

汚染土壌の減容を目的とした重液分離による
放射性微粒子回収法の高度化
(委託研究)

—平成 30 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—

Upgrading of Recovery Method for Radioactive Microparticles by Heavy Liquid
Separation Aiming to Volume Reduction of Contaminated Soil
(Contract Research)

-FY2018 Center of World Intelligence Project for Nuclear Science/Technology
and Human Resource Development-

廃炉国際共同研究センター
筑波大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science
University of Tsukuba

福島研究開発部門
福島研究開発拠点

Fukushima Research Institute
Sector of Fukushima Research and Development

January 2020

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<https://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方2番地4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Institutional Repository Section,
Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department,
Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2020

汚染土壌の減容を目的とした重液分離による放射性微粒子回収法の高度化（委託研究）

－ 平成 30 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業 －

日本原子力研究開発機構
福島研究開発部門 福島研究開発拠点

廃炉国際共同研究センター

筑波大学

(2019 年 11 月 13 日受理)

日本原子力研究開発機構（JAEA）廃炉国際共同研究センター（CLADS）では、平成 30 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業（以下、「本事業」という）を実施している。本事業は、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所の廃炉等を始めとした原子力分野の課題解決に貢献するため、国内外の英知を結集し、様々な分野の知見や経験を、従前の機関や分野の壁を越えて緊密に融合・連携させた基礎的・基盤的研究及び人材育成を推進することを目的としている。平成 30 年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省から JAEA に移行することで、JAEA とアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築した。

本研究は、研究課題のうち、平成 30 年度「汚染土壌の減容を目的とした重液分離による放射性微粒子回収法の高度化」について取りまとめたものである。

福島第一原子力発電所の事故では、放射性微粒子や粘土鉱物の存在により、放射性セシウムは表層土壌において不均一に存在することが分かっている。このため、これらの粒子を選択的に取り除くことで汚染土壌の減容に繋がると考えられる。本研究は、放射性微粒子を選択的に土壌から取り除く手法の検討や、土壌の減容を目的とした、粒子の比重の違いを利用した分離法（重液分離法）の実用化の可能性について探る。

本報告書は、日本原子力研究開発機構の英知事業における委託業務として、筑波大学が実施した成果に関するものである。

廃炉国際共同研究センター：〒979-1151 福島県双葉郡富岡町大字本岡字王塚 790-1

Upgrading of Recovery Method for Radioactive Microparticles by Heavy Liquid Separation Aiming to Volume
Reduction of Contaminated Soil (Contract Research)
– FY2018 Center of World Intelligence Project for Nuclear Science/Technology and Human Resource
Development –

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science

University of Tsukuba

Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development
Japan Atomic Energy Agency
Tomioka-machi, Futaba-gun, Fukushima-ken

(Received November 13, 2019)

The Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (CLADS), Japan Atomic Energy Agency (JAEA), had been conducting the Center of World Intelligence Project for Nuclear Science/Technology and Human Resource Development (hereafter referred to “the Project”) in FY2018. The Project aims to contribute to solving problems in nuclear energy field represented by the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. For this purpose, intelligence was collected from all over the world, and basic research and human resource development were promoted by closely integrating/collaborating knowledge and experiences in various fields beyond the barrier of conventional organizations and research fields. The sponsor of the Project was moved from the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology to JAEA since the newly adopted proposals in FY2018. On this occasion, JAEA constructed a new research system where JAEA-academia collaboration is reinforced and medium-to-long term research/development and human resource development contributing to the decommissioning are stably and consecutively implemented.

Among the adopted proposals in FY2018, this report summarizes the research results of the “Upgrading of Recovery Method for Radioactive Microparticles by Heavy Liquid Separation Aiming to Volume Reduction of Contaminated Soil”.

After the accident of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, radioactive cesium has been heterogeneously distributed in surface soil due to the existence of radioactive microparticles and clay minerals. Therefore, the selective removal of these microparticles will lead to the volume reduction of contaminated soil. The present study examines methods for selectively removing radioactive microparticles from soil. Also, in order to reduce the volume of contaminated soil, we search a possibility to practically apply the separation method that uses the difference in specific gravity of particles (heavy liquid separation method).

Keywords: Cesium-rich Microparticles, Heavy Liquid, Sodium Polytungstate, Specific Gravity, Contaminated Soil, Radioactive Cesium, Volume Reduction, Selective Separation

This work was performed by University of Tsukuba under contract with Japan Atomic Energy Agency.

目次

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要	1
2. 平成 30 年度採択課題	2
付録 成果報告書	5

Contents

1. Outline of Center of World Intelligence Project for Nuclear Science/Technology and Human Resource Development	1
2. Accepted Proposal in FY2018	2
Appendix Result Report	5

This is a blank page.

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要

文部科学省では、「東京電力(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等研究開発の加速プラン(平成26年6月文部科学省)」等を踏まえ、平成27年度から「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」(以下、「本事業」という。)を立ち上げ、「戦略的原子力共同研究プログラム」、「廃炉加速化研究プログラム」及び「廃止措置研究・人材育成等強化プログラム」を推進している。

具体的には、国内外の英知を結集し、国内の原子力分野のみならず様々な分野の知見や経験を、機関や分野の壁を越え、国際共同研究も含めて緊密に融合・連携させることにより、原子力の課題解決に資する基礎的・基盤的研究や産学が連携した人材育成の取組を推進している。

一方、日本原子力研究開発機構(以下、「JAEA」という。)では、平成27年に廃炉国際共同研究センター(以下、「CLADS」という。)を組織し、「東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ」等を踏まえ、東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所廃炉(以下、「1F廃炉」という。)に係る研究開発を進めている。

また、平成29年4月にCLADSの中核拠点である「国際共同研究棟」の運用を開始したことを踏まえ、今後はCLADSを中核に、廃炉の現場ニーズを踏まえた国内外の大学、研究機関等との基礎的・基盤的な研究開発及び人材育成の取組を推進することにより、廃炉研究拠点の形成を目指すことが期待されている。

このため、本事業では平成30年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省からJAEAに移行することで、JAEAとアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築することとし、従来のプログラムを、①共通基盤型原子力研究プログラム、②課題解決型廃炉研究プログラム、③国際協力型廃炉研究プログラム、④研究人材育成型廃炉研究プログラム(平成31年度より新設)に再編した。

2. 平成 30 年度採択課題

平成 30 年度は「共通基盤型原子力研究プログラム」、「課題解決型廃炉研究プログラム」、「国際協力型廃炉研究プログラム」において、研究課題の採択を決定した。公募の概要は以下のとおりである。

- ・ 公募期間：平成 30 年 5 月 22 日（火）～6 月 22 日（金）
平成 30 年 5 月 22 日（火）～7 月 12 日（木）※日英共同研究のみ
- ・ 提案数：
共通基盤型原子力研究プログラム 49 課題（若手研究 14 課題、一般研究 35 課題）
課題解決型廃炉研究プログラム 28 課題
国際協力型廃炉研究プログラム 5 課題

これらの提案について、外部有識者から構成される審査委員会において、書面審査及び面接審査、日英共同研究については二国間の合同審査を実施し、採択候補課題を選定し、その後、PD（プログラムディレクター）・PO（プログラムオフィサー）会議での審議を経て、表 2-1 に掲げる 19 の採択課題を決定した。

表 2-1 平成 30 年度採択課題一覧（1/3）

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
被災地探査や原子力発電所建屋内情報収集のための半自律ロボットを用いたセマンティックサーベイマップ生成システムの開発	河野 仁	東京工芸大学
汚染土壌の減容を目的とした重液分離による放射性微粒子回収法の高度化	山崎 信哉	筑波大学
ラドンを代表としたアルファ核種の吸入による内部被ばくの横断的生体影響評価	片岡 隆浩	岡山大学
炉心溶融物の粘性及び表面張力同時測定技術の開発	大石 佑治	大阪大学
iPS 細胞由来組織細胞における放射線依存的突然変異計測系の確立	島田 幹男	東京工業大学

表 2-1 平成 30 年度採択課題一覧 (2/3)

課題名	研究代表者	所属機関
レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度の低いストロンチウム 90 の迅速分析技術開発	岩田 圭弘	東京大学

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
放射性核種の長期安定化を指向した使用済みゼオライト焼結固化技術の開発	新井 剛	芝浦工業大学
燃料デブリ取り出しを容易にするゲル状充填材の開発	牟田 浩明	大阪大学
レーザー蛍光法を用いた燃料デブリ変質相の同定	斉藤 拓巳	東京大学
過酷炉心放射線環境における線量測定装置の開発	岡本 保	木更津工業高等専門学校
レーザー加工により発生する微粒子の解析と核種同定手法の開発	長谷川 秀一	東京大学

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
合金相を含む燃料デブリの安定性評価のための基盤研究	桐島 陽	東北大学
ガンマ線画像スペクトル分光法による高放射線場環境の画像化による定量的放射能分布解析法	谷森 達	京都大学
燃料デブリ取出し時における放射性核種飛散防止技術の開発	鈴木 俊一	東京大学
アルファダストの検出を目指した超高位置分解能イメージング装置の開発	黒澤 俊介	東北大学

表 2-1 平成 30 年度採択課題一覧 (3/3)

課題名	研究代表者	所属機関
ナノ粒子を用いた透明遮へい材の開発研究	渡邊 隆行	九州大学
先端計測技術の融合で実現する高耐放射線燃料デブリセンサーの研究開発	萩原 雅之	大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構

国際協力型廃炉研究プログラム (日英共同研究)

課題名	研究代表者	所属機関
放射性微粒子の基礎物性解明による廃炉作業リスク低減への貢献	五十嵐 康人	茨城大学
放射線耐性の高い薄型 SiC 中性子検出器の開発	三澤 毅	京都大学

国際協力型廃炉研究プログラム (日仏共同研究)

課題名	研究代表者	所属機関
採択なし	—	—

本報告書は上記のうち、共通基盤型原子力研究プログラム【若手研究】「汚染土壌の減容を目的とした重液分離による放射性微粒子回収法の高度化」について記したものである。

研究成果を取りまとめた成果報告書を付録として添付する。

付録
成果報告書

This is a blank page.

平成 30 年度

日本原子力研究開発機構

英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

汚染土壌の減容を目的とした重液分離による

放射性微粒子回収法の高度化

(契約番号 30I111)

成果報告書

平成 31 年 3 月

国立大学法人 筑波大学

本報告書は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の「英知を結集した原子力技術・人材育成推進事業」による委託業務として、筑波大学が実施した平成 30 年度「汚染土壌の減容を目的とした重液分離による放射性微粒子回収法の高度化」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略	iii
1. はじめに	1
2. 業務計画	3
2.1 全体計画	3
2.2 平成 30 年度の成果の目標及び業務の実施方法	5
3. 平成 30 年度の実施内容及び成果	6
3.1 重液分離による放射性微粒子分離法の高度化	6
3.1.1 土壌粒子の分離の効果の検討	6
3.1.1.1 研究の目的	6
3.1.1.2 実験操作	6
3.1.1.3 実験結果と考察	8
3.2 ランニングコストを低減するための重液の回収、再利用に関する検討	13
3.2.1 重液分離により生じる廃液中の溶存態セシウム量の定量評価	13
3.2.1.1 研究の目的	13
3.2.1.2 実験操作	13
3.2.1.3 実験結果と考察	13
3.2.2 廃液からの重液成分の回収法の検討（再結晶法）	15
3.2.2.1 研究の目的	15
3.2.2.2 実験操作	15
3.2.2.3 実験結果と考察	15
3.3 研究推進	17
4. 結言	18

表一覧

表 1 回収された各画分の重量比 12
 表 2 SPT 回収実験の結果と ¹³⁷Cs の残留率 16

図一覧

図 1 本業務における全体計画図 3
 図 2 化学的分散手法の検討 6
 図 3 物理的分散手法の検討 7
 図 4 連続分離操作の手順 8
 図 5 分散剤を加えて重液分離した場合（比重 2.0）の沈降粒子の重量比 8
 図 6 分散剤を加えて重液分離した場合（比重 2.0）の沈降粒子の ¹³⁷Cs 放射能比 9
 図 7 超音波処理して重液分離した場合（比重 2.0）の沈降粒子の重量比 9
 図 8 超音波処理して重液分離した場合（比重 2.0）の沈降粒子の ¹³⁷Cs 放射能 10
 図 9 分離した画分の写真（上段）及びオートラジオグラフ像（下段） 11
 図 10 各画分に含まれる ¹³⁷Cs の割合 11
 図 11 重液分離操作による ¹³⁷Cs の溶脱割合 13
 図 12 SPT 回収実験の様子 16

略語一覧（アルファベット順）

EDS:	Energy Dispersive X-ray Spectrometry	（エネルギー分散型 X 線分析）
SEM:	Scanning Electron Microscopy	（走査型電子顕微鏡）
SPT:	Sodium Polytungstate	（ポリタングステン酸ナトリウム）

概略

2011年に起きた福島第一原子力発電所の事故により、大量の放射性物質が環境中に放出された。それらの放射性物質は、大気を経由して陸域に沈着した[1-5]。この事故で、広範囲に亘り放射能汚染が起これ、その結果大量の放射性廃棄物が生じた。中間貯蔵施設への輸送対象物の量は約1400万 m^3 とされており[6]、放射性廃棄物の減容及びその技術が必要になると考えられる。現在、土壌中に存在する主な放射性核種は ^{137}Cs であり、これまでの多くの研究により放射性セシウムは土壌中に不均一に存在する事が分かっている[7-9]。土壌中における放射性セシウムの存在形態は大きく2種類に分ける事ができ、層状ケイ酸塩に強く吸着した物と、ガラス状の微粒子中に存在する物が報告されている。前者の層状ケイ酸塩においては、フレイドエッジサイトと呼ばれる吸着サイトに強く保持される事が分かっている[10-12]。一方、後者のガラス状微粒子（以下、「Cs含有粒子」と略す）は1粒子で数千ベクレルの放射能を持つものも報告されており、1粒子の寄与が大きい[13-16]。粒子が汚染土壌に含まれている事で、全体の放射能を上げていると考えられる。そこで、本研究ではこれらのCs含有粒子を選択的に分離する事を目的とする。

これまでに、汚染土壌を強熱する事で放射性セシウムを除く技術などが開発されてきた[17]。しかし、この手法は除去率が高い一方、処理した土は土壌として用いる事はできなくなる。本研究では、環境負荷なくCs含有粒子を選択的に取り除く事で、汚染土壌の放射能を低減し減容に繋がる事が期待される。これまでにCs含有粒子の研究が進められており、その放射能や元素組成、微細構造などが明らかになった[13, 18, 19]。これらの研究により、Cs含有粒子は非晶質のガラス粒子が母体であり、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比の違いによりその性状が異なる事も示唆された[20]。しかし、このようなCs含有粒子を選択的に除去する研究は全くない。Cs含有粒子に共通する性質は非晶質である事とケイ酸塩が主成分である事である。そこで、本研究では比重の違いを用いてCs含有粒子と天然鉱物を分離する手法について検討した。これまで重液として有機溶媒や毒劇物である重金属水溶液などが用いられてきたが、近年、毒性のないポリタングステン酸ナトリウム（以下、「SPT」（Sodium polytungstate）と略す）の水溶液を用いた重液分離法が鉱物学の分野で用いられるようになってきた[21-23]。本研究では、この重液分離法を適用し、汚染土壌からCs含有粒子を選択的に除去する方法の開発に取り組んだ。本研究の到達目標は、重液を用いて放射性微粒子を取り除き、室内実験において放射能濃度を初期量の50%以下にする事とした。また、その際の土壌の減容割合についても50%を目標とした。

本研究の目標を達成するために、重液分離に際して土壌粒子分散の効果、土壌粒子篩い分けの効果、土質の効果を検討する必要がある。また、重液分離法を工業的に応用するために、ランニングコストの低減が必要である。このために一度重液分離法により処理した後に溶脱する放射性セシウム濃度の定量と、廃液からSPTを回収する必要がある。

本年度は土壌粒子分散の効果及び、重液分離による放射性セシウムの溶脱量の評価、SPTの回収法について検討を行った。土壌粒子分散の効果について、重液分離法によりCs含有粒子を選択的に除去するためには、Cs含有粒子を含む土壌の凝集を防ぎ、重液中に分散させる必要がある。これについて、鉱物学でよく用いられる超音波法と分散剤を用いる方法それぞれについて検討した。本研究では、福島第一原子力発電所近傍で採取した表層土壌を2mmで篩い分けし、粒径の大きな土壌粒子を除去したものをを用いた。この土壌を重液中に分散させて、超音波ホモジナイザーを用いて物理的に土壌粒子を分散させる方法と、分散剤としてポリリン酸ナトリウムを加える

方法について検討した。次に、上記の重液分離法により生じた廃液をメンブレンフィルターを用いてろ過した。この水溶液についてゲルマニウム半導体検出器を用いた γ 線測定を行い放射性セシウムの濃度を定量した。さらに放射性セシウム濃度の定量後、廃液から SPT を回収する方法について検討を行った。回収法については、本年度は有機溶媒を用いた再結晶法について検討した。

まずは分散の効果を調べるために比重 2.0 の SPT 溶液で分離を行い、この溶液中で沈降した粒子の重量及び放射能濃度から分散処理の効果について検討した。1 段階の分離による回収率は、放射能で $94 \pm 6\%$ 、重量で $99 \pm 3\%$ となり、ほぼ全ての画分を回収できたとみなした。そしてポリリン酸ナトリウムの濃度が 1, 10, 100 ppm となるように系に加えた、比重の大きな成分の全体に対する重量比を求めた。その結果、ポリリン酸ナトリウムの濃度が大きくなるにつれて、重量比は最大で約 3% 減少した。一方で超音波処理を行った場合、比重の大きな成分の全体に対する重量比は超音波処理の時間を長くするにつれて増加し、最大で約 6% 増加した。凝集している土壤粒子はその中に気泡を含んでおり、比重を過小評価する可能性がある。このため、土壤粒子の凝集体を分散させる事で比重の大きな成分の量が増加すると考えられる。ポリリン酸ナトリウムで異なる結果が得られた原因については、今後の検討が必要であるが、本研究では、分散効果のより大きな超音波法を採用してさらに実験を進めた。

重液分離法による分離効果をより詳細に検討するために、比重 2.0、2.3、2.6 及び 2.8 の SPT 溶液を調製し、土壤粒子を重液分離法により段階的に 5 つの画分に分離した。まず、本手法の回収率について放射能で計算した場合およそ 90% となり、重量で計算した場合もおよそ 90% 程度となった。今回の実験条件では約 1 g の土壤を分離した。この土壤を回収する際の損失や回収した試料の計量時の誤差によるものと推測される。この問題は重液分離法で取り扱う量を増やす事で無視できる量になると考えられる。また、 ^{134}Cs と ^{137}Cs の分離挙動を調べた結果、各画分に含まれるこれらの放射性セシウムの同位体比はほぼ一致した。本実験時点で、 ^{134}Cs の濃度は減衰により ^{137}Cs の 1/10 程度に減少している。よって、以降は分析時間の短縮のために ^{137}Cs のみで議論を行った。各画分の放射性セシウムの分離結果について、比重が 2.0 以下の画分に全放射能の 50-60% 程度が集約される事が分かった。一方でこの画分の重量パーセントはおよそ 20% であり、その放射能濃度 (Bq kg^{-1}) はバルクの放射能濃度の約 2-3 倍となった。その他の画分を合計した画分の放射能濃度は初期濃度の 0.5 倍程度となった。つまり、比較的高濃度の粒子が最も軽い画分に濃集される結果が示された。この結果から重液分離法の有効性が確かめられた。

次に、重液分離法により生じた廃液中の放射性セシウム濃度を定量した。今回の操作では、比重 2.0、2.3、2.6 そして 2.8 の順番で段階的に土壤粒子を重液分離した。分離に用いた後のそれぞれの重液中の放射性セシウム濃度を測定した結果、それぞれの廃液に含まれた溶存態の放射性セシウム量 (Bq) は、分離前の土壤の放射能の 0.5、0.7、0.1、0.1% となり、合計 2% 以下となった。土壤の分離操作が進むにつれて溶脱する量が減少した事、そして SPT 溶液はナトリウムイオン濃度が高い事を踏まえると、イオン交換性の放射性セシウムが脱離した結果と考えられる。つまり、重液分離法を採用する場合、SPT 溶液を再利用すると徐々に放射性セシウム量が増えていく事が予想される。連続的に SPT 溶液を使用する場合、特に放射能濃度の高い土を処理した後は多量の放射性セシウムを含む事になるため、その除去が必要になる事が示唆された。

最後に、重液分離した後の廃液から SPT の回収を試みた。今回はエタノール及びアセトンを用いた回収法について検討した。回収した SPT 廃液を全て混合した後乾固させ、その固体が溶解残

る程度に超純水を加え SPT 飽和溶液を得た。この溶液に徐々にエタノールを加えると白色の懸濁液を得た。この懸濁液を 0.45 μm のメンブレンフィルターでろ過し、ろ液を蒸発乾固させる事で白色の粉末を得た。この手法の回収率はアセトン、エタノールともに 10%程度であった。回収した SPT からは ^{137}Cs が検出された。本手法では、 ^{137}Cs の除去に関する選択性は少ない事が明らかとなった。

本年度の結果について、予定されていた全ての検討項目を実施し一定の成果を得る事ができた。しかし土壌の分散について、乾燥土壌は気泡を含む事があり水と接触しにくい性質がある事が新たに分かった。このため、超音波処理する前に脱気する事で、重液がより粒子に浸透する事が予想され操作全体の効率が増す事が期待される。重液分離法の効率をより高めるための方策として、この脱気の操作を新たに加え、その効果について来年度に検討する。また、当初の予定通り土壌粒子をサイズ分離して、砂及びシルトと粘土成分に分ける。これらのサイズ（土壌の性質）が重液分離法における粒子の分離挙動に与える影響を検討する。さらに、SPT の回収法について主にイオンクロマトグラフィー法について検討を行う。その他、再結晶法やサイズ排除クロマトグラフィー法についても検討を行う。さらに、廃液中の放射性セシウムの溶脱についても引き続き測定を行う。

1. はじめに

本研究の目標は、福島第一原子力発電所の事故により生じた放射性廃棄物（汚染土壌）の減容に向けた新規手法について検討を行う事である。この目標は、「JAEA：廃炉に関する基礎・基盤研究の課題リスト（18/02/16）」に示されている 3-1 廃炉工程を大幅に改善する可能性のある代替的でイノベーティブな研究（3）放射性廃棄物の減容化に資する技術③土壌からの放射性物質の除去に関する課題である。放射性廃棄物の量は推定で 1400 万 m^3 であり、指定廃棄物の基準となる 8000 Bq kg^{-1} を下回る物が多いものの [6]、 8000 Bq kg^{-1} を超える指定廃棄物がクリアランスレベル 100 Bq kg^{-1} を下回るためには 200 年以上かかると予想される事、そして中間貯蔵後に処理が必要な事などから、指定廃棄物の内の 90% を占める土壌を減容する技術が必要と考えられる。

事故から 8 年経過した現在では、土壌中に存在する主な放射性核種は ^{137}Cs である。これまでの多くの研究により、放射性セシウムは土壌中に不均一に存在する事が分かっている [7-9]。放射性セシウムは土壌を構成する層状ケイ酸塩に強く吸着する他、福島第一原子力発電所事故で特有な事象として、ガラス状の微粒子（以下、Cs 含有粒子と略す）として存在する事が明らかとなっている [13-16]。放射性セシウムは層状ケイ酸塩のフレイドエッジサイトと呼ばれる吸着サイトに強く保持される事が分かっている。このため、表面を研磨する事で土壌の除染が可能となり得る。東京電力によると、ポンプを用いて汚染土壌を循環させる事で表面が研磨され、放射性セシウムを 90% 程度除去できると報告している [24]。一方、後者の Cs 含有粒子は 1 粒子で数千ベクレルの放射能を持つものも報告されており、1 粒子の寄与が大きい [13-16]。さらに、放射性セシウムは Cs 含有粒子全体に不均一に含まれているため、表面を削るだけでは減容に至らないと考えられる。また、汚染土壌を強熱する事で放射性セシウムを除く技術なども開発されている [17]。しかし、この手法は除去率が高い一方、処理した土は土壌として用いる事はできなくなる。反対に環境負荷なく Cs 含有粒子を選択的に取り除く事ができれば、汚染土壌の放射能を低減し減容に繋がる事が期待される。そこで、本課題ではガラス状の微粒子を汚染土壌から選択的に除く技術を確立する事で、汚染土壌を放射能の高い Cs 含有粒子群と放射能の低い天然土壌群に分別できると考えた。Cs 含有粒子と天然土壌粒子を分離するためには、それぞれの粒子群のバルク特性の違いを利用する必要がある。これまでの研究により明らかにされた Cs 含有粒子の共通の特性として、非晶質のガラス粒子である事が挙げられる。一方で、主な天然鉱物は石英、雲母、長石等が挙げられるがこれらもケイ酸塩を主体とする鉱物である。そこで、これらの Cs 含有粒子と天然土壌粒子は比重により分離できる可能性を考えた。非晶質ガラスの比重は 2.3 程度であり、天然鉱物の比重は 2.6 を超える事が予想される。この特性の違いを利用する事で、Cs 含有粒子の分離が果たせると考えられる。そこで本研究では、重液分離法を用いた天然鉱物と Cs 含有粒子の分離の可能性について検討を行う。重液分離法は鉱物学の分野で用いられてきた手法であり、比重の重い溶液に土壌を分散させる事で沈降する粒子群と浮遊する粒子群に分離される。これまで重液には有機溶媒や毒劇物である重金属水溶液などが用いられてきたが、近年になって毒性のないポリタングステン酸ナトリウム（SPT）水溶液を用いた重液分離法が用いられるようになってきた [21-23]。本研究では、重液分離法により分離した放射能の低い天然土壌を環境中に戻す事を想定し、SPT 溶液を用いて天然鉱物と放射性微粒子を比重の違いにより大まかに分離して放射性微粒子を選択的に取り除く事で、汚染土壌の減容が図れるのではないかと考えた。

先行研究では、表層土壌中における Cs 含有粒子の存在割合は 8.5-32%であり、50-320 個/g であると報告されている [25]。ここで、100 μm の Cs 含有粒子が 1g の土壌中に 320 個含まれ、Cs 含有粒子の比重を 2.3 と仮定すると、土壌全体に含まれる Cs 含有粒子の重量%は約 0.01%と計算される。すなわち、重量比で 0.01%の Cs 含有粒子のみを分離する事で土壌全体の放射能を 10-30%程度減少させる事が可能になると考えられる。現実的には、Cs 含有粒子のみを完全に分離する事はできないため、本研究の到達目標は、重液分離法により Cs 含有粒子を取り除き、室内実験において放射能濃度を初期量の 50%以下にする事とした。また、土壌の減容割合についても 50%を目指す。本研究は、将来的なスケールアップ試験及び実用化のための基礎研究として研究を遂行する。

2. 業務計画

2.1 全体計画

本研究の全体計画図を図1に示す。本研究の目標は、福島第一原子力発電所の事故により生じた汚染土壌を減容するために、重液分離法を用いてCs含有粒子を選択的に分離する手法を構築する事である。これを達成するために、(1)重液分離による放射性微粒子分離法の高度化及び(2)ランニングコストを低減するための重液の回収、再利用に関する検討の項目について3ヵ年計画で実施する。本課題では全て筑波大学が担当する。

年度	平成30年度	平成31年度	平成32年度
項目			
(1) 重液分離による放射性微粒子分離法の高度化(筑波大学)	電子顕微鏡一式整備 ↔		
① 土壌粒子分散の効果の検討	試験およびまとめ	試験およびまとめ	
② 土壌粒子の篩い分け効果の検討		試験およびまとめ	
③ 土壌採取場所依存性			試験およびまとめ
(2) ランニングコストを低減するための重液の回収、再利用に関する検討(筑波大学)			
① 重液分離による放射性セシウムの溶脱量の評価	試験およびまとめ	試験およびまとめ	試験およびまとめ
② 再結晶法の検討	試験およびまとめ		
③ イオン交換クロマトグラフィーの検討		試験およびまとめ	
④ サイズ排除クロマトグラフィーの検討			試験およびまとめ
(3) 研究推進(研究の結果および研究の展開に向けたまとめ)(筑波大学)	年度まとめ・評価	まとめ・評価	総まとめ

図1 本業務における全体計画図

初年度は、重液分離法を用いて汚染土壌を分離する際に重要になる分散の効果について検討した。本研究では、化学的処理として分散剤、物理的処理として超音波処理を用いて分散するかどうかについて検討を行った。また、重液分離法のコストを下げるための取り組みとして、1回の重液分離操作によりSPT溶液に溶脱する放射性セシウム量を定量した。さらに、廃液からSPTを回収して再利用するために、再結晶法を用いたSPTの回収について検討した。さらに研究成果をまとめ、CLADSとの連携を高めるために打ち合わせを行った。

来年度について、天然土壌については砂及びシルト、粘土でセシウムの吸着能が異なる他、Cs含有粒子についてもその特性は採取場所により異なる事が指摘されている。例えば、福島第一原子力発電所から北西方向で採取された土壌中からは数百マイクロメートル程度の不定形粒子が多く見られる一方、その他の地域では数マイクロメートルの球状粒子が見られる。このように場所によって主となるサイズ画分が異なる。このため粒径ごとに篩い分けを行い、分離挙動に与える影響を検討する。

最終年度は、採取場所ごとに土壌の質などが異なるため、その分離挙動や分離効率などが異なる事が予想される。そこで、2年目までに最適化した手法を用いて、様々な場所で採取した表層土について重液分離法を適用し、放射能及び土壌量の低減について定量的に結果を示し、重液分離法の実用可能性を示す。

2.2 平成 30 年度の成果の目標及び業務の実施方法

平成 30 年度については、業務計画書に基づき、(1) 重液分離による放射性微粒子分離法の高度化、(2) ランニングコストを低減するための重液の回収、(3) 研究推進について行った。

(1) 重液分離による放射性微粒子分離法の高度化

福島県内で採取した汚染土壌から放射性 Cs 含有粒子を分離するため、重液分離法を用いた除去法について検討した。この際、土壌粒子が均一に分散している事が望ましいため、分散剤及び超音波を用いた処理を行い、重液分離を効率的に行うための最適な前処理法について検討した。本項目では、簡便な方法で前処理ができる手法の選定を目的とした。

(2) ランニングコストを低減するための重液の回収

①重液分離により生じる廃液中の溶存態セシウム量の定量評価

重液分離法により SPT 溶液中に放射性セシウムが溶脱すると廃液処理の手間が掛かるため、廃液中に存在する溶存態セシウム量を把握するために実験を行った。重液分離に用いた後の SPT 溶液を回収し、メンブレンフィルターで懸濁物質を除いた後、ろ液中に含まれる放射性セシウムの濃度を定量した。

②廃液からの重液成分の回収法の検討（再結晶法）

重液分離法のランニングコストを下げるためには、重液分離に用いた SPT 溶液及び分離した土壌を洗浄した際の廃液から、SPT を回収する事が必要と考えられる。そこで、本項目では(2)-①で放射性セシウム濃度を定量した後の溶液を回収し、再結晶による SPT の回収を試みた。

(3) 研究推進

本年度行った研究について、CLADS の田川氏と 3/19 に打ち合わせを行った。本年度得られた結果について説明を行い、研究の問題点や今後の方針について議論を行った。

3. 平成 30 年度の実施内容及び成果

3.1 重液分離による放射性微粒子分離法の高度化

3.1.1 土壌粒子の分離の効果の検討

3.1.1.1 研究の目的

本研究では、この重液分離法を適用し、汚染土壌から Cs 含有粒子を選択的に除去する方法の開発に取り組んだ。まずは土壌粒子分散の効果について検討を行った。汚染土壌を大別すると放射能の低い天然鉱物と放射能の高い Cs 含有粒子の 2 種類に分けられる。これらを重液分離法により正確に分離するためには、Cs 含有粒子及び天然鉱物の凝集を防ぎ粒子を重液中に分散させる必要がある。これを達成するために、化学的な手法としてポリリン酸ナトリウムを分散剤として加える手法と、物理的な手法として超音波処理を行う手法についてそれぞれ検討した。

3.1.1.2 実験操作

福島第一原子力発電所近傍で採取した表層土壌 (0-2 cm) を採取し、現地で 2 mm で篩い分けした。試料採取は 2017 年 7 月に行った。実験室に持ち帰った土壌試料は、室温で風乾させた。その後、約 1 g をプラスチックバイアルに秤量し、ゲルマニウム半導体検出器を用いた γ 線測定 (GEM40P4-76、ORTEC 及び MCA、SEIKO EG&G) により重液分離前の放射能を定量した。

SPT 試薬 (MEASURE WORKS) を秤量し、比重が 2.0 になるように水を加えて SPT 溶液を調製した。この溶液を 30 mL 加えよく振とうした後、粒子を分散させるための操作を行った。

分散剤としてポリリン酸ナトリウムを加える方法について検討した。上記の試料にポリリン酸ナトリウムを濃度が 100、10、1 ppm になるように添加した。ポリリン酸ナトリウムを添加しないものを対照として準備した。これらの 4 種類の溶液について 10 分振とうした後、3000 rpm、30 分間遠心分離し、沈降した粒子と浮遊した粒子を分離した。それぞれの粒子を 0.45 μm メンブレンフィルターでろ過した。その後、フィルター上に回収した粒子を超純水で洗浄した。得られた試料はフィルターに載せたまま 30°C の恒温槽中で乾燥させた。乾燥した後、重量を測定し ^{137}Cs の濃度を定量した。実験は 3 回繰り返した。以上の手順を図 2 にまとめた。

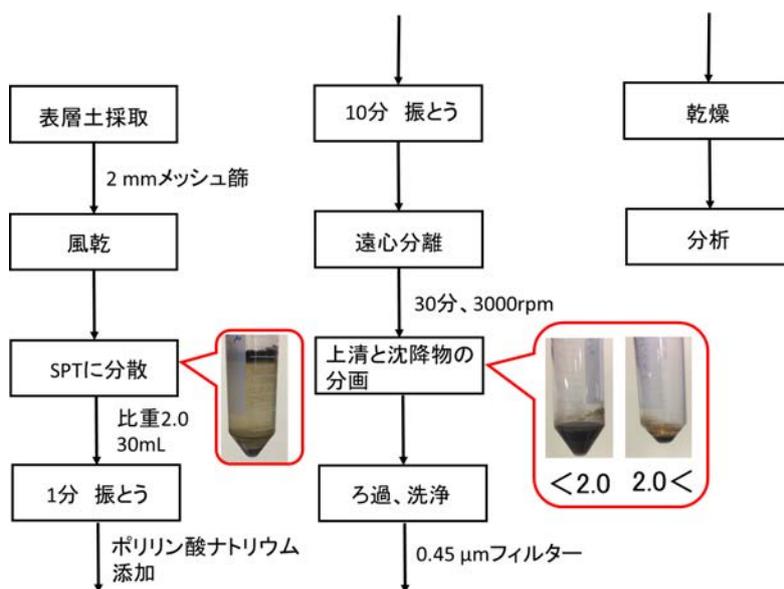


図 2 化学的分散手法の検討

物理的な分散手法として、超音波処理について検討した。SPT 溶液を加えた土壌試料について、超音波ホモジナイザー（ASONE、THU-08）を用いて試料を処理した。超音波の時間は1分、3分、5分と変化させた。超音波処理をしない試料を対象として準備した。超音波処理後は、10分振とうした後、3000 rpm、30分間遠心分離し、沈降した粒子と浮遊した粒子を分離した。それぞれの粒子を0.45 μm メンブレンフィルターでろ過した。その後、フィルター上に回収した粒子を超純水で洗浄した。得られた試料はフィルターごと30°Cの恒温槽中で乾燥させた。乾燥した後、重量を測定し¹³⁷Csの濃度を定量した。実験は3回繰り返した。以上の手順を図3にまとめた。

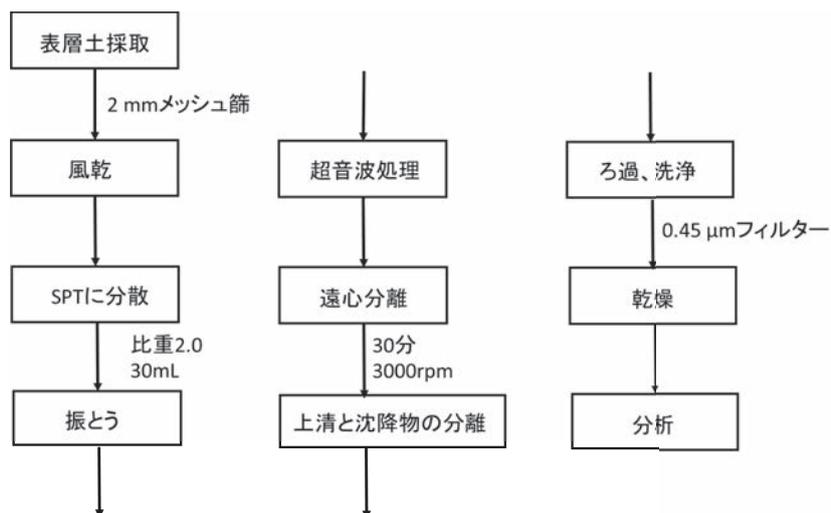


図3 物理的分散手法の検討

上記の実験で効率の良かった物理的分散手法を選択し、以下の土壌粒子の重液分離を行った。分離前の放射能を測定した土壌粒子1.0 gを比重2.0に調製したSPT溶液に加え、超音波処理を5分行い、10分振とうした後、3000 rpm、30分間遠心分離した。その後、シリンジを用いて沈降した粒子を分離した。浮遊した粒子と沈降した粒子はそれぞれ0.45 μm メンブレンフィルターでろ過して超純水で洗浄した。浮遊した粒子はその後フィルター上で乾燥させた。沈降した粒子は比重2.3に調製したSPT溶液と混合し同様の分離操作を行った。この手順で比重2.6、2.8のSPT溶液で段階的に分離し、5つの画分に分離した。それぞれの画分はフィルター上で乾燥させて、ゲルマニウム半導体検出器を用いて放射性セシウム濃度及び重量を測定した。また、オートラジオグラフィにより、放射能の画像化を行った。分離、洗浄を行った画分をイメージングプレートに30分曝写させ、その後読み取り機を用いて（GEヘルスケア、FLA9500）、オートラジオグラフ像を得た。また、分離した各画分から少量の土壌を取り出し、走査型電子顕微鏡（SEM）及びエネルギー分散型X線分析（EDS）を行い、組成分析を行った。以上の手順を図4にまとめた。

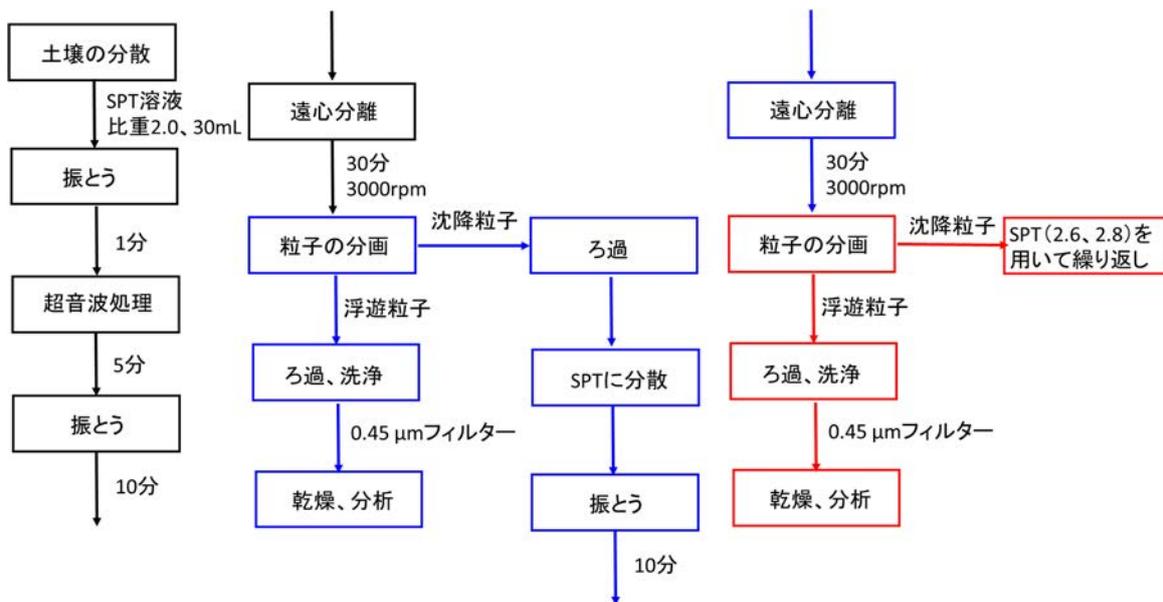


図 4 連続分離操作の手順

3.1.1.3 実験結果と考察

本実験における回収率を求めた。SPT 溶液を用いて 1 段階で分離した場合、重量から計算される回収率は $99\pm 3\%$ であり、 ^{137}Cs の放射能 (Bq) から計算される回収率は $94\pm 6\%$ となり、ほぼ全て回収できたとみなした。

次に、ポリリン酸ナトリウムを加えた際の結果を図 5 及び 6 に示す。図 5 は SPT 溶液で分離した際に沈降した粒子の重量パーセントを、図 6 は同画分の分離前に対する ^{137}Cs の放射能の割合を示している。

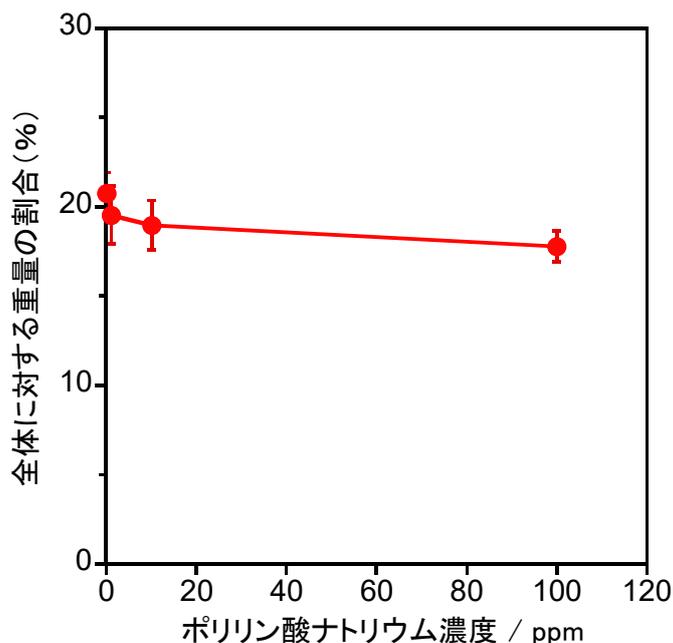


図 5 分散剤を加えて重液分離した場合 (比重 2.0) の沈降粒子の重量比

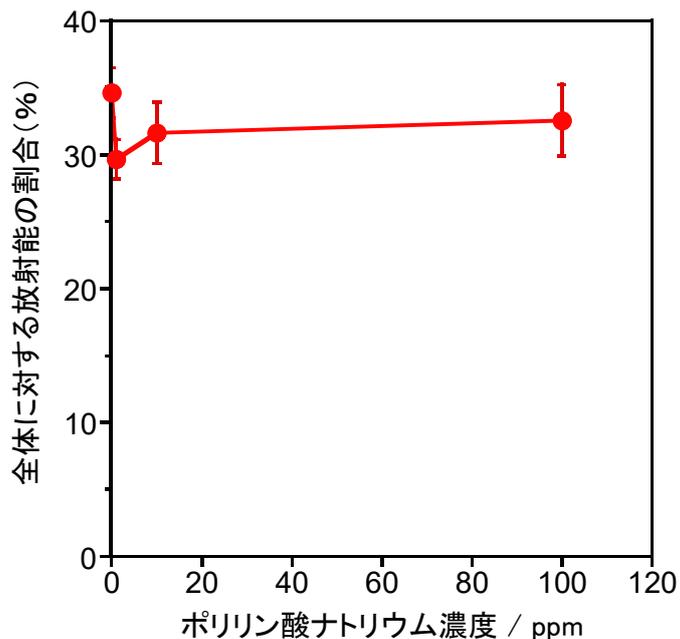


図6 分散剤を加えて重液分離した場合（比重 2.0）の沈降粒子の ^{137}Cs 放射能比

図5及び6から、ポリリン酸ナトリウムを比重 2.0 の SPT 溶液に加えた場合、比重の大きな画分の量及び放射能が僅かに減少する結果が得られた。重量比及び放射能比で見た場合どちらもおよそ 3%程度の減少幅であった。次に、超音波ホモジナイザーで処理した場合の結果を図7及び図8に示す。

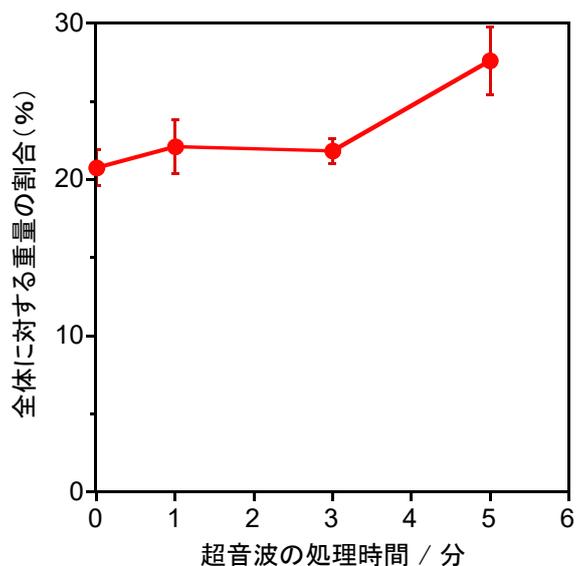


図7 超音波処理して重液分離した場合（比重 2.0）の沈降粒子の重量比

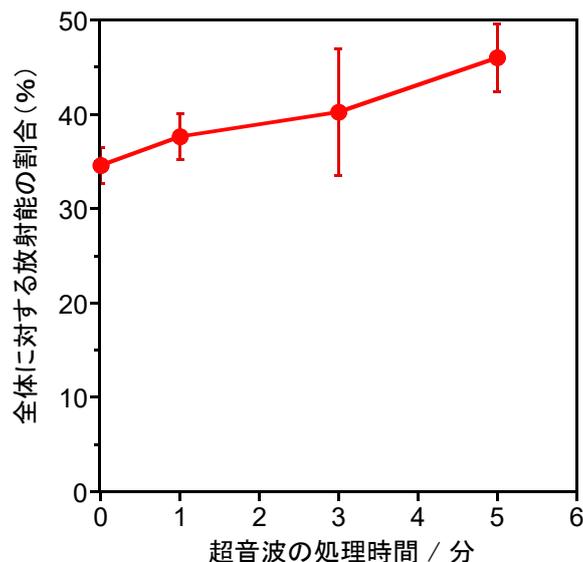


図8 超音波処理して重液分離した場合（比重 2.0）の沈降粒子の ^{137}Cs 放射能

超音波処理をした場合は、比重 2.0 で分離した際に沈降した粒子の割合が処理時間に応じて増加した。分離前後の放射能の比で見ると、15%程度増加する結果が得られた。土壌粒子は凝集体を生成しているため、その団粒の内部に気泡を含んでいる。このため、粒子の比重は過小評価される事が想定される。このため、超音波処理のように激しい操作で凝集体の構造を壊す事で比重の大きな成分がより多く分離されたと考えられる。分散剤を用いた場合に、逆の効果が見られた事については想定とは異なる結果であり、さらなる検討が必要になる。また、団粒に含まれる気泡を除去する方法として真空引きによる脱気も考えられる。これについては、今後検討する事でその効果を検討し、実用化の上でどちらの手法がコスト低減に繋がるかについて考える事が必要と考えられる。本研究では、変化の大きかった超音処理を選択し、以降の実験を行った。

上記の実験より、超音波処理の時間を 5 分に設定してより詳細な分離挙動の検討を行った。4 段階の分離を行った結果、重量及び放射能から計算された回収率はともに 90%程度であり、段階を多くする事で回収率が悪くなった。これは、分離する際に用いた器具等への吸着や、容器から容器へ粒子を移す際に試料の損失が起こったためである。今回は 1 g で分離を行ったが、取り扱う量を増やす事でこの回収率の低下は無視できる量になると考えられる。次に、分離した各画分の写真及びオートラジオグラフィにより得られた像を図 9 に示す。図中左から右になるにつれて比重が重くなっている。この結果、比重の最も軽い画分に放射能の強い粒子が多く集まっている事が分かる。また、オートラジオグラフ像は青、緑、赤と色が変わるにつれて放射能が高い事を示している。この結果、特に放射能の強い粒子が比重の小さな画分に良く集まっている事が分かった。

次に、各画分から任意に抽出した粒子について SEM-EDS により組成分析を行った。元素マッピングにより得られた結果では、主成分がケイ酸塩であった。比重 2.6-2.8 の画分の Al/Si 比が 0.2 程度、その他の画分の Al/Si 比は 0.4 程度であり、比重 2.6-2.8 は石英、その他の画分はアルミノケイ酸塩が主体である事が分かった。また、今回の実験においては SEM-EDS 分析でセシウムを同定する事はできなかった。つまり、比重 2.0 以下の画分に分離された高放射能の粒子が Cs

含有粒子かどうかについては、今後の研究で粒子の単離を進めて分析を行う事で特定を進める必要がある。

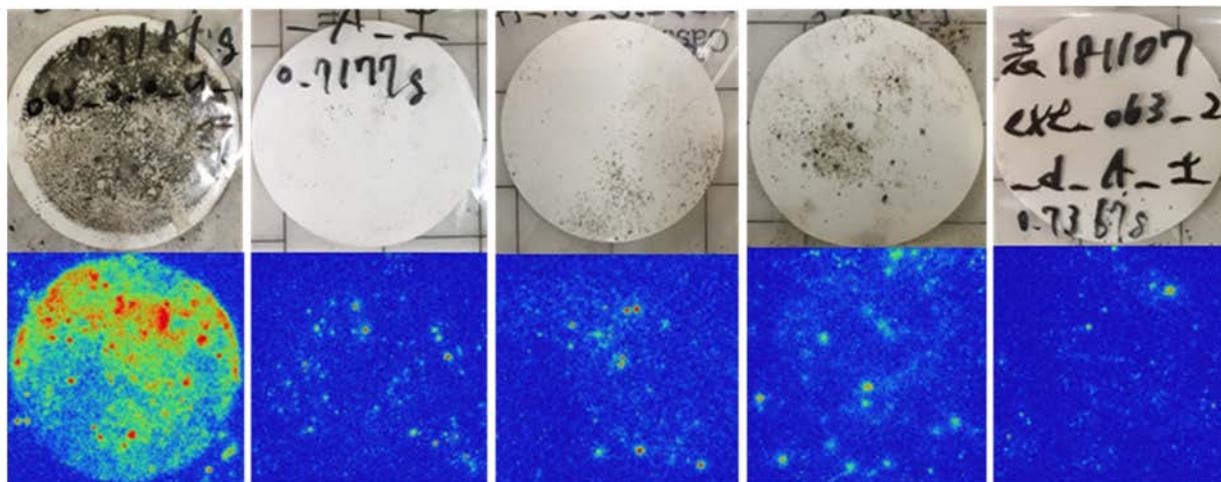


図9 分離した画分の写真（上段）及びオートラジオグラフ像（下段）
左から 2.0 以下、2.0-2.3、2.3-2.6、2.6-2.8、2.8 以上の画分を示している。

さらに、分離した画分に含まれる ^{137}Cs の量を γ 線測定により定量した。その結果を図 10 に示す。

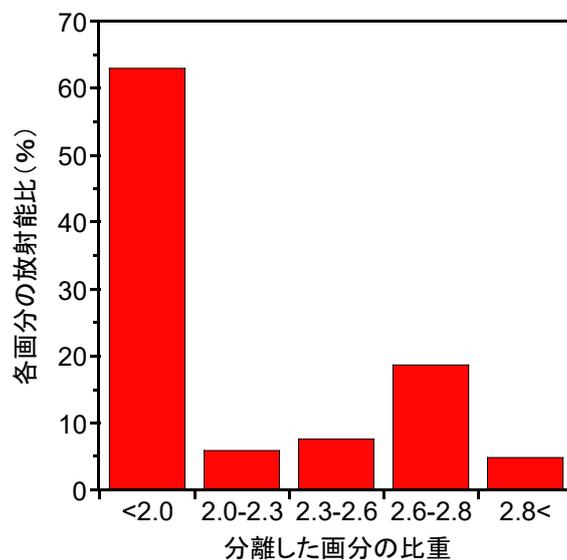


図 10 各画分に含まれる ^{137}Cs の割合

図 10 は回収した画分全体に対して各画分に含まれる ^{137}Cs の量を示した図である。この結果、およそ 60%の ^{137}Cs が比重 2.0 以下の各分に集約される事が分かった。これらの値は図 8 および 9

の結果ともおよそ一致している。また、比重 2.6-2.8 の画分の放射能比が高くなっているが、これはこの各分の重量が比較的大きかったためである。次に、表 1 に今回の手法で回収された各画分の重量比を示す。前述のように、今回の手法における土壌の回収率は重量比で 90%程度であった。それぞれの画分でどれだけの回収漏れがあったかは不明であるため、回収した土壌量を 100%として計算した値を示している。最も多かった画分は 2.6-2.8 の画分でおおよそ 50%の重量比であった。一方、図 10 で放射能比の高かった比重 2.0 以下の画分の重量比は全体の約 16%程度であった。

表 1 回収された各画分の重量比

重液画分	重量比 (%)
2.0<	16.2
2.0-2.3	2.2
2.3-2.6	12.2
2.6-2.8	53.5
2.8<	15.9

次に、放射能比の差が大きく見られた 2.0 を分離の基準にした場合、比重が 2.0 以下の画分の重量は回収した画分全体の 20%であり、2.0 以上の画分の重量は全体の 80%を占めることになる。これらの値から、比重が 2.0 より小さい画分と大きい画分の放射能濃度 (Bq g^{-1}) を求めた結果、それぞれ 5700 Bq g^{-1} と 800 Bq g^{-1} となった。重液分離前の土壌の放射能濃度が 1700 Bq g^{-1} であったため、放射能の高い粒子を比重の小さな画分に濃縮し、一方で重い画分の放射能を半減させる事ができた。今回実験に用いた土壌試料では、重い画分が重量比で 80%を占めるため、特に除染の効果は大きいと考えられる。今後の展望として、性質の異なる土壌で同様の実験を行いその効果を示す事が必要になる。

3.2 ランニングコストを低減するための重液の回収、再利用に関する検討

3.2.1 重液分離により生じる廃液中の溶存態セシウム量の定量評価

3.2.1.1 研究の目的

重液分離法のコストを下げるためには、重液分離後の SPT 溶液及び分離した粒子を洗浄した際の洗浄液を回収する事が有効と考えられる。その際問題となるのは、重液分離した際に放射性セシウムが溶脱する事である。廃液への溶脱量が多い場合にその放射性セシウムを処理しなければ、SPT 溶液を再利用した際に天然鉱物への再吸着による再汚染等が懸念されるためである。そこで、3.1 で生じた廃液について放射性セシウムの濃度を定量し、SPT 溶液中の放射性セシウムの挙動について検討した。

3.2.1.2 実験操作

3.1 で行った重液分離操作において生じた廃液を測定に用いた。今回測定したのは、比重 2.0、2.3、2.6、2.8 の SPT 溶液で段階的に分離した際の廃液であり、この溶液をさらに 25 nm のメンブレンフィルターでろ過し、そのろ液中の放射性セシウム濃度を γ 線測定により定量した。測定装置は 3.1 と同じものを使用した。

3.2.1.3 実験結果と考察

得られた結果を図 11 に示す。縦軸は廃液中に含まれる ^{137}Cs の分離前の ^{137}Cs に対する割合を示している。

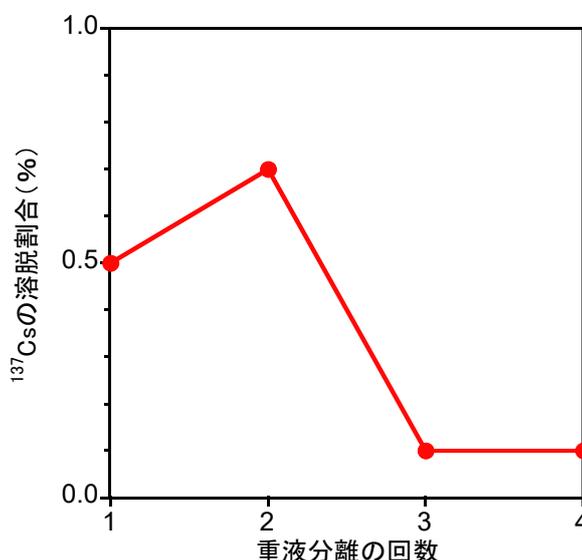


図 11 重液分離操作による ^{137}Cs の溶脱割合

^{137}Cs は 1 回目及び 2 回目の重液分離を行った際に脱離したが、3 回目以降の操作ではほぼ溶脱しなかった。4 回の操作で溶脱した総 ^{137}Cs 量は初期量の 2% 以下となった。先行研究では、表層土壌中のイオン交換性の放射性セシウムは全体の 2-20% 程度となる [9]。今回用いた SPT 溶液中にはナトリウムイオンが高濃度で含まれており、イオン交換反応により放射性セシウムが土壌から脱離したと考えられる。この結果から、重液分離により溶脱する放射性セシウム量は限定的だと

考えられる。しかし、汚染度の高い土壌を処理すると放射性セシウムが多く脱離する事になる。このため、段階的に重液分離操作を行う場合は、1、2回目の廃液と3回目以降の廃液を別にして回収し、1、2回目の廃液については放射性セシウムを除去した後に再利用する事も考える必要がある。

3.2.2 廃液からの重液成分の回収法の検討（再結晶法）

3.2.2.1 研究の目的

重液分離法のコストを下げるためには、重液分離後の SPT 溶液及び分離した粒子を洗浄した際の洗浄液を回収する事が有効と考えられる。本研究の目的は重液分離で生じた廃液から SPT を回収する方法を構築する事である。本年度は再結晶法について検討を行った。3.1 で生じた廃液から SPT を回収する方法について検討した。

3.2.2.2 実験操作

3.2.1 で実験に用いた廃液を全て回収して混合し、80℃オーブンで乾燥させた。乾燥後の固体に超純水を加え、溶け残りが出るようにして飽和水溶液を調製した。本研究では、良溶媒として水を、貧溶媒としてエタノール及びアセトンを選択した。この SPT 飽和水溶液 3 mL を分取し、エタノール及びアセトンを 0.5 mL 刻みで加えた。相分離している状態で有機層を分取し、0.45 μm ポアサイズのメンブレンフィルターでろ過後、溶液を 80℃のオーブンで乾燥させ、固体を得た。得られた個体について重量を測定して回収率を求めた。その後、回収率の高かったアセトンを用いた回収法について γ 線測定を行い ¹³⁷Cs の有無を調べた。実験は 3 回繰り返した。

3.2.2.3 実験結果と考察

エタノールの結果について、1 段階目（0.5 mL 加えるまで）は均一な溶液であり固体の析出は見られなかった。その後、2 段階目（3.5 mL を加えるまで）では相分離が起き、エタノールの懸濁液（上部）と透明な水相（下部）に分離した。さらに最終段階（4.0 mL 以上添加）では、相分離は解消し大量の白色沈殿が生じた。この白色沈殿が生じる領域は、エタノールが主な溶媒となる事から、エタノール中で溶解度の小さな SPT が析出したと考えられる。次に相分離している段階でエタノール中に析出した固相を回収した。本手法における SPT の回収率は 0.3±0.1%であった。

アセトンについても同様に結果を得た。まず、1 段階目（0.5 mL）では透明な溶液であった。その後、アセトンを 15 mL 加えるまでは相分離した。アセトンの添加量が 15.5 mL を超えると相分離が解消し、白色沈殿が大量に生じた。そこで、15 mL のアセトンを加えた段階で相分離している有機層を回収し、ろ過及び乾燥させて回収率を求めた結果、9.8±4.7%となった。この実験の様子について図 12 に示す。



図 12 SPT 回収実験の様子

エタノールよりもアセトンを用いた方が相分離が解消するまでの添加量が多かったため、アセトンを用いた場合の回収率が良かったのは妥当な結果と言える。アセトンを用いて回収した SPT について ^{137}Cs 量を γ 線測定により求めた結果、 $0.062 \pm 0.003 \text{ Bq g}^{-1}$ となり ^{137}Cs が検出された。一方、回収操作を行う前の SPT 中の ^{137}Cs 濃度は $0.077 \pm 0.004 \text{ Bq g}^{-1}$ であった。この値を表 2 にまとめた。放射能測定により、SPT の回収実験前後でおよそ同程度の ^{137}Cs 濃度が確認されたため、本回収法において放射性セシウムは選択的に除去されない事が分かった。つまり、本手法を実用化する際は SPT 廃液から他の手法を組み合わせる必要があると考えられる。

表 2 SPT 回収実験の結果と ^{137}Cs の残留率

	^{137}Cs 濃度 / Bq g^{-1}	
回収実験前	0.077	± 0.003
回収実験後	0.062	± 0.004
^{137}Cs 残留率	80%	

3.3 研究推進

CLADS との連携を図りつつ研究を推進するため、田川氏との打ち合わせを行った。研究成果について報告を行い、研究の問題点や改善点などについて議論を行った。

本年度得られた研究成果の一部を下記の研究会において発表した。

- (1) 山崎 信哉, 斎藤 輝, 高瀬 つぎ子, 末木 啓介, “重液分離により分離された放射性セシウム含有粒子の分析” 第5回 IER 成果報告会, 2019年3月14日-15日, コラッセ福島.
- (2) 斎藤 輝, 山崎 信哉, 植松 慎一郎, 末木 啓介, “ポリタングステン酸ナトリウムを用いた放射性セシウム含有粒子の分離法の検討” 第20回「環境放射能」研究会, 2019年3月12日-14日, 高エネルギー加速器研究機構

4. 結言

本年度は、3 ヶ年計画の 1 年目として、重液分離法における粒子の分散の結果について検討した。また、重液分離により生じた廃液中の放射性セシウムの定量及び、廃液からの SPT の回収法の検討についても合わせて行った。

分散法については、超音波処理を行う事で分散させる事ができた。ただし、新たに前処理として脱気させる事で重液の浸透具合や分離能に変化が起こる可能性が新たに分かったため、今後の検討課題とした。

廃液中の放射性セシウムの濃度測定により、およそ 2%程度の放射性セシウムが脱離する事が示唆された。これは、重液の成分であるナトリウム濃度が高いために、イオン交換によって放射性セシウムが土壌粒子から溶脱したと考えられる。この結果から、廃液から放射性セシウムを除去する事について検討する必要があると考えられる。

SPT の回収法については、本年度行った再結晶法では実用化を目指す上では十分な回収率及び SPT の純度を得る事ができなかった。来年度及び再来年度に、他の回収手法（イオン交換クロマトグラフィー及びサイズ排除クロマトグラフィー）について検討する予定であり、それらとの比較から、最適な回収法を検討する予定である。特に、イオン交換法では陽イオンの種類を容易に制御できる事が予想されるため、操作手順についてもよく検討し、実験を進めていく。

参考文献

- [1] G. Steinhauser, et al., “Comparison of the Chernobyl and Fukushima nuclear accidents: A review of the environmental impacts” *Sci. Total Environ.* 470-471, 800-817 (2014).
- [2] G. Steinhauser, “Fukushima’ s forgotten radionuclides: A review of the understudied radioactive emissions” *Environ. Sci. Technol.* 48, 4649-4663 (2014).
- [3] Y. H. Koo, et al., “Radioactivity release from the Fukushima accident and its consequences: A review” *Prog. Nucl. Energy* 74, 61-70 (2014).
- [4] N. Kinoshita, et al., “Assessment of individual radionuclide distributions from the Fukushima nuclear accident covering central-east Japan” *Proc. Natl. Acad. Sci.* 108, 19526-19529 (2011).
- [5] Y. Morino, et al., “Atmospheric behavior, deposition, and budget of radioactive materials from the Fukushima Daiichi nuclear power plant in March 2011” *Geophys. Res. Lett.* 38, L00G11 (2011).
- [6] 環境省, 中間貯蔵施設情報サイト, 参考資料・リンク集
(http://josen.env.go.jp/chukanchozou/material/index.html?tab1_pamphlet)
- [7] M. Kaneko, et al. “Radioactive Cs in the severely contaminated soils near the Fukushima Daiichi nuclear power plant” *Front Energy Res.* 3, 1-10 (2015).
- [8] K. Tanaka, et al., “Vertical profiles of Iodine-131 and Cesium-137 in soils in Fukushima Prefecture related to the Fukushima Daiichi Nuclear Power station accident” *Geochem. J.* 46, 73-76 (2012).
- [9] S. Yamasaki, “Radioactive Cs in the estuary sediments near Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant” *Sci. Total Environ.* 551-552, 155-162 (2016).
- [10] H. Mukai, et al., “Speciation of Radioactive Soil Particles in the Fukushima Contaminated Area by IP Autoradiography and Microanalyses” *Environ. Sci. Technol.*, 48, 13053-13059 (2014).
- [11] H. Qin, et al., “Investigation of cesium adsorption on soil and sediment samples from Fukushima Prefecture by sequential extraction and EXAFS technique” *Geochemical Journal.*, 46, 297-306 (2012).
- [12] B. C. Bostick, et al., “Cesium Adsorption on Clay Minerals: An EXAFS Spectroscopic Investigation” *Environ. Sci. Technol.*, 36, 2670-2676 (2002).
- [13] G. Furuki, et al., “Caesium-rich micro-particles: A window into the meltdown events at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant” *Sci. Rep.* 7, 42731 (2017).
- [14] N. Yamaguchi, et al. “Internal structure of cesium-bearing radioactive microparticles released from Fukushima nuclear power plant” *Sci. Rep.* 6, 20548 (2016).
- [15] Y. Abe, et al, “Detection of uranium and chemical state analysis of individual radioactive microparticles emitted from the Fukushima nuclear accident using multiple synchrotron radiation X-ray analyses” *Anal. Chem.* 86, 8521-8525 (2014).

- [16] K. Adachi, et al., “Emission of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident” *Sci. Rep.* 3, 2554 (2013).
- [17] 中間貯蔵・環境安全事業株式会社 (JESCO)
(<http://www.jesconet.co.jp/interim/information/josenjissho.html>)
- [18] A. Ochiai, et al., “Uranium Dioxides and Debris Fragments Released to the Environment with Cesium-Rich Microparticles from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant” *Environ. Sci. Technol.* 52, 2586-2594 (2018).
- [19] J. Imoto “Isotopic signature and nano-texture of cesium-rich micro-particles: Release of uranium and fission products from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant” *Sci. Rep.* 7, 5409 (2017).
- [20] Y. Satou et al., “First successful isolation of radioactive particles from soil near the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant” *Anthropocene*, 14, 71-76 (2016).
- [21] E. Kelepertzis, et al., “Geochemical associations for evaluating the availability of potentially harmful elements in urban soils: Lessons learnt from Athens, Greece, *Appl. Geochem.* 59, 63-73 (2015).
- [22] R. Wagai, et al., “Linking temperature sensitivity of soil organic matter decomposition to its molecular structure, accessibility, and microbial physiology” *Global Change Biol.* 19(4), 1114-1125 (2013).
- [23] B. Beckers, et al., “Manfred Age determination of Petra’s engineered landscape - optically stimulated luminescence (OSL) and radiocarbon ages of runoff terrace systems in the Eastern Highlands of Jordan” *J. Archaeolog. Sci.* 40(1), 333-348 (2013).
- [24] 東京電力ホールディングス (TEPCO)
(<http://www.tepco.co.jp/corporateinfo/company/rd/superconduct/jyosen.html>)
- [25] R. Ikehara, et al., “Novel Method of Quantifying Radioactive Cesium-Rich Microparticles (CsMPs) in the Environment from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant” *Environ. Sci. Technol.* 52(11), 6390-6398 (2018).

This is a blank page.

国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質량	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m ²
体積	立方メートル	m ³
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s ²
波数	毎メートル	m ⁻¹
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m ²
比体積	立方メートル毎キログラム	m ³ /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m ²
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 ^(a) , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率 ^(b)	(数字の)	1
比透磁率 ^(b)	(数字の)	1

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。
 (b) これらは無次元量あるいは次元1をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン ^(b)	rad	1 ^(b)	m/m
立体角	ステラジアン ^(b)	sr ^(e)	1 ^(b)	m ² /m ²
周波数	ヘルツ ^(d)	Hz		s ⁻¹
力	ニュートン	N		m kg s ⁻²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²	m ⁻¹ kg s ⁻²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m	m ² kg s ⁻²
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s	m ² kg s ⁻³
電荷, 電気量	クーロン	C		s A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻¹
静電容量	ファラド	F	C/V	m ² kg ⁻¹ s ⁴ A ²
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻²
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V	m ² kg ⁻¹ s ³ A ²
磁束	ウェーバ	Wb	Vs	m ² kg s ⁻² A ⁻¹
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²	kg s ⁻² A ⁻¹
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m ² kg s ⁻² A ⁻²
セルシウス温度	セルシウス度 ^(e)	°C		K
光照射度	ルーメン	lm	cd sr ^(e)	cd
放射線量	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
放射性核種の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq		s ⁻¹
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト ^(g)	Sv	J/kg	m ² s ⁻²
酸素活性化	カタール	kat		s ⁻¹ mol

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
 (b) ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明示されない。
 (c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
 (d) ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。
 (e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。
 (f) 放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
 (g) 単位シーベルト (PV, 2002, 70, 205) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa s	m ⁻¹ kg s ⁻¹
表面張力	ニュートンメートル	N m	m ² kg s ⁻²
角加速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
角加減	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ =s ⁻¹
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²	m m ⁻¹ s ⁻² =s ⁻²
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg s ⁻³
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m ² kg s ⁻² K ⁻¹
比エネルギー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m ² s ⁻² K ⁻¹
熱伝導率	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² s ⁻²
体積エネルギー	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
電界の強さ	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電荷密度	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m kg s ⁻³ A ⁻¹
電表面電荷	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ s A
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
誘電率	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
透磁率	ファラド毎メートル	F/m	m ³ kg ⁻¹ s ⁴ A ²
モルエネルギー	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル	J/mol	m ² kg s ⁻² mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m ² kg s ⁻² K ⁻¹ mol ⁻¹
吸収線量率	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ s A
放射線強度	グレイ毎秒	Gy/s	m ² s ⁻³
放射輝度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ⁴ m ⁻² kg s ⁻³ =m ² kg s ⁻³
酵素活性濃度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m ² sr)	m ² m ⁻² kg s ⁻³ =kg s ⁻³
	カタール毎立方メートル	kat/m ³	m ³ s ⁻¹ mol

表5. SI 接頭語

乗数	名称	記号	乗数	名称	記号
10 ²⁴	ヨタ	Y	10 ¹	デシ	d
10 ²¹	ゼタ	Z	10 ²	センチ	c
10 ¹⁸	エクサ	E	10 ³	ミリ	m
10 ¹⁵	ペタ	P	10 ⁶	マイクロ	μ
10 ¹²	テラ	T	10 ⁹	ナノ	n
10 ⁹	ギガ	G	10 ¹²	ピコ	p
10 ⁶	メガ	M	10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ³	キロ	k	10 ⁻¹⁸	アト	a
10 ²	ヘクト	h	10 ⁻²¹	ゼプト	z
10 ¹	デカ	da	10 ⁻²⁴	ヨクト	y

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI単位による値
分	min	1 min=60 s
時	h	1 h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=(1/60)°=(π/10 800) rad
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648 000) rad
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²
リットル	L, l	1 L=1 l=1 dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³
トン	t	1 t=10 ³ kg

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI単位で表される数値
電子ボルト	eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J
ダルトン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻²⁷ kg
統一原子質量単位	u	1 u=1 Da
天文単位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 ¹¹ m

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100 kPa=10 ⁵ Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 ⁻¹⁰ m
海里	M	1 M=1852m
バイン	b	1 b=100fm ² =(10 ¹² cm ²) ² =10 ⁻²⁸ m ²
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的關係は、 対数量の定義に依存。
ベレル	B	
デシベル	dB	

表9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI単位で表される数値
エルグ	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1Pa s
ストークス	St	1 St=1cm ² s ⁻¹ =10 ⁻⁴ m ² s ⁻¹
スチルブ	sb	1 sb=1cd cm ⁻² =10 ⁴ cd m ⁻²
フオト	ph	1 ph=1cd sr cm ⁻² =10 ⁴ lx
ガリ	Gal	1 Gal=1cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm ² =10 ⁻⁸ Wb
ガウス	G	1 G=1Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T
エルステッド ^(a)	Oe	1 Oe _e =(10 ³ /4π)A m ⁻¹

(a) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「△」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
フェルミ	f	1 フェルミ=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		1 メートル系カラット=0.2 g=2×10 ⁻⁴ kg
トル	Torr	1 Torr=(101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm=101 325 Pa
カロリ	cal	1 cal=4.1858J (「15°C」カロリ), 4.1868J (「IT」カロリ), 4.184J (「熱化学」カロリ)
マイクロ	μ	1 μ=1μm=10 ⁻⁶ m

