

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	福島原発事故で発生した土壌廃棄物の減容・除染のための水熱処理による粘土からのセシウム脱離促進
Title(English)	Enhancement of Cesium Removal from Clay Minerals by Hydrothermal Treatment for Volume Reduction and Decontamination of Nuclear Post-accident Soils in Fukushima
著者(和文)	YinXiangbiao
Author(English)	Xiangbiao Yin
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10651号, 授与年月日:2017年9月20日, 学位の種別:課程博士, 審査員:竹下 健二,加藤 之貴,大貫 敏彦,塚原 剛彦,鷹尾 康一郎
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10651号, Conferred date:2017/9/20, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

(博士課程)

## 論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	YIN XIANGBIAO		
		氏名	職名		氏名	職名
論文審査 審査員	主査	竹下 健二	教授	審査員	鷹尾 康一郎	准教授
	審査員	加藤 之貴	教授			
		大貫 敏彦	教授			
		塚原 剛彦	准教授			

### 論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「Enhancement of Cesium Removal from Clay Minerals by Hydrothermal Treatment for Volume Reduction and Decontamination of Nuclear Post-accident Soils in Fukushima (福島原発事故で発生した土壌廃棄物の減容・除染のための水熱処理による粘土からのセシウム脱離促進)」と題し、6 章より構成されている。

第 1 章「General Introduction」ではこれまでの福島第一原発事故に関する環境汚染の実態と除染活動が概観されている。除染によって集められた大量のセシウム (Cs) 汚染土壌の保管状況と既に報告されている Cs 脱離技術が紹介され、現行技術の問題点を指摘している。また土壌中の Cs<sup>+</sup> の吸着・移行挙動に関する従来研究が体系的に紹介され、Cs<sup>+</sup> が土壌に含まれる 2:1 型の粘土鉱物のフレイドエッジサイト (FES) から侵入して層間のキャビティ構造に強く吸着されることで粘土鉱物からの Cs<sup>+</sup> の脱離が困難になり、そのことが土壌の浄化を困難にしていると述べている。そうした従来研究を踏まえ、本論文では粘土鉱物から効率的かつ高速な Cs 脱離技術の開発を目的としたと述べている。

第 2 章「Adsorption Properties of Cs on Clay Minerals」では、パーミキュライト化した黒雲母(vermiculitized biotite: VB) の Cs 吸着特性が検討されている。XRD、SEM、EDX による VB の微細構造解析によって、VB への Cs 吸着は、黒雲母の層間を専有している非水和の K<sup>+</sup> では起こらず、VB 層間を専有している水和 Mg<sup>2+</sup> の交換によって進行し、最終的には Cs<sup>+</sup> で飽和された、層間距離 10.7Å の閉じた層間構造が形成されることを明らかにしている。こうした閉じた層間構造は、実汚染土壌の粘土鉱物の FES に Cs<sup>+</sup> が吸着された場合に形成される層間構造とよく類似しており、実土壌からの Cs 脱離試験の模擬物質として Cs<sup>+</sup> で飽和された VB が利用できると述べている。

第 3 章「Desorption of Cs from Vermiculitized Biotite by Ambient Treatment with Various Cations」では、室温 (25°C) での各種カチオン溶液による VB からの Cs 脱離が研究されている。NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup> で飽和された VB に Cs<sup>+</sup> を吸着させると NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、VB、K-VB には余り Cs<sup>+</sup> は吸着されず、VB 層間の入口付近に存在しているだけであるが、Mg-VB では Mg<sup>2+</sup> が Cs<sup>+</sup> と完全に交換され、Cs<sup>+</sup> の飽和吸着により閉じた層間構造を形成していると述べている。これらの試料を用いて Cs 脱離試験を実施したところ、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup> のいずれの交換カチオンを用いても NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、VB、K-VB から Cs<sup>+</sup> を容易に脱離できたが、閉じた層間構造をもつ Mg-VB からの Cs 脱離は困難であり、1~3 mol/L の高い交換カチオン濃度と 1 週間以上に及ぶ長い交換時間で 1 価カチオン (K<sup>+</sup>) を使った場合に Cs 脱離が可能であることを明らかにしている。室温条件では、K<sup>+</sup> が VB からの Cs 脱離に最適であるが、イオン交換速度が大変に遅く、実用的な Cs 脱離技術とは成り得ないと結論している。

第 4 章「Desorption of Cs from Vermiculitized Biotite by Hydrothermal Treatment with Various Cations」では、水熱処理条件 (250°C) における VB 層間からの Cs<sup>+</sup> の脱離挙動が検討されている。Cs<sup>+</sup> で飽和吸着された閉じた層間からの Cs 脱離速度は 1 価カチオン (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>) よりも多価カチオン (Mg<sup>2+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、Al<sup>3+</sup>、Fe<sup>3+</sup>、La<sup>3+</sup>) を用いることによって大幅に向上し、0.01 mol/L の低 Mg<sup>2+</sup> 濃度の溶液で僅か 30 分間の水熱処理を 5 回繰り返すと閉じた層間から Cs<sup>+</sup> を完全に回収することに成功している。Mg<sup>2+</sup> 濃度を増加すると Cs 脱離速度は向上し、1 mol/L の Mg<sup>2+</sup> 溶液を用いると 1 回の水熱操作で 80% 以上の Cs<sup>+</sup> を閉じた層間から脱離することができ、交換イオンを 2 価 (Mg<sup>2+</sup>) から 3 価 (Al<sup>3+</sup>、Fe<sup>3+</sup>、La<sup>3+</sup>) に変えることで更に Cs 脱離速度を向上できると述べている。これらの結果から、水熱処理条件では、大きな水和半径と水和エネルギーを有する多価カチオンにより閉じた層間の拡張が起こり、層間の Cs<sup>+</sup> が容易にイオン交換できたものと考察している。

第 5 章「Validation of Enhanced Desorption of Cs from Actual Contaminated Soil」では、実汚染土壌の分級細粒物 (放射能濃度: 15,600 Bq/kg) からの放射性 Cs の脱離が検討されている。0.5 mol/L の Mg<sup>2+</sup> 水溶液を用いて 60°C で洗浄処理しても細粒物から Cs<sup>+</sup> はほとんど脱離できなかったが、水熱処理条件 (250°C) では 30 分の洗浄時間で 80% の Cs<sup>+</sup> を水相側に脱離することができ、この洗浄操作を 3 回繰り返すことで細粒物からほぼ完全に Cs<sup>+</sup> を脱離できることを明らかにしている。実汚染土壌では、Cs<sup>+</sup> が土壌中の粘土鉱物の FES から層間に侵入し、K<sup>+</sup> と共に安定した閉じた層間構造を形成しており、このことが Cs 脱離を困難にしているが、水熱処理条件では水和した Mg<sup>2+</sup> によって閉じた層間を広げ、そこに存在する Cs<sup>+</sup> を K<sup>+</sup> と共にイオン交換でき、Cs 脱離に成功したと結論している。

第 6 章「Conclusions and Recommendations」では本論文の結論と今後の研究課題についてまとめている。

これを要するに、本論文は、福島第一原発事故で大量に発生した汚染土壌からの放射性 Cs 脱離技術を確立するために、水熱処理条件で多価金属イオンを用いた高速イオン交換により粘土鉱物から効率的に Cs<sup>+</sup> を脱離回収できることを明らかにしており、工学上及び工業上貢献するところが大きい。よって、本論文は博士 (工学) の学位論文として価値あるものと認められる。

注意: 「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチポジトリ (T2R2) にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。