

JRSM 6月シンポジウム(郡山) 2013.5.13-5.14

粘土鉱物のセシウム吸着と 土壌の汚染除去

Adsorption of cesium Ion on Various Clay Minerals and Remediation of
Cesium Contaminated Soil in Japan

(東大院工)

藤田豊久、王立邦、藪井耕史、トドビバ・
ジョルジ、岡屋克則、野村貴美

Toyohisa Fujita, Li Pang Wang, Koji Yabui, Gjergj Dodbiba,
Katsunori Okaya, Seiji Matsuo, and Kiyoshi Nomura
School of Engineering, The University of Tokyo

研究内容

- 2011年3.11の東日本大震災の後に起きた福島第1原子力発電所の事故によって一般環境に放射能汚染をもたらした。その汚染土壌と落ち葉の、中間貯蔵施設に格納すべき量は2900万 m^3 にも達すると推測されている。
- この研究では、様々な鉱物へのセシウム(Cs)吸着能を明らかにするとともに、セシウム(Cs)汚染土壌の中間貯蔵量を少なくするために汚染土壌の洗浄とふるい分けを実験的に試みた。その結果を示す。

放射線量の分布

文部科学省 2011. 12.16

Fig.1 Distribution of Cesium-134 and 137 of East Japan.

It has been estimated that as much as 29 million m³ of soil and fallen leaves should be removed and stored in interim storage facilities. (Oct. 13th, 2012, Asahi Shinbun)

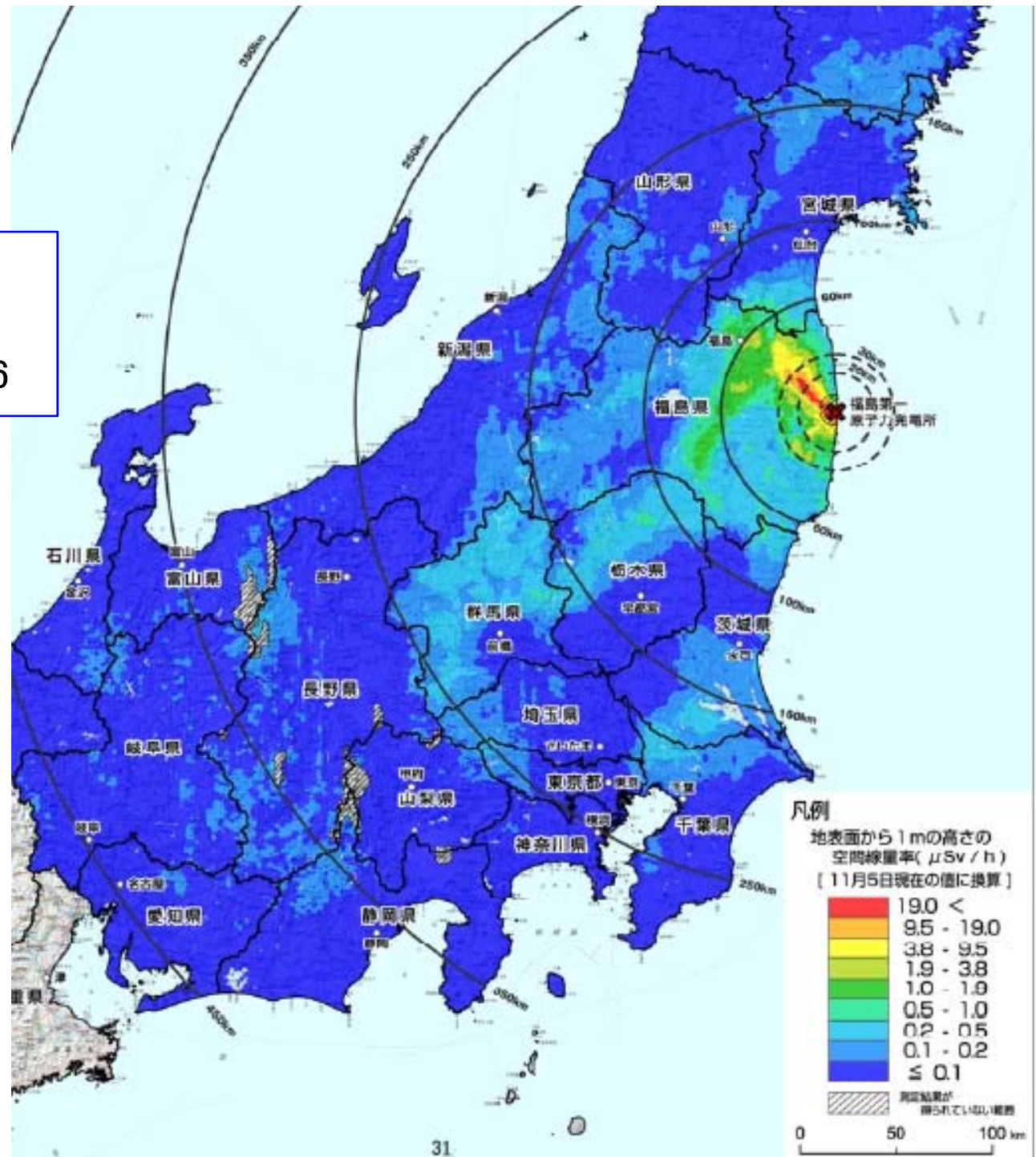
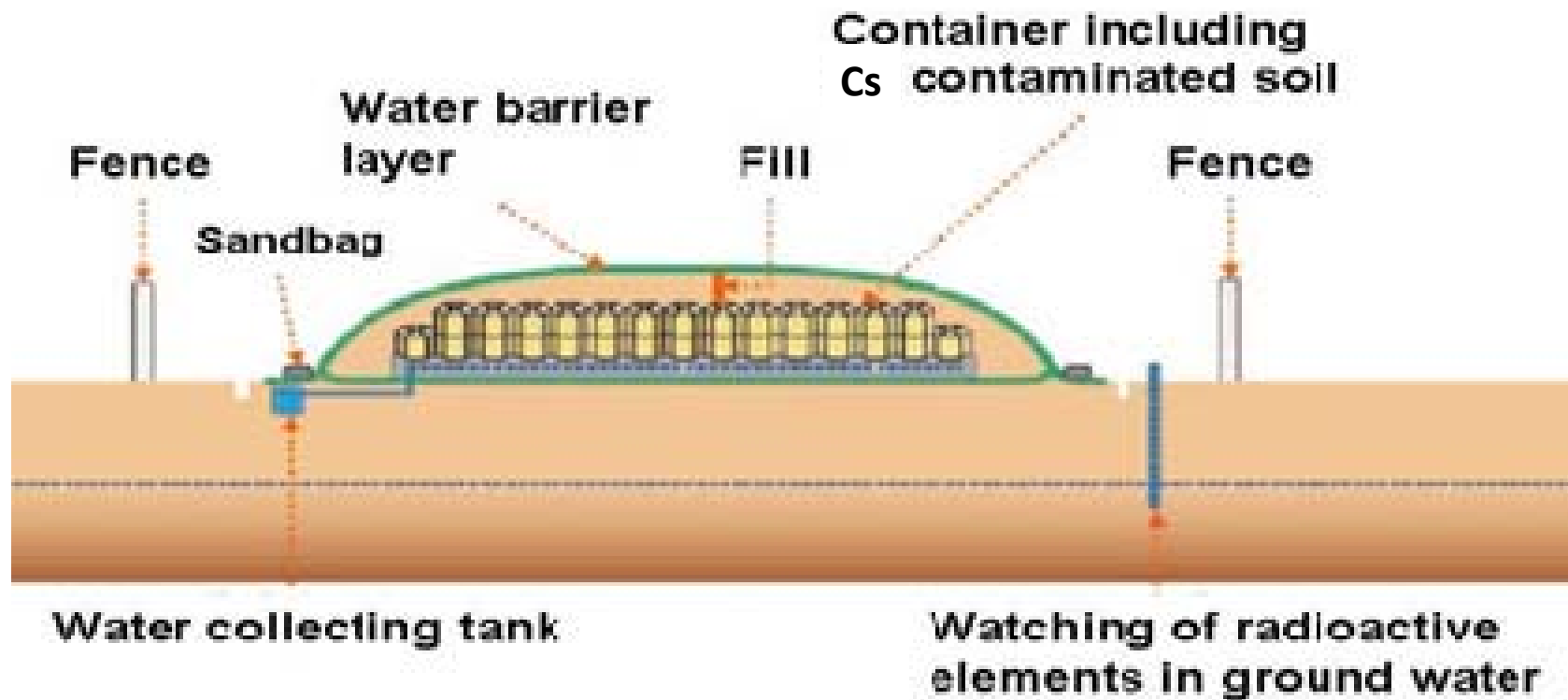


Fig.2 Concept for safe keeping facility of Cs contaminated soil
(From the Ministry of the Environment in Japan)



汚染土壌の粒度分離と水洗

Fig.3 The flow sheet for washing of Cs contaminated soil

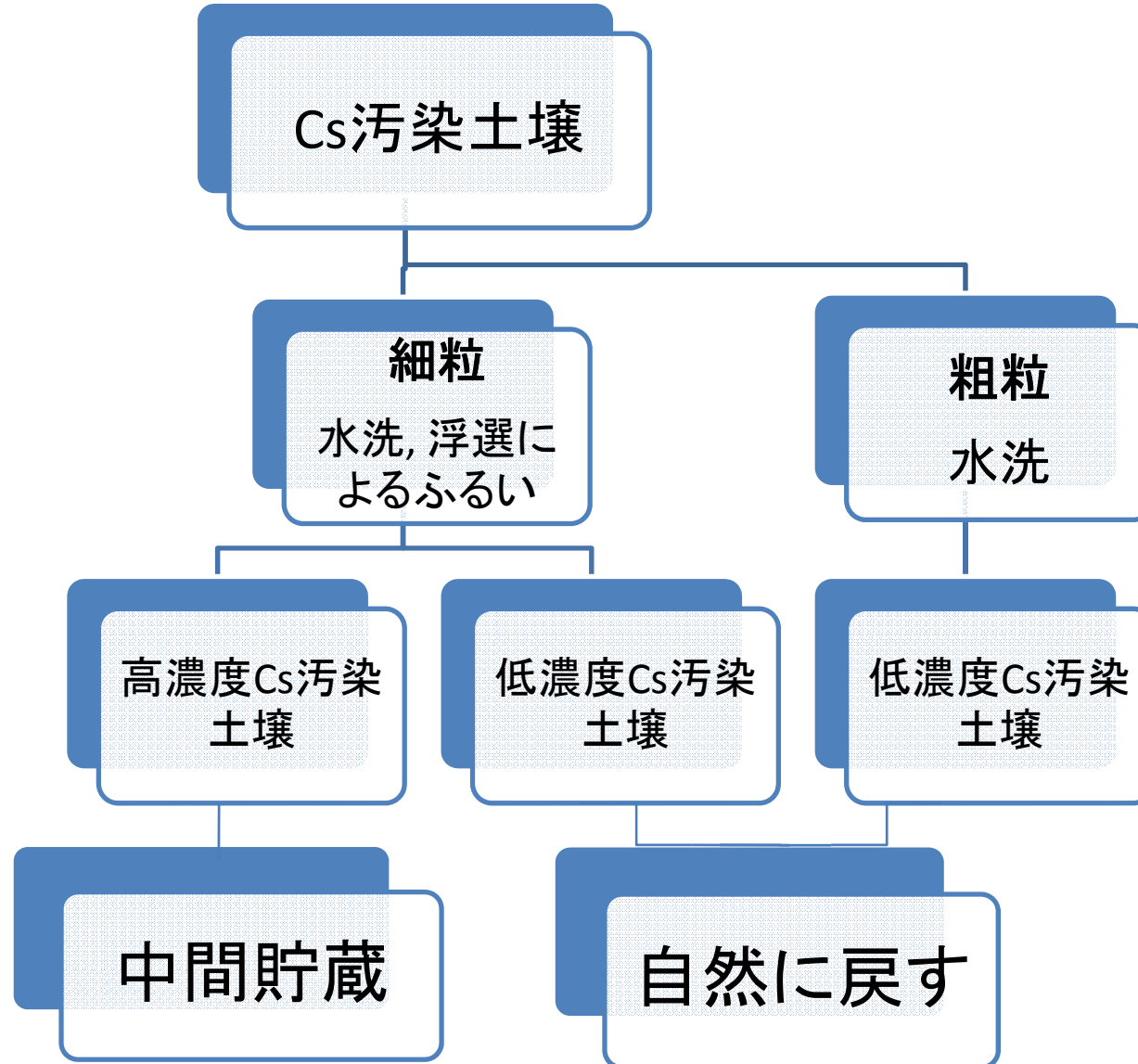
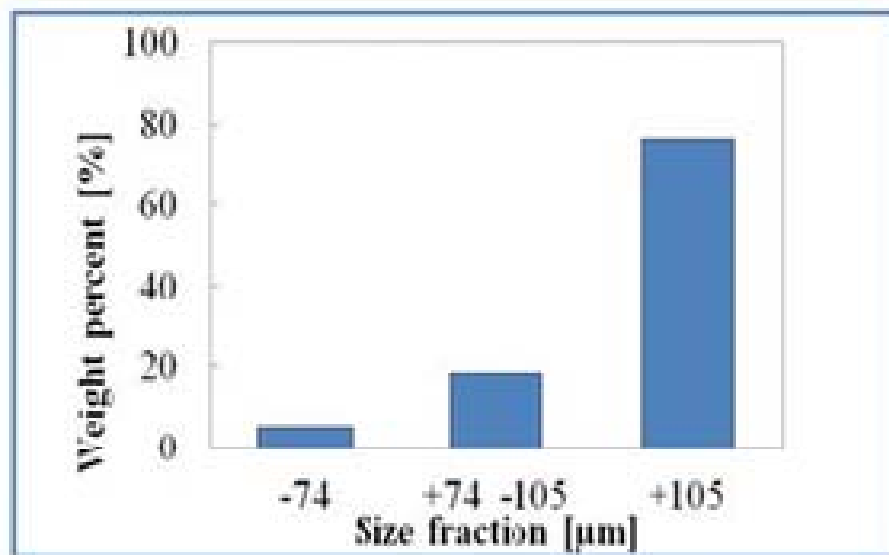
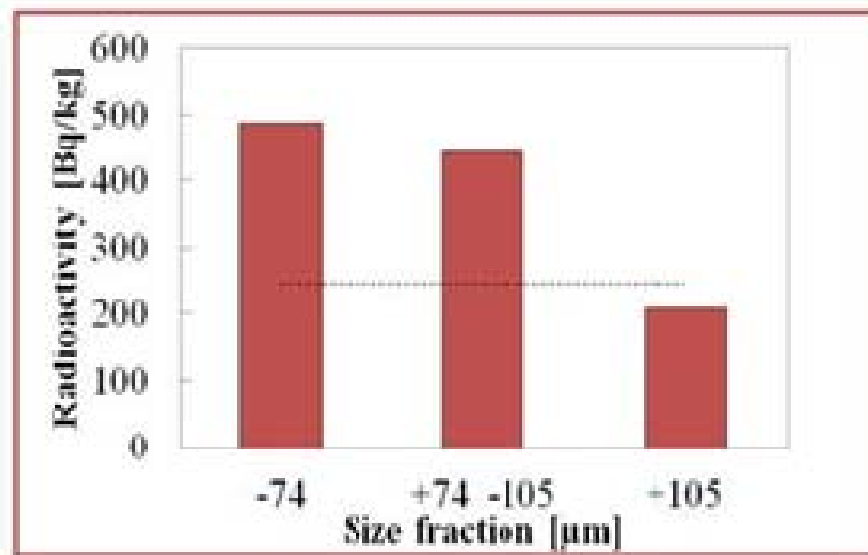


Fig.4 Sieving result of radioactivity of as received Cs contaminated soil



(a) Size fraction weight of soil

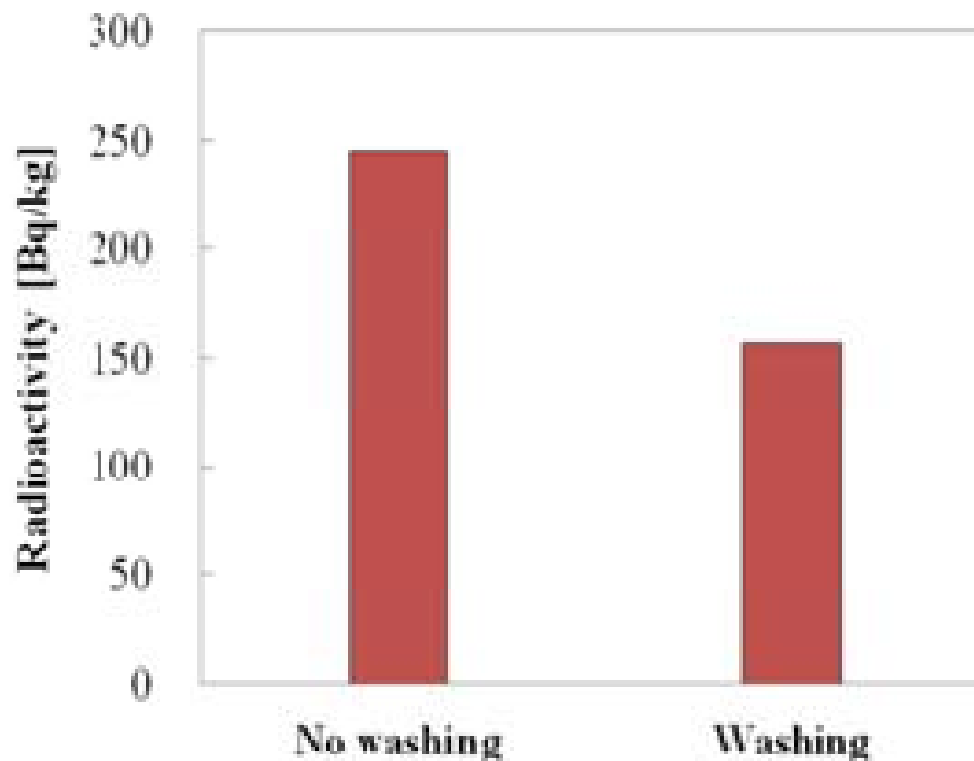


(b) Radioactivity of each soil fraction

土壤の粒度分布と比放射能

- 東和町の畑の土壤を105μm以上、105-74μm、74μm以下の粒子に分けてCs-134とCs-137の合計比放射能を測定した。
- 105μm以上の粒子とその比放射能は、約80%、200Bq/kg以下、105-74μmの粒子では、約16%、約450Bq/kg、74μm以下の粒子では、約4%、480Bq/kgであった。

Fig.5 Washing by water of as-received Cs contaminated soil.
(Water temperature 288K, Dried soil after one hour stirring)



水洗によって放射能を約60%に減少させることができる。
水洗後の水溶性Csイオンは、ゼオライトやプルシャンブルー類似錯体で取り除くことができる。

Table 1 Chemical components of various materials used for Cs adsorption

Zeolite	SiO_2	Al_2O_3	CaO	Fe_2O_3	K_2O
	70 %	12	2	2	2
Biotite	$\text{K}(\text{Mg,Fe})_3\text{AlSi}_3\text{O}_{10}(\text{OH,F})_2$				
Montmorillonite	$(\text{Na,Ca})_{0.33}(\text{Al,Mg})_2\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$				
Muscovite	$\text{KAl}_2 \times \text{AlSi}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2$				
Kaolinite	$\text{Al}_4\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_8$				
Magnetite	Fe_3O_4				
Sodium feldspar	$\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$				
Calcite	CaCO_3				
Hematite	Fe_2O_3				
Carbon from zelkova	C				
Quartz	SiO_2				

Fig.6 Langmuir and Freundlich isotherms:
adsorption of Cs by zeolite (Experimental conditions: Solution:
water; Adsorbent's dosage in solution: 0.1 g/L; Contact time; 120 min;
Initial pH: 7.5; Particle size: 74-149 μm ; Temperature: 288 K)

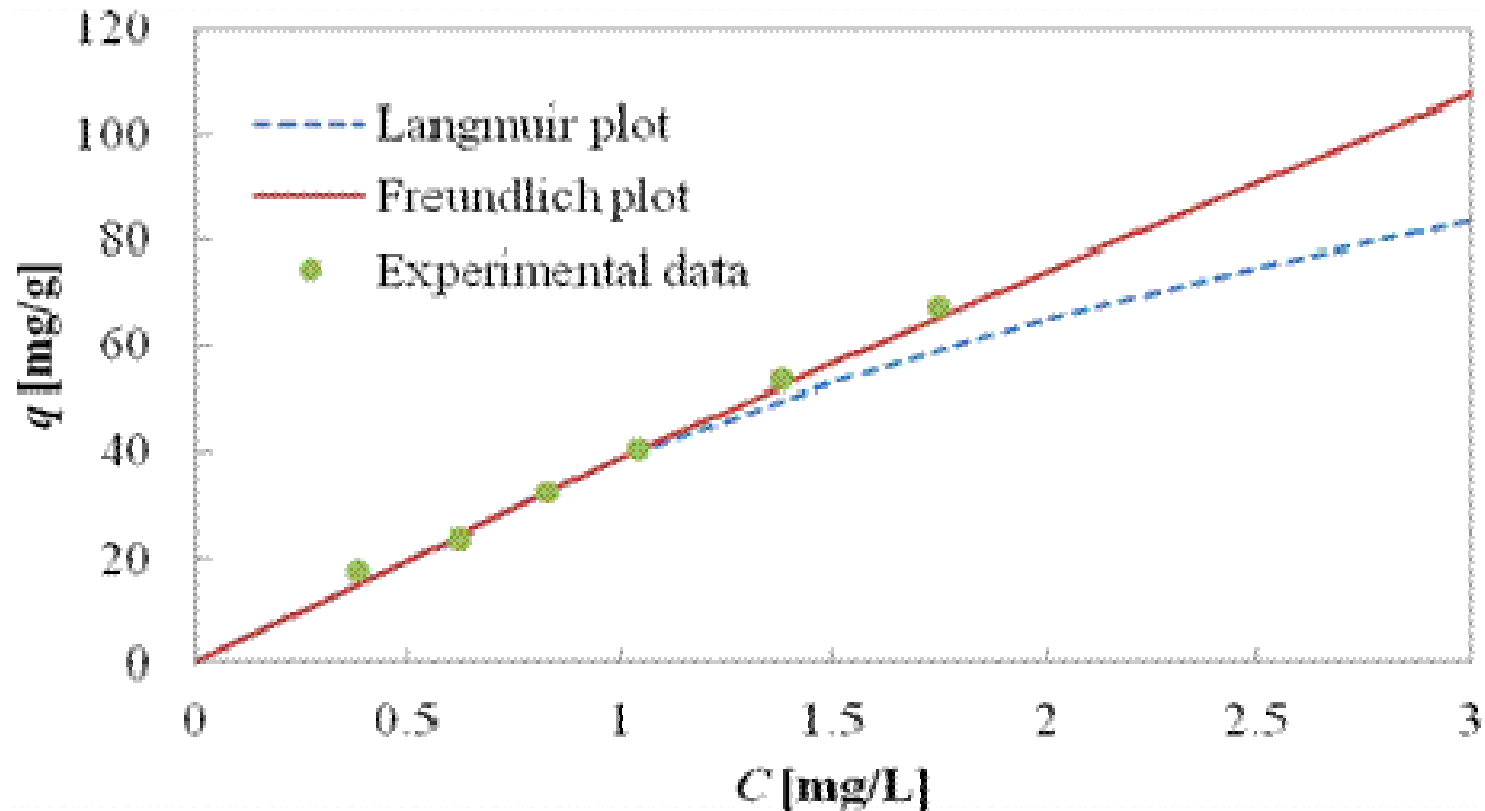


Fig.7 Langmuir and Freundlich isotherms: adsorption of Cs by biotite 黑雲母

(Experimental conditions: Solution: water; Adsorbent's dosage in solution: 0.1 g/L; Contact time; 120 min; Initial pH: 7.5; Particle size: 74-149 μm ; Temperature: 288 K)

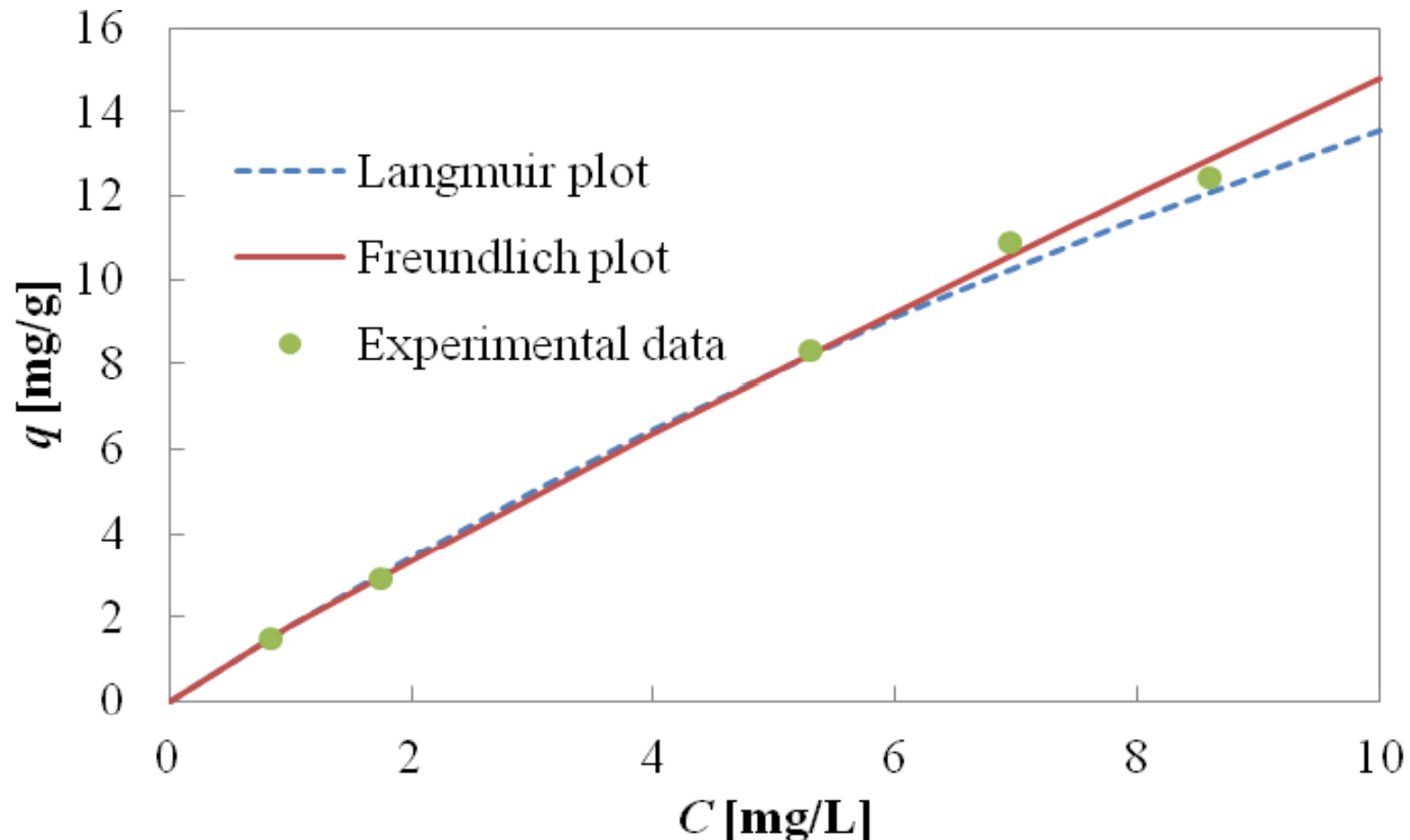


Table 2. Isotherm parameters obtained from adsorption of Cs using various minerals (Particle size :74-149 μm)

	Langmuir			Freundlich		
	R^2	q_{max} (mg/g)	K_a (L/mg)	R^2	$1/n$	K_F
Zeolite	0.972	196.1	0.268	0.973	0.920	39.1
Biotite	0.999	51.3	0.036	0.999	0.923	1.76
Montmorillonite	0.997	49.8	0.057	0.998	0.903	2.62
Muscovite	0.999	48.8	0.038	0.989	0.883	1.81
Kaolinite	0.996	37.0	0.088	0.989	0.814	2.99
Magnetite	0.999	36.5	0.080	0.991	0.806	2.79
Sodium feldspar	0.988	30.9	0.074	0.986	0.901	2.01
Calcite	0.973	29.9	0.108	0.981	0.885	2.71
Hematite	0.999	29.3	0.086	0.996	0.803	2.38
Carbon from zelkova	0.998	29.3	0.073	0.996	0.840	2.02
Quartz	0.993	13.2	0.149	0.995	0.710	1.75

鉍物の吸着能

- 吸着等温式によって鉍物の C_s の吸着能を評価。
- ゼオライトが最も高い吸着能を示し、つぎに、黒雲母、モンモリロナイトおよび白雲母の粘土鉍物の順に吸着能を示した。石英の吸着能は低い。

浮選による土壌の浄化について

- 土壌のサイズは $100\mu\text{m}$ 以下、パルプの密度は1重量%を含む。浮選条件は、pHは2.5、界面活性剤DAA(ジアセトンアルコール)とMIBC(メチルイソブチルカルビノール)を気泡材として使用し、その投与量は、 1kg/ton 。
- 弱酸性側で負に帯電している石英と正に帯電している沸石に正のドデシルアミン塩のような陽イオン性界面活性剤を添加することにより、石英は表面にアミンが付着して疎水性になり、泡について浮遊し、親水性の沸石と分離することができると予測される。

Table 3. Element analysis of froth and tailing in Cs contaminated soil collected from school grounds.

蛍光X線による元素分析

	Weight %	Al	Si	P	K	Ca	Ti	Mn	Fe
Froth	27.0	25.2	39.5	0.2	5.1	4.5	2.0	0.7	22.8
Tailing	73.0	22.3	46.5	0.3	4.8	8.7	1.5	0.6	15.3
As received soil	100	15.9	51.9	0.2	9.4	5.7	1.9	0.4	14.7

分離した成分の元素を蛍光X線分析により測定した結果を表3に示すと、残渣中のSiとCaの含有割合は、泡のものより大きい。一方、残渣のFeの含有割合は泡のものよりも小さい。

土壌の比重選別と浮選

- 石英とゼオライトの比重は、それぞれ2.6と1.8であるために水流で比重選鉱する場合、媒体としての水は1であるために、比重選鉱のためのしきい値 (concentration criteria) が $(2.6-1)/(1.8-1)=2$ となり、比重選鉱は粗い粒子にのみ適用できる。
- 一方、比放射能の高い105 μm 以下の微粒子の重量の割合は約20%で、その放射能が80%を占めるため、界面活性剤(陽イオン性)を添加して酸性側で負に帯電する石英のみを泡につけて浮遊させ、除去する浮選法による分離は有効であろう。
- 以上、浮選法を適用することによって汚染鉱物の微粒子を効果的に取り除くことができるので、粒径の粗い汚染土壌の放射能濃度が規制値以下になっていれば、貯蔵すべき汚染土壌の総重量を約1/5以下に減らすことができる。

This paper was published in the following Journal :

T. Fujita, et al, Resource Processing, 60: 13-17 (2013)