# 廃棄物焼却炉内における放射性セシウムの蓄積挙動

水原 詞治1\*、川本 克也2、前背戸 智晴3、倉持 秀敏3、大迫 政浩3

1龍谷大学理工学部 環境ソリューション工学科(〒 520-2194 滋賀県大津市瀬田大江町横谷 1-5)

2 岡山大学大学院 環境生命科学研究科 (〒700-8530 岡山県岡山市北区津島中 3-1-1)

<sup>3</sup>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)

# Accumulative Behavior of Radioactive Cesium during the Incineration of Municipal Solid Waste

Shinji MIZUHARA<sup>1\*</sup>, Katsuya KAWAMOTO<sup>2</sup>, Tomoharu MAESETO<sup>3</sup>, Hidetoshi KURAMOCHI<sup>3</sup>, and Masahiro OSAKO<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Ryukoku University (1-5 Yokotani, Seta Oe-Cho, Otsu, Shiga 520-2194, Japan)

<sup>2</sup>Okayama University (3-1-1 Tsushimanaka, Kita-ku, Okayama, Okayama 700-8530, Japan)

<sup>3</sup>National Institute for Environmental Studies (16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506, Japan)

#### Summary

Understanding the long-term accumulation behavior of radioactive cesium (r-Cs) in municipal solid waste (MSW) incineration plants is important for safety management of them. In this study, first, not only air dose rate but also r-Cs activity in wall adhesion dust at different point in the inside of a MSW incineration plant were measured. The results showed that higher amounts of the Cs were observed in the surface layer of refractory and that higher air dose ratios were obtained in the upstream region in incineration process. However, the Cs content of adhered dust onto the surface material of incineration equipment was higher in downstream than upstream because of the decrease of flue gas temperature.

Key Words: Municipal solid waste incineration, Radioactive cesium, Accumulation behavior, Refractory, Air dose rate

# 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子力 発電所事故により、セシウム(Cs)等の放射性物質が環境中 に放出され、福島県を中心に東日本一帯に及ぶ広域な放射性 物質汚染が生じた。人々の生活活動に伴い放射性物質を含む 草木類が一般ごみにも混入し、それを焼却処理することによ り、各地の一般廃棄物焼却施設の焼却灰(主灰)、飛灰から 高濃度の放射性Csが検出される事態が起こった。国が定める 基準値(8,000 Bq/kg)を超える焼却灰等は指定廃棄物とな り、国の責任で処理することになっているが、いまだ処分でき ずに施設内に保管されている。その後、発生する焼却灰等の 放射性Cs濃度は相当程度低減してきたが、現在においても 福島県内を中心に高い状態は続いている。また現在、除染に 伴って発生した除染廃棄物を減容化するために福島県内では 仮設焼却炉の整備が進んでおり、相当程度高い濃度の除染廃 棄物を焼却し減容化することになると考えられる。 このような放射性物質を含む廃棄物の焼却処理過程においては、周辺環境に影響を及ぼさないように適切な対策技術の 適用が不可欠であり、放射性物質汚染対処特別措置法に基づく処理基準が設定され、環境省が発出した廃棄物関係ガイド ラインにおいても高度な排ガス処理設備の適用など必要な措 置が示されている。このような法的対応には、様々な調査研 究に基づく知見<sup>1)</sup>が基礎となった。

一方、焼却炉内における放射性 Cs の長期的な挙動を把握 することは、適正な施設の維持管理や解体撤去を実施する観 点で重要である。労働者の放射線被ばく防止の観点からは、 2013 年 4 月に電離放射線障害防止法の改正 (7 月から施行) が行われ、事故由来廃棄物等の処分を行う事業者について 放射線障害防止の措置をとることを義務付けるなど新たな規 定が盛り込まれたが、実際に維持管理を行う際に具体的にど のような点に留意して作業すべきか、技術的留意事項の整理 は十分になされていない。また、維持管理を行う上では、ど

\*Corresponding author: TEL: 077-544-7109, Fax: 077-544-7130, E-mail: mizuhara@rins.ryukoku.ac.jp

の程度炉内に放射性 Cs が蓄積しているかの把握が必要不可 欠である。

炉内耐火物へのCsの蓄積に関しては、Buecheleら<sup>2)</sup>が、放 射性および有害廃棄物のガラス溶融炉の耐火煉瓦による放射 性核種の吸収と濃縮の可能性を指摘し、溶融試験において耐 火物への Cs の浸透を報告している。 溶融処理工程での耐火 物への Cs の移動に関しては、大杉ら<sup>3)</sup>が溶融スラグの浸漬試 験から、Cs は耐火物のマトリックス部分(骨材の間の結合相) を移動することなどを報告している。また、放射性物質では ないが、金属鋳造等での耐火物への鉛や亜鉛などの重金属類 の浸透・蓄積、溶融処理に使用される Cr 系耐火物における 六価クロム化合物の生成 ・ 蓄積に関する知見も種々報告され ている<sup>4-6)</sup>。しかし、今般の原発事故に伴う放射性 Cs に汚染 された廃棄物の焼却処理における具体的な技術的対応策に示 唆を与えるには、蓄積のメカニズムや長期的な蓄積挙動等の 観点での知見は十分とはいえない。阿部ら7)は、今般の事故 に伴い汚染された廃棄物を処理している実際の焼却施設を対 象にして、炉内の空間線量率と付着物の放射能濃度に関する 測定・調査および炉内耐火物の深さ方向の分布を調査し、炉 内の空間線量率の上昇に炉内耐火物への放射性 Cs の蓄積が 原因となっている可能性を指摘した。しかし、一般廃棄物の 焼却方式や焼却物中放射性 Cs の濃度レベルは様々であり、 使用される炉内耐火物の性状も少なからず異なっていることか ら、今後適切な技術的対応策を提示するためには、多くの関 連データの取得と蓄積が必要である。特に、焼却施設等で使 用される耐火物は最終的に廃棄物として処分されることを考慮 すると、汚染廃棄物の処理により定量的にどれだけ蓄積して

そこで本研究では、焼却施設の維持管理や廃止後解体撤 去の安全な手法の確立に資するため、原発事故由来の放射性

いるかを把握する必要がある。

物質に汚染された廃棄物を処理している既存施設と災害廃棄 物処理の仮設焼却炉等を対象として、焼却炉内の点検補修時 に生じた耐火物の廃材を採取し、放射性 Cs 濃度を測定する ことで、耐火物への蓄積実態を明らかにすることを主な目的と した。合わせて、付着物の採取、炉内の空間線量率の測定を 行い、炉内への放射性 Csの蓄積挙動の把握を行った。

# 2. 調査方法

# (1) 炉内の空間線量率及び付着ダストの調査

炉内の空間線量率及び付着ダストの調査は、東北地方で現 在稼働中の焼却施設(流動床炉)で実施した。図1に対象施 設の処理フローの概要を示す。〇印が調査箇所であり、焼却 炉内の廃棄物および排ガスの流れに沿って、焼却炉内では炉 上・ 炉中・ 炉下の3か所 (それぞれ流動床の上部、中部、 下部であり、下部は流動砂残存部の少し上の箇所)、ガス冷 却部の入口・出口、空気予熱器、減温塔の上流・下流、バ グフィルターの入口と、施設の上流側から下流側まで内部の空 間線量率の測定を行った。また、各箇所に付着していたダス トを採取し、放射性物質濃度の測定を合わせて実施した。焼 却炉内のダストは炉上、炉下でクリンカのように数 cm 厚で付 着しており、炉中では炉壁表層に薄く付着している状態であっ た。空間線量率測定は Nal シンチレーション式サーベイメー ター (TCS-172B、日立アロカメディカル)を用い、炉内に設置 されている耐火物および炉壁直近をダストが付着した状態で測 定した。放射性 Csの測定は放射性物質濃度等測定方法ガイ ドライン<sup>8)</sup>に則りゲルマニウム半導体検出器を用いて行った。

# (2) 耐火物の測定

耐火物を採取した中間処理施設の概要を表1に示す。廃棄物の処理方式や焼却物中放射性Csの濃度レベルの違いを考



図1 調査対象施設における炉内空間線量率及び付着ダストの採取箇所の概要(〇:調査箇所)

施設記号 処理方式 材質	所在地址	或 試料採取年度	£ 採取箇所*	備考
A 溶融 Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 系	東海	2010 年度	主燃焼室	
B 焼却 SiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O	系 関西	2011 年度	ボイラー室	
C 溶融 Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 系	東北	2011 年度	二次燃焼室	
D 溶融 Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 系	関西	2011 年度	主燃焼室	
E 焼却 Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 系	東北	2012 年度	燃焼室	
F 溶融 SiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O	系 関東	2012 年度	後燃焼室	
G 焼却 SiC 系	中国	2012 年度	ストーカ側壁	
H 焼却 SiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O	系 東北	2013 年度	燃焼室	災害仮設**
I 焼却 SiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O	系 東北	2013 年度	二次燃焼室	災害仮設
J 焼却 SiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O	系 東北	2013 年度	ストーカ側壁	災害仮設

表1 耐火物採取施設の概要

\* 採取箇所の記載は、採取に協力した事業者からの報告に基づくもので、さらに詳細な採取場所の情報は不明。\*\*「災害仮設」:災害廃棄物の仮設焼却炉

《一《天】《云》《云》《云》《云》《云》《云》《云》《云》

慮し、2011年度に3施設、2012年度に4施設で行い、これら はいずれも一般廃棄物の処理施設である。また、2013年度は 災害廃棄物の仮設焼却炉を対象として3施設の調査を行っ た。調査対象施設の処理方式は、ガス化溶融炉、灰溶融炉、 ストーカ炉、キルン炉等である。調査対象施設は東日本だけ でなく、西日本に立地している施設も選定した。また、比較 対照として原発事故以前(2011年3月以前)の試料を1施設 から入手した。これら施設から採取した耐火物の一例を参考 として図2に示す。

採取した耐火物試料について、図3のように、炉内側から 原則2 cmの厚さ毎に切断・粉砕し、分析試料とした。各層 について、放射性物質濃度等測定方法ガイドラインに則りゲ ルマニウム半導体検出器を用いて放射性 Cs (<sup>134</sup>Cs、<sup>137</sup>Cs)の 測定を行った。

# 3. 結果および考察

#### (1) 炉内の空間線量率および付着ダストの調査

図1の施設で行った炉内空間線量率および付着ダストの 測定結果を図4に示す。ダスト中の放射性 Cs 濃度は<sup>134</sup>Cs と <sup>137</sup>Cs の合計値である。炉内よりも、温度が低下してくるガス 冷却部(420℃)や集塵後の飛灰において放射性 Cs が高く なる傾向が確認された。ダストに含まれる放射性 Cs は排ガス の組成を考慮すると CsCl であると考えられているが<sup>11</sup>、その 沸点、融点はそれぞれ 1293℃、645℃<sup>9,101</sup>とされており、こ のことから、高温の炉内で揮発した放射性 Cs は、排ガスが 冷却されるに伴い液化、またはさらに固体となり、温度が低 い下流側でダストに濃縮され濃度が高くなったと考えられる。

しかし、空間線量率の流れ方向の変化は、ダストの放射性 Cs 濃度とは異なる結果であった。すなわち、ダストの放射性 Cs 濃度が高い下流側の空間線量率は低く、ダストの放射性



図 2 採取耐火物の一例(施設 G)



#### S. Mizuhara et al.



図4 炉内空間線量率と付着ダスト放射能濃度の測定結果

Cs 濃度が低い上流側の空間線量率が高いというダスト濃度の 流れ方向の変化とは逆の結果であった。本施設では、焼却 炉からガス冷却部の上流側には耐火物が設置してあり、空気 予熱器以降の下流側には耐火物は設置されていない。この ことから、耐火物設置の有無により空間線量率が影響を受 けること、耐火物内に放射性セシウムが浸透、蓄積しているこ とが推測された。

以上の結果に関連し、阿部ら<sup>7)</sup>は同様に、炉内耐火物への放射性 Cs の蓄積の可能性を指摘している。その他の調査<sup>11,12)</sup>でも、空間線量率等の測定を実施しており同様の結果が確認されている。したがって、付着ダストは排ガスが冷却されていく下流側ほど放射性 Cs 濃度は高いが、耐火物が存在する上流側で空間線量率が高くなる現象は、一般的傾向であると理解される。

#### (2) 炉内空間線量率と飛灰濃度の関係

ここで、先に述べた他の既往調査結果等<sup>11-13)</sup>を合わせて整理し、施設内の炉内空間線量率の最大値と飛灰中の放射性 Cs 濃度との関係についてまとめると図5のようになる。飛灰中 の放射性 Cs 濃度は<sup>134</sup>Cs と<sup>137</sup>Cs の合計値である。これらは 全てストーカ式焼却施設における測定データである。飛灰の 放射性 Cs 濃度は、焼却対象物中に含まれる放射性 Cs 量に 依存し、適正な処分方法を判断するために定期的な濃度確認 が行われており、施設管理のうえで有用な指標となりうる。図 5より、施設の飛灰中の放射性Cs 濃度が高いほど、炉内空 間線量率の最大値が大きくなる傾向が分かる。図5の中では、 飛灰の放射性Cs 濃度の最大は15,000 Bq/kg 程度であり、 管理区域設定の目安である2.5 µSv/hを上回っていないが、飛 灰濃度がさらに高い場合は作業従事者等の被ばく防止上留意 が必要と考えられる。特に、現在避難指示区域内の高線量地 域における仮設焼却炉の整備が進んでいるが、作業者の被ば く防止対策については注意する必要があると考えられる。

なお、単純に飛灰濃度のみで空間線量率が説明できるとは



考えられず、炉形式、耐火物の性状、さらに耐火物がどの程 度の濃度にどの程度の期間曝露されているかといった過去の 履歴等も影響すると考えられ、それらの情報も含めて、今後 のデータの蓄積が必要である。

### (3) 耐火物中の放射性 Cs の実態調査

炉内耐火物への放射性 Cs の蓄積を考える上で、使用前の耐火物に含まれる放射性 Cs 等をバックグラウンド値として測定しておく必要がある。そこで、焼却施設、溶融施設で使用されることの多い SiO<sub>2</sub> - Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 系、SiC 系耐火物、Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 系耐火物を入手し、使用前に含まれる放射性 Cs 等の調査を行った。その結果、いずれの耐火物においても放射性 Cs は検出されなかった。しかし、耐火物試料から<sup>234</sup> Th、<sup>226</sup> Ra などの天然核種が検出され、これら耐火物の表面線量率を NaI シンチレーションを用いて測定すると、いずれも 0.1  $\mu$ Sv/h 程度を示したことから、炉内環境調査等において耐火物の表面線量率 測定時に放射性 Cs でない核種の影響を考慮する必要があると考えられる。

また、施設Aで使用され、原発事故以前に採取された耐火物の放射性Csを測定した結果、いずれの部位においても放射性Csは検出されなかった。1施設のみの調査ではあるが、これより原発事故以前の使用後耐火物にも測定に影響を与えるほどの放射性Csは含まれていないと推測された。

図6が耐火物中の深さ方向の放射性Cs濃度分布結果である。耐火物中の放射性Cs濃度は<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csの合計値である。施設Fは溶融施設であるが、採取箇所である後燃焼室の温度雰囲気は750~850℃であり、放射性Csが検出された施設の温度領域は全て同等程度であると考えられる。

これによると、非汚染地域である施設  $B \sim D$ 、I では放射 性 Cs は検出されなかった。施設 C、I は東北地方の耐火物で あるが、施設で処理されている廃棄物に含まれる放射性 Cs がおそらくは微量であったことから検出されなかった。

図6より、放射性Csが検出された耐火物では、いずれも



表層から炉内側になるにつれ減衰傾向を示すものの、表層から5 cmの地点においても放射性 Csが検出されており、耐火物に放射性 Csが蓄積していることが確認された。一方、仮設炉においても放射性 Cs が検出されたが、いずれの箇所も最大で5 cmの深さまでの蓄積であった。

各施設で採取試料の汚染度は特に表層で大きく異なってお り、これには処理廃棄物の放射能濃度が影響していると考え られる。施設 E における焼却飛灰中放射性 Cs 濃度は 5,000 ~ 10,000 Bq/kg 程度、施設 F における溶融飛灰中放射性 Cs 濃度は 10,000 ~ 15,000 Bq/kg、施設 H、J における焼却 飛灰中放射性 Cs 濃度はともに 1,000 Bq/kg以下である。耐 火物の使用期間、処理対象物の処理量や処理対象物の性状 等を考慮する必要があるが、耐火物に浸透、蓄積する放射性 Cs 濃度は、焼却施設、溶融施設で処理される対象物に含ま れる放射性 Cs 濃度により影響されると解釈できる。

放射性 Cs が高濃度で検出された耐火物では、深さ方向に 濃度が低下していく傾向が確認された。これは耐火物内の温 度分布が影響していると考えられる。施設 Fの排ガス経路の 耐火物で表層から 5 cm ごとの層内温度分布を調査したとこ ろ、表層が約 800 °C、深さ 5 cm で約 600 °C、深さ 10 cm で 約 500 °C、深さ 15 cm で約 350 °Cと低下することが確認され た。ダストに含まれる放射性 Cs の主要成分は CsCl であると 考えられている<sup>1,14,15)</sup>ことから、温度の高い耐火物表層では一 部はガス態と考えられる。しかし、温度が低下するにつれガス 態の放射性 Cs は少なくなり、固体として凝縮するため、より 深くまで浸透する放射性 Cs 量は少なくなり、深さ方向に低下 傾向を示したと考えられる。

#### 4. 結論

一般廃棄物焼却施設(溶融施設含む)における耐火物への 放射性物質等の蓄積実態および炉内空間線量率の測定等によ る炉内への放射性物質の蓄積挙動の把握を行った。得られた 結果は、以下のようにまとめることができる。

焼却炉内の付着ダストの放射性 Cs 濃度と空間線量率の分 布を調査した結果、付着ダストは排ガスが冷却されていく下流 側ほど放射性 Cs 濃度は高いが、耐火物が存在する上流側で 空間線量率が高くなる現象が認められた。このことは、耐火 物内に放射性 Cs が浸透、蓄積していることを示唆していた。

炉内空間線量率の最大値と飛灰中の放射性 Cs 濃度との関係から、施設で処理している飛灰中の放射性 Cs 濃度が高い ほど、炉内空間線量率の最大値が大きくなる傾向があった。 飛灰の放射性 Cs 濃度は焼却対象物中に含まれる放射性 Cs 量に依存し、炉内作業上の被ばく防止対策を検討するうえで 有用な指標となりうると考えられる。

耐火物に放射性 Cs が浸透、蓄積していることが実際に確認された。炉内表面からの深さ方向の放射性 Cs 濃度は、耐火物中の内部温度の低下とともに減少する傾向があった。

複数施設における耐火物中放射性 Cs 濃度の比較から、その 濃度は焼却施設で処理される対象物に含まれる放射性 Cs 濃 度により影響されていた。

# 謝 辞

本研究の実態調査に際し、各調査対象施設関係者および 環境装置メーカーの皆様に試料提供等にご協力頂きました。 ここに記して感謝致します。

# 参考文献

- 国立環境研究所: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 第四版改訂版、2014 年)。
  http://www.nies.go.jp/shinsai/techrepo\_r4\_140414\_ all.pdf、2015 年 4 月閲覧
- A. C. Buechele, S. S. Fu, Q. Yan, and I. L. Pegg: Radionuclide uptake by waste glass melter refractories. Environmental Issues and Waste Management Technologies in the Ceramic and Nuclear Industries III, pp.583-590. Published by The American Ceramic Society(1998)
- 3) 大杉 武史、塙 律、伊藤 圭祐、小澤 一茂、岡本 芳 浩、赤堀 光雄、大越 実:小規模試験装置を用いて得 られた加熱処理時のCsに関する知見。第3回環境放射 能除染研究発表会要旨集、72-73 (2014)
- 4) 成田 貴一、尾上 俊雄、佐藤 義智、宮本 学:高炉耐 火物へのアルカリおよび亜鉛の侵入現象について 神戸1 号高炉解体調査。鉄と鋼、63, No.4 S41 (1977)
- 5) J. P. Bennett, K. S. Kwong, J. A. Clark, T. A. Clancy: Spent refractory reuse. Environmental Issues and Waste Management Technologies in the Ceramic and Nuclear Industries II, pp.205-221. Published by The American Ceramic Society(1996)
- 水原 詞治、占部 武生、山口 明良、前田 朋之:廃棄 物の溶融処理に伴う耐火物および溶融スラグからの Cr (VI)の溶出挙動。廃棄物資源循環学会論文誌、23, 77-84 (2012)

- 7) 阿部 清一、上林 史郎、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)
- 環境省: 放射性物質濃度等測定方法ガイドライン第1 版(2011)。http://www.env.go.jp/jishin/attach/ haikihyouka\_kentokai/11-mat\_4.pdf, 2015年4月閲覧
- 2) 崔原 栄、伊藤 隆政、熊谷 安造、須田 俊之、野瀬 裕之:焼却過程における草木系廃棄物中のセシウムの 挙動。IHI 技報、53、No.1、29-32 (2013)
- 10)日本原子力開発機構福島支援本部環境支援部人形峠 環境技術センター・東海研究開発センター核燃料サイ クル工学研究所・再処理技術開発センターガラス固化 技術開発部・東海研究開発センター核燃料サイクル工 学研究所放射線監視部環境監視課:土壌の原位置加 熱による放射性セシウムの除去可能性の検討。JAEA-Research 2011-026 (2011)
- 11) 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)
- 12) 山口 真弥、大下和 徹、高岡 昌輝、福谷 哲、藤森 崇: 都市ごみ焼却施設における放射性核種の挙動調査。環 境衛生工学研究、27,188-191 (2013)
- 13) 大迫 政浩:放射能汚染廃棄物処理施設の長期管理手 法に関する研究。平成25年度環境研究総合推進費補 助研究事業総合研究報告書(2014)
- 14) 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)
- 15) 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)

2015年2月13日受付 2015年6月2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処理において、炉内における放射性 Cs の長期的な挙動を把握することが適正 な施設の維持管理を行う上で重要である。本研究では、一般廃棄物焼却施設(溶融施設含む)における耐火物への放射性物質等 の蓄積実態および炉内空間線量率の測定等による炉内への放射性物質の蓄積挙動の把握を行った。その結果、耐火物に放射性 Cs が浸透、蓄積していることが実際に確認され、燃焼室から排ガス処理までの流れにおいて耐火物が存在する上流側で空間線量 率が高くなる現象が認められた。一方、炉内の付着ダスト中の放射性 Cs 濃度は下流側で高くなった。