報 文

溶融技術による土壌等からのセシウム熱分離に関する プラント実証試験評価

釜田 陽介1*、阿部 清一2、川本 克也3、由井 和子2、倉持 秀敏2、大迫 政浩2

¹株式会社クボタ 水・環境総合研究所 (〒 661-8567 兵庫県尼崎市浜 1-1-1)
 ²国立研究開発法人 国立環境研究所 資源循環・廃棄物研究センター (〒 305-8506 茨城県つくば市小野川 16-2)
 ³岡山大学大学院 環境生命科学研究科 (〒 700-8530 岡山市北区津島中 3-1-1)

Plant Demonstration Test on the Thermal Separation of Cesium by Melting Technique from Soil

Yosuke KAMATA^{1*}, Seiichi ABE², Katsuya KAWAMOTO³, Kazuko YUI², Hidetoshi KURAMOCHI², and Masahiro OSAKO²

¹Water & Environment R & D, KUBOTA Corporation (1-1-1 Hama, Amagasaki, Hyogo, 661-8567 Japan) ²Center for Material Cycles and Waste Management Research, National Institute for Environmental Studies (16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki, 305-8506 Japan)

³Graduate School of Environmental and Life Science, Okayama University (3-1-1 Tsushima-naka, Kita-ku, Okayama, 700-8530 Japan)

Summary

By the accident of Fukushima Daiichi nuclear power plant in March 2011, the east of Japan was widely contaminated by radioactive cesium (Cs). Since the accident, a variety of volume reduction technology for radioactively contaminated waste has been developed. Melting technique is considered to be one of useful high-temperature treatments carried at 1300-1400°C. Using the technique, Cs can be separated in high efficiency from different solids degreasing their volume significantly. In our previous laboratory test, a high Cs volatilization ratio had been obtained for various solid wastes employed. Therefore, in this study, we conducted a demonstration test using a melting test plant (3 t/day) and investigated the Cs separation performance for soil, biomass incineration ash, and sewage sludge incineration ash. As a result, regardless of the kind of solid sample, Cs volatilization ratio increased by the addition of CaCl₂. Hence, CaCl₂ was considered to have a promoting effect on the Cs volatilization even in the plant scale test. The Cs volatilization ratio in the presence of combustible vegetation was higher than that without the combustibles. This shows the coexistence-effect of combustibles on the Cs volatilization. Increasing the amount of additive reagent and vegetation achieved 99.9% of the Cs volatilization ratio. Furthermore, using the two series of Bag Filer (BF) units, Cs was concentrated into the first (No.1) BF ash, and the amount of the Cs-concentrated ash was reduced by 1/3 to 1/4 compared with the case of using one BF equipment. The No.1 BF ash was primarily composed of alkali metal chloride, and Cs in the No.1 BF ash was highly water-soluble. This indicates that the secondary treatment of Cs by wet process (water elution - solid-liquid separation - Cs adsorption) is possible. The second (No.2) BF ash was composed of neutralized products of acid components (HCl and SO₃) in flue gas as follows; CaClOH, CaCl₂·4H₂O, CaCO₃ and Ca(OH)₂. Therefore, the No.2 BF ash is considered to be reusable as the melting addition reagent.

Key Words: Cesium, Soil, Melting, Thermal separation, Chlorination volatilization

*Corresponding author: E - mail: yosuke.kamata@kubota.com

1. はじめに

2011年3月に発生した東日本大震災に伴う福島第一原発の 事故により、放射性セシウム(Cs)が広範囲に拡散し、東日本 の一部地域の環境を汚染した。その除染に伴う除去土壌、汚 染廃棄物は発生現場や仮置場に一時保管されている。また、 放射性 Cs が混入した都市ごみ等の焼却施設から生じた焼却 残さ、汚染された下水汚泥等の一部も各施設内に保管されて いる状況である。現在、これらの放射性物質を含む廃棄物等 の中で、可燃物については減容化を施した上で、福島県内に おいては放射能濃度に応じて中間貯蔵施設における貯蔵、管 理型処分場での処分等が行われることとなる。また、福島県 外においては、各県において国が遮断型相当の処分場に処分 することとされている¹⁾。福島県内の中間貯蔵施設については、 施設建設・稼働に向けた準備が進められているが、一方で 30年以内に県外最終処分を完了させることが法律で規定され たことから、県外最終処分の負荷を低減させるための減容化 技術の研究開発、実証が進められている2-8)。

筆者らが有する溶融技術は、焼却より高い1300~1400℃ で加熱を行うことで各種廃棄物を溶かしてマグマ状態の均質 な融液とし、それを冷却して非晶質の高密度固体であるスラ グとして排出する減容化技術の一つである。焼却よりも高温 処理であるため、減容化だけでなく溶融炉内で低沸点金属元 素を揮散分離できる点に特長がある。つまり、処理対象物に 塩化物や可燃物を共存させることで、アルカリ金属や重金属 を溶融炉内で塩素化または還元して揮散させ、排ガス冷却時 に析出、捕集される溶融飛灰として分離濃縮することができ る⁹⁻¹¹⁾。都市ごみ、下水汚泥の処理では多数の実績があり、 都市ごみ溶融処理では分離濃縮された溶融飛灰中のZn、Pb を非鉄製錬原料としてリサイクルする山元還元も一部で行われ ている¹²⁾。本研究は、除去土壌や汚染廃棄物からの放射性 Cs分離濃縮と処理物減容化を目的として、本溶融技術の適 用可能性をパイロットスケールの試験プラントを用いて実証的 に検討するものである。

Csの溶融分離については、筆者ら13)は実験室レベルで都市 ごみ焼却灰、下水汚泥焼却灰及び土壌に安定性 Cs 試薬を添 加した模擬汚染サンプルに対して溶融試験を実施し、塩化物 (塩化カルシウム)の添加によりNa、Kと同様にCsも揮散促進 が可能であること、可燃物(活性炭)を塩化物と混合添加する ことで更にCs 揮散が促進されること等の結果を得ている。ま た、Spalding ら¹⁴⁾は、放射性 Cs を含む土壌を処理対象として 実験室レベルの溶融試験を実施し、NaCl、CaCl2を添加して 1000 ℃以上に加熱することで¹³⁷Cs を有意に揮散分離できる ことを報告している。しかし、どちらも実験室レベルの結果で あり、プラント試験レベルでの実証はなされていない。そこで、 本研究では、プラント試験でのCs分離実証を目的とし、3t/ 日規模の溶融テストプラントを用いて、土壌、バイオマス焼却 灰、下水汚泥焼却灰等、様々な固形物を処理対象として安定 性 Cs₂CO₃を添加した実証試験を行い、溶融炉での Cs 分離 性能及びスラグ、溶融飛灰の性状に関する調査を行った。

2. 試験方法

(1) 溶融試験

a) 溶融テストプラント

試験は3t/日(溶融炉内径:1.8m、プラント敷地面積:約400m²)の溶融テストプラントを用いて行った。プラント全体のフローを図1に、回転式表面溶融炉の構造を図2に示す。 溶融炉は外筒と内筒の二重円筒構造で、試料はその間の供給 筒部分に投入される。外筒が水平方向に緩速回転し、試料も



図1 溶融テストプラントのフロー



図2 回転式表面溶融炉の構造

共に回転する。その際、内筒切出し部とのせん断力等により 試料は溶融空間である主燃焼室に全円周方向から供給され、 溶けてスラグとなる。スラグは炉中心方向に流下し、スラグピッ ト水中に落下して急速冷却され、排出される。溶融の過程で、 低沸点のアルカリ金属化合物、重金属化合物は揮散(気化) 分離して燃焼排ガスの一部となり、排ガス処理設備へ導入さ れる。

揮散した低沸点化合物は、ガス冷却塔で水噴霧により 200℃以下に冷却され、凝縮固化して溶融飛灰となり、バグ フィルタ(以下、BF)で捕集、排出される。本試験の前半条 件(RUN 1~3)では、BF は一段のみで、溶融飛灰と酸性ガ ス中和物を一括捕集したが、後半条件(RUN 4~5)では、 BFを二段とし、No.1 BFではアルカリ剤は噴霧せずに剥離 剤の炭酸カルシウム(CaCO₃)のみを少量噴霧して溶融 飛灰だけを分離捕集し、No.2 BFでアルカリ剤の高反応性 消石灰(Ca(OH)₂)を噴霧して酸性ガスを中和し、中和物を 捕集した。この二段 BFの適用は、Cs 濃縮物であるNo.1 BF 灰の減量化及び No.2 BF 灰の溶融薬剤としての循環再利用 を実証することを目的とした。

b) 試験条件

表1に、試験条件を示す。添加薬剤としては、Clを含みCs の塩化揮発を促進させる揮散促進剤(以下、揮散剤)とCl を含まずスラグの塩基度を高めて共融点を下げる融点降下 剤(以下、融剤)の二種を用いた。RUN1~3では真砂土、 ベントナイト及び草木類から構成される模擬土壌(以下、土 壌)を処理対象物とした試験を行った。RUN1では、土壌 中に草木類を混合せず、揮散剤としてCaCl₂・2H₂O(セントラ ル硝子株式会社、>95%)を乾重量ベースの内数で10%もし くは20%添加し、CaCl₂添加によるCsの揮散促進効果を調 査した。以下、添加条件は全て乾重量ベースの内数とする。 融剤は Na₂CO₃ (セントラル硝子株式会社、> 99%) を一律 20% 添加した。これら薬剤の添加濃度は、既報の実験室レ ベルでの試験(以下、ラボ試験)¹³⁾結果から、概ね80%以上 の高いCs 揮散率が得られる濃度に設定した。また、酸素富化 (純酸素吹込みによる炉内高温化)による炉内温度の影響も 調査した。RUN 2 では、RUN 1 と同一の薬剤添加率で土壌 中に30%の草木類を混合し、これによる影響について調査し た。RUN 3では、RUN 1 及び RUN 2 の結果を受けて Cs 揮 散率90%以上を指向した試験を行った。RUN4では、様々 な固形物、すなわち土壌に加えてバイオマス焼却灰(以下、 バイオ灰)、下水汚泥焼却灰(以下、下水灰)及びそれら と土壌の混合物について Cs 揮散挙動を調査した。揮散剤は CaCl₂·2H₂O(同上)を10~30%、融剤はCa(OH)₂(土佐 石灰株式会社、>95%)を10~20%、適宜添加した。最後 に、RUN 5 でCs 揮散率 99% 以上を指向した試験を行った。

全条件とも、試料に安定性 Cs_2CO_3 試薬(稀産金属株式会 社、 \geq 99.9%)を 0.2% 添加し、模擬汚染試料とした。添加 濃度 0.2% については、定量的に Cs 揮散促進効果が比較評 価でき、かつ Cs の 99.9% が揮散しても分析定量可能な最低 濃度として設定した。

c) 処理対象物

土壌の無機岩石成分には、市販の真砂土とベントナイト(ク ニミネ工業株式会社、クニゲル MB)の乾重量比 85:15 の混 合物を用いた。草木類には、市販のおがくず、腐葉土の混合 物を用いた。バイオ灰は、木質系のバイオマス発電施設で排 出された焼却灰を用いた。下水灰は、流動床式焼却施設で排 出された流動灰を用いた。

表2に、処理対象物である土壌の各構成物、バイオ灰、

RUN No.								溶融炉	BF
		試験内容	処理対象物	土壤中	揮散剤	融	剤	一一 善 善 善 善	
				草木類 割合*1	$CaCl_2$	Ca(OH) ₂	Na_2CO_3	窗化	段数
	1-1		土壤	0%	10%	-	20%	無	1
1	1-2	CaCl ₂ 添加効果	土壤	0%	20%	-	20%	無	1
	1-3		土壤	0%	20%	-	20%	有	1
	2-1	1 1-4-1	土壤	30%	10%	-	20%	無	1
2	2-2	土壌中 草木箱の影響	土壤	30%	20%	-	20%	無	1
	2-3		土壤	30%	20%	-	20%	有	1
2	3-1	℃	土壤	30%	30%	20%	-	有	1
5	3-2	℃ 揮 敗 卒 ≧ 90 %	土壤	30%	40%	15%	-	有	1
	4-1		土壤	30%	30%	-	-	有	2
	4-2		バイオ灰	-	30%	-	-	有	2
4	4-3	谷種固形物からの (s 揮散挙動	土壌 70%+ バイオ灰 30%	30%	20%	10%	-	有	2
	4-4		下水灰	-	30%	-	-	有	2
	4-5		土壤 70% + 下水灰 30%	30%	10%	20%	-	有	2
5		Cs 揮散率≧99%	土壤 85% + 下水灰 15%	60%	10%	20%	-	有	2

表1 試験条件

*1 土壌重量に対する草木類の乾重量割合(内数)

*2 試料重量に対する各薬剤の乾重量割合(内数)

下水灰の組成を示す。水分は105℃、2時間の乾燥前後の重 量変化から、可燃分及び灰分は815℃、2時間の乾燥前後の 重量変化からそれぞれ算出した。低位発熱量はボンベ型熱 量計(株式会社島津製作所、CA-4AJ)により測定した。Siの 定量方法はJIS K 0101に準拠した。試料を硝酸、過塩素 酸で加熱分解しSiO₂、Al₂O₃以外を溶解した後、懸濁液を 5 B ろ紙でろ過して固液分離を行った。得られた固体をろ紙ご と1000℃で1時間燃焼した後、フッ化水素酸でSiO2のみを 加熱揮散させ、その減少重量から濃度を算出した。Ca、Al、 Fe、P、Na、K は底質調査方法(H24環水大水発120725002 号)に準拠した。試料を硝酸、過塩素酸、フッ化水素酸で 加熱分解(Alのみ更にピロ硫酸ナトリウムで加熱融解)し、

衣と一処理対象物の組成									
	光生		±±		いく中国	トナロ			
坝日	- 単位	真砂土	ベントナイト	おがくず	腐葉土	八十五灰	下水灰		
水分	%	9.3	8.2	31.9	55.3	0.5	0.3		
可燃分	% (dry)	2.6	6.5	99.8	71.5	0.9	0.7		
灰分	% (dry)	97.4	93.5	0.2	28.5	99.1	99.3		
低位発熱量	J/g (dry)	<500	<500	19,700	13,900	<500	540		
SiO ₂	% (dry)	67.8	64.8	0.13	18.8	54.8	28.2		
AI_2O_3	% (dry)	11.7	11.6	0.02	3.9	12.1	14.2		
CaO	% (dry)	2.5	3.3	0.07	4.0	10.2	6.0		
FeO	% (dry)	3.6	3.6	0.01	1.6	4.6	13.9		
P_2O_5	% (dry)	0.11	0.18	0.02	0.37	0.62	18.5		
Na	% (dry)	2.1	1.5	0.02	0.24	0.68	1.2		
К	% (dry)	2.0	1.1	0.05	0.50	1.84	1.7		
Cs	% (dry)	0.00037	0.00032	0.00002	0.00011	0.00033	0.00024		
Cl	% (dry)	0.03	<0.01	0.07	0.10	0.28	0.02		
S	% (dry)	<0.01	0.05	<0.01	0.15	0.12	0.25		

表2 処理対象物の組成

P以外については ICP 発光分光分析計(株式会社リガク、 CIROS-120)により、Pについては吸光光度計(株式会社日立 製作所、U-1500)により定量した。Csは硝酸、過塩素酸、フッ 化水素酸により加熱分解し、ICP-MS(エスアイアイ・ナノテク ノロジー株式会社、SPQ9500)により定量した。S、ClはJIS M 8813に準拠し測定した。試料をエシュカ合剤で加熱融解し、 Sについては ICP 発光分光分析計(同上)により、Clについて は吸光光度計(同上)により定量した。

土壌の灰分を構成する真砂土、ベントナイトは SiO₂ 主体の 組成であったのに対し、バイオ灰は CaO 濃度が高く、下水灰 は FeO、P₂O₅ 濃度が高かった。Cs 濃度はどれも数 mg/kg 以 下であり、Cs₂CO₃ 添加濃度と比較すると微量レベルであった。 Cl 濃度はバイオ灰がやや高かったが、他は 0.1%未満と低 かった。土壌の草木類を構成するおがくず、腐葉土について は、腐葉土の方が灰分が高く可燃分が少なかったため、低位 発熱量は低かった。

d) 試料の調製方法

各 RUN の配合条件に従って構成材料を計量し、大型の混 練機で撹拌混合して試料を作製した。 Cs₂CO₃ は、事前に 蒸留水 20 L に 4 kg を溶解させておき、混錬時にスプレー噴 霧して添加した (図 3)。混錬後の試料は 1 m³ のフレコンバッ グに入れて一時保管し、試験において適宜、ホッパに投入し



図3 大型混練器を用いた試料混合における Cs₂CO₃の 噴霧添加状況

て使用した。

e)分析方法

固形物(投入物、スラグ、BF灰)の組成分析は、上述の 処理対象物の分析と同様の方法で行った。CO₃は1NHCl 溶液に浸漬し、発生したCO2をGC-TCD(ジーエルサイエン ス株式会社、GC323)で定量し、算出した。OHは試料1g を100 mLの蒸留水と混合撹拌し、1 N HCl 溶液による中和 滴定量から算出した。スラグ、No.1 BF 灰の溶出試験は、 酸溶出条件については H15 環境省告示第 19 号試験(以下、 19 号試験)、水溶出条件については H3 環境庁告示第46号 試験(以下、46号試験)によりそれぞれ行った。 No.2 BF 灰 の結晶相同定及びその内訳の半定量分析は、X線回折分 析計(株式会社リガク、RINT2000)により行った。分析条件 は、管球 Cu、管球電圧 40 kV、管球電流 200 mA、測定角 度 5~90°、走査ステップ 0.02°、走査速度 4°/min、発散・ 散乱スリット0.5°、受光スリット0.3 mmとした。結晶相内訳 の半定量分析については、X 線回折チャートにおける結晶性 ピークを結晶種別に分離し、各結晶のピーク面積比率から概 略割合を算出した。排ガス分析については、排ガス量は JIS Z 8808、ばいじん濃度は JIS Z8808、SO、濃度は JIS K 0103、 HCl濃度はJISK 0107 にそれぞれ準拠して行った。

(2) 光学的塩基度とその適用

本研究では、溶融スラグの塩基度を評価するのに際し、評価指標として光学的塩基度を用いた。光学的塩基度は、多元系酸化物ガラスの塩基性を表現可能な塩基度である。Duffyら¹⁵⁾がガラスを構成する各酸化物の加成性が成立することに着目し、ガラス組成から式(1)により計算で求める方法を提案した。

 z_i:i種カチオンの原子価
 r_i:酸素1個当りのi種カチオン数 (MmOnの場合 m/n)
 χ_i:i種カチオンの電気陰性度

塩基度指標には、CaO/SiO₂重量比(以下、二成分塩基度) が用いられることが多いが、光学的塩基度であればSiO₂、 CaO以外の多様な元素の寄与を考慮した塩基度を簡便に 計算することができる。表3に、SiO₂50% - CaO 30% -Al₂O₃15% - FeO 15%の組成(重量ベース)を基準として、 SiO₂の10%を他元素酸化物に置換した場合の光学的塩基度 の増減を示す。光学的塩基度に与える寄与の序列は $Na_2O > K_2O > CaO > MgO > Al_2O_3 > FeO$ と塩基性の最も高いア ルカリ金属元素の寄与が最も大きい結果となっており、二成分

表3 光学的塩基度に与える各元素の影響

置換元素	光学的塩基度	塩基度の増減	二成分塩基度
基準*	0.598	-	0.60
CaO	0.641	+0.043	1.00
AI_2O_3	0.613	+0.014	0.75
FeO	0.607	+0.009	0.75
Na₂O	0.649	+0.051	0.75
K ₂ O	0.647	+0.049	0.75
MgO	0.631	+0.033	0.75

* SiO₂ 50 %- CaO 30 %- Al₂O₃ 15 %- FeO 15 %

塩基度では表現できない幅広い多成分系酸化物を表現可能な 塩基度指標であることが分かる。

スラグの光学的塩基度とCs 揮散率との関係について、プラン ト実証試験とは別にラボ試験を行った。模擬土壌(真砂土と 腐葉土の混合物 (重量比 85:15) にCs,CO, 試薬を0.5% 添加 したもの)を試料とし、融剤として Li,CO, (キシダ化学株式会 社、特級)、Na₂CO₃、Ca(OH)₂、Fe₂O₃、Na₂B₄O₇·10H₂O、 PbO(以上、シグマアルドリッチジャパン株式会社、特級) を20~30%添加し、スラグの光学的塩基度を意図的に変 化させた条件で試験を行った。 揮散剤には CaCl, 試薬 (シグ マアルドリッチジャパン株式会社、特級)を一律で10%添加 し、試料中 Cl 濃度を6.4%で一定とした。試験方法は既報¹³⁾ のラボ試験と同じとした。試料を舟形の磁性ボート(W 20 mm×L 150 mm×H 12 mm) に充填し、1350 ℃に調整した 電気マッフル炉(株式会社共栄電気炉製作所、SiC ヒータ、炉 室空間 W 300 mm×D 400 mm×H 300 mm) に挿入し、15 分間保持して溶融した。15分経過後、磁性ボートを炉内から 取出し、空気中で自然冷却した後、スラグを磁性ボートから分

離し、Cs含有濃度を分析した。溶融前後の重量及びCs含有 濃度からCs揮散率を算出した。

3. 結果と考察

(1) 投入物の組成

表4に、代表条件として RUN 1-2(土壌[草木類なし])、 RUN 2-2(土壌[草木類あり])、RUN 3-1(Cs 揮散率≧ 90%)、RUN 4-2(バイオ灰)、RUN 4-4(下水灰)、RUN 5 (Cs 揮散率≧ 99%)における投入物の組成を示す。概ね、混 合比率に基づいた想定通りの組成であった。

(2) 溶融運転状況

各RUNとも8時間以上の連続定常運転を行った。運転中 の溶融炉内温度、投入量、スラグ排出量はいずれも安定し ており、運転状態は良好であった。図4に、一例としてRUN 4-1での各部温度トレンドを示す。RUN 4-1では酸素富化に より炉内温度を1400℃に高めた運転を行っていたが、溶融 炉内(主燃焼室)温度は1400℃前後で安定的に推移してい ることが分かる。表5に、代表条件での溶融温度及び固形 物量の収支を示す。スラグ化率については、各 RUN とも 90%前後で高く、炉内で処理物が飛散せずに溶融処理され ていることが確認された。溶融飛灰化率については、一段 BFのRUN1~3では24~28%と高かったが、二段BFの RUN 4~5では5~9%と概ね1/3~1/4に低減した。一 段 BF では、一つの BF において、式 (2 a) の反応により生じ る溶融飛灰と式(2b)、(2c)の反応により生じる酸性ガス中 和物の両方を捕集するため、BF 灰の量は多かったが、二段 BF を用いることにより、一段目の No.1 BF では式 (2 a) によ る溶融飛灰のみを捕集し、酸性ガスはそのまま気体状で 通過させるため、Cs 濃縮物である No.1 BF 灰の量が少なくな

		RUN 1-2	RUN 2-2	RUN 3-1	RUN 4-2	RUN 4-4	RUN 5	
項目	単位	土壌 [草木なし]	土壌 [草木あり]	Cs 揮散≧90%	バイオ灰	下水灰	Cs 揮散≧99%	
SiO ₂	% (dry)	41.7	30.8	27.8	34.2	24.2	16.0	
AI_2O_3	% (dry)	9.0	7.1	5.8	9.3	13.1	4.3	
CaO	% (dry)	9.7	12.1	30.5	23.1	16.4	26.9	
FeO	% (dry)			*		11.8	*	
P_2O_5	% (dry)			_ `		19.6		
Na	% (dry)	9.9	11.1	1.9	1.4	1.0	0.7	
K	% (dry)	1.3	1.0	0.9	2.3	1.4	0.8	
Cs	% (dry)	0.17	0.14	0.25	0.10	0.20	0.15	
Cl	% (dry)	10.2	11.2	18.1	14.9	5.8	8.0	
S	% (dry)	<0.01	0.03	0.04	0.22	0.23	0.04	

表4 投入物の組成

* 未測定(濃度が高かった下水灰のみ測定)



り、溶融飛灰化率が低減した。

 $MCl_x(g) \rightarrow MCl_x(s)$ (2a) M:Csなどアルカリ金属元素、重金属元素 2HCl(g)+Ca(OH)₂(s) → CaCl₂(s)+2H₂O(g)(2b)

 $SO_2(g) + Ca(OH)_2(s) \rightarrow CaSO_3(s) + H_2O(g) \quad \dots \dots \quad (2c)$

(3) 溶融炉での Cs の揮散効果

表6に、各RUNにおける溶融炉でのCsの揮散率を示す。 この揮散率は投入量、スラグ量及び投入物中、スラグ中のCs 濃度から式(3)により算出した。

揮散剤として CaCl₂ を添加することにより、対象物種によら ずCsの揮散が起こり、全条件において85%以上の高いCs 揮散率が得られた。図5に、Cl添加率(投入物中灰分量に対 する Cl 添加量) と Cs 揮散率との関係を示す。Cl 添加率が高 い条件ほどCs 揮散率は高く、プラント実証規模においても CaCl2の添加によりCsの塩化揮発が促進されることが示され た。また、土壌、バイオ灰、下水灰いずれの処理対象物につ いても、草木類すなわち可燃物を含む条件の方が Cs 揮散率 は高かった。既報¹³⁾のラボ試験において、可燃物を CaCl₂と 混合添加することで Cs 揮散が促進される結果が得られてお り、本結果はそのラボ試験結果と符合している。可燃物の添 加により、燃焼場におけるCs 元素近傍の酸素分圧が低下する ことから、炉内の酸素分圧と CsCl ガス(揮散時に予想される 化学形態)の生成との関係について、熱化学平衡計算を行っ た。反応式(4)の標準反応ギブスエネルギーを純物質のギ ブスエネルギー¹⁶⁻¹⁸⁾から求め、各酸素分圧における CsCl ガ ス平衡分圧を算出し、プロットした。なお、計算では、Cs,O (slag)のスラグ相中の活量係数は実測値と合うように2×10⁻¹³ とした。

 $Cs_2O(slag)+Cl_2(g)=2CsCl+1/2O_2(g)$ (4) g: ガス、slag: スラグ

	項目			RUN 1-2	RUN 2-2	RUN 3-1	RUN 4-2	RUN 4-4	RUN 5
区分			単位	土壌 [草木なし]	土壌 [草木あり]	Cs 揮散 ≧ 90%	バイオ灰	下水灰	Cs 揮散 ≧ 99%
溶融	炉内温度		°C	1,250	1,280	1,350	1,400	1,400	1,400
温度	純酸素吹込量		m³/h	-	-	12	80	120	50
		湿	kg/h	125	198	275	159	128	218
投入	投入量	乾	kg/h	111	154	203	152	119	167
		灰分	kg/h	97	124	168	133	113	110
	スラグ量 -	湿	kg/h	99	108	168	120	108	110
		乾	kg/h	96	103	160	113	104	107
-ныци -	CaCO3 吹込量		kg/h		-			2.8	4.7
19F山 ·	No.1 BF 灰量		kg/h	(-	一段 BF のため))	10.2	6.3	9.9
-	Ca(OH) ₂ 吹込量	- -	kg/h	9.9	7.6	22.3	62.6	58.5	39.3
	BF 灰量 No.2 BF 灰量		kg/h	26.5	29.7	47.3	83.9	75.7	50.2
北山卒	スラグ化率 *1		%	98.8	83.4	95.1	84.8	91.9	97.2
17F田平 ·	溶融飛灰化率*2		%	27.3	24.0	28.1	7.7	5.5	9.0

表5 溶融温度及び固形物量の収支

*1 スラグ量(乾)/投入量(灰分)×100

*2 RUN 1~3:BF 灰量/投入量 (灰分)×100、RUN 4~5:No.1 BF 量/投入量 (灰分)×100

Y. Kamata et al.

RUN No.		試験内容		投入物 Cs 濃度 % (dry)	スラグ Cs 濃度 % (dry)	Cs 揮散率 %
	1-1		CaCl ₂ 10%	0.15	0.021	87.5
1	1-2	土壌[草木なし]	CaCl ₂ 20%	0.17	0.024	91.2
	1-3	i	酸素富化	0.15	0.013	92.5
2	2-1	(CaCl ₂ 10%	0.13	0.015	92.3
	2-2	土壌[草木あり]	CaCl ₂ 20%	0.14	0.011	95.3
	2-3	i	酸素富化	0.14	0.0080	96.2
2	3-1	Cc / / / / / / / / / / / / / / / / / / /	0/	0.25	0.0034	99.0
3	3-2	CS 揮 敗 举 兰 90	70	0.27	0.0025	99.4
	4-1	土壤		0.14	0.0077	96.7
	4-2	バイオ灰		0.10	0.0039	97.1
4	4-3	バイオ灰+土地	丧	0.14	0.0033	98.4
	4-4	下水灰	下水灰		0.0078	96.5
	4-5	下水灰+土壤		0.17	0.0055	97.6
	5	Cs 揮散率≧99	%	0.15	0.00027	99.9





図 5 Cl 添加率と Cs 揮散率との関係

1400℃での計算結果を図6に示す。酸素分圧が低いほど CsCl(g)の平衡分圧が高く、すなわちCsが揮散しやすい傾 向となっていることから、可燃物の添加により酸素分圧が低下 し、Csの平衡形態が酸化物側(スラグ)から塩化物側(ガス) へ相対的に移動したため、Cs揮散が促進されたと考えられる。

土壌とバイオ灰、下水灰とで、同一の Cl 添加率でも Cs 揮 散レベルは異なる結果となった。この違いは Cl 添加率以外の 因子の影響であると考えられる。Cl 添加率以外の影響因子と しては、草木類(可燃物)の量、スラグの塩基度、溶融温度 が挙げられる。そこで、① Cl 添加率、②可燃物比率(投入物 中灰分量に対する可燃物量)、③スラグの光学的塩基度、④ 溶融温度の4つを説明因子とした重回帰分析を行った。

スラグの光学的塩基度とCs 揮散率との関係については、別 にラボ試験を実施した。土壌試料に、Cl 濃度一定条件下で 6種の異なる融剤を数水準で添加し、スラグの光学的塩基度 を意図的に変化させた条件で溶融させた。光学的塩基度と Cs 揮散率との関係を図7に示す。スラグの光学的塩基度が高 い条件はCs 揮散率も高く、両者の間には概ね正の関係が認





められた。したがって、Cl添加率が同一であれば、スラグの光 学的塩基度が 0.5 ~ 0.7 程度の範囲においては、スラグの光 学的塩基度が高いほどCs 揮散率は高いことが示された。スラ グは SiO₂、 P_2O_5 などの酸性酸化物(酸素と架橋して強固な 結合でガラスの網目を形成)と CaO、Cs₂O、K₂O、Na₂O な どの塩基性酸化物(酸素と架橋せずに電気的中和によりガラ スの網目を修飾)とから構成される多成分系の酸化物ガラス であり、酸性酸化物に含まれる架橋酸素は電子供与性(有効 電荷)が低く、塩基性酸化物に含まれる非架橋酸素は電子 供与性が高い。塩基度が増加して塩基性酸化物の比率が増 えると、非架橋酸素の比率が増加して非架橋酸素1個当りの 電子供与性が低下するため、Cs などアルカリ金属原子は相対 的に酸素との結合力が低下し、揮散しやすくなると考えられる。

Cs 揮散率を目的因子とし、① Cl 添加率、②可燃物比率、 ③スラグの光学的塩基度、④溶融温度の4つを説明因子とし た重回帰分析の結果を抜粋して表7に示す。t値はそれぞれ の説明因子が目的因子に与える影響の大きさを表し、絶対値 が大きいほど影響が強く、一般的に絶対値が2より小さいと統 計的にその説明因子は目的因子に影響しないと判断できる。 P 値はそれぞれの説明因子の係数の有意確率を表し、一般的 に有意確率が0.05(5%)を下回っているとその説明因子は目 的因子に対して関係性があると判断できる。説明因子①、②、 ④を考慮したCase4 における決定係数が0.848 と最も大きく、 相関性が高い結果となった。Case4 でのt 値は各因子とも2以 上と高く、P値は0.05以下と低かったことから、回帰分析結果 は概ね妥当であると考えられた。結果的に、スラグの光学的 塩基度の影響は除外されたが、これは、本研究では高い Cs 揮散率レベルでの比較となるよう、全ての RUN について薬剤 添加率を高めた塩基度の高い条件としたため、その条件範囲 においては Cs 揮散率への塩基度の影響が明確に現れず、統 計処理上は関係性が低い結果となったと考えられる。以上から、本研究の条件範囲においては、Cs 揮散率は式(5)に示す重回帰式により推定できると推測された。

Cs 揮散率 (%) = 42.4 + 11.6X + 3.45Y + 0.037Z ······ (5) X:Cl 添加率 (kg-Cl/kg-投入物灰分) Y:可燃物比率 (kg-可燃物/kg-投入物灰分) Z: 溶融温度 (℃)

この重回帰式(5)を用いて、既報¹³⁾のラボ試験でのCs揮 散率を推定し、実測値との比較を行った。都市ごみ焼却灰に CaCl₂試薬、活性炭試薬を5~20%添加した条件を用いた。 結果を図8に示す。実測値は、推定値と概ね同程度ではあっ たが、推定値よりも全体的に3~5%程度高い結果となった。 プラント試験で用いた可燃物は腐葉土とおがくずの混合物で あり可燃物中の炭素濃度は46.3%と低かったが、ラボ試験で 用いた可燃物は活性炭試薬であり、可燃物中の炭素濃度は 92.8%と高かったことから、ラボ試験の方が可燃物の還元力 が強く、Cs近傍の酸素分圧がより低かったため、図6に示し た通り、CsCl(g)の平衡分圧が高くなり、高いCs揮散率が得 られたと考えられる。

図9に、Cs 揮散率とNa、K 揮散率との関係を示す。両者の間には正の相関が認められ、CsはNa、Kと同様の原理で揮散していることが示唆された。NaよりKの方が相関性が高かった。揮散率の序列はCs > K > Naであった。ラボ試験¹³⁾でも同様の結果が得られており、溶融温度における各アルカリ金属塩化物の蒸気圧¹⁹⁻²³⁾の違いに起因した序列であったと考えられる。

Cs 揮散率 90% 以上を指向した RUN 3、99% 以上を指向 した RUN 5 では、草木類と添加薬剤の量を調整することによ

Y. Kamata et al.

	条件	名		Case1	Case2	Case3	Case4	Case5
	① Cl 溺	和率		0	0	0	0	0
本 南部明田 7	②可燃	物比率			0	0	\bigcirc	\bigcirc
	③スラ	グの光	学的塩基度			0		0
	④溶融	温度					0	0
重注	央定係数	(補正)	R2	0.269	0.492	0.448	0.848	0.843
			係数	91.6	90.5	81.6	42.4	30.8
「五下			標準偏差	1.9	1.6	26.1	9.3	17.1
则片			t 値	48.3	55.4	3.1	4.5	1.8
			P值	0.00	0.00	0.01	0.00	0.11
			係数	17.1	14.3	12.7	11.6	9.7
X1:			標準偏差	7.1	6.0	7.7	3.3	4.2
Cl 添加率			t 値	2.4	2.4	1.6	3.5	2.3
			P值	0.03	0.04	0.13	0.01	0.05
			係数		6.6	5.6	3.4	2.1
X2:			標準偏差		2.6	4.1	1.6	2.3
可燃物割合	ĩ		t 値	-	2.5	1.4	2.2	0.9
			P 値		0.03	0.20	0.05	0.37
			係数			15.5		19.8
X3:			標準偏差	_	_	45.5	_	24.3
スラグの光	学的塩基	基度	t 値	-	-	0.34	-	0.82
			P 値			0.74		0.43
			係数				0.037	0.037
X4:			標準偏差	_	_	_	0.007	0.007
溶融温度			t 値	-	-	-	5.2	5.1
			P 値				0.0004	0.0006

表7 Cs 揮散率への影響因子に関する重回帰分析結果





り、RUN 3 で 99.4 %、RUN 5 で 99.9 % と目標値以上の高い Cs 揮散率を実証することができた。

実際の汚染物中のCs濃度は、安定性Cs₂CO₃試薬を0.2% 添加した本試験の試料と比べるとかなり低いが、溶融炉内に

おける Cs の気固分配比は理論的には Cs 含有濃度によらず一 定であることから、実際の汚染物に対しても同様の条件で溶 融処理を行えば、同程度の Cs 揮散率が得られると考えられ る。そこで、安定性 Cs と放射性 Cs の揮散挙動を比較するラ



ボ試験を行った。安定性 Cs₂CO₃ 試薬を 0.2% 添加した非 汚染土壌と放射性 Cs を 258,000 Bq/kg 含む汚染土壌につい て、CaCl₂ 試薬を同量添加した条件で 1350 ℃での溶融ラボ試 験を行い、Cs 揮散率を比較した。土壌は、どちらも福島県内 の水田土壌とした。試験方法は既報¹³⁾のラボ試験と同じとし た。結果を図 10 に示す。どちらの試料も、Cl 添加量の増加 に伴いCs 揮散率は増加し、増加の程度は概ね同じであった。 したがって、放射性 Cs を極微量に含有する実際の汚染物か らも、溶融技術は Cs を有意に揮散分離できると考えられた。 また、土壌中の Cs には、粘土鉱物のフレイドエッジサイトに 強固に吸着した固定態の Cs もあるが、溶融は処理物を溶かし て均質な融液状態にして Cs を揮散分離する技術であることか ら、このような固定態の Cs に対しても有効であると考えられる。

(4) BF 入口排ガスの性状

表8に、代表条件におけるBF入口での排ガス性状を示す。

HCl 濃度については、揮散剤の添加率に応じた濃度となっ ており、1,900 ~ 11,000 ppm (O_2 12 % 換算) であった。SO_x 濃度については、下水灰のS 濃度が 0.25 % と高かったため、 RUN 4-4 は 43 ppm (O_2 12 % 換算) と比較的高かったが、 他の条件については、概ね10 ppm 前後と低かった。

(5) BF 灰及び BF 出口排ガスの性状

表9に、BF灰の組成を示す。Cs 濃度については、一段 BFのRUN 1~3 ではCs 濃度が0.66%~0.90%であったの に対し、二段 BFの RUN 4~5 では 1.24~1.72% と高く、 二段 BFの適用によるCsの濃縮率増加が確認された。

二段 BF における No.1 BF 灰は、溶融炉内で揮散した低沸 点金属化合物が凝縮固化したダストであるため、剥離剤として 吹込んだ CaCO₃ を除くと鉱物元素は少なく、アルカリ金属化 合物が主体であった。下水灰を処理対象とした RUN 4-4 に ついては、鉄化合物の濃度も高かった。化合物形態としては、 硫酸塩も含まれていたが、大部分は塩化物であった。

二段 BF システムにおける各排出物の流れを図 11 に示す が、No.1 BF 灰については、湿式処理(水溶解-固液分離-Cs 吸着)を施して主成分のNa、Kを分離し、Csを二次濃縮し て保管することを想定しているため、溶出試験を実施し水溶性 に関する調査を行った。土壌、バイオ灰、下水灰を処理対象 物とした条件 (RUN 4-1、4-2、4-4) での No.1 BF 灰につい て酸溶出条件の19号試験、水溶出条件の46号試験を行っ た。両試験における各元素の溶出率を図12に示す。鉱物元 素である Si は 19 号試験、46 号試験共に溶出率が低く、Ca も 46 号試験での溶出率が低かったが、アルカリ金属元素である Na、K、Cs については 19 号試験、46 号試験どちらにおいても 溶出率が80%前後で高く、特にCs溶出率は概ね90%以上 と高かった。塩化揮発により塩化物形態で揮散、凝縮固化 したものが大部分であったため、水溶性が高かったと考えられ る。したがって、No.1 BF 灰中の Cs は pH によらず水溶性が 高く、湿式処理による二次濃縮と保管が可能であると考え

項目			RUN 1-2	RUN 2-2	RUN 3-1	RUN 4-2	RUN 4-4	RUN 5
		単位	土壌 [草木なし]	土壌 [草木あり]	Cs 揮散 ≧ 90%	バイオ灰	下水灰	Cs 揮散 ≧ 99%
世ポット	湿	Nm³/h	2,200	2,300	2,300	1,600	2,300	2,750
伊クヘ里	乾	Nm³/h	1,700	1,500	1,400	1,100	1,600	1,960
排ガス温度	排ガス温度		195	179	176	180	177	194
水分		%	23.8	36.3	35.8	30.2	31.4	28.9
ばいじん量(0 2	ばいじん量(0₂ 12% 換算)		8.3	11	12	6.3	4.0	3.7
SO _x (O ₂ 12% 換算)		ppm	2	<1	17	11	43	7
HCI (O ₂ 12% 換算)		ppm	2,300	1,900	5,600	11,000	9,500	4,000

表8 BF入口での排ガス性状

		RUN 1-2	RUN 2-2	RUN 3-1	RUN	4-2	RUN	4-4	RU	N 5
項目	単位	土壤	土壤	Cs 揮散	バイ	才灰	下水灰		Cs 揮散≧99%	
		[草木なし]	[草木あり]	≧ 90%	No.1	No.2	No.1	No.2	No.1	No.2
SiO ₂	% (dry)	0.24	0.15	<0.01	0.11	0.13	0.12	0.26	0.47	0.49
AI_2O_3	% (dry)	0.02	<0.01	<0.01	0.04	0.06	0.06	0.04	0.19	0.05
Ca	% (dry)	21.6	18.6	26.1	8.1	44.7	14.5	42.0	20.4	38.7
Fe	% (dry)			*			10.3	0.04		*
Р	% (dry)			-			0.5	0.02	-	
Na	% (dry)	17.2	18.7	10.4	8.9	-	6.6	-	5.5	-
К	% (dry)	2.9	3.1	2.8	17.2	-	8.4	-	6.6	-
Cs	% (dry)	0.84	0.66	0.90	1.24	-	1.72	-	1.43	-
Cl	% (dry)	32.0	34.9	34.3	30.6	16.8	23.0	17.5	22.5	19.0
SO_4	% (dry)	0.08	0.11	0.16	4.8	0.2	1.6	0.2	-	-
CO ₃	% (dry)	-	-	-	7.2	9.9	11.3	6.1	28.0	8.0
ОН	% (dry)	-	-	-	-	26.6	-	20.1	-	18.6

表 9 BF 灰の組成

* 未測定 (濃度が高かった下水灰のみ測定)



図 11 二段 BF システムにおける各排出物の流れ

られた。

No.2 BF では、HCl、SOx のアルカリ中和除去を行った。 その結果、No.2 BF 出口の HCl 濃度は 2 ~ 65 ppm(O_2 12 % 換算)に低減した。図 13 に、消石灰の当量比と HCl 除去率 との関係を示す。消石灰当量比が高いほど HCl 除去率は高 く、HCl 除去率 90% 以上を得るためには概ね当量比 2 以上、 99% 以上を得るためには概ね当量比 2.5 以上が必要であるこ とが分かった。また、No.2 BF 出口のばいじん濃度は、いず れも 0.002 g/Nm^3 未満 ($O_2 12\%$ 換算)となり、BF でのばい じん除去率は 99.9% 以上と高かった。



図 12 No.1 BF 灰の 19 号試験、46 号試験における各元素溶出率



図 13 No.2BF における消石灰当量比と HCI 除去率との関係

同定結晶種		土壤 (RUN 4-1)	バイオ灰 (RUN 4-2)	下水灰 (RUN 4-4)
CaClOH [Calcium Chlolide Hydroxide]	%	63	65	63
CaCl ₂ •4H ₂ O [Calcium Chlolide Hydrate]	%	19	_*	_*
CaCO ₃ [Calcite]	%	_*	6	8

18

表 10 No.2 BF 灰の X 線回折分析結果

*同定されず

29

29

No.2 BF 灰の組成は、純粋な酸性ガス中和物であるため、 Ca、Cl、OH が主体の組成であった。No.2 BF 灰は、図11に 示した通り、溶融処理の揮散剤、融剤として循環再利用する ことを想定しているため、X 線回折分析による結晶相の同定 及びその内訳の半定量分析を行った。表10に、土壌、バイ オ灰、下水灰を処理対象物とした条件での、No.2 BF 灰の X 線回折分析結果を示す。70~80%が中和生成物である CaClOH、CaCl₂・4 H₂O、CaCO₃、残りの20~30%が未反 応薬剤 Ca(OH)₂であると推定された。溶融薬剤(揮散剤、 融剤)と類似の形態であることから、No.2 BF 灰は溶融薬剤と して循環再利用が可能であると考えられた。

(6) スラグからの Cs 溶出挙動

%

Ca(OH)₂

[Portlandite, syn]

図14に、土壌、バイオ灰、下水灰を処理対象物とした条件で得られたスラグの19号試験、46号試験における各元素の 溶出率を示す。

酸溶出条件の19号試験では、バイオ灰、下水灰について は鉱物元素(Si、Ca)とアルカリ金属元素(Na、K、Cs)の溶出 率は概ね同レベルであり、スラグのガラス構造全体が均一に 溶出していることが示された。土壌については、一部の白色鉱 物結晶がスラグ中に残存したため、その影響で鉱物元素とア ルカリ金属元素の溶出レベルが異なった。Cs 溶出率は6.9~ 43.6%であった。元々、19号試験は汚染土壌の直接経口摂取 リスクを評価するためのものであり、含有量基準は100 mg/日

Y. Kamata et al.



図 14 スラグの 19 号試験、46 号試験における各元素溶出率

の土壌を摂取することを想定して定められている。いま、仮に 放射能濃度 1,000 Bq/kg のスラグを100 mg/日摂取した場合、 その 43.6%が体内で溶出したとしても暴露量は 0.0436 Bq/日 と算出され、飲料水基準 10 Bq/Lの水を 2 L/日摂取した場合 の暴露量 20 Bq/日と比較して非常に低いレベルであった。処 理対象物による溶出レベルの違いは、塩基度の違いや結晶、 分相構造の有無等に起因すると考えられる。筆者ら^{24,25)}は、 様々な組成の都市ごみ溶融スラグについて 19 号試験を行い、 スラグの塩基性元素(Ca、Na、K)含有濃度が高いほど各元 素の溶出率は高く、その理由は、上述したCs 揮散率に与える 塩基度の影響に関する考察と同様に、塩基度の高いスラグの 方が架橋酸素の割合が少なく、酸素との結合力が弱いためで あることを報告している。

水溶出条件の46号試験では、鉱物元素とアルカリ金属元素 とで溶出率が異なり、スラグ構造中のアルカリ金属元素が選択 的に溶出していることが示された。ただし、Cs 溶出率は0.02 ~1.1%であり、看倉ら²⁶⁾の報告と同様に低い値であった。 46号試験は汚染地下水の飲用リスクを評価するためのもので ある。ここで、溶出濃度を飲用する地下水中の汚染物質濃度 に相当すると保守的に仮定しても、放射能濃度1,000 Bq/kg のスラグの1.1%が溶出した場合の溶出濃度は1.1 Bq/Lであり、 飲料水基準10 Bq/Lと比較すると低いレベルであった。ガラ スの耐水機構については実用ガラスで様々な知見^{27),28)}があり、 ガラスを水中に浸漬すると、水和反応によりアルカリ金属等、 塩基性元素が選択的に溶出して表面にSiOH 層が形成され るため、鉱物元素は相対的に溶出率が低いことが分かって いる。

4. 結論

溶融テストプラントを用いて、土壌、バイオ灰、下水灰等、 様々な固形物を処理対象として安定性 Cs₂CO₃ を添加した実 証試験を行い、下記の結果を得た。

- ① CaCl₂の添加によりCs 揮散率は処理対象に関わらず増加し、プラント実証レベルでもCaCl₂はCsの塩化揮発促進効果を有することが実証された。また草木類を含む条件の方がCs 揮散率は高く、可燃物の共存による揮散促進効果も確認された。添加薬剤と草木類の量を増加させることにより、最大99.9%のCs 揮散率が得られた。
- ② Cs 揮散率への影響因子に関し重回帰分析を行い、本研究の条件範囲では、Cs 揮散率はCl 添加率、可燃物比率及び溶融温度の3因子を用いた重回帰式により推定できると推測された。
- ③ Cs 揮散率は Na、K 揮散率と正の相関を有しており、揮 散率序列はCs > K > Na であった。
- ④ 二段 BFの適用により Cs は No.1 BF 灰に濃縮され、灰の量は一段 BFの場合に対して1/3 ~ 1/4 に低減された。
- ⑤ No.1 BF 灰は、アルカリ金属の塩化物が主体であった。 含まれる Cs は pH によらず水溶性が高く、湿式処理(水 溶解 - 固液分離 - Cs 吸着)による二次濃縮と保管が可 能であると考えられた。
- ⑥ No.2 BF 灰は、酸性ガス中和物が主体であり、70~ 80%が中和生成物である CaClOH、CaCl₂·4 H₂O 及び CaCO₃、残りの 20~30%が未反応薬剤 Ca(OH)₂で あると推定され、溶融薬剤として循環再利用が可能で あると考えられた。

⑦ スラグからのCs 溶出率は、19号試験(酸溶出条件)では

6.9~43.6%、46号試験(水溶出条件)では0.02~1.1% であった。

参考文献

- 「東京電力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」環境省 HP(http://www.env. go.jp/jishin/rmp.html#roadmap)、2014 年 12 月閲覧
- 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試験。第24回廃棄物資源循環学 会研究発表会論文集、469-470 (2013)
- 3) 阿部 清一、川本 克也、倉持 秀敏、大迫 政浩:溶融 による土壌、バイオマス焼却灰、下水汚泥焼却灰からの セシウム分離実証試験。第25回廃棄物資源循環学会 研究発表会論文集、373-374 (2014)
- 4) 舟川 将史、田邉 康太、村上 優、奥田 信康:植物が 混入した放射性セシウム汚染土壌の多段階土壌洗浄処 理に関する研究。第1回環境放射能除染研究発表会要 旨集、76(2012)
- 5) 中島 卓夫、松生 隆司、大山 将:湿式分級に表面研 磨を付加した土壌洗浄処理技術による放射能汚染土壌 の減容化。第1回環境放射能除染研究発表会要旨集、 77(2012)
- 6) 阿部 紘子、中村 秀樹、松宮 浩志、田嶋 直樹、金子 昌章:シュウ酸等を用いた汚染土壌除去法の除去率 向上の検討。第2回環境放射能除染研究発表会要旨集、 14(2013)
- 7) 高倉 恵太、小林 嗣幸、千葉 怜、高津 光志、松山 加苗、大村 恒雄:汚泥飛灰からの放射性セシウム除 染技術の開発。第2回環境放射能除染研究発表会要 旨集、60 (2013)
- 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, No.14, 16-17 (2012)
- 9) 釜田 陽介、立道 隆幸、佐藤 淳、上林 史朗、阿部 清一:溶融炉内における処理物中塩化物、可燃物濃 度と重金属揮散率との関係。第21回廃棄物資源循環 学会研究発表会論文集、411-412 (2010)
- 10) 佐藤 淳、釜田 陽介、立道 隆幸、渡邉 敬一:焼却残 渣溶融における廃プラスチックのケミカルリサイク ル効果の実証調査。第15回廃棄物学会研究発表会論 文集、1012-1014 (2004)
- H. Kageyama, H. Nakada, N. Mihara, D. Kucher, M. Kubota and H. Matsuda: Effect of Cl compounds on lead volatilization behavior from molten slag. Proc. International Symposium on EcoTopia Science 2007, 912-914 (2007)

- 12)小西洋紀、胡浩、小野田弘士、永田勝也:溶融飛 灰資源化の現状と展望。第20回廃棄物資源循環学会 研究発表会論文集、361-362 (2009)
- 13) 釜田 陽介、佐藤 淳、上林 史朗、阿部 清一:溶融に 伴う都市ごみ及び下水汚泥焼却灰中セシウムの揮散 特性に関する基礎研究。環境放射能除染学会誌、2, 3-11 (2014)
- 14) B. P. Spalding: Volatilization of cesium -137 from soil with chloride amendments during heating and vitrification. *Environ. Sci. Technol.*, 28, 1116-1123 (1994)
- J. A. Duffy, M. D. Ingram: Nephelauxetic effect and Pauling electronegativity. J. Chem. Soc. Chem. Comm., 635 (1973)
- M. W. Chase, Jr.: "NIST-JANAF thermochemical tables, Fourth edition". J. Phys. Chem. Ref. Data, Monograph, 9, 1-1951 (1988)
- R. H. Lamoreaux, D. L. Hildenbrand: High temperature vaporization behavior of oxides. I. Alkali metal binary oxides. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, **13**, 151-173 (1984)
- 18) I. Barin, O. Knacke, and O. Kubaschewski: "Thermochemical Properties of Inorganic Substances", Springer-Verlag, Berlin (1977)
- M. D. Scheer, J. Fine: Entropies, heats of sublimation, and dissociation energies of the cesium halides. J. Chem. Phys. 36, 1647-1653 (1962)
- 20) E. F. Fiock, W. H. Rodebush: The vapor pressures and thermal properties of potassium and some alkali halides. J. Am. Chem. Soc. **48**, 2522-2528 (1926)
- J. E. Mayer, I. H. Wintner: Measurements of low vapor pressures of alkali halides. J. Chem. Phys. 6, 301-306 (1938)
- 22) B. H. Zimm, J. E. Mayer: Vapor pressures, heats of vaporization, and entropies of some alkali halides. *J. Chem. Phys.* **12**, 362-369 (1944)
- 23) G. E. Cogin, G. E. Kinball: The vapor pressures of some alkali halides. J. Chem. Phys. 16, 1035-1048 (1948)
- 24) 釜田 陽介、佐藤 淳、上林 史朗、阿部 清一:溶融ス ラグのガラス骨格組成と鉛溶出挙動との関係(実験的 検討)。第20回廃棄物資源循環学会研究発表会論文 集、377-378(2009)
- 25) 釜田 陽介、加納 弘也、佐藤 淳、上林 史朗、阿部 清一:溶融スラグのガラス骨格組成と鉛溶出挙動との 関係(実炉スラグによる検証)。第20回廃棄物資源循 環学会研究発表会論文集、379-380(2009)

- 26) 肴倉 宏史、保高 徹生、石森 洋行、遠藤 和人:廃棄 物等からの放射性セシウムの溶出特性。平成 26 年度廃 棄物資源循環学会主催 第2回講演会「放射能汚染廃 棄物処理に関する科学的理解」、37-52 (2014)
- 27) 山根 正之:「はじめてガラスを作る人のために」、pp. 99-111、内田老鶴圃 (1989)
- 28) 作花 済夫、由水 常雄、伊藤 節郎、幸塚 広光、肥 塚 隆保、田部 勢津久、平尾 一之、和田 正道編:「ガ ラスの百科事典」、pp. 596-603、朝倉書店 (2007)

2015年2月18日受付 2015年4月6日受理

和文要約

1300 ~ 1400 ℃での高温熱処理により、各種固形物からCsを塩化揮発等により高度に分離濃縮、減容化できる溶融技術について、プラント試験レベルでのCs分離実証を目的とし、溶融テストプラントを用いて土壌、バイオマス焼却灰、下水汚泥焼却灰等、様々な固形物を処理対象とした試験を行った。その結果、処理対象に関わらず CaCl₂の添加によりCs 揮散率は増加し、プラント実証レベルでも CaCl₂ は Cs の塩化揮発促進効果を有することが実証された。また草木類を含む条件の方が Cs 揮散率は高く、可燃物の共存による揮散促進効果も確認された。添加薬剤と草木類の量を増加させることにより、最大 99.9 %のCs 揮散率が得られた。また、二段 BFの適用によりCs は No.1 BF 灰に濃縮され、一段 BFの場合に対して1/3 ~ 1/4 に減量した。No.1 BF 灰は、アルカリ金属塩化物が主体であり、水溶性が高かったため、湿式処理(水溶解ー固液分離-Cs 吸着)によるCsの二次濃縮、保管が可能であると考えられた。No.2 BF 灰は、純粋な酸性ガス中和物であり、CaClOH、CaCl₂・4H₂O、CaCO₃、Ca(OH)₂で構成されたため、溶融薬剤として循環再利用が可能であると考えられた。

┼┎╹┙┙┼║┼┎╹┙┙┼║┼┎╹┙┙┼║┼┎╹┙┙┽║┼┎╹┙┙┿

