土壌洗浄による放射性Cs汚染土壌の 浄化・減容化処理の物質収支と性能評価

毛利 光男¹・馬場 直紀²・土田 充³・中嶋 卓磨⁴

¹正会員 清水建設株式会社 エンジニアリング事業本部 土壌環境事業部
(〒104-8370 東京都中央区京橋2-16-1)

E-mail: mouri@shimz.co.jp

²清水建設株式会社 エンジニアリング事業本部 土壌環境事業部 (同上)

E-mail: n-baba@shimz.co.jp

³清水建設株式会社 エンジニアリング事業本部 土壌環境事業部 (同上)

E-mail: m.tsuchida@shimz.co.jp

⁴清水建設株式会社 エンジニアリング事業本部 土壌環境事業部 (同上)

E-mail: takuma@shimz.co.jp

本研究では、土壌洗浄による放射性Cs汚染土壌の浄化・減容化効果を把握することを目的に、各洗浄プロセスの放射性Cs量の収支を検討した上で、トレードオフの関係にある浄化・減容化の評価を行なった。土壌洗浄による浄化効果は高く、20,000 Bq/kg前後の元土壌から概ね3,000 Bq/kg以下の浄化産出物(洗浄土+粗粒子分)が得られること、減容化効果も高く、元土壌の70~80%を浄化産出物として回収できることが判明した。また、元土壌中の有機物のほとんどが濃縮残渣に集約され、浄化産出物の強熱減量は2~3%と低い値となった。分級処理に化学的洗浄処理であるスクラビング・フローテーションを追加することは、高い除去率と高い減容率の両立に極めて有効であると考えられた。

Key Words : radiocesium contaminated soil, soil washing, remediation and volume reduction, mass balance analysis, scrubbing-flotation, performance evaluation

1. はじめに

福島県の除染事業によって放射性Cs汚染土壌と廃棄物の集積が進んでおり、環境省によると総量は1,500~2,800万m³になると推定されている^{1), 2)}。膨大な汚染土壌などを保管する中間貯蔵施設の建設には莫大な建設費用が必要となるため、汚染土壌や廃棄物などを効率的に浄化・減容化する技術が重要であると考えられる。放射性Cs汚染土壌の浄化・減容化に関しては(a)土壌洗浄法^{3)~11)}、(b)薬剤抽出法^{12), 13)}、(c)加熱処理法^{14), 15)}などの技術開発が進められている。筆者らは、膨大な量の放射性Cs汚染土壌の減容化を迅速かつ効率良く進めるためには、大量処理に適した土壌洗浄法を核とした浄化・減容化システムが最も有効であると考えている。土壌洗浄法は、重金属、鉱物油、農薬など多くの物質に適用可能な代表的な浄化・減容化技術^{16), 17)}であり、放射性Cs汚染土壌に対しても室内実験と除染技術実証事業¹⁸⁾において多くの検討と

実証が行われてきた^{3)~11)}。

今までに報告された土壌洗浄による浄化・減容化の実験的検討の多くは、主に分級洗浄(湿式フルイ、ハイドロサイクロンなど)に研磨処理(土壌表面の磨砕)を追加したものであり、放射性Cs除去率を向上させることを目的に行なわれてきた。一般に分級洗浄や研磨処理を用いた浄化法では、放射性Cs除去率と洗浄土の回収率(=減容率)はトレードオフの関係にある。すなわち、高い放射性Cs除去率を追求するために分級径を大きくしたり、土壌粒子表面を過度に研磨すると、濃縮残渣(脱水ケーキ)の割合が増大し回収できる洗浄土が大幅に減少するため、減容化効果が大きく低下する。この観点から、浄化・減容化を合理的に進めるためには、浄化技術のさらなる革新もさることながら、土壌洗浄法による放射性Cs汚染土壌全体の浄化・減容化効果、すなわちトレードオフの関係にある放射性Cs除去率と減容率の両方を定量的に理解することが重要と考える。

本研究は、土壌洗浄による放射性Cs汚染土壌全体の浄化効果と減容化効果の両面を把握することを目的に実施した。本研究で対象とした土壌洗浄法は、分級処理のみによる従来の洗浄法と異なり、土壌粒子と汚染物質の界面化学的性質の違いを利用して汚染物質を選択的に分離する洗浄技術(スクラビング・フローテーション)を備えている^{9, 10)}。最初に多数の放射性Cs汚染土壌(福島県内の運動場土壌と住宅地等の除染除去土壌)の特性(含有放射エネルギー、強熱減量、粒度分布など)を把握した上で一連の土壌洗浄実験を行なった。次に、各洗浄プロセスの放射性Cs量の収支を検討した上で、本土壌洗浄法による浄化・減容化効果の評価を行なった。特に、(a)分級処理のみの場合と分級処理に加えて洗浄処理を行なった場合の除去率と濃縮残渣発生量の関係、および(b)浄化産出物と濃縮残渣の発生量と放射性Cs量の分配割合については詳しい考察を行なった。最後に、元土壌中の放射性Csがどのように洗浄土、粗粒子分、濃縮残渣へ分配されるのかを表示し、本土壌洗浄法による浄化・減容化効果の理解を図った。尚、本論文においては洗浄処理の対象となる汚染土壌を元土壌(feed soil)、浄化された土壌を洗浄土(clean sand)、放射性Csが濃縮された脱水ケーキを濃縮残渣(sludge cake)と記している。

2. 既往の知見, 本研究の土壌洗浄法の概要

(1) 土壌洗浄による浄化・減容化の実験例

放射性Csはその多くが細粒子分(粘土・シルト)に付着・吸着しているため、細粒子分を分離することによって、土壌から放射性Csを効率良く除去することが十分可能であると考えられている^{3)~11)}。井出ら³⁾は福島県内の運動場土壌(1,300~46,000 Bq/kgの3試料)を対象に分級洗浄の室内試験を行ない、(a)含有放射エネルギーの除去率が概ね75%であること、(b)除去率をさらに上げるには研磨処理(ロッドミルなど)を組み入れることが有効であることを報告している。舟川ら⁴⁾は植物が混入した放射性Cs汚染土壌(5,400~12,600 Bq/kgの4試料)の多段階土壌洗浄処理試験を行ない、(a)洗浄土の放射性Cs濃度は1,300~3,300 Bq/kgまで低減し、放射性Cs除去率は73~90%であること、(b)元土壌の粘土・シルト分の割合が30~45%の場合、洗浄土の回収率は50~60%であること、(c)汚染土壌中の植物片には放射性Csが高濃度で吸着していること、(d)土壌表面を摩砕することで浄化効率が向上することを述べている。中島ら⁵⁾は表層土壌(3,970~8,070 Bq/kgの4試料)に対して分級洗浄の実験を行ない、(a)ロータリー式の分級洗浄による一次洗浄土の放射性Cs除去率は58~83% (ave. 68%)であること、(b)キャビテーションジェットによる研磨洗浄を追加した二次処理土の放射性Cs除去率は80~

93% (ave. 85%)まで向上することを報告している。他の研磨方法としては、ジェットポンプによる磨洗⁶⁾、コンクリート吹付機を用いた砂洗淨⁷⁾、ポットミルを用いた磨砕洗淨⁸⁾などが報告されている。上記のように分級洗淨に物理的な研磨処理を追加することは、放射性Csの低減には効果的であるが、摩耗粒子が多量に発生するため減容化にはマイナスに働くという欠点を有している。

(2) 本研究の土壌洗浄法の概要

本研究の土壌洗浄法では、物理的な研磨処理ではなく、化学的な洗浄処理であるスクラビング・フローテーションを使用した。後述するように、薬剤を用いたスクラビングによって土壌粒子表面に付着しているCs吸着粒子が効果的に剥離されるため、摩耗粒子の発生を抑制することができる。本研究の土壌洗浄法のフローを図-1に示す。2段湿式フルイ(wet screens)によって元土壌(feed soil)は、2mm以上の礫・粗砂分(coarse fractions)と2mm以下の土壌(feed<2mm)に篩い分けられる。2mm以下の土壌スラリーは、ハイドロサイクロン(hydrocyclone, 分級径: 63 μ m, 滞留時間: 数秒)によってオーバーフロー(OF, 細粒子分)とアンダーフロー(UF, 砂・細砂分)に分級される。アンダーフロー中の砂・細砂分は、スクラバー(scrubber, 滞留時間: 4~6分)において複数の薬剤によって表面処理された後、スクラビングによって土壌粒子表面から付着しているCs吸着粒子や有機物等が効果的に剥離される。続いて、フローテーションセル(滞留時間: 10~15分)に入り、起泡剤(frother)が添加されフローテーションが行われる。ここでは、雲母類などのCs吸着粒子や有機物等は、土壌粒子と

図-1 放射性Cs汚染土壌の洗浄処理フロー

の界面化学的性質の差を利用して選択的に分離され、気泡と共に液表面まで上昇しフロス(froth)として系外へ除去される。洗浄された砂・細砂分は、脱水工程を経て洗浄土(clean sand)となる。オーバーフローとフロスに含まれる細粒子分は、凝集沈殿とプレス脱水を経て濃縮残渣(sludge cake)となる。なお、一連のスクラビング・フローテーション(scrubbing-flotation)の工程では、捕収剤、pH調整剤、活性剤、抑制剤、起泡剤などが適宜使用される。

3. 実験内容と方法

本研究では、福島県の大葉郡の広野町、浪江町、川内村、相馬郡の飯舘村、南相馬市、田村市、伊達市の学校の運動場(playground, PG)の表層部(0~5cm)から採取した土壌(11 試料)と広野町周辺の住宅地等(residential area, RA)を除染した際に表層部(0~5cm)を剥ぎ取った土壌(10 試料)、すなわち運動場土壌(soil-PG)と住宅地等の除染除去土壌(soil-RA)の計 21 試料を対象に実験を行なった。

これらの土壌試料の基礎的な性状と放射性Csの分布特性を把握するために、元土壌(feed soil)の含有放射能量と強熱減量(ignition loss)の分析、粒度分布試験(grain-size distribution test)を実施した。強熱減量の分析は、植物片や腐植質などの有機物量を把握するために行なった。8試料のsoil-PG(5,640~69,500 Bq/kg)と6試料のsoil-RA(13,200~26,300 Bq/kg)の計14試料について土壌洗浄試験(soil washing test)を行ない、洗浄プロセスにおける放射性Csの分離・除去過程を調べた。次に、各洗浄プロセスの放射性Csの収支を検討した上で、2mm以上の粗粒子分を含む放射性Cs汚染土壌全体の浄化・減容化効果の評価を行なった。

Soil-RAの2~4mm粗粒子分には、多数の軽質分(植物片等の有機物)が混入していた。このため、ログウォッシャー(log washer)¹⁹⁾の使用を想定した傾斜法(decantation)による軽質分の分離試験を追加した。

土壌試料別に実施した実験項目を表-1に整理して示す。

(1) 含有放射能量と強熱減量の分析

含有放射能量の分析では、SEIKO EG&G社 HPGe半導体検出器(GEM-35200-P, 33-TP30842A)、SEIKO EG&G社 MFG-DSPEC-JR-2.0型波高分析装置、CANBERRA社 INSP-14型波高分析装置が使用された。本論文における含有放射能量は試料測定時点での値であり、有効数字3桁の値で表示した。強熱減量はJIS A1226に従って分析された。

土壌試料の含有放射能量と強熱減量の分析は、外部の分析機関へ依頼した。

(2) 粒度分布試験

2段の金網フルイ(上段:4mm, 下段:2mm)を有する(株)興

和工業所の円形振動フルイ機(KGCR-500-2D)を用いて、湿式で元土壌を2mm以上の粗粒子分と2mm以下の土壌に分級した。粒度分布試験では、2mm以下の土壌を対象に、Retsch社の振動フルイ機(AS200)と篩目が38 μ m, 63 μ m, 125 μ m, 250 μ m, 500 μ m, 1mm, および2mmの金網フルイを用いて湿式で篩分けを行い、対象試料の粒度分布を求めた。篩目が D_L と D_U のフルイによって分けられた土壌粒子の代表粒子径 D_M は式(1)より求めた²⁰⁾。

$$D_M = \sqrt{(D_L^2 + D_U^2)/2} \quad (1)$$

例えば、38 μ m未満の土壌の代表粒子径は、 $D_L = 0 \mu$ m, $D_U = 38 \mu$ mより $D_M = 26.8 \mu$ mとなる。

(3) 土壌洗浄試験

サイクロン試験はMozley社のハイドロサイクロン(50%分級径: 63 μ m)を用いて、土壌スラリーの供給圧力が0.1 MPaの設定下で行った。土壌スラリーは図-2に示すようにサイクロン内部で分級され、上部よりオーバーフロー(OF, 63 μ m未満の細粒子分を含むスラリー)が、下部よりアンダーフロー(UF, 63 μ m~2mmの砂・細砂分を含むスラリー)が流出する。2mm以下の土壌スラリー、OF, UFの固形物率(DS)をそれぞれ DS_{feed} , DS_{OF} , DS_{UF} とし、OFとUFの重量比を $1-x:x$ とすると、式(2)の関係式が得られる。

$$DS_{feed} = DS_{UF} \cdot x + DS_{OF} \cdot (1-x) \quad (2)$$

スクラビング・フローテーション試験は、Denver社のフローテーション試験機を用いて行った。UF中の砂・細砂分は、試験機のセル内で捕収剤(collector)などの薬剤と混合され、スクラビングによって砂粒子の表面からCsを吸着した汚染粒子が効果的に剥離される(図-3(A))。次に、セル内に気泡剤(frother)が添加されフローテーションが行われる。粒子表面が疎水化された汚染粒子は選択的に気泡へ吸着し、液面まで連行されフロス層を形成する。放射性Csを吸着した汚染粒子はフロス(froth)として掻き出されることで系外へ除去される(図-3(B))。捕収剤は、対象の汚染粒子の表面に吸着して粒子表面を疎水化する界面活性剤である。起泡剤は、界面活性が高く特定の吸着

図-2 ハイドロサイクロンによる土壌スラリーの分級

特性を持たない界面活性剤であり、水中に安定な気泡を多数発生させる。今回は、捕収剤にカチオン系のアクリルアミン塩、アニオン系の脂肪酸塩やアルキル硫酸塩を、気泡剤にMIBC, pine oil, 2-ethyl-1-hexanolを、pH調整剤に硫酸と水酸化ナトリウムをそれぞれ適宜使用した。

(4) 軽質分分離試験

植物片などの軽質分を多く含む粗粒子分を入れた容器へ水を加えて攪拌し軽質分を浮遊させながら、傾斜法(decantation)によって軽質分を分離した。これにより、植物片などの軽質分が保持している含有放射エネルギーと軽質分の除去による含有放射エネルギーの低減効果の評価を行なった。

4. 実験結果と考察

(1) 放射性Cs汚染土壌の含有放射エネルギーと強熱減量

表-1に運動場土壌(soil-PG)と住宅地等の除染除去土壌(soil-RA)の元土壌(feed soil)の含有放射エネルギーと強熱減量の分析値を示す。Soil-PGの含有放射エネルギーは最小1,890 Bq/kg, 最大69,500 Bq/kgであり、11試料中5試料は21,000~46,300 Bq/kgであった。強熱減量は1.6~3.8%であり、11試料中9試料は1.6~2.3%であった。一方、soil-RAの含有放射エネルギーは最小8,790 Bq/kg, 最大53,100 Bq/kgであり、10試料中7試料は13,200~26,300 Bq/kgであった。強熱減量は8.5~20.9%であり11試料中6試料は10.9~16.9%であった。Soil-RAの強熱減量は、soil-PGに比べてかなり高い値であった。

(2) 放射性Cs汚染土壌の粒度分布

Soil-PGとSoil-RAの粒度分布と単純平均化した粒度分布を図-4(a), (b)に示す。Soil-PGの粒度分布は比較的バラツキが少なく、63 μ m以下の細粒子分の割合は20~35% (ave. 26.0%)であった。Soil-PGは、細粒子分の割合が比較的小さいため、土壌洗浄に適した粒度構成であると判断された。Soil-RAの粒度分布は、soil-PGに比べてバラツキが大

きく63 μ m以下の細粒子分が17~44% (ave. 28.0%), 125 μ m以下の粒度の割合が27~59% (ave. 41.3%), 250 μ m以下の粒度の割合が36~68% (ave. 51.0%)であった。Soil-RAには、細粒子分の割合が小さく高い減容化効果が望める粒度構成の土壌(soil-RA-a, b, e, g, hの5試料)と細粒子分の割合が大きく高い減容化効果が望みにくい粒度構成の土壌(soil-RA-c, fの2試料)の両方が含まれていた。

(3) 土壌洗浄試験結果と放射性Cs量の収支

表-1に示した計14試料について土壌洗浄試験を行ない、各プロセスにおける土壌と含有放射エネルギーの分離・除去過程を調べた上で、土壌量と放射性Cs量の収支を求めた。

表-1 元土壌の含有放射エネルギー, 強熱減量, および実験項目

Soil samples	Cs-Total (Bq/kg)	Ignition Loss (%)	Grain size distribution test	Soil washing test	Mass balance analysis	Light fraction separation
(A) Playground (PG)						
Soil-PG-a	7,230	3.8%	X	X	X	---
Soil-PG-b	46,300	1.8%	X	X	X	---
Soil-PG-c	40,900	2.2%	X	X	X	---
Soil-PG-d	69,500	2.9%	X	X	X	---
Soil-PG-e	32,700	2.3%	X	X	X	---
Soil-PG-f	5,640	2.1%	X	X	X	---
Soil-PG-g	1,890	2.1%	X	---	---	---
Soil-PG-h	7,610	1.9%	X	---	---	---
Soil-PG-i	62,300	1.9%	X	---	---	---
Soil-PG-j	21,000	1.6%	X	X	X	---
Soil-PG-k	23,600	1.6%	---	X	X	---
(B) Residential area (RA)						
Soil-RA-a	26,300	8.8%	X	X	X	X
Soil-RA-b	15,800	11.2%	X	X	X	X
Soil-RA-c	18,900	16.9%	X	X	X	X
Soil-RA-d	18,800	8.9%	---	X	X	X
Soil-RA-e	13,200	8.5%	X	X	X	X
Soil-RA-f	51,100	20.9%	X	---	---	X
Soil-RA-g	24,000	13.7%	X	---	---	---
Soil-RA-h	53,100	14.8%	X	---	---	X
Soil-RA-i	15,700	15.8%	---	X	---	---
Soil-RA-j	8,790	10.9%	---	---	---	---

Key: X, tested; ---, untested

図-3 スクラビング・フローテーションの原理と概要

図-4 2mm以下の土壌(fine<2mm)の粒度分布 (累積加積曲線)

なお、サイクロンOFを主体とする洗浄排水の凝集沈殿処理水の放射性Cs濃度は、全て定量下限値未満(<10 Bq/kg)であった。放射性Cs量の収支は土壌粒子(有機物を含む)のみに着目すれば良い。洗浄試験で使用した薬剤(捕収剤、凝集剤など)の添加量は土壌量に比べて僅かであるため、収支計算において薬剤量は無視している。洗浄試験結果と放射性Cs量の収支計算の例を図-5に示す。含有放射エネルギーは有効数字3桁の値で表示した。収支計算の途中では丸めずに最終的な総計において3桁に丸めた。計算途中すなわち各プロセスでの放射性Cs量(Bq)の計算では、2桁多い5桁まで残しそれ以降の数字は切り捨てた。

図-5(A)に示したsoil-PG-kの例では、乾燥重量表記で23,600 Bq/kgの元土壌100 kgから1,600 Bq/kgの洗浄土72.9 kgと2,090 Bq/kgの2~4mm粗粒子分10.7 kgが産出され、濃縮残渣16.4 kg (138,000 Bq/kgのOF 15.2 kg, 78,600 Bq/kgのプロス1.2 kg)が発生した。放射性Cs量の収支については、2段湿式フルイが86.8%、ハイドロサイクロンが116.8%、フローテーションが78.0%であった。元土壌の放射性Cs量2,360,000 Bqを100%とした場合、洗浄土は4.9%、粗粒子分は0.9%、濃縮残渣は92.9% (OF: 88.9%, プロス: 4.0%)を占め、プロセス全体の収支は98.7%となった。濃縮残渣の発生率は16.4%であるが、放射性Csの約93%が濃縮残渣に集約されることがわかった。産出された2~4mm粗粒子分、洗浄土、OF、およびプロスの放射性Cs量の合計2,330,000 Bqを100%とした場合には、洗浄土は5.0%、粗粒子分は1.0%、濃縮残渣は94.0% (OF: 90.0%, プロス: 4.0%)の割合となった。

図-5(B)に示したsoil-RA-dの例では、18,800 Bq/kgの元土壌100 kgから2,840 Bq/kgの洗浄土53.2 kgと13,400 Bq/kgの2~4mm粗粒子分14.0 kg, 2,710 Bq/kgの4~40mm粗粒子分13.0 kgが産出され、濃縮残渣19.8 kg (74,600 Bq/kgのOF 14.6

kg, 17,500 Bq/kgのプロス5.2 kg)が発生した。放射性Cs量の収支については、2段湿式フルイが92.2%、ハイドロサイクロンが93.5%、フローテーションが74.8%であった。元土壌の放射性Cs量1,880,000 Bqを100%とした場合、洗浄土は8.0%、4~40mm粗粒子分は1.9%、2~4mm粗粒子分は10.0%、濃縮残渣は62.7% (OF: 57.9%, プロス: 4.8%)を占め、プロセス全体の収支は82.4%となった。また、産出された粗粒子分、洗浄土、OF、およびプロスの放射性Cs量の合計1,550,000 Bqを100%とした場合には、洗浄土は9.7%、4~40mm粗粒子分は2.3%、2~4mm粗粒子分は12.1%、濃縮残渣は76.2% (OF: 70.3%, プロス: 5.9%)の割合となった。

8試料のsoil-PGの洗浄試験結果と放射性Cs量の収支を表-2に、6試料のsoil-RAの試験結果と収支を表-3に示す。試料名称の横に使用した捕収剤の種類を記載した。図-5と同じく表-2、表-3においても元土壌量を100 kgとして、各プロセスの土壌量(kg)、含有放射エネルギー(Bq/kg)、これらの積である放射性Cs量(Bq)について、投入量(input)、産出量(output)、および中間体(intermediate)の値をそれぞれ記した。本実験の収支の結果を以下に要約する。

- 1) 2段湿式フルイの収支は、soil-PGでは8試料全てが81.2~105.8% (ave. 92.0%)と良好な値であった。Soil-RAでは5試料中3試料が80.5~113.7%と良好な値であったが、2試料が60%台の値であった。
- 2) ハイドロサイクロンの収支は、soil-PGでは8試料全てが78.5~124.7% (ave. 104.3%)と概ね良好な値であった。Soil-RAではsoil-RA-e (68.0%)を除く4試料が88.0~105.2% (ave. 96.6%)と良好な値であった。
- 3) スクラビング・フローテーションの収支は、soil-PGではsoil-PG-c (49.6%)を除く7試料が65.2~95.9% (ave. 77.9%)であり、soil-RAの5試料は62.5~96.3% (ave. 79.0%)

図-5 土壌洗浄試験結果と放射性Cs量(Bq)の収支計算の例

であった。

スクラビング・フローテーションの放射性Cs量(Bq)の収支の値が2段湿式フルイやハイドロサイクロンのそれらに比べて低い理由としては、以下の事柄が考えられる。

- 洗浄土量は、試験に供したサイクロンUF量から掻き取ったフロス量を差し引くことで求めた。洗浄土は試験後に脱水操作(水切り)を行ってから回収した。
- スクラビング・フローテーション後の洗浄土に微細な粒子分が残存している場合には、これらの一部が脱水操作の際に水と一緒に流出した可能性がある。

これらの微細な粒子分の含有放射エネルギーが高いほど、スクラビング・フローテーションの放射性Cs量の収支は相対的に低下する。土壌洗浄の実プラントにおいても、このような微細な粒子分は脱水フルイ(dewatering screen)に

おいて水と一緒に流出しやすい。図-1に示したように脱水フルイから流出した細粒子分は、オーバーフロー(OFF)やフロスと一緒に凝集沈殿と脱水工程(press)を経て濃縮残渣となる。すなわち、流出分だけ洗浄土の産出量が減少し、濃縮残渣の発生量は増加することになる。

(4) 土壌洗浄による浄化・減容化効果の評価

洗浄試験を行なった14試料の元土壌とサイクロンUF、洗浄土の含有放射エネルギーの関係を図-6(A)に、元土壌と2段湿式フルイによる分級後の粗粒子分(coarse fractions)の含有放射エネルギーの関係を図-6(B)に示す。図中には、(a)含有放射エネルギーの除去率を表す線、および(b)浄化の目標値(目安)として3,000 Bq/kgと8,000 Bq/kgの線を示した。

図-6(A)に示したように、soil-PGの含有放射エネルギー除去率

表-2 運動場土壌(soil-PG)の土壌洗浄試験結果と放射性Cs量(Bq)の収支

Stream (input / output)	Soil-PG-a (Anion)			Soil-PG-b (Anion)			Soil-PG-c (Anion)			Soil-PG-d (Anion)		
	Dry solids (A) (kg)	Cs-total (B) (Bq/kg)	Bq (=A x B) (Bq)	Dry solids (A) (kg)	Cs-total (B) (Bq/kg)	Bq (=A x B) (Bq)	Dry solids (A) (kg)	Cs-total (B) (Bq/kg)	Bq (=A x B) (Bq)	Dry solids (A) (kg)	Cs-total (B) (Bq/kg)	Bq (=A x B) (Bq)
Untreated feed soil (input)	100.0	7,230	723,000	100.0	46,300	4,630,000	100.0	40,900	4,090,000	100.0	69,500	6,950,000
Coarse, +2-4mm (output)	9.2	920	8,464	22.8	4,270	97,356	14.5	1,950	28,275	7.8	1,440	11,232
Feed<2mm (intermediate)	90.8	8,010	727,300	77.2	49,400	3,813,600	85.5	43,600	3,727,800	92.2	74,300	6,850,400
Subtotal-1, screens	100.0	---	735,760	100.0	---	3,910,900	100.0	---	3,756,000	100.0	---	6,861,600
Balance-1, screens	100.0%	---	101.8%	100.0%	---	84.5%	100.0%	---	91.8%	100.0%	---	98.7%
Feed<2mm (intermediate)	90.8	8,010	727,300	77.2	49,400	3,813,600	85.5	43,600	3,727,800	92.2	74,300	6,850,400
Underflow (intermediate)	71.7	1,710	122,600	60.6	15,700	951,420	63.4	9,520	603,560	61.6	29,200	1,798,700
Overflow (output)	19.1	27,700	529,070	16.6	196,000	3,253,600	22.1	183,000	4,044,300	30.6	209,000	6,395,400
Subtotal-2, hydrocyclone	90.8	---	651,670	77.2	---	4,205,000	85.5	---	4,647,800	92.2	---	8,194,100
Balance-2, hydrocyclone	100.0%	---	89.6%	100.0%	---	110.3%	100.0%	---	124.7%	100.0%	---	119.6%
Underflow (intermediate)	71.7	1,710	122,600	60.6	15,700	951,420	63.4	9,520	603,560	61.6	29,200	1,798,700
Clean sand (output)	67.3	810	54,510	57.6	6,750	388,800	59.7	3,290	196,410	56.4	12,090	681,870
Froth (output)	4.4	6,160	27,100	3.0	95,400	286,200	3.7	27,800	102,860	5.2	94,400	490,880
Subtotal-3, scrubbing-flotation	71.7	---	81,610	60.6	---	675,000	63.4	---	299,270	61.6	---	1,172,700
Balance-3, scrubbing-flotation	100.0%	---	66.6%	100.0%	---	70.9%	100.0%	---	49.6%	100.0%	---	65.2%
Total output	100.0	---	619,000	100.0	---	4,030,000	100.0	---	4,370,000	100.0	---	7,580,000
Balance	100.0%	---	85.6%	100.0%	---	87.0%	100.0%	---	106.8%	100.0%	---	109.1%
Clean products (calculated value)	76.5	824	63,000	80.4	6,040	486,000	74.2	3,030	225,000	64.2	10,800	693,000
Sludge cake (calculated value)	23.5	23,700	556,000	19.6	181,000	3,540,000	25.8	161,000	4,150,000	35.8	192,000	6,890,000
Clean products (clean sand+coarse)	76.5%	---	10.2%	80.4%	---	12.1%	74.2%	---	5.1%	64.2%	---	9.1%
Sludge cake (overflow+froth)	23.5%	---	89.8%	19.6%	---	87.9%	25.8%	---	94.9%	35.8%	---	90.9%

Stream (input / output)	Soil-PG-e (Anion+Cation)			Soil-PG-f (Anion)			Soil-PG-j (Anion)			Soil-PG-k (Cation)		
	Dry solids (A) (kg)	Cs-total (B) (Bq/kg)	Bq (=A x B) (Bq)	Dry solids (A) (kg)	Cs-total (B) (Bq/kg)	Bq (=A x B) (Bq)	Dry solids (A) (kg)	Cs-total (B) (Bq/kg)	Bq (=A x B) (Bq)	Dry solids (A) (kg)	Cs-total (B) (Bq/kg)	Bq (=A x B) (Bq)
Untreated feed soil (input)	100.0	32,700	3,270,000	100.0	5,640	564,000	100.0	21,000	2,100,000	100.0	23,600	2,360,000
Coarse, +2-4mm (output)	20.9	12,400	259,160	7.5	1,720	12,900	10.5	3,100	32,550	10.7	2,090	22,363
Feed<2mm (intermediate)	79.1	32,100	2,539,100	92.5	6,310	583,670	89.5	18,700	1,673,600	89.3	22,700	2,027,100
Subtotal-1, screens	100.0	---	2,798,200	100.0	---	596,570	100.0	---	1,706,100	100.0	---	2,049,400
Balance-1, screens	100.0%	---	85.6%	100.0%	---	105.8%	100.0%	---	81.2%	100.0%	---	86.8%
Feed<2mm (intermediate)	79.1	32,100	2,539,100	92.5	6,310	583,670	89.5	18,700	1,673,600	89.3	22,700	2,027,100
Underflow (intermediate)	63.4	10,100	640,340	75.8	1,880	142,500	73.5	2,700	198,450	74.1	3,650	270,460
Overflow (output)	15.7	106,000	1,664,200	16.7	18,900	315,630	16.0	96,600	1,545,600	15.2	138,000	2,097,600
Subtotal-2, hydrocyclone	79.1	---	2,304,500	92.5	---	458,130	89.5	---	1,744,000	89.3	---	2,368,000
Balance-2, hydrocyclone	100.0%	---	90.8%	100.0%	---	78.5%	100.0%	---	104.2%	100.0%	---	116.8%
Underflow (intermediate)	63.4	10,100	640,340	75.8	1,880	142,500	73.5	2,700	198,450	74.1	3,650	270,460
Clean sand (output)	60.6	6,650	402,990	69.7	1,150	80,155	70.5	1,960	138,180	72.9	1,600	116,640
Froth (output)	2.8	42,700	119,560	6.1	7,160	43,676	3.0	17,400	52,200	1.2	78,600	94,320
Subtotal-3, scrubbing-flotation	63.4	---	522,550	75.8	---	123,830	73.5	---	190,380	74.1	---	210,960
Balance-3, scrubbing-flotation	100.0%	---	81.6%	100.0%	---	86.9%	100.0%	---	95.9%	100.0%	---	78.0%
Total output	100.0	---	2,440,000	100.0	---	452,000	100.0	---	1,760,000	100.0	---	2,330,000
Balance	100.0%	---	74.6%	100.0%	---	80.1%	100.0%	---	83.8%	100.0%	---	98.7%
Clean products (calculated value)	81.5	8,120	662,000	77.2	1,210	93,100	81.0	2,110	171,000	83.6	1,660	139,000
Sludge cake (calculated value)	18.5	96,200	1,780,000	22.8	15,700	359,000	19.0	84,200	1,600,000	16.4	134,000	2,190,000
Clean products (clean sand+coarse)	81.5%	---	27.1%	77.2%	---	20.6%	81.0%	---	9.7%	83.6%	---	6.0%
Sludge cake (overflow+froth)	18.5%	---	72.9%	22.8%	---	79.4%	19.0%	---	90.3%	16.4%	---	94.0%

Balance of radio-Cs (Bq); : 80~120%, : 60~80% or 120~140%, : under 60%

は、UFが58.0~87.2% (ave. 73.1%), 洗浄土が79.6~93.2% (ave. 86.5%)であり、soil-RAの除去率は、UFが50.4~78.1% (ave. 68.7%), 洗浄土が72.2~92.6% (ave. 84.0%)であった。

サイクロンによる分級処理は、除去率のバラツキが大きい上に平均的な除去率は70%前後に止まった。スクラビング・フローテーションによる化学的な洗浄処理を追加することによって、除去率のバラツキは小さくなり、平均的な除去率は84~87%へと大幅に改善された。筆者らの検討では、soil-PGとsoil-RAの両方において細砂~砂分の表面に金雲母(phlogopite)や蛭石(vermiculite)などが付着、もしくは砂表面の一部を有機物や酸化水酸化鉄が覆っていることが推察された²⁰⁾。これらの物質はCsを吸着

しやすいことが知られている²¹⁾。薬剤を用いたスクラビングによって、Csを吸着している金雲母や蛭石、有機物、酸化水酸化鉄などを砂表面から効果的に剥離すること、続くフローテーションにおいて、これらのCs吸着粒子がフロスとして系外へ除去されることが放射性Csの低減に大きく寄与したものと考えられた。また、洗浄土の目標を3,000 Bq/kgとした場合には、soil-PGおよびsoil-RAの両方において20,000~30,000 Bq/kgまでが浄化可能であること、目標を8,000 Bq/kgとした場合には、soil-PGであれば約50,000 Bq/kgまでが浄化可能であることがわかった。

続いて粗粒子分について検討する。表-2に示したように、Soil-PGの2~4mm粗粒子分の中ではsoil-PG-eだけが

表-3 住宅地等の除染除去土壌(soil-RA)の土壌洗浄試験結果と放射性Cs量(Bq)の収支

Stream (input / output)	Soil-RA-a (Anion+Cation)			Soil-RA-b (Anion)			Soil-RA-c (Anion+Cation)		
	Dry solids (A) (kg)	Cs-total (B) (Bq/kg)	Bq (=A x B) (Bq)	Dry solids (A) (kg)	Cs-total (B) (Bq/kg)	Bq (=A x B) (Bq)	Dry solids (A) (kg)	Cs-total (B) (Bq/kg)	Bq (=A x B) (Bq)
Untreated feed soil (input)	100.0	26,300	2,630,000	100.0	15,800	1,580,000	100.0	18,900	1,890,000
Coarse, +4mm (output)	11.0	1,500	16,500	22.0	970	21,340	19.0	580	11,020
Coarse, +2-4mm (output)	13.0	6,320	82,160	12.0	5,510	66,120	12.0	8,040	96,480
Feed<2mm (intermediate)	76.0	20,700	1,573,200	66.0	13,200	871,200	69.0	20,500	1,414,500
Subtotal-1, screens	100.0	---	1,671,800	100.0	---	958,660	100.0	---	1,522,000
Balance-1, screens	100.0%	---	63.6%	100.0%	---	60.7%	100.0%	---	80.5%
Feed<2mm (intermediate)	76.0	20,700	1,573,200	66.0	13,200	871,200	69.0	20,500	1,414,500
Underflow (intermediate)	62.3	5,760	358,840	49.3	3,720	183,390	43.5	5,650	245,770
Overflow (output)	13.7	88,200	1,208,300	16.7	43,900	733,130	25.5	39,200	999,600
Subtotal-2, hydrocyclone	76.0	---	1,567,100	66.0	---	916,520	69.0	---	1,245,300
Balance-2, hydrocyclone	100.0%	---	99.6%	100.0%	---	105.2%	100.0%	---	88.0%
Underflow (intermediate)	62.3	5,760	358,840	49.3	3,720	183,390	43.5	5,650	245,770
Clean sands (output)	60.3	3,130	188,730	46.2	2,400	110,880	41.6	3,570	148,510
Froth (output)	2.0	49,200	98,400	3.1	21,190	65,689	1.9	27,100	51,490
Subtotal-3, scrubbing-flotation	62.3	---	287,130	49.3	---	176,560	43.5	---	200,000
Balance-3, scrubbing-flotation	100.0%	---	80.0%	100.0%	---	96.3%	100.0%	---	81.4%
Total output	100.0	---	1,590,000	100.0	---	997,000	100.0	---	1,310,000
Balance	100.0%	---	60.5%	100.0%	---	63.1%	100.0%	---	69.3%
Clean products (calculated value)	84.3	3,400	287,000	80.2	2,470	198,000	72.6	3,530	256,000
Sludge cake (calculated value)	15.7	83,400	1,310,000	19.8	40,400	799,000	27.4	38,300	1,050,000
Clean products (clean sand+coarse)	84.3%	---	18.1%	80.2%	---	19.9%	72.6%	---	19.5%
Sludge cake (overflow+froth)	15.7%	---	81.9%	19.8%	---	80.1%	27.4%	---	80.5%

Stream (input / output)	Soil-RA-d (Anion)			Soil-RA-e (Cation)			Soil-RA-i (Cation)		
	Dry solids (A) (kg)	Cs-total (B) (Bq/kg)	Bq (=A x B) (Bq)	Dry solids (A) (kg)	Cs-total (B) (Bq/kg)	Bq (=A x B) (Bq)	Dry solids (A) (kg)	Cs-total (B) (Bq/kg)	Bq (=A x B) (Bq)
Untreated feed soil (input)	100.0	18,800	1,880,000	100.0	13,200	1,320,000	---	15,700	---
Coarse, +4mm (output)	13.0	2,710	35,230	23.0	3,430	78,890	---	---	---
Coarse, +2-4mm (output)	14.0	13,400	187,600	10.0	4,200	42,000	---	---	---
Feed<2mm (intermediate)	73.0	20,700	1,511,100	67.0	20,600	1,380,200	---	22,400	---
Subtotal-1, screens	100.0	---	1,733,900	100.0	---	1,501,100	---	---	---
Balance-1, screens	100.0%	---	92.2%	100.0%	---	113.7%	---	---	---
Feed<2mm (intermediate)	73.0	20,700	1,511,100	67.0	20,600	1,380,200	---	22,400	---
Underflow (intermediate)	58.4	5,540	323,530	49.0	6,560	321,440	---	5,240	---
Overflow (output)	14.6	74,600	1,089,100	18.0	34,400	619,200	---	29,100	---
Subtotal-2, hydrocyclone	73.0	---	1,412,600	67.0	---	940,640	---	---	---
Balance-2, hydrocyclone	100.0%	---	93.5%	100.0%	---	68.2%	---	---	---
Underflow (intermediate)	58.4	5,540	323,530	49.0	6,560	321,440	---	5,240	---
Clean sands (output)	53.2	2,840	151,080	48.2	3,670	176,890	---	1,160	---
Froth (output)	5.2	17,500	91,000	0.8	29,900	23,920	---	22,500	---
Subtotal-3, scrubbing-flotation	58.4	---	242,080	49.0	---	200,810	---	---	---
Balance-3, scrubbing-flotation	100.0%	---	74.8%	100.0%	---	62.5%	---	---	---
Total output	100.0	---	1,550,000	100.0	---	941,000	---	---	---
Balance	100.0%	---	82.4%	100.0%	---	71.3%	---	---	---
Clean products (calculated value)	80.2	4,660	374,000	81.2	3,670	298,000	---	---	---
Sludge cake (calculated value)	19.8	59,600	1,180,000	18.8	34,200	643,000	---	---	---
Clean products (clean sand+coarse)	80.2%	---	24.1%	81.2%	---	31.6%	---	---	---
Sludge cake (overflow+froth)	19.8%	---	75.9%	18.8%	---	68.4%	---	---	---

Balance of radio-Cs (Bq): : 80~120%, : 60~80% or 120~140%, : under 60%

12,400 Bq/kgと非常に高い値であった。Soil-PG-eのみが高い理由は不明である。図-6(B)に示したように、soil-PG-e以外のsoil-PGの2~4mm粗粒子分は、920~4,270 Bq/kg (ave. 2,210 Bq/kg)であり、除去率は69.5~97.9% (ave. 88.2%)であった。またsoil-RAの4~40mm粗粒子分の含有放射エネルギーは580~3,430 Bq/kg (ave. 1,840 Bq/kg)であり、除去率は74.1~96.9% (ave. 88.9%)であった。Soil-PGの2~4mmとsoil-RAの4~40mmの粗粒子分については、フルイによる分級操作のみで概ね3,000 Bq/kg以下になることが認められた。一方、soil-RAの2~4mm粗粒子分は、4,200~13,400 Bq/kg (ave. 7,490 Bq/kg)と高く、除去率は29.0~75.9% (ave. 59.1%)

と他の粗粒子分に比べて低い値であった。

図-7に含有放射エネルギーの除去率と濃縮残渣の発生量の関係を示す。ハイドロサイクロンまでの分級処理のみのプロットとスクラビング・フローテーションによる洗浄処理を加えた場合のプロットを関連付けて示した。フロスの発生量はsoil-PGで元土壌の1.2~6.1% (ave. 3.7%), soil-RAで0.8~5.2% (ave. 2.6%)であった。スクラビング・フローテーションは除去率を70%前後から84~87%へと大きく改善させても、濃縮残渣は僅か数%しか増加しないことがわかった。スクラビング・フローテーションは、物理的な研磨処理では困難であった高い除去率と高い減容

図-6 元土壌の含有放射エネルギーとアンダーフロー(UF), 洗浄土, 粗粒子分の含有放射エネルギーとの関係

図-7 含有放射エネルギー除去率と濃縮残渣発生量の関係

図-8 浄化産物と濃縮残渣の発生量と放射性Cs量の分配割合

率の両立に極めて有効な技術であると考えられる。

次に洗浄土と粗粒子分の浄化産物(clean products)と濃縮残渣(sludge cake)について検討する。土壌洗浄によって産出された粗粒子分, 洗浄土, OF, およびフロスの放射性Cs量の合計を100%とした場合の浄化産物(洗浄土+粗粒子分)と濃縮残渣(OF+フロス)の放射性Cs量(Bq)の分配割合を計算し表-2と表-3の末尾に示した。図-8に浄化産物と濃縮残渣の発生量と放射性Cs量(Bq)の分配割合を示す。浄化産物と濃縮残渣が, 発生量と放射性Cs量の両方においてトーレードオフの関係にあることが認められる。Soil-PGでは, 浄化産物は土壌量の64.2~83.6% (ave. 77.3%), 放射性Cs量の5.1~27.1% (ave. 12.5%)を占め, 濃縮残渣は土壌量の16.4~35.8% (ave. 22.7%), 放射性Cs量

の72.9~94.9% (ave. 87.5%)を占めた。同様にsoil-RAでは, 浄化産物は土壌量の72.6~84.3% (ave. 79.7%), 放射性Cs量の18.1~31.6% (ave. 22.6%)を占め, 濃縮残渣は土壌量の15.7~27.4% (ave. 20.3%), 放射性Cs量の68.4~81.9% (ave. 77.4%)を占めた。以上より, (a)土壌量の約80%が浄化産物, 約20%が濃縮残渣となること, (b)約20%の濃縮残渣に放射性Cs量の77~88%が集約されることがわかった。

(5) 粗粒子分の軽質分除去による含有放射エネルギーの低減

Soil-RA-a~eの元土壌, 洗浄土, 濃縮残渣, および粗粒子分の強熱減量値を表-4(A)に示す。元土壌は8.8~16.9% (ave. 10.9%), 洗浄土は1.3~2.3% (ave. 1.7%), 濃縮残渣は23.4~32.2% (ave. 28.1%), 2~4mm粗粒子分は5.8~

11.1% (ave. 8.1%), および4~40mm粗粒子分は2.0~7.0% (ave. 4.0%)であった。元土壌中の有機物のほとんどは洗浄処理によって濃縮残渣に集約されること、2~4mm粗粒子分には多くの有機物が混入していることが認められた。含有放射能量は2~4mm粗粒子分が4,200~13,400 Bq/kg (ave. 7,300 Bq/kg), 4~40mm粗粒子分が580~3,430 Bq/kg (ave. 1,800 Bq/kg)であることから、有機物が放射性Csを吸着していることが示唆された。目視によると2~4mm粗粒子分には、分解が進んでいる枯葉や植物片などの軽質分が多数混入していること、4~40mm粗粒子分には小枝などの植物片が含まれていること等が観察された。Soil-RA-f~hの3試料についてもフルイ分級を行ない、粗粒子分の強熱減量と含有放射能の分析値を表-4(A)に追加した。2~4mm粗粒子分については、soil-RA-fの強熱減量が32.5%、含有放射能が20,230 Bq/kgと高い値であったが、他の2試料は強熱減量が6.7~8.7%、含有放射能が8,910~9,660 Bq/kgと前述の5試料(soil-RA-a~e)と同程度であった。4~40mm粗粒子分は、soil-RA-hの含有放射能が8,150 Bq/kgと他の試料に比べて高い値であった。

植物片等の軽質分の含有放射能と軽質分の除去による含有放射能の低減効果を把握するために、傾斜法による軽質分の分離試験を実施した。傾斜法によって粗粒子分は、砂利(gravel)を主体とする沈殿物(deposit)と植物片等の軽質分(light fraction)に分離された。結果を表-4(B)と図-9に示す。図-9中の曲線は、分離前の含有放射能の40%、80%、200% (2×), 600% (6×)の値を示している。沈殿物と分離された軽質分の乾燥重量比率は、soil-RA-fを除いて77.23~95.5 (ave. 87.13)であった。強熱減量値が32.5%と非常に高いsoil-RA-fについては、36%の軽質分が分離された。図-9と表-4(B)に示すようにsoil-RA-hの2~4mmを除いて、(a)軽質分が分離されたことによって粗粒子分の含有放射能の20~60%が除去されること、(b)分離された軽質分(有機物)の含有放射能は12,000~50,000 Bq/kgと分離前の粗粒子分の2~6倍と高いこと、(c)分離後の粗粒子分の強熱重量は1.7~3.2%と運動場土壌並みの低い値になることがわかった。なお、soil-RA-hの2~4mm粗粒子分については、原因は不明であるが分離前後で含有放射能値が逆転した。

表-4 住宅地等の除染除去土壌(soil-RA)の粗粒子分中の軽質分除去による含有放射能の低減

(A) Ignition loss (%) and Cs-total (Bq/kg) of coarse fractions								(B) Removal effect of light fraction (organic etc) in coarse fractions								
Soil-RA	Ignition loss (%)					Cs-total (Bq/kg)			Soil-RA, Coarse fractions	Ratio by dry weight (%)		Deposit			Light fraction	
	Feed soil	Clean sand	Sludge cake	Coarse, 2-4mm	Coarse, 4-40mm	Coarse, 2-4mm	Coarse, 4-40mm	Deposit (gravel)		Light fraction (organic etc)	Cs-total (Bq/kg)	Removal ratio (%)	Ignition loss (%)	Cs-total (Bq/kg)	Ignition loss (%)	
a	8.8%	1.3%	23.4%	7.4%	7.0%	6,320	1,500	a, 2-4mm	91.3%	8.7%	3,510	44.5%	1.7%	39,100	28.2%	
b	11.2%	1.4%	32.2%	8.1%	2.0%	5,510	970	b, 2-4mm	89.8%	10.2%	3,200	41.9%	2.2%	25,500	53.5%	
c	16.9%	2.0%	31.3%	8.1%	2.5%	8,040	580	c, 2-4mm	77.2%	22.8%	4,110	48.9%	2.1%	35,200	---	
d	8.9%	2.3%	24.2%	11.1%	5.5%	13,400	2,710	d, 2-4mm	80.7%	19.3%	6,760	49.6%	3.0%	49,900	17.0%	
e	8.5%	1.4%	29.3%	5.8%	2.9%	4,200	3,430	e, 2-4mm	88.2%	11.8%	3,980	5.2%	2.3%	12,800	---	
f	20.9%	---	---	32.5%	---	20,200	---	f, 2-4mm	64.4%	35.6%	8,460	58.1%	2.8%	42,100	82.2%	
g	13.7%	---	---	6.7%	6.0%	8,910	2,600	h, 2-4mm	84.4%	15.6%	13,100	-35.6%	2.8%	45,100	---	
h	14.8%	---	---	8.7%	4.5%	9,660	8,150	h, 4-40mm	95.0%	5.0%	6,080	25.4%	3.2%	20,600	---

図-9 粗粒子分中の軽質分除去による含有放射能の低減効果

図-10 土壌洗浄による運動場土壌(soil-PG)の浄化・減容化効果

一部の例外があるものの軽質分を分離することで、含有放射エネルギーの20～60 %が除去され、分離後の粗粒子分の強熱重量は1.7～3.2%と低い値となることが判明した。

5. 浄化・減容化の効果の評価

土壌洗浄による放射性Cs汚染土壌の浄化・減容化効果を理解するために、表-2と表-3の中から各プロセスの放射性Cs量(Bq)の収支が良好であり、元土壌の放射性Csが20,000 Bq/kg前後であったsoil-PG-j, kとsoil-RA-c, dの4試料を選び図-10、図-11に整理して示した。20,000 Bq/kg前後の元土壌を選んだのは、soil-PGとsoil-RAの比較を容易に行なうためである。なお、サイクロンOFを主体とする洗浄排水の凝集沈殿処理水の放射性Cs濃度はsoil-PG, soil-RA共通して全て定量下限値未満(<10 Bq/kg)であった。

図-10に示したように100 kgのsoil-PG-j, k (21,000～24,000 Bq/kg)の洗浄処理を行なうと、1,600～2,000 Bq/kgの洗浄土が70～73 kg、84,000～134,000 Bq/kgの濃縮残渣が16～19 kg、2,000～3,100 Bq/kgの2～4mm粗粒子分が10～11 kg産出された。洗浄土と粗粒子分を併せた浄化産出物81～84 kgの含有放射エネルギーは1,600～2,100 Bq/kgとなった。

Soil-RA-c, dについては、粗粒子分中の軽質分除去による含有放射エネルギーの低減効果を考慮に入れて図-11を作成した。100 kgのsoil-RA-c, d (18,800～18,900 Bq/kg)の洗浄処理を行なうと、2,800～3,600 Bq/kgの洗浄土が42～53 kg、38,000～60,000 Bq/kgの濃縮残渣が20～27 kg、600～2,700 Bq/kgの4～40mm粗粒子分が13～19 kg、8,000～13,400 Bq/kgの2～4mm粗粒子分が12～14 kg産出された。軽質分除去によって2～4mm粗粒子分の含有放射エネルギーは8,000～

13,400 Bq/kgから4,100～6,800 Bq/kgに低減された。回収された2～4mm砂利の量は9～11 kgであった。除去された軽質分量は2.7～2.8 kgであり、その含有放射エネルギーは35,000～50,000 Bq/kgであった。洗浄土と粗粒子分を併せた70～78 kgの浄化産出物の含有放射エネルギーは2,800～3,400 Bq/kgとなり、軽質分を併せた22～30 kgの濃縮残渣の含有放射エネルギーは38,000～58,000 Bq/kgとなった。また、強熱減量の値からは元土壌の有機物のほとんどが濃縮残渣(軽質分を含む)に集約され、浄化産出物の強熱減量は2～3%と運動場土壌並みの低い値となった。

以上より、土壌洗浄による放射性Cs汚染土壌(soil-PG, soil-RA)の浄化効果は非常に高く、20,000 Bq/kg前後の元土壌から概ね3,000 Bq/kg以下の浄化産出物が得られること、減容化効果も高く、元土壌の70～80%を浄化産出物として回収できることが判明した。

6. まとめ

本研究は、土壌洗浄による放射性Cs汚染土壌の浄化・減容化効果を把握することを目的に、各洗浄プロセスの放射性Cs量の収支を検討した上で、浄化・減容化効果の評価を行なった。主な結果を以下に記す。

- 1) ハイドロサイクロンによる分級処理は、除去率のバラツキが大きい上に平均的な除去率が70%前後に止まった。スクラビング・フローテーションによる化学的な洗浄処理を追加することによって、除去率のバラツキは小さくなり、平均的な除去率は84～87%へと大幅に改善された。
- 2) スクラビング・フローテーションは除去率を70%前

図-11 土壌洗浄による住宅地等の除染除去土壌(soil-RA)の浄化・減容化効果

後から84~87%へと大きく改善させても、濃縮残渣は僅か数%しか増加しないことがわかった。スクラビング・フローテーションは、高い除去率と高い減容率の両立に極めて有効な技術であると考えられる。

- 3) 洗浄土の目標を3,000 Bq/kgとした場合には、soil-PGとsoil-RAの両方において、20,000~30,000 Bq/kgまで浄化可能であること、目標を8,000 Bq/kgとした場合には、soil-PGであれば約50,000 Bq/kgまでが浄化可能であることがわかった。
- 4) 浄化産出物(洗浄土+粗粒子分)と濃縮残渣は、発生量と放射性Cs量の両方においてトレードオフの関係にある。放射性Cs汚染土壌量の約80%が浄化産出物、約20%が濃縮残渣となること、約20%の濃縮残渣に放射性Cs量の77~88%が集約されることが判明した。
- 5) Soil-RAの粗粒子分には、分解の進んでいる枯葉や植物片などの軽質分が多数混入していること、これらの軽質分の含有放射エネルギーはかなり高いこと、軽質分を分離することによって粗粒子分の含有放射エネルギーの20~60%が除去されることがわかった。
- 6) 粗粒子分中の軽質分の分離プロセス(ログウォッシャーを想定)も考慮に入れて土壌洗浄による放射性Cs汚染土壌の浄化・減容化効果の評価を行なった。浄化効果は非常に高く20,000 Bq/kg前後の元土壌から概ね3,000 Bq/kg以下の浄化産出物が得られること、減容化効果も高く元土壌の70~80%を浄化産出物として回収できることが判明した。また、元土壌中の有機物のほとんどが濃縮残渣(軽質分を含む)に集約され、浄化産出物の強熱減量は2~3%と運動場土壌並みの低い値となることがわかった。

謝辞：本研究の実施に当たって、清水建設株式会社の高木光雄氏、嶋田智郎氏、および樋口義弘氏からは放射性Cs汚染土壌の採取と実験の実施に当たって多大な協力を頂いた。技術研究所の中尾徳晶博士からは放射線防護に関する有益な助言を頂いた。帝人エコ・サイエンス株式会社の森川航平氏からは一連の実験的検討において多大な実務的な協力を受けた。なお、本研究の一部は、環境省の「平成24年度(平成23年度からの繰越分)除染技術実証事業(その5)」の一環として実施した。

ここに記して謝意を表します。

参考文献

- 1) 環境省：除染関係ガイドライン(第2版, 平成25年5月), pp.2-5~pp.2-126, 2013.
- 2) 環境省除染情報サイト：中間貯蔵施設について, http://josen.env.go.jp/soil/interim_storage_facility.html.
- 3) 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, No.76, pp.1-6, 2012.
- 4) 舟川将史, 田川明広, 奥田信康：植物が混入した放射性セシウム汚染土壌の多段階土壌洗浄処理試験, 日本原子力学会和文論文誌, Vol.11, No.4, pp.272-280, 2012.
- 5) 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, Vol.22, pp.1-8, 2012.
- 6) 田中真弓, 川端淳一, 大塚誠治, 河合達司, 小澤一喜：放射性セシウム含有土壌の原位置湿式分級洗浄・磨洗効果について, 第19回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会(CD-ROM), S6-20, pp.594-597, 2013.
- 7) 山本達生, 岩田将英, 野田兼司, 清水英樹, 芝本真尚：放射性物質により汚染された土壌の小型・簡易設備による減容化処理技術の開発, 第20回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会(CD-ROM), S3-24, pp.333-338, 2014.
- 8) 友口勝, 早澤敬一, 渡邊亮栄, 鎌田雅美：放射性セシウム含有土壌の処理について, 第19回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会(CD-ROM), S4-20, pp.384-388, 2013.
- 9) 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, No.754, pp.65-71, 2012.
- 10) 毛利光男, 土田充, 馬場直紀, 中嶋卓磨：土壌洗浄法による放射性物質汚染土壌の浄化・減容化および濃縮残渣処理の自動化, 環境放射能除染学会誌, Vol.1, No.3, pp.213-219, 2013.
- 11) 伊藤健一, 宮原英貴, 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, Vol.11, No.4, pp.255-271, 2012.
- 12) 高橋勇介, 藤井隆夫, 島長義, 石井和之, 工藤一秋, 立間徹, 藤田洋崇, 佐藤理夫, 迫田章義：汚染土壌からの放射性セシウムの除去・回収, 生産研究, Vol.66, No.4, pp.81-87, 2014.
- 13) 保高徹生, 川本徹, 駒井武：放射性セシウム含有土壌への酸抽出方法の適用性に関する基礎的検討, RADIOISOTOPES, Vol.62, No.4, pp.211-218, 2013.
- 14) 時澤孝之, 長沼政喜, 青木勝己, 長安孝明, 佐藤和彦, 山下照雄, 小林秀和, 横澤拓磨, 永井崇之, 藤田博喜, 菊池政昭, 横山裕也：土壌の原位置加熱による放射性セシウムの除去可能性の検討, 日本原子力研究開発機構 JAEA-Research (Web), No.2011-026, pp.1-74, 2011.
- 15) 大山将, 中島卓夫, 松生隆司：放射性セシウム含有土壌の加熱処理に関する基礎検討, 第19回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会(CD-ROM), S2-21, pp.176-179, 2013.
- 16) Dermont, G., Bergeron, M., Mercier, G. and Richer-Lafleche, M. : Soil washing for metal removal: A review of physical/chemical technologies and field applications, *Journal of Hazardous Materials*, Vol.152, No.1, pp. 1-31, 2008.
- 17) USEPA : Innovative site remediation technology, Soil Washing/Soil Flushing, 542-B-93-012, pp.3.1-3.35, 1993.
- 18) 環境省 除染技術検索サイト：除染技術実証事業等, <https://www2.env.go.jp/dtox/info/proof>.
- 19) 毛利光男, 馬場直紀, 土田充, 保坂幸一, 佐藤大樹, 中嶋卓磨：ログウォッシャーによる粗粒子分からの軽質

分の効果的な分離, 第 21 回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会(CD-ROM), S2-20, pp.185-190, 2015.

- 20) 毛利光男, 馬場直紀, 土田充, 中嶋卓磨: 表面吸着モデルによる土壌中の放射性 Cs 分布特性の解析, 土木学会論文集 G(環境), Vol.71, No.1, pp.26-38, 2015.
- 21) 山口紀子, 高田裕介, 林健太郎, 石川寛, 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, Vol.31, pp.75-129, 2012.

(2015. 4. 10 受付)

MASS-BALANCE ANALYSIS AND PERFORMANCE EVALUATION OF RADIOCESIUM CONTAMINATED SOIL WASHING

Mitsuo MOURI, Naoki BABA, Mitsuru TSUCHIDA and Takuma NAKAJIMA

Soil washing is seen as a volume reduction/waste minimization technology for treatment of radiocesium (radio-Cs) contaminated soils. However, little information relative to specific application and potential effectiveness of the soil washing process exists that applies to radio-Cs contaminated soils in Fukushima. The objective of this experimental study was to understand the performance and validity of soil washing for the radio-Cs contaminated soils. Soil washing performance with a trade-off between the removal efficiency of radio-Cs and the volume reduction rate of feed soils was evaluated after an examination of each radio-Cs balance at every stage of soil washing, namely wet-sieving, hydrocyclone, and scrubbing-flotation.

As a result of this study, following observations were made; 1) the removal efficiencies of cyclone system were at around 70% of radio-Cs, and the efficiencies were greatly improved to 84~87%, when the cyclone system was combined with the scrubbing-flotation system, 2) the sludge volume was slightly increased when the cyclone system was combined with the 'chemical scrubbing-flotation'. 3) 'chemical scrubbing-flotation' was useful for improving the removal efficiencies of radio-Cs as well as minimizing the sludge volume, 4) the treated water was good for reuse, because the radio-Cs was below the detectable level (< 10 Bq/kg), 5) the radio-Cs content of clean products was less than 3,000 Bq/kg as compared to the feed soils of approximate 20,000 Bq/kg, 6) the volume reduction rate of feed soils ranged from 70 to 80%, and 7) most of the organic matter in feed soils was concentrated into sludge cake.

The above results indicate that the soil washing system with the chemical scrubbing flotation makes it possible to achieve both high removal efficiency of radio-Cs and a high volume reduction rate of feed soils, and can be practically used in Fukushima for remediation of soils.