

アパタイトおよびケイ酸塩を用いた放射性物質除去に関する研究

Evaluation of radioactive substance adsorption on apatite and silicate

○ 大和田詠里 (茨城大) 尾関和秀 (茨城大)

増澤徹 (茨城大) 青木秀希 (国際アパ研)

Eri OWADA, Ibaraki University
Kazuhide OZEKI, Ibaraki University
Toru MASUZAWA, Ibaraki University
Hideki AOKI, International Apatite Co., Ltd

Abstract: The adsorption of Sr on HA and the adsorption of Cs on silicate were investigated. Montmorillonite, Zeolite, and Kaolinite was used as a silicate. We heated the HA and the silicate from 100°C to 1000°C for 1 hour. The unheated HA and the heated HA were immersed into the solution containing Sr. The concentration of Sr ion in the solution before and after the adsorption experiment measured using inductively coupled plasma atomic emission spectrometry (ICP-AES). The unheated silicate and the heated silicate were immersed into the solution containing Cs. The concentration of Cs ion in the solution before and after the adsorption experiment measured using inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS). From ICP-AES measurement, HA showed that the adsorption ratio of Sr decreased with increasing temperature. From ICP-MS measurement, Montmorillonite and Zeolite showed more than 90% of Cs adsorption at up to 500°C and 600°C, respectively.

Key Words: Hydroxyapatite, silicate, radioactive substance

1. 緒言

現在、福島県の原子力発電所の事故により、放射性物質であるストロンチウム (Sr) とセシウム (Cs) の飛散が問題となっている。しかし、放射性物質が空気中や地表面、海中に飛散した場合、回収することが困難である。現在、放射性物質の吸着材として注目を集めているケイ酸塩を使用した研究が行われている⁽¹⁾。ケイ酸塩は陽イオンのイオン交換能が高い特徴があるため Cs を吸着しやすいが、鉄やナトリウムなどの親和性の高いイオンが大量に存在すると Cs の吸着率が低下するという問題点が挙げられる⁽²⁾。一方、アパタイトはリン酸カルシウム化合物の一種であり、優れたイオン交換能を持っている。この性質を利用して、アパタイトにより汚染水中の鉛やカドミウムなどの有害な金属イオンを除去する研究結果が報告されている⁽³⁾。そのアパタイトの中でもハイドロキシアパタイト (HA) は人体の歯や骨に含まれているほかインプラントなどの生体材料に用いられ、人体や環境に無害であるという利点がある。このことから、HA を利用した Sr と Cs の吸着実験が行われ、HA が Sr に比べ Cs の吸着が著しく低いという結果が報告されている⁽⁴⁾。そのため、HA とケイ酸塩の粉末を複合化させることで Sr と Cs の両方を吸着できる可能性が考えられる。また、それらを固体化・複合化させる方法の1つとして、焼結が考えられる。しかし、HA やケイ酸塩の粉末を加熱した場合の Sr と Cs の吸着について明らかにされていない。そこで本研究では、加熱温度を変化させた HA とケイ酸塩の粉末を用いて純水中の放射性物質の吸着特性の違いについて評価した。

2. 実験方法

2-1 Sr 吸着実験

実験で使用した HA ($\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$) は、水酸化カルシウム (純度 95%以上, 宇部マテリアルズ (株)) とリン酸 (試薬特級, 和光純薬工業 (株)) を用いて溶液法により作製し

た。作製した HA 粉末を 100°C~1000°Cまでそれぞれ1時間加熱した。試料は、HA の未加熱、100°C~1000°Cまでそれぞれ加熱したもの計 11 個を用いた。0.001N の SrCl_2 (和光純薬工業 (株)) 水溶液 100ml 中に各 HA を 1g ずつ入れて 1 時間攪拌後、室温で 24 時間静置後ろ過した。吸着前後の溶液を誘導結合プラズマ発光分光分析装置 (島津製作所 (株)・ICPS-7510) で測定し、Sr 吸着率を算出した。

2-2 Cs 吸着実験

使用した試料は、未加熱と 100°C~1000°Cまでそれぞれ1時間加熱したケイ酸塩であるモンモリロナイト ($(\text{Al}_{2-y}\text{Mg}_y)\text{Si}_4\text{O}_{10} \cdot (\text{M}^+, \text{M}_{1/2}^{2+})_n\text{H}_2\text{O}$, 和光純薬工業 (株))、モンモリロナイト K10 ($(\text{Al}_{2-y}\text{Mg}_y)\text{Si}_4\text{O}_{10} \cdot (\text{M}^+, \text{M}_{1/2}^{2+})_n\text{H}_2\text{O}$, 和光純薬工業 (株))、ゼオライト HSZ-840NH ($[\text{M}^+, \text{M}_{1/2}^{2+}]_m(\text{Al}_m\text{Si}_{n-0.25m}) \cdot x\text{H}_2\text{O}$, 東ソー (株))、カオリナイト ($\text{Al}_4\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_8$, 和光純薬工業 (株)) の粉末を用いた。試料は、モンモリロナイト、モンモリロナイト K10、ゼオライト、カオリナイトの未加熱、100°C~1000°Cまでそれぞれ加熱したもの計 44 個を用いた。0.001N の CsCl (和光特級、和光純薬工業 (株)) 水溶液 100ml 中に各試料を 1g ずつ入れて 1 時間攪拌後、室温で 24 時間静置後ろ過した。吸着前後の溶液を誘導結合プラズマ質量分析装置 (アジレント (株)・7500CX) で測定し、Cs 吸着率を算出した。

3. 結果および考察

3-1 Sr 吸着

Fig.1 に HA の Sr の吸着率を示す。未加熱の時に 57%と吸着率が最も高く、加熱温度が高くなるにつれて Sr の吸着率が低下している。加熱により表面積が小さくなったため、Sr の吸着率が低下したと考えられる。

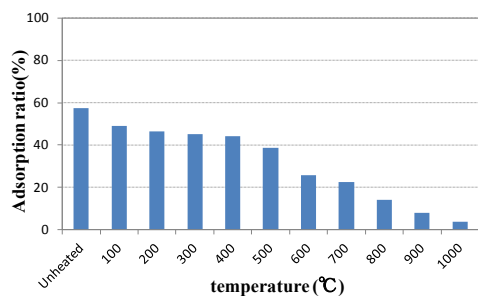


Fig.1 Adsorption ratio of Sr ion on the heated HA

3-2 Cs 吸着

Fig.2 にモンモリロナイトの Cs の吸着率を示す。未加熱の時に 91.9%と最も吸着率が高く、加熱温度 500°C以下の時 Cs の吸着率が 90%以上であった。このことから、モンモリロナイトは加熱温度が 500°C以下の時、92%以上のイオン吸着能が維持できる可能性があると考えられる。Fig.3 にモンモリロナイト K10 の Cs の吸着率を示す。未加熱の時 54.4%であり焼成温度 800°Cの時まで Cs の吸着率が 35%以上であった。また、モンモリロナイトとモンモリロナイト K10 の違いとして挙げられるのは、天然鉱物であるか架橋処理をされているかという点である。今回、天然鉱物であるモンモリロナイトの方が、架橋処理されたモンモリロナイト K10 より Cs 吸着率が高いことが示されたが、今後表面積測定等の必要があると考えられる。Fig. 4 にゼオライトの Cs の吸着率を示す。未加熱と加熱温度が 600°C以下の時 Cs の吸着率が 90%以上であった。これらの結果から、モンモリロナイト、モンモリロナイト K10 そしてゼオライトは加熱温度が上昇するにつれて、しだいに表面積が小さくなっているため、Cs 吸着率が低下していくのではないかと考えられる。Fig.5 にカオリナイトの Cs の吸着率を示す。Cs 吸着率がいずれの加熱温度においても 12%以下であったことから、カオリナイトは Cs の吸着能が低いと考えられる。

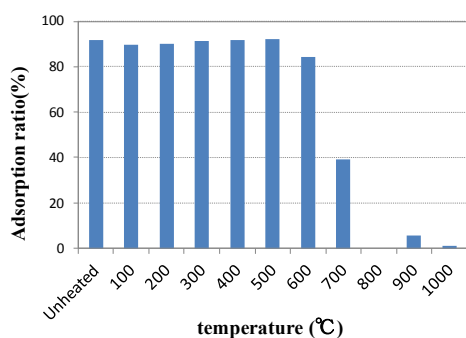


Fig.2 Adsorption ratio of Cs ion on the heated Montmorillonite

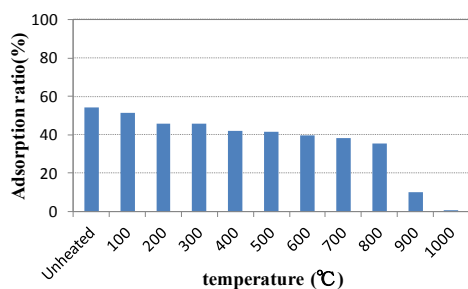


Fig.3 Adsorption ratio of Cs ion on the heated Montmorillonite K10

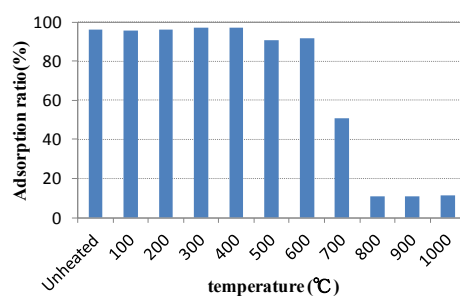


Fig.4 Adsorption ratio of Cs ion on the heated Zeolite

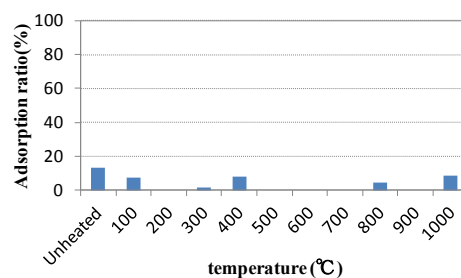


Fig.5 Adsorption ratio of Cs ion on heated the Kaolinite

4. 結言

本研究では、HA とケイ酸塩である、モンモリロナイト、モンモリロナイト K10、カオリナイト、ゼオライトを用いて純水中の放射性物質の吸着特性の違いについて評価した。HAは加熱温度が500°C以上になるとSrの吸着率が低下することを示した。また、ケイ酸塩ではモンモリロナイトが加熱温度が500°C以下で、ゼオライトが加熱温度が600°C以下でCs吸着率が90%以上を維持することを示した。

参考文献

- (1) 原伸宜, 高橋浩, ゼオライトー基礎と応用, 58-64 123-126, 株式会社講談社, 1975
- (2) 佐藤至, 松坂尚典, 小林晴男, 西村義一, 放射性物質除去剤としてのゼオライトの有効性(3) —137Cs について—, RADIOISOTOPES, 43, 468-473, 1994
- (3) A.Yasukawa, T.Yokoyama, K.Kandori, T.Ishikawa, Physicochem. Engi Aspects, 299, 203-208, 2007
- (4) 日本セラミックス第 25 回秋季シンポジウム 予稿集 1P24, 2012