

水中における金属ドーパアンチモン化合物のストロンチウム吸着性能評価

Sr adsorption performance of metal-doped antimony compounds

*渡部 亜由美¹, 野下 健司², 鴨志田 守¹

¹日立研開, ²日立GE

再処理廃液中で放射性Srを吸着する性質を持つ金属ドーパアンチモン化合物に着目し、タングステン(W)、タンタル(Ta)、バナジウム(V)をドーパしたアンチモン化合物を合成した。これらの化合物はパイロクロア構造を有し、酸性～弱塩基性領域において 10^4 L/kg以上の高いSr分配係数(Kd)を示した。

キーワード: 再処理廃液, 放射性ストロンチウム, アンチモン化合物

1. 緒言

再処理廃液中には高濃度の硝酸が含まれ廃液中から放射性Srなどを除去するためには、材料の耐酸性や吸着性能の維持といった課題がある。一方、Wをドーパしたアンチモン化合物は、硝酸溶液中でSrに対して高い吸着性能を示すことが知られている[1]。本研究では、酸性から弱塩基性領域で高いSr吸着性能を持つ可能性がある金属ドーパアンチモン化合物に着目し、異なるドーパ金属種を加えた際のアンチモン化合物のSrのKdを評価した。

2. 実験

アンチモン化合物は、 SiO_2 水溶液に SbCl_5 水溶液とドーパ金属水溶液を添加し、 50°C で静置して合成した。ドーパ金属は①アンチモン(Sb)に近いイオン半径を持つこと、②酸化物が酸性あるいは両性であることを基準にW、Ta、V、Zrを選定した。Sr-85を添加した純水または共存イオンを含む模擬試験水をpH2～9に調整し、SrのKdを評価した。模擬試験水の濃度はNa: 650 ppm, Mg: 150 ppm, Ca: 150 ppmとした。固液比は1:100として浸漬し、浸漬前後の試験水中のSr-85濃度を測定し、式1によりKdを求めた。

$$Kd = \frac{C_0 - C_f}{C_f} \times \frac{V}{M} \quad \dots(\text{式 1})$$

ここで、 C_0 : 浸漬前の試験水中Sr-85濃度(cps)、 C_f : 浸漬後のSr-85濃度(cps)、 V : 試験水体積(L)、 M : 固相重量(kg)である。

3. 結果と考察

アンチモン化合物は $\text{A}_2\text{Sb}_2\text{O}_6\text{O}'$ (A: H^+ 、アルカリ金属、アルカリ土類金属等、 O' : O^{2-} 、 OH^- 等)の組成を持ち、パイロクロア構造をとることで高いSr吸着性能を示す[1]。合成したアンチモン化合物は、図1に示すXRD測定結果より、主にパイロクロア構造をとっていることが分かった。いずれのアンチモン化合物でも非晶質部に由来するハローパターンが生じ、Sbとのイオン半径の差が最も大きいZrをドーパ金属とした場合に最も顕著であった。アンチモンにより近いイオン半径を持つドーパ金属はパイロクロア構造維持に優位であることが確認できた。

図2に純水中でのアンチモン化合物のKdを示す。ドーパ金属の種類によらず酸性から弱塩基性の広いpH領域において 10^4 L/kg以上の高いKdを示した。酸化物が酸性を示すドーパ金属は高いKdを示すことが報告されているが[1]、酸化物が両性を示すV、Zrにおいても同程度のKdが得られた。

表1に模擬試験水(pH~2)でのアンチモン化合物のKdを示す。W、Ta、Vをドーパ金属とした場合には 10^4 L/kg以上のKdが得られたのに対し、Zrをドーパ金属とした場合には、Kdが 10^3 L/kg程度となった。W、Ta、Vをドーパしたアンチモン化合物は、結晶性が高いためSrの選択性が高く、共存イオンが存在しても高いKdを示したと推察する。

参考文献

[1] Teresia Möller et al., *Chem. Mater.* **2001**, *13*, p.4767-4772

*Ayumi Watanabe¹, Kenji Noshita² and Mamoru Kamoshida¹

¹Hitachi, Ltd., Research & Development Group, ²Hitachi-GE Nuclear Energy, Ltd.

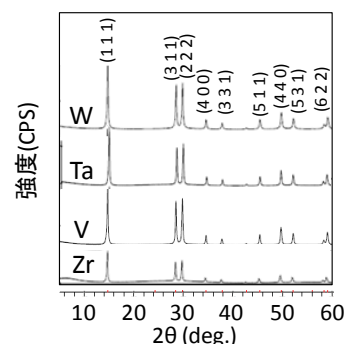


図1 XRD測定結果

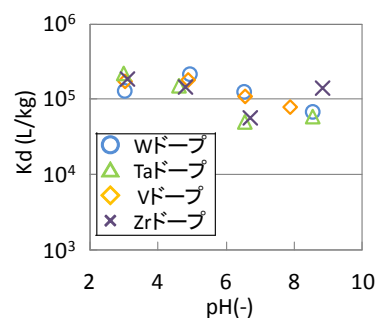


図2 アンチモン化合物の分配係数(純水条件)

表1 模擬試験水でのアンチモン化合物のSr分配係数(pH~2)

ドーパ金属	Kd(L/kg)
W	2.4×10^5
Ta	1.7×10^5
V	3.4×10^4
Zr	1.4×10^3