

放射性セシウムの土壌等に対する 吸着効果

(独) 国立環境研究所
資源循環・廃棄物研究センター

放射性セシウムの吸着試験 (第2報)

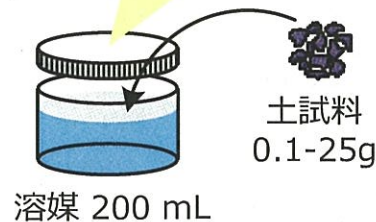
1. 溶媒

- ✓ 飛灰溶出液
 - ・ $^{134}\text{Cs} = 356 \text{ Bq/L}$, $^{137}\text{Cs} = 407 \text{ Bq/L}$
 - ・ $\text{pH} = 12.1$, $\text{EC} = 2,100 \text{ mS/m}$
- ✓ 飛灰溶出液に塩酸を添加したもの
 - ・ $^{134}\text{Cs} = 388 \text{ Bq/L}$, $^{137}\text{Cs} = 398 \text{ Bq/L}$
 - ・ $\text{pH} = 6.9$, $\text{EC} = 1,920 \text{ mS/m}$

初期の溶媒条件は一定にし、
投入する試料量を変化させ、
各水準での分配比を評価する。

2. 吸着材

- ✓ 珪砂5号
- ✓ 埼玉土壌
- ✓ 茨城県真砂土
- ✓ ベントナイト
- ✓ 粉末ゼオライト
- ✓ 顆粒ゼオライト




$$\text{吸着量 (Bq/kg)} = \left[\text{初期濃度 (Bq/L)} - \text{平衡濃度 (Bq/L)} \right] \times \text{液固比 (L/kg)}$$

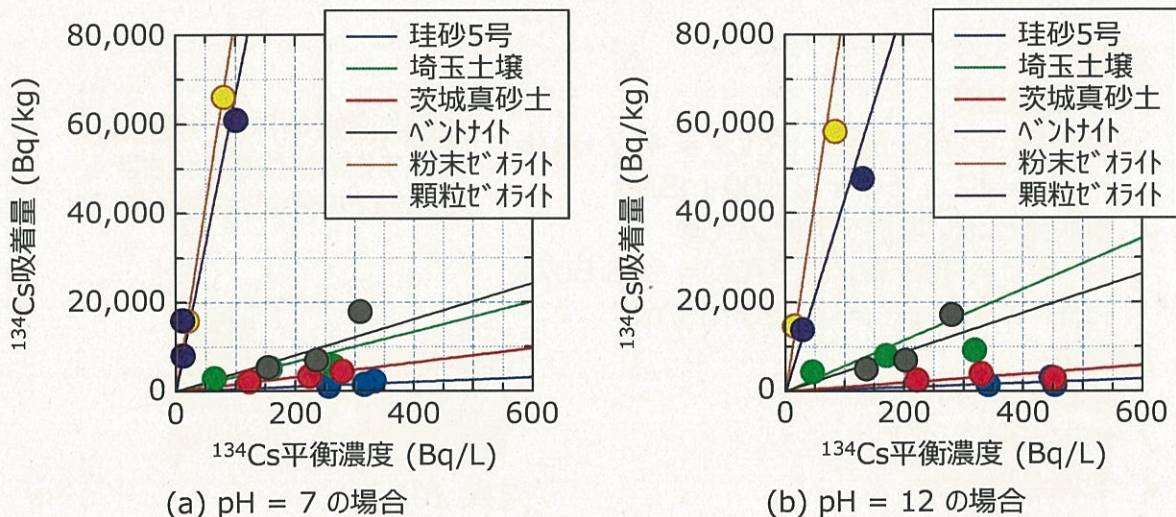
3. 実験条件

- ✓ 液固比 = 8-2,000
- ✓ 吸着時間 = 1日
- ✓ 攪拌条件 = 120 rpm 水平振とう

吸着試験に用いた吸着材

<p>珪砂5号</p>  <p>✓ 石英を主成とする標準砂 ✓ 0.4-0.6 mm の均一粒径</p>	<p>茨城真砂土</p>  <p>✓ 花崗岩などが風化した土 ✓ 礫分も多い、様々な粒径</p>	<p>粉末ゼオライト</p>  <p>✓ 天然のゼオライト ✓ 0.2 mm 以下の粒径</p>
<p>埼玉土壌</p>  <p>✓ 粘性土質を含んでいる</p>	<p>ベントナイト</p>  <p>✓ ワイミング産Naベントナイト ✓ 難透水性材料として利用</p>	<p>顆粒ゼオライト</p>  <p>✓ 天然のゼオライト ✓ 1.4-4.0 mm の粒径</p>

セシウム134： 平衡濃度と吸着量の関係



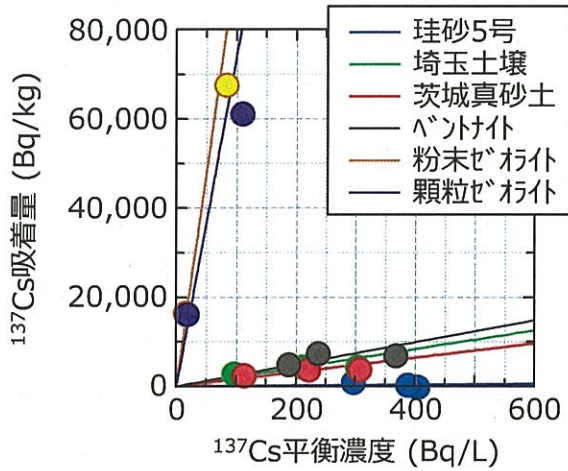
吸着材量の異なる各水準から得られた平均分配比

単位：mL/g

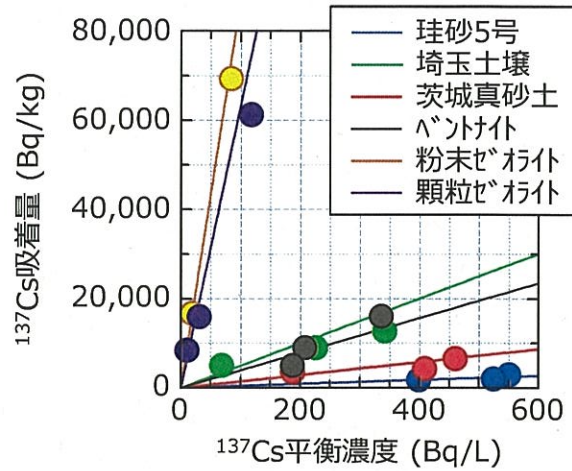
	珪砂5号	埼玉土壌	茨城真砂土	ベントナイト	粉末ゼオライト	顆粒ゼオライト
pH=7	5.20	33.6	16.1	40.4	841	665
pH=12	4.73	57.5	9.71	44.0	855	431

※ ただし、分配比は、液体の共存イオン濃度（イオン強度）などにも左右されると考えられることから、上記の平均分配比は、分配係数の目安であることに留意すること。

セシウム137： 平衡濃度と吸着量の関係



(a) pH = 7 の場合



(b) pH = 12 の場合

吸着材量の異なる各水準から得られた平均分配比

単位：mL/g

	珪砂5号	埼玉土壌	茨城真砂土	ベントナイト	粉末ゼライト	顆粒ゼライト
pH=7	0.91	21.0	16.1	24.7	962	742
pH=12	4.50	50.2	14.5	39.1	876	636

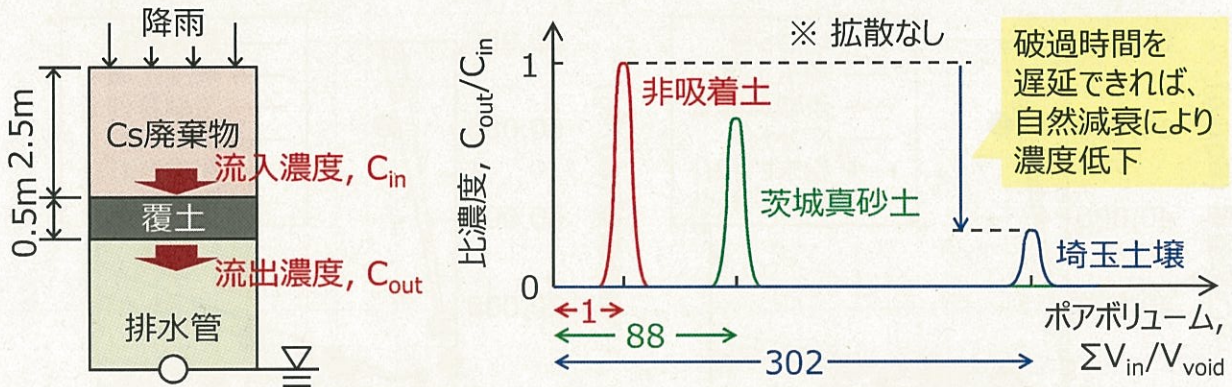
※ ただし、分配比は、液体の共存イオン濃度（イオン強度）などにも左右されると考えられることから、上記の平均分配比は、分配係数の目安であることに留意すること。

セシウム137と安定Csの吸着特性

	pH	EC mS/m	セシウム137			安定セシウム				
			濃度 Bq/L	吸着量 Bq/kg	各水準及び 平均分配比 mL/g	濃度 mg/L	吸着量 mg/kg	各水準及び 平均分配比 mL/g		
溶媒	11.9	1890	621			0.16				
珪砂5号	5g	11.9	1900	549	2890	5.3	4.5	0.15	0.40	2.7
	10g	11.9	1890	523	1960	3.8		0.14	0.40	2.9
	25g	11.8	1870	398	1790	4.5		0.13	0.24	1.8
埼玉土壌	5g	11.6	1770	341	12600	37.1	50.2	0.099	2.75	27.8
	10g	11.4	1670	225	8900	39.7		0.071	2.01	28.3
	25g	10.9	1590	68	5000	73.9		0.031	1.16	37.6
ベントナイト	0.1g	11.9	1900	599	49600	82.8	71.2	0.15	22.5	150
	0.5g	11.7	1800	545	34200	62.8		0.15	4.51	30.0
	1g	11.3	1700	477	32400	68.0		0.17	-2.25	

※ 吸着材の初期吸着量がゼロと仮定した場合の試算

吸着による遅延効果と浸出水放射能濃度の低減



	pH=12 分配係数 (mL/g)	遅延係数	鉛直一次元流れを仮定し、降雨量1,800 mm/yrの うち、600 mm/yrが浸透したときの、0.5 m厚の覆土 を ¹³⁷ Csが通過するのに必要な時間、トラベルタイム (yr)
珪砂5号	4.50	28	7
埼玉土壌	50.2	302	75
茨城真砂土	14.5	88	22
ベントナイト	71.2	430	107

※ この試算は、覆土内を半ば強制的に通水させたときのトラベルタイムである。吸着による遅延を期待する場合には、水を吸着材に浸透させる工夫が必要になる。

まとめ

- わが国の処分場浸出水の水質を考慮して、高アルカリ、高電気伝導率の飛灰溶出液を用いて吸着試験を行ったところ、以下の知見を得た。
 - 放射性セシウム (¹³⁴Csと¹³⁷Cs)の吸着能は、珪砂5号 < 茨城真砂土 < 埼玉土壌 ≒ ベントナイト < 顆粒ゼオライト < 粉末ゼオライトの順に高くなる。
 - 吸着材の吸着性能(分配比)は、pH = 7とpH = 12の場合で、ほとんど変わらない。
 - 既往の研究で報告されている、蒸留水にCs単体を溶かして溶媒とした吸着試験結果よりも、飛灰溶出液を溶媒とした吸着試験結果の方が、分配比が小さくなる可能性が示唆された。
- 得られた分配比から、¹³⁷Csが覆土層を通過するトラベルタイムと、その期間内に期待できる自然減衰を推察した。分配比の高い土壌を覆土層に使うと、放射性セシウムの通過を大幅に遅延し、放射能の自然減衰の効果を期待できる。
- 天然ゼオライトは、¹³⁷Csに対して高い分配係数を示し、浸出水処理に有効な吸着材であることが示唆された。

最終処分場浸出水処理施設に おける放射性セシウムの挙動

(独)国立環境研究所
資源循環・廃棄物研究センター

1

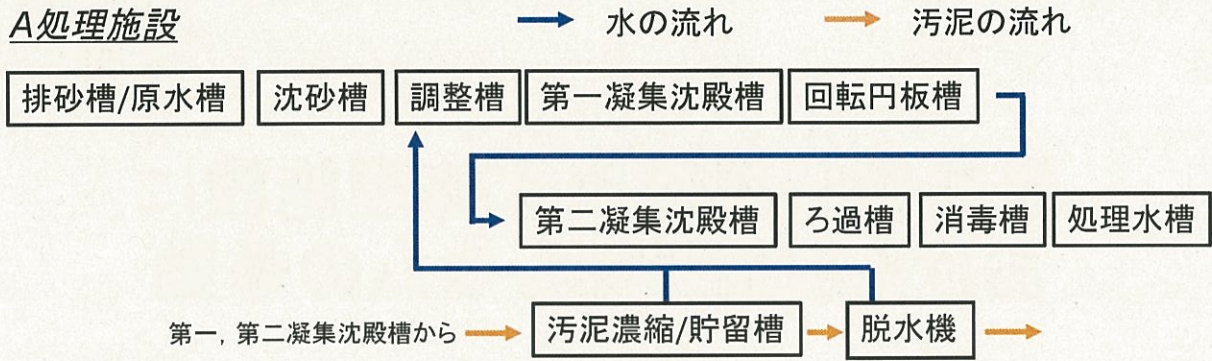
目的と試験・調査項目

- 目的
 - 浸出水処理施設における放射性Csの挙動把握
 - 放射性Csの除去方法の検討
- 試験・調査項目等
 - 浸出水処理施設における放射性Csの調査
 - 原水, 処理水, 脱水汚泥等を対象として, 放射性Cs, 安定Cs, 含水率等を測定し, 現在の濃度レベルと除去効果を把握した。
 - 浸出水中の放射性Cs除去方法の検討
 - 既存処理施設において, 活性炭, 精密ろ過膜, RO膜の設備前後の安定Csの濃度変化を調査した。
 - 飛灰溶出液の放射性Csの吸着試験から, 除去方法を検討した。

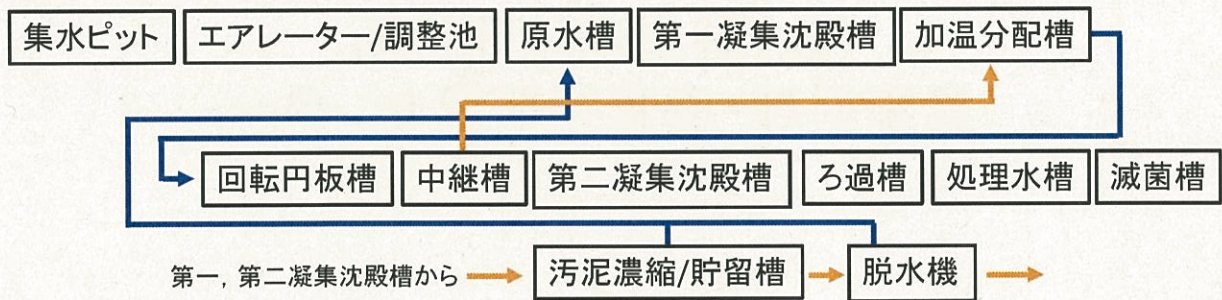
2

対象施設と試料採取地点

A 処理施設



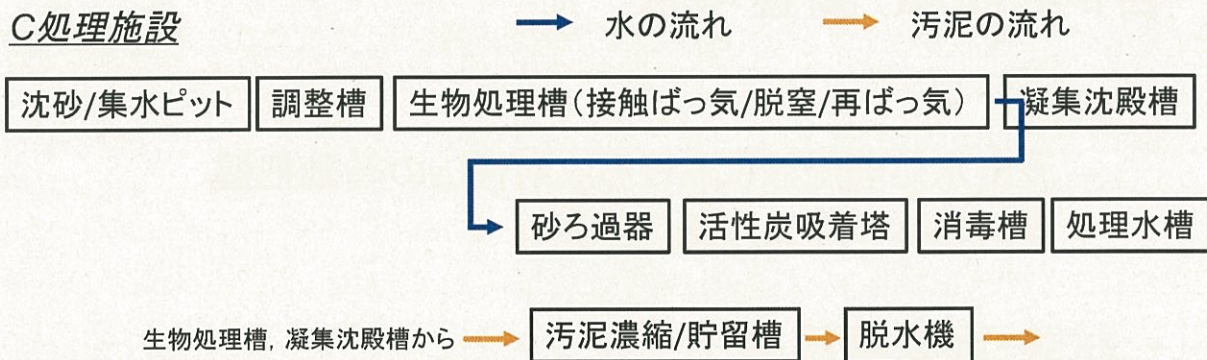
B 処理施設



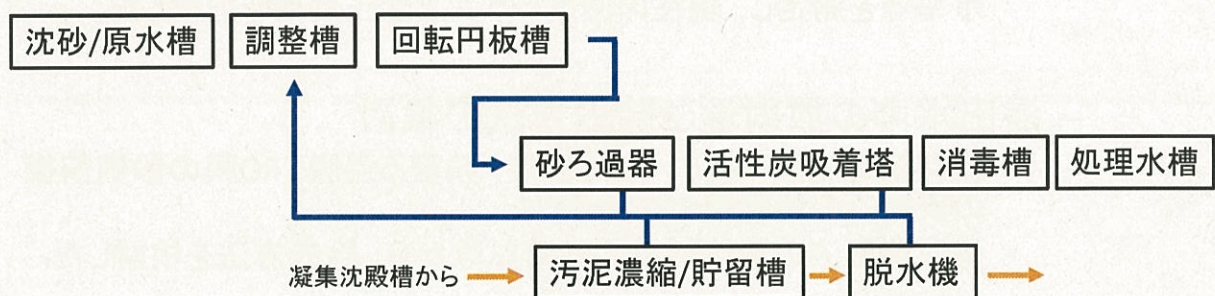
3

対象施設と試料採取地点

C 処理施設



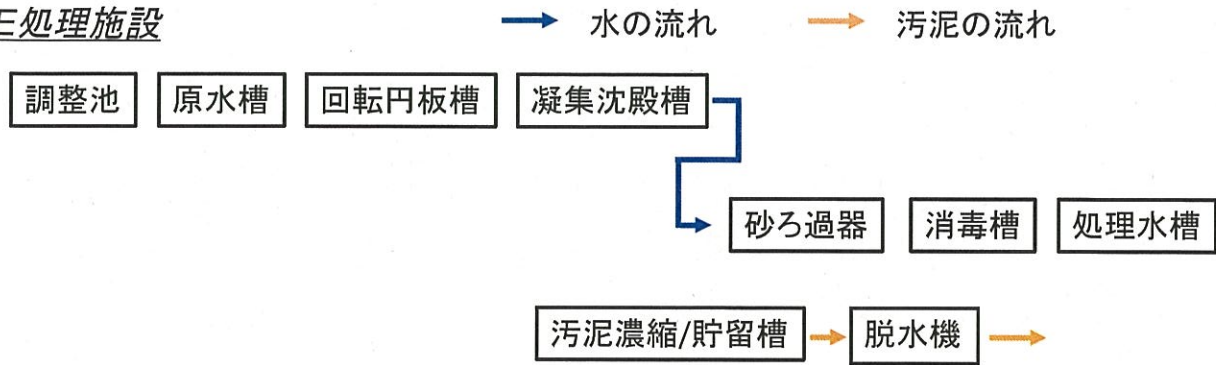
D 処理施設



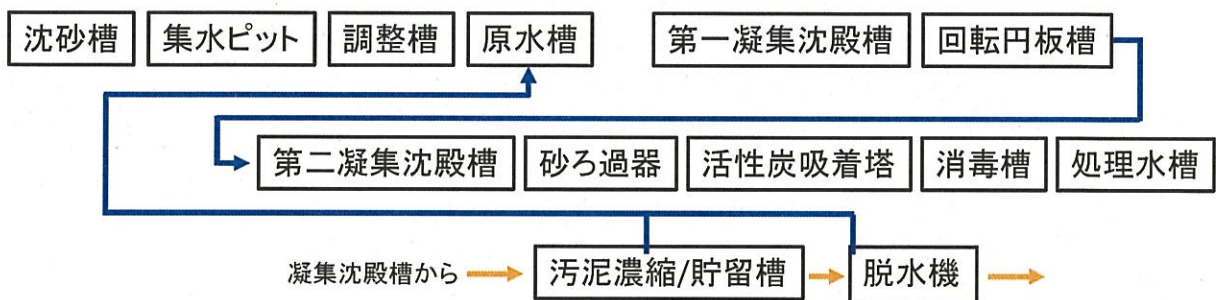
4

対象施設と試料採取地点

E処理施設



F処理施設



5

処理施設における原水及び放流水の放射性Cs濃度

原水	Cs134 (Bq/L)	Cs137 (Bq/L)	Cs合計 (Bq/L)	固形性Cs合計 (Bq/L)	特徴
A施設	<7.10	9.59	9.59	-	処理プロセスは覆われている。
B施設	<6.82	8.49	9.34	1.8	集水ピットが露天。
C施設	<1.50	<1.66	-	2.4	処理プロセスは覆われている。
D施設	<1.50	<1.52	-	-	沈砂・原水槽が半露天。
E施設	<1.99	<1.35	-	-	処理プロセスは覆われている。
F施設	<2.76	<1.78	-	-	調整池が露天。

処理水	Cs134 (Bq/L)	Cs137 (Bq/L)	Cs合計 (Bq/L)	固形性Cs合計 (Bq/L)	特徴
A施設	7.09	9.98	17.07	-	処理プロセスは覆われている。
B施設	<7.08	8.87	8.87	-	集水ピットが露天。
C施設	<1.28	<1.66	-	-	処理プロセスは覆われている。
D施設	4.01	5.67	9.68	-	沈砂・原水槽が半露天。
E施設	<1.28	<1.35	-	-	処理プロセスは覆われている。
F施設	<1.69	3.29	3.29	-	調整池が露天。

処理水濃度限度の目安

実用発電用原子炉の設置、運転等に関する規則の規定に基づく線量限度等を定める告示(平成13年経済産業省告示第187号)第9条に定める濃度限度(周辺監視区域の外側の境界における水中の濃度)

浸出水処理施設の原水および処理水中の放射性Csは検出下限未満の値が多く、検出された試料も線量限度等を定める告示の示す濃度限度内であった。

¹³⁴Cs 60 Bq/L
¹³⁷Cs 90 Bq/L

6

処理施設における汚泥の放射性Cs濃度

汚泥

		湿重量当たり(Bq/kg-wet)			遠心分離後の上澄(Bq/L)			乾燥重量当たり(Bq/kg-dry)		
		Cs134	Cs137	Cs合計	Cs134	Cs137	Cs合計	Cs134	Cs137	Cs合計
A施設	脱水汚泥	28	23	51				61	50	111
	円板汚泥	<11	<11	-				-	-	-
B施設	脱水汚泥	282	328	610				452	526	978
	第一汚泥貯留槽	17	33	50				630	1,222	1,852
	第二汚泥貯留槽	<9	11	11				-	786	786
C施設	沈さ	<7.61	<8.84	-	<6.54	<6.22	-	-	-	-
D施設	脱水汚泥	187	229	416				984	1,205	2,189
E施設	脱水汚泥	52.8	45.9	98.7				275	239	514
F施設	脱水汚泥	168	215	383	<1.13	<7.54	-	971	1,243	2,214

A施設	B施設	C施設	D施設	E施設	F施設
処理プロセスは覆われている。	集水ピットが露天。	処理プロセスは覆われている。	沈砂・原水槽が半露天。	処理プロセスは覆われている。	調整池が露天。

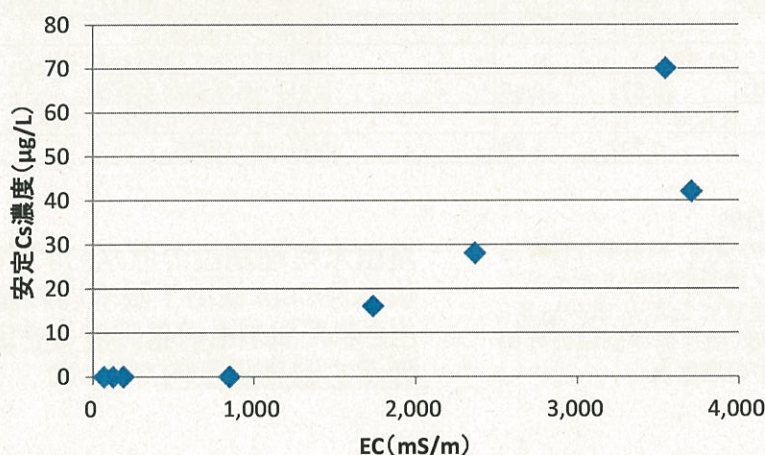
1. 汚泥中の放射性Cs濃度はB, D, F施設で比較的高い値を示したが、すべての処理施設の汚泥は湿重および乾重で8,000Bq/kg以下であった。放射性Cs濃度の高かった施設は、集水ピットや調整池が露天の施設であることから、事故直後のフォールアウトの影響が残存している可能性がある。
2. 脱水汚泥に含まれる水を分離して測定した結果、検出下限値以下であったことから、通常の保管状態であれば、脱水汚泥からの再溶出は少ないと考えられる。

7

参考1: 一般的な焼却灰の安定セシウム含有量及び溶出試験結果の一例

安定Cs	含有量	溶出濃度 (液固比10)	溶出率(%)
焼却主灰	1.0 mg/kg	2.2 µg/L	2.1
焼却飛灰	2.7 mg/kg	183 µg/L	67.1

参考2: 浸出水原水中の電気伝導度(EC)と安定Cs濃度の関係



8

浸出水処理施設での安定セシウムの調査結果

安定Cs133 ($\mu\text{g/L}$)	原水	処理水
A施設	42	35
B施設	16	18
C施設	<1	2
D施設	<1	2
E施設	<1	<1
F施設	28	25
G施設	70	72
H施設	<1	<1

※汚泥は検出限界以下 (5mg/kg-dry)

処理施設によって安定Cs濃度に違いはあるが、原水と処理水で顕著な差がない。

9

膜分離(MF膜) 活性炭吸着塔, キレート吸着塔

	原水	第一凝沈	汚水分配槽	生物処理	第二混和槽	膜分離装置(MF膜)	第二中和槽	活性炭吸着塔	活性炭出口	キレート吸着塔	放流槽
安定Cs133 ($\mu\text{g/L}$)	70		70		73		70		76		72
EC(mS/m)	3,550		3,580		3,700		3,700		3,700		3,700

	原水	凝集沈殿	RO原水	砂ろ過	砂ろ過後	マイクロンフィルター	マイクロンフィルター後	1段目RO膜	1段目RO透過水	2段目RO膜	2段目RO透過水	中和・消毒	消毒槽
安定Cs133 ($\mu\text{g/L}$)	<1		<1		<1		<1		<1		<1		<1
EC(mS/m)	71.8		81.0		82.6		93.1		21.0		1.6		3.7

RO濃縮	濃縮水原水槽
	<1
	161

1. 膜分離(MF膜), 活性炭吸着塔およびキレート吸着塔では安定Csは除去されていない。
2. RO膜においては, 安定Csが検出下限以下であるが, 電気伝導度(EC)は低下した。

顆粒ゼオライト

<吸着試験条件>

飛灰溶出液: 200ml

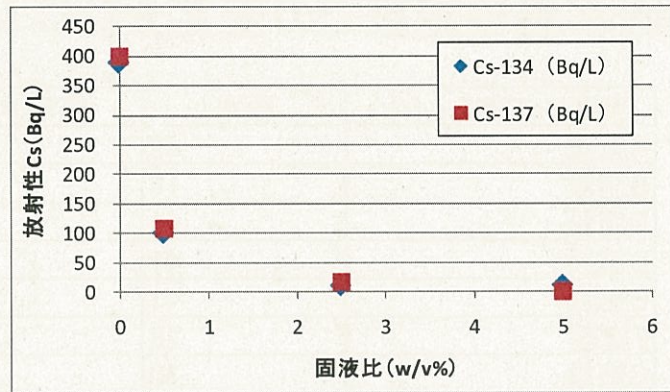
pH: 中性

試験対象試料: 1, 5, 10g

振とう時間: 24h

振とう速度: 約120rpm

振とう方向: 水平



固液比(w/v%)	Cs-134(Bq/L)	Cs-137(Bq/L)	Cs合計(Bq/L)	EC(mS/m)	Cs合計除去率(%)
0.0	388	398	786	1,920	-
0.5	100	109	209	1,920	73.4
2.5	10.6	17.4	28	1,880	96.4
5.0	11.0	8.78	20	1,860	97.5

※赤字は検出下限値以下で、下限値を記載している。

1. ゼオライト(固液比5%w/v)により、ECの高い飛灰溶出液中の放射性Csは24時間で97%除去された。
2. ゼオライトは、塩類濃度が高い浸出水においても吸着剤として使用可能であることが示唆された。