

基礎物性・挙動解析プロジェクト報告

倉持秀敏、由井和子、肴倉宏史、石森洋行*、遠藤和人、保高徹生
(*:現在、立命館大学)

背景I(問題の発端)



背景II(今後のニーズと対応)

- ❖主灰（スラグ）-飛灰間の分配性および化学形態の制御
- ❖汚染農業副産物の熱処理の注意点・条件
- ❖焼却施設の解体・維持管理（放射性物質の蓄積・洗浄）
- ❖除染廃棄物の仮置ききの管理や中間貯蔵の設計



各専門分野でセシウム（Cs）の挙動解明 + 解析ツール化を目指す。

- サブ1 物性および熱処理挙動の解析
- サブ2 溶出特性の解析および逐次抽出法の確立
- サブ3 土壌及び吸着剤種類別の放射性Cs吸脱特性の把握



熱処理減容化や廃棄物・土壌処分技術手法開発プロジェクトへの支援（基礎データや解析ツールの提供）

基礎物性・挙動解析プロジェクト

目的及び達成目標

放射性物質のそれ自身の物理化学的な性質に加えて、汚染廃棄物や処理残渣、さらには処分における共存との化学的特性(溶出・吸脱特性等)を明らかにするとともに、処理・処分過程の放射性物質の挙動を解明し、汚染副産物や除染廃棄物の処理や中間貯蔵施設等の将来的なニーズも踏まえて適切な処理・処分技術の確立と設計に資する。

研究概要

サブテーマ1 物性および熱処理挙動の解析

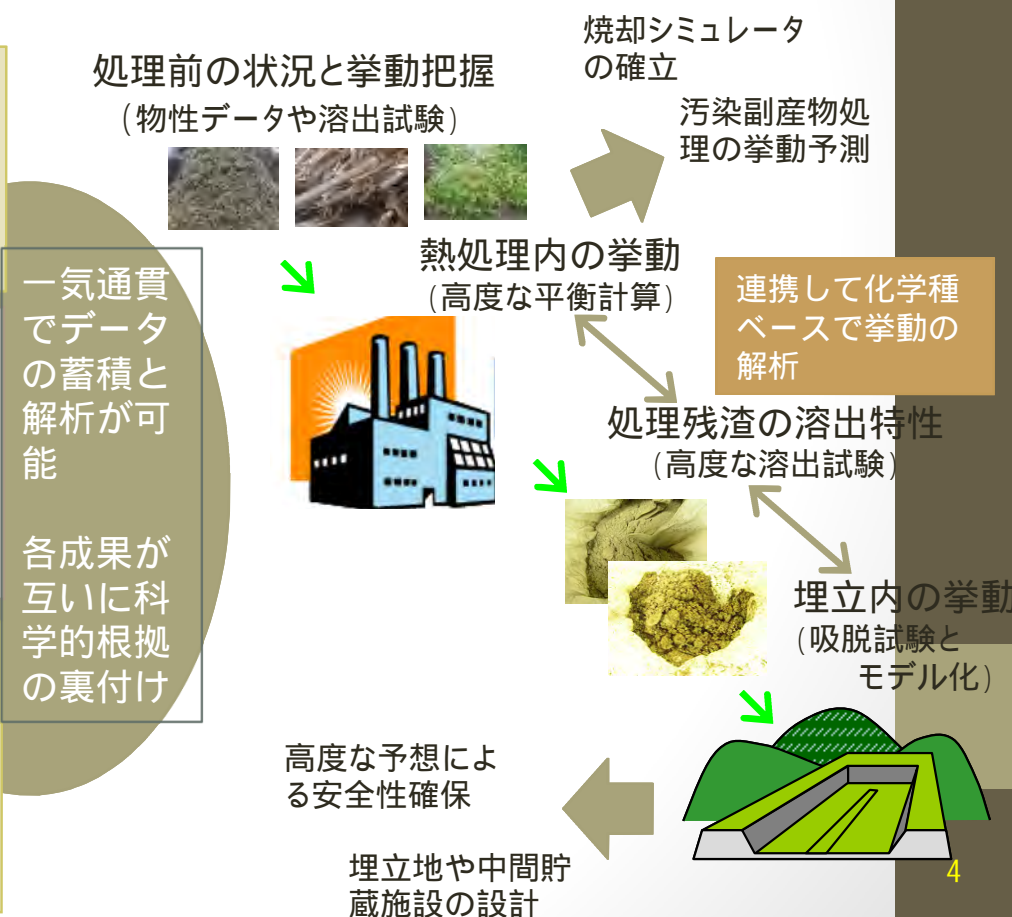
- 放射性物質の基礎物性整備
- 汚染廃棄物ごと熱処理挙動のデータ蓄積
- 平衡計算の高度化と熱処理挙動の解明
- 汚染・除染廃棄物の混焼・専焼の挙動予測

サブテーマ2 溶出特性の解析および逐次抽出法の確立

- 草本類等の汚染物と処理灰の溶出性の把握と試験法の開発・評価
- 逐次抽出の開発と化学形態の推定
- 溶出性を示す他の性状指標の探索

サブテーマ3 土壌及び吸着剤種類別の放射性Cs吸脱特性の把握

- 実浸出水を用いたバッチ・カラム吸着試験と化学物質やコロイド等の影響を把握
- 土壌からの脱着試験と影響因子の解明
- モデルによる土壌の長期的な吸脱着挙動の予測



サブ1：物性および熱処理挙動の解析

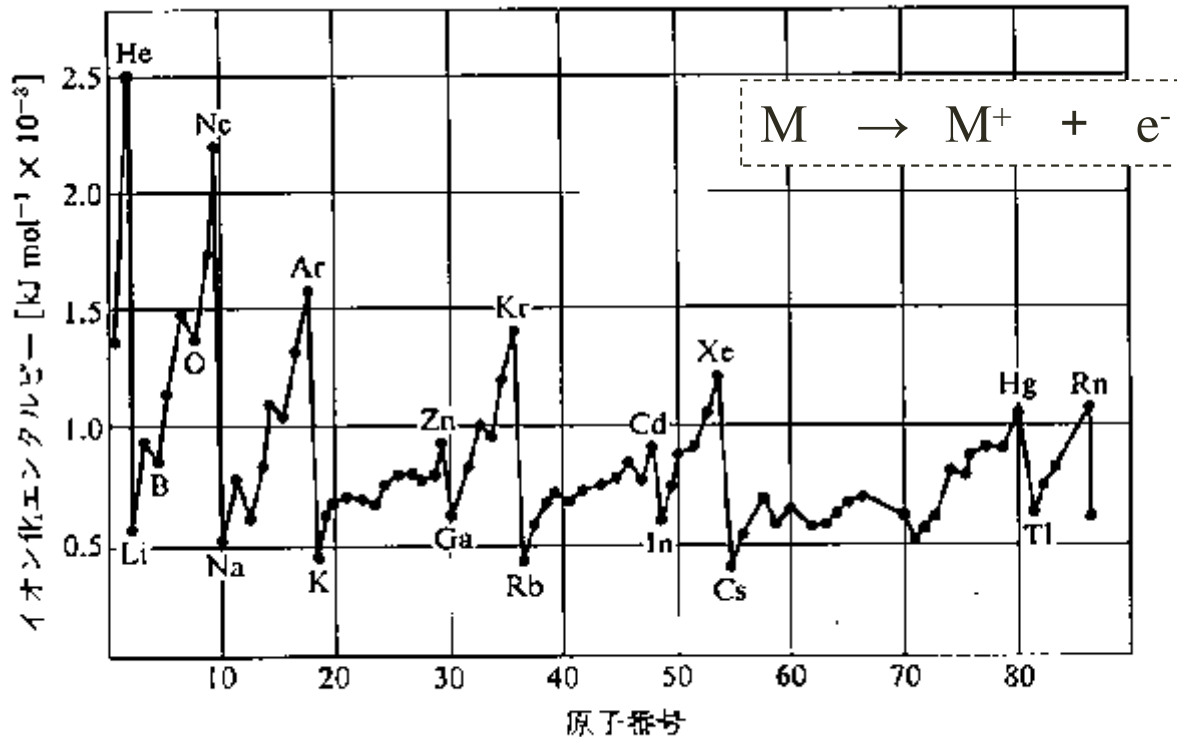
目的

基礎的な物性等の物理化学的な知見に基づいて汚染された都市ごみや下水汚泥等の焼却処理における放射性セシウム（Cs）の挙動を明らかにし、焼却施設全体におけるCsの挙動を再現でき、挙動の制御性を検討できるシミュレータの実現を目的とする。また、排ガス中のガス状のCs濃度を推定する。

今回の発表内容

1. 基礎物性データの整備
2. 挙動解析のための平衡計算の適用
3. 組成変化の影響および温度依存性
4. 温度依存性に関する妥当性の評価
5. Cs挙動の解明のための焼却シミュレータの開発
6. バグフィルターの問題への対応(排ガス中のガス状Cs濃度の推定)

放射性Csの形態は？



第一イオン化エンタルピー ΔH_{ion} の原子番号による変化

- Csは極めて陽イオン (Cs^+) になり易い。
- 環境媒体 (水中での解離以外)、塩として存在 ($\text{CsI}, \text{CsOH} \rightarrow \text{CsCl}, \text{Cs}_2\text{CO}_3, \text{Cs}_2\text{O} \dots$)

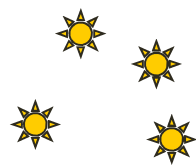
基礎物性データ(Cs)

	Cs	CsCl	Cs ₂ CO ₃	CsOH	Cs ₂ O	CsNO ₃
沸点 / K	963.15	1573.15	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.
融点 / K	301.15	919.15	883.15	545.15	763.15	687.15
飽和蒸気圧 (600)/ Pa	45028	7.25	4 ~ 9×10 ^{-3, §}	N.A.	0.01-0.02 §	N.A.
溶解度(25)/ g/ 飽和溶液 100g	-	65.5	2.1 *	75.18+	70.63	21.53

*: kg/L, +: 30 , § : グラフから外挿, N.A.: 入手不可

一般的なCs塩では、高温の飽和蒸気圧は比較的高く、高温ではガスとして存在、常温での水への溶解度は極めて高い

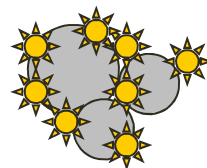
焼却過程



気体状のセシウム塩



排ガスの冷却
過程で凝縮



ばいじん（飛灰）の粒子
（平均は数十μm）



処分においては、
水系へは溶け易
いことに注意

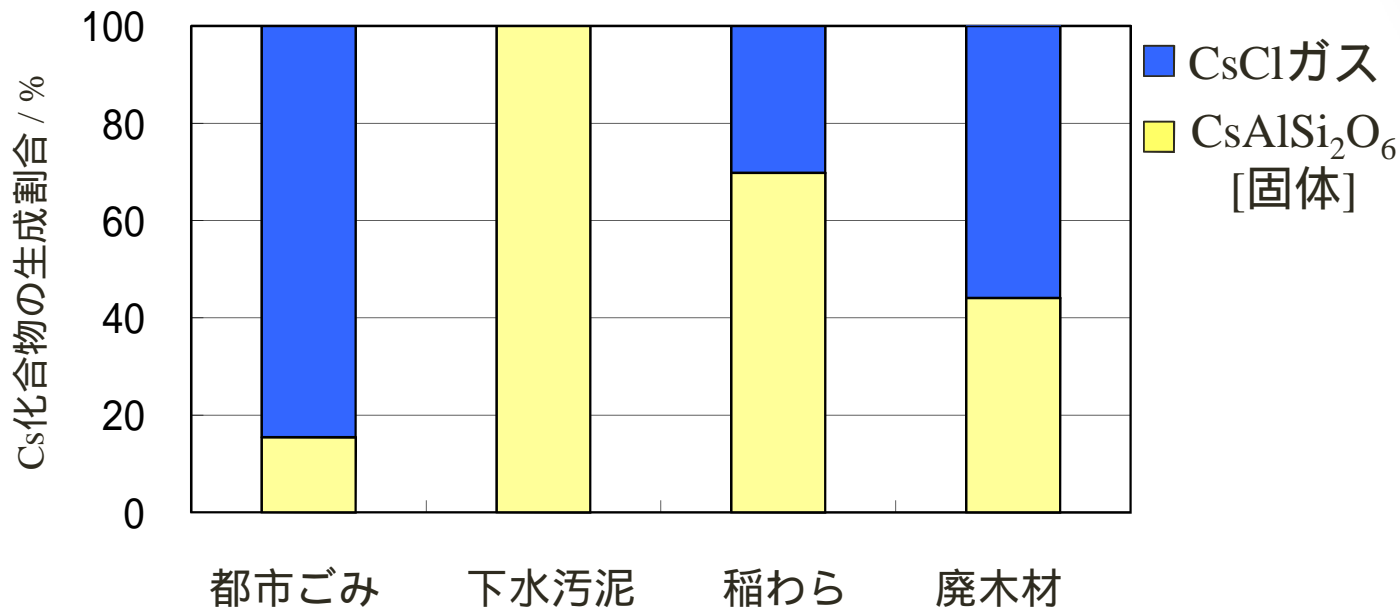
平衡計算方法

平衡計算とは、与えた系（例えば、都市ごみ燃焼）に対して、熱力学的な安定な系（化学種とその量）を求めること。

平衡計算の条件

被焼却物:	都市ごみ、下水汚泥、稲わら、廃木材、(牧草)
焼却温度:	基本:850°C、(400から900 °Cもしくは1200°C)
圧力:	1 [atm]
空気比:	1.6
空気:	21% O ₂ +79% N ₂
計算ソフト:	FactSage Ver. 6.3 (GTT-Technologies社)

修正後の平衡計算結果

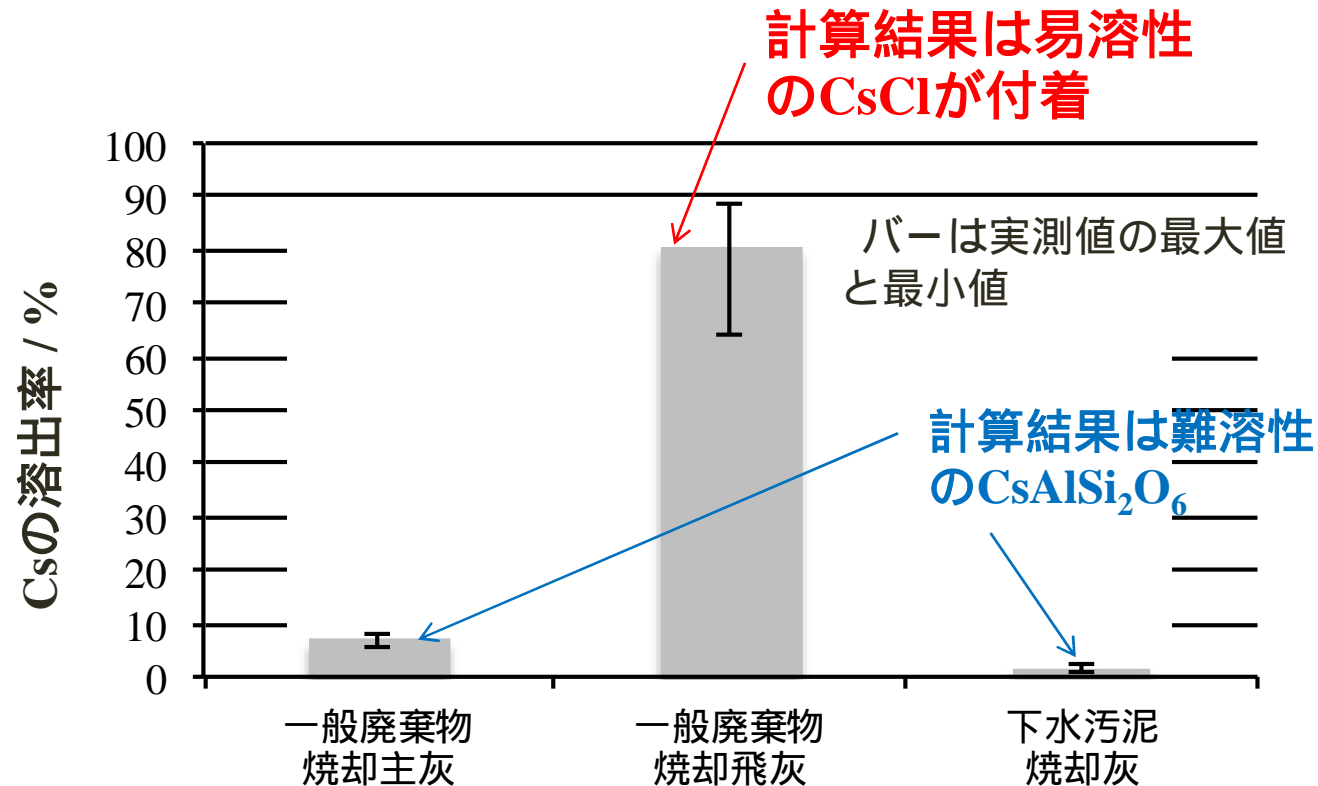


各被焼却物と850 におけるCs化合物の種類と割合

- CsClガス → 排ガスの冷却過程において飛灰へ移行
- CsAlSi₂O₆ → 主灰に残存

修正により現実の主灰・飛灰への濃縮をうまく説明することができた。
さらに、焼却物の組成によってCsClガスとCsAlSi₂O₆のバランスに相違、つまり、制御できる可能性がある。

計算結果の妥当性（溶出試験結果との比較）



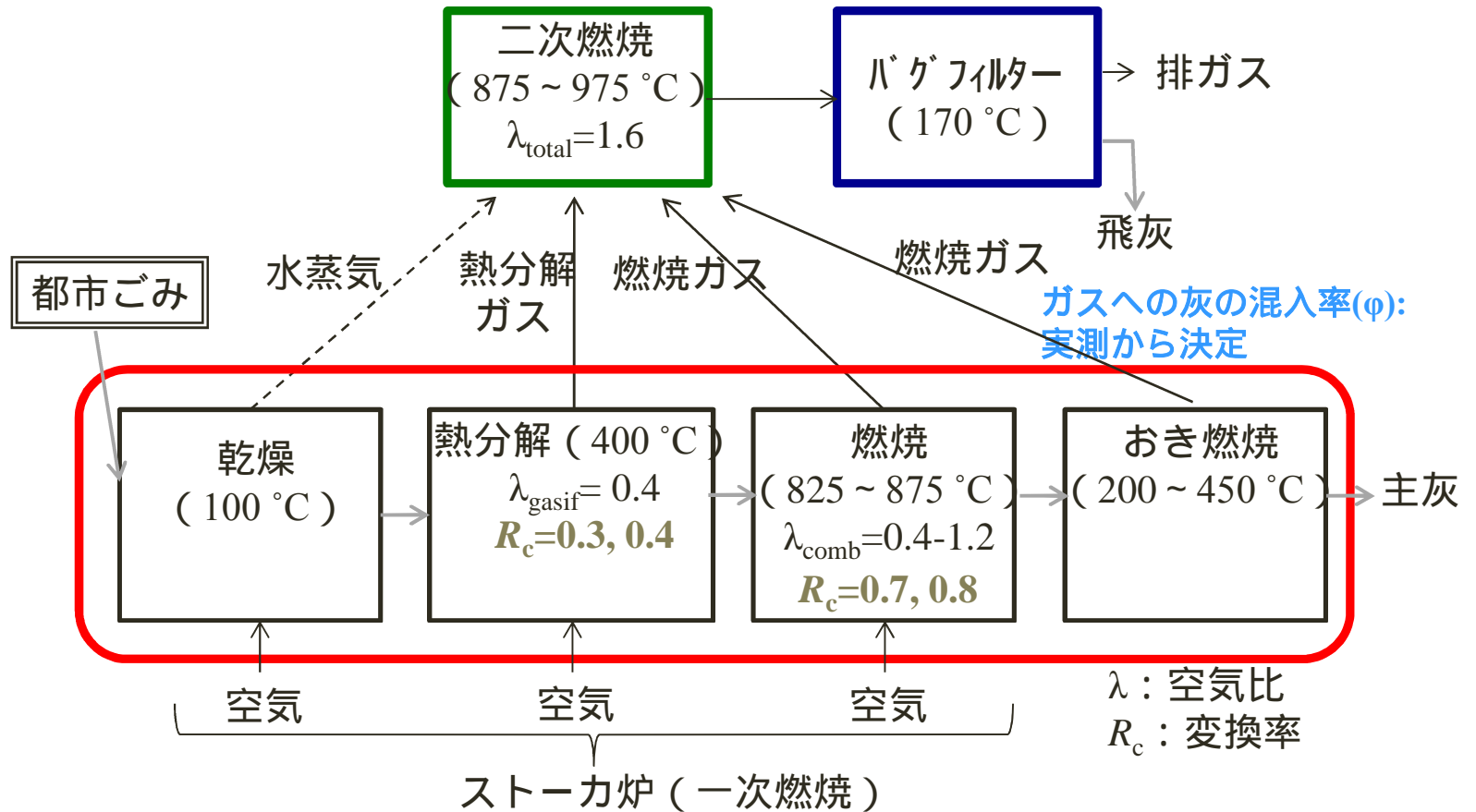
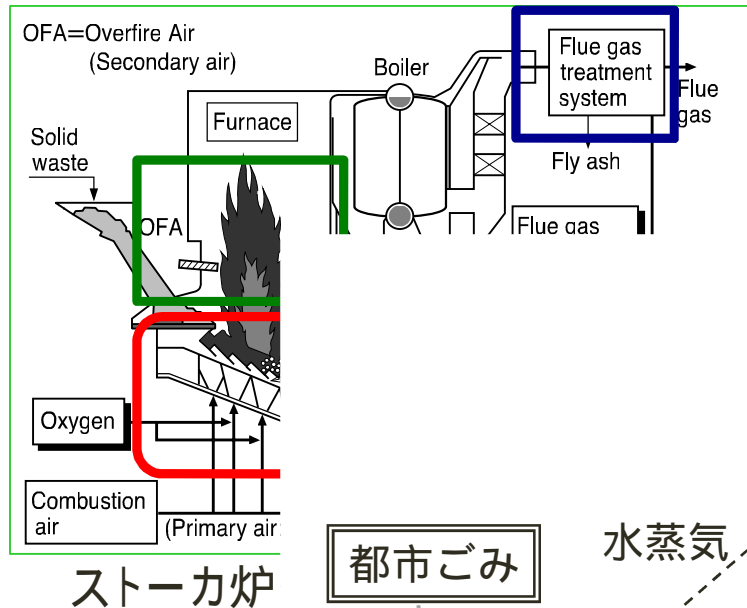
各灰からの放射性Csの溶出率

平衡計算の結果はCsの溶出性を説明可能
平衡計算結果の組成の影響 ≒ 溶出試験の変動→溶出も組成に依存？

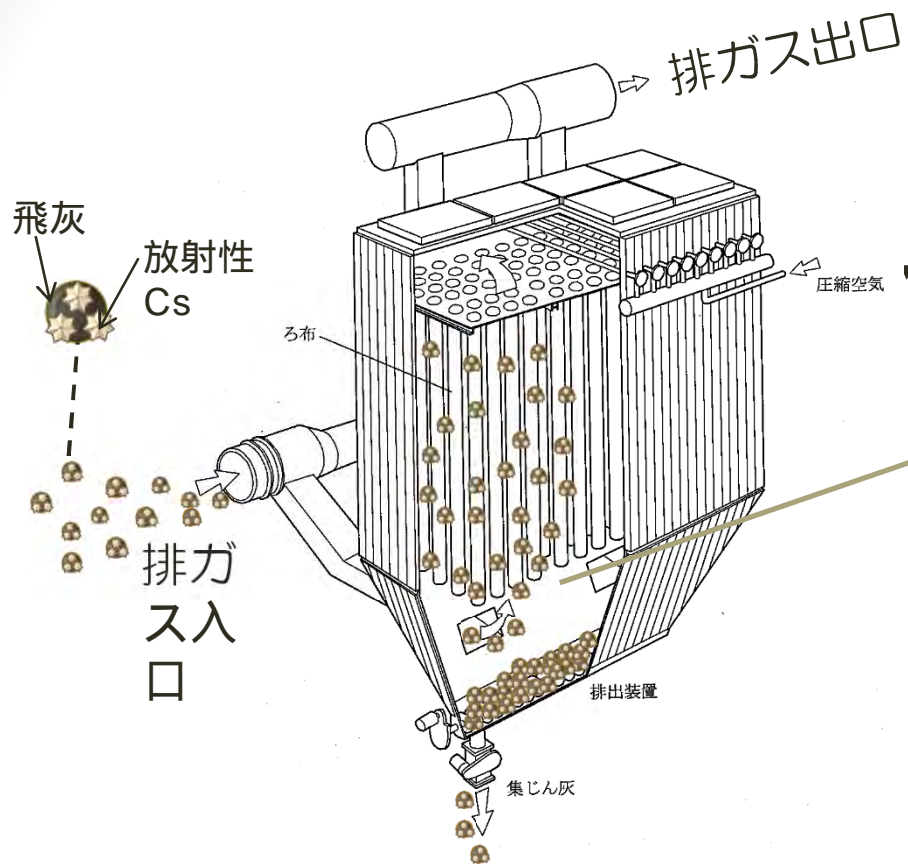
マルチゾーン平衡計算 (MZEC) の適用

(GINSBERG ET AL., PROCESS SAFETY ENVIRON. PROT., 2012)

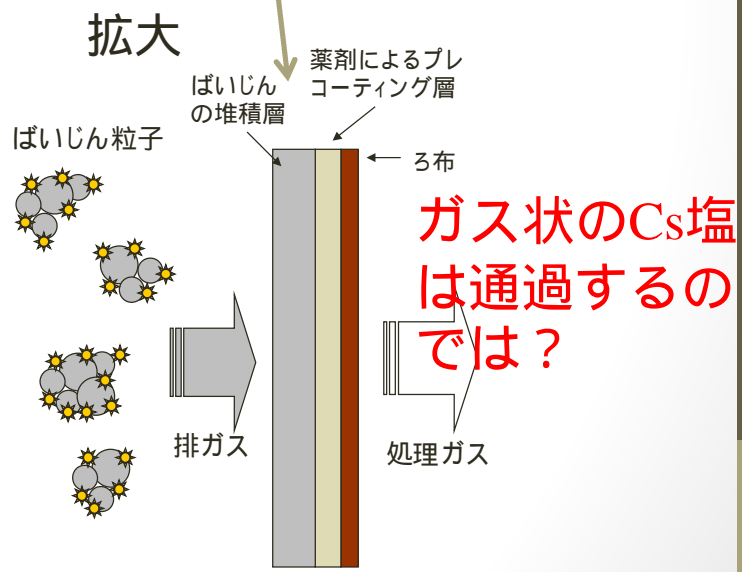
より定量的な解析と技術開発検討
を目的に焼却シミュレータの開発



バグフィルターの機能と疑問



拡大



バグフィルターの構造

出典：全国都市清掃会議，2006. ゴミ処理施設

整備の計画・設計要領

サブミクロン（ $1\mu\text{m}$ 以下）の粒子をこしとって除去

バグフィルターの疑問（排ガス中の ガス状のCsの濃度は？）

ガスの最大揮発量、つまり、飽和蒸気圧で評価

	Cs ₂ O	CsCl	Cs ₂ CO ₃
600 °Cの飽和蒸気 圧レベル (Pa)	0.01 ~ 0.02	7.25	4~9 × 10 ⁻³

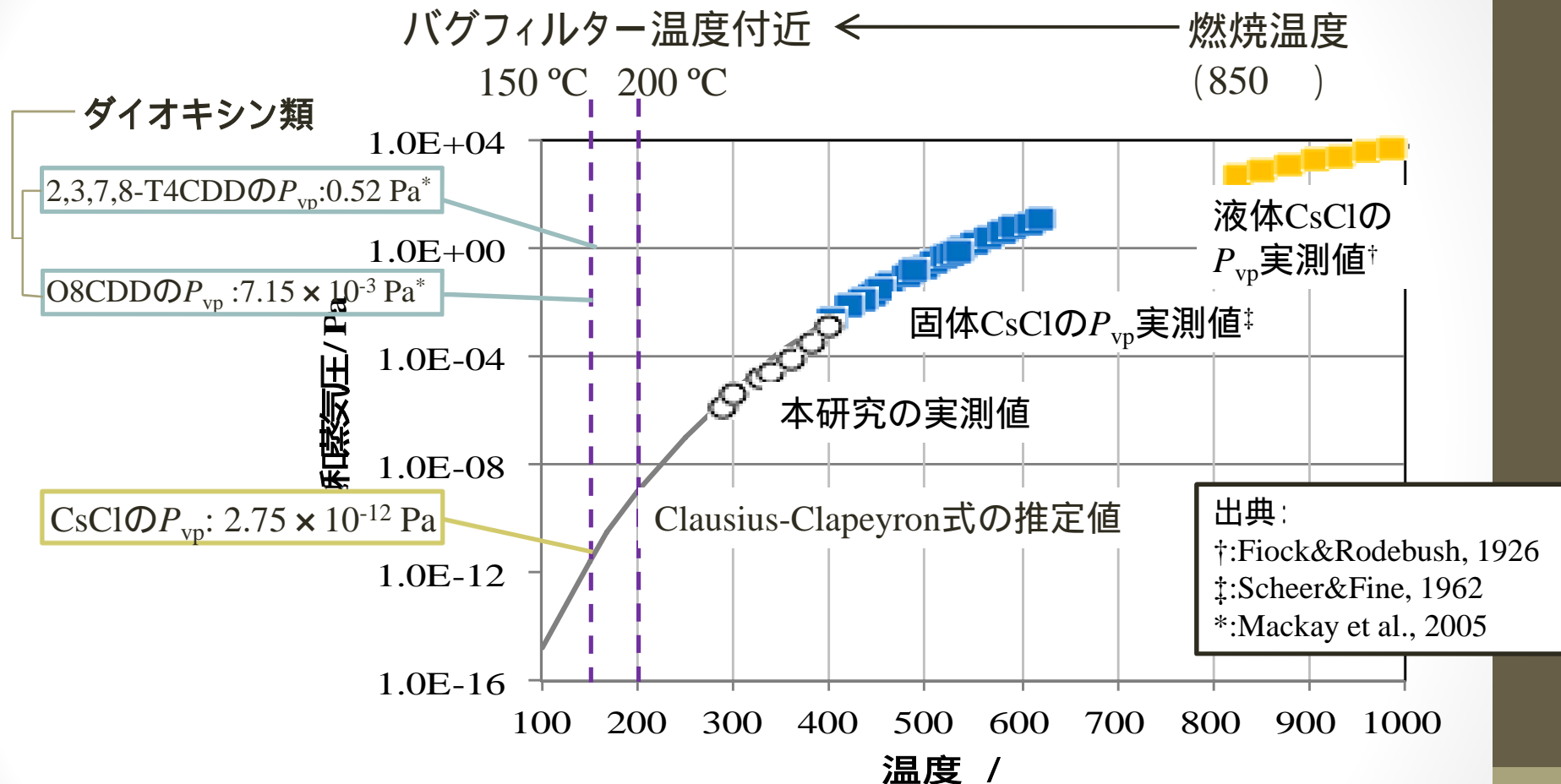
出典 Cs₂O : Westphal et al. (2005) による計算値 (図から読み取り)

CsCl: Scheer&Fine (1962)の実測値

Cs₂CO₃: Bonnell et al., (1986)の実測値 (図から読み取り) を外挿

Cs塩のなかではCsClの飽和蒸気圧が最も高く、揮発しやすいため、CsClの挙動が重要！

CsClの飽和蒸気圧(P_{vp})の推定結果と測定



- バグフィルターの温度では極めて低い飽和蒸気圧と予想される
- より低温の飽和蒸気圧を明らかにした
- 飛灰を200 °Cで24時間加熱しても放射性Cs量が減少しないことを確認

今後の展開

- メーカーとの連携によるMZECの高度化と実炉データと比較
- MZECの他の焼却型式や熱処理施設への適用
- Cs挙動の制御性の提案と検証
- バイオマスごとのラボ燃烧試験の蓄積と汚染農業副産物処理やバイオマス燃烧の挙動解析
- 炉内の放射性Csの蓄積・洗浄条件の解析とMEZCへの統合
- 他の核種および重金属への適用
- 蒸気圧測定についてはデータの蓄積と灰の加熱実験による検証

サブテーマ2 溶出特性の解析および逐次抽出法の確立

目的

植物体から焼却灰まで各種溶出試験（有姿攪拌試験、逐次抽出試験等）を適用し、溶出量の把握するとともに、化学形態を推定しつつ、溶出パターンや最大溶出量を明らかにする。

内容

- 焼却灰に対する各種溶出試験法の適用と考察
- 溶媒を海水とした場合の影響
- 焼却灰以外の各種溶出試験

JIS K 0058-1 の 5. 利用有姿による攪拌試験

利用有姿の状態：

粉塊状の試料

粉碎することなく、その粒径分布
に応じて縮分して調製

大型試料

コンクリート製品

100mmφ × 200mm供試体

アスファルト成型体

100mmφ × 63.5mm供試体

5 kg以下試料は、そのまま

10 倍量の水に浸漬

6 時間

回転数 200 回/分

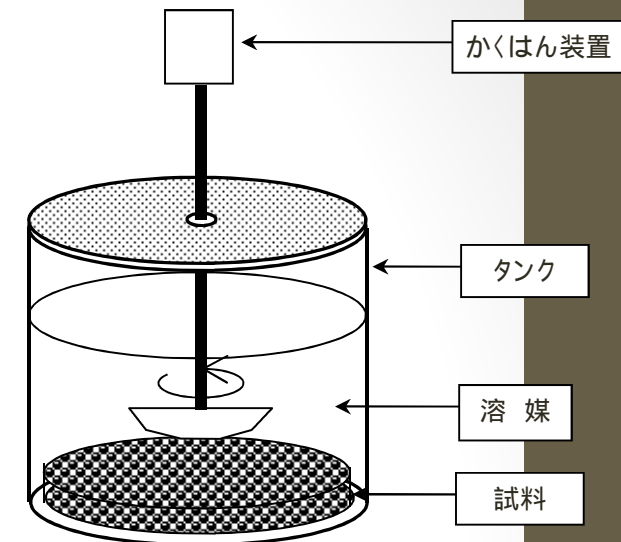


図 1 溶出量試験装置の概略図



試料

施設	主灰	原飛灰	飛灰 処理物	スラグ
A				
B				
C				
D				
E				
F				
M				

A市 原飛灰



A市 飛灰処理物



B組合 主灰



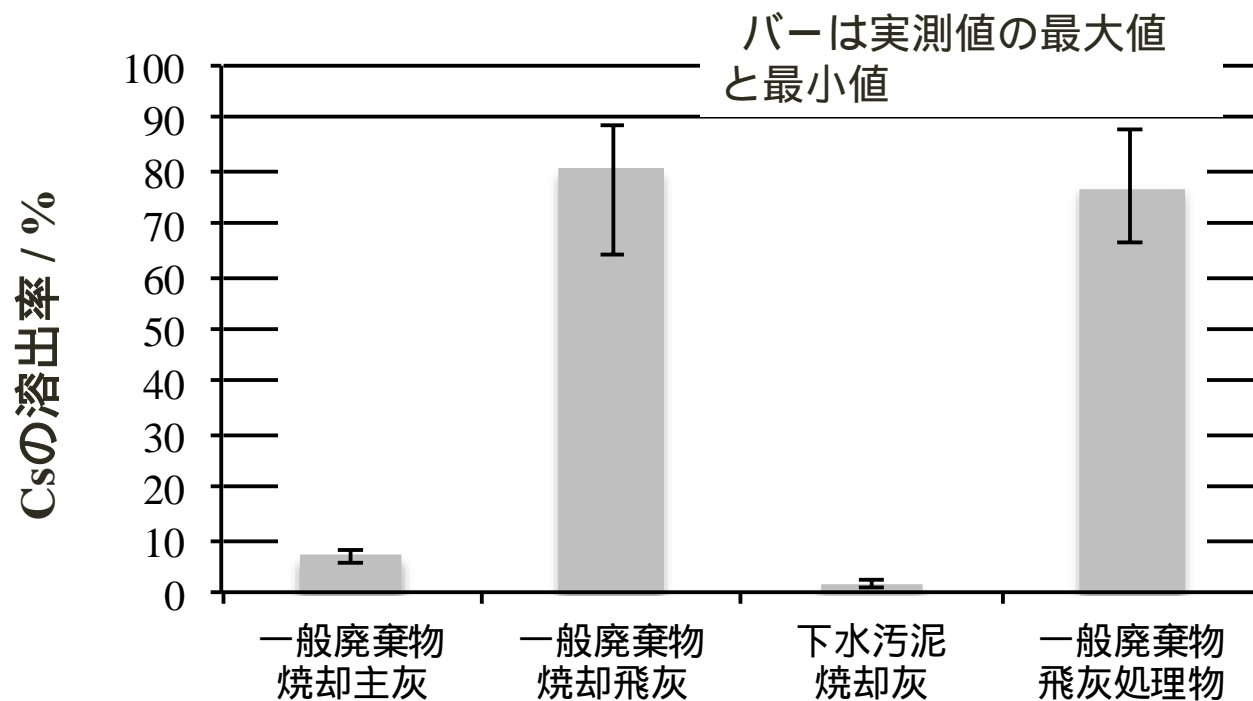
B組合 原飛灰



B組合 飛灰処理物



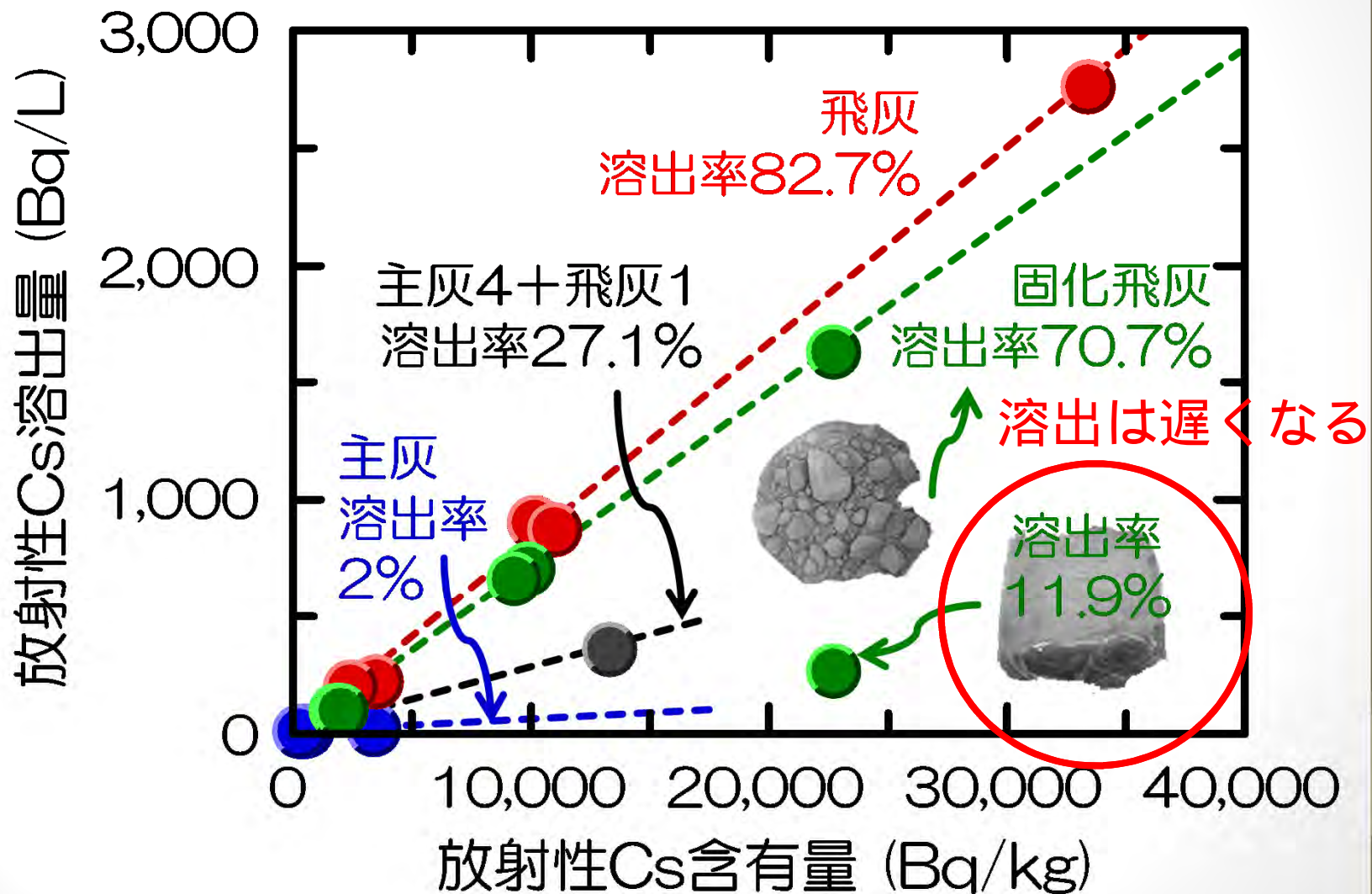
溶出試験結果



各灰からの放射性Csの溶出率

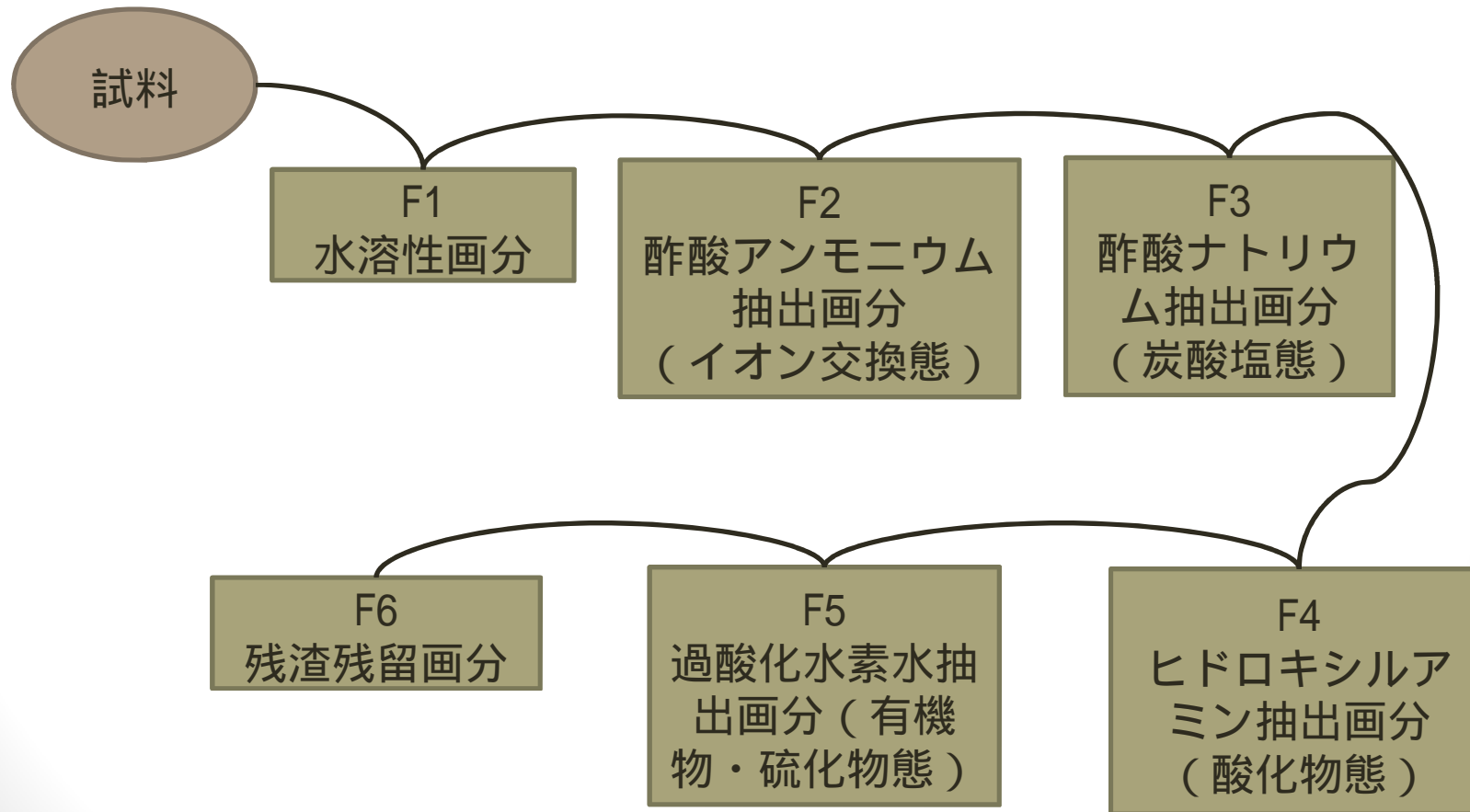
飛灰は処理物になっても溶出率は高い

試験結果（都市ごみ焼却灰）

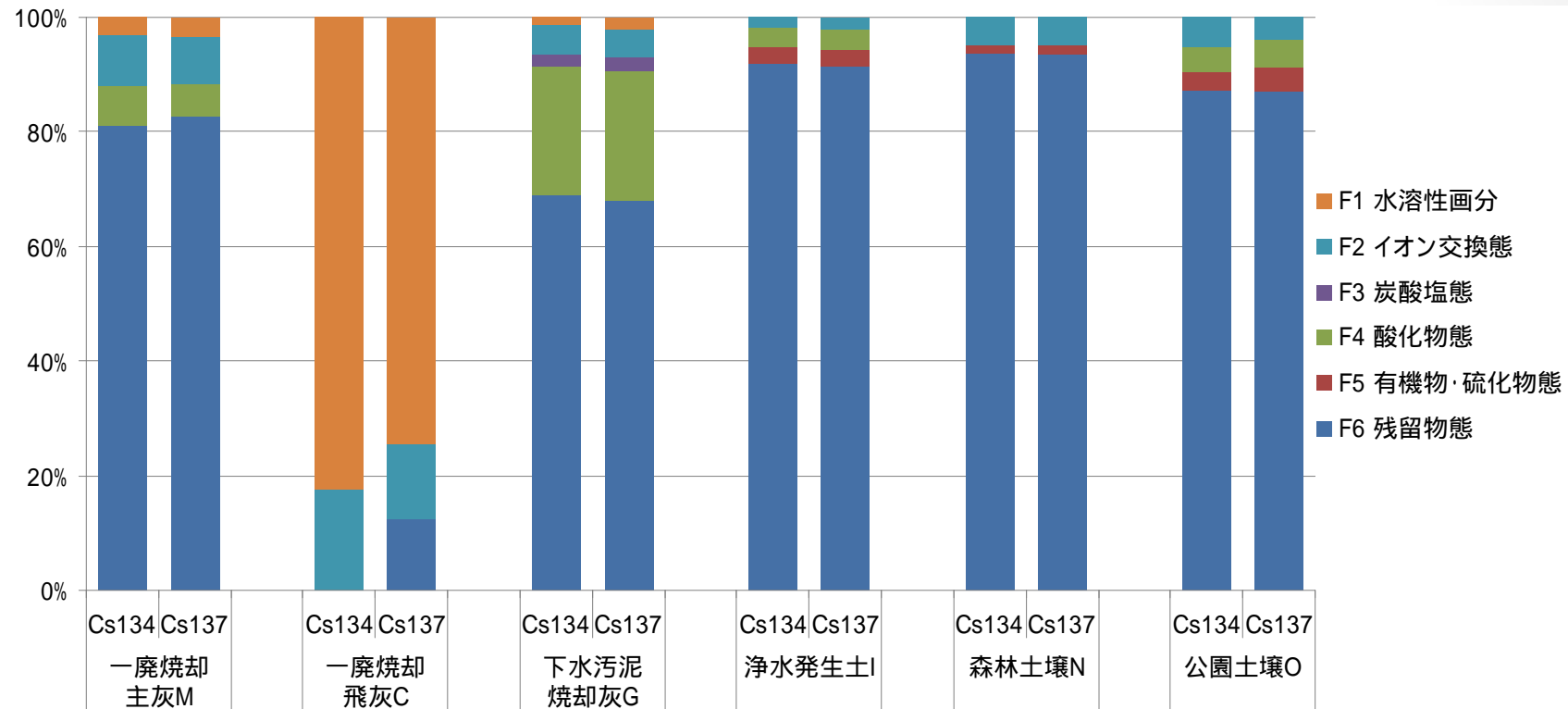


逐次抽出試験による評価

抽出能力の異なる溶媒で試料を逐次抽出することによりCs等の化学形態を推定

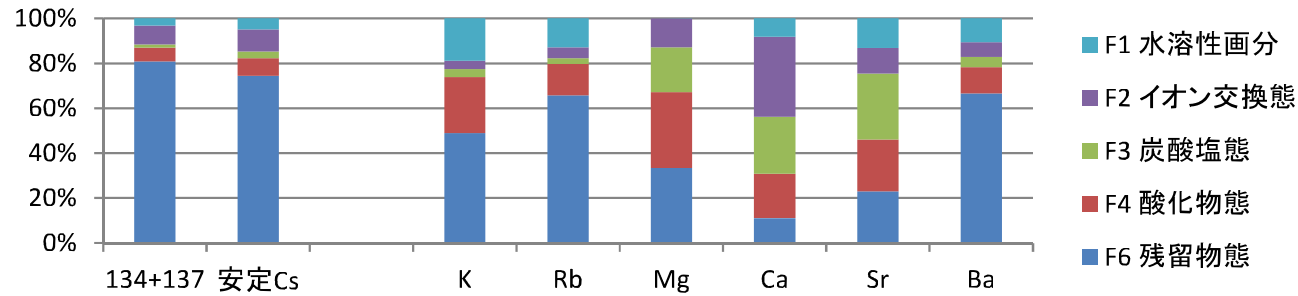


逐次抽出試験結果

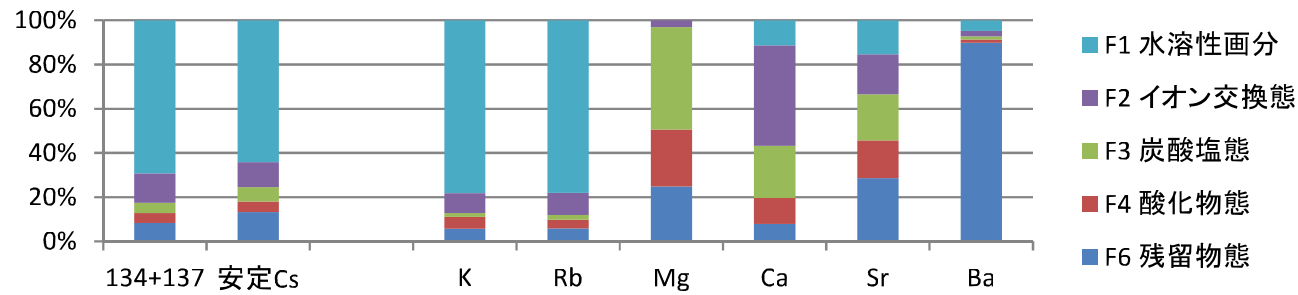


- 1) 飛灰は、溶解性の水溶性画分、イオン交換態の割合が多い
- 2) 主灰、下水汚泥焼却灰、浄水発生土、土壌は、難溶解性の残留態の割合が高い。主灰と下水汚泥焼却灰では多少異なる。

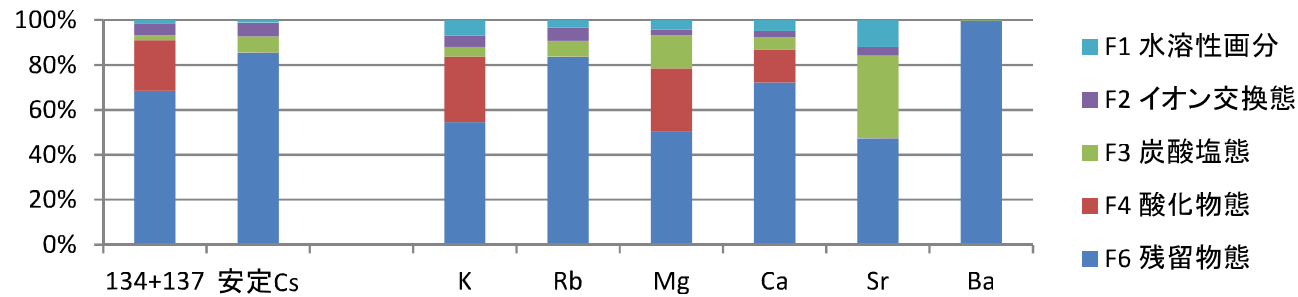
安定Csや他の元素との比較



(a) 一般廃棄物焼却主灰



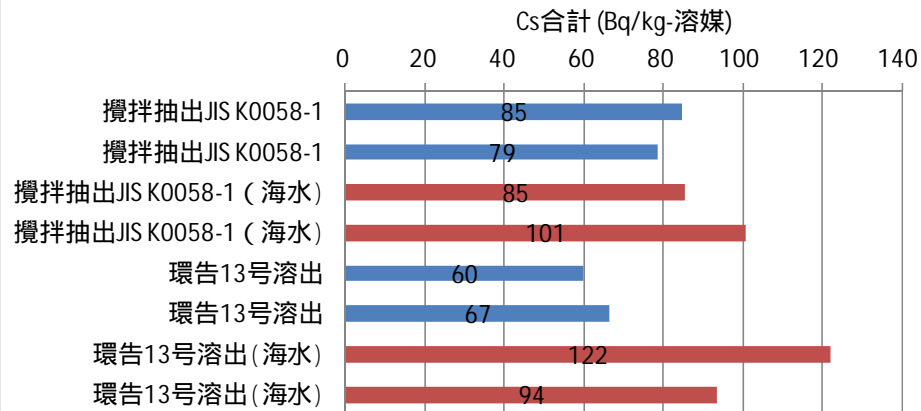
(b) 一般廃棄物焼却飛灰



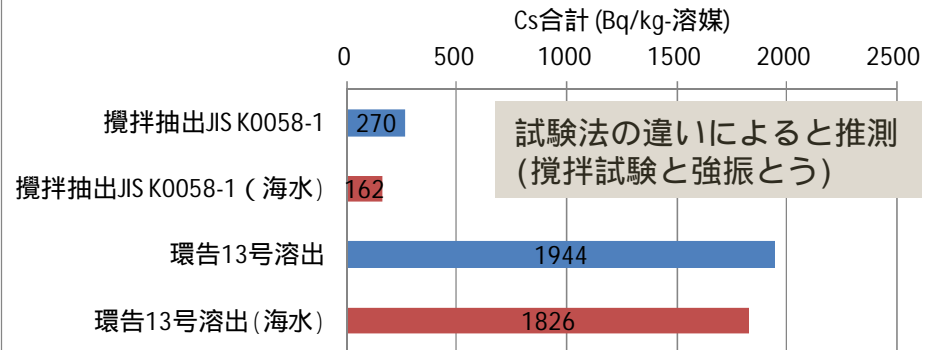
(c) 下水汚泥焼却灰

海水溶媒による影響の検討

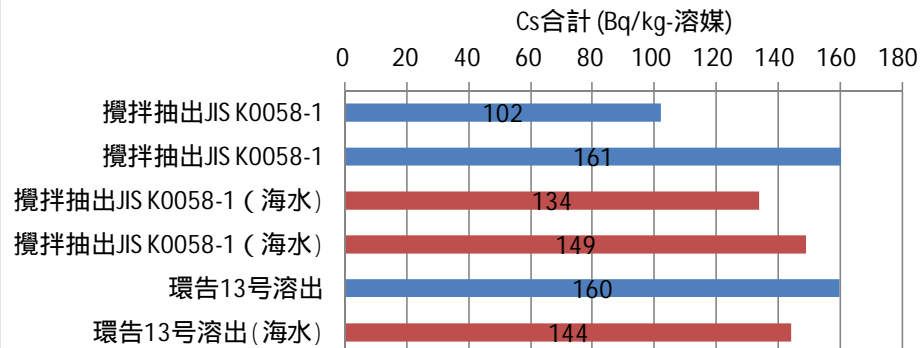
一般廃棄物焼却主灰N



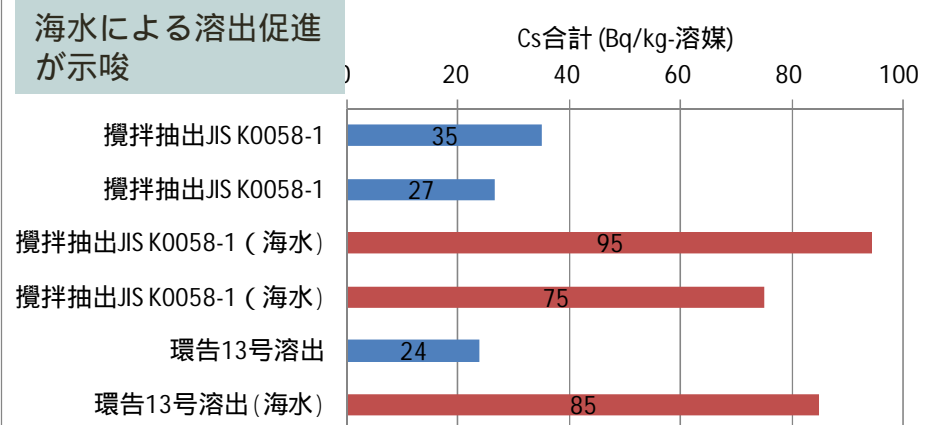
一般廃棄物焼却飛灰処理物B (成形固化体)



一般廃棄物焼却飛灰処理物E (粒状体)



下水污泥焼却灰G(湿灰)



溶出データの蓄積状況と今後

- 灰の長期溶出試とカラム試験
- 植物体の溶出時間と溶出率および乾燥や湿潤との関係
- 植物体の逐次抽出試験
- 土壌、災害廃棄物、産業廃棄物（安定品目）、堆肥等について、溶出試験や逐次抽出試験を実施

今後の課題

- ◇ 植物体の腐植進行に伴う溶出挙動の解明
- ◇ カラム通水試験やシリアルバッチ試験による長期的な挙動評価と逐次抽出試験により推測された化学形態との関連付け
- ◇ 化学形態については平衡計算のとの関連付けも

政策貢献

- ❖ 基礎物性の成果は、放射性障害防止の検討会の報告書に引用
- ❖ 焼却挙動の成果は、汚染牧草の一般廃棄物との混焼処理の促進に寄与
- ❖ 溶出試験の成果は、環境省の安全検討委員会へ情報提供、廃棄物関係ガイドラインや埋め立て基準の試験法に反映
- ❖ 放射性Csに汚染された廃棄物の埋立工法を検討するための基礎資料として活用