# 8 焼却飛灰の水洗浄による放射性セシウムの除去

## 8.1 飛灰洗浄技術のコンセプト

放射性セシウムを含む一般廃棄物等を焼却すると、ごみ組成等にも依りますが、大部分の 放射性セシウムは飛灰に移行・濃縮されて排出されます(第6章 焼却処理過程における挙 動と制御)。飛灰に含まれる放射性セシウムは水への溶出性が極めて高い(第4章 放射性 セシウムの溶出特性)ため保管期間中も十分な配慮が必要ですが、水との接触や飛散を防止 する措置をとり、加えて放射線に対する遮へいを適切に行うことにより、安全に保管するこ とができます。但し、指定廃棄物としての一般廃棄物焼却灰(放射能濃度が8,000Bq/kg超) は平成25年12月31日時点で約9.7万t(環境省:指定廃棄物の数量、指定廃棄物処理情 報サイト)存在しており、その保管スペースがひっ迫してきていますし、対策地域内の可燃 物の焼却、中間貯蔵施設における減容化など、さらに増えていく可能性があります。

この対策としては、溶出性の高い飛灰中の放射性セシウムを予め水洗浄することが有効 な方法の一つと考えられます。飛灰洗浄技術は、放射性セシウムに汚染された焼却飛灰を既 存の管理型処分場で埋め立て可能なレベルまで洗浄・処理するとともに、溶出した洗浄排水 中の放射性セシウムを吸着・濃縮することで、保管すべき廃棄物(二次廃棄物:廃吸着剤等) を減容することを目的とした処理方法です(図 8.1)。



図 8.1 飛灰洗浄技術を適用した際の流れ

なお、焼却残渣の洗浄に関する研究は 1987 年頃より開始されており、最終処分場の高濃 度無機塩類問題、浸出水中のカルシウム除去、脱塩研究を経て、1994~2012 年まで、埋立 前処理としての洗浄脱塩および洗浄灰のセメントリサイクルについて WOW (Wash Out Waste)システムとして研究がなされてきています。本章で紹介する放射性セシウムを除去 するための飛灰洗浄技術の開発研究は、それらの知見をベースに行われています。

#### 8.2 飛灰洗浄技術の導入による汚染廃棄物に関する課題の解決

### 8.2.1 焼却施設における保管スペースのコンパクト化

発生した飛灰をそのままフレコンで保管する場合と、飛灰洗浄を適用して二次廃棄物(廃 吸着剤)のみを保管する場合を比較すると、例えば、原飛灰が2万 Bq/kg であったとする と、二次廃棄物の放射能濃度を10万 Bq/kg まで濃縮した場合の減容率はおおよそ86%(約 1/10 に減容化)、1,000万 Bq/kg まで濃縮した場合は99.8%(約 1/1,000 に減容化)と大幅 に保管スペースを小さくできる可能性があります。(詳細は8.4.4 洗浄排水からの放射性セ シウムの除去をご参照ください)

#### 8.2.2 地域の除染の促進

一般廃棄物焼却施設において、飛灰処分ができずに保管しきれなくなった場合、焼却施設 でのごみの受入を停止せざるを得ないという危機的状況に陥る危険性があります。また、 地域で進められる除染事業においては、可燃性の除染廃棄物が発生することが想定されま すが、焼却施設への受け入れにより飛灰濃度が上昇し、保管せざるをえない状況になれば、 除染自体に支障をきたすことにもなりかねません。除染廃棄物の仮置場の設置は困難であ り、また設置できた場合でも、最終処分場や中間貯蔵施設(福島県の場合)での受入が始ま るまでに腐敗・変質することが危惧され、管理上の大きな支障が生じる可能性もあります。

一般廃棄物焼却施設において、飛灰洗浄技術を適用し、当該除染廃棄物を受け入れること により、上記のような問題を回避でき、仮置場の運用がスムーズに進むことで、地域に散在 していた除染廃棄物を適切に処理し、集中的かつ安全に管理できるものと考えられます。

#### 8.3 飛灰洗浄技術の概要

#### 8.3.1 飛灰洗浄技術の基本原理

飛灰洗浄技術の基本原理を図 8.2 に示します。飛灰中の放射性セシウムは水に溶けやすい ため、保管や処分においては十分な管理が必要となりますが、本技術は、水に溶けやすいと いう特性を逆に利用し、保管・処分の前処理として、水洗浄を行おうとするものです。

水に飛灰を加えて一定時間撹拌し、これを脱水機で絞ると大部分の放射性セシウムが除 去された脱水ケーキ(洗浄飛灰)が得られます。飛灰の性状にもよりますが、ビーカー試験 やベンチ試験において、概ね8~9割程度が除去される結果が得られています。

水(洗浄排水)に移行した放射性セシウムは吸着法等によって水から除去・濃縮するこ とができます。このとき、水中には放射性セシウムとともに飛灰から溶出した塩類(Na、 Ca、K等)が多く含まれております。このような共存するイオンはしばしば放射性セシウ ムの吸着を阻害することが指摘されておりますが、セシウム選択性の高い吸着剤の使用や 工学的なプロセス設計により、十分に吸着・除去可能であることがビーカー試験やベンチ 試験において明らかとなっています。



図 8.2 飛灰洗浄技術の基本原理

# 8.3.2 飛灰の性状

焼却施設においては、排ガス処理過程で消石灰(水酸化カルシウム)が使用されることが 多く、その場合、飛灰には多量のカルシウムが含まれています。また、重金属溶出抑制のた め、キレート剤やセメント等が添加されています。使用されている薬剤の種類や量、混練の 有無等の影響で、飛灰の物理的状態(粉状、粒状、硬さなど)は施設によって異なっていま す(図 8.3)。複数の一般廃棄物焼却施設の飛灰を調査したところ、含水率 10~20%程度、 かさ比重 0.8 程度のものが多く見られました。



図 8.3 一般廃棄物焼却施設から排出された飛灰の例

### 8.3.3 飛灰からの放射性セシウム等の溶出特性

焼却施設の運転方法やごみ質等に由来する飛灰の性状の違いは、放射性セシウムの水への溶出性に影響を与える可能性があります。また、飛灰の保管期間中に性状が変化する可能性も考えられます。そこで、複数の一般廃棄物焼却施設から排出された飛灰について、放射性セシウムの水への溶出特性を調査しました。

試料採取は10施設にて実施し、フレコン等で保管されている飛灰について、可能な限り 発生時期(保管期間)の異なる複数の試料を採取しました。採取した試料は粒径5mm以下 に揃え、JIS K 0058-1の方法で溶出試験を行いました。その結果、多くの施設の飛灰は高 い放射性セシウム溶出率を示し、同一施設で保管期間の異なる飛灰の溶出率は大きく変わ りませんでした。但し、同じタイプの炉であっても施設によって溶出率が低いケースがあり、 全体として40~95%程度と大きく異なることがわかりました(図8.4)。このことから、飛 灰の保管期間は放射性セシウムの溶出性に影響せず、施設毎のごみ質や運転方法の違いが 大きく影響していると推察されます。



図 8.4 異なる施設から排出された飛灰の放射性セシウム溶出率

溶出率に影響を及ぼす因子としては、排ガス処理方法が考えられます。排ガス処理に活性 白土を使用している施設(E、F)では、飛灰からの放射性セシウムの溶出率が著しく低下 していたことから、飛灰抽出液を用いて活性白土の吸着試験を行いました。その結果、活性 白土に対する放射性セシウムの分配係数は27.6 ml/gで、ゼオライト(345 ml/g)と比べる と1オーダー低いものの、高塩濃度・高 pH条件下においてもセシウムを吸着することが確 認できました(表 8.1、図 8.5)。なお、今回の結果を第5章(放射性セシウムの土壌等への 吸着特性)で示された分配係数と比較すると、ゼオライトの分配係数が約半分になっていま すが、これは今回の供与液の共存イオン濃度が高いためと考えられます。これまでの検討で、 ECが10倍になるとゼオライトの分配係数が1/10になる結果が得られており、ベントナイ トや茨城真砂土などでも、程度は異なりますが、同様の傾向が認められています(廃棄物・ 土壌処分技術手法開発等プロジェクト報告、p.15、http://www.nies.go.jp/shinsai /hokoku\_haikibutsu.pdf)。今回の供与液(飛灰抽出液)のEC(5,540 mS/m)での分配係 数を比較すると、活性白土はベントナイトと同程度の吸着能を有していると言えます。

また、検体数は少ないのですが、セメント固化を行っている施設(A)も若干溶出率が低いことから、セメント固化も溶出性への影響があると考えられます。その他の要因としては、 消石灰による固結や主灰の吹き上げなどが考えられますが、いずれにしても、主灰や下水汚 泥焼却灰などと比べて、どの施設の飛灰においても放射性セシウムは水への溶出性が高い といえる結果となりました。

pН	10.90	
EC(mS/m)	5,540	mS/m
Cs134	384	Bq∕L
Cs137	981	Bq/L
Cs合計	1,365	Bq/L
安定Cs	0.15	mg/L
CI-	21,500	mg/L
Ca	7,430	mg/L
Na	3,380	mg/L
К	4,600	mg/L
Mg	<0.5	mg/L





図 8.5 飛灰抽出液中の放射性セシウムの吸着特性

## 8.3.4 溶出液の特性

焼却飛灰を埋め立てた最終処分場の浸出水は高濃度の塩類を含み、pH も高いことが知ら れています。同様に、飛灰の洗浄水も塩濃度、pH が非常に高くなります。実際に、上記の 溶出試験の結果、ろ液の pH は平均で 12.5 (10.5~12.9)、EC は 4,451 mS/m (1,750~ 7,220) と高 pH、高塩濃度となりました。

飛灰洗浄においては、放射性セシウムが溶出した洗浄排水を処理する必要がありますの で、大量の水を使って洗った場合、洗浄排水の処理に要するコストや用地が大きくなってし まいます。そこで、洗浄排水を繰り返し洗浄に使用することにより、実質的な使用水量の削 減可能性を検討しました。液固比は 10、溶出時間は 1 時間としてビーカー試験を行ったと ころ、4 回までの繰り返し使用においては、EC および放射性セシウムともに同程度の効率 で飛灰から溶出しており、4 回目の洗浄排水の放射能濃度は 9,100 Bq/L、EC は 13,200 mS/m となりました(図 8.6)。この結果、洗浄時の液固比は 10 ですが、繰り返し使用によ って実質的な使用水量を削減可能であることがわかりました。なお、このときの塩化物イオ ンは 55 g/L、カルシウムイオンが 22 g/L、ナトリウムイオンが 8.2 g/L、カリウムイオンが 12 g/L でしたので、試料重量の約 1 割がこれらのイオンで占められることになり、非常に 高塩濃度であることがわかります。



# 8.4 一般廃棄物焼却施設での飛灰洗浄ベンチ試験

飛灰を埋立前に洗浄することは有意義であると考えられますが、これまで、放射性セシウムを含む飛灰の洗浄処理を一般廃棄物の焼却施設等で実施することは過去に例が無いため、 上述した原理に基づき、実用化に向けた技術の確立を目的として、試験研究を実施しました (図 8.7)。



# 図 8.7 飛灰洗浄ベンチ試験のイメージ図

# 8.4.1 試験方法·設備

今回の飛灰洗浄ベンチ試験の処理フローを図 8.8 に示します。飛灰洗浄技術は、飛灰から 放射性セシウムを除去する溶解・脱水工程と飛灰を洗浄した排水から放射性セシウムを除 去する処理工程の2つに分けられます。溶解・脱水行程では、飛灰を水に所定時間溶解し、 脱水機でろ過した後、脱水機内に水を供給し、濯ぎ(リンス)を行ってから脱水しました。 リンスされた脱水ケーキは洗浄飛灰として取り出しました。洗浄排水の処理工程では、排出 された放射性セシウムを含む洗浄排水を RO 膜にて濃縮して透過水を回収し、回収された 透過水は放射性セシウムおよび塩類が除去されているので、溶解水およびリンス水として 再利用しました。一方、濃縮水中には放射性セシウムおよび塩類が濃縮されているので、吸 着処理により効率的に放射性セシウムを除去しました。なお、洗浄排水の繰り返し使用等に より洗浄排水の塩濃度が高い場合は、RO 膜処理は不要とし、直接、吸着処理を行いました。



図 8.8 飛灰洗浄ベンチ試験の処理フロー

# 8.4.2 飛灰の洗浄効率

飛灰の洗浄効率の最適化を図るため、溶解槽(500L)に数+kgの原飛灰と水を投入 し、原飛灰と溶解水の液固比(重量比)や溶解・撹拌時間をパラメータとした最適化試験 を行いました。なお、脱水はフィルタープレスを用いて行い、リンス水は投入した原飛灰 の重量の0~数倍程度で試験しました。なお、放射性セシウム濃度はNaI(Tl)検出器

(AT1320A、株式会社アドフューテック社)を使用した簡易スペクトロメータを用いて測 定しました。

飛灰の溶解を液固比 10 倍、溶解時間 6 時間で行い、フィルタープレスでリンス(リンス 液固比 5 倍)を行った結果を図 8.9 に示します。原飛灰の放射能濃度は約 8,000 Bq/kg でし たが、溶解・脱水により約 1,000 Bq/kg となり、さらに残存する溶解液をリンス水で追い出 す(濯ぐ)ことにより、550 Bq/kg まで低下しました。このことから、飛灰洗浄の仕上げと してリンスが有効であることがわかります。なお、脱水ケーキの放射能濃度は脱水機内部の どの場所でも顕著な違いは認められず、脱水機内で均等にリンシングが行われていること がわかりました。



図8.9 飛灰洗浄による放射能濃度の低減とリンスの効果

ここでWETベースは原料飛灰および脱水ケーキの有姿の値であり、DRYベースは含水 率を考慮して水分を含まない場合に換算した値です。埋立時の放射能濃度の判断は有姿 (WETベース)で行いますが、脱水ケーキの含水率にバラツキがある場合や物質収支を把 握すること考慮し、DRYベースの評価も併記しています。

また、飛灰と水の混合時間(撹拌・溶解時間)が放射性セシウム除去率に及ぼす影響を明 らかにするため、溶解液固比を 10 倍、リンス液固比を 5 倍とし、溶解時間をパラメータと して行った試験結果を図 8.10 に示します。溶解時間 30 分ではわずかに除去率の低下が見 られるものの、1 時間以上では WET ベースでも除去率 90%を超え、放射性セシウムの除去 率に顕著な差は認められませんでした。従って、飛灰の溶解時間は 1 時間程度の短時間で 十分に洗浄効果が得られることがわかりました。

なお、本試験では 8,000~27,000 Bq/kg の飛灰について同様の試験を行い、飛灰洗浄技術 は原飛灰の放射能濃度によらず、同程度の洗浄効率を発揮することが確認できました。

また、飛灰洗浄の効率と水温の関係を解析した結果、洗浄効率の温度依存性は非常に小さ く、水温が 0℃に近い低温であっても顕著な放射性セシウム除去率の低下は認められません でした。従って、冬季および寒冷地域においても加温処理等を必要とせず、効果的な飛灰洗 浄が可能であると考えられます。



図 8.10 溶解時間と放射性セシウム除去率の関係

# 8.4.3 使用水量の低減

本システムでは、洗浄排水を RO 膜ユニットに通すことによって、放射性セシウムを除 去・分離した透過水と濃縮水を得ることができます。この透過水を洗浄水として再利用する ことは、システム全体の水使用量および排水量を低減することができ、省コスト化、省スペ ース化において重要です。図 8.11 は RO 膜処理による放射性セシウムの除去効果を示して います。ここで、縦軸は放射性セシウム濃度の監視基準の算定式である Cs-134÷60Bq/L+ Cs-137÷90Bq/L で換算した値です。



図 8.11 RO 膜処理前後の放射性セシウム濃度

RO 膜処理水は、1 段処理では原水の濃度の変動により濃度基準が1を超えることがあり ましたが、放射性セシウムの除去率は95%以上であり、1 段処理水を洗浄水として再利用可 能であることがわかりました。さらに2 段処理を行うことにより、RO 処理水は十分に濃度 基準を満足することがわかりました。 使用水量を低減させる別の方法として、溶解水やリンス水もしくはそれらの吸着処理水 の再利用が考えられます。特に、飛灰を溶解させた飛灰溶解水をろ過した後に行うリンスで は、塩類等がある程度低下しているため、リンス水中の塩濃度は飛灰溶解水よりも低くなっ ており、再利用の有効性が高いと考えられます。そこで1度使用したリンス水を飛灰溶解 水として再利用した場合の飛灰の洗浄効果の変化について、検討を行いました。

試験は、溶解水の液固比を 5~10、リンス水の液固比は逆に 10~5 とし、トータル液固 比は 15 で固定して行いました。リンス水を溶解水として再利用した場合としない場合の放 射性セシウム除去率の比較を図 8.12 に示します。この結果から、溶解水の液固比によらず、 リンス水の溶解水としての再利用は洗浄効果に悪影響を与えないことがわかりました。な お、トータル液固比を 10(溶解液固比 5 倍)に下げた試験では、リンス水の再利用により 洗浄効果の若干の低下が見られましたが、それでも除去率は 90%を超えており、その影響 は軽微であると考えられました。このように、水を繰り返し使用することで、洗浄効率を維 持しつつ、使用水量を削減できることがわかりました。使用水量の削減はシステムの省コス ト化、省スペース化に重要であり、限られたスペースで本技術を活用する上で、その適用性・ 有用性の向上に大きく貢献するものと考えられます。



図 8.12 リンス水を飛灰溶解水として再利用した場合の洗浄効果への影響

#### 8.4.4 洗浄排水からの放射性セシウムの除去

飛灰の溶解液および脱水ケーキのリンス水を混合した洗浄排水には、飛灰に由来する多 量の塩類とともに放射性セシウムが含まれています。洗浄排水に含まれる放射性セシウム を除去するためには、高塩濃度条件下で効率的にセシウムを吸着・除去する必要があります。 そこで、共存する陽イオン濃度が高い環境でもセシウム選択性の高いプルシアンブルー(フ ェロシアン化鉄)を粒状に成形した吸着剤(東亞合成(株))を用いて吸着処理試験を行い ました。プルシアンブルーは一般的には青色顔料として身近なところで使われていますが、 セシウムの吸着剤として高い吸着容量と選択性を有しています。但し、高 pH 環境下では分 解してしまうこと、排水基準項目であるシアンの溶出が有り得ることなどから、取扱には注 意が必要です。

吸着試験条件を表 8.3 に示します。洗浄排水は pH が 12 程度と高いため、塩酸により pH を中性にしてから吸着処理を行いました。その結果、図 8.13 に示す通り、吸着処理の原水中の放射性セシウム濃度は洗浄する飛灰の濃度で変動し、1,000~3,400Bq/kg の間で推移しました。これに対して、吸着処理水は常に 10Bq/kg 未満となりました。従って、高濃度の塩類を含む飛灰洗浄排水においても、含有する放射性セシウムを効果的に吸着除去できることが実証されました。

なお、処理フローでは RO 膜処理により洗浄排水を濃縮した後に吸着処理を行いますが、 上述のリンス水の再利用を行った場合は、RO 膜処理を行わなくても洗浄排水が高濃度とな るため、直接吸着処理を行いました。その場合においても、吸着処理の性能に変化は見られ ず、十分な処理性能が得られています。

吸着塔の数(直列)	6	
吸着塔の直径(m)	0.15	m
吸着塔の高さ(m)	0.7	m
充填量(L)	12.4	L
充填剤に占める吸着剤の割合	20	%
流入方法	上向流	
SV	0.71	$h^{-1}$
LV	3.0	m $h^{-1}$

表8.3 洗浄排水中の放射性セシウムの吸着試験条件



図 8.13 吸着原水および処理水の放射性セシウム濃度

一方で、プルシアンブルー吸着剤に濃縮された放射性セシウムの状況を把握するため、吸 着塔表面の放射線量率を測定しました。図 8.14 は第1吸着塔の流入部表面の放射線量率の 経時変化を示しています。処理を進めるにつれて放射線量率が上昇し、洗浄排水から放射性 セシウムが吸着除去されている様子がうかがえます。



図 8.14 第1吸着塔表面の放射線量率

また吸着塔内の吸着剤の放射性セシウム吸着量の推定および分布の把握を行いました。 ここで吸着量は、吸着塔に投入した総ベクレル数から処理水に含まれる総ベクレル数の差 を吸着塔内の吸着剤重量で除して、平均吸着量を求めると同時に、予め、吸着塔表面の放射 線量率と吸着量を換算する係数を求めておき、吸着塔毎の放射線量率を測定することで、各 吸着塔における吸着量を算出しました。図 8.15 に示す通り、吸着塔へ投入した総ベクレル 数が 10,000 Bq の時には吸着塔 A の下部(1 段目の入口)の吸着量は 20 万 Bq/kg 程度で すが、総ベクレル数が 300,000 Bq の時には 2 百万 Bq/kg 程度まで吸着されました。このと き、吸着塔 A の上部(出口側)ではまだ吸着量に余裕があるとともに、吸着塔 D (4 塔目) までにほとんどの放射性セシウムが吸着される結果となりました。





また、原水の放射性セシウム濃度の上昇に伴って吸着量が増加することも確認されました。原水の放射能濃度は最大で 3,000 Bq/kg 程度で、その際の吸着量は吸着剤の充填率を加味すると約 1,000 万 Bq/kg となりました。この結果を元に、飛灰の放射能濃度を 20,000 Bq/kg と仮定したときの物質収支を図 8.16 に示します。



図 8.16 飛灰洗浄(プルシアンブルー吸着剤使用)の物質収支

一方で、廃吸着剤の放射能濃度を10万 Bq/kg以下に制御する方法も検討しました。この 場合、単位吸着剤量あたりの放射性セシウム除去量が少なくなりますので、より多くの吸着 剤が必要となります。そこで、安価で汎用性の高い天然ゼオライトを焼成したモルデナイト 型ゼオライト(ゼオフィル、新東北化学工業(株))を使用しました。

ゼオライトを用いた吸着試験の条件と結果を表 8.4 に示します。なお、廃吸着剤の放射能 濃度を 10 万 Bq/kg 以下に制御するため、ゼオライト吸着剤を砕石と混合して試験を行い ました。この場合でも、吸着原水で 3,900 Bq/L あった放射能濃度が吸着処理水では検出下 限値(10Bq/L)未満となり、十分な処理性能が得られました。

吸着塔の数(直列)	6	
吸着塔の直径	0.15	m
吸着塔の高さ	0.7	m
充填量	12.4	L
充填剤に占める吸着剤の割合	5	%
流入方法	上向流	
SV	0.36	h <sup>−1</sup>
LV	1.5	m $h^{-1}$

表 8.4 ゼオライトを用いた吸着試験の条件と結果

ここで、処理対象飛灰 1,500t、放射能濃度 20,000 Bq/kg の条件で、飛灰洗浄による減容

化率を試算しました。表 8.5 に示す通り、プルシアンブルー吸着剤を用いた高濃度濃縮の場 合では、廃吸着剤量は 2.7t(3.4m<sup>3</sup>)となり、減容化率は極めて高く、原飛灰の 0.19%の容 量となりました。一方、ゼオライト吸着剤を用いた中濃度濃縮の場合の減容化率は 13.5%で あり、高濃度濃縮ケースに比べると減容化率は低くなりますが、放射能濃度は 10 万 Bq/kg 以下に制御されることから、一時保管における遮へいに要するコスト・スペースが小さくな ります。いずれのケースでも、廃吸着剤では原飛灰と異なり、放射性セシウムの溶出性が極 めて低くなっていることから、速やかに中間貯蔵施設や国の最終処分場に搬出されること が期待されます。

	プルシアンブル一吸着剤	ゼオライト吸着剤			
	(高濃度濃縮ケース)	(中濃度濃縮ケース)			
飛灰の保管量	1,50	00 t			
保管飛灰の比重	0.	85			
保管飛灰の容量	1,76	5 m <sup>3</sup>			
保管飛灰の放射能濃度	20,000	Bq/kg			
総放射能	$3.0 \times 10^{10} \text{ Bg}(=1.5 \times 10^{10} \text{ Bg}$	0 <sup>6</sup> kg×20,000 Bq∕kg)			
飛灰洗浄により除去される放	00%				
射性セシウムの割合	50%				
飛灰洗浄により除去される総	$2.7 \times 10^{10} \text{ Bm}(-1.5 \times 10^{6} \text{ km} \times 20.000 \text{ Bm}(\text{km} \times 0.0)$				
放射能	2.7 × 10 Bq(-1.3 × 10 kg × 20,000 Bq/ kg × 0.9)				
最大吸着量	1,000万Bq/kg	10万Bq/kg			
四美刘佐田昌	$2.7 t (= 2.7 \times 10^{10} Bq \div 1.0 \times$	270 t(=2.7×1010 Bq÷1.0×			
吸有削使用重	$10^7 \text{ Bq/kg}$	$10^5 \text{ Bq/kg})$			
吸着材のかさ比重	0.8 1.13(吸着剤は0.65)				
吸着材の容量	$3.4 \text{ m}^3(=2.7 \text{ t}\div 0.8)$ $239 \text{ m}^3(=270 \text{ t}\div 1.13)$				
減灾化率	0.19% (=3.4 m <sup>3</sup> ÷1,765 m <sup>3</sup> ×	13.5% (=239 m <sup>3</sup> ÷1,765 m <sup>3</sup> ×			
	100)	100)			

表8.5 飛灰洗浄による減容化率の試算

※飛灰の保管方法および廃吸着剤の遮へいによるスペースについては別途考慮が必要。

# 8.4.5 洗浄飛灰に含まれる放射性セシウムの水への溶出性

飛灰洗浄による溶出性低減効果を確認するため、放射能濃度の異なる原飛灰を洗浄し、放 射能濃度の変化を確認するとともに、洗浄飛灰の溶出試験を行いました。溶出試験は JIS K0058-1に基づいて行い、ゲルマニウム半導体検出器を用いて放射能濃度を測定しました。 表 8.6に示す通り、原飛灰で 8,000 もしくは 26,000 Bq/kg 程度であったものが、洗浄後に はそれぞれ 400、2,200 Bq/kg 程度まで低減しており、洗浄飛灰の溶出濃度は<17 Bq/L、52 Bq/L となりました。洗浄飛灰としての放射性セシウム溶出率は 23%程度ですが、洗浄前(原 飛灰)の状態から考えると、2%程度となります。原飛灰からの放射性セシウム溶出率が 90% 超であることを考慮すると、大幅な溶出性の低減が図られたと言えます。

	ケース1	ケース2
原飛灰の放射能濃度(Bq/kg)	8,120	26,130
洗浄飛灰の放射能濃度(Bq/kg)	407	2,235
洗浄飛灰の溶出濃度(Bq/L)	<17.0	51.9

表8.6 洗浄飛灰の溶出試験結果

上述した溶出試験は特措法に基づくものですが、溶出時間が 6 時間であるため、念のた め、約1ヶ月の溶出試験を実施しました。先ほどとは別の洗浄飛灰(1,453 Bq/kg)を同じ ように 10 倍量の水と混合し、30 分後、6 時間後、7、17、29 日後に溶出液中の放射能濃度 を測定しました。その結果、6 時間後の溶出濃度は 19 Bq/L(溶出率 13.1%)であり、その 後、顕著な変化がなかったことから、洗浄飛灰に残存する放射性セシウムの大部分は不溶性 であることが推察されました(図 8.17)。



図 8.17 洗浄飛灰の長期溶出試験

なお、環境庁告示第13号(昭和48年2月17日)に基づいて溶出試験を行った結果、鉛 について基準値を超える値が検出されることがありましたが、液体キレートを飛灰溶解水 に添加(重量比2%)することで、洗浄飛灰からの鉛の溶出を抑制することが可能であるこ とが確認できています。

### 8.4.6 洗浄不溶化試験

8,000 Bq/kg 超 100,000 Bq/kg 以下の指定廃棄物は、埋立後の放射性セシウムの溶出リス クを低減するため、セメント固型化や隔離層の設置が義務づけられています。しかし、当該 廃棄物からの放射性セシウムの溶出量が少なければ(基準値:溶出試験で Cs137 が 150Bq/L 未満)、セメント固型化をせずに埋立処分することができ、埋立時の隔離層の設置について も上部の不透水層以外は不要となります。そこで、ここまでに示した飛灰洗浄技術を応用し、 埋立処分の前処理として飛灰中の放射性セシウムを不溶化する方法(図 8.18)を検討しま した。





具体的には、上述のベンチ試験装置を用い、飛灰洗浄において水に溶解する際に放射性セシウムを不溶化するための吸着剤を添加して飛灰中の放射性セシウムを不溶化する方法 (洗浄不溶化方式)の実証試験を行いました。

放射能濃度が 22,000~27,000 Bq/kg 程度の原飛灰 40kg に対して吸着剤としてのゼオラ イトを 10~30%添加し、溶解液固比を 5 倍、リンス液固比を 2.5 倍、吸着時間を 1 時間と して不溶化処理を行いました。フィルタープレスで脱水・排出された不溶化飛灰の溶出試験 を行ったところ、溶出性が著しく低減されていることが確認できました。また、ゼオライト の添加率が高いほど溶出濃度は低くなりますが、10%添加でも溶出濃度は ND レベル (10 Bq/L 以下)となることがわかりました (図 8.19)。



図 8.19 ゼオライト添加率と不溶化飛灰からの放射性セシウム溶出濃度の関係

なお、洗浄不溶化した際の排水中には数百 Bq/L 程度の放射性セシウムが残留しているため、後処理を行って除去する必要がありますが、洗浄不溶化で使用する吸着剤と同じものを 吸着塔に充填して通水することにより、ND レベル(10 Bq/L 以下)まで除去できました。 また、この後処理で使用したゼオライトは吸着容量が十分に余っているため、これを粉砕し て洗浄不溶化に再利用できることも確認できました。従って、飛灰溶解時に添加する吸着剤 の量に合わせて後処理吸着の条件を調整することで、二次廃棄物を発生させることなく不 溶化処理が可能であることがわかりました。

### 8.4.7 放射線管理

飛灰洗浄ベンチ試験を実施したエリアの空間線量率をモニタリングしたところ、飛灰洗 浄による事業所外部への汚染の拡大は見られませんでした。但し、飛灰を大量に搬入すると その周辺は線量率が上昇するため、必要に応じて遮へい等の対応を検討する必要がありま す。一方、放射性セシウムを吸着・濃縮する吸着ユニットや廃吸着剤を保管する保管スペー スは鉄板やコンクリートによる遮へいを行っており、十分な被ばく防護が確認できました。 また、電離則で定められている作業環境測定を作業環境測定士により 1cm 線量当量率、床 面の表面密度、空気中放射性物質濃度の測定を行った結果、特段の汚染は認められず、適切 にプロセスを管理できることがわかりました。なお、原料飛灰は一定の水分を含んでいるた め、溶解作業中に粉塵として舞うことはほとんどありませんでした。

作業に従事した作業員が作業により受けた被ばくについて、表 8.7 に示します。作業従事 者の被ばくは 0~2μSv/日程度で、試験期間に最も放射線量を受けた作業員(E)でも約 1 年間で 0.25 mSv 程度であり、法律で定められている年間 50 mSv、5 年で 100 mSv と比較 して非常に低い値で管理できました。規模が大きくなると処理する飛灰量が増加するため に放射線量の増加が考えられますが、実設備では飛灰溶解作業の自動化による作業時間の 短縮、吸着塔の遮蔽とデータの自動測定等により、作業員が受ける放射線量を低減すること が可能であると考えられます。

作業員	主な作業内容	1 時間当たりの被ばく量
А	データ整理	0.031 <i>µ</i> Sv/h
В	作業環境測定、RO 膜装置データ測定	0.163 <i>µ</i> Sv/h
С	吸着装置データ測定	0.206 <i>µ</i> Sv/h
D	作業環境測定、飛灰溶解作業	0.174 <i>µ</i> Sv/h
E	飛灰溶解作業	0.245 <i>µ</i> Sv/h
F	吸着装置データ測定	0.167 <i>µ</i> Sv/h
G	作業環境測定、吸着装置データ測定	0.143 <i>µ</i> Sv/h

表 8.7 各作業員の作業内容と被ばく状況

#### 8.4.8 ベンチ試験のまとめ

以下に、飛灰洗浄ベンチ試験で得られた結果をまとめます。

• 飛灰洗浄による放射性セシウム除去率は概ね90%以上でした。

- 洗浄後の飛灰には放射性セシウムが10%程度残存しましたが、8,000 Bq/kgを大きく
  下回り、放射性セシウムの溶出濃度・溶出性も著しく減少しました。
- 洗浄排水中の放射性セシウムは、吸着塔で除去・回収され、<u>処理水中の放射性セシ</u> ウム濃度は ND レベル (<10 Bq/L) でした。</li>
- 一連のプロセスを通して、適切に放射線管理が可能でした。
- クリーンセンター等では<u>排水できないケース</u>が多いため、<u>処理水の蒸発固化</u>が必要 であり、<u>使用水量の削減</u>が重要となります。
- 現時点では二次廃棄物(廃吸着剤)の搬出先がないため、<u>放射性セシウムを濃縮し</u>
  た二次廃棄物を放射能濃度に応じて遮へい容器等に収納し、場内に一時保管する必要があります。
- 放射能濃度の高い二次廃棄物は、一度保管したら移し替え等は困難であるため、中 間貯蔵および最終処分における廃棄体と保管形態・容器等の条件を整理しておく必 要があります。

### 8.5 飛灰洗浄技術の開発状況

## 8.5.1 **飛灰の洗浄方法**

飛灰中の放射性セシウムを溶解、洗浄して分離させる技術としては、本稿で示した方法を 含め、以下のような技術開発が進められています。

▶ 水洗浄

飛灰に対して数倍程度の水を加えて溶解させた後、フィルタープレス等で脱水す ることにより、放射性セシウムが除去された洗浄飛灰と放射性セシウムを含む排 水とを分離する方法です。

(国立環境研究所・福岡大学・(株)神鋼環境ソリューション)

- 本稿 8.4
- ・ 放射性物質に汚染された飛灰の洗浄による埋立前処理に関する研究(2013) 第 34 回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集、313-315.
- ・ 飛灰中のセシウムの洗浄分離に関する研究(2012)第23回廃棄物資源循環 学会研究発表会講演論文集、573-574.
- ▶ 水洗浄+磁気分離

飛灰の水洗浄の際、もしくはその後に磁性吸着剤を混合することで水溶性の放射 性セシウムを除去し、放射性セシウムを吸着した磁性吸着剤は超伝導磁気分離装 置で分離・回収する方法です。吸着剤は繰り返し使用可能です。これにより、水 洗浄と洗浄排水の処理を同時に行うことができ、システムをコンパクトにできる ことが期待されます。なお、磁性吸着剤を工夫することで、高 pH 耐性と磁力の 向上を図り、磁気分離に永久磁石を用いることも試みられています。

- (三菱製紙(株)・(株) MS エンジニアリング、他)
- 磁気分離法による飛灰浄化方法の検討(2012)第1回環境放射能除染研究発表会
- ・ 磁性吸着剤を用いた放射能除染システム(2012)月刊 JETI2012 年 12 月号 (大成建設(株))
- · 平成 25 年度除染技術実証事業
- 承灰を造粒して水切りフレコンで固液分離 飛灰をセメントにより造粒固化してから水洗浄することで、その後の固液分離に 水切りフレコンを用いることができ、コスト削減が期待される方法です。 ((株)大林組)
  - ・ 飛灰の放射能濃度低減を目的とした造粒固化洗浄 (2013) 大林組技術研究 所報 No.77
  - · 平成 24 年度除染実証事業報告書
- 散水による極小水量での洗浄技術

機械撹拌等を用いることなく、間欠散水・通気を利用して使用水量および洗浄排 水の量を極端に少なくする洗浄方法です。実証試験では、液固比 0.5 程度で洗浄 を行い、環告 13 号法による溶出(液固比 10)と同程度の洗浄効果が得られてい ます。

- (株) フジタ
- 平成 25 年度除染実証事業報告書

### 8.5.2 洗浄排水からの放射性セシウムの除去方法

高濃度の塩類を含む排水から放射性セシウムを効率的に除去するため、以下のような技術開発が進められています。

▶ プルシアンブルー

造粒プルシアンブルーを吸着塔に充填し、飛灰洗浄排水を通水する方法です。 (国立環境研究所・福岡大学・(株)神鋼環境ソリューション)

- 本稿 8.4
- 洗浄・水処理プロジェクト(2013.7)
  <a href="http://www.nies.go.jp/shinsai/hokoku\_senjou.pdf">http://www.nies.go.jp/shinsai/hokoku\_senjou.pdf</a>
- 一般廃棄物焼却設備の飛灰除染一貫処理システムを開発(2013.8)
  <u>http://www.kobelco-eco.co.jp/topics/news/2013/20130806.html</u>

フェロシアン化鉄(プルシアンブルー)を飛灰溶解液中で合成し、セシウムを吸 着するとともに、凝集沈殿する。さらに、凝集沈殿物をアルカリ溶液で分解し電 気透析で放射性セシウム濃縮液を作り、ゼオライトに吸着させる。

(アタカ大機(株))

- ・ 焼却飛灰等の水洗浄除染とその水処理(2014)第35回全国都市清掃研究・ 事例発表会講演論文集、318-320.
- 溶融飛灰からの放射性セシウムの分離除去技術について(2012)環境技術、
  41(9)、41-46.
- ・ 飛灰からの放射性セシウムの分離除去に係る新技術の開発について (2013.8) <u>http://www.atk-dk.co.jp/xml/docs/ATK\_214.pdf</u>

ナノ粒子化したプルシアンブルーで高効率にセシウムを吸着する方法です。 (産業技術総合研究所、他)

- Adsorption removal of cesium from drinking waters: A mini review on use of biosorbents and other adsorbents (2014) Bioresource Technology、印刷 中 (DOI: <u>http://dx.doi.org/10.1016/j.biortech.2014.01.012</u>)
- ・ ナノ粒子化したプルシアンブルーでセシウム吸着能が向上(2012.2)
  http://www.aist.go.jp/aist\_j/press\_release/pr2012/pr20120208/pr20120208.
  html
- 植物系放射性セシウム汚染物を除染・減容するための実証試験プラント (2012.11)

http://www.aist.go.jp/aist\_j/press\_release/pr2012/pr20121112/pr20121112.h tml

▶ ゼオライト

天然ゼオライト(モルデナイト)を吸着塔に充填し、飛灰洗浄液を通水すること により放射性セシウムを除去する方法です。吸着剤の放射能濃度を制御すること で、保管・管理方法を選択することができます。また、飛灰洗浄時に一定量添加 することにより、不溶化処理を行うこともできます。

(国立環境研究所・福岡大学・(株)神鋼環境ソリューション)

- 本稿 8.4
- クラウンエーテル 洗浄排水中の放射性セシウムをクラウンエーテルにより吸着した後、溶離工程により濃縮・回収する方法です。

((株) タクマ)

- ・ 繰返し使用可能な吸着剤を用いた焼却飛灰からの放射性セシウムの分離除去システム(第2報)(2014)第35回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集、324-326.
- ・ 繰返し使用可能な吸着剤を用いた焼却飛灰からの放射性セシウムの分離除去 システム(2013)都市清掃、66(313)、306-309.
- 焼却飛灰中の放射性セシウム除去システムを開発(2013.1)
  <u>http://www.takuma.co.jp/news/2012/20130123.html</u>

#### 9. 埋立処分過程における挙動と制御

#### 9.1 モデル解析からみる挙動と埋立工法

現時点で放射性物質に汚染された廃棄物(焼却灰等含む)の埋め立ては、濃度によって 分類されており、その値は、作業者の被曝線量率から求められた 8,000 Bq/kg(廃棄物中に 含まれる放射性物質濃度:以下、固体濃度とする)が採用されています。重金属やその他 の有害物質に関して、廃棄物最終処分場への埋め立ては、固体濃度ではなく、廃棄物処分 場から発生する浸出水に対する影響という観点から、溶出試験によって分類されてきまし た。したがって、現時点では、浸出水への影響よりも作業者の被爆が優先されていること になります。当然、埋立後の地域住民に対する被曝線量を十分に低くしなければならない ことから、固体濃度による規制も必要ですが、放射性物質を含む浸出水が発生した場合 に、既存の水処理施設では十分な対応が取れないことから、被曝量と同時に、浸出水への 影響も考える必要があります。

放射性物質に汚染された廃棄物には、放射性物質を溶出しやすい廃棄物と、しにくい廃 棄物があります。溶出しやすい廃棄物としては、家庭や事業所から出される一般廃棄物の 焼却飛灰が挙げられます。一方で、一般廃棄物の主灰からは溶出しにくく、下水汚泥の焼 却灰(飛灰)や上水汚泥からも溶出しにくいことが確認されています。ここでは、放射性 物質に汚染された廃棄物の埋め立て時において考えなければならない共通事項や留意事項 を示すとともに、溶出量の大小における浸出水への影響について述べます。

#### 9.1.1 放射性物質に汚染された廃棄物の埋立方法

第1節でも述べられているように、放射性物質に汚染された廃棄物であったとしても、 既存の管理型廃棄物最終処分場に埋め立てられることが示されました。これは、覆土等に よって地域住民に対する被曝量を制御することが可能であることや、跡地利用制限するこ とで一般公衆に対する被曝線量も制御可能であることが理由として挙げられます。管理型 最終処分場は、底部に遮水工があり、水が場外へと漏洩しない封じ込め施設として建設さ れており、処分場内の水は、集排水管によって集められて水処理後に放流する仕組みとな っています。よって、浸出水に対する配慮も求められます。水処理技術が確立していない 現時点においては、水処理によって放射性物質を止めることは合理的でないことから、浸 出水へと溶出させないことが必須と考えられます。

放射性物質の固体濃度が 8,000Bq/kg 以上の廃棄物や、8,000 Bq/kg 以下であっても溶出し やすい煤塵等の廃棄物に関しては、上部隔離層の役割が重要になります。廃棄物処分場内 へと浸透する降雨量を涵養量といいますが、この涵養量の大小によって浸出水への溶出は 大きく変化します。上部隔離層に求められる性能は、遮水性と変形追従性、施工性、(放 射能に対する)遮蔽性です。

・ 遮水性は、透水係数を小さくすることと、排水勾配を設けることによって確保可能

です。排水勾配は、不同沈下のことも考慮すると、5%は必要と考えられます。透 水係数としては、周辺の廃棄物地盤よりも少なくとも2オーダーは低い透水係数を 与えることで、十分な遮水性を確保することが可能です。

- 変形追従性は、不同沈下対策として求められる機能です。一般的には、自己修復性 を有する膨潤性粘土鉱物を用いることで対応がとられます。
- 上部隔離層は、中間覆土代替として設置されることから、数日から数週間に1度の 施工となり、連続施工とはなりません。したがって、特殊な重機等を用いないと施 工できない方法では、維持管理が困難になります。このことから、通常の管理型最 終処分場で用いられるシャベルカー等を用いた工法を採用する必要があると思われ ます。
- ・ 遮蔽性は、隔離層の充填密度(かさ密度)と厚みによって制御されます。これまでの報告ですと、通常の締固め土壌であれば 50 cm の厚みで十分とされています。

上部隔離層についてのみを詳述しましたが、セメント固化の強度が十分でなく、溶出し にくいと判断できない 8,000~100,000 Bq/kgの廃棄物については、側面にも隔離層が求め られますが、必要な性能は上部隔離層と同様です。

次に、これまでの埋立や仮置きに関する通知文等に一貫して述べられていることとし て、廃棄物の下には土壌層を敷設することが示されています。これは、廃棄物から溶出し た放射性物質を吸着させることが目的であり、土壌層には、吸着能と通水性の2つが求め られます。ただし、これまで吸着層という設計が行われた事例は少なく、どのような土壌 であれば良いか、どのように敷設するのかという具体的方法を示すことは難しいのが現状 です。土壌層という名前であることから、砂や礫、スラグ等は使用できず、真砂土やシル ト質土壌等が対象となってきます。これは、砂や礫だと通水性は確保できますが、セシウ ム吸着能が低く、吸着性能が悪いことが理由です。また、吸着能のみを考えれば、粘土質 土壌が最も性能が良いことになりますが、粘土分(75µm以下の粒径)が多いと、通水性 が悪く、浸透水が吸着層内に入り込まない可能性が高いため、吸着層としての機能を果た さないことになります。よって、適切な土壌が手に入らなければ、通水性と吸着能を両立 する材料を配合して人為的に作ることが求められます。

土壌層の設計が容易でないことから、最も重要な対策は上部隔離層と側部隔離層であ り、下部の土壌層は、仮に水が入ってしまった時の補助的な役割であり、フェイルセーフ 機能の一つとして考える方が無難です。

これまでの通知では、埋立や仮置きにおいて、下部にも隔離層(遮水層)が必要という ことになっておりますが、水を集水しない構造で下部を遮水する行為は、工学的には危険 と考えられます。溜まった水の処理を行うことができません。原発事故時に降下したセシ ウムは土壌表面から数センチ以内に留まっています。このことを考えると、セシウムにつ いては、土壌層を通水させても系外には漏洩しない、といえると思います。よって、下部 は遮水性能の隔離を行うのではなく、吸着層としての隔離に留めるべきと考えています。

# 9.1.2 放射性物質の溶出量を考慮した浸出水への影響評価

焼却灰に吸着したセシウムは、その全てが水へと溶出するわけではありません。下水汚泥 焼却灰からの溶出率は、固体濃度に対して3%未満であることが報告されています。一方で、 一般廃棄物の焼却飛灰からの溶出は、キレート処理やセメント添加処理にかかわらず数 +%になることも報告されております。例えば、10,000 Bq/kgの焼却灰から10%溶出する ことと、100,000 Bq/kg から1%溶出することは、水にとっては同じ負荷量となります。溶 出時間という観点もありますが、放射性物質の移動や減衰の時間からすると、溶出時間は短 く、影響評価においては大きな影響を及ぼしません。

本節では、JIS K 0058 から求められる溶出率等を利用し、不溶態のセシウムの存在を考慮した合理的な評価を行うことで、適正な埋立処分を行うための基礎データを構築します。 図 7.1.1 には放射性物質に汚染された廃棄物の埋立イメージの一例を示します。



図 9.1.1 溶出量と溶出率の関係と支配方程式

廃棄物は1日に300 cm までしか埋め立てることができないため、フレキシブルコンテナ に入れられた廃棄物であれば、おおよそ3段積みとなります。上部には遮水性を有する隔 離層が必要であることから、厚さ50 cm程度の難透水性土壌層が設置されます。土壌層と しているのは、廃棄物の圧縮沈下等に伴う不同沈下に対する変形追随性を持たせることが 理由です。多少の沈降があったとしても、透水係数が極端に増加することのないような材料 を用いる必要があります。また、廃棄物層の下部には吸着を目的とした土壌層が必要です。 上部も下部も隔離層という概念ですが、その目的は異なります。下部の吸着目的の隔離層に は、セシウムが吸着する材料を選択する必要があります。土壌層と書きましたが、人工的な 材料でも、変形追随性と吸着性、地耐力があれば問題ありません。

図7.1.1 には、数値モデルの条件設定も示しています。上部の隔離層である難透水性土壌 層の透水係数と、地域の降雨量、廃棄物の透水係数によって、この隔離層を通過する流量は 変化します。ここでは、この通過水量を涵養量としました。上部の隔離層の遮水性は25年 間は発揮されますが、その後、徐々に機能劣化が起こることを想定し、涵養量が50年後に は当初の5倍になることを模擬しました。実際、粘土等を用いた遮水であれば、その機能が 劣化することはなく、ここで安全側の計算ができるように安全率を設置したことになりま す。廃棄物層からの溶出は、例えば、JISK0058 (JIS 攪拌溶出試験)による溶出試験結果 から得られた濃度を用いることになります。JIS 撹拌溶出試験は、廃棄物を構成している粒 子を、廃棄物の10倍の質量の水で溶出させることになります(液固比が10ということ)。 実廃棄物層では、粒子が撹拌されることなく、粒子同士の間隙を涵養した水が通過すること になりますので、ここでも安全側の計算を行っていることになります。溶出試験結果で100 Bq/Lである場合、液固比が10であることから、実廃棄物層の間隙水のセシウム濃度は10 倍の1,000 Bq/kg となります。JIS 撹拌溶出試験は、6時間で溶出させますので、セシウム の移動や減衰挙動を評価する上では、微々たる時間であることから、JIS 撹拌溶出より得ら れた溶出量が、初期に瞬時に間隙水に溶出することを仮定しました。

下部の隔離層である土壌吸着層には、バッチ吸着試験より得られた分配係数を用いることとしました。この分配係数は、使用する材料にもよりますが、塩分濃度の影響を強く受けるので、実際の処分場の浸出水や溶出水等を用いてセシウムの分配係数を求める必要があります。本解析では、まさ土にて求められた分配係数 Kd = 10 L/mg を用いました。

なお、本解析では、134Csの半減期が短く、本計算上では影響を及ぼさないことから、 137Csのみに着目して実施しています。

(あ) 涵養量の条件設定

本計算で与えた涵養量のパターン図を図 7.1.2 に示します。涵養量 10 mm/yr とは、年間 降雨量が 1,800 mm と仮定した場合に、透水係数 10<sup>-6</sup>~10<sup>-8</sup> cm/s の透水係数を有する隔離 層を設置した場合に相当します。涵養量が 100 mm/yr であれば、透水係数で 10<sup>-5</sup>~10<sup>-6</sup> cm/s 相当になります。この涵養量は、不飽和浸透特性に影響を受けることから、単純に透水係数 で求めることができないため、比例計算等で涵養量を求めることは困難です。



図 9.1.2 涵養量のパターン図

(い) 計算結果

図 7.1.1 における濃度測定点(下部土壌層の下端)での濃度変化を図 7.1.3~7.1.5 に示します。それぞれ、涵養量毎で図化しました。凡例に示される溶出濃度は 1~500 Bq/L として計算しました。1 Bq/L は検出限界に近い値であり、例えば土壌などの溶出試験で N.D.となった場合には、この 1 Bq/L の溶出濃度を用いて評価することが可能です。

図 7.1.3 の涵養量  $10 \rightarrow 50 \text{ mm/yr}$  の場合では、溶出試験結果が 500 Bq/L であった場合に、 濃度限界である 90 Bq/L を超過することになります。溶出試験結果が 500 Bq/L であるの で、初期の液相濃度は 10 倍の 5,000 Bq/L となります。これでも、小さい涵養量を確保可 能な上部隔離層を用い、分配係数 10 程度の土壌吸着層を用いれば浸出水濃度を約 90 Bq/Lまで抑制することが可能になります。



図 9.1.3 涵養量 10→50 mm/yr の場合の浸出水濃度変化



図 9.1.4 涵養量 20→100 mm/yr の場合の浸出水濃度変化



図 9.1.5 涵養量 40→200 mm/yr の場合の浸出水濃度変化

ピーク濃度に着目して整理すると、図 7.1.6 のようになります。それぞれの涵養量毎に整理すれば、ピーク濃度は溶出濃度の関数となります。よって、溶出試験による濃度が分かれば、相当する涵養量の近似式を用いてピーク濃度を評価することが可能です。図には 500 Bq/L の溶出濃度までしか描いておりませんが、750 Bq/L までは線形関係が保たれることを確認しています。理論上はそれ以上の濃度でも予測可能です。



図 9.1.6 涵養量毎のピーク濃度の整理結果

(う) 安全率の確認とクロスチェック

安全率の一つとして、上部隔離層の遮水性能の劣化を想定したことは先に述べましたが、 どの程度の安全率であるか確認した図を図 7.1.7 に示します。涵養量の条件は 10→50 mm/yr、溶出濃度 100 Bq/L のケースを計算した結果です。劣化考慮なしの場合は、涵養量 10 mm/yr が継続することを想定します。劣化考慮なしに比較すると、劣化を考慮した場合 は、濃度が約 3 倍となっており、安全率としては 3 を見込んでいることになります。



図 9.1.7 上部隔離層の劣化の有無による濃度経時変化の違い

最後に計算結果の妥当性を評価するため、国環研グループが使用している COMSOL ver4.2 とは別の汎用型ソフトウェア(G-TRAN/3D:株式会社地層科学研究所)を用いて 同様の計算を行いました。計算結果の比較を図 7.1.8 に示します。涵養量が小さい 10→50 mm/yr の場合、ピーク濃度がややずれて下りますが、40→200 mm/yr のケースでは、ほ ぼ同様の結果が得られております。ピーク濃度の出現年数もやや異なり、G-TRAN/3D の 方が数年ほど早い時間帯にピークが出現しています。この時間の差の原因は分かっており ませんが、ピーク濃度の出現時間が同じ時期に仮定すると、濃度差は減衰効果のみの影響 であることが確認されており、セシウムの移動自体の計算に大きな差はありません。今 後、この部分については精緻化が必要なところとなります。



図 9.1.8 クロスチュックによる計算結果の妥当性評価

# 10. 浸出水処理過程における挙動と制御

放射能汚染廃棄物の処分・取扱の基本は最終処分場における封じ込めですが、降水等に より放射性セシウムが溶出した場合に備え、最後の砦となる浸出水処理施設における放射 性セシウムの挙動と制御方法について、現場調査および吸着除去方法の検討を行いまし た。

#### 10.1 浸出水処理施設における実態

## 10.1.1 浸出水処理施設における放射性セシウムの現状

2011年7月以降、福島県内の一般廃棄物最終処分場6ヶ所の浸出水処理施設において 放射性セシウムの調査を行ったところ、浸出水原水および処理水中の放射性Csは検出下 限未満の値が多く、検出された試料も最大で17Bq/L程度(Cs-134、Cs137の合計)であ り、線量限度等を定める告示の示す濃度限度内でした。(但し、Cs-134の半減期は2.062 年であり、Cs-137の半減期は30.0年であり、震災時のフォールアウトから各々の試料測 定日までの減衰によるCs-134/Cs-137の比率の差異にも留意する必要があります)

※ 処理水濃度限度の目安(Cs-134:60 Bq/L、Cs-137:90 Bq/L。但し、二種類以上の 放射性物質がある場合にあっては、それぞれその放射性物質についての濃度に対する 割合の和が一となるようなそれらの放射性物質の濃度) 実用発電用原子炉の設置、運転等に関する規則の規定に基づく線量限度等を定める告示(平成13年経済産業省告示第187号)第9条に定める濃度限度(周辺監視区域の 外側の境界における水中の濃度)

汚泥中の放射性 Cs 濃度は B、D、F 施設で比較的高い値を示しましたが、すべての処理 施設の汚泥は湿重および乾重で 8,000Bq/kg 以下でした。放射性 Cs 濃度の高かった施設 は、集水ピットや調整池が露天の施設であることから、事故直後のフォールアウトの影響 が残存している可能性があります。なお、脱水汚泥に含まれる水を分離して測定した結 果、検出下限値以下であったことから、通常の保管状態であれば、脱水汚泥からの再溶出 は極めて少ないと考えらます。

<sup>\*\*</sup>特措法における施行規則(環境省令)において、最終処分場の放流水を監視することで 公共の水域の水中でこの濃度限度を満たすことが基準として示された。

湿重量当たり(Bq			当たり(Bq/k	g-wet)	遠心忿	う離後の上澄	(Bq/L)	乾燥重量当たり(Bq/kg-dry)			
			Cs134	Cs137	Cs合計	Cs134	Cs137	Cs合計	Cs134	Cs137	Cs合計
A施設	脱水汚泥		28	23	51	/		/	61	50	111
	円板汚泥		<11	<11	-	/		/	-	-	· _
B施設	脱水汚泥		282	328	610				452	526	978
	第一汚泥貯留	習槽	17	33	50	/		/	630	1,222	1,852
	第二汚泥貯留	習槽	<9	11	11	/		/		786	786
C施設	沈さ		<7.61	<8.84	-	<6.54	<6.22			-	· _
D施設	脱水汚泥		187	229	416	/		/	984	1,205	2,189
E施設	脱水汚泥		52.8	45.9	98.7	/		/	275	239	514
<mark>F施設</mark>	脱水污泥		168	215	383	<1.13	<7.54		- 971	1,243	2,214
	A施設		B施設		C施設		D施設		E施設		F施設
処理ブ	<b>ロセスは</b>	集水	ピットが富	<mark>客</mark> 処理	<b>ピプロセス</b>	は <mark>沈</mark> る	小原水槽	<mark>が</mark> 処	理プロセス	は <mark>囲ま</mark>	なまた一日日
覆われ	ている。	天。		覆れ	っれている	。 <mark>半</mark> 冨	<b>喜天</b> 。	覆	われている	。詞金	<u>電池</u> が路大。

表 10.1 浸出水処理施設の脱水汚泥中の放射性セシウム濃度

## 10.1.2 安定セシウムを指標とした浸出水処理施設におけるセシウム除去性能の評価

安定セシウム(Cs-133)は放射能を持たない安定同位体ですが、物性は放射性セシウム である Cs-134、Cs-137と同様であることから、放射性セシウムの挙動を推測する指標と なり得ます。安定セシウムは焼却灰中に高濃度に存在しているため、福島第一原発の事故 影響を受けていない地域においても検出されます。そこで、複数の最終処分場の浸出水処 理施設において安定セシウムを IPC-MS によって測定したところ、処理施設によって安定 Cs 濃度に違いはありますが、原水と処理水で顕著な差がない(表 8.2)ことから、浸出液 等に陽イオンとして溶存するセシウムは、凝集沈殿・砂濾過、生物処理、活性炭吸着、キ レート樹脂処理等の現行の浸出水処理工程ではほとんど除去されないと考えらます。

安定Cs133(μg/L)	原水	処理水
A施設	42	35
B施設	16	18
C施設	<1	2
D施設	<1	2
E施設	<1	<1
F施設	28	25
G施設	70	72
H施設	<1	<1

表 10.2 浸出水処理施設の原水および処理水中の安定セシウム濃度

一方、海水淡水化等にも用いられる逆浸透(RO)膜の設備を有する浸出水処理施設に おいて調査した結果、ほとんどの施設で安定セシウム除去率95%程度以上の結果が得られ ました(表10.3)。除去率の低い施設は原水中の安定セシウム濃度が極端に低いことによ るもので、定量限界が1µg/Lであるために計算上除去率が低く算出されています。すな わち、RO 膜の設備を有する浸出水処理施設においては、放射性セシウムが混入したとし

<sup>※</sup>赤字は検出下限値以下

ても放流水中の放射性セシウム濃度は極めて低く抑えられる可能性があります。但し、 RO 膜で処理した際に濃縮水が発生し、濃縮水中の安定セシウム濃度は原水の 2~6 倍程度 となっていました。また通常、濃縮水は蒸発乾固し、固形残さとして廃棄されることか ら、実際に放射性セシウムを対象として除去する場合には、濃縮水の取り扱いも含めて検 討する必要があります。また、RO 膜を含めた脱塩設備では同様の効果が期待されます が、全国 1,988 施設の一般廃棄物の最終処分場のうち表 10.3 に示す脱塩設備が導入されて いる施設は 35 施設であり、関東~東北(1 都 12 県)では 521 施設のうち 6 施設となって おり、一般廃棄物最終処分場における導入割合は非常に低いのが現状です。

			EC	安定 Cs133	安定 Cs133	安定 Cs133
		рН	(mS/m)	(μg/L)	除去率	濃縮倍率
	RO 原水	6.7	2,920	77		1.0
施設I	RO 濃縮水	6.7	6,140	160	98.7%以上	2.1
	RO 処理水	7.2	18	<1		0.0
	RO 原水	3.7	535	2		1.0
施設 II	RO 濃縮水	3.9	777	4	※50.0%以上	2.0
	RO 処理水	3.5	28.8	<1		0.5
	RO 原水	5.9	1680	2		1.0
施設 III	RO 濃縮水	6.5	6530	13	※50.0%以上	6.5
	RO 処理水	7.2	20.6	<1		0.5
	RO 原水	6.8	932	62		1.0
施設 IV	RO 濃縮水	6.2	3,310	270	98.4%以上	4.4
	RO 処理水	5.7	4.8	<1		0.0
	RO 原水	5.1	1,600	20		1.0
施設 ∨	RO 濃縮水	5.6	4,860	85	95.0%以上	4.3
	RO 処理水	5.8	9.4	<1		0.1
	RO 原水	7.1	1,490	19		1.0
施設 VI	RO 濃縮水	6.8	4,130	63	94.7%以上	3.3
	RO 処理水	5.5	7.7	<1		0.1

表 10.3 RO 膜によるセシウムの除去効果

※除去率の低い施設は原水中の安定セシウム濃度が極端に低いことによるもので、定量限 界が1μg/Lであるために計算上除去率が低く算出されています。

	P&F	SWRO	ED	合計
2010年度現在	14	7	14	35
比率(%)	40	20	40	100
2006~2010	7	1	3	11
比率(%)	64	9	27	100

#### 表 10.4 RO 膜を含めた脱塩設備の設置状況

P&F :プレート&フレーム型RO膜脱塩装置 SWRO :スパイラル型RO膜脱塩装置

ED :電気透析膜式脱塩装置

# 参考資料:除去性能確認のための指標である安定セシウムについて

ー般廃棄物の焼却灰(主灰、飛灰)には、数 mg/kg 程度の安定セシウムが含まれてお り、焼却飛灰からの溶出率は放射性 Cs と同様に高いことがわかっています。図 8.1 は、 実際の浸出水原水の安定セシウム濃度を電気伝導度(EC)とともにプロットしたもので す。100µg/Lを超える安定 Cs が浸出している施設もあります。このことは、放射性 Cs を 含む焼却飛灰を通常と同様に埋めてしまうと、相当程度浸出してくる可能性を示唆してい ます。そのため、溶出しやすい焼却飛灰(ばいじん)を埋立処分する場合は、下部に土壌 層を敷設したり、上部にキャッピング(難透水層・隔離層)を施して、水との接触を低減 することが重要です。

また、図においては、浸出水処理施設における安定セシウム濃度は EC(電気伝導度) との相関関係が見られます。EC が高いということは、塩類濃度が高く、埋立地に焼却灰 が相当程度埋め立てられていることを表していると考えられ、放射性 Cs を含む焼却灰を 埋立処分する場合も、EC のモニタリングが重要な意味をもつ可能性もあります。



### 図 10.1 実際の浸出水原水の EC と安定セシウム濃度の関係

## 10.2 放射性セシウムの有効な除去方法の検討

## 10.2.1 ゼオライトによる吸着除去

# 10.2.1.1 カラム試験

ゼオライトによる吸着法の実用化を検討するため、放射性セシウムが 30Bq/L 程度含ま れる浸出水を原水とし、カラム試験を実施しました(図 8.2)。試験条件は、浸出水処理施 設における活性炭吸着塔をゼオライトに置き換えることを想定し、可能な限り現場の条件 を反映させました。

- 使用原水:一般廃棄物最終処分場浸出水
- 原水 Cs 濃度: Cs134 (14.3Bq/L)、Cs137 (13.9Bq/L)、合計 (28.2Bq/L)
- 通水速度:LV 6.23m/h(現地の活性炭吸着塔及びキレート吸着塔の条件と同じ)
- 空間速度: SV=6(カラム1出口)、SV=3(カラム2出口)(SV=6は現地の活性 炭吸着塔およびキレート吸着塔1塔あたりの条件と同等)
- 通水量:2.6L/h
- 使用ゼオライト:新東北化学工業 ゼオフィル 品番 1424 粒径 1.0~1.4mm
- 使用カラム: φ23mm×1,000mmH
- 充填ゼオライト量: 0.31kg/カラム



今回の試行的な試験条件として、処理水中の放射性セシウム濃度 10Bq/L を破過点とす ると、SV6 となるカラム1 においては、通水開始後 28~32 時間の間に破過に達しまし た。このとき、SV3 となるカラム2 では検出下限値以下であり、50~60 時間後に 10Bq/L を超える値が検出されました。このカラム試験により、破過点を 10Bq/L とした場合の浸 出水中のセシウム吸着容量は、24 時間振とう試験の結果の約半分程度の 6,641Bq/kg と計 算されました。浸出水原水量、原水中の放射性セシウム濃度、吸着塔容量等を仮定した上 で、吸着塔によるセシウム除去を行う際のゼオライトの必要量および交換頻度を試算した 結果は表 8.5 に示す通りです。なお、破過点におけるゼオライト中の放射性セシウム濃度 は 8,000Bq/kg 以下であることから、本条件においては、破過後の吸着剤の取り扱いは比 較的容易であると考えられますが、ゼオライトの交換頻度が 8.1 日と短いため、恒久的な 対策としては他の方法を導入することも検討に値します。

		単位	Cs合計	計算条件・内容
1	原水量	m <sup>3</sup> /日	37	定格水量を37m <sup>3</sup> とする。
2	原水中の放射性Cs濃度	Bq/L	31	原水中のCs濃度を31Bq/Lとする。
3	流入Cs量	Bq∕日	1,147,000	①×②×1000
4	Csの吸着容量	Bq/kg	6,641	カラム試験結果より
5	顆粒ゼオライト必要量	kg∕日	173	(3)÷(4)
6	顆粒ゼオライト必要量	t/月	5.2	$(5) \times 30 \div 1000$
$\bigcirc$	充填物容量	m <sup>3</sup> /塔	2	吸着塔充填容量を2m <sup>3</sup> とする。
8	充填物重量	kg/塔	1,400	ゼオライトの比重を0.7kg/m <sup>3</sup> とする。
9	ゼオライト交換頻度	日	8.1	8÷5

表 10.5 試験結果(カラム1)からの交換頻度の算出

# 10.2.1.2 現場試験

基準値を下回る放射性セシウムが検出された埋立地浸出水処理施設において、既設活性 炭吸着塔2塔と、キレート吸着塔(水銀用)をゼオライトによる吸着塔として使用した試験 を実施しました。なお、浸出水中の放射性セシウム濃度(Cs134、Cs137の合計)は最大で も31 Bq/L であり、基準値を下回る値でした。



図 10.3 処理フロー

活性炭吸着塔A、B、キレート吸着塔Aの3塔について、カラム試験で用いたゼオライトと同じ素材で粒径のみ若干大きいものを充填しました。

品名	品番	サイズ (mm)	メーカー
ゼオフィル	0614#	1.4~4.0	新東北化学工業

表 10.6 使用したゼオライト

	既	存		交	交換後	
塔名称	容量	充填物	容量	充填物	重量	袋数
	(m <sup>3</sup> )		$(m^{3})$		(kg)	(20kg/袋)
活性炭吸着塔 A	0.4	活性炭	0.8	ゼオライト	560	28
活性炭吸着塔 B	0.4	活性炭	0.8	ゼオライト	560	28
キレート吸着塔 A	0.2	キレート	0.4	セオライト	280	14
(水銀用)						
合 計	1.0	_	2.0	_	1400	70

表 10.7 ゼオライト充填量

活性炭吸着塔 A の上部が破過していると想定される 24 時間後に一旦通水を停止し、ゼ オライト及び浸出水(砂ろ過器出口)、処理水(活性炭吸着塔 A 出口、B 出口)の分析を 行いました。その結果、浸出水自体の放射性セシウム濃度も低い状態でしたが、処理水中 の放射性セシウム濃度は定量限界以下となることが確認されました。このとき、ゼオライ トの放射性セシウム濃度は 2,450 Bq/kg でした。含水率(38.4%)から乾燥重量当たりの 放射性セシウム濃度を計算すると、約 4,000 Bq/kg となります。カラム試験の結果では、 ゼオライトの吸着容量は 6,641Bq/kg と試算していますので、6 割程度しか吸着していませ んが、浸出水中の放射性セシウム濃度が低いことや粒径が若干異なることが影響したもの と考えられます。

項目	サンプリング	放射性 Cs 濃度(Bq/kg)			理論値
	箇所	Cs134	Cs137	合計	(Bq/kg)
ゼオライト	活性炭吸着塔A	1,060	1, 390	2,450(湿潤)	6,641
	上部			※4,000(乾燥)	(破過時の濃
					度)
浸出水	砂ろ過塔出口	<10	10	10	_
処理水 A	活性炭吸着塔A	<10	<7	不検出	不検出
	出口				
処理水 B	活性炭吸着塔 B	<11	<9	不検出	不検出
	出口				

表 10.8 24 時間通水後の分析結果

なお、この吸着塔での試験においては、吸着塔の外部表面における放射線量率を定期的 に測定することで、吸着剤への放射性セシウムの吸着状態を把握し、吸着剤の交換時期の 目安などの維持管理に用いることができる可能性が示されました。

### 10.2.2 逆浸透膜による除去

表 8.3 で示した通り、RO 膜による放射性セシウムの除去特性を把握するため、安定セ シウムを指標として既存処理施設における挙動を調査した結果、安定セシウムは約 99%除 去され、RO 濃縮液は 2 倍程度の濃縮率でした。したがって、放射性セシウムについても 同様の除去効果が期待できます。但し、RO 膜で処理した際に濃縮水が発生しますが、濃 縮水中の安定セシウム濃度は原水の 2 倍以上となります。また通常、濃縮水は蒸発乾固 し、固形残さとして廃棄されることから、実際に放射性セシウムを対象として除去する場 合には、濃縮水の取り扱いも含めて検討する必要があります。

調査対象施設では原水の塩濃度が高いため、処理水量と濃縮水量の比率は 6:4 程度であ り、流入原水量の 4 割程度が濃縮液として排出される状況でした。濃縮水は蒸発乾固さ れ、含水率 85%以下となるため、濃縮率は数十~数百倍以上になる可能性があります。し たがって、濃縮液の取り扱いについては検討が必要です。

#### 10.2.2.1 逆浸透膜による放射性セシウム除去の現場試験

恒久的な放射性セシウム対策のひとつとして、浸出水中の放射性セシウム濃度 (Cs134、Cs137の合計)が数十 Bq/L の浸出水を対象として、放射性物質を物理的に除 去・濃縮する逆浸透膜処理を行い、その除去性能を確認しました。本システムの逆浸透膜 は海水の淡水化などで用いられるもので、ポリアミド系高分子膜のプレート&フレーム型 で4 MPa 程度の圧力で運転しました。図 8.4 の通り、2 段階の逆浸透膜により処理する仕 組みになっており、1 段目の逆浸透膜から濃縮水が、2 段目の逆浸透膜から処理水が出て きます。



図 10.4 逆浸透膜試験装置フロー図

分析の結果、浸出水中に74.5 Bq/Lの濃度で存在した放射性セシウムが定量下限以下まで除去されることが確認できました。ECや安定セシウムの分析値を見ると、それぞれ99%、97%の除去率となっており、表 10.3の結果と同様に現場試験においても高い除去率が得られました。

	SS (mg/L)	EC (mS/m)	安定 Cs133 (mg/L)	Cs134 (Bq/L)	Cs137 (Bq/L)	Cs 合計 (Bq/L)
浸出水	2	1,040	0.031	33.6	40.9	74.5
1stRO 処理水	<1	80.9	0.004	<7.83	9.53	9.53
1stRO 濃縮水	58	3,940	0.15	187	246	433
2ndRO 処理水	<1	10.7	<0.001	<8.07	<10.1	-
2ndRO 濃縮水	<1	294	0.015	13.1	30.2	43.3

表 10.9 逆浸透膜による浸出水中の放射性セシウムの除去

表 10.10 EC、安定セシウムの除去率および濃縮倍率

	EC(mS/m)	安定 Cs133(mg/L)
除去率(2ndRO)	99%	97%以上
濃縮倍率(1stRO)	3.8	4.8

なお、除去された放射性セシウムは濃縮水中に 5.8 倍に濃縮されていました。この濃縮 水に含まれる放射性セシウムについては、吸着剤により効率的に除去・処分する試験を進 めています。