(19)日本国特許庁(JP)　(12)公開特許公報(A)　(11)特許出願公開番号
特開2017-116407
(P2017-116407A)
(43)公開日　平成29年6月29日(2017.6.29)

(51)Int.Cl.		F I			テーマコード（参考）
G21F 9/12	(2006.01)	G21F	9/12	501B	4G066
B01J 20/06	(2006.01)	G21F	9/12	501J	
		B01J	20/06	A	
		B01J	20/06	B	

審査請求 未請求　請求項の数 6　ＯＬ　（全 17 頁）

(21)出願番号　特願2015-252082 (P2015-252082)
(22)出願日　平成27年12月24日 (2015.12.24)

(71)出願人　000000239
株式会社荏原製作所
東京都大田区羽田旭町１１番１号
(71)出願人　000230593
日本化学工業株式会社
東京都江東区亀戸９丁目１１番１号
(74)代理人　100140109
弁理士　小野　新次郎
(74)代理人　100112634
弁理士　松山　美奈子
(74)代理人　100146710
弁理士　鐘ヶ江　幸男
(72)発明者　佐久間　貴志
東京都大田区羽田旭町１１番１号　株式会社荏原製作所内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムの吸着剤、当該吸着剤を用いた放射性廃液の処理方法

(57)【要約】
【課題】放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを高い除去効率にて簡易に除去することができる吸着剤、及び放射性廃液の処理方法を提供する。
【解決手段】粒径２５０μｍ以上１２００μｍ以下の粉末又は粒子状の水酸化セリウム（ＩＶ）を含む、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを同時に吸着可能な吸着剤、及び該吸着剤を１０ｃｍ以上３００ｃｍ以下の層高で充填した吸着塔に、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを含有する放射性廃液を通水線流速（ＬＶ）１ｍ／ｈ以上４０ｍ／ｈ以下、空間速度（ＳＶ）２００h^{-1}以下で通水して、当該吸着剤に放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを吸着させることを含む、放射性廃液の処理方法。
【選択図】なし

【特許請求の範囲】
【請求項１】
下記特性を有する水酸化セリウム（ＩＶ）：
（１）粒径２５０μｍ以上１２００μｍ以下の粒子状であること
（２）熱重量分析において２００℃から６００℃まで温度上昇したときの重量減少率が４．０％以上１０．０％以下であること、及び
（３）赤外吸収スペクトル分析したときに、３２７０ｃｍ$^{-1}$以上３３３０ｃｍ$^{-1}$以下、１５９０ｃｍ$^{-1}$以上１６５０ｃｍ$^{-1}$以下及び１４１０ｃｍ$^{-1}$以上１４８０ｃｍ$^{-1}$以下の各範囲に吸収ピークが観察されること
を含む、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを同時に吸着可能な吸着剤。
【請求項２】
前記水酸化セリウム（ＩＶ）の含有量が９９．０ｗｔ％以上である、請求項１に記載の吸着剤。
【請求項３】
前記水酸化セリウム（ＩＶ）の含有量が９０．０ｗｔ％以上９９．５ｗｔ％以下であり、さらにリン酸銀を０．５～１０．０ｗｔ％含む、請求項１に記載の吸着剤。
【請求項４】
前記水酸化セリウム（ＩＶ）の含有量が９０．０ｗｔ％以上９９．０ｗｔ％以下であり、さらにリン酸銀を０．５ｗｔ％以上５．０ｗｔ％以下及び二酸化マンガンを０．５ｗｔ％以上５．０ｗｔ％以下含む、請求項１に記載の吸着剤。
【請求項５】
請求項１～４のいずれか１に記載の吸着剤を１０ｃｍ以上３００ｃｍ以下の層高で充填した吸着塔に、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを含有する放射性廃液を通水線流速（ＬＶ）１ｍ／ｈ以上４０ｍ／ｈ以下、空間速度（ＳＶ）２００ｈ$^{-1}$以下で通水して、当該吸着剤に放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを吸着させることを含む、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを含有する放射性廃液の処理方法。
【請求項６】
前記放射性廃液は、Ｎａイオン、Ｃａイオン及び／又はＭｇイオンを含む廃液である、請求項５に記載の処理方法。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを含む放射性廃液の処理方法に関し、特に原子力発電プラント内で発生するＮａイオン、Ｃａイオン及び／又はＭｇイオンなどの夾雑イオンを含む放射性廃液中に含まれる放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを除去することができる吸着剤、当該放射性廃液の処理方法に関する。
【背景技術】
【０００２】
2011年3月11日の東日本大震災により福島第一原子力発電所で発生した事故により、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを含む放射性廃液が大量に発生している。この放射性廃液には、原子炉圧力容器や格納容器、使用済み燃料プールに注水される冷却水に起因して発生する汚染水や、トレンチ内に滞留しているトレンチ水、原子炉建屋周辺のサブドレンと呼ばれる井戸より汲み上げられるサブドレン水、地下水、海水などがある（以下「放射性廃液」と称す。）。これらの放射性廃液は、サリー（SARRY, Simplified Active Water Retrieve and Recovery System（単純型汚染水処理システム）セシウム除去装置）やアルプス（ALPS, 多核種除去装置）などと呼ばれる処理設備にて放射性物質が除去され、処理された水はタンクに回収されている。

【０００３】
放射性物質のうち、放射性アンチモンは酸化チタン、放射性ヨウ素は銀添着活性炭、放射性ルテニウムはイオン交換樹脂である吸着剤が使用され、放射性物質が除去されている。しかし、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムは除去目標値を超える値が検出されており、十分に除去できていない状況である。
【０００４】
また、放射性アンチモンは酸化ジルコニウムにより吸着除去できること（特許文献１）、放射性ヨウ素はＰｄ、Ｐｔ、Ｒｈ及びＡｇなどの貴金属を担持させた多孔質無機酸化物により吸着除去できること（特許文献２）、放射性ルテニウムはｐＨ調整剤又は酸化還元剤との併用によりイオン交換樹脂で吸着除去できること（特許文献３）が報告されている。
【０００５】
しかし、特許文献１～３に開示されている吸着剤はそれぞれ特定の放射性元素のみを吸着除去するものであって、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを同時に吸着除去できる吸着剤は知られていない。さらに、放射性ヨウ素には、ヨウ化物イオンとヨウ素酸イオンが含まれており、放射性ヨウ素のみを吸着除去するだけでも２種類の吸着剤を使用する必要がある。各種放射性物質で汚染された海水などを除染するためには、放射性物質ごとに適切な吸着剤を使用することが必要となり、複数種類の吸着剤を用いるための複数の吸着塔及び薬剤の費用が高くなるという問題がある。
【０００６】
特許文献４には、ヒ素及び陰イオンの吸着剤として希土類元素の水酸化物が有効であることが開示されているが、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを同時に吸着除去できることは開示されていない。また、特許文献４に開示されている水酸化セリウムの赤外吸収スペクトルには３２７０ｃｍ$^{-1}$以上３３３０ｃｍ$^{-1}$以下の吸収ピークが確認できない。
【０００７】
非特許文献１には、セリア担持活性炭がアンチモン及びヨウ素酸イオンの吸着効果を有することが開示されている。しかし、アンチモン、ヨウ素酸イオンに加えてルテニウムを同時に吸着除去できることは開示されていない。
【０００８】
特許文献５及び６には、特定の水酸化セリウムがヨウ素酸イオンの吸着効果を有することが開示されている。しかし、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを同時に吸着除去できることは開示されていない。
【先行技術文献】
【特許文献】
【０００９】
【特許文献１】特開2014-238407号公報
【特許文献２】特開2013-104727号公報
【特許文献３】特開2015-059852号公報
【特許文献４】特開昭61-187931号公報
【特許文献５】特許5793230号公報
【特許文献６】特許5793231号公報
【非特許文献】
【００１０】
【非特許文献１】小松崎優子他，Ｎ３７　多核種汚染水のワンスルー浄化のための吸着剤の開発（２）セリア担持活性炭のアンチモン・ヨウ素酸イオン吸着特性，日本原子力学会「２０１３年秋の大会」予稿集（ＣＤ－ＲＯＭ），日本原子力学会，２０１３年，６４８頁
【発明の概要】
【発明が解決しようとする課題】

【００１１】
本発明の目的は、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを同時に吸着除去できる吸着剤を提供することにある。
また、本発明の目的は、１種類の吸着剤をカラムに充填して被処理水を通水する方法により放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを高い除去効率にて簡易に除去することができる、放射性廃液の処理方法及び処理装置を提供することにある。
【課題を解決するための手段】
【００１２】
上記課題を解決するため、本発明者らは鋭意研究した結果、水酸化セリウム（ＩＶ）（$Ce(OH)_4$）を含む特定の吸着剤が放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを同時に吸着除去できることを知見した。また、当該吸着剤を充填した吸着塔に特定の通水条件にて放射性廃液を通水することによって、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを簡易に効率よく除去できることを知見し、本発明を完成するに至った。
【００１３】
本発明は、以下の態様を含む。
［１］下記特性を有する水酸化セリウム（ＩＶ）：
（１）粒径２５０μｍ以上１２００μｍ以下の粒子状であること
（２）熱重量分析において２００℃から６００℃まで温度上昇したときの重量減少率が４．０％以上１０．０％以下であること、及び
（３）赤外吸収スペクトル分析したときに、$3270cm^{-1}$以上$3330cm^{-1}$以下、$1590cm^{-1}$以上$1650cm^{-1}$以下及び$1410cm^{-1}$以上$1480cm^{-1}$以下の各範囲に吸収ピークが観察されること
を含む、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを同時に吸着可能な吸着剤。
［２］前記水酸化セリウム（ＩＶ）の含有量が９９．０ｗｔ％以上である、［１］に記載の吸着剤。
［３］前記水酸化セリウム（ＩＶ）の含有量が９０．０ｗｔ％以上９９．５ｗｔ％以下であり、さらにリン酸銀を０．５～１０．０ｗｔ％含む、［１］に記載の吸着剤。
［４］前記水酸化セリウム（ＩＶ）の含有量が９０．０ｗｔ％以上９９．０ｗｔ％以下であり、さらにリン酸銀を０．５ｗｔ％以上５．０ｗｔ％以下及び二酸化マンガンを０．５ｗｔ％以上５．０ｗｔ％以下含む、［１］に記載の吸着剤。
［５］前記［１］～［４］のいずれか１に記載の吸着剤を１０ｃｍ以上３００ｃｍ以下の層高で充填した吸着塔に、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを含有する放射性廃液を通水線流速（ＬＶ）１ｍ／ｈ以上４０ｍ／ｈ以下、空間速度（ＳＶ）２００h^{-1}以下で通水して、当該吸着剤に放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを吸着させることを含む、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを含有する放射性廃液の処理方法。
［６］前記放射性廃液は、Ｎａイオン、Ｃａイオン及び／又はＭｇイオンを含む廃液である、［５］に記載の処理方法。
【発明の効果】
【００１４】
本発明の吸着剤は、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを同時に吸着除去できる。
また、本発明の１種類の吸着剤を吸着塔に充填して被処理水を通水する方法により放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを高い除去効率にて簡易に除去することができる。
【図面の簡単な説明】
【００１５】
【図１】製造例１で製造した水酸化セリウム（ＩＶ）の赤外吸収スペクトルである。

【図２】実施例３におけるアンチモン吸着除去性能を示すグラフである。
【図３】実施例４におけるヨウ素酸イオン吸着除去性能を示すグラフである。
【図４】実施例５におけるルテニウム吸着除去性能を示すグラフである。
【図５】実施例６におけるヨウ素酸イオン吸着除去性能を示すグラフである。
【図６】実施例７におけるヨウ化物イオン吸着除去性能を示すグラフである。
【図７】実施例８におけるルテニウム吸着除去性能を示すグラフである。
【発明を実施するための形態】
【００１６】
本発明は、（１）粒径２５０μｍ以上１２００μｍ以下、好ましくは３００μｍ以上８００μｍ以下、より好ましくは３００μｍ以上６００μｍ以下の粉末又は粒子状であり、（２）熱重量分析において２００℃から６００℃まで温度上昇したときの重量減少率が４．０％以上１０．０％以下、好ましくは４．０％以上８．０％以下であること、及び（３）赤外吸収スペクトル分析したときに、３２７０ｃｍ$^{-1}$以上３３３０ｃｍ$^{-1}$以下、１５９０ｃｍ$^{-1}$以上１６５０ｃｍ$^{-1}$以下及び１４１０ｃｍ$^{-1}$以上１４８０ｃｍ$^{-1}$以下の各範囲に吸収ピークが観察される水酸化セリウム（ＩＶ）を含む、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを同時に吸着可能な吸着剤を提供する。
【００１７】
本発明の吸着剤の粒径は、市販されている一般的な吸着剤（例えばゼオライト系吸着剤は粒径１．５ｍｍ程度のペレットである）と比較して微細な粒子状であり、吸着速度が高い。一方、粉末状の吸着剤では、吸着塔に充填して通水処理を行うと流出してしまうため、所定粒径に成形することが好ましい。水酸化セリウム（ＩＶ）を例えば撹拌混合造粒、転動造粒、押し出し造粒、破砕造粒、流動層造粒、噴霧乾燥造粒（スプレードライ）、圧縮造粒、溶融造粒等の公知の造粒方法を用いて、粒子状に成形することができる。通常の吸着剤は造粒の際にバインダを用いるが、本発明の吸着剤はバインダを使用しない。バインダを用いずに造粒した吸着剤は、体積当たりの吸着剤量が増えるため、吸着塔に充填して用いる本発明の処理方法においては同じ吸着塔の体積当たりの処理量が増加するので好ましい。あるいは、水酸化セリウム（ＩＶ）を粉砕して粒子状としてもよい。粒子状に成形した後、篩を用いて分級して所定粒径範囲の粒子を得ることができる。
【００１８】
また、本発明で用いる上記所定範囲の粒径を有する粒子状に成形されている吸着剤は、湿潤状態で０．１Ｎ以上の強度を有することが好ましく、処理対象となる放射性廃液の通水時の圧力（一般的には、０．１～１．０ＭＰａ）や長期間の通水によって崩壊しない。
【００１９】
本発明の水酸化セリウム（ＩＶ）は、熱重量分析において２００℃から６００℃まで温度上昇したときの重量減少率が４．０％以上１０．０％以下、好ましくは４．０％以上８．０％以下であることが望ましい。熱重量分析による重量減少率を上記範囲内とすることにより、イオン交換可能なＯＨ基が特定範囲内に制御され、安定した吸着性能を保持することができる。
【００２０】
３２７０ｃｍ$^{-1}$以上３３３０ｃｍ$^{-1}$以下の赤外吸収ピークは、ヒドロキシル基の伸縮振動に帰属し、特に３２９０ｃｍ$^{-1}$以上３３２０ｃｍ$^{-1}$以下の範囲に吸収ピークが観察されることが好ましい。
【００２１】
１５９０ｃｍ$^{-1}$以上１６５０ｃｍ$^{-1}$以下及び１４１０ｃｍ$^{-1}$以上１４８０ｃｍ$^{-1}$以下の赤外吸収ピークは、ヒドロキシル基の変角振動に帰属し、特に１６１０ｃｍ$^{-1}$以上１６３０ｃｍ$^{-1}$以下及び１４３０ｃｍ$^{-1}$以上１４７０ｃｍ$^{-1}$以下の範囲に吸収ピークが観察されることが好ましい。
【００２２】
本発明の吸着剤は、前記水酸化セリウム（ＩＶ）をそのまま用いてもよく、あるいは追加成分との混合物として用いても良い。水酸化セリウム（ＩＶ）をそのまま用いる場合の

水酸化セリウム（ＩＶ）の含有量は９９．０ｗｔ％以上、残余は不可避不純物であることが好ましい。

【００２３】

前記水酸化セリウム（ＩＶ）と追加成分との混合物である場合、本発明の吸着剤は、水酸化セリウム（ＩＶ）の含有量が９０．０ｗｔ％以上９９．５ｗｔ％以下であり、さらにリン酸銀を０．５～１０．０ｗｔ％含むことが好ましい。リン酸銀を含む場合には、ヨウ化物イオンに対する吸着能が向上し、水酸化セリウム（ＩＶ）とリン酸銀の割合を調整することで、ヨウ化物イオンの吸着能を制御することができる。

【００２４】

或いは本発明の吸着剤は、水酸化セリウム（ＩＶ）の含有量が９０．０ｗｔ％以上９９．０ｗｔ％以下であり、さらにリン酸銀を０．５ｗｔ％以上５．０ｗｔ％以下及び二酸化マンガンを０．５ｗｔ％以上５．０ｗｔ％以下含むことが好ましい。リン酸銀及び二酸化マンガンを含む場合には、ヨウ化物イオン及びルテニウムイオンの吸着能が向上し、リン酸銀及び二酸化マンガンの割合を調整することで、ヨウ化物イオン及びルテニウムイオンの吸着能を制御することができる。　本発明は、上記吸着剤を、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを含む廃液と接触させる処理方法も提供する。本発明の処理方法は、上記吸着剤を１０ｃｍ以上３００ｃｍ以下の層高で充填した吸着塔に、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを含有する放射性廃液を通水線流速（ＬＶ）１ｍ／ｈ以上４０ｍ／ｈ以下、空間速度（ＳＶ）２００h^{-1}以下で通水して、当該吸着剤に放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを吸着させることを含む。

【００２５】

本発明の処理方法において、前記吸着剤を１０ｃｍ以上３００ｃｍ以下の層高、好ましくは２０ｃｍ以上２５０ｃｍ以下、より好ましくは５０ｃｍ以上２００ｃｍ以下の層高となるように吸着塔に充填する。層高１０ｃｍ未満では、吸着剤を吸着塔に充填する際に吸着剤層を均一に充填することができず、通水時のショートパスを引き起こし、結果として処理水質が悪化する。層高が高い程、適切な通水差圧が実現でき、処理水質が安定化し、処理水の総量も多くなるため好ましいが、層高３００ｃｍを越えると通水差圧が大きくなりすぎて、実用的ではない。

【００２６】

前記吸着剤を充填した吸着塔に対して、放射性アンチモン、放射性ヨウ素及び放射性ルテニウムを含有する放射性廃液を通水線流速（ＬＶ）１ｍ／ｈ以上４０ｍ／ｈ以下、好ましくは５ｍ／ｈ以上３０ｍ／ｈ以下、より好ましくは１０ｍ／ｈ以上２０ｍ／ｈ以下、空間速度（ＳＶ）２００h^{-1}以下、好ましくは１００h^{-1}以下、より好ましくは５０h^{-1}以下、好ましくは５h^{-1}以上、より好ましくは１０h^{-1}以上で通水する。通水線流速が４０ｍ／ｈを越えると通水差圧が大きくなり、１ｍ／ｈ未満では処理水量が少ないため、いずれも実用的ではない。空間速度（ＳＶ）は一般的な廃液処理で用いられる２０h^{-1}以下、特に１０h^{-1}程度でも本発明の吸着剤の効果を得ることができるが、通常の吸着剤を用いる廃液処理では２０を越える大きな空間速度（ＳＶ）では安定した処理水質を実現できず、除去効果を得ることができない。本発明においては、吸着塔を大型化せずに通水線流速及び空間速度を大きくすることができる。

【００２７】

なお、通水線流速とは、吸着塔に通水する水量（m^3／ｈ）を吸着塔の断面積（m^2）で除した値である。空間速度とは、吸着塔に通水する水量（m^3／ｈ）を吸着塔に充填した吸着剤の体積（m^3）で除した値である。

【００２８】

本発明の吸着剤、処理方法及び処理装置は、Ｎａイオン、Ｃａイオン及び／又はＭｇイオンを含む廃液の除染に適する。

【実施例】

【００２９】

以下、実施例及び比較例により本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。各種成分及び吸着剤の分析は下記に示す装置及び条件で行った。

＜熱重量分析＞

メトラー・トレド社製熱重量測定装置　ＴＧＡ／ＤＳＣ１を用い、３０ｍｇの試料を、３０℃から１０００℃まで昇温速度５℃／ｍｉｎで温度上昇させたときの２００℃における試料の重量（Ａ）及び６００℃における試料の重量（Ｂ）を測定し、下記計算式により重量減少率を算出した。

［計算式］　重量減少率（％）＝（Ａ－Ｂ）／Ａ×１００

＜赤外吸収スペクトル分析＞

サーモフィッシャーサイエンティフィック社製ＮＩＣＯＬＥＴ６７００により、分解能：４ｃｍ$^{-1}$、積算数：２５６回、測定波数領域：４００ｃｍ$^{-1}$～４０００ｃｍ$^{-1}$の条件にて測定した。ＡＴＲ法により測定し、ＡＴＲ補正及びスペクトルのスムージング処理を行った。

【００３０】

＜水酸化セリウム（ＩＶ）含有量＞

蛍光Ｘ線分析装置として、リガク社製ＺＳＸ１００ｅを用いた。測定条件は、管球：Ｒｈ（４ｋＷ）、雰囲気：真空、分析窓材：Ｂｅ（厚み３０μｍ）、測定モード：ＳＱＸ分析（ＥＺスキャン）、測定径：３０ｍｍφとして、全元素測定を行った。測定結果よりCO_2成分を除去し、更に全成分から全不純物（セリウム化合物以外の成分、例えばAl_2O_3、SiO_2、P_2O_5、ＣａＯ、SO_3、ZrO_2、Nd_2O_3、Au_2O、Ｃｌ、Ｆ）を差し引いた量を求め、水酸化セリウム（ＩＶ）の量とした。測定用の試料は、吸着剤をアルミリング等の適当な容器に入れ、ダイスで挟みこんでからプレス機で１０ＭＰａの圧力をかけてペレット化することにより得た。

【００３１】

＜アンチモン濃度、ヨウ素濃度及びルテニウム濃度＞

アジレントテクノロジー社製誘導結合プラズマ質量分析装置（ＩＣＰ－ＭＳ）型式：Ａｇｉｌｅｎｔ　７７００ｘを用いて、アンチモン、ヨウ素１２７、ルテニウムの定量分析を行った。試料は希硝酸で２０倍希釈し０．１％硝酸マトリックスとして分析した。標準試料は各々の元素を１０．０ｐｐｂ、２０．０ｐｐｂ、５０．０ｐｐｂ、１００．０ｐｐｂ、２００．０ｐｐｂ及び５００．０ｐｐｂ含有した水溶液を使用した。

【００３２】

［製造例１］（水酸化セリウム99.0wt%以上）

＜吸着剤Ａの調製＞

硝酸セリウム（ＩＩＩ）６水和物８６．８ｇ（０．２ｍｏｌ）を１Ｌビーカーに秤量して、イオン交換水５００ｍＬに溶解した。ここに３５％過酸化水素水１９．４ｇ（０．２ｍｏｌ）を添加して１時間撹拌した。得られた混合物に、アンモニア水（６ｍｏｌ／Ｌ）を添加することにより、該混合物のｐＨを９．０とし、一昼夜撹拌を継続して、反応スラリーを得た。得られた反応スラリーをろ過して固形物を得、この固形物を洗浄した後、５０℃で２４時間乾燥して水酸化セリウム（ＩＶ）の乾燥品を得た。得られた水酸化セリウムは、蛍光Ｘ線回析装置を用いた定量分析により、純度が９９ｗｔ％であることが確認された。図１に得られた水酸化セリウム（ＩＶ）の熱分析スペクトルを示す。

【００３３】

この水酸化セリウムを粉砕し、分級し、ＪＩＳ　Ｚ８８０１規格における公称目開きが６００μｍの篩に通し、この篩を通ったものを、前記の公称目開きが３００μｍの篩に通して、粒度が３００μｍ以上６００μｍ以下の粒状品を得、吸着剤Ａを調製した。

【００３４】

［製造例２］（水酸化セリウム95.0wt、リン酸銀5.0wt%）

＜リン酸銀の調製＞

リン酸水素２ナトリウムと硝酸銀との下記の反応により、リン酸銀を調製した。

【００３５】

$Na_2HPO_4 + 3AgNO_3 \rightarrow Ag_3PO_4 + 2NaNO_3 + HNO_3$

リン酸水素２ナトリウム１２水塩３５．８ｇを３００ｍＬのイオン交換水に溶解した。硝酸銀５１．０ｇを１５０ｍＬのイオン交換水に溶解して、リン酸水素２ナトリウム水溶液に添加し、添加後、常温で１時間撹拌を継続して反応及び熟成させた。その後、反応後のスラリーをろ過し、得られた固形分を洗浄後、洗浄物を乾燥することによりリン酸銀（重量測定による推定純度：１００ｗｔ％）を得た。

【００３６】

＜吸着剤Ｂの調製＞

１００ｍＬ密閉式ガラス瓶に、製造例１で得られた水酸化セリウム（ＩＶ）と、上記で得られたリン酸銀とを合計で３５ｇとなるように入れた。配合比は、水酸化セリウム（ＩＶ）９５ｗｔ％とリン酸銀５ｗｔ％とした。この密閉式ガラス瓶に更に、イオン交換水５０ｇ及び２ｍｍφのガラスビーズ６０ｇ（４０ｍＬ）を入れて、ペイントシェーカーで２０分間粉砕した。粉砕後のスラリーの平均粒子径を上記の方法で測定したところ、１．２μｍであった。粉砕品をろ過した後、１１０℃で乾燥させた。乾燥後の固形物を乳鉢粉砕により粉砕した。得られた粉砕物を分級し、ＪＩＳ　Ｚ８８０１規格における公称目開きが６００μｍの篩に通し、この篩を通ったものを、前記の公称目開きが３００μｍの篩に通して、粒度が３００μｍ以上６００μｍ以下の粒状品を得、これを吸着剤Ｂとした。

【００３７】

［製造例３］（水酸化セリウム90.0wt%、リン酸銀10.0wt%）

配合比を水酸化セリウム（ＩＶ）９０ｗｔ％とリン酸銀１０ｗｔ％とした以外は、製造例２と同様にして吸着剤Ｃを得た。

【００３８】

［製造例４］（水酸化セリウム95.0wt%、リン酸銀5.0wt%、二酸化マンガン5.0wt%）

１００ｍＬ密閉式ガラス瓶に、製造例１で得た水酸化セリウム（ＩＶ）と、上製造例２で得たリン酸銀と、二酸化マンガン（日本重化学工業株式会社製活性化二酸化マンガン）とを合計で３５ｇとなるように入れた。配合比は、水酸化セリウム９５ｗｔ％、リン酸銀５ｗｔ％、二酸化マンガン５ｗｔ％とした。その他については、製造例２と同様にして吸着剤Ｄを得た。

【００３９】

［実施例１］

＜模擬汚染海水１の調製＞

以下の手順にて、福島第一原発の汚染水を模擬した非放射性のアンチモン、ヨウ素及びルテニウムを含む模擬汚染水を調製した。

【００４０】

まず、大阪薬研株式会社の人工海水製造用薬品であるマリンアートＳＦ－１（塩化ナトリウム２２．１ｇ／Ｌ、塩化マグネシウム六水和物９．９ｇ／Ｌ、塩化カルシウム二水和物１．５ｇ／Ｌ、無水硫酸ナトリウム３．９ｇ／Ｌ、塩化カリウム０．６１ｇ／Ｌ、炭酸水素ナトリウム０．１９ｇ／Ｌ、臭化カリウム９６ｍｇ／Ｌ、ホウ砂７８ｍｇ／Ｌ、無水塩化ストロンチウム０．１９ｇ／Ｌ、フッ化ナトリウム３ｍｇ／Ｌ、塩化リチウム１ｍｇ／Ｌ、ヨウ化カリウム８１μｇ／Ｌ、塩化マンガン四水和物０．６μｇ／Ｌ、塩化コバルト六水和物２μｇ／Ｌ、塩化アルミニウム六水和物８μｇ／Ｌ、塩化第二鉄六水和物５μｇ／Ｌ、タングステン酸ナトリウム二水和物２μｇ／Ｌ、モリブデン酸アンモニウム四水和物１８μｇ／Ｌ）を用いて塩分濃度が３．０ｗｔ％になるように水溶液を作成した。そこに、塩化アンチモン、ヨウ素酸ナトリウム及び塩化ルテニウムを添加して、アンチモンイオンの濃度が５．０ｍｇ／Ｌ、ヨウ素酸イオン及びルテニウムイオンの濃度が各１．０ｍｇ／Ｌの模擬汚染海水１を調製した。模擬汚染海水１の一部を採取して、ＩＣＰ－ＭＳにより分析したところ、アンチモンイオン濃度は５．１４ｍｇ／Ｌ、ヨウ素酸イオン濃度は０．９０ｍｇ／Ｌ、ルテニウムイオン濃度は０．８４ｍｇ／Ｌであった。

【００４１】

製造例１で調製した粒径３００μｍ以上６００μｍ以下の吸着剤Ａ　１．０ｇを２Ｌの

ビーカーに充填し、１０００ｍｌの模擬汚染海水１を添加して、撹拌した後、２４時間及び４８時間経過時に模擬汚染海水１の一部を採取してアンチモンイオン、ヨウ素酸イオン及びルテニウムイオンの各濃度を測定したところ、２４時間後のアンチモンイオン濃度は０．４２ｍｇ／Ｌ、ヨウ素酸イオン濃度は０．５９ｍｇ／Ｌ、ルテニウムイオン濃度は０．００ｍｇ／Ｌとなり、４８時間後のアンチモンイオン濃度は０．２１ｍｇ／Ｌ、ヨウ素酸イオン濃度は０．４２ｍｇ／Ｌ、ルテニウムイオン濃度は０．００ｍｇ／Ｌとなった。

【００４２】

吸着剤による処理２４時間及び４８時間のアンチモンイオン、ヨウ素酸イオン及びルテニウムイオン濃度から、それぞれの除去率を算出した。結果を表１に示す。アンチモン及びルテニウムについては２４時間の処理で９０％以上の除去率を達成しており、短時間の処理が可能である。ヨウ素については４８時間の処理で５０％以上の除去率を達成しており、本吸着剤によってアンチモン、ヨウ素及びルテニウムをすべて除去することができるといえる。

【００４３】

【表１】

表１

	２４時間	４８時間
アンチモン	９１．８％	９５．８％
ヨウ素	３４．１％	５３．３％
ルテニウム	９９．９％	９９．９％

【００４４】

［実施例２］

＜模擬汚染海水２の調製＞

以下の手順にて、福島第一原発の汚染水を模擬した非放射性のアンチモン、ヨウ素及びルテニウムを含む模擬汚染水を調製した。

【００４５】

大阪薬研株式会社の人工海水製造用薬品であるマリンアートＳＦ－１（塩化ナトリウム２２．１ｇ／Ｌ、塩化マグネシウム六水和物９．９ｇ／Ｌ、塩化カルシウム二水和物１．５ｇ／Ｌ、無水硫酸ナトリウム３．９ｇ／Ｌ、塩化カリウム０．６１ｇ／Ｌ、炭酸水素ナトリウム０．１９ｇ／Ｌ、臭化カリウム９６ｍｇ／Ｌ、ホウ砂７８ｍｇ／Ｌ、無水塩化ストロンチウム０．１９ｇ／Ｌ、フッ化ナトリウム３ｍｇ／Ｌ、塩化リチウム１ｍｇ／Ｌ、ヨウ化カリウム８１μｇ／Ｌ、塩化マンガン四水和物０．６μｇ／Ｌ、塩化コバルト六水和物２μｇ／Ｌ、塩化アルミニウム六水和物８μｇ／Ｌ、塩化第二鉄六水和物５μｇ／Ｌ、タングステン酸ナトリウム二水和物２μｇ／Ｌ、モリブデン酸アンモニウム四水和物１８μｇ／Ｌ）を用いて塩分濃度が３．０ｗｔ％になるように水溶液を作成した。そこに、塩化アンチモン、ヨウ素酸ナトリウム、ヨウ化ナトリウム及び塩化ルテニウムを添加して、アンチモンイオン５．０ｍｇ／Ｌ、ヨウ素酸イオン（IO_3^-）、ヨウ化物イオン（I^-）濃度が各０．５ｍｇ／Ｌ及びルテニウムイオンの濃度が１．０ｍｇ／Ｌの模擬汚染海水２を調製した。模擬汚染海水２の一部を採取して、ＩＣＰ－ＭＳにより分析したところ、アンチモンイオン濃度は４．０７ｍｇ／Ｌ、ヨウ素濃度は１．００ｍｇ／Ｌ、ルテニウムイオン濃度は０．８２ｍｇ／Ｌであった。なお、ヨウ素酸イオン及びヨウ化物イオン濃度を合算してヨウ素濃度とした。

【００４６】

製造例２で調製した粒径３００μｍ以上６００μｍ以下の吸着剤Ｂ　１．０ｇを２Ｌのビーカーに充填し、１０００ｍｌの模擬汚染海水２を添加して、撹拌した後、２４時間及び４８時間経過時に模擬汚染海水２の一部を採取してアンチモンイオン、ヨウ素酸イオン、ヨウ化物イオン及びルテニウムイオンの各濃度を測定したところ、２４時間後のアンチモンイオン濃度は０．１１ｍｇ／Ｌ、ヨウ素濃度は０．２９ｍｇ／Ｌ、ルテニウムイオン濃度は０．００ｍｇ／Ｌとなり、４８時間後のアンチモンイオン濃度は０．０８ｍｇ／Ｌ、ヨウ素濃度は０．２７ｍｇ／Ｌ、ルテニウムイオン濃度は０．００ｍｇ／Ｌとなった。ヨウ素酸イオン及びヨウ化物イオン濃度を合算してヨウ素濃度とした。

【００４７】

吸着剤による処理２４時間及び４８時間のアンチモン、ヨウ素及びルテニウム濃度から、それぞれの除去率を算出した。結果を表２に示す。アンチモン及びルテニウムについては２４時間処理で９７％以上の除去率を達成し、ヨウ素については２４時間処理で７１％以上の除去率を達成していることから、水酸化セリウム（ＩＶ）及びリン酸銀を含む吸着剤は、ヨウ素酸イオンに加えヨウ化物イオンも除去できると言える。

【００４８】

【表２】

表２

	２４時間	４８時間
アンチモン	９７．３％	９８．０％
ヨウ素	７１．１％	７３．０％
ルテニウム	９９．９％	９９．９％

【００４９】

［実施例３］

＜模擬汚染海水３の調製＞

以下の手順にて、福島第一原発の汚染水を模擬した非放射性アンチモンイオンを含む模擬汚染水を調製した。

【００５０】

まず、ダイヤソルト株式会社の並塩の塩分濃度が１．０ｗｔ％になるように水溶液を作成した。そこに、セシウム濃度が１ｍｇ／Ｌとなるように塩化セシウムを添加し、ストロンチウム濃度が１０ｍｇ／Ｌになるように塩化ストロンチウムを添加し、カルシウム濃度が３００ｍｇ／Ｌになるように塩化カルシウムを添加し、マグネシウム濃度が４００ｍｇ／Ｌになるように塩化マグネシウムを添加し、アンチモン濃度が１０ｍｇ／Ｌになるように酒石酸アンチモンカリウムを添加して、共存イオンとして高濃度の塩化物イオン、セシウムイオン、ストロンチウムイオン、マグネシウムイオン、カルシウムイオン、ナトリウムイオンを含む模擬汚染海水３を調製した。模擬汚染海水３の一部を採取して、ＩＣＰ－ＭＳにより分析したところ、アンチモンイオン濃度は１０．０４～１２．０６ｍｇ／Ｌであった。

【００５１】

製造例１で調製した粒径３００～６００μｍの吸着剤Ａ　２０ｍｌを内径１６ｍｍのガラスカラムに１０ｃｍの層高となるように充填し、模擬汚染海水３を６７ｍｌ／ｍｉｎの流量（通水線流速２０ｍ／ｈ、空間速度２００ｈ$^{-1}$）で通水し、出口水を定期的に採取してアンチモンイオン濃度を測定した。なお出口水の分析結果は、アンチモンイオン濃度は０．２０～４．６８ｍｇ／Ｌであった。

【００５２】
アンチモンの除去性能を図２に示す。図２において、横軸は吸着剤の体積に対して何倍量の模擬汚染海水を通水したのかを示すＢ．Ｖ．であり、縦軸はカラム出口のアンチモンイオン濃度（Ｃ）をカラム入口のアンチモン濃度（$Ｃ_0$）でそれぞれ除した値である。
【００５３】
図２より、層高１０ｃｍ、空間速度２００$ｈ^{-1}$では、Ｂ．Ｖ．７０００程度までアンチモンをほぼ１００％近く吸着除去できていることがわかる。
［実施例４］
＜模擬汚染海水４の調製＞
以下の手順にて、福島第一原発の汚染水を模擬した非放射性ヨウ素酸イオンを含む模擬汚染水を調製した。
【００５４】
まず、ダイヤソルト株式会社の並塩の塩分濃度が０．３ｗｔ％になるように水溶液を作成した。そこに、セシウム濃度が１ｍｇ／Ｌとなるように塩化セシウムを添加し、ストロンチウム濃度が１０ｍｇ／Ｌになるように塩化ストロンチウムを添加し、カルシウム濃度が４００ｍｇ／Ｌになるように塩化カルシウムを添加し、マグネシウム濃度が４００ｍｇ／Ｌになるように塩化マグネシウムを添加し、ヨウ素酸イオン濃度が１ｍｇ／Ｌになるようにヨウ素酸ナトリウムを添加して、共存イオンとして高濃度の塩化物イオン、セシウムイオン、ストロンチウムイオン、マグネシウムイオン、カルシウムイオン、ナトリウムイオンを含む模擬汚染海水４を調製した。模擬汚染海水４の一部を採取して、ＩＣＰ－ＭＳにより分析したところ、ヨウ素酸イオン濃度は０．９９～１．５８ｍｇ／Ｌ、であった。
【００５５】
製造例１で調製した粒径３００μｍ以上６００μｍ以下の吸着剤２０ｍｌを内径１６ｍｍのガラスカラムに１０ｃｍの層高となるように充填し、模擬汚染海水４を６７ｍｌ／ｍｉｎの流量（通水線流速２０ｍ／ｈ、空間速度２００$ｈ^{-1}$）で通水し、出口水を定期的に採取してヨウ素酸イオン濃度を測定した。なお出口水の分析結果は、ヨウ素酸イオン濃度は０．０５～０．５２ｍｇ／Ｌであった。
【００５６】
また、製造例１で調整した水酸化セリウム（ＩＶ）をＪＩＳ　Ｚ８８０１規格における公称目開きが１ｍｍ(１０００μｍ)の篩にかけ、次いで前記の公称目開きが５００μｍの篩にかけて、粒径５００μｍ以上１０００μｍ以下の範囲に分級した吸着剤Ａ’　２０ｍｌを同様に内径１６ｍｍのガラスカラムに１０ｃｍの層高となるように充填し、模擬汚染海水４を６７ｍｌ／ｍｉｎの流量（通水線流速２０ｍ／ｈ、空間速度２００$ｈ^{-1}$）で通水し、出口水を定期的に採取してヨウ素酸イオン濃度を測定した。
【００５７】
ヨウ素酸イオンの除去性能を図３に示す。図３において、横軸は吸着剤の体積に対して何倍量の模擬汚染海水を通水したのかを示すＢ．Ｖ．であり、縦軸はカラム出口のヨウ素酸イオン濃度（Ｃ）をカラム入口のヨウ素酸イオン濃度（$Ｃ_0$）でそれぞれ除した値である。
【００５８】
図３より、粒径３００μｍ以上６００μｍ以下の吸着剤Ａ’（図３中「◇」で示す）はＢ．Ｖ．１５０００程度までヨウ素酸イオンを９０％近く吸着除去でき、Ｂ．Ｖ．３００００程度でも６０％程度は吸着除去でき、粒径５００μｍ以上１０００μｍ以下の吸着剤Ａ’（図３中「●」で示す）はＢ．Ｖ．１００００程度までヨウ素酸イオンを９０％近く吸着除去でき、Ｂ．Ｖ．３００００程度でも６０％程度を吸着除去できることがわかる。
【００５９】
［実施例５］
＜模擬汚染海水５の調製＞
以下の手順にて、福島第一原発の汚染水を模擬した非放射性ルテニウムイオンを含む模擬汚染水５を調製した。

【００６０】
まず、ダイヤソルト株式会社の並塩の塩分濃度が０．３ｗｔ％になるように水溶液を作成した。そこに、セシウム濃度が１ｍｇ／Ｌとなるように塩化セシウムを添加し、ストロンチウム濃度が１０ｍｇ／Ｌになるように塩化ストロンチウムを添加し、カルシウム濃度が４００ｍｇ／Ｌになるように塩化カルシウムを添加し、マグネシウム濃度が４００ｍｇ／Ｌとなるように塩化マグネシウムを添加し、ルテニウムイオン濃度が１ｍｇ／Ｌになるように塩化ルテニウムを添加して、共存イオンとして高濃度の塩化物イオン、セシウムイオン、ストロンチウムイオン、マグネシウムイオン、カルシウムイオン、ナトリウムイオンを含む模擬汚染海水５を調製した。模擬汚染海水５の一部を採取して、ＩＣＰ－ＭＳにより分析したところ、ルテニウムイオン濃度は０．５４～０．８７ｍｇ／Ｌであった。

【００６１】
製造例１で調製した粒径３００μｍ以上６００μｍ以下の吸着剤Ａ　２０ｍｌを内径１６ｍｍのガラスカラムに１０ｃｍの層高となるように充填し、模擬汚染海水５を６７ｍｌ／ｍｉｎの流量（通水線流速２０ｍ／ｈ、空間速度２００h^{-1}）で通水し、出口水を定期的に採取してルテニウム濃度を測定した。なお出口水の分析結果は、ルテニウムイオン濃度は０．０１～０．１９ｍｇ／Ｌであった。

【００６２】
ルテニウムイオンの除去性能を図４に示す。図４において、横軸は吸着剤の体積に対して何倍量の模擬汚染海水を通水したのかを示すＢ．Ｖ．であり、縦軸はカラム出口のルテニウムイオン濃度（Ｃ）をカラム入口のルテニウムイオン濃度（C_0）でそれぞれ除した値である。

【００６３】
図４より、Ｂ．Ｖ．２５００程度までルテニウムをほぼ１００％吸着除去することができ、Ｂ．Ｖ．９０００程度までルテニウムをほぼ８０％吸着除去することができることがわかる。

【００６４】
［実施例６］
＜模擬汚染海水６の調製＞
以下の手順にて、福島第一原発の汚染水を模擬した非放射性ヨウ素酸イオンを含む模擬汚染水を調製した。

【００６５】
まず、ダイヤソルト株式会社の並塩の塩分濃度が０．３ｗｔ％になるように水溶液を作成した。そこに、セシウム濃度が１ｍｇ／Ｌとなるように塩化セシウムを添加し、ストロンチウム濃度が１０ｍｇ／Ｌになるように塩化ストロンチウムを添加し、カルシウム濃度が４００ｍｇ／Ｌになるように塩化カルシウムを添加し、マグネシウム濃度が４００ｍｇ／Ｌになるように塩化マグネシウムを添加し、ヨウ素酸イオン濃度が１０ｍｇ／Ｌになるようにヨウ素酸ナトリウムを添加して、共存イオンとして高濃度の塩化物イオン、セシウムイオン、ストロンチウムイオン、マグネシウムイオン、カルシウムイオン、ナトリウムイオンを含む模擬汚染海水６を調製した。模擬汚染海水６の一部を採取して、ＩＣＰ－ＭＳにより分析したところ、ヨウ素酸イオン濃度は９．７２～１０．９７ｍｇ／Ｌ、であった。

【００６６】
製造例２及び製造例３で調製した粒径３００μｍ以上６００μｍ以下の吸着剤Ｂ及びＣ　２０ｍｌをそれぞれ内径１６ｍｍのガラスカラムに１０ｃｍの層高となるように充填し、模擬汚染海水４を６７ｍｌ／ｍｉｎの流量（通水線流速２０ｍ／ｈ、空間速度２００h^{-1}）で通水し、出口水を定期的に採取してヨウ素酸イオン濃度を測定した。なお出口水の分析結果は、ヨウ素酸イオン濃度は０．０６～８．８９ｍｇ／Ｌであった。

【００６７】
ヨウ素酸イオンの除去性能を図５に示す。図５において、横軸は吸着剤の体積に対して何倍量の模擬汚染海水を通水したのかを示すＢ．Ｖ．であり、縦軸はカラム出口のヨウ素

酸イオン濃度（Ｃ）をカラム入口のヨウ素酸イオン濃度（C_0）でそれぞれ除した値である。

【００６８】

図５より、リン酸銀５ｗｔ％を含む吸着剤（図５中「▲」で示す）はＢ．Ｖ．４０００程度までヨウ素酸イオンをほぼ１００％の吸着除去でき、リン酸銀１０ｗｔ％を含む吸着剤（図５中「○」で示す）はＢ．Ｖ．２５００程度までヨウ素酸イオンをほぼ１００％吸着除去できることがわかる。

【００６９】

［実施例７］

＜模擬汚染海水７の調製＞

以下の手順にて、福島第一原発の汚染水を模擬した非放射性ヨウ化物イオンを含む模擬汚染水７を調製した。

【００７０】

まず、ダイヤソルト株式会社の並塩の塩分濃度が０．３ｗｔ％になるように水溶液を作成した。そこに、セシウム濃度が１ｍｇ／Ｌとなるように塩化セシウムを添加し、ストロンチウム濃度が１０ｍｇ／Ｌになるように塩化ストロンチウムを添加し、カルシウム濃度が４００ｍｇ／Ｌになるように塩化カルシウムを添加し、マグネシウム濃度が４００ｍｇ／Ｌになるように塩化マグネシウムを添加し、ヨウ化物イオン濃度が１０ｍｇ／Ｌになるようにヨウ化ナトリウムを添加して、共存イオンとして高濃度の塩化物イオン、セシウムイオン、ストロンチウムイオン、マグネシウムイオン、カルシウムイオン、ナトリウムイオンを含む模擬汚染海水７を調製した。模擬汚染海水７の一部を採取して、ＩＣＰ－ＭＳにより分析したところ、ヨウ化物イオン濃度は７．８８～９．７３ｍｇ／Ｌであった。

【００７１】

製造例２及び製造例３で調製した粒径３００μｍ以上６００μｍ以下の吸着剤Ｂ及びＣ２０ｍｌをそれぞれ別個の内径１６ｍｍのガラスカラムに１０ｃｍの層高となるように充填し、模擬汚染海水６を６７ｍｌ／ｍｉｎの流量（通水線流速２０ｍ／ｈ、空間速度２００h^{-1}）で通水し、出口水を定期的に採取してヨウ化物イオン濃度を測定した。なお出口水の分析結果は、ヨウ化物イオン濃度は０．０３～８．９８ｍｇ／Ｌであった。

【００７２】

ヨウ化物イオンの除去性能を図６に示す。図６において、横軸は吸着剤の体積に対して何倍量の模擬汚染海水を通水したのかを示すＢ．Ｖ．であり、縦軸はカラム出口のヨウ化物イオン濃度（Ｃ）をカラム入口のヨウ化物イオン濃度（C_0）でそれぞれ除した値である。

【００７３】

図６より、リン酸銀５ｗｔ％を含む吸着剤Ｂ（図６中「▲」で示す）はＢ．Ｖ．３０００程度までヨウ化物イオンをほぼ１００％の吸着除去でき、リン酸銀１０ｗｔ％を含む吸着剤Ｃ（図６中「○」で示す）はＢ．Ｖ．５０００程度までヨウ化物イオンをほぼ１００％吸着除去できることがわかる。

【００７４】

［実施例８］

＜模擬汚染海水８の調製＞

以下の手順にて、福島第一原発の汚染水を模擬した非放射性ルテニウムイオンを含む模擬汚染水を調製した。

【００７５】

大阪薬研株式会社の人工海水製造用薬品であるマリンアートＳＦ－１（塩化ナトリウム２２．１ｇ／Ｌ、塩化マグネシウム六水和物９．９ｇ／Ｌ、塩化カルシウム二水和物１．５ｇ／Ｌ、無水硫酸ナトリウム３．９ｇ／Ｌ、塩化カリウム０．６１ｇ／Ｌ、炭酸水素ナトリウム０．１９ｇ／Ｌ、臭化カリウム９６ｍｇ／Ｌ、ホウ砂７８ｍｇ／Ｌ、無水塩化ストロンチウム０．１９ｇ／Ｌ、フッ化ナトリウム３ｍｇ／Ｌ、塩化リチウム１ｍｇ／Ｌ、ヨウ化カリウム８１μｇ／Ｌ、塩化マンガン四水和物０．６μｇ／Ｌ、塩化コバルト六水

和物２μｇ／Ｌ、塩化アルミニウム六水和物８μｇ／Ｌ、塩化第二鉄六水和物５μｇ／Ｌ、タングステン酸ナトリウム二水和物２μｇ／Ｌ、モリブデン酸アンモニウム四水和物１８μｇ／Ｌ）を用いて塩分濃度が０．３ｗｔ％になるように水溶液を作成した。そこに、ルテニウムイオンが１ｍｇ／Ｌとなるように塩化ルテニウムを添加し、さらに塩酸を用いてｐＨを３に調整し、模擬汚染海水８を調製した。模擬汚染海水８の一部を採取して、ＩＣＰ－ＭＳにより分析したところ、ルテニウムイオン濃度は０．９０～１．０９ｍｇ／Ｌであった。

【００７６】

製造例４で調製した粒径３００～６００μｍの吸着剤Ｄ　２０ｍｌ及び水酸化セリウム（ＩＶ）のみをそれぞれ別個の内径１６ｍｍのガラスカラムに１０ｃｍの層高となるように充填し、模擬汚染海水８を６７ｍｌ／ｍｉｎの流量（通水線流速２０ｍ／ｈ、空間速度２００h^{-1}）で通水し、出口水を定期的に採取してルテニウムイオン濃度を測定した。なお出口水の分析結果は、ルテニウムイオン濃度は０．００～０．４４ｍｇ／Ｌであった。

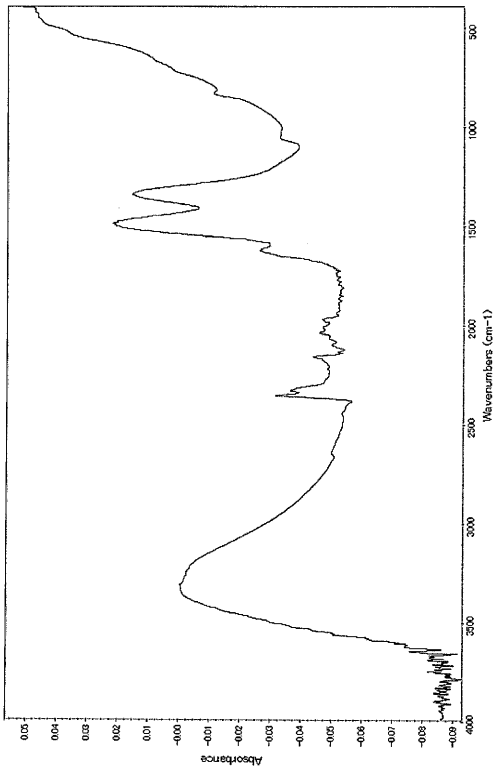
【００７７】

ルテニウムイオンの除去性能を図７に示す。図７において、横軸は吸着剤の体積に対して何倍量の模擬汚染海水を通水したのかを示すＢ．Ｖ．であり、縦軸はカラム出口のルテニウムイオン濃度（Ｃ）をカラム入口のルテニウムイオン濃度（C_0）でそれぞれ除した値である。

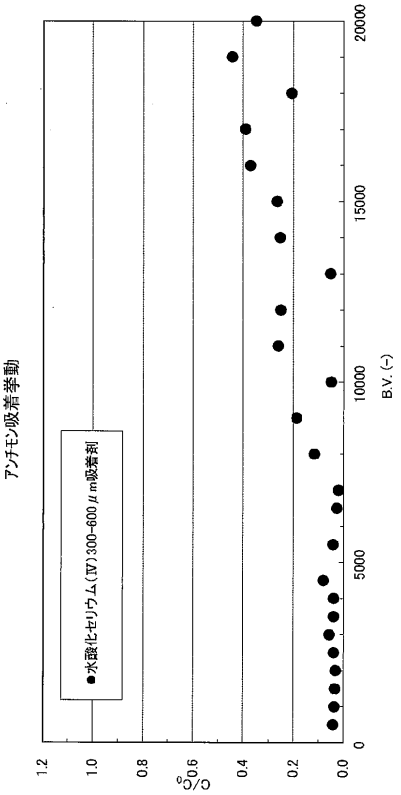
【００７８】

図７より、水酸化セリウム（Ｖ）だけの場合（図７中「△」で示す）と比較して、水酸化セリウム（Ｖ）とリン酸銀５ｗｔ％と二酸化マンガン５ｗｔ％とを含む吸着剤Ｄ（図７中「●」で示す）のルテニウム吸着性能が向上していることがわかる。

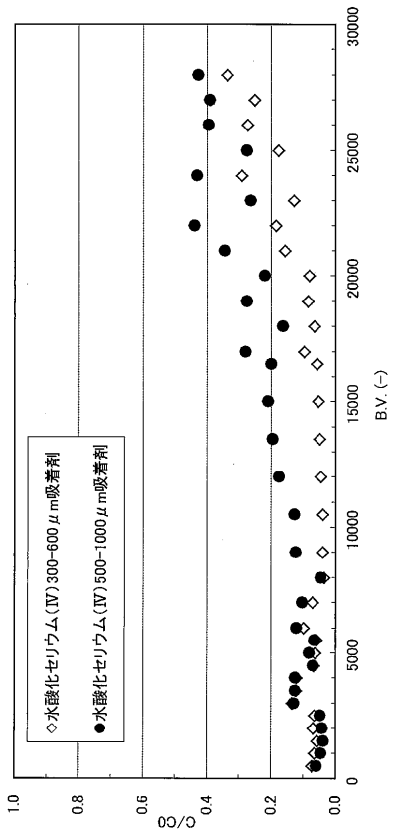
【図１】



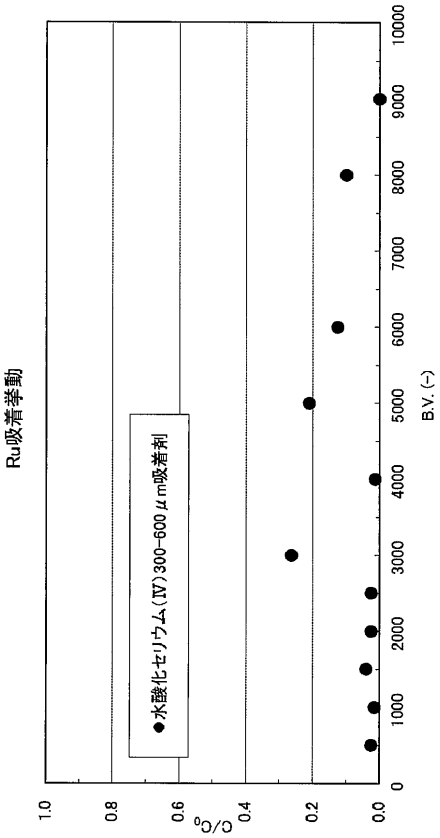
【図２】



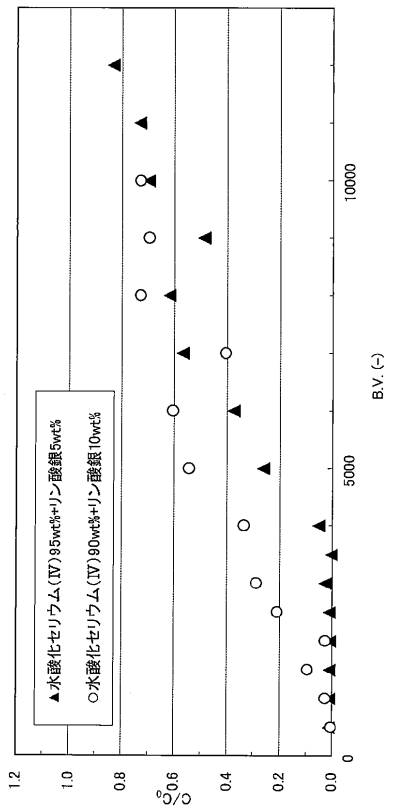
【図３】


ヨウ素酸吸着挙動
◇水酸化セリウム(IV)300-600μm吸着剤
●水酸化セリウム(IV)500-1000μm吸着剤
C/C0
B.V. (-)

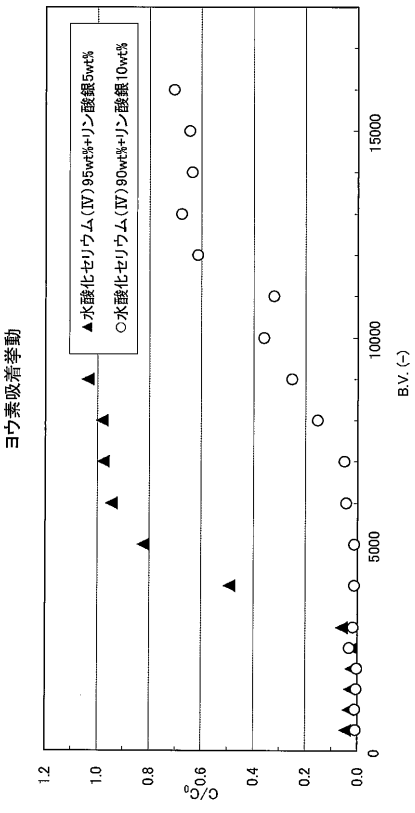
【図４】


Ru吸着挙動
●水酸化セリウム(IV)300-600μm吸着剤
C/C0
B.V. (-)

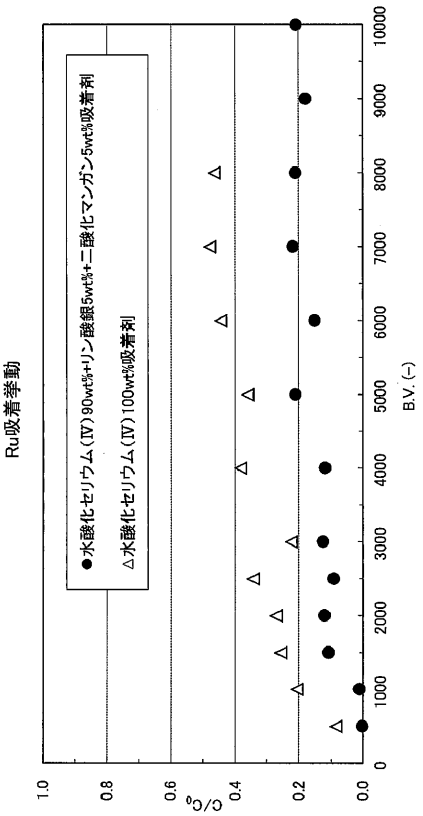
【図５】


ヨウ素酸吸着挙動
▲水酸化セリウム(IV)95wt%+リン酸銀5wt%
○水酸化セリウム(IV)90wt%+リン酸銀10wt%
C/C0
B.V. (-)

【図６】


ヨウ素吸着挙動
▲水酸化セリウム(IV)95wt%+リン酸銀5wt%
○水酸化セリウム(IV)90wt%+リン酸銀10wt%
C/C0
B.V. (-)

【図７】


Ru吸着挙動
●水酸化セリウム(IV)90wt%+リン酸銀5wt%+二酸化マンガン5wt%吸着剤
△水酸化セリウム(IV)100wt%吸着剤
C/C0
B.V. (-)
0.0
0.2
0.4
0.6
0.8
1.0
0
1000
2000
3000
4000
5000
6000
7000
8000
9000
10000

フロントページの続き

(72)発明者　小松　誠
東京都大田区羽田旭町１１番１号　株式会社荏原製作所内
(72)発明者　出水　丈志
東京都大田区羽田旭町１１番１号　株式会社荏原製作所内
(72)発明者　宮部　慎介
東京都江東区亀戸９丁目１１番１号　日本化学工業株式会社内
(72)発明者　木ノ瀬　豊
東京都江東区亀戸９丁目１１番１号　日本化学工業株式会社内
(72)発明者　佐藤　清
東京都江東区亀戸９丁目１１番１号　日本化学工業株式会社内
(72)発明者　小指　健太
東京都江東区亀戸９丁目１１番１号　日本化学工業株式会社内
(72)発明者　徳武　茉里
東京都江東区亀戸９丁目１１番１号　日本化学工業株式会社内
(72)発明者　坂本　剛
東京都江東区亀戸９丁目１１番１号　日本化学工業株式会社内
(72)発明者　杉原　かおり
東京都江東区亀戸９丁目１１番１号　日本化学工業株式会社内

Ｆターム(参考) 4G066 AA12B AA26B AA50B AA53A BA09 BA20 CA12 CA31 CA46 DA08
FA37