

## 学位論文及び審査結果の要旨

横浜国立大学

氏名	藤原 大
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	環情博甲第2003号
学位授与年月日	平成30年3月23日
学位授与の根拠	学位規則(昭和28年4月1日文部省令第9号)第4条第1項及び横浜国立大学学位規則第5条第1項
学府・専攻名	環境情報学府 環境リスクマネジメント専攻
学位論文題目	廃棄物焼却施設における放射性セシウムの挙動説明と汚染焼却残渣に対する除染技術の開発
論文審査委員	主査 横浜国立大学 客員教授 倉持 秀敏 横浜国立大学 教授 中井 里史 横浜国立大学 准教授 亀屋 隆志 横浜国立大学 准教授 小林 剛 横浜国立大学 客員教授 藤江 幸一

## 論文及び審査結果の要旨

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、放射性セシウム(以下、Cs)は環境中に放出され、一般廃棄物処理過程にも流入した。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。焼却処理の安全性は確認されているものの、一般廃棄物焼却施設における円滑な運転計画を検討するには、焼却炉の形式ごとに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の溶出率などの放射性Csの挙動に関する基礎情報が必要となる。また一方、除染活動から生じた除染廃棄物等の焼却処理においても、安全かつ安定な処理を目指して焼却残渣中の放射性Cs濃度を制御するためには、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、最終処分の負荷低減を目的に、焼却残渣から放射性Csを除去する等の除染・減容化技術が求められている。

そこで、本論文では放射性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。すなわち、実施調査に基づき焼却処理過程における放射性Csの挙動、処理形式や処理対象物がおよぼす影響を明らかにする。また、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。

本論文は、以下に示す全五章から構成されている。

第一章では、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情報を整理し、課題を抽出して研究目的を示した。

第二章では、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の調査結果を整理し、追加調査を行った。その結果、いずれの焼却形式においても放射性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)への放射性Cs分配率が最も高くなり、一方、流動床式焼却炉やガス化熔融炉では、飛灰への放射性Cs分配率が高くなった。特に、シャフト式ガス化熔融炉では、放射性Csの飛灰への分配率が約98%と極めて高く、除染技術として適用の可能性も示唆された。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く、基本的に飛灰からの溶出率は高いも

の、炉下排出物（主灰、不燃物、スラグ）からの溶出率は低いことがわかった。最後に、排ガス処理の調査分析結果として、排ガス中に含まれる放射性 Cs は焼却処理に依存せずに高効率に除去されることが確認された。

第三章では、除染廃棄物、家屋解体廃棄物などの廃棄物種類の違いに着目し、ストーカ式焼却炉における放射性 Cs 挙動について実施調査を行った。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 濃度はほぼ同じレベルであった。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。さらに、除染廃棄物焼却飛灰からの放射性 Cs 溶出率は 1%未満 ~ 42%になり、一般廃棄物の飛灰に比べるとかなり低いこともわかった。一方、家屋解体廃棄物のみを焼却した場合の放射性 Cs の分配率等の挙動は、一般廃棄物焼却とほぼ同様であり、焼却対象物の種類が放射性 Cs の挙動に大きな影響をおよぼすことが明らかとなった。焼却残渣に対する電子顕微鏡等による分析から、放射性 Cs の化学形態や残渣への分配メカニズムを推定した。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に高い除去率（99.99%以上）を有することを確認した。

第四章では、除染・減容技術の一つである加熱化学処理技術の基本原則を明らかにするとともに、一般廃棄物主灰及び除染廃棄物等焼却残渣（主灰と飛灰）からの放射性 Cs 除去を目的に、加熱化学処理技術をそれらの残渣に適用して除去特性等を調べた。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）に分けて実験を行った。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 除去の機序も存在することが示唆された。粗粒分から効率よく放射性 Cs を除去するためには、10  $\mu\text{m}$  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を示した。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。一方、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に対して加熱温度 1000  $^{\circ}\text{C}$  で 86%以上の放射性 Cs が除去可能であった。一般廃棄物及び除染廃棄物等焼却主灰のモデル系として、それぞれ Pollucite と非晶質体を合成し、加熱化学処理実験に供した。Cs 除去率と加熱前後の試料に対する X 線構造解析により、NaCl 及び CaCO<sub>3</sub> の Cs 除去における役割について考察した。また、両モデル系における Cs 除去率を比較すると、非晶質体中の Cs は Pollucite に比べて除去されにくいことから、除染廃棄物焼却主灰からの放射性 Cs 除去率が一般廃棄物焼却主灰よりも低い理由として、放射性 Cs の存在形態の違いに起因すると推察された。さらに、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を考察し、灰中の Cl/SiO<sub>2</sub> 及び CaO/SiO<sub>2</sub> が高くなると放射性 Cs が除去されやすくなることを明らかにした。

第五章では、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及び減容化処理を提示し、今後の放射性 Cs 汚染廃棄物の焼却及び減容化における課題を示した。

以上の通り、本研究は放射性セシウム Cs に汚染された廃棄物の焼却処理について、各種焼却残渣への放射性 Cs の分配率等を初めて体系的に整理・調査し、焼却形式や焼却対象物の違いが分配率等へ与える影響を明らかにした。焼却残渣に対する化学分析等から焼却処理における放射性 Cs の挙動メカニズムや化学形態等を推定した。また放射性 Cs を含む焼却残渣の除染による減容化についても、加熱化学処理法による放射性 Cs 揮発除去技術を開発し、そのメカニズムや最適処理条件を提示しており、博士（工学）の学位論文として十分な内容を有すると審査委員全員が一致して認めた。

注 論文及び審査結果の要旨欄に不足が生じる場合には、同欄の様式に準じ裏面又は別紙によること。