DOI:10.11484/jaea-review-2020-037

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)

- 令和元年度 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)

-FY2019 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource

Development Project-

福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉環境国際共同研究センター 筑波大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development University of Tsukuba PI ROY ON ON

December 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 $\overline{}$ $\overline{\phantom{a$

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)

- 令和元年度 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 廃炉環境国際共同研究センター

筑波大学

(2020年10月15日受理)

日本原子力研究開発機構(JAEA)廃炉環境国際共同研究センター(CLADS)では、令和元年度 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はじめとした

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はじ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年度に採択された「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」の令和元年度の研究成果について取りまとめたものである。

本研究の目的は汚染土に含まれる放射性セシウムを高濃度に含む粒子を選択的に分離するための手法を開発する事である。令和元年度は、粒径が重液分離の選択性に与える影響を明らかにすること、そして重液分離のランニングコストを低減するための廃液の処理法について検討を行った。この結果、 $63~\mu m$ 以上の粒子について顕著な分離の効果がある結果が得られ、比重 $2.0~\mu m$ の比重画分(15wt%)に 6~100~100~100 割の放射能が集約された。

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を取りまとめたものである。

廃炉環境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)

FY2019 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project —

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science
Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development
Japan Atomic Energy Agency
Tomioka-machi, Futaba-gun, Fukushima-ken

University of Tsukuba

(Received October 15, 2020)

The Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (CLADS), Japan Atomic Energy Agency (JAEA), had been conducting the Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project (hereafter referred to "the Project") in FY2019.

The Project aims to contribute to solving problems in the nuclear energy field represented by the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. (TEPCO). 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" conducted in FY2019.

In the present study, we aimed to develop a selective separation method of highly radioactive particles from contaminated soil. In FY2019, the effect of particle size on the selectivity of heavy liquid separation method, and regeneration of heavy liquid waste to reduce the running cost of this method were examined. The particles more than 63 μ m in size showed the effective separation behavior, which the fraction having 2.0 in specific gravity (15 wt%) had ~60% of radioactive cesium.

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

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 (継続分)	2
3.	令和元年度 採択課題	5
付銀	录 成果報告書	9
	Contents	
1	Outline of New Levy Evenue Coince (C. Tarkey Levy and Henry D. Davidson Device)	1
1.	Outline of Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project	. I
2.	Accepted Proposal in FY2018 ~Continued~	.2
3.	Accepted Proposal in FY2019	. 5
Λ	age div Daget Danget	0
App	pendix Result Report	. 7

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。現:廃炉環境国際共同研究センター)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(令和元年度より新設)に再編した。

2. 平成30年度 採択課題(継続分)

平成30年度採択課題(継続分)については以下のとおりである。

課題数:19課題

共通基盤型原子力研究プログラム 11 課題

(若手研究6課題、一般研究5課題)

課題解決型廃炉研究プログラム 6課題

国際協力型廃炉研究プログラム 2課題

(日英共同研究)

平成30年度 採択課題一覧

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	山﨑 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	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
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

共通基盤型原子力研究プログラム

【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
ナノ粒子を用いた透明遮へい材の開発研究	渡邉 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	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

3. 令和元年度 採択課題

令和元年度は、4つの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31年4月24日~令和元年6月7日令和元年5月30日~令和元年7月18日 ※日露共同研究のみ

· 課題数:19課題

共通基盤型原子力研究プログラム 7課題

(若手研究2課題、一般研究5課題)

課題解決型廃炉研究プログラム 4課題

国際協力型廃炉研究プログラム 4課題

(日英共同研究2課題、日露共同研究2課題)

研究人材育成型廃炉研究プログラム 4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た。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、採択課題を決定した。

令和元年度 採択課題一覧

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
ウラニル錯体化学に基づくテーラーメイド型新規海 水ウラン吸着材開発	鷹尾 康一朗	東京工業大学
動作不能からの復帰を可能とする多連結移動ロボットの半自律遠隔操作技術の確立	田中 基康	電気通信大学

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
一次元光ファイバ放射線センサを用いた原子炉建屋 内放射線源分布計測	瓜谷 章	名古屋大学
低線量・低線量率放射線被ばくによる臓器別酸化ス トレス状態の検討	鈴木 正敏	東北大学
単一微粒子質量分析法に基づくアルファ微粒子オン ラインモニタリングに向けた基礎検討	豊嶋 厚史	大阪大学
幹細胞動態により放射線発がんを特徴付ける新たな 評価系の構築	飯塚 大輔	量子科学技術研究開発機構
耐放射線性ダイヤモンド半導体撮像素子の開発	梅沢 仁	産業技術総合 研究所

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
Multi-Physics モデリングによる福島 2・3 号機ペデスタル燃料デブリ深さ方向の性状同定	山路 哲史	早稲田大学
燃料デブリ取出しに伴い発生する廃棄物のフッ化技 術を用いた分別方法の研究開発	渡邉 大輔	日立 GE ニュークリア・ エナジー
アパタイトセラミックスによる ALPS 沈殿系廃棄物 の安定固化技術の開発	竹下 健二	東京工業大学
拡張型スーパードラゴン多関節ロボットアームによ る圧力容器内燃料デブリ調査への挑戦	高橋 秀治	東京工業大学

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
高い流動性および陰イオン核種保持性を有するアルカリ刺激材料の探索と様々な放射性廃棄物の安全で効果的な固化	佐藤 努	北海道大学
再臨界前の中性子線増に即応可能な耐放射線 FPGA システムの開発	渡邊 実	静岡大学

国際協力型廃炉研究プログラム (日露共同研究)

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取出し臨界安全技術の高度化	小原 徹	東京工業大学
微生物生態系による原子炉内物体の腐食・変質に関 する評価研究	金井 昭夫	慶應義塾大学

研究人材育成型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取り出し時における炉内状況把握のため の遠隔技術に関する研究人材育成	淺間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティックスを融合したデ ブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育成	高貝 慶隆	福島大学
放射線・化学・生物的作用の複合効果による燃料デブ リ劣化機構の解明	大貫 敏彦	東京工業大学
燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発	永井 康介	東北大学

本報告書は、採択課題のうち、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」の令和元年度の研究成果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.

令和元年度

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 31I041)

成果報告書

令和 2 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科学技術・人材育成推進事業」に よる委託業務として、国立大学法人筑波大学が実施した 「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」の令和元年度の研究成果を取りまとめ たものです。

目次

概略	٧
1. 緒言	
2. 業務計画 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	
2.1 全体計画・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3
2.2 令和元年度の成果の目標及び業務の実施方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5
3. 令和元年度の実施内容及び成果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	7
3.1 重液分離による放射性微粒子分離法の高度化	7
3.1.1 土壌粒子の分散の効果の検討・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	7
3.1.1.1 研究の目的・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	7
3. 1. 1. 2 実験操作 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	7
3.1.1.3 実験結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	9
3.1.2 土壌粒子の篩い分け効果の検討・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	10
3.1.2.1 研究の目的・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	10
3.1.2.2 実験操作・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	10
3.1.2.3 実験結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	11
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	19
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	19
3.2.1.1 研究の目的・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	19
3. 2. 1. 2 実験操作 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	19
3.2.1.3 実験結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	19
3.2.2 廃液からの重液成分の回収法の検討(再結晶法)	21
3. 2. 2. 1 研究の目的・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	21
3. 2. 2. 2 実験操作 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	21
3.2.2.3 実験結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	21
3.2.3 廃液からの重液成分の回収法の検討(イオン交換クロマトグラフィー)2	23
3. 2. 3. 1 研究の目的・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	23
3. 2. 3. 2 実験操作 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	23
3.2.3.3 実験結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	25
3.2.4 廃液からの重液成分の回収法の検討(サイズ排除クロマトグラフィー)2	28
3. 2. 4. 1 研究の目的・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	28
3. 2. 4. 2 実験操作 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	28
3.2.4.3 実験結果と考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	28
3.3 研究推進・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・(31
4. 結言 · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	32
参考文献 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	33

Contents

Abstract ·····	$\cdots v$
1. Introduction ····	
2. Project plan·····	
2.1 Overall plan····	3
2.2 Goal and methods of the project in FY2019 ·····	
3. Contents and results of the project in FY2019 ·····	7
3.1 Upgrading selective separation of radioactive micro-particles using heavy liquid separation	7
3.1.1 Dispersion of soil particle ·····	7
3.1.1.1 Aim of the study ·····	
3.1.1.2 Experimental · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	7
3.1.1.3 Results and discussion ·····	9
3.1.2 Effect of sieving soil particles (particle size) on separation behavior	10
3.1.2.1 Aim of the study ·····	10
3.1.2.2 Experimental · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	10
3.1.2.3 Results and discussion ·····	11
3.2 Examination of Recovery and recycle method of SPT to reduce running cost ······	19
3.2.1 Estimation of dissolution amount of radioactive cesium by heavy liquid separation · · · · · ·	19
3.2.1.1 Aim of the study ·····	19
3.2.1.2 Experimental · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	19
3.2.1.3 Results and discussion ·····	19
3.2.2 Examination of SPT recovery method from waste (Recrystallization) · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	21
3.2.2.1 Aim of the study ·····	21
3.2.2.2 Experimental · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	21
3.2.2.3 Results and discussion	21
3.2.3 Examination of SPT recovery method from waste (Ion exchange chromatography) · · · · · · ·	23
3.2.3.1 Aim of the study ·····	23
3.2.3.2 Experimental · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	23
3.2.3.3 Results and discussion ·····	25
3.2.4 Examination of SPT recovery method from waste (Size exclusive chromatography)	28
3.2.4.1 Aim of the study ·····	28
3.2.4.2 Experimental · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	28
3.2.4.3 Results and discussion ·····	28
3.3 Research output ·····	
4. Conclusion · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	32
References	33

表一覧

表 1	本研究の年度別全体計画・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3		
表 2	前処理の組み合わせ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・8			
表 3	前処理法と比重 2.0 以下の画分中に含まれる放射能の割合	9		
表 4	粒子群(L)の重液分離の結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	11		
表 5	粒子群(S)の重液分離の結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	12		
表 6	全ての画分の放射能濃度及び重量比のまとめ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	12		
表 7	粒子群(L)及び(S)を重液分離して得た画分(a)- (d) の AR 像 ··································	13		
表 8	粒子群(L)の鉱物組成のまとめ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	17		
表 9	粒子群(S)の鉱物組成のまとめ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	17		
表 10	1 g の SPT 中に含まれる不純物量 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	26		
.w. ≅	<u>:</u>			
図一覧				
図 1	前処理法の検討に関する実験手順・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	7		
図 2	超音波処理の様子・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	8		
図 3	脱気処理の様子・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	8		
図 4	重液分離の操作手順・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	11		
図 5	単離した粒子 (2.2 Bq) の AR 像···································	13		
図 6	粒子群(L)の各画分の X 線回折パターン・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	14		
図 7	粒子群(S) の各画分の X 線回折パターン・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	14		
図 8	粒子群(L)の各画分の SEM-EDS 像······	15		
図 9	粒子群(S) の各画分の SEM-EDS 像······	16		
図 10	粒子群(L)の分離操作における ¹³⁷ Cs の抽出率 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	19		
図 11	粒子群(S)の分離操作における ¹³⁷ Cs の抽出率 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	20		
図 12	実験に用いた有機物を多く含む廃液・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	21		
図 13	廃液とアセトンを混合した溶液・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	22		
図 14	未使用の SPT 粉末(左)と再結晶法により回収した SPT 粉末(右) ······	22		
図 15	陰イオン交換クロマトグラフィーに用いた装置一式・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	23		
図 16	陰イオン交換樹脂を用いたクロマトグラフィーの様子	24		
図 17	使用前の SPT と標準液の陰イオン交換クロマトグラム・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	25		
図 18	使用前後の SPT の陰イオン交換クロマトグラム・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	26		
図 19	陰イオン交換樹脂を用いて廃液を分画した際のクロマトグラム・・・・・・・・・・・・・・・	27		
図 20	サイズ排除クロマトグラフィー用のカラム・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	28		
図 21	F6 及び F7 のイオンクロマトグラム · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	29		
図 22	サイズ排除クロマトグラフィー画分の比重・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	29		

略語一覧 (アルファベット順)

AR: Autoradiography (オートラジオグラフィー)

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 Polytangstate (ポリタングステン酸ナトリウム)

XRD: X-ray diffraction (X 線回折)

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り、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㎡。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「37Cs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(以下、Cs含有粒子と略する)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。このため、これらのCs含有粒子を選択的に分離する事は汚染土の減容に有効であると考えらえる。

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、¹³⁴Cs/¹³⁷Cs 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 polytangstate)と略する)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]。そこで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。

令和元年度は、重液分離を行う前処理として土壌を重液に適切に分散させる手法の検討、土壌 粒子を粒径ごとに分けた後に重液分離した際の分離挙動の検討を行った。さらに廃液の再生法と して、再結晶法、陰イオン交換樹脂、サイズ排除クロマトグラフィーによる分離法に関する研究 を実施した。 まずは分散手法の検討を行った。平成 30 年度の結果から、正確に重液分離を行うには乾燥している試料を重液に分散させる際に分散処理が必要である事が分かった。これは粒子が団粒を形成する事で粒子間に気泡ができるため、比重が過小評価されるためである。そこで、平成 30 年度に検討した超音波による団粒の破壊に加えて、土壌粒子を分散した重液を密閉容器中で減圧する事で気泡を除去する方法について検討した。上記二種類を組み合わせて前処理を行い、その後重液分離を行った。比重 2.0 の重液を用いて分離を行い、分離した画分の放射能を測定して分離効果について比較検討した。その結果、前処理を行わない場合は軽い画分の放射能は分離前の34%となった。一方で、脱気処理のみ、超音波処理のみ、脱気処理+超音波処理を行った場合、どれも45%程度となり効果に違いはなかった。前処理法としては脱気処理または超音波処理のどちらも有効である事が示唆されたが、大規模処理する際のコストについては今後検討する必要がある。

次に、重液分離に対する粒径の効果について検討した。採取した土壌試料を 63 μ m の篩にかけて大きい粒子群 (L) と小さい粒子群 (S) に分けた。それぞれの粒子群について重液分離を行った。比重 2.0、2.4、2.8 に調整した SPT 溶液を用いて段階的に分離を行い 4 つの比重画分を得た。この 8 画分(粒径 2 種×比重 4 種)それぞれについて、重量、放射能、鉱物組成について分析を行い、粒径と分離効果の関係について検討した。その結果、粒径にかかわらず比重が相対的に小さい画分(<2.4)に高放射能粒子が含まれる事が分かった。特に粒子群 (L) の比重が大きい画分 (2.4<) は粒子全体の 70%程度あり、この画分の放射能濃度は分離前の放射能濃度に比べておよそ半減している事が分かった。一方、粒子群 (S) の比重の大きな画分 (2.4<) には放射性セシウムを強く吸着する粘土鉱物が多く含まれており、粒子群 (S) の全ての画分で分離前の放射能濃度よりも高くなった。しかし、今回用いた土壌では粒径の小さな粒子が少なかったため、重液分離に影響は大きくないと言える。つまり、粒径の大きな粒子の存在割合が大きいほど重液分離の効果が大きくなる事、比重 2.4 の重液を用いて 1 段階で分離すると効率的に分離できる可能性がある事が示された。

重液分離を行った際の重液への放射性セシウムの溶脱について検討した。粒子群(L)及び(S) それぞれの重液分離操作で生じた廃液中に含まれる放射性セシウムの定量を行い、溶脱率を求めた。その結果、どちらの粒子群も放射性セシウムの溶脱率は2%以下になった。よって、どのような粒度分布でも溶脱率は2%程度に収まると予想される。しかし高濃度の土壌を処理した廃液を再利用する際は、土壌への放射性セシウムの再吸着を防ぐために適切な処理をする事が必要と考えられる。

ランニングコストを低減するために廃液を再処理する必要がある。まずは平成 30 年度に引き続き再結晶法について検討した。廃液にアセトンを加え混合した後、相分離している状態でアセトン相を回収して脱溶媒して固相を得た。この固体について重量測定により回収率を測定し、放射能測定により放射性セシウムの残留率を調べた。この結果、回収した固相には有機物が混在していた。また回収率は 1 回の操作で 10%程度であった。また、放射性セシウムの残留率も 80%程度となり、効率の良い回収法ではないと結論付けた。

次に、陰イオン交換樹脂を用いた再生法について検討した。廃液中の不純物(陰イオン)及び、 イオン交換樹脂を通した画分中に含まれる不純物量をイオン交換クロマトグラフィーにより定量 した。その結果、重液分離を行った際の廃液に含まれる不純物(陰イオン量)は使用前とほぼ変 わらず、再生操作が必要ない事が明らかとなった。つまり、放射性セシウムの除去が今後の検討 課題になると言える。また、イオン交換樹脂を通す際の問題点として、廃液の比重が移動相の比 重よりも大きいためにカラムと平衡に達する前に全て流れ出る事が明らかとなった。これを防ぐ には少なくとも廃液を 10 倍程度希釈する必要があり、実際の処理に用いるには不適切であると 考えられる。

最後にサイズ排除クロマトグラフィーを用いた廃液処理について検討した。基本的には上記の イオンクロマトグラフィーと同じ問題点が明らかとなった。

これらの研究成果について令和元年度の日本放射化学会における発表により情報公開を行った。 また令和2年度の学会においても継続的に成果発表を行う予定である。

令和2年度は本研究課題の最終年度として、様々な場所で採取した土質の異なる土壌について これまでに最適化した方法で重液分離を行い、その適用範囲などについて検討を行う。また、廃 液の処理については、令和元年度の知見をもとに放射性セシウムを除去する方法について検討し、 廃液の再利用について適切な方法を示す予定である。

以上のとおり、令和元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、所期の成果を得る事ができた。

1. 緒言

と考えた。

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 m³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¹³⁷Cs 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、Cs 含有粒子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、 本研究では Cs 含有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 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

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

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

あると報告されている[25]。ここで、100 μ mの Cs 含有粒子が 1 g 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

本業務の全体計画を表 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。本研究は全て筑波大学が担当する。

年度 平成30年度 令和元年度 令和2年度 項目 (1) 重液分離による放射性微粒子分離 電子顕微鏡等整備 法の高度化(筑波大学) 試験およびまとめ 試験およびまとめ ①土壌粒子分散の効果の検討 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 (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) 試験およびまと 試験およびまとめ 試験およびまとめ 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 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 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 ⑤廃液中に含まれる放射性セシウ ム除去の検討 (3)研究推進(研究の結果および研究 総まとめ まとめ・評価 年度まとめ・評価 の展開に向けたまとめ) (筑波大学)

表1 本研究の年度別全体計画

初年度である平成 30 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。この結果、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。令和元年度は重液分離法の効率をより高めるための方策として、試料の前処理に脱気の操

作を新たに加え、その効果について検討を行った((1)-①)。次に、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予想される。このため、採取した試料について粒径ごとに篩い分けを行った後に重液による分離操作を行う事で、粒子の大きさが重液分離挙動に与える影響を検討した((1)-②)。

さらに、重液分離法のコストを下げるための取り組みとして重液への放射性セシウムの脱離量の定量及び重液成分の回収法の検討について検討を行った。まずは(1)-②の実験で生じた廃液中に含まれる放射性セシウム量を定量した((2)-①)。次に、平成30年度に行った再結晶法によるSPTの回収法に関連して、回収した際の放射性セシウムの残留率について検討した((2)-②)。さらに、新たにイオン交換クロマトグラフィー((2)-③)及びサイズ排除クロマトグラフィーによるSPTの回収法について検討した((2)-④)。さらに研究成果をまとめ、学会発表や廃炉環境国際共同研究センター(CLADS)との連携を高めるための打ち合わせを行った((3))。

令和2年度も引き続き(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と(3)研究推進を行う。令和元年度までは原発近傍の1か所で採取した土壌について検討を行ってきた。しかし、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、令和元年度までに最適化した手法を、福島県内の様々な場所で採取した表層土に対して適用する。これにより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((1)-③)。その際、採取場所により土壌の成分や性質などが異なるため、重液分離による放射性セシウムの脱離量に対する土壌成分の違いについて検討する((2)-①)。これにより、本研究で提案する重液分離法による汚染土壌の減容について、その適用可能範囲等を示す。また、令和元年度までの研究で重液分離を行った際に生じる廃液には不純物(共存陰イオン)はほぼ含まれない事と放射性セシウムが含まれる事が示された。これにより放射性セシウムを除くための方法として陽イオン交換樹脂を用いた重液の再処理法について検討を行う((2)-⑤)。さらに3年の総まとめを行う((3))。

2.2 令和元年度の成果の目標及び業務の実施方法

令和元年度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

①土壌粒子分散の効果の検討

平成 30 年度の結果から、重液を用いて放射性微粒子を選択的に分離する際の前処理法として超音波法が有効であると結論づけた。これに加えて乾燥した土壌は凝集して団粒を形成し、空気を内包するため比重の過小評価に繋がる事が予想されたため、新たに脱気の操作について検討を行った。本項目では、土壌試料の前処理法について超音波法と脱気を組み合わせて行った後、重液分離を行って土壌粒子を分画した。それぞれの前処理法で得られた最も比重の小さな画分の放射能を比較し、前処理法の影響について検討を行い簡便な方法で前処理ができる手法を選定した。

②土壌粒子の篩い分け効果の検討

採取した試料について粒径ごとに篩い分けを行った後に重液による分離操作を行う事で、粒子の大きさが重液分離挙動に与える影響を検討した。 $63~\mu\,\mathrm{m}$ メッシュの篩を用いて土壌試料を2つの画分に分けた。サイズ分画した2つの粒子群(L)($>63~\mu\,\mathrm{m}$)及び(S)($<63~\mu\,\mathrm{m}$)をれぞれに対して重液分離を行い、分離した画分の重量、放射能分布、放射能濃度、及び鉱物組成を分析しサイズによる重液分離の結果について検討した。

(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

①重液分離による放射性セシウムの溶脱量の評価

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。令和元年度は前処理と して 2 つのサイズ画分に分離した。それぞれのサイズ画分について重液分離を行い、その際 に生じた SPT 溶液を回収し、メンブレンフィルター(25 nm ポアサイズ)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。得られた結果から、平成 30 年 度の結果との比較及び粒子群(L)と(S)の比較を行った。

②再結晶法の検討

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。平成 30 年度の結果から、アセトンと廃液を混合した後アセトン相から SPT を回収する事で、回収効率約 10%で SPT を回収できる事が分かった。本年度はこの回収法における放射性セシウムの残留率について検討を行った。

③イオン交換クロマトグラフィーの検討

②と同様の理由により、本項目ではイオン交換樹脂を用いた SPT の回収法について検討を 行った。具体的には、陰イオン交換樹脂を充填したカラムに廃液を添加し、カラム分離を行 った。各画分中に含まれる陰イオン濃度を陰イオン交換クロマトグラフィーにより分析した。

これにより、陰イオン交換樹脂による分離法の実用性について検討した。

④サイズ排除クロマトグラフィーの検討

重液として用いている SPT はタングステン酸が重合している構造を持つため、土壌中に含まれる主要陰イオン (硝酸イオン、塩化物イオンなど)とサイズが異なる。これを利用して、サイズ排除クロマトグラフィーを行う事で SPT の回収及び精製を行う事を目的として検討を行った。

(3)研究推進

本年度行った研究について、CLADSの田川氏と1月28日に打ち合わせを行い、研究の問題点や今後の方針について議論を行った。また、学会発表を行い得られた成果について議論を深めた。

- 3. 令和元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、比重の大きな水溶液を用いて放射性セシウムを高濃度に含む粒子を選択的に分離する手法の開発を行っている。平成30年度の実験では、乾燥している試料を重液に分散させる際に分散処理を行わないと、正確に分離できない事が分かった。これは粒子が団粒を形成する事で粒子間に気泡ができるため、比重が過小評価され重液分離がうまくいかない事が分かった。そこで、平成30年度は物理的な分散法として超音波による団粒の破壊を行い、粒子を重液中に分散させる手法を提案した。上記の分散法の他に、団粒中に含まれる気泡を除く方法として、土壌粒子を水に分散させた後に減圧操作を行う方法が考えられる。そこで本研究では、重液分離法を行う際の前処理として、減圧操作による団粒中の気泡除去及び水分の浸透について検討を行った。本実験では、平成30年度に行った前処理操作(超音波法)と減圧操作による気泡の除去について比較検討するため、(i)前処理なし(ii)超音波法のみ、(iii)減圧操作のみ、(iv)減圧操作+超音波法、以上の4条件についてそれぞれ重液分離操作を行った。

3.1.1.2 実験操作

本実験の全体の実験操作を図1に示す。

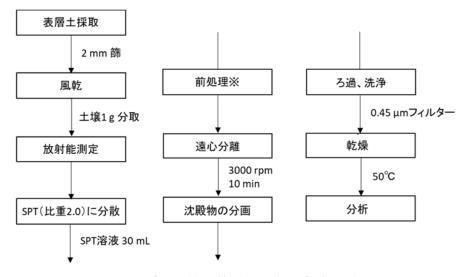


図1 前処理法の検討に関する実験手順

実験に用いた土壌試料は、平成 30 年度の試験に用いたものと同じ地点で採取したものを用いた。この試料は 2017 年 7 月に福島第一原子力発電所近傍で採取した表層土壌(0-2 cm)であり、現地で 2 mm の篩にかけて大きな粒子を除き、実験室で風乾させた。この試料を 1 g 分取してプラスチック容器に入れ、ゲルマニウム半導体検出器(GEM40P4-76、ORTEC 社及び MCA、SEIKO EG&G 社)を用いて γ 線測定を行った。これにより重液分離前の放射性セシウムの放射

能を定量した。この試料について前処理及び重液分離操作を行った。次に、SPT (MEASURE WORKS 社) を超純水に溶かし、比重を 2.0 に調整した重液 (SPT 溶液) を調製した。この SPT 溶液 30 mL を 1 g の土壌試料に加えてよく振り混ぜた後、下記の 4 種類の前処理を行った(表 2)。

—	前処理の組み合わせ
 ')	- ロロガル +田 (/) XH - ム /へ かつ +十
14 /	

前処理	超音波処理	脱気処理
(i)	×	×
(ii)	0	×
(iii)	×	0
(iv)	0	0

超音波処理は、超音波ホモジナイザー(THU-08、ASONE 社)を用いて 5 分間処理した(図 2)。また、脱気処理は SPT 溶液を入れた遠沈管をポリサルホンホルダー(KP-47S、ADVANTEC 社)に入れ密封し、アスピレーター(MDA-006、ULVAC 社)を用いて見かけ上気泡の発生が収まるまで(30 分間)脱気を行った(図 3)。



図 2 超音波処理の様子



図3 脱気処理の様子

それぞれの前処理を行った後、全ての試料について 10 分間振とうした。その後、10 分間、3000 rpm で遠心分離を行い、沈降する成分と浮遊する成分に分離した。そして、沈降した粒

子(比重 > 2.0)をシリンジで回収し、 $0.45~\mu\,\mathrm{m}$ のメンブレンフィルター上で超純水を用いて洗浄し、重液成分を除去してフィルター上で乾燥させた。また、遠心分離後に残った懸濁粒子(比重 < 2.0)も同様に、 $0.45~\mu\,\mathrm{m}$ のメンブレンフィルター上で超純水を用いて洗浄し、フィルター上で乾燥させた。これらの乾燥は恒温槽を用いて 50~Cの条件で行った。乾燥後の試料について、ゲルマニウム半導体検出器を用いた γ 線測定により ^{137}Cs の放射能を定量した。放射能は全て 2011 年 3 月 15 日正午に減衰補正した。さらに、分離前の全放射能に対する比重 2.0 以下の画分に存在する ^{137}Cs 放射能の割合を算出した。

3.1.1.3 実験結果と考察

本実験における土壌粒子の回収率を 137 Cs 放射能で計算した結果、94 ± 3%となった。これは平成 30 年度の実験で得られた値(94 ± 6%)とほぼ同じ値であった(平成 30 年度成果報告書)。重液分離により、溶脱する 137 Cs はおよそ 2%程度であるため、ほぼ全ての粒子を回収できたとみなした。そこで、比重 2.0 以下の画分の放射能を分離前の全放射能で割り、比を算出した。その結果を表 3 に示す。誤差は γ 線測定における測定誤差を示している。試料間の誤差(n=3)は測定誤差未満であった。

	前処理	脱気処理	超音波処理	放射能の割合(%)
	削处理	(30 分間)	(5 分間)	双别能切割百(%)
	(i)	×	×	34 ± 3
	(ii)	×	0	45 ± 3
	(iii)	0	×	44 ± 3
	(iv)	0	0	46 ± 3

表 3 前処理法と比重 2.0 以下の画分中に含まれる放射能の割合

前処理を行わない場合(i)に比べて前処理を行った場合、比重 2.0以下の画分に含まれる放射能の割合が増加した。これは前処理により団粒が破壊されて各粒子が重液中に分散された事によると考えられる。また、前処理法の違いについて大きな違いが見られなかった(ii 及びiii)。つまりそれぞれの前処理法(超音波処理 5 分及び脱気処理 30 分)が共に有効であり、団粒の分解と各粒子への重液成分の浸透が適切に行われたと考えられる。さらに、超音波処理と脱気処理を重ねて行っても優位な改善は見られなかった(iv)。これらの結果から、重液分離法における前処理法としては超音波処理と脱気処理のどちらでも採用できると考えられる。コストについては今後検討する必要があるが、大量の試料を処理する点では脱気処理を行う方が簡便であると予想される。また、本研究における以降の実験では脱気処理を前処理法として採用して実験を行った。

3.1.2 土壌粒子の篩い分け効果の検討

3.1.2.1 研究の目的

本研究で対象としている、福島第一原発事故により環境中に放出された Cs 含有粒子はサイズや同位体比などに違いがある事が分かっている[26]。主に原発近傍では 100 μ m を超える粗大な粒子に放射性セシウムが不均一に分布するいびつな粒子や、つくば市や東京都等で発見された 2 μ m 程度の球状の粒子などの存在が報告されている。そこで、本研究ではサイズによる重液分離挙動の違いについて検討を行った。本実験では、地質学的な分類に基づいて63 μ m以上の粒子(砂)と63 μ m以下の粒子(シルト、粘土)の2つの画分に分け、それぞれに対して重液分離を行い4つの画分に分離する事で分離に対する粒子径の効果について検討した。

3.1.2.2 実験操作

実験の手順を図 4 に示す。実験室で乾燥した試料を 63 μ m の金属製篩にかけた。この際、粘土粒子などが大きな粒子に付着して混入するのを防ぐために、湿式法で行った。土壌粒子を篩にかける際に、超純水で十分に洗い流した。得られた大きい粒子群(L)と小さい粒子群(S)はそれぞれ 50℃の恒温槽で乾燥させた。乾燥後のそれぞれの粒子群の重量を測定した。さらに(L)及び(S)の粒子をそれぞれ 1 g ずつ秤量し、ゲルマニウム半導体検出器を用いた γ 線測定により 137 Cs 放射能を定量した。放射能は 2011 年 3 月 15 日正午に減衰補正した。定量した土壌粒子を比重 2.0 に調整した SPT 溶液 30 mL に分散させた。その後、3.1.1 で選択した手法に沿って前処理した。土壌懸濁液を密閉容器に入れて 30 分間減圧処理した。次に 10 分間振とう撹拌を行った後、3000 rpm、10 分間遠心分離を行った。そして、沈降した粒子をシリンジで回収した。浮遊粒子は 0.45 μ m のメンブレンフィルターでろ過後、超純水を用いて洗浄、乾燥させた(画分(a))。一方で、回収した沈降粒子は 0.45 μ m のメンブレンフィルターでろ取し、比重を 2.4 に調整した SPT 溶液 30 mL に分散させた。その後は直前の操作と同様に、沈降粒子と浮遊粒子を分離し画分(b)を得た。さらに沈降粒子を比重 2.8 に調整した SPT 溶液を用いて重液分離操作を行い、画分(c)と(d)を得た。

以上の手順で得た画分(a) - (d)はフィルター上で乾燥させた後、重量を測定した。次に、ゲルマニウム半導体検出器を用いて放射性セシウムの放射能を定量した。また、オートラジオグラフィー(以下、AR)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(IP)に 30 分曝写させ、その後読み取り機を用いて(FLA9500、GE ヘルスケア社)、AR 像を得た。画像分解能は 50 μ m で行った。また、分離した各画分から少量の土壌をカーボン導電性テープ上に移した。この試料に対してカーボン蒸着処理を行った(VS-100、真空デバイス社)。走査型電子顕微鏡(以下、SEM)及びエネルギー分散型 X 線分析(以下、EDS)を行い、組成分析を行った(JSM-6610、JEOL 社)。加速電圧は 20 kV で行った。さらに、各画分から約 0.1 g の土壌を分取しメノウ乳鉢を用いて 30 分間粒子を細粒化した。細粒化した粒子はシリコン無反射板に充填し、粉末 X 線回折(以下、XRD)測定を行った。X 線は CuK α 線(1.6 kW)を用い、掃引速度は毎分 0.02°(2 θ)で測定を行った。

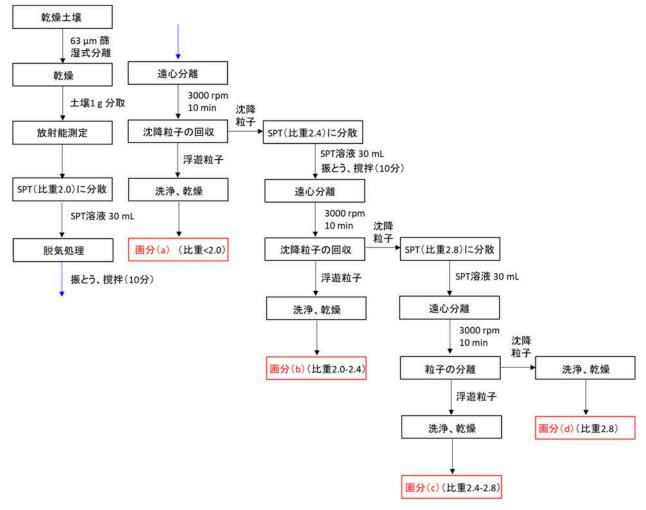


図4 重液分離の操作手順

3.1.2.3 実験結果と考察

まず 63 μ mの篩により分離した粒子群 (L) と (S) の重量比を算出したところ、今回用いた試料の比は (L) が 91 wt%、 (S) が 9 wt%となった。全体の寄与としては砂の寄与が大きい事が分かった。次に、表 4 に大きい粒子群 (L) 、表 5 に小さい粒子群 (S) を重液分離した際の各比重画分の放射能、放射能比、重量比をまとめた。さらに、表 6 には全ての画分の放射能濃度 (Bq g⁻¹) 及びサイズ分画前の未処理の土壌に対する重量比 (wt%) を示す。

画分	放射能(Bq)	放射能比(%)	重量比(wt%)
(a) SG <2.0	985±11	61.5±0.2	16.6±0.3
(b) SG 2.0-2.4	121 ± 3	7.5 ± 0.5	5.8 ± 0.3
(c)SG 2.4-2.8	412 ± 7	25.5 ± 1.3	54.7 ± 1.4
(d)SG 2.8-	198±5	12.4 ± 0.4	19.0 ± 0.8
回収率		107 ± 2	96.1 ± 0.7

表 4 粒子群 (L) の重液分離の結果

表 5 粒子群 (S) の重液分離の結果

画分	放射能(Bq)	放射能比(%)	重量比(wt%)
(a) SG <2.0	4510±30	80.0 ± 2.3	61.0±2.6
(b) SG 2.0-2.4	657 ± 9	11.7 ± 0.9	10.9 ± 0.6
(c) SG 2.4-2.8	531 ± 8	9.5 ± 0.8	12.1 ± 0.9
(d) SG 2.8-	501 ± 7	8.8 ± 0.9	11.1 ± 1.2
回収率		110±5	95.1±0.3

表 6 全ての画分の放射能濃度及び重量比のまとめ

	粒子群(L)	粒子群(S)
画分	放射能濃度(Bq g ⁻¹)	重量比(wt%)	放射能濃度(Bq g ⁻¹)	重量比(wt%)
(a) SG <2.0	5730±10	15	7200 ± 160	5
(b) SG 2.0-2.4	2060 ± 250	5	5830 ± 40	1
(c)SG 2.4-2.8	720 ± 30	50	3870 ± 110	1
(d) SG 2.8-	1020 ± 50	17	5190 ± 110	1
分離前	1580±10		5490 ± 230	

表中のSGは比重(Specific Gravity)を表している。これらの結果の誤差は3回繰り返しの誤差である。放射能で計算される回収率が100%を超えたのは、放射能の測定誤差によるものと思われる。重量比でみる回収率は95%を超えており解析に支障はないと考えた。

まず粒子群 (L) の結果について、最も重量の大きい画分は (c) (2.4-2.8) であった。また、放射能で見ると画分 (a) が最も高い値を示した。放射能濃度で比較した場合、画分 (a) の放射能濃度が 5730 Bq g^{-1} と最も高く、画分 (c) が 720 Bq g^{-1} で最も低い値となった。重液分離前の粒子群 (L) の放射能濃度が 1580 Bq g^{-1} 、サイズ分画前の未処理の土壌は 1670 Bq g^{-1} であった事から、放射能濃度の高い粒子が画分 (a) に集まる結果となった。粒子群 (S) についても、画分 (a) の放射能が 7200 Bq g^{-1} と最も高くなった。しかし、他の画分 (b) 、 (c) 、 (d) についても分離前の放射能濃度 1670 Bq g^{-1} よりも高くなった。分離前の粒子群 (S) の濃度が 5490 Bq g^{-1} であった事から、放射性セシウムをより強く吸着する粘土粒子の特性に加え、粒子が小さく比表面積が大きいためと考えられる。また、放射性セシウムを良

さらに重液分離前の放射能濃度と比較すると、画分(c)及び(d)は分離前よりも濃度が低下し、画分(a)及び(b)は濃度が高くなった。この傾向は粒子群(L)と同じであった。このため、サイズを分離しない場合でも比重 2.4 を境界として分離する事で放射能の低減が可能になる事が分かった。この結果は、粒子のサイズ分離をしない場合に重液分離を行った平成 30 年度の結果と一致した。

く吸着するとされる層状ケイ酸塩は風化したイライトやバーミキュライトなどの雲母鉱物であり、画分(d)に含まれる。特に粒径が小さく風化の影響を受けた雲母が吸着媒体になり得る

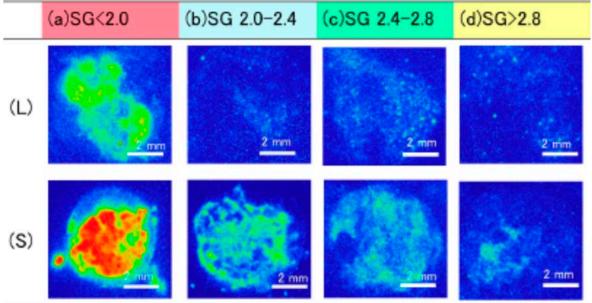
ので画分(d)の放射能濃度が(c)よりも高くなっているのはそのためと考えられる。

今回用いた土壌については、粒子群(S)の量が(L)に比べて少なかったため、全体への影響は小さいと考えられる。全体を見ると、粒子群(L)の画分(c)の重量が全体の半分を占める事が分かる。また、画分(d)の放射能濃度についても初期濃度よりも低い事が分かる。これらの画分(全体の70%)以外を集める事で、本研究の目的である容積及び放射能の半減が達成できる可能性がより高くなると予想される。サイズ分離の必要性について来年度に様々な土壌について検討する事で、より詳細な考察が可能となる。

次に、これらの8画分の成分について化学分析を行った。まず、表7に各画分のAR像をまとめた。比較として、2.2 Bqの放射能を持つ単一粒子を同条件で分析したAR像を図5に示す。ただし、この結果は粒子群 (L)及び (S)をそれぞれ1gずつ用いて重液分離をしたものであるため、粒子群 (L)と (S)間の粒子数の比較はできない(実際の土壌試料中の比を反映していない)。

表 7 粒子群 (L) 及び (S) を重液分離して得た画分 (a) - (d) の AR 像

(a)SG(20 (b)SG 20-24 (a)SG 24-28 (d)SG)2



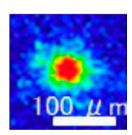


図5 単離した粒子 (2.2 Bq) の AR 像

以上の結果を見ると、粒子群(L)及び(S)の画分(a)に高濃度粒子が集まっている事が分かる。これについては、 γ 線測定の結果とほぼ一致する傾向となった。また、粒子群(S)については、 γ 線測定の結果どの画分も放射能が高い事が示されたが、AR 像の結果を見ると放射能の高い粒子が存在するわけではなく、全体的に放射能が高い事が分かる。この事から粒子群(S)の画分(b)、(c)、(d)に含まれる粒子は、本研究で対象としている Cs 含有粒子ではなく天然鉱物に放射性セシウムが吸着したものと予測される。

次に各画分の鉱物組成を調べるために粉末 X 線回折を行った。それぞれの粒子群の結果を ② 6 及び 7 にまとめて示す。

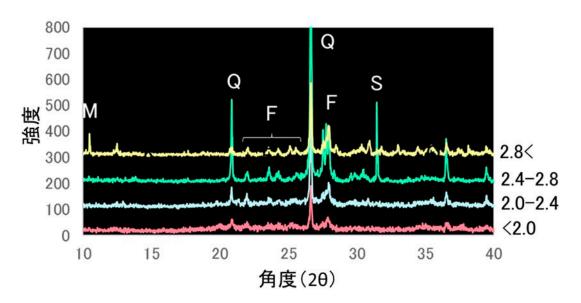


図 6 粒子群 (L) の各画分の X 線回折パターン (M:雲母グループ、F:長石グループ、Q:石英、S:蛇文石)

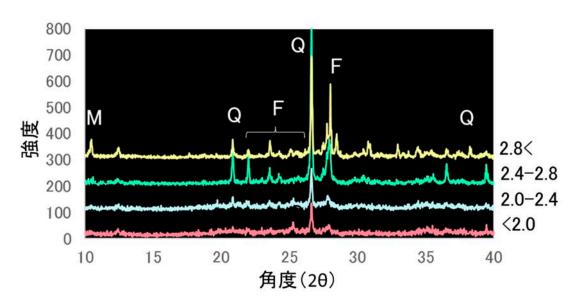


図7 粒子群(S)の各画分の X 線回折パターン (M:雲母グループ、F:長石グループ、Q:石英、S:蛇文石)

得られた結果から主に石英、雲母、長石が主成分である事が分かった。また、粒子径にかかわらず比重が小さくなるほど結晶性のピークが見られなくなる結果となった。

さらに、鉱物の化学組成を調べるために SEM-EDS による分析を行った。代表的な SEM 像及 び元素マッピング像を図 8 及び図 9 に示す。

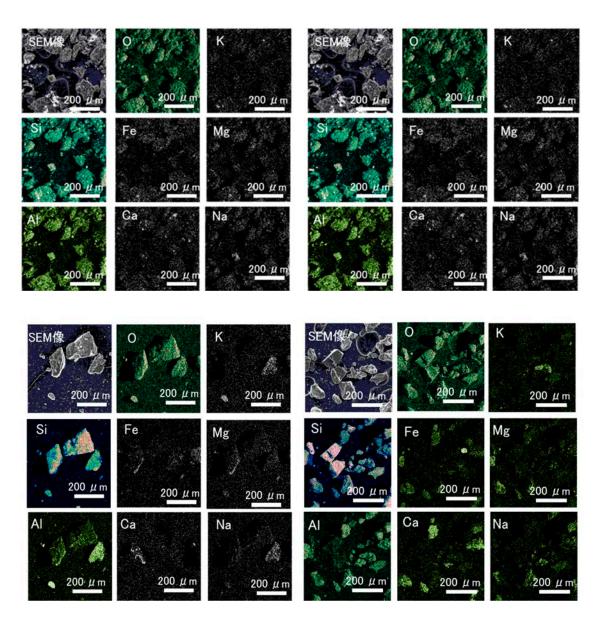


図 8 粒子群 (L) の各画分の SEM-EDS 像 (左上: 比重 < 2.0、右上: 比重 2.0-2.4、 左下: 2.4-2.8、右下: 比重 2.8 <)

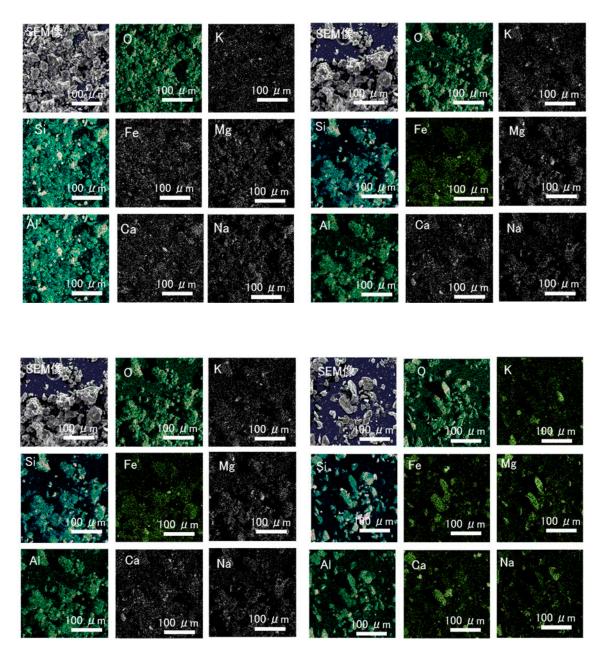


図 9 粒子群 (S) の各画分の SEM-EDS 像 (左上: 比重 < 2.0、右上: 比重 2.0-2.4、 左下: 2.4-2.8、右下: 比重 2.8 <)

SEM 像から、平板型の粒子が多く見られた。また、EDS 分析から主成分がケイ素、酸素、アルミである事が分かった。また、粒子群 (L) と (S) 共に、比重が大きくなるにつれてマグネシウムや鉄等の金属元素の濃度増加が見られた。これらは、XRD の結果から比重 2.8 以上の画分で雲母類が検出された事と対応していると考えられる。これらの SEM-EDS 及び XRD の結果を踏まえて、各画分の鉱物組成について表 8 及び 9 にまとめた。

表 8 粒子群 (L) の鉱物組成のまとめ(主要鉱物は XRD の結果、化学組成は主要鉱物の一般 的な化学組成、A1/Si 比は EDS の分析結果、比重は主要鉱物の一般的な比重)

	主要鉱物	化学組成	AI/Si比[#]	比重[9]
(a)SG<2.0	非晶質	アルミノケイ酸塩	0.50	<2.3
(b)SG 2.0-2.4	非晶質	アルミノケイ酸塩	0.40	<2.3
(c)SG 2.4-2.8	長石 石英 蛇紋石	$\begin{array}{c} (\mathrm{Na,K,Ca,Ba})(\mathrm{Si,AI})_4\mathrm{O_8} \\ \mathrm{SiO_2} \\ (\mathrm{Mg,Fe})_3\mathrm{Si_2O_5}(\mathrm{OH})_4 \end{array}$	0.17	2.5< 2.7 2.6<
(d)SG>2.8	雲母	$IM_{2-3} \square_{1-0} T_4 O_{10} A_2^{[*]}$	0.27	2.8<

I: K、Na、Ca、M: Al、Mg、Fe、 $\square:$ 空孔、T: Si、Al、A: OH、F

表 9 粒子群 (S) の鉱物組成のまとめ(主要鉱物は XRD の結果、化学組成は主要鉱物の一般 的な化学組成、A1/Si 比は EDS の分析結果、比重は主要鉱物の一般的な比重)

	主要鉱物	化学組成	AI/Si比[#]	比重[9]
(a)SG<2.0	非晶質	アルミノケイ酸塩	0.44	<2.3
(b)SG 2.0-2.4	非晶質	アルミノケイ酸塩	0.42	<2.3
(c)SG 2.4-2.8	長石 石英	(Na,K,Ca,Ba)(Si,Al) ₄ O ₈ SiO ₂	0.24	2.5< 2.7
(d)SG>2.8	雲母	$IM_{2-3}\Box_{1-0}T_4O_{10}A_2^{[*]}$	0.41	2.8<

I: K、Na、Ca、M: A1、Mg、Fe、 $\square:$ 空孔、T: Si、A1、A: OH、F

化学組成の観点では、粒子群(L)と(S)に大きな違いはなかった。XRDの結果から、画分(a)は石英のピークがわずかに検出されたのみで、大部分が非晶質の粒子である事が示された。主成分がアルミとケイ素と酸素からなるアルミノケイ酸塩であった。画分(b)についても非晶質成分が多くアルミノケイ酸塩が多く見られた。また、画分(c)は長石や石英が主であった。特に石英はアルミニウムを含まないため、Al/Si比が他の画分に比べて小さくなったと考えられる。画分(d)には鉄やマグネシウムなどを含む雲母類が多く、相対的に比重が大きい粒子が含まれる事が分かった。また、明らかに天然鉱物を多く含む画分(b)、(c)、(d)に比べて非晶質の多い画分(a)の放射能濃度が高かった事は、従来の研究で報告されている Cs 含有粒子[13-16]の存在によると考えられる。

JAEA-Review 2020-037

以上をまとめると、土壌粒子をサイズ分画した後に重液分離をした結果、粒径にかかわらず比重が相対的に軽い画分(< 2.4)に高放射能粒子が含まれる事が分かった。しかし、粒径が小さい場合、天然の粘土鉱物に放射性セシウムが吸着しやすいため比重の大きな画分の放射能も高い事が分かった。今回用いた土壌では粒径の小さな粒子が少なかったため、重液分離に影響は大きくないと言える。つまり、重液分離の効果には粒径分布が重要な要因になり得る事が本実験により示された。

最後に、2.4 を重液分離の閾値にできる場合、SPT に拘らず重液を選択できる可能性がある。例えば、ポリリン酸ナトリウムなどを用いる事ができれば、コスト面(80%減)や環境面(毒性)の点でタングステン酸を用いるよりも優位になる。このような検討も将来的に必要になると考えられる。

- 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

平成 30 年度に引き続き、「(1) 重液分離による放射性微粒子分離法の高度化実験」において溶脱する事が予想される溶存態放射性セシウムの放射能濃度について定量を行った。本年度は 3.1 で示したようにサイズ分画を行った後重液分離を行った。そこで、粒子群(L)及び(S)のそれぞれの重液分離操作で生じた廃液中に含まれる放射性セシウムの溶脱量について検討を行った。

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。粒子群(L)及び(S)の重液分離操作において、画分(a)、(b)、(c)、(d)を回収する際に、 $0.45~\mu\,\mathrm{m}$ ポアサイズのメンブレンフィルターでろ過、洗浄した。これらの洗浄操作で生じた廃液をさらに $25~\mathrm{nm}$ ポアサイズのメンブレンフィルターでろ過をして懸濁粒子を除去した。このろ液中の放射性セシウム濃度を、ゲルマニウム半導体検出器を用いた 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。重液分離前の各粒子群(L)及び(S)中の放射能を測定し、分離前の放射能に対する溶脱した放射性セシウムの放射能の量を抽出率として算出した。

3.2.1.3 実験結果と考察

図 10 に粒子群 (L)、図 11 に粒子群 (S) の重液分離操作により脱離した放射性セシウムの抽出率をそれぞれ示す。

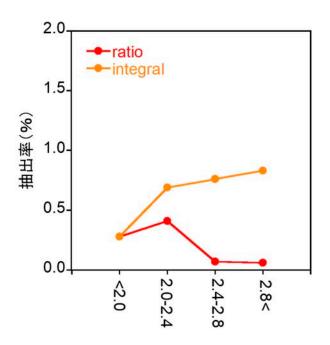


図 10 粒子群 (L) の分離操作における ¹³⁷Cs の抽出率

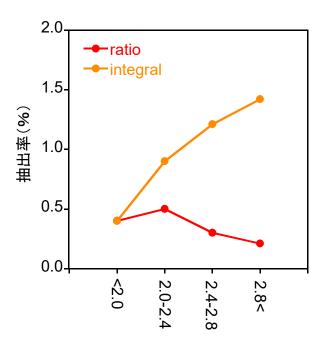


図 11 粒子群 (S) の分離操作における ¹³⁷Cs の抽出率

図中、赤の点が各画分を分離した際の抽出率、オレンジの点は合計の抽出率を示している。 平成30年度の結果と同様に、重液分離操作後の廃液に含まれる放射性セシウムの放射能は粒子群(L)及び(S)共に全体の2%以下であった。粒子群(S)については、画分(c)及び(d)を処理した際にも放射性セシウムの脱離が多く見られた。これは、3.1.2で考察したように、放射能濃度が高い粘土鉱物が多く含まれているために放射性セシウムの脱離が多くなったと考えられる。

以上をまとめると、重液分離を行った場合に脱離する放射性セシウムは全体の2%以下となり、サイズ分画の影響はない事が分かった。しかし、高汚染土壌の処理をした後の廃液はセシウムの放射能が高くなる事が予想されるため、再吸着を防ぐために廃液から放射性セシウムを除去する操作が必要になると考えられる。

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

重液分離法のランニングコストを低減するために、重液の再生が必要と考えられる。平成30年度に引き続き、再結晶法により廃液から重液成分を回収する方法について検討した。本年度の実験で生じた廃液を回収し、再結晶により純度の良い重液成分が回収できるかについて検討を行った。特に、25 nmのメンブレンフィルターでろ過されない有機物(腐食物質等)を多量に含む溶液について再結晶法を適用した。

3.2.2.2 実験操作

3.2.1 で実験に用いた廃液(図 12)を 25 nm ポアサイズのメンブレンフィルターでろ過して残留粒子を除去した後 80 $\mathbb C$ オーブンで乾固させた。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、貧溶媒としてアセトンを選択した。この SPT 飽和水溶液 10 mL に対しアセトンを 15 mL 加えた。相分離している状態で 5 分撹拌振とうした後 10 分静置した。有機層を分取し 0.45 μ m ポアサイズのメンブレンフィルターでろ過後、溶液を 80 $\mathbb C$ のオーブンで乾燥させ、固体を得た。得られた固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 137 Cs の有無を調べた。



図12 実験に用いた有機物を多く含む廃液

3.2.2.3 実験結果と考察

図 13 にアセトンと廃液を混合した際の混合溶液を、図 14 に未使用の SPT 粉末と再結晶により回収した SPT を示す。写真から分かるように、再結晶法では残留有機物が除かれず、回収した SPT に含まれる事が分かった。



図 13 廃液とアセトンを混合した溶液 (上部がアセトン相、下部が水相)



図 14 未使用の SPT 粉末 (左) と再結晶法により回収した SPT 粉末 (右)

1回の再結晶(15 mLのアセトン使用)による SPTの回収率はおよそ 10%であり平成 30 年度の結果(9.8 ± 4.7%)とほぼ一致した。放射性セシウムの残留率についても約 80%となり平成 30 年度の結果とほぼ一致した。表層土壌中で有機物に結合している放射性セシウムはおよそ 6 ± 2% [9]と見積もられるが、廃液中の存在量が少ないために残留率への影響はなかったと考えられる。以上のとおり、回収する際に放射性セシウムが除去できないため、再結晶法単体で SPT を回収するのは効果的ではないという事が分かった。

3.2.3 廃液からの重液成分の回収法の検討(イオン交換クロマトグラフィー)

3.2.3.1 研究の目的

3.2.2 と同様に、重液分離法のランニングコストを下げるため、廃液から重液成分を回収する方法について検討した。本項目では重液分離後の不純物量を調べるために、分離前後のSPT溶液中の陰イオン濃度を陰イオン交換クロマトグラフィーで分析した。さらに、廃液を再生するための操作として、陰イオン交換樹脂に通し各フラクションを回収した。回収した溶液中の不純物量について定量し、本手法の実用化について検討した。

3.2.3.2 実験操作

3.2.2.2 と同様に、重液分離で生じた廃液を 25 nm ポアサイズのメンブレンフィルターでろ過して残留粒子を除去した後 80 $^{\circ}$ Cオーブンで乾固させた。この固体を少量量り取り超純水で希釈して陰イオン交換クロマトグラフィー(島津製作所、図 15)で陰イオン濃度の定量を行った。同時に、未使用の SPT 粉末についても超純水で溶液を調製してイオン濃度を測定した。イオン交換カラムは SI-50 4E(5 μ m、250 mm×4.0 mm ϕ)を用い、カラム温度を 30 $^{\circ}$ Cに設定した。溶離液には 3.2 mmol dm⁻³ Na₂CO₃ と 1.0 mmol dm⁻³ NaHCO₃ の混合液を用い 0.6 mL min⁻¹で溶離した。測定は陰イオン混合標準液 1(和光純薬)を用いて、検量線法により Br⁻、Cl⁻、F⁻、NO₂⁻、NO₃⁻、PO₄³⁻、SO₄²⁻の定量を行った。



図 15 陰イオン交換クロマトグラフィーに用いた装置一式

次に、イオン交換樹脂を用いて重液分離の廃液から SPT を再生する実験を行った。本実験には、重液分離で生じた廃液を 25 nm ポアサイズのメンブレンフィルターを通したろ液を用いた。陰イオン交換樹脂は再生済みのアンバーライト(Cl⁻型、IRA402BL、アズワン社)を用いた。この樹脂を $0.8 \text{ mm} \phi$ のカラムに 10 cm 充填した。廃液 1 mL をピペッターでカラム上部に添加し、カラム分離を行った。この際、ペリスタリティックポンプをカラムの下流に取り付け、流速が 1.0 mL min⁻¹になるように調整した(図 16)。樹脂を通した液は 3.0 mL ずつ回収し、6 つの画分を得た。この 6 つの溶液を適当な濃度になるように超純水で希釈し、陰イオン濃度を上記と同様に陰イオン交換クロマトグラフィーで定量した。本測定では、電気伝導度によるイオンの検出を行った。

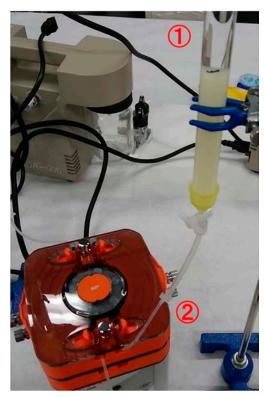


図 16 陰イオン交換樹脂を用いたクロマトグラフィーの様子 (①カラムを通過する廃液の流速は②ペリスタリティックポンプにより制御される)

3.2.3.3 実験結果と考察

まず、重液分離に使用する前の SPT 粉末及び陰イオン混合標準溶液の陰イオン交換クロマトグラムを図 17 に示す。

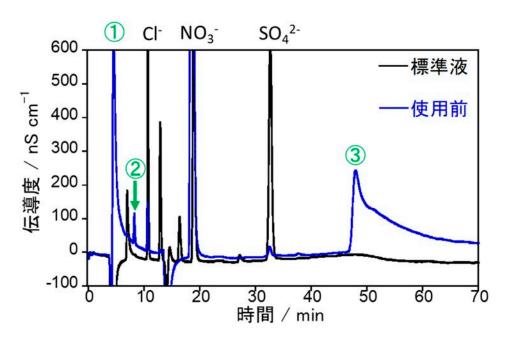


図 17 使用前の SPT と標準液の陰イオン交換クロマトグラム

標準液のクロマトグラムと比較すると、 CI^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} が不純物として検出された。また、標準液にないピークが見られた(ピーク①、②、③)。ピーク位置について①は陰イオンの中でも最も溶出が早い F^- よりも早く、ウォーターディップと同じ時間に検出されている。ウォーターディップは分析試料中の H_2 0 が検出されるもので、これはカラム中の樹脂との相互作用がほぼない事に由来する。SPT はポリマーのため、ナトリウムの化学量論はポリタングステン酸イオンよりも大きい。このため、溶離液の濃度よりも高くなり電導度が上昇したと考えられる。次に②については、標準液には含まれない化学種であり、カラムに対して Fと CI^- の中間の相互作用を示す化学種であるが、本研究では同定に至らなかった。③は硫酸イオンよりも電荷及びイオン半径が大きい化学種であり、このピークがポリタングステン酸イオンと考えられる。このようなクロマトグラムはポリリン酸でも確認される[27]。ピークがブロードになっているのは、SPT の重合度が様々である事に由来する。次に、使用前後のクロマトグラムを図 18 に示す。使用前後を比較すると、③のピークが分裂して④のピークが生じ、⑤のピークも生じた。これについては、SPT の廃液を前処理する際に 80 $^+$ で加熱した事に起因すると考えられる。特に⑤のピークはポリマーが分解してモノマー($^+$ 00 4^+ 2)が生じたためと考えられる。

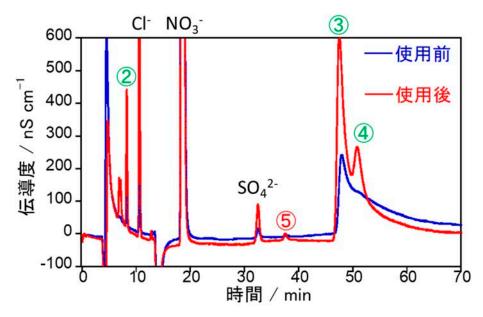


図 18 使用前後の SPT の陰イオン交換クロマトグラム

次に、図 18 の結果をもとに使用前後の成分組成について計算した。測定したのは陰イオンであり、全てがナトリウム塩であると仮定とした。また、1 g O SPT 中に含まれる不純物量の結果を表 10 に示す。この結果、使用前後の不純物量はどちらも 0.1%程度であり有意な差が見られなかった。

表 10 1 gの SPT 中に含まれる不純物量

	使用前 / mg	使用後 / mg
NaF	< 0.003	0.019
NaCl	0.005	0.051
NaNO ₂	< 0.010	< 0.009
NaBr	< 0.005	< 0.005
$NaNO_3$	1.16	0.981
Na ₃ PO ₄	< 0.11	< 0.10
Na ₂ SO ₄	0.001	0.103
Total	1.17	1.15

次に廃液を、陰イオン交換樹脂を通して分画した際の結果を図19に示す。

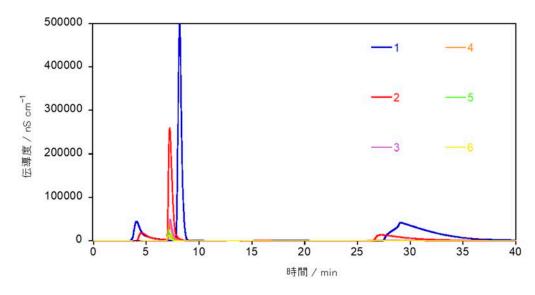


図 19 陰イオン交換樹脂を用いて廃液を分画した際のクロマトグラム (図中の数字は分画した順番を示す)

この結果について、溶離時間が図 18 と異なっているがこれは測定日の違いによるカラムの状 態に起因する。まず、7-8 分に図 18 中②のピークと重なるピークが見られた。このピークは ポリタングステン酸イオンのブロードなピークよりも強度が高かった。これは、試料の含有 量から考えるとポリタングステン酸イオン由来のピークと考えられるが、化学形態は不明で ある。次に 27 分以降に見られるブロードなピークがポリタングステン酸イオンであり、画分 1及び2に検出された。図17や18で見られるように陰イオン交換樹脂を通すと電荷及びイオ ン半径の小さい物から順に溶離されるはずであるが、ポリタングステン酸イオンのほぼ全て が画分1及び2に検出される結果となった。これは、廃液の比重に原因があると考えられる。 廃液の比重は 2.0 程度あり、イオン交換樹脂を充填したカラムに廃液を導入した際、重液成 分が素早く沈降する様子が確認された。この事から、カラム内でイオン交換平衡に達する前 にカラムを通過するためにポリアニオンが最初の画分に多く見られたと考えられる。さらに、 画分 3-6 にはポリタングステン酸イオンがほぼ検出されなかったため、ほぼ全てのポリタン グステン酸イオンがカラムを素通りした事になる。分画時の溶液の流速を変えた場合もこの 傾向は変わらなかった。これを防ぐためには廃液の比重が移動相とほぼ同じにする事が必要 となり廃液を 10 倍程度希釈する必要がある。これは廃液処理の方法として非合理的である。 このため、廃液の再生として本手法は最適ではないと結論づけられる。

3.2.4 廃液からの重液成分の回収法の検討(サイズ排除クロマトグラフィー)

3.2.4.1 研究の目的

本研究項目では重液分離法のランニングコストを下げるため、廃液から重液成分を回収する方法について検討した。重液分離に用いるポリタングステン酸イオンは分子サイズが大きいため、サイズ排除クロマトグラフィーを用いると不純物と分離する事ができると考えられる。そこで、サイズ排除クロマトグラフィーを行い、分画した試料中に含まれる陰イオン及び放射性セシウムの量を定量し、サイズ排除クロマトグラフィーの効果について検討した。

3.2.4.2 実験操作

サイズ排除クロマトグラフィー用の担体には Sephadex G-50 fine を用いた。超純水で膨潤させてコンディショニングしたこの担体を、 $0.8\,\mathrm{mm}\,\phi$ のカラムに $10\,\mathrm{cm}\,\pi$ 填した(図 20)。カラム分離を行う際に廃液の比重が問題になるため、本実験では廃液(比重 2.29)を $10\,\mathrm{GR}$ 税して比重を小さくした(比重 1.12)。この希釈した廃液を $1\,\mathrm{mL}$ 添加すると同時にカラムから流出する液を $3\,\mathrm{mL}$ ずつ分取し、合計 $10\,\mathrm{mg}$ (以下、FX、 $X=1-10\,\mathrm{b}$ と表記する)を得た。この際の流速は三方コックを用いて $1\,\mathrm{mL}\,\mathrm{min}^{-1}$ に調整した。その後、回収した廃液中の陰イオン量を陰イオン交換クロマトグラフィーにより定量した。測定は $3.2.3.2\,\mathrm{cr}$ に下した方法と同じ手順で行った。また、ポリタングステン酸イオンの量については、画分の比重を測定して評価した。比重は校正済みのマイクロピペッターで $1\,\mathrm{mL}\,\mathrm{e}$ を取り、電子天秤を用いて重さを量り比重を求めた。この操作を各 $10\,\mathrm{e}$ 回繰り返し、平均値を求めた。



図20 サイズ排除クロマトグラフィー用のカラム

3.2.4.3 実験結果と考察

各画分に含まれるイオン量は異なるので、図 21 に F5-7、図 22 に F8-10 のイオンクロマトグラムをそれぞれ示す。F1-5 及び F8-10 まではイオンが検出されなかったため(< 50 ppb)省略した。

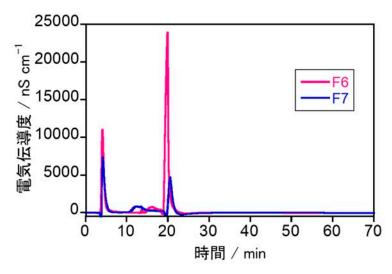


図 21 F6 及び F7 のイオンクロマトグラム

3.2.3.2 の時とカラムの状態が異なり、今回の測定ではポリタングステン酸イオンは 70 分以内に検出されなかった。標準液との比較から、開始後 5 分に見られるピークは陽イオン、20分にポリタングステン酸イオンに由来するピーク(図 18 の②のピークに相当)が検出された。その他の陰イオンについては F6 及び 7 には見られなかった。次に F1-10 の比重を図 22 に示す。

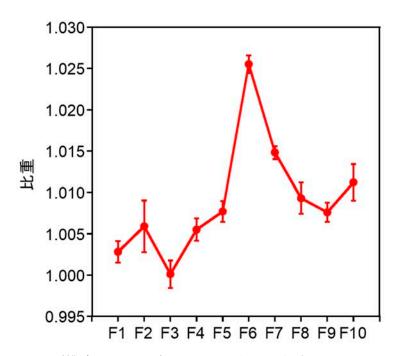


図 22 サイズ排除クロマトグラフィー画分の比重 (エラーバー:1σ)

JAEA-Review 2020-037

イオンクロマトグラフィーの結果と同様、F6 及び F7 の比重が高く、ポリタングステン酸イオンが存在する事が示唆された。その他、F8-10 に塩化物イオンのピークがわずかに見られたが、検出限界以下(10 ppb)であった。この事からサイズ排除クロマトグラフィーにより、イオンサイズの大きなイオンと小さなイオンを分離する事ができたと言える。しかし、3.2.3.2 の陰イオン交換クロマトグラフィーと同様に、廃液中の不純物は無視できる程度に小さいため今後は放射性セシウムの除去に焦点を当てて回収、精製操作をする事が適切であると考えられる。

3.3 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして、研究を進めた。また、研究実施計画を推進するための打合せ及び外部発表(下記)を行った。令和2年1月28日の成果報告会でポスター発表を行った。同時に、CLADS研究推進室の田川明広氏に研究の進捗を説明し、現在の問題点や今後の方針などについて打ち合わせを行った。最終的な成果については、令和2年度中に開催される学会での発表を検討している。

学会発表 (1件)

斎藤 輝、 山﨑 信哉、 植松 慎一郎、 末木 啓介、「重液分離法を用いた土壌中の放射性セシウム含有粒子の分離の評価」、日本放射化学会第63回討論会、2019/09/24-26.

4. 結言

本年度は、3 ヵ年計画の 2 年目として、主に重液分離法における粒径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 討について検討した。

粒径の効果について、 $63~\mu\,\mathrm{m}$ を境界として分離操作を行った。この結果、粒径の小さな粒子群については、どの比重画分も分離前と比べて放射能濃度が高くなった。一方、粒径の大きな粒子群は比重 2.4 以上の画分の放射能濃度が分離前に比べておよそ半減した。この画分は約 $70~\mathrm{wt}$ % あるため、特に重液分離による効果が高かったと考えられる。この結果から、重液分離の効率には土壌粒子の粒度分布が重要な要因になる事が予想される。そこで、当初の計画通りに $3~\mathrm{fel}$ には様々な地点で採取した土壌について検討していく予定である。

SPT の回収法については、再結晶法、陰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した。この結果、重液分離で生じる廃液中に含まれる不純物量は 0.1 wt%程度であり、陰イオンの観点では精製操作が不要であると結論付けられた。一方、廃液には放射性セシウムが含まれるため、放射能の高い土壌を処理後の廃液を再利用する際は再吸着を防ぐために放射性セシウムを除去する必要がある。3 年目はこの点について検討を行う予定である。

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, http://josen.env.go.jp/chukanchozou/material/index.html?tab1_pamphlet, 2020 年 4 月 1 日アクセス.
- [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, 297-302 (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),除染土壌等の減容等技術実証事業について, http://www.jesconet.co.jp/interim/information/josenjissho.html, 2020年4月1日アクセス.
- [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),除染に伴う汚染土壌の減容化システム, http://www.tepco.co.jp/corporateinfo/company/rd/superconduct/jyosen.html, 2020 年 4 月 1 日アクセス.
- [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).
- [26] Y. Igarashi et al., "A review of Cs-bearing microparticles in the environment emitted by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident" J. Environ. Radioact. 205-206, 101-118 (2019).
- [27] 長島潜ら, "イオンクロマトグラフィーによる有機化合物中の微量リンの定量" 分析化学 45(10), 941-946 (1996).

This is a blank page.

国際単位系(SI)

表 1. SI 基本単位

基本量	SI 基本i	単位
- 本半里	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
物質量	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	
和工里	名称	記号
面	責 平方メートル	m ²
体		m^3
速 さ , 速 月	まメートル毎秒	m/s
加 速 月		m/s^2
波	毎メートル	m ⁻¹
密度,質量密度	ま キログラム毎立方メートル	kg/m ³
面積密度	ま キログラム毎平方メートル	kg/m ²
比 体 和	責 立方メートル毎キログラム	m³/kg
電流密度	まアンペア毎平方メートル	A/m ²
磁界の強き	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 ^(a) ,濃厚	ま モル毎立方メートル	mol/m ³
質 量 濃 月	ま キログラム毎立方メートル	kg/m ³
輝		cd/m ²
出 切 半	b) (数字の) 1	1
比透磁率(^{b)} (数字の) 1	1

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

	回作の名称と記り	7 (1)(0		
			SI 組立単位	
組立量	名称	記号	他のSI単位による	SI基本単位による
	10 AD ATT	記り	表し方	表し方
平 面 角	ラジアン ^(b)	rad	1 (p)	m/m
立 体 角	ステラジアン ^(b)	sr ^(c)	1 (b)	m^2/m^2
周 波 数	(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	С		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	$m^{-2} kg^{-1} s^4 A^2$
	オーム	Ω	V/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻²
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V	$m^{-2} kg^{-1} s^3 A^2$
磁束	ウエーバ	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	Н	Wb/A	m ² kg s ⁻² A ⁻²
セルシウス温度	セルシウス度 ^(e)	$^{\circ}\!\mathbb{C}$		K
光	ルーメン	lm	cd sr ^(c)	cd
	ルクス	lx	lm/m^2	m ⁻² cd
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,	グレイ	G	T/l	$m^2 s^{-2}$
カーマ	2 24	Gy	J/kg	m s
線量当量,周辺線量当量,	. (-)	_	7.0	9 -9
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
	カタール	kat		s ⁻¹ mol
Charlest Contract and Contract			to the second second second	mm > f t = > >>f f t = >

- 酸素活性|カタール kat simple

 (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、患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)へルソは周朝現象についてのみ、ペクレルは放射性接種の統計的過程についてのみ使用される。(d)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、温度差や温度開局を表す数値はども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動告2(CI-2002)を参照。

表 4 単位の中に因有の名称と記号を含むSI組立単位の例

表 4. 単位 Ø)中に固有の名称と記号を含		立の例
	S.	I 組立単位	
組立量	名称	記号	SI 基本単位による 表し方
粘度	パスカル秒	Pa s	m ⁻¹ kg s ⁻¹
カのモーメント	ニュートンメートル	N m	m ² kg s ⁻²
表 面 張 力	ニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ =s ⁻¹
角 加 速 度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s^2	m m ⁻¹ s ⁻² =s ⁻²
熱流密度,放射照度	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg s ⁻³
熱容量、エントロピー		J/K	$m^2 \text{ kg s}^{-2} \text{ K}^{-1}$
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	$m^2 s^{-2} K^{-1}$
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² s ⁻²
熱 伝 導 率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m kg s ⁻³ A ⁻¹
	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ s A
	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ² 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	ファラド毎メートル	F/m	$m^{-3} kg^{-1} s^4 A^2$
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	m ² kg s ⁻² mol ⁻¹
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m ² kg s ⁻² K ⁻¹ mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	kg⁻¹ s A
吸 収 線 量 率	グレイ毎秒	Gy/s	m ² s ⁻³
放射 強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m4 m-2 kg s-3=m2 kg s-3
放 射 輝 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
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m³	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	₹ <i>リ</i>	m	
10^{15}	ペタ	Р	10 ⁻⁶	マイクロ	μ	
10^{12}	テラ	Т	10 ⁻⁹	ナーノ	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}	丰 口	k	10 ⁻¹⁸	アト	a	
0			-01	18		

10-24 ヨクト

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		
目	d	1 d=24 h=86 400 s		
度	0	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		

da

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		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		
		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		
バーン	b	1 b=100fm ² =(10 ⁻¹² cm) ² =10 ⁻²⁸ m ²		
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s		
ネ ー パ	Np ¬	CI単位しの粉は的な関係は		
ベル	В	SI単位との数値的な関係は、 対数量の定義に依存。		
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 ォ ト	ph	1 ph=1cd sr cm ⁻² =10 ⁴ lx		
ガル	Gal	1 Gal =1cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²		
マクスウエル	Mx	$1 \text{ Mx} = 1 \text{G cm}^2 = 10^{-8} \text{Wb}$		
ガ ウ ス	G	1 G =1Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T		
エルステッド ^(a)	Oe	1 Oe ≙ (10 ³ /4 π)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			
+	ユ		リ	ſ	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq			
ν	ン	卜	ゲ	ン	R	$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{C/kg}$			
ラ				k	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy			
ν				ム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv			
ガ		ン		7	γ	$1 \gamma = 1 \text{ nT} = 10^{-9} \text{T}$			
フ	æ.		ル	131		1フェルミ=1 fm=10 ⁻¹⁵ m			
メートル系カラット				ット		1 メートル系カラット= 0.2 g = 2×10 ⁻⁴ kg			
卜				ル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa			
標	準	大	気	圧	atm	1 atm = 101 325 Pa			
力	П		IJ	ſ	cal	1 cal=4.1858J(「15℃」カロリー),4.1868J (「IT」カロリー),4.184J(「熱化学」カロリー)			
3	ク		口	ン	μ	1 μ =1μm=10 ⁻⁶ m			