天然モルデナイトの焼成による Cs 固定化および炭酸ナトリウム添加効果

Cs immobilization by the heat-treatment of natural mordenite and effects of sodium carbonate addition

*青野 宏通, 高橋 龍一郎, 板垣 吉晃, エルニ ジョハン, 松枝 直人

愛媛大学

非放射性の Cs⁺を天然のモルデナイトに部分吸着させ、加熱によるセシウムの固定化を試みた。1000℃およびより高い温度での焼成では、ガラス相に固定化されるため Cs⁺の溶出は検出されなかった。炭酸ナトリウムをモルデナイトに添加したところ、より低温で固定化し溶出が無くなり、Cs の気化についても著しく抑制されることがわかった。

キーワード : Cs 除染, ゼオライト, 固定化, モルデナイト, 加熱操作

1. 緒言

放射性物質の除去の方法としてゼオライトによる吸着除去が用いられてきている。特にモルデナイト (Na₈Al₈Si₄₀O₉₆ · 24H₂O) は Cs に対する選択的吸着性能が優れており、本研究では少量 Cs 吸着させた後、熱処理することによる Na₂O-Al₂O₃-SiO₂ ガラスへの Cs の固定化の評価を行った。また状態図を基に融点を低下させるために Na₂CO₃ を添加し固定化温度の低下および Cs 気化の抑制についての検討を行った。[1]

2. 実験

安価な天然モルデナイトを使用し、100 mL の非放射性 Cs (100 ppm) 溶液と 1.0 g のゼオライトを 3 h 振とうさせ、遠心分離・乾燥を行ったものを使用した。Cs 吸着後のゼオライト (全てのアルカリイオンサイトの 4.0% 程度) を 600~1100 °C で焼成し固定化試料を作製した。放射性物質の固定化の評価として溶出試験を行った。溶出試験は、0.1 g の焼成試料を 10 mL の純水中で 24 h 振とうさせ、遠心分離した溶液に溶出した Cs 濃度を測定した。その後、新たに純水を加えて再度振とうさせ、これを 14 日間繰り返し、溶液中に溶出した Cs の総量を算出した。Na₂CO₃ を添加した試料については、モルデナイトと Na₂CO₃ の重量比を 9:1, 8:1, 7:3 とし検討を行なった。

3. 結論

天然モルデナイトの XRD 結果は、Cs の吸着の有無にかかわらず同じ結果であり、モルデナイト相は 800℃ 焼成でも壊れず、900 °C 焼成で結晶構造が壊れ非晶質となり、1000 °C 以上では Cristobalite (SiO₂) を生成した。何も焼成しないモルデナイトでは 1 4 日間の純水による溶出実験により吸着したセシウムのうち 3.6% が溶出した。この溶出は 600℃ の焼成によってもかなり低下し、1000℃ およびより高い温度での焼成では、ガラス相に固定化されるため Cs 溶出が検出されなかった。

炭酸ナトリウムをモルデナイトに添加し同様の実験を行ったところ、添加量の増大に伴い熔融温度が低下した。炭酸ナトリウム添加試料は 9:1 混合試料でも、900 °C 焼成を行なうことにより Cs の溶出が検出されなくなり、非晶質となる温度が強く影響していることがわかった。また、天然モルデナイトのみでは 1000℃ の焼成により約 1% のセシウムの気化が起こるが、炭酸ナトリウムの添加によりセシウムの気化が著しく抑制されることがわかった。

参考文献

[1] H.Aono et al, *Journal of Nuclear Materials*, **508**, 20-25 (2018).

*Hiromichi Aono, Ryuitchiro Takahashi, Yoshiteru Itagaki, Erni Johan and Naoto Matsue

Ehime Univ.