

溶融塩・酸処理法による福島県土壌中の放射性セシウムの脱離挙動

田岡, 奈那子 / TAOKA, Nanako

(出版者 / Publisher)

法政大学大学院理工学研究科

(雑誌名 / Journal or Publication Title)

法政大学大学院紀要. 理工学研究科編

(巻 / Volume)

65

(開始ページ / Start Page)

1

(終了ページ / End Page)

2

(発行年 / Year)

2024-03-24

(URL)

<https://doi.org/10.15002/00030659>

溶融塩・酸処理法による福島県土壤中の放射性セシウムの脱離挙動

DESORPTION BEHAVIOR OF RADIOACTIVE CESIUM IN FUKUSHIMA SOIL USING MOLTEN SALT-ACID TREATMENT

田岡奈那子

Nanako TAOKA

指導教員 渡邊雄二郎

法政大学大学院理工学研究科応用化学専攻修士課程

The molten salt treatment and the acid treatment were used to desorb radioactive cesium (RCs) in Fukushima soil. The molten salt treatment was carried out by using 0 to 80% CaCl₂ at 800°C for 3 hours. After then the acid treatment was carried out by using 0 to 1 mol/L HCl solution. By using 10% CaCl₂, with 1 mol/L of HCl solution, 93% of RCs in Fukushima soil was removed. This confirms the effectiveness of these treatments. These results were explained by the Radiocesium Interception Potential (RIP) of Fukushima soil after these treatments.

Key Words : Cesium, Molten salt treatment, Acid treatment

1. 諸言

福島第一原子力発電所の事故によって大気中に放出された放射性物質は、森林・農地・居住地などを広く汚染した。この事故によって環境中に放出された主な放射性核種に放射性セシウム 137 があり、半減期が約 30 年と長い。放射性セシウム(RCs)は土壤中の粘土鉱物内に強固に吸着し、時間経過によってさらに安定・固定化することが明らかになっている。また、くさび型空間をもつ風化黒雲母(Hydroxy-Interlayered Vermiculite: HIV)中のヒドロキシアリミニウム(HyA)近傍の吸着サイト(HIV サイト)と陽イオン交換サイトで RCs が高い安定性を示すことが報告されている¹⁾。そのため、RCs の脱離には、HIV サイトを崩壊させると共に RCs との陽イオン交換を促進させる手法が有効である。溶融塩処理は、高温で溶融状態にすることで陽イオン交換を促進させると共に HIV サイトを崩壊でき、低濃度の酸処理で容易に RCs を脱離できると考えられる。本研究では、CaCl₂ を用いた溶融塩処理法と塩酸を用いた酸処理法に着目し、除去土壤中想定される 20,000 Bq/kg 程度の RCs を含む福島県土壤からの RCs 脱離を試みた。また、RCs の脱離挙動の解明のため、土壤のくさび型空間量の指標とされる放射性セシウム捕捉ポテンシャル(RIP)による評価を行った。

2. 実験方法

2.1 塩化カルシウムを用いた土壤の溶融塩処理

福島県土壤は、風化黒雲母を含む RCs 濃度が 12,000~

20,000 Bq/kg の浪江町の土壤(粒子径 0.25~1.0 mm)を用いた。溶融塩処理は CaCl₂ を土壤の質量に対して 0~80%混合し、800°C で 3 時間焼成することで行った。処理前後の土壤の RCs 濃度は NaI シンチレーション検出器を用いて測定した。

2.2 塩酸及び純水を用いた放射性セシウムの脱離

2.1 で 40%の CaCl₂、800°C で 3 時間の溶融塩処理を行った土壤を 0~1.0 mol/L 塩酸(塩酸(mL)/土壤(g)=10)と 98°C で 4 時間反応させて酸処理を行った。また、より処理しやすい条件を検討するため、10%または、40%の CaCl₂ で 800°C、3 時間の溶融塩処理後の土壤と純水(純水(mL)/土壤(g)=10)を 25°C で 10 分反応させた。その後、孔径 0.45 μm メンブレンフィルターで固液分離し、固相は 60°C で乾燥させた。処理後の土壤と脱離溶液の RCs 濃度は NaI シンチレーション検出器を用いて測定した。また、処理後の土壤の結晶構造は粉末 X 線回折装置(XRD)、脱離溶液中の元素濃度は誘導結合プラズマ発光分光装置(ICP-AES)を用いて評価した。

2.3 溶融塩・酸処理後土壤の放射性セシウム捕捉ポテンシャルの測定

使用した放射性土壤と同サイトの 30 cm 以深から採取した非放射性土壤 1.0 g を Ca-K 溶液(100 mmol/L CaCl₂ + 0.5 mmol/L KCl 溶液)10 mL とともに透析用セルロースチューブに入れ、分離バッグを作製した。分離バッグを 50 mL Ca-K 溶液に入れ、2 時間の攪拌を 10 回行った。攪拌後、分離バッグを 90 mL の Ca-K 溶液に入れ、110 Bq の

RCs を添加し、5 日間の連続攪拌を行った。攪拌前後の Ca-K 溶液の RCs 濃度は NaI シンチレーション検出器を用いて測定した。RIP は以下に示す式(1)によって求めた。

$$RIP = \frac{A-C \cdot V}{M \cdot C} \cdot [K] \quad (1)$$

ここで、A:RCs 添加量 (Bq)、C:連続攪拌後の溶液中 RCs 濃度 (Bq/kg)、V:溶液体積 (mL)、M:土壌質量 (g)である。

3. 実験結果および考察

Fig.1 に CaCl₂ 添加量と処理後の土壌の RCs 濃度および除染率の関係を示す。10%の CaCl₂ で最大の RCs 除染率である 93%を示し、処理後の土壌の RCs 濃度は 1,226 Bq/kg と基準値の 8,000 Bq/kg を大きく下回った。Fig.2 に処理前後の土壌の XRD パターンを示す。処理後の土壌の XRD パターンから、10%の CaCl₂ では風化黒雲母を含む雲母の回折線は消失した。しかし、0、5%では雲母を示す回折線は減少せず、雲母構造を破壊できなかつたため、RCs の脱離が進まなかつたと考えられる。

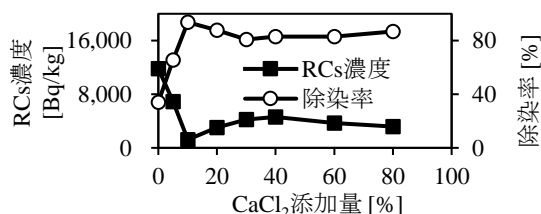


Fig.1 CaCl₂ 添加量と溶融塩・酸処理後の土壌の RCs 濃度および除染率の関係

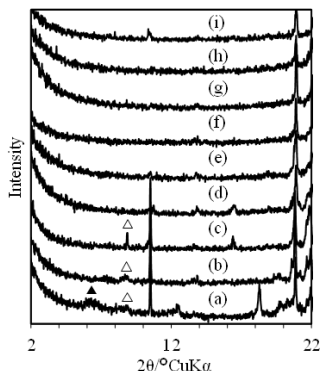


Fig.2 溶融塩・酸処理前後の土壌の XRD パターン
(a) 福島県土壌、(b)CaCl₂ 添加量 0%(c) 5%
(d) 10%(e) 20%(f) 30%(g) 40%(h) 60%(i) 80%
▲ : 風化黒雲母 △ : 雲母

Fig.3 に脱離溶液中の Si、Al 溶出量を示す。土壌からの Al 溶出量は、10%の CaCl₂ で大きく増加し、20%以上では僅かに増加する傾向が見られた。また、20%以上では Si の溶出量は減少した。これらの結果は、10%の CaCl₂ における溶融塩・酸処理で、土壌中の HIV サイトと陽イオン交換サイトの RCs をほぼ脱離できたことを示しており、20%以上の CaCl₂ では土壌から過剰に溶出した Si、Al が、ケイ酸塩化合物を生成し、そこに RCs が再凝集したため、

RCs 除染率が低下したと考えられる。酸処理濃度においては塩酸濃度 0 mol/L(純水)で最も高い除染率を示した。また、純水と 25°C で 10 分反応させた土壌の除染率は、10%の CaCl₂ で 88%、40%の CaCl₂ で 92%となり、10%では 1.0 mol/L 塩酸処理、40%では純水処理でより高い除染率を示した。

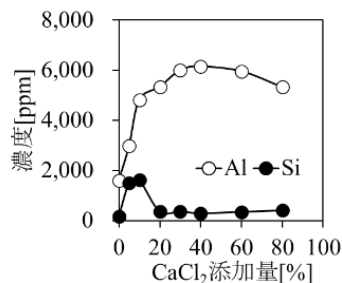


Fig.3 CaCl₂ 添加量と脱離溶液中の Si、Al 溶出量の関係

Fig.4 に CaCl₂ 添加量と溶融塩・酸処理後の土壌の RIP の関係を示す。

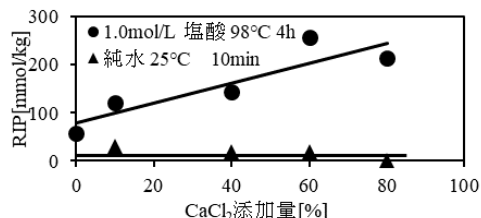


Fig.4 CaCl₂ 添加量と溶融塩・酸処理後の土壌の RIP の関係

すべての CaCl₂ 添加量において、純水処理より 1.0 mol/L 塩酸の処理で RIP が増加した。これは、塩酸処理により土壌の RCs 固定サイトが発現したことを示唆している。また、塩酸処理においては CaCl₂ 添加量が増加するほど、RIP も増加している。これは CaCl₂ 添加量が増加するほど溶融塩処理後の土壌表面積が増加し、塩酸処理によって RCs 固定サイトが多く発現した可能性を示している。これらの結果から 40%の CaCl₂ では塩酸処理で RCs 固定サイトが発現し RCs が再吸着したため、除染率が低下したと考えられる。一方、10%では溶融塩処理でくさび型空間が残存しており塩酸処理の脱 Al によってくさび型空間の破壊が促進され、純水処理よりも高い除染率を示したと考えられる。

4. 結言

本研究で使用した 20,000 Bq/kg 以下の土壌に対しては、10%の CaCl₂ や低濃度の酸で 8,000 Bq/kg 以下まで RCs 濃度を減少させることに成功した。本方法は土壌からの RCs 脱離方法として利用が期待できる。

参考文献

- 1) 田村堅志ら, 第 11 回環境放射能除染研究発表会要旨集, 11.