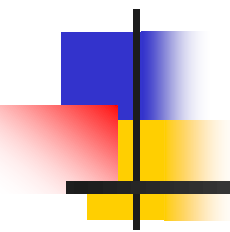


セシウムの土壌中の挙動及び構造 廃棄物処理



2014年1月19日

「日本原子力学会シンポジウム」

東京電力福島第一原子力発電所事故後の環境回復の取り組み
ー除染の現状と低線量被ばくについてー

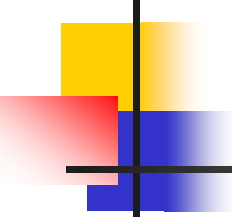
クリーンアップ分科会/(株)東芝 三倉通孝



クリーンアップ分科会

東京電力福島第一原子力発電所事故により放出された放射性物質による汚染の除去や環境修復について分析し、課題の検討と解決に向けた提言を行うことを目的として、日本原子力学会では、平成23年4月に「原子力安全」調査専門委員会の下に立ち上げ。

現在は学会理事会直結の組織として創設された「福島特別プロジェクト」の下で引き続き活動は実施中



ご紹介内容

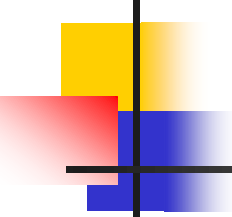
- 土壌中のセシウムの挙動及び構造
 - ・土壌への吸着現象とそのメカニズム
 - ・福島県内で採取した水田土壌の評価例
- 廃棄物処理
 - ・現状行われている除染
 - ・今後に向けた廃棄物処理

(東京電力福島第一原子力発電所事故に関する調査委員会報告書等)



土壌中のセシウムの挙動及び構造

- ・土壌への吸着現象とそのメカニズム
一般的なセシウムの土壌への吸着
土壌成分への評価例
処分評価における吸着評価例
- ・福島県内で採取した水田土壌の評価
対象水田土壌の性質
土壌の性質とセシウムの吸着



土壌中のセシウムの挙動及び構造

・土壌への吸着現象とそのメカニズム

- セシウムの一般的性質

- ・アルカリ金属(ナトリウム、カリウムと同じ属)

水に溶けて陽イオンに(Cs^+)

- ・代表的放射性セシウム

Cs-134(半減期2.06年) Cs-135(半減期2百万年)

Cs-136(半減期13日)

Cs-137(半減期30年)

- ・土壌への吸着

土壌の負電荷に吸着

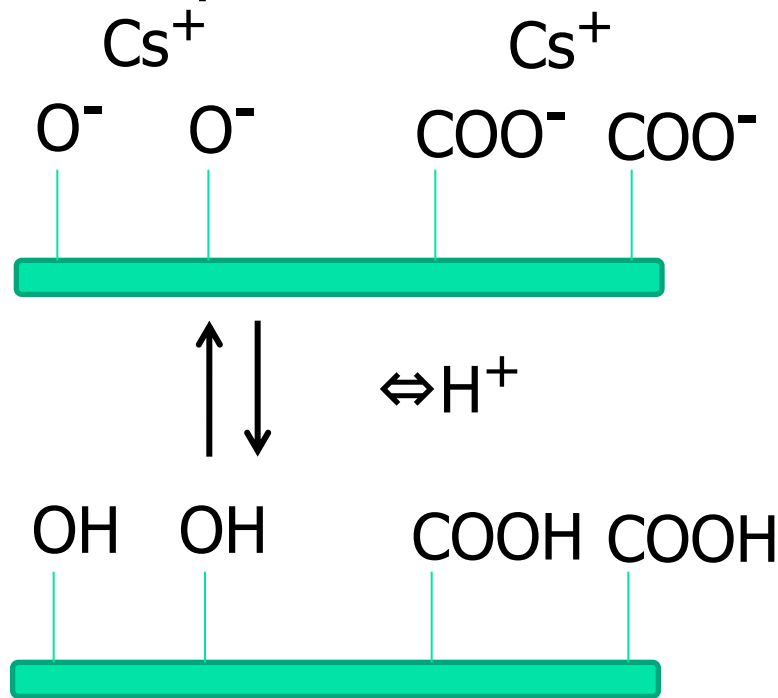
土壌のpHにより現れる(比較的弱い吸着)

粘土鉱物構造による(比較的強い吸着)

土壌中のセシウムの挙動及び構造

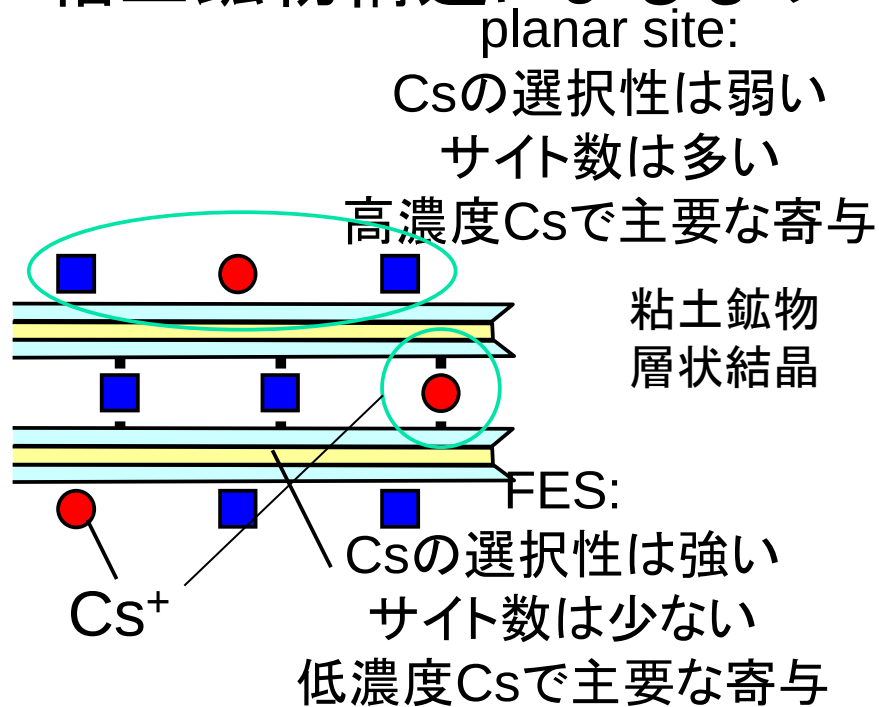
・土壌への吸着現象とそのメカニズム

土壌のpHにより現れるもの



フェリハイドライド、腐食物質

粘土鉱物構造によるもの



風化雲母、バーミュキュライト、イライト
2:1型層状ケイ酸塩鉱物

土壌への吸着は種類で異なる

・土壌への吸着現象とそのメカニズム

松宮ら/東芝での実土壌環境評価例*

	対象粘土物質	固相中の濃度	吸着に用いた液相の濃度
Qin et al.	バーミキュライト		8400mg-Cs/L
Bostick et al.	バーミキュライト	27000ppm	
Nakano and Kawamura	モンモリロナイト	120000ppm	
松宮ら(東芝)	バーミキュライト、イライト	300ppm	50mg-Cs/L
実土壌		数ppm～ppb	

Csを吸着させ、シュウ酸煮沸処理前後のEXAFSスペクトルを測定

純水で洗浄後、湿潤状態で測定

SPring-8 BL14B2 (産業利用ビームラインII)

Cs K-吸収端(35.949keV), 蛍光法で測定

後方散乱強度、位相シフトはXAFS理論計算ソフトFEFF6で計算しフィッティング

実土壌現象を見るように、測定可能な限りの低濃度で実施

*: 松宮ら, A37「2:1型粘土鉱物に収着した溶離困難なセシウムのEXAFS測定」

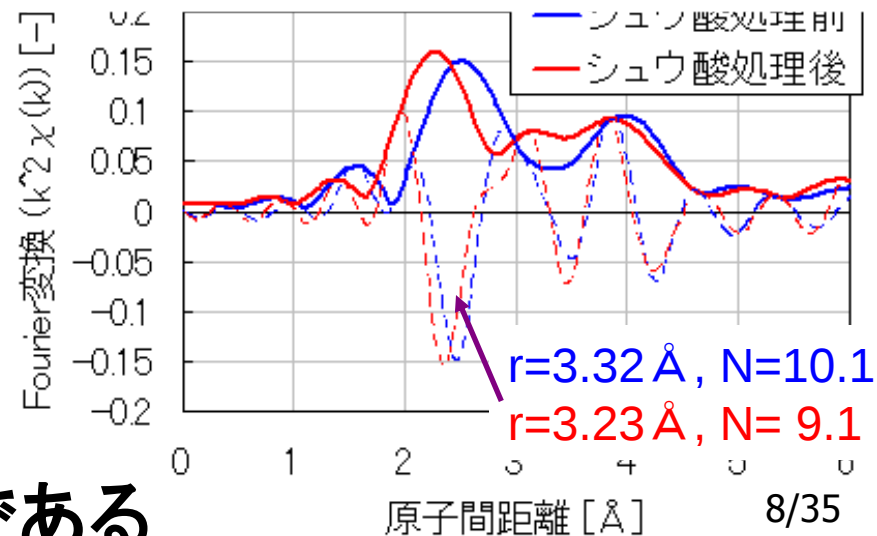
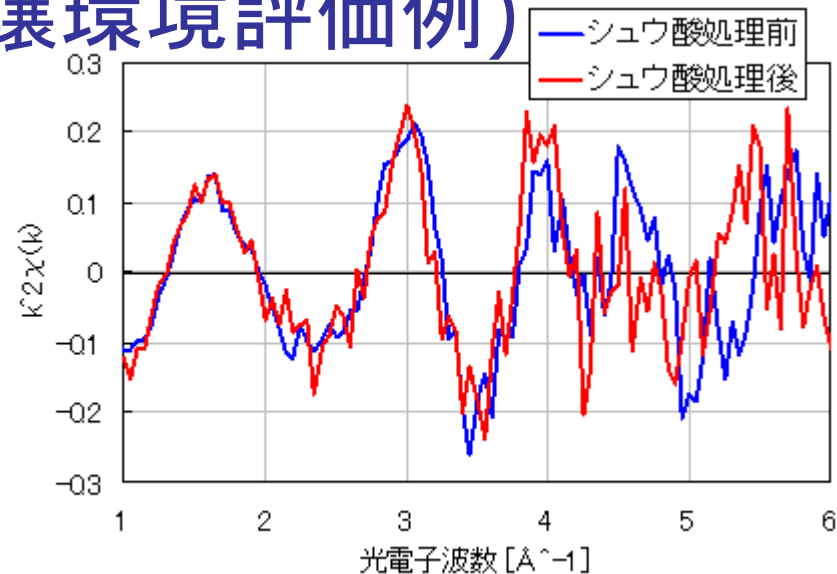
日本原子力学会 2013年春の年会

・土壌への吸着現象とそのメカニズム (松宮ら/東芝での実土壌環境評価例)

- ・ シュウ酸*処理前後でEXAFSスペクトルに変化あり
 - Cs吸着形態がシュウ酸処理により変化している可能性あり
- ・ シュウ酸処理後、イライトのスペクトルに類似

固着しているCsはイライト様の吸着形態であると考えられる

* シュウ酸処理:粘土層中のアルミニウムを溶出させる処理



粘土中でも吸着の状態は様々である

・土壌への吸着現象とそのメカニズム

処分施設性能評価用吸着データ

放射性廃棄物処分施設の性能評価を行う際に土壌のセシウムの吸着性能(分配係数:Kd)で評価している。

表 海外で設定されている分配係数の設定値例

出典	農耕土壌 (ml/g)	帯水層土壌、河川岸土 壌、湖沼岸土壌、海岸 土壌(ml/g)
IAEA TRS No.364砂		270
IAEA TRS No.364有機土		270
IAEA TD-401		300
ORNL-5786		1000
IAEA TRS No.427 All		1200
IAEA TRS No.427 砂/鉱物		530
IAEA TRS No.427 有機土/粘土		270

分配係数: 液相と固相(土壌)の濃度の比率、大きければ吸着しやすいことを示す。

処分研究での評価でもCsは土壌に吸着しやすい

・土壌への吸着現象とそのメカニズム

処分施設性能評価用吸着データ

日本原燃(株) 六ヶ所低レベル放射性廃棄物埋設センター線量当量計算に用いる共通パラメータのうち、土壌関連のCsの分配係数設定値

各種バリア材設定値	Cs分配係数(ml/g)
覆土	1000
ベントナイト混合土	100
鷹架層	1000
設定の際に参考とした試験データ	
土壌	140-11000
凝灰岩	300-13000
砂岩	300-7300

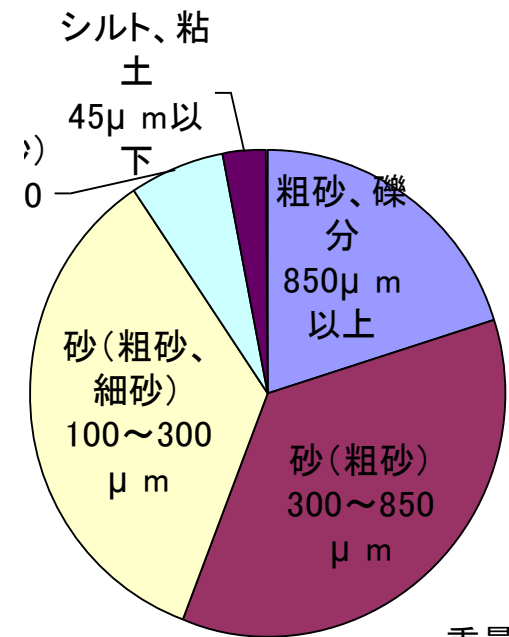
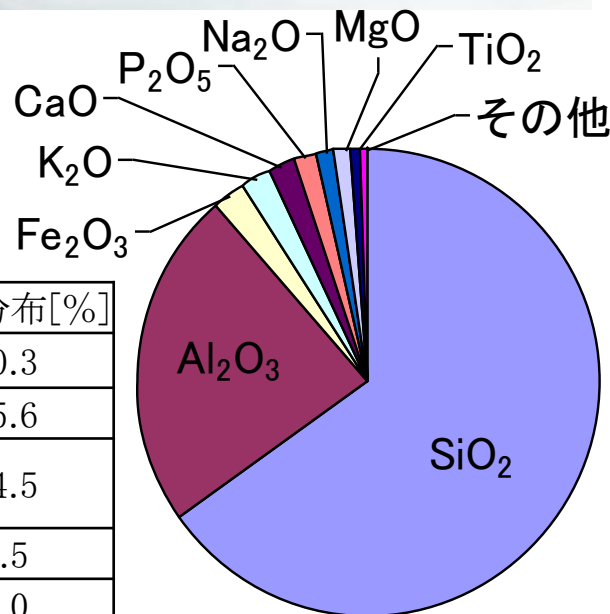
日本原燃(株) 六ヶ所低レベル放射性廃棄物埋設センター 廃棄物埋設事業変更許可申請書 平成9年1月 より線量当量計算に用いる共通パラメータのうち、土壌関連のCsの分配係数設定値から引用

現行施設でも土壌へはCs吸着しやすい

・土壌への吸着現象とそのメカニズム

福島県内で採取した水田土壌の評価例

■ 福島県 1Fサイト北西部浜通りの水田土壌試料の性状



重量分布[%]

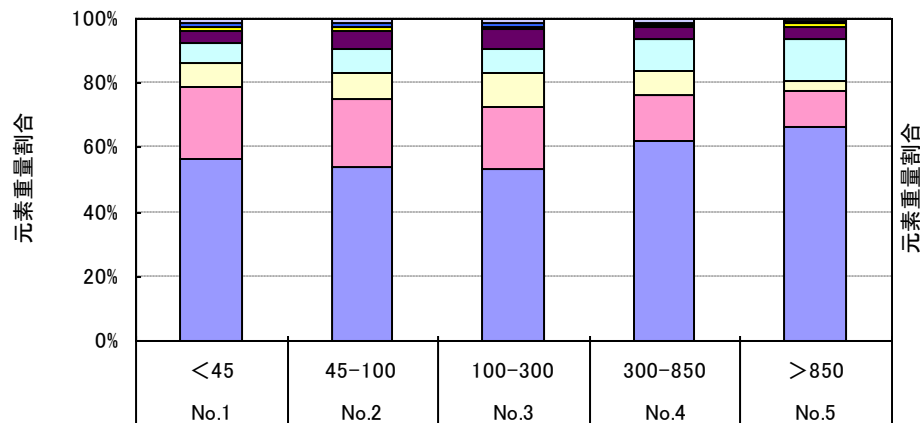
粒径	分類	重量分布[%]
850μm以上	粗砂、礫分	20.3
300~850μm	砂(粗砂)	35.6
100~300μm	砂(粗砂、細砂)	34.5
45~100μm	砂(細砂)	6.5
45μm以下	シルト、粘土	3.0



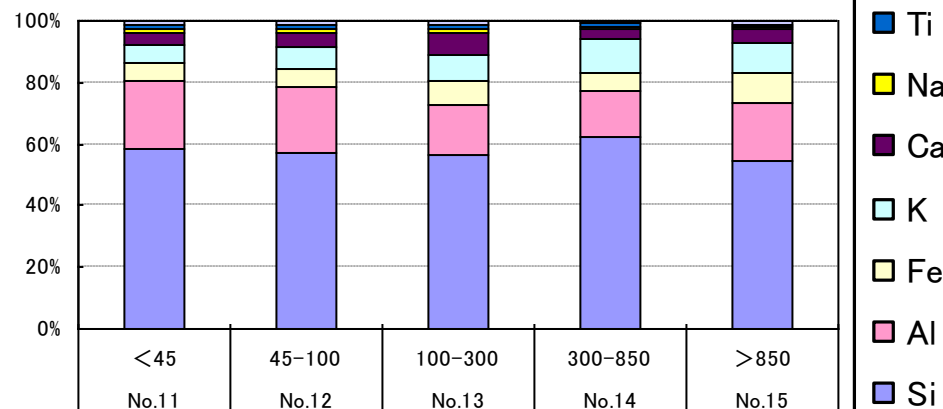
・土壌への吸着現象とそのメカニズム

福島県内で採取した水田土壌の評価例

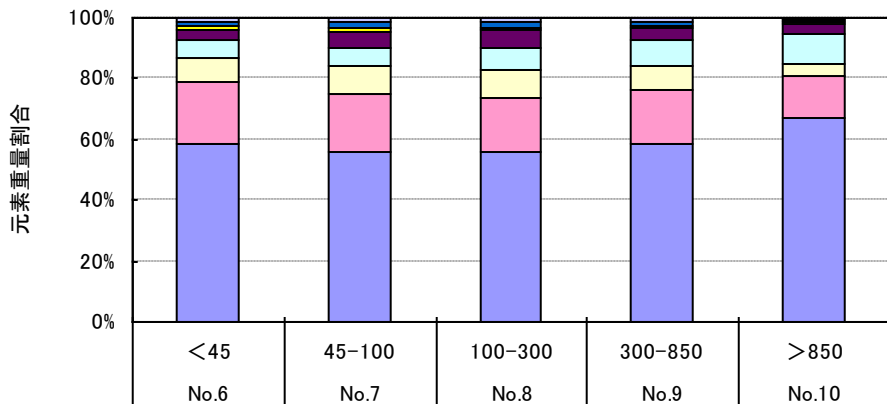
荒起こし前



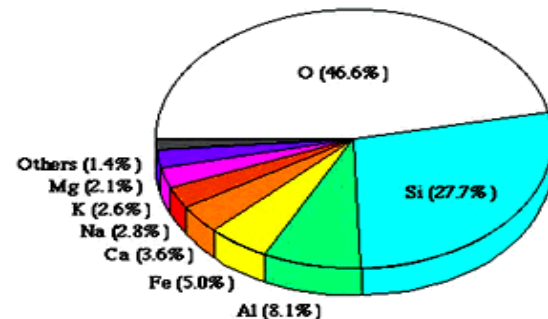
代掻き後



荒起こし後



(参考)地殻を構成する主要元素の存在割合



- 水田土壌の主成分はSiとAlであり、12/35
その他FeやK、Ca等が確認された。

・土壌への吸着現象とそのメカニズム

福島県内で採取した水田土壌の評価例



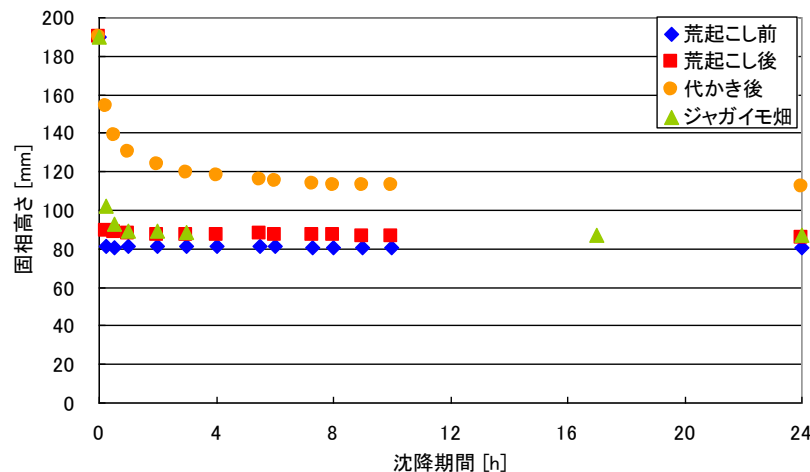
(左から粒径範囲が45 μm 以下、45~100 μm 、100~300 μm 、300~850 μm 、850 μm 以上)

・土壌への吸着現象とそのメカニズム

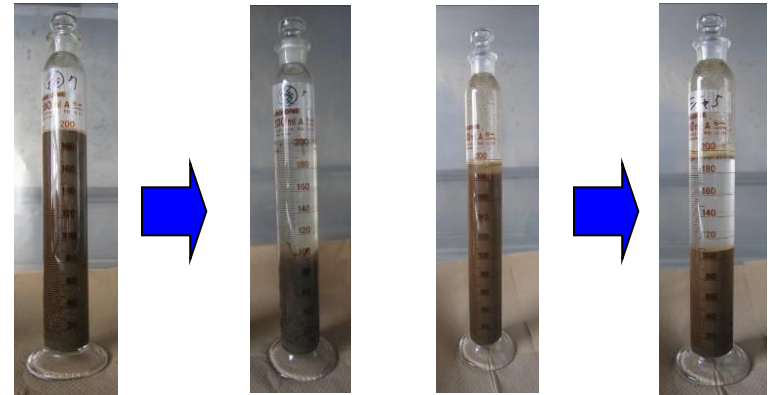
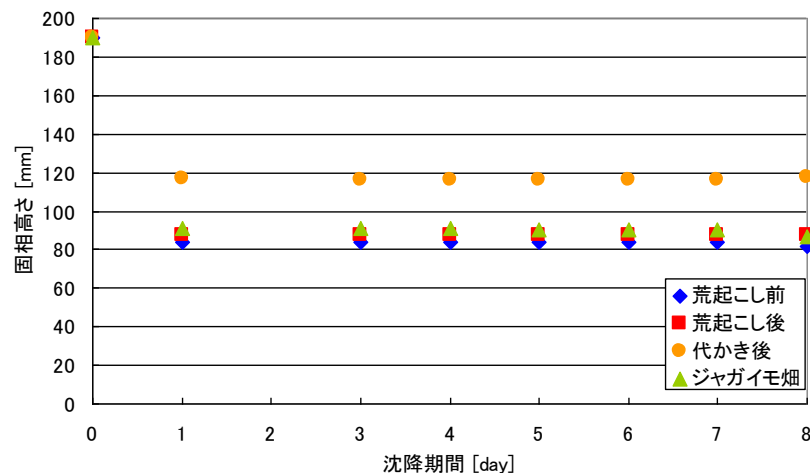
福島県内で採取した水田土壌の評価例

沈降速度測定結果

沈降速度測定結果(24 h)



沈降速度測定結果(8 d)



荒起こし後試料
(左: 0 min、右: 8 day)

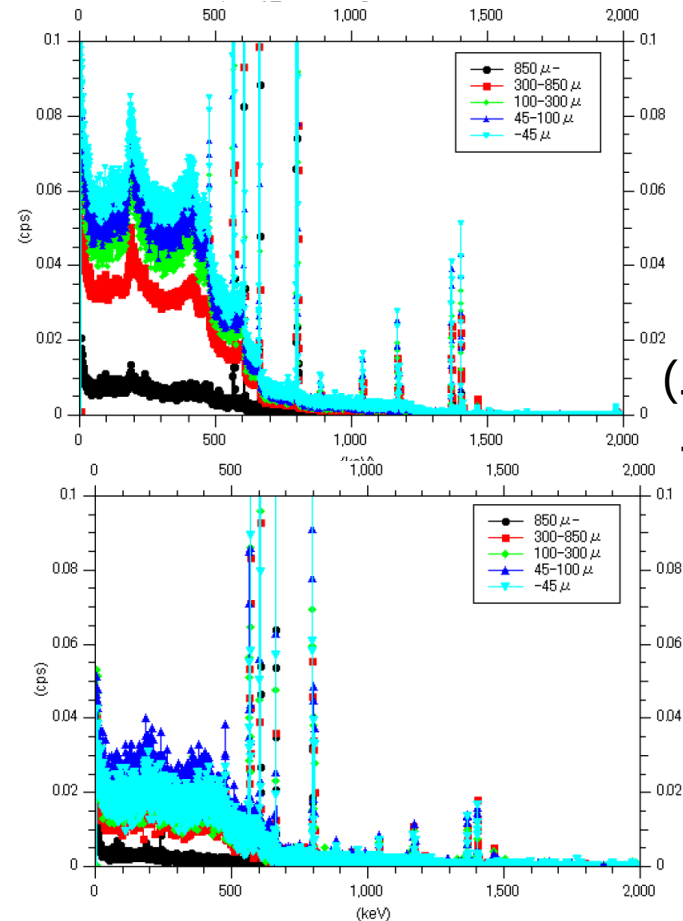
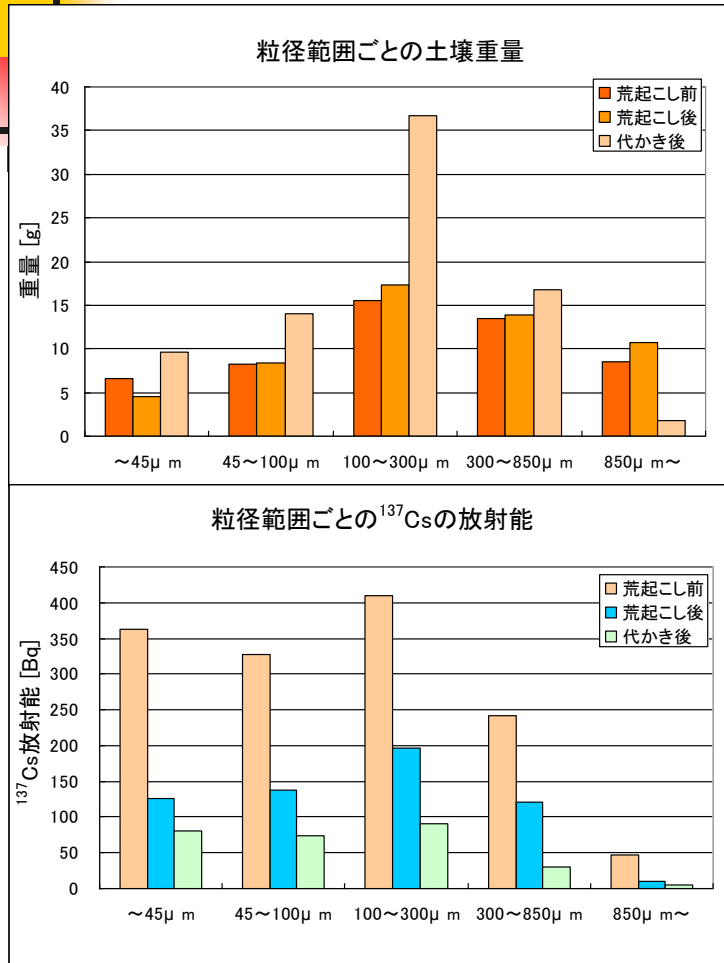
ジャガイモ畑試料
(左: 0 min、右: 15 min)

- 荒起こし前後の土壌は1 h程度で速やかに沈降したが、8 dまで水中の濁りが残存た。
- 代かき後の土壌は、緩やかに沈降し、8 h程度で大部分が沈降
- ジャガイモ畑の土壌は1 h程度で速やかに沈降し、水中の濁りも0.25 h程度でほぼ消失

・土壌への吸着現象とそのメカニズム

福島県内で採取した水田土壌の評価例

分級試料のガンマ線測定結果荒起こし前後代かき後土壌)

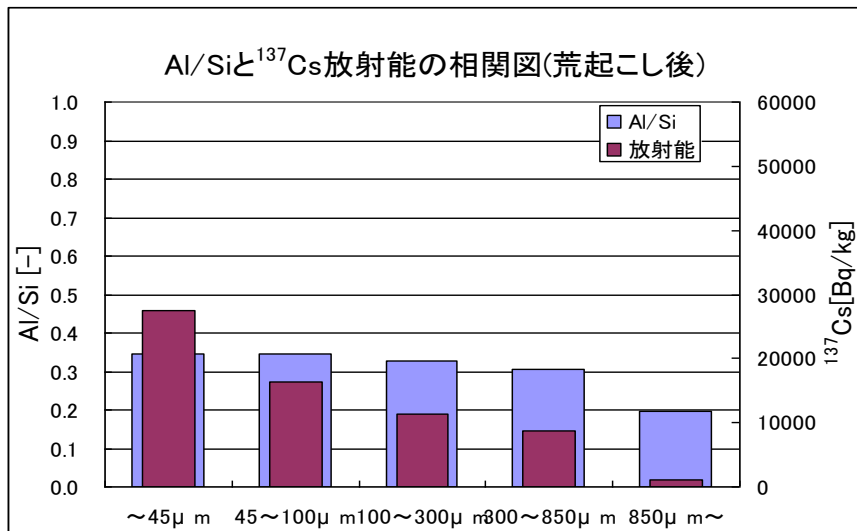
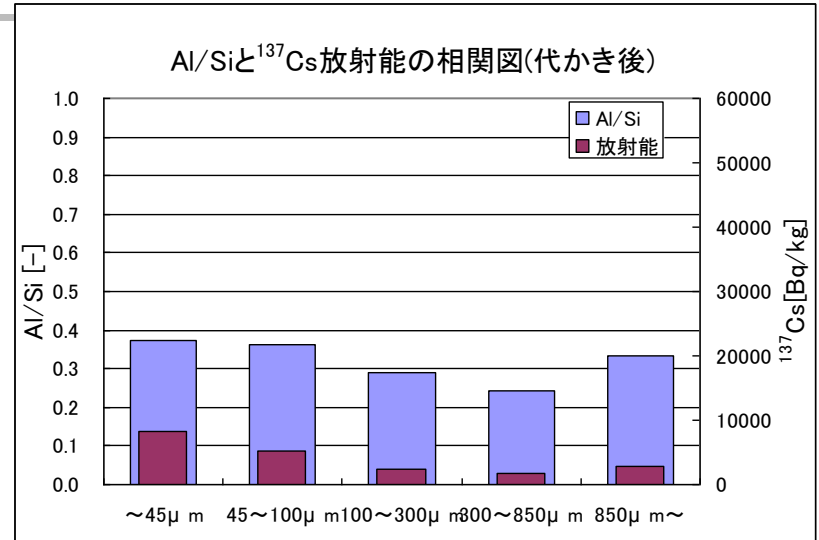
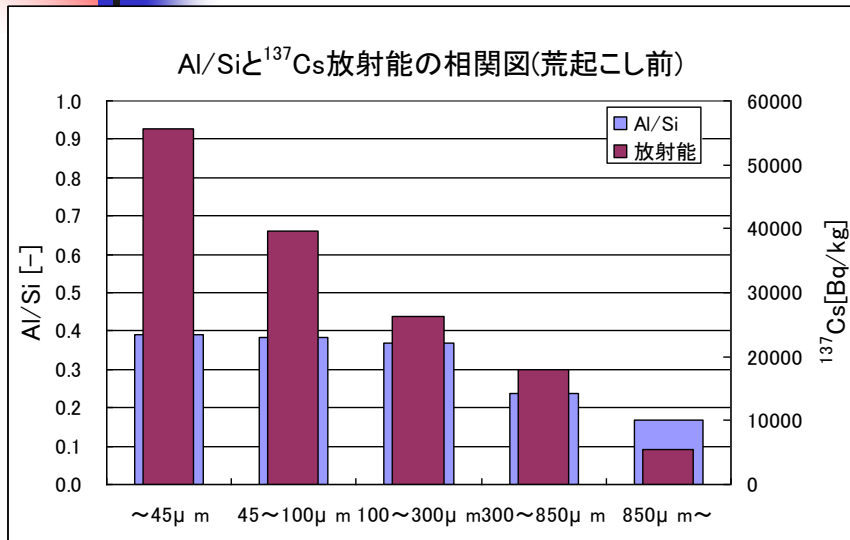


- 荒起こし前後および代かき後の土壌いずれでも、粒径100~300 μmの範囲の粒子量が最も多く、放射能も大きいことを確認
- 荒起こし前後および代かき後の土壌では、100 μm以下の粒子に50%程^{15/35}度のCsが吸着していることを確認

・土壌への吸着現象とそのメカニズム

福島県内で採取した水田土壌の評価例

Al/Siと放射能濃度の相関

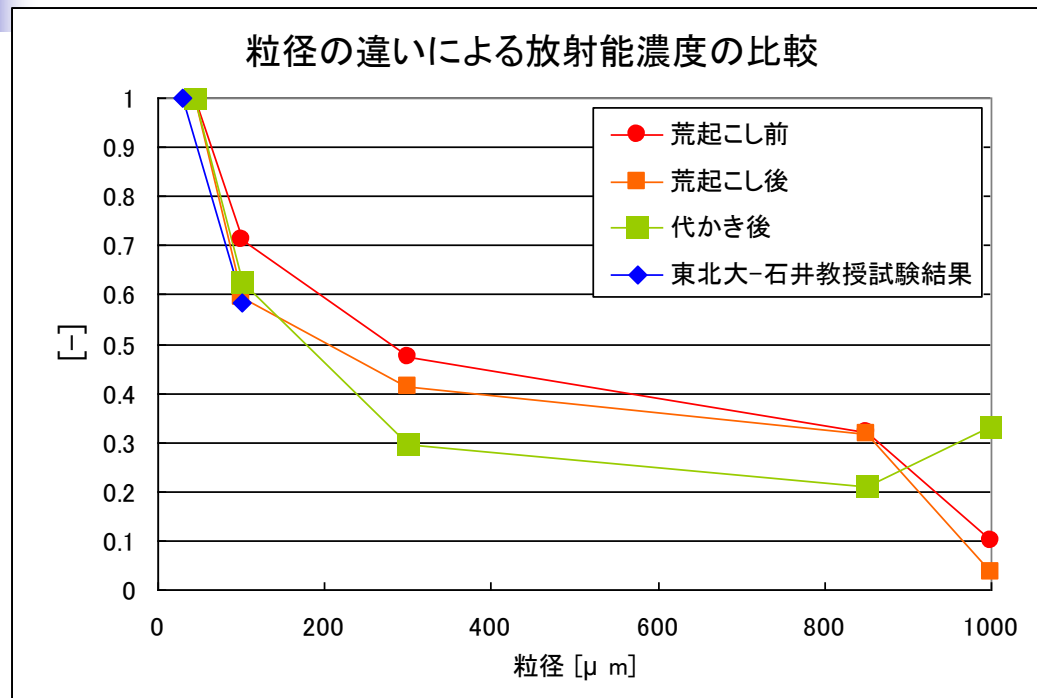


- ^{137}Cs の放射能は粒径が小さいほど大きい傾向を示したが、Al/Siは粒径300 μm 以下では有意な差が確認されなかった。

・土壌への吸着現象とそのメカニズム

福島県内で採取した水田土壌の評価例

校庭の土結果との比較



粒径45 μ m以下の粒子の放射能(Bq/g)に対する、各粒径範囲の試料の放射能(Bq/g)

(東北大石井先生試料は、粒径30 μ mの試料に対して)

- 水田土壌(弊社試験結果)、校庭の土(東北大試験結果)のいずれでも、単位質量当たりの放射能は最小粒径範囲の粒子が大きい
- 水田土壌では校庭の土の場合よりも大きな粒子の土壌にもセシウムの吸着が見られる



土壌中のセシウムの挙動及び構造

- ・土壌への吸着現象とそのメカニズム
土壌の中で特に粘土層へのセシウムの吸着は強固である。
セシウムは移動せず、表層にほとんどが存在。
- ・福島県内で採取した水田土壌の評価例
セシウムは粘土層にほとんど存在し、粒径は小さいものが多い。



廃棄物処理

- 現状行われている除染
法的な考え方
除染後の廃棄物
- 今後に向けた廃棄物処理
検討されている処理方法と処理例

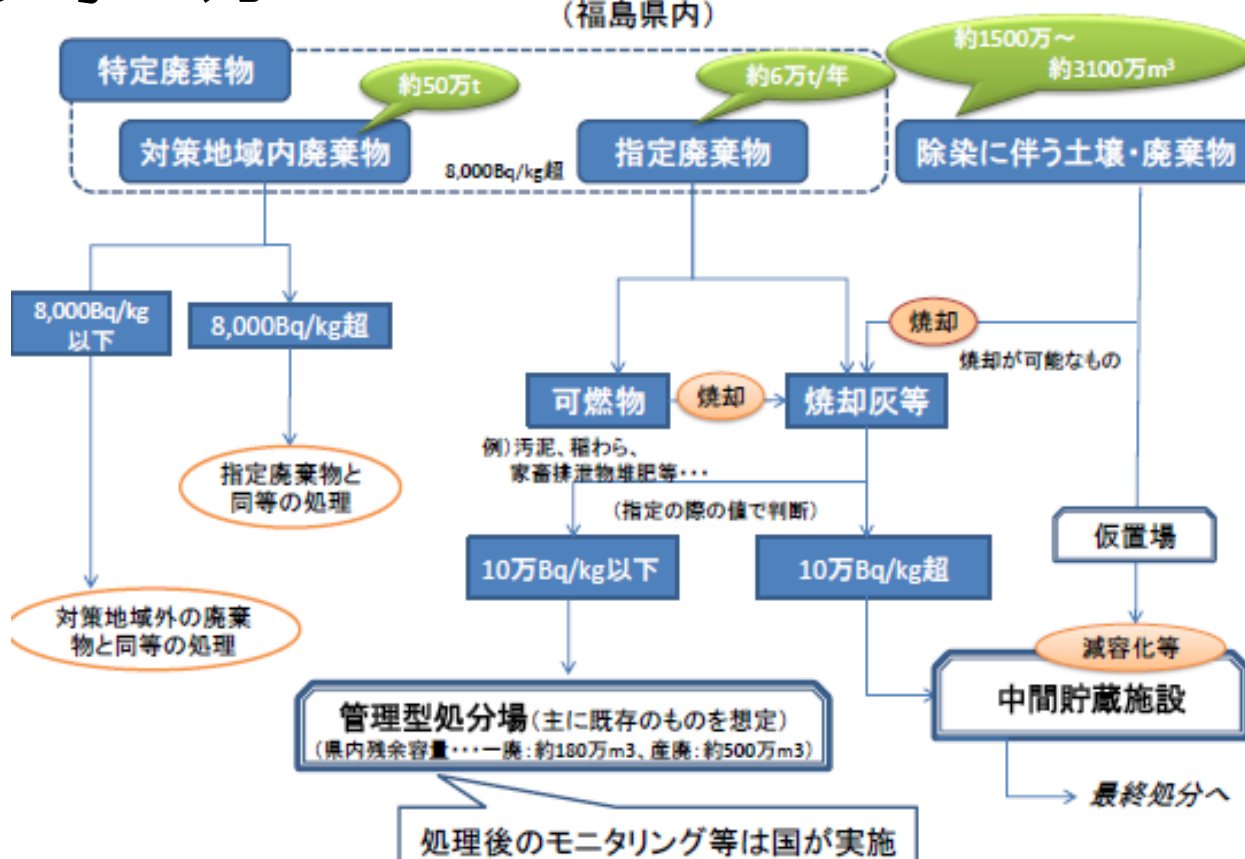
廃棄物処理

・現状行われている除染

法的な考え方

特定廃棄物及び除染に伴う廃棄物の処理フロー
(福島県内)

図2



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、環境省2011年10月29日」

(http://www.env.go.jp/iishin/rmp/attach/roadmap111029_a-0.pdf)

廃棄物処理

・現状行われている除染

法的な考え方

【検討フロー】

1. 前提条件の整理
(運搬量、車両・荷姿、出発地、仕向地 他)

2. 運搬候補ルートの特徴抽出
社会影響面：市街地・観光地の極力回避等
技術面：通行不能、通行規制の状況、道路構造 等
安全面：事故リスクの高い箇所回避

3. 運搬候補ルートの選定

4. 中間貯蔵施設への運搬の考え方に関する検討
・交通シミュレーションの実施
交通への影響（混雑・渋滞） その他
放射線安全の確保（沿道住民、一般車両）

5. 中間貯蔵施設への運搬の考え方の提示※
・運搬ルート、運搬可能量、搬入の優先順位付け等の
目安
・課題の抽出、対策案の整理 他

【調査・情報等】

除去土壌等量想定

仮置場位置 等

道路状況調査

交通量調査

ルート再検証

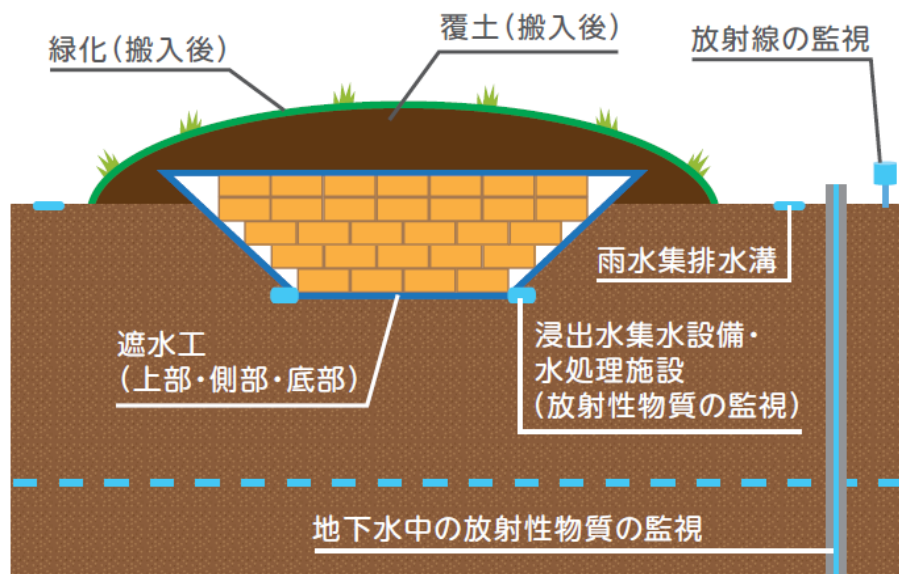
※除去土壌量、仮置場情報の更新や関係箇所との協議・検討結果等に基づき、随時改訂していく。

廃棄物処理

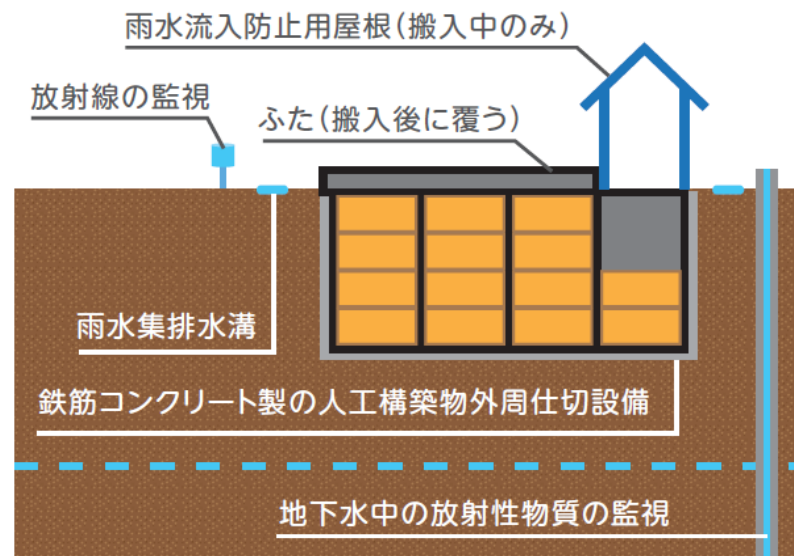
・現状行われている除染

除染後の廃棄物

非溶出性対応型施設の例
(土をかぶせる)



溶出性対応型施設の例
(コンクリートでおおう)



中間貯蔵施設環境保全対策検討会(第1回), 資料4「中間貯蔵施設の概要」(環境省 平成25年6月28日)

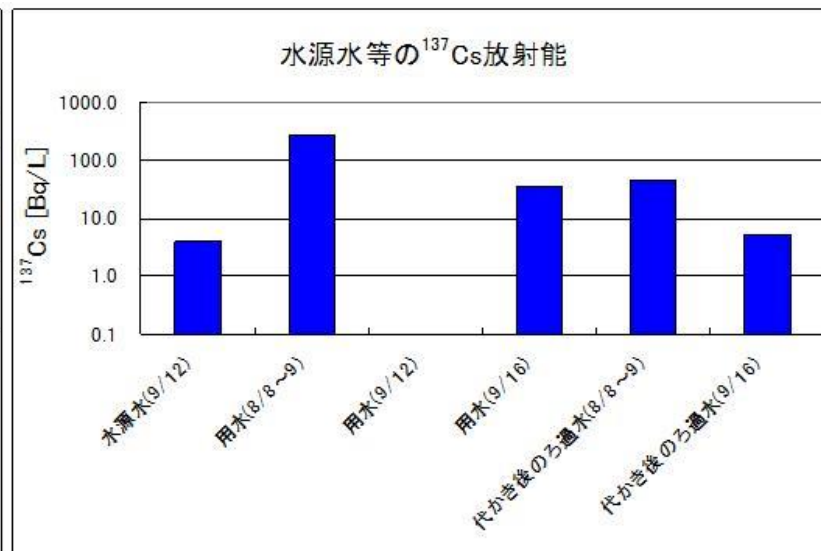
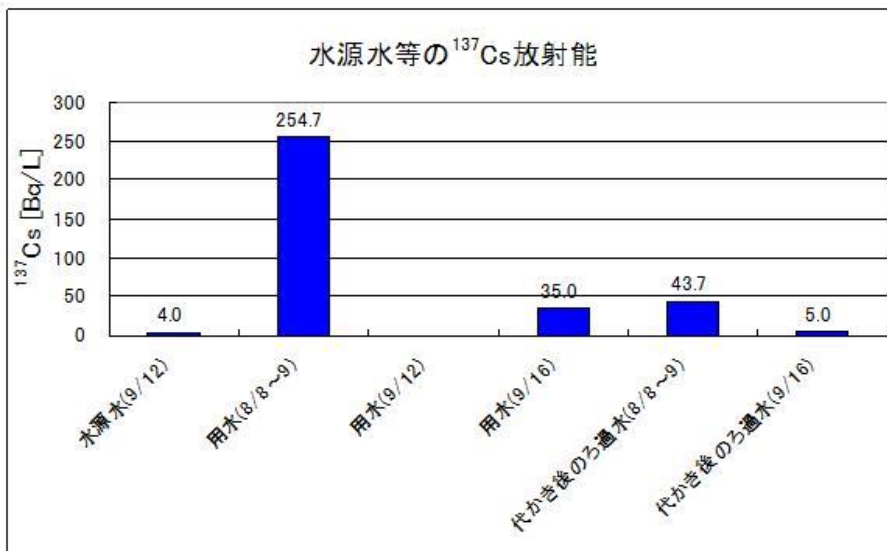
http://josen.env.go.jp/area/processing/pdf/environmental_protection_01.pdf

廃棄物処理

・土壌から水への移行

(クリーンアップ分科会現地試験)

福島県水田引用水(水田荒かき時)



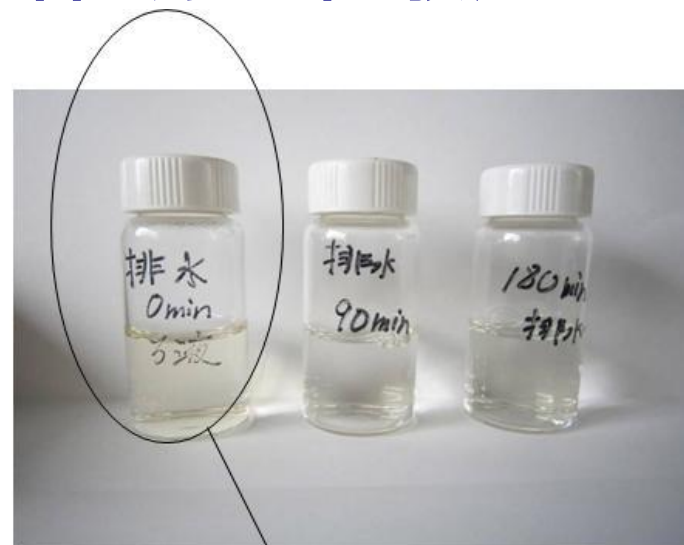
- 対象の水田の水源(9/16)からも ^{137}Cs が検出されたが、4.0 Bq/L程度であった。
- 水田用水(8/8~9) の ^{137}Cs 放射能は、250 Bq/Lであった。
- 水田用水(9/12)については、 ^{137}Cs は検出されるものの10,000secの測定時間では、定量値を得られない低い値であった。

廃棄物処理

・土壌から水への移行

(クリーンアップ分科会現地試験)

水



土壌分離後排水



土壌分離後排水

(ϕ 5nmフィルタでの遠心ろ過後)

廃棄物処理

・土壌から水への移行



サンプリングポイントAで
（プル名：初期水）

水開始、サンプリングポイントBで
を採取（サンプル名：0min）

サンプリングポイントBで



サンプリングポイントB

試験エリアの概要

②

③

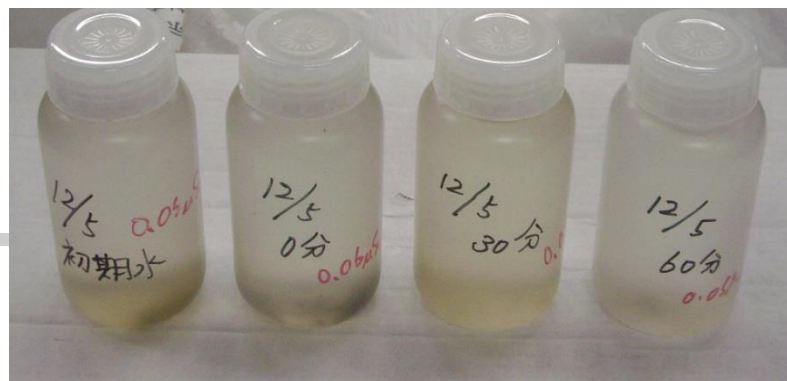
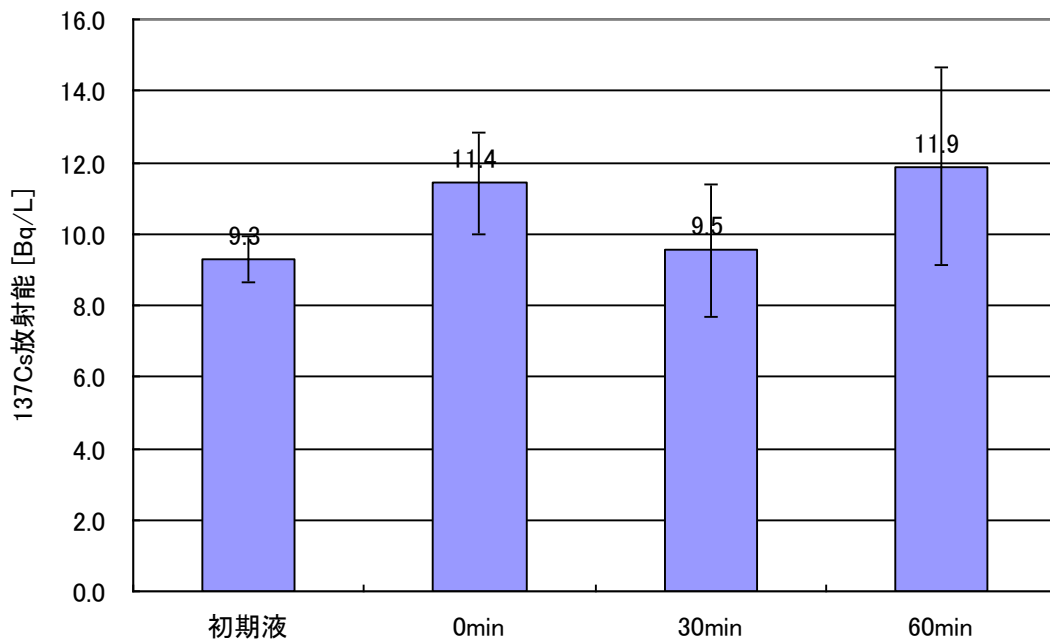
廃棄物処理

・土壌から水への移行

(クリーンアップ分科会現地試験)

サンプル名	測定試料量/ml	測定時間/sec	Cs-137濃度/Bq dm ⁻³
初期液	10	334481	9.3E+00 ± 6.5E-01
0min	10	75484	1.1E+01 ± 1.4E+00
30min	10	62469	9.5E+00 ± 1.9E+00
60min	10	36505	1.2E+01 ± 2.8E+00

20111205に南相馬にて採取したサンプルの¹³⁷Cs放射能

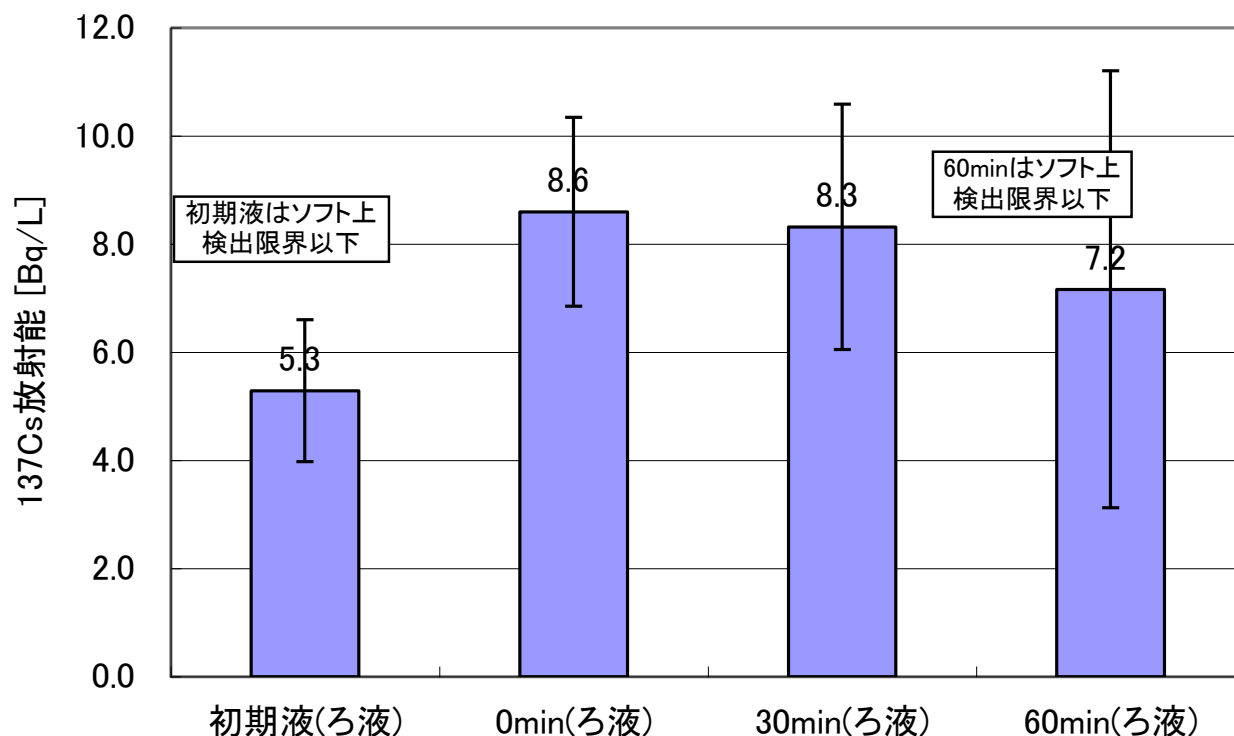


攪拌試料であるため、固相の混入が考えられる。
0.45μmでのろ過後の測定を追加

廃棄物処理

・土壌から水への移行

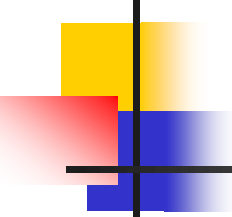
(クリーンアップ分科会現地試験)



ろ液は初期液に比較し、用水路に流した溶液の方がややCs-137濃度は高い。
前ページの30分後の濃度は初期液と同等のように見えるが、固相の混入量が低いいためか

- 土壌からはほとんど接触水へのセシウム溶出は見られない。
- 水をろ過することで溶液からの放射性Csは除去可能。コロイドを取り除けば検出下限値以下濃度に低減可能

廃棄物処理

- 
- ・土壌から水への移行
 - ・今後に向けた廃棄物処理
-

- ・現在の除染で発生している汚染土壌は仮置場・中間貯蔵施設で保管されるが、雨水などと接触してもほとんど水へは移行しない。(非溶出性)
- ・除染作業の進展で多量の汚染土壌の発生が考えられるため、合理的な処分には減容が重要な課題となる。

廃棄物処理

・今後に向けた廃棄物処理

平成23年度 除染技術実証試験事業一覧(内閣府・JAEA)

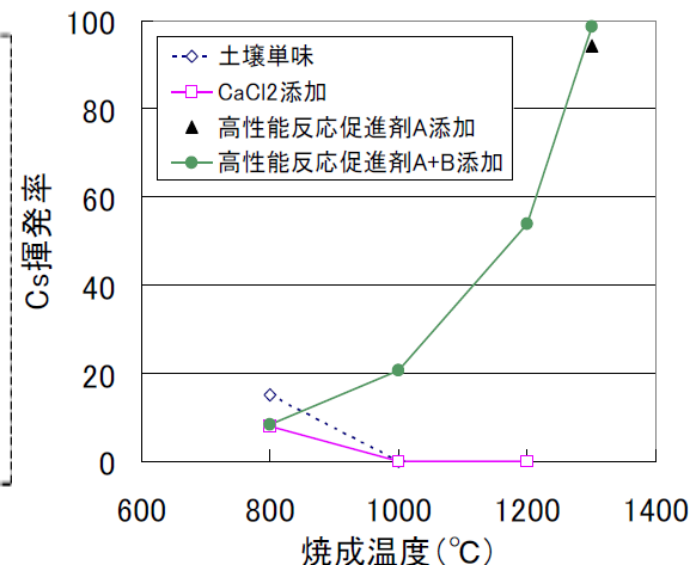
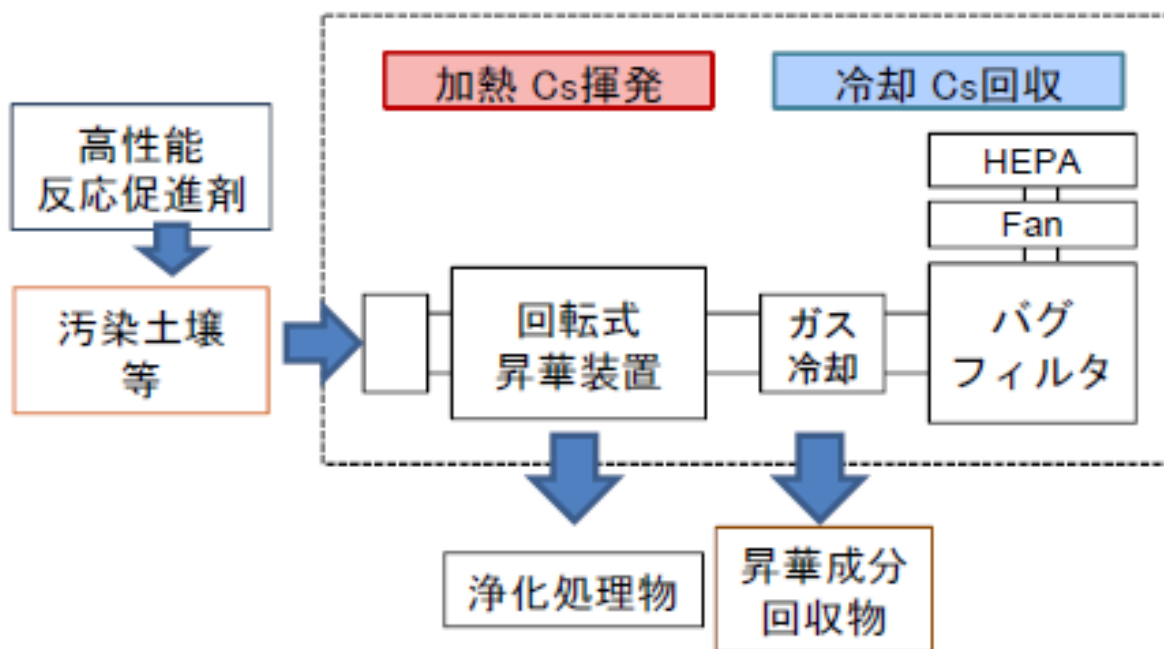
No.	対象物	手法	特徴	実施者	除染率 %	減量率 %	除染効果	設備投資	除去物量	コスト	評価
1	土壌	熱処理	回転炉により昇華しセシウム分離	太平洋セメント(株)	99	98~99	高	必要	極少	高	コスト低減放射性Csの高濃縮除去物の取扱い
2		分級	特殊ポンプと篩機による小型分級システム	ポト製薬(株)	97.8	90	中	既設有	少	中	特殊ポンプ、篩機の除染データの蓄積が必要
3			ボールミル・ドライウォッシャー	(株)竹中工務店	87.8~91.7	48.7~60	中	必要	中	低	80%程度の除染効果あり、除染現場での適用性あり
4			摩砕洗浄機	(株)能谷組	89.0/99.0	91.9/0.6	中	必要	中	低	高濃度汚染土壌の場合、減量率低い
5			分級後、700℃で加熱	(株)日立プラントテクノロジー	58.8	12	低	必要	中	低	分級による除染効果あり熱処理は効果なし
6			摩砕洗浄機、キャビテーション洗浄	(株)鴻池組	74.7~91.5	66.7~75.6	中	必要	中	低	80%程度の除染効果あり、除染現場での適用性あり
7			高圧ジェット水流、マイクロバブル洗浄・分離	佐藤工業(株)	85.7	65	中	必要	中	中	80%程度の除染効果あり、除染現場での適用性あり
8		化学処理	シュウ酸によるCs溶解	(株)東芝	77~93	95	中	既設有	極少	高	コスト低減
9	下水汚泥	溶出	汚泥可溶化剤を使用してCsを溶出し、特殊な吸着材で吸着回収する。	新日鉄エンジニアリング(株)	—	50	低	必要	中	評価不能	溶出効果のデータ蓄積が必要
10	公園・道路・建物	切削・剥離	切削：吸塵式サンダー 剥離：ストリップペイント	志賀塗装(株)	50	—	中	不要	少	低	50%程度の除染効果あり、即適用可
11		特殊水洗浄	チノバブル水	京都大学	78	—	低	必要	少	高	水道水と同程度の除染効果
12			高濃度オゾン水	ネパース(株)	73	—	低	必要	少	高	高圧水洗浄と同程度作業者の安全対策必要
13		高圧洗浄	超高圧水洗	(株)ネテック	90以上	—	高	既設有	少	中	様々な舗装面で90%以上の除染効果、即適用可
14	瓦礫	研削・剥離	ウェットブラスト	マコー(株)	60~70	—	中	既設有	少	中	様々な舗装面で80%以上の除染効果、即適用可
15		洗浄	「廃棄物洗浄機」および「摩砕洗浄機」を使用して洗浄	戸田建設(株)	26~77	—	中	必要	少	中	研磨による除去物減少のための最適化必要
16			ドライアイスを利用した乾式方法によって除染	環テックス(株)	30.8	—	低	必要	中	中	除染効果低いが水処理量削減が可
17	植物・牛糞減容	堆肥化	高温好気堆肥菌システム	(独)宇宙航空研究開発機構	—	50	—	必要	評価不能	評価不能	堆肥化のデータ蓄積が必要
18			有機物を発酵分解により減容化	日本シオ(株)	—	82以上	—	必要	中	中	春夏植物でのデータ蓄積が必要
19	水	捕集	ゼオライトブロック	前田建設工業(株)	46.7	—	低	必要	中	中	ブロックの最適化が必要
20		吸着・凝集	フェロシアン化	東京工業大学	高圧：45 超高圧：90	—	高	既設有	少	中	シアン化物処理が課題だが、即適用可
21		固化剥離	セメント塗布	大成建設(株)	84	—	低	不要	多	高	ブラシ水洗と同程度の除去効果コスト低減
22	森林・木材	洗浄	樹皮(パーク)洗浄、小型焼却炉	郡山チップ工業(株)	39~45	95.4~96.4	中	既設有	少	中	パークの洗浄除染、焼却減容を実証し即適用可
23			樹皮(丸太)高圧水洗浄 汚染水を吸着剤(ネオナイト)で処理	(株)村付	70~96	—	中	既設有	少	低	木材の種類のデータ蓄積が必要水処理即適用可
24		間伐有	森林内の間伐量等	福島県林業研究センター	針葉樹林：30% 広葉樹林：40%	—	— (知見を得る試験のため)				森林除染における放射線等の基礎データを取得
25		間伐無	①森林除染作業の効率化 ②放射性物質汚染土を用いたセメント固化物の土工材料としての利用 ③アスファルト舗装道路の切削除去に際して発生する放射性廃棄物の減容化	(株)大林組	—	③減容率 89.6	—	既設有	—	中	土工材料、アスファルト除去試験では効率化必要

※除染効果、設備投資、除去物、コスト、評価については、同分野の技術の相対評価
※今後、技術の進展等により評価は変わり得る

廃棄物処理

・今後に向けた廃棄物処理

土壌除染例(高温処理)



廃棄物処理

・今後に向けた廃棄物処理

土壌除染例(分級＋表面研磨)

汚染土壌



田んぼ、畑等から
試料土壌を採取。



乾燥



解砕、分級に弊害を
及ぼさない様、水分を
除去する。



一次解砕



二次解砕での負荷を
低減させるため、
最大粒径を小さくする。

二次解砕&研磨+分級



細粒分の解砕及び、
粗粒子の表面研磨を
施すことにより、
細粒側に放射性物質を
集め分級する。



分級後の**細粒分**+表皮
(放射能レベル高)

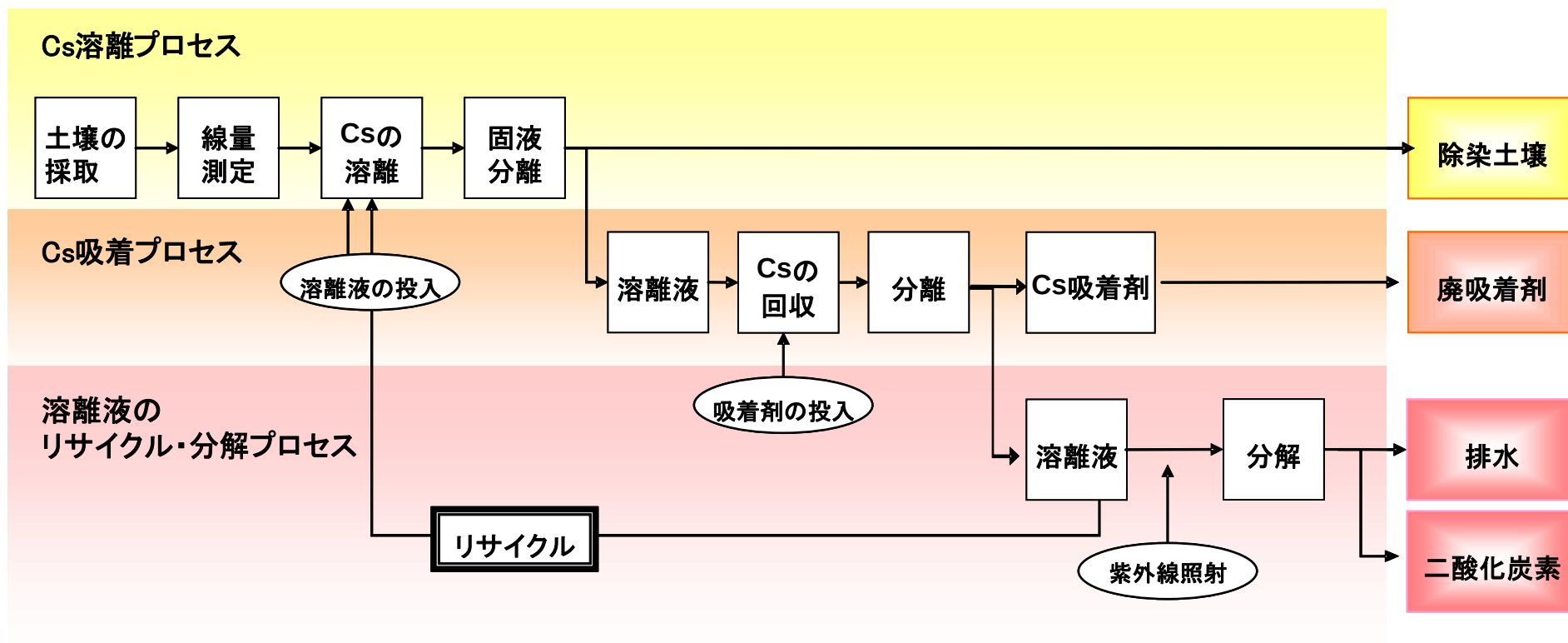


分級後の**粗粒分**+核粒子
(放射性レベル低)

廃棄物処理

・今後に向けた廃棄物処理

土壤除染例(化学的除染)



廃棄物処理

・今後に向けた廃棄物処理

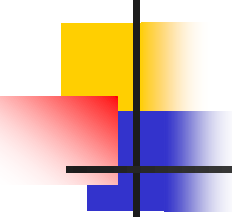
土壌除染例(化学的除染)



初期
繰返
溶離
廃液

g

下



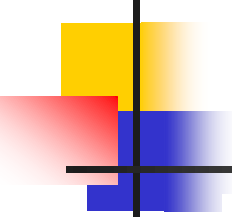
まとめ

■ 土壌中のセシウムの挙動及び構造

- ・土壌のセシウムは粘土層に強固に吸着し、福島においてもその傾向は変わらない。
- ・セシウムは地中深く浸透しないが、セシウムを吸着した粒径の小さい土壌は移動する可能性がある。

■ 廃棄物処理

- ・現状行われている土壌除染は剥ぎ取りが主流で仮置き場などでの安全性は確保できている。
- ・今後合理的な最終処分にはモニタリングと減容が必要になると考えられる。



Fight!
Fukushima!



速やかに
効果的除染が進む
ことを願って

ご清聴ありがとうございました