

ベラルーシ国立ソスヌイ科学アカデミー
原子力合同研究所



Eメール: jinpr@sosny.bas-net.by



放射化学研究所

水圧分離の適用、ケミカルリーチングおよび天然有機
物・鉱物吸収材の添加に基づく
放射能汚染土壌の改良のための複合技術
ISTCプロジェクト B-859号

Valentina Toropova, Dmitri Davydov

東京、2012年2月 3～4日



www.istc.ru



放射化学研究所 – 42年の研究実績



主な研究分野

- 水溶液中の金属イオン(放射性核種)の形態:
Cs (I), Sr(II), Co(II), Mn(II), Cr(III), Fe(III), Th(IV), Pu(IV), U(IV,VI) などのカチオンの種
- 溶液からの除去に用いる物理化学プロセス中の金属イオンの挙動
- 土壌・水システムにおける放射性核種の挙動

応用活動

技術の開発:

- 液体放射性廃棄物の処理
- 産業水性廃棄物の処理
- 様々な表面の除染
- 土壌の除染

200以上の科学研究と20以上の特許

- 「溶液中の放射性核種の状態」1978年ソ連および1986年日本
- 「溶液中の金属イオン(放射性核種)の形態」2011年ベラルーシ
- 「除染土壌法」特許1867号ベラルーシ





プロジェクトB-859号



プロジェクトの目的 — 水圧分離の適用、ケミカルリーチングおよび天然有機物・鉱物吸収材の添加に基づく放射能汚染土壌の改良のための複合技術の開発

研究手法

- 水圧分離
- 以下の条件に依存する放射性核種の収着と脱着（ケミカルリーチング）
 - 溶液の組成（pH、カチオン、アニオン、還元／酸化剤、フミン酸およびフルボ酸など）
 - 溶液の温度





研究の対象



主な農薬特徴が様々な土壌:

- 酸性度
- 有機炭素とミネラル分の含有量
- 腐食質のタイプ
- 吸収力
- 吸収された塩基および K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} などの総和

現実のサンプル

– チェルノブイリ原子力発電所事故のために ^{137}Cs および ^{90}Sr で汚染された農業地域であるゴメル県およびモジレフ県の土壌(2001年および2006年)

– Pollesky国立放射線生態学自然保護区(チェルノブイリ原子力発電所避難勧告区域)の領域に設置された定常観測管理区域の土壌

– 水圧分離法によりすべての土壌サンプルからシルト土壌画分を抽出した。

現実のサンプルの初期放射能:

- 土壌: ^{137}Cs が20-72 Bq/g, ^{90}Sr が5-6 Bq/g
- シルト土壌画分: ^{137}Cs が $2,7 \cdot 10^4$ Bq/g, ^{90}Sr が9,0 Bq/g

モデルサンプル: 土壌およびシルトを ^{137}Cs および ^{90}Sr によって人工的に汚染した。



プロジェクトで得られた結果

チェルノブイリ事故後に沈着した放射性核種の大部分が、微細な有機・鉱物土壌画分(シルト)にしっかりと固定していることが、多くの研究から明らかになった。

その微細な土壌画分が、土壌の農業特性を決定する。

表1

サイズ mm	相対質量 %	比放射能 Bq/g	相対活量 %
0.05超	80.10	1.30	33.46
0.05-0.005	20.05	33.0	58.83
0.005未満	0.9	18.80	6.9

砂質土壌および砂質ローム土壌の最上層部分(約1 cm)における¹³⁷Csの分布

表2

深度 cm	相対質量%		相対活量%		
	>0.05mm	0.05-0.005mm	>0.05m	0.05-0.005mm	<0.005m
0-3	85.3	10.5	27.4	66.6	9.5
2-8	85.0	6.7	22.5	39.3	36.4

砂質土壌および砂質ローム土壌のより深い土壌層における¹³⁷Csの分布

放射能は、0.05 mmより小さい土粒子において濃縮されている。

水圧分離は、有機物を含有するすべての粘土、シルトおよび一部の塵粒を除去するのを可能にする。

超音波による微粒子の分離を行うべきである。

すべてのケースで0 ~ 12 cmの層が選択された。

表3

土壌	シルト画分(強力に固定されている部分)
	$^{137}\text{Cs}, \%$
砂および芝ポドゾル砂	25-50
ピート質粘土の多い腐食土	> 80
ターフ腐食土	> 70
ピート湿地	80
ピート	> 60

土壌の鉱物組成に応じた、強力に固定されている放射性核種形態の相違

結果:

- 放射能の3分の1の減少(除染係数 $K_d \approx 3$)
- 平均約5~15 %の質量変化
- 有機物濃度の低下($C_{org} \sim 15 \%$)

土壌タイプが異なると、これらの値が大幅に変動する可能性がある。

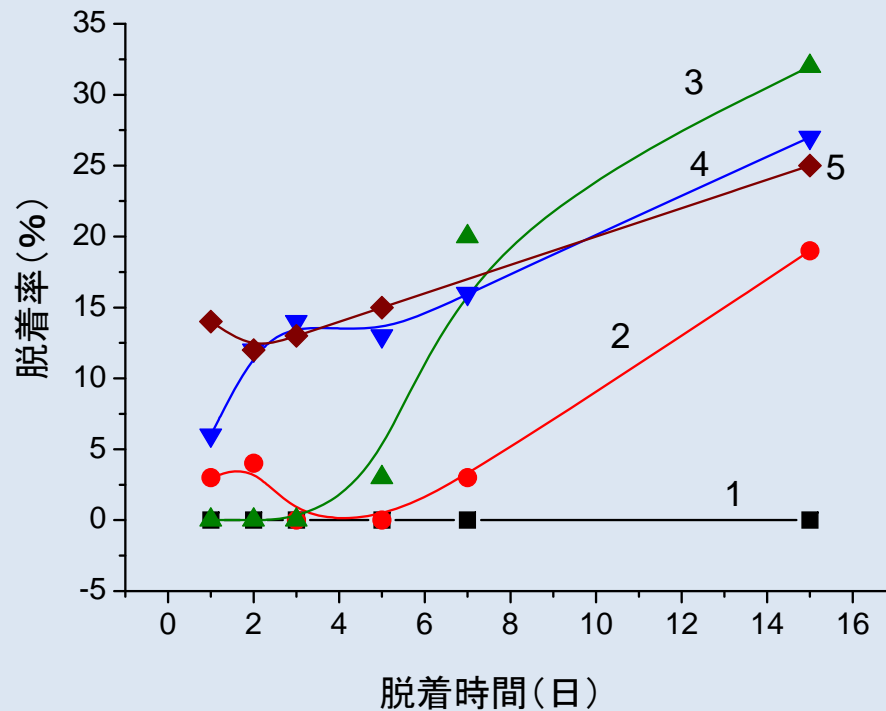
欠点:

- そのような処理の後の土壌は、その貴重な特性を失う。その回復のためには、有機物、肥料およびその他の成分の添加が必要とされる。

ケミカルリーチング – 土壌画分の放射性核種についての除染を可能にする。

同位体交換および温度が土壌の放射性核種リーチングに与える影響

図1



チェルノブイリ原子力発電所事故のために汚染された土壌より、カチオン K^+ и $\text{Cs}^+_{\text{stable}}$ の存在のもとで、シルト土壌画分からの脱着 ^{137}Cs を抽出した。

$V/m = 125$; $\text{pH } 5,5$;

1,2 - $T=20^\circ\text{C}$; 3,4,5 - $T=60^\circ\text{C}$

カチオン濃度 (mole/l)

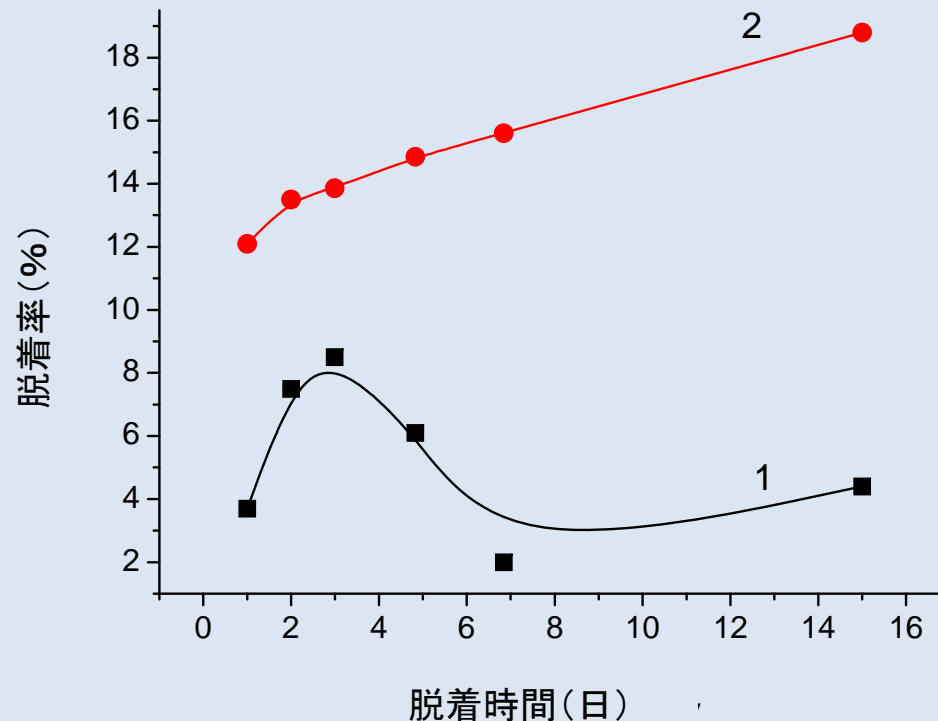
1 – H_2O ; 2 – $[\text{K}^+] = 1 \cdot 10^{-5}$;

$[\text{Cs}^+_{\text{stable}}]$:

3 – $1 \cdot 10^{-3}$; 4 – $1 \cdot 10^{-5}$; 5 – $1 \cdot 10^{-3}$

多価カチオンが土壌からの放射性核種リーチングに与える影響

図2



チェルノブイリ原子力発電所事故のために汚染された砂質ローム土壌からの、Fe(III)ヒドロオクソ錯体の存在のもとでのCsの脱着¹³⁷

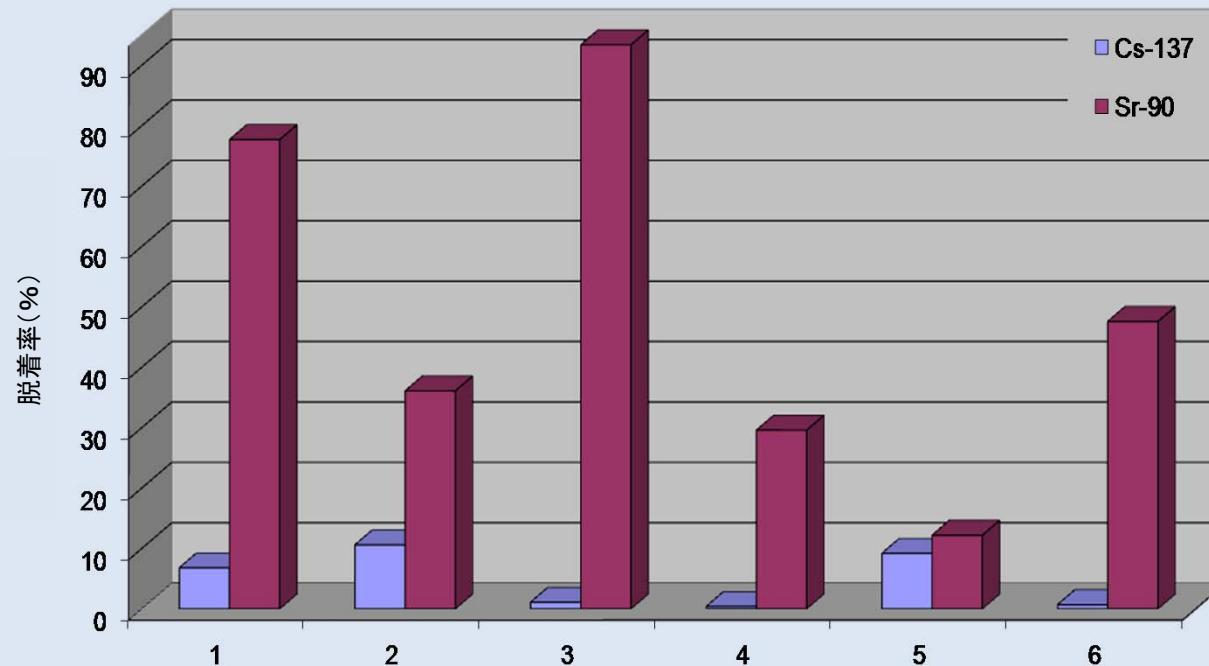
$V/m = 10$; pH 3,5; $T=20^{\circ}\text{C}$

1 – $[\text{Fe(III)}] = (1 \cdot 10^{-4} \div 1 \cdot 10^{-3}) \text{ mole/l}$,

2 – $[\text{Fe(III)}] = 5 \cdot 10^{-3} \text{ mole/l}$

土壌の組成が土壌からの放射性核種リーチングに与える影響

ダイアグラム1



チェルノブイリ原子力発電所事故のために汚染された現実のターフ土壌およびピーチ土壌からの¹³⁷Csおよび⁹⁰Srの脱着

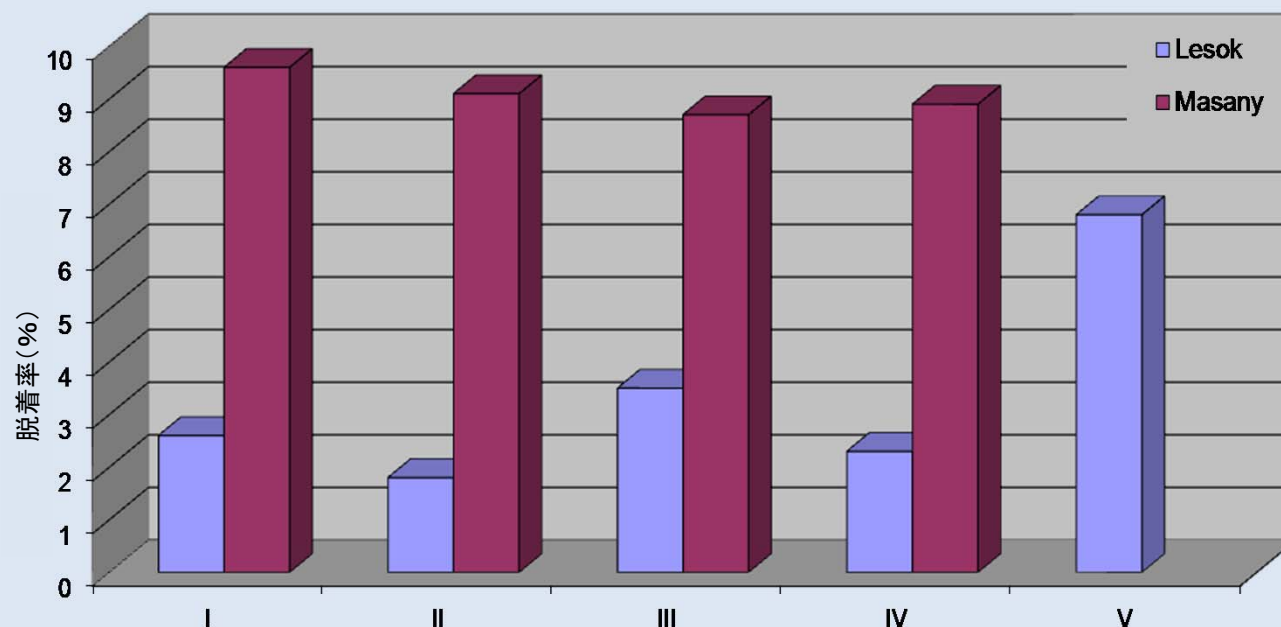
V/m = 4; pH 2,5; T=20°C; 脱着溶液1 mole/l KCl; 脱着時間14日;

1-3 – 管理区域、有機物含有量(1-5) %;

4-6 – 管理区域、有機物含有量 (10-20) %

溶液の組成が土壌からの放射性核種リーチングに与える影響

ダイアグラム2



チェルノブイリ原子力発電所事故のために汚染されたターフ・ポドゾル土壌からの ^{137}Cs の脱着
有機物含有量 (1-5) %;

$V/m = 4$; $\text{pH } 2,5$; $T=20^{\circ}\text{C}$; 脱着時間10日;

脱着溶液, mole/l:

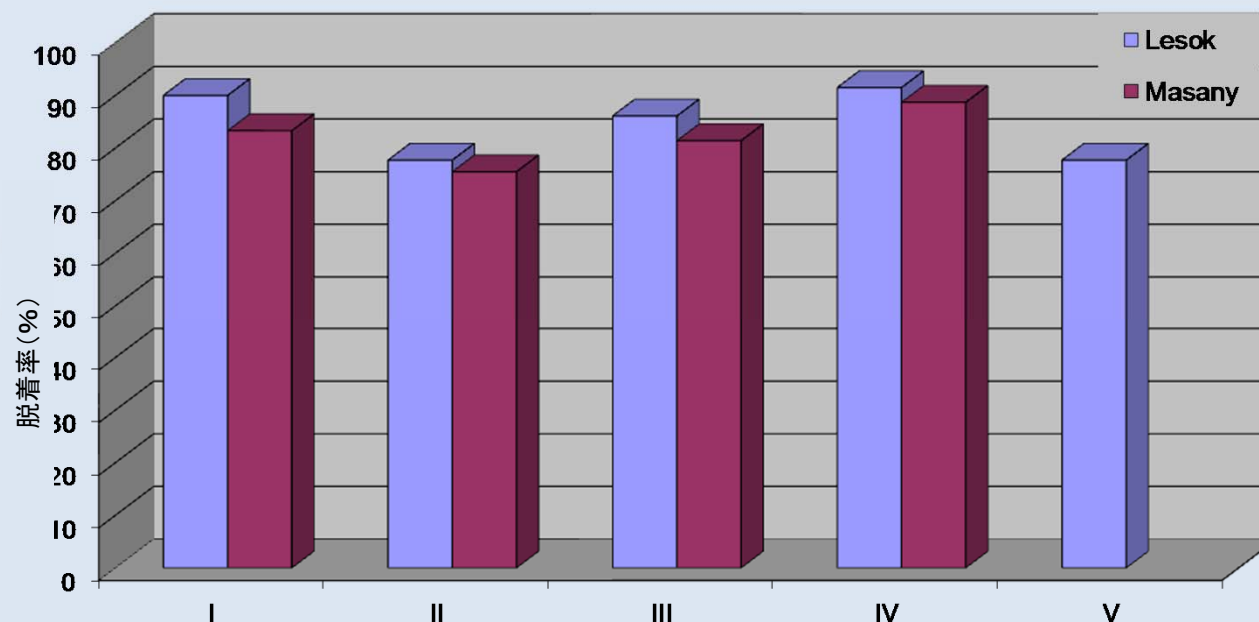
I – $0,1 \text{ NH}_4\text{Cl}$; II – $0,1 \text{ FeCl}_3 + 0,02 \text{ NH}_4\text{Cl}$; III – $0,1 \text{ KCl} + 0,02 \text{ NH}_4\text{Cl}$;

IV – $0,1 \text{ CaCl}_2 + 0,02 \text{ NH}_4\text{Cl}$; V – 1 KCl

ケミカルリーチング

溶液の組成が土壌からの放射性核種リーチングに与える影響

ダイアグラム3



チェルノブイリ原子力発電所事故のために汚染されたターフ・ポドソル土壌からの⁹⁰Srの脱着
有機物含有量 (1-5) %;

V/m = 4; pH 2,5; T=20°C; 脱着時間10 日;

脱着溶液, mole/l:

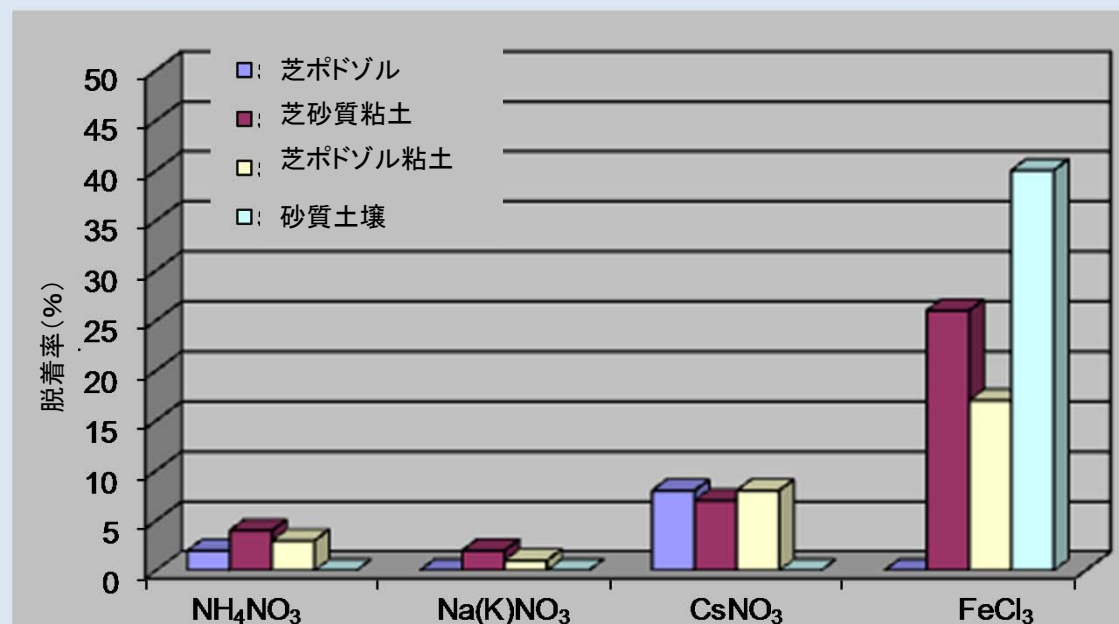
I – 0,1 NH₄Cl; II – 0,1 FeCl₃+0,02 NH₄Cl; III – 0,1 KCl+0,02 NH₄Cl;

IV – 0,1 CaCl₂+0,02 NH₄Cl; V – 1 KCl

ケミカルリーチング

溶液の組成が土壌からの放射性核種リーチングに与える影響

ダイアグラム4



無機カチオンを含有する様々な溶液による鉱物タイプ土壌からの¹³⁷Csの脱着

溶液の組成:

0,01 mole/l FeCl₃; 0,1 mole/l KNO₃, NaNO₃, CsNO₃, NH₄NO₃



ケミカルリーチング – 結果



- シルト土壌画分からの放射性核種 ^{137}Cs および ^{90}Sr の抽出量は、無視できる程度の値である。砂土壌画分からは、それらの放射性核種を最も有効に除去できる。
- 土壌タイプや溶液の組成によっては、異なるカチオン（単価および多価）の存在により、土壌からの放射性核種の脱着の度合いが異なることになる。
- 脱着溶液中に還元剤、酸化剤、フミン酸が存在すると、土壌からの放射性核種 ^{137}Cs および ^{90}Sr の抽出の度合いが変化することになる。
- したがって、放射性核種の抽出は、溶液の組成・温度、溶剤の性格、同位体交換速度および脱着時間に依存する。





天然有機物・鉱物の添加

—

土壌の農業特性の修復を
可能にする。

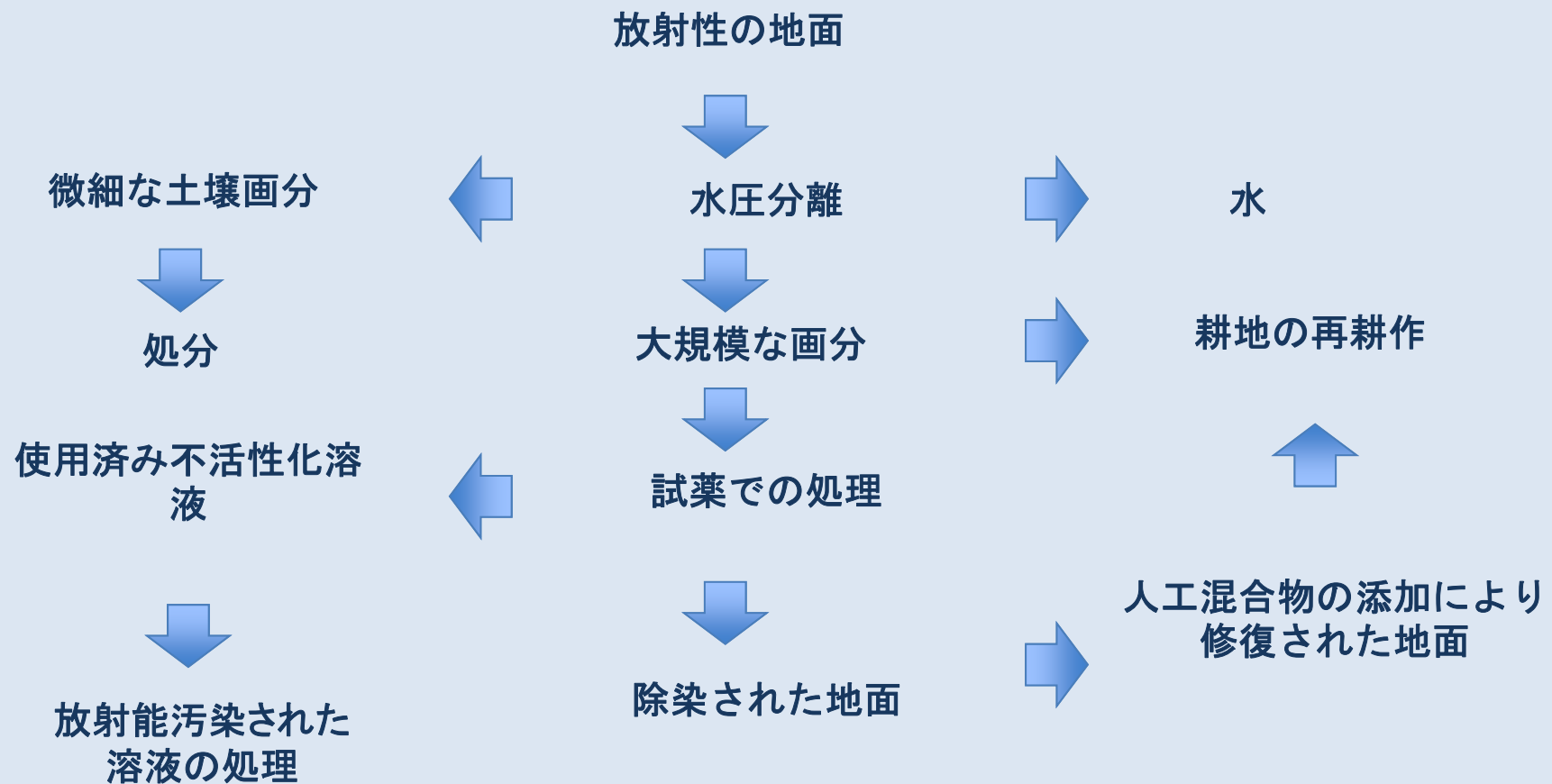


- 機械的または化学的な土壌除染の手法を適用すると、土壌の腐植質含有量が低下し、その物理化学的特性が変化することになるため、土壌の肥沃度が低下する。
- このことから、土壌の除染における必要な条件が規定される。それは、土壌特徴の変化に対する厳格な管理である。
- 天然原料に基づく有機物・鉱物混合物の組成が開発された。
- 特に、加水分解リグニン、腐泥およびカリウム産業のクレイソルト廃棄物が、基礎成分として使用された。



放射能汚染土壤の改良のための複合技術

土壤修復のための技術の図解



結論

- 高濃度の微細シルト画分を含む土壌については、水圧分離を有効に適用することができる。
- ケミカルリーチングは、砂または有機画分の処理に対してのみ適用可能だが、微細シルト画分に対しては有効性が低い。
- 結果としての $K_d \sim 10 - 12$ は、複合土壌システムにとって非常に有効である。
- 土壌の農業特性を修復するためには、天然有機物および鉍物の添加が必要とされる。
- 一部のサイトでは、すべての土壌タイプのために除染技術の是正が必要とされる。



用途



以下の原因で放射能に汚染された広大でない領域の浄化:

- 原子力施設の保守に関する事故(チェルノブイリまたは福島事故)
- 産業、研究および医療における放射性同位体の様々な適用 業務
- 核兵器の生産と実験
- 原子力施設の廃止措置
- テロ行為に関連する事故





結果の考え得る反映方法



そのタイプおよび鉱物組成が福島事故のために汚染された土壌と類似するようなモデル土壌サンプルによる実験室条件での除染土壌技術の開発:

- 最も有効な除染ソリューションの選択
- 除染条件の選択 – 溶液のpHおよび温度、相関 V/m、持続期間など

福島事故のために汚染された現実の土壌サンプルによる実験室条件での除染土壌技術の開発

除染土壌技術の図式の開発

開発された技術の経済的便益の評価

原位置除染土壌のための可動式設備の設計と創出



www.istc.ru

ご清聴ありがとうございました!