汚染土壌の減容化に向けた放射性セシウムイオン除去: ミニフィールド装置によるオンサイト実験

佐藤 久子1*、 山下 浩1、 大森 大輔2、 田村 堅志3、 金子 芳郎4、 山岸 晧彦5.6、 森田 昌敏5

1 愛媛大学大学院理工学研究科 (〒790-8577 愛媛県松山市文京町2-5)

2株式会社ダイキアクシス(〒791-8022愛媛県松山市美沢1丁目9番1号)

3国立研究開発法人物質・材料研究機構(〒305-0044 茨城県つくば市並木 1-1)

4 鹿児島大学大学院理工学研究科 (〒890-0065 鹿児島県鹿児島市郡元 1-21-40)

⁵NPO法人環境測定品質管理センター(〒305-0061 茨城県つくば市稲荷前 24-10)

6 東邦大学 (〒 143-8540 東京都大田区大森西 5-21-16)

On-site Elimination Experiments of Cesium Ions by a Mini-Field Plant for Reducing Volume of Radioactively Contaminated Soil

Hisako SATO^{1*}, Hiroshi YAMASHITA¹, Daisuke OOMORI², Kenji TAMURA³, Yoshiro KANEKO⁴, Akihiko YAMAGISHI^{5,6}, and Masatoshi MORITA⁵

¹Ehime University (2-5 Bunkyo-cho, Matsuyama, Ehime 790-8577, Japan)

²Daiki Axis Co., Ltd. (1-9-1 Misawa, Matsuyama, Ehime 791-8022, Japan)

³National Institute for Materials Science (1-1 Namiki, Tsukuba, Ibaraki 305-0044, Japan)

⁴Kagoshima University (1-21-40 Korimoto, Kagoshima 890-0065, Japan)

⁵Center of Analytical Quality Control for the Environment (24-10 Inarimae, Tsukuba, Ibaraki 305-0061, Japan)

⁶Toho University (5-21-16 Oomori-nishi, Ota-ku, Tokyo 143-8540, Japan)

Summary

It is an urgent problem to reduce the volume of a huge amount of contaminated soil that was accumulated after the accident at the Fukushima nuclear power plant in 2011. In this paper, we reported the results when we performed the experiment in the mini-field plant at Fukushima in order to eliminate radioactive Cs ions out of contaminated soil. A contaminated soil on a scale of 1~3 kg was treated with magnesium chloride, sulfuric acid and oxalic acid. As a typical experiment, 3 kg of soil contaminated at the radioactive level of 39,500 Bq/kg was treated by sulfuric acid (c.a. 8M). After the mixture was decanted and centrifuged, 80% of radioactive Cs⁺ ions were desorbed into the water phase, leaving 2.7 kg of soil at the radioactive level of 2,800 Bq/kg. The contaminated water at 1,435 Bq/kg was purified down to 2.48 Bq/kg by being passed through a column packed with 2 kg of mordenite. The final volume reduction ratio was attained to be 1/16.

Key Words: Cesium ion, Desorption, Volume reduction, Mordenite, Vermiculite

1. はじめに

報

文

2011年の福島第一原子力発電所原発事故により放射性セシ ウム(¹³⁴Csと¹³⁷Csがほぼ等量とされている)が大気中へ放出さ れ、その後降雨等により土壌中へ取り込まれた。事故以前か らも土壌研究者により、セシウムは他のアルカリ金属に比べて 非常に強く土壌に結合し保持されることが指摘されて来た。 さらに、その後の研究により、セシウムの結合は経時変化を 起こし、より強く結合することも報告されている¹⁾。除染作業 の結果、大量の汚染土壌が集積された。このような状況のも とで、汚染土壌から放射性セシウムを除去し、集積した土壌 を減容化する方法の確立が緊急の課題となっている。求めら れるのは、実施が安価にかつ迅速に行えること、放射性セシ

*Corresponding author: E-mail: sato.hisako.my@ehime-u.ac.jp



図1 本研究で提案した湿式モデル浄化システム Part 1: 汚染土壌の湿式法による浄化 Part 2: 汚染水の粘土鉱物カラムによる浄化

ウムにより汚染された被汚染物質の最終的な容量を極力低減 できること等である。

我々は今までに、粘土鉱物による物質分離の研究経験を活 かして、(1)粘土鉱物を利用した海水からの放射性ヨウ素、セ シウム、ストロンチウムの除去、(2) 粘土鉱物中のセシウムイ オンの吸着構造の解明、そして(3)粘土鉱物に吸着したセシ ウムを脱離させるための溶液処理法の開発、さらに(4) 脱離 処理によって生じる汚染水に対して粘土鉱物を吸着剤に用い た浄化方法を検討してきた¹⁻⁶⁾。また、風化粘土鉱物中のセ シウムイオンにはいくつかの状態があり、その中にはイオン交 換できないものもあることを報告した

本研究では、これまでの安定同位体セシウムイオンを用い たバーミキュライトによる基礎検討を踏まえて、実際の汚染土 壌に対する粘土化学的手法を用いた湿式方式の実証を行うこ とを目標とした。まず、汚染土壌を現地で採取し、それを用 いたラボスケールでセシウムイオン脱離の基礎実験を行った。 ラボ実験では、汚染土壌50g程度を処理できる装置を製造 した。次に福島での実証実験では、現地にミニプラントを建 設し土壌処理の最適条件を探索した。本報告は、初めてキロ

グラムスケールの汚染土壌を用いたミニプラント実証結果の報 告である。

2. 提案スキームと実験操作

(1) 提案する減容化スキーム

我々の提案する土壤除染方式の概略図を図1に示す。この 湿式方式は2段階からなっている。まず、第1段階(part 1) では、汚染土壌からのセシウムイオンは各種溶媒を用いて脱 離を行う。第2段階(part 2)では、生じた汚染水をバーミキュ ライト、バイオタイト、モルデナイトなどの粘土鉱物を用いて セシウムイオンを選択的に吸着させる。

(2) ラボ実験

この提案の有効性を検討するために、いくつかのラボ実験 を行った。脱セシウム化においては、土壌中の粒径が重要と 考え、まず採取した土壌サンプル(図2(a))を各種粉砕機 (ボールミル、臼引き)にて粉砕した。ボールミルとしては、 Retsch 製遊星ボールミルPM400 を用いた。内容積 500 mL のステンレス製容器に、径18 mmのボール18個を用いて 200 rpm、30分で粉砕を行った。日引きには、グローエンジ ニアリング製マルチミルRD1-15Gを用い、250 rpmで粉砕し た。実験室レベルでのミニスケールのラボ装置の製作(1~ 50g)を行った。ここではフッ素を含む溶液処理の検討も視 野にいれて、テフロン製ビーカーを使用とした。 ラボ装置に おいては、ボールミル粉砕後に攪拌、ろ過による作業を行っ た(図2)。 ラボ装置のろ過などの条件を表1に示した。例と しては、粉砕試料をテフロンビーカーに10g量りとり、2Mク エン酸1Lを加え300 rpmで24時間攪拌し、その後ろ過を 行った。 桐山ロートとろ過鐘により、循環式吸引ろ過をおこ なった。その後、ろ液にバーミキュライト1gを加えて、300 rpmで24時間攪拌して、その後再ろ過した(本報告では結果 は示していない)。処理液としては、硝酸マグネシウム(2M、 3 M)、塩化マグネシウム(2.5 M)、クエン酸(2 M)、シュウ酸(1 M)、硫酸(3 M)、濃塩酸、塩酸(1.5 体積%)、フッ化水素アン モニウム (1 M) などを試みた。本論文では現地におけるミニ フィールド実験の結果の報告を主目的としているので、ラボ実



(a) 2種類の土壌サンプル



脱離処理後の土壌サンプル



(c) 撹拌処理 ろ過処理



(d)



ラボスケールで行ったセシウムイオン脱離実験の様子 図 2

Vol.6, No.3, 2018 / 環境放射能除染学会誌

1			1上 1家			
I	冷山武駅表里 ① 掛け宏男					
	(1)見)十合布	<u> </u>	51			
		谷里· 十述·	JL め及 ± 184 mm 内径 ± 170 mm 間口如是十役 205 mm 直さ 250 mm			
		1伝:	外径 @ 184 mm、 州径 @ 1/0 mm、 囲口部取入住 205 mm、 尚さ 250 mm			
	(1) 1(1) 1(1) 1(1) 1(1) 1(1) 1(1) 1(1)	竹筫:	PIFE (ノツ茶樹脂)			
	②撹拌機					
		回転数:	$10 \sim 600 \text{ (rpm)}$			
		電源:	AC100 V, 50/60 Hz, 88VA			
		機能:	タイマー機能 (ON/OFF タイマー)、正転・逆転切り替え機能			
		寸法:	98 mm×155 mm×164 mm			
2	吸着試験装置					
	①吸着塔					
		容量:	200 mL			
		寸法:	外径 φ 45 mm、内径 35 mm、長さ 230 mm			
		材質:	本体 PTFE、O リングフッ素ゴム			
	②吸着材分離フィルター					
		平均孔径:	$5 \sim 10 \ \mu m$			
		寸法:	口径 φ 35 mm 以上、厚さ 6 mm			
	③薬液ポンプ					
		最大吐出量:	38 mL/min			
		最高吐出圧力:	1.0 MPa			
		接続口径:	内径 ø 4 mm、外径 ø 6 mm			
		電源:	AC100 \sim 200 V, 50 \sim 60 Hz, 20 W			
		寸法:	幅 100 mm、長さ 167 mm、高さ 174 mm			
		材質(接液部):	ポンプヘッド PVDF、バルブガイド PVDF、バルブ アルミナセラミックス			
			※ PVDF ポリフッ化ビニリデン			
3	固液分離装置					
	①遠心分離機					
		最高回転数:	3,000 rpm			
		最大遠心力:	1,500×g			
		有効容量:	4.5 L			
		電源:	AC100 V, 1 kVA			
		機能:	回転数制御 (インバータ制御)、タイマー制御 (0 ~ 60分)			
		寸法:	幅 470 mm、奥行き 560 mm、高さ 835 mm			
		重量:	70 kg			
		材質 (接液部):	テフロン			
		その他:	専用制御盤付			
	②ろ過布					
		寸法:	直径 300 mm			
		材質:	PP (ポリプロピレン)			

表1 ラボスケール装置の内容	容
----------------	---

験の結果の詳細に関しては別途報告予定である。

汚染土壌は福島において採取した。土壌中の粘土成分の分 析のために粉末X線回折 (XRD) 測定を行った。測定には、 X線回折装置(UltimaIV: Rigaku製)を使用した。粉砕の結 果を調べるために、走査型電子顕微鏡 (SEM) によって土壌 粒子の形態を観察した。SEM 測定は、日立ハイテクノロジー ズ製TM-1000 で行った。 処理後の放射能測定は依頼分析 (いであ株式会社)により行った。測定は、ゲルマニウム半導 体検出器によるガンマ線放出核種について行った。

(3) ミニフィールド実験

実地における減容化実験のために、汚染土壌1~3 kgを 処理可能なミニフィールド装置を製造した。装置を現地で組 み立て、福島各所で採取した汚染土壌に対して浄化・減容化 実験を試みた。採取土壌としては、汚染度、植物成分、各種 粘土鉱物の影響を見るために、高濃度汚染土壌、多量の植物 成分を含む土壌、黒土など(表2(a))を用いた。これらにつ いては後に結果のところで概要写真を示した。使用した処理 液は、環境への影響とコストを考慮し塩化マグネシウム、シュ ウ酸、および硫酸の3種である。

ミニフィールド装置を用いた実験計画と手順を以下に示し た。 ここでは5種類の採取した汚染土壌に関して、上記3種 の脱離剤を用いて脱セシウム処理を行った。表2(a) に示す ように計11条件に対する実験を行った。表2(b)に条件の詳 細を記載した。そのうち、放射能測定をおこなった4種類の 汚染土壌に対して、脱離結果、環境への影響の評価、および 経済評価を行った。

3. 結果と考察

(1) 福島土壌の粉末 X 線回折

福島で採取した各種汚染土壌に対して、土壌中の結晶性成 分を調べるために粉末X線回折測定を行った。高濃度放射 能を含む土壌のXRDの一例を図3に示した。採取した土壌 中には、試料によっては石英、雲母、スメクタイト、カオリン 等が含まれていることが示された。

(2) ラボ装置を用いた攪拌法による汚染土壌からの セシウム脱離の検討

汚染土壌 50gを用いて、土壌粉砕の効果、および湿式方

番号	採取時の周辺放射線線量	処理方法	処理溶液量	処理量 (g)
0	N.D.	(1) 硫酸	600 mL	3,000
1	0.26 μSv/hr	塩化マグネシウム	15 kg	3,000
2	1.068 µSv/hr	(1) 硫酸	300 mL (300 mL)	1,503
			300 mL (300 mL)	1,502
3	2 μSv/hr	(1) 硫酸	300 mL (300 mL)	1,270
			300 mL (300 mL)	1,310
4	0.26 μSv/hr	(1) 硫酸	300 mL (300 mL)	1,502
			300 mL (300 mL)	1,509
5	0.26 μSv/hr	シュウ酸2水和物	2,715 g	3,002
6	1.068 µSv/hr	シュウ酸2水和物	2,800 g	3,010
7	N.D.	シュウ酸2水和物	2,932 g	2,965
8	N.D.	(2) 硫酸	300 mL (200 mL)	753
			300 mL (200 mL)	755
9	20 µSv/hr 以上	(2) 硫酸	300 mL (200 mL)	752
			300 mL (200 mL)	753
10	20 µSv/hr 以上	塩化マグネシウム	15 kg	2,977
11	1.038 µSv/hr	(3) 硫酸	400 mL (300 mL)	757
			400 mL (300 mL)	756
		(注) 広融加理の好る		ND・データか

表2(a)	ミニフィー	-ルド	装置を	用い	た実験-	
1 2 \	u/	~_/	141	12000			50

(注) 硫酸処理の括弧内は濃硫酸に対して加えた水の量。 N.D.: データなし

表2(b) (a)で示した実験で使用した処理方法

処理方法	方法
(1) 硫酸処理	 ①汚染土壌 1.5 kg を 2 個計量し、2本のテフロンボトルにいれる。各々に水 300 mL を加える。 ②そのボトルに硫酸 300 mL を少しづつ加える。 ③ホットプレートで加温しながら、2 時間放置する。 ④反応槽に水 10 L をいれて、そこに水 10 Lで、ボトル中の試料を反応槽に移動する。さらに、水 10 L 加え、30 L とし、反応を開始する。 ⑤ 2 時間攪拌する。
塩化マグネシウム	①反応槽に水 30 L を入れ、塩化マグネシウム 15 kg を入れて溶解する。 ②反応槽に汚染土壌 3 kg を入れて、4 時間攪拌する。
シュウ酸	①反応槽に水 30 L を入れ、シュウ酸 2.0 kg を入れて溶解する。 ②反応槽に汚染土壌 3 kg を入れて、4 時間攪拌する。
(2) 硫酸処理	汚染土壌を半分にして、硫酸処理は(1)と同様。
(3) 硫酸処理	硫酸処理(2)より、水と硫酸の量を増加させて、硫酸との反応を比較した。



図 3 代表的な高放射能汚染土壌 (Sample A と Sample D) の粉末 XRD Sample Aの図:挿入図は低角度領域の拡大図、Sm はスメクタイト、 M は雲母、K はカオリン由来のピーク

式(攪拌法)による脱セシウム化の検討を行った。XRD測定 の結果から汚染土壌中には雲母が含まれていることが示され、 事故以来の経年風化により雲母層間にセシウムが存在してい ることを推定した。そこで機械的に雲母層間を粉砕し、セシ ウムの脱離を容易にすることができるものと考え、臼引きおよ び、ボールミルを用いて土壌を粉砕した。図4、5には臼引き および、ボールミルによる土壌のSEM写真と粒径分布を示し た。 これより、 臼引きよりもボールミルのほうが土壌は細かく なることがわかった。 そのためラボ実験ではボールミルを用 いた処理を検討した。

粉砕試料に対して、各種試薬を用いた攪拌方式による脱セ シウム化を行った。その結果、硫酸では高いセシウムイオン の脱離率を示すことがわかった。放射能の高い土壌では、 シュウ酸を用いた場合で、52%程度、硝酸マグネシウムで 26%程度の脱離率を示した(表3)。2つの土壌では、処理方 法で大きな差異は見られなかった。

各種土壌を用いた湿式処理のラボ実験から、効率的には硫 酸、塩酸などの酸が有効であることがわかった。塩酸は、装 置の腐食などへの影響を考慮して負荷が大きいと判断した。 ミニフィールド実験に用いる処理液は、環境への影響と薬剤 のコストなどの観点から、シュウ酸、塩化マグネシウムおよび 硫酸の3種類に決定した。

(3) ミニフィールド装置を用いた汚染土壌からの セシウムイオンの脱離

ダイキアクシスと共同でミニフィールド装置の製作を行った。 装置の仕様を図6に示した。作製した装置をダイキアクシス 福島工場敷地内に立ち上げた。装置の外観および詳細部分



2016/08/04 20 um





2016/08/04 D2.4 x5.0k 20 um (b) ボールミル後

図 4 粉砕処理後の汚染土壌の SEM 写真

H. Sato et al.



図5 粉砕処理後の汚染土壌の粒径分布

表 3	ボールミル粉砕後の土壌2試料における湿式処理(ラボ実験)によるセシウム除去率(%	6
10 5		υ,

処理液の種類と量	使用した土壌の種類			
(土壌 50g当たり)	多量の植物成分を含む土壌	高濃度汚染土壌		
2.5M Mg (NO ₃) ₂ , 1 L	27	26		
1 M シュウ酸、1 L	34	52		
3 M 硫酸、120 mL	72	79		



図6 ミニフィールド装置による汚染土壌からのセシウムイオン脱離処理の流れ

表 4	採取土壌に対する各種除去方法の
	セシウムイオン除去率(%)(ミニフィールド装置)

処理液 土壌サンプル	硫酸	塩化マグネシウム	シュウ酸
A (20 µSv/hr 以上)	80.6	33.9	-
B (1.068 μ Sv/hr)	82.2	-	62.5
C (0.26 µSv/hr)	66.5	38.5	50.7
$D (2 \mu Sv/hr)$	86.1	-	-

を図7に示す。 ミニフィールド装置を使った実験により、4種 類の汚染土壌に対して得られたセシウム脱離率の結果を表4 に示した。

A-Dは放射能分析結果の測定ができた結果をまとめた。 ミニフィールド装置を用いた実験では、各種試薬の中で、Cの 土壌以外は硫酸処理により80%以上のセシウムイオンの脱 離ができることがわかった。この場合は初期の線量も低く効



図7 ミニフィールド装置によるオンサイト実験の写真

果がなかったものと思われる。今回の実証実験では、各土壌 の違いによる脱離への影響は少ないことがわかった。硫酸に 関してはすでに有効であるという報告もある⁸。

(4) ミニフィールド装置を用いた減容化処理と 減容化率の評価

ミニフィールド装置を用いた減容化処理の手順を図8にま とめた。まず、最初に、手ふるいを行った。 ふるい後の土壌 が3kgあり、その全放射能は12万Bq程度である。 その後 硫酸処理を行い、底部に残った土壌は<3,000Bq/kgとなり 一般利用できるレベルとなった。この土壌は重量で90%にな る。残りの土壌の遠心ろ過を行い、ろ布に10%の重量(0.3 kg:ろ布を入れない)の土壌が回収され、この土壌に放射性セ シウムが濃縮されていた。このため、1/10の減容化率である。 ろ液は1,500 Bq/kg程度であり、炭酸水素アンモニウムを用 いて中和し、80 Lの汚染水を2 kgの福島産モルデナイトを充 填したカラムを通してセシウムを吸着させた。このモルデナイ トカラムは11 サンプルすべてに使用した。以上の操作により、 2 kgのモルデナイトに11 サンプル全て(約 31 kg)に使用した ため、減容化率は1/16 を達成した(ろ布残渣を含まない計 算)。また、通過液は約2.5 Bq/kgであり廃棄レベルに浄化 することができた。



図8 ミニフィールド装置による減容化における物質収支の例

(5) 処理薬剤及びその処理コストについて

今回用いた汚染土壌処理法に関するコスト計算を行った。 この実験をおこなった時点で、土壌中の放射性セシウムは事 故発生から5年が経ち、土壌との結合が強化する方向に変化 したと思われる。そのような強い結合として雲母や雲母風化 で生まれる粘土類のフレイドエッジサイトとの結合が指摘され てきた。フレイドエッジサイトは、粘土鉱物のイオン交換サイ トの1~2%あるとされるが、セシウムイオンのサイズと良く フィットするものから少しずれているものまでいろいろなレベル のものが考えられる。 実際、用いた土壌でのセシウムの同位 体交換(或いはマグネシウム交換)で交換される放射性セシウ ムは20~30%程度あった。従って、残り70~80%の放 射性セシウムは溶出する速度は極めて遅くなって溶出が困難 となっていると推測される。実際の土壌でのマグネシウム交換 で、交換される放射性セシウムは20~30%程度あり、また 溶剤として高濃度のマグネシウム塩が必要であり、そのコスト は大きい。70~80%の放射性セシウムは強い酸で溶出可能 であった。一方で、土壌浄化コストを考えると、薬剤の価格 と廃液の処理費用及び関連して発生する廃棄物量を考えてお く必要がある。除染のために短時間で溶出させるためには、 粘土の構造を破壊するような物理的粉砕を並用することとな る。今後、最適化に向けて検討を重ねる必要がある。各薬剤 と再利用方法などを表5にまとめた。

コスト計算として、1日100トンを処理すると仮定して、表6

に各コスト計算を示した。表6からわかるように、最も効果 的な方法は希硫酸処理であることになる。この方法は相対 的に低コストであり、これを前処理としての分級分離と組み 合わせることにより、処理後の土壌は再利用可能で、保管し た場合もその環境安全性は達成されると思われる。処理コス トの大半を占めるのは、薬剤費である。特にマグネシウム塩 やシュウ酸では、この費用が高く、実用上のネックとなると思 われる。環境負荷が小さいが薬剤および水の蒸発のためコス トがかかる。

硫酸や塩酸においては、中和用のアルカリのコストが高い。 これらの4つの方法の中で、硫酸、塩酸が相対的に安いため 実用的と考察された(表6)。その中で前述したように、塩酸は、 装置の腐食などへの影響を考慮して環境への負荷が大きいと 判断した。

4. まとめ

これまでの安定同位体セシウムイオンを用いたバーミキュ ライトによる基礎研究をもとに、本研究では実際の汚染土壌 への湿式方式の適用を検討した。特に本報告では、福島に おいて行ったミニフィールド装置による結果をまとめた。現地 では、採取した汚染土壌からの放射性セシウム除去と粘土カ ラムを用いた汚染水の浄化という2段階の実証実験を行った。 現地で建設した湿式浄化用ミニプラントにおいて貯蔵汚染土 壌の減容化、汚染水の浄化、および土壌のリサイクル化プロ

抽出剤	再利用	廃液処理	課題
シュウ酸	シュウ酸として回収、再利用	シュウ酸アルミ等塩処理	土壌に残るシュウ酸評価が必要である。
塩酸系	廃塩酸の循環利用	中和 (CaCO ₃ など)	濃度が高ければ塩化カルシウム剤としての用途の 可能性の検討が必要である。
硫酸系	廃硫酸の循環利用	中和 (NaOH または石灰)	石膏ボード、工業用硫酸ナトリウムの副生利用の 検討が必要である。

表 5 抽出薬剤の再利用方法と課題

表6 土壌1t当たりの処理コストの見積もり(単位:円)

	Mg塩処理	硫酸処理	塩酸処理	シュウ酸	
設備費	6,000	13,700	17,100	13,700	
薬剤費	9,360 (繰り返し使用)	35,600	32,300	133,800	
人件費	4,320	4,320	4,320	4,320	
光熱費	69,380 (水の蒸発に要するコスト)	4,380	4,380	4,380	
合計	89,060	58,000	58,100	156,200	
1日100 t の汚染土壌処理を想定	除去率 30%	除去率 80%	—	—	
効率	\bigtriangleup	0	0	\bigtriangleup	
環境負荷	0	0	×	0	
コスト	\bigtriangleup	0	0	×	

セスの構築を試みた。得られた結果から、実際に福島の現地 で汚染土壌の浄化を湿式方式で行う場合の最適条件を、経 済的、利便性、環境などの観点から評価した。今回の実証 実験の結果から、安定同位体セシウムイオンでは有効であっ た高濃度のマグネシウム陽イオン交換による浄化が困難であ ることが示された。最終的には、環境への影響、コストの点 から、湿式方式による汚染土壌の脱セシウム化には、硫酸処 理が有効であると結論した。土壌の分級を含めた各種土壌の 性質と湿式処理の関係や、湿式条件の詳細検討などは今後報 告予定である。

謝 辞

愛媛大学で基礎実験をおこなっていただいた古鎌恵子氏、 米地明美氏、越智美和氏、小山和美氏に感謝する。株式会 社ダイテク伊藤岩夫氏においては、現地での実験をおこなっ ていただいた。小松正孝氏の現地での装置立ち上げの御協 力に感謝する。この研究は環境省研究総合推進費補助金 3K143012の援助を受けた。

参考文献

- H. Mukai, T. Hatta, H. Kitazawa, H. Yamada, T. Yaita, T. Kogure: Speciation of radioactive soil particles in the Fukushima contaminated area by IP autoradiography and microanalyses. *Environ. Sci. Technol.*, **48**, 13053–13059 (2014).
- K. Morimoto, K. Tamura, Y. Umemura, H. Sato, A. Yamagishi: Capture of radioactive nuclear wastes from sea water by use of clay minerals. *Chem. Lett.*, 40,

867-869 (2011).

- T. Kogure, K. Morimoto, K. Tamura, H. Sato, A. Yamagishi: XRD and HRTEM evidence for fixation of cesium ions in vermiculite clay. *Chem. Lett.*, **41**, 380-382 (2012).
- K. Morimoto, T. Kogure, K. Tamura, S. Tomofuji, A. Yamagishi, H. Sato: Desorption of Cs⁺ ions intercalated in vermiculite clay through cation exchange with Mg²⁺ ions. *Chem. Lett.*, **41**, 1715-1717 (2012).
- K. Tamura, H. Sato, A. Yamagishi: Desorption of Cs⁺ ions from a vermiculite by exchanging with Mg²⁺ ions: Effects of Cs⁺-capturing ligand. *J Radioanal. Nucl. Chem.*, **303**, 2205–2210 (2015).
- H. Sato, Y. Kaneko, M. Morita, K. Tamura, A. Yamagishi: Application of vermiculite clay for selective adsorption of cesium ions by high performance liquid chromatography. *Clay Sci.*, **20**, 7-11 (2016).
- M. Tansho, K. Tamura, T. Shimizu: Identification of multiple Cs⁺ adsorption sites in a hydroxy-interlayered vermiculite-like layered silicate through ¹³³Cs MAS NMR analysis. *Chem. Lett.*, **45**, 1385-1387 (2016).
- V. B. Nikolaevsky, F. A. Lifanov, S. S. Batusov: Improving the decontamination of ¹³⁷Cs contaminated soil. *Atom. Energy*, **114**, 51-55 (2013).

2018年1月23日受付 2018年7月5日受理 (第6回研究発表会座長推薦論文)

和文要約

2011年の福島第一原子力発電所原発事故後の除染作業により集積した大量の汚染土壌を減容化する方法の確立が緊急の課題 となっている。我々は粘土化学的な立場から、汚染土壌から放射性セシウムイオン除染方法を見出すことを目標に研究を続けてき た。安定同位体セシウムイオンを用いた基礎検討を踏まえて、湿式方式による土壌除染方式を提案した。この湿式方式は2段階 からなっている:第1段階で汚染土壌からセシウムイオンは各種溶媒を用いて脱離を行い、第2段階で生じた汚染水をバーミキュラ イトやモルデナイトなどの粘土鉱物を用いてセシウムイオンを選択的に吸着させる。ラボスケールでの汚染土壌を用いて各種溶剤 による検討をおこない、環境負荷などを考慮して、最終的には硫酸処理を選択した。ミニフィールド装置を建設し、福島において 実証実験を行い、減容化の検討をおこなった。

