

[様式2 (汚染水処理対策委員会に報告し、一般公開となるものです)]

提 案 書	
技術分野	②汚染水処理
提案件名	汚染水からの放射能除去に沈殿法の採用を
おお提案者	菅野 等 (防衛大学校 名誉教授)
<p>1. 技術等の概要 (特徴、仕様、性能、保有者など)</p> <p>東京電力福島原子力発電所の汚染水の処理にはいろいろな困難が立ちはだかつて大変な事になっていますが、これは汚染水からの放射能の除去にゼオライトなどを用いたイオン交換法を採用している事にかなりの原因があるように思われます。これはフランスのアルパ社などが原子炉の冷却水からのセシウム 137 などの除去にゼオライトなどを用いて除去している事に倣ったもので、正常に機能している原子炉格納容器からの冷却水からの極少量の放射能の除去には極めて有効な方法であると推定されます。しかし、福島原子力発電所の場合には根本的に事情が異なってきます。福島原子炉の場合には核燃料のペレットが破壊されて核分裂生成物が冷却水に混じって出てくる状態で、さらに悪い事に事故の際に、緊急性から海水を冷却に使用したので冷却水に海水が大量に混入している状態になっています。したがって、例えばセシウム 137 を例にとっても、海水あるいは土壌からのナトリウム (イオン) やカリウム (イオン) が、セシウム 137 の数万倍あるいは 100 万倍以上の濃度で汚染水に入っている可能性があります。</p> <p>セシウム (Cs137) が 1 リットル中 100 万ベクレルの汚染水の場合には、セシウムの原子数で$\sim 1.37 \times 10^{15}$個が 1 リットルに入っていることになります。一方、海水中には Na^+イオン (食塩、NaCl) のほかにカリウムイオン (K^+イオン) も入っており、Na^+イオンに較べて少ないですが、文献値に寄れば $\text{K}/\text{Na} = 0.037$ (原子の数の比) で含まれています。つまり、海水 1 kg (大体 1 リットル) 中に K^+イオンは$\sim 1.3 \times 10^{22}$個含まれている事になります。カリウムとセシウムは化学的にかなり似た挙動を示しますから、ゼオライトに Cs^+イオンが吸着するとすれば K^+イオンも吸着します。汚染水中に Cs^+イオンの 100 万倍以上 (海水が 10 倍以上に希釈されていても) の個数の K^+イオンが含まれているので、K^+イオンがゼオライトの吸着ポイントに優先的に入ってしまいます [厳密には Cs^+イオンと K^+イオンの吸着係数を用いる必要があります。データがあるはずですが]。化学者の常識に従えば、K^+イオンに対して Cs^+イオンが 1 万倍以上吸着されやすいと言う事は想像できません、例えそのような事があっても、K^+イオンは Cs^+イオンの 100 万倍以上の個数があると推定されますので、ゼオライトの使用寿命は極端に減ってしまう (K^+イオンが吸着ポイントに入れば飽和してそれ以上のカリウムあるいはセシウムイオンが吸着できなくなる) と推定されます。したがって、この方法は汚染水中のセシウムを除く方法として機能しない (真水のみで原子炉の炉を冷却している原子炉から漏れた汚染水のセシウムを除くのにゼオライトは有効に働くのだと確認されてアメリカやフランスではこの方法が採用されているのだと思います。また、活性炭など他の吸着剤</p>	

でも同じ結果、つまり、 K^+ イオンが多数存在するならば、 Cs^+ イオンを除くには十分機能しない。 K^+ イオンが圧倒的に沢山あるので吸着ポイントは K^+ イオンで飽和して Cs^+ イオンが入る余地がなくなります。つまり、吸着能力は直ぐに飽和して機能しなくなります。 K^+ イオンに較べれば Na^+ イオンは、 Cs^+ イオンの吸着ポイントを妨害する効果ははるかに小さいですが、 Na^+ イオンも多量に存在すれば同じくセシウム 137 の吸着にはマイナスに働きます。

最近の報道では貯水タンクの数箇所で汚染水の漏れが観測され、東京電力の対応が非難されておりますが、これも毎日増え続ける汚染水からの放射能除去がスムーズに進まないためと考えられます。汚染水の貯蔵タンクの現状を見ると、至急に汚染水からの放射能の除去法を確立しないと、汚染水が溜まり続け、もし震度 6 以上の地震が福島原子炉付近を襲った場合、惨状は考える事さえ恐ろしくなってしまいます。

今東京電力は、東芝製のサリーや多核種除去装置のアルプスに依存して汚染水からの放射能除去を行っています。東芝の装置の詳細い内容は分かりませんが、アルプスの操作状況は必ずしも満足に行くものでは無いと聞いています。これは、セシウム 137 の除去にゼオライトなどイオン交換体を使用していることが主因と思われま

す。ネットから、東京電力の評価検討会（第 10 回）の「多核種除去設備のホット試験の実施状況と今後の対応について」をダウンロードして参考にしておりますが、詳しい状況については分かりませんが、セシウム 137 などはゼオライトなどの吸着体で汚染水から除去していると見受けられます。ゼオライトはもともと嵩高い吸着体で、飽和した（セシウム 137 で）ゼオライトは廃棄することになります。現状の汚染水の量から考えて膨大な廃棄物が生じることになります。これらを回避して、迅速に汚染水からの放射性核種を除去するには沈殿法がベストであると考えられます。少なくとも、セシウム 137 の除去にテトラフェニルホウ酸ナトリウム水溶液で沈殿させる方法を採用すれば、はるかに迅速にかつ簡便に放射性セシウムを除去出来るようになると考えられます（文献としてアメリカの Savannah river site の高放射性廃液からのテトラフェニルホウ酸ナトリウム溶液を用いた放射性セシウム除去の実験結果を添付しました）。

他の放射性核種の除去についても同様です。もちろん、セシウム 137 にしても他の放射性核種にしても、ベクレル数は相当高くても含まれている濃度（原子数、重量）は極めて低い。そのためにきわめて良い沈殿剤を添加しても目に見える沈殿は生じて来ません。しかし、このような時にはキャリアー（担体）として、除去目的の核種の元素（イオン、あるいは性質の良く似た元素のイオン）を、沈殿を生じさせるに十分な量を添加して良く攪拌して均一にしてから、有効な沈殿剤を添加すれば通常のコピー（あるいはフィルター）でろ過できる量の沈殿が生じ、濾過で目的の放射性核種が除去できます。アルプスの対象としている放射性核種 62 種について考えると、無機溶液化学の視点でなるべく操作数を少なくすれば沈殿法では 4 回か 5 回の操作で大部分の放射能は除去できる（一つの操作で除去が不十分の場合には同じ操作を繰り返せば良い）と考えられます

(別添の資料を参照ください)。アルプスの操作がどのように行われているか、私にはわかりませんが、吸着法では溶液と吸着体の接触を十分に行う必要があるためどうしても接触時間が長くなり単位時間あたりの処理できる汚染水の量が限定されます。確かにテトラフェニルホウ酸ナトリウムでセシウムを沈殿生成するのに時間がかかると報告されていますが、現在貯蔵タンクに入れられている汚染水に硝酸カリウムを必要量入れて、その後テトラフェニルホウ酸ナトリウム溶液を添加して、攪拌してしばらく放置しておけば良いのですから、その後のフィルターでの分離は迅速に行うことができはずです。ストロンチウム 90 の炭酸塩での沈殿の分離も同じです。フィルターでの分離はかなり短時間で行うことができます。具体例と根拠となるデータなどは、添付書類として付けました。

P. S. 原子炉建屋や地下トレンチ内の汚染水の放射能の海への漏出の防止にも沈澱法は有効であると推定されます。

現在原子炉建屋や地下トレンチに大量の放射性汚染水が放置されて、これらの汚染水が地下水を汚染して海に漏出する危険性が危惧されておりますが、これらの汚染水に硝酸カルシウム、硝酸ランタン、硝酸鉄（+硝酸ニッケル）、硝酸カリウムなどを汚染水の量に見合った量を添加して良く攪拌してから、炭酸ナトリウム溶液を加え、その後テトラフェニルホウ酸ナトリウム水溶液を加えれば、おもな放射性核種であるセシウム 137 はテトラフェニルホウ酸塩としてテトラフェニルホウ酸カリウムと共に、ストロンチウム 90 は炭酸塩として炭酸カルシウム共に、セリウム 144 などの多くの放射性核種（イオン）は炭酸塩または水酸化物として炭酸ランタンあるいは水酸化ランタン（あるいは水酸化鉄、水酸化ニッケル）と共に沈澱する。これらはマクロ量ですからゲル状で底に沈澱するので土壌の中に侵入して海に漏出する可能性は極めて小さくなるはずです。

海のすぐそばの土に硝酸カルシウム、硝酸ランタン、硝酸鉄（あるいは硝酸ニッケル）、硝酸カリウムの水溶液を注入して、炭酸ナトリウムとテトラフェニルホウ酸ナトリウムの水溶液を注入して、炭酸カルシウム、炭酸ランタン（+水酸化ランタン）、水酸化鉄、テトラフェニルホウ酸カリウムの沈澱を土壌の中に分散させれば、放射性イオンが漏れてきてもこれらの沈澱にトラップされるはずです。

また、トレンチ内の汚染水に同じ操作を行えば、沈澱になって地下トレンチの底に降りて行きますので、トレンチなどの汚染水の表面の放射線レベルをかなり下げることができるはずです。また、トレンチの底に沈澱したゲル状放射性物質は吸引して除けば地下トレンチの放射能レベルを下げることができ、原子炉建屋内の作業する際の被曝線量を下げることができるはずです。

1. 備考（以下の点など、可能な範囲でご記入いただけますようお願いいたします）

・開発・実用化の状況（国内外の現場や他産業での実績例、実用化見込み時期を含む）

テトラフェニルホウ酸ナトリウム水溶液を使って放射性セシウムを除去する件に関してはアメリカの Savannah river site での高放射性廃液から放射性セシウムを成功裏に除去した実験結果が報告されており、参考文献として添付しました。私の提案では、担体(carrier)としてカリウムイオンを用いていますが、価格を問題にしないならばセシウム塩溶液を添加するのが一番確実です。他の放射性核種の除去に関しても同じですが、ストロンチウム 90 とバリウムの放射能の除去にそれぞれの元素の塩を加える必要はないと考えています（カルシウム塩水溶液で十分である）。

・開発・実用化に向けた課題・留意点

それぞれの沈澱生成のプロセスは、化学的にはそれほど厳格な濃度、量などの設定は必要ないが、濾過の過程においてフィルター（口紙）の目の細かさについては、実験で検証する必要がある。フィルターの目を細かくすれば濾過に時間がかかる、一方目を粗くすれば沈澱が濾過して decontamination factor が悪くなります。同じ操作を 2 回あるいは 3 回にして時間を短くするのが良いのか、フィルターの目を細かくして操作回数を減らす方が良いのかは試験を行って確かめる必要があります。

・その他（特許等を保有している場合の参照情報等）

提案の沈澱法については、特許などに抵触する危険性は一切ないので、実行する会社が自由に設計して実施すればよいと理解しています。