福島第一原発事故由来の放射性セシウムによる 汚染物の処理・処分方法の総合的比較(第2報) - 焼却残渣に対する減容化プロセス 5 CASE の比較 -

有馬 謙一1*、 大迫 政浩1、 保高 徹生2、 篠崎 剛史3

【要約】 福島第一原発の事故に由来する放射性物質に汚染された廃棄物や除去土壌のうち、対策地 域内の仮設焼却炉から発生する焼却残渣などを対象として、2020年3月から減容化施設において熱処 理(溶融処理)が行われている。その生成物であるスラグは放射能濃度が低く再生利用が想定されてい るが、飛灰は放射能濃度が高いため処分方法が未定であり、様々な研究開発が進められている。本報告 では焼却残渣の減容化プロセス5CASEを設定し、第1報で報告したマスバランス計算方法を使用して、 発生物の物量と放射能濃度を計算し比較した。その結果、基準となるプロセスでは、焼却残渣38万m³ (3.3万Bq/kg)に対して廃棄体840m³(1500万Bq/kg)が発生して1/450の減容化となり、二次生成物 として洗浄残渣1.7万m³、洗浄廃液52万m³が発生した。これに対し、洗浄残渣を熱処理に再投入する と廃棄体、洗浄廃液が4%増加したが、洗浄残渣の処分は不要となった。洗浄廃液を蒸発乾燥固化すると、 固化塩類が6.6万m³発生した。分配係数の大きい吸着剤を使用すると、廃棄体110m³(1億2000万 Bq/kg)が発生し1/3,500の減容化となった。飛灰をそのまま固型化処理すると、廃棄体18万m³(7.3 万Bq/kg)が発生して1/2.1の減容化に留まった。

キーワード:放射性セシウム、熱処理、飛灰、減容化、マスバランス

1. はじめに

福島第一原子力発電所の事故により飛散した放射性セシウ ムに汚染された廃棄物や除染作業に伴う除去土壌のうち、福 島県内で発生し中間貯蔵施設に搬入される量は、現時点で 1400万m³程度と予想されている¹⁾。除去土壌については 2017年10月より中間貯蔵施設内の土壌貯蔵施設への貯蔵 が開始されており、放射能濃度の低いものは再生資材として の活用が計画されている。また、放射能濃度の高いものは分 級処理した後に濃度の低い粗粒分は再生利用し、濃度が高 い細粒分は化学処理、熱的処理などを行うことが検討されて いる^{1,2)}。一方、対策地域内の仮設焼却炉から発生する除 染廃棄物などに由来する焼却残渣(主灰とばいじん等)につ いては、2020年3月から減容化施設において、熱的に溶融 してセシウムを揮散させる処理(以下熱処理)が行われてい る^{3,4)}。その際に発生する放射能濃度の低い生成物(以下ス ラグ)は再生利用が想定されているが、放射能濃度の高い灰 処理ばいじん(以下飛灰)は処分方法が未定であり、様々な 研究が進められている。その中心となるのは飛灰中の放射能 セシウムをさらに濃縮して減容化するプロセスであり、例えば 洗浄により放射性セシウムを水中に溶出させ、その放射性セシ ウムを吸着剤により選択的に吸着させ、その吸着剤を固型化 して廃棄体とする方法であり、そのための基礎的研究が進め られている⁵⁻²²⁾。このほか、飛灰をそのままセメント固型化処 理するなどの方法も考えられる¹⁾。ところが、最終処分の方法 や放射能濃度の基準が現時点では未定であるため、減容化 の有効性を評価するとともに、目標を明確にし実用化に向け た検討を進めるためには、前述したプロセスを複数設定し、 二次生成物も含めた発生物の量と放射能濃度を定量的に比 較・評価することが重要である。

本研究の第1報⁵⁾では、減容化プロセスにおける発生物 の量と放射能濃度を定量的に計算する手法とその試算例を 示し、主要な運転パラメータが発生物の量と放射能濃度に与 える影響を定量的に評価した。本報告では、焼却残渣の減 容化プロセスとして5CASEを設定してそれぞれのマスパラン スを計算し、廃棄体の発生量とその減容化効果とともに、二 次生成物の発生量と放射能濃度、処分方法について比較・

2020年4月15日受付 2020年7月8日受理

* Corresponding author: E-mail: arima.kenichi@nies.go.jp

¹ 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)

² 国立研究開発法人産業技術総合研究所 地圏資源環境研究部門(〒305-8560茨城県つくば市東1-1-1中央第1)

³株式会社三菱総合研究所 原子力安全事業本部 (〒100-8141 東京都千代田区永田町 2-10-3)

検討した。

2. 減容化プロセスとマスバランス計算

処理対象物、減容化プロセスと処理技術について説明し、 その上でマスバランスの計算方法を示す。

(1) 処理対象物

処理対象物は、中間貯蔵施設に搬入された焼却残渣 34 万m³に、除去土壌から分別された可燃性の除染廃棄物の 焼却残渣 4万m³を加えた合計 38万m³とした¹⁾。今回の マスバランス計算では固形物の質量と放射能濃度を与える必 要があるため、表1に示すように、焼却残渣の体積、含水 率、放射能濃度を与え⁴⁾、水分を除いた固形分ベースの質 量と放射能濃度に換算した。

なお、処理対象物に含まれる放射性物質は主に放射性セシウム(¹³⁴Csと¹³⁷Cs)であり、放射性物質汚染対処特措法でも放射性セシウムを対象としていることから⁶⁾、本研究では

表1	マスバランス計算において設定した
	処理対象物の質量と放射能濃度

対象物	対象物								
体積	万m ³	38							
主灰:飛灰	_	5:1							
かさ密度	kg/m ³	1,200							
含水率	%	0							
放射能濃度 (主灰/飛灰)	万 Bq/kg	2/10							
質量 M _f (合計)	万t	46							
放射能濃度 R _f (平均)	万 Bq/kg	3.3							

放射性セシウムのみを検討の対象とした。セシウムは自然界に も安定セシウム(¹³³Cs)として存在し、焼却残渣にも数 ppm、 放射性セシウムの 100万倍程度含まれているが^{7,8)}、安定セ シウムも放射性セシウムも減容化プロセスにおける挙動はほぼ 同じであるので⁸⁾、本報告では両者を合わせてセシウム(以 下 Cs)と記載する。

(2) 減容化プロセスと処理技術

本研究では、焼却残渣を対象として熱処理を起点とする減 容化を対象とした。その減容化プロセスを図1に示すが、基 本は処理対象物を熱処理して発生した飛灰を洗浄して Csを 水中に溶出させ、そのCsを吸着剤により選択的に吸着させ、 その吸着剤を固型化して廃棄体とする⁵⁾。そのほか、点線で 示すように、洗浄残渣を熱処理に再投入する、洗浄廃液を 蒸発乾燥固化する、飛灰をそのまま固型化するなどいくつか の選択肢もある。各処理の概要は次の通りである。 a) 熱処理

減容化施設における焼却残渣を対象とした熱処理には、 「シャフト炉式ガス化溶融炉 + 回転式表面溶融炉」と「焼却 炉 + コークスベット式高温溶融炉」の2方式が採用されてお り、2020年3月に処理が開始された³⁾。前者では処理対象 物にCa(OH)2、CaCl2などの添加物を加えたうえで1400°C 程度に加熱して溶融させ、CsをCsCl(沸点:1295°C)とし て他のアルカリ金属(Na,K)とともに揮散させ、飛灰側に濃 縮して回収する。Csが揮散した後の処理対象物は放射能濃 度の低い溶融スラグとして排出される⁸⁾。飛灰は洗浄処理に 移送されるが、そのまま固型化処理する選択肢もある。

b)洗浄処理

熱処理の飛灰には、アルカリ金属塩化物に加えて、添加物由来のCaCl2、燃焼ガスとともに飛散したAl2O3、SiO2、バグフィルタで捕集する際の剥離剤であるCaCO3などが含ま



図1 減容化プロセスとマスバランスの概念図

れる⁸⁾。この飛灰に洗浄水を加えて洗浄し、アルカリ金属塩 化物などの可溶成分を水中に溶出させる¹⁰⁻¹²⁾。CaCO3、 Al₂O₃、SiO₂などは洗浄水に溶解せずに残渣となるが、処 分方法は未定であり、放射能濃度が低い場合には産業廃棄 物としての処分の可能性もあるが、熱処理に再投入する選択 肢もある。洗浄溶液は吸着処理に移送される。

c) 吸着処理

洗浄溶液にはアルカリ金属(Na、K、微量のCs)などのイ オンが含まれているが、Csを選択的に吸着する吸着剤により Csを濃縮して回収する。洗浄溶液中にはK、NaがCsよりも 多量に含まれるため^{10,12)}、Csの選択係数の大きい吸着剤が 必要であり、フェロシアン化物、ケイチタン酸塩などが使用され る¹²⁻¹⁷⁾。Csを吸着した吸着剤(以下使用後吸着剤)は固型 化処理に移送される。Csが除去され放射能濃度の低下した 洗浄廃液の処分方法は未定であり、重金属類などの有害成 分を除去して排水基準値以下としたうえで放流の可能性もあ るが、水分を蒸発させ固化塩類として処分する選択肢もある。 d) 固型化処理

使用後吸着剤あるいは飛灰に固型化材を加えて固型化 し、最終処分可能な形態(廃棄体)とするが、その固型化 方法は未定である。特定廃棄物セメント固型化処理施設にお ける10万Bq/kg以下の焼却飛灰を対象としたセメント固型 化¹⁸⁾、原子力発電所などにおける放射性廃棄物を対象とし たセメント固型化¹⁹⁾は実用化されている。そのほか、焼却残 渣や汚染土壌の減容化により発生する放射能濃度の高い生 成物に対するジオポリマー固型化²⁰⁾、ガラス固型化²¹⁾などに ついて基礎的な研究が行われている。

(3) マスバランスの計算方法

減容化プロセス全体のマスバランスを大きく把握するため に、各処理において、個別の元素や成分ごとではなく、投入 物、添加物、生成物と全体を一括りにして定式化した。詳細 は第1報を参照のこと⁵⁾。

記号と添え字は次の通りである。

(記号)

M	: 固体の質量 (dry base)	[t]
W	:液体の質量	[t]
R	:放射能濃度	[Bq/kg]
α	: 質量比	[-]
β	:セシウム質量百分率	[%]
(添え字	:)	

- a :吸着剤
- c :熱処理の添加物
- d :熱処理の飛灰

f :熱処理の対象物

- e :乾燥·固化塩類
- h :飛灰の固型化材

- i :吸着剤の固型化材
- m :熱処理の溶融スラグあるいは生成物
- r :洗浄処理の残渣
- s :洗浄処理の洗浄溶液
- t :吸着処理後の洗浄廃液
- w :洗浄処理の洗浄水
- y :飛灰を固型化した廃棄体
- z :使用後吸着剤を固型化した廃棄体

a) 熱処理

スラグ、飛灰の質量 (それぞれ $M_m \ge M_d$) と放射能濃度 (そ れぞれ $R_m \ge R_d$) は、熱処理の対象物に対する添加物の質 量比を α_c 、処理対象物 + 添加物に対する飛灰の質量比を α_d 、Csの揮散率を β_d とすると、対象物の質量 M_f と放射能 濃度 R_f により式(1) ~ 式(4) で与えられる。

$M_{\rm m} = (1 + \alpha_{\rm c}) \cdot (1 - \alpha_{\rm d}) \cdot M_{\rm f}$	(1)
$M_{\rm d} = (1 + \alpha_{\rm c}) \cdot \alpha_{\rm d} \cdot M_{\rm f}$	$\cdots \cdots (2)$
$R_{\rm m} = (1-\beta_{\rm d}/100)/(1+\alpha_{\rm c})/(1-\alpha_{\rm d})\cdot R_{\rm f}$	$\cdots \cdots (3)$
$R_{\rm d} = \beta_{\rm d}/100/(1+\alpha_{\rm c})/\alpha_{\rm d}\cdot R_{\rm f}$	$\cdots \cdots (4)$

減容化施設の回転式表面溶融炉では、添加物比 α_{c} は0.3 ~0.6、飛灰発生比 α_{d} は0.05~0.2、Cs 揮散率 β_{d} は88 ~99%の範囲にある^{8,9)}。

b)洗浄処理

洗浄残渣と洗浄溶液の質量 (それぞれ M_r と W_s)と放射能 濃度 (それぞれ R_r と R_s)は、熱処理飛灰に対する洗浄水の 比を a_w 、熱処理飛灰の洗浄水への溶出比を a_s 、Csの洗浄 水への溶出率を β_s とすると、a)項で得られた飛灰の質量 M_d と放射能濃度 R_d を用いて、式(5)~式(8)で与えられる⁵⁾。

$M_{\rm r} = (1 - \alpha_{\rm s}) \cdot M_{\rm d}$	(5)
$W_{\rm s} = (\alpha_{\rm w} + \alpha_{\rm s}) \cdot M_{\rm d}$	(6)
$R_{\rm r} = (1-\beta_{\rm s}/100)/(1-\alpha_{\rm s})\cdot R_{\rm d}$	(7)
$R_{\rm s} = \beta_{\rm s}/100/(\alpha_{\rm w}+\alpha_{\rm s})\cdot R_{\rm d}$	(8)

洗浄水比 a_w は4~10、飛灰溶出比 a_s は0.7~0.9、Cs 溶出率 β_s は85~99%の範囲にある¹⁰⁻¹²⁾。

なお、洗浄残渣を熱処理に再投入する選択肢もある。その場合、洗浄残渣はスラグと飛灰に分配され、飛灰を洗浄した後の洗浄残渣が増加するため繰返し計算となり、処理対象物の質量が式(9)、式(10)のように増加したことに相当する⁵⁾。

$M_{\rm f}' = M_{\rm f} \cdot \left[1 + \sum_{1}^{\infty} \{\alpha_{\rm d} \cdot (1 - \alpha_{\rm s})\}^n\right]$	•	•	•	•	•	•	•	•	(9)))
$R_{\rm f}' = R_{\rm f} \cdot M_{\rm f} / M_{\rm f}' \cdot [1 + \sum_{1}^{\infty} \{\beta_{\rm h} \cdot (1 - \beta_{\rm s} / 100)\}^n]$	•	•	•	•	•	•		(1()))

c) 吸着処理

吸着処理後の吸着剤の放射能濃度 *R*_aと洗浄溶液の放射 能濃度 *R*_t は、式(11)で定義される吸着剤に対する洗浄溶 液の比を α_a、洗浄溶液中 Cs の吸着率をβaとすると、b)項 で得られた洗浄溶液の質量 Wsと放射能濃度 Rsにより式(12) と式(13)で与えられる⁵⁾。

$\alpha_{\rm a} = W_{\rm s}/M_{\rm a}$	•••••	(11)
$R_{\rm a} = \beta_{\rm a}/100 \cdot \alpha_{\rm a} \cdot R_{\rm s}$		(12)
$R_{\rm t} = (1 - \beta_{\rm a}/100) \cdot R_{\rm s}$		(13)

既往文献での基礎試験における分配係数は、ケイチタン酸 塩では 2,500 ~ 3,500^{12,13)}、フェロシアン化物では 20,000 ~ 100,000¹³⁻¹⁶⁾の範囲にある。分配係数は吸着剤固有の 特性であるが、吸着処理比 α_a は装置設計上の運転パラメー タであり、洗浄溶液の組成をもとに吸着塔における吸着剤の 破過吸着量、時定数を考慮した洗浄溶液の線速度や空間 速度などの設計条件について実用的な研究を行ったうえで決 定する必要があるが、現時点では文献での分配係数を参考 にして、 α_a は 2,500 ~ 20,000 の範囲にあるとした⁵⁾。文献に おける Cs 吸着率 β_a は 99% 以上である¹⁷⁾。

なお、洗浄廃液を蒸発乾燥固化する選択肢もある。その 場合、固化塩類の質量 Meは、吸着剤に吸着されるCsの質 量を微量とすると、洗浄処理における飛灰からの溶出量と同 じであり、飛灰の質量 Meと洗浄水への溶出比 asから式(14) で与えられる。また、固化塩類の放射能濃度 Reは、洗浄廃 液の放射能濃度 Rtに、固化塩類の質量 Meに対する洗浄 廃液の質量 Wsの比を乗じることにより式(15)で与えられる。

$$\begin{split} M_{\rm e} &= \alpha_{\rm s} \cdot M_{\rm d} \qquad (14) \\ R_{\rm e} &= W_{\rm s}/M_{\rm e} \cdot R_{\rm t} \\ &= (\alpha_{\rm w} + \alpha_{\rm s})/\alpha_{\rm s} \cdot R_{\rm t} \qquad (15) \end{split}$$

d) 固型化処理

吸着剤廃棄体の質量 M_z と放射能濃度 R_z は、吸着剤に対 する固型化材の比を α_i とすると、c)項で得られた吸着剤の質 量 M_a と放射能濃度 R_a により、それぞれ式(16)と式(17) で与えられる⁵⁾。

$M_{\rm z} = (1 + \alpha_{\rm i}) \cdot M_{\rm a}$	•••••	(16)
$R_{\rm z} = R_{\rm a}/(1+\alpha_{\rm i})$		(17)

なお、熱処理の飛灰をそのまま固型化処理する選択肢もある。飛灰廃棄体の質量 *M*_yと放射能濃度 *R*_yは、飛灰に対する固型化材の比をα_hとすると、飛灰の質量 *M*_mと放射能濃 *R*_dにより、それぞれ式(18)と式(19)で与えられる。

$M_{\rm y} = (1 + \alpha_{\rm h}) \cdot M_{\rm d}$	• •	·	•	• •	•	·	·	·	•	•	•	•	•	•	• •	•	•	•	 •	(18)
$R_{\rm y} = R_{\rm d}/(1+\alpha_{\rm h})$	• •	•	•	• •	•	•	•	•	•	•	•	•	•	•					 •	(19)

固型化材比 α_hとα_iは、対象物の性状や放射能濃度により 適正値が異なると考えられ、今後の検討と実証が必要であ る。参考値として、10万 Bq/kg以下の焼却残渣を対象とし た特定廃棄物セメント固型化処理施設¹⁸⁾では約 0.5、放射 性廃棄物を対象とするセメント固型化の基礎試験¹⁹⁾では 1.5 ~4、ジオポリマー固型化²⁰⁾では約3である。

e) 全体マスバランス

処理対象物の質量 *M*_fと放射能濃度 *R*_fをもとに、各処理 の運転パラメータであるαとβを与えると、熱処理でのスラグと 飛灰、洗浄処理での残渣と洗浄溶液、吸着処理での洗浄 廃液と使用後吸着剤、固型化処理での廃棄体について、順 次質量と放射能濃度が算出される。

(4) かさ密度の設定

マスバランスは質量基準で計算されるが、処分は体積基準 であるため、質量(t)を体積(m³)に換算するためのかさ密 度を次のように設定した⁵⁾。

- スラグのかざ密度は1,600から1,800 kg/m³であり⁹⁾、その中央値である1,700 kg/m³とした。
- 洗浄残渣のかざ密度は、表1に示す焼却残渣と同じく 1,200 kg/m³とした。
- 廃棄体の形態は未定であるが、セメント固型化を想定すると見掛け密度は1,500 kg/m³程度であるので²²⁾、処分場における充填率を70%として、処分場全体でとらえた廃棄体のかさ密度は1,100 kg/m³とした。
- 洗浄溶液の塩分濃度は、洗浄水比 α_w = 5、飛灰溶出比 α_s = 0.8 のとき 100 · α_s/(1 + α_w) = 13%となるため、 洗浄溶液の密度は1,100 kg/m³とした。
- 固化塩類の主成分は NaCl (真密度 2,160 kg/m³)と KCl (真密度 2,000 kg/m³)であるので、空隙率を40% 程度として、固化塩類のかざ密度は1,200 kg/m³とした。

3. 減容化プロセスの比較方法

環境省資料^{1,2)}をもとに、焼却残渣を対象とした減容化プロセスを5 CASE 設定し、それぞれの発生物に対して処分を 考慮して目標とする放射能濃度を与え、その放射能濃度を満 足するための運転パラメータを与えた。

(1) 5 CASEの設定

図1に示すように、以下に示す5 CASEを設定した。

(a) CASE I-1 (基準)

基準となる減容化プロセスであり、飛灰を洗浄して Cs を洗 浄溶液中に溶出させ、溶出した Cs を吸着剤で吸着し、使用 後吸着剤を固型化処理する。洗浄残渣と洗浄廃液は、それ ぞれ放射能濃度を目標値以下として処分あるいは放流すると した。

(b) CASE I-2(洗浄残渣を熱処理に再投入)

CASE I-1 において、洗浄処理おけるセシウム溶出率に限 界があり洗浄残渣の放射能濃度が目標値を超える場合などを 想定し、洗浄残渣を熱処理に再投入するとした。洗浄廃液 は放射能濃度を目標値以下として放流するとした。 (c) CASE I-3 (洗浄廃液を蒸発乾燥固化)

CASE I-1 において、洗浄廃液の放流が困難な場合を想 定して、洗浄廃液を蒸発・乾燥・固化処理により固化塩類と して、洗浄残渣とともに放射能濃度を目標値以下として処分 するとした。

(d) CASE II (分配係数の高い吸着剤を使用)

CASE Iと同じ減容化プロセスであるが、分配係数が大き く吸着処理比を大きくすることが可能な吸着剤を使用すること により、より高度な減容化を行うとした。洗浄残渣と洗浄廃液 は、CASE Iと同じくそれぞれ放射能濃度を目標値以下して 処分あるいは放流するとした。

(e) CASE III (飛灰をそのまま 固型化)

飛灰を洗浄処理することなく、そのまま固型化処理して処分 するとした。

(2) 放射能濃度の目標値の設定

再利用あるいは処分が必要となるスラグ、洗浄残渣、洗浄 廃液、固化塩類に対して、それぞれ次のように放射能濃度 の仮の目標値を設定した。

- 8,000 Bq/kg: 放射性物質汚染対処特措法において、取り扱う作業者の年間被ばく線量が1mSv(自然放射能による被ばくと同等)以下となる放射能濃度であり、この放射能濃度を超えると指定廃棄物となる⁶⁾。この値は、用途限定の管理された状態で対象物の再生利用が可能となる一つの目安でもある^{1,2)}。
- 90 Bq/L: 放射性物質汚染対処特措法において、公共 水域への放流が可能となる放射能濃度は¹³⁴Cs(半減期: 2.1年)と¹³⁷Cs(半減期:30年)でそれぞれ60 Bq/L、 90 Bq/Lであるが⁶⁰、事故から9年が経過し¹³⁴Csは1/10 以下に減少しているため、ここでは¹³⁷Csのみを考慮した。 洗浄廃液の密度を1,100 kg/m³とすると、質量基準では 82 Bq/kgとなる。

(3) 運転パラメータの設定

第1報で与えた運転パラメータの代表値とマスバランス計 算結果をそれぞれ表2、図2に示す⁵⁾。これをもとに、処理 の考え方と放射能濃度の仮の目標値から、各CASEでの運 転パラメータを設定した。結果を表3に纏めて示す。

加工田	運転パラメータ	和旦	士 赴/庙	計算条件						
火山生	連邦バノメーク	記与	又厭胆	変化範囲	代表値					
	添加物比	αc	0.3-0.6	-	0.45					
熱処理	飛灰発生比	$\alpha_{\rm d}$	0.05-0.2	-	0.15					
	セシウム揮散率	$\beta_{ m d}$	88%-99%	-	95%					
	洗浄水比	$lpha_{ m w}$	4 - 10	-	5					
洗浄処理	飛灰溶出比	$\alpha_{\rm s}$	0.7-0.9	-	0.8					
	セシウム溶出率	β_{s}	85%-99%	85%-100%	95%					
四美加田	吸着処理比	$\alpha_{\rm a}$	2,500-100,000	2,000-20,000	2,500					
败有処埋	セシウム吸着率	$eta_{ ext{a}}$	>99%	95%-100%	99%					
固型化処理	固型化材比	αi	1.5-4	-	3					

表2 減容化プロセスにおける運転パラメータと代表値⁵⁾ (網掛けは変化させた運転パラメータを示す)



図2 減容化プロセスのマスバランス計算例(表2の条件で計算)

60 XH	運転パラメータ	≠a P.	化主体			設定値		
火吐哇		記万	1、衣他	CASE I-1	CASE I-2	CASE I-3	CASE II	CASE III
	添加物比	$\alpha_{\rm c}$	0.45	0.45	0.45	0.45	0.45	0.45
熱処理	飛灰発生比	$\alpha_{ m d}$	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15
	セシウム揮散率	$eta_{ ext{d}}$	95%	95%	95%	95%	95%	95%
	洗浄水比	$lpha_{ m w}$	5	5	5	5	5	-
洗浄処理	飛灰溶出比	$\alpha_{\rm s}$	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	-
	セシウム溶出率	β_{s}	95%	99%	95%	99%	99%	-
四羊加田	吸着処理比	$\alpha_{\rm a}$	2,500	2,500	2,500	2,500	20,000	-
败有处理	セシウム吸着率	eta_{a}	99%	99.7%	99.7%	96%	99.7%	-
固型化処理	固型化材比	$\alpha_{\rm i}$	3	3	3	3	3	1

表3 ケーススタディにおける運転パラメータの設定値 (網掛けは代表値から調整した数値)





図4 吸着処理におけるセシウム吸着率と 洗浄廃液放射能濃度の関係

(a) CASE I-1 (基準)

運転パラメータを代表値としたマスパランス計算では、洗浄 残渣と洗浄廃液の放射能濃度が、それぞれ3.6万 Bq/ kg、260 Bq/Lと目標値を超過した。洗浄残渣については、 洗浄処理におけるセシウム溶出率 β_s と放射能濃度 R_r の関係 を図3に示すが、放射能濃度 R_r を8,000 Bq/kgとするため に、セシウム溶出率 β_s は99%とした。洗浄廃液については、 吸着処理におけるセシウム吸着率 β_a と洗浄廃液の放射能濃 度 R_t の関係を図4に示すが、放射能濃度 R_t を90 Bq/Lと するために、セシウム吸着率 β_a は99.7%とした。 (b) CASE I-2 (洗浄残渣を熱処理に再投入)

洗浄残渣については、セシウム溶出率 β 。が代表値である 95%のとき、放射能濃度 R_r は3.6万 Bq/kgと目標値を超え るが、熱処理に再投入するためそのままとした。洗浄廃液に ついては、放射能濃度 R_t を90 Bq/Lとするために CASE I-1と同じくセシウム吸着率 β_a を99.7%とした。



図5 吸着処理におけるセンリム吸着率と 固化塩類放射能濃度の関係

(c) CASE I-3 (洗浄廃液を蒸発乾燥固化)

洗浄残渣については、放射能濃度 $R_r \varepsilon 8,000$ Bq/kgとす るために、CASE I-1と同じくセシウム溶出率 β_s は 99%とし た。洗浄廃液を蒸発乾燥固化した固化塩類については、セ シウム吸着率 β_a と固化塩類の放射能濃度 R_e の関係を図 5 に 示すが、放射能濃度 $R_e \varepsilon 8,000$ Bq/kgとするために、セシウ ム吸着率 β_a は96%とした。洗浄廃液を放流する場合 (CASE I-1 など)に比べてセシウム吸着率 β_a は低い値となった。

(d) CASE II (分配係数の高い吸着剤を使用)

吸着処理比 α_aについて、CASE Iでは代表値である2,500 としたが⁵⁾、CASE II ではフェロシアン化物などで想定される 20,000 とした。

(e) CASE III (飛灰をそのまま固型化)

使用後吸着剤に対する固型化材比 aiの代表値は3とした⁵⁾。 一方、飛灰は放射能濃度が 15万 Bq/kg 程度と低く、特定 廃棄物セメント固型化処理施設における対象物に近いため、 飛灰に対する固型化材比 aiは、特定廃棄物セメント固型化 処理施設における固型化材比 0.5 に余裕を付けて1とした。

4. 結果と考察

まず各 CASE のマスバランス計算を実施し、これらを比較 し考察を加えた。

(1) マスバランス計算結果

各CASEのマスバランス計算結果を図 6-1から図 6-4 に、 生成物の一覧を表4に示す。概要は次の通り。

(a) CASE I-1 (基準)

図6-1に示すように、処理対象物46万t(3.3万Bq/kg) を熱処理すると、添加材20万tを加えるため、スラグ56万t (1,400Bq/kg)と飛灰9.9万t(15万Bq/kg)が発生し、 全体の質量は増加した。スラグの放射能濃度は仮の目標値 以下であり再生利用が想定されるが、飛灰に対してはさらに 減容化を行うことにより、廃棄体 920 t (1600万 Bq/kg)が 発生し 1/500 の減量化となった。一方、放射能濃度の低い 二次生成物として、洗浄残渣 2.0 万 t (8,000 Bq/kg)、洗 浄廃液 58 万 t (90 Bq/L)が発生した。

(b) CASE I-2 (洗浄残渣を熱処理に再投入)

図 6-2 に示すように、式(9)と式(10)により処理対象物 が CASE 1-1での 46万t(3.3万Bq/kg)から49万t(3.3 万Bq/kg)に増加したことに相当する。熱処理によりスラグ 59万t(1,400Bq/kg)と飛灰10.4万t(15万Bq/kg)が 発生し、この飛灰を減容化することにより、廃棄体960t (1500万Bq/kg)が発生し1/480の減量化となった。処分 が必要な二次生成物として、洗浄残渣は発生せず、洗浄廃 液 60万t(90Bq/L)のみが発生した。

(c) CASE I-3 (洗浄廃液を蒸発乾燥固化)

図 6-3 に示すように、CASE 1-1 と同じく放射能濃度の高 い廃棄体 920 t (1500万 Bq/kg)が発生し、二次生成物と して洗浄残渣 2.0万 t (8,000 Bq/kg)と固化塩類 7.9万 t (8,000 Bq/kg)が発生した。

(d) CASE II (分配係数の高い吸着剤を使用)

図 6-4 に示すように、廃棄体 120 t (1億 2000万 Bq/kg) が発生して 1/4,000 の減量化となり、CASE I-1よりも 減量化の効果が大きくなった。放射能濃度の低い二次生成 物としては、CASE I-1と同じく洗浄残渣が 2.0万 t (8,000 Bq/kg)、洗浄廃液 58万 t (90 Bq/L)が発生した。

(e) CASE III (飛灰をそのまま固型化)

図 6-1 の点線で囲まれた部分に示すように、廃棄体 20 万 t (7.3万 Bq/kg)のみが発生した。



図 6-1 減容化プロセスのマスバランス計算結果(CASE I-1とCASE III)



図 6-2 減容化プロセスのマスバランス計算結果(CASE I-2)



図 6-3 減容化プロセスのマスバランス計算結果(CASE I-3)



図 6-4 減容化プロセスのマスバランス計算結果(CASE II)

	步时能演声	ふそ家産	質量(万t)							体積(万m ³)						
生成物	成別 能震度 (Bq/kg)	//3-2 密度 (kg/m ³)	熱処理	CASE I-1	CASE I-2	CASE I-3	CASE II	CASE III	熱処理	CASE I-1	CASE I-2	CASE I-3	CASE II	CASE III		
焼却残渣	3.3万	1,200	(46)	(46)	(46)	(46)	(46)	(46)	(38)	(38)	(38)	(38)	(38)	(38)		
スラグ	1,400	1,700	56	56	59	56	56	56	33	33	35	33	33	33		
飛灰	15万	1,200	9.9	(9.9)	(10.4)	(9.9)	(9.9)	(9.9)	8.3	(8.3)	(8.7)	(8.3)	(8.3)	(8.3)		
洗浄残渣	8,000	1,200		2.0	(2.1)	2.0	2.0			1.7	(1.8)	1.7	1.7			
洗浄廃水	90	1,100		58	60	(58)	58			52	55	(52)	52			
固化塩類	8,000	1,200				7.9						6.6				
吸着剤廃棄体	>1500万	1,100		0.092	0.096	0.092	0.012			0.084	0.087	0.084	0.011			
飛灰廃棄体	7.3 万	1,100						20						18		

表4 各CASEでの発生物の質量と体積

注:()内は、次の処理に移送され処分の対象とはならない発生物

(2)比較と考察

マスバランスは質量ベースであるが、再生利用と処分は体 積ベースであるため、2(4)で与えた密度をもとに質量を体積 に換算して考察した。表4、図7から図9に各CASEの発 生物の体積の比較を示す。

なお、熱処理においては、スラグが56万t(1,400 Bq/kg)発生し、焼却残渣に対する質量比は1.2(56万t/46万t)と増加するが、体積比では0.87(33万m³/38万m³)とやや減容化された。一方、飛灰は9.9万t(15万 Bq/kg)発生し、焼却残渣に対する質量比は0.21(9.9万t/46万t)、体積比は0.22(8.3万m³/38万m³)であった。スラグは放射能濃度が仮の目標値8,000 Bq/kg以下であり再生利用が想定されているため、処分方法が未定の飛灰の処理について考察した。

- ・飛灰を洗浄処理すると(CASE I-1)、図7、図8に示すように、吸着剤廃棄体が840m³発生し、焼却残渣に対して1/450の減容化となった。放射能濃度の低い二次生成物として洗浄廃液、洗浄残渣が発生したが、二次生成物の大部分を占める洗浄廃液を放流とすると、図8に示すように、処分の対象は洗浄残渣となり大きく低減された。なお、洗浄廃液には焼却残渣に由来する重金属類も含まれており²³⁾、放流前には重金属類濃度を基準値以下とするための排水処理が必要である。
- ・洗浄残渣を熱処理に再投入すると(CASE I-2)、図7、 図8に示すように、CASE I-1に比べて吸着剤廃棄体と 洗浄廃液の発生量が4%程度増加したが、洗浄残渣の 処分が不要となり、洗浄廃液を放流とすると、吸着剤廃 棄体だけが処分の対象となった。この場合、洗浄残渣の 放射能濃度に対する制約はなくなり(8,000 Bq/kgを超え ても良い)、既存の灰洗浄装置をそのまま使用できる可能 性がある。一方、洗浄残渣には焼却残渣に由来する重 金属類も含まれており²³⁾、熱処理で揮散するが洗浄処理 で除去されないものがあると系内に蓄積するため、熱処理



に再投入する前の除去が必要となる可能性があり、今後 の確認が必要である。

- ・洗浄廃液を蒸発乾燥固化すると(CASE I-3)、図8に 示すように、CASE I-1に比べて処分の対象となる固化 塩類が増加した。一方、図6-3に示すように、固化塩類 の放射能濃度の目標値を8,000 Bq/kgとすると洗浄廃液 の放射能濃度の目標値は1,100 Bq/kgとなり、放流する 場合に比べ高くなるため、吸着処理は容易となる。また重 金属類を除去するための排水処理も不要となると考えられ る。洗浄残渣、固化塩類、吸着剤廃棄体を合わせた体 積は飛灰とほぼ同じであり、Csが濃縮された吸着剤廃棄 体と放射能濃度の低い洗浄残渣と固化塩類に飛灰を分 離したと言える。
- 今配係数の大きい吸着剤を使用すると(CASE II)、図
 8、図9に示すように、洗浄廃液、洗浄残渣の発生量は
 CASE I-1と同じで、吸着剤廃棄体の発生量が 840 m³
 から110 m³に減少し、焼却残渣に対する減容化比は
 1/3,500と減容化の効果がさらに大きくなった。ただし、
 放射能濃度が 1600 万 Bq/kg から 1 億 2000 万 Bq/kg
 まで増加するため、処理施設において CASE I-1 よりも高
 度な放射線防護対策が必要になると考えられる。吸着剤
 の選定においては、減容化比(廃棄体の体積)、放射
 線防護対策、さらに固型化処理の方法を含めて総合的な
 評価が必要である。
- ・ 飛灰をそのまま固型化処理すると(CASE III)、図7から図9に示すように廃棄体の体積が飛灰の2.1倍に増加して焼却残渣に対する減容化比が1/2.1に留まり、処分の対象物がCASE IやCASE IIに比べて大きく増加する。一方、減容化プロセスに関連した洗浄、吸着などの設備一式は不要となるとともに、飛灰廃棄体の放射能濃度は7.5万 Bq/kgと比較的低いため、処分や取扱いは容易になると考えられる。

(3)課題と今後の予定

減容化プロセス5 CASE の特徴と発生物の比較を表5に 示す。各 CASEには一長一短があり、これらを比較・評価 するため、今後放射能濃度だけではなく重金属類も考慮し て、洗浄・吸着・固型化のための設備費と運転費、発生す る廃棄体と二次生成物の処分費用を試算する予定である。 ただし、各処理には技術的に未検証な項目もあり、また処分 側から想定される仮の目標値から逆算して仮定した運転パラ メータもあるため、並行して、次のような項目について減容化 施設の熱処理飛灰を使用した試験などを実施し、検証する 必要がある。

- 洗浄処理における洗浄方法とセシウム溶出率 β。の確認
- 洗浄残渣中の重金属類の挙動の把握とその除去方法
- 吸着処理における吸着剤の選定と吸着方法、セシウム吸 着率 β_aの確認
- 洗浄廃液中の重金属類の濃度の把握とその処理方法
- 飛灰と使用後吸着剤に適した固型化材の選定と固型化 方法

また、吸着剤廃棄体、飛灰廃棄体、二次生成物である洗 浄残渣、洗浄廃液、固化塩類は、それぞれ放射能濃度、 性状、Csの溶出特性が異なるため、最終処分における輸送 方法や処分場における保管方法や管理期間が異なり、また 社会受容性も大きく異なることが予想される。そのため、各 CASEの総合的評価においては、環境安全性の側面や経 済的な側面だけでなく、ステークホルダーを包括した社会的側 面も含めた検討・議論も必要である。

5. まとめ

中間貯蔵施設では、2020年3月より焼却残渣を熱処理に より減容化する施設の運転が開始された。熱処理からはスラ グと飛灰が発生し、スラグは再生利用が計画されているが、 飛灰の処理と処分の方法は未定である。第1報では飛灰を さらに減容化するプロセス(洗浄処理→吸着処理→固型化

CASE	減容化プロセスの特徴	発生物
I-1	 ●基準となる減容化プロセスで、飛灰の洗浄、放射性Csの吸着、使用後吸着剤を固型化する。 ●放射能Csが濃縮された吸着剤廃棄体のほか、二次生成物として洗浄残渣と洗浄廃液が発生する。 	 ●吸着剤廃棄体の焼却残渣に対する減容化比は1/450である。 ●洗浄廃液を排水処理後に放流出来れば、処分が必要な二次 生成物は洗浄残渣のみとなる。
I-2	●洗浄残渣を熱処理に再投入する。	●洗浄残渣の処分は不要となる。●吸着剤廃棄体と洗浄廃液が4%程度増加する。
I-3	●洗浄廃液を蒸発乾燥固化する。	●洗浄廃液の代わりに固化塩類が発生し、処分が必要となる。
II	●分配係数の高い吸着剤を使用する。	●減容化効果が大きくなり、吸着剤廃棄体の焼却残渣に対する 減容化比は1/3,500である。
III	●熱処理飛灰を減容化することなく、そのまま固型化する。	●飛灰の洗浄・吸着処理などは不要となる。●飛灰廃棄体の焼却残渣に対する減容化比は1/2.1に留まる。

表5 各CASEの特徴と発生物のまとめ

処理)について、発生物の量と放射能濃度の定量的な把握 を可能とする全体マスバランス計算手法を報告した。

本報告では、焼却残渣46万t(=38万m³、15万Bq/kg)に対する減容化プロセスとして、熱処理の飛灰をさらに減容化するかどうか、どこまで減容化するか、洗浄残渣を熱処理に戻すかどうか、洗浄廃液を放流するかどうかによって5CASEを設定して、マスバランスを計算し比較した。今後、この計算結果をもとに、各CASEの経済性の試算を行う予定である。

- CASE I-1 (基準)では、廃棄体 840 m³ (1600万 Bq/kg)が発生し焼却残渣に対して1/450の減容化となった。 放射能濃度が低い二次生成物として、洗浄残渣 1.7万 m³ (8,000 Bq/kg)、洗浄廃液 52万 m³ (90 Bq/L) が発生した。
- CASE I-2 (洗浄残渣を熱処理に再投入)では、廃棄体、 洗浄廃液が CASE I-1 から約4% 増加したが、洗浄残 渣の処分は不要となった。
- CASE I-3 (洗浄廃液蒸発乾燥固化)では、洗浄廃液
 52万 m³ (90 Bq/L) に替わりに固化塩類が 6.6万 m³ (8,000 Bq/kg) 発生した。
- CASE II (分配係数の大きい吸着剤を使用)では、さら に減容化の効果が大きくなり、廃棄体が110 m³ (1億 2000万 Bq/kg)が発生し、焼却残渣に対して1/3,500 の減容化となった。
- CASE III (飛灰をそのまま固型化)では、洗浄・吸着などの処理は不要となるが、廃棄体18万m³(7.3万 Bq/kg)が発生し焼却残渣に対して1/2.1の減容化に留まった。

謝 辞

本研究を進めるにあたり、国立環境研究所の山田一夫様、 遠藤和人様、由井和子様、農業・食品産業技術総合研究 機構の万福裕造様から有用な情報を提供頂くとともに、種々 のアドバイスを頂きました。ここに記載し深謝いたします。

文 献

- 環境省:減容・再生利用技術開発戦略 進捗状況に ついて,第9回中間貯蔵除去土壌等の減容・再生利 用技術開発戦略検討会の資料4,pp.43-53 (2018).
- 2)環境省:被災地の復興・再生に向けた環境書の取組 (詳細版),第20回環境回復検討会の資料2,pp. 26-46 (2019).
- 3) 環境省:「平成29年度 双葉町減容化施設(中間貯蔵 施設)における廃棄物処理その1業務,平成29年度 双葉町減容化施設(中間貯蔵施設)における廃棄物 処理その2業務要求水準書」,pp.1-1-1-16 (2017).
- 4) 環境省:減容・再生利用WG活動報告,減容・再生 利用の物質収支に関する試算概要,除染・廃棄物技

術協議会資料 3-2, pp. 9-11 (2016).

- 5) 有馬謙一,山田一夫,大迫政浩,保高徹生,芳賀和子:福島第一原子力発電所事故由来の放射性セシウムによる汚染物の処理・処分方法の総合的比較(第1報)焼却残渣の熱処理・灰洗浄を含む減容化プロセスの定量的評価方法の開発.環境放射能除染学会誌,7(4),241-252 (2019).
- 環境省:「廃棄物関係ガイドライン」,第二部 特定一 般廃棄物・特定産業関係ガイドライン 第2版(平成 25年3月), pp. 2-9,環境省(2017).
- 7) 山本貴士,竹内幸生,高田恭子,大迫政浩:焼却灰 中のストロンチウムとその溶出について,第29回廃 棄物資源循環学会研究発表会講演原稿,C6-6,pp. 395-396 (2018).
- 8) 釜田陽介, 阿部清一, 川本克也, 由井和子, 倉持秀敏, 大迫政浩: 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.環境放射能除 染学会誌, 3(2),49-64 (2015).
- 9) 釜田陽介:溶融プロセスによる重金属及びアルカリ金属の分離と資源リサイクルに関する研究.岡山大学学位論文,乙第4463号,pp.4&77-122(2016).
- 10) 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)」,第8章 焼却 飛灰の水洗浄による放射セシウムの除去,pp.132-153,国立環境研究所(2014).
- 11) 笠原 勝, 高橋寛昭, 栄一雅, 丸田俊久:都市ごみ 焼却飛灰の水洗脱塩によるセメント原料化, 秩父 小野田研究報告, 49 (2), 129-138 (1998).
- 12)前原裕治,佐野義和,永山貴志,釜田陽介,上林史朗: 溶融飛灰中放射性セシウムの水溶解-吸着による再減 容化に関する基礎的検討. 第28回廃棄物資源循環 学会研究発表会講演原稿, C6-11P, pp. 365-366 (2017).
- 13) 三村 均: 放射能高汚染水からの放射性物質の選択 的除去及び安定化処理. *RADIOISOTOPES*, 65, 451-467 (2016).
- 14) 川本 徹, 高橋 顕, Durga Parajuli, 南 公隆, 田 中 寿: プルシアンブルー型錯体のナノ粒子を活用し た放射性Cs汚染焼却灰処理, 産業総合研究所, 材 料化学領域, ナノ材料研究部門,9p. (2017), https:// unit.aist.go.jp/nmri/ja/results/paper/1703. briefing%20paper%20Cs.Ash%20decontamination. 180330.pdf.
- 15) 宗澤潤一,西和俊:最終処分場での効率的保管のための放射性セシウム回収システムの開発.環境放射 能除染学会誌,2(2),101-110(2014).
- 16) E. Tusa, R. Harjula, P. Yarnell: Fifteen years of operation

with inorganic highly selective ion exchange materials. Proceedings of Waste Management 2007 Conference, 11 p. (2007).

- 17)東京電力ホールディングス株式会社:第三セシウム 吸着装置の設置に係る補足説明資料, p.8 (2017), https://www2.nsr.go.jp/data/000197107.pdf
- 18) 中島卓夫,近藤秀樹,大山 将,三溝達也,安達 忍, 楠 佳男:放射性物質に汚染された特定廃棄物のセ メント固型化処理技術の開発,鴻池組技術研究報告, 25-32(2019), https://www.konoike.co.jp/solution /thesises/2019_civil_04.pdf.
- 19) 川戸喜美, 富岡 修, 高橋邦明, 目黒義弘, 坂本浩幸, 芳賀和子: 焼却灰のセメント固化試験I: 模擬焼却 灰の基本的固化特性, JAEA-Technology 2010-013, 38 p. (2010).
- 20) 中村裕太, 塩田憲司, 大下和徹, 藤森 祟, 高岡昌揮: 除染廃棄物の減容化施設から生じる高濃度Csを含

有した飛灰に対するジオポリマー固化処理,第29 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演原稿,E1-4, pp.487-488 (2018).

- 21) 稲葉優介, 針貝美樹, 高橋秀治, 内海和夫, 竹下健二, 堀内伸剛, 近沢孝弘, 宗澤潤一:金属イオン含有亜 臨界水による土壌分級物からのCsの高速イオン交 換回収と高減容ガラス固化(3) 亜臨界処理水からの Cs選択回収によるCsガラス固化. 第6回環境放射 能除染研究発表会要旨集, S8-3, p. 36 (2017).
- 22) 石森洋行,遠藤和人,山田一夫,山田正人:放射能 汚染飛灰セメント固型化物内部における無機物質の 動態解明.第28回廃棄物資源循環学会研究発表会 予稿集, D7-9, pp.471-482 (2017).
- 23) T. Sekito, Y. Dote, K. Onoue, H. Sakanakura, K. Naklamura: Characteristics of element distribution in an MSW ash melting treatment system. *Waste Manage.*, **34**, 1637-1643 (2014).

Original

Comprehensive Comparison of Treatments and Disposal Methods of Radioactively Contaminated Materials by the Accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station: Part II. Comparison of 5 Cases of Volume Reduction Processes for Incineration Residue

•

ARIMA Kenichi*, OSAKO Masahiro, YASUTAKA Tetsuo, and SHINOZAKI Takeshi

 Summary • Among the waste and removed soil contaminated by radiocesium from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident, from March 2020 incineration residue produced from temporary incinerators in the Special Decontamination Area is now being treated in volume reduction facilities, which use thermal treatment to evaporate and concentrate radiocesium. Its main product is molten slag with a limited concentration of radiation, and which is planned to be reused. Its by-product is highly radioactive fly ash, the final disposal of which is the subject of various studies. In this report, using the mass balance calculation method introduced in our previous report, we calculate and compare the mass balances and radioactivities of five treatment processes. In the standard treatment process, 380,000 m³ of incineration waste with 33,000 Bq/kg was reduced to 840 m³ of disposal waste with 16×10^6 Bq/kg, a volume reduction of 1/450, and produced 17,000 m³ of washing residue and 520,000 m³ of wastewater as lower-radioactive by-products. Returning the washing residue to the thermal treatment made its disposal unnecessary and increased the amount of disposal waste and wastewater by only 4%. Evaporation of wastewater produced 66,000 m³ of solidified salts. When higher-performance adsorbent was used, 110 m³ of disposal waste with 120×10^6 Bq/kg was produced, a volume reduction of 1/3,500. When fly ash was solidified without volume reduction, 180,000 m³ of disposal waste with 73,000 Bq/kg was produced, a volume reduction of only 1/2.1. From these results, the next report will estimate the cost of each treatment process and the disposal cost of all products and compare the economics.

Key Words: radiocesium, thermal treatment, fly ash, volume reduction, mass balance

Received April 15, 2020; Accepted July 8, 2020

*Corresponding author: Address: Center for Material Cycles and Waste Management Research, National Institute for Environmental Studies, 16-2, Onogawa, Tsukuba, Ibaraki, 305-8506, Japan E-mail: kenichi@nies.go.jp

