

平成 23 年 4 月 10 日

紺青（フェロシアン化鉄）を用いた凝集沈殿法による Cs 回収技術

東京工業大学
原子炉工学研究所
化学グループ

無機青色顔料 紺青（フェロシアン化鉄、FeFC）は現在年間 1000 トン以上生産されており、主に EU 向けに輸出されている。用途は芝生用着色剤、葉面産婦剤、医薬品（高い安全性）などである。紺青のようなフェロシアン化合物は Cs に対する高選択吸着性が知られている。例えば、フィンランドで開発された Cs 吸着剤（Cs-treat）はフェロシアン化コバルトが主成分である。福島第一で発生した大量の汚染水（60000 トン超）からの Cs 回収が早急に必要とされているが、もし紺青が利用できれば、材料の確保に問題がなく、汚染水処理を早期に開始できる。しかし、紺青は微粉であり、これを Cs 回収に用いるには造粒技術の開発などが必要であるが、微粉のまま使用するとすれば、凝集沈殿法が最も有力な分離手法と考えられる。そこで、東工大原子炉研化学グループでは、東工大原子炉研と NPO 再生舎が開発した高性能凝集剤（イオンリアクション N）と大日精化工業提供の紺青を用いて模擬汚染水からの Cs 凝集沈殿試験を行った。本報告は、これまでの試験結果をまとめたものである。

1. 模擬汚染水の調製

汚染水は、炉の冷却に当初海水を用いていたことを考えると海水に Cs などの FP が溶解したものと想定される。そこで、模擬汚染水の調製には相模湾の江ノ島近辺で取水した実海水と、海水の主要成分を含む人工海水を用いた。人工海水には CsCl、SrCl₂、NaIO₃（海水中ではヨウ素はおおよそ IO₃⁻の化学形）を添加した。実海水はメンブレンフィルター（0.45 μm）でろ過処理後、CsCl と NaIO₃ を添加した（実海水には Sr が天然に 8mg/L 含まれるため、SrCl₂ を加えなかった）。実験に用いた人工海水の組成を表 1 に、模擬汚染水の組成を表 2 に示す。

表 1 人工海水の組成（人工海水 1 kg に含まれる各種塩の重量）

NaCl : 26.49g/kg	MgCl ₂ : 3.26g/kg	MgSO ₄ : 2.07g/kg
CaSO ₄ : 1.36g/kg	KCl : 0.71g/kg	

表 2 模擬汚染水の組成

溶液 No.	原水	CsCl	SrCl ₂	NaIO ₃
1	人工海水	10mg-Cs/L	10mg-Sr/L	10mg-I/L
2	海水*	10mg-Cs/L	0	10mg-I/L

* 海水には Sr が本来 8mg-Sr/L ほど含まれるために SrCl₂ を加えなかった。

2. 紺青、凝集剤

写真1、2には本試験で用いた紺青および凝集剤を示す。紺青はやや湿気を帯びた粉体であり、凝集剤は複数の粉体の混合物である。凝集剤を構成する主な物質成分を図1に示す。

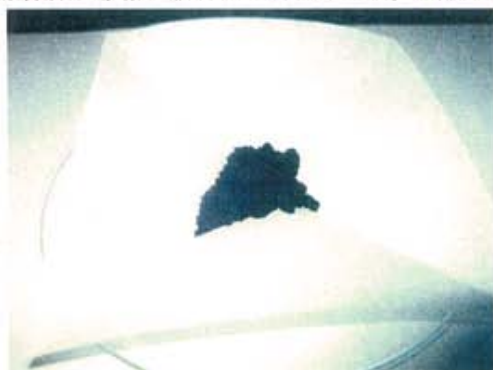


写真1 紺青

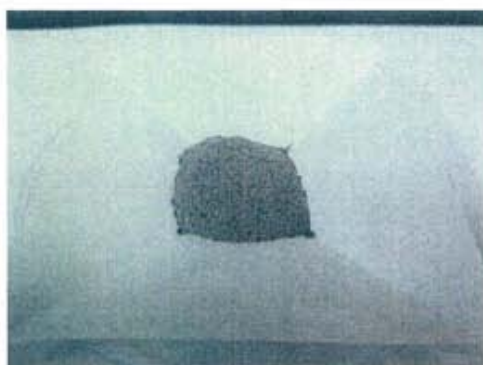


写真2 凝集剤



図1 凝集剤の組成

3. 試験方法

模擬汚染水 (No. 1、2) 10mL をバイヤル瓶のとり、所要量の紺青を懸濁させた。そこに凝集剤を加え、25℃ (室温) で震盪 (170rpm) した。模擬汚染水、紺青、凝集剤の添加量を表3に示す。1時間震盪後、バイヤル瓶の中の水溶液を分取し、遠心分離 (2000rpm、20分) をかけて微粒子を取り除いた後、蒸留水で10~500倍に希釈した。希釈溶液中のCs、Sr、Iの濃度をICP-MSによって測定した。この結果から、模擬汚染水からのCs、Sr、Iの除去率を計算した。

$$\text{除去率 [\%]} = \frac{C_0 - C}{C_0} \times 100 \quad (1)$$

ここで、C:水溶液に残された金属イオン濃度、 C_0 :初期金属イオン濃度

表3 試験条件

	Run No.	紺青 g	凝集剤 g	模擬汚染水 mL	V/m	V/M	
人工海水	A-1	0.501	0.051	50	100	978	
	A-15	0.249	0.056	50	200	895	
	A-2	0.105	0.051	50	478	986	
	A-3	0.502	0.500	50	100	100	
	A-4	0.509	0.010	50	98	4780	
	A-5	0.508	0.051	50	98	989	*ケイ砂添加
実海水	B-1	0.502	0.050	50	100	993	
	B-2	0.103	0.051	50	486	983	
	B-3	0.504	0.502	50	99	100	
	B-4	0.503	0.010	50	99	4822	
	B-5	0.505	0.050	50	99	1000	*ケイ砂添加

4. 試験結果

紺青で懸濁している試験溶液に凝集剤を添加すると写真3に示すように速やかに凝集沈殿し、懸濁した模擬汚染水が透明になった。凝集沈殿後の水溶液の分析結果を表4に示す。

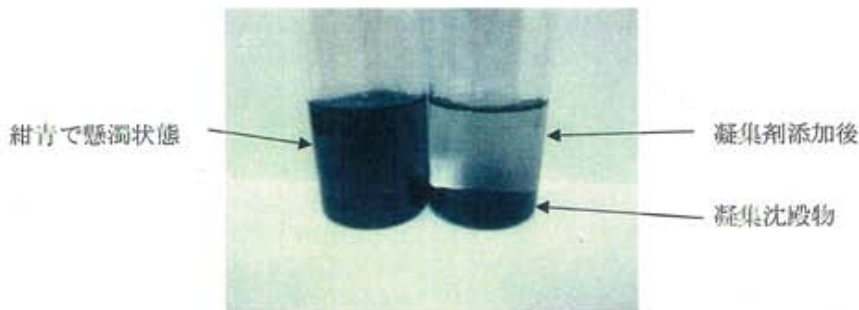


写真3 凝集剤添加前後の溶液の状態変化

表4 試験結果

	Run No.	V/m	V/M	Cs除去率%	I除去率%	Sr除去率%
人工海水	A-1	100	978	100.0	0.0	14.6
	A-15	200	895	99.7		
	A-2	478	986	95.1	1.0	17.6
	A-3	100	100	99.9	0.0	53.4
	A-4	98	4780	100.0	3.9	16.9
	A-5	98	989	100.0	0.4	15.7
実海水	B-1	100	993	100.0	0.0	12.2
	B-2	486	983	94.8	0.0	11.0
	B-3	99	100	100.0	3.5	48.1
	B-4	99	4822	100.0	16.6	48.7
	B-5	99	1000	100.0	19.1	49.3

V/m=100 (汚染水 100mL に紺青を 1g 添加) では Cs 凝集沈殿効果はおおきく高く、模擬汚染水から Cs をほぼ完全に除去できた。紺青は Cs 凝集沈殿に利用でき、効率的な Cs 回収が可能であ

る。V/m=200 (A-15、汚染水 100mL に紺青を 0.5g 添加) でさえ、99.7%以上の Cs が回収できた。凝集剤量を変化させても本実験の範囲では高い Cs 回収率が維持された。I、Sr はある程度共沈されるものの除去率は不安定である。また、実海水を用いても、人工海水と同様、高い Cs 回収率が得られた。以上の試験結果は、実海水に含まれる Cs が市販顔料「紺青」と市販凝集剤「イオンリアクションN」を使った凝集沈殿によって完全に除去できることを示唆している。

本法は福島第一で発生している汚染水からの Cs 分離に適用可能である。