

個別試験結果と評価詳細

Web 用報告書

実施代表者：法政大学

実証テーマ名： 除去土壤中の放射性セシウムの溶融塩・酸処理法による脱離とゼオライトを用いた回収・安定化による減容・再生利用技術の開発

概要：

除去土壤の多くは中間貯蔵施設に持ち込まれ、今後はこの土壤の再生利用を推進すると共に放射性セシウムを除去・濃縮し、最終処分量を減らすことが求められる。本事業では高効率かつ低コストな除去土壤の減容・再生利用を推進することを目的に、10,000 Bq/kg 以上の除去土壤を想定し、福島県内の土壤中の放射性セシウムのロータリーキルン炉による連続溶融塩処理、酸処理による脱離とゼオライト吸着装置による連続回収、ポルサイトによる安定化に関する実証試験を実施する。

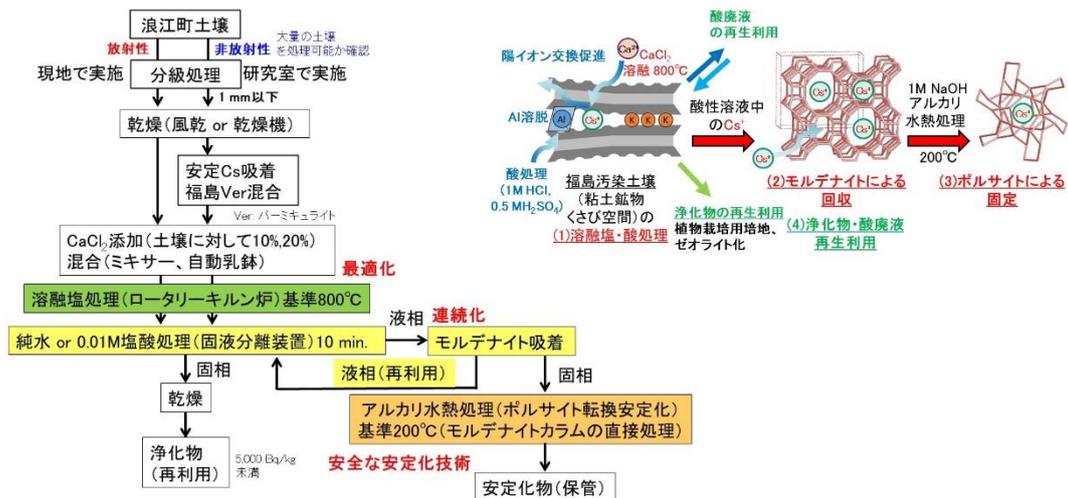
実施内容：

除去土壤中の放射性セシウム（RCs）の処理の実機化に向け、ロータリーキルン炉溶融塩処理の最適条件の検討と大量の土壤を本処理方法で連続的に処理できるかを検討し、連続処理した場合の課題を把握し、除染率データを取得する。また、酸処理からゼオライト吸着処理までの一連の工程の連続化、安定化処理（ポルサイト化）と酸・アルカリ廃液処理方法の検討を行い、実機化のために必要な設計データを取得する。

技術概要：

- (1) ロータリーキルン炉を用いた溶融塩処理 (20% CaCl₂)と、酸処理(0.01 M HCl)による土壤中の Cs 脱離
- (2) 酸処理-ゼオライト（モルデナイト(MOR)）吸着処理装置による Cs の連続回収
- (3) ポルサイト(POL)による固定・溶液安定性評価

1. 試験フロー



2. 成果目標

8千 Bq/kg 未満の浄化物（1万 Bq/kg 未満の放射性土壤では RCs 除染率 50%以上）、減容率 1/50、500 g/h 以上での 24 h 連続処理、処理設備の大型化・連続処理に対応する実機処理プロセスの構築、運転に係る概略費用（15 万円/t 以下）の試算を目標とする。

<p>実証試験の結果：</p> <p>浪江町の放射性土壌を用いたロータリーキルン炉を用いた熔融塩処理では、高濃度放射性土壌に関して RCs 除染率 89%以上、RCs 濃度 3,100 Bq/kg 未満となった。低濃度放射性土壌に関しては、ロータリーキルン炉を用いた 24 h 連続運転を実施するための条件を詳細に検討し、焼成温度 800°C、処理時間 30 分、CaCl₂ 添加量 20%、雰囲気 Air での試験が適していることが明らかになった。低濃度放射性土壌を用いた 24 h 連続試運転では、上記最適化した条件で行い、500 g/h の供給量で土壌投入でき、停止することなく処理できた。酸処理-ゼオライト吸着連続処理装置を用いた検討においては、連続的に自動で酸処理とゼオライト吸着処理ができた。アルカリ水熱処理により安定な構造を有するポルサイトへ転換でき、その Cs 溶出試験結果は初期の微量な溶出のみを示し、溶液安定性が高いことが明らかになった。装置を使用した処理の全体のマスバランス結果から、Cs 分配比が悪いことがわかり、各処理プロセスの改善が必要であることがわかった。上記の検討を踏まえた本処理全体の概略系統図を作成し、実機プロセスへ適用できることが示唆された。また、土壌 1 t 当たりの概算費用（設備稼働 10 年）13.5 万円以下となった。</p>	
<p>技術等の評価：</p> <p>成果目標はすべて達成できている。マスバランスから Cs 分配比が悪い工程が見られ、それぞれの工程の条件の見直しは必要である。酸を使用せず水での処理も可能であることがわかり、処理装置の簡素化も期待できる。酸廃液の再生利用も可能なことから、有用な減容・再生利用技術として期待できる。</p>	
<p>作業員被ばく量評価：</p> <p>1 万 Bq/kg 程度の放射能濃度の除去土壌では、一人当たり年間 1 mSv 以下の被ばく量になるが、それ以上の放射能濃度の除去土壌に対しても対応できるように年間作業時間を管理する。</p>	
<p>コスト評価：</p> <p>13.5 万円/t(土壌)（設備費、薬品費、人件費、廃液処理費等から算出))</p>	<p>歩掛り（作業人工、作業速度等）：</p> <p>運転員 10 人 1.4 t/h を処理。 主な 4 作業工程を 1 日で実施。</p>
<p>コスト評価条件：</p> <p>設備稼働は 10 年で評価、設備費、薬剤費、人件費（10 人）、電気代、建屋費、設計費、設備メンテ費、廃液処分費から算出した。なお、水道料金、放射線管理費は考慮していない。従来の化学処理より低環境負荷かつ低コストな処理が実現可能である。</p>	
<p>安全性の評価：</p> <p>土壌微粉末を扱うときは、防護マスクをしてドラフト内で作業する必要がある。特に濃縮物を取り扱うときは注意する必要がある。</p>	
<p>試験場所（住所）：</p> <p>法政大学小金井キャンパス東館 （東京都小金井市梶野 3-7-2） 物質・材料研究機構並木地区 （茨城県つくば市並木 1-1）</p>	<p>除去物保管場所と保管状況：</p> <p>処理後の土壌とゼオライト等濃縮物は、混合し、8,000 Bq/kg 以下として指定業者にて産廃処分を依頼する。廃液は検出限界以下であることを確認し大学にて産業廃棄物として処分する。</p>

1. 試験概要

(1) 背景と実施方針

福島県内の除染作業で発生した除去土壌の多くは中間貯蔵施設区域内の土壌貯蔵施設に持ち込まれ、今後はこの土壌の再生利用を推進することが重要となってくる。最終処分量を減らすためには除去土壌に含まれる放射性セシウム(RCs)を除去・濃縮する必要がある。既に低コストな技術である土壌分級処理では低コストではあるが除染率に限界があり、放射能濃度が高い土壌から分級処理のみで放射能濃度が低い再生資材を得ることは難しい。強酸処理等の化学処理方式では除染率は比較的高いが、高濃度の酸や多段処理が必要で高コストとなり、また酸処理後の土壌の再生資材としての利用は限定されるため、今のところ大規模処理への対応、環境への影響、コストパフォーマンス等に課題が残る。さらに除染率の高い処理方法として熱処理方式があり、土壌以外の廃棄物処理では既に実機が稼働しているが、土壌においては反応促進剤を添加し、1300°C以上の高温処理が必要となり高コストになること、浄化物の容積が除去土壌より増加することなどコスト面と減容化に課題が残る。本事業では、除去土壌中の RCs の処理の実機化に向け、ベンチスケールでのロータリーキルン炉溶融塩処理の最適条件の検討と大量の土壌を本処理方法で連続的に処理できるかを検討し、連続処理した場合の課題を把握し、除染率データを取得する。また、酸処理からゼオライト吸着処理までの一連の工程の連続化、安定化処理（ポルサイト化）と酸・アルカリ廃液処理方法の検討を行い、実機化のために必要な設計データを取得する。

(2) 目的

「令和4年度除去土壌等の減容等技術実証事業（その5）」において、浪江町の11種の土壌を用いて、「溶融塩・酸処理による RCs の脱離」、「天然 MOR による RCs の回収」、「RCs 回収天然 MOR の POL 化による安定化」の一連のバッチ試験を行い、本技術の有用性を確認した。また、洗浄液と浄化物の再生利用が可能なことも実証した。令和5年度は、溶融塩処理に関して、福島県浪江町の放射性と非放射性土壌を用いた小型ロータリーキルン炉による事前試験を行い、その結果を基にベンチスケール連続処理と、酸処理及び天然 MOR による連続回収処理を一定条件で行い、連続的に除染できることまでは確認した。これを踏まえて本年度（最終年度）は、実機化に向け、ベンチスケールでのロータリーキルン炉溶融塩処理の最適条件の検討と大量の土壌を本処理方法で連続的に処理できるかを検討し、連続処理した場合の課題を把握し、除染率データを取得する。また、酸処理からゼオライト吸着処理までの一連の工程の連続化、安定化処理（ポルサイト化）の検討を行う。実機化のために必要な設計データ（概略フロー、設備、運転に係る概略費用等）を取得すると共に全体システムについての課題を整理する。

(3) 目標

8千 Bq/kg 未満の浄化物（1万 Bq/kg 未満の放射性土壌では RCs 除染率 50%以上）、減容率 1/50、500 g/h 以上での 24 h 連続処理、処理設備の大型化・連続処理に対応する実機処理プロセスの構築、運転に係る概略費用（15万円/t以下）の試算を目標とする。

2. 試験の手順

浪江町の放射性土壌及び非放射性土壌を用いた試験のフローを図 2-1 に示す。

令和 5 年度の実証試験を踏まえ、浪江町の高濃度放射性土壌（1 万 Bq/kg 以上）1 kg 程度 5 種、低濃度放射性土壌（1 万 Bq/kg 未満）100 kg 程度 1 種、および非放射性土壌(100 Bq/kg 未満)100 kg 程度（土壌深さ 30 cm 以深の土壌）1 種を採取する。それらの土壌は、土質の目視、空間線量率を参考にして選定し、原土から草木等混合物を除去し、1 万 Bq/kg 以上の高濃度放射性土壌に関してはその場でふるいを用いて手動で分級し、1 mm 以下にしたものを持ち帰る。残りの土壌に関しては、試験室で電磁式ふるい振とう機を用いて 1 mm 以下に分級して用いる。なお、非放射性土壌に関しては福島県バーミキュライト(Ver)を 1 mass% 添加したものを実験に用いる。1 mm 以下の乾燥土壌は CaCl_2 と混合後ロータリーキルン炉で熔融塩処理を行う。様々な条件で検討し 24 h 連続処理の条件を決定する。その後酸処理・ゼオライト吸着装置を用いて連続処理を行う。RCs を吸着したゼオライト(モルデナイト)はアルカリ水熱処理して安定化（ポルサイト化）する。得られた一部のポルサイトに関しては、溶出試験（溶液安定性試験）を、米国原子力学会の動的 Cs 浸出試験法(ANSI/ANS-16.1-2019)に準拠した方法で行う。

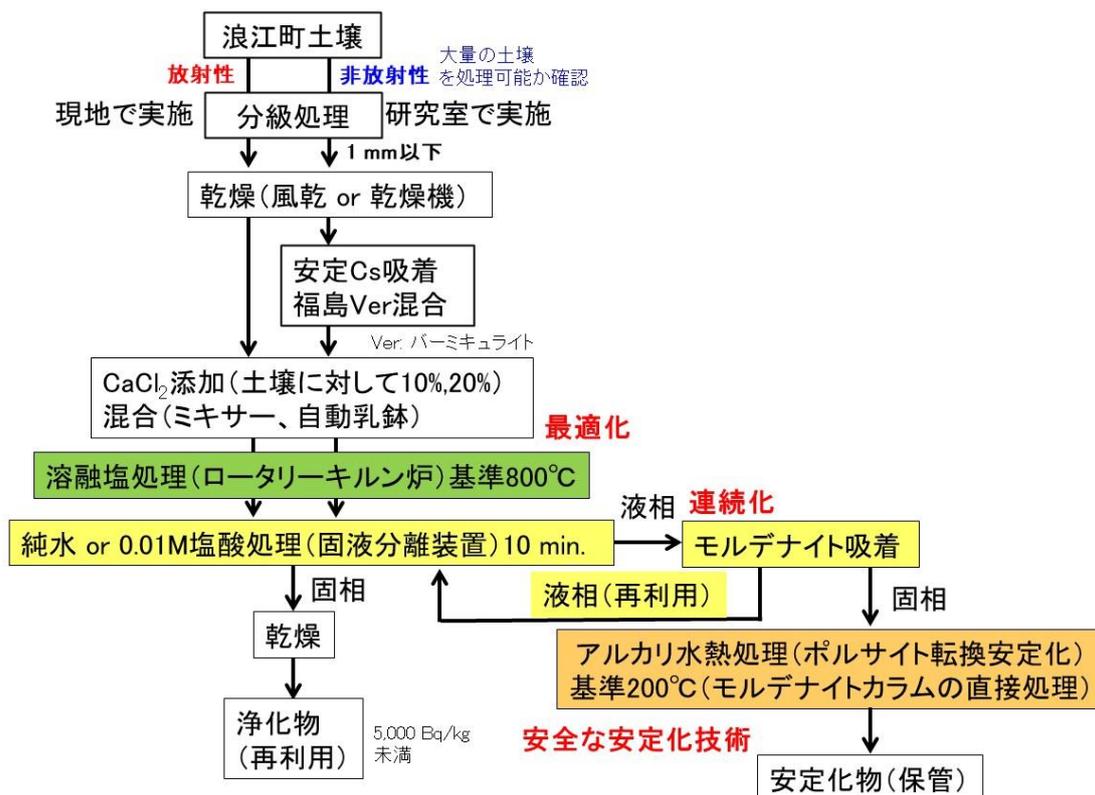


図 2-1 土壌の処理手順

3. 試験の実施方法・測定方法と実験結果

(1) ロータリーキルン炉による熔融塩処理に用いる土壌について

土壌試料は浪江町周辺の 1 万 Bq/kg 以上の 5 種の土壌（高濃度放射性土壌と表記）、1 万 Bq/kg 未満 100 Bq/kg 以上の土壌（低濃度放射性土壌と表記）、100 Bq/kg 未満の土壌に安定 Cs を吸着したバーミキュライトを 1 mass% 添加した土壌（非放射性土壌と表記）、計 7 種を用いた。原土と風乾及び乾燥後の土壌の RCs 濃度を表 3-1 に示す。また XRD 構造解析結果を図 3-1 に示す。これらの土壌を試験に用いた。なお、ロータリーキルン処理に用いる前に土壌をよく混合し、RCs 濃度を再測定してから用いた。（⑪低濃度放射性土壌では少量では RCs 濃度が低かったが(3,305 Bq/kg)、約 10 kg を混合した後では RCs 濃度が 5,800 Bq/kg 程度となっている。）

表 3-1 原土と風乾及び乾燥後の土壌の RCs 濃度

採取土壌	原土 [Bq/kg]	風乾後 [Bq/kg]	乾燥後 [Bq/kg]
③高濃度	15,172	20,177	27,809
④高濃度	11,272	8,874	13,326
⑤高濃度	12,482	13,201	18,083
⑦高濃度	11,405	14,140	18,476
⑫高濃度	18,922	21,389	22,914
⑪低濃度	2,616	2,880	3,305
⑪非放射性土壌	81.9	107.3	152.5

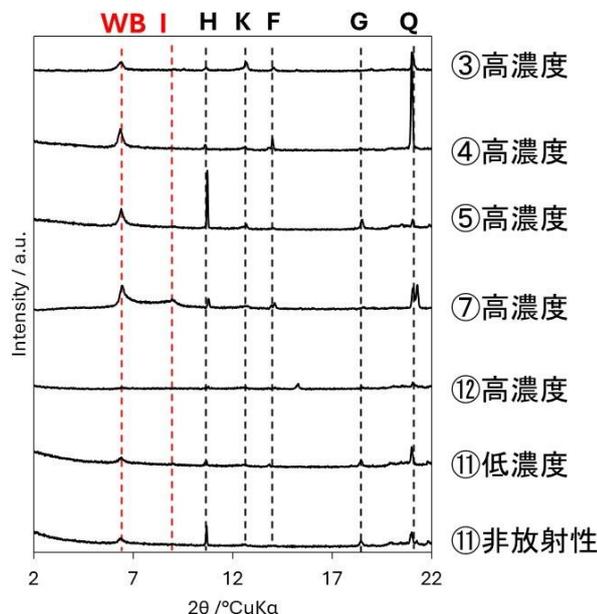


図 3-2 乾燥後の各土壌の XRD パターン

WB：風化黒雲母，I：雲母鉱物，H：角閃石，K：カオリナイト，
G：ギブサイト，F：長石，Q：石英

XRD パターンから各土壌で風化黒雲母(WB)の回折線を示し、高濃度放射性土壌では高 RCs 吸着能を示す風化黒雲母の回折線が高いことが分かった (⑫高濃度放射性土壌を除く)。その他、雲母粘土鉱物、角閃石、カオリナイト、ギブサイト、長石、石英を含有している。このように鉱物組成、有機物量の異なる土壌をロータリーキルン試験に用いた。

(2) ロータリーキルン炉について

図 3-2 に本研究で用いるロータリーキルン炉の図面と写真を示す。ロータリーキルン炉は、一定の傾きを持った炉心管を回転させることによって粉体を攪拌・流動させながら加熱する装置である。原料投入口と排出口が設置されており、搬送装置を使わずに炉芯の回転によって原料を排出口までゆっくり搬送しながら焼成を行うことで連続的に焼成処理を行うことができる。また、炉芯が回転して材料が攪拌されるため材料を均一に焼成することが可能で焼きムラが発生しにくい。炉内の温度制御や炉芯の回転速度を変化させることによる原料の焼成時間の制御、ガスの供給と原料投入量の変化による雰囲気制御が可能である。

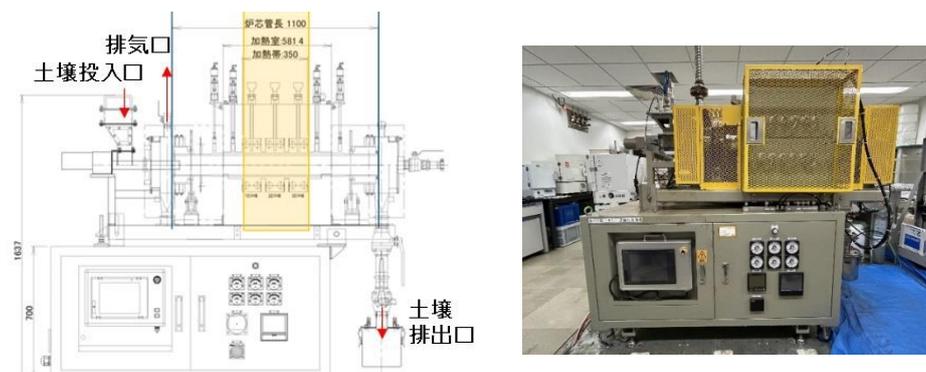


図 3-2 ロータリーキルン炉の図面と写真

間接加熱式と直接加熱式があるが、本研究では、焼成温度の制御が重要なため一定温度に制御可能な間接加熱炉（電気式）を用いた。また、熔融塩として CaCl_2 を用いるため、塩素ガスの発生に伴う炉心管等の腐食が問題となる。本研究では、耐食性が高いニッケルを 20%、クロムを 25%含有した耐熱ステンレス鋼である SUS3010S の炉心管に用いた。炉心管長は 1100 mm で、加熱室は 581.4 mm、加熱帯は 350 mm である。本研究では加熱帯の温度（基準条件：800°C）と流動時間（基準条件：30 分）を制御して試験を実施した。炉内の雰囲気は、ガスフローにより制御でき、土壌や CaCl_2 由来の排出ガスは、雰囲気ガスとともに排気口から排出される。本研究では排気口と集塵機（アララウルトラベンチミニ）をフレキ管により接続し、スクラバー付きドラフトチャンバーを通してこれらのガスを排出している。800°Cでの処理で排出口から排出される土壌は 60°C以下となり、冷却装置を使用せずに次工程の酸洗浄処理が可能となる。土壌投入口の下部に設置してあるフィーダーの速度と炉心管の傾斜および回転速度で、加熱帯における土壌の充填率と流動時間を制御している。

(3) 高濃度放射性土壌のロータリーキルン炉による熔融塩処理

図 3-3 に各高濃度放射性土壌の RCs 除染率と酸処理後の RCs 濃度を示す。熔融塩処理条件は、焼成温度: 800°C、処理時間(800°C保持部): 30 分、CaCl₂:添加量: 20%、雰囲気: N₂ である。酸処理条件は、0.01 M HCl 熔融塩処理後土壌の質量に対して 10 倍量(100 g では 1.0 L での処理)である。RCs 除染率 89%以上、RCs 濃度 3,100 Bq/kg 未満であり、目標の基準値 8,000 Bq/kg 未満を達成した。また、充填率 11%と高い条件で、除染率が高くなることが分かった。なお螺旋羽を入れない充填率の低い条件(充填率 2%)における高濃度汚染土壌の同処理では、除染率 57.6%と低い値を示し、ある程度の充填率が必要なことを確認している。

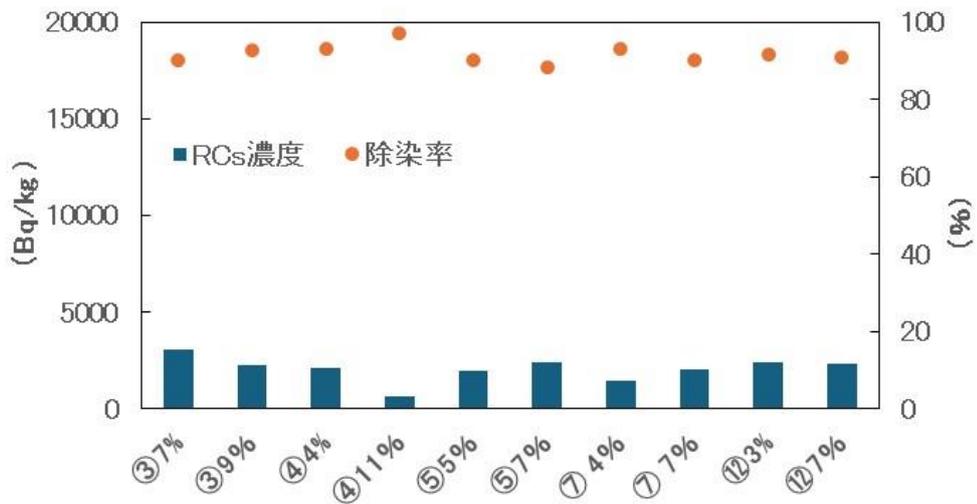


図 3-3 高濃度放射性土壌の除染率と RCs 濃度
横軸%は充填率を示す

(4) ⑪低濃度放射性土壌のロータリーキルン炉による熔融塩処理

図 3-4 に CaCl₂ 添加量 20%、処理時間 30 min.における充填率と雰囲気の異なる

⑪低濃度放射性土壌の熔融塩・酸処理後の RCs 量と除染率を示す。すべての条件で RCs 除染率 50%以上は達成した。N₂ 雰囲気では、充填率が増加すると RCs 除染率が若干減少する傾向が見られた。Air

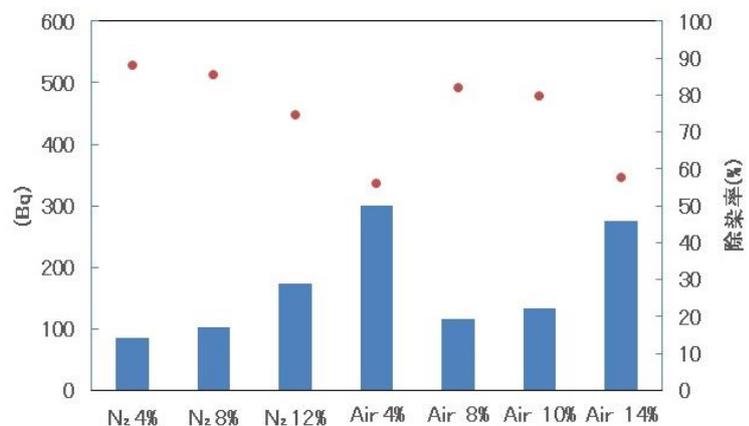


図 3-4 CaCl₂ 添加量 20%、処理時間 30 min.における充填率と雰囲気の異なる⑪低濃度汚染土壌の熔融塩・酸処理後の RCs 量と除染率 ■ : RCs 量、● : 除染率

雰囲気では、充填率が低い4%と、充填率が高い14%で減少し、8%と10%ではRCs除染率75%以上の高い値を示した。なお、基準条件で処理時間60minでは、110Bq以下のRCs量と85%以上の除染率を示し、目標値50%以上の除染率を達成した。しかし、CaCl₂添加量10%ではいずれの処理時間もRCs濃度は400Bq以上のRCs量と33%以下の除染率を示した。CaCl₂添加量が足りず溶融塩処理が不十分であると考えられる。また、基準条件で850℃の焼成温度での実験も行っているが大きなRCs除染率の向上は示さずCaCl₂の融点に近い800℃処理で十分と考えられる。以上の⑪低濃度放射性土壌の結果から、RCs除染効率の良い条件を表3-2に示す。連続処理運転は表3-2の条件で実施した。

表3-2 ロータリーキルン溶融塩処理における⑪低濃度放射性土壌のRCs除染率の高い条件

乾燥土壌試料	⑪低濃度放射性土壌
焼成温度	800℃
処理時間	30分
CaCl ₂ 添加量	20%
キルン内の土壌試料の充填率	8~12%
雰囲気	Air

(5) ⑪低濃度放射性土壌のロータリーキルン炉による24h連続溶融塩処理

ロータリーキルン炉を用いた連続処理試験の条件を下記に記す。

投入量：18kg 炉心回転速度：0.83rpm フィーダー速度：10~20Hz

使用土壌：⑪低濃度放射性土壌（乾燥）RCs濃度：5,800Bq/kg

CaCl₂濃度：20% 焼成温度：800℃ 焼成時間：30min 雰囲気：Air

図3-5に土壌投入からの経過時間と排出量を示す。3時間半経過後から26時間半までの23時間、8%以上の充填率（平均10.9%）で連続的に溶融塩処理できた。また、排出量から求めた処理量は247.9g/30分（495.8g/h）であった。排出量は、投入時の土壌の有機物が分解して質量減少が起きているため、元土壌の投入量を計算すると、575g/hとなり、目標の500g/h以上の処理は達成していると言える。なお、表中の①~⑩の試料に関しては100gを0.01M HCl 1Lで処理した。

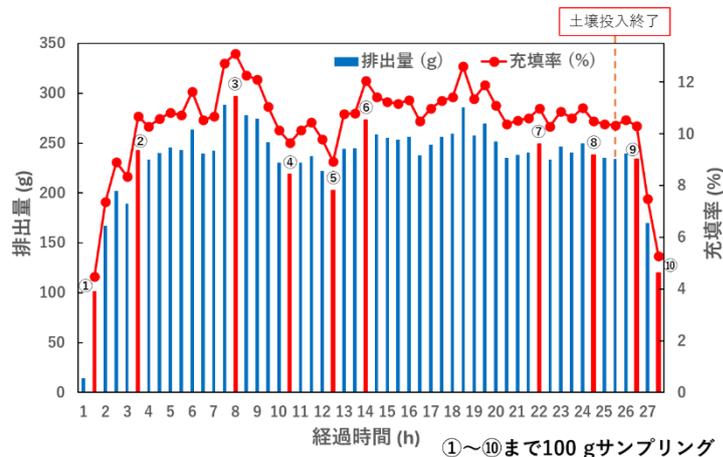


図3-5 土壌投入からの経過時間における排出量と充填率

図 3-6 にサンプリング 10 点の RCs 量と除染率を示す。いずれの土壤も RCs 除染率 56%以上であり、目標値 50%以上は達成している。充填率（平均 10.9%）が安定した②～⑧の試料では 70%以上を達成している。特に充填率が低かった④と⑤の試料では、若干ではあるが 78%以上の高い RCs 除染率を示し、処理量は減少するが充填率 8%程度が適していることが示唆された。

連続溶融塩処理試験後のロータリーキルン炉は、排気管接続部、排気管下部および入口ネジ部に緑色の析出物が見られた。この析出物の EDX 化学組成分析結果から、Cl:54.2%、Fe:37.1%、Cr:5.11%、Ni:3.53%であることが分かり、溶融塩処理に伴う塩素ガスにより配管が劣化したと考えられる。この他、SUS310S、SUS304 で作製した螺旋羽の劣化が見られ、塩素ガスで腐食しない材質での利用が必要である。なお、SUS310S で作製した炉心管については、多少の劣化が見られるものの大きな損傷はなかった。

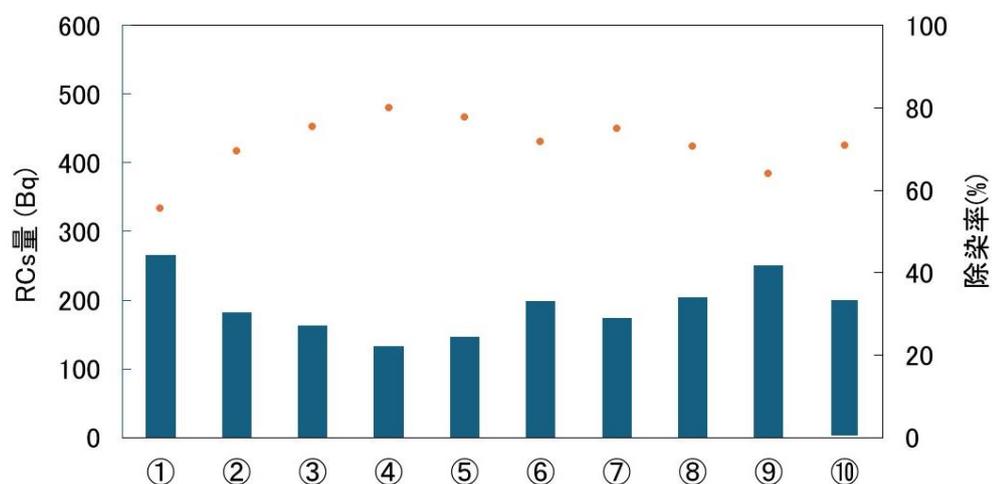


図 3-6 サンプリング 10 点の RCs 量と除染率
 ■ : RCs 量、● : 除染率

酸処理時に使用している 0.01 M HCl を純水に変えて処理を行った結果、0.01M HCl と同程度の除染率を示したことから、溶融塩処理で RCs が土壤から脱離していれば水処理でも除染できることが明らかになった。ただし、純水の場合、酸化鉄などが析出する可能性がある。

(5) 酸処理—ゼオライト吸着装置を用いた連続処理

これまでに、電気炉による溶融塩処理後の土壤を酸溶液と混合し、攪拌することで土壤中の RCs を溶出させ、天然モルデナイト (MOR) カラムに通水し、カラム中に RCs を吸着させるプロセスを実施してきた。大量の土壤を連続的に処理するためには、これらの処理を自動化する装置が必要である。

図 3-7 に酸処理—ゼオライト吸着連続処理装置の写真と概略図を示す。

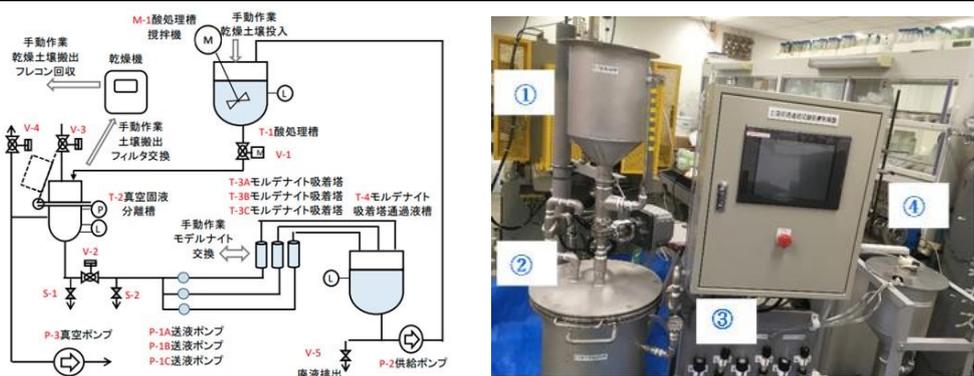


図 3-7 酸処理—ゼオライト吸着連続処理装置の概略図と写真

この装置は、①酸処理槽、②真空固液分離槽、③MOR 吸着塔、④MOR 吸着塔通水液槽の 4 つの構成要素からなる。連続処理装置の運用プロセスは以下の通りである。まず、MOR 吸着塔通水液槽に酸溶液を投入し、供給ポンプを用いて酸処理槽に送液する。酸処理槽に溶液が充填された後、付属の攪拌装置を作動させ、酸溶液と溶融塩処理後の土壌を混合する。この状態で所定の時間攪拌を行った後、攪拌を停止し、真空固液分離槽へ移送する。真空固液分離槽では、固相と液相が分離される。その後、供給ポンプによって分離された溶液を設定された流速で MOR 吸着カラムに通水させる。カラムを通過した溶液は MOR 吸着塔通水液槽に回収され、再利用または最終回収が可能である。本装置はこれらのプロセスを自動化することが可能であり、従来の手法に比べて処理効率の大幅な向上が期待される。

図 3-8 に①低濃度放射性土壌の処理の空間速度 SV における酸処理後溶液の RCs 濃度と MOR 通水後 (7.0 g のカラム 3 本) の RCs 濃度と吸着率を示す。SV の増加により RCs 吸着率は減少したが、SV400 においても 81%以上の RCs 吸着率を保持した。また、MOR 通水後の RCs 濃度はいずれの SV においても 70 Bq/kg 以下であり RCs137 の放流水の基準値(90 Bq/L)を下回っている。

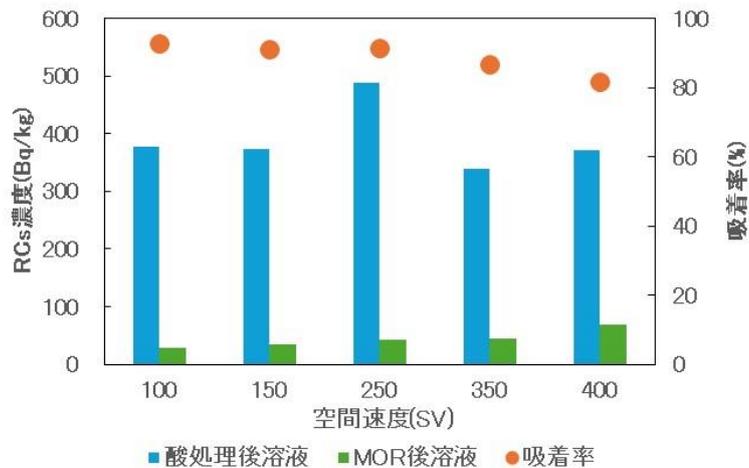


図 3-8 ①低濃度放射性土壌の処理の空間速度における酸処理後溶液の RCs 濃度と MOR 通水後 (7.0 g のカラム 3 本) の RCs 濃度と吸着率

なお、溶融塩処理後の非放射性土壌においても同様な傾向を示し、福島バーミキュライトからの Cs 脱離を示し、MOR による回収もできた。

(6) 安定化試験結果

図 3-9 に①低濃度放射性土壌から RCs を移行した RCs 吸着 MOR を各条件で水熱処理した生成物の XRD パターンと SEM 像を示す。基準条件(a)では、ポルサイト(POL)の回折線が強く見られた。また、POL 特有の多面体結晶が観察された。POL 転換できていることが分かる。基準条件から反応時間を 4 時間としたもの(b)、NaOH 濃度を 0.8 M としたもの(c)においても基準条件とほぼ変わらない POL の回折線を示し、ポルサイト転換できていることが分かる。基準条件から水熱温度を 150°C としたもの(d)では、POL の回折線の他に、NaP1 型ゼオライトの回折線が見られた。また、NaP1 型ゼオライト特有の柱状の凝集粒子も観察された。

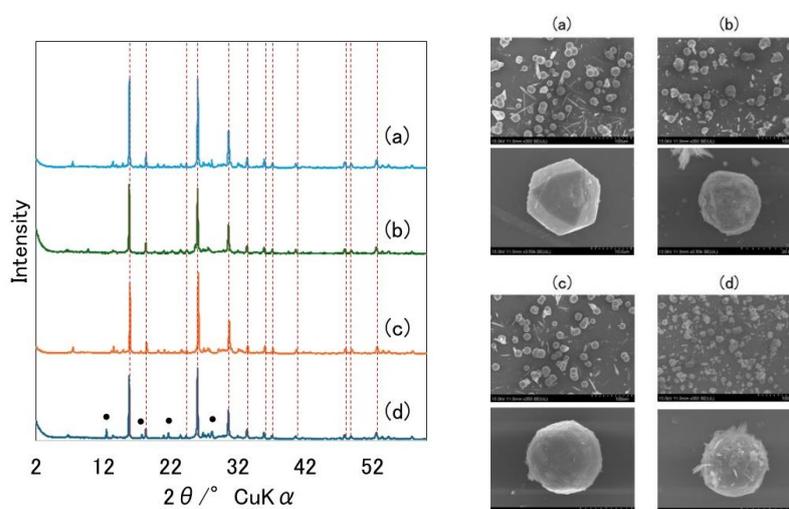


図 3-9 RCs 吸着 MOR を各条件で水熱処理した生成物の XRD パターンと SEM 像 (a) 200°C、1M NaOH、液固比: 15 mL / 2 g、24 h (b) 200°C、1M NaOH、液固比: 15 mL / 2 g、4 h、(c) 200°C、0.8 M NaOH、液固比: 15 mL / 2 g、24 h、(d) 150°C、1 M NaOH、液固比: 15 mL / 2 g、24 h
 …… : ポルサイト、● : NaP1 型ゼオライト

図 3-10 に基準条件 (200°C、1 M NaOH、液固比: 15 mL / 2 g、24 h) で得られた POL の RCs 溶出量及び積算溶出率を示す。1 日目までに 3%の溶出率を示すもののその後は溶出しないことが分かった。POL 最表面の溶出のみであり、POL 構造中に取り込まれた RCs は安定に保持されていることが明らかになった。

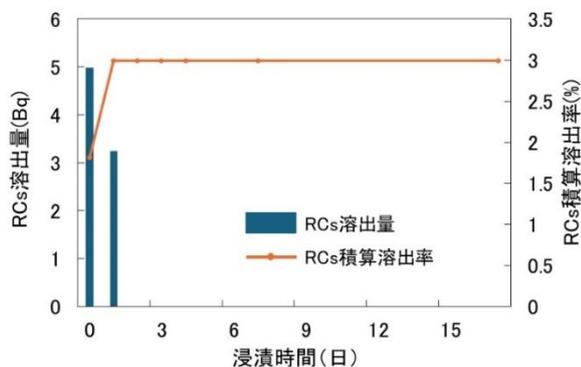


図 3-10 基準条件 (200°C、1 M NaOH、液固比: 15 mL / 2 g、24 h) で得られた POL の RCs 溶出量及び積算溶出率

4. まとめ

浪江町の放射性土壌及び非放射性土壌を用いて、ロータリーキルン炉による溶融塩処理条件の最適化、酸処理からゼオライト吸着処理までの一連の工程の連続化及び、安定化処理（ポルサイト化）の検討を行った。

ロータリーキルン炉を用いた溶融塩処理では、高濃度放射性土壌に関しては螺旋羽を用いた半バッチ試験において、RCs 除染率 89%以上、RCs 濃度 3,100 Bq/kg 未満となり、目標の基準値 8,000 Bq/kg 未満を達成した。また、充填率 11%と高い条件で、除染率が高くなることが分かった。低濃度放射性土壌に関しては、ロータリーキルン炉を用いた 24h 連続運転を実施するための条件を詳細に検討した。焼成温度 800°C、処理時間 30 分、CaCl₂ 添加量 20%、雰囲気 Air での試験が適していることが明らかになり、好条件では RCs 除染率 70%以上であり、低濃度汚染土壌の目標値である 50%以上を達成した。安定 Cs を吸着したバーミキュライトを 1 mass%混合した非放射性土壌に関しては、放射性土壌と同様な Cs 除去の傾向が見られ、本処理でバーミキュライト中から Cs を脱離できることを明らかにした。

低濃度放射性土壌を用いた 24 h 連続試運転では、上記最適化した条件で行い、500 g/h 以上の供給量で土壌投入でき、停止することなく処理することができた。しかし、溶融塩処理に伴う塩素ガスの対策をしていなかった金属部に腐食が起きること、フィーダーと炉心管の隙間に土壌が残留することなど課題も明らかになった。

酸処理-ゼオライト吸着連続処理装置を用いた検討においては、連続的に自動で酸処理とゼオライト吸着処理ができることが明らかになった。今回の処理では SV250 の条件で行い流速が速かったことで吸着率が低下したが、高濃度汚染土壌の処理時のように SV を遅くすることで改善すると考えられる。モルデナイト 7g のカラムで処理した場合の減容率は 1/50 以下となり目標を達成した。

アルカリ水熱処理により構造が安定なポルサイトへ転換でき、その Cs 溶出試験結果は初期の微量な溶出のみを示し、溶液安定性が高いことが明らかになった。

装置を使用した処理の全体のマスバランス結果から、Cs 分配比が悪いことがわかり、各処理プロセスの改善が必要であることがわかった。

上記の検討を踏まえた本処理全体の概略系統図(1.4 t/h の処理)を作成し、実機プロセスへ適用できることが示唆された。また、土壌 1t 当たりの概算費用（設備稼働 10 年）は、13.5 万円以下となり、15 万円/t 以下の目標も達成できた。

実施代表者：鹿島建設株式会社		
実証テーマ名： 分級処理に伴い発生する細粒分の処分に関する技術的実証 ～その2 脱水ケーキの安定性評価～		
概要：戦略検討会の最終処分シナリオでは、除去土壌について分級処理の適用が検討されており、分級処理によって発生する細粒分（高濃度土壌）は熱処理をせずに最終処分することがシナリオの1つとして検討されている。細粒分のみを脱水ケーキとして埋立施設で最終処分することについての技術的検証はこれまで十分な実績があるとはいえない。そこで本実証事業では脱水ケーキを最終処分した場合を想定してセシウム溶出挙動や物理的安定性を評価し、脱水ケーキの直接埋立処分における安全性を検証した。		
実施内容： <ul style="list-style-type: none"> 埋立後の埋立施設内を想定した嫌気条件下でのアンモニウムイオンの発生量とセシウム溶出挙動の評価および有害ガスの発生量、浸出水の水質についての評価 埋立後の事故や災害等により、万が一埋立施設内に大量の水が流入した場合を想定し、脱水ケーキが水と長時間接触したときの物理的安定性の評価 		
技術概要： <p>減容化技術等検討 WG で示された最終処分シナリオ（2）では、分級処理によって発生する細粒分（高濃度土壌）については熱処理をせずに最終処分することが示されており、この高濃度土壌は脱水ケーキとして扱われると考えられる。これまで脱水ケーキのみを埋立施設で最終処分した実績はないため、長期的なセシウムの再溶出リスク等について評価し、埋立処分における安全性を検証する必要がある。本実証事業では脱水ケーキを直接埋立により最終処分した場合を想定し、以下の2つの観点で検討を実施した。</p> <p>A) 嫌気状態で発生したアンモニウムイオンにより置換された放射性セシウムの溶出 B) 災害等で埋立施設内に大量の水が流入して脱水ケーキが水と長時間接触した場合に、放射性セシウムを含む土粒子が脱水ケーキから解離し流出</p> <p>これらの事象を検証するために3つの試験を実施した。本試験で使用した試料は令和5年度技術実証事業（その3）で実施した分級処理によって生じた脱水ケーキ（添加した薬剤や分級点の違いによる7種類）と分級前除去土壌（原土）の計8種類である。原土は実際に中間貯蔵施設で埋め立てられているものと同じものであり、脱水ケーキの試験結果を埋立実績のある原土と比較して相対的に評価するために試験に供した。次項の試験結果では7種類の脱水ケーキ試料を代表して1種類の結果を「脱水ケーキ」と称して示す（本文中の試料1に該当し、20μm分級により生成した脱水ケーキである）。</p>		
試験項目	実施目的	試験方法
(A-1) 促進溶出試験	アンモニウムイオンの置換により溶出するセシウムの評価	水または酢酸アンモニウム水溶液と液固比10で6時間振とうした後固液分離し、液相の放射能濃度を測定
(A-2) 嫌気下での培養促進試験	埋立施設内を想定した嫌気条件下でのアンモニウムイオンの発生量とセシウム溶出挙動の評価	脱気した水と土壌を混合して密閉容器に入れて40℃で12週間培養し、液相のアンモニウムイオンと放射能濃度を測定
(B) 細粒分流出試験	埋立施設が冠水し長時間水と接触した場合の物理的安定性の評価	脱水ケーキ有姿の状態でタンクリーチング試験を実施し28日浸漬後に液相中のSSと放射能濃度を測定

実証試験の結果（一部）：

(A-1) 促進溶出試験の結果

試験結果を図1に示す。いずれの試料も酢酸アンモニウム水溶液の濃度が大きくなるにつれて溶出率が大きくなった。また、脱水ケーキは原土より溶出率が小さくなる傾向が確認された。

(A-2) 嫌気下での培養促進試験の結果

培養によって発生したアンモニウムイオンと、それによって溶出した放射性セシウムの放射能濃度を表1に示す。アンモニウムイオン濃度は同程度であり、放射能濃度は脱水ケーキのほうが小さくなった。

促進溶出試験および培養促進試験の結果から、脱水ケーキからのセシウムの再溶出リスクは原土より低いと評価できる。

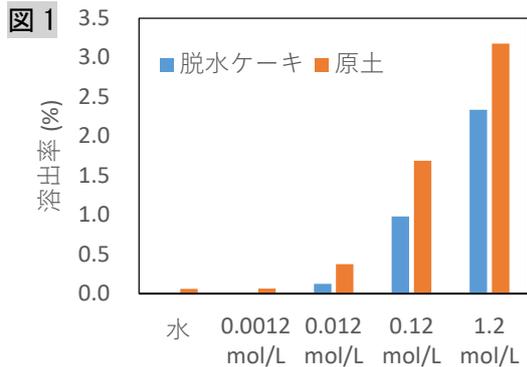


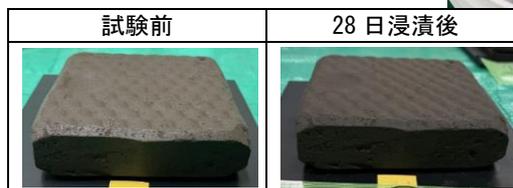
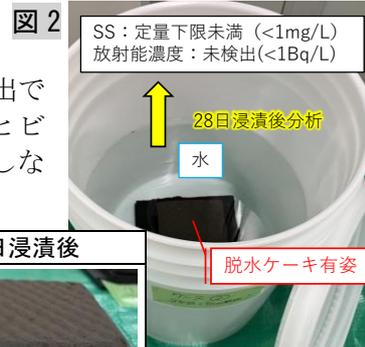
表1 嫌気下での培養促進試験の液相分析結果

試料	アンモニウムイオン [mol/L]	放射能濃度 [¹³⁷ Cs Bq/L]	溶出率 [%]
脱水ケーキ	0.0013	2.2	0.04
原土	0.0015	3.6	0.10

(B) 細粒分流出試験の結果

液相側のSSは定量下限値未満であり、放射能濃度も未検出であった。脱水ケーキ表面のフィルタープレスの跡や細かなヒビ割れも残っており、目視確認では浸漬によって形状が変化しないことが確認された。

脱水ケーキが水と接触しても、土粒子が解離して浮遊物質となり流出することはないと評価できる。



技術等の評価：脱水ケーキは埋立実績のある原土よりも溶出率が低く、細粒分の流出もないため、脱水ケーキを直接埋立により最終処分することについて安全性が示された。

作業員被ばく量評価：試験を実施した室内の空間線量：0.18～0.31μSv/h

試験員最大被ばく量：21μSv（のべ作業日数 57 日）

コスト評価：

・高濃度土壌の処分費：16 万円/m³

(★)県外最終処分に向けた技術開発戦略の在り方に関する研究会 活動報告書 Ver. 2 より引用

歩掛り（作業人工、作業速度等）：

通常の処分場における埋立事業と同様

コスト評価条件：管理型処分場相当での処分（6 万/m³）＋維持管理費（4 万/m³）＋一般貨物の輸送単価（2 万/m³）に不確定要素があるため 1.3 を乗じて算出(★同引用)

安全性の評価：一般的な最終処分における安全管理に加えて、高線量となる脱水ケーキの取り扱いにはできるだけ機械で行うこととして作業員の被ばくを低減する対策が必要

試験場所（往所）：技術実証フィールド（福島県双葉郡大熊町）

除去物保管場所と保管状況：試験に使用した除去土壌は技術実証フィールドにて返却済

1. 試験目的

中間貯蔵施設に搬入された除去土壌のうち 8,000Bq/kg 超の土壌は、まずは大規模・低コストでの実施が可能な分級処理が実施され、分級処理によって生じる高濃度土壌に対しては放射能濃度の低減効果が高い熱処理が実施される。熱処理によって生じた飛灰については減容化の観点から飛灰洗浄・吸着技術の適用が検討されている。そして、その組み合わせにより最終処分シナリオ(1)～(4)が示されている。この中で熱処理や飛灰洗浄・吸着は減容効果が大きいものの処理費が大きくなる技術として位置づけられており、減容技術の適用が増えるほど事業全体の減容処理コストは大きくなる。

シナリオ(1)で最終処分の対象となるのは除去土壌であり、埋め立てたあとの長期安定性については中間貯蔵施設での埋立の実績に基づく知見がある。シナリオ(3)、(4)で最終処分の対象となるのはそれぞれ飛灰、吸着剤の安定化体であるため、埋立後の安定性には問題が発生しにくい状態だと考えられる。一方でシナリオ(2)では分級処理で発生した脱水ケーキを直接埋め立てて最終処分すると考えられる(図-1)。このように脱水ケーキを直接埋立処分する場合、放射性セシウムを含む脱水ケーキを直接埋立した実績は知られておらず、長期的なセシウムの再溶出について技術的な検証が十分になされているとはいえない。セシウムは除去土壌中の粘土粒子に吸着すれば溶出しにくくなることは確認されているものの、脱水ケーキは分級処理の過程で薬剤が添加されて除去土壌と性状が異なるものとなるため、セシウムの再溶出に関する長期安定性については改めて検証すべきである。埋立処分環境を想定し、細粒分流出に伴う放射性物質の拡散や分級処理等で添加される薬剤(硫酸第一鉄、消石灰など)がセシウムの溶出に及ぼす影響を検証する必要がある。また、埋立処分後の安定性の観点から、脱水ケーキ中に残留する有機物等の成分がセシウムの溶出に及ぼす影響も併せて把握しておくべきである。

表-1 検討されている減容技術と最終処分シナリオ(案)

(中間貯蔵施設における除去土壌等の減容化技術等検討WG(第9回)より引用)

<除去土壌>

技術の組合せ	分級処理	熱処理	飛灰洗浄・吸着(処理)	シナリオの説明
シナリオ(1)	実施しない	実施しない	実施しない	減容処理は実施しない。
シナリオ(2)	湿式通常分級	実施しない	実施しない	分級処理によって得られる粗粒分が8,000 Bq/kg以下となることが期待される濃度帯の土壌を湿式通常分級処理。
シナリオ(3)	湿式通常分級	熔融or焼成	実施しない (飛灰をそのまま固型化)	分級処理後の細粒分、及び分級処理対象外の8,000 Bq/kg超の土壌を熱処理。飛灰を安定化処理
シナリオ(4)	湿式通常分級	熔融or焼成	洗浄・吸着・セメント固型化	熱処理によって発生する飛灰を洗浄、洗浄水中の放射性セシウムを吸着剤で吸着し、更なる減容化を図る。吸着剤を安定化処理。

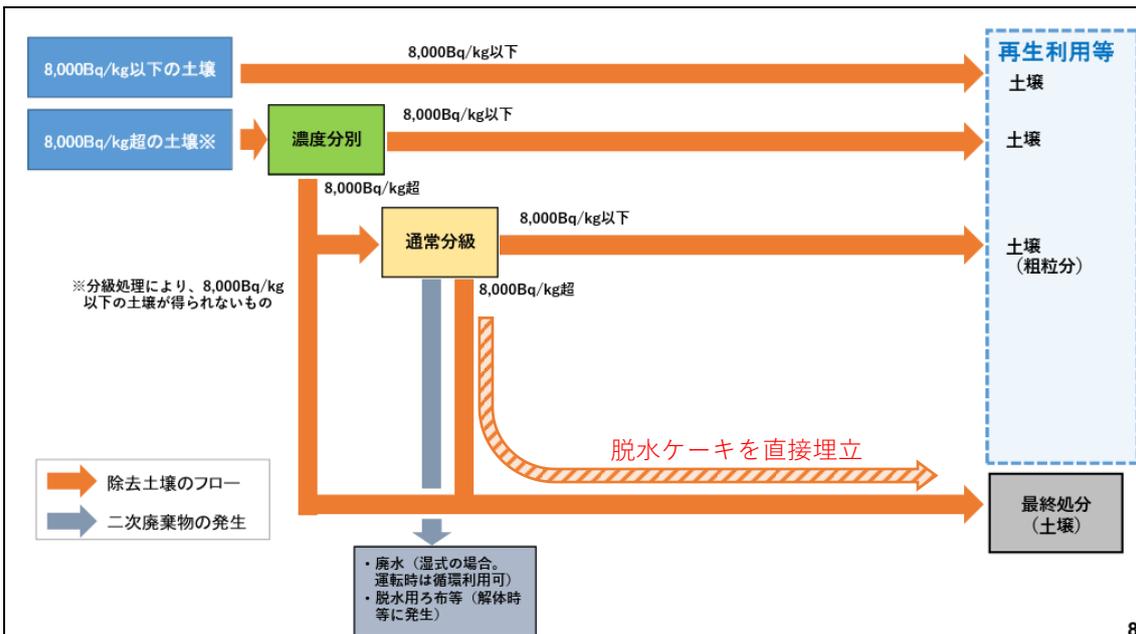


図-1 除去土壌の最終処分シナリオ（2）に加筆（減容化WG（第9回）より引用）

こうした背景から、脱水ケーキの安定性について主に次の2つの観点で試験を実施し、脱水ケーキの直接埋立による最終処分の安全性について検証した。

- A) 化学的安定性: 埋立後の埋立施設内を想定した嫌気条件下でのアンモニウムイオンの発生量とセシウム再溶出挙動の評価および有害ガスの発生量、浸出水の水質についての評価
- B) 物理的安定性: 災害等で埋立施設内が冠水して脱水ケーキが水と長時間接触した場合の安定性(放射性セシウムを含む土粒子が脱水ケーキから解離して浮遊物質として流出しないか) の評価

ここで想定されるセシウムの再溶出のイメージを図-2 に示す。A)の場合は、生成したアンモニウムイオンによって吸着していたセシウムがイオン態として溶出すると考えられる。B)の場合はセシウムが土粒子に吸着した状態で解離し、浮遊物質として流出すると考えられる。

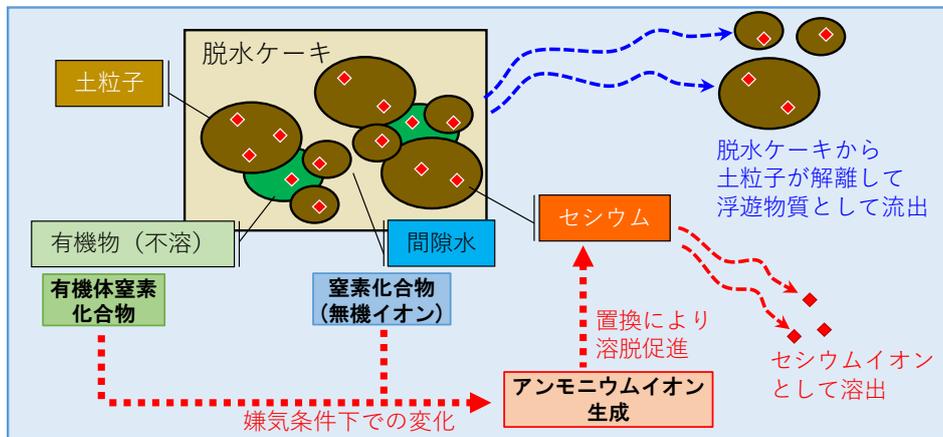


図-2 埋立施設内で懸念されるセシウム溶出のイメージ

2. 実施内容

① 使用した土壌

本試験では、令和5年度の除去土壌等の減容等技術実証事業（その3）で実施した分級処理によって生じた脱水ケーキを使用した。作製フローを図-3に示す。使用した薬剤の種類や分級点（粒径）の違い、遠心分離機による有機物分離の有無により表-2に示す7種類の脱水ケーキを使用して試験を実施した。試料7はシナリオ（2）の脱水ケーキに該当し、試料1～6は分級（表面粉碎材）＋分級点の小粒径化（20 μ m）により生成した脱水ケーキである。

また、分級前の除去土壌（以降では原土と称する）も試験に使用した。この原土は、現在中間貯蔵施設に埋め立てられているものと同じものであり、脱水ケーキの試験結果を埋立実績のある原土と比較して相対的に評価するために本試験で使用した。

試験に使用した試料の放射能濃度（乾燥重量あたり）、強熱減量以外、CN コーダによる窒素含有量、脱水ケーキの間隙水に含まれる無機化合物含有量（硝酸イオン、硫酸イオン等、溶出試験による推定値）を把握してから試験を開始した。原土には農耕地由来が考えられる硝酸イオンが比較的多く含まれている。脱水ケーキでは分級洗浄～脱水過程でその硝酸イオンは洗い出されたが、一部は脱水ケーキの間隙水に残ったと考えられる。アンモニウムイオンはどの試料でもほとんど含まれていなかった。

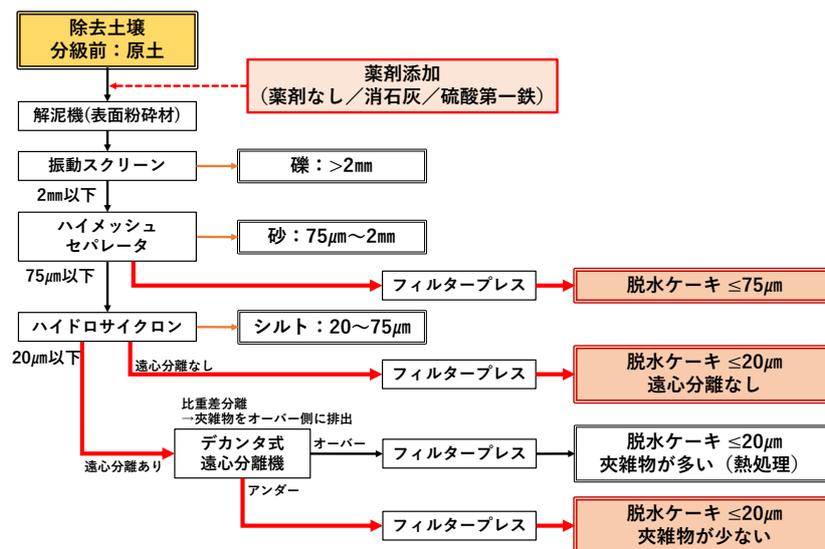


図-3 脱水ケーキの作製フロー（※作製は令和5年度）

表-2 本実証事業で使用した試料

試料名	作製条件			諸特性			
	薬剤	分級点	遠心分離	^{137}Cs [Bq/kg-d]	強熱減量 [%]	N含有量 [%]	硝酸イオン [mg/kg]
試料1	なし	≤20 μ m	あり	18,400	17.0	0.595	41
試料2	なし	≤20 μ m	なし	23,900	19.4	0.742	78
試料3	消石灰	≤20 μ m	あり	18,500	14.8	0.538	28
試料4	消石灰	≤20 μ m	なし	25,800	17.9	0.704	120
試料5	硫酸第一鉄	≤20 μ m	あり	21,700	20.6	0.717	61
試料6	硫酸第一鉄	≤20 μ m	なし	25,300	18.9	0.729	110
試料7	なし	≤75 μ m		22,300	18.9	0.711	76
原土				13,600	11.0	0.387	1500

② 試験方法

図-2 に示すイメージに基づいて試験条件を設定し、表-3 に示す 3 つの試験を実施した。

表-3 本実証事業における実施事項

試験項目	実施目的
促進溶出試験	・ アンモニウムイオンの置換により溶出するセシウム量の評価
嫌気下での培養促進試験	・ 埋立施設内を想定した嫌気条件下でのアンモニウムイオンの発生量とセシウム溶出挙動の評価 ・ 有害ガスの発生量、浸出水の水質についての評価
細粒分流出試験	・ 埋立施設が冠水し水と長時間接触した場合を想定したときの物理的安定性（土粒子が解離して流出しないか）の評価

【促進溶出試験】

「土壤中の放射性セシウムの挙動に関するレビュー（土壤中の放射性セシウムの挙動に関するレビュー作成検討委員会）」では、除去土壌を対象として、酢酸アンモニウム水溶液を用いた溶出試験を実施し、セシウムの溶出特性が評価されている。本実証事業では脱水ケーキおよび原土を対象として同試験を実施し、セシウムの溶出特性を評価する。

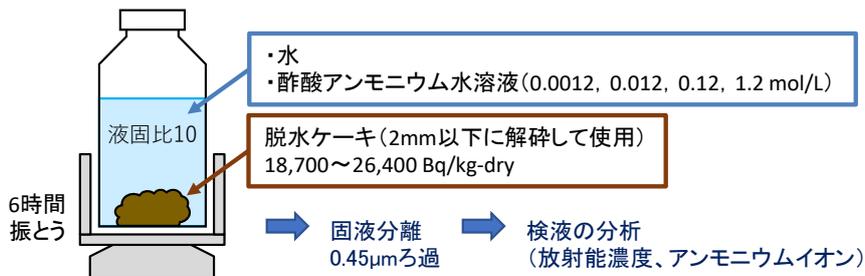


図-4 促進溶出試験の実施概要

【嫌気下での培養促進試験】…以降では培養促進試験と略して称す

埋立施設内の嫌気環境を再現するため、密閉容器の中に脱水ケーキもしくは原土と水を入れて 40℃養生により嫌気性の反応を促進し、所定期間ごとにサンプリングして各種分析を実施した。12 週サンプリング後に容器からサンプルを取り出し、固液分離して液体・固体についてそれぞれ分析を実施した。

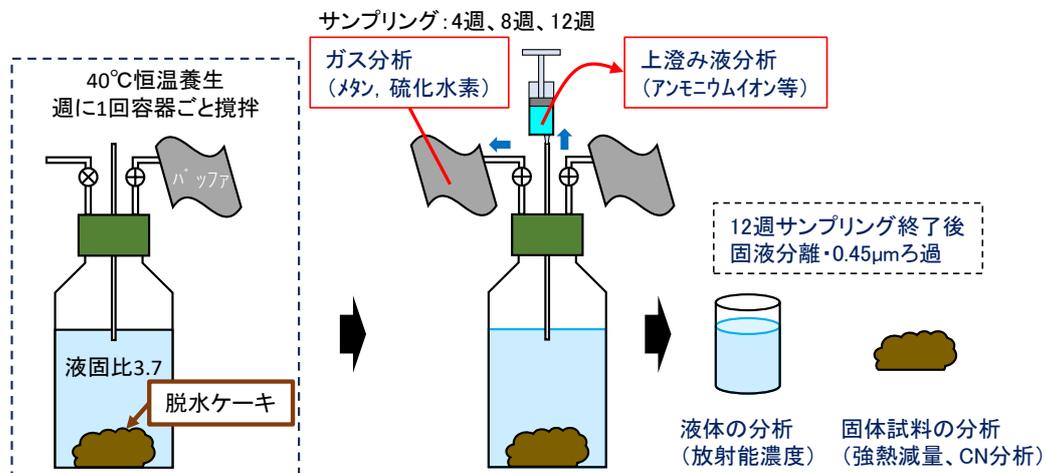


図-5 嫌気下での培養促進試験の実施概要

【細粒分流出試験】

埋立施設内が水で飽和した状態を想定し、容器内に水と脱水ケーキを入れて所定期間静置した。この試験は原土を除いて脱水ケーキの試料1～7を対象に実施した。試験終了後に水を全量サンプリングし、SSと放射能濃度測定と供試体の目視確認を実施した。

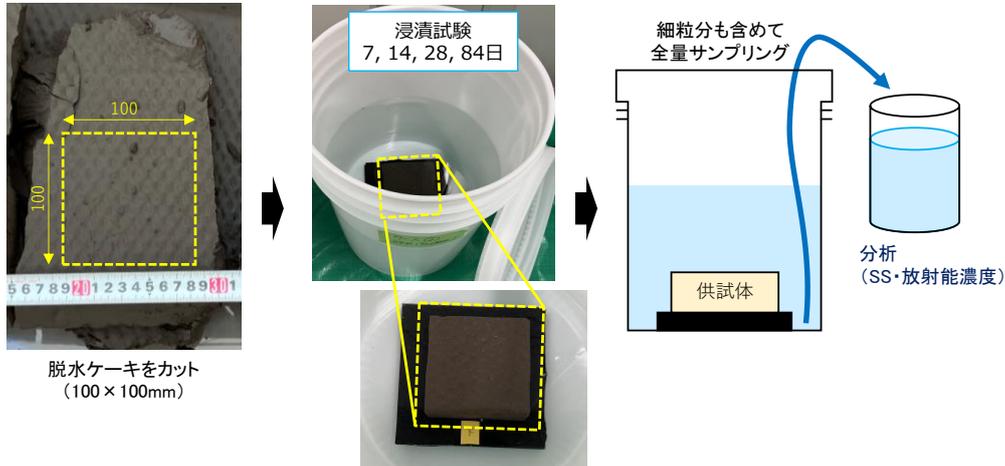


図-6 細粒分流出試験の実施概要

3. 各種試験結果

【促進溶出試験】

試料の放射能濃度（表-2）と促進溶出試験の検液の放射能濃度から、¹³⁷Cs の溶出率を計算した。

$$[\text{溶出率}] = ([\text{検液の放射能濃度}] \times [\text{液固比} : 10]) / [\text{試料の放射能濃度}]$$

その結果を図-7 に示す。その結果、酢酸アンモニウム水溶液の濃度が大きくなるにつれて溶出率が大きくなり、この傾向は既報（土壤中の放射性セシウムに関するレビュー）と一致した。全体的に原土の溶出率が高い傾向はあるものの、脱水ケーキ試料1～7との差はわずかであり、原土と脱水ケーキでの明瞭な差異は確認されなかった。また、脱水ケーキの種類による違いもわずかであった。なお、水で実施したケースでは原土のみ、0.0012mol/L で実施したケースでは試料2, 5, 6, 7, 原土のみ ¹³⁷Cs の放射能を検出できたため溶出率を計算したが、他のケースでは検出されず溶出率が計算不可であったため ND と表記した。

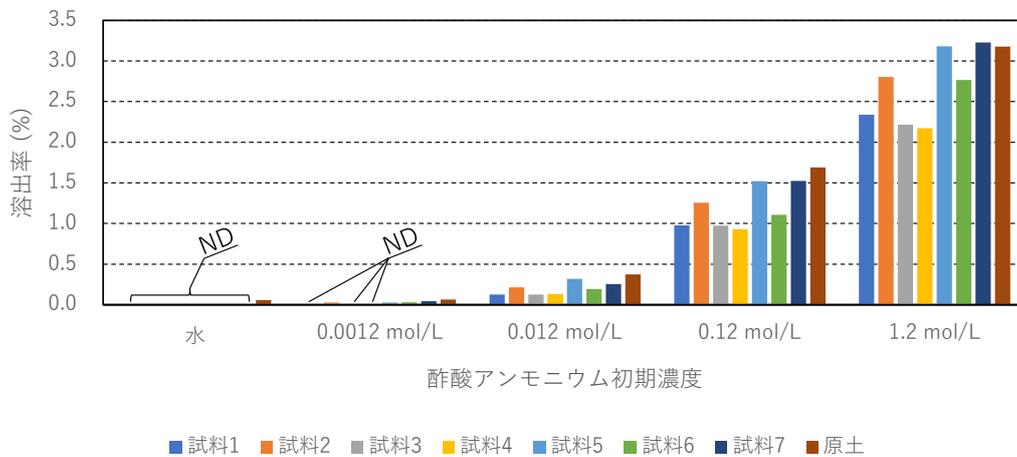


図-7 促進溶出試験 溶出率の結果

【培養促進試験】

4、8、12週にサンプリングした上澄みのアンモニウムイオンの分析結果を図-8に示す。12週目の濃度は原土が最も高く0.0015mol/Lとなった。試料1,2,3,4は原土と同じように濃度が上昇した一方で、試料6は12週目で減少、試料5,7は8週目から12週目までほとんど変化しなかった。グラフには示していないが、硝酸イオンは試験開始後に濃度が低下して4週目でほとんど検出されなくなったことも確認された。

表-4に固液分離後の液体の放射能濃度および溶出率を示す。溶出率の計算方法は促進溶出試験と同様である。放射能濃度は原土が最も高く3.6Bq/Lであった。初期放射能濃度が最も低い原土の試験ケースで液体の放射能濃度が最も高くなったため、その分原土の溶出率は他の脱水ケーキの試料と比べて大きくなる結果となった。

図-9に硫化水素とメタンのガス分析結果を示す。試料5,6,7は硫化水素が発生している一方でメタンの発生量が少なく、試料1,3,4,原土は硫化水素が発生せずにメタンが発生していた。試料2はその中間的な挙動を示した。詳細な結果は省略するが、試料5,6,7は初期状態で硫酸イオンを多く含むことが確認されており、その硫酸イオンが硫化水素の発生元となったと考えられる。また、硫化水素の発生が優位な雰囲気となったことでメタンは生成されなかったと考えられる。試料2,4,原土も初期状態で硫酸イオンをある程度含んでいたが、比較的量が少なかったことから早期に消費されたのちにメタン生成が開始されたことを確認した。

次項の表-5に4,8,12週にサンプリングした上澄み液のpHとBOD値を示す。pHは試料5,6,7が排水基準:5.8を下回る酸性を示すことがあったが、その後中性に戻ったため酸性化は一時的な挙動だと考えられる。BODは脱水ケーキと比べて原土の方が高い傾向がある。脱水ケーキは分級洗浄・脱水の過程でBODの上昇要因となる物質が洗い出されたことでBODの上昇を抑制できた可能性がある。

アンモニウムイオン

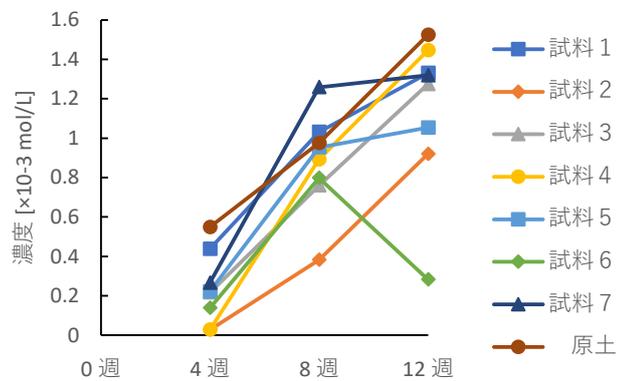


図-8 アンモニウムイオン分析結果

表-4 液体の放射能濃度

試料	放射能濃度 [¹³⁷ Cs Bq/L]	溶出率 [%]
試料1	2.2	0.04
試料2	1.9	0.03
試料3	2.6	0.05
試料4	3.2	0.05
試料5	1.9	0.03
試料6	3.0	0.04
試料7	1.1	0.02
原土	3.6	0.10

試料1 試料2 試料3 試料4
試料5 試料6 試料7 原土

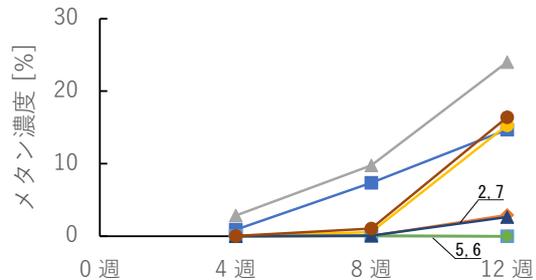
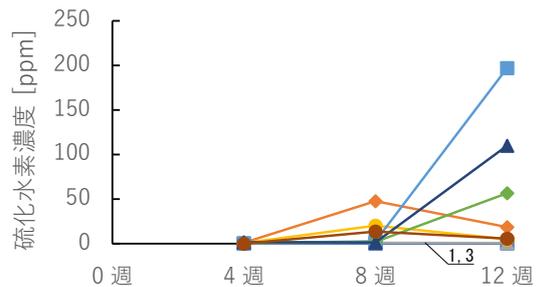


図-9 ガスの分析結果

【細粒分流出試験】

表-6 に試験結果を示す。放射能濃度は全試験ケースにおいて検出限界未満、SS は2ケースを除いて定量下限値未満であり、定量された試験ケースもわずかに定量下限値を上回っただけであった。写真-1 は脱水ケーキ供試体の浸漬試験の前後の様子である。脱水ケーキ表面のフィルタープレスの跡や細かなヒビ割れも残っており、目視確認では浸漬によって形状が変化していないことが確認された。本試験の結果から、脱水ケーキが水と接触したときに解離して流出する土粒子はほとんどないことが示された。

表-5 上澄みの水質

試料	pH			BOD [mg/L]		
	4w	8w	12w	4w	8w	12w
試料 1	7.1	7	7	<15	<15	<15
試料 2	6.4	6.6	6.6	<15	<15	35
試料 3	7.4	7.2	7.2	<15	<15	<15
試料 4	7.0	6.8	6.8	<15	24	<15
試料 5	4.8	5.7	5.6	<15	<15	<15
試料 6	5.0	5.9	6.2	<15	<15	<15
試料 7	5.1	6.1	6.2	<15	<15	<15
原土	6.7	6.8	6.7	<15	20	31

表-6 放射能濃度 (¹³⁷Cs) と SS の分析結果

項目	単位	試料 1~7			
		7d	14d	28d	84d
放射能濃度 ¹³⁷ Cs (検出限界：0.71 Bq/L)	Bq/L	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
SS	mg/L	<1.0	試料 1 のみ：1.0 他：<1.0	<1.0	試料 5 のみ：1.3 他：<1.0

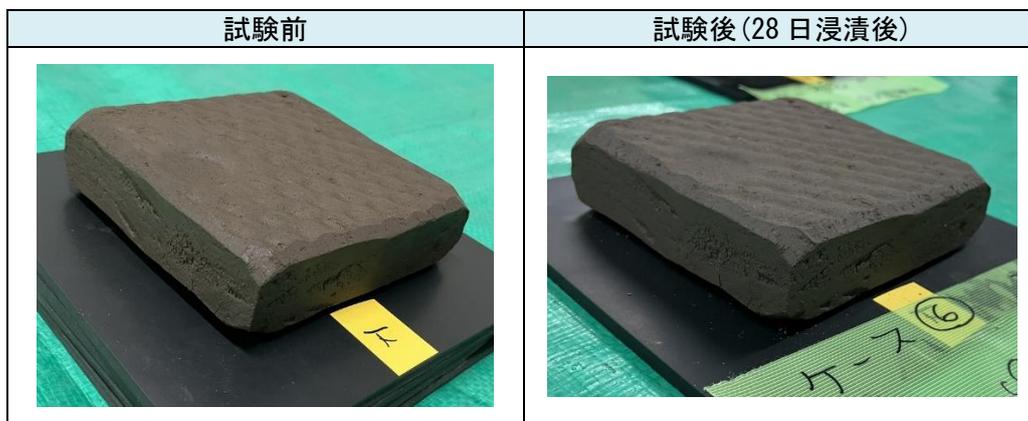


写真-1 試験前後の脱水ケーキの例 (試料 6 浸漬期間 28 日のケース)

4. 各種試験結果に対する評価

A) 化学的安定性について

まず促進溶出試験と培養促進試験では、イオン態としてのセシウム再溶出可能性について検証した。促進溶出試験の結果から、アンモニウムイオンによる脱水ケーキからのセシウムの溶出率は原土を対象としたときとほぼ同等であった。また、培養促進試験では原土の試験ケースで最もアンモニウムイオン濃度が高くなり、それに応じて溶出した放射性セシウムが高いのも原土の試験ケースであった。以上の結果から、脱水ケーキの放射性セシウムの溶出率は原土と比べて少なくとも同程度、もしくはより低くなると評価できる。ここで除去土壌と脱水ケーキの溶出率が同等の場合に、それぞれを埋め立てた場合の放射性セシウムの放出量について次のように試算した。令和5年度実証事業(その3)の分級洗浄の実績を使用するため、放射能濃度を 14,000Bq/kg-d と仮定する。その場合、分級洗浄による減量化率は 35%、脱水ケーキの放射能濃度は 20,000Bq-d/kg 程度となる。脱

水ケーキは放射能濃度が除去土壌と比べて大きくなるが、減量化率を考慮すると放射性セシウムの総量は除去土壌を埋め立てる場合と比較して $0.35 \times (20,000/14,000) = 0.5$ 倍になる。除去土壌と脱水ケーキの溶出率は同等の場合は、放射性セシウムの総量が 0.5 倍になった分、放出される放射性セシウムの量も 0.5 倍になる。このように、溶出率に加えて分級処理による減量化も考慮することで、放出される放射性物質は除去土壌より脱水ケーキのほうが小さくなるのが分かる。分級処理によって生成する脱水ケーキを直接埋立することは、除去土壌を直接埋め立てる場合と比べて埋立の総量を削減し、さらに放出される放射性セシウム総量も削減できると評価できる。

加えて、今回使用した脱水ケーキは埋立前の除去土壌を使用した。実際に分級処理の事業を実施する場合は埋立後の除去土壌を使用することから、埋立期間中に浸出水とともに溶解性の成分はある程度流出したと考えられる。そのため、実際の脱水ケーキは本実証事業で扱ったものより安定的な状態（アンモニウムイオンが発生しにくいなど）となり、セシウムは溶出しにくくなると考えられる。

促進溶出試験と培養促進試験では各種詳細データを取得し、セシウムの再溶出に関わる挙動を定量的に評価することができた。その結果を元に作成した培養促進試験の物質収支イメージを図-10に示す。

図中①のように、脱水ケーキの初期状態では間隙水に硝酸イオンが含まれており（表-2）、その硝酸イオンは培養中に濃度が低下したため全て消費されたと考えられる。硝酸イオンは脱窒菌による窒素ガス化か硝酸塩還元細菌によるアンモニウムイオン化されたと考えられる（図-10では後者とした）。

図中②は有機体として含まれる窒素化合物を示す。表-2に示す窒素分は、そのほとんどが不溶性の有機物に含まれていると考えられる。①の硝酸イオンは試験開始後4週目で全て消費されたため、その後に発生したアンモニウムイオンは②の有機体の窒素化合物から生成されたと考えられる。CNコードによる窒素含有量分析により、試験前と比較して培養促進試験（12週間）後の窒素含有量がわずかに低下した試料が確認された。

図中③に示すように、培養促進試験ではアンモニウムイオン濃度が $0.8 \sim 1.3 \text{mmol/L}$ となり、④のように溶出したセシウムの溶出率は $0.02 \sim 0.04\%$ であった。図-7の促進溶出試験の結果では 0.0012mol/L のときの溶出率が $0.03 \sim 0.04\%$ であり、その関係性と一致した。この結果から、アンモニウムイオンの生成が脱水ケーキからのセシウムの溶出に影響することを定量的に評価することができた。

培養促進試験では放射性セシウムの他にも有害ガスや水質に関するデータを取得し、有害ガスについてはメタンガスと硫化水素の発生が確認された。ただし、この試験は 40°C ・密閉条件で養生しており、ガスが発生しやすい条件での試験であるため、実際の環境下では本試験よりガス発生速度は緩慢になると想定されることに留意されたい。有害ガスの対策として通常の処分場と同様にガス抜き管で対応することで安全に埋立処分が可能になると考えられる。水質については、一部の脱水ケーキで pH が低下して酸性になることが確認されたが、これは一時的な挙動であり、長期的には中性に戻ると考えられる。また、原土の BOD が時間経過に伴い上昇していたのに対し、脱水ケーキではその上昇を抑制する傾向が確認された。以上の有害ガス・水質いずれの結果も、脱水ケーキの直接埋立の適用可否に対して大きな影響はないと考えられる。

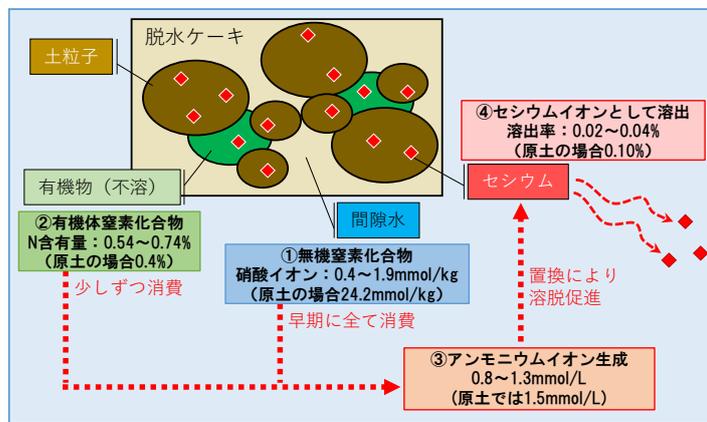


図-10 培養促進試験における物質収支のイメージ

B) 物理的安定性について

脱水ケーキを含めた除去土壌を最終処分場で埋め立てる場合の前提条件として、埋立完了後は中間貯蔵施設と同じような遮水シートか透水性の低い最終覆土により水がほとんど入らないと想定した。また埋立期間中の雨水については、多くは表流水として処理することも考慮すると、埋立物量と比べて雨水量は少なく埋立物の間隙を満たすほどではないため、水との接触は限定的なものになると考えられる。そのため、平常時は水と長時間接触することがなく、脱水ケーキから細粒分は流出しないと考えられる。細粒分流出試験は、災害や事故によって“仮に”大量の水が流入した場合を想定した試験であり、このような想定での埋立物と水の接触時間について確認されたデータはないことから、埋立施設内における埋立物（脱水ケーキ）と水の接触時間は次のように設定して計算した。

- 覆土が破損して水が流入し埋立施設内が一時的に冠水する
- 脱水ケーキより覆土の透水係数の方が大きいことから、冠水したあとの水は覆土部分を流下する
- 冠水後に水が全て流下するまで最下部の埋立物が水と接触している時間を接触時間とする

埋立部の高さを 20m、流下する経路長を 70m と仮定すると、その場合の動水勾配が 0.286 となり、覆土の透水係数を砂として 0.0001m/s とすると流下時間は 28.4 日となる。この場合、最下部に埋め立てられた脱水ケーキが水と接触している時間は 28.4 日となる。本実証事業で実施した細粒分流出試験では、最大 84 日の浸漬期間を設定していたため、このように冠水した環境でも脱水ケーキから細粒分が流出しないことを示すことができた。

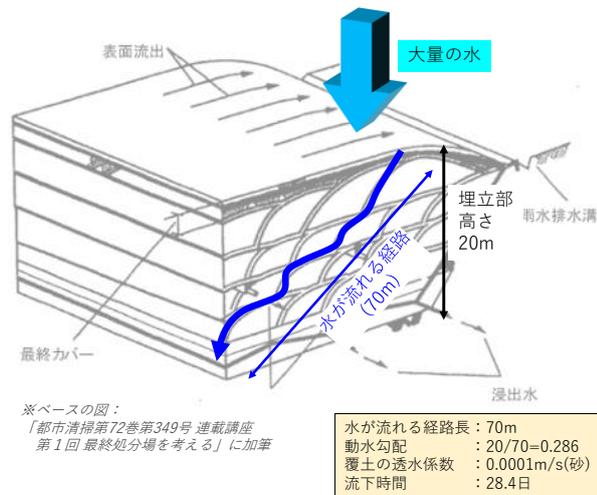


図-11 脱水ケーキと水の接触時間の試算イメージ

5. 事業性の評価

以上の検証により、試料 7 の結果から図-1 に示した除去土壌の最終処分シナリオ (2) における埋立処分の安全性を示すことができた。表面粉碎材による分級および分級点の小粒径化 (20 μ m) により生成した脱水ケーキ：試料 1~6 についても同様に直接埋立による最終処分の安全性が示された。表-2 に示すように添加した薬剤や有機物分離の有無により試料 1~6 を使用したが、いずれの試料でもセシウムの再溶出の可能性に対して化学的安定性・物理的安定性ともに有意な差異がないことが確認された。

令和 5 年度実証事業 (その 3) では最終処分後の安定性の確保することを目的として遠心分離による有機物除去をフローに組み込んでいたが、本実証事業の検討結果では遠心分離による明瞭な効果を示すことが出来なかった。よって、次項の事業コスト試算の R6 案では、遠心分離を除いた処理フローでコスト試算することとした。

令和 5 年度実証事業 (その 3) で提案した処理フローから有機物除去を削除し、高濃度土壌の直接埋立処分を加えた最終処分シナリオを図-12 に示す。図中の土壌 C・土壌 D の数量は 2022 年の「中間貯蔵施設における除去土壌等の減容化技術等検討 WG (第 1 回)」から引用した数量であり、それぞれの処理数量は土壌 C・土壌 D の数量に令和 5 年度の成果を適用して計算した結果である。詳細は令和 5 年度実証事業 (その 3) を参照されたい。分級 (表面粉碎材) + 分級点の小粒径化 (20 μ m) の処理対象は 12,900~15,400Bq/kg-d であり、39.2 万 m³ の細粒分が生成する (①)。それより濃度が高

い 15,400~32,000Bq/kg-d は通常分級により処理し、13.9 万 m³ の細粒分が生成する (②)。また、32,000Bq/kg-d 超の土壌 D : 10 万 m³ も最終処分の対象となる (③)。

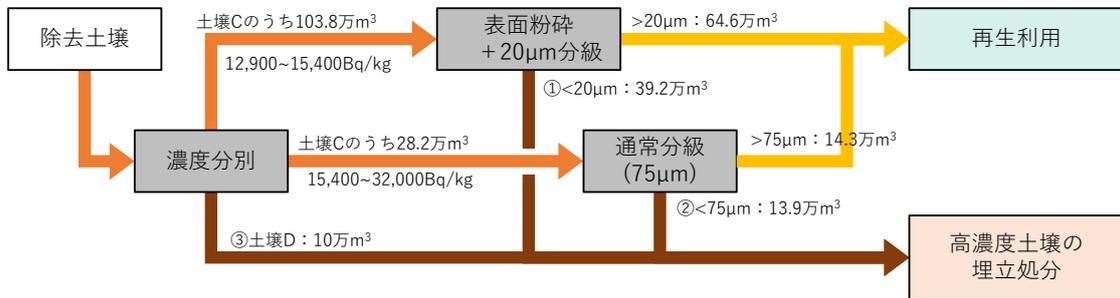


図-12 最終処分のシナリオ提案

減容化技術等検討 WG で示されたシナリオ (2)・(4) と、図-12 に示した最終処分のシナリオ提案について事業コストを試算した結果を表-7 に示す。熱処理は高コストであるため、他のシナリオと比べてシナリオ (4) は事業コストが高くなる。

シナリオ (2) と R6 案を比較すると、R6 案では表面粉碎材による分級および分級点の小粒径化を適用したことで処理コストはやや高くなり、事業コストは約 4.7% 増となる。しかしながら生成した 20~75μm も再生利用することで高濃度埋立数量を削減することが可能となり、埋立の数量をシナリオ (2) : (65.0+10.0)=75.0 万 m³ に対して R6 案では (13.9+10.0+39.2)=63.1 万 m³ となり、埋立の数量としては約 16% 削減可能となる。

表-7 事業コスト試算

分級処理方法	環境省シナリオ (2)				環境省シナリオ (4)				R6案			
	土壌C (万m ³)	土壌D (万m ³)	単価 (万円/m ³)	合計 (億円)	土壌C (万m ³)	土壌D (万m ³)	単価 (万円/m ³)	合計 (億円)	土壌C (万m ³)	土壌D (万m ³)	単価 (万円/m ³)	合計 (億円)
	通常分級 (75μm)								分級 (表面粉碎 + 分級点の小粒径化 : 20μm)			
全体	132.0	10.0	-	-	132.0	10.0	-	-	132.0	10.0	-	-
分級処理(75μm)	132.0	0.0	4.3	573	132.0	0.0	4.3	573	28.2	0.0	4.3	121
>75μm (低濃度、再生利用費)	67.0	0.0	7.0	469	67.0	0.0	7.0	469	14.3	0.0	7.0	100
<75μm (高濃度、熱処理費等)	0.0	0.0	44.1	0	65.0	10.0	44.1	3,305	0.0	0.0	44.1	0
<75μm (スラグ利用費)	0.0	0.0	5.2	0	65.0	10.0	5.2	393	0.0	0.0	5.2	0
<75μm (高濃度埋立費)	65.0	10.0	16.0	1,200					13.9	10.0	16.0	382
分級処理(20μm)									103.8	0.0	6.4	664
>20μm (低濃度、再生利用費)									64.6	0.0	7.0	452
<20μm (高濃度、熱処理費等)									0.0	0.0	44.1	0
<20μm (スラグ利用費)									0.0	0.0	5.2	0
<20μm (高濃度埋立費)									39.2	0.0	16.0	627
合計(億円)	2,242				4,740				2,347			