研究課題番号: ZB-1206

課題名・放射能汚染土壌の除染実用化

技術の開発

研究代表者名: 逸見彰男

所属 : 愛媛大学

研究実施期間: 平成24~25年度

累積予算額 : 72,320 千円



研究体制

(1) 磁性Na-P1ゼオライトの製造条件検証

愛媛大学 農学部 逸見彰男 愛媛大学 大学院理工学研究科 青野宏通

(2) 放射性土壌分離用磁選機の開発

愛媛大学 農学部 松枝直人 愛媛大学 大学院理工学研究科 青野宏通



研究開発目的

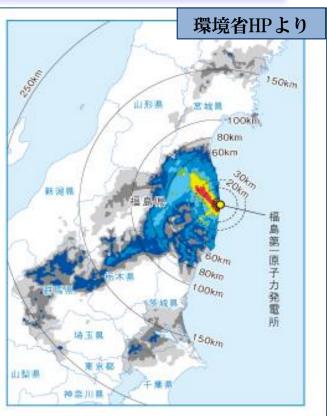
背景

東日本大震災により福島第一原子力発電所から飛散した放射性Csが土壌などを汚染している

現狀

- ・表土の削り取り
- ・ 建造物の洗浄





本質的な土壌からの除染方法がない



「磁化ゼオライト」を用いた新規除染方法について検討した



説明内容

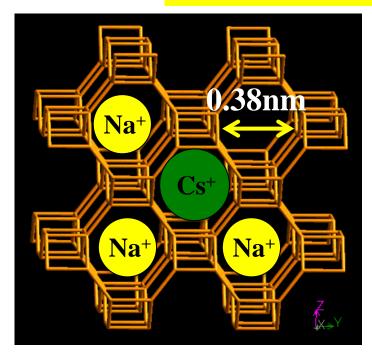
- 1. 磁化Na-P1ゼオライトの合成方法と性能
- 2. 磁選機の開発
- 3. 現地実証試験の結果
- 4. より性能の高い磁化ゼオライトの開発
- 5. まとめ



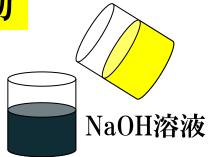
1. 磁化Na-P1ゼオライトの合成方法と性能

Na-P1型人工ゼオライト:石炭火力発電所焼却灰(国内800万t/年)を原料として安価な合成が可能である・・・優れたイオン交換能力をもつ Cs+>K+>Na+









100℃24時間加熱還流



Na-P1ゼオライト

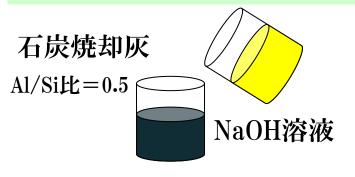
CEC : 300cmol/kg以上

粒径 : 数マイクロ

コスト : 150円/kg

ゼオライト-マグネタイト複合材料の合成

Na-P1型ゼオライトの合成



100℃24時間加熱還流



Na-P1ゼオライト

マグネタイト(磁石)の合成



<u>マグネタイト(Fe₃O₄)ナノ微粒子</u>

ほとんど同じ合成法



ゼオライト-マグネタイト複合材料(以下、磁化ゼオライトとする)の生成



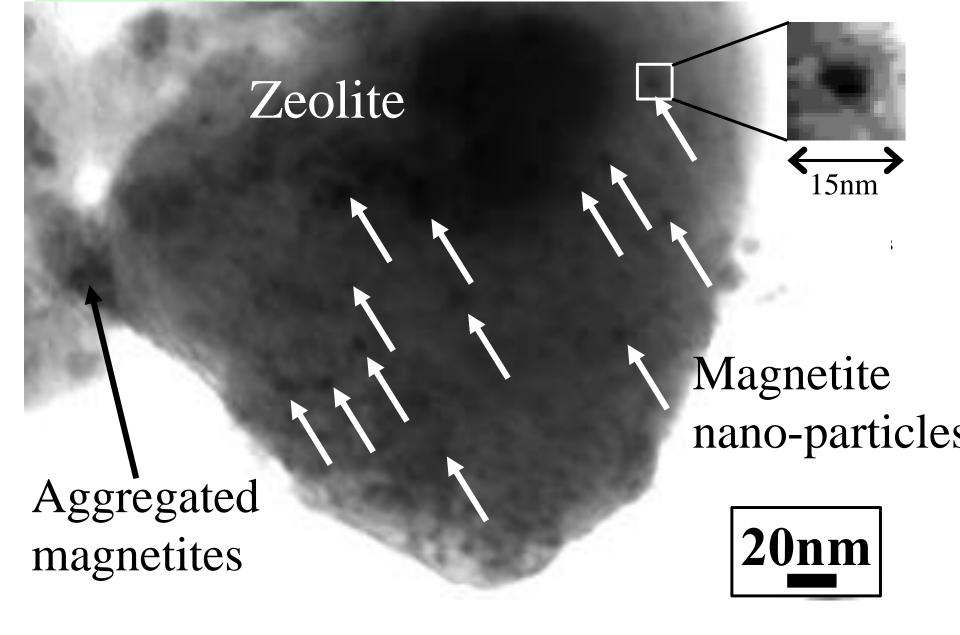


図1 磁化ゼオライトのTEM観察



く使用方法>





- 1. 土壌(水田)に散布
- 2. Csをゼオライトに固定

農作物への吸収を制御

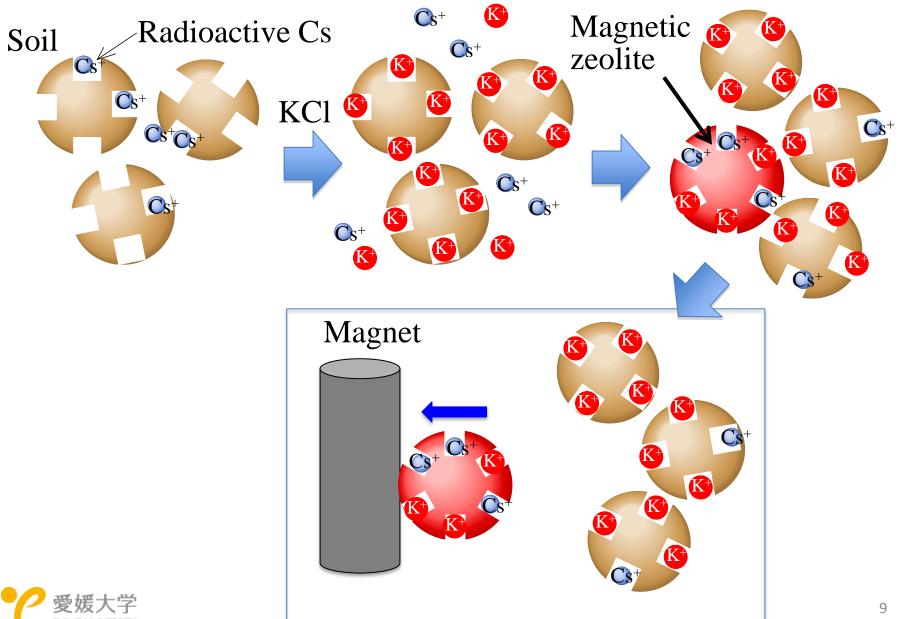


Cs吸着磁化ゼオライトを回収





除染の流れ





汚染土壌に使用した磁化ゼオライト







オートクレープ

脱水・洗浄用フィルタプレス

排水処理設備

各50~100kg製造(永井機械鋳造株式会社)



大量合成による性能確認及び製造方法の確立を行なった

優れた陽イオン交換能及び磁場回収率を有する、16%マグネタイト-ゼオライト時間差合成複合材料にて現地実証試験を行なった



2. 磁選機の開発

H25年度 (2号機)

①被処理品(土壌)の調整

土を 耕す 水と 混合 採取· 夾雑物 除去 ②被処理品からの Csの移行(吸着)

磁化 セオライト 添加

Cs遊離 ・吸着 ③非処理品中の磁化 ゼオライト分離回収

磁化 セオライト 吸着回収

放射線 検査・ リターン/

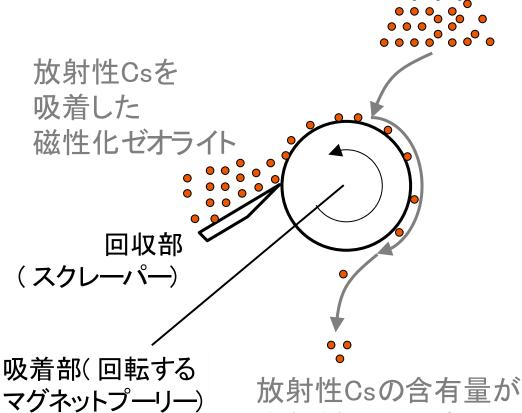


磁選ユニット(磁選機)

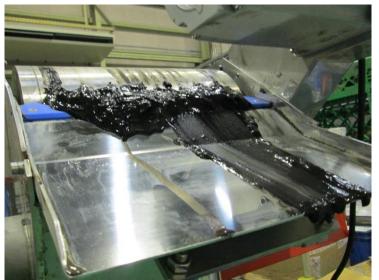


放射性Csを吸着した 磁性化ゼオライトが 混じった水田の泥水

少なくなった泥水





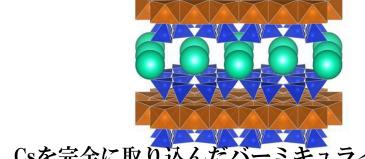


3. 現地実証試験の結果

使用した各種土壌の組成

	川俣	飯館	南相馬
放射能 (Bq/kg)	1000~2000	12000~16000	1000~2000
粘土鉱物の割合(%)	16	17	14
粘土鉱物の組成	84% カオリナイト 及び1:1粘土鉱物 10% バーミキュラ イト 7% 雲母	63% カオリナイト 及び1:1粘土鉱物 33% バーミキュラ イト 4% 雲母	50% カオリナイト 及び1:1粘土鉱物 48% バーミキュラ イト 1% 雲母





Csを完全に取り込んだバーミキュライトの構造 (東邦大学 山岸晧彦 先生)





磁力選別



複数回磁選操作を 繰り返すことによ り放射性セシウム は約80%除去

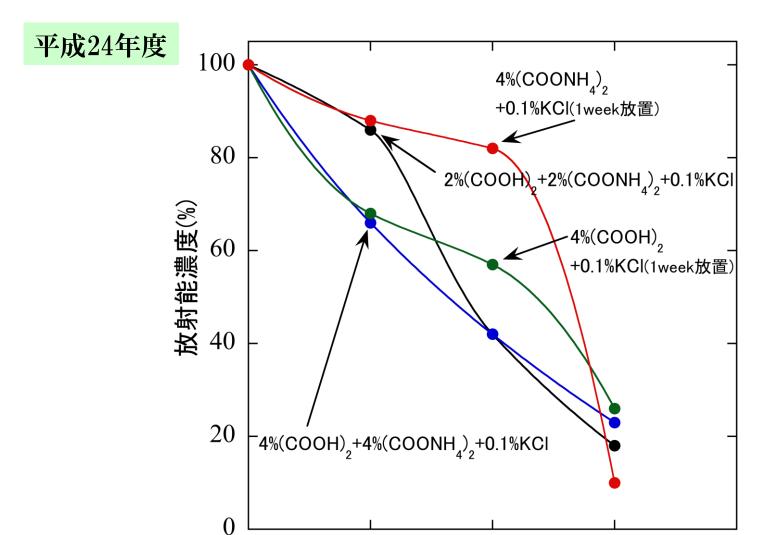




セシウム吸着磁化ゼオライト



浄化土壌

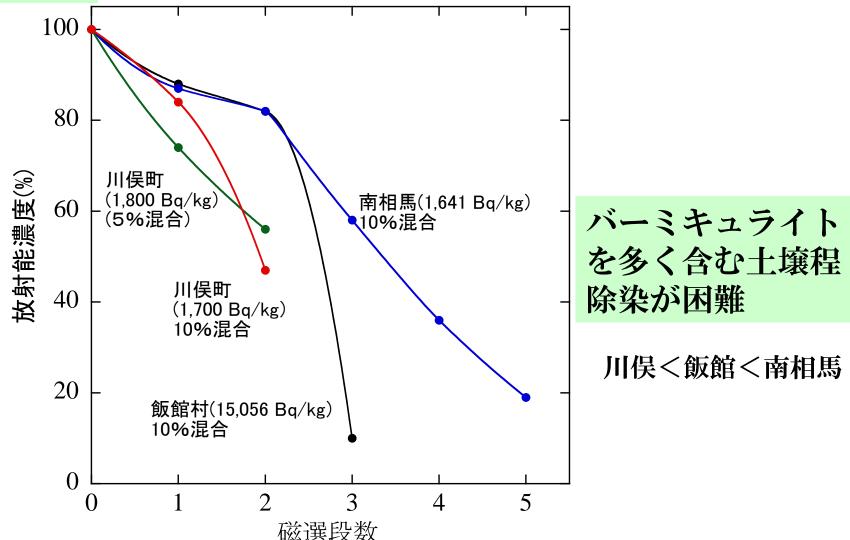


福島県飯館村の土壌(12,000~16,000 Bq/kg)における、磁化ゼオライトを用いた磁 選段数による放射能濃度変化(溶出助剤の種類を図内に示した)

磁選段数



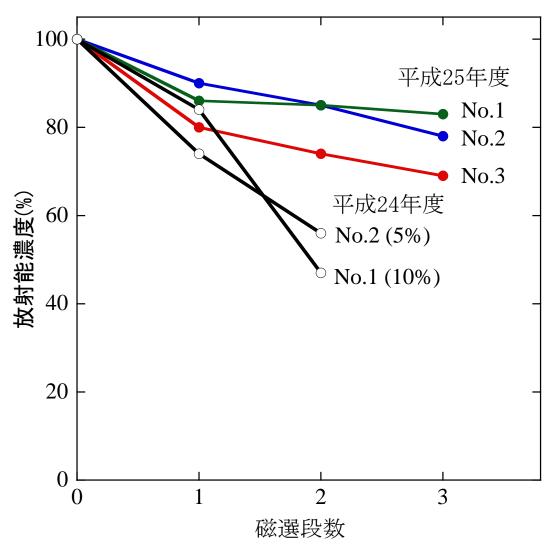
平成24年度



磁選段数 各種土壌における磁化ゼオライトを用いた磁選回数による放射能濃度変化 (溶出助剤は4%(COONH₄)₂+0.1%KClに統一) (磁化ゼオライトの混合%を図内に示した)



平成25年度



川俣土壌における磁化ゼオライトを用いた磁選回数による放射能濃度変化における平成24年度と25年度の比較(磁化ゼオライトの混合%は全て10%であるが、平成24年度には5%の結果も示した)



4. より性能の高い磁化ゼオライトの開発

[Na-P1型]

組成: Na₆Al₆Si₁₀O₃₂] · 12H₂O

細孔径が約0.38nm

人工的に合成される

CEC: 300 cmol/kg以上

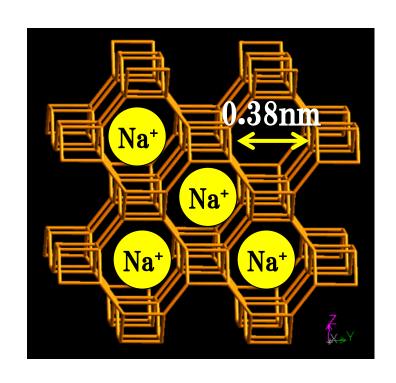
[モルデナイト]

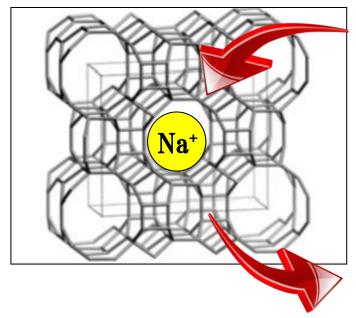
組成: Na₈[Al₈Si₄₀O₉₆] • 24H₂O

細孔径が約0.65nm

天然で産出される

CEC: 約200 cmol/kg







合成した磁化モルデナイトの性質

セシウム吸着率

磁選回収

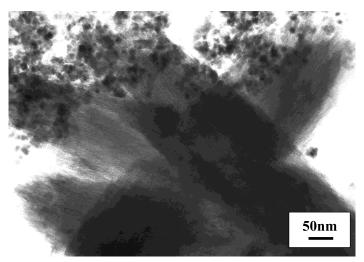
海水

磁化モルデナイトーー

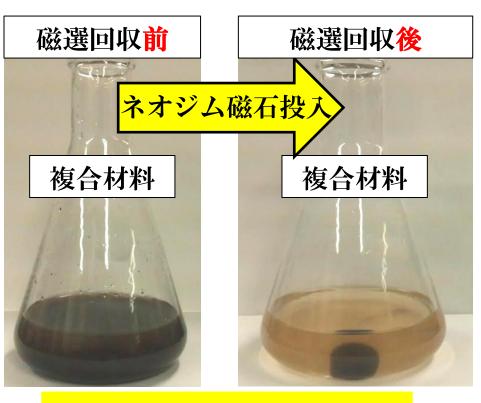
磁化Na-P1ゼオライト→

約80%

約40%

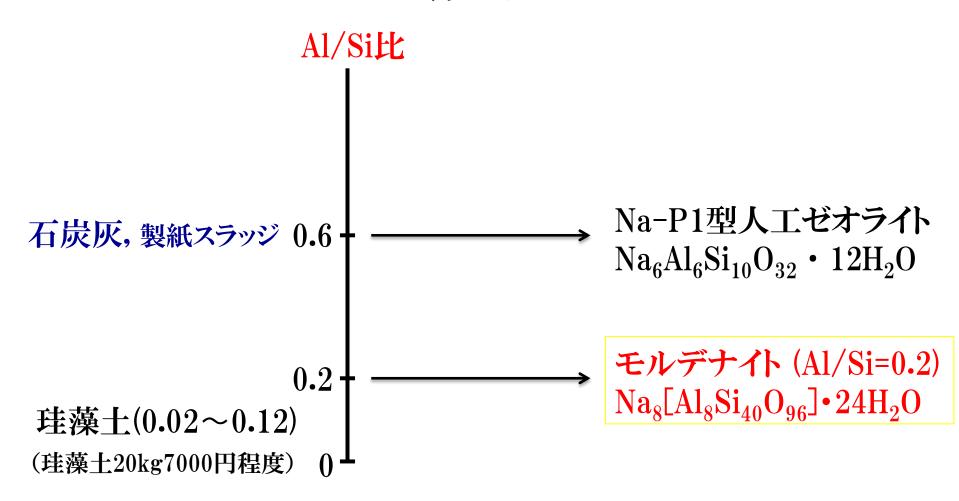


磁化モルデナイトのTEM写真



磁場回収率90%以上

各種ゼオライトの合成方法



より安価な原料が求められる



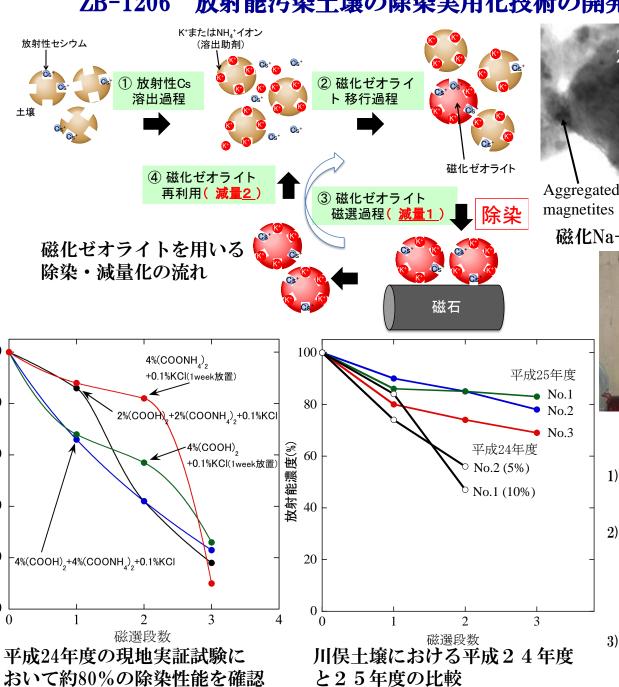
石炭灰や籾殻焼却灰の使用?

5. まとめ

- (1) 磁化Na-P1型ゼオライトについて、ゼオライトとマグ ネタイトナノ微粒子が一体型複合材料となっているこ とを確認した。
- (2) 磁化Na-P1型ゼオライトにより、優れた汚染土壌からの放射性セシウム除去効果が確認できた。また、再使用による減量化も可能であることがわかった。しかし、平成25年度では除染効率が低下した。放射性Csの土壌への固着状態の変化が懸念される。
- (3) セシウム選択性がより優れたモルデナイトの人工合成及びマグネタイト複合化に成功した。



ZB-1206 放射能汚染土壌の除染実用化技術の開発(愛媛大学)



100

80

放射能濃度(%) 40 99

0

磁化Na-P1型人工ゼオライトのTEM写真

Zeolite



Magnetite nano-particles

20nm

開発された磁選機

- 1) 磁化Na-P1型ゼオライトについて、ゼオラ イトとマグネタイトナノ微粒子が一体型複 合材料となっていることを確認した。
- 2) 磁化Na-P1型ゼオライトにより、優れた汚染土壌からの放射性セシウム除去効果が確認できた。また、再使用による減量化も可能であることがわかった。しかし、平成25年度では除染効率が低下した。放射性Csの土壌への固着状態の変化が懸念される。
- 3) セシウム選択性がより優れたモルデナイト の人工合成及びマグネタイト複合化に成功 した。