

ナノ磁性除染剤を用いた飛灰洗浄技術の安全性に関する検討

大成建設 正会員 ○根岸 昌範, 高畑 陽, 島田 曜輔
東京慈恵会医科大学 並木 禎尚

1. はじめに

放射性セシウムを含有する指定廃棄物量は 2013 年 12 月時点でおおよそ 14 万 t とされており，うち 10 万 t を焼却残渣が占めている¹⁾．これらの大部分は飛灰であり，水溶性セシウムの存在比率が高いことから，放射性セシウムが周辺へ拡散するリスクも懸念される．今後は，更に中間貯蔵施設における減容化など，可燃性の除染除去物に対する焼却が進めば，放射性セシウムを含んだ飛灰発生量は増加することになる．

飛灰洗浄処理技術は図 1 に示すような処理スキームを仮定し，水溶性セシウムを吸着材に濃縮固定し安全に保管し，洗浄後の飛灰は放射能濃度に応じて取扱うものであり，各種吸着材を用いた処理手法が検討されている²⁾．本報告では，飛灰洗浄処理技術の安全性の観点から，洗浄処理後の飛灰や洗浄水の性状などを中心に知見を取りまとめた．

2. 実証試験の概要

筆者らは，ナノ磁性除染剤を用いた飛灰洗浄による放射性セシウム回収技術を検討し，図 2 に示したフローでデモ機レベルの実証試験を実施した³⁾．異種金属を導入した不溶性フェロシアン化物を担持させ，アルカリ耐性を高めたナノ磁性除染剤を飛灰スラリーに直接添加する．磁力選別機にネオジム磁石内蔵の汎用機を使用し，固液分離前の段階で除染を完了する．固液分離にも小型真空脱水装置を活用するシステムである．フロー中の除染飛灰，回収除染剤，洗浄水に記載したパーセンテージは，実証試験ケースにおける放射性セシウムの存在比率（平均値）を示す．

主な試験パラメータを表 1 に，供試飛灰試料の主な性状を表 2 に示す．除染剤添加率，固液比，攪拌時間，磁力選別機流量などを試験パラメータとして，除染剤や洗浄水の繰返し利用を含めて，累積 305kg の飛灰を処理した．全試験ケースの平均除染率は 82%，回収濃縮物は 12.4kg であり，重量で 1/20 以下に減少した．表 2 に示すように，飛灰を固液比 1：5 の条件で硫酸添加による pH 調整下で処理した際に，飛灰由来の鉛およびカドミウムが排水基準を超過する結果であった．磁性除染剤由来のフェロシアンイオンを含めて，処理後洗浄水への対応については後述する．

3. 洗浄処理後飛灰の性状

(1) 放射性セシウムの再溶出試験

洗浄処理後飛灰の放射能濃度と，固液比 1：10 で実施した再溶出試験時の放射能濃度の関係を図 3 に示す．なお，除染剤添加量 0.5%および 1%（対飛灰重量比）の条件では攪拌時間 30 分で実施し，0.2%の条件では図中に示したプロットのケースを除いて攪拌時間 60 分で実施したものである．除染剤添加量 0.5%，1%の条件では攪拌 30 分後に固液分離することで，放射性セシウムの再溶出濃度を安定的に数 10Bq/kg 以下に

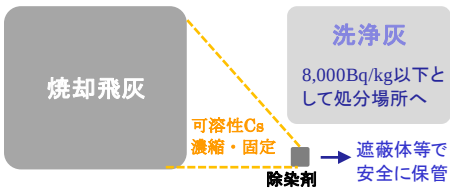


図 1 飛灰処理のスキーム

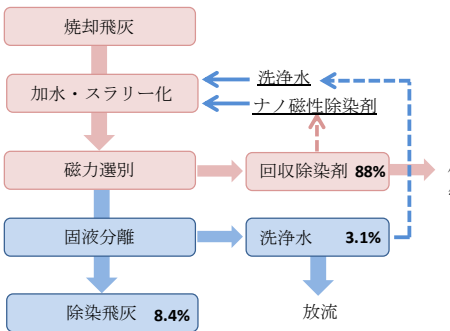


図 2 飛灰洗浄処理フロー

表 1 主な試験パラメータ

攪拌槽			磁力選別機
固液比	除染剤添加率	攪拌時間	スラリー通過流量
1:5で1回洗浄	0.2 %	30 min	10 L/min
1:10で洗浄水を3回繰返し使用	0.5 % 1.0 %	60 min	20 L/min

表 2 供試飛灰試料の主な性状

項目		飛灰試料①	飛灰試料②
放射能濃度 (Bq/kg)	Cs-134	11,000	7,500
	Cs-137	24,000	17,000
	合計	35,000	24,500
含水率 (%)		18.9	16.5
水溶性Cs比率 (%) *固液比1：5、pH調整		86	88
重金属類溶出 (mg/L)	Pb	0.17	0.26
	Cd	0.32	0.42
	T-CN	0.1未満	0.1未満

キーワード 放射性セシウム，焼却飛灰，洗浄，ナノ磁性除染剤

連絡先 〒245-0051 神奈川県横浜市戸塚区名瀬町 344-1 大成建設(株)技術センター TEL045-814-7217

抑制できていたが、添加量 0.2% の場合には、60 分の攪拌時間が必要であった。また、除染剤を繰返し使用した場合には、処理後飛灰の放射能濃度が増加し、溶出率も漸増する傾向であった。処理前飛灰の放射能濃度を基準とすると、事前の溶出率が 90% 以上に対し、事後の溶出率は平均 2.4% まで抑制できた。

(2) その他重金属類の評価結果

飛灰由来の鉛およびカドミウムについては、全ての試験ケースで溶出液中濃度が 0.01mg/L を下回った。また、磁性除染剤由来の全シアン溶出量は定量下限値 (0.1mg/L) 未満～0.7mg/L の範囲であり、いずれも第二溶出量基準 1mg/L (低添加量であれば土壌溶出量基準 0.1mg/L も) を満足する結果であった。

4. 飛灰洗浄処理後の洗浄水性状

(1) 放射能濃度

図 4 に磁力選別後の洗浄水中の放射能濃度と除染剤乾燥重量当たりの吸着量当たりの吸着量の関係を示す。

洗浄後液相中の放射能濃度が、固液比 1 : 5 でスラリー化した際の液相の放射能濃度 (およそ 6,000 Bq/kg) の 10% 以下程度であれば循環・再利用できると考えた場合、磁性除染剤への放射性セシウム保持量を 10^7 Bq/kg 以内に制御すればよいことになる。

(2) シアン溶出濃度の評価

図 5 は事前室内試験および実証試験における液相の全シアン濃度と pH の関係を示す。事前試験では磁性除染剤を 2g/L の条件で、NaOH 添加により pH を調整して 1 時間攪拌した後の全シアン濃度を測定したが、pH を 9.5 以下程度に維持できれば、全シアン濃度が排水基準 1mg/L を超過することはなかった。フェロシアン化鉄の場合には、pH9 でもフェロシアンイオン溶出量が 10mg/L (全シアンで 6.6mg/L) という報告もあるが⁴⁾、本試験では大幅にフェロシアンイオンの溶出を抑制できた。

実証試験では飛灰スラリー 1kg あたり、0.3～1.7g の磁性除染剤を添加したが、最初の試験ケースで事前試験よりも高濃度の全シアンが検出されたため、飛灰スラリー 1kg あたり 1.3mL のポリ硫酸第二鉄を固液分離前に添加することとした。その結果、より安定的に全シアンの洗浄水中への溶出を抑制することができた。

(3) その他飛灰由来重金属について

鉛については、幾つかの試験ケースで排水基準を超過したが、懸濁物質に付着した形態が主であり、洗浄水をろ過することで濃度低減することが可能であった。カドミウムについては、一部ケースでろ過後も排水基準を超過しており、最終放流時には留意が必要であった。

5. 今後の課題

洗浄処理後の飛灰や洗浄水の性状評価を主眼に整理したが、今後更に放射性セシウムが濃縮した回収物の安全な保管等に関する検討を進めていき、洗浄処理による焼却飛灰保管量の減容化の実現に貢献したい。

謝辞

本稿の実証試験は環境省の平成 25 年度除染技術実証事業で実施したものです。また、DOWA エレクトロニクス株式会社よりナノ磁性除染剤の提供を受けました。

参考文献

- 1) 環境省：指定廃棄物情報サイト (<http://shiteihaiki.env.go.jp/02/02.html#amount>)
- 2) 国立環境研究所 資源循環・廃棄物研究センター：放射性物質の挙動からみた適正な廃棄物処理処分 (技術資料 第四版), 2013. 3
- 3) JAEA：平成 25 年度除染技術実証事業 報告書 (http://fukushima.jaea.go.jp/initiatives/cat01/entry07_25.html), 2013. 3
- 4) 平岡秀樹, 神谷大介：フェロシアン化鉄を用いたセシウム吸着材, 東亜合成グループ研究年報第 16 号, pp. 31～36, 2013

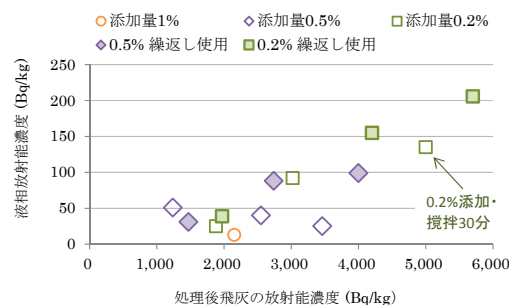


図 3 洗浄処理後飛灰のセシウム溶出濃度

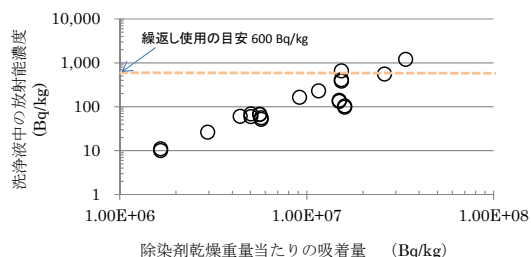


図 4 除染剤吸着量と液相放射能濃度の関係

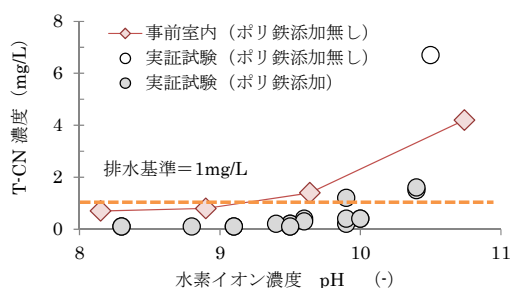


図 5 pH と全シアン濃度の関係