

(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2021-32652**

**(P2021-32652A)**

(43) 公開日 **令和3年3月1日(2021.3.1)**

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>G 2 1 F 9/12 (2006.01)</b>	G 2 1 F 9/12 5 0 1 K	4 G 0 6 6
<b>B 0 1 J 20/20 (2006.01)</b>	G 2 1 F 9/12 5 0 1 F	
<b>B 0 1 J 20/18 (2006.01)</b>	G 2 1 F 9/12 5 0 1 D	
<b>B 0 1 J 20/16 (2006.01)</b>	G 2 1 F 9/12 5 0 1 J	
<b>B 0 1 J 20/10 (2006.01)</b>	B 0 1 J 20/20 B	
審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 13 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号	特願2019-151889 (P2019-151889)	(71) 出願人	000000239 株式会社荏原製作所 東京都大田区羽田旭町 1 1 番 1 号
(22) 出願日	令和1年8月22日 (2019.8.22)	(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 1 1 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 1 1 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】 放射性物質汚染水の除染装置及び除染方法

(57) 【要約】

【課題】 土壌などに吸着された放射性セシウムを懸濁物質として含む放射性物質汚染水を除染する除染装置及び除染方法を提供する。

【解決手段】 放射性物質を吸着する吸着剤を充填してなる吸着塔に、放射性物質汚染水を下降流で通水して除染する除染装置において、当該吸着剤は、小粒径の吸着剤と大粒径の吸着剤とからなり、当該吸着塔は、当該大粒径の吸着剤を充填してなる第1の吸着剤層の上に、当該小粒径の吸着剤を充填してなる第2の吸着剤層が積層されてなることを特徴とする、除染装置。

【選択図】 なし

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

放射性物質を吸着する吸着剤を充填してなる吸着塔に、放射性物質汚染水を下降流で通水して除染する除染装置において、

当該吸着剤は、小粒径の吸着剤と大粒径の吸着剤とからなり、

当該吸着塔は、当該大粒径の吸着剤を充填してなる第 1 の吸着剤層の上に、当該小粒径の吸着剤を充填してなる第 2 の吸着剤層が積層されてなることを特徴とする、除染装置。

## 【請求項 2】

前記第 1 の吸着剤層と前記第 2 の吸着剤層との充填高さの比が、第 1 : 第 2 = 8 : 2 ~ 5 : 5 の範囲であることを特徴とする、請求項 1 に記載の除染装置。

10

## 【請求項 3】

前記大粒径の吸着剤は、重量基準で 90% 以上の粒子が 800  $\mu\text{m}$  以上 2000  $\mu\text{m}$  以下の粒径範囲に存在する粒度分布を有する吸着剤であり、

前記小粒径の吸着剤は、重量基準で 90% 以上の粒子が 300  $\mu\text{m}$  以上 600  $\mu\text{m}$  以下の粒径範囲に存在する粒度分布を有する吸着剤であることを特徴とする、請求項 1 又は 2 に記載の除染装置。

## 【請求項 4】

前記吸着剤は、酸化鉄、活性炭、銀ゼオライト、リン酸銀、ハイドロタルサイト、ジオポリマー、ケイ酸バリウム、酸化チタン、シリカゲル、非晶質アルミニウムケイ酸塩、ゼオライト、チタン酸塩、シリコチタネート、酸化マンガン、フェロシアン化物、ヒドロキシアパタイト、水酸化セリウム、及び、水酸化ジルコニウムから選択される 1 種以上であることを特徴とする、請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 に記載の除染装置。

20

## 【請求項 5】

複数の前記吸着塔が直列に接続されていることを特徴とする、請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 に記載の除染装置。

## 【請求項 6】

放射性物質を吸着する吸着剤を充填してなる吸着塔に、放射性物質汚染水を下降流で通水して除染する除染方法であって、

当該吸着剤は、小粒径の吸着剤と大粒径の吸着剤とからなり、

当該大粒径の吸着剤を充填してなる第 1 の吸着剤層の上に、当該小粒径の吸着剤を充填してなる第 2 の吸着剤層が積層されてなる吸着塔に、放射性物質汚染水を下降流で通水する処理運転と、洗浄水を 20 m/h 未満の線流速 (LV) の上向流で通水する逆洗運転と、を行うことを特徴とする除染方法。

30

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、放射性物質、特に放射性セシウム、を含む汚染水（以下「放射性物質汚染水」という。）の除染装置及び方法に関する。

## 【背景技術】

40

## 【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、放射性物質を含む放射性物質汚染水が大量に発生している。この放射性物質汚染水には、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。これらの放射性物質汚染水は、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。

50

## 【 0 0 0 3 】

放射性物質のうち、放射性セシウムを選択的に吸着除去することができる物質として、紺青等のフェロシアン化合物や、ゼオライトの一種であるモルデナイト、アルミノケイ酸塩、チタンケイ酸塩（CST）などがある。たとえばサリーでは、放射性セシウムを除去するために、アルミノケイ酸塩であるUOP社製のIE96とCSTであるUOP社製のIE911が使用されている。放射性ストロンチウムを選択的に吸着除去することができる物質として、天然ゼオライトや合成A型及びX型ゼオライト、チタン酸塩、CSTなどがある。たとえばアルプスでは、放射性ストロンチウムを除去するためにチタン酸塩である吸着剤が使用されている。

## 【 0 0 0 4 】

ところで、福島第一原子力発電所で発生している放射性物質汚染水は、原子炉などの建屋に滞留する。この建屋には、震災時の津波と共に持ち込まれた土壌や、地下水経路で持ち込まれた土壌が大量に存在している。一方、放射性セシウムは、土壌や砂などに吸着し易いことが広く知られている。したがって、サリーなどで処理している放射性物質汚染水には、放射性セシウムが吸着した土壌が含まれていることになる。しかし、現在サリーなどで使用している吸着剤であるIE911などの無機系の吸着剤は、イオン交換反応によって放射性セシウムイオンなどを吸着処理するものであり、土壌などの懸濁物質に吸着した放射性物質をそのまま除去することは想定していない。したがって、汚染水中に含まれる放射性物質の全てを除去することは容易でないと見える。

## 【 0 0 0 5 】

一般的に、懸濁物質はろ過によって除去される。放射性物質汚染水から懸濁物質を除去するためには、サリーなどの処理設備に放射性物質汚染水を通水する前に、砂ろ過槽、沈降分離槽、静電フィルタなどの前置フィルタを設けている（例えば特許文献1及び2）。しかし、前置フィルタを設けることは追加の費用が発生し、大きな設置面積を必要とする。また、サリーなどの処理設備では、砂ろ過槽に充填されている粒子（有効径0.6mm）は、吸着塔に充填されている粒子（例えばIE911は300μm～600μm）よりも粒径が大きいため、小さな懸濁物質は砂ろ過槽で捕捉されずに吸着塔に到達し、吸着塔に充填されている粒子に捕捉されることになる。このため、吸着塔の差圧が上昇してしまう。

## 【 先行技術文献 】

## 【 特許文献 】

## 【 0 0 0 6 】

【 特許文献 1 】 特許第6289884号公報

【 特許文献 2 】 特開2015 59870号公報

## 【 発明の概要 】

## 【 発明が解決しようとする課題 】

## 【 0 0 0 7 】

放射性物質汚染水は、イオン化した放射性汚染物質のみではなく、土壌などに吸着された放射性セシウムなど懸濁物質を含む。懸濁物質を含む放射性物質汚染水を吸着塔に下降流で通水すると、懸濁物質が吸着剤層の上や隙間に堆積して詰まるため、吸着塔の流入圧と流出圧との差圧が大きくなり、処理すべき放射性物質汚染水の流量が著しく低くなり、処理時間を長期化させ、除染処理を遅延させる。また、吸着剤層に堆積している懸濁物質を除去するには、吸着塔の流出口から流入口に向けて洗浄水を逆流させる逆洗処理が頻繁に必要になる。逆洗処理を行うためには、除染装置の運転を停止する必要があり、除染処理を遅延させる。そこで、除染処理を遅延させないために、吸着塔内での懸濁物質の堆積を減少させることが求められる。一般的な懸濁物質の除去は、砂ろ過槽などの前置フィルタを設けることが行われる。砂ろ過槽を設置するには費用も設置面積も必要となる。その上、砂ろ過槽の砂は、放射性セシウムなどの放射性物質を除去する能力を有していないため、砂ろ過槽で捕捉した懸濁物質内の放射性物質の除染が別途必要になる。これは、放射性物質を含む懸濁物質の保管及び除染処理の必要性を増大させるばかりであって問題の解

10

20

30

40

50

決にはならない。

【 0 0 0 8 】

本発明は、上記課題を解決して、土壌などに吸着された放射性セシウムを懸濁物質として含む放射性物質汚染水を除染する除染装置及び除染方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【 0 0 0 9 】

本発明は、土壌などに吸着された放射性セシウムを懸濁物質として含む放射性物質汚染水を除染する除染装置及び除染方法を提供する。具体的態様は以下のとおりである。

[ 1 ] 放射性物質を吸着する吸着剤を充填してなる吸着塔に、放射性物質汚染水を下降流で通水して除染する除染装置において、

当該吸着剤は、小粒径の吸着剤と大粒径の吸着剤とからなり、

当該吸着塔は、当該大粒径の吸着剤を充填してなる第 1 の吸着剤層の上に、当該小粒径の吸着剤を充填してなる第 2 の吸着剤層が積層されてなることを特徴とする、除染装置。

[ 2 ] 前記第 1 の吸着剤層と前記第 2 の吸着剤層との充填高さの比が、第 1 : 第 2 = 8 : 2 ~ 5 : 5 の範囲であることを特徴とする、上記 [ 1 ] に記載の除染装置。

[ 3 ] 前記大粒径の吸着剤は、重量基準で 9 0 % 以上の粒子が 8 0 0 μ m 以上 2 0 0 0 μ m 以下の粒径範囲に存在する粒度分布を有する吸着剤であり、

前記小粒径の吸着剤は、重量基準で 9 0 % 以上の粒子が 3 0 0 μ m 以上 6 0 0 μ m 以下の粒径範囲に存在する粒度分布を有する吸着剤であることを特徴とする、上記 [ 1 ] 又は [ 2 ] に記載の除染装置。

[ 4 ] 前記吸着剤は、酸化鉄、活性炭、銀ゼオライト、リン酸銀、ハイドロタルサイト、ジオポリマー、ケイ酸バリウム、酸化チタン、シリカゲル、非晶質アルミニウムケイ酸塩、ゼオライト、チタン酸塩、シリコチタネート、酸化マンガン、フェロシアン化物、ヒドロキシアパタイト、水酸化セリウム、及び、水酸化ジルコニウムから選択される 1 種以上であることを特徴とする、上記 [ 1 ] ~ [ 3 ] のいずれか 1 に記載の除染装置。

[ 5 ] 複数の前記吸着塔が直列に接続されていることを特徴とする、上記 [ 1 ] ~ [ 3 ] のいずれか 1 に記載の除染装置。

[ 6 ] 放射性物質を吸着する吸着剤を充填してなる吸着塔に、放射性物質汚染水を下降流で通水して除染する除染方法であって、

当該吸着剤は、小粒径の吸着剤と大粒径の吸着剤とからなり、

当該大粒径の吸着剤を充填してなる第 1 の吸着剤層の上に、当該小粒径の吸着剤を充填してなる第 2 の吸着剤層が積層されてなる吸着塔に、放射性物質汚染水を下降流で通水する処理運転と、洗浄水を 2 0 m / h 未満の線流速 ( L V ) の上向流で通水する逆洗運転と、を行うことを特徴とする除染方法。

【発明の効果】

【 0 0 1 0 】

本発明によれば、従来の放射性物質の吸着剤によるイオン交換のみでは除染が十分ではなかった土壌などに吸着されている放射性セシウムなどを懸濁物質として含む放射性物質汚染水の除染が可能となる。

【 0 0 1 1 】

また、大粒径の吸着剤と小粒径の吸着剤との充填高さを所定比率とすることにより、ろ過性能を損なうことなく、差圧上昇を低減し、所定の通水量を確保できるため、安定した除染処理が可能となる。

【図面の簡単な説明】

【 0 0 1 2 】

【図 1】実施例 1 における逆洗時の通水線流速と逆洗展開率との関係を示すグラフ。

【図 2】実施例 2 における逆洗時の通水線流速と濁度との関係を示すグラフ。

【図 3】実施例 4 における逆洗時の通水線流速と逆洗展開率との関係を示すグラフ。

【図 4】比較例 1 における逆洗時の通水線流速と逆洗展開率との関係を示すグラフ。

【発明を実施するための形態】

10

20

30

40

50

## 【 0 0 1 3 】

以下、添付図面を参照しながら本発明を詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

本発明の除染装置は、放射性物質を吸着する吸着剤を充填してなる吸着塔に、放射性物質汚染水を下降流で通水して除染する除染装置である。吸着剤は、小粒径の吸着剤と大粒径の吸着剤とを含む。吸着塔内には、大粒径の吸着剤を充填してなる第1の吸着剤層の上に、小粒径の吸着剤を充填してなる第2の吸着剤層が積層されていることを特徴とする。これは、一般的な砂ろ過槽においては、大粒径、中粒径、小粒径の順番で通水することと逆の順番である。砂ろ過槽における順番では、大きな懸濁物質を最初にろ過により取り除き、最終的に小さな懸濁物質をろ過により取り除くため、ろ過効率は高い。しかし同じ種類の砂ろ過材を充填する場合、比重が同じであるため、砂ろ過槽を逆洗する際に、小粒径の砂が、上段の中粒径及び大粒径の砂と混ざり合ってしまう、大粒径 - 中粒径 - 小粒径の層構成を維持することができないため、繰り返し使用することができない。このため、懸濁物質の除去を目的とする一般的な砂ろ過槽では、大粒径粒子としてアンスラサイトなどの比重の小さい砂、中粒径粒子としてろ過砂などの比重が中程度の砂、小粒径粒子としてガーネットなどの比重の大きい砂を使用し、逆洗による混在を防止している。しかし、イオンなどの溶解性の放射性物質を含む放射性物質汚染水の除染を目的とする場合には、各種イオンに対する吸着能が重要な因子となり、一般的な砂ろ過槽のように単に比重差の大きな粒子を吸着剤として用いることができない。このため、逆洗しても、吸着剤の層構成を維持できるものでなければならず、通常の砂ろ過槽の層構成を採用することはできない。

10

20

## 【 0 0 1 4 】

また、イオンなどの溶解性の放射性物質を含む放射性物質汚染水を下降流で通水することにより、放射性物質はまず小粒径の吸着剤と接触して吸着され、次に大粒径の吸着剤と接触して吸着される。放射性物質の吸着量は、接触面積に比例するから、小粒径の吸着剤による放射性物質の吸着量は、大粒径の吸着剤による放射性物質の吸着量よりも多く、放射性物質の大半は小粒径の放射性物質に吸着される。この吸着は液相との平衡状態にあるため可逆的であり、放射性物質濃度が低い水と接触することで、吸着されていた溶解性の放射性物質は水中に放出される。逆洗の際には、小粒径の吸着剤に吸着されている放射性物質濃度は、洗浄水中の放射性物質濃度よりも高いため、小粒径の吸着剤からは放射性物質が洗浄水中に放出される。放射性物質を含む洗浄水は、放射性物質汚染水貯槽に戻され、再度、除染処理に供される。

30

## 【 0 0 1 5 】

また、本発明の装置においては、逆洗後、大粒径の吸着剤と小粒径の吸着剤とは入れ替わらないため、層構成は維持される。一方、従来の大粒径が上層で小粒径が下層に存在する装置では、逆洗により、上層の吸着剤と下層の吸着剤とが入れ替わるため、下層に放射性物質を多量に吸着した吸着剤が存在することになる。下降流中の放射性物質濃度が低い場合には、下層の吸着剤から下降流中に放射性物質が放出されることになり、吸着塔から排出される処理水中の放射性物質濃度が高くなるため、除染処理ができないことになる。

## 【 0 0 1 6 】

本発明の除染装置の吸着塔内における第1の吸着剤層と第2の吸着剤層との充填高さの比は、第1：第2 = 80：20 ~ 50：50の範囲、好ましくは70：30 ~ 60：40の範囲、より好ましくは67：33である。下層となる第1の吸着剤層の大粒径の吸着剤の比率を大きくすることにより、差圧を大きくすることなく、懸濁物質を効率的にろ過することができる。

40

一般的に、小粒径の吸着剤は懸濁物質のろ過性能及び放射性物質の吸着性能は良いが、通水時の差圧が大きくなる。差圧が大きくなると、汚染水を通水するためのポンプ容量を大きく、また吸着剤層を支持する吸着塔構造の強度を強くすることが必要となるため、過大な設備が必要になる。また、吸着剤そのものに対する負荷圧力も大きくなり、吸着剤の耐圧強度を超えた場合、吸着剤が粉碎されてしまう。吸着剤が微粉になると、さらなる差圧

50

の上昇や吸着塔下流への微粉のリークの懸念があり好ましくない。

第1の吸着剤層と第2の吸着剤層との充填高さの比を上記範囲内とすることにより、小粒径の吸着剤からなる第2の吸着剤層によって懸濁物質をろ過、及び放射性物質汚染水中のイオン化した放射性物質を吸着し、大粒径の吸着剤からなる第1の吸着剤層によって放射性物質汚染水中のイオン化した放射性物質を十分に吸着できる。

また、逆洗時には、第2の吸着剤層を展開させて、小粒径の吸着剤の間に捕捉されている懸濁物質を洗い流すことが必要である。逆洗前の吸着剤層の充填高さを100%とした場合に、逆洗により洗浄水を含んだ吸着剤層の高さが膨脹した分の比率を展開率とすると、後述する実施例に基づき、第2の吸着剤層の展開率は30%以上とすることが必要である。第1の吸着剤層と第2の吸着剤層との充填高さの比を上記範囲内とすることにより、逆洗時の第2の吸着剤層の展開率30%以上を確保するために必要な吸着塔高さを小さくすることができる。

10

#### 【0017】

使用する吸着剤が無機物である場合、イオン交換樹脂やキレート樹脂などと違い、製造時の吸着剤由来の微粉が存在している。また、吸着剤を輸送する際や吸着剤を吸着塔に充填する際に、物理的な衝撃が加わるため、吸着剤からの微粉の発生を避けることができない。この微粉は、通水時の差圧上昇に影響を与え好ましくない。また、放射性物質は表面積の大きい微粉に吸着されやすいため、微粉を取り除かず通水し、放射性物質が吸着した微粉が吸着塔下流に万が一リークした場合、処理水質の悪化に繋がる。このため、吸着剤を吸着塔に充填後、放射性物質汚染水を通水する前に吸着剤由来の微粉を逆洗により取り除く必要がある。逆洗後に、吸着剤の層構成を維持できるものでなければならないことは上述したとおりである。加えて、本発明の装置においては、大粒径の吸着剤を充填して第1の吸着剤層を形成した後、小粒径の吸着剤を充填する前に、第1の吸着剤層の上方の空間を利用して、第1の吸着剤層だけを逆洗により展開することができる。次いで、小粒径の吸着剤を充填して第2の吸着剤層を形成した後に、逆洗により第2の吸着剤層のみを30%展開することができる。このように逆洗を2段階に分けて行うことにより、第1の吸着剤層と第2の吸着剤層とを一度に逆洗する場合と比較して、吸着剤を展開するために必要な高さは半分以下で十分であり、吸着塔の高さを小さくすることができる。

20

#### 【0018】

大粒径の吸着剤は、重量基準で90%以上が800 $\mu$ m以上2000 $\mu$ m以下の粒径範囲、好ましくは900 $\mu$ m以上1700 $\mu$ m以下の粒径範囲、より好ましくは1000 $\mu$ m以上1500 $\mu$ m以下の粒径範囲となる粒度分布を有する。一方、小粒径の吸着剤は、重量基準で90%以上が300 $\mu$ m以上600 $\mu$ m以下の粒径範囲、好ましくは300 $\mu$ m以上550 $\mu$ m以下の粒径範囲、より好ましくは300 $\mu$ m以上500 $\mu$ m以下の粒径範囲となる粒度分布を有する。この範囲の粒度分布を有することにより、小粒径の吸着剤からなる第2の吸着剤層によって懸濁物質をろ過、及び放射性物質汚染水中のイオン化した放射性物質を十分に吸着し、大粒径の吸着剤からなる第1の吸着剤層によって放射性物質汚染水中のイオン化した放射性物質を吸着できると共に、逆洗時に、大粒径の吸着剤と小粒径の吸着剤とが混ざり合って混在する界面層が形成された場合でも、界面層の比率を小さく抑制することができ、懸濁物質のろ過性能及び放射性物質の吸着性能を損なうことがない。また、逆洗時には、第2の吸着剤層を展開させて、小粒径の吸着剤の間に捕捉されている懸濁物質を洗い流すことが必要である。逆洗前の吸着剤層の充填高さを100%とした場合に、逆洗により洗浄水を含んだ吸着剤層の高さが膨脹した分の比率を展開率とすると、後述する実施例に基づき、第2の吸着剤層の展開率は30%以上とすることが必要である。第1の吸着剤層と第2の吸着剤層との充填高さの比を上記範囲内とすることにより、逆洗時に第1の吸着剤層を展開させずに、第2の吸着剤層のみを展開率30%以上とすることができる。

30

40

#### 【0019】

吸着剤は、酸化鉄、活性炭、銀ゼオライト、リン酸銀、ハイドロタルサイト、ジオポリマー、ケイ酸バリウム、酸化チタン、シリカゲル、非晶質アルミニウムケイ酸塩、ゼオラ

50

イト、チタン酸塩、シリコチタネート、酸化マンガン、フェロシアン化物、ヒドロキシアパタイト、水酸化セリウム、及び、水酸化ジルコニウムから選択される1種以上を主成分として含む吸着剤であり、除染対象となる放射性物質に応じて単独または組み合わせて用いることができる。除染対象となる放射性物質が2種類以上である場合には、それぞれの放射性物質を選択的に吸着し得る吸着剤を組み合わせて用いることが好ましい。たとえば、放射性セシウムが除染対象である場合には、シリコチタネート、ゼオライト、フェロシアン化物、非晶質アルミニウムケイ酸塩を主成分として含むセシウム吸着剤を用いることが好ましい。放射性ストロンチウムが除染対象である場合には、ジオポリマー、ケイ酸バリウム、酸化チタン、非晶質アルミニウムケイ酸塩、ゼオライト、チタン酸塩、シリコチタネート、酸化マンガン、ヒドロキシアパタイトを主成分として含むストロンチウム吸着剤を用いることが好ましい。放射性ヨウ素が除染対象である場合には、酸化鉄、活性炭、銀ゼオライト、リン酸銀、ハイドロタルサイト、ヒドロキシアパタイト、水酸化セリウム、水酸化ジルコニウムを主成分として含むヨウ素吸着剤及びヨウ素酸イオン吸着剤を用いることが好ましい。ヨウ素吸着剤としては、銀担持活性炭、銀担持ゼオライト、銀担持イオン交換樹脂、銀担持キレート樹脂から選択される銀担持型ヨウ素吸着剤を好適に挙げるができる。ヨウ素酸イオン吸着剤としては、酸化セリウム系吸着剤、チタン系吸着剤、酸化鉄系吸着剤、及び希土類元素水酸化物系吸着剤を好適に挙げるができる。

10

#### 【0020】

放射性セシウム及び放射性ストロンチウムの両者が除染対象である場合には、上述のセシウム選択的吸着能を有するセシウム吸着剤とストロンチウム選択的吸着能を有するストロンチウム選択的吸着剤の組合せや、シリコチタネート系吸着剤を用いることが好ましい。放射性セシウム及び放射性ストロンチウムを共に吸着できるシリコチタネート系吸着剤としては、結晶子径が60以上で、且つ格子面(100面)における回折ピークの半値幅が $0.9^\circ$ 以下である一般式： $A_4Ti_4Si_3O_{16} \cdot nH_2O$  (式中、AはNa又はK又はこれらの組み合わせであり、nは0~8の数を示す。)で表される結晶性シリコチタネート系吸着剤、一般式： $Na_4Ti_4Si_3O_{16} \cdot nH_2O$ 、 $(Na_xK_{(1-x)})_4Ti_4Si_3O_{16} \cdot mH_2O$ 及び $K_4Ti_4Si_3O_{16} \cdot lH_2O$  (これらの式中、xは0超1未満の数を示し、n、m及びlはそれぞれ0~8の数を示す。)で表される結晶性シリコチタネートから選ばれる少なくとも一種と、一般式： $Na_4Ti_9O_{20} \cdot qH_2O$ 、 $(Na_yK_{(1-y)})_4Ti_9O_{20} \cdot rH_2O$ 及び $K_4Ti_9O_{20} \cdot tH_2O$  (これらの式中、yは0超1未満の数を示し、q、r及びtはそれぞれ0~10の数を示す。)で表されるチタン酸塩から選ばれる少なくとも一種を含むシリコチタネート系吸着剤、シチナカイト構造を有するシリコチタネートと、粉末X線回折によるX線回折角 $2\theta = 8.7 \pm 0.5^\circ$ 、 $2\theta = 10.0 \pm 0.5^\circ$ 、 $2\theta = 27.8 \pm 0.5^\circ$ 又は $2\theta = 29.4 \pm 0.5^\circ$ の少なくとも1つに回折ピークを有し、かつX線回折角 $2\theta = 21.8 \pm 0.5^\circ$ に回折ピークを有する結晶性物質と、1.0重量%以上12.0重量%以下の $Na_2O$ と、を含み、Na/Tiモル比が0.1以上1.0以下であるシリコチタネート系吸着剤などを好適に挙げるができる。コロイド性セシウムなど放射性コロイド物質が除染対象である場合には、吸着剤として、活性炭、シリカゲルを用いることが好ましい。

20

30

40

#### 【0021】

大粒径の吸着剤及び小粒径の吸着剤は、選択的吸着性能を最大限に活用するため、異なる粒径の同一の吸着剤を用いることが好ましいが、大粒径の吸着剤及び小粒径の吸着剤は、異なるものでもよい。異なる吸着剤を充填する場合には、除染対象となる放射性物質に応じて選択的吸着性を示す吸着剤を適宜組み合わせ用いることができる。

#### 【0022】

本発明の除染装置において、大粒径の吸着剤からなる第1の吸着剤層の上に、小粒径の吸着剤からなる第2の吸着剤層が積層されていることを特徴とする吸着塔を複数直列に接続させることもできる。各吸着塔に充填する吸着剤は、同一でも異なるものでもよい。吸着塔毎に異なる吸着剤を充填する場合には、除染対象となる放射性物質に応じて選択的吸

50

着性を示す吸着剤を適宜組み合わせる用いることができる。

【0023】

複数塔で運用する場合、各吸着塔内の層構成は、大粒径の吸着剤からなる第1の吸着剤層の上に、小粒径の吸着剤からなる第2の吸着剤層が積層されてなるものであるが、上流側の吸着塔の第2の吸着剤層を構成する小粒径の吸着剤の粒径は、下流側の吸着塔の第2の吸着剤層を構成する小粒径の吸着剤の粒径よりも小さくすることで、懸濁物質の除去効率を向上させることができる。

【0024】

吸着塔の交換タイミングは、蓄積された放射性物質の総量、吸着塔出口の放射性物質の濃度、吸着塔の表面放射線量で管理される。複数塔で放射性物質汚染水を処理する場合、上流側の吸着塔ほど、より高濃度の放射性物質を含む汚染水を処理することになるため、上流側の吸着塔に多くの放射性物質が蓄積され、上流側の吸着塔の交換頻度が多くなる。上流側の吸着塔の吸着剤を新規の吸着剤に交換すると、下流側の吸着塔に通水される放射性物質汚染水の放射性物質濃度が低くなりすぎるため、下流側の吸着塔の吸着剤から放射性物質が放出されることになる。この下流側の吸着塔からの放射性物質の放出を防ぐため、新規の吸着剤を充填した吸着塔を最下流側に接続し、上流から2番目の吸着塔を最上流に接続し、上流から3番目の吸着塔を上流から2番目に接続して、順送りに上流側に接続するメリーゴランド方式を採用する。

【0025】

放射性物質汚染水は下降流で吸着塔に流入するため、最初に小粒径の吸着剤を充填してなる第2の吸着剤層と接触する。放射性物質汚染水中に含まれる懸濁物質は、第2の吸着剤層のろ過作用を受けて、放射性物質汚染水から除去される。懸濁物質が除去された放射性物質汚染水には、第2の吸着剤層で吸着しきれなかったイオン化された放射性物質が含まれている。イオン化された放射性物質は、小粒径の吸着剤及び大粒径の吸着剤と順次接触することにより、イオン交換作用を受けて、主として大粒径の吸着剤に吸着される。

【0026】

本発明の除染装置は、小粒径の吸着剤によるろ過作用によって懸濁物質を捕捉するため、第2の吸着剤層が堵塞すると、放射性物質汚染水の流入圧力と流出圧力との差圧が大きくなる。差圧が所定値を超えた場合には、逆洗により第2の吸着剤層から捕捉された懸濁物質を除去することが必要になる。逆洗時には、大粒径の吸着剤と小粒径の吸着剤とが混在することがないように、逆洗の流速を調節することで、第1の吸着剤層と第2の吸着剤層との層構成を維持する。

【0027】

したがって、本発明は、放射性物質を吸着する吸着剤を充填してなる吸着塔に、放射性物質汚染水を下降流で通水して除染する除染方法であって、当該吸着剤は、小粒径の吸着剤と大粒径の吸着剤とからなり、当該大粒径の吸着剤を充填してなる第1の吸着剤層の上に、当該小粒径の吸着剤を充填してなる第2の吸着剤層が積層されてなる吸着塔に、放射性物質汚染水を下降流で通水する処理運転と、洗浄水を20m/h未満の線流速(LV)の上向流で通水する逆洗運転と、を行うことを特徴とする除染方法も提供する。

【0028】

逆洗時の洗浄水の線流速(LV)は、20m/h未満、好ましくは16m/h以下、より好ましくは10m/h以上16m/h以下である。線流速が20m/h以上になると、第1の吸着剤層が展開し、大粒径の吸着剤と小粒径の吸着剤とが混在し、層構成を維持することができない。線流速が10m/h未満では、第2の吸着剤層を展開することができず、逆洗を行うことができない。

【0029】

なお、線流速(LV)とは、吸着塔に通水する水( $m^3/h$ )を吸着塔の断面積( $m^2$ )で除した値である。

【実施例】

【0030】

10

20

30

40

50



市販のシリコチタネート吸着剤（ペレット：直径800 $\mu\text{m}$ ～1200 $\mu\text{m}$ 、長さ1000 $\mu\text{m}$ ～3000 $\mu\text{m}$ 、東ソー株式会社製品）を粉碎し、金属篩にかけて、粒径300 $\mu\text{m}$ 以上600 $\mu\text{m}$ 以下のサンプル1と、粒径800 $\mu\text{m}$ 以上2000 $\mu\text{m}$ 以下のサンプル2と、に分級した。

#### 【0031】

分級したサンプル1を5g採取し、金属篩にて、目開き600 $\mu\text{m}$ 、及び目開き300 $\mu\text{m}$ の順に各々3分間篩にかけ、目開き300 $\mu\text{m}$ の金属篩上に残ったサンプル1の重量を測定したところ、4.8gであった。したがって、サンプル1は、96wt%が300 $\mu\text{m}$ 以上600 $\mu\text{m}$ 以下の粒径範囲に存在する粒度分布であることが確認できた。分級したサンプル2を5g採取し、金属篩にて、目開き2000 $\mu\text{m}$ 、及び目開き800 $\mu\text{m}$ の順に各々3分間篩にかけ、目開き800 $\mu\text{m}$ の金属篩上に残ったサンプル2の重量を測定したところ、4.6gであった。したがって、サンプル2は、93.2wt%が800 $\mu\text{m}$ 以上2000 $\mu\text{m}$ 以下の粒径範囲に存在する粒度分布であることが確認できた。

#### 【0032】

##### [実施例1]

サンプル1及び2をそれぞれ、内径16mmのガラスカラムに充填し、吸着剤層の充填高さが100mmとなるようにタップした。次いで、カラム下部より、純水を上向流で通水し、通水の線流速（以下「逆洗LV」という。）を60m/hまで段階的に上昇させた。吸着剤層を構成する吸着剤が水中に浮遊し、吸着剤層の充填高さが変動するため、各逆洗LVにて、吸着剤層の充填高さの変動がなくなった時点の吸着剤層の充填高さを計測した。逆洗前の吸着剤層の充填高さ100mmを100%として、各逆洗LVで計測した充填高さの上昇分を逆洗展開率%とした。結果を図1に示す。

#### 【0033】

図1より、サンプル1は、逆洗LVが4m/hで展開し始め、逆洗LVが約15m/hで展開率30%となることがわかる。また、サンプル2は、逆洗LVが20m/hで展開し始め、逆洗LVが約46m/hで展開率30%となることがわかる。

#### 【0034】

以上の結果から、大粒径の吸着剤であるサンプル2を展開させずに、小粒径の吸着剤であるサンプル1だけを展開させるためには、逆洗LVを20m/h未満とすればよいといえる。

#### 【0035】

##### [実施例2]

サンプル1及び2をそれぞれ、内径30mmのアクリルカラムに充填し、吸着剤層の充填高さが500mmとなるようにタップした。充填した吸着剤量は350mlであった。次いで、カラム下部より、純水を上向流で通水し、展開率が10%となるように逆洗LVを調整し、吸着剤量350mlに対して30倍量（30BV）となるまで段階的に純水を通水して、カラム上部から逆洗後の処理水を採取して濁度を測定した。結果を図2に示す。

#### 【0036】

図2より、サンプル1及び2ともに、10倍量（10BV）までの通水量では、通水量が増えるほど濁度が低下するが、10BVを超えると濁度の低下は鈍化し、20BV以上で濁度の低下は落ち着き、30BVでは濁度がほぼ0となることがわかる。

#### 【0037】

##### [実施例3]

実施例2で調製した充填剤層のアクリルカラムに、表1に示す展開率となるように逆洗LVを調整し、各逆洗LVの場合に、吸着剤量350mlに対して30倍量（30BV）の純水を通水して逆洗し、その後、カラム上部より20の純水を表1に示す線流速（LV）の下降流で通水し、カラム流入口の圧力と流出口の圧力との差圧を測定した。結果を表1に示す。なお、測定した差圧は充填高さ500mm（0.5m）における値であるから、充填高さ1000mm（1m）に換算するため2倍した値である。

【 0 0 3 8 】

【 表 1 】

表 1 差圧測定結果

サンプル	サンプル1 差圧 (kPa)			サンプル2 差圧 (kPa)			
	40m/h	60m/h	80m/h	40m/h	60m/h	80m/h	
通水LV	40m/h	60m/h	80m/h	40m/h	60m/h	80m/h	
未洗浄	通水不可	通水不可	通水不可	571	通水不可	通水不可	
展 開 率	0%	105	155	210	186	252	311
	10%	61	90	124	25	41	53
	30%	54	79	109	20	25	39
	50%	54	76	107	18	25	37

【 0 0 3 9 】

表 1 より、サンプル 1 及び 2 とともに逆洗なし（未洗浄）では、いずれの通水線流速であっても通水ができないか、通水できても差圧が極端に高いことがわかる。また、逆洗展開率が 30% と 50% では、いずれの通水線流速であっても差圧は同等となることがわかる。

【 0 0 4 0 】

以上から、逆洗後の通水処理の差圧を低く抑えるためには、逆洗展開率は 30% 以上とする必要があるといえる。

20

【 実施例 4 】

内径 16 mm のガラスカラムに、サンプル 2 を充填して高さ 70 mm の第 1 の吸着剤層を形成した後、第 1 の吸着剤層の上にサンプル 1 を充填して高さ 30 mm の第 2 の吸着剤層を形成して、合計 100 mm の吸着剤層とした。

【 0 0 4 1 】

次いで、カラム下部より、純水を上向流で通水し、通水の線流速（以下「逆洗 LV」という。）を 60 m/h まで段階的に上昇させた。各吸着剤層を構成する吸着剤が水中に浮遊し、吸着剤層の充填高さの変動するため、各逆洗 LV にて、各吸着剤層の充填高さの変動がなくなった時点の各吸着剤層の充填高さを計測した。

30

【 0 0 4 2 】

22 m/h の逆洗 LV で、第 1 の吸着剤層と第 2 の吸着剤層との界面に少し凹凸が確認され、24 m/h の逆洗 LV で界面が崩れ第 1 の吸着剤層と第 2 の吸着剤層とが混ざり合い、界面を確認することができなくなった。

【 0 0 4 3 】

60 m/h の逆洗 LV に到達した後、逆洗 LV を徐々に低下させ、最終的に逆洗を完了した。完了後、吸着剤層全体の充填高さは 112 mm、第 1 の吸着剤層の充填高さは 82 mm、第 2 の吸着剤層の充填高さは 25 mm、第 1 と第 2 の吸着剤層の界面のサンプル 1 及び 2 が混在する層の高さは 5 mm であった。

【 0 0 4 4 】

逆洗前の吸着剤層全体の充填高さ 100 mm を 100% とし、各逆洗 LV で計測した吸着剤層全体の充填高さの上昇分を全体展開率%とした。逆洗前の第 1 の吸着剤層の充填高さ 70 mm を 100% とし、各逆洗 LV で計測した充填高さの上昇分を第 1 の吸着剤層の展開率%とした。同様に、逆洗前の第 2 の吸着剤層の充填高さ 30 mm を 100% とし、各逆洗 LV で計測した充填高さの上昇分を第 2 の吸着剤層の展開率%とした。結果を図 3 に示す。

40

【 0 0 4 5 】

図 3 より、第 2 の吸着剤層のサンプル 1 は、14 m/h の LV ですべての粒子が流動し、10 m/h の LV で展開率が 30% となることがわかる。第 1 の吸着剤層のサンプル 2 は、16 m/h の LV まで展開せず、18 m/h の LV で展開し始めることがわかる。

50

## 【 0 0 4 6 】

吸着剤層全体の展開率が30%となるのは逆洗LVが34m/hであり、これを大きく上回る60m/hの逆洗LVでもサンプル1と2との混在は少なく、逆洗後に第1の吸着剤層と第2の吸着剤層との層構成が大きく崩れることがないことが確認できた。

## 【 0 0 4 7 】

逆洗LVを10m/h以上16m/h以下の範囲とすれば、第2の吸着剤層は展開率30%を達成し、良好に洗浄することができ、一方、第1の吸着剤層は展開率がほぼ0%で展開しないため、逆洗後に大粒径と小粒径とが混在せず、層構成を維持できることがわかる。

## 【 0 0 4 8 】

## [ 比較例 1 ]

サンプル1からなる第1の吸着剤層の充填高さを30mm、サンプル2からなる第2の吸着剤層の充填高さを70mmとした以外は、実施例4と同様にして、逆洗LVを変えた場合のカラム内の各吸着剤層の状況を確認し、展開率を求めた。結果を図4に示す。

## 【 0 0 4 9 】

第2の吸着剤層は、16m/hのLVまで展開せず、18m/hのLVで展開し始めた。

第1の吸着剤層は、22m/hのLVで展開し始め、32m/hのLVで第1の吸着剤層と第2の吸着剤層との界面が一気に崩れ、サンプル1及び2が混ざり合い、界面を確認することができなくなった。

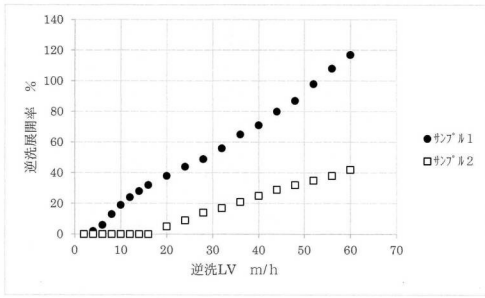
## 【 0 0 5 0 】

60m/hの逆洗LVに到達した後、逆洗LVを徐々に低下させ、最終的に逆洗を完了した。完了後、吸着剤層全体の充填高さは110mmであったが、第1の吸着剤層及び第2の吸着剤層は区別できなかった。

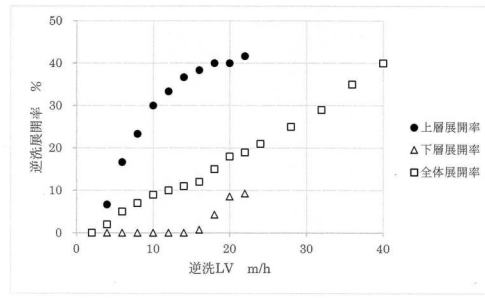
## 【 0 0 5 1 】

吸着剤層全体で展開率30%に到達した時点では、第1の吸着剤層及び第2の吸着剤層が混在し両者を区別することができず、各層の展開率30%を達成できなかった。

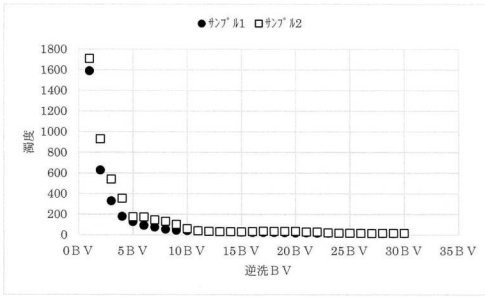
【図1】



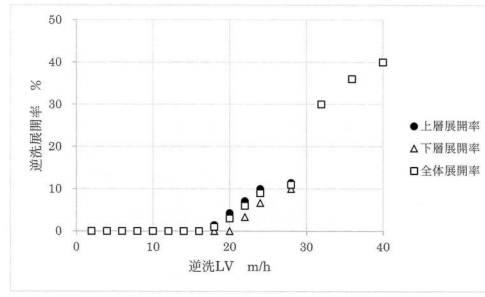
【図3】



【図2】



【図4】



## フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I		テーマコード(参考)	
B 0 1 J	20/06	(2006.01)	B 0 1 J	20/18	D
B 0 1 J	20/04	(2006.01)	B 0 1 J	20/18	B
B 0 1 J	20/02	(2006.01)	B 0 1 J	20/16	
B 0 1 J	20/34	(2006.01)	B 0 1 J	20/10	D
			B 0 1 J	20/10	A
			B 0 1 J	20/06	A
			B 0 1 J	20/04	A
			B 0 1 J	20/02	A
			B 0 1 J	20/34	C

(72)発明者 小松 誠

東京都大田区羽田旭町 1 1 番 1 号 株式会社荏原製作所内

F ターム(参考) 4G066 AA05B AA11B AA12B AA15B AA17B AA20B AA22B AA23B AA26B AA27B  
AA30B AA43B AA50B AA51B AA61B AA62B BA09 BA20 CA12 CA31  
CA45 DA08 GA11 GA31