T2R2 東京工業大学リサーチリポジトリ
Tokyo Tech Research Repository

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	亜臨界水イオン交換法による福島汚染土壌からのCs除染プロセスの開発
Title(English)	
著者(和文)	福田達弥
Author(English)	Tatsuya Fukuda
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12126号, 授与年月日:2021年9月24日, 学位の種別:課程博士, 審査員:竹下 健二,加藤 之貴,小林 能直,塚原 剛彦,鷹尾 康一朗
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12126号, Conferred date:2021/9/24, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

Powered by T2R2 (Tokyo Institute Research Repository)

（博士課程）
Doctoral Program

論 文 要 旨

THESIS SUMMARY

系・コース： Department of, Graduate major in	融合理工 系 原子核工学 コース	申請学位（専攻分野）： Academic Degree Requested	博士 （工学） Doctor of
学生氏名： Student's Name	福田　達弥	指導教員（主）： Academic Supervisor(main)	竹下　健二　教授
		指導教員（副）： Academic Supervisor(sub)	赤塚　洋　准教授

要旨（和文 2000 字程度）
Thesis Summary（approx.2000 Japanese Characters ）

本論文では、東京電力福島第一原子力発電所事故により発生した汚染土壌中の Cs^+除去に対して、亜臨界水イオン交換法を用いた高圧フィルタープレス装置を応用した処理装置による高効率・低環境負荷な除染プロセスの開発を行った。本論文は、以下の 6 章で構成されている。

第 1 章では、福島第一原子力発電所事故にて発生した汚染土壌の性質および、現在検討されている汚染土壌からの Cs^+除去方法について整理した。亜臨界水イオン交換法は、焼却・溶融法と比較して低温で処理あること，粘土鉱物の構造を壊すことなく処理することで土壌として再利用可能であること，二次廃棄物が少ないことが利点とされる。さらに、酸洗浄で問題となる環境負荷やコストについても、亜臨界水除染法は使用する試薬はもともと粘土鉱物中に含まれかつ安価な Mg^{2+}イオンであるため低環境負荷かつ高効率な処理が可能であると言える。さらに、本手法を用いた実用化可能な処理装置として高圧フィルタープレスの機構を応用した装置開発することで高効率・低環境負荷な除染システムを構築できる可能性を述べた。以上に加え、本研究の目的を論じた。

第 2 章では、亜臨界水イオン交換法による Cs^+脱離速度の定式化のため、Cs^+脱離速度評価および Cs^+脱離メカニズムの解明を実施した。常温環境下における粘土鉱物の層間イオンのイオン交換速度は、層端部のイオン交換現象と層間の拡散現象によって説明され、亜臨界水イオン交換法による Cs^+脱離を常温時と同様のモデルにて説明可能であるか検証した。回分式および連続通液式装置を用いた種々の条件による試験結果から、Cs^+/Mg^{2+}イオン交換平衡および速度挙動の評価を実施した。また、放射光を用いた Cs 脱離現象の in-situ 観察により、亜臨界環境下でも粘土鉱物の構造に大きな変化がないこと，層間 Cs^+の水和状態の変化が層間 Cs^+の安定性に影響を与え脱離を促進していることが明らかになった。これら得られた結果はすべて上記モデルと整合することを確認した。さらに、本モデルに基づいた脱離速度式を定式化，必要なパラメータを取得することで、脱離速度を数値解析にて評価可能にした。

第 3 章では、粘土鉱物に非放射性 Cs^+を吸着させた模擬汚染土壌を充填した 120cc スケールの平板型カラム内に亜臨界状態の溶離液を通液した際の流動の解明を実施した。高圧フィルタープレスの機構により粘土鉱物を充填した際、形成したケーキの充填状態（空隙率等）に分布があることが知られており、これが溶離液通液時の流動に大きな影響を与えることが予想された。このため、ろ過圧密および溶離液通液の数値解析を実施した。この結果から、圧密の進展による充填状態の変化が溶離液通液時の流動に影響を与えることが確認でき、圧密が進展するほど溶離液通液時に平板型カラム端部に溶離液が流れにくくなることが明らかになった。

第 4 章では、模擬汚染土壌を充填した 120cc スケールの平板型カラムを用いた Cs^+脱離試験および数値解析を実施した。まず、第 2 章で得た Cs^+脱離速度式および第 3 章で検討したカラム内流動解析の結果を組み合わせることで、平板型カラム内の模擬汚染土壌からの Cs^+脱離の数値解析を実施した。解析結果からカラム内の充填状態によるケーキ内流動の違いが Cs^+脱離の効率に大きな影響を与えることが確認できた。圧密の進展を抑えることでケーキ内の流動性が向上するが土壌処理量は減少する。つまり、ケーキ内の液流動と土壌処理量にはトレードオフの関係にある。本試験体系においては目標脱離率 90%以下の場合は圧密の進展を抑える方が効率的な脱離が可能であることが明らかになった。この結果を受け、カラム内の充填状態の異なる条件にて平板がカラムを用いた Cs^+脱離試験を実施した。試験結果は解析から得られた傾向と整合しており、圧密の進展を抑えることで効率的な Cs^+脱離が可能となることおよび本解析の妥当性を示すことが出来た。

第 5 章では、これまでに得られた結果をもとに高圧フィルタープレスの機構を応用した平板型カラム反応器を用いた除染プロセスを提示，処理コストの評価を実施した。評価結果より、本プロセスは他の除染プロセスと比較して競争力のあるコストとなることが明らかになった。さらに、本プロセスによる処理コストは装置の償却費が占める割合が多く、処理時間の短縮化，装置寿命を長くすることがさらなるコスト低減に有効であることが示された。

第 6 章では、各章で得られた結果を総括し、高圧フィルタープレス応用装置を用いた亜臨界水イオン交換法による高効率・低環境負荷な除染システムの実現可能性・有効性を示した。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。
Note：Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ（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。
Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

（博士課程）
Doctoral Program

論 文 要 旨

THESIS SUMMARY

系・コース： Department of, Graduate major in	融合理工 原子核工学 系 コース	申請学位（専攻分野）： Academic Degree Requested	博士 Doctor of （工学）
学生氏名： Student's Name	福田　達弥	指導教員（主）： Academic Supervisor(main)	竹下　健二　教授
		指導教員（副）： Academic Supervisor(sub)	赤塚　洋　准教授

要旨（英文 300 語程度）
Thesis Summary（approx.300 English Words ）

The purpose of this study is to develop a Cs decontamination process by subcritical water ion exchange method and to recover radioactive Cs adsorbed strongly in clay minerals (mainly vermiculite) in contaminated soil generated by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. A high-pressure filter press type soil treatment system, which enables highly efficient continuous liquid treatment of contaminated soil, was proposed as a Cs decontamination process and applied to the recovery of Cs from the contaminated soil.

Firstly, the ion-exchange desorption mechanism of Cs^+ from vermiculite was discussed by the results of high-energy X-ray diffraction and EXAFS in-situ observations. It was shown that the desorption of Cs^+ from vermiculite by the subcritical water ion exchange method was proceeded by two successive steps, the ion exchange phenomenon at the edge of the layers and the diffusion phenomenon in the layers. From these results, the Cs desorption rate was formulated based on the transport phenomena theory. The validity of the Cs desorption theory was verified by numerical analysis of the Cs desorption behavior from a column system packed with contaminated soil.

Secondly, in order to clarify the applicability of the high-pressure filter press type treatment system, both the flow of eluent in the flat plate type column and the Cs desorption behavior were analyzed numerically and experimentally. It was found that reducing the consolidation of the soil in the column facilitated the flow of the eluent to the edge of the column and increased the throughput of the contaminated soil under the condition that the Cs desorption was less than 90%.

Finally, the treatment cost of contaminated soil by the proposed high-pressure filter press type soil treatment system was evaluated. It was clarified that the treatment cost is competitive with those of other decontamination processes, and that shortening the treatment time and extending the system life are effective for further cost reduction.

From these results, the feasibility and effectiveness of the treatment system using the high-pressure filter press type soil treatment system was demonstrated.

備考 ： 論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。
Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ（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。
Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).