

ゼオライトからのCs、Sr 溶離・回収技術の開発

(1) Cs の溶離特性と回収

Development of Elution and Recovery Method of Cs and Sr from Zeolites

(1) Elution Properties and Recovery of Cs

*三村 均¹, 松倉 実¹, 北河友也¹, 黒崎文雄¹, 橋本裕之²

¹ユニオン昭和,²東北大・多元研

各種ゼオライトに吸着した放射性核種の溶離・回収および再利用技術を基礎的に検討した。Cs は無機塩溶液、特にアンモニウム塩溶液で効率的に溶離回収でき、回収されたCs 塩はポルサイトに安定固化できる。

キーワード：ゼオライト，セシウム，分配挙動，溶離，回収，再利用，ポルサイト，安定固化

1. 緒言

高汚染水中のCs およびSr の除染には、ゼオライト等の無機イオン交換体が使用されている。これら二次固体廃棄物の処理・処分シナリオには、現在、貯蔵時の安全性評価、安定固化技術の開発が進められている。一方、上記シナリオとは異なり、廃棄物からの核種(Cs, Sr)の溶離・回収および再利用に関する技術開発も進めておくことも重要と考えられる。本研究では、(1)無機塩溶液中でのCs の分配挙動、(2)溶離特性の評価、(3)溶離フラクションからのCs 塩の回収・安定固化に関して検討した。

2. 実験

各種塩溶液(Na, K, NH₄の硝酸塩)と酸溶液(0.1~5 M)中でのCs の分配特性をバッチ法により評価した。上記の溶離液を各種ゼオライト(A, X, Y, mordenite(SM, NM), clinoptilolite(CP), ferrierite(F))カラムに通液し、Cs の溶離曲線を取得した。溶離曲線から、Cs 溶離率($E(\%)$)、保持体積(V_R)、理論段数(N)、1 理論段高さ(H)およびテイリング係数(S)を算出・評価するとともに、クロマトグラフィ基本式を導出した。溶離フラクションは400℃で焼成して得られたCsCl 塩を、安定鉱物(pollucite)に変換した。

3. 結果と考察

3-1. 分配特性：各種塩溶液(Na, K, NH₄塩)と酸溶液(0.1~5 M)中でのCs の分配係数($K_{d,Cs}$)は、溶液濃度の増加に伴い、直線的に低下し、その序列はNH₄⁺ < K⁺ < Na⁺ < H⁺で、水和イオン半径が小さい程低下する。

3-2. 溶離特性：A 型、X 型からのCs の溶離率序列は、2 M HCl > 2 M NH₄Cl > 2 M KCl > 2 M NaCl であった。いずれも90%以上溶離するが、2 M HCl ではゼオライト構造が一部破壊され、カラム内に含水ケイ酸浮遊物が認められた。4 M NH₄Cl 溶液で99%以上溶離可能である。2 M NH₄Cl によるCs 溶離率($\%$)の序列は、X > A > Y > CP > SM > NM であった。Cs 選択性ゼオライト(モルデナイト、チャバサイト)からのCs 溶離には高濃度(>2 M)のNH₄塩溶液が必要である。SM, NM の耐酸性は高いが、酸によるCs の溶離は困難であった。F カラムからのCs 溶離の保持体積(V_R)の序列は、NH₄⁺ < K⁺ < H⁺ ≤ Na⁺であり、NH₄⁺濃度[M⁺]とは次式(1)で表される。

$$V_R = V_m + \rho V_a (10^{1.40} [M^+]^{-0.91}) \text{ (cm}^3\text{)} \quad (V_m: \text{空保持体積}, \rho: \text{固定相密度}, V_a: \text{固定相体積}) \quad (1)$$

3-3. Cs 塩の回収と安定固化：溶離フラクションを乾燥・400℃焼成し、NH₃を除去してCsCl 塩が回収できる。昇華物は溶離剤として再利用可能。Cs 塩はフライアッシュと混合、又は、ゼオライトに再吸着させ、高温焼成によりポルサイト(Pollucite, CsAlSi₂O₆)に安定固化できる。ゼオライトカラムは乾燥・400℃焼成でH 形ゼオライトとして、固体酸またはCs 吸着用ゼオライトとして再利用可能である。

*Hitoshi Mimura¹, Minoru Matsikura¹, Tomoya Kitagawa¹, Fumio Kurosaki¹, Hiroyuki Hashimoto²

¹UNION SHOWA K.K., ²Tohoku University