放射性セシウムで汚染されたバイオマスの アルカリ洗浄による除染効果

斎藤 祐二＊1・山本 哲史＊1・根岸 昌範＊2・高畑 陽＊2

Keywords : biomass, radioactive cesium, decontamination, alkali, treatment
バイオマス，放射性セシウム，除染，アルカリ，洗浄

1. はじめに

人の健康や生活への影響を速やかに低減する観点から，環境中に放出された放射性物質の除染は喫緊の課題となっている。すでに，周辺住民の被爆量が年間 1 ミリシーベルト以下を達成すべく，国や自治体の指導の下，住宅や道路，公共施設の除染が進められている。一方，農地や森林の除染は，その汚染範囲が広く膨大な処理量が予測されるため，今後の大きな課題として残されている。

平成 23 年 9 月の「市町村による除染実施ガイドライン」によれば，農地除染は汚染レベルに応じて表層剥ぎ取りや土壌撹拌，反転耕等が提示されている[1)]。一方，森林除染については未だ具体的な除染方法は提示されていないのが現状である。

本研究では，森林除染の一手法として，バイオマスのアルカリ洗浄に着目し，放射能汚染重点調査地域内から採取した放射性セシウム（Cs）汚染の枯葉，剪定枝，雑草のアルカリ洗浄試験を行い，その除染効果を検証したので報告する。

2. 洗浄による除染

焼却処理や加熱処理以外の放射性物質汚染物の除染方法として，重金属汚染土壌の浄化で適用されている洗浄処理が挙げられる。

洗浄処理としては，水による洗浄が一般的であるが，対象物質によっては酸を用いて洗浄する（酸洗浄）場合もある。以下に，酸洗浄を放射性 Cs 汚染土壌またはバイオマスへ適用した場合のプロセス概要，並びに本研究で着目したアルカリ洗浄で推定される除染機構を示す。

2.1 酸洗浄

放射性 Cs 汚染土壌を対象とした酸洗浄による除染方法の概要を図-1 に示す。

Cs はアルカリ金属であるため酸に可溶であることから，酸洗浄により汚染土壌から放射性 Cs を溶出させる。次に，水溶性となった放射性 Cs をゼオライト等の吸着材で処理し，吸着・固定するものである。また，除染された土壌は，その残存線量レベルに応じて適正処分されることとなる。

一方，汚染バイオマスを対象とした場合には，バイオマスから酸可溶性の有機成分が多量に溶出するため，これらによって後段の吸着反応が阻害されるだけでなく，廃液処理が困難となることが懸念される。また，酸による設備腐食も課題である。

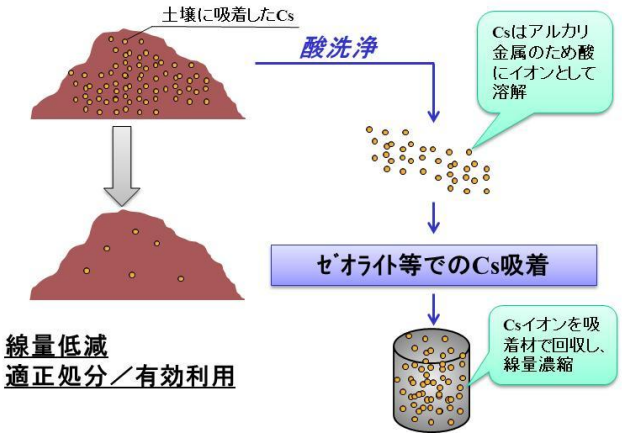

図-1 酸洗浄での除染
Fig.1 Decontamination mechanism of the acid treatment

＊1 技術センター 建築技術研究所 環境研究室
＊2 技術センター 土木技術研究所 地盤・岩盤研究室

2.2 アルカリ洗浄

現在のところ，放射性物質で汚染されたバイオマスのアルカリ洗浄による除染の事例はない。ただし，放射性 Cs のバイオマスへの吸着形態やバイオマスのアルカリによる浸食特性から，以下のような除染機構が推定される。

大気から降り注いだ放射性 Cs の多くは，バイオマス表面に吸着していると考えられる。現在までバイオマスへの放射性物質の吸着特性についての明確な研究はないが，津村ら [2] は，バイオマスの主要成分であるリグニンに質量数 137 のセシウム（Cs-137）を混合したところ，水溶性 Cs-137 が 12.2%，置換態 Cs-137 が 68.8%，固定態 Cs-137 が 31.2%となり，リグニンへの高い吸着性があることを示唆している。

リグニンの一部はアルカリ加水分解性を持つため，図-2 に示すように，汚染バイオマスをアルカリで処理することにより，放射性 Cs が吸着したバイオマス表面の組織が浸食されると考えられる。これにより，浸食されたバイオマス表面部分は放射性 Cs を吸着したままバイオマスから液中に離脱する。次に，バイオマスから離脱した表面組織を汚泥として回収することにより，放射性 Cs を汚泥に濃縮させることができると考えられる。

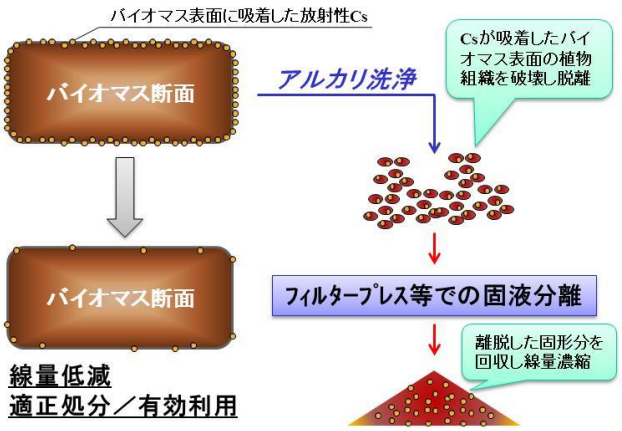

図-2 推定されるアルカリ洗浄の除染機構
Fig.2 Decontamination mechanism of the alkali treatmnet

このようなアルカリ洗浄による除染機構が成立すれば，アルカリ洗浄では酸洗浄で必要となる吸着材が不要となり，さらには従来の泥水処理のプロセスを応用することができる。また，酸洗浄と比較して廃液処理が容易であり，腐食トラブルのリスクも少ない。さらには，除染サイトに処理設備を構築することによって，オンサイトでの除染も期待できる。

そこで，本研究では，上述のようなアルカリ洗浄による除染機構を検証すべく，実際に放射性 Cs で汚染された枯葉，剪定枝，雑草を用いて，以下の基礎的実験を行った。

3. 実 験

3.1 実験材料

放射能汚染重点調査地域内から採取した枯葉，剪定枝，雑草を用いた。枯葉については 5mm 目開きのステンレス篩を用いて水道水で洗浄しながら 5mm オーバー分を回収し実験に用いた。剪定枝は径 1～1.5cm のものを選定し，長さ 20cm 程度に裁断したものを用いた。また，雑草は剪定鋏で 5cm 程度に裁断したものを用いた。

このように前処理した各試験試料の放射線量を Ge（ゲルマニウム）半導体検出器による γ 線スペクトロメトリーで定量した。また，各々の含水率を JIS A 1203 に準じて測定した。その結果，表-1 に示すようにいずれも放射性物質として，放射性同位体である質量数 134 のセシウム（Cs-134）及び質量数 137 のセシウム（Cs-137）が検出され，乾燥重量当りの放射線量は枯葉で 16,327 Bq/kg，剪定枝で 7,075 Bq/kg，雑草で 3,226 Bq/kg であった。

表-1 各試験試料の含水率と乾燥重量当りの放射線量
Table 1 Water content, and dose of radiation per dry weight

試験試料	含水率 (%)	Cs-134 (Bq/kg)	Cs-137 (Bq/kg)	Total (Bq/kg)
枯葉	75.5	6,122	10,204	16,327
剪定枝	16.6	2,758	4,317	7,075
雑草	81.4	1,183	2,043	3,226

3.2 実験方法

各試験試料のアルカリ洗浄試験を以下の方法に準じて行った。

3.2.1 枯 葉

1Lガラス製ビーカー4本に水洗浄した 5mm オーバーの試験試料の枯葉を 50g ずつ入れるとともに，表-2 に示す各洗浄液を 800mL ずつ混合した。各ビーカーをジャーテスターにセットし，室温にて撹拌を行った。19 時間経過後，2mm 目開きのステンレス製篩に各ビーカーのスラリーを通し，固層分と濁水に分離した。

固層分については，水分が十分切れた段階で分析用サンプルとした。濁水については，pH を塩酸にて 7.0 に中和した後，ポリグルタミン酸系凝集剤（日本ポリグル社製凝集剤）をフロックが形成できるまで撹拌し

ながら添加した。その後，1μm フィルターでろ液と汚泥に分離した。

以上の操作で得られた固層分，ろ液、汚泥を分析用サンプルとした。

表-2　枯葉除染試験に用いた洗浄液
Table 2　Washing fluid used for the decontamination experiment of the dead leaf

No.	洗浄液
1	水道水
2	1.5g-NaOH/L
3	3.0g-NaOH/L
4	6.0g-NaOH/L

3.2.2　剪定枝

長さ 20cm に裁断した試験試料の剪定枝を 5L プラスチック製ジョッキー2 本に各々275g ずつ入れた。さらに，各ジョッキーに表-3 に示す洗浄液を 4L ずつ混合した。18 時間室温で静置した後，各ジョッキーから剪定枝を別のジョッキーに取り出した。これに水道水を 4L ずつ入れ，攪拌機にて 5 分間水洗浄を行った（30rpm）。

水洗浄した剪定枝を取り出し天日乾燥させた。十分な乾燥を確認した後，直径 1cm 程度にチップ化し，分析用サンプルとした。

表-3　剪定枝除染試験に用いた洗浄液
Table 3　Washing fluid used for the decontamination experiment of the pruning branch

No.	洗浄液
5	水道水
6	55g-NaOH/L

3.2.3　雑　草

1Ｌガラス製ビーカー3 本に試験試料の雑草を 50g ずつ入れ，表-4 に示す各洗浄溶液を 800mL ずつ混合した。

No.9 で用いた A 社アルカリ洗浄剤は，油脂剥離剤として用いられている市販の洗浄剤であり，pH12 のアルカリで、かつ界面活性剤としてエチレングリコールモノブチルエーテルを含んでいる。No.9 の試験では，この洗浄剤を水道水で 4 倍希釈したものを洗浄液として用いた。

各ビーカーをジャーテスターに設置し，18 時間室温で撹拌処理を行った。その後，2mm 目開きのステンレス製篩に各ビーカーのサンプルを通した。

分離された固層分を回収し，水分が十分切れた段階で分析用サンプルとした。

表-4　雑草除染試験に用いた洗浄液
Table 4　Washing fluid used for the decontamination experiment of weeds

No.	洗浄液
7	水道水
8	1.5g-NaOH/L
9	A 社アルカリ洗浄剤

4.　実験結果

4.1　枯葉の除染

表-5 に，各洗浄液で 19 時間洗浄処理した固層分の湿重量，含水率，乾燥重量を示す。

含水率は水洗浄した No.1 で 78.5%であったが，NaOH 水溶液で洗浄した No.2，No.3，No.4 ではいずれも含水率が上昇した。

バイオマスを NaOH で処理した場合，バイオマスを膨潤させることが知られており[3)]、組織内部まで水が浸透し易い環境となったためと考えられる。一方，洗浄後に回収した固形分の乾燥重量を比較すると，水洗浄した No.1 では 13.08g であったが，NaOH 水溶液で洗浄した No.2，No.3、No.4 では各々10.36g, 11.36g，12.79g と低下した。これらの値にはバラツキはあるものの，NaOH によってバイオマスのアルカリ浸食が生じ，リグニン等の可溶化が促進され，回収量が低下したと考えられる。

表-5　固層分の乾燥重量及び含水率
Table 5　Dry weight and water content for solid fraction

No.	湿重量 (g)	含水率 (%)	乾燥重量 (g)
1	60.86	78.5	13.08
2	60.60	82.9	10.36
3	67.61	83.2	11.36
4	63.62	79.9	12.79

表-6 には，濁水の乾燥重量当りの放射線量の測定結果を示す。

供試枯葉の放射線量は乾燥重量当り 16,327 Bq/kg であったが，水洗浄した No.1 では残存線量が 7,163Bq/kg となり，56.1%の線量低減となった。一方，NaOH 水溶液で洗浄した No.2，No.3，No.4 では，いずれも線量低減が向上し，No.2 の条件で 70.3%と

最も高い低減率となった。

表-6　固層分の放射線量（乾燥ベース）
Table 6　Dose of radiation for solid fraction(dry base)

No.	Cs-134 (Bq/kg)	Cs-137 (Bq/kg)	Total (Bq/kg)	低減率 (%)
供試体	6,122	10,204	16,327	—
1	2,977	4,186	7,163	56.1
2	1,988	2,865	4,854	70.3
3	1,905	2,976	4,881	70.1
4	2,189	3,184	5,376	67.1

表-7 には，濁水から分離したろ液及び乾燥汚泥重量当りの放射線量の測定結果を示す。ろ液の放射線量はいずれのサンプルとも検出下限未満であった。一方，汚泥に関しては，水洗浄した No.1 で乾燥重量当り 75,000 Bq/kg となった。さらに，NaOH 水溶液で洗浄した No.2，3，4 では，No.1 で検出された放射線量よりも低い結果となった。

今回の試験では、各処理条件で回収した汚泥が極少量であったため重量を計測できていないが，アルカリを用いた洗浄では，放射性 Cs が吸着している部位だけではなく非吸着部位も浸食され，汚泥の発生量が増加したと考えられる。その結果，表-7 のように水洗浄で得られた汚泥の放射線量よりもアルカリ洗浄で得られた汚泥の放射線量が相対的に低下したものと考えられる。

以上のように，アルカリ洗浄は，放射性 Cs の除染効果があることがわかった。ただし，NaOH 濃度が高濃度になると，バイオマスの非汚染部分の浸食も促進すると考えられ，対象とするバイオマスの種類，汚染レベルに応じた適正濃度を把握することが必要であることがわかった。

表-7　ろ液及び汚泥の放射線量（Bq/kg）
Table 7　The filtered liquid and the dose of radiation of sludge (Bq/kg)

No.	ろ液		汚泥		
	Cs-134	Cs-137	Cs-134	Cs-137	Total
1	<7	<7	31,000	44,000	75,000
2	<7	<6	24,000	36,000	60,000
3	<7	<10	23,000	38,000	61,000
4	<8	<6	19,000	27,000	46,000

4.2　剪定枝の除染

写真-1 に実験に用いた剪定枝を，写真-2 にはこれを 20cm 長に裁断し，水道水（写真-2 No.5），55g-NaOH/L 水溶液（写真-2 No.6）に 18 時間浸漬した後の様子を示す。

水道水に浸漬した No.5 の場合には，溶液の色が若干黄色に変化したが，55g-NaOH/L 水溶液に浸漬した No.6 では，溶液が褐色となった。これは，剪定枝の表層，特に樹皮部に存在するリグニンがアルカリによって浸食され溶出したものと考えられる。

写真-1　実験に用いた剪定枝
Photo.1　Pruning branch used for the experiment

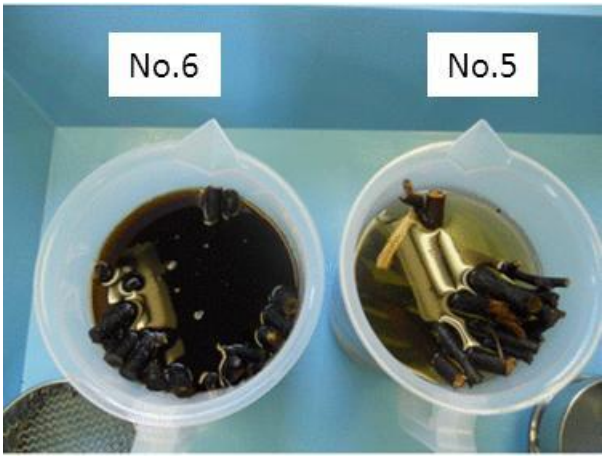

写真-2　18 時間浸漬処理後の様子
Photo.2　Situation after 18-hour immersion treatment

図-3 には，18 時間浸漬処理した後に各溶液から剪定枝を回収し、水洗浄した後の剪定枝乾燥重量当りの放射線量を示す。浸漬処理前の剪定枝は，乾燥重量当り Cs-134 が 2,758 Bq/kg，Cs-137 が 4,317 Bq/kg 検出され，Total 7,074 Bq/kg の放射線量であった。これを水道水及び NaOH 水溶液に浸漬処理することによって，各々の

放射線量は乾燥重量当り Total 5,090 Bq/kg，2,482 Bq/kg となった。この結果，水浸漬で 28%，NaOH 浸漬では 65%の線量低減となり，水浸漬に比較して NaOH 浸漬による除染効果は非常に大きいことがわかった。

剪定枝の樹皮を構成する主要成分はリグニンと考えられ，前述のように Cs はリグニンへの高い吸着性を持つ [2] ことから，水浸漬と比較してアルカリ浸漬は，高い線量低減を示したものと考えられる。

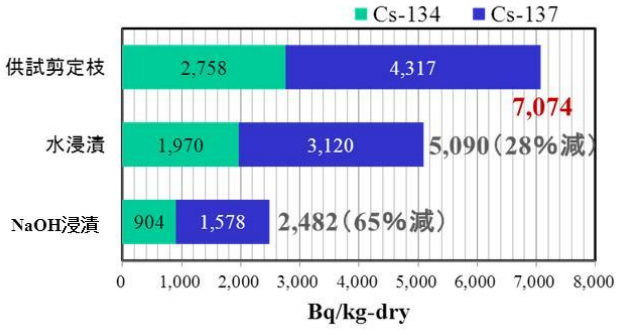

図-3　剪定枝の除染結果
Fig.3　Decontamination result of the pruning branch

4.3　雑草の除染

写真-3 に，雑草の洗浄実験 18 時間後の様子を示す。水道水で洗浄処理した条件（写真-3 No.7）では，溶液の色はほとんど変化しなかったが，1.5g-NaOH/L 水溶液（写真-3 No.8）及び A 社アルカリ洗浄剤で処理した条件（写真-3 No.9）では洗浄液が褐色に変化した。ただし，洗浄終了後に回収した雑草の様子を見ると，写真-4（No.8）に示すように，形態そのものはいずれの条件でも維持されていた。

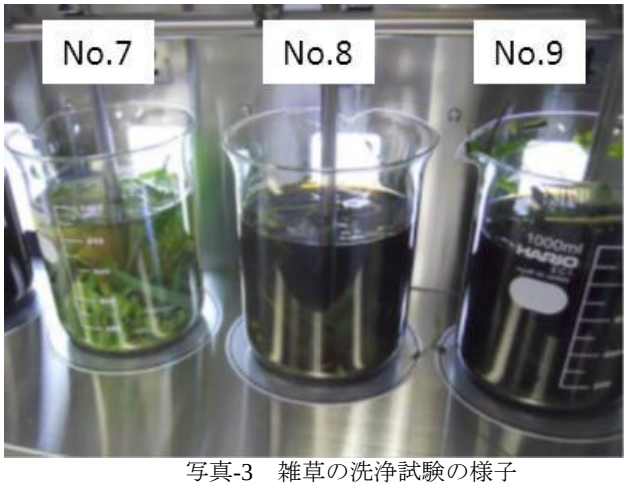

写真-3　雑草の洗浄試験の様子
Photo.3　Situation of the cleaning test of weeds

写真-4　アルカリ洗浄後の雑草（No.8）
Photo.4　Weeds after alkali treatment（No.8）

図-4 に各洗浄液による雑草の除染結果を示す。供試雑草の乾燥重量当りの放射線量は，Cs-134 で 1,183 Bq/kg，Cs-137 で 2,43 Bq/kg であり，Total 3,226 Bq/kg であった。一方，水洗浄後では Total 1,268 Bq/kg，1.5g-NaOH/L 水溶液での洗浄では Total 490 Bq/kg，A 社アルカリ洗浄剤での洗浄では検出下限未満となった。

なお、線量測定で用いた Ge 半導体検出器でのサンプル量（湿重 50g）と分析機器の検出下限値から推定すると，A 社アルカリ洗浄剤で洗浄した雑草の線量は，乾燥重量当り 340Bq/kg 未満となる。これより，各条件での線量低減率を求めると，水洗浄で 61%，NaOH 洗浄では 85%，A 社アルカリ洗浄剤では 89%超の線量低減となり，雑草においては，枯葉や剪定枝と比較して，水洗浄，NaOH 洗浄とも高い除染効果が得られた。特に，界面活性剤を含有するアルカリ性の洗浄剤（A 社アルカリ洗浄剤）を用いた場合には，極めて高い除染効果が確認され，湿重量に換算した場合にはクリアランスレベル 100Bq/kg を下回る結果となった。

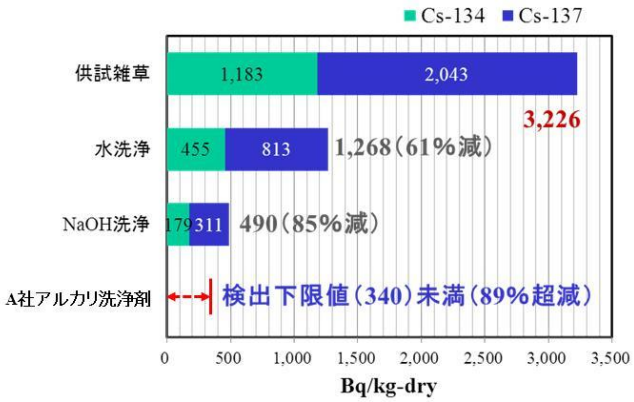

図-4　雑草の除染結果
Fig.4　Decontamination result of weeds

5. 考 察

Cs はアルカリ金属であり，環境から除去するには酸でイオン化させ，その後ゼオライトやプルシアンブルー等の吸着剤に濃縮させるのが一般的な考えである。しかし，土壌やバイオマスに混入した放射性 Cs は土壌のケイ酸層[4]やバイオマスのリグニン[2]に強固に吸着しており，酸処理でも放射性 Cs を十分溶出させることができず，高い除染率は得られないのが実状である。一方、本実験で示したとおり，枯葉，剪定枝，雑草等のバイオマスは，アルカリ洗浄によって高い除染効果が得られることが明らかとなった。これは，図-2 に示したとおり，放射性 Cs が吸着していると考えられるバイオマス表面部分がアルカリで浸食され，バイオマスから離脱することにより除染されるものである。さらに，放射性 Cs はアルカリ洗浄で溶液に溶解することなく，離脱した表面部分に吸着していることから，洗浄液から離脱成分を分離することによって，放射線量を汚泥に濃縮できることが明らかとなった。

6. 提案システム

アルカリによる洗浄処理は，酸洗浄で必要な吸着剤が不要であるだけでなく，いわゆる泥水処理プラントを基本として除染システムを構築することができる。

図-5 に，汚染木材を例とした除染プロセスを示す。

汚染木材をアルカリ処理槽にて NaOH 水溶液と接触させることにより，放射性 Cs が吸着した木材表面部分が浸食される。これにより発生した濁水は次工程の凝集沈殿処理及び脱水処理工程に送られ，放射性 Cs が吸着した汚泥が濃縮回収される。

回収された脱水ケーキは仮置場等に一時保管された後，中間貯蔵施設へ搬入される。また，脱水工程で分離されたろ液は放射線量が未検出となり，次のアルカリ処理に再利用される。

アルカリ処理で放射線量が低減した木材は，残留線量に応じて適正処分または再利用されることとなる。なお，現状では指定廃棄物基準値 8,000Bq/kg を下回れば既存の管理型最終処分場等に埋立処分が可能となる[5]。また，400Bq/kg 以下では堆肥利用[6]が可能となり，100Bq/kg 以下であればクリアランスレベル[7]を下回り、非汚染物として取り扱うことができる。

以上の提案システムについては，今後実証を行い，その実用性を評価する予定である。

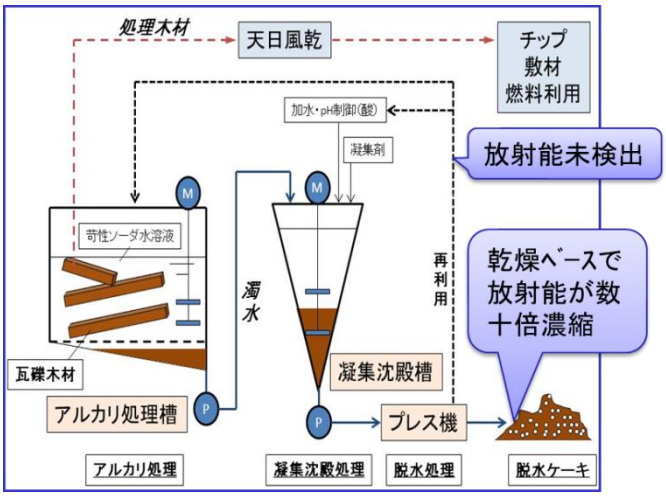

図-5 アルカリ洗浄による除染システム
Fig.5 The decontamination process of the alkali treatment

7. おわりに

本研究では，森林除染を目的に，新たな除染方法としてアルカリ洗浄に着目し，その可能性を実汚染バイオマスを用いて検証した。実用には，バイオマスの種類や汚染レベルに応じた最適条件の把握と実スケールでの性能把握が必要である。今後，実験により最適条件の知見を集積するとともに，具体的な除染プロセスの確定及びその効果を検証して行く予定である。

参考文献

1) 原子力対策本部：市町村による除染実施ガイドライン，平成 23 年 9 月.
2) 津村，駒村，小林：土壌及び土壌-植物系における放射性ストロンチウムとセシウムの挙動に関する研究，農技研報 B，36，p.57-113，1984.
3) 石倉，中野：アルカリ処理による木材中のミクロフィブリル収縮，Journal of Wood Science, 53(2) ，p.171-177，2007.
4) 中尾：放射性汚染土壌の環境修復を目指して，平成 23 年度日本農学会シンポジウム「環境の保全と修復に貢献する農学研究」
5) 環境省：福島県内の災害廃棄物の処理の方針（平成 23 年 6 月 23 日）.
6) 農林水産省：放射性セシウムを含む肥料・土壌改良資材・培土及び資料の暫定許容値について
7) 環境省：広域処理ガイドライン「災害廃棄物の広域処理の推進について」（平成 23 年 8 月 11 日（平成 24 年 1 月 11 日一部改訂））