# 土壌を除去せず現場で塩溶液を土壌中に循環さ せることによる除染の可能性

鎌田 慶朗\* 宮城教育大学 教育学部 (980-0845 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 149 番地)

# On Site Removal of Radioactive Contamination by Circulating Salt Solution in Contaminated Soil

Yoshiro KAMATA\* Miyagi University of Education 149 Aramaki-aza-Aoba, Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-0845 Japan

# Summary

A method to collect radioactive material on site effectively without removing surface soil was studied. Cesium which bound to the soil electrostatically was solubilized by circulating a salt solution in the soil. Half molar ammonium acetate was used for circulation. On the other hand, cesium which bound to the soil strongly was removed effectively by collecting fine particles of the soil. The fine particles adsorb much cesium, because the surface area of such a fine particles is relatively large. A salt solution was poured into the soil through a large number of pipes. The solution which leached out was collected with a different pipe at the surface of the soil. The collected solution was supplied again to the injection pipes. Two or three times of one-hour circulation was performed. The fine particles were collected using a filter paper. The fine particles and remaining soil were dried at 140°C for 20 hours. Radioactivity was measured about the filtrate, the fine particles and the residual soil. When water was used for circulation the dissolved radioactive material was around 3%. In this case around 16 % of radioactive material was included in the fine particles. When 0.5M ammonium acetate solution including the alginic acid (200 mg/L) was used for circulation liquid, 12 % of radioactive material dissolved. In this case the radioactive material collected in the circulation liquid and the fine particles was 42 %. On the other hand, the dry mass of the fine particles was 18 % of all dry soil. This shows that much radioactive material adheres to relatively small amount of the fine particles.

Key Words: Soil, On Site Removal, Salt Solution, Circulation, Fine Particle

#### 1. 緒論

原発事故で飛散し降下したセシウムは土壌に吸着され、土 地の比較的表面に留まる性質がある<sup>1)</sup>。そこで、多くの場合、 表土の除去が有効な除染の方法として実施されている。しか し、この方法を全ての土壌、特に農地に適用するとすれば、 その量は膨大となり、除去した土壌の保管や処分は困難な課 題となると考えられる。

現在、土壌からの放射性セシウムの除去法が様々提案されている。土壌へのセシウムの吸着は強固であり、これを引きはがすには、酸による処理<sup>2.3</sup>、土壌粒子の微細化による回

収<sup>4</sup>、あるいはセシウムの気化温度以上の高温での処理<sup>5</sup>など が試みられている。しかし、農地の除染を考慮するとこれら の処理は、その土壌の農耕用の基盤である栄養成分なども失 わせてしまうことになると思われ、また、これらの方法は、 土壌を削り取り、処理施設に運搬し、多くのエネルギーを用 いて処理し、再び現地に運んで戻すことを必要とし相当の<sup>3ス</sup> <sup>1</sup>がかかるものと思われる。また、一旦除去した土壌を再び戻 すことへの抵抗感も大きいのではないかと思われる。以上の 現状を考慮し、表土を除去することなく現地で放射性セシウ ムを効率的に回収する方法について検討した。

\*Corresponding author: Tel: 022-214-3476, Fax: 022-268-4327, E-mail: y-kama@staff.miyakyo-u.ac.jp

# 2. 材料及び方法

# (1) 材料

汚染土壌は福島県国見町の道路わき盛り土部分で採取した。 採取地点は山側斜面の道路を挟んで反対側で、斜面からの流 入よりは降雨などによる直接汚染が主体ではないかと思われ た。また、落葉などの蓄積も見られず、砂状のものであった。 乾燥した土壌の粒度は目開き 500 µm と 106 µm のふるいを セットしたミニふるい振とう機 (MVS-1、 AS ONE) で測 定した結果、500 µm 以上が 63.7±5.2% (平均±標準偏差)、 106~500 µm が 32.3±4.7%、106 µm 以下が 4.0±0.5%であっ た。この土壌の放射線の簡易測定値はバックグラウンドを差 し引いて 0.448±0.040 µSv/h/kg (平均±標準偏差) で、測定 器メーカーの簡易換算グラフによれば、約 6,000~20,000 Bq/kg 程度の放射性物質を含むものと思われた。使用した薬 品類は特級を用いた。

# (2) 除染装置

この装置は、生け花に使う剣山のようにセットした多数の パイプを通して液体を土壌中に注入し、その液体が土壌の表 面に浸み出してくるときに、土壌の微粒子成分を巻き込んで くることを期待した方法である。また、注入する液体は、い まだ可溶性の状態にあるセシウムを溶かし出すことを期待し 塩溶液を用いた。塩溶液の詳細は2(3)運転条件に示した。 また、塩溶液は残存してもかまわない肥料になりうるものを 選んだ。さらに注入時に、パイプをゆすって、微粒子が舞い 上がりやすいようにした。

モデル実験に用いた装置の概要を Fig. 1 に、実際の外観を Fig. 2 に示す。外径 10 mm、長さ 100 mm のチタンパイプを スポンジに等間隔に差し込み、スポンジの反対側からチュー ブポンプ (EYELA ROLLER PUMP RP-1000、東京理化器 械)を用いて塩溶液を送り込んだ。これを土壌の上に乗せ、 溶液をポンプで送りこむと、パイプは徐々に土壌中に潜り 込んでいった。中心の白いパイプは液体の回収用のもので、 回収した液体はフィルター装置を経て再びチタンパイプに 送り込まれる。



Fig. 1 Schematic representation of removal device



Fig. 2 Photograph of circulating system

フィルター装置は、あまり細かいとすぐに詰まってしまう ので、ポリエチレンネットを丸めてガラス製サイクロンに詰 め込んだものを用いた。これである程度の大きさの粒子は回 収できるが、にごり程度の微粒子は回収できなかった。しか し、粒径が小さいほど多くのセシウムを吸着している可能性 があるので、にごりは循環終了後ろ紙によるろ過で回収した。

#### (3) 運転条件

試料土壌 200 g をガラス製容器(内寸 70×130×50 mm) に入れ、除染装置のパイプを挿入した。塩溶液としては酢 酸アンモニウムを用いた。これは、後の測定時に加熱乾燥 によって除去できるためである。その他、硫酸アンモニウム や硝酸アンモニウムも試みたが、結果には大きな違いはなかっ た。循環速度は600 ml/min、循環時間は1時間を中心として いるが、短いに越したことはないので5分も試みた。循環回 数とは、循環をいったん止めて塩溶液と微粉を回収し、新た な溶液で循環した回数を示す。循環液としては、水道水、ア ルギン酸ナトリウム溶液 (200 mg/L)、0.5 M 酢酸アンモニウ ム水溶液にアルギン酸ナトリウム(200 mg/L)を溶解したも のを用いた。 アルギン酸の凝集には、塩化カルシウムを400 mg/L 投入した。循環液についてはそのまま放射能を測定し た。微粉土壌は回収に用いたフィルターやろ紙と一緒に 140℃、20 時間乾燥して、また残った土壌も同様に乾燥して 放射能を測定した。

#### (4) 放射線強度の測定

放射線強度の測定には、簡易測定器(HORIBA PA-100、 堀場製作所)と測定キット(HORIBA PA-K、堀場製作所) を用いた。この測定キットを用いると、測定器と試料の距離 を一定に保つことができるので、再現性の良い測定ができる。 また、環境放射線の影響をできるだけ下げるため、鉛板である 程度の遮蔽をした。測定地の環境放射能は 0.06~0.08 μSv/h 程度だが、遮蔽によってブランクを 0.03 μSv/h 程度に下げる ことができた。測定は20秒おきに15分間記録し、不安定な 最初の5分間を除いた残りの10分間を平均した。

この測定キットを用いると、測定されるµSv/hからベクレ ル量を大まかに推定でき、換算用グラフがメーカーより提供さ れている。しかし、換算の妥当性に関してはまだ十分なデータ が得られていないと思われる。また、µSv/hの値は本来は人 体に対する影響度を表しているので、その値を直接表記する ことは正確とはいえない。そこで、今回は得られたµSv/hの 値から、放射性物質が循環液や微粉等にどのように移動した かを比率で表現することにした。この測定では、循環液、微 粉、残渣の放射線の値を合計すると、概ね元の試料の乾燥後 の放射線量に相当することは確認できた。放射能回収率は循 環液、微粉、残渣の放射能値の合計に対する比率とした。質 量回収率は微粉と残渣の質量合計に対する比率とした。

# 3. 結果及び考察

#### (1) モデル装置の形態

今回、ガラス製の容器に土壌を入れたので、側壁が存在している。実際に現場で用いるとすれば、塩溶液が流出しないよう、装置の周りに側壁を立てることが必要と思われるが、 四角い側壁を土壌の上においておく程度で充分ではないかと思われる。

#### (2) 放射性物質の回収

3 種類の循環液を用いた結果を Table 1 に示す。まず、循 環液に水道水を用いた場合、循環液には全体の放射能の3% が回収された。一方、微粉土壌は質量で8%程度回収された が、放射能は16%含まれていたので単位質量あたりの放射線 量が高いことが示された。これは、これまでの報告とよく対 応している。

次に、微粉土壌を回収し易いように水道水にアルギン酸を 溶かして循環させ、回収時にアルギン酸を塩化カルシウムで 凝集させ、このときごく細かい微粒子を一緒に沈殿させるよ うにした。その結果、循環液に残った放射線量はやはり3% 程度、微粉は20%となったが、操作の手順によっての変動も 大きいので、明確な差とは言えないかもしれない。

一方、循環液に酢酸アンモニウムを用いると、明らかに循 環液に回収される放射線量が増え、一部のセシウムが可溶化 してきていると考えられた。これは、土壌のイオン交換体と しての性質によって吸着していたセシウムが、高濃度の塩に より溶出してきたものと考えられる。この実験では循環回数 を3回としているので、微粉に回収された放射線量も多く、 回収された総量も42%とかなりの量になるが、質量として回 収されたのは18%程度で比較的効率よく放射性物質を回収し ている。このとき体積は乾燥後約25 mL であり、200gの土 壤は250~300 mL であるので約1/10となっている。

一方、除染の効率を上げるためには、循環の時間は短いに 越したことはない。そこで、5分間1回の循環でどの程度の除 去が可能かを検討した(Table 2)。その結果、循環中にパイ プを振動させるなどすると、微粉土壌の放射能回収率は1時 間3回の29%に迫るくらいの回収率を得ることが可能だっ たが、循環液に溶出した放射性物質は少なく、イオン的に吸 着しているセシウムを循環液に可溶化させるにはある程度以 上の時間が必要と思われた。

以上の結果は、この方法が、汚染の完全除去には及ばない としても、広大な汚染面積を除染していく効率的で現実的な 手段となる可能性を持っていることを示している。汚染土壌 そのものを移動することなく、現地に設置し、移動しながら 除染を進める装置を製作すれば、時間はかかるとしても、除 染を着実に進める手段になるのではないだろうか。例えば、 現地では、農地の除染をしてもしばらくすると周辺の山地か ら放射性物質が流れ込むことが問題となっているが、この装 置を農機具としてまとめることができれば、各農家が毎年耕 作開始前に除染作業を行い、安全に耕作を行うことができる ようにするのも一案かもしれない。

循環液	循環回数	試料	放射能回収率(%)	質量回収率(%)
水道水	2	循環液	3	
		微粉土壤	16	8
		残存土壤	81	92
アルギン酸溶液	2	循環液	3	
		微粉土壤	20	13
		残存土壤	77	87
0.5M 酢酸アンモニウム+アルギン酸	3	循環液	13	
		微粉土壤	29	18
		残存土壤	58	82

 Table 1
 Distribution of radioactive material after the circulation process

循環液	循環回数	試料	放射能回収率	質量回収率(%)
			(%)	
酢酸アンモニウム+アルギン酸	1	循環液	2	
		微粉土壤	26	15
		残存土壤	72	85

Table 2 Distribution of radioactive material after 5 min circulation

# 参考文献

- 1) 塚田祥文、山口紀子、高橋知之:化学と生物、49,834-842 (2011)
- 福島正、西久保勝、赤井芳恵、三倉通孝、宮本真哉: 環境放射能除染学会第 1 回研究発表会要旨集、1,87 (2012)
- 木下哲一、谷本祐一:環境放射能除染学会第1回研究発 表会要旨集、1,19(2012)
- 4) 竹下健二、高橋秀治、最上要、石堂昭夫:環境放射能除 染学会第1回研究発表会要旨集、1,27(2012)
- 5) 三浦啓一、本間健一、佐々木忠志、木村武、真保祟:環 境放射能除染学会第1回研究発表会要旨集、1,81(2012)

2012年9月18日受付 2013年9月1日受理

# 和文要約

表土を除去することなく、現地で放射性セシウムを効率的に回収する方法について検討した。土壌中のセシウムのうち、イ オン交換可能な状態のものを、土壌に塩溶液を循環させることにより可溶化した。循環には 0.5 M 酢酸アンモニウムを用い た。一方、土壌に強固に結合したセシウムについては、多くのセシウムが吸着している表面積が大きい粒子径の小さなもの を同時に回収することで効率的に除去することを試みた。多数のパイプから塩溶液を土壌中に注入し、土壌表面に浸出して きた溶液を吸入用パイプで吸いこみ循環させ、流出してきた土壌微粒子を回収した。循環時間は1時間とし、これを 2~3 回行った。ろ液、微粒子、残った土壌に分け、ろ液はそのまま、微粒子と土壌は 140°C、20 時間乾燥して乾燥質量を測定し た後に放射能を測定した。循環液に水を用いた場合可溶化してくる放射能は 3 %程度とあまり多くはなく、微粒子として回 収された土壌には 16 %程度の放射性物質が含まれた。循環液に酢酸アンモニウムとアルギン酸を用いると、循環液に 12 % 回収され、総除去率は 42 %で、このとき除去された微粒子の質量は全体の 18 %であった。このことは、回収された微粒子 により多くの放射性物質が吸着していることを示している。

#