

# 放射性物質に汚染された土壌の除染・減容化技術

## —第2報—

### Decontamination and Volume Reduction Process for Radiation Contaminated Soil



竹田尚弘\*  
Naohiro Takeda



小倉正裕\*  
Masahiro Ogura



井出昇明\*  
Shoaki Ide

福島第一原子力発電所での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。前報では加熱処理のラボ試験により土壌から放射性セシウムを揮発除去可能な基礎条件を確立した。今回、福島県 A 市の協力を得て実施したベンチスケール試験設備を用いた現地実証試験により、ラボ試験結果の検証、そして本プロセスを構成する前処理（洗浄・分級）、加熱処理工程の最適化の検討を行った。試験の結果、実汚染土壌の除染・減容化のための最適条件および全体の処理プロセスを確立し、実用化の目途を得たので、報告する。

The accident occurred at Fukushima Daiichi Nuclear Power Station in March 2011 released radioactive cesium into the atmosphere, resulting in a large amount of soil that the radioactive cesium was adsorbed onto. The previous reports revealed basic thermal treatment conditions to decontaminate radioactive cesium from the contaminated soil. Bench scale test in a city, Fukushima prefecture, were performed to verify repeatability of results produced from laboratory scale test, and to optimize pretreatment (laundering and classification) and thermal treatment conditions. This experiment established optimal thermal treatment condition for decontaminating the soil and reducing its volume, and overall treatment process. The authors see the light of practical use of this process.

#### Key Words :

放射 性 セ シ ウ ム	Radioactive cesium
汚 染 土 壌	Contaminated soil
熱 処 理	Heating treatment
減 容 化	Volume reduction
再 利 用	Reuse

#### 【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、加熱処理後土壌の性状変化が少なく、覆土・盛土等の再利用が可能である。

汚染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、汚染物の大幅な減容化が可能であり、課題となっている仮置き場等のひっ迫や今後建設が計画されている中間貯蔵施設への輸送あるいは保管の負荷低減に対して有効であると考ええる。

## まえがき

2011年3月11日に発生した東日本大震災は、東京電力福島第一原子力発電所での事故に伴う、大量の放射性物質（Cs-134, Cs-137等）による汚染問題を引き起こし、未だに抜本的な解決策が見出されていない。

政府は、この事故由来放射性物質による汚染問題の解決を目的に、2011年8月に「放射性物質汚染対処特措法」を定め、除染作業を進めている。

除染作業により発生する除去土壌等は、現在各自治体毎に適切な場所に仮置き・一時保管されているが、国の指針にもとづき建設が計画されている中間貯蔵施設に今後すべての汚染物を搬入・保管し、30年以内に福島県外の最終処分場に移送する計画である。しかしながら、汚染が広範囲にわたりかつ除去土壌のみならず各種汚染物の量が当初の計画より大幅に超過することが予測されており、中間貯蔵施設の場所や容量、除去土壌の輸送方法、さらには同施設での汚染物の受入れ基準や体制の整備等課題が山積しているおり、具体化に向けて検討が進められている。なかでも整備が遅れている自治体での仮置き場の確保や中間貯蔵施設の早期建設・運用開始が、当面の最重要課題となっている。<sup>1)</sup>

また、環境省が出した除染関係ガイドライン<sup>2)</sup>では、除去土壌と除染廃棄物（除染等の措置に伴い生じた廃棄物、草木類・保護具等）を出来るだけ分別することとし、除去土壌は仮置き場にて保管し、除染廃棄物は廃棄物関係ガイドラインにしたがい適切に対応することとなっている。しかしながら、実際の除染現場では、土壌とともに剥取られた芝生類や草木類ならびにそれらの根が完全には分別できず、除去土壌に混ざってしまう例もあるようである（写真1）。ガイドラインでは、基本的には有機物の腐敗による可燃性の腐食ガスの発生、温度の上昇、



写真1 除染による除去土壌等

悪臭の発生に対する特段の措置は不要としているが、除去土壌に有機物が含まれている可能性を想定する必要がある。

一方、除染作業の進行と同時に津波により被害を受けた海岸沿いを中心に復興作業が進む中で、建設資材の不足が深刻化しており、除去土壌を建設資材に適用するための処理方法、放射能濃度の測定方法や要求レベルの規格化、さらには適用用途に応じた土壌の品質基準作りの検討が進められている。<sup>3)</sup>

現状、除去土壌等の処理技術として、分級処理、化学処理、熱処理等が開発されているが、分級処理では放射能除去率および減容化率が低く、かつ有機物を完全に分別できず、また化学処理の場合は処理物の再利用や廃水処理に難点がある。さらに従来の熱処理では処理温度が高いために処理後土壌の性状が変化し、また処理コストが高い等の課題があった。当社は上記各処理技術の課題を考慮して、除去土壌中の放射性セシウムの除去および汚染物の減容化、さらには処理後土壌の再利用を目的に、湿式分級による前処理と添加剤存在下での加熱処理法を組合わせた基本プロセスを開発した。本プロセスのラボ試験の結果、添加剤量、処理温度等条件の最適化により、添加剤を添加し1000℃、60分加熱処理を行うことで、汚染土壌から90%以上の放射性セシウムが除去可能であること、そして処理後土壌の後処理により農地還元への可能性を明らかにした。<sup>4)</sup>

本報告では、福島県A市の協力を得て実施したベンチスケール試験設備を用いた現地実証試験結果による、ラボ試験結果の検証、そして本プロセスを構成する前処理（洗浄・分級）、加熱処理工程の最適化の検討により、実汚染土壌の除染・減容化のための基本条件および全体の処理プロセスを確立し、実用化の目途を得たので、試験結果および実用化プロセスの概要を中心に報告する。

## 1. 当社放射性物質汚染土壌の加熱処理プロセスとその特徴

図1に当社の汚染土壌の処理プロセスの概念図を示す。本プロセスは（1）洗浄・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つの工程から成る。

洗浄・分級工程では、湿式分級により粒径の大きいレキ・砂成分（粗粒分）を分別し、同時にこれらに付着した粘土・シルト成分（細粒分）を洗浄・除去する。放射性セシウムは主として粘土鉱物に取り込まれていると考えられるため、分別・洗浄することにより、粗粒分の放射能を除去することができる。

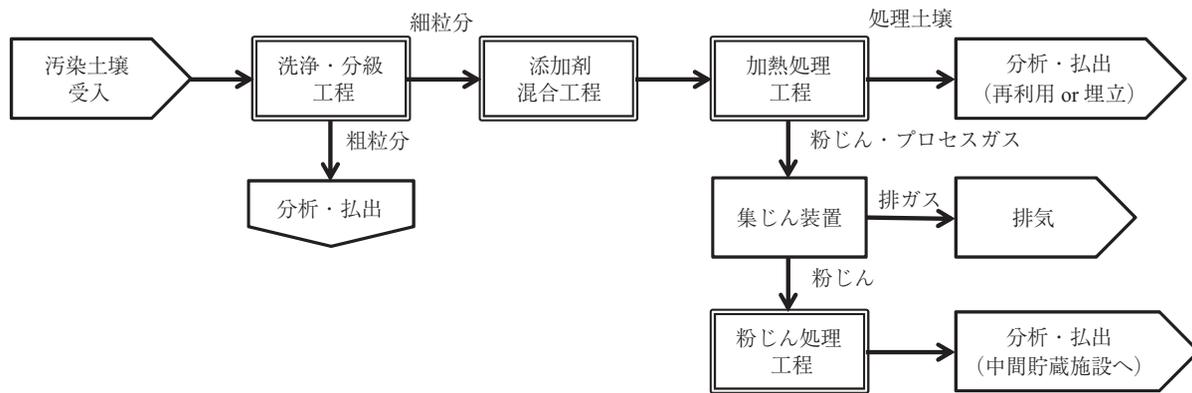


図1 汚染土壌処理プロセスの概念フロー

添加剤混合工程では、洗浄・分級工程後の細粒分に、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種類の添加剤を添加混合する。

加熱処理工程では、添加剤混合土壌を1 000℃以上で加熱処理を行う。本来セシウムの化合物は比較的揮発しやすく、単体であれば800℃では揮発するが、実際には土壌中に吸着されており、加熱中に周囲の成分と化学結合し安定化するために、通常1 000℃以下では揮発困難である。ところが、上記添加剤を混合することで、土壌が熔融する温度域（1 200℃以上）より低温にてセシウムを揮発除去することが可能であり、所定の放射能濃度まで低減させた上で払出し可能となる。

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バグフィルタにより粉じんとして捕捉回収し、高濃縮汚染物として仮置き場や中間貯蔵施設で保管する。

本処理技術の特徴は以下のとおりである。

- ① 洗浄・分級工程で放射能濃度の低い粗粒分より細粒分を洗浄・除去することで除染し、エネルギーのかかる加熱処理工程に投入する量を減らすことが可能である。
- ② 比較的低温域で加熱処理されるため、加熱処理済みの土壌は後処理を施した上で覆土、盛土等への再利用、もしくは通常の廃棄物処理が可能である。
- ③ 汚染土壌中の放射性セシウムが粉じん中に濃縮されることにより、処理後土壌の放射能濃度が目標値を満たせば、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。

## 2. ベンチスケール実証試験

### 2.1 安全対策

実証試験は、福島県 A 市より試験場所ならびに汚染土壌（高濃度および低濃度）の提供を受け、実施した。

試験を実施するにあたり、周辺環境への放射能汚染を防止するため、ビニールブースによる作業エリアを設け、その中ですべての試験を実施した。

ブース内は排気ファンにて常時負圧とし、室内排気および集じんガス吸収後の加熱処理排ガスはフェイルセーフ用の HEPA フィルターおよび活性炭を通過後に大気放出した。また、作業エリアの出入口にはエアシャワー室と着替え室を設け、作業エリア内外で服装を変更し、作業エリア内の汚染物をエリア外へ持ち出さないようにした。

また、試験期間中は毎日、試験実施場所の敷地境界4カ所ならびに作業エリア（ビニールブース）内外の3カ所において NaI シンチレーションカウンター（日立アロカメディカル製 TCS-172B）を使用して空間放射線量率を測定した。試験期間を通して、空間放射線量率は0.5 μSv/h を下回り、作業環境上問題なく、周辺環境への影響も無いことを確認した（図2）。

### 2.2 処理目標

実証試験に使用した汚染土壌の放射能濃度は表1に示すとおりである。放射能濃度は、ゲルマニウム半導体検出器（ORTEC 製 GEM-35）を用いて Cs-134 と Cs-137 の合計値を測定した。

これらの汚染土壌を処理した後の処理物の再利用を目的に、以下のとおり放射能濃度の削減の目標値を設定した。

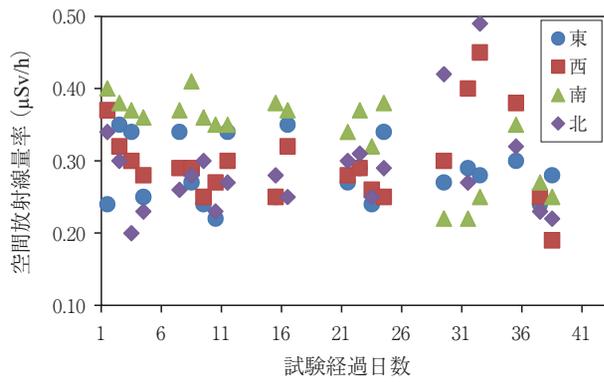


図2-1 空間放射線量率（敷地境界）

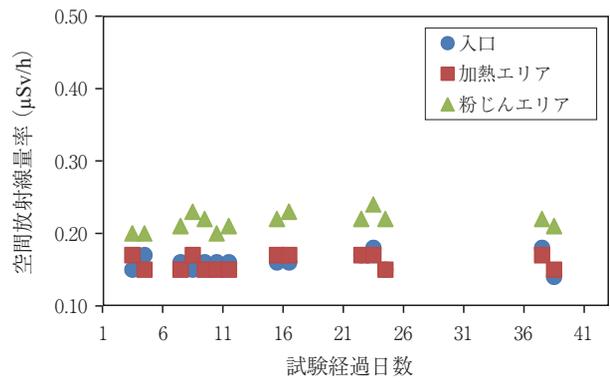


図2-2 空間放射線量率（作業エリア内）

表1 汚染土壌の放射能濃度測定結果

土 壤	放射能濃度 (Bq/kg)	試験実施
高濃度汚染土壌 (未分級)	6 900	洗浄・分級工程
	2 860	洗浄・分級工程
高濃度汚染土壌 (1 mm 未満)	10 000	加熱処理工程
	11 700	加熱処理工程
	8 600	加熱処理工程
中濃度汚染土壌 (1 mm 未満)	1 210	加熱処理工程
低濃度汚染土壌 (1 mm 未満)	137	加熱処理工程

表2 湿式分級条件

土壌仕込み量 (g-dry/バッチ)	500
ふるい目開き	1.0, 1.4, 2.0, 2.8, 4.0



写真2 電磁式ふるい振とう機

### (1) 洗浄・分級工程

洗浄後土壌の粗粒分（レキ・砂成分）：400 Bq/kg 以下

これは農林水産省、厚生労働省により規定された利用基準値案<sup>5), 6)</sup>を参考に、通常の土壌と同等の取扱いが可能な目標値として設定した。

### (2) 加熱処理工程

高濃度汚染土壌の処理後土壌：3 000 Bq/kg 以下

これは環境省により規定された再生利用の基準値案<sup>7)</sup>を参考に、用途制限付きで再利用可能な目標値として設定した。

## 2.3 洗浄・分級試験

### 2.3.1 試験方法

汚染土壌を湿式分級することにより、各粒径毎の放射能濃度を確認し、洗浄・分級工程での粗粒分の放射能除去の可能性を調査した。

写真2に示す電磁式ふるい振とう機を用いて、水を流しながらふるい振とうを行い、各種目開きのふるい上から回収された土壌を乾燥させ、放射能濃度を測定した。表2に湿式分級のふるい条件を示す。

### 2.3.2 試験結果

図3に土壌の粒度と放射能濃度の関係の一例を示す。

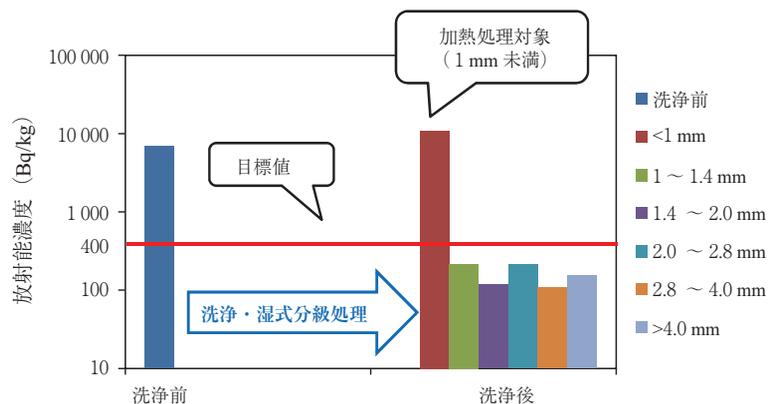


図3 土壌の粒度と放射能濃度の関係



写真3 小型回転炉の外観



写真4-1 加熱前土壌

表3 加熱試験条件

項目	条件
1. 添加剤混合割合	土壌：添加剤 A = 50 : 50~80 : 20 添加剤 B の添加量 = 5 ~ 10 %
2. 加熱温度	1 000~1 100 ℃
3. 加熱時間	30~90 min
4. 土壌の放射能濃度	高濃度 (10 000 Bq/kg) 中濃度 (1 000 Bq/kg) 低濃度 (100 Bq/kg)



写真4-2 加熱後土壌

6 900 Bq/kg の汚染土壌を湿式分級した結果、1 mm ふるい上の粒子の放射能濃度は100~210 Bq/kg、1 mm ふるい下の放射能濃度は10 000 Bq/kg 以上まで濃縮されることを確認した。汚染土壌の初期放射能濃度や土壌性状、混入成分の組成にも依存するが、分級・洗浄工程により処理目標である粗粒分の放射能濃度の400 Bq/kg 以下の達成は可能と判断した。

## 2.4 加熱処理試験

### 2.4.1 試験方法

洗浄・分級工程の試験結果より、1 mm ふるい下の放射能濃度の高い細粒分を試験試料として加熱試験に供した。

試験装置には写真3に示す小型回転炉を使用し、耐火物被覆したステンレス鋼製の炉心管に、所定の割合で添加剤（セシウム除去剤）を混合した混合土壌を装入し、バッチ方式により加熱処理試験を実施した。キャリアガスとして空気を流しながら所定温

度まで昇温し、所定時間加熱後、室温まで冷却して加熱後土壌を回収した（写真4）。排ガスは円筒ろ紙およびガス吸収水を通して放射性物質を捕捉した。

表3に加熱試験条件を示す。放射能濃度の異なる汚染土壌を使用して加熱温度、加熱時間、そして土壌に加える添加剤量をパラメータとして、試験を実施した。

加熱後土壌量および粉じんについて、試料量および放射能濃度を測定し、放射能除去率および減容化率を算出した。

### 2.4.2 試験結果

表4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放射能除去率および減容化率を、図4~6に放射能除去率と加熱温度・添加剤量、加熱時間、処理前汚染土壌放射能濃度との関係を示す。

表4 加熱処理による処理後土壌の放射能除去率

No.	添加剤混合条件			加熱条件		土壌の放射能濃度 Bq/kg	放射能除去率 %	加熱処理減容化率 %
	土壌	添加剤 A	添加剤 B	温度	処理時間			
	%	%	%	℃	min			
1	70	30	5	1 000	60	10 000	91.4	98.9
2	70	30	5	1 000	60	1 210	89.6	98.2
3	70	30	5	1 000	60	137	85.8	99.4
4	80	20	5	1 000	60	10 000	85.8	99.3
5	50	50	5	1 000	60	10 000	94.2	98.0
6	70	30	5	1 100	60	10 000	95.6	98.8
7	70	30	10	1 100	60	11 700	97.3	93.5
8	50	50	5	1 100	60	11 700	97.3	97.8
9	50	50	10	1 100	60	8 600	98.3	93.3
10	70	30	5	1 100	30	8 600	93.9	96.7
11	70	30	5	1 100	90	8 600	95.3	97.1

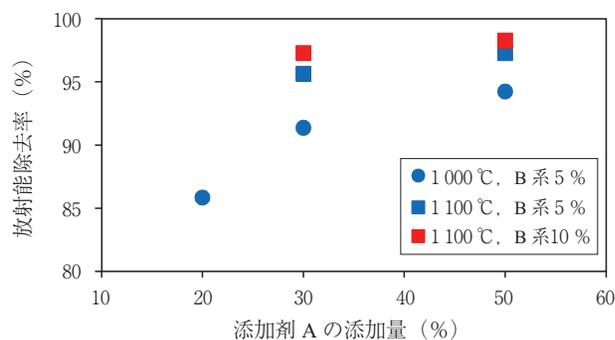


図4 加熱温度および添加剤量と放射能除去率の関係

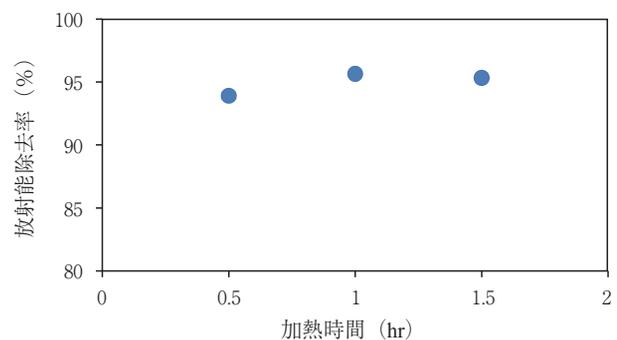


図5 加熱時間と放射能除去率の関係

図4に示すように、1 000℃以上に加熱することにより80%以上の放射能除去率を達成することができ、添加剤A、Bそれぞれの添加量を増やしたり加熱温度を1 100℃まで上昇させることにより最大98%の放射能除去率を達成できた。

また、加熱時間を30分から60分に延長した場合は、放射能除去率の増加が確認できたが、90分まで延長しても放射能除去率に変化は見られなかったため、加熱時間は60分以内で十分である(図5)。

処理前の汚染土壌の放射能濃度が低い土壌では放射能除去率も低下し、両者の間には正の相関が確認された(図6)。したがって、より高濃度の汚染土壌に対して本法は有効であると推定される。

#### 2.4.3 プロセスガス中の放射能濃度

プロセスガスの放射能濃度を、放射能濃度等測定方法ガイドライン(環境省)にしたがって、ろ紙に捕捉された粒子状放射性物質および純水に吸収されたガス状放射性物質の放射能濃度の二種類を分析した。分析結果の一例を表5に示す。

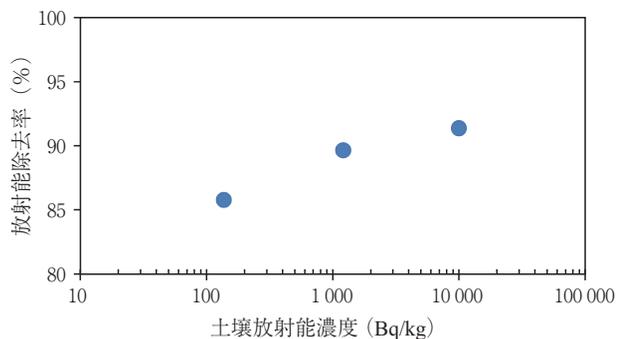


図6 処理前汚染土壌放射能濃度と放射能除去率の関係

表5 排ガスの放射能濃度

測定試料	各種	放射能濃度 (Bq/m <sup>3</sup> )	検出限界濃度 (Bq/m <sup>3</sup> )
粒子状 (ろ紙部)	Cs-134	25	2
	Cs-137	51	1
ガス状 (ドレン部)	Cs-134	不検出	4
	Cs-137	4	2

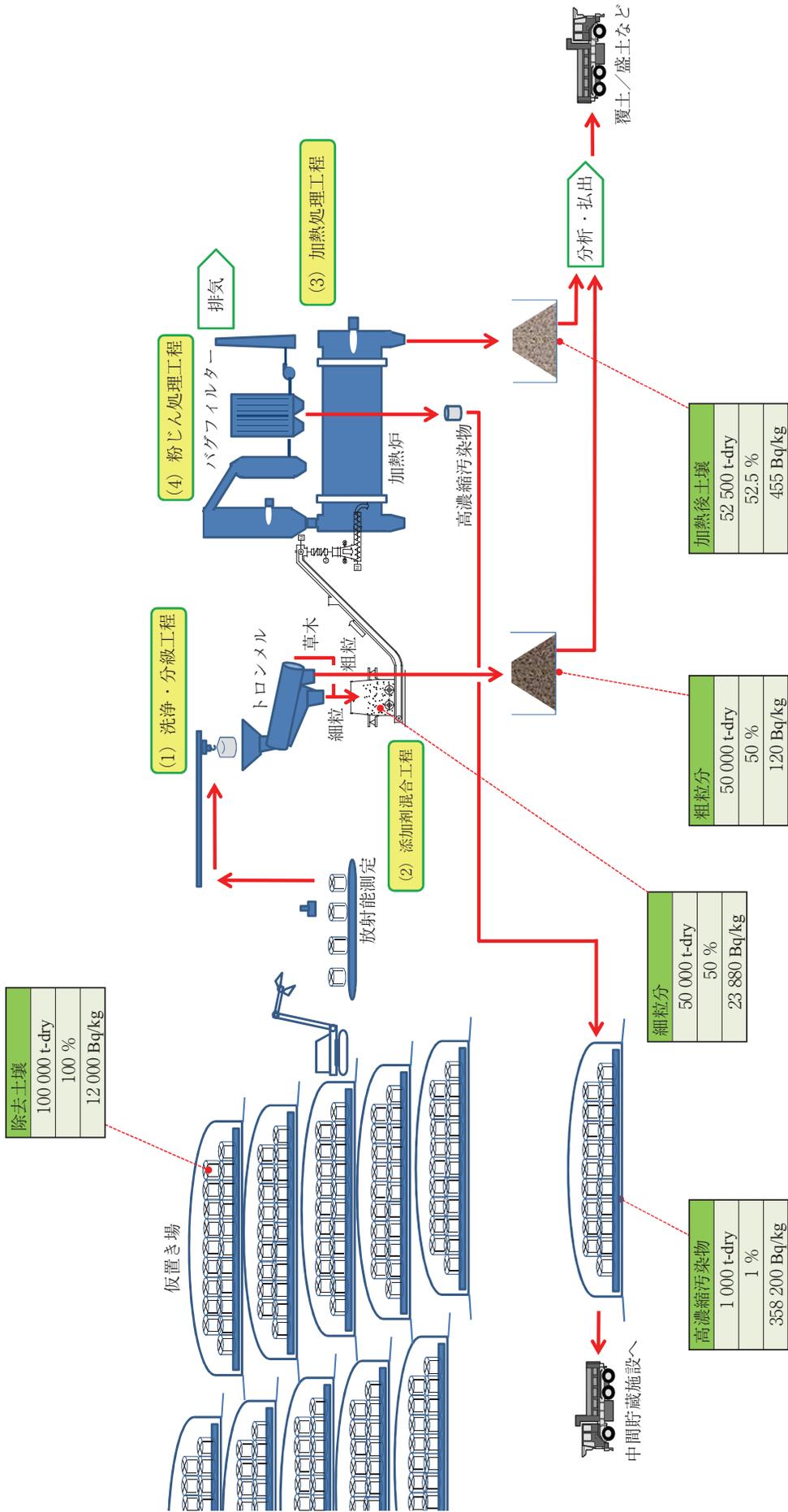


図7 除染減容化イメージ図

この結果、放射性セシウムはガス状物質として極微量検出されているが、ほとんどが粒子状物質として存在し、円筒ろ紙に捕捉されていることが確認された。したがって、本試験において最終排ガス中に放射性セシウムはなく、大気環境の汚染は無かったと言える。

また、実処理設備機においても、プロセスガスをバグフィルター等を用いて処理することにより、排ガスとして大気開放可能であると考えられる。

### 3. 実用化プロセスの概要

図7に本プロセスによる除去土壤の除染減容化イメージ図を示す。

処理対象の除去土壤は放射能濃度の測定後、洗浄・分級工程にて草木類、粗粒分、細粒分に分別する。粗粒分は分析後に払出し、細粒分に添加剤を混合の上、草木類とともに加熱処理工程で処理した上で、加熱処理物として分析後に払出す。放射性セシウムが濃縮された粉じんは高濃縮汚染物として仮置き場ならびに中間貯蔵施設にて保管を想定している。払出された粗粒分ならびに処理物は、その放射能濃度や土壤品質により、覆土や盛土等に活用する。

今回試験に用いた12 000 Bq/kgの除去土壤を仮に10万トン処理した場合、400 Bq/kg以下の粗粒分が5万トン、3 000 Bq/kg以下の加熱処理物が5.3万トンとなり、同時に高濃縮汚染物（約36万 Bq/kg）が1 000トン発生するが、この量は元の土壤に対して1 %であり、汚染物として99 %の減容化が可能と考えられる。

### むすび

放射性物質汚染土壤の除染・減容化プロセスの確立を目的に、実汚染土壤を用いた洗浄・分級試験およびベンチスケール試験装置を使用した各種条件下

での加熱処理試験を実施した。その結果、洗浄・分級工程により粗粒分を分別・除染できることを確認し、また回転炉を使用したベンチスケール実証試験において、添加剤の使用により安定的に80 %以上の放射能除去率を、さらには添加剤量と加熱温度を最適化することで最大98 %の放射能除去率を達成することができた。また、汚染物量は最大で99 %減容化できることが明らかになった。

結果より、本プロセスが実汚染土壤の除染・減容化に有効であり、実用化可能であることを確認した。

現状、除染作業を進めるにあたり課題となっている仮置き場等のひっ迫や今後建設が計画されている中間貯蔵施設への輸送あるいは保管の負荷低減に対して、本プロセスによる除染・減容化は、除染作業の効率化・促進や放射能除染問題の早期解決に有効であると考えられる。

#### [参考文献]

- 1) 福島民報 2013年9月7日新聞記事  
[http://www.minpo.jp/pub/topics/jishin2011/2013/09/post\\_8098.html](http://www.minpo.jp/pub/topics/jishin2011/2013/09/post_8098.html)
- 2) 環境省除染関係ガイドライン平成25年5月第2版
- 3) 除染・廃棄物技術協議会 浄化土壤 WG  
[http://tacrw.jp/03\\_techinfo/03\\_06\\_techinfo.html](http://tacrw.jp/03_techinfo/03_06_techinfo.html)
- 4) 竹田尚弘, 村上吉明, 石井 豊, 井出昇明: 放射性物質に汚染された土壤の除染・減容化技術, 神鋼環境ソリューション技報, Vol.9, No.2 (2013), p.15-20
- 5) 農林水産省通知, 放射性セシウムを含む肥料・土壤改良資材・培土及び飼料の暫定許容の設定について, 平成23年8月1日
- 6) 厚生労働省通知, 放射性物質が検出された浄水発生土の園芸用土又はグラウンド土への有効利用に関する考え方について, 平成25年3月13日
- 7) 環境省通知, 管理された状態での災害廃棄物(コンクリートくず等)の再生利用について, 平成23年12月27日

\*プロセス技術開発部 新規プロセス室