

膨潤抑制剤を利用した除去土壌の再生資材化技術 に関する基礎研究

Study of Efficient Reuse Technologies for Removed Soil with Swelling Inhibitors

清水祐也* 今井亮介* 小西正郎** 山田正彦***

要 旨

福島第一原子力発電所の事故により環境中に放出された放射性物質に対して除染作業が進められ、この除染作業で発生した除去土壌（約 1,300 万 m³）の中間貯蔵が進められている。中間貯蔵に際して、予め改質材を適量添加する処理が受入・分別施設で実施されている。一方、除去土壌の再利用に向けた減容化方法の一つとして、湿式分級処理が検討されている。改質材には微量の高吸水性樹脂を含むものがあり、この高吸水性樹脂により湿式分級処理で回収される再生資材の含水率増加等が生じることも考えられる。本研究では、湿式分級処理で得られた再生資材を利用する際の土質的特性に関する基礎的評価を実施した。また、高吸水性樹脂の膨潤を抑制する膨潤抑制剤の適用性についても検討した。その結果、「湿式分級処理過程で高吸水性樹脂が膨潤し、再生資材の含水率が増加する可能性がある」こと、「膨潤抑制剤添加により高吸水性樹脂の膨潤を抑制できる」こと等を確認した。

キーワード：除去土壌、減容化、湿式分級処理、高吸水性樹脂、膨潤抑制剤

1. まえがき

2011 年 3 月に発生した東北地方太平洋沖地震に伴う福島第一原子力発電所の事故に由来する放射性物質の拡散に対して、除染作業が進められている。除染作業で生じた除去土壌については、2017 年 6 月から中間貯蔵施設で異物除去処理されたものの貯蔵が進められ、2020 年 3 月現在では 9 施設が稼働している¹⁾。今後、この中間貯蔵施設に貯蔵された大量の除去土壌に対して、減容化と再生利用を進めることが重要とされている。

減容・再生利用技術開発戦略検討会等では、除去土壌のうち、放射性セシウム濃度が 1.5 万～6.2 万 Bq/kg（平成 30 年 10 月時点の濃度で約 134 万 m³ が対象）の除去土壌に対し、減容・再生利用方法の一つとして湿式分級処理が検討²⁾されている。湿式分級処理は、放射性物質がより吸着されやすい土壌中の細粒分³⁾を除去することで、再利用可能な土壌とする技術である。湿式分級処理の対象となる土壌には、中間貯蔵施設の受入・分別施設（以下、中間貯蔵受入・分別施設）における異物除去過程で、数%の高吸水性樹脂（ポリアクリル酸ナトリウム、以下 SAP：Super Absorbent Polymer）が配合された改質材が用いられている場合がある。この SAP は水と接

触すると数百倍に体積膨張し、内部に水を取り込む⁴⁾。この現象により、湿式分級処理で回収される粗粒土壌（以下、再生資材）の含水率が增大する可能性があり、運搬時の漏水や土木資材として利用する際の転圧作業の効率低下等が懸念される。また、現状ではそれを用いて構築した土木構造物の安定性等に関する知見がない。

一方、膨潤した SAP に塩化カルシウムなどの多価陽イオンを含む薬剤（以下、膨潤抑制剤）を加えると、膨張が抑制され、取り込んだ水分は放出される⁴⁾。

本研究は、この特性を利用し、湿式分級処理過程で膨潤した SAP に対し、膨潤抑制剤の添加による膨潤抑制効果の確認とそれに伴う土質特性の変化の把握を目的として進めている。本報告では、湿式分級処理で回収した粗粒分の膨潤性と膨潤抑制剤の適用効果を中心に報告する。なお、本実試験は、中間貯蔵・環境安全事業株式会社（以下、JESCO）が環境省より受託した、平成 31 年度の中間貯蔵施設の管理等に関する業務成果の一部である⁵⁾。

2. 試験の概要

湿式分級処理における SAP の挙動を把握するために

* 土木本部環境技術室 ** 技術研究所 *** 東日本支社東京支店土木営業第一部

以下に示す項目について試験を行った。なお、①～③の試験は、非汚染土壌を使って、(株)奥村組技術研究所で実施した。また、④～⑦の試験は、JESCO より提供を受けた中間貯蔵受入・分別施設で異物除去が行われた土壌（以下、提供土壌）を使って、除去土壌の減容等技術のための技術実証フィールドで実施した。

- ①改質材中の SAP が膨潤する可能性の検証試験
- ②有効な膨潤抑制剤の種類と量の検証試験
- ③SAP が再生資材に混入する可能性の検証試験
- ④提供土壌の膨潤性の確認試験
- ⑤提供土壌の改質材追添加による膨潤性変化の検証試験
- ⑥提供土壌に対する膨潤抑制剤の効果の検証試験
- ⑦湿式分級処理回収粗粒土壌の土質特性評価試験

3. 各試験の対象土壌

3.1 非汚染土壌

試験に使用した非汚染土壌は、茨城県つくば市内の畑地から採取した土壌であり、2mm 以上の土粒子と異物を取り除いて試験試料とした。非汚染土壌の物性を表-1 に、粒度分布を図-1 に示す。

表-1 非汚染土壌の物性

項目	物性
地盤材料の分類名	砂質細粒土
自然含水率	22.7%
0.075mm 通過百分率	58.7%

3.2 提供土壌

試験に使用した提供土壌は、中間貯蔵受入・分別施設内における異物除去の際に 2wt%程度の改質材が添加された除去土壌である。なお、添加情報のあった改質材に含まれる SAP の配合率については不明である。表-2 に提供土壌の物性を、図-1 に粒度分布を示す。

表-2 提供土壌の物性

項目	物性
地盤材料の分類名	細粒分質礫質砂
自然含水率	23.4%
放射性セシウム濃度	2,375Bq/kg

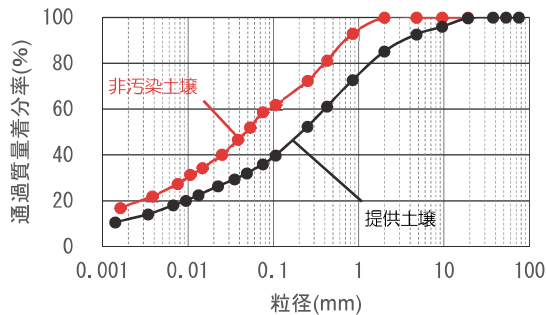


図-1 非汚染土壌・提供土壌の粒度分布

4. 使用した SAP を含む改質材、膨潤抑制剤、SAP

SAP を含む 3 種類の改質材 (写真-1) と 4 種類の膨潤抑制剤 (写真-2) を使用した。また、サイクロン分級装置を用いた試験では SAP 単体を使用した。

【SAP を含む改質材】

改質材 A : アルミナシリカ系材料を主材とする改質材
 改質材 B : 天然鉱物系材料を主材とし、中間貯蔵受入・分別施設の 1 つで使用されている改質材
 改質材 C : シリカ系材料を主材とした市販品で、過去に中間貯蔵受入・分別施設の検討に係る実証試験で使用された改質材

【膨潤抑制剤】硫酸第一鉄・七水和物 (以下、FeSO₄)、塩化カルシウム (以下、CaCl₂)、硫酸カルシウム (以下、CaSO₄)、水酸化マグネシウム (以下、Mg(OH)₂)

【SAP】OK-100 : 三洋化成工業株製

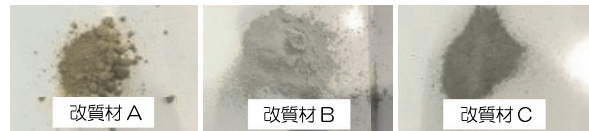


写真-1 改質材

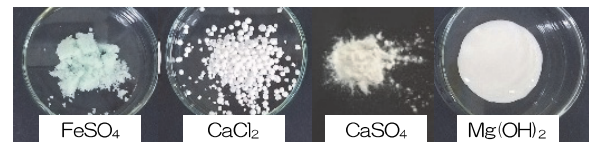


写真-2 膨潤抑制剤

5. 改質材中の SAP が膨潤する可能性の検証試験

土壌に混合された改質材中の SAP が湿式分級処理過程で膨潤する可能性について、0.075mm 目の篩を用いた湿式分級処理の模擬試験により検証した。

5.1 試験方法

水と接触し体積が数百倍に膨張した SAP は、0.075mm 目の篩を通過することなく、篩上に残留し、残留物の含水率と容積が増加すると考えられる。そこで以下の手順により試験を行った。試験状況を写真-3 に示す。

- ①非汚染土壌 100g に 1wt%、3wt%、5wt% の 3 通りで改質材を添加・混合 (改質材 A、B、C を使用)
- ②水道水 500mL を添加し、100rpm で 5 分間振とう機に掛け泥水作成
- ③0.075mm 目の篩で、篩振とう機により 3 分間振とう
- ④篩上残留物の含水率測定と容積の目視確認

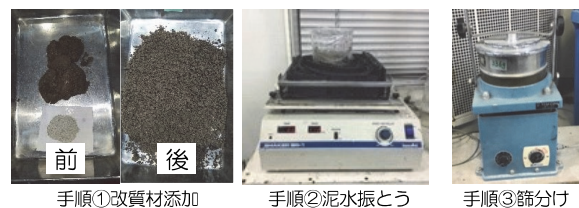


写真-3 試験状況

5.2 試験結果

改質材を添加することで、0.075mm 目の篩上残留物の容積が3種類の改質材のいずれも増加していることを、目視で確認した(写真-4)。また、図-2に示す通り、改質材の添加量に応じて篩上残留物の含水率が上昇した。これらの結果より、SAPを含む改質材を用いて異物除去処理が行われた除去土壌を湿式分級処理する場合、プラント内でSAPが膨潤する可能性があることを確認した。

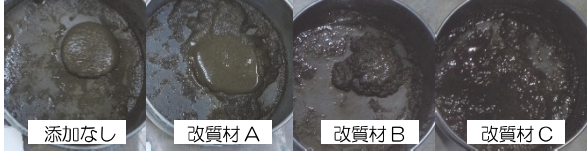


写真-4 改質材を3wt%添加した時の篩上残留物

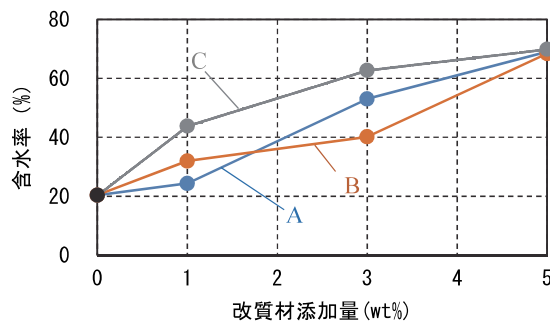


図-2 改質材添加量と篩上残留物の含水率

6. 有効な膨潤抑制剤の種類と量の検証試験

湿式分級処理過程で、土壌に混合された改質材中のSAPの膨潤を抑制することができる薬剤の選定と、有効な添加量を確認するための試験を実施した。

6.1 試験方法

以下の手順で試験を実施した。

- ①非汚染土壌 100g に改質材 A を 3wt%添加・混合
- ②水道水 500mL と FeSO_4 、 CaCl_2 、 CaSO_4 、 $\text{Mg}(\text{OH})_2$ の4種類の膨潤抑制剤をそれぞれ土壌に対し 0.25wt%、0.5wt%、0.75wt% ($\text{Mg}(\text{OH})_2$ のみ 0.75 wt%ではなく 1.5 wt%) の3通りの割合で添加
- ③100rpm で5分間振とう機に掛け泥水作成
- ④0.075mm 目の篩で、篩振とう機により3分間振とう
- ⑤篩上残留物の含水率測定

6.2 試験結果

図-3に示すように、 FeSO_4 と CaCl_2 では、添加量の増加に伴い、膨潤抑制効果が大きくなり、 CaSO_4 では0.25wt%添加からほぼ横ばいの結果となった。一方で、 $\text{Mg}(\text{OH})_2$ では、含水率の低下は認められず、膨潤抑制効果が発現しないことがわかる。以上の結果から、 FeSO_4 、 CaCl_2 および CaSO_4 が膨潤抑制剤として有効であることを確認した。

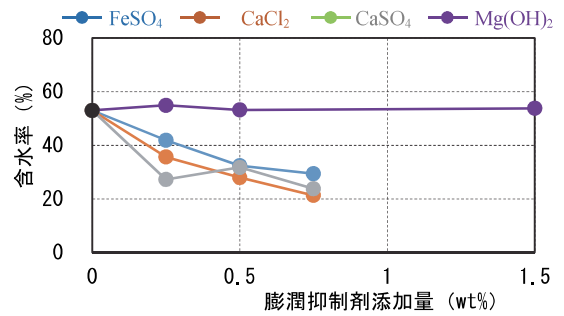


図-3 膨潤抑制剤添加量と篩上残留物の含水率

7. SAPが再生資材に混入する可能性の検証試験

湿式分級処理では、粒径により分離する振動篩と比重により分離するサイクロン分級装置による分級の組み合わせが汎用的に用いられ、それぞれ篩残留物およびサイクロンアンダーが再生資材として利用される。

本研究では、SAPを含む改質材を対象に0.5mm 目の篩(汎用的な振動篩の篩目サイズ)、および写真-5に示すサイクロン分級装置(株式会社三央製)を用いて、SAPの再生資材へ混入する可能性について検証した。



写真-5 サイクロン分級装置

7.1 試験方法

試験の手順を以下に示す。

【0.5mm 目の篩を用いた試験の手順】

- ①非汚染土壌 100g に改質材 A を 3wt%添加・混合
- ②水道水 500mL を添加し、100rpm で5分間振とう機に掛け、泥水作成
- ③0.5mm 目の篩で、篩振とう機により3分間振とう
- ④篩上残留物の含水率測定

【サイクロン分級装置を用いた試験の手順】

- ①水約 1.0m³ にSAP約 60kg を添加・攪拌
- ②分級装置に送水 (0.1MPa)
- ③サイクロンオーバーとサイクロンアンダー500mL を0.075mm 目の篩で分け、篩上残留物の重量を測定
- ④①に FeSO_4 を約 3.0kg 添加して②、③を実施
- ⑤①に土壌成分として砂 53kg と笠岡粘土粉末 60kg を添加して、②~④を実施

7.2 試験結果

篩を用いた試験では、写真-6のように改質材を添加した場合の篩上残留物の含水率や容積が増加したことから、振動篩による分級では、再生資材中に膨潤したSAPが混入する可能性があることを確認した。



写真-6 0.5mm 目の篩上残留物

サイクロン分級装置を用いた試験の材料混合条件 (Run1~4) と試験結果を表-3に示す。写真-7に示すように、土壌成分を添加ありで FeSO₄ の添加なし (Run3) のサイクロンオーバーでは、ゲル状の残留物 (SAP) が確認できる。また、Run3 のサイクロンアンダーや Run1 のサイクロンオーバーおよびサイクロンアンダーにおいても同様の残留物が確認できた。これらの結果より、サイクロン分級装置を用いた場合であっても SAPは粗粒分側と細粒分側の両方に分配されることが判明した。一方、FeSO₄ の添加ありの Run2 および Run4 では、上述のようなサイクロンオーバーおよびサイクロンアンダーの篩残留物は確認できなかった。また、表-3に示すように、土壌成分を添加していない Run1、2 のサイクロンオーバーおよびサイクロンアンダーの篩上残留物の湿潤重量では、FeSO₄ の添加なしの Run1 に比べ、添加した Run2 で小さい結果となった。これは FeSO₄ により SAP の膨潤が抑制された結果と考えられる。一方、土壌成分を添加した Run3、4 のサイクロンオーバーについては FeSO₄ 添加で減少したが、サイクロンアンダーは増加する結果となった。この原因については、今後の検証課題と考える。

表-3 サイクロン分級試験結果

Run	土壌添加	FeSO ₄ 添加	サイクロンアンダー(粗粒側)		サイクロンオーバー(細粒側)	
			容積(L)	湿重*(g)	容積(L)	湿重*(g)
1	なし	なし	65	221	994	154
2	なし	あり	70	54	992	11
3	あり	なし	69	194	932	91
4	あり	あり	64	284	924	31

※篩上残留物の湿潤重量



写真-7 サイクロンオーバー篩上残留物

8. 提供土壌の膨潤性の確認試験

除染作業で発生し、中間貯蔵受入・分別施設で改質材が添加された土壌を対象に、湿式分級処理を行った場合、膨潤が生じるかを確認するため、以下の試験を行った。

8.1 試験方法

- ①提供土壌 100g に水道水 500mL と FeSO₄ を土壌に対し 0.25wt%、0.5 wt%、1.0 wt% の 3 通りで添加・混合

- ②100rpm で 5 分間振とう機に掛け泥水作成
- ③0.075mm 目の篩で、篩振とう機により 3 分間振とう
- ④篩上残留物の含水率測定と容積の目視確認

8.2 試験結果

図-4に示すように、FeSO₄ の添加量を増やしても篩上残留物の含水率は、同剤未添加の試験における篩上残留物の含水率 (27.1%) より低下しなかった。また、写真-8のように、容積についても変化は確認できなかった。提供土壌については、改質材が 2wt%程度添加されているという情報を得ているが、膨潤抑制剤の添加による SAP の脱水挙動は確認されなかった。この原因については、今後の検証課題と考える。

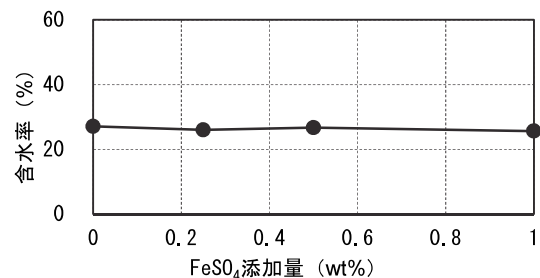


図-4 FeSO₄ 添加量と篩上残留物の含水率

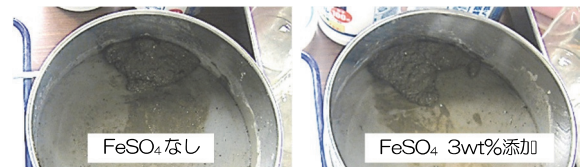


写真-8 FeSO₄ 添加による提供土壌の篩上残留物の変化

9. 提供土壌の改質材追添加による膨潤性検証試験

提供土壌に SAP を含む改質材 C を追添加したときの膨潤性について確認するため、以下の試験を行った。

9.1 試験方法

- ①提供土壌 100g に改質材 C を 1 wt%、2 wt%、3 wt%、5 wt% の 4 通りで添加・混合
- ②水道水 500mL を添加し、100rpm で 5 分間振とう機に掛け、泥水作成
- ③0.075mm 目の篩で、篩振とう機により 3 分間振とう
- ④篩上残留物の含水率測定

9.2 試験結果

写真-9のように、改質材追添加により、追添加なしに比べて篩上残留物の容積が増加した。また、図-5に示すように、改質材の追添加により含水率も増大した。これらの結果より、提供土壌自体には改質材中の SAP の膨潤を抑制する特性はないと考えられる。



写真-9 改質材追添加による篩上残留物の変化

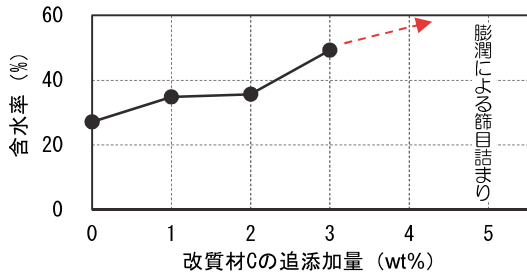


図-5 改質材追添加量と篩上残留物の含水率

10. 提供土壌に対する膨潤抑制剤の効果の検証試験

非汚染土壌を用いた試験結果と同様に、提供土壌に対しても膨潤抑制剤による SAP の膨潤抑制効果があることを確認するため、以下の試験を行った。

10.1 試験方法

- ①提供土壌 100g に改質材 C を 3 wt%追添加・混合
- ②水道水 500mL と FeSO₄ を土壌に対し 0.1 wt%、0.25 wt%、0.5 wt%、1.0 wt%の4通りの割合で添加
- ③100rpm で5分間振とう機に掛け泥水作成
- ④0.075mm 目の篩で、篩振とう機により3分間振とう
- ⑤篩上残留物の含水率測定と容積の目視確認

10.2 試験結果

図-6 に示すように、FeSO₄ の添加量増加に伴い、篩上残留物の含水率は減少し、0.25wt%添加からほぼ横ばいの結果となった。また、写真-10 のように篩上残留物の容積が縮小することが、目視で確認できた。以上の結果から、提供土壌を対象とした場合であっても膨潤抑制剤による効果があることを確認した。

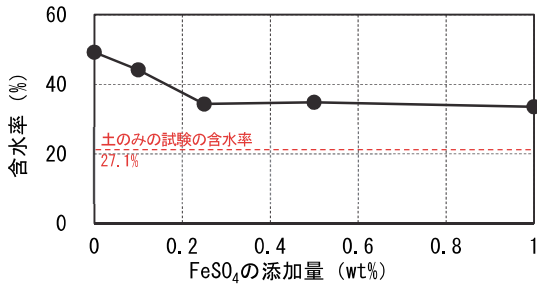


図-6 FeSO₄ 添加量と改質材追添加した提供土壌の篩上残留物の含水率



写真-10 FeSO₄ 添加による改質材追添加した提供土壌の篩上残留物の変化

11. 湿式分級処理回収粗粒土壌の土質特性評価試験

湿式分級処理で一般的に用いられるプラントにより、SAPを含む改質材を混合した提供土壌を湿式分級処理し、回収した粗粒土壌（再生資材）の土質特性を確認するこ

とで、本技術が再生資材に与える効果について検証した。

11.1 試験方法

技術実証フィールドに、写真-11 に示す湿式分級処理プラントを設置し、表-4 に示す条件に従って、湿式分級処理試験を実施した。湿式分級処理により回収した粗粒土壌の含水率や単位体積重量、コーン指数等の測定を行い、膨潤抑制剤の添加による再生資材に与える効果について検証した。ここでは、改質材の追添加と膨潤抑制剤の添加条件による土質特性の変化を顕著に捉えることができる含水率と単位体積重量の測定結果について示す。

追添加する改質材は改質材Cとし、追添加量は土壌に対し3wt%とした。また、膨潤抑制剤には FeSO₄を採用し、添加量は土壌に対し0.5wt%とした。

湿式分級処理プラントは、汚染土壌の分級処理として汎用的に使用されている振動篩（篩目 2.0mm と 0.5mm の2段）、サイクロン分級装置（分級点 0.075mm）、ハイメッシュセパレータの組み合わせとした。処理フローを図-7に、処理条件を表-5に示す。

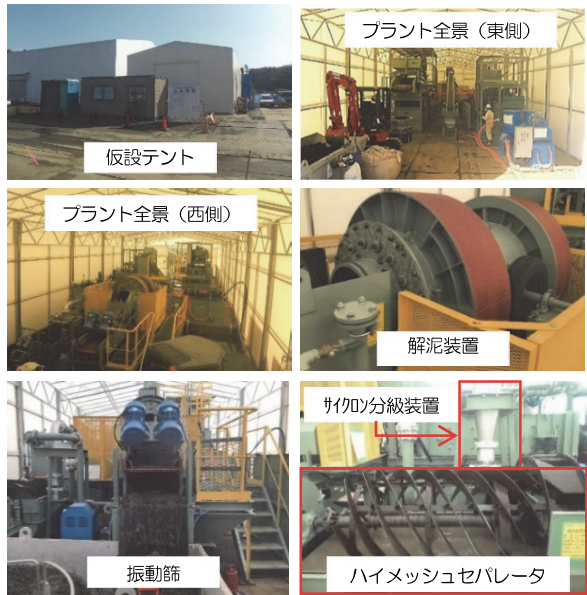


写真-11 湿式分級処理プラント

表-4 湿式分級処理ケースの実施条件

ケース	1	2	3	4
投入土壌量 (t)	12.01	11.6	11.7	12.0
投入土壌含水率 (%)	22.8	24.9	25.9	23.6
改質材追添加	なし	なし	あり	あり
膨潤抑制剤添加	なし	あり	なし	あり

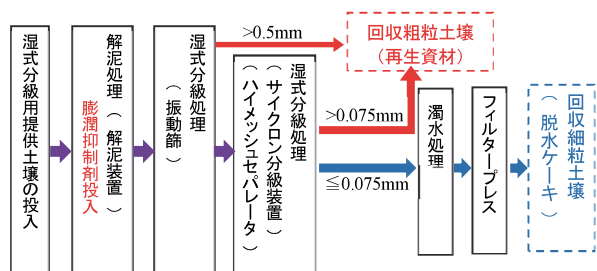


図-7 湿式分級処理フロー

表-5 処理条件

項目	条件	備考
土壌投入量	0.6m ³ /時間	バックホウを用いて投入
水添加量	5m ³ /時間	水道水を水処理して循環利用
膨潤抑制剤添加量	20L/時間	FeSO ₄ を約35%溶液として添加

11.2 試験結果

振動篩とハイメッシュセパレータから排出される回収粗粒土壌(0.075mm以上)を写真-12に示す。写真より、土壌のみのケース1に比べ、改質材を追添加したケース2は、高含水状態で排出されていることがわかる。

図-8に示す回収粗粒土壌の含水率では、土壌のみのケース1の場合は21.7%であり、改質材を追添加したケース3で28.4%に増加し、更に膨潤抑制剤を添加するケース4では、22.4%とケース1と同程度となった。また、図-9に示す回収粗粒土壌の単位体積重量では、土壌のみのケース1の場合は2.13t/m³であり、改質材を追添加したケース3では1.89t/m³に減少した。更に膨潤抑制剤を添加したケース4では、2.10t/m³とケース1と同程度となった。

以上のことから、SAPを含む改質材が本試験の追添加のケースと同程度添加された除去土壌を湿式分級処理により再生資材化する時には、含水率が30%近くまで増大する可能性があり、それを低減させる方法として膨潤抑制剤が有効であることを確認した。また、膨潤抑制剤は湿式分級処理回収粗粒土壌の単位体積重量を増大させる効果があることも判明した。なお、提供土壌に膨潤抑制剤を添加して処理を行ったケース2は、ケース1に比べ、含水率が1.4%増加し、単位体積重量は0.09t/m³減少しているが、この原因については今後の検証課題と考える。

12. まとめ

本研究でこれまでに得られた結果の考察を以下にまとめる。

- i. SAPを含む改質材が本試験の追添加のケースと同程度の割合で添加された除去土壌を、振動篩とサイクロン分級装置により湿式分級処理した場合、膨潤したSAPが再生資材に混入し、含水率の上昇と単位体積重量の減少が生じる可能性がある
- ii. これに対し、湿式分級処理時に膨潤抑制剤を添加することで、再生資材の含水率上昇や単位体積重量の減少を抑制できる
- iii. 膨潤抑制剤としては、FeSO₄、CaCl₂、CaSO₄が有効である

現在、技術実証フィールドにおいて湿式分級処理で得られた再生資材を用いて構築した実証盛土に対し、盛土材としての土質特性等に関するモニタリングを実施中である。その結果は、次報で報告する予定である。



写真-12 回収粗粒土壌 (再生資材)

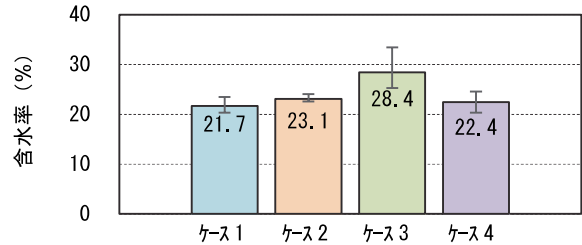


図-8 回収粗粒土壌の含水率

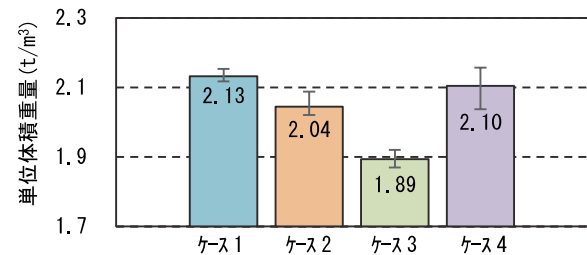


図-9 回収粗粒土壌の単位体積重量

【謝辞】

本研究の遂行に際し、実証事業推進にあたって環境省、JESCO の関係者各位ならびに国立研究開発法人国立環境研究所汚染廃棄物管理研究室の遠藤和人室長に指導を頂いた。ここに記して感謝の意を表す。

【参考文献】

- 1) 環境省、「中間貯蔵施設の整備の現状 2020年4月7日」、中間貯蔵施設情報サイト、<http://josen.env.go.jp/chukanchozou/about/>
- 2) 環境省、「減容・再生利用技術実証の現状と今後の予定—大熊分級技術実証事業—」、中間貯蔵除去土壌等の減容・再生利用技術開発戦略検討会(第11回)、2019
- 3) 伊藤健一、「放射性Csの土壌粒度別分布傾向と分級による減容化への取り組み」、粘土科学、Vol.54、No.1、pp.36-42、2015
- 4) 東 貴宏、宮田貴光、星野由雅、森下浩史、「新素材・高吸水性ポリマーを用いた授業実践」、教育実践総合センター紀要、10、pp.205-210、2011
- 5) ㈱奥村組、「膨潤抑制剤添加処理により除去土壌の再利用を効率化する技術」、平成31年度除去土壌等の減容等技術実証事業報告書 付録2: web用報告書、pp7-1-7-12、中間貯蔵・環境安全事業(㈱ホームページ、http://www.jesconet.co.jp/interim/information/PDF/h31-app2_webrep.pdf)