

# 福島第一原子力発電所における土壤中ストロンチウムの捕集対策 ～ アパタイトとゼオライトを用いた土壌改良工法 ～

東京電力株式会社 相京泰仁, 志村 聡, 水梨康之, 河西 基  
 電力中央研究所 土方孝敏, 横山信吾, 小山正史  
 大成建設株式会社 須網功二, 下村雅則, 塚原悌信, 小野 誠, 井尻裕二  
 CH2MHILL Scott McKinley, Nathan Bowles (現在、PBS Engineering and Environmentalに所属)

## 目的

2013年8月にH4エリアのタンクから周辺地盤中に汚染水が漏えいしたことから、これまでに漏えい範囲の汚染土壌の回収や地下水の揚水を実施し、汚染エリアの拡大抑制を図っている。本対策は追加的・重層的対策として、漏えい範囲の地下水下流側の地盤中に透過反応壁を構築することにより、流下してきた汚染水中の放射性ストロンチウムSr-90を捕集し、下流側への汚染拡大を抑制することを目的とする。

## 基本コンセプト

透過反応壁は、ストロンチウムを捕集する材料と、地下水を積極的に通す透過性の高い壁で構成される。

### ストロンチウム捕集材料の選定

米国では、ストロンチウム捕集材として、ハンフォードサイトではアパタイトが、ウェストバレーではゼオライト(クリノプチロライト)が採用されている。アパタイトは、ストロンチウムを吸着した後、時間の経過とともに次第に構造の中に取り込み固着する(脱離しない)特徴を有することが知られている。ゼオライトは、吸着性能は高いものの、固着性能はアパタイトより劣ると言われている。そこで、本対策では、アパタイトに固着性能を期待するとともに、安全率向上のためにゼオライトの吸着による壁前後でのストロンチウム濃度低減効果と杭中での移行遅延に伴うアパタイトへの固着促進効果を期待して、両者を混合して使用することとした。

### 対策工法の選定

アパタイトによる土壌改良方法としては溶液型と粉末型があり、ハンフォードサイトにおいては、溶液型はリン酸ナトリウムとクエン酸カルシウムの2液を注入して地盤中でアパタイトを合成沈殿させる方法であり、粉末型は牛や魚の骨粉を地盤中で機械的に混合攪拌する方法である。本対策では、ストロンチウムの流下に対する待ち受け型であること、ゼオライトを混合すること、我が国の土壌汚染浄化の分野で最も実績が多く確実性が高いこと等を踏まえて浄化杭工法(粉末型)を採用した。

## 透過反応壁の設計

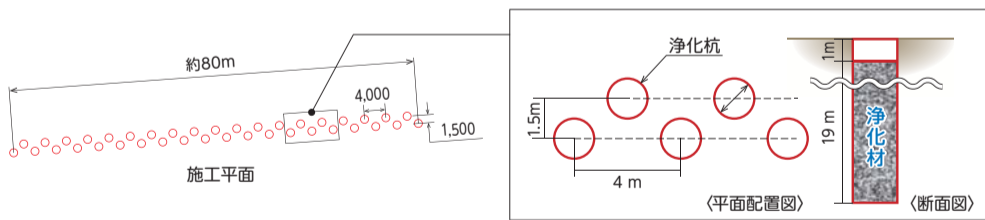
### 壁の位置

サイト内の地下水は、地下水位や地下水流動方向等の調査結果より、山側から海側に流れていることがわかっている。そこで汚染が確認されている領域から下流側に地下水流れと直交する方向に延長約80mの透過反応壁を構築することとした。

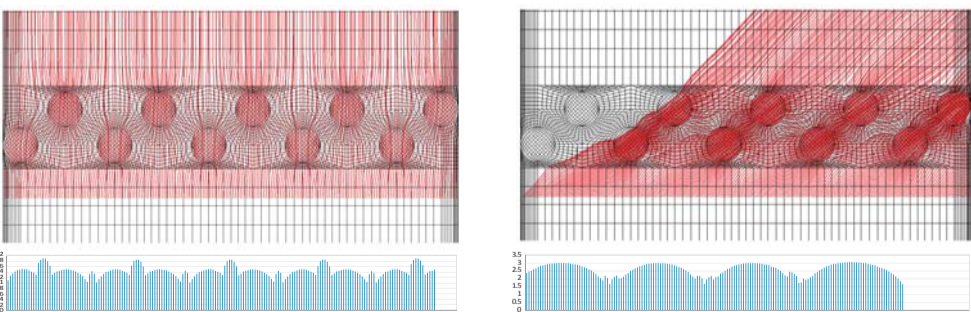


### 壁の仕様

透過反応壁は、直径1.5mの杭を千鳥状に2列で配置した。杭の間隔は、地下水解析結果に基づいて、地盤および杭の透水係数の関係から上流側から流れてきた全ての地下水が杭の中に流れ込むように同列の杭の中心間距離を4m、列間距離を1.5mとした。解析によると流れ込んできた地下水は、杭中を最短でも1m以上流れる結果となっている。また、透過反応壁は、透水性の高い中粒砂岩層を対象とし、杭深度は低透水性の泥岩層に到達する20mとした。



透過反応壁レイアウト(施工延長約80m, 杭径1.5m, 長さ20m, 39本)



地下水解析による地下水流跡線と杭中の延長距離

(透過反応壁と地下水流動方向が直交[左], 斜め45°[右])

透水係数は、地盤は中粒砂岩 $3.0 \times 10^{-5} \text{ m/s}$ を、杭は $1.0 \times 10^{-3} \text{ m/s}$ と実測値に基づき保守的に設定

## 工程と今後の計画

透過反応壁は、2014年7月現在施工中で9月末に完了予定である。施工後は、壁の上下流側でモニタリングを実施し、透過反応壁の捕集効果を確認する計画である。



材料混練り状況 材料投入量計測 杭施工(全旋回)

## 材料設計

### 材料の選定(スクリーニング)

母材は、杭の透水性を高めるため7号砕石(粒径2.5~5mm)とした。アパタイトは、天然由来・合成由来の様々な種類を対象としたバッチ試験結果を基に、吸着性(分配係数)が大きく、安定供給が可能で経済的な豚蒸製骨粉(粉体、蒸製温度180℃)を採用した。ゼオライトは、天然由来・合成由来の様々な種類のゼオライトを用いたバッチ試験に基づき、分配係数が大きく安定供給が可能な国産の天然クリノプチロライトを採用し、砕石の空隙に入るように粒径1~3mmとした。

分配係数測定結果 [単位: mL/g]

試験水は蒸留水およびアパタイトに対してはストロンチウムと競合するCaイオン $0.001 \text{ M}$ とし、ストロンチウムの初期濃度は $10 \text{ mg/L}$ とした。

天然アパタイト	アパタイトの種類	測定環境		供給力	材料の種類	測定環境			
		蒸留水	Ca=0.001M			蒸留水	供給力		
天然アパタイト	牛骨焼成(細粒)	130	—	○	砕石	7号砕石	35	—	
	牛骨焼成(粗粒)	4,700	1,100	×		土壌	中粒砂岩(現地発生土)	25	—
	豚蒸製骨粉(粉体)	1,500	300	○		天然ゼオライト	クリノプチロライト(島根産)	26,000	△
合成アパタイト	ハイドロキシアパタイト	890	72	×	天然ゼオライト	クリノプチロライト(ニッ井産)	240,000	○	
	ハイドロキシアパタイトスラリー	1,480	140	×	合成ゼオライト	人工ゼオライト	83,000	△	
	リン酸三カルシウム	710	120	△	合成ゼオライト	X型ゼオライト	1,100,000	×	
	リン酸三カルシウム	620	110	△					
	試験	316	490	×					

### 配合量の設定

#### アパタイト [Ca<sub>10</sub>(PO<sub>6</sub>)<sub>4</sub>(OH)<sub>2</sub>; 分子量1004.62]

固着性能を把握するためにストロンチウムを一旦吸着させた後に脱離試験を行った結果、脱離せずに固着したストロンチウムの量は8.5mg/g(アパタイト1molに対してストロンチウム約0.1molに相当)と求められた。

一方、漏えいした汚染水中には、最大で放射性ストロンチウムが約6g、海水起源の安定ストロンチウムが約600g含まれ、地下水中\*にも安定ストロンチウムが0.3mg/L含まれている。

\*主な地下水成分: Na<sup>+</sup> = 41, Ca<sup>2+</sup> = 14, Mg<sup>2+</sup> = 13, Sr<sup>2+</sup> = 0.3 (単位: mg/L)

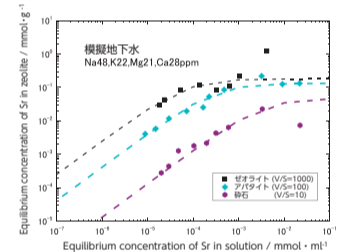
アパタイトが上記の固着性能を有しているとして、地下水実流速0.1m/dで流下してくる全てのストロンチウムを長期間に渡って固着できる量を試算した結果に基づき、砕石に対するアパタイトの重量配合率を5%とした。



バッチ試験  
分配係数の測定



吸着脱離試験  
アパタイトのSr固着量の測定



各材料の模擬地下水におけるストロンチウムの吸着等温図

### ゼオライト

ゼオライトの吸着特性は、地下水中のNaイオンの影響を受けることから模擬地下水(Na<sup>+</sup>=48, K<sup>+</sup>=22, Mg<sup>2+</sup>=21, Ca<sup>2+</sup>=28[mg/L])中でのバッチ試験を行い、ストロンチウム濃度を変数とした吸着等温線を求めた。その結果、等価壁厚0.883mの透過反応壁に地下水が流入し続けると仮定した場合、ストロンチウム濃度0.3mg/Lでの吸着容量からゼオライトの配合率30%で10年分を超える吸着容量があり、ゼオライト単体でも壁通過前後のストロンチウム濃度低減率が90%を満足する十分な遅延効果が得られることから、配合率は30%とした。

### 最終配合の設定

以上より、設計配合率は質量比で砕石:アパタイト:ゼオライト=100:5:30と求められた。そこで、実施工を想定した水中材料投入試験を室内で実施し、改良材の品質を確認した。その結果、施工時の改良材のばらつきを考慮して、捕集材投入量の最終配合率は100:10:35とした。

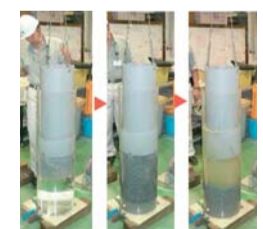
模擬地下水で測定し直した分配係数の一覧を示す(ストロンチウム初期濃度は0.3mg/L)。なお、混合した改良材のカラム試験による吸着特性は現在測定中である。



分配係数測定結果 [単位: mL/g]

	現地土壌	7号砕石	アパタイト	ゼオライト	改良材
蒸留水	25	750	1,200	62,000	13,000
模擬地下水	24	9	150	1,400	370

模擬地下水成分: Na<sup>+</sup>=40, Ca<sup>2+</sup>=15, Mg<sup>2+</sup>=15 [mg/L]



室内材料投入試験  
左から投入直後, 投入中, 投入後



カラム試験  
試料直径5cm, 長さ5cm/10cm

## 予測解析

汚染水プルーム(漏えい水の推定体積300m<sup>3</sup>, 土壌間隙率0.41よりプルームの範囲を732m<sup>3</sup>, ストロンチウム初期放射能10<sup>8</sup>Bq/Lとそれぞれ仮定)が、地下水実流速0.1m/dで距離20m離れた透過反応壁を通過する場合に、吸着(分配係数370mL/g)によりどの程度遅延されるかを核種移行解析により評価した。その結果、10年後でも下流側のストロンチウム濃度は1.0Bq/L未満となり、十分な遅延効果があることが判った。今後はカラム試験等により吸着速度や固着速度の評価を進め、本透過反応壁のストロンチウム捕集効果に関する解析精度を高めていく予定である。

