

課題名 5Z-1301 セシウムの動態解析に基づく除染シナリオの構築と磁気力制御型除染法の開発

課題代表者名 秋山 庸子（大阪大学 大学院工学研究科 環境・エネルギー工学専攻
環境資源・材料学講座 量子線生体材料工学領域）

研究実施期間 平成25～26年度

累計予算額 86,303千円（うち26年度46,515千円）
予算額は、間接経費を含む。

本研究のキーワード セシウム、土壌、建材、吸着、移行、除染範囲、除染シナリオ、減容化、保管、磁気力

研究体制

- (1)環境中のセシウムの動態解析(大阪大学)
- (2)セシウムの動態に基づく除染シナリオの構築(福島大学)
- (3)磁気力制御型除染法の開発(新潟大学)

研究協力機関

京都大学原子炉実験所、エヌ・エム・ピービジネスサポート株式会社、中部電力株式会社

研究概要

1. はじめに(研究背景等)

現在除染において最も問題になっている放射性核種は ^{137}Cs であり、除染して住民が帰還できるようにするためには、宅地周辺に存在する ^{137}Cs を除去することが必要である。しかし除染作業をすすめるにあたり、大量の除染廃棄物が発生することが大きな問題となっている。特に表土剥ぎ取りにより、大量の汚染土壌が排出されている。また住宅の除染に関しては、建材の種類に応じた除染効果の高い最適な除染方法が不明であることが課題として挙げられる。

このような問題の解決のためには、住宅周りの生活圏において、セシウムがどのような過程を経てどのような形態で沈着し、今後どのように変化していくのかを明らかにすることが重要であるが、生活圏の除染が求められているにもかかわらず、一般的な環境動態のほとんどは森林や河川などの非生活圏での巨視的な動きを対象としているため、生活圏での微視的な動態(吸着強度や移行過程)は明らかになっていない部分が多い。

この問題点を解決するために、放射性物質が生活圏のどこに、どのような形で存在しているかを明らかにし、それに応じて土壌や建材の最適な除染と減容化の方法、さらには除染から保管までの一連の除染シナリオを検討することが求められている。

2. 研究開発目的

本委託業務の目的は、土壌や建材などの生活圏を中心とした環境中のセシウムの動態解析を行うことで、それぞれの除染対象物質・対象地域に対して最も効果的な除染、減容化および保管の方法を明らかにし、除染対象地域の追加被ばく線量を最小限の労力、予算、期間で最終的に1 mSv/年以下にするための除染シナリオを構築することである。そのために、各サブテーマにおける目的を以下のとおりとする。

(1)環境中のセシウムの動態解析(サブテーマ1)

土壌や建材を中心とした除染対象について、Csの沈着状態、微構造、結合の強さについて分析し、どの形態のCsがそれぞれどのくらい存在するかを検討し、効果的な除染方法を明らかにする。また、サブテーマ3と連携して、1:1型粘土鉱物中の変異電荷に吸着している比較的脱離の容易なCsイオンを、強く固定化するサイトである2:1型粘土鉱物のフレイドエッジサイトに移行するための条件を検討する。

(2)セシウムの動態に基づく除染シナリオの構築(サブテーマ2)

土壌を中心にした除染対象物の特性、除染作業の環境と条件を考慮して除染シナリオを作成し、適切な除染、保管などの方法を決定する。これらの決定においては、大量の除染によって生じた除去土壌の分布と本研究で開発する除染方法の処理能力を勘案し、その除染方法やその後の保管方法などのコストも考慮して、適切な除染範囲、減容化の方法、保管等の方法を決定する。

(3)磁気力制御型除染法の開発(サブテーマ3)

磁気力制御による高度な除染手法の適用可能性を検討する。自然界中で強くセシウムを吸着する物質の磁場中での物性を評価し、連続処理、高速分離、選択的な分離に必要とされる磁場、磁場勾配、流速等の条件を明らかにする。

3. 研究開発の方法

(1)環境中のセシウムの動態解析

(1-1)建材におけるセシウムの沈着状態と吸着強さの検討

建材におけるセシウムの吸着動態を、①吸着形態、②深さ分布、③吸着強さ、の3つの観点から明らかにし、住宅地の空間線量率を効果的に低減する手法を提案することを目的とした。住宅建材としては、セメント瓦、木材、トタン材を用いた。福島県内で採取した実汚染建材を加工し、試料片A、B(各50 mm × 50 mm)を作製した。始めに試料片A、Bともに、蒸留水で10分間超音波洗浄し、放射線測定を行った。洗浄後、80 °Cで乾燥させ、試料片Aを硝酸(0.01 mol/L)に1時間浸漬・振とうし、放射線測定を行った。測定後、硝酸(0.05 mol/L、0.1 mol/L)を用いて同様の処理を行い、放射線量を測定した。試料片Bについては、試料片Aと同様の手順で、塩化カリウム溶液(0.01 mol/L、0.05 mol/L、0.1 mol/L)に段階的に浸漬、振とうし、放射線測定を行った。測定結果から、各洗浄段階におけるCs脱離率を算出した。

(1-2)土壌におけるセシウムの沈着状態と吸着強さの検討

半透膜と模擬試料を用いて、土壌におけるCsの微視的動態について検討した。特に①土壌沈着直後のCsの存在状態、②土壌沈着後のCsの存在状態に与える雨水の影響、③雨水により溶出したCsの挙動、の3点について検討した。まず、①土壌沈着直後のCsの存在状態を明らかにすることを目的とし、Csが土壌に添加された際の各成分への分配挙動を調査した。試料としては、土壌の大部分を占める砂と有機物の一種であるフミン酸、1:1型、2:1型粘土鉱物の代表的なものとしてカオリナイト、パーミキュライトの4種を用いた。半透膜に包んだ各試料2 gを全て同時に、10000 Bq/LのCsCl溶液200 mLに1時間浸漬した。溶液から取り出し、24時間乾燥させた各試料(試料Aとする)のCs吸着量をGe検出器により測定した。次に、②土壌沈着後のCsの存在状態に与える雨水の影響について調査した。雨水は陽イオンを含むため、イオン交換反応によってCsを溶出すると考えられる。試料Aを全て同時に、雨水を模擬した溶液(Ka⁺、Na⁺、Ca²⁺、Mg²⁺、各5 mg/L)200 mLに1時間浸漬した。溶液から取り出し乾燥させ、Cs吸着量を測定した(試料を取り出した後の溶液をBとする)。最後に、③雨水により土壌から溶出したCsの挙動について調査した。溶液Bに新たに別の砂、フミン酸、カオリナイト、パーミキュライトを1時間浸漬した。溶液から取り出し、乾燥させた各試料のCs吸着量を測定した。

(2)セシウムの動態に基づく除染シナリオの構築

(2-1)除染範囲の最適決定手法の提案

汚染地域の除染が進行するにつれて、膨大な量の除染廃棄物が発生し、その仮置き場の確保が困難になりつつある。また、除染を行っても、必ずしも目標値まで線量が下がらないこともしばしば起こっている。従って、除染計画の策定には、客観的シミュレーションを用いて、適切な除染範囲・除染方法を選択する必要がある。本研究では、除染作業による線量率の低減効果を評価するフリーソフトウェアCDE(Calculation system for Decontamination Effect, 日本原子力研究開発機構)を利用して、更に感度解析的手法を導入することにより、対象地域の空間線量率を目標値以下にできる最小の除染範囲を計算するソフトウェアを開発した。本研究で開発したソフトウェアの除染範囲最適計算手法のアウトラインを以下に示す。

- ① まず、対象地域の航空地図データとそれに対応する空間線量率のモニタリングデータを入手する。これに基づき、CDEを利用して、地図データから空間メッシュを作成し、各メッシュに対する汚染源(Cs134とCs137)の密度分布データを求める。
- ② 同時にCDEを利用して、ある5m×5mの空間メッシュに存在する単位汚染源密度による別の空間メッシュ上に与える空間線量率を距離の関数として求めておく。CDEでは、これを応答行列と呼ぶ。
- ③ 空間線量率を目標値以下に低減したい対象区域(例えば、居住地など。以下、「対象区域」という)に最も大きな影響を与えている周辺区域(例えば、耕作地など。以下、「周辺区域」という)のセルを検索し、

そのセルを適当な方法で除染する。

- ④ 周辺区域で最も影響の大きい1つのセルを除染する(③のプロセス)たびに、対象区域の空間線量率を再計算する。
- ⑤ 対象区域の空間線量率が目標値を下回るまで、③及び④を繰り返す。

(2-2) 除染の経済性・効率性のシミュレーション

本研究の目的は、放射性セシウムに汚染された土壌の特性、除染作業の環境と条件を考慮した除染シナリオの作成である。除染シナリオの作成にあたり、本報告書では、住宅や公共施設などの生活圏内の表土の剥ぎ取り、天地返しや反転耕などの除染作業を一次除染と定義する。また、剥ぎ取られた表土である汚染土壌に対し、湿式あるいは乾式の分級、磁気分離、化学的脱離吸着といった減容処理を二次除染と定義する。この一次と二次の除染の組み合わせで、除染シナリオは構成される。適切なシナリオを選定するためには、除染によって生じた除去土壌の放射能濃度、取扱量をパラメータにして、本研究で開発している磁気分離による減容処理を含めたシナリオごとのコストが算定されなければならない。このために、本研究の磁気分離による減容処理の実験結果に基づき、除去土壌の処理能力が毎時1トンでのプラント設計を行い、1トン当たりの処理コストを推定した。また、環境省の主管する除去土壌などの輸送、中間貯蔵を検討する委員会、福島県庁の関連部門に問い合わせを行いながら、それらの組織の公開資料や提供いただく除去土壌の放射能濃度、取扱量に基づき、除染シナリオの事例解析を行った。

これにより、除去土壌に対して、そのまま保管した場合と、磁気分離を使った減容処理を行った場合について、処理のコストなどを試算できる。また、除去土壌の放射能濃度に応じて適切なシナリオ選定を支援できる方法を確立し、その方法の有用性を検証した。

(3) 磁気力制御型除染法の開発

(3-1) 磁気分離の前処理としてのセシウムの移行

磁気分離の前処理方法として、粒径の大きな砂礫や1:1型粘土鉱物の放射能を低減させるCs移行処理として、砂礫の表面研磨とK⁺イオンを含む肥料溶液でCs吸着力の弱い砂礫から吸着力の強い2:1型粘土鉱物にCsを移行する処理を同時に行った。初めに、福島県の汚染土壌1kgをK⁺イオン濃度を0.1 mol/Lに調整したKCl水溶液2Lに添加し、ボールミル装置に設置して60 rpmの速さで2時間処理を行った。ボールミル後、懸濁液をふるいによって粒径毎に湿式分級し、乾燥後に重量と放射能を測定した。Cs移行処理前後の放射能の測定結果から、Cs移行処理による汚染土壌の減容化について検討した。

(3-2) 高勾配磁気分離システムの検討

高勾配磁気分離システムによる汚染土壌の減容化のためには、2:1型粘土鉱物のみを高効率に分離、回収することが必要である。そこで実用に向けた土壌の磁気分離条件の検討のため、超電導ソレノイド磁石を用いた実用化に向けた基礎実験を行った。

粘土のモデル物質として、2:1型粘土鉱物であるパーミキュライトと、1:1型粘土鉱物であるカオリナイトを用いた。まず常磁性体であるパーミキュライトの分離条件を調べるため、粒径が75 μm未満のパーミキュライト5.0 gに蒸留水1.5 Lを加え、固液比1:300の懸濁液を調製した。超電導ソレノイド磁石を用いて、最大中心磁束密度2 T、5 T、7 Tを印加し、流速を3.0 cm/sとして高勾配磁気分離を行った。磁気フィルターとしてSUS430(線径0.4 mm、外径36 mm、メッシュ数20)のものを30枚用いた。分離後の粒子はろ過、乾燥後に質量を測定した。さらに、混合系からの2:1型粘土鉱物の選択的分離条件について調べるため、パーミキュライト5.0 gとカオリナイト5.0 gを混合し、蒸留水を1.5 L加えた。超電導ソレノイド磁石を用いて、7 Tを印加し、流速3.0 cm/sで高勾配磁気分離を行った。実験1と同様にろ過、乾燥後に質量と吸光スペクトルを測定した。

4. 結果及び考察

(1) 環境中のセシウムの動態解析

(1-1) 建材におけるセシウムの沈着状態と吸着強さの検討

福島県内で採取した実汚染建材を用いて、建材(セメント系材料、木材、粘土瓦、トタン屋根)におけるセシウムの吸着動態を、①吸着形態、②深さ分布、③吸着強さ、の3つの観点から検討を行った。セメント系材料におけるこれら3つの観点から検討した。超音波処理、切削処理、薬品処理の結果から、固体を介して間接的に吸着している粒子態のものは全吸着量の4%であることが分かった。また、切削処理の結果から、セシウムは表面から1.6 mm以内に99%が分布することが分かった。さらに、硝酸と塩化カリウムを用いた溶出実験により、薬剤によって溶出させることが可能なイオン交換態のセシウムは全吸着量の12%であり、粒子態、イオン交換態を差し引いた全吸着量の84%がイオンとして沈着し、しかも溶液では溶出できない強い相互作用で吸着していると考えられ

る。そのため、事故後およそ3年半の時点で、大部分のセシウムはセメント系材料にかなり強く吸着しており、今後も雨水等により他の吸着サイトに移行する可能性は低いと言える。そのため、たたきなどの切削可能な場所にある場合については、セメント系材料の除染の場合は、表面切削が効果的であると考えられる。

上記のセメント材料と同様の手法で、木材、粘土瓦、トタン材についての検討も行った。その結果を表1に示す。木材、粘土瓦、トタン材のいずれも、事故後3年半の経過の時点で、固定態がほとんどを占めており、今後雨水での存在状態の変化は少ないと考えられる。そのため、今後の除染の手法で効果的な手法は、セシウムの吸着深さに依存し、表面からの深さ方向分布が深い場合は除染よりも取り換えなどの処理が効果的であり、一方で表面からの深さ分布が浅い場合は表面切削処理が効果的であると考えられる。このような観点から、セメント系材料は表面から数mmの切削、トタン材は腐植部分の切削除去、木材と粘土瓦については除染は不可能であるため、取り換えが最も有効であると考えられる。

表1 各建材における¹³⁷Csの存在状態

	セシウムの空間分布 (Cs)		セシウムの吸着機構	
			直接的吸着 (Nat)	間接的吸着 (GM)
セメント系材料	垂直方向	表面から約1.6mm以内に約99%が分布	<ul style="list-style-type: none"> ・イオン交換態 (表面電荷等): 約15% ・固定態 (セメント水和物の層間): 約85% 	粘土や有機物を介して吸着したCsが存在 → 表面汚染への寄与は低い (ほとんどがイオンとして直接的に吸着)
	水平方向	細孔部分に吸着量大		
木材	垂直方向	表面から約4mm以内に約97%が分布	<ul style="list-style-type: none"> ・固定態 (セルロース等が持つ水酸基、カルボキシル基 + 分子構造による捕捉): 約100% 	
	水平方向	繊維方向の拡散性大 → 拡散の異方性		
粘土瓦	垂直方向	表層約200μmに約30% (約70%は全体に拡散)	<ul style="list-style-type: none"> ・表面に吸着: 約3~4% ・ほとんどが固定態 (粘土層が強固に吸着) 	
	水平方向	均一な汚染ではなくホットスポットが存在		
トタン材	垂直方向	腐食度合に依存 (表面から約100μm以内に約91%が分布)	<サビ部分への吸着> <ul style="list-style-type: none"> ・イオン交換態 (表面電荷等): 約15% ・固定態 (サビの多孔質構造内部): 約85% 	
	水平方向	腐食部分 (サビ) へ吸着		

(1-2) 土壌におけるセシウムの沈着状態と吸着強さの検討

土壌中のセシウムの動態を調べるため、イオンのみを通すことができる半透膜に各土壌成分(砂、フミン酸、カオリナイト、バーミキュライト)を封入し、それらを放射性セシウム溶液中に一定時間共存させたのち、個々に取り出して放射線計測を行うことで、土壌成分間のセシウムの移行動態を実験的に追跡できる手法を構築した。その結果を図1に示す。

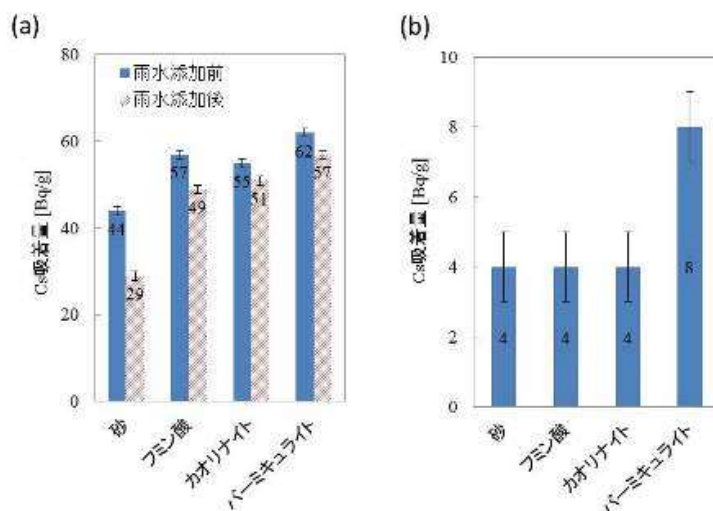


図1 (a) 土壌に存在するセシウムの状態変化に与える雨水の影響、(b) 模擬雨水溶液中に新たに別の砂・フミン酸・カオリナイト・バーミキュライトを添加した際の各成分のセシウム吸着量

図1(a)に示すように、土壌成分に模擬雨水を添加することで、1時間後には全ての試料のセシウム吸着量が減少した。これは、雨水中に含まれるカリウムイオン等との交換反応が考えられる。砂に比べ、フミン酸・粘土鉱物からはセシウムが溶出しにくいことが分かる。また図1(b)に示すように、溶出したセシウムは新たに添加した試

料に吸着され、特に吸着能が優れ、強くセシウムを固定化する2:1型粘土鉱物に吸着されたことが確認できた。したがって、雨水の影響で下層に溶出したセシウムは、1時間以内の短時間のうちに他の成分、特に2:1型粘土鉱物に移行する傾向が実験的に確認された。事故後の年月が経過した現在ではほとんどのセシウムが2:1型粘土鉱物に固定化されているため、事故直後よりも湿式・乾式分級などの分級の有効性が高まっていると考えられる。

実土壌の分級と磁気分離でも類似の傾向が確かめられたが、実土壌成分を完全に成分ごとには分離することはできないため、セシウムの微視的動態を調べる為には、上記の手法によるモデル実験と実土壌の調査が有用であると考えられる。

(2)セシウムの動態に基づく除染シナリオの構築

(2-1)除染範囲の最適決定手法の提案

開発したソフトウェアを用いて、伊達市における除染実証実験のデータ

(http://www.jaea.go.jp/fukushima/kankyoanzen/guideline_report/3.1.pdf)に適用して、妥当性の検証を行った。まず、実証試験サイトの航空写真を入手し、メッシュ分割を行い、実証試験で得られているモニタリングデータを用いて、図2に示すように、汚染密度データを設定した。分割したメッシュとモニタリングポイントは必ずしも一致しないところがあるので、1メッシュ(5m×5m)内で平均値として用いた。まず、全エリアを実証実験で行われた方法と同じ方法で除染した後の6つの家屋の線量率を計算した。本ソフトウェアで計算した結果は、概ね実証実験で得られたデータの範囲に入っていることが分かる。実証実験のデータには極めて局所的なホットスポットの線量データが含まれており、一方、本ソフトウェアではそのような局所的なホットスポットを考慮できないことが差異の要因と考えられる。図3には、目標線量率を変化させた時の除染範囲の変化について示してある。目標線量率を僅かに変えただけで、除染範囲が大きく変化することが示された。

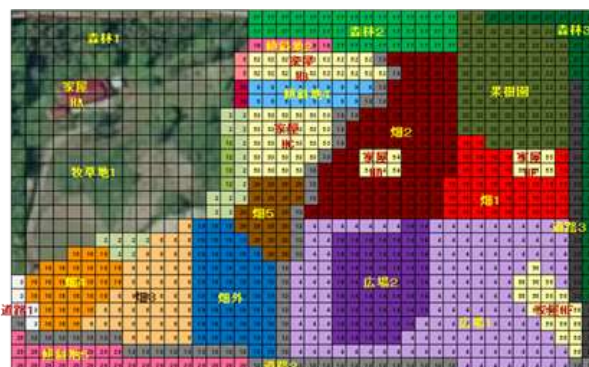


図2 生成した空間メッシュとエリア分割

(http://www.jaea.go.jp/fukushima/kankyoanzen/guideline_report/3.1.pdf)

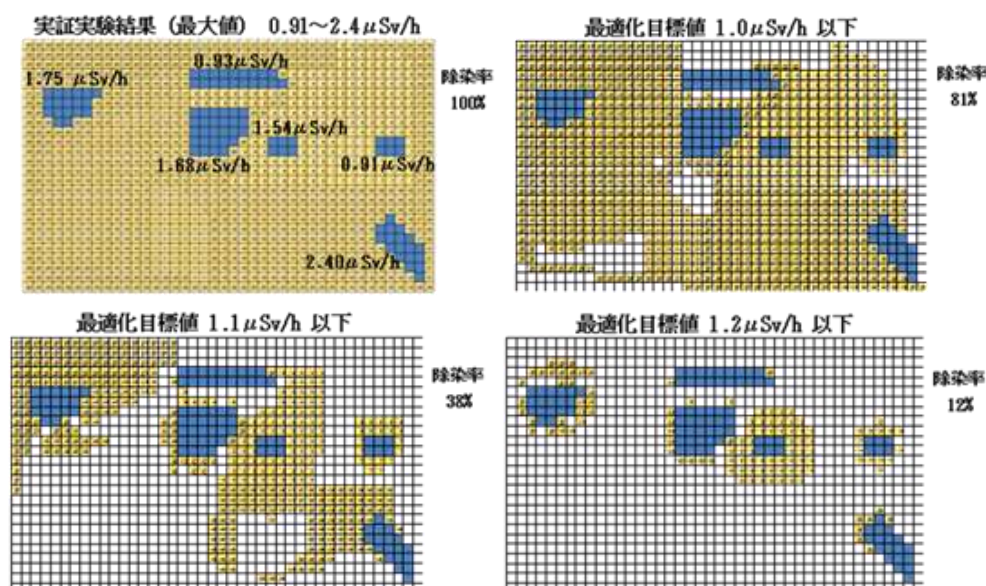


図3 目標線量率を変化させた時の除染範囲の変化

(2-2) 除染の経済性・効率性のシミュレーション

除染により生じた除去土壌をそのまま保管した場合と、磁気分離を使った減容処理を行った場合について、処理のコストなどを試算した。また、除去土壌の放射能濃度に応じて適切なシナリオ選定を支援できる方法を確立した。本手法については、複数の除去土壌処理の指針を立案した事例解析を行い、適切な除染シナリオを検討し、本研究の有用性を検証した。

適切なシナリオとは、法令、安全を遵守しつつ、中間貯蔵施設での受入管理区分である8,000 Bq/kg以下のI型施設、8,000 Bq/kgを超え10万 Bq/kg以下のII型施設、10万Bq/kgを超える廃棄物貯蔵施設といった管理区分に対して合理的であり、それぞれの施設貯蔵コストと減容処理コストのトレードオフ問題の解である。一例として、本研究で開発している分級洗浄と磁気分離からなる減容処理と中間貯蔵施設の関係をモデリングした。

まず、本研究で開発している減容処理を構成する分級洗浄、磁気分離それぞれの重量分離比、放射能分離比から、投入土壌の放射能濃度と減容処理の排出土壌特性の関係を調べた。表2に示すように、除去土壌が減容処理されずに、そのまま濃度に応じてI型、II型、廃棄物貯蔵施設へ搬入されるところを、減容処理により中間貯蔵施設において1区分簡易な施設へ少しでも貯蔵することを指針とするならば、本研究の減容処理は、放射能濃度 C_s が8,000 Bq/kgを超え32,000Bq/kg以下の除去土壌に対して有用であることが分かった。

表2 投入土壌の放射能濃度と減容処理の排出土壌特性の関係

投入除去土壌 1トンのセシウム濃度 C_s [Bq/kg]	分級洗浄工程 c		磁気分離工程 m			
	排出土壌		高濃度排出土壌		低濃度排出土壌	
	土壌量 [t]	濃度 C_{cl} [Bq/kg]	土壌量 [t]	濃度 C_{mh} [Bq/kg]	土壌量 [t]	濃度 C_{ml} [Bq/kg]
4,000	0.80	1,000	0.04	48,000	0.16	8,000
8,000	0.80	2,000	0.04	96,000	0.16	16,000
8,333	0.80	2,083	0.04	100,000	0.16	16,667
32,000	0.80	8,000	0.04	384,000	0.16	64,000
50,000	0.80	12,500	0.04	600,000	0.16	100,000
100,000	0.80	25,000	0.04	1,200,000	0.16	200,000
400,000	0.80	100,000	0.04	4,800,000	0.16	800,000

次に、減容処理コストの算定のために、毎時1トンの除去土壌を減容処理できるプラントの基本設計を行い、コストを概算した。プラント概算金額を5年間で償却するものと仮定し、この償却を含めて1カ月22日、1日8時間の稼働としてランニングコストを算定した。

環境省「除染情報サイト」では、福島県内にある中間貯蔵施設へ搬入する8,000 Bq/kg超10万Bq/kg以下の放射能濃度の土壌は、約1,035 m³あるとされている。重量換算で15,525,000 tとし、8,000 Bq/kg超10万Bq/kg以下の範囲で一様に等量分布すると仮定した。図4は、この対象土壌の減容処理後の排出土壌量を、中間貯蔵施設の管理区分ごとに示したものである。4,050,000tがII型施設で貯蔵されるところを、割高な廃棄物貯蔵施設へ47,250t移行してしまうものの3,240,000tを貯蔵コストが安価なI型施設へ移行できる。施設の貯蔵トン単価を、I型施設を U_I 、II型施設を U_{II} 、廃棄物貯蔵施設を U_{III} 、減容処理トン単価を U_r とし、次式が成立すれば、本研究で開発している減容処理が有効であり、減容処理を実施する事例シナリオが適切であると判断できる。

$$3,240,000U_I + (573,750 + 189,000)U_{II} + 47,250U_{III} + 4,050,000U_r < 4,050,000U_{II}$$

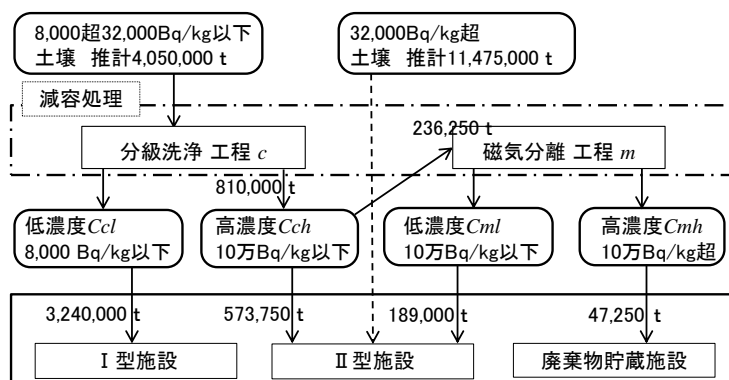


図4 減容処理後の排出土壌量の中間貯蔵施設管理区分ごとの分布

このように、除去土壌の状況に応じて適切なシナリオ選定を支援できる方法を確立した。本手法は実証試験が行われているさまざまな減容化技術に適用できると考えられる。

(3) 磁気力制御型除染法の開発

(3-1) 磁気分離の前処理としてのセシウムの移行

ボールミルと洗浄処理を同時に行った場合の粘土(粒径75 μ m未満)と砂礫(粒径75 μ m以上)の放射能と重量比を図5に示す。砂礫分の放射能は、処理前の1200 Bq/kgからCs移行処理により、400 Bq/kgに低下した。環境影響の少ない肥料のみを添加物として使用し、クリアランスレベルである100 Bq/kgに近づけることができたため、非汚染の土壌と混合して希釈することを想定すれば、埋め戻すことが可能である。Cs移行処理後の砂礫の土壌の重量比は88%であるため、それらの土壌を埋め戻すことで汚染土壌を初期量の12%程度に減容化できる可能性が示された。

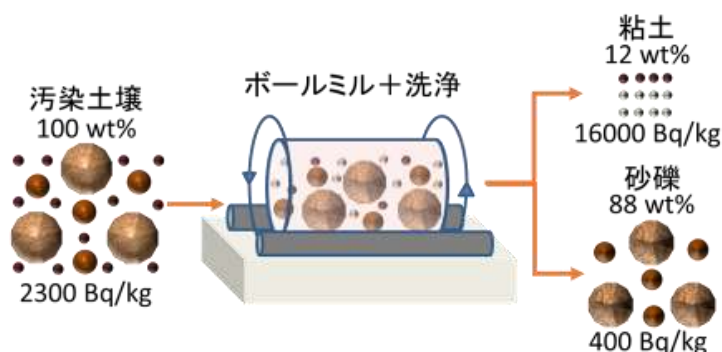


図5 Cs移行処理後の砂礫および粘土の重量と放射能

(3-2) 高勾配磁気分離システムの検討

今回用いた超電導ソレノイド磁石を用いた高勾配磁気分離システムの概略を図6に示す。超電導ソレノイド磁石はボア径100 mm、最大中心磁束密度が約10 Tのソレノイドコイルであり、ボア内の鉛直方向に緩やかな勾配を持ち、水平方向に均一な磁場分布を持つ。ソレノイド磁石のボア内に磁気分離領域用の配管(外径42 mm)を用意し、そこに磁気フィルターを設置した。磁気フィルターとしてSUS430(線径0.4 mm、外径36 mm、メッシュ数20)のものを5 mm間隔で30枚設置した。

バーミキュライトのみの高勾配磁気分離実験では、測定した質量からフィルターによる分離率を算出した。分離率は2 T、5 T、7 Tの順に、75%、90%、97%となり、5 T以上で高い分離率が得られた。バーミキュライトとカオリナイトの混合系の実験結果を図7に示す。投入したバーミキュライトの92%がフィルターに捕捉され、磁気力を用いたバーミキュライトの選択的分離に成功した。

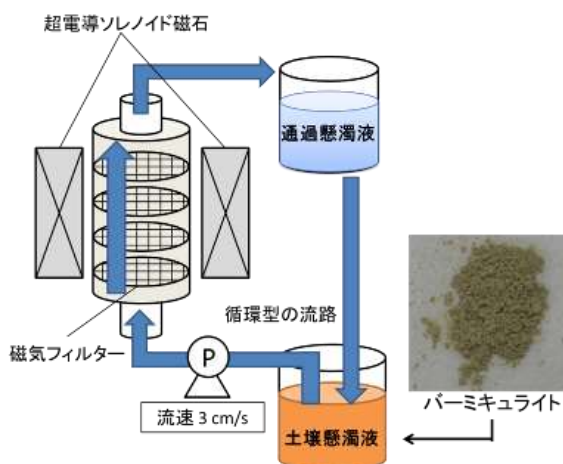


図6 実験装置の概要図

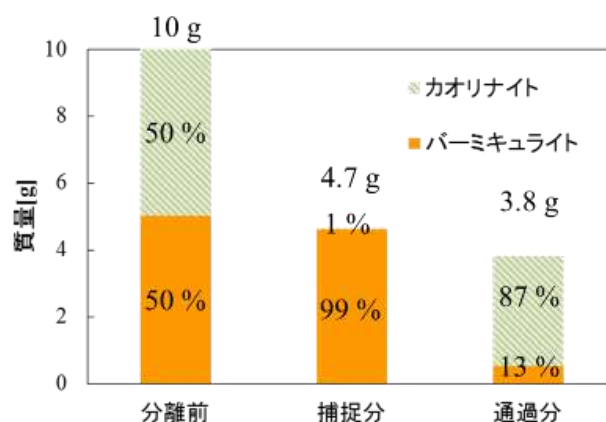


図7 磁気分離前後の粘土鉱物の割合の変化

5. 本研究により得られた主な成果

(1) 科学的意義

1) 環境中および吸着剤中のセシウムの動態解析(サブテーマ1)

土壌中のセシウムは事故後の降雨により2:1型粘土鉱物の永久電荷に移行することが実験的に確認された。建材中のセシウムは、どの種類でも粒子態での付着は少なくイオン態がほとんどであることが明らかになった。また浸透深さや吸着強さは建材の種類により大きく異なることが明らかになった。

2) セシウムの動態に基づく除染シナリオの構築(サブテーマ2)

除染範囲を最適化するための手法を確立し、実証実験のデータを用いてその妥当性を検証した。3つの放射能濃度の区分のそれぞれの土壌量に基づき、減容化処理の有無、減容化の手法に応じてコストを試算する手法を確立した。

3) 磁気力制御型除染法の開発(サブテーマ3)

自然界における雨水による土壌中成分間でのセシウム移行の調査結果を元に、土壌中のセシウムの2:1型粘土鉱物の移行を促進する低濃度カリウム溶液での前処理が、磁気分離の分離率向上に効果的であることが示された。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

(1) 環境中および吸着剤中のセシウムの動態解析(サブテーマ1)

事故後の時間経過によるCsの移行(2:1型粘土鉱物への固定化)は土壌分級や磁気分離による汚染土壌の減容化に有利であることが明らかになった。また建材のうち金属やコンクリートは浸透深さが比較的浅く、切削や鏝除去処理が有効である一方、木材や粘土瓦など内部まで浸透して除染不可能なものがあることが分かった。

(2) セシウムの動態に基づく除染シナリオの構築(サブテーマ2)

周辺区域からの放射線を加味して、対象区域を目的線量まで下げるための最適な周囲の除染範囲を策定できる手法を確立した。また汚染土壌の状況に応じて減容化処理の有無、その手法や実施場所等、適切なシナリオ選定を支援できる方法を確立した。

(3) 磁気力制御型除染法の開発(サブテーマ3)

7Tの超電導磁石で97%のパーミキュライトが分離可能であることが確認された。また実汚染土壌を用いた現地での永久磁石を用いた実験により線量低減が確認され、前処理として低濃度カリウム肥料溶液を用いたセシウム移行処理を行うことによるさらなる線量低減が見込まれた。

6. 研究成果の主な発表状況(別添.報告書作成要領参照)

(1) 主な誌上発表

<査読付き論文>

- 1) K. SEKIYA, H. KUWAHARA, Y. YOSHIDA, S. IGARASHI, N. NOMURA, F. MISHIMA, Y. AKIYAMA and S. NISHIJIMA,; IEEE Transactions on Applied Superconductivity, 24, 3, 3700205 (2014)
“Study on Decontamination of Contaminated Soils by Magnetic Separation”
- 2) Y. YOSHIDA, K. SEKIYA, N. NOMURA, F. MISHIMA, Y. AKIYAMA and S. NISHIJIMA,; IEEE Transactions on Applied Superconductivity, 25, 3, 3700505 (2014)
“Study on Volume Reduction of Contaminated Soil by Radioactive Cesium Using the Magnetic Separation”

(2) 主な口頭発表(学会等)

- 1) 関谷一輝、吉田有輝、野村直希、三島史人、秋山庸子、西嶋茂宏：第3回環境放射能除染研究発表会、福島県郡山市(2014.7.3)
「汚染土壌減容化のためのセシウム移行処理に関する研究」
- 2) 吉田有輝、関谷一輝、野村直希、三島史人、秋山庸子、西嶋茂宏：第3回環境放射能除染研究発表会、福島県郡山市(2014.7.3)
「土壌におけるセシウムの動態に関する研究」
- 3) Y. YOSHIDA, K. SEKIYA, N. NOMURA, F. MISHIMA, Y. AKIYAMA and S. NISHIJIMA: 2014 Applied Superconductivity Conference, Charlotte, USA, (2014,8.10-15)
“Study on volume reduction of contaminated soil by radioactive cesium using the magnetic separation”
- 4) S.NISHIJIMA: The 5th International Forum on Magnetic Force Control in Beijing, Beijing, China, (2014.10.30-31)
“Application of Superconducting Magnetic Separation for Decontamination Soil in Fukusima”
- 5) 福井聡、齊藤公世、秋山庸子、西嶋茂宏、三島史人、長屋重夫、渡部智則：第90回2014年度秋季低温工学・超電導学会、福島県福島市(2014.11.5-7)
「除染範囲の最適決定手法の検討」
- 6) 福井聡：低温工学・超電導学会 2014年度第3回材料研究会シンポジウム、福島県福島市(2014.11.4)
「効果的な除染のためのサイトの決定方法」
- 7) 岡田俊介、野村直希、三島史人、秋山庸子、西嶋茂宏：第90回2014年度秋季低温工学・超電導学会、福島県福島市(2014.11.5-7)
「セシウム動態に基づいた除染技術の研究 その1.住宅建材におけるセシウムイオンの動態に関する研究」
- 8) 野村直希、吉田有輝、関谷一輝、三島史人、秋山庸子、西嶋茂宏：第90回2014年度秋季低温工学・超電導学会、福島県福島市(2014.11.5-7)
「セシウム動態に基づいた除染技術の研究 その2.磁気力制御による汚染土壌の減容化」
- 9) Y.HONDA and S.NISHIJIMA.: 11th International Workshop on Positron and Positronium Chemistry, Goa, India, Nov.9-14,2014
“Application of localized annihilation of positron and σ -Ps”,
- 10) Y.YOSHIDA: 27th International Symposium on Superconductivity (ISS2014), Tokyo, Japan, 2014.11.25-27
“My research and prospect of future energy; Study on decontamination of contaminated soil by radioactive substances using magnetic separation”
- 11) 岡田俊介、三島史人、秋山庸子、西嶋茂宏：日本放射線安全管理学会 第13回学術大会、徳島県徳島市(2014.12.3-5),
「建材におけるセシウムの動態に関する研究」
- 12) 野村直希、吉田有輝、関谷一輝、三島史人、秋山庸子、西嶋茂宏：電気学会 超電導機器研究会、東京都(2015.1.21)
「磁気力制御を用いた除染土壌の減容化に関する研究」

7. 研究者略歴

課題代表者：秋山 庸子

大阪大学大学院工学研究科修了、博士(工学)、現在、大阪大学大学院工学研究科准教授

研究分担者

- 1) 西嶋 茂宏
大阪大学大学院工学研究科修了、博士(工学)、現在、大阪大学大学院工学研究科教授
- 2) 三島 史人
大阪大学大学院工学研究科修了、博士(工学)、現在、大阪大学大学院工学研究科助教
- 3) 菅田 義英
大阪大学大学院工学研究科修了、博士(工学)、現在、大阪大学産業科学研究所准教授
- 4) 矢坂 裕太
室蘭工業大学工業化学科卒業、現在、大阪大学環境安全研究管理センター講師

- 5) 樋口 良之
長岡技術科学大学大学院工学研究科修了、博士(工学)、現在、福島大学 理工学群 共生システム
理工学類教授
- 6) 福井 聡
横浜国立大学大学院工学研究科修了、博士(工学)、新潟大学工学部教授

5Z-1301 セシウムの動態解析に基づく除染シナリオの構築と 磁気力制御型除染法の開発

(1) 環境中のセシウムの動態解析

大阪大学

大学院工学研究科 環境・エネルギー工学専攻

秋山 庸子

西嶋 茂宏

三島 史人

産業科学研究所 量子ビーム科学研究施設

誉田 義英

環境安全研究管理センター

矢坂 裕太

〈研究協力者〉

京都大学原子炉実験所

芝原 雄司

エヌ・エム・ピービジネスサポート株式会社

高橋 正二

平野 靖浩

平成25～26年度累計予算額：53,380千円

(うち、平成26年度予算額：33,384千円)

予算額は、間接経費を含む。

【要旨】

本サブテーマの目的は、住民帰還に密接に関わる生活圏の除染対象である土壌と建材に関するセシウムの微視的動態を明らかにすることで、効果的な除染、或いは減容化の方法を提案することである。

まず土壌については、 ^{137}Cs の標準溶液を用いた学内RI施設での実験、および福島県内での実汚染土壌を用いたセシウム吸着状態の解析、および成分間での移行動態の解析を行った。その結果、土壌中では、セシウムは一旦すべての土壌成分に吸着するが、その後、雨水に含まれる陽イオンによる吸着力の弱い吸着サイトからの脱離と、より吸着力の強い吸着サイトへの移行が繰り返されることにより、2:1型粘土鉱物にセシウムが徐々に濃縮されることが実験的に示された。さらに、実汚染土壌の実験によって、上記の2:1型粘土鉱物への移行を促進できることが示され、サブテーマ(3)の磁気力制御による除去土壌の減容化の前処理として、カリウムイオンを含む希薄溶液を用いた移行処理が有効であることが示された。ここでは自然界中での動態を主な研究対象としているため、この人工的な移行の検証実験の詳細については、サブテーマ(3)にて述べる。

一方、非汚染建材を用いた ^{137}Cs の吸着・脱離実験、および福島県内での実汚染建材を用いた汚染状況の調査により、セシウムの沈着状態について、①吸着形態、②深さ分布、③吸着強さ、の3つの観点から検討を行った。その結果、建材の種類によりセシウムの沈着状態が大きく異なるこ

とが分かり、この結果に基づき、それぞれの建材の特性に応じた線量低減のための対応法を提案した。

[キーワード]

セシウム、土壌、建材、吸着、移行

1. はじめに

福島第一原子力発電所事故に伴い放出された放射性物質により広範囲の地域が汚染され、深刻な環境汚染を引き起こしている¹⁾。事故当時、主な核種は、セシウム134と137であったが、現在は半減期30年のセシウム137が主要な核種となりつつある。政府は事故後から、汚染土壌の表土はぎ取りや建物の除染作業を実施しており、表土剥ぎ取りで排出された土壌は、中間貯蔵施設で保存、減容化した後、最終処分場に保管される予定である²⁾。

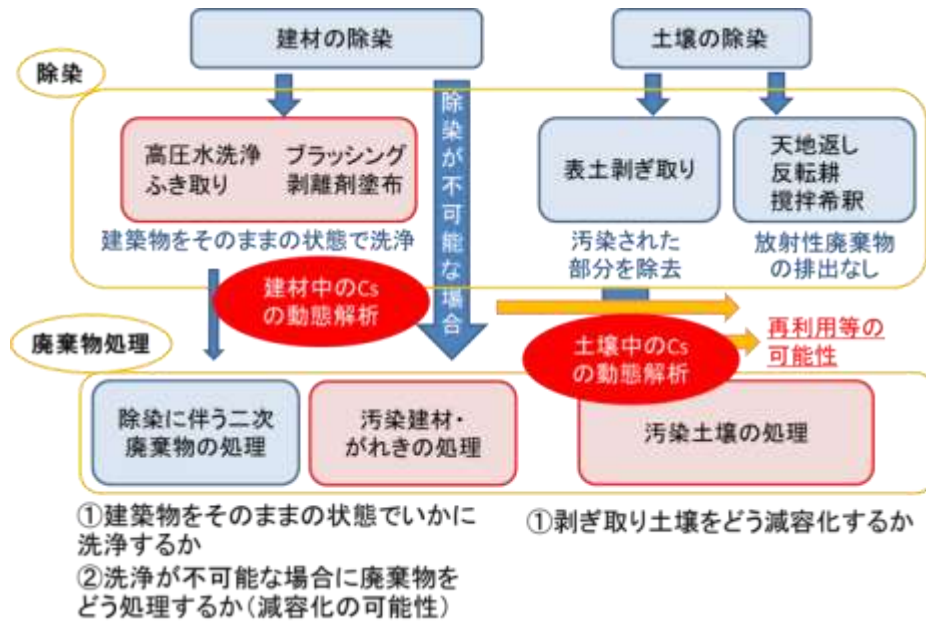
このような状況下において、土壌中や建材中におけるセシウムの存在状態・移行動態を理解することは重要である。なぜならば、事故後から現在、将来にわたってセシウムがどこに、どのような形態で存在するかを明らかにすることにより、事故後の経過時間に応じて最も適切な除染や、廃棄物の減容化のためのシナリオを構築することができるからである。

土壌中での存在状態に関しては、セシウム137が土壌に長期間存在すると、植物・微生物への取り込みを通じた食物連鎖や、水相への浸出の可能性があるが、時間経過に伴い、土壌中におけるセシウムの生物利用能は減少するという報告がある³⁾。これは土壌中において、セシウムの存在状態が経時的に変化していることを示唆し、今後長期間、汚染土壌を安全に保管し、効率的に減容化するためには、このような時間変化に伴う状態変化の原因を明らかにする必要がある。

一方、住宅除染では空間線量率の上昇に寄与する放射性Csが問題となっている。庭土については、表土の剥ぎ取りにより容易にCsを除去できるが、建材の中にはCsを強固に吸着するものが存在し、現在用いられている汎用的な手法では効率的な除染が困難であり、それぞれの建材のセシウム吸着特性に応じた適切な除染方法の提案が求められている。

このように、同じく放射性物質に汚染された土壌と建材であるが、除染や廃棄物減容化にかかる問題点は異なる。図(1)-1に土壌と建材の問題点と課題をまとめている。土壌に関しては、表土剥ぎ取りで汚染部分を除去することで、除染は可能であるが、排出された大量の土壌をどう減容化するかが課題である。一方、建材に関しては、建築物をそのままの状態に洗浄する場合は、いかにして線量を下げることかという課題であるが、内部まで放射性物質が浸透している等の場合で除染が不可能である場合は、それらが廃棄物となるため、その廃棄物をどう処理するかが問題となる。建材が除染可能かどうかの判断、および土壌や建材の除染・減容化の適切な手法の選択のためには、土壌や建材中でセシウムがどのような形態でどこに存在し、それが時間とともにどのように変化しているかということを知ることが重要になる。

そこで本サブテーマでは、(1) 土壌におけるセシウムの沈着状態と吸着強さの検討、(2) 建材におけるセシウムの沈着状態と吸着強さの検討を行った。

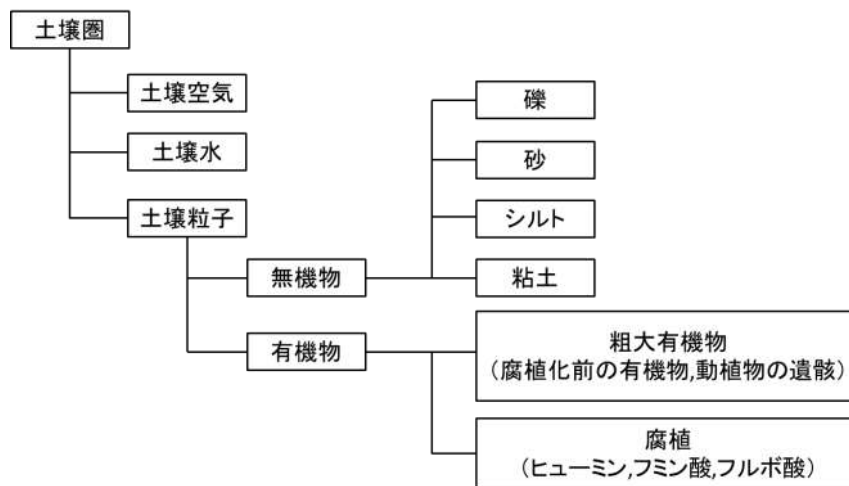


図(1)-1 土壌と建材の除染・廃棄物減容化に係る問題点と課題

(1) 土壌におけるセシウムの沈着状態と吸着強さの検討

1) セシウム吸着要素としての土壌の性質

土壌は様々な物質によって構成されており、気相、液相と固相が存在する。土壌構成を図(1)-2に示す。



図(1)-2 土壌の構成成分

土壌空気は、窒素と酸素が大半を占めるが、大気と比較して酸素が少なく二酸化炭素が多いところが特徴である。土壌水は土壌空気や土壌粒子の様々な成分が溶解した水溶液である。土壌粒子は無機物である鉱物と有機物で構成され、大部分は無機物が占めている。鉱物は粒径によって

表(1)-1に示すように、礫、粗砂、細砂、シルトと粘土に分類される⁴⁾。

表(1)-1 鉱物の粒径による分類⁴⁾

名称	粒径[mm]
礫	2以上
粗砂	0.2~2
細砂	0.02~0.2
シルト	0.002~0.02
粘土	0.002以下

図(1)-2で示したように土壌は様々な物質によって構成され、その中でセシウムがどの部分に吸着されているかを理解することは、汚染土壌を減容化するために重要である。

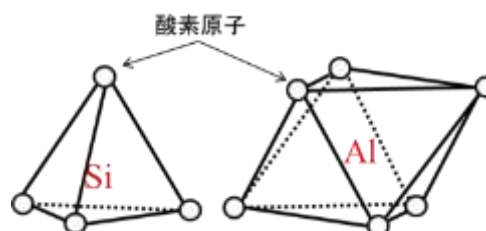
平成23年6月に農林水産省が福島県相馬郡飯館村伊丹沢で粒径ごとの放射性セシウム濃度の調査を行った結果⁵⁾を表(1)-2に示す。これより粒径の小さな粘土が最もセシウムを吸着し、粒径が大きくなるほど、セシウム吸着量が小さいことが分かる。粒径の大きな砂礫のセシウム吸着力は弱いため、水や環境負荷の少ない化学薬品によって容易に脱離させることが可能であることが分かっている。それに対して、セシウム吸着量が大きなシルトや粘土のセシウムを強固に吸着するため、脱離させることが困難である。

これらを踏まえると、砂礫に吸着されたセシウムを吸着量の大きな粘土鉱物に移行させ、シルトと粘土を分級によって土壌から取り除くことで、3分の1程度に減容化が可能であると考えられる。

表(1)-2 土壌表層（0-2.5 cm，飯館村伊丹沢）の粒径別の放射性セシウム濃度の測定結果⁵⁾

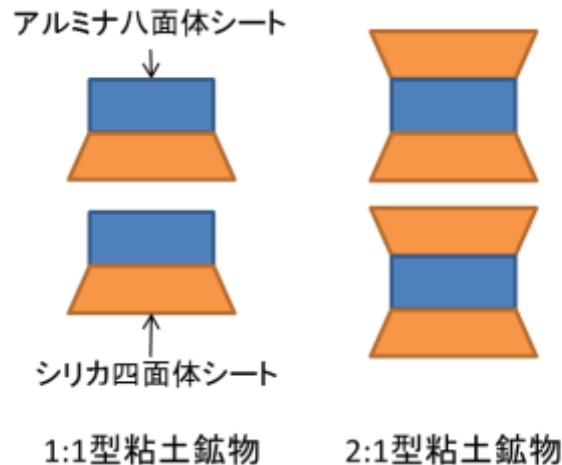
名称	粒径[mm]	組成割合[%]	放射性セシウム濃度[Bq/kg]
粗砂	0.2~2	20.4	25900
細砂	0.02~0.2	45.2	48000
シルト	0.002~0.02	29.6	103300
粘土	0.002以下	4.8	174300

粘土鉱物とは層状ケイ酸塩鉱物のことであり、シリカ四面体シートとアルミナ八面体シートが層状に積み重なった構造⁶⁾をしている。図(1)-3に示すように、シリカ四面体シートとは、ケイ素を中心として四面体の頂点部分に4つの酸素が存在する構造が、シート状に並び形成されている。またアルミナ八面体シートはアルミニウムを中心として八面体の頂点部分に8つの酸素が存在し、それがシート状に並び形成されている。



図(1)-3 シリカ四面体シートとアルミナ八面体シートの模式図

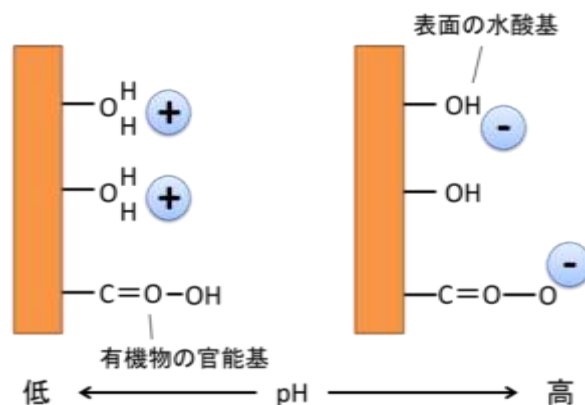
粘土鉱物は、大きく1:1型粘土鉱物と2:1型粘土鉱物に分類される。それぞれの鉱物の模式図を図(1)-4に示す。1:1型粘土鉱物とは、1枚のシリカ四面体シートと1枚のアルミナ八面体シートが結合したものを指す。代表例としてカオリナイトが挙げられる。これに対して2:1型粘土鉱物とは、2枚のシリカ四面体シートと1枚のアルミナ八面体シートが結合した鉱物であり、代表例としてバーミキュライト、イライトやモンモリロナイトが挙げられる。



図(1)-4 1:1型粘土鉱物と2:1型粘土鉱物の模式図

セシウムは1価の陽イオンとなり土壤中に存在し、その多くが粘土鉱物に吸着されるが、粘土鉱物の種類によってその吸着機構は異なる。粘土鉱物における吸着機構⁷⁾は、変位電荷による吸着と永久電荷による吸着に大別される。

変位電荷とは、図(1)-5に示したように粘土鉱物末端のOH基や有機物の官能基が、溶液のpHやイオンの種類、濃度などによって影響を受けて変化する電荷のことである。セシウムイオンは陽イオンであるため、OH基や有機物の官能基が負電荷を帯びるときに吸着されやすい。しかし、pHを変化させることで電荷を変えることが可能であるため、セシウムイオンの脱離が比較的容易である。具体的には、酸性条件下では水素イオンが官能基に多く吸着されるため、変位電荷に吸着されたセシウムイオンが置換され、脱離されやすいことが分かる。



図(1)-5 変位電荷の模式図

それに対して永久電荷とは、2:1型粘土鉱物で主に発生する構造由来の電荷である。シリカ四面体シートのケイ素やアルミナ八面体シートのアルミニウムが他の陽イオンに置き換わることを同形置換という。2:1型粘土鉱物では Si^{4+} が Al^{3+} に、 Al^{3+} が Mg^{2+} や Fe^{2+} に置換することで、電荷のバランスが保たれず負電荷が発生する。それに伴って粘土鉱物の層間が負に帯電し、ここにセシウムイオンを吸着する。同形置換は四面体シートで発生する場合と八面体シートで発生する場合があるが、それぞれのセシウムイオン吸着強度が異なる。

アルミナ八面体シートが同形置換する場合、負電荷の発生部分が層間から遠いためセシウムイオンは弱く吸着される。それに対して、シリカ四面体シートで同型置換が起こる場合は、負電荷の発生部位が層間に近いため、セシウムイオンは層間により強く吸着される。

さらに、多くのセシウムイオンが層間に吸着されると、セシウムを介して四面体シート同士が引き寄せられ、静電相互的作用以外にも、四面体シートの形状的特徴がセシウムイオンの吸着に影響を与える。四面体シートには、半径が約0.13 nmの空孔が存在する。層間が閉じると、この2つの空孔が合わさって空洞を作る。セシウムイオンのイオン半径は約0.16 nm⁴)であるため、層間に静電的に吸着されたセシウムイオンはこの空洞に固定される。これによりセシウムイオンを層間に閉じ込め、固定するメカニズムである。

以上より、四面体シートに永久電荷を持つ2:1型粘土鉱物は、静電相互的作用と形状的特徴が合わさることで、セシウムイオンを強固に吸着・固定するため、容易に脱離させることは難しい。これに対して、1:1型粘土鉱物はシートの電荷不足が少ないため、ほとんど負電荷を生じない。そのため、永久電荷によるセシウムイオンの吸着は少なく、変位電荷によってセシウムイオンを吸着する。よって、1:1型粘土鉱物の外部条件を変化させることで、容易に脱離が可能である。

2) 土壌中のセシウムの微視的動態の解析

これらの背景を元に、本研究ではまず、東北地方の一般的な土壌に含まれる各成分をモデル物質として用い、事故後から現在までの、土壌におけるセシウムの存在状態、移行動態の解明を目的とした模擬実験を行った。本研究の特徴は、半透膜を用いたことにある。これにより、様々な成分・吸着サイトが混在する実土壌体系において、イオンのみが通過できる膜に隔てられた状態に各土壌成分を保持したままで浸漬・乾燥・分析することで、セシウムの成分間での移行を調査可能とした。

本研究で行った実験は、大きく3つに分けられる。まず予備実験として、本研究に用いた試料(れき、砂、フミン酸、カオリナイト、イライト、パーミキュライト、モンモリロナイト)のセシウム吸着特性を評価した。これらは、福島県の土壌を構成する代表的な成分である。各試料に個別に同量のセシウムを添加することで、セシウム吸着量を求めた。次に、事故直後のセシウムの存在状態として、実際の土壌を模擬した土壌混合系にセシウムを添加し、土壌沈着後まもないセシウムの各土壌成分への吸着挙動を調査した。最後に、事故後のセシウムの移行動態として、土壌に存在するセシウムの状態変化に与える雨水の影響について調査した。以上の実験結果をもとに、事故後から現在までの、土壌におけるセシウムの動態について考察を行った。

さらに、粘土鉱物のセシウム吸着能についてナノスケール構造や空孔内の電荷について実験的に推定することができる手法として、陽電子消滅法を用いた寿命測定と消滅ガンマ線のドップラー広がり測定を行った。

(2) 建材におけるセシウムの沈着状態と吸着強さの検討

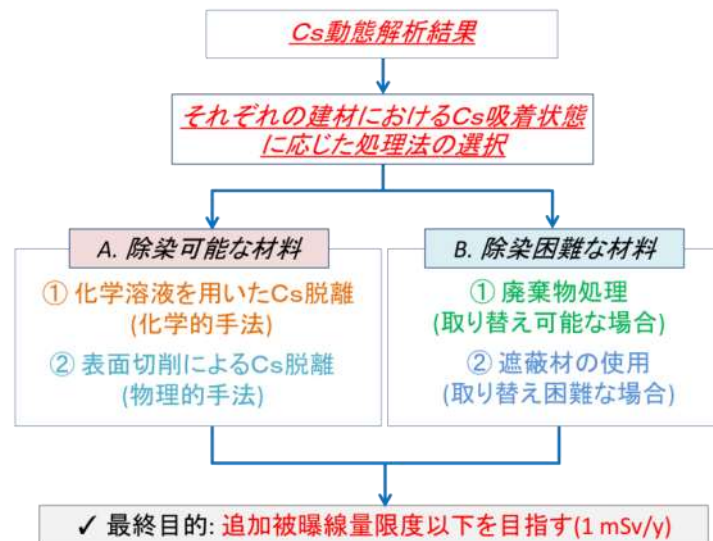
住宅地における除染作業では、庭土の表土剥ぎ取り、屋根や壁等の高圧水洗浄や拭き取りが行われている。しかし、除染特別地域内の高線量地域では、除染後も追加被曝線量限度である1 mSv/年(0.23 μSv/h)を満たしていない地域が広範囲に存在している。

住宅地において庭土の除染を行う場合、表土2～6 cmを除去することでおよそ90 %のセシウムを除去可能である^{8,9)}。しかし、建材の中にはセシウムを強固に吸着するものが存在し、現在用いられている汎用的な手法では効率的な除染が困難である。このように除染後も建材表面に残存したセシウムが、宅地において空間線量率を引き上げる主な要因の一つになっていると推測される。また追加被曝線量1 mSv/年から、一時間当たりの追加被曝線量(μSv/h)を算出する際、一日の3分の2を屋内で過ごすとして計算が行われている。この推定の基礎となる屋内の空間線量率は、建材表面の汚染状況に大きく依存すると考えられ、被曝線量を効果的に低減するためにも、放射線源となっている建材の除染が有効である。現在問題となっている放射性セシウムの多くは、CsOHやCsClの形態で放出され、水溶性のエアロゾル粒子を輸送担体として大気中を移動した¹⁰⁾。その後、住宅地に沈着したセシウムは、雨水に溶解してイオンの状態で建材に吸着したと考えられる。しかし、土壌に沈着したセシウムは、有機物粒子や土壌粒子等を輸送担体として再飛散を繰り返しており^{11,12)}、粒子を媒介して間接的に吸着したセシウムも建材表面の汚染に寄与していると推測される。

これらのセシウムのうち、粒子の状態で吸着したセシウムは比較的容易に除去可能であるが、イオンの状態で吸着したセシウムは建材と強固に結合している¹³⁾。このように先行研究では、セシウムと建材の相互作用について一定の見解が示されているが、建材の特性に応じた具体的な除染手法を提案している研究は数少ない。そこで本研究では、さらなる空間線量率低減のために、各建材表面におけるCs動態解析に基づいた除染プロセスについて検討した。

図(1)-6にCs動態解析に基づいた建材除染の流れを示す。動態解析の結果、除染が可能であると判断された建材(A)については、溶液等を用いた化学的な手法や、表面切削等の物理的な手法により線量低減を行う。しかし建材の中には、こういった手法によっても除染が困難なもの(B)が存在すると想定される。そのような建材のうち、取り換えが可能なものについては廃棄物として処理し、取り換えが困難なものについては、遮蔽材によって放射線の遮蔽を行う。このように各建材の特性に応じて適切な処理方法を選択し、住宅地における空間線量率を1 mSv/年以下まで低減することを目指すのが望ましいと我々は考えている。また本研究成果は、福島第一原子力発電所の廃止措置に向けた環境改善作業のうち、ガレキによる空間線量の低減にも資する基礎的知見となると考えられる。

本研究は、住宅建材の中でも比較的高線量である屋根材に用いられているセメント系材料、木材、粘土瓦、トタン材を対象とした。まず、各建材におけるCs動態を明らかにするために、(i) セシウムの吸着形態、(ii) 深さ方向の分布、(iii) 吸着強度の3つの観点から調査を行った。次に、これらの実験結果を基に、それぞれの建材に最適な除染プロセスについて検討した。



図(1)-6 セシウムの吸着状態に応じた建材の除染方法のフロー図

2. 研究開発目的

本研究開発の目的は、土壌や建材などの生活圏を中心とした環境中のセシウムの動態解析を行うことで、それぞれの除染対象物質・対象地域に対して最も効果的な除染、減容化および保管の方法を明らかにし、除染対象地域の追加被ばく線量を最小限の労力、予算、期間で最終的に1 mSv/年以下にするための除染シナリオを構築することである。そのために、本サブテーマでは、特に生活圏周辺に存在する土壌および建材中のセシウムの微視的な動態について、以下のことを明らかにすることを目的とする。

土壌や建材を中心とした除染対象について、Csの沈着状態、微構造、結合の強さについて分析し、どのような形態のCsがそれぞれどのくらい存在するか、またどのような手法によって除去することが可能であるかを検討し、効果的な除染方法を明らかにする。また、サブテーマ3と連携して、土壌において、1:1型粘土鉱物中の変異電荷に吸着している比較的脱離の容易なCsイオンを、強く固定化するサイトである2:1型粘土鉱物のフレイドエッジサイトに移行するための条件を検討する。特に、事故から現在までの経時的なセシウムの移行、および将来的なセシウムの移行について検討し、自然界での移行条件に基づいた効率的な除染・減容化方法の検討を行う。

3. 研究開発方法

(1) 土壌におけるセシウムの沈着状態と吸着強さの検討

半透膜と模擬試料を用いて、土壌におけるCsの微視的動態について検討した。特に1) 土壌沈着直後のCsの存在状態、2) 事故後のセシウムの移行動態（特に雨水による移行動態）の2点について検討した。さらに、陽電子消滅分光法（PAS）を用いて、フレイドエッジサイトのような欠陥や交換したカチオンの検出に有効であるかどうかを調べた。それぞれの詳細な実験方法を以下に示す。

1) 土壌沈着直後のCsの存在状態

まず予備実験として、本研究で用いた各試料のセシウム吸着量を調査した。セシウム吸着量は、

各試料に、個別に同量のセシウムを添加することで求めた。まず各試料2 gを半透膜（UC36-32-100, Viskase Companies, Inc.）で包んだ。半透膜の孔径は500 nm、透過分子量は14000である。半透膜に包んだ各試料2 gを、セシウム濃度10000 Bq/LのCs-137溶液50 mL（（公）日本アイソトープ協会、セシウム137放射能標準溶液（CS010）、Cesium chloride in 0.1 M HCl, 9.65×10⁴Bq/gを蒸留水により希釈して使用）に、それぞれ個別に、固液比1:25で添加し、1時間静置した。浸漬時間を1時間に設定した理由として、雨水は経時的に鉛直方向に浸透していくため、一般的な土壌の透水係数から大まかに定めた。溶液から取り出した半透膜から溶液と懸濁した状態にある試料の一部を回収し、ろ紙上で乾燥するまで静置した。その後、各試料の重量と放射線量をGe半導体検出器（GEM-25P, ORTEC）により測定した（測定時間10分）。この結果から、各試料のセシウム吸着量を算出した。ただし、各試料に対し、有機物除去処理は行っていない。これは処理過程において、過酸化水素・加熱により、粒子構成が破壊・変形し、吸着特性が変化することを防ぐためである¹⁴⁾。

なお本研究ではすべての実験で、半透膜に各土壌成分のサンプルを入れて、そのまま乾燥させて吸着量を計測している。まず半透膜を用いた理由は、溶液中にすべての成分を混合して分散させると、各成分への再分離が不可能となるため、それぞれの成分を分離した状態で、しかも同じ溶液中に共存した状態を作り、浸漬後に再分離して各成分間の移行を追跡するためである。また吸引濾過を用いず、ろ紙上で乾燥させたのは、雨水が浸透したのちに室温付近で徐々に乾燥するという、実土壌での降雨・乾燥サイクルを模擬するためである。なお予備実験により、半透膜に包んだままの状態と取り出した状態で同じサンプルを計測し、線量の測定値の違いが数%程度であることをあらかじめ確認した。

次に、土壌沈着直後のCsの存在状態を調べるため、7試料（れき、砂、フミン酸、カオリナイト、イライト、バーミキュライト、モンモリロナイト）の混合系にCsを同時に添加した際の、各試料のセシウム吸着量を調査した。本実験は、福島第一原子力発電所事故後まもない段階での、土壌におけるセシウムの存在状態を明らかにすることを目的としている。半透膜に包んだ各試料2 gを、全て同時に、セシウム濃度10000 Bq/LのCs-137溶液（Cesium chloride in 0.1 M HCl）350 mLに添加した（7つの試料を1つの溶液に同時に添加した）。7試料（2 g×7）と溶液（350 mL）の固液比は1:25である。その後、1時間静置し、溶液から半透膜を取り出し、半透膜から試料を回収して乾燥させた。各試料の重量と放射線量をGe半導体検出器により測定した（測定時間10分）。この結果から、各試料のセシウム吸着量を算出した。

2) 事故後のセシウムの移行動態

土壌に存在するセシウムの状態変化に与える雨水の影響について調査した。雨水中には、カリウム・ナトリウム・マグネシウム・カルシウムイオン等、陽イオンが数mg/L程度含まれる、これらはセシウムの挙動に影響すると考えられる¹⁵⁾。本実験の試料としては、土壌の大部分を占める砂、代表的な有機物としてフミン酸、1:1型・2:1型粘土鉱物としてカオリナイト・バーミキュライト、の4種類を用いた。手順は大まかに、1. 雨水添加前のCs存在量の算出、2. 雨水添加後のCs存在量の算出の2つに分けられる。

まず、半透膜に包んだそれぞれの試料2.0 gを、全て同時に、セシウム濃度10000 Bq/Lの塩化セシウム溶液200 mLに添加した（4つの試料を1つの溶液に同時に添加した）。1時間静置後、溶液から試料を包んだ半透膜を取り出し、キムタオル上で24時間、20℃で乾燥させた。その後、Ge半導体

検出器を用いて、半透膜に包んだ状態のまま各試料の放射線量を測定した。測定時間は10分である。本結果を、雨水添加前のCs存在量とする。このとき、半透膜内の試料重量は2.0 gであった。

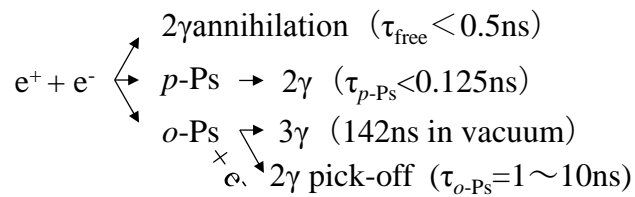
次に、先ほどの半透膜に包んだ各試料を同時に、雨水を模擬した溶液200 mLに添加した。本溶液は、カリウム、ナトリウム、カルシウム、マグネシウムイオン濃度をそれぞれ5 mg/Lに調製したpH=6.9の溶液である。1時間静置した後、溶液から各試料を包んだ半透膜を取り出し、キムタオル上で24時間、20℃で乾燥させた。その後、半透膜に包んだままの状態各試料の放射線量を測定した。本結果を、雨水添加後のCs存在量とする。このとき、各試料の重量は2.0 gであった。さらに、各試料から溶出したセシウムが、セシウムをまだ吸着していない土壌下層に移動した際の挙動について検討するため、試料を取り出した模擬雨水溶液中に、新たに別の未処理の砂・フミン酸・カオリナイト・バーミキュライト2.0 gを同時に添加した。本過程は、実際の土壌において、雨水の影響により、土壌成分から水相に溶出したセシウムが、水相を介して、あるいは雨水自体の浸透に伴い、他の成分に移行する可能性について検討している。1時間静置後、同様の方法で各試料を乾燥させ、放射線量を測定した。

また、本実験結果について考察するため、各試料のセシウム吸着強度を調査した。半透膜に包んだ各試料2.0 gを、10000 Bq/Lの塩化セシウム溶液50 mLに、それぞれ個別に、固液比1:25で添加した。1時間静置した後、キムタオル上で24時間、20℃で乾燥させた。乾燥後、半透膜に包んだ状態で各試料の放射線量を測定した。本結果を、セシウム吸着量(I)とする。続いて、先ほどの半透膜に包まれた各試料を0.5 mol/Lの酢酸アンモニウム溶液に、固液比1:25で添加し、1時間静置した。酢酸アンモニウム溶液は、粘土鉱物や有機物に吸着されている交換態セシウム量を評価する際に用いられる試薬である^{16,17)}。静置後、24時間、20℃で乾燥させ、半透膜に包んだままの状態各試料の放射線量を測定した。本結果を、セシウム吸着量(II)とする。以下の式(1)-1を用いて、各試料からのセシウム抽出率を算出した。

$$\text{セシウム抽出率[\%]} = (1 - (\text{セシウム吸着量(II)}) / (\text{セシウム吸着量(I)})) \times 100[\%] \quad (1)-1$$

3) 陽電子を用いたセシウム吸着性能に係る鉱物評価

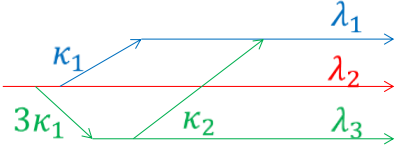
陽電子消滅分光法(PAS)を用いて、フレイドエッジサイトのような欠陥や交換したカチオンの検出に有効であるかどうかを調べた。測定した試料は1:1型粘土鉱物のカオリナイト、2:1型粘土鉱物のバーミキュライト(焼成の有無)、モンモリロナイト、イライトであり、特にイライトに関してはイライト65%、カオリナイト25%の混成品であった。また園芸店で販売している土壌も測定した。粘土鉱物の構造変化を避けるため、前処理をせずに計測した。X線回折実験とTEMによる電子顕微鏡像の観察も行った。消滅γ線の計測には約420 kBqのNa-22線源を用い、寿命測定には通常のコインシデンスシステムを用い、時間分解能は220-240 psであった。コインシデンスドップラー拡がり測定(CDB)も2台のゲルマニウム半導体検出器を用いて行った。これらの結果と、上記の手法で行った実際の放射性Csの吸着能との関係を照合して考察を行った。



図(1)-7 物質中での陽電子の消滅過程

陽電子消滅法の概要を以下に示す。

$n_1 : p - Ps$
 $n_2 : \text{positron}$
 $n_3 : o - Ps$



$$\begin{aligned}
 \frac{\partial n_2}{\partial t} &= -(\lambda_2 + \kappa_1 + 3\kappa_1)n_2 \\
 &\Rightarrow n_2 = I_2 e^{-(\lambda_2 + 4\kappa_1)t} \\
 \frac{\partial n_3}{\partial t} &= -(\lambda_3 + \kappa_2)n_3 + 3\kappa_1 n_2 \\
 &\Rightarrow n_3 = \frac{3\kappa_1}{\lambda_3 + \kappa_2 - (\lambda_2 + 4\kappa_1)} I_2 e^{-(\lambda_2 + 4\kappa_1)t} + I_3 e^{-(\lambda_3 + \kappa_2)t} \\
 \frac{\partial n_1}{\partial t} &= -\lambda_1 n_1 + \kappa_1 n_2 + \kappa_2 n_3 \\
 &\Rightarrow n_1 = I_1 e^{-\lambda_1 t} + \frac{\kappa_1(\lambda_3 - \lambda_2 + 4(\kappa_2 - \kappa_1))}{(\lambda_3 - \lambda_2 + \kappa_2 - 4\kappa_1)(\lambda_1 - \lambda_2 - 4\kappa_1)} I_2 e^{-(\lambda_2 + 4\kappa_1)t} + \frac{\kappa_2}{(\lambda_1 - \lambda_3 - \kappa_2)} I_3 e^{-(\lambda_3 + \kappa_2)t}
 \end{aligned}$$

図(1)-8 陽電子寿命の定式化

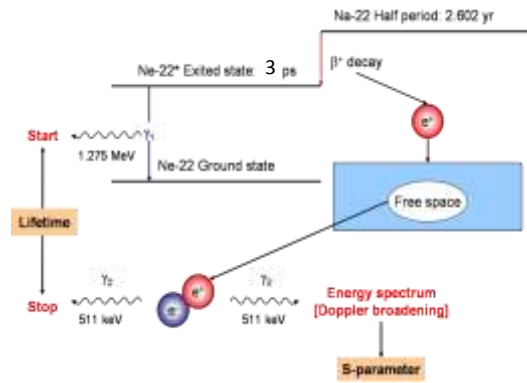
陽電子が固体に入射したとき、図(1)-7に示すような過程を経て消滅する。特に高分子のような多孔質物質においては、陽電子は多くの場合周囲の電子と共に束縛状態 (Ps, ポジトロニウム) を形成した後、3重項状態の場合 (*o*-Ps) は3光子消滅するか周辺の電子と対消滅 (ピックオフ消滅と呼ぶ) し、1重項 (*p*-Ps) の場合自己消滅する。*o*-Psの消滅まで考えた時の消滅モデルを図(1)-8に示す。 κ_1 は*p*-Ps(単重項)を形成する確率で、*o*-Psは3重項状態なのでこの3倍となる。また、*o*-Psからスピン交換で*p*-Psになる確率を κ_2 としている。これらの式から、このモデルでは陽電子寿命は3つの特徴的時間で記述されることがわかる。更に*o*-Psの寿命とナノ空孔サイズは、2次元球形井戸型ポテンシャル中に*o*-Psがトラップされており、壁付近の $\Delta R (=R_0 - R)$ で陽電子が周囲の電子とピックオフ消滅するというTaoモデルに従い定式化された、次式に示すTao-Eldrup式で関係づけられている。

$$\tau_3 = 0.5 \left[1 - \frac{R}{R_0} + \frac{1}{2\pi} \sin \left(\frac{2\pi R}{R_0} \right) \right]^{-1}$$

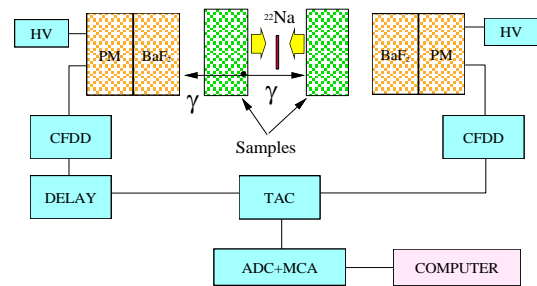
ここで、 τ_3 は図(1)-8で κ_2 が λ_3 に比べかなり小さいときには $1/\lambda_3$ で表される、*o*-Psの寿命である。

・陽電子寿命測定 (PALS)

図(1)-9に²²Na陽電子線源を用いた時の陽電子寿命測定の様式図を示す。線源には²²Naが良く用いられる。これは半減期がある程度長いこと、陽電子の放出に伴い放出されるγ線は殆どこの1.27 MeVのγ線だけであること、高額ではないことなどが理由である。測定方法は線源を試料で挟み、1.27 MeVのγ線と0.511 MeVの消滅γ線の時間差を計測する(図(1)-10)。この図に示すように、γ線の検出には量子効率が高く、光電ピークが得られやすく、光の減衰が早いことが要求されるため、BaF₂シンチレータがよく用いられている。光電子増倍管に対しても時間応答性の良いものを選ばれる。夫々の光電子増倍管から出た電気信号は、一般的には信号の発生時刻を決めるためのCFDD(Constant Fraction Differential Discriminator)、時間差を電圧に変換するためのTPHC(Time to Pulse Height Converter)、多チャンネル波高弁別器と送られ、消滅時刻に関するスペクトルが得られることになる。陽電子の寿命スペクトルは消滅γ線に対応するフォトン



図(1)-9 陽電子寿命測定



図(1)-10 陽電子寿命測定の設定アップ

の時間変化で表され、図(1)-11に示す式で与えられる。 I_i は τ_i で特徴づけられる消滅過程の相対強度を示しており、B.G.はバックグラウンドである。上述したように消滅過程が複数個ありお互いに関係している場合には連立方程式を解かなければならないが、多くの場合2成分、3成分の寿命を仮定すればうまくスペクトルにフィッティングできることがわかっている。特に σ -Psに対応する長寿命成分が対数でよくあらわされる場合には、寿命の小さい方から順に1重項状態のパラポジトロニウム(p -Ps)の寿命あるいは陽電子の自由消滅、 σ -Psの寿命と考えることができる。

・消滅γ線エネルギースペクトル測定

消滅γ線は消滅時の電子と陽電子の合成運動量が0でない限り、運動量保存の法則から180°方向と若干ずれた方向に放出される。陽電子は物質に入射後数psで熱化すると考えられており、消滅γ線に反映される運動量は殆ど電子に由来するものである。これを様式図として図(1)-11に示す。 p は電子の運動量である。

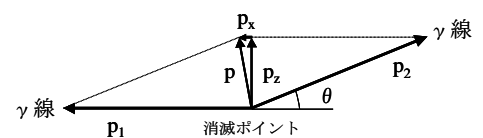
$$N(t) = \sum_{i=1}^n \frac{I_i}{\tau_i} \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right) + B.G.$$

エネルギー保存則より

$$cp_1 + cp_2 = 2m_0 c^2, \quad (m_0 \text{は電子の静止質量})$$

運動量保存則より

$$p_1 - p_2 \cos\theta = p_x$$



図(1)-11 消滅γ線の運動量依存性

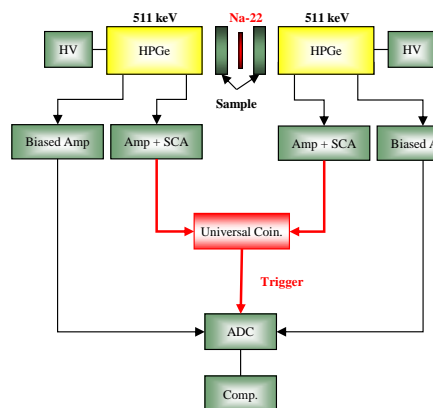
となり、 θ が小さいと2本の γ 線のエネルギーは

$$E = mc^2 \pm \frac{pc}{2}$$

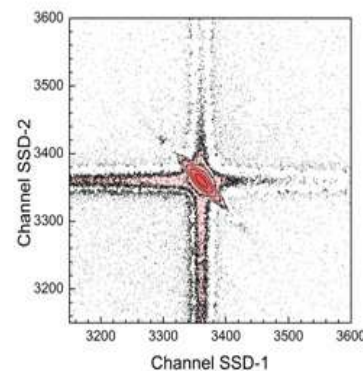
と書き表され、ドップラー効果により $\pm pc/2$ だけエネルギースペクトルが広がることになる。一般に消滅 γ 線の運動量には電子の運動量が加算されている。運動量分解能を上げるためには、エネルギー分解能の良い検出器を使う必要があるため、高純度の半導体検出器 (HPGe) が用いられる。陽電子が特定原子と選択的に消滅することなどもこのドップラー広がり測定から調べられる。

・消滅 γ 線2光子同時計測 (CDB)

消滅 γ 線ドップラー広がり測定法は装置の配置が簡単であるため、広く利用されているが、この手法では α -Psが3光子消滅するときに発生する γ 線も計測してしまうため、分解能の面で角相関法には劣る。この欠点を補うため、線源を介して反対側にもう1台検出器を置きHPGeの信号と同期を取り、2光子消滅の成分だけを検出する方法が消滅 γ 線2光子同時測定法 (Coincident Doppler Broadening Measurement Method) である。この測定系を図(1)-12に示す。また、この方法で得られる2次元エネルギースペクトルを図(1)-13に示す。左斜め上から右斜め下にスペクトルが広がっているのがわかる。これがドップラー効果により広がった消滅 γ 線光電ピークであり、この部分を抽出することで高いS/Nで光電ピーク形状を高エネルギー部分まで評価することが可能となる。実際のデータ処理では図(1)-13に示す2次元マッピングしたものを光電ピークの中心を軸に45度回転し、ドップラーシフトに絡む γ 線のエネルギースペクトルを得た後、これらの比を取ることによって陽電子消滅が異種の電子と起ったかどうかの比較を行った。



図(1)-12 コインシデンスドップラー (CDB) の測定系



図(1)-13 CDB法で得られた2次元エネルギースペクトル

(2) 建材におけるセシウムの沈着状態と吸着強さの検討

建材表面に吸着したセシウムには、イオンの状態で直接吸着したものと、粒子を媒介して間接的に吸着したものが存在すると想定される。したがって、どのような形態で吸着しているか、どのくらいの深さまで分布しているか、またどのくらいの強さで吸着しているかということは、建材の種類によって大きく異なると予想される。

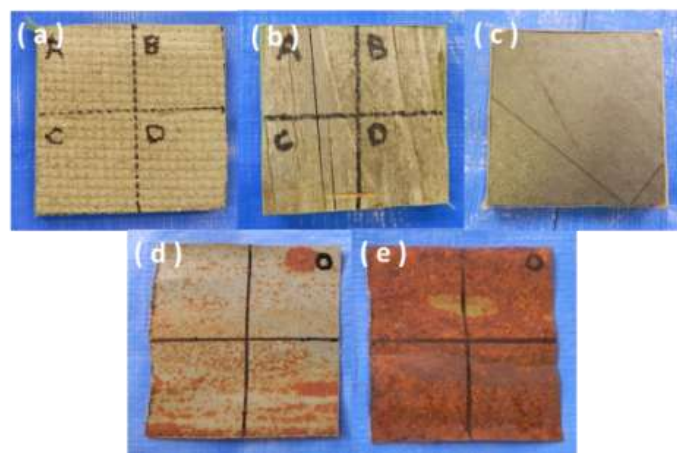
そこで、本研究では建材におけるセシウムの吸着動態を、1) 吸着形態、2) 深さ分布、3) 吸着強さ、の3つの観点から明らかにし、住宅地の空間線量率を効果的に低減する手法を提案することを目標とした。それぞれの詳細な実験方法を以下に示す。

1) セシウムの吸着形態の検討

建材表面に吸着したセシウムには、イオンの状態で直接吸着したものと、粒子を媒介して間接的に吸着したものが存在すると想定される。これらの表面汚染への寄与についての調査を目的として以下の実験を行った。

はじめに福島県川俣町で採取した実汚染物(セメント瓦、木材、粘土瓦、トタン材)を用いて試料片を作製した。トタン材は腐食の程度の異なる2種類の試料を用意し、腐食の程度の小さいものをトタンA、大きいものをトタンBとした。作製した試料片の様子を図(1)-14、寸法を表(1)-3 (SIZE I)に示した。試料は測定面以外を防水テープでマスキングし、前処理として水道水に10分間浸漬後、80℃で乾燥させた。乾燥後、GM計数管(TGS-146B, ALOKA)を用いて時定数30秒で120秒間計数率を測定し、5回の平均値を求めた。

次に、間接的に吸着したセシウムの表面汚染への寄与を調べるために、50 mLの水道水で10分間超音波洗浄し(43 kHz)、表面に吸着した粒子を脱離した。試料片を80℃で乾燥させ、GM計数管を用いて試料片の計数率測定を行った。このとき、超音波洗浄前後の計数率の変化量を粒子に吸着したCsの脱離によるものとし、表面線量への寄与割合を算出した。また粒子に吸着したセシウムと、ろ液に溶け出すイオン状態のセシウムについて確認するため、洗浄水を孔径0.45 μmのメンブランフィルターを用いてろ過した。分離粒子は80℃で乾燥後、顕微鏡観察した。ろ液と分離粒子は計数率をCsIシンチレーション式サーベイメータ (KRS2000, Kansai Electronics Co., Ltd.)を用いて1800秒間測定した。そして ^{134}Cs と ^{137}Cs のピーク(796 keV, 662 keV)の計数率の和によって評価を行った。



図(1)-14 実験に使用した実汚染建材サンプル
(a)セメント瓦, (b)木材, (c)粘土瓦, (d)トタンA, (e)トタンB

表(1)-3 実汚染建材サンプルの大きさ

実汚染建材サンプル	セメント瓦	木材	粘土瓦	トタンA	トタンB
Size I (W mm×D mm×H mm)	80 × 80 × 14	55 × 55 × 14	60 × 60 × 14	60 × 60 × 1.1	60 × 60 × 1.1
Size II (W mm×D mm×H mm)	50 × 50 × 13	50 × 50 × 12	50 × 50 × 17	-	50 × 50 × 1.1

2) セシウムの深さ分布の検討

上記の実験結果から、建材の表面汚染は、イオンの状態で吸着しているセシウムが大きく寄与していることが明らかになった。このようなイオンの状態で吸着したセシウムを物理的に除去する場合、建材表面からどの程度の深さまで拡散しているのかを調査する必要がある。ここではセシウムの深さ分布を調査するために、以下の実験を行った。

実験には、超音波洗浄をした後のセメント瓦、木材、粘土瓦、トタンA、Bを用いた。それぞれの試料表面を、ディスクグラインダーを用いて切削し、その後切削深さごとの表面の計数率を測定した。切削深さは試料片の厚さをノギスで測定し、切削前の厚さと切削後の厚さとの差分とした。計数率はCsIシンチレーション式サーベイメータを用いて600秒間測定した。そして¹³⁴Csと¹³⁷Csのピーク(796 keV, 662 keV)の計数率の和によって、深さ分布の評価を行った。

3) セシウムの吸着強さの検討

前項では物理的な除去手法への応用を想定し、セシウムの空間分布について調査した。本項では化学的な手法で除染を行う際に必要とされる、イオン状態で吸着したセシウムの吸着強度について調査した。実験には硝酸(以下HNO₃)と塩化カリウム溶液(以下KCl)の2種類の溶液を用意し、濃度の異なる溶液に段階的に浸漬することで、溶液中のカチオンの種類(オキソニウムイオン、カリウムイオン)とその存在量による脱離効果の違いを評価した。

はじめに1), 2)で述べた実験と同じ実汚染物(セメント瓦、木材、粘土瓦、トタンB)を用いて、各試料につき2個ずつ同寸法の試料片を作製し、Sample I、Sample IIとした。作製した試料片の寸法を表(1)-3 (SIZE II)に示した。粒子で吸着したセシウムを脱離するために、すべての試料片を50 mLの水道水で10分間超音波洗浄(100 rpm)し、洗浄後80 °Cで乾燥させた。

まず、Sample IをHNO₃ (0.01 mol/L)に1時間浸漬、振とうし、計数率の測定を行った。測定後HNO₃ (0.05 mol/L)を用いてSample IIに対して同様の処理を行い、計数率を測定した。さらにHNO₃ (0.1 mol/L)を用いて同様の処理を行い、計数率測定を行った。これらの処理により、溶液中のカチオン存在量が脱離効果に与える影響を調べた。計数率測定は、NaIシンチレーション式サーベイメータ(EMF211, EMF Japan Co.,Ltd.)を用いて600秒間行い、¹³⁴Csと¹³⁷Csのピーク(796 keV, 662 keV)の計数率の和を算出した。そして測定結果から、式(1)-2によりセシウムの脱離率を求めた。C_aは超音波洗浄後の計数率(cps)を示しており、C_bは各溶液に浸漬、振とう後の計数率(cps)を示している。

$$Removal\ ratio = \left(1 - \frac{C_b}{C_a}\right) \times 100 \quad (1)-2$$

次に、溶液中のカチオンの種類による脱離効果の違いを比較するために、Sample Iと同様の手順で、Sample IIを KCl (0.01 mol/L, 0.05 mol/L, 0.1 mol/L)に段階的に浸漬、振とうし、計数率測定を行った。測定結果から、各洗浄段階におけるCs脱離率を(1)-2により算出した。

4) 非破壊での放射能面密度、浸透深さの計測

福島県内にて採取した御影石サンプルについて、表面からの深さ測定から、放射能面密度、浸透深さの測定を行った。タイルは、白御影石と呼ばれる花崗岩で、大きさは15x15cm、厚みは1.2cmである。現地にて簡単に水洗浄を行ったのち、紙でふき取りを行った。

重量は712g、比重は2.68g/cm³であった。

表面裏面をそれぞれA面、B面とする。A面は平滑ではあるがざらざらした梨地面であり、一方でB面は平滑化したあと鏡面に仕上げられていた。

まず、GMサーベイメータによる表面放出率の測定を行った。ポリエチレンラップフィルム(12μ)で包み、GM管をサンプル上に直接配置して測定した。時定数はいずれも30秒で行った。また、直径50mmの穴をあけた厚さ5mmアクリル板を使い、中心部で穴のない部分(ガンマ線成分)、穴部(ガンマ線+ベータ線、転換電子)を測定した。

さらに、エヌ・エム・ピービジネスサポート(株)にて開発された、特性X線表面汚染密度測定装置を用いて、形状の異なるパラレルコリメータおよびスラントコリメータを使用してセシウムの浸透深さ、放射能面密度を測定した。X線の入射角度が異なる2種のコリメータを使用し、X線の減弱度を比較することで、放射能の浸透度を概算することが可能となる。

また参照実験として、あらかじめ校正した²²NaIを使用して、定位置に試料の御影石タイルを置いて、全放射能を測定した。

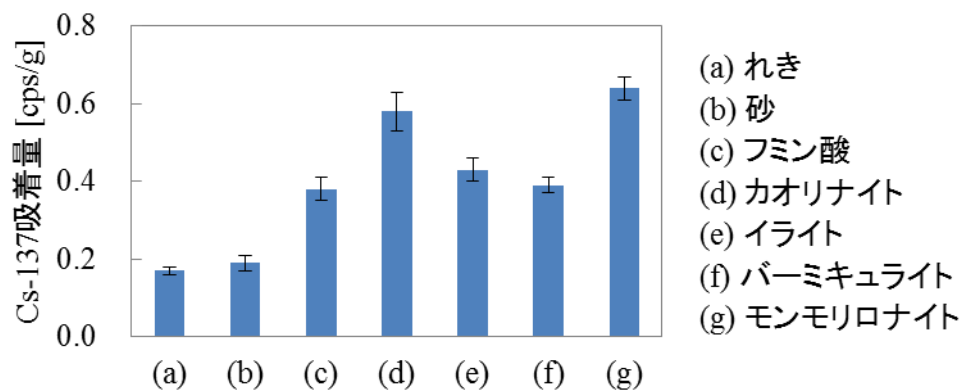
4. 結果及び考察

(1) 土壌におけるセシウムの沈着状態と吸着強さの検討

1) 土壌沈着直後のCsの存在状態

本研究で用いた各試料のセシウム吸着量を計測した結果を図(1)-15に示す。Cs-137の吸着量を放射線量により表すと、れき0.17±0.01 cps/g、砂0.19±0.02 cps/g、フミン酸0.38±0.03 cps/g、カオリナイト0.58±0.05 cps/g、イライト0.43±0.03 cps/g、バーミキュライト0.39±0.02 cps/g、モンモリロナイト0.64±0.03 cps/gとなり、れき・砂に比べ、フミン酸・粘土鉱物のセシウム吸着量が大きくなった。

れき、砂は粒子表面のイオン交換性の表面電荷によって、フミン酸は官能基によって、粘土鉱物はイオン交換性の表面電荷とFrayed edge siteによってセシウムを吸着する。用いた各試料の粒径は、れきが2 mm~4 mm、砂が75 μm~2 mm、フミン酸と粘土鉱物が数十μm程度以下であった。ゆえに、フミン酸・粘土鉱物は、れき・砂に比べ比表面積が大きい。加えて、主にカルボキシル基、表面水酸基および同形置換によって、多くの負電荷を有する^{15,18,19}。このため、フミン酸・粘土鉱物はれき・砂に比べ、高いセシウム吸着量を示したと考えられる。



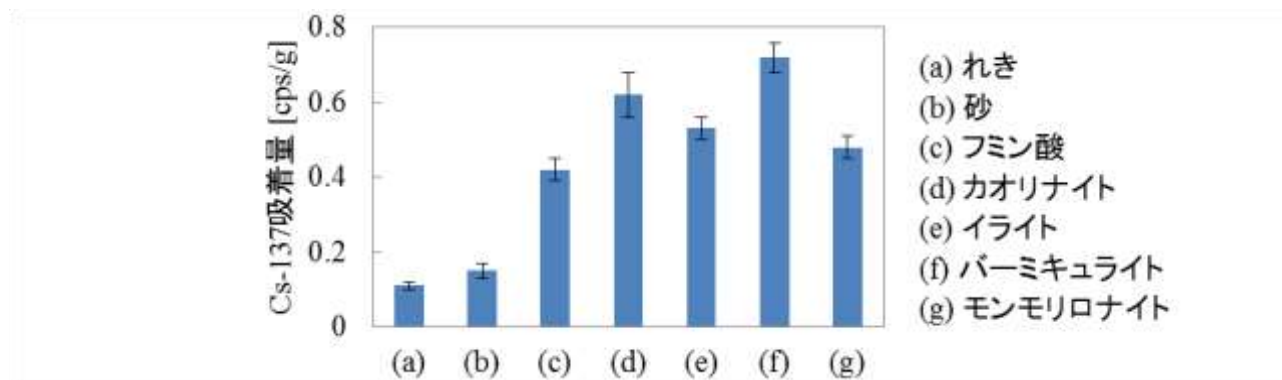
図(1)-15 試料のセシウム吸着特性

次に、これらの7種類の土壌成分の試料の混合系に、Csを同時に添加した際の各試料のセシウム吸着量を図(1)-16に示す。各試料のCs-137の吸着量を放射線量により表すと、れき 0.06 ± 0.01 cps/g、砂 0.11 ± 0.02 cps/g、フミン酸 0.36 ± 0.04 cps/g、カオリナイト 1.33 ± 0.08 cps/g、イライト 1.12 ± 0.06 cps/g、バーミキュライト 0.47 ± 0.04 cps/g、モンモリロナイト 1.00 ± 0.05 cps/gとなった。この結果より、土壌にセシウムが添加された際には、セシウムは全ての成分に吸着されることが分かった。

吸着量は、れき・砂より、フミン酸・粘土鉱物の方が大きい。これは、各試料に、個別にセシウムを添加した際の結果 (図(1)-15) と同様である。よって、土壌成分の混合物に一樣にセシウムが添加された際、セシウムは、各成分の吸着量の大きさに応じ、分配されることがわかった。また、フミン酸のセシウム吸着量が砂より大きい。このことから、実際の土壌において、有機質土壌では、砂質土壌に比べ、有機物に吸着されたセシウム量が多いと予想される。

一方、粘土鉱物4種に着目した場合、図(1)-15と図(1)-16で大小関係が異なる (図(1)-15:バーミキュライト<イライト<カオリナイト<モンモリロナイト; 図(1)-16: モンモリロナイト<イライト<カオリナイト<バーミキュライト)。この原因は、各粘土鉱物の凝集によるものと考えられる²⁰⁾。粘土鉱物のセシウム吸着量は、多くの研究で示されているように、カオリナイト<イライト<バーミキュライト<モンモリロナイトの順に大きい^{19, 21)}。しかし半透膜を用いた本実験では、凝集により、各試料の比表面積が減少し、吸着能が低下したと考えられる。そのため、粘土鉱物間のセシウム吸着量を、正確に評価することはできなかった。本問題の解決には、半透膜内の粘土鉱物量を少なくするといった方法が考えられるが、今後検討を進める予定である。

本実験で明らかになった点を以下にまとめる。事故直後、土壌表面に沈着したセシウムは、土壌を構成する各成分に分配された。この際、単位質量当たりで比較すると、土壌の大部分を占める砂より、土壌に数%程度しか存在しない粘土鉱物の方が、大きなセシウム吸着量を有していた。



図(1)-16 事故直後のセシウムが存在状態

2) 事故後のセシウムの移行動態

図(1)-17 (a)に、1. 雨水添加前のCs存在量、2. 雨水添加後のCs存在量の測定結果を示す。雨水添加前の砂、フミン酸、カオリナイト、パーミキュライトのセシウム吸着量は、それぞれ 1.42 ± 0.03 cps/g、 1.85 ± 0.04 cps/g、 1.77 ± 0.04 cps/g、 2.01 ± 0.04 cps/g、雨水添加後の吸着量は、それぞれ 0.94 ± 0.03 cps/g、 1.59 ± 0.04 cps/g、 1.65 ± 0.04 cps/g、 1.85 ± 0.04 cps/gとなった。この結果より、雨水添加前後に関わらず、セシウム吸着量の大きな試料が、多くのセシウムを吸着していることが分かった。また、雨水を添加することで、全ての試料のセシウム吸着量が減少した。これは、雨水中に含まれるイオンとの交換反応によって、試料からセシウムが溶出したためと考えられる。

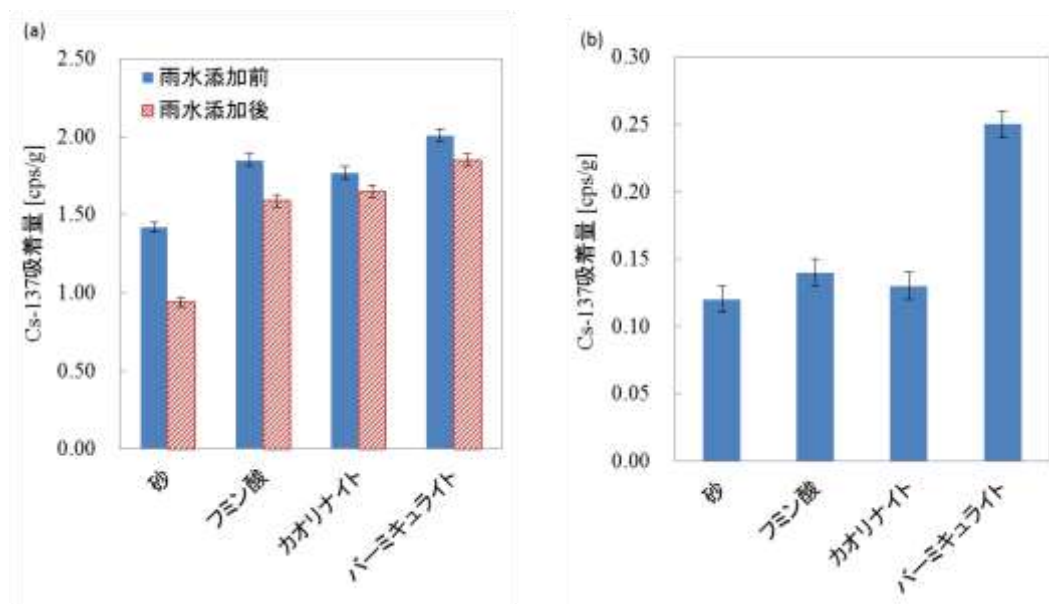
実際の雨水の多くは酸性であり、オキソニウムイオンを含む。また、実土壌中には、アルミニウムイオンやアンモニウムイオン等、様々な交換性陽イオンが含まれる。本実験では調査していないが、これらのイオンもセシウムイオンとイオン交換するため、実土壌においては、セシウム溶出に寄与すると考えられる。

雨水添加前のCs存在量に対する雨水添加後のセシウム存在量は、砂 66 ± 3 %、フミン酸 86 ± 3 %、カオリナイト 93 ± 3 %、パーミキュライト 92 ± 3 %となり、砂に比べ、フミン酸・粘土鉱物からはセシウムが移行しにくいことがわかった。これは、セシウム吸着強度から説明できる。表(1)-4に示すように、セシウム抽出率は、砂 47 ± 2 %、フミン酸 42 ± 2 %、カオリナイト 34 ± 1 %、パーミキュライト 7.4 ± 0.2 %となり、砂<フミン酸<粘土鉱物の順に、セシウム吸着強度が大きいことがわかる。これは、フミン酸はキレート化により一部のセシウムと錯体を形成するため、粘土鉱物はセシウム固定能を有するためと考えられる^{22, 23)}。よって、雨水が添加された際、セシウム吸着強度が低い成分のセシウム吸着量は減少しやすいことが分かった。

図(1)-17(b)は、試料を取り出した模擬雨水溶液中に、新たに別の砂・フミン酸・カオリナイト・パーミキュライトを添加した際の、各成分のセシウム吸着量を示す。吸着量は、砂、フミン酸、カオリナイトが 0.12 ± 0.01 cps/g、 0.14 ± 0.01 cps/g、 0.13 ± 0.01 cps/g、パーミキュライトが 0.25 ± 0.01 cps/gとなった。この結果より、溶出したセシウムは、新たに添加した試料に吸着されることが確認できた。したがって、雨水の影響で溶出したセシウムは、他の成分に移行することが示された。

本実験で明らかになった点は、以下の通りである。事故後、土壌中のセシウムは、雨水に含まれるイオンの影響により溶出した。この際、セシウム吸着強度の小さい砂からの溶出量が多く、吸着強度の大きい粘土鉱物からは少なかった。また溶出したセシウムは、他の土壌成分に移行し

た。



図(1)-17 (a) 土壤に存在するセシウムの状態変化に与える雨水の影響、(b)模擬雨水溶液中に新たに別の砂・フミン酸・カオリナイト・バーミキュライトを添加した際の、各成分のセシウム吸着量

表(1)-4 セシウム抽出実験の結果

試料	砂	フミン酸	カオリナイト	バーミキュライト
抽出率 [%]	47±2	42±2	34±1	7.4±0.2

以上の結果より、事故直度から現在までの、土壤におけるセシウムの存在状態と移行動態について考察する。まず、事故直後、土壤表面に様に沈着したセシウムは、れき・砂・有機物・粘土鉱物等、土壤を構成する全ての成分に吸着された。しかし、単位質量あたりで比較すると、有機物や粘土鉱物の成分に多く吸着された。その後、降雨に伴い土壤中に添加された陽イオンとのイオン交換反応により、セシウム吸着強度に応じ、各成分のセシウム吸着量が減少した。同時に、溶出したセシウムは別の成分に移行した。そして、長期間、降雨、セシウム溶出、移行のサイクルが繰り返されたことで、土壤におけるセシウムの存在状態は安定化したと考えられる。これにより、事故直後、土壤に様に沈着したセシウムが、現在、粒径の小さな成分に存在する理由が説明できる。また、セシウムの大部分が土壤表層から5 cm以内にとどまっている理由については、雨水の影響により土壤成分から水相に溶出したセシウムが、雨水の浸透に伴い鉛直方向に移行するが、その過程で1時間以内の短時間のうちにセシウム吸着強度の高い成分に吸着されることで、鉛直方向に深く浸透せず、表層付近に保持されたことから説明できる。ただし、鉛直方向の移行については、セシウムを吸着した粒子自体の移行¹⁵⁾も寄与すると考えられるため、より詳細な検討が必要である。

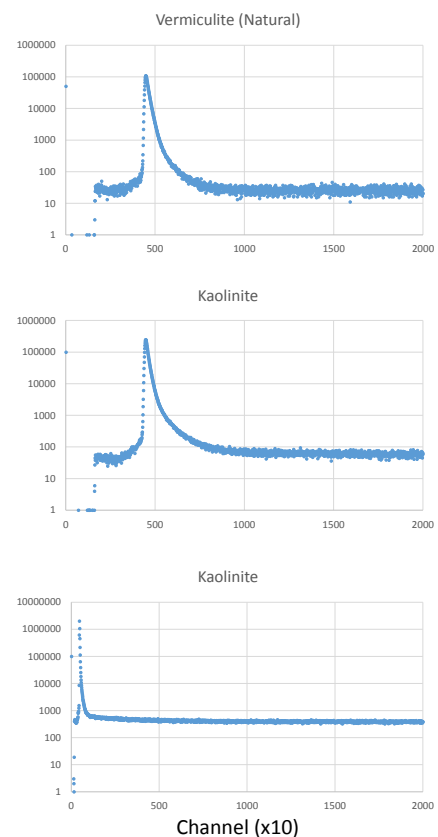
以上の考察より、将来の動態としては、セシウムのイオンとしての移行は限られてくると考えられる。これは、表土剥ぎ取りに伴い発生した汚染土壤を中間貯蔵施設で長期間保管する際、時

間が経過するにつれ、セシウムはバーミキュライトなどの2:1型粘土鉱物のFrayed edge siteに移行して固定化されていくため、環境中へのセシウムの拡散リスクが減少することを意味する。同時に、減容化・除染技術を考える上で重要となるのは、セシウムを強固に固定化する粘土鉱物であり、これに主眼を置いた技術を開発することで、効果的な減容化・除染が実現できると考えられる。

以上の内容を以下に簡潔にまとめる。福島第一原子力発電所事故に伴い放出された放射性セシウムの、事故後から現在までの、土壌における存在状態、移行動態の解明を目的とし、半透膜と各土壌成分のモデル材料を用いた模擬実験を行った。まず、事故直後のセシウムの存在状態を模擬し、実際の土壌を模擬した土壌成分の混合系にセシウムを添加することで、土壌沈着後まもないセシウムの各土壌成分への吸着挙動を調査した。この結果、事故直後、土壌に降下したセシウムはすべての土壌成分に吸着されたが、単位質量当たりで比較した場合、粘土鉱物や有機物に多く吸着されることが分かった。次に、事故後のセシウムの移行動態として、土壌に存在するセシウムの状態変化に与える雨水の影響について調査した。その結果、雨水中に含まれるイオンとの交換反応によって、各成分からセシウムがいったん溶出し、その後速やかに他の成分に移行することが確認できた。この際、セシウム吸着強度の小さい砂からの溶出量が大きく、吸着強度の大きい粘土鉱物からは小さいことが分かった。ゆえに、セシウムは、降雨、溶出、移行のサイクルが繰り返されたことで、大部分が、セシウム吸着強度の高い土壌成分（粘土鉱物）に移行したと考えられる。以上の結果より、現在、セシウムが粒径の小さな成分に多く存在していること、大部分が土壌表層から5 cm以内にとどまっていることのメカニズムが明らかとなった。しかしながら、本研究は実験的に各土壌成分間での短時間での溶出と移行の一連の傾向を追跡したことにとどまるため、実土壌中でのセシウムの微視的動態を評価するためには、より詳細な検討が必要である。

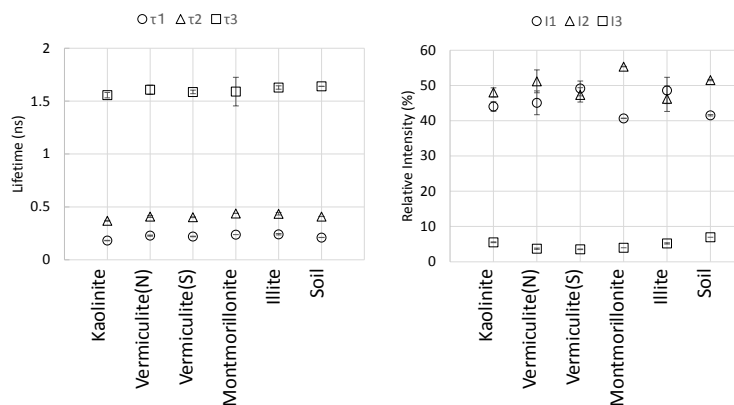
3) 陽電子を用いたセシウム吸着性能に係る鉱物評価

バーミキュライトとカオリナイトに対する陽電子寿命スペクトルを図(1)-18に示す。図の上段がバーミキュライト、中段がカオリナイト、下段が時間スケールを10倍に引き延ばしたカオリナイトの寿命スペクトルを示している。図(1)-18上段の波形ではピークに達した後800チャンネル付近で基線まで戻っているのに対し、図(1)-18中段の波形を見るとピークに達した後も基線に戻っていないことがわかる。下段の波形から600チャンネル（中段では6000チャンネルに相当）でほぼ基線に戻っている。これからカオリナイトがバーミキュライトに比べはるかに長寿命の成分を持つことがわかる。図(1)-18下段のデータをPATFITプログラムを使用し長寿

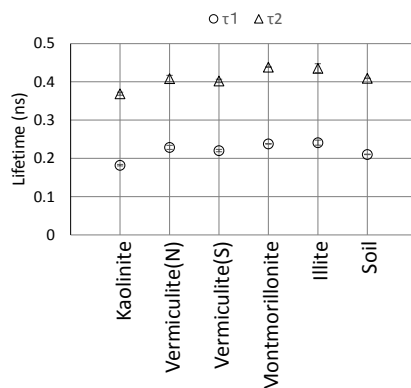


図(1)-18 バーミキュライトとカオリナイトに対する陽電子寿命スペクトル

命成分を求めたところ約63nsでこの成分の相対強度は2%という結果が得られた。他の2:1型粘土鉱物においてはパーミキュライト同様このような長寿命成分は観測されなかった。そこで3成分解析を基本とし、カオリナイトについてはこの長寿命成分値を固定して他の粘土鉱物と同じ3成分解析をPATFITを使って行った。



図(1)-19(a) 各鉱物に対する陽電子寿命と相対強度

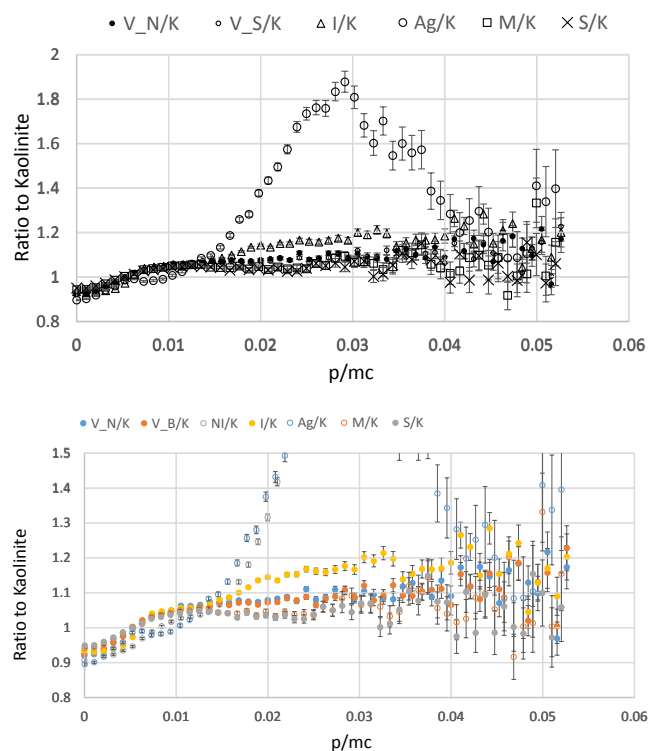


図(1)-19(b) (a)の寿命スケールを拡大したもの。

図(1)-19(a)に各鉱物に対し得られた陽電子寿命スペクトルを各成分に分解したときの寿命と相対強度を示す。第3成分 (τ_3) は o -Psの寿命に対応し、これはパーミキュライトとモンモリロナイトではほぼ同様の値を示したが、カオリナイトは若干短く、イライトと計測した土壌は若干長いという結果が得られた(図(1)-19(a)左図)。このことは1:1型粘土鉱物と2:1型粘土鉱物の違いを反映している可能性がある。実際、2:1型粘土鉱物では層間距離が捕捉カチオンにより変化することが知られている。四面体シートの六員環のサイズが陽電子寿命から Tao -Eldrup式を使って求めた大きさとほぼ同じであった。XRDの結果から層間間隔が約7.2Å程度と見積もられたが、このサイズを反映した o -Psの寿命(約3 ns)は得られなかった。カオリナイト、イライト、土壌の I_3 はほかに比べて若干大きかったが、全体としてはとても小さかった。何故 I_3 が小さかったのかについては、2:1型粘土鉱物については四面体シートが含まれるカチオンとクーロン力でタイトに

付着することで層間ギャップが減少していることが考えられる。1:1型粘土鉱物では、八面体シート側の酸素がOH基になっているため、層間は水素結合で結合しており、水分や水和カチオンがあると層間距離は2:1型粘土鉱物に比べ長くなる。しかし、 o -Psの生成量が少ないのは、水素結合に関係する電子エネルギーが小さいため、直接消滅が増え、また水和カチオンが増えるとスペースサイズも小さくなるためだと考えられる。このデータ処理では線源項に対する補正がおこなわれていないため、 I_3 には線源に由来する影響が含まれている。しかし、この相対強度には意味がある。層間に強い電場があり、陽電子は六員環のような負の極性を持つ場所に近づこうとするなら陽電子は o -Psを作ることなく消滅するであろう。図(1)-19 (b)に図(1)-19(a)の寿命スケールを拡大したものを示す。 τ_1 、 τ_2 についてはカオリナイトはわずかに短い寿命であった。これは層間の水素結合のためだと考えられる。2種類のバーミキュライトはほとんど同じだった。これは含有不純物に関係なく、構造に係る本質的な場所で消滅していることを意味している。一方、2:1型粘土鉱物ではほとんど差が無かった。

また、図(1)-20にCDB法で得られた土壌を含む各鉱物に対する消滅 γ 線エネルギースペクトルのカオリナイトのエネルギースペクトルに対する比を示す。横軸の p/mc は消滅電子の規格化運動量を表している。上段と下段とでは縦軸のスケールが異なっている。カオリナイトを分母に取ったのは、一連の計測においてカオリナイトを常に計測したことによる。金属と鉱物とではプロファイルが著しく異なることがわかる。運動量が0での比が全てのサンプルで1より小さいことから、カオリナイトは他の2:1型粘土鉱物や銀と比べ幅の狭いスペクトル分布であることがわかる。この図から焼成前のバーミキュライトに存在した針状の銀の影響は全く現れていないことがわかる。また焼成前後での差も見られなかった。これらの結果は陽電子がバーミキュライト本来の構造の中で消滅していることを意味し、陽電子寿命測定の結果とも矛盾していない。スペクトル比は規格化運動量が0.02から0.03にかけてイライトがバーミキュライト、モンモリロナイトに比べ高く、バーミキュライトはモンモリロナイトよりも若干高かった。カチオンの水和がカチオンのFESでの捕獲や層間への拡散に大きな影響を与えていることが言われている。入射した陽電子は局所電場により層間に近づき4面体の酸素やカチオンについた水分子、水素結合の電



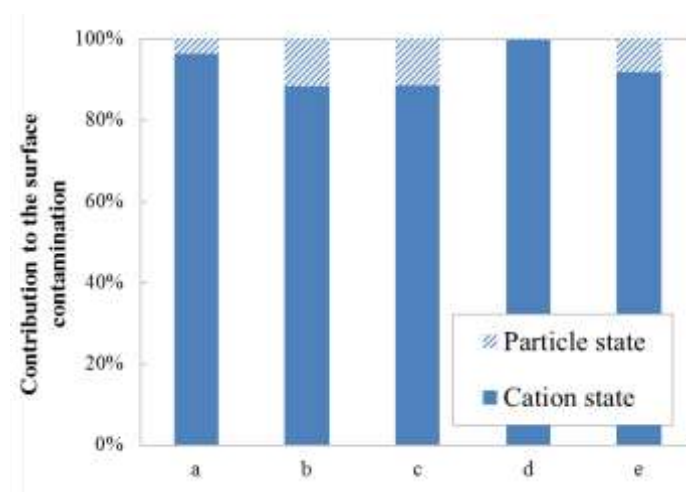
図(1)-20 消滅 γ 線光電ピークとカオリナイトの光電ピークとの比。V_N:焼結前バーミキュライト, V_S:焼結バーミキュライト, I: イライト, Ag: 銀, M: モンモリロナイト, S: 土壌。

子と消滅するであろう。このように図(1)-20の結果は層間の電子状態を反映していると考えられる。

(2) 建材におけるセシウムの沈着状態と吸着強さの検討

1) セシウムの吸着形態の検討

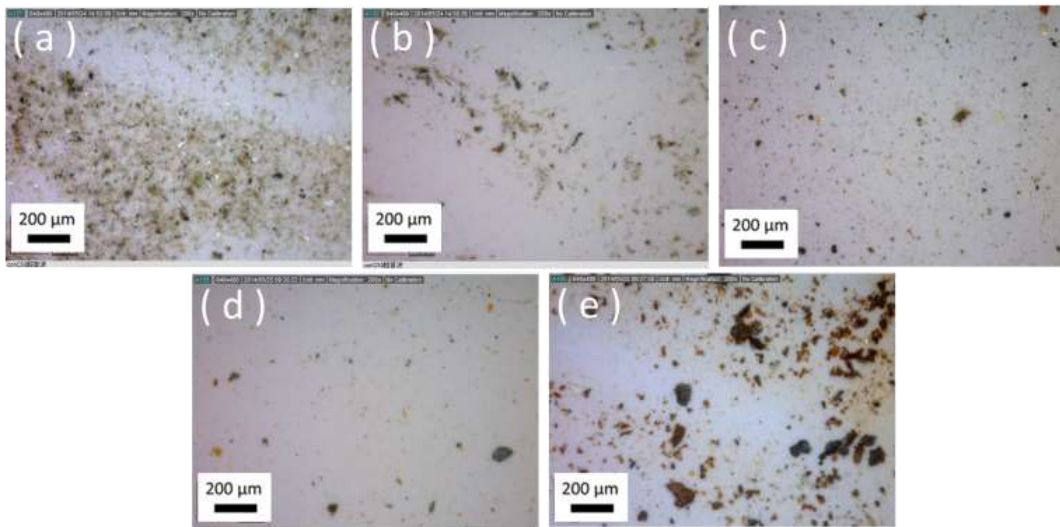
図(1)-21に粒子で吸着したセシウムの寄与割合を示す。セメント瓦(a)とトタンA(d)では、多重比較検定の結果、超音波洗浄前後で計数率に有意差がなく、木材(b)、粘土瓦(c)、トタンB(e)についても計数率の減少率は10%前後であった。この結果から、粒子を媒介して間接的に吸着しているCsの表面汚染への寄与は小さく、イオンの状態で直接吸着したセシウムが大きく寄与していることが示唆された。



図(1)-21 粒子で吸着したセシウムの寄与割合
(a.セメント瓦, b.木材, c.粘土瓦, d.トタンA, e.トタンB)

また洗浄液のろ液はいずれの建材についても検出限以下であった。セメント瓦、木材、粘土瓦、トタンBの分離粒子からはセシウムが検出された。図(1)-22に分離粒子の顕微鏡観察の結果を示す。顕微鏡観察の結果、セメント瓦、木材、粘土瓦では、数 μm ～数十 μm 程度の土壌由来と見られる微粒子が観察され、トタンではサビ粒子が観察された。

洗浄液のろ液はセシウムが検出限界以下であったことから、建材に吸着したセシウムのうち、イオンの状態で容易に水相に溶けだすセシウムは存在しないことが示唆された。一方、分離粒子からセシウムが検出されたことで、粒子を媒介し間接的に吸着したセシウムが、超音波洗浄により脱離したことが確認された。ただしトタン(e)については、表面に生成したサビにセシウムが吸着しており、サビ部分の剥離に伴ってセシウムが脱離したと考えられる。

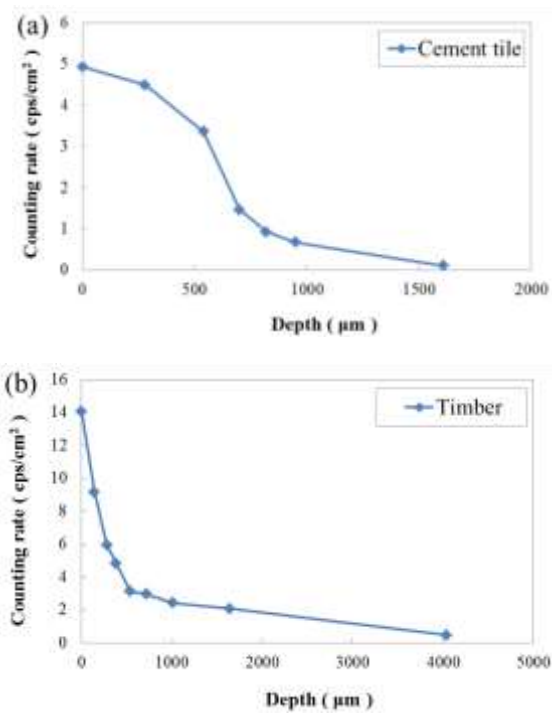


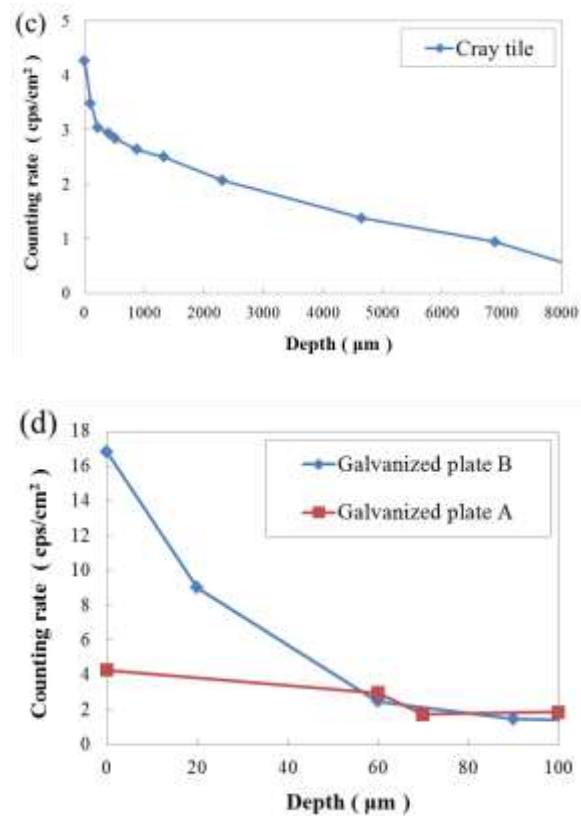
図(1)-22 分離粒子の顕微鏡観察

(a.セメント瓦, b.木材, c.粘土瓦, d.トタンA, e.トタンB)

2) セシウムの深さ分布の検討

切削深さごとの計数率測定の結果を図(1)-23に示す。





図(1)-23 計数率の切削深さによる変化
 ((a)セメント瓦, (b)木材, (c)粘土瓦, (d)トタンA・B)

横軸に切削深さ、縦軸に単位面積当たりの計数率を示した。セメント瓦では約950 μm切削後において、計数率が約88%低減しており、約1610μmの時点で約99%低下した。この結果から、セメント瓦におけるCsの浸透深さは表面から約1~2 mmであることが示された。一般にセメント系材料に含まれる骨材は表面には現れず、コンクリートやモルタルへのCs吸着は、セメント基質が大きく影響する²⁴⁾。このことから、セメント系材料の種類による吸着メカニズムは大きくは変わらないと推察される。K.Maslovaらが行った実験では、セメント表面から600 μm以内に約90%が存在していたという報告がある²⁵⁾。この報告から、降雨等の環境条件によってセシウムの深さ方向の分布は大きくは変化せず、1~2 mm程度の表面切削でほとんどのセシウムを除去できることが示された。

また木材では約4 mm以内に約97%、トタンでは表面に生成した約90 μmの腐食部分に約91%のセシウムが分布していた。ただし、粘土瓦については約8 mm切削時点で低減率は約87%にとどまり、表面の釉薬部分ではなく粘土質全体にCsが拡散していることが確認された。これらの結果からトタン材については、表面のサビ部分を除去することで容易に線量低減が可能であるが、木材については数mm程度、粘土瓦については材料全体にセシウムが拡散しており、物理的な手法による除染は困難であると言える。

3) セシウムの吸着強さの検討

脱離溶液に用いたHNO₃とKClの脱離効果の違いを評価するに当たり、静電相互作用の観点から考察を行った。一価のカチオン同士で比較する場合、イオン半径が大きいほど水和エネルギーは小さくなる²⁶⁾。KClに含まれるカリウムのイオン半径 (0.149 nm)は硝酸に含まれるH₃O⁺(0.115 nm)よりも大きいため、比較的水和エネルギーが小さい。それに伴い、脱水和に必要なエネルギーも小さいと考えられる。またカリウムのようなイオン半径の大きいイオンは、構造破壊イオンと呼ばれ水和水分子の配向性が低い²⁷⁾。したがって静電相互作用の際には、脱水和によってカリウムの電荷密度はH₃O⁺よりも大きくなり、セシウムに対するイオン交換作用はH₃O⁺を上回ると考えられる。このような理論に基づき、各建材のセシウム脱離結果について考察を行った。

図(1)-24に各建材のCs脱離率を示した。横軸に溶液濃度、縦軸に脱離率を示した。図(1)-24 (a) のセメント瓦の脱離実験結果では、0.01、0.05 mol/Lの溶液において、HNO₃、KClともに脱離率が濃度に比例しており、KClによる脱離率がHNO₃を上回った。一方0.1 mol/Lでは、硝酸による脱離率が18%まで上昇しており、KClによる脱離率を上回った。

セメント系材料中のセメント水和物は、主にカルシウムシリケート水和物(C-S-H)で構成されており、一部Ca(OH)₂を含む²⁸⁾。セシウムの吸着はC-S-Hが大きく寄与しており、イオン交換によりセシウムを強固に吸着する¹³⁾。KClによる脱離実験では、溶液に含まれるカリウムの水和イオン半径(0.331 nm)が、セシウムの水和イオン半径(0.329 nm)と近いため²⁹⁾、イオン交換作用によってセシウムが脱離したと考えられる。また0.1 mol/Lにおいて大きな変化が見られなかったことから、0.05 mol/LのKClによって、イオン交換性のあるセシウムが全て脱離すると推察できる。

それに対してHNO₃では、セメントを構成するCa(OH)₂がOH⁻を供給して酸を中和したことで³⁰⁾、溶液に含まれるH₃O⁺とセシウムのイオン交換が阻害されたと推測される。ただし、0.01 mol/Lの硝酸ではCa(OH)₂だけでなくC-S-Hが式(1)-3のように溶解し³¹⁾、脱離率がKClを上回ったと考えられる。



図(1)-24 (b) の木材の脱離実験では、KClによる脱離において、どの濃度においてもほとんど放射線量の低減がなかった。一方HNO₃では0.05 mol/Lで10%、0.1 mol/Lで20%前後の脱離率が得られた。理論上、カリウムの方がH₃O⁺よりも脱離効果が大きいと推測されるため、HNO₃による脱離はイオン交換作用によるものではないと考えられる。つまり、木材表面に分布していたイオン交換可能なセシウムは、ウェザリング効果によってすでに脱離しており、木材を構成する分子鎖の一部がHNO₃によって加水分解されたことで、分子構造により内部に捕捉されていたセシウムが溶出したと推察できる。

図(1)-24 (c) の粘土瓦については、いずれの溶液においても脱離率は数%であった。前述の深さ分布を調査する実験において粘土質全体にセシウムが拡散していたことから、降雨により水和状態で内部に拡散したセシウムが、脱水和によって粘土に強固に吸着された結果であると考えられる³²⁾。

図(1)-24 (d) のトタン材については、0.01、0.05 mol/LにおいてKClによる脱離率がHNO₃を上回り、0.1 mol/LではHNO₃の脱離率がKClと同程度となった。サビは酸化鉄表面の水酸基による表面電荷や2 nm以下のマイクロポアをもつ³³⁾。トタン材では、このようにサビ部分の持つ表面電荷による

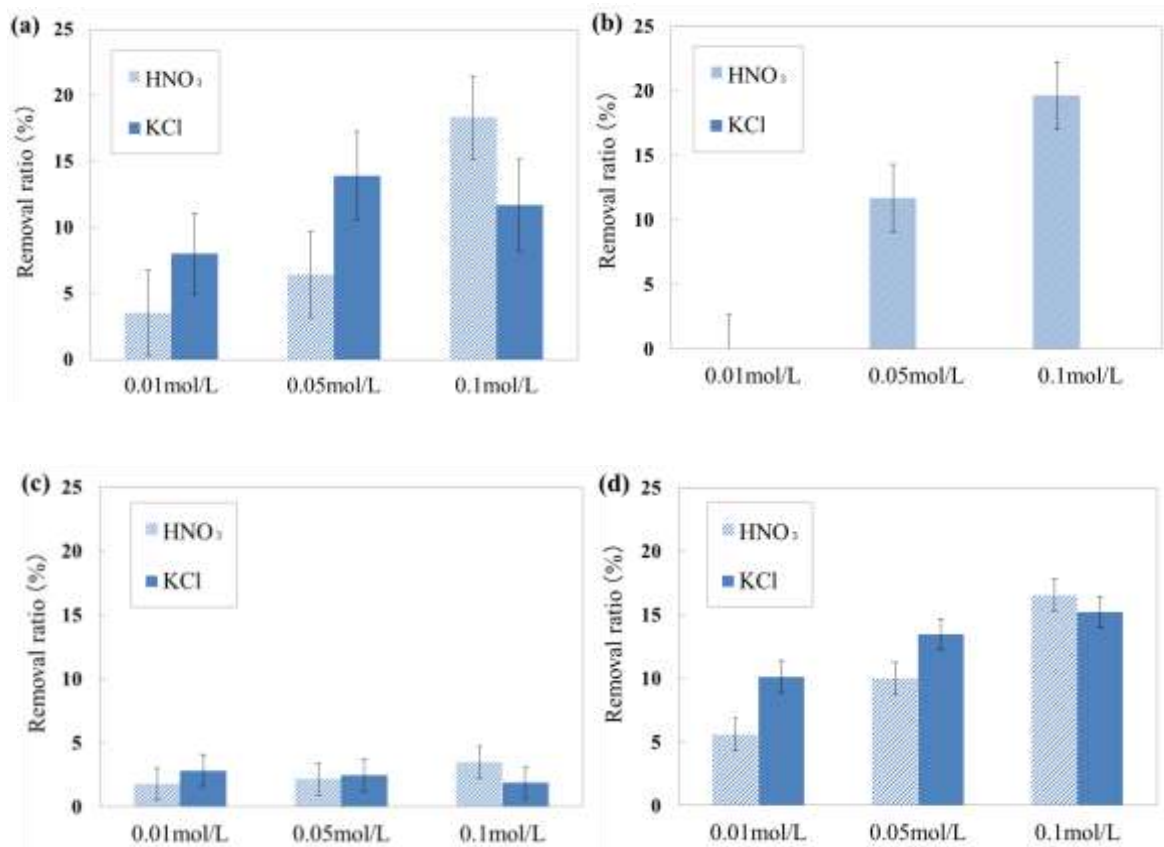
静電相互作用や、マイクロポアによって構造的にセシウムを捕捉していると考えられる。

溶液による脱離作用については、先述したようにカチオンの水和性に左右され、トタン材ではカリウムの脱離効果が発揮されたと考えることができる。ただし、0.1 mol/Lでは2つの溶液の脱離率が同程度となっており、硝酸によってセシウムを強固に吸着したサビが部分的に溶解したと推測される。

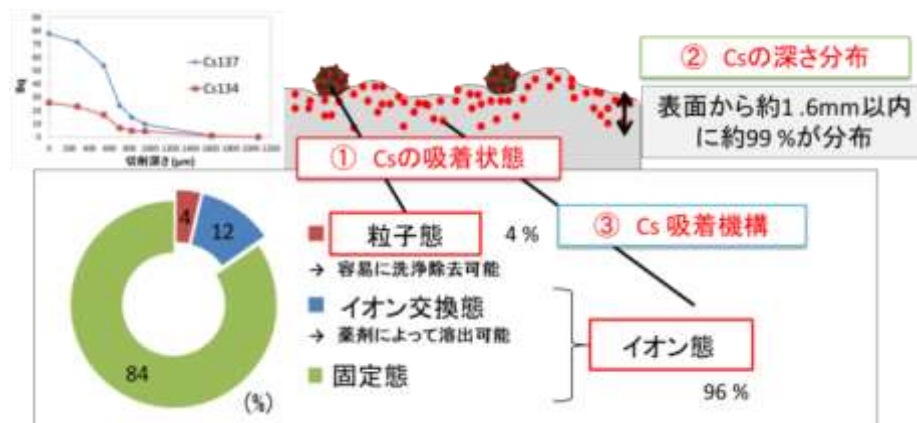
以上の実験結果からセシウムとイオン交換性の高いカチオンを含む溶液を用いることで、除染率を向上できることが示された。しかし溶液による化学的な除去手法のみでは線量低減が不十分である場合が想定され、表面切削等の物理的な除去手法等と組み合わせた除染プロセスを検討する必要がある。

上記の結果から、コンクリート材料を例にとりて、その吸着状態、深さ分布、吸着機構の結果をまとめたものを図(1)-25に示し、様々な建材におけるセシウムの吸着動態についてまとめた結果を表(1)-5に示す。

効果的に空間線量率を低減させるためには、対象の性質に応じた除染手法を選択することが求められる。ただし、建材によっては除染にかかるコストが高く、建材そのものを取り替えた方が現実的である場合も存在する。そこで本研究の実験結果に基づき、各建材の最適な処理方法について検討した。



図(1)-24 硝酸と塩化カリウムを用いた各建材のCs脱離率
(a)セメント瓦, (b)木材, (c)粘土瓦, (d)トタンA, (e)トタンB)

図(1)-25 コンクリート材料における¹³⁷Csの存在状態表(1)-5 各建材における¹³⁷Csの存在状態

	セシウム空間分布 (CsI)		セシウムの吸着機構	
			直接的吸着 (NaI)	間接的吸着 (GM)
セメント系材料	垂直方向	表面から約1.6mm以内に約99%が分布	・イオン交換態(表面電荷等): 約15%	粘土や有機物を介して吸着したCsが存在 → 表面汚染への寄与は低い(ほとんどがイオンとして直接的に吸着)
	水平方向	細孔部分に吸着量大	・固定態(セメント水和物の層間): 約85%	
木材	垂直方向	表面から約4mm以内に約97%が分布	・固定態(セルロース等が持つ水酸基、カルボキシル基、分子構造による捕捉): 約100%	
	水平方向	繊維方向の拡散性大 → 拡散の異方性		
粘土瓦	垂直方向	表層約200μmに約30%(約70%は全体に拡散)	・表面に吸着: 約3~4%	
	水平方向	均一な汚染ではなくホットスポットが存在	・ほとんどが固定態(粘土層が強固に吸着)	
トタン材	垂直方向	腐食度合に依存(表面から約100μm以内に約91%が分布)	<サビ部分への吸着>	
	水平方向	腐食部分(サビ)へ吸着	・イオン交換態(表面電荷等): 約15%	・固定態(サビの多孔質構造内部): 約85%

図(1)-26にCs動態解析に基づいた除染手法について示した。まず、A. 除染可能と判断される材料について検討した。セメント系材料では、最大で1~2mm前後までセシウムが浸透しているため、汚染面が広範囲である場合、物理的手法によってすべてのセシウムを除去するのは非効率的であると考えられる。そこで薬剤等による化学的処理を施した後、局所的に線量の高いホットスポットに対して、表面切削等による物理的なCs除去を行う。薬剤を用いる場合、高圧水洗浄に使う洗浄液に低濃度のカチオンを添加するなど、現在の除染作業と比較して、過剰な排水、廃棄物が出ないような工夫が必要である。

またトタン材のようにセシウムの浸透深さが100 μm 程度にとどまる場合、表面切削などの物理的な除去手法が効果的である。ただし、腐食の程度が激しい場合は、新しいものに取り換えた方が効率的かつ経済的であると考えられる。

次に、B. 除染が困難であると想定される材料について検討を行った。木材については4 mm程度までセシウムが浸透しているため、線量が高い箇所については十分な除染が困難である。そこで取り換えが可能な場合は廃棄物として焼却処理を行い、取り換えが困難な場合は、コンクリート等を遮蔽材として用いるといった手法が考えられる。

また粘土瓦等の不燃性の材料については、粉碎処理によって骨材や路盤材として再利用する際に、比放射能がクリアランスレベルである100 Bq/kg以下であれば再利用することが可能である。このように材料ごとに適切な除染手法を実施し、最終的には住宅地における空間線量率を1 mSv/年以下まで低減することを目指すことが適切であると考えられる。

原発周辺地域では空間線量率低減に向けた除染作業が進められているが、福島第一原子力発電所の廃炉作業においても、同様にセシウムによる建材の汚染が問題となっている。廃炉作業によって発生する廃棄物は主にコンクリート等のセメント系材料で構成され、セシウムとストロンチウムによる汚染が問題となっている。本研究で明らかになったセシウムの動態を基に、今後廃炉作業を促進するための除染技術への応用についても検討することも可能であると考えられる。

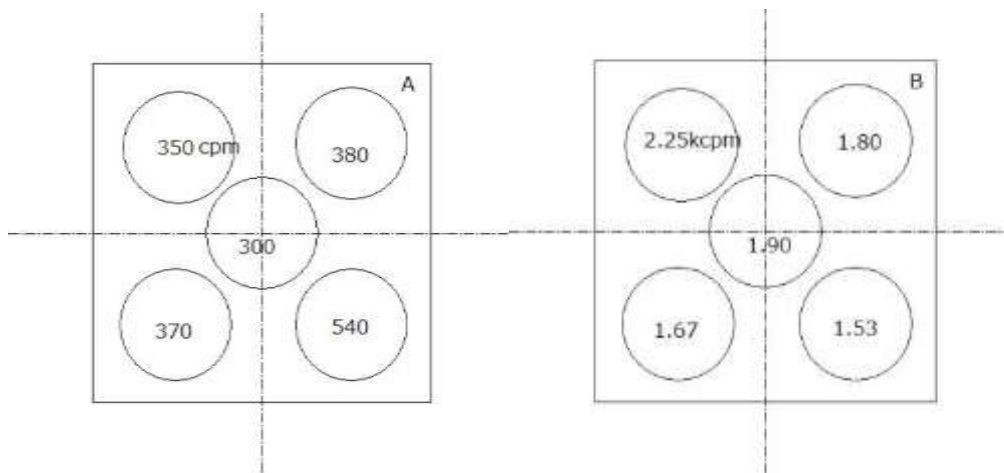


図(1)-26 Csの微視的動態に基づく対応方法の提案

4) 非破壊での放射能面密度、浸透深さの計測

放射性Cs崩壊時に放出されるBaの特性X線を測定する方法で非破壊で放射能面密度、浸透度合いを測定した。本手法は高橋らにより開発された³⁴⁾。御影石板の測定を研究協力者、エヌ・エム・パイビジネスサポート株式会社に委託した。試料は浪江町の石材加工場に2013年12月まで露天に置かれていた御影石板を所有者の了解を得て入手したものである。サンプルは白御影石と呼ばれる花崗岩で、大きさは15x15cm、厚みは1.2cmのタイルで、A面は荒仕上げ、B面は鏡面である

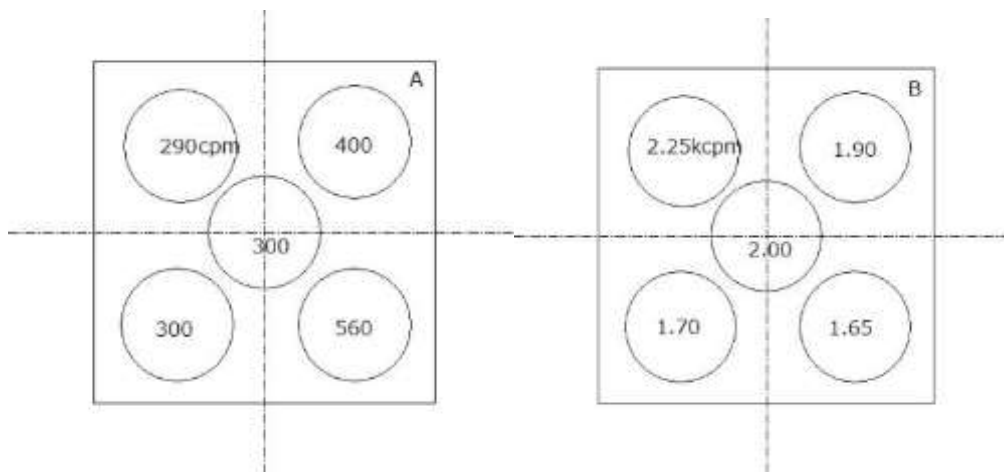
まず、GMサーベイメータをサンプル表面に直づけし、表面放出率の測定を行った。その結果を図(1)-27に示す。いずれも単位はcpmである。



図(1)-27 GM管を用いた直接測定の結果

屋外に積まれていたとき、どちらの面が上面であったか記録していないが、分布の様子からすると、B面が上面と思われる。上面は1.5～2.2kcpmの比較的高いカウントがあった。

試料表面を温水とやわらかいスポンジで3分間ほど丁寧に洗浄した。このとき洗剤類は使っていない。その結果を図(1)-28に示す。



図(1)-28 洗浄後のGM管を用いた直接測定の結果

洗浄後の計数値は若干の違いはあるが、変動の範囲内であり、温水、スポンジでは除去できない形で沈着していると思われる。

次に、ベータ線成分の測定を行うため、直径50mmの穴をあけた5mmアクリル板を使い、穴のない部分（ガンマ線成分のみ、図(1)-29）、穴の部分（ガンマ線+ベータ線、転換電子）でそれぞれ測定し、比較した。



図(1)-29 アクリル板を用いたガンマ線成分の測定

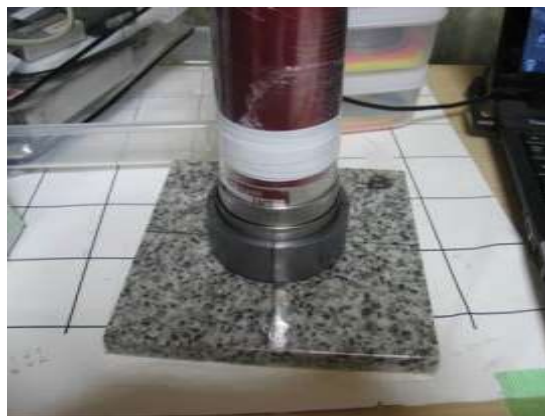
洗浄後の値は次のとおりであった。

BG 90-110cpm

A面中央 190/270 ベータ線成分 80±20cpm

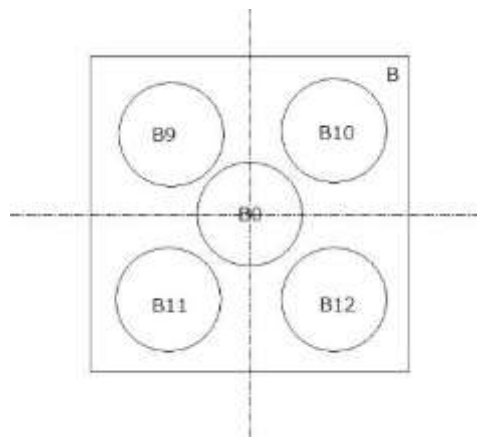
B面中央 280/1900 ベータ線成分 1600cpm

次に、特性X線による測定装置を用い、表層放射能の浸透性の非破壊測定を試みた。X線の入射角度が異なる2種のコリメータ（パラレル・スラント）を使用し、X線の減弱度と放射能の浸透度を計算した。特性X線測定の様子を図(1)-30に示す。

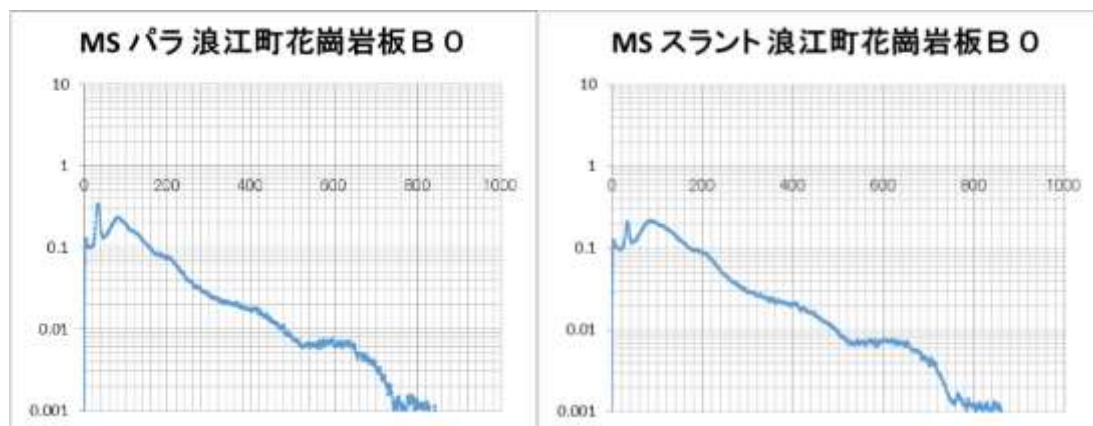


図(1)-30 特性X線による表層放射能の測定

B面は中心部および辺部を測定した。A面は中心部のみ測定した。図(1)-31にB面の測定箇所を示す。また図(1)-32に得られたスペクトルの例を示す。



図(1)-31 B面の測定箇所



図(1)-32 スペクトルの例

測定結果を表(1)-6にまとめる。

表(1)-6 特性X線の測定結果のまとめ

密度	材質	para 係数	s/p 係数	slant 係数	cm2/g	元データ											
木材	0.49	3	0.19	0.23	0.42	元データ											
磁器	2.47	4	0.84	0.59	1.43	20131211MS_LE3_減弱2.xlsx											
glass	2.50	5	0.88	0.68	1.56	s/p(0)											
放射能面密度(タイル2013.12.27)						0.457						7.8					
場所	材質	LE3para	LE3slant	s/p ratio	深さ g/cm2	減少率						LE3	+sd	-sd			
B0	1	5	2.15	0.85	0.40	0.41	0.39	-0.21	-0.17	-0.25	0.83	0.86	0.80	20.14	0.76	0.75	
B9	2	5	2.23	0.84	0.38	0.39	0.36	-0.28	-0.23	-0.33	0.78	0.81	0.75	22.29	1.01	0.98	
B10	3	5	1.93	0.80	0.41	0.43	0.40	-0.14	-0.09	-0.20	0.88	0.93	0.84	17.03	0.96	0.93	
B11	4	5	1.84	0.71	0.38	0.40	0.37	-0.25	-0.19	-0.32	0.80	0.85	0.75	17.91	1.16	1.12	
B12	5	5	1.66	0.69	0.41	0.43	0.40	-0.14	-0.08	-0.21	0.88	0.93	0.83	14.69	0.94	0.91	
A0	6	5	0.15	0.05	0.32	0.45	0.19	-0.54	-0.04	-1.33	0.62	0.97	0.31	1.83	1.81	0.66	
												=LN([s/p_ratio]/[s/p(0)])/[s/p係数]			=[1/eff]*[cps_para]/[減少率]		

深さを求めるのは以下の式による

パラレル $cps(p) = C_p \exp(-\alpha_p X)$

スラント $cps(s) = C_s \exp(-\alpha_s X)$

s/p 比 $= (C_s/C_p) \exp(-(\alpha_s - \alpha_p)X)$

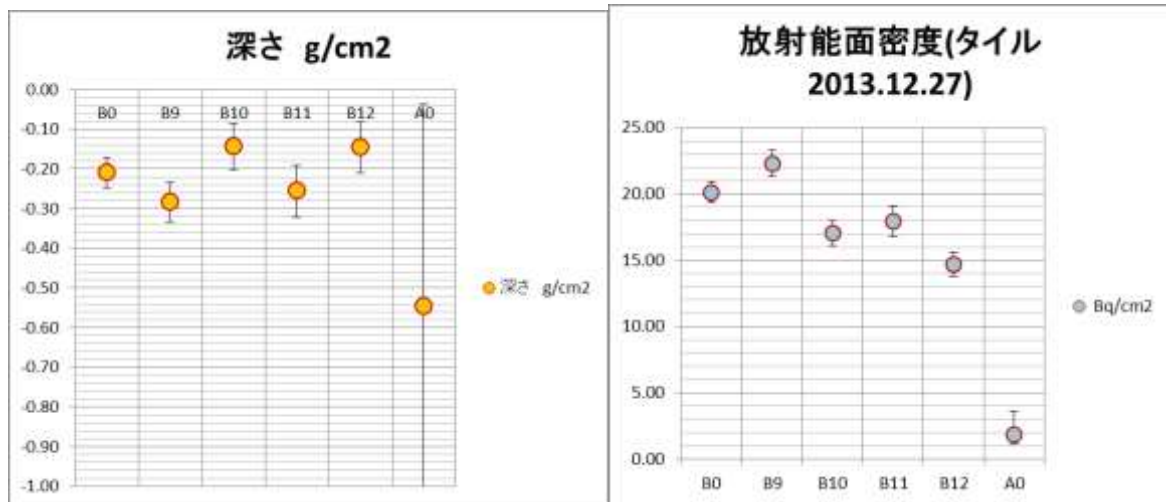
ここで減弱係数として、ガラスのものを使用した。

すなわち

$$\alpha_p = 0.88 \text{ cm}^2/\text{g}$$

$$\alpha_s = 1.56 \text{ cm}^2/\text{g}$$

換算面密度深さ（X線の透過度を尺度とした面密度深さ）および放射能面密度を図(1)-33に示す。



図(1)-33 換算面密度深さおよび放射能面密度

B面での放射能深さは、 $0.21 \pm 0.06 \text{ g/cm}^2$ 。

密度2.68より、長さに変換すると、 $0.8 \pm 0.2 \text{ mm}$ となる。

また、放射能面密度は、 $18 \pm 3 \text{ Bq/cm}^2$ である。

A面については、B面放射能からの透過X線をかなり含んでいると思われ、深さ、放射能とも不確定である。

最後に検証のため、あらかじめ校正した2” NaIシンチレータを使用して、定位置に試料の御影石タイルを置いて、全放射能を測定した。測定の様子を図(1)-34に示す。



図(1)-34 2” NaIシンチレータを用いた全放射能の測定

測定結果 662keVピーク面積より求めた¹³⁷Csの放射能は、 $4.7 \pm 0.1 \text{ KBq}$ である。これより、

15x15cmの面積での平均放射能面密度は、21 Bq/cm²となる。この結果は上記の特性X線測定の結果とよく一致している。

鏡面仕上げをしている御影石とセシウムの結合は、長期間の雨でも流されないしっかりしたものであると考えられる。化学的な結合も考えられるが、表面の微細な隙間への浸透も考えられる。A面のような一般的なざらざらした表面では肉眼で確認できなかったが、B面のように鏡面仕上げ面をよく見ると、図(1)-35のように粒界に沿って微細な隙間が存在することが観察された。セシウムはこのような隙間に入り込んでいる可能性がある。



図(1)-35 B面（鏡面仕上げ面）の拡大図

特性X線測定による放射能測定は、以下の特徴を持つ。

1. 高線量エリアにおいても、1kg程度の軽い遮蔽で少量サンプルの全放射能を測定できる
2. 地面などの除染、掘り出し等を行うとき、周囲の影響を受けずにその地点の放射能残留分を直接的に評価できる
3. 重い遮蔽なしで表層の放射能面密度の測定が出来る。また高さを変えることで測定面積を調節できる。

このような特徴から、浸透深さの精度にはさらなる検証が必要であるが、現地での汚染土壌や建材の表面汚染密度測定に有用であると考えられ、今回得られた結果を元に、現地での今後の利用が期待される。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

土壌中のセシウムは事故後の降雨により2:1型粘土鉱物の永久電荷に移行することが実験的に確認された。一方陽電子消滅法によって、セシウムの吸着サイトに関係する微構造に関わる情報が得られる可能性が示された。

また、建材中のセシウムは、どの種類でも粒子態での付着は少なくイオン態がほとんどであることが明らかになった。浸透深さや吸着強さについては、建材の種類により大きく異なることが明らかになった。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

- ◆ 土壌中の微視的動態に関しては、事故後4年が経過した現在ではほとんどのセシウムが2:1型粘土鉱物によって強く固定化されていると考えられるため、事故直後よりも湿式・乾式分級などの分級による手法が有用であると考えられる。
- ◆ 建材中のセシウムは、表面1mm以内にほとんどのセシウムが分布しており、かつ構造的に表面切削が可能なコンクリートたたきの部分等は切削処理が有効であることが示され、一方でセシウムが内部まで深く浸透している建材は、除染するよりも交換を行うことが有効であることが示され、建材の種類に応じて除染の指針が立てられるようになった。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

1件投稿中、1件投稿準備中であるため、現時点で特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表(査読なし)>

- 1) 西嶋茂宏：低温工学、49, 5, 224-226(2014)
「サロン：福島に何ができますか？」

(2) 口頭発表(学会等)

- 1) 秋山庸子, 矢坂裕太, 三島史人, 西嶋茂宏：
平成25年度 第4回 低温工学・超電導学会 材料研究会シンポジウム,平成25年度 第3回 電気学会「超電導磁気分離システムを利用した除染技術」調査専門委員会(2014.3.26)
「磁気分画法を利用した土壌中のCsの微視的動態の解析」
- 2) 秋山庸子：第1回「超電導磁気分離システムを利用した除染技術」調査専門委員会、大阪府吹田市(2014.6.23)
「環境省プロジェクト進捗状況」

- 3) 野村直希、三島史人、秋山庸子、西嶋茂宏：第1回「超電導磁気分離システムを利用した除染技術」調査専門委員会、大阪府吹田市(2014.6.23)
「土壌除染研究紹介-土壌中のセシウムの分布と吸着状態」
- 4) 岡田俊介、秋山庸子、西嶋茂宏：第1回「超電導磁気分離システムを利用した除染技術」調査専門委員会、大阪府吹田市(2014.6.23)
「建材除染研究紹介-建材の除染に関する調査報告」
- 5) 吉田有輝、関谷一輝、野村直希、三島史人、秋山庸子、西嶋茂宏：第3回環境放射能除染研究発表会、福島県郡山市(2014.7.3)
「土壌におけるセシウムの動態に関する研究」
- 6) 秋山庸子：第3回「超電導磁気分離システムを利用した除染技術」調査専門委員会、福島県福島市(2014.11.4)
「建材、土壌中のCsの微視的動態と問題点」
- 7) 岡田俊介、野村直希、三島史人、秋山庸子、西嶋茂宏：第90回2014年度秋季低温工学・超電導学会、福島県福島市(2014.11.5-7)
「セシウム動態に基づいた除染技術の研究 その1.住宅建材におけるセシウムイオンの動態に関する研究」
- 8) Y. Honda, S. Nishijima, 11th International Workshop on Positron and Positronium Chemistry, Goa, India, Nov.9-14,2014
“Application of localized annihilation of positron and o-Ps”
- 9) 岡田俊介、三島史人、秋山庸子、西嶋茂宏：日本放射線安全管理学会 第13回学術大会、徳島県徳島市(2014.12.3-5), 「建材におけるセシウムの動態に関する研究」

(3) 出願特許

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

- 1) 西嶋茂宏：日本における『環境問題』に対する取り組み方とは？-「放射能汚染」の現状と今後のあり方-、一般社団法人日本リスクマネージャネットワーク主催、大阪府大阪市
(2013.12.15) (市民向け講座)
「土壌汚染に関する「除染」についての現況」(受講者50名程度)
- 2) 低温工学・超電導学会主催 市民公開講座「建材はどうすれば除染できるか？」
福島市子どもの夢を育む施設 こむこむ館(2014.11.8) (来訪者80名程度)

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

- 1) 電気学会調査専門委員会主催 第12回2013年磁気力制御・磁場応用夏の学校 優秀発表賞
受賞者：岡田俊介(大阪大学大学院工学研究科)

- 2) 平成25年度第4回低温工学・超電導学会 材料研究会シンポジウム
平成25年度 第3回 電気学会「超電導磁気分離システムを利用した除染技術」調査専門委員会共催 研究会・見学会 「福島除染に関する現状と課題」(研究会主催)
- 3) 平成26年度 大阪大学総長奨励賞(研究部門)(受賞者:秋山庸子)
- 4) 平成26年度 日本原子力学会フェロー賞(修士論文テーマ「セシウムの微視的動態に基づいた磁気分離法による汚染土壌の減容化に関する研究」)(受賞者:吉田有輝)

8. 引用文献

- 1) T. Fujiwara, T. Saito, Y. Muroya, H. Sawahata, Y. Yamashita, S. Nagasaki, K. Okamoto, H. Takahashi, M. Uesaka, Y. Katsumura: Isotopic ratio and vertical distribution of radionuclides in soil affected by the accident of Fukushima Dai-ichi nuclear power plants. *Journal of Environmental Radioactivity*, 113, 37-44 (2012)
- 2) 「除染で取り除いた土壌等の処理の流れ」環境省HP
(http://josen.env.go.jp/soil/storage_procedure.html)、2014年12月閲覧
- 3) G. Wang, S. Staunton: Dynamics of caesium in aerated and flooded soils: experimental assessment of ongoing adsorption and fixation. *European Journal of Science*, 61, 1005-1013 (2010)
- 4) 日本粘土学会: 粘土ハンドブック第三版,2009
- 5) 農林水産技術会議事務局: 「農地土壌の放射性物質除去技術(除染技術)について」(平成23年9月14日)
- 6) 白水晴雄: 粘土鉱物学,粘土科学の基礎,朝倉書店,1988
- 7) 中尾淳・山口紀子: 放射性物質の土壌中での動き, 最新農業技術 土壌施肥 vol.4,2014
- 8) T. Ohno et al., "Depth profiles of radioactive cesium and iodine released from the Fukushima Daiichi nuclear power plant in different agricultural fields and forests," *Geochemical Journal*, vol. 46, 2012, pp. 287-295
- 9) H. Kato, Y. Onda, and M. Teramage, "Depth distribution of ^{137}Cs , ^{134}Cs , and ^{131}I in soil profile after Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident," *Journal of Environmental Radioactivity*, vol. 111, Sep. 2012, pp. 59-64
- 10) N. Kaneyasu, H. Ohashi, F. Suzuki, T. Okuda, and F. Ikemori, "Sulfate aerosol as a potential transport medium of radiocesium from the Fukushima nuclear accident," *Environ. Sci. Technol.*, vol. 46, no. 11, 2012, pp. 5720-5726
- 11) T. Takenaka, and Y. Onda, "Study on the migration of radioactive materials into the cedar pollen," Japan Atomic Energy Agency : Establishing the way to grasp long-term impacts of radioactive materials associated with the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident, 2012, pp. 123-128
- 12) K. Kita, and N. Yoshida, "Scattering situation of radioactive cesium from a variety of land use section," Japan Atomic Energy Agency : Establishing the way to grasp long-term impacts of radioactive materials associated with the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident, 2012, pp. 153-159

- 13) J. Real, F. Persin, and C. Camarasa-Claret, "Mechanisms of desorption of ^{134}Cs and ^{85}Sr aerosols deposited on urban surfaces," *Journal of Environmental Radioactivity*, vol. 62, issue 1, 2002, pp. 1-15
- 14) S. Staunton, C. Dumat, A. Zsolnay: Possible role of organic matter in radiocesium adsorption in soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, 58, 163-173 (2002)
- 15) K. Akiba, H. Hashimoto, T. Kanno: Distribution Coefficient of Cesium and Cation Exchange Capacity of Minerals and Rocks. *Journals of Nuclear Science and Technology*, 26, 1130-1135 (1989)
- 16) R. N. Yong, M. Nakano, R. Pusch: Chapter 2. Nature of Soils. In "Environmental Soil Properties and Behavior", Taylor and Francis, pp. 52 (2012)
- 17) T. Matsunaga, J. Koarashi, M. Atarashi-Andoh, S. Nagao, T. Sato, H. Nagai: Comparison of the vertical distributions of Fukushima nuclear accident radiocesium in soil before and after the first rainy season, with physicochemical and mineralogical interpretations. *Science of the Total Environment*, 447, 301-314 (2013)
- 18) D. M. Ozdoda, J. C. Blyth, R. F. Engler, H. Dinel, M. Schnitzer: Leonardite and Humified Organic Matter. In "Humic Substances: Structures, Models and Functions", Ed. by E. A. Ghabbour, G. Davies, The Royal Society of Chemistry, Great Britain, pp. 309-314 (2001)
- 19) A. Nakao, Y. Thiry, S. Funakawa, T. Kosaki: Characterization of the frayed edge site of micaceous minerals in soil clay influenced by different pedogenetic conditions in Japan and northern Thailand. *Soil Science and Plant Nutrition*, 54, 479-489 (2008)
- 20) X. Guichet, M. Fleury, E. Kohler: Effect of clay aggregation on water diffusivity using low field NMR. *J. Colloid Interface Sci.*, 327, 84-93 (2008)
- 21) B. A. Moyer, Y. Sun: Chapter 6. Principles of Solvent Extraction of Alkali Metal Ions. In "Ion Exchange and Solvent Extraction", Ed. by J. A. Marinsky, Y. Marcus, Marcel Dekker, Inc., New York, pp. 302 (1997)
- 22) A. A. Helal, H. A. Arida, H. E. Rizk, S. M. Khalifa: Interaction of Cesium with Humic Materials: A Comparative Study of Radioactivity and ISE Measurements. *Radiochemistry*, 49, 523-529 (2007)
- 23) M. Okumura, H. Nakamura, M. Machida: Mechanism of Strong Affinity of Clay Minerals to Radioactive Cesium: First-Principles Calculation Study for Adsorption of Cesium at Frayed Edge Sites in Muscovite. *Journal of the Physical Society of Japan*, 82, No. 033802 (2013)
- 24) K. Volchek, M. Yusuf Miah, W. Kuang, Z. DeMaleki, and F. Handan Tezel, "Adsorption of cesium on cement mortar from aqueous solutions," *Journal of Hazardous Materials*, vol. 194, Oct. 2011, pp. 331-337
- 25) K. Maslova et al., "Fate and transport of radiocesium, radiostrontium and radiocobalt on urban building materials," *Journal of Environmental Radioactivity*, vol. 125, Nov. 2013, pp. 74-80
- 26) R. Gopalan, *Inorganic chemistry for undergraduates (Book style)*. Hyderabad, Telangana : Universities Press, vol. 1, 2009, pp. 159
- 27) Y. Marcus, *Introduction to Liquid state Chemistry (Book style)*, Hoboken, NJ : John Wiley and Sons , 1977, pp. 213-217

- 28) J. Bjornstrom, A. Martinelli, A. Matic, L. Borjesson, and I. Panas, "Accelerating effects of colloidal nano-silica for beneficial calcium-silicate-hydrate formation in cement," *Chemical Physics Letters*, vol. 392, Issues 1-3, Jul. 2004, pp. 242-248
- 29) A.G. Volkov, S. Paula, and D.W. Deamer, "Two mechanism of permeation of small neutral molecules and hydrated ions across phospholipid bilayers," *Bioelectrochemistry and Bioenergetics*, vol.42, 1997, pp. 153-160
- 30) H. Okochi, H. Kameda, S. Hasegawa, N. Saito, K. Kubota, and M. Igawa, "Deterioration of concrete structures by acid deposition - an assessment of the role of rainwater on deterioration by laboratory and field exposure experiments using mortar specimens," *Atmospheric Environment*, vol. 34, Issue 18, 2000, pp. 2937-2945
- 31) K. Kobayashi, Y. Uno, and Y. Mori, "Deterioration process of concrete structures affected by acid deposition," *Journal of the Japan Society of Civil Engineers*, vol.35, no. 564, 1997, pp. 243-251
- 32) Noriko Yamaguchi et al., "Behavior of radiocaesium in soil-plant systems and its controlling factor: A review," *Bull. Natl. Inst. AgroEnviron.Sci.*, vol. 31, 2012, pp.75-129
- 33) Tatsuo Ishikawa, "Characterization of Steel Rusts by Gas Adsorption," *Zairyo-to-Kankyo*, vol. 54, 2005, pp. 361-367
- 34) Masaji Takahashi, Yasuhiro Hirano, and Hitoshi Katayama, "Measuring Method of Radioactive Cesium Surface Density and Permeation Depth by Characteristic X-Ray Measurement", *KEK Proceedings 2014-7 (Nov. 2014) Proceedings of the 15th Workshop on Environmental Radioactivity*, pp. 287-293

(2) セシウムの動態に基づく除染シナリオの構築

福島大学 理工学群共生システム理工学類

樋口 良之

平成25～26年度累計予算額：13,451千円（うち、平成26年度予算額：5,134千円）

予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

福島原発事故により放射性セシウムに汚染された土壌を対象に、汚染土壌の特性、除染作業の環境と条件を考慮して除染シナリオを作成し、適切な除染、減容化、および保管などの方法を検討した。本研究における除染シナリオとは、次の2つを意味する。1つは住宅や公共施設などの生活圏内の表土の剥ぎ取り（本研究では一次除染と呼称する）等の除染方法とその範囲の策定、もう一つは剥ぎ取り後の除去土壌に対して、湿式あるいは乾式の分級洗浄、磁気分離といった減容化（本研究では二次除染と呼称する）の適用方法である。これらの検討においては、福島県における大量の除去土壌の分布と本研究で開発する除染処理能力を勘案し、地域社会の要望や復興計画を満足するものでなければならない。本研究ではまず、除染範囲の最適化手法の開発を行い、対象地域の空間線量を目標値まで下げるための一次除染の計画にあたり、適切な範囲を決定するための方法を提案した。次に、除染や減容化の経済性・効率性のシミュレーション手法の検討を行った。特に、連携するサブテーマで開発している湿式分級と磁気分離による減容化を中心に、減容化のための処理と処理後の土壌の保管について検討を行った。

その結果、対象となる居住地の空間線量に寄与する周囲の影響を踏まえ、最適な除染範囲を決定できる手法を確立した。また、減容処理を適切に行えるシナリオの検討方法を確立した。具体的には、適切なシナリオとなる減容処理コストの条件を算定できるモデルを定式化した。この定式化されたモデルに基づき、福島県の除染で生じた除去土壌の実状を事例にシミュレーションを行い、シナリオの経済性を検討した。

[キーワード]

除染シナリオ、除染範囲、除去土壌、減容化、経済性評価

1. はじめに

福島原発事故により、飛散した放射性セシウムが長期にわたり空間放射線量を高くしているなどの問題が広域に及んでいる。福島原発事故が発生した翌年度の平成23年度になっても、東日本大震災と福島原発事故の多重災害からの復旧に労力を要し、除染計画の策定は困難を極めた。平成24年度には、福島県内の自治体の多くが、除染に関する計画を策定した。しかし、最終処分、中間貯蔵施設の見通しが立たない中で、除染作業で生じる除去土壌の搬出先である地域内の仮置場の確保が進まず、除染作業の進捗は困難を極めた。平成25年度には、地域内での仮置場の整備が進み、仮置場への除去土壌の搬入も進んだ。平成26年度には、中間貯蔵施設の検討が進み、年度の終わりには中間貯蔵施設のスタックヤードへのパイロット輸送も実施された。

このような当時の福島県の状況から、本研究の計画時点の平成24年度には、住宅、公共用地な

どの除染作業現場での除去土壌の減容化が検討された。減容化の対象は、半減期が比較的長い放射性セシウムに汚染され、大量に扱われることが想定された除去土壌である。減容化の方法は、関連するサブテーマで開発する分級洗浄を前処理にした磁気分離によるものである。本研究では、住宅や公共施設などの生活圏内の表土の剥ぎ取り、天地返しや反転耕などを一次除染と定義している。また、剥ぎ取られた表土である除去土壌に対し、湿式あるいは乾式の分級洗浄、磁気分離などの減容処理を二次除染と定義している。本研究の当初には、一次除染単独、あるいは、二次除染との組み合わせで、除染作業現場での処理シナリオを構成しようと考えた。シナリオによって、除染作業現場から排出される除去土壌が、少量の高濃度汚染の土壌と多量の低濃度汚染のものに分けられ、低濃度のは再利用、埋め戻しをすることで減容化できると考えた。シナリオごとのコストを算定することで、シナリオの経済性を評価し、適切なシナリオ選択を目指した。

研究を開始した平成25年度以降には、除去土壌の取り扱いについて専門委員会の考え方がまともになり始め、規定化が進んだ。その結果、本研究の当初に想定していた二次除染、すなわち、比較的放射性セシウム濃度が高い少量の土壌と低濃度の多量の土壌に分けることをしたとしても、濃度に関係なく除去土壌であり、全量を中間貯蔵施設へ輸送する方針となった。また、地域ごとに除去土壌の仮置場の整備、運用が進んだ。中間貯蔵施設の基本計画では、除去土壌などの放射能濃度が8000 Bq/kg以下のものをⅠ型施設、8000 Bq/kg を超え10万Bq/kg以下のものをⅡ型施設、10万Bq/kgを超えるものを廃棄物貯蔵施設でそれぞれ貯蔵することとなった。これらの状況に鑑み、除染作業現場での処理のシナリオの検討であった研究計画当初の考え方から、二次除染（減容処理）の実施検討範囲を中間貯蔵施設まで拡大して、シナリオの経済性、適切なシナリオ選択方法を検討することとなった。

本サブテーマでは、除染・減容化・保管等のためのコストや除染廃棄物を最小限にとどめるための、除染範囲の最適決定手法の提案と、除染の経済性・効率性のシミュレーション手法の提案を行うという2つの観点から、除染シナリオの選択方法についてのモデリングを行った。それぞれの目的は以下のとおりである。

2. 研究開発目的

(1) 除染範囲の最適決定手法の提案

汚染地域の除染が進行するにつれて、膨大な量の除染廃棄物が発生し、その仮置き場の確保が困難になりつつある。また、除染を行っても、必ずしも目標値まで線量が下がらないこともしばしば起こっている。従って、除染計画の策定には、客観的シミュレーションを用いて、適切な除染範囲・除染方法を選択する必要がある。本研究では、除染範囲の最適化選定ツールの開発に資することを目的としている。

(2) 除染の経済性・効率性のシミュレーション手法の提案

土壌を中心にした除染対象物の特性、除染作業の環境と条件を考慮して除染シナリオを作成し、適切な除染、保管などの方法を決定する。これらの決定においては、大量の除去土壌の分布と、本研究の中で連携しているサブテーマにおいて開発の磁気分離による減容処理（二次除染）の能力を勘案し、地域社会の要望や復興計画を満足するものを選択しなければならない。また、その減容処理方法や処理後の保管方法などのコストも考慮し、適切な減容、保管などの方法を決定する。

3. 研究開発方法

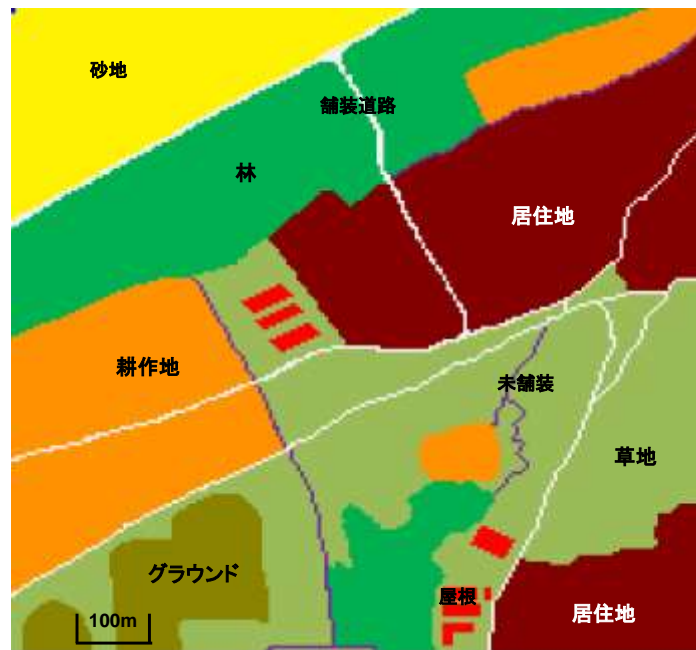
(1) 除染範囲の最適決定手法の提案

現在、日本原子力研究所により、除染作業による線量率の低減効果を評価するフリーソフトウェアCDE(Calculation system for Decontamination Effect)が開発されている。このソフトウェアでは、環境に広く分布している放射性セシウムに対して作成した線量寄与データベースを用いて、表面汚染密度データに基づき除染前の空間線量率を計算し、さらに除染の度合いを示す除染係数を用いて除染後の空間線量率を予測する。更に、除染効果は線量率減少係数によって表され、これらの結果は除染対象地域の地形図上に可視化される。本研究では、このソフトウェアを利用して、更に感度解析の手法を導入することにより、対象地域の空間線量率を目標値以下にできる最小の除染範囲を計算する手法を提案する。

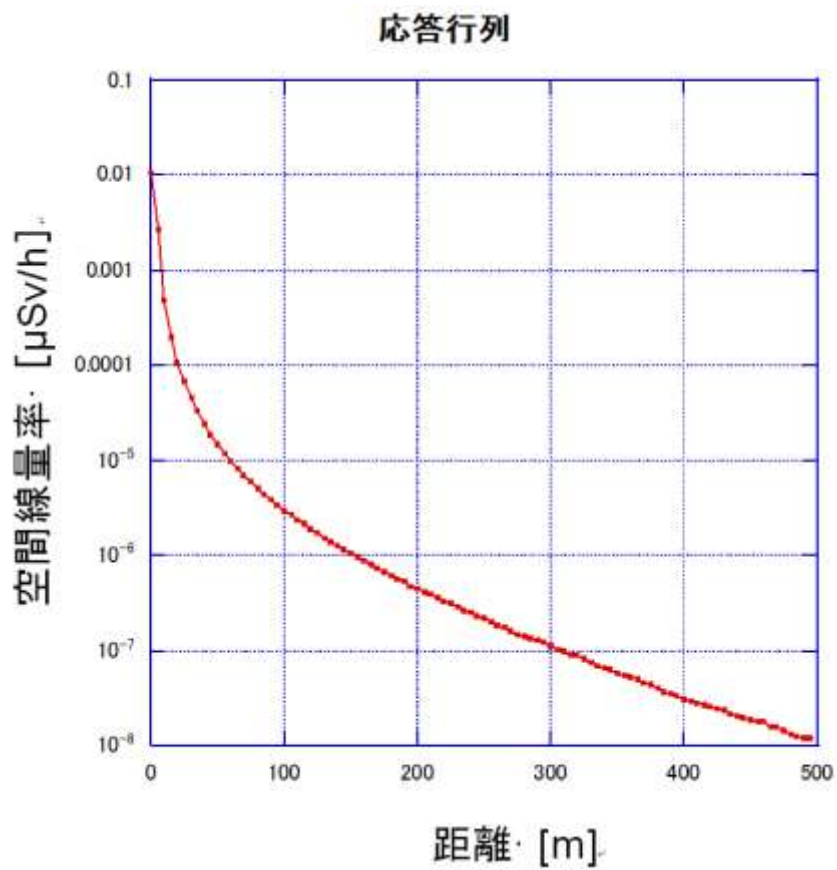
本研究で検討している除染範囲の最適計算手法のアウトラインを以下に示す。

- ① まず、対象地域の航空地図データとそれに対応する空間線量率のモニタリングデータを入手する。これに基づき、CDEを利用して、地図データから空間メッシュを作成し、各メッシュに対する汚染源（Cs134とCs137）の密度分布データを求める（図(2)-1）。
- ② 同時にCDEを利用して、ある5m×5mの空間メッシュに存在する単位汚染源密度による別の空間メッシュ上に与える空間線量率を距離の関数として求めておく（図(2)-2）。CDEでは、これを応答行列と呼ぶ。
- ③ 空間線量率を目標値以下に低減したい対象区域（例えば、居住地など。以下、「対象区域」という）に最も大きな影響を与えている周辺区域（例えば、耕作地など。以下、「周辺区域」という）のセルを検索し、そのセルを適当な方法で除染する（図(2)-3）。
- ④ 周辺区域で最も影響の大きい1つのセルを除染する（③のプロセス）たびに、対象区域の空間線量率を再計算する。
- ⑤ 対象区域の空間線量率が目標値を下回るまで、③及び④を繰り返す。

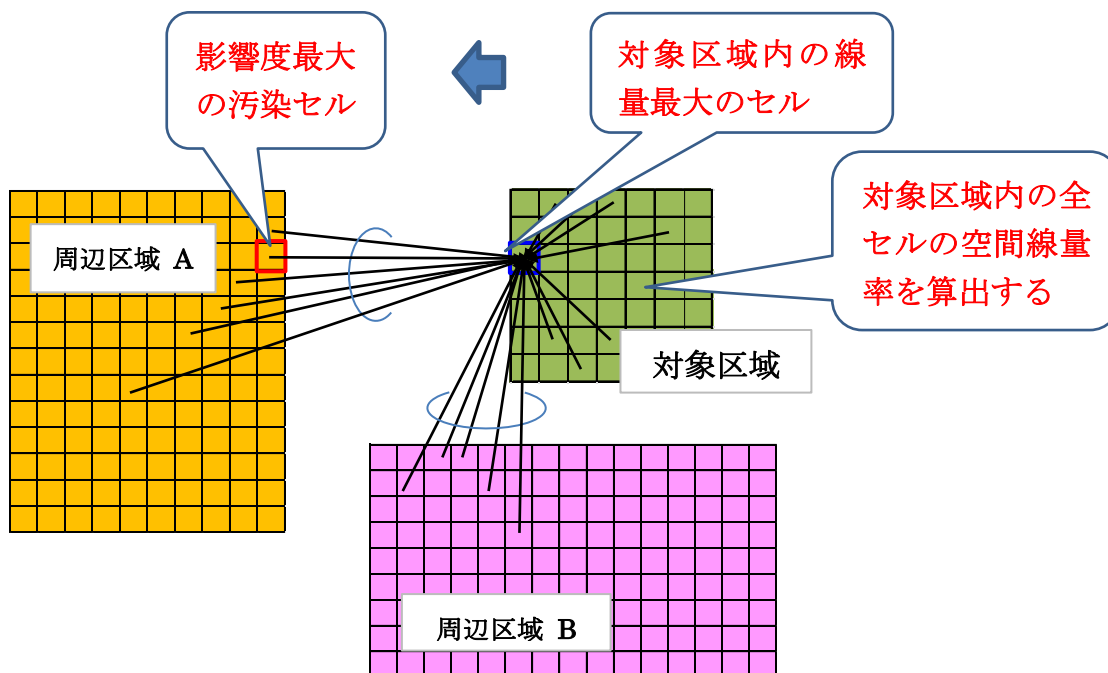




図(2)-1 対象地域の航空写真データ及び計算のために生成した空間メッシュ



図(2)-2 単位汚染源密度が発生する空間線量率と距離の関係



図(2)-3 除染範囲の最適化手法の概要

(2) 除染の経済性・効率性のシミュレーション手法の提案

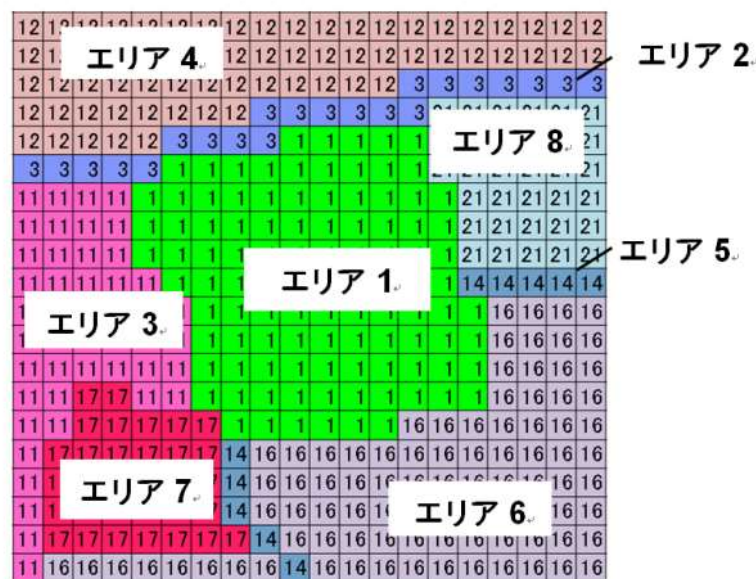
本研究の目的は、除染作業で除去された土壌の特性、除染作業の環境と条件を考慮した除染シナリオの作成である。除染シナリオの構成については「1. はじめに」において説明している。適切なシナリオを選定するためには、除去土壌の放射能濃度、取扱量を変数にして、本研究の中で連携しているサブテーマで開発した磁気分離による減容処理を含めたシナリオごとのコストが算定され、経済性が評価されなければならない。このために、プラント設計などで使われる原価計算の手法により、シナリオ構成の要素となる減容処理プラントの構築、設置、運用コストを算定する。連携サブテーマで開発する磁気分離による減容処理の実験、試験結果に基づき、毎時1トン単位の除去土壌の処理能力を有するプラント設計を行い、1トン当たりの処理コストを推定する。これにより、減容処理のコストの検討が可能になる。また、環境省の主管する除去土壌などの輸送、中間貯蔵を検討する委員会、福島県庁の関連部門に問い合わせを行いながら、それらの組織の公開資料^{1)~4)}や提供いただくデータに基づき、シナリオのモデリングと除染作業現場サイトから中間貯蔵施設までの各段階における除去土壌の放射能濃度、取扱量などのデータを収集する。収集した除去土壌の放射能濃度、取扱量に基づき、除染シナリオの事例解析を行う。これにより、除去土壌に対して、そのまま保管した場合と、磁気分離による減容処理を行った場合について、処理のコストと時間、処理後の土壌について放射性セシウム濃度ごとの量をシミュレーションにより試算できる。また、除去土壌の放射能濃度に応じて適切なシナリオ選定を支援できる方法を確認し、その方法の有用性を検証する。

4. 結果及び考察

(1) 除染範囲の最適決定手法の提案

前述したフローに基づき解析プログラムを作成し、仮想的な小規模モデルでプログラムの検証

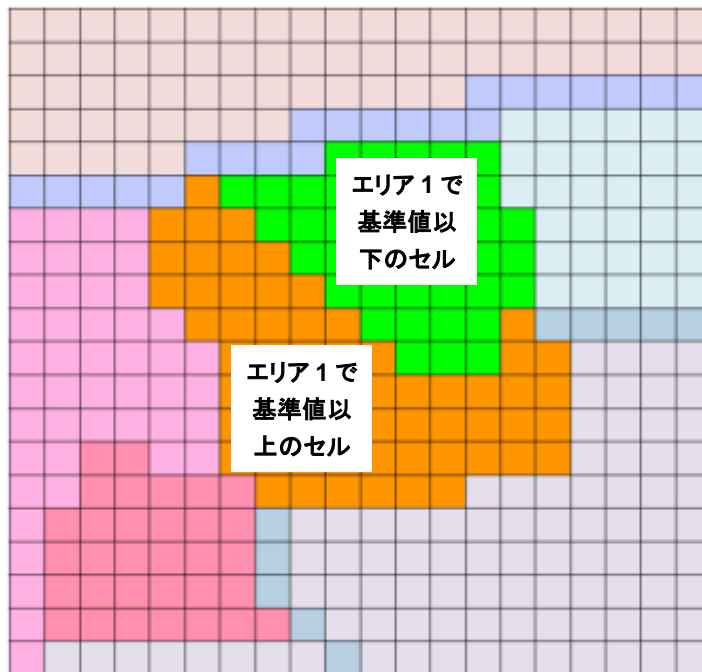
を行った。まず、図(2)-4に示すような仮想的な20×20セルの対象地域を考え、各区分の汚染密度や除染係数、除染方法を表(2)-1に示すように設定する。ここで、対象区域をエリア1とし、目標とする空間線量率を $0.7\mu\text{Sv/h}$ とする。対象区域（エリア1）内を除染しても、汚染源密度の高い周辺区域（エリア7等）の影響を受けて、対象区域内の空間線量率は目標値を超える部分が存在する（図(2)-5）。この状態からスタートして、周辺区域内の影響度の高いセルを適切に検索し、必要最低限な数のセルを除染することにより、対象区域内の空間線量率を目標値以下に低減できる結果（図(2)-6）を得ることができ、プログラムは上記のアルゴリズム通り動作していることを確認した。



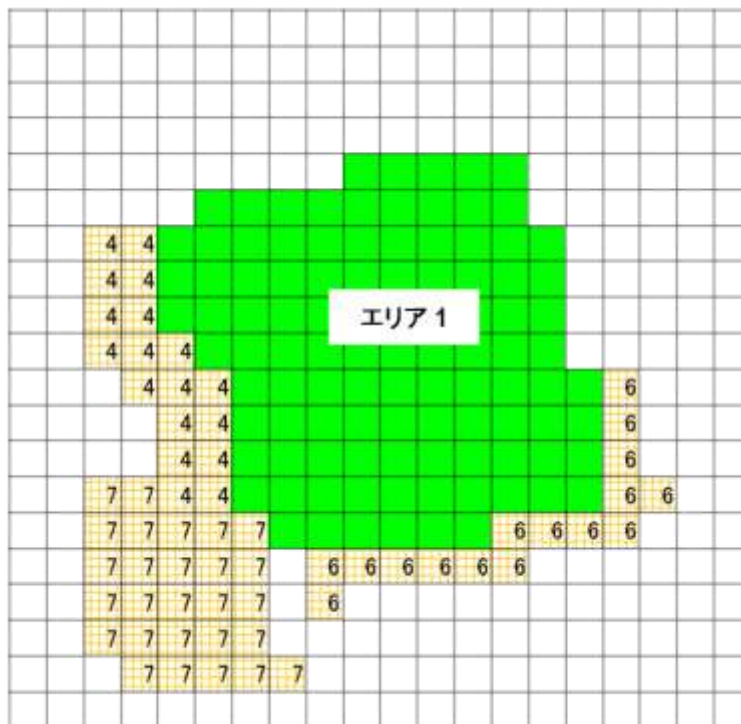
図(2)-4 検証のための仮想エリア

表(2)-1 想定汚染源密度及び除染方法

区分	区分ID	汚染密度 [Bq/cm ²]	除染係数	除染方法
エリア1（居住地を想定）	1	10	1.0	除染済み
エリア2（舗装道路を想定）	3	10	1.5	高圧洗浄
エリア3（草地を想定）	11	70	5.0	草剥ぎ取り
エリア4（砂地を想定）	12	20	3.0	反転耕
エリア5（未舗装道を想定）	14	20	5.0	砂利除去
エリア6（耕作地を想定）	16	40	4.0	天地返し
エリア7（林を想定）	17	150	10.0	堆積物除去+枝打ち
エリア8（グラウンドを想定）	21	20	4.0	天地返し



図(2)-5 周辺地域の除染前



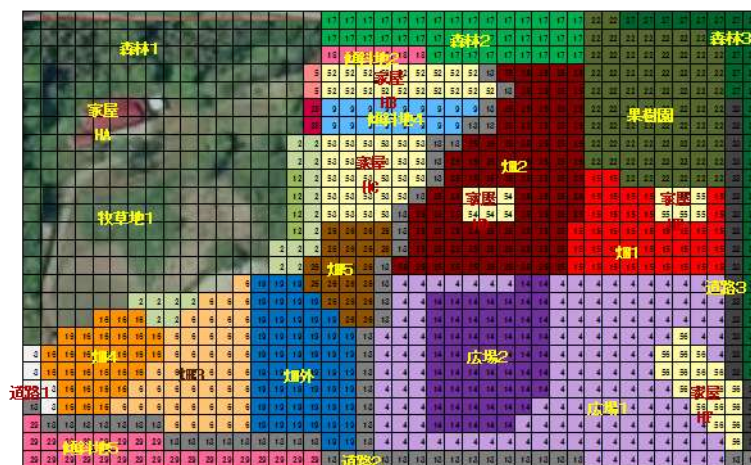
図(2)-6 周辺地域の必要セルを除染後

更に、開発したソフトウェアを用いて、伊達市における除染実証実験のデータ (http://www.jaea.go.jp/fukushima/kankyoanzen/guideline_report/3.1.pdf) に適用して、妥当性の検証を行った。まず、図(2)-7 及び図(2)-8 に示すような実証試験サイトの航空写真を入手し、メッシュ分割を行い、実証試験で得られているモニタリングデータを用いて、汚染密度データを設定する。分割したメッシュとモニタリングポイントは必ずしも一致しないところがあるので、1 メッシュ (5m×5m) 内で平均値として用いた。まず、全エリアを実証実験で行われた方法と同じ方法で除染した後の家屋 HA~HF の線量率を計算した。このときの家屋 HA~HF の空間線量率のデータを実証実験のデータと比較して図(2)-9 に示す。本ソフトウェアで計算した結果は、概ね実証実験で得られたデータの範囲に入っていることが分かる。実証実験のデータには極めて局所的なホットスポットの線量データが含まれており、一方、本ソフトウェアではそのような局所的なホットスポットを考慮できないことが差異の要因と考えられる。図(2)-10 には、目標線量率を変化させた時の除染範囲の変化について示してある。目標線量率を僅かに変えただけで、除染範囲が大きく変化することが示された。

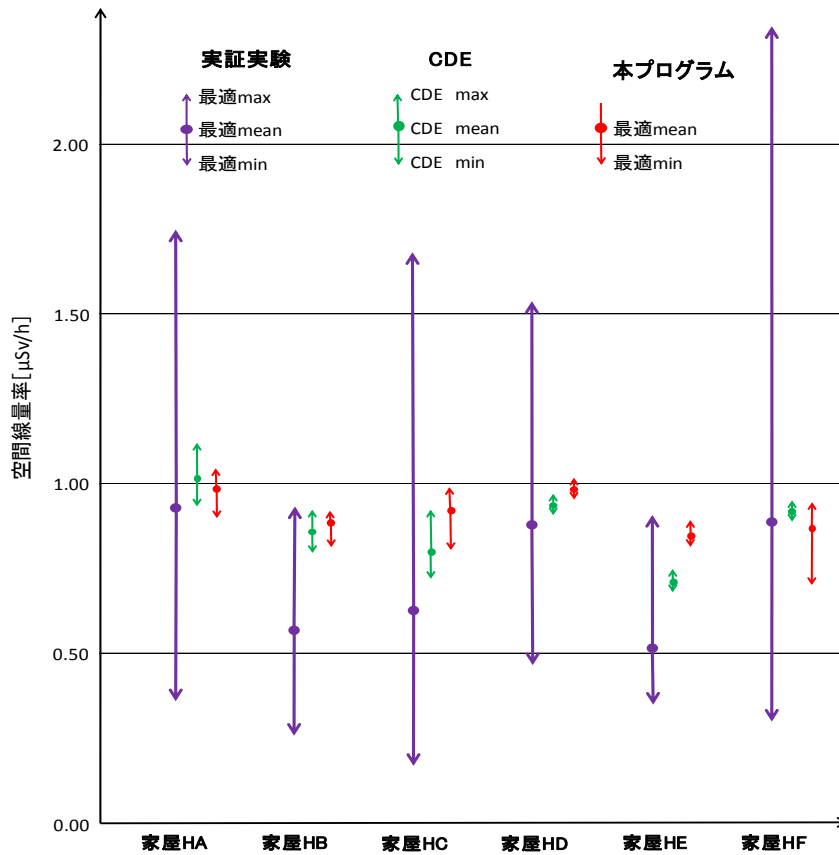


図(2)-7 対象地域の航空写真データ及びモニタリングポイント

(http://www.jaea.go.jp/fukushima/kankyoanzen/guideline_report/3.1.pdf)

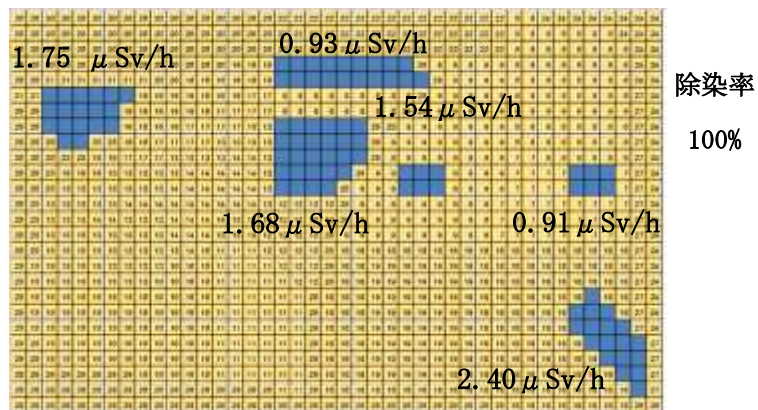


図(2)-8 生成した空間メッシュとエリア分割

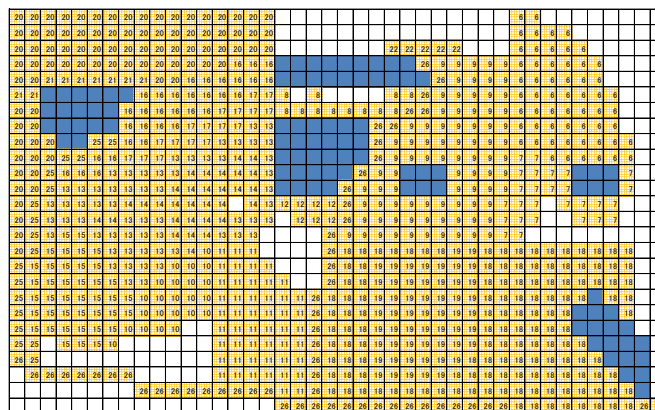


図(2)-9 家屋HA~HFの空間線量率のデータの比較

実証実験結果 (最大値) 0.91~2.4 μSv/h

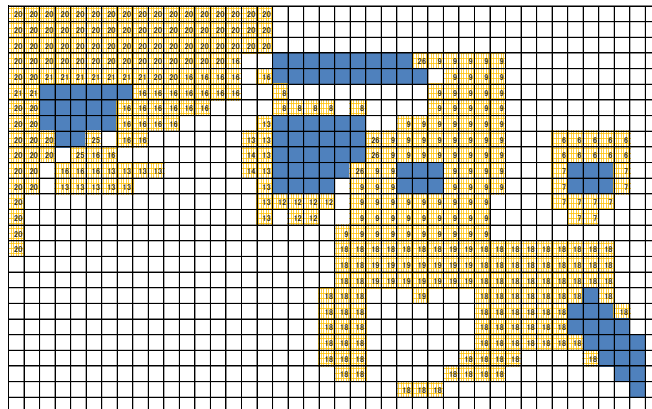


最適化目標値 1.0 μ Sv/h 以下



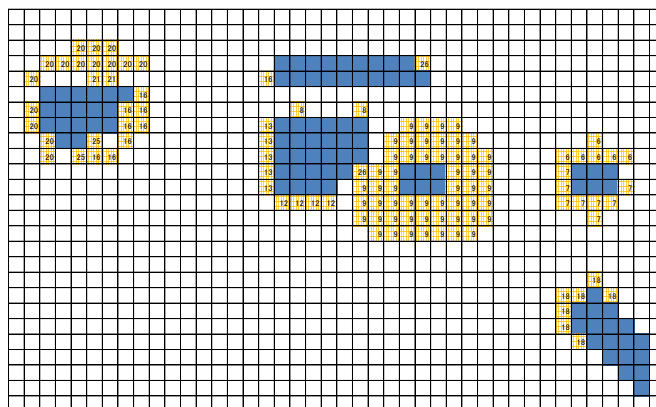
除染率
81%

最適化目標値 1.1 μ Sv/h 以下



除染率
38%

最適化目標値 1.2 μ Sv/h 以下



除染率
12%

図(2)-10 目標線量率を変化させた時の除染範囲の変化

(2) 除染の経済性・効率性のシミュレーション手法の提案

1) シナリオのモデリング

研究を始めた当初は、住宅や公共施設などの生活圏内の除染作業現場サイトでの一次除染、二次除染（減容処理）で構成されるシナリオを検討していた。しかし、平成25年度の後半には仮置場の整備が進捗し始め、一部に着工、仮置場への除去土壌の搬入といった運用が認められ始め、中間貯蔵施設などの後工程も検討されるようになった。この結果、除染作業現場サイトから中間貯蔵施設までの総合的な除去土壌の流れを考慮して検討すべきとのニーズが高まり、シナリオ構成の対象範囲を拡大し検討するものとした。

このため、シナリオは、住宅や公共施設などの生活圏内の除染作業現場サイトでの一次除染、加えて、現場サイトや仮置場での減容処理の有無で構成されるものへ拡大し検討を始めた。例えば、本研究の主たる対象となる除去土壌では、除染作業現場サイトにおける表土の剥ぎ取りなどの一次除染、同現場サイトでの磁気分離などの減容処理の有無、さらには、それを運搬した仮置場での減容処理の有無で複数のシナリオが設定できる。それぞれの処理の有無により設備費や運用コストがシナリオごとの総コストに加算されるだけでなく、放射能濃度が変化した処理後の土壌の運搬、輸送にかかわるコストも変動する。このようなシナリオごとの除去土壌の量や放射能濃度、コストを表(2)-2に示すように構造化し、4つのシナリオをモデリングした。表(2)-2に示した土壌の放射能濃度と量に応じた各工程 j のコスト C_j を試算し、シナリオ i ごとに C_j の総和をとることで総コスト T_i を算定でき、個々のシナリオの経済性を評価できる。

平成26年度に入り、除去土壌を貯蔵する中間貯蔵施設などの本格的な検討の段階において、除染作業で生じた除去土壌は、放射能濃度に関係なく中間貯蔵施設へ搬入することとなった。これにより、除染作業現場サイトと仮置場において、除去土壌を比較的に高濃度のもものと低濃度のものに分け、低濃度のもものは地域に埋め戻す減容処理のシナリオが現実的なものではないと判断された。また、この仮置場で行う減容処理のシナリオは、処理後に放射能濃度の高い土壌を生成するために、仮置場から中間貯蔵施設までの輸送において、荷姿、放射線防護など特別な配慮が求められる可能性もある。このことから、表(2)-2に示したシナリオNo. 1とNo. 2のみが、福島県の実状に現実的な選択となり、研究対象となった。

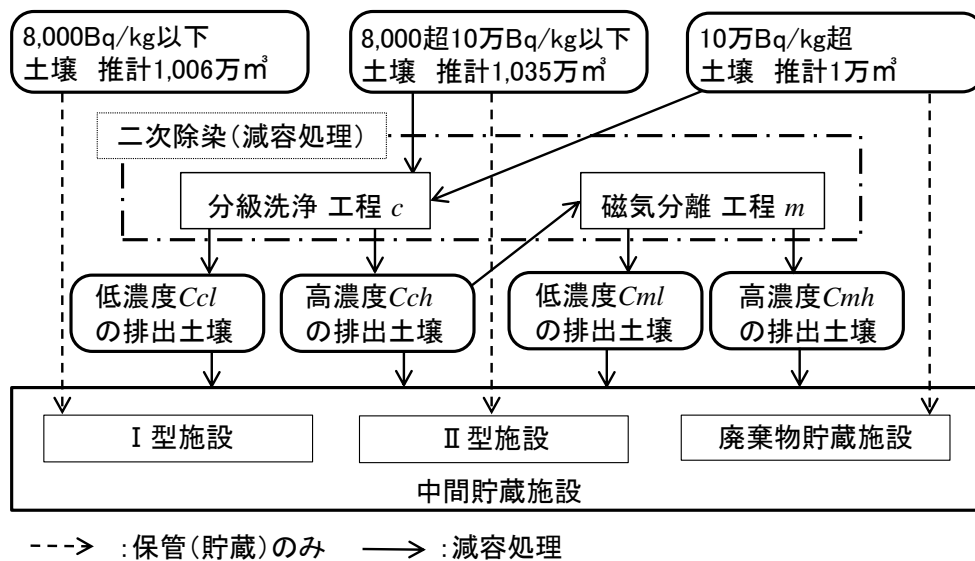
この福島県の実状に即したシナリオは、現実的であると同時に適切なものでなければならない。ここで言う適切とは、法令、安全を遵守しつつ、中間貯蔵施設での受入管理区分である8000 Bq/kg以下のI型施設、8000 Bq/kg を超え10万Bq/kg以下のII型施設、10万Bq/kgを超える廃棄物貯蔵施設といった基準に合理的であり、それぞれの施設貯蔵コストと減容処理コストのトレードオフ問題の最適解に合致するものである。

シナリオNo. 1は、中間貯蔵施設に搬入された除去土壌を、放射能濃度に応じてI型、II型、廃棄物貯蔵施設へ貯蔵するものである。また、シナリオNo. 2では、8000 Bq/kg以下の除去土壌は、貯蔵コストが低いI型施設へ全量貯蔵するのが適切と考えられる。8000 Bq/kg を超え10万Bq/kg以下の除去土壌は、減容処理によりI型施設へ搬入できるもの、II型施設へ搬入するもの、廃棄物貯蔵施設へ搬入しなければならないものも生じる可能性がある。10万Bq/kgを超える除去土壌は、減容処理によりI型、II型施設へ搬入できるものが出てくる可能性がある。このシナリオNo. 2と連携サブテーマで開発した分級洗浄と磁気分離からなる減容処理と中間貯蔵施設の関係をモデリングしたものを図(2)-11に示す。

表(2)-2 シナリオの構成と除去土壌の処理の関係

シナリオ	総コスト	区分	プロセスの流れ								
			除染作業現場サイト		運搬	仮置場		輸送	減容処理施設、中間貯蔵施設		
			除染作業 (一次除染)	減容処理 (二次除染)		搬入保管	減容処理 (二次除染)		搬入保管	減容処理 (二次除染)	
No. 1: 一次除染後、 中間貯蔵施設 へ搬入	T1	実施の有無	有	無	有	有	無	有	有	無	
		土壌量[t]	VI	>	VI	VI	>	VI	VI	VI	VI
		汚染濃度[Bq/kg]	PI	>	PI	PI	>	PI	PI	PI	PI
		コスト[¥/t]	CI	---	C31	C41	---	C61	C71	C81	
No. 2 一次除染後、 中間貯蔵施設等 で減容処理	T2	実施の有無	有	無	有	有	無	有	有	有	
		土壌量[t]	VI	>	VI	VI	>	VI	VI	減容 V18	
		汚染濃度[Bq/kg]	PI	>	PI	PI	>	PI	PI	PI18	
		コスト[¥/t]	CI	---	C31	C41	---	C61	C71	C82	
No. 3: 一次除染後、 仮置場で 減容処理	T3	実施の有無	有	無	有	有	有	有	有	無	
		土壌量[t]	VI	>	VI	VI	減容 V15	V15	V15	V15	
		汚染濃度[Bq/kg]	PI	>	PI	PI	P15	P15	P15	P15	
		コスト[¥/t]	CI	---	C31	C41	C5	C62	C72	C83	
No. 4: 一次除染後、 現場サイト で減容処理	T4	実施の有無	有	有	有	有	無	有	有	無	
		土壌量[t]	VI	減容 V12	V12	V12	>	V12	V12	V12	
		汚染濃度[Bq/kg]	PI	P12	P12	P12	>	P12	P12	P12	
		コスト[¥/t]	CI	C2	C32	C42	---	C63	C73	C84	

二次除染では、Px [Bq/kg] 以下のものと、それを超えるものに分別でき、Px [Bq/kg]以下のものがリサイクルできるものとする。



図(2)-11 減容処理と中間貯蔵施設の関係のモデル

2) 減容処理のモデリング

図(2)-11に示したように、本研究の減容処理は分級洗浄工程cと磁気分離工程mを組み合わせたものである。また、分級洗浄後に磁気分離を行うことが効果的で、磁気分離単独、あるいは、磁気分離後に分級洗浄を行うことは効果的でないことがわかっている。任意の工程*i*では、放射性セシウム濃度*C_s*の除去土壌が処理されると、比較的高い濃度*C_{ih}*の少量の土壌と低濃度*C_{il}*の多量の土壌に分けられる。この減容処理のモデルでは、磁気分離後に排出される低濃度*C_{ml}*は、分級洗浄工程*c*の放射能分離比の高値*R_{ch}*と重量分離比の高値*W_{ch}*、磁気分離工程*m*の放射能分離比の低値*R_{ml}*と重量分離比の低値*W_{ml}*を用いて次式で示される。

$$C_{ml} = C_s \frac{R_{ch} R_{ml}}{W_{ch} W_{ml}} \dots \dots \dots (2)-1$$

投入される除去土壌の*C_s*によって、*C_{ml}*が8,000 Bq/kg以下、10万Bq/kg以下、あるいは、10万Bq/kg超にそれぞれどの程度の土壌量に分けられるかが重要となる。

連携サブテーマで開発した減容処理では、現時点で除去土壌を重量について表(2)-3に示すように、放射能について表(2)-4に示すようにそれぞれ分離する。これらの表を解析条件として、投入除去土壌1トンに対して、排出される土壌の濃度と量を式(2)-1などで算定した結果を表(2)-5に示す。分級洗浄工程を単独にとらえ着眼すると、投入土壌の*C_s*が32,000 Bq/kgが一つの目安となることがわかる。*C_s*が8,000を超え32,000Bq/kg以下の除去土壌であれば、本来II型施設へ搬入するところを、8割の除去土壌を貯蔵コストが安価なI型施設へ搬入できる。逆に、*C_s*が32,000 Bq/kgを超えると排出される*C_{cl}*が8,000 Bq/kgを超えてしまい、II型施設に搬入されることになり、分級洗浄工程単独の減容処理では、処理を行う意味を失うことがわかる。適切なシナリオの説明において、各施設の基準に合理的としたのは、例えば、このように本来II型施設へ搬入すべきものが減容処理により、貯蔵コストの安価なI型施設へ搬入できることである。分級洗浄と磁気分離を組み合わせた減容処理では、*C_s*が4,000 Bq/kgを超えると排出される*C_{ml}*が8,000 Bq/kgを超えてしまい、貯蔵コストの検討では注意が必要となる。また、*C_s*が8,333 Bq/kgを超えると排出される

C_{mh} が10万Bq/kgを超えてしまい、注意が必要となる。さらに、 C_s が50,000 Bq/kgを超えると排出される C_{ml} までもが10万Bq/kgを超えてしまい、磁気分離工程のコストをかけて、この工程から排出されるすべての土壌が貯蔵コストの最も高い廃棄物貯蔵施設へ搬入しなければならない状況となる。

表(2)-3 減容処理工程の重量分離比

重量分離比	分級洗浄	磁気分離
高濃度	0.2	0.2
低濃度	0.8	0.8

表(2)-4 減容処理工程の放射能分離比

放射能分離比	分級洗浄	磁気分離
高濃度	0.8	0.6
低濃度	0.2	0.4

表(2)-5 投入土壌の放射性セシウム濃度と減容処理の排出土壌特性の関係

投入除去土壌 1トンのセシウム濃度 C_s [Bq/kg]	分級洗浄工程 c		磁気分離工程 m			
	排出土壌		高濃度排出土壌		低濃度排出土壌	
	土壌量 [t]	濃度 C_{cl} [Bq/kg]	土壌量 [t]	濃度 C_{mh} [Bq/kg]	土壌量 [t]	濃度 C_{ml} [Bq/kg]
4,000	0.80	1,000	0.04	48,000	0.16	8,000
8,000	0.80	2,000	0.04	96,000	0.16	16,000
8,333	0.80	2,083	0.04	100,000	0.16	16,667
32,000	0.80	8,000	0.04	384,000	0.16	64,000
50,000	0.80	12,500	0.04	600,000	0.16	100,000
100,000	0.80	25,000	0.04	1,200,000	0.16	200,000
400,000	0.80	100,000	0.04	4,800,000	0.16	800,000

除去土壌が減容処理されずに、そのまま濃度に応じてⅠ型、Ⅱ型、廃棄物貯蔵施設へ搬入されるところを、減容処理により中間貯蔵施設において1区分簡易で貯蔵コストが安価な施設へ少しでも貯蔵することを指針とするならば、表(2)-3と表(2)-4に示した本研究の現段階での減容処理の性能では、 C_s が8,000 Bq/kgを超え32,000Bq/kg以下の除去土壌に対して有用と理解できる。

3) 減容処理プラントのコスト算定

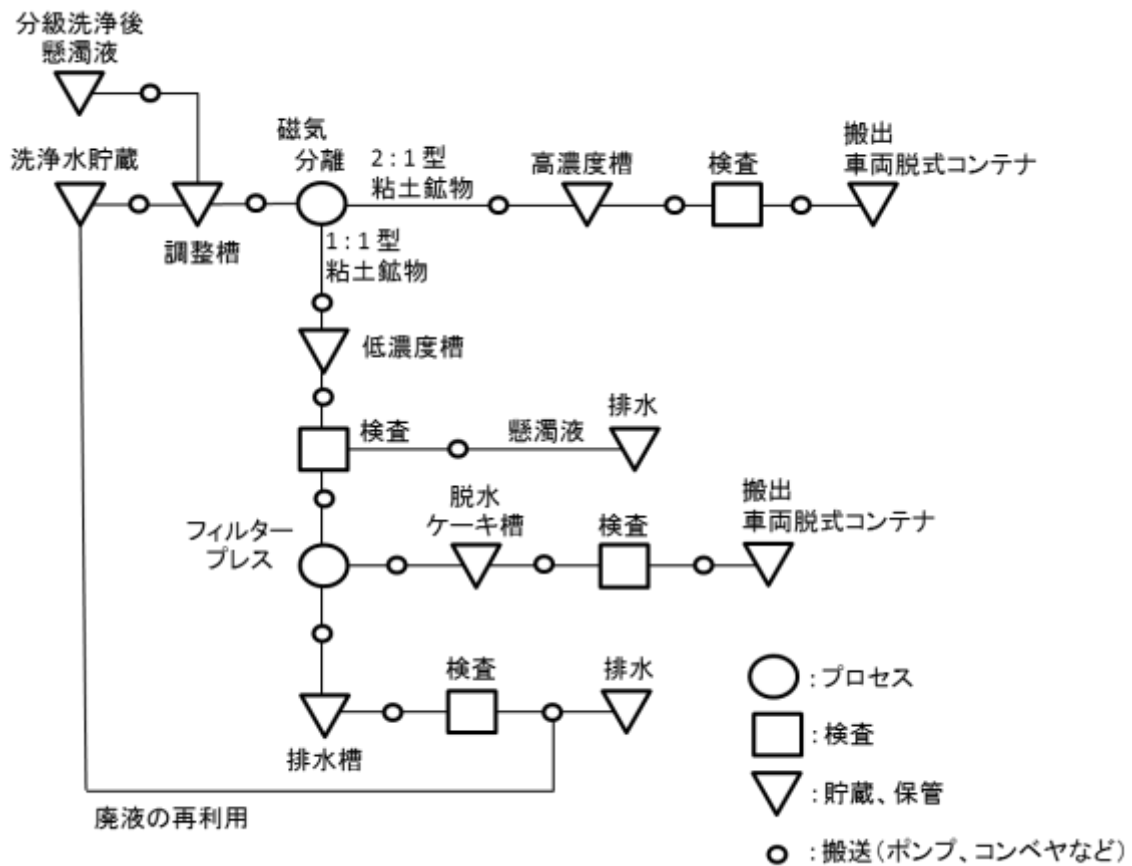
減容処理コストの算定のために、毎時1トンの除去土壌を減容処理できるプラントの基本設計を行い、コストの概算手順を検討し試算した。毎時1トンを単位にしたのは、プラントとして機能できる最小量であり、より大型化する際には、毎時1トンのユニットを複数機で構成することでコスト算定を1トン単位の倍数で簡易に行うためである。コストの算定は、次の①から⑦の手順で実施した。

① 分級洗浄、磁気分離などの減容処理プロセスの確認

連携しているサブテーマを担当する大阪大学、新潟大学の研究者からヒアリングを行い、また、実験、試験現場の視察を行い、減容処理のメカニズムの基本的なフローを理解した。

② 工程分析記号を用いた減容処理モデルの表記

手順①の結果に基づき工程分析記号⁵⁾を用い、例えば、図(2)-12に示すように減容処理のモデリングを行った。また、毎時1トンの除去土壌を取り扱えるように、各プロセスと搬送の処理能力を設定した。



図(2)-12 工程分析記号を用いた磁気分離工程モデルの表記例

③ ラインバランシング（処理性能、容器容量、搬送速度の決定）

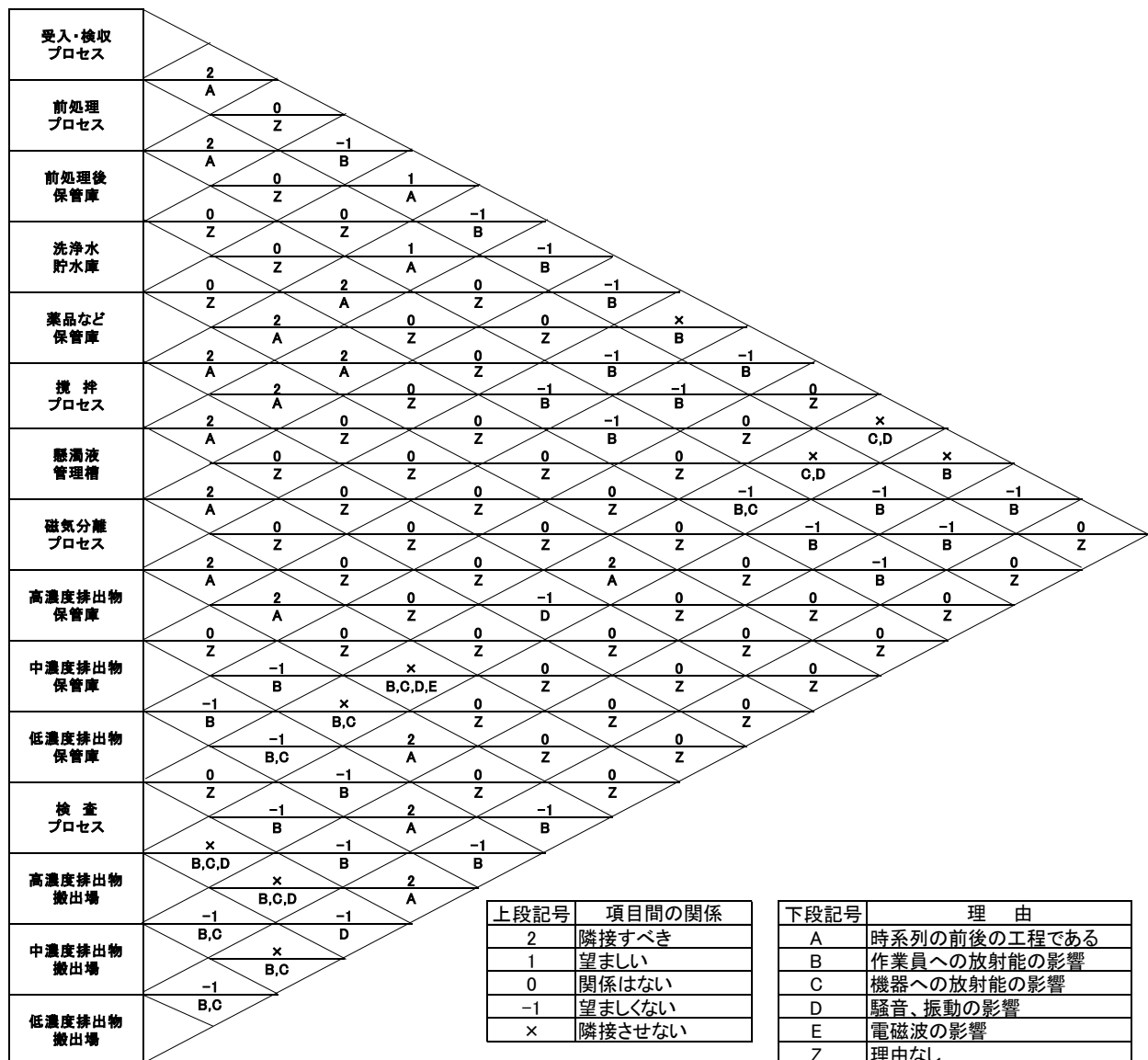
滞留などのボトルネックが生じないように、各プロセスと搬送処理のバランシングを行った。また、処理能力に応じて1ロットの容量を決定し、1ロットを処理するための容器、槽の容量を決定した。

④ 処理プロセスのエリア分割とリレーションシップチャートによる親和性の検討

プラント、設備設計の有識者に協力いただき、処理、貯蔵プロセスをエリア区分し、受入・検収プロセス、攪拌プロセス、磁気分離プロセス、高濃度排出物保管などの主要エリアに区分した。これらのエリア区分ごとに、エリア間の関係を放射能、振動、電磁波などの人員と機器への影響の観点で親和性の強弱を整理した。このエリア間の親和性の検討では、リレーションシップチャート⁵⁾を用いた。図(2)-13は、検討結果であるリレーションシップチャートである。

⑤ プラントの全体平面の検討

分割されたエリア1つを30平方メートル程度の床面積のユニット構造物で連結し、プラント全体の平面レイアウトを検討した。このとき、リレーションシップチャートに配慮し、また、作業人員の出入口、作業動線、除去土壌の搬入、処理中の土壌のエリア間の移出入、減容処理後の土壌などの搬出にも配慮し、エリアを連結するものとした。



図(2)-13 エリア間の親和性を分析したリレーションシップチャート

⑥ 構築、設置、撤去の概算金額の算定

手順③、④、⑤の結果により、確定したプラント仕様に基づき、個々の機器、工事の概算金額を、当該研究者らがこれまでに携わってきた実証試験などの実績値を参考に試算した。試算結果の一部を参考に、表(2)-6 に示す。

実際には、発注プラント基数、原材料価格の変動など様々な要因があり、試算、見積金額の正確性には疑問の余地がある。また、このプラント構築、設置などの概算金額は、減容処理を行うシナリオ選択において大きなインパクトがある。このため、本研究では、この概算金額の償却期間 T_a を考慮して、次に説明するランニングコストと合わせて考えるものとした。

⑦ ランニングコストの算定

ランニングコストは、作業員人件費、光熱費、消耗品費、修繕費を基本に構成し、1時間あた

表(2)-6 プラントの一部分の構築、設置、撤去の試算結果の一例

No.	内容	数量	単位	金額	備考
1	ドーム型テントレンタル(5年間)	1	式	25,000,000	
2	防塵テント関連工事	1	式	4,000,000	
	仮設基礎工事(鉄板敷設)	1	式		
	防塵テント工	1	式		
	環境対策設備工事	1	式		
3	テント内設備工事	1	式	2,000,000	
	防液堤設置	1	式		
	機器基礎工事	1	式		
	塗装工事(防水・防汚染)	1	式		
	モノレール及び架台設置工事	1	式		
	集塵装置設置(破袋機廻り-フィルター含む)	1	式		
4	配管・据付・工事関係	1	式	2,000,000	
5	放射線遮蔽工事	1	式	15,000,000	
6	撤去	1	式	2,000,000	

りの金額で算定した。プラントは1カ月22日、1日8時間稼働し、毎時1トンの除去土壌を処理するものとした。常時稼働しない人員や機器については、実働を、1年365日、1日24時間稼働に換算した。また、プラント構築、設置などの概算金額を Ta 年で償却するものと仮定し、ランニングコストに加算した。このランニングコストについても、試算、見積金額の正確性には疑問の余地がある。このため、適切な減容シナリオの検討では、償却期間 Ta 年のランニングコストの総額を、 Ta 年間のプラントの除去土壌処理トン数で割った値、すなわち、1トン当たりの減容処理費用 Ur の影響を考察するものとした。

表(2)-7は、 Ta を5年間として試算した結果を参考に示したものである。この試算は、減容処理だけではなく、処理によって生成された比較的濃度の高い土壌を施設内で荷役運搬するための保管容器の金額を含めている。投入する除去土壌の Cs が高いほど、割高な保管容器を用いるため Ur が高額になっていることがわかる。

表(2)-7 1トンあたりの減容処理費用の試算結果の一例

処理土壌の放射能濃度	Bq/kg	1,000	8,333以下	32,000以下	50,000以下	400,000以下	400,000超
1トンあたりの処理コスト	円/トン	79,915	79,915	87,315	87,315	116,915	264,915
排出物							
8000Bq/kg以下	トン	10,138	8,448	8,448	0	0	0
8000超10万Bq/kg以下	トン	422	2,112	1,690	10,138	8,448	0
10万Bq/kg超	トン	0	0	422	422	2,112	10,560
荷役運搬容器費用							
フレコンパック	円	158,400,000	158,400,000	152,064,000	152,064,000	126,720,000	0
IP-2型基準容器	円	0	0	84,480,000	84,480,000	422,400,000	2,112,000,000

4) 適切なシナリオの選定方法の確立と事例解析

除去土壌をそのまま中間貯蔵施設に貯蔵した場合と、磁気分離を使った減容処理後に貯蔵した場合について、それぞれのコストを比較することで、適切な減容処理を具現化できているのかを確認する。減容処理が適切な経済性を有すると評価できる場合、適切なシナリオ選定ができてい

ると考える。

連携サブテーマで開発した減容処理では、放射能濃度Csが8,000 Bq/kg超32,000 Bq/kg以下の範囲の除去土壌を取り扱うのが適切であるとわかっている。この範囲のCsの除去土壌は、減容処理が無ければ、Ⅱ型施設での貯蔵となる。この除去土壌の総量Voが減容処理によって、Ⅰ型施設へ土壌量Vi、Ⅱ型施設へ土壌量Vii、廃棄物貯蔵施設へ土壌量Viiiにそれぞれ分けられるとする。このとき、1トン当たりの減容処理費用Urを用いて次式が成立しなければ、減容処理の経済性を認めることはできない。

$$U_i V_i + U_{ii} V_{ii} + U_{iii} V_{iii} + U_r V_o < U_{ii} V_o \quad \dots \dots \dots (2)-2$$

ここで、UiはⅠ型施設の1トンあたりの貯蔵費用、UiiはⅡ型施設の1トンあたりの貯蔵費用、Uiiiは廃棄物貯蔵施設の1トンあたりの貯蔵費用である。減容処理対象の除去土壌の全量VoがⅡ型施設へ貯蔵されるところを、減容処理の費用を加えても安価に貯蔵できることが、適切な減容処理のシナリオ成立の条件である。

また、現時点で算定することは困難である施設iの貯蔵費用Uiについて、比較的試算や想定しやすいⅠ型施設の1トン当たりの貯蔵費用Uiを用いて、係数βi倍とする。また、Vo=Vi+Vii+Viiiであることから、式(2)-2をUrとUiその比で表わすと次式となる。

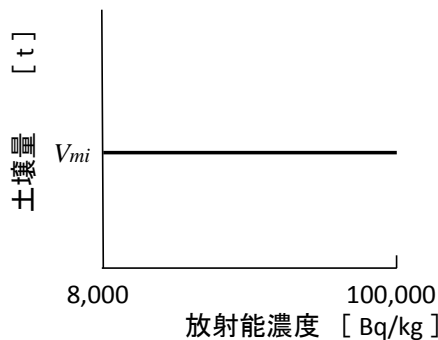
$$\frac{U_r}{U_i} < \beta_{ii} - \frac{V_i}{V_i + V_{ii} + V_{iii}} - \beta_{ii} \frac{V_{ii}}{V_i + V_{ii} + V_{iii}} - \beta_{iii} \frac{V_{iii}}{V_i + V_{ii} + V_{iii}} \quad \dots \dots \dots (2)-3$$

式(2)-3は、減容処理のシナリオ成立の条件として、貯蔵費用Uiと比較した減容処理費用Urの検討に役立つものである。

5) 福島県の汚染土壌を対象にした事例解析

福島県内の除去土壌の分布実態に応じた事例解析を行い、減容処理のシナリオを検討し、経済性評価の有用性を検証した。

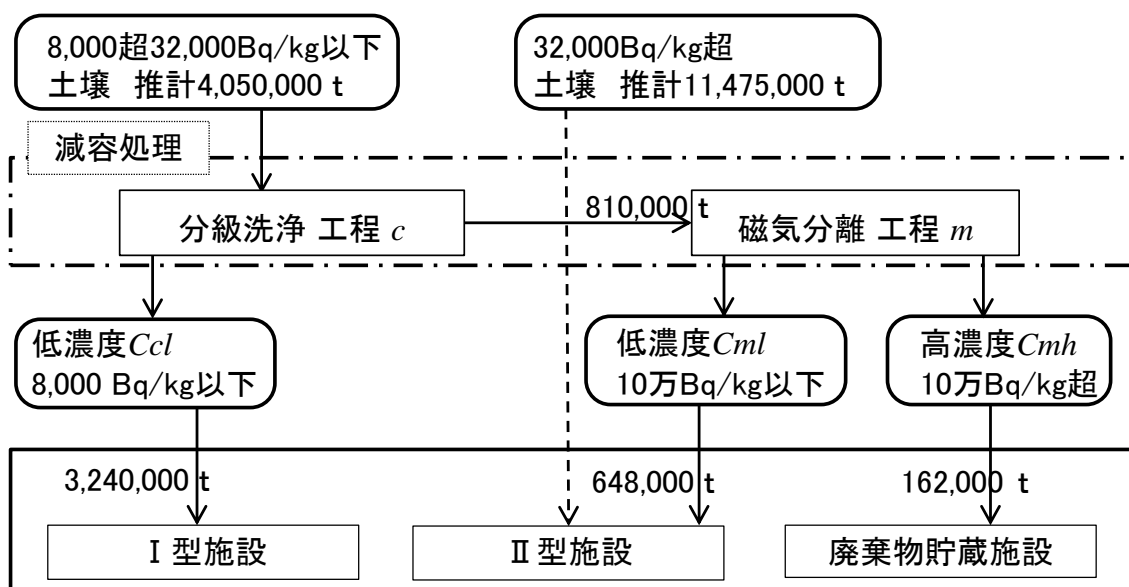
環境省の試算では、福島県内にある中間貯蔵施設へ搬入する8,000 Bq/kg超10万Bq/kg以下の放射能濃度の除去土壌は、約1035m³あるとされている。この8,000 Bq/kg超10万Bq/kg以下の除去土壌は、何ら二次除染（減容処理）を行わなければ、Ⅱ型施設での全量貯蔵となる。この除去土壌を1m³あたり1.5tで換算し、1035m³を15,525,000tとした。また、15,525,000tの除去土壌が8,000 Bq/kg超10万Bq/kg以下の範囲で図(2)-14に示すように、一様に等量分布すると仮定した。



図(2)-14 除去土壌の放射能濃度分布の仮定

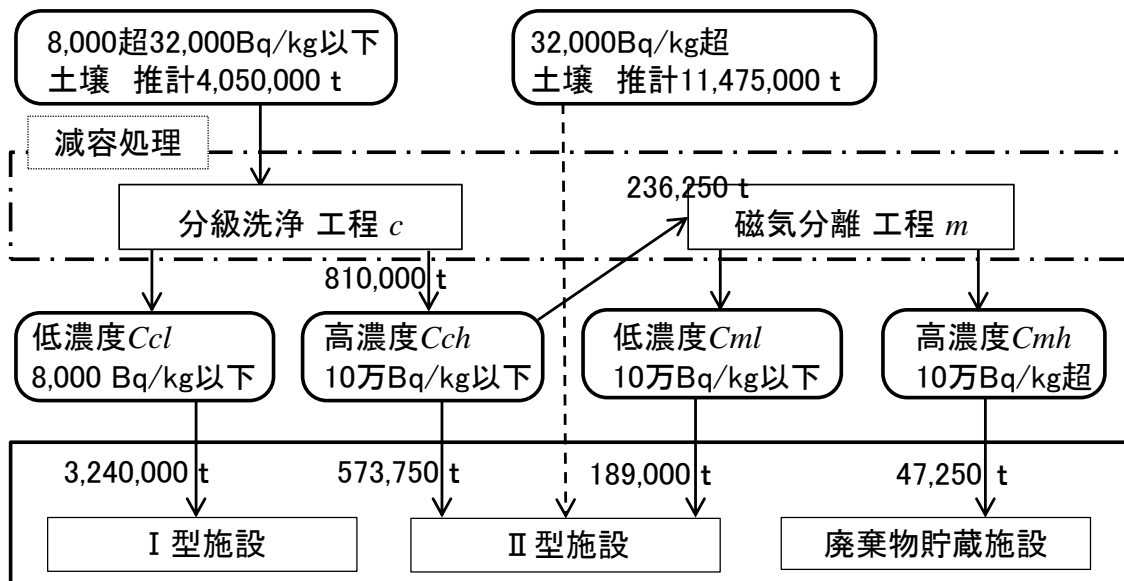
表(2)-3と表(2)-4に示した連携サブテーマで開発した磁気分離による減容処理性能に基づき、シナリオを作成した。表(2)-5に示した投入土壌と処理後の排出土壌の放射能濃度の関係から、検討に値するシナリオが立案される。除去土壌の放射能濃度 C_s が32,000 Bq/kg超となると、前処理の分級洗浄で排出される土壌の濃度 C_{cl} が8,000 Bq/kgを超えてしまい、減容処理しても全量がⅡ型施設での貯蔵となってしまふ。このため、 C_s が8,000 Bq/kg超32,000Bq/kg以下の除去土壌のみを減容処理の対象とし、これをシナリオAとする。また、 C_s が8,000 Bq/kg超32,000Bq/kg以下の除去土壌のみを対象とすることには変わりはないものの、分級洗浄後の比較的濃度が高く排出される土壌の C_{ch} が10万Bq/kg以下のものは磁気分離をせず、 C_{ch} が10万Bq/kg超の土壌のみを磁気分離するシナリオBを立案する。いずれのシナリオにおいても、 C_s が32,000 Bq/kg超の除去土壌については、減容処理によって多量に排出される土壌の濃度 C_{cl} が8,000 Bq/kgを超えてしまうため、減容処理をせずにそのままⅡ型施設での貯蔵が適切である。

減容処理対象の除去土壌は、一様に等量分布するという仮定から C_s が8,000 Bq/kg超 32,000 Bq/kg以下の範囲のもので、4,050,000 tとなる。図(2)-15と図(2)-16は、シナリオAとBのシミュレーション結果であり、対象除去土壌の減容処理後の排出土壌量を、中間貯蔵施設の管理区分ごとに示したものである。4,050,000 tがⅡ型施設で貯蔵されるところを、シナリオA、Bともに、3,240,000 tを貯蔵コストが安価なⅠ型施設へ移行でき、効果が期待される。シナリオAでは、廃棄物貯蔵施設へ162,000 t移行する。シナリオBでは、廃棄物貯蔵施設へ47,250 t移行する。廃棄物貯蔵施設の貯蔵トン単価は、Ⅱ型施設と比べて高額になることが想定される。このため、シナリオBがAより適切であると判断できる。



図(2)-15 シナリオAの減容処理後の排出土壌量の中間貯蔵施設管理区分ごとの分布

現在の中間貯蔵施設の検討段階では、各施設 i の貯蔵トン単価 U_i の算定は困難であり、今後の検討結果を待たなければならない。このため、現段階では、適切と判断されるシナリオBの結果について、次のようにシナリオBの有効性を提案する。施設の貯蔵トン単価をⅠ型施設で U_I 、Ⅱ



図(2)-16 シナリオBの減容処理後の排出土壌量の中間貯蔵施設管理区分ごとの分布

型施設で U_{II} 、廃棄物貯蔵施設で U_{III} として、式(2)-2を適用して次式が成立すれば、連携サブテーマで開発した減容処理が有効であり、シナリオBの運用方法が適切であると判断できる。

$$3,240,000U_I + (573,750 + 189,000)U_{II} + 47,250U_{III} + 4,050,000U_r < 4,050,000U_{II} \quad \dots (2)-4$$

また、式(2)-4を用いて、減容処理が有効となるトン単価について検討できる。例えば、 β_{II} と β_{III} をそれぞれ1.5、2.0、すなわち貯蔵単価についてI型施設と比較してII型施設は1.5倍、廃棄物貯蔵施設は2.0倍と仮定すると、 U_r は、 U_I に対して0.9倍未満でなければ、経済性を確保できないと算定される。

この事例解析では、除去土壌の放射能濃度分布が一様等量であると仮定した。平成26年度下期では、仮置場を管理している市町村は、除去土壌の入ったフレコンパックごとに重量と放射能濃度を集計中である。集計結果がまとまり、実際の除去土壌の C_s の分布が一様等量ではなく、8,000 Bq/kg超10万Bq/kg以下の範囲で比較的低い濃度に土壌量が多く分布している場合には、連携サブテーマで開発した磁気分離による減容処理が、さらに経済性で高く評価できる。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

- 表面汚染密度データに基づき除染前の空間線量率を計算し、さらに除染の度合いを示す除染係数を用いて除染後の空間線量率を予測するソフトウェアを利用して、対象とする地域への周辺地域の放射線の寄与を加味して除染範囲を最適化するための手法を確立し、実証実験のデータを用いてその妥当性を検証した。

- 分級洗浄と磁気分離を組み合わせた減容処理において、投入される除去土壌の放射能濃度と処理後に排出される土壌特性の関係を定式化できた。この定式化されたモデルを用いて中間貯蔵施設の貯蔵区分（I型施設、II型施設、廃棄物貯蔵施設それぞれで貯蔵される放射能濃度の範囲）

を考慮し、減容処理が有効な投入除去土壌の放射能濃度の範囲を検討できた。また、適切な減容処理を含む除去土壌の取り扱いシナリオの検討方法を確立した。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

- ・ 周辺区域からの放射線を加味した、対象区域を目的線量まで下げるための最適な周囲の除染範囲を策定できる手法。
- ・ 除染によって除去された土壌について減容処理を含む取り扱いシナリオの検討方法。具体的には、減容処理の経済性、効率性のシミュレーション方法。
- ・ 中間貯蔵施設に搬入する福島県内の除去土壌への減容処理の適用に関する方針。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文（査読あり）>

特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表（査読なし）>

特に記載すべき事項はない。

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) 西嶋 茂宏：第3回「超電導磁気分離システムを利用した除染技術」調査専門委員会（2013）
「除染シナリオの考え方」
- 2) 斉藤 公世，福井 聡：
平成25年度 第4回 低温工学・超電導学会 材料研究会シンポジウム,平成25年度 第3回
電気学会「超電導磁気分離システムを利用した除染技術」調査専門委員会(2014)
「除染範囲の最適決定手法の開発に向けて」

(3) 出願特許

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

特に記載すべき事項はない。

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) 環境省：中間貯蔵施設への除去土壌等の輸送に係る基本計画、2014
- 2) 環境省：中間貯蔵施設への除去土壌等の輸送に係るH26～H27年度実施計画（パイロット輸送）、2015
- 3) 環境省水・大気環境局中間貯蔵施設チーム：中間貯蔵施設に係る指針、2014
- 4) 環境省：中間貯蔵施設安全対策検討会及び環境保全対策検討会の検討結果取りまとめ、2013
- 5) 福永良晴：工場レイアウト技術のノウハウ、東京省力化研究所、1970

(3) 磁気力制御型除染法の開発

新潟大学 大学院自然科学研究科
〈研究協力者〉

福井 聡

中部電力株式会社 技術開発本部

長屋 重夫

渡部 智則

山崎 直

平成25～26年度累計予算額：17,472千円（うち、平成26年度予算額：7,547千円）

予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

磁気力制御を用いた自然界中の物質の選択的分離による除染手法について、実用に向けた磁気分離装置の検討を行い、シミュレーションとモデル実験により、必要な磁場および流速条件を明らかにした。また更なる線量低減を目指して、サブテーマ（1）と連携して磁気分離に適切な前処理方法の検討を行い、環境低負荷の低濃度カリウム溶液を用いて、セシウムを2：1型粘土鉱物に移行・濃縮し、その溶液は循環利用ができるシステムを検討した。また実土壌を用いた磁気分離実験により、本手法による除染率、減容化率を評価した。

福島第一原子力発電所事故により、放射性Csで汚染された土壌が大量に生じた。そのため、汚染土壌の減容化が必要とされている。先行研究で、分級と磁気分離によりCs吸着量の多い2:1型粘土鉱物のみを選択的に回収し減容化が可能であることが確認されている。しかし、砂礫や1:1型粘土鉱物等の他の土壌成分の線量が十分に低下しない場合は埋戻しや再利用ができない。そのため、これらの手法のみでは汚染土壌の減容化が難しい場合がある。そこで、砂礫と1:1型粘土鉱物から2:1型粘土鉱物へのCs移行処理を検討した。

Cs移行処理として2種類の手法を検討した。具体的には、砂礫表面を研磨する物理的手法と、低濃度のカリウム塩を含む肥料溶液でCs吸着力の弱い砂礫と1:1型粘土鉱物から吸着力の強い2:1型粘土鉱物にCsを移行する化学的手法である。本研究では、福島県の実汚染土壌を用いた実験を行い、本手法の実現可能性を検討した。

[キーワード]

磁気力、土壌、常磁性体、反磁性体、2：1型粘土鉱物

1. はじめに

表土の剥ぎ取り作業により発生した汚染土壌の量は、焼却などの減容化処理をした場合でも約1600万～2200万 m^3 の除去土壌が発生すると試算されている。それに対して先行研究では、高濃度の酸溶液等を用いて土壌からCsを脱離する手法¹⁾やゼオライト等の吸着剤を利用する手法²⁾が多く開発されているが、洗浄液や吸着剤の使用によるコストや環境への影響が大きいことから、大

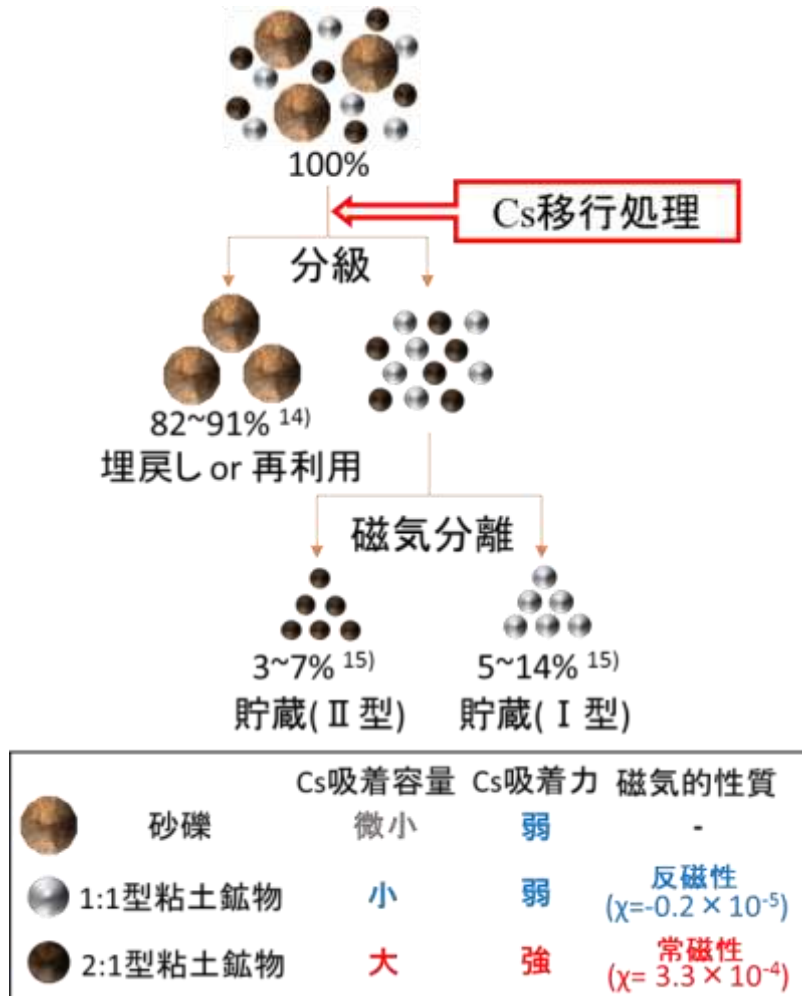
量の汚染土壌を行う手法としては課題が多く残る。また土壌中で特にCsを多く強固に吸着し、水相への抽出が難しい土壌成分の存在が土壌除染の妨げとなっている。そのため発生した全ての汚染土壌中からCsを取り除く「除染」は困難であり、現実的には貯蔵施設の不足を解消するための「減容化」が求められている。減容化を行うためには、表(3)-1に示した中間貯蔵施設の保管基準値と表(3)-2に示した汚染廃棄物の取り扱い基準値³⁾を考慮する必要がある。具体的には、中間貯蔵施設の中でも貯蔵にかかるコストが高い10万Bq/kg以上の高線量の土壌等を保管する廃棄物貯蔵施設や8000 Bq/kg以上の土壌を保管するII型の土壌貯蔵施設で管理が必要な土壌の量を減らし、100 Bq/kg以下で埋め戻し、3000 Bq/kg以下で再利用可能な土壌または8000 Bq/kg以下の低線量の土壌を貯蔵するI型の土壌貯蔵施設でも管理可能な土壌の量を増やすことが必要である。

そこで我々は物理的な分離法である分級と磁気分離を用いた手法により、高線量の土壌のみを選択的に回収し、汚染土壌の減容化を行う技術を検討している。この手法の特徴は、Csとの親和性が高い特定の土壌成分の性質を利用し、吸着剤等の使用を最小限に抑えた上で高速大量処理が可能な点である。土壌減容化手法のフローを図(3)-1に示し、その概要について以下に述べる。

土壌中の土壌粒子は粒径の違いによって主に礫、砂、粘土に分類されている。土壌中でCsは特に粒径の小さい粘土に吸着されているため、粒径の違いを利用した分級により、高線量の粘土と低線量の砂礫に分離する。粘土を取り除くことで放射能の低下した砂礫については、その放射能に合わせて埋め戻しや資材等として再利用を行う。土壌中で砂礫の占める割合は80~90%程度であるため、分級により初期量の約10~20%に減容化することができる。⁴⁾

分級についての研究例は多くあるが、本手法では分級後の粘土をさらに高線量と低線量の土壌に磁気力を用いて分離する。分級後の粘土には、構造の異なる2:1型粘土鉱物と1:1型粘土鉱物の2種類が存在し、1:1型に比べて2:1型粘土鉱物が比較的多くのCsを強固に吸着している。また2:1型は常磁性体、1:1型は反磁性体と磁氣的性質も異なるため、磁気力を用いた分離法である磁気分離法によって2:1型を選択的に回収可能である。これにより汚染土壌中から特に高線量であり、分級後の粘土中で約30~50%程度を占める2:1型粘土鉱物のみを取り除くため、比較的線量の低い他の土壌成分についてはI型の土壌貯蔵施設で管理することができる。⁵⁾ その結果、高線量の土壌を取り扱う施設で貯蔵が必要な土壌の量を初期量の10%以下程度に減容化できる。

この手法は砂礫や1:1型粘土鉱物に対してCsの吸着量が少ない場合に有効であるが、土壌の線量や土質によっては、それらの土壌成分の放射能も比較的高く、分離のみでは放射能が基準値を下回れないことがある。具体的には、砂礫の放射能を再利用の基準である3000 Bq/kgや埋め戻し可能な100 Bq/kg以下にすることや1:1型粘土鉱物の放射能を8000 Bq/kg以下に下げることが出来ない可能性が高い。そこで土壌の減容化率向上のために、分離手法の前処理として砂礫や1:1型粘土鉱物からCsを取り除いて基準値以下にするとともに、分離対象である2:1型粘土鉱物にCsを移行して回収する手法を検討している。この手法を本論文ではCs移行処理と呼ぶ。Cs移行処理には、表(3)-3に示す物理的な手法と化学的な手法の2つを用いた。物理的な手法としては、粒径の大きな砂礫の表面に付着した粘土やCsを比較的多く含む表面成分を剥離する表面研磨を用いた。化学的手法としては、低環境負荷な溶液を用いてイオン交換によりCs吸着力の弱い砂礫と1:1型粘土鉱物から化学的にCsを脱離させ、2:1型粘土鉱物に再吸着させることで回収する化学洗浄を用いた。Cs移行処理と分級、磁気分離を組み合わせることで2:1型粘土鉱物以外の放射能を低減できるため、様々な放射能の汚染土壌に対する減容化手法として期待できる。



図(3)-1 土壤除染のフロー

表(3)-1 中間貯蔵施設での貯蔵方法

放射能(Bq/kg)	貯蔵施設	貯蔵時の対策
8000以下	土壤貯蔵施設 (I型)	覆土やシート掛けにより飛散・流出を防止
8000~100000	土壤貯蔵施設 (II型)	I型の対策に加えて地下水等の遮水設備が必要
100000以上	廃棄物貯蔵施設	容器を封入し、遮蔽効果を有する建屋を用いる

表(3)-2 汚染廃棄物の取り扱い基準値¹³⁾

放射能(Bq/kg)	取り扱い
100以下	放射性物質で汚染されたものとして扱う必要のないものとして、安全に再利用可能(クリアランスレベル)
3000以下	遮蔽効果を有する資材により地表面から30cmの厚さを確保することで資材として再利用可能
8000以下	既存の処理施設で従来と同様の処理方法により安全に処理が可能

表(3)-3 Cs移行処理の手法

Cs移行処理の手法	目的
表面研磨	砂礫からCsを多く含む表面成分や付着した粘土を剥離し、砂礫の線量を低下させる
化学洗浄	Cs吸着力の弱い砂礫、1:1型粘土鉱物からKとのイオン交換によりCsを脱離し、吸着力の強い2:1型粘土鉱物に移行する

2. 研究開発目的

本研究では汚染土壤の減容化を行うための分離手法の前処理として、分離対象の土壤にCsを濃縮するCs移行処理の検討を行った。具体的には、Cs吸着力の低い砂礫や1:1型粘土鉱物の放射能を基準値以下にし、2:1型粘土鉱物へのCs移行を目指す。

減容化のための指標としては、表(3)-1と表(3)-2に示した放射能の値を基準値として用いる。汚染土壤の推定発生量として、8000 Bq/kgを上回るものと下回るものが、ほぼ同量発生すると推算されている。本手法では特に8000 Bq/kg以下の比較的低線量の土壤を移行処理と分級、磁気分離により減容化を目指す。粒径が大きい砂礫については、クリアランスレベルである100 Bq/kgに近づけ、1:1型粘土鉱物についてはI型の土壤貯蔵施設で管理可能な8000 Bq/kg以下に放射能を低減させることで汚染土壤を減容化し、貯蔵施設の不足を解消することを目的としている。そのために非汚染土壤を用いた模擬実験で基礎的検討を行った後に、汚染土壤を用いた現地実験を行い、実用化に向けた検討を行った。

3. 研究開発方法

1) 永久磁石を用いた実汚染土壤の線量低減の確認

土壤中に含まれる成分のうち、セシウムは粘土画分に濃縮されており、さらにその粘土の中でも2:1型粘土鉱物中に強く吸着していることが知られている。このことを利用して、まず分級により砂れきと粘土に分け、その次の段階として粘土画分に磁気分離法を適用し、粘土鉱物の中からセシウムを強く吸着する2:1型粘土鉱物を分離し、減容化を図る方法を検討した。

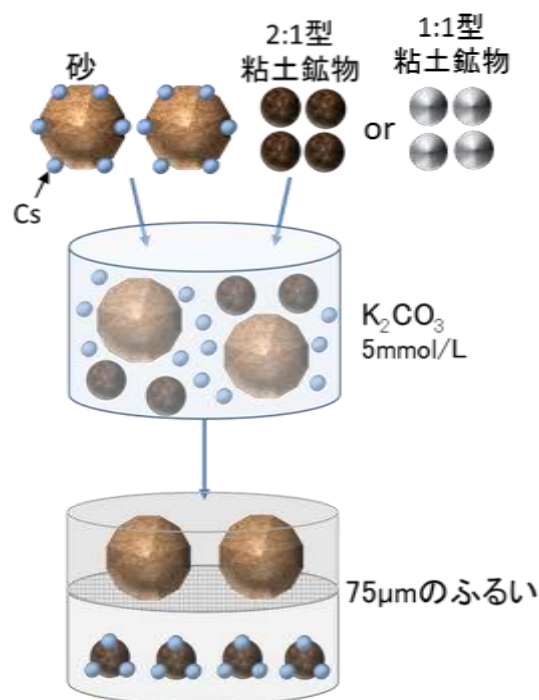
まず2:1型粘土鉱物の分離による線量低減の効果を確認するため、福島県内で採取した土壤を用いて、現地での永久磁石を用いた高勾配磁気分離実験により減容化と線量低減の可能性について検討を行った。湿式分級によりセシウムが濃縮されている粘土・シルト懸濁液（粒子径75 μm以下）に対して高勾配磁気分離を実施した。高勾配磁場を形成するため磁気フィルターとして、フィルターの洗浄が容易である理由で、鉄球（直径2mm）を使用し、磁場発生源に対向型永久磁石（最大磁束密度：3T）を利用して土壤の磁気分離を行った。

2) 磁気分離の前処理としての移行処理方法の検討

分級前の処理として砂から粘土鉱物へのCs移行を行うためには、砂からのCs脱離挙動と脱離後のCsの粘土鉱物に対する挙動を知ることが重要である。そのため、初めに非放射性Csを用いて調製した模擬汚染土壤で実験を行った。75~2000 μmにふるい分けした砂1 gを100 mg/LでCsを含む塩化セシウム溶液100 mlに固液比100で添加し、振とう器(SHK-101b, IWAKI)にて120 rpmで1時間振とうを行った。振とう後に0.45 μmのメンブレンフィルターを用いて吸引濾過を行い、ろ過後の砂を漏斗上で蒸留水により洗浄した。洗浄後の砂は風乾し、模擬汚染土壤として使用した。砂への

Cs吸着量は、ろ液のCs濃度をICP-MS (Agilent、Agilent 7700)を測定することで算出した。模擬汚染土壌として調製した砂とCsを吸着していない1:1型粘土鉱物のカオリナイト(kln)と2:1型粘土鉱物のバーミキュライト(vrm)を用いてCsの移行動態を検討した。実験手順の概念図を図3-1に示す。砂0.8 gと75 μm未満にふるい分けしたカオリナイトまたはバーミキュライト0.2 gを混合し、洗浄液として用いた5 mmol/Lの炭酸カリウム溶液20 mlに固液比20で添加した。炭酸カリウム溶液は、Csとイオン交換を起こすカリウムイオンを含み、環境負荷が低い溶液であるという理由から、洗浄液として使用した。懸濁液を1時間振とうした後、75 μmのふるいに通して砂と粘土鉱物とに分離し、0.45 μmのメンブレンフィルターを用いて吸引濾過を行った。それぞれのCs吸着量については、ろ液のCs濃度と乾燥後の砂から0.1mol/Lの酢酸アンモニウム溶液により抽出したCsの量をICP-MSで測定することにより算出した。

次に放射性Csを用いて同様の実験を行い、砂礫からのCs脱離挙動と粘土鉱物に対する吸着挙動について詳細に検討を行った。75~2000 μmにふるい分けした砂40 g、75μm未満にふるい分けしたカオリナイト、バーミキュライト10 gを各々10 kBq/Lで¹³⁷Csを含む塩化セシウム溶液100 mlに添加し、振とう後にろ過を行った。ろ過後の土壌試料を蒸留水で洗浄して風乾後、0.05 mol/Lの炭酸カリウム溶液を洗浄液として使用し、図(3)-2に示した手順と同様に実験を行った。炭酸カリウムの濃度については、予備実験の結果により非放射性Csを用いた場合よりも濃度の高い溶液を用いた。各土壌へのCs吸着量についてはGe半導体検出器(GC 4019,CANBERRA)を用いて測定を行い、その線量率(cps)を放射能の測定時に使用した土壌の重量(g)で割り、放射能(cps/g)を算出した。

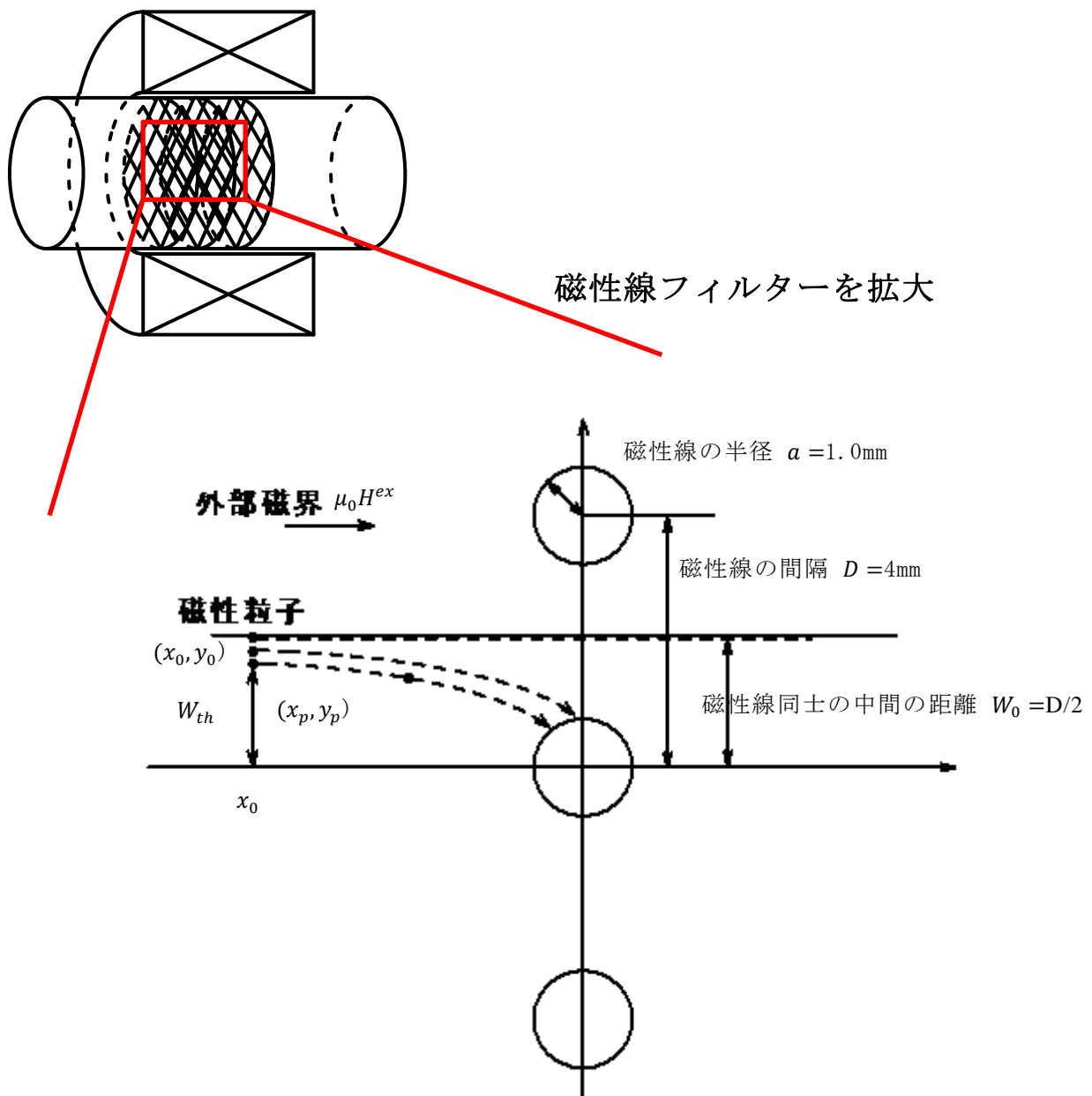


図(3)-2 セシウム移行実験のフロー図

3) 磁性粒子の運動軌跡計算に基づくCs磁気分離装置の設計

・運動軌跡計算モデルの概要

本章では磁気力下での粒子の運動軌跡について記述する。粒子軌跡は、流体からの力と磁気力を受けて運動している微粒子に関する運動方程式を解いて微粒子の運動を求め、微粒子の分離の可否を判別し分離特性を解析する手法である。今回の解析では、図(3)-3のモデルのように磁性細線が3本の場合を考える。



図(3)-3 粒子の捕獲モデル

・運動軌跡の計算

磁気力の計算モデルを図(3)-4に示す。磁性粒子の速度を V_p ，流速を V_f ，粒子半径を r_p ，粘性係数を η とすると，流体中を運動する球体に働くドラッグ力 F_d はその速度に比例し以下のように書ける。

$$F_{dx} = 6\pi\eta r_p (v_{fx} - v_{px}) \quad (1.1)$$

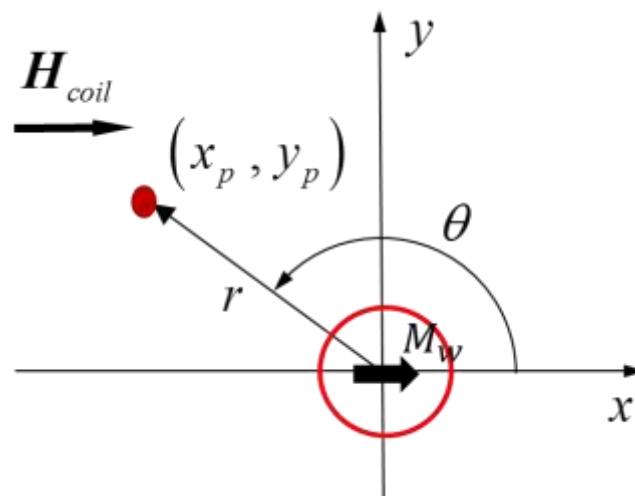
$$F_{dy} = 6\pi\eta r_p (v_{fy} - v_{py}) \quad (1.2)$$

ここで流速は，流体の初期速度を V_{f0} ，磁性細線の半径を a ，粒子の座標を (x,y) とすると，

$$v_{fx} = v_{f0} \left\{ 1 - \frac{a^2(x^2 - y^2)}{(x^2 + y^2)^2} \right\} \quad (1.3)$$

$$v_{fy} = -v_{f0} \left\{ \frac{2a^2 xy}{(x^2 + y^2)^2} \right\} \quad (1.4)$$

と表せる。



図(3)-4 磁気力の計算モデル

磁気力 F_m は，磁気ポテンシャルエネルギーを U とすると，

$$F_m = -\text{grad}U \quad (1.5)$$

$$U = -\frac{1}{2} m H^{ex} \times V_p \quad (1.6)$$

$$m = \mu_0 \chi_p H^{ex} \quad (1.7)$$

であるから,

$$F_m = -\text{grad} \left(-\frac{1}{2} \mu_0 \chi_p H^{ex} \cdot H^{ex} \times V_p \right) \quad (1.8)$$

$$= \frac{1}{2} \mu_0 \chi_p V_p \text{grad} (H^{ex} \cdot H^{ex}) \quad (1.9)$$

$$= \frac{1}{2} \mu_0 \chi_p V_p (H^{ex} \cdot \text{grad} H^{ex} + \text{grad} H^{ex} \cdot H^{ex}) \quad (1.10)$$

$$= \frac{4}{3} \pi_p^3 \mu_0 \chi_p H^{ex} \cdot \text{grad} H^{ex} \quad (1.11)$$

となり, 線材からの r 方向, θ 方向別に,

$$F_{mr} = \frac{4}{3} \pi_p^3 \cdot (\mu_0 \chi_p H^{ex} \cdot \nabla_r H^{ex}) \quad (1.12)$$

$$F_{m\theta} = \frac{4}{3} \pi_p^3 \cdot (\mu_0 \chi_p H^{ex} \cdot \nabla_\theta H^{ex}) \quad (1.13)$$

また、磁性細線周囲の磁場分布 W は, $Z = r e^{i\theta}$ を用いて,

$$W = H_{coil} z + \frac{m}{z} \quad (1.14)$$

故に,

$$W = \phi + i\psi = \left(H_{coil} r + \frac{m}{r} \right) \cos \theta + i \left(H_{coil} r + \frac{m}{r} \right) \sin \theta \quad (1.15)$$

これを x 方向, y 方向に分けると,

$$H_x = \frac{\partial \phi}{\partial x} = \frac{\partial \psi}{\partial y} = \left(H_{coil} + m \frac{(x^2 - y^2)}{(x^2 + y^2)^2} \right) = H_{coil} + m \frac{1}{r^2} \cos 2\theta \quad (1.16)$$

$$H_y = \frac{\partial \phi}{\partial y} = \frac{\partial \psi}{\partial x} = m \frac{2xy}{(x^2 + y^2)^2} = m \frac{1}{r^2} \sin 2\theta \quad (1.17)$$

さらに, H の接線成分が連続しており, 円柱の反磁界係数 N_d が $1/2$ であるから,

$$H_x \left(a, \frac{\pi}{2} \right) = H_{coil} - m \frac{1}{a^2} = H_{coil} - N_d M_w = H_{coil} - \frac{M_w}{2} \quad (1.18)$$

故に,

$$m = \frac{a^2 M_w}{2} \quad (1.19)$$

これを代入して,

$$H_r^{ex} = \left(H_{coil} + \frac{M_w}{2} \left(\frac{a}{r} \right)^2 \right) \cos \theta \quad (1.20)$$

$$H_\theta^{ex} = - \left(H_{coil} - \frac{M_w}{2} \left(\frac{a}{r} \right)^2 \right) \sin \theta \quad (1.21)$$

これを x 成分 y 成分に分けると,

$$H_{x1} = H_r^{ex} \cos \theta - H_\theta^{ex} \sin \theta \quad (1.22)$$

$$H_{y1} = H_r^{ex} \sin \theta + H_\theta^{ex} \cos \theta \quad (1.23)$$

ここで, 今回の粒子軌跡の計算モデルでは, 磁性細線を3つ考慮して計算しているため, 次の式も考慮することにする.

$$H_{r2}^{ex} = \frac{M_w}{2} \left(\frac{a}{r_2} \right)^2 \cos \theta_2 \quad (1.24)$$

$$H_{\theta2}^{ex} = \frac{M_w}{2} \left(\frac{a}{r_2} \right)^2 \sin \theta_2 \quad (1.25)$$

$$H_{r3}^{ex} = \frac{M_w}{2} \left(\frac{a}{r_3} \right)^2 \cos \theta_3 \quad (1.26)$$

$$H_{\theta3}^{ex} = \frac{M_w}{2} \left(\frac{a}{r_3} \right)^2 \sin \theta_3 \quad (1.27)$$

$$H_{x2} = H_{r2}^{ex} \cos \theta_2 - H_{\theta2}^{ex} \sin \theta_2 \quad (1.28)$$

$$H_{y2} = H_{r2}^{ex} \sin \theta_2 + H_{\theta2}^{ex} \cos \theta_2 \quad (1.29)$$

$$H_{x3} = H_{r3}^{ex} \cos \theta_3 - H_{\theta3}^{ex} \sin \theta_3 \quad (1.30)$$

$$H_{y3} = H_{r3}^{ex} \sin \theta_3 + H_{\theta3}^{ex} \cos \theta_3 \quad (1.31)$$

(4.22) (4.23) (4.28)~(4.31)を合成して H^{ex} を求めると,

$$H^{ex} = \sqrt{(Hx1 + Hx2 + Hx3)^2 + (Hy1 + Hy2 + Hy3)^2} \quad (1.32)$$

H^{ex} の r , θ 成分の勾配は,

$$\nabla_r H^{ex} = \frac{-H_{coil}M_w}{aH^{ex}} \left\{ \frac{M_w}{2H_{coil}} \left(\frac{a}{r} \right)^5 + \left(\frac{a}{r} \right)^3 \cos 2\theta \right\} \quad (1.33)$$

$$\nabla_\theta H^{ex} = \frac{-H_{coil}M_w}{aH^{ex}} \left(\frac{a}{r} \right)^3 \sin 2\theta \quad (1.34)$$

以上の (1.32) (1.33) (1.34) を (1.12) (1.13) 式に代入することで, $F_{mr}, F_{m\theta}$ を求めることができる.

よって, 磁気力 F_m の x , y 成分は,

$$F_{mx} = F_{mr} \cos \theta - F_{m\theta} \sin \theta \quad (1.35)$$

$$F_{my} = F_{mr} \sin \theta + F_{m\theta} \cos \theta \quad (1.36)$$

この値を用いて, 粒子の速度を求めることができる.

$$v_{px}(t_i) = v_{px}(t_{i-1}) + \frac{\Delta t}{m} \{ F_{mx}(x_p(t_{i-1}), y_p(t_{i-1})) + F_{dx}(x_p(t_{i-1}), y_p(t_{i-1})) \} \quad (1.37)$$

$$v_{py}(t_i) = v_{py}(t_{i-1}) + \frac{\Delta t}{m} \{ F_{my}(x_p(t_{i-1}), y_p(t_{i-1})) + F_{dy}(x_p(t_{i-1}), y_p(t_{i-1})) \} \quad (1.38)$$

故に, ある時間 t での粒子の座標を次の式で求めることができる.

$$x_p(t_i) = x_p(t_{i-1}) + \Delta t \cdot v_{px}(t_i) \quad (1.39)$$

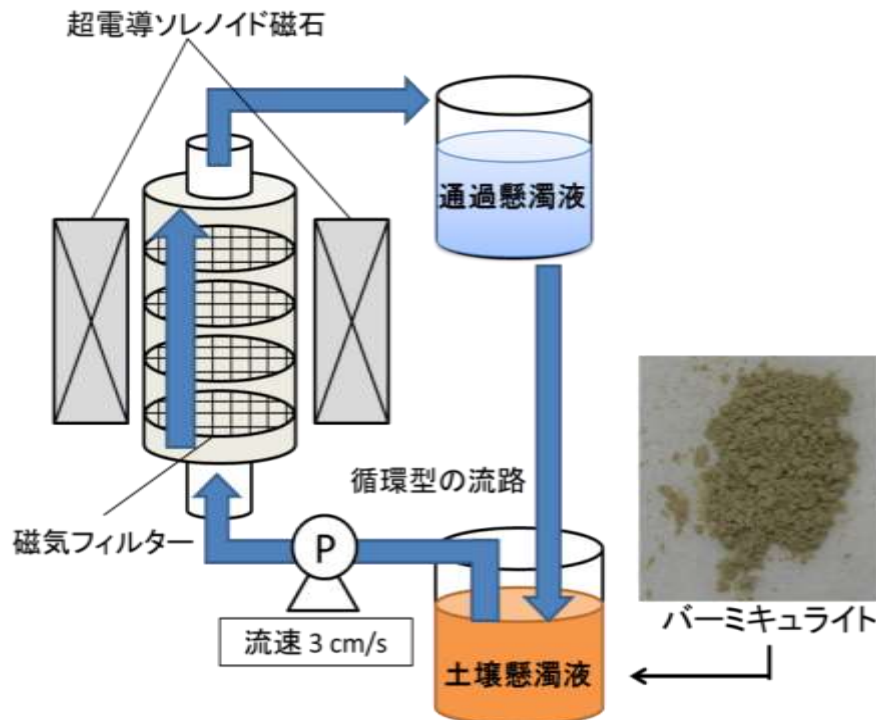
$$y_p(t_i) = y_p(t_{i-1}) + \Delta t \cdot v_{py}(t_i) \quad (1.40)$$

4) 超電導磁石を用いた2:1型粘土鉱物の選択的分離条件の検討

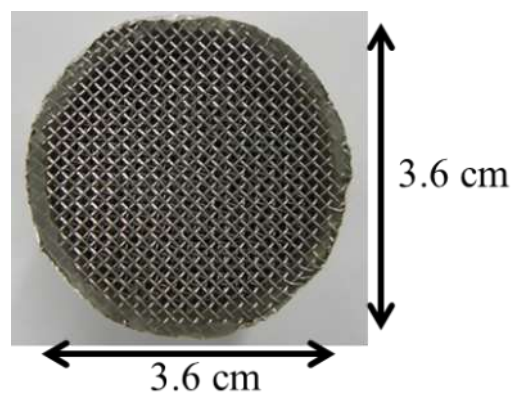
常磁性粒子である2:1型粘土鉱物を分離するために必要な磁場・磁場勾配の条件について確かめるため、小規模なモデル実験をまず行った。実験に先立ち、上記3)で述べた方法と同様の理論に基づき、若干簡易な方法ではあるが、実験条件とできる限り同じ条件で粒子運動計算を行い、分離可能性を検討してから実際の実験を行った。ここではまず、有限要素解析ソフトを用いて磁場解析と流体解析を行い、磁性細線近傍の磁場分布と流速分布を求めた。磁場解析と流体解析には、有限要素法解析ソフトANSYSを用いた。詳細な実験条件は結果の部分に示す。

次に、上記の計算結果を元に実験室スケールの磁気分離装置の検討を行い、超電導磁石を用いたモデル系での磁気分離実験を行った。概要図を図(3)-5に示す。粒径が75 μm 未満のバーミキュライト5.0 gに蒸留水を1.5 L加え、固液比1:300の模擬土壌懸濁液を調製した。ソレノイド磁石のボア内に磁気分離領域用の配管(外径42 mm)を用意し、そこに磁気フィルターを設置した。磁気フィ

ルターとしてSUS430（線径0.4 mm，外径36 mm，メッシュ数20）のものを5 mm間隔で30枚設置した。フィルターの様子を図(3)-6に示す。タイゴンチューブ（内径7.94 mm）を用いて，循環型の流路を作製した。超電導磁石を用いて，最大磁束密度が2 T，5 T，7 Tの3種類の磁場を印加して，3分間高勾配磁気分離を行った。このとき，定量送液ポンプ（RP-1000,EYELA）を用いて磁気分離領域における配管内の流速を3 cm/sとした。その後，捕捉懸濁液は0.45 μm のメンブランフィルターを用いて，また通過懸濁液は0.10 μm のメンブランフィルターを用いて吸引ろ過を行った。



図(3)-5 実験装置の概要図



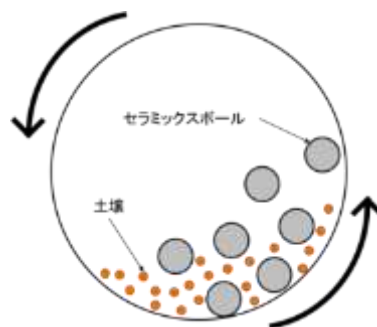
図(3)-6 磁気フィルターの写真

5) 実土壌を用いた土壌の減容化率の検討

模擬汚染土壌を使用した実験でCsの脱離に有効であった低濃度K⁺イオンを含む溶液による化学的手法と土壌表面を研磨する物理的手法による土壌の線量低減効果を調査するために、福島県内の実汚染土壌を用いた実験を行った。ここで土壌表面を研磨する手法としては、ボールミルと呼ばれる装置を用いた。使用した小型装置を図(3)-7に示した。この装置は、上部に土壌懸濁液とセラミックス製のボールを添加した容器を設置し、その容器を回転させることで試料の表面を研磨するものである。その概念図を図(3)-8に示す。



図(3)-7 小型ボールミル装置



図(3)-8 ボールミルの概念図

実験に用いた土壌試料は、福島県内の校庭土である。図(3)-9に示すように、土壌には比較的有機物の存在量が少ない砂質土壌であった。実験の前処理として粒径の大きな礫や土壌以外の成分を取り除くために、2mmのふるいで土壌を分級した。本実験は小型実験であり実験で用いる土壌試料の均質化を図るために、このような前処理を施した。

初めに、使用する土壌の各粒径の放射能と重量を測定した。乾燥状態の実汚染土壌100 gを水道水1 Lに添加し、懸濁液を調整した。その懸濁液を75 μ mと250 μ mのふるいを用いて湿式分級し、0.45 μ mのメンブレンフィルターを用いて吸引濾過を行った。その後、乾燥させて各粒径の土壌の乾燥重量と放射能をCsI(Tl) シンチレーションカウンターで測定を行った。また測定後の放射能はcps/gで表示されるが、減容化率の議論を行うために、簡易的に試料を採取した場所の空間線量率(μ Sv/h)から放射能(Bq/kg)に換算を行った。具体的には、式(3)-1に示した文部科学省土壌モニタリングによる回帰式から算出した。⁴⁾

$$\text{放射能(Bq/kg)}=10^{(\log_{10}(\text{空間線量率}(\mu\text{Sv/h})+3.16)/0.815)} \quad (3)-1$$



図(3)-9 実験に使用した実汚染土壌

次に、ボールミルを用いた物理的処理による砂礫の線量低減処理について検討した。前処理として2mmのふるいで土壌を分級した後、土壌100gと直径10mmのセラミックスボール100個を水道水1Lに添加してボールミルに設置し、100rpmで1時間処理を行った。ボールミル後に、75 μ m未満、75~250 μ m、250~2000 μ mの3区画にふるいを用いて湿式分級し、0.45 μ mのメンブレンフィルターを用いて吸引濾過を行った。その後、土壌を乾燥させて放射能をCsI(Tl)シンチレーションカウンターで測定を行った。

次に低濃度カリウム溶液による洗浄を用いた化学処理による砂礫の線量低減効果を検討するための実験を行った。ボールミル処理を施した後の75 μ m未満、75~250 μ m、250~2000 μ mの土壌試料をそれぞれ5g抽出して、0.05mol/Lの炭酸カリウム溶液50mlに添加した。その後、振とう器を用いて120rpmで1時間振とうし、0.45 μ mのメンブレンフィルターを用いて吸引濾過を行った。ろ過後の試料を乾燥させ、放射能をCsI(Tl)シンチレーションカウンターで測定を行った。この結果から低濃度カリウム溶液での洗浄による放射能の変化率を算出した。

最後にボールミルと洗浄処理を同時に行った場合の砂礫の線量低減効果について検討を行った。ボールミルのみを用いた実験と同様に、2mmのふるいを用いて前処理を行った後、土壌100gと直径10mmのセラミックスボール100個を0.05mol/Lの炭酸カリウム溶液1Lに添加し、ボールミル装置で100rpmで1時間処理を行った。その後、先ほどの実験と同様の手順でボールミルと湿式分級を行い、放射能の測定を行った。この実験により、Cs移行処理としてボールミルに加えて洗浄処理を行うことの有効性を検討した。

6) 仮置き場での大型装置による土壌の減容化実験

小型のボールミル装置を用いた実験において、ボールミルと低濃度カリウム溶液を用いた洗浄によって放射能が低下することが確認された。その結果を基に、大型ボールミルを用いた実験を行った。実汚染土壌は福島県本宮市内の仮置き場にて、自治体の特別な許可を得て採取したもの

を使用した。試料を採取した本宮市内の仮置き場の様子を図(3)-10に示す。



図(3)-10 本宮市内の仮置き場の様子

使用する土壌試料は、仮置き場にある10個のフレコンバックから採取した土壌の放射能をCsI(Tl)シンチレーションカウンターで測定し、その中で最も放射能の高い土壌を用いた。測定の結果から、図(3)-11に示す有機質と粒径の大きい礫が多い宅地土壌を使用した。



図(3)-11 実験に使用した実汚染土壌

初めに処理前の土壌の粒径毎の重量と放射能を調査した。福島県本宮市の仮置き場から採取した湿潤状態の宅地土壌1 kgを水道水2 Lに添加し、75 μ m未満、75~250 μ m、250~850 μ m、850~2000 μ m、2000 μ m以上の5区画にふるいを用いて湿式分級し、乾燥後に質量と放射線量を測定した。

次にボールミルの表面研磨による土壌の線量低減効果について検討した。湿潤状態の汚染土壌1kgを水道水2Lとともに図(3)-12に示した容器(φ27 cm×27 cm)に添加し、大型ボールミル装置に設置して処理を行った。ボールミル処理の条件は、セラミックボールを添加せず、60rpmの速さで、処理時間は2時間とした。ボールを添加しなかった理由は、土壌表面の過剰な研磨により減容化を目指す粒径の大きな土壌の過剰な重量の減少を防ぐためである。それに加えて、予備実験の結果より2000 μ m以上の粒径の大きな土壌が存在する場合は、ボールを添加せずとも同様の表面研磨効果が得られることが推察されていたため、この条件で実験を行った。また回転速度については、

ボールミル装置の上に設置する容器の大きさを考慮して決定し⁶⁾、小型ボールミルを用いた場合と同様の表面研磨効果が得られることを、非汚染土壌を用いた実験により確かめた上で設定した。ボールミル処理の後、懸濁液を75 μm 未満、75~250 μm 、250~850 μm 、850~2000 μm 、2000 μm 以上の5区画にふるいを用いて湿式分級し、乾燥後に重量と放射能をCsI(Tl)シンチレーションカウンターで測定した。

最後にボールミルと洗浄処理を組み合わせたCs移行処理による線量低減効果を評価し、汚染土壌減容化の可能性について検討を行った。洗浄には原料が海水や岩塩、花崗岩などで水溶性のカリウムを60%含む塩化カリウム肥料(たまごや製)を水道水に溶かした肥料溶液を用いた。肥料溶液を用いる利点としては、Cs移行処理後の砂礫に対して影響が少ないため、埋戻しを行った場合でも周辺地域への環境負荷が低い点が挙げられる。予備実験により、 K^+ イオン濃度が同じであれば、これまでの実験で使用していた炭酸カリウム溶液と肥料溶液とで同様のCs脱離効果を示すことが確認できている。 K^+ イオン濃度を0.1 mol/Lに調整した肥料溶液2Lに対して、湿潤状態の汚染土壌2 kgを添加し、大型ボールミル装置に設置して60rpmの速さで2時間処理を行った。その後、懸濁液をボールミルのみの場合と同様に5つの粒径区画に7ふるいを用いて湿式分級し、乾燥後に重量と放射能をCsI(Tl)シンチレーションカウンターで測定した。



図(3)-12 大型ボールミル装置

本研究で取り扱っている手法は、福島県で発生した様々な汚染土壌に対して有効である必要がある。そのため同じ本宮市内の仮置き場にある宅地土壌で、先ほどの実験で用いた土壌よりも有機質の含有量と粒径の大きな礫分が少なく、放射能が比較的低いものを使用した。使用した宅地土壌を図(3)-13に示す。実験の手順は、先ほどと同様に行い、Cs移行処理の有効性を検討した。



図(3)-13 実験に使用した実汚染土壌

4. 結果及び考察

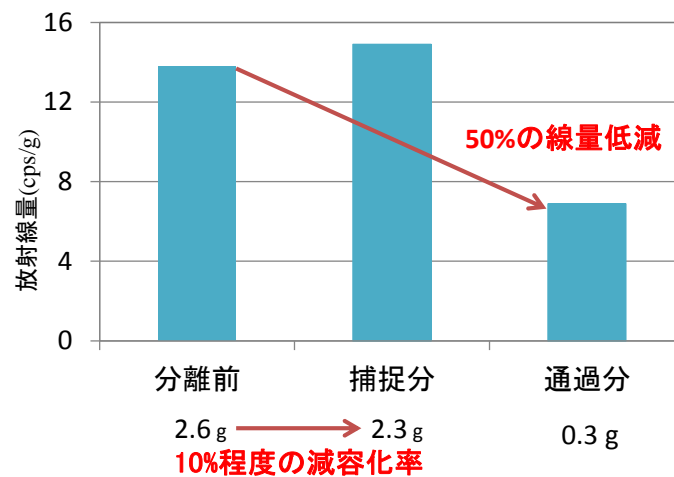
1) 永久磁石を用いた実汚染土壌の線量低減の確認

福島県伊達市内に設置した永久磁石を用いた磁気分離装置を図(3)-14に示す。



図(3)-14 永久磁石による汚染土壌の磁気分離の実験装置

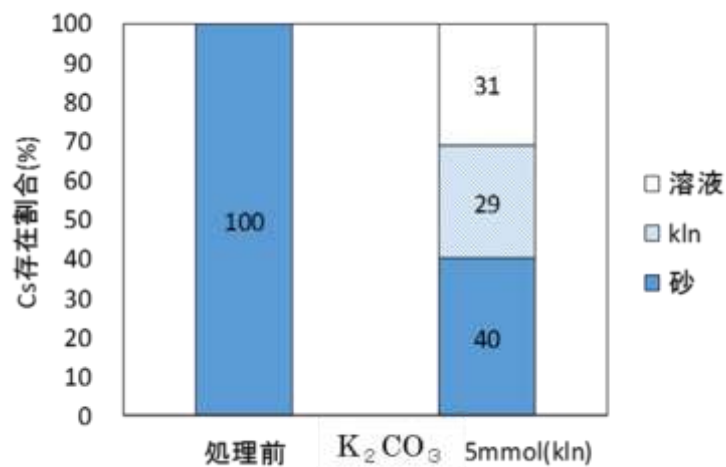
磁気分離前後の放射線測定により評価した除染効果の結果を図(3)-15に示す。フィルターに吸着した粘土（鉄球捕捉）と流出した分散粘土（鉄球通過）を回収し、放射線測定を実施した。図から分かるように物理的手法（磁気分離）のみにより約50%の放射線量の低減率が得られ、本実験により基本原理は実証されたと言える。減容化率は10%にとどまったが、これは、磁気フィルターとして用いた鉄球の充填率が高かったことによるフィルターの閉塞の影響が大きいと考えられる。そのため実用的には磁気フィルターとしては磁性細線を用いたメッシュフィルターの方が適切であると考えられる。メッシュフィルターと超電導磁石を用いた、より実用システムに近い体系での実験については後述する。



図(3)-15 磁気分離法による除染効果

2) 磁気分離の前処理としての移行処理方法の検討

非放射性Csを吸着した模擬汚染土壌を使用した実験の結果を図(3)-16と図(3)-17に示す。砂と共存する粘土鉱物としてカオリナイトを用いた場合の結果を図(3)-16に示した。

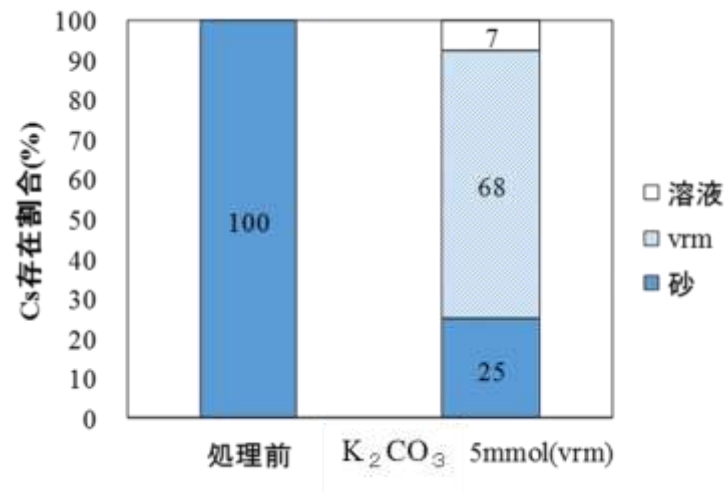


図(3)-16 砂とカオリナイトのCs存在割合の変化

縦軸のCs存在割合は、放射能(cps/g)と重量比を掛け合わせた値であり、処理前に砂に含まれるCsの量を100%として表示している。カオリナイトと砂を混合した実験においては、炭酸カリウム溶液を用いた洗浄によって砂から60%のCsが脱離された。脱離後のCsは共存するカオリナイトと溶液中のそれぞれに30%程度移行したことが読み取れる。

砂と共存する粘土鉱物としてバーミキュライトを用いた場合の結果を図(3)-17に示す。カオリナイトと共存した場合の結果と比較して、バーミキュライトと砂を混合した実験では、炭酸カリウム溶液を用いた洗浄により砂から75%のCsが脱離され、そのうち68%はバーミキュライト、7%は

溶液に移行するという結果になった。

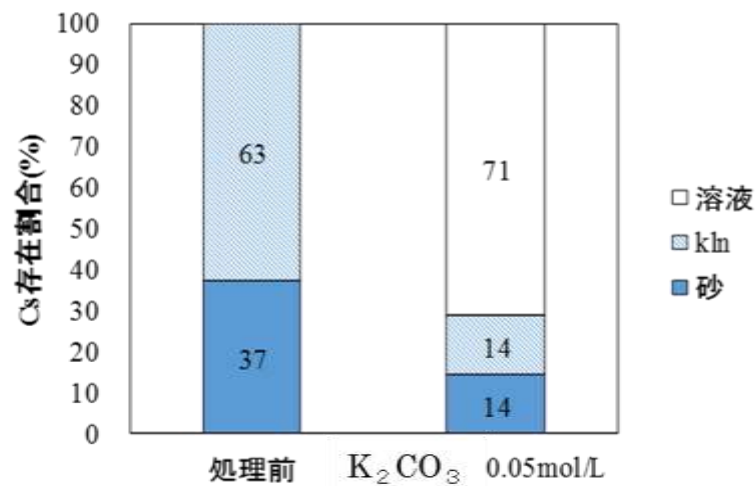


図(3)-17 砂とバーミキュライトのCs存在割合の変化

二種類の粘土鉱物を用いた実験の結果では、粘土鉱物へのCs移行量と砂からのCs脱離量に差が見られた。粘土鉱物へのCs移行量については、前述のCs吸着能の違いから推察できる結果となった。バーミキュライト等の2:1型粘土鉱物は、Csに対する選択性が高いため、吸着競合を起こすKとの共存下でも比較的多くのCsを吸着した。一方でカオリナイト等の1:1型粘土鉱物の持つ陽イオン吸着サイトは、特定の陽イオンに対して高い選択性を持っていないため、低い吸着率を示した。磁気分離対象物でない1:1型粘土鉱物にもCsが移行されたが、実汚染土壌では存在するCsの量が非常に微量であり、かつ砂と1:1型、2:1型粘土鉱物の3種類が共存している状態であるため、2:1型粘土鉱物に選択的に吸着され、1:1型粘土鉱物へのCs移行は起きないと考えられる。⁷⁾

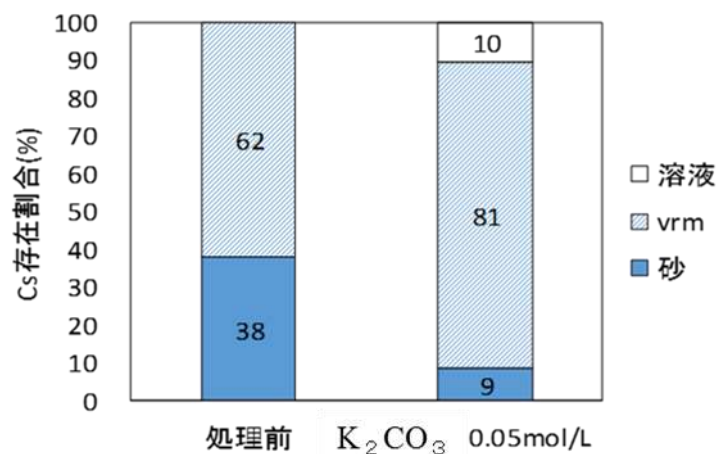
砂からのCs脱離量が異なった原因としては、溶液中のCs濃度の変化によると考えられる。カオリナイトと砂を混合した場合は、カオリナイトのCs吸着容量や選択性が低いために、溶液中に31%のCsが残留したが、バーミキュライトはCs吸着能が高いため7%のCsしか溶液に残らなかった。このようにバーミキュライトと共存している場合の方が、溶液中のCs濃度が低くなったため、固相と液相に対するCsの分配係数を考慮すると、砂から溶液中に脱離されるCsの量が増加したことが説明できる。⁸⁾

放射性Csを用いた模擬実験の結果を図(3)-18と図(3)-19に示す。図(3)-18は¹³⁷Csを吸着したカオリナイトと砂を用いた実験の結果である。縦軸のCs存在割合は、洗浄処理の前に砂と粘土鉱物のそれぞれが吸着している¹³⁷Csの量の和を100%として算出したものである。図(3)-18の結果から、砂からは初期吸着量の62%脱離され、非放射性Csを用いた実験と同じ傾向の結果が得られた。カオリナイトからも初期吸着量の77%のCsが脱離され、非放射性Csを用いた場合と異なり、砂から1:1型粘土鉱物へのCs移行が起きないことが確認された。



図(3)-18 砂とカオリナイトの¹³⁷Cs存在割合の変化

砂とバーミキュライトを用いた場合の結果を図(3)-19に示す。砂とバーミキュライトを用いた場合では、砂からは初期吸着量の77%のCsが脱離され、カオリナイトが共存している場合よりも多くのCsが脱離された。一方で、バーミキュライトのCs吸着量は洗浄前よりも増加し、砂から脱離されたCsの約70%が移行されたという結果が得られた。



図(3)-19 砂とバーミキュライトの¹³⁷Cs存在割合の変化

非放射性Csと放射性の¹³⁷Csを用いた実験での結果を比較すると、砂が吸着しているCs濃度が大きく異なるにもかかわらず、砂からのCs脱離特性については同じ傾向が見られた。

1:1型粘土鉱物のCsに対する挙動については、¹³⁷Csを用いた場合ではCsの移行が起きず、非放射性Csを用いた場合と異なる結果が得られた。その理由としては、実験の初期条件とCs濃度の違いが挙げられる。非放射性Csを用いた実験では、各土壌へのCs吸着量の測定が放射性Csを用いた場合よりも難しいため、模擬汚染土壌として用いた砂にのみCsを吸着させて実験を行った。それに対して放射性の¹³⁷Csを用いた実験では、すべての土壌粒子に初期状態でCsを吸着させて実験を行

った。そのため、非放射性Csを用いた実験では、陽イオンを吸着していないカオリナイトの変異電荷に対しても溶液中に残存したCsが移行されたと考えられる。また濃度については、非放射性Csを用いた場合の模擬汚染土壌中のCs濃度が 3×10^{-2} mol/kg程度であるのに対して、放射性の ^{137}Cs を用いた場合では濃度が 3×10^{-11} mol/kg程度と極めて低い。そのため砂から脱離された ^{137}Cs は、洗浄液中に存在する0.1 mol/LのKの量に対して微量であるため、既にCsを吸着しているおり、Csへの吸着選択性の乏しいカオリナイトには移行しなかったと考えられる。

バーミキュライトを用いた実験では、砂やカオリナイトからCsを脱離可能な洗浄液を用いてもCsが脱離されなかった。この結果から2:1型粘土鉱物のCs吸着が不可逆的であることが確認された。またバーミキュライトは、初めからCsを吸着している状態でも、さらに溶液中のCsを吸着することができた。この結果は、Csへの吸着選択性が高いフレイドエッジサイトの容量が実汚染土壌レベルの濃度のCsに対して十分であるという既知の事実⁹⁾と一致した。洗浄によって溶液中に脱離されたCsの全てがバーミキュライトに移行せず、溶液中に残るという結果になったが、バーミキュライトのCs吸着容量を考慮すると、今回の実験で用いた濃度の放射性Csに対しては飽和しないため、Csは溶液中に残らず全てバーミキュライトに移行すると考えられる。そのため、この結果は土壌の放射能測定の際に試料が均一であるとして試料の一部を抽出して行ったために生じた誤差によるものであると考えられる。今後は測定時の試料の量や測定時間、測定回数を増やすことで誤差を軽減する必要がある。

3) 磁性粒子の運動軌跡計算に基づくCs磁気分離装置の設計

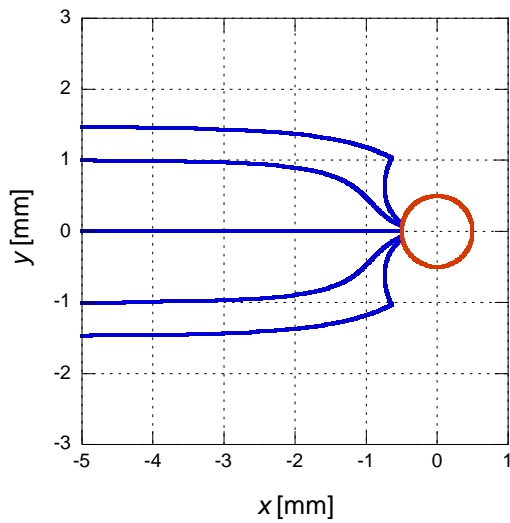
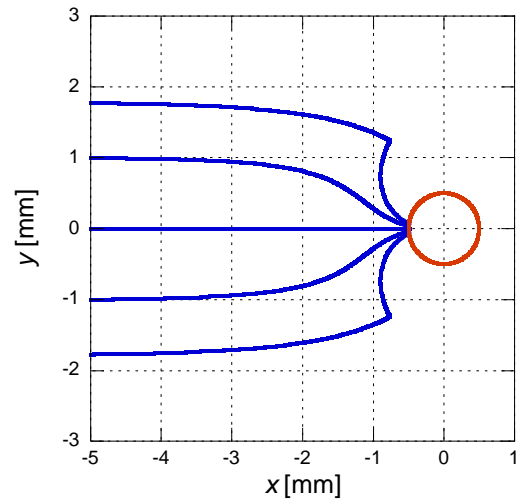
・運動軌跡の解析結果

前節では、運動軌跡の計算の方法を書いたが、本節では、それらの式を用いて計算した理論的な粒子の軌跡について半径 a ($a=0.5, 1.0, 2.0$)別に示す。

また、今回のパラメータを表(3)-4に示す。運動軌跡の解析結果の一例を図(3)-20, 21に示す。

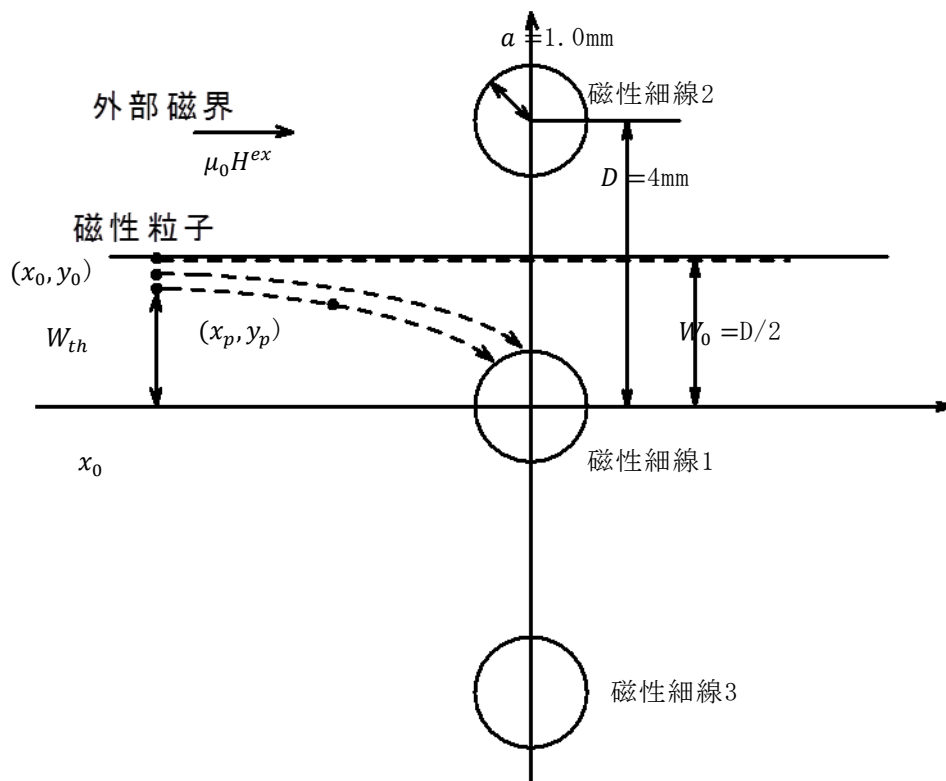
表(3)-4 解析パラメータ

流速 v_{f0}	10mm/s ~ 100mm/s
外部磁界 $\mu_0 H^{ex}$	3T ~ 8T
磁性線の飽和磁化 $\mu_0 M_w$	2T
粒子の磁化率 χ_p	10^{-3}
分散媒の粘性係数 η	10^{-3}
粒子半径 r_p	10 μm
磁性細線の半径 a	0.5, 1.0, 2.0mm
真空の透磁率 μ_0	$4\pi \times 10^{-10} \text{H/mm}$

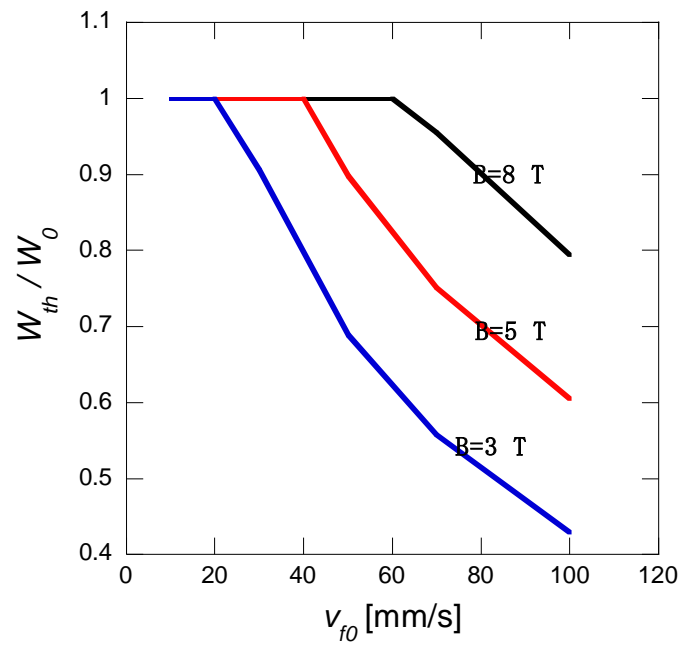
図(3)-20 $v_{f0}=1$ cm/s, $B=3$ T, $a=0.5$ mm図(3)-21 $v_{f0}=1$ cm/s, $B=5$ T, $a=0.5$ mm

・分離率の評価

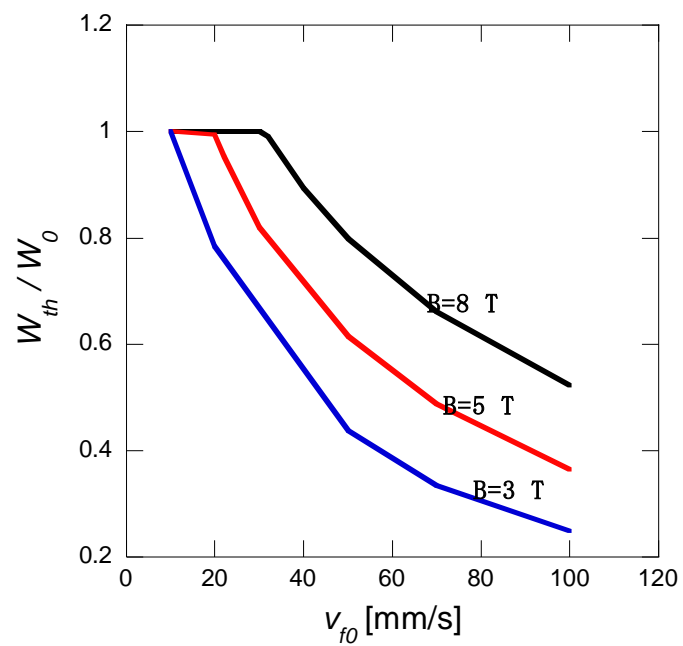
以上の粒子軌道のグラフを, 下図(3)-22のように1つの磁性細線から粒子までの最大の幅を $W_0=2$ [mm], x軸からの粒子を捕獲可能な距離を W_{th} , 半径を a として, 図(3)-23, 図(3)-24, 図(3)-25に磁界強度, 粒子の初期速度別にまとめた.



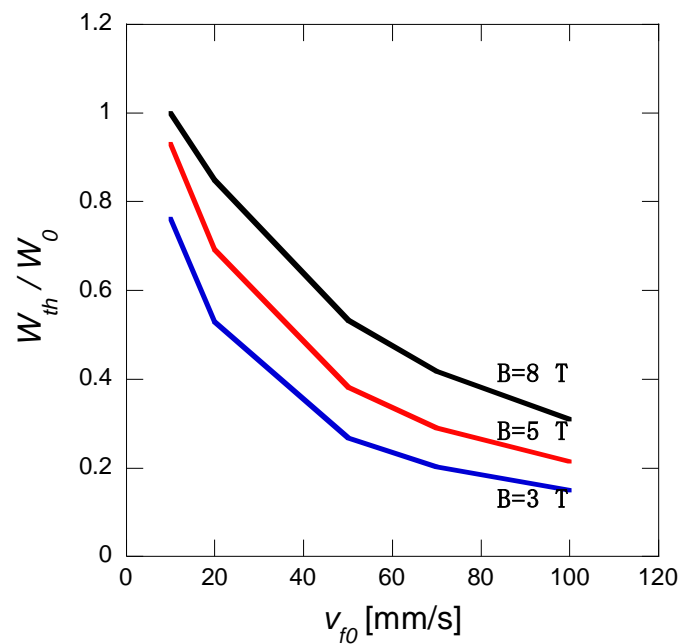
図(3)-22 分離率評価のモデル



図(3)-23 粒子の流速、磁束密度別捕獲率 $\alpha=0.5$ mm



図(3)-24 粒子の流速、磁束密度別捕獲率 $\alpha=1.0$ mm



図(3)-25 粒子の流速、磁束密度別捕獲率 $a=2.0$ mm

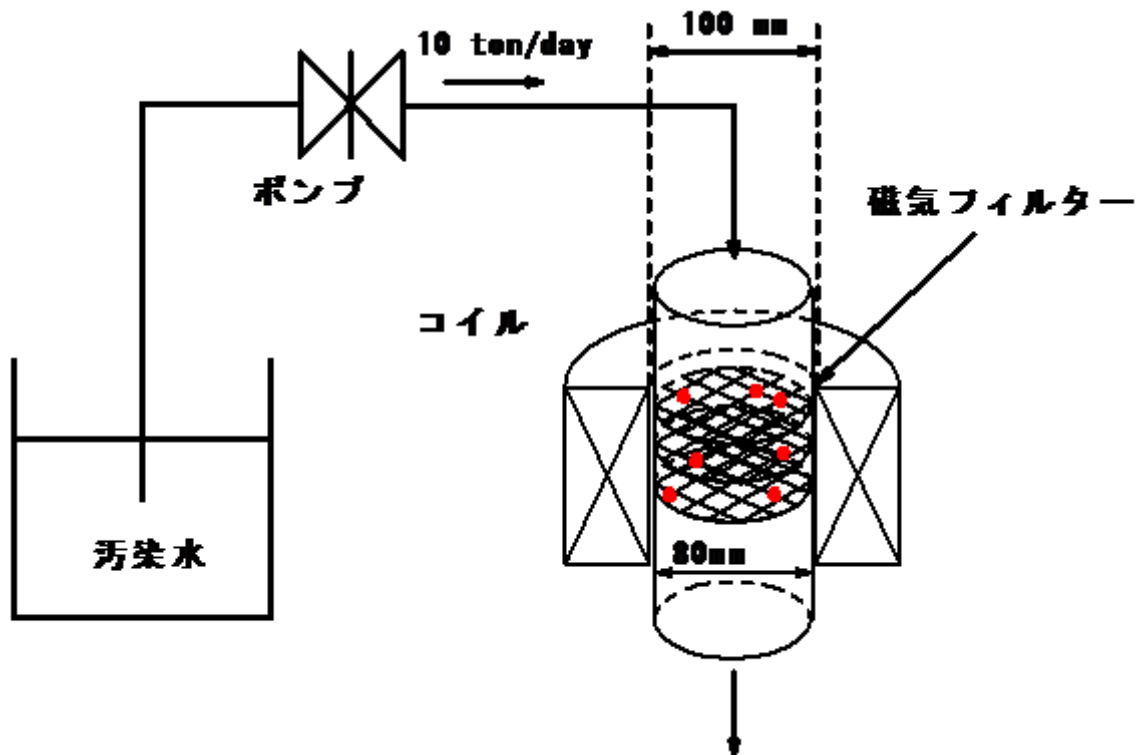
・システム設計

本研究では、高勾配磁気分離によって汚染された粒子を分離する装置の作成の一環として、磁気フィルターの基礎設計を目的とし、磁性細線で粒子を捕獲するまでの軌道計算を流速、磁石の強さ別に比較した検証を行った。図(3)-26のような装置を考え、ソレノイドコイルの内半径を5 cm、直径を10 cm、磁気フィルターの直径を8 cmとして、汚染水を1日に10トン (10 m^3) 処理するために必要な流速 v_{f0} を見積もると、

$$\frac{10}{24 \times 60 \times 60} = \pi(4 \times 10^{-2})^2 \times v_{f0}$$

$$\Rightarrow v_{f0} = 23 \text{ mm/s}$$

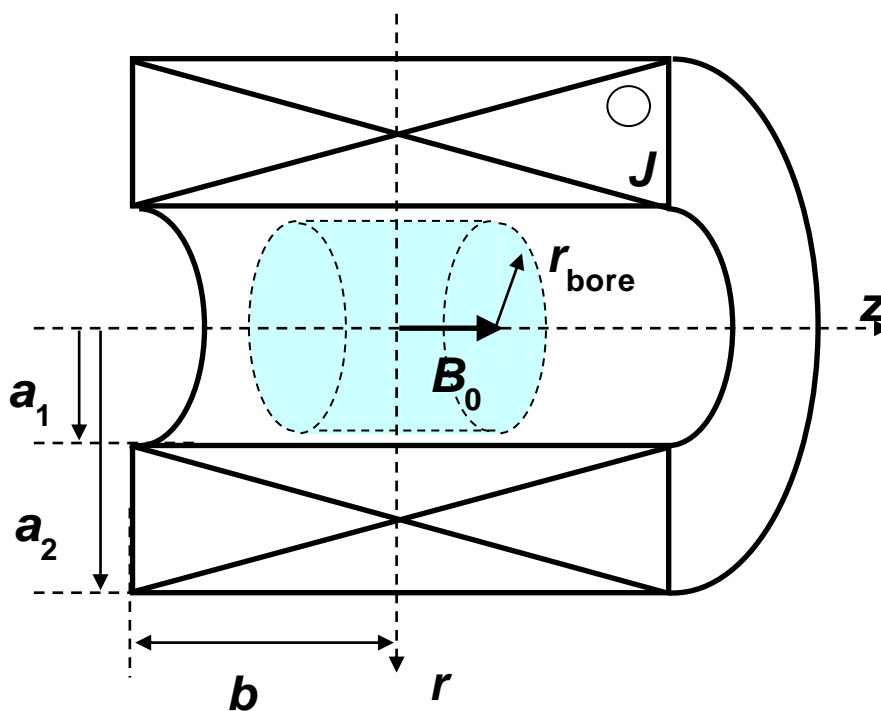
つまり、汚染水の流入速度 v_{f0} は約23 mm/sが必要となる。したがって、前章の結果より、半径が0.5 mmの場合3 T以上、1.0 mmの場合5 T以上、2.0 mmの場合は8 Tを超える磁石が必要となることが分かった。



図(3)-26 磁気フィルター装置

・磁気分離除染用超電導マグネットの設計の検討

前章までに評価したCs磁気分離システムに必要な超電導マグネットの構造を必要線材長最小化の基準から検討する。図(3)-27にソレノイド型の超電導マグネットのモデルを示す。



図(3)-27 ソレノイド型超電導マグネット

ソレノイドコイル中心の磁界は、ビオサバールの法則より、以下のように求められる。

$$B_0 = B_z(z_0 = 0) = \mu_0 J_{op} a_1 \beta \log \frac{\alpha + \sqrt{\alpha^2 + \beta^2}}{1 + \sqrt{1 + \beta^2}} = J_{op} a_1 F(\alpha, \beta) \times 10^{-6} \quad (2.1)$$

$$F(\alpha, \beta) = \frac{2\pi}{5} \beta \log \frac{\alpha + \sqrt{\alpha^2 + \beta^2}}{1 + \sqrt{1 + \beta^2}} \quad (2.2)$$

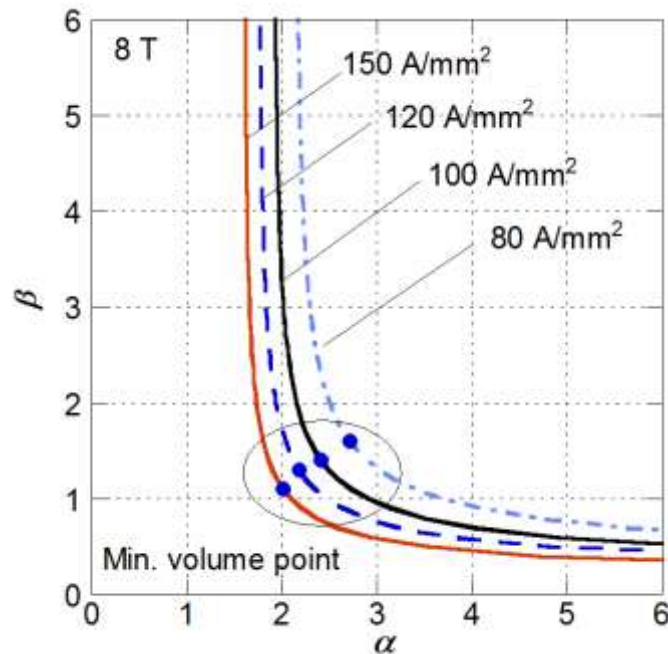
ここで、 $\alpha = a_2/a_1$ 、 $\beta = b/a$ である。よって、 α は β の関数として次のように表せる。

$$\alpha = \frac{\left[\left(1 + \sqrt{1 + \beta^2}\right) \exp(5F_0/2\pi\beta) \right]^2 - \beta^2}{2 \left(1 + \sqrt{1 + \beta^2}\right) \exp(5F_0/2\pi\beta)} \quad (2.3)$$

これを用いると、コイル巻線の体積は β を用いて、以下の式で書けるので、これを最小化する β を求めれば、必要な磁界を発生できる体積最小のコイル形状が求まる。

$$V_{coil} = 2b\pi(a_2^2 - a_1^2) = 2\pi a_1^3(\alpha^2 - 1)\beta = 2\pi a_1^3 \left(\left(\frac{\left[\left(1 + \sqrt{1 + \beta^2}\right) \exp(5F_0/2\pi\beta) \right]^2 - \beta^2}{2 \left(1 + \sqrt{1 + \beta^2}\right) \exp(5F_0/2\pi\beta)} \right)^2 - 1 \right) \beta \quad (2.4)$$

図(3-28)に、中心磁界8Tを発生できる巻線体積が最小となる $\alpha - \beta$ の関係と体積最小となる点を示す。



図(3)-28 中心磁界8Tを発生できる $\alpha - \beta$ の組合わせと体積最小条件

・磁気フィルターの分離性能の経時変化の検討

図(3)-29左に示すように、直径1 mmの磁性線を2 mm間隔で配置し、それを流体の流れ方向に50段積層した磁性フィルターについて、フィルターが閉塞するまでの時間の概略値を見積もる。固液比を1:100（粒子の断面占積率も1/100と考える）、磁性粒子の直径を20 μm （半径 1×10^{-2} mm）、流速を20 mm/sとする。図(3)-29に示す断面のみで考える。フィルターを構成する磁性線は規則的に配列されているので、ある磁性線の上下1 mmずつの断面領域を考える。この領域に1秒間に流入する粒子数は（断面領域内での流入する粒子の占有面積を粒子の断面積で除すれば良い）

$$\frac{(1 \text{ mm} + 1 \text{ mm}) \times 20 \text{ mm/s}}{100} \cdot \frac{1}{\pi \times (1 \times 10^{-2} \text{ mm})^2} = 1270$$

と見積もることができる。図(3)-29に示すように、フィルターを構成する磁性線に粒子が吸着する領域は上流側のみと考えることができるので、この断面部分に吸着可能な最大の粒子数は、

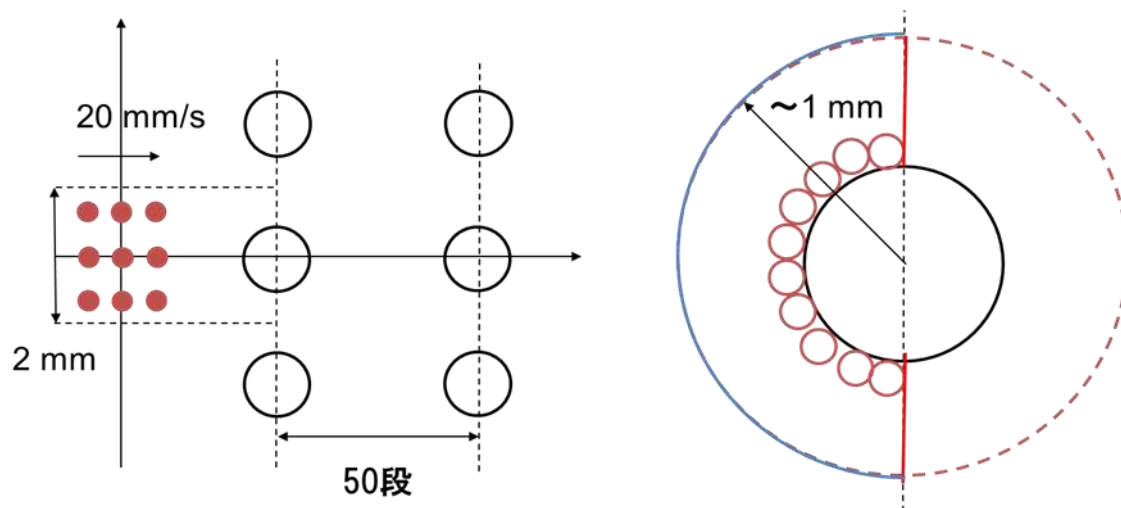
$$\frac{\pi \times \{(1 \text{ mm})^2 - (0.5 \text{ mm})^2\}}{2} \cdot \frac{1}{\pi \times (1 \times 10^{-2} \text{ mm})^2} = 3750$$

と考えることができる。

従って、フィルターが閉塞するまでの時間は、

$$\frac{3750}{1270} \times 50 = 148 \text{ sec.}$$

となり、約2-3分でフィルターは目詰まりすると考えられる。そのため、今後の実用化に向けては、フィルターの閉塞を防ぐフィルターの設計が重要であるといえる。



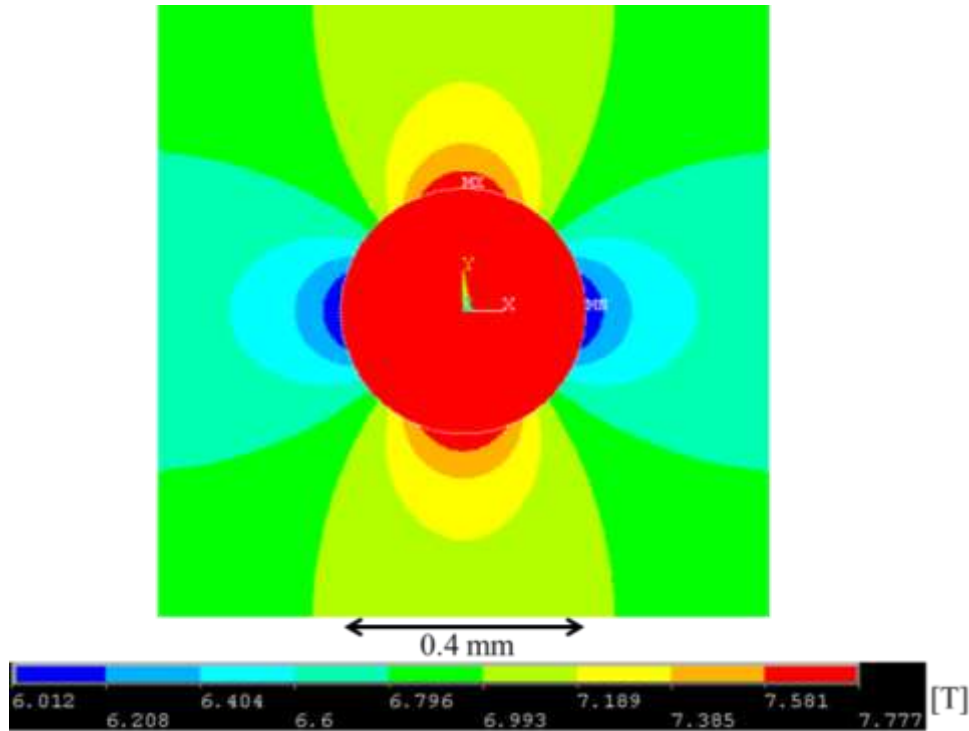
図(3)-29 磁性フィルターの模式図

4) 超電導磁石を用いた2:1型粘土鉱物の選択的分離

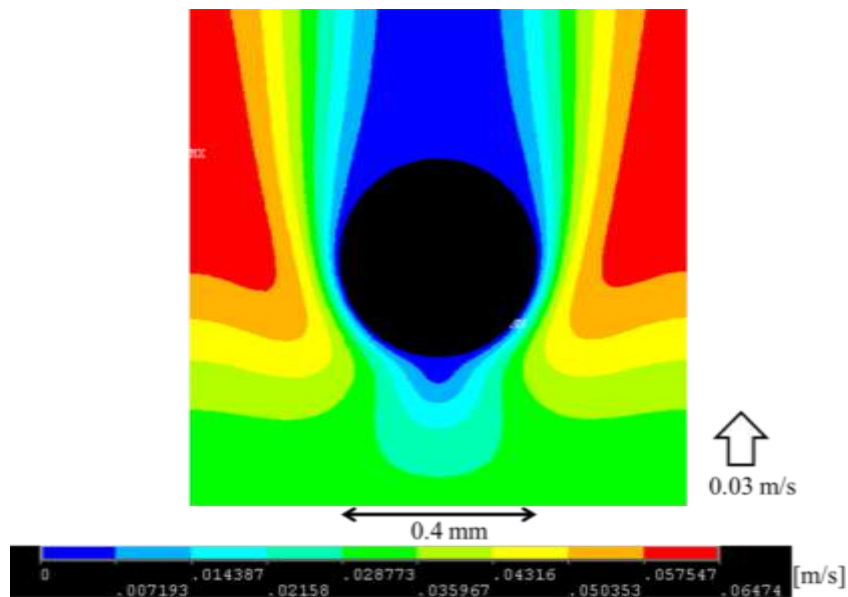
本項では、超電導磁石を用いることで、常磁性粒子である2:1型粘土鉱物を分離するために必要な磁場・磁場勾配の条件について確かめるため、1:1型粘土鉱物のひとつであるカオリナイトと、東北地方の土壌に多く含まれる2:1型粘土鉱物であるバーミキュライトを用いた小規模なモデル連続処理実験をまず行った。実験に先立ち、3) で述べた方法と同様の理論に基づき、若干簡易な方法ではあるが、実験条件とできる限り同じ条件で粒子運動計算を行い、分離可能性を検討してから実際の実験を行った。ここでは有限要素解析ソフトを用いて磁場解析と流体解析を行い、磁性細線近傍の磁場分布と流速分布を求めた。磁場解析と流体解析には、有限要素法解析ソフトANSYSを用いた。

磁気フィルターはSUS430から成る線径が0.4 mmの円型のものを想定しており、フィルターを構成している線の周囲の1.0 mm×1.0 mmの領域について解析を行った。磁場は、0.7 T、2 T、5 Tと7 Tの均一磁場を仮定している。0.7 Tは対向型永久磁石、2 Tは電磁石、5 Tと7 Tは超伝導ソレノイド磁石を用いることを想定している。また、流速は3.0 cm/sで検討した。

図(3)-30に磁場解析の結果を示す。y方向に7 Tの均一磁場を印加すると、フィルター近傍で最大7.8 Tの磁束密度が生じた。またy軸のフィルター近傍の磁場勾配は、最大で約7400 T/mとなった。また、図(3)-31に流速3.0 cm/sの流体解析の結果を示す。

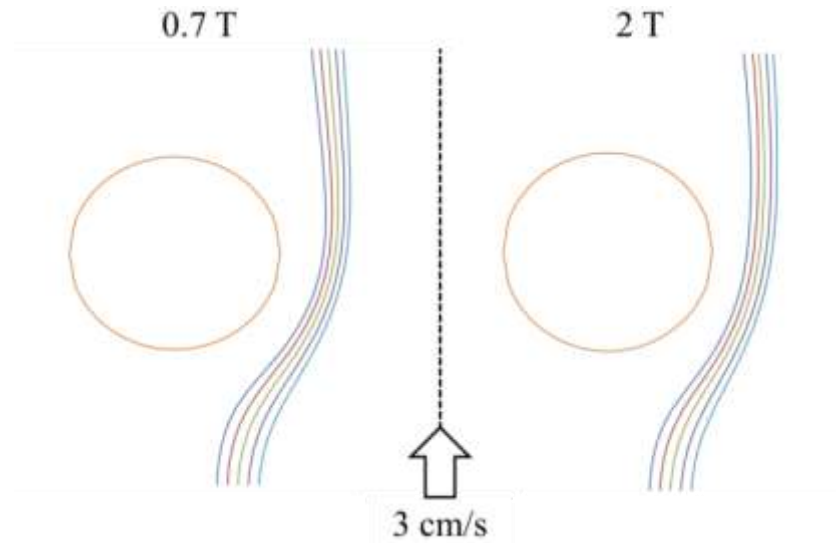


図(3)-30 7Tの均一磁場を加えた磁場解析結果

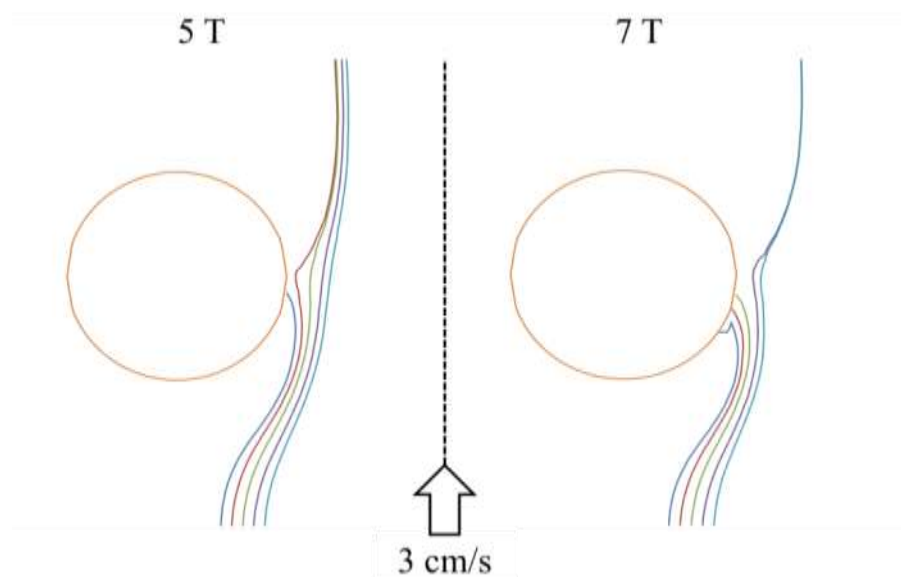


図(3)-31 流体解析結果

次に、磁場解析と流体解析の結果を用いて、磁気フィルター近傍での粒子軌跡計算を行った。磁場解析と流体解析は、図(3)-30と図(3)-31に示した結果を用い、分離対象はバーミキュライトとし、バーミキュライトの体積磁化率 7.0×10^{-4} 、粒子半径は $2.5 \mu\text{m}$ として計算を行った。この結果を図(3)-32と図(3)-33に示す。中央の円が強磁性フィルターの1本のワイヤーであり、半径が 0.2 mm である。これより流速 3 cm/s の場合、永久磁石（ 0.7 T ）や電磁石（ 2 T ）の磁場では、2:1型粘土鉱物は捕捉されず、超伝導ソレノイド磁石を利用して $5 \text{ T} \sim 7 \text{ T}$ 程度の磁場が必要であると計算された。



図(3)-32 粒子軌跡計算の結果（印加磁場が 0.7 T と 2 T の場合）



図(3)-33 粒子軌跡計算の結果（印加磁場が 5 T と 7 T の場合）

上記の結果を元に、磁気分離実験を行った。磁気分離後の通過懸濁液の様子を図(3)-34に示す。これより、磁場を強くするとバーミキュライトの色である茶色が薄くなっていることが分かる。ろ過後に回収した土壌を十分に乾燥させ、質量を測定した。その結果を表(3)-5に示す。磁場を強くすると、捕捉分のバーミキュライトの質量が減り、通過分の質量が増加した。また、欠損が少なくとも0.42 g発生した。これは磁気分離領域槽内に付着した分や、配管内に残った分などが考えられる。そのため容器の形状などを工夫することで、欠損を減らすことが必要となると考えている。また、それぞれの成分について磁気天秤（Sherwood scientific, Ltd.）を用いて測定した。その結果を表(3)-6に示す。磁場を強くすると、通過分の体積磁化率は小さくなった。



図(3)-34 通過懸濁液の様子（左から：2 T, 5 T, 7 T）

表(3)-5 磁気分離後の質量の比較

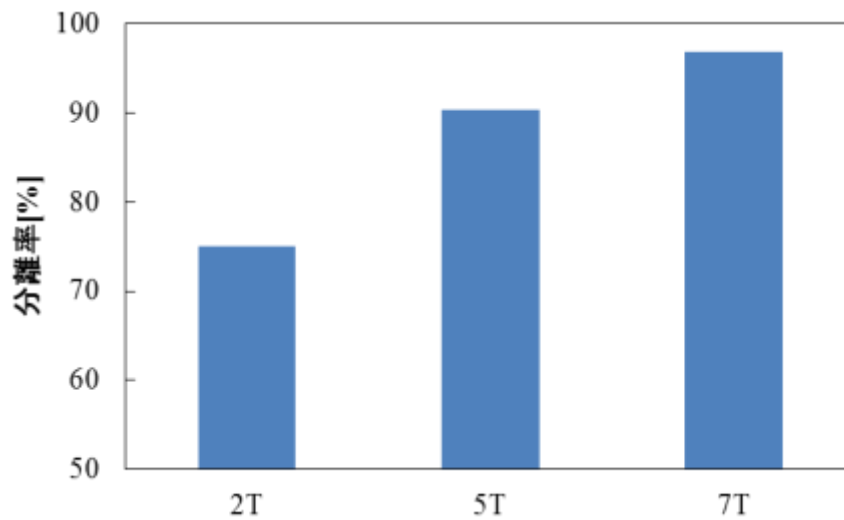
	捕捉分[g]	通過分[g]	欠損[g]
2T	3.44	1.15	0.42
5T	3.96	0.43	0.61
7T	4.38	0.15	0.48

表(3)-6 磁気分離後の体積磁化率の比較

	体積磁化率[-]	
	捕捉分	通過分
2T	2.4×10^{-4}	1.0×10^{-4}
5T	2.7×10^{-4}	8.0×10^{-5}
7T	2.0×10^{-4}	5.8×10^{-5}

さらに、それぞれの磁場強度における分離率を算出した。算出式は式(3)-2に示し、結果を図(3)-35に示す。磁場を強くすると分離率が高くなり、5 Tで90%、7 Tの磁場では、97%と高い分離率となり、流速3 cm/sで高い分離率でパーミキュライトを回収するためには、5 T以上の磁場が必要であることが分かった。この結果は前述の粒子軌跡計算とも一致した結果となった。

$$\text{分離率}[\%] = \frac{\text{捕捉分}[\text{g}]}{\text{捕捉分}[\text{g}] + \text{通過分}[\text{g}]} \times 100 \quad (3)-2$$

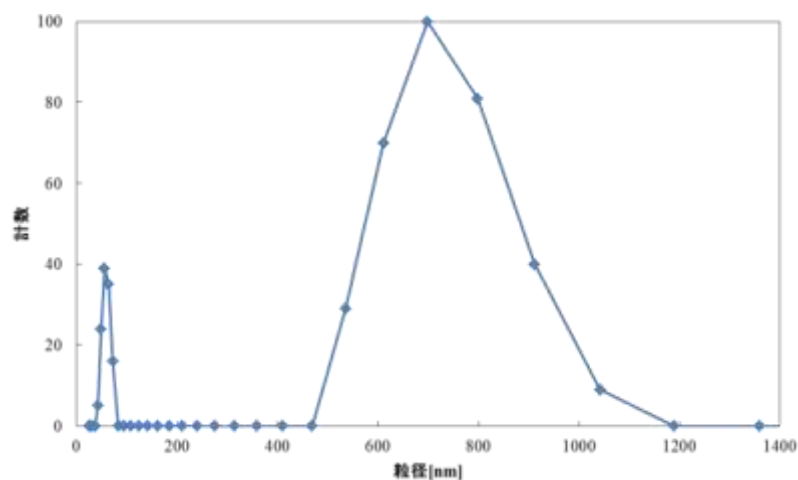


図(3)-35 磁場強度と分離率の比較

粒子軌跡計算と異なり、2 Tで75 %の分離率となった理由としては、粒径が5 μm より大きい粒子が数多く存在したことが挙げられる。これは、ドラッグ力は粒径に比例するが、磁気力は粒径の3乗に比例するため、粒径が大きいほど磁気力に捕捉されやすい。粒径を大きくして粒子軌跡計算を行うと、粒径が10 μm より大きいと捕捉することが可能であった。

7 Tの磁場を印加しても通過したバーミキュライトがわずかに存在した。これは通過した成分の磁化率と粒径から説明することができる。

この成分の粒度分布を、高濃度粒度分布測定装置FOQELS（日本ルフト株式会社）を用いて動的光散乱法により測定した。図(3)-36に結果を示し、粒径が60 nmと700 nmの2つのピークが確認された。粒子軌跡計算では、捕捉対象の粒径を5 μm として行い、磁気力とドラッグ力より簡易的に示した式によると、分離可能速度は粒径の2乗に比例する。よって700 nmのバーミキュライト粒子を捕捉するためには、3 cm/sより遅い流速で実験する必要がある。



図(3)-36 7 T の通過懸濁液の粒度分布

通過分の体積磁化率は、2 Tや5 Tと比較すると小さくなった。これは磁場を大きくすると磁気力が大きくなり、より低い磁化率の粒子や小さい粒子まで捕捉することが可能となったからである。通過した成分の磁化率が低い理由として、バーミキュライトの一般式は、

$(\text{Na}, \text{K}, \text{Ca}_{0.5} \text{Mg}_{0.5})_{0.6-0.9} (\text{Mg}, \text{Fe}^{3+}, \text{Al})_{2-3} (\text{Si}, \text{Al})_4 \text{O}_{10} (\text{OH})_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ と表され¹⁰⁾、アルミナ八面体シートにおける同型置換の量は一定ではないことが挙げられる。Fe³⁺やMg²⁺の置換量が多くなればなるほど、磁化率は大きくなると考えられ、7 Tの磁場で捕捉できなかった粒子は置換量が少なかったと考えられる。そのため磁気フィルターに捕捉されず流出したと考えられる。

砂礫の放射線量を400 Bq/kgと仮定し、カオリナイトが砂礫の6倍、バーミキュライトがカオリナイトの6倍のセシウム吸着量¹¹⁾とする。カオリナイトとバーミキュライトから成る土壌を考えた時、通過したバーミキュライトの割合が約5%以下の場合、磁気分離後の通過分の放射線量が、目標値である3000 Bq/kg以下となった。7 Tの磁場を印加したときの通過した成分は、全体の3%しか占めないため、流速3 cm/sでは7 Tの磁場を印加することで2:1型粘土鉱物のバーミキュライトを十分に分離できたと言える。

次にこの結果を元に、粒子どうしの相互作用の影響を確認するため、バーミキュライトとカオリナイトを用いた混合試料について磁気分離実験を行った。そして、複数の粘土鉱物の混合物からバーミキュライトを選択的に分離できるかどうかについて調査した。粒径が75 μm未満のバーミキュライト5.0 gとカオリナイト5.0 gに蒸留水を1.5 L加え、模擬土壌懸濁液を調製した。バーミキュライトとカオリナイトの様子を図(3)-37に示す。図(3)-5と同様な流路を設置し、超電導ソレノイド磁石を用いて、最大磁束密度7 Tの磁場を印加して、3分間高勾配磁気分離を行った。このとき、ポンプを用いて磁気分離領域用の配管内の流速を3 cm/sとした。その後、捕捉懸濁液と通過懸濁液0.45 μmのメンブランフィルターを用いて、吸引ろ過を行った。



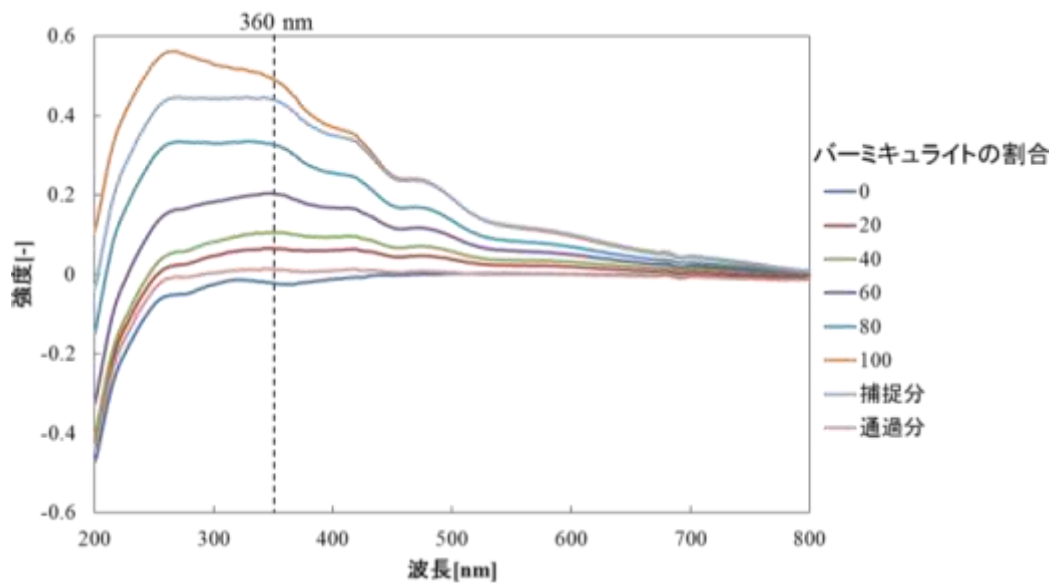
図(3)-37 バーミキュライトとカオリナイトの粒子

図(3)-38に磁気分離後に得られた捕捉懸濁液と、通過懸濁液の様子を示す。通過懸濁液は白い懸濁液であり、これは白色のカオリナイトが主に含まれていることが分かる。一方、捕捉懸濁液は茶色を示し、これは茶色のバーミキュライトが主に含まれていることが分かる。



図(3)-38 分離後の土壤懸濁液（左：通過懸濁液，右：捕捉懸濁液）

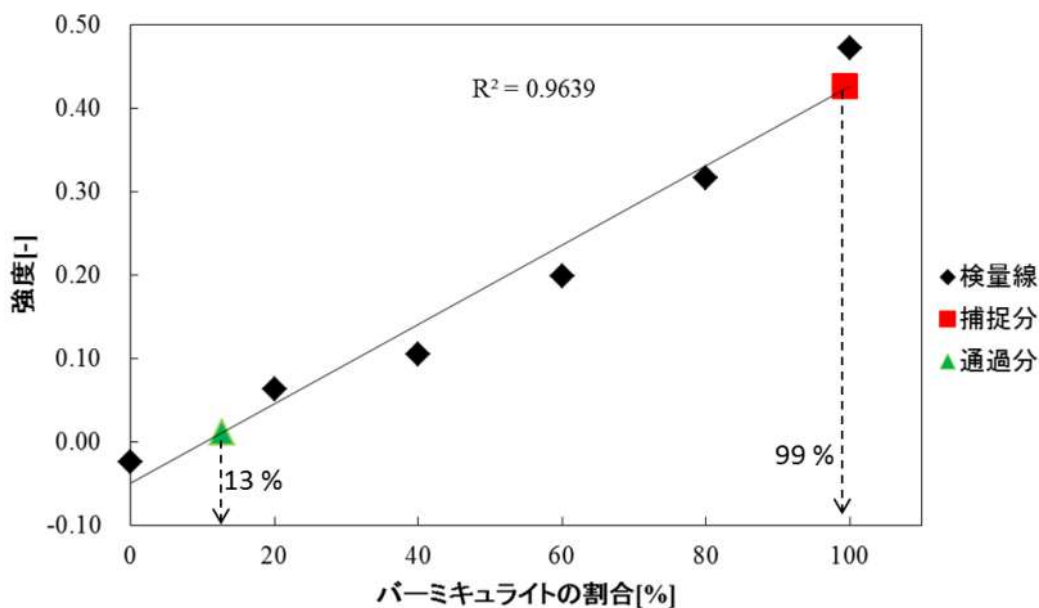
ろ過によって回収した成分をそれぞれ十分に乾燥させ、分光光度計（V-570，日本分光）を用いて吸光スペクトルを測定した。また検量線用として，バーミキュライトとカオリナイトの質量割合を0:100，20:80，40:60，60:40，80:20，100:0の試料を調製し，吸光スペクトルを測定した。その結果を図(3)-39に示す。波長が200 nmから600 nmのところにバーミキュライトのスペクトルがあり，捕捉分にはバーミキュライトが80 wt.%以上，また通過分にはバーミキュライトが20 wt.%以下含まれることが分かる。



図(3)-39 吸光スペクトルの測定結果

そして，バーミキュライトの質量割合と強度が，1次関数で表すことができる波長である360 nmのピークの強度を指標として，捕捉分と通過分のバーミキュライトの質量比率を算出した。

図(3)-40に360 nmの吸光度スペクトルの検量線と捕捉分及び，通過分の結果を示す。

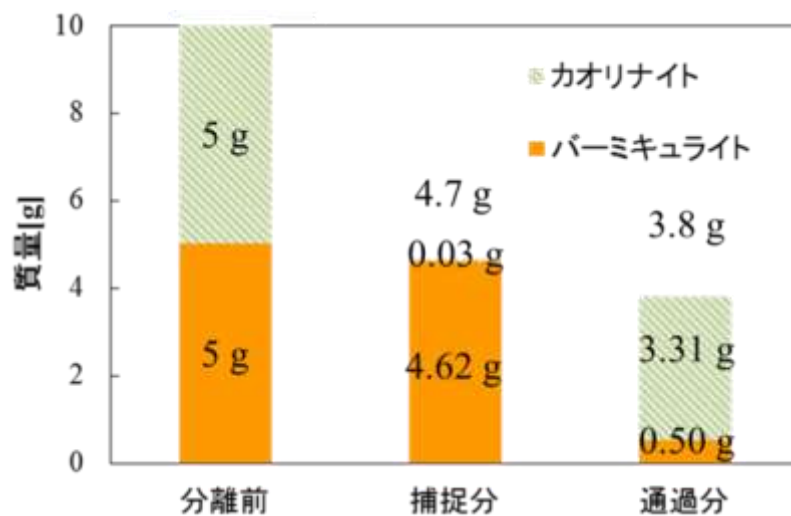


図(3)-40 360 nm の吸光スペクトルの結果

その結果、パーミキュライトが捕捉分には99 wt.%まで濃縮されていることや、通過分の87 wt.%がカオリナイトであることが分かった。さらに、パーミキュライトの割合と捕捉分と通過分の質量から得た磁気分離実験前後の粘土鉱物の質量割合の変化を図(3)-41に示す。磁気分離した模擬土壌は、カオリナイト5.0 gとパーミキュライト5.0 gの合計10 gであったが、磁気分離領域槽内に付着した分や、配管内に残った分などが存在したため、捕捉分と通過分の合計が8.5 gと少なくなった。少量ではあるがカオリナイトが磁気フィルターに捕捉されたのは、粒径の大きな粒子がフィルターに物理的に捕捉されたものや、フィルター壁面に付着したためと考えられる。

また投入したパーミキュライトの中で92 wt.%にあたる4.6 gがフィルターに捕捉されたが、これは図(3)-35の結果と比べると、通過したパーミキュライトが増加したことが分かる。これは一部のパーミキュライトがカオリナイトと凝集し、凝集体に作用するドラッグ力が大きくなったためであると考えられ、今後の検討が必要である。

今回の結果より、パーミキュライトとカオリナイトを1:1で混合した懸濁液を7 Tの磁場を印加して高勾配磁気分離することで、パーミキュライトをフィルターに選択的に捕捉し、濃縮することに成功した。この結果から放射性セシウムを強固に吸着する2:1型粘土鉱物、特にパーミキュライトを、磁気分離法により他の粘土鉱物と分離することで高い減容率を達成できる可能性が示された。



図(3)-41 磁気分離前後の粘土鉱物の質量変化

今回の実験では、循環系の流路を設定して3分間磁気分離実験を行ったが、ポンプの送液能力より、懸濁液は3分間で磁気フィルターを約3回通過している。懸濁液の磁気フィルターの通過回数が1回のみでも、パーミキュライトの分離率が同様な結果であれば、3回の通過の場合と比べて処理量は約3倍となるので、今後は磁気フィルターの通過回数の設定も行う。また流速と磁場を変化させ、パーミキュライトの分離率を比較する。速い流速の場合、処理量が増加するが、ドラッグ力も大きくなるため、これらの条件の最適化を図り、実用化に向けた条件設定を行う。そしてフィルター設計も重要となる。現在は線径が0.4 mmの磁性細線を用いているが、実土壌を大量に扱う場合には、土壌粒子との衝突による摩耗を考慮する必要があるため、現在使用している磁性細線より太いものを用いる必要がある。一般的に強磁性フィルターが太いと、磁場勾配が小さくなるため、磁気力が小さくなる。そのためこれらのことを考慮に入れて、実用化に向けた磁気フィルターの設定も必要となる。

以上のように、土壌中においてパーミキュライトなどの常磁性を示し、セシウムを強固に吸着する2:1型粘土鉱物を分離するため、大量高速処理が可能である超電導ソレノイド磁石を用いて磁気分離実験を行った。その結果、5 T～7 Tの磁場を印加すると、流速3 cm/sでは十分に分離できることが分かった。また、2:1型粘土鉱物と1:1型粘土鉱物を混合した模擬土壌から2:1型粘土鉱物の選択的分離に成功した。今後実用に向けては、磁場や流速、磁気フィルターや磁気フィルターの通過回数を変化させ、磁気分離条件の最適化を図る必要がある。

5) 実土壌を用いた土壌の減容化率の検討

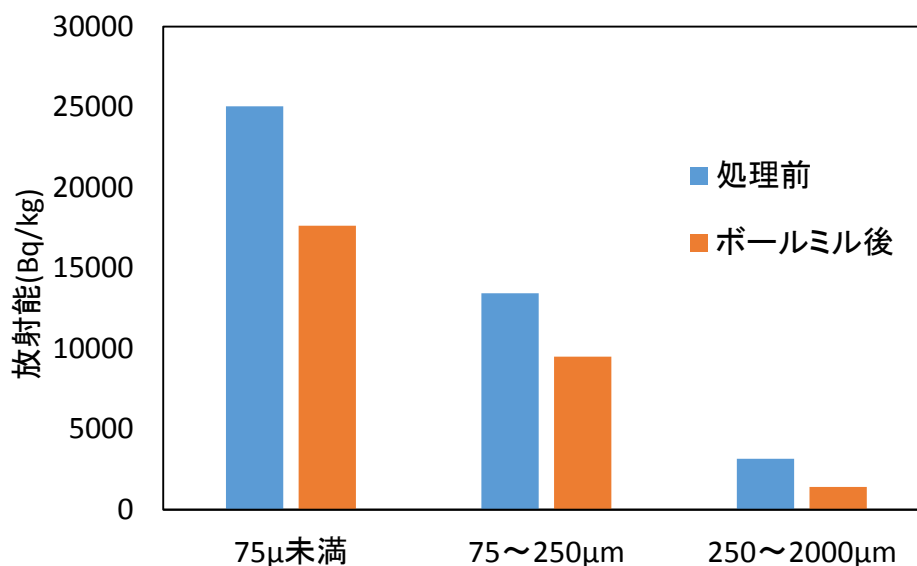
実験に使用する実汚染土壌の移行処理前の各粒径区分の乾燥重量と放射能の概算値を表(3)-7に示す。Cs存在割合は、土壌中のCs全量に対して各粒径区分の土壌にいくら存在しているかを示している。この結果から、粒径の小さな土壌ほど単位質量あたりのCs吸着量が多いことが確認でき、先行研究の結果と一致した。¹²⁾

表(3)-7 移行処理前の各粒径の土壌の重量比と放射能

粒径区分	重量比(%)	放射能(Bq/kg)	Cs存在割合(%)
75 μ m未満	17.5	25000	51.1
75~250 μ m	15.6	13400	24.3
250~2000 μ m	66.9	3200	24.6
土壌全体(2000 μ m以上を含む)	-	7500	-

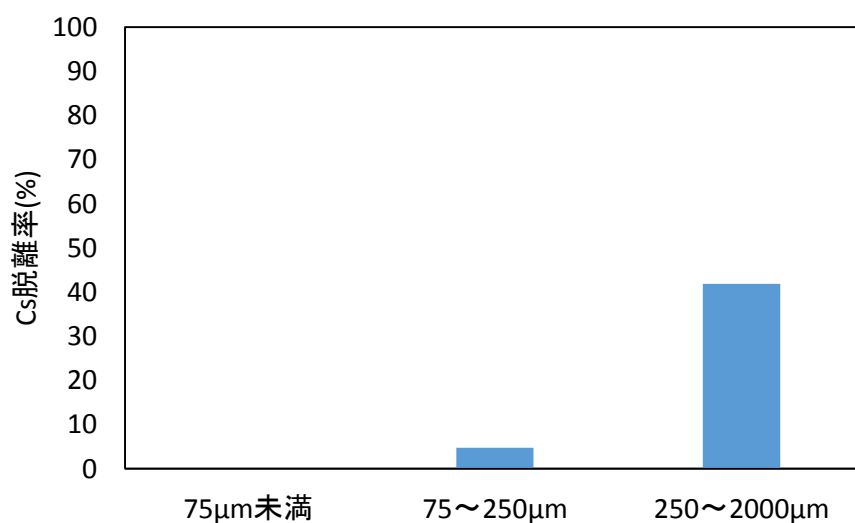
ボールミルを用いた物理的手法による各粒径の土壌の放射能の概算値の変化を図(3)-42に示した。処理前の値は湿式分級処理のみを施した後に、放射能を測定した結果である。これらの結果を比較すると、いずれの土壌においても放射能が低下したことが読み取れる。75~250 μ mの土壌と250~2000 μ mの土壌の放射能が下がった理由として、ボールミルによる2つの効果が考えられる。1つは、ボールミルによる表面研磨により粒径の大きな砂礫に付着していた放射能の高い粘土が剥離されたことである。もう1つは、粒径の大きな土壌において比較的多くのCsを吸着している土壌表面の成分が研磨されたことである。その結果、250~2000 μ mの土壌では約3200Bq/kgから約1400Bq/kgと55%の放射能が低下し、75~250 μ mの土壌では、約13400Bq/kgから約9500Bq/kgと30%程度の放射能が低減された。

一方でCsを移行した75 μ m未満の土壌についても放射能の低下が見られた。低下の原因は、ボールミルにより放射能の高い粘土だけでなく、75 μ m以上の土壌の表面成分が表面研磨により75 μ m未満の土壌に変化したことが挙げられる。75 μ m以上の粒径の大きな土壌の表面成分は、その内部成分に比べて放射能が高いが、処理前から存在していた75 μ m未満の土壌と比較すると放射能が低いため、75 μ m未満の土壌の放射能が希釈され、放射能が下がったと考えられる。



図(3)-42 ボールミル処理による各土壌の放射能の変化

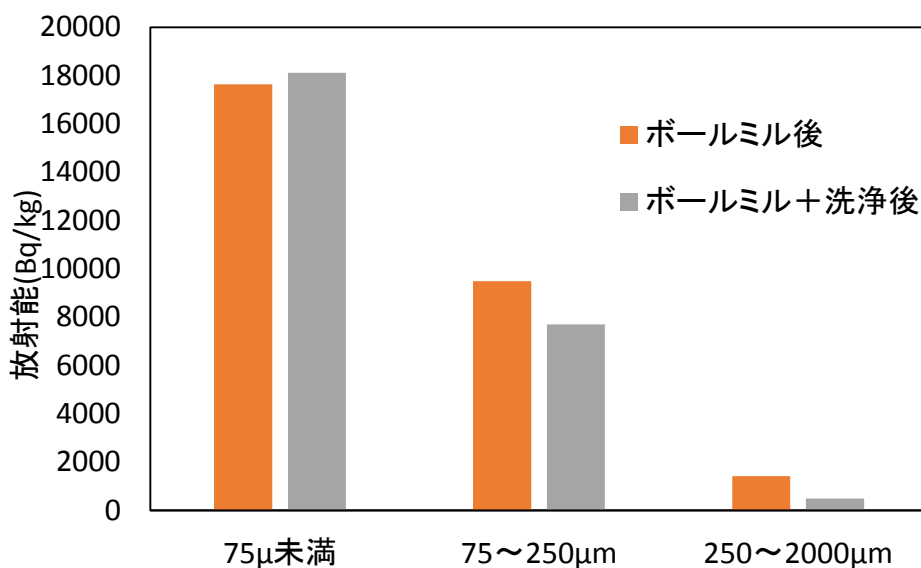
分級後の土壌を0.05mol/Lの炭酸カリウム溶液で洗浄した際のCs脱離率を放射能の概算値の変化から算出し、図(3)-43に示す。模擬実験の結果と同様に75 μm 未満の土壌については放射能の低下が見られず、CsがKとのイオン交換により脱離されない状態で吸着されていることが確認された。250~2000 μm の土壌は42%のCsが脱離されたことから、変異電荷により吸着されたCsは低濃度カリウム溶液で洗浄することによりCsを脱離できることが示された。それに対して、75~250 μm の土壌では脱離率5%程度であった。その要因は、250~2000 μm の土壌と比較すると、ボールミルによる表面研磨効果を受けにくかったため、放射能が高くCs吸着力の強い粘土が残留したことが考えられる。または粘土よりも粒径の大きな土壌についても、Csを固定するサイトを保持しているとの報告もあることから¹³⁾、75~250 μm の粒径を持つ土壌のCs吸着については詳細な検討が必要である。



図(3)-43 洗浄による¹³⁷Csの脱離率

ボールミル処理と炭酸カリウム溶液による洗浄処理とを組み合わせた場合の放射能の概算値の変化をボールミル処理のみの場合の各土壌の放射能と比較して図(3)-44に示す。各粒径の土壌の放射能の変化には、模擬汚染土壌を用いた実験やボールミル後の土壌試料を洗浄した実験と同様の傾向が見られた。ボールミル処理に洗浄処理を追加することで、75~250 μm の土壌は7700 Bq/kg、250~2000 μm の土壌は490 Bq/kgとそれぞれボールミル処理のみの場合と比べて約19%、65%の放射能を低減することができた。それに対して75 μm 未満の土壌の放射能は17600 Bq/kgから18100 Bq/kgに増加していた。75 μm 未満の土壌からは洗浄によりCsが脱離されないことが先ほどの実験で確認できているため、75~2000 μm 以上の土壌の変異電荷に吸着されていたCsが、Kとのイオン交換により脱離された後、75 μm 未満の土壌が有する永久電荷由来の吸着サイトに移行したと考えられる。

ボールミルと洗浄処理を同時にした場合の各粒径の土壌の放射能の低減率は、ボールミル後にそれぞれを個別に洗浄した場合よりも高い値を示した。理由としては、様々な粒径の土壌が混在することで、粒径の大きな土壌から脱離されたCsが粒径の小さな粘土等に移行し、溶液中のCs濃度が低く保たれたことが原因であると考えられる。このことから、ボールミルと低濃度カリウム溶液による洗浄をCs移行処理として、分級前に行うことが有効であることが示された。



図(3)-44 洗浄処理による各土壌の放射能の変化

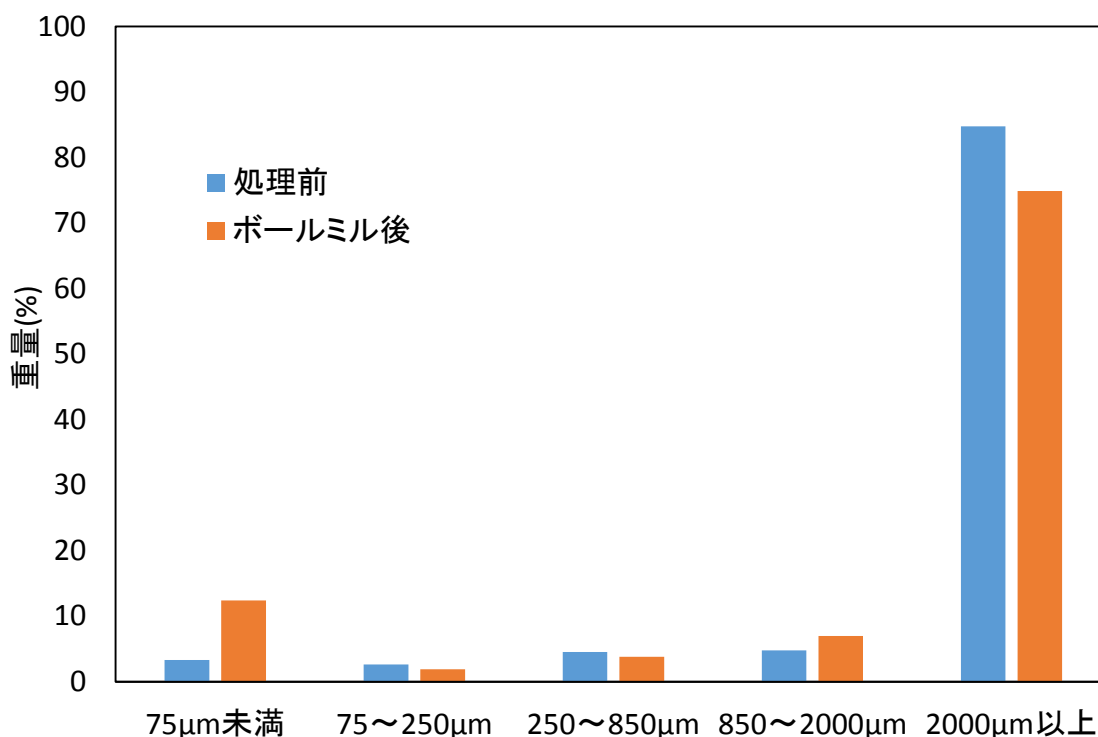
6) 仮置き場での大型装置による土壌の減容化実験

Cs移行処理前の汚染土壌の各粒径の放射能の概算値と重量比を表(3)-8に示す。小型実験で用いた汚染土壌と同様に粒径の小さい土壌の放射能が高く、重量比で3%程度の75μm未満の土壌に50%以上のCsが存在していることが明らかになった。それに対して、粒径の大きな2000μm以上の土壌に対するCs吸着量は比較的少ないが、放射能は約800 Bq/kgであった。そのため、75μm以上の土壌を減容化するためには更なる放射能の低減が必要である。

表(3)-8 移行処理前の各粒径の土壌の重量比と放射能 (本宮市仮置き場：土壌A)

	重量比(%)	放射能(Bq/kg)	Cs存在割合(%)
75μm未満	3.3	39600	53.2
75~250μm	2.6	8700	9.4
250~850μm	4.5	3700	6.8
850~2000μm	4.8	1800	3.5
2000μm以上	84.8	800	27.1
土壌全体	100	2300	100

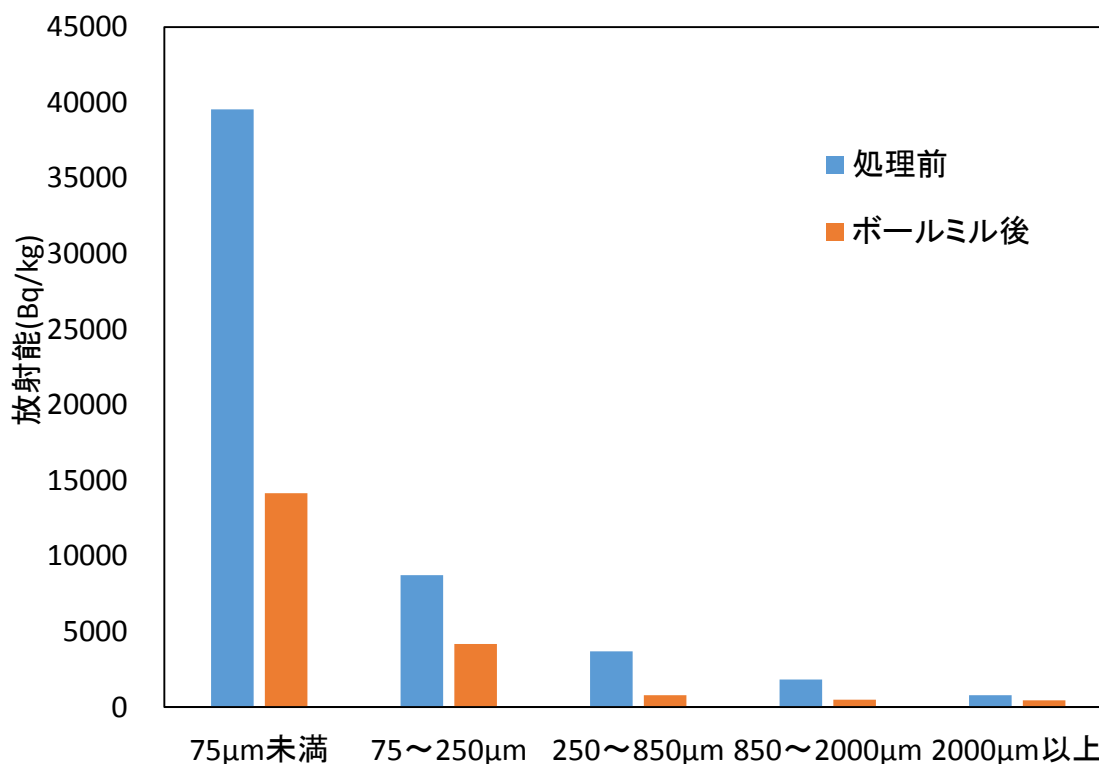
ボールミル処理を行った後の各粒径の土壌の重量比を処理前のものと比較して図(3)-45に示す。ボールミルを行ったことにより、粒径の最も大きい2000μm以上の土壌の重量比が初期量と比較して10%程度低下し、その剥ぎ取られた土壌が75μm未満の土壌に変化した結果、75μm未満の土壌の重量が初期量の4倍程度に増加していることが読み取れる。その他の粒径の土壌の重量変化については、処理前の試料とボールミル処理を施した試料が異なるものであるために生じた試料ごとの個体差であり、表面研磨による重量変化はわずかであると考えられる。



図(3)-45 ボールミル処理による土壌の重量変化（本宮市仮置き場：土壌A）

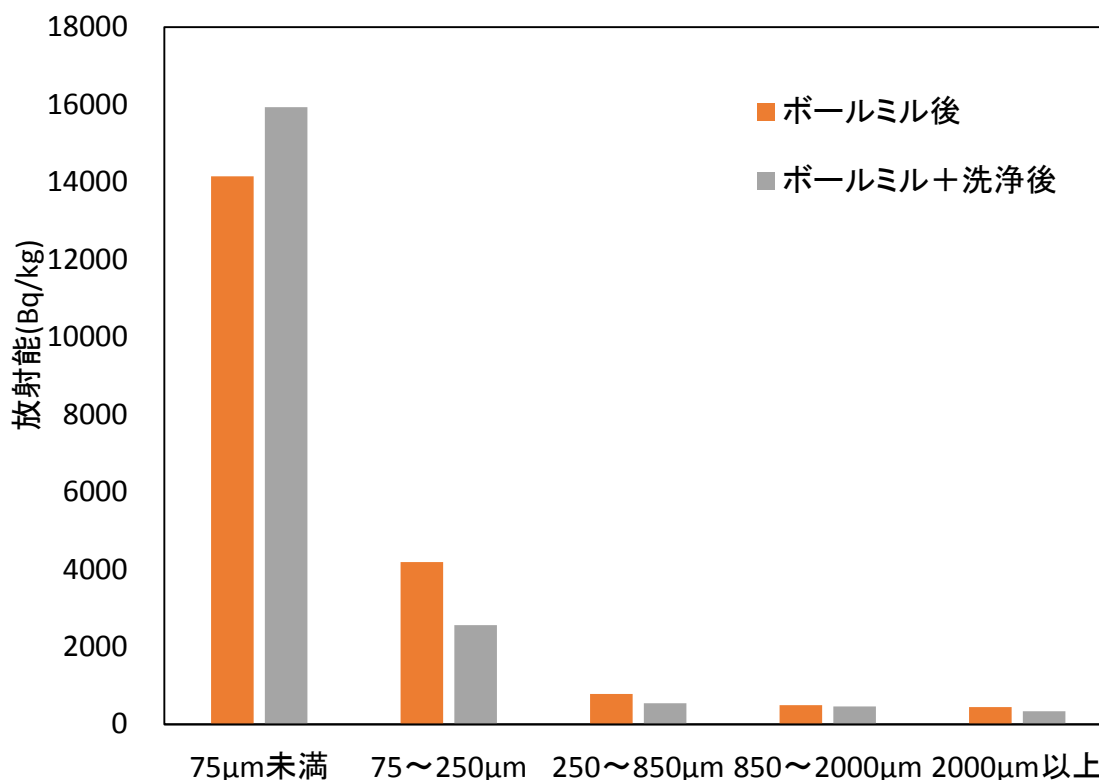
ボールミル処理前後での各粒径の土壌の放射能の概算値の変化を図(3)-46に示す。全ての粒径区分の土壌の放射能が低下し、小型実験と同様の結果を得ることができた。75μm以上の4つの粒径区分の土壌は、表面研磨効果により43~78%低下した。小型実験において、放射能の低減効果が低かった75μm~250μmの土壌についても処理前と比較して52%の放射能が低下した。小型実験で使用した校庭土は、有機質の少ない土壌であったのに対して、今回の実験で使用した宅地土壌は、土壌の色から判断して有機質を多く含むものである。そのため、土壌粒子のみで構成される校庭土と比較して、表面に有機物を多く含む宅地土壌の方が、ボールミルによる表面研磨の影響を受けやすかったと考えられる。また、この結果から粒径の大きい砂礫等の表面成分よりも有機物に多くCsが存在している可能性が示唆された。有機物へのCs吸着量については、過酸化水素を用いた有機物分解処理などを用いた処理等でさらに詳細に分析していく必要がある。

75μm未満の土壌の放射能は、粒径の大きな土壌の表面成分が加わったことにより、希釈されて低下した。土壌の重量比と放射能の概算値の合計が処理前後で大きく変化しておらず、かつ水洗浄では水相に脱離されることはないことが知られている¹⁴⁾ことから、ボールミル後に75μm未満の土壌に変化した土壌の放射能を、処理前から存在していたものの放射能から算出すると、4700 Bq/kg程度となった。75μm以上の粒径の土壌の処理前の放射能は、75~250μmの土壌を除き、4700 Bq/kgよりも低いため、放射能の高い粘土や表面成分を効果的に剥離して、75μm以上の土壌の放射能を低下させ、75μm未満に移行できたことが確認できた。



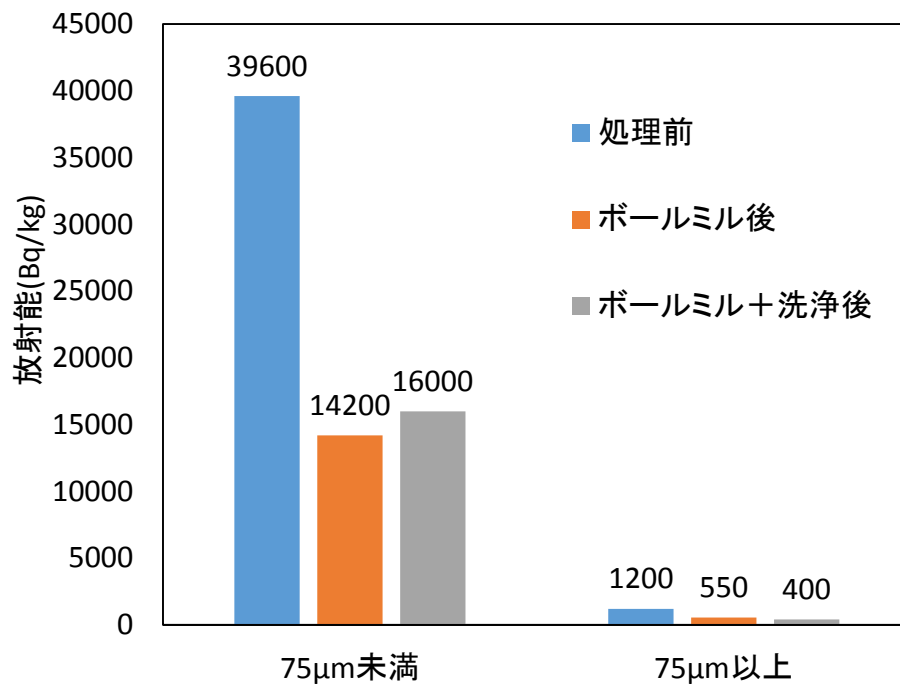
図(3)-46 ボールミル処理による土壌の放射能の変化（本宮市仮置き場：土壌A）

ボールミル処理の際に、0.1 mol/Lで K^+ イオンを含む肥料溶液を使用した場合の土壌の放射能の概算値の変化をボールミル処理のみの結果と比較して図(3)-47に示す。75 μm 以上の4つの粒径区分の土壌からは K とのイオン交換により Cs が脱離され、放射能が低下した。それに対して、75 μm 未満の土壌の放射能が増加したことが確認された。処理前後での土壌全体の放射能の合計を重量比と放射能から計算した結果、差が小さいことから粒径の大きな土壌から脱離された Cs が液相に脱離されず、75 μm 未満の土壌に移行したことが分かった。小型実験の結果と比較して、75 μm ~250 μm の土壌の放射能の低減率が処理前と比較して39%と、ボールミル処理のみの場合と比べて高い線量低減効果を示した。先述のように、今回用いた宅地土壌は校庭土よりも多くの有機物を含んでいる。有機物は砂礫などと同様にカルボキシル基や水酸基が帯びる負電荷により Cs を吸着しているが、その吸着強度は砂礫などよりも強いという報告もある。¹⁵⁾ ボールミル処理によって、 Cs 含有量が高く、 K とのイオン交換により脱離されにくい状態で Cs を吸着している有機物が土壌表面から取り除かれているため、粒径の大きい土壌粒子からより Cs を脱離しやすくなったことが、洗浄処理による Cs 脱離率の向上した要因であると考えられる。

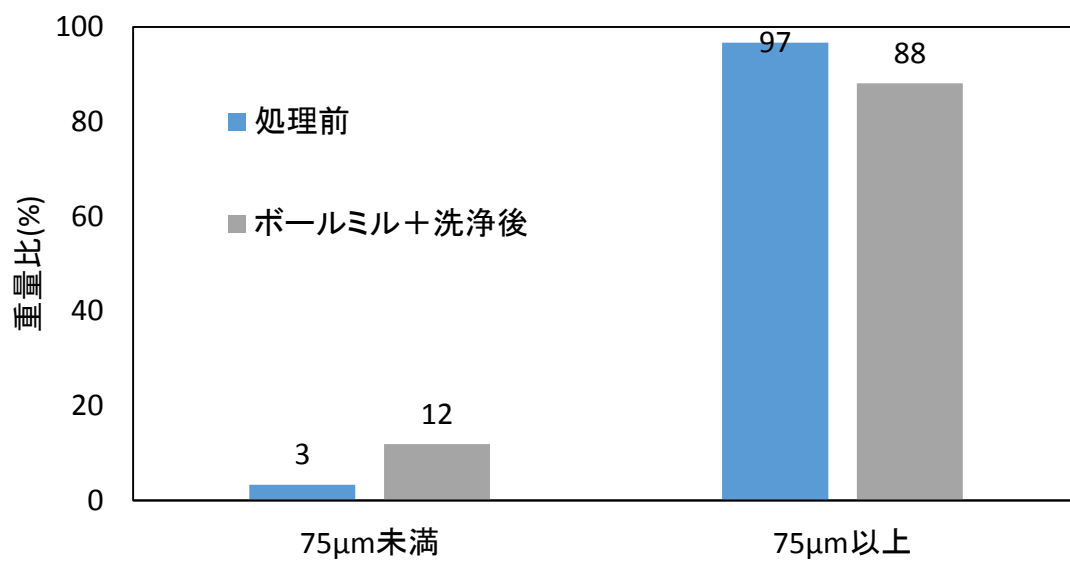


図(3)-47 洗浄処理による放射能低減効果（本宮市仮置き場：土壌A）

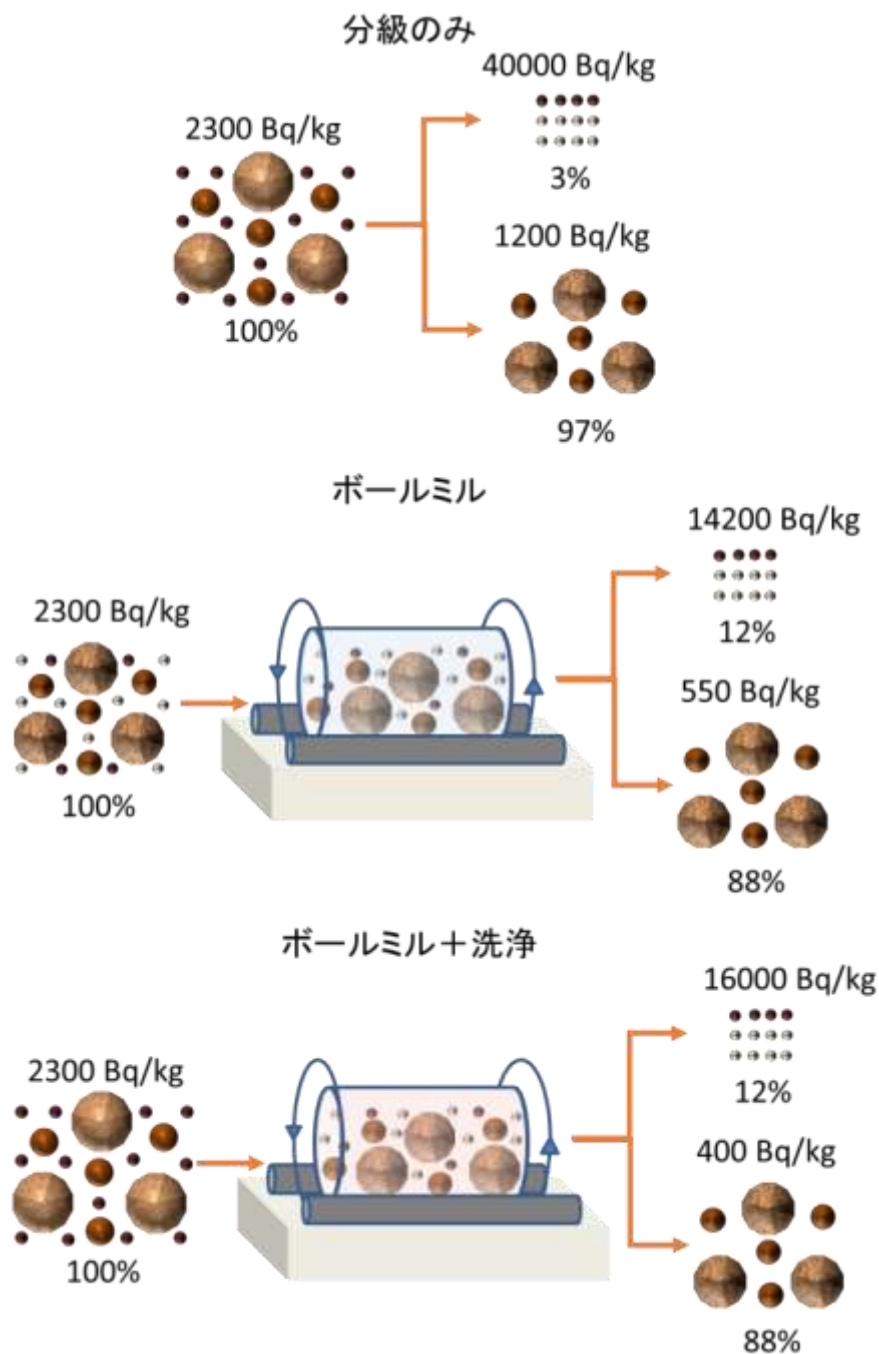
ボールミルのみの場合とボールミルと洗浄処理を同時に行った場合の粒径75μm未満の土壌と75μm以上の土壌の放射能の概算値と重量比の変化を図(3)-48と図(3)-49に示し、それらの結果を合わせて表した模式図を図(3)-50に示す。75μm以上の土壌の放射能は、処理前の1200 Bq/kgからCs移行処理により、400 Bq/kgと低下した。環境影響の少ない肥料のみを添加物と使用し、クリアランスレベルである100 Bq/kgに近づけることができたため、非汚染の土壌と混合して希釈することを考慮すれば、埋め戻すことが可能である。75μm以上の土壌の重量比は、ボールミル処理により97%から88%に低下しているが、それらの土壌を埋め戻すことで汚染土壌を12%程度に減容化できる可能性が示された。



図(3)-48 Cs移行処理による土壌の放射能の変化（本宮市仮置き場：土壌A）



図(3)-49 Cs移行処理による土壌の重量の変化（本宮市仮置き場：土壌A）



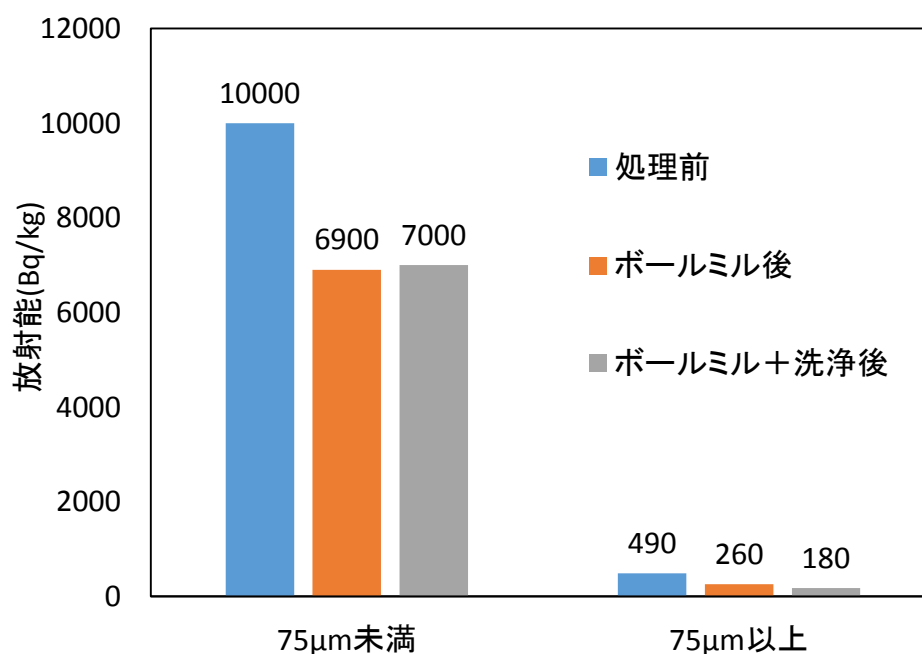
図(3)-50 Cs移行処理と分級による土壌の放射能、重量の変化（本宮市仮置き場：土壌A）

次に、上記の実験で使用した宅地土壌よりも放射能が低く、有機質の含有量と粒径の大きな礫分が少ない宅地土壌に対してもCs移行処理が有効であるかを調査するために実施した実験の結果について述べる。処理前の汚染土壌の各粒径区画の土壌の重量比と放射能の概算値を表(3)-9に示す。先述の実験で使用した土壌と比較すると、75 μm 未満の土壌の重量比が多く、2000 μm 以上の粒径の大きな土壌が少ない土壌であることがわかる。また土壌全体の放射能を比較した場合には、いずれの粒径区分についても比較的低いことが確認できる。

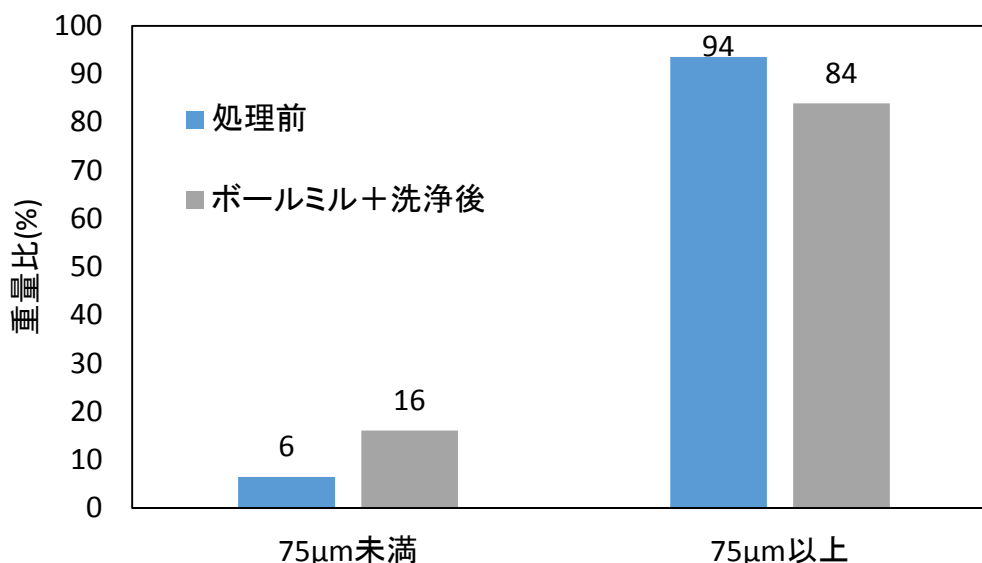
表(3)-9 移行処理前の各粒径の土壌の重量比と放射能（本宮市仮置き場：土壌B）

	重量比(%)	放射能(Bq/kg)	Cs存在割合(%)
75 μ m未満	6.4	10500	59.8
75～250 μ m	7.8	1700	11.9
250～850 μ m	12.2	800	8.3
850～2000 μ m	6.1	380	2.0
2000 μ m以上	67.5	300	18.0
土壌全体	100	1200	100

ボールミルと洗浄処理を同時に行った場合の粒径75 μ m未満の土壌と75 μ m以上の土壌の放射能の概算値と重量比の変化を図(3)-51と図(3)-52に示し、それらの結果を合わせて示した模式図を図(3)-53に示す。先ほどの実験で使用した土壌試料の放射能変化を示した図(3)-50と比較して、今回の土壌試料を用いた場合でも同様の結果が得られていることが確認できる。一般に土壌中のCs濃度が低い方が溶液中に抽出するのが困難になるが、処理前の放射能が低い場合でも放射能の低減率は大きく低下しなかった。具体的には、2000 μ m以上の土壌の放射能は、処理前で300 Bq/kg程度であったが、ボールミルと洗浄処理を行うことにより、50 Bq/kg程度まで低下した。75 μ m以上の土壌全体の放射能もCs移行処理後では、180 Bq/kgとクリアランスレベルである100 Bq/kgに近い値まで放射能が低下し、重量比で84 %存在する土壌を減容化できる可能性が示された。これらの結果から、土質や放射能の異なる実汚染土壌に対してもCs移行処理が有効であり、土壌の減容化に対して有効な手法であることが示された。



図(3)-51 Cs移行処理による土壌の放射能の変化（本宮市仮置き場：土壌B）

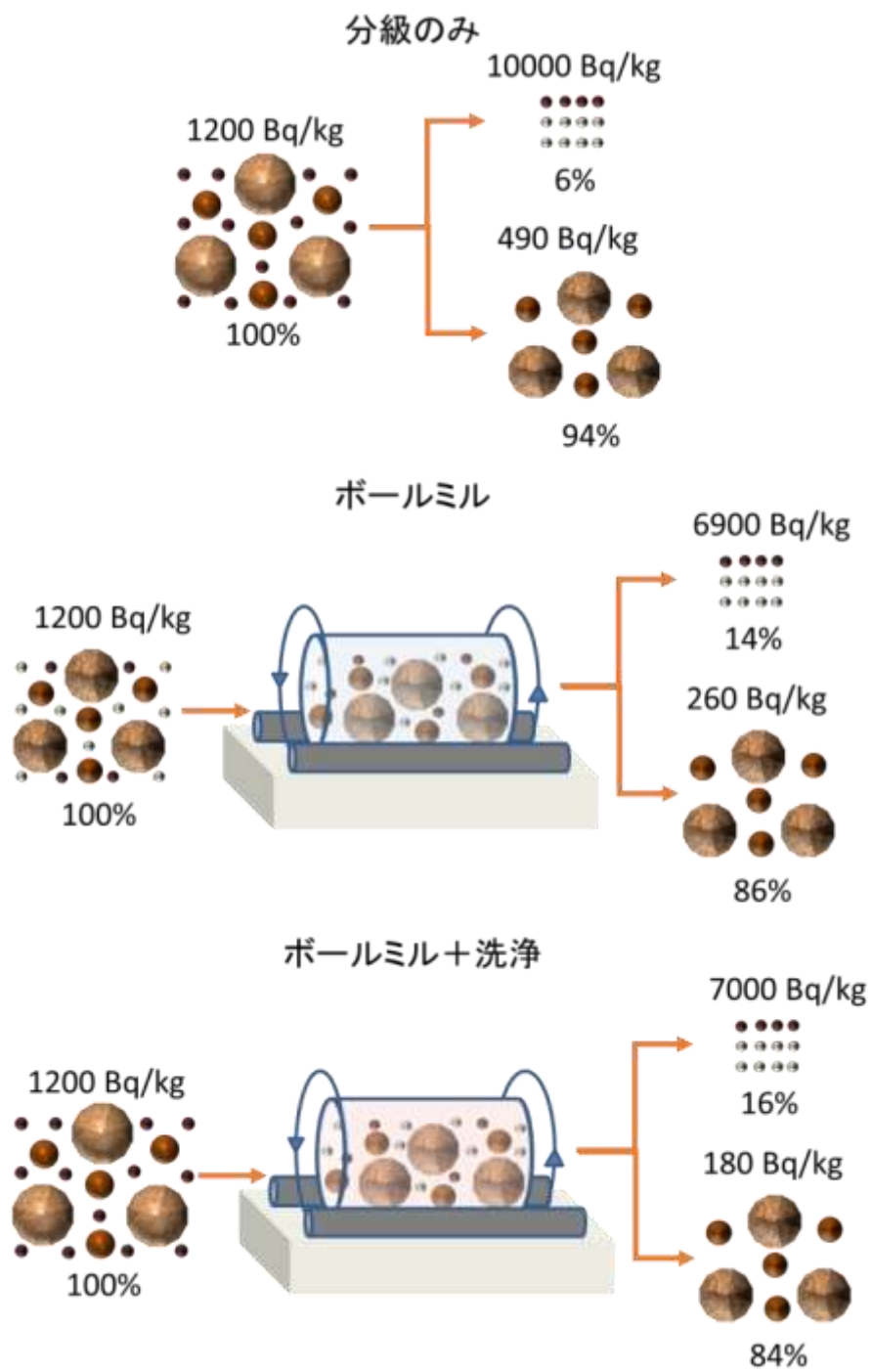


図(3)-52 Cs移行処理による土壌の重量の変化（本宮市仮置き場：土壌B）

ここでは土壌粒子の中で多くの体積を占める砂礫に吸着し、Csをボールミルと低濃度カリウム溶液による洗浄により、粒径の小さな粘土に移行する処理を検討した。初めに、非放射性または放射性のCsを吸着した土壌を調整し、模擬実験を行った。0.05 mol/Lの炭酸カリウム溶液で模擬汚染土壌を洗浄した結果、砂礫から77%の¹³⁷Csが脱離され、その70%が2:1型粘土鉱物であるパーミキュライトに移行することが示された。

次に福島県の実汚染土壌を用いた小型実験を行い、ボールミルと洗浄処理による土壌の放射能の低減効果について検討を行った。その結果、ボールミル処理のみで250~2000μmの土壌の放射能は3200 Bq/kgから1400 Bq/kgと55%、75~250μmの土壌では、13400 Bq/kgから9500 Bq/kgと30%程度の放射能が低減された。ボールミル処理に加えて0.05 mol/Lの炭酸カリウム溶液を用いた洗浄処理を行うことで、250~2000μmの土壌は490 Bq/kg、75~250μmの土壌は7700 Bq/kgとそれぞれボールミルのみの場合と比べて65%、19%の放射能がCsの脱離により低下し、そのCsが75μm未満の土壌に移行したことが確認された。

最後に小型実験の結果を踏まえて、大型のボールミル装置を用いた実験を行った。その結果、ボールミルと0.1 mol/LでK⁺イオンを含む肥料溶液による洗浄処理により、88%存在する75μm以上の土壌の放射能を1200 Bq/kgから400 Bq/kgに低下させることが可能であった。また土壌粒子の粒度分布や放射能の異なる実汚染土壌に対してもCs移行処理が有効であったことから、砂礫の埋戻しによる汚染土壌減容化の可能性が示された。今後は今回の実験と同様の結果を得ることが可能な表面研磨装置の選定や分級の装置化を行い、処理量やコストなどを考慮した上で実用化に向けた検討を行う。



図(3)-53 Cs移行処理と分級による土壌の放射能、重量の変化（本宮市仮置き場：土壌B）

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

◆土壤中に存在し、セシウムを強く吸着する2：1型粘土鉱物が常磁性体であり、他の多くの鉱物が反磁性体であることを利用することで、磁気分離法により2：1型粘土鉱物を選択的に回収し、線量を低減することに成功した。

◆自然界における雨水による土壤中成分間でのセシウム移行の調査結果を元に、土壤中のセシウムの2：1型粘土鉱物の移行を促進する低濃度カリウム溶液での前処理が、磁気分離による線量低減率の向上に効果的であることが示された。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき内容はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

7Tの超電導磁石で96%のパーミキュライトが分離可能であることが確認された。また実汚染土壌を用いた現地実験により、線量低減が確認され、さらに前処理として低濃度カリウム溶液を用いたセシウム移行処理を行うことによるさらなる線量低減が見込まれた。

そのため今後は移行処理を行ったのちに超電導磁石を用いて実汚染土壌を分離し、線量低減効果を調査するためのシステム設計と現地での検証実験を計画しており、中間貯蔵施設での減容化技術としての実用に向けて検討を続けていく予定である。

6. 国際共同研究等の状況

The International Forum on Magnetic Force Control (IFMFC)を日本、中国、韓国で年1回開催し、除染技術を含む磁気力制御技術に関して、日中韓の研究者間で密な情報交換を行っている。日本側は電気学会「超電導磁気分離システムを利用した除染技術」調査専門委員会の後援にて開催している。

2015年は北京のInstitute of High Energy Physicsで開催され、2016年はソウルのEwha Womans University in Seoul で開催する予定である。

参加研究機関

日本：首都大学東京，大阪大学，新潟大学，金沢工業大学，宇都宮大学，神戸大学，
物質・材料研究機構(NIMS)

中国：Technical Institute of Physics and Chemistry，Institute of High Energy Physics (CAS)，
University of Science and Technology Beijing

韓国：Korea Electrotechnology Research Institute (KERI)，Andong National University

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文（査読あり）>

- 1) S. NISHIJIMA, Y. AKIYAMA, F. MISHIMA, T. WATANABE, T. YAMASAKI, S. NAGAYA and S. FUKUI: IEEE Transactions on Applied Superconductivity, 23, 3, 3700405 (2013.6)
“Study on Decontamination of Radioactive Cesium From Soil by HTS Magnetic Separation System”
- 2) 西嶋茂宏：磁気分離による環境浄化 超電導磁気分離による汚染土壌減容化の試み、応用物理、82, 7, 575-578 (2013.7)
- 3) S. IGARASHI, N. NOMURA, F. MISHIMA, Y. AKIYAMA and S. NISHIJIMA: Physica C: Superconductivity, 494, 221-224(2013.11)
“Fundamental study of cesium decontamination from soil by superconducting magnet”
- 4) 五十嵐亨, 野村直希, 三島史人, 秋山庸子, 西嶋茂宏：超電導応用電力機器研究会（2014）
「超電導磁石を用いた高勾配磁気分離によるCs汚染土壌の減容化」
- 5) K.Sekiya, H.Kuwahara, Y.Yoshida, S.Igarashi, N.Nomura, F.Mishima, Y.Akiyama, S.Nishijima,: IEEE Transactions on Applied Superconductivity, 24, 3, 3700205 (2014)
“Study on Decontamination of Contaminated Soils by Magnetic Separation”
- 6) Y.Yoshida, K.Sekiya, N.Nomura, F.Mishima, Y.Akiyama, S.Nishijima, IEEE Transactions on Applied Superconductivity, 25, 3, 3700505 (2014)
“Study on Volume Reduction of Contaminated Soil by Radioactive Cesium Using the Magnetic Separation”

<その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 西嶋茂宏：Isotope News、719、14-20 (2014)
「展望：磁気分離による汚染土壌の減容化の試み」
- 2) 西嶋茂宏：超電導コミュニケーションズ、23、3、通巻128号、p.1,pp.7-9(2014)
「強磁場を利用した除染の可能性 大阪大学」
- 3) 野村直希、吉田有輝、関谷一輝、三島史人、秋山庸子、西嶋茂宏：超電導機器研究会、電気学会研究会資料、pp.17-21、ASC-15-005(2015)
「磁気力制御を用いた除染土壌の減容化に関する研究」
- 4) 野村直希、西嶋茂宏：放射性物質対策技術～除去、モニタリング、装置・システム開発～、(株)エヌ・ティー・エス、121-129 (2015)
「第1編 除去技術、第4章 その他注目される技術、第1節 高勾配磁気分離法を用いた汚染土壌の減容化技術」

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) 秋山庸子：第3回「超電導磁気分離システムを利用した除染技術」調査専門委員会（2013）
「磁気分離法を用いた土壌除染の可能性」

- 2) 野村直希、三島史人、秋山庸子、西嶋茂宏：第2回環境放射能除染研究発表会、東京都江戸川区(2013.6.5)
「磁気力制御を用いた土壌の除染に関する研究」
- 3) 関谷一輝、桑原裕紀、吉田有輝、五十嵐亨、野村直希、三島史人、秋山庸子、西嶋茂宏：第2回 環境放射能除染研究発表会、東京都江戸川区(2013.6.5)
「磁気分離法による除染のための土壌からのセシウムイオンの脱離特性に関する研究」
- 4) 西嶋茂宏：第1回電気学会「超電導磁気分離システムを利用した除染技術」調査専門委員会、除染と磁気分離・超電導技術シンポジウム、(2013.6.11)
「超電導を利用した土壌除染の可能性」 -
- 5) K. Sekiya, Y. Yoshida, H. Kuwahara, S. Igarashi, N. Nomura, F. Mishima, Y. Akiyama and S. Nishijima: 23rd International Conference on Magnetic Technology, Boston, USA, 2013
“Study on Decontamination of Contaminated Soils by Magnetic Separation”
- 6) 西嶋茂宏：第18回超電導・低温若手セミナー、北海道札幌市(2013.9.3)
「超電導磁石を利用したDDSと除染の研究」
- 7) 秋山庸子：第12回 2013年度 磁気力制御・磁場応用夏の学校、兵庫県神戸市(2013.9.6)
「私の見た福島現在の現在 ～磁気力制御を利用した土壌除染の可能性～」
- 8) 岡田俊介、関谷一輝、三島史人、秋山庸子、西嶋茂宏：第12回 2013年度 磁気力制御・磁場応用夏の学校、兵庫県神戸市(2013.9.6-7)
「超電導バルク磁石を用いた粘土鉱物の分離に関する研究」
- 9) 野村直希、桑原裕紀、三島史人、秋山庸子、西嶋茂宏：第12回 2013年度 磁気力制御・磁場応用夏の学校、兵庫県神戸市(2013.9.6-7)
「磁気分離法による汚染土壌の線量低減に向けた研究」
- 10) S. Igarashi, N. Nomura, F. Mishima, Y. Akiyama and S. Nishijima:
26th International Symposium on Superconductivity, Tokyo, JAPAN, 2013
“Study on magnetic separation for decontamination of cesium contaminated soil by using Superconducting magnet”
- 11) Y. Akiyama, N. Nomura, F. Mishima and S. Nishijima:
The 4th International Forum on Magnetic Force Control, Osaka, JAPAN, 2013
“The Possibility of Volume Reduction of Cesium Contaminated Soil by Magnetic Separation”
- 12) N.Nomura, F.Mishima, Y.Akiyama, S.Nishijima : The 4th International Forum on Magnetic Force Control, Osaka, JAPAN, (2013.11.22)
“Study on decontamination of contaminated soil by Magnetic separation”
- 13) 西嶋茂宏：日本技術士会 近畿本部主催講演会、大阪府大阪市(2013.11.23)
「磁場を用いた福島汚染土壌の除染に関する研究」
- 14) 五十嵐亨、野村直希、三島史人、秋山庸子、西嶋茂宏：第88回 2013年度秋季低温工学・超電導学会、愛知県名古屋市(2013.12.4)
「超電導磁石を用いたセシウム汚染土壌の除染に向けた土壌の磁気分離に関する研究」

- 15) 五十嵐亨、野村直希、三島史人、秋山庸子、西嶋茂宏：超電導応用電力機器研究会、東京都武蔵野市(2014.1.30)
「超電導磁石を用いた高勾配磁気分離によるCs汚染土壌の減容化」
- 16) 福井聡：低温工学・超電導学会 2013 年度第 2 回 多次元拘束磁場の発生と物質応答に関する調査研究会(2014)
「高勾配磁気分離の適用による資源循環と環境浄化
- メッキ排水からのニッケル回収及び環境中セシウムの除染を例として - 」
- 17) 関谷一輝、吉田有輝、野村直希、三島史人、秋山庸子、西嶋茂宏：第 3 回環境放射能除染研究発表会、福島県郡山市(2014.7.3)
「汚染土壌減容化のためのセシウム移行処理に関する研究」
- 18) Y. Yoshida, K. Sekiya, N. Nomura, F. Mishima, Y. Akiyama, S. Nishijima : 2014 Applied Superconductivity Conference, Charlotte, USA, (2014,8.10-15)
“Study on volume reduction of contaminated soil by radioactive cesium using the magnetic separation”
- 19) 行松和輝、関谷一輝、三島史人、秋山庸子、西嶋茂宏：第 13 回 2014 年度磁気力制御・磁場応用夏の学校、栃木県宇都宮市(2014.9.5-6)
「磁気分離法を用いた汚染土壌減容化技術に関する研究」
- 20) 西嶋茂宏：第 2 回「超電導磁気分離システムを利用した除染技術」調査専門委員会、東京都(2014.9.26)
「減容化の意味と磁気分離技術」
- 21) S.Nishijima : The 5th International Forum on Magnetic Force Control in Beijing, Beijing, China, (2014.10.30-31)
“Application of Superconducting Magnetic Separation for Decontamination Soil in Fukushima”

(3) 出願特許

特に記載すべき内容はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

- 1) 第29回 低温工学基礎技術講習会「磁気分離技術の基礎実験」（公開講座）
(2013年9月12-13日、大阪大学吹田キャンパスA1棟、参加者12名)

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき内容はない。

(6) その他

特に記載すべき内容はない。

8. 引用文献

- 1) V.B. Nikolaevsky, F.A. Lifanov, S.S. Batusov : Improving the decontamination of [sup.137]Cs contaminated soil, Atomic Energy Vol. 114 Issue 1, p51-55, 2013
- 2) H. Aono, K.Tamura, E.Johan, R.Yamauchi, T.Yamamoto, N.Matsue, T.Henmi, : Preparation of Composite Material of Na-P1-Type Zeolite and Magnetite for Cs Decontamination, Chemistry Letters Volume: 42 Issue: 6 p. 589-591, 2013
- 3) 放射能情報サイト みやぎ : 除去土壌の処理に関する課題, 2013
<https://www.r-info-miyagi.jp/site/wp-content/uploads/2013/04/81b0ea517604573b67b8dee32c771b81.pdf>
- 4) 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、2012
- 5) 農業環境技術研究所: わが国の低地土壌における粘土鉱物組成の類型化と地域的特徴
http://www.niaes.affrc.go.jp/dadmini/choutatsu/111124_2t.pdf
- 6) 石井慶造 : 水洗浄による放射性セシウム汚染土壌の除染方法について、第34回原子力委員会資料第1号、2011
- 7) Toshihiko Ohnukia、Naofumi Kozai : Adsorption behavior of radioactive cesium by non-mica minerals、Journal of Nuclear Science and Technology Volume 50、Issue 4、p369-375、2013
- 8) 原子力環境整備促進・資金管理センター : 環境パラメータ・シリーズ2 「土壌と土壌溶液間の放射性核種の分配係数」、原環センターライブラリー、RWMC-90-P-13、1990
http://www.rwmc.or.jp/library/other/file/kankyo2_1.pdf
- 9) 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、和穎朗太、牧野知之、赤羽幾子、平舘俊太郎 : 土壌斬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, p75-129,2012
- 10) 白水晴雄 : 粘土鉱物学、粘土科学の基礎、朝倉書店、1988
- 11) 関谷一輝・吉田有輝・野村直希・三島史人・秋山庸子・西嶋茂宏 : 汚染土壌減容化のためのセシウム移行処理に関する研究、第3回環境放射能除染研究発表会、2014
- 12) K. Ishii、A. Terakawa、S. Matsuyama、Y. Kikuchi、F. Fujishiro、A. Ishizaki、N. Osada、H. Arai、H. Sugai、H. Takahashi、K. Nagakubo、T. Sakurada、H. Yamazaki、S. Kim : Reducing logistical barriers to radioactive soil remediation after the Fukushima No. 1 nuclear power plant accident、Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B、Volume 318、Part A、P70-75、2014
- 13) Naofumi Kozai、Toshihiko Ohnukia、Makoto Arisakab、Masayuki Watanabeb、Fuminori Sakamotoa、Shinya Yamasakia、Mingyu Jianga : Chemical states of fallout radioactive Cs in the soils deposited at Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident、Journal of Nuclear Science and Technology Volume 49、No. 5、pp. 473-478、2012
- 14) 林 香織、斎藤 武 : ボールミル性能に関する一実験、北海道大学工学部研究報告、16巻、p105-112、1957
- 15) 吉田 有輝、関谷 一輝、三島 史人、秋山 庸子、西嶋 茂宏 : 土壌におけるセシウムの動態に関する研究、第3回 環境放射能除染研究発表会、2014

Construction of Decontamination Scenario Based on the Dynamic States of Cesium and Development of Decontamination Method by Magnetic Force Control

Principal Investigator: Yoko AKIYAMA

Institution: Graduate School of Engineering, Osaka University
2-1 Yamada-oka, Suita, Osaka 565-0871, JAPAN
Tel: +81-6-6879-7897 / Fax: +81-6-6879-7889
E-mail: yoko-ak@see.eng.osaka-u.ac.jp

Cooperated by: Fukushima University, Niigata University

[Abstract]

Key Words: Cesium, Decontamination scenario, Magnetic force, Microscopic dynamics, Ion migration

By the accident of Fukushima nuclear power plant, a large amount of Cs contaminated soils were discharged by the decontamination work, and volume reduction technologies for the contaminated soils are needed. In addition, there is an issue for the residential decontamination that the most suitable decontamination method depending on the kind of building materials is not clear. To solve these problems, it is important to clarify the adsorption states of radioactive Cs and their temporal change from the present to the future around the living area. However, most of researches on the dynamic states of Cs intend for environmental dynamic states around the woods, the river and the sea. Thus there are still many unclear points in microscopic states of cesium in the living area. This study intends to construct the decontamination scenario based on the microscopic dynamic states of cesium in the soil and building materials, and to develop a new decontamination method for contaminated soil by high gradient magnetic separation method.

Firstly, the states and dynamics of cesium were analyzed in the living environment such as soils, roofs and wall materials by a field work and a model experiment. The results indicated the guideline of effective decontamination and volume reduction method of the contaminated soils and building materials.

Secondly, making allowance for the property of the decontamination objects, the conditions for decontamination works and the factors relating to these both conditions, the method to examine optimum decontamination and volume reduction scenario was examined. As a result, a prototype of software for optimization of decontamination and volume reduction treatment was structured.

Finally, a new decontamination method was proposed by the selective separation of

2:1 type clay minerals using the magnetic separation using a superconducting magnet. By simulation and a model experiment, a necessary magnetic field and a speed condition became clear for volume reduction of the soil. By simulation and a model experiment, anecessary conditions for effective matngetic separation such as magnetic field and flow speed became clear. It was also shown that, for further dose reduction, Cs migration treatment by ion-exchange was effective as pretreatment of magnetic separation.