

# 放射性セシウム汚染灰除染技術

## — ナノ粒子の吸着材としての活用と実用化アプローチ —

川本 徹<sup>1\*</sup>、田中 寿<sup>1</sup>、伯田 幸也<sup>1</sup>、高橋 顕<sup>1</sup>、Durga PARAJULI<sup>1</sup>、  
南 公隆<sup>1</sup>、保高 徹生<sup>2</sup>、内田 達也<sup>1</sup>

2011年の東日本大震災に伴う、東京電力福島第一原子力発電所からの放射性物質漏えい事故に伴い、産総研では除染技術の研究開発を進めた。その課題の緊急性から、研究開発は極めて短期間に達成することが求められた。例として、プルシアンブルー (PB) ナノ粒子を利用した汚染焼却灰の除染技術を挙げ、その推進方法を紹介する。PBナノ粒子の構造制御による放射性セシウム吸着材としての最適化、材料を粒状体等製品として利用できる形にする成型、汚染灰からの放射性セシウムの抽出法等、技術全体を一貫して開発した。この全体的な開発の短期的な実現は、材料研究者、計算科学研究者、地質研究者等に加え、各企業との一体的な連携により達成できた。

キーワード: プルシアンブルー、ナノ粒子、放射性セシウム、除染、焼却灰

## Technology for radioactive cesium decontamination from ash

– Utilization of nanoparticles as adsorbent and approach to application –

Tohru KAWAMOTO<sup>1\*</sup>, Hisashi TANAKA<sup>1</sup>, Yukiya HAKUTA<sup>1</sup>, Akira TAKAHASHI<sup>1</sup>, Durga PARAJULI<sup>1</sup>,  
Kimitaka MINAMI<sup>1</sup>, Tetsuo YASUTAKA<sup>2</sup> and Tatsuya UCHIDA<sup>1</sup>

The accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station in 2011 spurred rapid research and development at AIST for a radioactive cesium decontamination system. In this paper, we introduce the development of an ash-decontamination technology that uses Prussian blue (PB) nanoparticles. We developed all aspects of the system using a combination of fundamental technologies, which included optimization of PB nanoparticle structure for use as cesium adsorbents, composite fabrication, e.g. granules for utilization as adsorbents, and extraction of radioactive cesium from the contaminated ash. All aspects of development were achieved within a short period of time through close collaboration among researchers from materials science, computational science, and geology. Collaboration with private companies was also effective.

Keywords: Prussian blue, nanoparticle, radioactive cesium, decontamination, ash

### 1 背景: 放射能漏えい事故と産総研の取り組み

2011年3月11日に起こった大地震は巨大な津波を発生させた。その津波は東京電力福島第一原子力発電所を襲い、電源喪失を引き起こした。その結果、原子炉の冷却に問題が発生し、放射性物質の漏えい事故につながった。漏えいした主たる放射性物質は比較的低温で揮発するもので、例えば、ヨウ素-131の放出量が $1.6 \times 10^{17}$  Bq、セシウム-137が $1.5 \times 10^{17}$  Bqと推定されている<sup>[1]</sup>。放出された放射性物質の中でも、ヨウ素とセシウムは常温では塩等の化合物として存在するため、地上に降り注ぎ、土壌を汚染し、水に溶出し、河川や海等の環境水を汚染した。中でもセシウム-134、セシウム-137は半減期がそれぞれ約2年、30年と長く、約8日のヨウ素と比べ、その影響が長

期にわたって残る。日本政府はこの放射性セシウムによる環境汚染の除去、いわゆる除染を喫緊の課題と位置づけ、研究開発に注力することになった。

産総研でも除染に関するさまざまな取り組みが行われた。それらは、プルシアンブルー (PB) ナノ粒子を用いた汚染水、土壌や焼却灰等の除染技術の開発<sup>[2]-[6]</sup>、環境水中放射性物質の超微量分析用濃縮装置の開発<sup>[7][8]</sup>、玄米の汚染評価に関する標準物質の開発<sup>[9]</sup>、環境中の放射性セシウムの動態評価<sup>[10][11]</sup>、除染に必要な費用試算<sup>[12]</sup>等極めて多岐にわたる。中でも我々は、高い放射性セシウム吸着能を有するPBナノ粒子を利用した除染技術、計測技術の開発に注力した。

除染技術は極めて喫緊のテーマであり、通常の研究開

1 産業技術総合研究所 ナノ材料研究部門 〒305-8565 つくば市東 1-1-1 中央第5、2 産業技術総合研究所 地圏資源環境研究部門 〒305-8567 つくば市東 1-1-1 中央第7

1. Nanomaterials Research Institute, AIST Tsukuba Central 5, 1-1-1 Higashi, Tsukuba 305-8565, Japan \* E-mail: tohru.kawamoto@aist.go.jp, 2. Research Institute for Geo-Resources and Environment, AIST Tsukuba Central 7, 1-1-1 Higashi, Tsukuba 305-8567, Japan

Original manuscript received March 29, 2016, Revisions received May 16, 2016, Accepted June 6, 2016

発スケジュールに比べて極めて速いスピードで研究開発を進めていった。我々のコア材料はPB ナノ粒子であり、材料科学の立場からの研究開発が主体である一方、除染技術の実用化には、化学工学、地質工学、農業に関する知見等、多様な専門性の結集が必要であった。また、産総研は研究機関であり、最終的に事業を実施することはできない。よって、どこかの時点で開発された技術を企業に橋渡しし、企業に実施してもらう必要がある。さらには、政府、自治体との調整、特に実証試験等を実施する現地との調整等が必要となる。

この論文では、特にPB ナノ粒子を用いた焼却灰除染技術を例にとり、その研究開発内容を第2章で、その技術開発を進めるにあたり設定した戦略とマネジメントについて第3章で紹介する。

## 2 焼却灰除染技術の開発

### 2.1 技術的背景

この技術のコア技術となる、放射性セシウム吸着材には金属ヘキサシアノ錯体 (MHCF、別名プルシアンブルー型錯体) ナノ粒子を利用している。MHCFは  $A_xM[Fe(CN)_6]_{1-x} \cdot zH_2O$  であらわすことのできる多孔性配位高分子である。ここでAはアルカリ金属等の陽イオン、Mは遷移金属イオンを示す。M=Feの場合がPBと呼ばれる顔料である。PBは18世紀初めに合成された人工顔料で、その後ゴッホや葛飾北斎にも利用され、現在でも顔料として利用されている。また、金属種 (A,M)、および組成 (x,y,z) は広い範囲で制御が可能である。結晶構造は図1に示す通りで、金属原子間をシア

ノ基が架橋したジャングルジム状の構造を取り、内部に空孔ネットワークを有する。陽イオンAは、この空孔ネットワークを出入りする。特に、セシウムイオンを選択的に吸着することが知られている<sup>[13]</sup>。

PBの放射性セシウム吸着能に関する最古の報告は1950年になされている<sup>[14]</sup>。その後、PBのみならず、さまざまなMHCFの放射性セシウム吸着能が検討され、利用されてきた<sup>[13][15][17]</sup>。例えば、1960年代にはアメリカで核開発を行っていたハンフォードにおいて、汚染水からの放射性セシウム除染に利用されており<sup>[18]</sup>、最近では、2011年の原発事故の際に最初に投入された汚染水除染装置の一つであるアレバの装置では、ニッケルヘキサシアノ鉄錯体 (NiHCF) が利用されている<sup>[19][20]</sup>。

産総研でのPBの研究の概要を図2に示す。産総研で

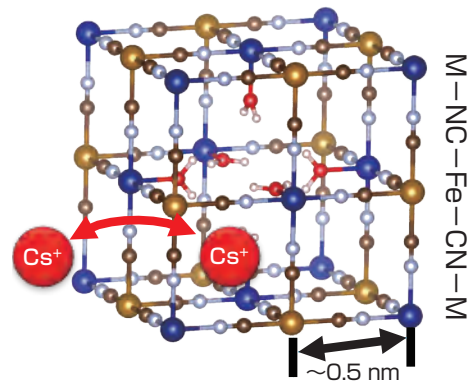


図1 ヘキサシアノ金属錯体  $A_xM[Fe(CN)_6]_{1-x} \cdot zH_2O$  の結晶構造 A、Mはそれぞれ陽イオン、Fe、Cu、Co等の遷移金属イオンを示す。図中赤原子は  $H_2O$  分子中酸素を示す。

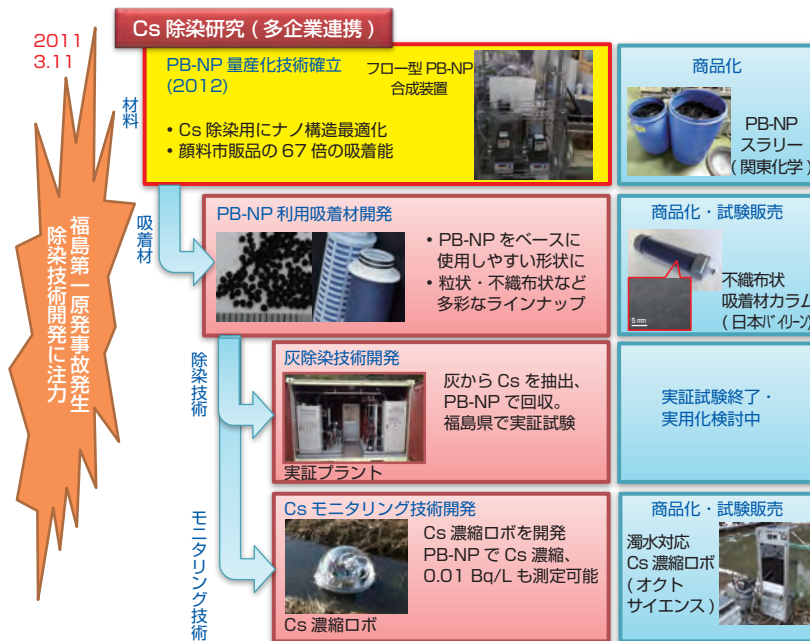


図2 産総研におけるPBナノ粒子を利用した放射性セシウム除染技術開発の経緯 PBはプルシアンブルー、PB-NPはPBナノ粒子をあらわす。

は、PB型錯体のナノ粒子の開発を2005年ごろから山形大学と共同で進めてきており<sup>[21][22]</sup>、特にエレクトロクロミック素子開発に注力してきた<sup>[23][26]</sup>。さらに、福島での事故の前から放射性セシウムを電気化学的に吸脱着し、濃縮するシステムの研究開発を行ってきた<sup>[27][29]</sup>。これらの技術的蓄積を行ってきた中で、福島での事故が発生、その除染の研究開発に貢献すべく、研究の中心を大きくシフトさせた。特に、PBナノ粒子を根幹にした吸着材開発と<sup>[30][34]</sup>、その吸着材を生かした除染技術の開発<sup>[35][38]</sup>を両輪として研究開発を進めた。

## 2.2 焼却灰除染技術の概要

我々が特に注力した技術開発の一つに植物系汚染物の減容化技術がある<sup>[31][6]</sup>。焼却灰除染技術はこの技術の一部である。この技術の概要を図3に示す。植物系放射性セシウム汚染物は、森林除染等から大量に排出されると想定されていた。また、このような可燃性の汚染物を放置しておくで発酵等により加熱、発火する恐れもあり、適切な焼却処理が必要と考えられる。しかし、焼却灰からは水との接触により放射性セシウムが溶出する場合があります<sup>[39][40]</sup>、通常の産業廃棄物と同様の処分は難しい。これらのことから、汚染物を焼却後、その灰を洗浄し、放射性セシウムを抽出した上で吸着材で回収することで、大半の放射性セシウムを吸着材内に封じ込め、その体積を灰の1/500～1/3,000、焼却前の1/25,000～1/300,000程度まで減容することが可能となる。

この考えに基づいた除染技術が多数の機関により検討された<sup>[41][44]</sup>。その中で、我々の技術の特徴は、独自に開発したPBナノ粒子の高い放射性セシウム吸着能である。しかし、ナノ粒子の粉末や分散液をそのまま除染の現場で使用することは現実的ではなく、吸着材への成型や、それ

を使用するプラントの設計等、多段階での研究開発が必要となる。材料から吸着材成型、プラントの設計および実証試験の流れを図4に示した。我々は、PBナノ粒子をベースに材料からプラント化までを一体開発することにより、ナノ材料の機能を最大限に発揮、セシウム除染に貢献することを目指した。なお、この材料からプラント化までの開発は、原子スケール～nm～μm～mという異なる長さスケールでの開発も意味することは重要である。つまり、材料開発は原子組成等の制御が必要であり、プラント化はmスケールでの開発となる。このように、材料からプラント化の一体開発は、異なる長さスケールでの開発技術も必要となる。以下この、図4に示した各段階の研究開発について、順に紹介する。

### 2.2.1 放射性セシウム吸着材用PBナノ粒子の開発

この技術の根幹となる材料が放射性セシウムを選択的かつ高効率に吸着するPBナノ粒子である。PBはもともと微粒子になりやすい物質であるが、粒径に加え、組成も最適化を行うことにより、そのセシウム吸着率が向上することを見いだした<sup>[30][32]</sup>。我々が使用したPBナノ粒子の粒径等の概要を市販品のプルシアンブルーである紺青（大日精化製905）との比較をあわせて表1に示す<sup>[30]</sup>。ポイントは組成の最適化と、粒径の制御である。プルシアンブルーの組成は一般的には $A_xFe[Fe(CN)_6]_{1-x}$ で書くことができる。プルシアンブルーはその構造の中に $[Fe(CN)_6]$ の欠陥や、アルカリイオン等の陽イオンを導入することができる。組成式におけるxが $[Fe(CN)_6]$ の欠陥量を、yが陽イオン導入量をあらわしている。プルシアンブルーは $Fe^{2+}$ イオン水溶液と、 $[Fe(CN)_6]^{3-}$ イオン水溶液を混合することで得られるが、その際の比率や、カウンターイオンの種類、イオンの価数等を適切に選択することにより、組成の制御が可能

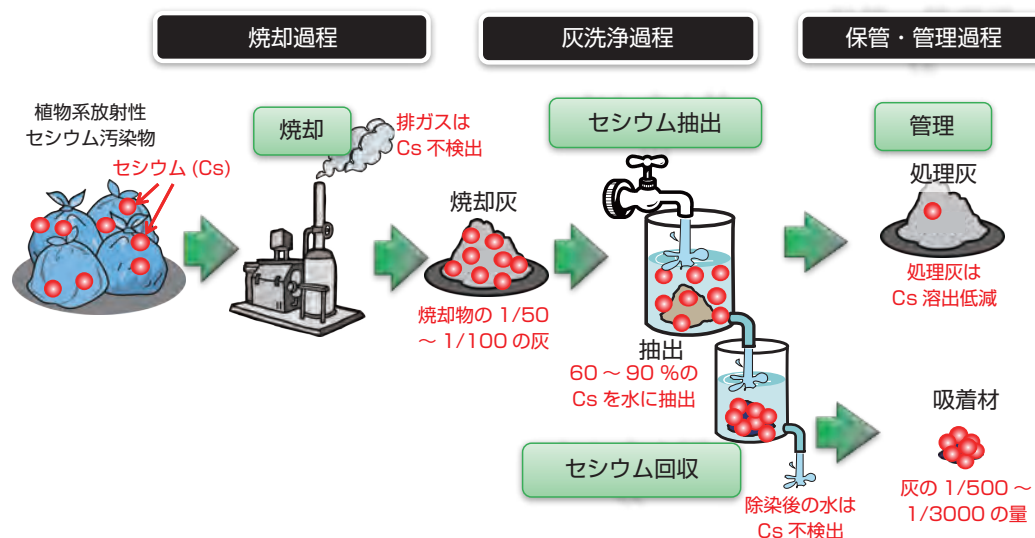


図3 PBナノ粒子による植物系汚染物および焼却灰の減容化概要<sup>[6]</sup>

表1 プルシアンブルーナノ粒子の概要<sup>[30]</sup>

名称	ナノ粒子 (11 μm)	ナノ粒子 (60 μm)	PB 市販品
組成	Fe [Fe(CN) <sub>6</sub> ] <sub>0.75</sub>		(NH <sub>4</sub> ) <sub>0.64</sub> Fe[Fe(CN) <sub>6</sub> ] <sub>0.91</sub>
一次粒子径	8.8 nm		36 nm
二次粒子径	11 μm	60 μm	9 μm

である。我々は、その組成によって大きく吸着容量が変化することを見いだした<sup>[45]</sup>。

さらに、吸着速度を高めるため、ナノ粒子化を施した。我々のナノ粒子の粒径は8～20 nm程度である(図5(a))。ナノ粒子の一次粒径も基本的には合成法に依存する。例えば、急速に混合することで粒子径を小さくすることが可能である。プルシアンブルー類似体である銅置換プルシアンブルー型錯体では、その合成にマイクロミキサーを使い、粒径を小さくすることにより、従来品に比して、7.7倍の吸着速度向上を実現した<sup>[33]</sup>。また、混合時の温度やイオンの価

数等の制御によってもある程度の粒径制御が可能である。

さらに例えば粉末においては、二次粒子径も吸着速度に影響を与える。粉末粒子内における放射性セシウムの拡散係数は液体中に比べると遅く、二次粒子径を小さくすることで吸着速度を速めることができる。例えばプルシアンブルーナノ粒子懸濁液を乾燥させることで粉末化できるが、その乾燥法を適切に選択し、小さな二次粒子径を実現することは肝要である。

図5(b)に焼却灰の洗浄水にPBナノ粒子等、各種セシウム吸着材粉末を添加した際のセシウム吸着率の液固比

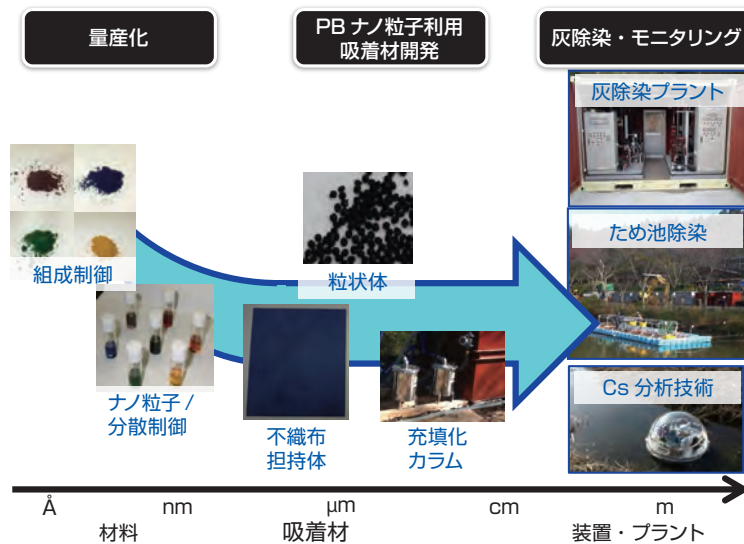


図4 産総研におけるPBナノ粒子を利用した除染関連技術開発のスケールごとの技術開発内容

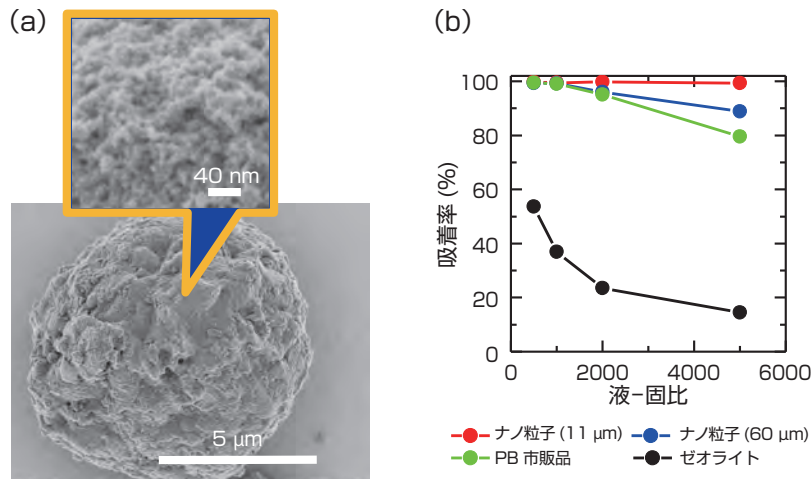


図5 (a) PBナノ粒子粉末の電子顕微鏡像。(b) 焼却灰洗浄水に各種セシウム吸着材を添加した際の吸着率の液-固比依存性<sup>[31][30]</sup>。

依存性を示す。我々のPBナノ粒子を利用した場合、液固比5,000、すなわち200 ppmの添加量でもほぼ100%の吸着率を示す。一方、市販のPBでは約80%、セシウム吸着材としてしばしば利用されるゼオライトでは20%以下の吸着率にとどまった。市販PBとの吸着率の差は粒径とともに組成が異なることが理由であり、また、ゼオライトの吸着率が大きく劣る理由は、灰洗浄水は高い塩濃度となっており、セシウム選択性が弱いゼオライトでは吸着率が低下するためである。

### 2.2.2 PBナノ粒子の量産化と利用吸着材の開発

開発したPBナノ粒子の量産化は関東化学株式会社との共同研究によって進められた。基本的なスタンスとしては、産総研が放射性セシウム吸着材として適当な組成、構造を決定する。さらに、製造法について、必要なスケールアップが可能な手法の中で検討し、技術移転した。さらに、関東化学はそれを量産化すべく、製造法のブラッシュアップを行うことで、量産化に至った。

高いセシウム吸着能を発揮するPBナノ粒子の開発には成功したが、通常この材料は粉末もしくはスラリーの形態である。灰洗浄水からの放射性セシウム除去は、先の実験のように、粉末を洗浄水に添加後、固液分離を行うことが考えられる<sup>[46]</sup>。しかし、粉末添加による手法は、放射性物質を濃縮する方法としては安全上の懸念があるとの意見もある。特に、装置故障等のため、高濃度に放射性セシウムを濃縮した吸着粉末を人が扱うことが避けられない状況になった際のリスクを懸念する声が多い。このような意見を受け、我々は企業と連携し、カラム等、吸着材が容器に閉じ込められた形式で放射性セシウムを吸着する方法の開発を進めた。カラムであれば、仮に閉塞等が発生した場合であっても、そのカラムだけを交換すればよく、吸着材を直接取り扱う必要はなくなるためである。

まず我々独自に綿布に担持した吸着材を開発し、十分な吸着特性を確認した<sup>[47]</sup>。さらに、関東化学株式会社、株式会社日本バイリーンとの連携の下、粒状体<sup>[34][36]</sup>と、不織布担持体<sup>[38][48]</sup>の2種類を開発した(図6)。粒状体は80%のPBナノ粒子を含有し、高い吸着容量を有することが特徴である。不織布担持体は接触面積が広く、高速吸着が可能である。これらの技術は、この論文にて紹介する灰除染に加え、ため池における放射性物質対策、環境水中の放射性セシウム分析用濃縮技術等にも活用されている。また、これらの開発には、性能シミュレーション等、計算科学的なアプローチも活用している<sup>[49]</sup>。

### 2.2.3 焼却灰の減容化システムの開発

この技術を利用し、灰洗浄システムの構築を目指した。我々の目標は、除染作業から排出される汚染物の減容で

ある。これらの汚染物は新たに設置される仮設焼却炉において、集中的に焼却する計画であった<sup>[50]</sup>。また、灰洗浄装置が設置される場合、この装置および処理後の汚染物の保管まで、すべて施設は新規に建設される。これらの状況に鑑み、我々は最も効率的な廃棄物の減容を検討すべく、焼却から灰洗浄、放射性セシウムの吸着材による回収、そして使用後吸着材の保管方法までを一体化して検討を進めた。

焼却炉にはバイオマスボイラーを活用し、放射性セシウムを確実に排気ガスから除去するとともに、その挙動を明らかにするためボイラー後部にサイクロン、バグフィルター、ヘパフィルターと三段の排ガス処理装置を設けた。また、焼却時に塩化カルシウムを添加することにより、後段の洗浄時の放射性セシウム抽出率を向上できることを確認した。特に、炉床から回収される「主灰」は、煙道から回収される「飛灰」と異なり、従来は水洗による放射性セシウムの抽出は困難と考えられていたにもかかわらず、実際は60%等の高い抽出率を達成できることが分かった<sup>[6]</sup>。

灰洗浄部では、特に使用水量の低減の検討を行った。除染活動の遂行においては、福島第一原発の内部で処理後の汚染水の扱い(滞留)が深刻な課題になっていることや、環境水が汚染されれば、直接飲用水や農業用水に影響が生じる等の理由から、汚染水の処理に慎重な意見が多い。そのため、使用水量を極力低減できることが重要となる。仮に汚染水を適切に処理しても放流することが許可されなかった場合、水量が少量であれば、蒸発乾固等、排水が発生しない方策がとりうるためである。具体的な灰洗浄・吸着回収を行うプラントの模式図を図7に示す。特に留意した点は、①灰投入時に適切に少量の水と混練するため振動造粒機を転用、②灰の脱水時の固液比を増やすことで閉塞を回避、③使用後の水を再利用、の三点である。①が必要となるのは、灰の性状によっては極めて疎水的で

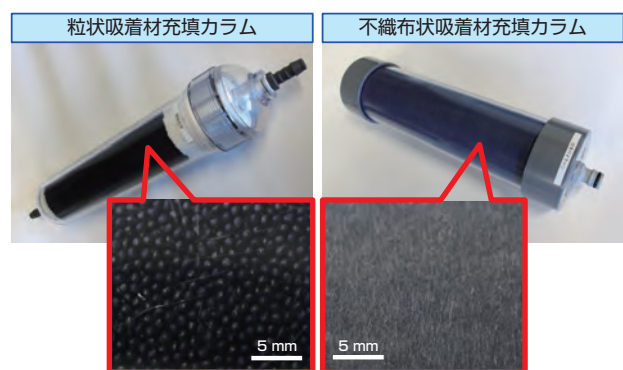


図6 PBナノ粒子を含有する放射性セシウム吸着材  
左図：関東化学製粒状吸着材。右図：日本バイリーン製不織布担持吸着材。

あり、単なる攪拌等では水と灰が全く混ざらず、洗浄が進まないことがあるためである。振動造粒機は通常のゴミ焼却場において焼却灰を最終処分場に搬入する際に必要な造粒作業を行う装置であり、少量の水を添加することで水と灰を混練、造粒できる。この装置を転用することで、極めて効率的に水と灰を混合できた。さらに、塊状になった灰も効率的に破碎できるため、洗浄も効率的に進む。②については、比較的安価な固液分離装置としてフィルタープレス法を採用すると共に、循環型流路を設けることで、脱水部の固液比を向上させ、閉塞を回避した。③については、放射性セシウム以外の有害物質を除去するため、凝集沈殿槽を設置することで、水の再利用を可能とした。

水に抽出した放射性セシウム回収には、前述のPBナノ粒子を利用した粒状または不織布担持の吸着材を利用した。おおむね想定通りに吸着が達成されることを実証する

と共に、その吸着挙動をカラム外部に設置した線量モニターにより推測できることを明らかとした。

この技術を使用した際の廃棄物の減容効果を図8に示す。例えば1,800 Bq/kgの放射性セシウムに汚染された1トンの可燃物を処理した場合、通常廃棄に準じた処理で良いもの、管理型処分場での処分が必要なもの、中間貯蔵施設で管理される廃棄物はそれぞれ7.8 kg、6.0 kg、4.4 gとなり、極めて大きな減容効果が期待できることが分かった<sup>[6]</sup>。

### 2.2.4 廃棄物の保管・処分の検討

この技術の実用化に関し、最後に残される大きな課題は廃棄物の保管方法である。この手法で排出される廃棄物のうち主たるものは、洗浄後焼却灰、洗浄後排水、吸着後吸着材である。洗浄後焼却灰については、放射性セシウム濃度が8,000 Bq/kg、100,000 Bq/kgの基準ごとに廃棄基準が決められている。この技術で排出される洗浄灰

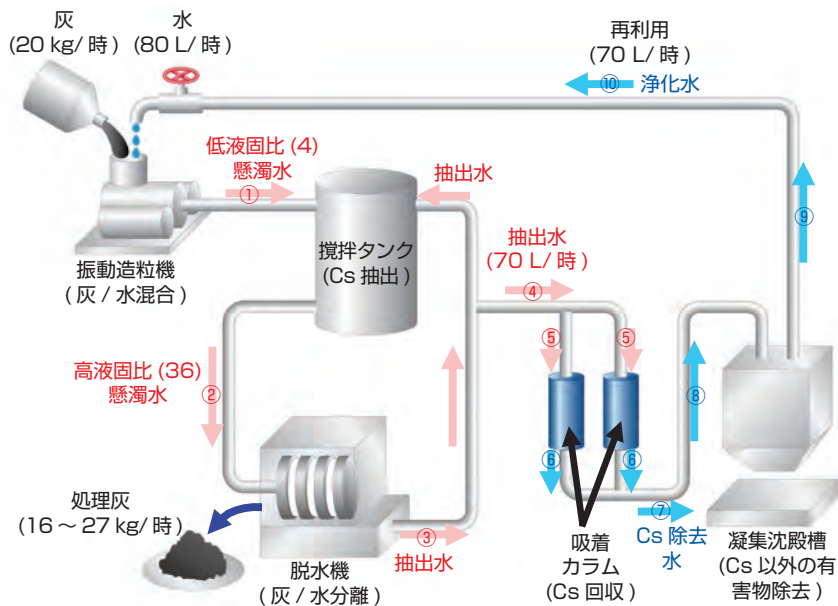


図7 灰洗浄・回収プラントの模式図<sup>[6]</sup>

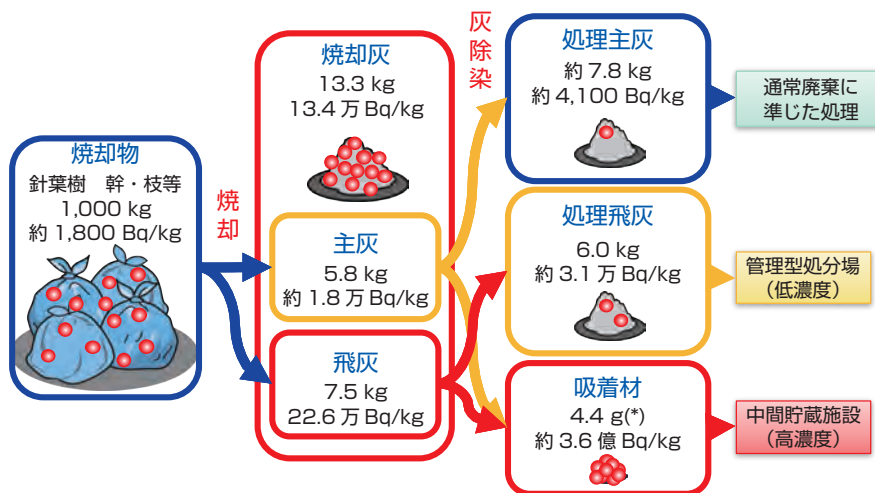


図8 本焼却灰処理技術を使用した際の減容効果の一例<sup>[6]</sup>

表 2 灰除染技術開発の研究内容と技術展開の方策  
橋渡し戦略は①特許化+技術移転、②技術を公開、③企業による実施、④従来技術活用をあらわす。

開発する要素技術		技術展開方法				試験内容	
		研究開発時の 技術導入法	橋渡し戦略				ラボ実験
①	②		③	④			
焼却		購入		○		○	既存知見の応用 20 kg/時バイオマス ボイラー導入
灰洗浄によるセシウム抽出		所内連携+ 外部人材招聘		○		○	既存知見の応用 塊状灰の処理、 温度・濃度等条件最適化 使用水量低減
吸着材による セシウム回収	材料	独自技術 +大学・研究機関連携	○				PB-NP の構造・ 組成最適化 量産化 (企業への技術移転)
	吸着材成型	企業連携 +企業独自開発				○	粒状体・不織布 担持体開発 量産化
	吸着材 現場管理	独自技術 +企業連携		○			吸着状態および 溶出管理 大型化
現場管理 (安全含む)		企業連携 +産総研フォロー				○	- 地元合意、現地施工・ 運営管理
廃棄物管理	灰・排水	一般技術		○		○	- 法律に従った処理
	吸着材	独自技術 +企業連携	○	○			二種類の保管法を 検討、提案

についてはこれらを満たして廃棄もしくは保管することが十分に可能である。洗浄水については、放射性セシウムは吸着材により十分に除去できるため、その後に通常の排水処理を行うことにより、排水基準を満たし放流することができる。また、地元自治体の懸念等により、放流が難しい場合であっても、水の再利用により使用量を最小化し、蒸発乾固することも可能である。

吸着後の吸着材は通常保管状態で十分に安定と考えているが、放射性物質を吸着するため、極めて長期間の保管が求められるため、保管時の安全性をより高める要請がある可能性もある。そのため、使用した吸着材を酸化処理し、より安定な状態で保管する方法も検討した。しかし、PB ナノ粒子の酸化反応は多大な酸加熱を伴う。一方、セシウムは 600 °C 以上では揮発し、再放出する可能性もあるため、500 °C 以下で安定的に酸化する方法が求められる。そこで、過熱水蒸気を利用したマイルドな状態での酸化法を確立した。この方法を用いることで、セシウムの再揮発を極めて少量に抑えながら、吸着材を酸化安定化することに成功した<sup>[51]</sup>。

### 3 灰除染技術の開発体制確立

前述の通り、我々は、焼却方法、焼却灰からの放射性セシウム抽出、吸着材によるその回収、廃棄物の保管方法の確立までを一貫して開発を進めた。さらに、ラボ試験のみにとどまらず、現地でのミゼットプラントによる実証試験を実現した。これにより、短期間での実用化にめどをつけることが可能となった。当初、この研究の立ち上げ時は、材料科学を専門とした研究者が中心的役割を担った。さら

に産総研内の化学工学、地盤工学等を専門とする研究者が加わり、研究体制の骨格が完成した。しかし、産総研研究者だけですべてを構築することは不可能であり、効率的ではない。例えば焼却技術や、プラント設計、現場運用等はもちろん、短期での量産化が可能な吸着材の設計等も、研究機関である産総研が事業化時に自身で実施することはできないため、企業との連携が必須となる。

これらのことから、我々は、事業化時の形態をできるだけ明確にイメージし、その実現に向けた要素技術の抽出、それらの要素技術の実現方法に関し戦略を策定していった。ここで重要なことは、それぞれの技術において、「誰が」「いつ」研究開発を開発し、「誰が」「いつ」事業を実施するのか、ということである。産総研は研究機関であり、事業の実施はできない。よって、事業実施は基本的には企業が行うこととなる。そのため、どこかの時点で企業への橋渡しを想定しながら研究開発計画を立てる必要がある。研究開発の具体的内容については、この橋渡し戦略からさかのぼりて実証試験における開発要素を決定、さらにそれに必要なラボ試験における開発要素を決定する、という方策を取っていった。この考え方により策定した戦略を表 2 に示した。表 2 では、分かりやすいように、試験内容、技術展開方法共に小規模または初期の段階からボトムアップ的に紹介しているが、実際の思考は逆であることに留意されたい。以下では、この思考の順序に従い、戦略の策定手順を紹介していく。

#### 3.1 橋渡し戦略

企業への橋渡しを行う戦略として、適材適所の観点で 4 つの方法を活用することに決定した。それは、①特許化+

技術移転、②技術を公開、③企業による研究開発の実施、④従来技術の活用、である。通常は研究機関の橋渡しとは、産総研による知財化と、その企業への技術移転、という形式が想定される。しかし、今回のような一貫したプロセスのすべてを想定し研究開発を進める場合、知財化一辺倒では開発速度が遅れるとともに、そもそも企業側が一日の長を持つ分野も多数あるため、現実的ではない。そのため、産総研自身の技術マップと、企業の技術マップを想定し、その比較から戦略を決めていく必要があった。

戦略策定に関する一つの大きな条件として、多数の企業と同時に連携が可能である、ということがある。このテーマにおいては、前述の通り、材料開発からプラント設計、廃棄物管理までを一貫して検討する必要がある。これらの幅広いテーマにおいて、一つの企業のみとの連携で推進することは現実的ではない。仮にそれらをすべて実施できる企業があったとしても、その数は限られるため、パートナー企業を見つけることに時間を要し、結果としてとん挫する可能性もある。これらのことから、研究開発のスピードを上げ、確実に実用化レベルに技術を引き上げるためには多数企業との同時連携が必要であると判断した。これは、それぞれの要素技術に対し、橋渡しの方法を適宜変えることの大きな理由となっている。

以下に、それぞれの橋渡し方法の概要と活用するケースを述べる。

#### ①特許化+技術移転

研究開発機関での技術移転方式の主たるものである。生まれた発明の特許化、またはノウハウ化し、適切な契約の下、企業に技術を移転していく。契約には共同研究契約、情報開示契約、ライセンス契約等がある。対象となる技術は、産総研側にコア技術があり、産総研以外に技術のハンドリングを任せることが技術の展開においてリスクがあると判断されるものになる。本研究の場合、PB ナノ粒子自体の開発がそれに当たる。PB ナノ粒子の材料開発は、産総研が長年培ってきたものであり、その技術開発力は企業と比べても産総研に一日の長がある。また、非公開の技術も多数有している状況であった。このような状況で、知財化することなく技術を開示してしまえば、特定企業が周辺技術の特許化等により、技術を囲い込む可能性を否定できない。そうになってしまえば、目的とする多数企業との同時連携が困難となる。

特に、この手法のコア技術である放射性セシウム吸着材として利用するPB ナノ粒子に関する知的財産は特許化し、産総研によるライセンスにより技術をマネジメントすることが肝要と考えた。また、灰除染の基本的な方法や、使用後吸着材の後処理法等も特許化による知財確保を

進めた。

#### ②技術を公開

知的財産および技術ノウハウをすべて産総研がマネジメントすることは理想ではあるものの、前述の通り、産総研が企業に対しすべての技術で優位性を持つわけではなく、さらに、知財化にもコストと時間がかかる。特に、知財化せずとも、特定企業による周辺特許出願等による技術の囲い込みのリスクが少ない要素技術については、積極的に公開し、迅速な技術移転を目指した。

例えば、焼却に関する灰のそれぞれの場所から得られる灰の性状、それらから放射性セシウムを抽出する洗浄法、さらには塊状になった灰の処理法等はプレス発表等により技術を公開している<sup>[6]</sup>。さらに、PB ナノ粒子は、その構造中にシアノ基を有するため、シアン化物の溶出が懸念されるが、シアン化物に関する排水管理についても、論文化により公開している<sup>[34][52]</sup>。

#### ③企業による研究開発の実施

繰り返しになるが、産総研は研究機関であり、事業化はできない。そのため、どのような技術であっても最終的には企業への橋渡しが必要になる。そのため、研究開発開始時点で企業側に優位性がある要素技術については、企業に研究開発推進を進めていただく方が望ましい。これに該当する技術として、製剤等、吸着材を利用可能な形態に成型する手法や、プラントの地元合意、現地施工、運営管理等のマネジメントが挙げられる。

前者の吸着材成型については、例えば粒状体や不織布への担持等が挙げられる。実際産総研ではこの目的に関し、関東化学、日本バイリーン、ユニチカトレーディング等、連携を公開している企業を含め、約10社との共同研究を進めた。多くのケースでは、成型技術自体は企業側に任せ、産総研は開発された吸着材の各種性能評価を担当した。

ここで重要な点は、知的財産の管理となる。同じ目的を有する複数社との同時連携においては、それぞれの企業との成果を切り分けて情報を管理することは極めて困難となる。我々は、この目的を達成するため、情報管理の考え方を以下の通り定め、共同研究契約に盛り込んだ。①産総研に開示した成果は必要に応じて他の共同研究先に開示することができる。②知財を発明した企業の利益確保は特許のライセンスにより行う。③共同研究内で発生した特許については、発明の貢献度により権利割合を決定する。ただし、企業の単願特許であっても、共同研究内で発生した特許については必要に応じて他の共同研究先にライセンスすることとする。これらの内容はすなわち下記の進め方を意味している。



- ・ノウハウ化したい内容は産総研にも話してはならない
- ・産総研に話した内容は産総研と連携している同業他社にも公開される、すなわち、御社も他社の技術を共有でき、開発を加速できる

このフォーマットは、特に共有化すべき要素技術が存在する場合に有効となる。今回の場合は、吸着材の評価技術がそれに当たる。今回連携を進めた多くの企業はこれまで放射性物質の吸着材という分野の専門性が不足しており、吸着材の製造は可能であっても、その評価に弱点があった。吸着材の成型法は企業のコア技術であるが、評価技術自体は逆に各社の材料を横一線で評価したほうが正しい評価が得られる可能性が高いとともに、よい評価を得られた場合の価値も上がる。これらのことから、多数の企業がこのフォーマットに賛同し、共同研究を進めることとなった。

このフォーマットは、研究開発機関のコア技術を実用化する際に極めて有効と考えられる。特に、コア技術を研究開発機関が有していれば、その実用化を目指す企業にとっては研究開発機関との連携は避けられないが、さらに、将来的な標準化の基盤を構築することも可能となる。さらに、異なる要素技術における連携企業が存在することも極めて重要である。今回の場合、吸着材を量産する企業や、プラントにおいてそれを使用する企業等も連携に含まれる。つまり、吸着材成型企業においては、材料を購入する企業や、成型剤を販売する企業との連携が進むため、サプライチェーンの設計が容易となる。研究機関にとっては、サプライチェーンや標準化戦略の設計や構築等が必要になるが、それらも今後研究機関に期待される能力であると考えられる。

#### ④従来技術の活用

研究を加速させるには、可能な部分ではできるだけ従来技術を活用することが望ましい。さらに、いわゆる「枯れた技術」には運用時の安定性や、想定外のリスク低減が期待できる。この技術では、特に焼却技術、灰洗浄技術、排水処理技術、現場管理技術については従来技術の活用を積極的に行った。従来技術であれば、企業側の知見の蓄積も高く、仮に蓄積がなくとも、文献等が多数存在するため、その活用も比較的容易である。

ここまで述べたように、実は橋渡し戦略の策定において最も重要なポイントは③の企業による実施、をいかに推進するか、である。研究開発機関だけではその能力に限界があるとともに、最終的には橋渡しをしなければ技術が事業化できないため、技術はできるだけ早く橋渡しすることが望ましい。さらに、事業化時のサプライチェーンを想定した上で複数社との連携を図ることにより、企業側も効率的

な事業化プランを立てやすくなる。ただし、その実現には知的財産の適切なマネジメントが必要であり、共同研究等の契約締結時に、その条文にフォーマットを書き込み、各企業に理解していただくことが極めて重要であることには留意が必要である。

### 3.2 研究開発時の技術導入法

橋渡し戦略が決まれば、産総研を中心とした研究開発における技術導入法もおのずとパートナーが決まってくる。例えば、橋渡し戦略として③企業による研究開発の実施、を選択した要素技術においては、すべてを産総研として技術導入する必要はない。例えば、吸着材成型に関しては、企業が成型を担当、産総研は評価を主として担当したため、産総研は、評価法のみをブラッシュアップしていけばよい。

ただし、同じ③企業による研究開発の実施、を目指す現場管理では産総研が多くの支援を行う必要があった。それは、今回の目的が放射性セシウムの除染という、突発的に発生した課題であることに起因する。セシウム除染は、極めて重大な課題であるが、政府としても全く検討してこなかった課題のため、技術開発と、さまざまな法対応が同時に進められてきた。よって、それらの法対応方針を適切に理解するとともに、関係機関との連携を通じ、技術側からの要請を適切に発信していくなどの対応がある。具体的には、産総研は国立環境研究所が中心となって立ち上げた飛灰洗浄技術研究会に参画し、「飛灰洗浄技術に関する技術資料（施設性能・設計に係る指針）」の公表に貢献した<sup>153)</sup>。実証試験においても、これらの指針に従う形で進めており、将来的な事業化時までには政府によって決定されると思われる仕様に対し対応ができなくなるというリスクを低減するよう心がけた。

一方、①特許化+技術移転、もしくは②技術を公開、で進める要素技術については、産総研で研究を進める必要がある。そのため、理事がリーダーとなり、所内で各種専門家が集合し、研究チームを立ち上げていった。例えば、プラント設計、カラム設計では化学工学専門家が、吸着材充填カラム表面線量からの吸着量推定では、計算科学チームから研究員が参画し、技術開発を進めた。また、事業化に近いプラント設計では、化学メーカーでの経験者を招聘し、事業化時のプラントイメージを共有しつつ、実証プラントを設計していった。

④従来技術の活用で橋渡しを行う要素技術については、人材は連携企業の研究員の活用や外部招聘で対応し、装置類は購入で対応した。特に留意したことは、事業化時に一般的な手法として利用できることである。焼却や排水処理に関しては、事業化時に実施する企業は決定しておらず、特定の企業しか対応できない技術の導入は全体最

適化を損なうリスクがあるためである。あくまで我々の目的は、産総研コア技術であるPBナノ粒子を利用した灰除染技術開発であるため、それ以外の技術は一般的な技術を利用した方が、PBナノ粒子を利用してくれる企業を幅広く探すことができる。

### 3.3 試験内容の決定

ここまで戦略が固まれば、実際の試験内容については、おおむね誰が、何を実施するかまで決まってくる。あとは利用可能な資源、すなわち予算、人員、時間、既存装置類等から適切な研究開発内容およびスケジュールを決定するのみである。

その中でも一つ留意した点を述べておく。成型吸着材については、実証試験の段階で量産可能なものを利用するように心がけた。具体的には、実証試験には、企業の製造した吸着材だけを使用し、技術移転を終えていない吸着材は使用していない。プラント設計等は必要部材が一般的に購入可能なものであれば、技術内容を明確にするだけでおおむね実現可能であるとともに、コスト計算等もできると考えられる。一方、成型吸着材においては、ラボ試験と量産化では必要となる製造装置が大きく異なるため、企業としては量産の判断が必要となる。量産はできていなくとも、少なくとも量産が可能であること、量産に向けたコスト計算が企業側でできていることが極めて重要と考える。

また、コア技術であるPBナノ粒子の材料最適化に関しては、大学・研究機関と協力して進めた。材料開発レベルでは、大学・研究機関は強力な基盤を有しており、その協力は力強い。また、農業系・環境系の研究機関等は用途側の知見を多く有している。懸念事項としては、同時に行う企業と共同研究を行うため、情報管理が煩雑になることが挙げられる。今回は、大学・研究機関との連携は、材料開発の基盤レベルにとどめた。

### 3.4 企業連携の流れと政府・自治体の連携

戦略および具体的な試験内容についてここまで述べてきた。一方、事業化に向けては、時間的なスケジュール、そのステージごとの戦略も必要になってくる。この研究開発において、他のケースと大きく異なる点は、原子力発電所の事故により、ニーズが突然発生したこと、またその結果、事業の多くが政府・自治体の主導で進められたことである。よって、市場の動きの追跡に関しては、政府・自治体の動きをフォローすることが必要であった。我々は、2011年の6月から農林水産省主導の内閣府予算で進められた科学技術戦略推進費によるプロジェクトに参画し、農地除染に関する研究開発を担った。このプロジェクトでは、産総研に加え、1大学、1研究機関、2企業からなるチームを結成、吸着材による除染技術開発を進めた。このように、

産総研は政府、研究機関、企業の連携を取りまとめるという観点からも大きな役割を担った。

この論文で取り上げた灰除染の研究開発を進めたのは2011年の秋からである。当初は材料メーカーと吸着材の開発に注力しつつ、プラント設計を進めた。このステージで苦労したのは、実証試験場所の確保である。従来国内では法律上、放射性物質は厳重に管理された環境でしか扱うことができなかった。事故に伴い、環境中に飛散した放射性物質についてはこのような管理が難しく、法整備と同時に技術開発が進められた。そのため、環境省の動きを確認しつつ、適切な管理法を策定し、それを自治体および周辺住民に提示し、実証試験の許可を得る、という作業が必要になった。ここで重要なことは、事業の実施者と自治体・周辺住民との信頼関係である。我々は焼却灰処理に関する実証試験を福島県郡山市と川内村の二箇所で行った。前者は郡山チップ工業が自社工場敷地内で実施した試験を技術的に支援した。郡山チップ工業は事故前から長年この地で事業を行っていたため、周辺住民の理解が得られた。後者は東電環境エンジニアリング（現東京パワーテクノロジー、以後、東電環境）との共同実施であった。東電環境は、実証試験開始時にすでに川内村の除染事業を進めていた。川内村では、除染作業について、地元企業が共同実施する形式をとっており、東電環境はその共同体の技術的支援を行っていた。この活動を通じ、自治体との信頼関係が醸成されていたため、実証試験に関しても理解が得られた。

今回は事故という特殊事例であったが、通常の研究開発においても、開発である以上、法律が整備されていないケースは多々ある。法制の適切な理解、法制制定以前からの委員会等の議論の動きを確認した上で方向性の推定を行い、それらをベースに研究開発戦略を立てていく必要がある。

企業連携のステージに関して述べておく。研究開発は素材開発等の「川上」といわれる部分から研究開発を始め、次に吸着材開発、除染法開発といった「川下」の開発を進める想定をする場合が多い。しかし、この進め方には二つの問題がある。一つは、研究開発に時間を要すること。もう一つは、研究初期にサプライチェーンが明確ではなく、ビジネスモデルが立てられないことである。このことから、望ましくは各ステージの研究開発を同時平行的に進めたほうがよい。これは一般的には「コンカレントエンジニアリング」と呼ばれる手法である。研究レベルから進めるためには、研究開発の全体像を明確にし、それを全員で把握すること、研究開発指針のぶれ幅が大きい場合、フィードバックを掛け合う頻度を通常以上に上げることが必要である。

### 3.5 事業化の現状

このように進められた灰洗浄技術開発の成果は図2に記載されている。例えば、関東化学、日本バイリーンは吸着材の開発を進め、すでに一部市販化されている。特に関東化学では、他社に供給するためのPBナノ粒子材料を市販していると共に、自身でも粒状吸着材を開発、販売している。

また、これらの技術は灰除染以外にもさまざまな用途に展開されている。例えば、日本バイリーンの不織布状吸着材はため池からの放射性セシウム拡散防止対策の実証試験に活用され、農林水産省のマニュアルにも記載された<sup>[54]</sup>。また、同様の不織布は環境水中の放射性セシウム濃度測定技術にも展開されている<sup>[8][55]</sup>。

## 4 結論

我々は独自技術であるPBナノ粒子を用い、東京電力福島第一原子力発電所放射能漏えい事故に伴う環境からの放射性セシウム除去技術の開発を進めてきた。この論文では、我々の主たる目的の一つである可燃性汚染物の減容を目的とした灰除染技術の開発について紹介した。この課題は、日本にとって喫緊の課題であるため、通常の研究開発以上に迅速な研究開発が求められてきた。そのため、研究開発自体はもちろん、最終目的を明確にした上で、その目的を最短距離で達成できる連携の構築が極めて重要であった。特に、連携の拡大と、知的財産のマネジメントを両立する仕組みが必要であった。我々は、コア技術の知的財産は極力確保した上で、周辺技術等、企業や他機関が優位性を持つ技術については、企業が中心となって進める方策を取った。その際に、産総研へ企業から開示された知見については、必要に応じて連携企業に開示する、企業の単願特許であっても、連携する他企業へのライセンス付与を可能にする等の方策を取った。

これらの方策により、研究開発を迅速に進めることが可能となった。この方式は今後そのほかの研究開発においても有効な方式になると期待される。ただし、その前提となるのは、研究機関側がコア技術を有しており、その知見および知的財産においては確実な優位性を有することである。さらに、事業化までを見越したサプライチェーンやコスト構造の推定も必要となる。これらはこれまでの研究機関での研究開発において必ずしも重要視されてこなかった。しかし、今後研究機関が日本におけるオープンイノベーションの核を目指すならば、必ず必要となる能力であろう。この研究が、日本における除染の推進に少しでも貢献するとともに、一つの研究機関を核とした研究開発のモデルとなれば幸いである。

## 謝辞

この研究を進めるにあたり、政府機関、自治体、民間企業等、さまざまな方にお世話になりました。ここに感謝いたします。特に実証試験に場所の使用をご許可いただいた川内村、共同研究を通じて多大なご協力をいただいた東京パワーテクノロジー（株）、関東化学（株）、日本バイリーン（株）、郡山チップ工業（株）をはじめとする企業の方々には深く感謝申し上げます。さらに、飛灰洗浄技術研究会の立ち上げ、運営を進めていただいた大迫政浩資源循環・廃棄物研究センター長をはじめとする国立環境研究所の皆様および参加機関の皆様にも大変お世話になりました。

所内では、セシウム除染プロジェクトのリーダーとして推進いただいた一村信吾元副理事長、瀬戸政宏理事、シミュレーション技術開発に深く貢献してくださった小川浩機能材料コンピュータショナルデザイン研究センター上級主任研究員、プロジェクト推進に深く関わっていただいた景山晃元上席イノベーションコーディネータ、宮本裕生技術移転マネージャー、小林秀輝パテントオフィサー、所内での環境放射能実験実施にご尽力いただいた安全管理部放射線管理室上岡晃元室長、吉成幸一室長代理、中岩勝元第五事業所管理監、渡邊修治第五研究業務推進部長、国岡正雄氏、伊藤賢志氏をはじめとする多数の方に支えられてこの研究を推進することができました。ここにお礼申し上げます。

なお、この研究の成果一部は2011年度科学技術戦略推進費（内閣府）、2011年度除染技術実証試験事業（環境省）、2011年度除染技術実証事業（環境省）により得られたものである。

## 参考文献

- [1] 経済産業省: 原子力安全に関するIAEA閣僚会議に対する日本国政府の報告書について, <http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/backdrop/20110607001.html>, 閲覧日2016-01-17.
- [2] 産総研: プルシアンブルーを利用して多様な形態のセシウム吸着材を開発, [http://www.aist.go.jp/aist\\_j/press\\_release/pr2011/pr20110824/pr20110824.html](http://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2011/pr20110824/pr20110824.html), 閲覧日2015-12-19.
- [3] 産総研: ナノ粒子化したプルシアンブルーでセシウム吸着能が向上, [http://www.aist.go.jp/aist\\_j/press\\_release/pr2012/pr20120208/pr20120208.html](http://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2012/pr20120208/pr20120208.html), 閲覧日2015-12-19.
- [4] 産総研: 土壌中のセシウムを低濃度の酸で抽出することに成功, [http://www.aist.go.jp/aist\\_j/press\\_release/pr2011/pr20110831/pr20110831.html](http://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2011/pr20110831/pr20110831.html), 閲覧日2015-12-19.
- [5] 産総研: 植物系放射性セシウム汚染物を除染・減容するための実証試験プラント, [http://www.aist.go.jp/aist\\_j/press\\_release/pr2012/pr20121112/pr20121112.html](http://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2012/pr20121112/pr20121112.html), 閲覧日2015-12-19.
- [6] 川本徹, 伯田幸也, 田中寿, 小川浩, 南公隆, 北島明子, D. Parajuli: 植物系放射性セシウム汚染物の焼却灰を除染する技術を実証, [http://www.aist.go.jp/aist\\_j/press\\_release/pr2013/pr20131120/pr20131120.html](http://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2013/pr20131120/pr20131120.html), 閲覧日2016-06-06.

- [7] 産総研: 水中の低濃度の溶存態放射性セシウムを簡易・迅速に測定, [http://www.aist.go.jp/aist\\_j/new\\_research/2012/nr20120905/nr20120905.html](http://www.aist.go.jp/aist_j/new_research/2012/nr20120905/nr20120905.html), 閲覧日2015-12-19.
- [8] 産総研: 水中の放射性セシウムを素早くモニタリング, [http://www.aist.go.jp/aist\\_j/press\\_release/pr2014/pr20140407/pr20140407.html](http://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2014/pr20140407/pr20140407.html), 閲覧日2015-12-19.
- [9] 産総研: 放射性セシウムを含む玄米の認証標準物質を開発 [http://www.aist.go.jp/aist\\_j/press\\_release/pr2012/pr20120830/pr20120830.html](http://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2012/pr20120830/pr20120830.html), 閲覧日2015-12-19.
- [10] 産総研: 阿武隈川の水中放射性セシウム濃度は低いレベルであることを確認, [http://www.aist.go.jp/aist\\_j/new\\_research/2013/nr20130204/nr20130204.html](http://www.aist.go.jp/aist_j/new_research/2013/nr20130204/nr20130204.html), 閲覧日2015-12-19.
- [11] 産総研: 風に乗って長い距離を運ばれる放射性セシウムの存在形態, [http://www.aist.go.jp/aist\\_j/new\\_research/2012/nr20120731/nr20120731.html](http://www.aist.go.jp/aist_j/new_research/2012/nr20120731/nr20120731.html), 閲覧日2015-12-19.
- [12] 産総研: 放射性物質除染の効果と費用を評価, [http://www.aist.go.jp/aist\\_j/new\\_research/2013/nr20130604/nr20130604.html](http://www.aist.go.jp/aist_j/new_research/2013/nr20130604/nr20130604.html), 閲覧日2015-12-19.
- [13] P. A. Haas: A review of information on ferrocyanide solids for removal of cesium from solutions, *Sep. Sci. Technol.*, 28 (17-18), 2479–2506 (1993).
- [14] Oak Ridge National Laboratory: Quarterly report for liquid waste disposal research (1950).
- [15] G. B. Barton, J. L. Hepworth, E. D. McClanahan, R. L. Moore and H. H. Van Tuyl: Chemical processing wastes—Recovering fission products, *Ind. Eng. Chem.*, 50 (2), 212–216 (1958).
- [16] H. H. Van Tuyl and R. L. Moore: Recovery of fission product cesium from acidic wastes, *Ind. Eng. Chem.*, 51 (6), 741–744 (1959).
- [17] R. Harjula, J. Lehto, A. Paajanen, E. Tusa and P. Yarnell: Use inorganic ion exchange materials as precoat filters for nuclear waste effluent treatment, *React. Funct. Polym.*, 60 (1), 85–95 (2004).
- [18] L. L. Burger, D. M. Strachan, D. A. Reynolds and W. W. Schulz: A summary of available information on ferrocyanide tank wastes, INIS, (1991).
- [19] T. Prevost, M. Blase, H. Paillard and H. Mizuno: Areva's Actriflo-rad water treatment system for the Fukushima Nuclear Power Plant, *Int. J. Nucl. Power*, 308 (2012).
- [20] A. Gay, P. Gillet, B. Ytournal, T. Varet, L. David, T. Prevost, C. Redonnet, G. Piot, S. Jouaville and G. Pagis: Multi-phased, post-accident support of the Fukushima Dai-Ichi Nuclear Power Plant, *WM2012*, 12246 (2012).
- [21] A. Gotoh, H. Uchida, M. Ishizaki, T. Satoh, S. Kaga, S. Okamoto, M. Ohta, M. Sakamoto, T. Kawamoto, H. Tanaka, M. Tokumoto, S. Hara, H. Shiozaki, M. Yamada, M. Miyake and M. Kurihara: Simple synthesis of three primary colour nanoparticle inks of Prussian blue and its analogues, *Nanotechnology*, 18 (34), 345609 (2007).
- [22] M. Ishizaki, K. Kanaizuka, M. Abe, Y. Hoshi, M. Sakamoto, T. Kawamoto, H. Tanaka, and M. Kurihara: Preparation of electrochromic Prussian blue nanoparticles dispersible into various solvents for realisation of printed electronics, *Green Chem.*, 14 (5), 1537–1544 (2012).
- [23] S. Hara, H. Shiozaki, A. Omura, H. Tanaka, T. Kawamoto, M. Tokumoto, M. Yamada, A. Gotoh, M. Kurihara and M. Sakamoto: Color-switchable glass and display devices fabricated by liquid processes with electrochromic nanoparticle “ink”, *Appl. Phys. Express*, 1 (10), 1040021–1040023 (2008).
- [24] S. Hara, H. Tanaka, T. Kawamoto, M. Tokumoto, M. Yamada, A. Gotoh, H. Uchida, M. Kurihara and M. Sakamoto: Electrochromic thin film of Prussian blue nanoparticles fabricated using wet process, *Jpn. J. Appl. Physics*, 46, 945–947 (2007).
- [25] H. Shiozaki, T. Kawamoto, H. Tanaka, S. Hara, M. Tokumoto, A. Gotoh, T. Satoh, M. Ishizaki, M. Kurihara and M. Sakamoto: Electrochromic thin film fabricated using a water-dispersible ink of Prussian blue nanoparticles, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 47 (2), 1242–1244 (2008).
- [26] K.M. Lee, H. Tanaka, A. Takahashi, K. H. Kim, M. Kawamura, Y. Abe and T. Kawamoto: Accelerated coloration of electrochromic device with the counter electrode of nanoparticulate Prussian blue-type complexes, *Electrochim. Acta*, 163, 288–295 (2015).
- [27] R. Chen, H. Tanaka, T. Kawamoto, M. Asai, C. Fukushima, M. Kurihara, M. Watanabe, M. Arisaka, and T. Nankawa: Preparation of a film of copper hexacyanoferrate nanoparticles for electrochemical removal of cesium from radioactive wastewater, *Electrochem. Commun.*, 25 (1), 23–25 (2012).
- [28] R. Chen, H. Tanaka, T. Kawamoto, M. Asai, C. Fukushima, H. Na, M. Kurihara, M. Watanabe, M. Arisaka and T. Nankawa: Selective removal of cesium ions from wastewater using copper hexacyanoferrate nanofilms in an electrochemical system, *Electrochim. Acta*, 87, 119–125 (2013).
- [29] R. Chen, M. Asai, C. Fukushima, M. Ishizaki, M. Kurihara, M. Arisaka, T. Nankawa, M. Watanabe, T. Kawamoto and H. Tanaka: Column study on electrochemical separation of cesium ions from wastewater using copper hexacyanoferrate film, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 303 (2), 1491–1495 (2015).
- [30] D. Parajuli, A. Kitajima, A. Takahashi, H. Tanaka, H. Ogawa, Y. Hakuta, K. Yoshino, T. Funahashi, M. Yamaguchi, M. Osada and T. Kawamoto: Application of Prussian blue nanoparticles for the radioactive Cs decontamination in Fukushima region, *J. Environ. Radioact.*, 151 (P1), 233–237 (2016).
- [31] A. Takahashi, H. Tanaka, N. Minami, M. Kurihara and T. Kawamoto: Simultaneous enhancement of Cs-adsorption and magnetic properties of Prussian blue by thermal partial oxidation, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, 88 (1), 69–73 (2015).
- [32] M. Ishizaki, S. Akiba, A. Ohtani, Y. Hoshi, K. Ono, M. Matsuba, T. Togashi, K. Kanaizuka, M. Sakamoto, A. Takahashi, T. Kawamoto, H. Tanaka, M. Watanabe, M. Arisaka, T. Nankawa and M. Kurihara: Proton-exchange mechanism of specific Cs<sup>+</sup> adsorption via lattice defect sites of Prussian blue filled with coordination and crystallization water molecules, *Dalton Trans.*, 42 (45), 16049–16055 (2013).
- [33] A. Takahashi, N. Minami, H. Tanaka, K. Sue, K. Minami, D. Parajuli, K.M. Lee, S. Ohkoshi, M. Kurihara and T. Kawamoto: Efficient synthesis of size-controlled open-framework nanoparticles fabricated with a micro-mixer: route to the improvement of Cs adsorption performance, *Green Chem.*, 17 (8), 4228–4233 (2015).
- [34] D. Parajuli, A. Takahashi, H. Noguchi, A. Kitajima, H. Tanaka, M. Takasaki, K. Yoshino and T. Kawamoto: Comparative study of the factors associated with the application of metal hexacyanoferrates for environmental Cs decontamination, *Chem. Eng. J.*, 283, 1322–1328 (2016).
- [35] D. Parajuli, A. Takahashi, H. Tanaka, M. Sato, S. Fukuda, R. Kamimura and T. Kawamoto: Variation in available cesium concentration with parameters during temperature induced extraction of cesium from soil, *J. Environ. Radioact.*, 140, 78–83 (2015).
- [36] GR. Chen, Chang, YR. X. Liu, T. Kawamoto, H. Tanaka, A. Kitajima, D. Parajuli, M. Takasaki, K. Yoshino, ML. Chen, YK. Lo, Z. Lei and DJ. Lee: Prussian blue (PB) granules

- for cesium (Cs) removal from drinking water, *Sep. Purif. Technol.*, 143, 146–151 (2015).
- [37] D. Parajuli, Y. Suzuki, M. Sato, A. Takahashi, H. Tanaka and T. Kawamoto: Assessment of the measures for the extraction or fixation of radiocesium in soil, *Geoderma*, 267, 169–173 (2016).
- [38] GR. Chen, YR. Chang, X. Liu, T. Kawamoto, H. Tanaka, D. Parajuli, ML. Chen, YK. Lo, Z. Lei and DJ. Lee: Prussian blue non-woven filter for cesium removal from drinking water, *Sep. Purif. Technol.*, 153, 37–42 (2015).
- [39] D. Parajuli, H. Tanaka, Y. Hakuta, K. Minami, S. Fukuda, K. Umeoka, R. Kamimura, Y. Hayashi, M. Ouchi and T. Kawamoto: Dealing with the aftermath of Fukushima Daiichi nuclear accident: Decontamination of radioactive cesium enriched ash, *Environ. Sci. Technol.*, 47 (8), 3800–3806 (2013).
- [40] 環境省: 伊勢崎市清掃リサイクルセンター21一般廃棄物最終処分場(第三期)浸出水処理施設放流水における放射性セシウム流出対策について, [https://www.env.go.jp/jishin/attach/haikihyouka\\_kentokai/08-ext\\_1.pdf](https://www.env.go.jp/jishin/attach/haikihyouka_kentokai/08-ext_1.pdf), 閲覧日2015-12-20.
- [41] 国立環境研究所: 焼却飛灰の水洗浄による放射性セシウムの除去, [http://www.nies.go.jp/shinsai/techrepo\\_r4\\_140414\\_8-10.pdf](http://www.nies.go.jp/shinsai/techrepo_r4_140414_8-10.pdf), 閲覧日2015-05-18.
- [42] Y. Namiki, T. Ueyama, T. Yoshida, R. Watanabe, S. Koido and T. Namiki: Hybrid micro-particles as a magnetically-guidable decontaminant for cesium-eluted ash slurry, *Sci. Rep.*, 4, 6294 (2014).
- [43] Y. Nishizaki, H. Miyamae, S. Ichikawa, K. Izumiya, K. Takano, N. Kumagai and K. Hashimoto: New Technologies for Decontamination of Radioactive Substances Scattered by Nuclear Accident, *Metall. Mater.*, 58 (1), 283–290 (2013).
- [44] 三菱製紙株式会社: 磁性吸着材を用いた放射性セシウム除染システムについて, <http://www.mpm.co.jp/company/news/pdf/2012/20120517.pdf>, 閲覧日2016-05-15.
- [45] M. Ishizaki, S. Akiba, A. Ohtani, Y. Hoshi, K. Ono, M. Matsuba, T. Togashi, K. Kananizuka, M. Sakamoto, A. Takahashi, T. Kawamoto, H. Tanaka, M. Watanabe, M. Arisaka, T. Nankawa and M. Kurihara: Proton-exchange mechanism of specific Cs<sup>+</sup> adsorption via lattice defect sites of Prussian blue filled with coordination and crystallization water molecules, *Dalton Trans.*, 42 (45), 16049–16055 (2013).
- [46] 宗澤潤一, 西和俊: 最終処分場での効率的保管のための放射性セシウム回収システムの開発, *環境放射能除染学会誌*, 2 (2), 101–110 (2014).
- [47] A. Kitajima, H. Tanaka, N. Minami, K. Yoshino and T. Kawamoto: Efficient cesium adsorbent using Prussian blue nanoparticles immobilized on cotton matrices, *Chem. Lett.*, 41 (11), 1473–1474 (2012).
- [48] A. Kitajima, H. Ogawa, T. Kobayashi, T. Kawasaki, Y. Kawatsu, T. Kawamoto and H. Tanaka: Monitoring low-radioactivity caesium in Fukushima waters, *Environ. Sci. Process. Impacts*, 16 (1), 28–32 (2014).
- [49] H. Ogawa, A. Kitajima, H. Tanaka and T. Kawamoto: Numerical evaluation of Cs adsorption in PB column by extended Langmuir formula and one-dimensional adsorption model, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 303 (2), 1287–1290 (2014).
- [50] 厚生労働省: 事故由来廃棄物等処分業務特別教育テキスト, (2013).
- [51] KM. Lee, M. Asai, T. Uchida, T. Kawamoto, K. Minami, A. Takahashi, D. Parajuli, G. Kido, M. Takasaki, K. Yoshino and H. Tanaka: Decomposition of Iron Hexacyanoferrate Microcapsule Beads Using Superheated Steam, *Chem. Lett.*, (2016) (in press).
- [52] D. Parajuli, H. Noguchi, H. Tanaka, T. Kawasaki, Y. Kawatsu, T. Kobayashi and T. Kawamoto: Effective removal of hexacyanoferrate anions using quaternary amine type ion exchange resin, *J. Environ. Chem. Eng.*, 3 (4), 2448–2452 (2015).
- [53] 国立環境研究所: 飛灰洗浄技術に関する技術資料 (施設性能・設計に係る指針), (2014).
- [54] 農林水産省: ため池の放射性物質対策技術マニュアル, <http://www.maff.go.jp/j/press/nousin/saigai/150327.html>, 閲覧日2016-02-28.
- [55] 産総研: 海水中の低濃度放射性セシウムを迅速にモニタリング, [http://www.aist.go.jp/aist\\_j/press\\_release/pr2016/pr20160205/pr20160205.html](http://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2016/pr20160205/pr20160205.html), 閲覧日2016-02-28.

#### 執筆者略歴

川本 徹 (かわもと とおる)

1992年大阪大学基礎工学部物性物理工学科卒。1997年大阪大学大学院基礎工学研究科物理系物性学専攻博士課程修了。同年通商産業省電子技術総合研究所に入所。以降、外部応答性材料の理論的研究に従事。2001年より産総研ナノテクノロジー研究部門研究員、2006年同主任研究員等を経て、2010年ナノシステム研究部門分子ナノ物性グループ長、グリーンテクノロジー研究グループ長、2015年ナノ材料研究部門ナノ粒子機能設計グループ長。2016年より山形大学理工学研究科客員研究員。この論文では、研究開発全体の統括を担当。



田中 寿 (たなか ひさし)

1994年東京大学理学部化学科卒。1999年東京大学大学院理学系研究科化学専攻博士課程修了。博士(理学)。同年より日本学術振興会特別研究員として、分子科学研究所にて分子性超伝導体の研究に従事。2002年産総研に入所。ナノテクノロジー研究部門研究員、2007年同主任研究員、2010年ナノシステム研究部門主任研究員、2015年ナノ材料研究部門主任研究員。この論文では、イオン吸着材料等の機能性材料の開発、評価を担当。



伯田 幸也 (はくた ゆきや)

1988年東北大学工学部化学工学科卒。1993年東北大学大学院工学研究科化学工学専攻中退。同年東北大学工学部助手。2001年産総研に入所。超臨界流体研究センター研究員。2007年経済産業省製造産業局化学課研究開発専門職。2008年産総研コンパクト化学プロセス研究センター主任研究員、2010年ナノシステム研究部門主任研究員を経て2015年ナノ材料研究部門ナノ粒子構造設計グループ長。この論文では、焼却灰除染実証試験を担当。



高橋 顕 (たかはし あきら)

2009年京都大学物理工学科卒。2011年京都大学大学院材料工学専攻修士課程修了。同年産総研に入所。2011年からナノシステム研究部門グリーンテクノロジー研究グループ研究員。2013年から同所に所属するとともに東京大学大学院理学研究科化学専攻博士課程に進学、2015年より産総研ナノ材料研究部門ナノ粒子機能設計グループ研究員。この論文では、吸着材の合成と物性研究を担当。



PARAJULI Durga (パラジュリ ドゥルガ)

2002年トリバン大学(ネパール)物理化学修士。2006年佐賀大学終了。博士(工学)。同年佐賀大学化学工学部博士研究員。2008年より3年間日本原子力研究開発機構原子ビーム研究部門博士研究員。2011年産総研ナノシステム研究部門研究員。2014年ナノシステム研究部門グリーンテクノロジー研究グループ研究員。2015年ナノ材料研究部門ナノ粒子機能設計グループ研究員。この論文では、焼却灰からのセシウム溶出法の開発および吸着材の開発を担当。



南 公隆 (みなみ きみたか)

2005年東北大学大学院工学研究科化学工学専攻博士課程修了。同年産総研コンパクト化学プロセス研究センター、2006年東北大学多元物質科学研究所、2007年11月東北大学原子分子材料科学高等研究機構、2010年東北大学未来科学技術共同研究センターで助教として、超臨界流体とナノ粒子合成に関する研究に従事。2012年3月に産総研ナノシステム研究部門に入所し、2013年10月より同主任研究員。この論文では、実証試験プラント設計等を担当。



保高 徹生 (やすたか てつお)

2000年京都大学農学部地域環境工学科卒。2002年京都大学大学院農学研究科博士前期課程修了。同年国際航業に入社。2007年横浜国立大学大学院環境情報学府博士後期課程修了。2011年より産総研地圏資源環境研究部門研究員、2013年同主任研究員。この論文では、モニタリング技術の開発、現地適用を担当。



内田 達也 (うちだ たつや)

1970年山梨大学工学部発酵生産学科卒。同年日立化成工業株式会社入社。以降、生産設備と一体化した環境修復、廃棄物リサイクル事業部門で研究開発に従事し海外プラント輸出にも展開。1995年住宅設備部門で設計部長、取締役工場長、2004年本社CSR統括部理事環境安全部長、2005年から日本原燃株式会社再処理委員会委員受託。2008年に内田技術士事務所設立、2011年産総研技術支援アドバイザー、2015年から客員研究員。この論文では、プラント設計等を担当。



## 査読者との議論

### 議論1 全体について

コメント(清水 敏美:産業技術総合研究所)

この論文は、国内で未曾有と言える東京電力福島第一原子力発電所の放射性物質漏えい事故に対して、喫緊の行政ニーズに応えるブルシアンブルー(PB)ナノ粒子材料をコアとする焼却灰除染技術に関して述べています。ナノ粒子から吸着材料へ、さらに吸着システム、プラント構築まで、ナノメートルからメートルサイズに至る広いサイズ領域をシームレスに繋いだ典型的なナノテクノロジー技術を紹介しています。特に、全体課題の俯瞰から独自の研究戦略、異分野研究者や企業、政府、自治体、地元住民等のステークホルダーとの連携、調整等、非常に特異的な環境と条件で構築された関連技術が述べられ、シンセシオロジーにふさわしい内容と判断します。

コメント(小林 直人:早稲田大学)

この論文は、東日本大震災に伴う、東京電力福島第一原子力発電所からの漏えい放射性物質の除染という喫緊の課題を、PBナノ粒子を利用して極めて短期間に達成した研究開発の報告であり、また企業との連携により実証・実用化という最終目標まで到達したことまでを示した非常に有益な論文です。そのためシンセシオロジーに掲載するのにふさわしいと考えられます。一方で、要素技術であるPBナノ粒子による除染効果の科学的説明が不足していると思われるので、その点の追加を期待します。

### 議論2 研究開発体制を表す図

コメント(清水 敏美)

シンセシオロジーを構成するに当たった要素技術およびその統合シナリオに関する説明は図2、図4、および表2等に述べられています。一方、当該研究は通常のユーザーや実用化企業のみならず、政府、県・市・町・村等の関係自治体、地元住民等がステークホルダーであり、関連法令が場合によっては未整備の状況下、緊急性を要する課題解決を成し遂げてきた特異的な研究開発に位置づけることができます。このような多様で複雑な連携・相互関係とコンプライアンスの束縛の中で推進してきた研究ですが、論文中にある図面だけではその複雑性や困難性を表現するには不十分な気がします。

例えば、産総研では以前、産学官連携が異なる3種類の形態に分類されていた記憶があります。それは、通常共同研究や委託研究等の「1対1」の連携、研究コンソーシアムやプラットフォーム等の「1対多」の連携、技術研究組合や研究拠点等の「多対多」の連携です。この研究では、最初は企業との共同研究でPBナノ粒子の量産化と吸着材開発から始まった「1対1」や「1対多」の連携体制が最終的にはどのような連携体制になっていったのか、第4の分類とも考えられる新たな連携枠組みがあるのか等、一般読者も非常に興味ある点だと思います。そこで、可能であれば、当該研究開発を取り巻く環境(ステークホルダーを含む)が時系列でどのように推移してきたのか、もし不可能であれば、最終場面での研究開発体制(ステークホルダーを含む)を示す図を描くことはできないでしょうか。

回答(川本 徹)

図に表現するのは非常に困難であると判断しましたので、この論文において3.4「企業連携の流れと政府・自治体の連携」を挿入し、説明を加えました。

### 議論3 企業との連携方法

質問・コメント(小林 直人)

この論文では、3.1の「橋渡し戦略」の部分が系統的に大変よく書けていて極めて重要だと思います。また今後、大学を含めて「橋渡し研究」を行う多くの人たちに有益な記述だと思います。ただ、多くの産学連携を見ているとなかなかうまくいかないのが実情です。そこで今回の経験をともに企業への「橋渡し」を行う際の秘訣のようなものがあれば、是非教えてください。

回答(川本 徹)

お褒めいただき、ありがとうございます。研究機関側の独自技術をベースに実用化を目指す場合について、川本が重要と考えている事柄を下記に記載します。企業側から研究ニーズが持ち込まれた場合は事情が異なりますのでご注意ください。

基本的には、表2を形式知化することが重要と考えます。具体的には以下の通りです。

(1) ビジネスモデルをイメージし、創造図でもよいので形式知化することがもっとも重要と思います。一般的にはビジネスモデルは企業が描くもので、研究機関側の仕事ではない、という認識かと思えます。しかし、そのような進め方では、企業側のビジネスモデルを描くことが難しい場合、技術の善し悪しはまったく関係なく頓挫してしまいます。最終的なビジネスモデルを描くのは当然各企業側

の責任によってなされるものだと思いますが、研究開発のスタート時点では、研究機関側と企業側はその詳細を把握していない状態ですので、研究機関側がそのたたき台を提示することは極めて重要だと思います。

(2) サプライチェーンの設計も重要視しています。大企業相手の場合、一社ですべてをまかなえる場合もありますが、中小企業ではそうは行きません。中小企業がビジネスモデルを構築する場合、例えば川上の材料提供企業等は研究機関側がある程度提示する必要がありますと思われる。

(3) 知財の構築およびハンドリング法の検討も重要かと思われます。少なくとも、今回のような多数企業を巻き込んだ事業化を目指す場合、産総研が基本知財を確保していなければ上記のような絵を描いても、それに企業側がついてくる理由がありません。

研究以外のところを重点的に記しましたが、技術が秀でていることは最優先課題です。このあたりについては、3.4に少し記載しました。

いろいろと書きましたが、残念ながら我々の研究もゴールにたどり着いたわけではありません。企業が吸着材を市販化し、省庁のマニュアルに記載されたことから、「死の谷」は乗り越えたと考えています。一方、本当に社会貢献するには、産業化するべく「ダーウィンの海」を越える必要があります。現状ではセシウム除染の進捗、進め方が当初と多少異なっていることもあり、産業化には至っていません。ここは完全に企業の仕事ではあるわけですが、その中で研究機関に何ができるかは検討課題かと思えます。

#### 議論4 吸着材の保管方法

質問・コメント（小林 直人）

「2.2.4 廃棄物の保管・処分の検討」において、加熱水蒸気を利用したマイルドな酸化法の確立の記述があります。これはこの研究開発の中でも極めて重要な技術だと思いますので、もし既発表論文があ

れば参考文献を記してください。初めての記述であれば「多大な酸化熱」の数値等を含めてもう少し詳しい説明があると思います。

回答（川本 徹）

論文が2016年3月25日に公開されましたので参考文献[51]として引用いたしました。

#### 議論5 ヘキサシアノ鉄錯体の科学

質問（清水 敏美）

ヘキサシアノ鉄錯体のセシウム吸着性能において、鉄、コバルト、ニッケル、銅、亜鉛等の金属種の相違や金属/鉄シアノ基/水分等の組成の相違等、どのような影響を与えるのか実験科学的に証明されているのでしょうか。現実問題として吸着操作は多様で複雑な水環境条件（温度、各種イオン共存、他の分子混合物の存在、pH条件、濃度等）において実施する必要があります。分析化学の観点から、最適の金属種と組成は条件ごとに自明なのでしょうか？あるいは現場では、やはり実際の吸着材ごとに吸着実験を実施する必要があるのでしょうか。分析化学や科学的な観点から説明をお願いします。

回答（川本 徹）

論文レベルでの最適解はかなりの部分までわかっていると思います。例えば、金属種変更によるセシウム吸着容量、アルカリ耐久性等は検討が進んでいます。ただ、それぞれの金属種に関して、さらに組成を細かく見ていく、という仕事は余りありません。我々のほうでは、吸着後の溶出等の検討等を行い、組成を決定しています。なお、プルシアンブルーだけは他の金属置換した材料と多少違うところがあり、まだセシウム吸着メカニズムは完全にはわかっていません。この議論はこの論文の趣旨から外れますので、検討を別途行い、別の機会に発表したいと思えます。