

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 18 日現在

機関番号：12101

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2018～2022

課題番号：18K19867

研究課題名（和文）放射性Csの存在様式を意識した効果的で経済的な除染方法の開発

研究課題名（英文）Development of effective and economical decontamination methods considering the mode of existence of radioactive Cs

研究代表者

田中 伊知朗（Tanaka, Ichiro）

茨城大学・理工学研究科（工学野）・教授

研究者番号：20354889

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,800,000円

研究成果の概要（和文）：汚染土壌をイメージングプレートで可視化することで、一様に存在する放射性Csの放射能濃度が比較的高く、顆粒状Csだけでなく一様に存在する放射性Csも考慮した除染が必要なが分かった。そこで、汚染土壌中の放射性Csの一価陽イオンを含む水溶液への溶解性と、風化を模擬するような荒い粉碎後の溶出性の調査についても行った結果、経済的な除染方法として硫酸水溶液が有効であるとわかった。さらに、硫酸水溶液の濃度を变化させた溶出実験では、放射性Cs+の溶出度に硫酸水溶液濃度依存性が見られた。また、土壌の荒い粉碎によって放射性Cs+の溶出量が増加した。これは、経済的除染の可能性も示しているといえる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

12年前の東日本大震災により東京電力福島第一原子力発電所事故が起こり、半減期が約30年と長い放射性Csが大量に拡散され、経済的な方法で速やかに取り除く必要がある。汚染土壌中の放射性Csのうち、放射能濃度が高いものは層状ケイ酸塩鉱物の層間に吸着されている存在様式であることを見出し、このような存在様式を意識した経済的な除染方法の開発を目的としていた。汚染土壌中の放射性Csの溶解性が高い一価陽イオンを含む水溶液では、硫酸が最適であることを見出したほか、風化を模擬するような荒い粉碎後の溶出実験によって、風化によって放射性Csの溶解性が上昇することを示すとともに、経済的除染の可能性も示すことができた。

研究成果の概要（英文）：By visualizing the contaminated soil with an imaging plate, we found that the radioactivity concentration of uniformly existing radioactive Cs is relatively high, and that it is necessary to consider not only granular Cs but also uniformly existing radioactive Cs in decontamination soil. Therefore, we investigated the solubility in an aqueous solution containing monovalent cations similar to radioactive Cs in contaminated soil, and the elution after rough pulverization to simulate weathering. As a result, aqueous ammonium sulfate solution was found to be effective. Furthermore, in the elution experiments with varying concentrations of ammonium sulfate solution, the elution rate of radioactive Cs+ was found to be dependent on the concentration of the ammonium sulfate solution. And rough crushing of the soil also increased the elution of radioactive Cs+. It can be said that this also indicates the possibility of economical decontamination.

研究分野：放射線科学

キーワード：汚染土壌中のCs存在様式 Cs溶出実験 経済的除染 一価陽イオン溶出 粗い粉碎

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

2011年3月の未曾有の大地震と大津波に誘発された福島第一原発の事故による放射能汚染は、いまだに根本的な解決に至っていない。その大きな理由は周辺にまき散らされた放射性Csである。この放射性Csの半減期は約30年であるので、1/10の放射能になるのに100年以上かかる。それなのに6年以上たった現在でも、「除染」のために集められた大量の土壌が膨大な数のトン袋(約1m<sup>3</sup>のフレキシブルコンテナバック)となって野ざらしになっており、中間貯蔵施設をどこに選び、今後の管理をどうするか、予算の問題も含め、問題解決は程遠い状態であった。

### 2. 研究の目的

現在でもその物理的形態が正確には分かっていない。このため、表土のみの除去・隔離をして一時保管という、本質的な除染からかけ離れたことを、多大な予算と労力を使って行っている。しかしながら、放射性Csは、Csボールというミクロンオーダーの顆粒状態で存在して他の元素との混合アモルファス状態であること、一般に不溶性であるがわずかにイオン状(水溶性)となり植物等へ吸収されることなどが最近の研究で明らかになりつつある。そこで、本研究の目的は、放射性Csの物理的・化学的存在様式を最新の分析技術を駆使して確認しながら、効果的・経済的な除染方法を開発することにある。

### 3. 研究の方法

放射性Csに汚染された地域に存在する1つの存在様式である多数の元素で構成されるシリカ系非晶質の不溶性顆粒状粒子については、リター(落葉落枝:福島県二本松市の「布沢慣行」(福島第一原子力発電所から約45km)にて2013年5月に採取したもの)と290℃で作成した炭化リターとで、また、炭化リターをボールミルで細かく砕いたものとそうでないもので、水に対する放射性Csの溶解性を比較した。

また、汚染土壌について、イメージングプレートで可視化することで、スポット状に写る不溶性顆粒状放射性Cs粒子と一様に存在する放射性Cs(層状ケイ酸塩鉱物の層間に放射性Csイオンが吸着されている存在様式)の放射能濃度を比較した。

さらに、汚染土壌中の放射性Csと同様の一価陽イオンを含む水溶液への溶解性と、風化を模擬するような荒い粉碎後の溶出実験についても行った。

### 4. 研究成果

不溶性顆粒状放射性Cs粒子の物理的状態を考察するために最初に行ったのは、リターと炭化リターの水に対する溶解速度比較だったが、誤差の範囲で両者ともほぼ同じであった。これらは、放射性Csを含む顆粒状微粒子の表面だけでなく、内部構造も変化しなかったことが示された。また、放射性Csを含む顆粒状微粒子が290℃では熱的安定性があることを示している。さらに、粉碎した炭化リター試料をもちいた溶解実験は、非粉碎の炭化リター試料の場合と比べて溶解速度が約10倍になった。このことから平均半径は約1/10になったことが示された(Fig.1)。この事実は、将来の汚染のシミュレーションだけでなく、放射性セシウムを含む顆粒状微粒子はボールミル等の外力によって粉碎されることが示され、この性質は放射性セシウムを除染する方法の開発にも貢献する可能性がある[1]。

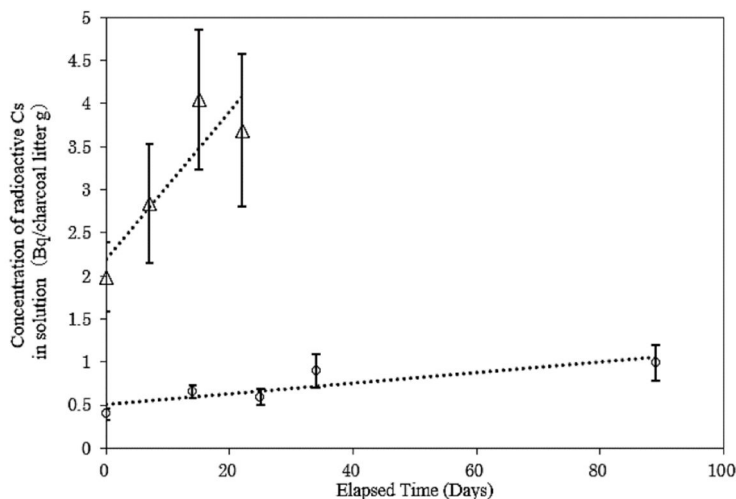


Fig.1 非粉碎及び粉碎の炭化リター溶解実験の比較; が粉碎炭化リター, が非粉碎炭化リター. 破線は回帰直線.

汚染の度合いが大きい土壌について、まずは、多数の元素で構成されるシリカ系非晶質の不溶性顆粒状粒子に、放射性Csが含まれている存在様式か、層状ケイ酸塩鉱物の層間に放射性Csイオンが吸着している存在様式かをイメージングプレートによるオートラジオグラフィで確認した。この結果、ケイ酸塩鉱物に放射性Csイオンが吸着している存在様式が放射線量として8割以上と多いことが分かった(Fig.2) [2]。

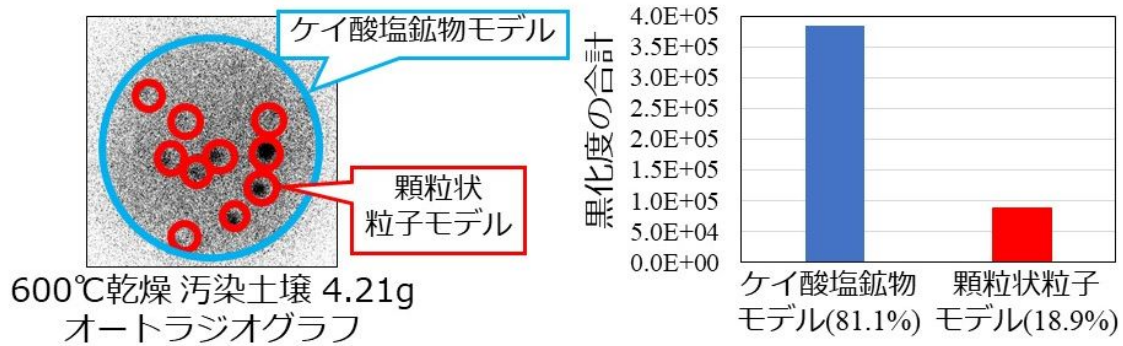


Fig.2 (左)乾燥土壌のオートラジオグラフ．青丸枠がシャーレの大きさ．赤丸部分は顆粒状放射性 Cs の像；(右)青丸部分から赤丸レベルを引いたものと赤丸部分の黒化度の比較．

振とう時間...3時間		回転数...240rpm		2020年採取土壌...20 g		水溶液...30 mL	
水溶液	純水	CH <sub>3</sub> COONa 1M	KCl 1M	(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> 0.5M	(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> 1M	CsCl 1M	
振とう前 試料 <sup>137</sup> Cs (Bq)	1255.0±2.8	970.2±1.7	1047.4±10.4	1152.8±10.8	1088.5±10.6	1154.5±11.0	
3時間振とう後 溶出 <sup>137</sup> Cs (Bq)	5.4±0.8	7.4±1.0	22.2±0.9	29.5±0.9	36.0±1.0	36.2±0.9	
<sup>137</sup> Cs溶出率(%)	<b>0.43±0.074</b>	<b>0.76±0.1</b>	<b>2.12±0.087</b>	<b>2.56±0.085</b>	<b>3.30±0.09</b>	<b>3.14±0.08</b>	

Table 1 一価陽イオンを含む水溶液への放射性 Cs の溶出度の比較

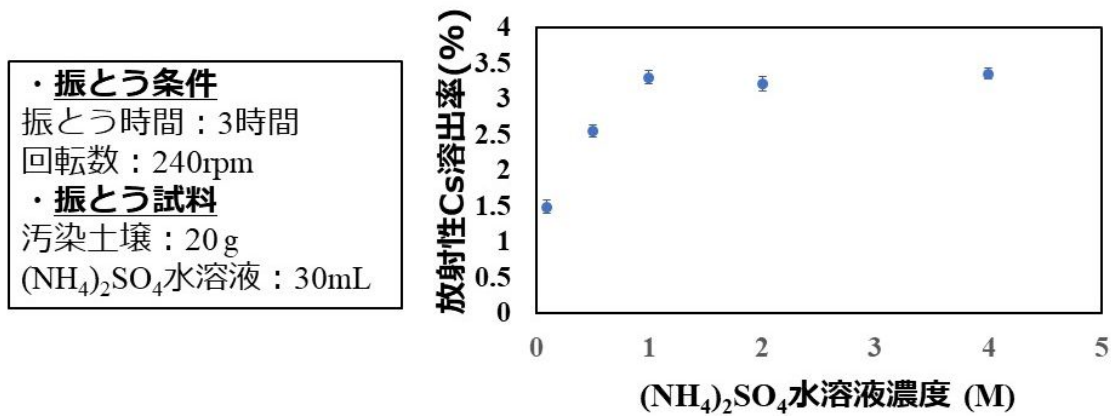


Fig.3 (左)試料と振とう条件；(右)硫酸濃度に対する放射性 Cs の溶出率．

次に、汚染土壌中の放射性 Cs と同様の一価陽イオンを含む水溶液への溶解性を調べた結果、Table 1 のように、水和エネルギーの値からは Cs<sup>+</sup>の方が NH<sub>4</sub><sup>+</sup>よりもケイ酸塩鉱物に吸着されやすい[3]と示唆されるが、同濃度の CsCl 水溶液や(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 水溶液と汚染土壌を振とう・濾過した場合、放射性 Cs の溶解性に大きな差は見られなかった。以上のことから、経済的な除染方法として安価な(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 水溶液の使用や、汚染土壌を粉碎し粒径を小さくすることは有効であると考えられる[4]。さらには、硫酸濃度に依存して放射性 Cs の溶出率が比例し、最終的には飽和することが確認できた (Fig.3)。これは、Cs イオンが層状ケイ酸塩鉱物中に一定量有り、イオン交換により化学量論的な溶出効果が得られたことを示す[5]。Bq 数の計算より、約 4.1%の放射性 Cs が層状ケイ酸塩鉱物から溶出したと考えられる。

また、粒径 0.5 mm, 0.1 mm に粉碎した汚染土壌を用いた実験では、土壤粒径が小さくなるほど放射性 Cs の溶解性が上昇し、粉碎無土壌と粒径 0.1mm 粉碎土壌を比べると、放射性 Cs の溶解性が約 28% 向上した (Fig.4)。これは、風化を模擬するような粗い粉碎後の溶出実験によって、風化によって放射性 Cs の溶解性が上昇することを示すとともに、経済的除染の可能性も示すことができた [4]。

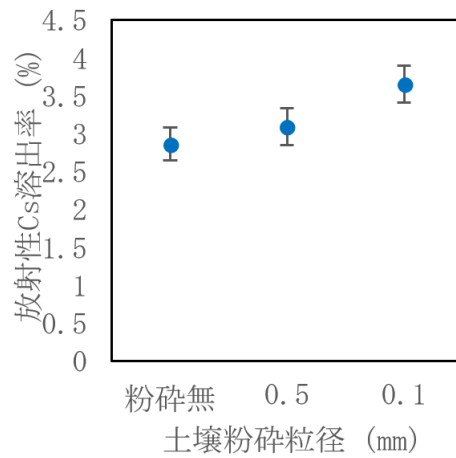


Fig.4 土壤からの放射性 Cs 溶出率の粗い粉碎による効果

参考文献等

- [1] A. Yamaguchi, *et al.*, Radiology and Medical Diagnostic Imaging, 3(4) (2020)1-8.
- [2] 杉原誠, 2020 年度茨城大学卒業論文.
- [3] 中尾淳, 学術の動向, 17 (2012), 40-45.
- [4] 杉原誠, 2022 年度茨城大学大学院修士論文.
- [5] 杉原誠, 菊地賢司, 新村信雄, 田中伊知朗, 2022 年度量子ビームサイエンスフェスタポスター、2023 年(つくば市).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Li Peiran, Gong Yingting, 菊地 賢司, 小松崎 将一	4. 巻 9
2. 論文標題 福島第一原発事故とチェルノブイリ後の農耕地における放射性セシウムの挙動に対する耕うん影響比較	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 環境放射能除染学会誌	6. 最初と最後の頁 117-130
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kenji Kikuchi	4. 巻 5
2. 論文標題 Field Research Report on Radioactive Cesium Contained in Persimmon Growing at Orchards of Fukushima Eight Years after the Nuclear Power Plant Accident	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Soil and Water Science	6. 最初と最後の頁 193-196
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.36959/624/444	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Atsushi Yamaguchi, Kenji Kikuchi, Masakazu Komatsuzaki, Ichiro Tanaka and Nobuo Niimura	4. 巻 3
2. 論文標題 Dissolution, Mechanical Properties, and Thermal Stability of Microparticles Containing Radioactive Cesium on Plant Litter Derived from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Radiology and Medical Diagnostic Imaging	6. 最初と最後の頁 1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.31487/j.RDI.2020.04.04	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計15件（うち招待講演 0件／うち国際学会 7件）

1. 発表者名 杉原誠、菊地賢司、新村信雄、田中伊知朗
2. 発表標題 汚染土壌における経済的除染方法開発のための 放射性Cs溶出条件の探索
3. 学会等名 2022年度量子ビームサイエンスフェスタ
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Ichiro Tanaka, Atsushi Yamaguchi, Kenji Kikuchi, Nobuo Niimura, Yume Saeki, Makoto Sugihara
2. 発表標題 Dissolution, Mechanical Properties, and Thermal Stability of Microparticles Containing Radioactive Cesium on Plant Litter Derived from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident, and Soil Decontamination Trials
3. 学会等名 European Geosciences Union General Assembly 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Makoto Sugihara, Nobuo Niimura, Kenji Kikuchi, Ichiro Tanaka
2. 発表標題 Visualization and dissolution behavior of Cs-contaminated soil for economical decontamination
3. 学会等名 The 6th International Symposium of Quantum Beam Science at Ibaraki University (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 杉原誠、菊地賢司、新村信雄、田中伊知朗
2. 発表標題 経済的除染方法開発のための汚染土壌からの $^{137}\text{Cs}$ 溶出条件の探索
3. 学会等名 2021年度量子ビームサイエンスフェスタ
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 佐伯夢、山口淳史、菊地賢司、新村信雄、田中伊知朗
2. 発表標題 放射性Cs含有土壌の熱安定性と経済的除染方法の開発
3. 学会等名 2020年度量子ビームサイエンスフェスタ
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 杉原誠、田中伊知朗
2. 発表標題 放射性Csを含む土壌の空間分布可視化と熱安定性
3. 学会等名 2020年度量子ビームサイエンスフェスタ
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Ichiro Tanaka, Atsushi Yamaguchi, Kenji Kikuchi, Nobuo Niimura, Yume Saeki, and Makoto Sugihara
2. 発表標題 Dissolution, Mechanical Properties, and Thermal Stability of Microparticles Containing Radioactive Cesium on Plant Litter Derived from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident, and Soil Decontamination Trials
3. 学会等名 EGU General Assembly 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 阿部真理奈, 松村邦仁、菊地賢司
2. 発表標題 イメージングプレートによる植物内の物質移動の可視化観察
3. 学会等名 日本原子力学会 春の年会ポスターセッション
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 菊地賢司
2. 発表標題 イメージングプレートによる柿の放射線計測
3. 学会等名 第1回茨城大学福島原発由来放射性セシウム除染に向けた研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田中伊知朗
2. 発表標題 福島原発事故由来の顆粒状放射性Csはいかにして溶解するか？
3. 学会等名 第1回茨城大学福島原発由来放射性セシウム除染に向けた研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Atsushi Yamaguchi, Kenji Kikuchi, Masakazu Komatsuzaki, Ichiro Tanaka, Yume Saeki, Nobuo Niimura
2. 発表標題 How does granular radioactive Cs derived from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident become soluble?
3. 学会等名 14th International Workshop on Spallation Materials Technology ( IWSMT-14 ) ( 国際学会 )
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山口淳史、菊地賢司、佐伯夢、新村信雄、田中伊知朗
2. 発表標題 福島第一原子力発電所事故由来の顆粒状放射性Csの可溶化について
3. 学会等名 2018年度量子ビームサイエンスフェスタ
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Ichiro Tanaka
2. 発表標題 Scope of the research base in Ibaraki University on the radiocesium emitted from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant
3. 学会等名 Ibaraki University-Institut de Radioprotection et de Surete Nucleaire ( IRSN )/Japan-UK EICHI-project joint international workshop on radioactive particles ( 国際学会 )
4. 発表年 2019年



1. 発表者名 Nobuo Niimura
2. 発表標題 Physical properties, structure, shape, and solubility of granular Cs* from the FDNPP accident
3. 学会等名 Ibaraki University-Institut de Radioprotection et de Surete Nucleaire (IRSN)/Japan-UK EICHI-project joint international workshop on radioactive particles (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kenji Kikuchi
2. 発表標題 Topics on Material Performance in LBE
3. 学会等名 14th International Workshop on Spallation Materials Technology (IWSMT-14) (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

茨城大学 福島原発由来放射性セシウム研究拠点 <a href="http://nsb.mat.ibaraki.ac.jp/pj/index.html">http://nsb.mat.ibaraki.ac.jp/pj/index.html</a>
---

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	新村 信雄  (NIIMURA NOBUO)  (50004453)	茨城大学・理工学研究科(工学野)・特命研究員   (12101)	

## 6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	菊地 賢司  (KIKUCHI KENJI)  (70354769)	茨城大学・理工学研究科（工学野）・特命研究員    (12101)	

## 7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計1件

国際研究集会 The 6th International Symposium of Quantum Beam Science at Ibaraki University	開催年 2022年～2022年
---	--------------------

## 8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------