

天然鉱物を利用した Cs, Sr 回収・固定化技術

東京工業大学 科学技術創成研究院 先導原子力研究所
准教授 吉田 克己

東京電力（株）福島第一原子力発電所事故の収束に向けて、発電所港湾部に滞留した放射性汚染水の処理が課題となっている。現在の主要な放射性物質は半減期が 30 年程度の ^{137}Cs や ^{90}Sr であり、汚染水からの除去が急務となっている。

現在、開発・実用化されている吸着材はフェロシアン化物や合成ゼオライト等であり、Sr や Cs などの放射性核種に対する高い吸着選択性を有するが、高コストであり吸着後の処分方法に不透明な点が多い。これらの課題を克服するために、図1に示すような安価な天然鉱物を原料とする、水中で使用可能な放射性核種吸着材を提案した。原料粉末に存在しているマイクロ・メソ孔と、焼成体を構成する粒子同士のマクロ孔との両方の細孔・気孔構造を有するセラミック多孔体を作製することで、内部への汚染水の流入を促して十分な吸着量を確保し、焼成体内部での均一な吸着と吸着量の増加を実現することをねらいとしている。あらかじめ固化した多孔質セラミック吸着材を利用することで、汚染水処理の簡便化と操作性の向上による作業への負担の軽減も期待できる。さらに使用済吸着材の処理方法として、再焼成により焼成体表面及び内部の細孔・気孔を閉塞することで、内部に吸着した放射性核種を固定化することが可能であると考えられる。これにより吸着材単独での廃棄も可能になるため、副次的な放射性廃棄物の発生を抑制することができる。

本研究では、天然鉱物である多孔質シリカ（以下A-WPS）または天然ゼオライト（以下NKZ）を主成分とし、成形助剤用の天然粘土（以下NC）を加えた多孔質セラミック吸着材の作製プロセスの検討及び得られた多孔質セラミック吸着材の非放射性Cs及びSrの吸着特性を単独吸着試験及び同時吸着試験により評価した。また、多孔質セラミック吸着材により回収したCs及びSrの固定化技術について検討した。

原料として北海道産の天然多孔質シリカ（A-WPS）、ゼオライト粉末（NKZ）、天然粘土（NC）を用いた。本研究で用いた各原料の主成分はA-WPSが石英及びクリストバライト、NKZがクリノプチロライト、NCが石英である。A-WPS、NKZ単独またはこれらの粉末にNCを10 wt%加えたものについて、一軸加圧成形により成形体を作製した。得られた成形体を高温大気炉により400～1000°Cで焼成し、A-WPS、NKZ、A-WPS+NC及びNKZ+NC焼成体を作製した。図2に700°Cの焼成で得られたA-WPS+NC及びNKZ+NC焼成体の外観を示す。得られた焼成体のSEM観察結果から、焼成温度が900°C以上の高温になると焼結が進行し、粒子間のマクロ孔が塞がること分かった。窒素ガス吸着量測定により得られた焼成体の比表面積測定の結果から、A-WPS粉末、NC粉末及びA-WPS+NC焼成体では焼成温度の上昇に伴い比表面積は減少し、1～10nmのメソ孔は消失することが分かった。

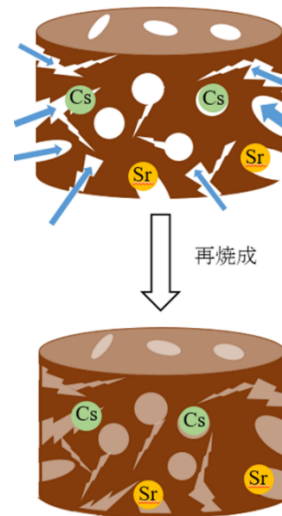


図1 本研究で提案する天然鉱物原料を利用した多孔質セラミック吸着材の概念図

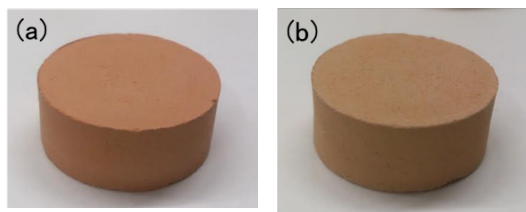


図2 (a)A-WPS+NC 及び(b)NKZ+NC 焼成体の外観（焼成温度 700°C）

次に、純水中に非放射性Cs及びSrを溶解した模擬汚染水を用いて、粉末や焼成体が両元素に対して十分な吸着機能を有しているかどうかを評価した。吸着性能評価は試験溶液の入った容器中で試料を振とうさせる吸着バッチ試験により実施した。まず、A-WPS、NKZ、NCの未焼成粉末のSr及びCs吸着率を評価した。Cs及びSrの単独吸着試験(初期濃度;0.5~5 ppm、吸着時間;10時間)による吸着率の評価を行ったところ、A-WPS、NKZどちらの未焼成粉末においても初期濃度によらず90%以上の高い吸着率を示した。

次にNC無添加で作製したA-WPS及びNKZ焼成体のCs及びSrの同時吸着試験による吸着率を評価したところ、A-WPS焼成体では600~800℃の焼成温度の違いによらず、5時間以内に100%近い吸着率となっているのに対し、NKZ焼成体では700℃に比べて800℃の場合に吸着速度が低下した。この吸着速度の低下は焼成に伴う焼成体の内部構造の変化による比表面積の低下が要因であると考えられる。どちらの試料においても吸着時間10時間以上で極めて高いCs及びSr吸着率を示した。また、A-WPS+NC及びNKZ+NC焼成体によるCs及びSrの吸着率を評価したところ、いずれの焼成体においても焼成温度が低い方が高い吸着率を示す傾向となった。

また、本研究では、吸着されたSr及びCsの固定化方法として、吸着材を再焼成することで細孔を閉塞して、内部に閉じ込める手法を提案した。1100℃で再焼成した吸着材では、SEM観察及び窒素ガス吸脱着等温線からメソ孔・マクロ孔がほぼ消失したことが分かった。再焼成に伴う細孔の閉塞による吸着元素の固定化は有効であると考えられる。

以上の結果から、天然鉱物を利用したCs、Sr回収・固定化技術について、天然多孔質シリカ及びゼオライトを用いた高性能多孔質セラミック吸着材の合成に見通しが得られた。