

原子力発電所港湾におけるゼオライトシートフェンスの事前設置による放射性セシウムの拡散防止

梅崎健夫¹, 河村 隆¹, 大淵智道², 櫻井 實³, 川井伸一⁴,
岩垂直明¹, 外谷憲之¹

¹信州大学工学部, ²凸版印刷(株), ³日本海洋整備(株),
⁴旭化成アドバンス(株)

Diffusion Prevention of Radioactive Cesium in Seawater by Pre-installation of Zeolite Sheet Fence at Port of Nuclear Power Plant

T. Umezaki¹, T. Kawamura¹, T. Oobuchi², M. Sakurai³, S. Kawai⁴, N. Iwadore¹ & N. Toya¹
¹Faculty of Engineering, Shinshu University, ²Toppan Printing Co., Ltd.
³Nihon Kaiyou Seibi Corporation, ⁴Asahi Kasei Advance Corporation

キーワード：原子力発電所，放射性セシウム，リスク管理，天然ゼオライト，シルトフェンス，拡散防止

Keywords: Nuclear Power Plant, Radioactive cesium, Risk management, Natural zeolite, Silt fence, Diffusion prevention

1. はじめに

2011年3月11日の東日本大震災における福島第一原子力発電所事故により、多量の放射性物質が飛散し、事故から3年後においても、発電所取水口付近の海水中には多くの放射性セシウムが残存している¹⁾(表-1)。

著者らは、天然ゼオライトのセシウムやアンモニウム態窒素などの陽イオン吸着能力に着目し、水域や汚染泥水に対する放射性セシウムの除染対策や閉鎖性水域の富栄養化対策について検討を行ってきた^{3)~5)}。その中で水中のそれらの吸着除去対策として、ゼオライトシートとそれを応用したゼオライトシートフェンスを開発した⁶⁾。

本文は、原子力発電所の港湾において、通常時にゼオライトシートフェンスを予め設置するこ

とにより、万一の有事における放射性セシウムの拡散を防止するリスク管理の対策を提案し(図-1)、その有効性について検討したものである。

2. ゼオライトシートフェンス

(1)ゼオライトシート

天然ゼオライト(MG イワミライト)^{7)~9)}の主

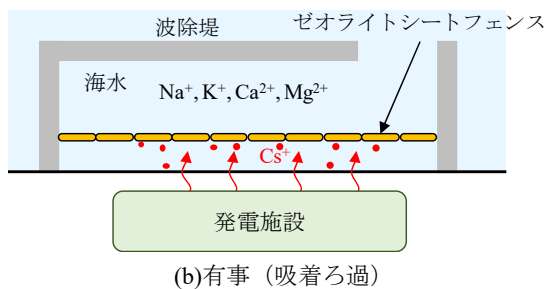
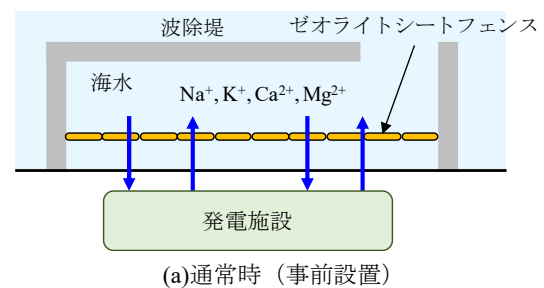


表-1 福島第一原子力発電所取水口付近における海水中の放射性セシウム濃度(2014/6/12)¹⁾

	放射線量 (Bq/L)		放射性物質濃度 (mg/L) ※	
	最小値	最大値	最小値	最大値
Cs134	2.2	19	4.7E-11	4.0E-10
Cs137	2.7	56	8.4E-10	1.8E-08

$g/Bq = \text{半減期(秒)} \times \text{原子量} / (6.022 \times 10^{23} \times 0.6931)$ (1)

半減期: Cs134は2.1年, Cs137は30.2年

※式(1)²⁾による算定値

図-1 ゼオライトシートフェンスによる放射性セシウムの拡散防止(リスク管理)



(a)モルデナイトを主成分とする天然ゼオライトの原石



(b)天然ゼオライト粉末 (粒径 $D<0.5\text{mm}$)



(c)ゼオライトシート ($D<0.5\text{mm}$ を $500\text{g}/\text{m}^2$ 担持, 厚さ 1.0mm , $1\text{m}\times 10\text{m}$ のロール)

写真-1 天然ゼオライトとゼオライトシート^{3)~5)}



図-2 ゼオライトシートフェンスの小型サンプル⁶⁾

成分はモルデナイトであり、鉬山より採掘される淡い翠色の天然鉬物であり、粉碎して任意の粒径に調整することが可能である(写真-1(a), (b)). 陽イオン交換機能(陽イオン交換容量 $\text{CEC}=120\sim 180\text{meq}/100\text{g}$)によって、セシウムイオン (Cs^+) などの陽イオンを強力に吸着することから、福島第一原発事故により飛散した放射性セシウムの吸着剤としても使用されている。

ゼオライトシート^{3)~5)}は、天然素材であるパルプに天然ゼオライト粉末を担持させたものであり(写真-1(c)), 二次加工も容易である。その特徴や利点の詳細は文献^{3)~5)}を参照されたい。

(2)ゼオライトシートフェンス

通常のシルトフェンスとして用いられるポリエステルシート(#300, 引張り強度: $300\text{kg}/3\text{cm}$)を二重にして、その内側にゼオライトシートを封

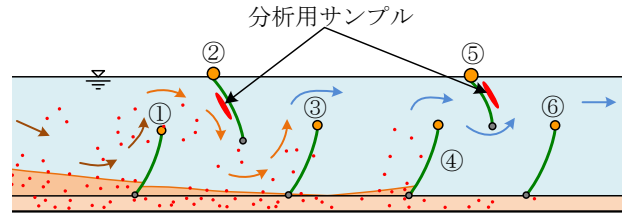


図-3 ゼオライトシートフェンス(①~⑥)およびその分析用サンプルの配置模式図



写真-2 ゼオライトシートフェンスの設置状況

入したものである。小型サンプルを図-2に示す。ゼオライトシートフェンスは、軽量であり、折り曲げて容易に運搬や保管することができ、短時間で施工することが可能である。

3. ため池における放射性セシウムの吸着試験

(1)ゼオライトシートフェンスの設置

大雨・強風時において、底質の巻き上がりと濁水の流出を抑制するための水塊分離を目的とした、平成27年度福島県ため池等放射性物質対策公募技術実証事業に付随して、福島県内のため池(最大水深: 4.2m 程度, 満水時の流出入量: $6\sim 12\text{L}/\text{s}$, 水中の放射性セシウム濃度(2015/11): $0.43\sim 0.81\text{Bq}/\text{L}$, 底質の粒度組成: シルト分 50% 程度および粘土分 30% 程度, 底質の放射性セシウム濃度(2015/11): $38,000\sim 58,000\text{Bq}/\text{kg-dry}$)において、ゼオライトシートフェンスによる水中の放射性セシウムに対する吸着試験を実施した。

ゼオライトシートフェンスは、図-3に示すように、自立型①, ③, ④, ⑥と懸垂型②, ⑤の2種類を設置した。その設置状況を写真-2に示す。吸着試験のために、ゼオライトシートフェンスの分析用サンプル(写真-3)を、②の上流側と⑤の下流側に設置した。

(2)ゼオライトシートフェンスの耐久性

写真-4にため池より引き上げたゼオライトシートフェンスの分析用サンプルの状況を示す。1

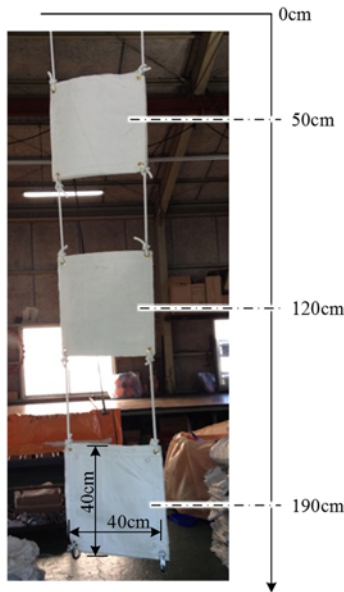


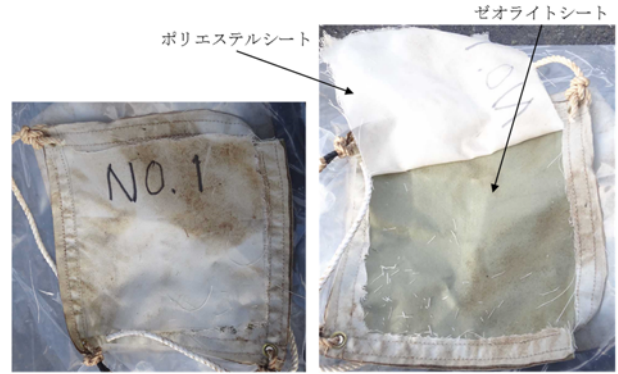
写真-3 ゼオライトシートフェンスの分析用サンプル

ヶ月後において、表面のポリエステルシートには若干の土粒子が付着している。しかし、内封されたゼオライトシートにはほとんど変化が見られない。一方、12ヶ月後において、ポリエステルの表面は土粒子や懸濁物質の付着により、茶色く変色している。内封されたゼオライトシートも茶色く変色して一部亀裂が見られるものの、形状はほぼ保たれており、12ヶ月までの耐久性が実証された。

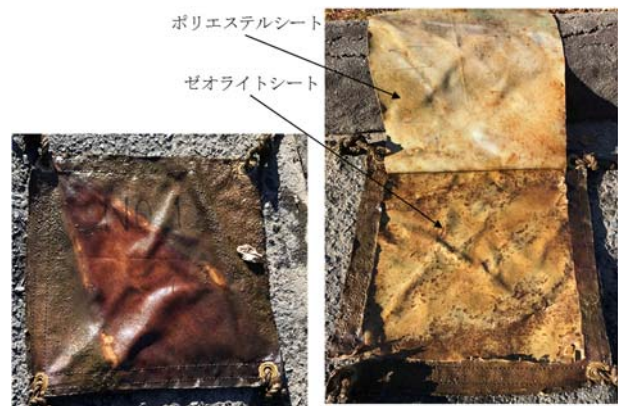
(3) 放射性セシウムに対する吸着特性

図-4 に分析用サンプルにおける放射性セシウム吸着量（平均値）の経時変化を示す。ポリエステルシート（外側）において、放射性セシウム吸着量は、3ヶ月後に300Bq/m²程度まで増加し、その後ほぼ一定になる。土粒子や懸濁物質に吸着された放射性セシウムがポリエステルシート表面に付着している。一方、ゼオライトシート（内封）の放射性セシウム吸着量は、時間経過とともに比例的に増加し、12ヶ月後には2,500Bq/m²程度である。ゼオライトシートフェンスは、ポリエステルシートを透過した放射性セシウムを吸着除去する。また、通常のシルトフェンス（ポリエステルシート1枚）では、水中の放射性セシウムが透過し、拡散防止対策の効果は不十分であることが確認された。

ゼオライトシート1m²（天然ゼオライトの担持量500g）のCs137に対する吸着容量Mは、天然ゼオライトのCECに基づいて式(2)のように算定



分析用サンプルの外観 ゼオライトシートの状況
(a)1ヶ月後



分析用サンプルの外観 ゼオライトシートの状況
(b)12ヶ月後

写真-4 ゼオライトシートフェンスの分析用サンプルの耐久性

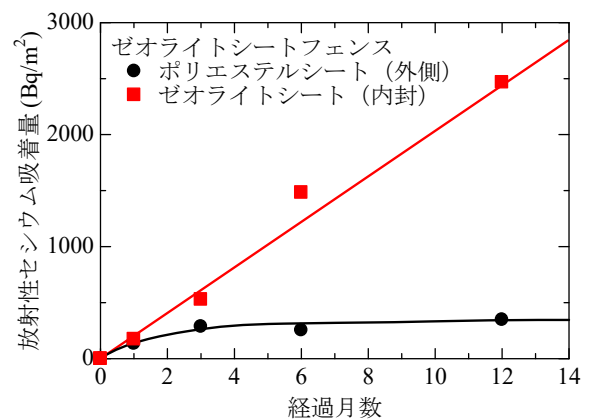


図-4 放射性セシウム吸着量（平均値）の経時変化

される。

$$\begin{aligned}
 M &= 1(\text{価数}) \times 137(\text{原子量}) \\
 &\quad \times 120 \sim 180(\text{CEC}) \times (500\text{g}/100\text{g}) \\
 &= 82,200 \sim 123,300\text{mg}/\text{m}^2 \quad (2)
 \end{aligned}$$

さらに、式(1)を用いて、

$$M = 2.6 \sim 3.9 \times 10^{14} \text{Bq}/\text{m}^2 \quad (3)$$

表-2 人工海水の成分

成分	CaSO ₄	MgSO ₄	MgCl ₂	KCl	NaCl
水 1kg 中の質量 (g)	1.4	2.1	3.2	0.7	26.8

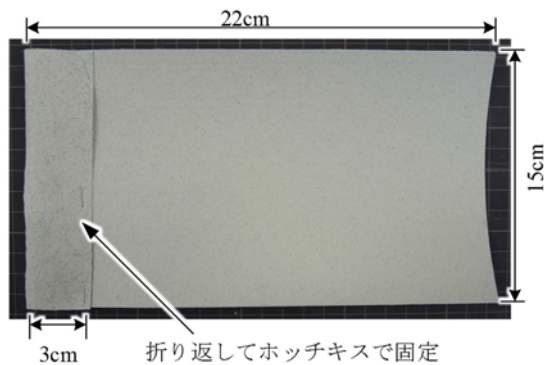


写真-5 ゼオライトシート（天然ゼオライト添加量：2.7g/L に相当）

12ヶ月後の吸着量は吸着容量の10¹¹分の1程度と極めて小さく、継続して設置することによりさらに多くの放射性セシウムを吸着除去できる。

4. 人工海水中の安定同位体セシウムに対する室内吸着試験

(1) 試験概要

通常、原子力発電所は海洋に面した場所に建設されることが多く、海水中には多くの金属イオンが含まれている（参考表-2）。通常時にリスク管理として、ゼオライトシートフェンスを事前に設置し、万一の有事における放射性セシウムを吸着することにより、海洋への汚染の拡散を防止することができれば、有効な対策となる。そこで、本試験では、人工海水（表-2）を用いて、ゼオライトシート（写真-5）に対して1週間の事前攪拌を行い（事前設置を模擬）、そのゼオライトシートを改めて安定同位体セシウム（Cs133）を含む人工海水中で3日間攪拌する試験（攪拌速度13cm/s程度）を行った（図-5）。所定時間毎に200mL採水してシリンジフィルター（孔径0.45μm）でろ過した後、ICP質量分析法によりセシウムイオン濃度を測定した。あわせてpHの経時変化も測定した。

試験ケースは表-3に示すとおりである。比較のために、事前攪拌なしの場合の人工海水と純水に対する試験も実施した。

一般に、ゼオライトの陽イオン交換順位は次式

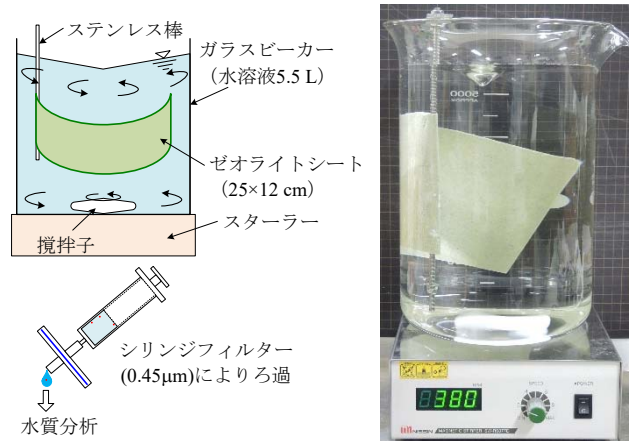
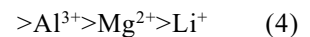
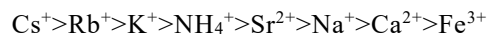


図-5 攪拌による吸着試験

表-3 試験ケース

	セシウムイオン濃度
人工海水（事前攪拌あり）	1, 10mg/L
人工海水（事前攪拌なし）	1, 3, 6, 10mg/L
純水（事前攪拌なし）	1, 10mg/L

のとおりである¹⁰⁾。



セシウムイオンの吸着優先順位は上式の陽イオンの中で最も高い。

(2) 試験結果および考察

ゼオライトシートの手前攪拌における人工海水中のpHの経時変化を図-6に示す。pH=8.8程度のアルカリ性が、短時間の攪拌でpH=7付近の中性となり、その後はほぼ一定となる。そのときの人工海水中の金属イオンの変化を図-7に示す。人工海水中のナトリウムイオンが300mg/kg程度増加している。これは、ゼオライトシート中の成分が溶出しているものである。他の金属イオンは幾分増加が見られるがあまり変化しない。

図-8(a), (b)に水中のセシウムイオンの吸着試験におけるpHの経時変化を示す。図-8(a)に示すように、セシウムイオン1mg/Lを含む人工海水（事前攪拌あり）では、pHがpH=9から緩やかに減少し、3000分程度でpH≒7でほぼ一定となる。人工海水（事前攪拌なし）の場合も同様の傾向であり500分程度でpH≒7に収束する。また、純水の場合は、pH=5.9から増加し500分程度でpH≒7に収束する。図-8(b)に示すように、セシウムイオン10mg/Lの場合においても同様の傾向を示すが、人工海水（事前攪拌あり）のpHの低下速度

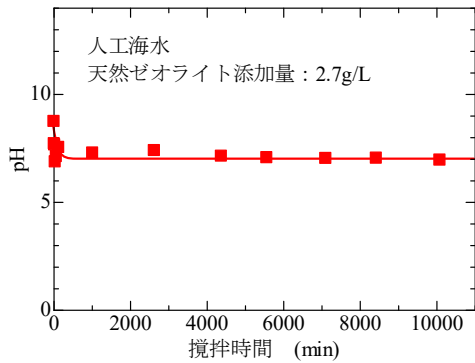


図-6 事前攪拌におけるpHの経時変化 (平均値)

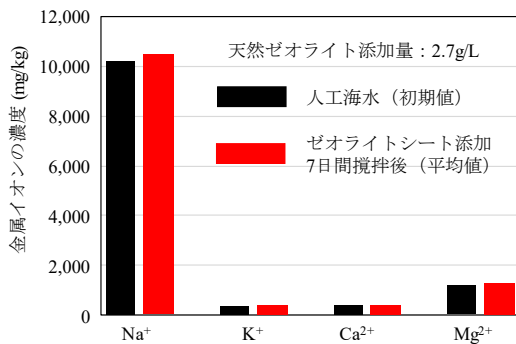


図-7 事前攪拌 (7日後) における金属イオンの変化

は 1mg/L の場合よりも緩やかである。

図-9 (a), (b) に人工海水中のセシウムイオンに対する吸着試験における金属イオンの変化を示す。人工海水中のナトリウムイオンを幾分吸着する傾向が見られるが、総じて有意な変化は見られない。

図-10 (a), (b) に水中のセシウムイオンの除去率の経時変化を示す。事前攪拌の有無による影響は見られない。両者はほぼ同じ値であり、時間とともに除去率は増加する。一方、純水の場合には、人工海水中よりも吸着速度が極めて速い。これは、人工海水中の金属イオンの影響である。

図-11 にセシウムイオンの初期濃度と 2 時間および 3 日後の除去率の関係を示す。初期濃度が低くなるにつれて、除去率は高くなる。表-1 に示すように、取水口付近 (2014/6/12) のセシウム Cs137 濃度は、 $8.4 \times 10^{-10} \sim 1.8 \times 10^{-8}$ mg/L であり、本試験の $10^8 \sim 10^{11}$ 分の 1 である。吸着試験におけるセシウムイオン (安定同位体) の検出限界が 0.1mg/L であり、それ以下の試験は実施できないが、図中の結果を外挿すると有事における放射性セシウムは短時間で吸着可能であることが示唆される。

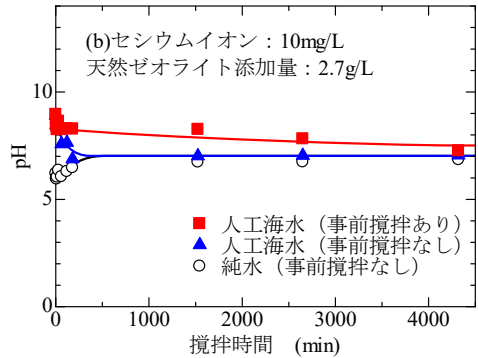
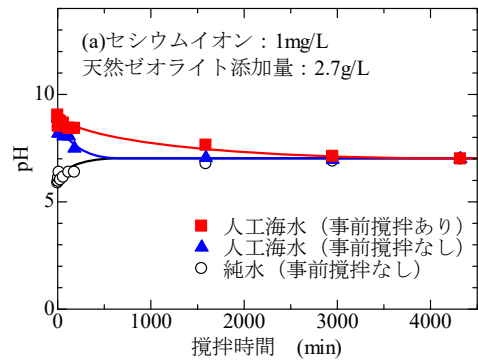


図-8 吸着試験におけるpHの経時変化

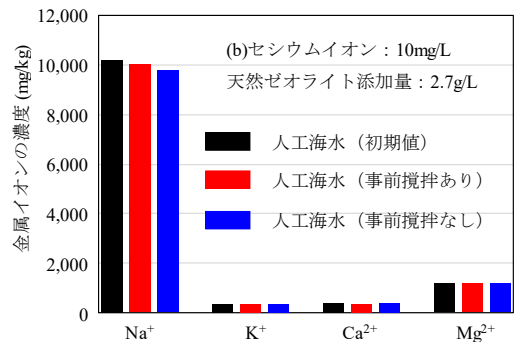
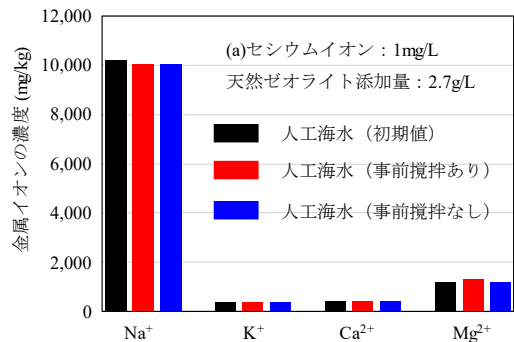


図-9 吸着試験 (3日後) における金属イオンの変化

6. まとめ

得られた主な知見は以下の通りである。

- (1) ゼオライトシートフェンスの 12 ヶ月までの耐久性が確認された。
- (2) ゼオライトシートフェンスは、ポリエステル

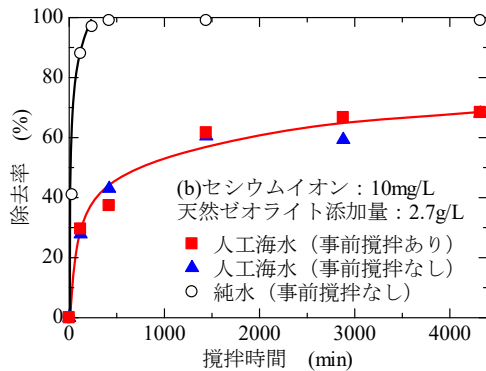
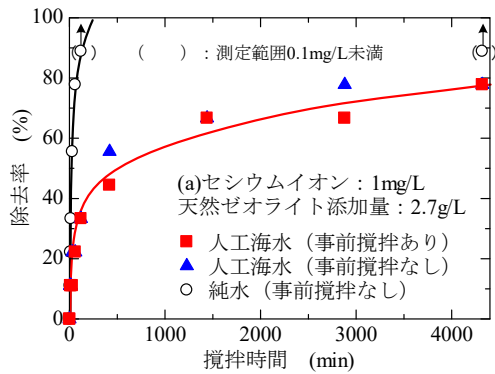


図-10 セシウムイオンの除去率の経時変化

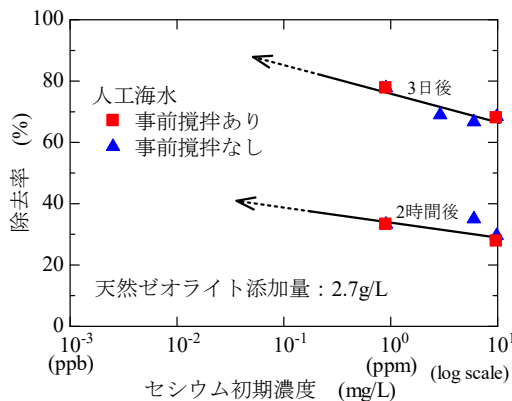


図-11 セシウムイオン濃度と除去率の関係

シートを透過した水中の放射性セシウムを吸着除去する。また、通常のシルトフェンス（ポリエステルシート1枚）では、放射性セシウムが透過し、拡散防止対策の効果は不十分であることが確認された。

- (3) 人工海水中の事前攪拌の有無による影響は見られない。時間とともにセシウムイオンの除去率は増加する。セシウムイオンの初期濃

度が低い方が、除去率は高くなり、有事における放射性セシウムは短時間で吸着可能であることが示唆される。なお、純水中におけるセシウムイオンの吸着速度は極めて速い。

- (4) 通常時にゼオライトシートフェンスを事前設置することにより、万一の有事における放射性セシウムの拡散を防止するリスク管理の対策の有効性が示唆される。

謝辞 ため池における放射性セシウムの吸着試験の一部は、平成27年度福島県ため池等放射性物質対策公募技術実証事業に付随して実施された。付記して、関係各位に感謝の意を表します。

【参考文献】

- 1) 福島第一原子力発電所周辺における海水分析結果(1～4号機取水口内), 東京電力< http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/fl/smp/2014/images/2tb-east_map-j.pdf>, (2014/6/13アクセス)
- 2) 廃炉・汚染水対策事業事務局:平成25年度補正予算「汚染水対策技術検証事業」に係る補助事業者公募要領, 別紙1(1)海水浄化技術実証事業, pp.5, 2013.
- 3) 河村 隆, 梅崎健夫, 外谷憲之, 大淵智道, 吉田浩之: 水中の窒素・リンに対する吸着機能紙の開発, ジオシンセティックス論文集, 第30巻, pp.119-125, 2015.
- 4) 梅崎健夫, 河村 隆, 西田健吾, 早川 典, 石井大悟, 志賀信彦: 多孔質担持機能紙の適用性と窒素・リン・セシウムに対する吸着特性, 信州大学環境科学年報, 第35号, pp.65-75, 2013.
- 5) 梅崎健夫, 河村 隆, 早川 典, 溝渕 隆: ゼオライト機能紙を用いた放射性セシウムの簡易ろ過処理, ジオシンセティックス論文集, 第28巻, pp.175-180, 2013.
- 6) WATER BARRIER®ウォーターバリア (カタログ), 凸版印刷(株), 日本海洋整備(株), 2014.
- 7) MINDECO IWAMI PROFILE イワミライト, 三井金属資源開発(株), 2006.
- 8) 三井金属資源開発株式会社の天然環境資材 イワミライト, 三井金属資源開発(株), 2011.
- 9) MINDECO IWAMI PROFILE イワミライト, 三井金属資源開発(株), 2012.
- 10) Ames, L.L.: Cation Sieve Properties of the Open Zeolites Chabazite, Mordenite, Erionite and Clinoptilolite, American Mineralogist, 46: 1120-1131, 1961.

(原稿受付 2017. 3. 30)