

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

伊藤 健一^{1,*}, 宮原 英隆², 氏家 亨³, 武島 俊達⁴, 横山 信吾⁵,
中田 弘太郎⁵, 永野 哲志⁶, 佐藤 努⁷, 八田 珠郎⁸, 山田 裕久²

Practical Approach to Decontamination of Radioactive Cesium-Contaminated Matter in Agricultural Region by Improved Wet Classification and Use of Geomaterials

Kenichi ITO^{1,*}, Hidetaka MIYAHARA², Toru UJIIE³, Toshikatsu TAKESHIMA⁴, Shingo YOKOYAMA⁵,
Kotaro NAKATA⁵, Tetsushi NAGANO⁶, Tsutomu SATO⁷, Tamao HATTA⁸ and Hirohisa YAMADA²

¹Department of Geo Environmental Preservation, Center for International Relations, University of Miyazaki, 1-1 Gakuenkibanadai-nishi,
Miyazaki-shi, Miyazaki 889-2192, Japan

²Environmental Remediation Materials Unit, Environment and Energy Materials Division, National Institute for Materials Science,
1-1 Namiki, Tsukuba-shi, Ibaraki 305-0044, Japan

³Japan Conservation Engineers & Co., Ltd., 1-12-11 Kitaurawa, Urawa-ku, Saitama 330-0074, Japan

⁴Astec Tokyo Co., Ltd., 5-21-3 Hirai, Edogawa-ku, Tokyo 132-0035, Japan

⁵Nuclear Fuel Cycle Backend Research Center, Civil Engineering Research Laboratory, Central Research Institute of Electric Power Industry,
1646 Abiko, Abiko-shi, Chiba 270-1194, Japan

⁶Nuclear Science and Engineering Directorate, Japan Atomic Energy Agency, 2-4 Shirakatashirane, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki 319-1195, Japan

⁷Division of Sustainable Resources Engineering, Department of Socio-Environmental Engineering, Faculty and Graduate School
of Engineering, Hokkaido University, Kita-13, Nishi-8, Kita-ku, Sapporo 060-8628, Japan

⁸Environmental Resources Division, Japan International Research Center for Agricultural Sciences,
1-1 Ohwashi, Tsukuba-shi, Ibaraki 305-8686, Japan

(Received May 24, 2012; accepted in revised form July 23, 2012; published online October 25, 2012)

In the radiation dosimetry of radiocesium in litate, Fukushima, the level of radiocesium around the environment did not exceed the criteria in liquid phases such as puddle water, but was distributed in solid phases such as some soil types and organic matter. On the other hand, retting of the cut bamboo grass and hemlock fir in water allowed the release of radiocesium, about 230 Bq/kg exceeding the criteria for a bathing area. The flow-thru test using zeolite showed the removal of radiocesium from the liquid phase. The wet classification test was performed for 3 types of radiocesium-contaminated soil. According to the results of wet classification, radiocesium was detected and its level exceeded the cropping restriction level in almost all classified particle fractions. The decontamination effect of wet classification on radiocesium contamination was smaller than that on heavy metal contamination. Specifically, the wet classification could not induce volume reduction. Accordingly, preprocessing and intermediate treatments such as dispersion or attrition by vibration or mixing in the wet classification process were devised and examined as improved processing techniques. As a result, the effectual volume reduction of the radiocesium-contaminated soil was confirmed by adding an intermediate process such as the surface attrition in the vibrator.

KEYWORDS: radiocesium, released radiocesium from organic matter, radiocesium-contaminated soil, wet classification, volume reduction

¹ 宮崎大学国際連携センター 地盤環境保全研究部門, ² 鉱物質・材料研究機構 環境・エネルギー材料部門環境再生材料ユニット

³ 国土防災技術株式会社 試験研究所, ⁴ ㈱アステック東京

⁵ ㈱電力中央研究所地球工学研究所 バックエンド研究センター, ⁶ ㈱日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究部門

⁷ 北海道大学大学院 工学研究科環境循環システム専攻資源循環工学講座, ⁸ ㈱国際農林水産業研究センター 生産環境部

* Corresponding author, E-mail: itoken@cc.miyazaki-u.ac.jp

I. はじめに

東日本大震災による福島第一原発事故で原発から放出された大量の放射性物質により、福島第一原発周辺のみならず南東北から関東の各地に比較的放射線量の高い汚染地域が分布している。避難地域を除く生活圏の汚染地域における主な放射線源は ^{131}I 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs である¹⁾。このうち、半減期が8日と短い ^{131}I は2011年5月以降の調査ではほとんど検出されておらず、環境モニタリング調査等では陽イオンで移動性が低いために主に地表部に留まっている放射性セシウム ^{134}Cs と ^{137}Cs が残存する放射性物質として報告されている¹⁾。したがって、土壌の除染では、放射性セシウムが残留して放射線量が高い表層土壌を掘削あるいは剥離し、より深い部分の土壌と入れ替える反転耕(天地返し)等の措置により地表の生活圏への放射線の影響と健康リスクを低減することができるとされている²⁾。しかし、汚染範囲が広域であること、地下水位や地形等の地勢および土地利用形態が多様であること、措置後は各土地で長期間に渡って管理される必要があること、土壌の掘削や利用および土地取引に支障を来すこと、付近住民および生活者等の安心と合意が得られ難いこと等の課題が予想される。そこで、剥ぎ取りなどで表層土壌を除去して、一定の条件を満たした管理場所(仮置き場等)で放射線量が一定レベルに下がるまでの期間、管理・保管することが安全策の1つと考えられており、すでにポリマーなどを用いて表層土壌を飛散させず安全に剥ぎ取る技術などが検討されている^{3,4)}。

一方、環境省資料によると、5 mSv/y以上の森林を含めた地域の面的除染と1 mSv/y以上のスポット除染を行う場合、除染対象地域の面積は2,419 km²となる⁵⁾。また、建物用地は対象面積の40%、農地等の用地は100%の表層土壌を5 cm 剥ぎ取り、森林は10%で枝打ちし10~100%で落ち葉回収、草刈りを行う場合の除染で発生する

土壌等の量は $28,785 \times 10^3 \text{ m}^3$ の規模と推算されている⁵⁾。この膨大な汚染土壌に対処するため、効率的な除去方法と現場で普及しやすい除去土壌等の減容化技術が望まれる。チェルノブイリ原発事故の際は、汚染された周辺土壌中の放射性セシウムの抽出処理技術が検討された^{6,7)}。東日本大震災後は日本でも酸で放射性セシウムを抽出する方法が検討されている⁸⁾。しかし、化学的処理は土壌の性状を変えることから除染後の土壌の再利用を困難にすること、屋外の現場における利用には安全上の問題があること、土壌を酸で溶解する過程で二次廃棄物の発生する可能性があること等の課題から、広域の多種多様な現場における運用は難しく、より簡便かつ安全な方法が望まれる。

土壌汚染分野では、**Fig. 1**に示すように分級や洗浄などにより土壌全体から重金属類およびそれを濃集する粘土などの細粒分を分離、分別して設定された基準値を超過する汚染土壌の量を圧縮、減容化する土壌分級洗浄という土壌浄化技術がある^{9,10)}。除染対象となる汚染土壌中のセシウムは放射性物質だが、ヒ素や鉛、カドミウムなどの重金属類と同じく無機の有害金属であることから、セシウムも重金属類と同様に細粒分に比較的多く存在していると考えられる。したがって、放射性セシウム汚染土壌に対しても土壌分級洗浄による減容化が期待される。

一方、福島県を中心とする放射性物質による汚染地域には、農地や山林が多い。環境省資料では、福島県全体で1 $\mu\text{Sv/h}$ 以上の土地2,373 km²のうち農地が26.5%、森林が62.6%を占める⁵⁾。しかし、平成15年に施行された土壌汚染対策法では、営農地や山林は法律の対象外であり、特定有害物質を扱っていた工場跡地や都市部の土壌汚染が主な対象であった¹¹⁾。そのため、農地等における土壌分級洗浄の適用実例やデータの蓄積は少ない。また、農地等の土壌は粘土などの細粒分が多く、保肥材などの土壌改良剤も含むことから、陰イオン交換容量(Anion Exchange Capacity: AEC)や陽イオン交換容量(Cation Exchange

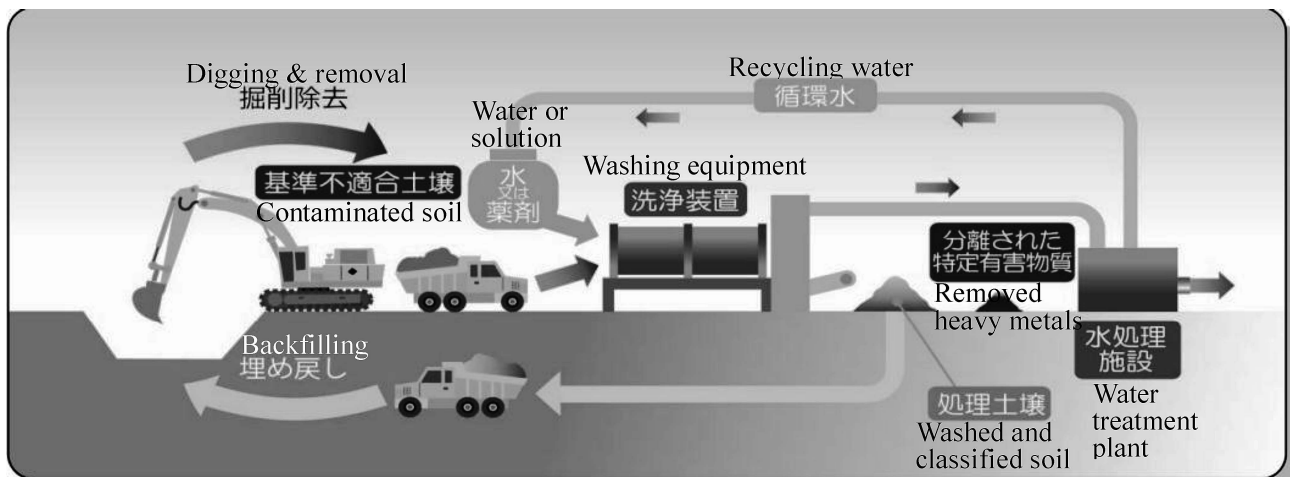


Fig. 1 Conceptual scheme of wet classification and washing for decontamination of heavy metal contaminated soil⁹⁾

Capacity: CEC)などのイオン交換能や保水性が高いなど、都市部土壌等と比べて物理的・化学的性質が異なることが推察される。

そこで、放射性セシウムに汚染された農地土壌等の土壌分級洗浄等による減容化効果の確認を目的として、計画的避難区域の中で山間部の農村である福島県相馬郡飯館村においてホット試験を行い、放射性セシウムを含む農地土壌等の減容化を検討した。

現場ホット試験は、2011年8月23～25日と10月16～21日の2回に渡って実施した。試料採取から試験、測定等の作業は基本的にすべて飯館村内にて行った。また、試験当時は保管場所が未確定であったことから、試験後の各試料については飯館村役場に確認の上、試料採取場所へ還した。

II. 測定方法および試料

1. 作業場所

試料は飯館村内、主に同役場周辺の農地等より採取し、飯館村役場の協力の下、試験作業は飯館村役場敷地内の屋内駐車場で実施した。また、試料の測定は環境中の放射線の影響を避けて測定時のバックグラウンドを抑えるため飯館村役場建屋内で行った。

2. 測定方法

試験試料の放射性セシウムの放射線測定は、NaI(Tl)シンチレーション式 γ 線スペクトロメータ(AMPTEK製EMF-211, 3×3 inch)を用いた。バックグラウンドを抑えるため、測定は装置を測定試料とともに厚さ5 cmの鉛ブロックで覆った鉛遮蔽システムに入れて行った(**Fig. 2**)。測定には、土壌試料では約100～300 g、液体試料では約100 gを用いた。測定結果を ^{134}Cs と ^{137}Cs のベクレル値に換算し、これを合算して供試試料の重量で割り戻して放射性セシウム濃度Bq/kgとした。測器性能とバックグラウンドの影響から、測定の定量下限値は33 Bq/kg、測定誤差は約±10%以内であった。詳細は氏家らの報告(2012)および装置メーカー資料を参照されたい^{12,13)}。フィールドでの試料採取の際は、汚染試料を探索および判別する目安として β/γ 線GMサーベイメータ(日立アロカメディカル製TGS-121)を用いた。また、液体試料の一部は、セシウム用のエムポア™ラドディスク(住友スリーエム製)でセシウムを回収後¹⁴⁾、(財)日本原子力研究開発機構において測定された。エムポア™ラドディスクとは、液相に溶解する特定の元素やイオン等を回収するディスク型の固相抽出材料である。本検討では、飲料水、河川水、地下水などの一般環境中の水に含まれる主要イオンの妨害影響を受けずに溶解セシウムを選択的に吸着する、フェロシアン化物の一種、コバルト修飾ヘキサシアノ鉄酸塩をセシウムの捕捉材料とするセシウム用ラドディスクを使用した(**Fig. 3**)¹⁴⁾。測定方法は次のとおりである。セシウム用ラ



Fig. 2 Gamma ray spectrometer detector enclosed by radioprotective lead blocks (upside) and appearance of field assay (underside)



Fig. 3 Empore™ RAD disk for cesium

ドディスクで試料水100 mLを吸引濾過し、液相中のセシウムをラドディスクに回収する。次に、ラドディスクを β/γ 線GMサーベイメータ(日立アロカメディカル製TGS-136型)の検出部に当てて計測する。これで得られたラドディスクの β 線計数率(cpm)に、標準線源を用いて求めた放射セシウムに対する保守的な換算係数(0.0644 Bq/cpm)を掛けて、その値を濾過水量で割り戻して放射性セシウム濃度(Bq/L)とした^{15,16)}。この手法における一般的

Table 1 2 kinds of measurement method for radiocesium in samples

Instrument & specification	γ -ray spectrometer	GM survey meter with rad disk
	γ -ray spectrometer EMF-211 (Amptek Inc.) 3×3 inch, NaI(Tl) scintillation counter	Selective SPE disk Empore™ RAD disk (3M) pore: 0.1~0.2 μ m β -ray and γ -ray GM survey meter TGS-136 (Hitachi Aloka Medical, Ltd.)
Measurement time	10 min	10 min
Objective sample	Liquid and solid	Liquid
Form in measuring	In vinyl bag	RAD disk filtrated sample
Sample amount in measuring	Liquid: 100 g Solid: 300 g	100 mL
Measurable form of radiocesium	All phase in sample	Soluble ion phase, fine particulate
Unmeasurable form	—	Colloidal phase under 0.1~0.2 μ m

な検出限界は 400 mBq/L 以下であり, 高い捕集率でセシウムを回収する方法とされている¹⁴⁾。また, ラドディスクの物理的な有効孔径は 0.1~0.2 μ m である¹⁷⁾。以降, この測定方法をラドディスク法と記載する。なお, 水など液相の試料は比重を 1 kg/L として測定結果では Bq/kg で示した。上記 2 種類の測定方法について Table 1 に示す。

3. 農地土壌等の汚染調査および試料採取

試験実施に当たり, 農村における除染対象物を確認するため, 飯館村役場周辺および農地等の土壌や枝葉等の固体および水についてそれぞれ試料を採取して測定を行った (Fig. 4)。

閉鎖系の水場では, 降下した放射性セシウムあるいはそれを含む微粒子等が液相に残留している可能性が考えられたことから, 屋外で長期間液相が保持されていたと思われるコンクリート製防火水槽の水を採取した。その比較として, 森林付近の被覆シート上にできた水たまりの水を事故後の天水を反映した地表水として採取した。また, 本ホット試験期間中の 2011 年 8 月 24 日に飯館村内の水田において, 水田土壌における放射性物質除去の物理的手法の 1 つとして (㈱農業・食品産業技術総合研究所・農村工学研究所が実施した¹⁸⁾, 用水を入れた水田土壌を攪拌して表土ごと排水させる代掻き強制落水試験で排出された濁水について水田表土を含む試料として採取した。一般に湛水後の放水は沈降後の上澄みを対象とすることから, 代掻き濁水の自然沈降後と, 75 μ m 篩に通してポリ塩化アルミニウム (PAC) を 200 μ L/L 加えて攪拌し, 凝集沈殿させた後の処理水との 2 種類の上澄みを作成して水田に湛水時の液相試料とした。

固体については, 植物と土壌を採取した。放射性セシウムの降下により付着が考えられる植物として, 役場内の植栽で空間線量を下げるために剪定されたササとツガの剪定枝葉を採取した。一般に植栽や森林等の植物は屋外で降雨に曝されることから, ササとツガの剪定枝葉をイオン交換水に一晩 (約 16 時間) 浸漬させた後, 孔径 3 μ m, 厚さ約 5

mm の不織布性のバグフィルターで固液分離して放射性セシウムの水への移行の可能性を確認した。土壌は, 畑地, 畝土, 草地, 水の抜かれた水田, および砂質のグラウンドの表土を採取した。このうち水田, 畑, グラウンドの 3 ヶ所では深さ 30 cm までの土壌を採取して深度方向の放射性セシウムの分布を確認した。なお, 固相試料について乾燥重量当たりの放射性セシウム濃度を測定する際は, 有姿試料を測定後, これを 110°C の恒温槽内で恒量まで乾燥させて含水率を求め, これを測定重量にかけて算出した。

以上の調査結果から試料を選定し, 土壌分級洗浄, および鉱物による放射性セシウムの処理を中心とした検討を行った。

III. 試料の測定結果および考察

1. 地表試料

採取および調整された各試料の放射性セシウム濃度を Table 2 に示す。放射性セシウムの濃度は, 水の比重を 1 kg/L とすると, 防火水槽水で環境省の水浴場の放射性物質に関する指針 50 Bq/L 以下であり¹⁹⁾, 水たまりについては定量下限値以下であった。また, 代掻き濁水は 2,100 Bq/kg を示し放水できない濃度であったが, その上澄みは自然沈降と凝集沈殿処理のいずれも定量下限値以下であった。これは, 3 月より水圏に降下した放射性セシウムが比較的速やかに土壌粒子やコンクリート面などの固相に分配されて液相から除かれていることを表している。また, 天水由来の水たまりについても定量下限値以下であった。これは, 上述のように放射性セシウムが固相面へ分配したか, あるいは天水には含まれていないことを示唆している。

土壌はすべて乾燥重量当たりの放射性セシウム濃度が稲の作付制限である 5,000 Bq/kg を超過し²⁰⁾, 8 月の畑土と草地表土以外は廃棄物を安全に処理するための基準である放射性物質汚染対処特措法 (特措法) に基づく指定基準 8,000~100,000 Bq/kg の範囲にあった^{21,22)}。しかし, 草地表土については特措法の指定基準の範囲を超過した。また, 剪定枝葉の放射性セシウム濃度はいずれも湿潤状態で



Fig. 4 Appearance of field research and sampling in Iitate, Fukushima
 (top left : rotary on paddy-field, top center : forced overfall, top right : topsoil sampling, middle left : handy sampler, center : appearance of soil sampling, middle right : borehole by sampling, bottom left : dose measurement of pruned hemlock fir, bottom center : pruned bamboo grass, bottom right : appearance of pruned branches sampling for immersion test).

ササが 53,000 Bq/kg, ツガが 65,000 Bq/kg と高い値を示した。未乾燥の植物の含水率は50%以上と推察されることから、これらについても特措法指定基準の上限を超過する可能性が示唆された。剪定枝葉を水に一晩浸漬した浸出水についても 230 Bq/kg であり環境省の水浴場指針 50 Bq/L を超過した (Table 2, Fig. 5)。

以上の調査結果から、除染対象は濁水中の固相を含む土壌および草木であり、さらに草木に付着した放射性セシウムは降雨などにより溶脱して水に移行する可能性が示唆された。試験で用いたササとツガの剪定枝葉の放射性セシウム濃度はササが 53,000 Bq/kg, ツガが 65,000 Bq/kg であり、それらの嵩体積は約 10 L であった。供試したササとツガの量比が同程度であり、木本植物の枝葉の嵩比重を 0.1 kg/L と仮定すると、供試した剪定枝葉の量は約 1 kg であり、放射性セシウム濃度は 59,000 Bq/kg と想定される。この剪定枝葉 1 kg を約 10 L のイオン交換水に浸漬して得られた浸出水の放射性セシウム濃度が 230 Bq/kg であったことから、概算ではあるが、浸漬された剪定枝葉か

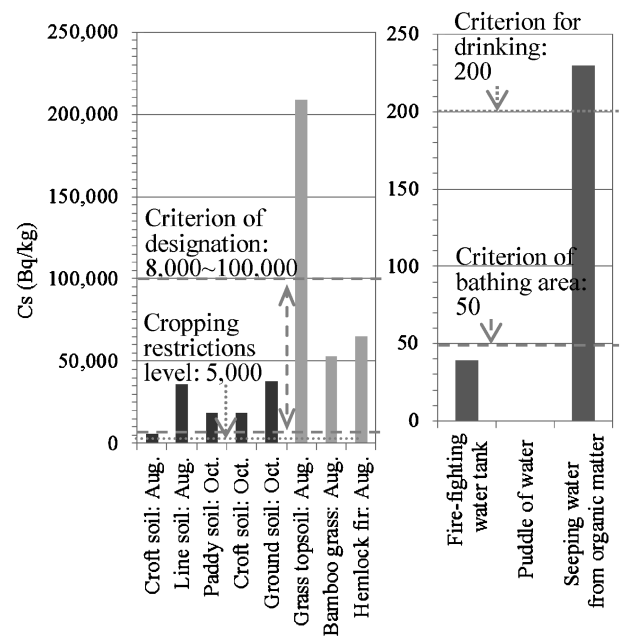


Fig. 5 Radioactive cesium concentrations of substances around Iitate village office

Table 2 Radioactive cesium concentrations of substances around Iitate village office

Time	Sample	Aspect and sampling site	Cs (Bq/kg)	
			Per wet weight	Per dry weight
2012. Aug.	Soil: croft	Near Iitate village office	3,640	5,620
	Soil: line soil	Same as above	24,800	35,900
	Soil: grass topsoil	Same as above, twined soil round grasses	93,900	208,700
	Organic matter: bamboo grass	Near Iitate village office	53,000	—
	Organic matter: hemlock fir	Same as above	65,000	—
	Muddy water: Paddy-field	From rotary and forced overfall test	2,100	—
	Rotary muddy water	Supernatant after spontaneous precipitation	< 33	—
		Supernatant after sieve and precipitation with PAC	< 33	—
	Liquid Fire-fighting water tank	Near Iitate village office	39	—
	Puddle water	On the coating sheet near Iitate village office	< 33	—
Oct.	Soil: Paddy-field	Kusano area	12,000	18,500
	Soil: Croft	Akaishizawamaeda area	13,000	18,255
	Soil: Ground	In front of Iitate village office	34,000	37,810
Ministry of Agriculture, Forestry and Fisheries of Japan: Cropping restriction level about paddy-field			5,000	
Environment Ministry: Criterion of designation (storage direction)			8,000~100,000	
Environment Ministry: Criterion of bathing area			50	

※ The error range of all data in this table is $\pm 10\%$.

ら液相に移行した放射性セシウムの量は 2,300 Bq であり、剪定枝葉に含まれるセシウムのうち 4% 程度が水への浸漬により液相へ溶脱したと考えられる。

2. 深度方向の放射性セシウムの分布

水田、畑、グラウンドの 3 ヶ所においてハンドサンブラー(藤原製作所製 HS-25S)を用いて地表から深さ 30 cm までの土壌を採取し、2 cm ごとに分取して放射性セシウム濃度を測定した。

結果を **Fig. 6** に示す。3 地点とも放射性セシウムは深さ 10 cm 以内に分布し、10 cm より深い土壌はすべて検出下限値以下であった。このことから、農水省の調査研究報告にもあるように²⁾、地表に降下した放射性セシウムは土壌深部まで浸透せずに比較的浅い深度で留まっていることが確認された。一方、農水省の調査研究報告では水田等において深さ 20 cm 程度まで浸透が報告されている。地域あるいは土質等による放射性セシウムの浸透程度の違いは、地盤の透水性や放射性セシウムを吸着・保持しやすい粘土鉱物等の存在に左右されるものと予想される。また農地においては、事故後に農作業の中で生じた土壌の耕起や耕作による表層土壌の攪乱があった地域もあると推察される。したがって、本調査においては放射性セシウムの浸透深度は 10 cm 以下であったが、条件や場所によってはそれ以上の深度まで浸透することがあることから、実際の除染に際しては、空間線量と土壌の放射性セシウム濃度の十分な確認の下で必要最低限の表層土壌の除去を進めることが必要といえる。

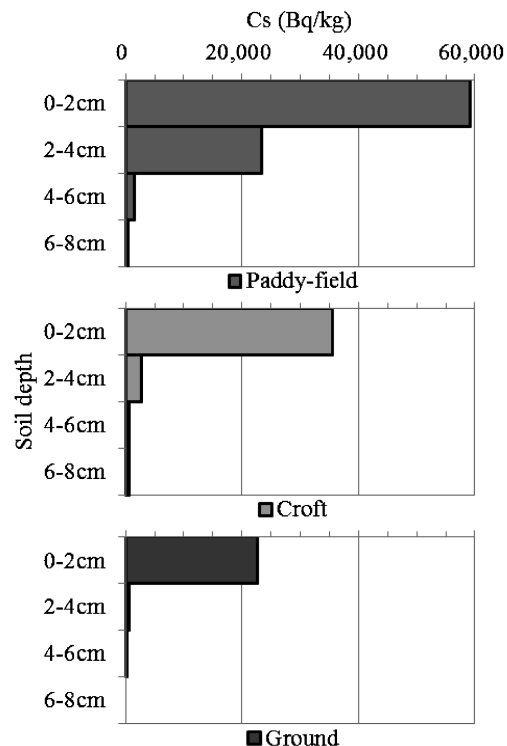


Fig. 6 Radioactive cesium distribution direction at each depth on 3 types of soil

IV. 溶脱セシウムの除去

1. 吸着試験方法

調査において植物から水への放射性セシウムの溶脱が確

認された。これは、空間線量を下げるために剪定・保管されている植物体や森林の植物等が降雨等により放射性セシウムを漏出して周辺環境を二次汚染する可能性を示唆している。そこで、これらの保管時の浸出水、あるいは減容化を目的として植物より積極的に放射性セシウムを溶脱させた際の洗浄水の処理を想定した、鉱物による放射性セシウムの除去の可能性を検討した。このため、調査時に剪定枝葉を浸漬した浸出水に対してバッチ法とカラム法により鉱物を接触させる吸着試験を行った。

バッチ吸着試験についての方法は次のとおりである。植物浸出水 1 L に対して、鉱物粉末を各 100 mg 添加して薬さじで攪拌して分散後、凝集沈殿のため直ちに 200 μ L の PAC を添加して再度攪拌した。これを 30 min 静置後、鉱物粉末の固相と液相を分離することから、土壌汚染における溶出試験等の公定法分析で固液分離時に用いられる 0.45 μ m のメンブレンフィルターで濾過して回収された液相を測定試料とした²³⁾。対象が液体であることから、放射性セシウム濃度の測定にはラドディスク法を用いた。鉱物粉末には、100 mesh 以下の北海道仁木産ゼオライト(クリノプチロライト)、金雲母、南アフリカ産パーミキュライト粉末、(鈹物質材料研究機構(NIMS)合成のセシウム用メソポーラスシリカを用いた。なお、メソポーラスシリカについては通常の使用条件では凝集剤を用いないことから PAC は添加しなかった。

カラム通水試験には、粒状の仁木産ゼオライトの M サイズ(粒径 2~5 mm 程度)、L サイズ(粒径 5~10 mm 程度)の 2 種類を使用した(Fig. 7)。およそ等量の容積となる M サイズ : 27 g, L サイズ : 25 g をそれぞれポリプロピレン製樹脂カラム(内径 15 mm × 高さ 175 mm)に充填し、M サイズと L サイズをそれぞれ 1 本のみと同サイズをそれぞれ 2 本連結した計 4 つの試験区を設定した(Fig. 8, Fig. 9)。各カラムにはバッチ試験と同じ植物浸出水をチュービングポンプで上向きに流し、通水開始から 0~30 min(最初の 30 min)に通過した水と開始から 30~90 min の間(次の 60 min)に通過した水をそれぞれ回収して有姿で放射性セシウム濃度を測定した。流速は、SV6.6~7.6 h⁻¹ であった。SV(Space Velocity)は単位時間当たりの通

過水量を濾過材料体積で割り戻した値で示される空間流速である。

2. セシウム吸着試験の結果および考察

バッチ吸着試験結果を Table 3 に示す。 γ 線スペクトロメータで測定された植物浸出水の放射性セシウム濃度 230 $\pm$ 23 Bq/kg に対して、ラドディスク法で測定された植物浸出水の放射性セシウム濃度はラドディスク法で 133.8 $\pm$ 4.9 Bq/kg であった。各測定における誤差範囲から、植物浸出水の放射性セシウム濃度に対する 2 つの測定法の間には 68.3~124.1 Bq/kg の差が認められた。 γ 線スペクトロメータは、対象全体より放出される γ 線を鉛遮蔽した中で測定する方法であり、その値は対象試料中に含まれる放



Fig. 8 Appearance of the columns for flow-thru test

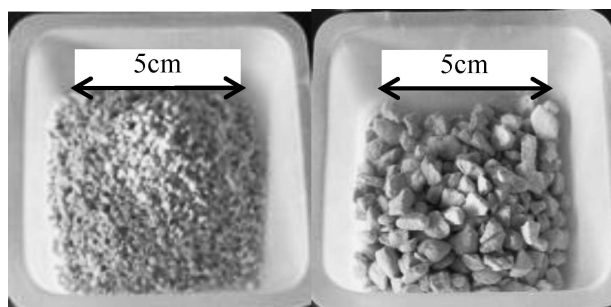


Fig. 7 Granular Niki-zeolite
(left : M size, right : L size).

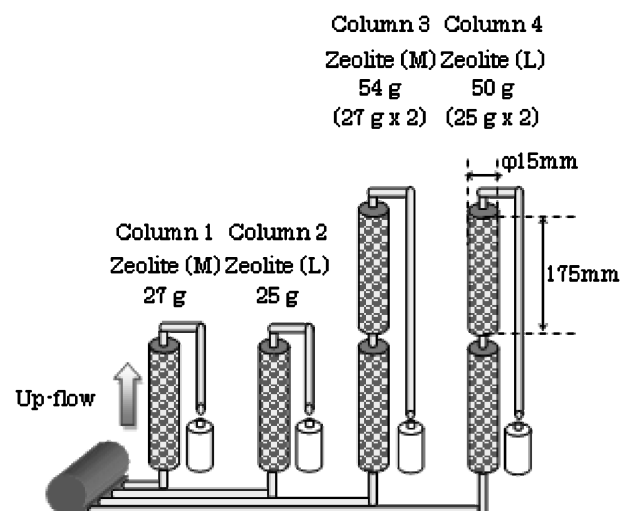


Fig. 9 Scheme of the flow-thru test using columns

Table 3 Results of batch adsorption test for eluted cesium from organic matter using geomaterials

Sample	Cs (Bq/kg)	Removal efficiency (%)	Adsorbed amount (Bq/kg)	Partition coefficient (mL/g)	Comment
Seeping water from organic matter	(230 ± 23) 133.8 ± 4.9	(γ -ray spectrometer) Measured using rad disk			
Zeolite	93.9 ± 4.1	29.8	399,000	4.2×10^3	At Niki, Hokkaido, <100 mesh
Phlogopite	65.4 ± 6.6	51.1	684,000	1.0×10^4	
Vermiculite	87.5 ± 4.0	34.6	463,000	5.3×10^3	In South Africa
Meso-porous silica	110.9 ± 8.0	17.1	229,000	2.1×10^3	Cs target type

Table 4 Removal efficiency of 2 geomaterials against cesium according to READS²⁴⁾

Sample	Initial Cs (mg/L)	pH	Removal efficiency (%)	Partition coefficient (mL/g)	Condition
Zeolite at Niki, Hokkaido	0.01	8.27	93.45	1.4×10^3	L/S = 100 Shaking: 24 h
	0.1	8.11	96.60	2.8×10^3	
	1	8.43	98.99	9.8×10^3	
	2	8.25	99.26	1.3×10^4	
	10	7.75	99.56	2.2×10^4	
Vermiculite in South Africa	0.04	6.0	84.0	5.2×10^2	L/S = 100 Shaking: 24 h
	0.1	6.8	97.9	4.8×10^3	
	2	6.1	98.9	8.6×10^3	
	10	5.8	99.5	1.9×10^4	
	20	5.9	99.4	1.7×10^4	
	100	5.9	99.8	5.3×10^4	
	200	5.6	99.9	7.1×10^4	

放射性セシウム全量の濃度を反映する。一方でラドディスクは、フェロシアン化物により溶存セシウムイオンを選択的に吸着する、有効孔径は $0.1 \sim 0.2 \mu\text{m}$ のフィルターである^{14,17)}。したがって、ラドディスク法で測定された放射性セシウムは植物浸出水中の放射性セシウムのうち、フェロシアン化物に吸着された溶存性のセシウムイオンと、物理的に濾過された $0.1 \sim 0.2 \mu\text{m}$ 以上の微粒子に付着する放射性セシウムの合計値と考えられる。また、2つの測定法の差分である $68.3 \sim 124.1 \text{ Bq/kg}$ はラドディスクの孔を通過したコロイドへの吸着や有機酸等と錯形成した放射性セシウムと推察される。これらの試験条件および測定条件から、ラドディスク法で測定したバッチ試験の結果は、溶存態および $0.1 \sim 0.2 \mu\text{m}$ 以上の微粒子に吸着した形態の放射性セシウムを対象とした各鉱物の除去効果を示すと考えられる。

以上を踏まえて各鉱物の吸着試験結果について考察する。鉱物によるバッチ吸着試験後の放射性セシウム濃度は、ラドディスク法で $65.4 \sim 110.9 \text{ Bq/kg}$ 、除去率は $17.1 \sim 51.1\%$ 、分配係数は $2.1 \times 10^3 \sim 1.0 \times 10^4 \text{ mL/g}$ であり、金雲母 (Phlogopite)、バーミキュライト (Vermiculite)、ゼオライト (Zeolite)、メソポーラスシリカ (Meso-porous silica) の順に高い効果を示した。同じ鉱物を用いたセシウム吸着試験の比較データとして、NIMS の放射性物質の除去・回収技術のためのデータベース READS

より同ロットの仁木産ゼオライトと南アフリカ産バーミキュライトで実施されたセシウム溶液を用いたコールドによる溶存セシウム吸着試験のデータを **Table 4** と **Fig. 10** に示す²⁴⁾。Table 4 のゼオライトとバーミキュライトのセシウム除去率は $84.0 \sim 99.9\%$ であった。これに比べて Table 3 の本バッチ試験における除去率は低い値であった。しかし、コールド試験の分配係数 $5.2 \times 10^2 \sim 7.1 \times 10^4 \text{ mL/g}$ の範囲には本バッチ試験結果は収まることから、本バッチ試験におけるゼオライトとバーミキュライトの結果は、植物浸出水中のセシウムの形態が不明であるため液相からの除去作用が不明確ではあるが、コールド試験で示された各鉱物のセシウムの除去性能の範囲であり、その効果を発揮したと考えられる。また、コールド試験で各鉱物は除去率、分配係数ともに初期セシウム濃度が低いほど低い値となる傾向を示したが、バーミキュライトは低濃度で固相中の濃度が少し上昇する傾向を示した (Fig. 10)。ゼオライトはコールド試験のセシウム濃度 0.01 mg/L の条件で分配係数 $1.4 \times 10^3 \text{ mL/g}$ に対して本バッチ試験では $4.2 \times 10^3 \text{ mL/g}$ とわずかに高く、バーミキュライトはコールド試験のセシウム濃度 0.04 mg/L の条件で分配係数 $5.2 \times 10^2 \text{ mL/g}$ に対して本バッチ試験では $5.3 \times 10^3 \text{ mL/g}$ と 1 桁高い値を示した。

Table 3 に示す本バッチ試験における植物浸出水の放射性セシウム濃度 $133.8 \pm 4.9 \text{ Bq/kg}$ は、 β/γ 線 GM サーベ

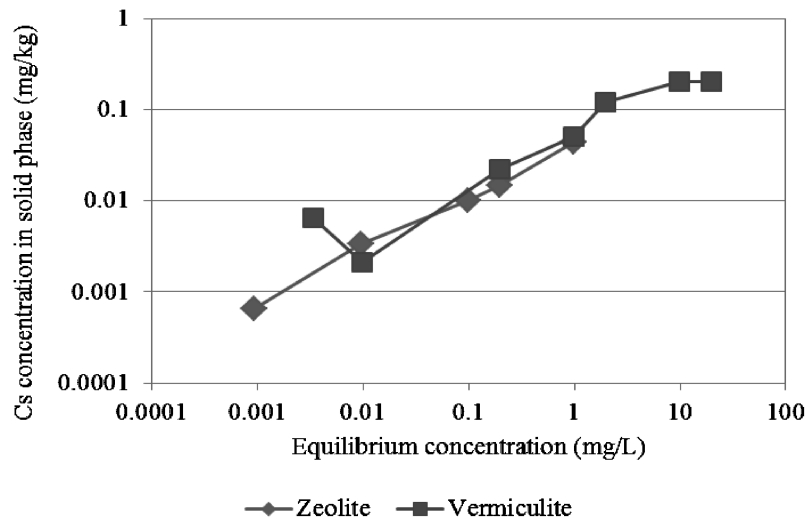


Fig. 10 Relationship between the equilibrium concentration of cesium in liquid phase and cesium concentration in solid phase about 2 geomaterials according to READS²⁴⁾

イメータで計測されたラドディスクの β 線計数率から算出された値であるため複数のセシウム同位体元素の合計値だが、含有する放射性セシウムを ^{137}Cs と仮定して考えると、 ^{137}Cs の崩壊定数 $\lambda = 7.32 \times 10^{-10} \text{s}^{-1}$ 、原子量約137からその濃度は約 $4.16 \times 10^{-8} \text{mg/kg}$ であり、Table 4のREADSの試験条件の初期セシウム濃度と比べて極低濃度といえる。各鉱物の溶存セシウムイオンの吸着除去効果は、コールド試験から、初期セシウム濃度が低いほど分配係数が低下することが示されている。しかし、コールド試験よりはるかに低い初期セシウム濃度であった本バッチ試験において、各鉱物はコールド試験の最も低いセシウム濃度条件より高い分配係数を示した。また、すでに考察のとおり、ラドディスク法で検出される放射性セシウムの形態が、溶存態および $0.1 \sim 0.2 \mu\text{m}$ 以上の微粒子に吸着した形態と想定される。以上から、本バッチ試験で示された各鉱物の植物浸出水からのセシウム除去効果は、各鉱物の溶存セシウムイオンの吸着による作用だけではない可能性が考えられる。他の作用としては、凝集剤として添加したPAC、および固液分離時のメンブレンフィルターによる濾過の影響が考えられる。それらをあわせて考察すると、本バッチ試験では、各鉱物によるセシウムイオンの吸着のほかに、PACの添加による放射性セシウムを吸着した微粒子やコロイドと各鉱物との凝集沈殿と、これを $0.45 \mu\text{m}$ のメンブレンフィルターで濾過したことによる物理的除去が作用した可能性が推察される。

粒状ゼオライトを充填したカラムの通水試験結果をTable 5に示す。測定は主に γ 線スペクトロメータで行い、現場で測定できなかったカラム3と4の一部についてはラドディスク法で測定した。通水した植物浸出水は、最初の30 min (0~30 min)、次の60 min (60~90 min)のすべてで環境省の水浴場指針50 Bq/Lを下回った。ラドディスク法で測定したカラム3と4の60~90 minの試料

についても γ 線スペクトロメータの定量下限を下回る放射性セシウム濃度の低下が確認された。また、Lサイズのカラム2と4より粒径の小さいMサイズのカラム1と3で通過後の放射性セシウム濃度はより低かった。単純に、鉱物の粒径が小さいほど同一容積中に充填される鉱物量およびその表面積は多くなるために処理効率が向上したと考えられる。放射性セシウム除去量と通水量から得られた各カラム条件でのゼオライトの分配係数は $7.8 \times 10^1 \sim 5.1 \times 10^2 \text{mL/g}$ であり、Table 3のバッチ試験におけるゼオライトの分配係数 4.2×10^3 より低い値となった。これは、(1)各カラム内の鉱物量に対する通過した水の総量、つまりは固体/液体の比率が11.8~13.7であり、バッチ試験の固体/液体=10,000に比べて著しく低かったために、鉱物単位重量当たりの吸着効率が低下したこと、(2)カラム試験の反応時間はバッチ試験の反応時間約30 minの1/3以下の7.9~9.1 minと短かったが、SVは $6.6 \sim 7.6 \text{h}^{-1}$ でありイオン交換樹脂で水道水进行处理する際のSV10~100などと比べて長い反応時間であったにもかかわらず、ゼオライトのイオン交換反応は比較的遅いようであり、本通水条件における反応時間では植物浸出水中の放射性セシウムに対してゼオライトの効果が十分に発揮できなかったこと、(3)バッチ試験の考察で示唆されたPAC添加と濾過による微粒子やコロイドに吸着されたセシウムの物理的除去作用がカラム通水試験ではなかったこと、の3点が主な理由として考えられる。しかし、カラムを通過した放射性セシウム濃度はバッチ試験結果に比べて低く、処理としては指針の50 Bq/Lを下回る値であった。

以上の結果から、鉱物の分配係数が下がることはその条件における材料としての利用効率が低下することであるが、これを下げてもカラム通水のように低い液体/固体比で処理することで液相中の放射性セシウム濃度を十分に低減できることが示された。

Table 5 Results of flow-thru test using columns infilling granular zeolite

Sample & condition		Seeping water	Column 1	Column 2	Column 3	Column 4	Criterion of bathing area
			M size × 1 stem	L size × 1 stem	M size × 2 stems	L size × 2 stems	
Amount of mineral (g)			27	25	54	50	
Column volume (mL)			30	30	60	60	
1st time: 30 min (0~30 min)	Cs (Bq/L)	230 ± 4.6	< 33	46 ± 4.6	< 33	32 ± 3.2	50
	Treated water (mL)		—	194.79	223.38	214.6	
	Removal Cs (Bq)		11.6	9.3	52.5	46.3	
2nd time: 60 min (30~90 min)	Cs (Bq/L)	230 ± 4.6	—	< 33	8.3 ± 2.7 ^{a)}	27.2 ± 2.9 ^{a)}	50
	Treated water (mL)		—	101.11	456.09	468	
	Removal Cs (Bq)		—	23.3	101.1	94.9	
Total: 90 min	Treated water (mL)		—	296	679	682.6	
	Ave. SV (h ⁻¹)		—	6.6	7.5	7.6	
	Removal Cs (Bq)		11.6	32.6	153.6	141.2	
	L/S		—	11.8	12.6	13.7	
	Ave. Reaction time (min.)		—	9.1	7.9	7.9	
	Partition coefficient		—	7.8 × 10 ¹	5.1 × 10 ²	9.6 × 10 ¹	

^{a)} Measured using rad disk. Others are measured by γ -ray spectrometer. The values are indicated as Bq/L on the assumption that water density is 1.

V. 農地土壌の分級洗浄

1. 土壌分級試験方法

放射性セシウムを含む表層土壌について、減容化を目的とした土壌分級洗浄試験を行った。試験には、パルクとして高い放射性セシウムが検出された畝土、および水田、畑、グラウンドの各表層土壌を供した。調査では草地表土において最も放射性セシウム濃度が高かったが、草の根に絡んだ土壌という局所的な試料であり、また試験に供するだけの試料量を確保できなかったことから除外した。

土壌分級洗浄試験は次のとおり行った。土壌を有姿の生重量として1.5 kg (乾燥重量として約1 kg 相当) 分取し、電磁式実験用ふるい振とう機(FRITSCH 製 A-3)を用いて水で洗浄しながら湿式分級を行った(Fig. 11)。洗浄水は放射性セシウムが不検出であった飯館村役場の水道水を使用し、使用量は供試土壌生重量の約7倍であった。

粒度画分は、ふるいの目から、<0.075 mm, 0.075~0.125 mm, 0.125~0.25 mm, 0.25~0.5 mm, 0.5~2 mm, 2~4.75 mm, >4.75 mm の7段階とした。<0.075 mm については濁水として回収し、懸濁成分を除く目的で植物浸出水を濾過したものと同一3 μ m のバグフィルターに通した。

また、粘土鉱物等にイオン交換で吸着された放射性セシウムが同じ陽イオンで置換される可能性が考えられる。そこで、畝土については農地土壌に添加されても営農へ影響が小さいと考えられるアンモニウムイオンの水溶液を洗浄

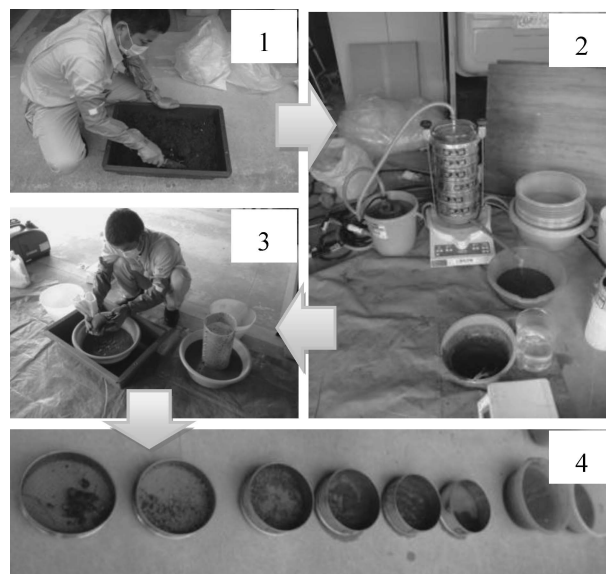


Fig. 11 Soil wet classification and washing procedure (1: homogenization of soil samples, 2: electric test sieve shaker, 3: washing and re-sieve residue, and solid-liquid separation for muddy water, 4: classified each particle fractions from soil sample).

水の代わりに用いる検討も行った。水溶液には0.1 mol/Lの硝酸アンモニウム水溶液を作成し、供試土壌に土壌と等量の硝酸アンモニウム水溶液約1.5 Lを加えて1 h 浸漬させた後、土壌分級洗浄試験を行った。

2. 土壌分級洗浄試験結果および考察

水と硝酸アンモニウム水溶液で分級洗浄を行った畝土の土壌分級洗浄の結果を **Table 6** に示す。畝土を試験した8月は設備が整わず分級後の土壌の含水率を現場で測定できなかったことから、篩いで水を切った圃場容水量の土壌 1 kg 当たりの放射性セシウム濃度を γ 線スペクトロメータで測定した。なお、原土については風乾により乾燥重量を求めた。

水洗浄と硝酸アンモニウム水溶液洗浄のそれぞれにおいて、放射性セシウム濃度は粗い粒度画分ほど原土に比べて低減した。しかし、硝酸アンモニウム水溶液による効果はみられなかった。湿潤重量当たりの数値のため正確さを欠くが、含水率が一般的な湿潤土壌の30～50％程度とした場合、湿潤重量で 6,000 Bq/kg 以下の 0.5 mm 以上の粒度画分については、分級洗浄により放射性セシウムは原土より半減すると推察された。しかし、0.075～4.75 mm の粒度画分において放射性セシウム濃度は稲の作付制限値：5,000 Bq/kg を超過したことから、畝土については分級洗浄による処理土壌の減容化効果は得られなかった。

0.075 mm 以下の濁水はバグフィルターを通した。しかし、濁水中的の懸濁物質が水圧により広がった不織布製のバグフィルターの目を素通りしたため、濾過後も液は懸濁液のまま、放射性セシウム濃度は 320 Bq/kg を示した。不織布製のバグフィルターでは強度的に濁水の濾過ができないことから、現場における懸濁液の脱水、固液分離方法には、フィルタープレス等、強度のある濾布による濾過処理が適当と考えられる。そこで、バグフィルター通過水について、濾布と同じく一枚もので同等程度の目開きである 10 μ m のメンブレンフィルターで濾過を行った。その濾過液は土壌微粒子等が除去されて清澄であり、放射性セシウム濃度は定量下限値 33 Bq/kg 以下であった。

Table 6 Radioactive cesium of each particle fraction from list soil after in wet classification

Line soil	Cs (Bq/kg)	
	25,794 ^{a)}	Per natural wet weight
	38,731	Per dry weight
Washing solvent	Water	1 mol/L ammonium nitrate
> 4.75 mm	2,200 ^{a)}	5,500 ^{a)}
2～4.75 mm	5,100 ^{a)}	4,700 ^{a)}
0.5～2 mm	5,300 ^{a)}	5,600 ^{a)}
0.25～0.5 mm	9,500 ^{a)}	8,700 ^{a)}
0.125～0.25 mm	10,000 ^{a)}	9,800 ^{a)}
0.075～0.25 mm	10,000 ^{a)}	12,000 ^{a)}
< 0.075 mm ^{b)}	320	—
< 0.075 mm ^{c)}	< 33	—

^{a)} Per natural wet weight.

^{b)} Muddy water.

^{c)} Filtrated b water using 10 μ m membrane filter.

※ The error range of all data in this table is $\pm 10\%$.

以上から、畝土については土壌分級洗浄で 0.5 mm 以下の土壌を取り除くことにより放射性セシウムを半減できる可能性と、土壌分級洗浄では土壌中の放射性セシウムは液相へは脱離し難いことが示唆された。

次に、畝土の土壌分級試験結果を受けて、性状の異なる農地土壌等について分級洗浄の効果を比較検討するため、水田、畑、グラウンドの土壌 3 種について試験を行った。結果を **Table 7** および **Fig. 12** に示す。

各土壌に含まれる放射性セシウムの63～85％は 0.075 mm 以下の粒度画分に存在していた。しかし、粗い粒度画分にも分布したことから、各土壌の 5,000 Bq/kg 以下で回収可能な粒度画分と重量割合は、水田で 2 mm 以上の 12.2％、畑で 0.25 mm 以上の 29.5％、グラウンドでは 0％であった。また、汚染程度の高い細粒分を分級で取り除いた後には土壌の物理性等を回復させるために等量程度の健全土を混ぜる、あるいは原地盤と攪拌することが考えられる。その場合、除去された細粒分と等量の健全土が補填され、希釈効果が加わる。希釈を加味して 5,000 Bq/kg を下回る条件では、水田、畑は 0.075 mm 以下、グラウンドは 0.25 mm 以下が除去対象となり、それぞれ回収率は 39％、44％、75％となると考えられる。土壌分級洗浄法により減容化の効率を高めるには、(1)水田や畑のような細粒分の多い土壌では、簡便なメッシュによる篩いで分離可能な 0.075 mm 以下の土壌粒子に対して、サイクロンなどの精度の高い分級洗浄機器を用いてさらに分級すること、(2)最終的に排出される高濃度の汚泥については費用対効果に応じて化学処理等の追加処理を行うことが必要である。また、砂質のグラウンドでは粗い粒度を含むすべての粒度画

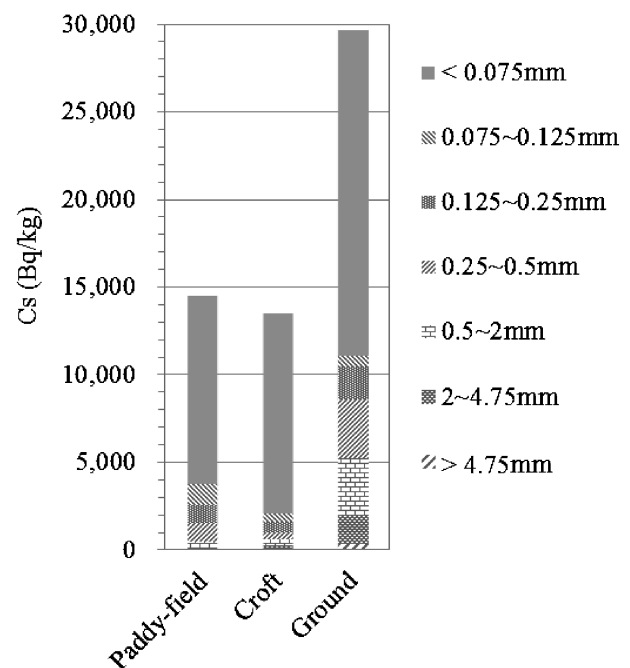


Fig. 12 Radioactive cesium integral density of particle fraction and recovered amount about 3 types of soil

Table 7 Particle size and radioactive cesium distribution about 3 types of soil in wet classification

Sample	Water content ratio (%)	Dry weight ratio of particle fraction (%)	Cs per dry weight (Bq/kg)	Cs per 1 kg dry weight sample (Bq)	Cs distribution (%)
Paddy-field	35.1%		18,500		
> 4.75 mm ^{a)}	—	—	—	—	—
2~4.75 mm	5.3	2.8	4,011	111.3	0.8
0.5~2 mm	33.9	9.4	3,782	356.5	2.5
0.25~0.5 mm	35.9	12.4	8,733	1,084.4	7.5
0.125~0.25 mm	43.0	7.4	13,674	1,008.9	7.0
0.075~0.125 mm	47.6	7.1	16,418	1,160.6	8.0
< 0.075 mm	77.9	60.9	17,618	10,736.1	74.3
Croft	28.8		18,255		
> 4.75 mm	23.9	3.1	1,445	45.1	0.3
2~4.75 mm	24.6	7.2	2,918	210.5	1.6
0.5~2 mm	39.6	11.0	2,981	327.0	2.4
0.25~0.5 mm	39.6	8.2	4,805	396.0	2.9
0.125~0.25 mm	45.2	8.5	7,301	618.2	4.6
0.075~0.125 mm	41.6	6.2	7,363	459.4	3.4
< 0.075 mm	79.0	55.7	20,525	11,440.9	84.8
Ground	10.1		37,810		
> 4.75 mm	22.5	1.1	30,968	325.9	1.1
2~4.75 mm	4.4	9.5	16,732	1,584.0	5.3
0.5~2 mm	15.5	33.0	9,946	3,286.9	11.1
0.25~0.5 mm	15.0	31.4	10,701	3,364.5	11.3
0.125~0.25 mm	8.8	9.6	19,733	1,892.4	6.4
0.075~0.125 mm	0.9	2.4	26,228	617.9	2.1
< 0.075 mm	73.3	13.0	142,500	18,589.8	62.7
Cropping restriction level about paddy-field			8,000~100,000		
Criterion of designation (storage direction)			5,000		

^{a)} preclusion for less amount to measure.

※ The error range of all data in this table is $\pm 10\%$.

分で放射性セシウム濃度が 8,000 Bq/kg を超過した。これは、放射性セシウムが粗い土壌粒子の表面への吸着または放射性セシウムを吸着した粘土鉱物等の付着により残留している可能性を示している。高い粗い粒度画分については、減容化の観点から追加処理ではなく土壌分級洗浄の工程で処理される必要がある。この場合、篩いやその前処理等を工夫して粗い粒子画分の放射性セシウム濃度を下げることが必要である。

VI. 分級洗浄の前処理検討

1. 検討方法

分級洗浄後に粗い粒度画分にも高い放射性セシウム濃度が確認されたグラウンド土壌に対して、分級洗浄の効率を高めるための前処理を検討した。検討した方法について一覧で **Table 8** に示す。現場での運用を想定し、汎用機器で可能な方法を中心とした。また、放射性セシウムの残留の原因には、粗い粒子への直接的な吸着、あるいはセシウムを吸着した粘土など微細粒子の付着などが考えられるが、少なくともその存在範囲は粗い土壌粒子の表面と想定

Table 8 Improvement methods for removal efficiency of radioactive cesium from coarse-grained particle fraction

Method	Effect
Target and equipment	
Preprocessing 1: Ultrasonic vibration	Dispersion
Dispersing soil particles by about 20 kHz Ultrasonic vibration.	
Preprocessing 2: Vibration using degasser for fresh concrete	Dispersion, shaking
Dispersing and shaking soil particles using with about 120 Hz vibration using degasser for fresh concrete.	
Preprocessing 3: Pot-mixing with rubber weight	Weighted attrition
Mixing soil in rotary pot with rubber weight ball frictionally.	
Intermediate processing: Attrition by vibrator and mortar	Surface attrition
Rubbing soil with rubber coating 6,500 Hz vibrator in deep mortar.	

される。そこで前処理方法として、粒子表面に作用するよう、分散や振動を主な作用とする超音波と生コン用パイプ

レーター、研磨を主な作用とするポットミキサー+重石および乳鉢+パイプレーターの計4種類について検討を行った。このうち、乳鉢+パイプレーター以外の3種は分級洗浄の前処理として行い、乳鉢+パイプレーターについては分級洗浄の中間処理として行った。また、超音波は現場の汎用機器ではないが、代表的な分散方法の比較として行った。各検討方法の詳細は次のとおりである (Fig. 13)。

(1) 前処理 1: 超音波

土壌 1 kg, 水 1 kg を投入したビニール袋を実験室用小型超音波振とう機 (アズワン製) に入れて, 10 min × 3 回の計 30 min 分散させて分級洗浄した。

(2) 前処理 2: 生コン用パイプレーター

土壌 1 kg, 水 1 kg を 5 L のステンレス製容器に投入し, 容器にアイロン型振動機 (AKTIO 所有, アイロン型 50 W 型棒パイプレーター) を装着して 5 min の振動を行った後に分級洗浄した。

(3) 前処理 3: ポットミキサー+重石

直径 20.5 cm のバスケットボールに 8.5 kg の砂を詰め

た重石と, 土壌 1.5 kg を 70 L のポットミキサー (AKTIO 所有) に投入して約 45° の角度で 3 min の回転 (24 rpm) を行った。しかし, 土壌がミキサー内側を滑ったために土壌と重石の擦り合いが生じなかったことから, 1.5 kg の水を投入して 2 min の回転をさせた。しかし, まだ擦り合いが浅かったことから, 傾斜角を約 10° に下げて 30 min 回転させて, 土壌と重石を擦り合わせ研磨した。処理後は分級洗浄を行った。

(4) 中間処理: 乳鉢+パイプレーター

分級洗浄後に粗い土壌粒子に残留する放射性セシウムの除去を目的として処理を行った。すなわち, 土壌より 0.125~4.75 mm の粒度画分を粗粒土壌として篩いとり, これを対象とした。粗粒土壌 200 g と水 100 g を鉄製深型乳鉢に投入した。接触部にゴムボールをはめた棒状パイプレーターで粗粒土壌を軽く抑えつつ上から振動 (6,500 rpm) を与える処理を 10 min 行い, 0.125 mm で篩って残存分, 通過分の各濃度を測定した。また, 同じ手順で水の割合と処理時間を増やした, 粗粒土壌 100 g と水 100 g に対して 20 min の処理も検討した。

2. 前処理 3 種の結果および考察

分級洗浄の前処理の位置付けで実施した前処理 1: 超音波, 前処理 2: 生コン用パイプレーター, 前処理 3: ポットミキサー+重石の結果を Table 9 に示す。検討の結果, 前処理 1 の超音波による分散処理では, 0.075~0.125 mm, 0.125~0.25 mm, 2~4.75 mm の粒度画分で無処理に比べてわずかに放射性セシウム濃度が減少したが, 0.25~0.5 mm, 0.5~2 mm の粒度画分では逆に上昇した。前処理 2 の生コン用パイプレーターと前処理 3 のポットミキサー+重石については, 2~4.75 mm で前処理 1 より放射性セシウム濃度をさらに半分以下とする濃度低減効果がみられたが, その他の各粒度画分の放射性セシウム濃度は前処理 1 と類似した傾向であった。

土壌分級洗浄は有害物質をより細粒分に濃集させて分離させることを目的とした手法であることから, その効果を確認するために各粒度画分の放射性セシウム濃度と重量割合より土壌全体の放射性セシウム濃度に対する各粒度画分への放射性セシウム分配率について計算した。各前処理後の土壌において, 研磨や分散により各粒度画分の放射性セシウム分配率は 0.25 mm 以上の粒度画分ですべて無処理より減少していること, 特に前処理 3 では 0.125~0.25 mm でも大きく減少しており, その効果が確認された (Table. 9)。0.075 mm 以下の粒度画分の重量割合と放射性セシウム分配率の変化を Fig. 14 に示す。Table 9 と Fig. 13 から, 各前処理により 0.075 mm 以下の粒子が前処理 1, 2, 3 の順で増加し, それにともなって 0.075 mm 以下に分配される放射性セシウムの割合が上昇していることが認められた。

この結果から, 粗い粒度画分に存在する放射性セシウム

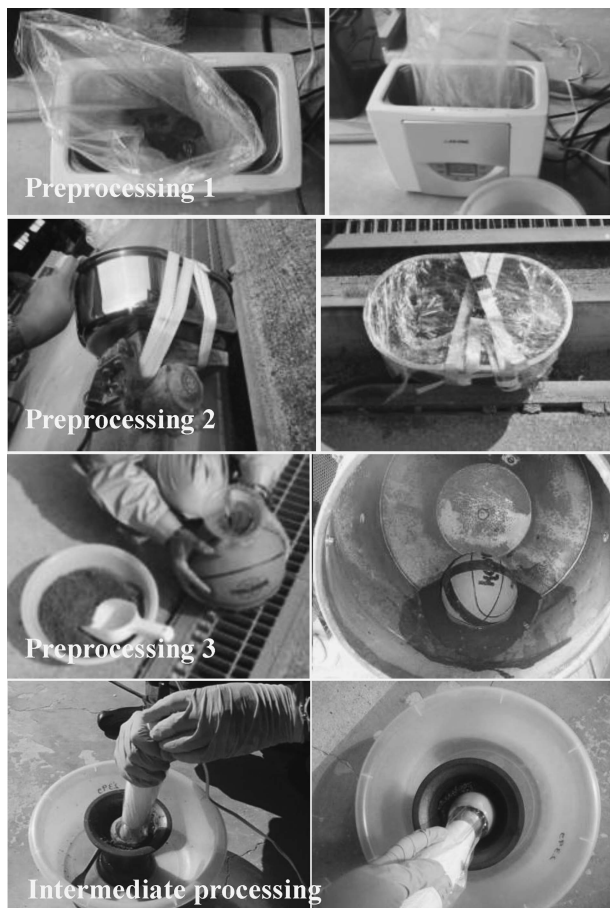
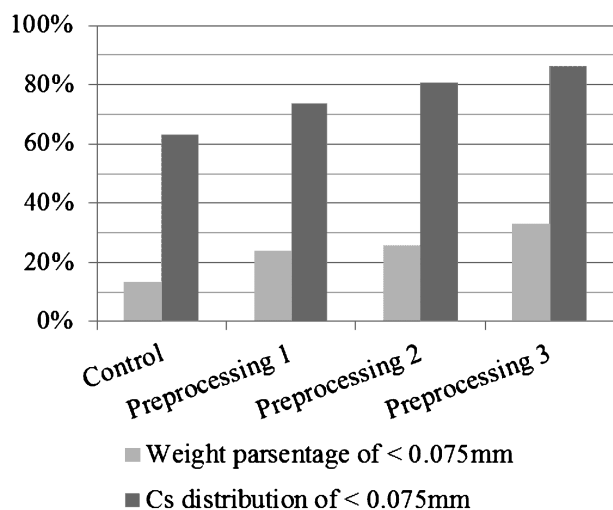


Fig. 13 Improvement methods of removal efficiency for residual radioactive cesium from coarse-grained particle fraction (Preprocessing 1: Ultrasonic vibration, Preprocessing 2: Vibration using degasser for fresh concrete, Preprocessing 3: pot-mixing with rubber weight, Intermediate processing: Attrition by vibrator and mortar).

Table 9 Results of wet classification after 3 types of preprocessing

Sample	Cs (Bq/kg)				Particle size distribution (%)				Cs distribution (%)			
	Control	Preprocessing			Control	Preprocessing			Control	Preprocessing		
		1	2	3		1	2	3		1	2	3
>4.75 mm	30,968	—	—	—	1.1	—	—	—	1.1	—	—	—
2~4.75 mm	16,732	15,535	6,249	6,239	9.5	13.8	12.1	18.2	5.3	5.3	1.7	2.0
0.5~2 mm	9,946	10,252	10,449	9,555	33.0	16.7	26.3	19.5	11.1	4.2	6.3	3.3
0.25~0.5 mm	10,701	14,175	12,234	12,857	31.4	20.7	11.1	10.1	11.3	7.2	3.1	2.3
0.125~0.25 mm	19,733	15,206	12,879	12,762	9.6	17.0	19.6	12.0	6.4	6.4	5.8	2.7
0.075~0.125 mm	26,228	15,697	18,095	23,385	2.4	8.6	5.6	7.7	2.1	3.3	2.3	3.3
<0.075 mm	142,500	128,531	139,832	147,705	13.0	23.2	25.3	32.5	62.7	73.5	80.8	86.3

※ The error range of all data in this table is $\pm 10\%$.

**Fig. 14** Results of wet classification after 3 types of preprocessing

の一部は、前処理によりそれを吸着する粘土鉱物などの微粒子とともに 0.075 mm 以下の粒度画分に移行されることが示唆された。また、例えば前処理 3 のポットミキサー + 重石の処理をして分級洗浄することで、0.075 mm 以下の細粒分が 13.0% から 32.5% に増加するが、同細粒分を汚染土壌から分離した場合の放射性セシウムの除去率は 62.7% から 86.3% に向上させることができると考えられる。

また、0.075 mm 以下の細粒分における重量割合と放射性セシウム分配率の増加は、前処理 1 の超音波、前処理 2 の生コン用バイブレーター、前処理 3 のポットミキサー + 重石の順で高かった。これは、土壌の前処理においては、液体中での粉体の分散などに用いる高い周波数での分散処理より、振動や研磨など土壌粒子表面を削るような作用をもたらす手法においてより高い分級洗浄効果をもたらす可能性を示唆していると考えられる。

3. 中間処理の結果および考察

土壌をバルクで前処理した場合、原土の分級洗浄で分離可能な 0.075 mm 以下の細粒分も含まれる。この細粒分が

Table 10 Efficiency of intermediate processing on wet classification

Sample	Cs (Bq/kg)	Soil residual rate (%)	Cs residual rate (%)
Coarse-grained soil 0.125~4.75 mm	11,706	100.0	100.0
Condition 1	6,490	93.6	55.4
Condition 2	6,217	89.5	53.1

※ The error range of all data in this table is $\pm 10\%$.

前処理の段階において分散や研磨の際に、粗い土壌粒子間に存在し、物理的衝撃の緩衝など、作用の阻害をする可能性が考えられる。そこで、原土を分級洗浄し 0.125~4.75 mm の粒度画分のみを回収し、水を加えて深い鉄製乳鉢を受け皿としてラバーコーティングしたバイブレーターで表面研磨を行い、0.125 mm の篩いで水洗しつつ篩った。また、土壌：水 = 2 : 1 で 10 min の研磨を条件 1、土壌：水 = 1 : 1 で 20 min の研磨を条件 2 とした。

結果を **Table 10** に示す。研磨により、重量割合では 6~10% が 0.125 mm 以下の細粒分となった。放射性セシウムの濃度は 5,000 Bq/kg 以下とはならなかったが、少なくとも保管対象となる 8,000 Bq/kg を下回り、その存在率は原土に比べて 53~55% にまで低減される効果が得られた。

この実験結果から、一度分級により細粒分を除いてから研磨作用をもたせた処理と分級洗浄を行う方法は、分級洗浄による放射性セシウムの分離効率を著しく向上させることが示された。

VII. 実施研究のまとめ

飯館村での試料採取と調査から、放射性セシウムは地表では主に土壌や植物体などの固相に分配されており、土壌はこれを強く保持するが、植物体においては水に曝されることで植物体から放出されることを確認した。植物に分配された放射性セシウムは降雨などで放出されて周辺環境を

二次汚染する恐れが考えられる。一方、植物体より放出される放射性セシウムについては、ゼオライト等の鉱物材料等を用いた処理により液相より除去できる可能性をバッチ吸着試験とカラム通水試験により確認した。

土壌分級洗浄試験では、汚染土壌中の放射性セシウムを細粒分に集めて、0.075～0.125 mm以上の粒度画分の土壌を保管対象濃度以下にできる可能性を確認した。土壌の種類により分級の効率は異なった。特に砂質のグラウンド土壌では土壌の分級洗浄のみの場合に粗い粒度画分に放射性セシウムが残留したが、前処理に分散、振動および研磨、中間処理に研磨を組み合わせて再度分級洗浄を行うなどの方法により、放射性セシウムをより効率的に細粒分へ移行させる処理ができることが確認された。

本研究における飯館村での調査および放射性セシウム除去方法検討の結果から考えられる、除染現場における放射性セシウムにより汚染された農地土壌等への対応について以下に提案する。まず、放射性セシウム濃度の高い植物体

を保管の際は防水シートや土壌などで被覆して降雨等への曝露を避け植物体等からの放射性セシウムの浸出による二次被害を防止する。また、保管時におけるセシウム浸出時の対策として、本検討結果からはゼオライトやバーミキュライト等の天然鉱物等をセシウム吸着材料として汚染物質の下部や周囲に配置することが有効と考えられる。使用する鉱物の形態は、粉末状だけでなく粒状でも効果を発揮することから、通水処理しやすく、使用後の回収時にハンドリングがよく飛散し難いと思われる粒状のものが利用しやすいと考えられる。汚染土壌に対しては、土壌の湿式分級洗浄処理を提案する。処理フロー図を **Fig. 15** に示す。まず、飛散防止のポリマーなどを用いて剥ぎ取られた汚染レベルの高い表層土壌を回収し、水に浸漬する。表層土壌には植物の根や葉、腐植などの有機物が比較的多く含まれる。植物体などの有機物は高い汚染濃度を示す可能性があること、また土壌と異なり乾燥や焼却などの効率的な減容化方法も考えられることから、浮上分離や浮選などで土壌

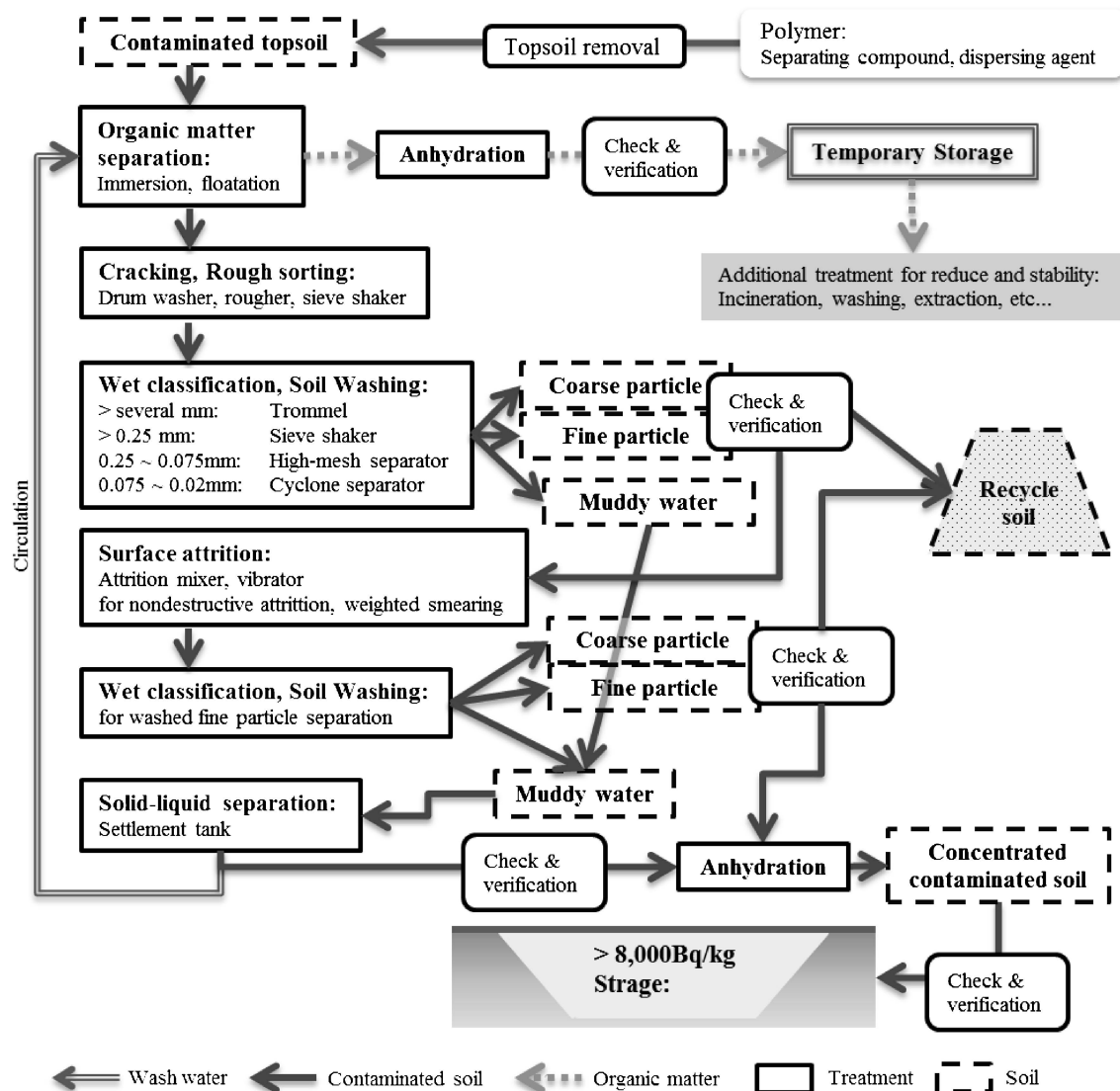


Fig. 15 Conceptual schema for improved wet classification decreasing the amount of radioactive cesium contaminated soil

粒子と分離する。分離された植物体などの有機物は脱水し、測定の上、保管する。植物体等の保管時の方法は先述のとおりである。また、これらは別途分解や焼却などの減容化、あるいは放射性セシウムの放出を防ぐ処理などが施されることが期待される。有機物の

- fractionation of ^{90}Sr , ^{106}Ru , $$