



研究開発成果報告会
～環境回復に向けての取り組み～

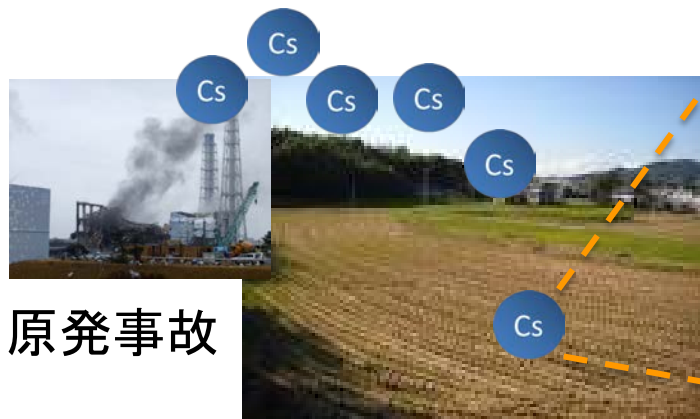
Cs吸脱離機構解明と脱離法の開発

平成25年3月22日

独立行政法人日本原子力研究開発機構
矢板 毅

はじめに

東京電力福島第一原子力発電所の事故由来の放射性セシウムによる被ばく低減のために、空間線量を下げることのための除染が実施されている。



原発事故

放射性セシウムの土壌への降下

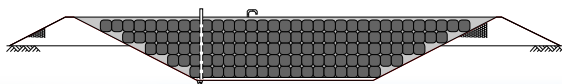


セシウム垂直分布
(表層数センチ)



土壌表面のはぎ取り、
天地返し

仮置場



平地における半地下式仮置場

- セシウムを安定的に保管するために。
- 膨大な量の汚染土壌を貯蔵するために。

研究の目的

安定的な保管あるいは減容法を考える上では、まずは、**どのようにセシウムが土壌にとどまっているのか？**を十分に確かめる必要がある。本研究は、これまでの研究に加え原子・分子レベルでの分析によりセシウムの環境中および処理における挙動を解明し、この知見を基に改めて安定的な保管、減容化方法などを検討することを目的としている。



SPring-8



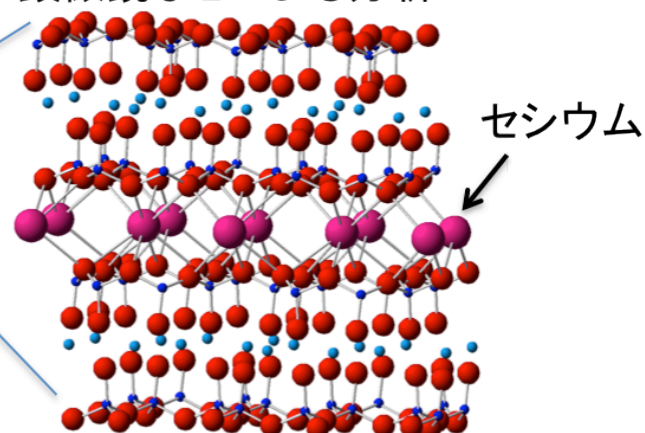
J-PARC



土壌の
拡大画像

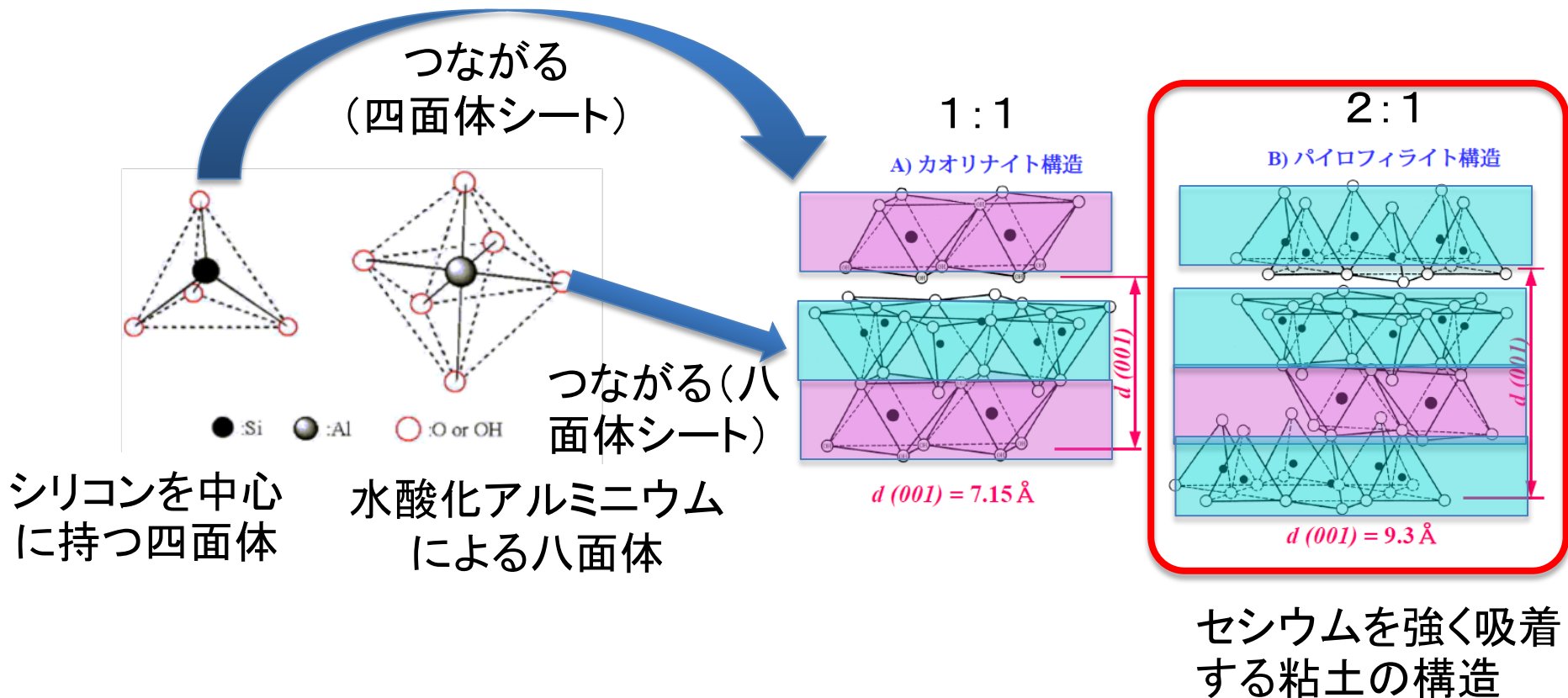
土壌

放射光、中性子、電子顕微鏡などによる分析



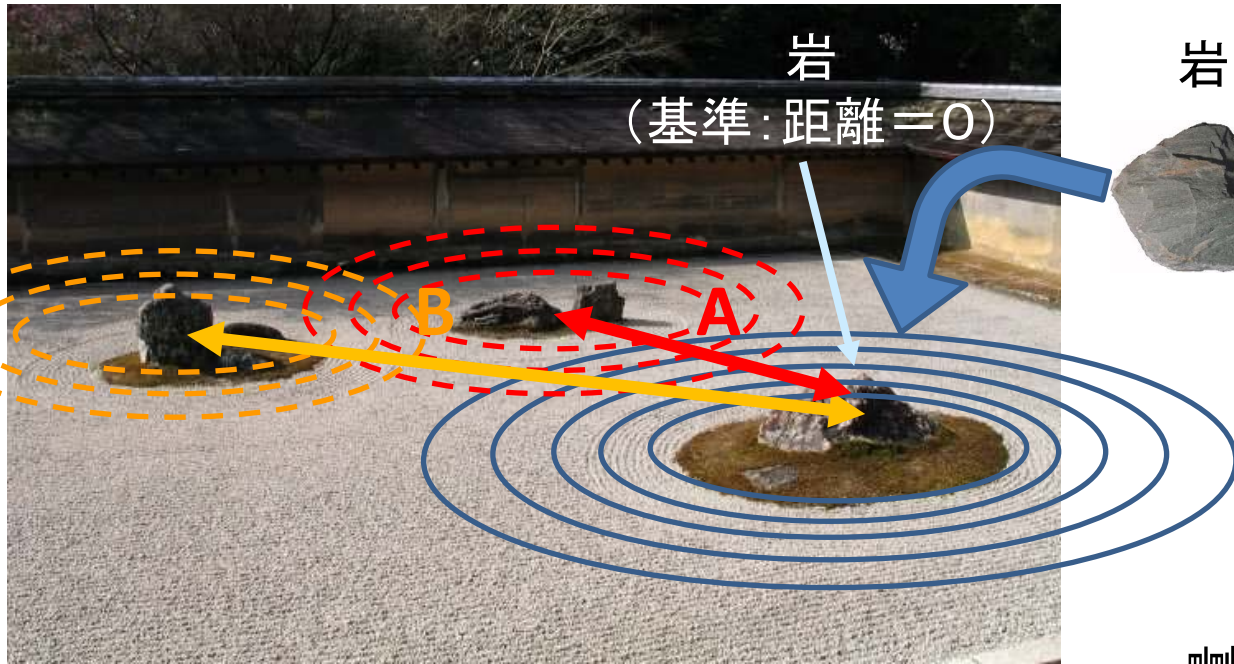
分子レベルでの土壌成分中セシウムの様子

土壤中セシウムを補足する粘土鉱物

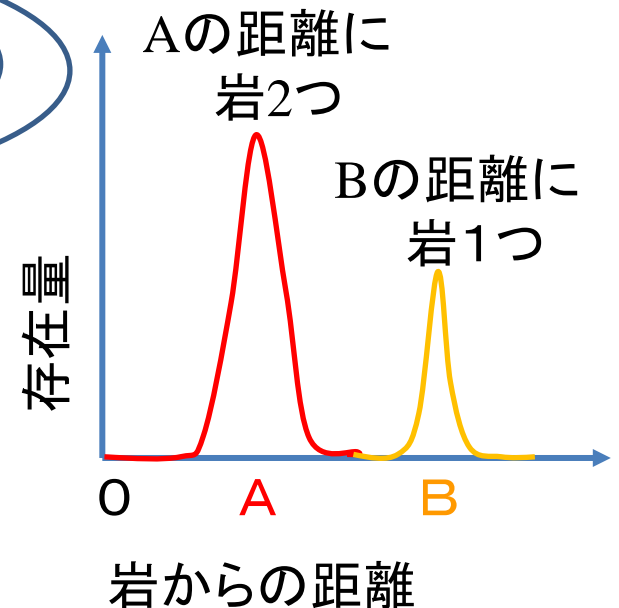


福島土壤中に多く含まれるバーミキュライト、雲母系粘土を研究対象にするのが効率的。詳細な状態分析へ！

広域X線吸収微細構造法 (EXAFS)



動径構造関数



はじめにできた波紋は、周りの物質に当たって反射する。

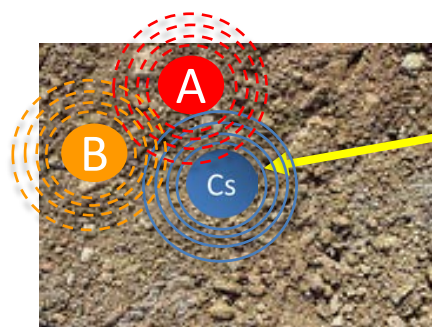
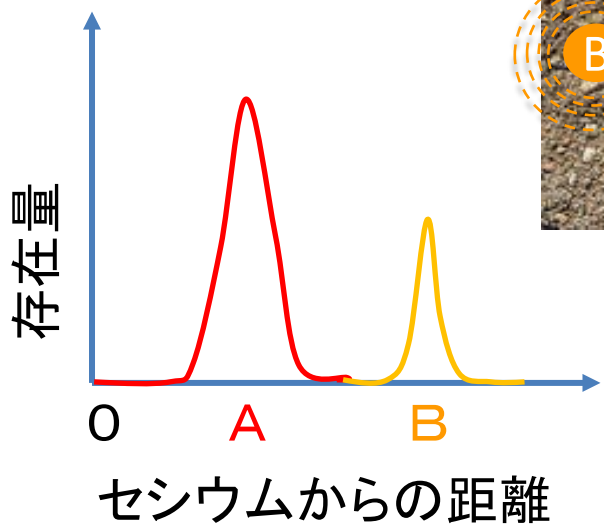
広域X線吸収微細構造法 (EXAFS)



放射光X線

世界最大の放射光から出るX線により、よりはっきりとセシウムの構造を観察することが出来る。

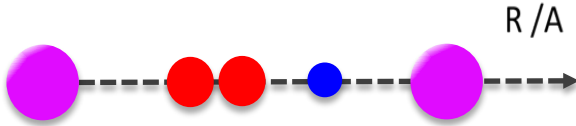
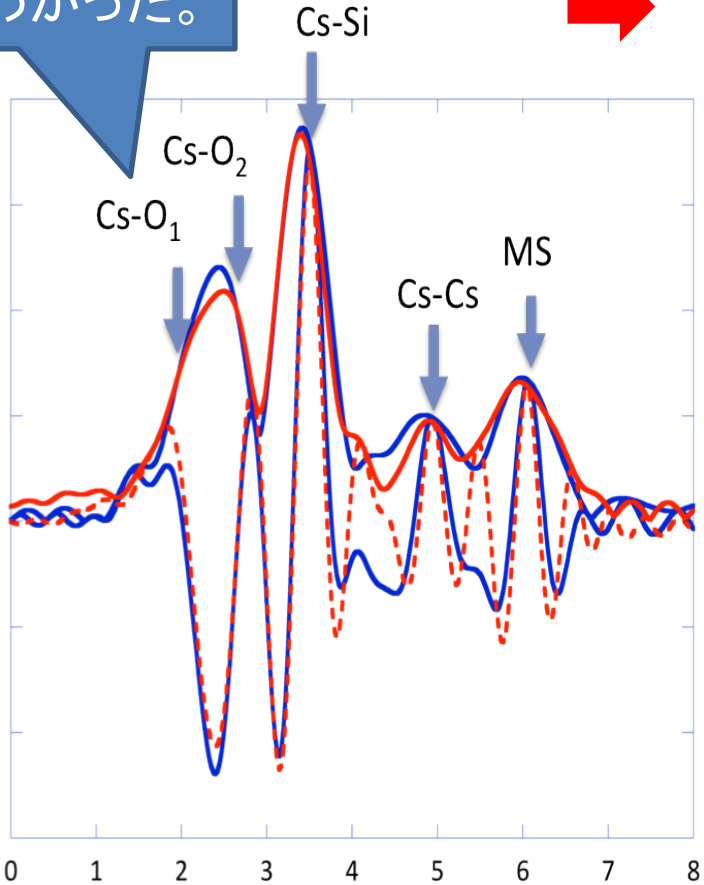
動径構造関数



予想以上に強く結合
することがわかった。

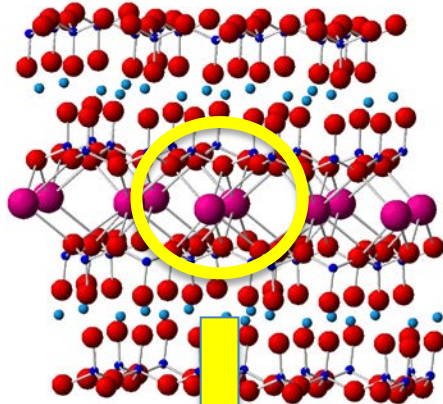


安定性あるいは新しい剥離
法の適用の必要性



セシウムから
の距離 (Å)

バーミキュライトのセシウムに関する動径構造関数

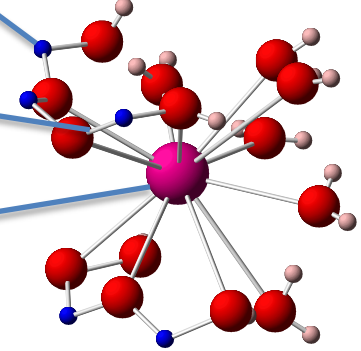


ケイ素
(シリコン)



酸素

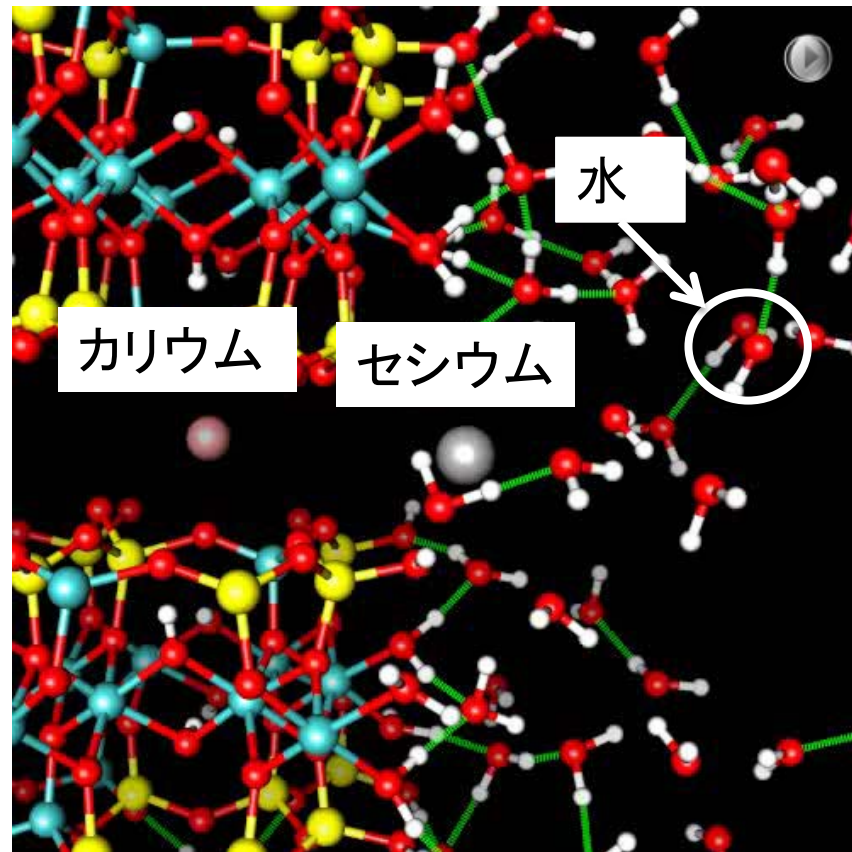
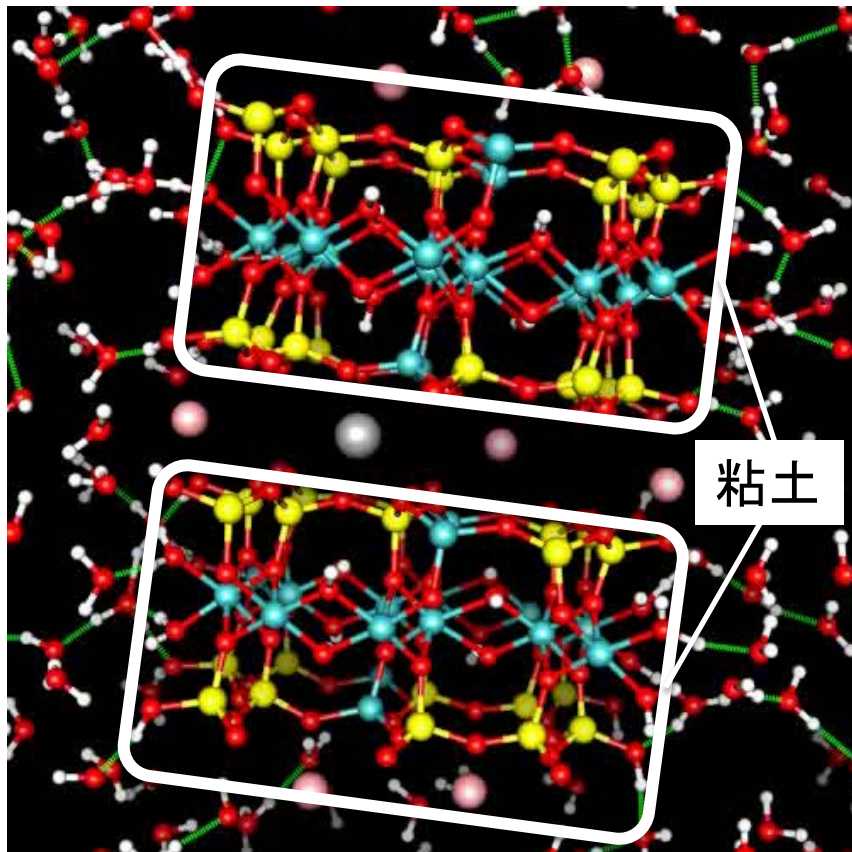
セシウム



EXAFSの結果に
基づく構造

第一原理分子動力学法によるシミュレーション

土壌のままの保管物に対する水の浸水に対するシミュレーション



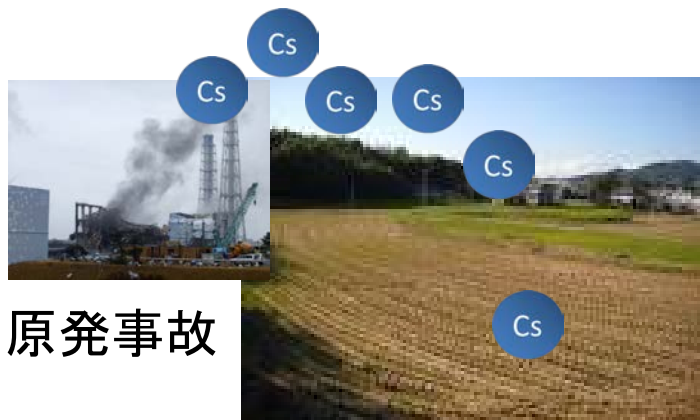
Kが端部にある場合。



Csが端部にある場合。

セシウム(Cs)は、カリウム(K)より安定に捕捉されている。

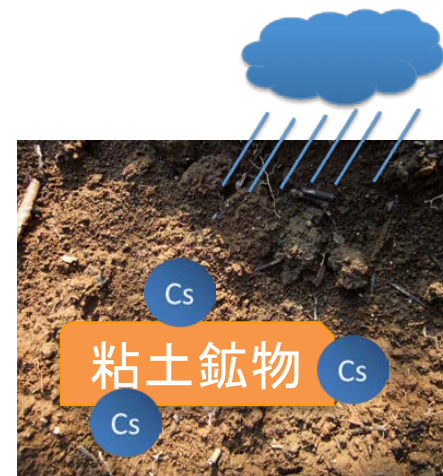
放出から土壤に吸着されるまで



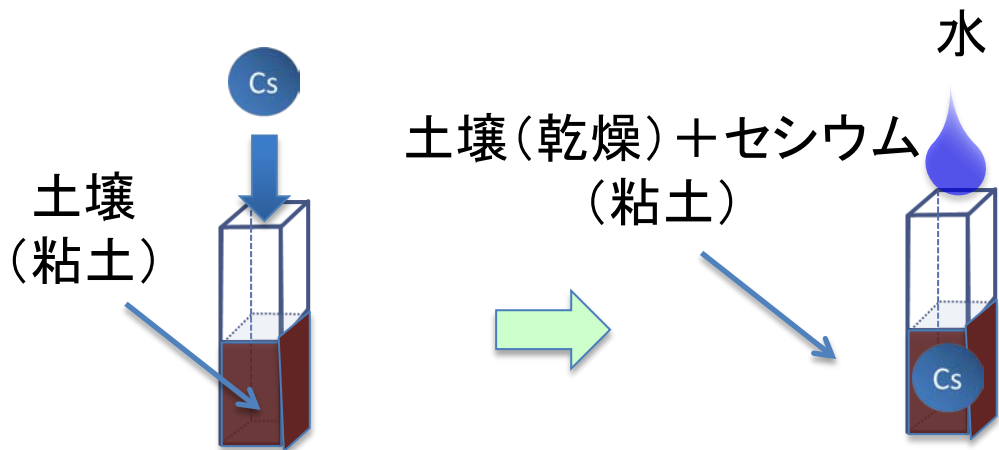
放射性セシウムの降下



放射性セシウムと
土壤中吸着物



降雨が土壤に浸透し、セシウムはこれを媒体にして吸着物に吸着

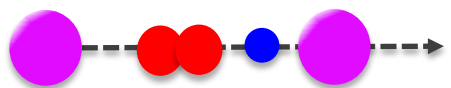
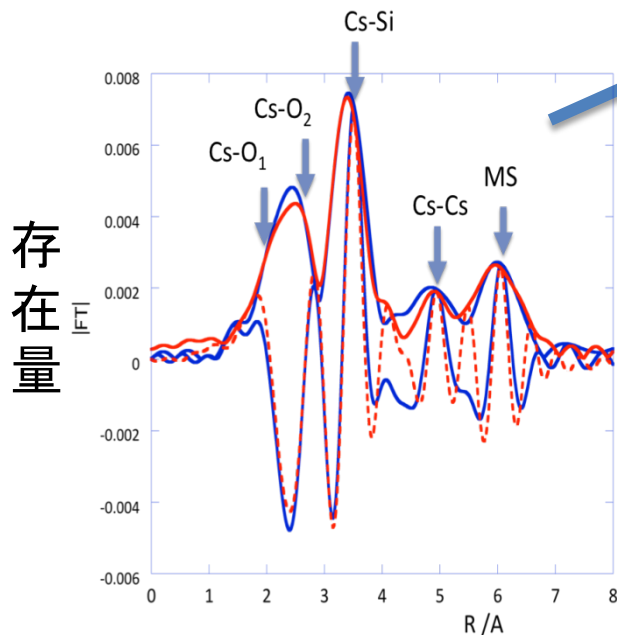


放射光で時間経過毎に
観察
(TR-DXAFA)

時間分解EXAFS測定(TR-DXAFS)

粘土鉱物にどのようにセシウムが取り込まれるか？

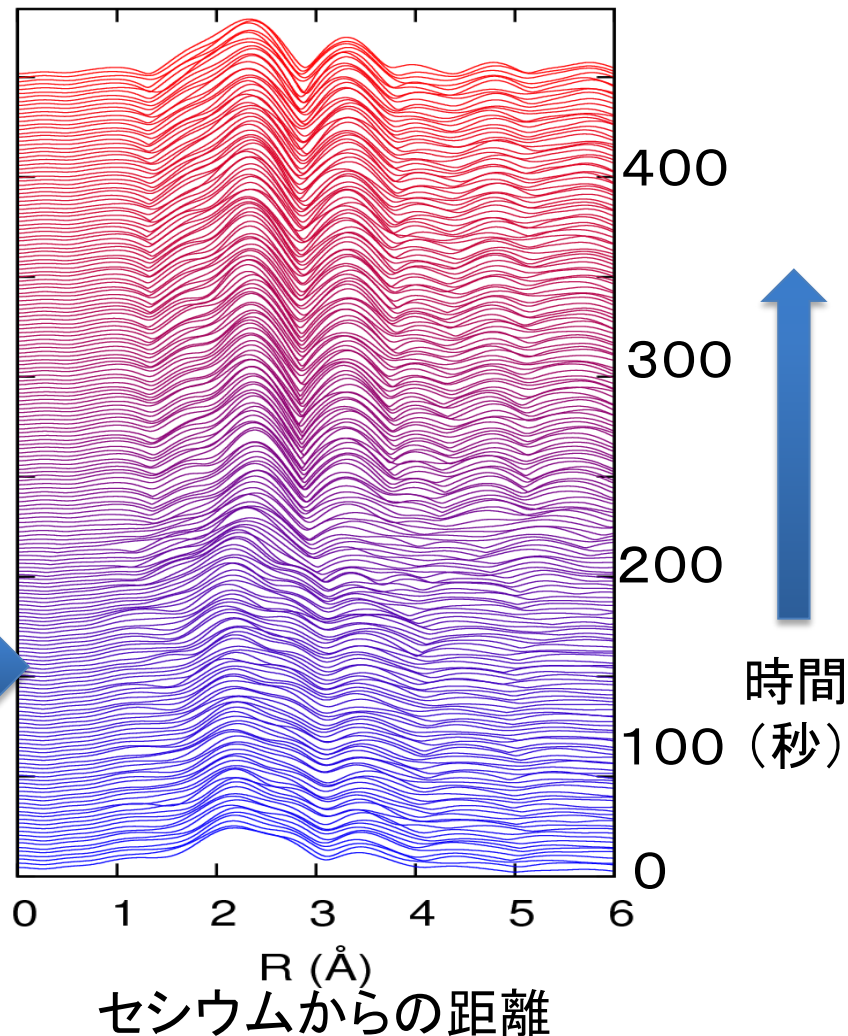
EXAFS



セシウムからの距離 (Å)

十分時間がたった動径分布関数

水注入

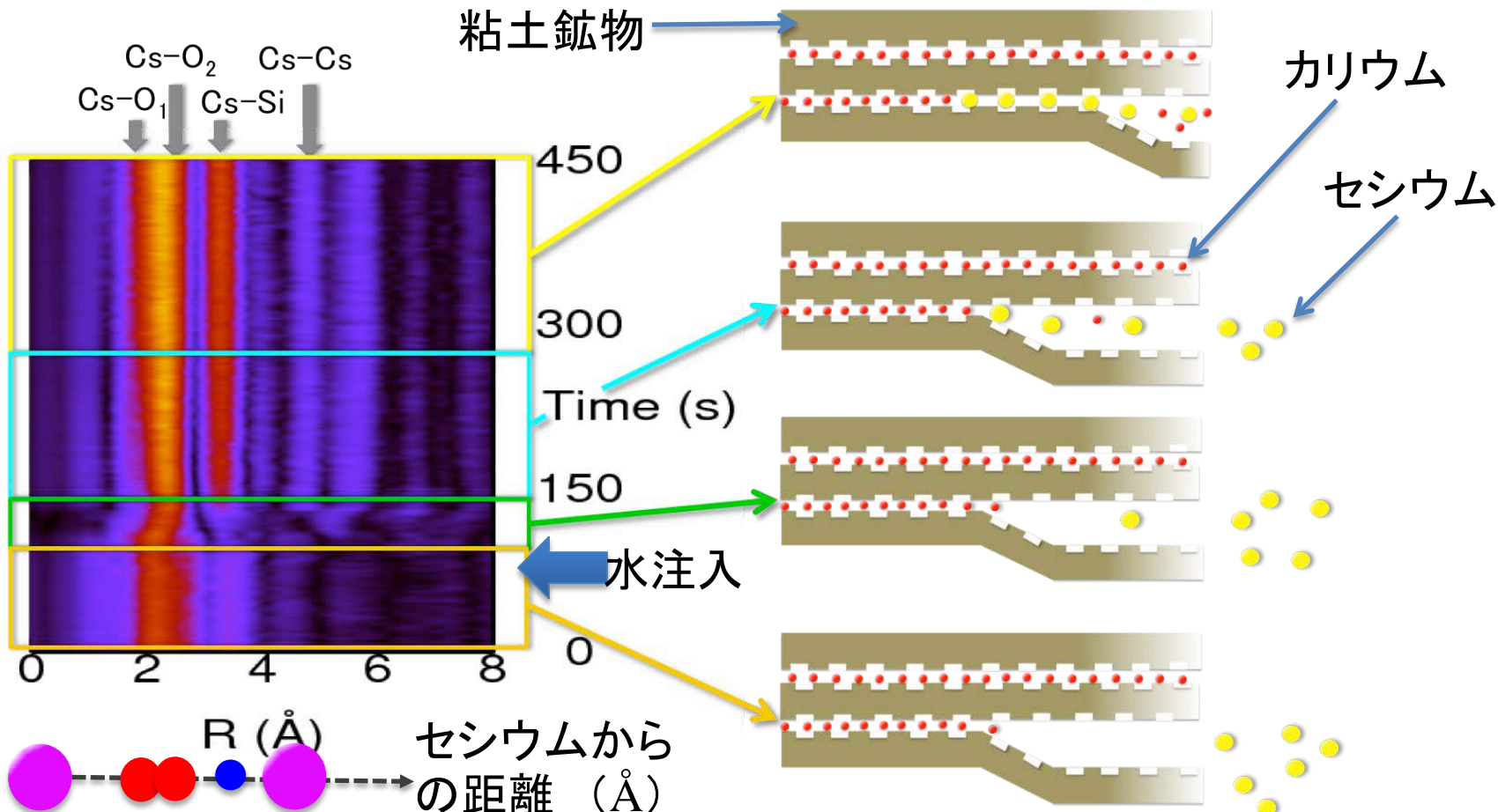


時間分解の動径分布関数

時間分解EXAFS測定(TR-DXAFS)

粘土鉱物にどのようにセシウムが取り込まれるか？

TR-DXAFSに基づくセシウムの取り込みモデル。

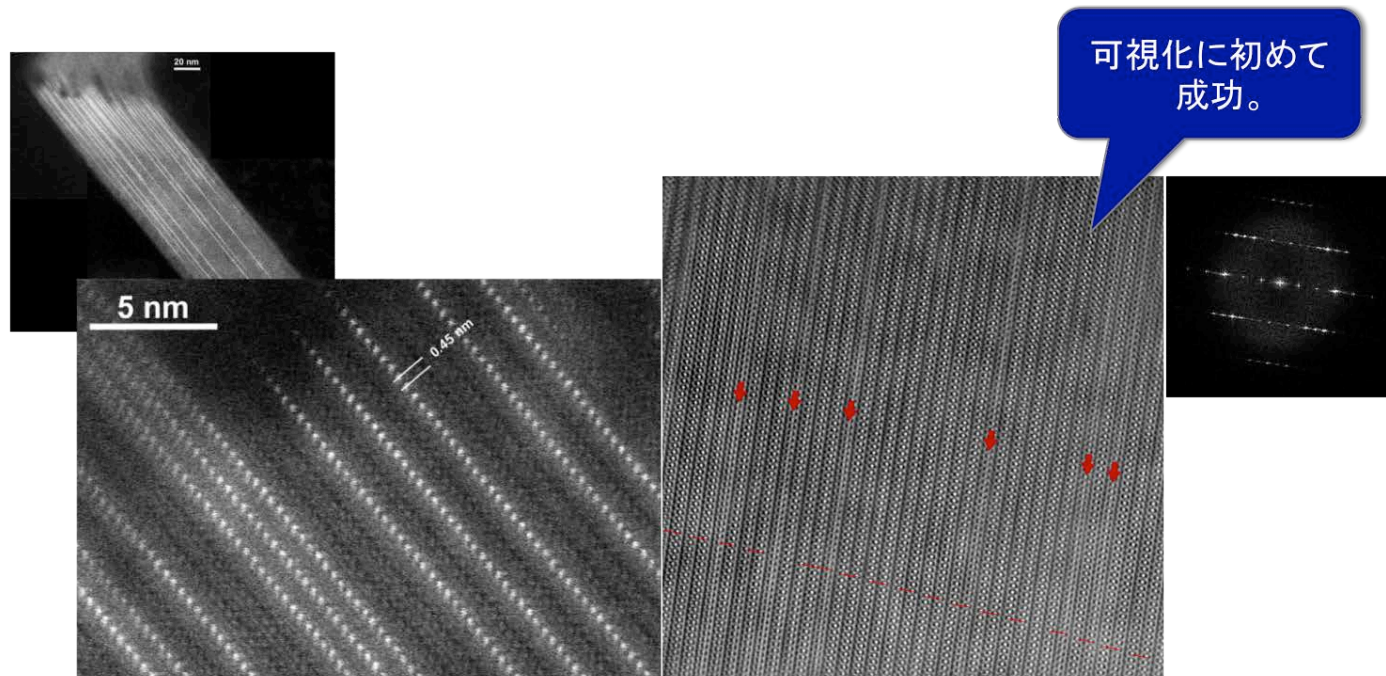


バーミキュライト中セシウムに対するEXAFS
時間分解動径構造関数

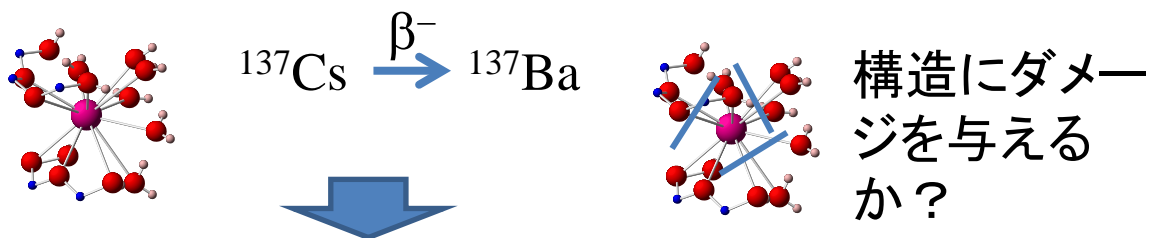
粘土の端部に放射性セシウムは濃縮することがわかる。

透過型電子顕微鏡による粘土中セシウムの可視化

放射性セシウムの直接観察を目指して



TEM観察による粘土鉱物層間にとりこまれたセシウム（セシウムは白まるいイメージ；現在イメージングプレートを組み合わせ、セシウム吸着サイトの観察を実施中）



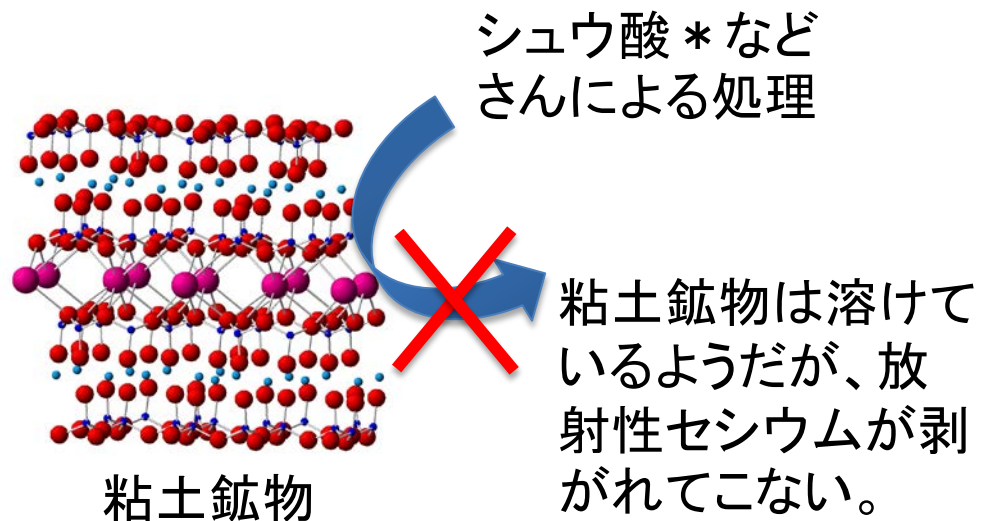
放射線による粘土の長期安定性などの理解につなげた研究へ

セシウム特異吸着サイトの解明

現地実証試験での問題を解決するために、



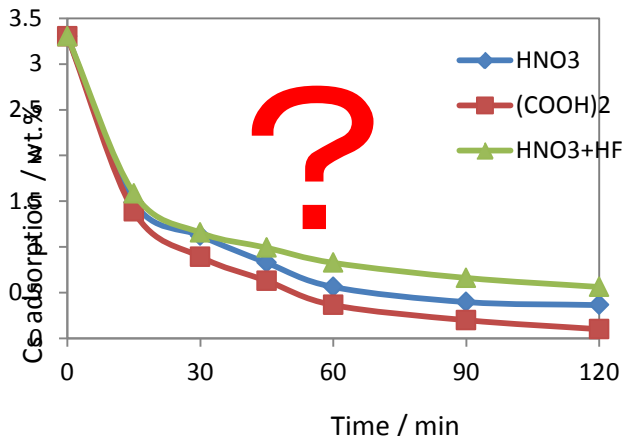
飯舘村での化学処理実験



*シュウ酸: $(\text{HCOOH})_2$ であり、植物などに含まれる酸。

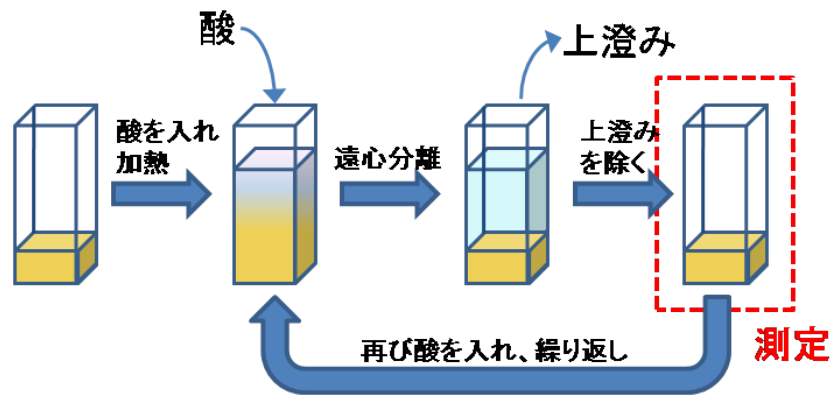
何が起きているかを明らかにし、脱着法を考える必要がある。

シュウ酸処理に伴うセシウム吸着状態の変化



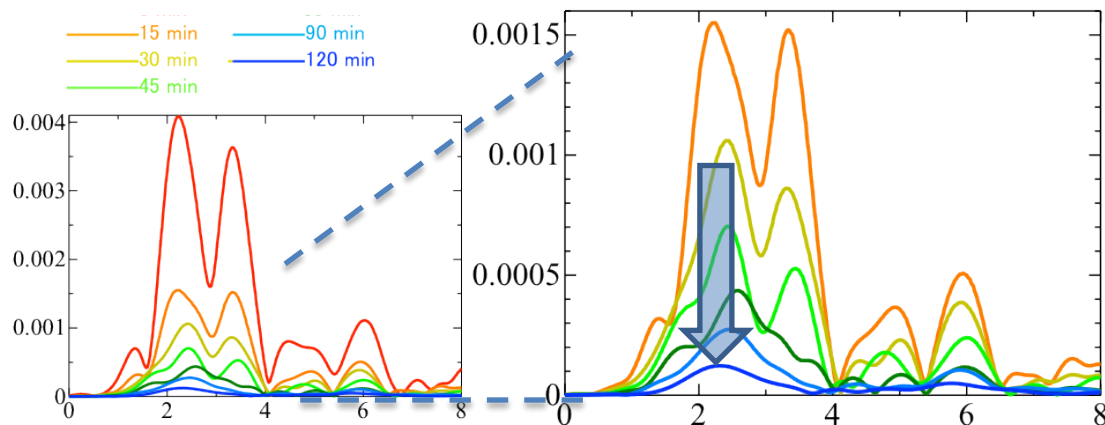
粘土鉱物に吸着させたセシウムの
溶離率(95%以上溶出)

QXAFS SPring-8 BL11XU



しかし？

1M シュウ酸 100°C

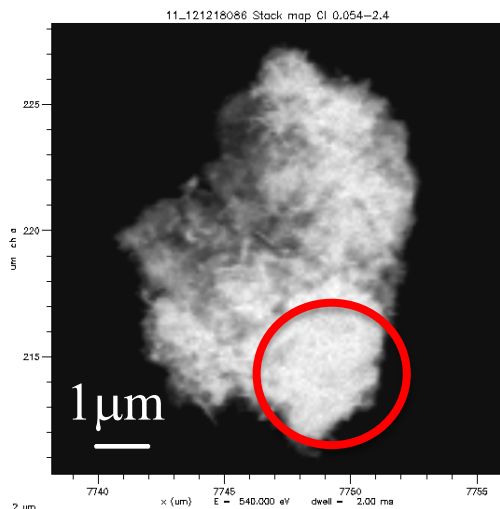


シュウ酸処理に伴うセシウム周りの構造の変化

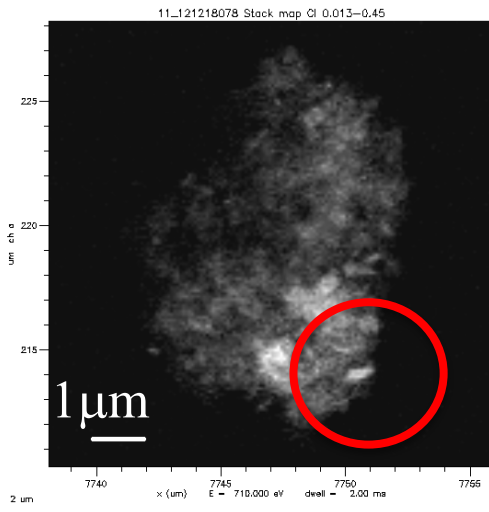
矢印の部分はどうやっ
てもはがれない。結合距
離は、2.98Åの部分。

この部分に放射性セシ
ウムが濃縮していると、
結果として除染できてい
ないことになる。

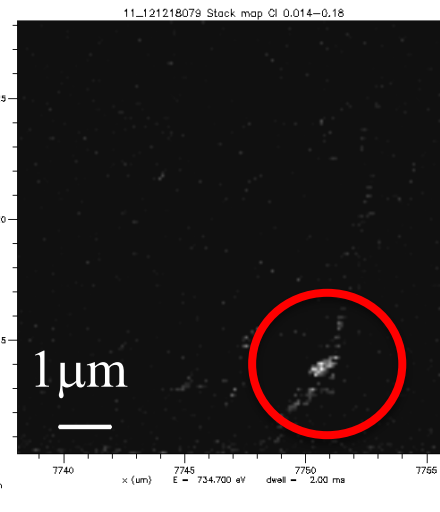
透過型X線顕微鏡(STXM)によるシュウ酸処理後の各元素分布



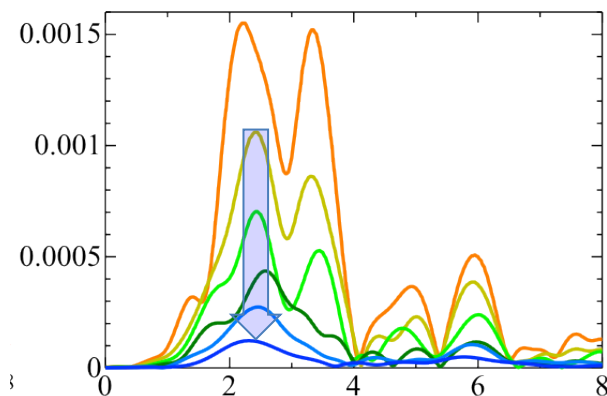
O Map



Fe Map

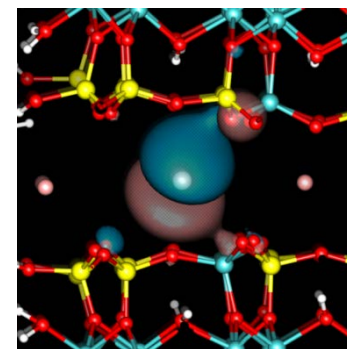


Cs Map



シュウ酸処理後の動径構造関数の変化

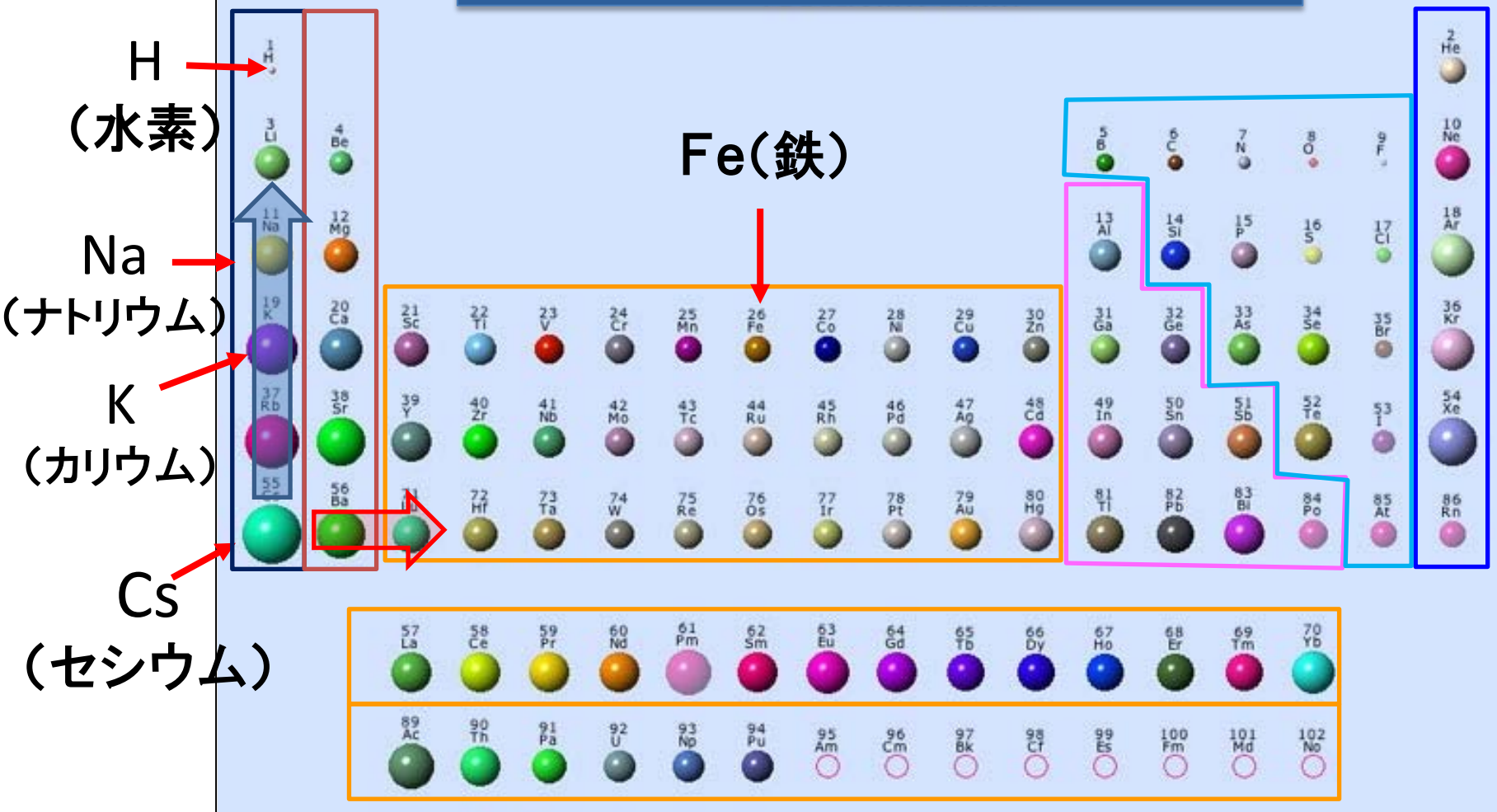
120分後の処理
(一番下)では、
粘土の構造はほとん
ど壊れている。



風化で一部構造が変わると
セシウムは特別な手を出して吸
着する→重い元素の特徴。

セシウムの性質に関して、

原子の大きさを示された周期表



セシウムの性質を考える場合、新しい考え方が必要！

基礎研究と現地試験の融合

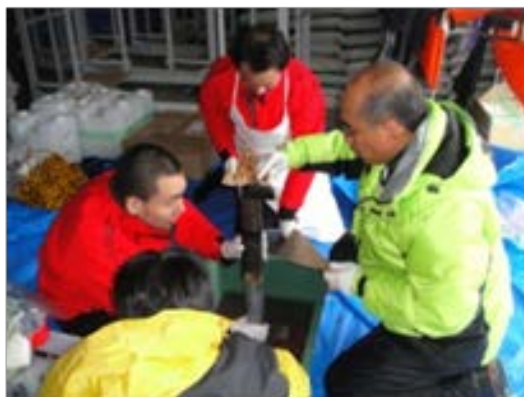
実際の現場での作業(様々な現象が絡んでいる系が相手)と基礎研究(1つ1つの現象を分けて考える)をいかに結びつけるか？



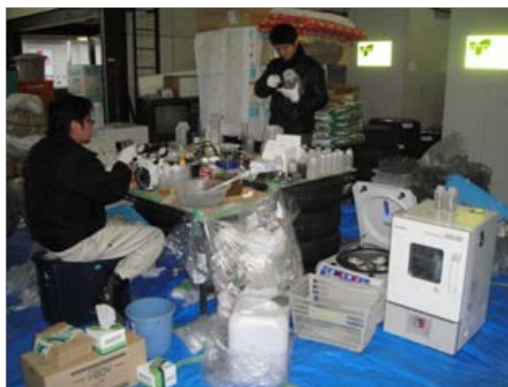
様々な土壌の採取と分析
(写真は、池底土の採取)



現地での汚染土壌の分級(土壌の粒度を分別)試験



現地での様々な化学処理試験



まとめ

1. 土壤中粘土鉱物におけるセシウムの吸着状態を明らかにした。それによって水の浸食など、セシウムの安定性、移動性に関する原子・分子レベルでの評価が可能となった。
2. 時間分解EXAFS解析で、セシウムが取り込まれる過程を明らかにした。その結果、粘土の端の部分にセシウムが濃縮している可能性を新しく指摘した。
3. 放射性セシウムは、風化などにより一部がアルミニウム、鉄などと置き換わった吸着サイトに強く吸着していることを明らかにした。これはセシウムのもう一つの性質を反映したものであり、この特徴に合った剥離法を考える必要がある。