の試験結果や処理成績について論述したものである。まず蒸発濃縮処理装置の運転条件を検討してその最適操作条件を求め、つぎに凝集沈殿処理装置の運転操作に対し、第3章で得られた基礎研究の成果を応用してその妥当性を確認した。

さらに、第3章で得られた汚泥の凍結再融解処理に関する基礎的研究の成果にもとづき、処理量125ℓ/回の処理装置を建設し、試験汚泥について各種の試験を行ない、基礎研究の結果と対比して減容比と凍結温度の関係がほぼ同じ傾向を示すことを明らかにし、ついで実際の廃液処理にさいしてのこの装置の有用性を確かめている。

第5章では上記の研究成果を総括するとともに、今後に残されたいくつかの問題について若干の見解を述べている。

論文審査の結果の要旨

原子力関連施設から生じる多量の弱放射性廃水の処理については、凝集沈殿処理法を適用することによって一応その目的を達している。しかし凝集沈殿処理そのものの処理結果は完全とはいえず、とくに Cs 除去の場合は後備装置としてのイオン交換塔を必要とし、また Sr 除去の場合には多量の吸着剤、たとえば水酸化鉄と多量の炭酸ナトリウムとを用いることによって目的を達している。さらにこうした処理によって生じる含水率の高い汚泥の処理は、實際上大きい問題となっている。著者はこれらの問題点に着目して、その解決をはかろうとした。

すなわち凝集沈殿法に関しては、一般に用いられているリン酸塩凝集法と水酸化鉄凝集法とについて詳細な実験的検討を加え、凝集剤の添加時および pH 調整時に除染作用が進行し、その後のかく拌にはあまり除染上の効果が期待できないこと、Sr 除去のための CO_3^{2-} の添加量は、全アルカリ土類と当量以上とするのが必要であることを明らかにした。また Cs に対しては、パーミキュライトにくらべて Cs 除去能が劣ってはいるが、分散性が良好であるために凝集沈殿操作が簡便であり、しかも高分子凝集助剤の添加によって、Cs 吸着後の汚泥の沈降分離性能が向上する可能性の大きいベントナイトとセリサイトとの二つの粘土鉱物に着目し、これらが凝集剤としてきわめて有効であることを確めた。さらに水酸化鉄凝集剤とベントナイト凝集剤—高分子凝集助剤とを用いる 2 段凝集によって、廃水中の核分装生成物は Ru を除いて効率よく除去され、しかも操作が容易であることを明らかにした。ついで、これまで凝集沈殿処理法で最も問題となっていた高含水率汚泥の脱水減容性について研究を進め、まず高分子凝集助剤が汚泥中の固形分の沈降性、脱水減容性に及ぼす効果を詳細に検討した結果、汚泥の種類にもよるがかなりの改善効果があることを立証した。また真空ろ過法による汚泥脱水の場合にも、高分子凝集助剤は汚泥の脱水減容性の改善に対してかなり効果的であることを認めた。さらにこうした汚泥の新処理法として、諸外国でも開発途上にあった凍結再融解脱水法に着目し、その処理条件について詳細に検討し、冷却温度と冷却時間とによって再融解後の汚泥の沈降分離性や減容比が異なること、高分子凝集助剤の効果はきわめて大きい、そのていどは汚泥の種類によって異なることなどの諸点を明らかにし、汚泥の種類に応じた最適処理条件を提示した。

ついで、これらの基礎研究のうちのいくつかの成果を実際の廃水と施設とについて適用した結果、基礎研究の結果とほぼ同じ傾向が実施設でも得られることを確めた。とくに凍結再融解脱水装置に関する実際的研究の成果は、近年本学原子炉実験所においても大いに参考とされ、本格的な汚泥の凍結再融解処理装置を建設するための有用な基礎資料として利用されている。

これを要するに、この論文はこれまで問題の多かった放射性廃水の凝集沈殿処理条件に関して一つの前進的な指針を提示するとともに、凝集沈殿法では処理水量の数%にも及ぶ多量の高含水率汚泥を生じることが最大の欠陥とされてきたのに対して、凍結再融解によるこの汚泥の効果的な脱水法を開発し、その処理条件を明らかにしたもので、学問上、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。