

## Cs の物理的・化学的移行による土壌の減容化に関する研究

野村 直希<sup>1,2</sup>、 関谷 一輝<sup>1</sup>、 三島 史人<sup>1</sup>、 秋山 庸子<sup>1\*</sup>、 西嶋 茂宏<sup>1</sup><sup>1</sup>大阪大学大学院 工学研究科 環境・エネルギー工学専攻 (〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1)<sup>2</sup>福島県生活環境部 環境創造センター研究部 (〒963-7700 福島県田村郡三春町字深作 10 番 2 号)

## Volume Reduction of Contaminated Soil by Physical and Chemical Migration of Radioactive Cesium

Naoki NOMURA<sup>1,2</sup>, Kazuki SEKIYA<sup>1</sup>, Fumihito MISHIMA<sup>1</sup>,  
Yoko AKIYAMA<sup>1,\*</sup> and Shigehiro NISHIJIMA<sup>1</sup><sup>1</sup>Division of Sustainable Energy and Environmental Engineering, Graduate School of Engineering,  
Osaka University (2-1 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871, Japan)<sup>2</sup>Centre for Environmental Creation, Life Environment Division, Fukushima Prefecture  
(10-2 Fukasaku, Miharu, Tamura, Fukushima 963-7700, Japan)

## Summary

A large amount of soil over 20 million m<sup>3</sup> have been discharged by decontamination work in Fukushima Prefecture and it is necessary to reduce the volume of contaminated soil. In order to reduce the volume, we have proposed the method consisting of three processes; wet classification, chemical and physical cesium migration and magnetic separation. In this method, firstly radioactive cesium was migrated into the silt and clay by ion exchange and polishing, and then the soil was separated into low-dose sand gravel and high-dose silt and clay, and lastly the 2:1 type clay minerals are selectively separated by high gradient magnetic separation. In this paper, we focused on chemical and physical cesium migration and wet classification as a preprocessing for the magnetic separation.

**Key Words:** Volume reduction, Wet classification, Ion exchange, Soil polishing, Magnetic separation

## 1. はじめに

福島第一原子力発電所事故に伴い、発電所周辺地域に大量の放射性物質が放出された。特に放射性物質の沈着量が多かった福島県においては、県内の空間線量率低減のため、面的な除染が実施されている。この作業に伴い放射性物質を含む除去土壌等の総量は、可燃物の焼却後で約 1600 万 m<sup>3</sup> ~ 2200 万 m<sup>3</sup> にのぼると推計されている<sup>1)</sup>。これらの除去土壌等は、仮置場や除染現場で一時的に保管した後、中間貯蔵施設へ輸送し、保管する計画となっている。中間貯蔵施設へ搬入後は、減容化、放射性物質の濃縮等を行い、30 年以内に最終処分施設に搬出し、管理されることとされている<sup>2)</sup>。

環境省の推計では除去土壌等の全てを運搬するのに 10 t トラックを用いて 3 年強の期間が必要とされている<sup>3)</sup>。しかし、実際の仮置場の中には 10 t トラックによる搬出が困難な場

所があることから、全量輸送にはさらに長期間かかることも考えられる。これに加え、中間貯蔵施設の建設に向けた用地確保が難航<sup>4)</sup>している現状においては、輸送前の段階で除去土壌の減容化を行い、中間貯蔵施設の容量縮小による建設の早期化、運搬期間の短縮等を図ることも必要になる可能性がある。

そこで我々は中間貯蔵施設内での減容化に加えて仮置場から中間貯蔵施設に運搬する過程においての減容化も視野に入れ、コンパクトで可搬型にすることも可能な一連の除去土壌減容化システムを検討している。具体的には除去土壌を「再利用の可能な大量の低濃度土壌」と「管理保管が必要な少量の高濃度土壌」に分ける減容化手法である。土壌の分離手法によって、低濃度土壌をできるだけ多くすることで、土壌処理にかかるコストおよび期間の削減が期待できる。しかし、これまでの既存の土壌処理技術である土壌分級<sup>5-8)</sup>や焼却処理<sup>9)</sup>の実

\*Corresponding author: TEL: 06-6879-7897, FAX 06-6879-7889, Email: yoko-ak@see.eng.osaka-u.ac.jp

用に向けてはいくつかの課題がある。例えば土壌分級に関しては、有機物を多く含む土壌や粘土等の細粒分の割合が高い土壌における減容効果の向上、焼却処理においてはエネルギー消費や処理コストの低減である。したがって既存技術の課題を補う新たな技術を組み合わせた減容化方法が必要となる。

このような減容化を成し得る手法として、我々は湿式土壌分級と磁気分離を組み合わせた土壌の減容化手法を提案してきた<sup>10-15)</sup>。本研究で提案する減容化手法のフロー図を図1に示す。これまでの我々の研究では、水を媒質とした通常の湿式分級の後処理として、シルト・粘土分をさらに減容化するためにCsを強固に吸着する特定の粘土鉱物を磁気力によって分離するものであった。それに対して、本研究ではさらに放射能濃度の低減を図るため、湿式分級の前処理として砂礫分の物理的研磨と交換態セシウム<sup>137</sup>の化学的移行を同時に行うことが新規な点であり、①土壌の表面研磨、②カリウム肥料溶液を用いた鉱物間でのセシウムの移行、③土壌分級、④超電導磁石を用いた2:1型粘土鉱物の磁気分離、の4つの要素技術から構成される。この中で本論文では①～③の処理について取り上げるが、実用的には1つの工程において処理が可能であるため、実際には大きく土壌処理・分級工程と磁気分離工程の2つの工程による土壌減容化が可能である。

①～③の要素技術のうち①と③の研磨・分級の組み合わせに関しては、多くの研究や実証実験がなされている<sup>7,8)</sup>。また②に関してはカリウム溶液の添加による水相へのセシウム溶出に関する知見が得られている<sup>16)</sup>。これらの既存研究に対する本研究の特徴の一つは、カリウム溶液を用いて土壌中から水相にセシウムを溶出させるのではなく、セシウムをシルトや1:1型

粘土鉱物の表面のような弱い吸着サイトから、強固にセシウムを吸着するFrayed Edge Siteを持つ2:1型粘土鉱物<sup>17)</sup>へと移行させることである。この移行現象については、我々の既存研究においてモデル実験により明らかにしている<sup>18)</sup>。人工的に鉱物間のセシウム移行を行い、水相中にセシウムが放出されないようにすることで、排水処理の工程が不要となり二次廃棄物も削減できることが予想される。もう一つの特徴は、①②の処理を1工程で行うことである。土壌の湿式表面研磨・湿式分級に用いる水にカリウム肥料を添加するのみであるため、既存の処理設備を使用可能であり、特殊な薬剤を用いないため、環境に負荷をかけずコストを低く抑えながらセシウムの分離率を増加することができると予想される。①～③の工程で十分な減容が可能な土壌については④は適用せずに保管、再利用を行い、シルト・粘土分が多い土壌については後処理として④を適用することを想定している。

本論文では、まず①～④の一連の減容化システムの概要について述べ、次に④磁気分離工程の前処理として位置づけられる①～③の工程に関して、実汚染土壌を対象とした福島県内での研究成果を報告する。

## 2. 湿式分級と磁気分離を組み合わせた土壌減容化システムの概要

まず①～④の一連の減容化システムの概要を述べる。我々が検討している減容化システムは、大きく分けて、粗粒分(砂礫分)と細粒分(シルト・粘土分)への土壌分級工程、および細粒分の磁気分離工程の2つに大別できる。土壌分級を行うのは、土壌中のセシウムが主に粒子径の小さい粒子に吸着され存在しているためである<sup>17)</sup>。また細粒分の磁気分離を行うのは、この細粒分の中でもパーミキュライトを初めとした常磁性を示す2:1型粘土鉱物や、それに類似した構造を持つ風化雲母がセシウムを選択的に吸着する性質を持つのにに対し、その他のシルトや1:1型粘土鉱物は反磁性を示し、かつセシウムに対する吸着選択性が低い性質を持つためである<sup>17)</sup>。本研究ではこれらの土壌分級と磁気分離を行う際に、<sup>137</sup>Csと<sup>134</sup>Csを主とする放射能濃度のさらなる低減とそれによる除染土壌の減容をはかるため、①土壌の表面研磨、②セシウム脱離溶液を用いた鉱物間でのセシウムの移行、の2つの処理を検討した。以下に①～④の各工程について説明する。

①の工程は砂礫分の表面に付着した粘土・シルト分を取り除くことと、セシウムを吸着している砂礫分表面を研磨することの2つの方法によって、粗粒分の放射能濃度を低減する目的を持つ処理工程である。砂礫分から高放射能濃度成分をシルト・粘土分に物理的に移行させることから、本論文ではこの工程を物理的移行と定義する。また②の工程は、土壌成分の中でも比較的放射能濃度が低いとされている砂礫、シルトや1:1型粘土鉱物分に対しても、イオン交換性のセシウムは低濃度に吸着していることから、2:1型粘土鉱物以外の土壌成分、すなわち

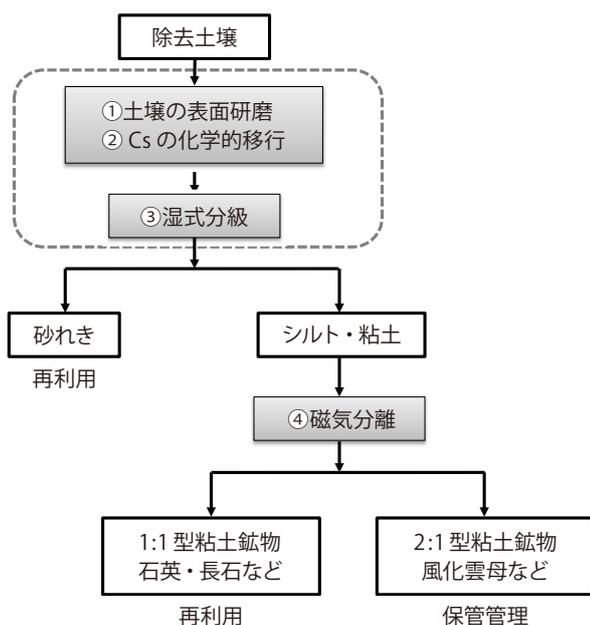


図1 提案する除去土壌減容化手法のフロー図

砂礫、シルト、1:1型粘土鉱物に吸着したセシウムを、環境負荷に配慮したカリウム肥料溶液を用いて、2:1型粘土鉱物へ移行させる工程である。これは、再利用を想定している砂礫分の放射能濃度を低減するための工程である。本論文ではこの工程を化学的移行と定義する。分級工程のみの場合は、低放射能濃度成分とされる砂礫分のCs濃度は土質や土壤全体としての放射能濃度に大きく依存するが、これら①、②の工程の導入により、③の湿式土壤分級において効果的に放射能濃度を低減させ、再利用が可能となることが予想される。

④超電導磁石を用いた2:1型粘土鉱物の磁気分離の工程は、①～③の処理によって得られたシルト・粘土分を対象として、セシウムが濃縮された2:1型粘土鉱物を磁気分離法により選択的に分離回収する工程である。本手法には常磁性・反磁性物質の混合物から常磁性物質のみを分離することが必要であるため、強い磁気力および大量処理が可能な分離領域が求められるため、超電導磁石を用いたHGMS(High Gradient Magnetic Separation高勾配磁気分離)が必要である。本工程において磁気力により捕捉されるのは常磁性物質である2:1型粘土鉱物や風化雲母、および磁鉄鉱などの強磁性物質のみで、分級後に得られたシルト・粘土分のうちの石英や長石、および1:1型粘土鉱物は、反磁性であるために磁気分離装置を通過し、低放射能濃度の土壤として回収される。ここで回収された低濃度土壤は、③の分級で分離された低放射能濃度の砂礫分と同様に埋め戻しあるいは再利用を想定しており、この手法が成立すれば、分級後の細粒分においてさらに減容化を行うことが可能である。また、捕捉した2:1型粘土鉱物に吸着されたセシウムは、鉱物の層間において強固に固定されており、セシウムの溶出が生じにくいという特長を持つことも保管時における利点となる。粘土鉱物に吸着したCsの分離方法として、酸を含むCs脱離液によって高温高压条件でCsを脱離し、ゼオライトやプルシアンブルーなどのCs吸着剤に吸着させる手法<sup>13)</sup>の検討が行われているが、本手法は薬品や吸着剤などの添加物を用いることなく、物理的手法を中心として用いることで、高濃度土壤と低濃度土壤に分離し、低濃度土壤を再利用することで除去土壤の減容化が可能であるとい

う特徴を持っている。このことは、低コスト、装置の維持管理の容易さ、低環境負荷などの面で優れていると考えられる。

本研究では、低放射能濃度土壤である砂礫分を、希釈によってクリアランスレベルである100 Bq/kg以下にできる数百Bq/kg以下、あるいは元の土壤の放射能濃度が高い場合は、覆土等30 cm以上の条件で道路資材等として使用可能な3000 Bq/kg以下<sup>19)</sup>にすることを目標としている。また上記の放射能濃度を達成できた場合の減量率は、元の土壤の1/10程度にすることを旨とする。

以下では上記の一連の減容化システムにおいて、④磁気分離工程の前処理工程にあたる①～③のセシウム移行及び分級工程について、福島県内にて実汚染土壤を用いて行った実験結果について報告する。

### 3. 実験方法

#### (1) 使用した土壤

上記①土壤の表面研磨、②カリウム肥料溶液を用いた鉱物間でのセシウムの移行、③土壤分級、の各工程の有用性を確認するため、福島県内にて実汚染土壤を用いたラボスケールの実験を行った。図2に実験の様子を示す。実験に用いた実汚染土壤は、いずれも福島県本宮市内の仮置場にて自治体の許可を得て、2014年11月に採取した宅地土壤である。フレコンバッグ約10袋からそれぞれ土壤を採取し、後述するNaI(Tl)シンチレーション検出器を用いた測定、および目視での土壤の性状観察により、放射能濃度が極端に低くなく、かつ砂礫分を含む代表的な宅地土壤として2つの土壤を選定した。その結果、本研究では異なるフレコンバッグから採取した砂礫分の含有量の異なる2種の土壤(土壤A、土壤B)を用いて実験を行った。土壤Aは粒径の大きな礫分に富み、放射能濃度が約2300 Bq/kgの宅地土壤である。一方土壤Bは土壤Aに比較して礫分が少なく、放射能濃度が約1200 Bq/kgの宅地土壤である。それぞれの土壤に対し、以下(2)～(4)に示す方法で各1回ずつ試験を行い、異なる実汚染土壤に同じ処理を行ったときの効果を比較検討した。なお本実験では同じ土壤での試験は1回のみの実施であることから、同じ土壤での再現



図2 実験の様子

(a) 土壤のサンプリング、(b) 土壤研磨・Cs移行処理、(c) 湿式分級

性は確認できていない。

## (2) 湿式分級による各粒径区分のセシウム存在量の調査

まず、それぞれの土壌の各粒径区分の放射能濃度を調査するため、上記のそれぞれの土壌について、ふるいを用いて湿式分級実験を行った。なお本実験における放射能濃度は、 $^{137}\text{Cs}$ 濃度のみを対象とした。本実験は上記③の土壌分級工程にあたる。土壌 1 kg を水道水 2 L に添加し、75  $\mu\text{m}$  未満、75 ~ 250  $\mu\text{m}$ 、250 ~ 850  $\mu\text{m}$ 、850 ~ 2000  $\mu\text{m}$ 、2000  $\mu\text{m}$  以上の 5 区画にふるいを用いて湿式分級し、60°C で 2 時間以上乾燥後に質量と  $^{137}\text{Cs}$  の放射能濃度を測定した。放射能濃度測定には NaI(Tl) シンチレーション検出器 (EMF211 型ガンマ線スペクトロメータ、EMF ジャパン株式会社) を用い、計測誤差が 5% 以下となるように計測時間を 600 秒とした (計測誤差 0.4 - 4.2%)。今回放射能測定に用いた土壌の量は数十 g であったため、計測器のキャリブレーションが行われている 900 mL マリネリ容器ではなく、ねじ口 U 型容器 (U-8、容量 100 ml) を用いた。そのため、まず分離前の土壌 A を、まず 900 mL マリネリ容器に満たして放射能濃度 (cps/g、Bq/kg) を測定した。次に同じ土壌 A を今度はねじ口 U 型容器 (U-8、容量 100 ml) に満たして放射能濃度 (cps/g) を測定した。これらのデータからねじ口 U 型容器を用いた場合の換算係数を算出し、ねじ口 U 型容器で計測した計数率 (cps/g) から放射能濃度 (Bq/kg) の概算値の推定を行った。そのため、放射能濃度の測定結果の全てのグラフにおいて、縦軸は cps/g の単位で示し、その測定誤差をエラーバーとして示した上で、それぞれの棒グラフの上に Bq/kg の単位での放射能濃度の概算値を示した。

## (3) 土壌表面の研磨効果の検討 (物理的移行)

初めに、土壌の減容化処理フローのうち①土壌の表面研磨について検討した。上記の通常の湿式分級を基準に比較を行うことで、その効果の検討を行った。分級によって砂礫分の放射能濃度が十分に低減されない理由として、砂礫表面にシルト・粘土粒子が付着したまま分級されている場合、あるいは砂礫そのものの表面にセシウムが吸着していることが考えられる。ここでは、砂礫表面の研磨を行うことで、これらの原因である砂礫表面に付着したシルト・粘土、砂礫表面に直接吸着したセシウムを除去するため、土壌の表面研磨を行った。実用的な土壌の表面研磨の手法は、解さい機<sup>20)</sup>、キャピテーション<sup>20)</sup>、スクラビング<sup>21)</sup>などの方法があるが、ここでは小規模な装置で数 kg の土壌の処理が可能なボールミルを用いて土壌表面の研磨を行った。湿潤状態の実汚染土壌 1 kg を水道水 2 L に添加し、直径 30 cm、容量 10 L のポットミル容器に投入した。これをポットミル架台 (株式会社タナカテック製 RBD-1) に設置して 60 rpm の速さで 2 時間処理を行った。この際、研磨用のアルミナボールを投入した場合は砂礫分の破砕が生じたという著者らのこれまでの予備検討結果に基づき、

本実験ではボールを用いず、粒子どうしの接触のみによる土壌研磨効果を用いた。上記の条件で土壌研磨処理を行った後、(2) と同様に懸濁液を 5 画分にふるいを用いて湿式分級し、乾燥後に質量と放射能濃度を測定した。

## (4) カリウム肥料溶液を用いた鉱物間でのセシウムの移行 (化学的移行)

次に、土壌の減容化処理フローのうち②のカリウム肥料溶液を用いた鉱物間でのセシウムの移行工程の有有用性について検討した。イオン交換により、砂礫分等に弱く吸着したセシウムイオンを一旦水相に溶出させ、粘土鉱物に移行することができれば、分級による放射能濃度低減効果をさらに向上させることができると考えられる。このような化学的移行の効果について調査するため、(3) の実験における媒質を、カリウム溶液に変更した条件で、鉱物間のセシウム移行処理および土壌表面の研磨を同時に行った。ここでは使用時の環境負荷低減を考慮し、カリウム源としては農業用肥料として用いられている、塩化カリウムを主成分とするカリ肥料を用いた。このことにより、一般的な酸や塩基などの洗浄液の使用により土質が大きく変化したり、排水が環境負荷を与えたりという従来の手法における課題を解決することができると考えられる。原料が海水や岩塩、花崗岩などであり、水溶性カリウムを 60% 含む塩化カリウム肥料 (たまごや製) を水道水に溶かした肥料溶液を用いた。K<sup>+</sup> 濃度が 0.1 mol/L になるように、水道水 2 L に対してカリ肥料 13 g 添加して洗浄液として用いた。その溶液に湿潤状態の実汚染土壌 1 kg を添加し、ボールミル装置に投入して 60 rpm の速さで 2 時間処理を行った。その後、懸濁液を 5 画分にふるいを用いて湿式分級し、乾燥後に質量と放射能濃度を測定した。

## 4. 土壌 A についての前処理効果の検討

### (1) 湿式分級による各粒径区分のセシウム存在量の調査

まず土壌 A について、通常の湿式分級を行った。表 1 に通常の湿式分級実験によって得られた各粒径区分の重量割合、放射能濃度および Cs 存在割合を示す。

湿式分級後の放射能濃度は 2000  $\mu\text{m}$  以上の粒径区分において 800 Bq/kg と最も低く、75  $\mu\text{m}$  未満において 39600 Bq/kg と最も高い結果が得られ、粒径が小さい区分ほど放射能濃度は大きくなる傾向がみられた。また重量比で 3% 程度を占めるに過ぎない 75  $\mu\text{m}$  未満の土壌成分に 50% 以上の Cs が存在していることが明らかになった。また、粒径区分毎の重量割合は、2000  $\mu\text{m}$  以上の区分が 84.8% と高く、その他の区分は全て 5% 未満であった。したがって土壌 A は分級による高い減容効果が期待できる土壌であることが言える。しかし、表 1 において 75  $\mu\text{m}$  以上の土壌粒子をすべて合わせた放射能濃度は 1200 Bq/kg であり、そのまま 75  $\mu\text{m}$  以上の粒子とそれ以下の粒子に分級した場合、粒径 75  $\mu\text{m}$  以上の砂礫分全体としての

表1 各粒径区分の重量比および放射能濃度(土壌A)

粒径区分	重量比 (%)	放射能濃度 (Bq/kg)	Cs 存在割合 (%)
75 $\mu\text{m}$ 未満	3.3	39600	53.2
75 ~ 250 $\mu\text{m}$	2.6	8700	9.4
250 ~ 850 $\mu\text{m}$	4.5	3700	6.8
850 ~ 2000 $\mu\text{m}$	4.8	1800	3.5
2000 $\mu\text{m}$ 以上	84.8	800	27.1
土壌全体	100	2300	100

※放射能濃度は概算値

放射能濃度は元の放射能濃度 2300 Bq/kg の半分程度にしかならない。

## (2) 土壌表面の研磨効果の検討 (物理的移行)

そこで、砂礫分のさらなる放射能濃度低減のため、この土壌Aについて研磨処理を行った後の各粒径の土壌の重量比を処理前のものと比較して図3に示す。75  $\mu\text{m}$  未満の粒子の重量割合が、土壌表面の研磨処理によって、土壌全体の重量のおよそ10%分増加していることが分かる。また、この増分は2000  $\mu\text{m}$  以上の粒子の減少分とほぼ同じである。一方、それ以外の75 ~ 250  $\mu\text{m}$ 、250 ~ 850  $\mu\text{m}$ 、850 ~ 2000  $\mu\text{m}$  の粒径区分に関しては土壌重量全体に対する比率としては大きな増減が確認されなかった。したがって、研磨処理により、主として2000  $\mu\text{m}$  以上の粒子表面が摩耗、あるいは表面に付着していた細粒分が剥離されることで、2000  $\mu\text{m}$  以上の粒径区分の重量割合が減少し、これが研磨粉として細粒分に移行することで、75  $\mu\text{m}$  未満の粒径区分の重量割合が増えたと考えられる。

図3において、粗粒分から細粒分へ移行した重量割合は、見かけ上土壌全体の約10%であったことから、粒径2000  $\mu\text{m}$

以上の粒子からの摩耗粒子発生率(Rate of Abrasion Loss; RAL)は約10%であるといえる。75 ~ 2000  $\mu\text{m}$  の粒径区分でも研磨粉の発生は起こっていると考えられるが、図3における見かけの重量変化は、その粒径区分より大きい粒径の粒子の摩耗粒子の付加による重量増加、およびその粒径区分の粒子自体の摩耗による重量減少の差引の結果を示しているため、他の各粒径区分における摩耗粒子の発生率の推測はできないが、ここでは重量比率として80%以上を占め、最も減容化率に寄与する粒径2000  $\mu\text{m}$  の粒子の摩耗率に着目して考察する。文献<sup>21)</sup>において摩耗粒子発生率10%は、それ以上研磨しても放射能濃度減少率が80%で飽和する閾値であると報告されている。研磨の手法と土質は異なるが、今回の研磨条件における粒径2000  $\mu\text{m}$  以上の粒子に対する研磨処理効果は文献<sup>21)</sup>と同等の研磨効果であるといえる。また球形粒子の表面が均一に研磨されたと仮定した場合、摩耗後の半径の減少率は約4%であり、例えば粒径2000  $\mu\text{m}$  の粒子は、表面から約40  $\mu\text{m}$  が剥離されたと推算される。文献<sup>21)</sup>における飽和値は実験的な値であり、適切な剥離厚さを求めるためには、粒子表面からどの程度の深さまで高濃度のセシウムが分布しているかを調査する必要がある。

上記の研磨条件で放射能濃度が低下しているかどうかを調べるため、研磨処理を行った場合の各粒径成分の放射能濃度の変化を、処理前のものと比較して図4に示す。全ての粒径区分において放射能濃度が40 ~ 80%減少しており、本手法によって効果的に高濃度土壌と低濃度土壌とに分離できていることが確認できる。なお、土壌の重量比と放射能濃度の積の合計値の処理前後の差は10%以内であり、放射能収支がほぼ取れていることを確認している。各粒径区分において放射能濃度の低下が起こった理由は2つ考えられ、1つは放射性セシウムを高濃度に吸着した粒子表面が研磨されたこと、もう1つ

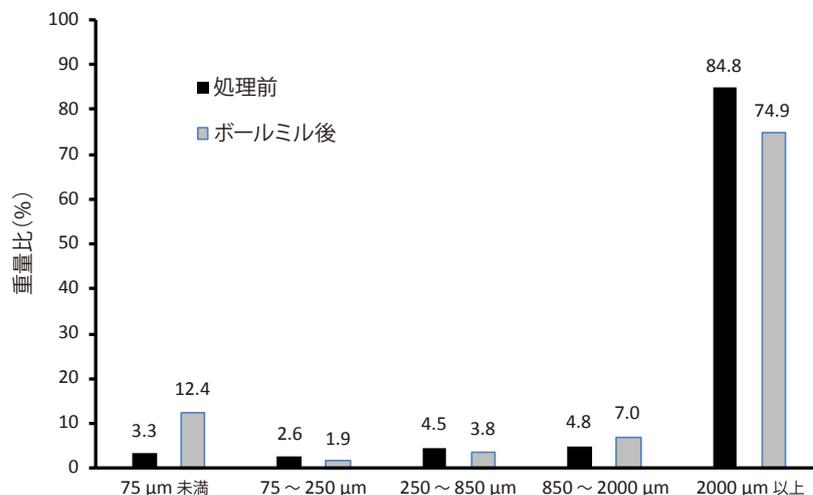


図3 土壌表面研磨処理による各粒径区分の重量割合の変化

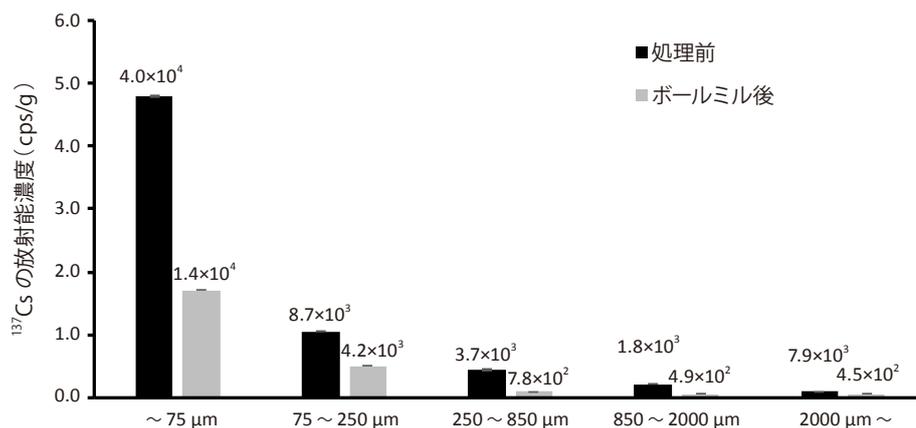


図4 土壌表面研磨処理による各粒径区分の放射能濃度 (cps/g) の変化

※測定誤差をエラーバーとして示している。

また棒グラフの上の数値は放射能濃度 (Bq/kg) への換算値 (概算値) である。

は該当の粒径区分よりも大きな粒子の摩耗による摩耗粉の混入によって、元の粒子よりも放射能濃度の低い粒子が加わったことである。図3では75～2000 μmの粒径区分においては研磨処理による重量変化の土壌全体に対する比率は数%にとどまったが、図4ではいずれの粒径区分においても放射能濃度の明らかな低下がみられている。したがって、重量変化には表れていないが、全ての粒径区分において、研磨による表面付着粒子の剥離あるいは粒子表面の摩耗が生じたと考えられる。上記に述べた通り、75～2000 μmの粒径区分における摩耗粒子の発生率については図3からは特定できないが、土質によってはこれらの粒径区分の研磨が重要になると考えられる。

図4から、放射能濃度の低下率は最大80%であり、粒径250～850 μmの粒子が最も放射能濃度の低減率が大きかった。これはこの粒径区分が今回の研磨条件で最も効率的に表面研磨されていることを示している。顕微鏡観察の結果から、250～850 μmの粒子は長辺と短辺の比が小さく形状が球形あるいは立方体に近い傾向を示したのに対し、それ以上の粒径区分の粒子は長辺と短辺の比が大きい傾向があり、凹凸を持つ形状の粒子も多く見られたことから、850 μm以上の粒子では、上記の推算のように表面を均一に研磨できていない可能性が高い。今後の課題として、75～2000 μmの粒径区分における研磨の度合いについて調査することで、研磨したい粒径区分に適した研磨条件の検討も必要である。また単に研磨時間の増加、回転速度の増加などによる更なる研磨も可能であるが、摩耗粒子発生率が増加することで細粒分が増加して減容率が低下することから、減容率も考慮する必要がある。したがって、本研究では上記の物理的研磨条件において粗粒分の放射能濃度をさらに低減させる手法を検討するため、カリウム肥料溶液を用いた化学的移行処理を行った。

### (3) カリウム肥料溶液を用いた鉍物間でのセシウムの移行 (化学的移行)

化学的移行処理によってさらに放射能濃度を低減させるため、研磨処理の際に、媒質として0.1 mol/Lで $K^+$ イオンを含むカリウム肥料溶液を使用した場合の土壌の放射能濃度の概算値の変化を研磨処理のみの結果と比較して図5に示す。75 μm以上の4つの粒径区分の土壌からは $K^+$ とのイオン交換によりCsが脱離され、放射能濃度が低下した。それに対して、75 μm未満の土壌の放射能濃度が増加したことが確認された。処理前後での土壌全体の放射能の合計を重量比と放射能濃度から化学的移行処理前後の放射能収支を計算した結果、その差は小さく、また液相中のCsは検出限界以下であったことから、粒径の大きな土壌から脱離されたCsが液相に脱離したのではなく、75 μm未満の土壌に移行したことが確認された。このことから、研磨処理と化学的移行を組み合わせることによって、さらに砂礫分の放射能濃度を低減でき、砂礫分からいったん溶出したセシウムは75 μm以下のシルト・粘土分に確かに移行していることが確認できた。

### (4) 物理的移行・化学的移行による前処理の効果

以上の結果をもとに、土壌Aに関して研磨処理のみを行った場合と、研磨処理と移行処理を同時に行った場合の粒径75 μm未満の土壌と75 μm以上の土壌の放射能濃度の概算値と重量比の変化を図6に示す。これは、実際の土壌分級処理装置により、75 μm以上とそれ以下の粒子に分級することで減容化を行うことを想定している。75 μm以上の土壌の放射能濃度は、処理前の1200 Bq/kgからCs移行処理により、400 Bq/kgと低下した。環境影響の少ない肥料のみを添加物と使用し、クリアランスレベルである100 Bq/kgに近づけることができたため、非汚染の土壌と混合して希釈して再利用することが可能

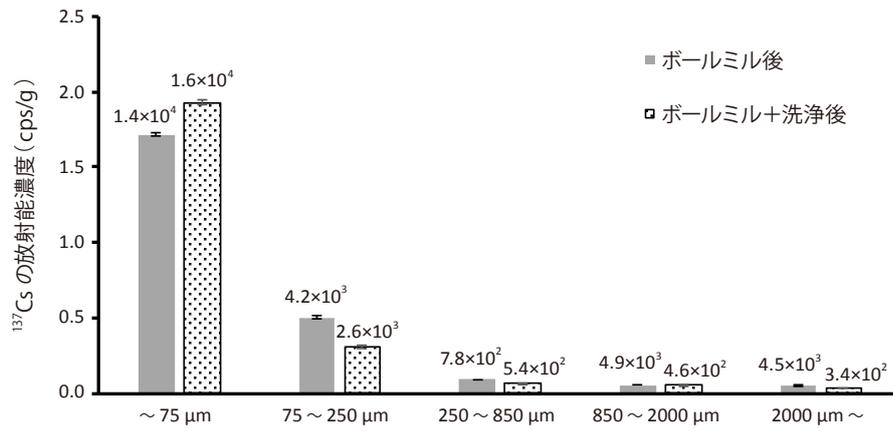


図5 化学的移行処理による放射能濃度 (cps/g) の変化  
 ※測定誤差をエラーバーとして示している。  
 また棒グラフの上の数値は放射能濃度 (Bq/kg) への換算値 (概算値) である。

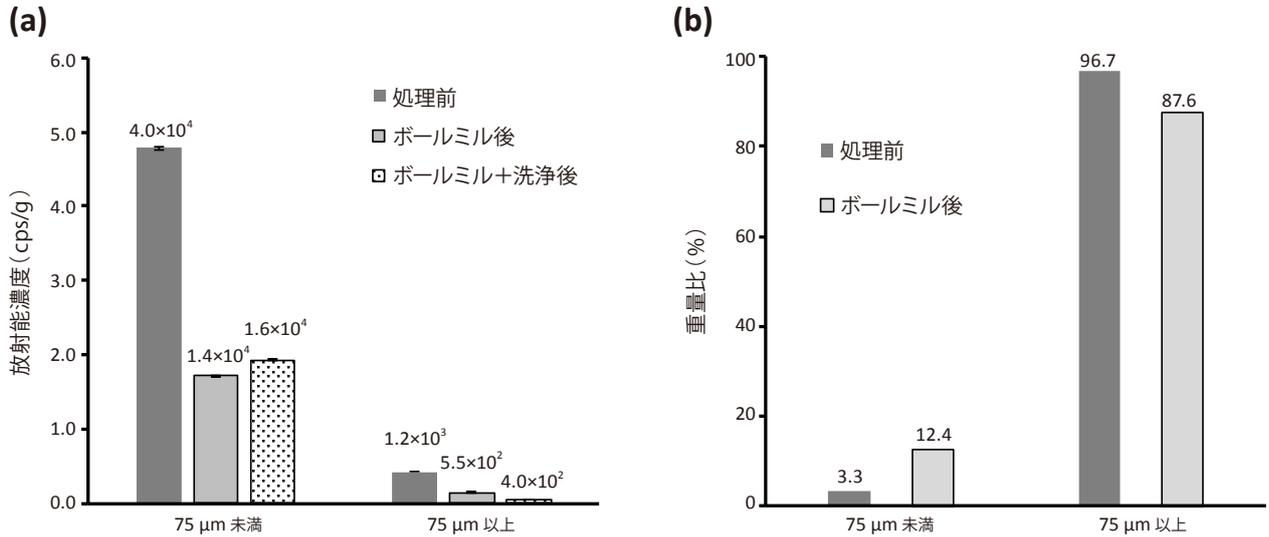


図6 Cs 移行処理による土壌成分の (a) 放射能濃度 (cps/g) および (b) 重量比の変化 (土壌 A)  
 ※測定誤差をエラーバーとして示している。  
 また棒グラフの上の数値は放射能濃度 (Bq/kg) への換算値 (概算値) である。

である。75 μm 以上の土壌の重量比は、研磨処理により 97% から 88% に低下しているが、それらの土壌を再利用することで除去土壌を元の土壌重量の 12% 程度に減量できる可能性が示された。

### 5. 土壌 B についての前処理効果の検討

#### (1) 湿式分級による各粒径区分のセシウム存在量の調査

次に、上記の実験で使用した宅地土壌よりも粒径の大きな礫分が少ない宅地土壌 (土壌 B) に対しても Cs 移行処理が有効であるかどうかを調査した。処理前の実汚染土壌の各粒径区分の土壌の重量比と放射能濃度の概算値を表 2 に示す。4. の実験で使用した土壌 A と比較すると、75 μm 未満の土壌の重量比

表 2 各粒径区分の重量比および放射能濃度 (土壌 B)

粒径区分	重量比 (%)	放射能濃度 (Bq/kg)	Cs 存在割合 (%)
75 μm 未満	6.4	10500	59.8
75 ~ 250 μm	7.8	1700	11.9
250 ~ 850 μm	12.2	800	8.3
850 ~ 2000 μm	6.1	380	2
2000 μm 以上	67.5	300	18
土壌全体	100	1200	100

※放射能濃度は概算値

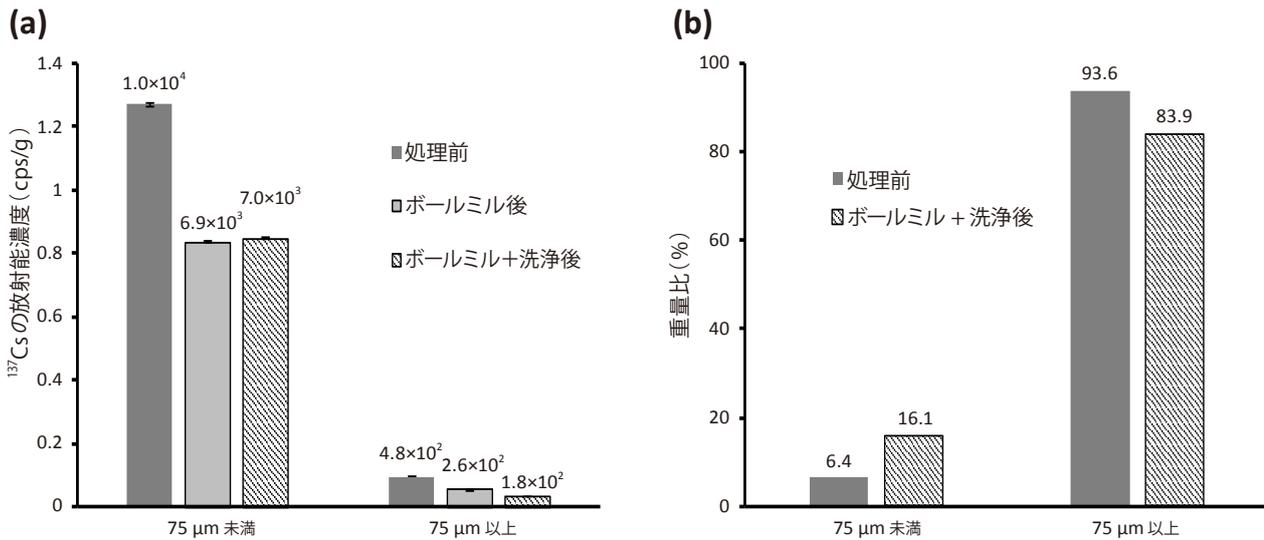


図7 Cs移行処理による土壤成分の(a)放射能濃度(cps/g)および(b)重量比の変化(土壤B)

※(a)のグラフでは測定誤差をエラーバーとして示している。

また棒グラフの上の数値は放射能濃度(Bq/kg)への換算値(概算値)である。

が多く、2000 μm以上の粒径の大きな土壤が少ない土壤であることがわかる。また土壤全体の放射能濃度を比較した場合は、いずれの粒径区分についても比較的低いことが確認できる。

## (2) 物理的移行・化学的移行による前処理の効果

研磨処理と洗浄処理を同時に行った場合の粒径75 μm未満の土壤と75 μm以上の土壤の放射能濃度と重量比の変化を図7に示す。4.の実験で使用した土壤Aの放射能濃度変化を示した図6と比較して、今回の土壤試料を用いた場合でも同様の結果が得られていることが確認できる。粒子径75 μm以上の粒子は土壤A、Bとも初期放射能濃度の約1/3となり、摩耗粒子発生率は重量変化から全体で約10%以上と推定される。土壤中のCs濃度が低い方が溶液中に抽出するのが困難になると考えられたが、処理前の放射能濃度が低い場合でもその低減率は同様であった。具体的には、2000 μm以上の土壤の放射能濃度は、処理前で300 Bq/kg程度であったが、研磨処理とカリウム肥料による洗浄処理により、50 Bq/kg程度まで低下した。75 μm以上の土壤全体の放射能濃度もCs移行処理後では、180 Bq/kgとクリアランスレベルである100 Bq/kgに近い値まで放射能濃度が低下し、重量比で84%存在する土壤を減容化できる可能性が示された。

事故後の時間経過により、比較的弱く土壤に吸着したセシウムは雨水等によって溶出していると考えられ、一方で強固に土壤に吸着したセシウムが土壤中に残存しているため、放射能濃度の低い土壤は濃度低減が困難と考えられたが、物理的・化学的移行処理はこのような土壤にも有効であることが分かった。このことは、事故後の時間が経過しても、2:1型粘土鉱物

のようなセシウムを強固に吸着した細粒分のみならずセシウムが存在するのではなく、砂礫、シルトや1:1型粘土鉱物などの比較的弱くセシウムを吸着する成分にも未だセシウムが存在していることを示唆するものである。これらの結果から、成分比や放射能濃度の異なる実汚染土壤に対しても物理的・化学的セシウム移行処理が有効であり、土壤の減容化手法としての可能性が示された。

## (3) 除去土壤減容化への磁気分離法の導入の重要性

以上の結果から、宅地土壤に関しては、①～③の工程において放射能濃度低減および減容化が見込める結果が得られた。しかし、研磨処理によっていずれの土壤においても減量率が10%程度低下し、当初の目標値である1/10以下への土壤減量にはわずかに至らない結果となった。これは、粗粒分の摩耗粉が75 μm以下の粒子として分級されるようになったためである。それに加え、今後は除去土壤として宅地土壤のみならず農地土壤などの粘土質に富む土壤が増加すると予想され、その場合はさらに減量率が低下することが考えられる。

以上のように、土壤分級を用いる際の大きな課題として減容率が土質に依存することが挙げられる。この課題の解決のためには、現在開発している④超電導磁石を用いた2:1型粘土鉱物の磁気分離の工程が重要となる。本論文で実験を行った①～③の工程では、細粒分のうちシルトや1:1型の粘土鉱物中の放射性セシウムに吸着した放射性Csは②の移行処理によっていったん脱離した後、層間に強固にセシウムを固定する能力を有する2:1型粘土鉱物への不可逆な吸着が生じる。この傾向については粘土鉱物混合物と模擬雨水を用いた自然界での移行

を模擬した実験において確認しており<sup>18)</sup>、またカリウム肥料を媒質とした研磨処理によって化学的移行の可能性を調査したモデル実験でも同様の傾向が示されている。したがって、④の磁気分離工程において2:1型粘土鉱物のみを選択的に回収することで、分級によって得られた細粒分を高濃度土壌と低濃度土壌に分け、細粒分をさらに減容化することが可能になると考えられる。今後は今回提案した手法で前処理を施した高放射能濃度の細粒分を対象に超電導磁石を用いた高勾配磁気分離処理を行い、放射能濃度低減と減容化の効果について検討していく予定である。

## 6. 結論

本論文では、除去土壌の減容化方法として、①土壌の表面研磨、②カリウム肥料溶液を用いた鉱物間でのセシウムの移行、③土壌分級、④超電導磁石を用いた2:1型粘土鉱物の磁気分離、の4つの技術要素から成る手法を提案し、このうち①～③の工程について検討を行った。その結果、①土壌の表面研磨工程の実験において、2種の宅地土壌のいずれにおいても、分級のみを行った場合と比較して、2000 μm以上の粒子に関して約50%の比放射能濃度の低減が確認された。次に、②カリウム肥料溶液を用いた鉱物間でのセシウムの移行の実験において、分級のみを行った場合と比較して、2000 μm以上の粒子に関して約65%の放射能濃度低減が確認された。またこの時の減量率はいずれの宅地土壌においても80%以上であった。このように、③の土壌分級の前に①②の前処理工程を導入することによって、高い減容化効果および放射能濃度低減効果が確認された。

今回は宅地土壌を対象としたため、粗粒分が多いために高い減容率が得られ、また土壌中の有機成分の影響は少なかったが、農地土壌や森林土壌を対象とする場合には細粒分が多くを占めることによる減容率の低下、有機成分による土壌粒子の凝集の影響が考えられる。したがって今後は幅広い土質の土壌に対して本手法が適用できるようにするため、④の磁気分離工程も含めた一連の減容化システムを検討し、粘土質や有機質の土壌への適用の検討を行う予定である。

## 謝 辞

本研究の一部は環境省総合推進費「セシウムの動態解析に基づく除染シナリオの構築と磁気力制御型除染法の開発」(5Z-1301)によって行われた。

## 参 考 文 献

- 1) 環境省 中間貯蔵施設情報サイト: 中間貯蔵施設の概要, (<https://josen.env.go.jp/chukanchozou/about/>) 2016年5月閲覧.
- 2) 環境省: 東京電力福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質による環境汚染の対処において必要な中間貯蔵施設等の基本的考え方について, ([https://www.env.go.jp/jishin/rmp/attach/roadmap111029\\_a-0.pdf](https://www.env.go.jp/jishin/rmp/attach/roadmap111029_a-0.pdf)), (2011)2016年8月閲覧.
- 3) 中間貯蔵施設等福島現地推進本部: 「除染土壌等の中間貯蔵施設の案等について」, ([https://josen.env.go.jp/chukanchozou/action/acceptance\\_request/](https://josen.env.go.jp/chukanchozou/action/acceptance_request/)) 2016年5月閲覧.
- 4) 「用地交渉は難航「中間貯蔵」10月着工方針、問われる国の責任」, 2016年3月4日 福島民友 みんゆう Net, <http://www.minyu-net.com/news/sinsai/serial/0400/08/FM20160304-055730.php>, 2016年8月閲覧.
- 5) 神坐 圭介, 富塚 千昭: 汚染土壌乾式除染・減容技術. 富士電機技報. **86**, pp.148-161 (2013).
- 6) 高畑 修, 熊田 正次郎, 安藤 淳也, 宮口 新治, 石山 宏二, 保高 徹生, 小峯 秀雄: 「道路維持管理に伴い発生する放射性物質含有土への土壌洗浄工法の適用性評価」, 地盤工学ジャーナル, **10**, 489-502 (2015).
- 7) 伊藤 健一, 宮原 英隆, 氏家 亨, 武島 俊達, 横山 信吾, 中田 弘太郎, 永野 哲志, 佐藤 努, 八田 珠郎, 山田 裕久: 「湿式分級洗浄および天然鉱物等による農地土壌等に含まれる放射性セシウム除去方法の実践的検討」, 日本原子力学会和文論文誌, **11**, 255-271 (2012).
- 8) 井出 一貴, 三浦 俊彦, 神徳 敬, 高田 尚哉: 放射能汚染土壌の分級洗浄処理. 大林組技術研究所報. **76**, 1-6 (2012).
- 9) 内閣府原子力被災者生活支援チーム: 平成23年度「除染技術実証試験事業」の結果概要資料回転加熱によるセシウム昇華技術. (<http://www.env.go.jp/jishin/rmp/conf/04-mat22.pdf>), 2015年11月閲覧.
- 10) S. Igarashi, N. Nomura, F. Mishima, Y. Akiyama, S. Nishijima: Fundamental study of cesium decontamination from soil by superconducting magnet. *Physica C: Superconductivity and Its Application*, **494**, 221-224 (2013).
- 11) S. Igarashi, N. Nomura, F. Mishima, Y. Akiyama, S. Nishijima: Study on magnetic separation for decontamination of cesium contaminated soil by using superconducting magnet. *Physica C: Superconductivity and Its Application*, **504**, 144-147 (2014).
- 12) K. Sekiya, H. Kuwahara, Y. Yoshida, S. Igarashi, N. Nomura, F. Mishima, Y. Akiyama, S. Nishijima: Study on decontamination of contaminated soils by magnetic separation. *IEEE T. Appl. Supercon.*, **24**, 3700205 (2014).
- 13) Y. Yoshida, K. Sekiya, N. Nomura, F. Mishima, Y. Akiyama, S. Nishijima: Study on volume reduction of contaminated soil by radioactive cesium using magnetic separation. *IEEE T. Appl. Supercon.*, **25**, 3700505 (2015).
- 14) 行松 和輝, 野村 直希, 三島 史人, 秋山 庸子, 西嶋 茂

- 宏：磁気分離法を用いた汚染土壌減容化に関する研究. 第4回環境放射能除染研究発表会 要旨集. 29 (2015).
- 15) K. Yukumatsu, N. Nomura, F. Mishima, Y. Akiyama, S. Nishijima: Study on volume reduction of cesium contaminated soil by magnetic separation. *IEEE T. Appl. Supercon.*, **26**, 3700604 (2016).
- 16) Takeda, A., H. Tsukada, Y. Takaku, S. Hisamatsu, J. Inaba, M. Nanzyo: Extractability of major and trace elements from agricultural soils using chemical extraction methods: Application for phytoavailability assessment. *Soil Sci. Plant Nutr.*, **52**, 406-417 (2006)
- 17) 山口 紀子, 高田 裕介, 林 健太郎, 石川 覚, 倉俣 正人, 江口 定夫, 吉川 省子, 坂口 敦, 朝田 景, 和穎 朗太, 牧野 知之, 赤羽 幾子, 平舘 俊太郎: 「土壌 - 植物系における放射性セシウムの挙動とその変動要因」, 農業環境技術研究所報告第3号 (2012)
- 18) 吉田 有輝, 三島 史人, 秋山 庸子, 西嶋 茂宏: 土壌におけるセシウムの微視的動態に関する研究. 環境放射能除染学会誌. **3**, 65-72 (2015).
- 19) 平成 24年4月 原子力被災者生活支援チーム 原子力発電所外に適用されている放射能に関する主な指標例 ([http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/120427\\_01a.pdf](http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/120427_01a.pdf)) 2016年5月閲覧.
- 20) 中島 卓夫, 田川 明広, 松生 隆司, 大山 将, 林 茂郎, 高馬 崇: 「放射性セシウム汚染土壌の洗浄処理に関する検討」 鴻池組技術研究報告 2012, 1-8 (2012).
- 21) 毛利 光男: 「スクラビング・フローテーションを用いた土壌洗浄法による放射性物質汚染土壌の効率的な浄化と減容化」, 建設の施工企画, **754**, 65-71 (2012).

2016年5月25日受付  
2016年8月24日修正  
2016年9月28日受理

#### 和文要約

福島県内の除染に伴い発生した除去土壌等の発生量は約 1600 万 m<sup>3</sup> ~ 2200 万 m<sup>3</sup> にのぼると推計されており、その減容化技術が望まれている。効果的な減容化のためには、除去土壌を低濃度土壌と少量の高濃度土壌に分け、このうち低濃度土壌を再利用できるレベルまで放射能濃度を低減し、高濃度土壌を安全に保管管理できるようにすることが重要である。これまで筆者らは、放射性セシウムの細粒分への移行、土壌分級、磁気分離法の3つのプロセスを組み合わせた効果的な減容化を提案してきた。この手法は、まず放射性セシウムをイオン交換および研磨によってシルト・粘土分に移行し、次に分級によって低放射能濃度の砂礫分と高放射能濃度のシルト・粘土分に分離する。さらに高勾配磁気分離法によってシルト・粘土分の中からCsを特に強く吸着する2:1型粘土鉱物のみを選択的に分離することで、湿式分級のみを用いた場合に比較して放射能濃度低減率および減容率を高める手法である。本論文では磁気分離の前処理手法として、物理的、化学的手法による放射性セシウムの細粒分への移行と土壌分級のプロセスについて検討した結果を報告する。

