

博士論文

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

Study on the behavior of radioactive cesium in waste incineration facilities
and development of a decontamination technology for contaminated
incineration residue

国立大学法人 横浜国立大学大学院
環境情報学府

藤原 大

Hiroshi Fujiwara

2018年3月

目 次

| | |
|---------------------------------------|----|
| 第 1 章 緒論 | 1 |
| 1.1. 放射性物質による環境汚染 | 1 |
| 1.2. 放射性 Cs による汚染廃棄物 | 3 |
| 1.3. 焼却処理に関する課題整理 | 6 |
| 1.4. 本研究の目的と構成 | 8 |
| 第 1 章の参考文献 | 10 |
| 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 | 13 |
| 2.1. はじめに | 13 |
| 2.2. 調査方法 | 16 |
| 2.2.1. 調査対象施設および試料 | 16 |
| 2.2.2. 分析方法 | 20 |
| 1) 焼却残渣発生量 | 20 |
| 2) 放射性核種分析 | 20 |
| 3) 焼却残渣への放射性 Cs 分配率 | 20 |
| 4) 溶出試験 | 21 |
| 5) バグフィルタによる放射性 Cs 除去率 | 21 |
| 2.3. 結果および考察 | 23 |
| 2.3.1. 焼却残渣への放射性 Cs 濃縮率および発生量 | 23 |
| 1) 飛灰への放射性 Cs 濃縮率 | 25 |
| 2) 炉下排出物への放射性 Cs 濃縮率 | 25 |
| 3) 煙道灰等への放射性 Cs 濃縮率 | 26 |
| 4) 炉下排出物と飛灰の放射性 Cs 濃度の比較 | 27 |
| 2.3.2. 焼却残渣への放射性 Cs の分配挙動 | 28 |
| 2.3.3. 焼却残渣からの放射性 Cs の溶出挙動 | 30 |
| 2.3.4. バグフィルタによる放射性 Cs 除去率の推定 | 34 |
| 2.4. 第 2 章のまとめ | 36 |
| 第 2 章の参考文献 | 37 |

| | |
|---|----|
| 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..... | 42 |
| 3.1. はじめに..... | 42 |
| 3.2. 調査方法..... | 44 |
| 3.2.1. 調査対象施設..... | 44 |
| 3.2.2. 試料採取..... | 45 |
| 1) 安全管理..... | 45 |
| 2) 採取方法..... | 45 |
| 3.2.3. 焼却残渣等発生量の算出方法..... | 46 |
| 3.2.4. 分析方法..... | 46 |
| 1) 放射性核種分析..... | 46 |
| 2) ごみ質分析..... | 47 |
| 3) 溶出試験..... | 47 |
| 4) 逐次抽出試験..... | 48 |
| 5) 元素組成..... | 49 |
| 6) X線回折分析..... | 49 |
| 7) 熱しゃく減量..... | 50 |
| 3.3. 結果および考察..... | 51 |
| 3.3.1. 焼却対象物の性状..... | 51 |
| 1) 発熱量および三成分..... | 53 |
| 2) 種類組成..... | 54 |
| 3) 除染廃棄物の粒径毎の性状..... | 54 |
| 3.3.2. 焼却残渣の放射性 Cs 濃度および焼却残渣への放射性 Cs の分配挙動..... | 56 |
| 1) 放射性 Cs 濃度の時系列変動..... | 56 |
| 2) 代表試料の放射性 Cs 濃度..... | 59 |
| 3) 焼却残渣への放射性 Cs 濃縮率..... | 61 |
| 4) 焼却残渣の発生量..... | 62 |
| 5) 焼却残渣への放射性 Cs の分配率..... | 63 |
| 3.3.3. 焼却残渣等からの放射性 Cs の溶出挙動..... | 64 |
| 1) 放射性 Cs の溶出率 (JIS K 0058-1)..... | 64 |
| 2) 形態分析 (逐次抽出試験)..... | 66 |
| 3.3.4. 焼却残渣の性状..... | 67 |
| 1) 元素組成..... | 67 |

| | |
|---|-----|
| 1)-1 焼却残渣の元素組成 (一般廃棄物との比較)..... | 67 |
| 1)-2 焼却残渣の元素組成 (主要成分の焼却対象物による比較)..... | 69 |
| 1)-3 各元素の分配挙動..... | 70 |
| 1)-4 安定性 Sr (Sr-88) の挙動..... | 71 |
| 1)-5 主要元素組成の比較..... | 72 |
| 2) 結晶構造 (X線回折)..... | 74 |
| 2)-1 主灰に含まれる結晶相..... | 74 |
| 2)-2 飛灰に含まれる結晶相..... | 74 |
| 3) 主灰の熱しゃく減量..... | 77 |
| 3.3.5. 飛灰中の放射性 Cs の存在形態の推定..... | 78 |
| 1) 放射性 Cs の溶出率への影響因子..... | 78 |
| 2) 除染廃棄物焼却残渣での主灰と飛灰の類似性 (施設 A Run1 の詳細な解析)..... | 82 |
| 2)-1 元素組成の類似性..... | 82 |
| 2)-2 結晶相の類似性..... | 84 |
| 2)-3 主灰の粒径毎の放射性 Cs 濃度..... | 85 |
| 2)-4 除染廃棄物焼却 (施設 A Run1 の詳細解析) のまとめ..... | 86 |
| 3.3.6. 主灰中の放射性 Cs の存在形態の推定..... | 87 |
| 1) はじめに..... | 87 |
| 2) 方法..... | 87 |
| 2)-1 試料..... | 87 |
| 2)-2 イメージングプレートによる放射能濃集粒子の特定..... | 88 |
| 2)-3 SEM-EDS/EBSD 分析による結晶相解析..... | 88 |
| 3) 分析結果..... | 90 |
| 3)-1 イメージングプレートによる放射能濃集粒子の特定..... | 90 |
| 3)-2 SEM-EDS/EBSD 分析による結晶相解析..... | 90 |
| 4) 放射能を濃集する主灰粒子の由来推定..... | 94 |
| 3.3.7. 排ガス中での放射性 Cs の挙動..... | 95 |
| 1) はじめに..... | 95 |
| 2) バグフィルタによる放射性 Cs 除去率の推定 (公定法)..... | 95 |
| 3) 排ガス中ばいじんの粒径別重量および放射性 Cs 濃度..... | 97 |
| 3.4. 第 3 章のまとめ..... | 100 |
| 第 3 章の参考文献..... | 102 |
| 第 3 章の付録..... | 110 |

| | |
|---|-----|
| 第4章 焼却残渣からの放射性 Cs 除染・減容化技術の開発 | 126 |
| 4.1. はじめに | 126 |
| 4.1.1. 主な除染・減容化技術 | 126 |
| 4.1.2. 加熱化学処理による放射性 Cs 除去 | 129 |
| 4.2. 加熱化学処理の技術特性 (粘土鉱物からの Cs 除去メカニズム) | 130 |
| 4.2.1. 試験方法 | 130 |
| 1) 試料 | 130 |
| 2) 加熱化学処理試験 | 130 |
| 3) XRD 分析 (粉末 X 線回折分析) | 131 |
| 4) TG-DSC-MS 分析 (熱重量-示差走査熱量測定-質量分析) | 131 |
| 4.2.2. 結果と考察 | 131 |
| 1) 加熱化学処理による Cs 除去 | 131 |
| 2) 加熱化学処理による結晶構造の変化 | 133 |
| 3) Cs の揮発挙動 | 135 |
| 4) 粘土鉱物からの Cs 除去メカニズムのまとめ | 136 |
| 4.3. 一般廃棄物主灰からの放射性 Cs 除去 | 137 |
| 4.3.1. 加熱化学処理の対象物 | 137 |
| 4.3.2. 試験方法 | 137 |
| 1) 試料および試料性状の分析 | 137 |
| 2) ラボ試験 (卓上管状炉試験) | 139 |
| 2)-1 加熱化学処理試験 | 139 |
| 2)-2 水洗浄併用による放射性 Cs 除去率向上の検討 | 140 |
| 2)-3 熱処理過程における Cs 除去剤の挙動 | 141 |
| 2)-4 粉砕処理の検討 | 141 |
| 2)-5 XRD 分析およびモデル化合物 (Pollucite) での Cs 除去 | 141 |
| 3) ベンチ試験 (回転式加熱試験装置) | 142 |
| 3)-1 加熱化学処理試験 | 142 |
| 3)-2 放射性 Cs 存在形態の変化 (逐次抽出試験) | 143 |
| 4) 高温化による放射性 Cs 除去率の向上 | 143 |
| 4.3.3. 結果と考察 | 144 |
| 1) ラボ試験 (卓上管状炉試験) | 144 |
| 1)-1 加熱化学処理試験 | 144 |
| 1)-2 水洗浄併用による放射性 Cs 除去率向上の検討 | 145 |

| | |
|---|-----|
| 1)-3 熱処理過程における Cs 除去剤の挙動 | 146 |
| 1)-4 粉碎処理の検討 | 147 |
| 1)-5 XRD 分析およびモデル化合物 (Pollucite) での Cs 除去 | 148 |
| 2) ベンチ試験 (回転式加熱試験装置) | 150 |
| 2)-1 加熱化学処理試験 | 150 |
| 2)-2 放射性 Cs 存在形態の変化 (逐次抽出試験) | 151 |
| 3) 高温化による放射性 Cs 除去率の向上 | 152 |
| 4.4. 除染廃棄物等焼却残渣からの放射性 Cs 除去 | 153 |
| 4.4.1. 加熱化学処理の対象物 | 153 |
| 4.4.2. 試験方法 | 153 |
| 1) 除染廃棄物等焼却残渣の加熱化学処理試験 | 153 |
| 2) モデル化合物 (模擬非晶質) による Cs 除去メカニズムの考察 | 154 |
| 2)-1 模擬非晶質の作製 | 154 |
| 2)-2 加熱化学処理試験 | 155 |
| 2)-3 SEM-EDS/EBSD 分析による構造変化の観察 | 155 |
| 4.4.3. 結果と考察 | 156 |
| 1) 除染廃棄物等焼却残渣の加熱化学処理試験 | 156 |
| 2) モデル化合物 (模擬非晶質) による Cs 除去メカニズムの考察 | 158 |
| 2)-1 熱化学処理試験 | 158 |
| 2)-2 SEM-EDS/EBSD 分析による構造変化の観察 | 158 |
| 4.5. 主灰種類の違いによる放射性 Cs 除去率の差異に関する考察 | 165 |
| 4.5.1. 放射性 Cs の存在形態の影響 | 165 |
| 4.5.2. 元素組成の影響 | 166 |
| 4.6. 第 4 章のまとめ | 167 |
| 第 4 章の参考文献 | 169 |

| | |
|--|-----|
| 第5章 総括 | 175 |
| 5.1. 本論文のまとめ | 175 |
| 5.1.1. 第1章「緒論」のまとめ | 175 |
| 5.1.2. 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」のまとめ | 176 |
| 5.1.3. 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」のまとめ | 176 |
| 5.1.4. 第4章「焼却残渣からの放射性 Cs 除染・減容化技術の開発」のまとめ | 178 |
| 5.2. 今後の展望と課題 | 180 |
| 5.2.1. 最適な焼却・除染減容化処理について | 180 |
| 5.2.2. 今後の焼却処理における課題 | 182 |
| 5.2.3. 今後の除染減容化における課題 | 182 |
| 5.3. おわりに | 183 |
| 第5章の参考文献 | 184 |

第1章 緒論

1.1. 放射性物質による環境汚染

2011年3月11日、日本の観測史上最大の規模となるマグニチュード9.0の東北地方太平洋沖地震が発生した。その直後には大津波が太平洋沿岸を襲い、福島第一原子力発電所（以下、福島第一原発）は全電源喪失という深刻な事態に陥り、複数の原子炉での水蒸気爆発により大量の放射性物質が大気中へ放出された。放出された主な放射性核種を表1.1に示す[1-3]。放出された放射性核種のうち、放射性セシウム（Cs-134およびCs-137）は半減期が年オーダーと長く、放出量も比較的多く、地上に沈着するため、人体や環境への悪影響が懸念されている。1986年に発生したチェルノブイリ原発事故と比べるとCs-137の放出量は約6分の1と少ないものの、福島第一原発事故の場合には人口密集地域にも汚染がおよび、人体、社会へ与える影響は決して小さいとは言えない。また、Cs-134やCs-137に比べると放出量は約100分の1程度と少ないものの、放射性ストロンチウム（Sr-90）もCs-137と同等の28年の長い半減期をもち、地上に沈着する核種であることから、放射性物質の沈着量の多い地域では、Sr-90についてもそのリスクを考慮する必要性が考えられる。放出量が多い放射性ヨウ素（I-131）による環境汚染も事故当初は問題となったが、8日という短い半減期により長期的な影響は小さい。したがって、福島第一原発事故に由来する放射性物質による環境汚染はCs-134およびCs-137による環境汚染であると言える。

Cs-134およびCs-137の安定性同位体であるCs-133は原子番号55番のアルカリ金属のひとつであり、同じアルカリ金属元素のナトリウム（Na）やカリウム（K）と化学的性質が類似している。図1.1に原子番号と第一イオン化エネルギーの関係を示す

表 1.1 福島第一原発事故による主な放射性核種の放出量および半減期 (PBq = 10¹⁵ Bq (ペタベクレル)) [1-3]

| 核種 | 半減期 | 放出量 (PBq) | |
|---------|--------|-----------|--------------|
| | | 福島第一原発[1] | チェルノブイリ[2,3] |
| Xe-133 | 5.3 d | 11000 | 6500 |
| I-131 | 8.0 d | 160 | ~1760 |
| Te-132 | 3.2 d | 88 | ~1150 |
| I-133 | 20.8 h | 42 | 910 |
| Cs-134 | 2.0 y | 18 | ~54 |
| Cs-137 | 30.0 y | 15 | ~85 |
| Sb-127 | 4.3 h | 6.4 | - |
| Te-131m | 30 h | 5.0 | - |
| Te-129m | 33.6 d | 3.3 | 240 |
| Ba-140 | 12.8 d | 3.2 | ~240 |
| I-135 | 6.6 h | 2.3 | - |
| Sr-89 | 52.0 d | 2.0 | ~115 |
| Te-127m | 109 d | 1.1 | - |
| Sr-90 | 28.0 y | 0.14 | ~10 |

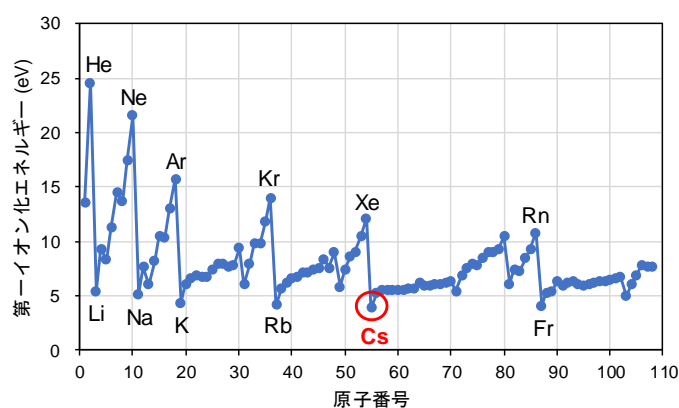


図 1.1 原子番号と第一イオン化エネルギーの関係。[4]より作成。

[4]。第一イオン化エネルギーは原子から 1 個の電子を除去、つまり、 $M \rightarrow M^+$ の転換に要するエネルギーであり、アルカリ金属は第一イオン化エネルギーは低いという特徴がある。また、Na、K、Cs と周期が大きくなるに従い原子半径は大きくなり電子の結びつきが弱くなるため、Cs の第一イオン化エネルギーが最も低く、Cs は容易に陽イオンになりやすい。そのため、Cs は O^{2-} や Cl^- 、 CO_3^{2-} などの陰イオンと反応しやすく、環境中では金属単体ではなく酸化物や塩化物、炭酸塩などの塩類もしくはイオンとして存在すると考えられる。

図 1.2 に事故から約 7 か月後の空間線量率および放射性 Cs の沈着量を示す[5]。放射性 Cs による汚染は同心円状ではなく福島第一原発の北西方向に汚染程度の非常に大きい地域が存在し、西南方向にも汚染が広がりつつあることがわかる。特に汚染程度の大きかった福島第一原発から 20 km 圏内は避難指示区域として設定された後、原子力災害特別措置法(1999 年法律第 156 号)に基づき「警戒区域」に指定され立ち入りが禁止された。また、20 km 圏外についても事故発生から 1 年の期間内に積算線量が 20 mSv に達する恐れのある地域が「計画的避難区域」に設定された。この 2 つの高線量の区域は後に「汚染廃棄物対策地域」として指定されている。放射性 Cs による汚染はこれらの地域だけでなく、図 1.2 の通り、福島県、栃木県、群馬県の広い範囲や岩手、宮城、茨城、千葉の一部などの東日本の広範囲におよんだ。

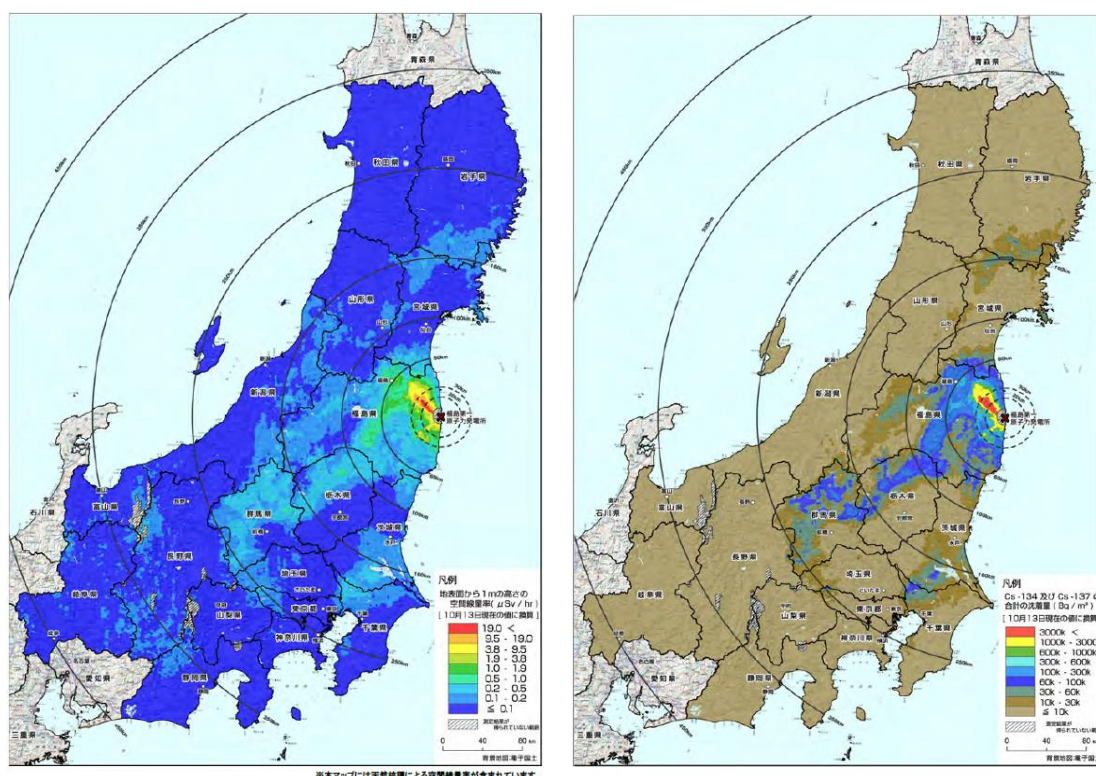


図 1.2 地表面から 1m 高さの空間線量率 (左) および、地表面への Cs-134 と Cs-137 の沈着量の合計 (右). 2011 年 10 月 13 日時点への換算値[5].

1.2. 放射性 Cs による汚染廃棄物

生活圏に沈着した放射性 Cs は、人間活動を通じて廃棄物処理過程へと流入し、放射性 Cs を高濃度に含む廃棄物が発生し、放射性 Cs による二次汚染への懸念が大きな社会問題となった。図 1.3 に放射性物質に汚染された廃棄物の発生構造を示す[6]。都市域に沈着した放射性 Cs は、雨水とともに下水処理過程に流入して下水汚泥中に濃集されるほか、ダストや土壌等と共に生活ごみに混入した放射性 Cs は日常的に排出される一般廃棄物の焼却残渣(焼却処理した際の燃え殻やばいじん)に移行される。その結果、東日本を中心に焼却施設で放射性 Cs に汚染された下水汚泥焼却灰や一般廃棄物焼却残渣が発生した。また、地震や津波の被災地で発生した災害廃棄物も同様に放射性 Cs に汚染された。さらに、放射性 Cs の汚染の程度が大きかった地域では、生活環境における空間線量率を低減させるために住宅や田畑、森林等で除染作業が行われ、汚染された表土の削り取りや草木類および落葉・落枝等の除去等により大量の除去土壌および除染廃棄物が生じた。これらの土壌や廃棄物は最終的に焼却施設等で減容化された後に最終処分場などで処分されることになる。焼却処理は、廃棄物の重量を約 10 分の 1 に減らすことができるが[7]、放射性 Cs は焼却されても分解せずに残るため、結果的に放射性 Cs は焼却残渣に濃縮されてしまう。放射性 Cs が高濃度になると、外部被曝による健康影響に配慮した被曝対策や、溶出や漏えいによる二次的な環境汚染の防止を検討しなければならないという問題が生じた。

このような事故由来の放射性 Cs を含む廃棄物の処理を速やかに進めるために、2011 年 8 月 30 日に「平成 23 年 3 月 11 日に発生した東北地方太平洋沖地震に伴う原子力発電所の

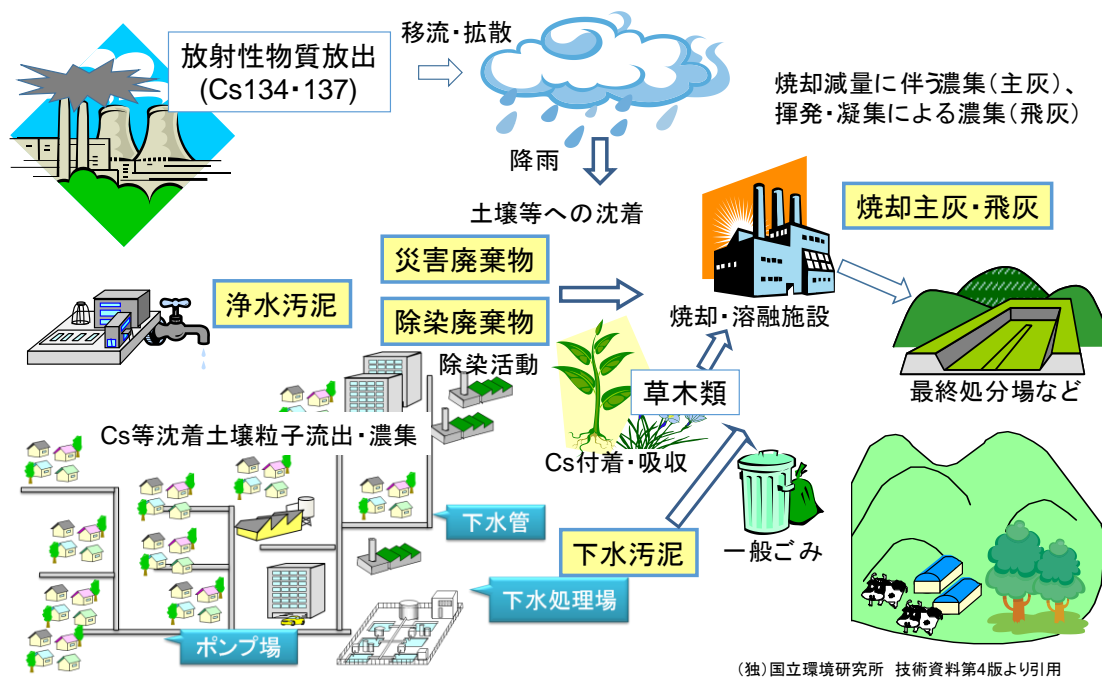


図 1.3 放射性物質に汚染された廃棄物の発生構造[6]

事故により放出された放射性物質による環境の汚染への対処に関する特別措置法」(以下、「特措法」、2011年法律第110号)が制定され、放射性Csを含む廃棄物処理の方針が示された。図1.4に福島県内の廃棄物および除去土壌等の処理フローを示す[8,9]。8,000Bq/kg以下の比較的放射性Cs濃度の低い廃棄物は通常の廃棄物として既存の廃棄物処理法に従って、各自治体で処理を行うことになった。ただし、8,000Bq/kg以下のものでも放射性Csに汚染され、または汚染のおそれのある一部の都県のばいじん(飛灰)や焼却灰その他の燃え殻(主灰等)などは特定一般廃棄物または特定産業廃棄物として指定され、入念的に廃棄物処理法に上乘せの留意事項が適用されている。汚染程度の大きかった旧警戒区域および計画的避難区域の11の市町村は汚染廃棄物対策地域(以下、対策地域)に設定され[10]、対策地域内の廃棄物は放射性Cs濃度が8,000Bq/kgを超える廃棄物(指定廃棄物)とあわせて特定廃棄物と呼ばれ、国が責任をもって処理することになった。特定廃棄物は放射性Cs濃度により処分方法が異なり、8,000Bq/kgを超え10万Bq/kg以下のものは、国有化された管理型処分場(旧フクシマエコテックセンター)を活用した埋立処分がなされ、10万Bq/kg超のものは中間貯蔵施設へ搬入される。中間貯蔵施設では濃度に関わらず福島県内の除去土壌および除染廃棄物の焼却残渣も貯蔵され、貯蔵総量は約1,600万~2,200万m³(東京ドーム約13~18個分に相当)と推計されている[11]。このような大量の貯蔵対象物については、2014年11月に改正された中間貯蔵・環境安全事業株式会社法(2003年法律第44号)の中で「中間貯蔵開始後30年以内に福島県外で最終処分を完了」と明記されており、最終処分に向けた減容化・再生利用が検討されている[12]。

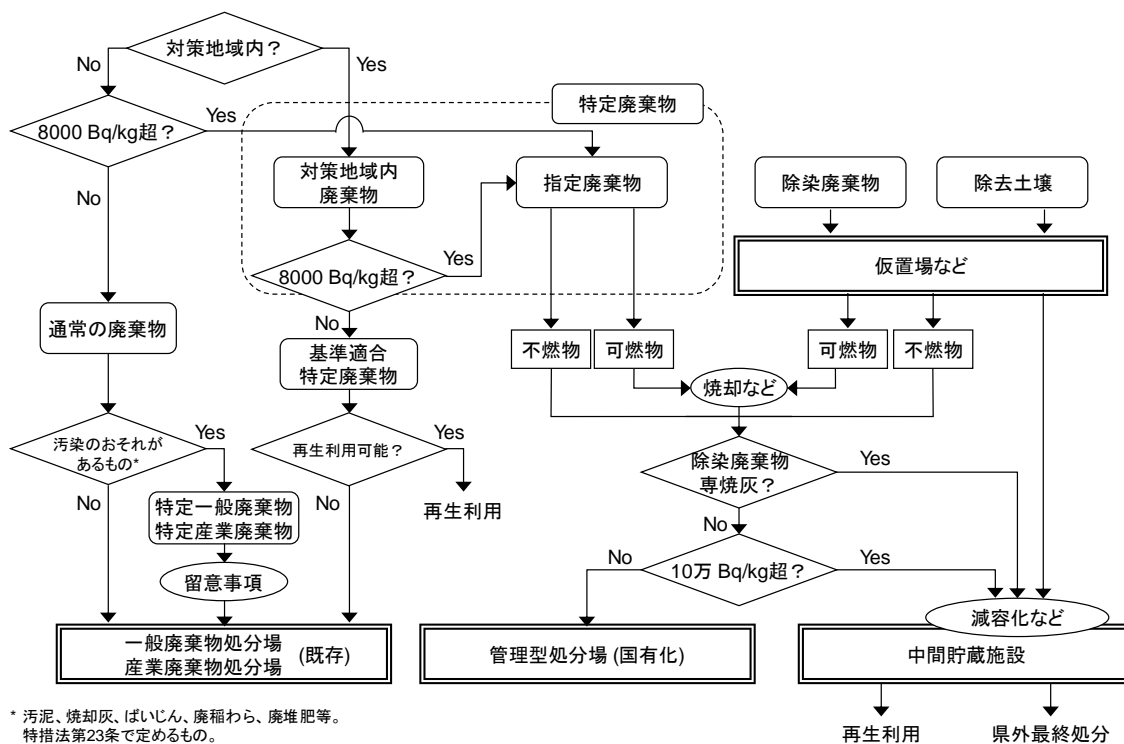


図 1.4 特措法に基づく福島県内の特定廃棄物および除去土壌等の処理フロー。[8,9]をもとに加筆修正。

特措法により指定廃棄物の処理は各県内で行うようになっていることから、福島県以外の各県では指定廃棄物の保管がひっ迫している場合には新たに長期管理施設を設置することとしている。しかし、長期管理施設の設置が計画されている、宮城県、栃木県、千葉県では住民からの合意が得られず計画は難航しており、茨城県および群馬県では指定廃棄物の量が比較的少ないとして分散保管を継続する方針が出ている。このように、事故から約7年が経過した現在でも、多くの自治体の焼却施設等で焼却残渣が分散保管されており、一時保管場所の負担増や長期的な安全性の確保が問題となっている。

1.3. 焼却処理に関する課題整理

我々の生活圏へと混入した放射性 Cs の多くは最終的に焼却処理により焼却残渣中に濃縮される。日本では山岳地域が多く埋立処分地の確保が難しいことなどから一般廃棄物の 80%が焼却処理されており[7]、焼却処理は必要不可欠である。そのため、焼却による放射性 Cs の濃縮は避けることのできない課題であり、焼却処理過程における放射性 Cs の挙動の把握は極めて重要である。事故以前の焼却・熔融処理における放射性 Cs の知見としては、原子力発電施設や病院から発生する放射性廃棄物の焼却[13-18]や、原子力発電所の廃炉にむけた金属くずの熔融[19-24]、チェルノブイリ原子力発電所の事故後の汚染バイオマスの燃焼[25,26] 等に関する知見が蓄積されている。しかし、都市域での広範囲の汚染は前例がなく、放射性物質を含む一般廃棄物や下水汚泥、除染廃棄物等の焼却処理は福島事故後に初めて直面する事案であった。事故から約 7 年が経過し、時間の経過とともに課題となる焼却施設や汚染廃棄物の種類は推移している。以下に、現状の放射性 Cs を含む廃棄物の焼却処理に関する課題を整理する (図 1.5)。I ~ III の 3 つの大きなフェーズに分かれ、互いに共通する場合もあるが、① ~ ③ の 3 つの課題が存在すると考えている。

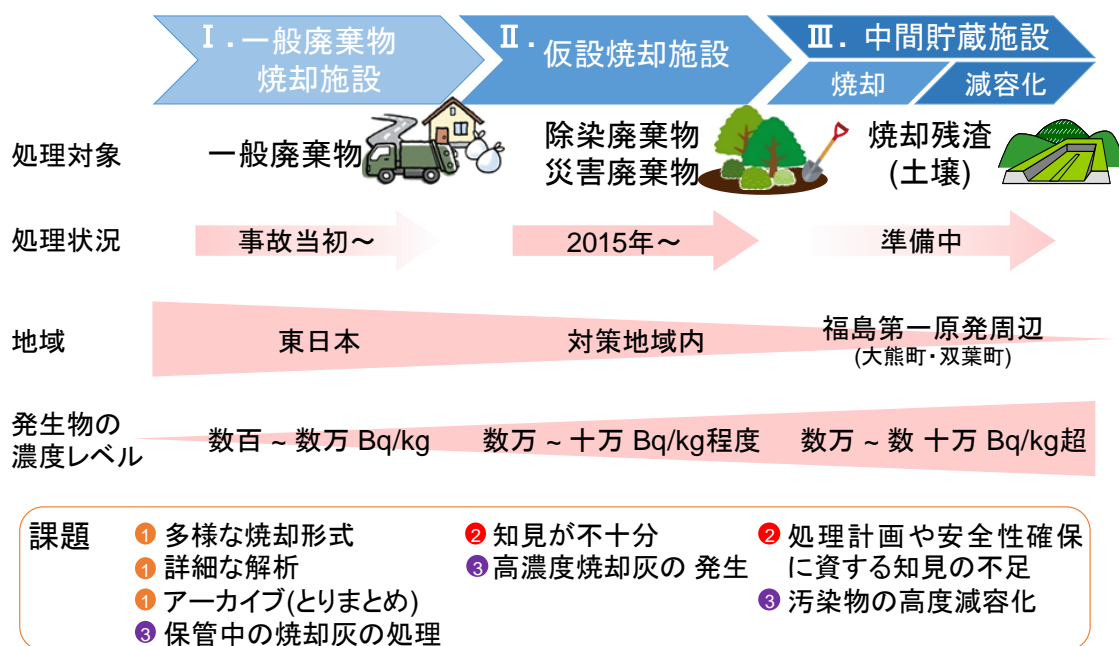


図 1.5 放射性 Cs を含む廃棄物の焼却処理に関する課題 (① ~ ③は次節 (1.4) と対応)

I. 一般廃棄物 (都市ごみ) 焼却施設

事故直後から数年の間は一般廃棄物中に混入した放射性 Cs の焼却残渣への濃縮と残渣の管理が東日本を中心に全国の広い範囲で問題となったが、現在は自然減衰等により放射性 Cs 濃度は低下し、事態は収束に向かっている。しかし、焼却施設には多様な処理形式が存在し、焼却残渣の性状も様々であった。事故後、焼却処理の安全性は確保されていたが、焼却残渣への放射性 Cs の濃縮率の違いや、焼却残渣からの放射性 Cs

溶出率の違いなどについて、焼却形式や焼却残渣の種類がおよぼす影響に着目した解析は十分になされておらず、今後の同様の不測の事態に備えるためにもこれまでの知見を体系的に整理する必要がある。また、一部の自治体では 8,000Bq/kg 以下の農林業系廃棄物（稲わら、牧草等）の焼却処理について理解が得られずに未だに仮保管されている状況であり、それらを一般廃棄物と混合焼却することが検討されているが[27]、その検討において、基礎となる一般廃棄物焼却処理過程における放射性 Cs の挙動を理解することは重要である。さらに、指定廃棄物である 8,000Bq/kg を超える焼却残渣は福島県外では集約保管の目途が立たずに焼却施設等で分散保管されており、8,000Bq/kg 以下の濃度の焼却残渣についても、厳しい自主基準等により最終処分には慎重な姿勢がとられるなど、焼却残渣からの放射性 Cs の除去等の抜本的な解決が求められている。

II. 対策地域内 仮設焼却施設

対策地域内では、大量の除染廃棄物が発生しており 2015 年より除染廃棄物の本格的な焼却処理が開始された。対策地域内の仮設焼却施設で処理される廃棄物は除染廃棄物や災害廃棄物（家屋解体廃棄物、片づけごみ等）など、一般廃棄物とは性状が異なり、これまでに焼却処理には前例がないため、発生する焼却残渣の放射性 Cs 濃度や焼却残渣からの放射性 Cs の溶出性などに関する知見が不十分である。今後は福島第一原発の位置する大熊町での焼却処理も始まるため、より高濃度の焼却残渣が発生することが予想され、除染廃棄物等の焼却処理過程における放射性 Cs の挙動の把握は安全性の面でも一層重要となる。また、焼却残渣は中間貯蔵施設で減容化され、副生成される高濃縮残渣が貯蔵されることになるが、減容化および貯蔵方法（貯蔵施設、貯蔵容器等）の選定や発生量の推計などにおいても焼却過程における放射性 Cs の挙動に関する知見は基礎データとして必要である。

III. 中間貯蔵施設

中間貯蔵施設内でも除染廃棄物の焼却・熔融処理などが計画されており、仮設焼却施設での知見が有用となると考えられる。また、中間貯蔵施設で保管される大量の除去土壌や除染廃棄物等の焼却残渣は 30 年以内に県外最終処分されることになっている。そのため、最終処分量を低減するために、除去土壌や焼却残渣から放射性 Cs を除去するの高度減容化技術が必要である。そのためには、それぞれの処理対象物に合わせた除染減容化技術を開発するとともに、効率よい放射性 Cs 除去のためにも放射性 Cs の除去原理を明らかにする必要がある。

このように、時の経過に伴い問題となる汚染地域の範囲は狭まる一方で、これまで手が付けられていなかった高線量地域の処理がはじまり、処理対象物の放射性 Cs 濃度は高くなる。また、いずれの場合でも焼却残渣からの放射性 Cs 除去による減容技術が必要とされている。

1.4. 本研究の目的と構成

本研究では、1.3 節に示した I ~ III の 3 つのフェーズから、次に示す 3 つの課題（図 1.5 の① ~ ③と対応）を抽出した。

- ① 一般廃棄物焼却施設における熱処理形式の放射性 Cs 挙動への影響
- ② 対策地域内仮設焼却施設における廃棄物種類の放射性 Cs 挙動への影響
- ③ 焼却残渣からの放射性 Cs 除染・減容化技術の開発

①および②は焼却処理過程における放射性 Cs の挙動に関する、一般廃棄物焼却施設および対策地域内仮設焼却施設での各々の課題である。両者には、いずれもストーカ式焼却施設での処理が行われる点で共通点があり相互の知見を比較することで焼却処理における放射性 Cs 挙動の全体像が見えてくると考えられる。③で除染・減容化の対象とする焼却残渣は一般廃棄物焼却施設および対策地域内仮設焼却施設の焼却残渣であり、焼却残渣からの放射性 Cs 除去特性の違いからも焼却残渣の評価が可能であると予想される。

以上の背景より、本研究では廃棄物の焼却処理過程に流入した放射性 Cs について、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処理対象物がおよぼす影響を明らかにするとともに、焼却残渣からの Cs 除去技術を検討することで、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。本論文の構成を図 1.6 に示す。本論文は、全 5 章から構成される。第 1 章は緒論とし、第 2 章 から第 4 章で① ~ ③の 3 つのテーマについて取り組み、第 5 章で研究を総括した。各章の内容を以下に概説する

第 1 章 緒論

研究の背景および課題について整理し、本論文での研究目的を述べる。

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

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、流動床式ガス化溶融炉、シャフト式ガス化溶融炉の 4 つの焼却形式について比較する。また、各焼却形式における放射性 Cs の分配（濃縮）挙動、焼却残渣からの溶出挙動、バグフィルタによる放射性 Cs 除去効率について実地調査を行う。

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

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う。第 2 章と同

様に放射性 Cs の分配挙動や溶出挙動、バグフィルタによる除去効率を調査するのに加え、主灰および飛灰中での放射性 Cs の存在形態についても解析する。第 2 章とはストーカ式焼却炉での処理について共通であり、第 2 章で得られた一般廃棄物焼却の結果とも比較を行う。

第 4 章 焼却残渣からの放射性 Cs 除染・減容化技術の開発

除染・減容技術の一つである加熱化学処理技術を、一般廃棄物および除染廃棄物等の焼却残渣からの放射性 Cs 除去に適用し、除去特性等について検討を行う。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る、各焼却残渣での放射性 Cs の存在形態と除去メカニズムについて考察する。

第 5 章 総括

全体のまとめを行い、今後の展望と課題を示し、本研究の総括を行う。

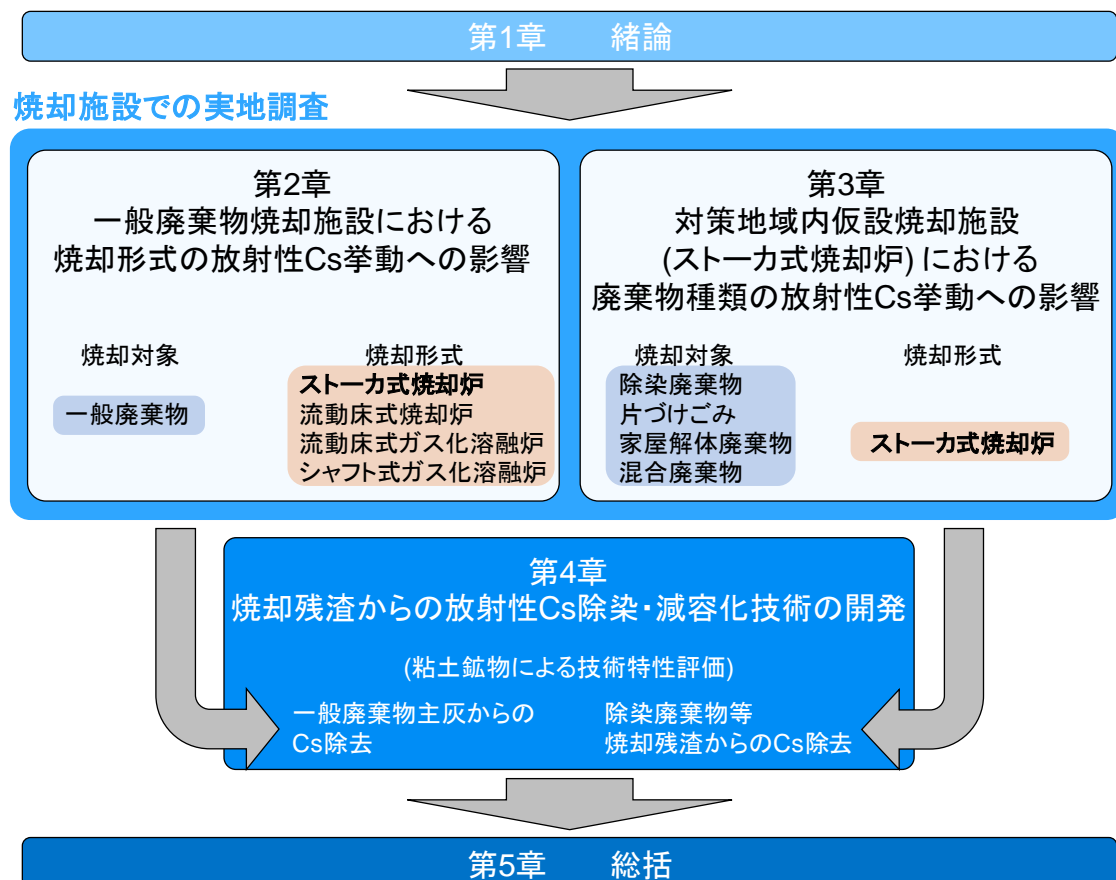


図 1.6 本論文の構成

第 1 章の参考文献

- [1] 経済産業省, 2011. 放射性物質放出量データの一部誤りについて, 平成 23 年 10 月 20 日, <http://f-archive.jaea.go.jp/handle/faa/1068/> (2018 年 1 月 14 日閲覧).
- [2] UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation), 2011. “Annex D. Health effects due to radiation from the Chernobyl accident”. Sources and Effects of Ionizing Radiation, UNSCEAR 2008 Report vol. II: Effects, Report to the General Assembly Scientific Annexes C, D and E. New York: United Nations, 70-71, ISBN 978-92-1-142280-1.
- [3] OECD Nuclear Energy Agency, 2003. “Chapter II The release, dispersion and deposition of radionuclides”. Chernobyl: Assessment of Radiological and Health Impacts: 2002 Update of Chernobyl: Ten Years On. OECD - Organisation for Economic Co-operation and Development.
- [4] NIST (National Institute of Standards and Technology), Ground Levels and Ionization Energies for the Neutral Atoms. (<https://www.nist.gov/pml/ground-levels-and-ionization-energies-neutral-atoms>) (2018 年 1 月 14 日アクセス)
- [5] 文部科学省, 2011. 文部科学省による、岩手県、静岡県、長野県、山梨県、岐阜県、及び富山県の航空機モニタリングの測定結果、並びに天然核種の影響をより考慮した、これまでの航空機モニタリング結果の改訂について, 2011 年 11 月 11 日. (http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/5000/4899/24/1910_111112.pdf) (2018 年 1 月 14 日閲覧).
- [6] 国立環境研究所, 2014. 放射性物質の挙動からみた適正な廃棄物処理処分(技術資料第 4 版), p2. (http://www.nies.go.jp/fukushima/pdf/techrepo_r4_140414_all.pdf) (2018 年 1 月 14 日閲覧).
- [7] 環境省 HP, 廃棄物処理技術情報 一般廃棄物処理実態調査結果 (http://www.env.go.jp/recycle/waste_tech/ippan/h27/index.html) (2018 年 1 月 14 日閲覧).
- [8] 環境省 HP, 放射性物質汚染廃棄物処理情報サイト, 福島県における取組み, 福島県内の汚染廃棄物の処理フロー (http://shiteihaiki.env.go.jp/initiatives_fukushima/#flow) (2018 年 1 月 14 日閲覧).
- [9] 遠藤和人, 2015. 除去土壌等の中間貯蔵施設整備とパイロット輸送. 基礎工. 43 (9), 70-73.
- [10] 環境省, 2011. 汚染廃棄物対策地域及び除染特別地域を指定する件 (2011 年 12 月 28 日, 環境省告示第 106 号)
- [11] 環境省 HP, 中間貯蔵施設情報サイト, 中間貯蔵施設の概要 (<http://josen.env.go.jp/chukanchozou/about/>) (2018 年 1 月 14 日閲覧).

- [12] 環境省 HP, 中間貯蔵施設情報サイト, 最終処分に向けた取組み, 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 (http://josen.env.go.jp/chukanchozou/facility/effort/investigative_commission/) (2018年1月14日閲覧).
- [13] Burger, L. L. 1995. A chemical basis for the partitioning of radionuclides in incinerator operation. PNL-10364, U.S. DOE (Department of Energy).
- [14] Eid, C., Van loon, A. J., 1985. Incineration of Radioactive Waste, Springer.
- [15] IAEA (International Atomic Energy Agency), 1989. Treatment of Off-gas from Radioactive Waste Incinerators. Technical Reports Series No. 302.
- [16] U.S. EPA (Environmental Protection Agency), 1991. Radiation and Mixed Waste Incineration Background Information Document Volume 1: Technology. EPA 520/1-91-010-1.
- [17] Yang, H. C., Eun, H. C., Lee, D. G., Oh, W. Z., Lee, K. W., 2005. Behavior of radioactive elements during thermal treatment of nuclear graphite waste thermodynamic model analysis. J. Nucl. Sci. Technol. 42 (10), 869-876. <https://doi.org/10.1080/18811248.2005.9711038>
- [18] Yoo, J. I., Shinagawa, T., Wood, J. P., Linak, W. P., Santoianni, D. A., King, C. J., Seo, Y. C., Wendt, J. O. L., 2005. High-temperature sorption of cesium and strontium on dispersed kaolinite powders. Environ. Sci. Technol. 39, 5087-5094. <https://doi.org/10.1021/es048064n>
- [19] Min, B. Y., Lee, K. W., Moon, J. K., 2014. Distribution characteristics of radionuclides in high-temperature melt phase during melt decontamination of decommissioned metal waste. Ann. Nucl. Energy 63, 774-779. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2013.08.038>.
- [20] Nakamura, H., Kanazawa, K., Fujiki, K., 1995. Melting tests for recycling of radioactive metal wastes. proceedings of JAERI-Conf 95-015, pp247-254.
- [21] Nakashima, N., Fukui, T. Nakashio N. Isobe, M., Ohtake, A., Wakui, T., Hirabayashi, T., 2002. Characterization of solidified products yielded by plasma melting treatment of simulated non-metallic radioactive wastes. J. Nucl. Sci. Technol. 39 (6), 687. <http://dx.doi.org/10.1080/18811248.2002.9715250>.
- [22] Sappok, M., 1991. Recycling of metallic materials from the dismantling of nuclear plants. Kerntechnik 56 (6), 376-378.
- [23] U.S. Nuclear Regulatory Commission (U.S. NRC), 2003. Radiological Assessments for Clearance of Materials from Nuclear Facilities: Main Report (NUREG-1640, Volume 1). <https://www.nrc.gov/reading-rm/doc-collections/nuregs/staff/sr1640/>.

- [24] 山手一記, 中村寿, 金沢勝雄, 藤本和男, 櫻井大八郎, 1996. 鉄系金属廃棄物の溶融・造塊時における放射性核種の移行挙動. 鑄造工学. 68 (8), 644-649. <https://doi.org/10.11279/jfes.68.644>
- [25] Amiro, B. D., Sheppard, S.C., Johnston, F.L. Evenden, W.G., Harris, D.R., 1996. Burning radionuclide question: What happens to iodine, cesium and chlorine in biomass fires? Sci. Total Environ. 187 (2), 93-103. [https://doi.org/10.1016/0048-9697\(96\)05125-X](https://doi.org/10.1016/0048-9697(96)05125-X)
- [26] Horrill, A. D., Kennedy, V. H., Paterson, I. S., McGowan, G. M., 1995. The effect of heather burning on the transfer of radiocaesium to smoke and the solubility of radiocaesium associated with different types of heather ash. J. Env. Radioact., 29 (1), 1-10. [https://doi.org/10.1016/0265-931X\(95\)00012-Y](https://doi.org/10.1016/0265-931X(95)00012-Y)
- [27] 宮城県, 第 14 回宮城県指定廃棄物等処理促進市町村長会議, 資料 2, (<http://www.pref.miyagi.jp/soshiki/houtai/shitei-kaigi14.html>) (2018年1月13日閲覧).

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

2.1. はじめに

放射性Csによる生活圏の汚染は広範囲におよび、各地の一般廃棄物焼却施設の焼却残渣から放射性Csが検出された。環境省で緊急調査された16都県のみならず[1]、福島第一原発から1,200 km離れた九州の焼却施設においても福島第一原発事故由来の放射性Csが確認された[2]。これまで一般廃棄物（都市ごみ）の各処理施設において汚染の実態解明のために調査がなされてきたが、焼却残渣の発生量、放射性Csの焼却残渣への濃縮の程度などは多様であり、その要因の一つとして焼却形式の違いが挙げられる。焼却形式として、施設の種類には廃棄物を燃やす「焼却」のほかに、廃棄物を熱分解し生成する可燃性ガスとチャー（炭）をさらに高温で溶かす「ガス化溶融」の主に2種類があり、「ストーカ式」、「回転式」、「流動床式」、「固定床式」、「シャフト式」などの処理方式がある[3]。焼却残渣を高温で溶かす「灰溶融炉」も存在するが、本論文では廃棄物を直接処理する「焼却」および「ガス化溶融」の2つを焼却施設として研究の対象とする。図2.1に事故発生当時（2011年度）の全国の焼却施設の焼却形式ごとの割合を示す[4]。ストーカ式焼却炉が約4分の3を占め、次いで、流動床式焼却炉、シャフト式ガス化溶融炉、流動床式ガス化溶融炉が続く。焼却形式が異なるということは、処理温度や、排出される処理残渣の性状、種類、発生量等が異なるということであり、当然ながら放射性Csの挙動にも影響をおよぼすことが予想される。施設内へと流入した放射性Csは焼却残渣もしくは溶融スラグ等として排出され、金属やセメント等へリサイクルされるものは再資源化されるが、それ以外の焼却残渣等は放射性Cs濃度が8,000Bq/kg以下であれば各自治体による埋立処分、8,000Bq/kg超であれば国による指定廃棄物としての処分が

行われる。そのため、焼却過程における放射性Csの焼却残渣等への濃縮、分配過程についてそれぞれの焼却形式が与える影響を明らかにすることは重要である。なお、焼却過程においては、放射性Csの一部が施設内耐火物へ浸透・蓄積することが報告されているが[5]、本論文ではそこは取り扱わずに、排出される固体への放射性Csの分配についてのみを焦点を絞った。

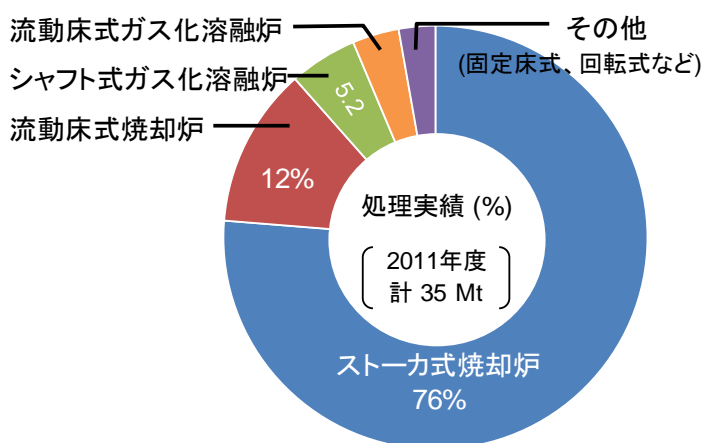


図2.1 一般廃棄物の焼却施設の割合（ガス化溶融施設含む）。（2011年度処理実績[4]をもとに作成）

放射性 Cs を含む廃棄物の焼却処理における懸念事項の一つは、二次的な環境汚染の発生、つまり排ガスを通しての大気への拡散や、焼却残渣からの溶出による処分場外の土壌や地下水の汚染、河川等への流入である。一般公衆の放射能の追加被ばく限度は ICRP (国際放射線防護委員会) 2007 年勧告[6]を踏まえて年間 1 mSv とされている。そこで、特措法では同じ人が 0 歳から 70 歳になるまで、毎日その空気を吸う、もしくは毎日その水を摂取し続けたとしても、被ばく線量が一般公衆の許容値 (1 mSV/年) 以下となるように環境中への排出に関する基準を設けた。具体的には、排ガス中の放射性 Cs 濃度については排ガスの排出口 (煙突) において放射性 Cs 濃度が監視され、3 か月間の平均濃度が、(2.1) 式を満たすように管理されている[7]。

$$\frac{\text{Cs-134 (Bq/m}^3\text{)}}{20 \text{ (Bq/m}^3\text{)}} + \frac{\text{Cs-137 (Bq/m}^3\text{)}}{30 \text{ (Bq/m}^3\text{)}} \leq 1 \quad (2.1)$$

埋立処分が行われる焼却残渣からの放射性 Cs の溶出については、埋立処分場からの放流水の排水口の放射性 Cs 濃度が監視され、3 か月間の平均濃度が (2.2) 式を満たすように管理されている[7]。

$$\frac{\text{Cs-134 (Bq/L)}}{60 \text{ (Bq/L)}} + \frac{\text{Cs-137 (Bq/L)}}{90 \text{ (Bq/L)}} \leq 1 \quad (2.2)$$

これらの濃度限度は、周辺の大気または公共水域の濃度限度に基づいたものであるが、実際の濃度管理は排ガスの煙突や最終処分場の浸出水排出口で行われているため、大気や河川等の希釈効果を考慮すると、非常に安全側に見積もった基準ということになる。

排ガス中の放射性 Cs 濃度の測定や[8]、焼却施設内の空間線量率の測定を行うことで、既設の焼却施設で放射性 Cs を含む一般廃棄物が安全に処理できることは既に各施設で確認されている。また、排ガス処理設備による放射性 Cs 除去率等の詳細な調査もなされ、科学的知見も蓄積されているが[9,10]、このような排ガスに関する詳細な調査が行われているのはストーカ式の焼却炉が中心であり、その他の焼却形式に関する知見は安定性 Cs に関する知見は存在するものの[11]、放射性 Cs に関する知見は不足している。焼却残渣からの放射性 Cs の溶出性は、主灰 (焼却炉の炉底から排出される燃え殻) からは溶出性が低く、飛灰 (排ガスに含まれるばいじん) では高い溶出性 (57.9 ~ 89.1%[12,13]) を示すことがわかっている。そのため、特措法において放射能に汚染されているおそれのある一部の都県のばいじん (飛灰) や焼却灰その他の燃え殻 (主灰等) は特定一般廃棄物 (もしくは特定産業廃棄物) に指定され、飛灰の処分にあたっては通常の処理に上乗せする形で、以下の 8 点に留意したうえで処分することとしている[14,15]。①「汚染飛灰を水と接触させない」、②「汚染飛灰の下を遮水しない」、③「汚染飛灰の下には土壌系吸着層を敷設する」、④「汚染飛灰を臭

穴（ガス抜き管）の近くに埋めない」、⑤「汚染飛灰を法面集排水管近くに埋めない」、⑥「汚染飛灰を下流側や下の方に埋めない」、⑦「汚染飛灰の上に有機性廃棄物を埋めない」、⑧「汚染飛灰の埋立が終わったら上部を遮水する。遮水が必要なのは、この上部のみ」。このような留意事項に加えて溶出する放射性 Cs については、処分場からの浸出水の放流水および周縁地下水の放射性 Cs 濃度を月 1 回以上測定管理し、(2. 2) 式の公共水域の放射性 Cs 濃度限度を満たすことが確認されている。環境省が把握しているモニタリング結果等では、(2. 2) 式の濃度限度を超過した事例は報告されておらず、放流水は約 9 割、周縁地下水はほぼ全ての検体が検出下限値未満である[16]。適切に処分され、管理、監視されることでこのような溶出性の高い放射性 Cs を含む廃棄物であっても、通常の管理型処分場で処分が可能であると考えられている。

また、放射性 Cs による汚染が懸念される地域にある焼却施設では、焼却残渣の放射性 Cs 濃度が定期的に調査されており[7]、自治体等の HP などで公開されている。小口ら[17] はこれらのデータを元に物質収支解析を行い、焼却形式ごとに飛灰の放射性 Cs 濃度の傾向が異なることを示し、その要因が飛灰の発生量や放射性 Cs の飛灰への移行のしやすさの違いによることを示した。焼却施設における実地調査も多数なされており[18-23]、その結果について Kuramochi et al. [24]がレビューしている。その中で、ストーカ式焼却炉、流動床式焼却炉、流動床式ガス化溶融炉、灰溶融炉での放射性 Cs の分配挙動や溶出性について比較されており、ストーカ式焼却炉や主灰のみを処理対象とした灰溶融炉では、放射性 Cs の飛灰（溶融飛灰）への分配率が比較的低下することがわかっている。さらに、実地調査だけではなく、非放射性的の CsOH や Cs₂CO₃ を焼却対象物に添加した模擬汚染物を使用した焼却試験により、いくつかの重要な知見が得られている。Oshita et al.[25] は焼却温度が高くなり、焼却用の空気量が多いほど Cs は飛灰へと移行しやすくなることを示した。主灰中の放射性 Cs はパイロットスケールのストーカ式焼却炉での実験[26]により主灰中の溶融相（高温により一部溶けた部分）へ移行しやすいという知見が得られているほか、熱力学平衡計算では 1000 °C より低い温度域では Cs は Pollucite (CsAlSi₂O₆) などのセシウムアルミノシリケートとして存在し、より高い温度では溶融相に Cs が取り込まれると推定されている[24]。一方、飛灰中の放射性 Cs は μ -XRF および μ -XAFS を用いた分析[27]や、熱力学平衡計算[24] から CsCl として存在することが示唆されている。CsCl は水への高い溶解性 (186.5 g/100g · H₂O at 20 °C)[28]を示すことや、一般的に飛灰中の Cl は主灰中よりも数桁高濃度であり、NaCl や KCl のアルカリ塩化物として存在することからも CsCl として存在すると推定される。つまり、一般廃棄物の焼却過程では焼却対象物中に含まれる Cl に起因して放射性 Cs は CsCl ガスとして揮発し、排ガス冷却過程において揮発した CsCl ガスがばいじんの表面へと凝結したものと考えられている[9]。また、通常の焼却施設においてはダイオキシン問題に対応するために排ガス処理設備としてバグフィルタ等を導入してばいじんが高度に除去されており、結果として放射性 Cs も高度に除去されている。

このような知見のもとこれまで安全な処理が行われており、福島第一原発事故から約 7 年

経過した現在では一般廃棄物焼却施設における放射性 Cs による二次汚染の問題は沈静化に向かっている。しかし、今後の予期せぬ事故など不測の事態へ備える意味でも、今回の事故を契機としたこれまでの知見を体系的に整理する必要がある、そのためには次に示すような課題が存在すると考えている。

- 1) 焼却形式の違いによる放射性 Cs の分配挙動の類型化
(特に、シャフト式ガス化溶融炉についての調査はほとんどない)
- 2) 熱回収等の工程で煙道に付着・落下するなどして捕集される灰（以下、煙道灰（焼却残渣の一部））や、磁力選別等で回収される金属類などを含めた詳細な解析
- 3) 多様な種類の焼却残渣からの放射性 Cs の溶出性の調査
- 4) バグフィルタの安全性（放射性 Cs 除去能）についての焼却形式の違いによる影響

そこで、本研究では実施設で新たに行った調査結果に加えて、これまでに行われた調査について相互比較が可能となるように再度解析を行い、焼却形式の違いによる放射性 Cs の焼却残渣への濃縮率や分配挙動を比較し、体系的に整理した。また、焼却残渣からの溶出率およびバグフィルタの安全性についても新たに比較し、焼却形式の違いによる影響を評価した。

2.2. 調査方法

2.2.1. 調査対象施設および試料

本研究では、ストーカ式焼却炉、流動床式焼却炉、流動床式ガス化溶融炉、シャフト式ガス化溶融炉の 4 つの焼却形式を調査対象とし、8 つ一般廃棄物焼却施設を対象とした。表 2.1 に調査対象施設の一覧を示す。いずれの施設もバグフィルタによる排ガス処理が行われている。今回新たに施設 E および施設 H で調査を行い、その他の施設についてはこれまでの調査で得られたデータや試料等について解析、追加実験を行った。施設 A ~ C は山崎ら [29] による調査であり、燃焼温度（燃焼室出口温度）の変化、焼却対象物への消石灰等の添加による放射性 Cs の移行挙動への影響を調査していたため、本研究では通常運転での処理について解析の対象とした。施設 D は川本ら [19] が灰溶融炉付帯の焼却施設で調査を行ったものであるが、本研究では焼却系列のみを解析の対象とした。解析対象には、通常運転条件のほかにバグフィルタの出口温度低減や灰溶融の雰囲気調整、排ガス処理薬剤にゼオライトを添加した場合の条件も含まれる。ただし、排ガス処理薬剤へゼオライトを添加した場合は、その物理的形状の違いや水溶液系において放射性 Cs の高い吸着能が報告されている点 [30] から放射性 Cs の挙動へ影響が考えられるため他の条件とは区別して比較した。施設 F では一般廃棄物に牧草等が混合処理されていたが、混合割合が小さく放射性 Cs の挙動への影響が小さいと考え、原田ら [21] により報告されている結果について解析を行った。施設 G は川本ら [20] の調査の中から除染廃棄物（木質チップ）混焼試験以外の、一般廃棄物のみを処理対象としたものを解析対象とした。いずれの施設でも調査は複数日程で行われた。

表 2.1 調査対象施設の一覧

| 施設 | 焼却形式 (略称) | 処理温度* (°C) | データ 数 | 採取試料 | | 試料/データ 出典 | 備考 |
|----|------------------------|---------------|----------|-------------------|-------------------------------|----------------|---|
| | | | | 炉下排出物 | 飛灰 | | |
| A | ストーカ式焼却炉 (ストーカ) | 850-950 | 3 | 主灰 | 減温塔灰、集じん灰 | 山崎ら(2016) [29] | - |
| B | ストーカ式焼却炉 (ストーカ) | 800-950 | 4 | 主灰 | 集じん灰 | 山崎ら(2016) [29] | - |
| C | ストーカ式焼却炉 (ストーカ) | 800-850 | 2 | 主灰 | 集じん灰 | 山崎ら(2016) [29] | - |
| D | ストーカ式焼却炉 (ストーカ) | 850-950 | 4 | 主灰 | 集じん灰 | 川本ら(2012) [19] | 下水汚泥 (6%) 混焼 |
| E | 流動床式焼却炉 (流動床焼却) | 800-900 | 2 | 不燃物、鉄 | ガス冷灰、集じん灰 | 新規調査 | 流動砂も採取(データ数1) |
| F | 流動床式焼却炉 (流動床焼却) | 800-900 | 10 | 不燃物 | 減温塔灰、集じん灰 (焼却飛灰) | 原田ら(2014) [21] | し尿汚泥(5-10%), 牧草(0-13%) 混焼. 溶出試験はデータ数51 |
| G | 流動床式ガス化溶融炉 (流動床ガス化) | 1300-1400 | 2 | スラグ、不燃物、 鉄、アルミ | 溶融飛灰 | 川本ら(2013) [20] | - |
| H | シャフト式ガス化溶融炉 (シャフト) | 1300-1650 | 2 | スラグ、磁選メタル | ガス燃焼炉ダスト、ボイラダ スト、減温塔灰、集じん灰 | 新規調査 | 酸素式 (石灰石やコークス等の 副資材は使用せず) |

* 処理温度は、施設 A, B, C は焼却炉出口温度を測定[29]。施設 D, G, H は施設のパンフレットより引用。施設 E, F は流動床式焼却炉での一般的な焼却温度を引用[31]。

代表的な採取試料を写真 2.1 に示す。いずれの焼却形式でもばいじんは主に集じん灰として回収されるが、焼却炉の下から排出される残渣は焼却形式により異なった。ストーカ式焼却炉の炉下からは主灰が排出されるのに対し、流動床式焼却炉では陶磁器や礫等の混合物である不燃物が排出される。このような主要な焼却残渣の他にも、磁選機やアルミ選別機で選別された金属類（鉄やアルミ）が炉下から発生する。流動床式ガス化溶融炉やシャフト式ガス化溶融炉の炉下からは灰分が溶融されてスラグとして排出される。また、減温塔灰やボイラー灰などの煙道灰が多く施設で発生する。本研究では、金属類や煙道灰などの発生量の少ない残渣も可能な範囲で採取し、主要な焼却残渣以外も解析の対象とした。また、流動床式焼却施設（施設 E）では、通常は炉内を循環している流動砂も採取した。試料は基本的に 1 日の中で複数回採取したものを混合して代表試料として分析に供し、1 日ごとの試料をデータ数「1」とした。

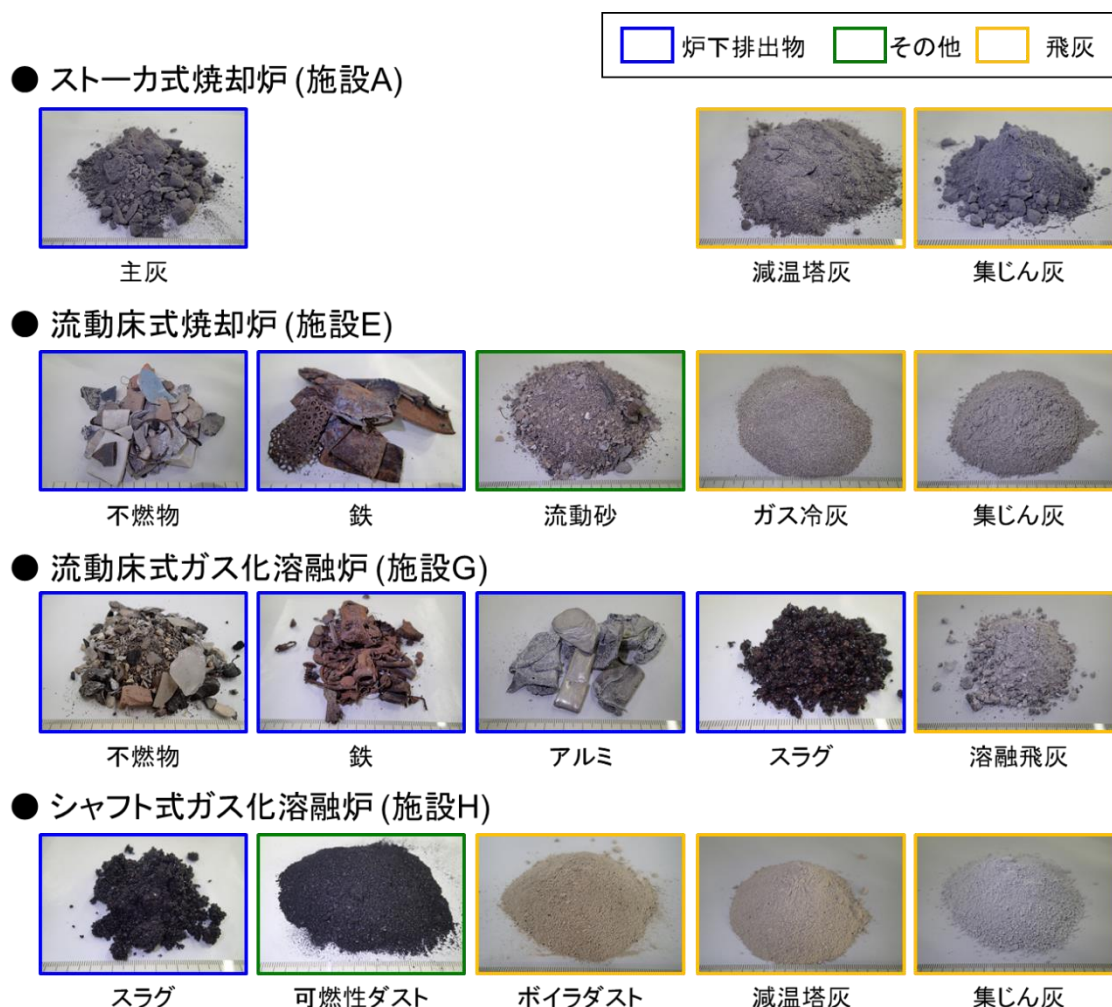


写真 2.1 代表的な焼却残渣の外観

図 2.2 に施設概略フロー図および試料採取箇所を示す。施設のフローや試料の採取箇所は施設により異なる点に留意が必要である。一般的には煙道灰は主灰や不燃物等とともに排出される場合と、集じん灰とともに排出される場合に分かれるが、本調査で個別に採取した煙道灰はいずれも集じん灰とともに排出されていた。したがって、本研究で対象とした焼却残渣は大きく次の 2 種類に分類することができる。

- 1) 炉下排出物：主灰、不燃物、スラグおよび金属等の炉下から排出されるもの
- 2) 飛灰：集じん灰および煙道灰。有害ガス除去薬剤（消石灰等）を含む

本研究では個々の焼却残渣について比較を行ったほか、発生量比に基づいて足し合わせたデータを「炉下排出物」もしくは「飛灰」として取り扱った。なお、飛灰は基本的に安定化処理（脱塩処理、キレート処理）を行う前のものを解析の対象とした。

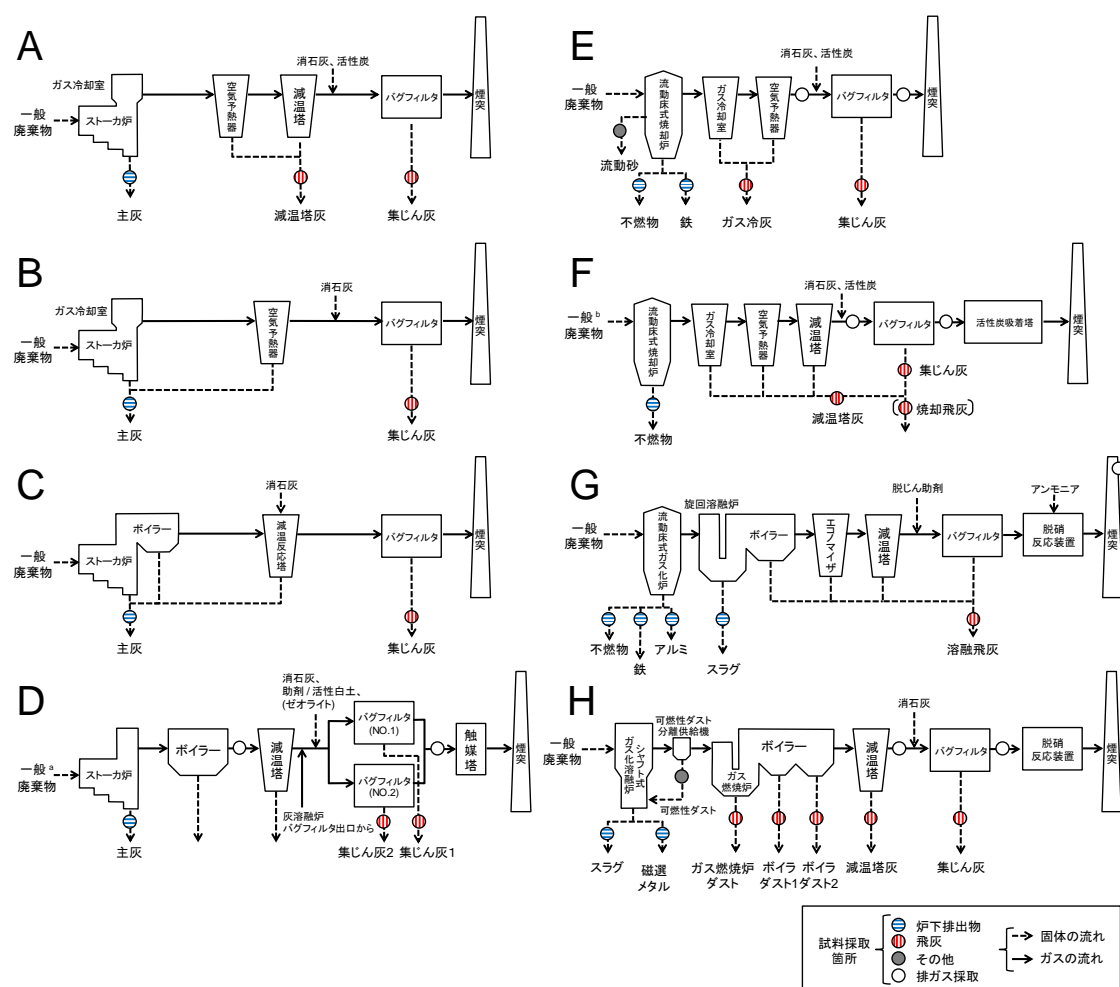


図 2.2 施設概略フロー図および試料採取箇所。a 施設 D では一般廃棄物に約 6%の下水汚泥を混焼、b 施設 F では 5～10%のし尿汚泥および 0～13%の牧草を混焼。

2.2.2. 分析方法

1) 焼却残渣発生量

焼却残渣の発生量は、基本的に各施設の日報、月報等の記録に基づいてデータを採用したが、通常の運転で発生量を計測していない試料については別途重量を測定し、個々の焼却残渣の重量を求めた。炉下排出物あるいは飛灰として 2 種類に分類して比較する際には、個々焼却残渣の発生重量を足し合わせた。

2) 放射性核種分析

放射性核種分析では放射性 Cs のみを対象とし、ゲルマニウム (Ge) 半導体検出器 (ORTEC、GEM-30, GEM-65, GMX-40 等) を用いて個々の焼却残渣について Cs-134 および Cs-137 の濃度を測定した。Cs-134 と Cs-137 の濃度は試料採取日に減衰補正を行い、合計値を放射性 Cs (T-Cs) 濃度とした。個々の焼却残渣について放射性 Cs 濃度の測定を行い、炉下排出物あるいは飛灰として 2 種類に分類して比較する際には、発生重量比に基づいて放射性 Cs 濃度を算出した。焼却対象物 (投入ごみ) については焼却残渣と異なり全体の代表性を保ったまま採取することは困難であるため、(2.3) 式のようにすべての焼却残渣の放射性 Cs 量の合計値を、焼却量で除することで焼却対象物の放射性 Cs 濃度とした。

$$C_{\text{waste}} (\text{Bq/kg}) = \frac{\sum\{C_{\text{residue}} (\text{Bq/kg}) \times W_{\text{residue}} (\text{kg/h})\}}{W_{\text{waste}} (\text{kg/h})} \quad (2.3)$$

ここで、 C_{waste} および C_{residue} はそれぞれ焼却対象物の放射性 Cs 濃度 (Bq/kg (湿基準)) および個々の焼却残渣の放射性 Cs 濃度 (Bq/kg (乾基準)) を、 W_{waste} および W_{residue} はそれぞれ焼却対象物の焼却処理量 (kg/h (湿基準)) および個々の焼却残渣の発生重量 (kg/h (乾基準)) を示す。

3) 焼却残渣への放射性 Cs 分配率

焼却残渣中の放射性 Cs 濃度に、各残渣の発生量を乗ずることで、焼却残渣への放射性 Cs の分配率を求めた ((2.4) 式)。

$$\text{放射性 Cs 分配率}(\%) = \frac{C_{\text{residue}} (\text{Bq/kg}) \times W_{\text{residue}} (\text{kg/h})}{\sum\{C_{\text{residue}} (\text{Bq/kg}) \times W_{\text{residue}} (\text{kg/h})\}} \times 100 \quad (2.4)$$

ここで、 C_{residue} および W_{residue} はそれぞれ個々の焼却残渣の放射性 Cs 濃度 (Bq/kg (乾基準)) および発生量 (kg/h (乾基準)) を示す。

4) 溶出試験

個々の焼却残渣について溶出試験を行った。溶出試験は JIS K 0058-1「スラグ類の化学物質試験方法」[32]に基づいて以下の手順で行った。

- 1) 試料：水=1：10 となるように試料を入れたプラスチック製ボトルに水を添加する
- 2) 1)を 6 時間攪拌もしくは水平振とうする
- 3) 0.45 μm メンブレンフィルタで 2) をろ過する
- 4) ろ液の放射性 Cs 濃度を測定する
- 5) 下記 (2.5) 式から放射性 Cs 溶出率を算出

$$\text{放射性 Cs 溶出率 (\%)} = \frac{(C_{\text{filtrate}}(\text{Bq/L})/\rho(\text{kg/L}) \times W_{\text{filtrate}}(\text{kg}))}{(C_{\text{residue}}(\text{Bq/kg}) \times W_{\text{residue}}(\text{kg}))} \times 100 \quad (2.5)$$

ここで、 C_{filtrate} および C_{residue} はそれぞれろ液および溶出試験を行う前の焼却残渣の放射性 Cs 濃度 (Bq/L および Bq/kg) を、 W_{filtrate} および W_{residue} はそれぞれろ液および溶出試験に使用した焼却残渣の重量を、 ρ は溶媒 (水) の密度 ($\rho=1.0 \text{ kg/L}$) を示す。なお、ろ液の放射性 Cs 濃度が検出下限値未満であったものは、便宜的に検出下限値を用いて計算した。また、溶出液の pH および電気伝導度 (EC) を測定した。

5) バグフィルタによる放射性 Cs 除去率

施設 D, E, F および H ではバグフィルタ前後の排ガス中の放射性 Cs 濃度および排ガス流量 (乾き) を測定し、バグフィルタ前後の排ガス中の放射性 Cs 量を算出し、その差からバグフィルタによる放射性 Cs 除去率を求めた。排ガス中の放射性 Cs 濃度の測定方法は、環境省の「廃棄物関係ガイドライン第 5 部 放射能濃度等測定方法マニュアル」(以下、公定法)[33]に定められている、JIS Z 8808「排ガス中のダスト濃度測定方法」[34]に準拠して行った。本法は、ろ紙によってばいじんを捕集してその後段で吸収液による捕集を行う方法であり、吸収液捕集はろ紙が破損した場合のバックアップとして組み込まれている。放射性 Cs 濃度の測定は、ろ紙部と吸収液 (ドレン部) のそれぞれについて Ge 半導体検出器で行われた。また、公定法では検出下限値は $2 \text{ Bq/m}^3\text{N}$ とされているが[33]、本研究ではより精度の高い放射性 Cs 除去率を把握するために、数桁低い検出下限値で測定を実施した。バグフィルタによる放射性 Cs 除去率は、(2.6) 式により求めた。

$$\text{放射性 Cs 除去率 (\%)} = \left\{ 1 - \frac{(C_{\text{after}}(\text{Bq/Nm}^3) \times V_{\text{after}}(\text{Nm}^3/\text{h}))}{(C_{\text{before}}(\text{Bq/Nm}^3) \times V_{\text{before}}(\text{Nm}^3/\text{h}))} \right\} \times 100 \quad (2.6)$$

ここで、 C_{before} および C_{after} はバグフィルタ前およびバグフィルタ後でろ紙部に捕集され

たばいじんの放射性 Cs 濃度 (Bq/Nm^3) を、 V_{before} および V_{after} はバグフィルタ前およびバグフィルタ後での排ガス流量 (Nm^3/h (乾き)) を示す。結果的にバグフィルタ後の放射性 Cs 濃度は検出下限値未満であったため、 C_{after} (バグフィルタ後の放射性 Cs 濃度) には検出下限値を代用した。また、施設 G では煙突においてのみ検出下限値を下げた測定を行った。

排ガス中の放射性 Cs の測定方法については高岡[10]により異なる 3 つの測定方法の比較がなされ、公定法が最も実地的で合理的であるとされている。さらに、公定法による測定の妥当性は大阪市[35]や籠谷ら[36]による管状炉での試験や、山本ら[37]による小型の焼却炉での試験で検証されているため、公定法により排ガス中の放射性 Cs 濃度を妥当に評価可能であると考えられる。

2.3. 結果および考察

2.3.1. 焼却残渣への放射性 Cs 濃縮率および発生量

焼却残渣の放射性 Cs 濃度レベルは焼却対象物の放射性 Cs 濃度レベルによって異なる。そこで、各施設間の放射性 Cs 濃度を比較するために (2.7) 式のように焼却残渣の放射性 Cs 濃度を焼却対象物の放射性 Cs 濃度で除して、一般廃棄物から各焼却残渣への放射性 Cs 濃縮率を算出した。なお、この濃縮率は各焼却残渣中の放射性 Cs 濃度の推定にも有用に利用できる。

$$\text{放射性 Cs 濃縮率} = \frac{C_{\text{residue}}(\text{Bq/kg})}{C_{\text{waste}}(\text{Bq/kg})} \quad (2.7)$$

ここで、 C_{waste} および C_{residue} はそれぞれ焼却対象物の放射性 Cs 濃度 (Bq/kg (湿基準)) および個々の焼却残渣の放射性 Cs 濃度 (Bq/kg (乾基準)) を示す。

表 2.2 に焼却形式ごとの炉下排出物および飛灰の放射性 Cs 濃縮率、残渣発生量および放射性 Cs 分配率を示す。また、図 2.3 に施設ごとの一般廃棄物から各焼却残渣への放射性 Cs 濃縮率を示す。

表 2.2 焼却形式ごとの放射性 Cs 濃縮率、焼却残渣の発生量および放射性 Cs 分配率 (全調査日の平均値、括弧内は最小値と最大値)

| 焼却形式 | | ストーカ | 流動床焼却 | 流動床ガス化 | シャフト |
|---------------------|-------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| 施設 | | A, B, C, D | E, F | G | H |
| データ数 | | 13 | 12 | 2 | 2 |
| 放射性Cs 濃縮率 (-) | 炉下排出物 | 3.4 (2.3 - 5.4) | 2.6 (1.5 - 4.2) | 1.4 (1.1 - 1.7) | 0.29 (0.17 - 0.41) |
| | 飛灰 | 20.6 (13.3 - 33.4) | 14.5 (5.8 - 18.3) | 34.1 (31.3 - 36.9) | 52.0 (48.8 - 55.2) |
| 残渣発生量 (kg/ごみ1t) | 炉下排出物 | 96.1 (52.6 - 162) | 56.0 (13.1 - 86.6) | 92.7 (83.4 - 102) | 60.3 (47.7 - 73.0) |
| | 飛灰 | 35.0 (22.9 - 44.3) | 65.4 (41.5 - 161) | 25.5 (24.7 - 26.3) | 19.0 (17.6 - 20.3) |
| 放射性Cs 分配率 (%) | 炉下排出物 | 30.8 (19.6 - 41.1) | 13.7 (4.3 - 35.5) | 13.2 (8.9 - 17.4) | 1.9 (0.79 - 3.0) |
| | 飛灰 | 69.2 (58.9 - 80.4) | 86.3 (64.5 - 95.7) | 86.8 (82.6 - 91.1) | 98.1 (97.0 - 99.2) |

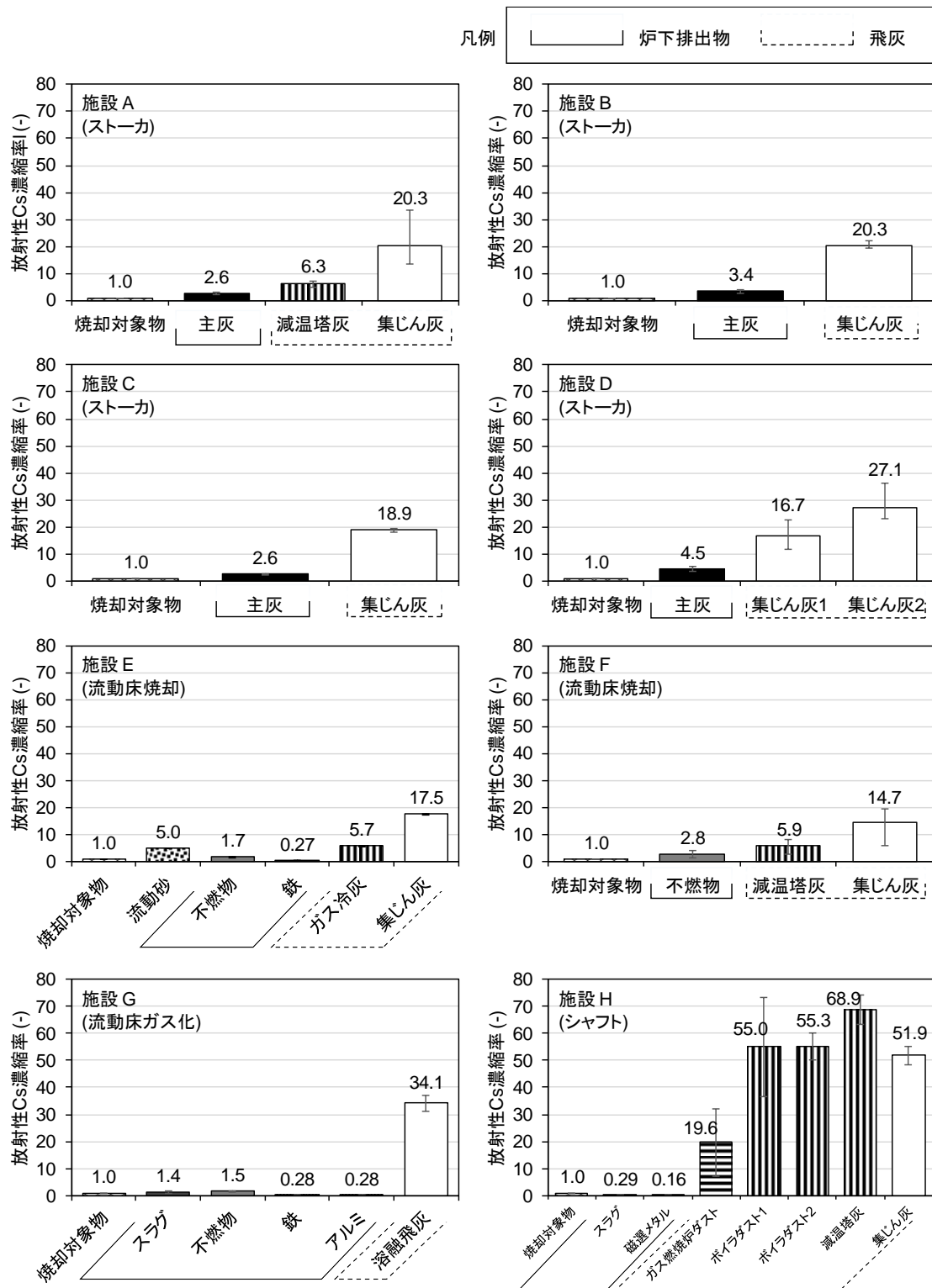


図 2.3 施設ごとの一般廃棄物から各焼却残渣への放射性 Cs 濃縮率

1) 飛灰への放射性 Cs 濃縮率

いずれの焼却形式においても一般廃棄物から飛灰への放射性 Cs 濃縮率は炉下排出物への濃縮率よりも高くなった。飛灰への放射性 Cs 濃縮率は焼却形式によって傾向が見られ、以下のような序列となった。流動床式焼却 < ストーカ式焼却 < 流動床式ガス化溶融 < シャフト式ガス化溶融。飛灰への放射性 Cs 濃縮率の違いの要因の一つとして飛灰の発生量の違いが考えられる。焼却対象物 1t あたりの焼却残渣の発生量を図 2.4 に示す。流動床式焼却では、他の焼却形式に比べて飛灰の発生量が多い。これは流動床式焼却では礫類や金属類以外の灰分のほとんどが飛灰として排出されるためである。流動床式ガス化溶融やシャフト式ガス化溶融の飛灰発生量は比較的少なく、特にシャフト式ガス化溶融では飛灰量の少なさが顕著であった。今回調査したシャフト式ガス化溶融施設（施設 H）では図 2.2 に示されるように熱分解ガス中の可燃性ダスト（粗粒チャー）がガス燃焼炉に入る前にサイクロンにより分離されて溶融部へ返送されるため溶融飛灰の発生量が抑制されたと考えられる [38]。シャフト式ガス化溶融で飛灰への放射性 Cs 濃縮率が高くなった要因の一つとして、飛灰が少ないことによる濃縮の影響が推定されるが、他の要因として焼却温度の違いが考えられ、後出の 2.3.2 項にて考察する。

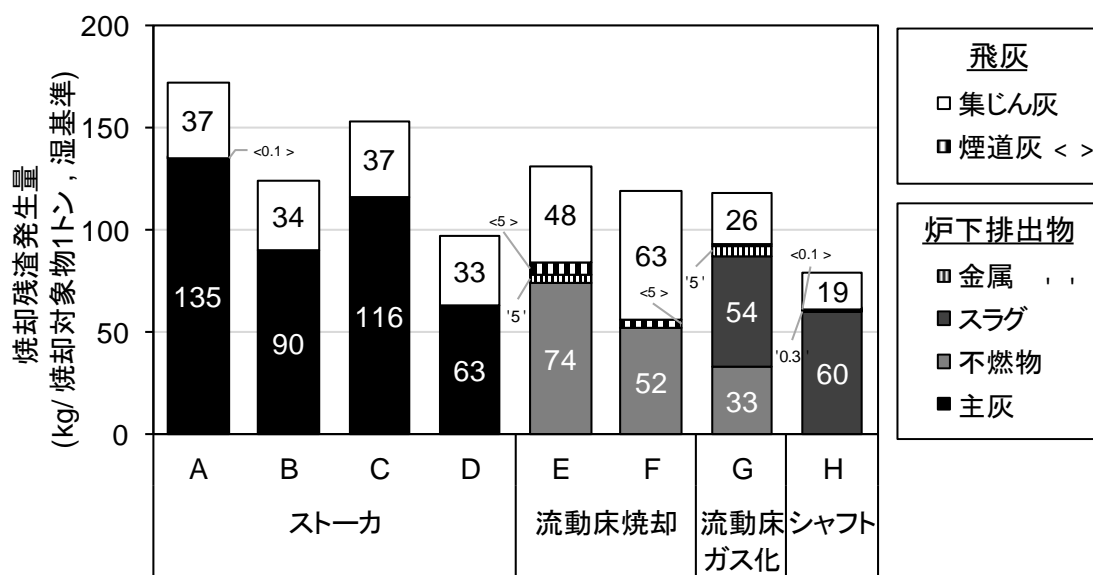


図 2.4 焼却対象物 1 トンあたりの焼却残渣の発生量

2) 炉下排出物への放射性 Cs 濃縮率

炉下排出物への放射性 Cs の濃縮率も焼却形式によって異なり、シャフト式ガス化溶融（スラグ）< 流動床式ガス化溶融（スラグ、不燃物）< 流動床式焼却（不燃物）< ストーカ式焼却（主灰）の序列になった。写真 2.1 のように焼却形式が異なると炉下から排出される残渣の見た目は全く異なるが、見た目だけでなく放射性 Cs 濃度も異なるものが排出されることがわかった。特に、シャフト式ガス化溶融では、スラグへの放射性 Cs 濃縮率が 1 より

も小さくなった。つまり、焼却対象物よりも放射性 Cs 濃度の低いスラグが排出されたことから、放射性 Cs に汚染された廃棄物がガス化熔融処理によって除染されたとも言え、除染・減容化技術としての応用の可能性が期待できる。一方、図 2.4 に示したようにストーカ式焼却で発生する主灰は、その他の焼却形式の施設から発生する不燃物やスラグよりも発生量が多いにもかかわらず主灰への放射性 Cs 濃縮率は最も高くなった。これらの結果より放射性 Cs の濃縮率の違いは、焼却残渣発生量の違いによる濃縮や希釈の影響のほか、放射性 Cs の脱離や取込みなどなどの効果によるものであるとわかった。また、鉄やアルミの金属類（施設 E, G および H）は焼却対象物よりも放射性 Cs 濃度が低くなり（図 2.3）、焼却対象物中に含まれていた金属類は放射性 Cs に汚染されていなかったと考えられる。

3) 煙道灰等への放射性 Cs 濃縮率

図 2.3 より、施設 A, E および F での煙道灰（減温塔灰およびガス冷灰）は、主要な炉下排出物（主灰もしくは不燃物）と集じん灰の中間の放射性 Cs 濃縮率であった。ストーカ式焼却炉では、主灰の約 16%が巻き上げにより排ガス中に混入すると推算されており[39]、煙道灰は焼却炉（もしくはガス化熔融炉）の後段へ飛散、あるいは揮発した成分のうち集じん機（バグフィルタ）まで到達できない、比較的粒径が大きいものであると考えられる。実際に、施設 F の減温塔灰は集じん灰よりも粒径が大きいことが分かっている[20]。また、放射性 Cs は塩化セシウム（CsCl）の形態で揮発して排ガス冷却過程に凝集し、ばいじんに着すると考えられるが、煙道灰は集じん灰に比べてばいじんの粒子径が大きく表面積が低いために、ばいじんよりも放射性 Cs 濃度が低くなったと推定される。一方、シャフト式ガス化熔融の施設 H の煙道灰（ボイラダストおよび減温塔灰）は集じん灰と同程度の非常に高い放射性 Cs 濃縮率であった。施設 H では、ガス燃焼炉の前に設置されたサイクロンにより排ガス中の粗粒分はガス化熔融炉に返送されるために、煙道灰であっても粒形が小さく、集じん灰と同程度の高い放射性 Cs 濃縮率となったと考えられる。

流動砂（施設 E）の放射性 Cs 濃縮率はガス冷灰とほぼ同レベルであり、焼却対象物からは流動砂へも放射性 Cs が分配、濃縮していることが明らかになった。ただし、放射性 Cs 濃縮率は集じん灰での放射性 Cs 濃縮率と比べると約 3 分の 1 程度と低く、本調査結果からは放射性 Cs が流動砂へ特異的に蓄積するという現象は確認されなかった。脱水汚泥の焼却施設で流動砂の経時的な性状変化について調べた報告では、新砂として投入された流動砂（ほぼ純粋な酸化ケイ素）は使用初期 1、2 か月以内に Na や K などのアルカリ金属の濃度が飛灰の元素組成と同程度まで高くなり、焼却対象物である脱水汚泥からアルカリ金属が流動砂に移行したと考えられている[40]。また一方、流動砂に Cs（Cs-133（安定性））や Na, K などのアルカリ金属の濃度が集じん灰よりも約 1.5 倍程度ではあるが高くなる例もあるため[41]、流動砂でも放射性 Cs が濃縮する可能性があるという点には留意が必要である。

4) 炉下排出物と飛灰の放射性 Cs 濃度の比較

放射性 Cs 濃度について、炉下排出物と飛灰の濃度を比較した (図 2.5)。図 2.5 中の直線は原点を通過する線形近似直線であり、傾きは放射性 Cs の炉下排出物に対する飛灰の濃度比 (飛灰/炉下排出物) を意味する。流動床式ガス化溶融での飛灰の主灰に対する濃度比は 20 倍を超え、シャフト式ガス化溶融ではさらに高かった。一方で、ストーカ式焼却および流動床式焼却ではそれぞれ、6.4 倍および 4.7 倍であった。流動床式焼却で飛灰の濃度比が小さい理由は、前述したように飛灰の発生量が多いためと考えられる。

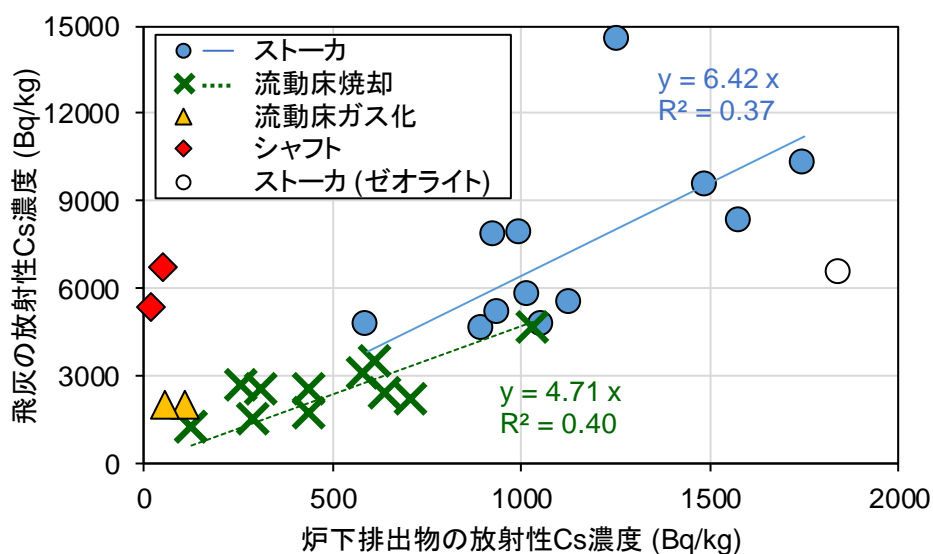


図 2.5 炉下灰主物と飛灰の放射性 Cs 濃度の関係。直線および等式は焼却形式ごとの原点を通る回帰直線。ストーカ (ゼオライト) は、施設 D の排ガス処理薬剤にゼオライトを追加したものであり、回帰直線からは除外した。

以上に示したような、焼却対象物に対する放射性 Cs の濃縮率や、飛灰と炉下排出物の濃度比は、焼却炉の形式によって一定の傾向を示すことが分かった。これは、汚染廃棄物を焼却した際に発生する焼却残渣の放射性 Cs 濃度を推算するうえで非常に有用な指標となる。例えば、指定廃棄物等の放射性 Cs 濃度の高いものを一般廃棄物に混焼する際などには、焼却残渣を処理する際の作業員の被ばく等の安全性の観点や指定廃棄物 (国による処分) にするかどうかの観点等から、発生する焼却残渣の放射性 Cs 濃度のコントロールが必要であり、表 2.2 や図 2.23 に示したような指標を用いることで混焼割合の検討が可能となる。

2.3.2. 焼却残渣への放射性 Cs の分配挙動

焼却残渣における放射性 Cs の分配率を表 2.2 および図 2.6 に示す。いずれの施設でも炉下排出物よりも飛灰への放射性 Cs の分配率の方が高く、59～99%の放射性 Cs が飛灰へと分配された。図 2.6 の通り、金属類や煙道灰などの排出量の少ない焼却残渣が放射性 Cs の分配へ与える影響は小さかった。ストーカ式焼却では他の焼却形式に比べると主灰への分配率が高く、約 30%の放射性 Cs が主灰へ分配し、ストーカ式焼却では他の焼却形式の炉下排出物中に含まれる放射性 Cs の 2 倍以上の放射性 Cs が主灰へと分配された。これは、2.3.1 項で明らかにされたように、主灰はスラグや不燃物に比べると発生量が多く、放射性 Cs 濃度も比較的高いためである。流動床式焼却ではストーカ式焼却に比べると放射性 Cs の飛灰へ分配される割合が大きい、これは流動床式焼却では飛灰の発生量が多いためである。ガス化熔融炉での飛灰への放射性 Cs 分配率は流動床式焼却よりも高く、特にシャフト式ガス化熔融炉ではその傾向が顕著であった。これは、飛灰発生量が少ないという濃縮の効果に加えて、表 2.1 に示したようにシャフト式ガス化熔融では処理温度が高いためと考えられる。流動床式ガス化熔融およびシャフト式ガス化熔融ではそれぞれ 1,300～1,400℃、1,300～1,650℃で処理されており、通常 800～950℃で焼却を行うストーカ式焼却などに比べると数 100℃高温である。そこで、シャフト式ガス化熔融炉での高温域における Cs 化合物の存在形態について、熱力学平衡計算 (FactSage ver. 6.4 (ただし、熱力学データを独自に改良したもの))により推定した (図 2.7)。その結果、1,300～1,600℃の温度域では 95～99%の Cs がガス態として存在し、主に CsCl の形態であると推定された。ガス態として存在する Cs 化合物は実際には飛灰へ分配すると考えられ、表 2.2 に示した実際の施設調査の結果 (飛灰への分配率：98%) と一致した。図 2.8 にアルカリ金属塩化物の飽和蒸気圧と温度の関係を示す。温度が高くなるといずれのアルカリ金属塩化物の飽和蒸気圧も

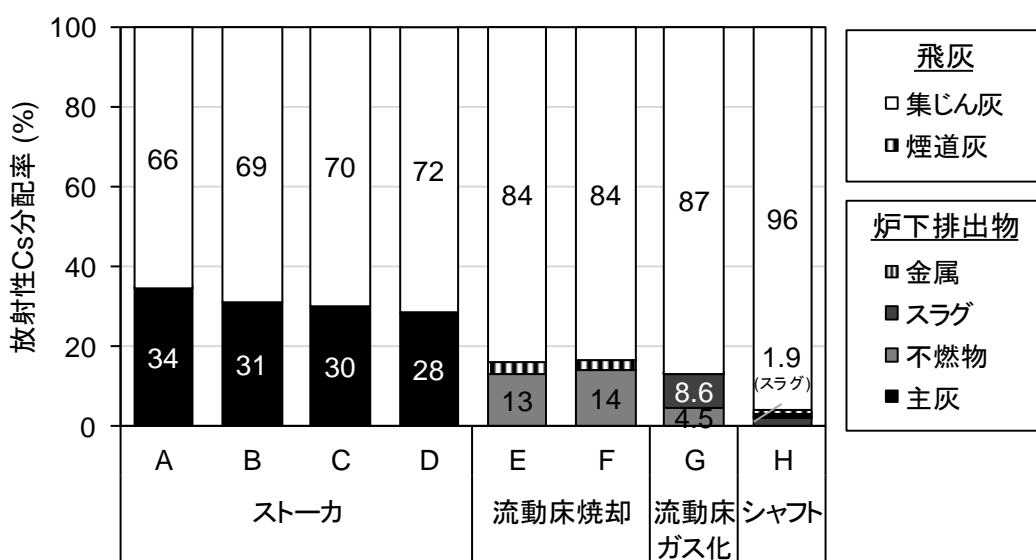


図 2.6 焼却残渣中の放射性 Cs の分配率

高くなり、処理温度が高いほど NaCl や KCl の揮発が促進されるのと同じように CsCl の揮発も促進されることがわかる。したがって、処理温度が高い流動床式ガス化溶融やシャフト式ガス化溶融では放射性 Cs が CsCl として揮発が促進され、特にシャフト式ガス化溶融では CsCl の沸点 (1,297 °C [42]) よりも処理温度が高いために、98%という高い放射性 Cs の飛灰分配率となったと考えられる。シャフト式ガス化溶融のこのような飛灰への高い放射性 Cs 分配率は、放射性 Cs を発生量の少ない溶融飛灰へと明確に分離可能であることを意味し、除染技術の一つとしても適用の可能性が期待できる。また、流動床式、シャフト式ともガス化溶融では還元的な雰囲気であり、還元的な雰囲気では Cs は CsCl ガスとして揮発しやすくなることから[43 (p.82)]、温度の影響に加えて雰囲気の違いの影響による飛灰への放射性 Cs 分配率向上の可能性もある。

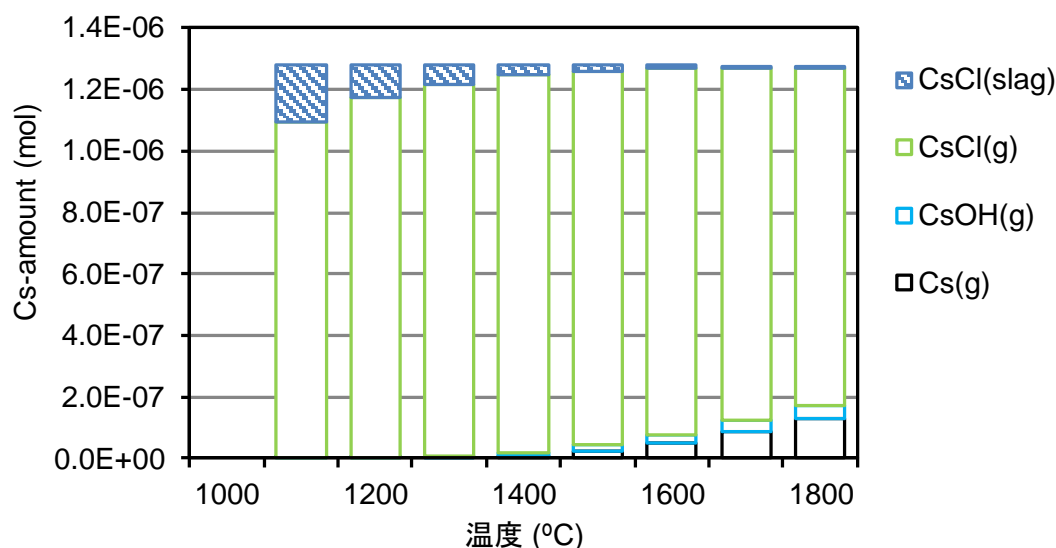


図 2.7 熱力学平衡計算によるシャフト式ガス化溶融炉における Cs 化合物の存在形態の推定. 計算は FactSage ver. 6.4 (ただし、熱力学データを独自に改良したもの) により行い、一般廃棄物の元素組成は先行研究[44]およびデータベースの値[45]を用いた. また、酸素等量比および一般廃棄物に対する石灰石の割合は先行研究[44]をもとにそれぞれ 0.26 および 0.011 とした. 凡例の slag と g はそれぞれ溶融スラグ相とガス (気相) を示す.

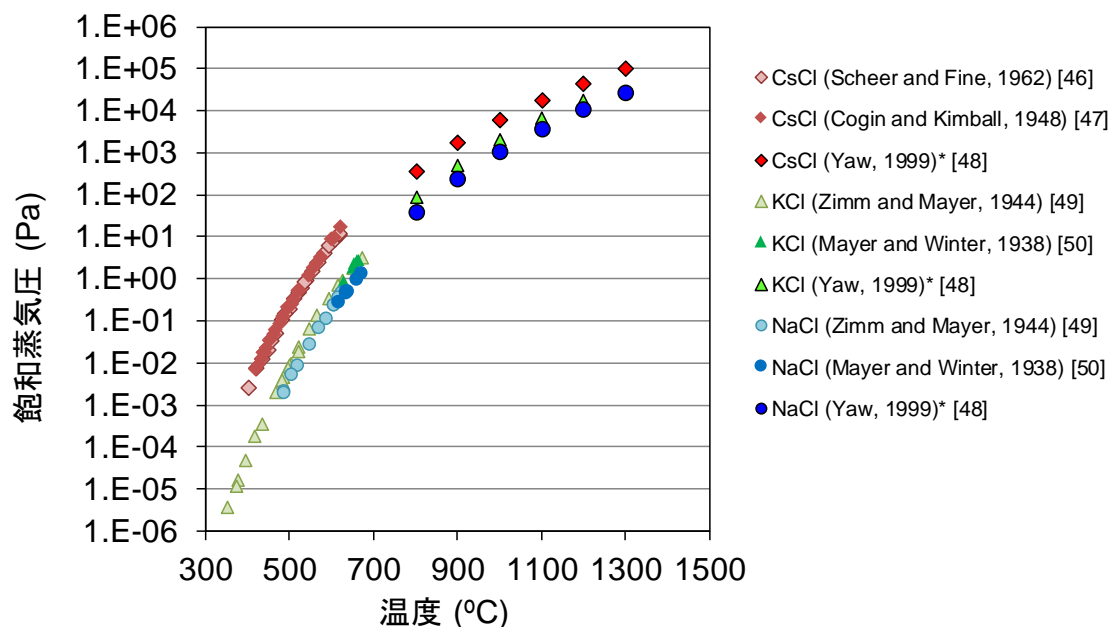


図 2.8 アルカリ金属塩化物の温度と飽和蒸気圧の関係[46-50]. *800 °C 以上の高温域は Antoine 式による外挿値[48].

2.3.3. 焼却残渣からの放射性 Cs の溶出挙動

溶出試験の結果一覧を表 2.3 に示す。また、集じん灰（もしくは焼却飛灰、溶融飛灰）の放射性 Cs 溶出率を図 2.9 に示す。飛灰（集じん灰等）からの放射性 Cs 溶出率は 30～100%（全施設平均：66%。施設 D のうちゼオライト添加した集じん灰は除く）と幅はあるものの、いずれのケースでも溶出率は高かった。飛灰からの放射性 Cs 溶出率は、焼却形式による一定の傾向は見られなかったが、施設により変動し、その影響因子の一つとして排ガス処理薬剤の違いが考えられる。施設 D では、他の施設に比べて放射性 Cs 溶出率が低く、これは排ガス中のダイオキシン除去のために活性白土を使用しているためだと考えられる。活性白土は 2:1 形粘土鉱物であるモンモリロナイトから成り、放射性 Cs を吸着することが知られている[51]。これまでも排ガス処理薬剤に活性白土を用いた場合に放射性 Cs 溶出率が低くなる現象が確認されており、その原因として活性白土の高塩濃度、高 pH 条件下における高い放射性 Cs 吸着能によるものとされている[43 (pp.134-136)]。また、飛灰に酸性白土（活性白土の原料）を混練することで放射性 Cs 溶出率が約 80%から 30%以下まで大きく低減することも報告されている[52]。さらに、施設 D で排ガス処理にゼオライトを加えた条件（活性白土 100%の代わりに、活性白土 60% + ゼオライト 20% + 活性炭 20%：図 2.9 からは除外している）での放射性 Cs 溶出率は約 25%であり、ゼオライトを加えない条件よりも溶出率として約 10%低かった。ゼオライトは福島第一原発事故以前より放射性 Cs の吸着材として利用されており[30]、ゼオライト添加による飛灰からの放射性 Cs 溶出抑制は、焼却残渣の海面埋立による最終処分を行っている横浜市や川崎市でも導入された[53,54]。こ

のように、飛灰に活性白土（酸性白土）やゼオライトを混合することで飛灰からの放射性 Cs 溶出率を低減できると考えられ、飛灰からの放射性 Cs 溶出率に与える焼却形式の影響は小さいと考えられる。

また、同一施設での飛灰からの放射性 Cs 溶出率の変動の要因として、季節変化の影響の可能性も考えられる。一般廃棄物の焼却残渣は、初夏と秋に放射性 Cs 濃度が上昇する傾向があり、その原因として、草木類やこれに付着した土に含まれる放射性 Cs である可能性が挙げられている[17,43 (pp.178-183)]。焼却対象物の違いによる放射性 Cs の挙動については第 3 章で詳細に解析を行うが、草木類や付着土壌が多い除染廃棄物のような性状のものでは飛灰からの放射性 Cs 溶出率は低くなる考えられる[55]。図 2.9 の施設 F のデータは約 1 年間のデータ（のべ 51 日）であり、施設 F では一般廃棄物中の放射性 Cs 濃度が高かった月について、「他の月に比べ、剪定枝や落ち葉が一般ごみとして多く搬入されていた」という報告があった[20]。施設 F での飛灰からの放射性 Cs 溶出率の変動（放射性 Cs 溶出率：60 ~ 100%）の要因として季節変動による搬入ごみに混入する草木類等の影響が考えられる。

一方、炉下排出物（主灰、不燃物、スラグ）からは、いずれの場合でも Cs-134 は検出下限値未満であった。ストーカ式焼却炉から発生する主灰の溶出液からはいずれの施設の場合でも Cs-137 は検出されたが、Cs-137 の溶出率は最大で 6.2%（施設 D Run3）であったが、溶出液の放射性 Cs 濃度は 1 桁 Bq/L のオーダーであり、溶出しにくいと言える。主灰中の放射性 Cs の存在形態については、前述のように実験や熱力学平衡計算により、Pollucite や部分的な熔融相（スラグ相）中に存在すると考えられている[24,26]。Pollucite は水に難溶性の性質であるため[56,57]、主灰からは放射性 Cs が溶出しにくかったと考えられる。また、ガス化熔融炉から排出されるスラグでは、溶出液中の放射性 Cs は検出下限値未満であったことから、スラグ中で放射性 Cs は安定に存在していると考えられる。

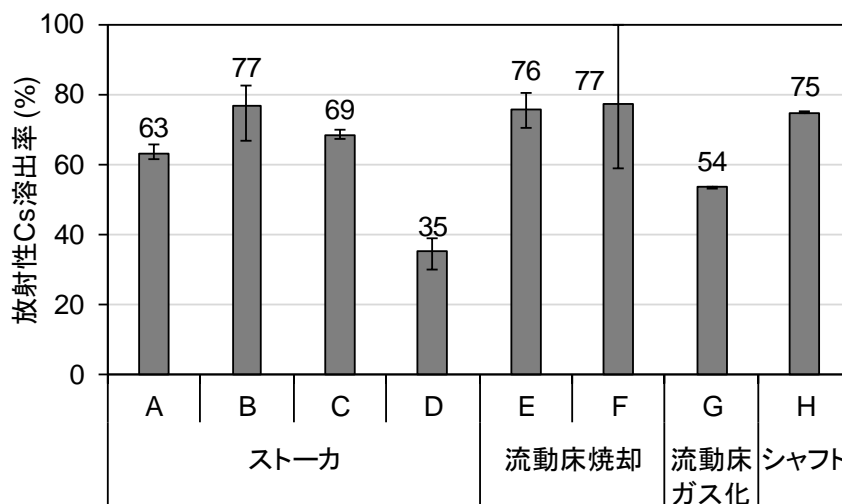


図 2.9 集じん灰（施設 A-E および H）および焼却飛灰（施設 F）、熔融飛灰（施設 G）からの放射性 Cs 溶出率。施設 F のデータは原田ら[21]によるものであり、施設 F のみキレート処理後。数値は溶出率の平均値を、エラーバーは最小値と最大値を示す。

これらの結果は、これまでのストーカ式焼却炉を中心とした調査（飛灰からの放射性 Cs 溶出率：63.7～89.1%、主灰からの放射性 Cs 溶出率：検出下限値未満～5.6%）[12,13]とおおよそ一致し、焼却形式による一定の傾向は見られなかった。つまり、焼却炉の形式によって焼却残渣の放射性 Cs 濃度や発生量、分配は異なるが、飛灰から放射性 Cs が溶出しやすいことに対する配慮はいずれの焼却形式の場合でも必要であることがわかった。

煙道灰の放射性 Cs 溶出性は施設 A, E および H から採取したサンプルについて調べた。施設 A および施設 E での煙道灰（減温塔灰、ガス冷灰）はそれぞれ 37%、22%であった。この溶出率は炉下排出物と飛灰の間であった。一方、シャフト式ガス化熔融の施設 H での煙道灰からの放射性 Cs 溶出率は、64～79%であり、集じん灰と同程度の放射性 Cs 溶出率であった。このような傾向は、2.3.1 項 3) の放射性 Cs 濃縮率の傾向と同じであった。このような煙道灰の放射性 Cs 溶出率の違いの理由についてもやはり炉下排出物の巻き上げによるものと考えられる。すなわち、巻き上げにより飛灰中へ混入した放射性 Cs の溶出性の低い炉下排出物は粒径が大きいためその一部が煙道灰として排出されたためであり、施設 H では、サイクロンによりそのような粒子の煙道灰の混入が抑えられたと考えられる。煙道灰の発生割合は図 2.4 に示したように非常に少なく、また処分場からも最終的に浸出水を放流する前には (2.2) 式の放流基準を満たすことを確認されるため、たとえ煙道灰が炉下排出物として排出される場合でも問題は少ないと考えられる。しかし、煙道灰が飛灰に合流される場合には、前述のように特定一般廃棄物として溶出性に留意した対策[14]がなされることになっているため、放射性 Cs の溶出性の観点からは今回の調査で対象とした施設のように煙道灰は飛灰として取り扱う方が安全であり、望ましいと考える。

流動砂（施設 E）では、Cs-137 の溶出率が 5.1%となり、ストーカ炉の主灰と同程度に低かった。流動砂の放射性 Cs 濃度は同施設のガス冷灰と同程度であったが、ガス冷灰からは放射性 Cs が 20%以上溶出しており、ガス冷灰と流動砂では放射性 Cs の存在形態が異なると考えられる。つまり、ガス冷灰の一部は、粒形が小さくなった流動砂の一部であると推察されるが、集じん灰と同様に粒子表面に凝結した CsCl も存在すると考えられる。

表 2.3 一般廃棄物焼却残渣等の溶出試験結果

| 施設 | 試料 | 溶出液放射性Cs濃度 (Bq/L) | | | 放射性Cs溶出率 (%) | | | pH | EC (mS/m) | データ 数 |
|----|------------|-------------------|------------|------------|--------------|-------------|-------------|------|--------------|----------|
| | | Cs-134 | Cs-137 | T-Cs | Cs-134 | Cs-137 | T-Cs | | | |
| A | 主灰 | <1.6 | 2.7 (7.9) | <4.3 | <2.5 | 1.0 (20.3) | <1.4 | 10.5 | 357 | 3 |
| | 減温塔灰 | 32 (13.5) | 101 (5.6) | 133 (7.0) | 36.0 (8.9) | 37.8 (9.6) | 37.4 (9.3) | 10.1 | 2,153 | 3 |
| | 集じん灰 | 180 (22.3) | 531 (33.5) | 711 (30.4) | 63.7 (0.9) | 63.3 (4.6) | 63.4 (3.4) | 12.1 | 5,393 | 3 |
| B | 主灰 | <1.8 | * 1.0 | <2.9 | <10.2 | * 2.0 | <4.1 | 11.9 | 479 | 4 |
| | 集じん灰 | 95 (8.5) | 281 (6.0) | 376 (4.6) | 75.1 (16.1) | 77.6 (7.6) | 76.9 (9.1) | 12.1 | 5,265 | 4 |
| C | 主灰 | <1.6 | 2.8 (27.0) | <4.4 | <5.4 | 3.0 (0.6) | <3.6 | 11.2 | 513 | 2 |
| | 集じん灰 | 147 (14.0) | 420 (6.4) | 567 (8.4) | 67.4 (3.6) | 69.1 (4.8) | 68.6 (2.7) | 12.2 | 4,140 | 2 |
| D | 主灰 | <4.5 | * 2.3 | <6.8 | <10.4 | * 3.7 | <6.4 | 12.6 | 897 | 4 |
| | 集じん灰1 | 60 (52.3) | 84 (38.5) | 143 (44.1) | 35.1 (18.6) | 35.5 (10.4) | 35.4 (13.6) | 10 | 2,733 | 3 |
| | 集じん灰1(zeo) | 41 | 50 | 91 | 25.7 | 24.9 | 25.2 | 12 | 1,880 | 1 |
| E | 流動砂 | <1.0 | * 1.2 | <2.2 | <8.0 | * 5.1 | <6.1 | 11.4 | 391 | 2 |
| | 不燃物 | <1.0 | <1.0 | <2.0 | <22.7 | <11.5 | <15.3 | 11.2 | 168 | 1 |
| | ガス冷灰 | 2.9 (7.4) | 6.6 (10.7) | 9.5 (9.7) | 19.0 (7.4) | 23.6 (10.7) | 22.0 (9.7) | 12.7 | 1,283 | 2 |
| | 集じん灰 | 31 (13.7) | 69 (9.3) | 100 (10.7) | 69.6 (12.1) | 78.7 (7.7) | 75.6 (9.1) | 12.5 | 3,325 | 2 |
| F | 焼却飛灰 | N.A. | N.A. | 157 (38.9) | N.A. | N.A. | 74.5 (11.3) | N.A. | N.A. | 51 |
| G | スラグ | <2.8 | <0.77 | <3.5 | <78.8 | <12.7 | <35.9 | 8.0 | 10 | 2 |
| | 不燃物 | <2.4 | <0.5 | <2.9 | <87.7 | <10.9 | <39.2 | 8.8 | 252 | 2 |
| | 溶融飛灰 | 39 (1.1) | 68 (1.0) | 107 (0.3) | 55.6 (0.9) | 52.7 (0.3) | 53.7 (0.5) | 9.1 | 2,330 | 2 |
| H | スラグ | <2.6 | <0.6 | <3.2 | <259 | <37 | <120 | 8.0 | 6 | 2 |
| | ガス燃焼炉ダスト | 110 | 200 | 310 | 78.6 | 80.0 | 79.5 | 6.8 | 4,340 | 1 |
| | ボイラダスト1 | 170 (58.2) | 325 (58.7) | 495 (58.6) | 74.4 (5.7) | 76.2 (5.8) | 75.6 (5.8) | 6.9 | 5,780 | 2 |
| | ボイラダスト2 | 140 (40.4) | 275 (28.3) | 415 (32.4) | 60.9 (19.3) | 65.7 (9.8) | 64.0 (12.9) | 7.2 | 5,200 | 2 |
| | 減温塔灰 | 175 (4.0) | 335 (10.6) | 510 (8.3) | 61.4 (1.6) | 66.7 (17.5) | 64.7 (11.9) | 7.0 | 5,920 | 2 |
| | 集じん灰 | 145 (14.6) | 305 (16.2) | 450 (15.7) | 67.5 (1.8) | 79.2 (0.3) | 75.0 (0.8) | 12.5 | 8,395 | 2 |

- 注) () 変動係数 (単位 : %) を示す。
 N.A. データ入手不可。
 < すべての試料で、溶出液の放射性 Cs 濃度が検出下限値未満であることを示す。平均値算出には検出下限値を使用した。
 * いずれかの試料で、溶出液の放射性 Cs 濃度が検出下限値未満であることを示す。平均値算出には検出下限値を使用した。
 (zeo) 排ガス処理剤としてゼオライトを吹込んだ際の集じん灰 (施設 D Run4)。

2.3.4. バグフィルタによる放射性 Cs 除去率の推定

バグフィルタ前後の排ガス中の放射性 Cs 濃度および放射性 Cs 除去率を表 2.4 に示す。すべての施設でバグフィルタ後の放射性 Cs 濃度は検出下限値未満であり、検出下限値は、(2.1) 式の大気環境基準よりも数桁低かった。バグフィルタの除去率は、99.9%を超えることもあった。放射性 Cs がバグフィルタ後で検出されないという結果は、環境省の調査とも一致し[8]、高い放射性 Cs 除去率である点も既報[9,22]とも整合性がとれている。ここで注意が必要なのは、放射性 Cs 除去率が例えば施設 F で「98.36%以上」となっているのは、「99.9%以下」を意味するわけではない。バグフィルタ出口の放射性 Cs 濃度は検出下限値未満のため、検出下限値を代用して除去率を計算している。そのため計算される放射性 Cs 除去率はあくまで検出下限値で計算した過小評価の数値であり、特にバグフィルタ入口濃度が低い場合には数値の取扱いに注意を要する。また、Cs-134の方がCs-137よりも半減期短いために減衰率が大きく、濃度が低くなる。放射性 Cs 除去率の計算ではバグフィルタ出口のCs-134とCs-137は検出下限値を用いるのに対し、バグフィルタ入口ではCs-134の濃度が低いために見かけ上Cs-134の放射性Cs除去率が低くなってしまうため、実際には放射性Csの除去率はCs-137で評価する方が妥当であると考え。シャフト式ガス化溶融炉ではストーカ式焼却炉に比べてばいじん中の粒径の小さい割合が多いが[58]、本調査によりシャフト式ガス化溶融炉でもCs-137は高効率(99.92%以上)で除去されていることが確認できた。

表 2.4 バグフィルタ前後の放射性 Cs 濃度および放射性 Cs 除去率

| 施設 炉形式 | 放射性Cs濃度 (Bq/Nm ³ -dry) | | | | 放射性Cs除去率(%) | |
|----------|-----------------------------------|--------------------|------------------------------|------------------------------|------------------------------|-----------------|
| | バグフィルタ前 | | バグフィルタ後 | | Cs-134 | Cs-137 |
| | Cs-134 | Cs-137 | Cs-134 | Cs-137 | | |
| D ストーカ | 13-16 ^a | 17-22 ^a | 0.012以下-0.018以下 | 0.012以下-0.017以下 | 99.80以上-99.88以上 | 99.87以上-99.92以上 |
| E 流動床焼却 | 1.8-4.7 | 3.7-9.4 | 0.012以下-0.020以下 | 0.011以下-0.020以下 | 98.83以上-99.76以上 | 98.83以上-99.76以上 |
| F 流動床焼却 | 13-50 ^b | | 0.10以下-0.36以下 ^b | | 98.36以上-99.61以上 ^c | |
| G 流動床ガス化 | N.A. | | 0.012以下-0.013以下 ^d | 0.011以下-0.012以下 ^d | N.A. | |
| H シャフト | 7.1-9.8 | 12-17 | 0.010以下 | 0.010以下 | 99.87以上-99.90以上 | 99.92以上-99.58以上 |

注) a ガス冷却塔前で測定、b Cs-134 と Cs-137 の合計値[21]、c バグフィルタ前後の排ガス流量は等しいという仮定で放射性 Cs 濃度のみで計算、d 煙突で測定。

飛灰中の Cs の存在形態として推定される CsCl は、図 2.8 に示したように温度が低いほど飽和蒸気圧は低くなりガス態として存在しにくくなる。排ガス処理過程では、ダイオキシン類の再合成防止の観点からバグフィルタ出口温度は 200 °C 以下に保持されているため、放射性 Cs は排ガスの冷却過程に凝集し、CsCl として飛灰に吸着し、飛灰を適切に除去することで放射性 Cs も除去されていると考えられている[9]。幸運なことに、我が国の焼却施設では 1980 ~ 1990 年代のダイオキシン問題に対応するためにほとんどの施設で高レベルの排ガス処理設備が設置されており、高い放射性 Cs 除去率が得られたと考えられる。また、

放射性 Cs の物理化学的特性は放射能や原子量以外は安定性 Cs (Cs-133) と同等と考えると、排ガス処理過程でも同様の挙動を示す。バグフィルタの温度領域である 200 °C 以下の CsCl の飽和蒸気圧は 150 °C で $2.8 \sim 3.0 \times 10^{-12}$ Pa、200 °C で $9.9 \times 10^{-10} \sim 1.1 \times 10^{-9}$ Pa と計算されており、ダイオキシン類に対して 9~11 桁程度も低い[24]。また、この飽和蒸気圧下で存在する CsCl ガスの空気に対する最大濃度は 150 °C で $1.6 \sim 1.7 \times 10^{-10}$ mg/kg、200 °C で $5.7 \sim 6.3 \times 10^{-8}$ mg/kg と非常に低い。さらに、放射性 Cs は安定性 Cs と同様の熱力学的特性を持つと仮定すると、同一個体中では共存するため、安定性 Cs が大量にある場合には放射性 Cs の影響は非常に小さくなる。一般に焼却残渣中に含まれる安定性 Cs (Cs-133) 濃度は主灰で 0.89 ~ 1.5 mg/kg、焼却飛灰で 2.4 ~ 3.9 mg/kg [59,60]であるが、放射性 Cs は例えば 10 万 Bq/kg (Cs-134 と Cs-137 が 5 万 Bq/kg ずつ) の高濃度存在した場合でも 1.7×10^{-5} mg/kg に過ぎず、放射性 Cs は環境中に元々存在する安定性 Cs 量の約 10 万分の 1 とごく少量である。以上より、例えガス状の放射性 Cs が存在したと場合でも極めて濃度が低く (とても検出できないレベル)、ばいじんに対して適切な排ガス処理が行われていれば放射性 Cs は高度に除去可能であり環境中への放出を防ぐことが可能である。したがって、焼却炉の形式に関わらず、飛灰を高度に除去可能な排ガス処理設備を有していれば、放射性 Cs の環境への放出は防ぐことができると考えられる。

2.4. 第 2 章のまとめ

本章では、一般廃棄物の焼却施設において放射性 Cs の濃縮・分配挙動および溶出挙動、バグフィルタによる放射性 Cs 除去率について調査した。焼却形式の違いに着目し、ストーカ式焼却炉、流動床式焼却炉、流動床式ガス化溶融炉、シャフト式ガス化溶融炉の 4 つの焼却形式について比較した。得られた主要な知見を以下に示す。

(1) 放射性 Cs の濃縮・分配挙動

いずれの焼却形式でも放射性 Cs は飛灰（ばいじん）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 分配率、濃縮率などは焼却残渣の発生比率や処理温度等の影響を受けて焼却形式ごとに異なり、各焼却形式により以下のような特徴があった。

- ストーカ式焼却：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：飛灰発生量が多いため希釈効果により飛灰への放射性 Cs 濃縮率が最も小さくなった。
- 流動床式ガス化溶融：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や流動床式焼却の飛灰よりも高くなったが、シャフト式ガス化溶融よりは低かった。
- シャフト式ガス化溶融：処理温度が 1,300～1,650 °C と最も高く、飛灰への放射性 Cs 分配率が約 98%と極めて高く、放射性 Cs をスラグと溶融飛灰に高度に分離できる。炉下排出物（スラグおよび磁選メタル）は焼却対象物よりも濃度が低く、除染技術として適用の可能性が示唆された。

(2) 焼却残渣からの放射性 Cs 溶出性

- 焼却形式の違いが溶出率へ与える影響は小さいことがわかった。
- 飛灰からの放射性 Cs 溶出率は高く、飛灰中の 30～100%の放射性 Cs が溶出し、排ガス処理薬剤や季節変動等の影響で違いが見られた。
- 炉下排出物（主灰、不燃物、スラグ）については、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。

(3) バグフィルタによる排ガス処理

- 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、バグフィルタ出口での放射性 Cs 濃度は検出下限値以下であった。
- 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 は焼却形式に依存せず高効率に除去されることが確認された。

本調査により、種々の焼却形式に対して放射性 Cs の主灰もしくは飛灰への分配や濃縮率などを明らかにし、その特徴を整理することができた。事故から約 7 年が経過し、一般廃棄物に混入する放射性 Cs は非常に少なくなり、多くの地域では沈静化に向かっている。しかし、今でもなお、宮城県内では 8,000Bq/kg 以下の稲わらや牧草等が 36,000 トン保管されており (2016 年 11 月 3 日現在) [61]、一般廃棄物との混焼が検討されているが、安全性についての理解が得られずに処分が進んでいない。宮城県では各焼却形式が存在し、本研究が焼却処理における放射性 Cs の挙動理解の一助となれば幸いである。

第 2 章の参考文献

- [1] 環境省, 2011. 16 都県の一般廃棄物焼却施設における焼却灰の放射性セシウム濃度測定結果一覧 (<https://www.env.go.jp/jishin/attach/waste-radioCs-16pref-result20110829.pdf>) (2018 年 1 月 13 日閲覧).
- [2] Iwahana, Y., Ohbuchi, A., Koike, Y., Kitano, M., Nakamura, T., 2013. Radioactive Nuclides in the Incinerator Ashes of Municipal Solid Wastes before and after the Accident at the Fukushima Nuclear Power Plant. *Anal. Sci.* 29, 61-66.
- [3] 全国都市清掃会議, 2017. ごみ処理施設整備の計画・設計要領 2017 改訂版.
- [4] 環境省, 2013. 廃棄物処理技術情報 一般廃棄物処理実態調査結果 (http://www.env.go.jp/recycle/waste_tech/ippan/h23/data/seibi/facility/01.xls) (2018 年 1 月 13 日閲覧).
- [5] 水原詞治, 川本克也, 前背戸智晴, 倉持秀敏, 大迫 政浩, 2015. 廃棄物焼却炉内における放射性セシウムの蓄積挙動, *環境放射能除染学会誌*, 3, 139-144.
- [6] 日本アイソトープ協会, 2009. 国際放射線防護委員会の 2007 年勧告 (ICRP Publication 103), 東京, 丸善出版.
- [7] 環境省, 2011. 平成 23 年 3 月 11 日に発生した東北地方太平洋沖地震に伴う原子力発電所の事故により放出された放射性物質による環境の汚染への対処に関する特別措置法施行規則 (平成 23 年環境省令第 33 号)
- [8] 環境省, 2012. 16 都県の一般廃棄物焼却施設における排ガスのモニタリング結果 (https://www.env.go.jp/jishin/attach/memo20120111_shori.pdf), p31 (2018 年 1 月 13 日閲覧).
- [9] 大迫政浩, 倉持秀敏, 肴倉宏史, 2012. 放射性セシウムを含む廃棄物の焼却処理. *都市清掃*. 65, 23-27.
- [10] 高岡昌輝, 2013. 廃棄物焼却施設における排ガス中放射性物質の測定. *廃棄物資源循環学会誌*. 24 (4), 258-266.
- [11] 米田稔, 高岡昌輝, 大下和徹, 松井康人, 福谷哲, 池上麻衣子, 2014. 焼却・溶融処理を用いた放射能汚染土壌・廃棄物の放射能分離・減容・固定化技術の確立 (3K 122106)

- 平成 25 年度環境研究総合推進費補助金 研究事業総合研究報告書 (https://www.env.go.jp/policy/kenkyu/suishin/kadai/syuryo_report/h25/pdf/3K122106.pdf) (2018 年 1 月 13 日閲覧)
- [12] 肴倉宏史, 石森洋行, 2013. 廃棄物等からの放射性製有無の溶出特性と溶出試験. 廃棄物資源循環学会誌. 24 (4), 274-280.
- [13] 国分宏城, 吉田博文, 村沢直治, 山崎眞一, 2015. 福島県の一般廃棄物焼却施設から発生した焼却残渣からの放射性 Cs の溶出特性. 第 5 回環境放射能除染研究発表会要旨集, 80.
- [14] 環境省, 2013. 廃棄物関係ガイドライン 第二部 特定一般廃棄物・特定産業廃棄物関係ガイドライン (http://www.env.go.jp/jishin/rmp/attach/haikibutsu-gl02_ver2.pdf) (2018 年 1 月 13 日閲覧).
- [15] 遠藤和人, 2017. 環境中における事故由来の放射性物質汚染廃棄物の総合的な管理. 日本原子力学会誌 ATOMOS, 59 (8), 13-15.
- [16] 環境省, 2013. 環境省大臣官房廃棄物・リサイクル対策部廃棄物対策課長・産業廃棄物課長, 環廃対発第 1307121 号, 環廃産発第 1307122 号 (2013 年 7 月 12 日). 事故由来放射性物質に汚染された廃棄物の処理の推進について.
- [17] 小口正弘, 森朋子, 大迫政浩, 森口祐一, 山田正人, 2012. 一般廃棄物焼却処理への放射性物質の移行と焼却灰への濃縮に関する傾向の分析. 第 23 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集. 165-166. http://doi.org/10.14912/jsmcwm.23.0_165
- [18] 阿部清一, 上林史朗, 佐藤淳, 釜田陽介, 西村和基, 2012. 回転表面溶融炉における放射性 Cs の挙動調査. 第 1 回環境放射能除染研究発表会要旨集. 48.
- [19] 川本克也, 倉持秀敏, 田野崎隆雄, 竹内幸生, 2012. 灰溶融炉付設焼却施設における放射性元素等の挙動. 第 23 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集. 451-452. https://doi.org/10.14912/jsmcwm.23.0_451
- [20] 川本克也, 水原詞治, 福島正明, 田野崎隆雄, 竹内幸生, 2013. 放射性物質を含む一般廃棄物の実焼却施設における焼却特性. 環境工学総合シンポジウム講演論文集. 23, 130-132.
- [21] 原田健一, 倉持秀敏, 八巻徹, 2014. 放射性物質に汚染された牧草の焼却実証事業について (事例報告). 都市清掃. 67 (319), 270-276.
- [22] 山本貴士, 滝上英孝, 田野崎隆雄, 竹内幸生, 鈴木剛, 大迫政浩, 貴田晶子, 酒井伸一, 2012. 焼却プロセスにおける放射性セシウムの挙動について, 第 23 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集. 167-168. https://doi.org/10.14912/jsmcwm.23.0_167
- [23] 倉持秀敏, 2014. 事故由来放射性物質汚染廃棄物の熱処理に関するこれまでの研究成果. 環境放射能除染学会誌. 2 (2), 71-84.
- [24] Kuramochi, H., Fujiwara, H., Yui, K., 2016. Behavior of Radioactive Cesium during Thermal Treatment of Radioactively Contaminated Wastes in the Aftermath of the

- Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident. *Global. Environ. Res.* 20, 91-100.
- [25] Oshita, K., Aoki, H., Fukutani, S., Shiota, K., Fujimori, T., Takaoka, M., 2015. Behavior of cesium in municipal solid waste incineration. *J. Environ. Radioact.* 143, 1-6. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.01.019>.
- [26] Saffarzadeh, A., Shimaoka, T., Kakuta, Y., Kawano, T., 2014. Cesium distribution and phases in proxy experiments on the incineration of radioactively contaminated waste from the Fukushima area. *J. Environ. Radioact.* 136, 76-84. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2014.05.009>.
- [27] Shiota, K., Takaoka, M., Fujimori, T., Oshita, K., Terada, Y., 2015. Cesium Speciation in Dust from Municipal Solid Waste and Sewage Sludge Incineration by Synchrotron Radiation Micro-X-ray Analysis. *Anal. Chem.* 87, 11249-11254. <http://dx.doi.org/10.1021/acs.analchem.5b03298>.
- [28] Linke, W. S., 2002. Solubilities: Inorganic and Metal-Organic Compounds; A Compilation of Solubility Data from the Periodical Literature, Edition 4, Volume 1, Pt.2; UMI: Michigan, pp 880.
- [29] 山崎眞一, 吉田博文, 鈴木仁, 鴨田美奈子, 倉持秀敏, 由井和子, 大越実, 小田原伸幸, 藤曲淳, 2016. 焼却炉の焼却温度制御等による放射性物質の主灰・飛灰への移行挙動調査結果について. 第37回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集, 374-376.
- [30] El-Kamash, A. M., 2008. Evaluation of zeolite A for the sorptive removal of Cs⁺ and Sr²⁺ ions from aqueous solutions using batch and fixed bed column operations. *Hazard. Mater.*, 151 (2-3), 432-445. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2007.06.009>.
- [31] Van Caneghem, J., Brems, A., Lievens, P., Block, C., Billen, P., Vermeulen, I., Dewil, R., Baeyens, J., Vandecasteele, C., 2012. Fluidized bed waste incinerators: design, operational and environmental issues. *Prog. Energy Combust.* 38, 551-582. <https://doi.org/10.1016/j.pecc.2012.03.001>
- [32] 日本工業規格, 2005. JIS K 0058-1 スラグ類の化学物質試験方法—第1部: 溶出量試験方法.
- [33] 環境省, 2013. 廃棄物関係ガイドライン 第5部 放射能濃度等測定方法ガイドライン (http://www.env.go.jp/jishin/rmp/attach/haikibutsu-gl05_ver2.pdf)
- [34] 日本工業規格, 2013. JIS Z 8808 排ガス中のダスト濃度の測定方法.
- [35] 大阪市, 2012. 報道発表資料 (平成24年10月11日) 放射性物質の測定方法に関する確認について (<http://www.city.osaka.lg.jp/kankyo/cmsfiles/contents/0000388/388404/121011experiment.pdf>) (2018年1月13日閲覧).
- [36] 籠谷純一, 渡辺信久, 2013. CsCl, KCl および NaCl の加熱時の揮発と捕集. 第22回環境化学討論会講演要旨集. 442-443.

- [37] 山本貴士, 竹内幸生, 鈴木剛, 大迫政浩, 2016. 焼却排ガス中セシウムの採取方法の検討. 第 27 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集. 497-498. https://doi.org/10.14912/jsmewm.27.0_497
- [38] 吉柳哲也, 高木修一, 2010. 賛助会員の活動事業レポート 川崎技研の「酸素式」熱分解直接溶融技術. 環境技術会誌. 138, 108-110.
- [39] Ginsberg, T., Liebig, D., Modigell, M., Sundermann, B., 2012. Multizonal thermochemical modelling of heavy metal transfer in incineration plants. *Process Saf. Environ. Prot.* 90 (1), 38-44. <https://doi.org/10.1016/j.psep.2011.07.002>.
- [40] 吉田正, 2016. 硅砂の流動焼却炉内での形状・特性変化と 交換時期の指標について. 東京都下水道局 技術調査年報. 40, 149-152.
- [41] 肴倉宏史, 藤原大, 谷田克義, 細田博之, 2018. 流動床式焼却施設における各残渣への金属分配挙動. 第 39 回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集, 130-132.
- [42] Haynes, W. M., 2013. *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, 94th ed. CRC Press, Boca Ranton, FL, pp. 4-45.
- [43] 国立環境研究所, 2014. 放射性物質の挙動からみた適正な廃棄物処理処分(技術資料第 4 版), (http://www.nies.go.jp/fukushima/pdf/techrepo_r4_140414_all.pdf) (2018 年 1 月 13 日閲覧).
- [44] Tanigaki, N., Manako, K., Osada M., 2012. Co-gasification of municipal solid waste and material recovery in a large-scale gasification and melting system. *Waste Manage.* 32, 667-675. <https://doi.org/10.1016/j.wasman.2011.10.019>
- [45] ECN (Energy research Centre of the Netherlands), Phyllis2, database for biomass and waste, <https://www.ecn.nl/phyllis2> (2017 年 12 月 1 日アクセス).
- [46] Scheer, M. D. and Fine J., 1962. Entropies, Heats of Sublimation, and Dissociation Energies of the Cesium Halides. *J. Chem. Phys.*, 36, 1647-1653. <https://doi.org/10.1063/1.1732792>.
- [47] Cogin, G. E. and Kimball, G. E., 1948. The Vapor Pressures of Some Alkali Halides. *J. Chem. Phys.*, 16, 1035-1048. <https://doi.org/10.1063/1.1746720>.
- [48] Yaw, C. L., 1999. *Chemical Properties Handbook: Physical Thermodynamic, Environmental, Transport, Safety, and Health Related Properties for Organic and Inorganic Chemicals*, McGraw-Hill, NY.
- [49] Zimm, B. H. and Mayer, J. E., 1944. Vapor Pressures, Heats of Vaporization, and Entropies of Some Alkali Halides. *J. Chem. Phys.*, 12, 362-369. <https://doi.org/10.1063/1.1723958>.
- [50] Mayer, J. E. and Wintner, I. H., 1938. Measurements of Low Vapor Pressures of Alkali Halide. *J. Chem. Phys.*, 6, 301-306. <https://doi.org/10.1063/1.1750255>.

- [51] Wu, J., Li, B., Liao, J., Feng, Y., Zhang, D., Zhao, J., Wen, W., Yang, Y., Liu, N., 2009. Behavior and analysis of Cesium adsorption on montmorillonite mineral. *J. Environ. Radioact.* 100 (10), 914-920. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2009.06.024>
- [52] 村沢直治, 国分宏城, 吉田博文, 山崎眞一, 八田珠郎, 2017. 焼却灰からの放射性 Cs 溶出特性とその難溶化の検討. *安全工学シンポジウム予稿集*. 368-371.
- [53] 大西健雄, 徳平悠, 赤間知行, 2014. 廃棄物処理における放射性物質対策の実施状況. 第 35 回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集, 309-311.
- [54] 水岡亜聖, 梶泰介, 鈴木賢司, 望月健宏, 池田直隆, 永井義明, 岩瀬宏, 2014. 川崎市におけるごみ焼却灰からの放射性物質の溶出抑制対策. 第 35 回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集, 312-314.
- [55] Fujiwara, H., Kuramochi, H., Nomura, K., Maeseto, T., Osako, M., 2017. Behavior of radioactive cesium during incineration of radioactively contaminated wastes from decontamination activities in Fukushima. *J. Environ. Radioact.* 178-179, 290-296. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.08.014>
- [56] Jing, Z., Hao, W., He, X., Fan, J., Zhang, Y., Miao, J., Jin, F., 2014. A novel hydrothermal method to convert incineration ash into pollucite for the immobilization of a simulant radioactive cesium. *J. Hazard. Mater.* 306, 220-229. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jhazmat.2015.12.024>.
- [57] Yoon, I. H., Choi, W. K., Lee, S. C., Min, B. Y., Yang, H. C., Lee, K. W., 2012. Volatility and leachability of heavy metals and radionuclides in thermally treated HEPA filter media generated from nuclear facilities. *J. Hazard. Mater.* 219, 240-246. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jhazmat.2012.03.081>.
- [58] Shiota, K., Tsujimoto, Y., Takaoka, M., Oshita, K., Fujimori, T., 2017. Emission of particulate matter from gasification and melting furnace for municipal solid waste in Japan. *J. Environ. Chem. Eng.* 5 (2), 1703-1710. <https://doi.org/10.1016/j.jece.2017.03.010>
- [59] 肴倉宏史, 小口正弘, 寺園淳, 2010. 焼却・溶融実処理プロセスにおける希少金属等 54 元素の分配と変動. 第 21 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集, 407-408. <https://doi.org/10.14912/jsmcwm.21.0.198.0>
- [60] 肴倉 宏史, 由井和子, 倉持秀敏, 成岡朋宏, 門木秀幸, 2016. ストーカ式都市ごみ焼却施設における各焼却残渣への金属分配挙動調査. 第 37 回全国都市清掃研究・じれ発表会講演論文集, 245-247.
- [61] 宮城県, 第 11 回宮城県指定廃棄物等処理促進市町村長会議, 資料 2, (<http://www.pref.miyagi.jp/soshiki/houtai/sitei-kaigi11.html>) (2018 年 1 月 13 日閲覧).

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

3.1. はじめに

汚染廃棄物対策地域 (以下、対策地域) では、津波被害や被災家屋等の解体による廃材、片づけごみ等の災害廃棄物のほか、除染活動により草木類等の除染廃棄物が大量に発生している。これらの廃棄物のうち可燃性のものは対策地域内の各市町村に設置された仮設焼却施設等により処理が行われ、除染廃棄物は 2015 年から本格的に焼却減容化されている。図 3.1 および表 3.1 に福島県内における仮設焼却施設の設置状況を示す。対策地域内には 10 の仮設焼却施設が設置されており[1]、事故から約 7 年が経過した現在でもその多くが稼働中である。また、対策地域外でも国代行処理として 3 つ仮設焼却施設で災害廃棄物および除染廃棄物が処理され[2-4]、伊達地方衛生処理組合では独自に除染廃棄物の焼却処理のために仮設焼却施設を設置している[5]。その他にも、指定廃棄物のうち、特に発生量の多い下水汚泥や農林業系廃棄物等を処理するために仮設焼却施設 (乾燥施設等を含む) が設置され、今後も農林業系廃棄物の処理が計画されている[6,7]。対策地域では空間線量が高いことから、発生する焼却残渣の放射性 Cs 濃度も高濃度になり、焼却施設の安全な運転や適切な焼却残渣の処理のためには焼却過程の放射性 Cs の挙動の把握はより一層重要となる。特に、今後は福島第一原発のすぐ近くの汚染程度の大きい大熊町や双葉町 (中間貯蔵施設内) での焼却処理も本格的に始まる予定である (図 3.1) [8]。福島県内の仮設焼却施設では、表 3.1 のように一般廃棄物とは異なる、除染廃棄物や災害廃棄物が処理されており、焼却対象物の違いは放射性 Cs の挙動へも影響を与えることが予想される。これまでの知見として、例えば木材を焼却した際には一般廃棄物の飛灰と同程度の高い溶出性を示すのに対し[9]、下水汚泥焼却灰 (飛灰) からは放射性 Cs がほとんど溶出しないことが報告されている[9-12]。これらの結果は、組成が大きく異なるものを焼却する際には放射性 Cs の化学形態が大きく変化する可能性を示唆しており、廃棄物種類の違いは、放射性 Cs の焼却残渣に対する分配率や焼却残渣等からの放射性 Cs 溶

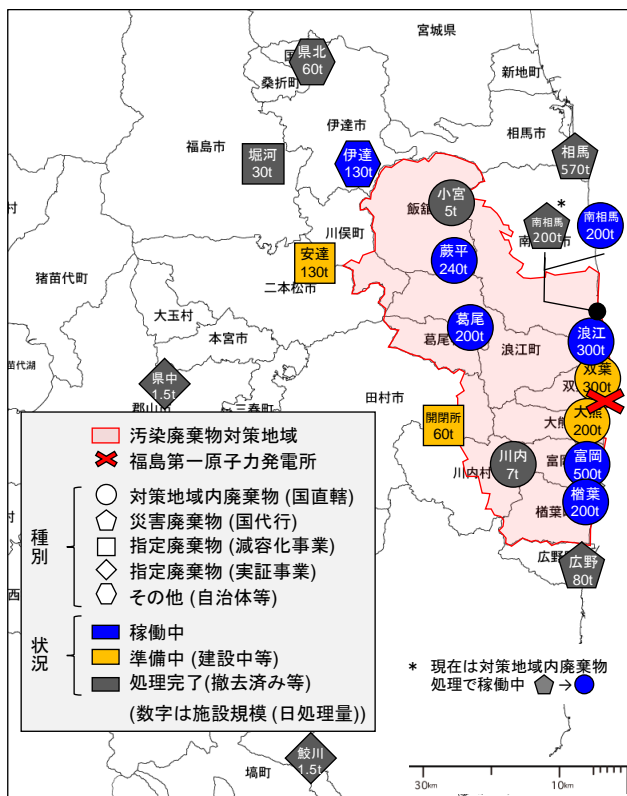


図 3.1 福島県内における仮設焼却施設等の設置状況 (2017 年 12 月 1 日時点)

出率へ影響を与えることを意味している。除染廃棄物や農林業系廃棄物（稲わらや牧草）を一般廃棄物と数%程度混焼した事例はあるが[13,14]、対策地域内で処理される除染廃棄物や災害廃棄物を主体として焼却した前例はなく、これらの廃棄物を処理した際の放射性 Cs の挙動に関する知見は十分とは言えない。

また、仮設焼却施設から発生する焼却残渣は管理型処分場での最終処分、もしくは中間貯蔵施設での減容化の後に、浄化物（低濃度生成物）は再生利用され、高濃度生成物は保管されることになるが[15]、減容化や処分方法を検討するためには、焼却残渣の発生量や放射性 Cs 濃度、溶出性、元素組成などの焼却残渣の性状や放射性 Cs の存在形態等の基礎的な知見を蓄積することは重要である。第2章では熱処理形式の違いによる放射性 Cs の挙動について明らかにしたが、仮設焼却施設ではこれまで処理経験のない除染廃棄物が処理されることに加えて、多様な廃棄物も処理されることから、廃棄物の種類が放射性 Cs の挙動に与える影響を明らかにする必要がある。そこで本研究では、対策地域内のストーカ式の仮設焼却施設において、廃棄物種類の違いが放射性 Cs の挙動へ与える影響について調査を行った。

表 3.1 福島県内における仮設焼却施設等の設置状況 ([1-8]に基づき作成)

| 事業主体 立地地区等 | 焼却対象物 | | | | | 処理予定量 〔処理完了量〕 (t) | 状況 | 処理 能力 (t/日) | 焼却形式 |
|------------------------|-------------------|---------------------------------|-----------------------|-----------------------|---------------------------------|-------------------------|-------------------------------------|-------------------|---------------|
| | 津波 が れ き | 被 災 家 屋 解 体 物 | 片 づ け ご み | 除 染 廃 棄 物 | 農 林 業 系 廃 棄 物 | | | | |
| 国直轄・対策地域内 | | | | | | | | | |
| 川内村 | | ● | ● | | | [2,000] | 2014年12月～2016年2月 | 7 | ストーカ |
| 飯館村(小宮地区) | | | ● | | | [2,900] | 2014年9月～2017年3月 | 5 | 流動床 |
| 富岡町 | ● | ● | ● | ● | | 225,000 | 2015年4月より稼働中 | 500 | ストーカ |
| 南相馬市 ^{*1} | ● | ● | ● | ● | ● | 286,200 | 2015年4月より稼働中 | 400 | ストーカ |
| 葛尾村 | | ● | ● | ● | | 129,000 | 2015年4月より稼働中 | 200 | ストーカ |
| 浪江町 | ● | ● | ● | ● | | 163,000 | 2015年6月より稼働中 | 300 | ストーカ |
| 飯館村(蔵平地区) | | ● | ● | ● | ● | 340,000 | 2016年1月より稼働中 | 240 | 回転ストーカ、流動床 |
| 楢葉町 | ● | ● | ● | ● | | 111,000 | 2016年11月より稼働中 | 200 | ストーカ |
| 大熊町 | ● | ● | ● | ● | | 226,000 | 準備中(2017年12月より稼働予定) | 200 | ストーカ |
| 双葉町 ^{*2} | ● | ● | ● | ● | | 277,400 | 準備中(2020年3月より稼働予定) | 300 | 未定 |
| (川俣町および田村市は既存の処理施設で処理) | | | | | | | | | |
| 災害廃棄物国代行処理 | | | | | | | | | |
| 相馬市・新地町 | ● | ● | ● | ● | ● | [92,493] | 2014年11月に処理完了 | 570 | ストーカ(階段式、回転式) |
| 広野町 | | ● | ● | ● | ● | [30,877] | 2015年5月～2017年1月 | 80 | シャフト式ガス化溶融 |
| 南相馬市 | ● | ● | ● | | | [36,000] | 2016年5月～2016年12月 (対策地域内廃棄物処理を継続) | 200 | ストーカ |
| 指定廃棄物処理(減容化事業) | | | | | | | | | |
| 福島市(堀河町終末処理場) | | | | | ● | [7,726] | 2013年4月～2014年8月 | 30 | 乾燥ドラム |
| 田村市-川内村(旧開閉所) | | | | | ● | 49,300 | 2017年6月より稼働中 | 60 | ストーカ |
| 二本松市(安達地方) | | | | | ● | 108,000 ^{*3} | 準備中(2019年2月より稼働予定) | 120 | ストーカ |
| 指定廃棄物処理(実証事業) | | | | | | | | | |
| 郡山市(県中浄化センター) | | | | | ● | [18,000] | 2013年9月～2014年3月 (福島県が焼却処理を継続) | 90 | 流動床 |
| 鮫川村 | | | | | ● | [415] | 2014年3月～2015年7月 | 1.5 | 傾斜式回転床 |
| 伊達地方衛生処理組合 | | | | | | | | | |
| 伊達市 | | | | | ● | 154,000 | 2015年4月より稼働中 | 130 | 回転キルン |
| 福島県、日本下水道事業団 | | | | | | | | | |
| 国見町(県北浄化センター) | | | | | ● | 25,000 | 2015年4月～2017年1月 | 60 | 回転式乾燥機 |

注)^{*1} 代行処理後に運用されている2号炉の対策地域内廃棄物の処理量および処理能力を含む

2017年12月1日時点

^{*2} その1業務、その2業務の合算処理量

^{*3} 安達地方広域行政組合から委託されている除染廃棄物が処理対象の主体

3.2. 調査方法

3.2.1. 調査対象施設

仮設焼却施設の焼却形式は表 3.1 に示したように一般廃棄物焼却施設と同様にストーカ式焼却施設が多い。流動床式焼却施設は片づけごみ（飯舘村小宮地区）や下水汚泥（県中浄化センター、飯舘村蕨平地区）の焼却処理に用いられているが、片づけごみは一般廃棄物に性状が近く、下水汚泥についても既存施設での知見により放射性 Cs の挙動の予測が可能と考えられる。廃棄物種類の違いによる放射性 Cs 挙動の把握を考えたときには、シャフト式ガス化溶融炉（広野町）では副資材（コークスや石灰石）の投入による元素組成の調整や長い滞留時間による組成の均質化により、廃棄物種類の影響が確認しにくいと考えられる[16]。そこで、本調査ではストーカ式焼却炉を対象として調査を行った。

調査は対策地域内の除染廃棄物を処理対象としている 4 つの仮設焼却施設で行った。1 日の調査を 1Run とし 4 施設で合計 20Run 行った。一部例外はあるが、基本的には 2 日 (2Run) を 1 セットとして実施し、いずれの調査でも調査対象日の前日から廃棄物種類の割合が調査対象日と同じになるようにした。調査日程は後出の表 3.3 に示す。

調査対象施設の概略フローおよび試料採取箇所を図 3.2 に示す。いずれの施設もストーカ式である点や、バグフィルタを直列で 2 基備えている点は共通であるが、熱回収設備や灰冷却方法に若干の違いがある。例えば、施設 A, C および D では、主灰は空冷されて乾燥状態で排出されるのに対し、施設 B では水冷された後に湿潤状態で排出される。また、ガス冷灰は施設 A, C および D では集じん灰と合流して飛灰として排出されるのに対し、施設 B では主灰と合流して搬出される。このように同一名称で取り扱っている試料でも、施設の違いにより違いがある点に留意が必要である。なお、仮設焼却施設と一般廃棄物焼却施設との主要な違いは次の 2 点である。1) ボイラー等の熱回収施設が省略されている。2) 一般廃棄物焼却施設よりも高濃度の放射性物質を取り扱うため、バックアップ用にバグフィルタが直列で 2 基設置されている。いずれの施設でも排ガス処理薬剤として消石灰および活性炭がバグフィルタ前に吹込まれているが、後段のバグフィルタ (NO.2) はバックアップ用であるため、後段のバグフィルタ (NO.2) 前への消石灰および活性炭の吹込み量は少ない。飛灰はいずれの施設でもキレート処理による重金属の安定化を行った後フレコンに搬出されていた。

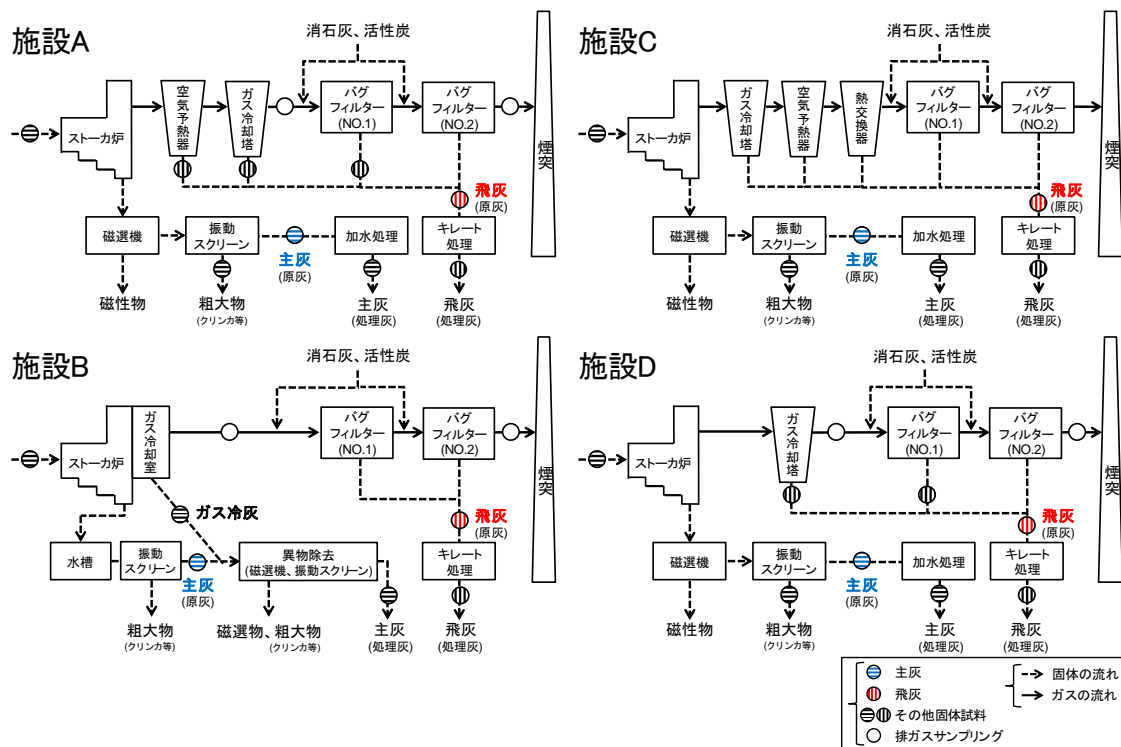


図 3.2 施設概略フロー図および試料採取箇所

3.2.2. 試料採取

1) 安全管理

焼却対象物および焼却残渣は、放射性 Cs 濃度が 10,000Bq/kg を超えることが予想されるため、各試料採取区域は電離放射線障害防止規則[17]に基づいて管理区域に設定されていた。そのため試料採取は適切な放射線管理のもと放射線業務従事者により行われた。具体的には、試料採取は有資格者により行われ、試料採取中には NaI シンチレーションサーベイメーターで空間線量率を測定するとともに、ハイボリウムエアサンプラーで粒子状物質を採取し、試料採取作業環境の安全性を確認した。採取した試料は GM (ガイガー・ミュラー) 管式サーベイメーターで表面汚染密度を測定し、試料持ち出しによる汚染に問題がないことを確認した後、管理区域外の実験室に試料を運び出した。このように管理区域での試料採取であるために採取方法や頻度に制約があり、施設あるいは試料種類によって採取方法や採取頻度が異なり、第 2 章で行ったような各煙道灰の発生量は測定できなかった。

2) 採取方法

各施設の試料採取方法の詳細を付録表 3.1 に示す。主灰は最終的には調湿や、磁性物・粗大物等の異物除去の後にフレコンに充填され、飛灰はキレート処理がなされた後フレコンに充填された後に施設内の保管テントへ搬出される。いずれもフレコン充填のために焼却残渣を一定量以上貯留する必要があり、場合によっては数日分の焼却残渣がサイロ (貯留

槽)等で貯留されている。本研究では、焼却対象物の変化に対応した放射性 Cs 等の挙動把握が目的であるため、焼却残渣の貯留による時間差の影響が小さくなるように、加水やキレート処理を行う前の「原灰」を中心に解析を行った。本調査では単に「主灰」もしくは「飛灰」と記すものはそれぞれ「主灰 (原灰)」および「飛灰 (原灰)」を示す。なお、図 3.2 の施設フロー図に示した通り「飛灰 (原灰)」は有害ガス除去のための消石灰および活性炭の排ガス処理薬剤を含み、キレート処理を行う前のものを示す。加湿やキレート処理後のフレコン充填時にも試料を採取し、本調査ではこれらを「主灰 (処理灰)」もしくは「飛灰 (処理灰)」と呼ぶ。焼却残渣の採取は基本的に 1Run の中で複数回行い、それぞれを等量ずつ混合して代表試料として分析を行った。焼却対象物は、施設 B および C では四分法により縮分したものを採取したが、施設 A および D では除染廃棄物が主体であるためかさ張るものがほとんど含まれておらず組成のばらつきが少ないと判断し、ごみピットに投入する直前の重機でよく混合された焼却対象物をスコップで複数点より採取し、混合したものを試料とした。

3.2.3. 焼却残渣等発生量の算出方法

各施設の焼却残渣等の発生量の算出方法の詳細を付録表 3.2 に示す。対策地域内の仮設焼却施設ではフレコンに充填された主灰 (処理灰) および飛灰 (処理灰) の搬出重量が記録されている。本調査では基本的にこれらの記録をもとに、それぞれの含水率がすべて加水およびキレート溶液によるものとみなし、主灰 (原灰) および飛灰 (原灰) の発生量を推計した。また、発生量の推計にあたっては各施設の焼却残渣発生からフレコン充填までの時間差等をヒアリングするとともに、調査日の前後数週間の焼却残渣の搬出量の変化等から総合的に判断し、付録表 3.2 のように推計した。ただし、本調査は 1~3 日間の短期間のスポット的な調査であったため、焼却残渣の貯留時間や処理灰搬出作業のタイミング等の影響により必ずしも調査当日の正確な発生量ではないことに留意が必要である。

3.2.4. 分析方法

1) 放射性核種分析

放射性核種分析では、放射性 Cs のみを対象とし、ゲルマニウム半導体検出器 (ORTEC、GEM-30, GEM-65, GMX-40) を用いて焼却残渣等の Cs-134 と Cs-137 の濃度を測定し、その合計値を放射性 Cs (T-Cs) 濃度とした。放射性 Cs 濃度は試料採取日に減衰補正を行った。焼却対象物の放射性 Cs 濃度については焼却残渣と異なり全体の代表性を保ったまま採取することは困難であるため、(3.1) 式のように焼却残渣中の放射性 Cs の総量を焼却量で除して算出した。

$$C_{\text{waste}} (\text{Bq/kg}) = \frac{\sum\{C_{\text{residue}} (\text{Bq/kg}) \times W_{\text{residue}} (\text{kg/h})\}}{W_{\text{waste}} (\text{kg/h})} \quad (3.1)$$

ここで、 C_{waste} および C_{residue} はそれぞれ焼却対象物および個々の焼却残渣の放射性 Cs 濃度 (Bq/kg) を、 W_{waste} および W_{residue} はそれぞれ焼却対象物の焼却処理量および個々の焼却残渣の発生重量 (kg/h) を示す。個々の焼却残渣とは、施設 B では、主灰 (原灰)、ガス冷灰、飛灰 (原灰) の 3 種を示し、施設 A、C、D では、主灰 (原灰) および飛灰 (原灰) の 2 種を示す。なお、各施設間で比較を行うため、放射性 Cs 濃度および発生量について、焼却対象物は湿基準で示し、焼却残渣は各々の含水率をもとに乾基準に換算した値を用いた。

2) ごみ質分析

分析項目と分析方法の概要を以下に示す。

➤ 三成分

環整第 95 号別紙 2 に掲げる方法[18]に準拠した。分析方法の概略は次の通り。

- ・ 水分 105 °C で恒量を得るまで乾燥し、乾燥前後の重量変化より算出した
- ・ 灰分 800 °C で 2 時間強熱し、強熱前後の重量変化より算出した
- ・ 可燃分 「100-水分(%)-灰分(%)」として算出した

➤ 種類組成

環整第 95 号別紙 2 に掲げる方法[18]に準拠した。①紙・布類、②ビニール・合成樹脂・ゴム・皮革類、③木・竹・ワラ類、④厨芥類、⑤不燃物類、⑥その他 (5mm のふるいを通したものの) の 6 つに分類し、乾燥基準による重量割合を示した。

➤ みかけ比重

環整第 95 号別紙 2 に掲げる方法[18]に準拠した。試料重量 (kg) を容器の容量 (m³) で除して算出した。

➤ 低位発熱量

JIS M 8814「石炭類及びコークス類—ボンブ熱量計による総発熱量の測定方法及び真発熱量の計算方法」[19]に準拠し、ボンブ式熱量計 (吉田製作所、1013-U 等) により測定した。

3) 溶出試験

焼却対象物および焼却残渣について溶出試験を行い、放射性 Cs の溶出性について調べた。溶出試験は第 2 章と同様に JIS K 0058-1[20]に準じて行った。手順を以下に示す。

- 1) プラスチック製ボトルに試料を 10 g を秤量し、水 100 ml (100 g) を添加する
- 2) 1) を 6 時間 200 rpm で水平振とうする
- 3) 0.45 μm メンブレンフィルタで 2) をろ過する
- 4) ろ液の放射性 Cs 濃度を測定する
- 5) 下記 (3.2) 式から放射性 Cs 溶出率を算出する

$$\text{放射性 Cs 溶出率 (\%)} = \frac{(C_{\text{filtrate}}(\text{Bq/L})/\rho(\text{kg/L}) \times W_{\text{filtrate}}(\text{kg}))}{(C_{\text{residue}}(\text{Bq/kg}) \times W_{\text{residue}}(\text{kg}))} \times 100 \quad (3.2)$$

ここで、 C_{filtrate} および C_{residue} はそれぞれろ液および溶出試験を行う前の焼却残渣等の放射性 Cs 濃度 (Bq/L および Bq/kg) を、 W_{filtrate} および W_{residue} はそれぞれろ液および溶出試験に使用した焼却残渣等の重量を、 ρ は溶媒 (水) の密度 ($\rho=1.0 \text{ kg/L}$) を示す。溶出試験は基本的に同一サンプルに対して 3 回行い、その平均値を採用した。平均値の算出にあたって、検出下限値が含まれる場合には検出下限値を用いて算出した。また、溶出液の pH および電気伝導度 (EC) をそれぞれガラス電極式 pH メータ (堀場製作所、D-51) および交流 2 極法の導電率計 (堀場製作所、ES-51) により測定した。

4) 逐次抽出試験

放射性 Cs の存在形態をより詳しく推定するために、抽出能力の異なる溶媒で試料を逐次抽出する逐次抽出試験をいくつかの試料に適用した。逐次抽出試験は、はじめに Tessier et al.[21]により土壌中の重金属の化学形態を調べるために開発された後、高岡ら[22]により飛灰中の重金属の化学形態の推定に応用されたものであり、それぞれの画分は異なる化学形態を表している。放射性 Cs を含む焼却残渣に対しては、肴倉・石森[10]により適用されているが、ここでも触れられているように焼却残渣中の Cs の化学形態については各化学形態の名称と合致するかについての確認は十分になされていないため、画分名の取り扱いには注意が必要である。逐次抽出試験は、既往の方法[10]を基に表 3.2 の手順により行った。

表 3.2 逐次抽出試験方法

| 画分名 | 抽出操作 |
|-------------------------------|--|
| F1 水溶性画分 | 試料10 gを秤量し、水100 mLを入れ、6時間攪拌後、吸引ろ過し、上澄み液と残渣をそれぞれ採取する。 |
| F2 酢酸アンモニウム抽出画分 (イオン交換態と呼ばれる) | F1の残渣と1M酢酸アンモニウムをF1の残渣の10倍量入れ、18時間攪拌後、吸引ろ過し、上澄み液と残渣をそれぞれ採取する。 |
| F3 酢酸ナトリウム抽出画分 (炭酸塩態と呼ばれる) | F2の残渣を105 °Cで2～3時間乾燥させ、酢酸でpH5に調製した1M酢酸ナトリウムをF2の残渣の10倍量入れ、18時間攪拌後、吸引ろ過し、上澄み液と残渣をそれぞれ採取する。 |
| F4 ヒドロキシルアミン抽出画分 (酸化物態と呼ばれる) | F3の残渣を105 °Cで2～3時間乾燥させ、体積で酢酸を25%含む0.2M塩酸ヒドロキシルアミン溶液100 mLをF3の残渣の10倍量入れ、液温を約85 °Cに保ち18時間攪拌後、吸引ろ過し、上澄み液と残渣をそれぞれ採取する。 |
| F6 残渣残留画分 (残留物態と呼ばれる) | F4の残渣を残留物態とする。 |

5) 元素組成

焼却残渣の元素組成を、測定する元素の種類に応じて下記の 5 つの分析方法で測定した。ただし、一部の試料では迅速かつ簡易に測定が可能な波長分散型蛍光 X 線装置（以下、XRF）のみで測定し、その場合には XRF のみで測定したことを明記した。特に断りのない場合には下記の 5 つの分析方法により測定した。

- Na, Mg, Al, P, K, Ca, Fe, Zn（酸分解-ICP 発光分光分析法）

試料に硝酸、フッ化水素酸、過塩素酸を添加して加熱分解した後、放冷、ろ過、定容を行った。得られた試料に対して ICP 発光分光分析計（島津製作所、ICPS-8100 または Agilent Technologies、Agilent 720 ICP-OES）で定量した。
- Cr, Cu, As, Sr, Cd, Pb, Cs（酸分解-ICP 質量分析法）

試料に硝酸、フッ化水素酸、過塩素酸を添加して加熱分解した後、放冷、ろ過、定容を行った。得られた試料に対して ICP 質量分析計（Varian、820-MS または Agilent Technologies、Agilent 7500cx）で定量した。
- Si（アルカリ融解-ICP 発光分光分析法）

試料に炭酸ナトリウムを添加し、アルカリ融解した後、フッ化水素酸で加熱分解し、定容を行った。得られた試料に対して ICP 発光分光分析計（島津製作所、ICPS-8100 または Agilent Technologies、Agilent 720 ICP-OES）で定量した。
- Hg（硫酸-硝酸-過マンガン酸カリウム分解法-還元気化原子吸光法）

試料に純水、硫酸、硝酸、過マンガン酸カリウム、ペルオキシ二硫酸カリウム溶液を添加し、加熱分解した。得られた試料に塩化ヒドロキシアンモニウム溶液および塩化すず(II)を添加し、還元気化水銀測定装置（日本インスツルメンツ、RA-3）で定量した。
- S, Cl, Ti, Mn, Br（XRF 法）

試料を 105 °C で一晩乾燥し、約 5g を振動ボールミル（Fritch, Pulverisette 23）もしくは遊星ボールミル（Fritch, Pulverisette 7）を用いて直径 10 ~ 15 mm のジルコニア製ボールで粉碎した後、加圧成型機（島津製作所、SSP-10A）で約 3 分間 60 kN 加圧して約 3.6 mm の厚みのブリケット状にした。得られた試料を Polypropylenen® 膜（Chemplex industries）で保護をして真空雰囲気下で測定した。測定は、波長分散型蛍光 X 線分析装置（リガク、Supermini200）を用いて 50 kV, 4 mA の条件で行い、元素組成は検出されたそれぞれの元素のネット強度について ZSX マッチングライブラリ（ver. 7.65、リガク）を使用し、散乱線より非測定成分を推定する SQX (Scan Quant X) 散乱線 FP (Fundamental Parameter) 法により元素組成を計算した。

6) X 線回折分析

焼却残渣に含まれる結晶相について X 線回折（以下、XRD）分析により調べた。試料は、XRF 分析と同じ振動ボールミルもしくは遊星ボールミルにより粉碎したものをを用いた。粉末試料について、リガク製の MultiFlex を用いて Cu-K α 線を使用し 40 kV、26 mA の条件

で $0.02^{\circ}(2\theta)/\text{step}$ で $3 \sim 90^{\circ}(2\theta)$ の範囲について測定を行った。結晶相の同定には、Jade 9.7 (Materials Data Inc.) を用い、ICDD® (International Centre for Diffraction Data®) PDF-2 2015 のデータベースを使用した。

また、XRD 分析では、試料中の結晶相の濃度（質量濃度）は XRD 強度に比例するため、その性質を利用して定量分析が可能であり [23]、一般的には検量線法やリートベルト解析などにより定量が行われるが、本研究ではより簡便な方法として XRD 強度を結晶相量の半定量的な指標として比較した。Halite (NaCl) については、 $2\theta = 45.3 \sim 45.6^{\circ}$ 、Sylvite (KCl) については、 $2\theta = 40.4 \sim 40.7^{\circ}$ の範囲の XRD 強度の最大値を各結晶相の強度とし、BG として $2\theta = 19.0 \sim 20.0^{\circ}$ の XRD 強度の平均値を差し引いたものを結晶量とした。

7) 熱しゃく減量

主灰の熱しゃく減量環整第 95 号 [18] に準拠した。はじめに、約 30g 分取した試料を 105°C で恒量になるまで乾燥させ、 600°C 、3 時間強熱を行った。乾燥後の試料から強熱後の試料の重量減少率により熱しゃく減量を算出した。

3.3. 結果および考察

3.3.1. 焼却対象物の性状

代表的な焼却対象物の外観を写真 3.1 に、廃棄物種類およびごみ質（三成分、種類組成、みかけ比重、低位発熱量）を表 3.3 に示す。本調査では廃棄物種類を、1) 除染廃棄物のみ、2) 混合廃棄物（除染廃棄物とその他の混合物）、3) 家屋解体廃棄物のみ、の 3 種類に分類した。除染廃棄物はフレキシブルコンテナバッグ（もしくは耐候性大型土のう袋）およびその内袋（以下、これらを総称してフレコンと呼ぶ）とともに通常は焼却されるが、施設 A および施設 D で行った除染廃棄物のみ焼却試験ではフレコンは極力排除し、厳密に除染廃棄物のみを焼却対象物とし、施設 B での除染廃棄物のみ焼却試験（Run9, 10）では袋類も混焼した。そのため、施設 B Run9, 10 では約 10%のビニール類が含まれ、写真 3.1 でも白いビニール類が散見される。混合廃棄物については、施設 A では Run3 ~ 6 で通常運転時よりも除染廃棄物の割合を意図的に増やし、計画処理量に対する除染廃棄物の不足分を補う形で片づけごみおよび家屋解体廃棄物を約 1 割（目視での概算）を混焼した。施設 B および施設 C の混合廃棄物は通常運転時の焼却対象物の割合であるが、施設 C では施設 A や施設 B の混合廃棄物には含まれていない「木材」が処理されていた。これは木材業者で発生した廃棄物であり写真 3.1 からわかるように、施設 B の Run7, 8 で焼却対象とした家屋解体廃棄物に似たような外観の木くずが中心の廃棄物であった。



写真 3.1 代表的な焼却対象物の外観

表 3.3 調査日および廃棄物種類および廃棄物の性状（三成分、種類組成、みかけ比重、低位発熱量）一覧。除染廃棄物の処理割合が多い順に並べている。

| 廃棄物種類 | 廃棄物種類 (%) ^a | | 廃棄物三成分 (%) | | | 種類組成分類 | | みかけ比重 (kg/m ³) | | 低位発熱量 (kJ/kg) | | RunNO. | | 調査日 ^d | 排ガス測定 |
|---|------------------------|------|------------|----|-----|--------|-------|----------------------------|-----|---------------|-----|-------------|-------|------------------|-------|
| | 除染 | 家屋解体 | 水分 | 灰分 | 可燃分 | 紙・布類 | ビニール類 | 木・竹・ワラ類 | 厨芥類 | 不燃物類 | その他 | 施設 | Run | | |
| 除染廃棄物のみ 〔施設A, D: フレコン含まず 施設B: フレコンを含む〕 | 100 | | 50 | 33 | 18 | 分析せず | | | | | | A | Run1 | 2015年8月4日 | ○ |
| | 100 | | 58 | 25 | 16 | 分析せず | | | | | | A | Run2 | 2015年8月5日 | ○ |
| | 100 | | 48 | 8 | 44 | | | | | | | B | Run9 | 2017年6月6日 | - |
| | 100 | | 48 | 6 | 46 | | | | | | | B | Run10 | 2017年6月7日 | - |
| | 100 | | 60 | 8 | 32 | | | | | | | D | Run1 | 2017年1月24日 | - |
| | 100 | | 62 | 6 | 32 | | | | | | | D | Run2 | 2017年1月25日 | - |
| 混合廃棄物 ^a 〔施設A: 除染約90%超+片づけ 施設B: 除染52-75%+片づけ・家屋解体 施設C: 除染50%+木くず50%〕 | 90 | 10 | 47 | 34 | 19 | 分析せず | | | | | | A | Run3 | 2015年11月17日 | ○ |
| | 90 | 10 | 43 | 34 | 24 | 分析せず | | | | | | A | Run4 | 2015年11月18日 | ○ |
| | 90 | 10 | 27 | 21 | 53 | | | | | | | A | Run5 | 2016年11月17日 | - |
| | 90 | 10 | 51 | 14 | 36 | | | | | | | A | Run6 | 2016年11月18日 | - |
| | 75 | 4 | 21 | 37 | 8 | 55 | | | | | | B | Run1 | 2015年11月10日 | - |
| | 73 | 25 | 2 | 45 | 15 | 40 | | | | | | B | Run6 | 2016年2月10日 | - |
| | 70 | 16 | 14 | 49 | 17 | 35 | | | | | | B | Run3 | 2016年1月13日 | - |
| | 57 | 35 | 8 | 45 | 18 | 37 | | | | | | B | Run5 | 2016年1月15日 | ○ |
| | 52 | 31 | 17 | 44 | 18 | 38 | | | | | | B | Run4 | 2016年1月14日 | ○ |
| | 52 | 18 | 30 | 44 | 22 | 35 | | | | | | B | Run2 | 2015年12月10日 | - |
| | 55 | 35 | 10 | 51 | 8 | 42 | | | | | | C | Run2 | 2016年11月10日 | - |
| | 39 | 51 | 10 | 45 | 7 | 48 | | | | | | C | Run1 | 2016年11月9日 | - |
| 家屋解体廃棄物のみ | 100 | | 13 | 10 | 77 | | | | | | | B | Run7 | 2017年2月9日 | - |
| | 100 | | 41 | 7 | 52 | | | | | | | B | Run8 | 2017年2月10日 | - |
| (参考) 一般廃棄物 (環境省, 2017) ^e | 一般廃棄物 | | 46 | 9 | 45 | | | | | | | (47都道府県平均値) | | (2015年度調査結果) | - |

注) a 混合廃棄物の割合は、施設 A は目視で、施設 B および C では調査前日+調査当日のごみ搬入量より推定した。また、施設 A では意図的に除染廃棄物を多く混合し、施設 B および C では通常運転時に調査した。

b その他は、片づけごみや分別処理後の可燃物等

c 2015 年度の全焼却施設の平均値[24]

d 調査日中の片カッコは連続した日程での調査

なお、通常仮設焼却施設では搬入される廃棄物を都度処理しており、本調査で行ったような「除染廃棄物のみ」や「家屋解体廃棄物のみ」というのは焼却対象物の上限と下限を把握するために意図的に廃棄物種類を指定したためであり、本調査は仮設焼却施設における“代表例”ではない点に留意が必要である。

1) 発熱量および三成分

図 3.3 に各 Run の焼却対象物の三成分を既往の知見とともに示す。除染廃棄物（図 3.3 中緑色のシンボル）は、施設 A および施設 D では自然領域から外れて燃えにくい性状であるのに対して、施設 B の除染廃棄物は自然可能な一般廃棄物に近い三成分であった。施設 B では除染廃棄物そのものが乾燥しており、フレコンに由来するビニール類の影響だけでなく除染廃棄物によっても三成分にばらつきがあると考えられる。3 施設の除染廃棄物の低位発熱量は 1,500 ~ 7,000 kJ/kg の範囲であり、一般廃棄物（全国平均：9,000 kJ/kg [24]）に比べて低く、特に施設 A では一般的な自然限界（通常 4,200 ~ 5,000 kJ/kg [25]）を大きく下回った。これは、除染された草木類に多量に水分が含まれていていたことや保管中の発酵により可燃分が失われたことなどが原因として考えられ、施設 A の除染廃棄物では見かけ比重も施設 B や施設 D の除染廃棄物よりも大きかった。このように、同じ除染廃棄物という名称であっても保管状況や季節、除染地域等によって性状が異なると考えられた。焼却施設内に搬入された焼却対象物は、ストックヤードでの保管期間が長いと水分が抜けて燃えやすい性状になるが、保管期間を確保できるかどうかは各施設のストックヤードの広さや余裕による部分が大きく、焼却時の除染廃棄物の性状は除染地域の違いだけでなく、焼却施設の状況の違いによる変動も考えられた。岩手県および宮城県における災害廃棄物処理の場合には、土砂の混入による灰分割合増加（最大 72%）や、

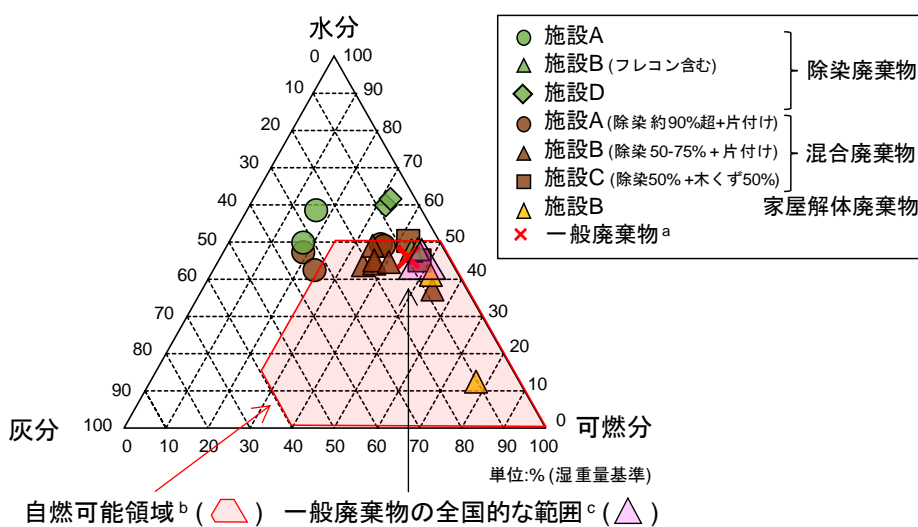


図 3.3 焼却対象物の三成分. a 一般廃棄物の全国の平均値[24], b 自然可能領域[26], c 一般廃棄物の全国的な範囲（水分 35~60%, 灰分 5~15%, 可燃分 40~55%の共通範囲）[25].

降雨等による水分増加（最大 56%）により発熱量が低下したところが多かったが[27,28]、除染廃棄物でも水分が多い点や灰分割合が一般廃棄物よりも高い点で、岩手県・宮城県の災害廃棄物と類似したごみ質であると言える。

家屋解体廃棄物の低位発熱量は 10,800～16,100 kJ/kg と一般廃棄物と同じか、それ以上であり、非常に燃えやすいごみ質であると言える。また、実際の処理の場合には発熱量が低い除染廃棄物のみを単独で焼却することは少なく、ほとんどの場合に片づけごみ等との混合廃棄物として発熱量などを調整して焼却処理される。施設 B や施設 C の混合廃棄物のように、除染廃棄物は片づけごみ等と混合処理することで発熱量や三成分が一般廃棄物に近い性状となり、安定に処理可能となると考えられる。

2) 種類組成

表 3.3 に種類組成分析の結果（乾燥基準）を示す。除染廃棄物およびその混合廃棄物では木・竹・ワラ類と主に土砂成分であるその他（5 mm のふるいを通過するもの）の合計の割合が 77～99%であり、ほとんど占めていた。一般廃棄物では紙・布類、ビニール類、厨芥類の順に多いことから、除染廃棄物およびその混合廃棄物の種類組成は一般廃棄物と大きく異なっていることがわかる。家屋解体廃棄物（施設 B の Run7, 8）は主に廃木材であるが、本調査中には家屋解体の際に発生する丸太や柱などの構造材は分別され別施設で処理されていたため、対象となった家屋解体廃棄物中の木材は壁材などに使用されるベニヤ等の木くずが主であった。また、家屋解体廃棄物の中には従来片づけごみとして区分されていたような一般廃棄物に近いようなものも含まれ、木くず（木・竹・ワラ類）が 6～7 割を占める他に、一般廃棄物と同程度の約 2 割のビニール類が含まれていたが、紙布類は一般廃棄物よりも非常に少なく、やはり木・竹・ワラ類が主体の廃棄物であると言える。

3) 除染廃棄物の粒径毎の性状

除染廃棄物の乾燥後の粒径毎の放射性 Cs 濃度および外観をそれぞれ図 3.4 および写真 3.2 に示す。粒径が小さいほど放射性 Cs 濃度は高い傾向を示した。粒径が小さい除染廃棄物は、写真 3.2 の外観からわかるように草、枝等の植物体のような細長いものではなく、粒状のものが多くことから土壌粒子が主体であると考えられる。土壌では、放射性 Cs は風化黒雲母等の粘土鉱物に選択的に吸着するため[29]、粒径が小さいほど放射性 Cs 濃度は高くなる[30,31]。したがって、除染廃棄物で粒径が小さいほど放射性 Cs 濃度が高い傾向は、除染廃棄物の汚染源が土壌であることを示唆している。除染廃棄物の粒径が大きくなると、細長い形状の草のようなものが増え、6.7 mm ふるい上では木くずのようなものが多かった。草木類等の植物体では、目視では土壌の付着が見られない場合にも土壌と考えられる微小な粒子が植物体表面に付着している場合があり[32]、除染廃棄物の粒径が小さいほど表面積が大きくなり土壌粒子の付着が多かった可能性が考えられる。施設 A、B とも除染廃棄物は粒径が小さいほど放射性 Cs 濃度が高い傾向が見られたが、この傾向は施設 B の方が顕著

であり、除染方法や除染地域の違いなどの影響により、除染廃棄物の汚染状況も異なると考えられる。

また、施設 B の除染廃棄物の 6.7 mm ふりい上のものについて、目視で木くず、フレコン内袋（透明なもの）、フレコン外袋（黒色なもの）を分別すると、フレコンは約 3 割程度であった。

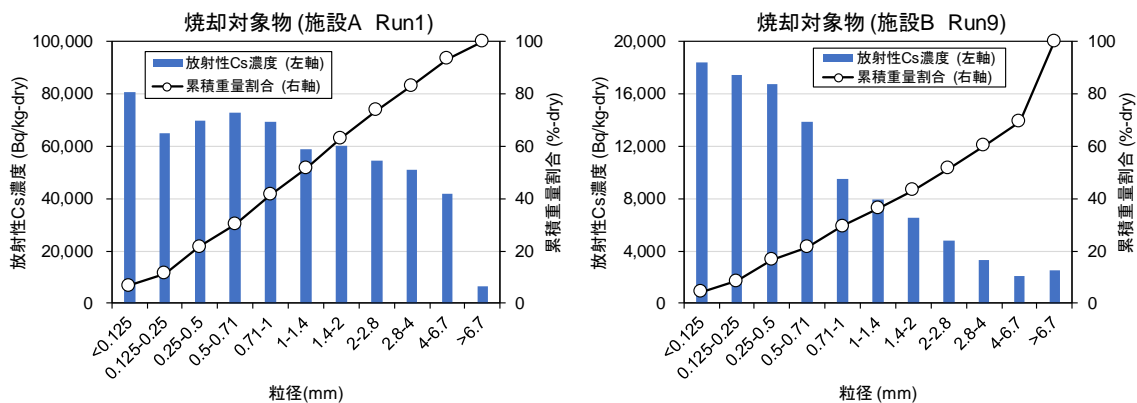


図 3.4 除染廃棄物の粒径毎の放射性 Cs 濃度および重量割合（乾基準）



写真 3.2 除染廃棄物の粒径毎の外観（乾燥後）. 円の直径は約 47mm.

3.3.2. 焼却残渣の放射性 Cs 濃度および焼却残渣への放射性 Cs の分配挙動

1) 放射性 Cs 濃度の時系列変動

図 3.5 に焼却残渣の放射性 Cs 濃度（湿基準）の時系列変化を示す。基本的には各焼却残渣は同じタイミングで試料採取を行ったが、図 3.5 の通り試料や施設により採取時間や採取頻度は若干異なる。なお、施設 B の Run1~6 では時間毎の放射性 Cs 濃度は測定できなかった。1Run の中での各々の試料の放射性 Cs 濃度の時間変動係数（RSD）を表 3.4 に示す。時間変動係数は、以下のように算出した。

$$s = \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \quad (3.3)$$

$$\text{RSD} (\%) = \frac{s}{\bar{x}} \times 100 \quad (3.4)$$

ここで、 s は標本標準偏差を、 x_i は各試料の放射性 Cs 濃度を、 \bar{x} は当該 Run の放射性 Cs 濃度の平均値を示す。

施設 A および D では飛灰（原灰）の放射性 Cs 濃度の時間変動係数が比較的大きく、特に施設 D では、Run1 で 49%、Run2 で 41% と非常に大きくばらついた。施設 A および施設 D の飛灰（原灰）は半円状の筒を 5 ~ 10 分差し込みサイロ上部で採取しているが、有害ガス除去のための薬剤（消石灰および活性炭）を含んでないガス冷灰や、ほとんど薬剤のみである NO₂ バグフィルタ灰の搬送割合の変化などによって採取試料中の薬剤の割合が変化し、濃度が大きくばらついたと考えられる。また、燃焼排ガス中のばいじん濃度は大きく変動するのに対して薬剤の吹込みは連続的に行われているため、飛灰中の薬剤の割合が変化して放射性 Cs 濃度が変動した可能性も考えられる。一方、施設 B では飛灰（原灰）の変動係数は低く、これは飛灰（原灰）の採取をサイロのダンパ下部で行ったために薬剤吹込の影響が平滑されたためと考えられる。このように、試料採取場所等違いによっては放射性 Cs 濃度のばらつきがことから、日々の定期サンプリングでも試料採取により放射性 Cs 濃度にばらつきが起きる可能性を考慮し、サンプリング位置や方法（複数回サンプリングを行う等）についても配慮する必要がある。本研究では時間毎に採取した試料を当量ずつ混合したものを代表試料とし、分析および解析に用いた。

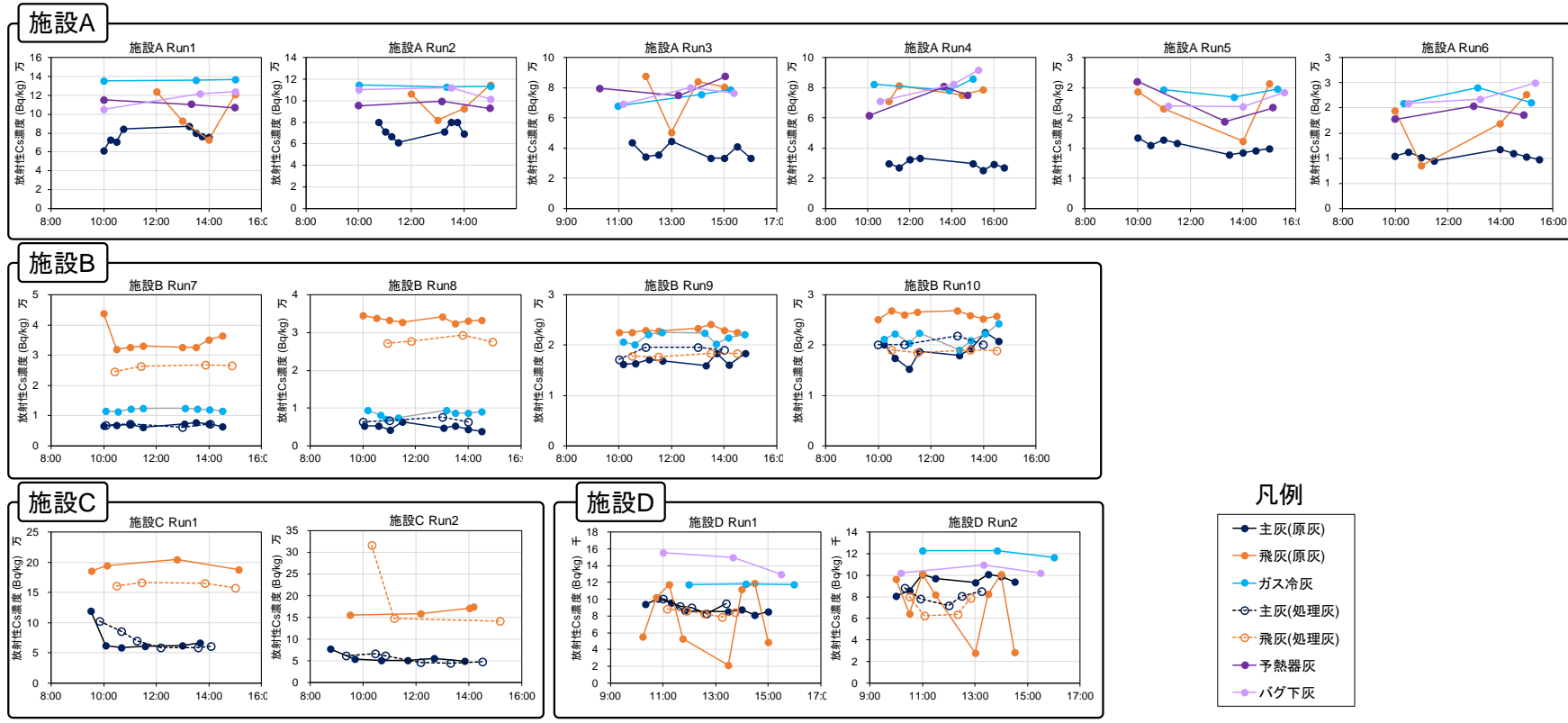


図 3.5 焼却残渣の放射性 Cs 濃度 (すべて湿基準) の時系列変化

表 3.4 時系列変化における放射性 Cs 濃度の時間変動係数 (%)

| 時間変動係数 (%) | 主灰(原灰) | 飛灰(原灰) | ガス冷灰 | 主灰(処理灰) | 飛灰(処理灰) | 予熱器灰 | 集じん灰 |
|------------|--------|---------|---------|----------|---------|---------|---------|
| 施設A | Run1 | 11 [8] | 24 [4] | 0.52 [3] | | 3.7 [3] | 8.7 [3] |
| | Run2 | 10 [8] | 15 [4] | 0.94 [3] | | 3.6 [3] | 5.1 [3] |
| | Run3 | 13 [8] | 23 [4] | 7.6 [3] | | 7.9 [3] | 7.2 [3] |
| | Run4 | 10 [8] | 5.7 [4] | 4.8 [3] | | 14 [3] | 13 [3] |
| | Run5 | 10 [8] | 25 [4] | 4.0 [3] | | 19 [3] | 7.7 [3] |
| | Run6 | 7.3 [8] | 36 [4] | 7.9 [3] | | 7.0 [3] | 10 [3] |
| 施設B | Run7 | 7.6 [8] | 11 [8] | 3.9 [8] | 6.8 [4] | 3.7 [4] | |
| | Run8 | 16 [8] | 2.3 [8] | 11 [3] | 8.7 [4] | 3.6 [4] | |
| | Run9 | 5.7 [8] | 2.4 [8] | 4.6 [8] | 6.2 [4] | 2.1 [4] | |
| | Run10 | 12 [8] | 2.7 [8] | 7.4 [3] | 4.2 [4] | 1.3 [4] | |
| 施設C | Run1 | 33 [6] | 4.5 [4] | | 25 [6] | 2.7 [4] | |
| | Run2 | 19 [6] | 5.3 [4] | | 17 [6] | 49 [3] | |
| 施設D | Run1 | 7.3 [8] | 49 [8] | 0.38 [3] | 7.2 [5] | 4.2 [5] | 10 [3] |
| | Run2 | 7.7 [8] | 41 [8] | 3.1 [3] | 7.7 [5] | 14 [4] | 4.0 [3] |

注) [] は試料数 (n 数) を示す

2) 代表試料の放射性 Cs 濃度

図 3.6 に焼却対象物および焼却残渣について代表試料の放射性 Cs 濃度を示す。基本的に主灰よりも飛灰の方が高濃度であったが、除染廃棄物のみを焼却した場合には、主灰と飛灰の濃度差は小さくなり、施設 D では飛灰の放射性 Cs 濃度は主灰よりも低くなった。また、施設 C では焼却対象物の放射性 Cs 濃度が他の施設と同じレベルであるにもかかわらず焼却残渣は非常に高濃度になり、特に飛灰の濃度は 20 万 Bq/kg となった。ガス冷灰や予熱器灰（総称して煙道灰）の放射性 Cs 濃度は比較的高く、主灰と飛灰の中間の濃度か飛灰に近い濃度を示した。このような煙道灰の傾向は第 2 章の一般廃棄物の焼却とも一致した。

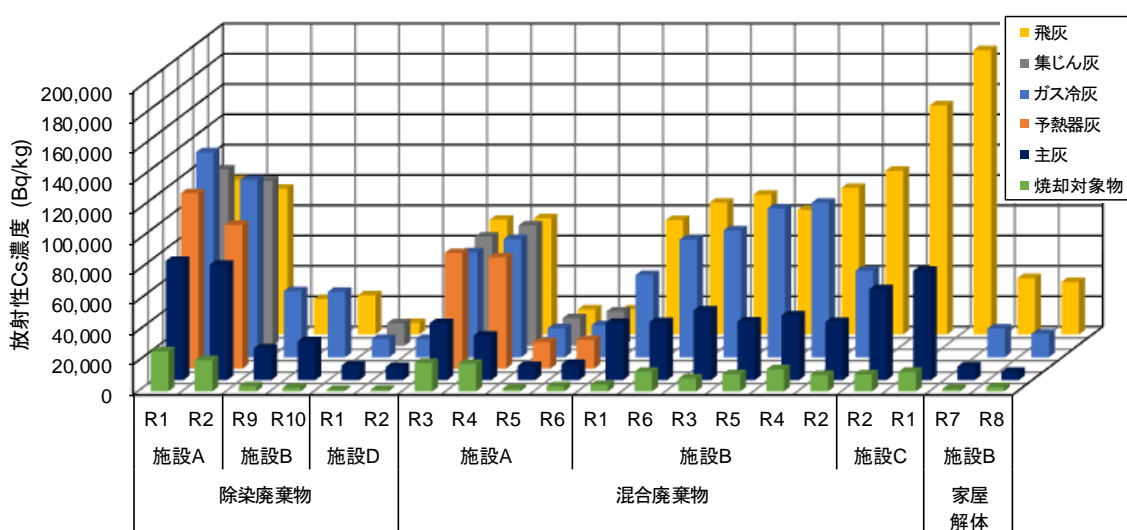


図 3.6 焼却対象物および焼却残渣の放射性 Cs 濃度。焼却対象物は湿基準、焼却残渣は乾基準での濃度を示す。

主灰と飛灰の放射性 Cs 濃度の関係を図 3.7 に示す。第 2 章で述べたように一般廃棄物では飛灰の方が主灰よりも明確に高濃度であり、主灰に対する飛灰の濃度比（飛灰/主灰）は約 6.4 であるのに対し、除染廃棄物のみを焼却した場合の濃度比は約 1.3 にとどまった。除染廃棄物焼却におけるこのような主灰に対する飛灰の濃度比が低い傾向は 3 施設ともに共通であった。一方、施設 B で家屋解体廃棄物のみを焼却した場合の放射性 Cs の主灰に対する飛灰の濃度比は、4.2~6.3 となり、飛灰への濃縮率が高く、一般廃棄物に近い傾向を示し、混合廃棄物を焼却した場合の濃度比は、除染廃棄物焼却と家屋解体廃棄物焼却の中間の約 2~3 の範囲であった。焼却対象物の違いにより明確に主灰と飛灰の濃度比が違うことが確認され、このような濃度比の違いは除染廃棄物の有無、あるいは除染廃棄物の割合が主灰と飛灰の放射性 Cs の濃度比に影響している可能性が示唆された。また、災害廃棄物については汚染の程度としては低いものの、岩手県および宮城県で複数の処理形式で行われており、その結果について主灰と飛灰の放射性 Cs 濃度の関係を処理形式ごとに図 3.8 にまとめた。

[27,28]。図 3.7 と共通であるストーカ式焼却炉での挙動に着目すると、災害廃棄物焼却での主灰に対する飛灰の濃度比は一般廃棄物と除染廃棄物の中間であり、回転式焼却炉（回転キルン、セメントキルン等を含む）でもストーカ式焼却炉と同様の傾向を示した。流動床式ガス化溶融炉、シャフト式ガス化溶融炉では主灰に対する飛灰の濃度比が大きくなり、濃度比はストーカ式焼却炉 ≒ 回転式焼却炉 < 流動床式ガス化溶融炉 < シャフト式ガス化溶融炉となり、第 2 章で示した一般廃棄物の結果と同じ傾向であった。

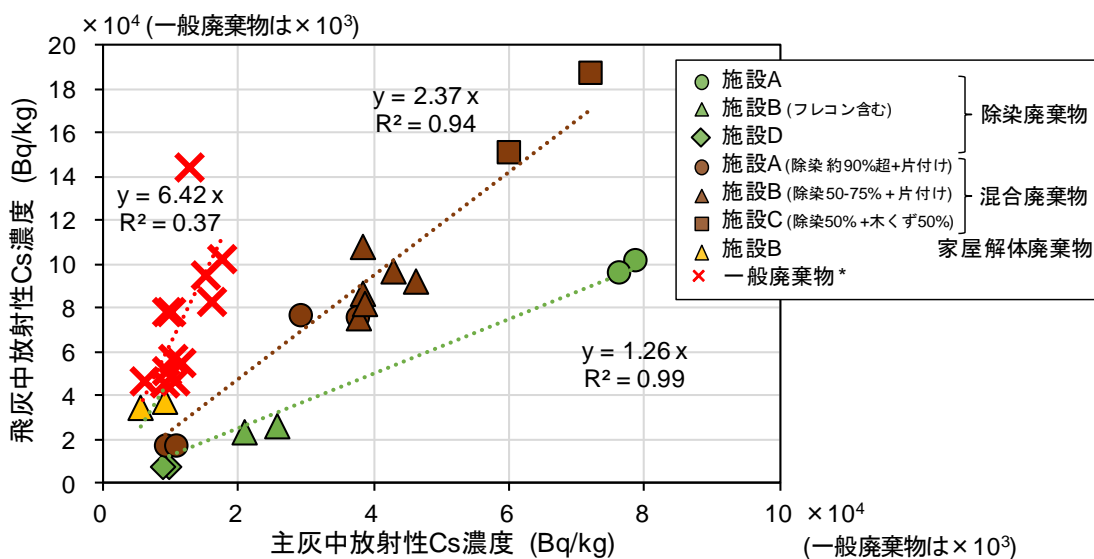


図 3.7 主灰と飛灰の放射性 Cs 濃度の関係。破線および等式は焼却対象物ごとの原点を通る回帰直線。* 一般廃棄物は第 2 章の施設 A～D（ストーカ式焼却施設）。

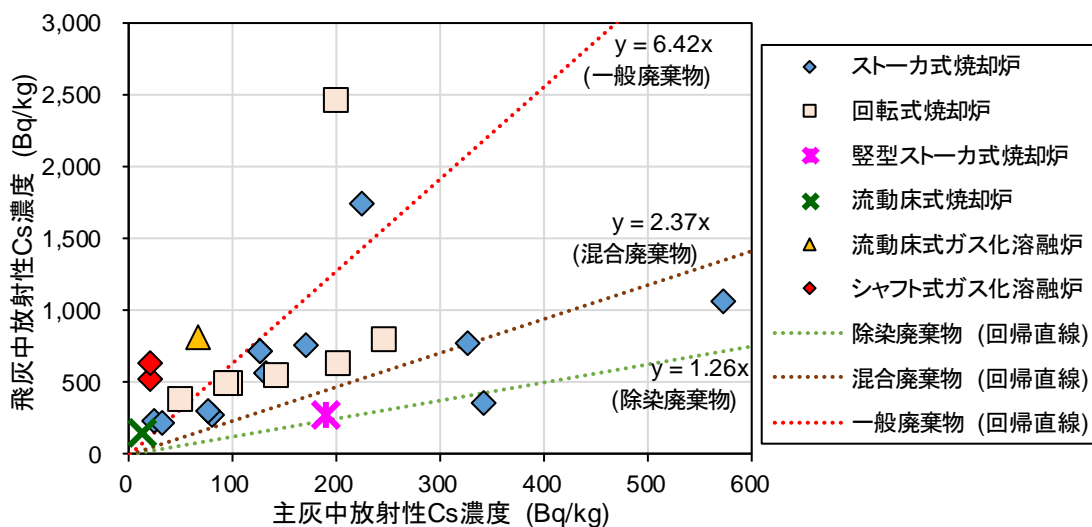


図 3.8 岩手県および宮城県における災害廃棄物の焼却処理時の主灰と飛灰の放射性 Cs 濃度の関係。破線は図 3.7 の回帰直線と共通。廃棄物資源循環学会資料[28]より作成。

3) 焼却残渣への放射性 Cs 濃縮率

焼却対象物から放射性 Cs の焼却残渣への濃縮率を図 3.9 に示す。放射性 Cs 濃縮率は、第 2 章と同様に主灰または飛灰の放射性 Cs 濃度を処理対象物の放射性 Cs 濃度で除して (3.5) 式のように算出した。

$$\text{放射性 Cs 濃縮率} = \frac{C_{\text{residue}}(\text{Bq/kg})}{C_{\text{waste}}(\text{Bq/kg})} \quad (3.5)$$

ここで、 C_{waste} および C_{residue} はそれぞれ焼却対象物の放射性 Cs 濃度 (Bq/kg (湿基準)) および個々の焼却残渣 (主灰または飛灰) の放射性 Cs 濃度 (Bq/kg (乾基準)) を示す。

焼却対象物から飛灰への放射性 Cs 濃縮率の傾向は除染廃棄物を主体として焼却したグループ (施設 A, 施設 B の Run1 ~ 6, 施設 D) と、木くず類が多いグループ (施設 C および施設 B の Run7 ~ 8) の 2 つに分かれた。除染廃棄物を主体として焼却した際の放射性 Cs の濃縮率は主灰へは 2 ~ 9 倍、飛灰へは 5 ~ 12 倍であった。一般廃棄物と比べると飛灰への濃縮率は半分程度と低く、主灰への濃縮率は一般廃棄物よりも高くなる場合もあった。つまり、除染廃棄物を主体として焼却すると、一般廃棄物ほどは放射性 Cs の飛灰への高濃縮は起こらないということがわかった。一方、木くず類が多いグループでは、焼却対象物から飛灰への放射性 Cs 濃縮率は約 20 倍となり、一般廃棄物と同程度の高い濃縮率になった。施設 C での焼却対象物は混合廃棄物であったが、除染廃棄物 (39 ~ 55%) のほかに木材が 35 ~ 51% 焼却されており (表 3.3)、木材の灰分量が少ないために飛灰への濃縮率が高くなったと考えられる。

対策地域内では処理対象物の放射性 Cs 濃度が高いため、目標 (濃度限度) とする焼却残渣の濃度に基づいて焼却対象物の濃度を調整するなどの処理計画を立てる上では、このような濃度推算の指標は非常に重要であり、特に、農林業系廃棄物の処理では高濃度の飛灰が発生する可能性を念頭に置く必要がある。

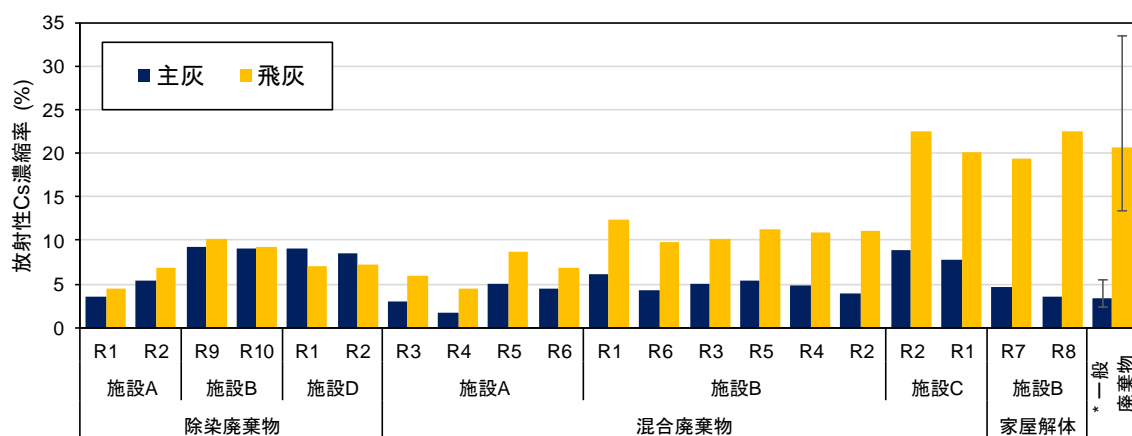


図 3.9 焼却残渣への放射性 Cs の濃縮率. * 一般廃棄物は第 2 章の施設 A ~ D (ストーカ式焼却施設). エラーバーは最大値と最小値を示す.

4) 焼却残渣の発生量

ごみ 1 トン (湿基準) あたりの焼却残渣の発生量 (乾基準) および残渣中の飛灰割合を図 3. 10 に示す。焼却残渣の発生量は、貯留時間等の影響を含むため、必ずしも調査当日の正確な発生量ではなく値の変動の可能性がある点に留意が必要である。

施設 C では焼却残渣の発生量が少なく、これは前述のように灰分量の低い木材の割合が多かったためであると考えられる。施設 A では Run に関わらず焼却残渣の発生量が多かった。施設 A では除染廃棄物を主体として処理していたために灰分量の多い土砂等の割合が多かったと考えられるが、施設 B および施設 D では除染廃棄物のみを焼却対象とした場合でも一般廃棄物と同程度の焼却残渣の発生量であり、廃棄物の種類だけでなく施設 (あるいは除染を行った地域) の違いにより除染廃棄物の灰分に差異が生じたと考えられる。図 3. 9 で施設 A の主灰および飛灰で放射性 Cs 濃縮率が他の施設に比べて低かったのは、このような焼却残渣の発生量の違いによるものと考えられる。施設 C を除くと焼却残渣の発生量は一般廃棄物と比べると同等か若干多い。しかし、津波被害による土砂の混入が多かったと考えられる岩手県と宮城県に設置された仮設焼却施設での焼却残渣の発生量 (主灰で 0.15 ~ 0.46 (t/t)、飛灰で 0.02 ~ 0.08 (t/t) (ストーカ式焼却炉) [27]より) は少なかった。また、焼却残渣に占める飛灰の割合はおおむね 10 ~ 40% と変動はあるものの、平均すると 25% 前後であり、一般廃棄物と同程度であった。

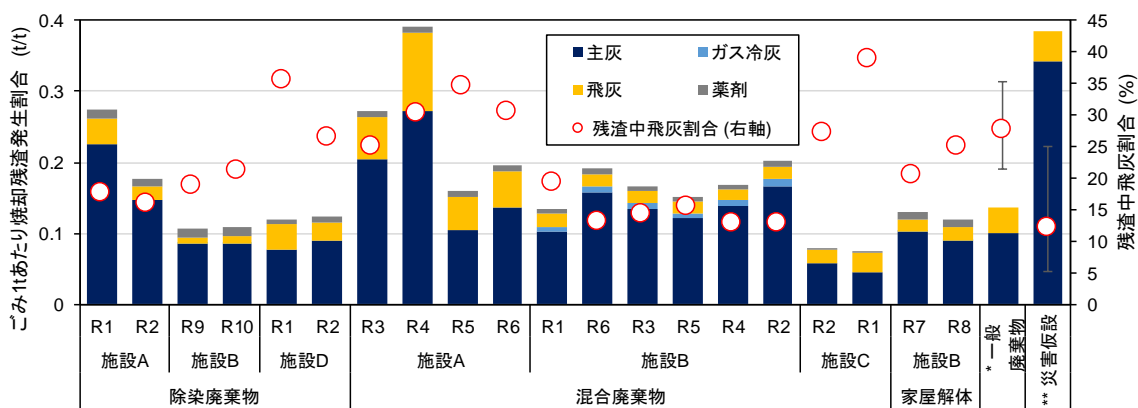


図 3. 10 焼却残渣の発生量および残渣中の飛灰割合. * 一般廃棄物は第 2 章の施設 A ~ D (ストーカ式焼却炉). ** 災害仮設は、岩手県および宮城県の災害廃棄物を焼却対象とした仮設焼却炉 (ストーカ式焼却炉)[27]. * および ** のデータは飛灰中に排ガス処理薬剤を含み、湿基準. エラーバーは最大値と最小値を示す.

5) 焼却残渣への放射性 Cs の分配率

焼却残渣中の放射性 Cs 濃度に各残渣の発生量を乗ずることで、焼却残渣への放射性 Cs の分配率を求めた ((3.6) 式)。図 3.11 に放射性 Cs の分配率を示す。

$$\text{放射性 Cs 分配率(\%)} = \frac{C_{\text{residue}} (\text{Bq/kg}) \times W_{\text{residue}} (\text{kg/h})}{\sum \{C_{\text{residue}} (\text{Bq/kg}) \times W_{\text{residue}} (\text{kg/h})\}} \times 100 \quad (3.6)$$

ここで、 C_{residue} および W_{residue} はそれぞれ焼却残渣の放射性 Cs 濃度 (Bq/kg (乾基準)) および発生量 (kg/h (乾基準)) を示す。個々の焼却残渣とは、施設 B では、主灰 (原灰)、ガス冷灰、飛灰 (原灰) の 3 種を示し、施設 A、C、D では、主灰 (原灰) および飛灰 (原灰) の 2 種を示す。除染廃棄物のみを焼却した場合、施設の違いによらず放射性 Cs は飛灰よりも主灰へと分配する割合が多く、約 7~8 割が主灰へと分配した。一方、家屋解体廃棄物のみを焼却した場合には主灰よりも飛灰へ分配する放射性 Cs の方が多く、飛灰への放射性 Cs の分配率は 60% (2Run の平均値) となり一般廃棄物と同程度の分配率であった。混合廃棄物の分配率はその中間で基本的には主灰への分配率の方が高くなったが、除染廃棄物の混合割合が小さい施設 C では施設 A や施設 B に比べると主灰への分配率は比較的小さかった。このように、除染廃棄物等の焼却では主灰への分配率が飛灰への分配率よりも大きく、一般廃棄物で飛灰への放射性 Cs の分配率が優勢であるという結果とは異なり、放射性 Cs の分配挙動が廃棄物種類の影響を受けていることが明らかになった。除染廃棄物や混合廃棄物では除染廃棄物に混入した土壌を含むと考えられるが、土壌中に取り込まれた放射性 Cs は単純な加熱だけでは容易には揮発しないことから[33]、土壌中に取り込まれた放射性 Cs は主灰へと分配したと考えられる。一方、家屋解体廃棄物や、施設 C の木材の割合が多い条件では土壌などの放射性 Cs を取り込むような媒体の混入が少ないために飛灰への放射性 Cs の分配率が高くなったと考えられる。このように、焼却対象物の違いは放射性 Cs の主灰と飛灰の分配率へ大きな影響を与えているとことがわかった。

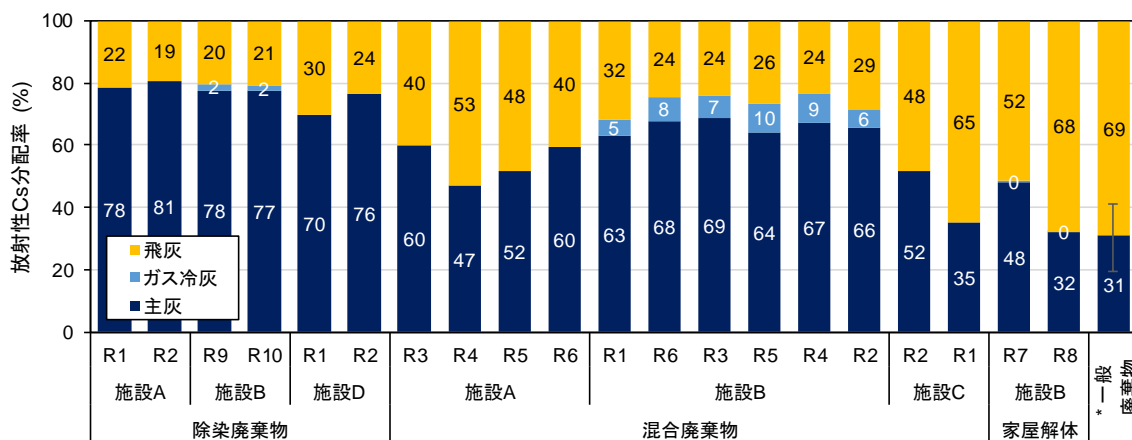


図 3.11 焼却残渣への放射性 Cs の分配率. * 一般廃棄物は第 2 章の施設 A ~ D (ストーカ式焼却炉). エラーバーは最大値と最小値を示す.

3.3.3. 焼却残渣等からの放射性 Cs の溶出挙動

1) 放射性 Cs の溶出率 (JIS K 0058-1)

溶出試験の結果を付録表 3.3 に示し、放射性 Cs 溶出率をまとめたものを図 3.12 に示す。

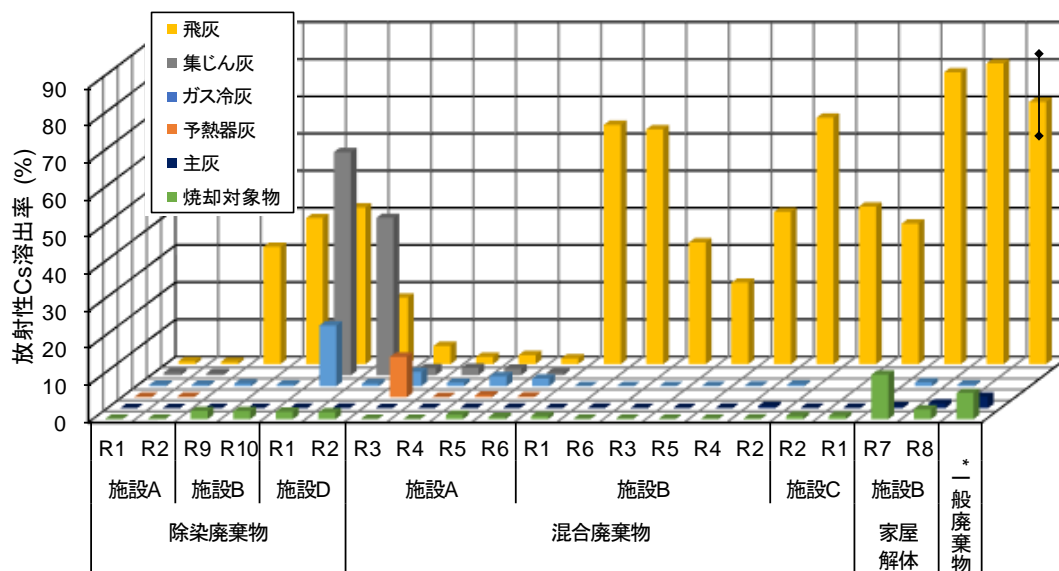


図 3.12 焼却対象物および焼却残渣からの放射性 Cs 溶出率. 放射性 Cs が検出下限値の場合には検出下限値を用いて計算した放射性 Cs 溶出率を示す. * 一般廃棄物の主灰および飛灰は第 2 章の施設 A ~ C (ストーカ式焼却炉), 焼却対象物は倉持 (2014)[34]. エラーバーは最大値と最小値を示す.

飛灰の溶出液からはすべての Run で Cs-134、Cs-137 とも検出されたが、飛灰からの放射性 Cs の溶出率は焼却対象物や施設によって傾向が異なった。除染廃棄物のみを焼却した場合の飛灰からの放射性 Cs 溶出率は、施設 A では 1%未満 (0.61 ~ 0.75%) とほとんど溶出しなかったのに対し、施設 B および施設 D では 18 ~ 42%の溶出率となり、一般廃棄物の飛灰よりは溶出率は低いものの、易溶性の放射性 Cs が存在することがわかった。第 2 章で述べたように一般廃棄物では飛灰中の易溶性の Cs は塩化セシウム (CsCl) であると考えられているが、施設 A では一般廃棄物や片づけごみ等に含まれる廃プラスチック類に由来する塩素成分が少ないために水への溶解性の高い CsCl の生成が抑制されたと考えられる。施設 B および D は津波被害が大きかった地域に設置されており、除染廃棄物が海水をかぶり海水による塩化ナトリウム (NaCl) が混入した可能性が考えられるほか、施設 D での調査は冬期 (1 月) に行ったため融雪剤 (塩化カルシウム : CaCl₂) が混入した可能性などが考えられる。飛灰からの放射性 Cs 溶出率の変動への影響因子は後出の 3.3.5 項で考察する。混合廃棄物の飛灰からの溶出率も Run ごとに変動した。混合廃棄物のほとんどが除染廃棄物である施設 A での溶出率は低く、最大でも 4.9%であった。施設 B では施設 A よりも飛灰からの放射性 Cs 溶出率は大きく、22 ~ 66%となり溶出率が高いものは一般廃棄物と同

程度であった。さらに、施設 B で家屋解体廃棄物のみを焼却した飛灰 (Run7~8)からの放射性 Cs の溶出率は 80%前後となり一般廃棄物の飛灰と同様の高い溶出率であった。先行研究により木質系の焼却灰からは 9 割以上の放射性 Cs 溶出することがわかっており[9]、家屋解体廃棄物は、飛灰からの溶出性の観点からは除染廃棄物よりも木質に近い性状であると言える。

焼却対象物および主灰からの放射性 Cs 溶出率は低く、ほとんどの場合で Cs-134 は検出下限値以下であったため、Cs-137 溶出率で比較した。焼却対象物の溶出液からはすべての Run で Cs-137 が検出され、Cs-137 溶出率は施設 B Run7 を除くと最大で 2.6%と、一般廃棄物からの溶出率 (7.1%)[34]よりも低かった。施設 B Run7 の Cs-137 溶出率は 12%と高く、これは施設 B Run7 の焼却対象物が家屋解体廃棄物であるため、家屋に湿性沈着した放射性 Cs の一部が土壌に取り込まれるなどの安定化がなされずに易溶性のまま付着していたために溶出した可能性が考えられる。主灰でもすべての Run で Cs-137 は検出されたが、溶出濃度は最大で 7.6Bq/L (施設 C Run1) であり、公共水域の基準に照らしても極めて低濃度であった。Cs-137 溶出率は家屋解体廃棄物を焼却した施設 B Run 8 で 1.3%となったのが最大であり、ほとんどの Run で 0.1%以下と極めて低い溶出率であった。このような主灰からの溶出率は第 2 章に示した一般廃棄物の主灰からの放射性 Cs 溶出率と比較しても低く、主灰中の放射性 Cs は一般廃棄物よりも溶出しにくい形態で存在していると言える。また、ほとんどの Run で主灰からの溶出率は焼却対象物の溶出率よりも低く、放射性 Cs の溶出に関しては焼却処理により安定な主灰が生成されたと言える。

ガス冷灰や集じん灰等の飛灰中に含まれる個々の焼却残渣の放射性 Cs 溶出率について施設 A および施設 D での 8 Run について比較する。一部例外はあるものの、基本的に下流で回収されたもの、すなわちガス冷灰よりも集じん灰の方が放射性 Cs 溶出率は高かった。これは、第 2 章でも述べたようにガス冷却塔など排ガス処理の前段では主灰の巻きあがりにより、溶出性の低い主灰の細粒分がガス冷灰として回収されたためと考えられる。ただし、施設 B のガス冷灰からの放射性 Cs 溶出率はいずれも 1%未満と低かった。これは、施設 B のガス冷却室ではシュート部に灰付着防止のために水が噴霧され、ガス冷灰は含水率が高い状態 (38~49%) で排出されるため、易溶性の放射性 Cs があっても排出される時点ですでに溶け出し、溶出試験では基本的に放射性 Cs が溶出しないためと考えられる。なお、施設 B では運営開始当初、ガス冷灰は飛灰として搬出されていたが、このような低い溶出性などが恒常的に確認されたため、運営途中より主灰として搬出されるようになった。

2) 形態分析 (逐次抽出試験)

逐次抽出試験の結果を図 3.13 に示す。図 3.13 には比較のために一般廃棄物の主灰・飛灰および公園土壌の結果[10]も示す F2 の酢酸アンモニウム抽出画分および F4 のヒドロキシルアミン抽出画分は、いずれの焼却残渣でも数%程度含まれていたが、F3 の酢酸ナトリウム抽出画分は非常に少なかった。除染廃棄物の飛灰の特徴は水への溶出率がとても低い点であるが、溶媒を変えた場合でも残さ残留画分が 80%以上を占めており、主灰と同様に安定な形態で放射性 Cs が存在していると言える。施設 B では施設 A に比べて除染廃棄物の割合が少なく、飛灰からの水への溶出率も施設 A より高かったが、水以外の溶媒に対する抽出率は、施設 A の飛灰とも大きな違いは見られなかった。また、焼却対象物（主に除染廃棄物）の逐次抽出試験では残留残さ画分が約 9 割を占め、残りの約 1 割が F2 酢酸アンモニウム抽出画分と F4 ヒドロキシルアミン抽出画分であり、既報の公園土壌と類似しており、除染廃棄物への土壌の混入が示唆された。

以上より、焼却対象物の違いは飛灰の水への溶出性には大きな影響をおよぼすが、その他の溶媒に対する抽出性、すなわち難水溶性の放射性 Cs の存在形態に与える影響は小さいと考えられる。

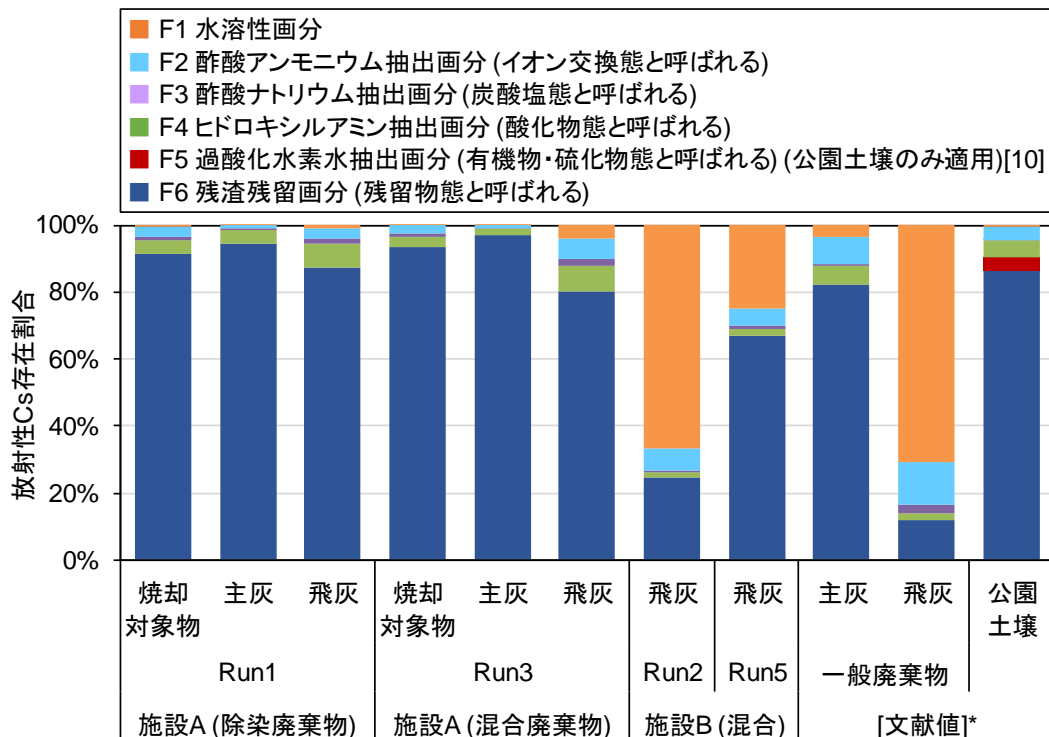


図 3.13 焼却残渣の形態分析試験 (逐次抽出式試験) による放射性 Cs 存在形態の推定. 焼却残渣では F5 (有機物・硫化物態) はほとんど存在しないと推定されることから焼却残渣には適用しなかった.* 肴倉・石森 (2013)[10]

3.3.4. 焼却残渣の性状

1) 元素組成

仮設焼却施設で発生する焼却残渣は、中間貯蔵施設での貯蔵量減少のために再生利用が想定されており、放射性 Cs だけでなく、再生利用における主要元素や阻害元素、重金属などの有害元素等について濃度レベルや分配挙動を把握することは重要である。また、特措法では放射性核種として Cs-134 および Cs-137 のみが対象となっているが、今後、福島第一原発近くの汚染程度の大きい地域での焼却処理の場合には、Cs-137 と同程度の比較的長い半減期を持つ放射性 Sr (Sr-90) の挙動についての知見も必要となると考えられる。しかし、Sr-90 は Cs-134 や Cs-137 と異なり γ 線を放出しないため、測定が困難であり[35]、焼却残渣での測定例も少ない[35-38]。そこで、Sr-90 の挙動を推定するために、安定性 Sr (Sr-88) の挙動についても考察を行った。

1)-1 焼却残渣の元素組成 (一般廃棄物との比較)

付録表 3.4 および図 3.14 に主灰および飛灰の元素組成を示す。主灰での主要成分 (20Run 平均濃度が 10,000 mg/kg (1%) 以上) は、Si, Al, Ca, Fe, K, Na であり一般廃棄物主灰とほぼ同じであった。主要成分の元素濃度の変動は小さく、安定した元素組成であったが、主灰中の Ca 濃度は一般廃棄物より低い傾向であった。飛灰の主要成分は排ガス処理薬剤として添加された消石灰に由来する Ca を除くと、Si 濃度が最も高く、次いで Cl, Al, Fe, S の順に多く、除染廃棄物等の飛灰は Si や Fe の濃度が高い点が一般廃棄物の飛灰よりも高い場合が見られた。一般廃棄物飛灰の主要成分として含まれる Na や K は仮設焼却施設の飛灰では 1 桁程度低かった。仮設焼却施設の主灰と飛灰は共通して Cl, Cr, Zn, Cd, Pb の濃度が一般廃棄物の主灰および飛灰よりも低く、特に Cl 濃度は一般廃棄物の 100 分の 1 程度になる場合もあった。一般廃棄物では廃プラスチックや食品廃棄物中の食塩などに由来して Cl 濃度が高くなり、重金属類は塩化ビニル安定剤や顔料、ゴム製品、印刷用インク等により混入するが、仮設焼却施設ではこのような廃棄物が少ないために主灰、飛灰ともや重金属濃度が低くなったものと考えられる。また、Cs (安定性 Cs, Cs-133) 濃度は、文献値として示した一般廃物よりも高濃度であったが過去には産業廃棄物のキルン炉主灰で 15.3 mg/kg[43]、飛灰 (電気式集じん機灰) で 110 mg/kg[44]が検出された例もあり、仮設焼却施設での Cs-133 濃度は妥当な濃度レベルである。

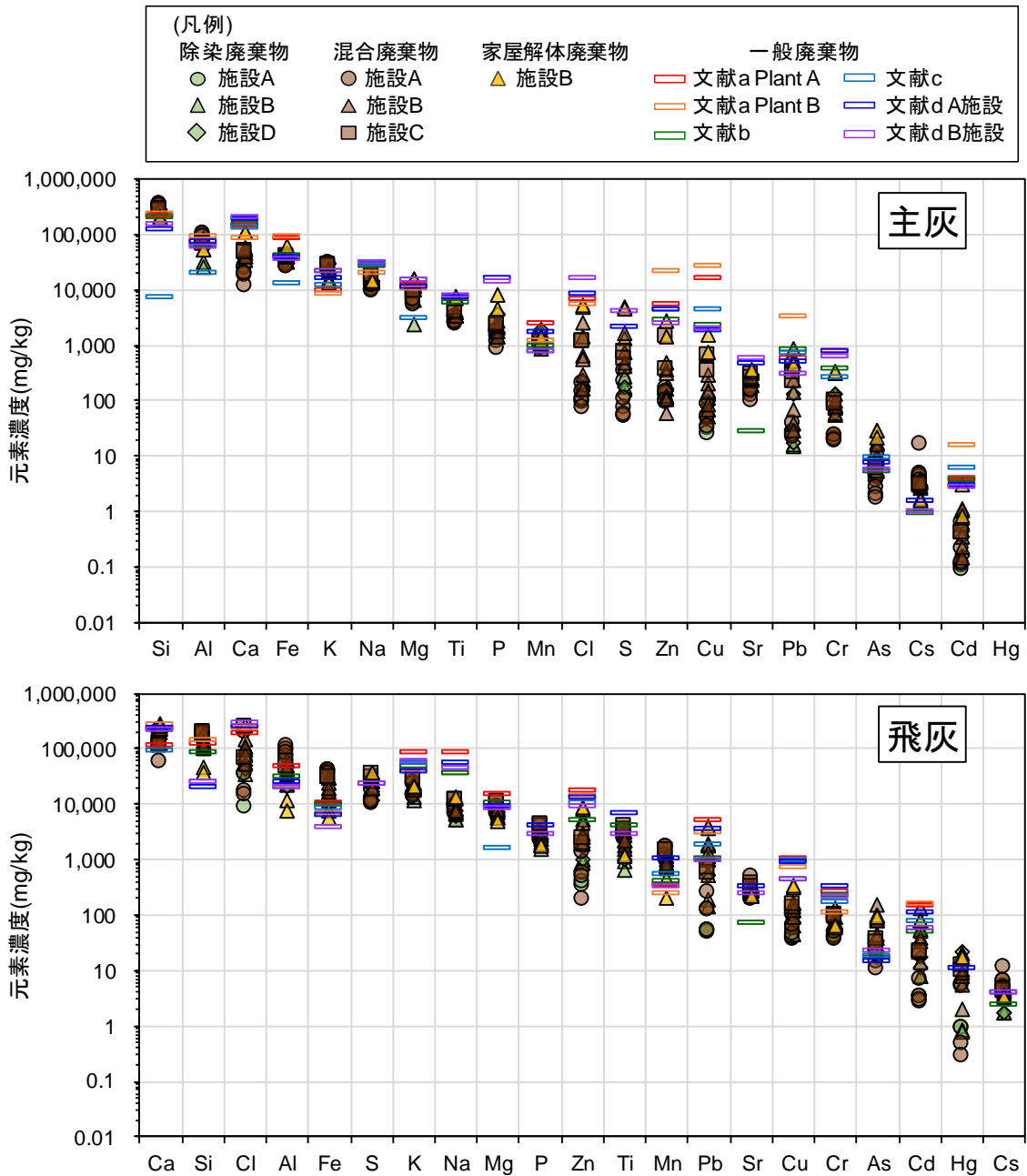


図 3.14 主灰および飛灰の元素組成の一般廃棄物（文献値）との比較（20Run の平均濃度が高い順に並べている）。文献 a: Jung and Osako(2007)[39]、文献 b: 肴倉ら(2010)[40]、文献 c: Sekito et al.(2014)[41]、文献 d: 肴倉ら(2016)[42]。

1)-2 焼却残渣の元素組成 (主要成分の焼却対象物による比較)

主灰および飛灰の焼却対象物ごとの主要元素組成を図 3.15 に示す。主灰では主要組成の変動は少なかったが、家屋解体廃棄物では主灰、飛灰ともに Si が少なく Ca が多い傾向が見られた。これは、除染廃棄物に比べると土壌の混入が少ないために Si が少なく、Ca は木材に由来したものと考えられ、焼却対象物の種類の違いにより焼却残渣の組成も異なることがわかった。飛灰中の Cl 濃度は焼却対象物により大きく変動し、除染廃棄物のみの焼却では 1~8%、混合廃棄物で 1~19%、家屋解体廃棄物で 24~26%となった。また、同じ除染廃棄物であっても、施設 A の飛灰では Si が 15~17%と比較的多く、Cl は 1%と低いのに対し、施設 B および D では Si が少なく Cl が 3~8%と高いなど、施設による主要成分の違いも見られた。

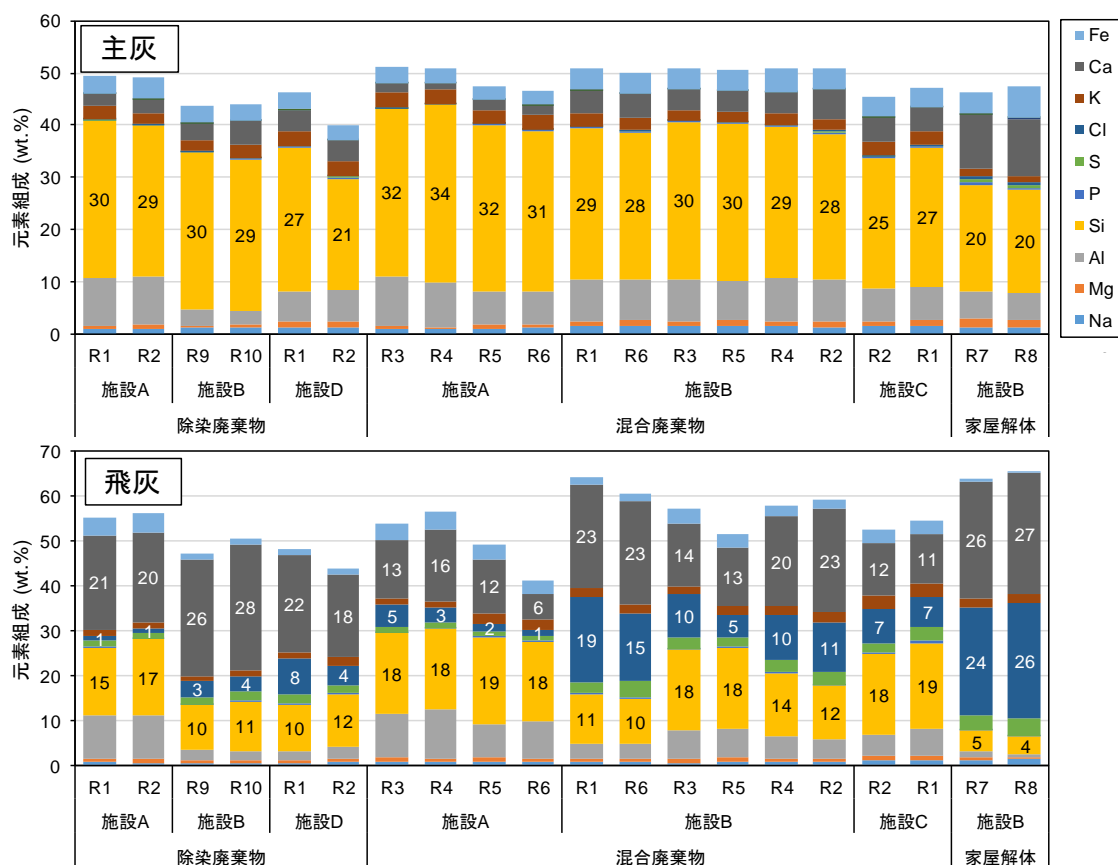


図 3.15 主灰および飛灰の主要元素組成. 図中の数値は主灰では Si 濃度、飛灰では Ca, Cl, Si 濃度を示す.

1)-3 各元素の分配挙動

放射性 Cs の分配挙動 ((3.6) 式) と同様に、焼却残渣中の各元素濃度に、各残渣の発生量を乗ずることで、焼却残渣への元素分配率を求めた。飛灰の元素濃度は、塩化水素除去のために吹込まれた消石灰による Ca 分 (後出の表 3.6) を含まない状態に換算して分配率を計算した。各元素の焼却残渣への分配率を付録図 3.1.に、飛灰への分配率をまとめたものを図 3.16 に示す。Cs と同じアルカリ金属である Na、K および Cs では放射性 Cs と同様に一般廃棄物に比べて飛灰への分配率が低く、その傾向は特に除染廃棄物のみの焼却の場合に顕著であった。除染廃棄物のみを焼却した場合のアルカリ金属の飛灰への分配率は、Na で 5 ~ 18%、K で 7 ~ 21%、Cs で 11 ~ 25% となり、 $Na < K < Cs$ の序列となり、これは物理化学的性質 (蒸気圧等) からも妥当であった。また、安定性 Cs (Cs-133) に比べると放射性 Cs の方が飛灰への分配率は大きかった (19 ~ 30%, 図 3.11)。安定性 Cs は土壌中の鉱物に含まれるなどの安定な形態で存在するのに対し、放射性 Cs は事故後に降下したものであるため鉱物に取り込まれるものの割合が少なく土壌等の表面に付着して揮発しやすい形態のものが多かったと推定される。重金属については、焼却対象物よりも施設の違による影響が大きく、Cr、Mn 等の有害物質は施設 A および C で比較的飛灰への分配率が高くなった。Cl はほとんどが飛灰へと分配し、特に除染廃棄物のみを焼却した場合にはその傾向が顕著であった。Cl は焼却残渣をセメントとして再生利用する際の阻害要因となり得るが、除染廃棄物のみを焼却した場合には Cl は主灰へ移行しにくく、主灰のセメント資材としての再生利用に有利となる可能性が考えられる。

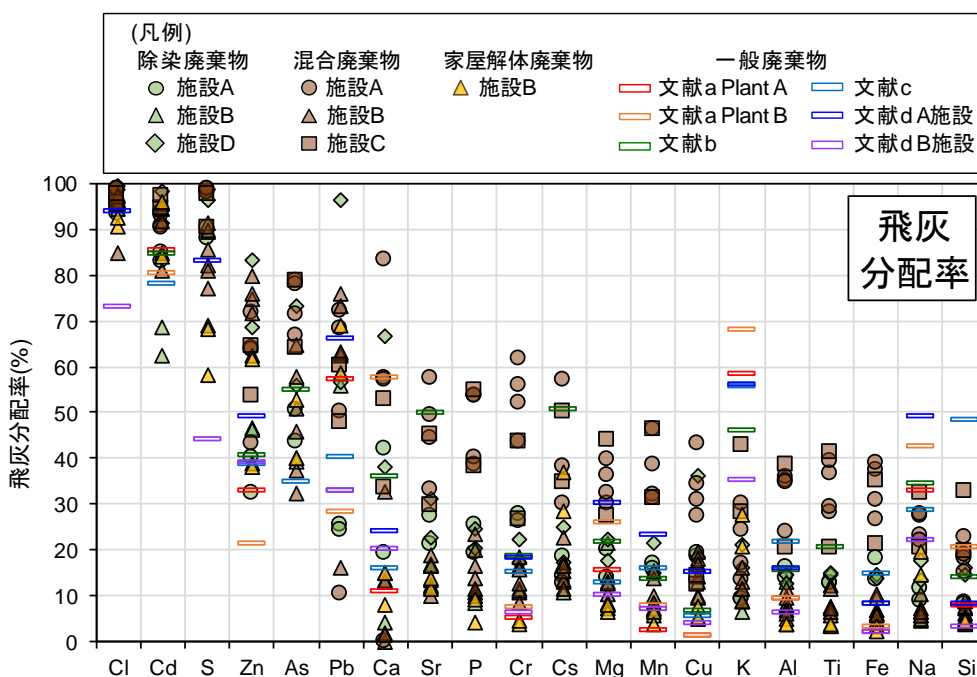


図 3.16 各元素の飛灰への分配率. 文献 a: Jung and Osako(2007)[39]、文献 b: 肴倉ら (2010)[40]、文献 c: Sekito et al.(2014)[41]、文献 d: 肴倉ら(2016)[42]。文献 a, c では飛灰に消石灰を含んだ状態での分配率。

1)-4 安定性 Sr (Sr-88) の挙動

主灰と飛灰の安定性 Sr (Sr-88) 濃度の関係を図 3.17 に示す。主灰に対する飛灰の安定性 Sr の濃度比 (飛灰/主灰) は、除染廃棄物および混合廃棄物では、0.90 ~ 3.33 (18Run 平均 1.47) であるのに対し、家屋解体廃棄物のときには濃度比が 0.63 ~ 0.68 と低く、既報の一般廃棄物でも 1 を下回ることが多かった[37,40,42]。また、測定例が少ないためデータの比較には注意を要するものの、放射性 Sr (Sr-90) でも除染廃棄物等処理する仮設焼却施設では濃度比が 1.86 と高いのに対し、一般廃棄物等それ以外の場合には濃度比は 0.38 ~ 1.54 と除染廃棄物等よりも低く[38 (pp.232-239)]、安定性 Sr は放射性 Sr と同じ挙動を示す可能性が考えられる。このような、一般廃棄物よりも除染廃棄物の方が主灰に対する飛灰の濃度比が高くなるという傾向は、放射性 Cs の濃度比とは逆の傾向であった。これは、Sr は Mg や Ca と同じアルカリ土類金属 (第 2 族) であり、アルカリ金属 (第 1 族) である Cs とは異なる挙動を示すためと考えられる。つまり、Sr は Cs に比べて融点が高く、SrCl₂ として存在した場合でも融点が 874 °C であり、CsCl の融点 (646 °C) よりも 200 °C 以上高いため[45]、Sr は基本的に揮発による飛灰への分配の影響が小さいためであると考えられる。Cl を比較的多く含む一般廃棄物であっても、アルカリ土類金属の飛灰分配率は、Ca (消石灰を含まない状態)、Mg、Sr のいずれもが 50%以下であり (図 3.16)、Cl が存在した場合でも Sr は揮発しにくいことがわかる。また、一般廃棄物では NaCl や KCl などのアルカリ塩化物が飛灰に多く揮発するため、相対的に Sr の濃度が低くなるのに対し、除染廃棄物ではアルカリ塩化物による希釈が少ないために飛灰への分配率が一般廃棄物よりも大きくなった可能性が考えられる。

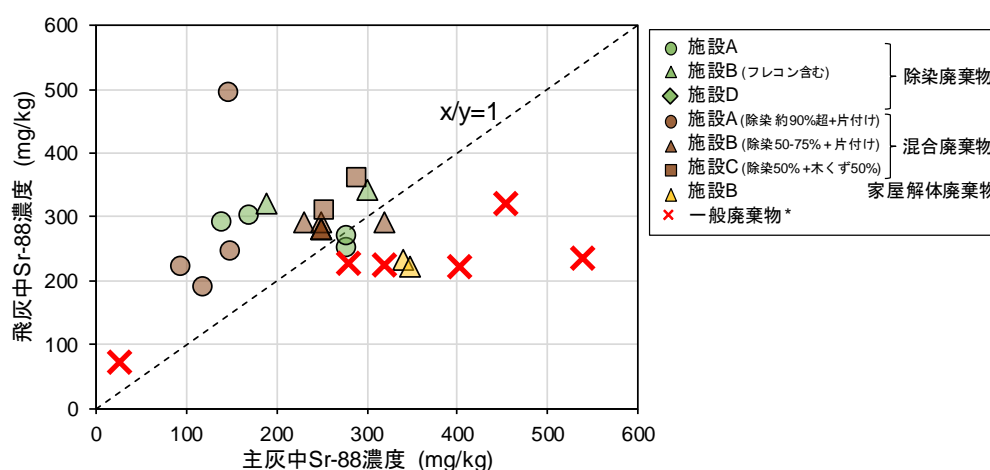


図 3.17 主灰と飛灰の Sr-88 濃度の関係. * 一般廃棄物は文献値[37,40,42].

焼却残渣への Sr-88 の分配率の施設による違いを図 3.18 に示す。Sr の分配率は Run によって変動し、焼却対象物よりも施設の違いによる影響の方が大きい傾向となった。施設 B では廃棄物種類の違いによらず主灰への分配率が大きく 78 ~ 88%が主灰へと分配し、その

他の施設 (A,C,D) での主灰への分配率は 43~79%であった。このような施設の違いによる分配挙動の傾向は、Cr および Mn と類似した傾向であった。いずれにしても、全ての施設で Sr の飛灰/主灰の濃度比は 0.63 ~ 3.33 の範囲であることから、主灰、もしくは飛灰のどちらかに極端に高度に濃縮されることはないと考えられる。

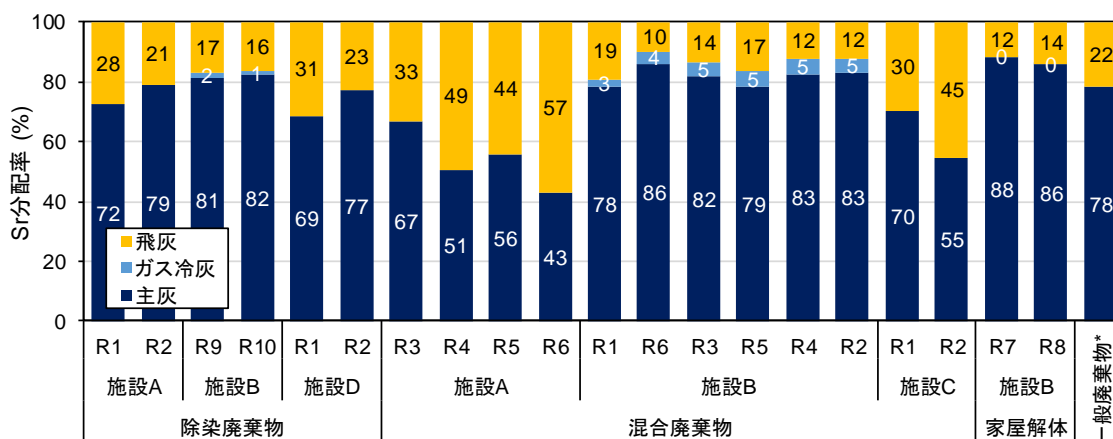


図 3. 18 焼却残渣への Sr-88 の分配率の施設による違い. (付録図 3.1 (3) と同じ図)

* 肴倉ら(2010) [40].

1)-5 主要元素組成の比較

元素組成から放射性 Cs の揮発特性を推算するために焼却残渣および焼却対象物の灰分の SiO₂-CaO-Cl 三成分組成を比較した (図 3.19)。焼却対象物の灰分組成は、主灰および飛灰 (施設 B では主灰、飛灰、ガス冷灰) の発生量と元素組成をもとに算出した。なお、飛灰中の消石灰由来の Ca については消石灰使用量を差引いた。既往研究[46]により、SiO₂ に対して CaO もしくは Cl の割合が多いと放射性 Cs の揮発が促進されていることが分かっており、図 3.19 の下の方にプロットが位置するほど放射性 Cs の揮発が促進されるということになる。仮設焼却施設の場合には、主灰では SiO₂ が多く、CaO や Cl が少ない傾向があり、結果的に焼却対象物の灰分も同様の傾向を示し、仮設焼却施設で処理対象とする除染廃棄物では放射性 Cs の揮発は起こりにくいことが推定される。また、同じ除染廃棄物という名称であっても施設 A と施設 D では灰分組成には違いが見られた。家屋解体廃棄物の灰分組成は比較的、一般廃棄物の組成に近く、放射性 Cs が揮発しやすくなることが予想される。

4 章で検討するような焼成や溶融といった焼却残渣の熱処理による放射性 Cs 除去では、焼却残渣の溶融温度とその組成における安定な鉱物相が重要であり、そのためには SiO₂-CaO-Al₂O₃ の三成分組成が重要となる。図 3.20 に SiO₂-CaO-Al₂O₃ の三成分組成を、各組成で安定となる鉱物組成[38 (p.17)]と重ね合わせた図を示す。前述の通り、仮設焼却施設の主灰の組成は変動が少ないのに対し、仮設焼却施設の飛灰は変動し、各組成で安定となる結晶相も様々である。また、仮設焼却施設の飛灰組成は、一般廃棄物の主灰と飛灰を重複するような三成分組成となっている。仮設焼却施設の飛灰の熱処理過程においては、これまでの

一般廃棄物の主灰および飛灰の知見が活用可能と考えられるが、組成の変動が大きい点には留意が必要となるだろう。

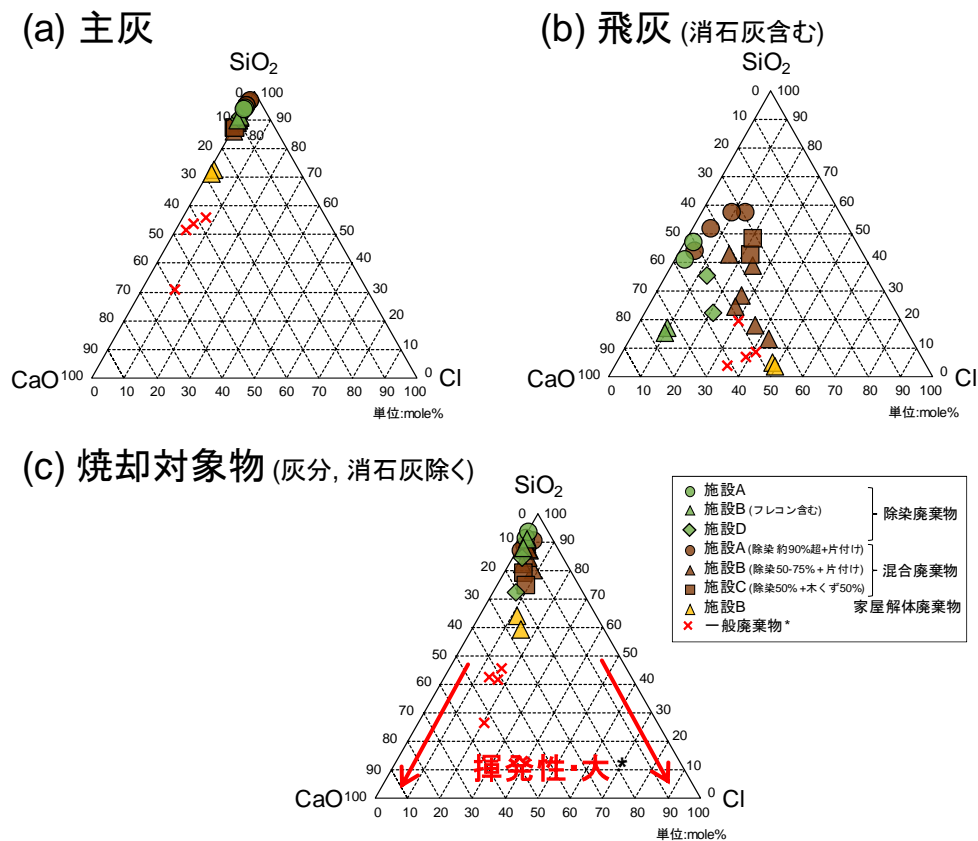


図 3.19 焼却残渣および焼却対象物灰分の $\text{SiO}_2\text{-CaO-Cl}$ 三成分図 (元素組成は XRF により測定). 一般廃棄物は第 2 章の施設 A~D.

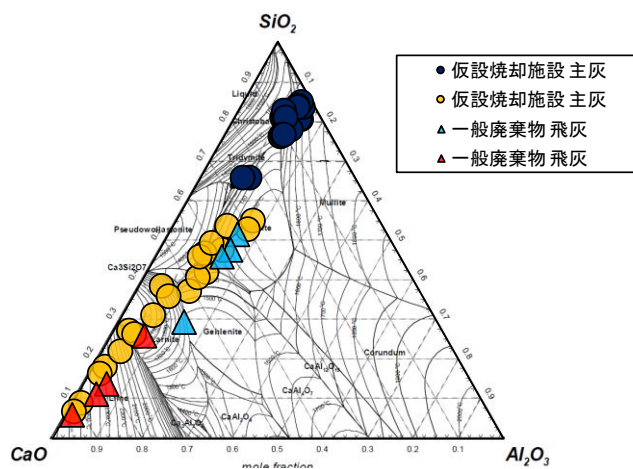


図 3.20 焼却残渣の $\text{SiO}_2\text{-CaO-Al}_2\text{O}_3$ 三成分図 (元素組成は XRF により測定). 一般廃棄物は第 2 章の施設 A~D. 状態図出典: [38 (p.17)].

2) 結晶構造 (X線回折)

XRD 分析により焼却残渣の結晶相を調べた。同定された主要な結晶相を表 3.5 に示す。

2)-1 主灰に含まれる結晶相

主灰に含まれる主要な結晶相は焼却対象物の違いに関係なく Quartz (石英) と Plagioclase (斜長石 : Ca を主体とした Anorthite (灰長石) と Na を主体とした Albite (曹長石) の連続固溶体の総称) であり、その他には家屋解体廃棄物の焼却 (施設 B Run7 ~ 8) でのみ Gehlenite (ゲーレン石) が確認された。一般廃棄物の主灰でも Quartz および Plagioclase は主要な結晶相であるが、一般廃棄物の主灰で見られる Calcite (CaCO_3) や鉄の酸化物 (Hematite, Magnetite) は仮設焼却施設の主灰では確認されなかった。Quartz や Plagioclase は福島県の土壤中にも多く含まれる鉱物であることから [30,47-49]、除染廃棄物等に付着した土壌の混入が一般廃棄物よりも多かったと推察される。また、Gehlenite は一般廃棄物の主灰でも一般的に含まれており [50-55]、家屋解体廃棄物は放射性 Cs の挙動だけでなく、主灰の結晶相の点からも一般廃棄物に類似していると言える。

2)-2 飛灰に含まれる結晶相

飛灰ではピークの大小の違いはあるもののすべての Run で Quartz が検出され、家屋解体廃棄物のみを焼却した施設 B の Run7-8 を除くすべての Run で Plagioclase が検出された。一般廃棄物の飛灰でも Quartz が確認される場合もあるが、除染廃棄物等の飛灰に比べると XRD 強度も弱く主要成分とはならない [56-60]。除染廃棄物等飛灰での Quartz および Plagioclase の明確な存在は、除染廃棄物等の主灰とも一致しており、主灰成分の飛灰への混入が推定される。この点については後述する 3.3.5 の 2) で詳細な検討を行った。

Quartz および Plagioclase 以外には塩化水素ガス除去のために吹込まれた消石灰に由来すると推定される Ca を主体とした結晶相が見られた。除染廃棄物の割合が多かった施設 A (Run1, 2, 5, 6)、施設 B (Run9, 10) では、消石灰の中和反応生成物である CaClOH は確認されず、Portlandite (Ca(OH)_2) のピークが大きかった。これらの飛灰では焼却対象物中の Cl 濃度が低いため排ガスの中和反応が進まず、消石灰が未反応のまま排出されたと考えられる。表 3.6 に焼却対象物 1 トン当たりの排ガス処理薬剤使用量を示す。 CaClOH が確認されなかった上記の 6 つの Run での消石灰の使用量は 7.0 ~ 11.4 kg/t であり、一般廃棄物焼却施設でのアルカリ剤 (消石灰等) 使用量 (約 6kg/t) [61] と比べても多かった。除染廃棄物には食品や廃プラスチック由来の塩素はほとんどなく排ガス中の HCl 濃度も低いと考えられることから、除染廃棄物の焼却では消石灰の使用量は低減できる可能性が考えられる。ただし、除染廃棄物のみを焼却した施設 D の Run1 ~ 2 では 3.3.3 で考察したように海水や融雪剤などにより塩素が混入した可能性があり、 CaClOH が確認された。家屋解体廃棄物を焼却した際には、Halite (NaCl) や Sylvite (KCl) が確認された。一般廃棄物の飛灰では Halite や Sylvite は主要な結晶相だが [56-60,62-64]、これらのアルカリ塩の結晶相は

表 3.5 焼却残渣中に含まれる主要結晶相

| 鉱物名 | 化学式 | 除染廃棄物 | | | | 混合廃棄物 | | | | | | | | | | 家屋解体 | | * 一般廃棄物 | | | | |
|---|--|-------|------|------|-------|-------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------------|------|------|------|-----|
| | | 施設A | | 施設B | | 施設A | | | | 施設B | | | | 施設C | | 施設B | | | | | | |
| | | Run1 | Run2 | Run9 | Run10 | Run1 | Run2 | Run3 | Run4 | Run5 | Run6 | Run1 | Run6 | Run3 | Run5 | Run4 | Run2 | Run2 | Run1 | Run7 | Run8 | |
| (a) 主灰 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| <i>silicate - アルミノケイ酸塩</i> | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Quartz | SiO ₂ | +++ | +++ | +++ | +++ | +++ | +++ | +++ | +++ | +++ | +++ | +++ | +++ | +++ | +++ | +++ | +++ | +++ | +++ | ++ | ++ | +++ |
| Plagioclase (Albite-Anorthite) | NaAlSi ₃ O ₈ -CaAl ₂ SiO ₈ | ++ | ++ | ++ | ++ | ++ | ++ | ++ | ++ | ++ | ++ | ++ | ++ | ++ | ++ | ++ | ++ | ++ | ++ | + | + | ++ |
| Alkali feldspar (Orthoclase - Microcline) | KAlSi ₃ O ₈ | + | + | | | | | ++ | ++ | | | | | | | | | | | | | |
| Gehlenite | Ca ₂ Al ₂ SiO ₇ | | | | | | | | | | | | | | | | | | | ++ | ++ | +++ |
| <i>salt - 塩</i> | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Halite | NaCl | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | + |
| Sylvite | KCl | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | ++ |
| <i>others - その他</i> | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Calcite | CaCO ₃ | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | +++ |
| Lime | CaO | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | +++ |
| Hematite | Fe ₂ O ₃ | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | ++ |
| (b) 飛灰 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| <i>silicate - アルミノケイ酸塩</i> | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Quartz | SiO ₂ | +++ | ++ | ++ | ++ | ++ | ++ | +++ | +++ | ++ | ++ | ++ | + | ++ | ++ | ++ | ++ | ++ | ++ | + | + | + |
| Plagioclase (Albite-Anorthite) | NaAlSi ₃ O ₈ -CaAl ₂ SiO ₈ | ++ | +++ | ++ | + | + | + | ++ | ++ | ++ | ++ | + | + | + | + | + | + | + | + | | | |
| <i>salt - 塩</i> | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Halite | NaCl | | | | | | | | | | | | | | | | | | | + | + | +++ |
| Sylvite | KCl | | | | | | | | | | | | | | | | | | | + | + | +++ |
| Calcium chloride hydroxide | CaClOH | | | | | ++ | ++ | +++ | +++ | | | +++ | +++ | + | + | ++ | +++ | + | + | +++ | +++ | +++ |
| <i>others - その他</i> | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Portlandite | Ca(OH) ₂ | +++ | +++ | +++ | +++ | | | ++ | ++ | ++ | ++ | | | | | + | + | ++ | | | | ++ |
| Calcite | CaCO ₃ | | | + | + | +++ | +++ | | | + | + | ++ | + | | | | | + | + | ++ | ++ | ++ |
| Lime | CaO | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | + |
| Anhydrite | CaSO ₄ | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | + |

注) +++: かなり存在、++: 存在する、+: わずかに存在

* 一般廃棄物について、主灰は Inkaew et al.(2016)[52]、飛灰は Mu et al.(2016)[63]の例（主灰と飛灰は同一施設）を示す。

除染廃棄物主体の飛灰では検出されなかった。Cs は Na や K と同じアルカリ金属類であり類似した化学的性質をもつため、NaCl や KCl の存在は、塩化セシウム (CsCl) の存在を示唆しており、家屋解体廃棄物の焼却飛灰では放射性 Cs の溶出率が高く、CsCl が水への溶解性が高い (186.5 g/100g-H₂O at 20 °C)[65] ことと合わせて考えると家屋解体廃棄物の飛灰中では放射性 Cs は CsCl の化学形態で存在していると推定される。

また、除染廃棄物は基本的には草木類であるため、バイオマスの焼却灰と結晶相が類似することが予想されるが、除染廃棄物の飛灰では一般的に木材や樹皮の焼却灰に含まれる Ca 主体の Calcite (CaCO₃) や Anhydrite (CaSO₄), Portlandite (Ca(OH)₂) などの結晶相[66-68]は検出されず、除染廃棄物には木材以外の土壌混入等のソースがあることが示唆された。

表 3.6 焼却対象物 1 トン当たりの排ガス処理薬剤使用量

| | | 消石灰 | 活性炭 | | | 消石灰 | 活性炭 | |
|-----------|------|--------|--------|------|-----------|--------|--------|------|
| | | kg/ごみt | kg/ごみt | | | kg/ごみt | kg/ごみt | |
| 除染 廃棄物 | 施設A | Run1 | 10.5 | 0.88 | 混合 廃棄物 | Run1 | 6.0 | 0.31 |
| | | Run2 | 8.3 | 0.77 | | Run6 | 7.8 | 0.61 |
| | 施設B | Run9 | 11.3 | 0.60 | | Run3 | 5.8 | 0.31 |
| | | Run10 | 11.4 | 0.60 | | Run5 | 5.5 | 0.29 |
| | 施設D | Run1 | 4.6 | 1.33 | | Run4 | 6.0 | 0.32 |
| | | Run2 | 6.2 | 1.30 | | Run2 | 7.1 | 0.38 |
| 混合 廃棄物 | 施設A | Run3 | 7.1 | 0.72 | Run2 | 2.0 | 0.50 | |
| | | Run4 | 6.0 | 0.65 | Run1 | 2.0 | 0.50 | |
| | | Run5 | 7.0 | 0.72 | 家屋 解体 | 施設B | Run7 | 10.5 |
| | Run6 | 7.0 | 0.72 | Run8 | | | 10.8 | 0.57 |

3) 主灰の熱しゃく減量

燃え残りなく焼却処理が行われたかについて評価するために、環整第 95 号[18]に従い、主灰の熱しゃく減量を調べた。表 3.7 に各 Run の主灰（原灰）の熱しゃく減量を示す。熱しゃく減量は木くずを焼却した施設 C Run1, 2 で 3.1 ~ 3.3%となったのが最大で、家屋解体廃棄物のみを焼却した場合にも 1.5 ~ 2.3%と比較的高かった。それ以外の除染廃棄物を主体として焼却した場合にはいずれも 1%以下と低かった。いずれの Run でも連続運転式ごみ焼却施設の熱しゃく減量の基準である 5%以下[69]を満たしており、特に除染廃棄物では 1%以下と低く、適切に焼却がなされていることを確認した。

表 3.7 各 Run の主灰（原灰）の熱しゃく減量

| | | 熱しゃく減量 | | | | 熱しゃく減量 | |
|-----------|-----|--------|----------|-----------|------|--------|------|
| | | % | | | | % | |
| 除染 廃棄物 | 施設A | Run1 | 0 | 混合 廃棄物 | 施設B | Run1 | 1.03 |
| | | Run2 | 0.06 | | | Run6 | 0.93 |
| | 施設B | Run9 | 0.73 | | Run3 | 0.35 | |
| | | Run10 | 0.36 | | Run5 | 0.87 | |
| 混合 廃棄物 | 施設D | Run1 | 0.96 | 施設C | Run4 | 0.41 | |
| | | Run2 | 0.40 | | Run2 | 0.78 | |
| | 施設A | Run3 | 0 | Run2 | 3.1 | | |
| | | Run4 | 0 | Run1 | 3.3 | | |
| Run5 | | 0 | 家屋 解体 | 施設B | Run7 | 2.3 | |
| Run6 | | 0 | | | Run8 | 1.5 | |

3.3.5. 飛灰中の放射性 Cs の存在形態の推定

1) 放射性 Cs の溶出率への影響因子

3.3.3 項で示したように仮設焼却施設の飛灰からの放射性 Cs の溶出率は、焼却対象物や Run によって大きく異なった。そこで、放射性 Cs 溶出率への影響因子を調べるため、飛灰中の元素組成と飛灰からの放射性 Cs 溶出率の関係について調べた (図 3.21)。飛灰中の塩素濃度が高いほど放射性 Cs 溶出率は高くなったことと、CsCl は水への溶解性が高い[65]ことから、飛灰から溶出する Cs は CsCl であることが示唆された。一方、飛灰中の Si, Al, Fe 濃度が高いほど飛灰からの放射性 Cs 溶出率は減少する傾向が確認された。これらは地殻構成元素の主要 3 成分、すなわち土壌の主要成分であり、除染廃棄物に付着した土壌中鉱物への放射性 Cs の取込みが示唆された。除染廃棄物のみを焼却した場合に、施設ごとに飛灰からの放射性 Cs の溶出率が異なったのは、このような元素組成の違いによる、Cs の揮発促進と Cs の土壌鉱物への取込みの影響の可能性が考えられる。

また、施設 A の飛灰からの放射性 Cs 溶出率は極めて低く、CsCl ほとんど存在しないと考えられる。塩化物がほとんど存在しない場合でも CsOH や Cs₂SO₄ などの水溶性の化合物が生成する可能性も指摘されているが[70-72]、施設 A では飛灰からの溶出率が極めて低く、これらの化合物の存在も無視できると考えられる。しかし、飛灰中に CsCl や Cs₂SO₄ などをほとんど含まないと考えられる施設 A でも例えば Run1 の飛灰中には Cl および S はそれぞれ、1.1%、1.3%含まれており、Cs (Cs-133 は 5 mg/kg) よりも多く存在している。そこで、施設 A の Run1 を例に、熱力学平衡計算により推定された Cs や Cl, S の生成物について考察を行った。これまで所属研究室の研究において、熱力学平衡計算ソフト Factsage ver.7.0 (GTT-Technologies) を用いて、廃棄物の焼却における Cs の挙動を推定してきた[38 (pp.11-20),73]。ただし、熱力学データベースには同社の既存のデータベースに加え、Cs 用の熱力学データセットが整備されている[38 (pp.11-20)]。除染廃棄物の焼却に対する計算結果を基に、Cl, S, Na, K, Cs 濃度と、生成するガス濃度を解析した。その結果を図 3.22 に示す。図 3.22 中の数値は塩化物ガスへの変換率であり、(3.7) 式のように計算した。

$$\text{塩化物ガス変換率} = \frac{C_{\text{gas}} (\text{mole/kg})}{\text{Cl in DW} (\text{mole/kg})} \times 100 (\%) \quad (3.7)$$

ここで、 C_{gas} は HCl (g)、CsCl (g) 等の塩化物ガスの濃度 (mole/kg) を、Cl in DW は除染廃棄物中の塩素濃度 (mole/kg) を示す。

除染廃棄物 (DW) 中の Cl 濃度は Na および K 濃度に比べて一桁低いものの、図 3.22 に示したように、NaCl ガスや KCl ガスの生成は極めて少ない。塩化物ガスへの変換率 (図 3.22 中の数値) から、除染廃棄物中の Cl はほとんどが塩化水素 (HCl) として生成しているが、Na や K に比べると Cs の方が塩化物ガスをより生成しやすいことが示唆された。また一方、除染廃棄物中の S 濃度は Cl 濃度よりも高く、アルカリ硫酸塩の生成も予想されたが、

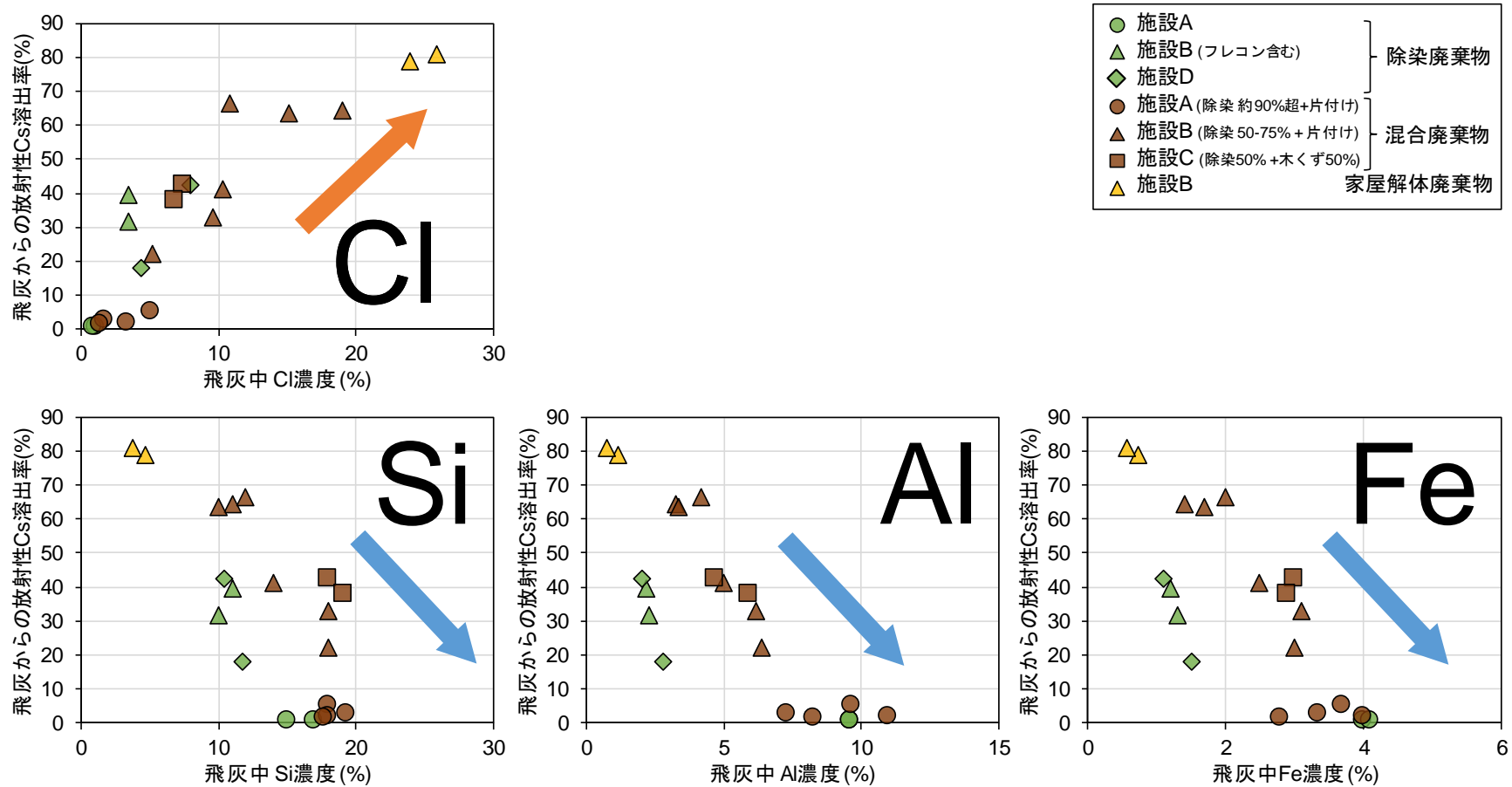


図 3.21 飛灰中の元素組成濃度と飛灰からの放射性 Cs 溶出率の関係

ほとんどが SO_2 ガスを生成した。図 3.23 に各焼却温度での熱力学平衡計算による Cs の生成物を示す[38 (pp.11-20)]。この結果からも、 Cs_2SO_4 は生成されないことが予測された。これらの熱力学データに基づく平衡計算結果から、Cs は気相においては塩化物が安定であるが、むしろ固体酸化物としてより安定になることが示唆された。Cs 化合物の生成における重要な元素は塩化物を生成する Cl や、酸化物の構成元素である Si や Al と考えられる。

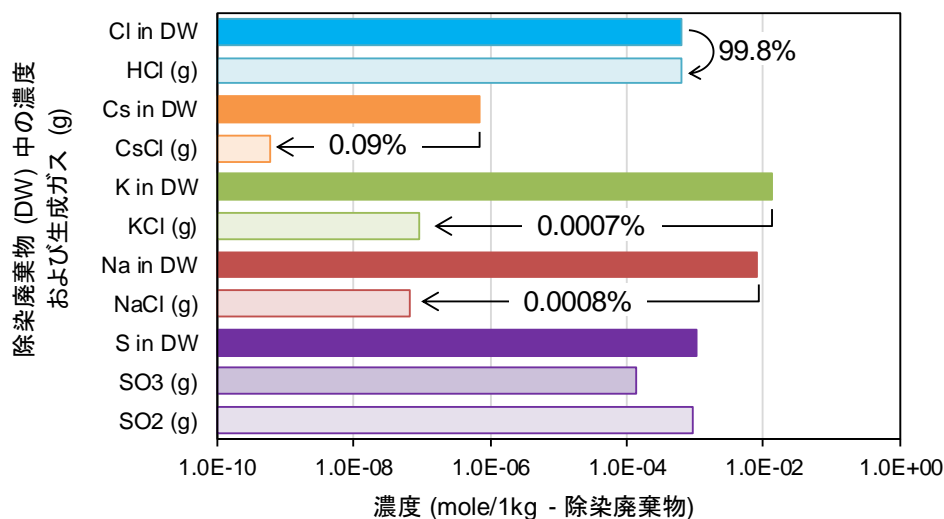


図 3.22 850 °C での除染廃棄物の中の Cl, S, Na, K, Cs 濃度および熱力学平衡計算による生成されるガス濃度 (施設 A Run1 の条件、図中の数値は塩化物ガス変換率、横軸は対数スケール)。

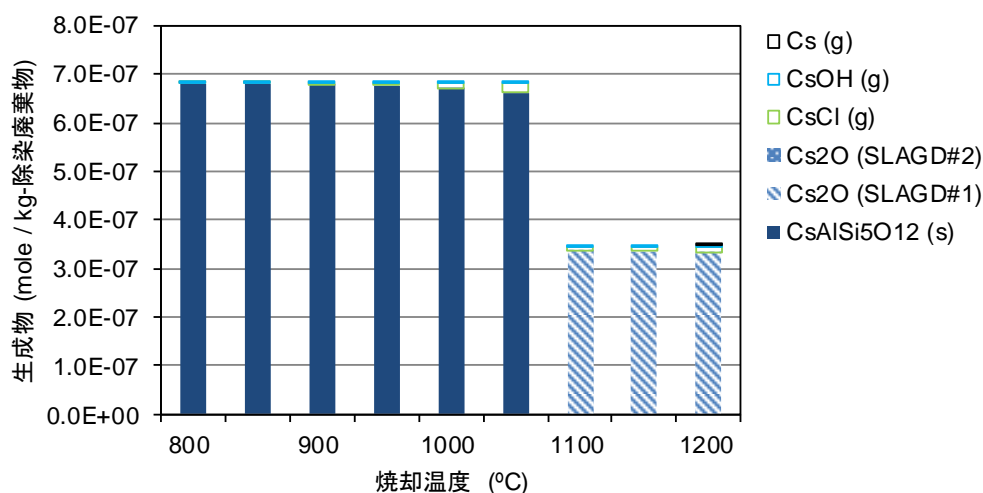


図 3.23 除染廃棄物に対する熱力学平衡計算による焼却温度と Cs の生成物の関係 (施設 A Run1 の条件). 凡例の g はガス (気相)、SLAG は熔融スラグ相、s は固相を示す。出典:[38 (pp.11-20)]。

次に、Clの存在形態についてXRD分析結果をもとに、Csと同じアルカリ金属であるNaおよびKの塩化物の結晶相が飛灰からの放射性Cs溶出率に与える影響を比較した。図3.24にHaliteおよびSylviteの結晶量と飛灰からの放射性Cs溶出率の関係を示す。HaliteやSylviteのようなアルカリ塩が多いほど放射性Csの溶出率は大きくなり、飛灰から溶出する放射性Csはアルカリ塩の形態で存在していると考えられる。このことから、水溶性のCsもNaやKが塩化物の形態で存在するのと同じように、溶出する放射性CsはCsClの形態で存在していることが示唆された。

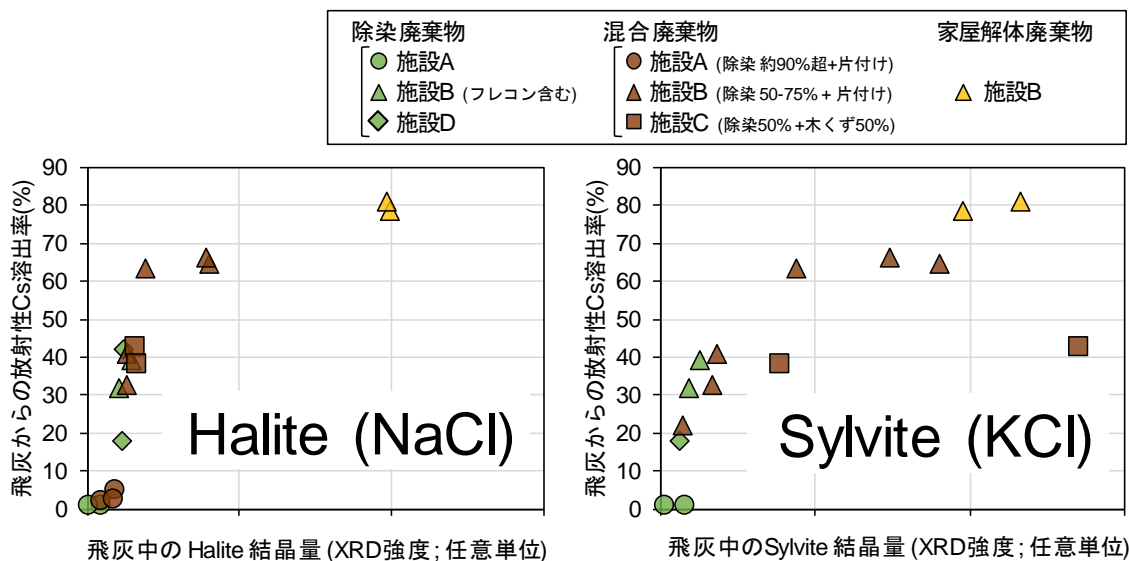


図 3.24 飛灰中の結晶量 (XRD 強度による半定量) と飛灰からの放射性 Cs 溶出率の関係

さらに、溶出液中の電気伝導度 (EC) と放射性 Cs の溶出率の関係を図 3.25 に示す。飛灰からの放射性 Cs 溶出率は EC と良い相関関係があった。このことから、NaCl や KCl などのアルカリ塩の溶出とともに放射性 Cs が溶出していることが示唆され、Cs も Na や K と同様に CsCl として溶出し、水溶性の放射性 Cs は主に CsCl の形態で存在していると考えられる。

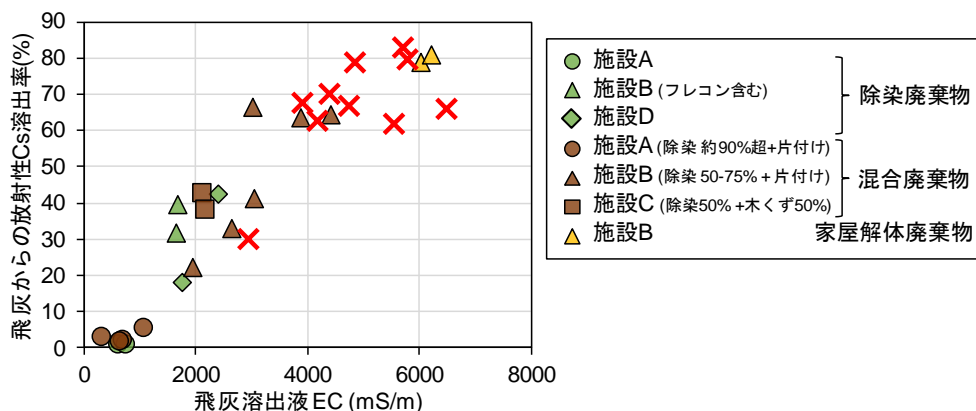


図 3.25 飛灰溶出液の EC と飛灰からの放射性 Cs 溶出率の関係

2) 除染廃棄物焼却残渣での主灰と飛灰の類似性 (施設 A Run1 の詳細な解析)

これまで示したように、除染廃棄物の焼却は放射性 Cs の分配挙動や飛灰からの放射性 Cs 溶出率などが一般廃棄物とは大きく異なることが明らかになり、除染廃棄物では主灰と飛灰の元素組成、結晶相などの性状が類似していることを示した。そこで、主灰と飛灰の類似性についてより詳細に比較を行うために、粒径の違いや排ガス処理薬剤である消石灰の影響を考慮した解析を実施した。解析は最も代表的な除染廃棄物と考えられる試料、すなわち、塩素濃度が低く、フレコンの混入も少ない施設 A の Run1 を対象とし、以下の試料について比較を行った。

試料

- 除染廃棄物 施設 A Run1
 - ・ 主灰 (未分級) : 通常の主灰 (原灰)
 - ・ 主灰 (<20 μm) : 通常の主灰 (原灰) の 20 μm ふるい下
 - ・ 飛灰 (排ガス中) : 消石灰吹込み前の飛灰。排ガス測定 (JIS Z 8808) 時に
図 3.2 のバグフィルタ前の白丸部で円筒ろ紙に採取したもの
 - ・ 除染廃棄物 (未加熱): 焼却対象物の 105 °C 乾燥後の 125 μm ふるい下
 - ・ 除染廃棄物 (930 °C): 焼却対象物の 105 °C 乾燥後の 125 μm ふるい下を卓上管状炉 (山田電機、T-740) を用いて 930 °C で焼却したもの
- 一般廃棄物 川本ら (2013) [13]の調査での A 施設 Run1
 - ・ 主灰 : 磁選等前処理後の空冷主灰 (A 施設 Run1 中 S6 [13])
 - ・ 飛灰 : 消石灰吹込み前の 1 段目の飛灰 (A 施設 Run1 中 S19 [13])

2)-1 元素組成の類似性

図 3.26 に、除染廃棄物および一般廃棄物の焼却残渣の元素組成を示す。除染廃棄物の主灰は Si が主体であるが、細粒分 (<20 μm) では未分級のものよりも Si はやや少なくなり、Ca や Fe の割合が大きい。また、除染廃棄物の飛灰 (排ガス中) でも Si が主要成分であり、Si や Ca, Al などの主要成分は除染廃棄物の主灰と類似しており、飛灰 (排ガス中) は未分級の主灰よりも細粒分の主灰 (<20 μm) との方が近い組成であった。さらに、除染廃棄物の飛灰 (排ガス中) には Si が多く、Na や Cl がほとんど含まれていないという点では一般廃棄物の主灰とも類似した元素組成であると言え、一般廃棄物の飛灰とは大きく異なる組成であった。

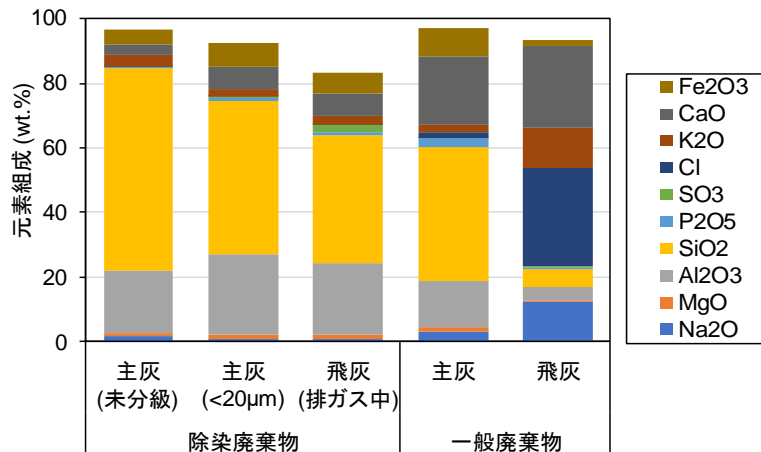


図 3.26 除染廃棄物および一般廃棄物の焼却残渣の元素組成 (XRF で測定)

除染廃棄物の主灰および飛灰粒子を走査型電子顕微鏡 (以下、SEM：日本電子、JSM-7800F) および、エネルギー分散型 X 線分析装置 (以下、EDS：Oxford instruments、X-Max50) で分析した。図 3.27 に除染廃棄物の主灰および飛灰粒子の外観と元素分布を示す。主灰、飛灰とも Si および Al を主体とした酸化物であり、そのほかに Fe や Ca を多く含み、表面に多数の空孔が存在していた。この空孔は部分的な熔融と発生ガスにより生じたと考えられ、焼却過程において主灰、飛灰ともに熔融相が生じていた痕跡であると考えられる。主灰と飛灰のいずれでもこのような多孔質の粒子が多数存在しており、元素組成だけでなく成因も主灰と飛灰とで類似していると考えられる。除染廃棄物焼却におけるこのような外観や元素組成の主灰と飛灰の類似性は、主灰の細粒分が飛灰へと混入した可能性を示唆している。

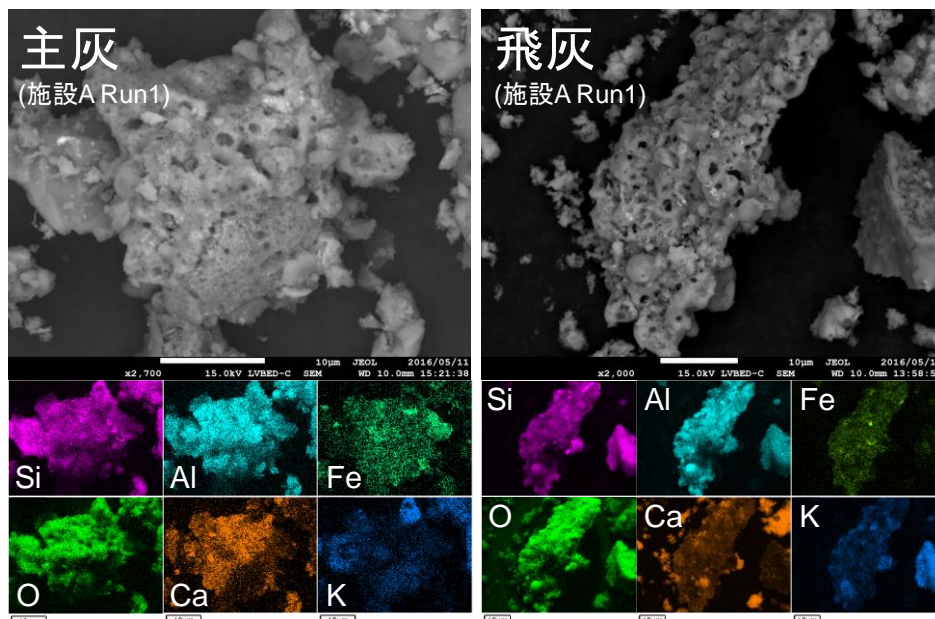


図 3.27 除染廃棄物の主灰および飛灰粒子の外観 (低真空反射電子像) および元素分布

2)-2 結晶相の類似性

各試料の XRD パターンを図 3.28 に示す。表 3.5 に示した通り、主灰、飛灰ともに Quartz および Albite 等の Plagioclase を主要結晶として含んでいたが、この傾向は焼却前の除染廃棄物（焼却対象物）についても共通であった。また、主灰、飛灰とも $2\theta = 20 \sim 40^\circ$ の間に典型的なハローピークを示し、非晶質相の存在が示された。焼却残渣だけでなく、焼却対象物も類似した結晶相を示すことから、焼却による結晶相の変化への影響は小さいと考えられる。XRD のピーク強度を比較すると、除染廃棄物では飛灰よりも主灰の方が強度が大きかったが、 $20 \mu\text{m}$ ふりい下の主灰細粒分と飛灰の XRD ピーク強度を比べると同程度であった。これは、前節で示したような飛灰中への主灰細粒成分の混入を支持する結果であり、施設 A の Run 1 で同程度の放射性 Cs 濃度レベルの主灰および飛灰となり、飛灰からの溶出性が主灰と同様に低かったことの原因となる。また、焼却対象物の結晶相は加熱前後で変わらなかったことから、主灰細粒成分の飛灰への混入の可能性に加えて、土壌粒子等の焼却対象物の細粒成分が灰化されずに飛灰へ混入した可能性も考えられる。さらに土壌中の鉱物は 1000°C 程度への加熱では熔融したり分解したりせず、また土壌中に吸着された放射性 Cs も揮発しないことが知られている[33]。以上より、汚染された土壌粒子が、除染廃棄物や除染廃棄物の主灰および飛灰の主要な供給源であると考えられる。

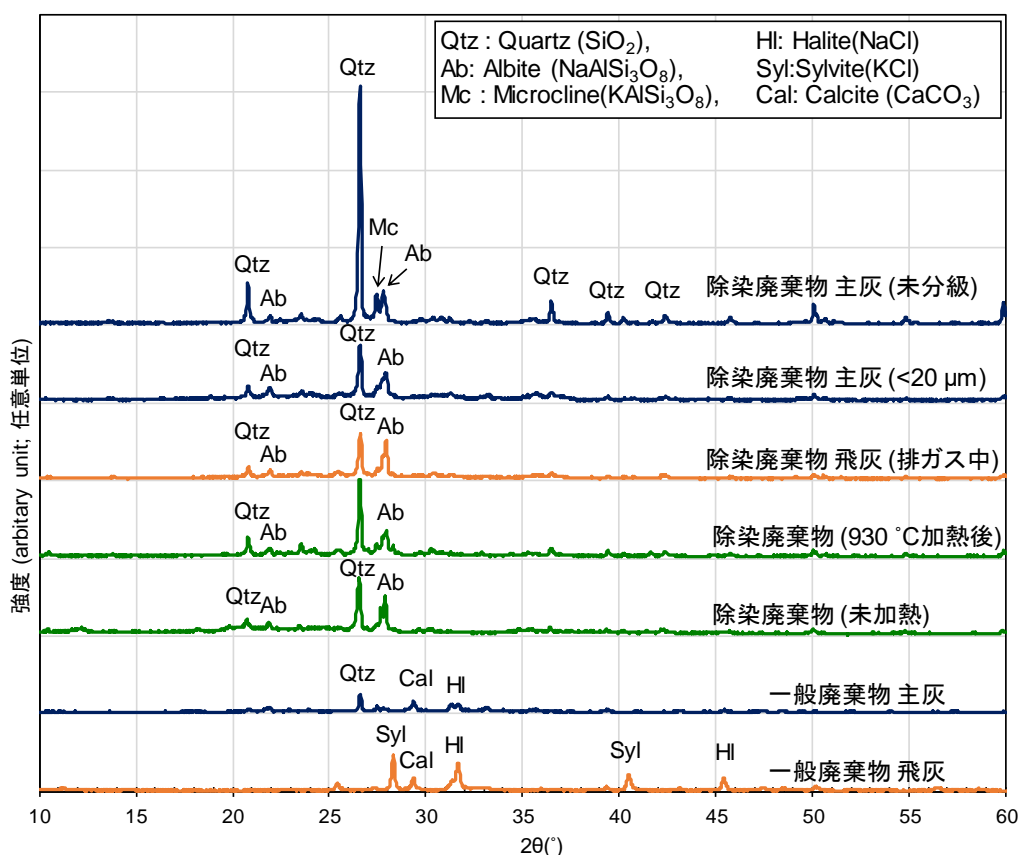


図 3.28 施設 A Ru における除染廃棄物およびその焼却残渣の XRD プロファイル

2)-3 主灰の粒径毎の放射性 Cs 濃度

図 3.29 に除染廃棄物のみを焼却した際の主灰の粒径毎の放射性 Cs 濃度および重量割合を示す。図 3.29 には、施設 A Run1 との比較のために、施設 B Run9 (除染廃棄物のみを焼却) の結果も示す。いずれの場合も、粒径が小さくなるほど放射性 Cs 濃度は高くなるが、施設 A の Run 1 では特にその傾向が顕著であった。施設 A の Run1 では、飛灰の放射性 Cs 濃度は主灰の 125 ~ 250 μm の画分の放射性 Cs 濃度と同等であり、さらに粒形の小さい 125 μm 以下の主灰は飛灰よりも放射性 Cs 濃度が高かった。つまり、施設 A の Run 1 の飛灰は濃度レベルからも主灰の細粒分との共通点があると言える。一方、施設 B の Run 9 の場合、除染廃棄物の飛灰は主灰の 125 μm 以下の細粒分よりも濃度が高い。これは、施設 B では主灰細粒分の飛灰への混入の影響以外にも Cs 移行のソースがあることを示唆しており、施設 B Run 9 の飛灰からは放射性 Cs が 30%程度溶出し、CsCl 等の水への溶解性の高い放射性 Cs が存在するとの前項の考察とも一致する。

また、施設 A と施設 B の主灰の大きな相違点は、6.7 mm 超の放射性 Cs 濃度である。施設 A では平均濃度よりも 6.7 mm 超の粗大分の方が高いのに対し、施設 B では 6.7 mm 超だけが非常に低濃度であった。それぞれの外観を写真 3.3 に示す。施設 A では黒っぽく、多孔質のクリンカのようなものが 6.7 mm 超の主体であったが、施設 B では多孔質体のもに加えて、非多孔質の石のようなものも多く含まれていた。熱力学平衡計算では熔融相があると放射性 Cs を捕捉して安定な形態になるとされており [73]、施設 A では部分的に生じた熔融相に放射性 Cs が取り込まれ、6.7 mm 超の粗大分へ放射性 Cs が濃縮した可能性が考えられる。

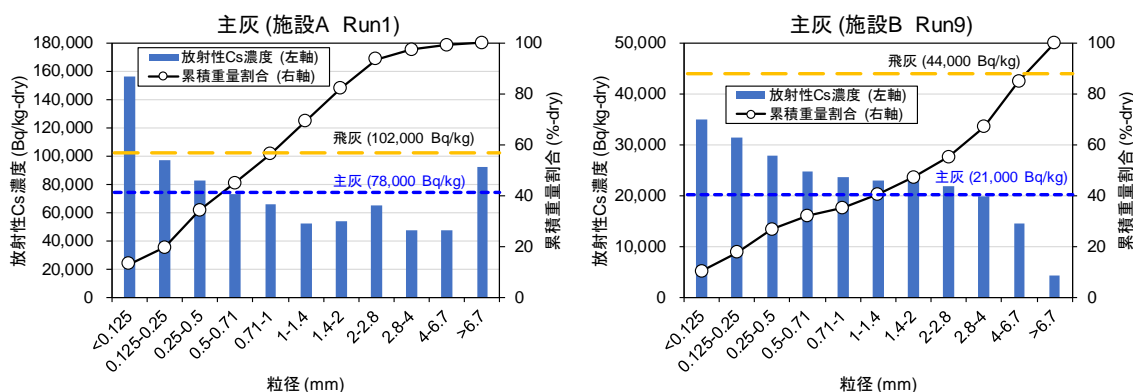
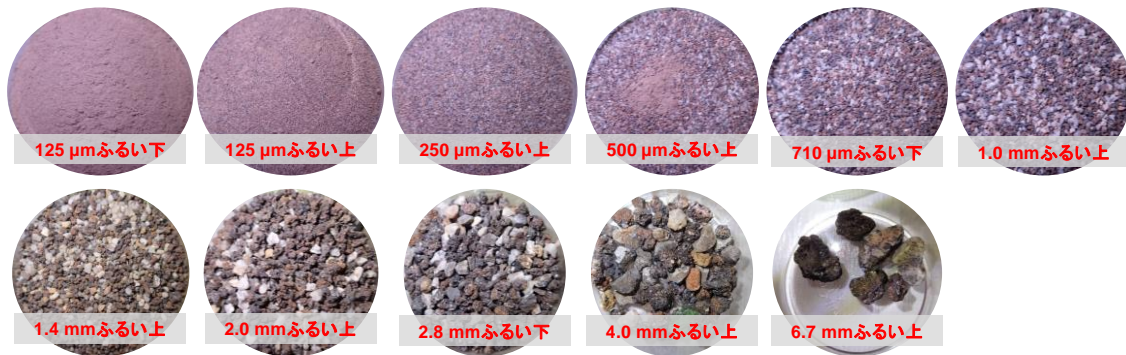


図 3.29 主灰の粒径毎の放射性 Cs 濃度および重量割合

施設A Run1



施設B Run9

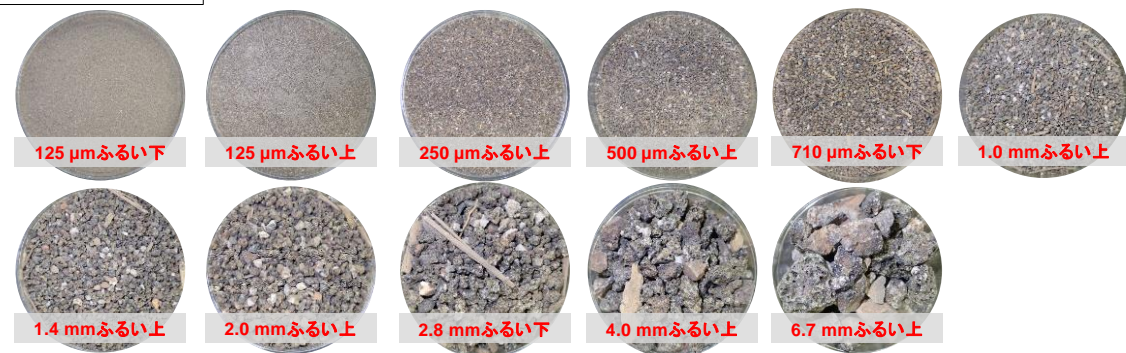


写真 3.3 除染廃棄物主灰の粒径毎の外観. 円の直径は約 47mm.

2)-4 除染廃棄物焼却 (施設 A Run1 の詳細解析) のまとめ

図 3.30 に除染廃棄物と一般廃棄物焼却の放射性 Cs 挙動の違いのイメージ図を示す。以上の施設 A Run1 の除染廃棄物のみを焼却した場合の主灰および飛灰の元素組成および結晶相、外観、放射性 Cs 濃度の類似性より、除染廃棄物の飛灰中における放射性 Cs は揮発によるものではなく、主灰細粒分の巻きあがりによるものである可能性が考えられた。

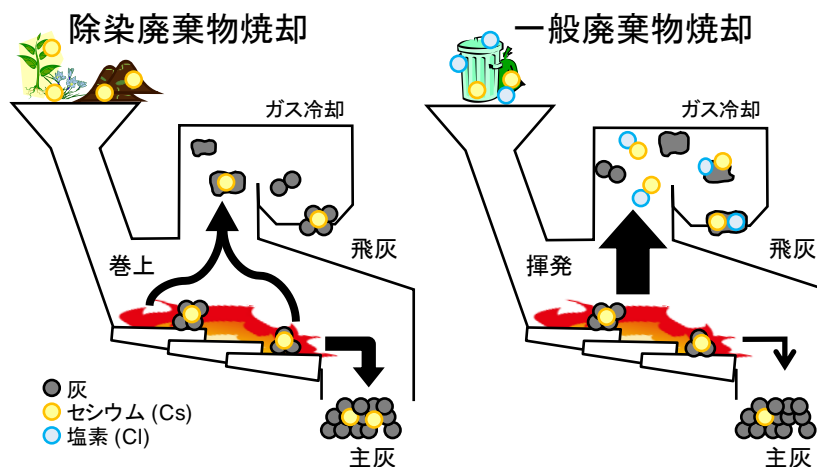


図 3.30 除染廃棄物と一般廃棄物焼却の放射性 Cs 挙動のイメージ図

3.3.6. 主灰中の放射性 Cs の存在形態の推定

1) はじめに

放射性 Cs を含んだ焼却残渣を適正に処分するうえで、放射性 Cs の化学的な安定性を評価する必要があり、放射性 Cs の存在形態や放射性 Cs が存在する箇所における結晶構造等の状態を把握することは有用である。また、焼却残渣から放射性 Cs の除去を検討する場合においても、放射性 Cs が存在、濃集する粒子について知ることでより適切な除去方法の検討が可能となる。3.3.5 項の 2) で述べたように仮設焼却施設では、飛灰中に含まれる放射性 Cs のうち易溶性のものは CsCl として存在すると考えられ、難溶解性の放射性 Cs は主灰の細粒成分の混入によるものと考えられている。仮設焼却施設で処理される除染廃棄物等の主灰に関する放射性 Cs の存在形態については、熱力学平衡計算による推定[73]は行われているが、実汚染物で確認された例はなく知見が不足している。そこで、本項では放射性 Cs を濃縮する主灰粒子を特定するとともに、その粒子についてマイクロレベルでの結晶相解析を行い、放射性 Cs の濃縮と鉱物的な性状との関係を考察した。

2) 方法

2)-1 試料

試料には 2 種類の主灰を用いた。主灰 A は除染廃棄物のみを、主灰 B は家屋解体廃棄物（主に木くず）のみを焼却した際に発生したものであり、主灰 A は施設 D の Run2、主灰 B は施設 B の Run7 の主灰（原灰）である。図 3.31 に、試料の外観および主灰の主要元素組成を示す。主灰 A では、除染廃棄物に混入した土砂成分に由来すると考えられる Si の割合が多く、主灰 B では Ca が多く木質に由来すると考えられる。以下の分析では、1 mm ふるい上、4 mm ふるい下の粒度のものを対象試料とした。試料は、厚み方向の放射能の影響を除くとともに、偏光顕微鏡観察を行うため、エポキシ樹脂に含浸したのち研磨して厚さ約 30 μm の薄片にした。



図 3.31 試料の外観および主灰の主要元素組成（元素組成は XRF により測定）

2)-2 イメージングプレートによる放射能濃集粒子の特定

薄片試料をイメージングプレート（以下、IP：FUJI FILM、BAS IP MS）に接触させ、自然界に存在するバックグラウンドレベルの放射性核種の影響を小さくするために鉛で遮蔽された容器内で放射能を約 6 日間曝露させた。曝露後の IP を画像解析装置（GE Healthcare、Typhoon FLA 7000 IP）で読み取り、試料表面の放射能分布画像（以下、IP 像）を取得し、放射能濃集箇所を特定した。特定された放射能濃集箇所について結晶相解析を行った。なお、IP の分解能は 50 μm であり、IP 像は自然界に存在するバックグラウンドレベルの放射性核種等の影響も反映している点に注意が必要である。

2)-3 SEM-EDS/EBSD 分析による結晶相解析

微小領域での結晶相解析には偏光顕微鏡が用いられるのが一般的だが、今回はより簡便に定量的な結晶相解析を行うために後方散乱電子線回折（EBSD）を用いた。EBSD 法は金属など無機材料の組織解析を起点に発展し、鉱物学でも広く応用されているが[74]、焼却残渣への応用例は少なく[75]、本稿では EBSD 法の焼却残渣への適用可能性を探ること自体も研究の目的の一つとした。図 3.32 に SEM-EDS/EBSD の装置内部のイメージ図を示す。偏光顕微鏡や XRD 分析と比較した際の EBSD 法のメリットは、①微小領域の結晶相解析が可能、②表面構造や元素組成との同時分析が可能、③結晶相分布のマッピングが可能、④結晶方位や歪みなどの情報が得られる、と言う点であり、今回は①~③の特徴に着目した。EBSD 法では結晶粒子から得られる菊池線回折パターン（以下、キクチパターン）をもとに、結晶相を行う装置であり、あらかじめ指定した結晶相のキクチパターンと照らし合わせ、結晶相を同定することが可能である。キクチパターンの一例を図 3.33 に示す。分析点が結晶構造をもつ場合、図 3.33 (a)のような明瞭なキクチパターンが得られ、この例では図 3.33 (b)のように石英のキクチパターンと一致するため結晶相の同定が可能である。一方、図 3.33 (c)のようにキクチパターンが得られない場合には、分析点が非晶質相もしくは樹脂包埋に用いた樹脂であると判別できる。ただし、試料表面が平滑でない場合にもキクチパターンは得られないため、正確に非晶質相を判別するためには試料表面を十分に研磨し平滑にすることが重要である。

そこで、はじめに放射能濃集箇所の周囲約 $\phi 5\text{ mm}$ を平面イオンミリング装置（サンヨー電子、SVM-721TB）にて照射電圧 2kV で Ar ビームを約 12 時間照射し、試料表面の仕上げ研磨を行った。仕上げ研磨後、SEM（日本電子、JSM-7800F）を用い、EDS（Oxford instruments、X-Max50）で元素組成を、EBSD 分析装置（Oxford instruments、NordlysNano）で微小領域の結晶相を分析した。分析は加速電圧 15kV、低真空モード（50Pa）の条件で行った。EBSD により得られた結晶相の面積評価には、Tango（Oxford instruments）および ImageJ（National Institutes of Health）[76]を使用した。また、EBSD 分析結果の確認のため、偏光顕微鏡（Olympus、BX-51）でも観察を行った。

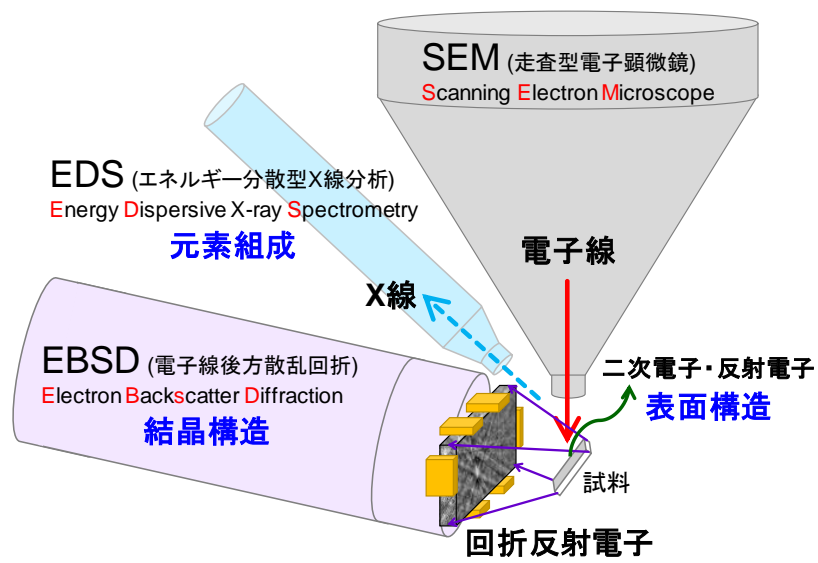
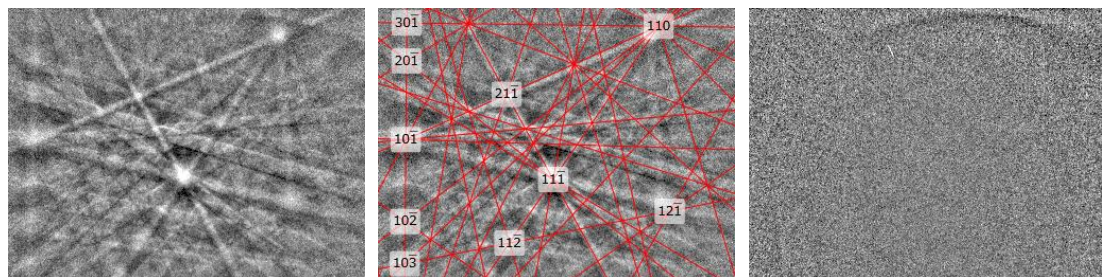


図 3.32 SEM 内部での検出器の配置イメージ



(a) 試料のキクチパターン (BC:199) (b) Quartz のキクチパターン (赤線)と一致 (c) 非晶質部 (BC:30)

図 3.33 キクチパターンの例 (粒子 A-1). BC (バンドコントラスト)はキクチパターンの明瞭さを表す.

3) 分析結果

3)-1 イメージングプレートによる放射能濃集粒子の特定

図 3.34 に薄片試料の実像および IP 像を示す。放射能は薄片試料全体に広く分布しており、比較的偏りは少ないことがわかった。しかし、一部では図 3.34 の(b) 中の黒い点で示される放射能の濃集点を確認された。そこで、放射能の濃集が確認された図 3.34 内の青枠で囲った 8 領域について SEM-EDS/EBSD 分析および偏光顕微鏡観察を行った。

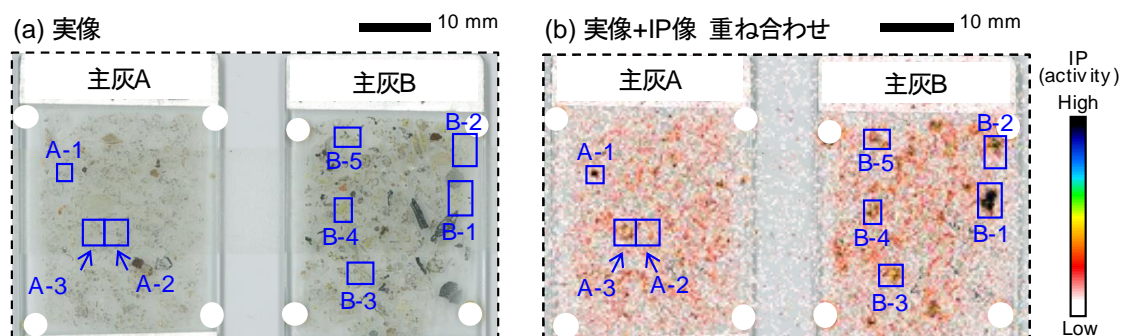


図 3.34 主灰薄片試料の (a) 実像および (b) 実像+IP 像の重ね合わせ像. 青四角部は SEM-EDS/EBSD の解析対象とした 8 領域.

3)-2 SEM-EDS/EBSD 分析による結晶相解析

SEM-EDS/EBSD 分析により得られた分析結果を図 3.35 に示す。図 3.35 の各画像は、以下の内容を示している。

- 粒子形状 粒子の形状 (EDS 分析により得られた酸素の分布)
- IP 像 放射能 (放射性 Cs) の分布
- BC 像 結晶相の分布 (白い箇所では BC が大きく結晶相の存在を示す)
- EBSD 同定された結晶相の分布
- 偏光顕微鏡 概ね光っている部分が結晶の存在を示している
- カリウム分布 EDS 分析により得られたカリウムの分布 (K- α 線使用)

なお、放射性 Cs 分布と結晶相の関係を示すため、BC 像と IP 像の重ね合わせ像も示すが、EBSD 分析と IP 分析は別の装置で行っているため、必ずしも重ね合わせの位置が一致しないため注意が必要である。

<結果概要>

放射性 Cs を濃集している粒子はいずれも 500 μm 程度の空隙を複数持っているという外観上の特徴があった。粒子の大半は非晶質相であり、非晶質相の中に Plagioclase (主に、Ca を主体とした Anorthite (灰長石)) や Quartz (石英) が含まれているという共通点があった。いずれの場合でも、EBSD による結晶相の分布と、偏光顕微鏡での結晶相の分布はよく一致していた。IP 像 (放射性 Cs の分布) では多くの粒子で放射性 Cs が粒子全体に広く分布しているが、主灰粒子は均一な形態ではなく非晶質中に結晶が含まれていた。

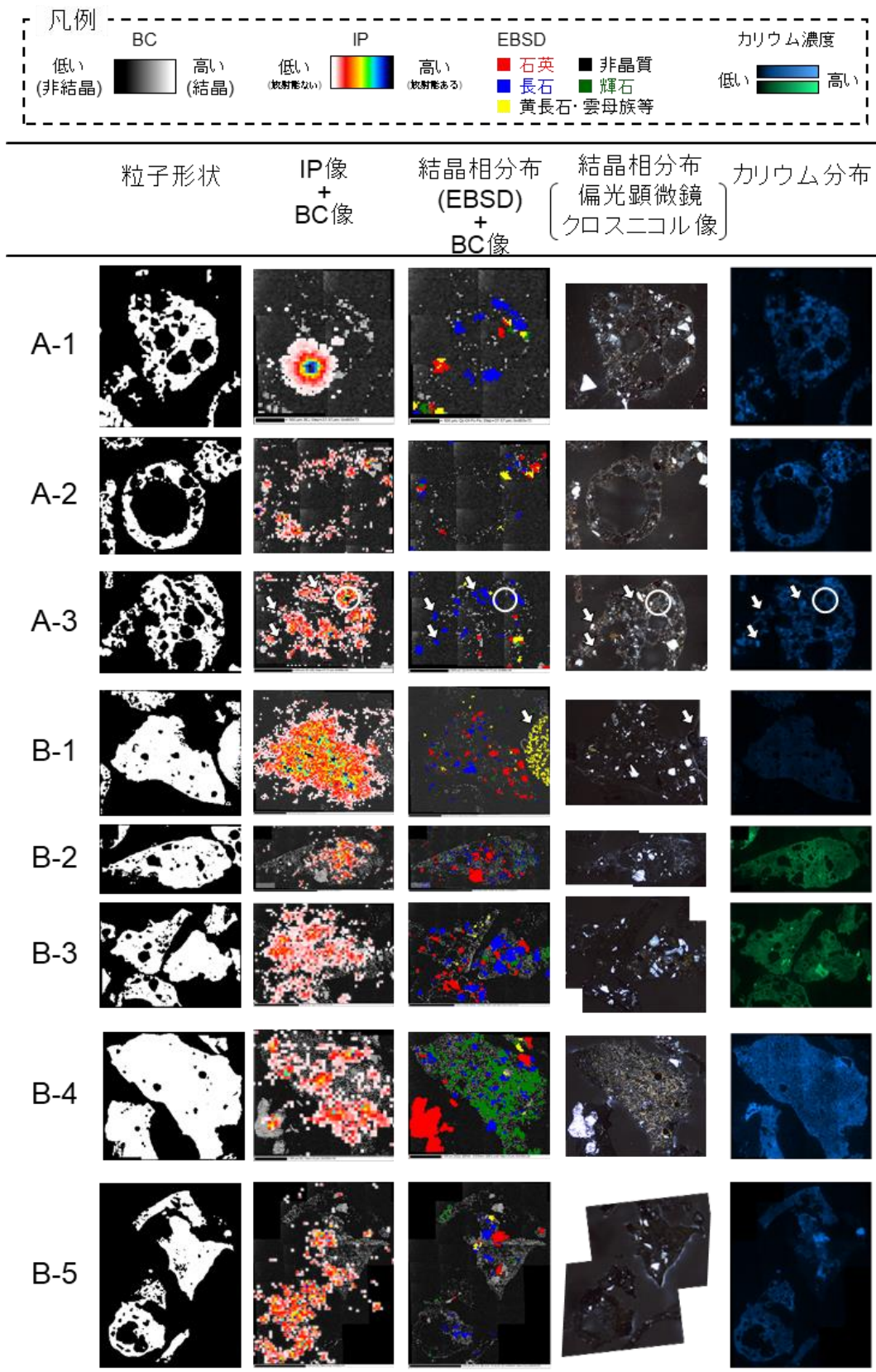


図 3.35 SEM-EDS/EBSD および偏光顕微鏡分析の結果

このことから、放射性 Cs は非晶質相、結晶相の両方に濃集している可能性が考えられる。したがって、主灰からの放射性 Cs の除去（減容化）には、主灰粒子の組織を崩す灰溶融や第 4 章で検討するような焼成などの熱処理による減容化が適当と考えられる。

また、K と放射性 Cs の分布は必ずしも一致しておらず、特に K を構成元素とする結晶相での放射性 Cs の濃集は明確に確認することはできず、マイクロレベルでの挙動については K の挙動と放射性 Cs の挙動が異なる場合も存在することがわかった。

EBSD 分析により同定された結晶相の種類とそれぞれの面積割合を図 3.36 に示す。図 3.36 は、キクチパターンの理論上のパターンとの角度差 (MAD: mean angular deviation) が 1° 未満かつ BC が 50 以上のものを抽出した結果を示している。いずれの分析領域でも、粒子のほとんどを非晶質相が占めていた。同定された主要な結晶相は Anorthite や Quartz であったが、主灰 B でのみ Melilite (黄長石: Gehlenite ($\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7$) と Akermanite ($\text{Ca}_2\text{MgSi}_2\text{O}_7$) の連続固溶体の総称) が確認され、表 3.5 に示した XRD の結果と一致していた。また、主灰 A と主灰 B では被焼却物の性状が大きく異なるにも関わらず、放射能を濃集する粒子の結晶相割合や外観上の特徴には明確な差異は認められなかった。

熱力学平衡計算においても、焼却過程で温度が高く部分的な溶融相があると、Cs は優先的に溶融相に移行するとされており [73]、本結果とも一致する。さらに、安定性 Cs を添加した模擬汚染試料での試験では、除染廃棄物を模擬した主灰では、Anorthite と同じ長石のグループである Microcline (微斜長石: KAlSi_3O_8) または Albite (曹長石: $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$) の表面に形成するガラス状非晶質に Cs が補足されることが分かっており [77]、一般廃棄物を模擬した主灰でも Cs は溶融相に取り込まれるとされている [78]。本研究はこれらの安定性 Cs を用いた模擬汚染物による既往の知見を裏付けるものとなった。

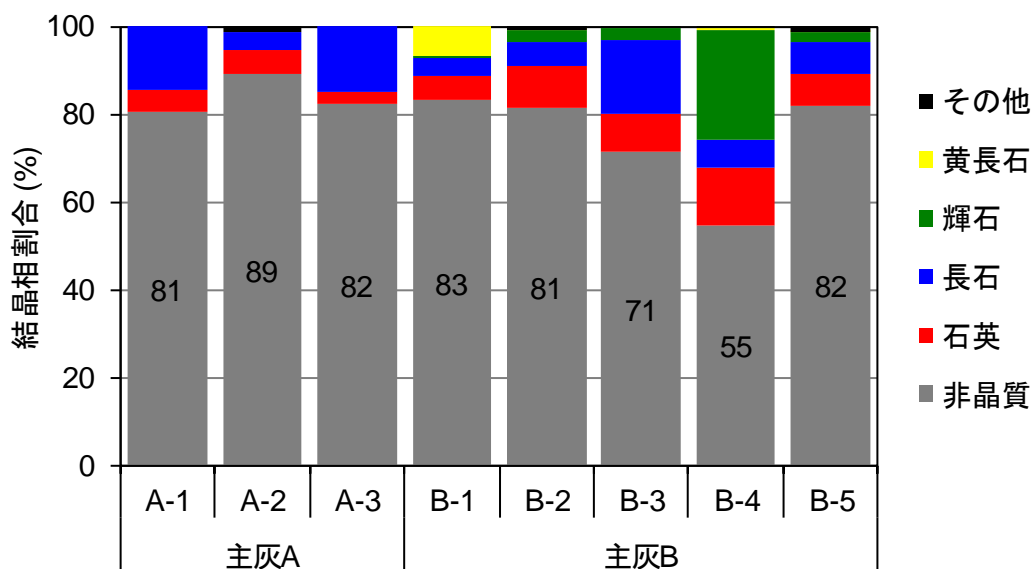


図 3.36 EBSD 分析により同定された結晶相の種類とそれぞれの面積割合

分析した8つの粒子のうち、代表的な粒子 (A-3)、特に放射能を濃集した粒子 (B-1)、他とは性状が異なる粒子 (B-4) について、以下に詳細な分析結果を記す。

< 代表的な粒子 (A-3) >

結晶相分布より、本粒子は非晶質を主体として長石を含む粒子であることがわかった。IP像より放射能は粒子全体に分布しているが、粒子の右上 (図 3.35 白丸部) に特に放射能が濃集していた。この放射能の濃集点は結晶相分布より非晶質相であるとわかる。また、カリウム (K) 分布像では、K がスポット的に高濃度となっている箇所 (図 3.35 矢印部) が数点見られ、この K の高濃度点は EBSD 分析の結果、K を主体としたアルカリ長石である Orthoclase (正長石 : KAlSi_3O_8) と同定された。しかし、IP 像からはこの K の高濃度点での放射能は高いとは言えず、ミクロレベルの結晶相では K の挙動と放射性 Cs の挙動が異なる場合も存在する可能性が示された。

< 特に放射能を濃集した粒子 (B-1) >

図 3.34 からわかるように、B-1 の粒子は際立って放射能を強く濃集している。結晶相分布より本粒子は非晶質中に石英と長石の微結晶を内包する粒子であり、IP 像より放射能は粒子全体にまんべんなく分布している。つまり、放射能は特定の結晶相に濃集するのではなく非晶質相に広く含まれている可能性が大きいと考えられる。しかし、結晶相も粒子全体に分布しているため結晶相中に放射能が取り込まれている可能性も否定できない。また、分析領域の画面右端に切れている円形の粒子 (図 3.35 矢印部) は、EBSD の結果 Gehlenite または Akermanite (Melilite) と同定されたが、この粒子には放射能はほとんど存在せず、放射能を含む粒子とそうでない粒子は明確に分かれる可能性が示唆された。

< 他と性状が異なる粒子 (B-4) >

他の分析領域とは異なり非晶質相中に Augite (普通輝石) が含まれていた。放射能の分布は B-1 とは異なり粒子の一部に偏っているが、放射能の分布の偏りに対応する結晶相の偏りはなく、放射能は結晶相・非晶質相のいずれにも含まれている可能性が考えられる。XRD 分析では Augite は同定されなかったが、微小領域の分析が可能である EBSD での分析であるために存在量の少ない結晶相も同定されたと考えられる。

4) 放射能を濃集する主灰粒子の由来推定

いずれの粒子でも粒子の大半を占める非晶質中に Quartz や Anorthite 等の Plagioclase の微結晶が含まれていた。このような非晶質中に微結晶が存在する構造組織は斑状組織と呼ばれ、火山岩によく見られる。対策地域が火山岩をベースとした地質であれば、除染作業により火山岩が除染廃棄物等に混入した可能性が考えられる。しかし、実際には対策地域は、東側は礫、砂、泥岩等の堆積物から成り、西側の地域では花崗岩や花崗閃緑岩といった深成岩類を基盤とした地質であり、対策地域内の除染廃棄物に混入する土壌には火山岩は少ないと予想される (図 3.37 [79,80])。岩石の成因過程からみると焼却灰の冷却は水冷・空冷の冷却方式に関わらず急冷であるため、焼却過程に部分的に溶融して冷却された焼却残渣は斑状組織を生成すると考えられる。以上より、今回確認された放射能を濃集する粒子はいずれも汚染された粒子として焼却炉に混入したのではなく、焼却過程に部分的に生じた高温領域で生成した溶融相に放射性 Cs 取り込まれたものと推察される。

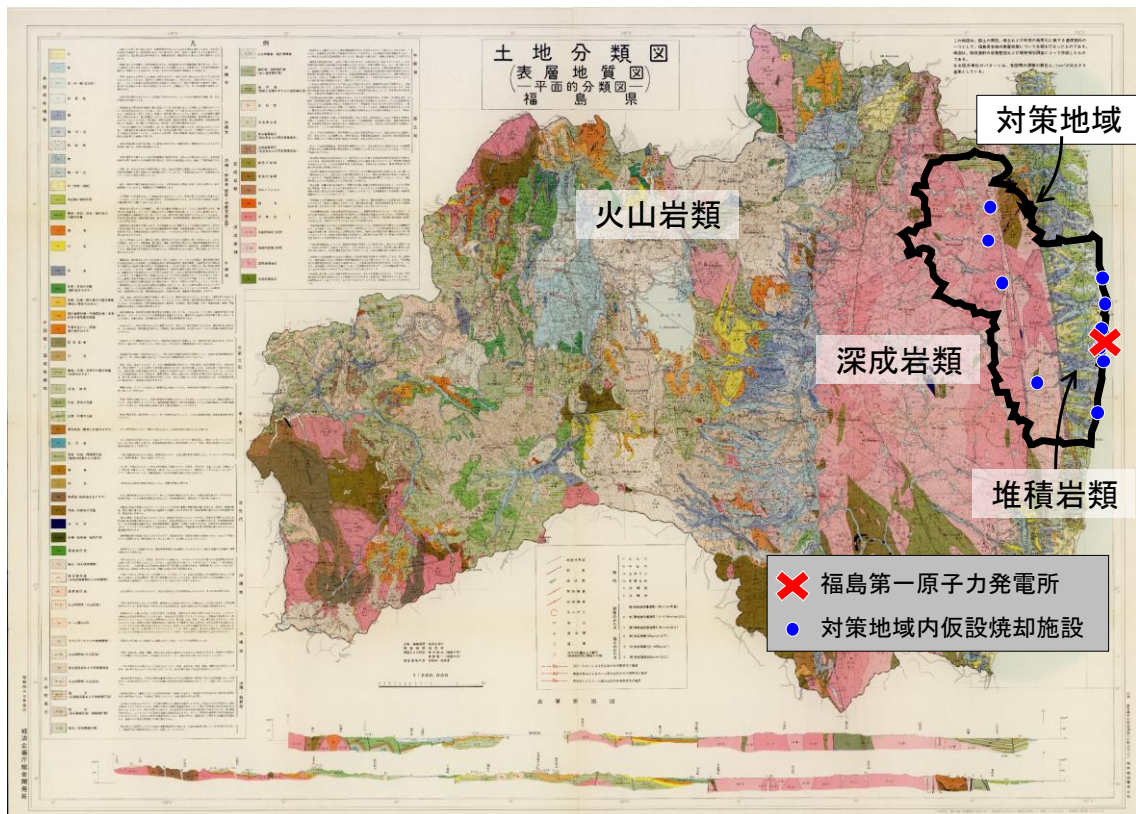


図 3.37 福島県の表層地質図と対策地域の関係[79]

3.3.7. 排ガス中での放射性 Cs の挙動

1) はじめに

第 2 章で一般廃棄物の焼却施設では焼却形式の違いによらずバグフィルタにより放射性 Cs が除去可能であることは確認できたが、仮設焼却施設では一般廃棄物と処理対象物が異なることに加え、一般廃棄物焼却施設よりも高濃度の放射性 Cs を含む廃棄物を処理することから、排ガス中における放射性 Cs の挙動の把握は重要である。そこで、本調査では、以下に示す A および B の 2 つの方法で仮設焼却施設における排ガス中の放射性 Cs の挙動の評価を行った (図 3.38)。

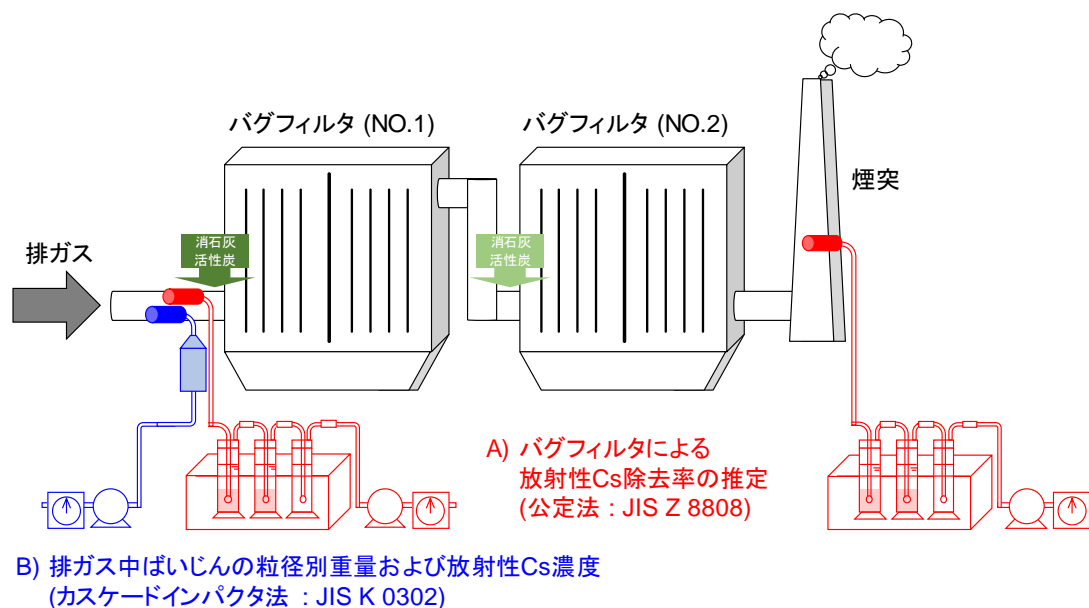


図 3.38 排ガス中での放射性 Cs 挙動調査方法概要

2) バグフィルタによる放射性 Cs 除去率の推定 (公定法)

2)-1 方法

第 2 章の一般廃棄物焼却施設と同様に、「廃棄物関係ガイドライン第 5 部 放射能濃度等測定方法マニュアル」(以下、公定法)[81]に定められている、JIS Z 8808「排ガス中のダスト濃度測定方法」[82]に準拠して行った。対策地域内仮設焼却施設では通常直列で 2 段のバグフィルタが設置されており、本調査では 2 段バグフィルタによる放射性 Cs 除去率について評価を行った。つまり、1 段目バグフィルタ入口と煙突部 (図 3.2 の排ガスサンプリング位置) で排ガス中の放射性 Cs 濃度および排ガス流量 (乾き) を測定し、それぞれの放射性 Cs 量を算出し、その差からバグフィルタによる放射性 Cs 除去率を求めた。バグフィルタによる放射性 Cs およびばいじんの除去率は、(3.8) 式および (3.9) 式により求めた。

$$\text{放射性 Cs 除去率 (\%)} = \left\{ 1 - \frac{(C_{\text{after}}(\text{Bq}/\text{Nm}^3) \times V_{\text{after}}(\text{Nm}^3/\text{h}))}{(C_{\text{before}}(\text{Bq}/\text{Nm}^3) \times V_{\text{before}}(\text{Nm}^3/\text{h}))} \right\} \times 100 \quad (3.8)$$

$$\text{ばいじん除去率 (\%)} = \left\{ 1 - \frac{(D_{\text{after}}(\text{mg}/\text{Nm}^3) \times V_{\text{after}}(\text{Nm}^3/\text{h}))}{(D_{\text{before}}(\text{mg}/\text{Nm}^3) \times V_{\text{before}}(\text{Nm}^3/\text{h}))} \right\} \times 100 \quad (3.9)$$

ここで、 C_{before} および C_{after} は 1 段目バグフィルタ前および煙突でろ紙部に捕集されたばいじんの放射性 Cs 濃度 (Bq/Nm^3) を、 D_{before} および D_{after} はろ 1 段目バグフィルタ前および煙突でろ紙部に捕集されたばいじん濃度 (mg/Nm^3) を V_{before} および V_{after} は 1 段目バグフィルタ前および煙突での排ガス流量 (乾き) (Nm^3/h) を示す。結果的にバグフィルタ後の放射性 Cs 濃度およびばいじん濃度は検出下限値以下であったため、 C_{after} (煙突での放射性 Cs 濃度) および D_{after} (煙突でのばいじん濃度) には検出下限値を代用した。

2)-2 結果および考察

表 3.8 にバグフィルタ前後でのばいじんおよび放射性 Cs 濃度およびそれらの除去率を示す。バグフィルタ後 (煙突) では放射性 Cs 濃度、ばいじん濃度とも検出下限値未満であった。第 2 章でも同様の解析を行い、放射性 Cs 除去率を算出したが、仮設焼却施設の方が焼却対象物の放射性 Cs 濃度が高いためバグフィルタ入口の放射性 Cs 濃度も高くなり、結果的に仮設焼却施設での Cs-137 の除去率はすべての施設で 99.99% 以上であると評価された。これは、バグフィルタ入口での放射性 Cs 濃度の違いによるものであるため、決して一般廃棄物焼却施設で放射性 Cs 除去率が低いことを意味するわけではない。また、ばいじんもバグフィルタ後 (煙突) では検出下限値以下であり、ばいじんの除去率は 99.96% 以上と評価された。第 2 章の繰り返しになるが、ここで示されている除去率は検出下限値を代用して計算しているため、算出される除去率はあくまで検出限界値で計算した過小評価の数値である点に注意が必要であるが、それでも放射性 Cs、ばいじんのいずれに対しても十分に高い除去率を示していた。

対策地域内の仮設焼却施設については煙突で放射性 Cs 濃度の測定が行われており [1] 安全性が確保された上で処理が行われているが、その他にも飯野ら [83] が粒子個数濃度測定による公定法の粒子捕集効率の評価を行っている。その結果、公定法での粒子捕集効率は、99.99% 程度であり本調査とも一致する結果であり、仮設焼却施設でも放射性 Cs はバグフィルタにより適切に回収、除去されていると考えられる。

表 3.8 バグフィルタによる放射性 Cs およびばいじんの除去率

| | 1段目バグフィルタ入口 | | | 煙突 | | | 除去率 | | |
|----------|-----------------------------|-----------------------------|--------------------------|-----------------------------|-----------------------------|--------------------------|-------------|-------------|-----------|
| | Cs-134 Bq/m ³ | Cs-137 Bq/m ³ | ばいじん g/m ³ | Cs-134 Bq/m ³ | Cs-137 Bq/m ³ | ばいじん g/m ³ | Cs-134 % | Cs-137 % | ばいじん % |
| 施設A Run1 | 440 | 1800 | 3.2 | 0.019以下 | 0.013以下 | 0.001以下 | 99.996以上 | 99.999以上 | 99.969以上 |
| Run2 | 140 | 540 | 3.7 | 0.02以下 | 0.015以下 | 0.001以下 | 99.986以上 | 99.997以上 | 99.973以上 |
| Run3 | 210 | 900 | 12 | 0.018以下 | 0.018以下 | 0.001以下 | 99.994以上 | 99.999以上 | 99.994以上 |
| Run4 | 70 | 310 | 4.4 | 0.016以下 | 0.013以下 | 0.002以下 | 99.981以上 | 99.996以上 | 99.962以上 |
| 施設B Run4 | 57 | 270 | 3.9 | 0.015以下 | 0.015以下 | 0.001以下 | 99.973以上 | 99.994以上 | 99.974以上 |
| Run5 | 92 | 430 | 4.6 | 0.016以下 | 0.014以下 | 0.001以下 | 99.984以上 | 99.997以上 | 99.981以上 |

3) 排ガス中ばいじんの粒径別重量および放射性 Cs 濃度 (カスケードインパクト法)

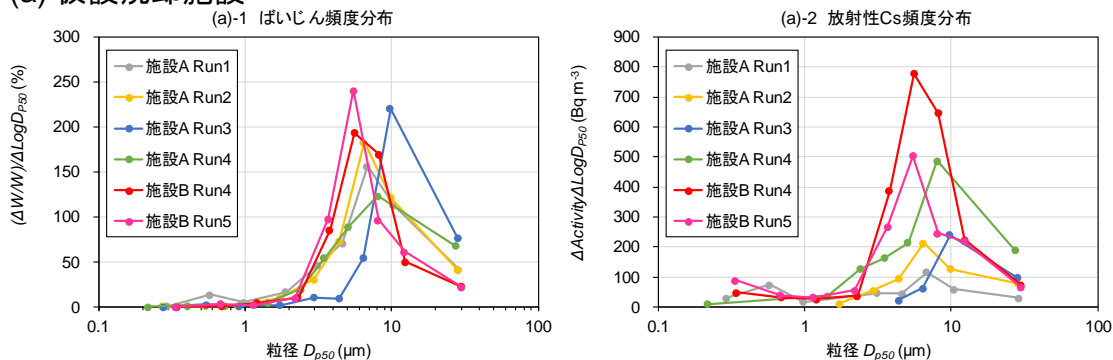
3)-1 方法

NO.1 バグフィルタの入り口でカスケードインパクトによる排ガス中のばいじんの粒形分布の測定を行った。JIS K 0302「排ガス中のダスト粒径分布の測定方法」[84]に従い、カスケードインパクトにより排ガス中ダストを粒形ごとに採取し、粒形ごとの重量および放射性 Cs 濃度を測定した。

3)-2 結果および考察

カスケードインパクトを用いたばいじんおよび放射性 Cs 濃度測定結果を付録表 3.5 に示す。塩田ら[85]の方法にならない、ばいじん粒子の上限値 45 μm 、下限値 0.1 μm とした場合のばいじんの粒径および放射能の頻度分布を図 3.39 に示す。なお、図中のばいじんの縦軸は JIS K 0302 中の 8.2「頻度分布」[84]の方法にならない、全捕集量(W)に対する各段の捕集量(ΔW)の割合、すなわち捕集分率($\Delta W/W$)を各段の 50%分離径の粒径幅の対数値($\Delta \text{Log} D_{p50}$)によって除したものを示し、放射性 Cs の縦軸は各段の放射性 Cs 濃度($\Delta \text{Activity}$)を各段の 50%分離径の粒径幅の対数値($\Delta \text{Log} D_{p50}$)によって除したものを示す。また、Cs-134

(a) 仮設焼却施設



(b) 一般廃棄物焼却施設

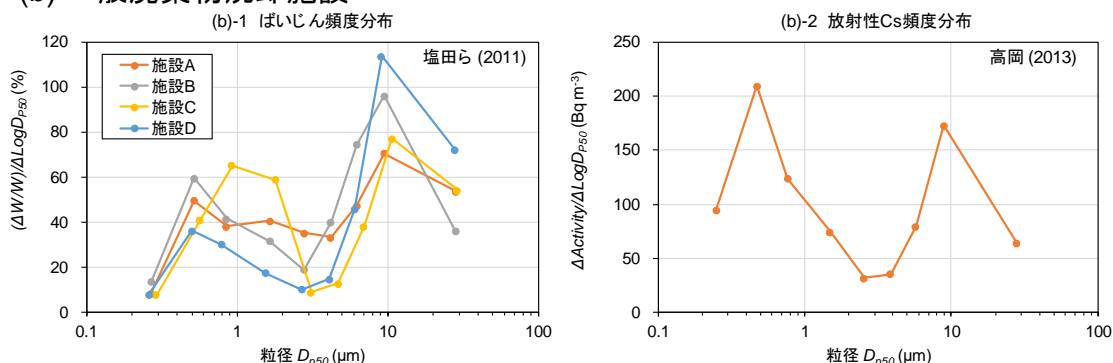


図 3.39 (a) 仮設焼却施設および (b) 一般廃棄物焼却施設におけるばいじんおよび、放射性 Cs の粒径別頻度分布。(b) 一般廃棄物焼却施設の図は参考文献[塩田ら(2011)[85]および 高岡(2013)[86]をもとに作成。

は検出下限値以下のものが多かったため、図 3.39 では放射能の自然減衰率に基づいた試料採取日の Cs-134 と Cs-137 の存在比を用いて、検出された Cs-137 濃度を元に Cs-134 濃度を算出し、Cs-137 濃度との和を放射性 Cs 濃度として取り扱った。

排ガス中の放射性 Cs の頻度分布は 10 μm 前後にピークを持ち、ばいじんの頻度分布と同じ分布であった。したがって、ばいじんを適切に捕集することで排ガス中の放射性 Cs も除去可能であると考えられる。ばいじんの頻度分布は、一般廃棄物焼却施設の場合には 10 μm 前後と 1 μm 前後にピークをもつ 2 山型の頻度分布を示すのに対し、仮設焼却施設の場合には 10 μm 前後に大きい 1 山のピークをもつ頻度分布となった。一部、0.1 ~ 1 μm にピークが見られる Run があったが (施設 A Run1、施設 B Run 4, 5)、10 μm 前後のピークに比べると非常に小さいピークであり、ピークが見られない場合 (施設 A Run 2, 3, 4) もあった。一般的に、10 μm 前後のピークは粗大粒子に分類され、土壌粒子や海塩飛沫などの自然発生源に由来して破碎や飛散などの機械的な力により生成し、0.1 ~ 1 μm のピークは累積モードと呼ばれて蒸気の凝集や 0.01 μm 前後の超微小粒子の成長による人為発生源によるものと考えられている (図 3.40 [87,88])。一般廃棄物では、NaCl や KCl といったアルカリ塩の凝集により 0.1 ~ 1 μm にピークが現れたと考えられるが、仮設焼却施設ではアルカリ塩の生成、すなわちガス状の成分が少なかったために 0.1 ~ 1 μm のピークが非常に小さくなったと考えられる。また、仮設焼却施設では、除染廃棄物中に含まれる微小な土壌成分に由来する粗大粒子 (10 μm 前後) の割合が多いために 1 μm 前後のピークが相対的に見えにくくなったと推定される。これは、前述の XRD 分析等から、飛灰中に Quartz や Plagioclase といった、土壌由来と考えられる結晶相が確認された結果とも一致する。さらに、一般廃棄物との粒径分布の違いのもう一つの可能性として、機器構成の違いが影響した可能性が考えられる。塩田らの調査[85]ではいずれもボイラーおよびガス冷却塔を備えた施設で調査したのに対し、仮設焼却施設では、ボイラーが設置されておらず一般廃棄物焼却施設に比べて熱回収プロセスが簡略されているという違いがある。そのため、一般廃棄物焼却施設ではボイラー等の熱回収の工程

で比較的粒径の大きい 10 μm 前後の粒子がボイラー灰などの煙道灰として回収されるのに対し、仮設焼却施設では熱回収工程で付着する割合が少なく、比較的粒径の大きい粒子がバグフィルタへと到達する割合が多かったために、相対的に 10 μm 前後の粒子が多くなり 0.1 ~ 1 μm が

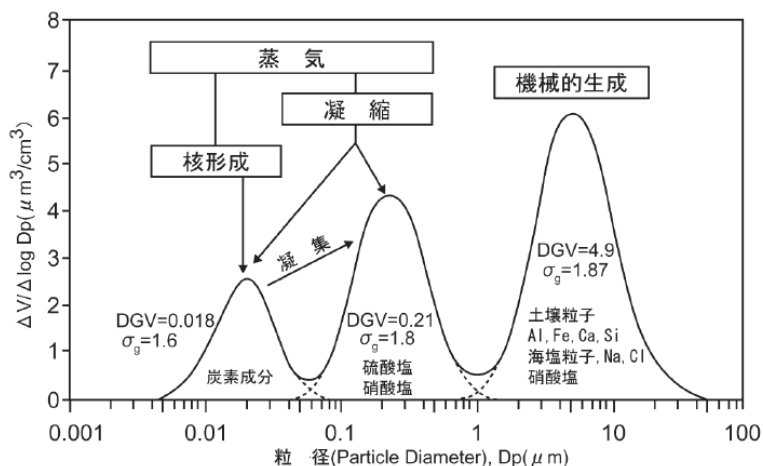


図 3.40 大気粒子の粒径分布および代表的な組成例 (出典: [87] (Whitby (1978) [88]) に基づき作図)

小さくなった可能性も考えられる。

カスケードインパクトで分級できる最小粒径は、流速等にもよるが $0.4 \mu\text{m}$ 程度であり、それよりも微小な粒子については本研究では把握できない。飯野ら[89]は仮設焼却炉においてサイクロンで $10 \mu\text{m}$ 以上の粒子を除いたバグフィルタ入口排ガスについて、高温用電子式低圧インパクト (ELPI) により $10 \mu\text{m}$ ~ サブミクロンの粒径範囲の粒径別の個数濃度および質量濃度について調べている。ELPI による測定では、バグフィルタ入口の粒子の質量濃度は粒径 $0.22 \sim 0.59 \mu\text{m}$ と $5.6 \mu\text{m}$ 以上にピークを持つ二峰性の粒径部分であった。つまり、カスケードインパクトの最終段ではこのようなサブミクロンの粒子に由来する放射性 Cs がわずかながら存在していると考えられる。飯野ら[89]の調査では、このようなカスケードインパクトで評価が困難なサブミクロンの粒子であっても、バグフィルタによる捕集効率は 99.99%以上であることを示しており、除染廃棄物等を焼却している対策地域内の仮設焼却施設においても飛灰は確実に捕集されていると考えられた。

3.4. 第3章のまとめ

本章では、対策地域内の仮設焼却施設（ストーカ式焼却炉）において放射性 Cs の濃縮・分配挙動および溶出挙動、焼却残渣中や排ガス中での放射性 Cs の存在形態等について調査した。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、焼却対象物の違いが与える影響について比較を行った。得られた主要な知見を以下に示す。

(1) 除染廃棄物の性状

- 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。片づけごみ等と混合処理することで発熱量は高くなり、安定に処理可能となる。
- 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。

(2) 焼却残渣の放射性 Cs 濃度

- 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、以下のような濃度比となった。

| | | | |
|---------|---|-----|--------------------|
| 除染廃棄物 | ➔ | 1.3 | （主灰と飛灰で濃度レベルが近い） |
| 混合廃棄物 | ➔ | 2.4 | （除染廃棄物と家屋解体廃棄物の中間） |
| 家屋解体廃棄物 | ➔ | 4.7 | （一般廃棄物（6.4）に近い） |

(3) 除染廃棄物を焼却した際の放射性 Cs の挙動

- 焼却残渣への放射性 Cs 濃縮率（除染廃棄物に対する焼却残渣の放射性 Cs 濃度）は、主灰へは 2～9 倍、飛灰へは 5～12 倍であった。
- 除染廃棄物のみを焼却すると、放射性 Cs の分配率は、約 80%の放射性 Cs が主灰へと分配された。
- 飛灰からの放射性 Cs 溶出率は、1%未満～42%と低いことがわかった。溶出率が変動する理由として、除染廃棄物の塩素（Cl）含有量の違いが考えられた。
- 除染廃棄物は一般廃棄物とは焼却過程における放射性 Cs の挙動が大きく異なることが、本研究により初めて明らかにされた。

(4) 家屋解体廃棄物を焼却した際の放射性 Cs の挙動

- 焼却残渣の発生量が少なく、放射性 Cs 濃縮率が高いことがわかった（飛灰への濃縮率は約 20 倍）
- 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、焼却前の家屋解体廃棄物や主灰からの放射性 Cs 溶出率も、それぞれ最大 12%、1.3%と比較的低かった。
- 濃縮率や溶出率が高い理由は、一般廃棄物と性状が似ており、第 2 章で述べたよ

うに、放射性 Cs の CsCl ガスの生成量が多いためと考えられる。

(5) 飛灰中の放射性 Cs の存在形態

- 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た。
- 難溶性の放射性 Cs 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とわかった。

(6) 主灰中の放射性 Cs の存在形態

- 電子顕微鏡 (SEM-EDS/EBSD) 等による分析から、焼却過程に部分的に生じる熔融相に放射性 Cs が特異的に濃集することが観察され、これが放射性 Cs の主な存在形態である可能性が示唆された。
- 放射性 Cs 濃集粒子の特徴は、焼却対象物の違いによる差異は見られなかった。

(7) 排ガス中の放射性 Cs の挙動

- 一般廃棄物焼却のばいじんの粒子径分布 (粒子径が 0.1 ~ 1 μm 間と 10 μm 前後にピークがある二峰性) と比べると、除染廃棄物焼却のばいじんの粒子径分布は 10 μm 前後の粒子径を有する粒子の割合が多かった。0.1 ~ 1 μm の粒子径 (凝集物由来) が少ない理由として、アルカリ塩化物ガスの生成が少なく凝集量が少ないことが考えられ、一方、10 μm 前後の粒子径 (機械的生成由来) が多い理由は土壤細粒分が多かったと推定される。
- いずれの調査でも煙突部では放射性 Cs は検出されず、焼却対象物の違いによらずバグフィルタは排ガス中に含まれる放射性 Cs に対して高い除去率 (99.99%以上) を有することが確認できた。

第3章の参考文献

- [1] 環境省 HP, 放射性物質汚染廃棄物処理情報サイト, 福島県における取組み, 対策地域内廃棄物処理の取組みについて (http://shiteihaiki.env.go.jp/initiatives_fukushima/waste_disposal/) (2017年12月25日閲覧).
- [2] 環境省 HP, 相馬市及び新地町の災害廃棄物の国による代行処理 (http://www.env.go.jp/jishin/waste/daiko_soma_shinchi.html)
- [3] 環境省 HP, 広野町の災害廃棄物の国による代行処理 (http://www.env.go.jp/jishin/waste/daiko_hirono.html) (2017年12月25日閲覧).
- [4] 環境省 HP, 南相馬市の災害廃棄物の国による代行処理 (http://www.env.go.jp/jishin/waste/daiko_minamisoma.html) (2017年12月25日閲覧).
- [5] 伊達地方衛生処理組合 HP, 仮設焼却炉施 (http://www.date-eisei.jp/?page_id=2839) (2017年12月25日閲覧).
- [6] 環境省 HP, 放射性物質汚染廃棄物処理情報サイト, 福島県内の指定廃棄物について (http://shiteihaiki.env.go.jp/initiatives_fukushima/specified_waste/) (2017年12月25日閲覧).
- [7] 福島県 HP, ふくしま復興ステーション, 放射性物質を含む下水汚泥の処理 (<http://www.pref.fukushima.lg.jp/site/portal/23-1.html>) (2017年12月25日閲覧).
- [8] 環境省 HP, 福島地方環境事務所, 調達情報, ①平成29年度双葉町減容化施設(中間貯蔵施設)における廃棄物処理その1業務②平成29年度双葉町減容化施設(中間貯蔵施設)における廃棄物処理その2業務, 要求水準書等, http://fukushima.env.go.jp/procure/02_03_1.000076280.pdf%20.pdf (2018年1月14日閲覧)
- [9] Parajuli, D., Tanaka, H., Hakuta, Y., Minami, K., Fukuda, S., Umeoka, K., Kawamoto, T., 2013. Dealing with the aftermath of Fukushima Daiichi nuclear accident: decontamination of radioactive cesium enriched ash. Environ. Sci. Technol. 47 (8), 3800-3806. <https://doi.org/10.1021/es303467n>
- [10] 肴倉宏史, 石森洋行, 2013. 廃棄物等からの放射性セシウムの溶出特性と溶出試験. 廃棄物資源循環学会誌, 24 (4), 274-280.
- [11] Tsushima, I., Ogoshi, M., Harada, I., 2013. Leachate tests with sewage sludge contaminated by radioactive cesium. J. Environ. Sci. Health, Part A: Toxic/Hazard. Subst. Environ. Eng. 48 (13), 1717-1722. <https://doi.org/10.1080/10934529.2013.815538>
- [12] 石川奈緒, 伊藤歩, 海田輝之, 2014. 埋立処分される下水汚泥焼却灰からの Cs および Sr の溶出特性. 日本原子力学会和文論文誌. 13 (3). 87-93. <https://doi.org/10.3327/taesj.J13.021>

- [13] 川本克也, 水原詞治, 福島正明, 田野崎隆雄, 竹内幸生, 2013. 放射性物質を含む一般廃棄物の実焼却施設における焼却特性. 環境工学総合シンポジウム講演論文集. 23, 130-132.
- [14] 原田健一, 倉持秀敏, 八巻徹, 2014. 放射性物質に汚染された牧草の焼却実証事業について (事例報告). 都市清掃. 67 (319), 270-276.
- [15] 環境省 HP, 中間貯蔵施設情報サイト, 最終処分に向けた取組み, 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 (http://josen.env.go.jp/chukanchozou/facility/effort/investigative_commission/) (2018年1月14日閲覧)
- [16] 野田康一, 倉持秀敏, 大迫政浩, 伊藤浩平, 鈴木浩, 吉本雄一, 吉元直子, 永田俊美, 越田仁, 2017. シャフト式ガス化熔融施設における放射性 Cs の挙動と Cs 揮発促進剤の添加効果. 第 28 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演集, 349-350. https://doi.org/10.14912/jsmewm.28.0_349
- [17] 厚生労働省, 2015. 電離放射線障害防止規則 (1972 年労働省令第 41 号) の一部を改正する省令 (厚生労働省令第 134 号).
- [18] 環境省, 1977. 一般廃棄物処理事業に対する指導に伴う留意事項について (昭和 52 年 11 月 4 日), 環整 95 号, 平成 2 年 2 月 1 日改定 衛環 22 号.
- [19] 日本工業規格, 2003. JIS M 8814 石炭類及びコークス類—ボンブ熱量計による総発熱量の測定方法及び真発熱量の計算方法.
- [20] 日本工業規格, 2005. JIS K 0058-1 スラグ類の化学物質試験方法—第 1 部: 溶出量試験方法.
- [21] Tessier, A., Campbell, P. G. C., Bisson, M., 1979. Sequential Extraction Procedure for the Speciation of Particulate Trace Metals. Anal. Chem. 51, 844-851. <http://dx.doi.org/10.1021/ac50043a017>
- [22] 高岡昌輝, 蔵本康宏, 武田信生, 藤原健史, 2001. 逐次抽出法による飛灰中亜鉛、鉛、銅およびカドミウムの化学形態推定. 土木学会論文集, 685, 79-90. https://doi.org/10.2208/jscej.2001.685_79
- [23] 中井泉, 泉富士夫, 2009. 粉末 X 線回折の実際 第 2 版. 朝倉書店, p.65.
- [24] 環境省, 2017. 廃棄物処理技術情報 一般廃棄物処理実態調査結果 (http://www.env.go.jp/recycle/waste_tech/ippan/h25/data/seibi/facility/01.xls) (2018 年 1 月 14 日閲覧)
- [25] 全国都市清掃会議, 2017. ごみ処理施設整備の計画・設計要領 2017 改訂版.
- [26] Tanner, V. R., 1965. Die Entwicklung der Von-Roll-Müllverbrennungsanlagen (The development of the Von-Roll incinerators). Schweiz Bauzeitung 83 (6), 251-260. <http://dx.doi.org/10.5169/seals-68135> (in German).

- [27] 仮設焼却炉検討会, 2017. 災害廃棄物処理における仮設焼却炉の実績と課題 (東日本大震災時の岩手県・宮城県における実績) 平成 29 年 5 月, <http://www.iesc.or.jp/library/tabid/318/Default.aspx> (2018 年 1 月 14 日閲覧)
- [28] 廃棄物資源循環学会 学術研究委員会 廃棄物焼却研究部会, 2013. 災害廃棄物の焼却処理. 第 24 回廃棄物資源循環学会研究発表会 企画セッション資料, <http://jsmewm.or.jp/mswi/files/2013/11/201311.pdf> (2018 年 1 月 14 日閲覧)
- [29] Mukai, H., Hatta, T., Kitazawa, H., Yamada, H., Yaita, T., Kogure, T., 2014. Speciation of radioactive soil particles in the Fukushima contaminated area by IP autoradiography and microanalyses. *Environ. Sci. Technol.* 48 (22), 13053-13059. <https://doi.org/10.1021/es502849e>
- [30] Saito, T., Makino, H., Tanaka, S., 2014. Geochemical and grain-size distribution of radioactive and stable cesium in Fukushima soils: implications for their long-term behavior. *J. Environ. Radioact.* 138, 11-18. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2014.07.025>
- [31] 伊藤健一, 宮原英隆, 氏家亨, 武島俊達, 横山信吾, 中田弘太郎, 永野哲志, 佐藤努, 八田珠郎, 山田裕久, 2012. 湿式分級洗浄および天然鉱物等による農地土壌等に含まれる放射性セシウム除去方法の実践的検討. *日本原子力学会和文論文誌*, 11 (4), 255-271. <https://doi.org/10.3327/taesj.J12.010>
- [32] 鈴木隆央, 藤原大, 竹内幸生, 千村和彦, 山本貴士, 倉持秀敏, 大迫政浩, 2018. 稲わらの放射性セシウム濃度測定における測定誤差に関する検討. *環境放射能除染学会誌*, 6 (1), 25-35.
- [33] 日本原子力研究開発機構, 2011. 土壌の原位置加熱による放射性セシウムの除去可能性の検討. *JAEA-Research 2011-026*. <http://dx.doi.org/10.11484/jaea-research-2011-026>
- [34] 倉持秀敏, 2014. 事故由来放射性物質汚染廃棄物の熱処理に関するこれまでの研究成果, *環境放射能除染学会誌*, 2 (2), 71-84.
- [35] 山本貴士, 埴章, 竹内幸生, 滝上英孝, 大迫政浩, 貴田晶子, 2014. 焼却灰試料中の放射性ストロンチウムの簡易測定法に関する検討. *環境放射能除染学会誌*, 2 (4), 263-269.
- [36] 環境省, 2012. 福島県内の焼却施設における放射性ストロンチウム及びプルトニウムの核種分析の結果について, 第 13 回災害廃棄物安全評価検討会参考資料 4 (https://www.env.go.jp/jishin/attach/haikihyouka_kentokai/13-mat_6.pdf) (2018 年 1 月 14 日閲覧).
- [37] 山本貴士, 竹内幸生, 大迫政浩, 2015. 焼却灰中放射性ストロンチウム濃度の測定. 第 26 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演集. 391-392. https://doi.org/10.14912/jsmewm.26.0_391

- [38] 国立環境研究所, 2016. H27 災害環境研究成果報告書 (第 2 編 環境回復研究 1), (http://www.nies.go.jp/fukushima/jqjm1000000a5gqu-att/H27_saigai_report-2.pdf) (2018 年 1 月 14 日閲覧)
- [39] Jung, C. H., Osako, M., 2007. Thermodynamic behavior of rare metals in the melting process of municipal solid waste (MSW) incineration residues. *Chemosphere*. 69, 279-288. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2007.03.071>
- [40] 肴倉宏史, 小口正弘, 寺園淳, 2010. 焼却・溶融実処理プロセスにおける希少金属等 54 元素の分配と変動. 第 21 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演要旨集. 407-408. <https://doi.org/10.14912/jsmewm.21.0.198.0>
- [41] Sekito, T., Dote, Y., Onoue, K., Sakanakura, H., Nakamura, K., 2014. Characteristics of element distributions in an MSW ash melting treatment system. *Waste Manage.* 34, 1637-1643. <http://dx.doi.org/10.1016/j.wasman.2014.04.009>
- [42] 肴倉宏史, 由井和子, 倉持秀敏, 成岡朋宏, 門木秀幸, 2016. ストーカ式都市ごみ焼却施設における各焼却残渣への金属分配挙動調査. 第 37 回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集. 245-247.
- [43] Fujimori, E., Minamoto, K., Iwata, S., Chiba, K., Haraguchi, H., 2004. Enrichment of elements in industrial waste incineration bottom ashes obtained from three different types of incinerators, as studied by ICP-AES and ICP-MS. *J. Mater. Cycles Waste Manage.* 6 (1), 73-79. <https://doi.org/10.1007/s10163-003-0106-6>
- [44] Kida, A., Noma, Y., Imada, T., 1996. Chemical speciation and leaching properties of elements in municipal incinerator ashes. *Waste Manage.* 16, 527-536. [https://doi.org/10.1016/S0956-053X\(96\)00094-3](https://doi.org/10.1016/S0956-053X(96)00094-3)
- [45] Haynes, W. M., 2013. *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, 94th ed. CRC Press, Boca Ranton, FL, pp. 4-47,4-92.
- [46] 野村和孝, 倉持秀敏, 藤原大, 大迫政浩, 2015. 除染廃棄物の焼却処理における放射性 Cs の挙動に関する基礎的検討. 第 4 回環境放射能除染研究発表会 要旨集, 94.
- [47] Kozai, N., Ohnuki, T., Arisaka, M., Watanabe, M., Sakamoto, F., Yamasaki, S., Jiang, M., 2012. Chemical states of fallout radioactive Cs in the soils deposited at Fukushima Daiichi nuclear power plant accident. *J. Nucl. Sci. Technol.* 49 (5), 473-478. <https://doi.org/10.1080/00223131.2012.677131>
- [48] Motai, S., Mukai, H., Watanuki, T., Ohwada, K., Fukuda, T., Machida, A., Kuramata, C., Kikuchi, R., Yaita, T., Kogure, T., 2016. Mineralogical characterization of radioactive particles from Fukushima soil using μ -XRD with synchrotron radiation. *J. Mineral. Petrol. Sci.* 111 (5), 305-312. <https://doi.org/10.2465/jmps.150722>

- [49] Qin, H., Yokoyama, Y., Fan, Q., Iwatani, H., Tanaka, K., Sakaguchi, A., Kanai, Y., Zhu, J., Onda, Y., Takahashi, Y., 2012. Investigation of cesium adsorption on soil and sediment samples from Fukushima Prefecture by sequential extraction and EXAFS technique. *Geochem. J.* 46 (4), 297-302. <https://doi.org/10.2343/geochemj.2.0214>
- [50] Chandler, A. J., Eighmy, T. T., Hjelmar, O., Kosson, D. S., Sawell, S. E., Vehlow, J., Sloat, H. A., Hartlén, J., 1997. *Municipal Solid Waste Incinerator Residues*. Elsevier, Amsterdam.
- [51] Eusden, J. D., Eighmy, T. T., Hockert, K., Holland, E., Marsellaa, K., 1999. Petrogenesis of municipal solid waste combustion bottom ash. *Appl. Geochem.* 14 (8), 1073-1091. [https://doi.org/10.1016/S0883-2927\(99\)00005-0](https://doi.org/10.1016/S0883-2927(99)00005-0)
- [52] Inkaew, K., Saffarzadeh, A., Shimaoka, T., 2016. Modeling the formation of the quench product in municipal solid waste incineration (MSWI) bottom ash. *Waste Manage.* 52, 159-168. <https://doi.org/10.1016/j.wasman.2016.03.019>
- [53] Saffarzadeh, A., Arumugam, N., Shimaoka, T., 2016. Aluminum and aluminum alloys in municipal solid waste incineration (MSWI) bottom ash: A potential source for the production of hydrogen gas. *Int. J. Hydrogen Energy* 41, 820-831. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2015.11.059>
- [54] Speiser, C., Baumann, T., Niessner, R., 2000. Morphological and Chemical Characterization of Calcium-Hydrate Phases Formed in Alteration Processes of Deposited Municipal Solid Waste Incinerator Bottom Ash. *Environ. Sci. Technol.* 34, 5030-5037. <https://doi.org/10.1021/es990739c>
- [55] Yang, S., Saffarzadeh, A., Shimaoka, T., Kawano, T. 2014. Existence of Cl in municipal solid waste incineration bottom ash and dechlorination effect of thermal treatment. *J. Hazard. Mater.* 267, 214-220. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2013.12.045>
- [56] Bogush, A., Stegemann, J. A., Wood, I., Roy, A., 2015. Element composition and mineralogical characterisation of air pollution control residue from UK energy-from-waste facilities. *Waste Manage.* 36, 119-129. <https://doi.org/10.1016/j.wasman.2014.11.017>
- [57] Hartmann, S., Koval', S., Škrobánková, H., Matýsek, D., Winter, F., Purgar, A., 2015. Possibilities of municipal solid waste incinerator fly ash utilization. *Waste Manage. Res.* 33 (8), 740-747. <https://doi.org/10.1177/0734242X15587545>
- [58] Kitamura, H., Sawada, T., Shimaoka, T., Takahashi, F., 2016. Geochemically structural characteristics of municipal solid waste incineration fly ash particles

- and mineralogical surface conversions by chelate treatment. *Environ Sci Pollut Res.* 23, 734-743. <https://doi.org/10.1007/s11356-015-5229-5>
- [59] Quina, M. J., Santos R. C., Bordado, J. C., Quinta-Ferreira, R. M., 2008. Characterization of air pollution control residues produced in a municipal solid waste incinerator in Portugal. *J. Hazard. Mater.* 152, 853-869. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2007.07.055>
- [60] Weibel, G., Eggenberger, U., Schlumberger S., Mäder, U. K., 2017. Chemical associations and mobilization of heavy metals in fly ash from municipal solid waste incineration. *Waste Manage.* 62, 147-159. <https://doi.org/10.1016/j.wasman.2016.12.004>
- [61] 松藤敏彦, 黄仁姫, 2012. 一般廃棄物焼却施設の物質収支・エネルギー消費・コスト算出モデルの作成 (K22006, K2323) 平成 23 年度環境研究総合推進費補助金研究事業研究報告書 (https://www.env.go.jp/policy/kenkyu/suishin/kadai/syuryo_report/pdf/K2323.pdf) (2018 年 1 月 14 日閲覧).
- [62] Jiao, F., Zhang, L., Dong, Z., Namioka T., Yamada N., Ninomiya, Y., 2016a. Study on the species of heavy metals in MSW incineration fly ash and their leaching behavior. *Fuel Process. Technol.* 152, 108-115. <https://doi.org/10.1016/j.fuproc.2016.06.013>
- [63] Mu, Y., Saffarzadeh A., Shimaoka T., 2017. Influence of ignition process on mineral phase transformation in municipal solid waste incineration. *Waste Manage.* 59, 222-228. <https://doi.org/10.1016/j.wasman.2016.09.028>
- [64] Zhu, F., Takaoka, M., Shiota, K., Oshita, K., Kitajima, Y., 2008. Chloride chemical form in various types of fly ash. *Environ. Sci. Technol.* 42, 3932-3937. <https://doi.org/10.1021/es7031168>
- [65] Linke, W. F., 2002. *Solubilities: Inorganic and Metal-Organic Compounds; A Compilation of Solubility Data from the Periodical Literature. Edition 4, Volume 1, Pt.2; UMI: Michigan, pp 880.*
- [66] Doudart de la Grée, G.C.H., Florea, M.V.A., Keulen A., Brouwers, H.J.H. 2016. Contaminated biomass fly ashes – Characterization and treatment optimization for reuse as building materials. *Waste Manage.* 49, 96-109. <https://doi.org/10.1016/j.wasman.2015.12.023>
- [67] Misra, M. K., Ragland, K. W., Baker, A. J. 1993. Wood ash composition as a function of furnace temperature. *Biomass Bioenergy.* 4 (2), 103-116. [https://doi.org/10.1016/0961-9534\(93\)90032-Y](https://doi.org/10.1016/0961-9534(93)90032-Y)
- [68] Pöykiö, R., Rönkkömäki, H., Nurmesniemi, H., Perämäki, P., Popov, K., Välimäki, I., Tuomi, T. 2009. Chemical and physical properties of cyclone fly ash from the

- grate-fired boiler incinerating forest residues at a small municipal district heating plant (6 MW). *J. Hazard. Mater.* 162, 1059-1064. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2008.05.140>
- [69] 環境省, 1998. 廃棄物処理施設整備国庫補助事業に係るごみ処理施設の性能に関する指針について, 生衛発 1572 号.
- [70] Burger, L. L., 1995. A chemical basis for the partitioning of radionuclides in incinerator operation, PNL-10364, US-DOE (Department of Energy).
- [71] Yang, H. C., Eun, H. C., Lee, D. G., Oh, W. Z., Lee, K. W., 2005. Behavior of radioactive elements during thermal treatment of nuclear graphite waste thermodynamic model analysis. *J. Nucl. Sci. Technol.* 42 (10), 869-876. <https://doi.org/10.1080/18811248.2005.9711038>
- [72] Yoo, J. I., Shinagawa, T., Wood, J. P., Linak, W. P., Santoianni, D. A., King, C. J., Seo, Y. C., Wendt, J. O. L., 2005. High-temperature sorption of cesium and strontium on dispersed kaolinite powders. *Environ. Sci. Technol.* 39, 5087-5094. <https://doi.org/10.1021/es048064n>
- [73] Kuramochi, H., Fujiwara, H., Yui, K., 2016. Behavior of Radioactive Cesium during Thermal Treatment of Radioactively Contaminated Wastes in the Aftermath of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident. *Global. Environ. Res.* 20, 91-100.
- [74] 小暮敏博, 立川純, 2002. 電子線後方散乱回折(EBSD)の鉱物学への応用. *岩石鉱物科学.* 31, 275-382. <https://doi.org/10.2465/gkk.31.275>
- [75] 高橋晴香, 山田一夫. 2012. ASR 抑制効果を支配するフライアッシュキャラクターの SEM-EDS/EBSD による解析. *コンクリート工学論文集.* 23 (1), 1-11.
- [76] Rasband, W.S., ImageJ, U. S. National Institutes of Health, Bethesda, Maryland, USA, <http://rsb.info.nih.gov/ij/>, 1997-2012.
- [77] 田村和樹, 東條安匡, 松尾孝之, 松藤敏彦, 2016. セシウムを表面に特異的に濃集する焼却主灰粒子の鉱物種の同定. 第 27 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演集. 461-462. https://doi.org/10.14912/jsmewm.27.0_461
- [78] Saffarzadeh, A., Shimaoka, T., Kakuta, Y. Kawano, T., 2014. Cesium distribution and phases in proxy experiments on the incineration of radioactively contaminated waste from the Fukushima area. *J. Environ. Radioact.* 136, 76-84. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2014.05.009>
- [79] 国土交通省 HP, 国土調査, 20 万分の 1 土地分類基本調査 (表層地質図 (平面的分類図)) 「福島県」経済企画庁, 昭和 47 年, (<http://nr-www.mlit.go.jp/kokjo/inspect/landclassification/land/20-1/07.html>) (2018 年 1 月 14 日閲覧).

- [80] 蟹澤聰史, 相田優, 2013. 福島県の地質. 大地 (東北地質調査業協会 協会誌). 53, 3-26. (<http://www.tohoku-geo.ne.jp/information/daichi/img/53/03.pdf>) (2018年1月14日閲覧).
- [81] 環境省, 2013. 廃棄物関係ガイドライン 第5部 放射能濃度等測定方法ガイドライン (http://www.env.go.jp/jishin/rmp/attach/haikibutsu-gl05_ver2.pdf) (2018年1月14日閲覧).
- [82] 日本工業規格, 2013. JIS Z 8808 排ガス中のダスト濃度の測定方法.
- [83] 飯野翔太, 高橋克行, 庄司貴, 鹿島勇治, 小山陽介, 山本貴士, 大迫政浩. 2017. 粒子個数濃度測定による焼却排ガス中の放射性セシウム濃度測定方法の検証. 第28回廃棄物資源循環学会研究発表会講演集. 359-360. https://doi.org/10.14912/jsmewm.28.0_359
- [84] 日本工業規格, 1989. JIS K 0302 排ガス中のダスト粒径分布の測定方法
- [85] 塩田憲司, 今井玄哉, 高岡昌輝, 木本成, 松井康人, 大下和徹, 水野忠雄, 森澤眞輔, 2011. 都市ごみ焼却施設から排出される微小粒子へのダイオキシン類除去対策強化による効果. 大気環境学会誌. (46) 4, 224-232.
- [86] 高岡昌輝, 2013. 廃棄物焼却施設における排ガス中放射性物質の測定. 廃棄物資源循環学会誌. 24 (4), 258-266.
- [87] 環境省, 2009. 中央環境審議会大気環境部会微小粒子状物質環境基準専門委員会 (第2回), 資料 2-1, 粒子状物質の特性について. (www.env.go.jp/council/former2013/07air/y078-02/mat02-1.pdf)
- [88] Whitby, K. T., 1978. The physical characteristics of sulfur aerosols. 1978 Atmos. Environ. 12 (1-3), 135-159. [https://doi.org/10.1016/0004-6981\(78\)90196-8](https://doi.org/10.1016/0004-6981(78)90196-8).
- [89] 飯野翔太, 高橋克行, 庄司貴, 鹿島勇治, 小山陽介, 山本貴士, 大迫政浩. 2017. 高温用電子式低圧インパクタによる仮設減容化施設における煙道内排ガスの粒径別個数濃度および質量濃度測定. 第28回廃棄物資源循環学会研究発表会講演集. 361-362. https://doi.org/10.14912/jsmewm.28.0_351

第3章の付録

付録表 3.1 試料採取方法 (1)

| | 施設A | 施設B | 施設C | 施設D |
|----------|--|--|--|---|
| 焼却対象物 | ストックヤードで複数点から採取 | クレーンで取出し、四分法で縮分 | ストックヤードで四分法で縮分 | ストックヤードで複数点から採取 |
| 主灰 (原灰) | 焼却炉から排出された主灰は空冷された後に磁選機および振動スクリーンによる異物除去後にサイロに貯留される。 サイロの上部で半円状のノズルを挿入して採取したものを、主灰(原灰)とした。 | 焼却炉から排出された主灰は水冷された後に振動スクリーンによる異物除去後にコンテナに排出される。 コンテナの中の主灰の山の上部から柄杓で採取したものを主灰(原灰)とした。 | 焼却炉から排出された主灰は空冷された後に磁選機および振動スクリーンによる異物除去後にサイロに貯留される。 サイロの上部で半円状のノズルを挿入して採取したものを主灰(原灰)とした。 | 焼却炉から排出された主灰は空冷された後に磁選機および振動スクリーンによる異物除去後にサイロに貯留される。 サイロの上部で半円状のノズルを挿入して採取したものを、主灰(原灰)とした。 |
| 主灰 (処理灰) | サイロに貯留された主灰(原灰)は加湿後にフレコンに封入され、搬出される。 フレコン表面の中央と四隅の5点より同じ袋に採取したものを主灰(処理灰)とした。 ※サイロでは約1日滞留するため、翌日に採取した。 | コンテナに排出された主灰(原灰)は、ヤードで数日保管して水分を除いた後に磁選機および振動スクリーン等による異物除去を行い、加湿後にフレコンに封入され、搬出される。 フレコン表面の中央と四隅の5点より同じ袋に採取したものを主灰(処理灰)とした。 ※Run9および10ではヤードでの保管期間を短縮したため水分が多く、加湿は行わなかった。 | サイロに貯留された主灰(原灰)は加湿後にフレコンに封入され、搬出される。 フレコン表面の中央と四隅の5点より同じ袋に採取したものを主灰(処理灰)とした。 | サイロに貯留された主灰(原灰)は加湿後にフレコンに封入され、搬出される。 フレコン表面の中央と四隅の5点より同じ袋に採取したものを主灰(処理灰)とした。 |
| ガス冷灰 | ガス冷却塔下の移送コンベア上にて、サイクロン式掃除機で灰を吸引して、サイクロン式掃除機内の灰を採取した | ガス冷却灰はガス冷却室下のベルトコンベアにより、主灰(原灰)と同じコンテナに排出されるため、試験開始前にコンベアを清掃し、コンベア上に付着したのもしくはコンベアから落下したものをバットで受けたのち柄杓で採取した。 | (採取せず) | ガス冷却塔下の移送コンベア上にて、サイクロン式掃除機で灰を吸引して、サイクロン式掃除機内の灰を採取した |

付録表 3.1 試料採取方法 (2)

| | 施設A | 施設B | 施設C | 施設D |
|----------|---|--|---|--|
| 予熱器灰 | <p>燃焼用空気予熱器下の移送コンベア上にて、サイクロン式掃除機で灰を吸引して、サイクロン式掃除機内の灰を採取した</p> | (存在せず) | (採取せず) | (存在せず) |
| バグフィルタ灰 | <p>NO.1バグフィルタ下の移送コンベア上にて、サイクロン式掃除機で灰を吸引して、サイクロン式掃除機内の灰を採取した</p> | (採取せず) | (採取せず) | <p>NO.1バグフィルタ下の移送スクリー出口にて、サイクロン式掃除機で灰を吸引して、サイクロン式掃除機内の灰を採取した</p> |
| 飛灰 (原灰) | <p>燃焼用空気予熱器、ガス冷却塔、NO.1バグフィルタおよびNO.2バグフィルタから排出されたものがコンベアで合流した後にサイロに貯留される。サイロの上部で半円状のノズルを挿入して採取したものを飛灰(原灰)とした。 (排ガス処理薬剤の消石灰および活性炭も含む)</p> | <p>NO.1バグフィルタおよびNO.2バグフィルタから排出されたものがコンベアで合流した後にサイロに貯留される。サイロの下部のシュート部で柄杓でうけて採取したものを飛灰(原灰)とした。 (排ガス処理薬剤の消石灰および活性炭も含む)</p> | <p>ガス冷却塔、燃焼用空気予熱器、減温用熱交換器、NO.1バグフィルタおよびNO.2バグフィルタから排出されたものがコンベアで合流した後にサイロに貯留される。サイロの上部で半円状のノズルを挿入して採取したものを飛灰(原灰)とした。 (排ガス処理薬剤の消石灰および活性炭も含む)</p> | <p>ガス冷却塔、NO.1バグフィルタおよびNO.2バグフィルタから排出されたものがコンベアで合流した後にサイロに貯留される。サイロの上部で半円状のノズルを挿入して採取したものを飛灰(原灰)とした。 (排ガス処理薬剤の消石灰および活性炭も含む)</p> |
| 飛灰 (処理灰) | <p>サイロに貯留された飛灰(原灰)はキレート薬剤および水が添加された後にフレコンに封入され、搬出される。フレコン表面の中央と四隅の5点より同じ袋に採取したものを飛灰(処理灰)とした。</p> | <p>サイロに貯留された飛灰(原灰)はキレート薬剤および水が添加された後にフレコンに封入され、搬出される。フレコン表面の中央と四隅の5点より同じ袋に採取したものを飛灰(処理灰)とした。</p> | <p>サイロに貯留された飛灰(原灰)はキレート薬剤および水が添加された後にフレコンに封入され、搬出される。フレコン表面の中央と四隅の5点より同じ袋に採取したものを飛灰(処理灰)とした。</p> | <p>サイロに貯留された飛灰(原灰)はキレート薬剤および水が添加された後にフレコンに封入され、搬出される。フレコン表面の中央と四隅の5点より同じ袋に採取したものを飛灰(処理灰)とした。</p> |

付録表 3.2 焼却残渣等の発生量の算出方法

| 焼却対象物 <湿基準> | 月報値 | 月報値 | 月報値 | 月報値 |
|------------------|----------------------------------|--|----------------------------------|----------------------------------|
| 主灰(原灰) <乾基準> | 主灰(処理灰)発生量から、主灰(処理灰)の含水率を補正して算出 | 主灰(処理灰)発生量から、主灰(処理灰)の含水率およびガス冷灰発生量を補正して算出 | 主灰(処理灰)発生量から、主灰(処理灰)の含水率を補正して算出 | 主灰(処理灰)発生量から、主灰(処理灰)の含水率を補正して算出 |
| 主灰(処理灰) <湿基準> | 月報値 | ・Run1-8：月報値 ・Run9-10：トラックスケールで計量 | 月報値 | 月報値 |
| ガス冷灰 | (計量できず) | ガス冷灰の単位時間当たりの発生割合を計量し、含水率を補正して算出 計量はRun4, Run8, Run9, 10でのみ実施し、Run1-6ではRun4、Run7-8ではRun8、Run9-10ではRun9-10(平均値)の発生割合を使用。 | (採取せず) | (計量できず) |
| 予熱器灰 | (計量できず) | (存在せず) | (採取せず) | (存在せず) |
| バグフィルタ灰 | (計量できず) | (採取せず) | (採取せず) | (計量できず) |
| 飛灰(原灰) <乾基準> | 飛灰(処理灰)の発生量から、飛灰(処理灰)の含水率を補正して算出 | 飛灰サイロの日報データから「(当日24時の飛灰サイロ重量)-(当日1時のサイロ重量)+(当日のサイロ通過重量)」として算出 | 飛灰(処理灰)の発生量から、飛灰(処理灰)の含水率を補正して算出 | 飛灰(処理灰)の発生量から、飛灰(処理灰)の含水率を補正して算出 |
| 飛灰(処理灰) <湿基準> | 月報値 | (算出せず) | 月報値 | 月報値 |

付録表 3.3 放射性 Cs 溶出試験結果の詳細 (1)

| 試料 | n 数 | 溶出濃度 (Bq/L) | | | 放射性Cs溶出率 (%) | | | pH | EC (mS/m) |
|------------|--------|-------------|-------------|-------------|--------------|-------------|-------------|------|--------------|
| | | Cs-134 | Cs-137 | T-Cs | Cs-134 | Cs-137 | T-Cs | | |
| 焼却対象物(除染) | 3 | * 1.5 | 6.9 (0.54) | * 8.4 | * 0.13 | 0.14 (0.54) | * 0.14 | 6.2 | 69 |
| R 主灰 (原灰) | 3 | * 1.7 | * 2.3 | * 4.0 | * 0.11 | * 0.04 | * 0.05 | 10.9 | 36 |
| u 主灰 (処理灰) | 3 | <1.3 | * 2.1 | <3.5 | <0.09 | * 0.04 | <0.05 | 10.6 | 20 |
| n 予熱器灰 | 1 | 2.5 | 12 | 14 | 0.11 | 0.13 | 0.12 | 11.2 | 77 |
| 1 ガス冷灰 | 1 | 9.3 | 40 | 49 | 0.34 | 0.37 | 0.36 | 12.3 | 630 |
| 集じん灰 | 1 | 14 | 67 | 81 | 0.59 | 0.71 | 0.69 | 11.2 | 110 |
| 飛灰 (原灰) | 3 | 15 (0.21) | 60 (0.17) | 75 (0.18) | 0.75 (0.19) | 0.74 (0.15) | 0.75 (0.16) | 12.2 | 960 |
| 飛灰 (処理灰) | 3 | 395 (0.33) | 1564 (0.31) | 1959 (0.31) | 18.5 (0.33) | 18.3 (0.31) | 18.3 (0.31) | 12.3 | 730 |
| 焼却対象物(除染) | 3 | 1.9 (0.19) | 6.7 (0.05) | 8.6 (0.02) | 0.20 (0.19) | 0.18 (0.05) | 0.19 (0.02) | 6.6 | 60 |
| R 主灰 (原灰) | 3 | <0.95 | 1.9 (0.14) | <2.8 | <0.06 | 0.03 (0.14) | <0.04 | 10.9 | 32 |
| u 主灰 (処理灰) | 1 | <2.7 | 3.5 | <6.2 | <0.13 | 0.04 | <0.06 | 10.9 | 90 |
| n 予熱器灰 | 1 | 2.4 | 11 | 14 | 0.12 | 0.15 | 0.14 | 11.2 | 110 |
| 2 ガス冷灰 | 1 | 9.3 | 37 | 46 | 0.40 | 0.39 | 0.39 | 12.3 | 750 |
| 集じん灰 | 1 | 11 | 42 | 53 | 0.51 | 0.48 | 0.49 | 12.3 | 850 |
| 飛灰 (原灰) | 3 | 11 (0.08) | 47 (0.04) | 58 (0.05) | 0.59 (0.08) | 0.61 (0.04) | 0.61 (0.05) | 12.4 | 967 |
| 飛灰 (処理灰) | 3 | 345 (0.36) | 1359 (0.35) | 1704 (0.35) | 17.9 (0.37) | 18.1 (0.35) | 18.0 (0.36) | 12.3 | 737 |
| 焼却対象物(混合) | 1 | <1.7 | 2.4 | <4.0 | <0.25 | 0.08 | <0.11 | 6.6 | 90 |
| R 主灰 (原灰) | 3 | <0.73 | 1.6 (0.20) | <2.4 | <0.10 | 0.05 (0.20) | <0.06 | 10.8 | 24 |
| u 主灰 (処理灰) | - | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. |
| n 予熱器灰 | 2 | 160 (0.00) | 670 (0.04) | 830 (0.03) | 10.9 (0.00) | 10.9 (0.04) | 10.9 (0.03) | 12.1 | 1756 |
| 3 ガス冷灰 | 2 | 48 (0.34) | 217 (0.29) | 265 (0.30) | 3.6 (0.34) | 3.9 (0.29) | 3.8 (0.30) | 12.3 | 1081 |
| 集じん灰 | 2 | 27 (0.11) | 108 (0.03) | 134 (0.05) | 2.0 (0.11) | 1.8 (0.03) | 1.9 (0.05) | 12.0 | 615 |
| 飛灰 (原灰) | 3 | 67 (0.12) | 305 (0.05) | 372 (0.04) | 4.7 (0.12) | 5.0 (0.05) | 4.9 (0.05) | 13.7 | 1460 |
| 飛灰 (処理灰) | 3 | 294 (0.02) | 1263 (0.04) | 1557 (0.03) | 19.4 (0.02) | 19.2 (0.04) | 19.2 (0.03) | 10.4 | 1096 |
| 焼却対象物(混合) | 1 | <0.79 | 2.5 | <3.3 | <0.12 | 0.08 | <0.09 | 6.2 | 8 |
| R 主灰 (原灰) | 3 | * 0.92 | 1.4 (0.52) | * 2.3 | * 0.17 | 0.06 (0.52) | * 0.08 | 10.8 | 19 |
| u 主灰 (処理灰) | - | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. |
| n 予熱器灰 | 2 | 1.2 (0.36) | 4.8 (0.13) | 6.0 (0.17) | 0.08 (0.36) | 0.08 (0.13) | 0.08 (0.17) | 11.4 | 87 |
| 4 ガス冷灰 | 2 | 13 (0.12) | 60 (0.04) | 73 (0.01) | 0.85 (0.12) | 0.96 (0.04) | 0.94 (0.01) | 12.2 | 716 |
| 集じん灰 | 2 | 31 (0.16) | 127 (0.15) | 157 (0.15) | 2.0 (0.15) | 2.0 (0.15) | 2.0 (0.15) | 12.3 | 1061 |
| 飛灰 (原灰) | 3 | 26 (0.06) | 118 (0.03) | 144 (0.03) | 1.9 (0.06) | 2.0 (0.03) | 2.0 (0.03) | 12.4 | 1373 |
| 飛灰 (処理灰) | 3 | 159 (0.02) | 709 (0.01) | 867 (0.02) | 11.1 (0.02) | 10.8 (0.01) | 10.8 (0.02) | 11.4 | 535 |
| 焼却対象物(混合) | 3 | <1.02 | * 1.1 | <2.2 | <3.8 | * 0.74 | <1.2 | 7.1 | 25 |
| R 主灰 (原灰) | 3 | <0.76 | * 0.76 | <1.5 | <0.58 | * 0.09 | <0.16 | 10.9 | 37 |
| u 主灰 (処理灰) | 3 | <0.6 | <0.6 | <1.2 | <0.47 | <0.08 | <0.14 | 10.6 | 20 |
| n 予熱器灰 | 3 | <3.7 | 4.4 (0.08) | <8.1 | <1.4 | 0.30 (0.08) | <0.46 | 11.6 | 124 |
| 5 ガス冷灰 | 3 | 7.8 (0.05) | 47 (0.07) | 55 (0.07) | 2.7 (0.05) | 2.7 (0.07) | 2.7 (0.06) | 11.5 | 331 |
| 集じん灰 | 3 | 4.0 (0.14) | 28 (0.07) | 32 (0.06) | 1.5 (0.14) | 1.8 (0.07) | 1.7 (0.06) | 12.4 | 984 |
| 飛灰 (原灰) | 3 | 5.4 (0.15) | 35 (0.16) | 40 (0.16) | 2.2 (0.15) | 2.5 (0.16) | 2.4 (0.16) | 12.0 | 1038 |
| 飛灰 (処理灰) | 3 | 8.5 (0.09) | 47 (0.06) | 55 (0.06) | 3.9 (0.09) | 3.8 (0.06) | 3.8 (0.06) | 12.2 | 1022 |
| 焼却対象物(混合) | 3 | <0.83 | 1.3 (0.08) | <2.1 | <1.6 (0.22) | 0.40 (0.08) | <0.57 | 7.2 | 31 |
| R 主灰 (原灰) | 3 | <0.86 | * 0.76 | <1.6 | <0.55 | * 0.08 | <0.15 | 11.1 | 38 |
| u 主灰 (処理灰) | 3 | <0.89 | <0.8 | <1.7 | <0.59 | <0.09 | <0.16 | 10.7 | 25 |
| n 予熱器灰 | 3 | <1.5 | 1.8 | <3.3 | <0.53 | 0.11 | <0.17 | 11.2 | 78 |
| 6 ガス冷灰 | 3 | 5.5 (0.08) | 39 (0.01) | 44 (0.01) | 1.7 (0.08) | 2.1 (0.01) | 2.1 (0.01) | 12.0 | 656 |
| 集じん灰 | 3 | <3.1 | 12 | <15. | <0.9 | 0.61 | <0.66 | 12.3 | 976 |
| 飛灰 (原灰) | 3 | 3.5 (0.08) | 22 (0.04) | 25 (0.05) | 1.4 (0.08) | 1.6 (0.04) | 1.6 (0.06) | 12.2 | 1103 |
| 飛灰 (処理灰) | 3 | 24 (0.06) | 135 (0.06) | 159 (0.05) | 9.7 (0.06) | 9.8 (0.06) | 9.8 (0.05) | 12.2 | 1072 |

注) () 変動係数 (単位 : %) を示す。

N.A. 測定実施せず。

< すべての試料で溶出液の放射性 Cs 濃度が検出下限値未満であることを示す。平均値算出には検出下限値を使用した。

* いずれかの試料で、溶出液の放射性 Cs 濃度が検出下限値未満であることを示す。平均値算出には検出下限値を使用した。

付録表 3.3 放射性 Cs 溶出試験結果の詳細 (2)

| 試料 | n 数 | 溶出濃度 (Bq/L) | | | 放射性Cs溶出率 (%) | | | pH | EC (mS/m) |
|------------|--------|-------------|-------------|-------------|--------------|-------------|-------------|------|--------------|
| | | Cs-134 | Cs-137 | T-Cs | Cs-134 | Cs-137 | T-Cs | | |
| 焼却対象物(混合) | 1 | <2.3 | 4.4 | <6.8 | <1.6 | 0.68 | <0.85 | 6.4 | 94 |
| R 主灰 (原灰) | 1 | <1.7 | 2.8 | <4.5 | <0.24 | 0.09 | <0.12 | 11.4 | 103 |
| u 主灰 (処理灰) | 1 | 6.2 | 22 | 29 | 1.2 | 1.0 | 1.1 | 10.5 | 51 |
| n ガス冷灰 | 1 | 1.0 | 3.1 | 4.1 | 0.10 | 0.07 | 0.08 | 8.5 | 144 |
| 1 飛灰 (原灰) | 3 | 930 (0.04) | 3926 (0.01) | 4856 (0.01) | 65.3 (0.04) | 64.2 (0.00) | 64.4 (0.01) | 12.1 | 4413 |
| 飛灰 (処理灰) | 3 | 635 (0.01) | 2862 (0.04) | 3497 (0.03) | 48.8 (0.01) | 50.0 (0.04) | 49.8 (0.04) | 12.1 | 3090 |
| 焼却対象物(混合) | 1 | <1.2 | 3.7 | <4.9 | <0.32 | 0.23 | <0.25 | 6.6 | 121 |
| R 主灰 (原灰) | 1 | 4.0 | 19 | 23 | 0.57 | 0.59 | 0.59 | 11.4 | 96 |
| u 主灰 (処理灰) | 1 | <1.2 | 2.4 | <3.6 | <0.15 | 0.07 | <0.08 | 10.3 | 45 |
| n ガス冷灰 | 1 | 4.1 | 20 | 24 | 0.38 | 0.42 | 0.41 | 10.3 | 103 |
| 2 飛灰 (原灰) | 1 | 1336 | 5826 | 7162 | 67.5 | 66.1 | 66.3 | 12.3 | 3010 |
| 飛灰 (処理灰) | 1 | 1081 | 4944 | 6025 | 64.7 | 66.5 | 66.2 | 12.3 | 3430 |
| 焼却対象物(混合) | 1 | <1.0 | 2.2 | <3.2 | <0.32 | 0.15 | <0.18 | 6.6 | 89 |
| R 主灰 (原灰) | 1 | <2.2 | 3.3 | <5.4 | <0.26 | 0.09 | <0.12 | 11.4 | 77 |
| u 主灰 (処理灰) | - | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. |
| n ガス冷灰 | 1 | 1.1 | 5.6 | 6.7 | 0.07 | 0.08 | 0.08 | 10.4 | 69 |
| 3 飛灰 (原灰) | 1 | 521 | 2501 | 3022 | 32.0 | 32.9 | 32.7 | 12.3 | 2650 |
| 飛灰 (処理灰) | 1 | 380 | 1774 | 2154 | 21.4 | 22.1 | 21.9 | 12.4 | 1830 |
| 焼却対象物(混合) | 1 | <0.80 | 3.9 | <4.7 | <0.18 | 0.19 | <0.18 | 6.4 | 100 |
| R 主灰 (原灰) | 1 | <2.3 | 3.0 | <5.3 | <0.31 | 0.09 | <0.13 | 11.3 | 56 |
| u 主灰 (処理灰) | - | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. |
| n ガス冷灰 | 1 | 3.3 | 15 | 18 | 0.18 | 0.17 | 0.18 | 10.4 | 83 |
| 4 飛灰 (原灰) | 1 | 633 | 3003 | 3636 | 40.3 | 41.1 | 41.0 | 12.2 | 3040 |
| 飛灰 (処理灰) | 1 | 399 | 1902 | 2301 | 22.2 | 23.0 | 22.9 | 12.3 | 1778 |
| 焼却対象物(混合) | 1 | <1.3 | 2.1 | <3.4 | <0.32 | 0.12 | <0.15 | 6.7 | 93 |
| R 主灰 (原灰) | 1 | 1.1 | 4.1 | 4.1 | 0.16 | 0.13 | 0.11 | 11.7 | 110 |
| u 主灰 (処理灰) | - | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. |
| n ガス冷灰 | 1 | 2.8 | 11 | 14 | 0.16 | 0.14 | 0.14 | 10.8 | 64 |
| 5 飛灰 (原灰) | 1 | 329 | 1473 | 1802 | 22.6 | 21.8 | 21.9 | 12.3 | 1934 |
| 飛灰 (処理灰) | 1 | 353 | 1632 | 1985 | 24.7 | 24.9 | 24.9 | 12.3 | 1756 |
| 焼却対象物(混合) | 1 | <0.77 | 2.9 | <3.7 | <0.18 | 0.15 | <0.15 | 6.4 | 63 |
| R 主灰 (原灰) | 1 | 1.6 | 4.2 | 5.8 | 0.24 | 0.13 | 0.15 | 11.3 | 91 |
| u 主灰 (処理灰) | - | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. | N.A. |
| n ガス冷灰 | 1 | <0.75 | 6.0 | <6.8 | <0.06 | 0.09 | <0.09 | 10.6 | 70 |
| 6 飛灰 (原灰) | 1 | 959 | 4542 | 5501 | 61.4 | 63.6 | 63.2 | 12.1 | 3870 |
| 飛灰 (処理灰) | 1 | 394 | 1959 | 2353 | 38.5 | 42.3 | 41.6 | 12.3 | 2180 |
| 焼却対象物(解体) | 3 | 3.7 (0.57) | 22 (0.58) | 26 (0.58) | 11.8 (0.48) | 12.0 (0.50) | 12.0 (0.50) | 6.4 | 92 |
| R 主灰 (原灰) | 3 | <0.92 | 3.8 (0.02) | <4.8 | <0.78 | 0.49 (0.02) | <0.53 | 12.4 | 405 |
| u 主灰 (処理灰) | 3 | 2.6 (0.14) | 18 (0.05) | 20 (0.05) | 2.1 (0.14) | 2.3 (0.05) | 2.2 (0.05) | 11.3 | 251 |
| n ガス冷灰 | 3 | <3.99 | 16 (0.07) | 20 | <1.5 | 0.95 (0.07) | <1. | 8.7 | 337 |
| 7 飛灰 (原灰) | 3 | 391 (0.01) | 2527 (0.02) | 2918 (0.01) | 77.0 (0.01) | 78.8 (0.02) | 78.5 (0.01) | 12.3 | 6033 |
| 飛灰 (処理灰) | 3 | 366 (0.04) | 2343 (0.01) | 2709 (0.01) | 84.5 (0.04) | 88.2 (0.01) | 87.6 (0.01) | 12.3 | 6177 |
| 焼却対象物(解体) | 3 | <0.92 | 6.1 (0.23) | <7.0 | <2.8 | 2.62 (0.23) | <2.6 | 7.2 | 101 |
| R 主灰 (原灰) | 3 | 0.86 (0.08) | 6.3 (0.06) | 7.1 (0.06) | 1.1 (0.08) | 1.3 (0.06) | 1.3 (0.06) | 12.3 | 320 |
| u 主灰 (処理灰) | 3 | 1.6 (0.06) | 11 (0.04) | 13 (0.03) | 1.7 (0.06) | 1.9 (0.04) | 1.9 (0.03) | 11.8 | 238 |
| n ガス冷灰 | 3 | <2.6 | 3.9 (0.22) | <6.5 | <1.2 | 0.29 (0.22) | <0.4 | 8.4 | 247 |
| 8 飛灰 (原灰) | 3 | 371 (0.02) | 2434 (0.03) | 2805 (0.03) | 74.1 (0.02) | 82.1 (0.03) | 80.9 (0.03) | 12.4 | 6197 |
| 飛灰 (処理灰) | 3 | 381 (0.03) | 2438 (0.02) | 2820 (0.02) | 83.2 (0.03) | 87.5 (0.02) | 86.9 (0.02) | 12.3 | 6590 |

注) () 変動係数 (単位 : %) を示す。

N.A. 測定実施せず。

< すべての試料で溶出液の放射性 Cs 濃度が検出下限値未満であることを示す。平均値算出には検出下限値を使用した。

* いずれかの試料で、溶出液の放射性 Cs 濃度が検出下限値未満であることを示す。平均値算出には検出下限値を使用した。

付録表 3.3 放射性 Cs 溶出試験結果の詳細 (3)

| 施設 | Run | 試料 | n | 溶出濃度 (Bq/L) | | | 放射性Cs溶出率 (%) | | | pH | EC (mS/m) |
|----------|----------|------------|------------|-------------|---------------|-------------|--------------|---------------|-------------|------|-----------|
| | | | | Cs-134 | Cs-137 | T-Cs | Cs-134 | Cs-137 | T-Cs | | |
| 施設 B | Run 9 | 焼却対象物(除染) | 3 | <0.95 | 6.1 (0.19) | <7.0 | <2.4 | 2.19 (0.19) | <2.2 | 6.8 | 30 |
| | | 主灰 (原灰) | 3 | <0.91 | 1.1 (0.22) | <2.0 | <0.35 | 0.06 (0.22) | <0.10 | 11.1 | 34 |
| | | 主灰 (処理灰) | 3 | <0.88 | 3.0 (0.06) | <3.9 | <0.29 | 0.13 (0.06) | <0.15 | 10.2 | 52 |
| | | ガス冷灰 | 3 | 4.0 (0.13) | 27 (0.15) | 31 (0.15) | 0.77 (0.13) | 0.69 (0.15) | 0.70 (0.15) | 9.8 | 210 |
| | | 飛灰 (原灰) | 3 | 91 (0.01) | 648 (0.03) | 739 (0.02) | 32 (0.01) | 32 (0.03) | 32 (0.02) | 12.7 | 1655 |
| | 飛灰 (処理灰) | 3 | 97 (0.04) | 706 (0.02) | 804 (0.01) | 37 (0.04) | 39 (0.02) | 38 (0.01) | 12.7 | 1650 | |
| | Run 10 | 焼却対象物(除染) | 3 | * 0.95 | 5.2 (0.16) | * 6.2 | * 2.7 | 2.12 (0.16) | * 2.2 | 7.3 | 33 |
| | | 主灰 (原灰) | 3 | <0.88 | * 0.82 (0.08) | <1.7 | <0.27 | * 0.04 (0.08) | <0.07 | 11.0 | 32 |
| | | 主灰 (処理灰) | 3 | <0.95 | 1.4 (0.20) | <2.4 | <0.29 | 0.06 (0.20) | <0.09 | 10.2 | 28 |
| | | ガス冷灰 | 3 | 2.3 (0.24) | 17 (0.05) | 19.3 (0.05) | 0.45 (0.24) | 0.45 (0.05) | 0.45 (0.05) | 10.0 | 167 |
| 飛灰 (原灰) | | 3 | 120 (0.04) | 895 (0.06) | 1015 (0.05) | 36 (0.04) | 40 (0.06) | 39 (0.05) | 12.7 | 1660 | |
| 飛灰 (処理灰) | 3 | 129 (0.09) | 915 (0.03) | 1044 (0.03) | 43 (0.09) | 45 (0.03) | 45 (0.03) | 12.7 | 1624 | | |
| 施設 C | Run 1 | 焼却対象物(混合) | 3 | * 1.4 | 11.2 (0.24) | * 12.6 | * 0.72 | 0.93 (0.24) | * 0.90 | 7.3 | 57 |
| | | 主灰 (原灰) | 3 | <4.2 | 7.6 (0.12) | <12 | <0.40 | 0.12 (0.12) | <0.16 | 11.5 | 156 |
| | | 主灰 (処理灰) | 3 | <4.2 | 6.0 (0.16) | <10.3 | <0.36 | 0.08 (0.16) | <0.12 | 11.1 | 103 |
| | | 飛灰 (原灰) | 3 | 968 (0.01) | 6188 (0.02) | 7156 (0.02) | 37 (0.02) | 38 (0.02) | 38 (0.02) | 12.1 | 2190 |
| | | 飛灰 (処理灰) | 3 | 965 (0.04) | 5957 (0.05) | 6922 (0.05) | 41 (0.01) | 40 (0.03) | 40 (0.03) | 11.5 | 1562 |
| | Run 2 | 焼却対象物(混合) | 3 | 1.4 (0.16) | 8.9 (0.06) | 10.3 (0.05) | 0.92 (0.16) | 0.89 (0.06) | 0.89 (0.05) | 7.5 | 32 |
| | | 主灰 (原灰) | 3 | <4.1 | 4.9 (0.32) | <9.1 | <0.48 | 0.09 (0.32) | <0.15 | 10.9 | 73 |
| | | 主灰 (処理灰) | 3 | <4.1 | 7.1 (0.17) | <11.2 | <0.47 | 0.13 (0.17) | <0.18 | 10.5 | 72 |
| | | 飛灰 (原灰) | 3 | 880 (0.05) | 5652 (0.05) | 6532 (0.05) | 41 (0.02) | 43 (0.08) | 42 (0.07) | 12.1 | 2117 |
| | | 飛灰 (処理灰) | 3 | 889 (0.08) | 5724 (0.05) | 6613 (0.06) | 41 (0.01) | 41 (0.01) | 41 (0.01) | 11.4 | 1459 |
| 施設 D | Run 1 | 焼却対象物(除染) | 3 | <1.0 | * 1.0 | <2.0 | <7.8 | * 1.2 | <2.0 | 7.2 | 33 |
| | | 主灰 (原灰) | 3 | <0.78 | * 0.8 | <1.6 | <0.57 | * 0.10 | <0.16 | 12.0 | 136 |
| | | 主灰 (処理灰) | 3 | <0.91 | <0.83 | <1.7 | <0.75 | <0.10 | <0.18 | 12.0 | 106 |
| | | ガス冷灰 | 3 | 26 (0.07) | 182 (0.04) | 208 (0.04) | 16 (0.07) | 16 (0.04) | 16 (0.04) | 10.5 | 1063 |
| | | 集じん灰 | 3 | 111 (0.04) | 794 (0.01) | 905 (0.00) | 57 (0.04) | 60 (0.01) | 60 (0.00) | 12.6 | 3517 |
| | Run 2 | 飛灰 (原灰) | 3 | 42 (0.07) | 279 (0.06) | 321 (0.06) | 42 (0.07) | 42 (0.06) | 42 (0.06) | 12.6 | 2393 |
| | | 飛灰 (処理灰) | 3 | 83 (0.05) | 566 (0.02) | 649 (0.02) | 54 (0.05) | 55 (0.02) | 55 (0.02) | 12.4 | 3537 |
| | | 焼却対象物(除染) | 3 | <1.0 | * 1.1 | <2.1 | <6.8 | * 1.1 | <1.9 | 7.4 | 19 |
| | | 主灰 (原灰) | 3 | <0.78 | * 0.75 | <1.5 | <0.66 | * 0.10 | <0.18 | 12.3 | 157 |
| | | 主灰 (処理灰) | 3 | <0.93 | <0.89 | <1.8 | <0.84 | <0.12 | <0.21 | 11.7 | 69 |
| Run 2 | ガス冷灰 | 3 | <3.3 | 5.4 (0.20) | <8.7 | <2.03 | 0.52 (0.20) | <0.72 | 12.0 | 259 | |
| | 集じん灰 | 3 | 58 (0.02) | 379 (0.05) | 437 (0.04) | 44 (0.02) | 42 (0.05) | 42 (0.04) | 12.7 | 2490 | |
| | 飛灰 (原灰) | 3 | 17 (0.07) | 116 (0.03) | 133 (0.03) | 16 (0.07) | 18 (0.03) | 18 (0.03) | 12.7 | 1739 | |
| | 飛灰 (処理灰) | 3 | 71 (0.05) | 474 (0.02) | 545 (0.02) | 57 (0.05) | 57 (0.02) | 57 (0.02) | 12.5 | 3013 | |

注) () 変動係数 (単位 : %) を示す。

N.A. 測定実施せず。

< すべての試料で溶出液の放射性 Cs 濃度が検出下限値未満であることを示す。平均値算出には検出下限値を使用した。

* いずれかの試料で、溶出液の放射性 Cs 濃度が検出下限値未満であることを示す。平均値算出には検出下限値を使用した。

付録表 3.4 焼却残渣の元素組成 (mg/kg) (1) 【主灰 (原灰)】

| | 主灰 (原灰) | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
|----|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|--------------|-------------|-------------|-------------|-------------|
| | 施設A | | | | | | 施設B | | | | | | | | | | 施設C | | 施設D | |
| | Run1 n=1 | Run2 n=1 | Run3 n=1 | Run4 n=1 | Run5 n=3 | Run6 n=3 | Run1 n=1 | Run2 n=1 | Run3 n=1 | Run4 n=1 | Run5 n=1 | Run6 n=1 | Run7 n=3 | Run8 n=3 | Run9 n=1 | Run10 n=1 | Run1 n=3 | Run2 n=1 | Run1 n=3 | Run2 n=3 |
| Na | 9800 | 10000 | 10000 | 9100 | 11700 | 11900 | 15000 | 14000 | 15000 | 15000 | 17000 | 16000 | 14600 | 14000 | 13000 | 13000 | 17000 | 16000 | 14400 | 14600 |
| Mg | 6300 | 8400 | 5400 | 5000 | 6330 | 6160 | 10000 | 11000 | 11000 | 11000 | 10000 | 11000 | 15400 | 14800 | 2400 | 6200 | 9370 | 9100 | 9760 | 9680 |
| Al | 92000 | 91000 | 96000 | 85000 | 63400 | 63300 | 79000 | 79000 | 80000 | 82000 | 76000 | 79000 | 52700 | 50500 | 32000 | 25000 | 64200 | 63000 | 59200 | 59800 |
| Si | 300000 | 290000 | 320000 | 340000 | 319000 | 307000 | 290000 | 280000 | 300000 | 290000 | 300000 | 280000 | 202000 | 196000 | 300000 | 290000 | 267000 | 250000 | 273000 | 213000 |
| P | 1400 | 1600 | 1100 | 840 | 1700 | 1760 | 2200 | 2200 | 1400 | 1700 | 1400 | 2000 | 7950 | 4380 | 2100 | 2600 | 2390 | 2200 | 3590 | 3560 |
| S | 332 | 207 | 70.0 | 102 | 52.0 | 54.0 | 418 | 1570 | 714 | 487 | 709 | 1300 | 4650 | 4580 | 169 | 274 | 532 | 739 | 123 | 175 |
| Cl | 90.0 | 93.0 | 197 | 142 | 101 | 71.0 | 1350 | 2400 | 561 | 288 | 158 | 633 | 4650 | 5210 | 206 | 230 | 1140 | 1140 | 154 | 171 |
| K | 27000 | 22000 | 30000 | 29000 | 26500 | 28100 | 24000 | 22000 | 20000 | 22000 | 21000 | 23000 | 15500 | 13400 | 21000 | 25000 | 26100 | 26000 | 29000 | 29000 |
| Ca | 23000 | 26000 | 17000 | 11000 | 18800 | 19300 | 45000 | 56000 | 39000 | 39000 | 38000 | 46000 | 103000 | 109000 | 33000 | 45000 | 46200 | 47000 | 40000 | 39600 |
| Ti | 3070 | 3190 | 2740 | 2330 | 2510 | 2500 | 4000 | 3440 | 3290 | 3820 | 3380 | 3440 | 6820 | 7310 | 3330 | 3260 | 3890 | 4480 | 2970 | 2970 |
| Cr | 19.0 | 18.0 | 19.0 | 22.0 | 23.3 | 18.5 | 80.0 | 96.0 | 56.0 | 76.0 | 60.0 | 73.0 | 296 | 341 | 130 | 83.0 | 83.4 | 93.0 | 127 | 57.9 |
| Mn | 1230 | 1360 | 1070 | 832 | 878 | 888 | 1360 | 1110 | 986 | 1040 | 872 | 1030 | 1230 | 1350 | 1520 | 1770 | 1100 | 1130 | 1580 | 1880 |
| Fe | 33000 | 40000 | 32000 | 28000 | 25500 | 25400 | 40000 | 40000 | 41000 | 46000 | 40000 | 40000 | 41900 | 58900 | 32000 | 31000 | 36400 | 38000 | 32500 | 29200 |
| Cu | 30.0 | 24.0 | 82.0 | 46.0 | 50.5 | 33.3 | 150 | 280 | 140 | 84.0 | 65.0 | 200 | 724 | 1510 | 69.0 | 52.0 | 640 | 320 | 82.3 | 97.3 |
| Zn | 90.0 | 120 | 160 | 130 | 136 | 98.7 | 360 | 470 | 120 | 100 | 59.0 | 300 | 2610 | 1410 | 110 | 160 | 1360 | 360 | 163 | 144 |
| As | 3.9 | 4.3 | 3.4 | 2.6 | 1.9 | 1.7 | 5.2 | 16.3 | 27.9 | 13.9 | 8.7 | 16.5 | 27.4 | 20.8 | 17.0 | 10.0 | 5.8 | 6.7 | 4.1 | 4.4 |
| Sr | 140 | 170 | 120 | 95.0 | 149 | 148 | 250 | 250 | 250 | 250 | 230 | 320 | 340 | 348 | 190 | 300 | 254 | 290 | 277 | 278 |
| Cd | 0.10 | 0.09 | 0.60 | 0.21 | * 0.11 | * 0.12 | 1.0 | 1.1 | 0.77 | 0.23 | 0.15 | 0.33 | 2.9 | 0.81 | 0.55 | 0.6 | * 0.4 | 0.4 | * 0.15 | * 0.34 |
| Hg | <0.05 | <0.05 | <0.05 | <0.05 | <0.05 | <0.05 | <0.05 | <0.05 | <0.05 | <0.05 | <0.05 | <0.05 | <0.05 | <0.05 | <0.05 | <0.05 | <0.05 | <0.05 | <0.05 | <0.05 |
| Pb | 25.7 | 23.9 | 36.3 | 440 | 23.5 | 21.1 | 230 | 840 | 38.0 | 69.0 | 28.0 | 140 | 493 | 448 | 15.0 | 16.0 | 313 | 210 | 16.8 | 126 |
| Cs | 4.2 | 4.0 | 4.8 | 4.4 | 15.7 | 3.5 | 2.8 | 3.2 | 3.5 | 3.7 | 3.2 | 3.6 | 1.7 | 1.5 | 1.5 | 2.6 | 3.0 | 2.7 | 2.6 | 2.5 |

注) S, Cl, Ti, Mn は XRF で、Hg は還元気化原子吸光法で、それ以外は ICP 発光分光もしくは ICP 質量分析法により測定した。

n=1 で測定した試料および元素は斜体で示した。

n=3 で分析した試料について変動係数が 10%より大きいものは網掛け斜体で示した。

< 検出下限値以下の場合の検出下限値を示す。

* n=3 で測定して n=1 のみが検出された場合に、n=1 の検出値を示す。

付録表 3.4 焼却残渣の元素組成 (mg/kg) (2) 【飛灰 (原灰)】

| | 飛灰 (原灰) | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
|----|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|--------------|-------------|-------------|-------------|-------------|
| | 施設A | | | | | | 施設B | | | | | | | | | | 施設C | | 施設D | |
| | Run1 n=1 | Run2 n=1 | Run3 n=1 | Run4 n=1 | Run5 n=3 | Run6 n=3 | Run1 n=1 | Run2 n=1 | Run3 n=1 | Run4 n=1 | Run5 n=1 | Run6 n=1 | Run7 n=3 | Run8 n=3 | Run9 n=1 | Run10 n=1 | Run1 n=3 | Run2 n=1 | Run1 n=3 | Run2 n=3 |
| Na | 7100 | 6400 | 9700 | 8100 | 9230 | 8240 | 8300 | 7800 | 6400 | 7300 | 8300 | 7200 | 12900 | 13400 | 5200 | 5300 | 12000 | 12000 | 6100 | 7370 |
| Mg | 8600 | 8900 | 7500 | 6800 | 8600 | 7270 | 7300 | 8000 | 9300 | 8300 | 9200 | 7500 | 5530 | 5020 | 5600 | 6000 | 10900 | 10000 | 5550 | 6680 |
| Al | 96000 | 96000 | 97000 | 110000 | 73300 | 82900 | 33000 | 42000 | 62000 | 50000 | 64000 | 34000 | 11600 | 7850 | 23000 | 22000 | 59300 | 47000 | 20400 | 28300 |
| Si | 150000 | 170000 | 180000 | 180000 | 194000 | 177000 | 110000 | 120000 | 180000 | 140000 | 180000 | 100000 | 46800 | 37400 | 100000 | 110000 | 191000 | 180000 | 104000 | 118000 |
| P | 2600 | 2500 | 2200 | 2300 | 4050 | 2910 | 2100 | 2400 | 2700 | 2400 | 2900 | 2000 | 1920 | 1770 | 1600 | 1800 | 4260 | 4000 | 2320 | 2970 |
| S | 13200 | 12800 | 11600 | 12000 | 10300 | 11300 | 24000 | 29500 | 25200 | 25900 | 20100 | 37800 | 33900 | 38100 | 17500 | 18900 | 31000 | 19900 | 18800 | 16500 |
| Cl | 11100 | 8890 | 51000 | 33700 | 17100 | 14300 | 191000 | 108000 | 95700 | 103000 | 52300 | 152000 | 239000 | 259000 | 35000 | 35100 | 68400 | 74800 | 80000 | 44100 |
| K | 15000 | 15000 | 15000 | 14000 | 23500 | 22500 | 22000 | 24000 | 19000 | 18000 | 20000 | 19000 | 21100 | 20200 | 12000 | 14000 | 29000 | 30000 | 15500 | 18400 |
| Ca | 210000 | 200000 | 130000 | 160000 | 120000 | 57200 | 230000 | 230000 | 140000 | 200000 | 130000 | 230000 | 260000 | 269000 | 260000 | 280000 | 111000 | 120000 | 218000 | 183000 |
| Ti | 2410 | 3080 | 3470 | 3200 | 3330 | 2570 | 1590 | 2220 | 3300 | 2250 | 2810 | 1800 | 1220 | 1200 | 951 | 641 | 4010 | 3330 | 1020 | 1700 |
| Cr | 40.0 | 42.0 | 78.0 | 84.0 | 36.7 | 49.9 | 77.0 | 74.0 | 93.0 | 91.0 | 72.0 | 77.0 | 60.7 | 64.0 | 130 | 63.0 | 94.5 | 99.0 | 52.3 | 53.4 |
| Mn | 1380 | 1660 | 1630 | 1700 | 1130 | 998 | 731 | 872 | 1160 | 678 | 1030 | 803 | 450 | 211 | 741 | 768 | 1410 | 1500 | 871 | 1080 |
| Fe | 40000 | 41000 | 37000 | 40000 | 33500 | 27900 | 14000 | 20000 | 31000 | 25000 | 30000 | 17000 | 7410 | 5800 | 13000 | 12000 | 29000 | 30000 | 11000 | 15000 |
| Cu | 37.0 | 38.0 | 100 | 57.0 | 46.2 | 62.9 | 170 | 120 | 160 | 140 | 92.0 | 170 | 310 | 333 | 64.0 | 46.0 | 157 | 130 | 93.5 | 72.2 |
| Zn | 330 | 380 | 1300 | 550 | 490 | 187 | 5200 | 2500 | 2600 | 3000 | 1900 | 4500 | 8370 | 8840 | 980 | 860 | 2330 | 1900 | 1610 | 1030 |
| As | 22.1 | 21.8 | 21.9 | 22.8 | 13.9 | 10.7 | 46.5 | 80.4 | 95.4 | 100 | 81.1 | 150 | 96.3 | 90.9 | 88.0 | 38.0 | 31.5 | 35.0 | 22.4 | 18.0 |
| Sr | 290 | 300 | 190 | 220 | 244 | 493 | 280 | 280 | 280 | 290 | 290 | 290 | 231 | 220 | 320 | 340 | 308 | 360 | 250 | 268 |
| Cd | 3.2 | 2.7 | 19.2 | 6.8 | 3.5 | * 2.8 | 130 | 39.8 | 34.1 | 52.9 | 14.6 | 57.7 | 82.0 | 82.8 | 8.0 | 8.2 | 21.2 | 21.0 | 17.0 | 11.6 |
| Hg | 0.93 | 0.88 | 5.0 | 5.6 | 0.48 | 0.28 | 20.7 | 9.2 | 5.5 | 7.9 | 2.1 | 16.9 | 16.7 | 17.0 | 0.86 | 0.76 | 12.3 | 10.0 | 21.3 | 8.2 |
| Pb | 47.8 | 50.7 | 250 | 120 | 126 | 53.0 | 1800 | 1300 | 1000 | 990 | 530 | 2000 | 3620 | 3900 | 190 | 140 | 695 | 560 | 886 | 534 |
| Cs | 5.1 | 4.4 | 6.6 | 6.5 | 4.8 | 11.6 | 3.9 | 5.2 | 4.6 | 4.2 | 4.3 | 4.8 | 3.6 | 3.4 | 1.8 | 1.8 | 4.4 | 4.2 | 1.7 | 1.7 |

注) S, Cl, Ti, Mn は XRF で、Hg は還元気化原子吸光法で、それ以外は ICP 発光分光もしくは ICP 質量分析法により測定した。

n=1 で測定した試料および元素は斜体で示した。

n=3 で分析した試料について変動係数が 10%より大きいものは網掛け斜体で示した。

< 検出下限値以下の場合の検出下限値を示す。

* n=3 で測定して n=1 のみが検出された場合に、n=1 の検出値を示す。

付録表 3.4 焼却残渣の元素組成 (mg/kg) (3) 【主灰(処理灰), 飛灰(処理灰), 集じん灰】

| | 主灰(処理灰) | | | | | | 飛灰(処理灰) | | | | | | 集じん灰 | | | | | |
|----|---------|--------|--------|--------|--------|--------|---------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| | 施設A | | 施設B | | 施設D | | 施設A | | 施設B | | 施設D | | 施設A | | | | 施設D | |
| | Run1 | Run2 | Run7 | Run8 | Run1 | Run2 | Run1 | Run2 | Run7 | Run8 | Run1 | Run2 | Run1 | Run2 | Run3 | Run4 | Run1 | Run2 |
| | n=1 | n=1 | n=3 | n=3 | n=3 | n=3 | n=1 | n=1 | n=3 | n=3 | n=3 | n=3 | n=1 | n=1 | n=1 | n=1 | n=3 | n=3 |
| Na | 11000 | 11000 | 20100 | 17500 | 14700 | 14300 | 6800 | 7100 | 13700 | 15500 | 8390 | 6790 | 6600 | 8800 | 13000 | 12000 | 11500 | 7910 |
| Mg | 8800 | 9800 | 15600 | 15100 | 9350 | 9220 | 7700 | 8200 | 5200 | 4630 | 6020 | 5450 | 8100 | 8900 | 7700 | 7300 | 8720 | 6560 |
| Al | 95000 | 110000 | 48100 | 52300 | 58200 | 61500 | 88000 | 83000 | 8570 | 6490 | 24100 | 19100 | 94000 | 100000 | 130000 | 140000 | 44300 | 22600 |
| Si | 270000 | 270000 | 209000 | 198000 | 246000 | 241000 | 160000 | 160000 | 35600 | 31600 | 117000 | 101000 | 180000 | 210000 | 240000 | 220000 | 234000 | 127000 |
| P | 1400 | 2000 | 8850 | 7410 | 3400 | 3550 | 2300 | 2200 | 1680 | 1460 | 2340 | 2270 | 2800 | 2600 | 2000 | 2500 | 4440 | 3180 |
| S | 283 | 368 | 3370 | 2840 | 291 | 264 | 26600 | 24400 | 45400 | 47300 | 43700 | 40100 | 11400 | 5740 | 3320 | 5770 | 30300 | 33900 |
| Cl | 83.0 | 71.0 | 7100 | 5790 | 241 | 290 | 8730 | 5670 | 240000 | 261000 | 138000 | 106000 | 13800 | 5080 | 11500 | 18400 | 123000 | 75100 |
| K | 24000 | 21000 | 15300 | 15700 | 29100 | 28900 | 20000 | 21000 | 25300 | 26900 | 24400 | 22500 | 15000 | 18000 | 17000 | 17000 | 29800 | 19200 |
| Ca | 29000 | 34000 | 106000 | 92800 | 38500 | 36500 | 170000 | 150000 | 265000 | 267000 | 175000 | 187000 | 180000 | 120000 | 52000 | 68000 | 90900 | 173000 |
| Ti | 3250 | 3360 | 6100 | 6330 | 3580 | 3040 | 2810 | 2940 | 1280 | 1260 | 1180 | 1110 | 2960 | 3680 | 4030 | 3420 | 1320 | 1160 |
| Cr | 22.0 | 26.0 | 322 | 281 | 87.2 | 66.7 | 37.0 | 37.0 | 64.8 | 58.9 | 63.8 | 53.8 | 41.0 | 42.0 | 76.0 | 90.0 | 74.7 | 68.8 |
| Mn | 1440 | 1430 | 1290 | 1390 | 1710 | 1560 | 1340 | 1360 | 327 | 334 | 902 | 779 | 1680 | 1690 | 1620 | 1740 | 1140 | 1030 |
| Fe | 41000 | 49000 | 43200 | 42700 | 29300 | 28800 | 37000 | 34000 | 6010 | 5050 | 12800 | 10500 | 39000 | 46000 | 48000 | 49000 | 22600 | 13300 |
| Cu | 21.0 | 31.0 | 850 | 800 | 118 | 631 | 33.0 | 39.0 | 320 | 333 | 146 | 122 | 38.0 | 38.0 | 89.0 | 64.0 | 112 | 111 |
| Zn | 94.0 | 140 | 1530 | 1360 | 203 | 168 | 240 | 210 | 9220 | 9400 | 3270 | 2500 | 420 | 300 | 870 | 770 | 1720 | 2030 |
| As | 3.5 | 7.4 | 17.5 | 17.3 | 4.4 | 4.0 | 18.1 | 17.1 | 109 | 96.3 | 40.7 | 33.0 | 22.5 | 16.3 | 13.8 | 18.7 | 26.2 | 36.9 |
| Sr | 170 | 200 | 374 | 362 | 274 | 265 | 240 | 260 | 225 | 218 | 240 | 237 | 280 | 260 | 180 | 190 | 288 | 264 |
| Cd | 0.09 | 0.17 | 2.5 | 2.8 | * 0.26 | * 0.29 | 2.5 | 2.1 | 79.0 | 86.9 | 31.7 | 25.6 | 3.5 | 2.2 | 10.3 | 8.1 | 17.9 | 23.1 |
| Hg | <0.05 | <0.05 | 0.06 | <0.05 | <0.05 | <0.05 | 0.68 | 0.67 | 17.0 | 22.3 | 47.7 | 37.3 | 0.80 | 1.4 | 0.83 | 3.8 | 45.3 | 15.0 |
| Pb | 21.1 | 25.9 | 331 | 304 | 109 | 22.8 | 53.4 | 48.9 | 3950 | 4200 | 1830 | 1480 | 59.4 | 50.8 | 180 | 150 | 916 | 904 |
| Cs | 3.9 | 4.6 | 1.4 | 1.8 | 2.5 | 2.4 | 4.8 | 4.1 | 3.5 | 3.7 | 2.4 | 2.0 | 4.8 | 4.8 | 6.7 | 7.6 | 2.8 | 2.1 |

注) S, Cl, Ti, Mn は XRF で、Hg は還元気化原子吸光法で、それ以外は ICP 発光分光もしくは ICP 質量分析法により測定した。

n=1 で測定した試料および元素は斜体で示した。

n=3 で分析した試料について変動係数が 10%より大きいものは網掛け斜体で示した。

< 検出下限値以下の場合の検出下限値を示す。

* n=3 で測定して n=1 のみが検出された場合に、n=1 の検出値を示す。

付録表 3.4 焼却残渣の元素組成 (mg/kg) (4) 【ガス冷灰, 予熱器灰】

| | ガス冷灰 | | | | | | | | | | | | | | 予熱器灰 | | | |
|----|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|
| | 施設A | | | | 施設B | | | | | | | | 施設D | | 施設A | | | |
| | Run1 n=1 | Run2 n=1 | Run3 n=1 | Run4 n=1 | Run1 n=1 | Run2 n=1 | Run3 n=1 | Run4 n=1 | Run5 n=1 | Run6 n=1 | Run7 n=3 | Run8 n=3 | Run1 n=3 | Run2 n=3 | Run1 n=1 | Run2 n=1 | Run3 n=1 | Run4 n=1 |
| Na | 11000 | 10000 | 13000 | 12000 | 9400 | 13000 | 12000 | 12000 | 12000 | 13000 | 14300 | 15200 | 11600 | 12600 | 13000 | 13000 | 12000 | 15000 |
| Mg | 9300 | 10000 | 7700 | 7000 | 6800 | 12000 | 13000 | 12000 | 12000 | 13000 | 15800 | 15200 | 9080 | 9790 | 10000 | 10000 | 8100 | 7500 |
| Al | 120000 | 120000 | 120000 | 130000 | 54000 | 90000 | 92000 | 95000 | 91000 | 95000 | 58600 | 60400 | 47300 | 56300 | 110000 | 110000 | 110000 | 130000 |
| Si | 240000 | 210000 | 230000 | 240000 | 290000 | 270000 | 280000 | 280000 | 270000 | 280000 | 186000 | 201000 | 225000 | 294000 | 270000 | 250000 | 210000 | 260000 |
| P | 2900 | 2700 | 2000 | 2300 | 2000 | 3500 | 3100 | 3800 | 3300 | 3700 | 10200 | 7250 | 4420 | 5070 | 2000 | 2000 | 2200 | 2000 |
| S | 4880 | 4480 | 4240 | 4780 | 2670 | 2340 | 1680 | 1110 | 1180 | 1580 | 12600 | 6780 | 26100 | 4010 | 1820 | 1320 | 8530 | 1380 |
| Cl | 3610 | 2580 | 19300 | 10400 | 3380 | 2040 | 1580 | 1030 | 912 | 997 | 13800 | 9170 | 42500 | 4010 | 177 | 211 | 56000 | 297 |
| K | 20000 | 18000 | 17000 | 17000 | 18000 | 27000 | 24000 | 26000 | 26000 | 27000 | 17400 | 16300 | 27500 | 33100 | 19000 | 19000 | 17000 | 19000 |
| Ca | 64000 | 82000 | 60000 | 52000 | 27000 | 51000 | 39000 | 43000 | 42000 | 43000 | 83100 | 70400 | 87400 | 45900 | 38000 | 41000 | 90000 | 30000 |
| Ti | 4070 | 3640 | 4250 | 3800 | 3400 | 3970 | 4320 | 4360 | 4360 | 4390 | 8080 | 10100 | 2910 | 2680 | 4460 | 4770 | 3810 | 5760 |
| Cr | 40.0 | 48.0 | 92.0 | 89.0 | 56.0 | 91.0 | 80.0 | 71.0 | 74.0 | 88.0 | 265 | 267 | 112 | 73.7 | 51.0 | 49.0 | 100 | 72.0 |
| Mn | 1940 | 1930 | 1530 | 1700 | 1370 | 1410 | 1300 | 1520 | 1400 | 1430 | 1580 | 1200 | 1820 | 2050 | 1680 | 1890 | 1460 | 2530 |
| Fe | 50000 | 49000 | 45000 | 47000 | 22000 | 45000 | 45000 | 46000 | 43000 | 46000 | 40200 | 40900 | 26700 | 27600 | 54000 | 55000 | 42000 | 51000 |
| Cu | 38.0 | 43.0 | 110 | 59.0 | 50.0 | 120 | 90.0 | 71.0 | 77.0 | 74.0 | 356 | 339 | 179 | 76.0 | 32.0 | 34.0 | 200 | 48.0 |
| Zn | 280 | 300 | 1100 | 680 | 310 | 660 | 530 | 370 | 370 | 640 | 3750 | 2630 | 4210 | 690 | 220 | 190 | 2500 | 430 |
| As | 13.4 | 15.8 | 15.2 | 16.3 | 4.11 | 20.0 | 29.0 | 21.5 | 19.3 | 29.5 | 47.0 | 47.7 | 42.9 | 13.2 | 8.5 | 8.1 | 19.2 | 8.7 |
| Sr | 230 | 260 | 180 | 180 | 150 | 260 | 240 | 250 | 240 | 260 | 321 | 286 | 276 | 298 | 200 | 220 | 200 | 160 |
| Cd | 2.2 | 2.0 | 12.5 | 6.0 | 3.5 | 2.3 | 2.3 | 1.4 | 1.2 | 1.6 | 11.3 | 6.54 | 22.7 | 5.3 | 1.2 | 1.0 | 31.0 | 2.0 |
| Hg | 0.22 | 0.18 | 1.8 | 1.5 | 0.27 | <0.05 | <0.05 | <0.05 | <0.05 | 0.05 | 0.99 | 1.8 | 4.0 | 0.12 | <0.05 | <0.05 | 5.9 | <0.05 |
| Pb | 54.3 | 53.9 | 190 | 110 | 88.0 | 370 | 150 | 83.0 | 76.0 | 170 | 676 | 601 | 1430 | 173 | 42.1 | 39.8 | 400 | 60.1 |
| Cs | 5.9 | 5.3 | 6.2 | 7.1 | 1.9 | 3.8 | 4.5 | 4.8 | 4.6 | 4.6 | 2.4 | 2.1 | 2.7 | 2.7 | 4.7 | 4.3 | 6.2 | 7.3 |

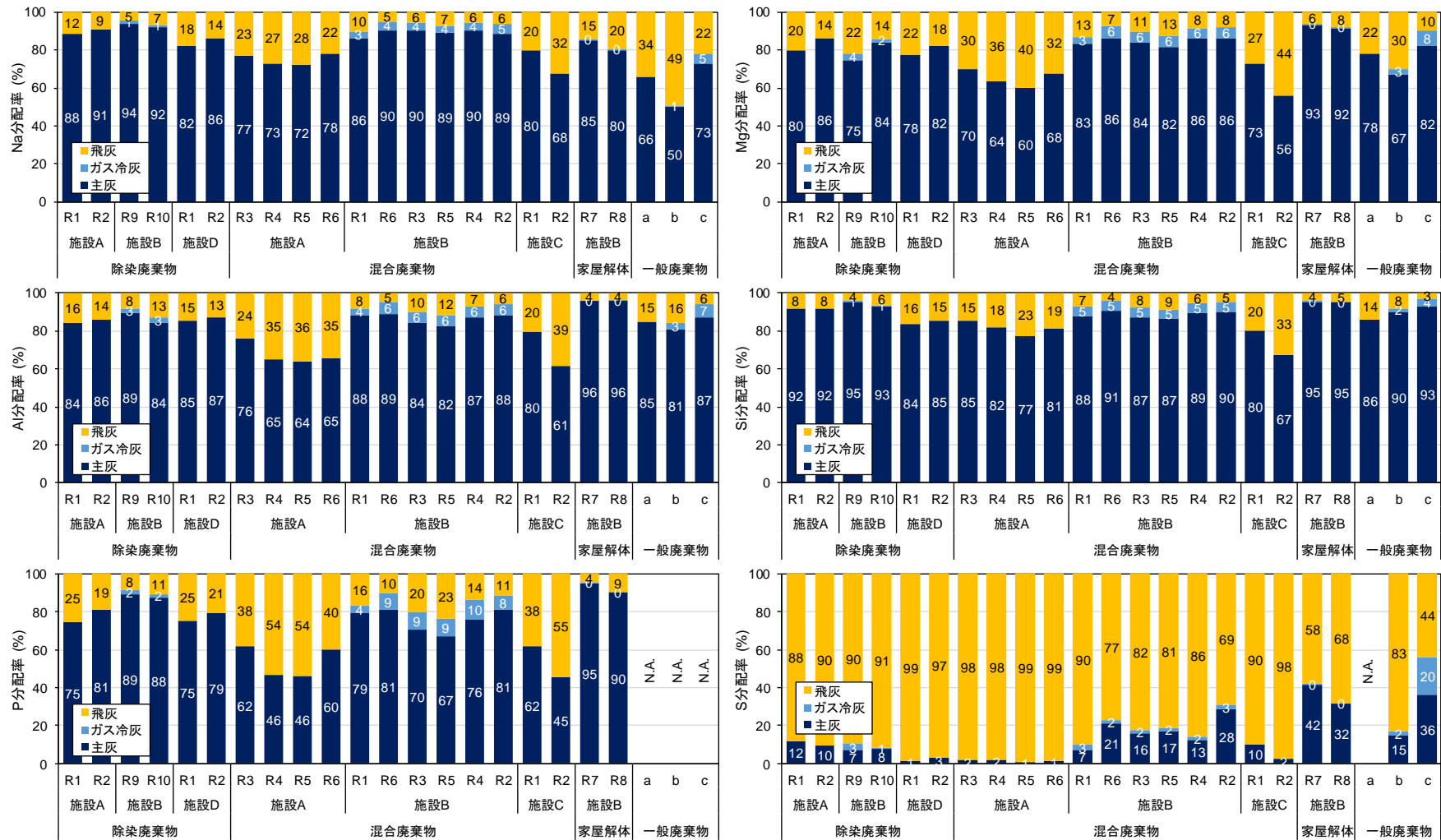
注) S, Cl, Ti, Mn は XRF で、Hg は還元気化原子吸光法で、それ以外は ICP 発光分光もしくは ICP 質量分析法により測定した。

n=1 で測定した試料および元素は斜体で示した。

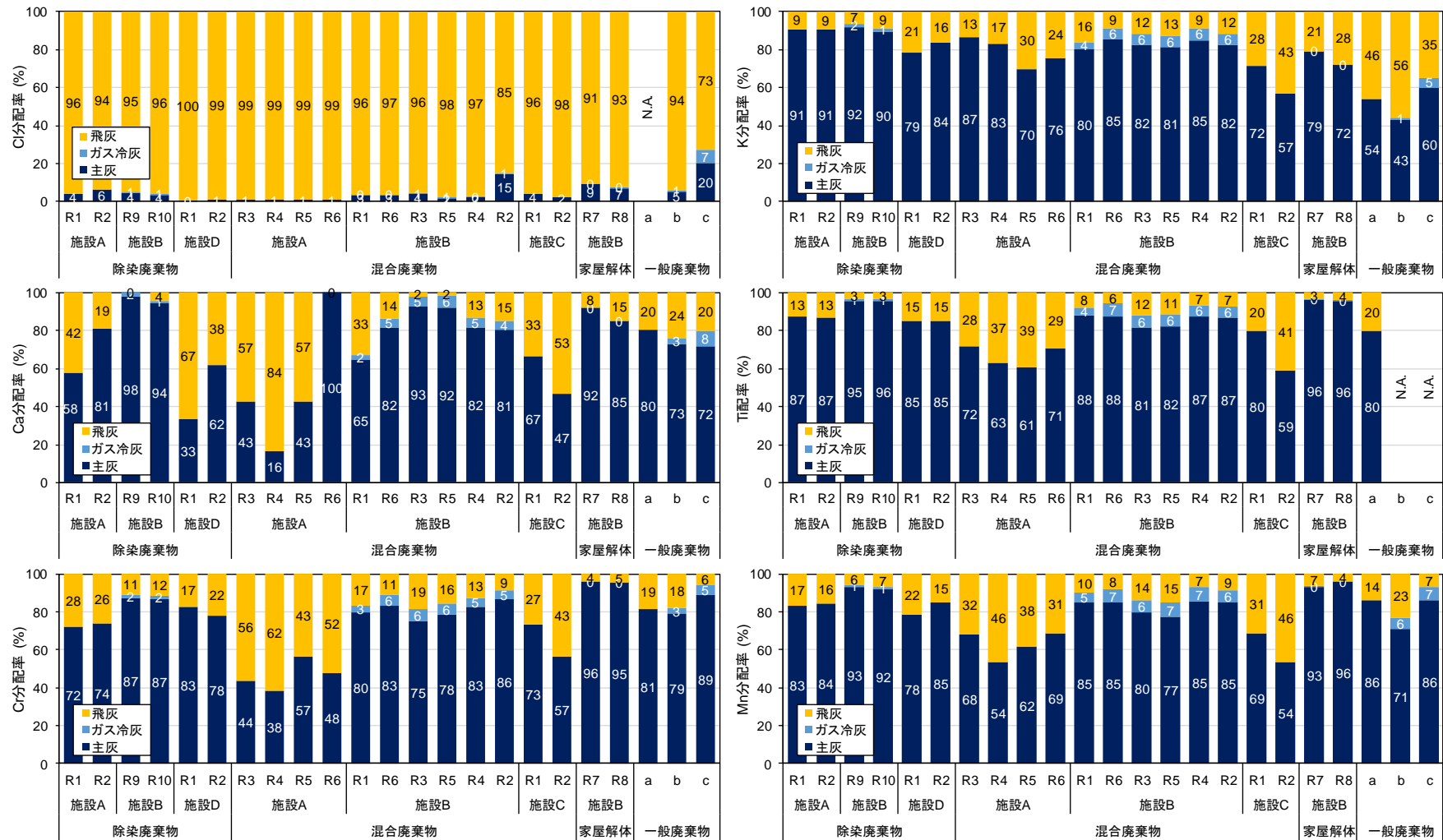
n=3 で分析した試料について変動係数が 10%より大きいものは網掛け斜体で示した。

< 検出下限値以下の場合の検出下限値を示す。

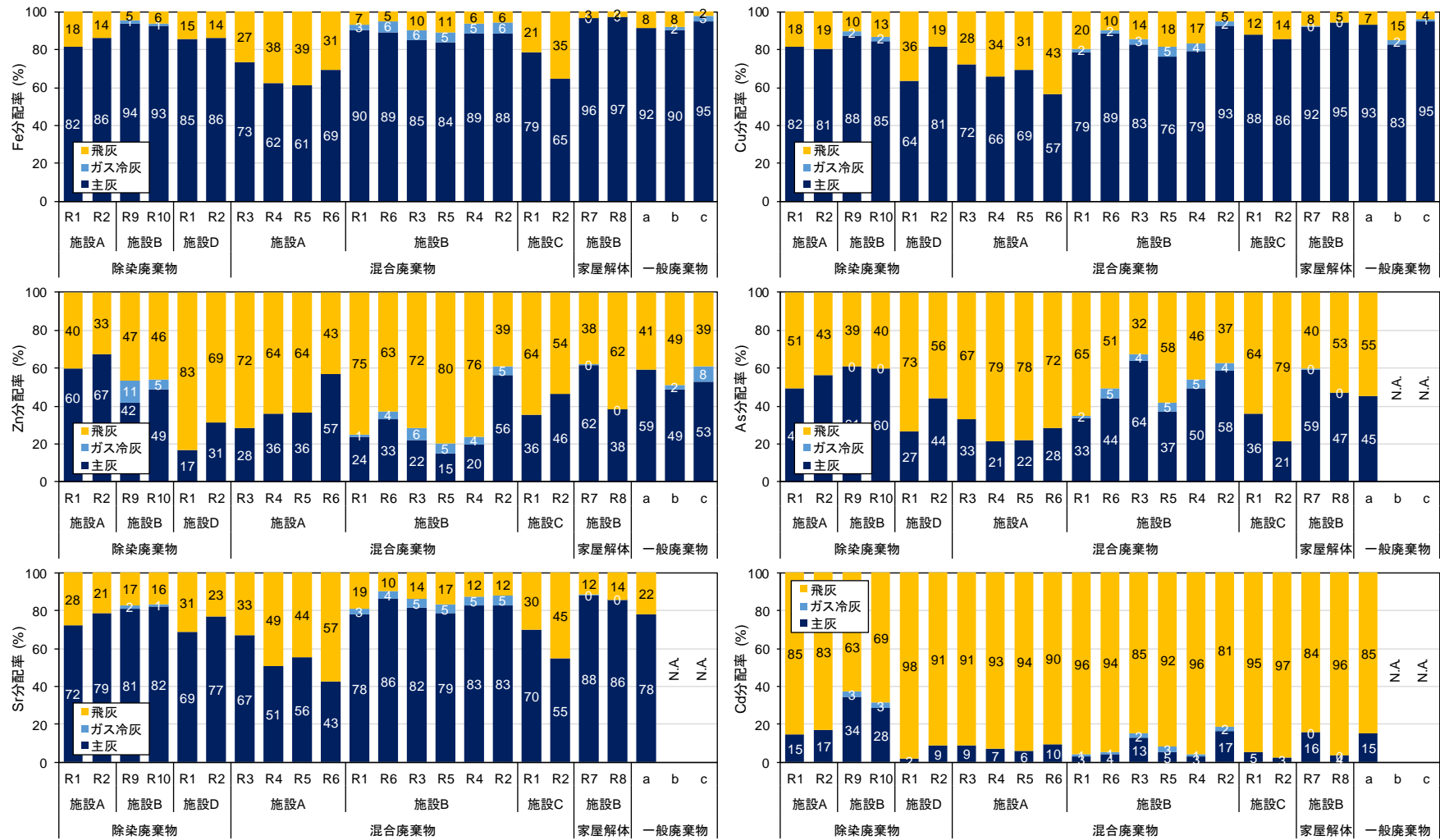
* n=3 で測定して n=1 のみが検出された場合に、n=1 の検出値を示す。



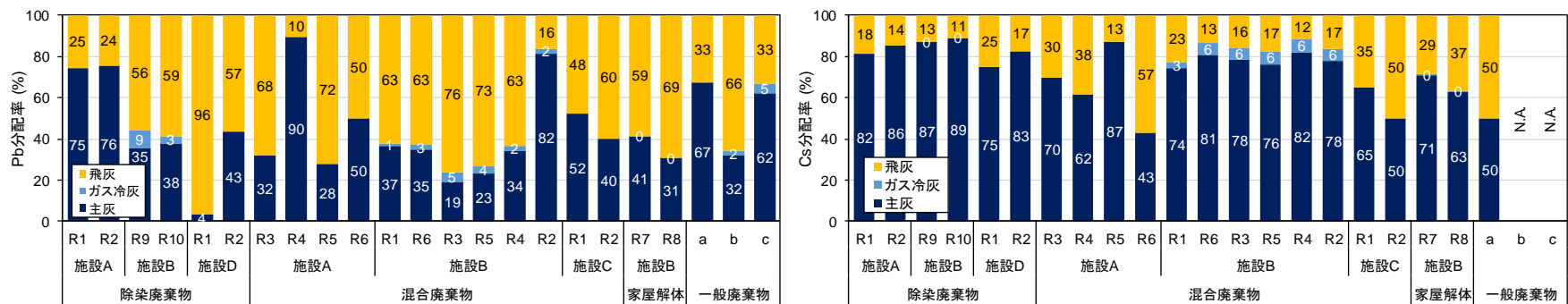
付録図 3.1 各元素の焼却残渣への分配率 (1). 一般廃棄物 a: 肴倉ら(2010)[40]、bおよび c: 肴倉ら(2016)[42]の A 施設および B 施設.



付録図 3.1 各元素の焼却残渣への分配率 (2). 一般廃棄物 a: 肴倉ら(2010)[40]、bおよび c: 肴倉ら(2016)[42]の A 施設および B 施設.



付録図 3.1 各元素の焼却残渣への分配率 (3). 一般廃棄物 a: 肴倉ら(2010)[40]、bおよび c: 肴倉ら(2016)[42]の A 施設および B 施設.



付録図 3.1 各元素の焼却残渣への分配率 (4). 一般廃棄物 a: 肴倉ら(2010)[40]、b および c: 肴倉ら(2016)[42]の A 施設および B 施設.

付録表 3.5 カスケードインパクトを用いたばいじんおよび放射性 Cs 濃度測定結果 (1)

| 施設 | 部位 | 粒径範囲 (μm) | ばいじん濃度 ($\text{mg}/\text{m}^3\text{N}$) | 放射性Cs濃度(Bq/m^3) | | |
|-------------|------------|---------------------------|--|-----------------------------------|--------|--------|
| | | | | Cs-134 | Cs-137 | T-Cs |
| 施設A Run1 | Stage 1 | 12.6以上 | 77 | 3.8 | 13.0 | 16.8 |
| | Stage 2 | 8.2~12.6 | 70 | 2.7 | 8.7 | 11.4 |
| | Stage 3 | 5.5~8.2 | 90 | 3.9 | 16.0 | 19.9 |
| | Stage 4 | 3.8~5.5 | 38 | 2.0 | 5.8 | 7.8 |
| | Stage 5 | 2.5~3.8 | 28 | 1.5 | 6.7 | 8.2 |
| | Stage 6 | 1.3~2.5 | 16 | <1.1 | 2.4 | 2.4 |
| | Stage 7 | 0.67~1.3 | 5 | 1.5 | 3.7 | 5.2 |
| | Stage 8 | 0.49~0.67 | 6 | <1.1 | 1.3 | 1.3 |
| | バックアップフィルタ | 0.49以下 | 2 | <1.1 | 2.2 | 2.2 |
| | 合計 | - | 332 | 15.4 | 59.8 | 75.2 |
| 施設A Run2 | Stage 1 | 12.0 以上 | 136 | 10.0 | 36.0 | 46.0 |
| | Stage 2 | 7.8 ~ 12.0 | 131 | 5.1 | 19.0 | 24.1 |
| | Stage 3 | 5.2 ~ 7.8 | 185 | 7.9 | 30.0 | 37.9 |
| | Stage 4 | 3.6 ~ 5.2 | 67 | 3.6 | 12.0 | 15.6 |
| | Stage 5 | 2.3 ~ 3.6 | 34 | 2.2 | 8.5 | 10.7 |
| | Stage 6 | 1.2 ~ 2.3 | 16 | 0.61 | 2.6 | 3.21 |
| | Stage 7 | 0.62 ~ 1.2 | 3 | 0.71 | 1.4 | 2.11 |
| | Stage 8 | 0.45 ~ 0.62 | 0 | <0.55 | 1.3 | 1.3 |
| | バックアップフィルタ | 0.45以下 | 2 | 0.59 | 1.0 | 1.59 |
| | 合計 | - | 574 | 30.7 | 111.8 | 142.51 |
| 施設A Run3 | Stage 1 | 12.0 以上 | 601 | 11.0 | 46.0 | 57.0 |
| | Stage 2 | 7.7~12.0 | 569 | 9.8 | 37.0 | 46.8 |
| | Stage 3 | 5.2~7.7 | 127 | 2.0 | 8.7 | 10.7 |
| | Stage 4 | 3.6~5.2 | 21 | <0.94 | 3.0 | 3.0 |
| | Stage 5 | 2.3~3.6 | 28 | <0.91 | 1.4 | 1.4 |
| | Stage 6 | 1.2~2.3 | 7 | <0.96 | <0.84 | <1.8 |
| | Stage 7 | 0.63~1.2 | 5 | <1.1 | <0.84 | <1.9 |
| | Stage 8 | 0.46~0.63 | 5 | <0.98 | <0.80 | <1.8 |
| | バックアップフィルタ | 0.46以下 | 4 | <0.96 | <0.88 | <1.8 |
| | 合計 | - | 1367 | 22.8 | 96.1 | 118.9 |

注) “<” は検出下限値を示す。合計値および T-Cs には検出下限値は含まない。

付録表 3.5 カスケードインパクトを用いたばいじんおよび放射性 Cs 濃度測定結果 (2)

| 施設 | 部位 | 粒径範囲 (μm) | ばいじん濃度 ($\text{mg}/\text{m}^3\text{N}$) | 放射性Cs濃度(Bq/m^3) | | |
|-------------|------------|---------------------------|--|-----------------------------------|--------|-------|
| | | | | Cs-134 | Cs-137 | T-Cs |
| 施設A Run4 | Stage 1 | 10.0以上 | 1841 | 25.0 | 100.0 | 125.0 |
| | Stage 2 | 6.1~10.0 | 1099 | 20.0 | 85.0 | 105.0 |
| | Stage 3 | 4.1~6.1 | 637 | 8.4 | 30.0 | 38.4 |
| | Stage 4 | 2.9~4.1 | 338 | 5.4 | 20.0 | 25.4 |
| | Stage 5 | 1.9~2.9 | 150 | 4.2 | 19.0 | 23.2 |
| | Stage 6 | 1.0~1.9 | 58 | 2.6 | 8.5 | 11.1 |
| | Stage 7 | 0.48~1.0 | 14 | <0.90 | 1.8 | 1.8 |
| | Stage 8 | 0.34~0.48 | 8 | <0.90 | 1.6 | 1.6 |
| | バックアップフィルタ | 0.34以下 | 5 | <0.85 | 4.1 | 4.1 |
| 合計 | - | 4150 | 65.6 | 270.0 | 335.6 | |
| 施設B Run4 | Stage 1 | 15.0以上 | 672 | 6.7 | 29 | 35.7 |
| | Stage 2 | 9.8~15.0 | 581 | 8.6 | 34 | 42.6 |
| | Stage 3 | 6.6~9.8 | 1821 | 21 | 91 | 112 |
| | Stage 4 | 4.6~6.6 | 1900 | 26.0 | 100 | 126.0 |
| | Stage 5 | 3.0~4.6 | 990 | 13 | 59 | 72 |
| | Stage 6 | 1.6~3.0 | 175 | 2.7 | 8.2 | 10.9 |
| | Stage 7 | 0.81~1.6 | 87 | 1.8 | 6.3 | 8.1 |
| | Stage 8 | 0.59~0.81 | 6 | <1.3 | 3.5 | 3.5 |
| | バックアップフィルタ | 0.59以下 | 14 | 8.10 | 30.0 | 38.1 |
| 合計 | - | 6246 | 87.9 | 361.0 | 448.9 | |
| 施設B Run5 | Stage 1 | 15.0以上 | 326 | 8.1 | 32 | 40.1 |
| | Stage 2 | 9.7~15.0 | 352 | 7.9 | 34.00 | 41.90 |
| | Stage 3 | 6.5~9.7 | 511 | 7.4 | 35 | 42.4 |
| | Stage 4 | 4.5~6.5 | 1171 | 16 | 66 | 82.0 |
| | Stage 5 | 2.9~4.5 | 568 | 9.3 | 42 | 51.3 |
| | Stage 6 | 1.5~2.9 | 86 | 2.7 | 13 | 15.7 |
| | Stage 7 | 0.80~1.5 | 15 | 2.3 | 7.20 | 9.50 |
| | Stage 8 | 0.58~0.80 | 13 | <1.5 | 4.40 | 4.40 |
| | バックアップフィルタ | 0.58以下 | 8 | 11.00 | 55 | 66.00 |
| 合計 | - | 3050 | 64.7 | 288.6 | 353.3 | |

注) “<” は検出下限値を示す。合計値および T-Cs には検出下限値は含まない。

第4章 焼却残渣からの放射性 Cs 除染・減容化技術の開発

4.1. はじめに

4.1.1. 主な除染・減容化技術

放射性 Cs を含む廃棄物は特措法に基づいて放射性 Cs 濃度や廃棄物の種類によって、通常の廃棄物 (8,000Bq/kg 以下)、指定廃棄物 (8,000Bq/kg 超)、除染廃棄物、除去土壌などに分類され、それぞれの分類に応じた処理方法、いわゆる「出口」が想定されている。しかし、指定廃棄物である 8,000Bq/kg を超える焼却残渣は福島県外では集約保管の目途が立たずに事故から約 7 年が経過した現在でも焼却施設等で分散保管が継続されており、通常の廃棄物として各自治体で処理されるべき 8,000Bq/kg 以下の焼却残渣についても放射性 Cs を含む不安などから自主基準を設けるなど最終処分への慎重な対応も多い。また、中間貯蔵施設では 1,600 万 ~ 2,200 万 m³ もの除去土壌等 (除去土壌および除染廃棄物等の焼却残渣) が施設への搬入対象であり [1]、30 年後の県外最終処分量の低減に向けた種々の除染・減容化技術開発が必要とされている [2]。除去土壌を対象とした主な除染・減容化技術は、分級処理、化学処理、熱処理の 3 つに大別される [3]。分級処理は放射性 Cs が細粒分 (シルト・粘土) に付着しやすいという特性を利用して土壌を細粒分と粗粒分 (砂・礫) に分離する方法であり、これまでも重金属汚染土壌に対しての適用実績も多いが、粘土割合が多い粘性土では効果的な分級が困難である。化学処理は、強酸などにより土壌中の Cs を抽出する方法であり、粘性土にも効果が期待されるが、除染効果は土壌の性状に依存性があり、浄化土壌への酸などの薬剤の残留等が課題である。熱処理は、分級処理や化学処理に比べて処理コストが高いというデメリットがあるが、粘性土や砂質土など土壌の性質の影響を受けにくく、高い放射性 Cs 除去率を示すことが特徴である。また、中間貯蔵施設では中間貯蔵施設に搬入もしくは施設内で発生した焼却残渣等を廃棄物貯蔵施設で貯蔵する予定である。しかし、廃棄物貯蔵施設は堅牢な鉄筋コンクリート構造物が想定されており場所もとるため、用地の効率的な利用から廃棄物貯蔵施設を最小化する必要があり、貯蔵対象となるばいじん等の減容化が行われる [4]。焼却残渣を対象とした除染・減容化技術は、焼却残渣の性状に応じて主灰と飛灰に対して異なる処理方法、例えば、一般に水に溶けやすい放射性 Cs を含む飛灰では、飛灰に付着した放射性 Cs を水に溶出させ飛灰から分離し、溶液中の放射性 Cs を吸着材等で回収する洗浄技術 [5-10] が想定されている。しかし、Cs 除去率は飛灰の種類 (放射性 Cs の溶出性) により大きく異なるため、特に、溶出率の低い除染廃棄物飛灰に対して洗浄技術の適用は困難となる。難溶性の放射性 Cs を含む主灰や下水汚泥焼却灰では土壌と同様の熱処理による減容化が検討されている。また、セメントや樹脂等の中に焼却残渣を閉じ込める安定化処理も考えられているが、安定化処理の場合には廃棄物量が増加するため減容効果は乏しい [3]。

本研究では、土壌、焼却灰のいずれにも適用可能な熱処理に着目した。主な熱処理による除染・減容化技術を表 4.1 に示す。

表 4.1 主な熱処理による除染・減容化技術

| NO. | 技術名称 | 対象物 | 添加剤 (Cs除去剤) | 主な処理条件 | 開発/研究主体 | 出典 |
|-----|-----------------------|-------------|--|-------------------|-------------|--|
| 1 | 加熱化学処理 (焼成方式(低温式)) | 土壌、焼却灰 | NaCl, CaCO ₃ | 1000 ~ 1200 °C | 神鋼環境ソリューション | 竹田ら (2016) [11] |
| 2 | 乾式Cs除去技術 (焼成方式(高温式)) | 土壌、焼却灰 | 反応促進剤(Ca源,Cl源) | 1350 °C以上 | 太平洋セメント | 本間ら (2013) 鈴木・本間 (2017) [12,13] |
| 3 | 表面熔融技術 (熔融方式) | 土壌、焼却灰 | CaCl ₂ ,Ca(OH) ₂ | 1300 ~ 1400°C | クボタ | 釜田ら (2015) [14] |
| 4 | 低圧昇華法 (Csフリー鉱化法) | 土壌 | CaCl ₂ , NaCl | 700 °C (14Paの低圧下) | JAEA | Shimoyama et al. (2014) Honda et al. (2017) [15-17] |
| 5 | 加熱処理 | 土壌 | NaCl, CaCO ₃ | 1000 °C | 鴻池組 | 大山ら (2014) [18] |
| 6 | 熔融塩法 | 土壌 | CaCl ₂ , NaCl | 800 °C (その後抽出) | NIMS | 原田 (2014) [19] |
| 7 | 揮発水洗除去 | 土壌 | 低融点塩化物, CaCO ₃ | 900 °C (その後抽出) | 日立造船 | 西崎ら (2016) [20] |
| 8 | 塩化揮発法 | 焼却灰 (模擬汚染物) | CaCl ₂ ,CaO | 1300 ~ 1500 °C | 中部大学 | Jiao et al. (2016)他 [21-24] |
| 9 | 塩化揮発法 | 合成ポルサイト | Cl ₂ ガス | 1000 ~ 1200 °C | 名古屋大学 | 長野ら (2016) [25] |
| 10 | エマルジョンバーナー式表面熔融炉 | 焼却灰 | CaCl ₂ , CaI ₂ | 1650 °C | 神戸製鋼所 | JAEA報告書 (2013) [26] |
| 11 | プラズマ式灰熔融炉 | } (提案段階) | | | 神鋼環境ソリューション | 除染・廃棄物 技術協議会 (2013) [27] |
| 12 | コークスベッド式熔融炉 | | | | DOWAエコシステム | |
| 13 | 焼却灰熔融技術 (プラズマ式、バーナー式) | | | | 日立造船株式会社 | |
| 14 | 下水汚泥等からのセシウム除去熔融技術 | | | | 三菱マテリアル | |

注) 技術名称はそれぞれの技術の提案者によるものである

表 4.1 には提案段階のものから実証試験が行われているものまでを広範に列挙したが、国立環境研究所等による「除染・減容化のあり方に関するワーキンググループ」[28]や、環境省の「中間貯蔵施設における可燃性除染廃棄物等の減容化施設検討会」[4]で土壌・焼却灰等の熱処理技術として例示されているのは表 4.1 の NO.1 ~ 3 の 3 つである。その他にも、ラボ試験ベースでは NO.4 ~ 9, 14 のように様々な技術が提案されている。また、焼却灰からの Cs 除去技術としては NO.10 ~ 13 のようにプラズマ式やコークスベッド式などの既存の灰溶融技術が提唱されており[27]、一般廃棄物処理等で導入実績のある灰溶融技術についても減容化技術として検討されている[4]。熱処理による放射性 Cs の除染・減容化技術の共通点は、CaCl₂や NaCl などの添加剤 (Cs 除去剤) を混合した後に加熱して Cs を揮発分離させる、もしくは溶融塩として Cs を抽出して水洗浄により Cs を回収するという方法である。これは、これまで重金属に汚染された飛灰などを対象として用いられてきた塩化揮発法に類似している。しかし、それぞれの技術により添加剤の種類や量、処理温度などは異なり、浄化物の再利用や処理温度の低減など技術ごとに特徴がある。表 4.1 の一部の技術についてその特徴を示す。NO.1 の加熱化学処理では、添加剤として NaCl と CaCO₃ の 2 種類を用い、熱処理技術の中では比較的低温の 1,000 ~ 1,200 °C の処理で高い Cs 除去率が得られることが特徴である。NO.2 の乾式 Cs 除去技術は浄化物を骨材やセメント等として利用することを念頭において多量の反応促進剤が添加されるが、浄化物の濃度目標を 100Bq/kg 以下に定め、99.9%以上の非常に高い Cs 除去率を得ている。NO.3 の溶融技術は Ca(OH)₂ と CaCl₂により塩基度を調整して土壌や焼却灰を溶融させるとともに Cs 除去率の向上を図り、99.9%以上の放射性 Cs を除去可能である。NO.4 の低压昇華法 (セシウムフリー-鉍化法) はラボ試験ではあるが、14 Pa の低压下で処理することで低温 (700 °C) でも Cs が揮発分離可能であることを示し、広域 X 線吸収微細構造 (EXAFS) 分析により 700 °C の処理後に Cs-O 結合が Cs-Cl 結合へ変化していることを明らかにした。NO.6 および NO.7 はいずれも Cs を抽出して水洗浄により回収する技術だが、NO.7 では共晶効果を利用した揮発分離と合わせることで高い Cs 除去率を目指している。NO.8 は模擬汚染物を用いたラボ試験ではあるが、Cs 除去剤について MgCl₂よりも CaCl₂が優れていることを示し、さらに CaCl₂だけでなく CaO を添加することで Wadalite (Ca₆Al₅Si₂O₁₆Cl₃) や Igumnovite (Ca₃Al₂(SiO₄)₂Cl₄) として試料中に Cl を保持して Cs との反応時間を確保することで Cs 除去率が向上することなどを示しており、Cs 除去剤の効果や Cs 除去メカニズムについて有用な知見が得られている。

本研究では、熱処理による除染・減容化技術の一つであり、焼成法や溶融法[12-14]などの処理技術に比べると低温での処理が特徴である「加熱化学処理」に関する研究を行った。

4.1.2. 加熱化学処理による放射性 Cs 除去

福島第一原発事故以前より、熱処理による汚染土壌からの放射性 Cs 除去技術として、アルカリ塩の存在下 1,000 ~ 1,400 °C で加熱することで放射性 Cs を 99%除去できることが、アメリカの Oak Ridge の放射性 Cs 汚染土壌について報告されている[29]。そこで、本技術をもとに「加熱化学処理法」として福島汚染土壌処理への応用が検討された。その結果、福島汚染土壌から 1,100 °C の処理温度で 98.3%の放射性 Cs が除去可能であることを見出し[11]、パイロットスケール規模 (3t/day) で適用可能であることを確認した[30]。しかし、汚染土壌からの放射性 Cs の除去技術は確立されたが、Cs の揮発除去原理は十分に解明されておらず、Cs 除去剤として用いている NaCl (Cs 揮発補助剤) および CaCO₃ (Cs 脱着促進剤) の個々の薬剤の効果についても十分には理解されていない。また、土壌や焼却灰中の Cs 濃度は非常に低濃度であるため Cs の揮発挙動の調査や Cs の化学形態の変化については不明である。

そこで本章では初めに土壌からの Cs 除去メカニズムを明らかにするため、Cs を特異的に吸着する粘土鉱物である風化黒雲母に、意図的に Cs を吸着させて土壌 (粘土鉱物) 汚染のモデル化合物として加熱化学処理による Cs 除去メカニズムを推定した (4.2 節)。次に焼却残渣への加熱化学処理の適用可能性について 4.3 節および 4.4 節でそれぞれ一般廃棄物焼却残渣および除染廃棄物焼却残渣について検討した。また、それぞれの焼却残渣についても、2 章および 3 章の知見からモデル化合物として Pollucite および模擬非晶質を用いて、焼却残渣からの Cs 除去メカニズムを考察した。最後に、4.5 節で主灰種類の違いによる放射性 Cs 除去率の差異について考察を行った。

4.2. 加熱化学処理の技術特性 (粘土鉱物からの Cs 除去メカニズム)

4.2.1. 試験方法

1) 試料

土壌中の放射性 Cs は粘土鉱物のフレイドエッジサイトに選択的に吸着・固定化され 2:1 型の層状ケイ酸塩鉱物に偏在すると考えられている[31,32]。実際の土壌中には様々な鉱物が存在するが、その中でも特に Weathered Biotite (風化黒雲母、部分的にバーミキュライト化した黒雲母) が特異的に Cs を吸着するとされており[33-35]、その風化黒雲母での Cs 吸着メカニズムも明らかにされつつある[36]。そこで、本研究では風化黒雲母に Cs を吸着させ、加熱化学処理試験を行った。試料には、Hydrobiotite (水和黒雲母)、Vermiculite (苦土蛭石) および Mica group (その他雲母族) 等の混合物である、南アフリカ・パラボラ産バーミキュライト (昭和 KDE) を使用した[37]。試料は、均一性を確保するため予め粉碎し、試料 10 g に対し、水酸化セシウム・一水和物 (Rockwood Lithium, 99.95%) が Cs 濃度 200 mg/L となるように調製した水溶液を 500 ml (固液比 1:50) 添加し、室温にて 24 時間、スターラーを用いて攪拌混合し Cs を吸着させた。混合後、遠心分離、減圧ろ過にて固液分離し、得られたろ過残渣を熱変性に配慮して 90 °C で 24 時間乾燥させた後、団粒化した試料を解砕して模擬汚染試料 (以下、バーミキュライト) とした。得られたバーミキュライトは、添加した Cs の 98%以上を吸着しており、バーミキュライト中の Cs 濃度は 1% であった。

2) 加熱化学処理試験

バーミキュライトに NaCl (和光純薬工業、一級) および CaCO₃ (丸尾カルシウム、重質) の 2 種類の Cs 除去剤を加え、容器に入れて十分に混合し処理対象試料を調製した。加熱処理には写真 4.1 に示す小型管状炉を用い、予め所定温度に加熱した石英管 (内径 φ28mm) 中にキャリアガスとして空気を 0.5 L/min で導入し、処理対象試料 (3g/バッチ) を入れた磁性ボート (16×12×80 mm) を石英管中央に導入し、60 分保持した。60 分経過後磁性ボートを取り出し、デシケータ中で常温まで自然冷却後、処理後試料の重量を測定した。得られた処理後試料は Cs 濃度を分析し、(4.1) 式より Cs 除去率を算出した。

$$\text{Cs 除去率}[\%] = \left(1 - \frac{\frac{\text{処理後試料量}[\text{g}]}{1,000} \times \text{処理後試料の Cs 濃度}[\text{mg/kg}]}{\frac{\text{処理前試料量}[\text{g}]}{1,000} \times \text{処理前試料の Cs 濃度}[\text{mg/kg}]} \right) \times 100 \dots (4.1)$$

試料中の Cs 濃度は、硝酸、過塩素酸ならびにフッ化水素酸の混酸による酸分解した試料を高周波誘導プラズマ質量分析法 (以下、ICP-MS: Agilent Technologies, Agilent 7700 型) により定量した。

試験条件は、これまでの検討[38]により福島の実汚染土壌にて放射性 Cs 除去率 90%以上を達成している条件である、加熱温度 1,000 °C、加熱時間 60 分、Cs 除去剤の混合比率はバーミキュライト : CaCO₃ : NaCl = 70 : 30 : 5 (重量比、以下同じ) を基本条件とし、Cs 除去剤の有無、加熱温度を 800 ~ 1,200 °C で変化させた場合について試験を行った。



写真 4.1 小型管状炉

3) XRD 分析 (粉末 X 線回折分析)

加熱化学処理によるバーミキュライトの結晶構造変化を確認するため、粉末 X 線回折 (以下、XRD) 分析を行った。分析試料は処理前のバーミキュライトならびに加熱化学処理試験により得られた処理後試料を対象とした。XRD 測定は分析試料を乳鉢で粉碎後、リガク製の MultiFlex を用い、測定角度 $2\theta = 3 \sim 90^\circ$ 、スキャンスピード $2^\circ/\text{min}$ で行った。X 線源は Cu-K α 線であり、40 kV、26 mA の条件で測定した。

4) TG-DSC-MS 分析 (熱重量-示差走査熱量測定-質量分析)

加熱化学処理中の重量および熱量変化、揮発成分を特定するため、TG-DSC-MS 分析を実施した。TG-DSC-MS 測定は、NETSCH 製の STD409CD-Skimmer カップリングシステムを用いた。測定試料は、バーミキュライト 10 mg を試料パン (アルミナ製) に秤量し、その上に、バーミキュライト : CaCO₃ : NaCl = 70 : 30 : 5 の混合比率になるように Cs 除去剤を秤量して試料パンの中で薬さじを用いて混合し、調製した。測定は He 雰囲気下で行い、室温から 1,100 °C まで $20^\circ\text{C}/\text{min}$ で昇温した。

4.2.2. 結果と考察

1) 加熱化学処理による Cs 除去

表 4.2 に加熱化学処理の処理条件および試験結果を示す。Cs 除去剤を添加しない場合や Cs 除去剤として CaCO₃ のみを添加した場合には Cs 除去率は低かったが、NaCl を添加することで 73.6% の Cs が揮発除去され、CaCO₃ と NaCl を組み合わせることで 95.9% の

高い Cs 除去率が得られた。この結果から、Cs を特異的に吸着・固定化する粘土鉱物であるバーミキュライトに対して加熱化学処理技術が有効であることを確認した。加熱温度については、700 °C 以下では Cs はほとんど除去されなかったが、800 °C 以上の温度域では加熱温度が高くなるほど Cs 除去率は向上し、1,000 °C で 90%以上の Cs 除去率となり、さらに 1,200 °C まで昇温することで 99.9%の Cs 除去率を達成した。また、1,200 °C の高温下で添加剤無しの条件にて試験を実施したが、Cs 除去率は 13%と低く、Cs 除去のためには高温にするだけでは無く 2 種類の Cs 除去剤が必要であることを確認した。

表 4.2 バーミキュライト（模擬汚染試料）を対象とした加熱化学処理試験条件および結果

| Cs除去剤混合比率 | | | 加熱条件 | | 放射性Cs 除去率(%) | 試験内容 |
|-----------|-------------------|------|--------|-------|-----------------|-------------|
| 試料 | CaCO ₃ | NaCl | 温度(°C) | 時間(分) | | |
| 70 | 0 | 0 | 1000 | 60 | 11.1 | Cs除去剤の効果 |
| 70 | 30 | 0 | 1000 | 60 | 2.6 | |
| 70 | 0 | 5 | 1000 | 60 | 73.6 | |
| 70 | 30 | 5 | 1000 | 60 | 95.9 | |
| 70 | 30 | 5 | 600 | 60 | 1.4 | 温度の影響 |
| | | | 700 | 60 | 1.5 | |
| | | | 800 | 60 | 18.8 | |
| | | | 850 | 60 | 53.7 | |
| | | | 900 | 60 | 70.2 | |
| | | | 1100 | 60 | 98.2 | |
| 1200 | 60 | 99.9 | | | | |
| 70 | 0 | 0 | 1200 | 60 | 13.0 | Cs除去剤と温度の影響 |

2) 加熱化学処理による結晶構造の変化

加熱化学処理による結晶構造変化について、Cs 除去剤の有無の比較を図 4.1 に、加熱温度の違いによる比較を図 4.2 に示す。

バーミキュライトを Cs 除去剤なしで 1,000 °C まで加熱した場合には、 $2\theta = 7.5^\circ$ (11.8 Å) に存在した Hydrobiotite のピークは $2\theta = 8.8^\circ$ (10.0 Å) へ移動し (Mica group)、Forsterite が生成した。これは既往の研究とも一致していた[39]。CaCO₃ のみを添加した場合は、Cs 除去剤を添加しない場合と同様の XRD ピークの変化があり、添加した CaCO₃ が Portlandite として残存していた。NaCl を添加した場合は Mica group のピークが大きく低下し、Forsterite や Hematite に変換された。CaCO₃ と NaCl を併用した場合には、Mica group のピークは完全に消失し、Monticellite や Melilite 等のカルシウムシリケートが生成された (図 4.1)。結晶構造は主に NaCl の効果により変換されると考えられるが、CaCO₃ を添加してカルシウムシリケート化を促進させることで、完全に結晶構造を変換することが可能であると考えられる。

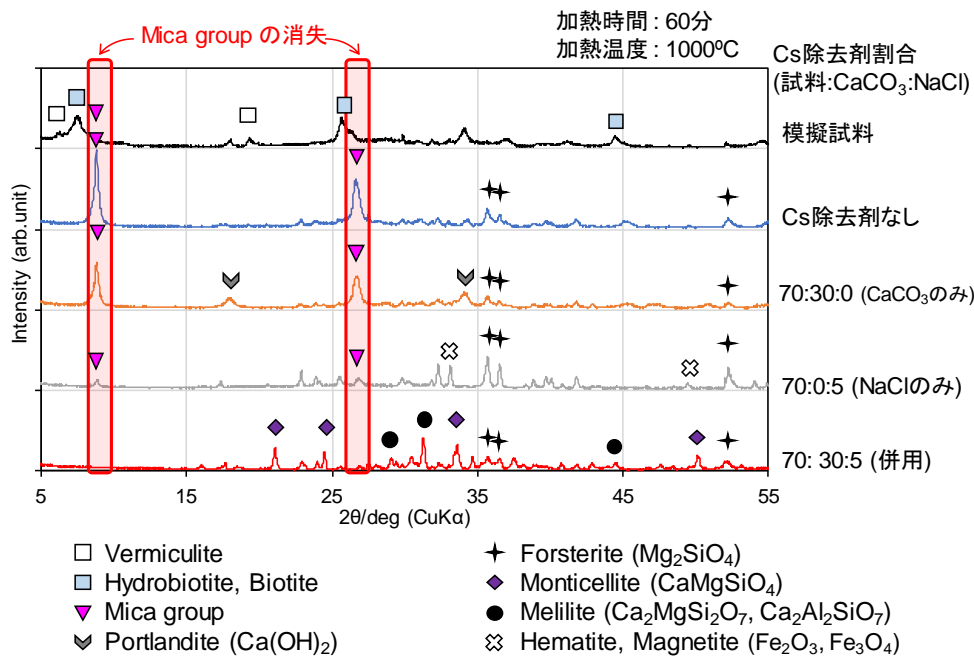


図 4.1 Cs 除去剤の有無による結晶構造の比較

次に加熱温度の違いによる結晶構造の変化を比較した(図 4.2)。Cs 除去剤として NaCl と CaCO₃ を併用した場合でも、加熱温度が 900 °C 以下の条件では Mica group のピークが残存しており Cs 除去率も 70%と低い。しかし、1,000 °C 以上に加熱すると Mica group のピークは完全に消失して Cs 除去率も 96%を超え、添加剤存在下にて Mica group の結晶構造を変換するためには 1,000 °C 以上の温度が必要であることを確認した。また、1,000 °C 以上では Monticellite および Melilite が主成分であり、高温になるにつれ Melilite の生成量 (XRD 強度) が増えた。

これらの XRD 分析の結果をもとに、Mica group の結晶量を XRD 強度 ($2\theta = 8.7 \sim 8.9^\circ$ の範囲の最大値) として半定量的にあらわし、Mica group の結晶量と Cs 除去率の関係を比較した (図 4.3)。Cs 除去率は Mica group の結晶量 (XRD 強度) と相関があり Mica group の結晶構造の消失により Cs 除去率が高くなることがわかる。以上の XRD 分析の結果より、Mica group の結晶構造を完全に変換するためには $1,000^\circ\text{C}$ 以上の温度域でかつ CaCO_3 と NaCl の 2 種類の Cs 除去剤を組み合わせる必要があることを確認できた。

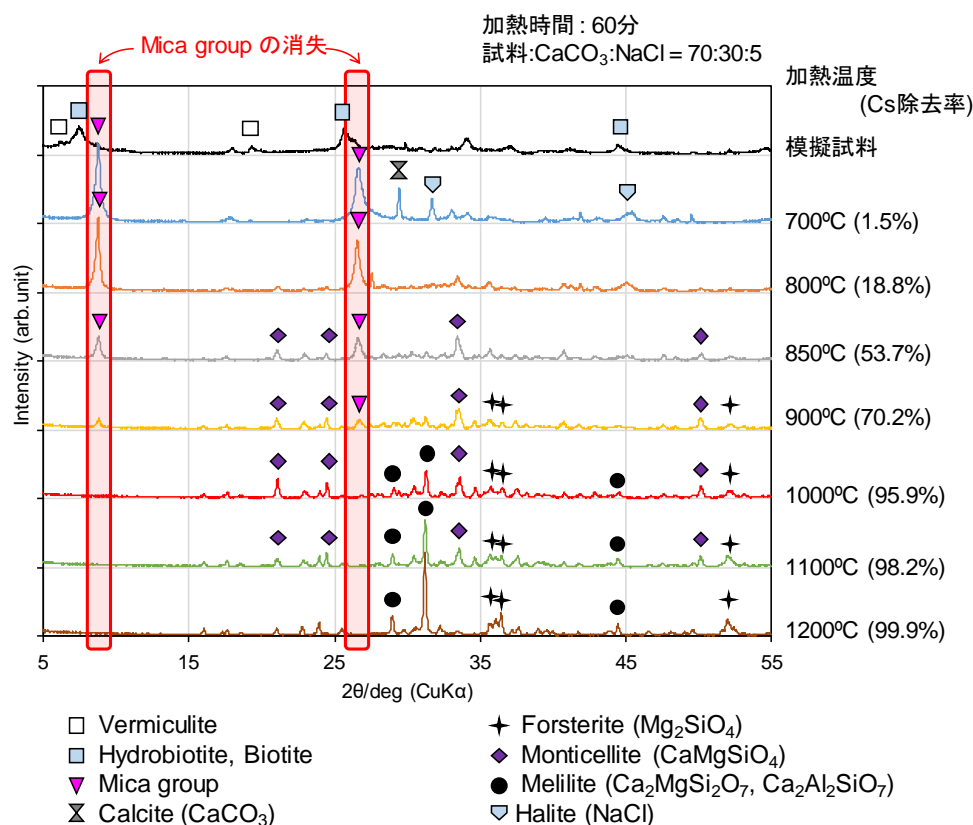


図 4.2 加熱温度の違いによる結晶構造の比較

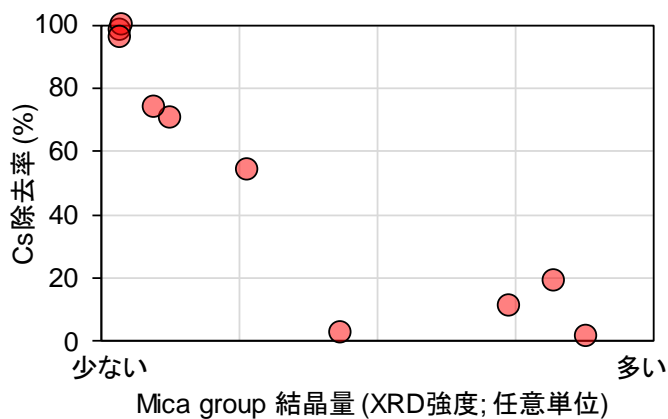


図 4.3 Mica group の結晶量 (XRD 強度による半定量) と Cs 除去率の関係

3) Cs の揮発挙動

TG-DSC-MS 分析を、バーミキュライト : CaCO_3 : NaCl = 70 : 30 : 5 の Cs 除去剤条件で行った。温度変化にともなう重量-熱量変化 (TG-DSC) および揮発成分 (MS) を図 4.4 に示す。加熱温度の増加にともない二段階の重量減少が確認された。600 ~ 720 °C の重量減少 (12.3%) は Cs 除去剤として添加した CaCO_3 の脱炭酸による重量減少量 (12.6%) とおおむね一致した。また 720 ~ 900 °C の重量減少 (4.9%) は添加した NaCl 量 (4.8%) と同量であり、同温度域での吸熱反応や、800 ~ 900 °C での $m/z = 58$ (NaCl) の検出から、720 ~ 900 °C の重量減少は NaCl の揮発によるものと考えられる。さらに、 $m/z = 58$ (NaCl) の揮発ピークとあわせて $m/z = 133$ (Cs) の揮発ピークも確認され、 NaCl の揮発が Cs の揮発を誘引していると推測された。

以上の TG-DSC-MS 分析結果から、Cs 除去剤として NaCl を用いた場合には 800 ~ 900 °C の温度域で NaCl の熔融塩が形成され、この熔融塩と Cs がともに揮発している可能性が示唆された。また、表 4.2 の Cs 除去率への温度の影響の結果と比較すると、800 ~ 900 °C は Cs 除去率の向上が見られる温度域であり、TG-DSC-MS 分析結果での $m/z = 133$ (Cs) の揮発とも一致した。以上より、Cs 汚染土壌のモデル化合物であるバーミキュライトについて、加熱化学処理の特徴である比較的低温での Cs 揮発除去が確認できた。

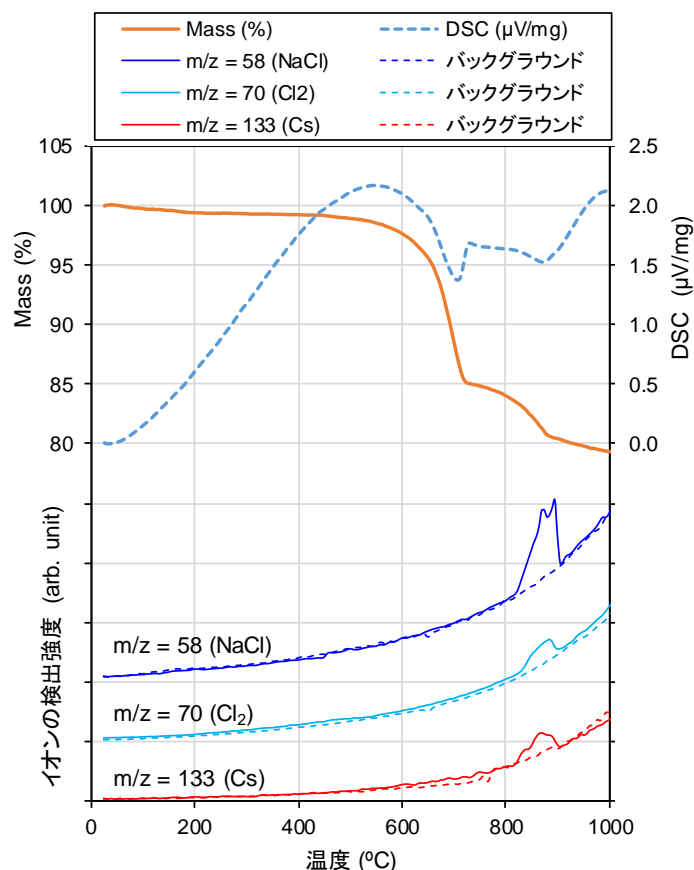


図 4.4 温度変化にともなう重量-熱量変化 (TG-DSC) および揮発成分 (MS)

4) 粘土鉱物からの Cs 除去メカニズムのまとめ

除染・減容化技術の一種である加熱化学処理技術について、粘土鉱物（バーミキュライト: Hydrobiotite, Vermiculite および Mica group の混合物）への適用検討ならびに粘土鉱物からの Cs 除去メカニズムの推定を行った。得られた主要な知見を以下に示し、粘土鉱物からの Cs 揮発除去イメージ図を図 4.5 に示す。

- 1) 粘土鉱物のうち、Cs を特異的に吸着・固定化するバーミキュライトに対して、加熱化学処理技術が効果的に適用できることを確認した。焼成法や溶融法[12-14]と比較して低い処理温度である 1,000 °C にて 95.9%、高温化 (1,200 °C) により最大 99.9% の Cs 除去率を得た。
- 2) 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 が消失する必要がある、加熱温度は 1,000 °C 以上が必要であること、Cs 除去剤として NaCl だけで無く CaCO₃ と併用する必要があることが明らかとなった。
- 3) 加熱化学処理による Cs の揮発メカニズムとして、NaCl の溶融塩と Cs がともに揮発している可能性が示唆された。

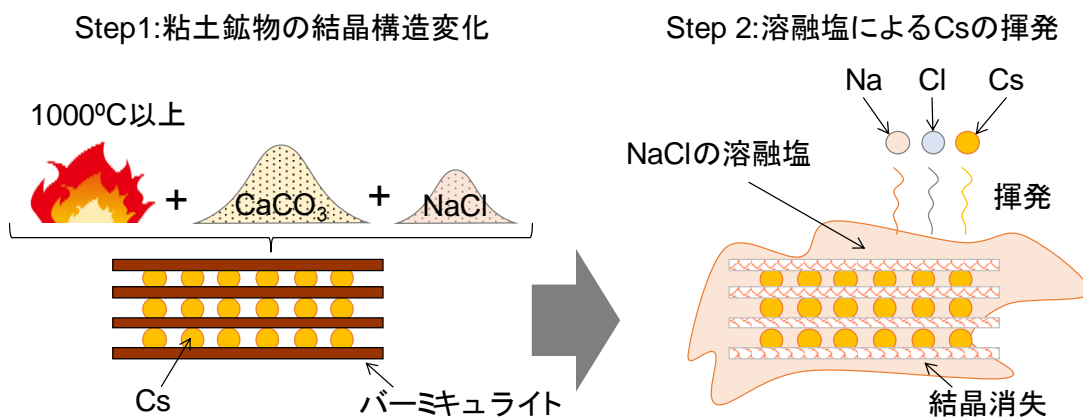


図 4.5 粘土鉱物からの Cs 揮発除去イメージ図

4.3. 一般廃棄物主灰からの放射性 Cs 除去

4.3.1. 加熱化学処理の対象物

第 2 章で示したように、一般廃棄物焼却施設からは焼却形式の違いにより、異なる種類の焼却残渣が発生する。飛灰については、焼却形式の違いによらず放射性 Cs は水溶性割合が多いことから、減容化技術として各種の飛灰洗浄技術が開発されている[5-10]。炉下排出物のうち、不燃物やスラグ、鉄・アルミ等の金属類は比較的発生量も少なく、それらの放射性 Cs 濃度が低いため、除染・減容化の必要性は低いと考えられる。一方、ストーカ炉から排出される主灰は、一般廃棄物中の放射性 Cs の約 3 割が移行し、不燃物やスラグに比べると濃度が高く、発生量も多いことから、放射性 Cs の除去による除染・減容化、つまり、浄化し再生利用することが減容化手法として有用である。主灰中の放射性 Cs は水に対して難溶性の形態で存在するため、洗浄技術の適用は困難であり、主灰等の難溶性 Cs を含む焼却残渣に対しては種々の熱処理による減容化技術が検討されているが(表 4.1)、いずれの技術も実用化はされておらず、また、科学的知見も十分とは言えない。また、主灰の汚染源の一つは一般廃棄物に混入した土壌の可能性が考えられるものの、主灰の性状自体は土壌とは異なり、放射性 Cs の存在形態も土壌中とは異なると考えられる。例えば、主灰では模擬汚染物の焼却実験により、Cs は主に非晶質中に存在するとされるほか[40]、熱力学的な安定性からはおおむね 1,000 °C 以下ではアルミノケイ酸塩 (Pollucite 等) が生成すると考えられており[41]、このような Cs の存在形態の違いは Cs 除去の際にも影響があると考えられる。そこで本研究では、一般廃棄物の「主灰」を対象に放射性 Cs の除去率と温度、Cs 除去剤の混合比率、粒径等の操作条件の影響を検討するとともに、加熱化学処理前後の主灰等の結晶構造変化について調べ、Cs 除去剤の効果について推定した

4.3.2. 試験方法

1) 試料および試料性状の分析

本試験では、福島県内の一般廃棄物焼却施設(ストーカ焼却炉)から発生した主灰を試験対象とした。主灰は 2 施設より採取し、それぞれ主灰①および主灰②とした。いずれの施設でもガス冷却灰は主灰へと合流されている。主灰①は乾灰を焼却炉の下で柄杓で受けて採取し、主灰②はコンベヤから排出された湿灰をフレコン表層より採取した。試料は 1 日の中で複数回採取したものを混合した後、105 °C のオーブンで恒量になるまで乾燥させて、試験に供した。なお、乾燥前の主灰②の含水率は 30.3%であった。各試料の放射性 Cs 濃度はゲルマニウム半導体検出器(ORTEC、GEM-35 もしくは GEM-30、GMX-40)を用いて測定し、各試料の採取日に減衰補正した Cs-134 と Cs-137 の合計値を放射性 Cs 濃度とした。主灰①の粒径毎の放射性 Cs 濃度と積算重量割合を図 4.6 に示す。基本的に粒径が小さいほど放射性 Cs 濃度が高くなる傾向が見られ、特に 0.125 mm 未満の主灰の放射性 Cs 濃度は顕著に高かったが、その重量割合は数%とかなり低かった。一般に土壌ではシルト・粘土分に放射性 Cs が特異的に濃集し、0.075 mm 以下に約 8 割の放射性 Cs が存在するなど

[42]の特性から、分級処理により放射性 Cs の分離が可能であることに比べると、主灰では粒径の違いによる濃度差は比較的小さく、主灰の放射性 Cs は分級処理による除去は難しい。そのため、主灰では、細粒分だけでなく粗粒分も含めて全量を加熱化学処理の対象とした。しかし、主灰でも粒径が小さいほど明確に放射性 Cs 濃度は高く、土壌と同様に生成由来や性状が粒径の違いにより異なり、放射性 Cs の存在形態も異なることも考えられることから、細粒分と粗粒分に分けて以後の試験に用いた。これらの区分けは、全試料量のおおよそ半分になる粒径であるとともに、浄化物の土木資材としての再利用を想定した場合に砂と礫の区分境界となる粒径[43]である 2 mm をしきい値に定め、2 mm ふるい下のものを細粒分、2mm ふるい上のものを粗粒分とした。加熱化学処理の処理条件の詳細な検討では放射性 Cs 濃度の高い細粒分 (2 mm ふるい下) を主対象として行った。粗粒分 (2 mm ふるい上) では一般に、灰分以外の陶磁器片や金属類、岩石等が多く含まれることから[44] 組成の変動が予想されるため、試験に用いるには試料を均一にする必要があり、2mm ふるい下を通過するまでメノウ製乳鉢で粗砕したものを試験に用いた (以下、粗砕物)。

試験に用いた主灰の元素組成および主要結晶相、結晶化率を表 4.3 に示す。元素組成は波長分散型蛍光 X 線分析装置 (リガク、Supermini200) を用いて 50 kV, 4 mA の条件で測定した。ZSX マッチングライブラリ (ver. 7.65、リガク) を使用し、散乱線より非測定成分を推定する SQX (Scan Quant X) 散乱線 FP 法により元素組成を酸化物として計算した。結晶相の分析はバーミキュライトの分析と同様に XRD 分析を行い、結晶化率は Jade 9.7 (Materials Data Inc.) により XRD パターンのピーク分離を行い、全ピーク面積に対する結晶性ピーク面積の割合として算出した。いずれの主灰でも、細粒分の方が粗粒分よりも塩基度 (CaO/SiO₂) や塩素 (Cl)、ナトリウム (Na) やカリウム (K) といったアルカリ金属の濃度が高かった。主灰試料中の主要結晶相は、細粒分、粗粒分に関わらず Quartz と Albite, Anorthite であり、福島県内の土壌中でよく確認される鉱物と同じあるため[45-48]、主灰への土壌の混入が考えられ、

先述のように放射性 Cs の汚染源の一つは土壌であると示唆された。細粒分と粗粒分の結晶相の違いは、Calcite (CaCO₃) が細粒分でのみ存在するという点と、細粒分は粗粒分比べて結晶化率が高いという違いがあった。

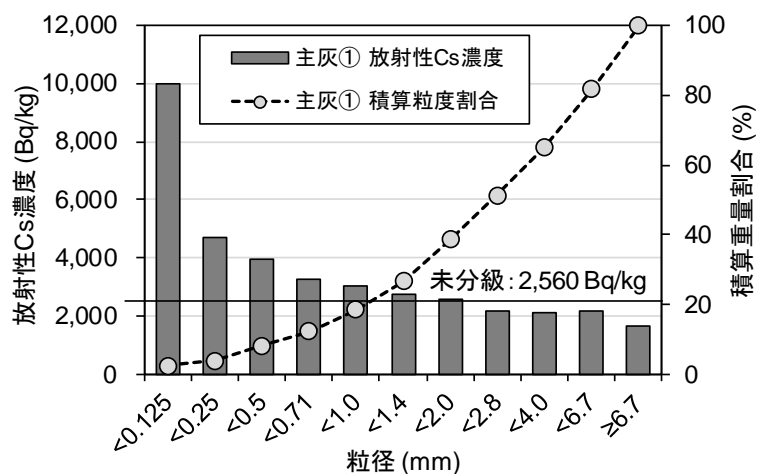


図 4.6 主灰の粒径毎の放射性 Cs 濃度と積算重量割合 (乾燥基準)

表 4.3 処理対象試料の元素組成および結晶相等の性状

| 試料名称 | 主灰① | | 主灰② | | |
|--------------------------------|--------------------------------|------------------|------------------|------------------|------|
| | 細粒分 (2mmふるい下) | 粗粒分 (2mmふるい上) | 細粒分 (2mmふるい下) | 粗粒分 (2mmふるい上) | |
| 発生割合(%) | 39 | 61 | 66 | 34 | |
| Na ₂ O | 4.1 | 3.9 | 4.1 | 3.7 | |
| MgO | 1.9 | 2.0 | 2.1 | 2.3 | |
| Al ₂ O ₃ | 10.7 | 13.2 | 14.2 | 13.3 | |
| SiO ₂ | 34.5 | 46.0 | 32.2 | 48.3 | |
| 元素組成 (wt.%) | Cl | 1.9 | 0.31 | 1.5 | 0.50 |
| | K ₂ O | 2.6 | 2.3 | 2.4 | 2.2 |
| | CaO | 21.1 | 15.9 | 18.7 | 12.5 |
| | Fe ₂ O ₃ | 3.9 | 6.0 | 5.1 | 8.9 |
| | 塩基度 (CaO/SiO ₂) | 0.61 | 0.34 | 0.58 | 0.26 |
| 主要結晶相 | Quartz | Quartz | Quartz | Quartz | |
| | Albite | Albite | Albite | Albite | |
| | Anorthite | Anorthite | Anorthite | Anorthite | |
| | Calcite | Akermanite | Calcite | Hematite | |
| | Microcline | | Gehlenite | | |
| 結晶化率(%) | 64.0 | 58.7 | 72.6 | 47.8 | |

2) ラボ試験 (卓上管状炉試験)

2)-1 加熱化学処理試験

加熱化学処理試験は、はじめに卓上管状炉を用いたラボ試験 (約 5g/バッチ) で基本的な処理条件を検討した後、回転式加熱試験装置でベンチ試験 (300g/バッチ) を行った。また、卓上管状炉および回転式加熱試験装置では高温での処理ができないため、最大 1,200 °C までの高温での処理を卓上高温マッフル炉 (約 5g/バッチ) で実施した。加熱化学処理試験では、予め主灰 (汚染物) に所定の割合で Cs 除去剤を添加して十分に混合した試料を調製して各電気炉で加熱化学処理試験を行い、浄化物を得た。Cs 除去剤は、バーミキュライトでの試験と同様、NaCl および CaCO₃ の 2 種類である。加熱化学処理試験前後の重量および放射性 Cs 濃度を測定し、(4.2) 式のように試料中の放射性 Cs 量の変化から放射性 Cs 除去率を計算した。

$$\text{放射性 Cs 除去率}[\%] = \left(1 - \frac{\frac{\text{浄化物量}[\text{g}]}{1,000} \times \text{浄化物の放射性 Cs 濃度}[\text{Bq/kg}]}{\frac{\text{汚染物量}[\text{g}]}{1,000} \times \text{汚染物の放射性 Cs 濃度}[\text{Bq/kg}]} \right) \times 100 \cdots (4.2)$$

卓上型管状炉 (山田電機、T-740) を用いた加熱化学処理試験は、図 4.7 に示す概略図に従って行った。図 4.7 中の耐火物は炉心管端部の金属製フランジへの熱の伝達を防ぐために

設置した。主灰と Cs 除去剤を混合した試料 (約 5g) を磁性アルミナボート (W16×L80×H 12 mm) に圧密することなく装入し、あらかじめ加熱温度まで昇温させたアルミナ製の管状炉 (内径 φ60×L1000 mm) へ挿入した。試験中にはキャリアガスとして空気を供給 (1 L/min) し、大気雰囲気とした。60 分加熱後に試料を取り出し、室温大気中で自然冷却した。主灰中の放射性 Cs の汚染源の一つは主灰中に含まれる土壌と推定されることから、処理条件は土壌処理[11,38]を参考にして加熱温度を 1,000 °C、加熱時間を 60 分、Cs 除去剤の混合比率は、主灰 : CaCO₃ : NaCl = 70 : 30 : 5 を基本的な処理条件とし、各試料について同条件の試験を 3 回行った。3 回試験を行った場合の放射性 Cs 除去率の変動係数は、細粒分で 1.2 ~ 2.8%、粗粒分で 6.9 ~ 14.8%であった。処理条件の詳細な検討を行う細粒分では繰り返し試験の誤差が小さいことが確認できたため、以後の試験は基本的に 1 条件につき 1 回行った。加熱化学処理試験により、細粒分、粗粒分毎の放射性 Cs 除去率を確認すると共に、細粒分を対象として加熱温度および Cs 除去剤の混合比率を変化させて加熱化学処理試験を行い、主灰を対象とした場合の処理条件の最適化を試みた。

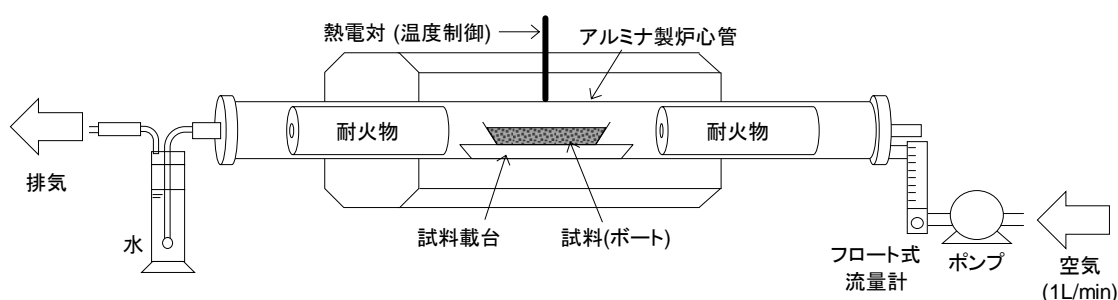


図 4.7 卓上管状炉による加熱化学処理試験の概略図

2)-2 水洗浄併用による放射性 Cs 除去率向上の検討

加熱化学処理後の浄化物について、揮発せずに残留した放射性 Cs の水洗除去についての検討を行った。これは、放射性 Cs が CsCl として揮発除去されるのであれば、CsCl の水への高い溶解性 (186.5 g/100g-H₂O (20 °C))[49]を利用して水洗により放射性 Cs の除去可能であると考えたためである。本検討では、卓上管状炉試験により加熱温度 600 ~ 1,000 °C で変化させて揮発除去による放射性 Cs 除去率を求め、その次に加熱化学処理後の浄化物を水洗して水洗除去による放射性 Cs 除去率を求めた。水洗は JIS K 0058-1[50]を参考にし、加熱化学処理後の浄化物全量に 10 倍量の純水を加え、6 時間振とう (200 rpm) した後、あな径 0.45 μm のメンブレンフィルターでろ過して溶出残渣の放射性 Cs 濃度を測定した。揮発除去による放射性 Cs 除去率は (4.2) 式に従い、水洗除去による放射性 Cs 除去率は、以下の (4.3) 式のように計算した。

(水洗) 放射性 Cs 除去率[%]

$$= \left(\frac{\frac{\text{浄化物量}[\text{kg}]}{1,000} \times \text{浄化物の放射性 Cs 濃度} \left[\frac{\text{Bq}}{\text{kg}} \right] - \frac{\text{溶出残渣量}[\text{kg}]}{1,000} \times \text{溶出残渣の放射性 Cs 濃度} \left[\frac{\text{Bq}}{\text{kg}} \right]}{\frac{\text{汚染物量}[\text{kg}]}{1,000} \times \text{汚染物の放射性 Cs 濃度} [\text{Bq/kg}]} \right) \times 100 \quad (4.3)$$

2)-3 熱処理過程における Cs 除去剤の挙動

4.2 節のバーミキュライトを用いた加熱化学処理試験で示しように、Cs の揮発除去には NaCl の揮発が重要となる。そこで、Cs 除去剤である NaCl と CaCO₃ の混合比率を変化させた場合の NaCl 揮発温度を調べるために、TG-DSC (熱重量示差走査熱量測定) 分析を行い、昇温時の重量および熱量変化を測定した。分析には NETZSCH 製の STA409CD を用い、所定量の Cs 除去剤をアルミナ製の試料パンに秤量して混合し、試料室に 70 ml/min で空気を供給して測定を行った。実機を想定したロータリーキルンでの加熱化学処理では目標の処理温度である 1,000 ~ 1,100 °C へは 1 時間程度で到達するが[30]、本試験では NaCl の揮発温度等の Cs 除去剤の挙動を正確に把握することが目的であるため、昇温速度は 5 °C/min と緩慢な速度とし、1400 °C まで昇温した。Cs 除去剤の混合比率は、NaCl のみ、NaCl : CaCO₃ = 1 : 2、1 : 6、1 : 10 の 4 条件とした。NaCl の揮発温度の比較が目的であるため、NaCl 量の変化が揮発時間および揮発速度へ与える影響を防ぐために NaCl の量は一定量 (1.52 ~ 1.58 mg) とし、CaCO₃ を各混合比率になるように変化させて (0 ~ 15.21 mg) 添加し、所定の Cs 除去剤混合比率とした。

2)-4 粉砕処理の検討

加熱化学処理の前処理として、主灰の粉砕処理の検討を行った。粉砕処理には転動ボールミルを用いた。ボールミルポットおよびメディアにはアルミナ製のものを用い、所定時間毎に粉砕物を取り出した。得られた粉砕物についてレーザー回折散乱法 (Malvern、LMS-2000e/S) により、粒径分布を測定するとともに、比表面積・細孔分布測定装置 (Quantachrome、QUADRASORB SI) を用いてガス吸着法により比表面積を BET3 点法で評価した。粒径は、体積基準で積算 50%での粒径 (D50 値) を代表値とした。比表面積測定は一度に測定できる試料量が少なく、粉砕処理前の粗粒分試料では分析値のばらつきが予想されたため、複数回 (n = 4 ~ 5) 測定した。粉砕物は Cs 除去剤と混合した後、a) と同様に卓上管状炉での加熱化学処理試験に供し、加熱温度 1,000 °C、加熱時間 60 分、主灰 : CaCO₃ : NaCl = 70 : 30 : 5 の条件で加熱化学処理試験を行った。

2)-5 XRD 分析およびモデル化合物 (Pollucite) での Cs 除去

加熱化学処理前後の試料の結晶構造を比較するため、2)-1 の加熱化学処理で得られた試料について XRD 分析を行った。分析対象は細粒分とし、加熱化学処理前の試料ならびに未粉砕試料の 700 °C および 1,000 °C での加熱化学処理後の 3 試料の分析を行い、XRD パタ

ーン変化を比較した。なお、加熱化学処理の条件は加熱時間 60 分、主灰 : CaCO_3 : NaCl = 70 : 30 : 5 で行った。

主灰中に含まれる Cs 量は、元々含まれている安定性 Cs である Cs-133 濃度は通常数 mg/kg 程度である一方で[51] (高くても 10 mg/kg 程度のオーダー[52])、放射性 Cs のうち Cs-137 は例えば 10 万 Bq/kg 存在した場合でも 31 ng/kg とごく微量である。そのため、実際の主灰の分析では Cs の存在形態は把握できないことから、Cs を含むモデル化合物を用いて加熱化学処理における結晶構造の変化を調べた。モデル化合物には、熱力学平衡計算による焼却過程(1,000 °C 以下)での主灰中の Cs の安定な存在形態とされている[41]Pollucite ($\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$) を用いた。Pollucite は既往の合成法[53-55]により作製され、XRD パターンは参照データ (PDF 00-029-0407) とよく一致していた。上述のように汚染主灰中に含まれる Cs 量はごく微量であることから、加熱化学処理で添加する Cs 除去剤量は他の金属元素の影響も考慮する必要はあるものの主灰中の Cs 量に対しては化学量論からは十分量の Cs 除去剤が添加されていることになる。Pollucite 中の Cs 濃度はおよそ 40%であり、放射性 Cs 処理時のモル当量比を適用することは現実的ではないため、本試験では Pollucite に対して過剰量の Cs 除去剤量となるよう、Pollucite : CaCO_3 : NaCl = 7 : 60 : 10 と、Pollucite の 10 倍量の Cs 除去剤を混合して加熱化学処理を行い、処理前後の XRD パターンを比較した。加熱化学処理は加熱温度 1,000 °C、加熱時間 60 分の条件で卓上管状炉にて行った。Cs 濃度は、アルカリ溶解した試料を ICP-MS (Agilent Technologies、Agilent8800x 型) により定量した。なお、Cs 除去率の計算は、バーミキュライトと同様に (4.1) 式により Cs 量の変化から計算した。

3) ベンチ試験 (回転式加熱試験装置)

3)-1 加熱化学処理試験

回転式加熱試験装置 (アドバンテック東洋) を用いて 300g/バッチ規模での加熱化学処理を行った。試験装置の概略図を図 4.8 に示す。主灰に所定割合の Cs 除去剤を混合した試料を耐火物で被覆した炉心管 (内径 $\phi 127 \times L300$ mm) に装入して試験装置に設置し、キャリアガスとして空気を約 7 L/min で供給しながら 3 rpm で回転させた。所定温度まで昇温して所定時間加熱化学処理した後に室温まで冷却して浄化物を回収した。排ガスは円筒ろ紙およびガス吸収水を通過させ放射性 Cs を捕集した。ガス吸収水の放射性 Cs 濃度は検出下限値未満 (<10Bq/L) であり、系外への排出はなかったと判断した。しかし、炉心管から円筒ろ紙の間の配管部に濃縮汚染物の一部が付着するほか、耐火物にも放射性 Cs が浸透・蓄積することから、正確な物質収支の把握は困難であった (卓上管状炉試験、卓上高温マッフル炉試験でも同様)。本研究では各操作条件の影響を評価するために、一試験ごとに実験装置の清掃 (耐火物の交換等) を行ったために濃縮汚染物の装置への付着等の影響が大きかったが、実機では長期間の運転により炉内への初期浸透・初期蓄積の影響が小さくなり、濃縮汚染物はバグフィルタ等の既存の集じん装置において回収可能であると考えている。放

放射性 Cs 除去率は卓上管状炉試験と同様に加熱化学処理試験前後の試料について重量および放射性 Cs 濃度を測定して (4.2) 式により求めた。ベンチ試験ではラボ試験の結果を確認するとともに、加熱時間および温度の放射性 Cs 除去率への影響を調べた。

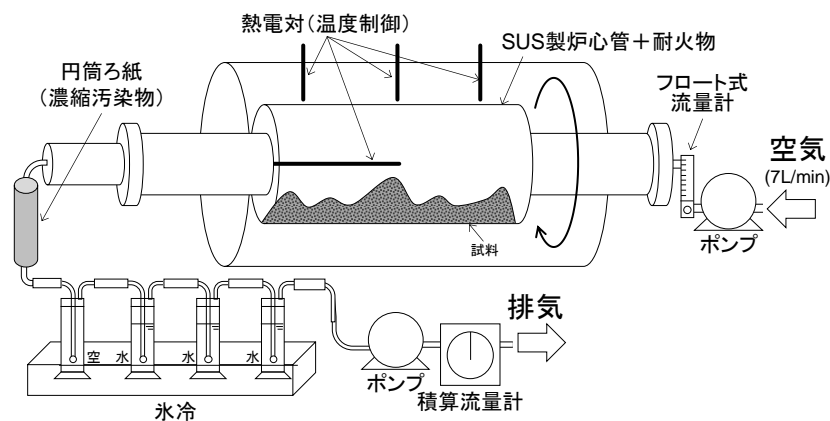


図 4.8 回転式加熱試験装置による加熱化学処理試験の概略図

3)-2 放射性 Cs 存在形態の変化 (逐次抽出試験)

加熱化学処理前後の試料について放射性 Cs の存在形態および安定性を評価するために、逐次抽出試験を行った。既往研究[56]を踏襲し、異なる溶媒の条件での放射性 Cs の抽出操作を逐次適用した。

4) 高温化による放射性 Cs 除去率の向上

加熱化学処理技術は他の熱処理浄化技術に比べて低温での処理が特徴の一つであるが、高濃度の処理対象物が混入した場合などはより高い放射性 Cs 除去率が必要とされる場面が想定される。前出の回転式加熱試験装置および卓上管状炉では最大 1,100 °C までしか昇温できないため、より高温での試験を行うために卓上高温マuffle炉 (山田電機製、MSS-2540) を用い、最大で 1,200 °C までの試験を行った。卓上管状炉試験と同様の磁性アルミナボートへ装入した試料を、あらかじめ所定温度に調整されたマuffle炉へ装入し、60 分間加熱した後に試料を取出して室温大気中で自然冷却した。炉内の雰囲気は大気雰囲気に保持した。放射性 Cs 除去率は、ラボ試験およびベンチ試験と同様に (4.2) 式により評価した。本試験は同条件について 1~2 回試験を行い、2 回行った場合にはその平均値を用いて比較した。

4.3.3. 結果と考察

1) ラボ試験 (卓上管状炉試験)

1)-1 加熱化学処理試験

細粒分 (2 mm ふるい下) と粗粒分 (2 mm ふるい上:粗砕物) について、同一条件で加熱化学処理を行った場合の放射性 Cs 除去率を図 4.9 に示す。主灰①および主灰②ともに、細粒分では 80%以上の放射性 Cs が除去できたのに対し、粗粒分の粗砕物での放射性 Cs 除去率は 60%程度にとどまった。表 4.3 に示したように、細粒分は粗粒分に比べると塩基度 (CaO/SiO_2) や塩素濃度が高く、このことが細粒分で放射性 Cs 除去率が高く、粗粒分では低くなった原因の一つと考えられる。つまり、塩基度が高い状態は非架橋酸素原子の増加により、アルミノケイ酸塩ガラスの網目構造が弱化するため[57]、放射性 Cs の揮発が促進されたものと考えられる。また、塩素が多いと Cs は CsCl として揮発する可能性が考えられ、 CsCl は高温下ではガス態として揮発しやすい性質があるために[41]、塩素の供給量が多くなることで放射性 Cs の揮発による除去が進むと考えられる。ただし、土壌処理における同条件での放射性 Cs 除去率は 89 ~ 93%であり[11]、土壌と比較すると主灰からの放射性 Cs 除去率は細粒分、粗粒分とも低く、処理条件の最適化が必要であることがわかった。

次に、細粒分を対象に、Cs 除去剤の混合比率と放射性 Cs 除去率の違いについて調べた (図 4.10)。Cs 除去剤として添加した NaCl および CaCO_3 が多いほど放射性 Cs 除去率は高くなる傾向があり、主灰①、②ともに Cs 除去剤の混合比率を増やすことで 90%以上の放射性 Cs が除去可能であった。特に、 NaCl 量の増加に対する放射性 Cs 除去率の向上は顕著であることから、 NaCl の存在が放射性 Cs 除去に対する主要因となっていると考えられる。一方、 NaCl が存在しない場合には CaCO_3 添加による放射性 Cs 除去率向上の効果は見られないが、 NaCl が存在する場合には CaCO_3 添加により放射性 Cs 除去率が向上し、 CaCO_3 はそれ単体では放射性 Cs 除去へは効果は与えない間接的な放射性 Cs 除去の機序が存在していると考えられる。Cs 除去剤の効果については次項で考察する。また、Cs 除去剤が存在しない場合にも 60~65%の放射性 Cs が除去されている。これは、主灰中の塩素と放射性 Cs が反応して CsCl ガスとして揮発除去されたためであると考えられる。

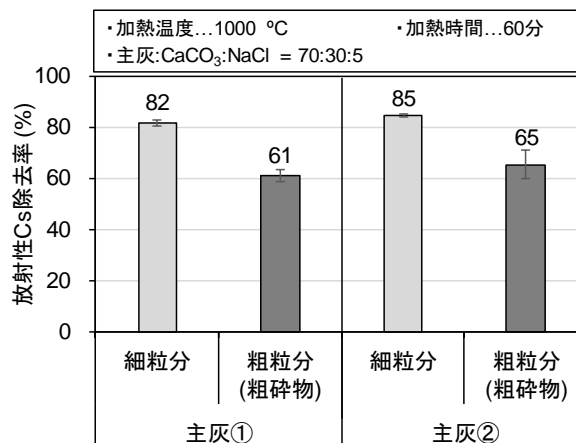


図 4.9 主灰種類および粒径の違いによる放射性 Cs 除去率 (エラーバーは標準誤差を示す)

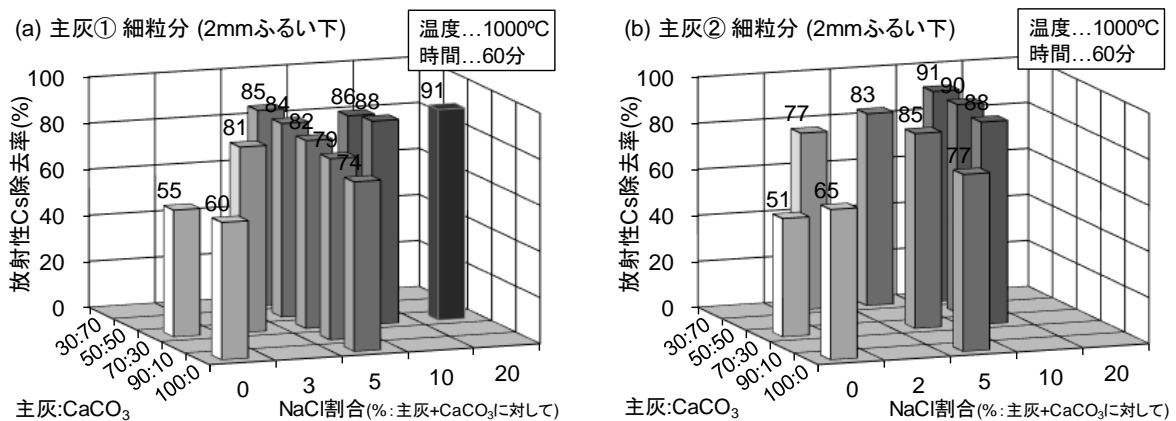


図 4.10 (a) 主灰①および (b) 主灰②における細粒分 (2mm ふるい下) の Cs 除去剤の混合比率と放射性 Cs 除去率の関係

1)-2 水洗浄併用による放射性 Cs 除去率向上の検討

600 ~ 1,000 °C の温度域における、加熱処理による Cs の揮発除去および加熱処理後の浄化物の水洗除去による放射性 Cs 除去率を図 4.11 に示す。加熱温度が放射性 Cs 除去率へ与える影響は大きく、水洗を行わずに揮発除去のみで 80%以上の高い放射性 Cs 除去率を得るためには 1,000 °C 以上の加熱温度が必要であることがわかった。600 °C の処理では、放射性 Cs の揮発除去率は 2 ~ 16%と低い、水洗により約 5 ~ 7%の放射性 Cs が除去された。加熱温度の増加とともに揮発による放射性 Cs 除去率は大きくなったのに対し、水洗による放射性 Cs 除去率は 700 °C での処理の場合が最も高く、約 30%の放射性 Cs が水洗により除去され、700 °C での処理の場合には揮発による放射性 Cs の除去分よりも水洗による除去分の寄与の方が大きかった。CsCl の融点は 645 °C であるため、700 °C での処理の場合には、Cs は水溶性の形態として存在するが、揮発ポテンシャルが低いために揮発せずに浄化物に残留していると考えられる。800 °C 以上の処理では CsCl の揮発が促進されて水洗による放射性 Cs 除去率が相対的に小さくなった。加熱温度 700 °C の条件では水洗により除去される放射性 Cs は他

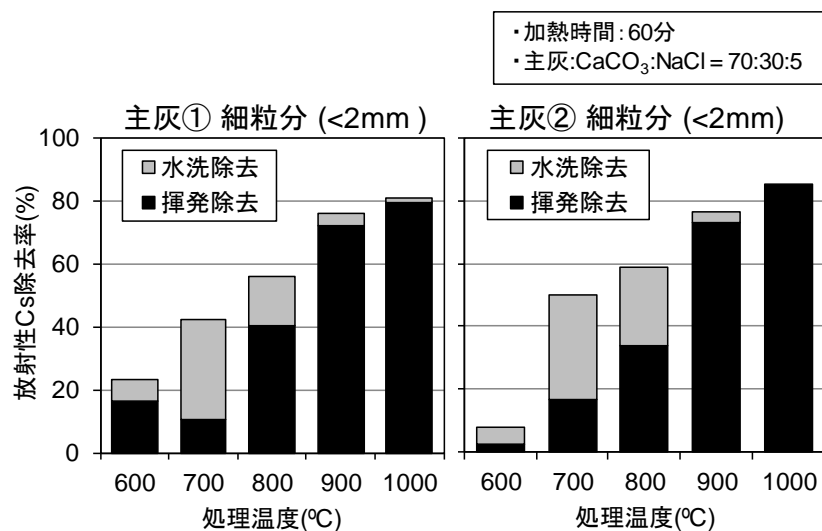


図 4.11 加熱化学処理による揮発除去および水洗除去による放射性 Cs 除去率

の温度域に比べると高いものの、揮発除去分を含めてトータルでの放射性 Cs 除去率を考えると 40 ~ 50%程度にとどまっており、本実験で放射性 Cs 除去率がもっとも高くなったのは、1,000 °C での処理の場合であり、放射性 Cs を除去するには高温により揮発させることが最適であった。

1)-3 熱処理過程における Cs 除去剤の挙動

Cs 除去剤である NaCl と CaCO₃ の混合比率を変化させた場合の昇温に伴う重量変化および熱量変化を図 4.12 に示す。図 4.12 左の重量変化より、NaCl と CaCO₃ の混合物では 600 °C 以上で CaCO₃ からの CO₂ の脱離に伴う重量減少が見られ、重量減少量は混合した CaCO₃ が多いほど大きかった。CO₂ の脱離に続いて 800 ~ 1,000 °C の間で二段階目の重量減少があり、これは NaCl の揮発によるものと考えられる。NaCl の揮発に伴う重量変化の際の温度としては、800 °C 付近の重量減少(揮発)の開始温度、1,000 °C 付近の重量減少(揮発)の終了温度ともに NaCl と CaCO₃ の混合比率の変化による大きな違いは見られなかった。また、NaCl の揮発過程の 800 ~ 1,000 °C の間での重量減少の傾きも、CaCO₃ の混合比率の変化による影響は見られなかった。さらに、図 4.12 右の熱量変化からは、NaCl の融解(揮発開始)と考えられるシャープな吸熱反応が約 800 °C で見られるが、この吸熱反応のピークも CaCO₃ の混合比率の増加によって変化することはない、NaCl の融点 (801 °C) とほぼ一致した。NaCl と CaCl₂ の混合物の場合には、共晶により共晶塩の融点が低くなるということが知られているが[58]、NaCl と CaCO₃ ではそのような現象は見られなかった。すなわち、CaCO₃ の添加は NaCl の揮発温度の低下や NaCl の揮発促進には直接的な影響は与えていないことがわかった。4.2 節で示したようにパーミキュライトの場合には CaCO₃ は結晶構造変化に寄与したためであると考えられており、CaCO₃ の添加効果の機序は後述する Cs を取り込んでいる結晶等の構造変化であると予想される。

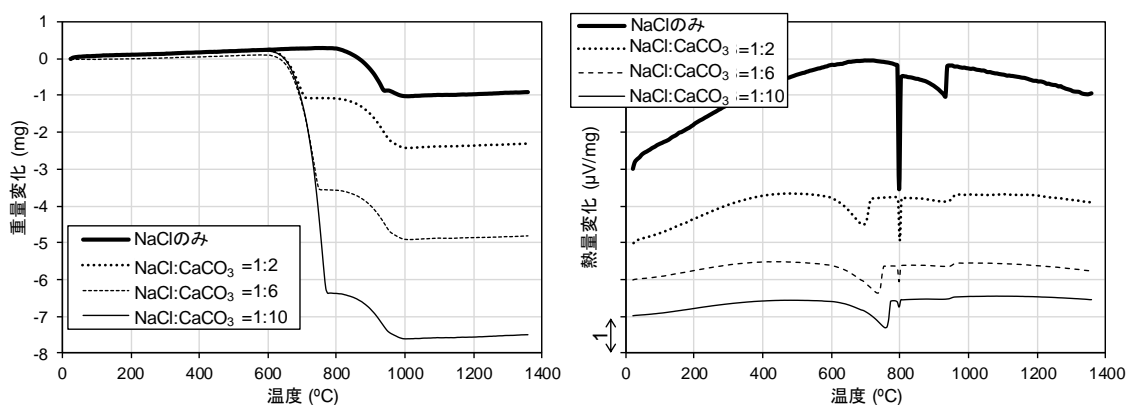


図 4.12 各 Cs 除去剤の混合比率での Cs 除去剤の重量変化 (左) および熱量変化 (右)

1)-4 粉砕処理の検討

主灰、特に粗粒分の主灰では土壌と比較すると放射性 Cs 除去率が低いことから、主灰の組織を物理的に破壊することで放射性 Cs が揮発しやすくなると考え、加熱化学処理の前処理として主灰の粉砕処理を検討した。まず初めに粉砕する前の主灰の比表面積を調べた (図 4.13)。粗粒分は粗砕を行う前の試料 (未粉砕 : 2 ~ 6.7 mm に分級後のもの) と粗砕物 (2 ~ 6.7mm に分級後のものを 2 mm 以下に粉砕したもの) について $n = 4 \sim 5$ で測定し、比較した。粗粒分の粗砕物の粒径は細粒分とおおよそ同等であるが、主灰①、②とも、粗粒分の粗砕物の比表面積は細粒分と比べると小さく、同一主灰であっても粒径によって性状が異なることが推察された。特に主灰①の粗粒分では比表面積は約 $0.7 \text{ m}^2/\text{g}$ と一般的な主灰の比表面積 ($3 \sim 46 \text{ m}^2/\text{g}$) [59] よりも小さく、粗粒分では低い比表面積により Cs 除去剤との接触効率が低いために放射性 Cs 除去率が低くなったものと推定される。図 4.14 にボールミルで粉砕した後の主灰粒径 (D50 値) と比表面積の関係を示す。粉砕処理による細粒化により主灰の比表面積を増大させることができたが、明確に比表面積を向上させるためには、粉砕後の粒径を $10 \mu\text{m}$ 以下にする必要があるとわかった。また、粉砕後の粒径が同じ場合には、粗粒分よりも細粒分の方が比表面積は大きいことから、原主灰の粒径によって主灰の微細構造が異なると考えられる。

次に、ボールミルにより粉砕した主灰について卓上型管状炉を用いて加熱化学処理を行った。図 4.15 に粉砕後主灰の比表面積と粉砕物の加熱化学処理による放射性 Cs 除去率の関係を示す。細粒分では粉砕後に加熱化学処理を行った場合でも放射性 Cs 除去率の向上は認められなかったが、粗粒分では比表面積が大きくなるほど放射性 Cs 除去率は向上して 80% を超え、細粒分と同等の放射性 Cs 除去率が得られた。細粒分と粗粒分での粉砕による Cs 除去率向上の効果の違いは、主灰中での放射性 Cs の存在形態やそれに対応する放射性 Cs 除去の律速段階の違いを示唆している。細粒分では粉砕により比表面積が劇的に増えているにも関わらず、粉砕による放射性 Cs 除去率の向上は見られず、加熱温度に応じて放射性 Cs 除去率が変化するため、Cs 除去反応、つまり NaCl と Cs の反応による Cs の揮発が律速であったと考えられる。一方、粗粒分の場合には、粒径の微細化により放射性 Cs 除去率が約 20% 向上し、向上分の放射性 Cs については、物質移動が放射性 Cs 除去の律速であったと考えられる。つまり、原主灰中の放射性 Cs と Cs 除去剤の物理的な接触面積が増大し、移動抵抗が低減したことで放射性 Cs 除去率が向上したと考えられる。

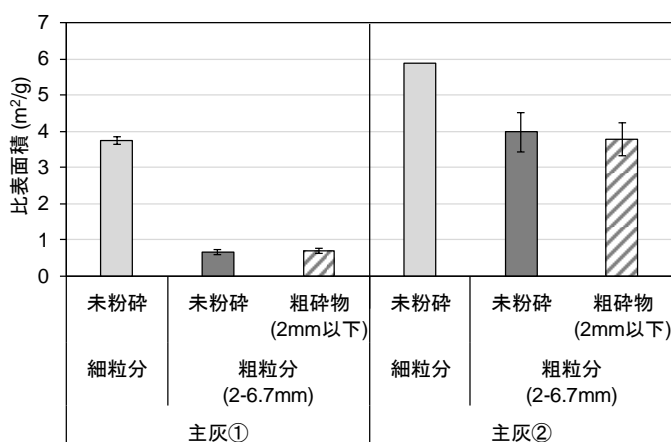


図 4.13 主灰種類および原主灰粒径の違いによる比表面積 (エラーバーは標準誤差を示す)

以上より、粉碎の前処理による放射性 Cs 除去率の向上は粗粒分に対してのみ有効であることから、細粒分 (2 mm ふるい下) は粉碎せずに有姿で、粗粒分 (2 mm ふるい上) は比表面積が増大する 10 μm 以下まで粉碎した後に加熱化学処理を行うことが望ましいという結果が得られた。

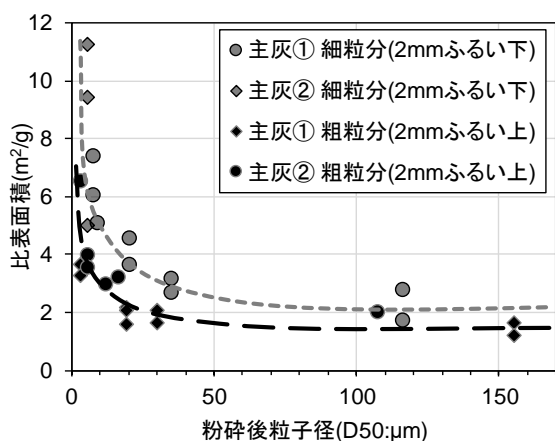


図 4.14 粉碎後の主灰粒径 (D50 値) と比表面積の関係

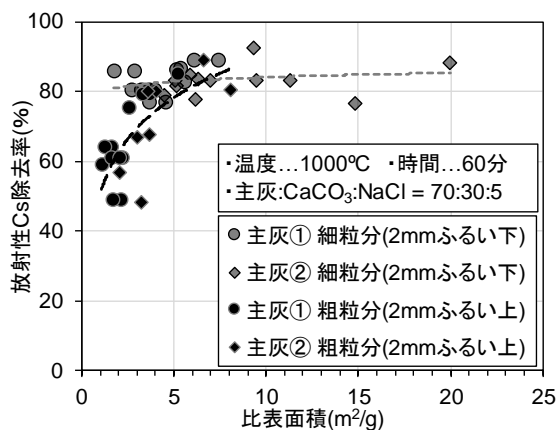


図 4.15 粉碎後主灰の比表面積と加熱化学処理による放射性 Cs 除去率の関係

1)-5 XRD 分析およびモデル化合物 (Pollucite) での Cs 除去

加熱化学処理前後の主灰の結晶構造を図 4.16 に示す。なお、図は細粒分の結果であるが、粗粒分でも以下に示す結果と同様の結果が得られた。主灰は Quartz (SiO_2) や Plagioclase (Albite ($\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$) と Anorthite ($\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$) の連続固溶体) を主体とした鉱物を含んでいるが、加熱化学処理の加熱温度が高くなるのに伴い図 4.16 の b、c のように Albite, Anorthite のピークが小さくなる一方で、Wollastonite (CaSiO_3) や Gehlenite ($\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7$)、Larnite (Ca_2SiO_4) のピークが大きくなり主灰の結晶構造変化が確認された。Cs のイオン半径は Na や K に比べて大きいいため Albite や Anorthite に含まれる Na や Ca が Cs と置換するとは考えにくいものの [60]、Cs を含む鉱物である Pollucite は Plagioclase と同様に三次元網目状のアルミノケイ酸塩鉱物 (テクトケイ酸塩鉱物) であることから、Pollucite で

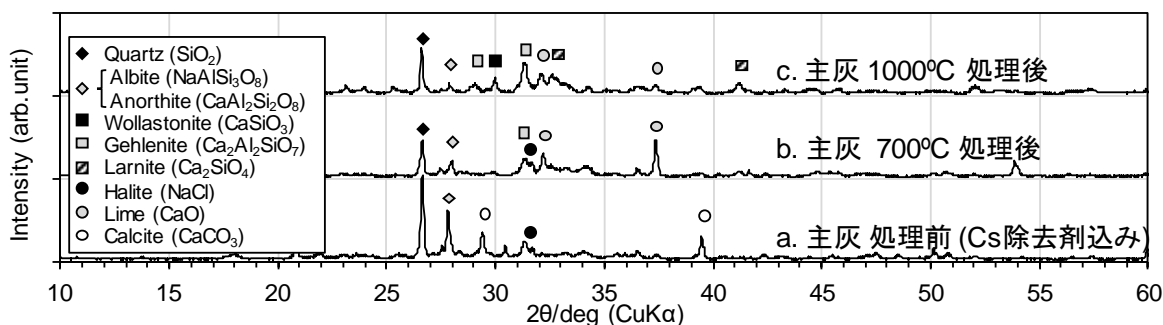


図 4.16 加熱化学処理前後の主灰① (細粒分)の XRD プロファイル

も結晶構造の変換が起きると予想される。また、加熱化学処理により生成する Wollastonite, Gehlenite, Larnite はいずれも化学量論比で Ca を多く含む鉱物であることから、Cs 除去剤として添加した CaCO_3 が結晶構造変化を促したと推測される。

次に、主灰中で Cs を含む鉱物として存在が推定されている Pollucite について、加熱化学処理前後での結晶構造の変化を調べた (図 4.17)。加熱化学処理後には、Cs 除去剤として添加した CaCO_3 由来の Lime (CaO) のほか、Larnite が確認され (図 4.17 : c)、Pollucite は消失した。この時の Cs 除去率は 96.5%であった。これらの知見より、主灰の加熱化学処理により Cs を含む結晶構造も変化して Cs が揮発除去されたと考えられる。また、加熱化学処理後に Ca を多く含む Larnite が確認されたことから CaCO_3 の添加による塩基度増大等の影響とともに、 CaCO_3 に含まれるカルシウム成分により Pollucite から Larnite への結晶構造の変化が促進された可能性も示唆された。土壌処理の場合においても、粘土鉱物の結晶構造が消失するためには CaCO_3 が必要であるとされており、 SiO_2 、 Al_2O_3 、CaO の主要元素組成や、層状 (Mica group)、三次元網目状 (Pollucite) などの鉱物的な特徴は土壌と主灰では異なるものの、結晶構造の変化を促す点では CaCO_3 の効果は主灰でも土壌処理と類似していると推定された。

アルカリ塩化物として NaCl を用いて Pollucite から Cs 除去が可能なことを実験的に初めて確認したが、既往研究においては、 CaCl_2 を Pollucite に混合した場合[21]、Pollucite の結晶が CsCaCl_3 を経由して Anorthite 等の Ca-Al-Si-O アルミノケイ酸塩と反応して $900 \sim 1,100^\circ\text{C}$ で消失すると報告されている。また、Pollucite に Cl_2 ガスを通気させて $1,000^\circ\text{C}$ で加熱処理した場合[25]にも Pollucite 結晶の消失が確認されている。実際の主灰の元素組成は複雑であることから、主灰に対する加熱化学処理においても本研究で示した Cs 除去メカニズムに加えて、これらの既往研究で考えられているような反応も併発していると考えられる。

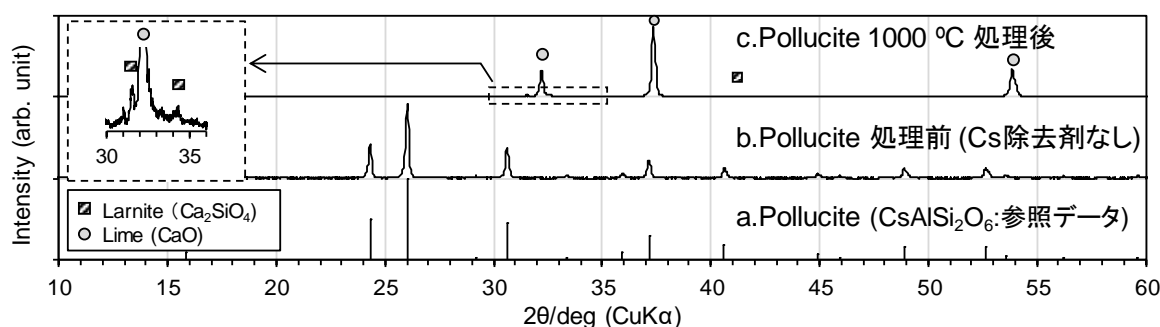


図 4.17 合成した Pollucite および加熱化学処理前後の Pollucite の XRD プロファイル

2) ベンチ試験 (回転式加熱試験装置)

2)-1 加熱化学処理試験

表 4.4 に加熱化学処理試験における 300g/バッチのベンチ試験での試験条件および試験結果を示す。細粒分のみを主灰 : CaCO_3 : NaCl = 70 : 30 : 5 の Cs 除去剤混合比率において 1,100 °C で処理した場合には 1,000 °C 処理よりも放射性 Cs 除去率は向上し、約 90% の放射性 Cs が除去された。また、加熱時間が長いほど放射性 Cs 除去率は高くなるが、加熱時間が放射性 Cs 除去率に及ぼす影響は比較的小さく、処理時間 60 分でも処理時間は十分であると判断できた。

次に、ラボ試験の粉碎処理の結果をふまえ、2 mm ふるい下の細粒分は粉碎せずに有姿で、2 mm ふるい上の粗粒分は 10 μm 以下に粉碎した試料について、加熱化学処理を行った。細粒分と粗粒分粉碎物は、ふるい分級前の割合 (焼却施設での発生割合) で混合した。加熱温度は 1,100 °C とし、Cs 除去剤の混合比率は、Cs 除去量を抑制しつつ放射性 Cs の揮発効率を高めるため、主灰 : CaCO_3 : NaCl = 70 : 30 : 10 とした。本条件での放射性 Cs のフローの一例を図 4.18 に示す。浄化主灰に残存した放射性 Cs は約 11% であり、放射性 Cs 除去率は最大で 89% を達成し、上記条件により主灰中に含まれる放射性 Cs を安定して除去できることを明らかにした。

表 4.4 ベンチ試験による加熱化学処理試験条件および結果 (全試験結果)

| 試料 | Cs除去剤混合比率 | 加熱条件 | | 放射性Cs濃度(Bq/kg) | | 放射性Cs除去率(%) | 備考 / 試験内容 | | | |
|--|-----------|------|-------------------|----------------|--------|-------------|-----------|-------|-------------|---------------------------|
| | | 主灰 | CaCO ₃ | NaCl | 温度(°C) | | | 時間(分) | 汚染物 | 浄化物 |
| 原主灰粒径 / 粉碎処理 | 種類 | 主灰 | CaCO ₃ | NaCl | 温度(°C) | 時間(分) | 汚染物 | 浄化物 | 放射性Cs除去率(%) | 備考 / 試験内容 |
| 未分級 | 主灰① | 70 | 30 | 5 | 1000 | 60 | 3,411 | 855 | 70.8 | |
| | 主灰① | 70 | 30 | 5 | 1000 | 60 | 3,559 | 596 | 81.6 | 逐次抽出試験 |
| | 主灰① | 70 | 30 | 5 | 1000 | 60 | 3,706 | 599 | 81.8 | |
| | 主灰① | 70 | 30 | 5 | 1000 | 60 | 4,000 | 636 | 84.0 | |
| 細粒分(2mmふるい下) 有姿 | 主灰① | 70 | 30 | 5 | 1000 | 60 | 4,000 | 658 | 88.7 | |
| | 主灰② | 70 | 30 | 5 | 1000 | 60 | 5,270 | 976 | 81.1 | 主灰種類の影響 |
| | 主灰① | 70 | 30 | 5 | 1100 | 60 | 3,706 | 421 | 89.9 | 高温 |
| | 主灰① | 70 | 30 | 5 | 1000 | 90 | 3,706 | 556 | 83.4 | 長時間 |
| | 主灰① | 70 | 30 | 5 | 1000 | 30 | 3,706 | 659 | 79.8 | 短時間 |
| 粗粒分(2mmふるい上) 粗砕物 | 主灰① | 70 | 30 | 5 | 1000 | 60 | 1,955 | 1,008 | 40.5 | 逐次抽出試験 |
| 細粒分 有姿 +粗粒分 粉碎物(D50=5.5 μm) | 主灰② | 70 | 30 | 10 | 1100 | 60 | 4,566 | 445 | 89.3 | 粗粒分粉碎・全量処理 (放射性Csフロー例) |
| 細粒分 有姿 +粗粒分 粉碎物(D50=6.7 μm) | 主灰② | 70 | 30 | 10 | 1100 | 60 | 4,610 | 483 | 88.8 | 粗粒分粉碎・全量処理 |

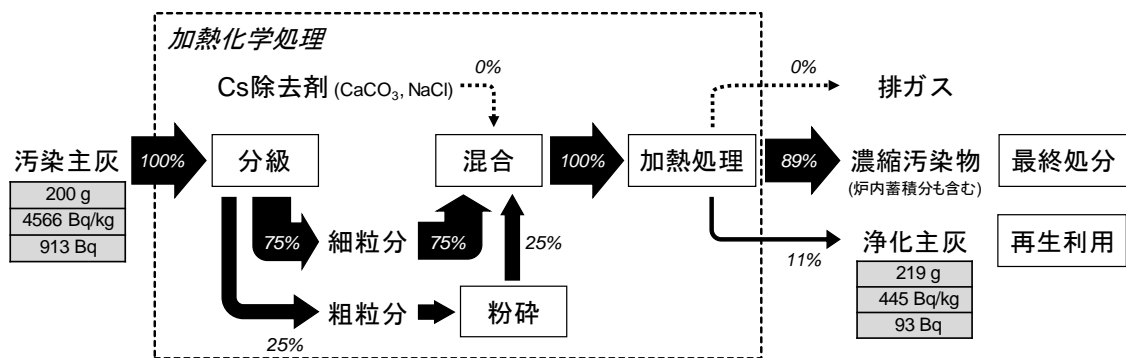


図 4.18 加熱化学処理過程における放射性 Cs フローの一例

2)-2 放射性 Cs 存在形態の変化 (逐次抽出試験)

逐次抽出試験による加熱化学処理前後の各画分での放射性 Cs 存在割合を図 4.19 に示す。加熱化学処理は表 4.4 に示したように 1,000 °C、60 分、主灰 : CaCO₃ : NaCl = 70 : 30 : 5 の条件で処理したものである。主灰は未分級の場合の文献値では残さ残留画分が約 80% を占めるが[56]、今回細粒分と粗粒分に分けて逐次抽出試験を行ったことで、易溶性の放射性 Cs は細粒分中に多く含まれ、粗粒分では比較的溶出しにくい安定な形態で放射性 Cs が存在していることがわかった。このような細粒分と粗粒分での放射性 Cs の存在形態の違いが、放射性 Cs 除去率の違いの要因の一つであったと推定される。

浄化物中の残さ残留画分の割合は、細粒分で 91%、粗粒分で 93%とどちらの場合も汚染物に比べて増加した。つまり、今回逐次抽出試験の対象とした加熱化学処理の条件で得られる浄化物に一部残存する放射性 Cs は難溶性のものが主体であり、加熱化学処理を行うことにより溶出性の観点からは安定・安全なものであると言える。

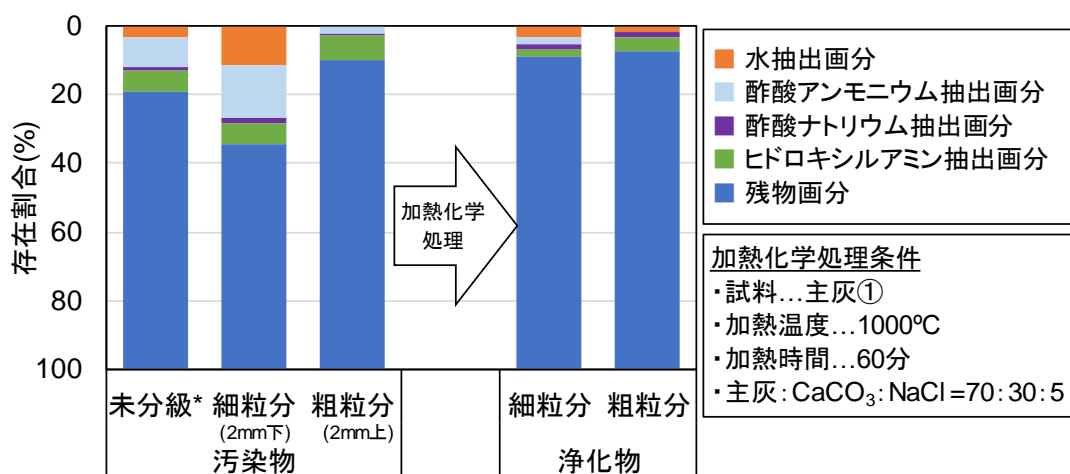


図 4.19 加熱化学処理前後における逐次抽出試験での放射性 Cs の存在割合の違い。* 未分級は文献値[56].

3) 高温化による放射性 Cs 除去率の向上

これまでの検討では加熱化学処理の低温処理での特徴を活かすために最大 1,100 °C までの試験を行っていたが、1,200 °C までの加熱化学処理試験を卓上高温マuffle炉で行った。図 4.20 に処理条件と放射性 Cs 除去率の関係を示す。粗粒分は粉碎物を試験に供した。細粒分と粗粒分を全量処理した場合の放射性 Cs 除去率については、表 1 に記載した各々の発生割合をもとに計算値として示した。全量処理の場合、処理温度 1,100 °C では、ベンチ試験よりも Cs 除去剤の混合比率を増やして、主灰 : CaCO₃ : NaCl = 50 : 50 : 10 とすることで、最大で 90.0%の放射性 Cs が除去できた。また、1,150 °C の処理では 95.7%の放射性 Cs が除去され、主灰細粒分については 1,200 °C の処理で最大で 98.6%の放射性 Cs 除去率を達成した。1,200 °C 処理の場合には、試料が溶融するのを防ぐために、CaCO₃ の比率を増やすことで細粒分では試料は溶融することなく処理できたが、粗粒分の粉碎物を 1,200 °C で処理した場合には試料が溶融してしまい処理ができなかった。この原因の可能性としては、粗粒分では細粒分比べて塩基度が小さいことに起因する融点の低下や、粉碎処理によって比表面積が大きくなり伝熱性の向上によって低融点物が速やかに溶融することなどが推定される。処理対象物や目標とする浄化物の濃度レベルに応じた適切な処理温度、Cs 除去剤混合比率の設定が運用上重要となると考えられる。

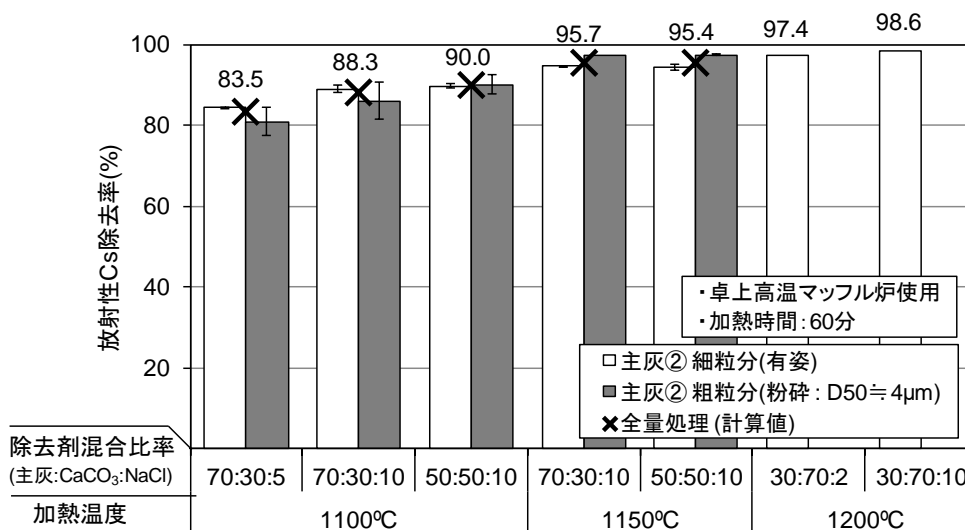


図 4.20 高温での加熱化学処理時の各処理条件と放射性 Cs 除去率の関係。図中の数値は放射性 Cs 除去率を示し、1,100 °C および 1,150 °C では全量処理、1,200 °C では細粒分の値 (エラーバーは標準誤差を示す)。

4.4. 除染廃棄物等焼却残渣からの放射性 Cs 除去

4.4.1. 加熱化学処理の対象物

第 3 章で示したように、対策地域内の仮設焼却施設から発生する焼却残渣は、除染廃棄物を主体として焼却した際には飛灰からの放射性 Cs の溶出率が低下し、溶出率が 1%を下回る場合も存在する。そのため、除染廃棄物等を焼却した飛灰では一般廃棄物の飛灰で想定されている飛灰洗浄技術[5-10]が適用できないと考えられ、多様な性状の飛灰に対応できる Cs 除去技術が必要となる。そこで、飛灰性状の異なる複数の除染廃棄物等の焼却残渣（主灰および飛灰）を対象として加熱化学処理による放射性 Cs 除去の検討を行った。また、4.3 節では放射性 Cs 汚染のモデル化合物として Pollucite を用いたが、第 3 章で除染廃棄物や家屋解体廃棄物の焼却により生じる主灰中では、放射性 Cs は非晶質を主体とした粒子に濃縮されることが示された。そこで、本研究では放射性 Cs 汚染のモデル化合物として、模擬的な非晶質を作製して放射性 Cs 除去メカニズムについて検討した。

4.4.2. 試験方法

1) 除染廃棄物等焼却残渣の加熱化学処理試験

試験に用いた試料の一覧およびそれぞれの元素組成を表 4.5 に示す。試料には、第 3 章で調査を行った対策地域内の仮設焼却施設（施設 A および B）で採取した主灰および飛灰（以下、除染主灰および除染飛灰）を用いた。除染廃棄物を主体とした Run について 2 施設で 2 Run ずつ、計 4 つの Run で採取した試料を対象とし、Cs の揮発に影響が大きいと考えられる Cl や Ca 濃度に着目して、除染飛灰の塩素濃度が 1.1~19%、塩基度 (CaO/SiO₂ 比) が 0.5~3.1 というように元素組成が異なる期間のものを試験対象とした。

表 4.5 除染廃棄物等焼却残渣の試料一覧および元素組成 (XRF で測定)

| 採取施設 | 試料 | | 発生割合 ^b (%) | 元素組成 ^c (wt.%) | | | | | | | | 塩基度 CaO/SiO ₂ |
|-------------------|-----------------|--------------------|--------------------------|--------------------------|------|--------------------------------|------------------|-------|------------------|------|--------------------------------|-----------------------------|
| | 種類 ^a | 被処理物 | | Na ₂ O | MgO | Al ₂ O ₃ | SiO ₂ | Cl | K ₂ O | CaO | Fe ₂ O ₃ | |
| A-① (施設A Run1) | 主灰 | 細粒分 | 60 | 1.3 | 1.2 | 20.3 | 57.7 | 0.011 | 3.2 | 3.8 | 5.3 | 0.07 |
| | 主灰 | 粗粒分 | 23 | 1.6 | 0.85 | 17.9 | 58.4 | ND | 3.7 | 3.2 | 4.8 | 0.05 |
| | 飛灰 | 除染廃棄物のみ | 17 | 0.39 | 1.0 | 11.7 | 22.5 | 1.1 | 1.5 | 28.8 | 4.2 | 1.28 |
| | 混合灰 | | 100 | 1.2 | 1.1 | 18.3 | 51.9 | 0.2 | 3.0 | 7.9 | 5.0 | 0.15 |
| A-② (施設A Run3) | 主灰 | 細粒分 | 72 | 1.2 | 0.71 | 18.3 | 63.6 | 0.038 | 3.6 | 2.3 | 4.0 | 0.04 |
| | 主灰 | 粗粒分 | 14 | 2.3 | 0.84 | 16.0 | 65.2 | 0.014 | 4.4 | 2.2 | 3.3 | 0.03 |
| | 飛灰 | 除染廃棄物9割 災害廃棄物1割 | 14 | 1.3 | 1.1 | 18.7 | 36.4 | 5.1 | 1.9 | 17.4 | 5.2 | 0.48 |
| | 混合灰 | | 100 | 1.4 | 0.78 | 18.0 | 60.1 | 0.73 | 3.5 | 4.3 | 4.1 | 0.07 |
| B-① (施設B Run1) | 主灰 | 細粒分 | 30 | 2.1 | 1.7 | 14.6 | 57.5 | 0.29 | 3.1 | 6.4 | 4.4 | 0.11 |
| | 主灰 | 粗粒分 | 49 | 2.7 | 1.5 | 13.6 | 56.2 | 0.10 | 3.2 | 6.5 | 4.9 | 0.12 |
| | 飛灰 | 除染廃棄物8割 災害廃棄物2割 | 21 | 1.6 | 0.77 | 2.8 | 9.8 | 19.1 | 2.4 | 30.6 | 1.9 | 3.13 |
| | 混合灰 | | 100 | 2.3 | 1.4 | 11.6 | 46.9 | 4.1 | 3.0 | 11.5 | 4.1 | 0.25 |
| B-② (施設B Run5) | 主灰 | 細粒分 | 34 | 2.0 | 1.6 | 15.1 | 56.3 | 0.046 | 2.8 | 6.9 | 4.9 | 0.12 |
| | 主灰 | 粗粒分 | 49 | 2.5 | 1.7 | 15.5 | 59.9 | 0.013 | 3.0 | 5.6 | 5.2 | 0.09 |
| | 飛灰 | 除染廃棄物6割 災害廃棄物4割 | 17 | 1.2 | 1.3 | 8.3 | 23.9 | 5.2 | 2.5 | 21.7 | 4.4 | 0.91 |
| | 混合灰 | | 100 | 2.1 | 1.6 | 14.1 | 52.5 | 0.91 | 2.8 | 8.8 | 5.0 | 0.17 |

注) ^a 細粒分は2mmふるい下、粗粒分は2mmふるい上。

^b 主灰と飛灰合わせたものを100%とした。

^c 波長分散型XRF (リガク、Supermini200)で測定。

除染主灰は 4.3 節の一般廃棄物の主灰と同様に 2 mm のふるい上下にわけて試験を行い、除染主灰および除染飛灰の全量を処理することを想定して採取日の発生量比で混合した試料（以下、除染混合灰）でも加熱化学処理試験を行った。

加熱化学処理試験は、4.3 節のラボ試験で用いた卓上管状炉（図 4.7）を使用し、一般廃棄物主灰と同様の方法で行った。

2) モデル化合物 (模擬非晶質) による Cs 除去メカニズムの考察

2)-1 模擬非晶質の作製

第 3 章で除染廃棄物等の主灰では非晶質を主体とした粒子に放射性 Cs が濃集していることが明らかになった。実際の主灰からそのような非晶質部のみを取り出すことは現実的ではなく Cs 含有量も Cs の化学形態を分析するには非常に少ないため、市販の薬品を混合、溶融処理して安定性 Cs を含む模擬非晶質を作製し、非晶質中からの Cs の除去メカニズムについて調べた。

模擬非晶質は、第 3 章の 3.3.6 項で EBSD (電子線後方散乱回折) 分析を行った除染廃棄物主灰粒子 (図 3.35 の A-1 ~ 3) について、各粒子 9 ~ 15 点の EDS (エネルギー分散型 X 線) 分析を行い粒子ごとの非晶質部の平均組成を求め、3 粒子の平均の元素組成を汚染非晶質の組成とした。汚染非晶質の主要 7 元素 (Si, Al, Ca, Fe, K, Na, Mg) に Cs 濃度が 1% となるようにしたものを模擬非晶質の目標組成とし、各元素を酸化物もしくは炭酸塩として含む試薬を模擬非晶質の原料試薬とした (表 4.6)。一般にストーカ式焼却炉での焼却温度は 850 ~ 1,000 °C 程度であるが、非晶質相が生じる場合には局所的に高温になっていると考えられる。あらかじめ原料試薬を所定の割合で混合して TG-DSC 分析により溶融点を調べると、原料を溶融するには少なくとも 1,400 °C 以上にする必要があるとわかった。原料を完全に溶融するためにはより高温で処理することが望ましいが、ここでは焼却施設内で部分的に生じる溶融現象を模擬することを目的としているため、原料を 1,400 °C で溶融することとした。

表 4.6 模擬非晶質の目標組成および原料試薬

| 目標組成 (%) | 原料試薬 | | | |
|----------|----------------------|---------------------------------|-----------------|------------|
| | 名称 | 化学式 | メーカー, 等級 | 純度 |
| Si 31.8 | 二酸化けい素(沈降製, 非晶質), 3N | SiO ₂ | 関東化学, 高純度試薬 | min. 99.9 |
| Al 8.1 | 酸化アルミニウム, 活性型 | Al ₂ O ₃ | キシダ化学, クロマトグラフ用 | - |
| Ca 4.4 | 炭酸カルシウム | CaCO ₃ | 関東化学, 特級 | min. 99.5 |
| Fe 2.6 | 酸化鉄(III) | Fe ₂ O ₃ | 関東化学, 鹿特級 | 99.0-101.0 |
| K 3.7 | 炭酸水素カリウム | KHCO ₃ | 関東化学, 特級 | 99.5-100.3 |
| Na 1.5 | 炭酸ナトリウム | Na ₂ CO ₃ | 関東化学, 特級 | min. 99.5 |
| Mg 0.87 | 酸化マグネシウム | MgO | 関東化学, 特級 | min. 98.0 |
| Cs 1.0 | 炭酸セシウム(無水) | Cs ₂ CO ₃ | 和光純薬工業, 一級 | 95-102.0 |

原料を目標組成となるように秤量して袋の中で十分に混合したものを磁性アルミナボート (W30×L118×H15 mm) に装入し、予め 1400 °C に昇温した高温管状炉 (山田電機、GTS-6450) の石英管 (内径 φ 63×L1,000 mm) の中央に設置し、15 分経過後に試料を取出し、室温大気中で冷却した。冷却後、磁性ボートから試料を回収し、均一性を得るために遊星ボールミルで粉碎し、模擬非晶質の試験試料を得た。模擬非晶質を 4.3.2 1) と同様の方法で XRD 分析を行った結果、非晶質中に Cristobalite (SiO₂) が析出していたが、結晶化率は 12%に過ぎず、ほとんどの部分が非晶質になっていると判断した。

2)-2 加熱化学処理試験

Cs 除去剤の各々の効果を調べるために、模擬非晶質に Cs 除去剤を加え、卓上管状炉 (図 4.7) を使用して加熱化学処理を行った。試験条件は、実汚染物と同じ、加熱温度 1,000 °C、加熱時間 60 分、Cs 除去剤の混合比率を、模擬非晶質 : CaCO₃ : NaCl = 70 : 30 : 5 を基本条件とし、Cs 除去剤の有無の場合について試験を行った。

模擬非晶質および処理後試料の Cs 濃度は、試料にメタホウ酸リチウムを添加し、アルカリ融解した後、塩酸で溶解し定容を行い、得られた試料に対して、ICP-MS (Agilent Technologies、Agilent 7500cx 型) で定量した。Cs 除去率の計算はその他のモデル化合物と同様に、(4.1) 式に従い、Cs 量の変化から計算した。

2)-3 SEM-EDS/EBSD 分析による構造変化の観察

加熱化学処理前後の模擬非晶質の変化について調べるために、SEM-EDS/EBSD による分析を行った。試料はエポキシ樹脂に含浸した後、研磨して断面を作製し、クロスセクションポリッシャ™ 断面試料作製装置 (日本電子、IB-19510CP) にて加速電圧 6.0 kV で鏡面を作製し、3.5 kV で仕上げ研磨を行った。SEM-EDS/EBSD 分析は、第 3 章の 3.3.6 項と同じ分析装置、同じ方法を行った。

4.4.3. 結果と考察

1) 除染廃棄物等焼却残渣の加熱化学処理試験

表 4.7 に除染焼却灰等焼却残渣の加熱化学処理試験の条件および放射性 Cs 除去率を示す。加熱試験は、各試験条件について主灰および除染混合灰は $n = 3$ 、飛灰は $n = 2$ で試験を行い、それぞれについて放射性 Cs 除去率の変動係数を示した。除染主灰の細粒分では、主灰： CaCO_3 ： $\text{NaCl} = 70 : 30 : 5$ の混合比率で処理した場合の放射性 Cs 除去率は 70% 前後であり、一般廃棄物主灰の同条件での放射性 Cs 除去率（約 80%）に比べると低かった。除染飛灰では、Cs 除去剤を混合せずに 1,000 °C で加熱化学処理した場合でも放射性 Cs 除去率は大きく、特に B-①の除染飛灰では Cs 除去剤がない場合でも 99%の放射性 Cs が除去できた。これは、後述するように B-①の除染飛灰は塩素濃度が 19%と高く一般廃棄物に近い焼却灰の性状であったためと考えられる。このような試料間の放射性 Cs 除去率のばらつきは、表 4.5 に示した各試料の塩素 Cl 濃度と対応していることから、Cs 除去剤として添加される NaCl による Cl 源だけではなく試料中に含まれる Cl の寄与が大きいと考えられる。また、除染混合灰の場合にも薬剤なしの場合でも 12 ~ 51%の放射性 Cs が除去され、除染飛灰中に含まれる Cl 等の寄与であると推定された。Cs 除去剤を加えた場合にはいずれの試料でも Cs 除去剤の添加割合の増加とともに放射性 Cs 除去率は高くなり、除染混合灰： CaCO_3 ： $\text{NaCl} = 50 : 50 : 10$ の混合比率においていずれの種類の除染焼却灰でも 86%以上の放射性 Cs の除去が可能であった。放射性 Cs 除去率の変動係数は、主灰では細粒分、粗粒分ともに比較的大きい値を示したが、除染混合灰として処理することで変動係数が小さくなり、安定な処理が可能となると考えられる。また、実際に試料を混合して加熱化学処理を行った場合の放射性 Cs 除去率（表 4.7 中の“実測値”）は、主灰単独あるいは飛灰単独で処理した場合の放射性 Cs 除去率にそれぞれの発生割合を乗じて計算した放射性 Cs 除去率（表 4.7 中の“計算値”）よりも基本的に大きくなった。これは、飛灰に含まれる Ca や Cl が塩基度などの組成バランスに影響を与え、Cs 除去効果を果たしたためであると考えられる。組成バランスと放射性 Cs 除去率については、4.5.2 項で後述する。

除染廃棄物等焼却残渣の減容化では浄化物の上限值が 8,000Bq/kg[61]とされており、本研究により得られた除染混合灰での放射性 Cs 除去率である 86%では、重量変化がないものとして単純計算すると 56,000Bq/kg 以下のものであれば加熱化学処理技術により 8,000Bq/kg 以下に処理可能である。しかし、第 3 章の 20Run の仮設焼却施設での調査では、除染混合灰の放射性 Cs 濃度は 8,000 ~ 12 万 Bq/kg であり、12 万 Bq/kg のものを 8,000Bq/kg 以下にするためには放射性 Cs 除去率は 93.3%以上が必要となる。また、今後より高濃度に放射性 Cs が濃縮した焼却残渣が発生することを考慮すると、100 万 Bq/kg のものを処理する場合には 99.2%以上の放射性 Cs 除去率が必要である。従って、加熱化学処理を除染廃棄物等焼却残渣に適用するためには、より高温での処理を行うことや、溶出性が高い飛灰については洗浄処理を行った後の溶出残渣について加熱化学処理を適用するなどの検討の必要性も考えられる。

表 4.7 除染焼却灰等焼却残渣の加熱化学処理試験条件および放射性 Cs 除去率.

| 試料 | | Cs除去剤混合比率 | | | 放射性Cs除去率* (%) | | |
|------------------------------------|-----|-----------|-------------------|------|---------------|------|---------|
| 種類 | 施設 | 試料 | CaCO ₃ | NaCl | 実測値 | 計算値 | 変動係数(%) |
| 除染混合灰 | A-① | 100 | 0 | 0 | 9.8 | 22.7 | (22) |
| | A-② | | | | 18.4 | 14.0 | (15) |
| | B-① | | | | 52.6 | 25.4 | (3.7) |
| | B-② | | | | 31.3 | 23.6 | (42) |
| | A-① | 70 | 30 | 5 | 75.4 | 73.6 | (1.2) |
| | A-② | | | | 79.8 | 72.8 | (3.0) |
| | B-① | | | | 75.8 | 62.3 | (3.5) |
| | B-② | | | | 73.1 | 63.2 | (11) |
| | A-① | 50 | 50 | 10 | 85.8 | - | (2.0) |
| | A-② | | | | 87.4 | - | (1.4) |
| | B-① | | | | 86.3 | - | (2.4) |
| | B-② | | | | 86.4 | - | (4.7) |
| 除染主灰 細粒分 (2mmふるい下:有姿) | A-① | 100 | 0 | 0 | 16.1 | - | (22) |
| | A-② | | | | 2.2 | - | (173) |
| | B-① | | | | 9.8 | - | (27) |
| | B-② | | | | 6.8 | - | (58) |
| | A-① | 70 | 30 | 5 | 74.4 | - | (2.2) |
| | A-② | | | | 72.8 | - | (1.3) |
| | B-① | | | | 62.4 | - | (3.2) |
| | B-② | | | | 71.4 | - | (3.6) |
| 除染主灰 粗粒分 (2mmふるい上を 2mm以下に粗砕) | A-① | 100 | 0 | 0 | 14.1 | - | (100) |
| | A-② | | | | 1.5 | - | (173) |
| | B-① | | | | 3.4 | - | (173) |
| | B-② | | | | 13.0 | - | (163) |
| | A-① | 70 | 30 | 5 | 57.0 | - | (23) |
| | A-② | | | | 52.2 | - | (7.1) |
| | B-① | | | | 46.2 | - | (8.4) |
| | B-② | | | | 47.7 | - | (32) |
| 除染飛灰 | A-① | 100 | 0 | 0 | 57.9 | - | (4.6) |
| | A-② | | | | 88.7 | - | (0.3) |
| | B-① | | | | 99.0 | - | (0.0) |
| | B-② | | | | 87.8 | - | (2.0) |
| | A-① | 70 | 30 | 5 | 93.0 | - | (1.0) |
| | A-② | | | | 94.4 | - | (0.2) |
| | B-① | | | | 99.8 | - | (0.0) |
| | B-② | | | | 91.0 | - | (0.3) |

*注) ・ いずれの試験も加熱温度 1,000 °C、加熱時間 60 分

- ・ 「実測値」 は実際に試料を混合して測定した放射性 Cs 除去率を示す
- ・ 「計算値」 は灰種類ごとに測定した放射性 Cs 除去率に発生割合を乗じて放射性 Cs 除去率を算出した
- ・ () 内は放射性 Cs 除去率の n=3 (飛灰は n=2) 試験での変動係数 (%) を表す

2) モデル化合物 (模擬非晶質) による Cs 除去メカニズムの考察

2)-1 熱化学処理試験

模擬非晶質の加熱化学処理による Cs 除去率を図 4.21 に示す。Cs 除去剤を加えない場合には 6.6%の Cs が除去されていたが、CaCO₃のみを添加した場合にはそのような Cs も含めて全く揮発しなくなり、この傾向はバーミキュライトでも同様であった。NaClのみを添加すると Cs 除去率は約 26%となり、NaCl と CaCO₃を併用することで 49%まで Cs 除去率は向上した。バーミキュライトや Pollucite と比べると Cs 除去率は低いものの、NaCl だけではなく CaCO₃の併用により Cs 除去率が向上するという点はバーミキュライトと同様であり、CaCO₃添加による Cs 除去率向上の機序が存在することが分かった。

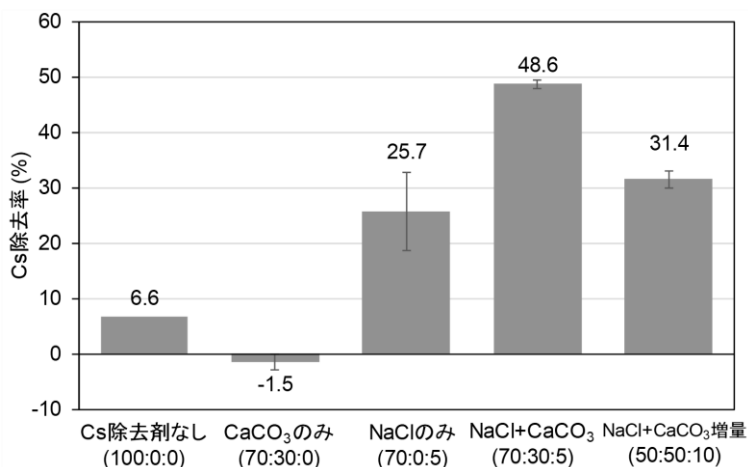


図 4.21 模擬非晶質の Cs 除去剤の有無による Cs 除去率の比較
(エラーバーは標準誤差を示す)

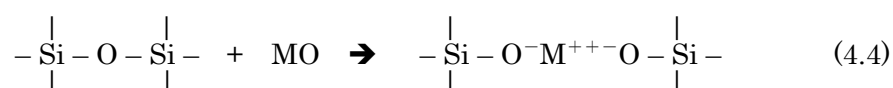
2)-2 SEM-EDS/EBSD 分析による構造変化の観察

図 4.22(a) ~ (e) に加熱化学処理前後の模擬非晶質の SEM-EDS/EBSD 分析結果を示す。加熱化学処理前の試料では Cristobalite 結晶が一部生成していたが (図 4.22 (a) a1)、その他の部分は EBSD 分析より非晶質であることが確認され、元素マッピングより同一粒子内での元素の偏りが小さいことがわかる。EDS 分析結果より、粒子ごとに組成のばらつきはあるものの、平均すると非晶質部は表 4.6 に示した目標組成となっており、元素の損失なく模擬非晶質が作製できたことが確認できた。

NaClのみを添加した場合には、冷却後の試料は全体が固まっており、その一部を削り出したものが図 4.22 (b) の試料である。b1 は小さい窪みになっており、揮発できなかった NaCl が残存していた。模擬非晶質の主要成分である Si、Al は部分的に O とともに濃度が高くなり、それぞれ高温で安定な SiO₂や Al₂O₃として存在したと考えられる。しかし、Cs や K は偏在せずに、処理前と同様に同一粒子内で均一に存在しており、NaClのみを添加した場合には粒子内で Cs や K の移動は起きにくかったものと考えられる

CaCO₃のみを添加した場合には (図 4.22 (c))、非晶質内で濃度の偏りが発生した。特に

Ca は粒子の内部では細長い Wollastonite を形成するとともに、粒子全体を数 μm の厚みで覆っていた。Wollastonite の結晶は処理後の冷却過程に生成したものと考えられるが、粒子内部には元々 Ca は 4% しか含まれていなかったため、Wollastonite の生成は CaCO_3 の添加により加熱化学処理過程に粒子内部に Ca が入りこんだためであると考えられる。また、粒子内部では Cs や K も偏在し、元々 1% 含有されていた Cs は濃度の高いところでは 6.3% まで濃縮されており、粒子内で移動したと考えられる。NaCl のみを添加、加熱化学処理をした非晶質粒子ではこのような Cs や K の偏在は見られなかったことから、模擬非晶質の網目構造が弱化し、 CaCO_3 の添加により模擬非晶質内の元素の移動が起こりやすくなったと考えられる。つまり、模擬非晶質は、Si-O を基本骨格として、 SiO_4 の四面体が酸素を共有して共有結合性の強い不規則な三次元の網目で存在していると考えられるが、ここに Cs 除去剤として添加した CaCO_3 の脱炭酸により生じる塩基性化合物 (MO) である CaO の酸素原子が解離して模擬非晶質の架橋酸素に電子供与し、(4.4) 式のように、 $-\text{Si}-\text{O}-\text{Si}-$ 結合の切断が起こる [62,63]。

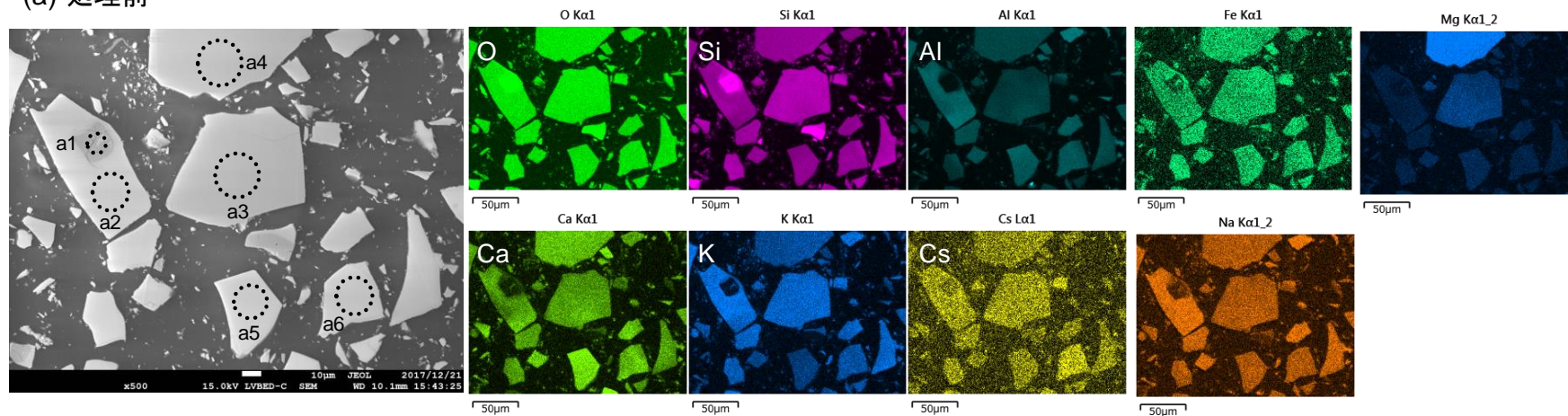


$-\text{Si}-\text{O}-\text{Si}-$ 結合の切断により生じた SiO^- イオンは、 Ca^{2+} などの陽イオンとイオンのにっり合いが取れ、イオン結合性の強い結合をする。このように模擬非晶質の構造変化、すなわち Si-O ネットワークが切断され、重合度や粘性が下がったために、Cs や K の移動が起こり、Ca は Wollastonite を生成したと考えられる。

CaCO_3 と NaCl を併用 (模擬非晶質 : CaCO_3 : NaCl = 70 : 30 : 5、図 4.22 (d)) した場合にも粒子内部に Ca が入り込み Wollastonite が生成し、Cs や K の高濃度点が存在した。 CaCO_3 添加による模擬非晶質の網目弱化により Cs の揮発が促進されたと考えられる。また、処理前に比べて多孔質である。これは、 CaCO_3 の脱炭酸によるものと考えられるが、今回の実験系のように予め処理温度 (1,000 °C) に達したところに試料を挿入した場合には、脱炭酸による攪拌作用 [57] のタイミングと NaCl の融解のタイミングが重なり効率的に Cs が揮発した可能性が推定される。

さらに、Cs 除去剤量を増量した場合 (模擬非晶質 : CaCO_3 : NaCl = 50 : 50 : 10、図 4.22 (e)) には、単鎖構造を持つ Wollastonite の周囲を三次元網目構造持つ Gehlenite が覆っていた。このように、Cs 除去剤を増量させた場合には Cs 濃集部の周囲をケイ酸塩鉱物が覆うために Cs が揮発できず、Cs 除去率が低下した可能性が予想される。

(a) 処理前

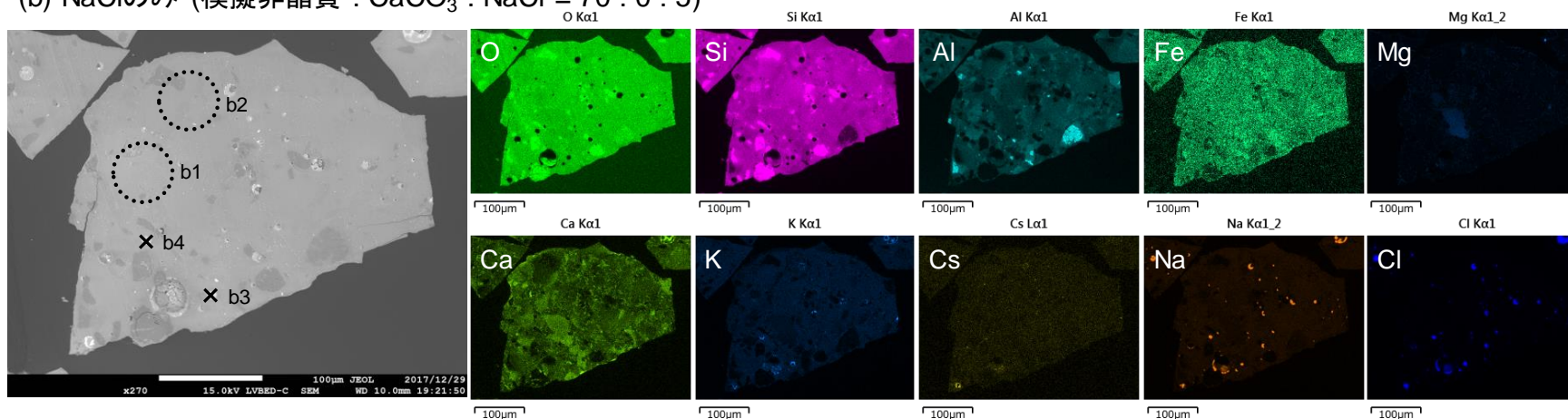


• EDS分析結果 (wt.%)

| 分析点 | O | Na | Mg | Al | Si | K | Ca | Fe | Cs |
|-----|------|-----|-----|------|------|-----|-----|-----|------|
| a1 | 50.8 | 0.3 | 0.2 | 1.2 | 44.9 | 0.9 | 0.8 | 0.9 | N.D. |
| a2 | 45.7 | 2.3 | 0.5 | 11.7 | 28.1 | 5.2 | 3.7 | 1.8 | 1.1 |
| a3 | 46.6 | 1.5 | 1.9 | 7.3 | 31.7 | 4.3 | 4.1 | 2.0 | 0.7 |
| a4 | 45.4 | 1.6 | 4.6 | 8.8 | 28.2 | 3.2 | 5.2 | 2.4 | 0.6 |
| a5 | 46.3 | 1.6 | 0.9 | 11.2 | 27.7 | 2.5 | 6.6 | 2.5 | 0.7 |
| a6 | 46.0 | 1.6 | 0.6 | 10.7 | 28.6 | 3.5 | 5.2 | 2.2 | 1.6 |

図 4.22 (a) 模擬非晶質の SEM-EDS/EBSD 分析結果 — 処理前

(b) NaClのみ (模擬非晶質 : CaCO₃ : NaCl = 70 : 0 : 5)



• EDS分析結果 (wt.%)

| 分析点 | O | Na | Mg | Al | Si | Cl | K | Ca | Fe | Cs |
|-----|------|------|------|-----|------|------|------|-----|-----|------|
| b1 | 44.7 | 2.9 | 1.1 | 8.0 | 31.3 | 0.6 | 3.4 | 4.8 | 2.6 | 0.7 |
| b2 | 45.5 | 3.2 | 0.6 | 7.9 | 32.5 | 0.5 | 3.5 | 3.2 | 2.4 | 0.7 |
| b3 | 11.3 | 19.7 | 1.9 | 3.3 | 44.1 | N.D. | 10.9 | 4.9 | 0.6 | 0.4 |
| b4 | 9.5 | 27.4 | N.D. | 1.9 | 4.2 | 45.6 | 7.3 | 0.7 | 0.5 | N.D. |

図 4.22 (b) 模擬非晶質の SEM-EDS/EBSD 分析結果 - NaCl のみ添加 処理後

(c) CaCO₃のみ (模擬非晶質 : CaCO₃ : NaCl = 70 : 30 : 0 処理後)

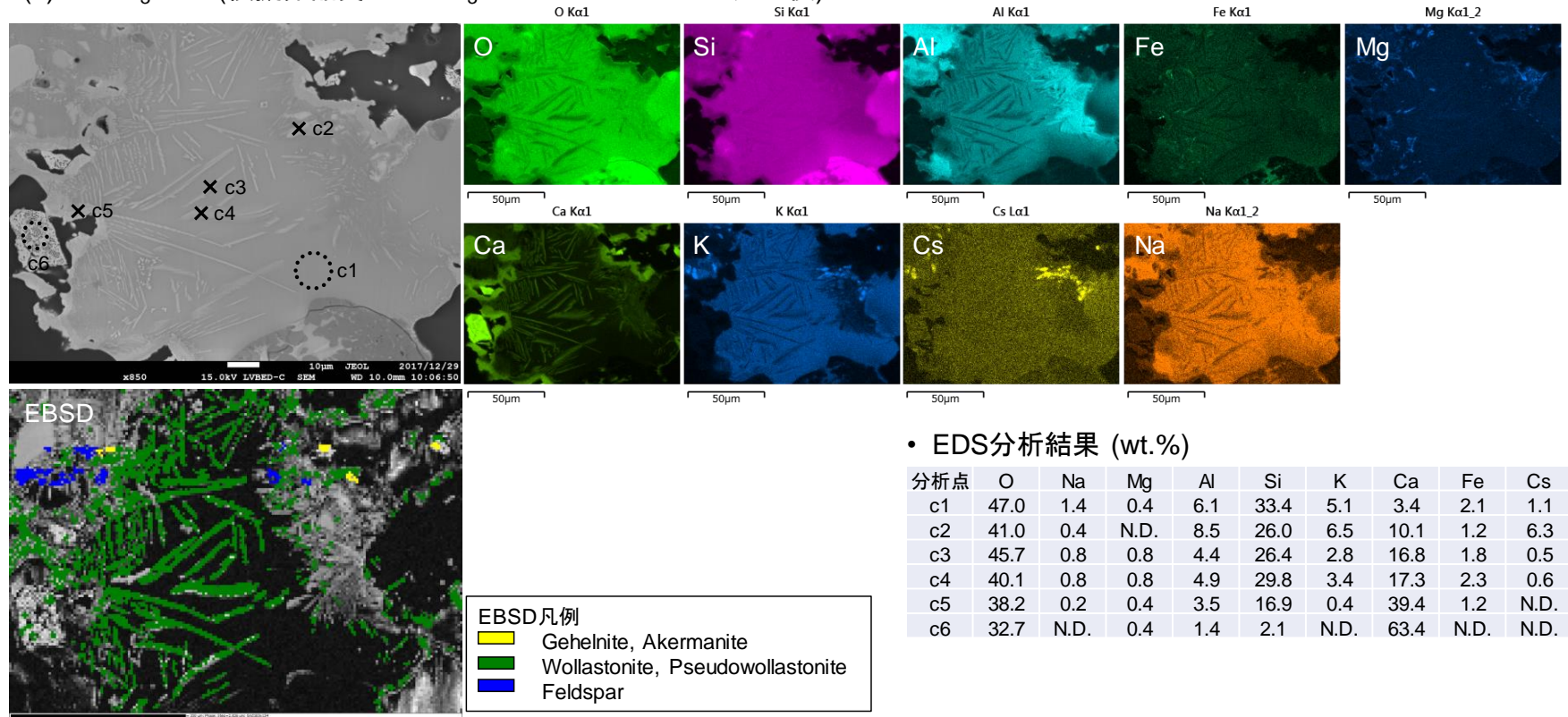


図 4.22 (c) 模擬非晶質の SEM-EDS/EBSD 分析結果 — CaCO₃のみ添加 処理後

(d) Cs除去剤併用 (模擬非晶質 : CaCO₃ : NaCl = 70 : 30 : 5 処理後)

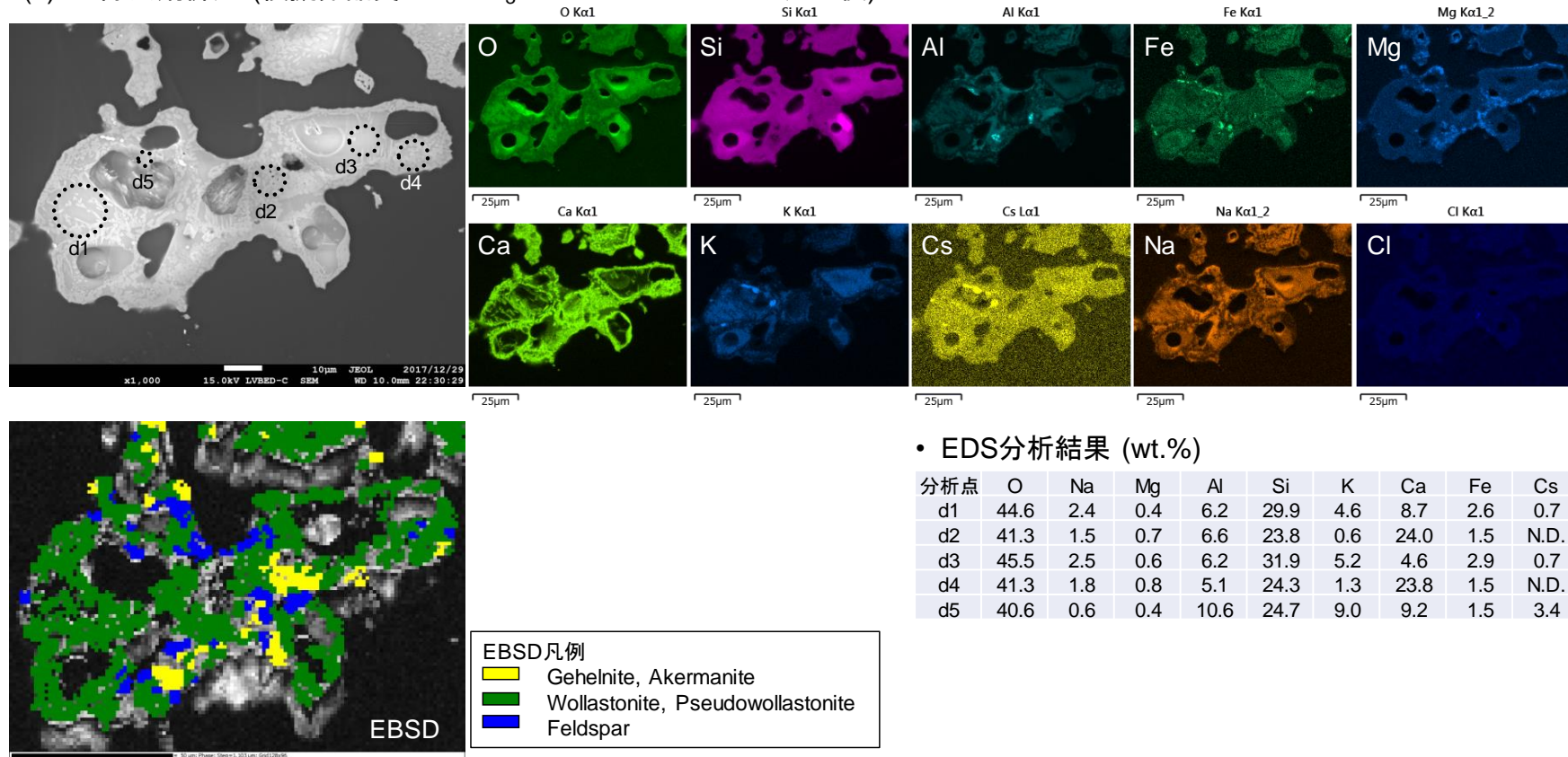


図 4.22 (d) 模擬非晶質の SEM-EDS/EBSD 分析結果 — Cs 除去剤併用 処理後

(e) Cs除去剤併用 増量 (模擬非晶質 : CaCO₃ : NaCl = 50 : 50 : 10 処理後)

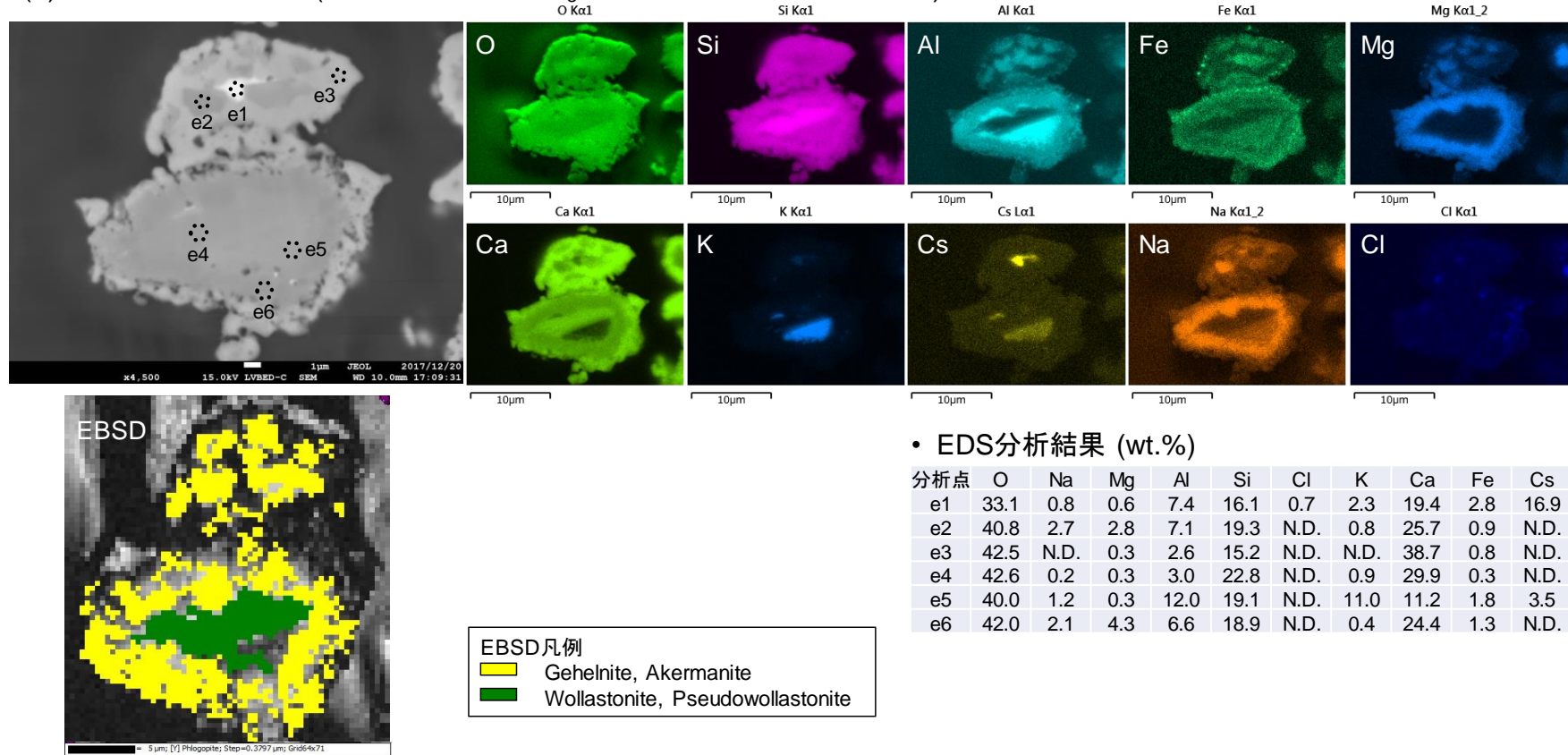


図 4.22 (e) 模擬非晶質の SEM-EDS/EBSD 分析結果 — Cs 除去剤併用 (増量) 処理後

4.5. 主灰種類の違いによる放射性 Cs 除去率の差異に関する考察

4.5.1. 放射性 Cs の存在形態の影響

放射性 Cs の揮発除去のためには焼却残渣中での放射性 Cs の安定性、つまり放射性 Cs の存在形態の影響も存在すると考えられる。模擬非晶質では Cs 除去剤として NaCl と CaCO₃ を併用した場合で Cs 除去率は 49%に留まり、結晶形態でのモデル化合物である Pollucite の Cs 除去率 (97%) よりもかなり低いことから主灰中の放射性 Cs の存在形態が放射性 Cs 除去率に影響している可能性が高い。熱力学平衡計算では、除染主灰中の Cs は 1,050 °C 以下ではセシウムアルミノケイ酸塩 (CsAlSi₅O₁₂ : Pollucite と類似した結晶相)、1,100 °C 以上では熔融スラグ相 (非晶質相) での存在形態が安定であるとされており、一般廃棄物では 1,000 °C 以下でセシウムアルミノケイ酸塩 (Pollucite)、1050 °C 以上で熔融スラグ相 (非晶質相) とで安定とされている[42]。実際の焼却炉の中では焼却温度の偏りや、滞留時間の違い、火格子の間から落ちる灰 (落じん灰) の存在などの要因により、セシウムアルミノケイ酸塩と熔融スラグ相の両方の形態で Cs は存在していると考えられる。そこで、Pollucite と模擬非晶質の Cs 除去率の違いについて、実汚染主灰の加熱化学処理の結果と比較した。

図 4.23 に主灰および主灰モデル化合物 (Pollucite および模擬非晶質) の放射性 Cs 除去率 (もしくは Cs 除去率) を示す。実汚染主灰では、いずれの場合にも細粒分よりも粗粒分の方が放射性 Cs 除去率は低く、粗粒分中には Pollucite のようなセシウムアルミノケイ酸塩の形態よりも非晶質相中に存在する Cs の割合が多いことが示唆された。一般廃棄物の主灰では、表 4.3 に示したように細粒分よりも粗粒分の方が結晶化率は低い (非晶質相が多い) ことから粗粒中では非晶質相中に含まれる Cs が多いものと考えられる。また、一般廃棄物の主灰に比べると除染主灰の方が放射性 Cs 除去率は小さく、この原因の一つとして、除染主灰では非晶質に取り込まれた Cs が多かったと推定される。

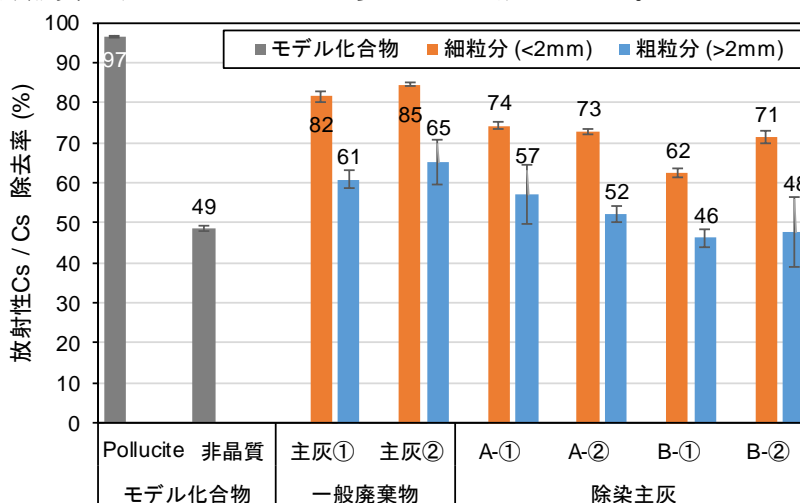


図 4.23 Cs 主灰および主灰モデル化合物 (Pollucite および模擬非晶質) の Cs 除去率. いずれも加熱温度 1,000 °C、加熱時間 60 分、試料 : CaCO₃ : NaCl = 70 : 30 : 5 (Pollucite のみ 7 : 60 : 10) の処理条件. エラーバーは標準誤差を示す.

4.5.2. 元素組成の影響

これまで示したように、一般廃棄物主灰では原主灰の粒径の違いにより、また除染廃棄物等の焼却残渣では試料種類や施設のの違いにより同じ処理条件であっても放射性Cs除去率に違いが見られた。放射性Cs除去率の違いについて、元素組成の観点から考察を行った。元素組成は、表4.3および表4.5に示したXRFで測定した試料の元素組成と、Cs除去剤であるCaCO₃およびNaClの混合比率から計算した。各試料の放射性Cs除去率は、図4.9, 図4.10, 表4.4, 表4.7の加熱化学処理の結果から加熱条件が1,000℃、60分のものを用いた。図4.24にCs除去剤混合後のCaO/SiO₂比およびCl/SiO₂比と放射性Cs除去率の関係を示す。SiO₂に対するCaO量あるいはCl量が多いほど放射性Cs除去率は高くなる傾向があった。この傾向は、焼却灰の元の焼却対象物の種類や粒径によらずに共通して確認された。ケイ素(Si)は、Csを吸着できる土壌の主要成分であるとともに、Csを固定化できるケイ酸塩化合物やケイ酸塩ガラスの骨格となる元素であることから放射性Csを捕捉する可能性があり、SiO₂が少ないほど、すなわちCaO/SiO₂比やCl/SiO₂比が大きいほど放射性Cs除去率が大きくなったと考えられる。また、SiO₂に対するCaOの比は塩基度と呼ばれる電子供与性の簡易的な指標であり、4.4節で考察したように、塩基度が高いために汚染試料の構造が弱化し、放射性Csの揮発が促進されたものと考えられる。また、SiO₂に対するCl比が大きいほど放射性Cs除去率が高くなったことから放射性CsがCsClとして除去されている可能性が推定される。放射性Cs除去率には多少の差があるものの試料種類の違いによらず、放射性Cs除去率はCaO/SiO₂比およびCl/SiO₂比と関係があることから、焼却灰等の元素組成に応じてCs除去量を調整することで効率良く放射性Csが除去可能となると考えられる。試料の違いによる放射性Cs除去率の違いの要因の一つとして、Csの存在形態(非晶質中、結晶など)の違いに加えて、このような組成の違いの影響も存在すると考えられる。

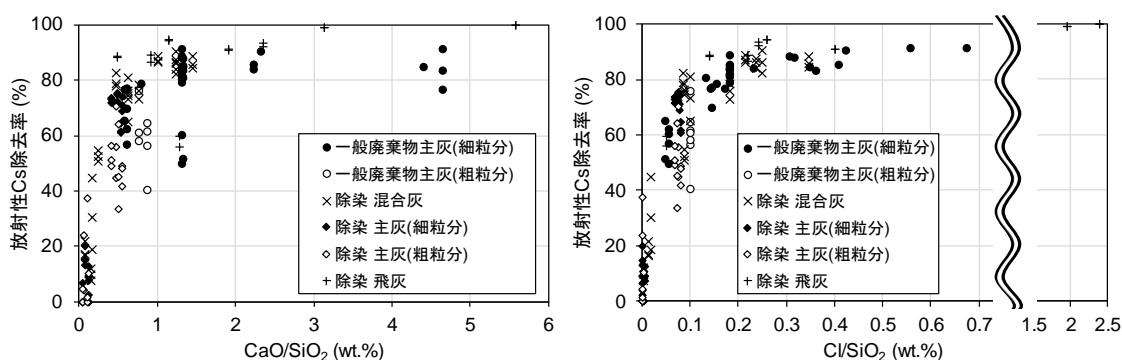


図 4.24 Cs 除去剤混合後の CaO/SiO₂ 比および Cl/SiO₂ 比と放射性 Cs 除去率の関係

4.6. 第4章のまとめ

本章では除染・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、各焼却残渣での放射性 Cs の存在形態と除去メカニズムについて考察した。得られた主要な知見を以下に示す。

(1) バーミキュライト（粘土鉱物）からの Cs 除去メカニズム

- 粘土鉱物のうち、Cs を特異的に吸着・固定化するバーミキュライトに対して、加熱化学処理技術が効果的に適用できることを確認した。焼成法や熔融法と比較して低い処理温度である 1,000 °C にて 95.9%、高温化 (1,200 °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り、加熱温度は 1,000 °C 以上が必要であること、Cs 除去剤として NaCl だけで無く CaCO₃ と併用する必要があることが明らかとなった。
- 加熱化学処理による Cs の揮発メカニズムとして、NaCl が熔融塩を形成し、NaCl とともに Cs が揮発することが分かった。また一方、CaCO₃ は結晶構造変換を促進させ、Cs の揮発促進に関与すると考えられる。

(2) 一般廃棄物の主灰からの放射性 Cs 除去

- 主灰中の放射性 Cs は、細粒分 (2 mm ふるい下) と粗粒分 (2 mm 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、粗粒分ではそれに加えて粉砕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 以下に粉砕した後に加熱化学処理を行うことが有効であるとわかった。
- 主灰粗粒分を粉砕することで、加熱温度 1,100 °C で 90.0%、1,150 °C で 95.7% の放射性 Cs を主灰から除去可能となった。また、細粒分では 1,200 °C の高温条件で 98.6% の高い放射性 Cs 除去率が得られた。
- 加熱化学処理後の浄化物中の放射性 Cs は難溶性のものが主体であり、溶出性の観点からはより安全なものであった。
- 加熱化学処理により、主灰中の Albite や Anorthite 等の三次元網目状のアルミノケイ酸塩鉱物の結晶が他の結晶構造に変換することを確認した。また、主灰中に存在すると予想される Cs を含むアルミノケイ酸塩である Pollucite でも加熱化学処理によりその結晶構造の消失が確認された。

➤ 加熱化学処理後には化学量論比でCaをより多く含む鉱物が生成していることから、 CaCO_3 が主灰等の構造変化を促す要因の一つになる可能性が示唆された。

(3) 除染廃棄物等の焼却残渣（主灰および飛灰）からのCs除去

➤ 除染廃棄物等の焼却残渣は、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1,000℃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。その結果、NaClの揮発によりCsは除去され、 CaCO_3 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。

(4) 試料間のCs除去率の違いに関する考察

➤ 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%であった（いずれもNaClと CaCO_3 併用、1,000℃、60分処理時）。非晶質中のCsはPolluciteに比べて除去されにくく、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。

➤ 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/SiO_2 および CaO/SiO_2 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4章の参考文献

- [1] 環境省 HP, 中間貯蔵施設情報サイト, 中間貯蔵施設の概要(<http://josen.env.go.jp/chukanchozou/about/>) (2018年1月14日閲覧)
- [2] 環境省 HP, 中間貯蔵施設情報サイト, 最終処分に向けた取組み, 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 (http://josen.env.go.jp/chukanchozou/facility/effort/investigative_commission/) (2018年1月14日閲覧)
- [3] 環境省 HP, 中間貯蔵施設情報サイト, 最終処分に向けた取組み, 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, 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1回) 資料 5-2 減容技術の現状と課題について. (http://josen.env.go.jp/chukanchozou/facility/effort/investigative_commission/pdf/proceedings_150721_05_02.pdf) (2018年1月14日閲覧)
- [4] 環境省 HP, 中間貯蔵施設情報サイト, 最終処分に向けた取組み, 中間貯蔵施設における可燃性除染廃棄物等の減容化施設検討会(第1回), 資料 (http://josen.env.go.jp/chukanchozou/action/investigative_commission/pdf/volume_reduction_170424.pdf) (2018年1月14日閲覧)
- [5] Namiki, Y., Ueyama, T., Yoshida, T., Watanabe, R., Koido, S., Namiki, T., 2014. Hybrid micro-particles as a magnetically-guidable decontaminant for cesium-eluted ash slurry. *Sci. Rep.*, 4, 6294. <https://doi.org/10.1038/srep06294>
- [6] 川本徹, 田中寿, 伯田幸也, 高橋顕, Parajuli Durga, 南公隆, 保高徹生, 内田達也, 2016. 放射性セシウム汚染灰除染技術—ナノ粒子の吸着材としての活用と実用化アプローチ—. *Synthesiology*, 9 (3), 139-153.
- [7] 谷田克義, 熊野晋, 上田豊, 坂井義広, 2014. 放射性セシウム含有飛灰の洗浄技術. *神鋼環境ソリューション技報*, 10 (2), 10-17.
- [8] 久保田洋, 山田裕己, 野口俊太郎, 2014. 焼却飛灰中放射性セシウムの高効率洗浄技術の開発. *フジタ技術研究報告*, 50, 73-78.
- [9] 市川誠吾, 西崎吉彦, 高野剛彦, 熊谷直和, 2016. 焼却飛灰等からの放射性セシウム除去技術. *日立造船技報*, 77 (1), 14-19.
- [10] 三浦俊彦, 小竹茂夫, 高田尚哉, 石井芳明, 青山裕作, 日笠山徹巳, 2013. 飛灰の放射能濃度低減を目的とした造粒固化洗浄. *大林組技術研究所報*, 77, 1-6.
- [11] 竹田尚弘, 小倉正裕, 藤原大, 倉持秀敏, 大迫政浩, 2016. 加熱化学処理法による土壌・粘土鉱物からのセシウム揮発除去と揮発メカニズムの推定. *環境放射能除染学会誌*, 4 (4), 303-312.
- [12] 本間 健一, 高野 博幸, 三浦 啓一, 佐々木 忠志, 木村 武, 万福 裕造, 2013. 放射性セシウムで汚染された土壌からの熱処理によるセシウム除去. *粘土科学*, 2 (52) 71-73. https://doi.org/10.11362/jcssinendokagaku.52.2_71

- [13] 鈴木務, 本間健一, 2017. 乾式セシウム除去技術の概要と飯舘村蕨平における仮設資材化実証調査委託業務について. *CEM'S*, 72, 9-11.
- [14] 釜田陽介, 阿部清一, 川本克也, 由井和子, 倉持秀敏, 大迫政浩, 2015. 熔融技術による土壌等からのセシウム熱分離に関するプラント実証試験評価. *環境放射能除染学会誌*, 3 (2), 49-64.
- [15] Shimoyama, I., Hirao, N., Baba, Y., Izumi, T., Okamoto, Y., Yaita, T., Suzuki, S., 2014. Low-pressure sublimation method for cesium decontamination of clay minerals. *Clay Sci.* 18, 71-77.
- [16] Honda, M., Shimoyama, I., Kogure, T., Baba, Y., Suzuki, S., Yaita, Y., 2017. Proposed Cesium-free Mineralization Method for Soil Decontamination: Demonstration of Cesium Removal from Weathered Biotite. *ACS Omega* 2, 8678-8681. <https://doi.org/10.1021/acsomega.7b01304>
- [17] Honda, M., Okamoto, Y., Shimoyama, I., Shiwaku, H., Suzuki, S., Yaita, T., 2017. Mechanism of Cs Removal from Fukushima Weathered Biotite by Heat Treatment with a NaCl-CaCl₂ Mixed Salt. *ACS Omega* 2, 721-727. <https://doi.org/10.1021/acsomega.6b00372>
- [18] 大山将, 中島卓夫, 松生隆司, 2014. 放射性セシウム含有土壌の加熱処理に関する基礎検討 (その 2). 地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集, 20, 200-203.
- [19] 原田幸明, 2014. 熔融塩法による土壌からのセシウムの抽出. *ケミカルエンジニアリング*, 59 (1), 84-89.
- [20] 西崎吉彦, 市川誠吾, 濱利雄, 福士静治, 伊藤貴康, 高橋俊之, 2015. 低融点塩化物を利用した分離促進剤のセシウム除去効果 (第 2 報). 第 26 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集, 379-380.
- [21] Jiao, F., Iwata, N., Kinoshita, N., Kawaguchi, M., Asada, M., Honda, M., Sueki, K., Ninomiya, Y., 2016. Vaporization mechanisms of water-insoluble Cs in ash during thermal treatment with calcium chloride addition. *Environ. Sci. Technol.* 50 (24), 13328-13334. <https://doi.org/10.1021/acs.energyfuels.7b02930>
- [22] Jiao, F., Iwata, N., Kinoshita, N., Kawaguchi, M., Asada, M., Honda, M., Sueki, K., Ninomiya, Y., 2017. Role of CaCl₂ and MgCl₂ addition in the vaporization of water-insoluble cesium from incineration ash during thermal treatment. *Chem. Eng. J.*, 323, 114-123. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2017.04.086>
- [23] Jiao, F., Kinoshita, N., Kawaguchi, M., Asada, M., Honda, M., Sueki, K., Ninomiya, Y., Sergeev, D., Bläsing, M., Müller, M., 2017. Vaporization Behavior of Cs, K, and Na in Cs-Containing Incineration Bottom Ash during Thermal Treatment with

- CaCl₂ and CaO. *Energy Fuels*, 31, 14045-14052. <https://doi.org/10.1021/acs.energyfuels.7b02930>
- [24] Jiao, F., Kinoshita, N., Kawaguchi, M., Asada, M., Honda, M., Sueki, K., Ninomiya, Y., 2018. Enhancement of Cs vaporization from simulated granular ash through thermal treatment in N₂ atmosphere with the addition of a mixture of CaCl₂ and CaO. *Fuel* 214, 409-415. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2017.11.018>
- [25] 長野泰久, 窪田光宏, 松田仁樹, 落修一, 2016. 下水汚泥焼却灰に含まれるセシウムの乾式除去を目的とするポルサイトからのセシウムの塩化揮発特性. 廃棄物資源循環学会論文誌, 27, 16-22. <https://doi.org/10.3985/jismcwm.27.16>
- [26] 日本原子力開発機構, 福島研究開発部門, 平成 24 年度除染技術実証事業 (環境省受託事業) 報告書 (https://fukushima.jaea.go.jp/initiatives/cat01/entry07_24.html) (2018 年 1 月 14 日閲覧)
- [27] 除染・廃棄物技術協議会 焼却灰ワーキンググループ, 2013. 焼却灰処理技術・最終処分技術集, (http://tacrwm.jp/03_techinfo/pdf/03_03/03_03_01_report_pub.pdf) (2018 年 1 月 14 日閲覧).
- [28] 除染・減容化のあり方に関する WG, 放射性 Cs を含む除去土壌等の熱処理に関する技術評価 SG, 放射性 Cs を含む除去土壌等の熱処理に関する技術評価 (http://www.nies.go.jp/fukushima/pdf/cs_heat-treatment_201510.pdf) (2018 年 1 月 14 日閲覧)
- [29] Spalding, B. P., 1994. Volatilization of cesium-137 from soil with chloride amendments during heating and vitrification. *Environ. Sci. Technol.*, 28, 1116-1123. <https://doi.org/10.1021/es00055a022>
- [30] 竹田尚弘, 小倉正裕, 2016. セシウム汚染土壌を対象とした加熱化学処理パイロット実証. 神鋼環境ソリューション技報, 13 (1) 27-34.
- [31] Nakao, A., Thiry, Y., Funakawa, S., Koski, T., 2008. Characterization of the frayed edge site of micaceous minerals in soil clays influenced by different pedogenetic conditions in Japan and northern Thailand. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 54, 479-489.
- [32] 山口紀子, 2014. 土壌への放射性 Cs の吸着メカニズム. 土壌の物理性, 126, 11-21.
- [33] Kogure, T., Kazuya, M., Kenji, T., Hisako, S. Akihiko, Y., 2012. XRD and HRTEM Evidence for Fixation of Cesium Ions in Vermiculite Clay. *Chem. Lett.* 41 (4), 380-382. <https://doi.org/10.1246/cl.2012.380>
- [34] Mukai, H., Hatta, T., Kitazawa, H., Yamada, H., Yaita, T., Kogure, T. 2014. Speciation of Radioactive Soil Particles in the Fukushima Contaminated Area by IP Autoradiography and Microanalyses. *Environ. Sci. Technol.* 48, 13053-13059. <https://doi.org/10.1021/es502849e>

- [35] Mukai, H., Hirose, A., Motai, S., Kikuchi, R., Tanoi, K., Nakanishi, T. M., Yaita, T., Kogure, T. 2016. Cesium adsorption/desorption behavior of clay minerals considering actual contamination conditions in Fukushima. *Sci. Rep.* 6, 21543. <https://doi.org/10.1038/srep21543>
- [36] Motokawa, R., Endo, H., Yokoyama, S., Nishitsuji, S., Kobayashi, T., Suzuki, S., Yaita, T., 2014. Collective Structural Changes in Vermiculite Clay Suspensions Induced by Cesium Ions. *Sci. Rep.* 4, 6585. <https://doi.org/10.1038/srep06585>
- [37] 宮脇律郎, 佐野貴司, 門馬鋼一, 小暮敏博, 菊池亮佑, 大橋文彦, 上原誠一郎, 佐藤努, 鈴木正哉, 山田裕久, 八田珠郎, 後内貴胤, 山崎淳司, 2015. 南アフリカ・パラボラ産蛭石 (粘土学会参考資料候補), 粘土科学討論会講演要旨集, 59, 40-41.
- [38] 竹田尚弘, 藤原大, 小倉正裕, 井出昇明, 倉持秀敏, 野村和孝, 大迫政浩, 2014. 除去土壌からのセシウム揮発除去と減容化. 第3回環境放射能除染研究発表会要旨集. 135.
- [39] 浦部和順, 小坂丈予, 山田久夫, 1971. 黒雲母より風化変質によって生成したバーミキュライトの加熱による相変化. *粘土科学.* 11 (1), 17-24.
- [40] Saffarzadeh, A., Shimaoka, T., Kakuta, Y., Kawano T., 2014. Cesium distribution and phases in proxy experiments on the incineration of radioactively contaminated waste from the Fukushima area. *J. Environ. Radioact.*, 136, 76-84. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2014.05.009>
- [41] Kuramochi, H., Fujiwara, H., Yui, K., 2016. Behavior of Radioactive Cesium during Thermal Treatment of Radioactively Contaminated Wastes in the Aftermath of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident. *Global Environ. Res.*, 20, 91,100.
- [42] 伊藤健一, 宮原英隆, 氏家亨, 武島俊達, 横山信吾, 中田弘太郎, 永野哲志, 佐藤努, 八田珠郎, 山田裕久, 2012. 湿式分級洗浄および天然鉱物等による農地土壌等に含まれる放射性セシウム除去方法の実践的検討. *日本原子力学会和文論文誌*, 11(4), 255-271. <https://doi.org/10.3327/taesj.J12.010>
- [43] 地盤工学会, 2009. 「地盤材料の工学的分類法」, JGS0051, 地盤工学会, 東京.
- [44] Chimenos, J. M., Segarra, M., Fernández, M.A., Espiell, F., 1999. Characterization of the bottom ash in municipal solid waste incinerator. *J. Hazard. Mater.*, 64 (3), 211-222. [https://doi.org/10.1016/S0304-3894\(98\)00246-5](https://doi.org/10.1016/S0304-3894(98)00246-5)
- [45] Kozai, N., Ohnuki, T., Arisaka, M., Watanabe, M., Sakamoto, F., Yamasaki, S., Jiang, M., 2012. Chemical states of fallout radioactive Cs in the soils deposited at Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. *J. Nucl. Sci. Technol.*, 49 (5), 473-478. <https://doi.org/10.1080/00223131.2012.677131>
- [46] Motai, S., Mukai, H., Watanuki, T., Ohwada, K., Fukuda, T., Machida, A., Kuramata, C., Kikuchi, R., Yaita, T., Kogure, T., 2016. Mineralogical

- characterization of radioactive particles from Fukushima soil using μ -XRD with synchrotron radiation. *J. Mineral. Petrol. Sci.*, 111 (5), 305-312. <https://doi.org/10.2465/jmps.150722>
- [47] Qin, H., Yokoyama, Y., Fan, Q., Iwatani, H., Tanaka, K., Sakaguchi, A., Kanai, Y., Zhu, J., Onda, Y., Takahashi, Y., 2012. Investigation of cesium adsorption on soil and sediment samples from Fukushima Prefecture by sequential extraction and EXAFS technique. *Geochem. J.*, 46 (4), 297-302. <https://doi.org/10.2343/geochemj.2.0214>
- [48] Saito, T., Makino, H., Tanaka, S., 2014. Geochemical and grain-size distribution of radioactive and stable cesium in Fukushima soils: implications for the long-term behavior. *J. Environ. Radioact.*, 138, 11-18. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2014.07.025>
- [49] Linke, W. F., 2002. Solubilities: Inorganic and Metal-Organic Compounds; A Compilation of Solubility Data from the Periodical Literature. Edition 4, Volume 1, Pt.2; UMI: Michigan, pp 880.
- [50] 日本工業規格, 2005. JIS K 0058-1 スラッグ類の化学物質試験方法—第 1 部: 溶出量試験方法.
- [51] 肴倉宏史, 由井和子, 倉持秀敏, 成岡朋宏, 門木秀幸, 2016. ストーカ式都市ごみ焼却施設における各焼却残渣への金属分配挙動調査. 第 37 回全国都市清掃研究・事例発表会 講演論文集, 245-247.
- [52] Funari, V., Braga, R., Bokhari, S. N. H., Dinelli, E., Meisel, T., 2015. Solid residues from Italian municipal solid waste incinerators: A source for “critical” raw materials. *Waste Manage.*, 45, 206-216. <https://doi.org/10.1016/j.wasman.2014.1.1005>
- [53] Yanase, I., Kobayashi, H., Shibasaki, Y., Mitamura, T., 1997. Tetragonal-to-Cubic Structural Phase Transition in Pollucite by Low-Temperature X-ray Powder Diffraction. *J. Am. Ceram. Soc.*, 80 (10), 2693-2695. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1997.tb03175.x>
- [54] 小林秀彦, 寺崎敏広, 森利之, 石原千尋, 斉藤正七, 山村博, 三田村孝, 1991. ゼルゲル法によるポルーサイト粉末の合成と熱膨張挙動. *日本セラミックス協会学術論文誌*, 99 (8), 686-691. <https://doi.org/10.2109/jcersj.99.686>
- [55] 柳瀬郁夫, 小林秀彦, 2011. 低熱膨張立方晶リユーサイト化合物の開発. *セラミックス*, 46 (11), 916-921.
- [56] 肴倉宏史, 石森洋行, 2013. 廃棄物等からの放射性セシウムの溶出特性と溶出試験. *廃棄物資源循環学会誌*, 24 (4), 274-280.

- [57] 山根正之, 安井至, 和田正道, 国分可紀, 寺井良平, 近藤敬, 小川晋永, 2010. 「ガラス工学ハンドブック(普及版)」, 朝倉書店, 東京.
- [58] Marchildan, D. I., Vasu, L., 1976. Heats of melting of some alkali halide solid solutions. *Chem. Zvesti*, 30 (6), 768-772.
- [59] Chandler, A.J., Eighmy, T. T., Hjelmar, O., Kosson, D. S., Sawell, S.E ., Vehlow, J., Slood, H. A., Hartlén, J., 1997. “Municipal Solid Waste Incinerator Residufes”, Elsevier, Amsterdam.
- [60] Sebastian, A., Lagache, M., 1990. Experimental Study of the Equilibrium Between Pollucite, Albite and Hydrothermal Fluid in Pegmatitic Systems. *Mineral. Mag.*, 54 (376), 447-454. <https://doi.org/10.1180/minmag.1990.054.376.10>
- [61] 環境省 HP, 福島地方環境事務所, 調達情報, ①平成 29 年度双葉町減容化施設 (中間貯蔵施設) における廃棄物処理その 1 業務②平成 29 年度双葉町減容化施設 (中間貯蔵施設) における廃棄物処理その 2 業務, 要求水準書等, http://fukushima.env.go.jp/procure/02_03_1,000076280.pdf%20.pdf (2018 年 1 月 14 日閲覧)
- [62] 白石裕, 1989. シリケート融体における粘度と光学的塩基度の相関. *岩鉱*, 84 (4), 151-156.
- [63] 早稲田嘉夫, 1980. 溶融スラグの構造と物性. *日本金属学会会報*, 19 (10), 695-707. <https://doi.org/10.2320/materia1962.19.695>

第5章 総括

5.1. 本論文のまとめ

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。各章で得られた知見を以下に示す。

5.1.1. 第1章「緒論」のまとめ

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以下の3つの課題を抽出した。

(焼却処理に関する課題)

- ① 一般廃棄物焼却施設における焼却形式の放射性 Cs 挙動への影響の解明
- ② 対策地域内仮設焼却施設における廃棄物種類の放射性 Cs 挙動への影響の解明
- ③ 焼却残渣からの放射性 Cs 除染・減容化技術の開発

そこで、第1章では本論文の研究目的を示し、第2章および第3章で焼却処理過程における放射性 Cs の挙動について焼却施設での実地調査を行い、第4章で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 除去について検討した。

5.1.2. 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」のまとめ

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、流動床式ガス化溶融炉、シャフト式ガス化溶融炉の4つの焼却形式について比較した。また、各焼却形式における放射性 Cs の分配（濃縮）挙動、焼却残渣からの溶出挙動、バグフィルタによる放射性 Cs 除去効率について実地調査を行い、以下の知見を得た。

(1) 放射性 Cs の濃縮・分配挙動

いずれの焼却形式でも放射性 Cs は飛灰（ばいじん）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 分配率、濃縮率などは焼却残渣の発生比率や処理温度等の影響を受け、さらに焼却形式ごとに異なり、各焼却形式により以下のような特徴があった。

- ストーカ式焼却：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：飛灰発生量が多いために希釈効果により飛灰への放射性 Cs 濃縮率が最も小さくなった。
- 流動床式ガス化溶融：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や流動床式焼却の飛灰よりも高くなったが、シャフト式ガス化溶融よりは低かった。
- シャフト式ガス化溶融：処理温度が 1,300 ~ 1,650 °C と最も高く、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 をスラグと溶融飛灰に高度に分離できる。炉下排出物（スラグおよび磁選メタル）は焼却対象物よりも濃度が低く、除染技術として適用の可能性が示唆された。

(2) 焼却残渣からの放射性 Cs 溶出性

- 焼却形式の違いが溶出率へ与える影響は小さいことがわかった。
- 飛灰からの放射性 Cs 溶出率は高く、飛灰中の 30 ~ 100%の放射性 Cs が溶出し、排ガス処理薬剤や季節変動等の影響で違いが見られた。排ガス処理薬剤に活性白土を用いると放射性 Cs 溶出率を抑制できた。
- 炉下排出物（主灰、不燃物、スラグ）については、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。

(3) バグフィルタによる排ガス処理

- 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 は焼却形式に依存せずに高効率に除去されることが確認された。

5.1.3. 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」のまとめ

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。第 2 章と同様に放射性 Cs の分配挙動や溶出挙動、バグフィルタによる除去効率を調査したのに加え、主灰および飛灰中での放射性 Cs の存在形態についても解析し、以下の知見を得た。

(1) 除染廃棄物の性状

- 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。片づけごみ等と混合処理することで発熱量は高くなり、安定に処理可能となる。
- 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。

(2) 焼却残渣の放射性 Cs 濃度

- 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、以下のような濃度比となった。

| | | | |
|---------|---|-----|--------------------|
| 除染廃棄物 | ➔ | 1.3 | （主灰と飛灰で濃度レベルが近い） |
| 混合廃棄物 | ➔ | 2.4 | （除染廃棄物と家屋解体廃棄物の中間） |
| 家屋解体廃棄物 | ➔ | 4.7 | （一般廃棄物（6.4）に近い） |

(3) 除染廃棄物を焼却した際の放射性 Cs の挙動

- 焼却残渣への放射性 Cs 濃縮率（除染廃棄物に対する焼却残渣の放射性 Cs 濃度）は、主灰へは 2～9 倍、飛灰へは 5～12 倍であった。
- 除染廃棄物のみを焼却すると、放射性 Cs の分配率は、約 80%の放射性 Cs が主灰へと分配された。
- 飛灰からの放射性 Cs 溶出率は、1%未満～42%と低いことがわかった。溶出率が変動する理由として、除染廃棄物の塩素（Cl）含有量の違いが考えられた。
- 除染廃棄物焼却は一般廃棄物焼却とは傾向が大きく異なることが、本研究により初めて明らかにされた。

(4) 家屋解体廃棄物を焼却した際の放射性 Cs の挙動

- 焼却残渣の発生量が少なく、放射性 Cs 濃縮率が高いことがわかった（飛灰への濃縮率は約 20 倍）
- 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、焼却前の家屋解体廃棄物や主灰からの放射性 Cs 溶出率も、それぞれ最大 12%、1.3%と比較的高かった。
- 濃縮率や溶出率が高い理由は、一般廃棄物と性状が似ており、第 2 章で述べたように、放射性 Cs の CsCl ガスの生成量が多いためと考えられる。

(5) 飛灰中の放射性 Cs の存在形態

- 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た。
- 難溶性の放射性 Cs 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とわかった。

(6) 主灰中の放射性 Cs の存在形態

- 電子顕微鏡（SEM-EDS/EBSD）等による分析から、焼却過程に部分的に生じる溶

融相に放射性 Cs が特異的に濃集することが観察され、これが放射性 Cs の主な存在形態である可能性が示唆された。

- 放射性 Cs 濃集粒子の特徴は、焼却対象物の違いによる差異は見られなかった。

(7) 排ガス中の放射性 Cs の挙動

- 一般廃棄物焼却のばいじんの粒子径分布（粒子径が 0.1～1 μm 間と 10 μm 前後にピークがある二峰性）と比べると、除染廃棄物焼却のばいじんの粒子径分布は 10 μm 前後の粒子径を有する粒子の割合が多かった。0.1～1 μm の粒子径（凝集物由来）が少ない理由として、アルカリ塩化物ガスの生成が少なく凝集量が少ないことが考えられ、一方、10 μm 前後の粒子径（機械的生成由来）が多い理由は土壤細粒子が多かったと推定される。
- いずれの調査でも煙突部では放射性 Cs は検出されず、焼却対象物の違いによらずバグフィルタは排ガス中に含まれる放射性 Cs に対して高い除去率（99.99%以上）を有することが確認できた。

5.1.4. 第 4 章「焼却残渣からの放射性 Cs 除染・減容化技術の開発」のまとめ

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（土壤（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、各焼却残渣での放射性 Cs の存在形態と除去メカニズムについて考察した。得られた主要な知見を以下に示す。

(1) バーミキュライト（粘土鉱物）からの Cs 除去メカニズム

- 粘土鉱物のうち、Cs を特異的に吸着・固定化するバーミキュライトに対して、加熱化学処理技術が効果的に適用できることを確認した。焼成法や熔融法と比較して低い処理温度である 1,000 °C にて 95.9%、高温化（1,200 °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り、加熱温度は 1,000 °C 以上が必要であること、Cs 除去剤として NaCl だけで無く CaCO₃ と併用する必要があることが明らかとなった。
- 加熱化学処理による Cs の揮発メカニズムとして、NaCl が熔融塩を形成し、NaCl とともに Cs が揮発することが分かった。また一方、CaCO₃ は結晶構造変換を促進させ、Cs の揮発促進に関与すると考えられる。

(2) 一般廃棄物の主灰からの放射性 Cs 除去

- 主灰中の放射性 Cs は、細粒分 (2 mm ふるい下) と粗粒分 (2 mm 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、粗粒分ではそれに加えて粉砕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 以下に粉砕した後に加熱化学処理を行うことが有効であるとわかった。
- 主灰粗粒分を粉砕することで、加熱温度 1,100 °C で 90.0%、1,150 °C で 95.7% 以上の放射性 Cs を主灰から除去可能となった。また、細粒分では 1,200 °C の高温条件で 98.6% の高い放射性 Cs 除去率が得られた。
- 加熱化学処理後の浄化物中の放射性 Cs は難溶性のものが主体であり、溶出性の観点からはより安全なものであった。
- 加熱化学処理により、主灰中の Albite や Anorthite 等の三次元網目状のアルミノケイ酸塩鉱物の結晶が他の結晶構造に変換することを確認した。また、主灰中に存在すると予想される Cs を含むアルミノケイ酸塩である Pollucite でも加熱化学処理によりその結晶構造の消失が確認された。

加熱化学処理後には化学量論比で Ca をより多く含む鉱物が生成していることから、CaCO₃ が主灰等の構造変化を促す要因の一つになる可能性が示唆された。

(3) 除染廃棄物等の焼却残渣 (主灰および飛灰) からの Cs 除去

- 除染廃棄物等の焼却残渣は、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 1,000 °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。その結果、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。

(4) 試料間の Cs 除去率の違いに関する考察

- 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% であった (いずれも NaCl と CaCO₃ 併用、1,000 °C、60 分処理時)。非晶質中の Cs は Pollucite に比べて除去されにくく、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。
- 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。

5.2. 今後の展望と課題

5.2.1. 最適な焼却・除染減容化処理について

どのような焼却形式がよいか、焼却対象物は専焼とするか混焼とするか、等の最適な処理方法の検討では、その後の減容化などを目指した焼却残渣の処理方法などによって多様な選択肢が存在すると考えられる。ここでは前章までの結果を踏まえ、想定されるいくつかのケースをについて、放射性 Cs の挙動の観点から適していると思われる処理方法と留意事項を提示する。

● 炉下排出物（主灰やスラグ、金属類等）を再利用する場合

ストーカ式焼却炉の場合には主灰への放射性 Cs 濃縮率は他の炉下排出物に比べて高くなるため、主灰の減容化、すなわち放射性 Cs の除去が必要となると考えられる。一方、ガス化熔融炉であれば、放射性 Cs 濃度の低いスラグと金属類が排出されるため、付加的な処理を必要とせず直接再利用できる点からガス化熔融炉が適していると思われる。ただし、ガス化熔融炉は焼却炉に比べてコストが高いことに留意する必要がある。

● 飛灰の放射性 Cs 濃度（分配）をコントロールしたい場合

焼却形式の処理特性から、飛灰の放射性 Cs 濃度を下げたい場合には流動床式焼却炉が適しているが、飛灰の発生量が多い点に留意が必要である。それとは逆に、放射性 Cs を飛灰側へ濃縮する場合（飛灰は指定廃棄物として国の責任で処分される）は、処理温度が高く飛灰への濃縮率が高いガス化熔融炉が有利であると考えられる。

また、処理対象物の種類も放射性 Cs の分配に対する重要因子であることを示した。つまり、除染廃棄物の焼却割合を多くすることで飛灰の放射性 Cs 濃度上昇を抑制でき、塩素含有量が高い一般廃棄物や木くず（家屋解体廃棄物等）の焼却では放射性 Cs が飛灰へとより多く移行する。この性質を利用して焼却対象物の混合比率を調整することで飛灰の放射性 Cs 濃度を大まかに制御することが可能となると考えられる。

● 焼却残渣を減容化せずに最終処分（埋立）を行う場合

除染廃棄物のみを焼却した場合には放射性 Cs 溶出性が低い主灰および飛灰が発生する傾向があるため、除染廃棄物は専焼するのが望ましい。東條らのグループでは、除染廃棄物中にアルカリ長石等のアルミノケイ酸塩を介在させることで放射性 Cs を難溶性態化する検討がなされているが[1,2]、除染廃棄物には元々アルカリ長石が含まれており放射性 Cs の難溶性態化に寄与していると考えられ、その効果を最大化するためにも除染廃棄物は専焼が良いと考える。ただし、除染廃棄物のみを焼却した場合にも、地域等の違いにより飛灰からの溶出率が最大で 40%程度存在する場合もあるため、除染廃棄物という名称が同一であっても必ずしも性状が一定でない点には留意が必要である。なお、飛灰には活性白土やゼオライト等の放射性 Cs の溶出率を低減可能な薬剤を混合する方

法も埋立における溶出防止法として有効である。また、除染廃棄物のみを焼却する場合には助燃のためのエネルギーを消費による化石燃料由来の CO₂ 排出量やコストが増える可能性が考えられるため、助燃剤の使用量削減対策として十分な広さのストックヤードで除染廃棄物を予め乾燥させる等の配慮が取られることが望ましいと考える。

● 焼却残渣の減容化（放射性 Cs 除去）を行う場合

焼成・溶融等の熱処理減容化では、塩基度 (CaO/SiO₂) および塩素 (Cl) 濃度が重要な因子となり、どちらも適切な量が設定されている。除染廃棄物の焼却残渣は塩基度および塩素濃度が低いことから、焼却残渣の塩基度や Cl 濃度が高くなる家屋解体廃棄物や一般廃棄物等を除染廃棄物と積極的に混焼することが望ましいと考える。ただし、セメントとして再生利用する際には、高い Cl 濃度は再生利用の阻害要因となるため、基本的に Cl 濃度が低い除染廃棄物を専焼することが望ましい。

また、減容化処理において、安定した放射性 Cs 除去や性状変動の小さい再生資材を生産するためには、均質な焼却残渣であることが望ましく、そのためにも焼却処理の際に焼却対象物を可能な限り均質化したうえで焼却処理を行うことが望ましい。

あるいは、シャフト式ガス化溶融炉のように、飛灰に放射性 Cs を高濃縮する技術であれば、炉下排出物（スラグ）からの Cs 除去の必要がなく、可燃物焼却減容化と Cs 除去を一つのプロセスで行うことができるため、可燃性の廃棄物の減容化技術として期待できる。

● 煙道灰（ガス冷灰など）の取扱いについて

焼却対象物の違いに関わらず、基本的に炉下排出物と飛灰の中間の性状を示し、放射性 Cs の溶出性を示す場合が多いことから、放射性 Cs が溶出する前提として飛灰として取り扱う方が環境への漏出防止の観点からは望ましい。また、ガス化溶融炉の場合には、煙道灰をサイクロン等で分級して粒径の大きいものは再度溶融するフローがあれば飛灰の発生量を抑えることができ、Cs を高度に分離できると考えられる。

5.2.2. 今後の焼却処理における課題

本研究では実施での調査・分析結果をもとに焼却形式や焼却対象物ごとに放射性 Cs の挙動を明らかにした。また、焼却残渣の元素組成や焼却残渣からの溶出率等のデータを数多く蓄積し、マイクロレベルでの放射性 Cs の存在形態や、結晶相に関する貴重な知見も得られた。将来の処理計画、減容化の検討等においては、多様な処理条件における放射性 Cs の挙動を予想する必要がある、そのためには放射性 Cs の存在形態や焼却残渣の分配を定量的に記述できるモデルの作成が大変有用になると思われる。現在、焼却施設全体で Cs の挙動を再現できる焼却シミュレータの開発がなされており [3-5]、その精度向上や、シミュレータの検証データとして、本研究で得られた包括的かつ詳細な知見が活用されることに期待する。

また、現在の除染活動は、生活環境における空間線量率低減のために林縁から 20 m 程度の範囲を目安として住居等の近隣の森林で行われているが [6]、林縁から 20 m 超の森林についても、「里山再生モデル事業」などで森林除染が計画されている [7]。除染範囲が拡大された場合に発生する汚染木材の有効利用については、木質バイオマスボイラーの設置も検討されているが [7]、木質バイオマスの場合には灰分量が少ないため比較的焼却残渣の放射性 Cs の濃度が高くなる可能性もあるため、作業員の被ばく管理や焼却残渣の処理方法について地域の実情に適した解決策を見出す必要がある。特に、福島県は、北海道、岩手県、長野県に次いで全国で 4 番目に広い森林面積を有しており [8]、福島県を含む放射能汚染のあった東日本地域の森林はバイオマス資源としての価値も注目されており [9]、木質バイオマスを利用の促進を期待したい。

5.2.3. 今後の除染減容化における課題

図 5.1 に中間貯蔵施設における福島県外での最終処分までの主な流れを示す [10]。最終処分に向けた技術開発、方向性の検討と並行して最終処分に向けた全国的な理解の醸成を図ることが、重要な命題として存在している。理解を得るための一つの重要なポイントは、浄化物の安全性などの科学的な裏付けであり、浄化物の溶出性や長期的な安定性などを十分に評価する必要があると考えられる。そのためには、第 4 章の 4.4 節で実施したような、浄化物のマイクロレベルでの性状評価などによる放射性 Cs 除去機構の解明が重要となると考える。本研究では、加熱化学処理に関しての研究を行ったが、本研究で用いた Pollucite や模擬非晶質のようなモデル化合物を用いた実験手法はその他の技術でも応用可能であるため、さらに高濃縮したときに問題となる可能性がある放射性 Sr に関する検討とともに、今後の展開に期待したい。

浄化物の再生利用にあたっては、積極的に再生資材として活用することで、限りある資源を活用する循環型社会の形成の良いモデルとなって欲しい。そのためには、重金属等を含めた浄化物の安全性を確保することはもちろんのこと、トレーサビリティを確保しながら再生利用を進めるためのシステムをより高度化するなど、単なる「除染・減容化」に終わらない適用事例となることを期待する。



図 5.1 福島県外での最終処分までの主な流れ（環境省 HP [10]より引用）

濃縮汚染物については、Cs-137 が 1×10^{11} (1000 億) Bq/kg まで濃縮された場合でも、原子力発電所施設等で発生する廃棄物の基準に照らすと、低レベル放射性廃棄物（ピット（浅地中）処分）の枠組みの濃度レベルである[11]。最終処分量低減の観点からは、高度濃縮による減容化も選択肢の一つであり、処理対象物が仮に最大 100 万 Bq/kg とした場合でも 10 万倍に濃縮できることになる。しかし、そのように高濃縮するためには熱処理だけでなく、熱処理後にバグフィルタ等で回収される濃縮汚染汚染物から洗浄により放射性 Cs を抽出し、吸着材へ濃縮するなどの方法が考えられる。このような濃縮汚染物の高度減容化により得られる高度濃縮汚染物については長期間安全に保管しなければならない、原子力発電所から発生する高レベル廃棄物で適用されているようなガラス固化体にするのか、セメント固型化するのか、Pollucite などの安定な鉱物に変換するのか等の最終廃棄体の開発も減容化技術の開発と並行して加速させなければならない。

5.3. おわりに

本研究が福島県をはじめ東日本の放射能に汚染された各地の復興の一助となり、一刻も早く安心して元の生活に戻れることを願います。

第5章の参考文献

- [1] 坂本さくら, 東條安匡, 松尾孝之, 松藤敏彦, 2017. 熱処理を介したアルミノケイ酸塩による廃棄物中セシウムの難溶性態化. 第28回廃棄物資源循環学会研究発表会講演集. 463-464. https://doi.org/10.14912/jsmcwm.28.0_463
- [2] 田村和樹, 東條安匡, 松尾孝之, 松藤敏彦, 2016. セシウムを表面に特異的に濃集する焼却主灰粒子の鉱物種の同定. 第27回廃棄物資源循環学会研究発表会講演集. 461-462. https://doi.org/10.14912/jsmcwm.27.0_461
- [3] 由井和子, 倉持秀敏, 野村和孝, 大迫政浩, 2013. 都市ごみ焼却処理過程における放射性セシウムの挙動解析のためのマルチゾーン平衡計算の開発. 第24回廃棄物資源循環学会研究発表会 講演原稿, 459-460. https://doi.org/10.14912/jsmcwm.24.0_459
- [4] 由井和子, 野村和孝, 倉持秀敏, 大迫政浩, 2014. 都市ごみ焼却処理過程における放射性セシウムの挙動解析のためのマルチゾーン平衡計算の開発(2)溶融スラグ、溶融塩の影響の評価. 第25回廃棄物資源循環学会研究発表会 講演原稿, 379-380. https://doi.org/10.14912/jsmcwm.25.0_379
- [5] 由井和子, 野村和孝, 倉持秀敏, 大迫政浩, 2015. 都市ごみ焼却処理過程における放射性セシウムの挙動解析のためのマルチゾーン平衡計算の開発(3)焼却炉の運転条件による影響. 第26回廃棄物資源循環学会研究発表会 講演原稿, 389-390. https://doi.org/10.14912/jsmcwm.26.0_389
- [6] 環境省, 2016. 除染関係ガイドライン第2版(2016年9月追補), http://www.env.go.jp/jishin/rmp/attach/josen-gl-full_ver2_supplement-201609.pdf (2018年1月14日閲覧).
- [7] 復興庁 HP, 復興に向けた取組, 復興の現状と取組, 福島森林・林業の再生のための関係省庁プロジェクトチーム第2回(平成28年3月9日開催) <http://www.reconstruction.go.jp/topics/main-cat1/sub-cat1-4/forest/20160309170328.html> (2018年1月14日閲覧).
- [8] 林野庁 HP, 2012. 都道府県別森林率・人工林率(平成24年3月31日現在), <http://www.rinya.maff.go.jp/j/keikaku/genkyou/h24/1.html> (2018年1月14日閲覧).
- [9] Ooba, M., Fujii, M., Hayashi, K, 2016. Geospatial distribution of ecosystem services and biomass energy potential in eastern Japan, J. Cleaner Prod. 130, 35-44. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2016.01.065>
- [10] 環境省 HP, 中間貯蔵施設情報サイト, 県外最終処分に向けた取組み, <http://josen.env.go.jp/chukanchozou/facility/effort/> (2018年1月14日閲覧).
- [11] 大石英希, 鈴木覚, 2016. 放射性物質による事故由来汚染物の対策技術の現状 7. 高レベル及び低レベル放射性廃棄物処分施設の安全確保の考え方と処分概念. 地盤工学会誌. 64(3), 56-62.

謝 辞

本研究を遂行するにあたり、ご指導ご協力を頂きました皆さまに感謝申し上げます。

はじめに、倉持秀敏教授には始終熱心に研究内容についてご指導・ご議論をして頂くとともに、素晴らしい研究環境を与えて頂き深く感謝いたします。ご多忙の中、研究の進め方や論文作成についても丁寧にご指導頂き、心より御礼申し上げます。また、倉持先生の研究に対する真摯な姿勢や誠実さ、熱情に間近で触れることができ、研究を志す者として何事にも代え難い経験となりました。

本論文の審査にあたり、ご多用中審査委員を快くお引き受け頂いた、横浜国立大学大学院環境情報学府の藤江幸一教授、中井里史教授、亀屋隆志准教授、小林剛准教授にはご貴重なご意見を頂きまして誠にありがとうございました。

国立研究開発法人国立環境研究所資源循環・廃棄物研究センターの大迫政浩氏には研究内容についての的確なご助言を頂き、研究発表の際などでもご指導いただきました。健康状態などにも気にかけて頂き、多面にわたりお世話になりました。大変感謝いたします。由井和子氏には、いつも有用なアドバイスを頂き、熱力学平衡計算の考察(図 2.7 等)や第 4 章の Polllucite の合成において多大なるご協力を頂きましたことを感謝申し上げます。野村和孝氏には実験の進め方などを親身になって相談に乗って頂き、優しさに度々心が救われました。山本貴士氏、肴倉宏史氏、小口正弘氏、水原詞治氏にはゼミや学会などでの活発なご議論にお付き合いいただき、適切なアドバイスを頂き、深く御礼申し上げます。竹内幸生氏、前背戸智晴氏、伊藤浩平氏には施設調査などご尽力いただき大変お世話になりました。千村和彦氏、五日市康広氏、伊藤恵氏、高田恭子氏、平山充宏氏、大村成二氏、新井裕之氏には実験や分析に献身的に取り組んで頂き感謝申し上げます。皆さまのご協力なしには本研究は達成できませんでした。また、これまで楽しい研究生生活を送ることができたのは、資源循環・廃棄物研究センターの皆さまのおかげです。深く感謝の意を表します。

株式会社神鋼環境ソリューション技術開発センターの小倉正裕氏、竹田尚弘氏には入社以来、実験の基礎から忍耐強くご指導いただくとともに折に触れて激励のお言葉を頂きました。研究活動をスムーズに開始し、続けてこれたのは両氏のお陰です。厚く御礼申し上げます。また、博士後期課程への進学を推薦してくださいました高橋正光氏をはじめ、研究に没頭できるよう様々なご支援を頂きました、田頭成能氏、細田博之氏、井出昇明氏に厚く御礼を申し上げます。

本研究の第 2 章では岡山大学大学院環境生命科学研究科の川本克也教授、福島県環境創造センターの山崎真一氏、国分宏城氏、吉田博文氏、村沢直治氏にご助言・ご協力を頂き、本研究の第 3 章では、環境省福島地方環境事務所の多大なるご支援ご協力を賜りました。関係者の皆様には深く御礼申し上げます。また、本研究の第 3 章は、「平成 28 年度中間貯蔵施設の管理等に関する業務」および「平成 29 年度中間貯蔵施設の管理等に関する業務」(環境省)については、中間貯蔵・環境安全事業株式会社からの受託研究で実施されたものであり、多くのご助言を頂き感謝・御礼を申し上げます。

最後に、本研究にご理解頂き、試料の提供や施設調査等にご協力頂きました自治体、プラントメーカー、JV、分析会社等、関係機関の皆さまに心から感謝の気持ちと御礼を申し上げます、謝辞とさせていただきます。

藤原 大