アルカリ塩化物を用いたセシウムフリー鉱化法による土壤除染： 反応剤のカチオン価数に依存した Cs 除去過程

Soil decontamination using cesium-free mineralization with alkaline chloride:

Cs removal processes depending on valence of cations in reactants

*下山 巖¹, 小暮 敏博², 奥村 大河², 馬場 祐治¹

¹原子力機構, ²東大院理

セシウムフリー鉱化法では添加する反応剤により除染率が異なる。本報告では CaCl_2 , MgCl_2 , KCl , NaCl の塩化物試薬を反応剤に用いた実汚染土壤の除染試験の結果から、Cs 除去過程はカチオンの価数に依存し、1 価ではイオン交換が支配的であるのに対し、2 価では粘土鉱物の分解が主な誘因であることを示す。

キーワード：土壤除染, セシウム, 熱処理

1. 緒言

我々は Cs 汚染土壤の減容化のために、従来よりも低温の熱処理での除染を可能にするセシウムフリー鉱化法 (CFM) を提案している[1]。CFM では反応剤との化学反応によって Cs を固定している粘土鉱物を分解し、Cs 除去 (除染) した生成物を産業利用することで除去土壤を減容化することを目指している。しかし、粘土鉱物の反応と除染率向上のための反応剤の選定に関してはまだ最適化がなされていない。そこで本研究では 4 種類のアルカリ塩化物試薬 (CaCl_2 , MgCl_2 , KCl , NaCl) を用いて、大気及び低圧条件での熱処理による除染率と土壤の鉱物相の変化について調べた。

2. 実験

福島県の帰還困難区域から採取した真砂土を主体とする約 1 万 Bq/kg の土壤に重量比 1:1 で上記の 4 種類のアルカリ塩化物試薬を添加し、20Pa 程度の低圧もしくは大気圧中で、一定温度での加熱処理を 2 時間行った。水洗浄により余剰試薬を除去した後の試料に対して NaI 検出器を用いて放射能濃度の変化を測定し、処理前の値に対する除染率を求めた。また、X 線回折と透過電子顕微鏡により試料の構造変化を調べた。

3. 結果と考察

CaCl_2 の場合は大気・低圧条件による除染率の差は小さく、790°C で 95% 以上の除染率が得られた。一方、 MgCl_2 の場合は大気圧下での 695°C の熱処理に対し除染率 40% だったのに対し、低圧下では 90% に達した。 CaCl_2 添加時は 790°C の熱処理後に土壤中の黒雲母は消滅し、大気・低圧条件で異なる生成物が確認された。これは圧力条件によらず CaCl_2 が黒雲母の分解を誘起したことを示している。それに対して MgCl_2 添加時は大気圧下の 695°C の熱処理後も黒雲母が明瞭に確認されたのに対し、低圧下では黒雲母がブルーサイトやかんらん石への相変化を起こしており、除染率はそれに伴って増大したことがわかった。また、1 価カチオンを含む KCl と NaCl の場合も低圧下で除染が促進される傾向を示し、790°C の熱処理後、 KCl 添加時の除染率は大気圧下で 35%、低圧下で 82% となった。また NaCl 添加時の除染率は大気圧下 15% に対して低圧下 94% であった。しかし生成物は大気・低圧条件により大きな違いは示さず、土壤中の黒雲母が熱処理後も明瞭に観測されたことから、これらの試薬についてはイオン交換による Cs 除去過程が主であると結論した。

参考文献

[1] 下山巖 他, Photon Factory News, 35, 17-22 (2017); M. Honda *et al.*, ACS Omega, 2, 8678-8681 (2017).

*Iwao Shimoyama¹, Toshihiro Kogure², Taiga Okumura², Yuji Baba¹

¹Japan Atomic Energy Agency, ²The Univ. of Tokyo