

焼却主灰における安定性セシウムの存在形態に関する研究

九州大学工学部 学生会員 ○呉 曾楨
九州大学大学院工学研究院 正会員 サファルザデ アミルホマユン
九州大学大学院工学研究院 フェロー会員 島岡 隆行

1. はじめに

2011年3月に起きた東日本大震災に起因する福島第一原子力発電所の事故により、大量の放射能汚染廃棄物が発生し、その適正な処理が求められている。しかしながら、放射汚染廃棄物の焼却により生成される焼却残渣に含有される放射性セシウムの存在形態や挙動に関する知見が不足している。本研究では、安定性セシウムを人工的に添加した焼却主灰を用いて XRD 分析、XRF 分析、SEM-EDX 分析を実施し、焼却主灰におけるセシウムの存在形態の把握を試みた。

2. 実験概要

2.1 実験試料：本研究では、実験試料として、安定性セシウムを含有させた焼却主灰を用いた。これは、RDF、RPF

および木屑に安定性セシウム (Cs) を添加したものを、パイロット試験用小型ストーカ炉にて焼却することで生成したものである。福島第一原発の事故によって実際に発生した放射能汚染廃棄物を用いることも考えられたが、焼却灰中に含まれる放射性 Cs の含有量がごく微量であり、存在形態の解明が非常に困難になると予想されたため、今回は安定性 Cs を使用した。

2.2 実験内容：実験概要として、まず試料を 105 °C で 24 時間乾燥した後、マッフル炉で 4 時間 440 °C 加熱し、強熱減量を測定したところ 1~5% 程度であった。その後 XRF 分析を行い、実験試料に存在する主要な元素の含有量を測った。次に、105 °C で 24 時間乾燥した試料を用いて XRD を用い、実験試料の鉱物種の同定を行った。さらに、SEM-EDX 分析により焼却灰薄片試料を観察し、焼却主灰に存在する Cs の存在する位置と Cs の分布を確認した。

3. 実験結果と考察

図 1 は、本研究で用いた実験試料の XRF 分析結果から得られた Cs と他の主要元素の平均含有量を示している。ほぼ全てのサンプルは Cs を 1% 以上含有していた。Cs 以外の主な元素としては、一般的な焼却灰と同様であり Ca、Al、Si、Fe 等が含まれていた。

次に、XRD 分析を用いてサンプル内の鉱物種の同定を行った。一般的な焼却灰に存在する鉱物（例えば Gehlenite と Quartz 等）を同定できたが、Cs を含む鉱物を同定することはできなかった。このことから、実験試料中の Cs は結晶体の鉱物として存在する量が少ないと考えられた。Cs はアルカリ金属元素の一番下に

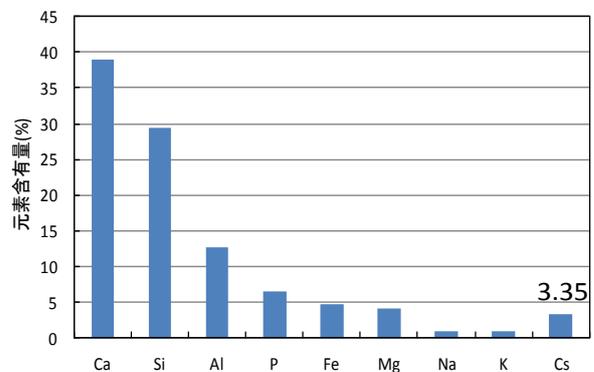


図 1 焼却主灰の主元素の平均含有量

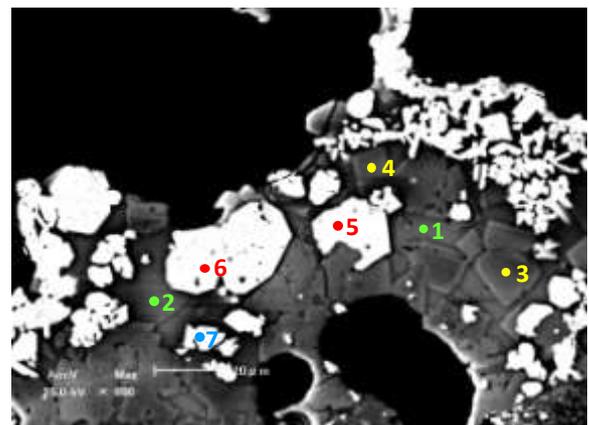


図 2 SEM-EDX 点分析 SEM 画像

表 1 SEM-EDX による点分析

	SEM-EDX による点分析							(単位: Wt%)
Points	p 1	p 2	p 3	p 4	p 5	p 6	p 7	
Cs	1.75	1.51	0	0	0	0	0	
Al	6.16	7.12	4.13	3.71	0.90	0.91	1.14	
Si	28.73	28.68	24.53	23.99	16.77	16.92	4.07	
Ca	5.30	4.38	20.94	19.38	23.72	23.47	2.01	
Fe	15.65	10.70	8.22	9.03	20.96	20.42	60.93	
K	2.95	2.76	0.24	0.29	0.18	0.17	0.28	

位置しており、非適合元素で原子半径が著しく大きいため、結晶体となりにくい性質があるためである。

図 2 は、実験試料の焼却主灰から作成した薄片の SEM-EDX 画像である。場所によってセシウムの含有量が異なることが分かる。図 2 では結晶相と非結晶相が観察される。結晶質は、多角形の規則的な形状で構成されている部分で偏光顕微鏡の観察では明るい領域であり、非晶質は規則的な形状がなく偏光顕微鏡の観察では暗い領域のことである。ここで、結晶質と非晶質の Cs の含有量の違いを分析するため、図 2 の点 1 から点 7 におけるそれぞれの元素の含有量を表 1 に示した。また、偏光顕微鏡で観察したところ、点 1、2 は非晶質と考えられ、点 3、4、5、6、7 は結晶質と考えられる。表 1 を見ると、Cs の含有量は点 1、2 においてそれぞれ 1.75%、1.51% であり、点 3~7 では 0% であった。Cs は結晶質に含有されておらず、非晶質に存在することが示唆された。また、Cs と同じアルカリ金属である K についても、表 1 を見ると結晶質（点 3~7）に存在する K の量は非常に少量なことから Cs と同様の分布特性を持つと考えられる。

図 3 の AB の線上を対象とし、SEM-EDX による線分析を実施したところ、Cs の含有量は図 4 のようになった。図 3 の AB 線上は規則的な形状の結晶が無く非晶質だと考えられる。た図 3 と図 4 から、白く明るい領域では周りの暗い領域より多く Cs を含有していることが分かった。Cs は主に非晶質に分布してはいるが、均一に分布しているのではなく、ある部分に集中して分布していると言える。別の実験試料を用いて作成した薄片試料の SEM-ESX のマッピングの画像（図 5）からもわかるように Cs は K の分布と多少差異はあるものの、おおよそ同様の分布をしている。このことから、焼却主灰中における Cs と K の分布は強い関連性があることが示唆された。



図 3 SEM-EDX 線分析 SEM 画像

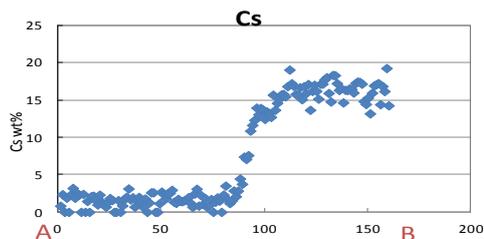
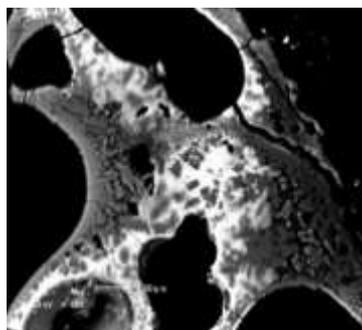
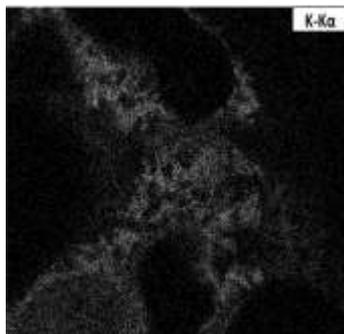


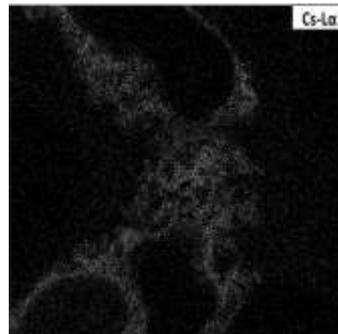
図 4 SEM-EDX による線分析



SEM-画像



K の SEM-EDX マッピング画像



Cs の SEM-EDX マッピング画像

図 5 SEMEDX によるマッピング画像

4. まとめ

本研究では、安定性セシウムを人工的に添加した焼却主灰を用いて焼却主灰におけるセシウムの存在形態の把握を試みた。得られた結果をまとめると次のようになる。

①XRD 実験で Cs を含有する鉱物を同定することができず、このことから Cs は結晶相に含まれていないと考えられた。②SEM-EDX 分析（線分析およびマッピング分析）により Cs は主に非晶質に分布しており、Cs と K の分布は類似していることが示された。

謝辞：本研究では、株式会社タクマの角田芳忠様、宇野様、河野孝志様に研究遂行において多大なる協力を頂きました。ここに記して謝意を表します。

参考文献：W.S. MacKenzie A.E.Adams:Rocks and Minerals in Thin section