

放射能汚染土の分級減容化と再生利用に関する検討

田 中 真 弓・川 端 淳 一・小 澤 一 喜

除染作業で発生した大量の除去土壌等の減容化のため、分級・化学処理・熱処理の3つが主要な技術として確立されつつある。本研究は、分級による減容化効果を検討するため、実汚染土壌としてグラウンドの土を用いた現地試験と、粒径2 mm以上の分級後土壌をセメント改良した後の土壌の溶出試験により土木資材としての利用可能性を検討した。その結果、分級洗浄によって得られた粒径0.075 mm以上の砂は放射性セシウム濃度が8000 Bq/kg以下となり、さらにセメント改良することによって溶液中への放射性セシウムの溶出率も低くなるため、土木資材としての再利用の可能性の高いことが分かった。

キーワード：中間貯蔵施設、除去土壌、減容化、土壌分級、磨洗

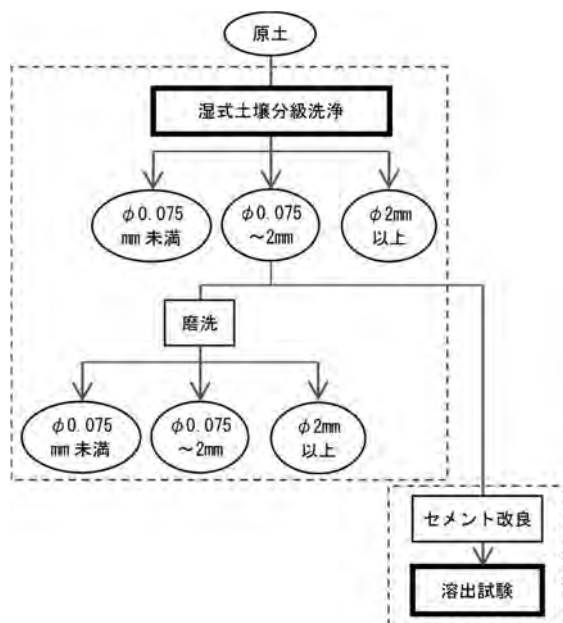
1. はじめに

福島第一原子力発電所での事故後、「平成二十三年三月十一日に発生した東北地方太平洋沖地震に伴う原子力発電所の事故により放出された放射性物質による環境の汚染への対処に関する特別措置法」（平成23年法律第110号）に基づき、空間線量率が一般公衆の年間被ばく量の上限とされている1 mSv/yを超える地域では除染が進められており、さらに汚染廃棄物の処理、中間貯蔵施設の整備等の各種取組が行われている。除染の対象となるのは、宅地、農地、森林、道路などである。宅地や農地などの土壌については、放射性物質が、細粒分に高濃度に、粗粒分に低濃度に吸着・付着しており、特に地表付近に集中していることが知られている¹⁾。

除染作業で発生した大量の除去土壌等は、中間貯蔵施設に搬入された後、安全に管理・保管され、中間貯蔵開始から30年以内に県外最終処分が予定されている。しかし、県外最終処分の実現に向けては、最終処分必要量の低減が課題であるため、除去土壌の中から再生資材として利用可能な放射能濃度の低い土壌を選別し、放射性物質の拡散が起こらないよう配慮した上で再生利用を進めていくことが望ましい。「中間貯蔵除去土壌等の減容・再生利用技術開発戦略（案）」（平成28年3月、環境省）では、上記考え方に基づき、関連した技術開発、再生利用等に関する中長期的な方針が示されている。最終処分の完了に向けて、放射性セシウム（以下、Cs）濃度が8000 Bq/kg以下のもの

は、遮蔽効果を有する資材で覆うなど管理された状態であれば、盛土や廃棄物処分場の覆土材などに再生利用可能であるとの見解が、「再生資材化した除去土壌の安全な利用に係る基本的考え方について」（平成28年6月30日、環境省）で示されている。

震災後、減容化のための技術開発が各機関で活発に進められており、その結果、分級、化学処理、熱処理の3つが主要な技術として研究されてきている。本研究では、このうち分級による減容化効果を、実汚染土壌としてグラウンドの土を用いた現地試験によって検討した。前述の通り、土壌中の放射性Cs濃度は粒径によって異なるが、放射性Cs濃度が比較的低い粗粒分を選別し、洗浄等により8000 Bq/kg以下とすることができれば、土木資材として再生利用が可能であると思われる。一方、こうして洗浄、選別された8000 Bq/kg以下の土を土木資材として再生利用する場合、河川水・海水等との接触における放射性Csの溶出特性が再生利用の際の課題として挙げられる。これらを踏まえ、本研究では、放射性Cs濃度が比較的低い粗粒分を対象に選別・洗浄による再利用の可能性について検討を行った。具体的には、まず湿式土壌分級洗浄によって、8000 Bq/kg以下の土壌の選別の可能性を室内実験・実規模実験により検証した。次に、道路や防潮堤の盛土材・中詰土に8000 Bq/kg以下の土壌を用いることを想定し、選別土壌（未改良土）と、セメントを添加して作製したセメント改良土供試体の粉碎物について、それぞれを試料とした溶出試験を行った。もし、8000 Bq/kg以下の土壌を土木資材と



図一 本研究のフロー

して再利用し、構築した構造物が河川の氾濫や津波や高潮などによって万が一破損した場合には、汚染土壌と河川水や海水が接触し、放射性Csが液相中へ溶出する懸念がある。溶出試験は、そのような状況を想定し、放射性Csの溶出特性を把握することを目的としたものである。本研究のフローを図一1に示す。

2. 実験方法

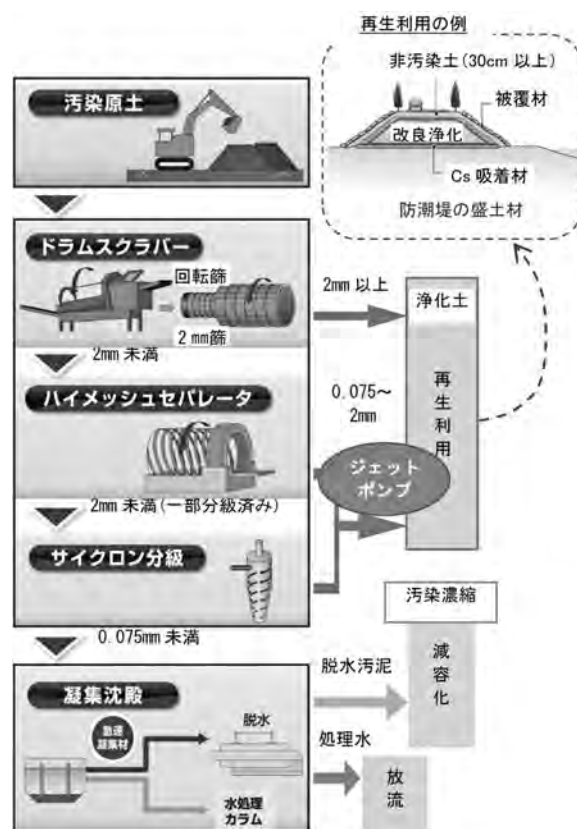
現地における湿式土壌分級洗浄と、分級後土壌を材料の一部として使用したセメント改良土の溶出試験について、実験方法を以下に示す。なお、本実験は2012年に実施したものである。

(1) 湿式土壌分級洗浄

放射性Csによって汚染されたグラウンド土壌を対象に湿式土壌分級洗浄を行った。汚染は地表部に集中していることが知られている¹⁾ことから、表層から深さ5cmまでの表土を対象とした。分級区画は、地盤工学で一般的な土粒子区分の粒径²⁾を参考に、粒径0.075mm未満、0.075～2mm、2mm以上の3段階とした。

まず、室内実験では、グラウンドの表層5cmの土壌をφ0.075mm未満、φ0.075～2mm、φ2mm以上に簡易湿式分級し、サンプル全体の放射性Cs濃度と各分級区画の放射性Cs濃度と重量比を測定した。

さらに、現地で実規模レベルの装置を用いて、湿式土壌分級洗浄を実施した。以下には、実規模実験の湿式土壌分級洗浄の手順を示す(図一2)。



図一2 湿式土壌分級システムの概要

- ①グラウンドの表土5cmをバックホウですきとる
- ②ドラムスクラバーに水と土壌を投入し、回転篩(2mm目)で分級洗浄(φ2mm以上、φ2mm未満に分級)
- ③ハイメッシュセパレータにより解泥・洗浄(φ2mm未満をφ0.075～2mmに分級)
- ④遠心力を利用したサイクロンによる分級(③で取り残したφ0.075～2mmを分級)
- ⑤細粒分を含む処理水を凝集沈殿、脱水(脱水汚泥はφ0.075mm未満となる)

湿式土壌分級洗浄の実施状況は写真一1に示す通りであり、原土と分級洗浄後土壌のサンプリングを行った。



写真一1 湿式土壌分級洗浄の状況

φ 0.075 ～ 2 mm に分級した土壌については、さらに砂・礫の表面に固着した放射性 Cs を分離する手法としてジェットポンプによる磨洗を試みた。本試験での磨洗とは、ジェットポンプにより砂と水と空気の三相（固相、液相、気相）を高速で流下させ、混練しながら矩形の管路内を通過させることにより、砂同士がこすり合わされ、砂粒子を破壊せずに砂粒子の表面を磨き取る方法である。実験条件（表—1）は、洗浄水に水あるいは過酸化水素水（2 wt%）を使用し、さらに浄化効果向上を期待して吸着材として笠岡粘土を 1 wt% 添加した場合を設定した。5 回磨洗した後の土壌を採取した。

表—1 ジェットポンプによる浄化実験条件

吸着材（笠岡粘土）	洗浄水
あり	水
	過酸化水素水（2 wt%）
なし	水
	過酸化水素水（2 wt%）

また、安定的かつ大規模に低コストで処理できる分級処理システム構築のための要素試験として、ハイメッシュセパレータによる緩速の分級洗浄を行う前段階で、洗浄水としてマイクロバブル水を使用した場合の分級洗浄効果について、原土を用いた試験を実施した。水またはマイクロバブル水と土壌を混合して作製したスラリー（5 wt%，土：水＝1：19）の分級洗浄を下記の手順で行った。なお、マイクロバブル水はマイクロバブル発生装置から吐出された直後のものを使用した。写真—2 に実験状況を示す。

- ①ハイメッシュセパレータを清水で満水にする
- ②ポットミキサーに土壌を規定量投入し、さらに水またはマイクロバブル水を加える
- ③ポットミキサーを 2 分間運転し停止する
- ④ポットミキサー内のスラリーから土壌試料を採取する
- ⑤スラリーを 860 kg/分の速度でハイメッシュセパ

レータに投入し 4 分間、運転する

- ⑥最終投入終了 1 分後にハイメッシュセパレータを停止する
- ⑦ベッセルに受けた土壌から土壌試料を採取する

なお、各実験でサンプリングした土壌は、全量での放射性 Cs 濃度と、φ 0.075 mm 未満、φ 0.075 ～ 2 mm、φ 2 mm 以上に室内で簡易分級した後、各分級区画の放射性 Cs 濃度と重量比を測定した。放射性 Cs 濃度は、ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリーで測定した ^{134}Cs と ^{137}Cs の合計値を、乾燥重量当りの測定値として示す。

(2) 溶出試験

溶出試験に用いた溶液は、河川水などの淡水を想定した水道水と海水を想定した人工海水である。溶出試験に用いた固体試料は、分級後の土壌のうち、φ 2 mm 以上（φ 2 ～ 5 mm 程度）の 8000 Bq/kg 以下に浄化された土壌（未改良土）と同じ分級後土壌をセメントで改良した土を用いた。この時のセメント添加量は、80 kg/m³、120 kg/m³とした。セメント改良土作製用型枠は直径 30 cm の円筒形で、供試体の高さは 30 cm である（写真—3）。材齢 11 週でこのセメント改良土を破碎し、5 mm 篩い通過分を試料とした。

溶出試験の条件を表—2 にまとめた。溶出試験の作業概要は次の通りである。試料は風乾せず、液固比 10（固体 50 g、液体 500 g（＝500 mL））で 1 L ポリビンに封入し、横置きで振とう（振とう幅 4 ～ 5 cm、200 rpm、6 時間）した。吸引ろ過時のろ紙は 0.45 μm

写真—3 セメント改良土供試体（左：80 kg/m³、右：120 kg/m³）

ポットミキサー（スラリー作製）

ハイメッシュセパレータ

処理後土壌の排出

写真—2 ハイメッシュセパレータ試験状況

表—2 溶出試験条件

試験土壌		試験水
未改良土		水道水
		人工海水
セメント改良土	セメント添加量：80 kg/m ³	水道水
		人工海水
	セメント添加量：120 kg/m ³	水道水
		人工海水

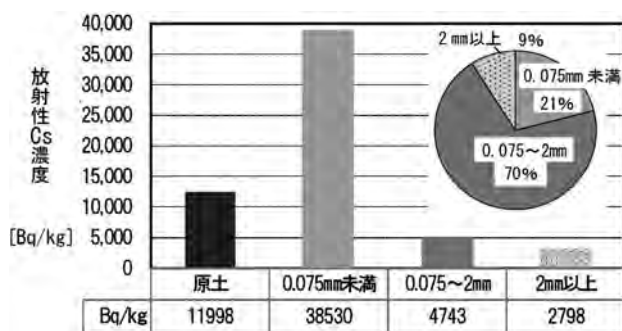
メンブレンフィルターを用いており、吸引ろ過後のろ液を検液とした。検液の放射性 Cs 濃度の測定は土壌と同じ測定器を用いた。

3. 実験結果

(1) 湿式土壌分級洗浄

分級前の原土（グラウンド表層 5 cm の土壌）と、 ϕ 0.075 mm 未満、 ϕ 0.075 ～ 2 mm、 ϕ 2 mm 以上に室内で簡易分級した土壌について、各分級区画の放射性 Cs 濃度と重量比を測定した。測定結果を図—3 に示す。放射性 Cs 濃度は、分級前の原土で約 12000 Bq/kg、 ϕ 0.075 mm 未満が約 39000 Bq/kg、 ϕ 0.075 ～ 2 mm が約 5000 Bq/kg、 ϕ 2 mm 以上が約 3000 Bq/kg であった。また、重量比は ϕ 0.075 mm 未満が 21%、 ϕ 0.075 ～ 2 mm が 70%、 ϕ 2 mm 以上が 9% であった。

また、現地で実規模レベルの湿式土壌分級洗浄を



図—3 原土の放射性 Cs 濃度と重量比 (円グラフ)

行った後の土壌の放射性 Cs 濃度は ϕ 0.075 mm 未満が 20000 ～ 40000 Bq/kg 程度、 ϕ 0.075 ～ 2 mm が 4000 ～ 6000 Bq/kg 程度、 ϕ 2 mm 以上（ ϕ 2 ～ 5 mm 程度）が 2000 ～ 2800 Bq/kg であった（表—3）。これは、室内で簡易分級した後の各分級区画の放射性 Cs 濃度とほぼ同じ結果となった。

ϕ 0.075 ～ 2 mm に分級した砂（4000 ～ 6000 Bq/kg 程度）をジェットポンプにより磨洗した結果、表—3 のように、吸着材あり、もしくは過酸化水素水を用いたケースで浄化効果が高く、放射性 Cs 濃度をさらに低減可能であることが分かった。磨洗後の ϕ 0.075 ～ 2 mm の土壌の放射能濃度は、吸着材なしのケースでは、水で 4950 Bq/kg、過酸化水素水で 4670 Bq/kg となり、過酸化水素水の方がやや低かった。この傾向は吸着材ありのケースでもみられ、水で 3690 Bq/kg、過酸化水素水で 2850 Bq/kg となり、「吸着材あり・過酸化水素水」のケースでは、3000 Bq/kg を下回った。 ϕ 0.075 mm 未満の土壌は、吸着材なしでは 14370 ～ 14650 Bq/kg であったが、吸着材ありでは水で 4950 Bq/kg、過酸化水素水で 6860 Bq/kg となった。なお、実験後土壌を湿式分級した各分級区画の分布重量割合は、 ϕ 0.075 mm 未満が 1.1%、 ϕ 0.075 ～ 2 mm が 97.8%、 ϕ 2 mm 以上が 1.1% であった。

ハイメッシュセパレータを用いた洗浄水の違いによる分級洗浄効果の検討では、水またはマイクロバブル水を使用した結果、原土の放射性 Cs 濃度は 52941 Bq/kg に対して、水の場合、除染率（（原土の放射性 Cs 濃度－洗浄後土壌の放射性 Cs 濃度）／原土の放射性 Cs 濃度 × 100）と放射性 Cs 濃度が、洗浄前→後で 33% → 55%、35242 Bq/kg → 24076 Bq/kg となり洗浄後の除染率は洗浄前に比べて + 22% であった。これに対して、マイクロバブル水のケースでは、除染率と放射性 Cs 濃度が、洗浄前→後で 54% → 62%、24387 Bq/kg → 20233 Bq/kg となり洗浄後の除染率は洗浄前に比べて + 8% であった。実験土壌を湿式分級した各分級区画の分布重量割合は、原土の ϕ 0.075 mm 未満が

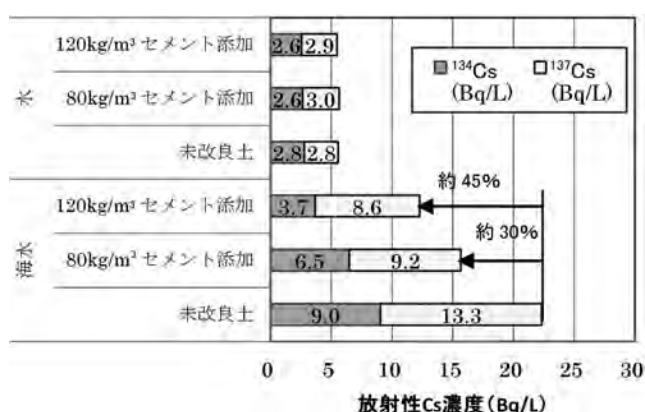
表—3 実験土壌の放射性 Cs 濃度

		分級前	分級後土壌の粒径		
			0.075 mm 未満	0.075 ～ 2 mm	2 mm 以上
原土		11998	38530	4743	2798
湿式土壌分級洗浄後		—	20000 ～ 40000 程度	4000 ～ 6000 程度	2000 ～ 2800 程度
磨洗後	吸着材なし、水	—	14650	4950	少量のため 測定できず
	吸着材なし、過酸化水素水	—	14370	4670	
	吸着材あり、水	—	4950	3690	
	吸着材あり、過酸化水素水	—	6860	2850	

20.2%, ϕ 0.075 ~ 2 mm が 74.0%, ϕ 2 mm 以上が 5.8% に対して, 洗浄前は ϕ 0.075 mm 未満が水 12.6%, マイクロバブル水 5.7%, ϕ 0.075 ~ 2 mm が水 79.9%, マイクロバブル水 85.2%, ϕ 2 mm 以上が水 7.5%, マイクロバブル水 9.0% であった。洗浄後は ϕ 0.075 mm 未満が水 5.6%, マイクロバブル水 4.2%, ϕ 0.075 ~ 2 mm が水 86.8%, マイクロバブル水 88.3%, ϕ 2 mm 以上が水 7.7%, マイクロバブル水 7.5% であった。

(2) 溶出試験

未改良土とセメント改良土（セメント添加量：80 kg/m³, 120 kg/m³）の粉碎物のうち 5 mm 篩い通過分を用いて, 水道水と人工海水を溶出液とした溶出試験を行った。その結果, 放射性 Cs の溶出量は, 未改良土, セメント改良土ともに水道水より人工海水の方が多かった。各ケースにおける溶出傾向と溶出濃度は図—4 の通りである。



図—4 溶出試験後ろ液の放射性 Cs 濃度

水道水を用いたケースでは, 全ての試料から放射性 Cs の溶出はほぼなく, 検出限界値 (6.0 Bq/L) 以下であった。

人工海水を用いたケースでは, 12.3 ~ 22.3 Bq/L 程度の放射性 Cs の溶出が認められた。溶出量は, 未改良土 > セメント改良土 80 kg/m³ > セメント改良土 120 kg/m³ の順で少なくなっており, 具体的には, 未改良土で 22.3 Bq/L, セメント改良土 80 kg/m³ で 15.7 Bq/L (未改良土より約 30% 低い), セメント改良土 120 kg/m³ で 12.3 Bq/L (未改良土より約 45% 低い) であった。

4. 考察

(1) 湿式土壌分級洗浄

グラウンド土壌原土の室内分級結果から, 細粒分比べて粗粒分で放射性 Cs 濃度は薄くなることが分かった。また, 現地における湿式土壌分級洗浄でも上記の傾向が確認され, 従来からの検討結果¹⁾と同様の分級による効果が確認された。これは, 細粒分は比表面積が大きいことと, Cs に対して極めて選択的吸着性の高いフレイド・エッジ・サイト³⁾が多く存在すること等に起因していると考えられる。

また, ジェットポンプを 5 回通過させた磨洗後の土壌は, 分級洗浄直後より放射性 Cs 濃度が低下しており, もし, 分級洗浄直後の 0.075 ~ 2 mm の放射性 Cs 濃度が 8000 Bq/kg を超えている場合でも, 磨洗を行うことによって土木資材として再生利用することが可能となりうると考えられる。洗浄効果が最も高かったのは, 洗浄水として過酸化水素水 2 wt% 溶液を用い, 吸着材として笠岡粘土を 1 wt% 添加したケースであった。吸着材を添加したケースでも洗浄水が水の場合, 過酸化水素水より洗浄効果は低かった。過酸化水素水と吸着材が除染効果の向上に影響を与えた原因としては以下が推定される。

- ① 0.075 ~ 2 mm の砂粒子表面に吸着していた Cs イオンが磨洗により溶出した可能性
- ② 過酸化水素水から分解した酸素気泡により, 混相流の攪拌性が増し, 砂粒子表層部の磨洗効果が増加した可能性
- ③ 脱着した Cs イオンを土壌よりも吸着力の強い吸着材が優先的に吸着した可能性

汚染は主に砂の表面に多くが付着しているため, 最も効率的な除染は表面のみを薄く削り, 取り除くことである。なお, 吸着材ありで ϕ 0.075 mm 未満の放射性 Cs 濃度が低いのは, 吸着材には元々放射性 Cs が含まれておらず, 希釈により濃度が低下したものと考えられる。

ハイメッシュセパレータを用いた洗浄水の違いによる分級洗浄効果の検討では, マイクロバブル水はスラリーを作製した段階でかなり細粒分が洗われており, 水でスラリーを作製した場合より, 除染率でハイメッシュセパレータによる洗浄前は 21%, 洗浄後は 7% 高い効果を示した。すなわち, マイクロバブル水には, 気泡による砂粒子表面の細粒分除去効果があると予想される。

(2) 溶出試験

溶出試験では、湿式土壌分級洗浄後の土壌のうち、 $\phi 2\text{ mm}$ 以上 ($\phi 2 \sim 5\text{ mm}$ 程度) の 8000 Bq/kg 以下に浄化された土壌(未改良土)とセメント改良を行った供試体を粉碎した 5 mm 篩い通過分を試料として用いた。セメント改良土のセメント添加量は、 80 kg/m^3 、 120 kg/m^3 として、水道水と人工海水を溶液として溶出試験を実施した結果、試験後の放射性 Cs の溶出量は、未改良土の砂、セメント改良土ともに水道水より人工海水の方が、同じ水質の場合はセメント改良土より未改良土の方が多かった。この結果より、水道水より人工海水の方が溶液中の Na^+ などの陽イオン濃度が Cs の濃度より圧倒的に高く、Cs の溶出を促進したと推定される。また、セメント改良を行うことにより、砂粒子表面がセメントでコーティングされ、砂粒子と水との接触機会が減少したことも溶出量低下の原因と考えられる。

したがって、防潮堤等の海水と接触する恐れのある構造物では、未改良土よりセメント改良土の方が、放射性 Cs の溶出量が少ないより安全な材料となると考えられる。

5. おわりに

県外最終処分が完了すべき中間貯蔵開始から 30 年後には、除去土壌等の放射能濃度は、物理減衰によって事故当初の 4 分の 1 以下まで低減する。約 2000 万 m^3 ある除去土壌等のうち、 8000 Bq/kg 以下のものは、平成 27 年 1 月時点では約 1000 万 m^3 であるが、中間貯蔵開始 30 年後には物理減衰のため約 1400 万 m^3 (全体の約 7 割) に増加すると環境省は予想している。県外最終処分実現のためには、これらの除去土壌の減容・再生利用を推進することが重要である。今回の検討の結果、 8000 Bq/kg を超える除去土壌であっ

ても再生資材となりうる土壌の選別が可能であり、汚染土の性状や適用現場に合わせて、適切な処理をすることで、より安全に再生利用が可能になることが分かった。今後は環境省から示された除去土壌等の減容・再生利用に関連した基本的な考え方にに基づき、土の安全性、環境管理手法を確立し、汚染土壌の減容・再利用推進の一助となるような検討を続けていきたい。

J C M A

《参考文献》

- 1) 奥島修二・塩野隆弘・石田聡・吉本周平・白谷栄作・濱田康治・人見忠良・樽屋啓之・今泉眞之・中達雄、浅代かき強制排水による水田土壌中の放射性物質除染法の有効性に関する事前検討、土壌の物理性、Vol.121, pp.43-48, 2012.08.
- 2) 地盤工学会、土質試験—基本と手引き—(第二回改訂版)、p27, 2010.03.
- 3) 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・和頼朗太・牧野知之・赤羽幾子・平館俊太郎、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、農環研報、Vol.31, pp.75-129, 2012.03.

【筆者紹介】

田中 真弓 (たなか まゆみ)

鹿島建設㈱

土木管理本部 土木技術部 要素技術開発グループ
課長代理



川端 淳一 (かわばた じゅんいち)

鹿島建設㈱

技術研究所

主席研究員 兼 岩盤・地下水グループ長



小澤 一喜 (おざわ かずき)

鹿島建設㈱

技術研究所

岩盤・地下水グループ
上席研究員

