

(様式 3)

論 文 内 容 の 要 旨

氏 名 大城 優

論文題目：

Development of fibrous zeolite-polymer composites used for decontamination of radioactive cesium.

(放射性セシウム除染のためのゼオライト-ポリマー複合繊維の開発)

論文要旨：

2011年3月11日の東日本大震災に起因する原子力発電所事故により福島を中心とする東北、北関東の広範囲に拡散し、環境中に放出された放射性物質のうち長寿命の放射性セシウム (^{137}Cs) は、大震災後、6年経過経過した現在も人体に対する影響が懸念されている。本論文は Development of fibrous zeolite-polymer composite used for decontamination of radioactive cesium. (放射性セシウム除染のためのゼオライト-ポリマー複合繊維の開発) と題し、福島地域の放射性セシウム除染材料として開発した新規の材料に関して述べている。特に大震災直後、様々な放射性製紙有無の吸着材の研究として特にプルシアンブルー吸着材が多数報告されたが化学構造中のシアン化合物の二次汚染の懸念も多く、その実利用は未だ限定的である。震災後6年経過により、客土等の除染作業と自然浄化により福島県内での空間線量低減が多く地域で可能となり期間地域での安全安心の生活の確保と、大量の放射性廃棄物の中間貯蔵施設への運搬・貯蔵が新たな問題となっている。特に、ごく低濃度レベルの放射性セシウムの除去は飲料水や生活圏内の川や池等の効率的な除染が必須となり、また中間貯蔵施設では、可燃性除染ごみの焼却処分による減容化がなされ、焼却処分により発生する焼却飛灰中の放射性セシウム除染が新たな問題となってきたが、水溶出中に移動した放射性セシウムの除染方法は確立されていなかった。本研究では、ゼオライトを担持させた繊維状吸着材 (Zeolite Composite Fiber: ZCF) を湿式凝固法により新規に開発し、これを用いた福島県内の放射性セシウムを含む自然環境中からの除染に関する研究成果をまとめている。開発した ZCF はポリエーテルスルホンエンジニアリングプラスチックとゼオライトの複合材料である。多孔質状の繊維構造を有し、ゼオライト含有率 58% で約 $140\text{m}^2/\text{g}$ の表面積を有することが特徴であり、このため自然環境下における放射性セシウムを用いた吸着性能では、飽和吸着性能は $120\text{mg}/\text{g}$ となった。自然環境下における放射性セシウムを用いた吸着性能では、ごく低濃度の放射性セシウムを最長 1 年以上の除染ができた。また、ゼオライトと比較して、設置後の吸着性能の低下が起きないことが示された。ZCF のセシウム吸着挙動はラングミュラー型であるが、ごく低濃度レベルの放射性セシウム吸着はフリンドリッヒ型の吸着であり異なる吸着挙動であることが示された。吸着挙動を確認するため、福島県内の河川等に ZCF を設置し、長期間の放射性セシウムの吸着性能を確認した。ZCF は福島県内の自然界水中に含まれるごく低濃度の放射性セシウム ($1\text{Bq}/\text{L}$ 以下) を最長で 1 年以上の長期間にわたり吸着機能を保持できることが判明し、複合化により、比較対象としたゼオライト

粒（5mm 角）より高い吸着性能を示した。また放射性廃棄物となる使用後の放射性セシウムを吸着した繊維状吸着材の減容化・安定性についても検討を行った。放射性セシウムを吸着させた ZCF は加圧熱処理（300℃）でコンパクトに成型したペレット体からの放射性セシウム溶出率は 0.05% であり、未処理の ZCF の溶出率 0.95% と比べ、放射性セシウムの溶出を抑制できることが分かった。これは熱加工後の ZCF の緻密な表面構造へと変化させることでゼオライト-ポリエーテルスルフォンの複合構造が内包したセシウムを固定化したことに起因していることがわかった。一方、吸着材を構成しているポリマー成分であるポリエーテルスルフォンの分解点（500℃）以上では吸着した放射性セシウムの保持ができなくなり、放出してしまうことが確認され、減容化と安定化の最適な加圧熱処理条件が示され、減容化率を 1/6 にすることが可能であることが明らかになった。これにより、ZCF は長期保管を見据えた減容化可能な除染材料として活用できることが示唆された。