

亜臨界水イオン交換法によるバーミキュライトからの Cs⁺脱離

Desorption of Cs⁺ from vermiculite by subcritical water ion-exchange method

*竹下 健二¹, 稲葉 優介¹, 殷 祥標^{1,2}, 駒 義和²

1. 東京工業大学、2. 日本原子力研究開発機構、

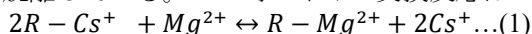
亜臨界水でのイオン交換によるバーミキュライトからの Cs 脱離現象を定量的に理解するために、交換イオンに Mg²⁺を用いた回分式のイオン交換実験により Cs で飽和されたバーミキュライトからの Cs 脱離率の時間変化を測定し、輸送現象論を用いて物質移動解析を行った。

キーワード：汚染土壌、亜臨界水、イオン交換、放射性セシウム

1. 背景および目的 除染で発生した汚染土壌は 1200 万 m³ を超えるが、8000Bq/kg 以下でそのまま利用できるものと放射線量の減衰を待って再利用されるものを合わせれば 90%以上の土壌は特別な処理をすることなく将来再利用が見込まれる。しかしながら、環境省が示した汚染土壌の分類のうちカテゴリーC (15,000 ~ 62,000 Bq/kg) の土壌をふるい分けして得られた細粒分とカテゴリーD (62,000Bq/kg 以上)の土壌を合わせて 70 万 m³ 強の土壌は適切な処理により Cs の回収と放射性廃棄物の減容化を行う必要が出てくるであろう。我々の研究グループは、亜臨界水イオン交換法による汚染土壌からの放射性セシウム回収技術を研究してきた。これまでに土壌の中でも Cs が安定吸着されやすいバーミキュライトから Cs の完全回収に成功しており、現在は、汚染土壌の連続処理のためのカラム処理プロセスの開発研究を行っている。亜臨界水でのイオン交換によるバーミキュライトからの Cs 脱離現象を定量的に理解するために、交換イオンに Mg²⁺を用いた回分式のイオン交換実験により Cs で飽和されたバーミキュライトからの Cs 脱離率の時間変化を測定し、輸送現象論を用いて物質移動解析を行った。

2. 実験手法 Cs を飽和吸着後のバーミキュライト粉末 2 g と 0.1 M MgCl₂ 水溶液 200 mL を回分式亜臨界水処理装置（回分式水熱処理装置）の圧力容器内へ入れ、密閉後、容器内を窒素ガスで置換し、容器内の圧力が 2 MPa になるまで窒素ガスを注入した。温度は 150°Cあるいは 250°Cで一定とし、フラクションコレクターを用いて約 1 mL ずつサンプルを回収した。その後、1、2、6、12 時間後に、同様の方法でサンプルを回収し、回収した溶液中の Cs 濃度を、原子吸光を用いて定量し、Cs 脱離率を算出した。

3. 実験結果 バーミキュライトの層間構造に吸着されている放射性 Cs⁺を亜臨界水中の交換イオン（主に Mg²⁺）でイオン交換することで脱離している。この時のイオン交換反応は



で記述される。イオン交換過程の平衡関係は選択係数 K_s により記述できる。式(1)の選択係数 K_s は式(2)で表される。

$$K_s = \frac{q_{Aeq} C_{BEq}^2}{C_{Aeq} q_{BEq}^2} \dots (2)$$

また、イオン交換速度の評価については、未だ詳細なイオン交換過程が知られていないことから、バーミキュライトの層間構造中のイオン移動過程が律速であると仮定して、固相側の総括物質移動係数 k_{sa} で評価した。この時、イオン交換速度は式(3)で記述される。

$$\frac{dq_A}{dt} = k_s a (q_A^* - q_A) \dots (3)$$

ここで q_A^* は水溶液中の Mg²⁺濃度 C_A に対して平衡な吸着 Mg²⁺濃度を表している。従って $(q_A^* - q_A)$ は水相から固相に輸送される Mg²⁺の推進力を表している。水相中の Cs⁺濃度の時間変化のデータを使って初期条件 $t=0, C_B=0, C_A=C_A^0$ を用いて式(3)の微分方程式を Runge-Kutta-Gill 法を用いて解き、実験結果と解析結果をフィッティングすることにより k_{sa} を決定した。図 1 に実験結果を示す。6 時間程度でイオン交換平衡に到達した。この結果ら選択係数(式(2))を求め、それを用いて式(3)を解いて過渡特性を計算した。ある特定の k_{sa} 値に対して解析解と実験値がよく一致し、 k_{sa} を決定できた。その結果、 k_{sa} は 250°Cで $2.5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ 、150°Cで $8.0 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ であった。温度を下げると物質移動係数は 1/3 程度に減少し、高温操作により高速で効率的に Cs を回収できることが分かった。

謝辞 本研究の成果は環境省平成 30 年度環境研究総合推進費の支援によって得られたものである。

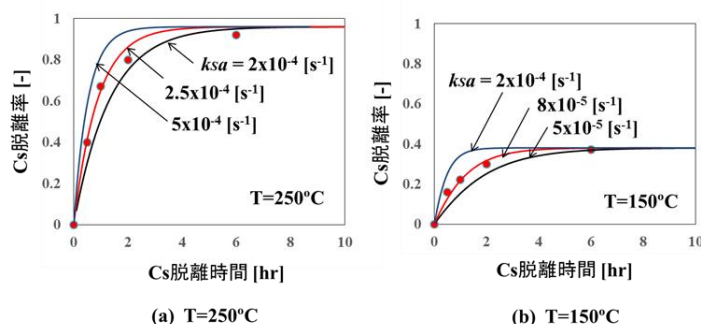


図1. Cs脱離回分試験の解析結果

*Kenji Takeshita¹, Yusuke Inaba², Yin Xiangbiao^{1,2}, Yoshikazu Koma²

¹ Tokyo Institute of Technology, ² Japan Atomic Energy Agency