

放射性核種除染を目的とした Na-P1 型人工ゼオライトの金属イオン吸着性能と焼成による固定化

Adsorption ability of metal ions for Na-P1 type zeolite and its immobilization using the heat-treatment for the purpose of decontamination of radionuclides

*高橋亜未, 板垣吉晃, 青野宏通
愛媛大学

廃炉過程で放射性核種を含む汚染水などに含まれる放射性の金属イオンの吸着除去および保存を目的として、Na-P1 型人工ゼオライトを石炭焼却灰(FA)および試薬(CR)を原料として合成し検討した。吸着後、焼成を行うことにより吸着した放射性核種の溶出を抑えられた。特に FA-Na-P1 において顕著に抑制され、Zn²⁺を吸着させた場合、焼結により石炭焼却灰の不純物として含まれる Fe₂O₃と固相反応することが明らかになった。

キーワード：Na-P1 型人工ゼオライト、金属イオンの固定化

1. 緒言

原子力発電所が廃炉となる際に発生する廃液中には半減期が長い ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ⁸⁹Sr, ⁹⁰Sr, ⁹¹Sr, ⁹²Sr, ⁵⁴Mn, ⁶⁵Zn, ⁵⁸Co, ⁶⁰Co, ⁵⁹Fe などの放射性核種を含んでいる。これらの除染のためにゼオライトが吸着材として用いられる。本研究室では石炭焼却灰(FA)または試薬(CR)から人工合成した Na-P1 型人工ゼオライト(Na₆Al₆Si₁₀O₃₂ · 12H₂O)を用い、これらの非放射性の各種イオンを吸着した後の焼成による固定化について、純水中での溶出試験により評価及び吸着させた FA および CR ゼオライトの焼成による陽イオン固定化相の検討を行った。

2. 実験方法

2-1. 試料作製

石炭焼却灰(四国電力 JIS-II 種)または試薬(NaAlO₂ および 3 号水ガラス)に NaOH 溶液を加え、100°C24h 熱還流を行うことにより FA-Na-P1 または CR-Na-P1 を合成した。

2-2. 吸着実験

2-1 で作製したゼオライト(1.0g)に対して非放射性同位体である等モルの Cs(100ppm)、Sr(66ppm)、Mn(41ppm)、Zn(49ppm)、Co(44ppm)、Fe(42ppm)の各溶液中(100mL)で 25°C24h 振とうさせ、各イオンの吸着を行った。

2-3. 溶出試験

吸着後のゼオライトを 600~1100°C で 1h 焼成を行うことで金属イオン固定化試料を作製した。固定化試料(0.1g)に対して純水(10mL)を加え 24h 振とう後、遠心分離により上澄み液を回収した。この工程を 14 日間繰り返し、回収した上澄み液中の各金属イオン濃度を原子吸光光度計で測定、14 日間の累積溶出率を算出した。

2-4. 試料評価

XRD と SEM-EDS を用いて、固定化試料の形成相と分布の評価を行った。

3. 結論

FA 及び CR-Na-P1 は全ての金属イオンに対して優れた吸着率を示した。陽イオン吸着後、焼成することにより 600°C 程度でゼオライト構造が壊れ、さらに高温で焼成すると FA-Na-P1 では Nepheline(NaAlSi₃O₈)と Albite(NaAlSi₃O₈)の混合相となり、FA に不純物として含まれている Hematite(Fe₂O₃)が残留した。一方、CR-Na-P1 では 1000°C 以上の焼成により Nepheline 相が生成した。Fig. 1 に FA-Na-P1 を用いた各種金属イオンの溶出試験(14 日間の累積)の結果を示す。焼成温度が高いほど陽イオンの溶出が低下し、1100°C の焼成 1% 以下となった。一方、CR-Na-P1 では、1100°C 焼成でも、FA-Na-P1 より高い溶出率であった。吸着した陽イオンは、主に焼成した後に得られるガラス成分による封じ込まれることにより溶出しにくくなることが考えられる。

FA の方が溶出しにくい理由を調べるため SEM-EDS により吸着陽イオンの分布を考察した。Zn 吸着 FA-Na-P1 を 1100°C 焼成させた SEM-EDS では、Al 濃度の差により Nepheline と Albite と考えられる粒子の点分析を行ったが Zn 量は影響されておらず Hematite(Fe₂O₃)相の Zn 濃度が高まっていることが確認できた。固相反応により ZnFe₂O₄を形成することが考えられる。Mn, Zn, Co でも同様のことが確認できた。

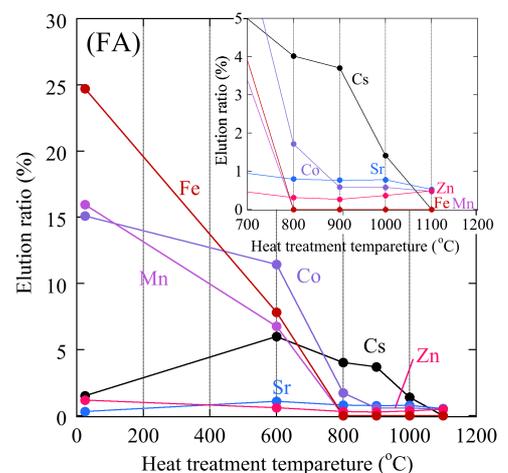


Fig. 1 The total elution ratio in ionized water over 14 days for the heated samples of FA-Na-P1 zeolite.

*Ami Takahashi, Yoshiteru Itagaki, and Hiromichi Aono. Ehime Univ.