

焼却残渣における安定性セシウムの存在形態に関する研究（2報）

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

フェロー会員

島岡 隆行

//

サファルザデ アミルホマユン

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。国立環境研究所の研究結果や本研究の既往の結果によると、セシウムは焼却飛灰の中で主に塩化セシウムの形態で存在している。しかし、放射汚染廃棄物の焼却により生成される焼却灰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残渣を用いてXRD分析、XRF分析、SEM-EDX分析を実施し、焼却残渣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

福島第一原発の事故により実際に発生した焼却残渣に含まれる放射性セシウムの含有量がごく微量（ppmオーダー）であり、その存在形態の解析は困難であること、また放射性セシウムの取扱いには危険を伴うことを踏まえ、本研究では安定性セシウムを%オーダーで含有する人工調整灰を使用した。人工調整灰は、都市ごみの代わりにRDFを用い、それに安定性セシウム（主に Cs_2CO_3 ）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し、作成したものである。図1に本研究で用いた焼却灰の主要元素組成を示す。

2.2 実験内容

105℃乾燥した試料を0.15, 0.3, 0.6, 1, 2, 4.75 mmの篩を用いて篩い分けし、それぞれの試料についてXRF分析を行い、実験試料に存在する主要元素の含有量を測った。次に、XRD分析を用いて試料を分析し、鉱物種の同定を行った。さらに、粒径0.3mm以上の5個の粒径区分の試料から粒子を選び、薄片試料を作成し、SEM-EDX分析により薄片試料の観察を行った。

3. 実験結果及び考察

本研究で用いた実験試料のXRF分析結果によると、ほぼ全ての試料はCsを1%以上含有していた。また、XRD分析では焼却飛灰に塩化セシウムの鉱物を同定できた。これは国立環境研究所の研究結果と一致した。しかし、焼却灰については違う粒径区分では鉱物の同定を行ったところ、はっきりした鉱物種のピークがなく、同定できなかった。

そこで、焼却灰についてはSEM-EDX分析に重点をおき、分析を行った。図2～図5に薄片試料のSEM画像、表2～表5にSEM画像中の各ポイントにおける元素組成を示す。結果をみると、セシウムが非晶質に存在していること、また結晶質にも存在することが分かった。得られたセシウム存在形態の結果をまとめると次の通りである。

- (1) 非晶質に低濃度に存在するセシウム（図5、表5）
- (2) 非晶質に高濃度に存在するセシウム（図2、表2）
- (3) 結晶質に低濃度に存在するセシウム（図4、表4）
- (4) 高濃度にセシウムを含有する結晶質（図3、表3）
- (5) 金属、硫化物と混合する結晶質に存在するセシウム

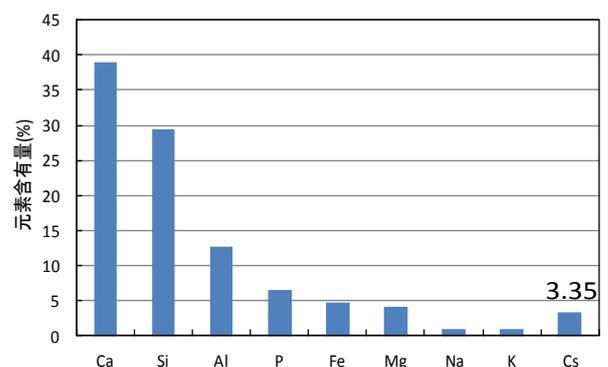


図1 焼却灰の主要元素の平均含有量

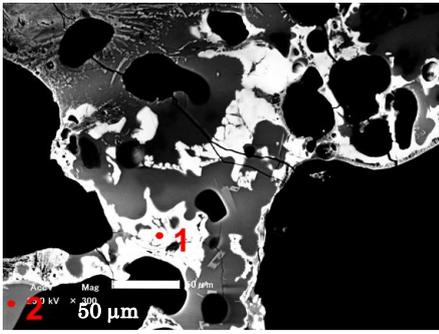


図2 薄片試料のSEM画像

表2 図2に対応する元素組成

Phase	Matrix glass	
	Point 1	2
Cs(Wt%)	20.79	1.47
Al	11.6	6.69
Si	26.94	36.62
Ca	0.85	3.85
K	8.05	3.37
Fe	0.82	1.42

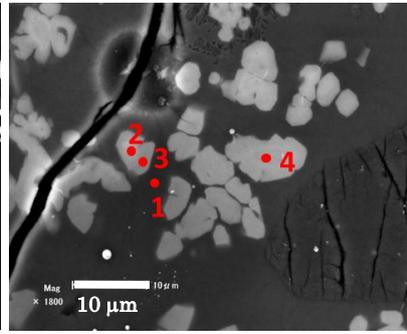


図3 薄片試料のSEM画像

表3 図3に対応する元素組成

Phase	Glass		Minerals	
	Point 1	2	3	4
Cs (Wt%)	2.8	25.04	18.2	26.3
Al	13.72	11.52	12.63	11.87
Si	26.49	24.26	24.78	22.71
Ca	3.68	1.67	1.79	1.77
K	6.77	5.8	7.61	5.31
Fe	2.58	0.82	0.83	0.66
Na	5.71	0.95	2.15	1.01
Mg	0.71	0.34	0.41	0.3

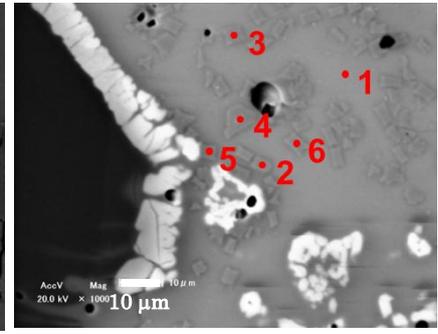


図4 薄片試料のSEM画像

表4 図4に対応する元素組成

Phase	Glass		Minerals			
	Point 1	2	3	4	5	6
Cs (Wt%)	0.91	0.39	0.21	0.27	1	0.41
Al	8.11	6.43	6.51	10.05	6.74	6.84
Si	23.97	24.68	24.5	21.65	24.65	24.84
Ca	14.01	20.43	19.94	23.58	20.28	22.36
K	2.2	0.84	0.83	0.47	1.08	0.93
Fe	2.92	1.97	1.85	1.78	1.74	2.22
Na	7	4.77	4.95	2.89	4.32	4.24
Mg	1.57	4.54	4.46	3.97	4.45	4.22

セシウムは薄片試料のセシウムを含有する粒子断面の全体の非晶質バックグラウンドに存在することが分かった。右図のようにその濃度は概ね0.5~3%質量百分率である。そのセシウムを含有する非晶質の中では、セシウムが濃縮しているポイントを見られ、この部分が非晶質形態のセシウムが高濃度に分布する部分であり、低濃度の部分と混合不可能だと考えられる。濃度は最大で30%質量百分率のポイントもあった。結晶質に低濃度に存在するセシウムの形態と高濃度にセシウムを含有する結晶質の形態を見られた。廃棄物は焼却後、非常に短い間に冷却される。また、セシウムはアルカリ性金属の中で、一番原子半径が大きい元素であり、不適合元素だと言われている。これらの理由で、結晶質は非常に形成しにくいと考えられる。しかし、実際に焼却灰には結晶質も存在する。そして、セシウムを含有する結晶質をも発見された。これは非晶質に存在するセシウムの量はあるキャパシテイを超え、結晶質になったということなのではないかと考えられた。セシウムが金属元素と硫化物と混在している結晶質を見られた。

4. おわりに

セシウムは、主に非晶質に不均一に存在し、また結晶質にも存在していた。しかし、問題点としては非晶質に存在するセシウムの量があるキャパシテイを超えると結晶質になると考えると、結晶質形態はおそらく安定性セシウムを大量に添加したのが原因だと考えられた。今後、セシウムの添加量を3段階に分類し、新たに試料を作成し、セシウムの存在形態と添加量の関係を明らかにするための実験を計画している。また、0.3 mm以下の粒径区分におけるセシウムの存在形態についての分析や、結晶質の形態と非晶質の形態の割合の定量的な把握等、さらなる検討と実験が必要である。

謝辞：本研究は環境研究総合推進費 K122102「放射性セシウムを含有する焼却残渣の性状把握と効率的かつ安全な処分技術」（研究代表者：島岡隆行）の支援を受けて行われた。ここに記して謝意を表す。

参考文献：1) 独立行政法人国立環境研究所：東日本大震災後の災害環境研究の成果, pp37-42

2) T. Iguchi et al: Combustion Behavior of Cesium in MSW Incineration Process, the 1st IWWG-ARB Symposium, 2012

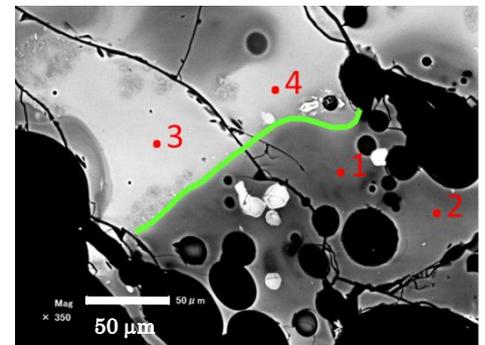


図5 薄片試料のSEM画像

表5 図5に対応する元素組成

Phase	Matrix glass			
	Point 1	2	3	4
Cs(Wt%)	2.15	1.57	0.41	0.48
Al	11.21	11.77	9.01	8.57
Si	32.03	28.61	24.05	25.01
Ca	5.31	7.66	17.46	16.39
K	5.34	4.58	1.92	2.11
Fe	1.12	1.61	6.25	5.32