

ETS-1によるセシウム除去

(戦略基盤) 希薄水環境技術開発ユニット

○佐古温菜(学部生)、佐野誠(環境都市工学部 エネルギー・環境工学科 専任講師)

鈴木俊光(関西大学 名誉教授)、三宅孝典(教授)

研究概要・成果

1. 緒言

2011年3月11日に起きた東日本大震災と、それに伴う福島原発の事故によりCs¹³⁴とCs¹³⁷が放出された。この事故によって放出された放射性セシウムは15000テラベクレルと見積もられており、これは広島に投下された原爆の実に170個分に相当する。その中でもCs¹³⁷は、半減期が30年と長いことから、早急な分離・回収が必要であり、現在、Csの吸着剤としてイオン交換性をもつゼオライトなどが用いられている。一方、チタノケイ酸塩(チタノシリケート)がゼオライト系の物質よりも高いCs吸着量や吸着速度を持つことが知られている。そこで、本研究ではEngelhard社で開発されたETS-1を用いて、バッチでのCs除去、および、Csの連続的除去を目指したカラム法への応用を検討した。

2. 実験方法

Na ₂ SiO ₃	8.1 g (36 mmol)
TiCl ₄	38.1 g (49 mmol)
NaOH	11.7 g (290 mmol)
KOH	4.9 g (88 mmol)
KF	2.9 g (50 mmol)
H ₂ O	20 mL

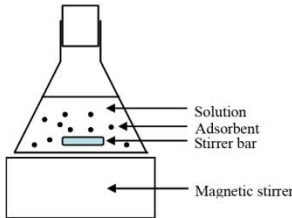
ETS-1	水熱処理温度	洗浄方法
A	125 °C	純水洗浄
B	90 °C	純水洗浄
C	90 °C	HCl洗浄

攪拌 30 min
水熱処理(テフロン製オートクレーブ, 90 °C or 125 °C, 24 h)
純水 or 0.5 M HCl洗浄
一晚乾燥(70 °C)

ETS-1(A, B, C)

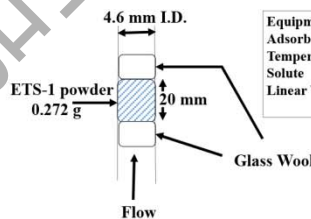
Cs除去条件

• Batch process



Equipment : 100 mL Erlenmeyer flask
Adsorbent : 0.050 g
Solution : 50 mL
Contact time: 0~24 h
Temperature: R. T.
Initial pH : 5.7~7.4
Solute : Cs⁺ 50~1000 ppm
(0.38~7.52 mmol/L)

• Continuous process



Equipment : Glass tube (4.6 mm I.D. × 100 mmL)
Adsorbent : 0.272 g
Temperature : R. T.
Solute : Cs 95 ppm (0.715 mmol/L)
Linear Velocity : 3.54, 9.68, 59.3 m/h

3. 結果と考察

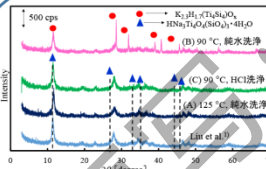


Fig. 1 XRD patterns of ETS-1 (Cu Kα, 40 kV, 20 mA)

Table 1 Elemental analysis of ETS-1 by XRF

Composition (wt%)	Ti	Si	Na	K	O
ETS-1					
(A) 125 °C, 純水洗浄	37.4	18.3	14.9	9.2	12.2
(B) 90 °C, 純水洗浄	15.4	6.8	14.0	6.8	43.1
(C) 90 °C, HCl洗浄	39.1	20.9	15.2	7.2	11.7

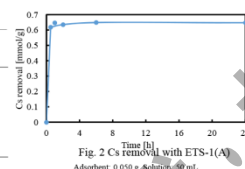


Fig. 2 Cs removal isotherms with ETS-1(A)

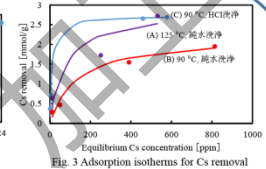


Fig. 3 Adsorption isotherms for Cs removal with ETS-1

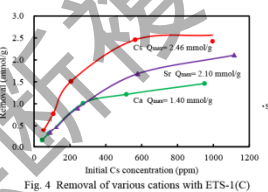


Fig. 4 Removal of various cations with ETS-1(C)

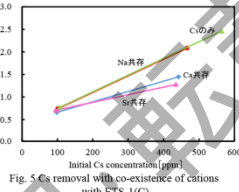
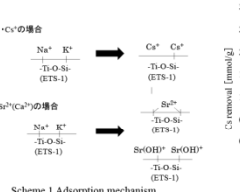


Fig. 5 Cs removal with co-existence of cations with ETS-1(C)

Table 3 Cs removal with co-existence of cations with ETS-1(C)

吸着量 (mmol/g)	除去率 (%)	Cs ⁺ 除去率 (%)	Cs ⁺ 除去率 (%)		
100 ppm Cs ⁺ -Na ⁺ (Cs/Na=1)	0.741	-2.32	97.5	-110	-313
100 ppm Cs ⁺ -Ca ²⁺ (Cs/Ca=2)	0.662	0.468	89.6	100	70.7
100 ppm Cs ⁺ -Sr ²⁺ (Cs/Sr=2)	0.707	0.42	99.0	93.0	59.4
500 ppm Cs ⁺ -Na ⁺ (Cs/Na=1)	2.08	-4.17	59.3	-50.5	-200
500 ppm Cs ⁺ -Ca ²⁺ (Cs/Ca=2)	1.45	1.18	43.5	49.0	81.4
500 ppm Cs ⁺ -Sr ²⁺ (Cs/Sr=2)	1.28	1.11	39.1	51.4	86.7

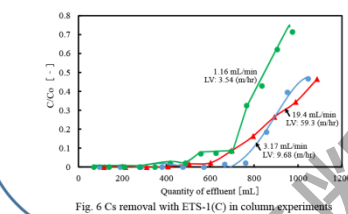


Fig. 6 Cs removal with ETS-1(C) in column experiments

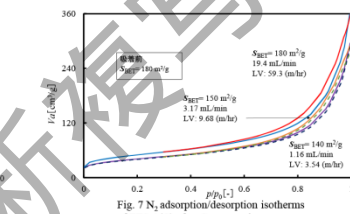


Fig. 7 N₂ adsorption/desorption isotherms of ETS-1(C) after Cs removal

Table 4 Ionic and hydrated ionic radii

結晶半径 (Å)	水合半径 (Å)	
Cs ⁺	1.69	3.29
Ca ²⁺	0.99	4.10
Sr ²⁺	1.13	4.12

4. 結言

- ETS-1を90°Cで水熱合成し、HClで洗浄することで簡便に調製できた。
- ETS-1のCs⁺イオン交換容量は約2.5 mmol/gであった。
- CsにCaやSrが共存しても、Csの除去選択性が高かった。
- カラム実験において、全Cs除去量はETS-1交換容量とほぼ等しくなり、最適な線速度があることが示唆された。

応用分野、実用化可能分野

排水浄化、イオン交換材、土壌改良材

問合せ先: 関西大学 環境都市工学部 三宅孝典 E-mail: tmiyake@kansai-u.ac.jp