

福島における汚染土壌の除染と再利用を目指したセシウムフリー鉱化法 (2) その場観察 EXAFS 分析を用いた混合塩(NaCl-CaCl₂)添加および 加熱 処理による Cs 収着風化黒雲母からの Cs 除去過程の解明

Proposition of Cs free mineralization for decontamination and reuse of contaminated soil in Fukushima.

*本田 充紀¹, 岡本 芳浩¹, 下山 巖^{1,2}, 塩飽 秀啓¹, 鈴木 伸一^{1,2}, 矢板 毅^{1,2}

¹原子力機構・物質科学研究センター, ²原子力機構・福島環境安全センター

本研究では、Cs 収着能力が高い風化黒雲母(WB)から混合塩(NaCl+CaCl₂)を用いて Cs 除去する際の脱離機構について調べるために、広域 X 線吸収微細構造 (EXAFS) 分析を行い、低温領域 (400-500°C) と高温領域 (600-700°C) において異なる 2 タイプの Cs 脱離過程が存在することを明らかにした。

キーワード: Cs 除去, 風化黒雲母, その場観察 EXAFS 分析

1. 緒言

福島の汚染土壌減容化には土壌中の粘土鉱物に固定された放射性 Cs の除去が必要不可欠である。これに対しアルカリ塩を添加して加熱処理を行う手法が提案されており高い Cs 除去率により注目を集めているが、加熱処理中の Cs 脱離過程の詳細は不明である。そこで我々は Cs 収着能力が高い WB[1]から混合塩(NaCl-CaCl₂)を用いて Cs を除去する際の脱離機構についてその場観察(*in situ* EXAFS)を行い加熱中の Cs 局所構造変化を調べた[2]。

2. 実験

非放射性 Cs を WB に飽和収着しモル比 1:1 の NaCl-CaCl₂ 混合塩を重量比 1:1 で WB 粉末に添加した。この試料に対して 200-700°C の温度範囲で 100°C ごと *in situ* EXAFS を行い混合塩の有無によるスペクトルの違いを比較検討した。また加熱処理後に混合塩を除去した試料に対して通常の(*ex situ*) XAFS 測定と蛍光 X 線分析(XRF)を行い Cs 除去率の温度依存性を調べた。XAFS 実験は SPring-8 BL-11XU において実施した。

3. 結果と考察

In situ XAFS 測定後に EXAFS 関数から得た実空間の道径構造関数を比較した。まず混合塩無添加の場合、200-700°C の加熱において Cs はほぼ同じ局所構造を示し、Cs は WB 中に保持されている事が分かった。一方混合塩を添加した場合、加熱するにつれて構造が徐々に変化し、加熱後室温に戻した時は完全に異なる構造を観測した[右図]。加熱後に混合塩を除去した試料の *ex situ* XAFS 測定結果では、吸収強度が加熱温度と共に減少した。XRF 測定により Cs 除去率を算出したところ、吸収強度減少率の温度依存性は Cs 除去率と同様の傾向を持つことが確認された。Cs 除去率と EXAFS 解析の結果から、混合塩を添加して 700°C 加熱するとほぼ全ての Cs は Cs-Cl に近い結合距離を示し 700°C から室温に戻した際にほぼ全ての Cs が WB から除去されたことが分かった。400-500°C 加熱では Cs はシリカの四面体構造に囲まれ Cs-O 結合を保持していたにもかかわらず室温への冷却過程において約 5 割の Cs が除去されたことがわかった。以上から我々は低温領域 (400-500°C) と高温領域 (600-700°C) において異なる 2 タイプの Cs 脱離過程が存在すると結論した。

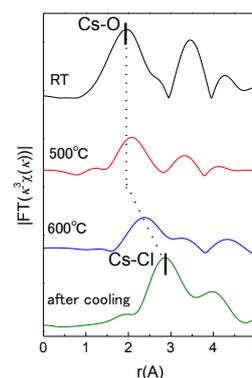


図 EXAFS 関数から得た実空間の道径構造関数 (混合塩添加の有の室温、500°C、600°C、冷却後)

参考文献

[1] H. Mukai, *et al.*, Sci. Rep. (2016) 2-4. [2] M. Honda, *et al.*, (under submitted)

*Mitsunori Honda¹, Yoshihiro Okamoto¹, Iwao Shimoyama^{1,2}, Hideaki Shiwaku¹, Shinichi Suzuki^{1,2} and Tsuyoshi Yaita^{1,2}

¹JAEA, Materials Research Science Center, ²JAEA Fukushima Environmental Safety Center