

解 説

放射性物質を含む木質系廃棄物の安全な処理

横田 かほり^a, 小川 秀樹^{a,b}, 新井 志緒^a, 中村 立子^a, 吉田 博久^a

^a 首都大学東京 都市環境科学研究科

^b 福島県林業研究センター

(受取日: 2015 年 10 月 29 日, 受理日: 2015 年 11 月 16 日)

Safe Decontamination of Forestry and Agricultural Wastes Including Radiocesium

Kahori Yokota^a, Hideki Ogawa^{a,b}, Shio Arai^a, Ritsuko Nakamura^a, Hirohisa Yoshida^a

^a Graduate School of Urban Environmental Science, Tokyo Metropolitan University

^b Fukushima Prefectural Forestry Research Center

(Received Oct.29, 2015; Accepted Nov. 16, 2015)

Safe decontamination combustion system for forestry and agricultural waste including radiocesium, caused by Fukushima Nuclear Power Plant accident, was developed and the demonstration combustion test of contaminated forestry wastes was carried out. Thermal decomposition behaviors of contaminated biomass, cedar leaves, bark, sapwood and pine leaves were investigated by TG/DTA-FTIR. The laboratory scale combustion test of contaminated cedar bark (10 g) was carried out at 300 – 900 °C. Mass and radiocesium balances were evaluated, 30 - 35 % of radiocesium in bark evaporated by combustion above 500 °C. Gaseous radiocesium was trapped efficiently by water. The mass and radiocesium balances of demonstration test for contaminated forestry waste (6 kg) were evaluated. 95 % of radiocesium in contaminated forestry wastes was retrieved by combustion gas extraction and ash.

Keywords: Radiocesium, Mass balance, Combustion, Ash, Gas extraction,



横田 かほり
Kahori Yokota
yokota-kahori@ed.tmu.ac.jp



小川 秀樹
Hideki Ogawa
ogawa_hideki_01@pref.fukushima.lg.jp



新井 志緒
Shio Arai
arai-shio@ed.tmu.ac.jp



中村 立子
Ritsuko Nakamura
ritsuk_n@tmu.ac.jp



吉田 博久
Hirohisa Yoshida
yoshida-hirohisa@tmu.ac.jp

1. はじめに

2011年3月11日の東日本大震災によって発生した東京電力福島第一原子力発電所の事故は、東日本一帯に放射性物質による環境汚染を引き起こした。地震発生から約1時間後の津波の第二波によって、福島第一原発の全電源が喪失し、その日のうちにメルトダウンに至った。12日に一号機のベンチレーションによって最初の放射性核種が環境中に放出され、その1時間後に水素爆発によって一号機建屋が損傷した。13日に三号機、14日に二号機の爆発が起こり、大量の放射性核種が放出された。¹⁾特に14日午前6時頃の二号機からの放出量が最大で、9時5分に第一原発正門のモニタリングポストで 11.93 mSv h^{-1} の空間線量を計測した。この値は原発事故前の空間線量の10万倍以上である。第一原発から250 km南西方向に離れた本学のRI研究施設のモニタリングポストでも、15日に二号機から放出された放射性物質による高い空間線量率（原発事故前の6倍）を検出している。²⁾環境中に排出された放射性ヨウ素は $1.6 \times 10^{17} \text{ Bq}$ 、放射性セシウムは ^{137}Cs 換算で $1.5 \sim 3.5 \times 10^{16} \text{ Bq}$ と見込まれ、³⁾チェルノブイリ事故に次ぐ規模である。2011年3月に福島第一原発周辺土壌からはテルル ^{129}Te 、 ^{132}Te 、ヨウ素 ^{131}I 、 ^{132}I 、セシウム ^{134}Cs 、 ^{136}Cs 、 ^{137}Cs 、バリウム ^{140}Ba 、ランタン ^{140}La が検出されていたが、⁴⁾半減期の短い核種は検出されなくなり2015年においては ^{134}Cs と ^{137}Cs が事故由来の主な放射性核種である。

福島第一原発から放出された放射性核種を含むプルームは主に三つの経路で東日本一帯を汚染した。⁵⁾第一の経路は、原発から福島沖を北上して宮城県から岩手県に向かうルートで、岩手県内で稲わらなどを直接汚染した。第二の経路は、福島沖を南下して千葉県から東京上空を経由するルートで、葉物野菜や東京都の金町浄水場の汚染を引き起こした。第三の経路は二号機から放出された大量の放射性核種が原発から北西方向の飯館村に向かうルートで、最も深刻な環境汚染を引き起こした。この経路は、飯館村、伊達市、福島市、二本松市、郡山市などの中通り地区ならびに阿武隈山系の森林を汚染した。

国は2011年4月11日に、福島第一原発から半径20 km圏内と葛尾村、浪江町、飯館村、川俣町の一部、南相馬市の一部を計画的避難区域に、広野町、楡葉町、川内村、田村市の一部、南相馬市の一部を緊急避難準備区域として住民を避難させた。さらに2011年4月21日に、福島第一原発から半径20 km圏内を警戒区域とし、立入を制限した。⁶⁾これらの設定基準となったのが、国際放射線防護委員会(ICRP)と国際原子力機関(IAEA)の緊急時被ばく状況における放射線防護基準値の年間 20 mSv の被ばく量である。この値は放射性物質や放射線を利用する放射線作業従事者の年間上限値で、空間線量率に換算すると $2.3 \mu\text{Sv h}^{-1}$ である。RI研究施設の管理区域は $2.6 \mu\text{Sv h}^{-1}$ でこれは短時間の滞在を想定した値であり、管理区域に出入りできるのは、放射性物質取扱いの教育と定期健康診断を課せられた放射線作業従事者のみである。⁷⁾暫定的とは言え放射線作業従事者を対象とした値が、子供を含めた一般の方々に長期間に渡って適用されている。

福島県の面積(1,378,000 ha)の70%が森林、11%が農地で、福島県の二大産業である林業と農業が営まれてきた。事故によって林業と農業は大きく停滞し、木材や農作物の出荷が制限されてきた。事故直後から福島県産農作物の放射性物質濃度計測が始まり、事故直後は直接汚染が原因であったが、多くの農作物が土壌にフォールアウトした放射性物質を吸収しにくいことが明らかになってきた。⁸⁾我々の研究室でも、事故直後から福島県伊達市の有機栽培農家グループが生産した野菜、果物、玄米の計測を始め、毎年

継続して農作物の放射性物質濃度を測定してきた。2011年産の農作物の多くから放射性セシウムが検出されたが、濃度は指数関数的に減少し、2013年にはほとんどの農作物の放射性セシウム濃度は装置の検出下限値(固体試料: 1 Bq kg^{-1} 、液体試料: 0.2 Bq kg^{-1})以下になっている。核種ごとの半減期に加え、植物の吸収抑制機能が働いていると考えられる。

農業に比べて林業への対応は、補償問題を含めて遅れている。事故後4年以上に渡り整備がされていない森林が阿武隈山地には多く、特に里山の荒廃が著しい。福島県では、比較的汚染が低い会津地方から間伐による森林管理を再開した。間伐では、森林1000 ha当たり30,000 m^3 の枝葉と15,000 m^3 の樹皮が発生すると言われている。これまでは枝葉は伐採した森林に放置して養分とした。樹皮は製材所などで発酵させて農業用堆肥として再利用されてきたが、原発事故後は放射性物質を含むため製材所で保管せざるを得なくなり、保管場所の確保が問題となっている。

福島県や東日本各地の自治体では、除染などによる廃棄物や燃焼灰、下水汚泥など8,000 Bq kg^{-1} 以上の放射性物質を含む廃棄物が大量に発生している。福島県で行われている除染の多くは表土と植相を剥ぎ取り、清浄土壌と交換する方法である。除染廃棄物(8,000~100,000 Bq kg^{-1})はポリエチレン製のフレコンバック(1 m^3)に詰めて、自治体の指定する仮置き場(Fig.1)に集められる。最終的には国が中間貯蔵施設に集め、減量化後に管理することになっているが、その用途は立っていない。除染廃棄物は土壌と植物で、国は減量化を燃焼で行うことを想定して、施設の建設を進めている。仮置き場での保管が長期化するに伴い、放射性物質の流出などの問題が起きていて、⁹⁾減量化の方法を含めた安全管理方法の早期確立が求められている。



Fig.1 Temporary storage facility of contaminated wastes. The contaminated wastes packed in polyethylene flexible containers were piled up and covered by waterproof rubber sheet.

我々は、製材所に設置されている端材などの燃焼炉(発熱量:100~500 kW)を利用して、放射性物質を含む木質系廃棄物(バイオマス)を燃焼する際に発生する燃焼ガスと燃焼灰を、安全に処理するシステムを福島県林業研究センターと開発し、¹⁰⁾実証試験を行ってきた。実証試験に至るまでに、実験室スケールの燃焼試験での物質収支と放射性セシウム収支の評価、燃焼ガスや燃焼灰に含まれる放射性セシウムの処理方法を検討してきた。本稿では、事故後の4年半に行ってきた我々のグループの研究を中心に述べる。

2. 樹木の汚染経路

我々は、原発事故由来の放射性物質の森林ならびに樹木

の汚染経路ならびに動態を調査してきた。¹¹⁾ 2011 年に福島県林業研究センターのスギ林（空間線量率 $2 \mu\text{Sv h}^{-1}$ ）での樹木の表面汚染密度調査から、樹木の汚染は放射性プルームが流れてきた北側が高く、樹木の立地条件、樹高などの影響を強く受けることが明らかになった。スギ林の北側林縁にある樹高約 20 m のスギを伐採して、各部位（葉、樹皮、辺材、心材）の高さならびに方位毎に放射性セシウム濃度を測定した。樹冠部の葉と樹皮の放射性セシウム濃度は乾燥質量あたり $10,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ であった。葉の放射性セシウム濃度は高さ 15 m 以下では $50,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ 程度で一定であったが、樹皮は葉のある 8~17 m では葉の遮蔽効果で $500 \sim 1,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ と樹冠部よりも低くなり、地表部では $5,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ と高くなる。地中の根の濃度は $4,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ で根周辺の土壌と同様な値であった。¹²⁾

辺材の放射性セシウム濃度は樹冠に近い 17 m の北側が最も高く 30 Bq kg^{-1} で同じ高さの南側辺材は 15 Bq kg^{-1} であった。葉による遮蔽効果が見られた樹高 10 m では辺材、心材ともに放射性セシウムは検出下限値 (1 Bq kg^{-1}) 以下であった。地表部の北側辺材から 28 Bq kg^{-1} 、南側辺材から 8~10 Bq kg^{-1} が、樹高 5 m では北側辺材のみから 25 Bq kg^{-1} が検出された。辺材の放射性セシウム濃度は葉や樹皮よりも二桁以下の値で樹冠に近い高さを除けば心材からは検出されていない。また、葉や樹皮と同様に辺材の濃度には方位性が見られ、事故直後に放射性プルームが流れてきた方角の濃度が高い。¹³⁾

樹体内部の汚染がどのように生じているかは、将来の樹木の汚染がどのように変化するかを予測する上で重要である。植物の放射性物質による汚染は、フォールアウトによる外部の直接汚染、葉面吸収による汚染、経根吸収による汚染が考えられる。2011 年 8 月に避難区域（空間線量率 $6 \mu\text{Sv h}^{-1}$ ）の森林から伐採したスギ（樹高約 20 m）の高さ 17 m の幹断面のイメージングプレート (IP) 画像を Fig.2 に示す。色の濃い部分が放射性物質からの γ 線で感光した部分である。樹皮と心材に放射性物質が存在し、樹皮の濃度は方位性が認められるが、心材はほぼ均一な分布をしており辺材よりも高濃度である。このスギ林には北東方向から放射性プルームが流れてきていて、樹皮は北東方向が汚染されている。この樹高の放射性セシウム濃度は、葉と樹皮が 200 kBq kg^{-1} 、心材が 4.5 kBq kg^{-1} 、辺材が 1.9 kBq kg^{-1} であった。いずれの部位からも放射性カリウム (^{40}K) は検出されず、心材が放射性セシウムで汚染されていることが判った。

経根吸収や葉面吸収では導管を經由して樹体全体に放射性セシウムが分布すると予想され、辺材の放射性セシウム濃度の方位性を説明するには、他の吸収経路を考える必要がある。スギ立木の小枝にスポンジに吸収させた非放射性の塩化セシウム 0.1 mmol 水溶液を 3 日間巻き付け水で洗浄後にその部分を採取した。SPRING-8（高輝度光科学研究セ

ンター、兵庫）の BL19B2 で小枝の X 線イメージングを、BL37XU で組織の蛍光 X 線分析を行った。イメージング像と $\text{Cs}\alpha$ (30.857 keV) の分布を Fig.3 に示す。 Cs の K 吸収端を挟むエネルギーの X 線で得たイメージング像の差から樹体内の Cs 分布解析を試みたが、 Cs 濃度が低かったため解像度の良い解析はできなかった。一方、蛍光 X 線測定では樹皮表面の Cs は洗い落されていたが、樹体内の形成層に最も多く分布していることが明らかになった。この結果は Cs が樹皮を経由して樹体内に浸透することを示唆しており、初期の汚染では葉面吸収に加えて若い枝の樹皮を経由した吸収が起こったと考えられる。

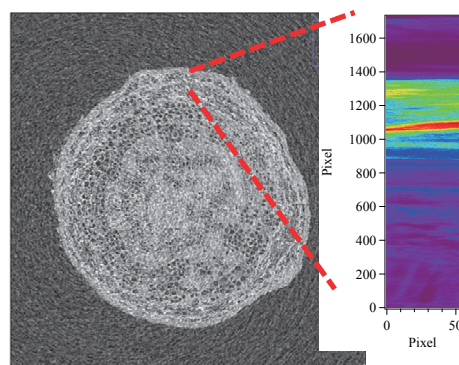


Fig.3 X-ray tomographic image (left) and cesium distribution (right) in twig of Japanese cedar prepared by wrapping 0.1 mmol CsCl solution on twig surface for 3 days.

2013 年に伐採したスギとヒノキの樹体内の放射性セシウム分布を年輪毎に調べ、放射性セシウムが辺材から心材へ移行している過程であることが明らかになった。¹⁴⁾ 2011 年から 2013 年にスギを県内 5 ヶ所の森林で伐採し、各部位の放射能濃度から、同一森林における放射性セシウム分布の経時変化を観察した結果、放射性セシウム分布は 2011 年には樹冠部が高いが 2012 年には樹木の上から下へ、辺材から心材への移行が観察された。¹⁵⁾ 2013 年には移行速度が遅くなり、心材の濃度と辺材の濃度が等しくなりつつあり、放射性セシウム分布が樹体内で均一化に向かっていると考えられる。初期の葉面吸収、経樹皮吸収に加え、高濃度汚染地区では経根吸収も生じている可能性も考える必要がある。

土壌に吸着している放射性セシウムの状態が今後の樹木の経根吸収の動向を決めると考えられる。一部の粘土鉱物では陽イオンがセシウムとイオン交換すると間隔が狭くなり、セシウムは安定な複合体を形成する。一般的な土壌粒子への放射性セシウムの吸着は分配によって生じていると考えられ、酸性雨など土壌の状況によって植物が吸収可能なイオン体へ変化する可能性がある。また、植物は養分が不足すると根から酸を出して土壌中のミネラルや養分を取り込む機能を発揮する。我々が飯館村で 2013 年に行ったブラックベリー栽培試験では、放射性セシウム濃度が $60,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ の土壌でも廃キノコ菌床を有機成分として用いた場合は、子実体の放射性セシウム濃度は最大で 9 Bq kg^{-1} でほとんどは検出下限値以下であったのに対し、廃キノコ菌床を用いない土壌で栽培した子実体は平均で 20 Bq kg^{-1} の放射性セシウムを含んでいた。

森林内の放射性セシウムの移動は、風雨による落葉や土壌粒子の流動によって生じている。¹⁶⁾ 将来の樹木の放射性セシウム分布の変化は経根吸収が活発に起こるかどうかによって大きく変化する。落葉の生分解による放射性セシウムの状態変化など森林内の生態系を含めた放射性セシウムの動態解析が、樹木の汚染予測には必要になる。

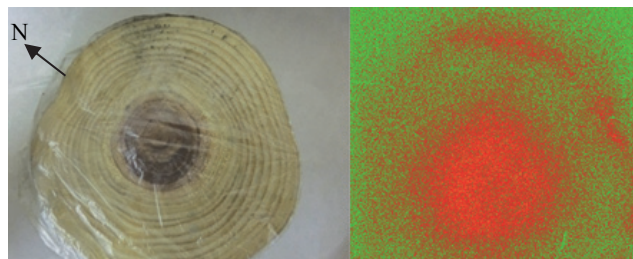


Fig.2 Cross sectional view (left) and radioulnar distribution (right) of Japanese cedar tree obtained at Yamakiya area at August 2011.

3. 木質バイオマスの熱分解

放射性物質で汚染されたバイオマスを減量化するためには、燃焼による方法と発酵による方法がある。どちらの場合も減量化によって放射性セシウムがどのような経路で濃縮されるかを明らかにし、環境中への放出を防がなくてはならない。木質バイオマスの熱分解挙動を、熱重量測定／示差熱分析（日立ハイテクサイエンス社製 TG/DTA7200）に発生気体分析としてフーリエ変換赤外分光計（日本分光製 FTIR650, MCT 検出器）を接続して測定した。乾燥空気雰囲気ならびに乾燥窒素雰囲気での TG 曲線を Fig.4 に示す。200 °C 以下、200～400 °C、400 °C 以上の温度領域で質量減少が観察された。発生気体分析から 200 °C 以下では水と揮発成分の蒸発、200～400 °C では酸化雰囲気では二酸化炭素、水、炭化水素が、不活性雰囲気では一酸化炭素、アルコール、酸が発生した。400 °C 以上の温度領域では芳香族系炭化水素の発生が観察された。これらの結果は 200～400 °C では主にセルロース、ヘミセルロースの熱分解、400 °C 以上ではリグニンの熱分解が起こっていると考えられ、セルロースやリグニンの熱分解挙動とほぼ同様な結果であった。¹⁷⁾

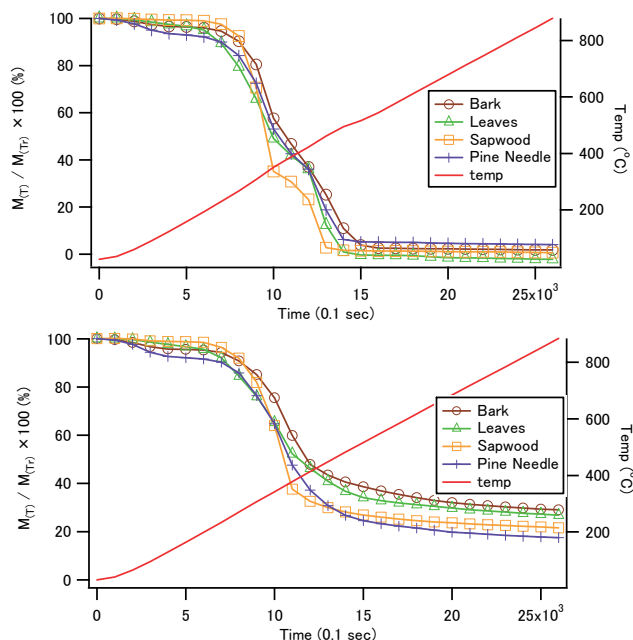


Fig.4 TG curves under air flow (upper) and nitrogen gas flow (lower) for cedar bark, leaves sapwood and pine needles at 5 K/min.

乾燥空気雰囲気での 800 °C と 890 °C の残渣はスギ辺材で 0.8, 0.6 %, スギ樹皮で 1.9, 1.7 %, スギ葉で 0.5, 0.4 % マツ葉で 4.2, 4.0 % であった。乾燥窒素雰囲気では 800 °C と 890 °C の残渣はスギ辺材で 22.4, 21.4 %, スギ樹皮で 29.8, 28.9 %, スギ葉で 27.7, 26.6 %, マツ葉で 18.2, 17.3 % であった。

4. 汚染樹皮の実験室スケール燃焼試験

放射性セシウムで汚染したスギ樹皮の燃焼試験を実験室スケールで行うため、ガラス製の燃焼装置を作成した。¹⁸⁾ 燃焼セルは石英ガラス製で雰囲気ガスの種類と流量を選択することが可能である。温度制御可能な電気炉に燃焼セルを設置し、燃焼ガスは氷水で冷却した後にアスピレータを利用した循環水で洗浄し、燃焼ガスに含まれる放射性物質

を回収するシステムである。アルミナ管のつばに放射性セシウム濃度を測定した樹皮 10 g を入れ、設定した燃焼温度まで 10 K min⁻¹ で昇温し設定温度に 30 分保持した。燃焼雰囲気は空気、アスピレータの吸引によって燃焼炉に供給される。

各燃焼温度での質量減少率ならびに放射性セシウム (¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs) 減少率を Fig.5 と Fig.6 に示す。質量ならびに放射性セシウムの減少率は、燃焼前後の樹皮と燃焼灰の質量ならびに ¹³⁴Cs と ¹³⁷Cs 濃度から求めた。質量減少率を酸化雰囲気ならびに不活性雰囲気での TG 曲線の質量減少率と比較すると、燃焼試験は空気雰囲気ですべて燃焼に近い条件で行われていたと考えられる。

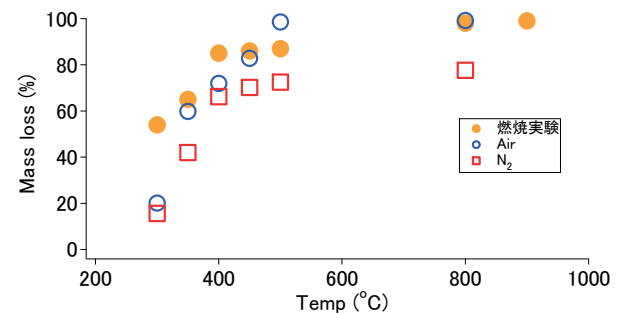


Fig.5 Mass loss at combustion test (closed circle) compared with TG experiment under air flow (open circle) and nitrogen gas flow (open square) at various combustion temperatures.

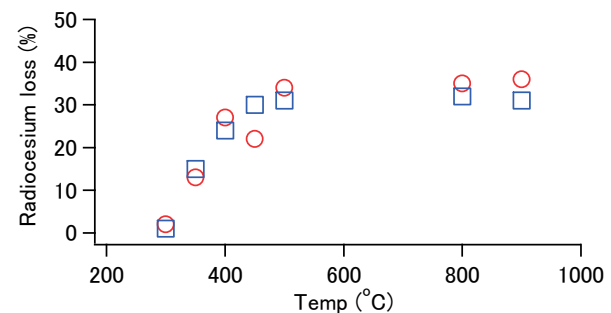


Fig.6 Radiocesium loss ¹³⁴Cs (open circle) and ¹³⁷Cs (open square) at various combustion temperatures.

放射性セシウムは ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs どちらも 400 °C までは燃焼温度が高くなると気化する量が増える。非放射性セシウムの蒸気圧 (0.011 Pa / 302 K) を考えると ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs も 100 °C では同程度の蒸気圧であると考えられる。TG 測定で示すように 200～400 °C ではヘミセルロースとセルロースの熱分解が起こる。放射性セシウムの気化量がこの温度範囲で燃焼温度に対して直線的に増加することから、植物に付着した放射性セシウムはセルロースなどの有機物と相互作用しているのではなく物理的な吸着と考えられる。リグニンの熱分解が生じる 500 °C 以上の燃焼温度では、気化する放射性セシウム量はほぼ一定の値となった。500～900 °C の燃焼温度で気化した ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs は樹皮に含まれていた量の 30～35 % になる。

300～900 °C の燃焼試験で発生した燃焼ガスは、氷水で冷却後に 2 L の水で全て洗浄した。氷水で冷却後の燃焼ガス温度は 80～100 °C で、燃焼ガス中の放射性セシウムを洗浄水で効率的にトラップするためには燃焼ガスの冷却が必要である。すべての燃焼試験終了後の洗浄水の放射性セシウム濃度は 153 Bq L⁻¹ (¹³⁷Cs: 90 Bq L⁻¹, ¹³⁴Cs: 63 Bq L⁻¹) であった。これは燃焼ガス中の ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs の 98 % に相当する。未回収の 2 % の ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs は冷却用ガラス容器に付着していると考えられる。

5. 燃焼システムの開発

実験室スケールの燃焼試験で次の知見を得た。① 木質バイオマスに含まれる放射性セシウムは 500℃以上の完全燃焼で 30～35%が気化する。② 気化した放射性セシウムは燃焼ガスを冷却した後に水洗浄で捕集することができる。③ 製材所などに設置されている燃焼炉の燃焼温度である 800～900℃で完全燃焼すると、燃焼灰への放射性セシウムの濃縮倍率は 25～32 倍である。④ 放射性セシウムを含む廃棄物を燃焼すると燃焼炉に放射性セシウムが残留する。

これらの知見を基に実証試験スケールの燃焼炉への設置を目指した燃焼ガス処理システムを設計した。¹⁰⁾ 一般的な燃焼炉の燃焼温度 800～900℃と発熱量 100 kWh を想定した設計である。燃焼ガス洗浄用の水は 550 L で、燃焼中は自然冷却で水温上昇を抑えることにした。発熱量が大きい場合は熱交換器か小型冷却器が必要になる。燃焼発熱量の大きいスギ樹皮や辺材であれば 1 時間当たり約 40 kg を燃焼処理できる条件である。

燃焼ガス処理システムの外観を Fig.7 に示す。¹⁰⁾ 処理システムは、燃焼ガス洗浄システム (I)、燃焼灰自動回収システム (II)、燃焼ガス洗浄水のろ過システム (III) と、各システムに接続する燃焼炉 (A)、燃焼ガス吸入煙道 (B)、スクラバー (C)、洗浄水用水槽 (D) で構成される。燃焼炉にはウッドストーブ 1630CB (Morsø社製, Finland) を用いた。燃焼炉の煙突に燃焼ガス処理システムへの導入口を装着し、燃焼ガスはスクラバーにおいてポンプで加圧された水流によって吸引・洗浄される。洗浄水は水槽に送られポンプで循環して洗浄を繰り返す。洗浄水は燃焼試験終了後にブルシアンプルーを担持したフィルター (E) でろ過して放射性セシウムを除去した。¹⁹⁾ このフィルターは効率的に放射性セシウムを吸着除去できるので洗浄水は再利用が可能である。²⁰⁾

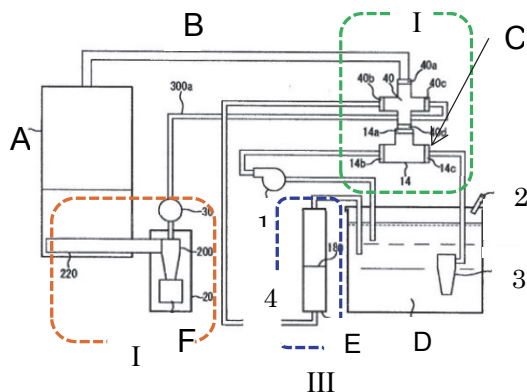


Fig.7 Schematic design of safe combustion system consisted of combustion smoke extraction system (I), ash enclosure system (II), swage water filter system (III), furnace (A), chimney (B), water scrubber absorbed smoke (C), water tank (D), sewage water filtrate column (E) and ash collecting apparatus (F).

スクラバーには上段に三口コネクターが接続していて、燃焼ガス、洗浄水ろ過システム、燃焼灰吸引システムが接続される。燃焼炉に入る全ての気体は洗浄水で洗浄後にシステム外部に排出される。外部排出口にはエアフィルターとヘパフィルターを設置し、実証試験終了後に各フィルターの放射性物質濃度を測定し、システム外部への放射性物質の漏えいを監視する。現段階では、燃焼ガス処理、洗浄水ろ過、燃焼灰処理は独立して行うが、燃焼ガス処理と洗浄水ろ過は同時に行うことができる。

6. 汚染木質バイオマスの燃焼実証試験

この燃焼システムを利用して、2012 年 2, 3 月に福島県林業研究センターで木質バイオマスの燃焼実証試験、2012 年 5 月に伊達市梁川町の農家で果樹剪定枝の燃焼実証試験を行った。木質バイオマスの燃焼での物質収支を得るための実証試験を、2014 年 3 月に福島県林業研究センターで 2 回実施した。²¹⁾ 1 回目はマツ葉 2.3 kg ($^{137}\text{Cs} + ^{134}\text{Cs}$: 22,000 Bq kg⁻¹) とスギ樹皮 1 kg ($^{137}\text{Cs} + ^{134}\text{Cs}$: 10,800 Bq kg⁻¹) で、2 回目はスギ樹皮 2.5 kg ($^{137}\text{Cs} + ^{134}\text{Cs}$: 15,000 Bq kg⁻¹) とスギ辺材 0.4 kg ($^{137}\text{Cs} + ^{134}\text{Cs}$: 50 Bq kg⁻¹) を用いた。これらの試料は燃焼前に 60℃で 3 日間乾燥させた。燃焼時間は 1 回目が 40 分、2 回目は 50 分であった。1 回目の燃焼開始時にはマツ葉から黒い煙が出ていて、燃焼温度が低い場合にはマツ葉は不完全燃焼であった。燃焼炉の温度が高くなると完全燃焼に近い条件で燃焼が進行した。赤外線放射温度計で測定した燃焼温度の変化は約 15 分で 400～700℃に上昇した。燃焼炉の外側温度は燃焼開始後 20 分で 150℃になり、その後はほぼ一定温度であった。

燃焼ガスは処理装置のスクラバーにおいて高速水流で洗浄した。燃焼試験時の外気温度は 4～6℃で水温は燃焼開始には 5℃であったが、燃焼終了後には 45℃になっていた。また 2 回の燃焼試験終了時には約 5 L の水が蒸発していた。燃焼ガス洗浄による熱エネルギーは 2.9 kWh と見込まれた。製材所などに設置されている小規模燃焼炉 (100～500 kWh) で木質バイオマスとして利用する場合、燃焼ガスの熱エネルギーを試料の乾燥に用いることが可能である。2 回の燃焼試験終了後に洗浄水タンク中の水の表面に、マツ葉の不完全燃焼によって生じたススが浮かんできた。燃焼試験終了後、1 晩放置して表面のススを回収した。燃焼炉とスクラバー間の煙道を解体し、内部に付着しているススを 100 L の水で回収した。洗浄水、スス、煙道洗浄水の放射性セシウム濃度を測定し、燃焼ガスに含まれる放射性セシウム量を求めた。

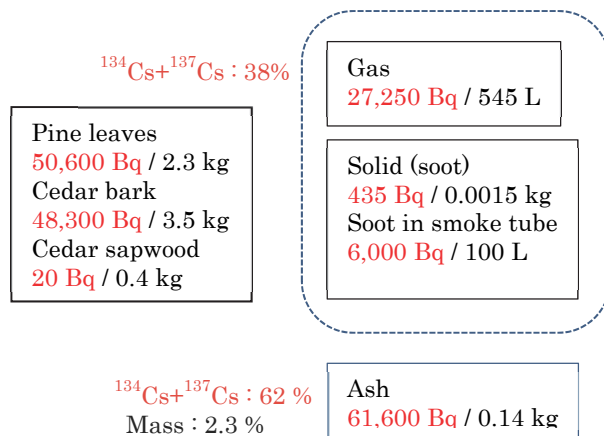


Fig.8 Radiocesium and mass balances of combustion tests for forestry wastes.

2 回の燃焼実証試験における放射性セシウムと質量の収支の概要を Fig.8 に示す。燃焼ガスならびに煙道に付着したススの回収は水を利用しているため、燃焼炉から流失した気体ならびに固体の放射性セシウムは、水に分散した状態で物質量を L で示している。木質バイオマスから燃焼によって気化した放射性セシウムは、煙道内部に付着したススに高濃度で吸着していた。ススは結晶化度が低く非晶性の活性炭として放射性セシウムを吸着したと考えられるが、現在放射性セシウムを吸着したススの構造解析を進めている。

2回の燃焼試験で木質廃棄物中の放射性セシウムの27%が気化したが水洗浄で回収することができた。燃焼ガスならびに煙道のスス燃焼初期の不完全燃焼時に発生し、質量は少ないが吸着している放射性セシウムは高濃度である。燃焼ガス中の放射性セシウムを含むススは実際の燃焼装置ではバグフィルターによって補足することが可能であるが、水洗浄方式の方が環境への放射性物質の放出を低減することが可能である。実証試験では木質バイオマスに含まれていた放射性セシウム(98,920 Bq)の96%が燃焼ガス処理水(33,685 Bq)と燃焼灰(61,600 Bq)として回収された。この差の放射性セシウムは、燃焼炉ならびに洗浄できなかった煙道に残存していると考えられる。

7. 燃焼ガス処理水の除染

燃焼ガスを洗浄した水には、燃焼に用いた木質バイオマス中の放射性セシウムの27%がセシウムイオンとして溶解し、放射性セシウムを吸着したススが分散している。ススへのイオン性セシウムの吸着は分配で生じると考えると、洗浄効果を維持するためには洗浄水中のセシウムイオンとススを燃焼・洗浄と同時に除去することが必要である。セシウムイオンを選択的に吸着する素材としてプルシアンブルー(PB)が知られていて、事故後に様々な担体にPBを担持した放射性セシウム吸着材が発表されているが、²²⁻²⁴⁾実用化に至った吸着材は少ない。PBが顔料であるため担体とは化学結合を形成せず、物理的な吸着で担持されているため、堅牢度が低く使用中に離脱するPBが多いことが理由である。

我々は、羊毛の高エネルギー表面層を反応場として利用してPB合成を行い、10~30 nmサイズのPB結晶を羊毛繊維表面に埋包した放射性セシウム吸着フィルターを開発した。^{25,26)} PBが羊毛表面の親水性キューティクル層に固定されているため、堅牢度は市販衣服の染色堅牢度と同じで、使用中にPBが離脱することはほとんど無い。5 gのPB担持羊毛フィルターを用いて、120 Bq L⁻¹の放射性セシウムを含む水を500 mL min⁻¹の流速でろ過すると1 Bq L⁻¹の濃度まで低減することが可能である。¹⁹⁾ このフィルター繊維300 gを用いてFig.8に示した545 Lと100 Lの洗浄水を2時間ろ過して放射性セシウム濃度を検出下限値(0.2 Bq L⁻¹)まで低下することができ、一般排水として処理した。

8. 燃焼灰の処理

2回の燃焼実証試験で発生した燃焼灰の質量は、燃焼した木質バイオマス質量の2.25%で、これは750℃での完全燃焼条件の残渣に相当する。赤外線放射温度計で測定した燃焼炉温度は最大で700℃であったが、実際の燃焼はそれよりも高い温度であったと考えられる。実証試験での質量減少と放射性セシウムの移行を考慮した燃焼灰への放射性セシウムの濃縮倍率は27.6倍で、これは実験室スケールの燃焼試験よりも多かった。¹⁸⁾

ブドウ剪定枝の焼却灰の透過型電子顕微鏡像(日本電子社製 JEM 3200FS, 300 kV)と蛍光X線分析結果(日立ハイテクサイエンス EA1200VX)をFig.9に示す。燃焼灰は長さ10~20 μm、幅0.5~1 μm程度の針状多面体結晶で、広角X線回折から主成分は酸化カルシウムで複数の結晶の混合物であった。蛍光X線分析から、最も多い成分元素はカルシウム(3.69 keV, CaKα)で、順にアルミニウム(1.487 keV, AlKα)、銅(8.0 keV, CuKα)、リン(2.01 keV, PKα)であった。含有量は少ないがガリウム(9.24 keV, GaKα)、鉄(6.38 keV, FeKα)、ホウ素(0.183 keV, BKα)、マンガン(5.89 keV, MnKα)、マグネシウム(1.25 keV, MgKα)、シリカ(1.74

keV, SiKα)、ストロンチウム(14.1 keV, SrKα)、亜鉛(8.63 keV, ZnKα)が含まれていた。²¹⁾ しかしセシウム(30.85 keV, CsKα)は検出されなかった。ブドウ剪定枝の焼却灰の440,000 Bq kg⁻¹(¹³⁷Cs: 255,800 Bq kg⁻¹, ¹³⁴Cs: 184,000 Bq kg⁻¹)は濃度換算すると0.8 ppbに相当し、放射性セシウムが微量で蛍光X線分析の検出限界値以下であることが要因と考えられる。これらの元素の内、カルシウム、リン、マグネシウム、マンガン、亜鉛は樹木組織由来の元素であるが、シリカなどの土壌由来の元素も検出されていて、樹皮に土壌粒子が付着していることを示す。

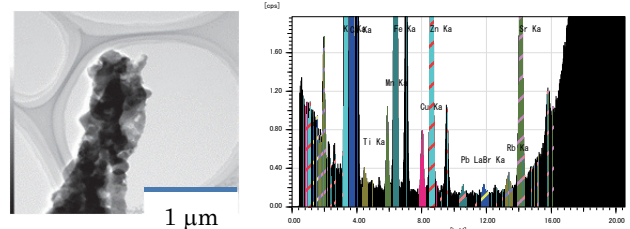


Fig.9 TEM image and X-ray fluorescence spectrum of combustion ash from pruned branch of grape.

燃焼灰は燃焼時や回収時に飛散しやすく、放射性物質が濃縮していることに加えてアスベスト状の形態から、作業者の被ばくと健康被害が懸念される。本システムでは、燃焼灰は燃焼炉の灰溜まりから減圧で集め帯電防止加工したポリエチレン袋に封じるまでを自動で行うようになっている。吸引した空気は燃焼ガスの洗浄システムで洗浄し、飛灰は洗浄水で補足し環境へ放出しないようになっている。各自治体では一般廃棄物の燃焼灰の一部で8,000 Bq kg⁻¹を超えるものがあり、長期保管を余儀なくされている。多くの保管施設では降雨を避けるようにしているが、長期保管で懸念されるのは放射性物質の環境への流出である。

異なるバイオマスの燃焼灰を水で抽出すると、燃焼灰中の放射性セシウムの35~40%が水に溶解する。焼却灰を水中で攪拌し1晩放置すると沈殿するので上澄みと沈殿した焼却灰を分離し、焼却灰沈殿物をプレスして板状に成型した。板状焼却灰を乾燥させた固形物を廃棄物として保管することで、飛散する可能性を低減することができる。

9. 福島の実業と農業の再生に向けた提案

原発事故によって環境中に放出された放射性物質は濃度に換算すると、食品規制値(100 Bq kg⁻¹)で10⁻²ppt以下、高濃度の廃棄物(>1,000,000 Bq kg⁻¹)でもppbオーダーである。放射性物質は色にもおいてもないことから、普段の生活では存在を意識することはない。2012年に警戒区域内で見た自然は以前のままなのに誰もいない景色を忘れることはできない。ラドンやカリウム⁴⁰Kなど自然の放射性物質や、1960年台の大気圏核実験で放出された¹³⁷Csも世界中で観察されている。原発由来の放射性物質であることを示す指標は¹³⁴Csであるが、半減期が2年であるため2015年には都内の土壌から検出されることは少なくなってきた。

放射性物質の放出によって増加したエントロピーを減少させるにはエネルギーとコストが必要である。効率的で有効な除染を含めた復興策の制定には、科学的な調査が不可欠である。福島で行われている除染は、汚染レベルに関わらず画一的である。除染した家周辺の空間線量率は下がるが、家から離れた里山の空間線量率はそのまま、風雨のたびに除染したところに放射性物質が移動することが各所で生じている。さらに大量の除染廃棄物が発生し、水田や畑がその仮置き場になる。我々は2011年8月に福島市立新

文 献

山公園の除染試験を行った。フォールアウトした放射性物質の90%以上が地表2cmに存在すること、放射性物質からの γ 線が20cm厚の土壌で遮蔽できることを基礎データとして、表層2cmの植相と土壌を剥ぎ公園内に深さ60cmの穴を掘って埋め、その上に公園内の土で40cmの厚さで覆った。この処置で $3.6 \mu\text{Sv h}^{-1}$ あった空間線量率を $0.6 \mu\text{Sv h}^{-1}$ まで下げることができた。4,000 m^2 の公園除染は事前調査と除染後の芝張作業を含め6日間で、ボランティアが参加した作業ではあるが同規模の除染費用の1/8であった。²⁷⁾

有効な復興策には、科学的な事前調査が重要である事例を2件紹介する。2012年から玄米への放射性セシウムの移行を抑制するため、福島県の水田にゼオライトを撒くことが始まった。水田土壌の調査ではイオン性の放射性セシウムが少ないことからゼオライトの効果は無いと考えられた。2011年に対策をしないまま稲作を行った水田土壌の放射性セシウム濃度は、収穫後には事故直後の1.5倍になっていた。2012年から3軒の有機栽培農家の水田で水口に堰を設け、放射性セシウムを吸着している土壌微粒子を沈殿させる方法で玄米への移行抑制試験を行った。収穫後に堰の土壌表面を5cm取り除いた。²⁸⁾この方法を続けた水田土壌の放射性セシウム濃度は、ゼオライトを入れた周辺の水田と比較して、2015年春にはほぼ半分にまで低下した。

ハウス栽培を除き原木栽培キノコの出荷は福島県内ではほとんど制限されている。事故前に飯館村で埋設したマイタケ原木から2013年に採取した子実体から 100Bq kg^{-1} を下回るものが見つかった。高濃度のマイタケ子実体が採取された場所と合わせて原木と生育環境の調査を行った。原木栽培マイタケの汚染経路を明らかにすることができ、2014年に飯館村で移行抑制対策を取った原木栽培マイタケの栽培実証試験を行った。2014年の子実体の放射性セシウム濃度は最大で 13Bq kg^{-1} 、収穫した子実体の60%は検出下限値以下であった。²⁹⁾

事故前は原木キノコ栽培を行いきれいに整備されていた里山は、事故後に入出がなくなり荒廃が進んでいる。台風の度に多量の土砂が流出するようになり、里山の放射性セシウム分布にも変化が起きている。間伐による森林整備が始まっているが、阿武隈山地はまだ整備計画の段階である。放射性物質を含むバイオマスを安全に処理し、有効利用するために大型のバイオマス発電計画が進められている。環境中に放射性物質を排出させない措置は当然のことながら、一定期間稼働した施設は放射性物質で汚染されることも考える必要があるだろう。

筆者の一人は本学で放射線作業従事者の教育に関わってきた。自らが被ばくしないこと、他者を被ばくさせないこと、放射性物質を環境中に出さないことを20年間述べてきた。東電の原発事故はこの対極の状況を引き起こした。我々の知識や経験で福島の復興活動に寄与したいと願って研究と支援を行っている。私達は、事故から5年近く経過しても自分の家に戻ることができない方々が大勢いることを忘れてはいけないだろう。

謝 辞

本稿で述べた研究を進めるにあたり次の研究費助成を受けたことを感謝する。東京都被災地支援事業、首都大学東京未来開拓研究費、平成23年度内閣府除染技術実証試験事業、平成24年度環境省除染実証試験事業、マコー株式会社、(株)横浜ゴム、旭化成ケミカルズ(株)、(株)日立ハイテクサイエンス、日本毛織(株)、二葉商事。

福島支援活動に精力的に参加した卒業生の張 竣赫、平野由里香、伊芸滋光、野沢隼人の各氏に感謝する。

- 1) 「原子力安全に関するIAEA閣僚会議に対する日本政府の報告書」, 原子力災害対策本部 (2011).
- 2) 吉田博久, ケミカルエンジニアリング **6**, 250-257 (2012).
- 3) 東京電力, http://www.tepco.co.jp/cc/press/betu12_j/images/120524j0105.pdf.
- 4) S. Endo, S. Kimura, T. Takatsuji, K. Nanasawa, T. Imanaka, and K. Shizuma, *J. Environ Radioact* **111**, 18-27 (2012).
- 5) 文部科学省, <http://savechild.sub.jp/archives/17.html>.
- 6) 首相官邸災害対策 HP, <http://www.kantei.go.jp/saigai/20110411keikakuhinan.html>.
- 7) 首都大学東京放射線障害予防規定 (2015).
- 8) T. Nakanishi, K. Tanoi (Eds) “*Agricultural Implications of the Fukushima Nuclear Accident*”, Springer Tokyo (2013).
- 9) 朝日新聞デジタル 2015年9月14日20時20分 <http://www.asahi.com/articles/ASH9G31M1H9GUGTB006.html>.
- 10) 首都大学東京, 特開 2013-224831.
- 11) 小川秀樹, 伊藤博久, 村上千香, 熊田淳, 平野由里香, 伊芸滋光, 横田かほり, 吉田博久, 福島県林業研究センター研究報, **47** (2014). <http://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/95864.pdf>
- 12) 小川秀樹, 伊藤博久, 村上千香, 熊田淳, 平野由里香, 伊芸滋光, 横田かほり, 吉田博久, *Proceedings of the 15th workshop on environmental radioactivity* **7**, 252-260 (2014).
- 13) Y. Mahara, T. Ohta, H. Ogawa, and A. Kumata, *Scientific Reports*, **4**, 7121-7127 (2014).
- 14) 小川秀樹, 伊藤博久, 横田かほり, 新井志緒, 榎本和義, 吉田博久, *Proceedings of the 16th workshop on environmental radioactivity* **8**, 302-306 (2015).
- 15) H. Ogawa et al., *J. environmental radioactivity*, In press (2016).
- 16) 吉田博久, グリーンパワー **2015**(2), 14-15 (2015).
- 17) 柘植新, 大谷肇, 渡辺忠一, 「高分子の熱分解 GC/MS, 基礎およびパイログラム集」, テクノシステム (2006).
- 18) H. Yoshida, H. Ogawa, K. Yokota, S. Arai, R. Nakamura, “*Radiological Issues for Fukushima’s Revitalized Future*” Edit by T. Takahashi, Ch7, Springer Japan (2016).
- 19) K. Yokota, et al., *International Symposium on Fiber Science and Technology 2014*, September 28 to October 1, PG3-01.
- 20) 横田かほり 他, 「福島の復興に向けての放射線対策に関するこれからの課題シンポジウム報告書」, 7-10 (2016).
- 21) 吉田博久, 小川秀樹, 横田かほり, 新井志緒, 伊芸滋光, 中村立子, 「福島の復興に向けての放射線対策に関するこれからの課題シンポジウム報告書」, 22-25 (2016).
- 22) 南公隆, 川本徹 他, 特開 2014-066647.
- 23) 斉藤恭一, 平成 27 年度繊維学会年次大会, 東京, 10-12 June 2015, 2D08.
- 24) D. Parajulu, A. Kitajima, etc., “Prussian Blue Nanoparticles for the Enrichment of Radioactive Cesium in Solutions”, WM2013 Conference, February 24-28, 2013, Phoenix, Arizona USA, 13275.
- 25) 塩野剛司, 福西興至, 特開 2013-61220.
- 26) 首都大学東京, 特願 2014-0023.
- 27) 吉田博久, 「新山公園除染報告書」(2011).
- 28) 日本農業新聞, 2013年3月19日1面.
- 29) 横田かほり, 新井志緒, 他, *Proceedings of the 15th workshop on environmental radioactivity* **8**, 6-10 (2015).