

放射性セシウムで汚染された土壌浄化のための亜臨界水 イオン交換システムの開発

(1) 亜臨界水中の土壌からの Cs⁺ のイオン交換脱離

Development of Subcritical Water Ion Exchange System for Cleaning of Soil contaminated by Radioactive Cesium

(1) Ion-exchange Desorption of Cs⁺ from Soil in Subcritical Water

*竹下健二、殷 祥標、渡邊真太、福田達弥、中瀬正彦

東京工業大学 科学技術創成研究院 先導原子力研究所

高度汚染土壌の処理を目的として福島汚染土壌に含まれる粘土鉱物（バーミキュライト）からの亜臨界水イオン交換による Cs 脱離について基礎理論（速度論・平衡論）の確立を目指している。本報告では交換イオンの違いによる Cs 脱離への影響を調べ、亜臨界水イオン交換挙動の速度論、平衡論について検討する。

キーワード：放射性セシウム、汚染土壌、粘土鉱物、イオン交換、亜臨界水、脱離速度

【緒言】東京電力福島第一原子力発電所事故により、放射性 Cs (¹³⁴Cs、¹³⁷Cs) が環境へと放出され、大量 (1,300 万 m³) の汚染土壌が発生した。大部分の汚染土壌は環境省が決定した基準 (8,000 Bq/kg) 以下に放射能が減衰するのを待って再利用されるが、62,000Bq/kg 以上の高度汚染土壌 (70 万 m³) は減容固化が検討されている。放射性 Cs は主に土壌中の粘土鉱物（主にバーミキュライト）に選択吸着されており、演者らは高度汚染土壌の処理を目的としてバーミキュライトからの亜臨界水イオン交換による Cs 脱離について検討している。本報告では回分式耐圧装置を用いて各種交換イオンによるバーミキュライトからの Cs 脱離挙動を調べ、その結果から Cs 脱離の速度論、平衡論について検討する。

【バーミキュライトからの Cs 脱離試験】耐圧容器内で Cs⁺ を飽和吸着させたバーミキュライト (Cs 吸着量 33mg-Cs/g-verm) 2.0g に 0.01M の交換イオン (KCl、MgCl₂、CaCl₂、AlCl₃、FeCl₃、LaCl₃) を含む水溶液 200mL を加え、150℃及び 250℃で Cs 脱離試験を行った。試験開始から 0.5、1、2、6、12 の各時間で液サンプルを採取し、サンプル溶液中の Cs 濃度を原子吸光法で求め、Cs 脱離率を算出した。

【試験結果と考察】図 1 には 250℃の亜臨界水中におけるイオン交換平衡時の Cs 脱離率と交換イオンの水和イオン半径の関係を示す。交換イオンの価数の増加に伴って水和イオン半径は増加するが、多数の水和水に伴って交換イオンが粘土鉱物の層間に入ることにより、Cs 脱離が促進されることが分かる。

図 2 には交換イオンに 2 価イオン (MgCl₂) と 3 価イオン (AlCl₃、LaCl₃) を用いた場合の 150℃における Cs 脱離率の時間変化を示す。いずれの場合もイオン交換時間の増加に伴って Cs 脱離率は増加し、6 時間程度で平衡状態に至った。交換イオンとして 2 価イオン (Mg²⁺) を用いた場合に比べて 3 価イオン (Al³⁺や La³⁺) を用いた方が効率的に Cs⁺ を脱離できた。この結果からバーミキュライトへの Cs 吸着量 q に対する物質移動速度式

$$\frac{dq_A}{dt} = k_s a (q_A^* - q_A) \quad (1)$$

を解いて計算結果と実験結果を一致させ、物質移動容量係数 $k_s a$ を決定した。 $k_s a$ は 2 価イオン (Mg²⁺: $8.0 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$) に比べて 3 価イオン (Al³⁺: $1.5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ 、La³⁺: $2.0 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$) の方が大きく、交換イオンの価数が大きいほどイオン交換速度が速いことを分かる。Cs は層状化合物であるバーミキュライトの層間に強く吸着されているが、XRD 分析によると Cs を飽和吸着したバーミキュライトの層間距離は 10.7Å であったが、2 価イオン (Mg²⁺) でイオン交換すると層間距離は 14.3Å、3 価イオン (La³⁺) で交換すると 15.2Å に増加した。多価イオンは水和水に伴って層間に入り込むためにバーミキュライトの層間が広げられ、イオン交換速度が増加すると考えられる。

【付記】本研究は、科学研究費補助金基盤研究 (B) (一般)「金属イオンを含有した亜臨界水による土壌粘土鉱物からの Cs 脱離に関する研究 (課題番号 18H03398)」及び環境省環境研究総合推進費「汚染土壌浄化・再利用と廃棄物高減容化を目指した亜臨界水処理システムの開発」の成果の一部である。

*Kenji Takeshita, Xiangbiao Yin, Shinta Watanabe, Tatsuya Fukuda and Masahiko Nakase
Laboratory for Advanced Nuclear Energy, Institute of Innovative Research, Tokyo Institute of Technology

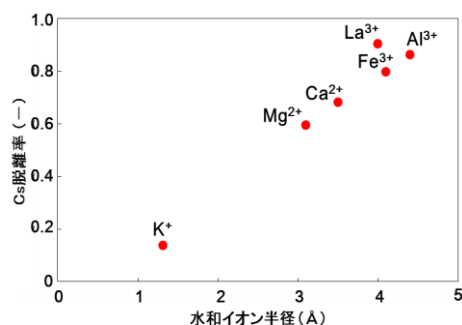


図 1. 水和イオン半径と脱離率との関係

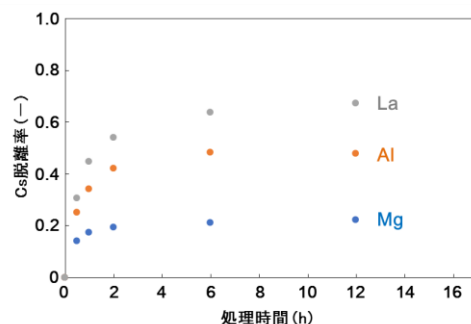


図 2. 150℃における経時的 Cs 脱離率