

事故由来放射性物質汚染廃棄物の熱処理に関する これまでの研究成果

倉持 秀敏*

独立行政法人国立環境研究所 資源循環・廃棄物研究センター (〒305-8506 茨城県つくば市小野川16-2)

Thermal Treatment of Waste Contaminated with Radioactive Chemicals due to the Accident at Fukushima Nuclear Power Stations: A Review of Recent Research Findings and Introduction of Some Key Literatures

Hidetoshi KURAMOCHI*

National Institute for Environmental Studies (16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506 Japan)

Summary

Many researches and challenges on thermal treatments such as incineration and melting for waste contaminated with radioactive fallout due to the explosions of Fukushima nuclear power stations have been reported. This paper reviews them not only in terms of Cs behavior and possibility to control the behavior but also in terms of appropriate maintenance of the thermal treatment plants. Various contaminated wastes from municipal solid wastes to biomass wastes discharged during decontamination works, but not from the on-site stations, are dealt with as the target wastes. Furthermore, the paper introduces some useful previous literatures associated with the recent findings and also suggests research subjects to be clarified in the future.

Key Words: Radioactive cesium, Incineration, Melting, Behavior, Refractory

1. はじめに

東日本大震災では、不幸にも原子力発電施設の爆発事故により大量の放射性物質が放出され、放射性物質の汚染が東日本の広範囲に至ってしまった。その結果、当然のことながら我々が毎日排出する都市ごみも汚染されおり、通常の間処理として行われていた都市ごみの焼却処理もしくは熔融処理において、処理残渣の問題、つまり焼却灰や熔融飛灰に放射性物質が高濃度に濃縮されることが明らかとなった。環境省の調査^{1,2)}により、除じん装置を経た排ガスは、放射性セシウム(Cs)が検出されないケースがほとんどであった。また、検出されても大気濃度限度(^{134}Cs 濃度(Bq/m³)/20(Bq/m³) + ^{137}Cs 濃度(Bq/m³)/30(Bq/m³) ≤ 1³⁾)よりも一桁以上低い値であることも確認されており、環境への出口における安全性は確保されていると考えられる。しかしながら、焼却における放射性物質の挙動に関する科学的知見はまだ十分とはいえず、汚染された災害廃棄物、稲わらや牧草等の農業副産物、除染で生じた除染廃棄物等の焼却処理を行った場合の放射性物質の挙動を完全に予測できるまでには至っていない。現在、除染廃棄物等の焼却もしくは熔融処理が本格的に検討・開

始されつつあり、目的通りの処理計画を実行するには、これまでの知見を生かしながら、適正に処理を進めていく必要がある。

このような背景から、事故以降の国内学会発表を中心に、これまでの焼却や熔融等の焼却処理に係る研究課題とその成果を調査し、汚染廃棄物の熱処理に関する知見を収集・整理する。また、今後の処理に必要な知見や課題について考察を行いつつ、加えて、関連した国内外の研究で示唆に富む過去の文献も併せて紹介する。筆者は以前、これまでの知見を震災から2013年7月でまとめているが⁴⁾、いくつかの知見はもう最新ではないため、昨年8月から2014年の春までの研究発表を追加して、これまでの知見を再整理した。

なお、放射性元素はCs以外にストロンチウム(Sr)等の様々な核種が存在するが、環境への放出量としてはCsが桁違いに多いことから⁵⁾、本文では放射性元素としてはCsのみを取り上げた。ただし、事故周辺の汚染廃棄物等の熱処理において、他の核種への対策が必要となれば、Cs以外の核種に関する科学的知見も蓄積すべきである。

*Corresponding author: E-mail: kuramochi.hidetoshi@nies.go.jp

2. 汚染廃棄物に係る研究課題

汚染された都市ごみの焼却等の熱処理により、放射性 Cs が処理残渣（飛灰や主灰等）に濃縮されることはわかっているが、施設内の放射性 Cs の挙動を完全に理解できているわけではない。そこで、まず熱処理に係る研究課題を整理した。最初に重要な知見として、施設内において放射性 Cs のフローを整備し、実態を把握することである。ただし、整備については以下のことに留意すべきである。熱分解ガス化処理ではあるが、以前の我々の研究⁶⁾では、処理対象物の組成がアルカリ金属の挙動に大きな影響を与えることを示した。Cs もアルカリ金属の一つであり、処理対象物の種類とその組成を踏まえて焼却処理施設等におけるフローを明らかにすべきである。さらに、熱処理の範囲を焼却からガス化溶融まで広げると、酸化還元雰囲気や処理温度等が大きく異なり、方式ごとにデータを蓄積するとともに、熱処理プロセスの挙動に関する体系化が求められる。自治体によっては、除染廃棄物や汚染農産副産物の焼却処理について、放射性 Cs を主灰に濃縮したい、もしくは飛灰に濃縮したい、さらには、溶出性が極めて低い化学形態で灰に濃縮させたいなどの各々の事情に応じたニーズが存在するように思われる。各ニーズに応えるためには、多様な組成に対する挙動が理解され、シミュレーションできるようなツールが確立されることが期待される。

排ガスの安全性は確保されているが、放射性 Cs が大気へ放出される懸念が依然として払拭されていない。特に、放射性 Cs がガス状で存在する場合には、ガス状物質がバグフィルターを通過して、直接大気へ放出されると考えられるためである。そこで、ガス状の放射性 Cs がどれくらい存在し得るのか、もしくはその最大存在濃度を明らかにすべきである。加えて、バグフィルターの除去率は厳密には 100 % ではないため（99.9 % 以上）、ばいじんの粒子径分布と放射性 Cs 濃度についても関心が高く、これらの知見についても今後充実すべきである。

放射性 Cs が焼却灰に濃縮されることは爆発事故から 3 か月後には顕著に知られるようになったが、焼却炉内、つまり炉内の耐火物へ放射性 Cs が蓄積することは事故後一年近く経ってから明らかになってきたことである。耐火物への蓄積状況の把握とその蓄積メカニズムの解明は、既設の焼却や溶融施設の維持管理および仮設焼却施設の解体における作業員の被爆防止や耐火物の適正処理に関するマニュアル作りにおいて、緊急かつ重要な課題である。以上の指摘した研究課題について、次節から知見をまとめていく。

3. 各課題に関する知見と今後の展開

(1) 熱処理における放射性 Cs の挙動

a) 施設調査による知見

都市ごみや下水汚泥の焼却・溶融における焼却灰や煙突排ガス中の放射性 Cs 濃度は、各自治体の Web ページに公表

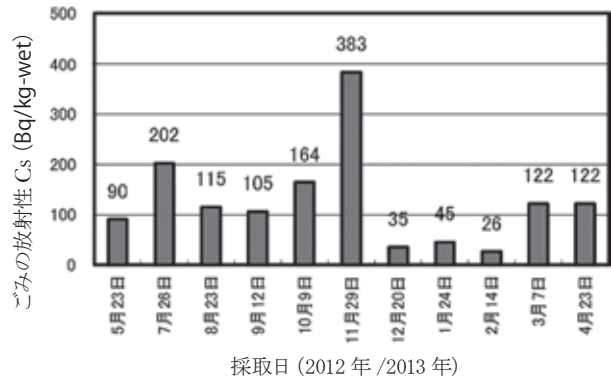


図1 都市ごみ中の放射性セシウム(Cs) 濃度の季節変動²⁾

されており、灰等の放射性 Cs の濃度レベルとその経時的変動を簡単に調べることができる。小口らの発表⁷⁾や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）⁸⁾のように、飛灰中の放射性 Cs 濃度やごみ中の放射性 Cs 濃度（推定値）は季節によって変動し、初夏や秋に高いことが示されている。いくつかの研究発表⁹⁻¹⁵⁾でも実施施設において主灰や飛灰に加えて溶融スラグにもそのような傾向が見てとれる。その原因として、原田らの報告²⁾にあるように、ごみの放射性 Cs 濃度が春から初夏に高く、冬に低いとめと考えられる（図1 参照）。冬場は草木類とそれに付着した土壌等の混入が少ないことがその原因と予想される。

また、飛灰発生量等のマクロデータの解析から、処理方式により放射性 Cs の各種灰への濃縮率や移行率が異なり、高温の溶融処理では溶融飛灰への濃縮率が高く、逆に、主灰が発生しない流動床式焼却処理では主灰の灰分によって希釈されるため飛灰への濃縮率が低いこと等が報告されている⁸⁾。実際の施設内の調査となると、川本らや山本らが灰溶融炉付ストーカ式焼却施設やガス化溶融施設に対して放射性 Cs のフローおよび影響因子に関する研究を発表している¹⁶⁻¹⁹⁾。これらの結果に加えて、筆者の調査結果や原田らの結果²⁾を含めて各灰等の濃度と発生量から推定される放射性 Cs の移行率を表1に示す。まず、ストーカ式については、投入ごみの放射性 Cs 濃度が高いほど、主灰と飛灰の濃度は高くなる傾向であったが、一部逆になるケースもあった。投入ごみの濃度はごみピットからごく一部を取り出したものであるため、全体を表していないと予想される。また、発表要旨の図からも投入ごみと残渣の放射性 Cs の収支が合っていない^{16,17)}。ただし、バグフィルター入口と出口ではかなり収支が合っており、一定期間、かつ、均一な状態でサンプルを採取できればある程度収支は取れるものと予想される。したがって、投入ごみの濃度は、サンプリングが複数回可能で、均一な状態で入手できる排出物、すなわち、灰から推定する方が適切ではないかと考えられる。ストーカ式の各種灰への移行率については、3施設ではあるが、主灰へは 24 %、35 %、40 %、飛灰へは 76 %、

表1 施設調査における各種灰等の放射性 Cs の濃度と移行率

灰溶融の原料	ストーカ+灰溶融				ストーカ式	流動床式	ガス化溶融 (都市ごみ)
	A 施設 主灰	B 施設 主灰+飛灰	C 施設 主灰 主灰+飛灰				
放射性 Cs の濃度 (Bq/kg)							
データ数	4	1	3	2	1	12	5
投入ごみ	146-297	100 ^a , 3000 ^b	468-2500	603-1320	395	26-383 [§]	65-1270
主灰	1000-1850	3890	2620-5530 ⁺	—	5130	544 ^{¶,*}	—
飛灰	4760-7930 ^c	21800	28600-62500	39200-69400	15630	1950 [*]	—
被溶融物	1160-1390	—	2620-5530	—	—	—	—
スラグ	356-478	800	675-1940	967-1490	—	—	81-1290
溶融飛灰	1840-8070	100500	9790-35900	43200-91800	—	—	1960-11500
放射性 Cs の移行率 (%)							
データ数	1	1	3	2	1	12	5
主灰	40.5	24.5	—	—	35.0	13 ^{¶,*}	—
飛灰	59.5	75.5	—	—	65.0	87 [*]	—
スラグ	34.5	5.9	8.3-48.0	5.5, 10.1	—	—	6.1-18.6
溶融飛灰	65.5	94.1	52.0-91.7	89.9, 94.5	—	—	81.4-93.9
参考文献の番号	17	16	18, 19	18, 19	筆者らの調査	2	18, 19
備考	排ガスにゼオライトを吹き込んだケースもあり		除染廃棄物も一部混入	除染廃棄物も一部混入	剪定枝や雑草類も含む	汚染牧草を混焼 (平均 8% 混入)	木質チップが混入したケースもあり

a: 一般ごみ、b: 草木類、c: 1号機と2号機の平均値、+: 主灰細粒灰、炉下の残渣から溶解不適物やアルミ等を取り除いた溶解原料(被溶解物)、—: データの入手不可もしくは計算不可、*: 平均値、§: 汚染牧草は含まず、¶: 不燃物

65%、60%であった。一方、流動床式の場合には、主灰の代わりに不燃物が排出されるが、移行率は、平均で飛灰に87%、不燃物に13%であり、ストーカ式よりも飛灰への移行率が高い結果となった。これらの移行率の値は、筆者の所属機関が報告している計算値⁸⁾とほぼ同等であり、計算法の妥当性が一部裏付けられたと考えられる。川本らの発表¹⁷⁻¹⁹⁾では、塩素(Cl)量や塩基度(CaO/SiO₂)が灰への分配挙動に対する影響因子として整理され、Cl量が高いと飛灰中の放射性Cs濃度が高く、塩基度が低いほど主灰中の濃度が高く、かつ飛灰中の濃度が低くなることが示唆されている(例えば、図2参照)。これらの組成の影響に加えて、運転温度や吹き込み空気量等の操作条件も影響すると予想され、今後明らかにすべき点であろう。

溶解については、灰溶解の場合では、主灰単独よりも飛灰との混合灰を原料とした方が溶解飛灰の放射性Cs濃度が高くなり、その移行率も90%を超えるほど高い値であった。飛灰のCl量は主灰よりも一桁高いことから、溶解でもClの揮発促進効果があると考えられ、Cl含有量と溶解飛灰の放射性Cs濃度に正の相関があることが指摘されている¹⁸⁾(図3参照)。ガス化溶解の場合には、溶解飛灰の濃度は相対的に低くなるものの、溶解飛灰への移行率については、主灰と飛灰の混合灰を溶解した場合に匹敵する高い移行率であった。阿部らの回転表面溶解炉に関する移行率²⁰⁾も引用すると、どの方式でも

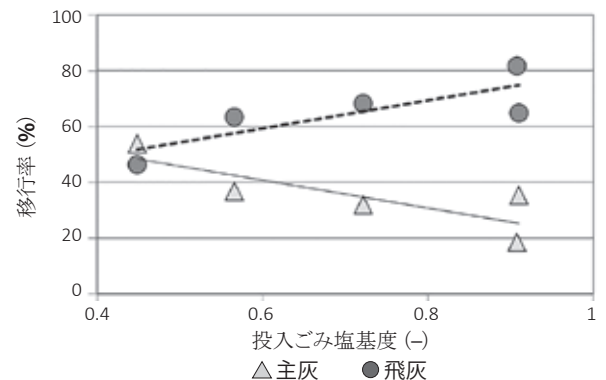


図2 A焼却施設における投入ごみの塩基度(CaO/SiO₂)と各種灰への移行率¹⁹⁾

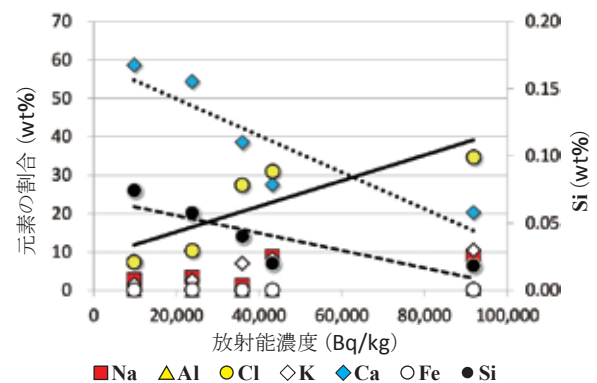


図3 灰溶解施設における溶解飛灰の放射能濃度と各元素の関係(被溶解物として主灰と飛灰を混合したケースも含む)¹⁸⁾

溶融飛灰への移行率はほぼ同等である可能性が高い。ただし、濃縮の度合には違いが生じており、溶融についても焼却と同様に、方式の違いを踏まえて、組成変化や操作条件の影響を明らかにしていくべきであろう。

これらの発表には、いくつか他の有用な知見もあり、簡潔に紹介する。川本らの発表¹⁷⁾では、排ガス処理剤としてゼオライトを添加しており、灰からの放射性Csの溶出率が30%低下するという効果が得られている。なお、この効果を得るには適切な量が存在することも指摘されている。また、灰の処分を海面埋立地で行う横浜市・川崎市では、溶出対策としてこのような取り組みがすでに実施されており¹¹⁻¹⁵⁾、飛灰重量に対してゼオライトを10%程度添加すれば、飛灰の溶出試験における溶出率を10%台へ大きく低減でき(他の施設ではあるが何も添加しない場合の飛灰の溶出率は表2を参照)、溶出液中の放射性Cs濃度が検出限界以下(10 Bq/L)になっていることが確認されている。

原田らの汚染牧草と都市ごみを混焼した事例報告²⁾は、流動床式であれば、投入する前に汚染牧草の放射性Cs濃度を把握し、飛灰濃度を予測しながら混焼すれば、除じん性能に影響なく安全かつ安定に長期間運転できることを示している。平均8%の混焼率であるが、汚染度の把握法等の運転管理のノウハウや都市ごみの汚染度の季節変動等の情報は既設を用いた処理法として有用な知見と考えられる。

山本らや川本らの発表^{16, 18, 19)}では、灰の粒子径と放射性Cs濃度や処理プロセスごとの粒子径分布に関するデータが報告されており、これらのデータについては、関係の深い3.(2)節で議論することとする。

b) 実験研究による知見

模擬汚染試料を含めた汚染廃棄物(都市ごみ、バイオマス、土壌等)に対して、焼却や溶融処理における放射性Csの挙動をラボ実験等により検討した例がいくつかあり、それらの知見と関連する海外の文献を紹介する。

焼却については、最初の報告として、藤森らが津波で発生した廃木材とそれに海塩を5%(Cl分として3%)添加したものを焼却処理し、放射性Csの主灰-飛灰間の分配と溶出率を発表している²¹⁾。まず、Csの灰への移行率について紹介し、関連研究と比較しながら移行率の違いを議論する。実験炉はストーカ炉ではなくキルン炉であるが、廃木材のみのケースでは、主灰への移行率が90%を超える値であり、都市ごみの施設調査における移行率に比べてかなり高い値であった。しかし、Cl分を添加したケースでは、主灰への移行率は依然高いものの、飛灰への移行率が3倍以上増加した。ここでもClによるCs塩の揮発促進効果が確認されている。また、井口らと河野らの模擬汚染廃棄物のラボ燃焼試験^{22, 23)}を図4に示す。模擬廃棄物とは、RDF(ごみ固形燃料)(二種類)、木屑、RPF(古紙と廃プラスチック類を原料とした高カロリー固形燃料)、下水汚泥に安定Csの炭酸塩(Cs_2CO_3)を添加したもの

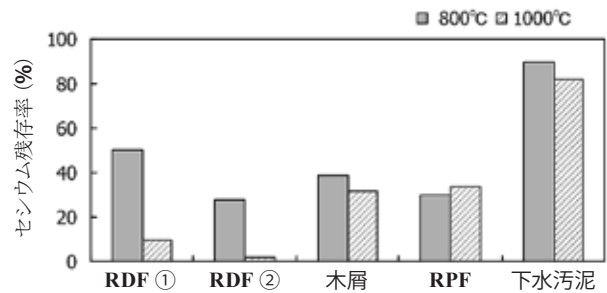


図4 模擬汚染廃棄物のラボ燃焼実験における安定セシウムの灰への残存率と温度の影響²³⁾

である。模擬汚染物であることから、実際のCsの含有量より桁違いに多いことを考慮する必要はあるが、特徴を以下に記す。800℃の結果では、下水汚泥の安定Csの主灰への残存率が特に高く、約90%であった。この灰にはアルミノシリケート(CsAlSiO_4)が確認されており、一般的なセシウム塩(CsCl など)に比べて極めて揮発性が低いと予想され、このような結果に至ったと推察される。一方、他の廃棄物の残存率は30%~50%であった。燃焼温度を1000℃に上げた場合には、RDFの残存率は二種類とも特に低い値(10%以下)を示したが、それ以外の残存率はそれほど変動せずに、投入ごみの組成によって残存率が異なることが示唆されている。

都市ごみ以外では、多田らが模擬汚染バイオマス(稲わらに安定Csの塩化物(CsCl)を添加)の燃焼におけるCsの挙動を報告しており²⁴⁻²⁶⁾、特に温度依存性は興味深い。800~1000℃の燃焼時の残存率は、井口や河野らの研究^{22, 23)}の木屑の結果と同様に温度に対する変化は鈍く、総じて30%弱程度であった。しかし、低温の600℃となると残存率は60%以上へと上昇した。低温燃焼における挙動については、Horriららがギョリュウモドキ(野草の一種)を対象として報告しており²⁷⁾、平均燃焼温度が550℃と660℃の場合では、灰(主灰相当)への残存率がそれぞれ約90%と約60%であった。500~600℃という低温燃焼では、主灰への残存率が高いことが予想される。しかしながら、筆者らが進めている汚染バイオマスのラボ燃焼試験では、一部違った結果もあった。筆者らの実験²⁸⁾では、汚染バイオマスを雑草類、針葉樹落葉、広葉樹落葉、小枝のように分類し、それぞれについてマッフル炉にて燃焼させ、放射性Csの挙動を解析した。温度が高くなるほど主灰に相当する残灰への放射性Csの残存率は低下するが、その低下度合いは種類ごとによって大きく異なる結果となった。図5(a)のように、温度を650~850℃に上げると、雑草類や針葉樹落葉を燃焼させた場合の灰への残存率はあまり変化しないが、広葉樹落葉や小枝の場合の残存率は、低温時の半分以上になるほど急激に減少した。このような分類分けで、組成と挙動の関係について普遍的な整理が見出せるかどうかを検討しつつ、今後この種のデータを蓄積していく予

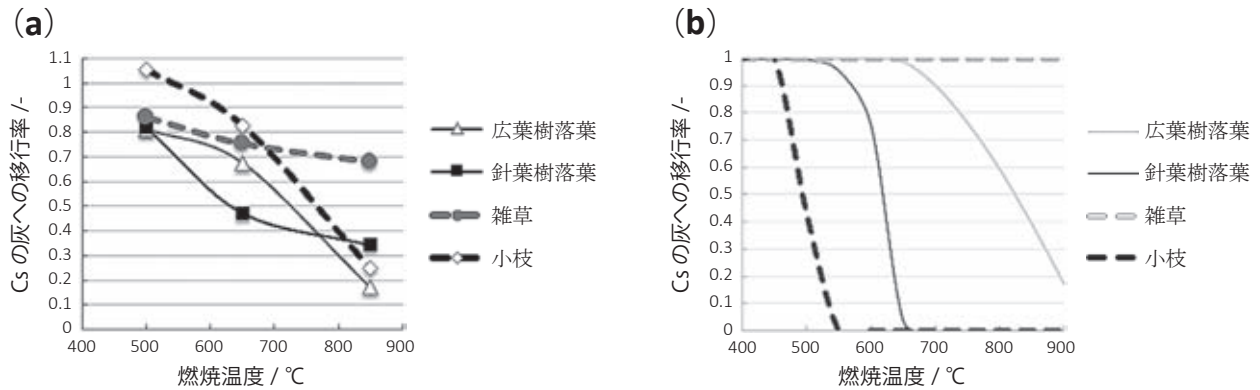


図5 汚染バイオマスを燃焼させた場合の灰への放射性セシウム(Cs)の残存率と平衡計算による残存率の推定
(a) 実測値²⁸⁾、(b) 平衡計算結果(筆者による計算)

定である。

以上をまとめると、燃やすものの組成や燃焼温度が挙動に大きな影響を与えることが示唆されており、もしCsの挙動制御を検討するならば、燃やすものの組成とその変動に加えて、燃焼方式(炉型式)と運転条件の影響も丁寧に検討すべきであろう。特に、木質系の結果ではCsの移行率が大きく異なったことから、樹皮の有無、形状の影響、燃焼条件等を正確に整理し、挙動への影響を明らかにするような研究成果の報告に期待したい。

組成が放射性Csの挙動に影響を与えることから、第三成分を添加して挙動を制御する試みもある。多田らの実験²⁴⁻²⁶⁾では、Csの揮発抑制剤として、ベントナイト(主成分は層状ケイ酸塩)を稲わらに約8%添加した実験を行っている。添加により、Csの主灰への残存率が10~15%増加し、揮発抑制効果が確認されている。また、標準生成自由エネルギーの解析から、Csがシリケートによって揮発性の低い化合物として固定化されたためと考察されている。過度な飛灰への濃縮の回避と溶出防止を目指すにはこの種の方法は有用であろう。一方で、反対に飛灰へ積極的に移行させる研究が溶融技術など焼却よりも高温の熱処理で研究が行われており、後節でそれらの技術について紹介する。

また、都市ごみやバイオマスの燃焼ではないが、第三物質の効果に関する論文を二つ紹介する。一つは、様々な酸化物の焼成物からCsClを加熱除去する実験研究で、シリケートの含有量を高くするために $\text{Na}_2\text{SiO}_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ を添加すると、Csの揮発量が1/3に低下することが報告されている²⁹⁾。また一方、酢酸Cs溶液(放射性廃棄物のモデル)の燃焼において、燃焼直後にカオリナイト($\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$)を添加すると、カオリナイトが揮発したCsを捕獲できることが報告されている³⁰⁾。これらの二つ論文では他に興味深い点があり、前者では、加熱温度が高く溶融状態になるとCsの揮発速度が急激に低下することが報告されており、揮発を効率的に行うには溶融させずに、

可能な限り高温加熱することが望ましいと指摘されている。後者は、Csの捕捉を塩素ガスや二酸化硫黄が阻害するという点である。つまり、塩素ガス存在下では、気相側のCs濃度が高くなることから、前説までの議論にあるClの揮発促進効果と整合した結果である。

紹介してきた研究には、焼却後の灰に対して溶出率を測定しているものもあり、他の文献値も含めて溶出率を表2にまとめた。実施設の主灰および下水汚泥焼却灰の溶出率は低く、実施設の飛灰は、概して溶出率が高い結果となった。水に溶解性のあるCs塩は揮発性も高いことから、飛灰中のCsの主な由来は排ガス側へ揮発したCs塩が排ガスの冷却過程で飛灰に凝縮したものと推察される。しかし、都市ごみの主灰や下水汚泥の飛灰の溶出率は低く、それらの灰ではCsの難溶性塩が生成されていることが予想される。井口と河野が指摘した下水汚泥焼却灰中のCs塩、つまり、アルミノシリケート(CsAlSiO_4)²²⁾は難溶性塩であることから、彼らの結果はこの低溶出性を裏付けるものであり、 CsAlSiO_4 がCs塩の一つの形態と考えられる。一方、ベンチ試験やラボ試験については、藤森らの研究²¹⁾では、廃木材の主灰の溶出率は高いことが報告されている(44%)。また、筆者らの汚染バイオマスの燃焼試験においても灰の溶出率が35%程度まで高くなるケースがあること、長時間の溶出時間ではあるがHorrellらの野草の低温燃焼で得られた灰の溶出性も約20%と比較的高い値が報告されている点²⁷⁾を踏まえると、汚染バイオマスの焼却については注意が必要かもしれない。ただし、筆者らが木質系を実施設で焼却した主灰の溶出試験を行った結果、主灰からの溶出率は1.3%という低い値であった。溶出性は灰の処理・処分の見通しに重要な点であることから、ラボ実験と実施設での違いを明らかにし、注意すべき点を明確にする必要がある。一つの可能性として、バイオマスの灰分と灰の発生量から予測するとラボ実験と実施設では土壌等の無機系の付着量が異なり、その影響かもしれない。さらに、実施設ではある特定のもの

表2 焼却対象物と焼却灰からの放射性 Cs の溶出率

	都市ごみ (ストーカ式)		廃木材 (キルン式)		野 草		広葉樹 落葉	針葉樹 落葉	小枝	木質系 (ストーカ式)	下水汚泥 (流動床式)		土壌
文献番号	16	31	21	8	27	28	28	28	28	筆者らの 測定データ (未発表)	8	32	8
投入物		7.1 ⁺	23	<2.2		6.1 19 ⁺	14.5 11 ⁺	16.2 2.7 ⁺	47 <1.1 ⁺				<1.0 <1.2
飛 灰	99.6 68.6 42.8 96.0* 86.7	89.1* 85.2 64.1 79.5 83.8	88								0.9 <2.0	2.7 0.5 0.6 <0.7 ~ <4.4	
主 灰		<8.2 5.6 2.5 ⁺ <5 ⁺	44		24 [§] 17 [¶]	<6.0	18 ~ <28	<15 ~ 24	18 ~ 36	1.3			
処理 スケール	実施設	実施設	ベンチ		ラボ	ラボ	ラボ	ラボ	ラボ	実施設	実施設	実施設	

*: 流動床炉、+: 筆者らの測定データ (未公開)、§: 平均燃焼温度 550℃で人工雨水による溶出 (溶出時間 = 8 × 2 時間 + 4 × 2 日)、¶: 平均燃焼温度 660℃で人工雨水による溶出 (溶出時間 = 8 × 2 時間 + 4 × 2 日)

のだけを専焼するわけではないことから、混合物としての影響も今後注意して解析し、適正な処理法を検討すべきであろう。

また、廃棄物そのものの溶出性についても、多少データがあることから表2に例示した。表中のデータでは、一部に高い例があるものの、概ね溶出性は低いと考えられる。溶出性が低いことを踏まえると、汚染形態として溶出性の高い一般的な Cs 塩が汚染廃棄物の表面に存在するとは考え難い。処理前の化学形態と燃焼挙動の関係も今後興味深い課題である。特に、模擬試料を使う実験では、添加している安定 Cs 塩の化学形態やその添加量も様々であり、模擬試料の溶出性が上記の放射性 Cs の溶出試験と整合しているのか、また、Cs 塩の形態や添加量が Cs の挙動に与える影響等については知見が少ない。したがって、科学的な裏付けを基に、統一的な模擬試料の考え方も構築すべきであろう。

最後に、焼却以外の熱処理として、より高温処理となる熔融や昇華、さらに還元雰囲気での熱処理である熱分解ガス化に関する研究成果についても紹介する。まず、熔融については、いくつかの機関で検討されている^{10, 33-43)}。ほぼ共通した検討は、塩化物を添加して揮発による高い Cs 除去率を目指している点である。なかでも阿部らのグループは、ラボスケールから大型テストプラントの実験装置を用いて高い Cs 除去率を報告している³⁵⁻⁴⁰⁾。彼らは、都市ごみ焼却灰、汚染土壌 (草木類も含む)、下水汚泥を対象とし、Cs 揮発促進剤として塩化カルシウム (CaCl₂) のような塩化物の添加を検討しつつ、炭素分の添加による揮発促進効果 (炭素燃焼による酸素分圧の低下) や塩基度 (ただし、光学的塩基度) が除去率の整理に有効で

あることを示している。また、CaCl₂ に代わる Cl ソースとして廃塩化ビニルも検討している。大型テストプラントにおいても上記の効果を組み合わせることで Cs 除去率は 99.4% を示し、高い除去性能を報告している⁴⁰⁾。揮発促進剤の添加量が 20 ~ 40% を占めることから、添加量の削減と熔融温度の低温化が課題ではないかと考えられる。Sill の論文²⁹⁾では高粘性が揮発速度の低下の要因と指摘されていることから、同時に低粘度化も検討できれば、更なる低温化と高除去率が期待される。

熔融技術の開発では、Cs を揮発させて除去するのとは反対に、固定化することも検討されている^{33, 41-43)}。山口らの研究では、対象物を変えながら組成の影響等の検討がなされている。対象が変わっても、塩基度の低いケースや硫酸塩を添加したケースでは Cs はスラグへ固定され易く、Cl の存在により固定が難しくなる点が報告されている。また、Cl の含有量が多いにもかかわらず MgO や Fe₂O₃ の存在により Cs の溶出を抑制できる点や X 線吸収微細構造 (XAFS) を用いた分析よりスラグ中の Cs の近傍には酸素が存在することが示唆されている点は興味深い。特に、後者の知見は挙動を理解する上で重要であり、今後このような解析により構造が明らかにされていくことが期待される。

他の高温処理として昇華法が報告されている^{44, 45)}。この技術は、1300℃という焼却よりも高温条件下で完全に熔融させずに、揮発促進剤を添加して Cs を揮発除去する技術である。原理としては、これまで高温処理で重要な制御因子とされていた塩基度を上げ、さらに Cl の揮発促進効果を利用するものと

推察される。この技術を適用すると、下水汚泥や土壌に対して 99.9 % 以上という極めて高い除去率が達成されており、数万 Bq/kg の汚染物がクリアランスレベル (100 Bq/kg 以下) になることが確認されている。また、除染された土壌および下水汚泥は盛土・路盤材・コンクリート骨材としての各種基準にすべて合致し、土工資材として使用できることも確認されている⁴⁶⁾。

還元的な熱処理である熱分解ガス化処理の例では、Cs の多くは固体残渣、すなわち炭化物 (チャー) に残存する傾向にあった。既報の成果から引用すると、曾根らの研究⁴⁷⁾では 450 ~ 600 °C で 90 % 以上、中島らの研究⁴⁸⁾では 89 ~ 95 %、水原らの研究⁴⁹⁾では 650 ~ 1050 °C で 72 ~ 98 % であった。一部例外もあるが温度が高いほど残存率が低下する傾向であった。また、熱源供給としての部分酸化用の酸素が存在すると残存率が高くなる傾向にあった。これらの実験では一般的な Cs 塩 (CsOH, CsCl, Cs₂CO₃) が添加されており、熱天秤による熱重量変化プロファイル⁵⁰⁾と融点から、低温処理では Cs 塩が固体残渣に固定化される点は理解できるが、Cs 塩の揮発性が極めて高い 950 °C 以上の高温域においても Cs の残存率が比較的高いことは興味深い。おそらく、残存する Cs は CsCl や Cs₂CO₃ ではなく低蒸気圧の化学形態、例えば、アルミノシリケート等へ変化しているものと予想される。溶出試験を行うことにより、還元処理における Cs 化合物の化学形態の変化を解明することが将来的には望まれる。焼却処理とは異なり、還元処理残渣は高いエネルギーを有していることから、同じ処理プロセスもしくは別の施設において熱源等として再利用することも可能である。しかしながら、発火・引火すると大きな災害につながる可能性もあり、再利用法に適した安全な保管法の確立が急務の課題と思われる。

c) 計算モデルによる知見

実試料の放射性 Cs 濃度は極めて低いため、放射性 Cs の化学形態を実験的に直接明らかにすることは困難である。そこで、以前から熱力学平衡計算 (以下、平衡計算) が利用され、生成し易い化学種を特定し、対象とした元素の挙動および影響因子 (温度や元素組成) 等が解析されている^{30, 51-55)}。筆者らも Cs の挙動解明のために平衡計算を試みた⁵⁶⁾。計算では、安定 Cs と放射性 Cs の挙動は同じものと仮定している。この根拠は、これまでの灰の溶出試験⁸⁾で安定 Cs と放射性 Cs の挙動が似ているからである。既存の平衡計算ソフトを適用すると、850 °C という平均的な焼却温度において、組成に依存せずに Cs はすべて CsCl ガスになって揮発するという結果しか得られなかった。CsCl は水への溶解度が極めて高いことから、主灰および下水汚泥焼却灰の溶出性が極めて低い現実とは計算結果と大きく矛盾することとなる。Cs の挙動を平衡計算で推定した過去の研究^{30, 51-55)}でも難溶性塩を生成させることは不可能であった。そこで、筆者らは、Cs と同じアルカリ金属である K の挙動を解析した結果、焼却条件下で Cs が固体かつ難溶

性塩を形成できる化学構造として、アルミノシリケートやシリケートが予想された。これらの化合物の熱力学データを加えて再度計算を行った。その結果、平衡計算は都市ごみおよび下水汚泥の焼却における放射性 Cs の主灰 - 飛灰間の分配や溶出挙動を再現することに成功した⁵⁷⁾。なお、アルミノシリケートの構造は多種存在することから、現在、どの形態が生成しやすいのかを検討するとともに、近似で用いている熱力学パラメーターの妥当性も評価している。平衡計算の利点は、組成や処理雰囲気の影響を簡単に評価できる点である。都市ごみや下水汚泥の平衡計算では、上述した Cl もしくは塩基度さらには還元雰囲気による Cs の揮発促進効果も再現できていた。ただし、平衡計算は、筆者らが行った汚染バイオマス燃焼試験における放射性 Cs の残存率をすべて再現できるわけではなく、図 5 (b) のように広葉樹落葉と雑草類の燃焼でのみ有用であったことに注意されたい。ラボ実験と平衡計算の適用例を増やすことで、利点・欠点を整理しつつ、適切な適用法を見極める必要がある。

平衡計算の有用性が示されたことから、平衡計算を基に、都市ごみ焼却施設内の Cs の挙動を表すシミュレーターの開発も行っている。筆者らは、マルチゾーン平衡計算 (焼却施設内を機能ごとにゾーンに分け、反応率や灰の排ガスへの巻き込み率等も考慮しながら各ゾーンにて平衡計算を行う方法)⁵⁸⁾を焼却施設に適用し、施設調査で得た実測データと比較しながら、運転操作上の影響因子の解析や挙動の制御方法について検討を行っている^{59, 60)}。

一方、平衡計算とは別に、杉杖らのグループは、ブラウン凝集・付着モデルをベースに焼却シミュレーターの開発を行っている⁶¹⁻⁶⁴⁾。ダイナミックモデルであり、時間に対して炉内の状況 (濃度や温度分布) を計算することが可能である。計算には、Cs の各種灰への移行率、灰のかさ密度や粒子径分布等の各種パラメーターが必要であり、それらのパラメーターに代表性のある値を設定し、かつ、多様な組成変動をどう反映するのかが課題といえる。

計算モデルを用いた研究では、用いる手法によってそれぞれにメリットとデメリットがあることから、目的に応じた使い分けが必要であると同時に、両者の利点を統合することによってより詳細なシミュレーターへと発展していくことも可能ではないかと思われる。

(2) 燃焼後の排ガス処理

排ガス中のばいじん (飛灰) を除去するバグフィルター処理により排ガスの安全性は確認されているが、不安材料として、ガス状の放射性 Cs 塩が捕捉されずに大気へ放出されるという懸念がある。そこでまず、筆者らが Cs 塩の揮発ポテンシャル等を検討した結果を紹介する。筆者らは、揮発のポテンシャルとして Cs 塩の飽和蒸気圧を推定した。上述の平衡計算では、ガス状物質として排出される Cs 塩は CsCl と予想され、ま

た、既存のデータ⁶⁵⁻⁶⁷⁾を基に一般的なCs塩(Cs_2O 、 CsCl 、 Cs_2CO_3 (Csの分圧を評価))の飽和蒸気圧の大きさを比較した結果、 CsCl が最も飽和蒸気圧が高いことがわかった。したがって、熱力学的な生成のし易さと飽和蒸気圧の大きさの観点から、 CsCl の飽和蒸気圧を評価した。文献データ⁶⁵⁾から150℃の飽和蒸気圧を推定した。その結果、飽和蒸気圧は、 2.75×10^{-12} Paであり、極めて小さい値、つまり極めて低い揮発ポテンシャルであることが推定された。なお、ダイオキシン類と比較すると、飽和蒸気圧が最も低い八塩素化ダイオキシン⁶⁸⁾と比べても9桁低いと考えられる。ただし、この推定値は文献値のデータをかなり低い温度域へ外挿して得られたものなので、より精度を上げるために最近、筆者らは文献値よりも低い温度の飽和蒸気圧を測定した⁶⁹⁾。しかし、低温へ外挿する温度範囲がまだ大きいことから、信頼性のあるデータを取りつつ、より低温を測定するための方法を現在開発している。さらに、 CsCl の極めて低い蒸気圧に加えて、より揮発性を低下させる現象が起きているのではないかと予想している。 KCl のようなアルカリ塩が共存する場合には、 KCl と CsCl は固溶体を形成する⁷⁰⁾。固溶体であれば、飽和蒸気圧は固体のCsの組成に比例して低下すると予想される⁷¹⁾。Csの存在量はKに比べて桁違いに少ないことから⁷²⁾、揮発性も数桁低くなると予想される。この点については、筆者も蒸気圧測定によって今後明らかにする予定である。

一方、実飛灰を加熱することによって、飛灰から放射性Csが揮発するかどうかとも試験している^{8, 69)}。バグフィルター処理中の灰の滞留時間は概ね20分～2時間と予想され⁷³⁾、筆者らは処理の最高温度、つまり、200℃で、滞留時間の約10倍という長時間加熱を行った(図6参照)。このような長時間処理条件下でも飛灰中の放射性Cs量にほとんど変化がないことを確認している。さらに、500℃の処理でも揮発するという確証は得られず、ほとんど揮発しないものと考えられる。

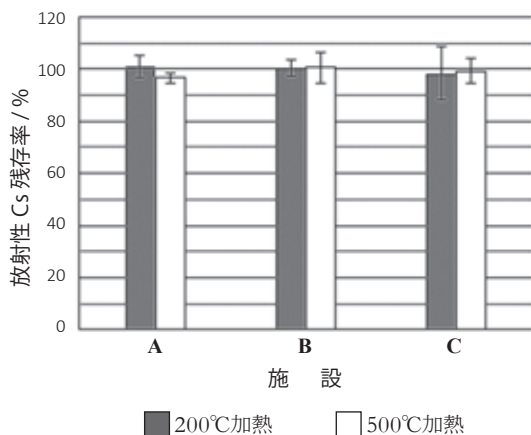


図6 飛灰の加熱試験(20h, 200℃もしくは500℃)後の放射性セシウム(Cs)の残存率⁸⁾

極めて低いレベルの飽和蒸気圧、固溶体による揮発抑制の可能性および加熱試験の結果より、最終排ガス処理においてガス状のCs塩は検出できないと考えられ、これが今までの施設調査において排ガス中にガス状のCs塩が検出していない理由と思われる。

ばいじんの粒子径分布と放射性Csの濃度についても関心が高いことから、関連する知見を紹介する。山本らの発表¹⁶⁾では、焼却主灰の粒子径が小さいほど、放射性Cs濃度が高いことが報告されている。この種の粒子径依存性は、主灰および飛灰についても同様の傾向にあることがKittoの論文⁷⁴⁾でも報告されている。ただし、粒子径としては20～340μmの範囲であり、サブミクロンまでのより細かい部分の知見については、高岡の調査⁷⁵⁾くらいである。その調査では、飛灰を粒子径別に分離し、粒子径別に放射性Csの含有量を調べている。6.9μm以上の画分を除くと、径が小さい画分の方が放射性Csの含有量が高く、放射性Cs含有の寄与は粒子径別の観点から両極端であることが示唆された。この結果は以前に高岡が安定Csの含有量を調べた結果⁷⁶⁾と一致している。安定Csの調査では、粒子に付着しているCs塩は水溶性塩であることが報告されており、放射性Cs塩も水溶性の化学形態をとっているものと推察される。

処理プロセスの違いと粒子径分布との関係については、川本らの発表^{18, 19)}で報告されており、図7のように、ガス化熔融における熔融飛灰と減温塔灰の粒子径分布が紹介されている。焼却施設の飛灰の平均粒子径は20～30μmといわれるため⁷³⁾、熔融飛灰の粒子径はそれよりも一桁小さく、減温塔灰はそれよりも若干小さい値であった。燃焼温度が高く、冷却する温度域帯が大きいほど凝縮体としての核発生が優勢になり、飛灰の粒子径が低くなる可能性も考えられる。熱処理における凝縮体になるための核発生速度と成長速度の関係が明らかになればこの点が理解できる。飛灰の粒子径は、汚染レ

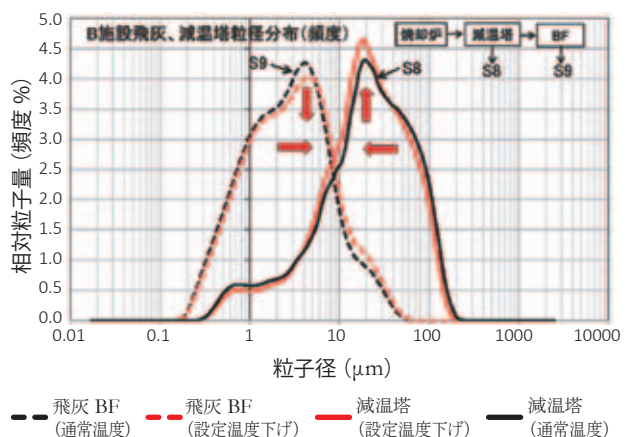


図7 ガス化熔融施設の飛灰の粒子径分布¹⁹⁾
BFはバグフィルターの略

ベルが高いものの処理において排ガス処理や灰処理・処分
の検討に必要不可欠であり、この種の知見の蓄積が必要である。

最近、大杉らが表わらの燃焼における灰の粒子径分布を研究しており、温度や酸素雰囲気によって分布形の違うことが報告されている⁷⁷⁾。報告されている灰の粒子径は一次粒子を意識したものとは予想されるが、実飛灰の粒子径とは二桁違うことから、揮発したアルカリ塩化物の凝縮、中和剤として吹き込む消石灰等の影響も考慮して飛灰粒子の生成・成長メカニズムが解明されることに期待したい。

(3) 焼却施設内の耐火物への蓄積

事故由来の放射性 Cs の炉内の蓄積に関する最初の発表は、阿部ら⁷⁸⁾の発表であり、熔融施設内の空間線量率と耐火物表面の付着ダストの放射性 Cs 濃度を測定するとともに、耐火物中の放射性 Cs の濃度プロファイルを紹介している。各プロセスごとの空間線量と付着ダストの放射性 Cs 濃度のピークが一致しないことから、放射性 Cs の耐火物への浸透・蓄積が明らかとなった。ただし、25 年前の電力中央研究所の報告書⁷⁹⁾によると、放射性廃棄物の焼却処理であるものの、放射性 Cs が焼却炉内へ蓄積することや、温度が低いほど放射性 Cs の蓄積量が多い傾向等の有用な知見が報告されており、参考にされたい。阿部らの報告を受け、筆者も一般廃棄物焼却施設の炉内に入り、空間線量と耐火物表面や内壁に付着したダスト中の放射性 Cs 濃度を測定した⁸⁰⁾。また、大下ら⁸¹⁾も複数施設について同じような調査結果を報告している。結果の一部を図 8 に示す。耐火物の有無で、空間線量が大きく増減することから、耐火物に放射性 Cs が蓄積されていることが確認された。また、大下らの報告では、炉内清掃前後でも空間線量が低下しないことから Cs 沈着は比較的強いものと予想される。彼らの報告では、Na+K の濃度と Cs 濃度に正の相関が得られたことから、このような浸透・蓄積は揮発性の高いアル

カリ金属塩特有の挙動であると考えられる。付着灰中の放射性 Cs 濃度と空間線量の関係より、耐火物のある高温域の維持管理では、汚染耐火物由来の放射線の防護が重要であり、また、耐火物のない低温域では、放射性 Cs 濃度が高くなるばいじんの取り扱いに注意すべきである。残念なことにはこれらの調査はまだ始まったばかりであり、付着ダストもしくはクリンカの溶出性等の重要な性状評価がなされていないことから、その点を今後明らかにする必要がある。

水原らは実施設の耐火物を取り扱いながら、耐火物への蓄積挙動に関する研究を積極的に行っている⁸²⁻⁸⁷⁾。図 9 のように、放射性 Cs の耐火物内の浸透プロファイルが運転温度によって異なり、低温部の方が耐火物中の放射性 Cs 濃度が高く⁸⁵⁾、施設内の線量調査結果とも一致していた。また、これは施設内の低温部はホットスポットになる可能性を示唆するものであり、維持管理の作業では注意が必要である。加えて、維持管理・解体において注意すべき彼ら知見を列挙する^{84,85)}。まず、曝露時間を変更させた実験より、160 日程度曝露しても蓄積量が飽和に至らない結果であった。なお、中温部と低温部では、蓄積挙動が異なっており、中温部では、曝露初期において急激に放射性 Cs が蓄積されるが、その後の蓄積速度は低下する傾向であった。しかし、低温部ではかなり直線的に蓄積する挙動であった。したがって、放射性 Cs は長期的に蓄積されると考えられ、運転時間、つまり、曝露時間にも留意すべきであろう。物理的特徴からくる知見として、気孔率が低いものほど放射性 Cs は浸透しづらく、耐火物の外周と内部では放射性 Cs 濃度に大きな差が生じていた。気孔率の低い耐火物は表面をはつることにより、耐火物中の濃度レベル、もしくは放射線量をかなり低減できると考えられ、被曝防止に役立つのではないと思われる。また、汚染された耐火物の溶出試験結果^{86,87)}より、耐火物組成と関連付けると、Si 含有率が高いものは溶出性が低い結果であった。しかし、低 Si 含有耐火物の

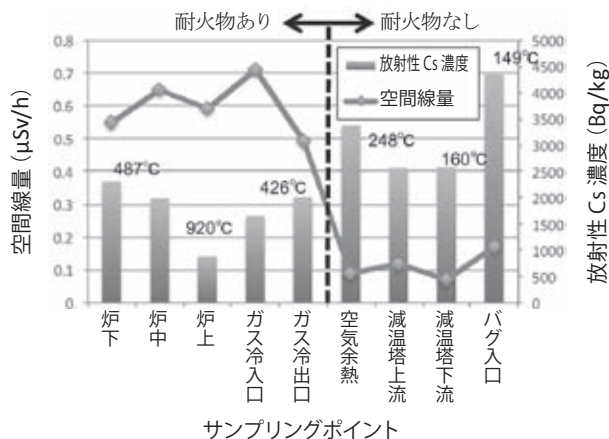


図 8 焼却炉および排ガス処理ライン内の空間線量と付着灰の放射性 Cs 濃度⁸⁰⁾

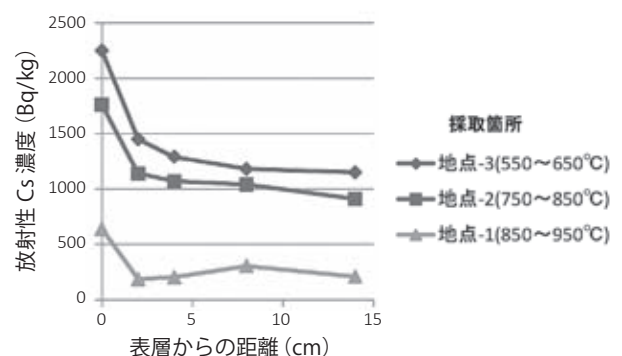
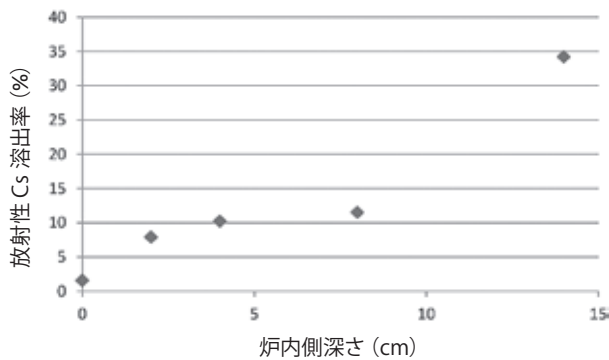


図 9 温度別の耐火物における放射性セシウム (Cs) の浸透状況 [曝露時間 : 922 h]⁸⁵⁾

図 10 耐火物深さ毎の放射性セシウム(Cs)の溶出性⁸⁷⁾

いくつかには溶出率がかなり高いものもあり、保管等には特別な配慮が必要である。したがって、耐火物の組成の選択も維持管理の点では今後重要な因子と考えられる。最近では、図 10 のように、耐火物の位置によっては溶出性が異なることも明らかにされ、浸透・蓄積する過程において化学形態が変化していることが示唆されている⁸⁷⁾。化学形態が変化しても可逆的なものであれば、放射性 Cs を脱離、すなわち、クリーニングでき、被曝防止に役立てることが可能である。今後このような可逆性を調べる必要がある。ただし、耐火物表面には灰分が溶融し融着する可能性があり、これが形成されてしまうとクリーニングができない可能性がある。大杉ら⁸⁸⁾は、Cs を含む溶融物に耐火物を浸し、ガス状物質の浸透と溶融相の浸透の違いを検討した。その結果、溶融相を形成した場合には Cs の浸透がかなり遅くなることが示されている。したがって、クリーニング等の手段を想定している場合には、融着相をできるだけ作らずに運転することが望ましい。燃やすものの元素組成と溶融生成温度を予想するための知見も今後必要であろう。平衡計算などはこれに最も適したものと思われ、溶融相の予測性能の向上が期待される。

4. まとめ

事故由来放射性物質に汚染された廃棄物の焼却もしくは溶融等の熱処理に関する施設調査結果および研究成果を収集・整理した。熱処理における放射性セシウム (Cs) の挙動については、施設調査結果より放射性 Cs の各種灰等への移行特性が明らかになりつつあり、また、室内実験や理論計算等の成果を踏まえて移行挙動の制御性、特に、塩素含有量や塩基度による移行の制御について有用な知見が蓄積されつつある。これらの知見は、事故以前の知見とも整合している部分もあり、概ね妥当なものと考えられ、今後処理される除染廃棄物等の適正処理に資するものと予想される。ただし、これまでの知見だけで放射性 Cs の挙動を完全に理解したわけではなく、個々の知見が整合していない点もあり、より詳細な挙動メカニズムの解明やこれまで以上の科学的知見の蓄積に期待す

るところも多い。また同時に、除染廃棄物の熱処理施設に関しても同様な調査を行い、これらの知見の妥当性を検証していくとともに、新たな課題の有無を確認する必要がある。

一方、熱処理施設の維持管理および解体については、放射性 Cs の炉内の蓄積や空間線量の把握に加えて、注意すべき点は整理されつつあるが、熱処理における放射性 Cs の挙動に比べると科学的知見がまだ不十分である。安全を確保し、適切に管理・解体を計画するには、炉形式等ごとの蓄積メカニズム、蓄積量の上限および除染の可能性等を明らかにしなければならない。

最後に、事故由来放射性物質に汚染された身近な廃棄物とその熱処理は新しい問題であることから、これまでの知見の検証を継続的に進めつつ、知見の体系化を構築すべきであろう。また、今回の問題を紐解くことは熱処理技術のより深い理解にもつながり、熱処理技術の高度化という形に結実することが期待される。

参 考 文 献

- 1) 環境省: 第九回災害廃棄物安全評価検討会、http://www.env.go.jp/jishin/attach/haikihyouka_kentakai/09-mat_2.pdf 2014 年 5 月 16 日閲覧
- 2) 原田 健一、福島 行我、倉持 秀敏、大畠 誠、杉田 進一、八巻 徹: 放射性物質に汚染された牧草の焼却実証事業について (事例報告)。第 35 回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集、303-305 (2014)
- 3) 環境省: 廃棄物関係ガイドライン (事故由来放射性物質により汚染された廃棄物の処理等に関するガイドライン) 第二版、環境省、2013
- 4) 倉持 秀敏: 放射性物質汚染廃棄物の焼却処理: 課題とこれまでの科学的知見 (研究レビュー)。安全工学、**52** (5)、282-290 (2013)
- 5) <http://www.jaea.go.jp/fukushima/pdf/gijutukaisetu/kaisetu09.pdf> 2014 年 5 月 16 日閲覧
- 6) H. Kuramochi, W. Wu, K. Kawamoto: Prediction of the behaviors of H_2S and HCl during gasification of selected residual biomassfuels by equilibrium calculation. *Fuel*, **84**, 377-387 (2005)
- 7) 小口 正弘、森 朋子、大迫 政浩、森口 祐一、山田 正人: 一般廃棄物焼却処理への放射性物質の移行と焼却灰への濃縮に関する傾向の分析。第 23 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、165-166 (2012)
- 8) 独立行政法人国立環境研究所資源循環・廃棄物研究センター: 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)、http://www.nies.go.jp/shinsai/techrepo_r4_140414_all.pdf 2014 年 5 月 16 日閲覧
- 9) 大林 新治、齋藤 正昭: 福島あらかわクリーンセンター

- (DBO 契約)の運営報告。第34回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集、19-21 (2013)
- 10) 加藤 考太郎、桧谷 逸朗:ひたちなか・東海クリーンセンターの灰溶融炉運転実績およびスラグの放射性物質濃度の低減について。第24廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、471-472 (2013)
 - 11) 水岡 亜聖、岩瀬 宏、小俣 貴寛、古川 功二、菅原 秀幸、鶴見 賢治:ごみ焼却飛灰からの放射性物質の溶出抑制対策。第34回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集、187-189 (2013)
 - 12) 山本 恵幸、水谷 和貴、村木 宏:横浜市の焼却残渣からの放射性物質の溶出防止対策の検討。第34回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集、298-300 (2013)
 - 13) 木村 充、馬場 一彦:横浜市の焼却工場における飛灰からの放射性物質溶出防止対策について。第34回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集、301-303 (2013)
 - 14) 大西 健雄、徳平 悠、赤間 知行:廃棄物処理における放射性物質対策の実施状況。第35回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集、309-311 (2014)
 - 15) 水岡 亜聖、梶 泰介、鈴木 賢司、望月 健宏、池田 直隆、永井 義明、岩瀬 宏:川崎市におけるごみ焼却灰からの放射性物質の溶出抑制対策。第35回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集、312-314 (2014)
 - 16) 山本 貴士、滝上 英孝、田野崎 隆雄、竹内 幸生、鈴木 剛、大迫 政浩、貴田 晶子、酒井 伸一:焼却プロセスにおける放射性セシウムの挙動について。第23回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、167-168 (2012)
 - 17) 川本 克也、倉持 秀敏、田野崎 隆雄、竹内 幸生:灰溶融炉付設焼却施設における放射性元素等の挙動。第23回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、451-452 (2012)
 - 18) 川本 克也、水原 詞治、福島 正明、田野崎 隆雄、竹内 幸生:放射性物質を含む一般廃棄物の実焼却施設における焼却特性。日本機械学会第23回環境工学シンポジウム2013 論文集、208 (2013)
 - 19) 川本 克也、福島 正明、田野崎 隆雄、竹内 幸生:焼却施設における廃棄物減容化と放射性セシウムの挙動。第24回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、453-454 (2013)
 - 20) 阿部 清一、上林 史朗、佐藤 淳、釜田 陽介、西村 和基:回転表面溶融炉における放射性セシウムの挙動調査。第1回環境放射能除染研究発表会要旨集、48 (2012)
 - 21) 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)
 - 22) 井口 拓、河野 孝志:ごみ焼却炉におけるセシウムの燃焼挙動の研究。第2回環境放射能除染研究発表会要旨集、141 (2013)
 - 23) 河野 孝志、井口 拓、島岡 隆行:ごみ燃焼時のセシウム挙動の研究。第24回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、451-452 (2013)
 - 24) 多田 光宏、富田 洋平、宮越 靖宏、辻 猛志、澁谷 榮一:焼却処理におけるセシウム挙動の把握と揮発防止技術の開発。第34回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集、190-192 (2013)
 - 25) 多田 光宏、富田 洋平、宮越 靖宏、澁谷 榮一:焼却プロセスにおけるセシウムの挙動と揮発防止技術の開発。第2回環境放射能除染研究発表会要旨集、65 (2013)
 - 26) 多田 光宏、富田 洋平、宮越 靖宏、辻 猛志、澁谷 榮一:焼却プロセスにおけるセシウムの挙動と飛灰処理技術の開発。日本機械学会第23回環境工学シンポジウム2013 論文集、214 (2013)
 - 27) A. D. Horrill, V. H. Kennedy, I. S. Paterson, G. M. McGowan: 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 Radioactiv.*, **29**, 1-10 (1995)
 - 28) 倉持 秀敏、由井 和子、野村 和孝、大迫 政浩:汚染廃棄物の燃焼における放射性Csの挙動に与える組成と温度の影響。第24廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、457-458 (2013)
 - 29) C. W. Sill: Volatility of Cesium and Strontium from a Synthetic Basalt. *Nucl. Chem. Waste Man.*, **8**, 97-105 (1988)
 - 30) J.-I. Yoo, T. Shinagawa, J. P. Wood, W. P. Linak, D. A. Santoianni, C. J. King, Y.-C. Seo, J. O. L. Wendt: High-Temperature Sorption of Cesium and Strontium on Dispersed Kaolinite Powders. *Environ. Sci. Technol.*, **39**, 5087-5094 (2005)
 - 31) 大迫 政浩、倉持 秀敏、肴倉 宏史:放射性セシウムを含む廃棄物の焼却処理。都市清掃、**65**, 23-27 (2012)
 - 32) 国土交通省:第4回下水道における放射性物質対策に関する検討会、<http://www.mlit.go.jp/common/000168573.pdf> 2014年5月16日閲覧
 - 33) 松崎 晋、部田 勝敏:セシウム含有焼却灰等の高周波溶融試験。日本原子力学会2012年秋の大会予稿集、84 (2012)
 - 34) 和田 隆太郎、栗本 宣孝、古渡 周作、古渡 正道:エマルジョンバーナー式表面溶融炉による溶融処理技術。第2回環境放射能除染研究発表会要旨集、151 (2013)
 - 35) 釜田 陽介、西村 和基、佐藤 淳、上林 史朗、阿部 清一:溶融技術を用いたセシウム揮散分離におけるセシウム

- 分離効率の向上に関する実験的検討。第1回環境放射能除染研究発表会要旨集、103 (2012)
- 36) 釜田 陽介、西村 和基、佐藤 淳、上林 史朗、阿部 清一：溶融技術による除染土壌からのセシウム分離に関する実験的検討。第1回環境放射能除染研究発表会要旨集、104 (2012)
- 37) 釜田 陽介、西村 和基、佐藤 淳、上林 史朗、阿部 清一：溶融技術におけるセシウム揮散促進剤としての廃塩ビの適用。第2回環境放射能除染研究発表会要旨集、62 (2013)
- 38) 阿部 清一、川本 克也、大迫 政浩：草木類を含む土壌の溶融処理試験。第2回環境放射能除染研究発表会要旨集、144 (2013)
- 39) 釜田 陽介、西村 和基、佐藤 淳、上林 史朗、阿部 清一：溶融技術による除染廃棄物からのCs分離における添加金属元素種の影響。第24廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、465-466 (2013)
- 40) 阿部 清一、水原 詞治、福島 正明、川本 克也：草木類を含む土壌の溶融処理試験。第24廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、469-470 (2013)
- 41) 山口 真弥、大下 和徹、藤森 崇、塩田 憲司、高岡 昌輝：模擬廃棄物焼却残渣を用いた溶融処理におけるCsの挙動に関する研究。第24廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、467-468 (2013)
- 42) Y. Endo, T. Tachibana, C. Kim, H. Jo, H. Feasibility study on Fukushima wastes treatment and stabilization (1). Feasibility study on the vitrification using simulated Fukushima wastes. 日本原子力学会 2013 年秋の大会予稿集、625 (2013)
- 43) 遠藤 芳浩、立花 孝洋：福島原発事故で発生した廃棄物に対するモックアップ設備によるガラス固化試験。日本原子力学会 2014 年春の大会予稿集、327 (2014)
- 44) 山本 博英、宮内 千里、後藤 菊次、黒田 康宏：回転式昇華装置を用いたセシウム除去対策。月刊下水道、**35 (14)**, 16-17 (2012)
- 45) 本間 健一、高野 博幸、三浦 啓一、佐々木 忠志、木村 武、万福 裕造：放射性セシウムで汚染された土壌からの熱処理によるセシウム除去。粘土科学、**52 (2)**, 71-73 (2014)
- 46) 本間 健一、田中 宜久、岡村 聡一郎、石田 泰之、高野 博幸、山本 博英、宮内 千里、後藤 菊次：乾式Cs除去技術で生成する浄化処理物の各種土工資材評価。第35回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集、330-332 (2014)
- 47) 曾根 智之、佐々木 悠、中西 良樹、中澤 修、田代 清：燃焼時のセシウム移行挙動試験。日本原子力学会 2012 年春の年会予稿集、572 (2012)
- 48) 中島 卓夫、松生 隆司、吉岡 由郎、大山 将：除染に伴い発生する有機物のバイオマスガス化発電による減容化およびエネルギー回収。第2回環境放射能除染研究発表会要旨集、129 (2013)
- 49) 水原 詞治、川本 克也：ガス化改質工程におけるCs挙動特性に関する基礎的研究。第24廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、477-478 (2013)
- 50) 青山 佳男、岡留 善裕、曾根 智之、中澤 修：ガス化燃焼処理法を用いた混合廃棄物の一括処理に向けた基礎試験 (1) 概要と熱分析結果。日本原子力学会 2013 年秋の大会予稿集、658 (2013)
- 51) L. L. Burger: A chemical basis for the partitioning of radionuclides in incinerator operation. PNL-10364, US-DOE, 1995
- 52) D. Verhalst, A. Buekens, P. J. Spencer, G. Eriksson: Thermodynamic behavior of metal chlorides and sulfates under the conditions of incineration furnaces. *Environ. Sci. Technol.*, **30**, 50-56 (1996)
- 53) L. Sorum, F. J. Frandsen, J. E. Hustad: On the fate of heavy metals in municipal solid waste combustion. Part I: Devolatilisation of heavy metals on the grate. *Fuel*, **82**, 2273-2283 (2003)
- 54) H.-C. Yang, Y.-J. Cho, H.-C. Eun, J.-H. Yoo, J.-H. Kim: Behavior of toxic metals and radionuclides during molten salt oxidation of chlorinated plastics. *J. Environ. Sci. Health, Part A*, **39**, 1601-1616 (2004)
- 55) D. Poole, B. B. Agrgent, V. N. Sharifi, J. Swithenbank: Prediction of the distribution of alkali and trace elements between the condensed and gaseous phases in a municipal solid waste incinerator. *Fuel*, **87**, 1318-1333 (2008)
- 56) 倉持 秀敏、大迫 政浩：熱力学平衡計算を用いた汚染廃棄物の焼却過程における放射性セシウムの挙動解析。第1回環境放射能除染研究発表会要旨集、49 (2012)
- 57) 倉持 秀敏、由井 和子、大迫 政浩：焼却過程の放射性セシウムの挙動を再現するための平衡計算の改良と評価。第2回環境放射能除染研究発表会要旨集、64 (2013)
- 58) T. Ginsberg, D. Liebig, M. Modigell, B. Sundermann: Multizonal thermochemical modelling of heavy metal transfer in incineration plants. *Process Saf. Environ.*, **90**, 38-44 (2012)
- 59) 倉持 秀敏、大迫 政浩：焼却処理過程における放射性セシウムの挙動解析のためのマルチゾーン平衡計算の開発。第23回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、405-406 (2012)
- 60) 由井 和子、倉持 秀敏、野村 和孝、大迫 政浩：都市

- ごみ焼却処理過程における放射性セシウムの挙動解析のためのマルチゾーン平衡計算の開発。第24回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、459-460 (2013)
- 61) 横山 薫、小原 義之、杉杖 典岳、栄 徳剛、竹田 宏、柳瀬 眞一郎、桑木 賢也、高見 敏弘、百武 徹：焼却施設でのセシウム挙動解析 (1) 総論・計画。日本原子力学会 2013 年春の年会予稿集、68 (2013)
 - 62) 横山 薫、小原 義之、杉杖 典岳、栄 徳剛、竹田 宏、柳瀬 眞一郎、桑木 賢也、高見 敏弘、百武 徹：焼却施設でのセシウム挙動解析 (2) 燃焼モデルの構築。日本原子力学会 2013 年春の年会予稿集、69 (2013)
 - 63) 横山 薫、小原 義之、大杉 武史、大越 実、梅澤 克洋、杉杖 典岳：焼却炉内での Cs 挙動解析コードの構築。第2回環境放射能除染研究発表会要旨集、159 (2013)
 - 64) 横山 薫、小原 義之、杉杖 典岳、栄 徳剛、竹田 宏、柳瀬 眞一郎、桑木 賢也、高見 敏弘、百武 徹：焼却設備でのセシウム挙動解析 (4) 焼却設備内でのセシウム挙動のシミュレーション。日本原子力学会 2013 年秋の大会予稿集、633 (2013)
 - 65) M. D. Scheer, J. Fine: Entropies, heats of sublimation, and dissociation energies of the cesium halides. *J. Chem. Phys.*, **36**, 1647-1653 (1962)
 - 66) B. R. Westphal, K. J. Bateman, R. P. Lind, K. L. Howden, G. D. Del Cul: Fission product removal from spent oxide fuel by head-end processing. *Proceedings of GLOBAL 2005* (2005)
 - 67) D. W. Bonnell, E. R. Plante, J. W. Hastie: Vaporization of simulated nuclear waste glass. *J. Non-Cryst. Solids*, **84**, 268-275 (1985)
 - 68) D. Mackay, W. Y. Shiu, K. C. Ma: "Handbook of Physical-Chemical Properties and Environmental Fate for Organic Chemicals", CRC Press Taylor&Francis, Boca Raton, FL, 2006
 - 69) 倉持 秀敏、大迫 政浩、酒井 伸一：塩化セシウムの蒸気圧測定。第22回環境化学討論会講演要旨集、228-229 (2013)
 - 70) J. Sangster, A. D. Pelton: Phase diagrams and thermodynamic properties of the 70 binary alkali halide systems saving common ions. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, **16**, 509-561 (1987)
 - 71) J. L. Goldfarb, E. M. Suuberg: Raoult's law and its application to sublimation vapor pressures of mixtures of polycyclic aromatic hydrocarbons. *Environ. Eng. Sci.*, **25**, 1-9 (2008)
 - 72) 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講演論文集、407-408 (2010)
 - 73) 社団法人全国都市清掃会議：ハンドブックごみ処理施設整備の計画・設計要領、p.268 (2006)
 - 74) M. E. Kitto: Radioactivity in size-separated municipal incinerator ashes. *Health Phys.*, **62**, 529-536 (1992)
 - 75) 高岡 昌輝：廃棄物焼却施設における排ガス中放射性物質の測定。廃棄物資源循環学会誌、**24**, 258-266 (2013)
 - 76) 環境省：第三回災害廃棄物安全評価検討会、http://www.env.go.jp/jishin/attach/haikiyouka_kentokai/03-mat_5.pdf
 - 77) 大杉 武史、塙 律、横堀 智彦、小澤 一茂、赤堀 光雄、岡本 芳浩、大越 実：植物残渣の焼却条件が排気系粒子に与える影響。日本原子力学会 2013 年秋の大会予稿集、634 (2013)
 - 78) 阿部 清一、上林 史朗、佐藤 淳、釜田 陽介、西村 和基：回転表面溶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回環境放射能除染研究発表会要旨集、152 (2012)
 - 79) 神戸 弘巳、黛 正己、小野 哲夫、吉舗 信也、瀬間 徹、神山 弘章、永 栄圓、高奥 芳伸、穂積 正浩：放射性廃棄物焼却減容システムにおけるセラミックフィルタの放射能除性能。電力中央研究報告書 T86041、電力中央研究所、東京、1987
 - 80) 大迫 政浩、倉持 秀敏：「放射性物質の熱処理挙動研究会」の立ち上げについて。JEFMA, **61**, 28-30 (2013)
 - 81) 大下 和徹、山口 真弥、福谷 哲、高岡 昌輝、藤森 崇：一般廃棄物焼却施設内部に蓄積した放射性核種と空間線量率の調査。第24回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、461-462 (2013)
 - 82) 水原 詞治、川本 克也：焼却施設における耐火材内へのセシウムの浸透調査。第23回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、407-408 (2012)
 - 83) 水原 詞治、川本 克也：焼却炉内耐火物の特性と Cs の浸透性等に関する基礎的調査。耐火物、**65**, 113 (2013)
 - 84) 上林 史朗、西村 和基、水原 詞治、川本 克也：耐火物中へのセシウムの浸透について。第24回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、463-464 (2013)
 - 85) 水原 詞治、川本 克也、上林 史朗、西村 和基：耐火物への放射性物質の蓄積に与える気孔率および暴露機関の影響調査。第35回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集、336-338 (2014)
 - 86) 水原 詞治、川本 克也：焼却施設における耐火物内へのセシウムの浸透調査 (第2報) - セシウムの溶出特性。第24回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、455-456 (2013)
 - 87) 水原 詞治、川本 克也：焼却炉耐火物からの放射性セシウムの溶出特性。第48回日本水環境学会年会講演集、

603 (2014)

会 2014 年春の大会予稿集、337 (2014)

88) 大杉 武史、塙 律、伊藤 圭祐、桑原 彬、中塩 信行、
小澤 一茂、大越 実、中島 邦彦、斎藤 敬高: 溶融処
理時における耐火物への Cs の移動特性。日本原子力学

2014 年 5 月 17 日受付

2014 年 5 月 27 日受理

和 文 要 約

事故由来放射性物質に汚染された廃棄物の焼却もしくは溶融等の熱処理に関する研究課題に対して、原子力発電施設の爆発事故以降の国内学会発表を中心に、調査結果および研究成果を収集し、これまでの知見を整理した。都市ごみから除染廃棄物相当の汚染バイオマスまで処理対象範囲を幅広くすることを意識しつつ、放射性物質の挙動の違いやその制御性および施設の維持管理の観点から知見を考察した。さらに、過去の内外の文献から示唆に富む研究成果を紹介するとともに、これまでの知見と比較しながら、今後解明すべき課題も提示した。

