

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 第四版)

平成 26 年 4 月 14 日 改訂版

(独) 国立環境研究所 資源循環・廃棄物研究センター

目 次

はじめに	1
1. 放射能汚染廃棄物の問題の概要	2
1.1 放射性物質による廃棄物の汚染事象	2
1.2 これまでの国等の動き	3
1.3 放射性物質汚染対処特別措置法	6
1.3.1 法律のポイント	6
1.3.2 基本方針のポイント	6
1.3.3 中間貯蔵施設設置等のロードマップ	7
1.3.4 環境省令(施行規則)	7
1.4 中間貯蔵施設の現状と課題	9
1.4.1 位置づけ	9
1.4.2 中間貯蔵施設の概要	9
1.4.3 技術的課題	9
2. 放射能に関する基礎知識	17
2.1 放射性物質と単位	17
2.2 放射線健康障害について	19
2.3 放射線の計測技術	20
2.4 放射線の管理技術	22
3. 放射性物質(セシウム、ストロンチウム)の物性	25
4. 放射性セシウムの溶出特性	32
4.1 はじめに	32
4.2 試験方法	32
4.2.1 JIS K0058-1有姿攪拌試験	32
4.2.2 逐次抽出試験	32
4.2.3 迅速シリアルバッチ試験	33
4.2.4 迅速累積バッチ試験	34
4.3 試験結果	35
4.3.1 JIS K0058-1有姿攪拌試験結果	35
4.3.2 海水溶媒の影響ならびに試験方法の影響	41

4.3.3	逐次抽出試験結果	41
4.3.4	迅速シリアルバッチ試験結果	44
4.3.5	迅速累積バッチ試験結果	45
4.4	考察	46
5.	放射性セシウムの土壌等への吸着特性	48
5.1	はじめに	48
5.2	各種土壌等の吸着能力の違い	48
5.2.1	実験方法	48
5.2.2	実験結果	50
5.2.3	まとめ	52
5.3	通水条件下における吸着挙動	53
5.3.1	実験方法	53
5.3.2	実験結果	56
5.3.3	まとめ	61
6.	焼却処理過程における挙動と制御	62
6.1	はじめに	62
6.2	焼却処理の安全性に関する概説	62
6.2.1	焼却処理における排ガスの基準値	62
6.2.2	実測データの状況	63
6.2.3	排ガス処理における除去率	64
6.2.4	放射性セシウムの燃焼及び排ガス処理過程での挙動	65
6.2.5	放射性セシウムの挙動に関する理論的背景	67
6.2.6	無視できる周辺住民のは排ガスによるリスク	69
6.2.7	バグフィルターの健全性の維持	69
6.2.8	プロセス内への蓄積挙動	70
6.3	焼却処理における放射性セシウムの挙動	72
6.3.1	はじめに	72
6.3.2	熱力学平衡計算	72
6.3.3	結果と考察	77
6.3.4	結論	92
6.4	焼却施設における炉内耐火物等への蓄積挙動調査	95
6.4.1	はじめに	95
6.4.2	調査方法	95
6.4.3	調査結果	96

7.	コンクリートの除染の基礎と	
	汚染廃棄物の最終処分へのセメント・コンクリート技術の活用	101
7.1	放射能汚染とコンクリート技術の関連	101
7.2	実コンクリートへの放射性Cs浸透解析と再利用への考え方	102
7.2.1	実コンクリートへの放射性Csの浸透解析	102
7.2.2	除染コンクリートの再利用への考え方	108
7.3	セメント・コンクリートとの関連から考えた焼却飛灰の特性	110
7.3.1	はじめに	110
7.4	Csの不溶化と飛灰のセメント固型化	114
7.4.1	はじめに	114
7.4.2	固定化材の探索	114
7.4.3	固定化材の効果	115
7.4.4	より効果的なCs固定化材	117
7.4.1	まとめ	119
7.5	鉄筋コンクリート製の最終処分場設計	119
7.5.1	飛灰の特性を考慮したコンクリートの劣化の可能性	119
7.5.2	コンクリート中でのCsの移動予測	122
7.5.3	アルカリ骨材反応の定量的評価と抑制	126
7.6	まとめ	131
8.	焼却飛灰の水洗浄による放射性セシウムの除去	132
8.1	飛灰洗浄技術のコンセプト	132
8.2	飛灰洗浄技術の導入による汚染廃棄物に関する課題の解決	133
8.2.1	焼却施設における保管スペースのコンパクト化	133
8.2.2	地域の除染の促進	133
8.3	飛灰洗浄技術の概要	133
8.3.1	飛灰洗浄技術の基本原理	133
8.3.2	飛灰の性状	134
8.3.3	飛灰からの放射性セシウム等の溶出特性	134
8.3.4	溶出液の特性	136
8.4	一般廃棄物焼却施設での飛灰洗浄ベンチ試験	137
8.4.1	試験方法・設備	138
8.4.2	飛灰の洗浄効率	139
8.4.3	使用水量の低減	141
8.4.4	洗浄排水からの放射性セシウムの除去	142
8.4.5	洗浄飛灰に含まれる放射性セシウムの水への溶出性	146

8.4.6	洗淨不溶化試験	147
8.4.7	放射線管理	149
8.4.8	ベンチ試験のまとめ	149
8.5	飛灰洗淨技術の開発状況	149
8.5.1	飛灰の洗淨方法	150
8.5.2	洗淨排水からの放射性セシウムの除去方法	151
9.	埋立処分過程における挙動と制御	154
9.1	モデル解析からみる挙動と埋立法	154
9.1.1	放射性物質に汚染された廃棄物の埋立方法	154
9.1.2	放射性物質の溶出量を考慮した浸出水への影響評価	156
10.	浸出水処理過程における挙動と制御	162
10.1	浸出水処理施設における実態	162
10.1.1	浸出水処理施設における放射性セシウムの現状	162
10.1.2	安定セシウムを指標とした 浸出水処理施設におけるセシウム除去性能の評価	163
10.2	放射性セシウムの有効な除去方法の検討	166
10.2.1	ゼオライトによる吸着除去	166
10.2.1.1	カラム試験	166
10.2.1.2	現場試験	167
10.2.2	逆浸透膜による除去	169
10.2.2.1	逆浸透膜による放射性セシウム除去の現場試験	169
11.	放射能等の測定モニタリング手法	171
11.1	はじめに	171
11.2	放射能濃度等測定方法ガイドライン	171
11.3	廃棄物等の放射能調査・測定暫定マニュアルとその改訂	174
12.	放射性物質を含む焼却灰等の空間的・時間的特性	177
12.1	はじめに	177
12.2	基礎情報の収集整備	177
12.3	一般廃棄物焼却施設における焼却灰等の放射性セシウム濃度の推移	178
12.4	焼却灰等の放射性セシウム濃度の空間分布	184
12.5	放射性セシウムで汚染された焼却灰等の施設・地域特性	186
12.6	焼却ごみの放射性セシウム濃度の傾向	187

12.7 焼却灰等への放射性セシウム濃縮傾向	191
------------------------------	-----

はじめに（第4版の公開にあたり）

東日本大震災に伴う福島第一原子力発電所の事故により、福島県を中心に関東圏域等に及ぶ広域な放射性物質汚染が生じました。事故後早3年が過ぎ、放射性物質汚染対処特別措置法に基づいて、関係者の懸命な努力が続けられています。福島県内では中間貯蔵施設整備に向けた地元との協議が続けられており、福島県外では指定廃棄物処分場の立地に関する合意形成へ向けた対応が正念場になっています。放射性物質汚染廃棄物の「出口」確保は、環境回復を進めるうえでの試金石であり、受け入れる地域の方々の苦難は計り知れないものですが、地域社会の将来に対して様々な支援を行い、何らかの着地点を見出さなければ日本社会は先に進むことができないと言っても過言ではありません。

本技術資料は、今後の放射性物質に汚染された廃棄物の適正処理を行っていくうえで、留意すべき技術的事項を中心に、(独) 国立環境研究所がこれまで実施してきた調査研究の成果等を取り纏め、情報提供を行うものです。2011年の12月に初版を公開して以降、その後の調査研究を通して得た新たなデータや知見を基に内容を第2版、第3版と更新、改訂してきましたが、本第4版では、熱処理過程における放射性セシウムの挙動に関する知見をさらに充実し、焼却施設等の長期管理において重要な放射性セシウムの炉内蓄積挙動に関するトピックも盛り込みました。また、処理処分過程におけるコンクリート技術の適用や、注目されている飛灰洗浄技術の開発研究の成果を新たに追加しました。その他、新たな知見や情報を踏まえて内容を更新しています。

なお今回の災害は、わが国において、また世界においても過去経験したことの無い未曾有の原子力災害であり、本技術資料の情報の中には科学的な知見が十分でなく不確実性を含む事項も多々あると思われます。しかし、いち早く社会に提供することが重要と考え、本技術資料を取り纏め、公開しております。被災地の早期の環境回復により、国民の安全・安心の社会の確保に少しでも貢献できれば幸いです。

1. 放射能汚染廃棄物の問題の概要

1.1 放射性物質による廃棄物の汚染事象

原発事故に伴い放出された放射性物質はエアロゾルなどの形で広域に移流拡散し、降雨に伴って地上に降下沈着しました。現在、環境放射能のほとんどを占めている放射性セシウムは、降雨に溶けてイオンの形で降り注いだと考えられます。文部科学省が行った航空機モニタリングの結果では、福島県内だけでなく、県外の広範囲に汚染が進んでいることが明らかとなりました。関東圏域でも、千葉県の北西部や栃木県、群馬県の山麓部など、高線量地域が分布しています。高線量地域では、放射性セシウムを含むごみが一般廃棄物の焼却施設に混入し、高濃度の焼却灰が発生しています。これは、日常生活の中で放射性セシウムを含む土壌が付いた雑草を除去したり、葉や樹皮に放射性セシウムが付いた樹木等を剪定するなどした際に生じた草木類のごみに起因するものです。

合流式下水道では、放射性セシウムが付着した地上部の土壌粒子が懸濁物として下水道に流入し、終末処理場において下水汚泥に濃集しました。上水の場合も同様に、取水域に懸濁物が流入し浄水過程で上水汚泥（浄水発生土）中に濃集しました。それ以外にも、降下物の付着による稲わらや腐葉土なども問題になっています（図 1.1 参照）。

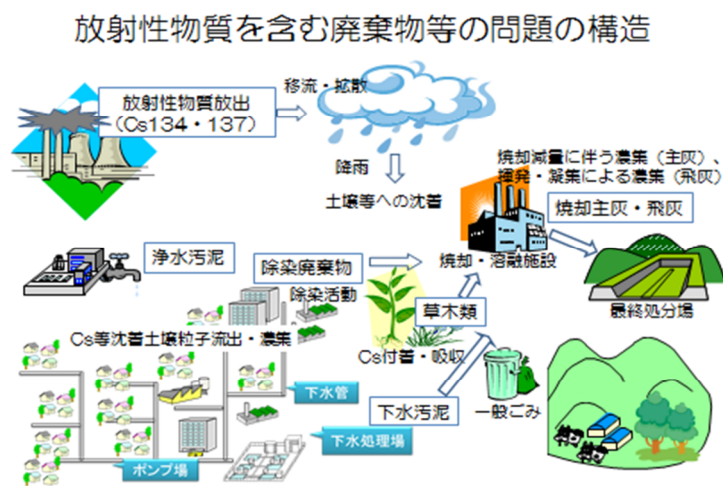


図 1.1 放射性物質に汚染された廃棄物の発生事象の機序の概要

1.2 これまでの国等の動き

表 1.1 に放射性物質によって汚染された廃棄物の問題に対する国等のこれまでの動きを時系列的に示しました。原発事故による汚染の実態が不明であった当初は、主に福島県内に目が向けられ、福島県内の災害廃棄物が放射性物質によって汚染されているおそれがあったことから、その実態把握と対処が検討されました。2011年5月2日に環境省から「福島県内の災害廃棄物の当面の取り扱い」の通知が出され、その後、放射性物質に汚染された災害廃棄物をどのように処理していくべきかについて検討していくために、「災害廃棄物

安全評価検討会」が環境省に設置され、5月15日に第一回会合が開催されました。

一方、災害廃棄物よりも先に顕在化したのは、下水汚泥の問題でした。5月1日に福島県内の下水処理場から発生する下水汚泥及びその焼却灰等の放射能濃度が高いことが報告され、その後福島県外からも同様の報告事例が相次ぎ、さらに高濃度の浄水発生土が広域的に生じていることも明らかになりました。そこで、6月16日には原子力災害対策本部から関連省に「放射性物質が検出された上下水処理等副次産物の当面の取り扱いに関する考え方」が通知され、同月17日に国土交通省においても「下水道における放射性物質対策に関する検討会」が発足しました。同通知は、6月3日に原子力安全委員会が発出した「東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故の影響を受けた廃棄物の処理処分等に関する安全確保の当面の考え方について」を元に作成されたものです。8,000Bq/kg以下の上下水処理等副次産物（下水汚泥及びその焼却灰、浄水発生土等）を通常の管理型処分場で埋立可能とする技術基準はこの時点で示されました。

環境省では、災害廃棄物安全評価検討会で検討を重ね、先述の6月3日の原子力安全委員会の示した考え方も踏まえながら、6月23日に「福島県内の災害廃棄物の処理の方針」を発出しました。この通知で、上下水処理等副次産物と同様に、8,000Bq/kgの埋立基準（管理型処分場で埋立可とする基準）が示されました。

一方、東京都江戸川清掃工場や柏市の清掃工場で高い放射能濃度の焼却灰が発生していることが判明し、福島県外の空間線量の高い地域でも、一般廃棄物への放射性物質の混入が明らかとなりました。この事象は、放射性物質を含む草木類等に主に起因しており、放射性物質による汚染は災害廃棄物以外の「一般ごみ」まで及んでいたのです。そこで環境省では、東日本の16都県に実態把握のための緊急調査を要請するとともに、放射性物質を含む焼却灰について6月23日の福島県内の災害廃棄物に対して示した方針に準じて取り扱うよう指示しました。その後、いくつかの技術的事項に関する通知を発出し、8月11日には、「災害廃棄物の広域処理の推進について（東日本大震災により生じた災害廃棄物の広域処理の推進に係るガイドライン）」を発出し、宮城県及び岩手県で発生している災害廃棄物の広域的処理を進めるにあたっての安全確保の考え方を示しました。8月29日には焼却灰の調査結果を公表するとともに、「一般廃棄物処理施設における放射性物質に汚染されたおそれのある廃棄物の処理について」を通知しました。ここでは、焼却処理や8,000Bq/kg以下の焼却灰等の埋立における安全確保について示し、施設におけるモニタリングなどについて指示しました。8月31日には、「8,000Bq/kgを超え100,000Bq/kg以下の焼却灰等の処分方法に関する方針について」の通知が発出され、8,000Bq/kgを超える高濃度の廃棄物の埋立方法が示されました。

以上のように、放射性物質に汚染された廃棄物の処理については、環境省を中心にした対応がなされてきましたが、廃棄物処理法の延長上で対処していくことには限界があり、国として新たな法的枠組みをつくる必要性に迫られました。そこで、放射性物質に汚染された廃棄物の処理と土壌等の除染の二本柱からなる特別措置法（放射性物質汚染対処特別

措置法)が8月30日に公布・施行され、11月11日には法に基づく基本方針が閣議決定されました。10月29日には、中間貯蔵施設等の基本的考え方(「東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質による環境汚染の対処において必要な中間貯蔵施設等の基本的考え方について」)の中で、福島県内における中間貯蔵施設設置のスケジュールや、福島県外では指定廃棄物を既存の管理型処分場で処分していく方向性が示されました。

12月14日には、法を運用していく上で必要な政省令(施行令・施行規則)が公布されました。環境省令(施行規則)では、各種の技術基準が示されており、技術基準に則って適正な処理を進めていくために必要なガイドラインも12月下旬に示されました。

以上のような特措法に基づく各種のルール等が体系的に整備され、2012年1月1日から本格施行となりました。法の本格施行後は、未設定であった各種の技術基準が順次設定、告示されるとともに、環境省内の組織体制も拡充され、法に基づく適正処理の推進が図られました。しかし現在においても、8,000Bq/kgを超える焼却飛灰を中心とした指定廃棄物の最終処分先確保、福島県内の中間貯蔵施設立地など、難題は山積の状態です。

8,000Bq/kg超の指定廃棄物の処分については、当初は既存の最終処分場の活用に向けて検討、調整を尽くしましたが、地元自治体、地域住民の強い反対から遅々として進まず、やむなく国においては、福島県外の各県の国有地に最終処分場を確保することを方針として示し(2012年3月30日)、9月には栃木県と茨城県について立地候補地を公表しました。しかし、候補地選定に関する手続きへの不信等もあり、政権交代を機に手続きが見直され(2013年2月25日)、2013年現在、新たな立地選定プロセスに基づいて慎重な議論が行われています。

一方、福島県内は2012年8月に除染による除去土壌と10万Bq/kg超の汚染廃棄物の搬入先である中間貯蔵施設の調査候補地が公表され、10万Bq/kg以下の処分は富岡町の民間最終処分場を活用する方向が示されました。以上のような立地問題においては、現在、地元の理解と合意形成に向けた国による調整が続けられています。中間貯蔵施設のイメージ、安全対策の考え方については、後述します。

その他、労働者の被ばく防止の観点からは、除染活動の本格化に合わせて、2012年1月から「除染電離則」が施行されましたが、放射性物質を相当程度含む廃棄物の処理に従事する労働者については、対応が曖昧な状況のまま手が付けられていませんでした。意識の高い現場では、従来の電離則の基本的な考え方に準じて必要な管理を行っていましたが、2013年7月1日から廃棄物処理の実態に則した改正電離則が施行されました。

表 1.1 これまでの国等の主な動き

環境省が主体となった動き	その他の主な動き
<p>「福島県内の災害廃棄物の当面の取り扱い」(5月2日)</p> <p>「災害廃棄物安全評価検討会」設置(5月15日)</p> <p>「福島県内の災害廃棄物の処理の方針」(6月23日)</p> <p>「一般廃棄物焼却施設における焼却灰の測定及び当面の取扱いについて」(6月28日)</p> <p>「災害廃棄物の広域処理の推進について(東日本大震災により生じた災害廃棄物の広域処理の推進に係るガイドライン)」(8月11日)</p> <p>「一般廃棄物処理施設における放射性物質に汚染されたおそれのある廃棄物の処理について」(8月29日)</p> <p>「放射性物質汚染対処特別措置法」公布(8月30日)</p> <p>「8,000Bq/kg を超え100,000Bq/kg 以下の焼却灰等の処分方法に関する方針について」(8月31日)</p> <p>「環境回復検討会」設置(9月14日)</p> <p>「東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質による環境汚染の対処において必要な中間貯蔵施設等の基本的考え方について」(10月29日)</p> <p>放射性物質汚染対処特別措置法基本方針閣議決定(11月11日)</p> <p>放射性物質汚染対処特別措置法施行令(政令)・施行規則(環境省令)(平成23年12月14日)</p> <p>除染関係ガイドライン(第1版)発出(平成23年12月14日)</p> <p>廃棄物関係ガイドライン(第1版)発出(平成23年12月27日)</p> <p>特別措置法本格施行(2012年1月1日)</p>	<p>福島県内の下水処理場から発生する下水汚泥等の放射能濃度が高いことを報告(5月1日)</p> <p>「東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故の影響を受けた廃棄物の処理処分等に関する安全確保の当面の考え方について」原子力安全委員会(6月3日)</p> <p>「放射性物質が検出された上下水処理等副次産物の当面の取り扱いに関する考え方」原子力災害対策本部(6月16日)</p> <p>「下水道における放射性物質対策に関する検討会」が国土交通省に発足(6月17日)</p> <p>東京都江戸川清掃工場や柏市の清掃工場で高い放射能濃度の焼却灰が発生していることが判明(6月下旬)</p> <p>厚労省「除染作業等に従事する労働者の放射線障害防止に関する専門家検討会」設置(10月21日)</p> <p>東京都が広域処理として岩手県の災害廃棄物を受入開始(11月初旬)</p> <p>厚生労働省「除染電離則」施行(平成24年1月1日)</p>

<p>指定廃棄物の今後の処理方針発出（3月30日）</p> <p>災害廃棄物に関する広域処理の基準等についての告示（4月17日）</p> <p>福島県内中間貯蔵施設調査候補地公表（8月19日）</p> <p>栃木県及び茨城県指定廃棄物最終処分場候補地公表（9月3日及び9月27日）</p> <p>指定廃棄物の最終処分場候補地の選定に係る経緯の検証及び今後の方針（平成25年2月25日）</p> <p>中間貯蔵施設安全対策検討会及び環境保全対策検討会設置（平成25年6月28日）</p> <p>福島県及び大熊町等4町への中間貯蔵施設の設置及び管理型処分場の活用に関する受け入れの要請（平成25年12月14日）</p>	<p>厚生労働省「改正電離則」施行（事故由来汚染廃棄物等の処分関係）（平成25年7月1日）</p>
---	---

1.3 放射性物質汚染対処特別措置法

1.3.1 法律のポイント¹⁾

放射性物質汚染対処特別措置法、正確には、「平成二十三年三月十一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」と言います。以下、特措法と略しますが、主要なポイントを以下に示します。

- (1)汚染廃棄物の処理と、除染およびそれに伴う除去土壌の処理の二本柱のフレームで汚染対処の措置が講じられること
- (2)国が原子力政策を推進してきた責任を認め、国の責務の下、あらゆる必要な措置が財政面を含め国主導で講ぜられること(第三条)
- (3)特措法に基づいて講ぜられた措置は、関係原子力事業者(東京電力)の負担の下に実施され、その費用を関係原子力事業者に請求・求償できるとされたこと(第四十四条)
- (4)汚染の程度が高い地域(「汚染廃棄物対策地域」,「除染特別地域」)あるいは廃棄物(汚染の程度が高い「指定廃棄物」および対策地域内廃棄物を合わせて「特定廃棄物」という)は、国の責任で除染措置や除去土壌・廃棄物の処理を行うが、汚染の程度が低い場合は、市町村あるいは事業者が実施すること
- (5)上記(4)の、汚染の程度は低い放射性物質に汚染されあるいはおそれのある廃棄物は、「特定一般廃棄物」または「特定産業廃棄物」として、特別の処理基準、維持管理基準が適用されること(第二十三, 二十四条)

1.3.2 基本方針のポイント²⁾

特措法に基づく今後の事故由来放射性物質汚染への対処のために、基本方針が策定され

ました(11月11日閣議決定)。廃棄物の処理に関する基本的な考え方において特記すべきポイントのみ以下に示します。

- ①住民の生活の妨げとなる廃棄物の処理を優先
- ②現行の廃棄物処理法に基づく廃棄物の処理体制、施設等を積極的に活用
- ③安全性を確保しつつ、可能な限りにおいて減容化、廃棄物の再生利用を図る
- ④高濃度の汚染廃棄物が相当量発生している都道府県においては中間貯蔵施設を確保し、それ以外では当該都道府県内で処理を行う。
- ⑤中間貯蔵施設および最終処分場の確保やその安全性の確保については、国が責任をもって行う。当該施設の確保に当たっては、環境影響の評価等を行う

1.3.3 中間貯蔵施設設置等のロードマップ³⁾

事故由来放射性物質に汚染された廃棄物の適正処理を推進していくためにもっとも重要な要素は「出口」、すなわち最終処分場等の確保と今後のスケジュールの設定であり、福島県および県外について中間貯蔵施設の設置等のロードマップが示されました(2011年10月29日)。福島県内外の特定廃棄物(対策地域内廃棄物および指定廃棄物)及び除染に伴う廃棄物等の処理フローについては、福島県内外ともに10万Bq/kg以下の特定廃棄物は、都道府県内の管理型最終処分場で処分、10万Bq/kg超については、福島県内では中間貯蔵施設(一定の期間、安全に集中的に管理・保管する施設)において貯蔵、その後には県外で最終処分、福島県外の10万Bq/kg超については当該都道府県の遮断型処分場で処分する方針となっています(なお、その後の2012年3月30日に、福島県外においては既存処分施設を優先的に活用しつつ、別途に国が遮断型の最終処分場を設置し、8,000Bq/kg超の指定廃棄物を処分する方針が示されました)。

また、今後の福島県内の処理のスケジュールについては、以下のとおりです。

- ・ 中間貯蔵施設は仮置場への本格搬入から3年以内に供用開始(平成24年度内に立地場所を選定、平成27年1月から順次搬入開始)
- ・ 県外の最終処分は、中間貯蔵開始後30年以内に完了

1.3.4 環境省令(施行規則)

特別措置法を円滑に運用するために、技術的事項等の基準について環境省令で定められました。以下に、主要なポイントのみ整理します。

(1)汚染廃棄物対策地域

国がその地域内にある廃棄物の収集、運搬、保管および処分を実施する必要がある地域として、警戒区域または計画的避難区域を指定

(2)指定廃棄物

指定基準は、セシウム134(以下¹³⁴Cs)およびセシウム137(以下¹³⁷Cs)の放射能濃度の合計値が8,000Bq/kgを超えるもの。指定廃棄物は国がその処理を行う。環境省令において、

指定廃棄物への該当性を判断するための調査方法及び申請方法などが規定されている。

(3)特定廃棄物(対策地域内廃棄物および指定廃棄物)の保管および処理基準

放射性物質の影響に関して、一般公衆の放射線被ばく管理の観点から特別な配慮が必要な事項を規定。とくに、指定廃棄物の最終処分場(管理型処分場)については、厳重な技術基準を上乗せで適用。焼却施設においては高度な排ガス処理設備を有することとされたが、ダイオキシン類の排出基準に対応している現在の施設性能で十分担保される。さらに、中間処理における排ガスまたは排水、および最終処分における放流水の監視によって周辺の大気中または公共の水域における水中の基準は以下のとおり(図1.2参照)。

一 大気中の放射性物質の濃度限度(3月間平均)

$$^{134}\text{Cs} \text{ の濃度(Bq/m}^3\text{)} / 20(\text{Bq/m}^3\text{)} + ^{137}\text{Cs} \text{ の濃度(Bq/m}^3\text{)} / 30(\text{Bq/m}^3\text{)} \leq 1$$

一 水中の放射性物質の濃度限度(3月間平均)

$$^{134}\text{Cs} \text{ の濃度(Bq/L)} / 60(\text{Bq/L)} + ^{137}\text{Cs} \text{ の濃度(Bq/L)} / 90(\text{Bq/L)} \leq 1$$

また、特定廃棄物には廃棄物処理法は適用されないが、廃棄物処理法における生活環境保全の観点から遵守すべき技術的事項を基準として含んでいる。

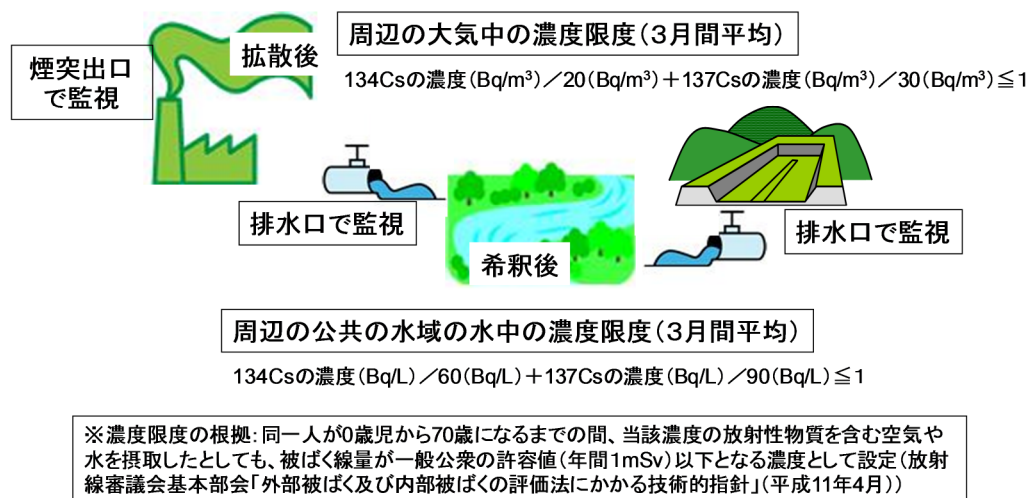


図 1.2 焼却施設および埋立処分場の排ガスおよび排水の監視
 ～濃度限度は排出口基準ではなく、周辺環境における基準～

(4)特定一般廃棄物及び特定産業廃棄物

特定廃棄物ほどに高濃度に汚染はされていないが、事故由来放射性物質に汚染され、あるいは汚染されたおそれのある廃棄物は、特別な処理基準を適用する特定一般廃棄物、特定産業廃棄物とされている。該当する都道府県から発生するばいじん、燃え殻、汚泥等の廃棄物の種類で規定されるとともに、都道府県の限定のない廃堆肥、稲わら、除染実施地

域から除染により発生する除染廃棄物が該当する（平成24年11月9日に環境省令改正により、都道府県の限定の範囲がばいじん以外が見直されるとともに、廃堆肥、廃稲わらについては都道府県が限定された）。

また、特定一般廃棄物および特定産業廃棄物を受け入れる焼却等の熱的処理を行う中間処理施設および最終処分場、または指定された都道府県に存在する中間処理施設は、廃棄物処理法に基づく基準に加えて、放射性物質汚染への対処の観点から上乘せの処理基準と維持管理基準が適用される。その上乘せ基準は、特定廃棄物の処理基準ほどに厳重ではないものの、一定の配慮すべき事項が規定された。とくに、最終処分場においては、50cm以上の土壌層を廃棄物層の下部に敷設すること（溶出性がない廃棄物については除外）、さらにばいじんについては、上部に不透水層を設置し、降雨浸透を防止することが義務化された。排ガスおよび排水（放流水）についても、特定廃棄物と同様の維持管理基準が適用される。

1.4 中間貯蔵施設の現状と課題

1.4.1 位置づけ

福島県内の除染によって生じた除去土壌や10万 Bq/kg 超の廃棄物は、中間貯蔵施設に搬入されることとなっています（図 1.3 参照）が、調査候補地の選定は行われ、現在は具体的な調査と基本設計等の議論が進行中です。関係者の努力は続けられていますが、当初のスケジュールどおりに進むには厳しい状況にあります。ちなみに、10万 Bq/kg 以下の廃棄物については、富岡町に立地する民間管理型埋立処分場での処分を念頭に置いた調整が進んでいます。ここでは、福島県内の今後の除染や汚染廃棄物等の処理進展の試金石である中間貯蔵施設について、公表されている資料の範囲内ではありますがその概要を紹介し、また今後に向けて技術的課題を中心に説明します。

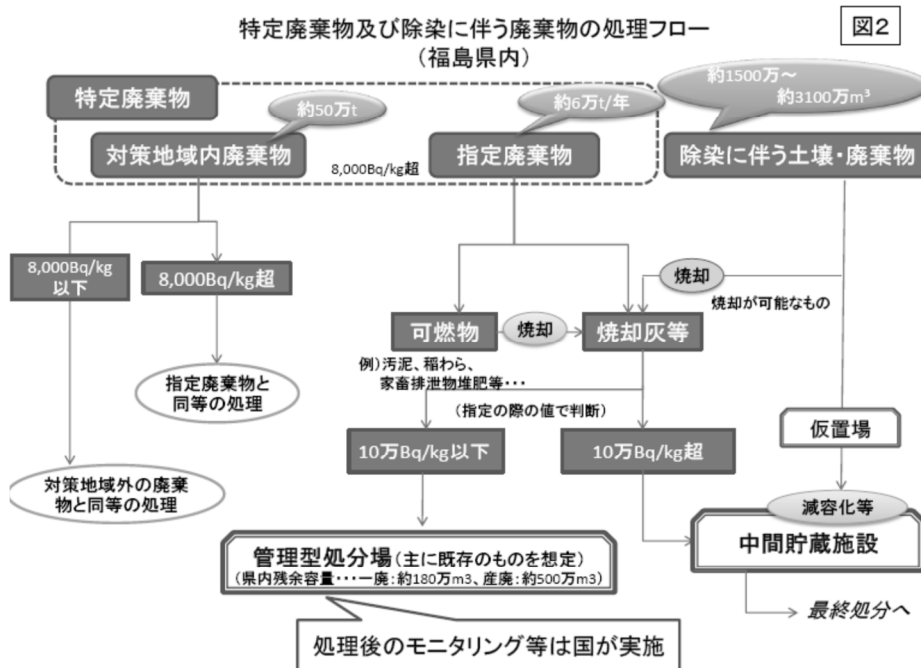


図 1.3 福島県内の特定廃棄物及び除染に伴う廃棄物等の処理フロー

1.4.2 中間貯蔵施設の概要

「中間貯蔵施設」は、福島県内において除染に伴い発生した土壌や廃棄物などを最終処分するまでの間、安全に集中的に管理・保管する施設です。保管対象は除染に伴う除去土壌と 10 万 Bq/kg 超の廃棄物であり、前者に放射能濃度の上限・下限は今のところはありません。後者は、主に焼却減容化後の焼却残渣（主灰、飛灰）が想定されます。

規模は施設全体の容量として当初は約 1,500～約 2,800 万 m³（東京ドームの約 12～23 倍）と想定されましたが、直近の推計では当初の 3 割減になっています。ただし、追加除染による増加など不確定要因も多く、中間貯蔵対象量についてはさらに精査が必要になります。

施設構成は、以下のとおりです。

① 貯蔵施設

土や廃棄物を貯蔵する。放射線の遮蔽や放射性物質の流出・飛散、地下水汚染防止のための対策が施される。谷地や段丘等の地形を活かしながら大量の除去土壌や 10 万 Bq/kg 超の廃棄物を貯蔵する施設である。土壌は、8,000Bq/kg 以下の低濃度土壌を貯蔵するタイプ I と、それを超える比較的高濃度の土壌を貯蔵するタイプ II に埋設貯蔵される予定である。また、10 万 Bq/kg 超の廃棄物は、適切な収納容器に封入し、遮蔽機能をもつ建屋に貯蔵する予定となっている。

② 受入・分別施設

搬入される土や廃棄物の重量や放射線量の測定、分別を行う。

③減容化施設

除染で発生した草木・汚泥などを焼却・減容化する。

④常時モニタリング施設

空間放射線や地下水のモニタリング（監視）を行う。

⑤研究等施設

貯蔵する土壌や廃棄物の減容化技術、放射性物質の効果的な分離技術の研究等を行う。

⑥情報公開センター

施設の運営についての情報を、住民をはじめ広く発信する。

これまでの国の説明資料^{3)・5)}から類推される中間貯蔵施設は、谷地や段丘等の地形を活かしながら大量の除去土壌（非溶出性）や焼却灰（溶出性）を中間貯蔵する施設を整備するイメージです。

これまでの経緯としては、2012年8月に、福島県内の中間貯蔵施設調査候補地として双葉町、大熊町、楡葉町に12箇所が公表されました⁶⁾。その後、地元との調整等により、現時点では9箇所の調査候補地が選定されています（その後平成26年2月12日に、福島県から、候補地として楡葉町を外し、大熊町と双葉町に集約する提案がなされた）。選定は次のような観点からなされました。

- ① 必要な敷地面積の確保
- ② 土壌や廃棄物が大量に発生する地域からの近さ
- ③ 主要幹線道路へのアクセス
- ④ 断層、軟弱地盤などを避ける
- ⑤ 河川の流れの変更などの最小限化

また、地域住民や施設における労働者の安全対策として、以下の7つのポイントが基本的考え方として示されています。

- ①施設の安全設計
- ②運搬時の安全確保
- ③地震・津波への対応
- ④環境モニタリング
- ⑤安全な操業
- ⑥緊急時対策（災害、事故）
- ⑦地域とのコミュニケーション・情報公開

今後のスケジュールとしては、平成27年1月から一部搬入を開始し、順次貯蔵施設の整備を進めることとしています。また、貯蔵開始後30年以内に福島県外で最終処分を完了するとしています。

1.4.3 技術的課題

①種類・性状，放射能のレベルに応じた「器」のカテゴリー分け

除去土壌・廃棄物の種類・性状や放射能のレベルに応じて，受け入れる「器」をどのようにカテゴリー分けし，それぞれの構造基準をどのように設定していくか，という点については、先述のとおり，土壌について8,000Bq/kgをしきい値として2区分(タイプⅠとⅡ)，あと10万超の廃棄物に対する構造が示されました(図1.4a～d参照) 7)。

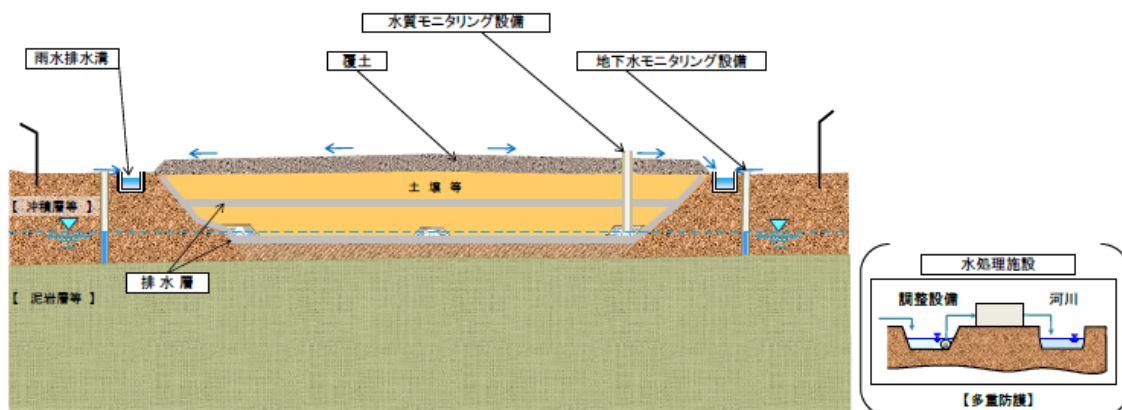


図 1.4-a 除去土壌の貯蔵施設 (土壌タイプⅠ)

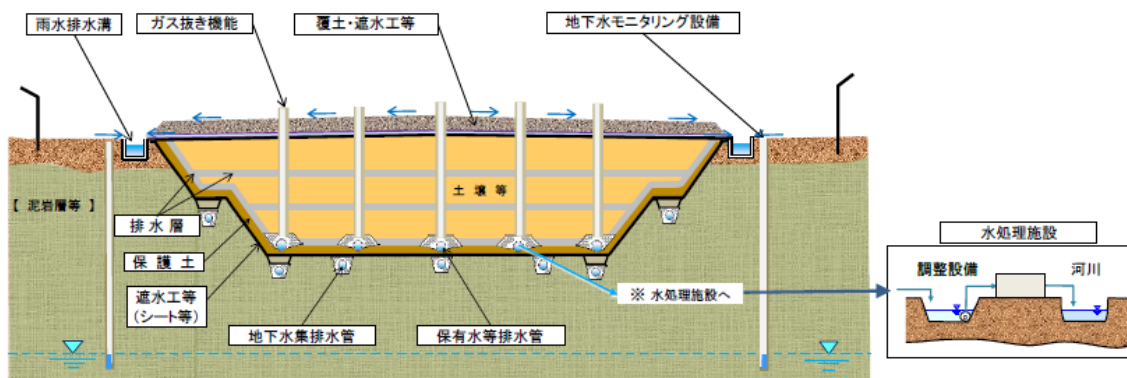


図 1.4-b 除去土壌の貯蔵施設 (土壌タイプⅡ a)

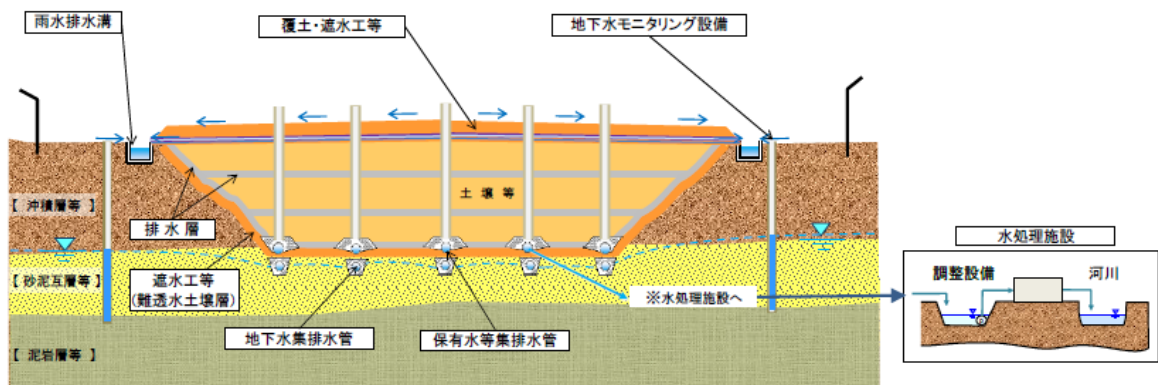


図 1.4-c 除去土壌の貯蔵施設（土壌タイプ II b）

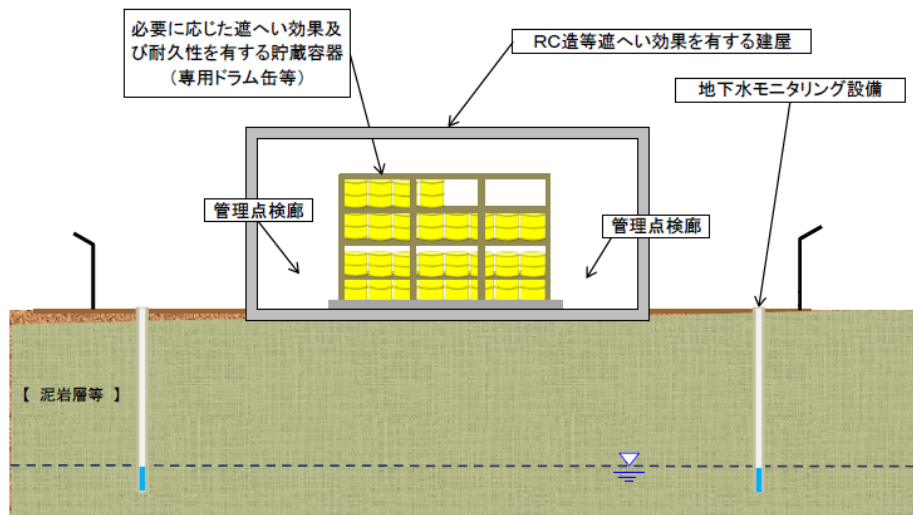


図 1.4-d 10 万 Bq/kg を超える廃棄物の貯蔵施設

8,000Bq/kg 以下の土壌タイプ I は、底部・側部に排水層のみ敷設し、水との接触があっても溶出は生じないことを前提としています。8,000Bq/kg 超の土壌タイプ II はさらに、底部基盤が透水性の低い強固な泥岩層上に遮水シートを敷設する II A タイプと、比較的軟弱な砂泥互層上に变形追随性のある難透水層を敷設する II B タイプに区分されており、立地条件に応じて選択されることとなります。

10 万 Bq/kg 超の廃棄物は、焼却灰など減容化後の残渣などが前提になりますが、溶出性やそれを踏まえた洗浄や固型化等の前処理をどうするか、収納容器等の要件等、県外での最終処分を踏まえた貯蔵の具体的な検討については今後の課題です。

②減容化技術

焼却、熔融、焼成などの熱処理や、分級、洗浄、選別などの機械的処理による減容化技術を中間貯蔵に位置づける場合は、二つの機能が考えられます。一つは、中間貯蔵へ搬入する廃棄物等の量を可能な限り減らす事前の減容化であり、もう一つは、最終処分に持ち

込む量を可能な限り減らすための中間貯蔵後に行う減容化です。

除去土壌の減容化技術としては、先述のとおり、分級洗浄技術の適用が可能であると考えられます。得られた低濃度の土壌は、中間貯蔵施設への負荷を減らすために管理された状態で発生地近くまたは中間貯蔵施設内の土工材として利活用する方策などを検討すべきです。そうすることで、県外での最終処分を前提にした中間貯蔵の対象量を極力減らしていく戦略を具体化しなければなりません。一方、中間貯蔵施設に受け入れた除去土壌すべてを熔融や焼成により減容化する方策の選択は、膨大な土壌の量を考えれば現実的ではありません。土壌に強固に吸着された放射性 Cs は、降雨浸透水と接触しても溶出リスクは無視できることから、外部への放射線遮蔽措置を施せば、長期的に安定であるといえます。

除染により生じる草木類、森林除染による腐葉土、落ち葉など、下水汚泥、廃稲わらなどの廃棄物は腐敗性物質であり、仮置きの際に環境保全上様々な問題を生じさせます。それだけに、既存の自治体焼却施設や仮設焼却炉での処理を最優先として、発生源近くでの焼却等による減容化処理を原則とすべきと考えられます。バイオマス発電などエネルギー化の付加価値をつけていくことは、将来の日本の再生可能エネルギー活用や森林保全等の観点からも重要な視点です（但し、残渣の問題には注意が必要）。

今後課題となってくるのは、焼却減容化後に生じる 10 万 Bq/kg 超の焼却残渣（主灰及び飛灰）の処理であると考えられます。減容化は、同時に環境中にばら撒かれた放射性 Cs を分離回収し濃縮するプロセスでもありますが、それでも量自体は、100 万立米を超える焼却残渣の発生が見込まれており、これらをそのまま収納容器に封入し貯蔵するには、施設容量からみて困難になる可能性があります。また、中間貯蔵後の最終処分を考えた場合、セメント固型化等の措置を施すことは、後工程の減容化を困難にする可能性があります。このように考えると、10 万 Bq/kg 超の焼却残渣はさらに減容化技術の適用を検討すべきと考えます。焼却残渣のうち飛灰については、飛灰洗浄技術の適用により容易に放射性 Cs を分離することが可能です。主灰のように難溶解性の形態で存在する場合は、熔融や焼成などの技術により放射性 Cs をばいじん（飛灰）中に分離濃縮し、生成する熔融スラグや焼成物は放射性 Cs の含有濃度が低減されているので限定再生利用を行い、さらに分離濃縮された飛灰（ばいじん）は飛灰洗浄を行うことが考えられます。このようにして、最終処分の対象を減らしていくとともに、飛灰洗浄後の洗浄液中の放射性 Cs は安定した形で濃縮回収・固定化し、最終処分までの期間、厳重に貯蔵保管することを考えていくべきと考えています。

以上の中間貯蔵施設を中核とした今後の処理スキームを図 1.5 に整理したが、一つの試案であり、今後の技術開発によってより合理的な技術システムの提案がなされることも考えられる。また、減容化による高濃度化は、施設の維持管理や解体撤去において、作業者の被ばくや解体廃棄物処理の観点から制約をもたらす可能性もあり、合わせて早急な検討が必要である。

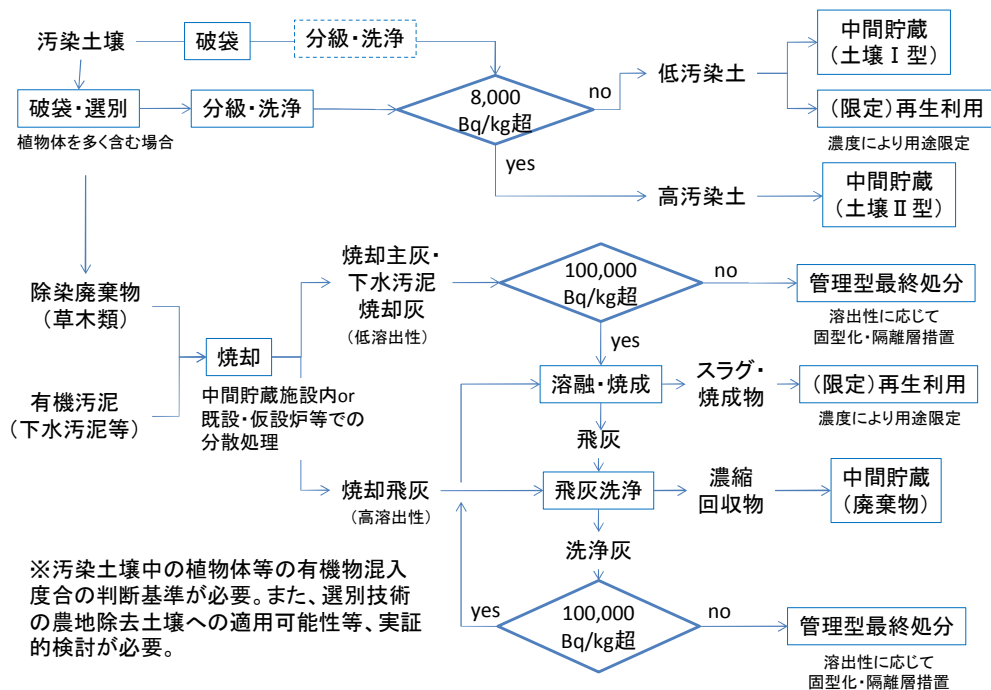


図 1.5 中間貯蔵施設を中核とした処理スキーム試案

③前捌き技術

中間貯蔵施設への受入にあたっては、大量の除去土壌等の前捌き技術の重要性についても見逃してはなりません。

埋設貯蔵は、膨大な数のフレキシブルコンテナ（フレコン）に封入されて運ばれてくる土壌等をフレコンから出して、バラの状態での埋設貯蔵することとなります。したがって、フレコンを破って土壌を取り出す効率的な破袋技術の確立が必須です。また、植物等の異物を土壌等から選別除去する効率的かつ高精度の技術が確立できれば、貯蔵時の安定性確保や溶出ポテンシャルの低減に効果的です。

参考文献

- 1) 平成二十三年三月十一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（平成 23 年 8 月 30 日法律第 110 号）、http://www.env.go.jp/jishin/rmp/attach/law_h23-110a.pdf
- 2) 平成二十三年三月十一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に基づく基本方針（平成 23 年 11 月 11 日閣議決定）
http://www.env.go.jp/jishin/rmp/attach/law_h23-110_basicpolicy.pdf
- 3) 「東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質による環境汚染の対処において必要な中間貯蔵施設等の基本的考え方について」（平成 23 年 10 月 29 日）
http://www.env.go.jp/jishin/rmp/attach/roadmap111029_a-0.pdf

- 4) 復興庁 HP : 双葉地方町村、福島県と国との意見交換会（平成 24 年 3 月 10 日）配布資料 <http://www.reconstruction.go.jp/topics/000622.html>
- 5) 復興庁 HP : 双葉地方町村と国との意見交換会（平成 24 年 4 月 22 日）配布資料、
<http://www.reconstruction.go.jp/topics/000755.html>
- 6) 復興庁 HP : 双葉地方及び福島県と国との協議会（平成 24 年 8 月 19 日）配布資料
<http://www.reconstruction.go.jp/topics/001185.html>
- 7) 環境省 : 中間貯蔵施設安全対策検討会及び環境保全対策検討会の検討結果取りまとめ、平成 25 年 10 月、環境省 HP、http://josen.env.go.jp/soil/pdf/compiled_1310.pdf

2. 放射能に関する基礎知識

2.1 放射性物質と単位

放射線と放射能の定義において、放射線は、空間を移動する高速の粒子の流れと一種の電磁波です（以下、電離放射線と呼ぶ）。一方、放射能は、不安定な原子核が崩壊し、①電離放射線を出す能力、及び②その数量（ベクレル）を指し、放射能を持った物質を放射性物質と呼びます。電離とは、イオン化を意味しますが、放射線で生じたイオンは化学的な反応性に富むことから、人体に影響を及ぼす可能性があります。

表 2.1 に主な放射線の種類とその基本的な性質についてまとめました。

表 2.1 主な放射線の種類とその基本的な性質

種類		基本的な性質
α線	ヘリウム原子核	直進するが、空気中の飛程は数 cm。紙 1 枚で止まる。強い電離作用。体内影響を及ぼす。エネルギー一定。γ線と共に出ることがある。
β線	電子	アルミ箔や厚さ数 cm のプラスチックで止まる。連続エネルギーをもつ。γ線と共に出ることがある。核内中性子から電子線が放出され、一般的に α線の約 100 倍の透過力がある（質量数不変で、β ⁺ 崩壊は陽子+1、β ⁻ 崩壊は陽子が -1 なので、原子番号が 1 つ変わる）。
γ線 X線	電磁波	光と性質が類似。核内から出て、透過力が大きい。単色エネルギー。α線、β線と共に出る。α線の約 1 万倍、β線の約 100 倍の透過力があるので、鉛やコンクリートなどで遮蔽し、環境中の放射線源に注意。
中性子線	中性子	電子核を構成する素粒子で電氣的に中性である。透過力が強く、水やパラフィンなど軽い元素を含むもので減速させる。単独に存在する中性子の半減期は 10.8 分で β線を放出して陽子に代わる。

福島第一原子力発電所の事故により環境中に飛散した放射性核種は、原子力発電のプロセス（核分裂反応）によって生じた核分裂生成物(¹³⁷Cs、¹³⁴Cs、¹³¹I)や、中性子が構造物や燃料に吸収されることによって生成する ⁶⁰Co や ²⁴¹Am があり、代表的な拡散された核種（核分裂反応による生成率の高い核種）として ¹³⁷Cs と ⁹⁰Sr を例示します（図 2.1）。

¹³⁷Cs は半減期 30.17 年であり、¹³⁷Cs は β線放出核種ですが、^{137m}Ba と永続平衡（放射平衡）の関係にあり、^{137m}Ba からの核異性体転移（IT; エネルギーの異なる核種のうち、測定

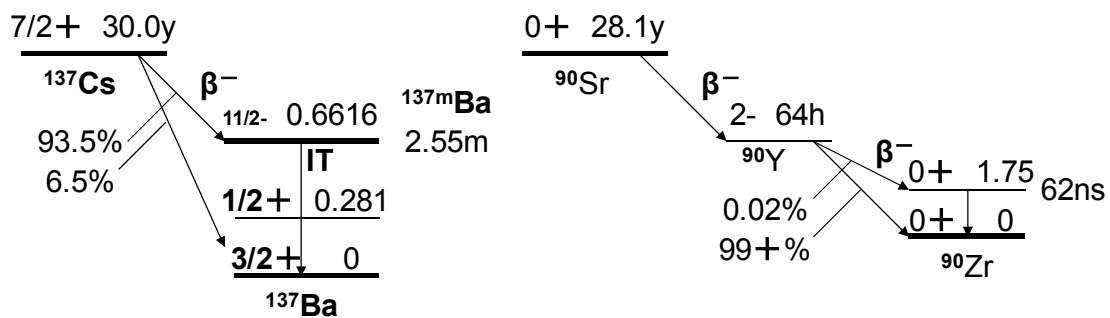


図 2.1 ^{137}Cs と ^{90}Sr の崩壊図表

可能な半減期を持つ励起された核には m をつけて区別し、励起状態から γ 線を放出すること（をいう）による 0.662 MeV の γ 線を測定することにより放射能の定量を行います。

^{90}Sr は最大エネルギーが 0.546 MeV の β 線放出核種であり、その半減期は 28.8 年です。娘核種の ^{90}Y （半減期 64.1 時間、2.28 MeV の β 線放出核種）と永続平衡の関係にあり、 ^{90}Y の放射能を測定することにより、 ^{90}Sr の放射能の定量を行います。

次に放射線単位（ベクレル、吸収線量、線量等量）の基本事項について説明します。

- ① ベクレル (Bq)：放射能の強さを示し、1 秒間に崩壊する原子の数（以下、壊変数とよぶ）です。同一核種における単位時間当たりの壊変数は存在する原子核の数に比例します。
- ② 吸収線量 (グレイ ; Gy)：放射線の照射を受けることによって、物質が受け取るエネルギー。1 kg の物質が 1 J のエネルギーを吸収したとき、その物質の吸収線量は 1 Gy です。
- ③ 線量当量：放射線が生体に及ぼす吸収線量の影響を評価する尺度であり、放射線防護の目的に使用される単位です。単位は Sv (シーベルト)。

線量当量 (Sv) = 吸収線量 (Gy) × 線質係数 (放射線荷重係数)

において、線質係数 (ICRP2007 勧告により放射線荷重係数とよぶ) はそれぞれの放射線の生体に及ぼす影響を表すものであり、 β 線、 γ 線、X 線に対しては 1、 α 線に対しては 20 が定められます。線量当量のうち、身体のそれぞれの組織や臓器について、不均一に放射線を受ける場合、その組織や臓器の感受性から相対的に値付けられた係数を組織荷重係数とよび、その組織や臓器の「等価線量当量」と呼びます。全ての組織荷重係数の和は 1 であり、全ての組織や臓器の「等価線量当量」を加えたものを「実効線量当量」と呼びます。実際、あらゆるエネルギーの放射線による、実効線量当量を正確に評価するのは難しい為、1 cm 線量当量 (皮膚から 1 cm 深さの線量) を測定することにより外部被ばくによる実効線量を評価します (放射線障害防止法)。 γ (X) 線を測定する線量計及びサーベイメーターでは 1cm 線量当量を測定するように調整されています。

- ④ その他：表面密度の単位は、放射エネルギーを測定対象の面積で割ったもので表し、(Bq/cm²) などの単位で表現します。また、空気中や水溶液中の放射性物質濃度は、放射エネルギーを測

定対象の体積で割ったもので表し、(Bq/cm³)などの単位で表現します。食物や土壌試料などは、体積当たりではなく質量当たり、つまり、放射エネルギーを測定対象の質量で割ったもので表し、(Bq/kg)などの単位で表現しています。

2.2 放射線健康障害について

放射線が人の健康に与える影響については、被ばくした人に直接現れる影響（身体的影響）と継代的に表れる突然変異等の遺伝的影響の二つに区分できます。

身体的影響については、一時的に大量の放射線を浴びた際に見られる早期効果及び急性障害ともいわれています（嘔吐、下痢、発熱、造血器障害、脱毛、出血等）。少量の線量を長期間浴びた場合や、数年、数十年といった長い潜伏期を経て障害が現れる晩発効果及び晩発性障害ともいわれます（発がん、寿命短縮、白内障等）。全身被ばくしたヒトの急性障害としては、0.5 Gy（γ線とすると線量当量で0.5 Sv）でリンパ球の一時的減少、2～6 Gyの被ばくで白血球の長期的減少や造血機能損傷等が現れます。ヒトの半致死線量当量（30日間での死亡率が50%）は4 Gy（γ線とすると線量当量で4 Sv）と推定されています。一方、低線量をめぐって、100 mSv以上では線量と発がんのリスクには直線的な有意性のある相関が認められるが、100 mSv以下では有意な相関が認められないことも原爆被ばく者の調査で分かっています。

放射線の人体に対する遺伝的影響や身体的影響のうち、晩発障害は線量の大きさによって障害の重篤度ではなく発生率のみが変化します（突然変異出現率、発がん率）。これを確率的影響と呼びます。また、身体的影響のうち、急性効果と、発がん以外の晩発効果は、あるしきい値を超える線量に応じて障害の重篤度が変化します（皮膚紅斑、脱毛、生殖能力への影響、個体死等）。これを確定的影響と呼びます。

遺伝的影響については、放射線による生殖細胞の損傷によって起こり、損傷した遺伝子が正しく修復されない場合、突然変異や染色体の異常の形で現れます。しかしながら、放射線によって遺伝子の突然変異が起こっても、熱や化学薬品による突然変異やその他の劣性遺伝子の継承による自然突然変異と区別することはできないとされています。ただ、放射線は突然変異率を増大させるものであり、遺伝的な損傷のリスクを低減する為にも、医療行為による被ばくを含めて、無用な被ばくを受けない為の厳密な規制が必要です。

身体的影響を及ぼすものとして、外部被ばくと、内部被ばくについて述べます。

自然には、宇宙からの放射線（宇宙線）や、地殻や建材や植物中に含まれる天然放射性物質（主として⁴⁰Kやウラン系列やトリウム系列）による放射線が存在し、医療行為（レントゲン撮影等）による医療放射線、過去の核実験などによる放射線降下物による放射線、各種産業界などで利用される放射線なども存在します。それらの放射線を体外から受けることを外部被ばくと呼び、それらの放射性物質を吸入・摂取行為で体内に取り込むことによって、体内から放射線を受けることを内部被ばくと呼びます。内部被ばくの場合、核種によっては特定の臓器に集まりやすいといった特徴があり、特定臓器や組織への蓄積への

留意が必要です。生体内の放射エネルギーが半分になる期間（以下、実効半減期と呼ぶ）については、放射性物質固有（不変）の物理学的半減期と代謝排泄による生物学的半減期の両方の作用を受けます。

外部被ばくを低減する為には、放射線源自体を直接触れずに取り除くこと、取り除けない場合には放射線源から人の間に放射線を遮るような遮蔽を設けること、放射線源から距離を置くこと、放射線源の近くにいる時間を短くすることが大切です。また、内部被ばくを低減するには、放射性物質を封じ込めること（密封）、放射性物質量を低減すること（除染）、適切な防護具を装着することが大切です。非密封の放射性物質がある場合、呼吸による吸引や付着物や含有物の摂取を避けること、開放している傷口や炎症している箇所からの体内への取り込みを避ける為に露出しないこと、マスク等の防護具を使用し、適宜洗浄し、体内に取り込まないように注意することが大切です。仮に体内に取り込んだ場合は、可能な限り洗浄することや、取り込んだ放射性物質が蓄積しないように代謝・排泄を促進する行為も重要になっています。

2.3 放射線の計測技術

表 2.2 に放射線の検出に利用される検出器と相互作用についてまとめました。

表 2.2 放射線の検出に利用される検出器と利用される相互作用、及び検出可能な放射線種

検出器	利用される相互作用	検出可能な放射線種
電離箱	気体の電離	γ 線
比例計数管	気体の電離	α 線, β 線, 中性子線
GM 計数管	気体の電離	β 線 + γ 線
NaI(Tl)シンチレーション検出器	固体の発光	γ 線
ZnS(Ag)シンチレーション検出器	固体の発光	α 線
プラスチックシンチレーション検出器	固体の発光	β + γ 線
HP-Ge, Ge(Li)検出器	固体の電離	γ 線
Si 半導体検出器	固体の電離	α 線
蛍光ガラス線量計	固体の蛍光	γ 線
熱蛍光線量計(TLD)	捕獲エネルギーの加熱による発光	γ 線, β 線, 中性子線用素子の併用
化学線量計(セリウム線量計, 鉄線量計)	化学変化	γ 線
電子ポケット線量計(EPD)	固体の電離	γ 線, 中性子線

α 線の計測には比例計数管、固体（半導体）検出器が用いられます。 β 線の計測には有機シンチレーション検出器、GM 計数管、比例計数管、電離箱、固体（半導体）検出器が用いられています。 γ 線、X線の検出には無機シンチレーション検出器、GM 計数管、固体（半

導体) 検出器が使用されます。ここでは、特に γ 線測定(主としてCs137及びCs134などによる線量率及び放射線量)に用いられる各種計測機器の概略についてのみ示します。

まず、空間線量(1 cm線量当量)測定用として持ち運びの容易なサーベイメーターでは、電離箱、GM計数管、NaI(Tl)シンチレーション式が一般的です。計測値も $\mu\text{Sv/h}$ 単位で表すことができるNaI(Tl)シンチレーション式は通常、放射線の検出感度が高いがエネルギー依存性が劣るため、カウント(cpm; count per minute; 一分当たりの放射線検出数)測定が基本的に可能ですが、良好なエネルギー依存性を補償する機種も販売されています。

γ 線放出核種の定性、定量測定に用いられる検出器としては、まずNaI(Tl)シンチレーションカウンター(NaI(Tl)シンチレーション検出器)が挙げられます。 γ 線を受けたNaI(Tl)結晶中で生じた電離や励起が元に戻る過程で生じる蛍光を光電子増倍管において電子に変換しますが、光電子増倍管は波高分析器につながっており、光電子増倍管から生じた信号の数(ピーク数)と振幅(ピーク面積)を測定し、核種同定と放射線測定を行います。

NaI(Tl)シンチレーションカウンターよりもエネルギー分解能に優れ、核種同定に威力を発揮するのがゲルマニウム(Ge)半導体検出器です。円筒形のGe半導体中に γ 線が入射するとGe結晶中に生じた電子-正孔対に由来する電離電流が生じ、パルスとしての電気信号が得られます。電子-正孔対を1個作り出すのに必要なエネルギーは、ゲルマニウム半導体検出器でわずか3 eVであり、気体電離を原理とする検出器に比べてはるかに大きなばらつきのない信号が得られます。測定に用いる電子回路はNaI(Tl)シンチレーションカウンターの場合と同様に検出器からの電気信号を増幅器で拡大し、多重波高分析器で解析します。Ge検出器では、検出する γ 線のエネルギーが約2 keV異なれば分離可能であり、核種同定と放射線の定量には現在、ほとんどGe半導体検出器が用いられています。

電離箱サーベイメーターによる線量当量率の測定も $\mu\text{Sv/h}$ 単位で表記されます。安定した状態での指示値の精度は良く、サーベイメーターだけでなく、エリアモニタとして長く利用されてきています。シャッターを開けるものについては、外したときの計測値と閉じた状態の差を以って、 β 線の線量率測定することも可能です。しかしながら、電源を入れてから数分待たなければならないこと、衝撃に弱いことに注意する必要があります。

GMサーベイメーターについては、 $\mu\text{Sv/h}$ 表示できるもの(線量率測定用)とcpm表示(表面密度測定用)の2種類が存在します。計数は γ 線だけでなく β 線も検出するので、 γ 線の精度のよい測定をする場合には十分に注意する必要があります。一般的に、時定数の設定のあるもので長い時定数の方がより精度の高い測定が可能ですが、計測には時定数の3倍の時間保持(例えば、時定数が10秒となっている場合、30秒間保持しての読み値を測定値とすべきである)として測定すべきとされています。モニタリングポスト、エリアモニタ、個人被ばく測定用の線量計も含めて、上記の放射線による相互作用を利用した検出器が利用されています。

2.4 放射線の管理技術

日本における放射線防護に関する技術的基準の考え方は、国際放射線防護委員会（以下、「ICRP」という。）の勧告を尊重して検討されてきます。平成 19 年（2007 年）12 月に、ICRP は、1990 年勧告に代わる 2007 年勧告（Pub.103）を公表しており、放射線審議会では、2007 年勧告の国内制度等への取入れについて基本部会において放射線障害防止の技術的基準の考え方などの検討を行っています。

- ・ 放射線防護の 3 つの基本原則（下記）は 1990 年勧告から引き続き維持されています。
- ・ 正当化の原則（放射線被ばくの状況を変化させるようなあらゆる決定は、害よりも利益が大となるべきである。）
- ・ 防護の最適化の原則（被ばくの生じる可能性、被ばくする人の数及び彼らの個人線量の大きさは、すべての経済的及び社会的要因を考慮に入れながら、合理的に達成できる限り低く保つべきである。）
- ・ 線量限度の適用の原則（患者の医療被ばく以外の、計画被ばく状況における規制された線源のいかなる個人の総線量は、委員会が特定する適切な限度を超えるべきではない。）
線量限度については、ICRP の調査に基づく科学的知見に基づき、職業被ばくと公衆被ばくの双方について定められており、表 2.3 にそれらの勧告値を示します。

表 2.3 線量限度

	職業被ばく	公衆被ばく
実効線量	100 mSv/5 年 ただし、いかなる 1 年も 50 mSv を超えな い。	1 mSv/年
年等価線量		
目の水晶体	150 mSv	15 mSv
皮膚	500 mSv	50 mSv
手及び足	500 mSv	—

ICRP の定める線量拘束値、参考レベルは、被ばくの種類、個人と社会の被ばく状況等から特徴付け、さらに国、地域の属性を考慮に入れ、国際的な指針等を考慮した最適化プロセスによって 2007 年勧告では下記のように策定されています。

- ・ 1mSv 以下（計画被ばく状況に適用され、被ばくした個人に直接的な利益はないが、社会にとって利益があるかもしれない状況（例：計画被ばく状況の公衆被ばく））
- ・ 1～20 mSv 以下（個人が直接、利益を受ける状況に適用（例：計画被ばく状況の職業被ばく、異常に高い自然バックグラウンド放射線及び事故後の復旧段階の被ばくを含む））
- ・ 20 mSv～100 mSv 以下（被ばく低減に係る対策が崩壊している状況に適用（例：緊急事

態における被ばく低減のための対策))

国内の事業所における労働者の電離放射線被ばくを防止するために労働安全衛生法に基づく「電離放射線障害防止規則」(厚生労働省省令)が定められています。事業者は法を遵守し、確実に労働者の安全を守る義務を有しています。規則の要点を以下に列記します。

- ・ 放射線の定義と放射性物質の核種、数量と濃度による定義が決められています。
- ・ 管理区域を標識により明示することが定められています(1.3 mSv/3月或いは表面密度4 Bq/cm²を超えるおそれのあるとき)。
- ・ 施設等の線量を限度以下に保つこと(1 mSv/週)。
- ・ 放射線業務従事者の被ばく限度(100 mSv/5年+50 mSv/年+(女性)5 mSv/3月、水晶体:150 mSv/年、皮膚:500 mSv/年)
- ・ 放射線業務従事者の線量の測定(外部被ばく測定:放射線測定器の装着、内部被ばく測定:1回/3月(但し、吸入摂取した時は速やかに))
- ・ 線量の測定結果の記録(3月ごと、1年ごと、5年ごとの合計を記録します。30年間保管(放射線影響協会へは5年後に引き渡し可能)、放射線事業従事者へ通知)
- ・ 専用の作業室内での作業(非密封な放射性物質取扱作業は専用の作業室内にて作業を行う。作業室の構造は腐食しにくい材質、表面平滑、突起・くぼみがないこと)
- ・ 空気中の放射性物質濃度、飛来防止措置、専用時具(厚生労働大臣が定める濃度の1/10、飛来物による汚染がないように幕・壁の設置、専用用具の利用)
- ・ 汚染検査(作業室内の汚染検査(1回/月)と除染、作業室から退去するときの汚染検査と除染)
- ・ 貯蔵施設(外部と区画された施設、施錠、貯蔵標識)
- ・ 焼却炉(気体が漏れない・灰が飛散しない構造、焼却炉標識)
- ・ 保管廃棄施設(外部と区画された施設、施錠、保管廃棄標識)
- ・ 保護具、作業衣(放射性物質濃度に応じた保護具着用、専用の作業衣)
- ・ 作業環境測定(作業室の放射線量率:1回/月測定、5年間保存、作業室の放射性物質濃度:1回/月測定、5年間保存)
- ・ 健康診断(管理区域常時立ち入り者:指定時、1回/6月、健康診断の記録:30年間保存(5年後に専門機関へ移転可能)、作業員へ健康診断結果の通知、健康診断結果の報告:所轄労働基準監督署長あて)

参考文献

石川友清, 初級放射線, 通商産業研究社(1993年)

動力炉・核燃料技術開発事業団, 放射線業務従事者指定教育講座テキスト(1993年)

核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律(「原子炉等規制法」)

放射性同位元素等による放射線障害の防止に関する法律(「放射線障害防止法」)

労働安全衛生規則

電離放射線障害防止規則(「電離規則」)

作業環境測定法

3. 放射性物質（セシウム、ストロンチウム）の物性

放射性物質を含む廃棄物の処理・処分において、放射性セシウムやストロンチウムがガスとして大気へ拡散するのか、固体となり灰に付着するのか、さらに雨水と接触して浸出水中へ溶け出すのか、といった挙動が安全性の確保の観点から最も重要になります。それらの挙動を理解もしくは予測するには、それらの蒸気圧や水への溶解度などの物理化学的性状（以下、物性）が必要となります。しかしながら、Cs-134 および-137、Sr-90 そのものの物性情報は入手できません。そこで、安定同位体のデータを収集し、物性について紹介します。ただし、それらの元素は表 3.1 の周期律表ではそれぞれアルカリ金属（第 1 もしくは 1A 族）とアルカリ土類金属（第 2 もしくは 2A 族）に属するため、環境または処理において原子よりはむしろ電解質（塩）として存在する可能性が高いと予想されます。そこで、それらの元素から構成される CsI や CsCl 等の塩や同族列の元素（Na や Ca 等）とその塩についても併せて紹介します。

1	2	Groups ▼										13	14	15	16	17	18		
1A	2A	3A	4A	5A	6A	7A	8A	3A	4A	5A	6A	7A	8A	3A	4A	5A	6A	7A	8A
1 H	2 He																		
3 Li	4 Be													5 B	6 C	7 N	8 O	9 F	10 Ne
11 Na	12 Mg	3 Al	4 Si	5 P	6 S	7 Cl	8 Ar	13 Ga	14 Ge	15 As	16 Se	17 Br	18 Kr						
19 K	20 Ca	21 Sc	22 Ti	23 V	24 Cr	25 Mn	26 Fe	27 Co	28 Ni	29 Cu	30 Zn	31 Ga	32 Ge	33 As	34 Se	35 Br	36 Kr		
37 Rb	38 Sr	39 Y	40 Zr	41 Nb	42 Mo	43 Tc	44 Ru	45 Rh	46 Pd	47 Ag	48 Cd	49 In	50 Sn	51 Sb	52 Te	53 I	54 Xe		
55 Cs	56 Ba	71 Lu	72 Hf	73 Ta	74 W	75 Re	76 Os	77 Ir	78 Pt	79 Au	80 Hg	81 Tl	82 Pb	83 Bi	84 Po	85 At	86 Rn		
87 Fr	88 Ra	103 Lr	104 Rf	105 Db	106 Sg	107 Bh	108 Hs	109 Mt	110 Ds	111 Rg	112 Uub		114 Uuq		116 Uuh		118 Uuo		
		6 57 La	58 Ce	59 Pr	60 Nd	61 Pm	62 Sm	63 Eu	64 Gd	65 Tb	66 Dy	67 Ho	68 Er	69 Tm	70 Yb				
		7 89 Ac	90 Th	91 Pa	92 U	93 Np	94 Pu	95 Am	96 Cm	97 Bk	98 Cf	99 Es	100 Fm	101 Md	102 No				

表 3.1 元素周期律表

物性データとして、融点 (T_f)、沸点 (T_b)、蒸気圧 (P_{vp})、イオン化エネルギー (IE)、電子親和力 (EA)、水への溶解度 (S_w) を収集しました。 T_f 、 T_b 、 P_{vp} については Yaw の Chemical Properties Handbook¹⁾から、IE と EA については NIST の Web ページから、 S_w については Linke の Solubilities : Inorganic and Metal-organic Compounds; A Compilation of Solubility Data from the Periodical Literature²⁾からデータを引用しています。ただし、Cs 塩の焼却プロセス内の挙動解析では、より低温域の蒸気圧データが重要になりますので、Cs 塩については、Scheer と Fine の文献³⁾から低温域の蒸気圧データを引用しています。また、物性データに加えて、蒸気圧

データから大気へ揮発する可能性を、IE と EA から環境へ放出された場合のイオン化の可能性を、さらに、水への溶解度をから水系への溶解性を考察します。

表 3.2 に元素および塩の純物質の T_f および T_b を、図 3.1 には蒸気圧データを示します。Cs 原子そのものは、Li (リチウム)、K (カリウム)、Na (ナトリウム) 等のアルカリ金属に属し、Na のように T_f や T_b は低く、蒸気圧は高い傾向にあります。したがって、高温でなくても揮発する可能性が高いといえます。しかし、Cs はハロゲン (F、Cl、Br、I) 化すると T_f と T_b は 500~600°C 高くなります。ただし、高温下における蒸気圧は比較的高いため、ハロゲン化塩として存在する場合は、高温下における揮発も注意が必要です。また、Cs はアルカリ金属の中で最も高い蒸気圧を有している点も注意すべき点です。

Sr は Mg (マグネシウム) や Ca (カルシウム) 等のアルカリ土類金属に属し、アルカリ金属に比べて T_b と T_f の値は 700°C 程度高いものの、蒸気圧曲線から高温下では大気中へ揮発する可能性があると考えられます。しかし、Cs と同様に、 SrCl_2 等のハロゲン化塩となると、 T_b と T_f がさらに高くなるため、大気へ揮発する可能性は低いと予想されます。

表 3.2a 元素に対する物性 (T_b , T_f , IE, EA, 水に対するヘンリー一定数 (k_H°))

	Na	K	Cs	Mg	Ca	Sr
原子量 g/mol	22.99		132.905		40.078	87.62
沸点(T_b)/K	1156		963.15		1762	1630
融点(T_f)/K	370.98		301.15		1112	1042
IE/eV	5.13908		3.8939		6.11316	5.69484
EA/eV	0.547949		0.47163		0.024546	0.052038
k_H° / mol/kg*bar	-		-		-	-

表 3.2b 塩に対する沸点 (T_b) と融点 (T_f)

	Na	NaCl	NaI	Cs	CsCl	CsI
原子量 or 分子量 g/mol	22.99	58.442	149.894	132.905	168.358	259.81
T_b / K	1156	1738.15	1577.15	963.15	1573.15	1553.15
T_f / K	370.98	1073.95	924	301.15	919.15	894.15
	Ca	Mg	MgCl ₂	Sr		
原子量 or 分子量 g/mol	40.078	24.305	95.21	87.62		
T_b / K	1762	1376	1691.15	1630		
T_f / K	1112	922	985.15	1042		

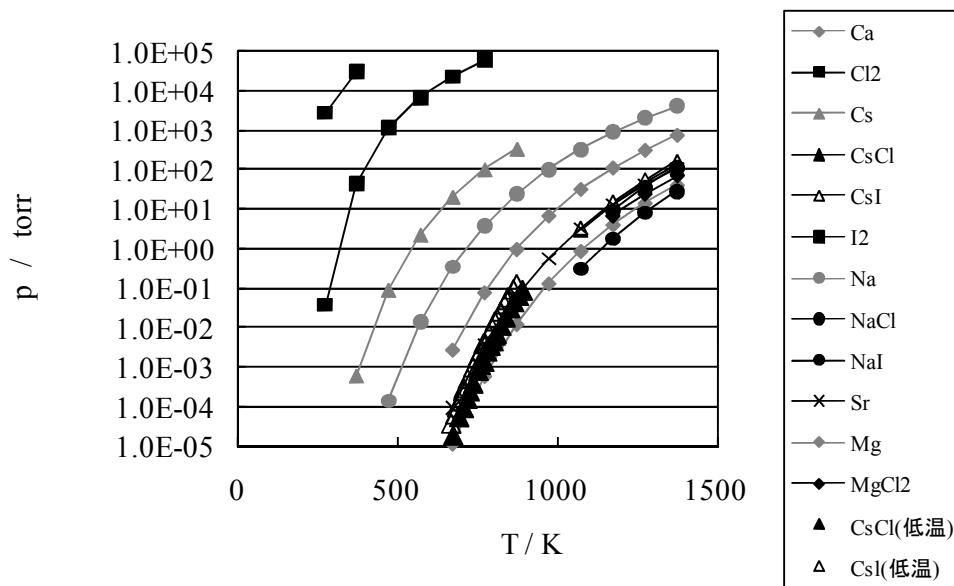


図 3.1 I_2 , Cs, Sr およびそれらの塩類の蒸気圧
低温域のデータは文献 3、それ以外は文献 1

以上の蒸気圧特性により、CsCl については、焼却炉のような高温下ではガス態として揮発する可能性があります。では、焼却炉の後のバグフィルターや煙道、つまり、冷却された低温下においてガス態としてどの程度揮発する可能性があるのでしょうか。蒸気圧、つまり、ガス態が飽和する濃度の観点から推測してみます。焼却炉内の温度における CsCl の蒸気圧データはありますが、バグフィルター周辺の温度 (150~170°C) に対して CsCl の蒸気圧データは残念ながら入手できません。

そこで、Clausius-Clapeyron 式を用いて 150~170°C の蒸気圧を推算してみます。Clausius-Clapeyron 式を次式に示します。

$$\ln P_{vp} = A - \frac{B}{T} \quad (3.1)$$

ここで、A と B は定数になります。それらの値は蒸気圧データから決めることができます。3.1 式は、純物質の気液または気固平衡から導出される下記の関係を積分することによって得られた式です。

$$\frac{dP_{vp}}{dT} = \frac{\Delta_v H}{T \Delta_v V} \quad (3.2)$$

ここで、 $\Delta_v H$ 蒸発エンタルピーで、昇華の場合には、昇華エンタルピー ($\Delta_{sub} H$) になります。エンタルピーが温度によらず一定、さらに、体積の変化量 $\Delta_v V$ は、次式のように気体の体積と仮定しています。また、理想気体の状態方程式 ($PV=nRT$) を用いて、 RT/P として表すこともできます。

$$\Delta_v V = V_g - V_s \cong V_g = \frac{RT}{P} \quad (3.3)$$

3.1 と 3.2 式より、傾き B と $\Delta_v H$ もしくは $\Delta_{\text{sub}} H$ は次式の関係になり、B から $\Delta_{\text{sub}} H$ を求めることができます。

$$\Delta_{\text{sub}} H = B \times R \quad (3.4)$$

Scheer と Fine の文献³⁾では、蒸気圧データを 3.1 式で相関しているため、その値を用いて、150 から 170°Cまで外挿しました。その結果を図 3.2 および表 3.3 に示します。CsCl の蒸気圧は、150°Cで 2.75×10^{-12} Pa、170°Cで 3.37×10^{-11} Pa となり、バグフィルター付近の温度域では、蒸気圧が極めて低いと予想されます。ただし、この計算では、200°C以上の低温度域へ外挿していることから、実際の蒸気圧はそれよりも低い値になると考えられます。これは、 $\Delta_{\text{sub}} H$ は次式のように弱い温度依存性があり、温度が低いほどエンタルピーが高い、すなわち、温度低下により蒸気圧が低くなる度合いが大きくなるためです。

$$\Delta_{\text{sub}} H_{170^\circ\text{C}} = \Delta_{\text{sub}} H_{\text{fus}} + \int_{170}^{\text{fus}} (Cp_s - Cp_g) dT \quad (3.5)$$

ここで、 Cp_s と Cp_g はそれぞれ固体および気体の熱容量、下添字 fus は融点を示しています。参考までに、800K (527°C) の文献値と 3.5 式で計算した 150°Cおよび 170°Cの昇華エンタルピーの値を表 3.3 に示します。温度が約 350°C低くなると、 $\Delta_{\text{sub}} H$ は約 2.5%高くなることがわかりました。

次に、一般ごみの焼却において微量な有害物質の代表格であるダイオキシン類（最も毒性の高い2,3,7,8-テトラクロロジベンゾジオキシン (T4CDD) および最も蒸気圧の低いオクタジベンゾジオキシン (O8CDD)) と比較しました。

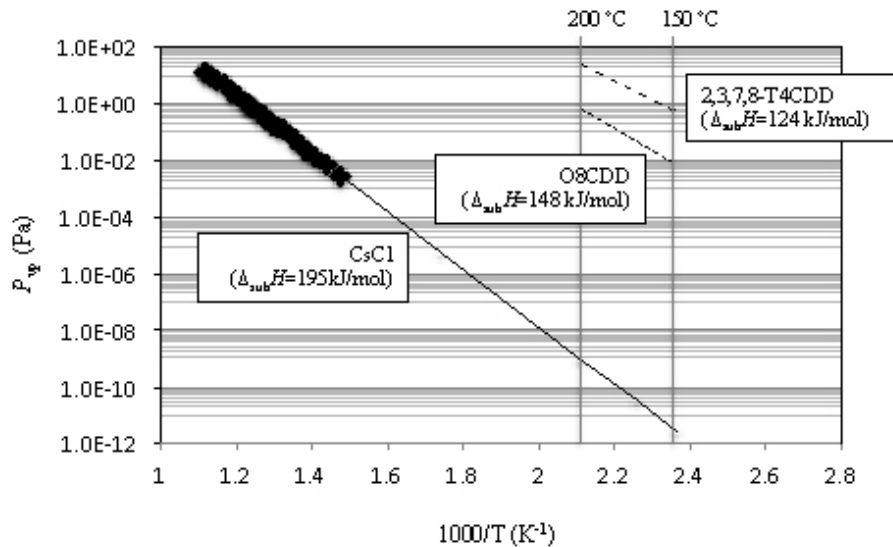


図 3.2 Clausius-Clapeyron 式を用いた CsCl の蒸気圧 (P_v) とダイオキシン類との比較 ($\Delta_{\text{sub}} H$ は直線の傾きと比例関係、 $\Delta_{\text{sub}} H$ の大きさ : CsCl > O8CDD > 2, 3, 7, 8-T4CDD)

表 3.3 塩化セシウム (CsCl) とダイオキシン類の蒸気圧および放射性 Cs の濃度

温度 (°C)	2,3,7,8-T4CDD の蒸気圧 ⁴⁾ (Pa)	O8CDD の蒸気圧 ⁴⁾ (Pa)	式 3.1 による CsCl の蒸気圧 (Pa)	昇華エンタルピー $\Delta_{sub}H$ (kJ/mole)
150	0.522	7.15×10^{-3}	2.75×10^{-12}	201
170	2.560	4.79×10^{-2}	3.37×10^{-11}	200
527	-	-	0.620	195

CsCl の蒸気圧は、一般的に揮発性の低いダイオキシン類と比較しても 9~11 桁ほど低く、超低揮発性もしくは不揮発性といえるくらいのレベルと考えられます。この超低揮発性、つまり、気相へ分配する能力が極めて低いことが焼却施設の排ガス調査においてバグフィルターの出入り口でガス態の放射性 Cs が検出されない理由と考えられます。また、CsCl の蒸気圧はダイオキシン類に比べても温度の影響を大きく受けますが、これは冷えることによって CsCl のガス濃度が過飽和になる度合いが大きくなり、温度低下により固体へ凝縮しやすいことも示唆しています。すなわち、ダイオキシン対策で排ガスを急冷することは、CsCl ガスを固体化させるのに有効に働いていると推察されます。

図 3.3 に Cs と Sr はイオン化エネルギーを他の元素と比較してみます。アルカリ金属およびアルカリ土類金属の値は低く、陽イオンになり易いとえます。特に、Cs のイオン化エネルギーの値は最も低いため、Cs の反応性は非常に高く、一度大気へ放出されれば容易に酸化されると考えられます⁵⁾。したがって、環境中では、酸素、水、他の元素や化学物質と反応し、酸化物、塩化物、炭酸塩、硝酸塩などの塩類もしくはイオンとして存在するのではないかと推察されます。

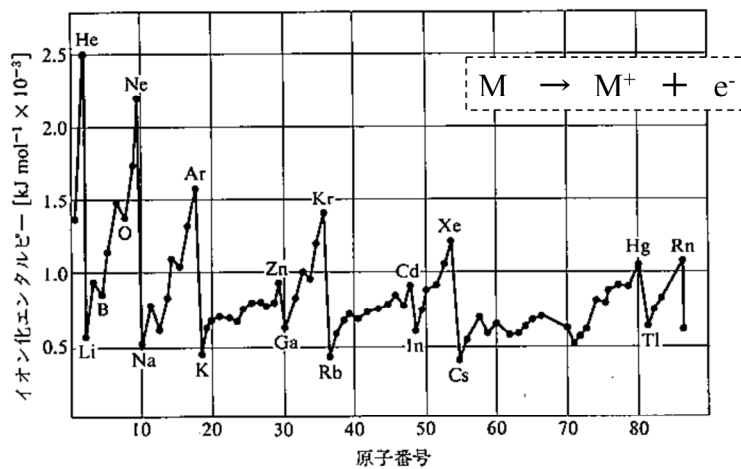


図3.3 第一イオン化エンタルピー ΔH_{ion} の原子番号による変化⁵⁾

Cs および Sr の塩類の水への溶解度を表 3.3 に示します。CsCl などの Cs の塩類は溶解度が非常に高く、浸出水などの水環境系へ Cs^+ イオンとして溶解する可能性が極めて高いと予想されます。また、Sr も F 以外のハロゲン化塩についてはやはり溶解度が高く、水環境系へ Sr^{2+} イオンとして溶解しているといえます。しかし、炭酸塩 (SrCO_3)、硫酸塩 (SrSO_4)、フッ化物 (SrF_2) の場合は溶解度が桁違いに低くなり、水環境系への溶解性は低くなります。

表 3.3 にて水への溶解度のデータを示しましたが、放射性同位体の環境濃度は、例えば、Cs-137 の 10Bq/L は、つまり、 $2.3 \times 10^{-14} \text{ mol/L}$ と極めて微量であることから、大気から水系に降下した元素およびその塩類は、すべてイオン化して溶解するものと考えられます。ただし、イオン化した Cs は土壌等の他の媒体へ吸着することもあります。吸着力は吸着媒体に依存するので、吸着力が強い場合には水環境中へ溶出する量がかなり少なくなると予想されます。5 章には土壌等への吸着に関する説明があります。

表 3.3 水へ溶解度

元素	塩	単位	温度 / °C	溶解度
Cs				
	CsBr	g/飽和溶液 100g	25	55.23
	CsIBr ₂	g/飽和溶液 100g	15	4.45
	CsCl	g/溶媒 100g	25	65.55
	CsI	g/飽和溶液 100g	25	46.1
	Cs ₂ CO ₃	kg/g*	20*	11.1*
	CsHCO ₃	g/溶媒 100g	20	67.8
	Cs ₂ O	g/飽和溶液 100g	30	70.63

元素	塩	単位	温度 / °C	溶解度
Sr				
	SrBr ₂ ·6H ₂ O	g/溶媒 100g	25	107
	SrCl ₂ ·6H ₂ O	g/溶媒 100g	25	55.8
	SrI ₂ ·6H ₂ O	g/溶媒 100g	20	177.8
	Sr(OH) ₂ ·8H ₂ O	g/飽和溶液 100g	25	0.85
	Sr(NO ₃) ₂	g/溶媒 100g	26.40	82.052
	SrSO ₄	g/飽和溶液 100g	20	0.0132
	SrCO ₃	mol/溶媒 1kg	25	5.53E-05
	SrF ₂	mol/L	25	0.00091

*：溶媒は水ではなくエタノール

参考文献

- 1) Yaw CL. Chemical Properties Handbook: Physical Thermodynamic, Environmental, Transport, Safety, and Health Related Properties for Organic and Inorganic Chemicals, McGraw-Hill NY 1999.
- 2) Linke WF. Solubilities: Inorganic and Metal-Organic Compounds; A Compilation of Solubility Data from the Periodical Literature, 4th ed.; American Chemical Society: Washington, DC, 1965.
- 3) Scheer MD, Fine J. (1962) Entropies, Heats of Sublimation, and Dissociation Energies of the Cesium Halides, J. Chem. Phys., 36(6), 1647-1653.
- 4) Mackay D, Shiu WY, Ma KC. Handbook of Physical-Chemical Properties and Environmental Fate for Organic Chemicals, CRC Press Taylor&Francis, Boca Raton, FL, 2006.
- 5) コットンら (中原訳), 基礎無機化学 第二版, 培風館, 1991.

4. 放射性セシウムの溶出特性

4.1 はじめに

一般廃棄物焼却灰、下水汚泥焼却灰、浄水発生土、災害廃棄物、土壌等に移行した放射性セシウムの環境中での挙動として、溶出特性^aについて検討を行いました。

4.2 試験方法

4.2.1 JIS K0058-1 有姿攪拌試験

試料を有姿のまま容器に入れ、10 倍量 (L/kg) の純水を入れた後に上部の液相部分をプロペラで攪拌する JIS K0058-1 有姿攪拌試験¹⁾ (図 4.1) により、表 4.2 から 4.6 に示す試料の評価を行いました。溶出操作時間は 6 時間です。ろ過は孔径 0.45 μm のメンブレンフィルターを用いて行い、ろ液の pH と電気伝導度 (EC) を併せて測定しました。また、放射性 Cs 含有量の測定を別途行い、JIS K0058-1 有姿攪拌試験における溶出率を求めました。

また、海水などのイオン濃度の高い溶媒の影響を調べるため、人工海水を溶媒として用い、他の条件は JIS K0058-1 有姿攪拌試験と同じ方法による試験も一部の試料で実施しました。さらに、試験方法間の違いを把握するために、産業廃棄物の金属等の検定方法である昭和 48 年環境庁告示第 13 号 (環告 13 号) を一部の試料で実施しました。環告 13 号は、試料の粒度を 0.5~5 mm に調整し、振幅 4~5 cm にて毎分 200 回反復振とうを行い、孔径 1.0 μm のガラス繊維ろ紙を用いる方法です。

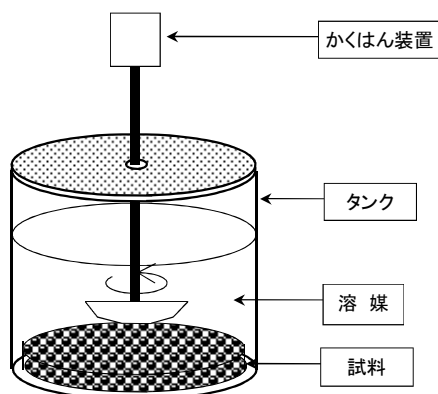


図 4.1 JIS K0058-1 有姿攪拌試験装置¹⁾

4.2.2 逐次抽出試験²⁾

JIS K0058-1 有姿攪拌試験における溶出率は、一般廃棄物焼却飛灰が他の試料よりも際だって高いことが把握されました。この要因を検討するために、抽出能力の異なる溶媒で試

^a 放射性 Cs の溶出濃度測定値は重量当たり (Bq/kg) で得られるが、溶出液の密度を 1 kg/L と仮定し、一般に溶出試験で用いられる体積当たり (Bq/L) で表記している。

料を逐次抽出する「逐次抽出試験」を適用し、放射性 Cs 等の化合物形態の差異を推察しました。試料は、一般廃棄物焼却主灰、一般廃棄物焼却飛灰、下水污泥焼却灰、及び 2 種類の土壌の各 1 試料を 125 μm 以下に粉碎したものを適用しました。試験方法は、参考文献²⁾ に準じて設定しました。試験方法の概要を表 4.1 に示します。逐次抽出試験の結果を解釈する際の注意点ですが、逐次抽出試験は土壌試料を対象として開発された方法なので、特に焼却灰への適用においては、各画分で抽出されたものの化学形態が、各画分の名称と合致したものか十分に確認されていないことが挙げられます。ただし、各画分の化学的安定性は各画分の化学形態と同等程度と推察することはできると思われます。なお、焼却灰等の熱処理物には F5 有機物・硫化物態がほとんど存在しないことから、F5 は土壌のみ適用することとしました。

表 4.1 逐次抽出試験方法

	画分名	抽出操作方法
F1	水溶性画分	試料 10 g を秤量し、精製水 100 mL を入れ、6 時間反復振とう後、遠心分離し、上澄み液と残渣をそれぞれ採取する。
F2	<u>酢酸アンモニウム抽出画分(イオン交換態と呼ばれる)</u>	F1 の残渣と 1M 酢酸アンモニウム 100 mL を入れ、18 時間反復振とう後、遠心分離し、上澄み液と残渣をそれぞれ採取する。
F3	<u>酢酸ナトリウム抽出画分(炭酸塩態と呼ばれる)</u>	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 100 mL を入れ、18 時間反復振とう後、遠心分離し、上澄み液と残渣をそれぞれ採取する。
F4	<u>ヒドロキシルアミン抽出画分(酸化物態と呼ばれる)</u>	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 を入れ、約 85°C の恒温振とう機で 18 時間反復振とう後、遠心分離し、上澄み液と残渣をそれぞれ採取する。
F5	<u>過酸化水素水抽出画分(有機物・硫化物態と呼ばれる)(浄水発生土と土壌のみ適用)</u>	F4 の残渣を 105°C で 2-3 時間乾燥させ、30% 過酸化水素水(0.02M 硝酸で pH 2 に調整したもの) 50 mL を入れ、約 85°C の恒温振とう機で 2 時間振とうする。冷却後、体積で硝酸を 11.1% 含む 1.78M 酢酸アンモニウム溶液 100 mL を加え、30 分室温で振とう後、遠心分離し、上澄み液と残渣をそれぞれ採取する。
F6	<u>残渣残留画分(残渣物態と呼ばれる)</u>	F5 の残渣を 105°C で 2-3 時間乾燥させ、0.5 g を秤量し、濃硝酸 2.5 mL と濃塩酸 7.5 mL を順に加え、時計皿で覆い 120°C に加温し反応が終了するまで分解する。5B ろ紙で固液分離し上澄み液を採取する。

4.2.3 迅速シリアルバッチ試験

一般廃棄物焼却主灰と焼却飛灰処理物の溶出パターンを検討するために、溶出試験を行う過後の試料に新たに溶媒を加える操作を繰り返し行う「シリアルバッチ試験」を適用しました。シリアルバッチ試験の概念図を図 4.2 に示します。溶媒交換のタイミングは 1 日以上とするものなど様々提案されていますが、本件では、初期の溶出パターンに重点を置くために、迅速法として、溶媒の交換を 1 時間ごとに行い 5 つの溶出液を得ました。溶媒は蒸留水のみを用いました。その他の条件は、液固比 10 L/kg、120 rpm 程度の緩やかなプロペラ攪拌とし、試料は 30 mm 以下に粗く破碎したものを使用しました。

4.2.4 迅速累積バッチ試験

放射性 Cs が溶出後、廃棄物層等をさらに下方へ浸透していくにしたがいさらに放射性 Cs が溶出することによって高濃度化する現象を検討するために、ろ過して回収された溶出液に新たに試料を投入する操作を繰り返す「累積バッチ試験」を適用しました。累積バッチ試験の概念図を図 4.3 に示します。最初の操作で得られた溶出液に新しい試料を投入して溶出操作を繰り返すことにより、溶出液の濃度は次第に高くなり、場合によっては平衡濃度に達すると思われれます。ただし、毎回、溶出液の分析や、ろ過後の残渣側への溶出液の残留のため、次回に使用できる溶出液量は次第に減少することになり、繰り返してできる回数には限界があることとなります。試料は迅速シリアルバッチ試験と同じ焼却主灰と焼却飛灰処理物を適用しました。溶媒は蒸留水を用い、液固比 5 L/kg にて毎分 50 回の緩やかな反復振とうを行いました。結果を迅速に得るために、1 回の溶出時間は 1 時間とし、ろ液に新たな試料を加えて溶出操作を再度行い、これを繰り返して 5 つの溶出液を得ました。

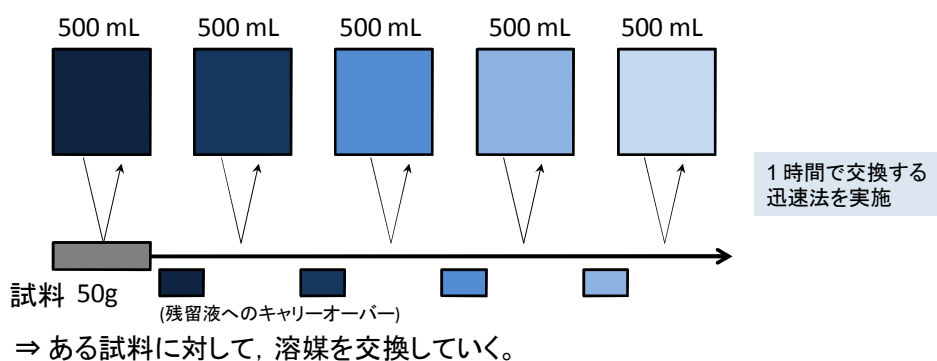


図 4.2 シリアルバッチ試験の手順の概要

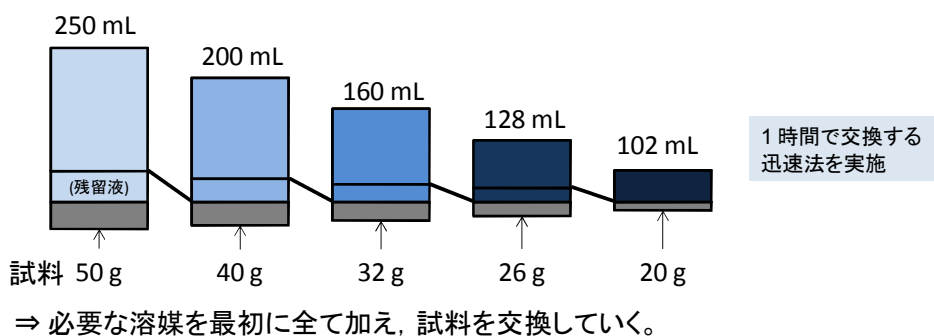


図 4.3 累積バッチ試験の手順の概要

4.3 試験結果

4.3.1 JIS K0058-1 有姿攪拌試験結果

試験の結果、Cs134 と Cs137 は含有量、溶出濃度ともに Cs137 がやや高く、この傾向は試験間で大きな違いは見られませんでした。このことから、以下では Cs134 と Cs137 を単純合計した値に基づいて結果を述べたいと思います。

(1) 一般廃棄物焼却灰等 (表 4.2)

焼却主灰中の含有量は 97.6～6800 Bq/kg と非常に幅広い値でした。このうち、主灰 B～E は溶出濃度が低く、検出限界以下でしたが、主灰 M は 85 Bq/L の溶出濃度が検出されました。溶出率を計算すると、主灰 M は 5.6% でした。主灰 B は検出限界値を用いて計算すると、8.2% 未満になりました。主灰 C～E は含有量と溶出濃度の両方が低いため、溶出率として可能性のある上限値は比較的高い値となっています。焼却飛灰は、含有量は 2400～32400 Bq/kg と幅広いのですが、含有量にほぼ比例した溶出濃度が得られており、溶出率は 64.1～89.1% という高い値でまとまっていました。飛灰処理物とは、焼却飛灰にセメントを添加したもので、処理物 B は成形固化体、他は最大径が数 10 mm 以下の粉体～団粒の混合物です。どの処理物も、含有量の値が処理前の焼却飛灰よりもやや低いのは、セメント等の混合物や加湿調整に用いた水分によって元に占める焼却飛灰の割合が低下したためと思われる。溶出率は処理物 B を除いて 66.4～88.1% で、焼却飛灰と飛灰処理物に差異はほとんど見られませんでした。なお、処理物 B について 30 mm 以下、ならびに 2 mm 以下に粉砕して JIS K0058-1 有姿攪拌試験を適用した結果、溶出率は 77.2～79.1% であったことから、成形固化体とすることで溶出を抑制できる可能性が示唆されました。熔融スラグは含有量、溶出濃度ともに低い結果となりました。

(2) 下水汚泥焼却灰等 (表 4.3)

下水汚泥焼却灰、同・混練物、下水汚泥熔融スラグ、ばいじん（下水汚泥熔融飛灰）については、含有量は 4400～35000 Bq/kg と大きく異なるものの、溶出濃度は低く、また、溶出率は 3.4% 未満でした。特に、検出された下水汚泥焼却灰 1 試料とばいじん 1 試料はそれぞれ 0.9%、0.8% という非常に低い値でした。

(3) 浄水発生土 (表 4.4)

浄水発生土は 3 施設から採取した試料を対象としました。含有量は 6130～100800 Bq/kg と高濃度でしたが、溶出濃度はいずれも検出限界（約 16 Bq/L）未満で、溶出率は 2.6% 未満でした。

(4) 土壌 (表 4.5)

採取した土壌 2 試料の含有量は約 14000～17000 Bq/kg であったのに対して、溶出濃度は検出限界（約 17 Bq/L）未満であり、溶出率は 1.2% 未満という低い結果でした。

(5) 災害廃棄物 (表 4.6)

2011 年 7 月に採取した試料では、大谷石の含有量が 30600 Bq/kg で最も高く、セメントブロック、スレート瓦、木材、トタン、塩化ビニール管は 6460～13850 Bq/kg という値でした。

一方、溶出濃度は含有量の大小にかかわらず、いずれも検出限界（約 16～19 Bq/L）未満であり、溶出率は 2.8%未満でした。

(6) 産業廃棄物の安定品目等とその再生品（表 4.7）

2012 年 1 月に採取した産業廃棄物の安定品目^b等の試料では、放射性 Cs 含有量はほとんどが 1000 Bq/kg 以下でした。また、溶出濃度はいずれも検出限界（約 15～19 Bq/L）未満でした。

以上を総括したものを図 4.4 に示します。一般廃棄物焼却飛灰はセメントによる固化処理の有無によらず、溶出率は 64～89%であることがわかりました。そのため、含有量が高い場合は高濃度で溶出する可能性が高いと考えられます（ただし成形固化体とし、これを破碎しない場合の溶出抑制効果は期待できる結果が得られました）。一般廃棄物焼却主灰は、溶出濃度は低く、溶出率は確認できたもので 5.6%という結果でした。一方、下水汚泥焼却灰等、浄水発生土、土壌、災害廃棄物、及び産業廃棄物の安定品目等は、含有量が高いものでも溶出液にはほとんど検出されず、溶出率は非常に低い傾向にあることがわかりました。

^b 産業廃棄物の中でコンクリートガラやアスファルトコンクリートガラ、金属など汚水を発生させない安定なものとして安定型処分場に埋立可能なものをいう

表 4.2 一般廃棄物焼却灰等の試験結果

(記号 A~F 及び M は採取施設。合計値は Cs134 と Cs137 を単純合計した値。

値に“<”を付した数値は検出限界以下。)

		放射性 Cs 含有量 (Bq/kg-wet)				JIS K0058-1 有姿攪拌試験							
						放射性 Cs 溶出濃度 (Bq/L)			放射性 Cs 溶出率 (%)			pH	EC (mS/m)
		Cs134	Cs137	合計	含水率	Cs134	Cs137	合計	Cs134	Cs137	合計		
一般廃棄物 焼却主灰	B	1150	1300	2450	27.7	<10.0	<10.0	<20.0	<8.7	<7.7	<8.2	12.0	401
	C	167	204	371	25	<5.7	<8.1	<13.7	<33.8	<39.6	<37.0	11.9	385
	D	153	191	344	40.5	<6.6	<8.5	<15.0	<42.9	<44.3	<43.7	12.5	802
	E	97.6	114	212	24.2	<5.7	<7.8	<13.5	<58.8	<68.3	<63.8	11.9	349
	M	6800	8400	15200	<0.1	38.6	46.1	84.7	5.7	5.5	5.6	12.5	976
一般廃棄物 焼却飛灰	A*	4320	5820	10140	<0.1	420	483	903	97.2	83.0	89.1	11.4	2510
	B	13900	18500	32400	3	1270	1490	2760	91.4	80.5	85.2	12.2	3830
	C	1570	1910	3480	<0.1	99.9	123	223	63.6	64.4	64.1	12.3	3850
	D	4980	6020	11000	<0.1	393	482	875	78.9	80.1	79.5	12.2	6620
	E	1070	1330	2400	0.1	88.6	112	201	82.8	84.2	83.8	12.1	5570
一般廃棄物 焼却飛灰 処理物	A*	3590	4580	8170	17.1	321	384	705	89.4	83.8	86.3	10.2	1780
	B*	9830	10800	20600	9.2	130	140	270	13.2	13.0	13.1	12.4	3270
	C	680	837	1520	15.5	48.7	52.6	101	71.6	62.8	66.4	12.5	2050
	D	3390	4120	7510	19	299	363	662	88.2	88.1	88.1	12.1	4700
	E	666	850	1520	24.1	45.9	55.6	102	68.9	65.4	67.1	11.8	2600
一般廃棄物 溶融スラグ	F	130	150	280	6.7	<6.7	<7.9	<14.6	<51.5	<52.3	<52.0	8.2	3.9

* A施設のみ流動床炉、他はストーカ炉、B施設の飛灰処理物は成型固化体

(出典:環境省第5回災害廃棄物安全評価検討会参考資料 3-1)

表 4.3 下水汚泥焼却灰等の試験結果

(記号 G、H は採取施設。合計値は Cs134 と Cs137 を単純合計した値。

値に“<”を付した数値は検出限界以下。)

		放射性 Cs 含有量 (Bq/kg-wet)				JIS K0058-1 有姿攪拌試験							
						放射性 Cs 溶出濃度 (Bq/L)			放射性 Cs 溶出率 (%)			pH	EC (mS/m)
		Cs134	Cs137	合計	含水率	Cs134	Cs137	合計	Cs134	Cs137	合計		
下水汚泥 焼却灰	G	16000	19000	35000	0.3	14	16	30	0.9	0.8	0.9	6.9	164
	H	3300	3900	7200	0.3	<7.2	<7.3	<14.5	<2.2	<1.9	<2.0	6.8	194
下水汚泥焼 却灰混練物	H	2000	2400	4400	30	<7.1	<8.0	<15.1	<3.6	<3.3	<3.4	9.9	125
下水汚泥 溶融スラグ	G	11000	13000	24000	8.4	<7.2	<7.5	<14.7	<0.7	<0.6	<0.6	7.5	0.8
ばいじん(溶 融飛灰)	G	16000	19000	35000	20.8	17	12	29	1.1	0.6	0.8	7.9	287

(出典:環境省第5回災害廃棄物安全評価検討会参考資料 3-1)

表 4.4 浄水発生土の試験結果

(記号 I、 J、 K は採取施設。合計値は Cs134 と Cs137 を単純合計した値。

値に“<”を付した数値は検出限界以下。)

		放射性 Cs 含有量 (Bq/kg-wet)				JIS K0058-1 有姿攪拌試験							
						放射性 Cs 溶出濃度 (Bq/L)			放射性 Cs 溶出率 (%)			pH	EC (mS/m)
		Cs134	Cs137	合計	含水率	Cs134	Cs137	合計	Cs134	Cs137	合計		
浄水発生土	I	6310	7510	13820	59.4	<8.3	<7.9	<16.2	<1.3	<1.1	<1.2	7.4	6.6
	J	2780	3350	6130	60.2	<6.6	<9.4	<16.0	<2.4	<2.8	<2.6	7.1	45.4
	K	45900	54900	100800	66.2	<8.1	<8.3	<16.4	<0.2	<0.2	<0.2	7.1	7.4

表 4.5 土壌の試験結果

(合計値は Cs134 と Cs137 を単純合計した値。値に“<”を付した数値は検出限界以下。)

		放射性 Cs 含有量 (Bq/kg-wet)				JIS K0058-1 有姿攪拌試験							
						放射性 Cs 溶出濃度 (Bq/L)			放射性 Cs 溶出率 (%)			pH	EC (mS/m)
		Cs134	Cs137	合計	含水率	Cs134	Cs137	合計	Cs134	Cs137	合計		
土壌	N	7430	9340	16770	29.8	<8.80	<8.38	<17.2	<1.2	<0.9	<1.0	5.8	1.6
	O	6240	8010	14250	13.0	<8.51	<8.38	<16.9	<1.4	<1.0	<1.2	6.9	1.9

表 4.6 災害廃棄物の試験結果(2011年7月1日採取)

(合計値はCs134とCs137を単純合計した値。値に“<”を付した数値は検出限界以下。)

	放射性Cs含有量 (Bq/kg-wet)				JIS K0058-1 有姿攪拌試験							
					放射性Cs溶出濃度 (Bq/L)			放射性Cs溶出率 (%)			pH	EC (mS/m)
	Cs134	Cs137	合計	含水率	Cs134	Cs137	合計	Cs134	Cs137	合計		
大谷石	14400	16200	30600	6	<8.8	<9.0	<17.7	<0.6	<0.6	<0.6	7.4	1.8
セメントブロック	2990	3470	6460	3.6	<8.2	<9.8	<18.0	<2.7	<2.8	<2.8	9.5	4.7
スレート瓦	3000	3550	6550	1.2	<8.8	<7.9	<16.7	<2.9	<2.2	<2.5	8.3	5.3
木材	3480	4070	7550	9.1	<8.6	<8.4	<17.0	<2.5	<2.1	<2.2	6.7	1.7
トタン	4510	5020	9530	0	<8.3	<10.5	<18.8	<1.8	<2.1	<2.0	7.3	1.8
石膏ボード	120	136	256	18.2	<8.1	<7.8	<15.9	<67.7	<57.3	<62.1	7.2	227
瓦	597	672	1269	1.6	<8.2	<8.3	<16.5	<13.7	<12.3	<13.0	7.5	1
塩化ビニール管	6560	7290	13850	0.5	<9.4	<9.1	<18.5	<1.4	<1.2	<1.3	7.3	2.6

表 4.7 安定品目の産業廃棄物とその再生品の試験結果(2012年1月11日採取)

(合計値はCs134とCs137を単純合計した値。値に“<”を付した数値は検出限界以下。カッコ内の数値は検出下限濃度未満の生データで、有効数字1桁で表示)

	放射性Cs含有量 (Bq/kg-wet)				JIS K0058-1 有姿攪拌試験					
					放射性Cs溶出濃度 (Bq/L)			pH	EC (mS/m)	
	Cs134	Cs137	合計	含水率	Cs134	Cs137	合計			
混廃フルイ下	525	687	1212	18.6	<9.2 (0)	<7.5 (0.5)	<16.7	7.3	220	
混廃可燃物	627	979	1606	15.5	<10.2 (0)	<8.0 (1)	<18.2	6.6	260	
廃プラ(安定型)	1880	2480	4360	2.6	<8.4 (0)	<8.0 (4)	<16.4	7.8	69.3	
通常アスコン	214	280	494	1.0	<9.8 (0)	<7.5 (0)	<17.3	7.1	1.6	
透水性アスコン	894	1160	2054	1.6	<8.4 (0)	<9.6 (0)	<18.0	7.4	1.9	
出荷アスコン	17.6	19.4	37.0	1.0	<9.3 (0)	<8.9 (0)	<18.2	9.0	3.0	
コンガラ	238	317	555	4.0	<10.1 (0)	<8.9 (0)	<19.0	8.9	8.4	
再生路盤材	354	462	816	8.2	<8.4 (0.9)	<9.3 (0)	<17.7	10.4	10.1	
再生路盤材	314	400	714	7.0	<6.9 (2)	<8.4 (0.5)	<15.3	11.1	25.3	
アスコン骨材 (RC-13)	191	253	444	1.7	<9.6 (0)	<8.5 (0)	<18.1	8.9	4.5	
再生砕石	161	241	402	8.5	<8.4 (0)	<8.9 (0)	<17.3	10.8	17.8	
木材チップ(建材)	378	583	961	13.7	<7.8 (7)	<6.8 (7)	<14.6	6.6	26.3	
廃瓦	123	148	271	5.7	<7.8 (0)	<9.3 (0)	<17.1	6.5	0.3	

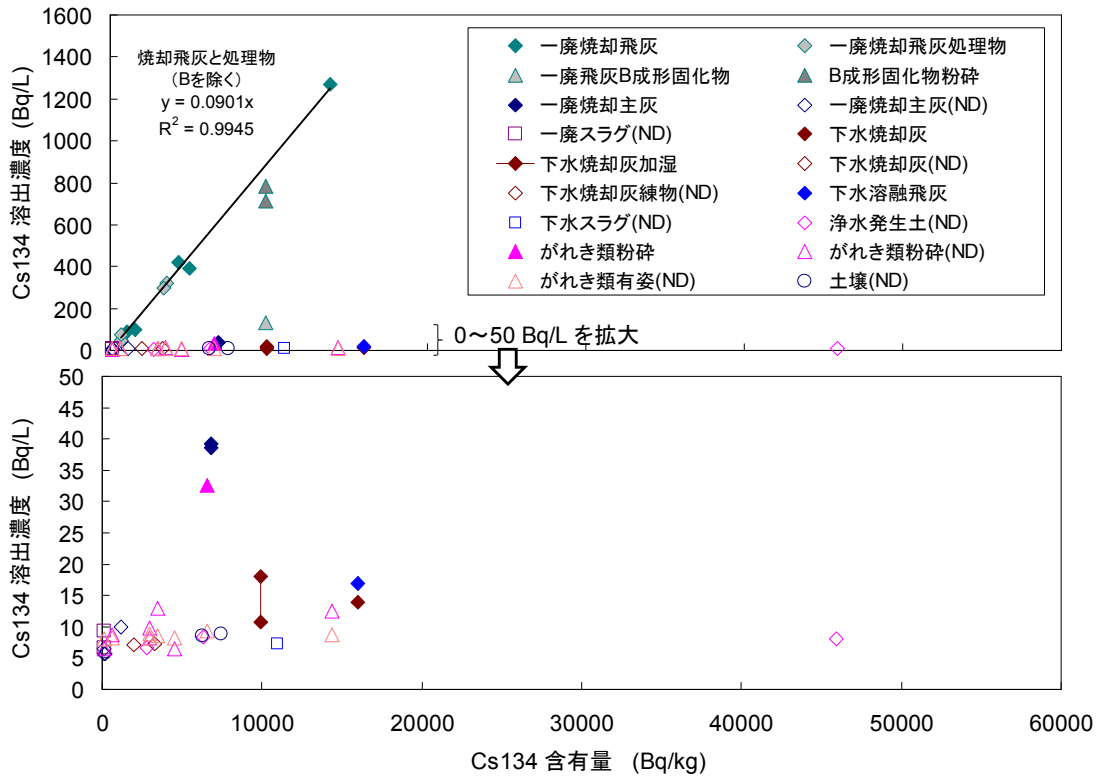


図 4.4 JIS K0058-1 有姿攪拌試験結果 (1) Cs134

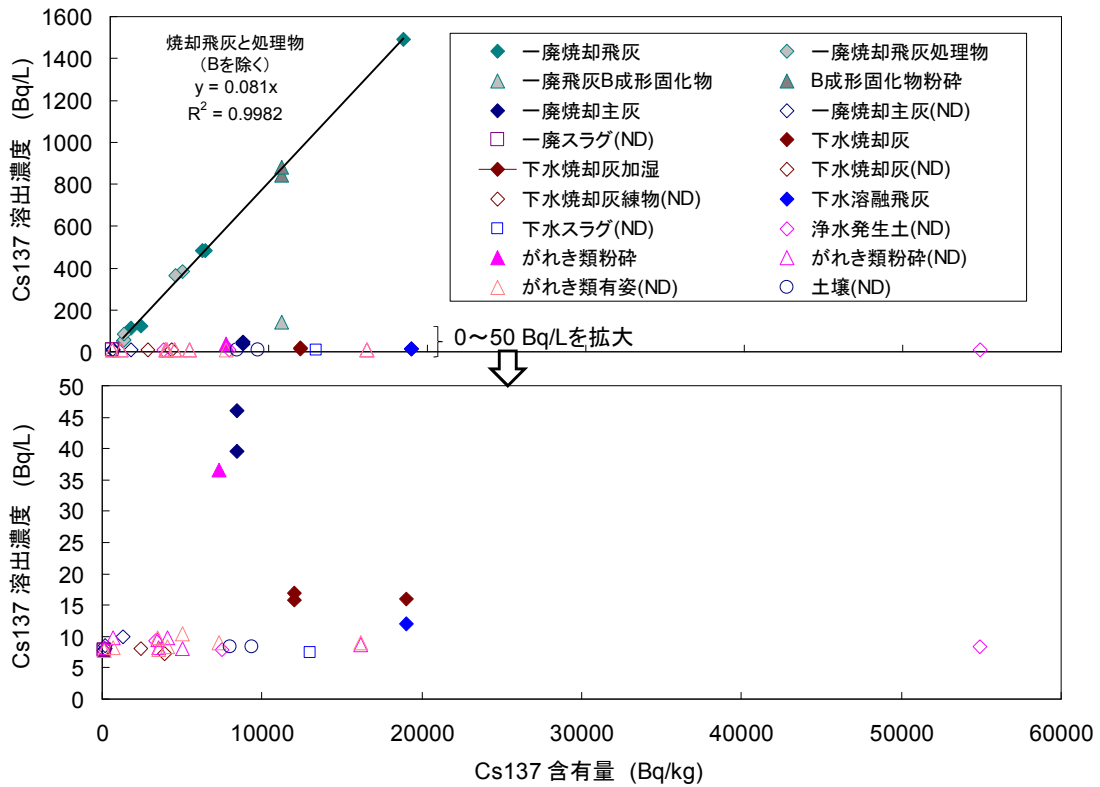


図 4.4 JIS K0058-1 有姿攪拌試験結果 (2) Cs137

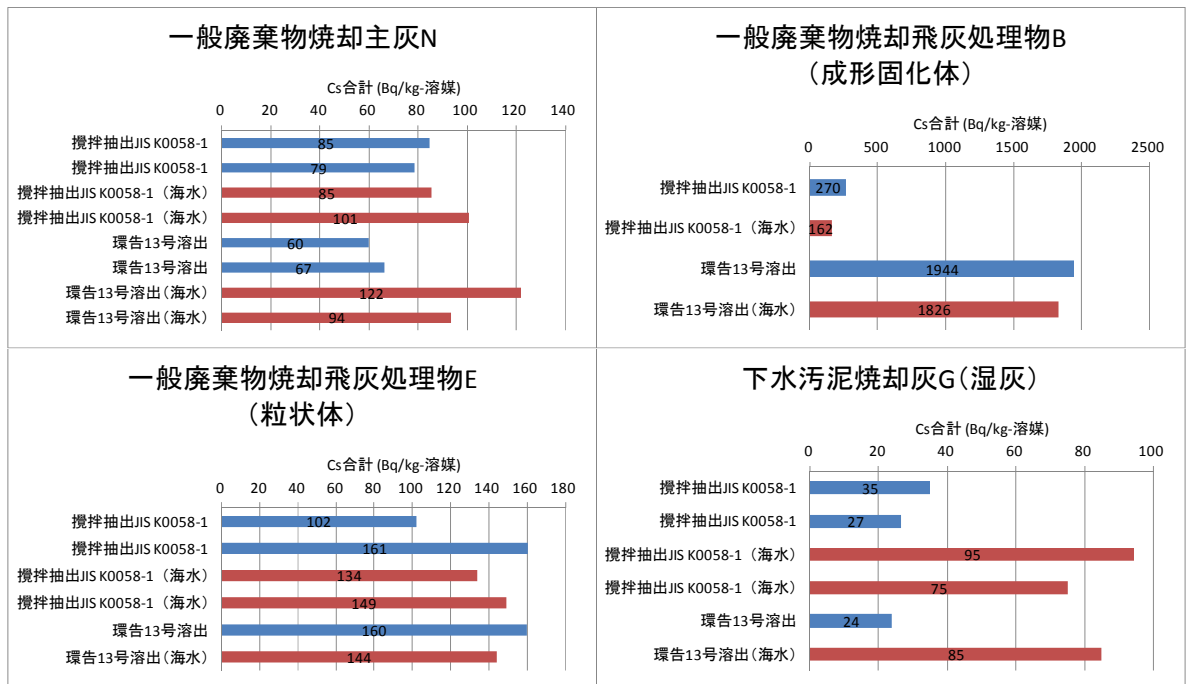


図 4.5 純水と人工海水の結果比較

4.3.2 海水溶媒の影響ならびに試験方法の影響

図 4.5 に純水と人工海水の結果を比較したものを示します。結果は、試料の種類によって異なるものでしたが、1 試料のみの結果なので、同様の結果が得られるかどうか検討を続ける必要があると思われます。今回得られた結果からは、一般廃棄物焼却主灰 N と一般廃棄物焼却飛灰処理物 E (粒状体) は、人工海水による明確な影響は見られませんでした (試験は 2 回ずつ行っています)。一般廃棄物焼却飛灰処理物 B (成形固化体) についても同様でした。下水汚泥焼却灰 G (湿灰) は、人工海水の方が溶出濃度が 3 倍程度高くなる傾向が見られ、この傾向は環告 13 号でも観察されました。環告 13 号では一般廃棄物焼却主灰 N もやや溶出濃度が増加する傾向が見られました。

4.3.3 逐次抽出試験結果

放射性 Cs の各抽出画分の割合は、表 4.8 と図 4.6 に示すように、試料によって大きく異なりました。まず、一般廃棄物焼却主灰 M は、F6 残留物態が 80%程度を占めており、F2 イオン交換態と F4 酸化物態が 5~8%、F1 水溶性画分と F4 炭酸塩態は 3%程度未満であり、非常に少ないことがわかりました。次に、一般廃棄物焼却飛灰 C は、F1 水溶性画分が非常に多く、次に F2 イオン交換態が多いことがわかりました。F3、F4、F6 (Cs134 のみ) は検出限界以下でした。F6 残留物態は Cs137 で検出されました。そこで、図 4.6 のように検出限界値の 1/2 を採用しない場合について Cs137 の、F1、F2、F6 の割合を計算すると、それぞれ 74.5%、13.0%、12.5%になります。下水汚泥焼却灰 G は、F6 残留物態が 70%近くを占

め、F4 酸化物態も約 23%を占めることがわかりました。浄水発生度 I、土壌 N および土壌 O は、残留物態が 90%前後を占めることがわかりました。

表 4.8 逐次抽出試験結果

(合計値は Cs134 と Cs137 を単純合計した値で、単位は Bq/kg。値に“<”を付した数値は検出限界以下。)

	一廃焼却 主灰 M		一廃焼却 飛灰 C		下水汚泥 焼却灰 G		浄水発生土 I		森林土壌 N		公園土壌 O	
	Cs134	Cs137	Cs134	Cs137	Cs134	Cs137	Cs134	Cs137	Cs134	Cs137	Cs134	Cs137
F1 水溶性画分	2.9	3.3	66.6	67.7	1.4	2.1	<0.3	<0.3	<0.6	<0.6	<0.8	<0.6
F2 イオン交換態	8.7	8.3	14.3	11.9	5.0	4.9	1.8	2.1	4.7	4.9	5.0	3.9
F3 炭酸塩態	<1.7	<0.9	<4.2	<4.8	2.2	2.3	<0.5	<0.3	<0.6	<0.4	<0.7	<0.8
F4 酸化物態	6.9	5.6	<4.3	<4.3	22.5	22.8	3.4	3.5	<0.6	<0.5	4.5	4.8
F5 有機物硫化物態	-	-	-	-	-	-	2.7	2.9	1.4	1.5	3.0	3.9
F6 残留物態	79.7	81.9	<10.6	11.4	68.9	68.0	91.3	90.9	92.0	92.1	86.1	86.0
Total	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0

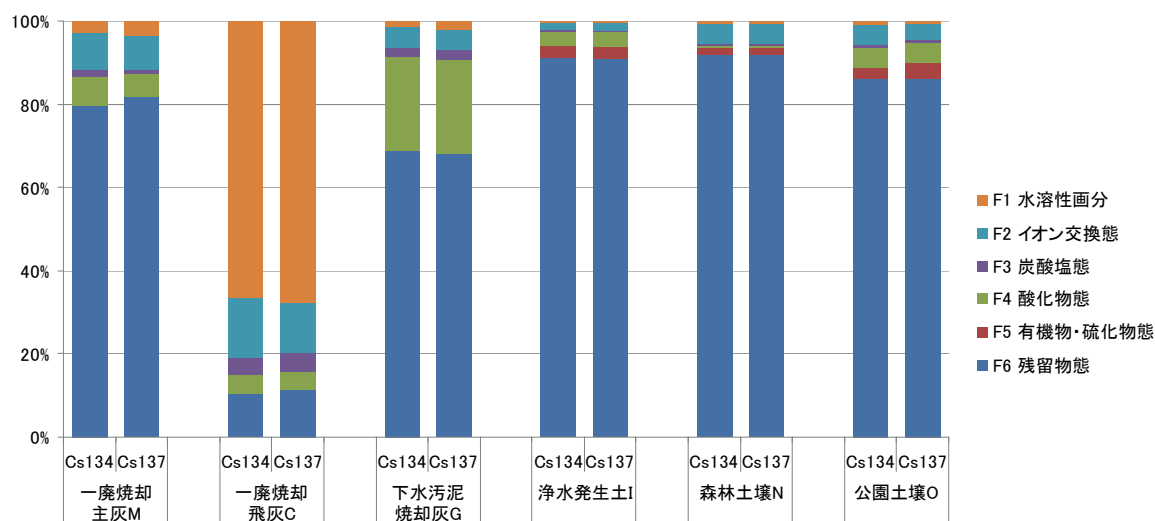


図 4.6 逐次抽出試験結果

(検出限界以下の画分は検出限界値の 1/2 の値を仮に採用した)

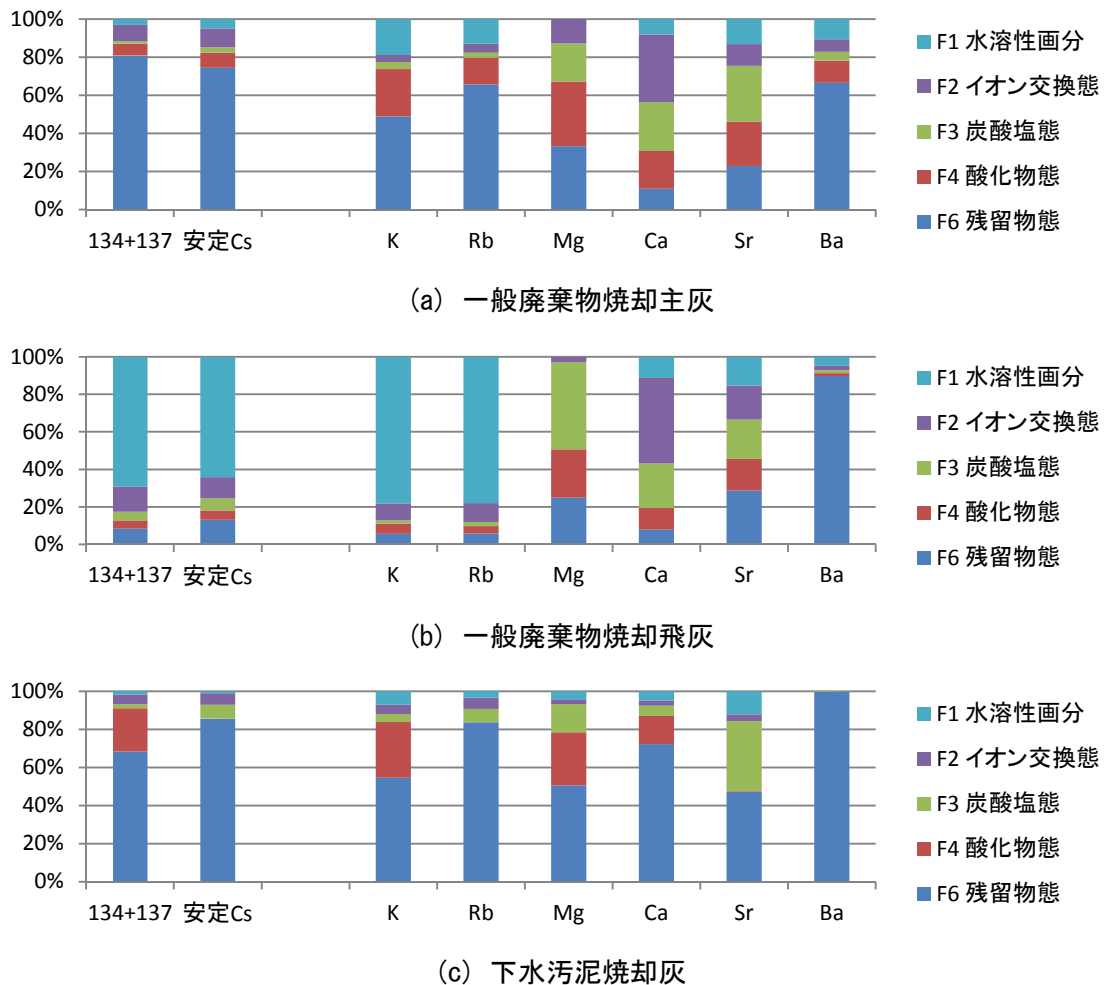


図 4.7 逐次抽出試験における Cs と他のアルカリ金属・アルカリ土類金属との比較結果

(検出限界以下の画分は検出限界値の 1/2 の値を仮に採用した)

図 4.7 に、放射性 Cs と安定 Cs との比較、ならびに他のアルカリ金属・アルカリ土類金属との比較の結果を示します。この図から、放射性 Cs と安定 Cs の抽出傾向はほとんど同じであることがわかります（下水汚泥焼却灰の F4 酸化物態の安定 Cs の割合がほぼゼロである点は再確認中です）。アルカリ金属のうち、Cs よりも原子量の小さい K、Rb と Cs とを比較すると、大まかな傾向は試料の種類ごとに類似していますが、例えば一般廃棄物焼却主灰について、水溶性画分の割合は $K > Rb > Cs$ であることがわかります。アルカリ土類金属については、Mg が F1 水溶性画分が極端に小さいのは水溶液がアルカリ性のために溶解できなかったと考えられますが、Ca、Sr、Ba の順に F6 残留物態が増え、F1 水溶性画分と F2 イオン交換態の割合が減少する傾向が見られました（ただし下水汚泥焼却灰はやや傾向が異なるようです）。

4.3.4 迅速シリアルバッチ試験結果

結果を表 4.9 及び図 4.8 に示します。一般廃棄物焼却主灰は上述までの結果と同様に検出限界以下でした。焼却飛灰処理物は初期に濃度が最も高く、洗い出し操作によって次第に速やかに低下することが確認されました。また、5回の溶出量の累積値は JIS K0058-1 有姿攪拌試験とほぼ一致し、78%になりました。

表 4.9 迅速シリアルバッチ試験結果

		Cs134	Cs137	合計値	pH	EC mS/m
		Bq/L	Bq/L	Bq/L		
一般廃棄物 焼却主灰	JIS 攪拌試験	<10	<10	-	12.0	401
	1 回目	<7	<7	-	11.7	235
	2 回目	<7	<8	-	11.3	80.8
	3 回目	<8	<8	-	11.2	60.0
	4 回目	<7	<8	-	11.2	58.7
	5 回目	<7	<8	-	11.0	47.1
一般廃棄物 焼却飛灰 処理物 (0.5-30mm)	JIS 攪拌試験*	712	881	1590	12.4	3240
	1 回目	443	524	967	12.1	1850
	2 回目	140	175	315	11.9	738
	3 回目	88.1	108	196	11.8	495
	4 回目	46.2	68.2	114	11.7	339
	5 回目	30.7	51.8	82.5	11.6	271

*1 試験粒度 (5-30 mm) による溶出試験 (JIS K 0058 準拠) の結果

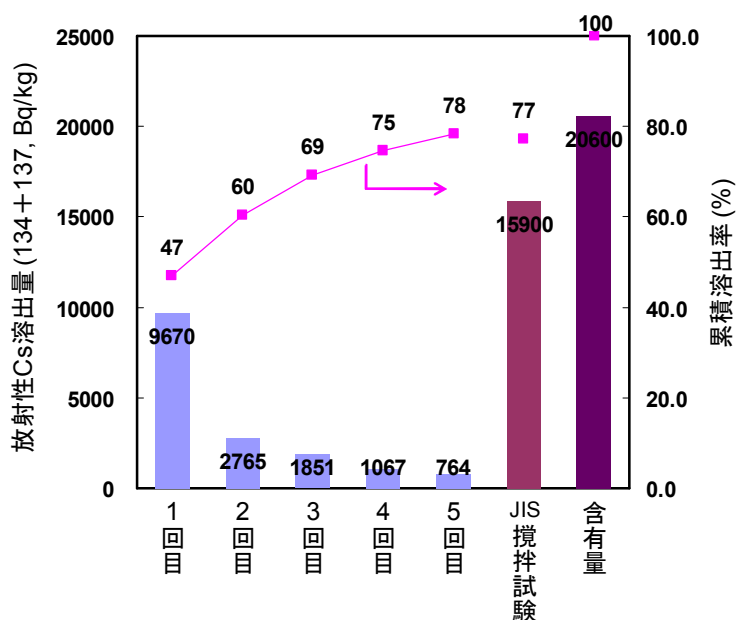


図 4.8 迅速シリアルバッチ試験結果

4.3.5 迅速累積バッチ試験結果

結果を表 4.10 及び図 4.9 に示します。一般廃棄物焼却主灰は、5 回目溶出液の Cs137 を除いて全て検出限界未満でした（5 回目溶出液の Cs137 は、試料投入量が 5 g と少なく、粒子が小さかったことが影響した可能性があります）。焼却飛灰処理物の溶出液濃度は次第に増加しましたが、各画分の溶出率は 3 回目から 5 回目にかけて減少する傾向が見られました。

表 4.10 迅速累積バッチ試験結果

		Cs134	Cs137	合計値	pH	EC mS/m
		Bq/L	Bq/L	Bq/L		
一般廃棄物 焼却主灰	JIS 攪拌試験	<10	<10	-	12.0	401
	1 回目	<11	<12	-	11.9	413
	2 回目	<11	<12	-	12.1	718
	3 回目	<11	<11	-	12.2	969
	4 回目	<11	<10	-	12.3	1190
	5 回目	<19	23 ^{*2}	23 ^{*2}	12.3	1250
一般廃棄物 焼却飛灰 処理物 (0.5-30mm)	JIS 攪拌試験 ^{*1}	712	881	1590	12.4	3240
	1 回目	711	881	1590	12.2	2860
	2 回目	1420	1840	3260	12.2	5500
	3 回目	2170	2840	5010	12.2	7500
	4 回目	2800	3420	6220	12.2	9360
	5 回目	3270	3990	7260	12.2	10900

*1 試験粒度 (5-30 mm) による溶出試験 (JIS K 0058 準拠) の結果

*2 試料投入量が少なかったため他の画分より細かい粒度を採取した可能性がある

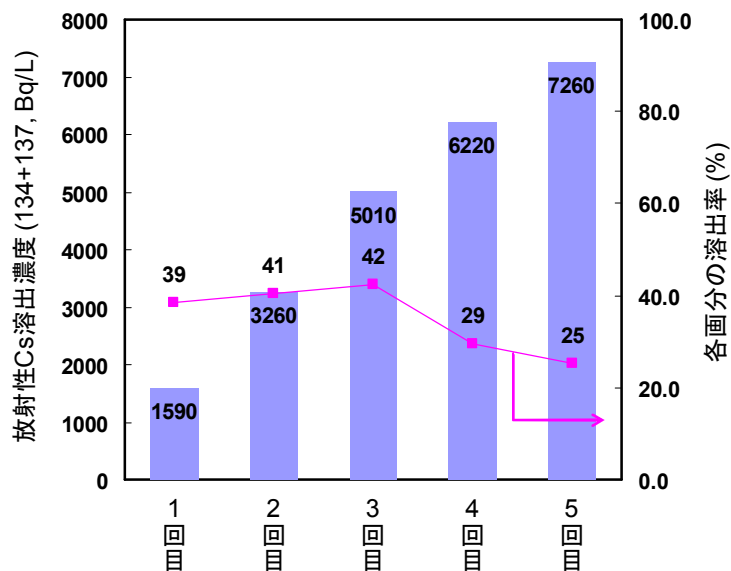


図 4.9 迅速累積バッチ試験結果

4.4 考察

対象とした試料中の放射性 Cs 含有量は、数百から数万 Bq/kg まで、試料の種類によらず幅広いものでした。一方で、JIS K0058-1 有姿攪拌試験における溶出濃度は、一般廃棄物焼却飛灰(5 試料)とその処理物(5 試料)が 100 Bq/L 以上(平均 990 Bq/L、標準偏差 1040 Bq/L)であったのに対して、他の試料では、一般廃棄物焼却主灰(1 試料)のみが 84 Bq/L であった他は、全て 30 Bq/L 未満という値でした(一般廃棄物焼却主灰(4 試料)、一般廃棄物溶融スラグ(1 試料)、下水汚泥焼却灰(2 試料)、ばいじん(下水汚泥溶融飛灰)(1 試料)、下水汚泥溶融スラグ(1 試料)、浄水発生土(3 試料)、災害廃棄物(大谷石、セメントブロック、スレート瓦、木材、トタン、石膏ボード、瓦、塩化ビニール管の各 1 試料)、土壌(2 試料))。

そこで、含有量(Bq/kg)に対する溶出量(溶出濃度から試料重量当りに換算したもの)の割合、すなわち溶出率を計算したところ、一般廃棄物焼却飛灰(5 試料)の溶出率は 64~89%の範囲にありました。一方、一般廃棄物焼却主灰の溶出率は、確認できたもので 5.6%で、その他の試料も溶出率は数%未満で焼却飛灰よりもずっと低いことがわかりました。

このように、放射性 Cs の含有量は個々の廃棄物等ごとに大きく異なるので、まず測定してそのレベルを確認し、放射性 Cs の含有量が高い廃棄物については、放射線を直接受けないように適切に隔離することが必要です。次に、放射性 Cs の溶出特性は廃棄物等の種類ごとに異なることから、それぞれの特性に応じて対策をとる必要があると思われます。

まず、溶出特性の高い一般廃棄物焼却飛灰については、雨水や地下水との接触により放射性 Cs が速やかに溶出する可能性が高いことから、浸出水処理において十分な除去が達成できない限りにおいて、雨水等から十分に隔離保管することが必要です。なお、焼却飛灰は重金属溶出抑制の面からセメント固化等(粒径数 mm 程度以下に団粒化する場合が多い)が義務化されていますが、JIS K0058-1 有姿攪拌試験の結果では、セメントを練り混ぜて成形固化物したものの溶出率が 13.1%であり、団粒化したものよりも低いことから、成形固化が溶出抑制に有効である可能性が示唆されました。ただし、1 試料のみの結果であるため、試料数を増やして一般性を確認することが必要です。逐次抽出試験の結果、焼却飛灰には水溶性画分(一般には、塩化物等と推測されます)やイオン交換態(他の陽イオンを含む水溶液と接触した場合、陽イオンの種類や濃度の組合せによっては固相から置換して溶出する場合がある)が非常に多いことがわかりました。また、シリアルバッチ試験と累積バッチ試験の結果から、焼却飛灰が水と接触すると初期に高濃度で溶出し、また、その水がさらに下方に移動するなどしてさらに飛灰と接触すると、より高濃度となる可能性が示唆されました。これらの結果から、焼却飛灰を埋立処分する際、雨水等からの隔離保管が必須であり、また、もし万が一、水と接触しても下層には放射性 Cs を吸着させる材料の敷設が必要であると考えられます。

放射性 Cs の含有量が比較的高いにもかかわらず溶出特性の低い廃棄物等については、もし雨水等に接触しても直ちに高濃度で溶出する危険性は低いと考えられます。逐次抽出試

験を適用した一般廃棄物焼却主灰と下水汚泥焼却灰については、酸化物態及び残留物態とされる画分が 86～91%を占めることがわかりました。ただし、埋立層を浸透流下することでの濃度上昇の可能性については検討を行っておく必要があります。また、一般には、アルカリ金属は埋立初期に最も高濃度になりますが、その後、長期的にごく低濃度で溶出が継続する可能性についても検討を行うとともに、実際の工法でも土壌吸着層敷設等の必要な溶出抑制策をとることが必要と思われる。ただし、あまりに過剰な安全策とせず、必要十分な対応策とすべきであると思われる。

参考文献

- 1) 日本工業規格 JIS K0058-1: 2005 スラグ類の化学物質試験方法 第 1 部 溶出量試験方法
- 2) 高岡昌輝ほか, 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, VII-20, 79-90, 2001

5. 放射性セシウムの土壌等への吸着特性

5.1 はじめに

福島第一原発事故後に発生した一般廃棄物の焼却灰には、放射性セシウムが含まれています。このような焼却灰からは放射性セシウムの溶出が懸念されるので、安全・安心な埋立処分のためには、(1) 土壌等の吸着層を設置、(2) 埋立場所を制限し降雨接触面積を減らす、(3) 降雨を遮断する、(4) 放射性セシウムの溶出を抑制させるといった工夫が必要です。

焼却灰の下に土壌を敷設した場合、焼却灰から溶出した放射性セシウムは土壌層に吸着し、その移動速度は遅延します。放射性セシウムには時間の経過とともに自身の濃度が減少する自然減衰性をもつので、土壌吸着による移動速度の遅延は濃度低下につながります。ゆえに埋立処分では、溶出する放射性セシウムを所定濃度まで自然減衰できるような土壌吸着層の設計が重要であり、放射性セシウムの土壌等への吸着性を知る必要があります。

放射性セシウムの土壌吸着性が著しく高いことは、チェルノブイリ原発事故後の土壌調査結果 (Petryaev et al. (1993)) や数多くの吸着実験 (井上と森澤(1976)) から明らかにされていますが、その一方で、環境中の pH や共存イオンにより吸着性は大きく変化します (日本原子力学会(2006); 福井と桂山(1976))。埋立地の環境条件を考慮した上での性能評価が重要になります。特に、焼却灰の直下に敷設される土壌は、焼却灰から溶出する高濃度のアルカリと電解質に曝されるので、このような条件下で放射性セシウムがどの程度吸着するのかは未解明であり、その実験評価は急務です。ここでは、福島第一原発事故後の焼却施設から採取した飛灰を用いて、その溶出液中の放射性セシウムに対して、土壌等の吸着量および分配係数を評価した例を紹介します。

5.2 各種土壌等の吸着能力の違い

5.2.1 実験方法

(a) 使用材料

東日本にある焼却施設から固化処理前の飛灰を採取し、液固比 10、6 時間 120 rpm 水平振とうの条件で溶出液を作製しました。その後、その溶出液に蒸留水や少量の塩酸を追加し、条件を整えたものを吸着実験の供与液として用いました。その濃度を表 5.1 に示します。

吸着実験に用いた試料は、(1) 蒸留水で洗浄した珪砂 5 号、(2) 茨城真砂土、(3) 埼玉土壌、(4) ベントナイト、(5) 粉末ゼオライト、(6) 顆粒ゼオライトです (写真 5.1)。これら吸着材の初期吸着イオン量および陽イオン交換容量を表 5.2 に整理します。また吸着材の放射性セシウム含有量は、いずれも検出限界以下でした。

(b) 実験手順

所定量の吸着材を 500 mL 容のポリスチレン容器に入れ、作製した供与液 200 mL を加えました。その後、1 日間の 120 rpm 水平振とうを行った後、容器内に入れた供与液の濃度を測定しました (写真 5.2)。吸着前後での濃度変化から次式により吸着量を算出しました。

$$S = (c_0 - c_{eq}) \frac{V}{m} + S_0 \quad (5.1)$$

S : 吸着量 (Bq/kg または mg/kg)、 c_0 : 初期濃度 (Bq/L または mg/L)、 c_{eq} : 平衡濃度 (Bq/L または mg/L)、 S_0 : 吸着材の初期吸着量 (Bq/kg または mg/kg)、V : 供与液の液量 (= 0.2 L)、

m：投入した吸着材の乾燥質量（kg）を表わします。また投入量は、試料の吸着性を考慮して珪砂・まさ土・埼玉土壌の場合で 5-25 g、ベントナイト・ゼオライトの場合で 0.1-10 g とし、各試料で 3 水準の投入量で実験を行いました。

なお一般的な吸着試験では、試料量を一定にし供与液の濃度レベルを希釈等で変化させて吸着等温線を描きその傾きから分配係数を算出しますが、本検討では、供与液の条件は一定として、吸着材の投入量を変化させる方法を採用しました。飛灰溶出液を供与液とする必要があり、供与液の希釈は放射性セシウムのみならず共存イオン濃度の低下にもつながり吸着材に作用する共存イオンの影響を小さく見積る恐れがあるためです。

表 5.1 飛灰から得た吸着試験用供与液の濃度と組成

	単位	pH12 供与液	pH7 供与液
pH		12.1	6.9*
導電率	mS/m	2,100	1,920
合計 Cs 濃度	Bq/L	763	786
¹³⁴ Cs 濃度	Bq/L	356	388
¹³⁷ Cs 濃度	Bq/L	407	398
Na 濃度	mg/L	1,520	1,510
K 濃度	mg/L	2,750	2,730
Mg 濃度	mg/L	< 0.5	< 0.5
Ca 濃度	mg/L	1,250	1,240
安定 Cs 濃度	mg/L	0.15	0.15

* pH12 の供与液に塩酸を加えて調整した



写真 5.1 吸着試験に用いた試料

表 5.2 吸着試験に用いた試料の初期イオン量と陽イオン交換容量 (NH₄/K 置換法)

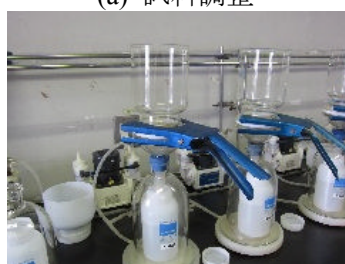
	Na (mg/kg)	Ca (mg/kg)	K (mg/kg)	Mg (mg/kg)	CEC (cmol/kg)
珪砂 5 号	21	322	58	43	0.7
茨城真砂土	78	1,030	73	105	4.1
埼玉土壌	28	1,250	113	414	6.3
ベントナイト	14,200	6,840	877	2,380	66
顆粒ゼオライト	13,500	19,100	9,260	602	140
粉末ゼオライト	11,800	16,400	7,340	1,060	130



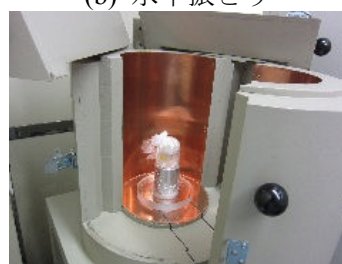
(a) 試料調整



(b) 水平振とう



(c) ろ過



(d) 濃度測定

写真 5.2 吸着試験の様子

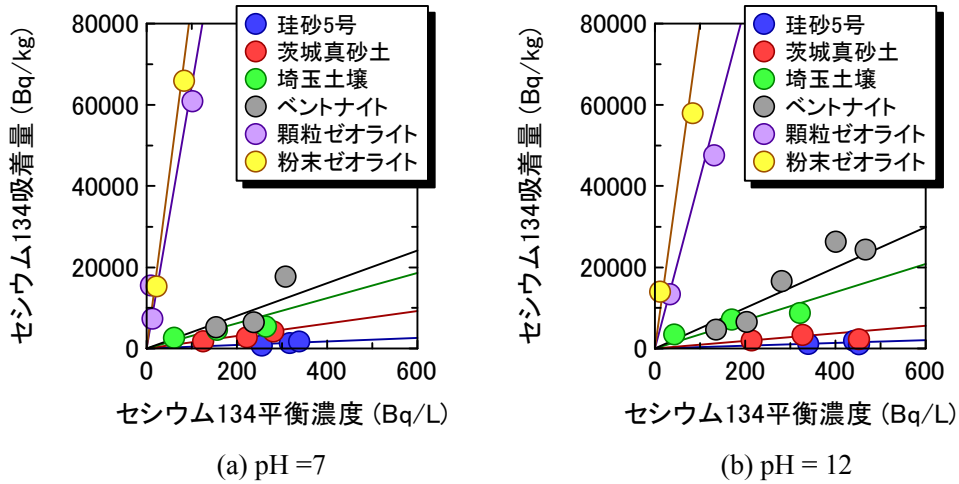
5.2.2 実験結果

(a) 放射性セシウムの吸着挙動

図 5.1 と図 5.2 は、飛灰溶出液中の放射性セシウムに対する、吸着材の吸着特性を示しています。横軸に平衡濃度、縦軸に吸着量で整理したときのプロットの線形勾配を分配係数^cと呼び、その値が大きいほど放射性セシウムに対する吸着性が高いことを意味します。飛灰溶出液中の放射性セシウムに対する吸着性は、珪砂 5 号 < 茨城真砂土 < 埼玉土壌 < ベントナイト < 顆粒ゼオライト < 粉末ゼオライトの順に大きいことがわかりました。特にゼオライトの分配係数は、ベントナイトの約 10 倍であり、極めて高い吸着性をもつことがわかります。また、これら吸着材の分配係数は、溶液の pH が中性 (pH = 7) の場合とアルカリ性 (pH = 12) の場合では、ほとんど同じであることもわかりました。なお埼玉土壌とベントナイトは、中性よりもアルカリ性の方が、若干高い分配係数を示していますが、

^c 異なる量の吸着材を供与液に投入するため、それぞれの平衡状態では共存イオンの組成が若干異なることから、厳密には線形勾配を基に分配係数を算定することはできませんが、ここでは蓋然性の高い分配係数を得る手法として採用しました。

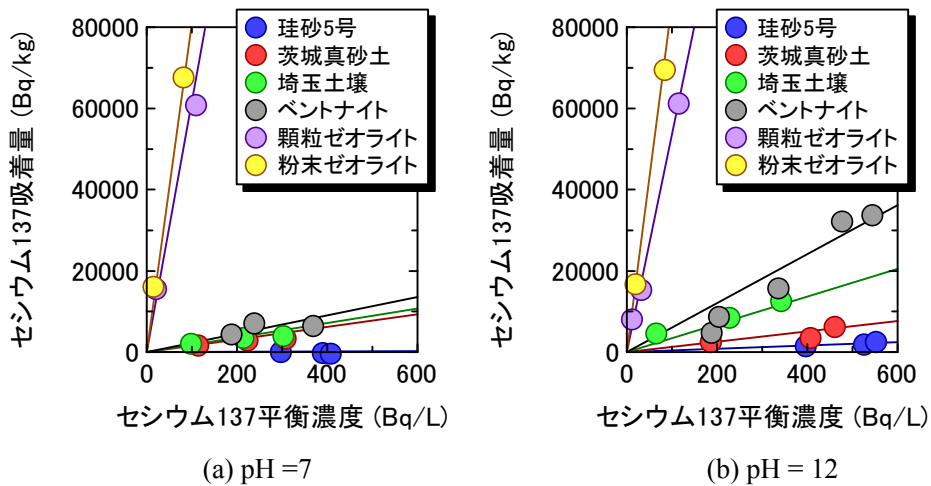
これは粘性土分の陽イオン交換容量がアルカリ性側で高くなるためだと考えられます。



放射性セシウム 134 に対する分配係数 (mL/g)

	珪砂 5 号	茨城真砂土	埼玉土壤	ベントナイト	顆粒ゼオライト	粉末ゼオライト
pH = 7	5.2	16	31	41	660	840
pH = 12	4.7	9.7	36	51	420	810

図 5.1 放射性セシウム 134 に対する土壌等の吸着特性



放射性セシウム 137 に対する分配係数 (mL/g)

	珪砂 5 号	茨城真砂土	埼玉土壤	ベントナイト	顆粒ゼオライト	粉末ゼオライト
pH = 7	0.9	16	19	24	620	840
pH = 12	4.8	13	35	63	530	840

図 5.2 放射性セシウム 137 に対する土壌等の吸着特性

(b) 共存イオンの挙動

図 5.3 は、吸着試験後の供与液中の放射性セシウム濃度と共存イオン濃度を示したものです。横軸は吸着材の投入量を表わし、投入量ゼロのときの濃度は供与液の初期濃度を意味します。供与液に吸着材を投与することで、供与液中の放射性セシウム濃度は低下する一方で、共存イオン濃度は、吸着材からの初期イオンの脱着に伴い増加する成分もあれば、吸着材への吸着に伴い低下する成分もあることがわかります。

ベントナイトと粉末ゼオライトの場合では、ナトリウム、カルシウム、マグネシウムの濃度は増加（脱着）し、カリウムと安定セシウムの濃度は減少（吸着）しました。このことから、放射性セシウムのみならず、カリウムと安定セシウムも同時に吸着していることが明らかになりました。吸着材の吸着容量には限りがあるので、共存イオンの吸着は放射性セシウムの吸着性の低下につながります。

Chang et al. (1993)によれば、放射性セシウム 137 単一溶液に対するベントナイトの分配係数は 6,200 mL/g と報告されています。一方、本実験で測定された分配係数は 20-60 mL/g であり、これは 2 オーダー以上も小さいことがわかります。これは飛灰溶液中に含まれる共存イオン（カリウムと安定セシウム）が放射性セシウム 137 の吸着性を阻害したためです。共存イオンによる吸着性の阻害は、いかに大きいものかということがわかります。そのため、埋立地内での土壤吸着層の設計では、土壤吸着層は焼却灰からの溶出液や周辺廃棄物からの共存イオンに曝されることを念頭におき、放射性セシウムに対する吸着性はそれら共存イオンにより低下することに注意しなければなりません。

5.2.3 まとめ

埋立地の環境条件下における放射性セシウムに対する土壤等の吸着特性を明らかにするために、焼却飛灰の溶出液を供与液とした吸着試験を実施しました。導電率 2,000 mS/m をもつ飛灰溶出液中の放射性セシウムに対する分配係数は、標準砂で 5 mL/g、真砂土で 10 mL/g、ベントナイトで 60 mL/g 程度でした。これらの値は、放射性セシウム単一溶液に対する分配係数よりも低い値であり、飛灰溶出液中のカリウムおよび安定セシウムが放射性セシウムの吸着性を阻害したためだと示唆されました。

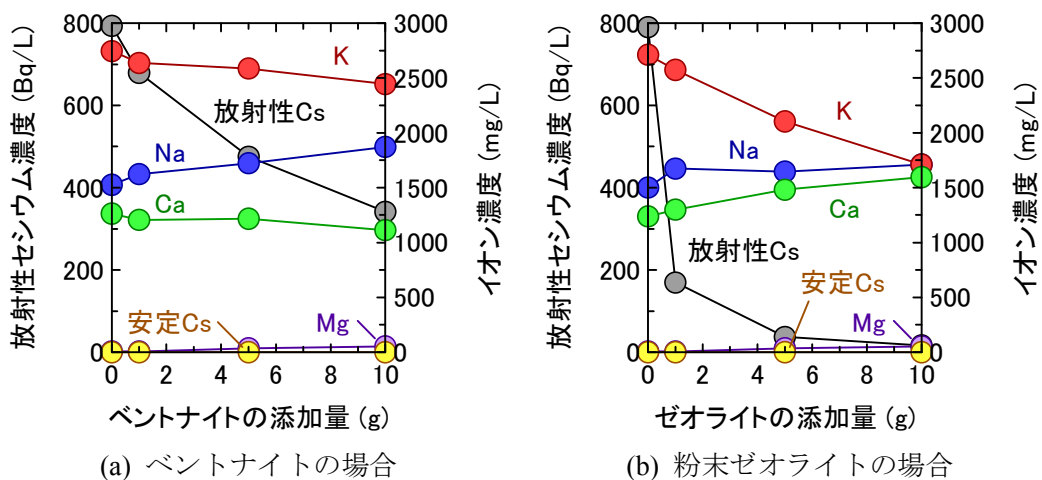


図 5.3 放射性セシウムの吸着性に及ぼす共存イオンの影響

放射性セシウムに対する吸着特性は、共存する化学物質（pH、イオン、腐植物質等）の影響や、吸着材の結晶構造や初期吸着イオン、吸着容量にも左右されますので、ここでの分配係数は目安としての値であり、条件により変わることには留意する必要があります。

5.3 通水条件下における吸着挙動

先のバッチ吸着試験では、吸着材は供与液とともに半ば強制的に攪拌混合させているので、供与液に十分に接触できる環境下での吸着能力を評価していることとなります。一方で、埋立地内に敷設された土壌層に放射性セシウムの混入した液体が浸透した場合、放射性セシウムはその浸透経路上にある限られた土粒子表面としか吸脱着反応を起こし得ませんので、浸透条件下にある放射性セシウムの分配係数は、バッチ吸着試験で得られるそれよりも小さくなる恐れが考えられます。

通水条件下において土壌層の吸着挙動を調べることは、実際の埋立地内で土壌層に期待できる分配係数を見極めるとともに、これまで行われてきたバッチ吸着試験との違いを知るためにも重要な課題ですので、ここではその一歩として、飛灰溶出液を透水溶液とした茨城真砂土のカラム吸着実験を行いました。

5.3.1 実験方法

(a) 使用材料

使用した土壌は、先と同じ茨城真砂土（写真 5.1(b)を参照）を用いました。茨城真砂土の物理的性質を表 5.3 に整理しました。また、透水溶液に用いた飛灰溶出液の条件を表 5.4 に整理しました。先のバッチ吸着試験に用いた飛灰溶出液（表 5.1 を参照）に比べて、ここで用いる飛灰溶出液は導電率が大きく、共存イオンを多く含んでいます。

表 5.3 カラム吸着試験に用いた茨城真砂土の物理的性質

	単位	値
土粒子密度	kg/m ³	2,640
粒度分布		
2mm 以上	%	53.0
75um-2mm	%	39.8
75um 以下	%	7.2
土懸濁液の導電率	mS/m	2.17
強熱減量	%	0.78
陽イオン交換容量 *	cmol/kg	4.1
初期吸着量 Na *	mg/kg	78
初期吸着量 K *	mg/kg	73
初期吸着量 Mg *	mg/kg	105
初期吸着量 Ca *	mg/kg	1,030

* 表 5.2 の値を再掲

表 5.4 カラム吸着試験に用いた飛灰溶出液

	単位	カラム吸着試験 で用いた飛灰溶出液	5.1 節のバッチ吸着試験 で用いた飛灰溶出液(参考)
pH		12.5	12.1
導電率	mS/m	5,000	2,100
合計 Cs 濃度	Bq/L	670	763
¹³⁴ Cs 濃度	Bq/L	305	356
¹³⁷ Cs 濃度	Bq/L	365	407
Na 濃度	mg/L	4,220	1,520
K 濃度	mg/L	4,800	2,750
Mg 濃度	mg/L	< 0.05	< 0.5
Ca 濃度	mg/L	2,640	1,250
安定 Cs 濃度	mg/L	0.26	0.15
Cl 濃度	mg/L	13,900	-----

(b) バッチ吸着試験

カラム試験の透水溶液（飛灰溶出液）に対する茨城真砂土の分配係数を、バッチ吸着試験により評価しました。500 mL のポリエチレン製容器に 300 mL の飛灰溶出液と 15-60 g の茨城真砂土を加えた後、20 °C の恒温条件下で、1 日間の 120 rpm 水平振とうを行いました。その後、容器内の上澄み液を 0.45 μm のメンブレンフィルターで濾過し、その濾液の pH、導電率、放射性セシウム濃度、および各種イオン濃度を測定しました。放射性セシウムの初期濃度と平衡濃度の違いから、式(5.1)に基づき、吸着量を算出しました。ここで得られる分配係数は、後述するカラム試験から得られる分配係数と比較し、吸着試験としてのバッチ試験とカラム試験の違いを検討するために用います。

(c) カラム吸着試験

使用したカラムはアクリル製であり、その寸法は内径 100 mm、高さ 130 mm です。カラム下部に厚さ 15 mm のアクリルフィルタと金網を設置し、その上に 5 mm 以下に粒度調整した所定量の茨城真砂土を投入し、厚さ 100 mm になるように締固めました。カラム上部の 15 mm の隙間に粒子径 2 mm のガラスビーズを詰め、その後カラムに蓋をして、カラム下部から上部に向けて蒸留水を通水させてカラム内を飽和しました。

以上の準備を経た後、飛灰溶出液を入れた給水タンクを定流量ポンプを介してカラム下部に接続し、フラクションコレクタをカラム上部に接続しました。その後、給水タンクを開き、定流量ポンプを動かして、飛灰溶出液をカラム内へと透水させました（写真 5.3）。流量は 2.75 mL/min に設定し、これはダルシー流速として 180,000 mm/year に相当し、我が国の平均涵養量 600 mm/year の 300 倍に相当します。試験条件を表 5.5 に整理しました。

フラクションコレクタに分画された流出液の pH、導電率、放射性セシウム濃度、および各種イオン濃度を測定し、経過時間に対する流出水の濃度変化を調べました。放射性セシウムは、非吸着性物質の塩素イオンよりも、遅れて流出しますので、その時間的な遅れを解析することで放射性セシウムの吸着量および分配係数を得ることができます。



(a) カラムとフィルタ



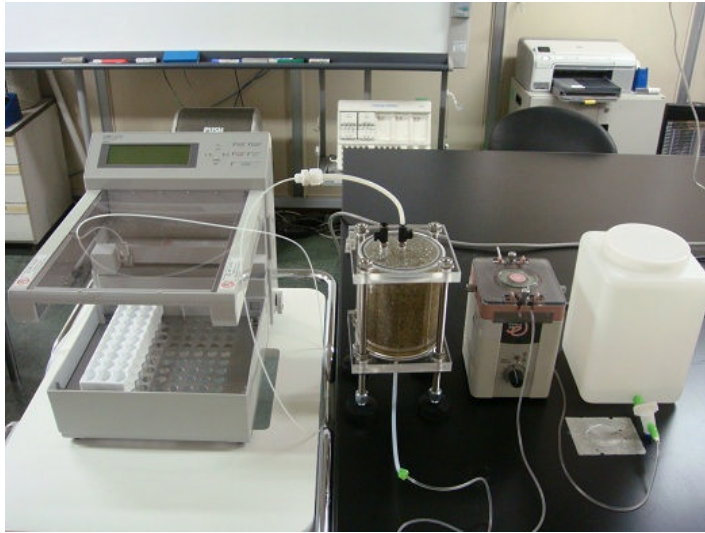
(b) 土壌カラム作製



(c) カラム上部のガラスビーズ



(b) 土壌カラムの完成



(e) カラム試験の全体

写真 5.3 カラム吸着試験の様子

表 5.5 カラム吸着試験の条件

	単位	値
土の種類		5 mm アンダー 茨城真砂土
土粒子密度	kg/m ³	2,640
土の乾燥密度 *	kg/m ³	2,070
間隙率 *	---	0.215
体積含水率 *	---	0.179
飽和度 *	---	0.833
透水係数	cm/s	7.0×10^{-5}
通水流量 **	mL/min	2.75
通水方向		上向流

* 試験終了時のカラム解体操作において測定

** ダルシー流速として 180,000 mm/year に相当

5.3.2 実験結果

(a) バッチ吸着試験の結果

バッチ吸着試験の結果を図 5.4 と表 5.6 に示します。横軸に平衡濃度、縦軸に吸着量で整理し、その線形勾配を見かけ上の分配係数としました。ここで用いた飛灰溶出液 (EC = 5,000 mS/m) に対する茨城真砂土の分配係数は、放射性セシウム 134 に対して 3.05 mL/g、放射性セシウム 137 に対して 2.77 mL/g でした。この値は、先の 5.1 節において示しました飛灰溶出液 (EC = 2,100 mS/m) に対する値と比較すると、約 3 分の 1 以下まで低下しています。その理由は、ここで用いた飛灰溶出液には、表 5.6 に示すように、より多くの共存イオンが含まれているため、共存イオンによる放射性セシウムの吸着阻害が顕著になったためです。なお、各系列にあるプロットが平衡濃度と吸着量の関係において一直線上に乗らず、ばらつきが認められるのは、真砂土は大小様々な粒径をもつため、吸着試験時において容器に少量の真砂土を一律の粒度をもって投入することが難しいためだと考えられます。

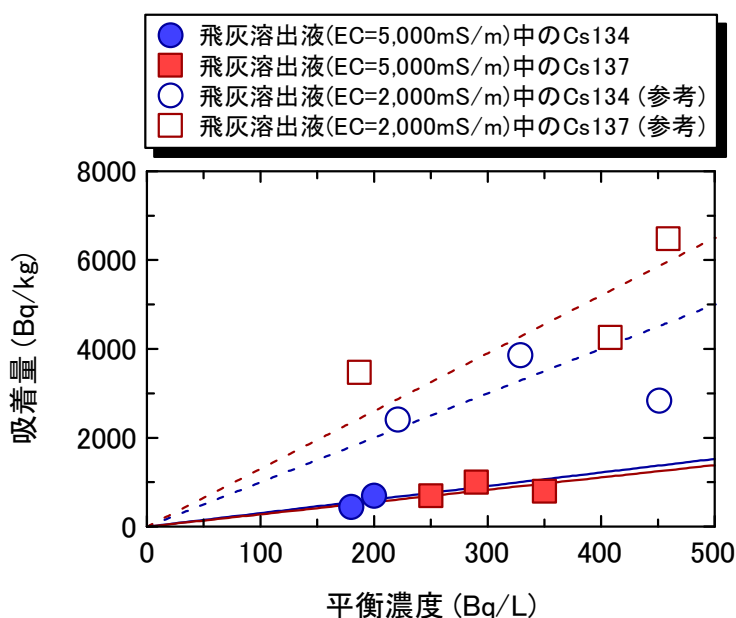


図 5.4 放射性セシウムに対する茨城真砂土の吸着量

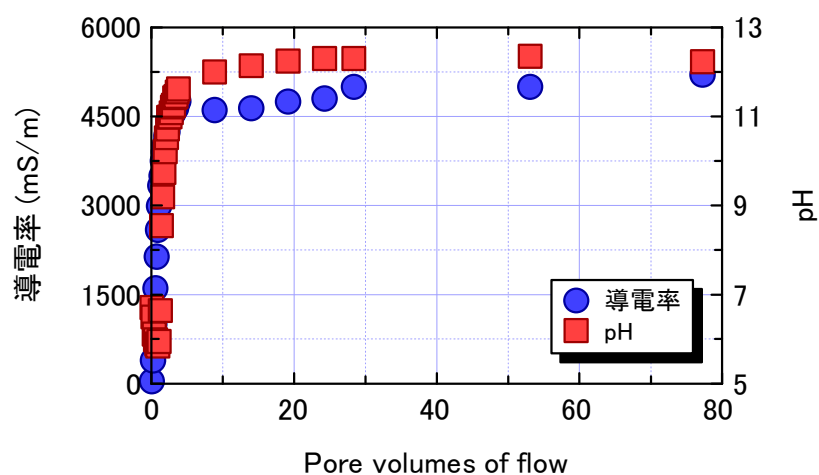
表 5.6 バッチ吸着試験から得た分配係数

		カラム吸着試験 に用いた飛灰溶出液	5.1 節のバッチ吸着試験 に用いた飛灰溶出液(参考)
pH		12.5	12.1
導電率 (mS/m)		5,000	2,100
分配係数 (mL/g)	放射性 ¹³⁴ Cs	3.05	9.71
	放射性 ¹³⁷ Cs	2.77	13.0
	安定 Cs	1.94	8.25

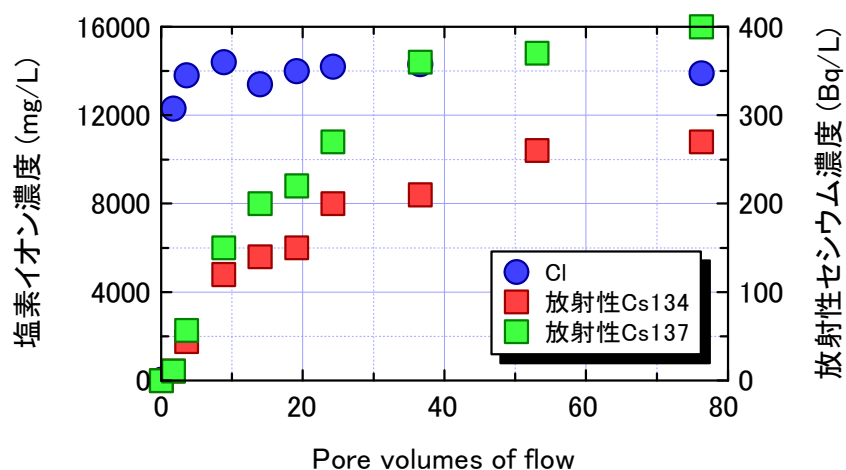
(b) カラム吸着試験の結果

図 5.5 にカラム試験の結果を示します。横軸にポアボリューム、縦軸に流出水の pH と導電率 (図 5.5(a)を参照)、塩素イオン濃度と放射性セシウム濃度 (図 5.5(b)を参照) を表わしています。ここでポアボリューム (PVF; Pore Volumes of Flow) とは、カラムからの積算流出水量を土壌の間隙体積で除した値であり、PVF = 1 のとき土壌中の間隙水が透水溶液によって 1 度置換されたことを意味します。したがって、塩素イオン等の非吸着性物質を流した場合には PVF = 1 においてその濃度が破過します。

図 5.5(b)に示すように、実験においても塩素イオンは PVF = 1 を境目に破過しており、茨城真砂土にはほとんど吸着しないことがわかります。一方で放射性セシウムは、塩素イオンよりも遅れて流出しています。茨城真砂土への吸着により、放射性セシウムの移動速度



(a) pH と導電率



(b) 塩素イオンと放射性セシウム

図 5.5 カラムから排出された液体の濃度

が遅延しているためです。放射性セシウムは、低濃度ではあるものの PVF = 1 前後の早い段階から流出し、時間経過とともにその濃度は徐々に増加し、PVF = 80 の段階で流出水の放射性セシウム濃度は流入水のそれとほぼ等しくなりました。このようなブロードな破過曲線になった理由の一つに、通水速度 2.75 mL/min (ダルシー流速として 180,000 mm/year) という条件が土壌への放射性セシウムの吸着速度に比して大きかったことが挙げられます。

土壌材に対する放射性セシウムの吸着実験では、その吸脱着反応を平衡させるためには少なくとも 3 日以上は必要だと言われています (Comans, R. N. J. et al. (1991); Chen, J. J. et al. (2000))。このカラム吸着実験では、層さ 100 mm の土壌層を通過するのに要するトラベルタイムは $100 \text{ (mm)} / (180,000 \text{ (mm/year)} / 0.179) = 1 \text{ hour}$ と短く、茨城真砂土に対する吸着を終える前に、放射性セシウムは流出しているものと示唆されます。

(c) 分配係数

カラム吸着試験の結果から分配係数を見積もる方法は 2 つあります。ひとつは、(1) 放射性セシウムが土壌に吸着しない場合の濃度プロファイルを仮定し、それに対する実験で得た濃度プロファイルの差分から、土壌に吸着した放射性セシウム量を算出し、流入水の放射性セシウム濃度で除すことで分配係数とする方法です。もうひとつは、(2) 土壌内を流れる放射性セシウムの輸送モデルを構築し、実験で得た濃度プロファイルに対してフィッティングすることで、実験結果に最も合う分配係数を算出する方法です。

まず前者の方法で、分配係数を試算します。例えば、放射性セシウム 134 に着目した場合、カラム内の茨城真砂土に吸着した総量は、図 5.6 に示すハッチ部の面積に相当します。ここで白抜きのプロットは、放射性セシウム 134 が土壌に対して吸着しない場合のプロファイルであり、PVF = 1 を境目に放射性セシウム濃度が流入水のそれと等しくなるように描いています。ハッチ部の面積に、カラム内に詰めた茨城真砂土の間隙体積を掛けることで、茨城真砂土に吸着した放射性セシウムの総量が計算できます。すなわち、

$$S_{\text{tot}} = \phi V \int_1^{\infty} (c_{\text{in}} - c_{\text{measured}}) d\text{PVF} \quad (5.2)$$

ここで、 S_{tot} : カラム内の土壌に吸着した放射性セシウムの総量 (Bq)、 ϕ : 間隙率、 V : 土

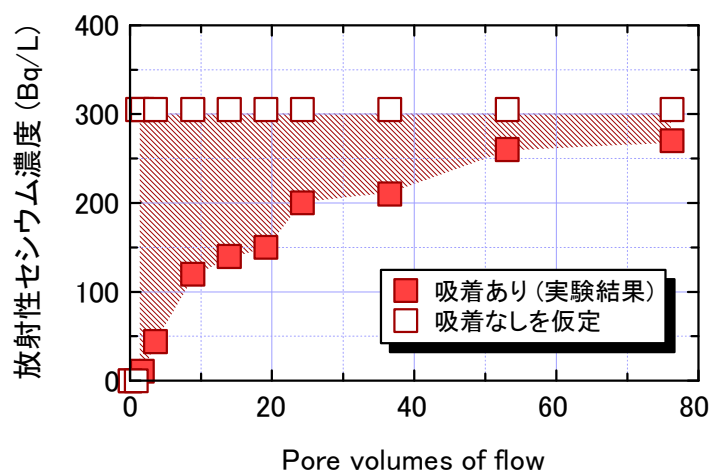


図 5.6 カラム内に吸着した物質総量 (放射性セシウム 134 を例として)

壤層の体積 (m^3)、 c_{in} : 流入水の放射性セシウム濃度 (Bq/m^3)、 $c_{measured}$: 流出水の放射性セシウム濃度 (Bq/m^3) となります。ここから、カラム内に詰めた茨城真砂土の乾燥重量で除すことで吸着量が求まり、さらに流入水の放射性セシウム濃度で除すことで分配係数が算出されます。すなわち、次式となります。

$$K_d = \frac{1}{c_{in}} \cdot \frac{S_{tot}}{\rho_d V} \quad (5.3)$$

ここで、 ρ_d : 土の乾燥密度 (kg/m^3) です。カラム試験から得た分配係数を表 5.7 に整理しました。この方法は、分配係数を簡易的に見積もる手段としては有効ですが、破過曲線上のプロット数が少ない、プロットがばらつく、流出水の濃度が流入水のそれと等しくなる前に試験を終了した、等の場合には、分配係数の算出が困難になるので注意が必要です。

次に後者のフィッティングによる方法で、分配係数を試算します。放射性セシウムの吸脱着反応を伴った物質移動を、次のような、一般的な移流分散モデルと非平衡吸着モデルの組み合わせで表現できると仮定します。

$$\frac{\partial}{\partial t}(\theta_w c + \rho_d S) = \nabla \cdot (\alpha u \nabla c - uc) - \lambda(\theta_w c + \rho_d S) \quad (5.4a)$$

$$\frac{\partial S}{\partial t} = \beta(K_d c - S) - \lambda S \quad (5.4b)$$

ここで、 c : 放射性セシウムの濃度 (Bq/m^3)、 S : 吸着量 (Bq/kg)、 θ_w : 体積含水率、 ρ_d : 土の乾燥密度 (kg/m^3)、 α : 縦分散長 (m)、 u : ダルシー流速 (m/s)、 λ : 崩壊定数 ($1/s$)、 β : 平衡速度定数 ($1/s$)、 K_d : 分配係数 (m^3/kg) を表わします。表 5.5 に示す試験条件を考慮すると、式(5.4)中の未知パラメータは、縦分散長、分配係数、および平衡速度定数の3つであり、これらの値を、計算される理論値と実験値の誤差が最小になるように、最小二乗法に基づき決定します。具体的には、(1) まず非吸着性の塩素イオンに着目し、その濃度プロファイルに最も適合する計算値を与える分散長を決定します。その分散長を用いて、(2) 放射

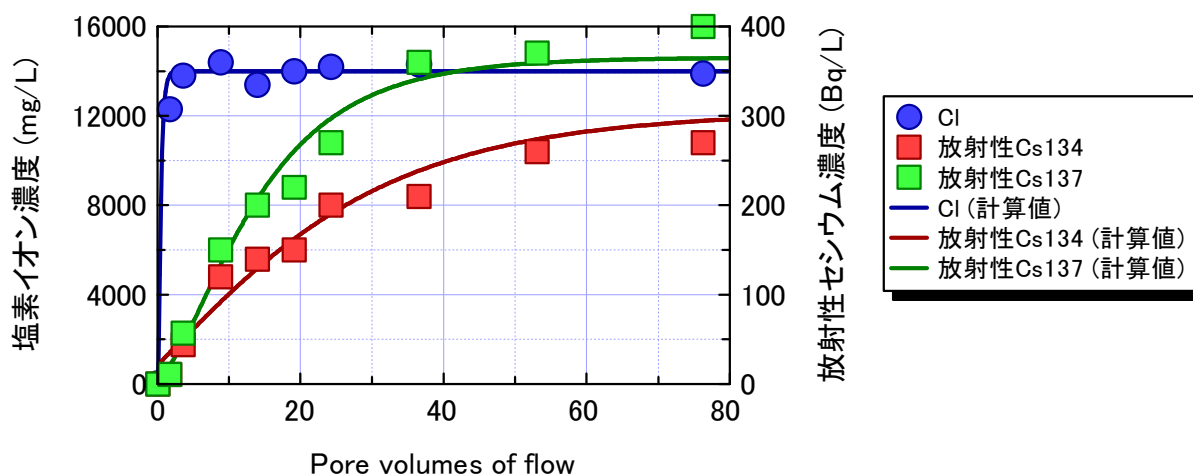


図 5.7 数値モデルへのフィッティング

表 5.7 バッチ吸着試験とカラム吸着試験から得た分配係数

	バッチ試験	カラム試験		
		破過曲線の面積より算出	数値モデルへのフィッティングより算出	
	分配係数 (mL/g)	分配係数 (mL/g)	分配係数 (mL/g)	平衡速度定数 (1/day)
放射性 ^{134}Cs	3.05	2.25	3.85	4.23
放射性 ^{137}Cs	2.77	1.20	2.47	14.3
安定 Cs	1.94	1.83	2.95	5.65

性セシウムについても同様の操作を行い、濃度プロファイルに適する分配係数と平衡速度定数を算出します。その推定結果を図 5.7 と表 5.7 に示しました。図 5.7 をみると、実験値の傾向をよく再現できていることから、今回のカラム吸着試験の条件においては、塩素イオンと放射性セシウムの挙動は式(5.4)により説明でき得ると考えられます。ただ、放射性セシウム 134 の計算値において $PVF = 1$ 程度の早い段階で濃度が立ち上がっているのは、平衡速度定数（吸着平衡に至るまでの時間）が小さく算出されたためだと考えられ、今後はビーカーレベルでの非平衡吸着試験を行い、茨城真砂土の平衡速度定数の現実的な値を把握しておく必要があります。なお、塩素イオンの挙動から推定された分散長は $4.13 \times 10^{-2} \text{ m}$ でした。

(d) 考察

表 5.7 に示すように、カラム吸着試験より得られた茨城真砂土の分配係数は、その算出方法によって値が異なります。破過曲線の面積から算出した分配係数は、バッチ吸着試験で得られる値よりも最大で 4 割程度にまで小さくなる場合があります。一方で、数値モデルのフィッティングから算出した分配係数は、バッチ吸着試験で得られるそれとほぼ同じような値を示しました。いずれも破過曲線のプロット数と正確さが、算出精度に大きく影響を及ぼしますので、カラム吸着試験から分配係数を評価するための試験法も今後検討しなければならない課題のひとつでしょう。

カラム吸着試験より得た平衡速度定数は、放射性セシウム 134 に対して 4.23 1/day、放射性セシウム 137 に対して 14.3 1/day であり、これらは液固比 10 の条件でバッチ吸着試験を行ったとき平衡に至るまでに 0.5-1 日間要する速度に相当します。それに対して、今回の通水流量の条件では、厚さ 100 mm の土壌層を通過するのに約 1 時間であったことから、放射性セシウムは茨城真砂土に対しても吸着平衡に至らないまま破過したものと考えられます。

埋立地内の厚さ 500 mm の土壌層では、涵養量を 600 mm/year とすると土壌層を通過するのに要する時間は体積含水率を 0.3 として約 90 日であり、このような長い滞留時間があれば、放射性セシウムは吸着平衡に達すると言えます。それに対して、今回のカラム吸着試験では通水速度が 180,000 mm/year（平均涵養量 600 mm/year の 300 倍）と大きく、非平衡吸着の条件下で検討が行われたことから、今後は現地での条件に近づけるために、吸着平衡に至るまでの時間をかせぐために通水速度を低下させて、カラム内での吸着挙動を調べることが必要になります。

5.3.3 まとめ

実際の埋立地内に敷設された土壌層における放射性セシウムの吸着挙動を明らかにすることを目的として、飛灰溶出液を用いたカラム吸着試験を行いました。その結果、放射性セシウムの混入した液体が土壌層を通過すると、放射性セシウムは共存イオンよりも遅れて破過し、土壌層への吸着による放射性セシウムの移動速度の抑制を確認できました。

カラム吸着試験から得た分配係数はバッチ吸着試験よりも小さくなる可能性が示唆されましたが、カラム吸着試験では通水速度をどのように設定するのか、カラムに詰める土壌粒径とその量はどのようにするのか、得られた濃度プロファイルをどのように解析するのか、といった条件設定次第で分配係数の値は変わります。そのため、埋立地における土壌層の吸着挙動を模擬的に評価する場合に、どのような条件でカラム吸着試験を実施すべきなのかという試験法と位置付けをまず明らかにする必要がありますと考えられます。

参考文献

- Chang K.P., Hsu C.N., and Tamaki H. (1993): Basic study of ^{137}Cs sorption on soil, *Journal of Nuclear Science and Technology*, Vol.30, No.12, pp.1243-1247.
- Chen, J. J., Wang J. S., and Li H. I. (2000): Influence on radionuclide migration by nonequilibrium sorption and identification of rate coefficient, *China Environmental Science*, Vol.20, No.1, pp.73-76.
- Comans, R. N. J., Haller, M., and De Preter, P. (1991): Sorption of cesium on illite: Non-equilibrium behavior and reversibility, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Vol.55, pp.433-440.
- Petryaev E.P., Ovsyannikova S.V., Lubkina I.Y., Rubinchic S.Y. and Sokolik G.A. (1994): States of Chernobyl radionuclides in soils outside the 30-km zone, *Geochemistry International*, Vol.31(2), pp.22-29.
- 井上頼輝, 森澤眞輔 (1976): 放射性核種の土壌と水との間の分配係数値, *原子力学会誌*, Vol.18, No.8, pp.52-62.
- 日本原子力学会編 (2006): 吸着分配係数の測定方法-浅地中処分のバリア材を対象としたバッチ法の基本手順及び深地層処分のバリア材を対象とした測定の基本手順-, 標準委員会技術レポート, AESJ-SC-TR001, pp.7.
- 福井正美, 桂山幸典 (1976): 飽和砂層内における Cs および Sr イオンの吸着モデルに関する研究, *土木学会論文報告集*, 第 254 号, pp.37-48.

6. 焼却処理過程における挙動と制御

6.1 はじめに

福島第一原発の事故から3年が経過しました。事故により東日本の地域環境が広域に汚染されましたが、事故由来放射性物質の混入に伴う廃棄物の焼却処理や最終処分の問題は、依然として解決していません。大きな障害は、廃棄物処理システムにおける安全性が国民に対して十分に理解されていない点にあります。関係している科学者、技術者が正しい情報を分かりやすく伝えることが求められています。

以上のような問題意識を踏まえ、ここでは放射性物質を含む廃棄物の焼却処理について、放射性物質の挙動と制御の観点から論述します。まず 6.2 では、焼却処理の安全性に関して概説し、6.3 以降において当研究所が行ってきた調査研究の成果を具体的に紹介します。

なお、放射性物質として対象になるのは放射性セシウムであり、放射性ストロンチウム等は被ばく評価の観点からは無視しうることから対象にしていません。

6.2 焼却処理の安全性に関する概説

6.2.1 焼却処理における排ガスの基準値

放射性物質対処特別措置法(以下、特措法)の施行規則(環境省令)に基づいて、放射性物質を含む廃棄物の処理施設においては、周辺環境の大気や公共水域の水中において濃度限度を超えない(^{134}Cs と ^{137}Cs のそれぞれの実測値を基準値で除した和が1を上回らない)ように、施設(事業場)からの排ガスや排水を排出口で監視することになっています(図 6.1 参照)。ここで注意が必要なのは、濃度限度の数値基準は排ガスが大気中で希釈された後の周辺環境に対するもので、排出口におけるものではない点です。濃度限度の根拠は、同一人が0歳児から70歳になるまでの間、当該濃度の放射性物質を含む空気や水を摂取したとしても、被ばく線量が一般公衆の許容値(年間1mSv)以下となる濃度として設定されたものです(放射線審議会基本部会「外部被ばく及び内部被ばくの評価法にかかる技術的指針」(平成11年4月))。

しかし、運用上は、この濃度限度を排出口において超えないことを管理目標として、安全側に立って監視しています*^a。したがって、放射性Csを含む廃棄物を処理する焼却施設は、排出口でこの濃度限度を満たすように入念的な処理基準(施設の構造等、例えば高度な排ガス処理設備の設置)が設定されていると言えます。

このように、排ガスは排出口で周辺環境の濃度限度の基準を下回るように管理されていますが、実際には一般公衆に達する前に周辺環境中でさらに希釈されます。どの程度希釈されるかは気象条件や地形に左右されますが、環境省におけるシナリオ評価¹⁾によれば、一般公衆が曝露される

*^a排出口で濃度限度を超えても規制違反にはならず、周辺環境で満たしているかどうかを確認し、対処方法を判断することになる。

までに大気拡散により 5 万倍程度希釈されると仮定されています(煙突の低い小型焼却炉の場合は、希釈率は相当程度低くなることに注意が必要)。すなわち、周辺環境中の大気の濃度限度を、希釈前の排出口における目標として管理することで、きわめて高い安全率が考慮されていることとなります。

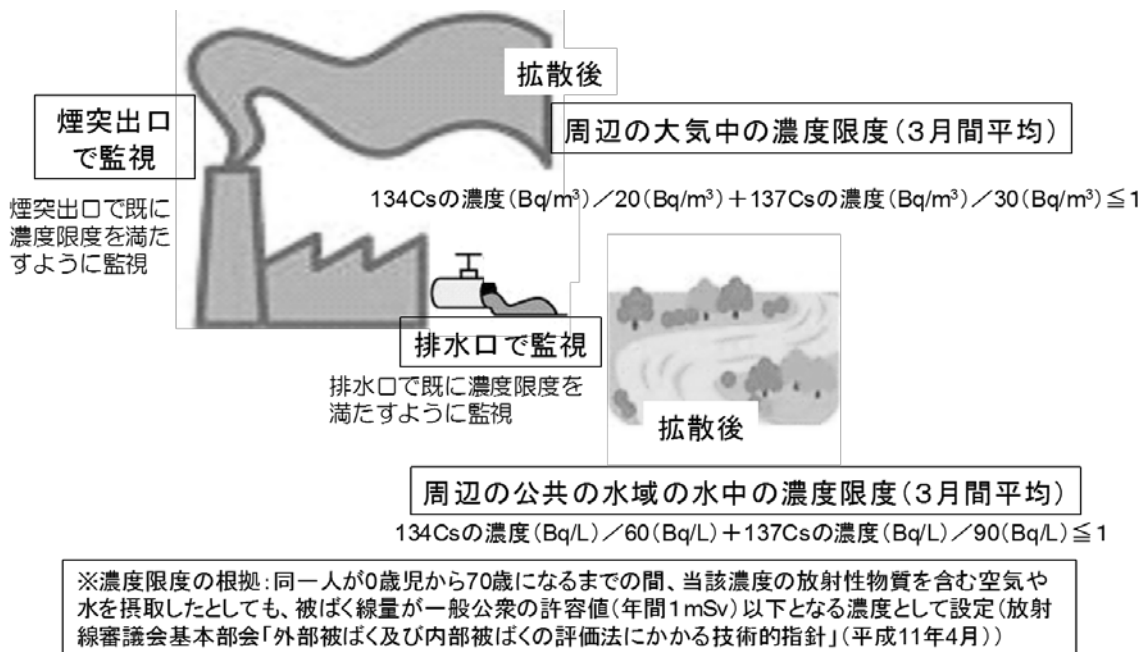


図 6.1 焼却施設の排ガスおよび排水の監視

～濃度限度は排出口基準ではなく、周辺環境における基準～

6.2.2 実測データの状況

これまで公表されている多くの測定データにおいて、煙突出口における排ガスの放射性 Cs 濃度はほとんどが検出下限未満となっています。環境省が収集している排ガスモニタリング結果において、2012年6月初旬までで13都県186施設290炉の調査によるデータによれば、施設の煙突出口付近で採取された排ガスの測定データのほぼ全てで検出下限未満になっています²⁾。検出された施設はいずれも電気集塵機を備えた施設ですが、その検出された値も濃度限度を大きく下回っていました。バグフィルターを備えた施設では、検出下限値を相当程度に低いレベルに設定しても、ほぼ全て検出下限未満になっています^{*b}。測定データは、福島県内で高い放射能濃度を有する焼却飛灰(ばいじん)が生じている施設もカバーしており、排ガス処理性能の健全性が確保され

*b 福島県内の施設において、除去性能を明確にするために検出下限を極端に下げた場合の調査結果で1施設のみ検出された例があるが、通常の見出下限値を適用すれば不検出との解釈になる。

ている限り、焼却施設からの排ガスについて不安視する必要はないと考えられます。

6.2.3 排ガス処理における除去率

焼却施設の安全性の議論で、バグフィルターの除去率の数字が取り上げられますが、リスク評価の観点からは、その数字自体を厳密に論ずることにあまり意味はありません。濃度限度の基準を満たしているかどうか重要であり、基準を満たしていれば被ばくリスクの観点から言えば問題ないといえます。

しかし、高線量地域への適用などを考慮すると、バグフィルター等の排ガス設備でどの程度の除去率が達成されるかを確認しておくことは大切です。表 6.1 にバグフィルター等の集塵設備の除去率について調査した結果の例を示します。ダイオキシン対策が施された現在の焼却施設については、バグフィルターの除去率は十分に高く、高度な排ガス処理性能を有しています。

表 6.1 排ガス処理設備による除去率の調査結果(調査時期は 2011 年 10 月～2012 年3月)

施設	対象プロセス	入口濃度(Bq/m ³)		出口濃度(Bq/m ³)		除去率(%)		集塵装置	調査実施者	調査時期
		Cs134	Cs137	Cs134	Cs137	Cs134	Cs137			
福島県 あらかわCC	焼却	78	96	<0.008	<0.006	99.99<	99.99<	BF	環境省	10月
		98	126	0.008	<0.007	99.99	99.99<			12月
須賀川地方 保健環境組合	焼却	33	42	0.2	0.2	99.39	99.52	EP	環境省	10月
		43	57	0.2	0.2	99.53	99.65			12月
A市清掃工場	焼却	58	70	<0.054	<0.053	99.91<	99.92<	BF	国環研	10月
B市清掃工場	焼却	58	76	<0.1	<0.1	99.83<	99.87<	BF	国環研	12月
	熔融	677	844	<0.1	<0.1	99.99<	99.99<			
C市清掃工場	焼却	15	20	<0.012	<0.013	99.92<	99.94<	BF	国環研	2月
	焼却	64	85	<0.018	<0.017	99.97<	99.98<			3月
	熔融	39	51	<0.01	<0.011	99.97<	99.98<			2月
	熔融	98	133	<0.013	<0.013	99.99<	99.99<			3月
D市清掃工場	熔融	335	404	<0.4	<0.3	99.88<	99.93<	BF	A社	9月
	熔融24h 採取	220	330	<0.05	<0.07	99.98<	99.98<			3月

*BF：バグフィルター、EP：電気集塵機

**濃度はろ紙部のみ、環境省調査の出口濃度は煙突出口、国環研調査はBF出口

6.2.4 放射性セシウムの燃焼及び排ガス処理過程での挙動

セシウム(Cs)は原子番号 55 のアルカリ金属であり、沸点は約 650℃、塩化セシウムの形態となった場合は約 1300℃です。大まかに言えば、800～850℃、あるいはそれ以上の温度の炉内で、放射性 Cs の一部は揮発あるいは液化して排ガスに移行し、残りの主に固体の形態で存在するものは主灰中に残留すると考えられます(図 6.2 参照)。排ガス中に移行した放射性 Cs は、ダイオキシン類生成抑制のために冷却され、約 200℃以下で制御されているバグフィルター付近では、主に塩化セシウムとして凝縮し固体状態になり、他の物質と一緒に凝集したり、固体に吸着されたりして、ばいじんになると考えられます。

京都大学の高岡教授の安定セシウム^{*c}に関する調査結果³⁾では、バグフィルター前で固体状が 99.9%、ガス態が 0.1%であったことが報告されていますが、環境省などがこれまでの多くの調査結果²⁾を報告しており、バグフィルター入口で濃度が検出される場合であっても、サンプリング装置(図 6.3 参照)のもっとも上流部の円筒ろ紙で検出であり、その後のドレン部や活性炭部では検出された例はありません。つまり、測定できるレベルではガス態は存在していないということです。

このように、排ガスが冷却された後は、放射性 Cs は固体状で存在し、ばいじんになり固体になって

*c 安定セシウムは放射性セシウムと物理化学的な挙動は同様と考えて良い。

存在しているので、ばいじんを除去できれば放射性 Cs も同時に除去可能です。ばいじんの平均粒径は、都市ごみ焼却施設の場合数十マイクロメートルであり、バグフィルターではサブマイクロメートル(1/10 ミクロンオーダー)の粒子をカットできることから、ほぼ完全に放射性セシウムを除去できます(図 6.2 参照)。

さて、排ガス中のばいじんには、そもそも大気汚染防止法において規制値が存在します。表 6.2 は、仮に規制値レベルの濃度でばいじんが排出されていた場合に、そのばいじん中に 8,000～100,000Bq/kg の放射性 Cs が含まれている場合を想定して、排ガス1m³あたりの放射性 Cs 濃度の推定値を示しました。なお表中には、実際の B 清掃センターにおけるばいじん濃度とばいじん中放射性 Cs 濃度の実測に基づいた排ガスの放射性 Cs 濃度の推定値も示します。この推定結果からも明らかなように、ばいじんの規制値を遵守していれば、放射性 Cs が濃度限度を超える可能性はないといえます。B 清掃センターのような実際の施設では、ばいじんの規制値について住民協定などでさらに上乘せの厳しい自主基準を課しており、事実、規制値よりも数桁低いばいじん濃度になっていることから、放射性 Cs 濃度は極めて低い値となり、通常の実測では検出下限未満になります

*d。

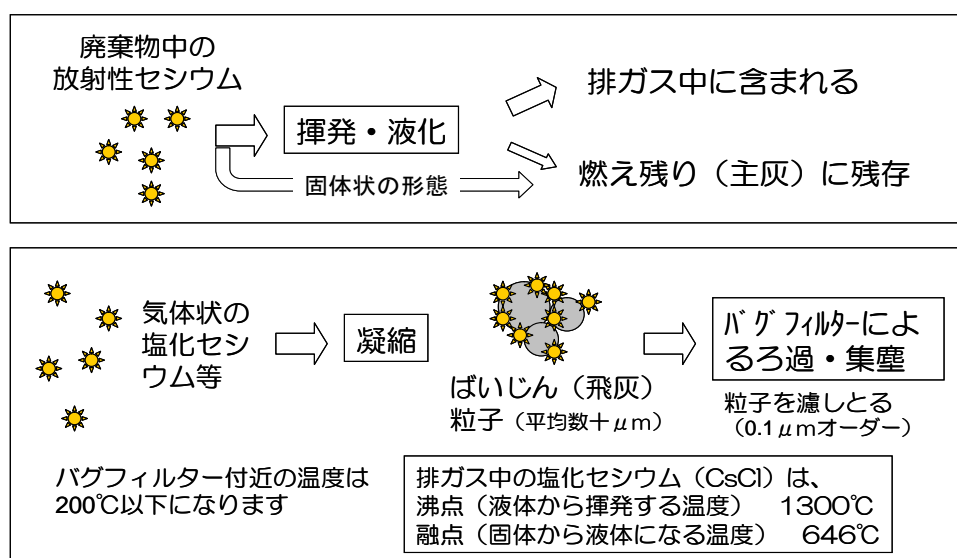


図 6.2 焼却処理過程における放射性 Cs の挙動イメージ

*d 事実、B 清掃センターの排ガスの放射性 Cs 濃度は検出下限未満になっている。

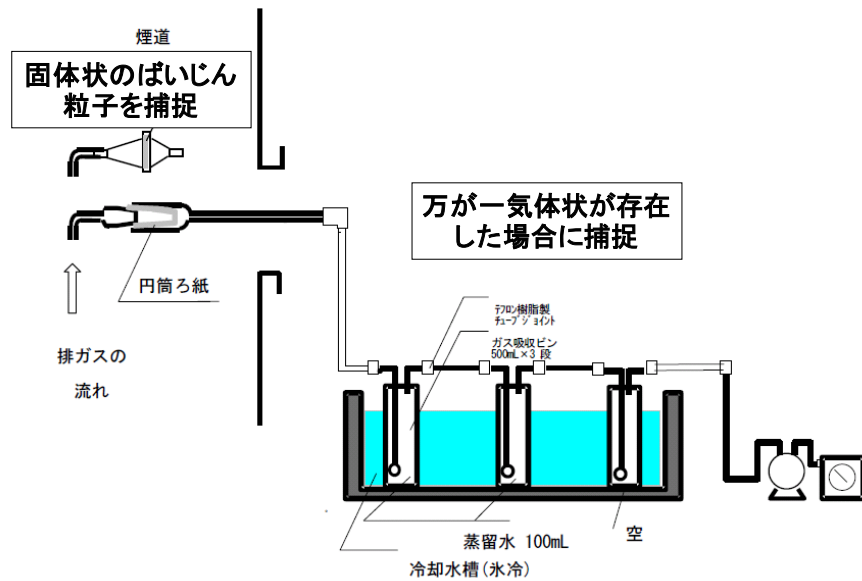


図 6.3 試料ガス採取装置の概要

表 6.2 ばいじんの規制基準からみた放射性 Cs 濃度の推定

排ガス中のばいじんの規制基準値もしくはB清掃センター実測値 (g/m ³ N)	ばいじんの放射性Cs濃度の仮定値 (Bq/kg)	ばいじん規制基準値における排ガスの放射性Cs濃度推定値 (Bq/m ³ N) *	(参考) 線量限度を定める告示**
0.04 (4t/h以上)	8,000~100,000	0.32~4	¹³⁴ Cs : 20Bq/m ³ ¹³⁷ Cs : 30Bq/m ³
0.08 (2~4t/h)		0.64~8	
0.15 (2t/h以下)		1.2~15	
0.0009~0.0016 (H22年度のB清掃センター実績値)	23,000 (7/14採取試料の1号炉飛灰測定値)	0.020~0.037	<div style="border: 1px solid green; border-radius: 10px; padding: 5px; display: inline-block;"> 排ガス濃度の基準の目安となる数値の1/1000程度になっています。 </div>

* 放射性Csはガス態で存在せず、ばいじんにて全て含まれると仮定

** 実用発電用原子炉の設置、運転等に関する規則の規定に基づく線量限度等を定める告示

6.2.5 放射性セシウムの挙動に関する理論的背景

放射性セシウムの挙動を論じる場合、焼却炉内でどのような化学形態をとっているかを把握することは重要です。しかし、放射性セシウムの質量基準の量は極めて微量であり、化学分析的な測定はほとんど困難であり、ましてや化学形態を捉えることは不可能であるといえます(安定セシウムについて把握することは可能)。

そこで、熱力学的化学平衡計算の方法を用いて、化学形態の理論的な推定を行いました。図 6.4 は、850℃の焼却炉内での計算結果です。主に塩化セシウムのガス態とアルミナシリケート(アルミナ珪酸塩)としての固体として存在する可能性が高いといえます。また、それぞれの廃棄物の種類によって元素組成が異なることから、化合物の存在割合は異なる傾向を示します。都市ごみ

では塩化セシウムが多く、下水汚泥はアルミナシリケートが支配的です。この推定結果の妥当性ですが、都市ごみ焼却炉のばいじんの溶出試験において溶出率が極めて高い一方で、下水汚泥の流動床焼却炉のばいじんの溶出率は極端に低いという現象から理解することができます。すなわち、排ガス中の気体状の塩化セシウムが冷却により固体状になってばいじんとして捕集されますが、塩化セシウムは極めて溶解度が高いことから溶出率が高くなります。一方で、下水汚泥の流動床焼却炉から排出されたばいじん中のセシウムの存在形態は、難溶性塩のアルミナシリケートであり、溶出率が低くなります。

つぎに、焼却炉内でガス態として存在する塩化セシウムが、排ガス処理過程のバグフィルター設備で、200°C以下の温度領域でもガス態として残存する可能性があるかを、塩化セシウムの蒸気圧の推定結果から論じます。図 6.5 に、塩化セシウムとダイオキシン類の蒸気圧を比較した結果を示します。塩化セシウムの低温度領域での蒸気圧は、高温領域における実測値から Clausius-Clapeyron 式に基づき外挿して推定しました。その結果、塩化セシウムの蒸気圧はダイオキシン類に対して 9~11 桁程度低く*⁶、気体としては極めて存在しにくいと考えられました。凝縮してばいじん吸着する性質はダイオキシン類よりもはるかに強いと考えられることから、現在のダイオキシン類対策が高度に進んだ排ガス処理設備(バグフィルター)では、ダイオキシン類以上に高効率で除去可能であると考えられます。

以上、セシウムの挙動を考察する上で重要となる化学形態と揮発しやすさを表す蒸気圧に関して論じました。現在、熱力学的化学平衡計算モデルの改良及び蒸気圧の直接的な測定を試みており、結果については今後改めて報告したいと考えています。

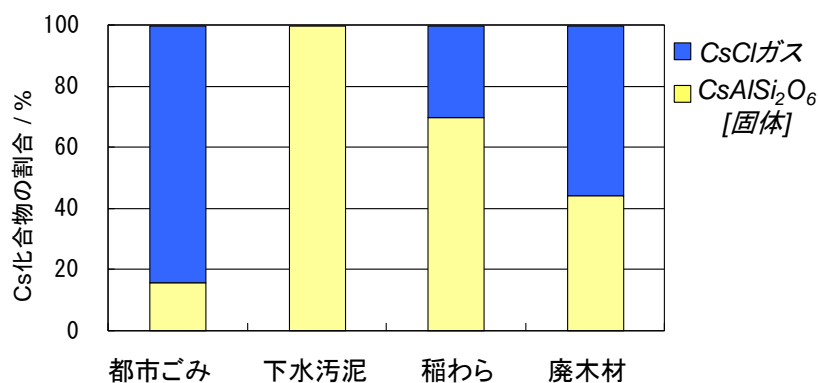


図 6.4 熱力学的化学平衡計算に基づく、850°Cの焼却炉内におけるセシウムの存在形態の推定結果

*⁶ 蒸気圧とは、その物質の気体と液体あるいは固体が平衡状態にある圧のことで、任意の温度に対して一意的に決まる。気体としての存在のしやすさを表す。ダイオキシン類の蒸気圧は実測に基づいているが、塩化セシウムは比較的低温域の実測データが存在しなかったことから、推算式を用いて蒸気圧を導出した。

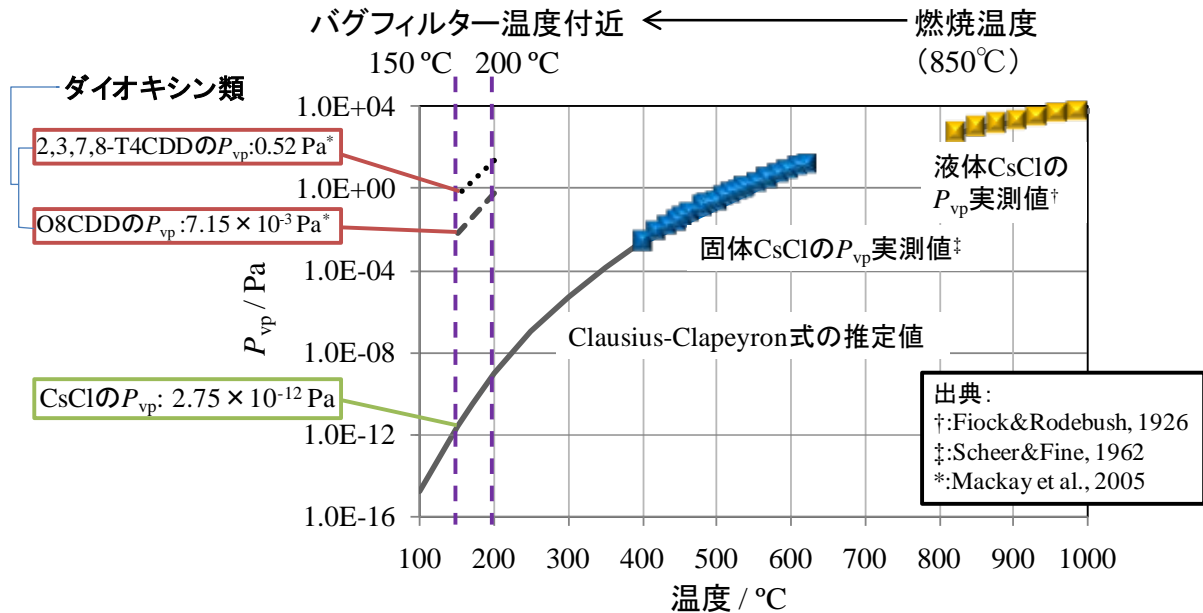


図 6.5 塩化セシウムとダイオキシン類の蒸気圧(推定値)の比較

6.2.6 無視できる周辺住民の排ガスによるリスク

これまで述べたとおり、基準が遵守され、さらに、ほとんどの場合で煙突出口の放射性 Cs 濃度は検出下限未満である点から、リスクは無視できると言ってよいと思います。しかしそれでも、「少しでも漏れると不安」という声が聞かれます。99.9%の除去率で、0.1%でも抜けるから不安という声です。

そこで、表 6.2 で示した実際の B 清掃センターを例として周辺住民の被ばく線量を試算しました。その結果は、表 6.3 のとおりです。煙突から排出された排ガスは実際には大気中で希釈され、一般公衆の居住場所では通常は無視できるレベルになります。焼却処理の期間を 10 年間として、もっとも影響が高いと考えられる土壌への沈着、蓄積による外部被ばくの影響を試算しても、年間 1 mSv の 10 万分の 1 程度の被ばくしか受けられないレベルです。周辺環境のバックグラウンドから考えなくても無視できます。

さて、99.9%除去率の話に戻りますが、もちろんこの数字は排出ゼロを意味するものではありません。例えば、1 日 100 トンのごみを焼却する施設(ストーカー炉を例)では、ばいじんは平均的には 3 トン程度発生します。仮に、このばいじんの 0.1%が除去されずに排出されたとすると、この 0.1%分は 1 日 3kg の量になります。例えば年間 300 日施設が稼働したとすると、900kg、つまり約 1 トンの量になります。99.99%除去率で 0.01%が抜けたとしても、年間 100kg のばいじんが排出されることになるのです。これらのばいじんは、後段に設置されている設備にその一部が付着します。煙突の内壁にも多少は付着すると考えられます。したがって、大気に排出される放射性セシウムを

含むばいじんは、先にも述べたとおり、一般公衆(地域住民)に対するリスクは無視できますが、バグフィルター後であっても長期的に付着し蓄積することは考えられるわけです。そのような場所で作業者が維持管理作業等を行う場合には、付着灰の飛散などに注意が必要です。

表 6.3 焼却炉排ガスによる被ばく線量の推定(B 清掃センター)

条件

<p>○排ガスの濃度：0.037 Bq/m³N (ばいじん濃度と放射能濃度から推定)</p> <p>○焼却施設条件は環境省検討会での評価に基づく</p>

試算結果

<p>1) ばいじんの外部被ばく(成人) 1.1×10⁻⁹ mSv/年</p> <p>2) 吸入による内部被ばく(成人) 7.4×10⁻⁷ mSv/年</p> <p>3) 降下粉塵による土壌からの外部被ばく(成人) 1.4×10⁻⁵ mSv/年(10年間累積の最後の1年間)</p>
--

※環境省災害廃棄物安全評価検討会第4回資料3に基づく試算

6.2.7 バグフィルターの健全性の維持

バグフィルターはろ布が張られた筒状のものであり、大規模施設では数百本が設置されています。ろ布が全く破れないということはありませんが、そのような状況にならないように、ろ布にばいじんが堆積することによる圧力損失の上昇や、重さによるろ布の脱落等を防ぐために、表面の堆積層は「パルスジェット」と呼ばれる一時的な衝撃により順次払い落とされています。払い落とし時に若干のフィルター効果の低下は考えられますが、フィルター効果を維持するためにろ布にはプレコートがなされており、大きな影響はないといえます。また、払い落としは全てのろ布に同時に行われるわけではなく、順次行われるので、全体としてのフィルター効果は維持されます。

また、ダストモニターをバグフィルターの後段に設置することで、ろ布の健全性を常に確認することができます。さらに、点検時などを利用して定期的にろ布の強度劣化や目詰まり程度を計測することで、事前の交換を行うという予防処置もとられています。

以上のような運転の下では、バグフィルターの損傷が頻繁に起こることはほとんどありませんし、常時監視がなされていることから、万が一損傷が起こった場合でも即座の対応が可能です。

6.2.8 プロセス内への蓄積挙動

施設を維持管理する作業者の安全性への配慮も必要です。放射性 Cs の設備材料等への蓄積が生じると、施設内の作業空間において、定常的な設備点検時あるいは長期的には施設更新時において十分な留意が必要になります。これに備えるために、放射性 Cs の蓄積挙動を解明するこ

とが重要です。当研究所で実施した既存施設における空間線量と付着灰の放射性 Cs の実態調査結果の一例を図 6.6 に示します。耐火物表面の付着灰の放射性 Cs 濃度が低いにもかかわらず、耐火物が存在する場所(高温になる炉内など)の空間線量が高いことがわかります。このことは、耐火物への蓄積を示唆しています。耐火物の深さ方向における濃度分布の測定結果からも、内部に浸透、蓄積している現象が確認されています。付着灰の濃度は後段に行くほど高くなっており、排ガスの冷却とともに、揮発した放射性セシウム化合物が凝縮して、固体化していくことを反映していると考えられます。同様の結果は、阿部ら³⁾も報告しています。

以上のような特性を踏まえて、作業者が維持管理を行っていくうえでの被ばく防止に留意する必要があります。

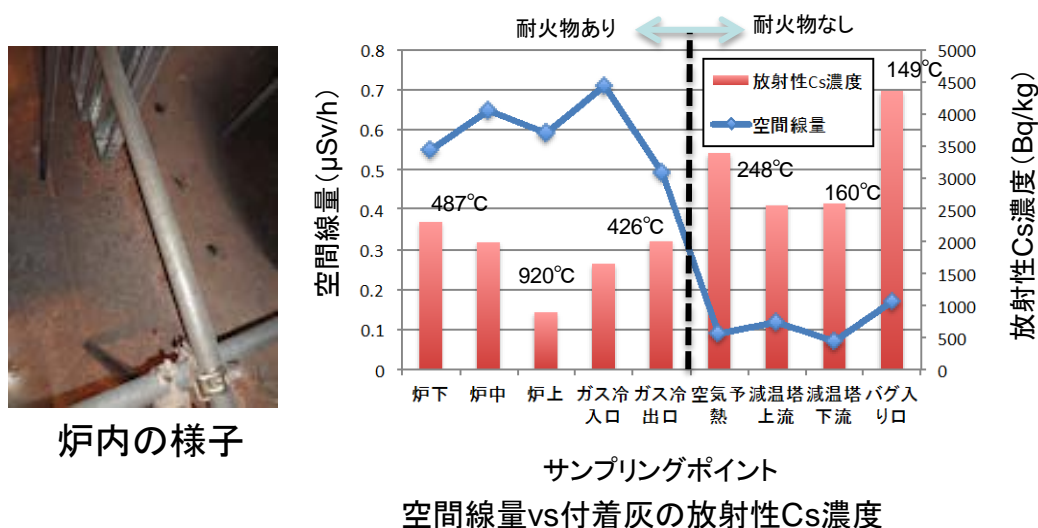


図 6.6 既存焼却施設内の空間線量と付着灰の放射性 Cs の実態調査の結果例

参考資料

- 1) 環境省第9回災害廃棄物安全評価検討会資料 11-1、11-2、
http://www.env.go.jp/jishin/attach/haikihyouka_kentokai/09-mat_4.pdf
- 2) 環境省 HP:第 13 回災害廃棄物安全評価検討会資料4、「災害廃棄物の広域処理の安全性について」、
http://www.env.go.jp/jishin/attach/haikihyouka_kentokai/13-mat_4.pdf
- 3) 阿部ら、回転表面熔融炉内の空間線量と耐火物内への放射性セシウムの浸透調査、第1回環境放射能除染学会研究発表会(2012)

6.3 焼却処理における放射性セシウムの挙動

6.3.1 はじめに

放射性セシウム (Cs) に汚染された都市ごみを焼却処理すると、放射性 Cs が濃縮された主灰と飛灰が処理残渣として生じます。放射性 Cs の濃縮割合に加えて、放射性 Cs の溶出性も主灰と飛灰とでは著しく異なります。これは、各灰に含まれる放射性 Cs の化学形態が違うことを示唆しています。また、下水汚泥の焼却灰中の放射性 Cs の化学形態についても同様に、その溶出性の違いから都市ごみの飛灰中の形態と異なり、燃やすもの、つまり、被焼却物の組成が放射性 Cs の化学形態、すなわち、Cs 塩の生成・分解挙動に影響を与えていることを意味しています。この化学形態の違いを説明するため、我々は熱力学平衡計算をこれらの焼却系に適用しました。まず、焼却施設の焼却炉を一つの系として捉えて、平衡計算を行いました。さらに、実際の焼却施設は様々な処理過程から成り立っており、施設内の全体の挙動を把握するために、マルチゾーン平衡計算を適用しました。

一方、今後計画されている汚染された農業副産物や除染廃棄物の適正な中間処理の確立には、バイオマス系被焼却物の焼却時の放射性 Cs を解明することが不可欠です。汚染された各バイオマスの燃焼に対して平衡計算を適用するとともに、ラボ熱処理実験を行い、放射性 Cs の挙動を調べました。

6.3.2 熱力学平衡計算

平衡状態とは系の全自由エネルギー G^{tot} が極小となる状態です。平衡組成を計算するには、圧力 P 、温度 T 、系を構成する成分のモル量 n を与え、熱力学パラメータ（生成自由エネルギー ΔG_f ）を用いて、ラグランジェの未定係数法にて G^{tot} が極小となる組成を求めます。ここでは、以前我々がバイオマスガス化におけるカリウム (K:セシウムと同じアルカリ金属) の挙動解析に関する研究¹ で用いた熱力学平衡計算ソフト GTT-Technologies 社の FactSage(ver6.3)² を用いて、平衡組成を計算しました。

計算で取り扱う廃棄物

計算の対象とした廃棄物は、まず、都市ごみと下水汚泥を対象とし、加えてラボ燃焼試験に供する4種類の廃棄物系バイオマス（雑草類、広葉樹落葉、針葉樹落葉、小枝）としました。計算には元素組成が必要で、元素は、C、H、O、N、S、Clの他に、F、Si、Al、Na、K、Mg、Ca、Fe、Zn、Pとしました。都市ごみと下水汚泥の組成については、表 6.3.1 に示します。さらに、4種類のバイオマスについては、組成データがないため、雑草類は牧草で、広葉樹落葉はポプラの葉で、針葉樹落葉は松葉で、小枝は廃材の組成データで代用し、それらの組成データを表 6.3.2 に示します。これらのデータは、データベースやハンドブック等を参考にして作成しました³⁻⁷。ここで、都市ごみの Cs 含有量は入手できませんので、肴倉らの焼却飛灰および主灰の組成データ⁸ から値を推定し、それを用いています。また、牧草の Cs 含有量は稲わらの含有量と同等と仮定しました。

表 6.3.1 都市ごみと下水汚泥 1kg に対する元素組成 (mol/kg)

試料	C	H	O	N	S	Cl
都市ごみ	30.52	57.37	21.04	0.704	0.0257	0.116
下水汚泥	24.87	53.04	16.86	2.884	0.4657	0.0242
試料	F	Al	Ca	Fe	K	Mg
都市ごみ	nm	2.78E-01	6.71E-01	3.65E-02	6.32E-02	7.89E-02
下水汚泥	0.0133	6.70E-01	8.59E-01	8.15E-01	5.03E-02	1.37E-01
試料	Na	P	Si	Zn	Cs	
都市ごみ	1.54E-01	2.1E-03	5.84E-01	1.27E-03	0.83E-06	
下水汚泥	6.42E-02	6.35E-01	1.05E+00	1.26E-02	5.03E-06	

表 6.3.2 バイオマス 1kg に対する元素組成 (mol/kg)

試料	C	H	O	N	S	Cl
牧草	29.52	48.66	22.25	0.12	0.0114	0.0617
ポプラの葉	30.475	49.4	27.725	2.028	0.0688	0.4986
松葉	30.52	57.37	21.04	0.704	0.0257	0.116
廃木材	39.04	57.40	28.04	0.302	0.0123	0.0189
試料	F	Al	Ca	Fe	K	Mg
牧草	na	6.77E-03	2.96E-02	3.27E-03	1.17E-01	1.50E-02
ポプラの葉	na	5.12E-03	4.64E-01	3.99E-03	1.53E+00	1.74E-01
松葉	na	2.15E-02	6.24E-02	8.24E-04	1.07E-01	2.01E-02
廃木材	0.0010	1.17E-02	7.45E-02	6.92E-03	1.71E-02	1.30E-02
試料	Na	P	Si	Zn	Cs	
牧草	4.37E-02	2.65E-02	1.87E+00	1.26E-04	4.00E-07	
ポプラの葉	1.86E-01	1.60E-01	2.72E-02	-	4.34E-07	
松葉	2.74E-03	3.45E-02	5.02E-02	-	2.11E-06	
廃木材	2.22E-02	2.10E-03	1.00E-01	3.49E-03	1.0E-07	

(1) Cs の挙動を再現するための平衡計算法の確立

FactSage には、Cs 化合物に関する熱力学パラメータが少ないことから、市販の状態での平衡計算を行うと、Cs はすべて塩化セシウム (CsCl) ガスとして揮発してしまう結果となります。そこで、本研究では、K の挙動を参考にして Cs の熱力学パラメータを整備しました。パラメータ整備後に、都市ごみおよび下水汚泥の焼却系について平衡計算を行い、実際の挙動と一致するかどうか確認しました。実際の挙動と一致した場合には、さらに、ラボ熱処理

実験を行う対象（雑草類、落葉（広葉樹）、落葉（針葉樹）、小枝）にこの計算法を適用しました。

(2) マルチゾーン平衡計算

マルチゾーン平衡計算とは、焼却施設の重金属の挙動を把握するために Ginsberg らが提案したモデル⁹です。このモデルを一般廃棄物焼却施設へ適用することにより、Cs の挙動を理解することを試みました。まず、ストーカ炉型の焼却施設を図 6.3.1 のように 3 つのゾーン（一次燃焼ゾーン、二次燃焼ゾーン、バグフィルターゾーン）に分け、さらに、一次燃焼ゾーンを 4 つのゾーン（乾燥、熱分解、燃焼、おき燃焼）に分け、焼却施設を計 6 つのゾーンに分けました。各ゾーンに対して熱力学平衡計算ソフト FactSage (Ver. 6.3) を用いて平衡計算を行っています。各ゾーンの温度や空気比(=投入空気量/完全燃焼に必要な空気量)、つまり、燃焼条件は図 6.3.2 のように設定しました。各ゾーンの計算内容を簡単に説明します。まず、ごみを投入すると乾燥ゾーンに入ります。最も上流側の乾燥ゾーンでは、水分が蒸発すると仮定しています。次の熱分解ゾーンでは、乾燥したごみが熱分解して低分子となって揮発化すると仮定しています。ここでは、ごみが熱分解した割合、すなわち変換率 (R_c) を設定しています。 R_c については、Ginsberg らの文献値⁹を参考にして、0.7-0.8 としました。燃焼ゾーンでは、熱分解後の固形残さを燃焼すると仮定しています。ここではさらに、変換率に加えて燃焼ガスへの灰の混入率 (φ) を設定しています。 φ については、肴倉らが報告している一般廃棄物の主灰と飛灰の発生量と元素組成データ⁸から揮発しない元素を選び、飛灰への移行率を計算し、その値を φ としています。最後に、おき燃焼ゾーンでは、未燃焼炭素を燃やすと仮定しています。一方、一次燃焼後については、二次燃焼ゾーンでは、 φ 分の灰と一次燃焼の各ゾーンからの排ガスを初期値として、高温で完全燃焼させる仮定となっています。最後のバグフィルターゾーンでは、二次燃焼後の排ガスのみが 170°C へ急冷されるという平衡計算になっています。マルチゾーン平衡計算の評価・考察は二段階で行いました。まず、二酸化炭素等の主要排ガス成分を計算し、既存のデータと比較しました。次に、Cs を含む無機元素の各種灰の含有率を計算し、我々の調査結果と比較しました。

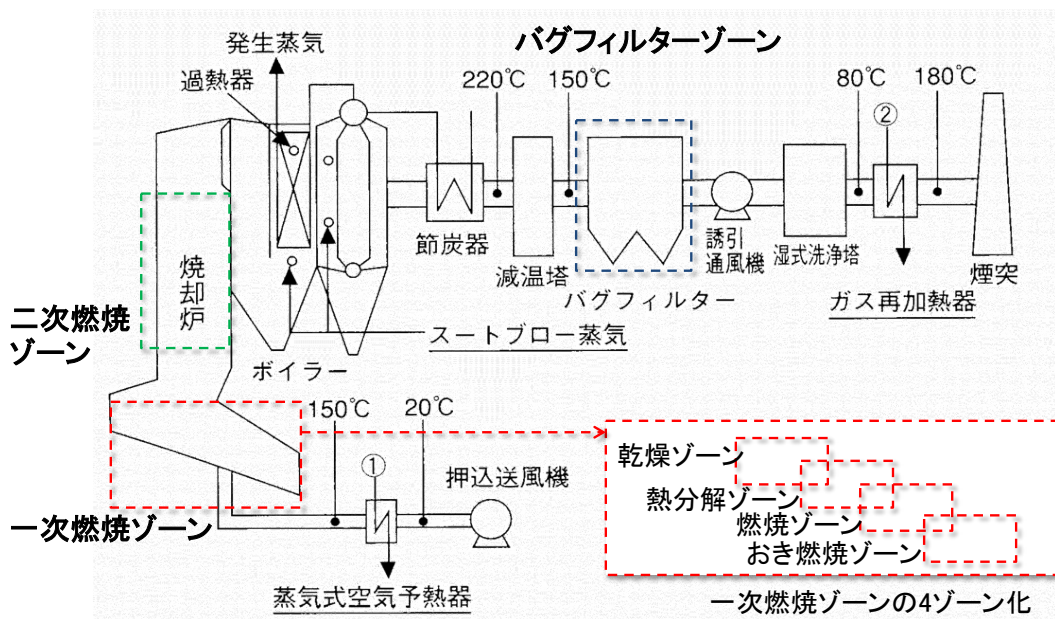


図 6.3.1 ストーカー炉型の焼却施設のゾーン分け（施設概略は参考文献 10 から引用）

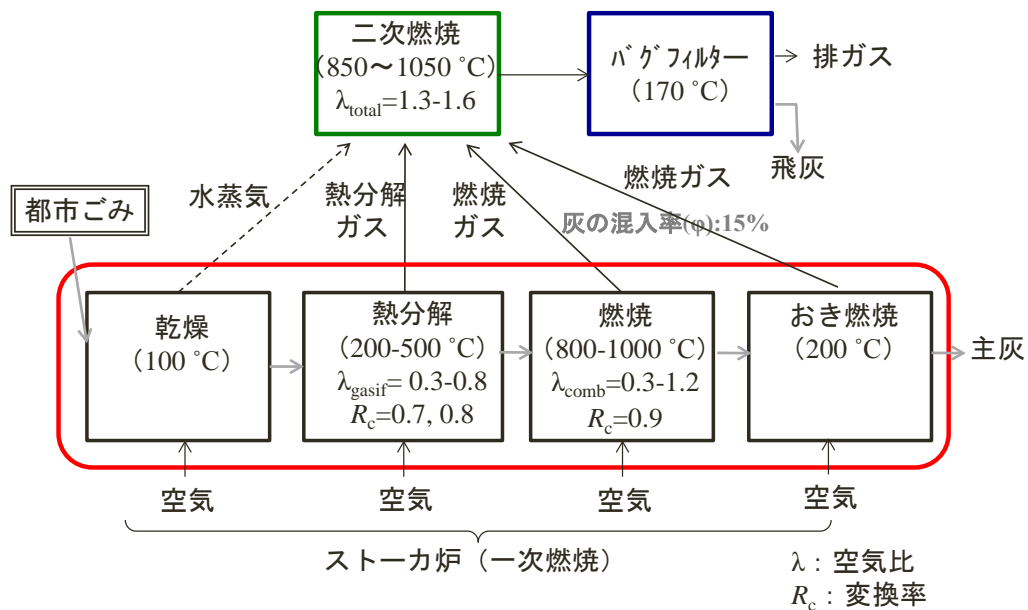


図 6.3.2 ストーカー炉に対するマルチゾーン平衡計算のフローと計算条件

(3) バイオマスごとのラボ熱処理実験

A 市処分場において野積みされた草、落葉、小枝などを採取し、それらを室内にて2週間風乾させました。雑草類、広葉樹の落葉、針葉樹の落葉、小枝を裁断もしくは粉碎し、熱処理するサンプルを調製しました。調製したサンプルを図 6.3.3 に示します。小枝は細かく

粉碎するとバークとそれ以外の部分が均一に混じらないように見えたことから、1cm 程度に切り落としたものをサンプルとしました。90×90mm のアルミナ容器にサンプルを入れ、図 6-3-4 のマッフル炉(ヤマト科学、FO100、炉内：100×100×170mm)を用いて熱処理しました。放射性 Cs の分析では、灰の体積として U8 容器の高さ 5mm ほどの体積が必要になるため、仕込み量を 5g～13g とし、燃焼処理および炭化処理を行いました。燃焼処理では、空気を約 1～2L/分で流しながら、約 10°C/分でサンプルを昇温し、目的の温度に達したところで 1 時間 30 分間その温度を保持しました。空冷後に灰を U8 容器に移し、ゲルマニウム半導体検出器を用いて灰中の放射性 Cs 濃度を測定しました。処理前後の重量を測定し、灰化率および炭化率を算出しました。

得られた熱処理残渣に対して溶出試験を行い、処理温度と灰からの放射性 Cs の溶出性を調べました。溶出試験では、残渣に対して 50～200 倍の超純水を添加し、6 時間振とうさせました。振とう後に溶出液を 0.45 μ m フィルターでろ過し、ゲルマニウム半導体検出により液中の放射性 Cs 濃度を測定しました。測定値と超純水の添加量から溶出率を決定しました。また、溶出液の電気伝導度および pH を測定しました。



図 6.3.3 熱処理するサンプル (左から雑草類、広葉樹の落葉、針葉樹の落葉、小枝)

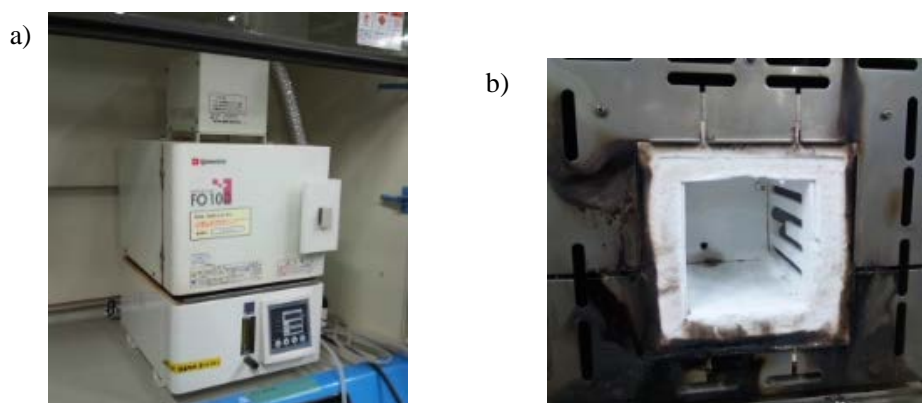


図 6.3.4 熱処理に用いたマッフル炉(a)と炉内(b, 100×100×170mm)

6.3.3 結果と考察

(1) Cs の挙動を再現するための平衡計算法の確立

我々のこれまでの研究¹¹において、都市ごみ、下水汚泥、廃木材の平衡計算結果では、K はアルミノシリケート (KAlSi_2O_6) として主灰へ固定化されることから、Cs のアルミノシリケート ($\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$) の熱力学パラメータを新たに加えることを検討しました。また、草の平衡計算では、K のシリケート ($\text{K}_2\text{Si}_4\text{O}_9$) が生成されることから、三種類の Cs のシリケート (Cs_2SiO_3 、 $\text{Cs}_2\text{Si}_2\text{O}_5$ 、 $\text{Cs}_2\text{Si}_4\text{O}_9$) も同様に加えました。シリケートのデータは入手できましたが、Cs のアルミノシリケートのデータは入手が困難であることから、Ogorodova らの pollucite の熱力学データ¹²を代用しました。

FactSage の熱力学データベースに Cs のアルミノシリケートとシリケートを加え、平衡計算によって得られた Cs の挙動の結果を図 6.3.5 に示します。熱力学データベースに修正を加える前は、CsCl ガスしか生成しない計算結果でしたが、データベースを修正することによって、アルミノシリケートとして Cs が灰に固定される可能性を示すことができました。すなわち、放射性 Cs の主灰への濃縮を再現できました。また、Cs の挙動は K の挙動 (図 6.3.6) と同様な結果、つまり、都市ごみを燃やすと Cs は塩化物のガスとアルミノシリケートの固体として存在し、下水汚泥を燃やすとアルミノシリケートのみが存在する結果となりました。塩化物は易溶性であり、一方アルミノシリケートは難溶性であるため、それぞれの溶解性が灰からの溶出挙動の結果¹を定性的に説明でき、平衡計算の結果は妥当なものと考えられます。ただし、アルミナシリケートは多様な構造を有することから、構造の違いを踏まえて熱力学パラメータを精緻化する予定です。

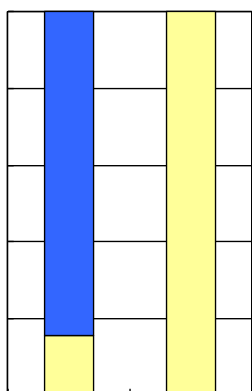


図 6.3.5 Cs に関する平衡計算結果
(燃焼温度 : 850°C)

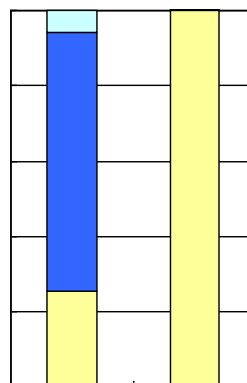
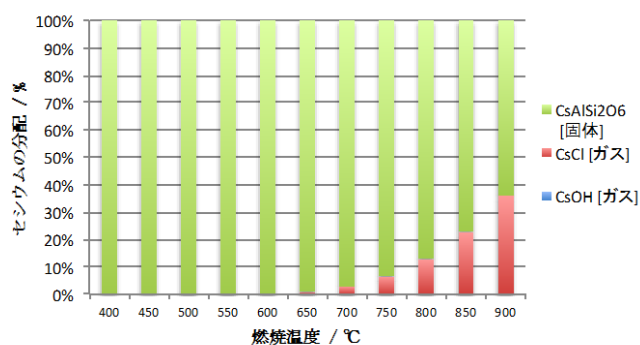
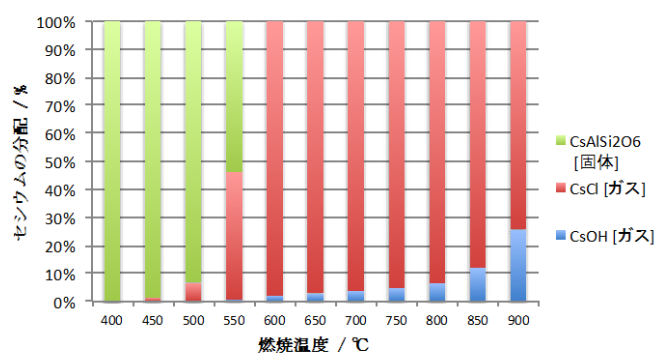


図 6.3.6 K に関する平衡計算結果
(燃焼温度 : 850°C)

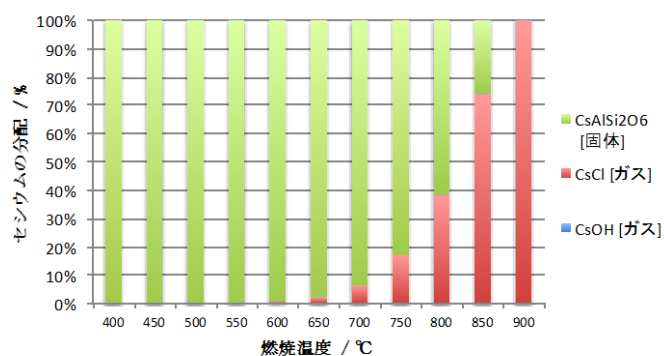
a) 牧草



b) ポプラの葉



c) 松葉



d) 廃木材

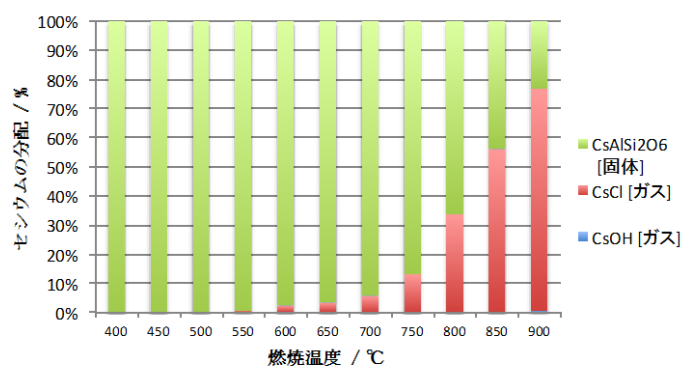


図 6.3.7 バイオマスごとの燃焼温度とセシウムの分配挙動に関する平衡計算結果
(上から、a) 牧草、b) ポプラの葉、c) 松葉、d) 廃木材)

良好な計算結果が得られましたので、牧草、ポプラの葉、松葉、廃木材を燃やした条件を計算しました。その結果を図 6-3-7 に示します。全体的な傾向として、低温にてアルミノシリケートが生成し易く、温度が高くなるとアルミノシリケートが分解し、CsCl や水酸化セシウム (CsOH) ガスが生成される結果となりました。ただし、それらのガスが発生する温度や量はバイオマスごとに異なり、Cs の挙動も被焼却物の組成依存性が示唆されました。また、図 6-3-8 に示す K の挙動と比較しますと、通常の焼却温度、すなわち 850°C については、Cs と K の挙動は似ていますが、低温下においては化学種の生成挙動がかなり違っていています。したがって、様々な熱処理条件を予想するには、K の挙動を Cs の挙動として予測することに限界があることもわかりました。

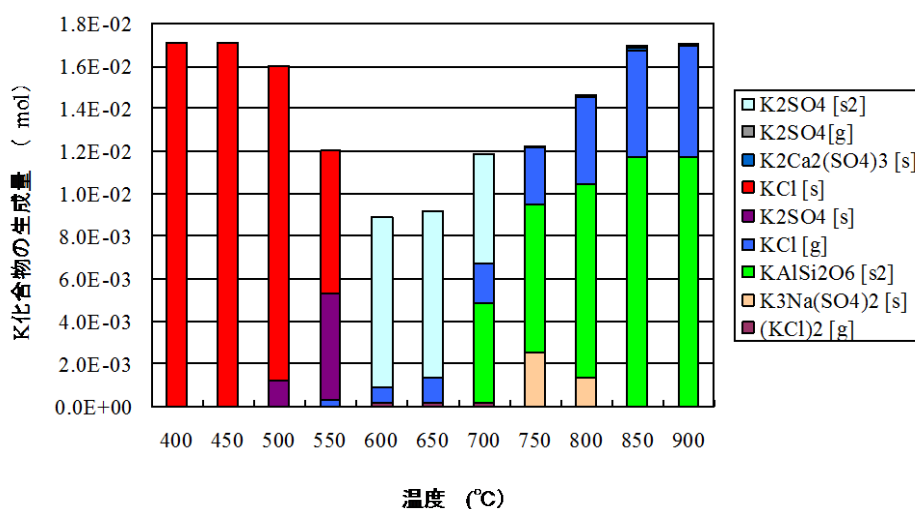


図 6.3.8 廃木材の焼却時の温度と K 化合物の生成量
(s もしくは s2 : 固体、g : ガス)

(2) マルチゾーン平衡計算の適用

まず、一次燃焼の入力パラメータとして未知である排ガス中の灰の混入率 (ϕ) を計算しました。 ϕ は揮発しない元素の飛灰への移行率とし、不揮発性元素としてケイ素 (Si) とアルミ (Al) としました。計算は次式で行いました。

$$\phi = \text{不揮発性元素} A \text{の移行率} = \frac{FA \times C_{FA}}{FA \times C_{FA} + BA \times C_{CBA}} \quad (1)$$

ここで、 FA と BA はそれぞれ飛灰と主灰の発生量、 C_{FA} と C_{CBA} は飛灰および主灰中の不揮発性元素 A の濃度を示しています。それらの値は肴倉らの焼却施設の調査結果⁸から引用し、計算結果を表 6.3.3 に示します。計算結果より、 ϕ を 0.15 としました。

表 6.3.3 飛灰と主灰の発生量、灰中の Si と Al の含有量、各金属の移行率

	主灰	飛灰
発生量 (t)	381.5	143.5
Si の含有量 (g/kg)	191	82.6
Al の含有量 (g/kg)	60.7	29.4
Si の移行率	0.140	0.860
Al の移行率	0.154	0.846

次に、表 6.3.4 のごみ組成を入力し、図 6-3-2 の条件でマルチゾーン平衡計算を行いました。まず、結果の妥当性を検討するため、主要排ガス成分である一酸化炭素 (CO)、二酸化炭素 (CO₂)、酸素 (O₂)、水蒸気 (H₂O)、水素 (H₂)、塩化水素 (HCl) の排ガス濃度に対して計算値と文献値を比較しました。良好な結果の一例を図 6.3.9 に示します。また、各ゾーンに対する比較結果を表 6.3.5 と 6 に示します。計算で得られた主要排ガス成分の濃度は、文献値と概ね一致しました。

表 6.3.4 マルチゾーン平衡計算の都市ごみ組成

元素	含有量 /wt%
C	25
H	4.0
O	21
N	0.56
S	0.080
Cl	0.20
Ca	0.80
P	0.018
Na	0.23
K	0.10
Si	1.8
Al	1.2
Mg	0.036
Fe	0.22
Cs	5.9・10 ⁻⁶

表 6.3.5 一次燃焼ゾーンの主要排ガス組成の計算結果と文献値

ガス成分	熱分解 /vol%	一次燃焼 /vol%	文献値 /vol%
CO	0.2	-	0.1-0.3 ¹⁴ 2-6 ¹³
CO ₂	10	14	14-16 ¹³
O ₂	4.4	4.6	1.4-4.8 ¹³
H ₂ O	18	6	15-28 ¹³
H ₂	5.5	-	4.1-7.2 ¹³
HCl	0.05	0.03	0.05-0.07 ¹³

表 6.3.6 二次燃焼ゾーンの主要排ガス組成の計算結果と文献値

ガス成分	計算値 /vol%	文献値 ¹³ /vol%
CO	0.005	0.02-0.08
CO ₂	11	8.6-15
O ₂	3.2	6-12
H ₂ O	23	14-25
H ₂	-	-
HCl	0.024	-

また、マルチゾーン平衡計算で得られた飛灰もしくは主灰中の各無機元素の含有率を図 6.3.9 に、施設調査から得られたそれぞれの含有率を図 6.3.10 に示します。Cs の計算結果は比較的良好に実測値と一致し、本計算法が Cs の挙動に関して有用な推算法となる可能性が示唆されました。他の元素については、概ね定性的には飛灰と主灰の違いを再現しましたが、ケイ素や鉄等に関しては定量的に問題があり、今後この点を修正していく必要があります。例えば、実施設の操作条件をヒアリングし、温度や空気比の調整を検討する予定です。

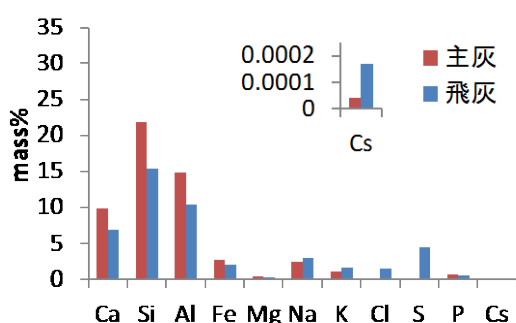


図 6.3.9 マルチゾーン平衡計算による主灰もしくは飛灰中の無機元素の重量分率 (mass%)

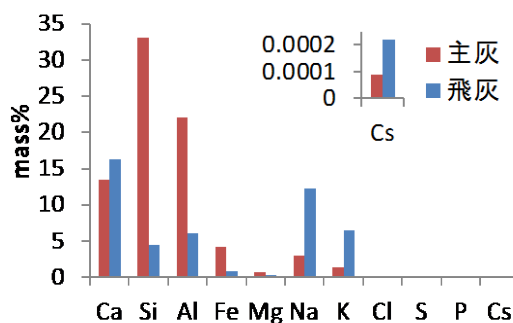


図 6.3.10 マルチゾーン平衡計算による主灰もしくは飛灰中の無機元素の重量分率 (mass%)

焼却灰の放射性 Cs レベルにより、灰の処分方法も異なってくることから、飛灰もしくは主灰中の放射性 Cs 濃度を制御するニーズがあります。実際の運転で調整できる空気比および温度です。まず、温度については、比較的容易に変更できることから、その影響を検討してみました。一次燃焼温度を変化させた場合の各ゾーンの放射性 Cs の組成の変化を図 6-3-11 に、各種灰への移行率を 6.3.12 に示します。燃焼温度を高く設定すると、燃焼ゾーンから CsCl として Cs の一部がガス化し、それらが冷却過程で固体化する結果となりました。したがって、燃焼温度を高くすればするほど、飛灰中の放射性 Cs 濃度および飛灰への移行率が高くなることが示唆されました。燃焼温度を高く設定することは、飛灰へ放射性 Cs を濃縮する方法として有効かもしれません。

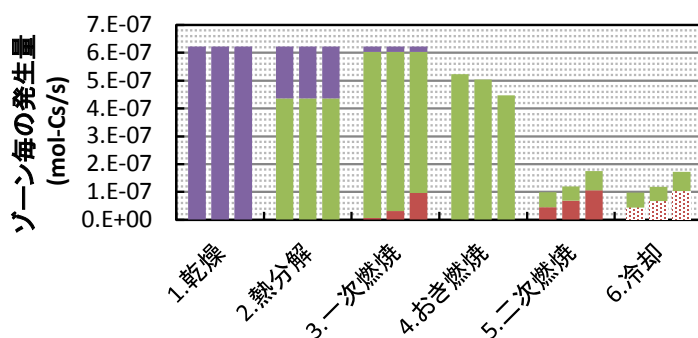


図 6.3.11 一次燃焼温度が各ゾーンの Cs の化学形態および発生量へ与える影響

($\lambda=1.3$ 、一次燃料温度は左から 800°C、900°C、1000°C)

- A/CsCl_solid-a(s) ■ Cs(MSW)
- A/gas_ideal/CsCl ■ A'/CsAlSi2O6'_solid(s)

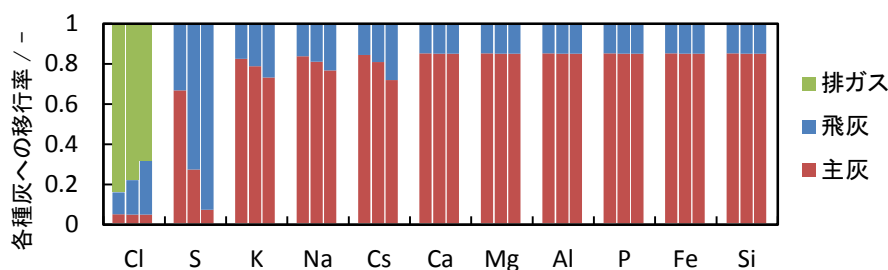


図 6.3.12 一次燃焼温度が各ゾーンの Cs の主灰および飛灰の移行率への影響
($\lambda=1.3$ 、左から一次燃焼温度は 800°C、900°C、1000°C)

また、空気比の影響を検討した結果を図 6.3.13 に示します。空気比が 1 より低い、つまり、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が示唆されました。焼却処理としてこの程度の低空気比で運転するのは困難ですが、一次燃焼の各ゾーンの空気量の割り振りを調整することで、Cs を飛灰へより濃縮させる方法があるかもしれません。ただし、空気比と炉内温度は独立な関係ではないことから、実際の操作ではその関係を踏まえた操作条件の設定が必要になります。

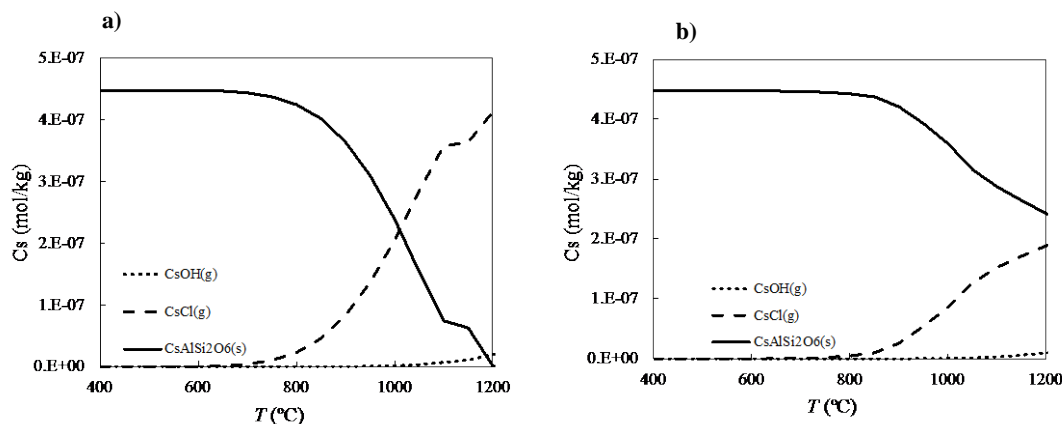


図 6.3.13 平衡計算を用いた空気比 (λ) が Cs の挙動に与える影響 (g : ガス、s : 固体)
a) : $\lambda=0.8$ 、b) : $\lambda=1.6$

さらに、我々のこれまでの研究¹¹で検討した影響因子(塩素(Cl)濃度やカルシウム(Ca)/Si比)の影響を単純な平衡計算により検討しました。その結果を図 6.3.14～16 に示します。影響因子となる元素については、図 6.3.14 のように、Cl 濃度を高くすると、CsCl ガスの揮発量は増しますが、今回の計算では、図 6.3.15 と 16 のように、Cl よりも Ca や Si の効果が大きいことが示されました。Cs を主灰へ固定化させるためには、Si 濃度を高く、Ca 濃度を低くする方法が有効と予想されます。一方、飛灰へ濃縮するには、Si 濃度を低くすることが有効と考えられます。ただし、これらの効果も被焼却物の組成との関係で大きく変化する可能性もあり、組成ごとにこれらの影響を把握することが必要です。最終的にはマルチゾーン平衡計算によって飛灰と主灰への分配率へどう反映されていくのかを計算する予定です。

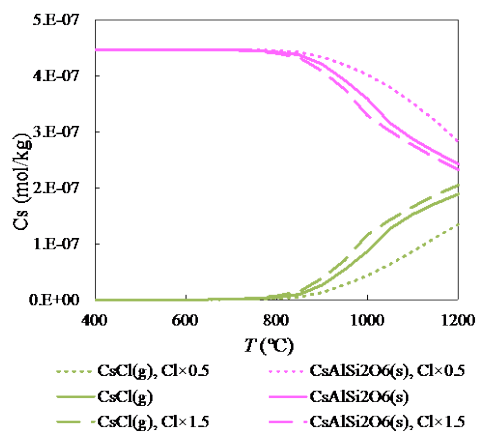


図 6.3.14 Cl 量が Cs の挙動に与える影響 (平衡計算結果、g : ガス、s : 固体、 $\lambda=1.6$)

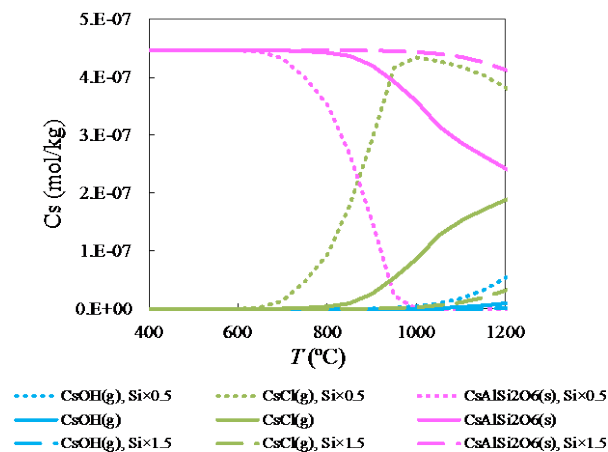


図 6.3.15 Si 量が Cs の挙動に与える影響 (平衡計算結果、g : ガス、s : 固体、 $\lambda=1.6$)

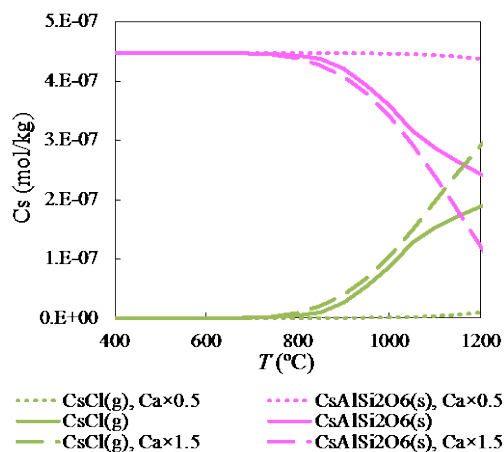


図 6.3.16 Ca 量が Cs の挙動に与える影響 (平衡計算結果、g : ガス、s : 固体、 $\lambda=1.6$)

(3) バイオマスごとのラボ熱処理実験

雑草類、広葉樹の落葉、針葉樹の落葉、小枝の燃焼処理前の状態と処理結果をそれぞれ図 6.3.17 と表 6.3.7 に示します。サンプルの放射性 Cs 濃度については、小枝の濃度は 200～400Bq/kg のレベルで比較的 low、残りのサンプルは 1400～2000Bq/kg のレベルとなり、一桁高い量を含っていました。燃焼処理による灰化率は、雑草類、広葉樹の落葉、針葉樹の落葉、小枝の順に低下し、小枝の灰分がかなり低いことがわかりました。



図 6.3.17 燃焼後の状態（左から雑草類、広葉樹の落葉、針葉樹の落葉、小枝）

表 6.3.8 に、燃焼後に残存する灰中の放射性 Cs 濃度、放射性 Cs の濃縮率や灰への移行率を示します。燃焼温度が高いほど灰中の放射性 Cs 濃度は低下する傾向、つまり、灰への濃縮が低下する傾向になりました。小枝は灰化率が低いことから、濃縮率は高く、小枝の灰には 11 倍～44 倍も放射性 Cs が濃縮されました。一方、他のバイオマスでは、2.5 倍～14 倍の濃縮が観察されました。図 6.3.18 に灰への移行率を示します。基本的には燃焼温度の上昇に伴い、灰への移行率は低下しました。ただし、草だけは灰への移行率がかなり高いことがわかりました。濃縮率と移行率の点から、バイオマス系の除染廃棄物の焼却では、小枝を含む場合には主灰への濃縮率が高くなること、草の場合には主灰への移行率が高くなる可能性があります。それらの結果として主灰中の放射性 Cs 濃度が高くなる可能性があります。その点については注意が必要です。また、灰への移行率の挙動は、温度の上昇に伴って固体である Cs アルミノシリケートが CsCl ガスへ分解・生成する熱力学平衡計算の結果（図 6.3.7 参照）と定性的に一致していました。そこで、平衡計算から得られた Cs の灰への移行率を図 6.3.19 に示します。実験で得られた移行率の変化を概ね再現できていると考えられ、本研究で行った平衡計算の有用性が確認されました。ただし、500℃の低温燃焼でも小枝以外のバイオマスでは、放射性 Cs の 10～20%分が揮発していたことから、これは平衡計算で反映できていない部分であり、今後この原因を解明する予定です。例えば、既存のデータを含む被燃焼物の溶出試験結果では、表 6.3.9 のように、放射性 Cs の溶出が確認されるケースも多くあり、易溶性かつ揮発性の Cs 塩が表面に付着して、それらの Cs 塩が揮発した可能性も考えられます。

バイオマスごとに移行率を比較すると、その挙動が大きく異なります。したがって、組成の依存性は大きく、この原因を理解できれば、Cs の挙動もある程度制御できるものと期待

されます。積極的に飛灰へ移行させるのであれば、広葉樹のような組成バランスで高温領域にて焼却すべきであり、逆に主灰へ移行させたい場合には、雑草類の組成に近づけ、低温側で焼却することが望ましいのではないかと考えられます。

表 6.3.7 バイオマスの燃焼処理前と燃焼処理後の状態

被燃焼物 (バイオマス)	処理前の状態					処理後		
	燃焼量 / g	Cs134 濃度 / Bq/kg	Cs137 濃度 / Bq/kg	放射性 Cs 濃度 / Bq/kg	放射性 Cs 含有量 / Bq	燃焼温度 / °C	灰 / g	灰化率 / -
雑草類	5.12	599	844	1433	7.34	500	0.36	7.03
	5.21	599	844	1433	7.47	650	0.28	5.37
	5.13	599	844	1433	7.35	850	0.37	7.21
落葉 (広葉樹)	5.23	646	819	1465	7.66	500	0.38	7.27
	5.40	646	819	1465	7.91	650	0.43	7.96
	5.01	646	819	1465	7.34	850	0.34	6.79
落葉 (針葉樹)	13.31	681	1,250	1931	25.70	500	0.8	6.01
	13.24	681	1,250	1931	25.57	650	0.71	5.36
	22.56	681	1,250	1931	43.56	850	1.2	5.32
小枝	29.90	86	148	234	7.00	500	0.72	2.41
	25.82	144	230	374	9.66	650	0.49	1.90
	25.76	89	115	205	5.28	850	0.54	2.05

表 6.3.8 バイオマスの燃焼における放射性 Cs の灰中の濃度、濃縮率および移行率

被燃焼物 (バイオマス)	燃焼温度 / °C	灰の Cs134 濃度 / Bq/kg	灰の Cs137 濃度 / Bq/kg	灰の放射性 Cs 濃度 / Bq/kg	放射性 Cs の濃縮率 / -	灰の放射性 Cs 含有量 / Bq	放射性 Cs の灰への移行率 / -	放射性 Cs の揮発率 / -
雑草類	500	7,366	10,163	17,529	12.23	6.3	0.86	0.14
	650	8,752	11,319	20,071	14.01	5.6	0.75	0.25
	850	5,485	8,008	13,493	9.42	5.0	0.68	0.32
落葉 (広葉樹)	500	6,837	9,555	16,392	11.19	6.2	0.81	0.19
	650	5,253	7,192	12,445	8.49	5.4	0.68	0.32
	850	1,672	2,017	3,689	2.52	1.3	0.17	0.83
落葉 (針葉樹)	500	11,315	15,070	26,385	13.66	21.1	0.82	0.18
	650	7,580	9,452	17,032	8.82	12.1	0.47	0.53
	850	5,126	7,336	12,462	6.45	15.0	0.34	0.66
小枝	500	4,020	6,197	10,217	43.66	7.4	1.05	-0.05
	650	6,195	10,104	16,299	43.58	8.0	0.83	0.17
	850	903	1,512	2,415	11.78	1.3	0.25	0.75

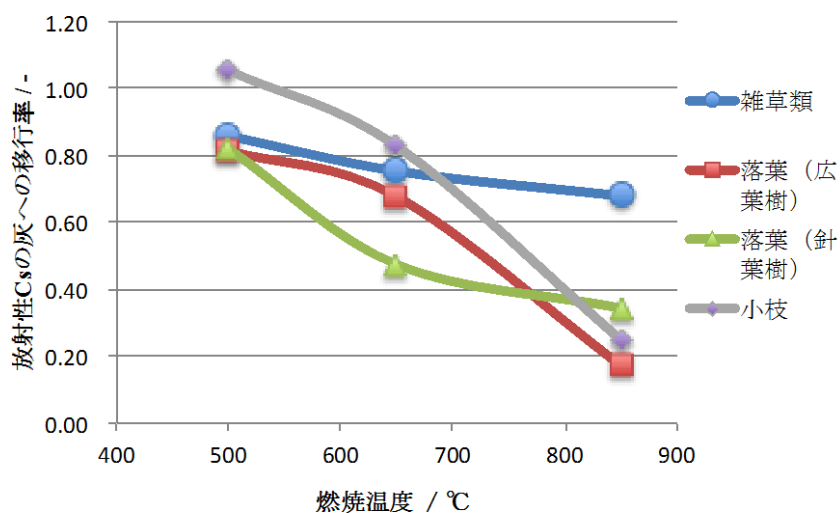


図 6.3.18 汚染されたバイオマス燃焼実験における放射性 Cs の灰への移行率

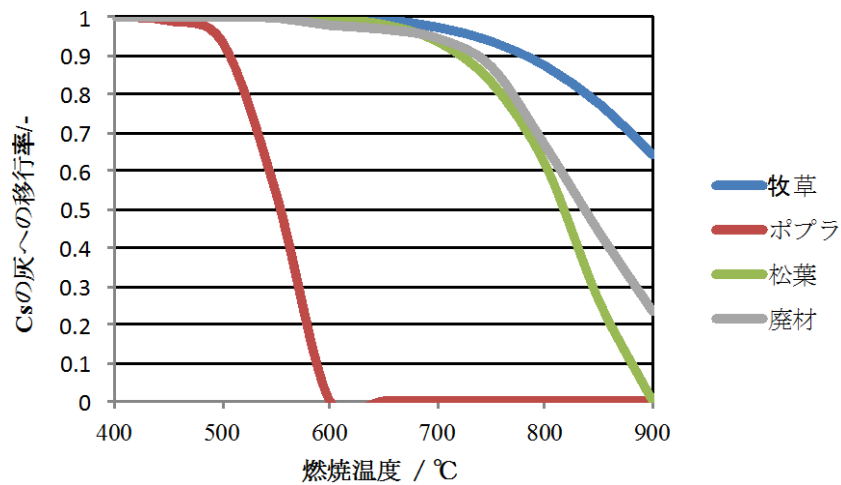


図 6.3.19 平衡計算によるバイオマス燃焼における放射性 Cs の灰への移行率

表 6.3.9 被焼却物の溶出試験結果

被焼却物	都市ごみ	雑草類	落葉 (広葉樹)	落葉 (針葉樹)	木質 (廃材、小 枝)
溶出率 / %	7.1	5.6, <8.5	14.5, 9.4	16.2, 11.0	23 ¹⁵ , <2.2 ¹¹ , 47.3

上添字は文献番号。木質は樹皮の有無で、大きく変化する可能性があります。

炭化処理の結果を表 6.3.10 と表 6.3.11 に示します。400°Cの低温炭化の場合には、その移行率は 500°Cの低温燃焼の灰への移行率とほぼ等しいですが、炭としての残渣量が多いことから、濃縮率は燃焼よりも低い結果となりました。ただし、炭化率（炭化物に変換される割合）はバイオマスによってかなり違い、炭化率の低い雑草類の場合には高濃度濃縮が生じることから、この点には注意が必要です。また、400°Cという低温炭化の結果でも放射性 Cs の 15%～25%程度は揮発しており、500°C燃焼の結果と比べて同等以上の揮発性が示されています。燃焼よりも炭化の方が揮発率が高い点は平衡計算でも示されていることから、還元雰囲気による揮発性促進も原因の一つではないかと考えられます。

表 6.3.10 バイオマスの炭化処理前と燃焼処理後の状態

被炭化物	炭化量 / g	Cs134 濃度 / Bq/kg	Cs137 濃度 / Bq/kg	放射性 Cs 濃度 / Bq/kg	放射性 Cs 含有量 / Bq	炭化温度 / °C	炭 / g	炭化率 /
雑草類	3.14	599	844	1433	4.50	400	0.3	0.0955
落葉 (広葉樹)	4.97	646	819	1465	7.28	400	1.26	0.254

表 6.3.11 バイオマスの炭化における放射性 Cs の炭化物中の濃度、濃縮率および移行率

被炭化物	炭化物の Cs134 濃度 / Bq/kg	炭化物の Cs137 濃度 / Bq/kg	炭化物の放射性 Cs 濃度 / Bq/kg	炭化物の放射性 Cs 含有量 / Bq	放射性 Cs の濃縮率 / -	放射性 Cs の灰への移行率 / -	放射性 Cs の揮発率 / -
雑草類	5,946	6,787	12,733	3.8	8.89	0.85	0.15
落葉 (広葉樹)	1,906	2,488	4,394	5.5	3.00	0.76	0.24

燃焼処理で得られた灰と炭化処理で得られた炭の溶出試験を行い、その結果を表 6.3.12 に示すとともに、燃焼処理後の灰の溶出率の結果を図 6.3.20 に示します。雑草類の溶出率は、他のバイオマスと比べて特異的な挙動を示しており、酸化・還元処理によらずどの処理温度に対しても溶出率はかなり低く、6%未満となりました。特異的な傾向は、溶出液の電気伝導度や pH からみても、それらの値がどの条件でもほぼ一定であり、他のバイオマスの結果よりも低い結果となっています。これは他の元素を含めて溶出率が低いことを意味しています。図 6.3.21 と 22 に溶出率と電気伝導もしくは pH の関係を示します。両値ともに増加すると溶出率が増加する傾向となりました。溶出率が高い場合には、無機塩の溶出も高いことが示唆されています。

他のバイオマスの溶出率は 15%~36%になり、都市ごみの主灰の溶出率に比べて比較的高い値を示しました。500°Cよりも 650°Cで処理した方が溶出率は高くなる傾向となりましたが、これは 650°Cで易溶性塩の生成量が増えているか、もしくは灰化率の減少分による易溶性塩の濃度増加によるものと推察されます。また、海外のこれまでの知見¹⁶においても、汚染された植物の野焼きを対象として、その残渣からの放射性 Cs の溶出性は本実験結果と同等レベルであったことが報告されており、今回の結果が特異なものではないと考えています。一方、850°C処理の場合には、小枝以外は、溶出液中の放射性 Cs 濃度のほとんどが検出限界以下であり、850°Cで処理した灰から放射性 Cs はほとんど溶出しない可能性が示唆されました。これは都市ごみ主灰の結果と同じ結果となります。高温処理された主灰から放射性 Cs が溶出しない原因として、850°Cの条件では、易溶性と揮発性を併せ持つ Cs 塩がほぼ

完全に揮発するためと考えられ、同時に、それらの塩は低温（例えば、500℃程度）では十分揮発できない可能性が考えられます。そこで、易溶性の放射性 Cs 塩を含む飛灰の加熱試験を行い、揮発性を検討してみました。その結果、図 6.3.23 のように、500℃で 20 時間加熱してもほとんど揮発しないことが確認されました。また一方、この加熱実験は、バグフィルターや飛灰のダイオキシン分解処理装置においても Cs 塩がガス状物質として揮発しない可能性も示唆しています。

表 6.3.12 熱処理残渣の溶出試験結果

被燃焼物	放射性 Cs 濃度 / Bq/kg	処理温 度 /°C	液固 比	電気伝導 度 / mS/m	pH / -	Cs134 濃度 / Bq/kg	Cs137 濃度 / Bq/kg	放射 性 Cs 濃度 / Bq/kg	溶出率 /-
雑草類	17,529	500	200	0.81	10.85	ND(2.68)	2.85	<5.53	<0.06
	20,071	650	200	1.15	11.62	ND(2.87)	3.40	<6.27	<0.06
	13,493	850	200	0.83	11.5	ND(2.23)	ND(1.8)	<4.03	<0.06
落葉(広 葉樹)	16,392	500	200	1.19	11.31	5.81	9.21	15.02	0.18
	12,445	650	200	6.22	12.57	5.30	7.88	13.18	0.21
	3,689	850	200	6.50	12.58	ND(2.91)	ND(2.25)	5.16	<0.28
落葉(針 葉樹)	26,385	500	200	1.09	10.98	10.7	14.20	24.90	0.19
	17,032	650	200	3.90	12.38	9.28	11.50	20.78	0.24
	12,462	850	200	3.77	12.38	ND(4.19)	5.23	<9.42	<0.15
小枝	10,217	500	50	nm	nm	14.9	22.3	37.2	0.15
	16,299	650	200	6.51	12.46	10.7	17.7	28.4	0.35
	2,415	850	100	7.91	12.53	4.25	4.38	8.63	0.36
被炭化物	放射性 Cs 濃度 / Bq/kg	処理温 度	液固 比	電気伝導 度 / mS	pH / -	Cs134 濃度 / Bq/kg	Cs137 濃度 / Bq/kg	放射 性 Cs 濃度 / Bq/kg	溶出率 /-
雑草類	12,733	400	200	0.60	10.25	ND(1.81)	1.99	<3.80	<0.06
落葉 (広葉 樹)	4,394	400	200	0.30	9.96	ND(2.21)	2.21	<4.23	<0.19

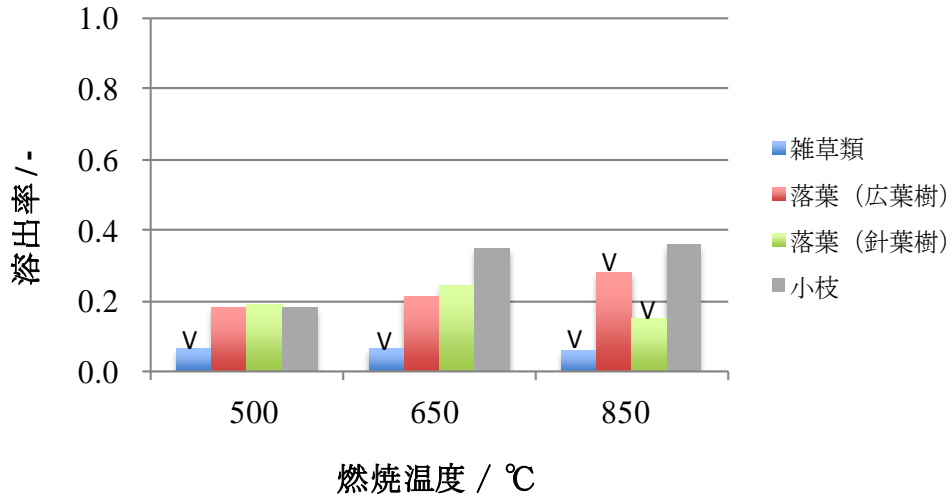


図 6.3.20 バイオマス燃焼温度と灰からの溶出率の関係
(V : 溶出液中の放射性 Cs 濃度が検出限界以下を含む値)

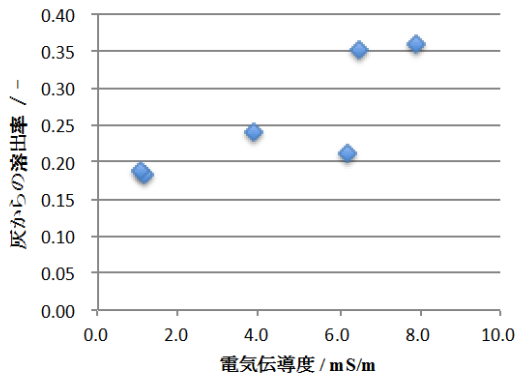


図 6.3.21 溶出液の電気伝導と灰からの放射性 Cs の溶出率

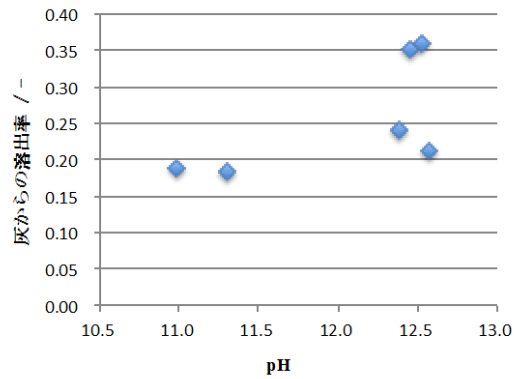


図 6.3.22 溶出液の pH と灰からの放射性 Cs の溶出率

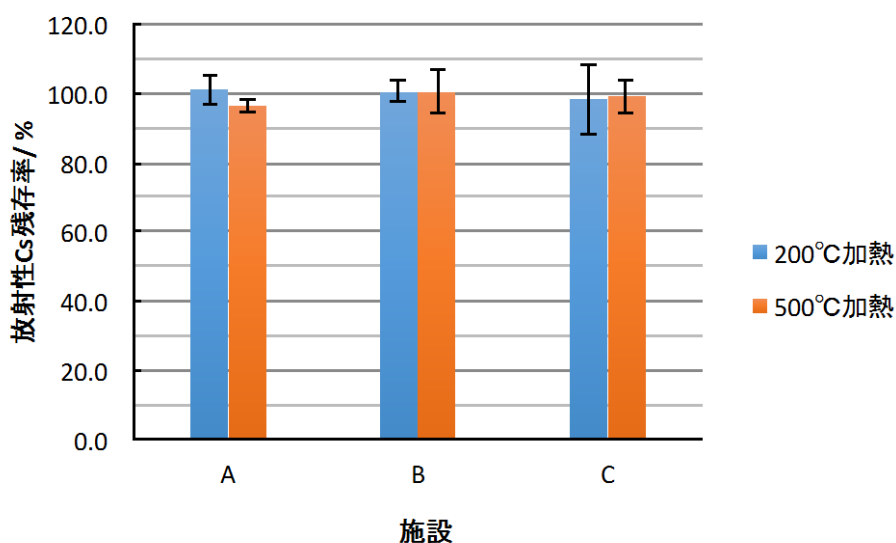


図 6.3.23 飛灰加熱後（200°Cおよび 500°Cで 20 時間）の放射性 Cs の残存率

6.3.4 結論

汚染廃棄物の熱処理過程における放射性 Cs の挙動を理解することを目的に、平衡計算ソフト FactSage の熱力学データベースに Cs のアルミノシリケートとシリケートのデータを加えて平衡計算した結果、都市ごみと下水汚泥の焼却時の放射性 Cs の挙動を再現できるとがわかりました。なお、アルミノシリケートには多様な構造があることから、パラメータの精緻化は今後重要な課題と考えています。アルミノシリケートは低温では安定に生成するものの、高温では分解し易く、分解する温度も被燃焼物の組成に依存することが示唆されました。本研究で得られたバイオマスの組成依存性は、今後減容化処理が計画されている除染物（バイオマスの混合物）の焼却処理において有益な基礎データになるものと思われま

す。マルチゾーン平衡計算をストーカ炉型の焼却施設に適用し、主要排ガス組成の計算値は既存の文献値と概ね一致することがわかりました。また、放射性 Cs の挙動も比較的良好に再現できました。ただし、実際の挙動を定量的に再現できない元素もあり、更なる改良が必要です。挙動の制御という点では、操作条件として温度と空気比、組成として Cl 量や Ca/Si が Cs の挙動に与える影響を予想しました。被焼却物ごとにそれらの影響因子のインパクトと Cs 挙動の制御性を検討する予定です。

ラボ熱処理実験により、バイオマスごとの燃焼過程における放射性 Cs の挙動、つまり、灰への移行率等を明らかにしました。放射性 Cs の灰への移行率と燃焼温度の関係はバイオマスごとに特徴があり、除染物の焼却処理では注意が必要になります。特に、雑草類は高温処理でも灰への移行率が高くなりました。この違いを理解することで、放射性 Cs を主灰もしくは飛灰のどちらかに濃縮できる方法が提案できる可能性があります。また一方、完全で

はないものの平衡計算によってある程度はCsの挙動を再現でき、本研究で示した平衡計算法の有用性が示唆されました。

燃焼実験で得られた灰に対して溶出試験を行い、放射性Csの溶出性を明らかにしました。溶出についてもバイオマスごとに特徴があり、雑草類の灰はどの条件でも溶出率が低いことがわかりました。また、他のバイオマスについては、溶出率は650°Cまでは温度が高いほど溶出率は高く、850°Cになると溶出率は低下する傾向が得られました。温度による溶出率の変化は、揮発性のCs塩（易溶性塩）が高温では揮発するものの、低温では揮発しないと考えられます。飛灰の加熱試験を行い、低温において易溶性の放射性Cs塩の揮発が極めて低いことを示しました。

参考文献

1. Kuramochi H, Wu W, Kawamoto K. Prediction of the behaviors of H₂S and HCl during gasification of selected residual biomass fuels by equilibrium calculation. *Fuel*, 84, 377–387(2005)
2. Bale CW, Chartrand P, Degterov SA, Eriksson G, Hack K, BenMahfoud R, Melancon J, Pelton AD, Petersen S. FactSage thermochemical software and databases. *Calphad*, 26, 9–228(2002)
3. ECN Phyllis, Database for biomass and waste, <http://www.ecn.nl/phyllis2/>
4. Kalar YP. Ed. Handbook of Reference Methods for Plant Analysis, CRC Press, 1998
5. California Energy Commission, Trace metal mobilization during combustion of biomass fuels, CEC-500-2008-014, 2008
6. Elizabeth et al., Certification of NIST standard reference material 1575a pine needles and results of an international laboratory comparison, NIST special Publication 260-156, 2004
7. Bell PF, Simmons TF. Silicon concentration of biological standards, *Soil Science Society of America Journal*, 61(1), 321-322(1997)
8. 肴倉宏史、小口正弘、寺園淳 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、198-199(2010)
9. Ginsberg T, Liebig D, Modigell M, Sundermann B, Multizonal thermochemical modeling of heavy metal transfer in incineration plants. *Process Safety and Environmental Protection*, 90(1), 38-44(2012)
10. タクマ環境技術研究会編、ごみ焼却技術 絵とき基本用語[改訂増補版]、189、2003
11. (独) 国立環境研究所資源循環・廃棄物研究センター、http://www.nies.go.jp/shinsai/techrepo_r3_1212_20.pdf
12. Ogorodova LP, Melchakova LV, Kiseleva KA, Belitsky IA. Thermochemical study of natural pollucite. *Thermochim. Acta*, 403(2), 251-256(2003)
13. 占部武生、基昭夫、清掃工場燃焼室ボイラ水管の腐食状況および腐食環境に関する

- 研究、廃棄物学会論文誌 7(4), 174-182(1996)
14. 石見忠之、山口尚夫、石黒智、東村一弘、米田主、都市ごみ焼却炉燃焼ガスの二次燃焼条件把握のための基礎実験、廃棄物学会論文誌 5(2), 73-81(1994)
 15. 藤森崇、土井妙子、滝上英孝、大迫政浩、廃棄物処理実験プラントを用いた災害廃木材燃焼時の放射性セシウムの熱分配挙動および溶出特性、第 22 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、371-372(2011)
 16. Horrill, AD., Kennedy, VH., Paterson, IS., and McGowan, G.M., 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. Environ Radioactivity, 29(1), 1-10(1995)

6.4 焼却施設における炉内耐火物等への蓄積挙動調査

6.4.1 はじめに

放射性物質を含む廃棄物を焼却処理する結果、そのような焼却施設の焼却灰や飛灰から高濃度の放射性セシウム (Cs) が検出され、問題となる場合があります。このような放射性物質を含む廃棄物の焼却処理過程での Cs の挙動に関しては、多くの施設で調査が行われていますが、焼却施設の維持管理や廃止後の解体撤去の際における作業員の放射線被ばく防止の観点、さらに維持管理や解体撤去により生じる廃棄物の適正処理の観点から、施設設備内における放射性 Cs の蓄積等についての現象を明らかにする必要があります。そこで、ここでは、焼却施設内の点検補修時に生じた耐火物試料を採取し、放射性物質等の濃度分布を把握し、既存焼却施設における耐火物への放射性物質蓄積の実態調査を行いました。

6.4.2 調査方法

(1)都市ごみ焼却施設における放射性 Cs の炉内での蓄積・分布に関する実態調査

放射性 Cs の焼却炉内での蓄積・分布の特徴を把握するため、実施設の炉内から後段の排ガス処理設備にわたる範囲で設備付着物を採取するとともに、メンテナンス時の被曝評価のため炉内外の空間線量率を測定しました。付着物サンプルについては放射性 Cs 濃度を測定しました。

(2)既存施設における耐火物中の放射性 Cs 及び安定 Cs の実態調査

現在稼働している都市ごみ焼却・熔融施設の点検補修時に生じた耐火物廃材を採取し、採取した耐火物廃材を図 6.4.1 のように炉内側から原則的に 2cm の厚さ毎に切断しました。こうして得た各層試料の測定を行い、それぞれの測定項目は放射性 Cs (Cs-134、137)、安定 Cs (Cs133)、Si、Al、Ca、Mg、Na、K、Cl としました。

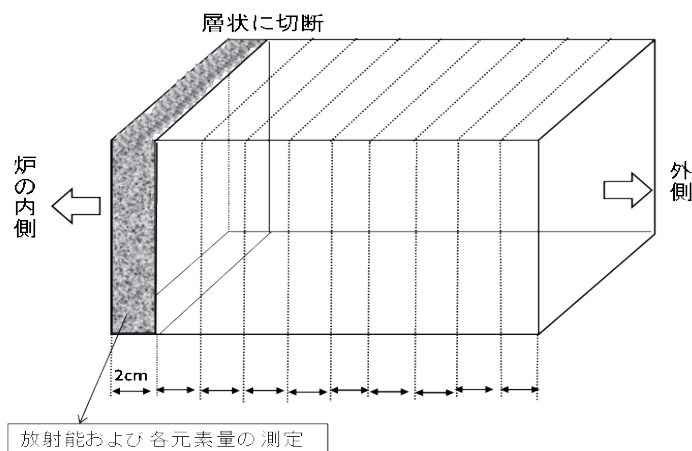


図 6.4.1 耐火物の前処理方法

また、ブランク値として焼却施設等で使用される前の耐火物中の放射性 Cs 濃度の調査を行いました。調査は焼却施設、熔融施設で使用される耐火物のうち SiO₂-Al₂O₃ 系、SiC 系、Cr₂O₃ 系のものを用いて行いました。使用前耐火物に関しては、放射性 Cs 以外の天然核種の測定も合わせて行いました。

6.4.3 調査結果

(1) ごみ焼却施設における放射性 Cs の炉内での蓄積・分布に関する実態調査

図 6.4.2 に施設の各サンプリング場所と放射性 Cs 濃度および空間線量率について示します。炉内で比較的温度的の高い箇所(炉下、中、上、ガス冷入口、出口)では炉壁付着物中の放射性 Cs 濃度は高くありませんが、やや温度が低くなってクリンカがしやすい部位では放射性 Cs 濃度が高いという傾向が確認されました。空間線量率については、いずれも電離則に基づく管理区域設定の目安である 2.5μSv/h 以下の値でした(ただし、常時作業を行わない炉内についても同様の基準を当てはめるかについては議論が必要)。しかし、付着物中の放射性 Cs 濃度が高い箇所よりも、比較的高温部で耐火物が設置されている箇所(炉下、中、上、ガス冷入口、出口)において空間線量率が高い傾向にあり、耐火物内部へ Cs が浸透していることが予測されました。

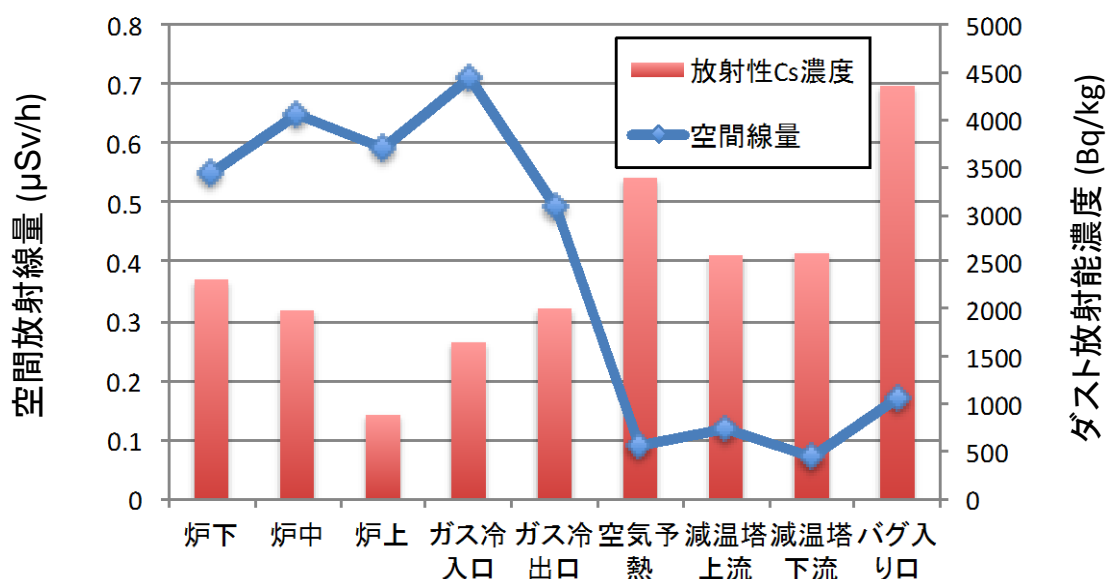


図 6.4.2 ごみ焼却施設の各サンプリング場所と放射性 Cs 濃度および空間線量率の関係

(2) 既存施設における耐火物中の放射性 Cs 及び安定 Cs の実態調査

使用前耐火物における放射性 Cs 等測定結果の例を表 6.4.1 に示します。耐火物の材質は熔融施設で使用されることの多い Cr₂O₃ 系耐火物ですが、いずれの Cr₂O₃ 含有量(30%、60%、80%)の耐火物においても放射性 Cs は検出されませんでした。焼却施設で使用されることの

多い SiO₂-Al₂O₃ 系、SiC 系耐火物でも同様の調査を行いました。いずれの耐火物においても放射性 Cs は検出されませんでした。一方で、いずれの材質からも Th-234、Ra-226 などの天然核種が検出されました。これらは、耐火物に使用される鉱物由来であると考えられ、多い場合で 2000Bq/kg 程度になることから、炉内環境調査等において放射性 Cs でない核種の影響を考慮する必要があると考えられます。

表 6.4.1 使用前耐火物の放射性 Cs および天然核種測定結果の例

No	核種名	Cr ₂ O ₃ 系(Cr ₂ O ₃ 含有量:30%)		Cr ₂ O ₃ 系(Cr ₂ O ₃ 含有量:60%)		Cr ₂ O ₃ 系(Cr ₂ O ₃ 含有量:80%)	
		荷重平均放射能 Bq/kg	検出限界放射能 Bq/kg	荷重平均放射能 Bq/kg	検出限界放射能 Bq/kg	荷重平均放射能 Bq/kg	検出限界放射能 Bq/kg
1	Th-228	0.0	27.4	317	83.4	231	66.0
2	Th-234	12.1	6.96	219	16.2	177	13.1
3	Ra-226	32.8	11.1	722	31.6	597	25.8
4	Pb-212	4.43	0.94	49.8	2.18	35.2	1.81
5	Ra-224	0.0	11.6	0.0	43.7	0.0	35.5
6	Pb-214	19.1	1.12	355	3.12	296	2.56
7	Tl-208	4.02	1.49	45.3	3.32	30.6	2.93
8	Cs-134	0.0	0.43	0.0	1.27	0.0	1.03
9	Bi-214	18.9	1.00	311	2.56	259	2.19
10	Cs-137	0.0	0.43	0.0	1.17	0.0	1.06
11	Bi-212	0.0	6.73	59.4	18.1	44.5	15.4
12	Ac-228	4.53	1.75	48.1	4.81	34.7	4.18
13	K-40	0.0	9.35	19.2	16.1	0.0	16.2
	Σ-T	96		2,146		1,705	

原発事故以前の耐火物廃材にごく微量でも放射性 Cs が含まれていたがどうか、すなわちベースとなるレベルを把握しておくことも重要ですので、2010 年度に採取した耐火物廃材を用いて原発事故以前調査を実施しました。その結果、いずれの部位においても放射性 Cs は検出されませんでした。これは 1 施設のみの調査ではありますが、原発事故以前の耐火物廃材に放射性 Cs は含まれていないと考えてよいようです。

原発事故後の 2011 年度から 2012 年度にかけて各施設で採取した耐火物については、施設が立地する地域が放射性 Cs にどの程度汚染されているか、状況は様々であり、放射性 Cs が検出された試料は一部でした。耐火物中の濃度分布として顕著な傾向が認められた結果の一例を図 6.4.3 に示します。いずれの元素も表層から炉内側になるにつれ減衰する傾向を示しました。同族元素である Cs、Na、K も同じ傾向を示したことから、耐火物内での Cs の浸透・蓄積を知るうえで、Na、K を指標にできる可能性があると考えられます。また、Cl も Cs と同様の傾向を示しました。

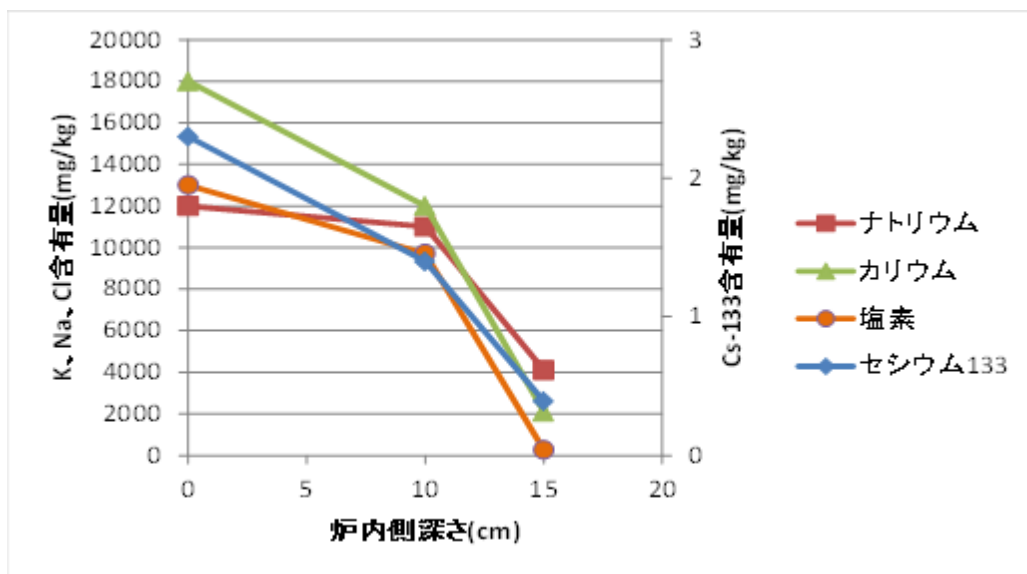


図 6.4.3 焼却施設における Cs-133、Na、K、Cl の浸透例

高汚染地域である施設の試料に関する放射性 Cs の測定結果を図 6.4.4 に示します。これより、使用後耐火物の炉内壁面部が最も高く、深くなるにつれて濃度が減衰していることが分かります。炉の最下層でも放射性 Cs が検出されていることから、放射性 Cs を含む廃棄物を長期間処理することによって、耐火物全体に放射性 Cs が浸透している可能性が考えられます。

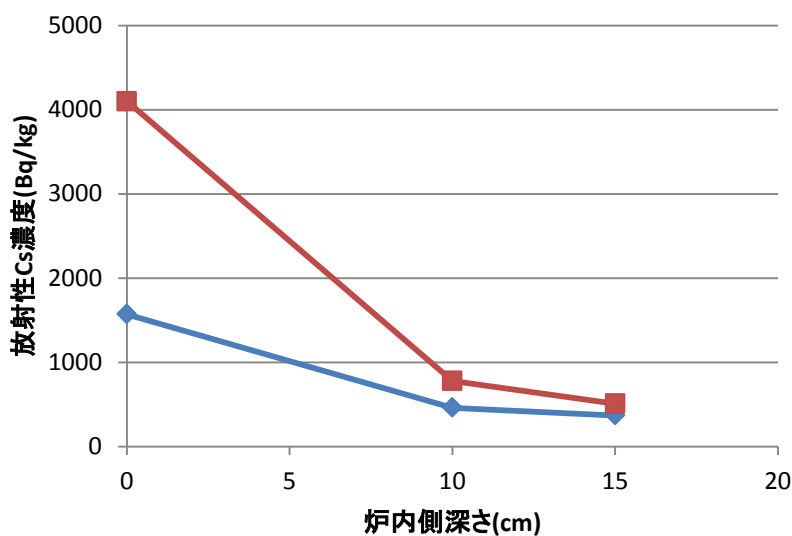


図 6.4.4 高汚染地域施設における放射性 Cs の浸透例

次に、ある施設において雰囲気温度の異なる 3 箇所から採取した耐火物および耐火物付着物の放射性 Cs の測定結果を表 6.4.2 と図 6.4.5 に示します。耐火物付着物から高濃度の放射性 Cs が検出されましたが、雰囲気温度別にみると、より低温部で放射能濃度が高い傾向

にあります。飛灰中に含まれる放射性 Cs は CsCl になっていると想定されますが、この場合 800°C 以上では多くが揮発して排ガス中へ移行していると考えられ、温度が低くなるにつれ凝縮すると考えられます。このため、二次室・後燃焼室の雰囲気温度よりも上部煙道部の雰囲気温度の方が固体中に含まれる放射性 Cs の濃度が高くなると予想され、付着物の濃度に影響したと考えられます。

表 6.4.2 施設における耐火物付着物中放射性 Cs 濃度

	雰囲気温度(°C)	耐火物付着物Cs濃度(Bq/kg)
二次室	850~900°C	4000
後燃焼室	750~800°C	4700
上部煙道	550~650°C	12600

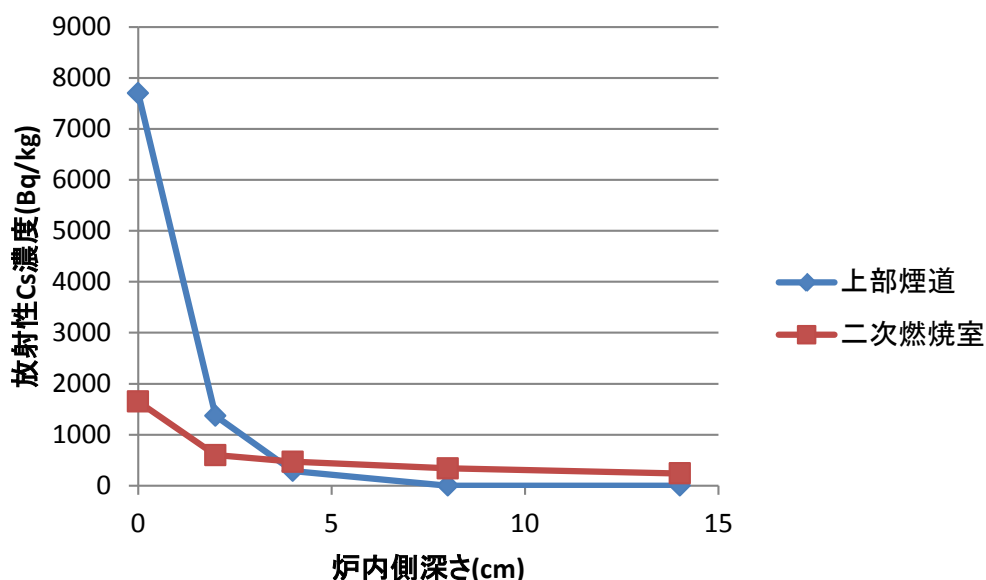


図 6.4.5 耐火物所在箇所別の放射性 Cs の深さ方向への浸透例

図 6.4.5 より、2 つの採取材料からいずれも放射性 Cs が検出されていることに加え、耐火物表層の放射性 Cs 濃度が大きく異なっていることがわかります。雰囲気温度が高い二次燃焼室では 2000Bq/kg 程度ですが、雰囲気温度が低い上部煙道では 8000Bq/kg 程度となっています。表 2 から、付着物の放射性 Cs 濃度が大きく異なるため、とくに表層付近では影響が大きく現れたと考えられます。しかし、炉の内側に移るにつれ上部煙道部と二次燃焼室の放射性 Cs 濃度はほぼ同じになり、上部煙道部の試料では内側 10cm 以降はほぼ 0Bq/kg となりました。前述同様 CsCl が化学的に主であるとする、耐火物内部の温度が浸透に影響を与えると考えられます。二次燃焼室では雰囲気温度が 850~900°C であることから耐火物表層も同程度の温度と考えられます。また、焼却施設で使用される主な耐火物(SiC 系など)

は熱伝導率が高いことから、耐火物内部の温度変動は比較的小さい(100°C程度)と考えられ、気孔を通じて揮発した CsCl が浸透すると考えられます。逆に上部煙道部では雰囲気温度が 550~650°Cと低いため、飛灰の付着により耐火物付着物および耐火物表層の濃度は高くなりますが、内部において気相で移動する CsCl が少なく、その分濃度減衰の勾配が大きくなり、浸透深さも短くなったものと考えられます。

なお、放射性 Cs が検出されなかった他の施設で安定 Cs を指標として調査した結果では、耐火物の深さ方向に安定 Cs が浸透している結果もありましたが、濃度勾配が認めにくい場合もありました。通常の可燃ごみには一定レベルの安定 Cs が含まれていて、既に長期的に暴露されているため、平衡状態にある可能性が高いと考えられます。その場合は、炉材の温度分布に応じた濃度勾配が生じる可能性がありますが、今後は温度分布との関係で考察していく必要があります。また、炉材の材質や気孔率などにも影響を受けると考えられます。

7. コンクリートの除染の基礎と汚染廃棄物の最終処分へのセメント・コンクリート技術の活用

7.1 放射能汚染とコンクリート技術の関連

(1) はじめに

本章では、がれきや廃棄物の処理・処分をコンクリート^a技術の観点から考察します。概要を図 7.1.1 に示します。種々の汚染物に除染や固型化など何らかの処理を施し、まずは再利用することを考えます。除染処理により放射性 Cs^bが濃縮された廃棄物や元々高濃度の汚染物は、Cs の水溶性の有無により処分方法を変えることが必要です。放射能濃度と他の有害成分にもよりますが、公共水域の保全の観点からは、Cs が水溶性でなければ放射性 Cs による周辺環境による汚染がないので、安定型相当の処分場でも処分できますが、Cs が水溶性の場合は放射性 Cs が環境に再放出される可能性を否定できないことから、溶出を問題ないレベルに制御する、セメント固型化を施し管理型相当の処分場に処分する、もしくは環境から遮断可能な遮断型相当の処分場に処分する等が必要となります。

コンクリートがらについて考えますと、岩手県及び宮城県でのがれき処理の実情報から、不燃系廃棄物のうちコンクリートがらは膨大な量ですが、全量が路盤材などとして有効に活用されています。岩手県や宮城県でのコンクリートがらもまったく放射性 Cs による汚染がないわけではないですが、十分低いレベルであり、再利用による被曝は無視しえると考えられます。しかし、より汚染レベルが高い地域においては汚染したコンクリート構造物を単に粉砕再利用しますと放射線影響が無視できなくなる可能性もあります。ただし、この場合も、コンクリートの汚染は表層部に留まっている可能性が高いので、表面部分を研削・除染することで再利用を促進でき、廃棄物量を削減できるのです。このための基本情報として、環境汚染の程度とコンクリートへの放射性 Cs 浸透深さの関係を調べました。

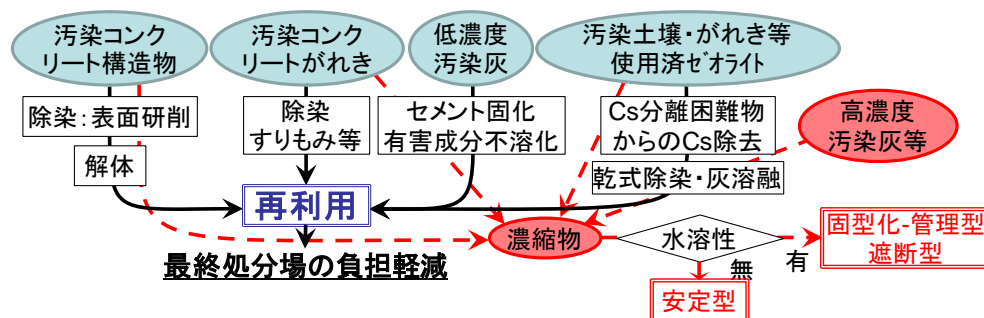


図 7.1.1 不燃系減容化・再利用及びコンクリート技術適用の全体像

a コンクリートは、セメント、骨材、水を練り混ぜて製造します。セメントが水と水和反応し、水和物が生成することで硬化します。水/セメント比が低いほど高強度となり、水密性や耐久性も高まります。

b 福島第一原子力発電所事故による放射能汚染は放射性 Cs(セシウム)によるものですが、Cs という元素は特別なものではなく、天然にも安定 Cs(放射壊変しない種類の Cs)が微量ながら普遍的に存在します。放射性 Csはこの安定 Csに比較すると、濃度としては数桁以上も低く、化学的挙動は両者に差はありません。本章では放射性 Csの固定化による溶出防止を取り上げますが、固定化は圧倒的多数の安定性 Csに対しても行われることとなります。

一方、汚染廃棄物処分において注意を要するのは前述のように Cs が水溶性として含有されるものです。ここでは、セメント・コンクリート技術は二つの役割を持ちます。一つはセメント固型化による放射性 Cs を含む有害成分の逸散防止であり、もうひとつは最終処分場への鉄筋コンクリートの適用です。ここで特に重要なのは、第4章でも述べられますが、水溶性 Cs の割合が高い焼却飛灰であり、その特性を理解したうえで処理・処分することです。このため、本章では焼却飛灰の特性を説明し、その上で、セメント固型化と鉄筋コンクリート施設で最終処分する際の注意事項の説明、及び現在の研究状況の紹介を行います。

7.2 実コンクリートへの放射性 Cs 浸透解析と再利用への考え方

7.2.1 実コンクリートへの放射性 Cs の浸透解析

(1) はじめに

高圧水洗浄では、コンクリートの除染効果は限定的ですが、コンクリートを研削する超高压水やショットブラストによる方法では効果があることが示されています[1]。しかし、具体的な浸透深さや汚染レベルの影響に関する情報はあまりありません。チェルノブイリの事故の事例では、Cs-137 と Sr-90 は少なくとも 50mm では浸透していましたが、5mm までに 70%が存在するとされています[2]。このような状況から、福島県の異なる汚染度の地点からサンプルを採取し、空間線量率と汚染の程度を調査しました。

調査方法としては除染の手法としても有効と考えられるウォータージェット[3]と Cs の分布が直接的に測定できるβ線ラジオグラフを用いました。

(2) ウォータージェットによる汚染コンクリートの Cs 浸透深さの実測

サンプルの採取場所は、福島県の居住制限区域で、帰還困難区域の直前です。より空間線量率(高さ 1m の道路上)が低い 2.7~2.8 $\mu\text{Sv/hr}$ の地域における擁壁 3 箇所から直径 10cm のコンクリートコアを、より空間線量率が高い 7 $\mu\text{Sv/hr}$ の地域における道路側溝から蓋(JIS A 5345 道路用側溝蓋 3 種蓋 412*95*500mm)を 3 箇所から採取しました(2012 年 12 月 17 日)。外観から劣化度が異なり、新品のもの、表面のセメントペーストが多少減少しているもの、劣化が進み粗骨材が露出しているもの、です。

図 7.2.1 に空間線量率とコンクリートの表面線量率(コンクリート表面 1 cm 以内)の関係を示します。空間線量率が高まるに従いコンクリートの放射能汚染レベルも高まります。今回サンプリングしたもっとも高い空間線量率の地域は、文部科学省によるデータではおよそ 3000k Bq/m^2 (300 Bq/cm^2)の Cs-134 と Cs-137 の沈着量です[4]。GM 管によるとこの地域で採取したコンクリート蓋

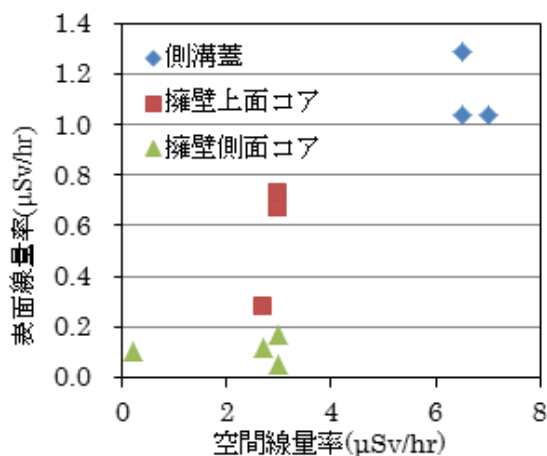


図 7.2.1 空間線量率とコンクリートの表面線量率



図 7.2.2 ウォータージェット

の表面線量率は 5k~10kcpm 程度で、10kcpm は 33Bq/cm² となります。後述の放射能濃度測定でも 39Bq/cm²(2013 年 3 月 13 日測定)で、文部科学省のデータと比較すると、測定地点のコンクリートには降下した Cs の約 1/10 程度が残存しコンクリート上の土壌を含む植生(コケ)には 1/3 程度が今も残存していると推定できます。

コンクリートコアをウォータージェット(図 7.2.2)で研削する前に高圧水洗浄(3MPa)し、付着している泥などを除去しましたが、表面線量率の低下は少なく、ほとんど影響がないものから最大でも 2 割程度の低減でした。擁壁の上面と側面では、明らかに側面の放射能レベルが数分の 1 程度に低くなっています。

コンクリート蓋はコンクリートコアと異なり、高圧水洗浄により 3~4 割程度、放射能レベルが低下しました。側溝の蓋は道路面近くに存在するため、ほこりを多く付着していたものと推定できます。

次にウォータージェット(水圧:150MPa、ノズル:径 0.1mm×7 個、噴射流量:5.58L/min、噴射反力:50.9N、2012 年 12 月 17 日)によりコンクリート蓋を研削しました。研削による表面変化を図 7.2.3 に示します。コンクリート表面のセメントペーストが研削され、骨材が露出する様子が分かります。研削時間と表面線量率変化の関係を図 7.2.4 に示します。研削時間と表面線量率変化の関係はどの蓋でも同様に、研削時間と共に急激に表面線量率は低下しました。研削前後の供試体質量から、除去深さを推定し、表面線量率との関係を図 7.2.5 に再表示します。蓋ごとに表面線量率プロファイル、すなわち放射性 Cs の浸透プロファイ

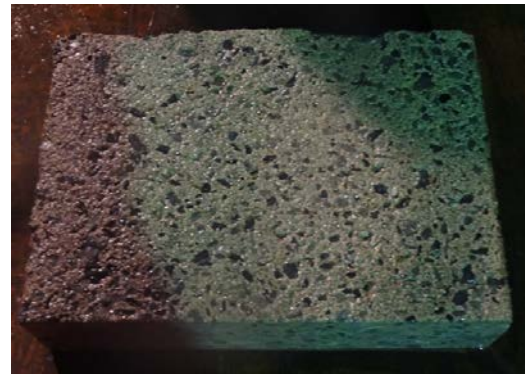


図 7.2.3 除染による蓋の表面状態変化
(上:0 秒, 中:60 秒, 下 240 秒)

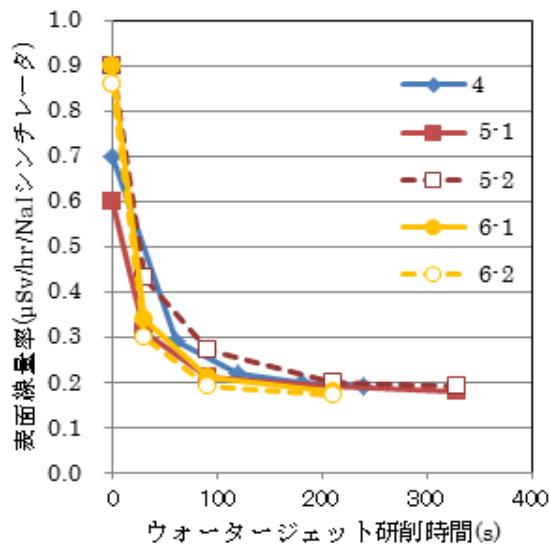


図 7.2.4 研削時間と表面線量率の関係

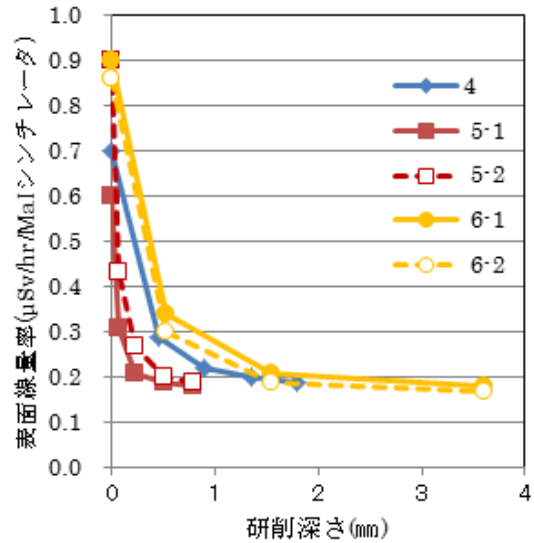


図 7.2.5 推定研削深さと表面線量率の関係

ルが異なることが分かります。空間線量率がほぼ同じ地域であり、降雨によりもたらされた放射性 Cs に大差ないとすれば、プロファイルの差はコンクリートの品質に依存するものと考えられます。これ乾いた表面に降雨により放射性 Cs がアルカリイオンとしてもたらされたとするならば、拡散ではなく吸水に伴いコンクリート中に放射性 Cs は移動したのと考えられ、表面が緻密なほどコンクリートは吸水による Cs 汚染の程度が小さくなったと考えられるのです。

一方、除染ということを考えれば、空間線量率が類似であることから、類似した量の放射性 Cs がもたらされたと推定できるならば、除染のためにウォータージェットで研削する時間は同じ空間線量率の場所ではコンクリートの質によらずほぼ一定でよい可能性があります。空間線量率 $7\mu\text{Sv/hr}$ の環境では、 $40\times 30\text{cm}$ を 30 秒 (250s/m^2) 研削すれば 65~80% の削減効果が見込め、90 秒 (750s/m^2) 研削すれば 85~95% の削減効果が見込まれます。ただし今回の研削条件はプロファイル測定の精度を上げるために穏やかに設定したものであり、ウォータージェットの水圧を高め数倍の効率を得ることは可能です。

(3) β 線ラジオグラフによる分布測定

ウォータージェットによる研削では脆弱部分が先行して研削され、表面から必ずしも均一に研削できているとはいえません。見かけ上は放射性 Cs の拡散によるものと考えられる濃度プロファイルが得られましたが、別の方法で検証する必要があります。放射性物質の分布を測定する方法としてラジオグラフがあります。放射線に感光する素材の上に放射性物質を置くと、放射線が照射された位置のみが読み取れます。

放射性 Cs は β 崩壊し、 β 線と γ 線を放出します。 γ 線は透過力が強いので、放射線源がたとえ局部であっても試料内部を拡散するため高い空間分解能を得ることが困難です。 β 線であれば、物質透過能力が低いため(コンクリート中ではおよそ 0.06mm)、より高い空間

分解能が得られます。ここでは感度が高く測定レンジが広いイメージングプレート(IP)を用いたβ線ラジオグラフを試みました。測定は、GE Healthcare社製 Typhoon FLA 7000(空間分解能 50 μm)を用い、2013年3月13日から166時間行いました。

表 7.2.1 に各コンクリート片の放射性 Cs の表面濃度の測定結果(Ge 半導体検出器による)を表面線量率(GM 管)とあわせて示します。コンクリートコアについては上面と側面では、濃度においても数倍以上の差が認められました。図 7.2.6 に放射能の表面濃度と表面線量率の関係を示します。両者には線形の相関があります。

表 7.2.1 放射性 Cs の表面濃度

	表面濃度	表面線量率		環境放射線量率	中性化深さ
	Bq/cm ²	cpm(GM)	μ Sv/h(NaI)	μ Sv/h(NaI)	mm
1u	14.0	3,700	0.4	2.7	1.3
1s	5.0	1,500	0.3	2.7	7.4
2u	34.4	10,000	0.7	3.0	2.4
2s	0.2	300	0.2	3.0	8.5
3u	36.4	10,000	0.7	3.0	0.3
3s	5.9	3,000	0.3	3.0	2.2
4	21.4	7,000	0.7	7.0	0.0
5	14.6	5,000	0.7	6.5	0.0
6	33.3	6,000	1.1	6.5	1.5
A2	7.0				5.7
A3	5.9				7.9
B1	4.5				5.2

1,2,3 は擁壁からのコア。u は擁壁上面、s は擁壁側面。4,5,6 は側溝蓋。
A2,A3,B1 は二本松市の擁壁側面からのコア。

図 7.2.7 にβ線ラジオグラフの測定結果を示します。試験片と測定結果を重ね合わせた図を見ると線源が表層部分に限定されていることがまず分かります。また表 2.7.2 に示したコアの放射能濃度の高低にしたがって、濃淡が現れています。擁壁側面は低レベルであり、上面は高レベルになっています。また同じコンクリートコアからの試験体であっても、濃度は mm オーダーで相当程度にばらついていることが分かります。

図 7.2.8 にコイン状の標準線源とコンクリート試料を比較し、β線強度分布、すなわち放射性 Cs の濃度分布を示します。試料は 2mm 前後の厚さを有するため、表面から周囲へβ線が拡散するため、エッジではなだらかになります。一方で、3u の中央の試料のよう

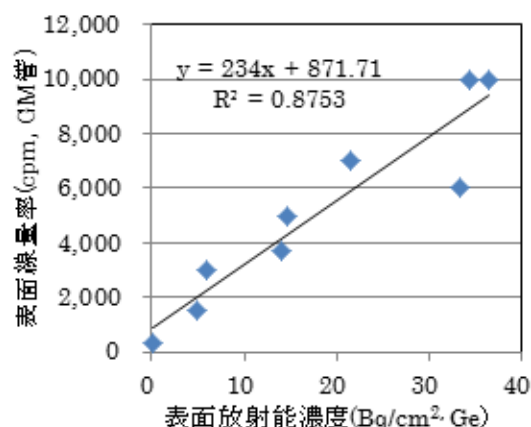


図 7.2.6 表面放射能濃度と表面線量率との関係

に別の試料と接する場合には、 β 線の拡散がなくなり、比較的シャープなプロファイルが得られます。このプロファイルは内部への浸透においても同等でシャープです。比較のために、飽水したコンクリートを塩水に浸漬した際の塩素の浸透状況を電子プローブ微小分析(EPMA)という方法で分析した例を図7.2.9に示します。この場合は、内部に向かい、徐々に塩素濃度が低下し、塩素が見かけ上拡散により浸透したとみなすことが出来ます。

図7.2.6に示したウォータージェットによるCs濃度プロファイルと比較すると、コンクリート蓋ごとに、 $6>4>5$ という浸透深さの順も、ラジオグラフの結果では異なり、ウォータージェットによる測定は濃度プロファイルという観点では妥当とは考えにくいものです。一方で、ラジオグラフの測定は1断面のみであり、ばらつきが大きいことも考慮する必要はあると考えられ、原因も含め、今後の更なる検討が必要です。

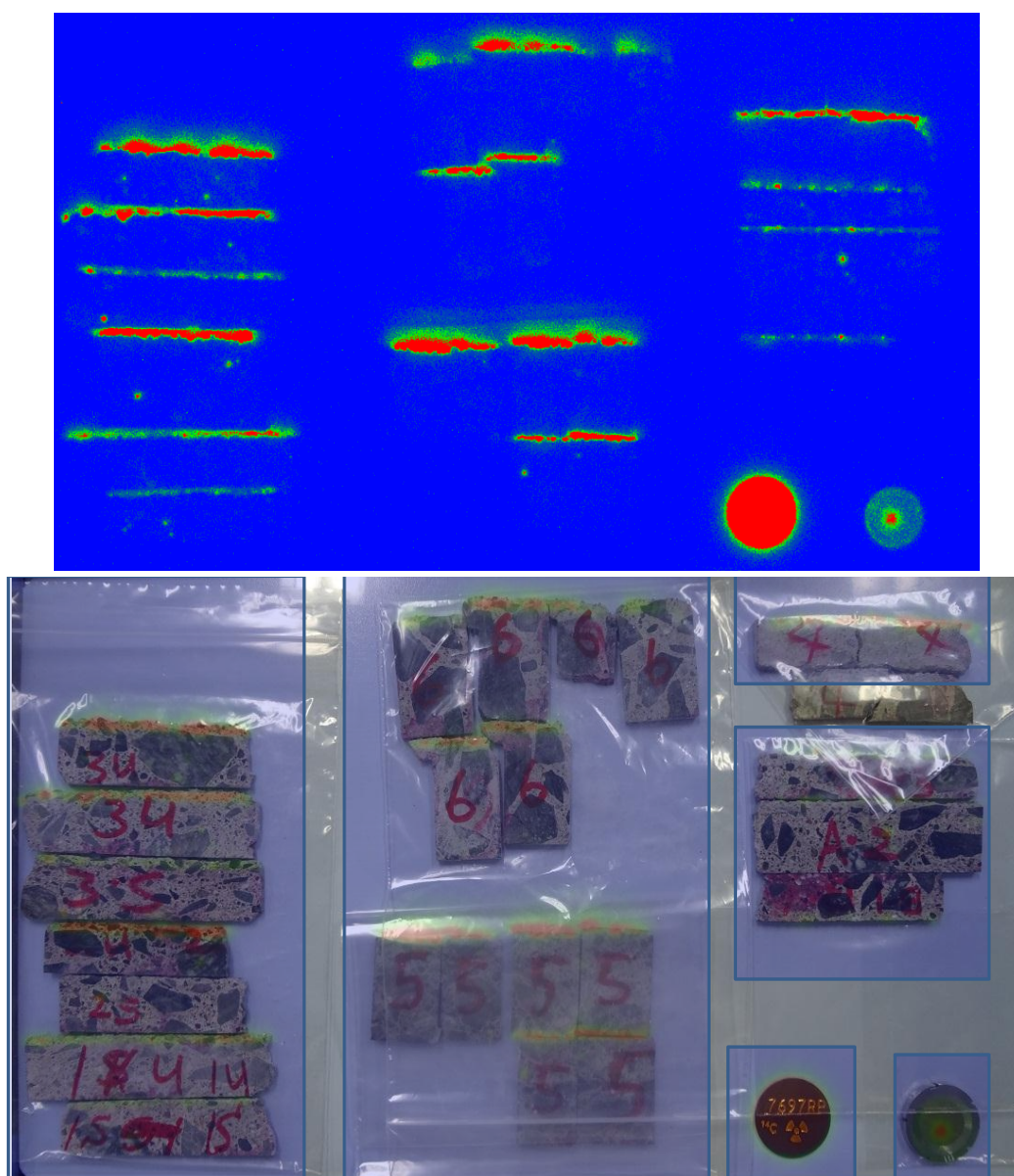


図2.7.7 IPによるコンクリートコアの β 線暴露分布(右下コインが $\phi 2.5\text{cm}$)

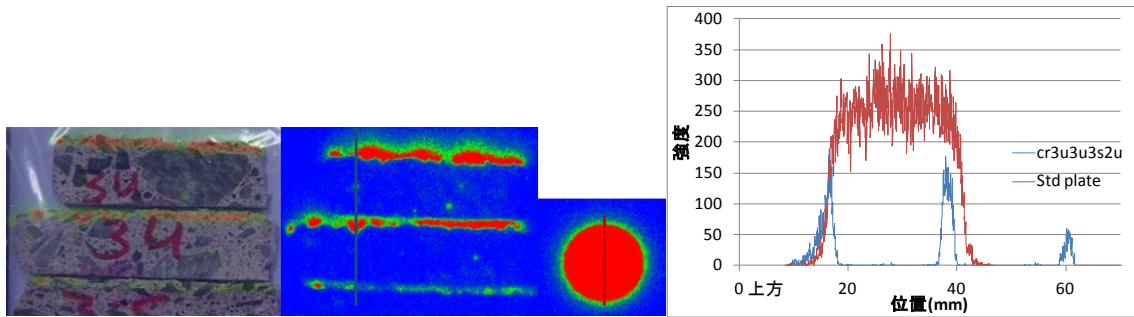


図 7.2.8 IP によるコンクリート表面からの放射性 Cs の浸透プロファイル

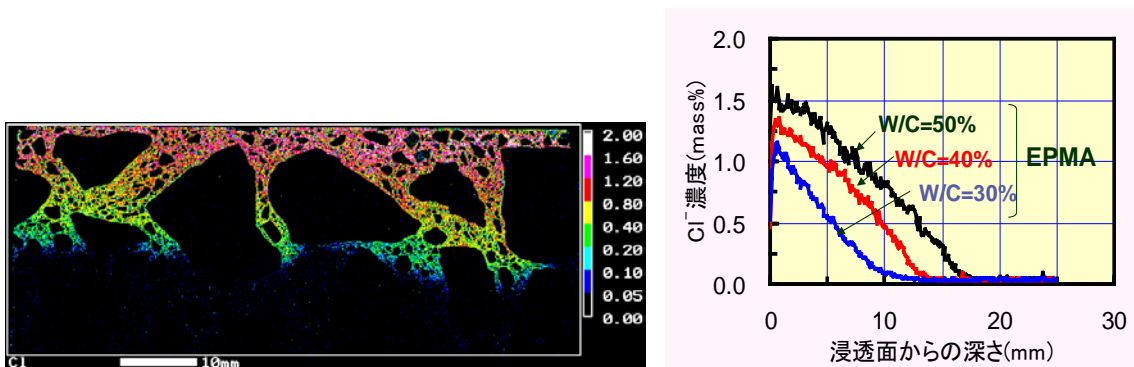


図 7.2.9 コンクリート表面からの塩素の浸透プロファイルの測定例

従来から Cs は単体であれば、粘土などに大きな吸着平衡定数を示しますが、共存イオン、特に K や NH_4 があると吸着平衡定数は大幅に低下することが分かっています。セメントには 0.1% オーダーの K が含有され、Cs はコンクリートに吸着されにくい状況にあるといえます。コンクリート表面に留まれない Cs は事故後、1 年 9 ヶ月が経過する間に雨水で流出するものはすでに流出していると考えられます。Cs 固定の安定性を検証するため、20.1kBq/kg を示した No.6 の試料を用い、純水、1N の KCl 及び NH_4Cl 溶液で

Cs の 24 時間での再溶出を調べました。その結果、純水では 0.1% 以下、KCl 溶液では 28%、 NH_4Cl 溶液では 25% が溶出しました。このことは汚染したコンクリートがらに雨水がかかっても、またウォータージェットにより微粉を研削しても、固体を除去すれば水には Cs は移行しないことを示すものです。

セメント硬化体を考えると、空隙水の組成は 0.5M 程度の水酸化アルカリ溶液で、主には Na と K が溶解しています。K の濃度は 0.1-0.2M 程度と考えられます。Cs の固定が起きて

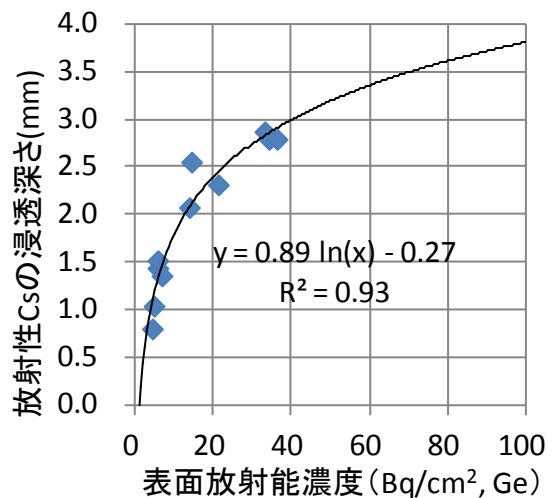


図 7.2.10 表面放射能濃度と Cs 浸透深さ

いる範囲は中性化とは無関係でしたが、内部のアルカリの存在領域と関係しているのかもしれない。すなわち、雨水によりコンクリート中のアルカリが表面部分で溶出しているならば、選択的 Cs 固定が表面部分のみで起きていてもおかしくはありません。さらに、Ca の溶脱による効果もあると推定されます。

コンクリートの表面放射能濃度と β 線ラジオグラフから読み取った Cs の浸透深さの関係を図 7.2.10 に示します。両者には対数の関係があり、表面濃度が高くなっても Cs 浸透深さはそれほど大きくならないことが分かります。この関係を外挿して考えると、高濃度汚染地域でのコンクリートの除染に要する研削厚さの目安になります。

7.2.2 除染コンクリートの再利用への考え方

放射性 Cs に関するコンクリートのクリアランスレベルは 100Bq/kg とされています。クリアランス制度とは、原子力発電所内の物質を所外に持ち出す際、明らかに非放射性と考えられる N.R. とされるものとは別に、放射能汚染の有無の確認が必要なものを、放射性物質として取り扱う必要性を判断するための基準です。種々の再利用シナリオが設定され追加被ばく線量が 10 μ Sv/y 未満^cとなるように計算がなされました。詳細は日本建築学会から検討の概要をまとめた資料[5]が提供されています。

放射能汚染への心配から、クリアランス以下の放射能レベルが求められる風潮がありますが、本来の考え方は追加被ばく線量により判断されるべきものです。日本建築学会から示された考え方の図を図 7.2.10 に示します。東日本一帯は広く放射能汚染されたのですから、多くのものは N.D. とはみなせず、汚染レベルの確認が必要です。空間線量率や素材ごとの特性から十分に低いレベルと考えられるものは通常の利用や処分が出来ます。一定レベル以上のものは除染を考慮し、除染できるものは再利用するのが廃棄物量を減らす上でも合理的です。

ここで、放射能濃度が十分に低い、もしくは再利用の際の基準が単にクリアランスとの比較ではなく、使用状況に応じ、追加被ばく線量の許容限度(平常時では 10 μ Sv/y、すでに放射能汚染が起きている状況では 1mSv/y というのが一つの考え方)を満たすかどうかの本質的な判断基準といえます。しかし、追加被ばく線量を求めることは一般には容易ではありません。もし、精度は不十分としても、生活環境を取り巻く放射性物質の存在形態(例えば、自宅近くの側溝や仮置き場)及び量を指定でき、個々人の生活スタイルを設定することで、個人が被曝し得る線量を計算できるとすれば、国民全体の放射能汚染に対するリスクへの理解がより深まるものと考えられます。

公的機関からこのような線量計算ソフトを提示することは、精度に責任を求められるの

^c 日本人の年間平均被ばく線量は 1.5mSv/y であり、追加被ばく線量 10 μ Sv/y はこれに比べて十分に低く無視しえるものと一般に考えられています。ICRP(国際放射線防護委員会)によりますと、事故時には 1~20mSv/y で出来るだけ低い追加被ばく線量に低減することが求められており、日本では 1mSv/y が採用されています。どこまで許容するか、慎重でありかつ経済性を考慮したバランスある選択が必要です。

で容易なことではありませんが、すでに多くの事例が過去に計算されており、それを参照するだけでも相当のケースに対応できそうです。個人が自らリスクを算定することで、リスクとコストをバランスさせた社会が出来るのが望ましい姿と考えます。

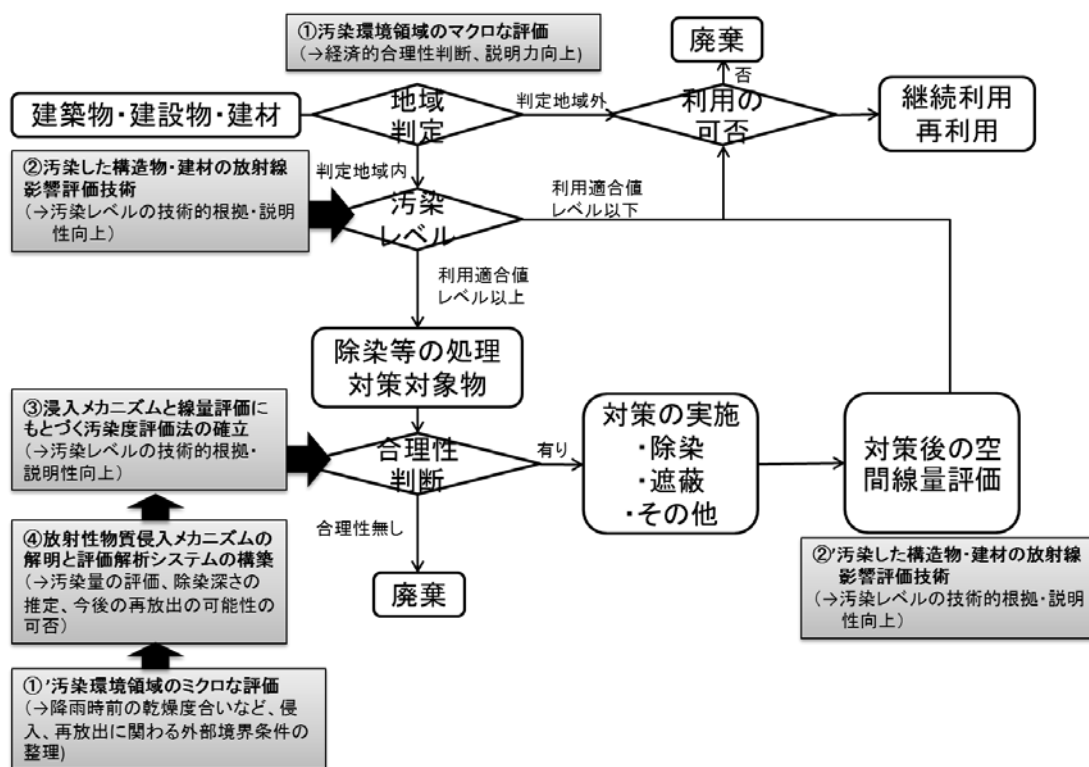


図 7.2.10 放射能汚染を受けた状況での建築生産と維持管理に関わる全体スキーム[5]

- [1] <http://www.jaea.go.jp/fukushima/index.html>
- [2] Farfán, E.B., et al.: Assessment of (90)Sr and (137)Cs penetration into reinforced concrete (extent of "deepening") under natural atmospheric conditions, Health physics, Vol. 101, No. 3, pp.311-320, 2011
- [3] http://www.jaea.go.jp/fukushima/techdemo/h23/appendix_2.pdf
- [4] <http://ramap.jmc.or.jp/map/map.html> 文部科学省放射線量等分布マップ拡大サイト, 平成 24 年 6 月 28 日時点, Cs134+137 の合計
- [5] <http://www.aij.or.jp/scripts/request/document/20130328-1.pdf>

7.3 セメント・コンクリートとの関連から考えた焼却飛灰の特性

7.3.1 はじめに

福島第一原発の事故によって広域に飛散した放射性セシウム(Cs)の一部は、ごみ焼却飛灰中に濃縮蓄積されているため、放射性Csを含む焼却飛灰を長期安定保管することは、喫緊の社会的課題となっています。飛灰に含まれる水溶性成分としては、放射性Csを含む塩化アルカリに加えて、多くの場合、焼却排ガスに含まれる塩化水素の中和過程で生じる塩化カルシウム(CaCl_2)が多量に存在します。 CaCl_2 は吸湿剤としても市販されている潮解性の高い物質なので、飛灰を高湿度の大気に長期間曝露した場合、吸湿・潮解によって生じた放射性Csを含む水溶液が周囲に漏出し、放射能汚染を引き起こす可能性があります。また、漏出した溶液には多量の塩分が含まれているので、これが飛灰貯蔵施設のコンクリートに侵入し、コンクリートの劣化を引き起こす可能性もあります。よって CaCl_2 による飛灰の吸湿挙動を明らかにすることは、飛灰の長期安定保管にとって重要な研究課題です。本研究では、飛灰の吸湿速度を CaCl_2 濃度、温度および湿度の関数として測定することにより、吸湿によって飛灰から放射性Cs等が漏出するまでの時間を予測します。

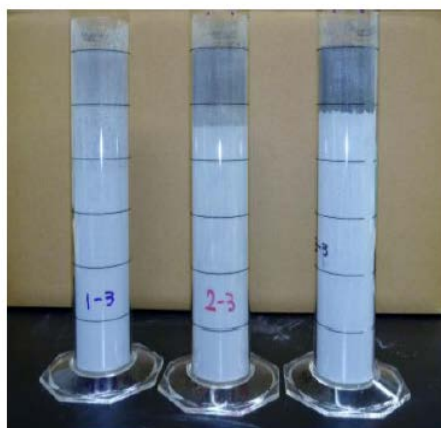
表7.3.1 焼却飛灰の組成例

含有元素	ストーカ炉飛灰	流動床炉飛灰
	重量% (内, 可溶成分)	重量% (内, 可溶成分)
Ca	23.3 (8.5, CaCl_2 として 23.6)	21.3 (1.8, CaCl_2 として 5.0)
K	4.0 (3.6, KClとして 6.8)	3.1 (1.8, KClとして 3.4)
Na	3.2 (2.3, NaClとして 5.8)	4.1 (1.9, NaClとし 5.8)
Cs	2.7ppm (1.7ppm)	?
Cl	25.2 (19.5)	10.7 (7.0)
Al	2.3	5.5
Si	7.7	9.2

使用した焼却飛灰の組成例を表7.3.1に示します。飛灰の主成分は、塩化水素の中和のために投入した $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 及び生成物である CaCO_3 、 CaCl_2 と、焼却物から蒸発したNaCl、KClです。NaClやKClの潮解性は弱いのですが、 CaCl_2 がもたらす水分

で溶解すると、これもまた水分を吸収することになります。

これらの飛灰10gを開口面積 25.1cm^2 の容器に飛灰入れ、 30°C 、相対湿度(RH)95%で放置すると、200時間後には吸湿によって飛灰が完全に水没してしまいました。飛灰元来の成分組成では、吸湿が CaCl_2 、NaCl、KClの3成分によって生じるため、吸湿現象の解析が複雑になります。そこで、水洗して可溶性塩類を取り除いた流動床炉飛灰に、 CaCl_2 を10%、20%、および



$\text{CaCl}_2 = 10\%$ 20% 30%

図7.3.1 加湿中の飛灰に観察される湿润帯

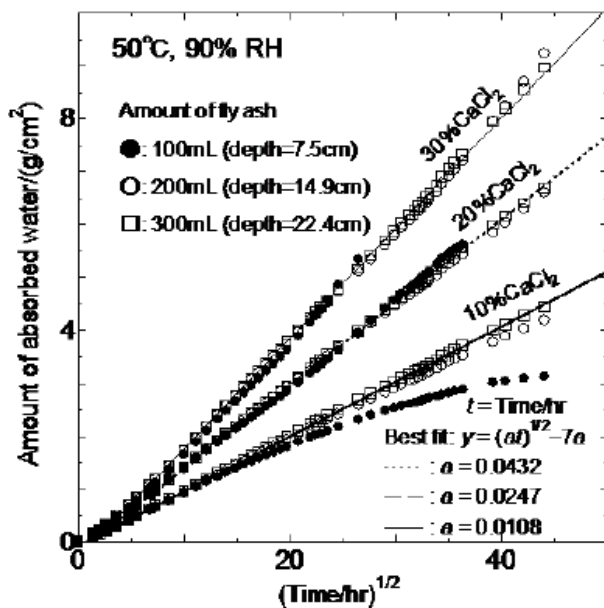


図7.3.2 飛灰吸湿量の時間依存性

その先端が容器の底に接近するまでは、飛灰の充填量には依存せず、ほぼ(時間)^{1/2}則に従って増大します。飛灰の吸湿量、湿潤帯幅が共に(時間)^{1/2}則に従うことより、湿潤帯が飛灰の底に達するまでは、湿潤帯内の平均CaCl₂濃度はほぼ一定に保たれていることが推論されます。湿潤帯内でのCaCl₂溶液の濃度を見積もると、CaCl₂含量や充填量にかかわらずほぼ40~50%となりますが、これは飽和CaCl₂溶液の濃度に近い値です。湿潤帯が飛灰の底に達したのちは、湿潤帯内のCaCl₂濃度は吸湿と共に低下するため、吸湿速度が減じるものと予想されましたが、吸湿が飽和に近づいた試料を除き、湿潤帯が容器の底に達した後も、吸湿量は(時間)^{1/2}則に従いました。

吸湿過程を明らかにすべく、2000時間加湿後の飛灰の吸湿量とCaCl₂含量の深さ分布を測定しました。いずれの試料も、吸湿後のCaCl₂含量は下に行くほど濃くなることから、上から下へのCaCl₂溶液の移動が生じていることが分かります。このことは、吸湿で生じたCaCl₂溶液が毛管吸引(+重力)で下部に移動することを示しています。毛管吸引だけで溶液移動が生じるのなら、飛灰表面の含量は極めて低濃度になるはずですが、200mL試料で初期値の1/2、300mL試料で初期値の1/3程度にしか減していません。これは下部への水分移動については、毛管吸引だけでなく溶液からの蒸発移動も寄与していることを示しています。以上、吸湿は飛灰表面近傍で起きており、生じた溶液の水分は再蒸発によって飛灰内部に輸送されるとともに、溶液の一部は毛管吸引によっても内部に輸送される結果、表面吸湿層のCaCl₂濃度が時間と共に低下するので、吸湿速度も低下し、結果的に(時間)^{1/2}則が

^d 湿潤帯が(時間)^{1/2}則に従うということは、これが見かけ上の拡散現象であることを意味します。

30%添加したものを吸湿用試料として実験しました。これらを断面積13.4cm²の透明プラスチック製100mL、200mL、300mL円筒容器に充填し、恒温・恒湿槽内で吸湿させました。

50°C、90%RHで加湿した際の飛灰の様子を図7.3.1に示します。飛灰に吸収された水分によって上部に黒色の湿潤帯が生じています。50°C、90%RHでの吸湿量の時間変化を図7.3.2に示します。吸湿速度はCaCl₂濃度に依存しますが、吸湿量が飽和に近づかない限り、飛灰の初期充填量には依存せず、吸湿初期を除きほぼ(時間)^{1/2}則^dに従います。湿潤帯の幅も、

成立したものと結論されます。

表7.3.2 体積100mLの飛灰から固液分離が始まるときの吸湿量と飛灰中の非水溶性成分が作る空隙の空隙率との関係

CaCl ₂ 含量	かさ密度	空隙率	吸湿量	CaCl ₂ 濃度	溶液体積	対空隙比
20%	0.90 g/cm ³	0.68 cm ³ /cm ³	0.65 g/cm ³	21.7 %	0.69 cm ³	1.06
30%	0.90 g/cm ³	0.72 cm ³ /cm ³	0.72 g/cm ³	27.3 %	0.78 cm ³	1.08

吸湿速度測定に用いた9本の試料の内、20%および30%のCaCl₂を含む100mL飛灰試料2本は、途中で固液分離による飛灰からの溶液の漏出が起きました。固液分離時の吸湿量と飛灰の空隙率、溶液体積との関係を表7.3.2に示します。吸湿で生じたCaCl₂水溶液が空隙を完全に満たすと固液分離が生じ、飛灰からの溶液漏出が始まることが分かります。すなわち、

$$(\text{単位体積中の水溶性成分が吸湿して水溶液となった時の体積}) > (\text{飛灰中の非水溶性成分が作る空隙の空隙率}) \quad (1)$$

の関係が成り立つと、飛灰からの溶液流出が始まります。例えば空隙率=60%、湿度=80%では、CaCl₂含量>0.14g/cm³でいつかは溶液漏出が起きますが、同じ条件でもCaCl₂含量<0.14g/cm³なら、いつまでたっても漏出は生じません。

実際の飛灰では、その重量によって空隙率も変化します。しかしながら飛灰のかさ密度

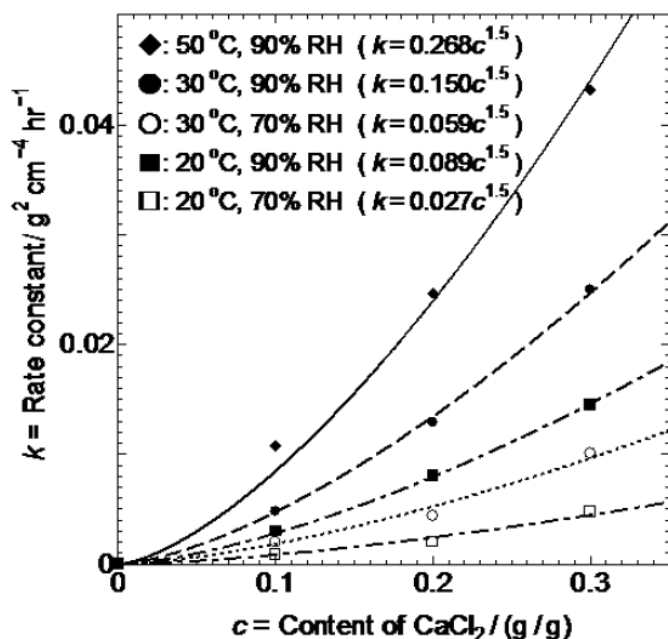


図7.3.3 吸湿速度定数と温度、湿度及びCaCl₂の関係

を0.9から1.14に増やして空隙率を低下させても、吸湿速度は変化しませんでした。空隙率の低下に伴う水蒸気の実効拡散係数の低下による吸湿減速とCaCl₂濃度の増加による吸湿加速が互いに打ち消し合うため、実験範囲内では空隙率変化が吸湿速度に影響を与えないものと考えられます。

飛灰は一般にフレコンに入れて保管されています。フレコンは通気阻害性があるため、飛灰の吸湿を妨げる効果があります。飛灰の大気接触

面をフレコンシートで覆って吸湿させましたが、吸湿速度は無いときの6割程度にしか減少しませんでした。飛灰の吸湿は、通気性の悪い飛灰層を通して水蒸気が内部に侵入することによって生じるので、フレコンシートの通気性が少々悪くても吸湿速度はそれほど低下しないものと考えられます。

これまでの実験では、実験時間を短縮するため、吸湿条件を50℃、90%RHとしてきましたが、実際の温度や湿度はさまざまです。そこで温度30℃、20℃、湿度90%、70%で吸湿速度を測定したところ、いずれの場合も、吸湿初期を除き吸湿量は(時間)^{1/2}則に従って増大しました。吸湿量=($k \cdot$ 吸湿時間)^{1/2}+定数とした場合の、吸湿速度定数 k のCaCl₂濃度依存性を図7.3.3に示します。 k はほぼ濃度の1.5乗で増大しますが、温度や相対湿度、絶対湿度との間には単純な関係は成立しませんでした。ただし同じ温度なら湿度が高いほうが吸湿は早いですし、同じ相対湿度なら温度(絶対湿度)が高いほど吸湿は早いです。なお、含有CaCl₂と等量以下の水を飛灰に均一に添加した後の初期吸湿速度は無添加の場合よりも低下しますが、吸水速度定数自体にはさほどの変化はありませんでした。

吸湿量は(時間)^{1/2}則に従うので、(1)式の関係が成立するのに十分な量のCaCl₂を含む空隙率 ϕ 、高さ L の飛灰の上面から吸湿が生じた場合、飛灰からCsが漏出するのに要する時間 T は、 $T=(L\phi)^2/k$ で与えられることとなります。溶液漏出に要する時間は蓄積飛灰の高さと空隙率の二乗に比例するので、堆積高さが低く、かさ密度が大きい飛灰ほど、溶液漏出が生じ易くなります。高さ100cmの筒状容器に入れた、空隙率60%、CaCl₂含量30%の飛灰を30℃、90%RHの大気中に晒した場合の漏出時間は6000日ですが、高さが10cmに減少すると、漏出時間は60日に減少してしまいます。つまり、通常フレコンに飛灰を一杯に充填しておけば、理論上、少なくとも16年は、溶液漏出は生じないこととなります。現実の保管環境は、一般に温度も湿度も上記よりは相当に低く、通常保管状況において100年程度は溶液漏出はないといえます。

7.4 Csの不溶化と飛灰のセメント固型化

7.4.1 はじめに

前節で述べたように、飛灰に含まれる放射性Csの多くは水溶性なので、吸湿や結露、あるいは外部からの水の流入によって飛灰に水が浸入すると、これが周囲に漏出し、放射能汚染を引き起こす可能性があります。これを防ぐにはCsに対して選択係数の高いイオン交換体を飛灰に加え、Csをこれに吸着させることが効果的です。Csはイオン半径が大きく、従って水中ではイオン半径が実質的に最小のイオンとなるため、イオン交換体に対する選択係数が非常に大きく、吸着が容易なイオンです。しかし飛灰中には水和イオン半径の比較的小さいカリウムが多量に含まれるため、これがCsイオンの吸着を阻害します。カリウムイオンが吸着阻害しないイオン交換体としてはプルシアンブルーがよく知られていますが、飛灰には塩化水素の中和のために加えた水酸化カルシウムが多量に含まれているので、これがプルシアンブルーを分解してしまいます。このため飛灰中の放射性Cs不溶化法

としては、飛灰の洗浄液を中和処理し、その後プルシアンブルーに通して吸着させる手法がとられてきました。

高アルカリ性溶液中で安定、かつ高濃度のカリウムイオン共存下で選択的にCsイオンを吸着できる、安価かつ少量で有効なイオン交換体があれば、飛灰に直接イオン交換体の懸濁液を加えるだけで、放射性Csの不溶化が達成できます。また不溶化処理した飛灰をセメント固型化し、地中に埋没することも可能となります。

表7.4.1 焼却灰1gからの模擬漏出液10mL中での各種材料のCs固定化能

吸着剤	Ca/ppm	Na/ppm	K/ppm	Cs/ppk
無添加	7667	2092	3615	1392
1:1 フライアッシュセメントペースト 1g	7248	2071	3592	1431
1:1 高炉スラグセメントペースト 1g	7261	2101	3607	1580
炭酸化セメントペースト 1g	7098	1983	3331	1361
ベントナイト 1g	6767	2935	2953	24
ベントナイト 0.1g	7864	2175	3388	1145
モルデナイト 0.1g	7965	2139	3180	316
プルシアンブルー (フェロシアン化カリ 0.1g+塩化第二鉄 0.05g)	9416	2096	7350	1391

7.4.2 固定化材の探索

まず、適切な固定化剤を探索すべく、いくつかの材料について、飛灰漏出液を模した化学組成を有する溶液中での固定化剤のCs固定化能を調べました。飛灰の一例として、可溶性塩類として 10^{-4} mol/kg以下のCsClと、各々2mol/kg、1mol/kg、1mol/kg程度のCaCl₂、NaCl、KCl、および難溶性のCa(OH)₂が含まれていました。よって模擬溶液は、上記組成比の塩類と過剰量のCa(OH)₂に相当量の水を加えて作製しました。CaCl₂共存下での溶液のpHは、溶解度積の関係より、 $\text{pH} = 11.9 - 0.5 \log[\text{Ca}^{2+}]$ となります。なお、実際の放射能汚染飛灰では、これに極微量のCs-134とCs-137が加わることとなりますが、その量は元来含まれている非放射性Csの量に比べて無視できます。模擬溶液に固定化剤あるいは固定化剤の懸濁液を加えて攪拌混合後、1昼夜静置し、0.2 μm フィルターを通して上澄み液を吸引濾過してCsの定量分析用試料としました。Csの定量は、非放射性Csの場合はICP分析で、放射性Csを用いる場合にはNaIシンチレータによる γ 線測定により行いました。一部は、実際の放射能汚染飛灰を用いて効果を確かめました。

Csをイオン吸着する固定化剤としては、石炭フライアッシュなど様々な材料が知られています。これらの固定化剤の焼却飛灰に対する有効性を知るため、飛灰模擬溶液に各種固定化剤を添加し、24時間振盪後、溶液を吸引濾過し、溶液組成をICP(誘導結合プラズマ発光)分析しました(表7.4.1)。石炭フライアッシュはCsを強く吸着することが報告されていますが、フライアッシュセメントペーストに固定化能は見いだせません。これは石炭フライアッシュがCsを特異吸着しないため、共存するKイオンなどで吸着サイトが占有されて

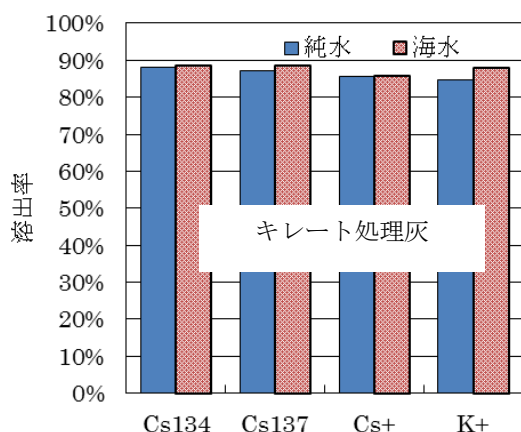


図 7.4.1 有姿攪拌試験における溶出率 (キレート処理灰)

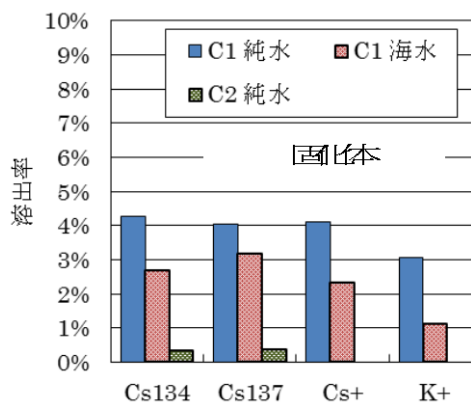


図 7.4.2 有姿攪拌試験における溶出率 (固型化体)

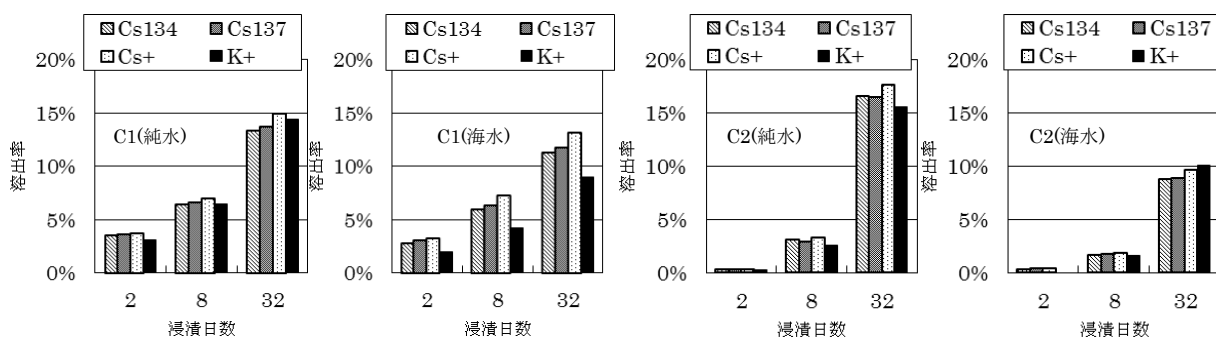


図 7.4.3 タンクリーチング試験における溶出率

しまったことによります。同様の現象は高炉セメントペーストや炭酸化セメントペーストにも見られました。ベントナイト(モンモリロナイト)やゼオライトの一種であるモルデナイトはCsの固定化に有効ですが、飛灰と同量程度添加しないとCsの漏出を阻止できません。プルシアンブルーは多量のKイオン存在下でも選択的にCsイオンを吸着することが知られています。しかしアルカリ性の飛灰漏出液中では分解し、その固定化能は完全に失われます。

7.4.3 固型化の効果

8k~100kBq/kg の溶出性の高い放射性 Cs を含有する焼却飛灰等について、管理型相当の処分場で処分するには、セメント固型化が求められています。Cs 固定以外に、セメント固型化には、放射性 Cs と水との接触を低減させる効果があり、8kBq/kg 超の高濃度に汚染されたキレート処理溶融飛灰をセメント固型化し、種々の溶出試験により溶出抑制効果を検証しました。

固型化に用いたキレート処理溶融飛灰(以下、キレート処理灰。64,000Bq/kg)を用いて、砕石骨材有り無しの 2 種類の固型化体を作製しました。まず、骨材無しの作製では、キレート処理物と高炉セメント B を 1:1 で混合、金型(φ115×300mm)に水を噴霧しながら数回に

分けて層状に充填し、プレス機(加圧能力：25t)を用いて圧縮し、膨張を防ぐ蓋をしました(圧密成型)。最終的に水セメント比は0.19でした。次に砕石有りの作製では、砕石無しと同様にキレート処理物とセメントを混ぜ、金型に数回に分けて充填する際に、つなぎ目に20mm程度の砕石を置いて圧密成型しました。水セメント比は0.23でした。以降、砕石無しの固型化体をC1、砕石有りの固型化体をC2とします。圧密成型後、金型は室温で保管し、C1では7日後、C2では19日後に脱型し、その後C1は2週間、C2は7日間気中養生しました。

溶出試験は、キレート処理灰と固型化体(C1,C2)をJISK0058-1に準じて、液固比；10、攪拌時間；6時間の条件で、溶媒を蒸留水または人工海水を用いて行いました(有姿攪拌試験)。結果を図7.4.1と図7.4.2に示します。キレート処理灰の134Csと137Csの溶出率は90%程度であり、溶出性が高い結果でした。放射性Csと安定Cs、その他の無機イオン類は同程度の溶出率であり、溶媒の違いによる溶出率の差は見られませんでした。一方、固型化体からの放射性Cs溶出率は、C1で4%、C2で1%未満であり、セメント固型化による溶出率の低減が確認されました。

タンクリーチング試験は供試体を有姿のまま溶媒中に静置する溶出試験です。浸漬日数を変え、溶媒として蒸留水と人工海水を用いて調べました。試験結果を図7.4.3に示します。放射性Csや無機イオンの溶出率は浸漬日数が伸びるほど大きくなり同じ挙動を示しました。最終的に32日間の浸漬による放射性Csの溶出率は9~17%程度で、有姿攪拌試験の結果よりも大きくなりましたが、固型化により溶出速度を低減させることができることが示されました。

7.4.4 より効果的なCs固定化材

各種の材料の使用やセメント固型化により、放射性Csの溶出は一定程度抑制できることが

表7.4.2 Ca(OH)₂飽和-0.0375mM-Cs溶液にプルシアンブルー類似化合物の懸濁液を等量加えた際のCs除去能

フェロシアン化物懸濁液組成 (Fe(CN) ₆ ⁴⁻ = 5mM)		
Metal ions (7.5mM)	Ca(OH) ₂ 濃度	Cs除去率(%)
無し	飽和量	0
Mn ²⁺	0	78
Mn ²⁺	飽和量	19
Fe ³⁺	0	0
Fe ³⁺	飽和量	8
Co ²⁺	0	98
Co ²⁺	飽和量	71
Ni ²⁺	0	99
Ni ²⁺	飽和量	98
Cu ²⁺	0	0
Cu ²⁺	飽和量	2
Zn ²⁺	0	4
Zn ²⁺	飽和量	0

が分かりましたが、より効果的な抑制方法が望まれます。フェロシアン化鉄が高pHを除いて高効率でCs固定することに着目しさらに検討しました。フェロシアン化カリウムと様々な遷移金属塩を混合すると、プルシアンブルー類似の不溶性イオン交換体が生じますが、これらもまた、特異的にCsイオンを吸着します。よってアルカリ雰囲気下で安定なプルシアンブルー類似化

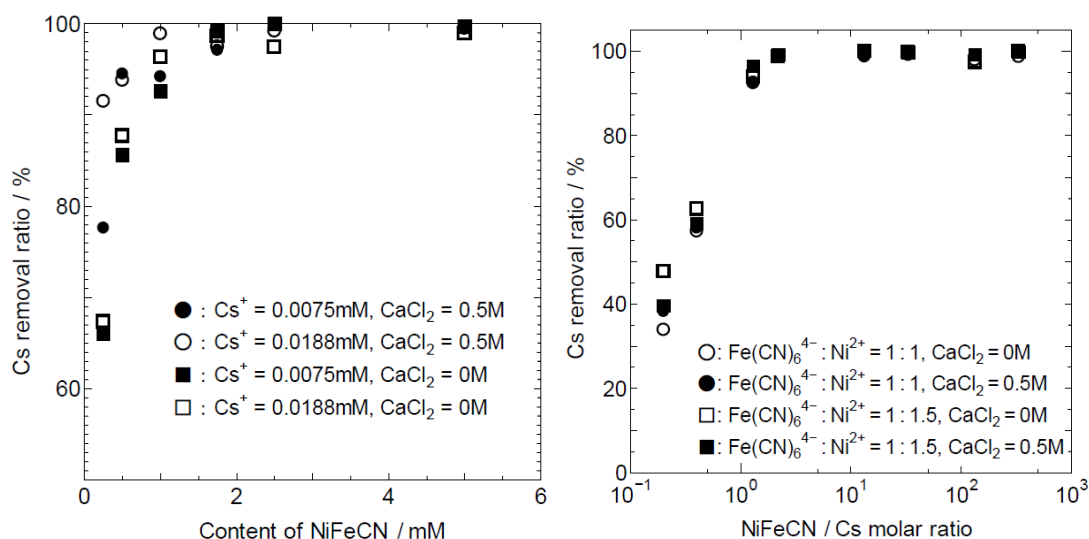


図 7.4.4 NiFeCN 濃度と Cs 除去能 図 7.4.5 Cs 除去能への Cs 濃度依存性

化合物があれば、飛灰中の放射性Csを不溶化できることとなります。

マンガンから亜鉛にわたる遷移金属のプルシアンブルー類似化合物の懸濁液をCsの133倍等量加えた際のCs固定化能を表7.4.2に示します。Csを含む溶液がアルカリ性(pH=12.7、Ca(OH)₂の飽和状態)であっても懸濁液が中性の場合は、Mn、Coは良好なCs固定化能を示しますが、懸濁液がアルカリ性になると固定化能が低下します。これに対してNiでは、懸濁液がアルカリ性になってもCs固定化能は低下しません。よってフェロシアン化ニッケル(NiFeCN)は飛灰からの放射性Csの溶出阻止に有効であると推論されます。実際、放射能汚染飛灰に1kg当たり0.01molを加えたところ、無添加の場合61%であった放射性Csの溶出率が0%に低下しました。よって以後NiFeCNについて、そのCsイオン吸着特性を詳細に述べます。

Csイオンに加えて飽和濃度のCa(OH)₂とNaCl、KCl、およびCaCl₂を含む溶液に、フェロシアン化カリウムとこれの1.5倍のモル比の塩化ニッケルを加えて作ったNiFeCN懸濁液を添加した際のCs除去率とNiFeCNの濃度との関係を図7.4.4に示します。溶液全量に対してのNiFeCNの濃度が2mM以下になるとCsの除去が不完全になるように見えますが、これはNiFeCNの量が不足するためではなく、Csを吸着したNiFeCNの沈降が遅くなるため、0.2μmのフィルターを通して放射線測定溶液中に放射性Csが混入することによります。このためCsイオン濃度と除去率の間に相関は見られません。

NiFeCNの量を一定とし、Csイオン濃度を増加した際のCsイオン濃度と除去率との関係を図7.4.5に示します。Csに対するNiFeCNのモル比が1以上あれば、KイオンやNaイオン、Caイオンが多量にあってもNiFeCNはCsをほぼ100%吸着します。NiFeCN懸濁液作製の際のFe(CN)₆²⁻とNi²⁺のモル比を1:1から1:1.5にしてもCs除去率に変化は見られないことから、NiFeCNの作製に要するフェロシアンイオンとニッケルイオンのモル比は1:1でよいことが分かります。飛灰には多くて10ppm程度のCsが含まれているので、放射性セシウム溶出防

止に必要なNiFeCNは、飛灰1トン当たりNiFe(CN)₆²⁻重量換算で20g以上あればよいということになります。

NiFeCN のアルカリ耐性を表 7.4.3 に示します。NiFeCN は pH=14 に近づくと分解することが知られていますが、中性の NiFeCN 懸濁液を pH>14 の強アルカリ溶液に添加しても、Cs 固定化能に変化はありません。また懸濁液を pH=14 にしてもかなりの Cs 固定化能を示します。これは NiFeCN のアルカリ耐性が Cs を吸着することによって著しく増加したためと考えられます。

表 7.4.3 NiFeCN による Cs 固定化に対する pH の効果

溶出液組成 ¹⁾		懸濁液組成 ²⁾		混合液	
NaOH/mmol	PH	NaOH/mmol	PH	PH	Cs 除去 ³⁾
0.4	13.3	0	中性	13	97.7
1	13.7	0	中性	13.4	97.8
2	14	0	中性	13.7	96.3
4	14.3	0	中性	14	93.7
0.2	13	0.2	13	13	98.2
0.5	13.4	0.5	13.4	13.4	97.2
1	13.7	1	13.7	13.7	97.6
1.6	13.9	1.6	13.9	13.9	48.1
2	14	2	14	14	54.6

1) 液量=2mL, Cs⁺ = 0.75μmol, NaCl, KCl = 1mmol

2) 液量 = 2mL, NiFeCN=10μmol

7.4.5 まとめ

放射性 Cs の処分の難しい点は、安定 Cs も含めて、焼却飛灰からの溶出率が高いことです。溶出しないのであれば、遮蔽をきちんと行うだけで安全に処分できます。Cs の溶出を抑制する方法として、固定化とセメント固型化を検討しました。その結果、フェロシアン化ニッケルを 1 トンあたり 20g という少量用いることで、セメントが生成する高いアルカリ環境でも安定して Cs の溶出を防止できることを示しました。セメント固型化は他の重金属などの溶出防止にも効果的であるので、フェロシアン化ニッケルを飛灰に混合し、さらにセメント固型化することで安全な可溶性 Cs を含有する汚染廃棄物の最終処分が出来ると期待できます。

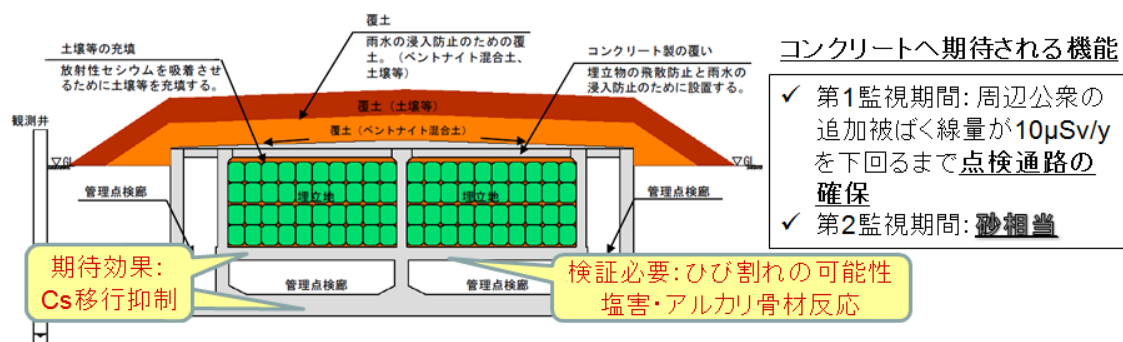


図 7.5.1 遮断型相当の処分場における現在のコンクリートへの期待性能と検討課題

7.5 鉄筋コンクリート製の最終処分場設計

7.5.1 飛灰の特性を考慮したコンクリートの劣化の可能性

福島県外の指定廃棄物の処分には、遮断型相当の最終処分場が検討されています(図 7.5.1)。ここで問題となるのは前節までも説明したように、放射性 Cs が水溶性である割合が高い焼却飛灰です。環境省から提示された案では、何重にも飛灰に水が接することがないように配慮されています。すなわち、覆土に加え、ベントナイト混合土により灌水からコンクリートピットを遮水します。コンクリート自体も遮水性を有するものを使用します。さらにコンクリート内部には遮水シートが配置されます。万が一、これらが機能しない場合は、点検通路により目視点検し、異常時には補修を行います。

想定しえる事故を含め、通常の条件では十分に安全であると考えられます。ただし、極めて厳しい事故が発生した場合についても、最新のコンクリート工学の知見から考えておくことは重要です。なぜならば、コンクリート材料の劣化については現在も研究が進行中であり、現在の基準類では対応できていない現象もあることが分かっているからです。本節では、これらの可能性を紹介し(表 7.5.1、図 7.5.2)、対応策を示します。

まず、通常の条件を考えます。環境省のコンクリートピットの案では床や壁がかなり厚い 60-80cm となっています。このような厚い部材を製造すると、セメントの水和発熱反応によりコンクリートの温度が上昇し、温度応力によるひび割れが一定間隔で発生します。この初期に生じるひび割れに対しては樹脂注入で補修できるのですが、ひび割れが少ないに越したことはありません。セメントの発熱量を下げるにはいくつかの方法、例えば材料を冷却する、低熱セメントを用いる、石炭火力発電所から発生するフライアッシュなどの混合材を用い圧縮強度を保証する管理材齢を長くする、などがあります。

地下ピットで湿潤雰囲気にあることを考えると、アルカリ骨材反応(ASR)が懸念されます。ASR はコンクリート中の骨材がセメントからもたらされるアルカリイオンと反応し、膨張性のゲルを生じ、コンクリートを膨張破壊する現象です。コンクリートの癌とも言われ、発生すると抑制は困難です。現在も ASR 抑制対策がありますが、その方法には限界があることが最近指摘されるようになっており、さらに抑制対策が安全性保証が必要な長期間にわたって果たして有効であるのか保証がありません。

表 7.5.1 コンクリートの劣化現象 ()の数字は図 7.5.2 の事例に対応

発生条件	現象	原因	対処例	課題
通常時	温度ひび割れ(1)	セメントの水和発熱	ひび割れの樹脂注入	少ないほうが望ましい
	ASR(2)	反応性骨材	現行抑制対策ではおきないはず	現行抑制対策は不完全 保証期間不明
事故時	塩害	遮水工機能不全によ	目視点検による検出	ピット内部からの劣

	ASR など	る飛灰からの CaCl_2 漏出	と補修	化を補修するのは困難
万が一の事故時	乾燥収縮(3)	CaCl_2 による吸湿・乾燥	膨張材の利用	ひび割れ発生時期を延ばせるだけ
	塩害(4)	飛灰からの Cl 溶出と鋼材腐食	コンクリート中の Cl 拡散係数低減 エポキシ塗装鉄筋利用	ひび割れが発生すると局所腐食発生コスト
	ASR(2)	飛灰からの Cl 溶出と骨材の ASR 膨張	フライアッシュの添加	長期予想を含めた挙動予測
	化学侵食(5)	飛灰からの Cl 溶出と膨張性鉱物生成	フライアッシュの添加	



(1) 温度ひび割れ



(2) アルカリ骨材反応 (ASR)



(3) 乾燥収縮ひび割れ



(4) 塩害



(5) 化学侵食

図 7.5.2 コンクリートの劣化現象の例

7.3節で示した飛灰の特性を考えると、最もコンクリートの耐久性に強い影響を与えるのが、コンクリート表面の遮水層が機能しなくなる場合です。遮水層に欠陥があると、飛灰は乾燥剤なので、コンクリートが乾燥し、乾燥ひび割れが発生します。さらに、吸湿した飛灰がコンクリートに接する状況になると、いくつかの劣化現象が促進することになります。

ひとつは、飛灰中の塩素がコンクリート中に進入し、鋼材を腐食させること(塩害)です。鋼材はセメントが生成する高アルカリ雰囲気中で酸化に対して安定になっていますが、塩素が高濃度になるとさびが生じ膨張し、かぶりコンクリートに大きなひびを発生し、ひどい場合にはコンクリート自体が剥離します。飛灰中のアルカリがコンクリートに進入すると pH が増加し、ASR が促進される可能性もあります。さらに高濃度の CaCl_2 は $3\text{CaO} \cdot \text{CaCl}_2 \cdot 15\text{H}_2\text{O}$ という膨張性の鉱物を生成しコンクリートを膨張破壊する現象がおきえます。

まとめますと、まずは、ピット内部に水が供給されないように配慮することが最も重要です。飛灰が水に触れなければ、適切に注意され設計・施工された鉄筋コンクリート[Ⓔ]自体は十分に耐久的と考えられます。

安全安心のために、万が一の事故時までを想定すると、塩害による腐食にはコンクリート中の塩素浸透を抑制すると共にエポキシ塗装鉄筋を使用するのが望ましいでしょう。温度ひび割れ、塩素浸透抑制、ASR、化学的侵食のすべてにフライアッシュは有効なので、効果をj確認して積極的に使用することが環境負荷低減の観点からも好ましいことです。

以下の項ではコンクリート中の Cs の移動を塩素の移動と比較しながら解析した事例を示します。また、ASR の長期的挙動の予測を加速コンクリートプリズム試験により行う方法を示します。最後にこれらの成果を技術資料としてまとめるための活動状況を紹介します。

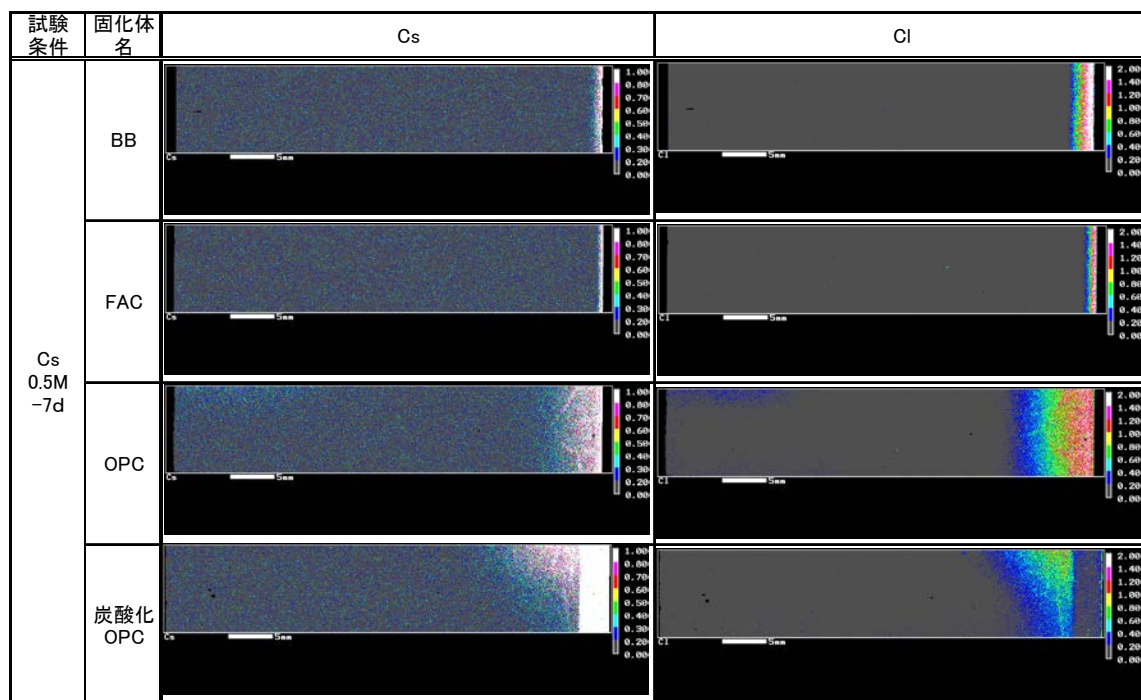


図 7.5.3 各種セメントペーストへの Cs と Cl の浸透状況

Ⓔ 各種の基準にはコンクリートが十分耐久的であると記載されていますが、これは施工欠陥を排除する慎重な対処がなされることを前提としており、すべてのコンクリート工事で本来の性能が実現されているわけではないという現実には十分注意すべきです。

7.5.2 コンクリート中での Cs の移動予測

コンクリート中の元素移動の最新の解析として、

- 1) セメントが水和反応で生成する固相の相組成と外環境とコンクリート内部の液相の化学組成、
 - 2) 熱力学的相平衡計算により、固液間の物質のやり取り、
 - 3) 多元素の移動をイオンの移動に基づく電場形成
- を考慮して解析的に解く方法が開発されてきています。

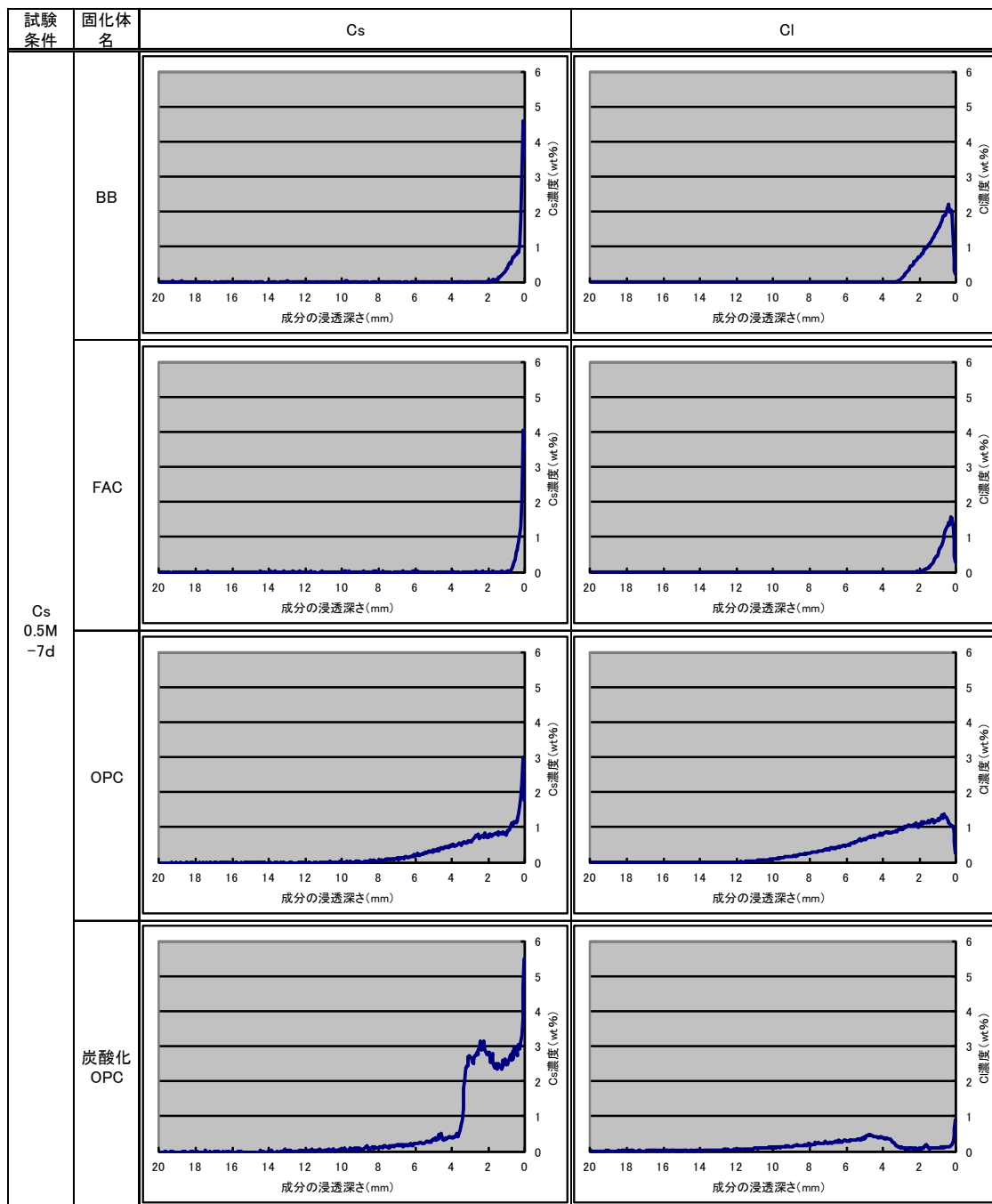


図 7.5.4 各種セメントペーストへの Cs と Cl の浸透プロファイル

この計算には対象元素とセメント水和物との相互作用が溶解平衡定数として与えられていなければなりません。通常、Cs は考慮されませんので、Cs とセメント水和物との相互作用を調べ、セメント硬化体を CsCl 溶液に浸漬して得られた元素の濃度プロファイルと比較しました。

図 7.5.3 にセメントペーストへの Cs と Cl の浸透状況を、図 7.5.4 に濃度プロファイルを示します。水/セメント比 60% のセメント硬化体で、セメントとしては、普通ポルトランドセメント(OPC)、高炉スラグにより 40% 置換した高炉セメント(BB)、フライアッシュにより 30% を置換したフライアッシュセメント(FAC) の 3 種類としました。0.5M の CsCl 溶液に 20°C で 7 日間浸漬しました。濃度分布は電子線プローブマイクロアナライザ(EPMA)により面分析を行い求めました。

Cs と Cl はどのセメントにおいてもほぼ同程度の浸透であることが分かります。セメント種類の違いに着目すると、OPC が 10mm 程度の浸透深さであるのに比較し、BB と FAC では数 mm 程度と大幅に Cs と Cl の浸透が抑制されていることが分かります。

この浸透プロファイルを熱力学相平衡-多元素移動モデルで再現します。図 7.5.5 に概念図を示します。外環境との元素のやり取りを、イオンの拡散と固相との相平衡反応を考慮して解析します。

解析の結果を図 7.5.6 に示します。実験結果と同じように、OPC では 10mm 程度の浸透であり、BB と FAC では数 mm の浸透に抑制されていることが再現できました。Cs に関してはより深くまで浸透する結果となっています。

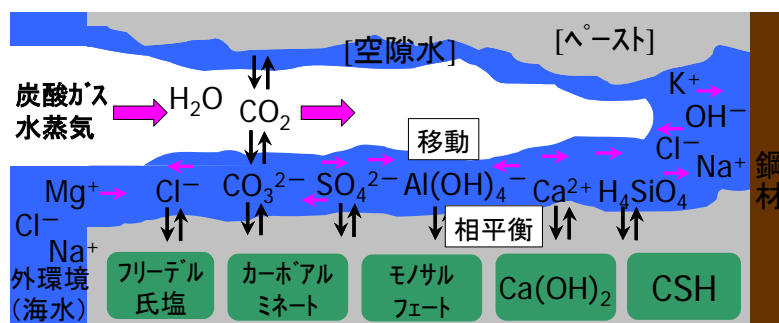


図 7.5.5 セメント硬化体中での物質移動と相平衡の概念図

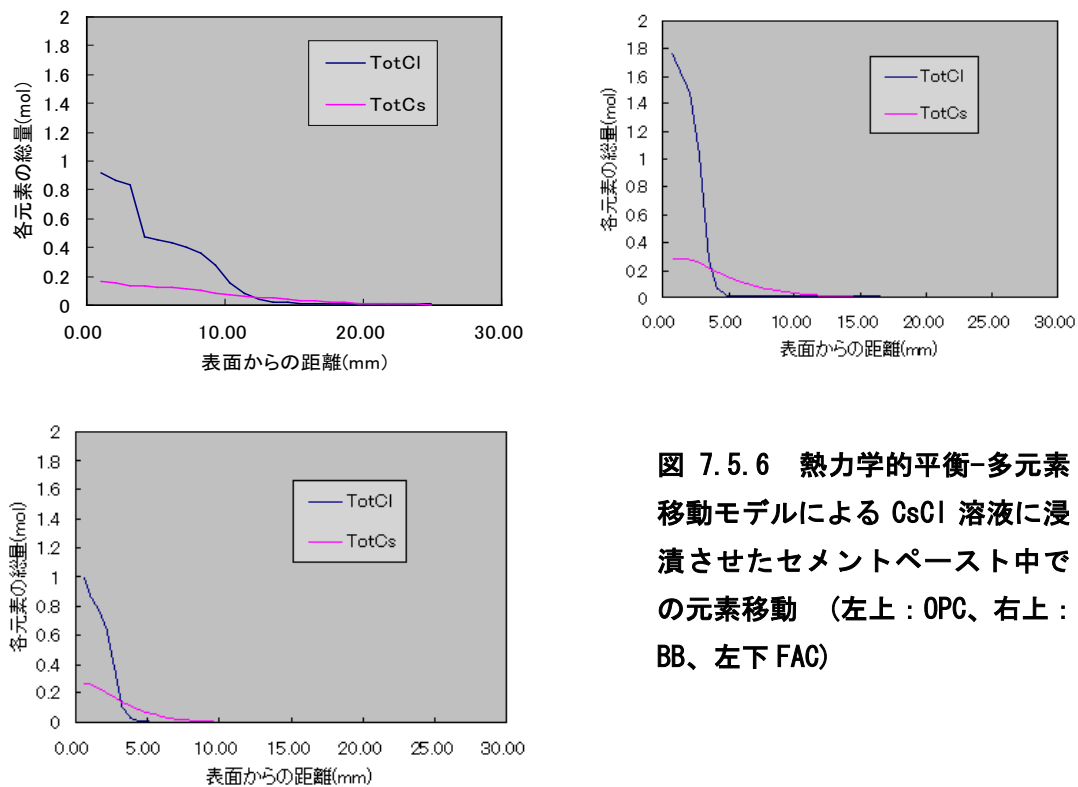


図 7.5.6 熱力学的平衡-多元素移動モデルによる CsCl 溶液に浸漬させたセメントペースト中の元素移動 (左上: OPC、右上: BB、左下 FAC)

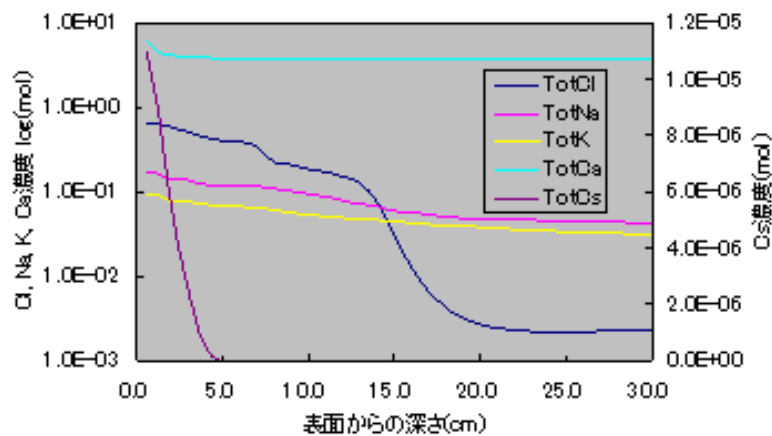


図 7.5.7 飛灰溶出液からセメントペーストへの元素移動予測

実験では濃厚な 0.5M の CsCl 溶液を用いましたが、実際の飛灰からの溶出液では Cl 濃度は濃厚ですが、Cs はごく希薄です。飛灰に 10ppm の Cs が含まれ(多い状況)、等量の水が作用した場合を考えると、10mg/L の濃度になりますので、これを境界条件として Cs 浸透を 30 年にわたり OPC に対して計算しました。Cl は 87000mg/L としました。

解析結果を図 7.5.7 に他の主要元素濃度とあわせて示します。塩素浸透は 20cm 程度までおきていますが、Cs 浸透は 5cm までです。これは Cs がごく低濃度でしか存在していないことと対応しています。すなわち、コンクリートが塩害に対して耐久的に設計されているな

らば、コンクリートピットから Cs が漏洩することは考えられない、ということになります。

7.5.3 アルカリ骨材反応の定量的評価と抑制

(1) はじめに

放射性物質に汚染された焼却灰(汚染灰)をコンクリート施設で最終処分するには、汚染灰に含まれる放射性 Cs の半減期から、コンクリート施設は長ければ 100 年オーダーにわたる耐久性を保有しなければなりません。耐久性のうち、アルカリ骨材反応(ASR)は JIS にも抑制対策が定められていますが完全なものではなく、より確実な抑制が求められます。そこで、反応性の異なる骨材を準備し、国際的最新版情報を考慮した試験方法により、フライアッシュなどを用い、ASR を抑制する効果を定量的に評価します。

(2) コンクリートバー法の加速倍率の推定の基本概念

寿命予測における加速試験は、様々な材料の劣化評価手法として用いられています。劣化を評価するには求められる寿命の年月暴露し、あるいは実際の使用に供して評価するのが最も確実ですが現実的ではなく、過酷な条件の下で劣化を促進し、長期間に起こる劣化が短期間に進むとみなして、現実的な時間の試験で長期の劣化に代える必要があります。

コンクリートにおいて化学的な劣化の進行は、コンクリートが天然に産出する材料を用いた複合材料であること、コンクリートは主に屋外において用いられるため様々な環境条件が作用し一義的には評価できないことから、予測は容易ではありません。また、アルカリ骨材反応に関しては、1940 年にカリフォルニアの King City 橋におけるひびわれを調査した T.E. Stanton によって初めて報告され、未だ 70 年数年しか経っていません。従って、アルカリ骨材反応に関する長期の膨張データは極めて少なく、長期間の劣化予測における検証が困難です。アルカリ骨材反応に対する劣化モデルはコンセプトの提示が行われている段階であり、未だ様々な骨材の膨張特性を化学的な反応に基づいてモデル化するには至っていません。

アルカリ骨材反応は、コンクリート中のアルカリ金属が骨材中に浸透し、骨材中のシリカが反応することによって生じる化学的な反応が主であると見なすことができます。すなわち、反応速度論に基づいた劣化の進行をモデル化することで、促進試験における劣化進行を、暴露試験の結果と対比することで、加速倍率を推定できる可能性があります。

本項では、アルカリ骨材反応における既存のコンクリート試験^fによる膨張に関するデータを整理し、化学的な反応速度の観点から基礎的な反応モデルを構築し、反応モデルにおけるパラメータを抽出して、暴露試験体における膨張劣化と比較することで、加速倍率を推定します。

^f 骨材の反応性を調べる試験には、高温アルカリ溶液への溶解シリカ量とアルカリ減少量を調べる化学法、粒度調整した骨材とアルカリ量を増加したセメントでモルタルを作製し高温養生する方法が日本では主流である。それぞれ、限界があり、コンクリートによる試験では、骨材組合せや骨材の粒度調整に起因する悪影響を除去できるため、ここではコンクリート試験により用いるコンクリート配合条件での挙動を検討する。

図 7.5.8 にコンクリート供試体を用いたアルカリ骨材反応の温度による膨張挙動の違い[1]を示します。この図における各供試体の膨張曲線は、用いる骨材、コンクリート配合が異なるのもですが、以下のように考察することができます。

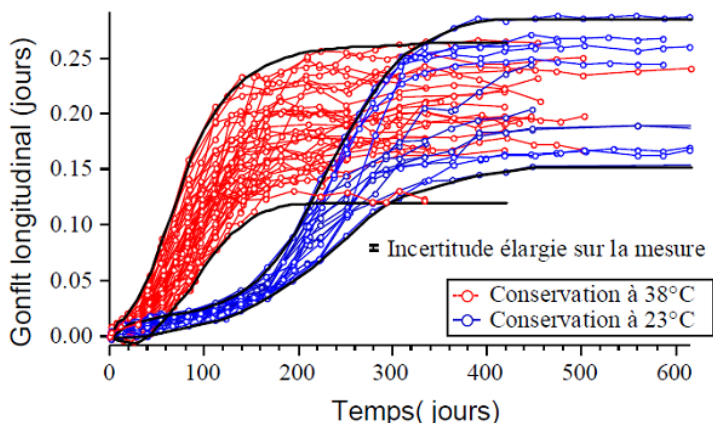


図 7.5.8 アルカリ骨材反応による膨張挙動[1]

①何れの供試体も養生初期には膨張が開始するまでの誘導期を有し、その後、加速

度的に膨張速度が増加し、減衰して最大膨張量に達する、

②温度が高ければ膨張は早期に生じるが膨張曲線の差異は小さい、

③最大膨張量は温度が高いほど小さくなる。

これらのことから、膨張挙動は、用いる骨材、配合、温度に係らず、同一の曲線として表すことができる可能性があります。また、アルカリ骨材反応における膨張は、直線的に生じるものではなく、また、試験におけるコンクリートの膨張測定では、最大膨張量に達するまでに時間を要するために限られた時間範囲での試験にならざるを得ないのですが、膨張は直線的に生じるものではないため、単に、ある時間における膨張量を把握しただけでは加速倍率を求めることができません。従って、ここでは、膨張挙動を曲線として捉えることで、膨張挙動を表し、膨張曲線に与える様々な要因をパラメータ化して膨張挙動の特性値として用いることで、加速倍率を求めることとしました。

初期に誘導期を有して時間とともに加速し、その後に緩やかとなって最大値に達する曲線として、以下の式 1 に表されるロジスティック曲線を仮定しました。この式における L_{∞} は時間 ∞ における極大値を示し、 b は傾きを、また、 c はロジスティック曲線の立上り開始までの時間を表します。

$$L = \frac{L_{\infty}}{\left(1 + e^{-b(t-c)}\right)} \dots\dots\dots \text{式 1}$$

RILEM で開発された AAR-3(38°C)および AAR-4(60°C)のアルカリ骨材反応における膨張試験結果[2]のデータを元に、式 1 で示される式を最小二乗法によって近似させました。アルカリ骨材反応における膨張曲線は実測値とほぼ一致し、ロジスティック曲線式で膨張挙動を表すことができると考えられます。なお、この式をアルカリ骨材反応の膨張に適用した場合には、 L_{∞} は、限られた試験における時間から推定される終局的な最大膨張量を示し、 b は膨張における傾き、 c は膨張開始までの時間を表し、 b はアルカリと骨材中のシリ

カとの反応速度、 c は骨材中にアルカリが浸透するまでの時間と負の相関を有すると考えることができ、これらは化学反応速度では温度による活性化エネルギーが関与するとみなすことができます。

(3) 膨張曲線におけるパラメータ

既往の室内試験および暴露試験で得られた各種の反応性骨材、配合による膨張において、前述の膨張モデルのパラメータに対する影響を調査しました。用いたデータは、14カ国の24機関が参加した、欧州で実施されたアルカリ骨材反応抑制のための規格化プロジェクトで実施された試験結果[3][4][5][6]のうち、屋外暴露試験、AAR-3、およびAAR-4試験のデータです。収集した試験体のデータはAAR-4(60°C)が32データ、AAR-3(38°C)が26データ、暴露試験が24データで、これらデータの総アルカリ量は、何れも $5.2\text{kg/m}^3 \sim 5.5\text{kg/m}^3$ です。収集したデータを、式1を用いて最小二乗法で近似させ、 L_∞ 、 b および c を求めました。

(4) 加速倍率の推定方法

以上の検討より、AAR-4 または、他の温度条件でのコンクリート試験から、暴露環境など、任意の温度および総アルカリ量での膨張曲線を、図 7.5.9 で示したフローで求めました。なお、選定した関係式からの変換式以下の通りです。

- 温度による最大膨張量の変換($L_{\infty(T1)} \rightarrow L_{\infty(T2)}$)

$$\frac{L_{\infty(T2)}}{L_{\infty(T1)}} = e^{1735 \cdot (1/T2 - 1/T1)}$$

- 温度による c 値の変換($c_{(T1)} \rightarrow c_{(T2)}$)

$$\frac{c_{(T2)}}{c_{(T1)}} = e^{6508 \cdot (1/T2 - 1/T1)}$$

- アルカリ量による最大膨張量の変換($L_{\infty(T2)} \rightarrow L_{\infty(T2R2)}$)

$$L_{\infty(T2R2)} = L_{\infty(T2)} - 0.2 \cdot (R_2O_{(1)} - R_2O_{(2)})$$

- アルカリ量による c 値の変換($c_{(R1)} \rightarrow c_{(R2)}$)

$$\frac{c_{(R2)}}{c_{(R1)}} = e^{-0.2577 \cdot (R2O_{(2)} - R2O_{(1)})}$$

- c 値と b 値の相関($c_{(x)} \rightarrow b_{(x)}$)

$$b = 5.066 \cdot c^{-0.7826}$$

推定における精度を検証するため、膨張曲線推定フローにおける各式を用い、屋外暴露試験体から加速試験における膨張量を推定しました。暴露試験体は、著しいペシマム現象 ε を示す安山岩骨材をペシマム条件で用い、約 2 年間暴露した 3 つの試験体で、アルカリ総量はそれぞれ 3.25kg/m^3 、 2.6kg/m^3 および 1.95kg/m^3 である。推定では 3.25kg/m^3 を基準とし、アルカリ量および温度の差異による $L_{\infty}(T_{2R2})$ 、 $b(T_{2R2})$ 、 $c(T_{2R2})$ を求め、ロジスティック曲線を用いて対象とした試験体での膨張率と比較しました。なお、暴露試験体は、暴露環境温度の平均値である 17°C として計算しました。

使用した骨材はアルカリ反応性が極めて高いため、推定膨張曲線は文献値から最もアルカリ濃度依存性が小さい骨材の値を用いて計算し、結果を図 7.5.10 に示します。推定膨張曲線と実測値はほぼ近い値を示しました。この結果から、膨張曲線の推定ではコンクリート中アルカリ量に対する骨材の反応性を適切に評価することで、より適切に膨張予測が出来ると考えられます。

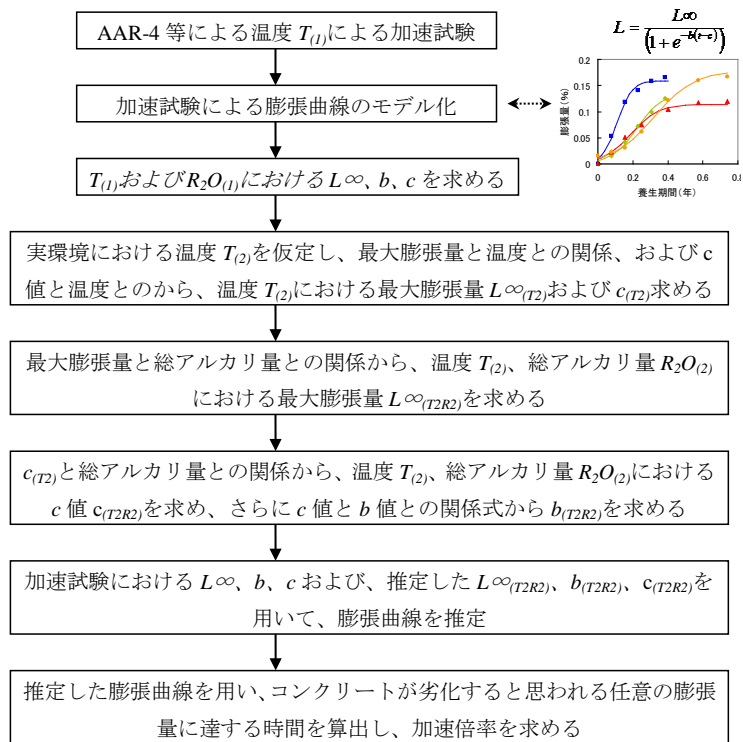


図 7.5.9 ASR における膨張曲線推定フロー

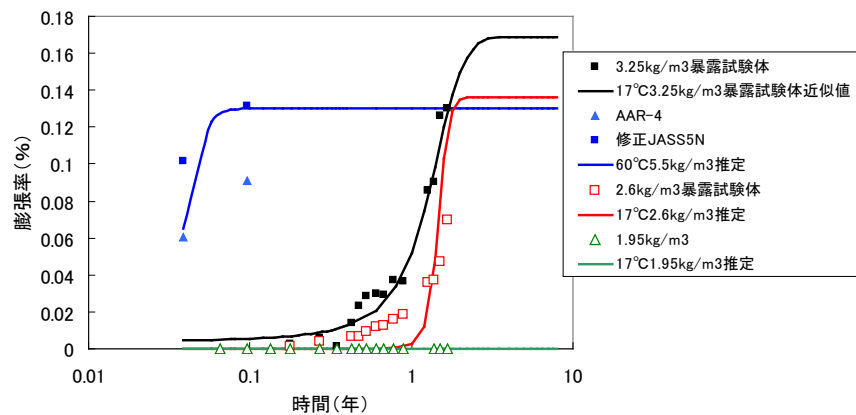


図 7.5.10 アルカリ総量 3.25kg/m^3 とした A 骨材を用いた暴露試験体の膨張曲線を用いた加速試験における膨張曲線の推定

ε ある種の高い反応性を示す骨材は、単独では膨張を示さない場合があるが、ある一定割合(例えば 30%)で反応性を示さない骨材と組み合わせられることで著しい膨張を示すようになることが知られており、これをペシマム現象と呼ぶ。

膨張曲線推定には、未だ課題はあるものの、検討した膨張曲線推定法を用いて加速倍率の推定を行いました。基準とした膨張量測定データは、AAR-4 による試験 [2]で、アルカリ骨材反応の反応性が"Normal"に分類される骨材 G1 を用いた結果であり、ここでは、アルカリ骨材反応による劣化は、膨張率が 0.05%に達した時にコンクリートにひび割れを生じ劣化が開始すると仮定しました。

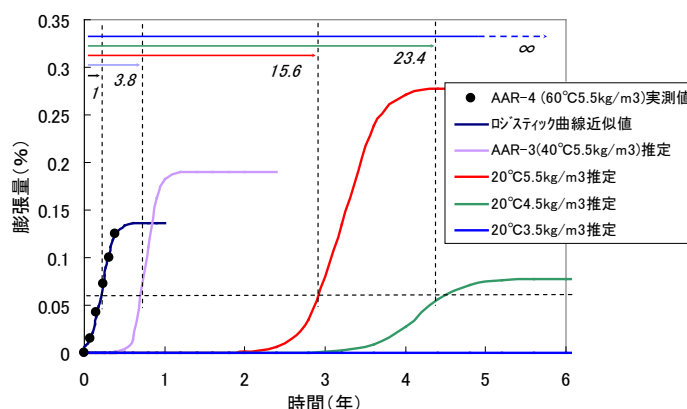


図 7.5.11 AAR-4 による試験結果を用いた加速倍率の推定

結果を図 7.5.11 に示します。60°Cにおける AAR-4 に対して、修正 JASS 5N に相当する 40°Cの試験の加速倍率は 3.8 倍、AAR-4 と同じ総アルカリ量 5.5kg/m³ で 20°C環境下の暴露試験では 15.6 倍、総アルカリ量を 4.5 kg/m³とした場合は 23.4 倍、さらに総アルカリ量を 3.5 kg/m³とした場合は膨張を生じず、加速倍率は無限大(∞)となりました。

これら加速倍率は、用いる骨材によって、あるいは、暴露における湿度や日射の有無などの環境条件によって異なるものであり、また、課題として、アルカリ骨材反応を生じたコンクリートの長期間における膨張曲線に関するデータが極めて少なく、長期における膨張の推定結果の検証が難しいこと、先に示したように最大膨張量に与える総アルカリ量の影響が挙げられ、例えば、アルカリ量を変化させて試験を行うなど、今後のデータ蓄積が必要です。

参考文献

- [1] C. Larive, Apports Combin'es de l' Experimentation et de la Modélisation à la Comprehension del Alkali-Réaction et de ses Effets Mécaniques. PhD thesis, Thèse de Doctorat, Laboratoire Central des Ponts et Chaussées, Paris, 1998
- [2] J. Lindgard, P. J. Nixon, I. Borchers, B. Schouenborg, B. J. Wigum, M. Haugen, U. Akesson, The EU "PARTNER" Project - European Standard Tests to Prevent Alkali Reactions in Aggregates: Final Results and Recommendations, Cement and Concrete Research, Vol.40, pp.661-635, 2010
- [3] J. Lindgard, P. J. Nixon, I. Borchers, B. Schouenborg, B. J. Wigum, M. Haugen, U. Akesson, The EU "PARTNER" Project - European Standard Tests to Prevent Alkali Reactions in Aggregates: Final Results and Recommendations, Cement and Concrete Research, Vol.40, pp.661-635, 2010
- [4] P. Nixon and S. Lane, Experience from testing of the alkali reactivity of European

aggregates according to several concrete prosm test methods, PARTNER Report 3.3, SINTEF Building and Infrastructure, 2006

- [5] B. Grelk, Experience from testing of the alkali reactivity of European aggregates according to two Danish laboratory test methods, PARTNER Report 3.4, SINTEF Building and Infrastructure, 2006
- [6] E. Siebel, J. Bokern, I. Borchers, Field site test established in the PARTNER project for evaluationg the correlation between laboratory tests and field performance, PARTNER Report 3.5, SINTEF Building and Infrastructure, 2006
- [7] E. Siebel, M. Böhm, I. Borchers, C. Müller, J. Bokern, E. Schäfer, ASR test methods - comparability and practical relevance, Concrete Technology Reports, VDZ, 2004-2006

7.6 まとめ

セメント・コンクリート技術を汚染廃棄物の処理・処分に活用する観点から種々の情報を説明しました。まず、セメント・コンクリート技術の活用の全体像を説明しました。さらにここの技術の展開について、以下のような説明を行いました。

- ・ 汚染コンクリートについては表面汚染を除染することで汚染廃棄物量を減量できる可能性がある。
- ・ コンクリートの放射能汚染は表面数 mm に留まり、より高濃度の汚染があったとしても汚染深さは限定的と考えられる。
- ・ 鉄筋コンクリートせいの処分場で安定的に処分するには水溶性の Cs を高い割合で含有する焼却飛灰が問題となる。
- ・ 飛灰は吸湿・潮解性の高い CaCl_2 を塩化アルカリと同時に含む。
- ・ 飛灰をフレコンに入れ保管すると通常温度湿度条件では 100 年は潮解による漏水は起きないと予想できる。
- ・ 水溶性 Cs の固定化を混合セメントやゼオライトなどを用いて行おうとしても効果は限定的である。
- ・ 飛灰をセメント固型化することにより溶出速度を大幅に低減できる。
- ・ フェロシアン化ニッケルを用いることで、飛灰中の水溶性 Cs を不溶化でき、かつ、高 pH を示すセメントを用いた固型化も可能である。
- ・ 環境省が提示している遮断型相当の鉄筋コンクリート製最終処分場(コンクリートピット)の平常時、事故時、万が一の事故時に発生しえる現象を整理した。
- ・ コンクリートピット内への水の浸透防止が最も重要であるが、処分場は多重の遮水構造となっており、安全であると考えられる。
- ・ 万が一の事故時を想定すると、塩害、アルカリ骨材反応(ASR)、化学侵食へ備えることが好ましい。

- ・ コンクリートへの飛灰からの漏出液による Cs の浸透予測を行ったところ、Cl の浸透に比べ、Cs の浸透は大幅に少なく、塩害に十分抵抗性を持つコンクリートからは Cs 漏洩は起きないと考えられる。
- ・ 長期間にわたる ASR の抑制効果は、加速コンクリートプリズム試験を行い、試験の加速倍率を考慮することで予測可能である。

放射能汚染のレベルが高い焼却飛灰などは、鉄筋コンクリート製の遮断型相当の最終処分場建設が予定されていますが、飛灰の特性を考慮し、安全安心の観点から万が一の事故にも耐える対策を講じることが必要となる可能性もありえます（当然、費用対効果の観点での検討も必要）。上記の研究成果を最終処分場建設に活かすことが今求められていることです。国立環境研究所では、汚染廃棄物処分にかかわる事業の安全確保に資するため、最新の知見をまとめ、最終処分場の設計と施工に活用するべく、コンクリートに関する専門家の協力を得て、「汚染廃棄物等最終処分場へのセメント・コンクリート技術適用に関する研究」に係る研究会を設置し、以下の内容に関して検討を重ねております。

- ・ 処分対象物の特性を考慮した処分場の評価シナリオの設定
- ・ 設計すべき事象、事故時などマネジメントすべき事象の整理
- ・ 望ましい構造や材料の例示（例えば構造として、上部からの漏水を防止、検出、補修が可能なプレストレストコンクリートによる屋根構造、コンクリート容器、材料としてフライアッシュセメント、膨張材、エポキシ塗装鉄筋など）

8 焼却飛灰の水洗浄による放射性セシウムの除去

8.1 飛灰洗浄技術のコンセプト

放射性セシウムを含む一般廃棄物等を焼却すると、ごみ組成等にも依りますが、大部分の放射性セシウムは飛灰に移行・濃縮されて排出されます（第6章 焼却処理過程における挙動と制御）。飛灰に含まれる放射性セシウムは水への溶出性が極めて高い（第4章 放射性セシウムの溶出特性）ため保管期間中も十分な配慮が必要ですが、水との接触や飛散を防止する措置をとり、加えて放射線に対する遮へいを適切に行うことにより、安全に保管することができます。但し、指定廃棄物としての一般廃棄物焼却灰（放射能濃度が8,000Bq/kg超）は平成25年12月31日時点で約9.7万t（環境省：指定廃棄物の数量、指定廃棄物処理情報サイト）存在しており、その保管スペースがひっ迫してきていますし、対策地域内の可燃物の焼却、中間貯蔵施設における減容化など、さらに増えていく可能性があります。

この対策としては、溶出性の高い飛灰中の放射性セシウムを予め水洗浄することが有効な方法の一つと考えられます。飛灰洗浄技術は、放射性セシウムに汚染された焼却飛灰を既存の管理型処分場で埋め立て可能なレベルまで洗浄・処理するとともに、溶出した洗浄排水中の放射性セシウムを吸着・濃縮することで、保管すべき廃棄物（二次廃棄物：廃吸着剤等）を減容することを目的とした処理方法です（図8.1）。

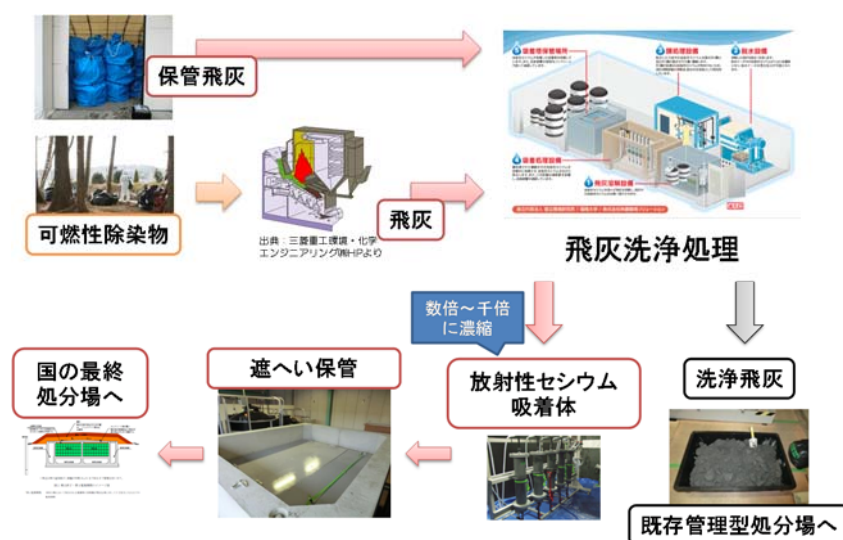


図 8.1 飛灰洗浄技術を適用した際の流れ

なお、焼却残渣の洗浄に関する研究は1987年頃より開始されており、最終処分場の高濃度無機塩類問題、浸出水中のカルシウム除去、脱塩研究を経て、1994～2012年まで、埋立前処理としての洗浄脱塩および洗浄灰のセメントリサイクルについてWOW（Wash Out Waste）システムとして研究がなされてきています。本章で紹介する放射性セシウムを除去するための飛灰洗浄技術の開発研究は、それらの知見をベースに行われています。

8.2 飛灰洗浄技術の導入による汚染廃棄物に関する課題の解決

8.2.1 焼却施設における保管スペースのコンパクト化

発生した飛灰をそのままフレコンで保管する場合と、飛灰洗浄を適用して二次廃棄物（廃吸着剤）のみを保管する場合を比較すると、例えば、原飛灰が 2 万 Bq/kg であったとすると、二次廃棄物の放射能濃度を 10 万 Bq/kg まで濃縮した場合の減容率はおおよそ 86%（約 1/10 に減容化）、1,000 万 Bq/kg まで濃縮した場合は 99.8%（約 1/1,000 に減容化）と大幅に保管スペースを小さくできる可能性があります。（詳細は 8.4.4 洗浄排水からの放射性セシウムの除去をご参照ください）

8.2.2 地域の除染の促進

一般廃棄物焼却施設において、飛灰処分ができずに保管しきれなくなった場合、焼却施設でのごみの受入を停止せざるを得ないという危機的状況に陥る危険性があります。また、地域で進められる除染事業においては、可燃性の除染廃棄物が発生することが想定されますが、焼却施設への受け入れにより飛灰濃度が上昇し、保管せざるをえない状況になれば、除染自体に支障をきたすことにもなりかねません。除染廃棄物の仮置場の設置は困難であり、また設置できた場合でも、最終処分場や中間貯蔵施設（福島県の場合）での受入が始まるまでに腐敗・変質することが危惧され、管理上の大きな支障が生じる可能性もあります。

一般廃棄物焼却施設において、飛灰洗浄技術を適用し、当該除染廃棄物を受け入れることにより、上記のような問題を回避でき、仮置場の運用がスムーズに進むことで、地域に散在していた除染廃棄物を適切に処理し、集中的かつ安全に管理できるものと考えられます。

8.3 飛灰洗浄技術の概要

8.3.1 飛灰洗浄技術の基本原則

飛灰洗浄技術の基本原則を図 8.2 に示します。飛灰中の放射性セシウムは水に溶けやすいため、保管や処分においては十分な管理が必要となりますが、本技術は、水に溶けやすいという特性を逆に利用し、保管・処分の前処理として、水洗浄を行おうとするものです。

水に飛灰を加えて一定時間攪拌し、これを脱水機で絞ると大部分の放射性セシウムが除去された脱水ケーキ（洗浄飛灰）が得られます。飛灰の性状にもよりますが、ビーカー試験やベンチ試験において、概ね 8～9 割程度が除去される結果が得られています。

水（洗浄排水）に移行した放射性セシウムは吸着法等によって水から除去・濃縮することができます。このとき、水中には放射性セシウムとともに飛灰から溶出した塩類（Na、Ca、K 等）が多く含まれております。このような共存するイオンはしばしば放射性セシウムの吸着を阻害することが指摘されておりますが、セシウム選択性の高い吸着剤の使用や工学的なプロセス設計により、十分に吸着・除去可能であることがビーカー試験やベンチ試験において明らかとなっております。

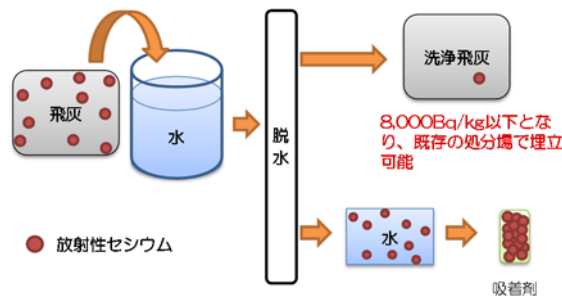


図 8.2 飛灰洗浄技術の基本原理

8.3.2 飛灰の性状

焼却施設においては、排ガス処理過程で消石灰（水酸化カルシウム）が使用されることが多く、その場合、飛灰には多量のカルシウムが含まれています。また、重金属溶出抑制のため、キレート剤やセメント等が添加されています。使用されている薬剤の種類や量、混練の有無等の影響で、飛灰の物理的状態（粉状、粒状、硬さなど）は施設によって異なっています（図 8.3）。複数の一般廃棄物焼却施設の飛灰を調査したところ、含水率 10～20%程度、かさ比重 0.8 程度のものが多く見られました。



図 8.3 一般廃棄物焼却施設から排出された飛灰の例

8.3.3 飛灰からの放射性セシウム等の溶出特性

焼却施設の運転方法やごみ質等に由来する飛灰の性状の違いは、放射性セシウムの水への溶出性に影響を与える可能性があります。また、飛灰の保管期間中に性状が変化する可能性も考えられます。そこで、複数の一般廃棄物焼却施設から排出された飛灰について、放射性セシウムの水への溶出特性を調査しました。

試料採取は 10 施設にて実施し、フレコン等で保管されている飛灰について、可能な限り発生時期（保管期間）の異なる複数の試料を採取しました。採取した試料は粒径 5mm 以下に揃え、JIS K 0058-1 の方法で溶出試験を行いました。その結果、多くの施設の飛灰は高い放射性セシウム溶出率を示し、同一施設で保管期間の異なる飛灰の溶出率は大きく変わりませんでした。但し、同じタイプの炉であっても施設によって溶出率が低いケースがあり、全体として 40～95%程度と大きく異なることがわかりました（図 8.4）。このことから、飛

灰の保管期間は放射性セシウムの溶出性に影響せず、施設毎のごみ質や運転方法の違いが大きく影響していると推察されます。

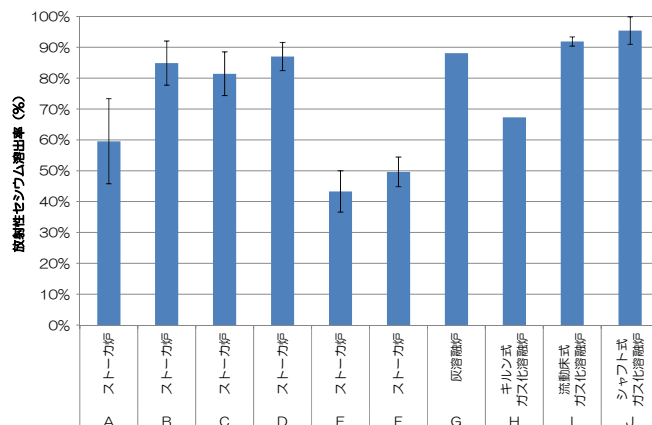


図 8.4 異なる施設から排出された飛灰の放射性セシウム溶出率

溶出率に影響を及ぼす因子としては、排ガス処理方法が考えられます。排ガス処理に活性白土を使用している施設 (E、F) では、飛灰からの放射性セシウムの溶出率が著しく低下していたことから、飛灰抽出液を用いて活性白土の吸着試験を行いました。その結果、活性白土に対する放射性セシウムの分配係数は 27.6 ml/g で、ゼオライト (345 ml/g) と比べると 1 オーダー低いものの、高塩濃度・高 pH 条件下においてもセシウムを吸着することが確認できました (表 8.1、図 8.5)。なお、今回の結果を第 5 章 (放射性セシウムの土壌等への吸着特性) で示された分配係数と比較すると、ゼオライトの分配係数が約半分になっていますが、これは今回の供与液の共存イオン濃度が高いためと考えられます。これまでの検討で、EC が 10 倍になるとゼオライトの分配係数が 1/10 になる結果が得られており、ベントナイトや茨城真砂土などでも、程度は異なりますが、同様の傾向が認められています (廃棄物・土壌処分技術手法開発等プロジェクト報告、p.15、http://www.nies.go.jp/shinsai/hokoku_haikibutsu.pdf)。今回の供与液 (飛灰抽出液) の EC (5,540 mS/m) での分配係数を比較すると、活性白土はベントナイトと同程度の吸着能を有していると言えます。

また、検体数は少ないのですが、セメント固化を行っている施設 (A) も若干溶出率が低いことから、セメント固化も溶出性への影響があると考えられます。その他の要因としては、消石灰による固結や主灰の吹き上げなどが考えられますが、いずれにしても、主灰や下水汚泥焼却灰などと比べて、どの施設の飛灰においても放射性セシウムは水への溶出性が高いといえる結果となりました。

表 8.1 飛灰抽出液の組成

pH	10.90	
EC(mS/m)	5,540	mS/m
Cs134	384	Bq/L
Cs137	981	Bq/L
Cs合計	1,365	Bq/L
安定Cs	0.15	mg/L
Cl ⁻	21,500	mg/L
Ca	7,430	mg/L
Na	3,380	mg/L
K	4,600	mg/L
Mg	<0.5	mg/L

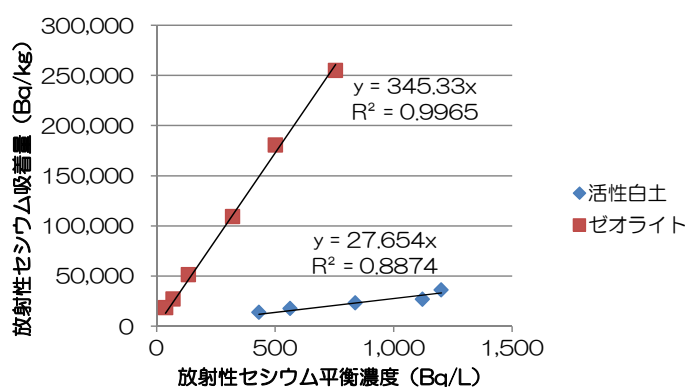


図 8.5 飛灰抽出液中の放射性セシウムの吸着特性

8.3.4 溶出液の特性

焼却飛灰を埋め立てた最終処分場の浸出水は高濃度の塩類を含み、pH も高いことが知られています。同様に、飛灰の洗浄水も塩濃度、pH が非常に高くなります。実際に、上記の溶出試験の結果、ろ液の pH は平均で 12.5 (10.5～12.9)、EC は 4,451 mS/m (1,750～7,220) と高 pH、高塩濃度となりました。

飛灰洗浄においては、放射性セシウムが溶出した洗浄排水を処理する必要がありますので、大量の水を使って洗った場合、洗浄排水の処理に要するコストや用地が大きくなってしまいます。そこで、洗浄排水を繰り返し洗浄に使用することにより、実質的な使用水量の削減可能性を検討しました。液固比は 10、溶出時間は 1 時間としてビーカー試験を行ったところ、4 回までの繰り返し使用においては、EC および放射性セシウムともに同程度の効率で飛灰から溶出しており、4 回目の洗浄排水の放射能濃度は 9,100 Bq/L、EC は 13,200 mS/m となりました (図 8.6)。この結果、洗浄時の液固比は 10 ですが、繰り返し使用によって実質的な使用水量を削減可能であることがわかりました。なお、このときの塩化物イオンは 55 g/L、カルシウムイオンが 22 g/L、ナトリウムイオンが 8.2 g/L、カリウムイオンが 12 g/L でしたので、試料重量の約 1 割がこれらのイオンで占められることになり、非常に

高塩濃度であることがわかります。

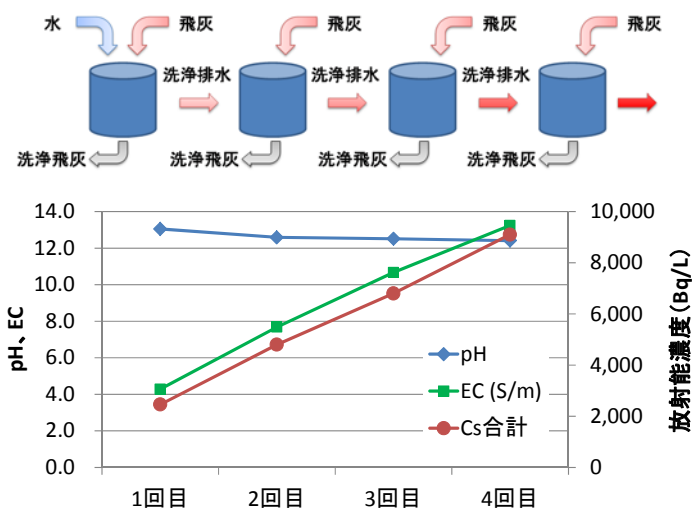


図 8.6 洗浄排水の繰り返し利用

8.4 一般廃棄物焼却施設での飛灰洗浄ベンチ試験

飛灰を埋立前に洗浄することは有意義であると考えられますが、これまで、放射性セシウムを含む飛灰の洗浄処理を一般廃棄物の焼却施設等で実施することは過去に例が無いため、上述した原理に基づき、実用化に向けた技術の確立を目的として、試験研究を実施しました (図 8.7)。

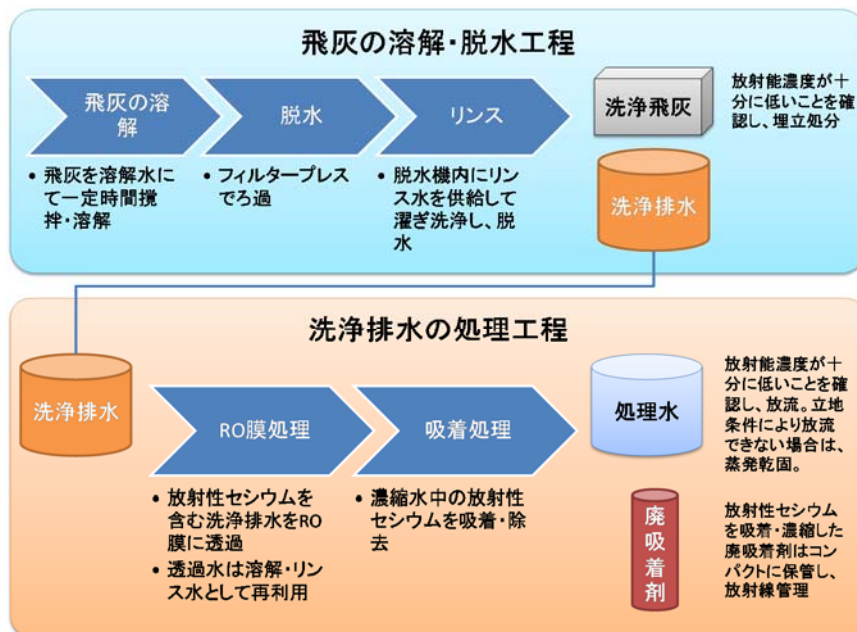


図 8.8 飛灰洗浄ベンチ試験の処理フロー

8.4.2 飛灰の洗浄効率

飛灰の洗浄効率の最適化を図るため、溶解槽（500L）に数十 kg の原飛灰と水を投入し、原飛灰と溶解水の液固比（重量比）や溶解・攪拌時間をパラメータとした最適化試験を行いました。なお、脱水はフィルタープレスを用いて行い、リンス水は投入した原飛灰の重量の 0～数倍程度で試験しました。なお、放射性セシウム濃度は NaI(Tl)検出器

（AT1320A、株式会社アドフューテック社）を使用した簡易スペクトロメータを用いて測定しました。

飛灰の溶解を液固比 10 倍、溶解時間 6 時間で行い、フィルタープレスでリンス（リンス液固比 5 倍）を行った結果を図 8.9 に示します。原飛灰の放射能濃度は約 8,000 Bq/kg でしたが、溶解・脱水により約 1,000 Bq/kg となり、さらに残存する溶解液をリンス水で追い出す（濯ぐ）ことにより、550 Bq/kg まで低下しました。このことから、飛灰洗浄の仕上げとしてリンスが有効であることがわかります。なお、脱水ケーキの放射能濃度は脱水機内部のどの場所でも顕著な違いは認められず、脱水機内で均等にリンスが行われていることがわかりました。

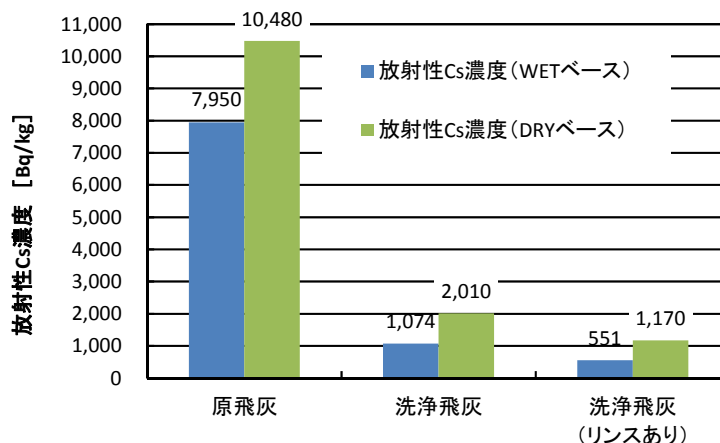


図 8.9 飛灰洗浄による放射能濃度の低減とリンスの効果

ここで WET ベースは原料飛灰および脱水ケーキの有姿の値であり、DRY ベースは含水率を考慮して水分を含まない場合に換算した値です。埋立時の放射能濃度の判断は有姿 (WET ベース) で行いますが、脱水ケーキの含水率にバラツキがある場合や物質収支を把握すること考慮し、DRY ベースの評価も併記しています。

また、飛灰と水の混合時間 (攪拌・溶解時間) が放射性セシウム除去率に及ぼす影響を明らかにするため、溶解液固比を 10 倍、リンス液固比を 5 倍とし、溶解時間をパラメータとして行った試験結果を図 8.10 に示します。溶解時間 30 分ではわずかに除去率の低下が見られるものの、1 時間以上では WET ベースでも除去率 90% を超え、放射性セシウムの除去率に顕著な差は認められませんでした。従って、飛灰の溶解時間は 1 時間程度の短時間で十分に洗浄効果が得られることがわかりました。

なお、本試験では 8,000~27,000 Bq/kg の飛灰について同様の試験を行い、飛灰洗浄技術は原飛灰の放射能濃度によらず、同程度の洗浄効率を発揮することが確認できました。

また、飛灰洗浄の効率と水温の関係を解析した結果、洗浄効率の温度依存性は非常に小さく、水温が 0°C に近い低温であっても顕著な放射性セシウム除去率の低下は認められませんでした。従って、冬季および寒冷地域においても加温処理等を必要とせず、効果的な飛灰洗浄が可能であると考えられます。

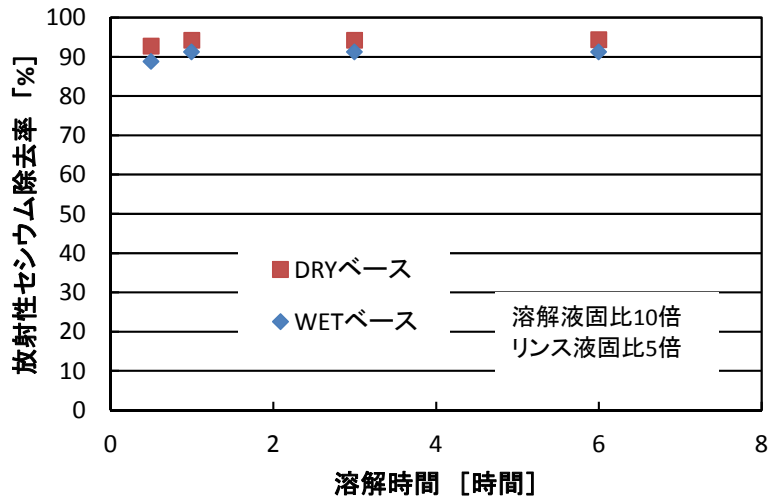


図 8.10 溶解時間と放射性セシウム除去率の関係

8.4.3 使用水量の低減

本システムでは、洗浄排水を RO 膜ユニットに通すことによって、放射性セシウムを除去・分離した透過水と濃縮水を得ることができます。この透過水を洗浄水として再利用することは、システム全体の水使用量および排水量を低減することができ、省コスト化、省スペース化において重要です。図 8.11 は RO 膜処理による放射性セシウム除去効果を示しています。ここで、縦軸は放射性セシウム濃度の監視基準の算定式である $Cs-134 \div 60Bq/L + Cs-137 \div 90Bq/L$ で換算した値です。

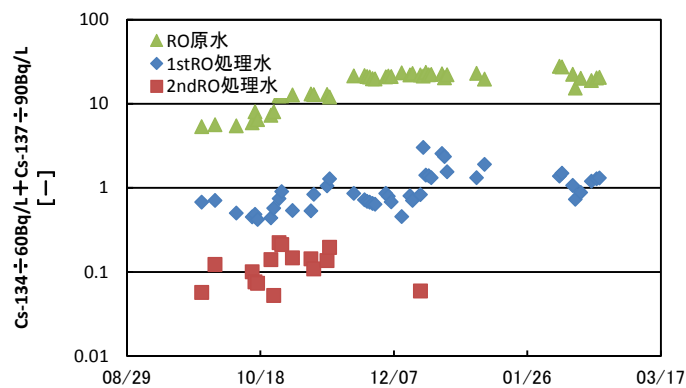


図 8.11 RO 膜処理前後の放射性セシウム濃度

RO 膜処理水は、1 段処理では原水の濃度の変動により濃度基準が 1 を超えることがありましたが、放射性セシウムの除去率は 95%以上であり、1 段処理水を洗浄水として再利用可能であることがわかりました。さらに 2 段処理を行うことにより、RO 処理水は十分に濃度基準を満足することがわかりました。

使用水量を低減させる別の方法として、溶解水やリンス水もしくはそれらの吸着処理水の再利用が考えられます。特に、飛灰を溶解させた飛灰溶解水をろ過した後に行うリンスでは、塩類等がある程度低下しているため、リンス水中の塩濃度は飛灰溶解水よりも低くなっており、再利用の有効性が高いと考えられます。そこで1度使用したリンス水を飛灰溶解水として再利用した場合の飛灰の洗浄効果の変化について、検討を行いました。

試験は、溶解水の液固比を5~10、リンス水の液固比は逆に10~5とし、トータル液固比は15で固定して行いました。リンス水を溶解水として再利用した場合としない場合の放射性セシウム除去率の比較を図8.12に示します。この結果から、溶解水の液固比によらず、リンス水の溶解水としての再利用は洗浄効果に悪影響を与えないことがわかりました。なお、トータル液固比を10（溶解液固比5倍）に下げた試験では、リンス水の再利用により洗浄効果の若干の低下が見られましたが、それでも除去率は90%を超えており、その影響は軽微であると考えられました。このように、水を繰り返し使用することで、洗浄効率を維持しつつ、使用水量を削減できることがわかりました。使用水量の削減はシステムの省コスト化、省スペース化に重要であり、限られたスペースで本技術を活用する上で、その適用性・有用性の向上に大きく貢献するものと考えられます。

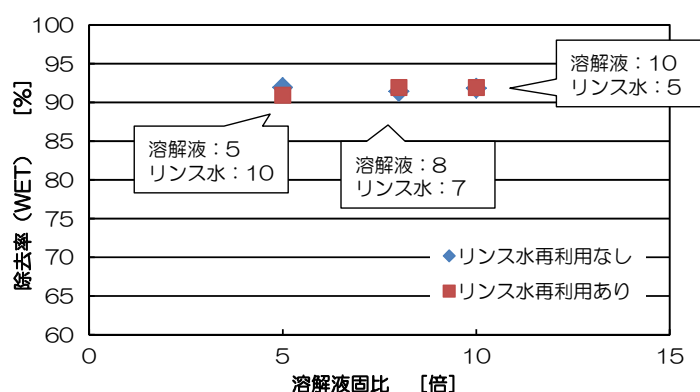


図 8.12 リンス水を飛灰溶解水として再利用した場合の洗浄効果への影響

8.4.4 洗浄排水からの放射性セシウムの除去

飛灰の溶解液および脱水ケーキのリンス水を混合した洗浄排水には、飛灰に由来する多量の塩類とともに放射性セシウムが含まれています。洗浄排水に含まれる放射性セシウムを除去するためには、高塩濃度条件下で効率的にセシウムを吸着・除去する必要があります。そこで、共存する陽イオン濃度が高い環境でもセシウム選択性の高いプルシアンブルー（フェロシアン化鉄）を粒状に成形した吸着剤（東亜合成（株））を用いて吸着処理試験を行いました。プルシアンブルーは一般的には青色顔料として身近なところで使われていますが、セシウムの吸着剤として高い吸着容量と選択性を有しています。但し、高 pH 環境下では分解してしまうこと、排水基準項目であるシアンが溶出が有り得ることなどから、取扱には注

意が必要です。

吸着試験条件を表 8.3 に示します。洗浄排水は pH が 12 程度と高いため、塩酸により pH を中性にしてから吸着処理を行いました。その結果、図 8.13 に示す通り、吸着処理の原水中の放射性セシウム濃度は洗浄する飛灰の濃度で変動し、1,000~3,400Bq/kg の間で推移しました。これに対して、吸着処理水は常に 10Bq/kg 未満となりました。従って、高濃度の塩類を含む飛灰洗浄排水においても、含有する放射性セシウムを効果的に吸着除去できることが実証されました。

なお、処理フローでは RO 膜処理により洗浄排水を濃縮した後に吸着処理を行いますが、上述の rins 水の再利用を行った場合は、RO 膜処理を行わなくても洗浄排水が高濃度となるため、直接吸着処理を行いました。その場合においても、吸着処理の性能に変化は見られず、十分な処理性能が得られています。

表 8.3 洗浄排水中の放射性セシウムの吸着試験条件

吸着塔の数(直列)	6	
吸着塔の直径(m)	0.15	m
吸着塔の高さ(m)	0.7	m
充填量(L)	12.4	L
充填剤に占める吸着剤の割合	20	%
流入方法	上向流	
SV	0.71	h ⁻¹
LV	3.0	m h ⁻¹

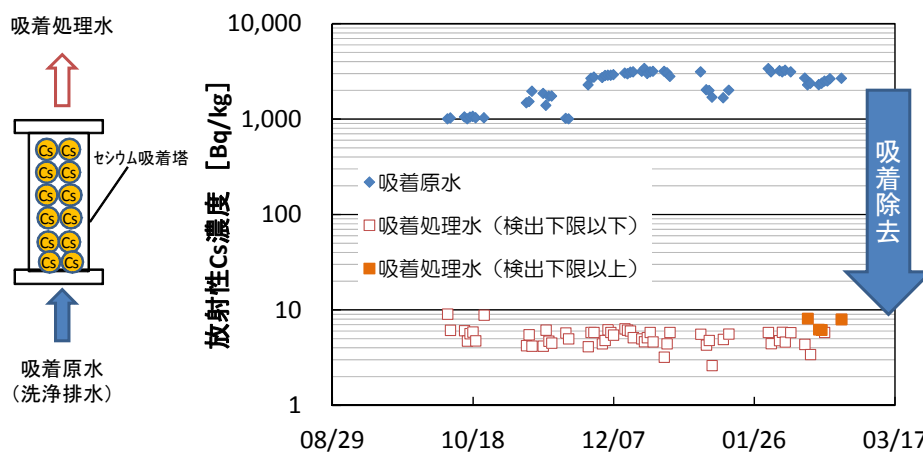


図 8.13 吸着原水および処理水の放射性セシウム濃度

一方で、プルシアンブルー吸着剤に濃縮された放射性セシウムの状況を把握するため、吸着塔表面の放射線量率を測定しました。図 8.14 は第 1 吸着塔の流入部表面の放射線量率の経時変化を示しています。処理を進めるにつれて放射線量率が上昇し、洗浄排水から放射性セシウムが吸着除去されている様子が見えます。

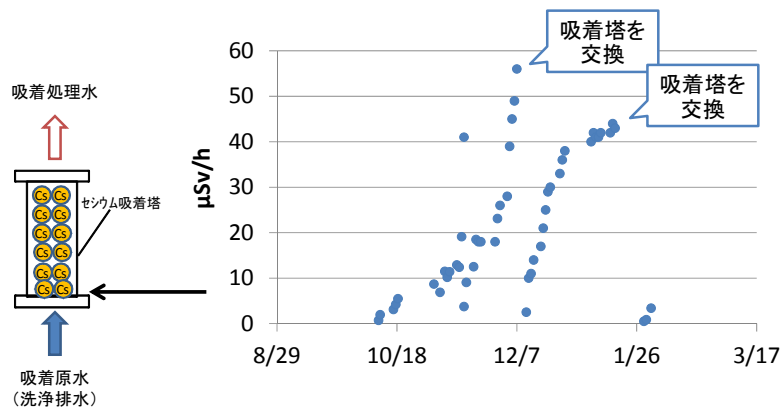


図 8.14 第 1 吸着塔表面の放射線量率

また吸着塔内の吸着剤の放射性セシウム吸着量の推定および分布の把握を行いました。ここで吸着量は、吸着塔に投入した総ベクレル数から処理水に含まれる総ベクレル数の差を吸着塔内の吸着剤重量で除して、平均吸着量を求めると同時に、予め、吸着塔表面の放射線量率と吸着量を換算する係数を求めておき、吸着塔毎の放射線量率を測定することで、各吸着塔における吸着量を算出しました。図 8.15 に示す通り、吸着塔へ投入した総ベクレル数が 10,000 Bq の時には吸着塔 A の下部（1 段目の入口）の吸着量は 20 万 Bq/kg 程度ですが、総ベクレル数が 300,000 Bq の時には 2 百万 Bq/kg 程度まで吸着されました。このとき、吸着塔 A の上部（出口側）ではまだ吸着量に余裕があると同時に、吸着塔 D（4 塔目）までにはほとんどの放射性セシウムが吸着される結果となりました。

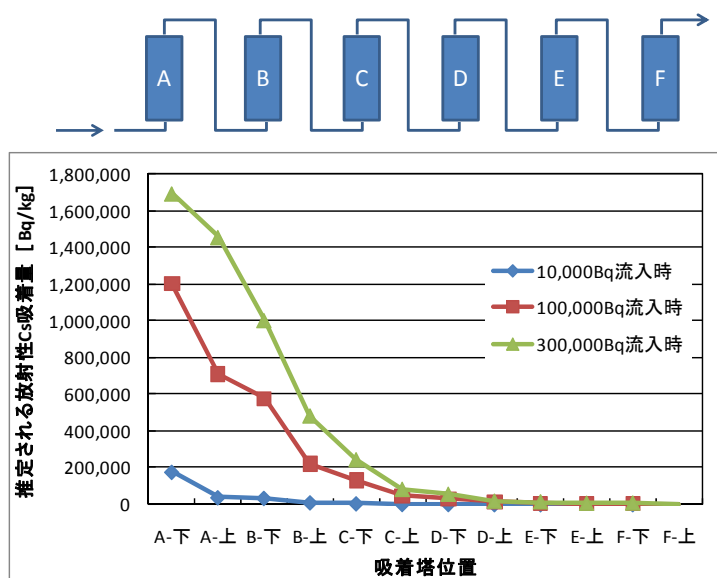


図 8.15 吸着塔における放射能濃度の分布

また、原水の放射性セシウム濃度の上昇に伴って吸着量が増加することも確認されました。原水の放射能濃度は最大で 3,000 Bq/kg 程度で、その際の吸着量は吸着剤の充填率を加味すると約 1,000 万 Bq/kg となりました。この結果を元に、飛灰の放射能濃度を 20,000 Bq/kg と仮定したときの物質収支を図 8.16 に示します。

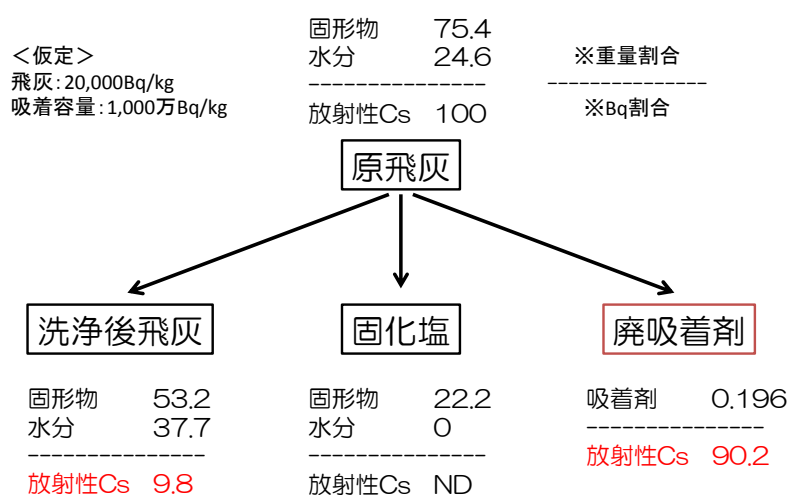


図 8.16 飛灰洗浄（プルシアンブルー吸着剤使用）の物質収支

一方で、廃吸着剤の放射能濃度を 10 万 Bq/kg 以下に制御する方法も検討しました。この場合、単位吸着剤量あたりの放射性セシウム除去量が少なくなりますので、より多くの吸着剤が必要となります。そこで、安価で汎用性の高い天然ゼオライトを焼成したモルデナイト型ゼオライト（ゼオフィル、新東北化学工業（株））を使用しました。

ゼオライトを用いた吸着試験の条件と結果を表 8.4 に示します。なお、廃吸着剤の放射能濃度を 10 万 Bq/kg 以下に制御するため、ゼオライト吸着剤を碎石と混合して試験を行いました。この場合でも、吸着原水で 3,900 Bq/L あった放射能濃度が吸着処理水では検出下限値（10Bq/L）未満となり、十分な処理性能が得られました。

表 8.4 ゼオライトを用いた吸着試験の条件と結果

吸着塔の数(直列)	6	
吸着塔の直径	0.15	m
吸着塔の高さ	0.7	m
充填量	12.4	L
充填剤に占める吸着剤の割合	5	%
流入方法	上向流	
SV	0.36	h ⁻¹
LV	1.5	m h ⁻¹

ここで、処理対象飛灰 1,500t、放射能濃度 20,000 Bq/kg の条件で、飛灰洗浄による減容

化率を試算しました。表 8.5 に示す通り、プルシアンブルー吸着剤を用いた高濃度濃縮の場合では、廃吸着剤量は 2.7t (3.4m³) となり、減容化率は極めて高く、原飛灰の 0.19%の容量となりました。一方、ゼオライト吸着剤を用いた中濃度濃縮の場合の減容化率は 13.5%であり、高濃度濃縮ケースに比べると減容化率は低くなりますが、放射能濃度は 10 万 Bq/kg 以下に制御されることから、一時保管における遮へいに要するコスト・スペースが小さくなります。いずれのケースでも、廃吸着剤では原飛灰と異なり、放射性セシウムの溶出性が極めて低くなっていることから、速やかに中間貯蔵施設や国の最終処分場に搬出されることが期待されます。

表 8.5 飛灰洗浄による減容化率の試算

	プルシアンブルー吸着剤 (高濃度濃縮ケース)	ゼオライト吸着剤 (中濃度濃縮ケース)
飛灰の保管量	1,500 t	
保管飛灰の比重	0.85	
保管飛灰の容量	1,765 m ³	
保管飛灰の放射能濃度	20,000 Bq/kg	
総放射能	3.0 × 10 ¹⁰ Bq (= 1.5 × 10 ⁶ kg × 20,000 Bq/kg)	
飛灰洗浄により除去される放射性セシウムの割合	90%	
飛灰洗浄により除去される総放射能	2.7 × 10 ¹⁰ Bq (= 1.5 × 10 ⁶ kg × 20,000 Bq/kg × 0.9)	
最大吸着量	1,000万Bq/kg	10万Bq/kg
吸着剤使用量	2.7 t (= 2.7 × 10 ¹⁰ Bq ÷ 1.0 × 10 ⁷ Bq/kg)	270 t (= 2.7 × 10 ¹⁰ Bq ÷ 1.0 × 10 ⁵ Bq/kg)
吸着材のかさ比重	0.8	1.13 (吸着剤は0.65)
吸着材の容量	3.4 m ³ (= 2.7 t ÷ 0.8)	239 m ³ (= 270 t ÷ 1.13)
減容化率	0.19% (= 3.4 m ³ ÷ 1,765 m ³ × 100)	13.5% (= 239 m ³ ÷ 1,765 m ³ × 100)

※飛灰の保管方法および廃吸着剤の遮へいによるスペースについては別途考慮が必要。

8.4.5 洗浄飛灰に含まれる放射性セシウムの水への溶出性

飛灰洗浄による溶出性低減効果を確認するため、放射能濃度の異なる原飛灰を洗浄し、放射能濃度の変化を確認するとともに、洗浄飛灰の溶出試験を行いました。溶出試験は JIS K0058-1 に基づいて行い、ゲルマニウム半導体検出器を用いて放射能濃度を測定しました。表 8.6 に示す通り、原飛灰で 8,000 もしくは 26,000 Bq/kg 程度であったものが、洗浄後にはそれぞれ 400、2,200 Bq/kg 程度まで低減しており、洗浄飛灰の溶出濃度は <17 Bq/L、52 Bq/L となりました。洗浄飛灰としての放射性セシウム溶出率は 23%程度ですが、洗浄前(原飛灰)の状態から考えると、2%程度となります。原飛灰からの放射性セシウム溶出率が 90%超であることを考慮すると、大幅な溶出性の低減が図られたと言えます。

表 8.6 洗浄飛灰の溶出試験結果

	ケース1	ケース2
原飛灰の放射能濃度(Bq/kg)	8,120	26,130
洗浄飛灰の放射能濃度(Bq/kg)	407	2,235
洗浄飛灰の溶出濃度(Bq/L)	<17.0	51.9

上述した溶出試験は特措法に基づくものですが、溶出時間が 6 時間であるため、念のため、約 1 ヶ月の溶出試験を実施しました。先ほどとは別の洗浄飛灰 (1,453 Bq/kg) を同じように 10 倍量の水と混合し、30 分後、6 時間後、7、17、29 日後に溶出液中の放射能濃度を測定しました。その結果、6 時間後の溶出濃度は 19 Bq/L (溶出率 13.1%) であり、その後、顕著な変化がなかったことから、洗浄飛灰に残存する放射性セシウムの大部分は不溶性であることが推察されました (図 8.17)。

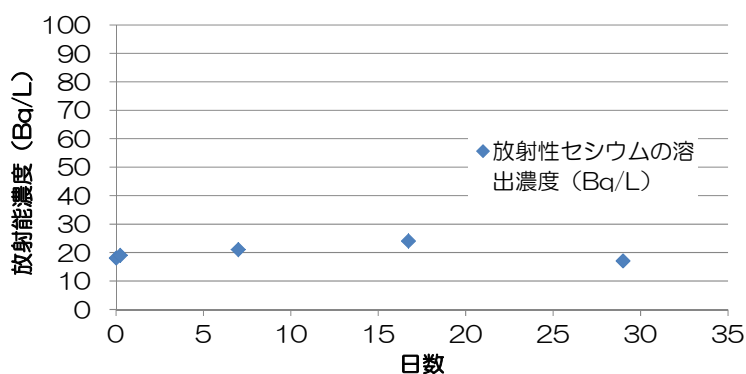


図 8.17 洗浄飛灰の長期溶出試験

なお、環境庁告示第 13 号 (昭和 48 年 2 月 17 日) に基づいて溶出試験を行った結果、鉛について基準値を超える値が検出されることがありましたが、液体キレート剤を飛灰溶解水に添加 (重量比 2%) することで、洗浄飛灰からの鉛の溶出を抑制することが可能であることが確認できています。

8.4.6 洗浄不溶化試験

8,000 Bq/kg 超 100,000 Bq/kg 以下の指定廃棄物は、埋立後の放射性セシウムの溶出リスクを低減するため、セメント固型化や隔離層の設置が義務づけられています。しかし、当該廃棄物からの放射性セシウムの溶出量が少なければ (基準値: 溶出試験で Cs137 が 150Bq/L 未満)、セメント固型化をせずに埋立処分することができ、埋立時の隔離層の設置についても上部の不透水層以外は不要となります。そこで、ここまで示した飛灰洗浄技術を応用し、埋立処分の前処理として飛灰中の放射性セシウムを不溶化する方法 (図 8.18) を検討しました。

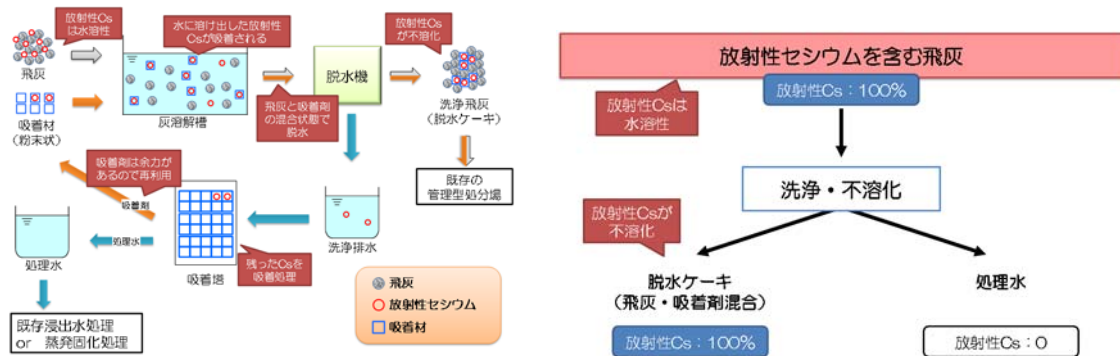


図 8.18 洗浄不溶化処理の概念図と収支のイメージ

具体的には、上述のベンチ試験装置を用い、飛灰洗浄において水に溶解する際に放射性セシウムを不溶化するための吸着剤を添加して飛灰中の放射性セシウムを不溶化する方法（洗浄不溶化方式）の実証試験を行いました。

放射能濃度が 22,000～27,000 Bq/kg 程度 of 原飛灰 40kg に対して吸着剤としてのゼオライトを 10～30% 添加し、溶解液固比を 5 倍、リンス液固比を 2.5 倍、吸着時間を 1 時間として不溶化処理を行いました。フィルタープレスで脱水・排出された不溶化飛灰の溶出試験を行ったところ、溶出性が著しく低減されていることが確認できました。また、ゼオライトの添加率が高いほど溶出濃度は低くなりますが、10% 添加でも溶出濃度は ND レベル（10 Bq/L 以下）となることがわかりました（図 8.19）。

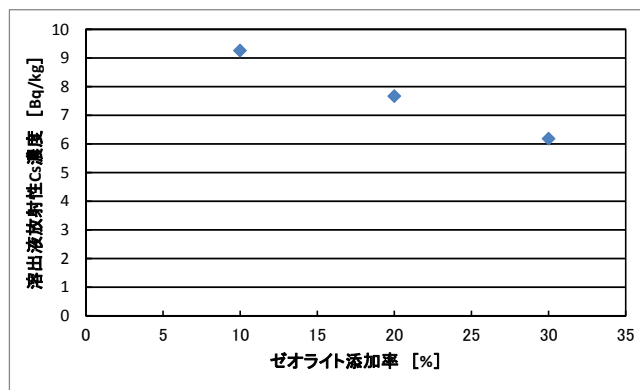


図 8.19 ゼオライト添加率と不溶化飛灰からの放射性セシウム溶出濃度の関係

なお、洗浄不溶化した際の排水中には数百 Bq/L 程度の放射性セシウムが残留しているため、後処理を行って除去する必要がありますが、洗浄不溶化で使用する吸着剤と同じものを吸着塔に充填して通水することにより、ND レベル（10 Bq/L 以下）まで除去できました。また、この後処理で使用したゼオライトは吸着容量が十分に余っているため、これを粉砕し

て洗浄不溶化に再利用できることも確認できました。従って、飛灰溶解時に添加する吸着剤の量に合わせて後処理吸着の条件を調整することで、二次廃棄物を発生させることなく不溶化処理が可能であることがわかりました。

8.4.7 放射線管理

飛灰洗浄ベンチ試験を実施したエリアの空間線量率をモニタリングしたところ、飛灰洗浄による事業所外部への汚染の拡大は見られませんでした。但し、飛灰を大量に搬入するとその周辺は線量率が上昇するため、必要に応じて遮へい等の対応を検討する必要があります。一方、放射性セシウムを吸着・濃縮する吸着ユニットや廃吸着剤を保管する保管スペースは鉄板やコンクリートによる遮へいを行っており、十分な被ばく防護が確認できました。また、電離則で定められている作業環境測定を作業環境測定士により 1cm 線量当量率、床面の表面密度、空气中放射性物質濃度の測定を行った結果、特段の汚染は認められず、適切にプロセスを管理できることがわかりました。なお、原料飛灰は一定の水分を含んでいるため、溶解作業中に粉塵として舞うことはほとんどありませんでした。

作業に従事した作業員が作業により受けた被ばくについて、表 8.7 に示します。作業従事者の被ばくは 0~2 μ Sv/日程度で、試験期間に最も放射線量を受けた作業員 (E) でも約 1 年間で 0.25 mSv 程度であり、法律で定められている年間 50 mSv、5 年で 100 mSv と比較して非常に低い値で管理できました。規模が大きくなると処理する飛灰量が増加するために放射線量の増加が考えられますが、実設備では飛灰溶解作業の自動化による作業時間の短縮、吸着塔の遮蔽とデータの自動測定等により、作業員が受ける放射線量を低減することが可能であると考えられます。

表 8.7 各作業員の作業内容と被ばく状況

作業員	主な作業内容	1 時間当たりの被ばく量
A	データ整理	0.031 μ Sv/h
B	作業環境測定、RO 膜装置データ測定	0.163 μ Sv/h
C	吸着装置データ測定	0.206 μ Sv/h
D	作業環境測定、飛灰溶解作業	0.174 μ Sv/h
E	飛灰溶解作業	0.245 μ Sv/h
F	吸着装置データ測定	0.167 μ Sv/h
G	作業環境測定、吸着装置データ測定	0.143 μ Sv/h

8.4.8 ベンチ試験のまとめ

以下に、飛灰洗浄ベンチ試験で得られた結果をまとめます。

- 飛灰洗浄による放射性セシウム除去率は概ね 90%以上でした。

- 洗浄後の飛灰には放射性セシウムが 10%程度残存しましたが、8,000 Bq/kg を大きく下回り、放射性セシウムの溶出濃度・溶出性も著しく減少しました。
- 洗浄排水中の放射性セシウムは、吸着塔で除去・回収され、処理水中の放射性セシウム濃度は ND レベル (<10 Bq/L) でした。
- 一連のプロセスを通して、適切に放射線管理が可能でした。
- クリーンセンター等では排水できないケースが多いため、処理水の蒸発固化が必要であり、使用水量の削減が重要となります。
- 現時点では二次廃棄物（廃吸着剤）の搬出先がないため、放射性セシウムを濃縮した二次廃棄物を放射能濃度に応じて遮へい容器等に収納し、場内に一時保管する必要があります。
- 放射能濃度の高い二次廃棄物は、一度保管したら移し替え等は困難であるため、中間貯蔵および最終処分における廃棄体と保管形態・容器等の条件を整理しておく必要があります。

8.5 飛灰洗浄技術の開発状況

8.5.1 飛灰の洗浄方法

飛灰中の放射性セシウムを溶解、洗浄して分離させる技術としては、本稿で示した方法を含め、以下のような技術開発が進められています。

➤ 水洗浄

飛灰に対して数倍程度の水を加えて溶解させた後、フィルタープレス等で脱水することにより、放射性セシウムが除去された洗浄飛灰と放射性セシウムを含む排水とを分離する方法です。

（国立環境研究所・福岡大学・(株) 神鋼環境ソリューション）

- 本稿 8.4
- 放射性物質に汚染された飛灰の洗浄による埋立前処理に関する研究（2013）第 34 回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集、313-315.
- 飛灰中のセシウムの洗浄分離に関する研究（2012）第 23 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、573-574.

➤ 水洗浄＋磁気分離

飛灰の水洗浄の際、もしくはその後に磁性吸着剤を混合することで水溶性の放射性セシウムを除去し、放射性セシウムを吸着した磁性吸着剤は超伝導磁気分離装置で分離・回収する方法です。吸着剤は繰り返し使用可能です。これにより、水洗浄と洗浄排水の処理を同時に行うことができ、システムをコンパクトにできることが期待されます。なお、磁性吸着剤を工夫することで、高 pH 耐性と磁力の

向上を図り、磁気分離に永久磁石を用いることも試みられています。

(三菱製紙(株)・(株)MSエンジニアリング、他)

- ・ 磁気分離法による飛灰浄化方法の検討(2012)第1回環境放射能除染研究発表会
- ・ 磁性吸着剤を用いた放射能除染システム(2012)月刊JETI2012年12月号(大成建設(株))
- ・ 平成25年度除染技術実証事業

➤ 飛灰を造粒して水切りフレコンで固液分離

飛灰をセメントにより造粒固化してから水洗浄することで、その後の固液分離に水切りフレコンを用いることができ、コスト削減が期待される方法です。

((株)大林組)

- ・ 飛灰の放射能濃度低減を目的とした造粒固化洗浄(2013)大林組技術研究所報 No.77
- ・ 平成24年度除染実証事業報告書

➤ 散水による極小水量での洗浄技術

機械攪拌等を用いることなく、間欠散水・通気を利用して使用水量および洗浄排水の量を極端に少なくする洗浄方法です。実証試験では、液固比0.5程度で洗浄を行い、環告13号法による溶出(液固比10)と同程度の洗浄効果が得られています。

(株)フジタ

- ・ 平成25年度除染実証事業報告書

8.5.2 洗浄排水からの放射性セシウムの除去方法

高濃度の塩類を含む排水から放射性セシウムを効率的に除去するため、以下のような技術開発が進められています。

➤ プルシアンブルー

造粒プルシアンブルーを吸着塔に充填し、飛灰洗浄排水を通水する方法です。

(国立環境研究所・福岡大学・(株)神鋼環境ソリューション)

- ・ 本稿 8.4
- ・ 洗浄・水処理プロジェクト(2013.7)
http://www.nies.go.jp/shinsai/hokoku_senjou.pdf
- ・ 一般廃棄物焼却設備の飛灰除染一貫処理システムを開発(2013.8)
<http://www.kobelco-eco.co.jp/topics/news/2013/20130806.html>

フェロシアン化鉄（プルシアンブルー）を飛灰溶解液中で合成し、セシウムを吸着するとともに、凝集沈殿する。さらに、凝集沈殿物をアルカリ溶液で分解し電気透析で放射性セシウム濃縮液を作り、ゼオライトに吸着させる。

（アタカ大機（株））

- ・ 焼却飛灰等の水洗浄除染とその水処理（2014）第35回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集、318-320.
- ・ 溶融飛灰からの放射性セシウムの分離除去技術について（2012）環境技術、41(9)、41-46.
- ・ 飛灰からの放射性セシウムの分離除去に係る新技術の開発について（2013.8）http://www.atk-dk.co.jp/xml/docs/ATK_214.pdf

ナノ粒子化したプルシアンブルーで高効率にセシウムを吸着する方法です。

（産業技術総合研究所、他）

- ・ Adsorption removal of cesium from drinking waters: A mini review on use of biosorbents and other adsorbents (2014) Bioresource Technology、印刷中 (DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.biortech.2014.01.012>)
- ・ ナノ粒子化したプルシアンブルーでセシウム吸着能が向上（2012.2）
http://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2012/pr20120208/pr20120208.html
- ・ 植物系放射性セシウム汚染物を除染・減容するための実証試験プラント（2012.11）
http://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2012/pr20121112/pr20121112.html

➤ ゼオライト

天然ゼオライト（モルデナイト）を吸着塔に充填し、飛灰洗浄液を通水することにより放射性セシウムを除去する方法です。吸着剤の放射能濃度を制御することで、保管・管理方法を選択することができます。また、飛灰洗浄時に一定量添加することにより、不溶化処理を行うこともできます。

（国立環境研究所・福岡大学・（株）神鋼環境ソリューション）

- ・ 本稿 8.4

➤ クラウンエーテル

洗浄排水中の放射性セシウムをクラウンエーテルにより吸着した後、溶離工程により濃縮・回収する方法です。

((株) タクマ)

- ・ 繰返し使用可能な吸着剤を用いた焼却飛灰からの放射性セシウムの分離除去システム (第 2 報) (2014) 第 35 回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集、324-326.
- ・ 繰返し使用可能な吸着剤を用いた焼却飛灰からの放射性セシウムの分離除去システム (2013) 都市清掃、66(313)、306-309.
- ・ 焼却飛灰中の放射性セシウム除去システムを開発 (2013.1)
<http://www.takuma.co.jp/news/2012/20130123.html>

9. 埋立処分過程における挙動と制御

9.1 モデル解析からみる挙動と埋立工法

現時点で放射性物質に汚染された廃棄物（焼却灰等含む）の埋め立ては、濃度によって分類されており、その値は、作業者の被曝線量率から求められた 8,000 Bq/kg（廃棄物中に含まれる放射性物質濃度：以下、固体濃度とする）が採用されています。重金属やその他の有害物質に関して、廃棄物最終処分場への埋め立ては、固体濃度ではなく、廃棄物処分場から発生する浸出水に対する影響という観点から、溶出試験によって分類されてきました。したがって、現時点では、浸出水への影響よりも作業者の被曝が優先されていることとなります。当然、埋立後の地域住民に対する被曝線量を十分に低くしなければならないことから、固体濃度による規制も必要ですが、放射性物質を含む浸出水が発生した場合に、既存の水処理施設では十分な対応が取れないことから、被曝量と同時に、浸出水への影響も考える必要があります。

放射性物質に汚染された廃棄物には、放射性物質を溶出しやすい廃棄物と、しにくい廃棄物があります。溶出しやすい廃棄物としては、家庭や事業所から出される一般廃棄物の焼却飛灰が挙げられます。一方で、一般廃棄物の主灰からは溶出しにくく、下水汚泥の焼却灰（飛灰）や上水汚泥からも溶出しにくいことが確認されています。ここでは、放射性物質に汚染された廃棄物の埋め立て時において考えなければならない共通事項や留意事項を示すとともに、溶出量の大小における浸出水への影響について述べます。

9.1.1 放射性物質に汚染された廃棄物の埋立方法

第1節でも述べられているように、放射性物質に汚染された廃棄物であったとしても、既存の管理型廃棄物最終処分場に埋め立てられることが示されました。これは、覆土等によって地域住民に対する被曝量を制御することが可能であることや、跡地利用制限することで一般公衆に対する被曝線量も制御可能であることが理由として挙げられます。管理型最終処分場は、底部に遮水工があり、水が場外へと漏洩しない封じ込め施設として建設されており、処分場内の水は、集排水管によって集められて水処理後に放流する仕組みとなっています。よって、浸出水に対する配慮も求められます。水処理技術が確立していない現時点においては、水処理によって放射性物質を止めることは合理的でないことから、浸出水へと溶出させないことが必須と考えられます。

放射性物質の固体濃度が 8,000Bq/kg 以上の廃棄物や、8,000 Bq/kg 以下であっても溶出しやすい煤塵等の廃棄物に関しては、上部隔離層の役割が重要になります。廃棄物処分場内へと浸透する降雨量を涵養量といますが、この涵養量の大小によって浸出水への溶出は大きく変化します。上部隔離層に求められる性能は、遮水性と変形追従性、施工性、（放射能に対する）遮蔽性です。

- ・ 遮水性は、透水係数を小さくすることと、排水勾配を設けることによって確保可能

です。排水勾配は、不同沈下のことも考慮すると、5%は必要と考えられます。透水係数としては、周辺の廃棄物地盤よりも少なくとも2オーダーは低い透水係数を与えることで、十分な遮水性を確保することが可能です。

- ・ 変形追従性は、不同沈下対策として求められる機能です。一般的には、自己修復性を有する膨潤性粘土鉱物を用いることで対応がとられます。
- ・ 上部隔離層は、中間覆土代替として設置されることから、数日から数週間に1度の施工となり、連続施工とはなりません。したがって、特殊な重機等を用いないと施工できない方法では、維持管理が困難になります。このことから、通常の管理型最終処分場で用いられるシャベルカー等を用いた工法を採用する必要があると思われます。
- ・ 遮蔽性は、隔離層の充填密度（かさ密度）と厚みによって制御されます。これまでの報告ですと、通常の締固め土壌であれば50 cmの厚みで十分とされています。

上部隔離層についてのみを詳述しましたが、セメント固化の強度が十分でなく、溶出しにくいと判断できない8,000~100,000 Bq/kgの廃棄物については、側面にも隔離層が求められますが、必要な性能は上部隔離層と同様です。

次に、これまでの埋立や仮置きに関する通知文等に一贯して述べられていることとして、廃棄物の下には土壌層を敷設することが示されています。これは、廃棄物から溶出した放射性物質を吸着させることが目的であり、土壌層には、吸着能と通水性の2つが求められます。ただし、これまで吸着層という設計が行われた事例は少なく、どのような土壌であれば良いか、どのように敷設するのかという具体的方法を示すことは難しいのが現状です。土壌層という名前であることから、砂や礫、スラグ等は使用できず、真砂土やシルト質土壌等が対象となってきます。これは、砂や礫だと通水性は確保できますが、セシウム吸着能が低く、吸着性能が悪いことが理由です。また、吸着能のみを考えれば、粘土質土壌が最も性能が良いこととなりますが、粘土分（75 μ m以下の粒径）が多いと、通水性が悪く、浸透水が吸着層内に入り込まない可能性が高いため、吸着層としての機能を果たさないこととなります。よって、適切な土壌が手に入らなければ、通水性と吸着能を両立する材料を配合して人為的に作るものが求められます。

土壌層の設計が容易でないことから、最も重要な対策は上部隔離層と側部隔離層であり、下部の土壌層は、仮に水が入ってしまった時の補助的な役割であり、フェイルセーフ機能の一つとして考える方が無難です。

これまでの通知では、埋立や仮置きにおいて、下部にも隔離層（遮水層）が必要ということになっておりますが、水を集水しない構造で下部を遮水する行為は、工学的には危険と考えられます。溜まった水の処理を行うことができません。原発事故時に降下したセシウムは土壌表面から数センチ以内に留まっています。このことを考えると、セシウムについては、土壌層を通水させても系外には漏洩しない、といえると思います。よって、下部は遮水性能の隔離を行うのではなく、吸着層としての隔離に留めるべきと考えています。

9.1.2 放射性物質の溶出量を考慮した浸出水への影響評価

焼却灰に吸着したセシウムは、その全てが水へと溶出するわけではありません。下水汚泥焼却灰からの溶出率は、固体濃度に対して3%未満であることが報告されています。一方で、一般廃棄物の焼却飛灰からの溶出は、キレート処理やセメント添加処理にかかわらず数十%になることも報告されています。例えば、10,000 Bq/kgの焼却灰から10%溶出することと、100,000 Bq/kgから1%溶出することは、水にとっては同じ負荷量となります。溶出時間という観点もありますが、放射性物質の移動や減衰の時間からすると、溶出時間は短く、影響評価においては大きな影響を及ぼしません。

本節では、JIS K 0058 から求められる溶出率等を利用し、不溶態のセシウムの存在を考慮した合理的な評価を行うことで、適正な埋立処分を行うための基礎データを構築します。図 7.1.1 には放射性物質に汚染された廃棄物の埋立イメージの一例を示します。

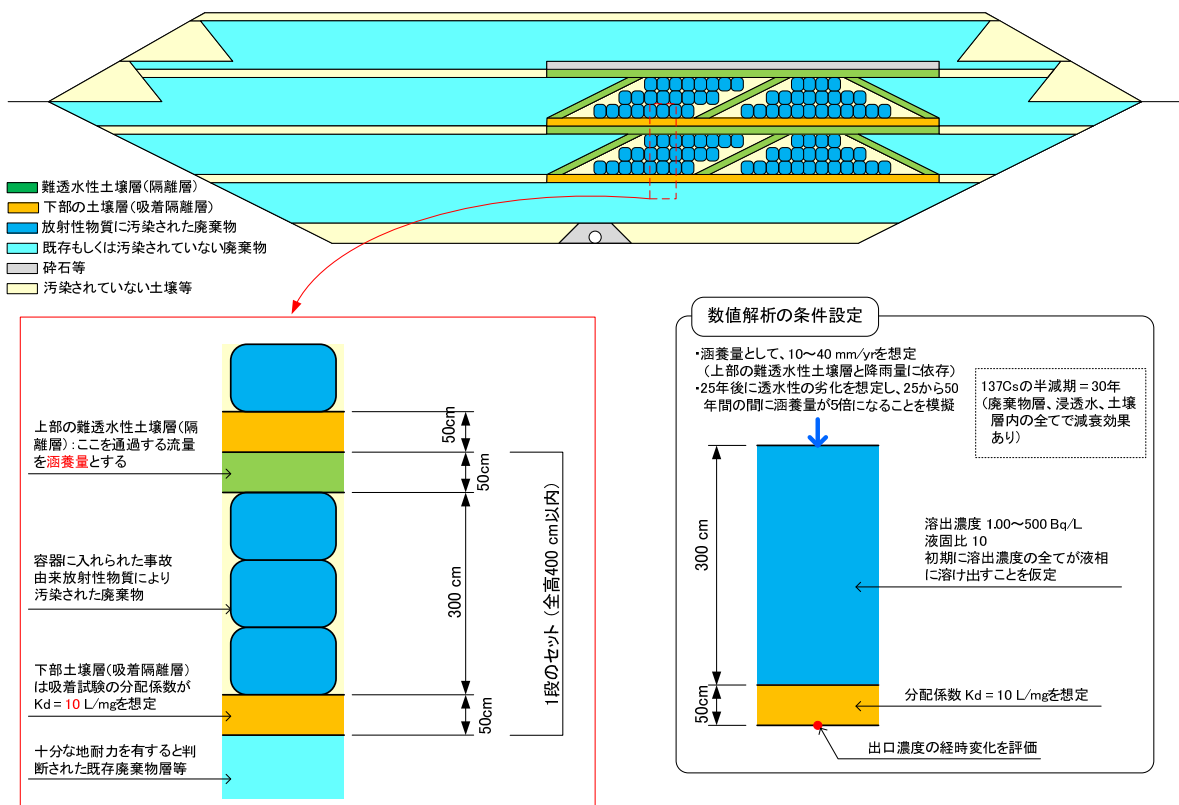


図 9.1.1 溶出量と溶出率の関係と支配方程式

廃棄物は1日に300 cmまでしか埋め立てることができないため、フレキシブルコンテナに入れられた廃棄物であれば、おおよそ3段積みとなります。上部には遮水性を有する隔離層が必要であることから、厚さ50 cm程度の難透水性土壌層が設置されます。土壌層としているのは、廃棄物の圧縮沈下等に伴う不同沈下に対する変形追随性を持たせることが

理由です。多少の沈降があったとしても、透水係数が極端に増加することのないような材料を用いる必要があります。また、廃棄物層の下部には吸着を目的とした土壌層が必要です。上部も下部も隔離層という概念ですが、その目的は異なります。下部の吸着目的の隔離層には、セシウムが吸着する材料を選択する必要があります。土壌層と書きましたが、人工的な材料でも、変形追随性と吸着性、地耐力があれば問題ありません。

図 7.1.1 には、数値モデルの条件設定も示しています。上部の隔離層である難透水性土壌層の透水係数と、地域の降雨量、廃棄物の透水係数によって、この隔離層を通過する流量は変化します。ここでは、この通過水量を涵養量としました。上部の隔離層の遮水性は 25 年間は発揮されますが、その後、徐々に機能劣化が起こることを想定し、涵養量が 50 年後には当初の 5 倍になることを模擬しました。実際、粘土等を用いた遮水であれば、その機能が劣化することはない、ここで安全側の計算ができるように安全率を設置したことになります。廃棄物層からの溶出は、例えば、JIS K 0058 (JIS 攪拌溶出試験) による溶出試験結果から得られた濃度を用いることとなります。JIS 攪拌溶出試験は、廃棄物を構成している粒子を、廃棄物の 10 倍の質量の水で溶出させることとなります (液固比が 10 という事)。実廃棄物層では、粒子が攪拌されることなく、粒子同士の間隙を涵養した水が通過することとなりますので、ここでも安全側の計算を行っていることとなります。溶出試験結果で 100 Bq/L である場合、液固比が 10 であることから、実廃棄物層の間隙水のセシウム濃度は 10 倍の 1,000 Bq/kg となります。JIS 攪拌溶出試験は、6 時間で溶出させますので、セシウムの移動や減衰挙動を評価する上では、微々たる時間であることから、JIS 攪拌溶出より得られた溶出量が、初期に瞬時に間隙水に溶出することを仮定しました。

下部の隔離層である土壌吸着層には、バッチ吸着試験より得られた分配係数を用いることとしました。この分配係数は、使用する材料にもよりますが、塩分濃度の影響を強く受けるので、実際の処分場の浸出水や溶出水等を用いてセシウムの分配係数を求める必要があります。本解析では、まさ土にて求められた分配係数 $K_d = 10 \text{ L/mg}$ を用いました。

なお、本解析では、 ^{134}Cs の半減期が短く、本計算上では影響を及ぼさないことから、 ^{137}Cs のみに着目して実施しています。

(あ) 涵養量の条件設定

本計算で与えた涵養量のパターン図を図 7.1.2 に示します。涵養量 10 mm/yr とは、年間降雨量が 1,800 mm と仮定した場合に、透水係数 $10^{-6} \sim 10^{-8} \text{ cm/s}$ の透水係数を有する隔離層を設置した場合に相当します。涵養量が 100 mm/yr であれば、透水係数で $10^{-5} \sim 10^{-6} \text{ cm/s}$ 相当となります。この涵養量は、不飽和浸透特性に影響を受けることから、単純に透水係数で求めることができないため、比例計算等で涵養量を求めることは困難です。

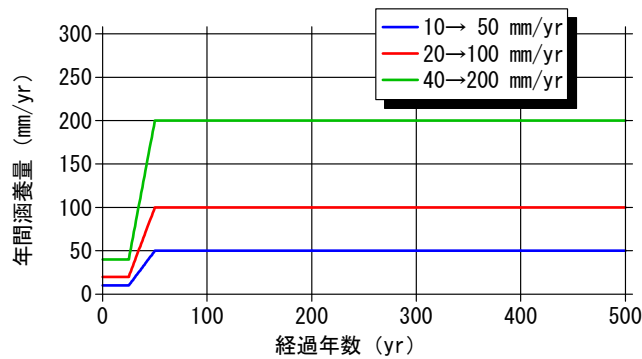


図 9.1.2 涵養量のパターン図

(い) 計算結果

図 7.1.1 における濃度測定点（下部土壤層の下端）での濃度変化を図 7.1.3～7.1.5 に示します。それぞれ、涵養量毎で図化しました。凡例に示される溶出濃度は 1～500 Bq/L とし、計算しました。1 Bq/L は検出限界に近い値であり、例えば土壌などの溶出試験で N.D. となった場合には、この 1 Bq/L の溶出濃度を用いて評価することが可能です。

図 7.1.3 の涵養量 10→50 mm/yr の場合では、溶出試験結果が 500 Bq/L であった場合に、濃度限界である 90 Bq/L を超過することになります。溶出試験結果が 500 Bq/L であるので、初期の液相濃度は 10 倍の 5,000 Bq/L となります。それでも、小さい涵養量を確保可能な上部隔離層を用い、分配係数 10 程度の土壌吸着層を用いれば浸出水濃度を約 90 Bq/L まで抑制することが可能になります。

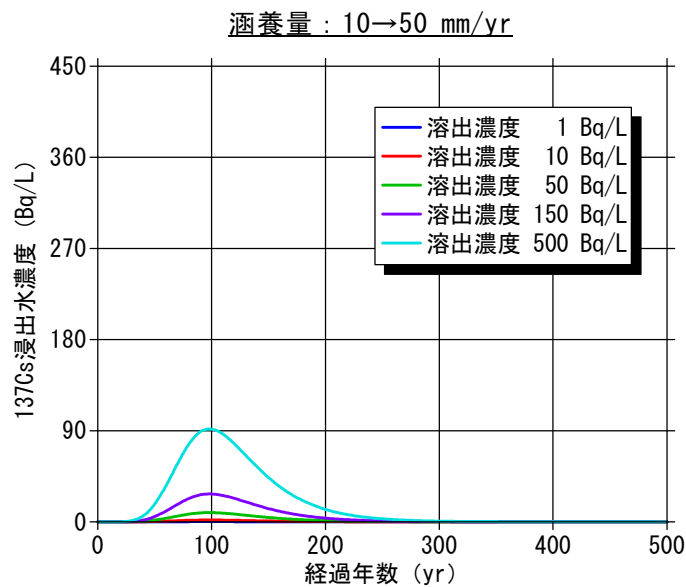


図 9.1.3 涵養量 10→50 mm/yr の場合の浸出水濃度変化

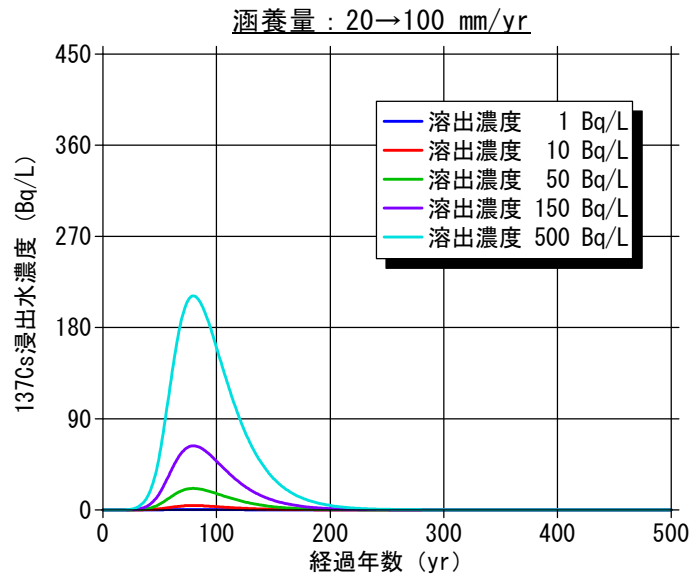


図 9.1.4 涵養量 20→100 mm/yr の場合の浸出水濃度変化

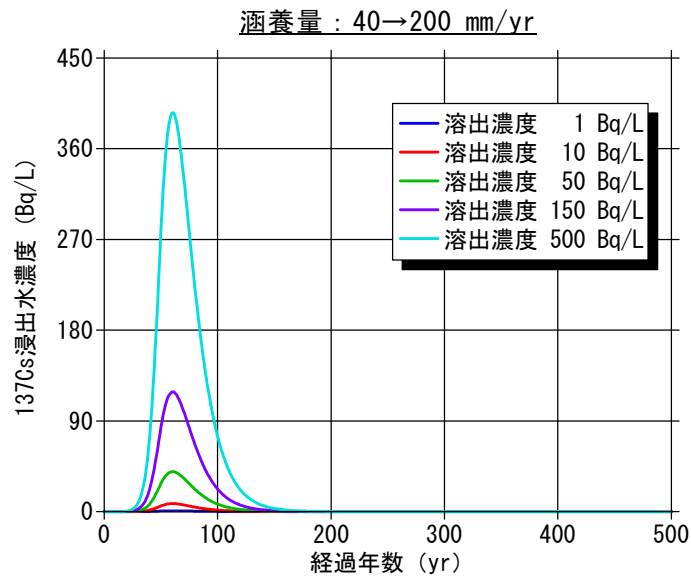


図 9.1.5 涵養量 40→200 mm/yr の場合の浸出水濃度変化

ピーク濃度に着目して整理すると、図 7.1.6 のようになります。それぞれの涵養量毎に整理すれば、ピーク濃度は溶出濃度の関数となります。よって、溶出試験による濃度が分かれば、相当する涵養量の近似式を用いてピーク濃度を評価することが可能です。図には 500 Bq/L の溶出濃度までしか描いておりませんが、750 Bq/L までは線形関係が保たれることを確認しています。理論上はそれ以上の濃度でも予測可能です。

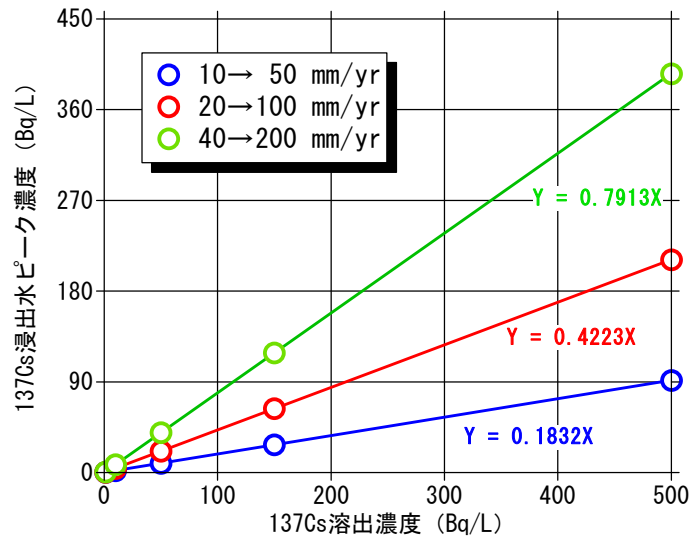


図 9.1.6 涵養量毎のピーク濃度の整理結果

(う) 安全率の確認とクロスチェック

安全率の一つとして、上部隔離層の遮水性能の劣化を想定したことは先に述べましたが、どの程度の安全率であるか確認した図を図 7.1.7 に示します。涵養量の条件は 10→50 mm/yr、溶出濃度 100 Bq/L のケースを計算した結果です。劣化考慮なしの場合は、涵養量 10 mm/yr が継続することを想定します。劣化考慮なしと比較すると、劣化を考慮した場合は、濃度が約 3 倍となっており、安全率としては 3 を見込んでいることとなります。

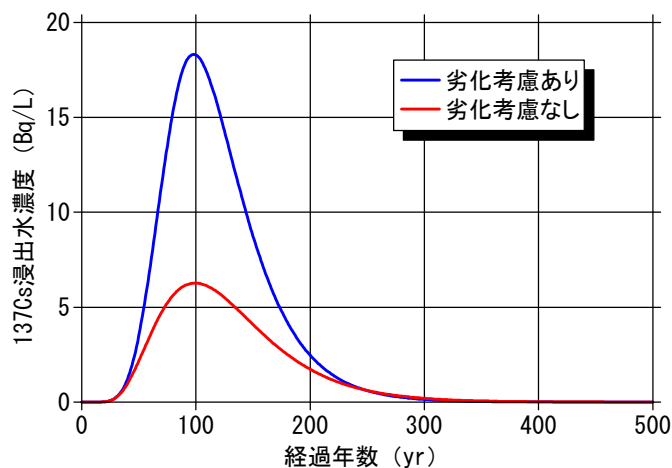


図 9.1.7 上部隔離層の劣化の有無による濃度経時変化の違い

最後に計算結果の妥当性を評価するため、国環研グループが使用している COMSOL ver4.2 とは別の汎用型ソフトウェア（G-TRAN/3D：株式会社地層科学研究所）を用いて同様の計算を行いました。計算結果の比較を図 7.1.8 に示します。涵養量が小さい 10→50 mm/yr の場合、ピーク濃度がややずれて下りますが、40→200 mm/yr のケースでは、ほぼ同様の結果が得られております。ピーク濃度の出現年数もやや異なり、G-TRAN/3D の方が数年ほど早い時間帯にピークが出現しています。この時間の差の原因は分かっておりませんが、ピーク濃度の出現時間が同じ時期に仮定すると、濃度差は減衰効果のみの影響であることが確認されており、セシウム137の移動自体の計算に大きな差はありません。今後、この部分については精緻化が必要なところとなります。

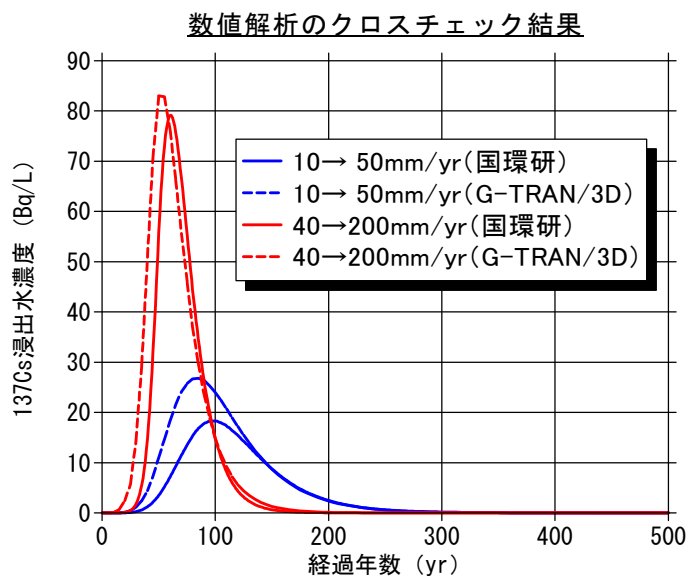


図 9.1.8 クロスチェックによる計算結果の妥当性評価

10. 浸出水処理過程における挙動と制御

放射能汚染廃棄物の処分・取扱の基本は最終処分場における封じ込めですが、降水等により放射性セシウムが溶出した場合に備え、最後の砦となる浸出水処理施設における放射性セシウムの挙動と制御方法について、現場調査および吸着除去方法の検討を行いました。

10.1 浸出水処理施設における実態

10.1.1 浸出水処理施設における放射性セシウムの現状

2011年7月以降、福島県内の一般廃棄物最終処分場6ヶ所の浸出水処理施設において放射性セシウムの調査を行ったところ、浸出水原水および処理水中の放射性Csは検出下限未満の値が多く、検出された試料も最大で17Bq/L程度（Cs-134、Cs-137の合計）であり、線量限度等を定める告示の示す濃度限度内でした。（但し、Cs-134の半減期は2.062年であり、Cs-137の半減期は30.0年であり、震災時のフォールアウトから各々の試料測定日までの減衰によるCs-134/Cs-137の比率の差異にも留意する必要があります）

- ※ 処理水濃度限度の目安（Cs-134：60 Bq/L、Cs-137：90 Bq/L。但し、二種類以上の放射性物質がある場合にあつては、それぞれその放射性物質についての濃度に対する割合の和が一となるようなそれらの放射性物質の濃度）
実用発電用原子炉の設置、運転等に関する規則の規定に基づく線量限度等を定める告示（平成13年経済産業省告示第187号）第9条に定める濃度限度（周辺監視区域の外側の境界における水中の濃度）

汚泥中の放射性Cs濃度はB、D、F施設で比較的高い値を示しましたが、すべての処理施設の汚泥は湿重および乾重で8,000Bq/kg以下でした。放射性Cs濃度の高かった施設は、集水ピットや調整池が露天の施設であることから、事故直後のフォールアウトの影響が残存している可能性があります。なお、脱水汚泥に含まれる水を分離して測定した結果、検出下限値以下であったことから、通常の保管状態であれば、脱水汚泥からの再溶出は極めて少ないと考えられます。

※特措法における施行規則（環境省令）において、最終処分場の放流水を監視することで公共の水域の水中でこの濃度限度を満たすことが基準として示された。

表 10.1 浸出水処理施設の脱水汚泥中の放射性セシウム濃度

		湿重量当たり(Bq/kg-wet)			遠心分離後の上澄(Bq/L)			乾燥重量当たり(Bq/kg-dry)		
		Cs134	Cs137	Cs合計	Cs134	Cs137	Cs合計	Cs134	Cs137	Cs合計
A施設	脱水汚泥	28	23	51				61	50	111
	円板汚泥	<11	<11	-				-	-	-
B施設	脱水汚泥	282	328	610				452	526	978
	第一汚泥貯留槽	17	33	50				630	1,222	1,852
	第二汚泥貯留槽	<9	11	11				-	786	786
C施設	沈さ	<7.61	<8.84	-	<6.54	<6.22	-	-	-	-
D施設	脱水汚泥	187	229	416				984	1,205	2,189
E施設	脱水汚泥	52.8	45.9	98.7				275	239	514
F施設	脱水汚泥	168	215	383	<1.13	<7.54	-	971	1,243	2,214

A施設	B施設	C施設	D施設	E施設	F施設
処理プロセスは覆われている。	集水ピットが露天。	処理プロセスは覆われている。	沈砂・原水槽が半露天。	処理プロセスは覆われている。	調整池が露天。

10.1.2 安定セシウムを指標とした浸出水処理施設におけるセシウム除去性能の評価

安定セシウム (Cs-133) は放射能を持たない安定同位体ですが、物性は放射性セシウムである Cs-134、Cs-137 と同様であることから、放射性セシウムの挙動を推測する指標となり得ます。安定セシウムは焼却灰中に高濃度に存在しているため、福島第一原発の事故影響を受けていない地域においても検出されます。そこで、複数の最終処分場の浸出水処理施設において安定セシウムを IPC-MS によって測定したところ、処理施設によって安定 Cs 濃度に違いはありますが、原水と処理水で顕著な差がない (表 8.2) ことから、浸出液等に陽イオンとして溶存するセシウムは、凝集沈殿・砂濾過、生物処理、活性炭吸着、キレート樹脂処理等の現行の浸出水処理工程ではほとんど除去されないと考えられます。

表 10.2 浸出水処理施設の原水および処理水中の安定セシウム濃度

安定Cs133(μg/L)	原水	処理水
A施設	42	35
B施設	16	18
C施設	<1	2
D施設	<1	2
E施設	<1	<1
F施設	28	25
G施設	70	72
H施設	<1	<1

※赤字は検出下限値以下

一方、海水淡水化等にも用いられる逆浸透 (RO) 膜の設備を有する浸出水処理施設において調査した結果、ほとんどの施設で安定セシウム除去率 95%程度以上の結果が得られました (表 10.3)。除去率の低い施設は原水中の安定セシウム濃度が極端に低いことによるもので、定量限界が 1 μg/L であるために計算上除去率が低く算出されています。すなわち、RO 膜の設備を有する浸出水処理施設においては、放射性セシウムが混入したとし

でも放流水中の放射性セシウム濃度は極めて低く抑えられる可能性があります。但し、RO膜で処理した際に濃縮水が発生し、濃縮水中の安定セシウム濃度は原水の2~6倍程度となっていました。また通常、濃縮水は蒸発乾固し、固形残さとして廃棄されることから、実際に放射性セシウムを対象として除去する場合には、濃縮水の取り扱いも含めて検討する必要があります。また、RO膜を含めた脱塩設備では同様の効果が期待されますが、全国1,988施設の一般廃棄物の最終処分場のうち表10.3に示す脱塩設備が導入されている施設は35施設であり、関東~東北(1都12県)では521施設のうち6施設となっており、一般廃棄物最終処分場における導入割合は非常に低いのが現状です。

表 10.3 RO膜によるセシウムの除去効果

		pH	EC (mS/m)	安定 Cs133 ($\mu\text{g/L}$)	安定 Cs133 除去率	安定 Cs133 濃縮倍率
施設 I	RO 原水	6.7	2,920	77	98.7%以上	1.0
	RO 濃縮水	6.7	6,140	160		2.1
	RO 処理水	7.2	18	<1		0.0
施設 II	RO 原水	3.7	535	2	※50.0%以上	1.0
	RO 濃縮水	3.9	777	4		2.0
	RO 処理水	3.5	28.8	<1		0.5
施設 III	RO 原水	5.9	1680	2	※50.0%以上	1.0
	RO 濃縮水	6.5	6530	13		6.5
	RO 処理水	7.2	20.6	<1		0.5
施設 IV	RO 原水	6.8	932	62	98.4%以上	1.0
	RO 濃縮水	6.2	3,310	270		4.4
	RO 処理水	5.7	4.8	<1		0.0
施設 V	RO 原水	5.1	1,600	20	95.0%以上	1.0
	RO 濃縮水	5.6	4,860	85		4.3
	RO 処理水	5.8	9.4	<1		0.1
施設 VI	RO 原水	7.1	1,490	19	94.7%以上	1.0
	RO 濃縮水	6.8	4,130	63		3.3
	RO 処理水	5.5	7.7	<1		0.1

※除去率の低い施設は原水中の安定セシウム濃度が極端に低いことによるもので、定量限界が $1\mu\text{g/L}$ であるために計算上除去率が低く算出されています。

表 10.4 RO 膜を含めた脱塩設備の設置状況

	P&F	SWRO	ED	合計
2010年度現在	14	7	14	35
比率(%)	40	20	40	100
2006～2010	7	1	3	11
比率(%)	64	9	27	100

P&F : プレート&フレーム型RO膜脱塩装置
 SWRO : スパイラル型RO膜脱塩装置
 ED : 電気透析膜式脱塩装置

参考資料：除去性能確認のための指標である安定セシウムについて

一般廃棄物の焼却灰（主灰、飛灰）には、数 mg/kg 程度の安定セシウムが含まれており、焼却飛灰からの溶出率は放射性 Cs と同様に高いことがわかっています。図 8.1 は、実際の浸出水原水の安定セシウム濃度を電気伝導度（EC）とともにプロットしたものです。100µg/L を超える安定 Cs が浸出している施設もあります。このことは、放射性 Cs を含む焼却飛灰を通常と同様に埋めてしまうと、相当程度浸出してくる可能性を示唆しています。そのため、溶出しやすい焼却飛灰（ばいじん）を埋立処分する場合は、下部に土壤層を敷設したり、上部にキャッピング（難透水層・隔離層）を施して、水との接触を低減することが重要です。

また、図においては、浸出水処理施設における安定セシウム濃度は EC（電気伝導度）との相関関係が見られます。EC が高いということは、塩類濃度が高く、埋立地に焼却灰が相当程度埋め立てられていることを表していると考えられ、放射性 Cs を含む焼却灰を埋立処分する場合も、EC のモニタリングが重要な意味をもつ可能性もあります。

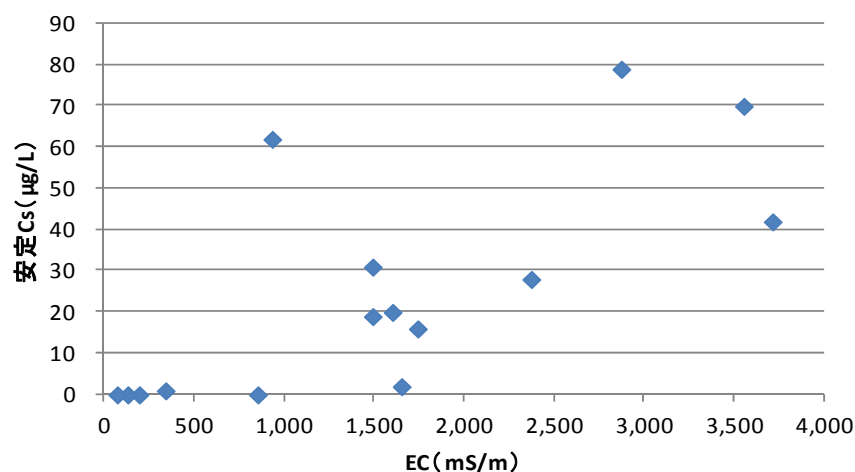


図 10.1 実際の浸出水原水の EC と安定セシウム濃度の関係

10.2 放射性セシウムの有効な除去方法の検討

10.2.1 ゼオライトによる吸着除去

10.2.1.1 カラム試験

ゼオライトによる吸着法の実用化を検討するため、放射性セシウムが 30Bq/L 程度含まれる浸出水を原水とし、カラム試験を実施しました（図 8.2）。試験条件は、浸出水処理施設における活性炭吸着塔をゼオライトに置き換えることを想定し、可能な限り現場の条件を反映させました。

- 使用原水：一般廃棄物最終処分場浸出水
- 原水 Cs 濃度：Cs134 (14.3Bq/L)、Cs137 (13.9Bq/L)、合計 (28.2Bq/L)
- 通水速度：LV 6.23m/h（現地の活性炭吸着塔及びキレート吸着塔の条件と同じ）
- 空間速度：SV=6（カラム 1 出口）、SV=3（カラム 2 出口）（SV=6 は現地の活性炭吸着塔およびキレート吸着塔 1 塔あたりの条件と同等）
- 通水量：2.6L/h
- 使用ゼオライト：新東北化学工業 ゼオフィル 品番 1424# 粒径 1.0~1.4mm
- 使用カラム：φ23mm×1,000mmH
- 充填ゼオライト量：0.31kg/カラム

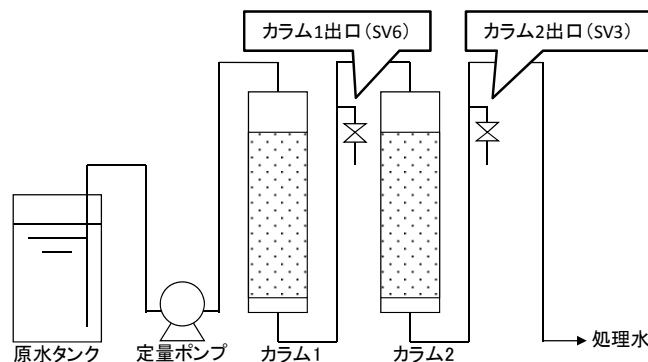


図 10.2 カラム試験概要

今回の試行的な試験条件として、処理水中の放射性セシウム濃度 10Bq/L を破過点とすると、SV6 となるカラム 1 においては、通水開始後 28~32 時間の間に破過に達しました。このとき、SV3 となるカラム 2 では検出下限値以下であり、50~60 時間後に 10Bq/L を超える値が検出されました。このカラム試験により、破過点を 10Bq/L とした場合の浸出水中のセシウム吸着容量は、24 時間振とう試験の結果の約半分程度の 6,641Bq/kg と計算されました。浸出水原水量、原水中の放射性セシウム濃度、吸着塔容量等を仮定した上で、吸着塔によるセシウム除去を行う際のゼオライトの必要量および交換頻度を試算した

結果は表 8.5 に示す通りです。なお、破過点におけるゼオライト中の放射性セシウム濃度は 8,000Bq/kg 以下であることから、本条件においては、破過後の吸着剤の取り扱いと比較的容易であると考えられますが、ゼオライトの交換頻度が 8.1 日と短いため、恒久的な対策としては他の方法を導入することも検討に値します。

表 10.5 試験結果（カラム 1）からの交換頻度の算出

		単位	Cs合計	計算条件・内容
①	原水量	m ³ /日	37	定格水量を37m ³ とする。
②	原水中の放射性Cs濃度	Bq/L	31	原水中のCs濃度を31Bq/Lとする。
③	流入Cs量	Bq/日	1,147,000	①×②×1000
④	Csの吸着容量	Bq/kg	6,641	カラム試験結果より
⑤	顆粒ゼオライト必要量	kg/日	173	③÷④
⑥	顆粒ゼオライト必要量	t/月	5.2	⑤×30÷1000
⑦	充填物容量	m ³ /塔	2	吸着塔充填容量を2m ³ とする。
⑧	充填物重量	kg/塔	1,400	ゼオライトの比重を0.7kg/m ³ とする。
⑨	ゼオライト交換頻度	日	8.1	⑧÷⑤

10.2.1.2 現場試験

基準値を下回る放射性セシウムが検出された埋立地浸出水処理施設において、既設活性炭吸着塔 2 塔と、キレート吸着塔（水銀用）をゼオライトによる吸着塔として使用した試験を実施しました。なお、浸出水中の放射性セシウム濃度（Cs134、Cs137 の合計）は最大でも 31 Bq/L であり、基準値を下回る値でした。

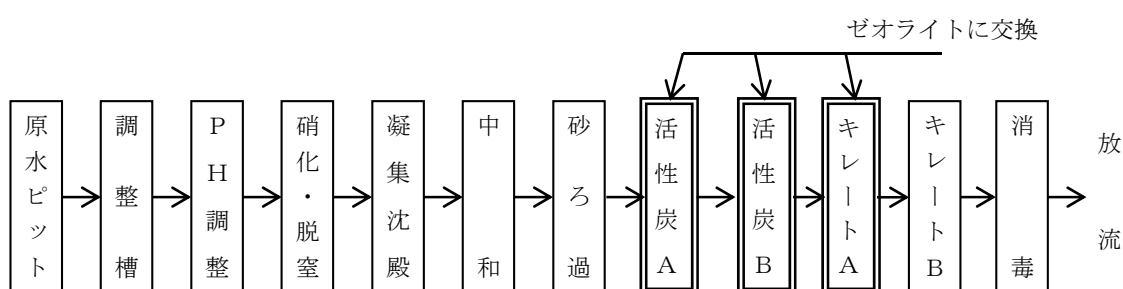


図 10.3 処理フロー

活性炭吸着塔 A、B、キレート吸着塔 A の 3 塔について、カラム試験で用いたゼオライトと同じ素材で粒径のみ若干大きいものを充填しました。

表 10.6 使用したゼオライト

品名	品番	サイズ (mm)	メーカー
ゼオフィル	0614#	1.4~4.0	新東北化学工業

表 10.7 ゼオライト充填量

塔名称	既存		交換後			
	容量 (m ³)	充填物	容量 (m ³)	充填物	重量 (kg)	袋数 (20kg/袋)
活性炭吸着塔 A	0.4	活性炭	0.8	ゼオライト	560	28
活性炭吸着塔 B	0.4	活性炭	0.8	ゼオライト	560	28
キレート吸着塔 A (水銀用)	0.2	キレート	0.4	ゼオライト	280	14
合計	1.0	—	2.0	—	1400	70

活性炭吸着塔 A の上部が破過していると想定される 24 時間後に一旦通水を停止し、ゼオライト及び浸出水（砂ろ過器出口）、処理水（活性炭吸着塔 A 出口、B 出口）の分析を行いました。その結果、浸出水自体の放射性セシウム濃度も低い状態でしたが、処理水中の放射性セシウム濃度は定量限界以下となることが確認されました。このとき、ゼオライトの放射性セシウム濃度は 2,450 Bq/kg でした。含水率（38.4%）から乾燥重量当たりの放射性セシウム濃度を計算すると、約 4,000 Bq/kg となります。カラム試験の結果では、ゼオライトの吸着容量は 6,641Bq/kg と試算していますので、6 割程度しか吸着していませんが、浸出水中の放射性セシウム濃度が低いことや粒径が若干異なることが影響したものと考えられます。

表 10.8 24 時間通水後の分析結果

項目	サンプリング箇所	放射性 Cs 濃度 (Bq/kg)			理論値 (Bq/kg)
		Cs134	Cs137	合計	
ゼオライト	活性炭吸着塔 A 上部	1,060	1,390	2,450 (湿潤) ※4,000 (乾燥)	6,641 (破過時の濃度)
浸出水	砂ろ過塔出口	<10	10	10	—
処理水 A	活性炭吸着塔 A 出口	<10	<7	不検出	不検出
処理水 B	活性炭吸着塔 B 出口	<11	<9	不検出	不検出

なお、この吸着塔での試験においては、吸着塔の外部表面における放射線量率を定期的に測定することで、吸着剤への放射性セシウムの吸着状態を把握し、吸着剤の交換時期の目安などの維持管理に用いることができる可能性が示されました。

10.2.2 逆浸透膜による除去

表 8.3 で示した通り、RO 膜による放射性セシウムの除去特性を把握するため、安定セシウムを指標として既存処理施設における挙動を調査した結果、安定セシウムは約 99% 除去され、RO 濃縮液は 2 倍程度の濃縮率でした。したがって、放射性セシウムについても同様の除去効果が期待できます。但し、RO 膜で処理した際に濃縮水が発生しますが、濃縮水中の安定セシウム濃度は原水の 2 倍以上となります。また通常、濃縮水は蒸発乾固し、固形残さとして廃棄されることから、実際に放射性セシウムを対象として除去する場合には、濃縮水の取り扱いも含めて検討する必要があります。

調査対象施設では原水の塩濃度が高いため、処理水量と濃縮水量の比率は 6:4 程度であり、流入原水量の 4 割程度が濃縮液として排出される状況でした。濃縮水は蒸発乾固され、含水率 85% 以下となるため、濃縮率は数十～数百倍以上になる可能性があります。したがって、濃縮液の取り扱いについては検討が必要です。

10.2.2.1 逆浸透膜による放射性セシウム除去の現場試験

恒久的な放射性セシウム対策のひとつとして、浸出水中の放射性セシウム濃度（Cs134、Cs137 の合計）が数十 Bq/L の浸出水を対象として、放射性物質を物理的に除去・濃縮する逆浸透膜処理を行い、その除去性能を確認しました。本システムの逆浸透膜は海水の淡水化などで用いられるもので、ポリアミド系高分子膜のプレート&フレーム型で 4 MPa 程度の圧力で運転しました。図 8.4 の通り、2 段階の逆浸透膜により処理する仕組みになっており、1 段目の逆浸透膜から濃縮水が、2 段目の逆浸透膜から処理水が出てきます。

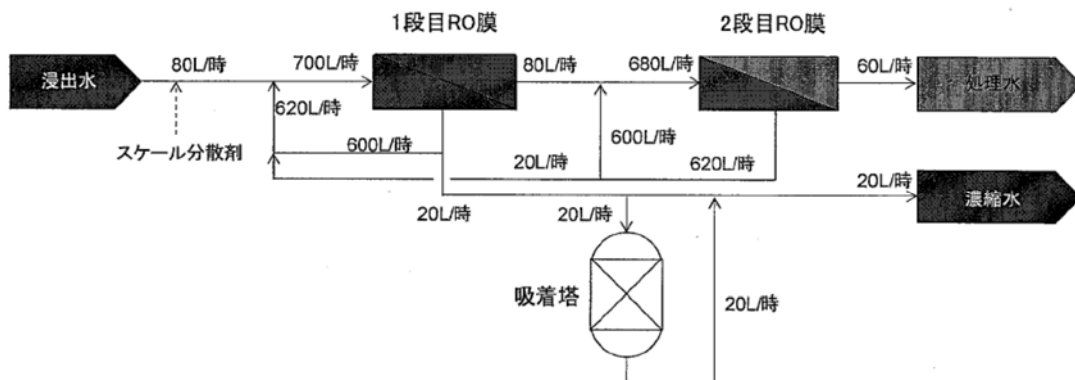


図 10.4 逆浸透膜試験装置フロー図

分析の結果、浸出水中に 74.5 Bq/L の濃度で存在した放射性セシウムが定量下限以下まで除去されることが確認できました。EC や安定セシウムの分析値を見ると、それぞれ 99%、97% の除去率となっており、表 10.3 の結果と同様に現場試験においても高い除去率が得られました。

表 10.9 逆浸透膜による浸出水中の放射性セシウムの除去

	SS (mg/L)	EC (mS/m)	安定 Cs133 (mg/L)	Cs134 (Bq/L)	Cs137 (Bq/L)	Cs 合計 (Bq/L)
浸出水	2	1,040	0.031	33.6	40.9	74.5
1stRO 処理水	<1	80.9	0.004	<7.83	9.53	9.53
1stRO 濃縮水	58	3,940	0.15	187	246	433
2ndRO 処理水	<1	10.7	<0.001	<8.07	<10.1	—
2ndRO 濃縮水	<1	294	0.015	13.1	30.2	43.3

表 10.10 EC、安定セシウムの除去率および濃縮倍率

	EC(mS/m)	安定 Cs133(mg/L)
除去率(2ndRO)	99%	97%以上
濃縮倍率(1stRO)	3.8	4.8

なお、除去された放射性セシウムは濃縮水中に 5.8 倍に濃縮されていました。この濃縮水に含まれる放射性セシウムについては、吸着剤により効率的に除去・処分する試験を進めています。

11. 放射能等の測定モニタリング手法

11.1 はじめに

原発事故由来の放射性物質に汚染された廃棄物や福島県内の災害廃棄物の処理処分を、施設の作業従事者や周辺住民の被ばくを最小限に抑えつつ円滑に進める上で、廃棄物や処理施設の放射能を測定し、そのレベルに応じた対応や処理処分の方法を選択する必要があります。本章では、廃棄物の放射能等の測定モニタリング手法について概説します。

11.2 放射能濃度等測定方法ガイドライン

指定廃棄物等の保管や特定一般・特定産業廃棄物処理施設の維持管理に係る空間線量率、放射能濃度の測定・方法は、環境省の「廃棄物関係ガイドライン」の「第5部 放射能濃度等測定方法ガイドライン」にまとめられており(以下、ガイドラインと呼びます)、平成23年12月に第1版が発出され、平成25年3月には第2版に改訂されました^[1,2]。ガイドラインの構成は、測定機器(第1章)、空間線量率の測定方法(第2章)、排ガス(第3章)や粉じん(第4章)、排水及び公共の水域の水(第5章)、周縁地下水(第6章)、燃え殻・ばいじん・排水汚泥・溶融スラグ・溶融飛灰の採取及び測定方法(第7章)、溶出量の測定方法(第8章)となっています。以下に、各測定対象についての測定方法を概説します。

(1) 空間線量率

空間線量率の測定は、廃棄物等の保管や運搬、廃棄物処理施設の維持管理の際に周辺環境への影響がないことを確認するために実施します。ここでは、廃棄物等の保管に係る空間線量率の測定について記します。測定の時期は保管の開始前(搬入前)、開始後(搬入中及び搬入後)とします。測定地点は敷地境界線の4点とバックグラウンド地点の5地点とします。測定高さは地上1mとし、測定場所は周囲1m以内に木や建築物がない場所とします。測定機器は1年以内に校正されたシンチレーション式サーベイメータを使用します。機器の時定数は十分長い時間(例えば30秒以上)とし、時定数の3倍程度の時間経過して数値が安定した後、5回数値を読み取りその平均値を測定結果とします。

(2) 排ガス

試料採取位置は最終排出口と同一組成のガスが採取できる排出口とします。試料採取はJIS Z 8808「排ガス中のダスト濃度の測定方法」に準拠し、円筒ろ紙(または円形ろ紙)による吸着捕集と吸収瓶による液体捕集を用い等速吸引により採取します。採取量は3000Lを目安とします(15L/分×240分)。試料採取後の円筒ろ紙はブランクのろ紙と合わせて裁断・混合してU8容器に充填します。また、吸収瓶中のドレン洗浄液は2Lマリネリ容器に充填します。測定は捕集部(ろ紙部、ドレン部)ごとにゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリーにより行います。検出下限値は捕集部ごとに¹³⁴Cs、¹³⁷Cs共に2Bq/m³(N)としています。

(3) 粉じん

開放型の破砕施設では、破砕施設の敷地境界の2点(風上側、風下側)でハイボリウムエアサンプラーにより試料を採取します。試料採取量は15 m³とします(500 L/分×30分)。密閉型の破砕施設では、排ガスと同様に、JIS Z 8808に準拠して試料を採取します。採取した試料の調製、測定は排ガスと同様に捕集部ごとにゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリーにより行いますが、開放型の破砕施設はろ紙部のみの測定となります。検出下限値は捕集部ごとに¹³⁴Cs、¹³⁷Cs共に2 Bq/m³(N)としています。

(4) 排水及び公共の水域の水

排水口において、ひしゃく等の採水器具を使用して採取します。採取量は2 Lとします。公共の水域の水は排水中の放射性セシウム濃度が濃度限度(¹³⁴Cs: 60 Bq/L、¹³⁷Cs: 90 Bq/L)を超過した場合に採取・測定します。排水はU8容器に、公共の水域の水は2 Lマリネリ容器充填し、ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリーにより測定します。検出下限値は¹³⁴Cs、¹³⁷Cs共に排水では10~20 Bq/L、公共の水域の水では1~2 Bq/Lとしています。

(5) 周縁地下水

地下水の流向が分かっている場合は保管場所等の下流側、不明な場合は最も近い観測井や井戸の水を、ベラー等の採取器具を使用して採取します。採取量は2 Lとします。試料は2 Lマリネリ容器に充填し、ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリーにより測定します。検出下限値は¹³⁴Cs、¹³⁷Cs共に1~2 Bq/Lとしています。

(6) 燃え殻、ばいじん、排水汚泥、溶融スラグ、溶融飛灰

試料の採取は代表性に配慮して行い、採取器具としてインクリメントスコップ等を使用します。堆積した試料の場合は、離れた4カ所以上から採取します。コンベア等を流れている試料の場合は、1ロットが流れている間に一定時間間隔に4回以上採取します。採取試料は全部を1つの容器に入れ混合し、最終的に500 g~1 kg程度とします。試料は適宜粉碎を行った後に均一化してU8容器に充填し、ゲルマニウム半導体検出器またはNaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータ、LaBr₃(Ce)シンチレーションスペクトロメータによるガンマ線スペクトロメトリーにより測定します。検出下限値は¹³⁴Cs、¹³⁷Cs共に10~30 Bq/kgとしています。

(7) 溶出量

溶出量試験は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」に準拠して行います。一定量の有姿試料に対して10倍量の溶媒(水)を添加し、毎分200回

転で6時間攪拌して放射性物質を溶出させます。10～30分静置後に溶媒を抜き取り、必要に応じて遠心分離を行った後に、メンブランフィルター(孔径0.45 μm)でろ過して検液とします。検液はU8容器に充填し、ゲルマニウム半導体検出器またはNaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータ、LaBr₃(Ce)シンチレーションスペクトロメータによるガンマ線スペクトロメトリーにより測定します。検出下限値は¹³⁴Cs、¹³⁷Cs共に10～20 Bq/Lとしています。

(8) 第2版での主な改訂点について

上述の通り、ガイドラインは平成25年3月に第2版に改訂されました。主な改訂内容について以下に記します。

- 放射能濃度の測定機器について、LaBr₃(Ce)シンチレーションスペクトロメータを追加。この機器はNaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータよりもエネルギー分解能に優れています¹³⁾。
- 空間線量計について、校正方法(JIS Z 4511、Z 4333に準拠して行う)、校正が困難な場合の措置(校正済みの空間線量率と測定値を比較して誤差が20%を下回る場合には測定値を補正して使用できる)を追加。
- 搬入後の空間線量率の測定結果の評価について、バックグラウンド測定値と「おおむね同程度」と曖昧な表現であったものが、「バックグラウンド測定値の平均値+バックグラウンド測定値の標準偏差の3倍以内」と、より明確な表現に改めました。
- 排ガスの採取方法について、排ガス温度が高い場合や採取口が小さい場合を考慮してJIS Z 8808に定める2形捕集装置の使用、排ガス中の水分量が多くドレン量が2Lを超える場合の加熱濃縮による対処、排ガスの温度が低い場合や水分飽和の排ガスにも対応できるよう有機製ろ紙の使用に関する事項を追加。2形捕集装置の導入に係る検討においては、(一社)廃棄物資源循環学会の平成23年度環境省受託業務「廃棄物関連試料の放射能分析方法に関する調査委託業務」の成果を参照しています¹⁴⁾。
- 周縁地下水の測定結果の評価について、異常値でないこと」と表現が曖昧であったものが、「異常値でないこと(検出下限値以下であること等)」と改めました。
- 燃え殻、ばいじん、排水汚泥、熔融スラグ、熔融飛灰の採取方法について、以下の補足を追加。①4カ所以上または4回以上採取する根拠としてJIS K 0060「産業廃棄物のサンプリング方法」を引用。②1カ所あたりの試料採取量はJIS K 0060に準拠して、粉状、塊状の試料の場合は最大粒度に基づいて規定される体積以上を目安とし、汚泥は100 mL以上の容器等で採取したものを1試料の目安とする。試料採取数に係る検討においては、(一社)廃棄物資源循環学会の平成23年度環境省受託業務「廃棄物関連試料の放射能分析方法に関する調査委託業務」の成果を参照しています¹⁴⁾。
- 燃え殻、ばいじん、排水汚泥、熔融スラグ、熔融飛灰の測定方法について、LaBr₃(Ce)シンチレーションスペクトロメータを追加。

- 溶出量の測定方法について、NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータ、LaBr₃(Ce)シンチレーションスペクトロメータを追加。但し、シンチレーションスペクトロメータを適用できるのは、「雨水その他の水が浸入した場合に溶出する事故由来放射性物質の量が少ない特定廃棄物の要件」(平成 24 年 1 月 13 日環境省告示第 3 号)の試験方法に限定されます。
- 放射能濃度の測定条件について、(目標値である)検出下限値が達成されない場合には条件を変更して再度測定を行うが、測定値が得られた場合にはこの検出下限値を適用しないとの補足が追加されました。これは、主に焼却灰試料で、コンプトン散乱により検出下限値が下がらないものの、放射性セシウム自体は検出されているというケースを想定したものです。
- 放射能濃度の単位を求める際のガス体積の補正について、排ガス及び密閉型破碎施設の粉じんは体積の補正は標準状態(0℃、101.3 kPa)、乾きガス、開放型破碎施設の粉じんは 20℃、101.3 kPa、湿りガスとしました。

11.3 廃棄物等の放射能調査・測定暫定マニュアルとその改訂

廃棄物等の放射能濃度の測定モニタリングに関して、環境省のガイドラインに先行して廃棄物等の調査・測定法研究会により「廃棄物等の放射能調査・測定法暫定マニュアル」(以下、暫定マニュアルと呼びます)が平成 23 年 11 月に作成・発出されています⁵⁾。暫定マニュアルでは、廃棄物等に係る放射能の調査、測定分析およびそれに付随する試料の取り扱いや安全管理の方法を適用範囲としています。測定項目は¹³⁴Cs、¹³⁷Cs、¹³¹I です(概ね 10 万 Bq/kg 以下、¹³¹I は検出の可能性がない場合は省略可)。測定対象は排ガス、灰・汚泥、廃水・浸出水、受入廃棄物、土壌及び施設内での作業環境です。測定法はゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリーです。

ガイドライン第 1 版と暫定マニュアルは同時期に発出され、どちらも廃棄物関連試料を対象とした調査・測定法であったため、分析従事者や廃棄物処理施設管理者等から、両者の相違点やどちらを参照すべきかという質問が多く寄せられました。現状の整理では、ガイドラインは公定法として上位に位置するものであり、暫定マニュアルはその解説やより先駆的な内容、また調査・研究事例を紹介するものとして位置付けられます⁶⁾。両者の相違点について、表 11.1 に示します。

ガイドラインの改訂を踏まえ、現在、廃棄物資源循環学会により暫定マニュアルの改訂作業も進められており、近日中に新たなマニュアルとして発出される予定です。主な改訂点について以下に示します。

- ① 適用範囲については、ガイドラインと整合をとるため¹³⁴Cs、¹³⁷Cs に限定しました。但し、¹³¹I については「医療用途での使用があるために医療系廃棄物を対象とした際に検出することがあり得る」旨の注記として残しています。
- ② 作業従事者の安全の確保、試料の採取や取扱、サーバイメータやγ線スペクトル測定機

器の解説、放射能濃度や線量測定における精度管理について、「共通的事項」としてまとめ記載しました。作業安全の確保や試料取扱方法については、改正電離則や除染電離則を参照して改訂を行っています。測定機器については、暫定マニュアルで記載のなかった NaI(Tl)、LaBr₃(Ce)シンチレーションスペクトロメータやサーベイメータを追加し、また精度管理についても、実際に試験所内で適切な精度管理を行えるよう、それぞれ詳細な解説を加えています。

- ③ 各測定対象は、「個別的事項」として各節に記載しました。改訂にあたっては、ガイドラインと整合するように項立ての整理を行い、ガイドラインにあって現行の暫定マニュアルにない「空間線量率」、「粉じん」、「公共の水域の水」、「周縁地下水」、「溶出量」について、ガイドラインの記載内容に準じて新たなマニュアルに追加しました。また、暫定マニュアルにあってガイドラインにない「受入廃棄物」と「土壌」は、環境省の広域処理ガイドライン⁷⁾及び「除染関係ガイドライン」⁸⁾を参照するものとして、新たなマニュアルからは割愛しています。
- ④ 個別的事項の各節において、当該対象の測定が必要となる根拠(法令や通知)や測定操作のフロー、測定方法の原理や妥当性について、「測定の概要」に記載しました。
- ⑤ 「排ガス」では、採取方法はろ紙によるろ過捕集及び吸収瓶による液体捕集としたこと、2形捕集装置や円形ろ紙、有機性のろ紙はマニュアルに記載された条件で適用可能であること、ドレン部の液量が2Lを超えた場合の試料の扱い、ろ紙部をU8容器に充填する際の留意点等について改訂しました。
- ⑥ 「排水、公共用水域の水」では、試料採取量を2Lとすることや、使用する測定容器、γ線スペクトロメトリーでの検出下限値をガイドラインに合わせて改訂しました。
- ⑦ 「廃棄物(灰、汚泥、廃稲わら、廃堆肥等)」では、試料の採取箇所数や1箇所当たりの採取量を明記し、測定機器に NaI(Tl)、LaBr₃(Ce)シンチレーションスペクトロメータの追加を追加しています。
- ⑧ ガイドラインより進んだ内容や調査・研究事例、例えば現場での放射能濃度スクリーニング方法や放射性ストロンチウムの測定方法の検討について、マニュアル本編とは別に附属書として記載する予定です。

表 11.1 暫定マニュアルとガイドラインの主な相違点

	暫定マニュアル	ガイドライン
測定項目	放射性セシウム及び放射性ヨウ素	放射性セシウム
測定対象	排ガス(4章)、灰・汚泥(5章)、廃水・浸出水(6章)、 <u>受入廃棄物(7章)</u> 、 <u>土壌(8章)</u> 、 <u>作業環境(9章)</u> 、一般環境の空間線量(第10章)	空間線量率(2章)、排ガス(3章)、 <u>粉じん(4章)</u> 、排水及び <u>公共の水域の水(5章)</u> 、 <u>周縁地下水(6章)</u> 、燃え殻・ばいじん・排水汚泥・溶融スラグ・溶融飛灰(7章)、 <u>溶出量(8章)</u>
排ガスの採取方法	ろ紙によるろ過捕集+吸収瓶による液体捕集+ <u>活性炭による吸着捕集</u>	ろ紙によるろ過捕集+吸収瓶による液体捕集
固体試料の採取箇所数	4カ所	4カ所以上
固体試料の1箇所当たりの採取量	規定なし	JIS K 0060「産業廃棄物のサンプリング方法」に準拠 100 mL(排水汚泥)
水試料の採取量	500 mL程度(検出下限濃度を低くする場合は2 L)	2 L
水試料の調製方法	浮遊物質を除いて測定する場合 1 µm または 0.45 µm 孔径相当のメンブレンフィルターでろ過	規定なし
放射能濃度の測定機器	ゲルマニウム半導体検出器	ゲルマニウム半導体検出器、 <u>NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータ</u> 、 <u>LaBr₃(Ce)シンチレーションスペクトロメータ</u>

※下線部は一方の調査・測定法にあって他方がないもの。

引用文献

- [1] 環境省：廃棄物関係ガイドライン第2版、平成25年3月
- [2] 前原裕治：放射能濃度等測定ガイドライン第2版の概要および改訂内容、廃棄物資源循環学会誌、24(4)、248-252 (2013)
- [3] 厚生労働省：水道水等の放射能測定マニュアル、平成23年10月
- [4] 滝上英孝、大迫政浩：廃棄物関連試料の放射能分析に関する(一社)廃棄物資源循環学会の取り組み、廃棄物資源循環学会誌、24(4)、239-247 (2013)
- [5] 廃棄物等の調査・測定法研究会：廃棄物等の放射能調査・測定法暫定マニュアル、平成23年11月
- [6] 山本貴士：「廃棄物等の放射能調査・測定法暫定マニュアル」について、廃棄物資源循環学会誌、24(4)、253-257 (2013)
- [7] 環境省：災害廃棄物の広域処理の推進について（東日本大震災により生じた災害廃棄物の広域処理の推進に係るガイドライン）、平成23年8月（平成24年1月一部改正）
- [8] 環境省：除染関係ガイドライン第2版、平成25年5月

12. 放射性物質を含む焼却灰等の空間的・時間的特性

12.1 はじめに

福島第一原子力発電所の事故に伴って放出された放射性物質に由来して、東日本の広範囲地域において放射性セシウムを高濃度で含む焼却灰等が発生しています。その処分方法については通知が発出され、具体的な処分方法についても検討されてきましたが、今後放射性セシウムを高濃度で含む焼却灰等の処分を円滑に進めていくためには、焼却灰等の放射性セシウム含有レベルや発生量についてその空間的な分布や推移の見通しを示しておくことが重要です。ここでは、そのための知見として、放射性セシウムの焼却灰等中濃度や焼却ごみへの移行に関して基礎情報の整備と空間的・時間的な傾向の分析を行いました。

12.2 基礎情報の収集整備

焼却灰等の放射性セシウム濃度等の空間的・時間的特性に関する基礎情報として、東日本の16都県（岩手、宮城、秋田、山形、福島、茨城、栃木、群馬、埼玉、千葉、東京、神奈川県、新潟、山梨、長野、静岡）の一般廃棄物焼却施設について下記のデータを収集整備しました。各データの詳細は表12.1の通りです。

表 12.1 放射性物質を含む焼却灰等の空間的・時間的特性に関する基礎情報

データ	情報源・データ収集方法	詳細
(1) 焼却灰等の放射性セシウム濃度（月別）	地方自治体による報告値を各地方自治体ウェブサイトより収集（一部環境省とりまとめデータリを活用）	焼却飛灰、焼却主灰、焼却混合灰、溶融飛灰、溶融スラグ、その他発生物の別にデータ整備
(2) 焼却処理量、焼却灰等発生量	廃棄物・3R研究財団ごみ焼却施設台帳（平成21年度版）、環境省一般廃棄物処理実態調査（平成21年度）、環境省（廃棄物・リサイクル対策部廃棄物対策課）提供データ	
(3) 設備仕様等	環境省一般廃棄物処理実態調査（平成21年度）、廃棄物・3R研究財団ごみ焼却施設台帳	施設種類（焼却、ガス化溶融等）、処理方式（ストーカ、流動床等）、灰溶融の有無等
(4) 各施設のごみ収集対象区域	地方自治体ウェブサイト等の情報（焼却施設情報、地区ごとのごみ収集情報、清掃事業概要等）、地方自治体へのヒアリングより空間情報として整理。	

また、空間線量率および放射性セシウムの土壌濃度データは文部科学省の航空機モニタリングデータ（2011年11月5日換算値）を用いました。ただし、2011年3月16日頃および21日頃に降雨による放射性セシウムの大きな沈着があった²⁾ことをふまえ、データ分析にはCs-134およびCs-137の自然減衰のみを考慮して2011年3月22日時点の値に換算した値を用いました。また、データの集計や分析には、日本ESRI社製地理情報システムソフトウェアArcGISを用いました。

12.3 一般廃棄物焼却施設における焼却灰等の放射性セシウム濃度の推移

図12.1および図12.2に東日本16都県の一般廃棄物焼却施設における焼却灰等の放射性セシウム濃度測定値（Cs-134とCs-137の合計）の推移をまとめました。図には、施設ごとの焼却飛灰・溶融飛灰、焼却主灰・溶融スラグの濃度について、月ごとの測定値をプロットしてその推移を示しています。放射性セシウム濃度が比較的高い8都県（岩手、福島、茨城、栃木、群馬、埼玉、千葉、東京）については2011年7月から2012年9月、その他の8県については2011年7月から2012年3月までの推移をまとめました。同一月に複数回または複数の炉の測定値があった施設についてはその単純平均値をプロットしています。また、欠損値（ウェブサイトで測定値が報告されていない月や不検出であった月）は推移の傾向が見やすいように補間してプロットしています。焼却飛灰・溶融飛灰のデータは、施設によって測定対象が原灰と処理灰（薬剤処理、セメント固化など）で異なります。

焼却飛灰・溶融飛灰、焼却主灰・溶融スラグのいずれについても、放射性セシウム濃度は2011年7月から2012年3月頃にかけて全体的に低下している傾向があることがわかります。しかしながら、焼却灰等の放射性セシウム濃度は多くの施設で再び上昇しており、2012年5月頃に再びピークが見られます。また、施設によっては2011年の9月頃にも放射性セシウム濃度のピークが見られる場合があります（この変動を読み取りやすいように、2012年9月までのデータを整理した8都県の焼却飛灰・溶融飛灰のデータを例として、2011年7月の濃度を1として放射性セシウム濃度を相対的に表わしたものを図10.3に示しました）。このデータから、焼却灰等の放射性セシウム濃度には季節変動があり、初夏と秋に上昇する可能性があると考えられます。

この原因としては、初夏や秋には剪定枝や雑草などの草木類の排出量が増加し、草木類やこれに付着した土に含まれて放射性セシウムの混入量が増えたことが可能性として挙げられます。このように、焼却灰等の放射性セシウム濃度は一旦低下しても再び上昇することが十分考えられることから、濃度レベルによっては定期的・長期的なモニタリングが重要と考えられます。

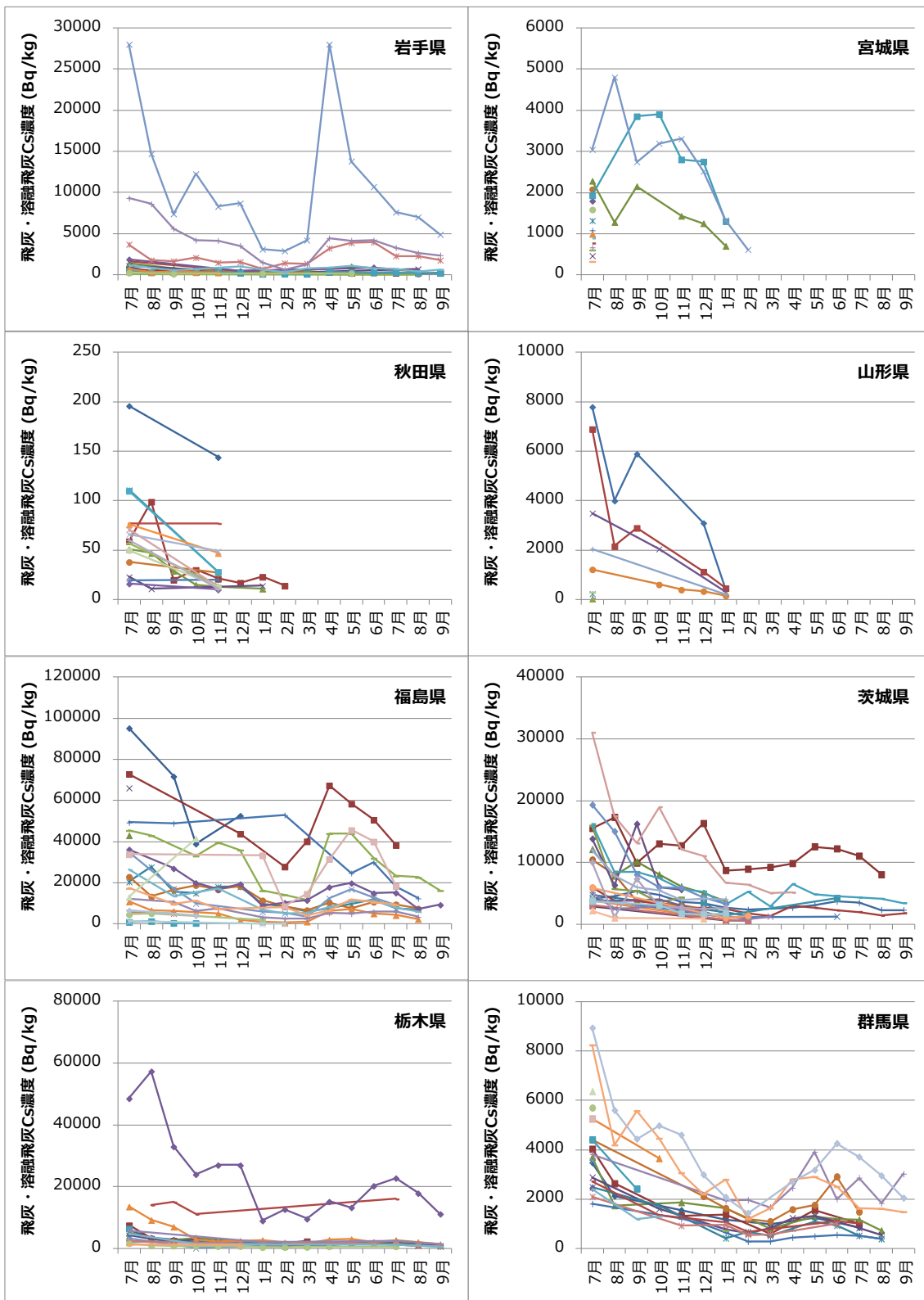


図 12.1 一般廃棄物焼却施設における焼却飛灰・溶融飛灰の放射性セシウム濃度 (Cs-134 と Cs-137 の合計) の推移

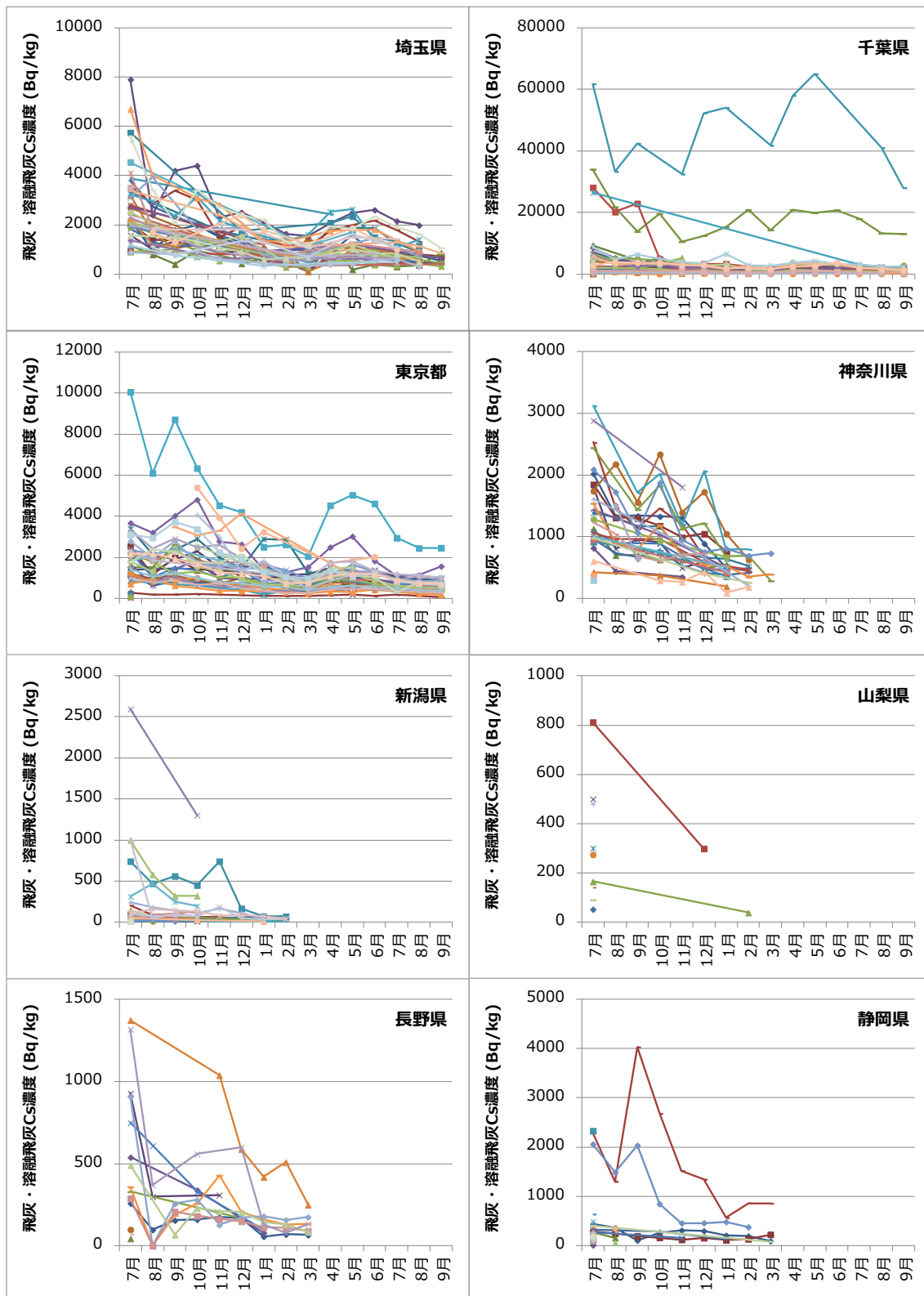


図 12.1 (つづき) 一般廃棄物焼却施設における焼却飛灰・溶融飛灰の放射性セシウム濃度 (Cs-134 と Cs-137 の合計) の推移

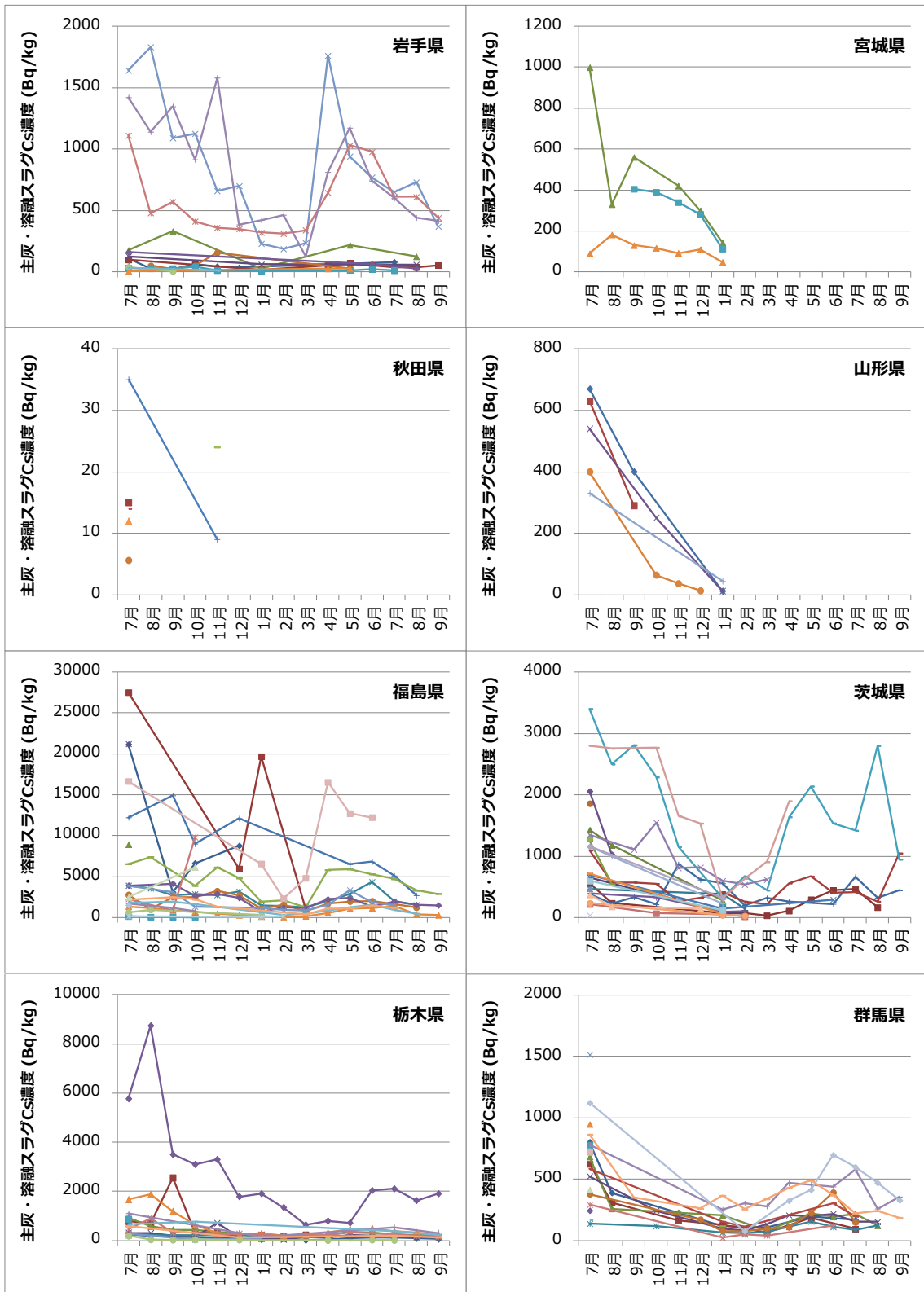


図 12.2 一般廃棄物焼却施設における焼却主灰・溶融スラグの放射性セシウム濃度 (Cs-134 と Cs-137 の合計) の推移

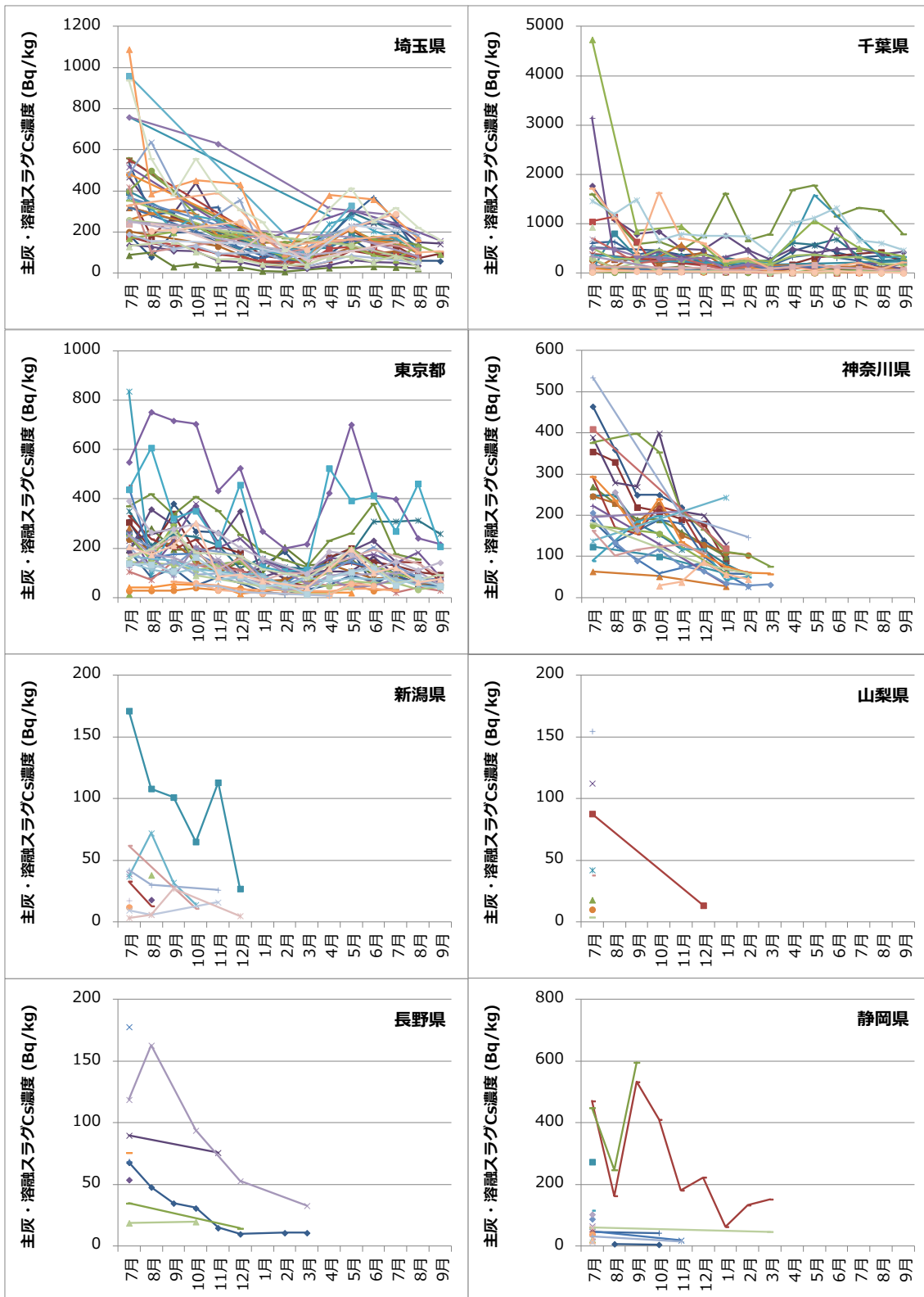


図 12.2 (つづき) 一般廃棄物焼却施設における焼却主灰・溶融スラグの放射性セシウム濃度 (Cs-134 と Cs-137 の合計) の推移

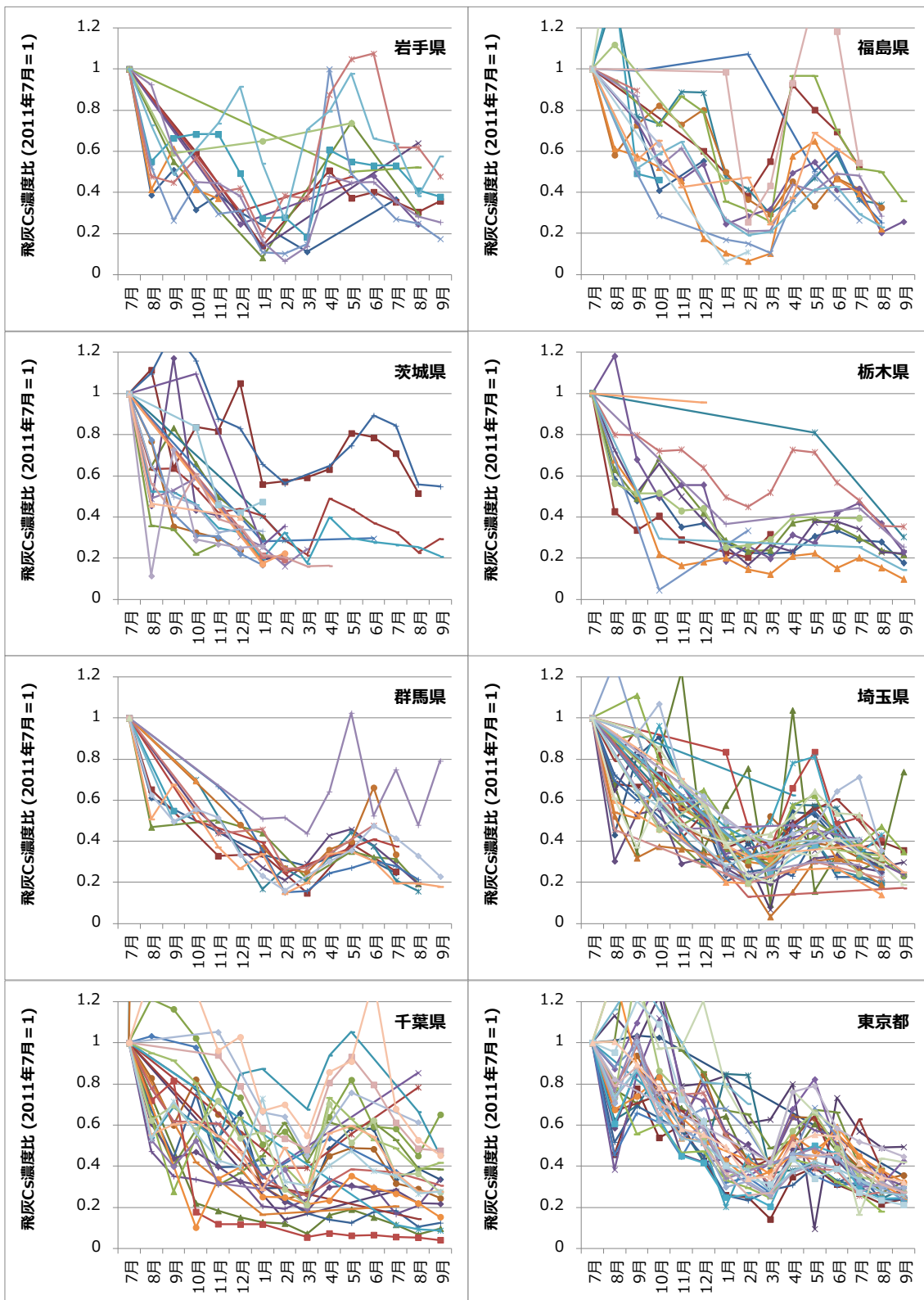


図 12.3 一般廃棄物焼却施設における焼却飛灰・溶融飛灰の放射性セシウム濃度 (Cs-134 と Cs-137 の合計) の推移 (2011 年 7 月を 1 とした値)

12.4 焼却灰等の放射性セシウム濃度の空間分布

図 12.4 に、東日本の一般廃棄物焼却施設における焼却飛灰・熔融飛灰の放射性セシウム濃度レベル（7月測定値、Cs-134 と Cs-137 の合計）と発生量の空間分布を示します。円の色が放射性セシウム濃度、円の大きさが焼却飛灰・熔融飛灰の月間発生量（年間発生量を 12 で割った値）を示しています。なお、混合灰の測定値しか報告されていない施設については図に含まれていません。

2011 年 7 月時点では、福島県内に加えて岩手県一関周辺、栃木県那須周辺、千葉県東葛地域などの施設において放射性セシウム 8,000Bq/kg を超える飛灰（赤、橙、または黄色の円）が月間 50～250 トン程度の量で生じていたことがわかります。一方、特に関東地方においては、8,000Bq/kg は超えていないものの、放射性セシウム濃度が数千 Bq/kg（緑色の円）が月間数百トンの量で発生していた施設も多く存在することがわかります。これらの施設で生じた放射性セシウム濃度が 8,000Bq/kg を超えない飛灰は特定一般廃棄物として既に処分されたものもあると考えられますが、適切な処分がなされているかを把握しておくことも放射性物質の管理の面から重要であると考えられます。

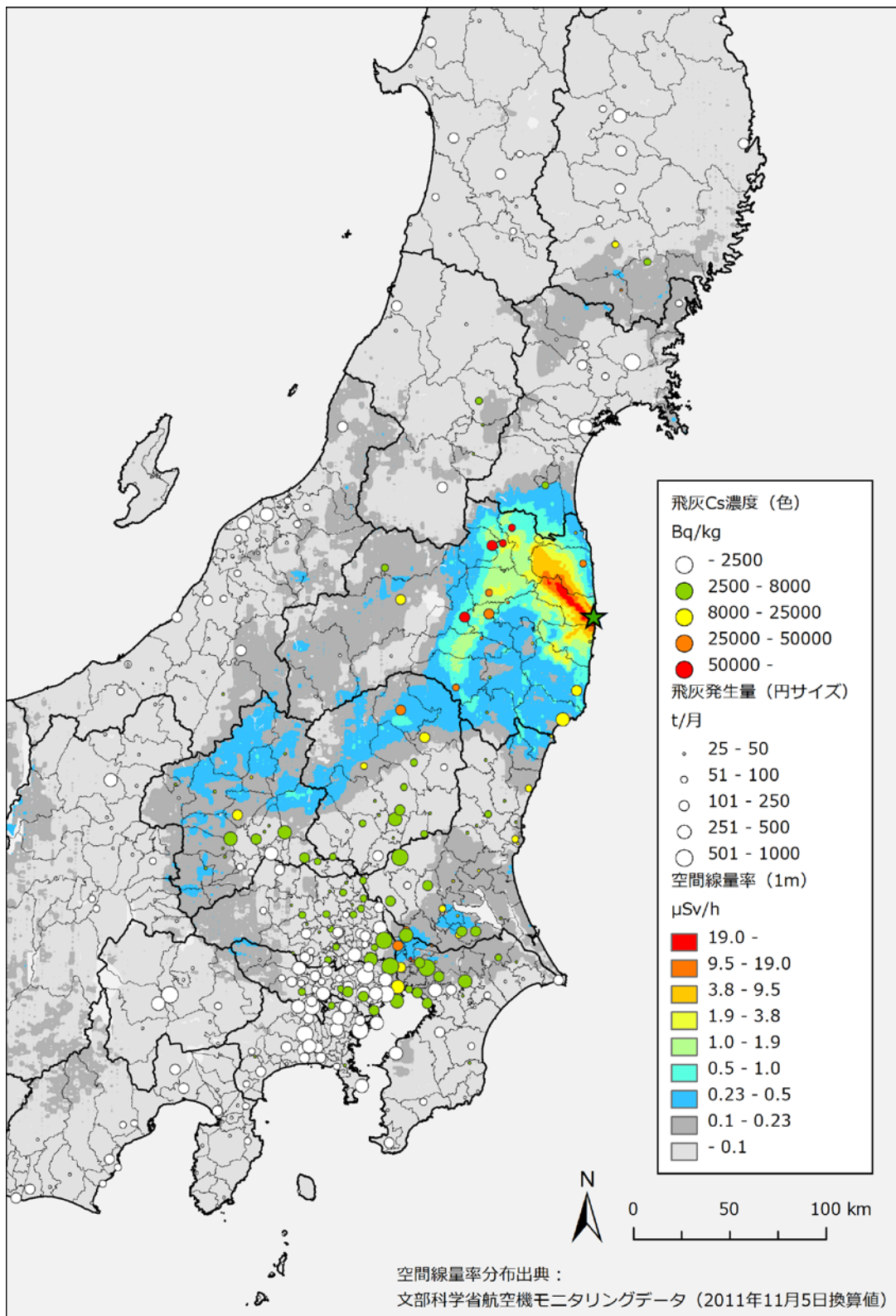


図 12.4 焼却飛灰・溶融飛灰の放射性セシウム濃度レベルと発生量の空間分布
(濃度は2011年7月測定値、Cs-134とCs-137の合計)

12.5 放射性セシウムで汚染された焼却灰等の施設・地域特性

図 12.4 に示した飛灰の放射性セシウム濃度と空間線量率の分布状況を見ると、焼却灰等の放射性セシウム濃度と空間線量率の間には一定の相関があることが予想されます。そこで、図 12.5 に施設ごとのごみ収集対象区域の平均空間線量率と飛灰の放射性セシウム濃度の関係を示します。ごみ収集対象区域の平均空間線量率は、文部科学省航空機モニタリングに基づいて作成されたメッシュデータを用い、中心点がごみ収集対象区域に含まれるメッシュの空間線量率を単純平均したものを用いています。なお、空間線量率の値はバックグラウンドである自然放射線量の値を差し引いていません。

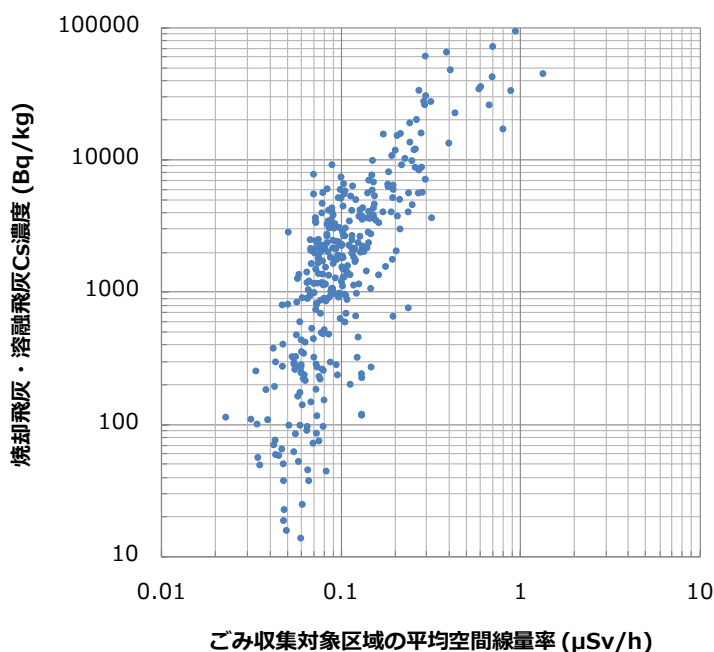


図 12.5 焼却飛灰・溶融飛灰の放射性セシウム濃度
(2011年7月測定値、Cs-134とCs-137の合計)と空間線量率の関係

この図より、焼却飛灰や溶融飛灰の放射性セシウム濃度は施設のごみ収集対象区域の空間線量率と一定の正の相関があることがわかります。その一方で、空間線量率のレベルが同程度であっても焼却飛灰や溶融飛灰の放射性セシウム濃度は施設によって大きくばらついており、1桁から2桁程度異なっている場合があることがわかります。

焼却飛灰や溶融飛灰の放射性セシウム濃度は、焼却前のごみの放射性セシウム濃度と焼却による飛灰への濃縮倍率で決まると考えられますので、施設によるこれらの違いが飛灰の放射性セシウム濃度の違いに影響していると考えられます。そこで、放射性セシウムの焼却ごみ濃度や濃縮倍率について推定を行い、地域や施設ごとの特性を分析しました。

12.6 焼却ごみの放射性セシウム濃度の傾向

(1) 焼却ごみの放射性セシウム濃度の推定

施設ごとの焼却灰等の放射性セシウム濃度、焼却灰等発生量および焼却処理量データを用いて、下記の式より各施設における焼却ごみの放射性セシウム濃度を推定しました。

$$\text{焼却ごみ Cs 濃度(Bq/kg)} = \frac{\sum_i \text{焼却灰等 } i \text{ の Cs 濃度(Bq/kg)} \times \text{焼却灰等 } i \text{ の発生量(kg/年)}}{\text{焼却処理量(kg/年)}}$$

i は焼却飛灰、焼却主灰、混合灰、熔融飛灰、熔融スラグ等の発生物の種類を示しており、基本的に焼却施設については焼却飛灰と焼却主灰、または混合灰のデータ、ガス化熔融施設や灰熔融併設焼却施設については熔融飛灰と熔融スラグのデータを用いて推定を行っています。

なお、この推計値は主に剪定枝や雑草などの草木類やこれに付着した土に含まれていると考えられる放射性セシウムの量を焼却ごみ全体の量で平均化した値となっており、家庭ごみ全体が放射性セシウムに汚染されていることを示しているわけではありません。言い換えれば、草木類や土に比較的高濃度で含まれていた放射性セシウムはその他の家庭ごみ等で薄められており、この推計値はその薄められたときの焼却ごみ全体の平均濃度を示しているということになります。

図 12.6 に推定した焼却ごみの放射性セシウム濃度の推移を 2012 年 9 月までのデータを整理した 8 都県について示します。焼却ごみの推定放射性セシウム濃度は 2011 年 9 月頃や 2012 年 5 月頃にピークが見られ、これが焼却灰等の放射性セシウム濃度の季節変動につながっていると考えられます。ただし、同じ季節について 2011 年と 2012 年を比較すると、一部の施設を除けば 2012 年の方が低い濃度を示していることから、焼却ごみの放射性セシウム濃度は季節変動によって低下と上昇を繰り返しながら徐々に低下していると予想されます。この全体的な低下傾向は Cs-134 の自然減衰や生活圏における放射性セシウムを含む草木類や土壌の除去、移動（意図的および非意図的な除染活動）によるものである可能性が考えられます。

図 12.7 に推定した焼却ごみの放射性セシウム濃度と施設のごみ収集対象区域の平均空間線量率の関係の例（2011 年 7 月の例）を示します。図より、焼却ごみの放射性セシウム濃度も空間線量率と一定の相関があり、単純な回帰曲線（累乗関数）上においては 2011 年 7 月時点で平均空間線量率が $0.1 \mu\text{Sv/h}$ の地域で 70Bq/kg 程度、 $0.5 \mu\text{Sv/h}$ で 700Bq/kg 程度、 $1 \mu\text{Sv/h}$ で $2,000\text{Bq/kg}$ 程度と試算されました。ただし、飛灰の場合と同様に、空間線量率のレベルが同程度であっても焼却ごみの放射性セシウム濃度は施設によって 1 桁強異なっている場合があり、一般廃棄物焼却処理への放射性セシウムの移行挙動は施設（地域）によって異なっていると考えられます。

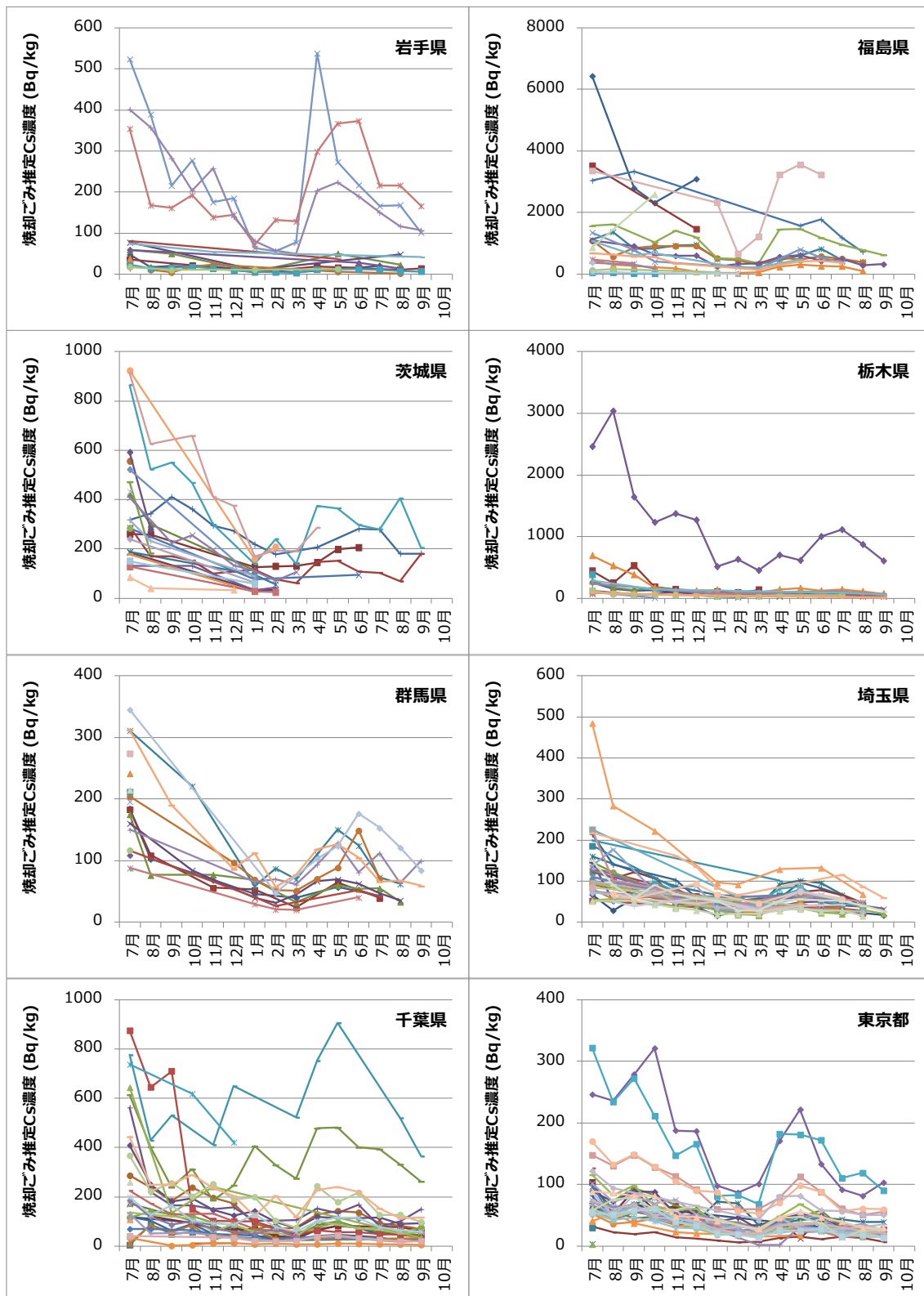


図 12.6 一般廃棄物焼却施設における焼却ごみの推定放射性セシウム濃度 (Cs-134 と Cs-137 の合計) の推移

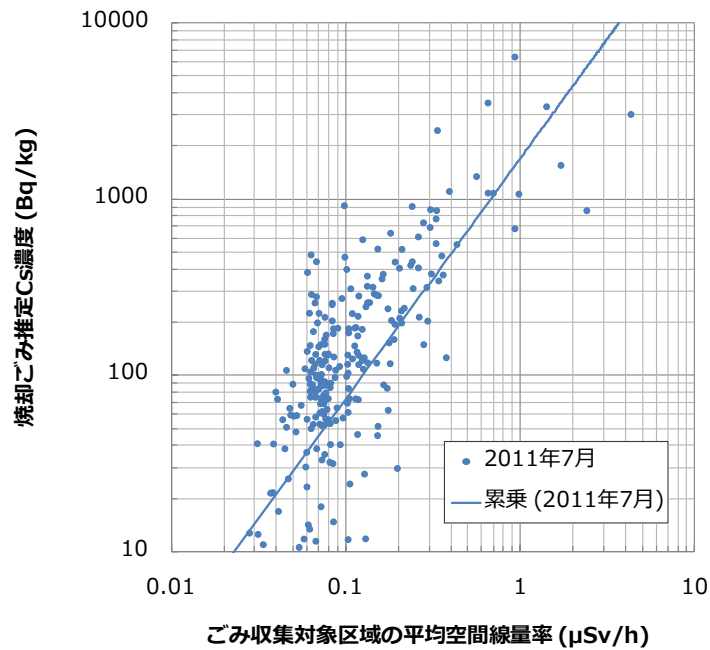


図 12.7 焼却ごみの推定放射性セシウム濃度（2011 年 7 月推定値、Cs-134 と Cs-137 の合計）と空間線量率の関係

(2) 焼却ごみへの放射性セシウム移行率の推定

一般廃棄物焼却処理への放射性セシウム移行挙動の施設（地域）による違いを考察するため、放射性セシウムの焼却ごみ濃度（推定値）と土壌沈着量から放射性セシウムの焼却ごみへの移行率を計算し、その傾向を考察しました。各施設の放射性セシウムの焼却ごみ移行率は下記の式で年間あたりの値として計算しました。

$$\text{焼却ごみ Cs 移行率} = \frac{\text{焼却ごみ Cs 濃度(Bq/kg)} \times \text{年間焼却処理量(kg/年)}}{\text{ごみ収集対象区域の土壌 Cs 濃度(Bq/m}^2\text{)} \times \text{面積(m}^2\text{)}}$$

ごみ収集対象区域の土壌放射性セシウム濃度には、文部科学省航空機モニタリングに基づいて作成されたメッシュデータから中心点がごみ収集対象区域に含まれるメッシュのデータを単純平均したものを用いています。

図 12.8 に土壌沈着量に対する焼却ごみへの放射性セシウム移行率の分布を示します。放射性セシウムの移行率は施設によって大きく異なっており、この違いが施設（地域）による焼却ごみの放射性セシウム濃度の違いの 1 つの影響要因であると考えられます。

年間あたりで焼却ごみへ移行する放射性セシウムは 8 割以上の施設において土壌沈着量

の1%未満であり、最も高い施設でも8%（2011年7月時点）と推定されました。また、各施設のごみ収集対象区域への放射性セシウムの総沈着量（＝土壌濃度×面積）で加重平均した年間あたりの移行率は0.1%未満であり、一般廃棄物焼却処理への放射性セシウムの移行量は沈着量に比して決して多くはないことがわかります。

全体的な傾向として、2011年8月から9月頃に焼却ごみへの放射性セシウム移行率が高い施設の割合が増えており、冬季はその割合が低下している様子が見られます。また、2012年5月頃に再度ピークが見られ、その後はまた減少傾向が見られます。この変動は焼却ごみに含まれる放射性セシウムの主な由来と考えられている剪定枝や雑草などの草木類およびこれに付着した土の排出量の季節変動によるものである可能性があります。ただし、これを裏付けるデータは得られていないため、継続的なデータ蓄積とともに草木類排出に関する情報収集も望まれます。

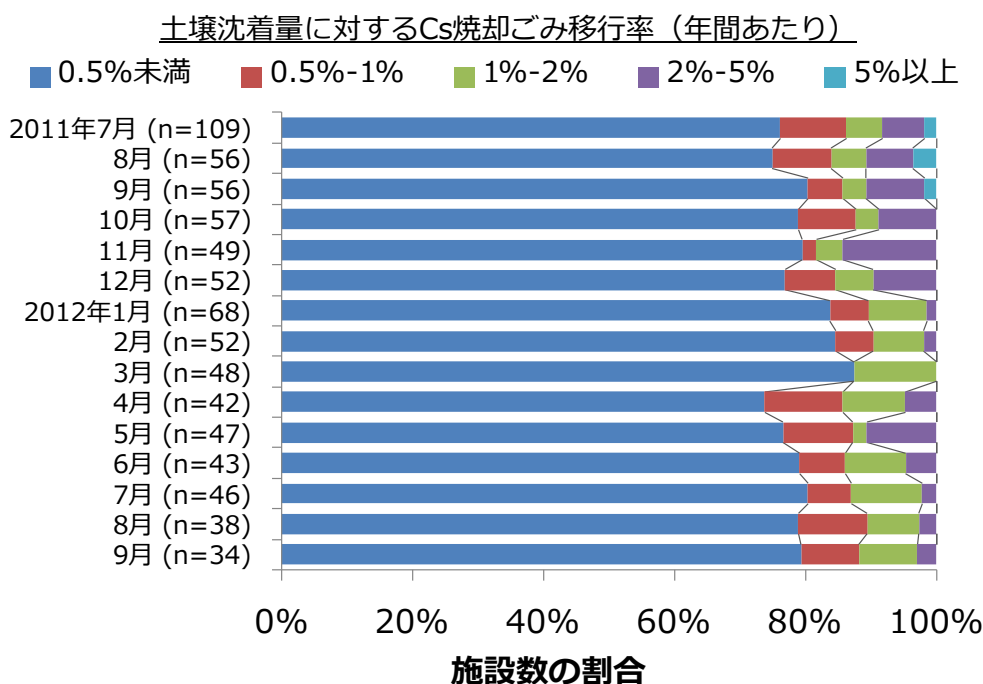


図 12.8 土壌沈着量に対する焼却ごみへの放射性セシウム移行率の分布

焼却ごみに含まれる放射性セシウムの主な由来が草木類およびこれに付着した土だとすれば、放射性セシウムの焼却ごみへの移行率は草木類排出に係る地域的な特性に影響されると考えられます。例えば草木類の排出量は住宅の密集度や土地利用状況に関する可能性があります。そこで、例として施設のごみ収集対象区域の人口密度（平成17年国勢調査データより算出）と放射性セシウムの焼却ごみ移行率の関係を見てみました。

図 12.9 に放射性セシウムの焼却ごみ移行率とごみ処理区域の人口密度の関係（2011年7

月の例) を示します。この図より、放射性セシウムの焼却ごみ移行率は人口密度が大きい地域ほど高い傾向があることがわかります。この結果は、人口密度が高い地域ほど沈着した放射性セシウムを含む草木類や土壌が除去、移動されている割合が高いという可能性を示していると言えます。一方、人口密度が低い地域では日常生活に直接関係しない森林等の土地も多く、沈着した放射性セシウムの大部分がそのまま残されているのではないかと推測ができます。なお、人口密度が低い地域 (2,000 人/km² 程度以下) では焼却ごみ移行率は施設 (地域) によって数桁と大きく異なっています。これに対し、人口密度が 5,000 人/km² 程度を超える地域では焼却ごみ移行率がそれほど大きくは異ならない傾向があり、放射性セシウムの焼却ごみ移行率は高くても数%で頭打ちになっていると考えられます。

また、結果は示していませんが、放射性セシウムの焼却ごみ移行率は土地利用区分における建物用地面積の割合 (国土数値情報平成 18 年土地利用細分メッシュデータより算出) や住宅種別世帯数の割合 (平成 17 年国勢調査データより算出) とも相関が見られました。しかし、これらの指標は人口密度とも高い相関があり相互に関係していることから、放射性セシウムの焼却ごみへの移行率は人口密度のみでもある程度説明可能と考えられました。

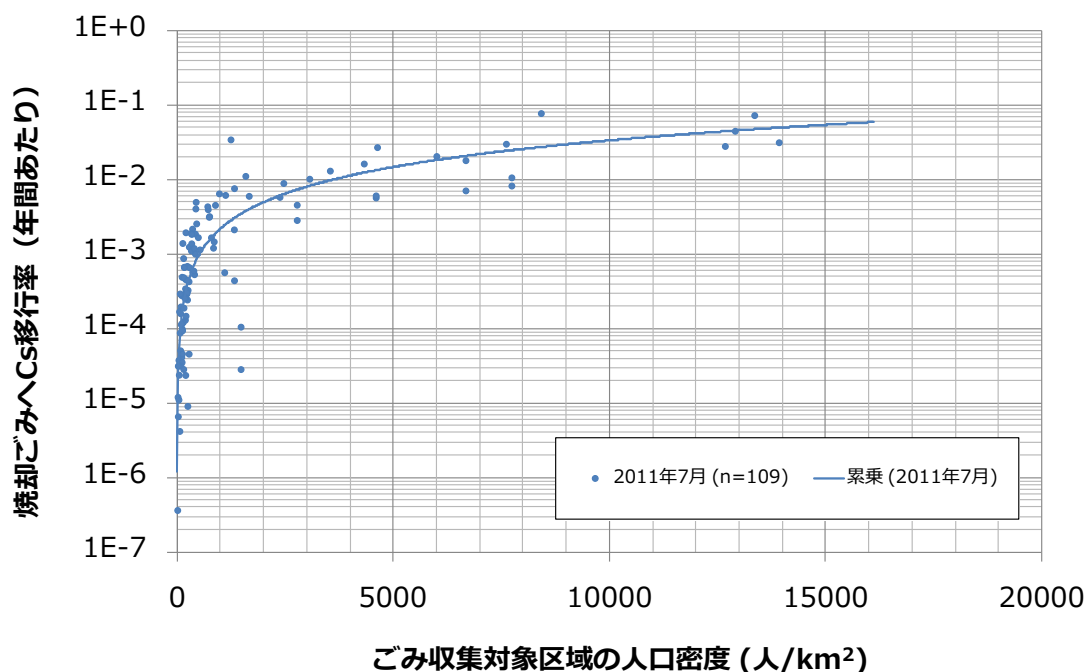


図 12.9 土壌沈着量に対する焼却ごみへの放射性セシウム移行率と人口密度の関係

12.7 焼却灰等への放射性セシウム濃縮傾向

焼却灰等の放射性セシウム濃度に影響するもう 1 つの要因である放射性セシウムの焼却灰等への濃縮倍率について、焼却飛灰・熔融飛灰のデータをもとにその傾向を考察しました。

図 12.10 は放射性セシウムの焼却ごみ濃度（前節で推定）と焼却飛灰・溶融飛灰濃度の関係を施設の処理方式別に示したものです。図ではある施設・ある月の測定値を1データとしてプロットしています。横軸（焼却ごみ濃度）に対する縦軸（飛灰濃度）の比が焼却飛灰・溶融飛灰への放射性セシウム濃縮倍率を示します。

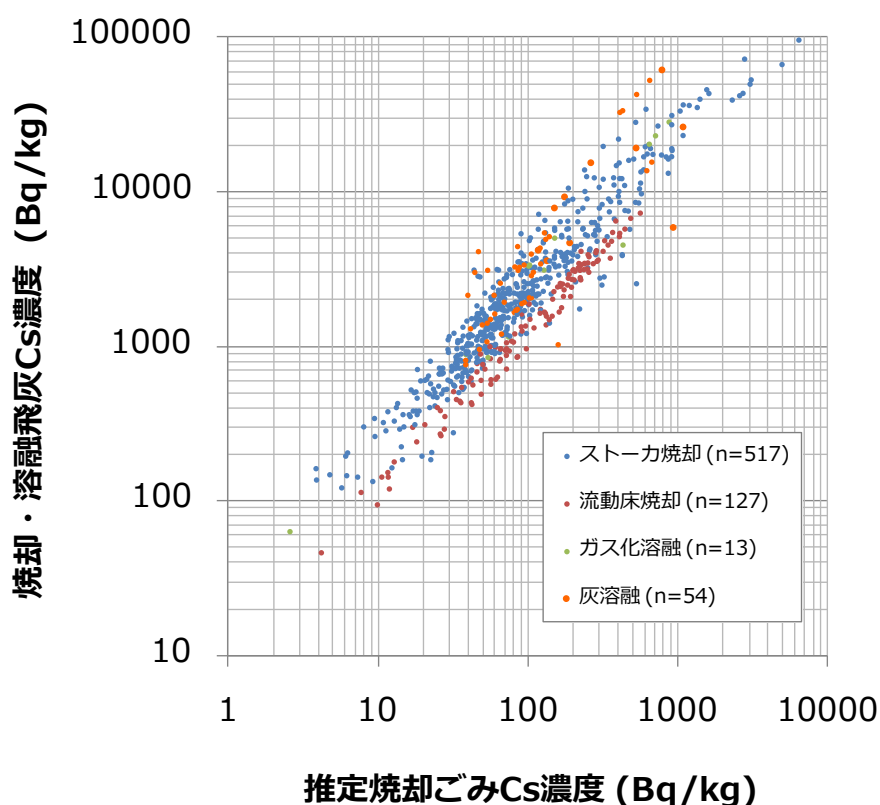


図 12.10 放射性セシウムの推定焼却ごみ濃度と焼却・溶融飛灰濃度の関係

飛灰への放射性セシウム濃縮倍率は流動床式焼却施設では明らかに低く、灰溶融併設焼却施設では全体的に高い傾向があり、ストーカ式焼却施設およびガス化溶融施設はその中間に位置していることが見て取れます。

飛灰への放射性セシウム濃縮倍率の分布を処理方式別にヒストグラムで表したものを図 12.11 に示します。流動床式焼却施設における飛灰への放射性セシウム濃縮倍率は大半のデータが 10～15 倍程度であり、施設によるばらつきは非常に小さいことがわかります。一方、灰溶融併設焼却施設における飛灰への放射性セシウム濃縮倍率は 20～40 倍程度のデータが多いですが、さらに高い濃縮倍率を示すデータがあるなど全体的に高い傾向があります。ストーカ式焼却施設における飛灰への放射性セシウム濃縮倍率は 20 倍程度を中心に流動床式焼却施設と灰溶融併設焼却施設の中間に位置する分布を示しています。ガス化溶融施設はデータ数が少なく傾向を読むことは難しいものの、ストーカ式焼却施設と比べて明らか

な違いは見られません。

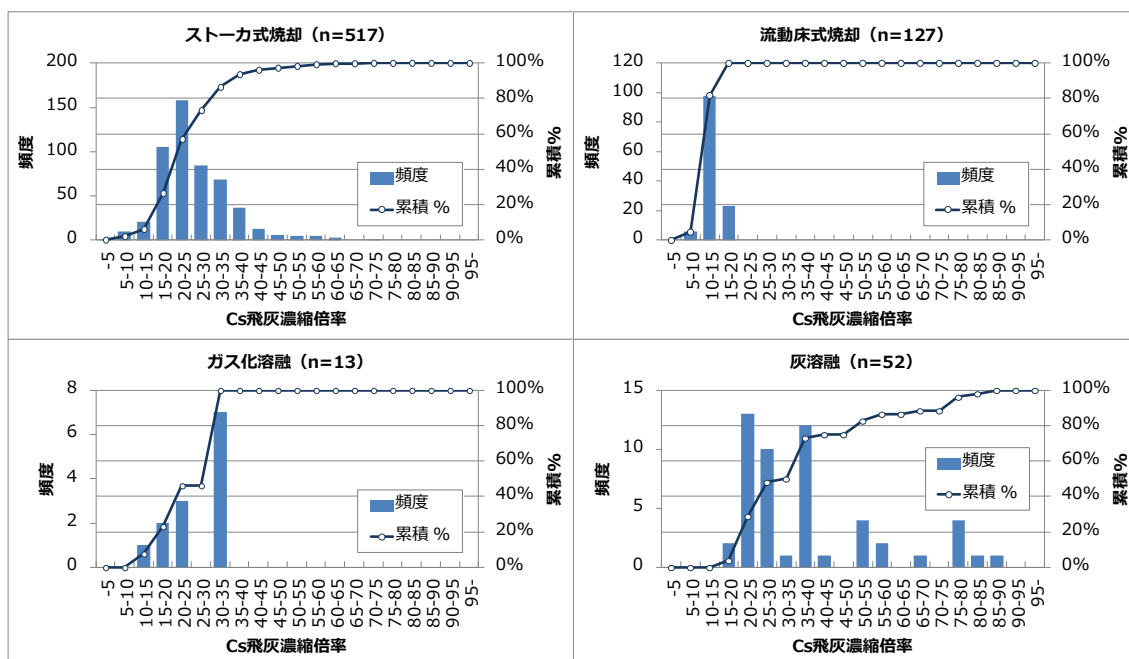


図 12.11 焼却・溶融飛灰への放射性セシウム濃縮倍率の分布（処理方式別）

まとめると、飛灰への放射性セシウム濃縮倍率は灰溶融併設施設、ストーカ式焼却施設およびガス化溶融施設、流動床式焼却施設の順に高い傾向にあることがわかります。また、この濃縮倍率データを用いれば、飛灰の放射性セシウム濃度から焼却ごみの放射性セシウム濃度をおよそ推定できると考えられます。特に流動床式焼却施設は施設による濃縮倍率の違いが小さいことから、焼却ごみの放射性セシウム濃度を比較的精度よく推定できると考えられます。

焼却飛灰・溶融飛灰への放射性セシウム濃縮倍率は、焼却処理量に対する飛灰発生量の割合（飛灰発生率）と放射性セシウムの飛灰への分配率で決まると考えられます。そこで、処理方式別にこれらの傾向を考察しました。

(1) 施設の処理方式による飛灰発生率の傾向

図 12.12 に処理方式別の飛灰発生率の分布（ヒストグラム）を示します。流動床式焼却施設は他の処理方式に比べて飛灰発生率が高い傾向が見られます。流動床式焼却施設では焼却灰が基本的に全て飛灰として回収され、炉下に残るのは不燃物のみであることから、焼却処理量に対して発生する飛灰の割合が高いこの傾向は妥当と考えられます。一方、灰溶融併設焼却施設では他の処理方式に比べて飛灰発生率が低い傾向が見られます。溶融処理物（焼却飛灰や焼却主灰）の主要成分のうち溶融飛灰へ移行するのは Na や K などの揮発成分が主

であり、SiやAlはほぼ熔融スラグへ分配することから、飛灰発生率が低い傾向があることは妥当と考えられます。焼却灰が焼却飛灰と焼却主灰に分かれて排出されるストーカ式焼却施設の飛灰発生率は、全体的な傾向として流動床式焼却施設と灰熔融併設焼却施設の間に位置しています。また、ガス化熔融施設における飛灰発生率はストーカ式焼却施設と同程度の分布となっています。

飛灰発生率が高いほど飛灰へ分配した放射性セシウムが希釈され、飛灰発生率が低いほど濃縮される方向に影響しますので、飛灰発生率の点においては飛灰への放射性セシウム濃縮倍率が低いという傾向と整合しています。

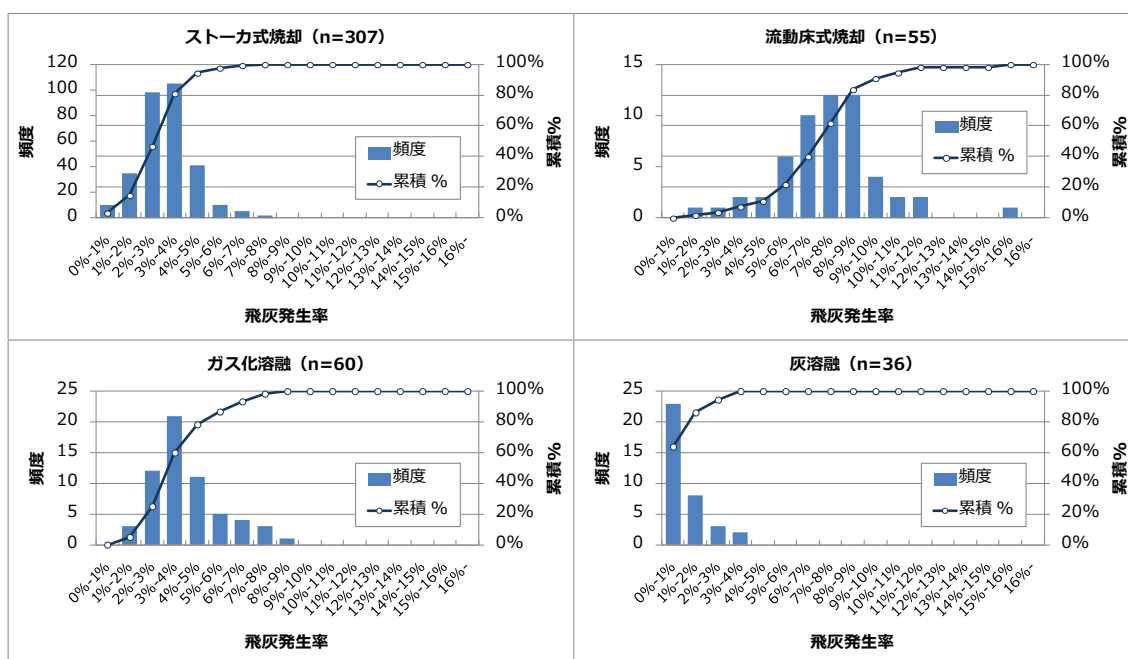


図 12.12 焼却処理量に対する飛灰発生率の分布（処理方式別）

(2) 施設の処理方式による飛灰への放射性セシウム分配率の傾向

図 12.13 に処理方式別の飛灰へのセシウム分配率の分布（ヒストグラム）を示します。飛灰への放射性セシウム分配率は下記の式で計算しました。なお、図ではある施設・ある月の測定値を 1 データとして数えています。

$$\text{飛灰への Cs 分配率} = \frac{\text{飛灰 Cs 濃度(Bq/kg)} \times \text{飛灰発生量(kg/年)}}{\text{焼却ごみ推定 Cs 濃度(Bq/kg)} \times \text{焼却処理量(kg/年)}}$$

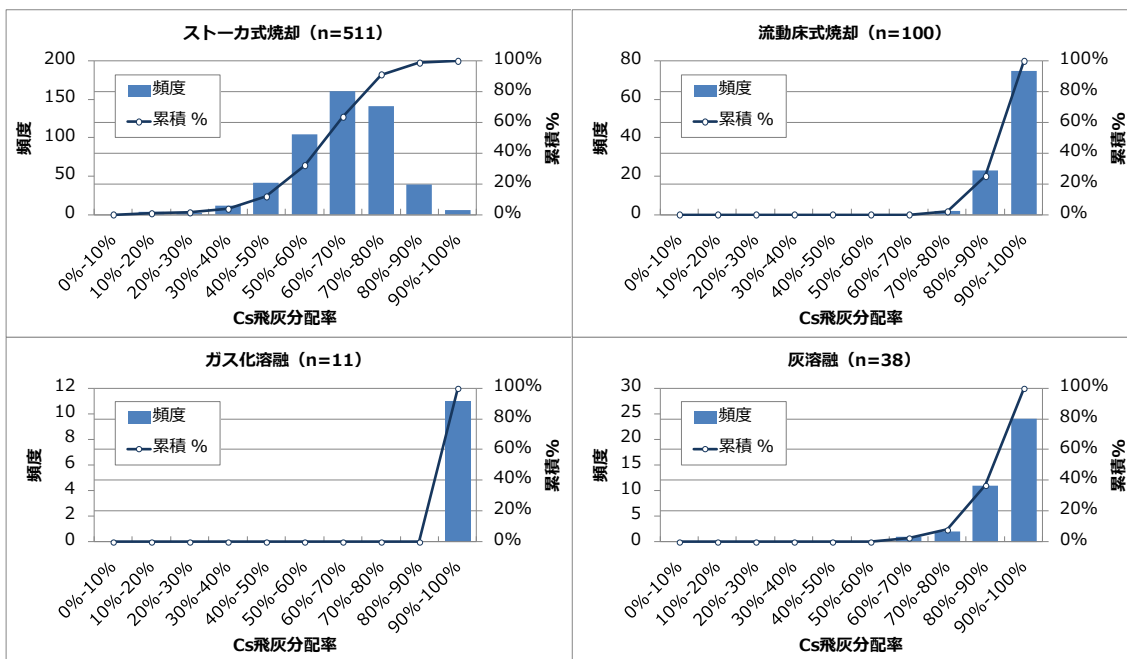


図 12.13 焼却ごみに含まれる放射性セシウムの飛灰への分配率の分布（処理方式別）

流動床式焼却施設、灰溶融併設焼却施設では飛灰への放射性セシウムの分配率が多く of 施設で 90%以上となっています。ガス化溶融施設はデータ数が少なく傾向を見出すことは困難ではありますが、得られた 11 データは全て 90%以上となっています。これらの処理方式について、施設による飛灰への放射性セシウム分配率の違いはせいぜい±20%程度であることから、飛灰への放射性セシウムの分配率の違いだけによって放射性セシウムの濃縮倍率に数倍程度の大きな差が現れることはないことがわかります。したがって、流動床式焼却施設、灰溶融併設施設、ガス化溶融施設では、放射性セシウムの飛灰分配率の影響はそれほど小さくなく、飛灰への放射性セシウム濃縮倍率はほぼ施設の飛灰発生率によって決定されていると考えられます。実際に、飛灰発生率の高い傾向のある流動床式焼却施設は飛灰への放射性セシウム濃縮倍率が低く、飛灰発生率の低い傾向のある灰溶融併設焼却施設は濃縮倍率が高い傾向となっており、飛灰発生率で濃縮倍率の傾向をおよそ説明できる結果となっています。

一方、ストーカ式焼却施設については、飛灰への放射性セシウム分配率が 20%からほぼ 100%まで広い範囲の値を取っており（すなわち施設によって 5 倍程度異なる）、焼却ごみに含まれる放射性セシウムの飛灰と主灰への分配挙動が施設によって大きく異なっていることがわかります。先に示したように、ストーカ式焼却施設では飛灰への放射性セシウム分配率も施設によって大きく異なっていることから、放射性セシウム濃縮倍率は飛灰発生率と飛灰への放射性セシウム分配率の両方に影響されていると考えられます。

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、<http://www.env.go.jp/jishin/attach/waste-radioCs-16pref-result20110829.pdf>、2011 年 11 月 22 日閲覧
- 2) Morino, Y., Ohara, T., Nishizawa, M. (2011) Atmospheric behavior, deposition, and budget of radioactive materials from the Fukushima Daiichi nuclear power plant in March 2011, *Geophysical Research Letters*, 38, L00G11