

論文要旨 Dissertation Abstract

平成 30 年 1 月 15 日

Date (YY/MM/DD):

専攻 Major 環境リスクマネジメント	学籍番号 Student ID 15TF005	氏名 Name 藤原 大
論文題目 Dissertation Title	廃棄物焼却施設における放射性セシウムの挙動解明と 汚染焼却残渣に対する除染技術の開発	
<p>2011 年に発生した東日本大震災にともなう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セシウム (以下、Cs) は廃棄物処理過程に流入した。汚染廃棄物の焼却により、放射性 Cs が焼却残渣 (燃え殻やばいじん等) に濃縮され、残渣による二次汚染への懸念が大きな社会問題となった。適正なモニタリングにより放射性 Cs を含む一般廃棄物 (都市ごみ) は安全に処理されてきたが、焼却残渣への放射性 Cs の分配率や濃縮率、残渣からの放射性 Cs の溶出率などについて、焼却炉の形式の違いが与える影響などの報告はほとんどなされておらず、今後の不足事態に備える意味でもこれまでの知見を含めて体系的に整理する必要がある。また、除染活動により生じる草木類を中心とした除染廃棄物等の焼却処理は、2015 年に仮設焼却施設で処理が開始されるまでは前例がなかった。今後予想される高線量地域での焼却処理において、安全かつ安定な処理を目指して焼却残渣中の放射性 Cs 濃度をコントロールするためにも、焼却対象物の違いが焼却過程における放射性 Cs の挙動へ与える影響を明らかにする必要がある。さらに、一般廃棄物、除染廃棄物等のいずれの焼却残渣についても、最終処分や再生利用を円滑に進めるためには、焼却残渣から放射性 Cs を除去する等の減容化が求められている。</p> <p>そこで、本研究では放射性 Cs に汚染された廃棄物が適正かつ円滑に処理がなされるための科学的知見を獲得して、体系的に整理することを目的とした。実施調査に基づく焼却処理過程における放射性 Cs の挙動、さらには処理形式や対象物がおよぼす影響を明らかにするとともに、一般廃棄物および除染廃棄物等の焼却残渣からの放射性 Cs 除去技術を開発した。</p> <p>本論文は、以下に示す全 5 章から構成されている。</p> <p>第 1 章「緒論」では、研究の背景として、福島第一原子力発電所事故による放射性 Cs による環境汚染、汚染廃棄物の発生とその処理の流れについて整理した。また、放射性 Cs を含む廃棄物の焼却処理に関する課題を抽出し、研究目的を示した。</p> <p>第 2 章「一般廃棄物焼却施設における焼却形式の放射性 Cs 挙動への影響」では、焼却形式の違いに着目し、一般廃棄物を焼却処理した際の放射性 Cs の挙動についてストーカ式焼却炉、流動床式焼却炉、流動床式ガス化熔融炉、シャフト式ガス化熔融炉の 4 つの焼却形式について実施調査で調査した。その結果、いずれの焼却形式でも放射性 Cs は飛灰 (はいじん) へ分配しやすく、飛灰への分配率は 58.9 ~ 99.2% と高かった。しかし、各残渣への放射性 Cs の分配率、濃縮率などは焼却残渣の発生比率や熱処理温度等の影響により焼却形式ごとに異なった。例えば、ストーカ式焼却炉では、主灰 (燃え殻) 中に放射性 Cs が取り込まれて放射性 Cs の濃縮率が高くなることに加え、主灰の発生量も多いことから主灰への放射性 Cs 分配率が最も高くなった。流動床式焼却炉では、飛灰発生量が多いため飛灰への放射性 Cs 濃縮率が最も小さくなった。一方、ガス化熔融炉では、飛灰への放射性 Cs 濃縮率および分配率がストーカ式焼却炉や流動床式焼却炉の飛灰より高くなった。特に、シャフト式ガス化熔融炉では処理温度が最も高いため、放射性 Cs の飛灰への分配率が約 98% と極めて高く、放射性 Cs をスラグと熔融飛灰に高度に分離でき、除染技術として適用の可能性が示唆された。焼却残渣からの放射性 Cs 溶出率については焼却形式の違いによる影響は小さいことがわかった。飛灰からは 30 ~ 100% の放射性 Cs が溶出し、排ガス処理薬剤等の影</p>		

(続葉) (Continued)

響で溶出率に違いが見られた。一方、炉下排出物(主灰、不燃物、スラグ)においては、主灰から6.2%の放射性Csが溶出したのが最大であり、基本的に溶出率は低かった。一方、排ガス処理については、いずれの焼却形式においても既設の排ガス処理設備(バグフィルタ)により飛灰が適切に捕集された。ガス態の放射性Csは飛灰へ凝結することから、結果として排ガス中に含まれる放射性Csは焼却処理に依存せず高効率に除去されることが確認された。

第3章「対策地域内仮設焼却施設(ストーカ式焼却炉)における廃棄物種類の放射性Cs挙動への影響」では、除染廃棄物、家屋解体廃棄物などの焼却対象となる廃棄物種類の違いに着目し、対策地域内のストーカ式焼却炉において放射性Cs挙動について実地調査を行った。除染廃棄物は水分や灰分が多く発熱量が低く自然できない性状のものも存在したが、片づけごみ等と混合処理することで発熱量は高くなり、安定に処理可能と考えられる。また、除染廃棄物は粒径が小さいほど放射性Cs濃度が高く、混入した土壌が主要な汚染源であると示唆された。主灰に対する飛灰の放射性Cs濃度比(飛灰/主灰)は焼却対象物の違いにより明確に異なり、除染廃棄物のみを焼却した場合の濃度比は約1.3であり、飛灰と主灰の放射性Cs濃度はほぼ同レベルであった。また、放射性Cs分配率については、約80%の放射性Csが主灰へと分配され、飛灰に放射性Csが高濃縮される一般廃棄物焼却とは傾向が異なることが本研究によって初めて明らかにされた。除染廃棄物のみを焼却した場合の飛灰に対する溶出試験結果から、放射性Cs溶出率は、1%未満～42%と一般廃棄物の飛灰に比べると低いことがわかった。一方、家屋解体廃棄物のみを焼却した場合には焼却残渣の発生量が少なく、放射性Cs濃縮率が高いことを見出した。また、飛灰からの放射性Cs溶出率は約80%に達し、一般廃棄物焼却飛灰と同程度に高く、焼却対象物の種類が焼却残渣への放射性Cs濃縮率や焼却残渣からの放射性Cs溶出率に大きな影響をおよぼすことが明らかとなった。焼却残渣の性状等の解析から、除染廃棄物等焼却飛灰における放射性Csについて、易溶性の形態は揮発したCsClガスが凝結したものと考えられ、難溶性の形態は元素組成や結晶相の類似性から主灰の細粒分の巻き上がりによるものであることを示した。さらに、排ガス中のばいじんの粒子径分布は、アルカリ塩等の凝集による $0.1\sim 1\mu\text{m}$ のピークが小さく、 $10\mu\text{m}$ 前後に大きいピークを持つことから土壌粒子等が飛灰へ多く飛散していると考えられた。一方、主灰では、電子顕微鏡等による分析から主に焼却過程に部分的に生じる熔融相に放射性Csが濃集する可能性が示唆された。さらに、排ガス中に含まれる放射性Csに対して、バグフィルタは焼却対象物の違いによらず高い除去率(99.99%以上)を有することが確認できた。

第4章「焼却残渣からの放射性Cs除染・減容化技術の開発」では、除染・減容技術の一つである加熱化学処理技術を一般廃棄物主灰および除染廃棄物等焼却残渣(主灰および飛灰)からの放射性Cs除去に適用し、除去特性等について検討を行った。また、汚染物のモデル化合物として、バーミキュライト(土壌(粘土鉱物)のモデル)、Pollucite(一般廃棄物主灰のモデル)および模擬非晶質(除染廃棄物主灰のモデル)に対しても加熱化学処理を適用し、Cs除去剤の効果について調べ、各焼却残渣における放射性Csの存在形態と除去メカニズムについて考察した。バーミキュライトを用いた実験では、加熱温度 $1000\text{ }^{\circ}\text{C}$ にて95.9%、 $1200\text{ }^{\circ}\text{C}$ により最大99.9%のCs除去率を得た。Csを十分に除去するためには、バーミキュライト中のMica groupの結晶構造が消失する必要があることがわかった。 CaCO_3 により結晶構造の変換が促進され、熔融塩を形成したNaClとともにCsが揮発したと考えられる。一般廃棄物焼却主灰の実験では、細粒分(2mmふるい下)と粗粒分(2mmふるい上)では放射性Csの存在形態の違いにより、放射性Cs除去の律速段階が異なると考えられた。細粒分ではNaClとCsの反応によるCsの揮発がCs除去の機序と考えられたが、粗粒

(続葉) (Continued)

分ではそれに加えて粉碎による比表面積の向上による物質移動が律速となる Cs 除去の機序も約 20% 存在し、粗粒分から効率よく放射性 Cs を除去するためには 10 μm 以下に粉碎した後に加熱化学処理を行うことが有効であることがわかった。このように粗粒分を粉碎することで、加熱温度 1100 $^{\circ}\text{C}$ で 90.0%、1150 $^{\circ}\text{C}$ で 95.7% 以上の放射性 Cs が除去可能となった。また、細粒分のみでは 1200 $^{\circ}\text{C}$ の高温条件で 98.6% の高い放射性 Cs 除去率が得られた。加熱化学処理により、主灰中の結晶構造の変換が確認され、主灰中に存在すると予想される Pollucite (Cs を含むアルミノケイ酸塩) では加熱化学処理によりその結晶構造の消失が確認された。除染廃棄物等の焼却残渣の実験では、主灰と飛灰の混合灰として処理することで安定した放射性 Cs 除去率が確保され、加熱温度 1000 $^{\circ}\text{C}$ で 86% 以上の放射性 Cs が除去可能であった。除染廃棄物等の主灰中で放射性 Cs を濃縮する非晶質相の模擬物を合成し、Cs 除去剤の効果について調べた結果、NaCl の揮発により Cs は除去され、CaCO₃ 添加により非晶質相中の Cs が移動可能となり Cs 除去率が向上すると考えられた。しかし、主灰の汚染モデル化合物である Pollucite と模擬非晶質からの Cs 除去率は、それぞれ 97% および 49% であり、差異が見られた。非晶質中の Cs は Pollucite に比べて除去されにくいことから、主灰の粗粒分が細粒分よりも放射性 Cs 除去率が低い理由や、除染廃棄物等の主灰が一般廃棄物の主灰よりも放射性 Cs 除去率が低い理由は、放射性 Cs の存在形態の違いに起因する可能性が示された。また、試料ごとに放射性 Cs 除去率が異なる別の要因として、元素組成の影響も示唆され、Cl/SiO₂ および CaO/SiO₂ が大きくなると放射性 Cs が除去されやすい傾向であることが明らかになった。

第 5 章「総括」では、各章の結論を整理するとともに、各章で得られた知見を踏まえて最適な焼却および減容化処理を提示し、今後の放射性 Cs 汚染廃棄物の焼却および減容化における課題を示した。

(3917 / 4000 字)