

蒸発濃縮による土壤中セシウム回収方法 に関する基礎実験

立元陽子¹・伊藤洋²

¹ 学生会員 北九州市立大学 大学院 (〒808-0135 北九州市若松区ひびきの 1-1)

t2mac015@eng.kitakyu-u.ac.jp

² フェロー 北九州市立大学 (〒808-0135 北九州市若松区ひびきの 1-1)

yito@kitakyu-u.ac.jp

農地等の土壤の放射線物質除去技術において大量の廃棄土壌の発生や長期的な地下水汚染の可能性があるといた課題がある。本研究では、蒸発促進作用により、セシウムを表層に移行・濃縮させる回収技術を発想し、基礎的な性質を明らかにすることを目的に基礎実験を行った。実験は、セシウムの土壌からの分離促進剤の選定と蒸発促進方法を検討するために非吸着性トレーサー (NaCl) を用いた蒸発移行試験を行った。その結果、蒸発量の促進方法は、強制送風の蒸発量は室内環境に比較して 6.5 倍、温風では 8 倍となり、十分な蒸発促進効果が得られることが分かった。NaCl の蒸発移行実験においても温風のケースが最も Cl が表層に向かって移動し、高濃度に濃縮することが認められ、同時に体積含水率 θ は表層に向かって小さくなっていることが分かった。

Key Words: soil, Cesium, Evaporation, Groundwater

1. はじめに

原発事故により福島県内を中心に広く放射性物質が拡散した。現在、福島第一原子力発電所から 80 km 圏内の Cs^{134,137} の地表面への蓄積量は 1m² あたり 300 万 Bq/m² を超えるところもある¹⁾。こうした背景にあつて、放射性物質に汚染された農地土壌の対策技術は表土削り取りや反転耕が主流となっており、除去された大量の廃棄土壌の処理・処分や残留物の長期的な地下水への移行・拡散といった課題がある。著者らは、これまでの研究実績から有機酸による放射性セシウムの分離・除去²⁾と蒸発促進を活用した塩分を含めて表層土壌への濃縮^{3,4)}をベースとする汚染物質の回収技術を発想した。

本研究では、こうした回収技術を開発することを目指して、その第一歩として土壌からのセシウム分離促進剤

として用いる有機酸の選定と蒸発作用により、セシウムを表層に移行・濃縮させる回収技術を発想し、基礎的な性質を解明することを目的に基礎実験を行った。

2. 回収方法の概念

本研究における蒸発促進システムによるセシウムおよび塩分の表層への移行の概念を図-1 に示す。本システムで現位置にて農地汚染土壌上にビニールハウス (トンネル型) を置き、蒸発の促進のために太陽熱を利用した温風発生装置を設置し、強制通気を行うものである。これによりビニールハウス内に加温された風が通気されることで土壌中の水分が蒸発し、毛管上昇が促進される。それに伴って、物質が表層に移動し、濃縮されるようになる。

濃縮されたセシウムを回収することで、効率的に汚染土壌を回収できると廃棄物量も減らすことができる。ただし、セシウムについては土壌吸着性能があり、移行に時間を要するため、土壌との分離促進を目的として環境負荷が小さい有機酸を使用する。

3. 実験方法

本実験では、セシウムの分離促進剤の選定とセシウムの非吸着性トレーサーとして NaCl を用いて蒸発移行試験を行った。まず、安定性セシウムである Cs¹³³ (CsCl) の人工汚染土壌を作製し、有機酸を用いた溶出試験を行った。また、NaCl 濃度 3% 溶液を散布・混合した土壌を作製し、円筒カラムを用いて NaCl の蒸発移行試験を行った。

(1) セシウム人工汚染土壌の作製

粒径 2mm 以下に調整したまさ土に対して試薬の Cs 標準液 0.6mg/L を所定量添加して作製した。この溶液をまさ土に添加し、よく混合しながら適宜加水し、最終的には含水比 10% (体積含水率 θ :15.1%) 程度になるように調整した後、24hr 実験室内で養生した。

(2) 有機酸の選定

土壌から Cs を分離するために有効な酸を選定するため、シュウ酸、酢酸、クエン酸の 3 種の有機酸の溶出試験を実施した。試験は環境庁告示第 19 号に従って行った。また、比較のため 1% 硝酸で同様の試験を行った。用いた酸の種類を表-1 に示す。

(3) 円筒カラムを用いた蒸発実験

図-2 は、用いた実験装置と実験ケースを併せて示したものである。実験ケースは、①促進なし、②人工照射のみの促進、③温風 (熱吸収板+送風) による促進、④送風のみによる促進の計 4 ケースについて 5 日間行った。写真-2 は、実験装置の全体を示したものである。熱吸収板の底部は黒塗の鉄板、上部は 5mm の塩ビ板で密閉しており内部は、滞留時間を大きくするために 4 枚の仕切りを設けている。熱吸収板に人工照射 (50w ミニレフ球×2 個) を行い、送風機 (ブロー) にて風量 2.5m³/min の送風し熱吸収板を通し、温風を円筒カラムに送ることで蒸発を促進する (図-2 の ③温風による促進)。

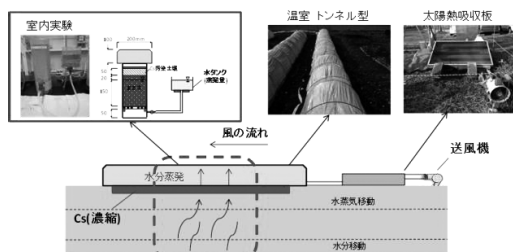


図-1 セシウム回収システム概念

表-1 有機酸の種類

検討有機酸	分子式	分子量 (g/mol)	密度 (g/cm ³)
シュウ酸二水和物	(COOH) ₂ · 2H ₂ O	126.07	1.90
クエン酸	HOC(=O)CH ₂ (OH)(COOH)CH ₂ COOH	210.14	1.67
酢酸	CH ₃ COOH	60.05	1.05
水	H ₂ O	18.0	1
硝酸	HNO ₃	63.0	1.51

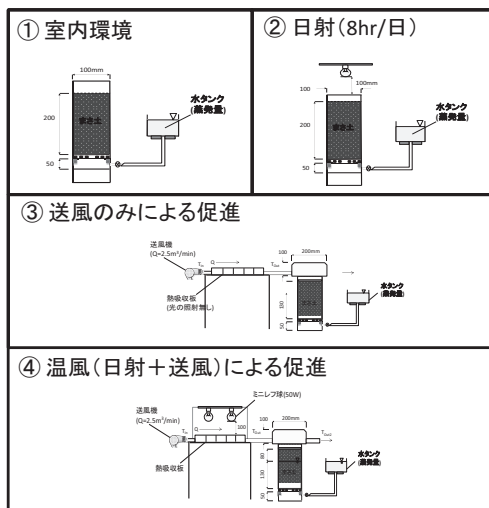


図-2 蒸発促進実験装置および実験ケース



写真-1 蒸発促進実験装置

(4) 円筒カラムを用いた NaCl 蒸発実験

NaCl の蒸発移行と濃縮現象の基礎的な性質を明らかにすることを目的とし、海水濃度に近い NaCl 濃度 3.2% の溶液 (Cl 濃度 1.9%) を作製し、粒径 2mm 以下に調整したまき土に適宜加水しつつよく混合し、24hr 実験室内で養生し、最終的に体積含水率 17.8% 程度 (Cl 濃度 1.7%) となった。円筒カラム内にまき土 15cm と表層 5cm にこの NaCl 含有土壌を詰め、蒸発実験時の実験ケース (図-2 参照) の①、②、③、④と同様の条件で実施した。3 日経過後、深度方向 1cm ごと (表層は 0.2mm ごと) に土壌を採取し、固液比 1 : 10 で振とうを行い、ろ過後の溶液を塩分濃度計 (0~3%) を用いて、Cl 濃度を測定した。

4. 実験結果

(1) セシウム人工汚染土壌

Cs 人工汚染土壌を作製し、含有量試験を行い、ICP-MS で測定した結果、Cs 含有量は 19.4mg/kg となった。

(2) パッチ試験による有機酸の選定

図-3 はパッチ試験による有機酸の選定を示したものである。縦軸は Cs の溶出量を示す。酸での溶出量で最も高かったのは硝酸 (Cs 溶出量 $0.73 \mu\text{g/L}$) であり、水のみでの溶出量の 56 倍であった。また、有機酸の中で最も溶出量が高かったサンプルはシュウ酸 (Cs 溶出量 $0.45 \mu\text{g/L}$) であり、水での溶出量の 35 倍の値となり、セシウム汚染土壌との分離に最も有効であった。なお、シュウ酸は、農地による環境影響はないと考えられる。

(3) 円筒カラムを用いた蒸発試験結果

図-4 に蒸発試験の結果を示す。縦軸は積算蒸発量を示している。蒸発試験を 4 ケース行った結果、まず①促進なしは 1 日の平均蒸発量が 1.41mm/d となった。福島県の年間降水量 1500mm (1 日: 14.1mm/d) から、その 1/3 が蒸発量であるとする、蒸発量は 1.37mm/d となるから、自然状態の値としては概ね妥当であると考えられる。①促進なしの条件に対して、③温風による促進は 11.5mm/d (8 倍促進)、④送風のみによる促進は 9.25mm/d (6.5 倍促進) となった。この結果から、送風のみでの促進でも 6.5 倍促進とかなりの蒸発促進となっているが、熱吸収板による送風の加温効果を加えることによって、より蒸発を促進できることが分かった。

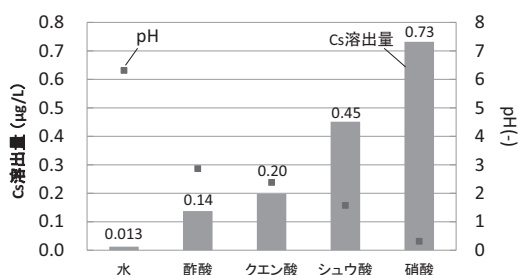


図-3 有機酸の選定結果

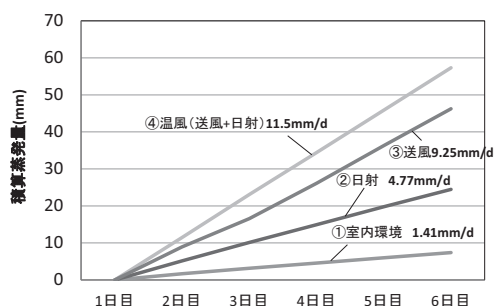


図-4 蒸発試験結果(4 ケース)

表-2 NaCl 蒸発試験の蒸発量

	蒸発量(mm/d)			
	①室内環境	②日射	③送風	④温風
1日目	1.53	3.21	8.92	12.10
2日目	1.40	3.25	9.04	12.13
3日目	1.46	4.22	9.17	12.17
平均	1.46	3.56	9.04	12.13

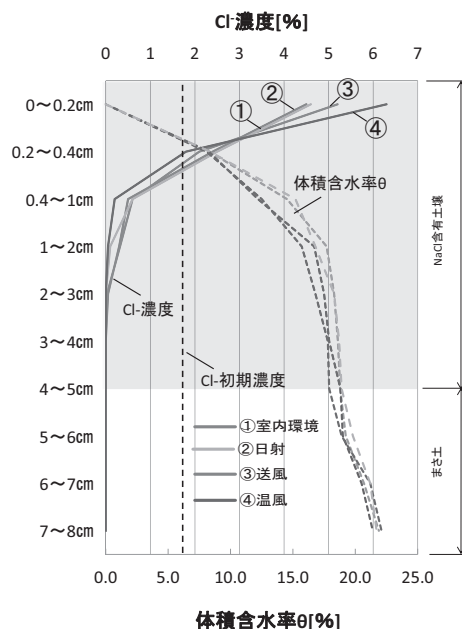


図-5 深度方向における Cl-濃度

(4) 円筒カラムを用いた NaCl 蒸発実験

まず、表-2 は、実験時の NaCl 蒸発試験の蒸発量を示したものである。蒸発量は、①室内環境<②人工照射<③送風<④温風の順となっている。次に、深度方向に 1cm ごと（表層は 0.2mm ごと）の Cl 濃度と体積含水率の分布を図-5 に示す。深度方向 0～5cm は NaCl 含有土壌、5cm 以下はまさ土の分布となっている。いずれのケースも塩分は表層に向かって移動し、全体に表層から概ね 1cm 以内に Cl が集積していることが確認できる。また、体積含水率は表層に向かって小さくなっていることが分かる。また、蒸発によって表層で濃縮された Cl (0～0.2cm 深度) は①～④の順に大きくなっていることが分かる。④温風による促進の場合では 6.5%と Cl 初期濃度 1.7%に対して、かなり大きくなっていることが分かる。

5. まとめ

得られた成果は以下のとおりである。

- ① 土壌中のセシウムを分離させるのに有用な有機酸はシュウ酸が最も有用である可能性が示唆され、溶出試験における Cs 溶出量 ($0.45 \mu\text{g/L}$) は水のみでの溶出量の約 35 倍の値となった。
- ② 蒸発量の促進方法は、促進なし（室内環境）に比較して送風促進の蒸発量は 6.5 倍、温風（熱吸収板+送風）では 8 倍となり、十分な蒸発促進効果が得られることが分かった。
- ③ 蒸発の促進を行った NaCl の蒸発移行実験において、Cl は表層に向かって移動し、濃縮していることが確認された。また、同時に体積含水率 θ は表層に向かって

小さくなっていることが認められた。

- ④ 蒸発によって表層で濃縮された Cl (0～0.2cm 深度) はいずれのケースも塩分は表層に向かって移動し、全体に表層から概ね 1cm 以内に Cl が集積していることが確認できる。また、④温風による促進の場合では 6.5%と Cl 初期濃度 1.7%に対して、かなり大きくなっていることが分かる。

今後、室内実験にて有機酸を分離促進剤としてセシウムの蒸発移行試験を行い、基礎的な性質を明らかにし、総合的な評価を進めていくつもりである。

参考文献

- 1) 菅野均志 (2011): 大津波による農耕地土壌への影響—宮城県の広域土壌調査の事例から、平成 23 年度東北農業試験研究推進会議 作物推進部会 畑作物研究会 (夏期) 研究会資料, pp.25～29.
- 2) 立元陽子・伊藤洋 (2013): 蒸発促進による土壌中セシウム回収方法に関する基礎実験(Ⅰ), 第 19 回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集, (社)土壌環境センター, pp.172～175.
- 3) 高石万理・伊藤洋・大石徹・安藤彰宣・門上希和夫 (2012): 蒸発過程における重金属移行抑制に関する基礎実験, 第 17 回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演, (社)土壌環境センター, pp.14～17.
- 4) 石井大悟・伊藤洋・大石徹・安藤彰宣・門上希和夫 (2012): 複合表層構造による重金属の蒸発移行抑制効果, 第 18 回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集, (社)土壌環境センター, pp.183～186.

(2013. 7. 19 受付)

CONCENTRATION SYSTEM OF CESIUM IN SOIL BY PROMOTING SURFACE EVAPORATION

Youko TACHIMOTO and Yo ITO

This paper presents the technique for efficiently recovering the cesium from radioactive pollution soil by promoting surface evaporation action. At first, in order to select organic acid to separate cesium from soil, the elution test was carried out. Next, the evaporation acceleration was done by using air flow device and solar heat system, and migration test that used sodium chloride as a non-adsorptive material was executed. As a result, it was found that an enough effect of evaporation concentration was admitted with this system, and sodium chloride accumulated early on the surface.