



## 福島原子力事故関連情報アーカイブ

Fukushima Nuclear Accident Archive

Title	放射性セシウム含有モルデナイトから転換した ANA 型ゼオライトの水酸アパタイト被覆
Alternative_Title	Hydroxyapatite coating on ANA-type zeolite converted from radioactive cesium-containing mordenite
Author(s)	田岡 奈那子(法政大学), 金田 健(法政大学), 田村 堅志(物質・材料研究機構), 渡邊 雄二郎(法政大学) Taoka, Nanako(Hosei Univ.); Kaneda, Takeshi(Hosei Univ.); Tamura, Kenji(National Inst. for Materials Science); Watanabe, Yujiro(Hosei Univ.)
Citation	第 11 回環境放射能除染研究発表会要旨集, p.43 The 11th Workshop of Remediation of Radioactive Contamination in Environment
Subject	ポスターセッション
Text Version	Publisher
URL	<a href="https://f-archive.jaea.go.jp/dspace/handle/faa/251061">https://f-archive.jaea.go.jp/dspace/handle/faa/251061</a>
Right	© 2022 Author
Notes	禁無断転載 All rights reserved. 「第 11 回環境放射能除染研究発表会要旨集」のデータであり、発表内容に変更がある場合があります。 学会は発表の機会を提供しているもので、内容に含まれる技術や研究の成果について保証しているものではないことをお断りいたします。



## 放射性セシウム含有モルデナイトから転換した ANA 型ゼオライトの水酸アパタイト被覆

○田岡奈那子<sup>1</sup>, 金田健<sup>1</sup>, 田村堅志<sup>2</sup>, 渡邊雄二郎<sup>1</sup>  
1)法政大学, 2)物質・材料研究機構

【はじめに】 ANA 型ゼオライト(ANA)は細孔径がセシウムイオン( $\text{Cs}^+$ )直径より小さく、安定に  $\text{Cs}^+$  を保持できるため、福島第一原発事故に伴い飛散した長い半減期を持つ放射性セシウム  $^{137}\text{Cs}$  (半減期約 30 年)の固定化材料として注目されている。しかし、 $^{137}\text{Cs}$  のような長い半減期を持つ放射性物質に対しては、更なる長期安定化技術の開発が必要である。水酸アパタイト(HA)は水への溶解度が極めて低いため、ANA に被覆することにより、水溶液中での安定性の向上が期待できる。これまでに、安定同位体  $\text{Cs}^+$  と  $\text{Ca}^{2+}$  を含有した ANA を、リン酸アンモニウム水溶液を用いて水熱処理することで、 $\text{Cs}^+$  を保持したまま ANA 表面を HA 被覆できることを明らかにしている<sup>[1]</sup>。本研究では、福島土壌から脱離した放射性  $\text{Cs}^+$  と  $\text{Ca}^{2+}$  を含有した ANA の水熱処理法、交互浸漬法、及び擬似体液(SBF: Simulated body fluid)浸漬法<sup>[2]</sup>を用いた HA 被覆を試みた。

【実験方法】放射性  $\text{Cs}^+$  と  $\text{Ca}^{2+}$  を含有した ANA は、福島土壌から熔融塩( $\text{CaCl}_2$ )-酸(HCl)処理法により脱離した放射性  $\text{Cs}^+$  を吸着した天然モルデナイトを、1.0 mol/L の NaOH 水溶液中で 200°C、24 時間水熱処理することにより作製した。HA 被覆は水熱処理法、SBF 浸漬法、及び交互浸漬法を用いて行った。水熱処理法は 2.0 g の ANA と  $(\text{NH}_4)_3\text{PO}_4$  水溶液 300 mL を、SBF 浸漬法は 1.0 g の ANA と SBF 150 mL を 40°C で 72 時間接触させることにより行った。交互浸漬法は 80°C で 1.0 g の ANA を 150 mL の  $\text{Na}_2\text{HPO}_4$  水溶液と  $\text{CaCl}_2$  水溶液中で 3 回交互に接触させることにより行った。各生成物の結晶構造、形態観察、化学組成分析は粉末 X 線回折装置(XRD)、走査型電子顕微鏡(SEM)、及びエネルギー分散型 X 線分析装置(EDX)を用いて行い、各生成物と処理溶液の放射性  $\text{Cs}^+$  濃度は NaI シンチレーション検出器または環境放射線モニタを用いて測定した。

【結果と考察】 図 1 にリン酸アンモニウム水熱処理前後の ANA 及びその表面の SEM 像を示す。処理前の天然モルデナイトから転換した ANA からは ANA 特有の多面体結晶が観察され、その表面は平滑であった(図 1 (a), (b))。XRD パターンは ANA 単相であることを示し、EDX 分析からは、Ca が検出された。また、放射性  $\text{Cs}^+$  濃度は、 $4.4 \times 10^5$  Bq/kg を示した。これらの結果は、放射性  $\text{Cs}^+$  と  $\text{Ca}^{2+}$  を含有した ANA が作製できたことを示している。水熱処理後の ANA の SEM 像からは ANA 多面体結晶表面に約 50 nm の板状結晶が観察された(図 1 (c), (d))。また、EDX 分析結果はこの板状結晶の Ca/P モル比が HA(Ca/P モル比 1.67)に近い 1.71 であることを示し、ANA 表面が HA 板状結晶で被覆されていることが明らかになった。交互浸漬法及び SBF 浸漬法においても、ANA 表面に HA 板状結晶が観察され、特に交互浸漬法では HA 被覆量が多かった。HA 被覆後の ANA の放射性  $\text{Cs}^+$  濃度は  $4.1 \times 10^5$  Bq/kg 以上を示し、処理溶液中の放射性  $\text{Cs}^+$  濃度は検出限界未満であったことから、放射性  $\text{Cs}^+$  を保持したまま ANA 表面に HA が被覆できることが明らかになった。

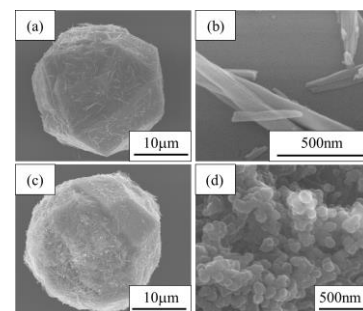


図 1 リン酸アンモニウム水熱処理前後の ANA の SEM 像 (a), (b) 処理前 (c), (d) 処理後

【謝辞】 本研究は環境省研究総合推進費補助金 1-1906 並びに JSPS 科研費 20K12226 を受けて実施した。

(参考文献)

[1] 田岡奈那子ら, 第 10 回環境放射能除染研究発表会要旨集, 70 (2021).

[2] S. B. Cho et al. J. Am. Ceram. Soc., 78[7] 1769-1774 (1995).

Hydroxyapatite coating on ANA-type zeolite converted from radioactive cesium-containing mordenite

Nanako Taoka<sup>1)</sup>, Takeshi Kaneda<sup>1)</sup>, Kenji Tamura<sup>2)</sup>, Yujiro Watanabe<sup>1)</sup> 1) Hosei Univ., 2) NIMS