金属イオン含有亜臨界水による汚染土壌からの Cs 回収と無機材料による減容固化（4）亜臨界処理水からの Cs 選択回収と Cs ガラス固化

Recovery of Cs from Contaminated Soil by Subcritical Water containing Metal Ions and Its Solidification using Inorganic Materials for Volume Reduction (4) Selective Recovery of Cs from Subcritical Treated Water and Vitrification of Cs

*高橋秀治[1], 稲葉優介[1], 針貝美樹[1], 内海和夫[1], 竹下健二[1], 堀内伸剛[2], 近沢孝弘[2], 宗澤潤一[3]
[1]東京工業大学, [2]三菱マテリアル, [3]エンバイロテック開発

亜臨界処理水に回収された Cs は MC-B（フェロシアン化鉄の造粒粒子）で選択的に吸着できた。MC-B に吸着された Cs は溶出回収され、Cs をガラスに固定化できた。また、亜臨界処理水に回収された Cs は固体酸含有高珪酸ガラスで吸着された。加温溶融によって固体酸含有高珪酸ガラスへの Cs の固定化が確認された。

キーワード：セシウム、フェロシアン化物、固体酸含有高珪酸ガラス、ガラス固化

1. 緒言

本研究では、イオン含有亜臨界水による汚染土壌からの Cs 脱離および Cs のガラス固化を行うことにより、汚染土壌の大幅な減容化を実現し、かつ安定的に放射性 Cs を固定化する技術の実用化に資することを目的としている。我々は過去に、水溶液中の Cs を吸着後のフェロシアン化鉄を約 350℃で熱分解し、その熱分解残渣を水および 0.5M 希硝酸で洗浄することで 99.9%以上の Cs を溶出させることができることを確認した[1, 2]。また、溶出させた Cs をガラス固化させる基礎研究を行った[3]。ここでは、MC-B を使用した亜臨界処理水からの Cs 選択回収による Cs ガラス固化（固化法-1）および固体酸含有高珪酸ガラスを用いた Cs 回収による Cs ガラス固化に関する試験（固化法-2）の実施結果について報告する。

2. 実験

2-1. フェロシアン化鉄を用いた Cs 回収による Cs ガラス固化（固化法-1）

模擬汚染土壌試験（コールド試験）で得られた Cs 含有亜臨界処理水と吸着剤 MC-B（関東化学製）を容器に入れ振とうし（1h）、Cs を選択的に吸着させた。その後、Cs 吸着後の MC-B を空気雰囲気下で 350℃にて熱分解させた。熱分解後の MC-B と水を混合後に振とうし Cs を溶出させた（80℃）。また、実汚染土壌試験（ホット試験）で得られた Cs 含有亜臨界処理水を用いて、同様にして、MC-B による Cs 吸着、Cs 吸着後の MC-B の熱分解、Cs 溶出の操作を行った。ガラス固化試験（コールド試験）では、Cs 濃縮後の溶出液（Cs 濃縮体）を模擬した固体試薬とガラスフリット（PF798）、融剤（Na_2CO_3）を混合し加熱、自然冷却しガラス固化体を作製した。それぞれの試験の結果より、Cs の移行挙動や物質収支を評価した。

2-2. 固体酸含有高珪酸ガラスを用いた Cs 回収による Cs ガラス固化（固化法-2）

模擬汚染土壌試験（コールド試験）で得られた Cs を含有する亜臨界処理水と固体酸含有高珪酸ガラス（環境レジリエンス製）[4,5]をを容器に移し振とうし（3h）、固体酸含有高珪酸ガラスに Cs を吸着させた。ガラス固化試験（コールド試験）では、Cs の吸着後模擬塩（固体試薬）と固体酸含有高珪酸ガラス、融剤(Na_2CO_3) を混合し加熱、自然冷却しガラス固化体を作製した。固化法-1 と同様に、Cs の移行挙動や物質収支を評価した。

3. 結果と考察

3-1. フェロシアン化鉄を用いた Cs 回収による Cs ガラス固化（固化法-1）

模擬汚染土壌試験（コールド試験）から得られた処理水を用いて Cs 吸着試験を行なった結果、バッチ処理（液固比 10 mL/g）にて Cs 吸着率は 97.0%であった。吸着剤を熱分解させ残渣からの Cs 溶出を行ったところ、水のみで 99.8%の Cs を溶出させることができた。溶出液を想定した模擬塩にてガラス固化試験を行ったところ Cs の固定化が確認された(875℃、900℃、950℃では Cs 残存率 100%、99%、93%)。実汚染土壌試験（ホット試験）から得られた処理水を用いて、MC-B による吸着試験を行なったところ、Cs 吸着率は 93～94%となった。また、Cs を吸着した MC-B を熱分解し残渣からの Cs 溶出試験を実施した結果、水で約 95%の Cs を溶出でき、水溶出後の残渣から希硝酸（0.5M）により残りの Cs のほぼ全量を溶出することができることを確認した。以上の結果より、汚染土壌から亜臨界処理水中へ脱離させた Cs を MC-B で吸着し、熱分解後、溶出させ、ガラス固化させる一連のプロセスの成立性を確認した。

3-2. 固体酸含有高珪酸ガラスを用いた Cs 回収による Cs ガラス固化（固化法-2）

模擬汚染土壌試験（コールド試験）から得られた処理水を用いて Cs 吸着試験を行った結果、バッチ処理（液固比 10 mL/g）にて Cs 吸着率は 94%であった。また、ガラス固化試験により、Cs が固体酸含有高珪酸ガラスに固定化できることが確認された(850℃、950℃、1200℃では Cs 残存率 100%、100%、85%)。

参考文献

[1] 宗澤ら, 環境放射能除染学会誌, Vol.4, No.1, pp.35-44 (2016). [2] 宗澤ら, 第 5 回環境放射能除染研究発表会, S4-3, (2016). [3] 稲葉ら, 第 4 回環境放射能除染研究発表会, S5-6, (2015). [4] 長澤, 日本化学会秋季事業 第 6 回 CSJ 化学フェスタ 2016, (2016). [5] 山崎, 横浜国立大学大学院博士論文, (2015).

本研究は中間貯蔵・環境安全事業株式会社（JESCO）が公募した「平成 28 年度除染土壌等の減容等技術実証事業」で実施したものである。

* Hideharu Takahashi[1], Yusuke Inaba[1], Miki Harigai[1], Kazuo Utsumi[1], Kenji Takeshita[1], Nobutake Horiuchi[2], Takahiro Chikazawa[2], Junichi Munezawa[3]
[1]Tokyo Institute of Technology, [2]Mitsubishi Materials Corporation, [3]ETD