

# 植物焼却灰からの放射性汚染物除去



川本 徹  
Kawamoto Tohrû  
(産業技術総合研究所ナノシステム研究部門)



伯田 幸也  
Hakuta Yukiya

## 1 はじめに

2011年3月11日の東日本大震災に伴う東京電力(株)福島第一原子力発電所(福島第一原発)の放射性物質漏えい事故以来、福島県など広範囲にわたる地域の除染の推進が国の事業として進められている。除染推進上の重要な検討課題として、除染に伴う廃棄物(以下、除染廃棄物という)の管理貯蔵法がある。

除染廃棄物の貯蔵・処分は環境省「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」<sup>1)</sup>に従うと考えられる。この指針における、除染廃棄物の処分方針を図1に示す。除染廃棄物はまず、仮置場に保管されるか、事前に焼却される。

仮置場に一旦保管された除染廃棄物は中間貯蔵施設内で必要に応じて減容化(基本的には可燃物の焼却)される。

焼却灰の貯蔵法については、10万Bq/kg超のものはドラム缶等に充填し屋内保管されるが、10万Bq/kg以下の場合には、中間貯蔵施設内にて性状に応じて保管、とされている。放射性セシウム

(r-Cs)濃度以外で最も重要な性状は水へのr-Cs溶出性である。溶出性がある場合、雨水等でr-Csが溶出し環境を再汚染するおそれがある。r-Cs溶出性は灰の種類によって大きく異なる<sup>2,3)</sup>。r-Csの溶出については、環境省告示等で、固液比1:10で灰と水を混合攪拌し、水のr-Cs濃度が150Bq/L以下は“溶出が少ない”、10~20Bq/L(検出限界)以下は“溶出がない”とされ、その区分に従い処分法が定められている。また、事前焼却による灰は、その濃度が10万Bq/kg超の場合には中間貯蔵施設に、それ以外は管理型処分場へ移送される。

以上の指針に従うと、廃棄物のr-Cs濃度が

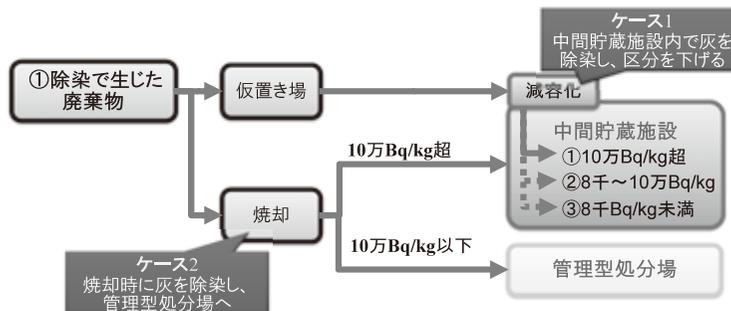


図1 除染で生じた廃棄物の想定される処理フロー(文献1)より作成)、及び、灰除染法の想定される用途

高く、r-Cs 溶出性が高いほど、嚴重な貯蔵が必要となり、結果として廃棄物当たりに必要な貯蔵施設の体積・コストが増大する。我々の目的は、除染廃棄物の焼却灰の① r-Cs 濃度を低減するとともに、② 水に触れた場合の r-Cs の溶出を抑制する技術を開発し、この貯蔵施設の体積・コストを低減することである。

想定する技術活用例を図 1 に示した。中間貯蔵施設において焼却、減容化した灰について、r-Cs 濃度及び溶出性を低減し、より簡便な施設での貯蔵を可能にする (図 1 ケース 1)。事前焼却の場合は、r-Cs 濃度を 10 万 Bq/kg 以下とすれば管理型処分場での処分が可能となる (図 1 ケース 2)。

筆者らは、本目的のため、焼却灰の除染法を開発し、2012 年 11 月から約 1 年間、福島県川内村において、東京パワーテクノロジー、関東化学、日本バイリン、阿部鐵工所とともに実証試験を行った<sup>4,5)</sup>。本稿ではその概要を紹介する。

## 2 除染法の概要

筆者らの除染法においては、まず、r-Cs 汚染物を焼却させ、焼却灰にする。次に、この焼却灰から水で r-Cs を抽出する。抽出した r-Cs は吸着材で濃縮回収する。吸着材の r-Cs 濃度は高くなるが、10 万 Bq/kg を超える放射性廃棄物の体積は大きく低減する。

吸着材は、産総研が連携企業と共同で開発したプルシアンブルーナノ粒子 (PB-NP) 吸着材を利用する。PB-NP 吸着剤は、ゼオライト、市販顔料のプルシアンブルーなどと比較して、Na、K 等のほかの共存イオンが存在しても選択的に Cs を吸着する能力が高く<sup>6)</sup>、処理すべ

き灰重量当たりに必要な吸着材の量を低減できる。今回は関東化学製の粒状体と、日本バイリン製の不織布担持体を用いた (図 2)。

実証試験のために、図 3 に示す焼却プラントと、灰除染プラントを構築した。焼却プラントでは、主に木の幹、枝等を焼却し、焼却灰の量、濃度に加え、焼却炉内で得られる主灰と、バグフィルター等で回収される飛灰について、特性の違いも検討した。

都市ゴミ焼却灰の場合、主灰中の r-Cs 溶出性が低く、飛灰は溶出性が高いことが知られて



図 2 PB ナノ粒子を利用した r-Cs 吸着剤と充填コラム<sup>5)</sup>

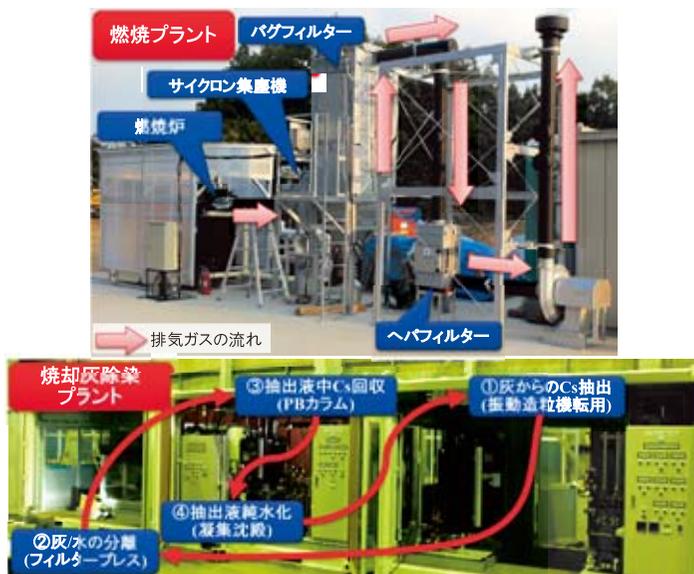


図 3 本実証試験に使用した試験プラント<sup>5)</sup>

いる<sup>2)</sup>。溶出率が低いことは、すなわち、水での r-Cs 抽出率が低いことを示している。今回は r-Cs 抽出率向上のため、CaCl<sub>2</sub> を添加し、焼却する実験を行った。都市ゴミの場合、焼却時 CaCl<sub>2</sub> 添加量が増すにつれ、r-Cs の揮発率が高まることが報告されている<sup>7)</sup>。植物焼却の場合でもこの傾向と一致するか、更に揮発の高さが抽出率向上につながるかの検討を行った。

灰除染プラントでは、焼却灰と水を混合攪拌し、r-Cs を抽出後、脱水することで灰中の r-Cs を可能な限り除去する。抽出水中の r-Cs は、PB ナノ粒子を含有する吸着剤を充填したカラムに通水し、回収・濃縮する。

灰除染プラントのフローを図 4 に示す。本方式の特徴として、使用水量を減らせることが挙げられる。本方式により、法令上排水可能なレベルへの水浄化は可能である。しかし、事業化時の排水には住民の合意形成が必要となり、必ずしも排水できるとは限らない。排水が諸々の理由から困難な場合、蒸発処理などが必要となり、使用水量の低減は大きなコスト削減要因となる。

まず、灰と水の混合攪拌時に振動造粒機を用いた。この振動造粒機は焼却灰の加水造粒用途のものであり、疎水性の灰と水を低液固比でも効率良く混合できる。この低液固比懸濁水を、攪拌槽と脱水機を循環させた高液固比懸濁水に追加することで処理を進める。

脱水機後、r-Cs 抽出水の大半は攪拌槽に戻り、振動造粒機から循環系注入された水量のみ吸着カラムに送水される。攪拌や脱水はある程度液固比が高い方が望ましく、この循環系構築により、それが実現できる。さらに抽出水の再

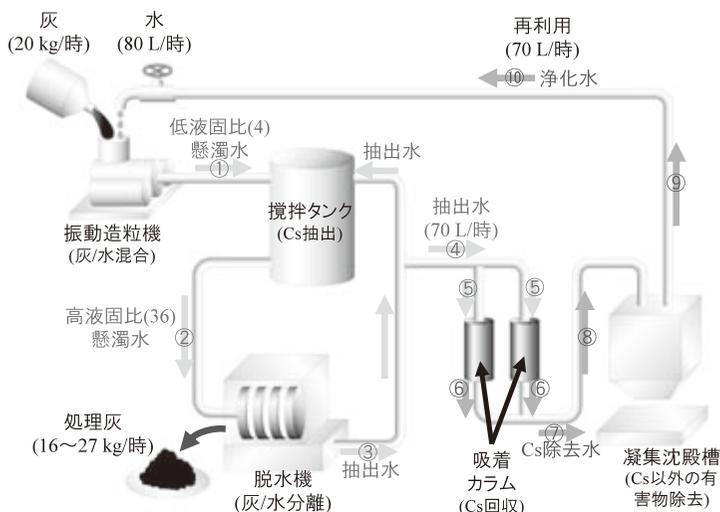


図 4 除灰除染装置の工程図。数値は 1 時間当たり 20 kg の灰を処理する場合の量<sup>5)</sup>

利用により、更なる排水量低減もできる。

### 3 試験結果と考察

#### 3.1 灰からの r-Cs 抽出率の焼却条件依存性

CaCl<sub>2</sub> 無添加での燃焼の場合、燃焼対象に含まれる r-Cs は主灰及び飛灰へそれぞれ 40%、60% 移行した。また、水への r-Cs 抽出率は主灰、飛灰それぞれ 1~38%、56~72% であった。同じ灰種であってもばらつきがみられる理由は明確ではないが、燃焼対象物に含まれる Al、Si の含有量が高ければ、r-Cs が不溶性となると考えられる<sup>2)</sup>。

一方、燃焼対象に、0.5~1.0 重量%の CaCl<sub>2</sub> を添加した場合の灰からの r-Cs 抽出試験を行ったところ、約 90% の r-Cs が飛灰に移行し、主灰への移行は 10% と、大きく低減した。灰からの r-Cs 抽出量も大きく増加した (表 1)。この場合、飛灰で約 80~90%、主灰では 60~70% の r-Cs を灰から抽出された。すなわち、CaCl<sub>2</sub> 添加により、飛灰のみならず、主灰についても r-Cs を効率的に除去することができた。処理前の焼却灰濃度は、主灰、飛灰のそれぞれが 8,000、10 万 Bq/kg の基準値を超えていた

表1 CaCl<sub>2</sub>を添加した汚染物燃焼と灰からのr-Cs抽出試験の結果

焼却物	灰種	灰重量 (kg)	Cs濃度 (Bq/kg)	抽出処理後Cs濃度 (Bq/kg)	Cs除去率
広葉樹幹/枝	主灰	5.7	20,800	5,900	62%
	飛灰	1.3	106,500	20,100	79%
針葉樹幹/枝	主灰	1.8	17,700	4,100	69%
	飛灰	2.4	225,800	31,700	89%

が、抽出処理により、それぞれ基準値を下回った。さらに、処理後の飛灰、主灰の溶出試験を行ったところ、水中r-Cs濃度はそれぞれ130 Bq/L、36 Bq/Lとなり、いずれも“溶出が少ない”レベルにすることができた。

### 3.2 抽出水からの吸着剤によるr-Cs回収

抽出水を図2のカラムに通水したところ、約1,000 Bq/Lの抽出水を10 Bq/L以下にすることができた。吸着容量を評価するため、安定セシウム(s-Cs)を抽出水に添加した加速試験を行った。例として、260 gの不織布状吸着剤を充填したカラムに、r-Cs濃度が1,180 Bq/L、s-Cs濃度が34 µg/Lの抽出水にs-Cs濃度が177倍になるようs-Csを添加した上で、通水した結果を図5に示す。通水初期は処理水のr-Cs濃度は検出限界以下であり、通水量約90 Lで破過が観測された。

また、r-Csとs-Csの吸着挙動はほぼ一致した。除染用途の多くの場合、s-Cs濃度はr-Cs濃度の1万~100万倍程度であるため、破過挙動はs-Csの吸着挙動で決定されると結論付けた。また、通水と同時に測定したカラム表面での空間線量率を図5に示す。通水入口では通水開始直後に線量率が上がる一方、出口側では破過が近付くまで上昇が見られない。このことから、本手法においてはカラム出口付近の空間線量率を評価することでカラム交換時期を判断できる。

この加速試験から、実際の抽出液を利用した場合のカラムの性能を推定した結果を表2に示

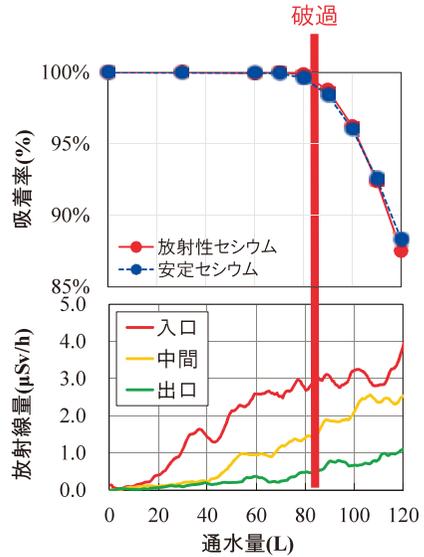


図5 s-Csを添加した抽出水を不織布状吸着剤充填カラムに通水した際のr-Cs吸着率と、カラム表面での空間線量率

表2 粒状吸着剤と不織布状吸着剤の、s-Csを添加した吸着加速試験から見積もった吸着性能

	粒状	不織布状
空間速度 (/h)	11.5	28.0
破過時の吸着材中r-Cs濃度 (Bq/kg)	$1.7 \times 10^8$	$5.7 \times 10^7$
灰1t処理当たりの吸着剤量	0.7 kg	2.0 kg

す。流量は、r-Csを一定時間十分に吸着するように決定したが、特に粒状吸着剤は流量を下げることで容量増大可能である。通水時に水が吸着剤に接触する時間は不織布状の方が短く設定した。これは、不織布状吸着剤の方が、高速に水を処理できるためである。

一方、粒状吸着剤の方がより高濃度にr-Csを吸着するため、放射性廃棄物となる使用後吸着剤量を低減できる。加速試験で用いた抽出水(r-Cs濃度876 Bq/L、s-Cs濃度25 µg/L)の場合、1億7,000万Bq/kgの吸着が可能であると結論付けた。これは、本実験に用いた灰(r-Cs濃度15.4万Bq/kg、76%のr-Csが水に抽出)の

処理に、灰の約 1,400 分の 1 の量の吸着剤で足りることを示している。不織布状吸着剤の場合でも、灰の 500 分の 1 の重量の吸着剤で足りる。

このように、いずれの吸着剤を用いても、十分に汚染物の減量は可能である。また、不織布状、粒状の吸着剤の、高速処理、使用吸着剤の更なる減量化という特徴を生かし、目的に合わせた使い分けが望ましい。

### 3.3 想定される物質収支

本試験で得られた知見から推定される汚染物の物質収支の一例を図 6 示す。この場合、1 t の汚染物焼却により 8,000 Bq/kg 超、10 万 Bq/kg 超の灰がそれぞれ 5.6 kg、7.3 kg 生じる。これを灰除染により、8,000 Bq/kg 未満の処理主灰 7.5 kg、8,000 Bq/kg～10 万 Bq/kg の処理飛灰 5.7kg 及び 10 万 Bq/kg 超の吸着剤 4.3 g に減量することができる。

つまり、灰の除染に約 3,000 分の 1 の吸着剤を用いることで、特に 10 万 Bq/kg 超の廃棄物を 1,700 分の 1 に減らすことができる。吸着剤は r-Cs を高濃度に含むが、灰に比べ十分少量のため、遮蔽材を勘案しても十分に減量できる。

## 4 まとめ

筆者らの開発した PB-NP 吸着材を利用した灰除染技術により、灰の r-Cs 濃度と溶出性を低減し、貯蔵のレベルを下げる事が可能であることをプラントレベルで示した。これらの手

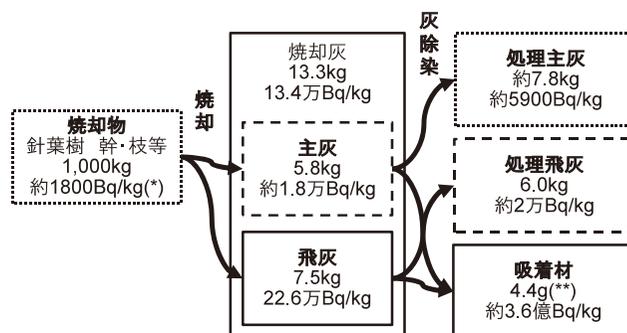


図 6 本試験で得られた知見から推定される汚染物の処理フローの一例

(\*) 吸着剤使用量は焼却物中 Cs 濃度に依存し、数倍～10 倍程度の変動が生じる

法が中間貯蔵施設の負担軽減等につながり、除染を加速することを願ってやまない。

### 参考文献

- 1) 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 (環境省), (2013)
- 2) 放射性物質の挙動からみた適正な廃棄物処理処分 (国立環境研究所), (2012)
- 3) Parajuli, D., et al., *Env. Sci. Tech.*, **47**, 3800 (2013)
- 4) 川本徹, 他, 産業技術総合研究所プレス発表 (2012 年 11 月 12 日)
- 5) 川本徹, 他, 産業技術総合研究所プレス発表 (2013 年 11 月 20 日)
- 6) 川本徹, 他, 産業技術総合研究所プレス発表 (2012 年 2 月 8 日)
- 7) 釜田陽介, 他, 第 2 回環境放射能除染学会, 要旨集 (2013)