

放射性物質に汚染された土壌の除染・減容化技術

Decontamination and Volume Reduction Process for Radiation Contaminated Soil



竹田尚弘*
Naohiro Takeda



村上吉明*
Yoshiaki Murakami



石井 豊*
Yutaka Ishii



井出昇明*
Shoaki Ide

福島第一原発事故により環境中に放射性セシウムが放出され、汚染された土壌が大量に発生している。当社では過去に PCB 汚染土壌の還元加熱による浄化技術を開発しており、同技術をベースに放射性セシウム汚染土壌の除染・減容化プロセスを検討した。その結果、汚染土壌に効果の異なる二種類の添加剤を混合し、1 000 ℃にて30分以上加熱することにより、放射性セシウムを90 %以上揮発除去し、除去土壌を大幅に減容化できることを見いだした。

In the cause of a lot of radioactive cesium fallen out into the environment by the accident happened at Fukushima Daiichi nuclear power plant in March 2011, a large amount of contaminated soil has been generated. The process of the decontamination and volume reduction for the radiation contaminated soil was developed based on a detoxication process for Polychlorinated Biphenyl (PCB) contaminated soil system by thermal treatment under reductive atmosphere. As a result, it became clear that it was possible to decontaminate more than 90 % of radioactive cesium from the contaminated soil and reduce the volume of the original contaminated soil by adding two types of chemical agents under the heating conditions of 1 000 ℃ and more than 30 minutes.

Key Words :

放 射 性 セ シ ウ ム	Radioactive cesium
汚 染 土 壌	Contaminated soil
加 熱 処 理	Heating treatment
減 容 化	Volume reduction

【セールスポイント】

既存技術と比べて比較的低温での処理であるため、加熱処理後土壌に後処理を施すことにより農地還元もしくは通常の産業廃棄物処理が可能である。

土壌から放射性セシウムを効率的に除去し、濃縮することにより、汚染土壌の大幅な減容化が可能であり、実用化できれば課題となっている除去土壌の仮置きや保管の問題を解決できる。

まえがき

2011年3月11日に発生した東日本大震災にともなう東京電力福島第一原子力発電所での事故により、大量の放射性セシウム（Cs-134, Cs-137）および放射性ヨウ素（I-131）が発電所の周辺環境に放出された。これらの放射性物質は周辺地域に降下し、一部は自然の物質循環系にのって拡散し、原発周辺の森林、土壌、水の各環境を広範囲に汚染した。

これらの放射性物質のうち、放射性ヨウ素は半減期が約8日であるため現在ほとんど存在しておらず、主要な汚染物質はセシウム134（半減期約2年）とセシウム137（半減期約30年）となっている。

図1に2012年6月28日時点での福島第一原子力発電所周辺の空間放射線量率分布を示す。

国は、2011年8月に、「放射性物質汚染対処特措法」を制定、2012年1月より施行し、除染を進めて

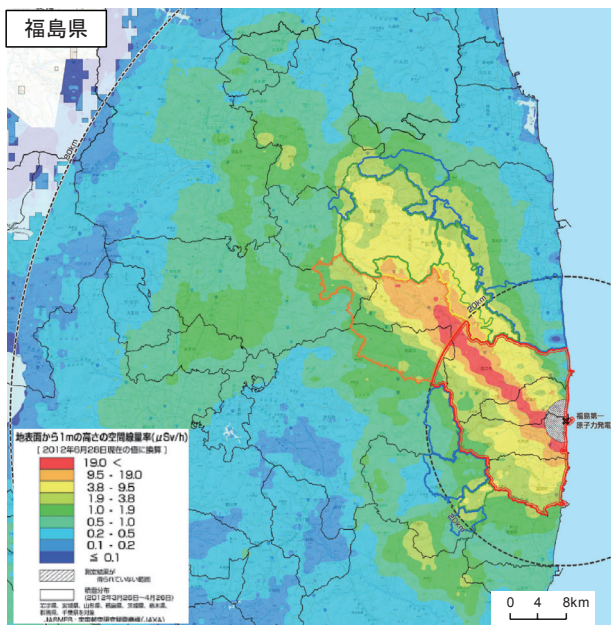


図1 空間放射線量率分布（2012年6月28日時点）¹⁾

きた。これらの除染は、主に建築物の高圧洗浄や表土剥離などによる居住地の空間線量率を低減することを目的に実施されており、これにともない生じる除去土壌および廃棄物（以下除去土壌等）は仮置きもしくは仮保管されている状況である。

今後発生する除去土壌等も含め仮置き場の除去土壌等は、将来的には中間貯蔵施設へ運び込まれ30年間にわたり管理・保管される計画となっているが、その量は福島県だけで1 500～2 800万 m³とも見積もられ、減容化技術の開発が急務となっている。

本開発では、当社の保有する還元加熱（RH-SP）法に基づく土壌の加熱処理技術²⁾をベースに、上記除去土壌中の放射性セシウムの除染・減容化のための基本プロセスの確立を目的に、除去土壌の加熱処理によるセシウム除去率に及ぼす添加剤の量、加熱温度、加熱時間の影響を調べた。プロセスの概要と各種試験結果について報告する。

1. 処理プロセスの概要と特徴

図2に汚染土壌の処理プロセスの概念フローを示す。本プロセスは（1）分級工程、（2）添加剤混合工程、（3）加熱処理工程、そして（4）粉じん処理工程の4つの工程から成り立っている。

分級工程では、湿式分級により粒径の大きい礫・砂成分を分別し、同時にこれらに付着した粘土・シルト成分を洗浄・除去する。セシウムは、これらの粒径の小さい成分に吸着・固定されているため、分別・洗浄することで粗い粒子を除染することができる。

添加剤混合工程では、分級後の細かい粒子土壌（高濃度汚染土壌）に、セシウムを土壌から脱着させる脱着促進剤（添加剤 A）と脱着したセシウムを揮発させる揮発補助剤（添加剤 B）の2種類の添加剤を混合する。

加熱処理工程では、添加剤混合土壌を1 000℃で

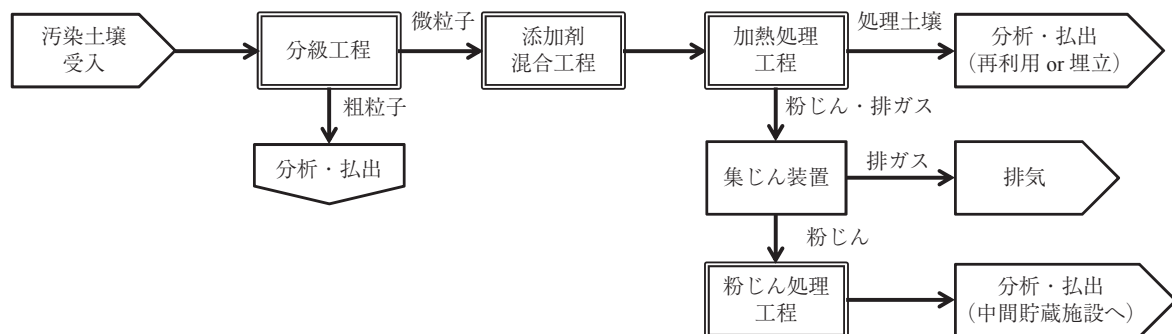


図2 汚染土壌の処理プロセスの概念フロー

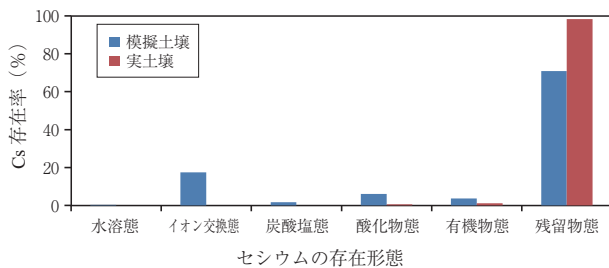


図3 模擬土壌中の安定性セシウムの存在形態

加熱処理を行う。本来セシウムの水酸化物は比較的揮発しやすく単体であれば800℃でほぼ揮発するが、実際には土壌中に吸着されており、加熱中にまわりの成分と化合し安定化するために、通常1000℃では揮発しない。ところが、添加剤を混合することで、土壌が溶融する温度域(>1200℃)より低温にてセシウムを揮発除去することが可能である。

粉じん処理工程では、排ガスとともに揮発したセシウムを集じん装置により粉じんとして回収し、高濃度汚染物として仮置き場や中間貯蔵施設で保管される。

本処理技術の特徴は、以下のとおりである。

- ① 加熱処理済みの土壌は、比較的低温域で加熱処理されたものであるため、後処理を施した上で農地還元、もしくは通常の産業廃棄物処理が可能である。
- ② セシウムは、粉じん中に濃縮されることにより、元の汚染土壌量と比較して大幅な減容化が可能となり、仮置き場や中間貯蔵施設への搬入量を減らすことが可能である。

本処理プロセスを構築するにあたり、中核プロセスである土壌から放射性セシウムを揮発除去させるための加熱処理工程について検討した。

2. 安定性セシウムを使用した模擬試験

実汚染土壌での加熱試験に先立ち、放射線を発生しない安定性セシウム(Cs-133)を使用した模擬土壌によるラボ試験を実施した。

2.1 試験方法

模擬土壌は、市販の園芸用土壌に試薬の水酸化セシウム(安定性セシウム)水溶液を、土壌中のセシウム濃度が10 mg/kgとなるように混合し、所定条件下で乾燥させて調製した。

安定性セシウムの模擬土壌への吸着形態が実土壌と類似の形態になっているかを確認するため、土壌中の重金属の逐次抽出法による形態分析³⁾を実施した(図3)。この結果、イオン交換態のセシウム

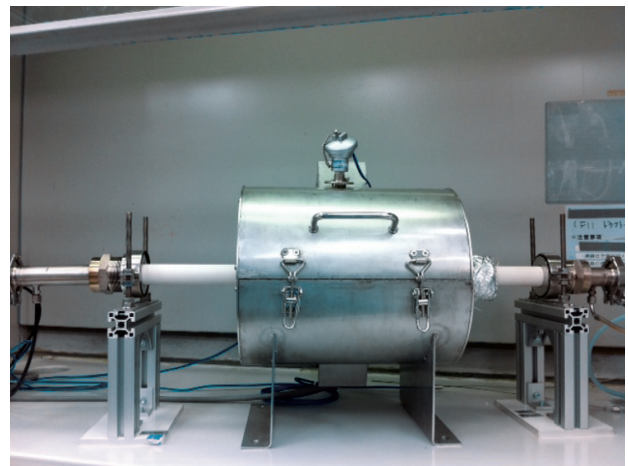


写真1 小型加熱炉



写真2 燃焼ボートと加熱前模擬土壌

表1 模擬試験の試験条件

項 目	条 件
1. 添加剤量	土壌に対する添加剤 A の混合割合 = 10~50 % 添加剤 B の量 = 0~5 %
2. 加熱温度	800~1000℃
3. 加熱時間	10~60 min

も検出されるものの、土壌に混合した安定性セシウムの約70%が残留物態として存在し、実土壌に近い形態として存在していることを確認した。

試験装置は写真1に示す小型加熱炉を用いた。中央に挿入した石英管中に、添加剤を混合した模擬土壌を入れた燃焼ボート(写真2)を置き、キャリアガス(空気)を流しながら所定の条件下で加熱処理を行った。

表1に試験条件を示す。加熱温度、加熱時間、そして土壌に加える添加剤量を変化させて試験を実施した。

加熱処理前の土壌および加熱処理後の土壌を混酸を用いて全分解し、その溶解液をICP-MSで分析し、セシウム濃度を測定した。

加熱処理前後の土壌中のセシウム量の変化から、セシウム除去率を算出した。

2.2 試験結果

表2に種々の条件下で実施した加熱処理試験における処理後土壌のセシウム除去率を、図4～6に加熱温度、加熱時間、添加剤量とセシウム除去率の関係を示す。

図4のとおり、添加剤を添加しない場合は、いずれの加熱温度においてもセシウム除去率は10 %未満と低く、セシウムは除去困難であった。一方、添加剤存在下では、加熱温度の上昇にともないセシウム除去率は向上し、1 000 ℃では80 %を超えた。

表2 加熱処理による処理後土壌のセシウム除去率

No.	添加剤混合条件			加熱条件		Cs 除去率 %
	土壌	添加剤 A	添加剤 B	温度	処理時間	
	%	%	%	℃	min	
1	70	30	5	800	60	37
2	70	30	5	900	60	71
3	70	30	5	1 000	60	84
4	100	0	0	1 000	60	9
5	70	30	5	1 000	10	43
6	70	30	5	1 000	30	80
7	50	50	5	1 000	60	86
8	90	10	5	1 000	60	85
9	100	0	5	1 000	60	73
10	70	30	1	1 000	60	47
11	100	0	1	1 000	60	29
12	90	10	0.5	1 000	60	12

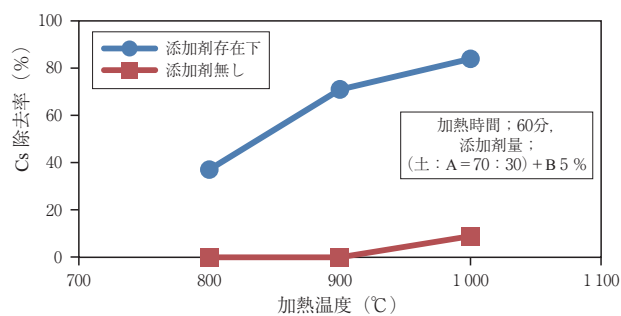


図4 加熱温度とセシウム除去率の関係

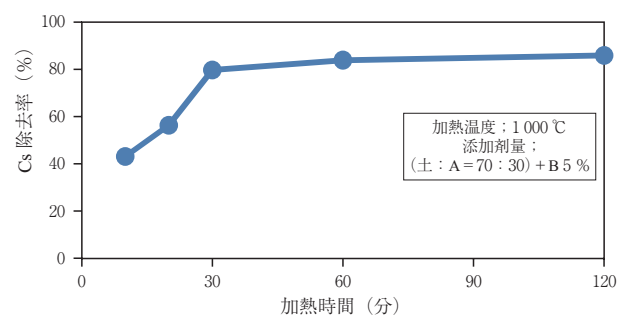


図5 加熱時間とセシウム除去率の関係

また、セシウム除去率は、加熱時間の増加にともない向上し、30分以上で80 %以上のセシウム除去率が得られた（図5）。

添加剤については、添加剤 A（セシウム脱着促進剤）と同 B（セシウム揮発補助剤）の混合割合がセシウム除去率の向上に重要であり、とくに土壌と添加剤 A を70：30の割合で混合し、この混合物の総量に5 %の添加剤 B を加えることで、セシウム除去率80 %以上を安定的に確保することができた（図6）。

3. 放射性セシウム汚染土壌の加熱試験

模擬試験では安定性セシウムを10 mg/kg（ppm オーダー）の濃度になるように調製した模擬土壌にて加熱試験を実施したが、実汚染土壌中に含まれる放射性セシウム濃度は100万 Bq/kg の汚染土壌でも300 ng/kg（ppt オーダー）と極微量しか含まれていない。このため、極微量の放射性セシウムへの効果を確認するため、模擬試験で絞込んだ最適条件下で実汚染土壌を使用した現地試験を実施し、再現性を確認した。

3.1 試験方法

試験には、福島県内の畑の土（低濃度および高濃度）、そして水田の土の計3種類の実汚染土壌を用いた。それぞれの土壌の放射能濃度を表3に示す。

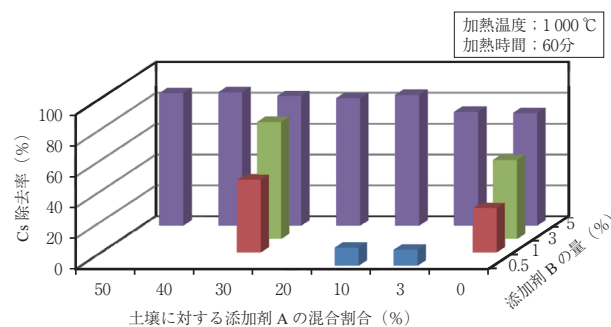


図6 添加剤の量とセシウム除去率の関係

表3 実汚染土壌の放射能濃度

土壌の種類	放射能濃度 (Cs-134)	放射能濃度 (Cs-137)	放射能濃度 合計値
	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg
畑の土 (低濃度)	1 700	2 860	4 560
畑の土 (高濃度)	6 100	12 000	18 100
水田の土	6 100	11 000	17 100

表4 加熱処理による各土壌の放射能除去率

No.	土壌種類	添加剤混合条件			加熱条件		加熱処理後 放射能濃度合計値	Cs 除去率
		土 壌	添加剤 A	添加剤 B	温 度	処理時間		
		%	%	%	℃	min	Bq/kg	%
1	畑の土（低濃度）	70	30	5	1 000	60	139	97
2	畑の土（低濃度）	90	10	1	1 000	60	510	92
3	畑の土（高濃度）	70	30	5	1 000	60	1 560	91
4	畑の土（高濃度）	80	20	5	1 000	60	1 950	90
5	水 田 の 土	70	30	5	1 000	60	2 420	84

放射能濃度は、ゲルマニウム半導体検出器（ORTEC GEM-35）を用いて測定した。

試験装置は、模擬試験と同様の小型加熱炉を用い、試験も同様の手順で実施した。

なお、放射性物質に汚染された土壌を取扱う際は、外部被ばくを防止するためにゴム手袋、軍手、ゴム手袋の3重防護を実施し、内部被ばくを防止するために電動ファン付呼吸用保護具（PL100相当）を着用し、安全に万全を期した。

3.2 試験結果

表4に、実汚染土壌へ添加剤を添加し、温度1 000℃、時間60分にて加熱処理した結果を示す。畑の土では、放射能濃度に関係なく、放射能を90%以上除去できることを確認した。とくに、放射能濃度の低い畑の土では、土壌への添加剤Aの混合割合を約4分の1に、添加剤Bの添加量を約5分の1に減らした場合でも、放射能除去率が90%以上となり、添加量を減らすことが可能であった。

また、畑の土と比較して粘土・シルト成分が多い水田の土の場合は、放射能除去率は約84%となり、畑の土より低下した。

4. 加熱処理土壌を用いた発芽試験

模擬試験にて加熱処理により安定性セシウムを除去した土壌を用いて、農地還元を目的に植生試験を実施した。植生試験は、種子から芽が発芽することを確認する発芽試験と、植物の成長を確認する生育試験に分けられるが、今回は土壌の農地としての再利用可否の判断を目的とするため、発芽試験を実施した。

評価対象土壌を、土壌の量を1としてその10倍、1 000倍量の水道水に分散し、さらに酸またはアルカリを添加してpHが5.5-7になるように調製した土壌懸濁液を作製した。シャーレに評価用種子（コマツナ、ラディッシュなど、アブラナ科の植物）50個を並べたろ紙を敷き、ここに希釈倍率の異なる2種の土壌懸濁液の上澄みと、対照系となる水道水をそ

表5 発芽した種子の数と経過時間

植物名	検 液	経過時間（h）				
		－	19	25	36	48
ラ デ ィ ッ シ ュ	水道水	発芽総数	23	43	50	－
		増 加 数	23	20	7	－
	1 000倍 希釈懸濁液	発芽総数	20	37	45	46
		増 加 数	20	17	8	1
	10倍 希釈懸濁液	発芽総数	7	24	44	46
		増 加 数	7	17	20	2
コ マ ツ ナ	水道水	発芽総数	2	7	40	43
		増 加 数	2	5	33	3
	1 000倍 希釈懸濁液	発芽総数	2	6	37	41
		増 加 数	2	4	31	4
	10倍 希釈懸濁液	発芽総数	0	0	35	37
		増 加 数	0	0	35	2

れぞれ滴下して、発芽状況を観察した。^{4), 5)}

実際の農地還元では農地土壌と加熱処理土壌を混合して使用することを想定し、評価対象土壌として、加熱前の園芸用土壌の量5に対して、表2の試験No.3の条件下で実施した加熱処理後の土壌の量1を混合したものを使用し、発芽試験を実施した。表5に経過時間と発芽した種子の数を、写真3に48時間経過後の発芽の様子を示す。

これらの結果より、加熱処理土壌の農地還元への可能性を見いだした。

む す び

放射性物質汚染土壌の除染・減容化プロセスの確立を目的に、各種条件下で同土壌の加熱処理試験を実施した。その結果、実汚染土壌を用いた場合でも、添加剤の使用により、90%以上の放射能を除染できることを確認した。

試験規模・装置のスケールアップや放射線に対する安全対策など、実用化に向けた課題が残されているが、減容化技術の1つとして本技術を提案し、一

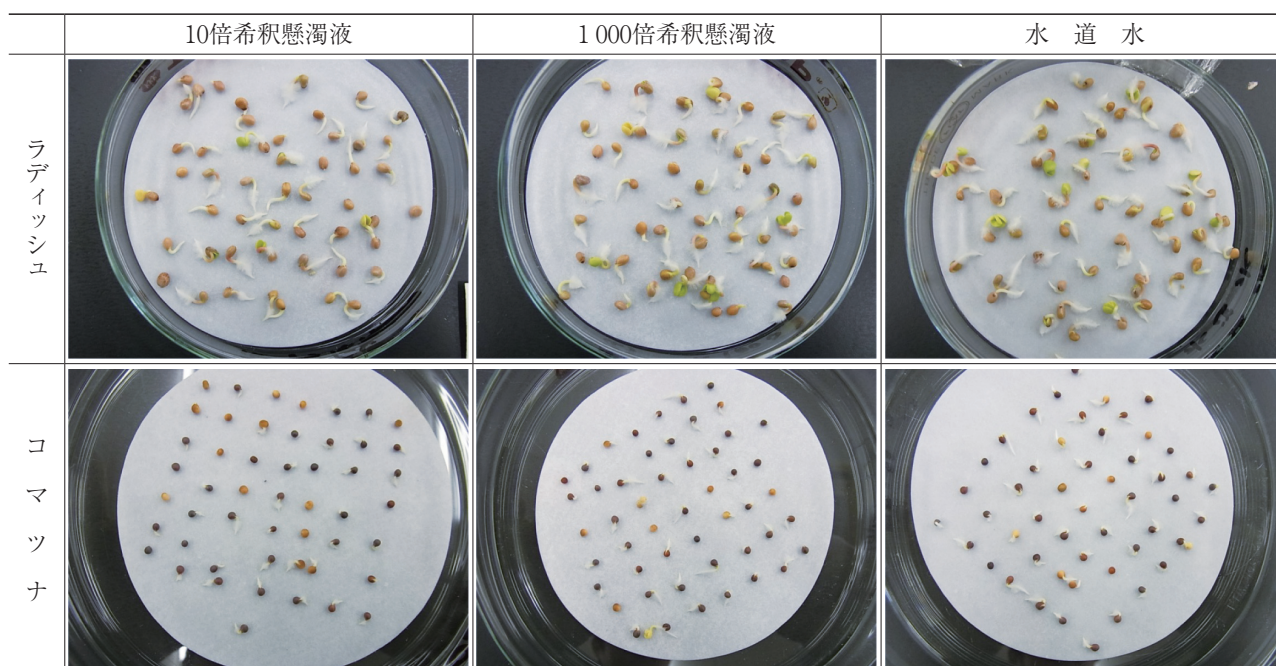


写真3 48時間経過後の発芽の様子

刻も早い福島県の復興の一助となるよう、努めていきたい。

最後に、本開発に関する共同研究を通じ、東北大学多元物質科学研究所、中村教授、柴田准教授、佐藤准教授より多大なる助言をいただきました。ここに感謝の意を表します。

[参考文献]

- 1) 放射線量等分布マップ(2012年6月28日時点) 文部科学省ホームページ, <http://ramap.jaea.go.jp/map/>
- 2) 石井豊, 小倉正裕, 川井隆夫: POPs 汚染物処理技術としての「RH-SP 法」, 神鋼環境ソリューション技報,

Vol.3, No.1 (2006), p.29-33

- 3) Maclean. J. E and Bledoe. B. E: Ground Water Issue: Behavior of Metals in soils, EPA/540/S-92/018, (1992) pp.1-25
- 4) 独立行政法人 農業・食品産業技術総合研究機構中央農業総合研究センター 2002年の成果情報: コマツナを用いた堆肥品質評価のための簡易栽培装置, <http://www.naro.affrc.go.jp/project/results/laboratory/narc/2002/narc02-21.html>
- 5) 独立行政法人 農業・食品産業技術総合研究機構関東東海総合研究部: 幼植物試験等による堆肥の簡易品質評価法, <http://www.naro.affrc.go.jp/training/files/20031006-08-2.pdf>

*商品市場・技術開発センター プロセス技術開発部 新規プロセス室