

土壤に吸着した放射性セシウムの不溶化についての研究

2年 本田菜々子 高野大輔 1年 松原蓮 坂田紀乃

【1. 諸言】

福島第一原子力発電所の事故後、放射性セシウムを含む大量の除去土壤が発生した。これらの除去土壤は放射性セシウムの漏出が無いことを前提に中間貯蔵を経て最終処分される予定で議論が進められているが、絶対に漏出しないとは言い切れない。また、大量の汚染土壤を保管するためには広大な敷地が必要だが保管場所が不足しているのが現状だ。そこで私たちはこれらの除去土壤を安全かつ、体積の少ない形で保管するためにポルサイトという鉱物に放射性セシウムを閉じ込める手法に注目した。(Fig.1)

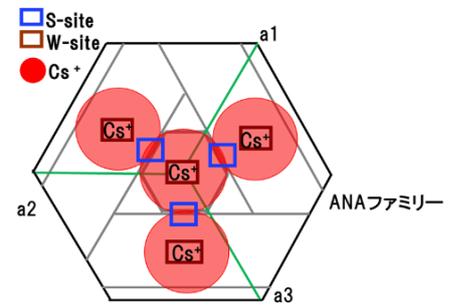


Fig.1 ポルサイトの構造のイメージ

ポルサイトとはゼオライト(沸石)の一種であり、実際に現在も土壤の処理で使われている。酸性から塩基性まで強く溶けにくいいため、漏出も無いとされている。しかし合成されたポルサイトの様々な条件下における漏出の有無についてはまだ検証が進んでいなかった。そこで私達は放射性セシウムの漏出の有無を調査する事にした。

また、ポルサイト合成の際の水熱合成に用いた放射性セシウムを含む溶液が、合成毎に廃液として発生するという問題があった。そこで今回私たちは溶液の含有物の量などの条件を変え繰り返し合成実験を行い、合成限界回数及び合成可能条件を調査した。なお、繰り返し合成実験については、既に福島大学による研究によって可能であることが確認されている。

【2. 実験1 リークテスト】

<先行研究及び実験目的>

昨年までの研究により、今回実験に用いる放射線測定器(下記<実験方法>にて詳細を示す)が、重量の少ないサンプルでも、最短約5時間の測定で一定の測定値を検出可能であることが分かった。この結果をもとに、今回私たちはポルサイトからの放射性セシウムの漏出の有無を確認するための実験を行った。

<実験方法>

放射性セシウムを含むポルサイト及び対照実験のための放射性セシウム含有物(土壤など)を石英砂で希釈し、流水実験装置(Fig.2)と水道水10Lを用いて約12時間流水実験を行ったその後、それらのサンプルの放射能濃度(セシウム137)を、千代田テクノル株式会社製Na(Tl)シンチレーションカウンター「RADIQTMFS200」を用いて5時間で測定し、流水実験前後での放射能濃度の減少量を確認した。ポルサイトを用いた実験での放射能濃度の減少が、対照実験のためのサンプルを用いた実験でのそれよりも十分に小さいと判断できる場合、ポルサイトからの放射性物質の「漏出がない」と判断することとした。なお、今回は対照実験に腐葉土(0.02g)と土壤(0.02g)を石英砂5gで希釈したものを使用した。(Fig.3)



Fig.2 漏出試験装置



Fig.3 希釈した腐葉土

<実験結果>

右に腐葉土用いた実験での放射能濃度の変化の結果を示す。N.D は測定器の限界検出値未満であることを示す。1～4回目の実験では平均して 1000Bq/kg の放射性セシウムの漏出を確認することが出来た。しかし 5 回目の実験においては、放射性セシウムの漏出が少なかった。その要因としては、流水実験装置の不具合により対象物が 12 時間水に触れていなかったことが考えられる。

	実験前(Bq/kg)	実験後(Bq/kg)
1 回目	5581.9	N.D.
2 回目	7261.2	5985.0
3 回目	6576.6	4060.0
4 回目	4187.4	3647.1
5 回目	3836.5	3833.1
6 回目	7798.5	N.D.

右に土壌を用いた実験での放射能濃度の変化の結果を示す。一回の実験で放射性セシウム濃度の減少が確認されたものの、土壌は腐葉土と比べて放射性セシウムが漏れにくいため、期待した結果を得ることができなかった。また、3 回目と 4 回目の実験後に大幅に放射能濃度が増加した原因については現在調査中だが、測定方法に何らかの不備があったと考えている。

	実験前(Bq/kg)	実験後(Bq/kg)
1 回目	7198.4	7164.2
2 回目	6077.5	305.1
3 回目	6163.9	9293.8
4 回目	10607.9	11554.8
5 回目	11257.4	10615.2

ポルサイトの流水実験は現在進行中である。

<考察>

土壌での実験から、流水によって土壌から放射性セシウムが漏出する可能性は非常に高いと考えられる。また、複数の実験において、放射能濃度の低下量が少なかったことや流水実験の前後で放射能濃度が増加していたことなどの要因は現在検証中である。現時点では、腐葉土や土壌に対し適切に流水が行えなかったこと、測定方法に不備があったことなどを要因として考えている。

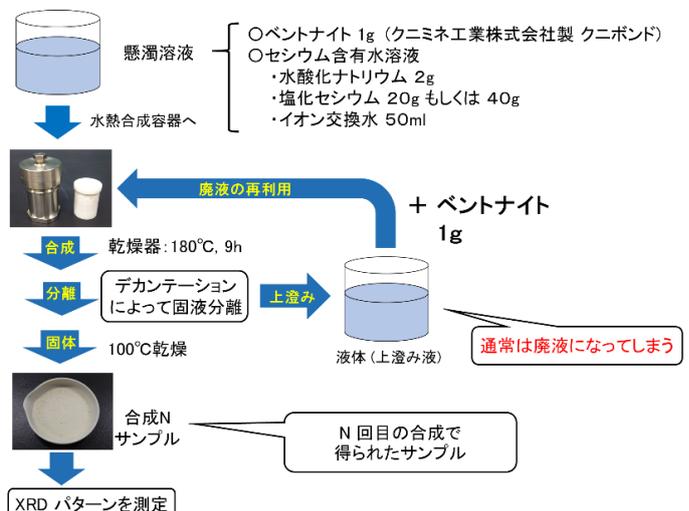
<今後の展望>

引き続きポルサイトの流水による漏出の有無を調査していくと共に、結果をまでに行った研究の結果をより深く検証し、土壌からの流出した放射性セシウムの量に大きなばらつきがあったことや、期待通りの結果を得ることが出来なかった原因を解明し、必要に応じて実験方法の改善を行う。また、模擬海水などの水道水以外の水を用いた条件下での、ポルサイトからの放射性セシウムの漏出の有無についても並行して調査を行う。

【3. 実験2 水熱法による溶液再利用時のポルサイト合成】

<実験目的>

実験方法にて示す水熱合成に用いる溶液中の、塩化セシウムの含有量を変化させてポルサイトの水熱合成を行い、塩化セシウムが合成に与える影響及び、合成可能な条件を調査する。右図は水熱合成のイメージ図。



<実験方法>

水熱合成容器に水酸化ナトリウム(2g)、イオン交換水(50g)、ベントナイト(1g)、塩化セシウム(10g, 20g, 40g)を加え、この溶液を、定温乾燥機を

用いて 180°Cで 9 時間保ち、水熱合成を行った。合成後の溶液中の沈殿物を分離、洗浄して乾燥させた。この沈殿物の XRD (RIGAKU Ultima-III) パターンを測定し、ポルサイトの合成の有無を確認した。以下、N 回目の合成で得られた沈殿物のサンプルを合成 N と表現する。一方、分離した廃液に相当する溶液には、新たにベントナイト (1.0 g) のみを加え、再び一回目の合成と同条件で水熱合成を行った。これによって通常はセシウムを含む廃液となってしまう溶液を再利用し、その量を減らすことができる。このベントナイトのみを加える操作をそれぞれ異なる塩化セシウム量で各 13 回行い、各回 XRD パターンを測定し、合成の有無を確認した。

<実験結果>

下に塩化セシウムを 20 g、40 g 加えた際の合成回数ごとの XRD パターンを示す (fig.4、fig.5)。最上はポルサイト、最下はベントナイトの XRD パターンである。最上のポルサイトの XRD パターンと同じピークを確認できたとき、ポルサイトが合成されたと判断した。

どちらの実験においても、合成 8 でポルサイト特有のピークが消滅または弱化しているため、合成は 8 回目または 9 回目までであったと判断した。

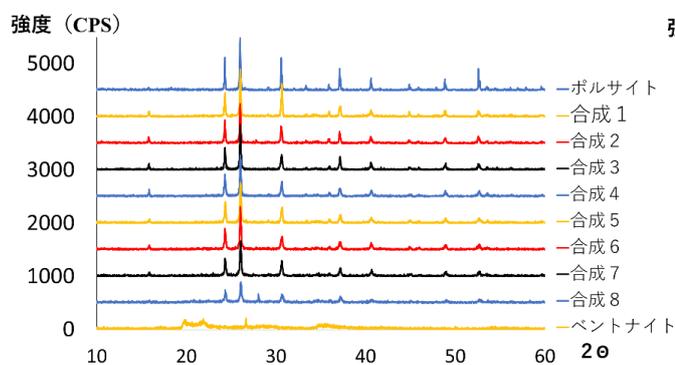


Fig.4 NaCl 20 g の XRD パターン

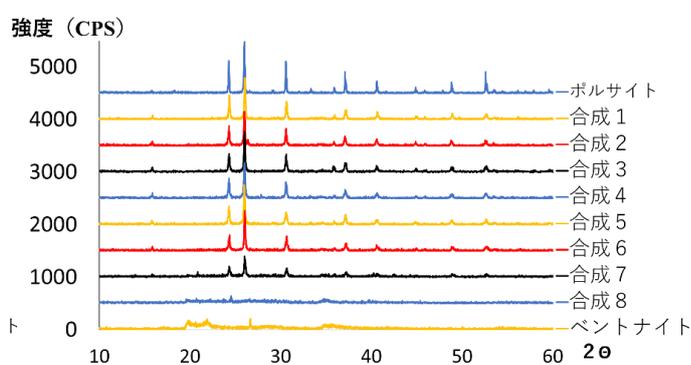


Fig.5 NaCl 40 g の XRD パターン

下に塩化セシウム 10 g での実験結果を示す (fig.6)。ポルサイト合成の確認方法は上の実験と同様である。グラフから、合成 9 においてポルサイト特有のピークが消滅しているため、ポルサイトが合成できたのは 8 回目までであったと判断した。また、塩化セシウム 10 g での実験では合成後の溶液の pH の値も測定した。以下、N 回目の合成後の溶液を溶液 N と表現する (合成前の溶液は溶液 0 と表現する)。表 (fig.7) より、溶液 8 の pH の値が 12 まで低下したことがわかる。これは 9 回目の合成に用いられた溶液の pH が低下していたことを示すため、上記の結果と合致する。

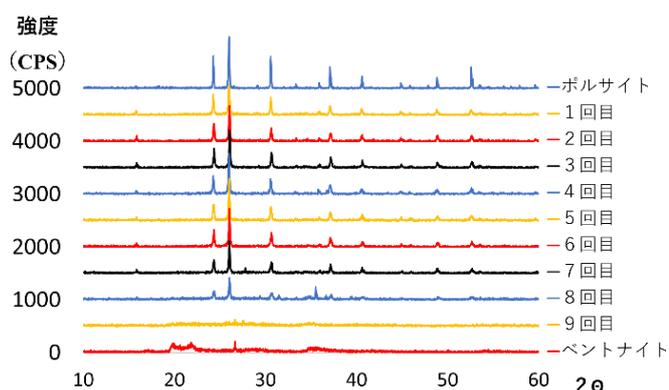


fig.6 NaCl 10 g の XRD パターン

溶液	溶液 0	溶液 6	溶液 7	溶液 8
万能試験紙				
pH	14	13	13~12	12

fig.7 NaCl 10 g での実験で合成回数と pH の値の変化

<考察>

塩化セシウム 20 g、40 g、10 g での 3 回の実験結果から、今回私たちが行った実験において、溶液の塩化セシウム含有量が合成可能回数に与えた影響は小さかったと考えられる。また、塩化セシウム 10 g での実験の pH の値の変化の測定結果から、今回ポルサイトの合成ができなくなったのは、溶液中の水酸化物イオンの減少により塩基性が弱まり、ケイ素及びアルミニウムソースであるベントナイトが溶解されなくなったためであると考えた。

<今後の展望>

今回の実験では水酸化ナトリウムの不足によってポルサイトが合成されなくなったと考えられたため、溶液中の物質の割合を調節し、塩化セシウム量が合成可能回数に与える影響を調査する予定である。また、より定量的な研究結果を得るため、今後は mol 計算など化学的な検証を用いた研究を行いたいと考えている。

【4. 謝辞】

本研究は福島大学共生システム理工学類 大橋 弘範 准教授のご指導、ご監修のもとで行った。また、東京大学大学院新領域創成科学研究科 斎藤泰秀先生よりご助言をいただいた。リークテストにおいて使用した Na(TI)シンチレーションカウンター「RAD IQTM FS200」は千代田テクノル株式会社様のご厚意により借り受けることができ、高校の部活動中の柔軟な使用が可能となった。厚く御礼申し上げ、感謝の意を表す。