

放射能汚染土壌の分級洗浄処理

井 出 一 貴 三 浦 俊 彦
 神 徳 敬 高 田 尚 哉
 (本社技術本部) (本社技術本部)

Classification Washing Treatment of Radioactive Cesium-Contaminated Soil

Kazuki Ide Toshihiko Miura
 Takashi Jintoku Naoya Takada

Abstract

Soil washing treatment was conducted for remediation of radioactive cesium-contaminated soil. According to the soil washing test results, radioactive cesium in soil exists mainly in fine soil particles. Therefore separating the fine-grained fraction from soils reduces the radioactive cesium concentration of soils. The coarse-grained fraction can be handled by some post-processing treatments. Radioactive cesium in the coarse-grained fraction was efficiently reduced by surface attrition using a shaker and hydrochloric acid immersion. Similarly, some pre-processing treatments using a shaker and mill for the soil, which included the fine-grained fraction, could reduce the concentration of radioactive cesium. The coagulation-sedimentation method using a flocculant was shown to be effective for muddy water treatment.

概 要

放射性セシウム含有土壌(放射能汚染土壌)の浄化を目的として、分級洗浄処理の室内試験をおこなった。放射性セシウムは細粒分に多く存在し、細粒分を除去する分級洗浄は放射能濃度の低減に効果があった。分級後の粗粒分を対象として、後処理の検討をおこなったところ、表面研磨や塩酸浸漬処理で放射能濃度をさらに低減することができ、表面研磨では粒径が大きいほど、塩酸浸漬では粒径が小さいほど効果が高かった。また、分級洗浄前の全粒径の土壌を対象とした前処理の検討としてロッドミルや振とう研磨などの物理的な表面研磨処理を検討したところ、分級洗浄のみと比較して各粒径の放射能濃度を低減できることがわかった。分級洗浄に伴い発生する濁水の浮遊物質と放射能濃度の関係から、濁水処理として凝集沈殿処理をおこなうことで放射能濃度を低減できることを確認した。

1. はじめに

2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震の津波により発生した福島第一原子力発電所の事故で、大量の放射性物質が環境中に放出され、放射能汚染土壌問題が顕在化した。放射性物質は広域に拡散し、降雨水に溶解したり、大気中の塵に吸着した形で地表に沈降したと考えられる。これら放射性物質(主に放射性セシウム)は、地表面に存在していることから、放射線量を下げる対策として、表土のはぎ取りや反転耕などの対策が検討、実施されている。表土のはぎ取りでは、大量の土壌が発生すると推測されている。これら土壌を効率的に保管するためには、減容化することが必要である。放射能汚染土壌を減容化する一つの手法として分級洗浄処理が検討されている。¹⁾分級洗浄処理は、汚染物質の付着している細粒分(地盤工学的には粒径0.075mm未満の土粒子)を除去することで、汚染物質の付着の少ない砂分などを浄化土として分離回収することを目的としている。

本報文では、産地の異なる複数の放射能汚染土壌に対して室内試験で分級洗浄処理を行い、その洗浄効果を確

認した。また、放射性物質濃度(以降放射能濃度)のさらなる低減効果を達成するために、洗浄後の粗粒分を対象とした酸や塩類などの浸漬処理、表面研磨処理などの後処理や、分級洗浄処理前の土壌を対象とした同様な処理(前処理)の検討をおこなった。加えて分級洗浄に伴い発生する濁水の処理試験などについて報告する。Fig. 1 に検討フローを示す。

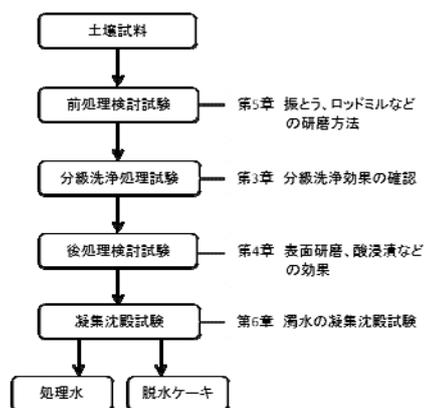


Fig. 1 室内試験の検討フロー
 Flow Chart of Laboratory Experiment

2. 分級洗浄処理の概要

分級洗浄処理は、重金属汚染土壌の浄化技術の一つとして多くの適用実績がある。土中の重金属類は様々な形態で存在しているが、吸着や沈殿等により土粒子の表面に付着して存在している場合が多い²⁾。今回対象とする放射性セシウムは、イライト、パーミキュライトなどの粘土鉱物や雲母に多く吸着し、また、雲母類の風化によって部分的に膨張した末端部の層荷電に特異的に吸着されることが知られており、重金属類と同様に、土壌の細粒分に多く吸着していると考えられる。分級洗浄処理は、一般には湿式分級により放射性セシウムの付着量の多い細粒分を分離・除去し、付着量の少ない粗粒分を浄化土として有効利用する方法である。

分級点は地盤工学的に示された0.075mmが一般的であり、0.075mm未満を細粒分、以上を粗粒分としているが、実際には、事前試験を行い、洗浄効果のある分級点を採用している。分級しても粗粒分の放射能濃度が高い場合には、分級洗浄は適用できない。そのため、粗粒分の放射能濃度をさらに低減して技術の適用範囲を拡大するため、湿式分級の前・後にいろいろな処理を追加することも提案されている^{3) 4)}。

3. 分級洗浄試験

3.1 目的

採取した放射能汚染土壌を対象に、分級洗浄処理を行い、粒度分布と各粒径画分の放射能濃度を測定して、粒径毎の放射性物質の存在割合を調べて、分級洗浄処理の適用性を調べた。

3.2 試料土

Table 1 に試料土の性状を示す。福島県内のグラウンドなどから採取した土壌で、放射性物質を含有していた。放射能濃度は、ゲルマニウム半導体検出器によるγ線スペクトロメトリーでセシウム134とセシウム137濃度を測定し合計したもので、以降の放射能濃度はすべてこの合計値で示す。試験には、試料毎に混合均一化したものを用いた。

3.3 試験方法

目の開きが2mm, 0.5mm, 0.075mmのふるいを用いて、試料土を分級した。湿土500gと水250mlを混合・攪拌し、2mmふるいにかけた。その際、ふるい上で水250mlによるすすぎ洗いをおこなった。2mmふるいを通過した濁水を0.5mmふるいの上にあげ、すすぎ洗いをおこなった。同様に0.075mmふるいまで段階的にすすぎ洗いを行い、最終的に4倍量の水2,000mlを用いた。使用した水の放射能濃度は10Bq/L以下であった。0.075mm未満の細粒分の入った濁水を用いて沈降分離を行い、0.020mm未満と0.020mm以上に分けた。その後、各粒径の土壌を乾燥させて、質量と放射能濃度を測定した。

Table 1 試料の性状
Properties of Soil Samples

		土壌の種類		
		A	B	C
含水比	%	7.6	19.3	19.6
pH	-	7.8	7.6	8.7
放射能	Cs134 Bq/kg	5,700	20,000	570
	Cs137 Bq/kg	7,700	26,000	730
	合計 Bq/kg	13,000	46,000	1,300

Table 2 分級洗浄試験の結果
Results of Classification Washing

項目	粒径	土壌の種類		
		A	B	C
粒度分布 (%)	>2mm	29.2	14.8	4.7
	0.5~2mm	36.3	39.9	24.6
	0.075~0.5mm	24.5	26.5	33.8
	0.020~0.075mm	7.7	11.0	16.3
	<0.020	2.3	7.8	20.6
放射能濃度 (Bq/kg)	>2mm	560	6,600	1,800
	0.5~2mm	1,200	5,500	780
	0.075~0.5mm	5,300	25,000	630
	0.020~0.075mm	47,000	140,000	4,000
	<0.020mm	160,000	260,000	4,000

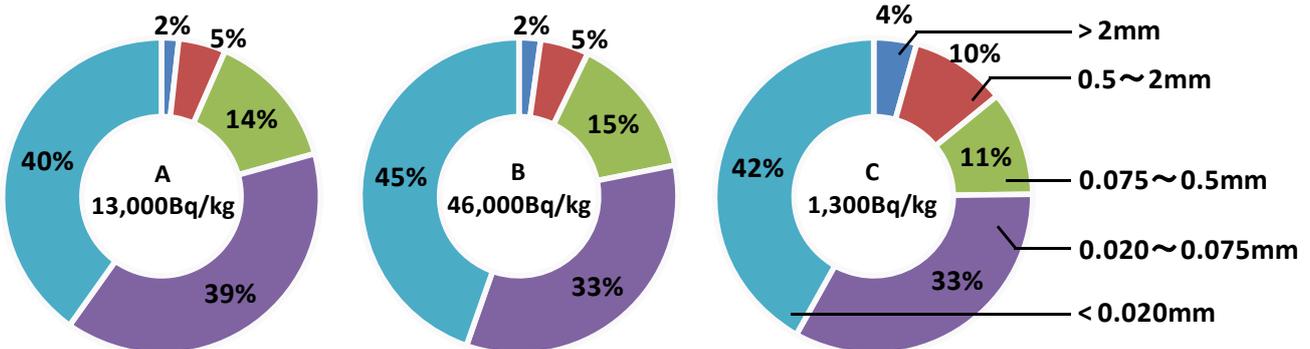


Fig. 2 各土壌の粒径毎の放射能存在割合
Radioactive Cesium Distribution for Fraction of Three Soil Samples

3.4 試験結果

Table 2 に分級処理後の土壌の各粒径の質量割合と放射能濃度の測定結果を示す。

A土壌は、細粒分が10%、B土壌は約20%、C土壌は約37%であった。C土壌の2mm以上を除くと粒径が小さくなるにつれて、放射能濃度が高くなる傾向が見られた。放射性セシウムが細粒分への吸着が多いと想定した通りの結果であった。Fig. 2 に各土壌の粒径毎の放射能存在割合を示す。これは、各粒径の質量割合に粒径毎の放射能濃度を掛けて合計したものから各粒径の放射能存在割合を計算したものである。各土壌で、細粒分に放射能全体の3/4以上が存在しており、細粒分を分級することで、粗粒分として回収できる土壌の放射能濃度が全体土壌の放射能濃度の21~25%にまで下げることができた。分級洗浄処理により、細粒分を除去することは、土壌の放射能濃度の低減に一定の効果があることがわかった。

4. 分級洗浄後処理の検討

4.1 目的

分級洗浄処理により細粒分を分けることで、放射能濃度を低減可能なことがわかったが、分級洗浄処理後の粗粒分に初期土壌の21~25%程度の放射能濃度があることから、粗粒分に細粒分が付着していること、または、粗粒分に放射性物質が吸着していることが考えられた。そこで分級洗浄後の粗粒分を対象として、さらに放射能濃度を低減する方法の検討をおこなう。

4.2 分級洗浄後処理

4.2.1 後処理試験方法 A土壌の分級洗浄後の0.075mm以上(粗粒分)の各粒径画分の土壌を用いて、以下の各処理をおこなった。

- 1) 超音波洗浄:粒径画分土壌1に対して10倍量の水を加えて、卓上超音波発生器(100W,22.5kHz)使用し、30分洗浄した。
- 2) 塩酸浸漬:粒径画分土壌1に対して4倍量の1M塩酸溶液を加え、12時間静置した。
- 3) 酢酸アンモニウム溶液浸漬:2)と同様に1M酢酸アンモニウム溶液を加え、12時間静置した。
- 4) 表面研磨:粒径画分土壌1に対して0.5倍量の水を添加し、振とう機で12時間振とうした。

各処理後に0.075mmふるい上ですすぎ洗いをを行い、ふるいに残留した試料を乾燥させた後、質量と放射能濃度を測定した。

4.2.2 後処理試験結果 分級洗浄後の放射能濃度を100としたときの各処理後の放射能濃度の残存率をFig. 3 に示す。

超音波洗浄では、粒径2mm以上、0.5~2mmでは処理後の方が高い値を示し、0.075~0.5mmでは分級洗浄と変わらない値を示して、効果が確認できなかった。塩酸浸漬

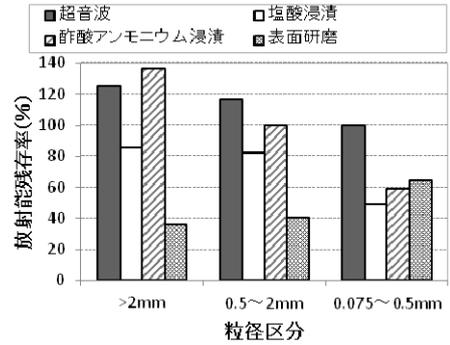


Fig. 3 各処理後の放射能残存率
Radioactive Cesium Residual Rate of 4 Types Post-processing

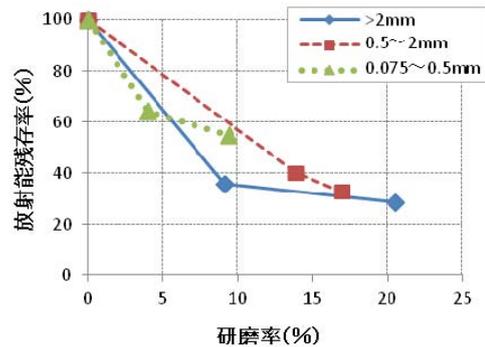


Fig. 4 A土壌の研磨率と放射能残存率の関係
Relation between Attrition Rate and Radioactive Cesium Residual Rate of Post-processing by Attrition (A-soil)

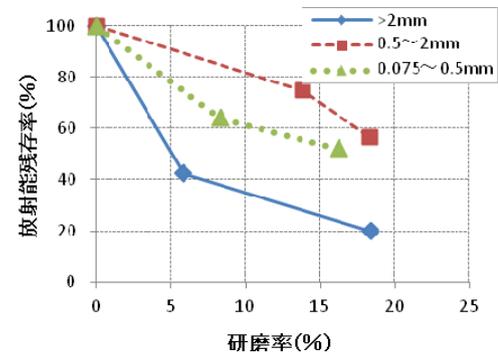


Fig. 5 B土壌の研磨率と放射能残存率の関係
Relation between Attrition Rate and Radioactive Cesium Residual Rate of Post-processing by Attrition (B-soil)

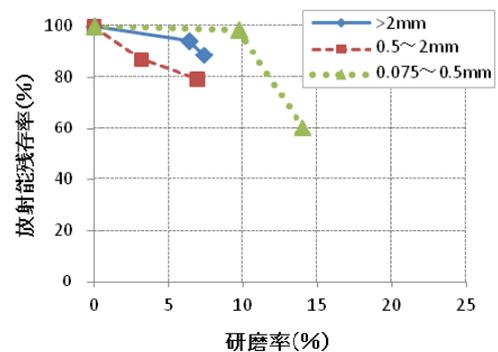


Fig. 6 C土壌の研磨率と放射能残存率の関係
Relation between Attrition Rate and Radioactive Cesium Residual Rate of Post-processing by Attrition (C-soil)

で50~80%の残存率で一定の効果が見られた。酢酸アンモニウム溶液浸漬では、粒径が0.075~0.5mmの区分で60%の残存率であったが、それ以外では効果がみられなかった。表面研磨では36~64%の残存率であり、粒径が大きい画分ほど効果が見られた。詳しいことは4.3.2で述べるが、Fig. 3に示す表面研磨処理の研磨率は粒径2mm以上では9%、粒径0.5~2mmでは14%、粒径0.075~0.5mmでは4%であった。放射能濃度の低減効果が高いのは表面研磨であった。分級洗浄で取りきれなかった細粒分や表面に付着した放射性物質が研磨することで除去できたと考えられる。

そこで、次節において、B土壌、C土壌も対象とした表面研磨処理に係わる試験をおこなった。

4.3 表面研磨処理

4.3.1 表面研磨処理試験方法 土壌の種類による違いをみるためA土壌、B土壌、C土壌の分級洗浄後の土壌(粗粒分)を用いて4.2.1の4)表面研磨処理をおこなった。また、研磨の度合いによる違いをみるために研磨時間を12時間と72時間として、表面研磨による質量低減と放射能残存率を調べた。

4.3.2 表面研磨処理試験結果 試験結果をFig. 4~6に示す。縦軸に処理前の放射能濃度を100としたときの処理後の放射能濃度の残存率をとり、横軸に研磨率(土壌の初期の質量から表面研磨処理後の土壌を引いた値を初期の質量で除したものを)をとった。

各土壌ともに研磨率が大きくなるにつれて放射能濃度の低減効果は見られたが、C土壌は研磨率も低く、低減効果は大きくなかった。A土壌では、粒径2mm以上と0.5~2mmで最大75%の低減が見られた。B土壌では粒径2mm以上で80%の低減効果が見られた。A、B土壌では粒径が2mm以上の粒径画分で低減効果が大きかった。土壌による残存率の違いは構成鉱物の種類などによって表面を研磨しやすいかどうかなどの違いによるものと考えられる。

4.4 分級洗浄後処理のまとめ

分級洗浄後に粒径の大きなところ(粗粒分)に残る放射性物質については、土壌種類によっては、分級洗浄処理後に表面研磨処理を組み合わせることで放射能濃度を低減できることがわかった。

5. 分級洗浄前処理の検討

5.1 目的

分級洗浄後の処理で、研磨処理が有効であることがわかった。研磨処理することで、細粒分が発生して除去するために再度洗浄、ふるいがけなどの処理が必要となる。分級洗浄の工程の前処理として土壌の解泥を行っているが、そこで、研磨等の処理を実施し放射能濃度の低減に効果があれば、処理効率の向上がはかれる。そこで、全



Photo 1 ロッドミル試験状況
Pot-mixing with Iron Rod Weight

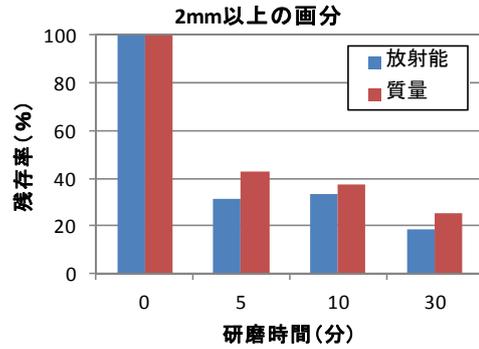


Fig. 7 研磨時間と質量、放射能残存率の関係 (2mm以上)

Relation between Pot-mixing Time and Residual Rate of Radioactive Cesium and Particle Weight (>2mm)

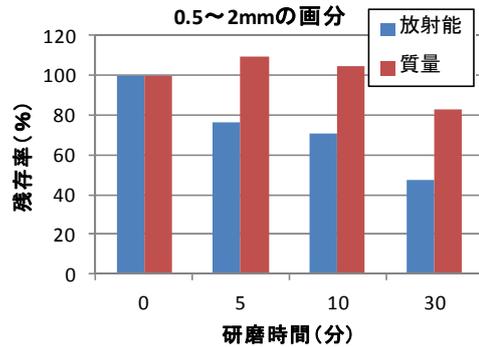


Fig. 8 研磨時間と質量、放射能残存率の関係 (0.5~2mm)

Relation between Pot-mixing Time and Residual Rate of Radioactive Cesium and Particle Weight (0.5~2mm)

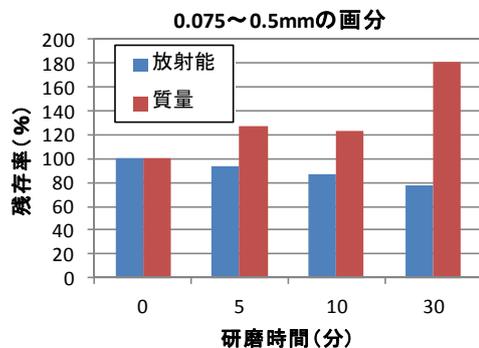


Fig. 9 研磨時間と質量、放射能残存率の関係 (0.075~0.5mm)

Relation between Pot-mixing Time and Residual Rate of Radioactive Cesium and Particle Weight (0.075~0.5mm)

粒径を対象とした研磨等の処理の検討をおこなった。

5.2 分級前処理

5.2.1 前処理試験方法 A土壌を用いて、研磨処理の検討をおこなった。研磨の方法は以下の2種類を検討した。また、ロッドミルの試験ケースで研磨時間の検討と、洗浄液として水とシュウ酸+シュウ酸アンモニウムの混液の2種類をおこなった。混液は非晶質の鉄やアルミニウムを溶かして吸着している放射性物質の除去効果があるかどうかの確認のため使用した。

- 1) 振とう研磨：ポリ容器に湿潤土壌500g、水500mlを添加し、振とう機で4時間振とうした。
- 2) ロッドミル研磨：鉄製のポットミル内径16cmに湿潤土壌500g、洗浄液500mlを添加し、円柱形状のロッド(1本あたり180g)を5本入れた。回転数は60rpmとし5～30分間運転した。試験状況をphoto 1に示す。

5.2.2 前処理試験結果 ロッドミルによる研磨時間の比較試験の結果をFig. 7～9に示す。粒径区分ごとのグラフで、縦軸に質量および放射能濃度の残存率を表す。横軸に研磨時間を示す。研磨時間0は分級洗浄のみのケースを表し、質量、放射能ともに100として、ロッドミルで処理した後の残存割合を示す。

2mm以上の粒径画分では、研磨時間が長くなるほど質量は減少した。30分研磨では75%程度減少した。5分と10分では60%前後で大きな違いはなかった。放射能濃度は70～80%程度の減少が見られたが、時間による大きな差はなかった。0.5～2mmの粒径画分では、5分、10分のケースでは質量が少し増えた。これは2mm以上の画分が一部破碎されて0.5～2mmの画分に移行したためと考えられる。30分では20%程度減少した。放射能濃度は5分、10分のケースでは70～80%程度残存し、30分研磨でも50%残存した。0.075～0.5mmの粒径画分では、いずれの研磨時間でも質量が増加し、30分研磨では1.8倍に増えている。

放射能濃度は研磨時間とともに減少しているが、質量が増えた分の希釈効果だけでなく、一部が0.075mm以下の微細粒子(放射能濃度が相対的に高い部分)となって除去された効果によると考えられる。研磨時間が増えても細粒分はあまり増えずに粒径が0.075～2mmの画分が増えている結果となった。ロッドミルでは、研磨効果よりも打撃による破碎の効果が大きく、粒径の2mm以上の大きい画分に作用して、0.075～2mmの画分がもとの土壌よりも増えたと考えられる。

放射能濃度の減少程度や質量の残存量から振とう研磨との比較や洗浄液の比較をおこなうロッドミルの運転時間を5分とした。

分級洗浄のみの各粒径画分の質量を100としたときの各処理後の質量残存率をFig. 10に示す。また、同様に放射能濃度を100としたときの各処理後の放射能濃度の残存率をFig. 11に示す。

質量残存率の変化では、振とう、ロッドミルともに2

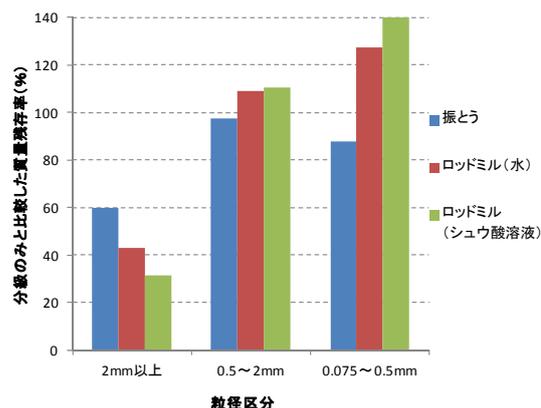


Fig. 10 研磨試験後の質量残存率
Residual Rate of Each Soil Particle Size by Three Type Attritions

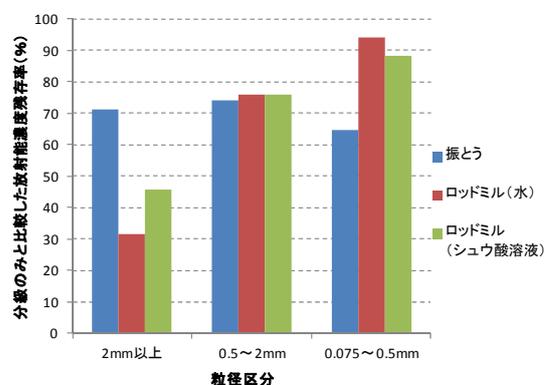


Fig. 11 研磨試験後の放射能残存率
Residual Rate of Each Soil Fraction's Radioactive Cesium by Three Type Attritions

mm以上の粒径で大きく減少しており、振とうで40%、ロッドミルで70%程度の減少であった。0.5～2mm、0.075～0.5mmでは変化が少なく、振とうでは3～12%程度の減少、ロッドミルでは逆に8～30%程度増加した。0.075mm以下の細粒分の増加は振とうの方が大きかった。

放射能残存率では、振とう研磨では、各粒径区分で30～35%の減少であった。ロッドミルでは2mm以上で70%と大きな減少であったが、0.5～2mmでは25%、0.075～0.5mmでは6%の減少であり、粒径が細かいほど放射能濃度の減少が見られなかった。質量残存率と同じような傾向であった。

洗浄液の比較では、水とシュウ酸とシュウ酸アンモニウムの混液では、混液による効果はほとんどみられなかった。

5.3 分級洗浄前処理のまとめ

研磨による前処理でも、分級洗浄のみに比べて放射能低減効果があることがわかった。粒径の大きいところはロッドミルによる放射能低減効果があるが、粒径の細かいところでは、振とう研磨を併用した方が、放射能低減効果が高かった。もとの土壌の放射能濃度は、細かい粒径が高かったため、全体の低減効果としては振とう研磨

の方の効果が高かった。

6. 濁水処理の検討

6.1 濁水処理

分級洗浄処理に伴い、細粒分を含んだ濁水が発生する。発生した濁水は凝集沈殿処理を行い、脱水ケーキとして処分する。土壌に吸着した放射性セシウムは水溶性の形態は少ないことから、濁水の放射能濃度は細粒分に起因していると考えられる。濁水処理時に浮遊物質量(SS)を落とせば、その後の水処理などは軽減できると考えられる。そこで、土壌の分級洗浄後の濁水を用いて、放射能濃度とSS量の関係およびポリ塩化アルミニウム(PAC)と高分子ポリマーによる凝集沈殿試験を行い、処理後の濁水の放射能濃度とSS量の測定をおこなった。

6.2 濁水における放射能濃度と濁度の関係

分級洗浄後の濁水とその濁水を水で希釈した濁水を作製し、放射能濃度とSS量の測定をおこなった。測定結果をFig. 12 に示す。

処理水の放射能濃度の目標値を10Bq/L(飲料水の放射性セシウムの基準値)以下とすると、濁水の種類によって対応するSS量に差がある。これは細粒分に含まれる放射能濃度の差に起因すると考えられる。細粒分の放射能濃度が低い場合には、処理後のSS量が多くても放射能濃度が低くなる可能性がある。土壌の性質などが一定の場合には、濁水の処理目標をSS量で管理できる可能性がある。

6.3 凝集沈殿処理試験

6.3.1 試験の方法 分級洗浄処理後の濁水を用いて、凝集沈殿処理試験をおこなった。濁水2.5Lを容器に採取し、凝集剤としてPAC(50μ/L)と高分子ポリマー(5μ/L)添加して、スターラーで3分攪伴した。30分静置後に上澄み液を採取して、放射能濃度とSS量を測定した。

6.3.2 試験の結果 試験結果をTable 3に示す。すべての試験ケースで、上澄み液は清澄であり、SS量も低減していた。また、放射能濃度は10Bq/Lを下回った。凝集沈殿しSS量を低減することで放射能濃度が10Bq/L以下となり、水溶性セシウムの影響が少ないことがわかった。

7. まとめ

著者らは、放射能汚染土壌の浄化を目的として、分級洗浄処理の室内試験を行い、放射能濃度を低減させるために有効な方法について検討をおこなった。その検討結果をまとめると、次のとおりである。

- 1) 今回使用した土壌では、分級洗浄処理によって、放射能濃度を1/4程度に低減することができた。
- 2) さらに上記放射能濃度の低減率を上げるには、振とうやロッドミルなどの研磨処理を分級後か、分級前に組合せることが有効であることを確認した。

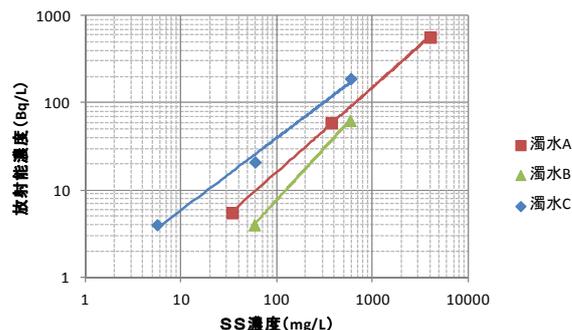


Fig. 12 濁水試料のSS濃度と放射能濃度の関係
Relation between Suspended Solids and Radioactive Cesium of Turbid Solutions

Table 3 凝集沈殿試験の結果
Results of Coagulating Sedimentation Test

	処理前		処理後	
	SS量 mg/L	放射能濃度 Bq/L	SS量 mg/L	放射能濃度 Bq/L
濁水A	4,000	570	16	4.4
濁水B	580	63	5.6	<4
濁水C	590	190	4.8	<4

3) 分級洗浄処理により発生する濁水は、PACなどで凝集沈殿し、放射能濃度を下げることができる。

福島県では、環境省が提示したロードマップにしたがい、本格除染事業が急ピッチで進められている。また、当該事業から発生する放射性物質に汚染された除染物を中間貯蔵する施設の建設計画が引き続き、検討されている。

このような状況下、放射能汚染土壌の浄化技術は、除去物の減容化のうえで重要な技術であることから、今回の室内試験結果などで得られた知見を基に、より効率的であり、実用的な分級洗浄処理システムを構築していきたい。

参考文献

- 1) 保高徹生, 他: 【速報】放射性物質の土壌中の深度分布および土壌洗浄法の適用性試験結果について, <http://staff.aist.go.jp/t.yasutaka/Aist-Risk/110927.html>, (2011)
- 2) 三浦俊彦, 他: 鉛汚染土の分級洗浄処理の適用事例と品質管理手法の検討, 大林組技術研究所報, No.70, (2006)
- 3) 毛利光男, 他: 土壌洗浄による放射性物質汚染土壌の浄化・減容化, 第18回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集, pp.55-58, (2012)
- 4) 大山将, 他: 放射性セシウム含有土壌の対策技術に関する基礎的検討(その1), 第18回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集, pp.88-93, (2012)